平成 30 年 10 月発行

ISSN 2188-0115

# 放射線化学

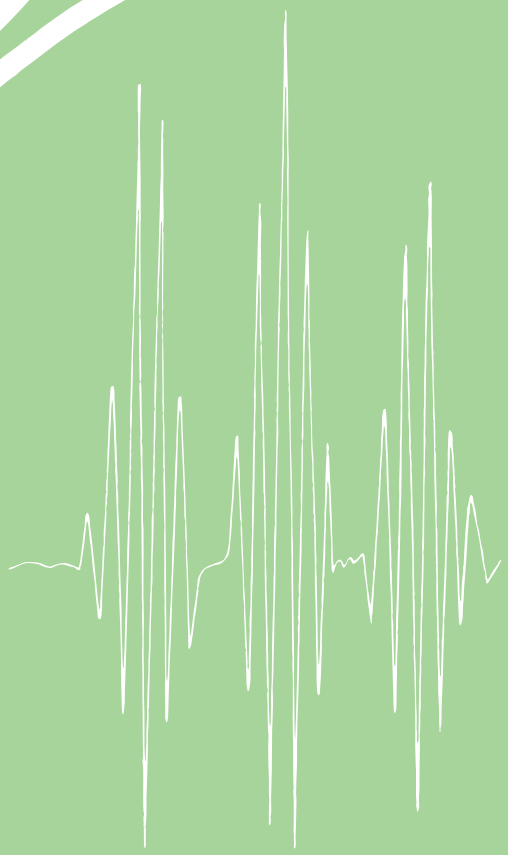
# RADIATION CHEMISTRY

2018 NO. 106

日本放射線化学会 JAPANESE SOCIETY OF RADIATION CHEMISTRY

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

〈巻頭言〉
異分野との共同研究で放射線化学の新たな進展を
〈特集記事：EUV リソグラフィと放射線化学〉
EUV リソグラフィ用レジストの増感とラフネス改善へのアプローチ
極端紫外線リソグラフィーの現状・課題・今後の展開
水・アルコール現像性植物由来レジストを用いた環境配慮型極端紫外光と電子線リソグラフィ
〈展望・解説〉
放射線物理化学過程に関する最近の進展（後編）
〈とぴっくす〉
クルックス管からの低エネルギー X 線評価手法の開発
〈放射線利用紹介〉
量子科学技術研究開発機構六ヶ所核融合研究所 IFMIF/EVEDA 原型加速器の開発施設の紹介
〈海外レポート〉
ローレンスバークレー国立研究所に滞在して
2nd International Conference on Ionizing Processes（ICIP2018）参加記
PULS2018 報告
〈ニュース〉
参加報告：量子生命科学研究会第 2 回学術集会
参加報告：第 55 回アイソトープ・放射線研究発表会
放射線化学若手の会夏の学校 開催報告
第 61 回放射線化学討論会参加報告（1 日目）
第 61 回放射線化学討論会参加報告（2 日目）
第 61 回放射線化学討論会参加報告（3 日目）
〈お知らせ〉
第 61 回放射線化学討論会プログラム
放射線化学賞の授賞に係る審査報告書
〈本会記事〉
〈賛助会員名簿〉



Japanese Society of RADIATION CHEMISTRY

HOKAER(106)1–69(2018)

# 放射線化学

2018 No.106

〈巻頭言〉

異分野との共同研究で放射線化学の新たな進展を ····· 真嶋 哲朗 ··· 1

〈特集記事：EUV リソグラフィと放射線化学〉

EUV リソグラフィ用レジストの増感とラフネス改善へのアプローチ ····· 永原 誠司 ··· 3

極端紫外線リソグラフィーの現状・課題・今後の展開 ····· 渡邊 健夫 ··· 9

水・アルコール現像性植物由来レジストを用いた環境配慮型極端紫外光と電子線リソグラフィ

····· 竹井 敏 ··· 17

〈展望・解説〉

放射線物理化学過程に関する最近の進展（後編）

····· 甲斐 健師, 横谷 明徳, 藤井 健太郎, 渡邊 立子 ··· 21

〈とぴっくす〉

クルックス管からの低エネルギー X 線評価手法の開発

···· 秋吉 優史, 谷口 良一, 松浦 寛人, 宮丸 広幸, Do Duy Khiem, 神野 郁夫, 濱口 拓, 野村 貴美, 山口 一郎, 谷口 和史, 小林 育夫, 川島 紀子, 佐藤 深, 森山 正樹, 宮川 俊晴, 掛布 智久 ··· 31

〈放射線利用紹介〉

量子科学技術研究開発機構六ヶ所核融合研究所 IFMIF/EVEDA 原型加速器の開発施設の紹介

····· 春日井 敦 ··· 39

〈海外レポート〉

ローレンスバークレー国立研究所に滞在して ····· 佐伯 誠一 ··· 45

2nd International Conference on Ionizing Processes（ICIP2018）参加記 ····· 岩松 和宏 ··· 47

PULS2018 報告 ····· 高橋 憲司 [1], 吉田 陽一 [2] ··· 48

〈ニュース〉

参加報告：量子生命科学研究会第 2 回学術集会 ····· 泉 雄大 ··· 50

参加報告：第 55 回アイソトープ・放射線研究発表会 ····· 仮屋 深央 ··· 51

放射線化学若手の会夏の学校 開催報告 ····· 青木 祐太郎 ··· 51

第 61 回放射線化学討論会参加報告（1 日目） ····· 河村 俊哉 ··· 53

第 61 回放射線化学討論会参加報告（2 日目） ····· 仮屋 深央 ··· 53

第 61 回放射線化学討論会参加報告（3 日目） ····· 外川 雄介 ··· 54

〈お知らせ〉

第 61 回放射線化学討論会プログラム ····· 堀邊 英夫 ··· 56

放射線化学賞の授賞に係る審査報告書 ····· 鷲尾 方一 ··· 62

〈本会記事〉

〈賛助会員名簿〉

【複写をされる方に】本誌に掲載された著作物を複写する場合は, 著作権者から複写権の委託を受けている一般社団法人学術著作権協会 (〒107–0052 東京都港区赤坂 9–6–41 乃木坂ビル 8F, TEL 03–3475–5618, FAX 03–3475–5619, E-mail: info@jaacc.jp) から許諾を受けてください. ただし, アメリカ合衆国における複写については, Copyright Clearance Center Inc. (222 Rosewood Drive, Danvera, MA01923, USA. TEL (978)750–8400, FAX (978)750–4747; www.copyright.com) へ.

**Houshasenkagaku** (Radiation Chemistry)
(106)1–69(2018)

Biannual Journal of Japanese Society of Radiation Chemistry
"Radiation Chemistry"
No.106, October 2018

Preface

New development of radiation chemistry by collaboration research with different research subjects
Tetsuro Majima ··· 1

Feature Articles: EUV lithography and radiation chemistry

Approaches toward EUV resist sensitization and roughness reduction Seiji Nagahara ··· 3

Current status, technical issues, and prospect for EUV Lithography Takeo Watanabe ··· 9

Eco-friendly extreme ultraviolet and electron beam lithography using water and alcohol developable resist derived from biomass
Satoshi Takei ··· 17

Reviews

Recent progress of radiation physicochemical process（third part）
Takeshi Kai, Akinari Yokoya, Kentaro Fujii and Ritsuko Watanabe ··· 21

Topics

Development of evaluation techniques for low energy X-rays from a Crookes tube
Masafumi Akiyoshi, Ryoichi Taniguchi, Hiroto Matsuura, Hiroyuki Miyamaru, Do Duy Khiem, Ikuo Kanno, Takumi Hamaguchi, Kiyoshi Nomura, Ichiro Yamaguchi, Kazufumi Taniguchi, Ikuo Kobayashi, Noriko Kawashima, Shin Sato, Masaki Moriyama, Toshiharu Miyakawa and Tomohisa Kakefu ··· 31

Applications

Introduction to Facility of IFMIF/EVEDA Prototype Accelerator at Rokkasho Fusion Institute in QST
Atsushi Kasugai ··· 39

Overseas

Report of my research and life at Lawrence Berkeley National Laboratory
Seiichi Saiki ··· 45

Report of the 2nd International Conference on Ionizing Processes (ICIP2018)
Kazuhiro Iwamatsu ··· 47

Report of PULS 2018 ········· Kenji Takahashi and Yoichi Yoshida ··· 48

News

Report of the 2nd Symposium on Quantum Life Science ········· Yudai Izumi ··· 50
Report of the 55 th Annual Meeting on Radioisotopes and Radiation Researches
········· Miou Kariya ··· 51
Report of the Summer School for Young Scientists of Radiation Chemistry
········· Yutaro Aoki ··· 51
Report of the 61st Annual Meeting of Japanese Society of Radiation Chemistry (the 1st day)
········· Shunya Kawamura ··· 53
Report of the 61st Annual Meeting of Japanese Society of Radiation Chemistry (the 2nd day)
········· Miou Kariya ··· 53
Report of the 61st Annual Meeting of Japanese Society of Radiation Chemistry (the 3rd day)
········· Yusuke Sotokawa ··· 54

Information

Program of the 61st Radiation Chemistry Symposium ········· Hideo Horibe ··· 56

Notification of the Selection Committee for 2017 JSRC Award ········· Masakazu Washio ··· 62

Announcements

List of Support Members

巻　頭　言

# 異分野との共同研究で放射線化学の新たな進展を

大阪大学 産業科学研究所
真嶋 哲朗

放射線化学との出会いとして，1973 年大阪大学工学部 3 年生の時に放射線化学の講義で，櫻井洸先生，高椋節夫先生から溶媒和電子について，驚きを持って学んだことを今でも覚えています．その後，大阪大学産業科学研究所櫻井先生の研究室に博士後期課程の学生として所属し，櫻井先生，高椋先生，その後，理化学研究所で荒井重義先生，また，ハーンマイトナー研究所の W. Schnabel 先生に放射線化学をご指導いただきました．そして現在に至るまで，阪大産研藤塚守准教授を始め多くの共同研究者の方々と共に，阪大産研量子ビーム科学研究施設の L バンドライナックによるナノ秒パルスラジオリシスやコバルト 60 γ 線照射を利用したラジカルイオンの化学について研究して来ました．私の放射線化学研究の経緯は本誌 100 号特集号（100, 18 (2015)），研究内容は本誌 99 号（99, 9–21 (2015)）に，また，私の研究者としての心構えについては本誌 76 号巻頭言（76, 1 (2003)）に記載しました．本号の巻頭言への執筆依頼を受けましたので，放射線化学，日本放射線化学会の今後の発展を願う一研究者として，以下に申し上げます．

学問の発展には，その研究分野を極めて来た研究者がさらにその分野の奥深い問題の解明のために，徹底的に研究を遂行することが第一に必要なことです．多くの放射線化学者がその専門分野でそれぞれの研究を深耕していることは言うまでもありません．一方で，専門家が専門分野をより深耕することは，他の多くの研究者からは理解が困難になり，一般的興味から乖離してしまうこともあります．その結果，深化した研究分野は初期・隆盛時に比べて意義・注目度が弱まり，少人数の専門研究者のみの集まりになってしまうことがあります．長い歴史と隆盛を経て研究分野の多くがこのような状況になってしまうのは当然で，放射線化学でもその傾向があります．

New development of radiation chemistry by collaboration research with different research subjects
Tetsuro Majima (*The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University*),
〒567–0047 大阪府茨木市美穂ヶ丘 8–1
E-mail: majima@sanken.osaka-u.ac.jp

放射線化学の研究を行うためには放射線利用施設が必要で，そのため放射線化学研究者は限定され，国内外の放射線化学に関する会議は，少人数の参加者になります．特に近年，国内外の放射線化学研究施設の休止，廃止により，放射線化学研究者の減少が止まりません．中でも一昨年，放射線化学の Gordon Research Conference が廃止されたのは放射線化学の研究者離れ，一般的関心の薄れを示す象徴的な出来事の一つで大変残念なことでした．

このような状況を打破するため，一つは，放射線化学の普及（装置，手法の有用性）とともに，化学，物理学，生物学はもちろん，医学から情報学までの多様な研究者との共同研究が必要です．放射線化学は異分野の研究者には馴染みのない研究分野なので，放射線化学の魅力をアピールし，できるだけ多くの研究者に放射線化学の研究に取り組んでもらうことです．異分野の研究者との共同研究は徒労に終わることも多く，新しい研究成果を出すのは大変なことですが，一方で新たな発見，新たな研究方向が開ける場合もあり，放射線化学の重要性が強まるはずです．なお，放射線化学研究者が少ないアジアへの放射線化学の普及，装置利用，共同研究や，放射線化学に興味を持つ学生への教育，訓練などの国際的貢献は特に意義深いと思います．

もう一つは，放射線化学研究者がその研究成果を専門分野の学術誌ではなく，なるべく一般的な学術誌に論文発表することが重要です．専門的学術誌の論文は一般の研究者の注目を集めるのは困難です．一方，一般的な学術誌は世界中の研究者，学生がすぐにアクセスして論文を読むことができ，興味深い論文は必ず注目され，引用され，反響を呼ぶものです．その結果，放射線化学の手法を使用しようという研究者の増加に繋がり，放射線化学の重要性が認知され，新たな進展をもたらすことでしょう．ただ，重要で優れた内容でも専門的研究論文ほど一般的な学術誌への掲載は容易ではなく，放射線化学の一般的意義，重要性，発展性などを明確に示すことが必要です．

上記はいずれも放射線化学研究者によってのみ達成されることです．皆様方の一層のご努力をお願いします．

特　集　記　事

# EUV リソグラフィ用レジストの増感とラフネス改善へのアプローチ

東京エレクトロン株式会社　永原 誠司*

As a radiation chemistry application, EUV resist materials for EUV lithography are to be used for mass production of semiconductor devices. The remaining important challenges of EUV resists for mass production are the cost reduction of EUV lithography by using high sensitivity (high throughput) resist and the reduction of roughness caused by the effect of photon and chemical shot noise in EUV lithography. As one of the approaches to sensitize the resist with keeping lithography performance including roughness performance, *Photosensitized Chemically Amplified Resist*™ (PSCAR™)** technologies are reviewed in this article.

**Keywords:** EUV resist, *Photosensitized Chemically Amplified Resist*, PSCAR, sensitivity, shot noise

## 1　はじめに

イオン化エネルギーを超える放射線である 13.5 nm の極紫外線（EUV）を用いたリソグラフィの実用化へ向けた準備が着々と進んでいる[1–3]．EUV リソグラフィの課題のひとつであるコストを下げるため，レジストの高感度化による EUV 露光のスループット向上が望まれている．一方，従来の化学増幅型レジストでは，解像度（Resolution）とラフネス（LWR）と感度（Sensitivity）の間にトレードオフの関係（RLS トレードオフ）があり，すべてを同時に改善することが難しい[4–8]．そのため，今までにない新しい技術で，従来の RLS トレードオフの関係を打破し，ラフネスや解像度の劣化を抑えつつ，EUV 光に対する感度を上げ，EUV リソグラフィの生産性を上げる方法が切望されている．高いエネルギーの光子を用いる EUV リソグラフィでは，エネルギーの低い波長の光を露光する場合と比較して，同じ露光量をウェーハ上に照射しても，光子数が少なくなる．たとえば，ひとつのホールパターンを形成するために，数百個から数千個をいう少ない光子数で像を形成するようになる．その場合，光子の個数の統計的なばらつき（光子のショットノイズ）が引き起こすレジスト寸法のばらつきが無視できなくなる[4–8]．これらの統計的ばらつき因子の存在下で，より忠実にパターンを形成できる方法も望まれている．本稿では，PSCAR™ [9–18] を例に，ばらつき因子の影響を低減しつつ感度を上げるアプローチを紹介する．

Approaches toward EUV resist sensitization and roughness reduction
Seiji Nagahara* (*Tokyo Electron Limited*),
〒107–6325 東京都港区赤坂 5–3–1 赤坂 Biz タワー
TEL: 03–5561–7473, FAX: 03–5561–7395,
E-mail: seiji.nagahara@tel.com

## 2　光増感化学増幅型レジスト (PSCAR™) 技術

### 2.1　EUV レジストの高感度化の技術：PSCAR™

レジストを高感度化する手法として光増感化学増幅型レジスト PSCAR™（*Photosensitized Chemically Amplified Resist*™）が 2013 年に大阪大学田川教授らから発表され[9]，その後，産業界での実用化へ向けて研究開発が進んでいる．PSCAR™ は，化学増幅型レジストの組成として，ベース樹脂に加え，光増感剤前駆体（PP），増感性の光酸発生剤（PS-PAG），クエンチャを使用したレジストである[10,11,13]．Figure 1 に PSCAR™ のプロセスフローを示す．PSCAR™ のプロセスでは，EUV 露光後，現像をする前に，UV による一括露光を行う点が，従来のレジストプロセスとは異なっている．本プロセスでは，まず，EUV 露光機によるパターン露光で PS-PAG から生成した酸が，PP を酸触媒反応で分解する．その反応により，パターン露光部だけに光増感剤（PS）が生成する．次に，PS だけが光を吸収する比較的長波長の UV 波長で，レジストを一括露光する．この工程で，パターン露光部で PS が選択的に一括露光の UV 光を吸収し，その結果，光増感反応によりパターン露光部だけで PS-PAG が分解し，酸が追加で発生する．一括露光の波長は，PS-PAG が直接の光

吸収により分解しないが，光増感反応を経れば酸を発生できる波長を用いる．この概念により，EUV 露光で発生する酸の発生を低減しても，UV 一括露光による増感反応で，パターン露光部にレジストの極性変化反応に必要な量の酸を発生できる．そのため，EUV リソグラフィの高感度化が実現できる．

### 2.2 PSCAR™ 2.0 技術

PSCAR™ の発展型のレジストとして，2017 年に PSCAR™ 2.0 の概念が発表された[16]．化学増幅型レジストの組成として，ベース樹脂，PP，PS-PAG に加え，増感性の光分解型クエンチャ (PS-PDB) を使用したレジストである．Figure 2 に示すように，PSCAR™ 2.0 のプロセスフローは，従来の PSCAR™ と同様で，EUV 露光後に UV 一括露光を行うことで，レジストの増感を行う[16,17]．Figure 3 に PSCAR™ 2.0 の反応ステップを示す[17]．EUV リソグラフィにより，露光部で PS-PAG と PS-PDB が分解し，酸の潜像ができる．その酸による触媒反応で，PP から PS が生成する．その後，UV 光による一括露光で PS が生成している部分だけで増感反応を引き起こす．その結果，PS が生成している EUV 露光部で，PS-PAG だけでなく PS-PDB が増

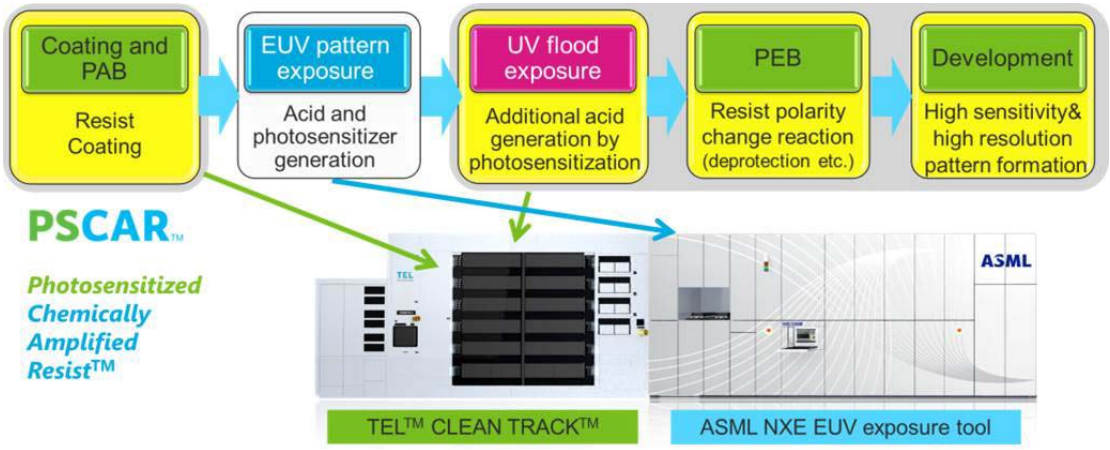



Figure 1. PSCAR™ process flow.

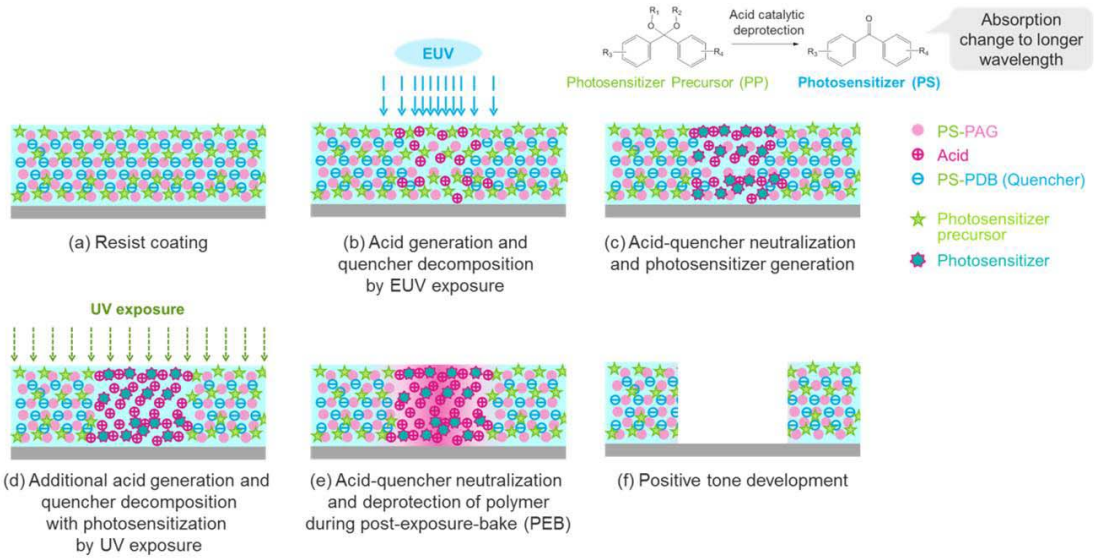



Figure 2. PSCAR™ 2.0 reaction flow[16,17].

感により分解し，より鮮明な酸の潜像が形成される．それにより，ベース樹脂の加熱で起こる脱保護反応で形成される像質が改善する．また，PS-PDB も分解することで UV 一括露光の露光量を大幅に減らすことができる．ベース樹脂のベークによる脱保護後，アルカリ現像液で現像すると露光部が現像され（ポジトーン現像：PTD），有機現像液で現像すると未露光部が現像され（ネガトーン現像：NTD），レジストパターンが形成される．Figure 4 は，通常の化学増幅型レジスト（CAR）と PSCAR™ 2.0 のシミュレーションによる潜像を示している[16,17]．PSCAR™ 2.0 の概念を用いることで潜像の像質が大きく改善することが示唆されている．これは，クエンチャの光増感分解を組み合わせることで，クエンチャ量をコントラストが最大になるように調整できるためである．このことから，高コントラスト（低ラフネス，高解像度）と高感度を両立できる可能性がある．

Figure 5 は，PSCAR™ 2.0 が，UV 一括露光で感度が増感されている様子を示している．16.5 nm ラインのレジストパターンにおいて，10 J/cm$^2$ の UV 一括露光で感度が 1.19 倍となっており，ラフネスを劣化させずにレジストの増感ができることを示している[17]．

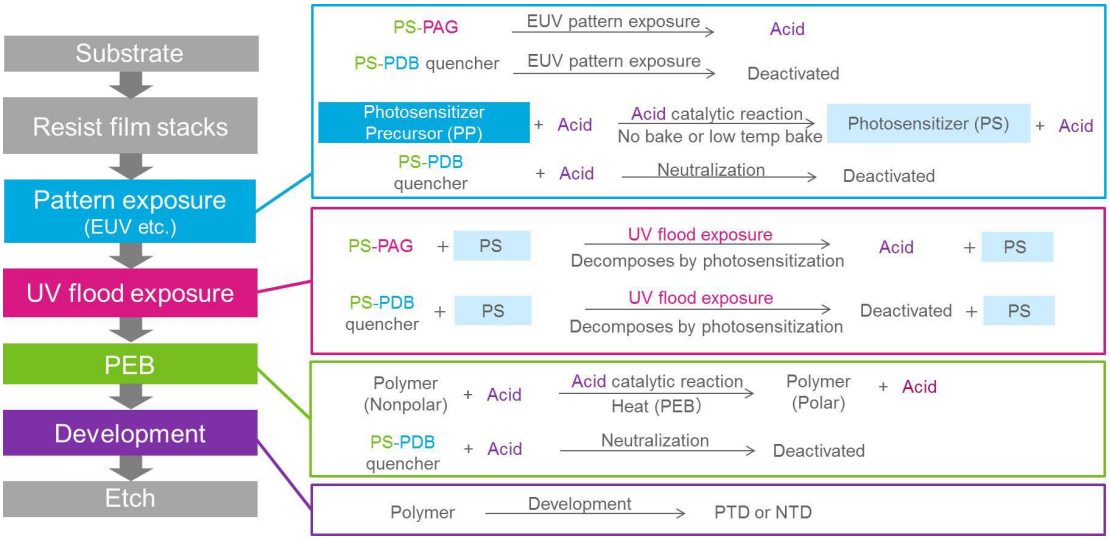



Figure 3. PSCAR™ 2.0 reaction steps.[16,17]

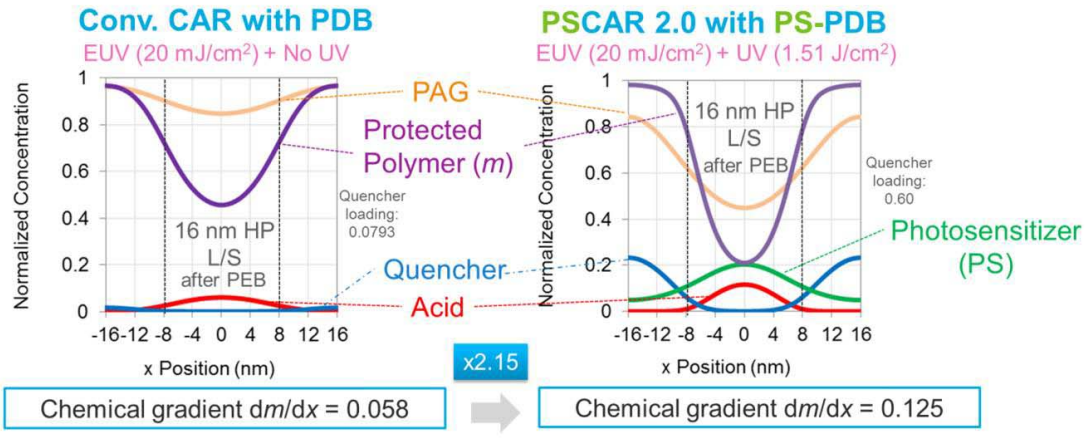



Figure 4. Comparison of simulated chemical gradients after PEB between conventional CAR (left) and PSCAR™ 2.0 (right) [16,17]

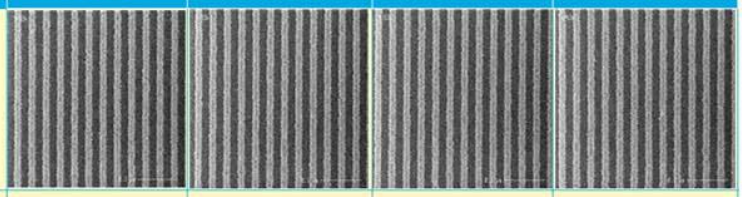
| UV flood exposure dose | 0 J/cm$^2$ | 5 J/cm$^2$ | 10 J/cm$^2$ | 15 J/cm$^2$ |
|---|---|---|---|---|
| 16.5 nm line at 36 nm pitch SEM-image (Mag X 300k, Y 52.7k) |  | | | |
| EUV dose to size (mJ/cm$^2$) | 50.5 | 47.0 | 42.5 | 37.5 |
| Relative resist sensitivity | 1 | x 1.07 | x 1.19 | x 1.35 |
| EUV EL (CD±10%) (%) * | 15.3 | 14.6 | 15.1 | 15.9 |
| Unbiased LWR (nm) | 2.33 ± 0.11 | 2.24 ± 0.09 | 1.99 ± 0.08 | 2.48 ± 0.10 |
| Unbiased LER (nm) | 1.99 ± 0.04 | 1.75 ± 0.04 | 1.73 ± 0.03 | 1.94 ± 0.04 |

Figure 5. PSCAR$^{TM}$ 2.0 exposure results at imec. Relative resist sensitivity = (UV 0 J/cm$^2$ dose-to-size) / (Sample dose-to-size).

この PSCAR$^{TM}$ 2.0 技術は，統計的な効果を考慮したレジストシミュレーションでも，レジストのラフネスを下げることができると期待されている[16]．PSCAR$^{TM}$ の実用化へ向けて，高感度化の効率向上と高感度化時の像質の改善のため，さらなる材料と UV 一括露光装置の開発活動が続いている．

## 3 まとめ

EUV リソグラフィの実用化に向けて，EUV レジストの更なる改善が望まれている．EUV リソグラフィによる 20 nm 以下のきわめて微細なパターンを高感度（高スループット）レジストで形成するためには，レジストのコントラストをできるだけあげて，光子や化学物質のばらつきの影響を抑えるアプローチが必須になる．本稿では，有望なアプローチの例として PSCAR$^{TM}$ 技術を紹介した．放射線化学の基礎的理解と応用に基づいて，本新技術が進展していくことに期待している．

## 〈謝　辞〉

PSCAR$^{TM}$ の研究開発にあたって，共同研究でご協力くださり，ご指導いただいた皆様に感謝いたします．

**PSCAR$^{TM}$ は，東京エレクトロン株式会社と大阪大学の登録商標です．

## 〈参 考 文 献〉

1) A. Lio, Proc. SPIE, 9776 (2016) 97760V.
2) S-S. Kim, R. Chalykh, H. Kim, S. Lee, C. Park, M. Hwang, J-O. Park, J. Park, H. Kim, J. Jeon, I. Kim, D. Lee, J. Na, J. Kim, S. Lee, H. Kim, S-W. Nam, Proc. SPIE, 10143 (2017) 1014306.
3) A. Yen, Proc. SPIE, 9776 (2016) 977632.
4) C. A. Mack, Proc. SPIE, 9189 (2014) 91890D.
5) Y. Ma, H. J. Levenson, T. Wallow, Proc. SPIE, 6518 (2007) 651824.
6) G. M. Gallatin, Proc. SPIE, 5754 (2005) 38.
7) G. M. Gallatin, P. Naulleau, R. Brainard, Proc. SPIE, 6519 (2007) 651911.
8) C. A. Mack, Proc. SPIE, 10583 (2018) 1058315.
9) S. Tagawa, A. Oshima, S. Enomoto, J. Photopolym. Sci. Technol., 26 (2013) 825.
10) S. Tagawa, A. Oshima, S. Enomoto, C. Q. Dinh, Proc. SPIE, 9048 (2014) 90481S.
11) S. Nagahara, M. Carcasi, H. Nakagawa, E. Buitrago, O. Yildirim, G. Shiraishi, Y. Terashita, Y. Minekawa, K. Yoshihara, M. Tomono, H. Mizoguchi, J. Estrella, T. Nagai, T. Naruoka, S. Dei, M. Hori, A. Oshima, M. Vockenhuber, Y. Ekinci, M. Meeuwissen, C. Verspaget, R. Hoefnagels, G. Rispens, R. Maas, H. Nakashima, S. Tagawa, Proc. SPIE, 9776 (2016) 977607.
12) E. Buitrago, S. Nagahara, O. Yildirim, H. Nakagawa, S. Tagawa, M. Meeuwissen, T. Nagai, T. Naruoka, C. Verspaget, R. Hoefnagels, G. Rispens, G. Shiraishi,

Y. Terashita, Y. Minekawa, K. Yoshihara, A. Oshima, M. Vockenhuber, Y. Ekinci, Proc. SPIE, 9776 (2016) 97760Z.

13) T. Nagai, H. Nakagawa, T. Naruoka, S. Tagawa, A. Oshima, S. Nagahara, G. Shiraishi, K. Yoshihara, Y. Terashita, Y. Minekawa, E. Buitrago, Y. Ekinci, O. Yildirim, M. Meeuwissen, R. Hoefnagels, G. Rispens, C. Verspaget, R. Maas, Proc. SPIE, 9779 (2016) 977908.

14) E. Buitrago, S. Nagahara, O. Yildirim, H. Nakagawa, S. Tagawa, M. Meeuwissen, T. Nagai, T. Naruoka, C. Verspaget, R. Hoefnagels, G. Rispens, G. Shiraishi, Y. Terashita, Y. Minekawa, K. Yoshihara, A. Oshima, M. Vockenhuber, Y. Ekinci, J. Micro-Nanolithogr. MEMS MOEMS, 15 (2016) 033502.

15) M. Carcasi, M. Carcasi, S. Nagahara, G. Shiraishi, T. Iseki, Y. Minekawa, K. Yoshihara , H. Nakagawa, T. Naruoka, T. Nagai, A. Oshima, S. Tagawa, Proc. SPIE, 10143 (2017) 1014329.

16) S. Nagahara, M. Carcasi, G. Shiraishi, H. Nakagawa, S. Dei, T. Shiozawa, K. Nafus, D. De Simone, G. Vandenberghe, H-J. Stock, B. Küchler, M. Hori, T. Naruoka, T. Nagai, Y. Minekawa, T. Iseki, Y. Kondo, K. Yoshihara, Y. Kamei, M. Tomono, R. Shimada, S. Biesemans, H. Nakashima, P. Foubert, E. Buitrago, M. Vockenhuber, Y. Ekinci, A. Oshima, S. Tagawa, Proc. SPIE, 10146 (2017) 101460G.

17) S. Nagahara, M. C. G. Shiraishi, Y. Kamei, K. Nafus, Y. Minekawa, H. Ide, Y. Kondo, T. Shiozawa, K. Yoshida, M. Enomoto, K. Yoshihara, H. Nakashima, S. Biesemans, R. Shimada, M. Tomono, K. Takeshita, T. Moriya, H. Makoto, R. Aizawa, Y. Konishi, M. Hori, K. Maruyama, H. Nakagawa, M. Miyake, T. Nagai, S. Dei, T. Naruoka, M. Shima, T. Kimura, G. Vandenberghe, J. S. Petersen, D. De Simone, F. Philippe, H-J. Stock, B. Meliorisz, A. Oshima, S. Tagawa, Proc. SPIE, 10586 (2018) 1058606.

18) M. Carcasi, S. Nagahara, G. Shiraishi, Y. Minekawa, H. Ide, Y. Kondo, K. Yoshihara, M. Tomono, R. Shimada, K. Takeshita, T. Moriya, Y. Kamei, K. Nafus, S. Biesemans, H. Nakashima, M. Hori, K. Maruyama, H. Nakagawa, T. Nagai, S. Dei, M. Miyake, T. Naruoka, M. Shima, G. Vandenberghe, D. De Simone, P. Foubert, J. Petersen, A. Oshima, S. Tagawa, Proc. SPIE, 10583 (2018) 105831M.

〈著 者 略 歴〉

永原 誠司： 大阪大学大学院工学研究科博士課程修了，博士（工学）．現在，東京エレクトロン株式会社にて最先端リソグラフィ向け塗布現像装置の技術開発，マーケティングに携わる（プリンシパル/チーフサイエンティスト）．東京エレクトロン株式会社入社以前は，半導体メーカー（NEC，NEC エレクトロニクス，ルネサスエレクトロニクス），研究機関（米国アルゴンヌ国立研究所，米国カリフォルニア大学バークレー校，ベルギー imec 等）でも最先端半導体のリソグラフィプロセス技術の研究開発に携わった．

特　集　記　事

# 極端紫外線リソグラフィーの現状・課題・今後の展開

兵庫県立大学 高度産業科学技術研究所　渡邊 健夫*

Extreme ultraviolet lithography (EUVL) is expected as a next-generation mass production technology for the fabrication of semiconductor electronic devices. Challenges for mass production of this technology are development of light sources, resists, pellicles for masks, and defect-free masks. In this paper, the current status, technical issues, and future development of EUVL technology are described. In recent years, the power of the light source has been improved, and in 2017 it realized 250 W at the intermediate focus position, using this light source in the exposure equipment of NXE:3400B at the headquarters factory of AMSL, it is achieved the throughput of 125 wafers per hour for 12 inches wafers. As a result, the momentum to apply it to mass production for logic devices has increased, and it is scheduled to be used as high volume mass production technology for semiconductor chips around 2019.

**Keywords:** lithography, EUVL, resist, source, mask

## 1　はじめに

Figure 1 に示すように世界半導体市場統計[1]によると 2017 年の電子デバイス全般の市場は 4122 億ドルであり 2016 年に比べて約 21.6 % の成長をしており，2020 年には 4500 億ドルに迫る勢いとなっている．この中で国産メーカーが 1 社になっていることは寂しい限りであるが，この半導体市場の成長は IT 産業や近年の IoT（Internet of Things）の進展に支えられており，そこに用いられている中央演算素子（Micro Processing Unit: MPU）やメモリ等の超高集積回路（ULSI）製造技術が市場を牽引している．この ULSI の先端技術は半導体微細加工技術によって支えられており，半導体微細加工技術は依然重要な半導体製造の基幹技術である．SEMATECH が中心に纏めてきた半導体国際ロードマップ（International Technology Roadmap for Semiconductor: ITRS）に従い，ULSI は MPU，DRAM（Dynamic Random Access Memory），並びに NAND 型 FLASH メモリ等の技術開発を中心に技術が進展してきた．現在では微細加工が中心であった ITRS に代わり，IEEE が中心に纏めている新規半導体国際ロードマップである International Roadmap for Devices and Systems（IRDS）が提案されている[2]．このロードマップは電子デバイスやこれを用いたシステム応用の下流側から製造プロセスの上流側に向けて，半導体のロードマップが纏められている．最初のバージョンは 2016 年にリリースされており，最近 2017 年版がリリースされた．

半導体微細加工技術であるリソグラフィー技術は所謂写真焼き付け技術であり，ULSI の回路パタンが形成されたマスクの原版パタンを縮小露光光学系によりシリコンウェハの上に形成した感光剤樹脂であるレジストに縮小転写する手法を採用しており，この技術が縮小投影方式のリソグラフィー技術である．一般的にこの方式ではレジストに転写されるパタンの最小寸法は露光波長程度でありレーリーの式（$R = k_1\lambda/NA$）で表記され，形成されるレジストパタン寸法 $R$ は露光波

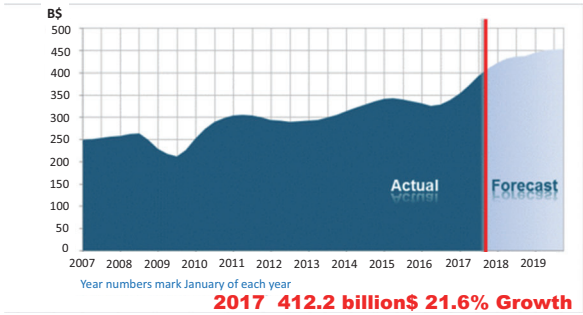



Figure 1.　World semiconductor trade statistics.

Current status, technical issues, and prospect for EUV Lithography
Takeo Watanabe* (*Laboratory of Advanced Science and Technology for Industry, University of Hyogo*),
〒678–1205 兵庫県赤穂郡上郡町光都 3–1–2
TEL: 0791–58–2546, E-mail: takeo@lasti.u-hyogo.ac.jp

長 $\lambda$ に比例し，縮小露光学系の開口数 $NA$ に反比例する．ここで，比例定数はプロセス定数 $k_1$ を示す．これまで，微細加工技術は波長の短波長化や縮小露光光学系の開口数の増大化，ならびに位相シフトマスクや変形照明系を用いた超解像技術にプロセス定数 $k_1$ を小さくすることでリソグラフィーの解像性能を向上させて，この技術の延命を図ってきた．リソグラフィーの露光光源は，波長 438 nm の g 線，365 nm の i 線，248 nm の KrF エキシマレーザー，並びに 193 nm の ArF エキシマレーザーの順に量産に適応されており，このように露光の短波長化により微細なパタン形成を実現してきた．さらに，40 nm のパタン形成では，従来のリソグラフィーでは実現が困難であったため，ArF 液浸リソグラフィーが使われている．一般に縮小露光光学系の開口数 $NA$ は $NA = n\sin\theta$ で表記される．ここで，$n$ および $\theta$ はそれぞれ物質中の屈折率および光軸上の物体が入射するレンズの開口角を示している．そこで液浸露光方式は半導体露光装置のレンズとシリコンウェハとの間を，空気（屈折率 1.00）よりも屈折率の高い純水（屈折率 1.33）で満たすことで，純水自体をレンズのように作用させることで実効的に開口数を 1 よりも大きくすることができ，線幅 40 nm のパタン形成が可能になった．その後，線幅 40 nm 以下のパタン形成が要求され，ArF 液浸リソグラフィーによる多重露光技術が考案された．この方式ではリソグラフィーに加えて成膜技術とドライエッチング技術が多重露光の回数分行われており，多重露光の回数を増やすことでより微細なパタン形成が可能になった．しかしながら，リソグラフィーに加えて成膜とエッチングの各プロセスを多重露光の回数分繰り返すためにプロセスの複雑化を招き，従来の単層レジストプロセスに比べて製造コストアップが大きな課題となっている．

そこで，16 nm 以降のパタン形成ではプロセスの工程が単純で安価な単層レジストプロセスが可能な極端紫外線リソグラフィー[3]（Extreme Ultraviolet Lithography; EUVL）技術が次の半導体微細加工技術としての量産技術として最も期待されており，幾つかの半導体デバイスメーカーが 2019 年から半導体量産技術として使用することになっている．

兵庫県立大学高度産業科学技術研究所はニュースバル放射光施設を有しており，この施設は国内で大学が保有する放射光施設では最大の施設である．2000 年に供用を開始して以来，EUVL の研究開発を進めてきた．Figure 2 に示すように稼働している 9 本のビームラインの内 BL03，BL09，BL10 の 3 本のビームラインが EUVL 技術開発専用のビームラインであり，これらのビームラインのエンドステーションには only one の装置を開発・設置を進めてきた．そして，これらの装置群を用いて特に共同研究や受託研究を通じて産業支援を精力的に推進している．EUV マスクの研究では，広視野 EUV 顕微鏡[4] および EUV コヒーレントスキャトロメトリ顕微鏡による欠陥検査[5,6] の開発を進めてきた．また，レーザー励起プラズマ (LPP) 方式の EUV 光源パワーの向上を目的に，新たに開発した大型反射率系による EUV 光源用大型ミラーの反射率評価[7] を進めている．EUV レジストの研究では，大面積露光による解像度評価[8,9]，EUV 干渉露光系による 10 nm 級のパタン形成・評価[10]，アウトガス評価[11–14]，新規 EUV レジスト開発[15–17]，軟 X 線吸収分光によるレジストの反応解析[18,19]，並びにレジストの透過率測定系[20] の開発を進めてきた．また，このようにニュースバルでの研究を通じて，日本の半導体技術開発分野に優位に立っているレジストおよびマスクの研究開発に貢献をしてきた．さらに，上記したように only one

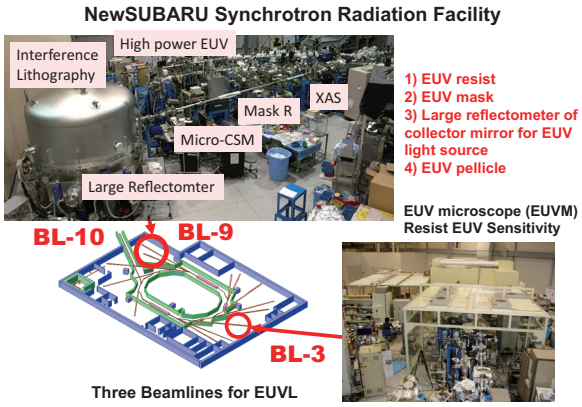



Figure 2. Beamline groups dedicated to EUV lithography technology development using BL03, BL09, and BL10 beamlines of NewSUBARU synchrotron light facility, which are for 1) EUV resist sensitivity and EUV microscope for mask defect inspection, 2) Mo/Si reflectometer for mask and large collector mirror, 3) EUV resist chemical reaction analysis using soft X-ray absorption spectroscopy, and resist chemical structure analysis using resonant soft X-ray scattering, and 4) EUV interference lithography for EUV resist resolution and LER evaluations, in-situ ellipsometry outgassing and contamination evaluation tool for EUV resists and mask materials, respectively.

の装置開発を進めており，これらの装置を外部ユーザに広く開放することで，EUVL の技術の発展に大きく貢献している．

IRDS の国際ロードマップによると 2019 年には線幅 16 nm（7 nm node）のパタン形成が，2020 年には 10 nm（5 nm node）のパタン形成が要求されている．エレクトロニクス設計の国際イベントである 55th Design Automation Conference（DAC 2018）（米サンフランシスコで 6 月 24 日–28 日に開催）では微細化競争でしのぎを削る台湾 TSMC と韓国 Samsung Electronics 社が，それぞれの先端プロセスの状況の報告で，2019 年には EUVL を量産に適用するという報告があった．本論文では EUVL 技術開発の現状・課題，並びに今後の展開について紹介および議論をする．

## 2　EUV 露光装置および EUV 光源技術

EUVL 技術に用いられる光源の波長は 13.5 nm であり，露光光学系やマスクには Mo/Si 多層膜が用いられている．EUV 露光装置について，EUVL 開発の黎明期では露光光学系は 2 枚の球面鏡から構成されるシュバルツシルド光学系が主流であり，ウェハ上の露光領域は数百ミクロン程度であった．このため半導体製作用に露光面積を拡大する必要があった．そこで，NTT の研究グループは 2 枚の非球面鏡から構成される露光光学系を考案した．2 枚の非球面鏡系で中心から光の光路をずらすことで，球面鏡の光学系ではこれまで低減するのが困難であった像面歪を低減することが可能になり，露光面積を拡大することが可能になった．これにより，より大きな露光領域で 150 nm の解像度が確認された．その後，兵庫県立大学のグループが 60 nm の解像度実現を目的に 3 枚非球面鏡から構成した縮小露光光学系が考案され，日立中央研究所およびニコンとの共同開発で 1999 年に非球面 3 枚系により 10 mm × 2 mm の露光領域で線幅 40 nm の孤立パタン形成に成功した．その後，超先端電子技術開発機構（ASET）を通じて NEDO の再委託の研究により，熱安定性の高い鏡筒に改良することとマスクとウェハステージに同期走査系を導入することで，10 mm × 10 mm の露光領域で線幅 60 nm のパタン形成を実証した．この研究成果を 2001 年に島根県松江市で開催した EUVL の国際会議で発表し，この研究成果が EUVL 技術開発を加速させる切っ掛けとなり，ASML 社も本格的に露光機開発を進めることになった[8,9]．

次に EUV 光源技術について，量産向けに LPP 方式

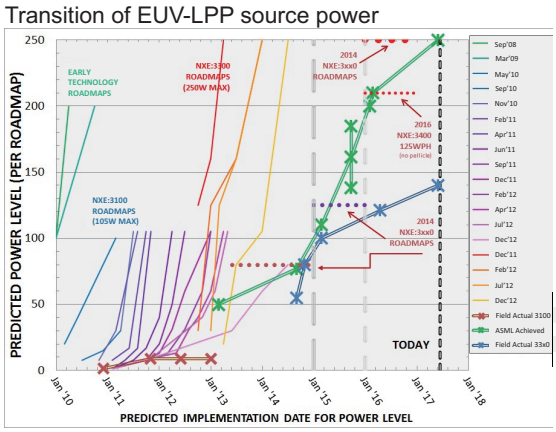



Figure 3.　Transition of EUV source power achievement by LPP light source at Cymer (provided by Intel).

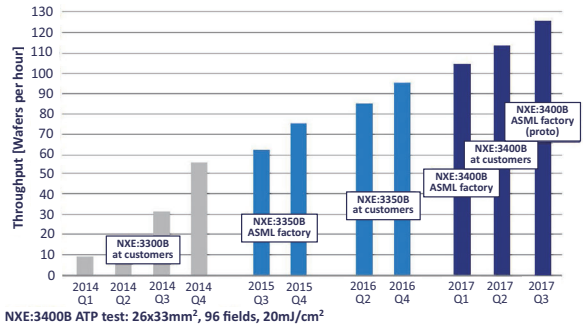



Figure 4.　Changes in wafer throughput improvement of ASML's exposure apparatus (provided by ASML).

の EUV 光源の開発が進められている．量産に要求されている EUV 光源パワーは中間集光点で 250 W である．最近では LPP 方式の光源は，直径 20 μm の大きさの Sn 液滴に YAG レーザーを照射することで Sn を初期励起させ，25 kW の高強度 $CO_2$ レーザーの照射によりプラズマを生成し，波長 13.5 nm の EUV 光が発生する．Figure 3 にこれまでの EUV 光源パワー実現の変遷を示す[21]．Sn 液滴の大きさの最適が図られたとことに加えて，より安定したドロップレットジェネレーター（液滴生成装置）の開発が進んだことにより，今年急激な光源パワーに向上がみられた．Figure 4 に示すように EUV 光源パワー向上に伴い，ASML の露光装置のウェハスループット向上が図られている[22]．現在，ASML の露光装置 NXE:3350B に搭載されてい

る EUV 光源は中間集光点で 125 W の光源パワーが主流であり，12 インチのシリコンウェハ（ウェハ）を 1 時間に 85 枚露光が可能としている．このような中で 2017 年 7 月の SEMICON West 2017 で ASML 本社工場の EUVL 用露光機（NXE:3400B）に搭載した Cymer 社の LPP EUV 光源は中間集光点で 250 W を実現し，12 インチウェハを 1 時間に 125 枚露光を可能にしている[22]．これにより，ロジックを中心に 1–3 層で 2018 年から 2019 年にかけて半導体の量産技術として使用されることになった．現在，さらに 300 W の高い光源パワーを有する LPP 方式の EUV 光源の開発が進められており，Cymer や Gigaphoton によると今後はこの LPP 方式で 500 W までの光源開発が可能としている．

一方，NAND 型の Flash memory の場合に要求されるスループットが 12 インチウェハで 1 時間に 200 枚とされており，メモリメーカーの中間集光点における要求パワーは 1 kW になっている．この光源開発には EUV 用自由電子レーザー（EUV-FEL）方式が有力視されており，この EUV-FEL 光源は電子線形加速器とアンジュレータで構成され，電子銃で生成された電子は線形加速器により加速され，下流に設置したアンジュレータから EUV 光が発生する．半導体の量産に要求される EUV-FEL は大電流の線形加速器であることと 100 % の稼働率が要求される．また，リソグラフィー用の光源に用いるには，コヒーレントな光をインコヒーレントな光に変換する必要がある．さらに，1 台の FEL に十数台の露光機を設置することになるため，仮に 1 台の FEL が故障で停止をするとこれに接続されている十数台の露光装置が一斉に停止することになり，大きな生産上のリスクを招くことになるので，あらかじめバックアップ用の EUV-FEL を用意する必要があるといった課題がある．これらの課題を克服し，半導体市場の要求に間に合わせる必要がある．

## 3　EUV マスク用ペリクル技術とマスク欠陥検査技術

EUV 光は空気中の窒素や酸素に吸収されるため，EUVL 用の露光は真空中で行われる．EUV 露光装置は，主としてマスクステージやウェハステージ，並びに光学鏡筒から構成されており，真空中露光であっても露光機中のパーティクルの発生は否めない．そこで，EUVL に於いても従来の量産用リソグラフィー技術で用いられているペリクルが必須である．このペリクルにより露光装置の中で発生したパーティクルがマスク面上に付着するのを防ぐ役目がある．Figure 5(a) および 5(b) にそれぞれ ASML 社が開発したマウント付の EUV ペリクルフィルムの写真およびこれまでのマスク欠陥の改善の状況を示す[22]．EUV ペリクルに要求される性能は，1) 透過率が 90 % であること，2) 1G shots に対して露光耐性を有することである．現在，世界中で SiN，SiC，並びに各種有機材料をベースとした EUV ペリクルの開発が全世界で勢力的に進められており，実用化に向けて開発が勢力的に進められている．

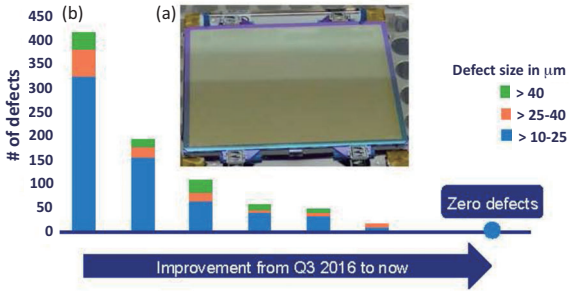



Figure 5.　Full field EUV pellicle film; (a) pellicle film with mounting, and (b) mask defect improvement (provided by ASML).

また，EUV マスクは低膨張ガラスレチクル基板の表面に EUV 光を反射する Mo/Si 多層膜を成膜し，この表面に吸収体からなる半導体回路パタンが形成されている．EUV マスクの欠陥は吸収体，多層膜の欠け，並びに多層膜表面のパーティクルに起因する「強度欠陥」，そしてガラスレチクル表面の異物，マスク基板表面の傷，並びに多層膜中の異物に起因する「位相欠陥」に大別される．この位相欠陥は上記した異物や傷等により Mo/Si の多層膜構造が乱れることで，局所的に Bragg の反射条件を満たさなくなるため，欠陥としてレジストに転写される．このため，従来のマスク検査技術では，位相欠陥の検出が不可能であり，位相欠陥も露光波長による検出可能な欠陥検査装置が必須である．これまで兵庫県立大学では EUV 顕微鏡[4]，コヒーレント EUV 光による回折顕微鏡[5] の開発を進めてきた．特に近年，マイクロビームを利用したコヒーレント EUV 光による回折顕微鏡[6] の開発に成功し，これにより EUV マスクの自然欠陥の 3 次元検査が可能となっている．また，スタンドアロンなコヒーレント EUV 光による回折顕微鏡の開発を進め，さらなる微細な自然欠陥観察が可能になっている．

先端ナノプロセス基盤開発センター（EIDEC）ではレーザーテックを中心に，EUV 光による暗視野顕微鏡の開発が進められてきた．また，ローレンスバークレ

イ国立研究所（LBNL）では，SHARP[23] というマスク欠陥検査装置を構築し，この装置を用いて EUV マスクの欠陥検査の技術開発が進められている．

## 4　EUV レジスト材料・プロセス・評価技術

5 nm node に要求される EUVL 技術開発では EUV レジストプロセス技術の開発が最も優先するべき課題となっている．この node での EUV レジストの仕様は，10 nm 以下の解像性能，露光感度 15 mJ/cm$^2$ 以下，0.1 nm 以下の線端粗さ（line edge roughness; LER），低アウトガスを有することである．この中で露光感度および LER はそれぞれウェハスループットおよびデバイスの電気特性に大きく影響する．このため，EUV レジストは高感度と低 LER を同時に満足させる必要がある．この課題で低 LER の実現が最も優先度が高く，低 LER を実現するには EUV レジストの EUV 光による各種統計的なバラツキ（stochastic）を極限までに抑制する必要がある．

ASML が販売している EUVL の量産用露光装置の価格は約 160 億円と言われている．このためレジストメーカーや材料メーカーが新規レジスト開発用に購入するには高価過ぎて，この高価な装置に開発途上のレジスト材料を評価するには大きなリスクを伴う．一方で，レジスト自身の解像性能評価用にスイスの Paul Scherrer Institute[24] や兵庫県立大学[10] が開発した EUV 干渉露光系があり，解像度や LER の評価に用いられている．この露光方式では透過型回折格子を用いてレジストパタン形成をするため，光学系やマスクを用いる必要がないので，光学系の収差やフレアおよびマスクのエラーの影響を受けないことが特徴であり，このためレジスト自身の解像性能や LER の性能評価ができる．

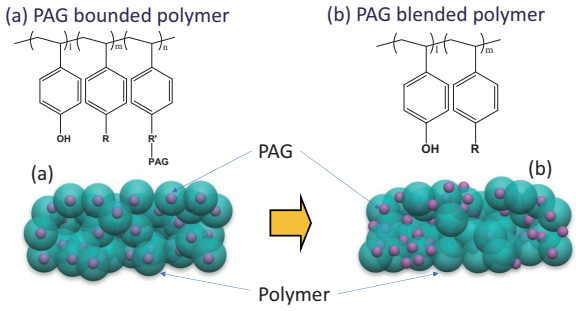



Figure 6.　The configuration of the a) PAG bounded resist and b) PAG blended resist developed at University of Hyogo.

一般的にレジストは化学増幅系レジストと非化学増幅系レジストに分類される．また，それぞれのレジストは，高分子系および低分子系レジスト[15] に分類できる．JSR の従来の高分子化学増幅系レジストでは，現在 13 nm の解像度が ASML の EUV 露光装置で実現できているが，15 mJ/cm$^2$ 以下の高感度で 3 nm 以下の LER の両条件を満足するに至っていない．また，兵庫県立大学では 2006 年に Fig. 6 に示すような酸発生剤を直接ベースポリマーに合成する酸発生剤内包型化学増幅系レジスト（PAG bounded resist）を提案し[16,17]，世界に先駆けて EUV 光での低 LER を実現の可能性を示した．このレジストの LER は，従来のレジスト（PAG blended resist）の 1/3 程度でかつ露光感度も改善できた．さらなる進展が期待されている．

従来の水酸化テトラメチルアンモニウム（TMAH）の現像液でポジ型を示すレジストを有機現像液に代えることでネガ型に反転でき，富士フィルムの Negative tone development (NTD) process ではこの方式を利用している．このように有機系現像液を用いることで表面張力を低減でき，パタン倒れを抑制することができる．さらに，日産化学工業の Dry development rinse process（DDRP）と有機現像液によるネガ型プロセスを適用することで，パタン倒れが低減でき，最終的にポジ型の高アスペクトな微細パタンが形成できる．

低分子系レジストの中でもナノパーティクル系のレジストは，大きさが 2 nm–3 nm 程度であり，高分子系レジストに比べると一桁程度小さい．このため，高分子系レジストのような分子量分布が無いため化学構造上のバラツキがないことを期待して開発が進められている．しかしながら，材料自身およびプロセス安定性に課題が残っている．

低 LER の実現が大きな課題であるが，深紫外光（DUV）等の EUV 光以外（out of band; OoB）の光が LER に悪影響を及ぼすことが分かっているが，低 LER の低減に向けての OoB 光による影響の定量化が為されていない．そこで，ニュースバル放射光施設の BL03A ビームラインに OoB 光による影響の評価が可能な評価系の構築を進めている．この装置を用いることで OoB 光のレジストへの影響のみでなく，OoB 光による EUV マスクの反射率も測定できるので，OoB 光の影響を受けないマスクおよびレジストの開発にも貢献することができる．

以上述べたように，これまでに EUV レジスト課題解決に向けた様々な取り組みがなされているが，要求仕様を満足するに至っていない．そこで，兵庫県立

大学では原点に立ち帰り，軟 X 線吸収分光法を用いた EUV レジストの反応解析[18,19]を進めている．これまでに従来の化学増幅系レジストでは EUV 光によるイオン化反応だけでなく，励起反応を促進させることでより高感度が実現できることを見出した．さらに，LER について 10 nm 以下のパタン形成では従来の経験則に基づいた評価では実現が困難になっており，LER 低減に向けて兵庫県立大学では高輝度の軟 X 線放射光を用いた新しい分析装置の開発も進めている．

一方で，高感度 EUV レジスト開発では金属レジストが期待されているが，金属のアウトガスによるデバイスプロセスへの汚染の影響が懸念されている．レジストの透過率測定はフォトダイオードに直接レジストを塗布して，レジストの塗布前後での EUV 照射時のフォトダイオードの電流値の差とレジスト膜厚が分かれば，高精度で透過率が計算できる[20]．また，これまでの金属系レジストのアウトガスの研究結果では，金属系レジストの構造にアウトガスは依存しており，現在アウトガスの評価が継続して進められている．カーボンコンタミネーションの評価系を兵庫県立大学と EIDEC との共同で開発した[13]．一般に EUV 光をレジストに照射するとアウトガスが生成され，主にカーボンが多層膜表面に堆積する[11–14]．この装置は *in-situ* の可視の分光エリプソメータ[13]により，カーボンの堆積をリアルタイムで評価ができる装置であり，この装置を用いて各種レジストの評価を進めてきた．

## 5　まとめ

今後の IoT 用各種電子デバイスは低コストおよび低消費電力が要求されており，依然として半導体微細加工が必須である．この中で，7 nm node および 5 nm node では，EUVL が一部のチップメーカーの量産技術に採用されることが発表されている．この中で 7 nm node では開発課題の優先順位は光源，レジスト，ペリクル，マスクの順番であったが，5 nm node ではレジスト，光源，ペリクル，マスクの順番になっている．現在，EUV 光源開発は 250 W でウェハ露光のスループットが 125 枚/時間が実現できている．レジストについては LER の低減が最大の課題になっている．また，マスクについては，ペリクルの開発が進められており，今後の進展が期待されている．さらに，マスク欠陥検査技術開発では各種欠陥検査装置の性能確認が，日本，米国，欧州で精力的に進められている．以上のように，EUVL はロジック系デバイスへの量産適用検討とともに，EUVL 技術開発課題解決に向けて基礎研究が同時に進められているのが現状である．今後の半導体デバイスの技術展開では，これまで以上の高集積化が要求されており，ロジック系デバイスでは半導体微細加工技術は必須の技術である．IRDS によるとリソグラフィー分野では 2024 年まで従来の微細加工技術が，それ以降には 3 次元デバイスへの展開に伴い最小線幅でアスペクト比の高いホールパタンの超微細加工技術が要求される．

## 〈謝　辞〉

マスク欠陥検査技術開発の一部内容は CREST JST の支援を受けて実施した．また，アウトガス評価および一部のマスク欠陥検査技術開発は EIDEC を通じて NEDO から再委託を受けて実施した．さらに，EUV 干渉露光技術開発は科研費により実施した．その他，レジスト材料開発やマスク研究についても多くの企業・大学にご協力を頂いたので感謝する．

## 〈参 考 文 献〉

1) https://www.wsts.org/
2) IRDS roadmap URL: https://irds.ieee.org/
3) H. Kinoshita, K. Kurihara, Y. Ishii, Y. Torii, J. Vac. Sci. Technol. B, 7 (1989) 1648.
4) T. Watanabe, T. Haga, T. Shoki, K. Hamamoto, S. Takada, N. Kazui, S. Kakunai, H. Tsubkino, H. Kinoshita, Proc. SPIE, 5130 (2003) 1005.
5) T. Harada, J. Kishimoto, T. Watanabe, H. Kinoshita, D. G. Lee, J. Vac. Sci. Technol. B, 27 (2009) 3203.
6) T. Harada, Y. Tanaka, T. Watanabe, H. Kinoshita, Y. Usui, T. Amano, J. Vac. Sci. Technol. B, 31 (2013) 06F605.
7) H. Iguchi, H. Hashimoto, M. Kuki, T. Harada, T. Watanabe, H. Kinoshita, Proc. SPIE, 9658 (2015) 965819.
8) T. Watanabe, H. Kinoshita, H. Nii, Y. Li, K. Hamamoto, T. Oshinio, K. Sugisaki, K. Murakami, S. Irie, S. Shirayone, Y. Gomei, S. Okazaki, J. Vac. Sci. Technol. B, 18 (2000) 2905.
9) T. Watanabe, H. Kinoshita, K. Hamamoto, M. Hosoya, T. Shoki, H. Hada, H. Komano, S. Okazaki, Jpn. J. Appl. Phys., 41 (2002) 4105.
10) T. Urayama, T. Watanabe, Y. Yamaguchi, N. Matsuda, Y. Fukushima, T. Iguchi, T. Harada, H. Kinoshita, J. Photopolym Sci. Technol., 24 (2011) 155.

11) T. Watanabe, H. Kinoshita, H. Nii, K. Hamamoto, H. Tsunakino, H. Hada, H. Komano, S. Irie, J. Vac. Sci. Technol. B, 19 (2001) 736.
12) K. R. Dean, I. Nishiyama, H. Oizumi, A. Keen, H. Cao, W. Yueh, T. Watanabe, P. Lacovig, L. Rumiz, G. Denbeaux, J. Simon, Proc. SPIE, 6519 (2007) 65191P.
13) T. Watanabe, Y. Kikuchi, T. Takahashi, K. Katayama, I. Takagi, N. Sugie, H. Tanaka, E. Shiobara, S. Inoue, T. Harada, H. Kinoshita, Jpn. J. Appl. Phys., 52 (2013) 056701.
14) E. Shiobara, I. Takagi, Y. Kikuchi, T. Sasami, S. Minegishi, T. Fujimori, T. Watanabe, T. Harada, H. Kinoshita, S. Inoue, J. Photopolym Sci. Technol., 28 (2015) 103.
15) H. Kudo, N. Niina, T. Sato, H. Oizumi, T. Itani, T. Miura, T. Watanabe, H. Kinoshita, J. Photopolym Sci. Technol., 25 (2012) 587.
16) T. Watanabe, Y. Fukushima, H. Shiotani, M. Hayakawa, S. Ogi, Y. Endo, T. Yamanaka, S. Yusa, H. Kinoshita, J. Photopolym Sci. Technol., 19 (2006) 521.
17) Y. Fukushima, T. Watanabe, R. Ohnishi, H. Kinoshita, S. Suzuki, S. Yusa, Y. Endo, M. Hayakawa, T. Yamanaka, J. Photopolym Sci. Technol., 21 (2008) 465.
18) T. Watanabe, Y. Haruyama, D. Shiono, K. Emura, T. Urayama, T. Harada, H. Kinoshita, J. Photopolym Sci. Technol., 25 (2012) 569.
19) K. Emura, T. Watanabe, M. Yamaguchi, H. Tanino, T. Fukui, D. Shiono, Y. Haruyama, Y. Muramatsu, K. Ohmori, K. Sato, T. Harada, H. Kinoshita, J. Photopolym Sci. Technol., 27 (2014) 631.
20) D. Mamezaki, M. Watanabe, T. Harada, T. Watanabe, J. Photopolym Sci. Technol., 29 (2016) 749.
21) B. Turkot, “Presentation Template Overview of EUV Workshop 2017,” Berkeley, CA, USA, 2017.
22) Roderik. van Es, M. van de Kerkhof, H. Jasper, L. Levasier, R. Peeters,
EUV lithography indu strialization progress, - NXE-3400B scanner for (sub) 7 nm single patterning?,” International Symposium on Extreme Ultraviolet Lithograhy 2017, Monterey, CA, USA, September 2017.
23) K. A. Goldberg, I. Mochi, M. P. Benk, C. Lin, A. Allezy, M. Dickinson, C. W. Cork, J. B. Macdougall, E. H. Anderson, W. Chao, F. Salmassi, E. M. Gullikson, D. Zehm, V. Vytla, W. Cork, J. DePonte, G. Picchi, A. Pekedis, T. Katayanagi, M. G. Jones, E. Martin, P. P. Naulleau, S. B. Rekawa, Proc. SPIE, 8880 (2013) 88800T.
24) V. Auzelyte, C. Dais, P. Farquet, D. Grutzmacher, L. J. Heyderman, F. Luo, S. Olliges, C. Padeste, P. K. Sahoo, T. Thomson, A. Turchanin, C. David, H. H. Solak, J. Micro-Nanolithogr. MEMS MOEMS, 8 (2009) 021204.

〈著 者 略 歴〉

渡邊 健夫： 1990 年 大阪市立大学大学院理学研究科後期博士課程を修了，理学博士号を取得する。1991 年シャープ株式会社中央研究所に入社，DRAM 開発および半導体微細加工技術開発に従事。1996 年より姫路工業大学（現，兵庫県立大学）高度産業科学技術研究所助手，2008 年より同研究所准教授，2015 年 同研究所極端紫外線リソグラフィー研究開発センター長，教授，2016 年より同研究所所長，センター長，教授職を兼務，現在に至る．

特　集　記　事

# 水・アルコール現像性植物由来レジストを用いた環境配慮型極端紫外光と電子線リソグラフィ

富山県立大学 工学部医薬品工学科　竹井 敏

This research aims to develop an eco-friendly, water developable, glucose-based resist materials in Extreme Ultraviolet (EUV) and Electron Beam (EB) lithography that will improve traits of the resist material, does not use alkaline developer agents and organic solvents, for achieving simplification of wastewater treatment processes. The research progress of eco-friendly water and alcohol developable processes were reported. The future generation of development using the eco-friendly, innovative and unique micromachining materials is expected to contribute to the energy efficiency in the manufacturing process of the latest electronic devices and differentiation of electronic technology.

**Keywords:** eco-friendly, lithography, resist, water development, biomass

## 1　はじめに

レジスト材料を用いた微細加工は，次世代半導体製造のみならず，Liquid Crystal Display（LCD），Light Emitting Diode（LED），Nano Electro Mechanical Systems（NEMS），太陽電池，およびバイオセンサー等の広域な産業用途デバイス製造上の重要な基幹技術である．アクリル樹脂やエステル樹脂等の石油由来合成高分子を主成分とする既存レジスト材料の現像液には，アルカリ現像液や有機溶媒が使用されている[1–3]．化学物質の危険性や有害性を記載した「化学品の分類および表示に関する世界調和システム（The Globally Harmonized System of Classification and Labelling of Chemicals, GHS）」によれば，アルカリ現像液や有機溶媒の急性毒性は小さいものの，弱い生態毒性を有することが報告されている[4–6]．有害物質製品規制が欧州を中心に年々強化されており，使用プロセス・廃液処理等の追加対応と共に，毒性の高いアルカリ現像液や有機溶媒の置き換えが要求される事例が想定される．そこで，環境配慮型リソグラフィ技術の開発のため，水やエタノール等で現像できるレジスト・パターニング機能性材料の開発が求められている．水やアルコール現像が可能な水溶性高分子のレジスト材料の研究開発がポリアクリル酸，ポリビニルアルコール，ポリオキサゾリン，ポリエチレングリコール，ポリアクリルアミド，ポリアニリン，およびポリビニルピロリドン等の水溶性高分子（非イオン性）やそれらの共重合体を用いて以前から進められてきたが，水やアルコール現像時のレジスト膨潤によるナノ加工特性の課題が報告され，多くの研究がなされてきた[7–9]．富山県立大学では，水やエタノール現像が可能な水溶性高分子として，セルロース，糖鎖，および絹等の植物生産物を利用した機能性電子材料の研究を進めていた．ここでは，水・エタノール現像性植物由来レジストを用いた環境配慮型 EUV と EB リソグラフィ技術について報告する．

## 2　水・エタノール現像を用いる環境配慮型 EUV と EB リソグラフィ

Figure 1 に水・エタノール現像を用いる環境配慮型リソグラフィプロセスを示す．ハードマスク，およびエッチング転写用下層膜をシリコン・ガラス基板上に成膜後，水・エタノール現像性植物由来レジスト材料をスピンコートした．EB 照射（Elionix ELS-7700T, ELS-100T, Crestec CABL-8000T, または Iwasaki Electric EC90/10/50LS-T）および水またはエタノール現像（23 °C–25 °C, 60 秒）後乾燥させた．水溶性，水・エタノール膨潤性，水・エタノール現像性，および EB

Eco-friendly extreme ultraviolet and electron beam lithography using water and alcohol developable resist derived from biomass

Satoshi Takei (*Department of Pharmaceutical Engineering, Toyama Prefectural University*),
〒939–0398 富山県射水市黒河 5180
TEL: 0766–56–7500, E-mail: takeis@pu-toyama.ac.jp

照射による膜収縮性がセルロース，糖鎖，および絹等の植物生産物の化学構造にどのように影響するか基礎評価すると同時に，環境配慮型リソグラフィプロセスのプロセス条件の最適化を行った．得られた水・エタノール現像性植物由来レジスト材料の表面微細構造を走査型電子顕微鏡（SEM; Zeiss NVision 40）等で観察した．

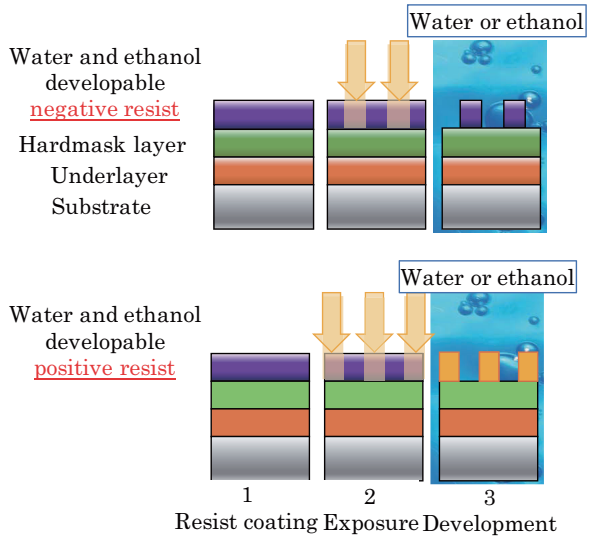



Figure 1. Ecofriendly water and ethanol developable processes in EUV and EB lithography using biomass resist materials.

## 3 水現像性植物由来ネガ型レジスト材料

水溶性工業用デンプンから新規な EUV・EB 反応基を有するグルコース誘導体の合成（酵素分解・抽出・精製・高分子側鎖の置換反応）を行った．Figure 2 に水現像性植物由来ネガ型レジスト材料，ハードマスク材料，エッチング転写用下層膜材料の主成分の化学構造を，およびピラー構造（径：330 nm，ピラー間隔：850 nm）と短冊構造（短辺：290 nm，長辺：2 μm）の加工結果を示す．プラズマエッチング加工性とレジスト材料との塗布・密着性の改善のために，ゾルゲル法による重合したケイ素含有率 24 % のハードマスク材料（TPU-UL）を水現像性植物由来ネガ型レジスト材料の下層膜として使用した．水現像性植物由来ネガ型レジスト材料を用いた EB リソグラフィにより，300 nm 域の微細構造が得られたことが確認できた．EB リソグラフィを使用しているにもかかわらず，水現像性植物由来ネガ型レジスト材料の限界解像度が低い課題があることがわかった．水現像性植物由来ネガ型レジスト材料については，光リソグラフィ用に材料設計を見直し，医薬品や医療周辺材料への表面加工分野への展開

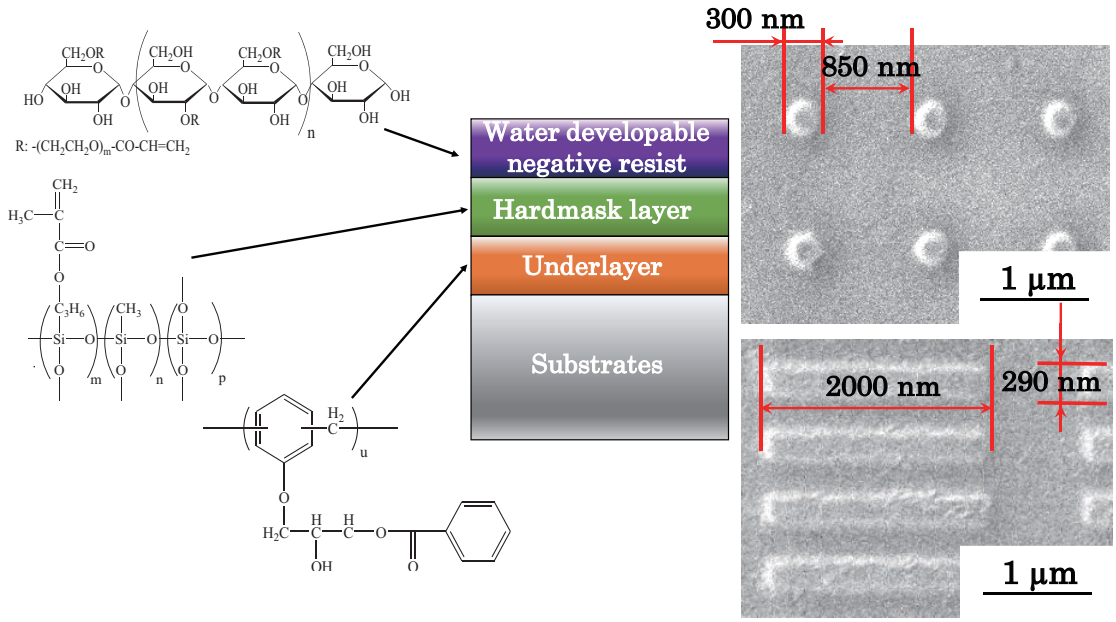



Figure 2. (a) Chemical structures of base polymers in negative-tone biomass resist material, hardmask layer, and underlayer. (b1) Pillar patterns and (b2) line patterns of negative-tone biomass resist material.

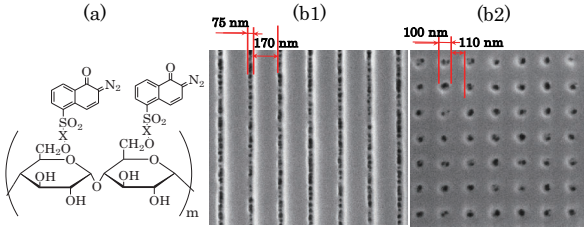



Figure 3. (a) Chemical structure of base polymers in positive-tone biomass resist material. (b1) Line patterns and (b2) hole patterns of positive-tone biomass resist material.

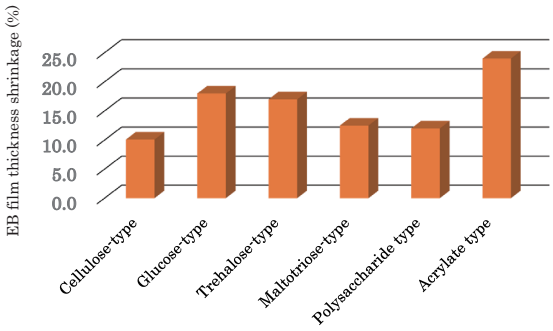



Figure 4. Film shrinkages of thickness of resist materials in EB irradiation processes (Copyright AIP Publishing, Satoshi Takei et al., AIP adv., 5 (2015) 077141).

を進めている．

## 4 アルコール現像性植物由来ポジ型レジスト材料

Figure 3 に水現像性植物由来ポジ型レジスト材料の主成分の化学構造を，およびイソプロピルアルコールにより現像したライン構造（線幅：75 nm，間隔：170 nm）とホール構造（直径：100 nm，間隔：110 nm）の加工結果を示す．水現像性植物由来ポジ型レジスト材料の解像性は，前述の水現像性植物由来ネガ型レジスト材料に比べ優れていることがグルコース骨格系においても明らかになった．

当初グルコース骨格系においても，含水率の増加やレジスト材料の膨張によるパターン寸法の異常が課題であった．この欠点を解消するため，糖鎖誘導体だけでなく，セルロース誘導体などの植物性原料を使用して強度や膜密度を高め，適切な分子量と水酸基の濃度

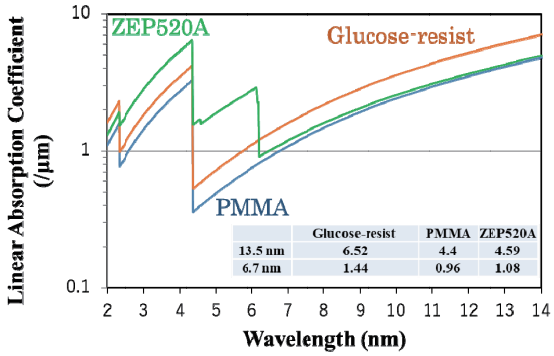



Figure 5. Calculated linear absorption coefficients of resist materials at EUV exposure wavelengths of 6.7 nm and 13.5 nm (Copyright The Japan Society of Applied Physics, Satoshi Takei et al., Jpn. J. Appl. Phys., 53 (2014) 116505).

の最適化と共に，水現像性促進剤の混合が有効であることがわかった．現像促進剤を用いたエタノール現像性植物由来ポジ型レジスト材料においては，量産性には課題があるが線幅 40 nm のライン構造に成功している[10]．Figure 4 に EB 照射による水現像性植物由来レジスト材料の膜収縮率と化学構造との関係を報告している[11]．レジスト材料の膜収縮率は，EB 照射前後のレジスト膜厚を非接触干渉膜厚計 Fimetrics F20-UV により測定し，膜厚の変化量から計算している．EB 照射装置は，Crestec CABL-8000TPU を使用し，加速電圧を 30 kV，照射量を 19 μC/cm$^2$ とした．環状構造を有しないアクリル樹脂を主成分とする既存レジスト材料の膜収縮率は，20 % 以上であった．しかしながら，グルコース骨格を有する水現像性植物由来レジスト材料の膜収縮率は 20 % 以下であり，良好なレジスト特性を示すことを紹介する．

Figure 5 に，グルコース骨格の水現像性植物由来レジスト材料，ポリメチルメタクリレート（PMMA），および市販レジスト材料 Zeon ZEP520A の線吸収係数に対する波長依存性の計算結果を引用する[12,13]．線吸収係数は，NIST database 66 により計算された．水現像性植物由来ネガ型レジスト材料の波長 6.7 nm と 13.5 nm の線吸収係数は，PMMA や ZEP520A のそれらより大きいことがわかる．水現像性植物由来レジスト材料は，EB リソグラフィだけでなく，EUV リソグラフィにおいても高感度が期待できると思われる．

### 4.1 まとめとこれから

毒性の高いアルカリ現像液や有機溶媒を不要とする，水・アルコール現像性植物由来レジストを用いた環境配慮型 EUV と EB リソグラフィの研究進捗を示した．環境に配慮した水溶性糖鎖化合物の分子設計の解明により，競争著しい電子デバイス産業の差別化，モアザンムーア（More than Moore）の新用途展開を目指す．富山県立大学と富山県が進める環境配慮型リソグラフィ技術と機能性電子材料の創出により，半導体や Nano Electro Mechanical Systems（NMES）以外の新たな用途開発を産学連携により加速していく計画である．

## 〈謝　辞〉

本稿で紹介した研究は，JSPS 科研費 JP16K04920, JSPS 二国間交流事業オープンパートナーシップ共同研究（米国・ベルギー），JST 研究成果最適展開支援プログラム A-STEP，JST 地域産学バリュープログラム，文部科学省「ナノテクノロジープラットフォーム」，文部科学省 地域イノベーション戦略支援プログラム「とやまナノテクコネクト・次世代ものづくり創出プログラム」，および公益財団法人村田学術振興財団の支援により実施された．

## 〈参 考 文 献〉

1) N. Hayashi, K. Tadano, T. Tanaka, H. Shiraishi, T. Ueno, T. Iwayanagi, Jpn. J. Appl. Phys. 29(11R) (1990) 2632.
2) A. Grigorescu, M. Van der Krogt, C. Hagen, P. Kruit, Microelectron. Eng., 84 (2007) 822.
3) T. Kumada, S. Kubota, H. Koezuk, T. Hanawa, H. Morimoto, J. Photopolym Sci. Technol., 6 (1993) 571.
4) C. L. Wu, S. B. Su, J. L. Chen, H. J. Lin, H. R. Guo, J. Occup. Health, 50 (2008) 99.
5) J. Huang, K. S. Wang, C. Liang, J. Environ. Sci. Health Part A-Toxic/Hazard. Subst. Environ. Eng., 52 (2017) 930.
6) T. Danshita, Y. Miyaoka, N. Matsuura, H. Sumino, T. Yamaguchi, K. Syutsubo, J. Environ. Sci. Health Part A-Toxic/Hazard. Subst. Environ. Eng., 53 (2018) 1015.
7) J. B. Kim, J. H. Jang, J. S. Ko, J. H. Choi, K. K. Lee, Macromol. Rapid Commun., 24 (2003) 879.
8) T. Fujimori, T. Tsuchihashi, T. Itani, J. Photopolym Sci. Technol., 28 (2015) 485.
9) X. Chen, R. Palmer, A. Robinson, Nanotechnology, 19 (2008) 275308.
10) S. Takei, N. Sugino, M. Hanabata, A. Oshima, M. Kashiwakura, T. Kozawa, S. Tagawa, Appl. Phys. Express, 10 (2017) 076502.
11) S. Takei, H. Maki, K. Sugahara, K. Ito, M. Hanabata, AIP Adv., 5 (2015) 077141.
12) T. G. Oyama, A. Oshima, M. Washio, S. Tagawa, J. Vac. Sci. Technol. B, 31 (2013) 041604.
13) S. Takei, A. Oshima, T. G. Oyama, K. Ito, K. Sugahara, M. Kashiwakura, T. Kozawa, S. Tagawa, M. Hanabata, Jpn. J. Appl. Phys., 53 (2014) 116505.

## 〈著 者 略 歴〉

竹井 敏：京都工芸繊維大学大学院工芸科学研究科高分子学専攻博士前期課程修了，日産化学工業（株）中央研究所（平成 10 年 4 月–平成 13 年 8 月），Interuniversity Microelectronics Center, IMEC/Belgium（平成 13 年 9 月–平成 14 年 9 月），日産化学工業（株）電子材料研究所（平成 14 年 10 月–平成 22 年 3 月）．その間，大阪大学大学院基礎工学研究科物質創成専攻博士後期課程修了（平成 21 年 3 月），The University of Texas at Austin, U.S.A., Department of Chemistry and Biochemistry, Prof. C. Grant Willson（平成 21 年 5 月–平成 22 年 3 月），大阪大学大学院基礎工学研究科招聘教員（平成 21 年 12 月–），富山県立大学機械システム工学科准教授（平成 22 年 4 月–平成 29 年 3 月），同大学医薬品工学科教授（平成 29 年 4 月–），専門は機能性電子材料・リソグラフィ材料の開発．研究で行き詰ったときは，一人で考えるよりもキーとなる技術を持つ人と情報交換することにしている．

展　望・解　説

# 放射線物理化学過程に関する最近の進展（後編）

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構
甲斐 健師*
国立研究開発法人 量子科学技術研究開発機構
横谷 明徳, 藤井 健太郎, 渡邊 立子

Although most of radiation damage to genomic DNA could be rendered harmless using repair enzymes in a living cell, a certain fraction of the damage is persistent resulting in serious genetic effects, such as mutation induction. In order to understand the mechanisms of the deleterious DNA damage formation in terms of its earliest physical stage at the radiation track end, dynamics of low energy electrons were investigated using a dynamic Monte Carlo code. The primary incident (1 keV) electrons multiply collide within 1 nm (equivalent to three DNA-base-pairs, 3bp). The secondary electrons are mainly distributed within approximately 10 nm from their parent cations. DNA damage sites comprising multiple nucleobase lesions or single strand breaks can therefore be formed by multiple collisions of these electrons within 3 bp. This multiple damage site is hardly processed by base excision repair enzymes. However, pre-hydrated electrons can also be produced resulting in an additional base lesion (or a strand break) more than 3 bp away from the multi-damage site. These damage sites may be finally converted into a double strand break (DSB) when base excision enzymes process the additional base lesions. This DSB includes another base lesion(s) at their termini, and may introduce miss-rejoining by DSB repair enzymes, and hence may result in biological effects such as mutation in surviving cells.

**Keywords:** electron deceleration in water, dynamic Monte Carlo method, dissociative electron transfer, clustered DNA damage.

Recent progress of radiation physicochemical process（third part）
Takeshi Kai* (*Japan Atomic Energy Agency*), Akinari Yokoya, Kentaro Fujii and Ritsuko Watanabe (*National institutes for Quantum and Radiological Science and Technology*),
〒319–1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2–4
TEL: 029–282–5583, E-mail: kai.takeshi@jaea.go.jp

## 1　はじめに

細胞に高エネルギーの 1 次電離放射線を照射すると，1 次電離放射線の種類に関わらず，高エネルギー電子線が生成される．この高エネルギー電子線は線エネルギー付与率が低く，細胞中に無数の半径 10 nm 程度の孤立スパーを生成し，その微小空間内に 2 次生成物である電離した低エネルギー 2 次電子やフリーラジカルを生成する．これらの 1 次電離放射線，および 2 次生成物が細胞中の DNA と相互作用すると，DNA の鎖切断，塩基損傷，AP（apurinic/apyrimidinic）サイトのような不可逆的な化学変化が生成される．これらの損傷のうちのほとんどは細胞が持つ DNA 修復機能により除去される．しかし，電子線のトラックエンド近傍においては，電離や電子的励起が DNA 上の数 nm 程度の領域以内に複数生じるため，DNA の損傷も複雑になると考えられる．このような複雑な損傷は，クラスター DNA 損傷と呼ばれ[1,2]，細胞の持つ修復機能により正常に除去されない可能性が高く，最終的に染色体異常や細胞死のような生物影響を誘発する要因の一つになると考えられている．

人工的に合成した DNA 損傷を利用した in vitro 実験により，クラスター DNA 損傷による細胞の生物影響は，損傷の種類や空間分布の僅かな差にも強く依存することがわかっている[3]．しかしながら，実際の放射線照射実験では，クラスター DNA 損傷自体の検出は難しく，さらに数 nm 以内に複数個生成されている損傷を種類別に厳密に分類することはきわめて困難である．そのため，モデルシミュレーションによる DNA 損傷の高分解能推定が期待され，これまでにも，損傷

分布の詳細解析は行われている[4]．しかしながら，モデルシミュレーションにおいても，すべての放射線作用を原理的に解いているわけではなく，さらに，放射線と DNA 構成分子との衝突断面積も完備されていないことから，放射線と DNA の相互作用については，基本的に水の断面積が代用されてきた[5–7]．また，物理化学過程については，基本的にモデル化やパラメータ化がなされている[6,8,9]．このように，実験とモデルシミュレーション両方の側面において，精緻化の余地がある．

水の放射線分解によって生じたフリーラジカルによる DNA 損傷は，ナノからミリ秒オーダーで誘発され，その中でも，OH ラジカルによる DNA 損傷が最も多いと考えられてきた．近年になり，フォトリシス法を利用した実験により，水和前電子も DNA 損傷を誘発することが報告された[10]．しかも，水和前電子による DNA 損傷収率は OH ラジカルによる収率の 2 倍程度であるとの報告もなされている[11]．水和前電子が DNA 構成分子を分解する現象は解離性電子移行（DET: Dissociative Electron Transfer）と呼ばれ，水中の DNA 構成分子の解離エネルギーが，水和前電子の束縛エネルギーとほぼ同程度であるために誘発されると考えられている．従来の飛跡構造コードには電子的励起と電離は考慮されているが，2000 年以降注目されている解離性電子付着（DEA: Dissociative Electron Attachment）[12] や DET は考慮されていない[4–9]．低エネルギー 2 次電子による減速過程が強く関与するエネルギー付与分布や水和前電子が生成される初期分布の解明は，DNA 損傷推定の精度を向上させるために非常に重要であると考えられるが，未だに多くの不確定要素が存在する．

これらの背景により，低エネルギー 2 次電子の放射線作用について一連のシミュレーション研究を行うために，まず，低エネルギー領域における液相の回転・フォノン励起の断面積，阻止能およびエネルギー損失率を計算した[13]．本研究の液相の計算結果は気相・アモルファスアイスの先行研究の結果[14,15] と検証され，水中における電子の熱化過程を解明するために有用であることを本稿前編で解説した[16]．次の段階として，幅広い電子エネルギー領域において，水中に照射された電子の熱化距離を計算し，実験結果[17,18] と比較検討することで，現在，開発している電子挙動計算コードの有用性を示した[19]．また，本研究の計算結果から，電子の熱平衡化と水和前過程は，ほぼ同時に進行している可能性も予測された．これらの成果は，水中における電子の熱化過程を理解するための重要な基礎的知見になり得ることを本稿中編で解説した[20]．

さらに，これまで開発してきた計算コードを拡張し，親カチオンの作るクーロン場を考慮することで，電離した低エネルギー 2 次電子の挙動が計算可能となり，孤立スパーにおける低エネルギー 2 次電子の放射線作用について詳しく調べた[21–24]．特に，水中における電子線トラックエンドに注目し，水中における 1 keV 電子線の挙動および放射線分解作用を実験結果との比較検討を含め詳しく調べた[25]．それらの結果をもとに，DNA のクラスター化の度合い，すなわち 3 塩基対内（1 nm 以内）に複数の損傷が誘発され得る頻度を評価すると共に，DEA や DET が関与するクラスター損傷生成機構について予測した．これらについて，DNA 修復の作用機序との関連から予測されるモデル[25] を本稿後編で解説する．

## 2　水中における電子の動力学計算法

本稿前編[16] では液相における電子衝突断面積の計算法について解説し，本稿中編[20] では時間に依存したモンテカルロ法を利用した水中における電子の減速過程について解説した．本稿後編では，水中における電子の動力学計算法について解説する．従来のモデルシミュレーションでは，物理過程と物理化学過程を分割するが，本研究では，これらを分割せずに，同様の計算手法を用いる．また，媒質の水は密度が一定な連続体であると仮定し，入射電子や 2 次電子は粒子とみなす．これらの電子が水中に生じたクーロン場の中を，分子との衝突を伴いながら時々刻々と運動する様子を動力学計算する．本稿中編で述べたように，本計算コードでは，以下の条件を満たしたときに，電子と水が相互作用するとしている[25]．

$$1 - \exp\left(-\frac{\Delta s}{\lambda(E)}\right) > k, \tag{1}$$

ここで，$E$ は電子のエネルギー，$\lambda(E)$ は平均自由行程，$k$ は一様乱数である．$\Delta s$ は $\Delta s = v\Delta t$，$v$ は電子の速度の絶対値，微小時間刻み $\Delta t$ は 1 アト秒（as）としている．つまり，$\Delta t$ ごとに（1）式の条件を満たすか判定し，条件が満たされた場合，その時刻に電子と水が衝突した位置が特定される．その後，どの分子過程が誘発されるか決定するために，各分子過程の断面積データをもとに，一様乱数を用いて決定する．もし，電離が誘発された場合，その電離位置から 2 次電子が放出され，同じ位置に親カチオンのクーロン場が生じる．

本研究では，親カチオンおよび電子を正と負の電荷 $e$ を持つ半径 $a$ の粒子であると仮定した．このとき親カチオンの内部および外部のポテンシャルは Poisson

方程式より以下のように表される[25]．

$$\Phi(r) = \frac{1}{4\pi\epsilon}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{e}{|\,\mathbf{r}-\mathbf{r}'\,|}\mathrm{d}\mathbf{r}' \qquad (2)$$

$$= \begin{cases} \frac{e}{4\pi\epsilon r} & (r \geq a), \\ \frac{e(3a^2-r^2)}{8\pi\epsilon a^3} & (r < a), \end{cases}$$

ここで，$r$ は親カチオンからの距離で，粒子半径 $a$ は 0.15 nm とした[21]．(2) 式の $\epsilon$ は水の誘電率であり，真空の誘電率を $\epsilon_0$ とすると，水の比誘電率 $\epsilon_r$ は $\epsilon/\epsilon_0$ により与えられる．この比誘電率 $\epsilon_r$ は水の電子分極，イオン分極，および配向分極により時間と共に変化し，配向分極が完了すると 80 程度になる．そのため，水中で生成されたクーロン場はこれらの分極効果により徐々に遮蔽されていく．本研究では，本稿前編の（5）式を用い，比誘電率の時間発展を求めた．本稿前編の（5）式の元となる Yada らの論文では[26]，誘電関数は光の周波数で与えられているが，本研究では光の周波数を時間に変換している．この結果から，100 フェムト秒（fs）以内では電子分極のみ有効であり，比誘電率は 2 程度であるが，100 fs を超えるとイオン分極も寄与し始め，1 ピコ秒（ps）で比誘電率は 4 程度にまで上昇する．すなわち，放射線化学過程の時間スケールになると漸く 80 程度に到達する．

水分子内部の電子が電離する時，付与されたエネルギーからイオン化エネルギーを差し引いた分を，2 次電子の運動エネルギー $E_0$ とする．本研究では，親カチオンのポテンシャルを（2）式で仮定したため，イオン化エネルギーを（2）式の中心である $\Phi(0)$ とした．但し，入射電子は $E_0$ と正確なイオン化エネルギーを足し合わせた分のエネルギーを損失するとしている．2 次電子の初期エネルギーを与える必要があるが，その値 $E_{\mathrm{eject}}$ は，（3）式として与える[21]．

$$E_{\mathrm{eject}} = E_0 + \Phi(0), \qquad (3)$$

ここで，$\Phi(0)$ の値は，(2) 式の粒子半径 $a$ を 0.15 nm としたため 7.2 eV となる．このエネルギーは，水の電子的励起の閾値以下となるため，$E_{\mathrm{eject}}$ の内，代用したイオン化エネルギー $\Phi(0)$ 分のエネルギーは，(2) 式のポテンシャルを乗り越えるためだけに瞬時に消費され，電離した 2 次電子による電子的励起・電離は残りの運動エネルギー $E_0$ により誘発されることになる．また $E_0$ は衝突する電子のエネルギーに依存するため，Kim らにより求められた一重微分断面積の式を利用し[27]，その結果をもとに一様乱数を用いてサンプリングすることにより決定する．

2 次電子は（3）式のように初期エネルギーが与えられ，(2) 式のポテンシャルの中心から放出されるため，2 次電子は物質と衝突しない限り，無限遠まで飛んで行く．十分に希薄な気相の場合はこのような状況になり，親カチオンから無限遠の位置で，2 次電子の運動エネルギー $E_0$ と $E_{\mathrm{eject}}$ は等しくなる．しかしながら，媒質中で生じた 2 次電子は，媒質分子との衝突を繰り返すことにより，親カチオン近傍でエネルギーを損失し，親カチオンのクーロン場に再捕獲される可能性がある．このような状況をシミュレーションで再現するため，本研究では，(4) 式のニュートン方程式を用いて電子の動力学計算を行う．

$$m\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\mathbf{v}_l = \sum_{j\neq l} e\mathbf{E}_{lj}, \quad \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\mathbf{x}_l = \mathbf{v}_l, \qquad (4)$$

ここで，

$$\mathbf{E}_{lj} = \pm\frac{e}{4\pi\epsilon r_{lj}^3}\mathbf{r}_{lj} \quad (r_{lj} \geq a), \ \mathbf{E}_{lj} = \pm\frac{e}{4\pi\epsilon a^3}\mathbf{r}_{lj} \quad (r_{lj} < a),$$

ここで，$\mathbf{v}_l$ および $\mathbf{x}_l$ は $l$ 番目の電子の速度および位置である．インデックス $j$ は $l$ 番目の電子以外の電子を示す．また，$\mathbf{E}_{lj}$ は $j$ 番目の電子・親カチオンが位置 $\mathbf{x}_l$ につくる電場である．また，$r_{lj}(=|\,\mathbf{r}_{lj}\,|)$ は $l$ 番目の電子（又は親カチオン）と $j$ 番目の電子（又は親カチオン）の距離（$\mathbf{r}_{lj}$ はそのベクトル）を表す．さらに $m$ は電子の質量である．微小時間刻み $\Delta t$（1 as）ごとに，（1）式の判定を行い，さらに（4）式のニュートン方程式を解くことで，電子は水分子との衝突，さらに他の電子や親カチオンが作る電場の影響を受けながら運動していく様子を時々刻々と動力学計算することが可能になる．また，本研究では，電子以外の粒子は電子に比べて十分に重いため動かないと仮定した．本計算コードのフローチャートを Fig. 1 に示す．

本研究では，細胞中における電子線のトラックエンドに注目したため，原点から z 軸方向に 1 keV の電子を照射した．水中における DNA 標的を模擬するため，Fig. 1 に示した断面が 2 nm × 2 nm で y 軸方向に伸びた長方形の仮想的な DNA 分子領域を考えた．実際の DNA の半径は約 1 nm であるため，直線状の DNA はこの領域の中に丁度納まる．また，この仮想 DNA 分子領域を y 軸に対して 1 nm の空間メッシュで区切った．この微小体積（2 nm×1 nm×2 nm）中には，3 塩基対分の DNA 分子が含まれていることに相当する．この DNA を模擬した標的は原点から 40 nm 離れた位置

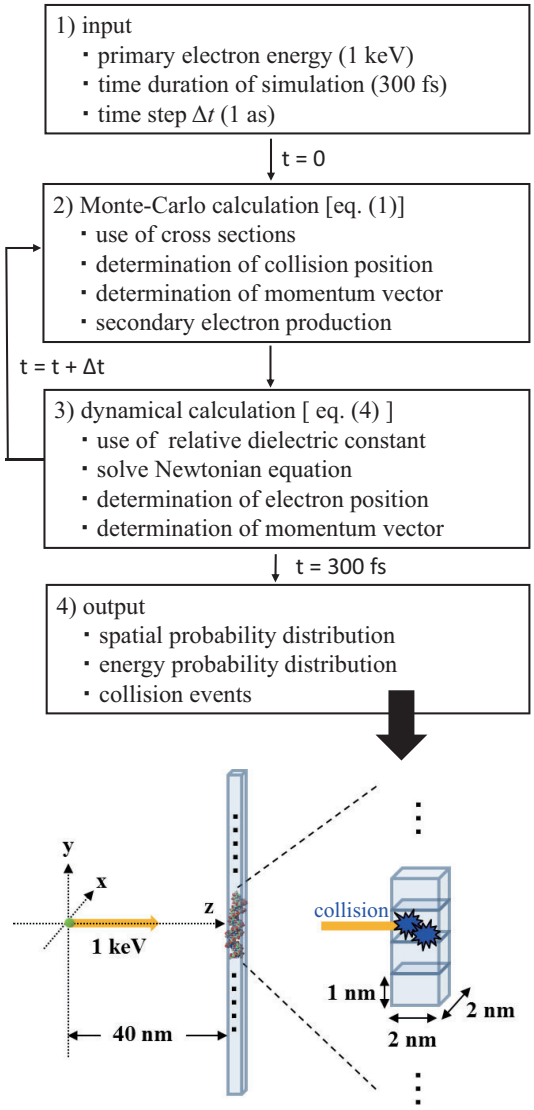



Figure 1. Flow chart of a dynamic Monte Carlo code and schematic illustration of a simulated system of DNA damage at a primary electron track end. Reproduced from Ref 25 with permission from the PCCP Owner Societies.

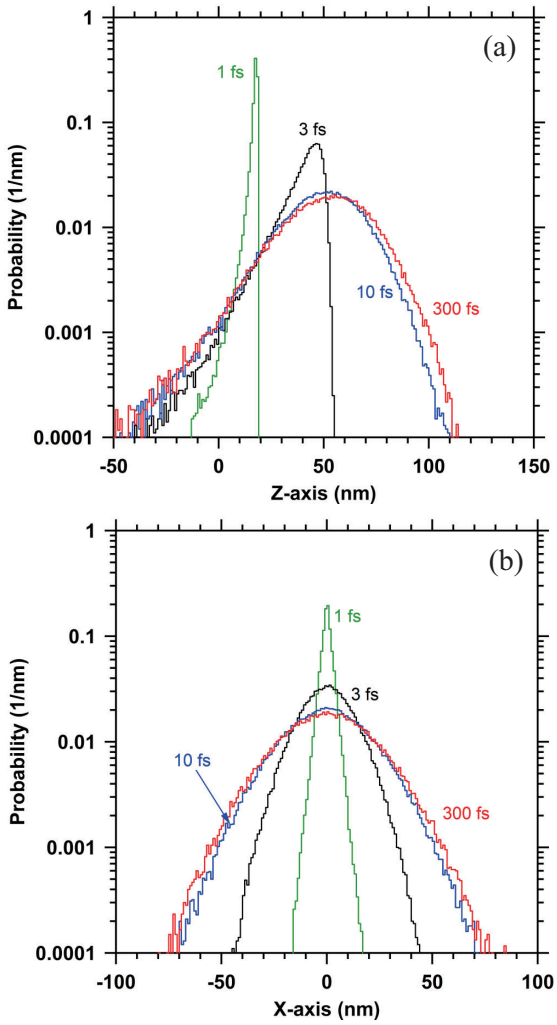



Figure 2. Temporal evolution of spatial probability distributions of a primary electron at the energy of 1 keV. (a) shows the distribution for z-axis, and the probabilities for x- and y-axes have been integrated. (b) shows the distribution for x-axis, and the probabilities for y- and z-axes have been integrated.Reproduced from Ref. 25 with permission from the PCCP Owner Societies.

に配置した．本研究では，1 次電子線の空間確率分布の時間発展を計算した．また，2 次電子については空間確率分布とエネルギー確率分布の時間発展を計算した．さらに，電離，電子的励起，解離性電子付着が誘発される空間分布を計算した．今日まで，DNA 構成分子における電子衝突断面積として，気相における電離断面積のデータは報告されているが[28]，水中に配置された DNA 構成分子の電離・電子的励起断面積は報告されていない．この気相における DNA 構成分子の全電離断面積は，液体水における電離断面積の 1.4 倍程度である．そのため，水の放射線分解の計算結果をもとにした DNA 損傷の推定が行われている[4–9]．これらの理由から，本研究でも同様に，水の放射線分解の計

算結果をもとに DNA 損傷の推定を実施する．本研究では，一様乱数を用いた計算を実施しているため，これらの計算値の統計平均が得られるように，乱数の異なる同様の計算を最大 100 万回繰り返した．

## 3　結果と議論

1 keV の 1 次電子線の時間発展に伴う空間確率分布の計算結果を Fig. 2(a) および 2(b) 示す．Figure 2(a) は電子線の z 軸方向への分布を示し，その空間確率分布は x 軸および y 軸成分について積分されている．Figure 2(b)，x 軸方向の分布を示しており，その空間確率分布は y 軸および z 軸成分について積分されている．これらの結果から，z 軸方向の電子輸送について，電子が照射されてから 10 fs 程度までは数 10 nm の領域において輸送されている様子が容易に分かる．しかしながら，10 fs 以降になると電子は極端に広がらなくなり，50 nm 程度の領域に分布することが示された．また，x 軸方向についても同様で，1 次電子線の空間確率分布は z 軸に垂直方向に数 10 nm 程度に広がることが示された．

Figure 3 に 2 次電子の空間確率分布の計算結果を示す．本計算では極座標 $\Delta r \cdot \Delta\Omega$ 採用し，Fig. 3 の横軸はその動径メッシュ $\Delta r$（0.1 nm）ごとの確率が示されており，これは親カチオンから 2 次電子までの直線距離を示している．角度メッシュ $\Delta\Omega$ については，$\Delta r$ ごとに積分されている．これらの結果から，電離した 2 次電子は数 100 fs で親カチオンから約 10 nm 離れた位置に分布しやすいことが示された．電子の空間確率分布を Ritchie et al の経験式[29] から求めると，親カチオン近傍で過少評価し，親カチオン遠方で過大評価する傾向が示された．電離から 100 fs 経過すると，親カチオンへ帰還する電子も現れる．特に親カチオンのごく近傍である 1 nm 以内に注目すると，300 fs 後に電子線トラックエンドで発生した全電子のうちの約 5% が帰還し存在する．

2 次電子のエネルギー確率分布の時間発展の計算結果を Fig. 4 に示す．これらの結果から，1 次電子入射直後の 10 fs 程度においても 0.1 eV 以下の極低エネルギーを持つ電子が多く存在し，時間が経つにつれこれらの確率は増加していき，300 fs 後になると 0.1 eV 以下の極低エネルギー成分は 10% 以上にもなることが

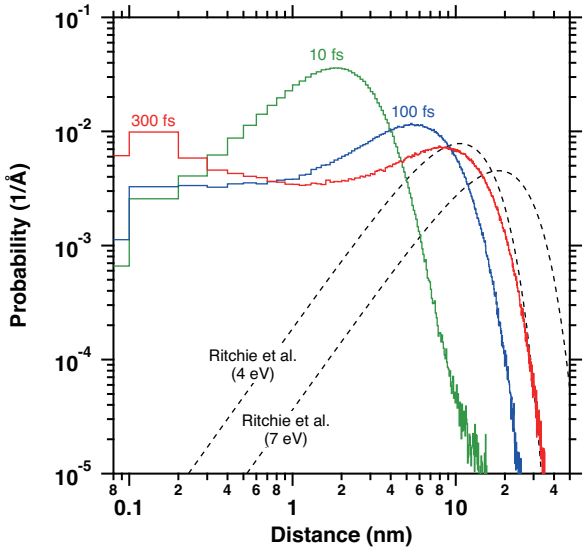



Figure 3.　Temporal evolution of spatial probability distributions of the secondary electrons at 10, 100, and 300 fs after ionization. The probabilities for solid angle have been integrated. The dashed curve indicates the results for the previous method for 4 and 7 eV electrons[29]. Reproduced from Ref. 25 with permission from the PCCP Owner Societies.

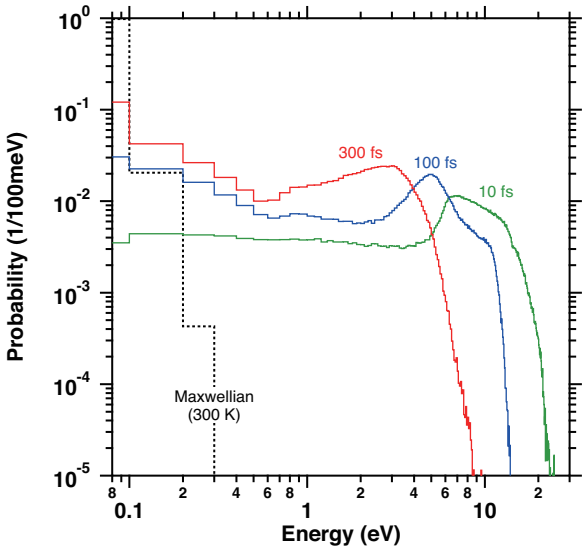



Figure 4.　Temporal evolution of energy distributions of secondary electrons in water. The solid line illustrates calculations for 10 (green), 100 (blue) and 300 (red) fs. The dashed line indicates a Maxwellian distribution at 300 K. Reproduced from Ref. 25 with permission from the PCCP Owner Societies.

示された．この時間スケールはフォトリシス法・パルスラジオリシス法による実験において水和前電子が測定される時間スケールに大体等しい[30,31]．今日まで，電子の熱化は少なくとも 100 fs 以内に完了すると考えられてきた[32]．しかしながら，水中で電離した 2 次電子は，電離から数 100 fs 経過しても非熱平衡分布を示し，本稿中編で解説したように，水中における電子の熱化と水和前電子の生成は同時に進行している可能性が示された．

Figure 5(a) および (b) に，1 keV の 1 次電子と電離により生じた 2 次電子により誘発された電離，電子的励起および解離性電子付着の衝突数の空間分布を示す．これらの結果は，電子が水中に照射されてから 300 fs 間の各分子過程における衝突数の積算値を表している．Figure 5(a) は z 軸方向の衝突数分布を示し，その衝突数分布は x 軸および y 軸成分について積分されている．Figure 5(b) は，x 軸方向の衝突数分布を示しており，その衝突数分布は y 軸および z 軸成分について積分されている．これらの計算結果から，電子的励起が最も誘発されやすく，電離，解離性電子付着の順に誘発されやすい．また，z 軸近傍でこれらの分子過程は誘発されやすく，入射位置から約 40 nm 離れた位置で上記の分子過程が最も誘発されやすい結果が得られた．

ここから，DNA 損傷の半定量的な推定を試みる．Figure 1 に示した微小体積中における電離，電子的励起および解離性電子付着の 1 回衝突（DNA 損傷に対応）と 2 回以上衝突（DNA 損傷がクラスター化して生成することに対応）が誘発される頻度について調べた．その結果を Fig. 6 に示す．この結果から，1 keV 電子の場合，単独損傷が最も誘発される頻度は $6.9\times10^{-3}$ 回で，クラスター損傷が最も誘発される頻度は，$3.4\times10^{-3}$ (2 lesions)，$2.0\times10^{-3}$ (3 lesions)，$1.2\times10^{-3}$ (4 lesions) 回であり，単独損傷（$6.9\times10^{-3}$ 回）とクラスター損傷（total: $6.6\times10^{-3}$ 回）は同程度であることが示された．これらの結果は，DNA および DNA に結合している水和水のイオン化とその後の電子放出が起点となる DNA 損傷過程（いわゆる直接効果）においては，全ての DNA 損傷に占めるクラスター損傷の割合がきわめて大きいことを示している．これは，DNA から離れた場所で生じた拡散性の OH ラジカル等により間接的に生じた DNA 損傷（いわゆる間接効果）のほとんどが単独損傷であることとは非常に対照的である．

放射線による DNA 損傷を検出する実験では，一本鎖切断（SSB: Single Strand Break）や単独の塩基損傷が主に検出され，本研究のようにラジカル反応を除去

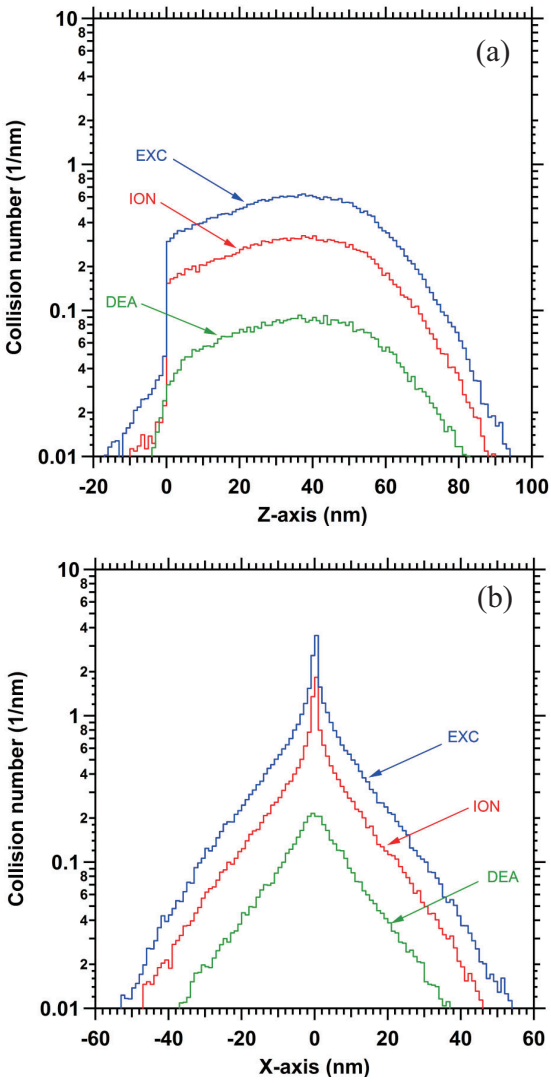



Figure 5. Collision number distribution at a primary electron track end. (a) shows the distribution for z-axis, and the probabilities for x-axis and y-axis are integrated. (b) shows the distribution for x-axis, and the probabilities for y-axis and z-axis are integrated. Reproduced from Ref. 25 with permission from the PCCP Owner Societies.

した条件下では，その 1/10 程度の収率で DSB や損傷の相対距離が 1 nm–10 nm のクラスター DNA 損傷が検出される．DNA の 3 塩基対以内（1 nm）にクラスター DNA 損傷が生成された場合，化学的な分析手法によりそれを検出することは困難であることが，実験技術上の問題として指摘されてきた[33–35]．本研究において，1 keV 電子の場合，最もエネルギー付与率が高

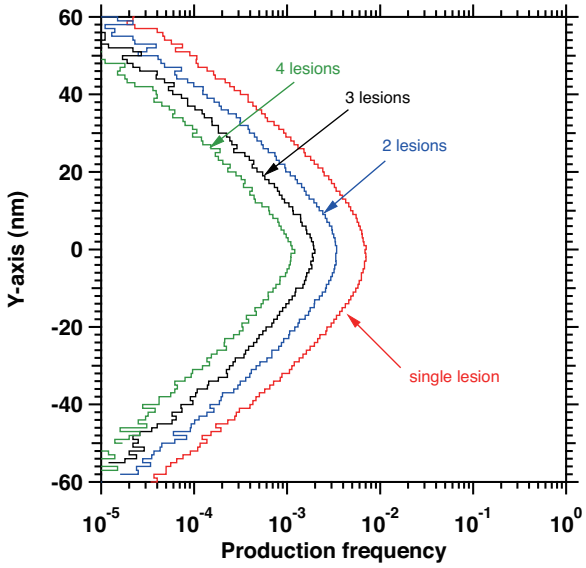



Figure 6. Production frequencies of single and multi damage in three base pairs of DNA assumed in this study at the primary electron energy of 1 keV. The red line indicates the formation of single lesion, the blue line indicates the formation of 2 lesions, the black line indicates the formation of 3 lesions, and the green line indicates the formation of 4 lesions. Reproduced from Ref. 25 with permission from the PCCP Owner Societies.

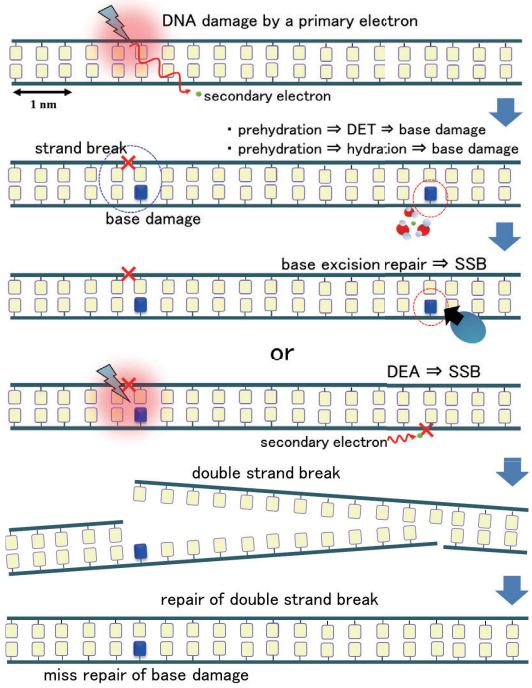



Figure 7. Schematic illustration of formation of complex double strand break predicted by this study. Reproduced from Ref. 25 with permission from the PCCP Owner Societies.

い領域における損傷収率を計算したところ，DNA の 3 塩基対以内に複数損傷がクラスター化して生成する頻度は単独損傷の生成頻度と同程度誘であることが示された．また，DNA 構成分子の電離断面積に注目すると，DNA 主鎖の断面積は塩基の断面積の 1.5 倍程度である[28]．その一方，DEA は DNA 鎖切断を，DET は塩基損傷を誘発しやすい[10,12]．これらのことから，Fig. 7 のようなクラスター損傷の生成様態が推測された．

電子線がトラックエンドで DNA 中を通過すると，電離や電子的励起により，半径 1 nm（3 塩基対）以内に SSB や塩基損傷からなるクラスター損傷が形成される．一方，2 次電子はさらに周囲の水分子と相互作用を繰り返し，10 nm 程度の比較的離れた場所で水和前電子になり，DET により塩基損傷を誘発する．3 塩基対以内に密集した損傷部位は DNA の立体構造を歪めるため，修復酵素はこれらを修復できなくなる可能性が高い．しかしながら，DET により生成された塩基損傷は，修復酵素により速やかに除去され，DNA 主鎖に新たな切れ込みが入る．この新たに生じた SSB が，最初の SSB の反対鎖（相補鎖）に生じた場合，DNA の熱運動のため二重らせんが分離し二本鎖切断（DSB: Double Strand Break）が生じる．また，2 次電子が DEA により DNA 鎖切断を誘発する可能もある．この場合も同様に DSB が生じる．DSB が修復されない場合，細胞は死に至る重篤な損傷となるが，通常細胞内では，DSB の修復を担う様々なタンパク質が協同して働くことで，その大部分は再結合することが実験的にわかっている．しかし，たとえこの DSB が修復された場合でも，塩基損傷などが残るため生体の正確な遺伝子情報が失われ，突然変異や発がんに繋がる可能性が考えられる．

通常，細胞内では DSB は酵素的な修復経路により修復を受けるが，エネルギー付与率が高く，DSB 末端に除去し切れなかった塩基損傷や AP サイトが伴われている場合，修復不可もしくは誤修復により DNA に不正確な遺伝情報が再配置される可能性がある．これまで人工合成 DNA 損傷を利用した損傷修復研究の成

果から，DNA の 3 塩基対以内に塩基損傷が複数生成した場合，塩基除去修復効率が低下し突然変異が誘発されると考えられてきた．しかしながら，放射線作用による DNA 損傷修復機構全体を俯瞰した場合，修復されなかったクラスター DNA 損傷の収量はごくわずかになり，放射線により直接生成された DSB，および修復除去作用の結果生成された DSB の損傷収率の方が圧倒的に多くなる．これらの DSB は更なる修復作用を受けるが，万一 DSB 末端に塩基損傷などが残されるようなことがあると，突然変異や発がんに繋がる遺伝的不安定性のような細胞分裂を経ても残存する継世代の生物影響が誘発される可能性が高くなると推測される．

## 4　本稿全体のまとめおよび今後の展開

本稿前編において[16]，幅広い低エネルギー領域（≤ 100 eV）における，液相の回転励起およびフォノン励起における断面積，阻止能およびエネルギー損失率の計算結果を示した．本研究では水に注目したが，計算手法自体は一般的なものであるため，光学的誘電関数が既知の様々な液体媒質への適用も期待される．本研究の液相の計算結果は気相・アモルファスアイスの先行研究の結果と検証され，これらの基礎データは，水中における電子の熱化過程を解明するために有用であることを解説した．

本稿中編では[20]，幅広い照射エネルギー領域（≤ 100 keV）についての水中における電子の熱化距離の計算結果を示し，実験結果と比較検討することで，本計算コードの有用性を示した．また，本研究の計算結果から，電子の熱平衡化と水和前過程は，ほぼ同時に進行している可能性が予測された．これらの成果は，水中における電子の熱化過程を理解するための重要な基礎的知見になり，今後，時間分解能の高い新たな測定による実証実験が行われることが期待される．

本稿後編では，電子線トラックエンドの放射線最初期過程を詳しく調べた．本研究と既存の実験結果から，SSB を含むクラスター DNA 損傷は，塩基除去修復作用により比較的 DSB に変換され，結果として，最終的な生物影響は DSB 末端の複雑さに依存すると考えられる．この DSB 末端に除去し切れなかった塩基損傷や AP サイトが含まれる場合には，突然変異や発がんに繋がる遺伝的不安定性のような細胞分裂を経ても残存する継世代の生物影響が誘発される可能性があることを示した．

ごく近年のパルスラジオリシス実験では，DET の誘発はごくまれであり，電子付着により非解離性の DNA 分子負イオンラジカルが生成されることが報告された[35]．現在，これらの優位性を解明するためのシミュレーション解析を進めている．本研究では，放射線物理・物理化学過程までの基礎研究を行ってきた．今後の展望として，後続の化学過程との連携を深めることで，媒質に対する放射線作用全般の礎を築くよう展開していきたいと考えている．その際，本研究で考慮しなかった媒質の分子レベルの動的変化および化学反応を積極的に取り扱うことが重要であると考えている．これらの一連の基礎研究は，本研究で実施した DNA 損傷の推定のみならず，様々な応用課題へと利用されることが期待される．

## 〈謝　辞〉

本研究の一部は科学研究費補助金（15H02823, 16H02959, 17K07022）の援助を受けて行われました．また，共同研究者の東京農工大学・鵜飼正敏教授から放射線物理過程の観点から様々なご助言を頂き，大阪大学産業科学研究所・吉田陽一教授および同研究室の方々からは，放射線化学過程の観点から様々なご助言を頂きました．この場を借りて感謝申し上げます．

## 〈参 考 文 献〉

1) D.T. Goodhead, Int. J. Radiat. Bio., 65 (1994) 7.
2) J.F. Ward, Prog. Nucl. Acid. Res. Mol. Biol., 35 (1988) 95.
3) M.H. David-Cordonnier, J. Laval, P. O'Neill, J. Biol. Chem., 275 (2000) 11865.
4) R. Watanabe, S. Rahmanian, H. Nikjoo, Radiat. Res., 183 (2015) 525.
5) R. Watanabe, A. Yokoya, K. Fujii, K. Saito, Int. J. Radiat. Bio., 80 (2004) 823.
6) W. Friedland, M. Dingfelder, P. Kundrat, P. Jacob, Mutation Research, 711 (2011) 28.
7) P. O'Neill, E.M. Fielden, Advances in Radiation Biology, 17 (1993) 53-120.
8) H. Nikjoo, P. O'Neill, W.E. Wilson, D.T. Goodhead, Radiat. Res., 156 (2001) 577.
9) H. Tomita, M. Kai, T. Kusama, A. Ito, Radiat. Environ. Biophys. 36 (1997) 105.
10) C.-R. Wang, J. Nguyen, Q.-B. Lu, J. Am. Chem. Soc., 131 (2009) 11320.
11) J. Nguyen, Y. Ma, T. Luo, R.G. Bristow, D.A. Jaffray,

Q.B. Lu, Proc. Natl. Acad. Sci. U S A., 108 (2011) 11778.
12) B. Boudaiffa, P. Cloutier, D. Hunting, M.A. Huels, L. Sanche, Science, 287 (2000) 1658.
13) T. Kai, A. Yokoya, M. Ukai, R. Watanabe, Radiat. Phys. Chem., 108 (2015) 13.
14) Y. Itikawa, N. Mason, J. Phys. Chem. Ref. Data, 34 (2005) 1.
15) M. Michaud, A. Wen, L. Sanche, Radiat. Res., 159 (2003) 3.
16) 甲斐健師，横谷明徳，藤井健太郎，渡邊立子，放射線化学，101 (2017) 3.
17) ICRU, Report 37, (1984).
18) V.V. Konovalov, A.M. Raitsimring, Yu.D. Tsvetkov, Radiat. Phys. Chem., 32 (1988) 623.
19) T. Kai, A. Yokoya, M. Ukai, K. Fujii, R. Watanabe, Radiat. Phys. Chem., 115 (2015) 1.
20) 甲斐健師，横谷明徳，藤井健太郎，渡邊立子，放射線化学，102 (2017) 49.
21) T. Kai, A. Yokoya, M. Ukai, K. Fujii, M. Higuchi, R. Watanabe, Radiat. Phys. Chem., 102 (2014) 16.
22) T. Kai, A. Yokoya, M. Ukai, K. Fujii, R. Watanabe, Int. J. Radiat. Biol., 92 (2016) 654.
23) T. Kai, A. Yokoya, M. Ukai, K. Fujii, R. Watanabe, J. Phys. Chem. A, 120 (2016) 8228.
24) 甲斐健師，横谷明徳，藤井健太郎，渡邊立子，陽電子科学，8 (2017) 11.
25) T. Kai, A. Yokoya, M. Ukai, K. Fujii, T. Toigawa, R. Watanabe, Phys. Chem. Chem. Phys., 20 (2018) 2838.
26) H. Yada, M. Nagai, K. Tanaka, Chem. Phys. Lett., 464 (2008) 166.
27) Y.-K. Kim, J. P. Santos, F. Parente, Phys. Rev. A, 62 (2000) 052710.
28) Ph. Bernhardt, H. G. Paretzke, Int. J. Mass Spectrom., 223–224 (2003) 599.
29) R. H. Ritchie, R. N. Hamm, J. E. Turner, Computational approaches in molecular radiation biology (M. N. Varma, A. Chatterjee Eds.), (Basic Life Sciences 63), Plenum Press, New York, (1994) 33–44.
30) A. Migus, Y. Gauduel, J. L. Martin, A. Antonetti, Phys. Rev. Lett., 58 (1987) 1559.
31) J. Yang, K. Kan, T. Kondo, Y. Yoshida, K. Tanimura, J. Urakawa, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A-Accel. Spectrom. Dect. Assoc. Equip., 637 (2011) S24.
32) A. Mozumder, Radiat. Phys. Chem., 32 (1988) 287.
33) A. Yokoya, S. M. T. Cunniffe, P. O’ Neill, J. Am. Chem. Soc., 124 (2002) 8859.
34) T. Shiina, R. Watanabe, I. Shiraishi, M. Suzuki, Y. Sugaya, K. Fujii, A. Yokoya, Radiat. Environ. Biophys., 52 (2013) 99.
35) K. M. Prise, C. H. L. Pullar, B. D. Michael, Carcinogenesis, 20 (1999) 905.
36) J. Ma, F. Wang, S. Denisov, A. Adhikary, M. Mostafavi, Sci. Adv., 3 (2017) e1701669.

## 〈著 者 略 歴〉

甲斐 健師： 2005 年 宮崎大学大学院物質エネルギー工学専攻博士後期課程修了．2005 年 大阪大学レーザーエネルギー学研究センター特任研究員．2008 年 日本原子力研究開発機構特定課題推進員．2011 年 同機構博士研究員．2014 年 同機構研究員．2015 年 同機構研究副主幹（現職）．博士（工学）．専門：原子分子物理，放射線物理．

横谷 明徳： 1991 年 筑波大学大学院生物科学研究科（理学）単位取得退学．1992 年 同学博士取得（筑波大学）．1991 年 日本原子力研究所入所．2000 年-2001 年 英国 Medical Research Council 客員研究員．量子科学技術研究開発機構上席研究員，茨城大学大学院客員教授（現職）．博士（理学）．専門：放射線生物物理．

藤井 健太郎： 2000 年 広島大学大学院理学研究科物性学専攻博士後期過程修了．同年，日本学術振興会特別研究員．2001 年 日本原子力研究所入所，量子科学技術研究開発機構上席研究員（現職）．博士（理学）．専門：放射線化学，放射線生物，放射光科学，表面科学．

渡邊 立子： 量子科学技術研究開発機構上席研究員（現職）．博士（理学）．専門：放射線生物物理．

とぴっくす

# クルックス管からの低エネルギー X 線評価手法の開発

大阪府立大学 放射線研究センター
秋吉 優史*, 谷口 良一, 松浦 寛人, 宮丸 広幸
大阪府立大学 量子放射線系専攻
Do Duy Khiem
京都大学 原子核工学専攻
神野 郁夫, 濱口 拓
首都大学東京 アイソトープセンター
野村 貴美
国立保健医療科学院 生活環境研究部
山口 一郎
千代田テクノル株式会社
谷口 和史
長瀬ランダウア
小林 育夫
文京区立文林中学校
川島 紀子
札幌市立北栄中学校
佐藤 深
札幌市立白石中学校
森山 正樹
放射線教育フォーラム
宮川 俊晴
公益財団法人 日本科学技術振興財団
掛布 智久

Development of evaluation techniques for low energy X-rays from a Crookes tube

Masafumi Akiyoshi*, Ryoichi Taniguchi, Hiroto Matsuura and Hiroyuki Miyamaru (*Radiation Research Center, Osaka Prefecture University*), Do DuyKhiem (*Department of Quantum and Radiation Engineering, Osaka Prefecture University*), Ikuo Kanno and Takumi Hamaguchi (*Department of Nuclear Engineering, Kyoto University*), Kiyoshi Nomura (*Radioisotopes Centre, Tokyo Metropolitan University*), Ichiro Yamaguchi (*National Institute of Public Health, Department of Environmental Health*), Kazufumi Taniguchi (*Chiyoda Technol Corp.*), Ikuo Kobayashi (*Nagase Landauer Ltd.*), Noriko Kawashima (*Bunkyou-ku Bunrin Junior High School*), Shin Sato (*Sapporo Hokuei Junior High School*), Masaki Moriyama (*Sapporo Shiroishi Junior High School*), Toshiharu Miyakawa (*Radiation Education Forum*), Tomohisa Kakefu (*Japan Science Foundation*),
〒599–8570 大阪府堺市中区学園町 1–2
TEL: 072–254–9852, E-mail: akiyoshi@riast.osakafu-u.ac.jp

Crookes tube is widely used for science education in Japanese junior-high school to learn about the electric current and the cathode rays. Some Crookes tubes radiate quite strong X-rays, however, the energy of the X-rays are about 20 keV, then the most commercial dose survey meters are unuseful. Therefore, it is required to establish a guide line for the radiological safety in the education field to achieve safety experiment without overload to teachers.

In this study, ion chamber and fluoroglass dosimeters are used to measure the X-rays from Crookes tube correctly. The dose change was estimated depend on the setting of an induction coil that was used for high-voltage supply. The energy spectrum was evaluated using a CZT detector and a Be window Ge detector, and also the linear attenuation coefficient was analyzed using a GM survey meter.

X-rays are emitted in pulse when a Crookes tube is driven using an induction coil. To prevent a pile up, X-rays must be collimated using a very thin aperture, and the counting rate needed to be suppressed to several cps.

**Keywords:** radiological education, Crookes tube, measurement of low-energy X-ray, dose estimation

## 1　はじめに

平成 29 年 3 月に公布された中学校の新学習指導要領では，2 年生で学習する「(3) 電流とその利用」の単元において「真空放電と関連付けながら放射線の性質と利用にも触れること」という内容が新しく追加されている．

クルックス管（Fig. 1）は従来から中学校の学校教育現場で電流と電子の流れの教材として広く用いられているが，古くはレントゲンが X 線の発見のきっかけとなったように，運用条件によっては非常に高い強度の X 線を放出する製品が存在する．放射線作業従事者ではなくまた労働者でもない若年層の「生徒」に対して高い線量の被ばくの可能性が検討されていないことは，放射線安全管理上の問題が懸念される．特に近年，眼の水晶体に対する被ばくが問題になっており，線源を見つめる必要があるクルックス管の特性上，詳細な検討が必要である．

しかしながら，クルックス管から放出される X 線はエネルギーが低いため，一般的なサーベイメーターでは全く検出できない例もあり，学校教育現場で負担無く安全に実験を行うための運用上のガイドラインを提供する必要がある．

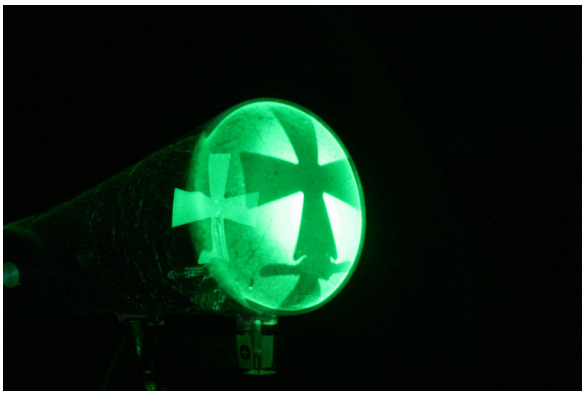


Figure 1.　A Crookes tube in operation with a Maltese cross plate.

そのためには，クルックス管からの X 線について特性評価を行い，実際にどの程度の被曝線量となるかの評価と，運用条件によってそれらがどのように変化するかの検討が不可欠である．クルックス管からの X 線は，低エネルギーであるだけでなく，パルス場であり，空間的にも不均一，時間的にも誘導コイルからの出力の揺らぎのため不均一であるなど，評価がきわめて困難である．本稿ではこれまでに明らかになったクルックス管からの X 線の特性と，その評価手法について報告を行う．

## 2　背景

中学校の理科の授業において，平成 20 年 3 月に行われた学習指導要領の改訂では第一分野の「(7) 科学技術と人間」の単元において，エネルギー教育の一環として原子力が取り上げられており，内容の取扱において「放射線の性質と利用にも触れること」との記述が新しく追加され，30 年ぶりに放射線教育が復活している．しかしながら当該の単元は 3 年生の一番最後に学習する内容であり，また「触れること」という表現は学習指導要領の記述の中では最も軽い扱いにとどまっている．このため，受験問題として取り上げられないなどから実際に放射線教育を実施している学校はそれほど多くはなかった．

ところが，平成 29 年 3 月に公布された中学校の新学習指導要領では同じく第一分野の「(3) 電流とその利用」の単元において，その内容の取扱で「電流が電子の流れに関係していることを扱うこと．また，真空放電と関連付けながら放射線の性質と利用にも触れること．」という内容が新しく追加されている．さらに学習指導要領の解説では，「雷も静電気の放電現象の一種であることを取り上げ，高電圧発生装置（誘導コイルなど）の放電やクルックス管などの真空放電の観察から電子の存在を理解させ，電子の流れが電流に関係していることを理解させる．その際，真空放電と関連させて X 線にも触れるとともに，X 線と同じように透過性などの性質をもつ放射線が存在し，医療や製造業などで利用されていることにも触れる．」と，かなり詳細な内容が記載されている．当該単元は 2 年生で取り扱う内容であり，放射線については「触れること」ではあるが，クルックス管については観察を求めており，全ての中学校においてクルックス管の放射線安全管理が必要となる．

Table 1. Measurement results of low-energy X-ray radiated from Crookes tube using various type survey meters.

| Detector | Product name | Note | Dose rate | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | 15 cm | 30 cm | 50 cm | Unit |
| Ion chamber | Hitachi ICS-1323 | without cover | 8.15 | 1.91 | 0.64 | mSv/h |
| | | with cover | 5.3 | 1.28 | 0.47 | mSv/h |
| Fluoroglass dosimeters | Chiyoda Technol Glass Badge type-FX | 70 μm dose equivalent rate | 4.62 | 1.26 | 0.48 | mSv/h |
| | | 1 cm dose equivalent rate | 1.62 | 0.48 | 0 | mSv/h |
| NaI scintillator | Fuji Electric. NHC6 | Be window | 1.34 | 10.0 | 13.1 | μSv/h |
| | Aloka TCS-172 | | 0.17 | 0.17 | 0.15 | μSv/h |
| GM tube | SE International Ranger | 1 min. scaler | 33.9 | 31.7 | 27.3 | kcpm |
| Plastic scintillator | Kind-mini | no cover | 118 | 64 | 24.5 | μSv/h |
| CsI scintillator | Air Counter EX | no cover | 12.6 | 12.5 | 8.3 | μSv/h |
| Si semiconductor | Air Counter S | | <9.99 | 0.05 blinc | <9.99 | μSv/h |

実は，平成 20 年 3 月の学習指導要領（真空放電についても何も記載されていない）に則った，現行の教科書においても「(3) 電流とその利用」の単元において，調査を行った 5 社全ての教科書でクルックス管による電子線の観察はすでに取り上げられており，特に，合わせて 60 % 程度のシェアを持つ啓林館と東京書籍の教科書では，レントゲンによる X 線発見の歴史的経緯が 2 年生の当該単元で取り上げられている（残りの 3 社は 2 年生の当該単元では放射線に関する記述はなく，3 年次のエネルギーに関する単元で触れられている）．

クルックス管などの放電管からの放射線の漏洩は以前から報告されているが[1–4]，これまであまり大きく取り上げられることはなかった．これらの報告によると，クルックス管からは，製品によっては，また使用条件によっては，ガラス管表面から 5 cm 位置で 1 cm 線量当量が 100 mSv/h を大きく超える，非常に高い強度の X 線が放出されている[2]．

しかしながら，20 keV 以下の低エネルギーの X 線は学校教育現場で用いられる一般向けのサーベイメーターで線量を測定する事が不可能である．さらに，誘導コイルからの高電圧出力がパルス状であるため発生する X 線についてもパルス状であり，半導体検出器などではパイルアップにより正常な計測を行う事が専門家でも非常に困難である．また，ごくわずかな印加電圧の変動によっても大きくクルックス管自体を構成するガラス管壁の透過率が変わり，装置の経年変化によって電子線を出すのに必要な印加電圧が上昇していくなどするために，放出される線量を一律に保証することが出来ない．一方で，これまで報告された論文では，測定上や線量評価上の問題点がある．2002 年に文科省からエックス線装置に関する通知が出ているが，これは X 線照射装置の不適切な利用による事故を受けた通知であり，クルックス管を念頭に置いていない[5]．なお，電離放射線障害防止規則における「エックス線装置」とは，第十条に定義されている通り「エックス線を発生させる装置」であり，エックス線を発生させることを目的としていない装置は規制の対象外であるとの見解が厚生労働省から示されている[6]．

このため，現在日本全国の放射線計測，線量評価，放射線安全管理の専門家と，現場の学校の先生方，これまで放射線教育に携わってきたさまざまな先生方有志による，「教育現場などにおける低エネルギー X 線を対象とした放射線安全管理体制の確立」プロジェクト，通称「クルックス管プロジェクト」を立ち上げ，教育現場における放射線安全管理ガイドラインの作成と標準化を目指している．

## 3 様々な線量計を用いた線量測定

まず，さまざまなサーベイメーターを用いてクルックス管からの漏洩 X 線量測定を行った結果を Table 1 に示す．使用したのはケニス製の十字板入りのクルックス管 3C-B と，ニューパワー誘導コイル ID-6 である．放電針側を陰極，放電円板側を陽極側に接続し（以降全て同様），放電極間距離は 25 mm，放電出力のダイアルは，20 目盛まであるうちの 6 目盛まで上げ，若干の大気中放電が発生している状況で測定を行った．

クルックス管と直列に繋いだアナログ電流計の読みは40 μA であった．なお，電離箱 ICS-1323 は前面のフタを付けた場合 1 cm 線量当量（H*(10)）を，フタを外した場合 70 μm 線量当量（H*(0.07)）に対応するが，低エネルギーでの補正は行っておらず，70 μm 線量当量に関しては目安程度にとどまる．また，1 cm 線量当量についても表示値そのままでありエネルギーによるレスポンスの補正は行っていない．

NaI シンチレーターのうち，富士電機の NHC6 は 8 keV から測定可能な最新鋭のサーベイメーターであるが，正常な評価を行うことは出来なかった．同様に Be 窓を使用しており 5 keV からの測定が可能なリガク Get Smart XU についても，非常に低い値を示しており正常な評価は出来なかった．これは，クルックス管からの X 線が単に低エネルギーであるだけではなく，誘導コイルからのパルス状の高電圧印加に対応したパルス場であるために，短時間に入射する高線量率の X 線を時間分解できず，パイルアップしてしまうことによる物であると考えられる．広く放射線管理業務で一般的に用いられている TCS-172 は，ステンレスのハウジングによる遮蔽と，50 keV 以下はカットする補償回路により，ほとんど測定できなかった．ごくわずかにバックグラウンド（0.07 μSv/h 程度）よりも高く出ているのは，パイルアップしたパルスを計数している物と思われる．

一般の家庭に普及しているエアーカウンター S はそもそも 9.99 μSv/h までしか測定できないが，0.05 μSv/h で点滅状態にもなり正常な測定を行えなかった．CsI シンチレーターを使用したやや高級機のエアーカウンター EX についても，実際の線量からかけ離れた値となった．プラスチックシンチレーターを使用した Kind-Mini は同様に値自体はかけ離れているが，距離に対する依存性は拾えており，校正の仕方によっては使えるようになる可能性も存在する．

さまざまな検出器を評価した中で，汎用の測定器で現場での安全管理に使用出来る可能性のあるのは，現在のところ GM サーベイメーターのみである．ただし測定可能なのはあくまでも cpm などの計数値であり，実効線量に換算するためにはそれぞれの機体に対して校正を行う必要がある．医療用の X 線装置などについて同様の評価を行った例が大久保，野村らによって報告されている[7]．ただし，GM サーベイルーターは一般に 50 keV 以下の光子に対しては極端に検出効率が落ちることが知られており，さらに 100 μs 程度の不感時間に対する数え落としの補正を行う際に，パルス場に対する補正を行う必要があるため，定量的な評価は簡単ではない．しかし一度ガラスバッジなどで測定した場に対して，同じ条件で測定を行っておけば，それよりも上がったのか下がったのかなどの定性的な評価には使うことが出来る．

最後に，測定に使用した蛍光ガラス線量計は千代田テクノルが評価を行うガラスバッジサービスを利用した．さまざまなタイプがある中で，低エネルギー X 線を取り扱う環境で個人線量計として用いられている FX 型を使用した．対象とするエネルギー範囲は 10 keV–80 keV であり，2 Sv までの評価が可能である．通常は 0.1 mSv 単位での評価であるが，0.01 mSv 単位での報告を行うオプションを使用している（下限値は 0.05 mSv）．パルス場かどうかによらず積算線量を評価することが出来るため，他のサーベイメーターに比べて信頼性が高く，内部の複数のフィルターに対するレスポンスの違いから実効エネルギーを評価することが出来るため，クルックス管からの X 線評価にきわめて適しているが，測定後に郵送でバッジを返送して結果が帰ってくるまでに数週間を要するため，迅速な評価は出来ない．また，今回使用している FX 型は個人線量計であり，人間が装着することを前提としているため，On Phantom での測定を行う必要があるが，20 keV 前後での測定では Free Air での測定でもほとんど差がない（後方散乱の影響がほとんど無い）というデータがあり，現在検証中であるが，差があった場合でもあとで補正を行うという考え方で Free Air での測定を行っている．なお，長瀬ランダウアが提供している OSL 線量計を用いたルミネスバッジサービス（2017 年度よりクイクセルバッジから変更）でも同様の評価が可能である．

## 4　さまざまな条件での線量評価

ガラスバッジおよび電離箱を用いてさまざまな条件で測定した結果を報告する．なお，ここで報告する線量はあくまでもあるクルックス管と誘導コイルの組み合わせで得られる値であり，他の装置では同様の設定で実験を行っても全く異なる値となる可能性が高く，絶対値についてはあくまでも一例としてとらえていただきたい．

まず，誘導コイルからの出力電圧を制御するために，放電極間の距離を 15 mm，20 mm，30 mm と変えて，ギリギリ大気放電する放電出力として線量の測定を行った結果を Fig. 2 に示す．陽極側の正面ガラス端面から正面方向に 15 cm，30 cm，50 cm 位置でそれぞれ 10 分間測定（X 線照射）を行い，1 時間あたりの

線量率に換算した上で距離の二乗に反比例するとしてフィッティングした．クルックス管は点線源ではないが，点線源同様に概ね距離の逆二乗で線量が下がっていくことがわかる．また，放電極の距離を狭くすることで，大幅に線量率を低くすることが出来ることがわかる．ただし，放電極距離 15 mm では天候によっては大気放電が激しく起こりすぎるため，いつでもこの距離に設定できるわけではないギリギリの距離である点に注意を要する．

次に，放電極距離 20 mm，25 mm，30 mm で放電出力を 0 目盛から 8 目盛まで変化させ，平均電流と 30 cm 位置での線量率（フタ無しでの測定値を 70 μm 線量当量率として示した）を測定した．Figure 3 に放電出力と平均電流の相関を，Fig. 4 に放電出力と線量率の相関をそれぞれ示し，さらにこれらから Fig. 5 に平均電流と線量率との相関を求めた．なお，放電極距離 20 mm では放電出力 4 で大気放電が激しくなったためそれ以上上げていない．これらの結果は放電が起こらなければ放電極距離は電流や線量率に影響せず，放電出力と共に電流，線量率は上昇する．Figure 5 では指数関数を用いてフィッティングを行っているが，二次関数を用いてもほぼ同等の精度でフィッティングできている（頂点はゼロにならない）．電流の二乗の電力量で線量が決まるのか，わずかに電圧上昇するこ

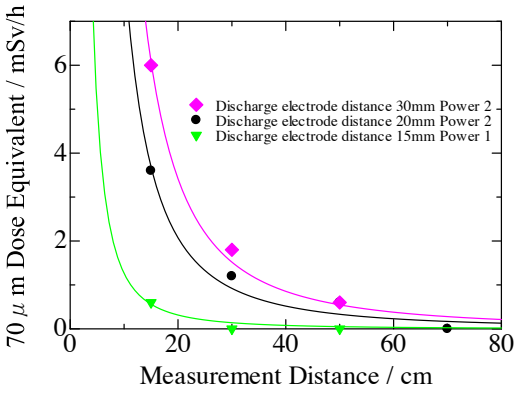



Figure 2. Correlation between discharge distance and dose rate.

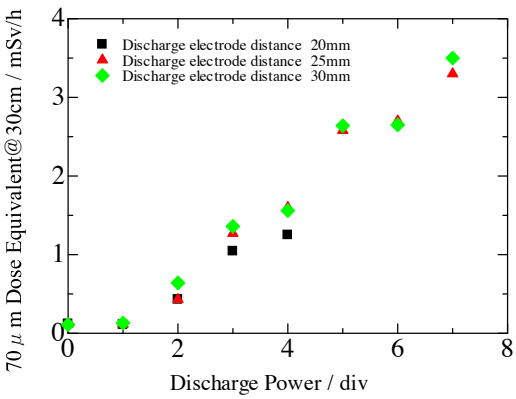



Figure 4. Correlation between discharge power and dose rate.

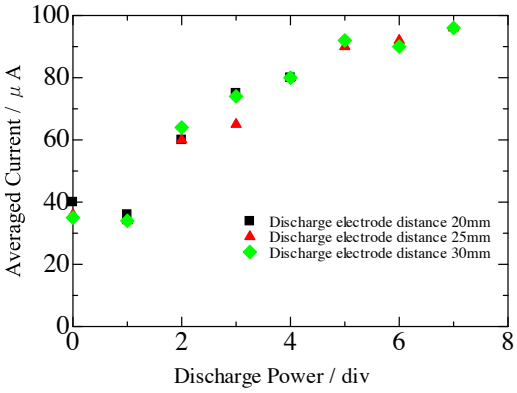



Figure 3. Correlation between discharge power and averaged current.

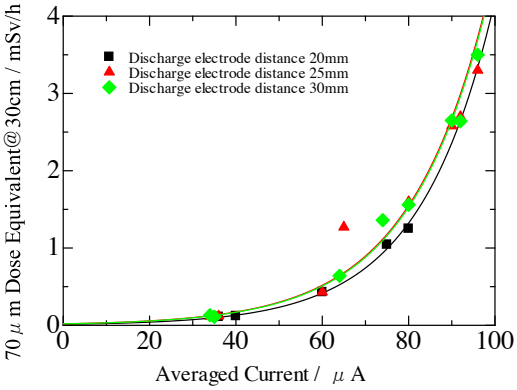



Figure 5. Correlation between averaged current and dose rate.

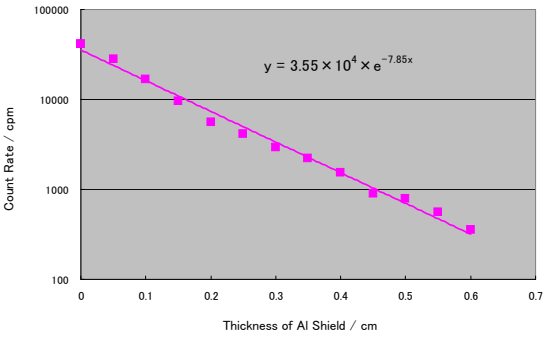



Figure 6. An estimation attempt of linear attenuation coefficient using a GM survey meter.

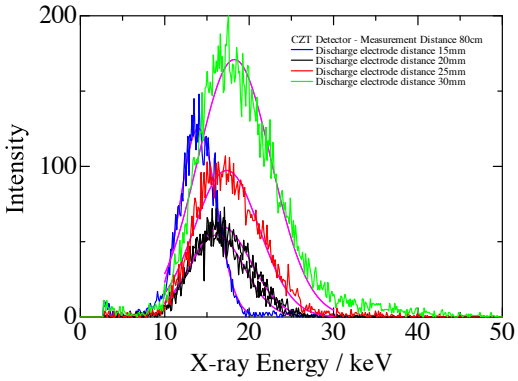



Figure 7. An energy spectrum of X-ray radiated from Crookes tube obtained by CZT detector.

とにより透過率が指数関数的に変わるのか，現在のところ明らかになっておらず，より高い放電出力までの測定を今後行っていく．

## 5 クルックス管から漏洩したX線のエネルギー評価

まずGMサーベイメーターと遮蔽体を用いた応答から大まかなエネルギーを評価した．サーベイメーターとクルックス管の間に0.5 mmピッチでアルミ板を入れていき，対数プロットした際の傾きから，線減衰係数を求めた．Figure 6は放電極距離20 mm，50 cm位置でSE International社のRanger GMサーベイメーターで測定を行った結果である．その結果，放電極距離20 mmでわずかに放電が起こる放電出力の場合，一成分でフィッティングを行うと線減衰係数は7.85 $cm^{-1}$となり，20 keVでのアルミ中での線減衰係数が8.85 $cm^{-1}$，30 keVで2.82 $cm^{-1}$であることから，20 keV強の実効エネルギーであることが確認できた．

ガラスバッジは内部に複数のフィルターが入っているため，同様にそれらに対する応答からエネルギー評価が可能であり（FX型の場合），同様の条件での測定では実効エネルギーは18 keV前後と評価された．

本研究ではそれらの測定に加えて，CZT（$Cd_{0.9}Zn_{0.1}Te$）検出器や，Be窓のGe半導体検出器を用いてスペクトル計測を行った．測定を行う上で，数十cps程度の低い計数率においてもパイルアップが起こってしまい，高エネルギー側に長く尾を引くスペクトルとなった．これは，クルックス管からのX線がパルス状に放出されていることに起因する．半値幅20 μs程度のパルスが10 msに平均で5パルス程度放出されているため，実際にX線が放出されているのはLive Timeの1 %程度の時間に過ぎず，計数率を100倍程度多く考えて測定を行う必要がある．

Table 2. X-ray spectrums that was shifted by setting of an induction coil.

| Discharge electrode distance | Discharge Power | Averaged Current | Peak Energy |
|---|---|---|---|
| mm | div | μA | keV |
| 15 | 2 | 8 | 14.0 |
| 20 | 4 | 28 | 16.4 |
| 25 | 6 | 30 | 17.3 |
| 30 | 8 | 45 | 18.3 |

このため，$\phi$19 mm×10 mm，内径$\phi$3 mmの円筒状の鉛アパーチャーを黄銅製のスリーブ内に複数並べるコリメーターシステムに，$\phi$0.5 mmの穴開けをした1 mm厚の鉛薄板を用いたコリメーターを追加することにより，入射X線量を極端に減らして10 cps以下での測定を行い，パイルアップの少ないスペクトルを取得した．コリメーターの向きなどによって大きく線量やスペクトルが異なるため，非常に測定は困難であったが，慎重な測定により誘導コイルの設定によってわずかにスペクトルがシフトしていることが確認された．

CZT検出器により測定されたスペクトルをFig. 7に，ガウシアンフィッティングによるピーク位置の変化をTable 2に示す．なお，CZT検出器からのスペ

クトルは歪みがあることが知られているが[8]，補正は行っておらず，測定されたままのスペクトルを使用している．

印加電圧のパルスは誘導コイルの設定によって一定の電圧が出力されているのではなく一定のばらつきを有していたため，パルス波高のヒストグラム評価を今後行う予定である．また，パルス波高のヒストグラムから制動放射により発生する X 線のスペクトルを計算し，さらにそれぞれのエネルギーの X 線がガラス管壁により遮蔽されることを考慮して求めた放出 X 線スペクトルと，実際に測定されたスペクトルと比較検証を行う予定である．

## 6　今後の展開

電離箱や CZT 検出器による線量，スペクトル測定は，中学校の教育現場で実施する事は不可能であり，より簡便な線量評価法の開発が必要である．GM サーベイメーター程度であれば入手可能とすると，一度ガラスバッジなどで測定を行った条件で校正を行うことで，ある程度の線量の目安を得ることは可能であるし，前節の方法でエネルギーも評価可能である．ただし，クルックス管からの X 線は不均一なパルス場であり，線量率，不感時間に対する数え落としの補正を行う必要がある．このあたりの手順について今後検討を行う必要がある．

エネルギースペクトルに関しては，放射線教育で良く用いられている霧箱を用いることで評価可能である可能性がある．20 keV 程度の電子線は空中で 6 mm 程度しか飛べず，その飛程を画像解析することでエネルギースペクトルを求めることが出来る可能性がある．特に，ペルチェ冷却式霧箱は過飽和層が薄く平面的に飛んだ飛跡のみを観察できるため，この評価に適している[9]．

また，電気と電流の単元で静電気の可視化によく使われる箔検電器は，どこの中学校の理科室にもある物だが，一旦電荷をチャージした箔検電器は，周辺の空気中で放射線により生成した逆の電荷を吸い寄せて次第に箔が閉じていく．この閉じる速度は線量率に依存しており，一種の開放型の電離箱として機能し，湿度などの影響をあまり受けないことが明らかになってきている[10]．

さらに，化学線量計の一種としてヨウ化カリウムを用いた KI 線量計（PVA ゲルを入れたものも含めて）が最近注目されているが，100 mSv 程度の照射が必要でありそのままではほとんど色の変化を確認できない．しかしより低温で測定したり，濃度の調整やろ紙に染みこませるなど使用条件を調整することで使える可能性も残されており，現在検討を進めているところである．

このような測定上の要素技術開発と，いかに電流，電圧を抑えるかというクルックス管運用上の技術開発，空間的に不均等な放射線からの実効線量評価，法令と国際機関等の勧告などの文献調査，さらに社会的受容性などの公衆審査を経て，教育現場における放射線安全取扱のガイドラインを 2019 年冬までには策定する方針である．

## 〈謝　辞〉

日本全国の放射線教育関係者，放射線計測の専門家，線量評価の専門家，そして実際の学校現場の数多くの先生方の協力による，「クルックス管プロジェクト」として本研究は行われた．この場を借りて深く感謝を表明したい．

## 〈参 考 文 献〉

1) 田原隆志，新見克彦，草間朋子，吉澤康雄，物理教育，35 (1987) 150.
2) 大森儀郎，第 22 回放医研環境セミナー「生活と放射線」，NIRS-M-105 (1995) 107.
3) 藤淵俊王，井上創，小原哲，加藤英幸，小林育夫，細田正洋，日本放射線安全管理学会誌，10 (2011) 40.
4) 宇藤茂憲, 福岡教育大学紀要, 66 (第 3 分冊) (2017) 1.
5) 学校におけるエックス線装置を使用した実験等について, 初等中等教育局教育課程課長・文部科学省スポーツ・青少年局学校健康教育課長通知 (2002).
6) 電離放射線障害防止規則における X 線装置にかかる届出義務の簡素化，全国規模での規制改革要望に対する見解の確認，
http://www8.cao.go.jp/kisei/siryo/030919/09-2.pdf.
7) 大久保徹，府川和弘，野村貴美，日本放射線安全管理学会誌，15 (2016) 66.
8) 加藤秀起，中村光一，津坂昌利，電気学会論文誌 C，120 (2000) 1774.
9) 秋吉優史，日本放射線安全管理学会誌，16 (2017) 72.
10) 森千鶴夫，緒方良至，秋吉優史，臼井俊哉，村上浩介，羽澄大介，中村嘉行，神谷均，宮川俊晴，日

本アイソトープ協会 第 55 回アイソトープ・放射線研究発表会，ID:3a-II-01 (2018).

〈著 者 略 歴〉

秋吉 優史： 2001 年 3 月 東京工業大学大学院理工学研究科原子核工学専攻 博士（工学）取得，2001 年 4 月 東京工業大学原子炉工学研究所 講師，2002 年 3 月 University of Virginia, School of Engineering and Applied Science, Research Associate，2002 年 10 月 核燃料サイクル開発機構大洗工学センター燃料材料試験部 博士研究員，2004 年 4 月 京都大学工学研究科原子核工学専攻 助手，2015 年 4 月 大阪府立大学地域連携研究機構 准教授，現在に至る．

放射線利用紹介

# 量子科学技術研究開発機構六ヶ所核融合研究所 IFMIF/EVEDA 原型加速器の開発施設の紹介

国立研究開発法人 量子科学技術研究開発機構 六ヶ所核融合研究所
春日井 敦*

## 1　IFMIF/EVEDA プロジェクトについて

核融合エネルギーの研究開発は，日欧米露中韓印の7極が参加する国際熱核融合実験炉（ITER）計画を中心に進められています．ITER では核融合エネルギーの科学的・技術的実現性の実証を目指すものの，実際に発電を行う核融合原型炉を実現するためには，いくつかのハードルがあります．その 1 つが重水素（D）と三重水素（T）による核融合反応で発生する 14 MeV という高いエネルギーを持った中性子にさらされる構造物の材料開発です．

DT の核融合反応で発生する中性子環境を模擬するため，重陽子–リチウム（d–Li）核反応による加速器駆動型中性子源である国際核融合材料照射施設（IFMIF）（International Fusion Materials Irradiation Facility）の検討がこれまで国際協力の下進められてきました．IFMIF は 125 mA という大電流の重陽子ビームライン 2 つを 40 MeV まで加速し，連続的に液体リチウムに入射することで 20 dpa/年以上の高い中性子束を発生させ，核融合材料の中性子照射を目指しています（Fig. 1）[1]．

ITER 計画を補完する活動として日欧の国際共同事業である核融合分野における幅広いアプローチ（BA）活動の一つとして，IFMIF の工学実証・工学設計活動 EVEDA（Engineering Validation and Engineering Design Activities）が 2007 年から開始されました．量子科学技術研究開発機構（QST）はこのプロジェクトの日本の実施機関として文部科学省から指定を受け，青森県六ヶ所村に設置した六ヶ所核融合研究所（国際核融合エネルギー研究センター）において欧州との共同事業として IFMIF 原型加速器の建設・調整・コミッショニングが実施されています．

## 2　六ヶ所核融合研究所について

2007 年から始まった国際プロジェクトにともない，当初日本原子力研究開発機構（原子力機構）が実施機関となり，国際核融合エネルギー研究センターを青森県六ヶ所村に設立しました．原野を切り開いて整備された約 130,000 $m^2$ の敷地に，IFMIF 原型加速器の施設（IFMIF/EVEDA 開発試験棟）の他，燃焼プラズマや次世代核融合炉設計に必要なスパコンを収めるための核融合計算機シミュレーションセンター，ITER 実験施設と高速ネットワークで結び ITER の実験やデータ解析に遠隔で参加できる ITER 遠隔実験センター，トリチウムを扱うことのできる設備や核融合材料，発電ブランケットなど原型炉技術に関する R&D を行う施設等による複合施設として 2010 年に整備されました（Fig. 2）．

その後 2016 年 4 月に組織改編により，核融合エネルギー研究開発部門は原子力機構から分離され，放射線医学総合研究所と統合し，量子科学技術研究開発機構となって再出発しました．引き続き六ヶ所核融合研究所として国際プロジェクトの推進を継続し，核融合エネルギーの実現を目指した国際的な研究開発拠点として，多くの研究者を受け入れています．

## 3　IFMIF 原型加速器の概要

この IFMIF 原型加速器は，LIPAc（Linear IFMIF Prototype Accelerator）と呼ばれ，重水素イオン源（入射器）–高周波四重極加速器（RFQ）–中エネルギービーム輸送系（MEBT）–超伝導線形加速器（SRF ライナック）–ビーム診断系（D-Plate）–高エネルギービーム輸

Introduction to Facility of IFMIF/EVEDA Prototype Accelerator at Rokkasho Fusion Institute in QST
Atsushi Kasugai* (*Rokkasho Fusion Institute, National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology (QST)*),
〒039–3212 青森県上北郡六ヶ所村大字尾駮字表舘 2–166
TEL: 0175–71–6675, E-mail: kasugai.atsushi@qst.go.jp

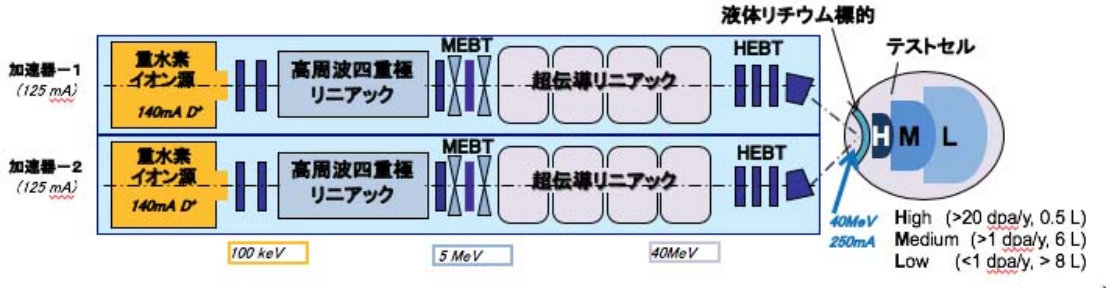



Figure 1. A schematic of the IFMIF facility.

Figure 2. Rokkasho Fusion Institution of QST.

送系（HEBT）–ビームダンプ（BD）から構成された全長約 36 m の大電流重陽子線形加速器です（Fig. 3）[2]．IFMIF の加速器セクションの設計が，ビームライン 2 本でそれぞれ 4 段の超伝導加速器を用いて合計 250 mA の重陽子ビームを 40 MeV まで連続加速する仕様（Fig. 1）であるのに対し，LIPAc は 1 本のビームライン，初段の超伝導線形加速器 1 台で 9 MeV–125 mA の重陽子ビームを連続運転する仕様になっています．大電流の連続ビームを加速するためには，空間電荷によるビーム発散力が大きい低エネルギー部の実証が不可欠であり，そのため，RFQ までの低エネルギー部については，IFMIF の加速器セクションと全く同じ構成となっています．

LIPAc の大きな特徴は，加速器を構成する各機器の製作を欧州および日本の研究機関がそれぞれ担当し，六ヶ所核融合研究所において加速器として 1 つに組み上げるという調達取決めに基づいた国際協力である点です．日本はホスト国であることから主に建家や受電設備，組み立てなどのインフラ整備を担当し，加速器本体では RFQ の一部である RF 結合部の調達，全体の制御系を担当しています．これまでに欧州の研究機関において，加速器機器の R&D および製作が行われ，現在六ヶ所核融合研究所において欧州で製作した機器を組立て，調整し，ビーム試験を段階的に実施しています．第一段階は入射器（イオン源および低エネルギービーム輸送系（LEBT））のみの 100 keV の重陽子ビームを出力することであり，フランス原子力・代替エネルギー庁サクレー研究所（CEA Saclay）が開発した入射器を六ヶ所サイトに 2014 年に移設し，100 keV–140 mA の重陽子ビームを 0.15 πmm–mrad の低エミッタンスで発生させ，その目標性能実証を完了しました

第二段階としては，5 MeV までの RFQ によるビーム加速です．LIPAc の RFQ は 9.8 m と世界で最も長く，2016 年にイタリア国立核物理学研究所（INFN）レニャーロ研究所から 3 分割された状態で搬入され，レーザートラッカーを用いた空洞の精密な組み上げ，空洞共振器のチューナーの調整，RF 結合器の取り付け，真空排気系の取り付け，ベーキング，ケーブル配線，冷却水配管を完了し，2017 年には入射器と接続を完了しました．

また MEBT，D-Plate は 2016 年にスペインエネルギー環境技術センター（CIEMAT）から搬入され，整備が進められ，四重極コイルの調整，バンチャーのコンディショニング，ビーム診断機器の調整を 2017 年–2018 年にかけて完了しました．ビームを最終的に受け止めるための小型のビームダンプが INFN より搬入され，上流のイオン源から最下流のビームダンプまでビームラインの真空がゲートバルブ制御システムを経て接続されました．

一方，高周波システムはスペイン CIEMAT の担当であり，LLRF システムを含め，RFQ 用の 175 MHz の

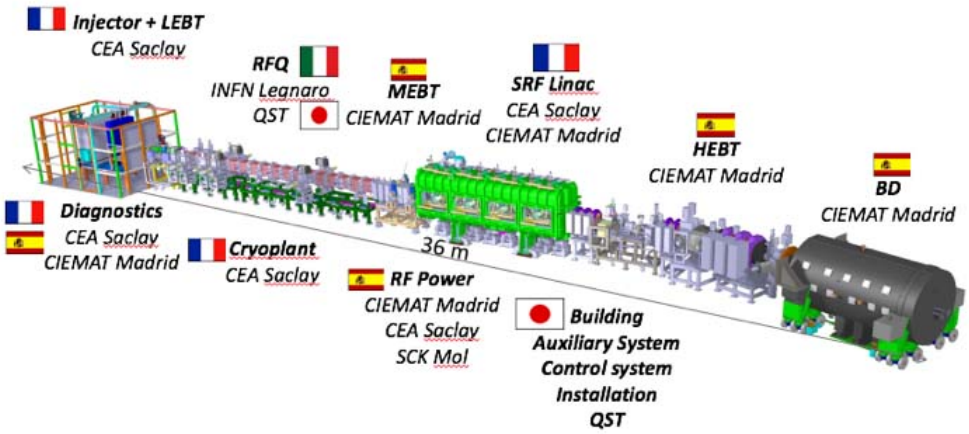



Figure 3. Configuration of LIPAc. Published with permission of IFMIF/EVEDA.

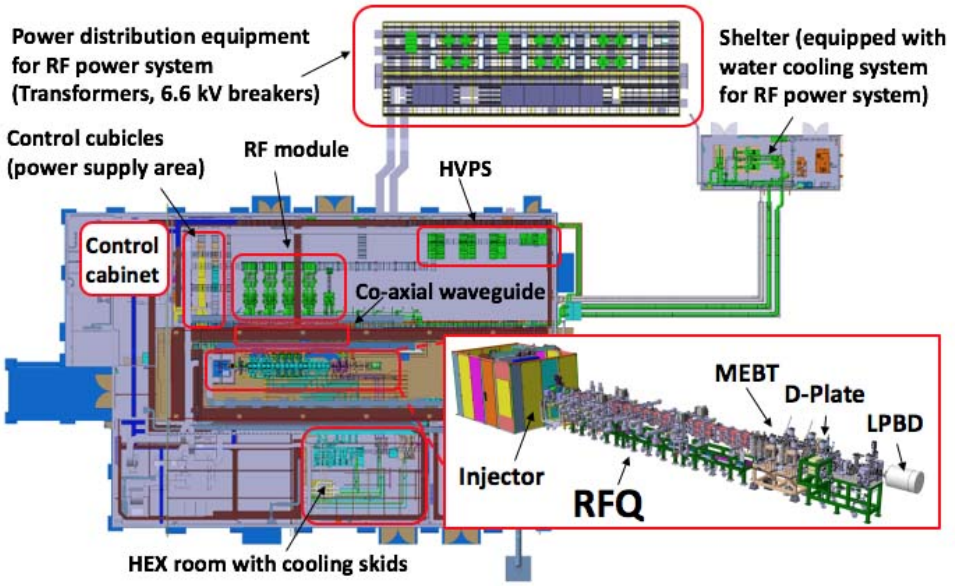



Figure 4. Configuration of LIPAc for 5 MeV acceleration and the equipped sub-systems.

200 kW-CW の大電力増幅管（4 極管）8 系統，SRF 用の 100 kW–CW 大電力増幅管（4 極管）8 系統，MEBT バンチャー用の 16 kW 固体増幅器 2 系統が完了しました．同時にシステムの冷却水系，高周波電力伝送系も接続し，加速器の試験準備が完了しました．EPICS ネットワークとタイミングシステムは中央制御担当の QST によって提供されています．個々の系統の高周波出力は，RF 結合器を介して RFQ 空洞に注入されます．第二段階の試験に必要なサブシステムの整備状況を Fig. 4 に示します．

最終段階は，SRF ライナック，HEBT，大電力ビームダンプの接続と，最終目標である 9 MeV–125 mA-CW の重陽子ビームの発生です．SRF ライナックのうち，ニオブ製の半波長空洞 8 式やクライオスタットなどは CEA サクレー研究所の担当，ソレノイドコイルや電流リードはスペイン CIEMAT の担当で，これらの機器は 2018 年に六ヶ所核融合研究所に部品として搬入され，六ヶ所核融合研究所の建屋内に設置するクリーン

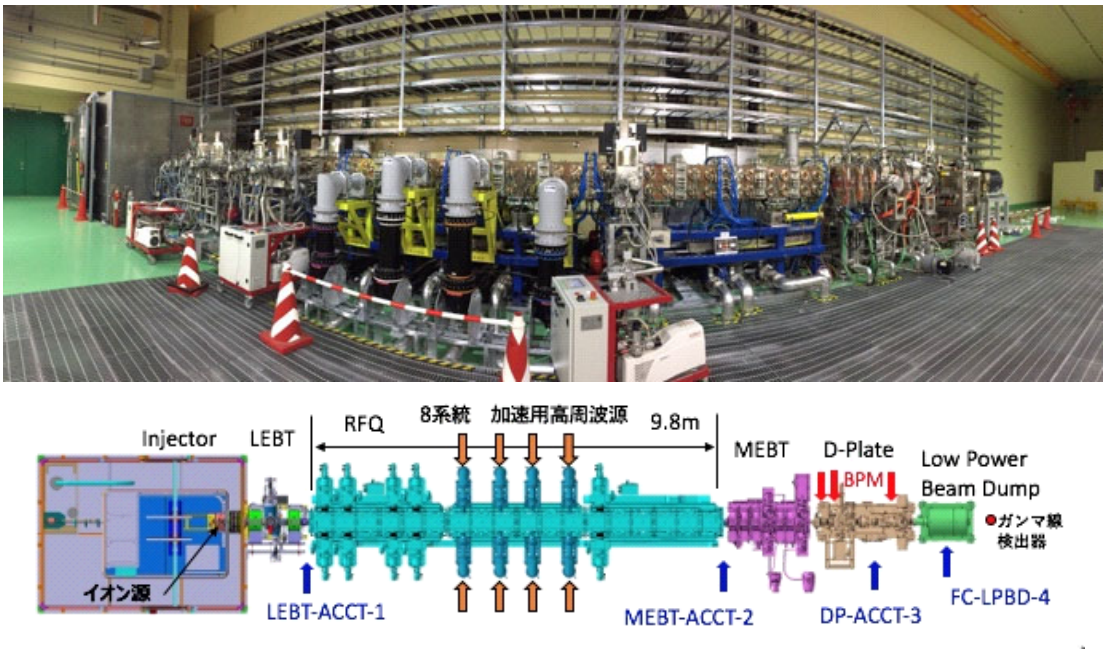



Figure 5. Configuration of LIPAc in first $H^+$ beam acceleration.

ルーム内で組み立てが行われたのち，加速器のビームラインに組み込みます．HEBT，大電力ビームダンプはスペイン CIEMAT の担当で，現在製作が進められ，2018 年の秋には加速器室に搬入される予定です．なお，SRF ライナックの冷却に必要な液体ヘリウムの液化供給装置については CEA サクレー研究所の調達の下 2017 年に完成し，青森県の認可を受けました．

## 4 六ヶ所サイトにおける試験状況と今後の予定

入射器は 2013 年より欧州から六ヶ所サイトに輸送，据付が進められ，2014 年に陽子によるビーム試験を開始しました．陽子ビームでの加速器のコミッショニングを進めた後，2015 年に放射線障害防止法に基づく放射線管理区域を設定し初めて重陽子ビーム生成に成功しました．また重陽子ビーム生成による中性子発生を確認し，これまでにエミッタンス測定中に（エミッタンスメータの表面はタングステン）$4.7 \times 10^9$ n/s の中性子発生を確認しています．その後，LEBT の 2 つのソレノイドコイルの電流値を最適化し，加速管の電極を最適化するなどにより，エミッタンスの最適条件を見出し，原型加速器のマイルストーンである重陽子ビームで，100 keV，140 mA，CW，エミッタンス 0.3 πmm–mrad 以下を達成しました[3]．また，RFQ への入射を模擬した位置でのビームエミッタンス等の測定を実施し，入射器として要求されているパラメータの最適化を実施しました．

第 2 段階の最初のステップは，RFQ 空洞の RF コンディショニングです．コンディショニングでは，低いデューティサイクルで非常に低い電力から高周波電力を徐々に空洞に入れ，最終的には重陽子加速を可能にするために必要な設計電界レベルまで段階的に高周波電力を増加させることを試みました． RFQ 空洞への最初の高周波電力の入射は，2017 年 7 月に成功しました．8 系統の独立した高周波入射を単一の RFQ 空洞に同時に同期させた状態で入射する技術的課題がありました．この技術は完全にデジタル化された LLRF（低電力高周波制御ユニット）によって実現されています．8 系統の同期入射の後，本格的に 24 時間の RF コンディショニングが開始されました．RF コンディショニングのマイルストーンの 1 つは，重陽子ビームを加速するのに必要なベーン間電圧 132 kV の目標値を超えることであり，マルチパクタリング放電などの状況を乗り越え，RFQ 空洞の最大ベーン電圧は 143 kV に達しました．RFQ ビームコミッショニングは，重水素ビームによる不必要な放射化を回避するため，まずは水素ビームを用いて調整されました．この場合の RFQ に入射する水素ビームエネルギーは，重水素ビームと比べ半分の 50 keV となります．

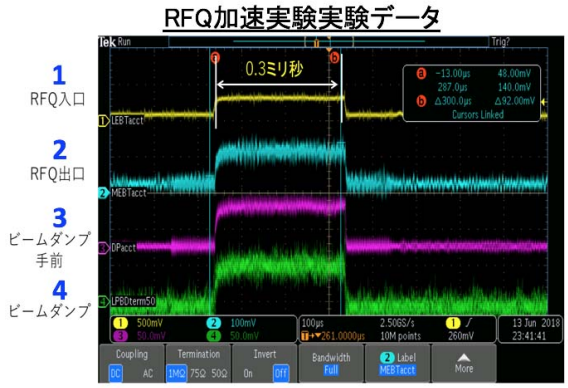



Figure 6. Beam pulse signal measured by AC-CTs and LPBD when $I_{ext}$ = 10 mA. Published with permission of IFMIF/EVEDA.

LIPAc のビーム加速試験の構成（写真と平面図）を Figure 5 に示します．Figure 6 に示すように，初めての水素ビーム加速は，ビーム電流 10 mA 程度を目標にビーム調整され，300 マイクロ秒のパルス幅で加速試験が行われました．2018 年 6 月に初めての水素ビームの RFQ への入射を実施し，ビームラインの各部に取り付けた電流検出器の測定結果から RFQ の通過電流がほぼ 100 % であることを確認し，また加速された水素ビームがビームダンプに衝突した時に発生するガンマ線のエネルギー計測，および計測装置（D-Plate）に取り付けた BPM（Beam Position Monitor）を用いたビームの飛行時間測定の結果から，RFQ による加速後の水素ビームのエネルギーが約 2.5 MeV であることを確認しました[4]．今後は，計測装置の調整を実施し，水素ビームの定格である 65 mA までの加速実証とさまざまなビーム計測を行うとともに，さらに 5 MeV–125 mA を目指した RFQ の RF コンディショニングと重水素ビームの加速実証をデューティ 0.1 % で行う予定です．

RFQ のコミッショニングと並行して，HEBT，大型ビームダンプが六ヶ所サイトに搬入され，最終的な設置位置にレーザートラッカーを用いて精密に配置されました．また，六ヶ所サイトに建設したクリーンルームの中で超伝導加速器を組み上げた後，全ての加速器機器をビームラインに接続し，最終段階であるプロジェクトのミッションの，重陽子を用いた統合ビーム試験 9 MeV–125 mA を目指した試験を 2020 年 3 月末までに実施します．加えて現在，日欧でその後の共同研究の進め方を議論しており，2020 年以降も 2025 年 3 月までは引き続き，加速器の運転条件の最適化や限界性能を見極める信頼性試験を行うように日欧で協議しています．

量子科学技術研究開発機構六ヶ所核融合研究所では，IFMIF/EVEDA プロジェクトで得られた原型加速器とターゲットである液体リチウムループの知見を基に，核融合材料開発だけでなく中性子を利用した RI 製造/製薬や産業応用を可能とする我が国独自の核融合中性子源 A-FNS 計画の検討[5] を進めており，今後，国内の幅広い分野の専門家と連携をとりながら，A-FNS の実現を目指したいと考えています．

## 〈参 考 文 献〉

1) J. Knaster, A. Moeslang, T. Muroga, Nat. Phys., 12 (2016) 424.
2) A. Kasugai, T. Akagi, T. Ebisawa, Y. Hirata, R. Ichimiya, K. Kondo, S. Maebara, K. Sakamoto, T. Shinya, M. Sugimoto, J. Kaster, P. Cara, H. Dzitko, R. Hidinger, G. Phillips, Proceedings of the 14th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, (2017) 85.
3) Y. Okumura, R. Gobin, J. Knaster, R. Heidinger, J.-M. Ayala, B. Bolzon, P. Cara, N. Chauvin, S. Chel, D. Gex, F. Harrault, R. Ichimiya, A. Ihara, Y. Ikeda, A. Kasugai, T. Kikuchi, T. Kitano, M. Komata, K. Kondo, S. Maebara, A. Marqueta, S. O’ Hira, M. Perez, G. Phillips, G. Pruneri, K. Sakamoto, F. Scantamburlo, F. Senée, K. Shinto, M. Sugimoto, H. Takahashi, H. Usami, M. Valette, Rev. Sci. Instrum., 87 (2016) 02A739.
4) K. Kondo, T. Akagi, R. Ichimiya, T. Ebisawa, A. Kasugai, K. Sakamoto, T. Shinya, M. Sugimoto, Y. Hirata, S. Maebara, E. Fagotti, G. Pruneri, F. Scantamburlo, D. Jimenez, I. Podadera, M. Weber, B. Bolzon, P. Cara, J. Knaster, H. Dzitko, D. Gex, R. Heidinger, A. Jokinen, A. Marqueta, I. Moya, G. Phillips, Proceedings of the 14th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, (2018) 7.
5) A. Kasugai, K. Kasuya, H. Kobayashi, H. Kondo, S. Kwon, M. Nakamura, K. Ochiai, M. Ohta, M. Oyaidzu, C. Park, S. Sato, M. Teduka, Proceedings of the 15th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, (2018) 110.

海 外 レ ポ ー ト

# ローレンスバークレー国立研究所に滞在して

## 1　はじめに

アメリカ・カリフォルニア州にあるローレンスバークレー国立研究所に 2017 年 3 月より 1 年間滞在する機会を得たので，簡単に報告させていただく．

## 2　ローレンスバークレー国立研究所について

ローレンスバークレー国立研究所（Lawrence Berkeley National Laboratory: LBNL）は，元々カリフォルニア大学バークレー校（UC Berkeley）の放射線研究所（Radiation Laboratory）として 1931 年に Dr. Ernest Orland Lawrence によって設立された．Dr. Lawrence は，1930 年にサイクロトロンの原理を発表し，テーブルトップサイズの装置開発から始め，11 inch, 27 inch, 37 inch, 60 inch と徐々に大型化・高エネルギー化を図った．1939 年には Dr. Lawrence はサイクロトロンの発明とそれを利用した新元素の存在立証への貢献によりノーベル物理学賞を受賞している．その後，さらに大型のサイクロトロン建設のため，1940 年に研究所をバークレー校キャンパス裏の丘斜面に移転した．それが現在の LBNL であるが，彼の死後，研究所の名は Lawrence の名を冠することになった．

LBNL は米国エネルギー省管轄下にあり，丘の麓にある UC Berkeley と組織・研究面で連携しながら，“Bringing science solutions to the world” をスローガンに Biosciences，Computing Sciences，Earth & Environmental Sciences，Energy Sciences，Energy Technologies，Physical Sciences など幅広い研究を進めている．宇宙物理学の分野でも有名であり，2011 年に超新星爆発の観測による宇宙加速膨張の発見によりノーベル物理学賞を受賞した Dr. Saul Perlmutter や東京大学カブリ数物連携宇宙研究機構（IPMU）機構長の村山斉教授も在籍している．

研究所の雇用者数は約 3000 人であり，その約 3 分の 1 は非アメリカ国籍である．その内訳は，中国 50 %，ドイツ 15 %，韓国 13 %，インド 12 %，フランス 10 % となっているそうで，合計 100 % となってしまう．他の国は 1 % 未満ということで，実際私が知り得た日本人研究者は 3 人だけであった．数十年前は多くの日本人研究者が在籍していたそうであるが，何とも寂しい限りである．また，現在でもシンクロトロン ALS（Advanced Light Source）を有し，加速エネルギー 1.9 GeV，ビームライン 40 本，ビーム波長は赤外–硬 X 線となっており，さまざまな分野の研究者に利用されている．他に，ナノテクノロジー研究を推進する Molecular Foundary，人工光合成研究を進める JCAP（Joint Center for Artificial Photosynthesis）などテーマに特化した組織や施設が特徴的である．

写真 1.　研究所からの眺め．

## 3　研究生活について

筆者は，水溶液中における有機配位子と元素の錯体形成に関する研究手法を学ぶため，Glenn T. Seaborg Center に在籍する Dr. Linfeng Rao のグループの門を叩いた．筆者の普段の職務の一つは，放射線グラフト重合法による元素吸着材開発であり，いいかえれば，有機配位子を有機高分子上に固定化する技術開発である．有機配位子の元素選択性等の性質は吸着材にとって重要な要素の一つであり，それらを評価する手法を勉強したいと考えていた．新しいモノを生み出すためには基礎的な研究に立ち戻ること，新しい分野の知識が重要であるとひしひしと感じていたこともあり，今回一から教えてくださいとほぼ学生気分で Dr. Rao のところに飛び込んだ次第である．

少し脱線するが，センターの名を冠している Dr. Glenn T. Seaborg は Dr. Lawrence らが構築したサイクロトロンを用いて多くのアクチニド元素の存在を立証し，その化学的性質を系統的にまとめあげた功績により，1951 年ノーベル化学賞を受賞している．ちな

みに，超ウラン元素の中には LBNL にちなんだ名前があり，Bk（バークレニウム，原子番号 97），Cf（カリホルニウム，原子番号 98），他に Dr. Lawrence の名を取った Lr（ローレンシウム，原子番号 103），Dr. Seaborg の名を取った Sg（シーボーギウム，原子番号 106）がある．本センターは，新元素研究の流れを引き継ぎ，特にランタニド，アクチニド，超ウラン元素にまつわる研究が連綿と続いている．Dr. Rao は，水溶液中における錯体化学，特に電位差測定，光吸収測定，熱量測定，X 線構造解析等，複数の手法を組み合わせて，重元素の化学的性質や有機配位子との相互作用を多角的に解釈することを専門としている．筆者は，古典的な電位差測定法から始めることにして，電極でひたすら pH を測定する日々が続いた．ただ装置が安定に機能せず，その解決に 3 か月以上かかってしまった．苦労して解決したことは良かったが，むしろこれまでポスドクや学生が測定していたデータは大丈夫だったのだろうかとやや心配にはなった．他に分光測定，熱量測定等を用いた化学種同定法などを学び，先述の ALS 放射光での錯体結晶構造解析などを含め，多くのことを経験させていただいた．また，HERL（Heavy Element Research Laboratory）と呼ばれるアクチニド元素を扱う施設があり，ウラン錯体の実験も多少行うことができた．多くの想定外のトラブルはあったが，何とか予定していた手法を学ぶことができた．もう少し時間があれば！ と思ったりもするが，基礎研究の世界に一時でも戻れたことは本当に幸せなことだった．今後の材料開発に活かしていきたいと思う．

## 4　バークレーでの生活について

バークレーの街は，サンフランシスコ周辺のベイエリアと呼ばれる地域の東側，イーストベイに位置する．サウスベイエリアには，シリコンバレーがあり，現在を代表するテック企業，Apple や Google，Intel，Tesla など多数立地している．ベイエリアには世界中から多くの人材が技術や仕事，夢を追い求めて集まり，家賃が凄まじく高騰し，かつ競争率が激しい．かくいう筆者も現地に到着後，家探しに奔走した．20–30 件ほど連絡を取って交渉し，たくさんの物件を下見に行った．家賃も 1 K の間取りで 1500 ドルは下らない．また，比較的条件の良い物件は下見に多くの人が集まり，この多くのライバルの中から家主に気に入られなければならない．非常に苦労したが，あの手この手を使い，比較的条件の良い物件の契約に成功した．ただし，契約後，家主はことあるごとに“この家ぼろいからなあ”といい放ってくる．確かに入口のドアを開けるには蹴る必要があり，部屋のドアノブは引っ張れば外れてしまう，という具合であった．

写真 2.　Dr. Rao（左）と Dr. Zhang（右）とともに．

いくらかバークレーの街に友人ができると，彼らは Potluck Party をやろうという．いわゆる食べ物を持ち寄るパーティである．ある時，持ち寄った料理に投票で順位を決めようという企画が持ち上がった．皆は寿司を作れだなんだといってきたが，材料の入手しやすさ，食べやすさ，南米出身者が多いこと，色々考えて，肉汁をたっぷり含んだビーフコロッケに行きついた．結果，作戦が功を奏し，31 人中 1 位を獲得した．よくしゃべるブラジル人の婦人がお気に召したらしく，宣伝効果が抜群だったようだ．誇らしかったが，コロッケが日本料理かというと答えに若干窮してしまった．元々日本料理ではないが，典型的な日本の家庭料理だということでその場は落ち着いた．

## 5　おわりに

バークレーやベイエリアに世界中からやってくる人々は，皆意欲的で目が輝いているように見えた．生活費の高騰にも関わらず集まってくるのは，仕事や先端技術によるだけではなく，人々や街の寛容さにあるのだと個人的に思う．Dr. Lawrence の Radiation Laboratory では，物理学者のみならず，化学者，医学者など多様な分野の人が集っていたという．その中から，新元素の化学的性質の解明，核医学への応用が展開していった．新しい分野を切り拓くには，異なる分

野や発想を融合していく勇気や労力が必要だと思う．そういったものを称賛・応援する土壌がバークレーやベイエリアにはあると感じる．今回の滞在では，研究以外にも多くのことを学ぶことができた．このような機会を与えていただいた職場関係者に感謝し，この経験を今後の研究生活に活かしていきたい．

(国立研究開発法人 量子科学技術研究開発機構　　佐伯 誠一)

# 2nd International Conference on Ionizing Processes（ICIP2018）参加記

2018 年 7 月 22 日から 27 日の 6 日間，アメリカ合衆国 Maryland 州の Annapolis にて 2nd International Conference on Ionizing Processes（ICIP2018）が開催された．ICIP は Gordon conference の後継として 2 年前に第 1 回が Brookhaven National Lab. にて行われ，今回が 2 回目の開催になる．開催地の Annapolis は Washington D.C. から東に車で 1 時間程の距離であり，綺麗な街並みやシーフードを楽しむことができる港町である．今年は University of Maryland の Mohamad Al-Sheikhly 先生が Chair を行われ，Gordon conference から続く伝統を踏襲し，世界各国からの研究者を招待し，最新の研究成果やアイディアなどを含めた意見交換を目的とし，放射線化学の基礎から応用に至る幅広い内容について，活発な議論が行われた．

会議にはアメリカを中心として世界 15 カ国から若手研究者 19 人を含む 91 人が参加し，日本からは 2 名が参加した．参加者の多くは学会会場である Loews Annapolis Hotel に宿泊し，朝から夕方まで行われたセッションに参加した．会場は Annapolis のメインストリートに位置し，メインストリートを通って海まで徒歩 15 分ほどであった．2 日目の午後に少しのフリータイムが設けられ，潮風にあたりながら街中を散策することができた．Annapolis 自体が有名な観光地の一つであるようで，街中にはレストランも豊富にあったため，空き時間には近隣の散策などを行ったり，美味しいシーフードに舌鼓をうったりすることができた．5 日目の夕方には Banquet が催され，港の真横のレストランを利用し，クラフトビールとカニの食べ放題付きの料理に舌鼓を打ちつつ，参加者同士の懇親を深めることができた．夜にはホテル内および近隣のバーでお酒を飲むことができ，夕食後には参加者同士でさらなる親睦を深める飲み会が開かれていた．

セッションでは 41 件の招待講演，12 件の若手研究者講演，30 件のポスター発表があった．講演の内容としては，放射線化学の基礎過程，エネルギー技術への応用，放射線による合成技術，生体分子への照射効果，原子炉への応用など，幅広くカバーされている内容で非常に充実していた．初日は Welcome reception および 1 つのセッションが行われた．2 日目以降は 8 時から 12 時の間に 2 セッション，14 時から 18 時の間で 2 セッション，という形で行われた．ポスター発表は 3，4，5 日目の午後の 1 つのセッションを用いて実施され，筆者は酸化アルミニウムの表面における過酸化水素の反応についてポスター発表を行い，KTH の Jonsson 先生，パリ南大の Mostafavi 先生，BNL の Wishart 先生など，著名な方々と充実した議論をすることができた．議論を通し，ポスターで発表したデータのみならず，基礎データや実験の細かい手法，さらには関係する別のプロジェクトの内容についても細かく議論することができ，有意義な時間を過ごすことができた．招待講演全体を通して活発な議論が行われ，各講演について，時間内に終わることが稀であり，議長から言葉にならない悲鳴が聞こえていた気がした．また前回に比べて会議自体のスケジュールに比較的余裕があったため，講演終了後や空き時間に随所で質問しきれなかった内容についての議論が行われていたり，研究グループ同士での打ち合わせも行われていたりした．

次回は Idaho National Lab（INL）の Dr. Gregory Horne がオーガナイザーとして，Idaho Fall で行われることが決定した．INL はアメリカで初めて実機のスケールで原子炉を設計し，国内で初めて原子力発電による電気を供給した場所でもあり，これまでに 52 機の原子炉を設計してきたことから，アメリカ国内でも原子力及

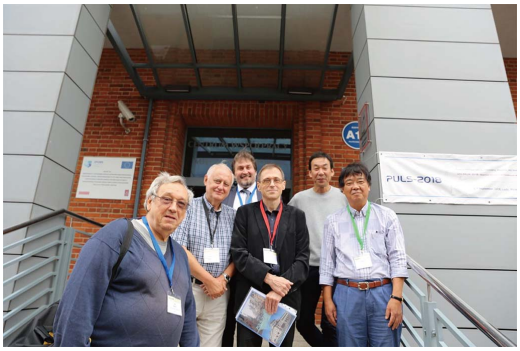
び放射線関連の研究において重要な研究施設の一つである．Dr. Horne と筆者とは Notre Dame Radiation Lab. にて寝食を共にした仲であり，非常に人柄のよい方で，INL に移動した後も実験や会議で顔を合わせる度に熱い抱擁を交わしてくる研究者である．次回の会議はそんな彼の人間性あふれる内容の会議になることは間違いないと思われる．また INL の近くにはアメリカで初めて国立公園として指定されたイエローストーン国立公園があるため，会議の前後にオプショナルツアーを計画されることをお勧めいたします．筆者もなるべく参加できるように，研究に精進したいと思う．

写真． 参加者の集合写真

(University of Notre Dame　岩松 和宏)

# PULS2018 報告

2018 年 9 月 2 日から 7 日にかけて，ポーランドの Łódź（ウッチ）工科大学で，第 9 回 PULS (Pulse Investigation in Chemistry, Physics and Biology) Conference が，第 4 回 RKCM (Reaction Kinetics in Condensed Matter) Conference との合同で開催された．

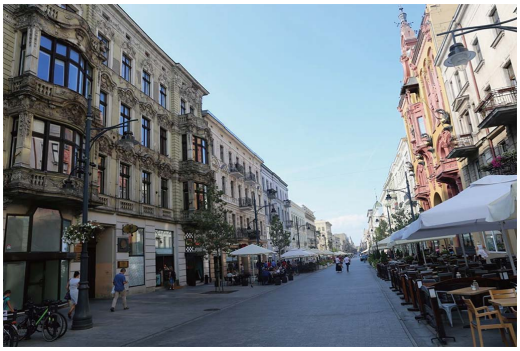


写真． 主催者の Wojcik 教授（中央），Bobrowski 教授（中列左），Ulański 教授（後列左）．

ウッチ工科大学の IARC（応用放射線化学研究所）では，1980 年代から Kroh 教授（2016 年没）のもと，パルスラジオリシスによる放射線化学初期過程の研究が推進されてきた．そのウッチで 1985 年に第 1 回が開催され，2008 年までに 8 回の国際会議がポーランドの各地で開催さた．その後しばらく開催が中断していたが，2010 年から始められた RKCM Conference と合同開催で，歴史ある国際会議が復活した．なお，この会議は，その前の週にモスクワで開催された IRaP2018 から連続の参加者も多数見受けられた．

写真． PULS2018 ポスター会場．

本会議のメインテーマは kinetics であるが，実験，パルスラジオリシス，光物理・光触媒，生体系，フリーラジカル，高分子，理論の広い分野に渡るセッションが設けられた．招待講演 28 件，一般講演 25 件，ポスター 49 件が行われ，連日熱心な議論が行われた．冒頭の米ブルックヘブン国立研究所の J. Wishart 博士は，放射線化学の研究動向の現状と将来について総括を行い，日本の東京大学，大阪大学等の日本のパルスラジオリシスにつても言及した．日本からは，高橋，吉田のほか，産総研の関和彦先生，また現在，台湾国立交通大学におられる太田信廣先生が参加された．高橋は，イオン液体の反応ダイナミックス，吉田はアト秒パルスラジオリシスに関する提案を行った．



写真．会議の開かれたポーランド Łódź の街並み．

ポーランドをはじめ若手研究者の発表も多く，この分野における活発な活動が印象に残った．会議の運営は非常によく，充実したバンケット等，参加者は充実した 6 日間を過ごすことができた．改めて，主催者の M. Wojcik 教授，K. Bobrowski 教授，P. Ulański 教授をはじめ，組織委員会の方々に感謝する．

写真．Conference Dinner（Izrael Poznański's Palace）．

(金沢大学 [1], 大阪大学 [2]　高橋 憲司 [1], 吉田 陽一 [2])

# 参加報告：量子生命科学研究会第 2 回学術集会

平成 30 年 5 月 10 日に東京大学弥生講堂で量子生命科学研究会第 2 回学術集会が量子科学技術研究開発機構主催，日本放射線化学会他の後援で開催された．

量子生命科学研究会は昨年発足した研究会であり，『生命科学の分野に最先端の量子技術あるいは量子科学の知見を総合的に活用することにより，生命の本質に迫る新たな研究分野–量子生命科学（Quantum Life Science）–を立ち上げることを目的』（量子生命科学研究会 Web サイトより引用；英語名は筆者が追記）としている．昨年 4 月の第 1 回集会，7 月の国際シンポジウムを経て，都合 3 回目となる本集会には，236 名の参加があり，第 1 回と比べて 100 名近く増えたとのことである．第 1 回よりも大きくなった講演会場が，それでもなお満員となったことは，量子生命科学への関心，期待が徐々に高まりつつあることを感じさせた．本集会では，2 件の基調講演，1 件の特別講演，9 件の講演と，55 件のポスター発表が行われた．本稿では，この中から筆者が特に関心を持った講演を紹介したい．

1 件目の基調講演では，国立遺伝学研究所の前島一博先生が，「クライオ電子顕微鏡，X 線散乱，超解像蛍光顕微鏡で明らかになったクロマチンの構造とダイナミクス」と題し，電子線，放射光 X 線，あるいは蛍光を利用したイメージングにより，長年信じられていた規則正しく束ねられたクロマチン（DNA とタンパク質の複合体）構造は細胞内には存在せず，不規則に収納されている事や，その不規則な折り畳みによりクロマチンドメインと呼ばれる塊が形成されることを明らかにした成果に関して講演された．「規則正しく束ねられた」クロマチン構造もまた，実験的に観測された「正しい」描像ではあったが，細胞内の条件とは異なるイオン強度が低い条件下で観察される構造であり，イオン強度を高くした場合には不規則になることが紹介された．実験条件は，実験手法の制約などに左右され，実際の系とは異なる条件を設定せざるを得ない場合もあるが，ここに大きな落とし穴が隠れている可能性に改めて気付かされた．昨年ノーベル化学賞を受賞したクライオ電子顕微鏡に関しては，多少見聞きしていたものの，自身の研究に近い分野で適用された例をじっくりと聞くことができたのは非常に良い経験となった．

理研・放射光科学研究センターの山本雅貴先生は，「生命機能に迫る相関構造解析の最前線」と題し，講演をされた．講演では，10 μm 程度の微小タンパク質結晶から構造解析が可能になった最近の X 線結晶構造解析の進展が紹介された．また，創薬研究等への応用には，結晶構造解析で得られる静的な構造情報だけではなく，構造の時間変化や他の分子との相互作用，反応過程も重要になってくるため，現在主流の結晶構造解析に加え，小角散乱，クライオ電子顕微鏡，NMR といった複数の構造解析手法から得られた情報を統合し，計算機によるシミュレーションなども併用しながら構造ダイナミクスを明らかにする「相関構造解析」が重要であると述べられた．結晶という最もコンパクトな環境下に置かれた構造情報のみをもとに諸々が議論されることに疑問を感じていたので，「相関構造解析」が積極的に行われるようになることを期待したい．筆者らの使う放射光円二色性分光も上記の手法ではカバーできない重要な情報を提供できると考えられるので，放射光円二色性分光を中心に据えた相関構造解析を今後の課題としたい．

ポスターセッションでは，50 分の発表時間に対して，上述のように 55 件もの発表があった．非常に短い時間ではあったが，各所で活発な議論が行われていた．ポスター賞の審査員を拝命しており，一通りポスターを見て回る必要があったため，議論が不十分になってしまったのは残念であった（ちなみに筆者自身の発表は，ポスターを貼り付けただけで終わってしまった）．

最初の挨拶の中で平野俊夫会長（量研機構）が『（発足 2 年目の）量子生命科学はまだよちよち歩きの子ども』と表現されたが，その例え通り，昨年生まれたばかりの量子生命科学が日々着実に成長し，歩み始めていることを感じさせる第 2 回集会であった．本会を主催いただいた量研機構の関係者の皆様に深く感謝したい．量子生命科学が「走り回って」いるであろう第 3 回集会は，来年に京都大学主催で開かれる予定となっており，第 2 回の国際シンポジウムも計画中と聞いている．量子生命科学の成長を見に，ぜひともご参加いただきたい．

最後に，運営委員を拝命しているので，宣伝をひとつ．量子生命科学研究会は，現在会員を募集中である．興味を持たれた方は，研究会 Web サイトをご覧いただければと思う．

(広島大学 放射光科学研究センター　泉 雄大)

# 参加報告：第 55 回アイソトープ・放射線研究発表会

第 55 回アイソトープ・放射線研究発表会が東京大学において 7 月 6 日–8 日の 3 日間にわたり開催され，多くの分野で口頭発表及びポスター発表が行われました．本参加記では初日に行われた発表に関する私の印象等について記したいと思います．

## 1　放射線効果に関する研究

このセッションでは主にパルスラジオリシス法を用いた研究についての発表があった．パルスラジオリシス法とは時間幅の短いパルス状の放射線を試料に照射し，短寿命中間活性種の生成過程や反応機構を発光や吸光等の分光により調べる方法です．レジスト材料として用いられている ZEP520A の放射線反応を解明することを目的としたポリ α メチルスチレンの照射効果についての研究や，軽水炉の高温水中の水の放射線反応機構についての研究，他には放射線の防御機構の解明等，さまざまな研究発表が行われました．私の研究もパルスラジオリス法を用いており，非常に興味深いセッションでした．

その中でも早稲田大学の志村氏の発表が特に印象に残りました．再生医療用細胞培養膜の作製時に電子線グラフト重合法によって微細加工を施すことにより，細胞成長制御特性を持った細胞培養膜を作製する，という内容でした．私は学部生の時に再生医療に関する研究を行っていたこともあり非常に興味を持ちました．電子線等を用いた微細加工技術はレジスト分野で特に研究されているというイメージが非常に強かったため，細胞培養膜にも微細加工技術を使って新しい特性を付与しようという研究に感嘆しました．細胞培養膜へ新規特性を付与することで従来作れなかった細胞を培養できるようになり，再生医療がますます発展していくことを期待させられました．

## 2　線源及び放射線発生器に関する研究

このセッションでは高品質電子ビーム生成やレーザー変調器を用いた高出力テラヘルツ源に関する研究等と，日頃の研究で私が用いている装置についての発表でした．放射線効果のセッションとは異なり，物理的な話が多く非常にためになる発表ばかりでした．

また，量子科学技術研究開発機構の太田氏の “核融合中性子源（A-FNS）計画における医療用 RI 製造の検討” に関する発表では，A-FNS からの中性子線の核融合以外の利用の検討として，医療用 RI である $^{99}$Mo の製造に着目したものが紹介されました．原子炉の多くが停止して以来，$^{99}$Mo は 100 % 輸入に頼っているとのことでしたが，A-FNS で国内の需要分をまかなう量の製造が可能との見積もりで，国内製造による安定供給の実現が期待されるとのことでした．今までのアカデミックな研究発表とはがらりと変わり，産業により近い研究テーマであり興味深かったです．

この発表会を通じて，放射線を用いた研究というのは，生体・原子炉・レジスト等と，さまざまな分野に広がっており，私が思っていた以上に奥深い研究分野であることを知り，この分野での興味，そして理解を深めることができました．

また，私も口頭発表させていただき，さまざまな先生方からありがたい助言をいただきましたこと，この場を借りて感謝申し上げます．

(阪大産研　　仮屋 深央)

# 放射線化学若手の会夏の学校 開催報告

2018 年度の放射線化学若手の会夏の学校は 8 月 25 日から 27 日にかけての 3 日間，福井工業大学砂川研究室の運営で開催しました．本年度は福井工業大学を会場に，また，大学に隣接する福井アカデミアホテル（天然温泉付き）を宿泊施設とし，大阪大学（吉田研究室），福井大学（泉研究室），福井工業大学（砂川研究室）から学生 10 名，教員 3 名の 13 名が参加しました．講師は量子科学技術研究開発機構高崎量子応用

研究所の田口光正先生，福井大学附属国際原子力研究所の泉佳伸先生をお招きし，ご講義頂きました．今回は 2 日目と 3 日目の朝にそれぞれ講義を行って頂くようにし，それぞれの前日の夜に事前学習と称して講義の前授業を行うことにしました．

初日は 16 時から開校式を行い，ホテルで一息ついた後で夕食とし，夕食後に早速田口先生の事前学習を行いました．放射線分解・架橋反応の利用についての説明の中で，架橋技術を用いた学校教材を使って簡単な実験を体験しました．この教材は生分解性樹脂（ポリカプロラクトン）に対して放射線照射による架橋反応によって耐熱性向上と形状記憶性が付与され，子供たちが簡単・短時間で放射線作用について学習できるというものでした．参加者は未照射の樹脂と照射済みの樹脂をお湯につけて伸ばし，放射線架橋された樹脂は再度お湯につけると元の形状に戻ることを実際に体験し，放射線の利用に対してよりよく理解することができました．その後懇親会を兼ねた研究室紹介を行い各研究室の個性，特色を表したユニークな発表でした．福井名物の一つ「秋吉の焼き鳥」と各研究室の持ち寄った酒を飲みながら参加者間で交流が深めることができ，1 日目を終えました．

2 日目の午前中は田口先生の講義をお聞きしました．田口先生は「放射線加工技術を駆使した生体親和性材料の医療への応用」という題目でお話ししていただきました．放射線治療に用いるゲル線量計，細胞培養に適したハイドロゲル，ナノゲルを用いた MRI 造影剤等についての医療応用での放射線架橋技術，研究について分かりやすく説明していただきました．

午後からはバスで移動し，福井県立恐竜博物館の見学に行きました．世界 3 大恐竜博物館の一つであり，恐竜の全身骨格が所狭しに展示されており，その迫力に圧倒されました．恐竜の世界，地球の科学，生命の歴史についてロマンを感じつつ普段触れない学問分野を体感でき，良いリフレッシュにもなったのではないかと思います．

会場に戻り夕食後には泉先生の事前学習を行いました．数名の学生をあてて問題を出されることもあり，少し緊張していた学生もいましたが，「若手なのだから間違えることを恐れてはいけない」と，良い教えをいただきました．2 日目の最後にポスター発表を，お酒を片手にしながら行いました．ディスカッションは活発に行われ，手に持つぬるくなったビールも忘れるほどに盛り上がり，各人の研究内容にとって非常に有意義な時間を得ることができました．

最終日 3 日目は，泉先生の講義をお聞きしました．泉先生は「放射線化学と放射線生物学での保護効果について」という題目でお話ししていただきました．化学過程における放射線保護効果について踏まえたうえで，細胞や生体が対象の放射線防護に適応させるにはどうすればよいかなど丁寧に説明していただき，カテキンなどのポリフェノール類やアスコルビン酸などの食品，天然由来のラジカルスカベンジャーの可能性等について興味を持って受講し，理解を深めることができました．

以上で 2018 年度の放射線化学若手の会を無事に終えることができました．開催日直前には台風が来ておりどうなるか不安でしたが，開催日は台風一過で非常に良い天候で 3 日間を過ごせました．反省点として，本年度は，放射線化学討論会の 1 か月前に開催することで，討論会本番へ向けて発表内容をシェイプアップさせる場にする意図を持たせようとした一方で，遠方の方にとっては参加しにくかったのかもしれません．

最後になりましたが，ご支援をくださった日本放射線化学会に厚く御礼申し上げます．ご講義頂いた田口先生，泉先生には，大変お忙しい中，多くの興味ある知見を与えていただき，また 3 日間通してご参加していただき，心から御礼を申し上げます．今後の若手の会が大きく盛り上がり，ひいては日本放射線化学会が繁栄することを願っております．

写真 1.　集合写真

(福井工業大学　　青木 祐太郎)

# 第 61 回放射線化学討論会参加報告（1 日目）

第 61 回放射線化学討論会は，大阪市立大学杉本キャンパスにて平成 30 年 9 月 26 日（水）から 28 日（金）までの 3 日間の日程で開催された．討論会初日の 26 日は，12 時 50 分から今年度討論会実行会委員長である大阪市立大学大学院工学研究科の堀邊英夫先生による開会挨拶の後，2 つのセッションにて 8 件の口頭発表と 1 件の特別講演，そして 1 件の招待講演が行われた．その後，ポスターセッションが行われ，多くの分野の研究成果が報告された．最後に理事会が執り行われた．

はじめのセッションでは，理研仁科センターの池田時浩氏により，ガラスキャピラリーによるイオンマイクロビーム照射で生じた細胞核内イオントラックの解析などが報告された．その後，筆者も関わっている研究グループのメンバーにより研究成果が報告され，筆者もこのセッションにおいて「紫外線マイクロビーム細胞照射システムの開発:微小距離でのプロファイル測定とエネルギー評価」の演題名で報告した．後半のセッションでは，東大院工の于暠氏らにより，放射線による DNA 変異誘発における微量添加剤の影響や，京大院工の水谷氏らにより，高真空内の微小液滴へのMeV イオンビーム照射をし，二次イオンの質量分析を行い，液滴通過後の前方散乱イオンとの相関測定システムの開発についての報告があった．

阪大産研の仮屋氏らにより，有機物フリーな白金コロイド水溶液中でのナノ粒子形成過程について報告された．阪大基礎工の宮坂博先生により，多重励起・多光子励起による高位電子励起状態の反応過程の解明について特別講演が行われた．主に，フォトクロミック分子系における高位電子励起状態からの反応過程に関する報告を紹介していただいた．筆者の研究グループでフォトクロミックシートを取り扱い始めたこともあり，内容は非常に興味深いものであった．筆者は物理が専門であるが，放射線化学分野の多くの人と議論できたことで多く知見を得ることができた．また，本討論会において筆者は優秀発表賞をいただけたこともあり，筆者にとって有意義な時間となりました．

最後に，この様な貴重な機会を与えてくださった先生方，討論会を主催していただいた実行委員の方々に感謝いたします．

(東邦大学大学院　　河村 俊哉)

# 第 61 回放射線化学討論会参加報告（2 日目）

平成 30 年 9 月 26 –28 日に大阪市立大学で開催された放射線化学討論会に参加しました．今年度は放射線化学だけでなく，光化学や生化学についての様々な講演を聴講することができ，非常に実りのある討論会でした．本参加記では 2 日目の 27 日に行われました発表等に関して記します．

2 日目の発表で非常に印象に残ったのは，大阪市立大学の堀井泰之氏の「ナノ物質の自在空間操作を目指して 量子の世界に足を踏み入れた新型光ピンセットの開発」でした．光ピンセットとは，レーザー等を物質に照射した際に生じる光の圧力を用いて非接触に微生物を捕獲する装置のことであり，今年のノーベル物理学賞はこの技術を開発したアメリカのアシュキン氏が受賞し，現在注目されている技術です．従来技術では DNA などの生体物質の捕捉としてよく用いられていますが，10 nm 以下のナノ物質の光捕捉は，捕捉に働く勾配力がビームの熱揺らぎに打ち勝てなくなるため非常に困難でした．そこで堀井氏らは，ナノニードルが集積した表面構造を有するケイ素結晶板を用いることで光圧を上げ，熱揺らぎを抑えた全く新しい光ピンセットを開発しました．光ピンセットという単語すら聞いたことのない初心者の私にもとてもわかりやすく，非常に興味をそそられるご講演でした．

また 2 日目の最後には放射線化学賞を受賞された，量研機構の山本洋輝氏の授賞式および受賞講演「放射線化学によるポリマーフィルムへの金属ナノパターン

形成」がありました．写真 1 は授賞式の様子です．山本氏は，金属含有のポリマー膜を作製し，放射線照射することで金属含有微細パターンを直接形成するという研究内容でした．私も放射線誘起による金属ナノ粒子形成に関する研究を行っており，非常に勉強になりました．新たな微細加工技術の創造に，今後の EUV リソグラフィーの発展をますます期待させられました．

写真 1. 授賞式の様子．

受賞講演の後には懇親会が行われ，多くの方々と懇親を深めることが出来ました．また，若手研究者による優秀発表賞の表彰式もありました．写真 2 は受賞した一人，東北大学の川本弘樹氏です．彼の「銀添加リン酸塩ガラスにおけるラジオフォトルミネッセンス（RPL）中心形成過程の RPL の温度依存性による探求」のポスター発表では，知識のない私でも非常に分かりやすい説明をしてくださり，深く理解することが出来ました．またそのほかの方々の素晴らしい口頭およびポスター発表を通して，皆様の研究姿勢に刺激を受け，私自身今後の研究を頑張っていこうと思いました．

この討論会を通じて，放射線を用いた研究というのは，生体・原子炉・レジスト等と，様々な分野に広がっており，私が思っていた以上に奥深い研究分野であることを知り，この分野での興味，そして理解を深めることができました．また，私も口頭発表させていただき，様々な先生方からありがたい助言を頂きましたこと，この場を借りて感謝申し上げます．

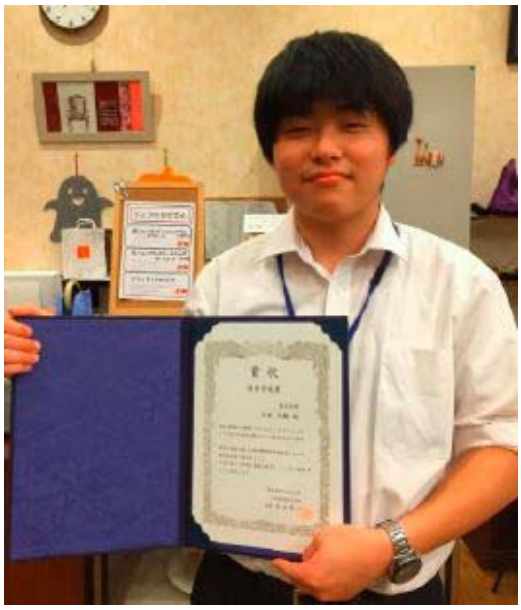


写真 2. 優秀発表賞を受賞した川本弘樹氏（東北大学）．

(阪大産研　仮屋 深央)

# 第 61 回放射線化学討論会参加報告（3 日目）

討論会最終日となる 3 日目は，午前 9 時 30 分から午後 12 時 35 分までの間に計 8 件の講演が行われた．

まず，平出哲也氏（原子力機構）による “水中における OH-$H_2O$ 複合体の陽電子消滅法による検出”，中島洋氏（阪市大院理）による “近赤外光応答性一酸化炭素放出鉄 (III) 錯体の開発”，渡邊禎之氏（都産技研）による “固体 NMR によるフェロシアン化遷移金属中のアルカリ金属イオンの吸着構造研究”，神戸正雄氏（阪大産研）による “ハロメタン中の放射線誘起反応の反応機構の再検討” の 4 件の口頭発表が行われた．筆者は，昨今発展の目覚ましい医療分野への応用を見越した中島氏の研究に聞き入った．これまで筆者は，一酸化炭素 (CO) は人体に有毒であると認識していた．しかし，本講演を通して CO を用いた技術が臨床段階に

至っていることを初めて知り，CO 医療への応用に向けた CO 放出錯体の可能性に高い将来性を感じた．

次に，招待講演として，中村貴宏氏（東北大学 多元物質科学研究所）に “レーザー誘起核生成法による金属・合金ナノ粒子の作製” について講演していただいた．いまだ発展途上である超高強度レーザー科学の分野において，講演者らが開発したレーザー誘起核生成法は世界に先駆けたものであり，金属・合金ナノ粒子を水溶液中に作製可能であると報告があった．

休憩をはさんだ後，小畠誠也氏（阪市大院工）に “フォトクロミック結晶の光化学と固体物性変化” について講演していただいた．ジアリールエテンは固体状態でフォトクロミズムを示す稀有な材料であり，光照射によるジアリールエテンの色，複屈折率，蛍光強度および結晶状変化について報告があった．筆者は，ジアリールエテン結晶の光照射による多様な特性の発現報告を受け，ジアリールエテンの今後の躍進と，より高度な光機能材料への応用が期待されると感じた．

最後に，鵜飼正敏氏（農工大院工）による “DNA 放射線損傷中間体分析のための発光測定”，小林一雄氏（阪大産研）による “パルスラジオリシス法を用いた放射線耐性を有するクマムシヘモグロビン（Kumaglobin）の酸素結合過程” と 2 件の口頭発表が行われた．これらの講演は，放射線の生理学・医学への利用が報告の主であり，近い将来，我々が享受することになるかもしれない最先端の技術に対する今後の展望をお聞きすることができた．

本討論会を通して，最先端の研究や技術を拝聴することができ，改めて化学の魅力を感じるとともに，放射線化学の益々の発展に期待した．さらに，講演では研究内容だけでなく，研究に対する姿勢やプレゼン技術などを実際に拝聴することができ，自分の研究生活の参考とすることができた．また，筆者は 2 日目のポスターセッションにて発表させていただいた．発表中には，多分野の方々からご指摘とご助言を拝受し，自分の勉強不足を痛感するとともに，今後の研究課題を見据えることができた．お会いする機会が限られている先生，学生の方々が積極的に自分の研究内容について議論を持ち掛けてくださり，自分の研究に対する知見を広げるとともに専門外の方々との交流を図る有意義な時間となった．本学会に参加し得た経験や知識は今後，社会人となり研究に携わっていく上で必ず生かされるものであると感じた．このような機会を与えてくださった関係者の方々に感謝を申し上げ，結びとさせていただく．

(大阪市立大学　外川 雄介)

# 第 61 回放射線化学討論会プログラム

【日 程】2018 年 9 月 26 日（水）–28 日（金）
【場 所】大阪市立大学 杉本キャンパス
【会 場】学術情報総合センター 10 階
【主 催】日本放射線化学会
【協 賛】日本アイソトープ協会
【テーマ】放射線化学の基礎，応用及び関連分野の研究発表を行う．関連分野には，放射光化学，レーザー化学，プラズマ科学，原子分子衝突，加速器科学，陽電子科学などの学際領域に加えて，ナノテクノロジー，高分子科学，分子科学，デバイス物理などと放射線化学との境界領域を含む．
【事務局】大阪市立大学大学院工学研究科 高分子科学研究室（堀邊研究室内）
〒558–8585 大阪市住吉区杉本 3–3–138
jsrc2018osaka@gmail.com
【講演時間】質疑応答：5 分含
特別（2 件）：45 分，招待（4 件）：30 分
受賞（1 件）：30 分，依頼 A（3 件）：25 分，
依頼 B（3 件）：20 分，一般（21 件）：15 分
【ポスター】1 日目（9 月 26 日（水））16:40–17:30（24 件）
2 日目（9 月 27 日（木））11:00–11:50（24 件）

【プログラム】
（「※」は優秀発表賞候補者）

**9 月 26 日（水） [1 日目]**

＜開会挨拶＞ (12:50–13:00)

＜口頭発表 **1** ＞ (13:00–14:15)
座長：間嶋 拓也（京大院工）

1–O–01 ガラスキャピラリーによるイオンマイクロビーム照射で生じた細胞核内イオントラックの解析
○池田 時浩[1]，引間 宥花[2]，森 光正[2]，池亀 真由佳[2]，河村 俊哉[2]，松原 充芳[2]，箕輪 達哉[2]，金 衛国[2]（1：理研仁科センター，2：東邦大物理）

1–O–02 ※ ガラスキャピラリーによるマルチ量子マイクロビーム照射に向けたイオンビームプロファイル測定
○池亀 真由佳[1]，池田 時浩[2]，森 光正[1]，引間 宥花[1]，河村 俊哉[1]，松原 充芳[1]，箕輪 達哉[1]，金 衛国[1]（1：東邦大物理，2：理研仁科センター）

1–O–03 ※ ガラスキャピラリー光学系によるマイクロレーザービームプロファイルの測定：微小ティルト角依存性
○森 光正[1]，池田 時浩[2]，池亀 真由佳[1]，引間 宥花[1]，河村 俊哉[1]，松原 充芳[1]，箕輪 達哉[1]，金 衛国[1]（1：東邦大物理，2：理研仁科センター）

1–O–04 ※ ガラスキャピラリー光学系による紫外線マイクロビームの形状測定：フォトクロミックシートを使ったスポット転写
○引間 宥花[1]，池田 時浩[2]，森 光正[1]，池亀 真由佳[1]，河村 俊哉[1]，松原 充芳[1]，箕輪 達哉[1]，金 衛国[1]（1：東邦大物理，2：理研仁科センター）

1–O–05 ※ 紫外線マイクロビーム細胞照射システムの開発：微小距離でのプロファイル測定とエネルギー評価
○河村 俊哉[1]，池田 時浩[2]，池亀 真由佳[1]，森 光正[1]，引間 宥花[1]，松原 充芳[1]，箕輪 達哉[1]，金 衛国[1]（1：東邦大物理，2：理研仁科センター）

＜休憩＞ (14:15–14:30)

＜特別講演 **1** ＞ (14:30–15:15)
座長：吉田 陽一（阪大産研）

1–I–01 多重励起・多光子励起による高位電子励起状態の反応過程の解明
宮坂 博 （阪大院基礎工）

＜口頭発表 **2** ＞ (15:15–16:00)
座長：端 邦樹（原子力機構）

1–O–06 ※ 放射線による DNA 変異誘発における微量添加剤の影響：透析による DNA の高純度化
○于 暠[1]，山下 真一[1]，横谷 明徳[2]，藤井 健太郎[2]，上坂 充[1]（1：東大院工，2：量研東海量子センター）

1–O–07 ※ 真空内微小液滴への重イオン照射：透過イオン相関測定による生成イオン質量分析の高度化

○水谷 汐里，間嶋 拓也，北島 謙生，斉藤 学，土田 秀次（京大院工）

1–O–08 ※ パルスラジオリシス法及びガンマラジオリシス法による有機物フリーな白金コロイド水溶液中におけるナノ粒子形成過程研究
○仮屋 深央[1]，室屋 裕佐[1]，石田 一成[2]，和田 陽一[3]，伊藤 剛[2]，太田 信之[4]，古澤 孝弘[1]（1：阪大産研，2：日立・研開，3：日立 EU，4：日立 GE）

＜休憩＞ (16:00–16:15)

＜招待講演 **1**＞ (16:15–16:45)
座長：室屋 裕佐（阪大産研）

1–I–02 Applications of γ-ray radiolysis of water on the synthesis of diverse functional materials
M. Wang （中国科技大)

＜ポスター発表 **1**＞ (16:45–17:35)

＜理事会＞ (17:45–)

**9** 月 **27** 日（木） **[2** 日目**]**

＜口頭発表 **3**＞ (9:30–10:45)
座長：近藤 孝文（阪大産研）

2–O–01 ※ 過酸化水素およびガンマ線照射による定比二酸化ウランの溶解反応
○熊谷 友多[1]，A. B. Fidalgo[2]，M. Jonsson[2]（1：原子力機構，2: KTH Royal Instit. Technol.）

2–O–02 ※ ピコ秒およびナノ秒パルスラジオリシスを用いた メタルレジスト配位子の放射線化学反応機構の解明
○山田 徹平[1]，石原 智志[1]，山本 洋揮[2]，室屋 裕佐[1]，小室 嘉崇[3]，川名 大助[3]，山崎 晃義[3]，古澤 孝弘[1]（1：阪大産研，2：量研高崎研，3：東京応化）

2–O–03 ※ パルスラジオリシス –時間分解共鳴ラマン測定による芳香族イミド誘導体の一電子還元に伴う構造変化の解明
○庄 勃[1]，藤塚 守[1]，藤乗 幸子[1]，D. W. Cho[1,2]，J. Choi[1,3]，真嶋 哲朗[1]（1：阪大産研，2：Korea Univ.，3：Inst. Basic Sci., Korea）

2–O–04 ※ ポリスチレンにおけるイオン照射下損傷挙動の AMOC 測定
○小西 涼香，南川 英輝，間嶋 拓也，斉藤 学，土田 秀次（京大院工）

2–O–05 ※ 偏光照射によるジアリールエテン結晶の光誘起結晶形状変化
○平野 明，北川 大地，小畠 誠也（大阪市大院工）

＜招待講演 **2**＞ (10:45–11:15)
座長：篠田 哲史（大阪市大院理）

2–I–03 ナノ物質の自在空間操作を目指して–量子の世界に足を踏み入れた新型光ピンセットの開発
坪井 泰之（大阪市大院工）

＜ポスター発表 **2**＞ (11:15–12:05)

＜昼食＞ (12:05–13:00)

＜企画セッション，パート **1**＞
「EUV リソグラフィと放射線化学」 (13:00–14:25)
座長：岡村 晴之（大阪府大院工）

2–K–0 企画挨拶
山下 真一（東大院工）

2–K–1 EUV リソグラフィと放射線化学
田川 精一（阪大産研）

2–K–2 分子増殖反応を利用した高感度フォトレジスト材料の開発
有光 晃二（東京理科大理工）

2–K–3 イオンビーム照射後のレジストと原子状水素との反応性
堀邊 英夫（大阪市大院工）

＜休憩＞ (14:25–14:40)

# お 知 ら せ

＜企画セッション，パート **2** ＞
「EUV リソグラフィと放射線化学」　(14:40–15:40)
座長：山本 洋揮（量研高崎研）

2–K–4 ヒドロキシベンゼン誘導体を用いた非化学増幅型 EUV レジスト
岡村 晴之（大阪府大院工）

2–K–5 電子線を用いた EUV レジスト感度予測法の研究
○保坂 勇志，大山 智子（量研高崎研）

2–K–6 パルスラジオリシスによるレジスト材料の 放射線化学初期過程の解明と展開
○岡本 一将[1,2]，古澤 孝弘[1]（1：阪大産研，2：北大院工）

＜休憩＞　(15:40–15:55)

＜招待講演 **3** ＞　(15:55–16:25)
座長：小畠 誠也（大阪市大院工）

2–I–04 外部刺激に応答する易解体性接着材料の設計と高性能化
佐藤 絵理子（大阪市大院工）

＜口頭発表 **4** ＞　(16:25–16:55)
座長：甲田 優太（大阪市大院工）

2–O–06 アラニン線量計による国際宇宙ステーション ISS での真空紫外線量計測とアラニン 2 量体生成の初観測
○中川 和道[1,2]，小林 憲正[3]，癸生川 陽子[3]，三田 肇[4]，橋本 博文[5]，矢野 創[5]，山岸 明彦[6]（1：神戸大，2：阪大産研，3：横浜国大，4：福岡工大，5：宇宙研，6：東京薬科大）

2–O–07 歯を利用した外部被ばく線量推定
○岡 壽崇[1,2]，高橋 温[3]，小荒井 一真[2]，木野 康志[2]，関根 勉[1,2]，清水 良央[4]，千葉 美麗[4]，鈴木 敏彦[4]，小坂 健[4]，佐々木 啓一[4]，漆原 佑介[5]，鈴木 正敏[6]，篠田 壽[4]，福本 学[7,8]（1：東北大高教機構，2：東北大院理，3：東北大病院，4：東北大院歯，5：東北大院医，6：東北大災害機構，7：東京医科大分子病理，8：東北大加齢研）

＜休憩＞　(16:55–17:10)

＜総会＞　(17:10–17:40)

＜放射線化学賞 受賞講演＞　(17:40–18:10)
座長：鷲尾 方一（早大理工総研）

A–01 放射線化学によるポリマーフィルムへの金属ナノパターン形成
山本 洋揮（量研高崎研）

＜懇親会＞　(18:20–19:50)
学術情報総合センター 1 階 「野のはなハウス」
優秀発表賞 授賞式

**9** 月 **28** 日（金） **[3** 日目**]**

＜口頭発表 **5** ＞　(9:30–10:30)
座長：岡 壽崇（東北大高教機構）

3–O–01 水中における OH-$H_2O$ 複合体の陽電子消滅法による検出
○平出 哲也（原子力機構）

3–O–02 近赤外光応答性一酸化炭素放出鉄 (III) 錯体の開発
○中島 洋[1]，中江 豊崇[2]，西岡 孝訓[1]，廣津 昌和[3]（1：大阪市大院理，2：CNRS, Lille，3：神奈川大理）

3–O–03 固体 NMR によるフェロシアン化遷移金属中のアルカリ金属イオンの吸着構造研究
渡邊 禎之[1]，○市川 恒樹[2,3]，山田 一夫[3]，芳賀 和子[4]（1：都産技研，2：北大，3：国環研，4：太平洋コンサルタント）

3–O–04 ハロメタン中の放射線誘起反応の反応機構の再検討
○神戸 正雄，近藤 孝文，菅 晃一，楊 金峰，吉田 陽一（阪大産研）

＜招待講演 **4** ＞　(10:30–11:00)

座長：八ッ橋 知幸（大阪市大院理）

3–I–05 レーザー誘起核生成法による金属・合金ナノ粒子の作製
中村 貴宏（東北大多元研）

＜休憩＞ (11:00–11:15)

＜特別講演 **2** ＞ (11:15–12:00)
座長：堀邊 英夫（大阪市大院工）

3–I–06 フォトクロミック結晶の光化学と固体物性変化
小畠 誠也（大阪市大院工）

＜口頭発表 **6** ＞ (12:00–12:30)
座長：山下 真一（東大院工）

3–O–05 DNA 放射線損傷中間体分析のための発光測定
寺尾 優作[1]，百鬼 壮大[1]，高田 秀一郎[1]，小島 拓也[1]，相原 大樹[1]，小田島 嘉孝[1]，槇島 熙[1]，島田 紘行[1]，○鵜飼 正敏[1]，C. Ozga[2]，X. Holzapfel[2]，Ph. Schimidt[2]，C. Küstner-Wetekamm[2]，H. Otto[2]，A. Knie[2]，A. Ehresmann[2]，横谷 明徳[3]，藤井 健太郎[3]，福田 義博[4]，斎藤 祐児[4]（1：農工大院工，2：Univ. Kassel，3：量研東海量子ビーム，4：原子力機構）

3–O–06 パルスラジオリシス法を用いた放射線耐性を有するクマムシヘモグロビン（Kumaglobin）の酸素結合過程
○小林 一雄[1]，J. E. Kim[2]，福田 庸太[2]，井上 豪[2]，古澤 孝弘[1]（1：阪大産研，2：阪大院工）

＜閉会挨拶＞ (12:30–12:40)

ポスター発表

＜ **1** 日目＞
（9 月 26 日（水）16:45–17:35，コアタイム 16:45–17:15）

1–P–01 ※ PVA-KI ゲル線量計の研究開発
○青木 祐太郎[1]，グレン ハーヴェル[2]，田口 光正[3]，長澤 尚胤[3]，佐倉 俊治[4]，砂川 武義[1]（1：福井工大，2：オンタリオ工科大，3：量研高崎研，4：（株）ニュークリアテクノロジー）

1–P–02 実用材料レーザー加工の高度化のための可視～真空紫外領域における光学特性データベース構築
○田中 真人，田中 宏，澁谷 達則，佐藤 大輔，小川 博嗣，盛合 靖章，黒田 隆之助（産総研）

1–P–03 産総研における小型電子加速器を用いた中性子分析装置構築の現状
○田中 真人[1,2]，木野 幸一[1,2]，オローク ブライアン[1,2]，満汐 孝治[1,2]，鈴木 良一[1,2]，小川 博嗣[1,2]，藤原 健[1,2]，清 紀弘[1,2]，豊川 弘之[1,2]，黒田 隆之助[1,2]，渡津 章[1,2]，佐藤 大輔[1,2]，林崎 規託[1,2,3]，宍戸 玉緒[2]，室賀 岳海[2]，古坂 道弘[2]，大島 永康[1,2]（1：産総研，2：新構造材料技術研究組合，3：東工大）

1–P–04 液中レーザープラズマによる親水性フッ化炭素ナノ粒子の生成
岡本 拓也，○八ッ橋 知幸（大阪市大院理）

1–P–05 ※ Synthesis of poly(4-vinyl pyridine)-grafted reduced graphene oxide by γ-ray radiation and its application in selective separation of Pd(II)
G. Chen[1]，Y. Wang[1]，Z. Wu[1]，K. He[1]，H. Weng[1]，Y. Muroya[2]，M. Lin[1,3]（1: 中国科技大，2: 阪大産研，3: 中国科学院）

1–P–06 ※ Efficient extraction of precious metals by a membrane emulsification circulation extractor
K. He[1]，J. Tang[1]，H. Weng[1]，G. Chen[1]，Z. Wu[1]，M. Lin[1,2]（1: 中国科技大，2: 中国科学院）

1–P–07 ※ Functionalization of boron nitride by γ-ray radiation-induced oxidative polymerization of dopamine in acidic aqueous solution
Z. H. Wu[1]，Y. Wang[1]，G. Chen[1]，K. B. He[1]，H. Q. Weng[1]，M. Lin[1,2]（1: 中国科技大，2: 中国科学院）

1–P–08 ※ Simulation of Hydroxylammonium nitrate process in PUREX
J. Tang[1]，J. Xiao[1]，H. Weng[1]，Y. Muroya[2]，M. Lin[1,3]（1: 中国科技大，2: 阪大産研，3: 中国科学院）

1–P–09 ※ Synthesis of Pd nanoparticles supported on hexagonal boron nitride nanosheets by radiation-induced reduction

Y. Wang[1], G. Chen[1], Z. Wu[1], F. Li[1], H. Weng[1], M. Lin[1,2]（1: 中国科技大，2: 中国科学院）

1–P–10 ※ Preparation and application of highly interconnected porous polymer microspheres
X. Cui, Y. Song, H. Liu（中国科技大）

1–P–11 ※ *In-situ* loading of Pt nanoclusters by γ-ray radiation on inverse opal $SiO_2$ microspheres and their catalytic property
W. Yang, M. Wang, X. Ge（中国科技大）

1–P–12 ※ Synthesis of fluorescent zinc-organosilica nanoparticles as gene transfection carriers by γ-ray radiation
K. Zeng, M. Wang, X. Ge（中国科技大）

1–P–13 ※ One-step preparation of boron nitride nanosheets/Ni nanocomposites by γ-ray radiation and their reusable catalytic activity
Z. Jiang, W. Zhu, X. Xu, M. Wang, X. Ge（中国科技大）

1–P–14 ※ A dicyclic scaffold for programmed monocyclic and polycyclic polymer architectures
Z. Zhao, Q. Zhu, Z. Wang, J. Lu, Z. Jin, H. Liu（中国科技大）

1–P–15 フッ素化スルホン酸アイオノマーのγ線分解試験
○山口 真，大平 佳代（FC-Cubic）

1–P–16 低速 AMOC 測定による有機シリカ CVD 膜の細孔構造
○伊藤 賢志（産総研）

1–P–17 ※ ジヘテロアリールベンゼン誘導体のフォトクロミズムと高速熱退色反応挙動
○中濱 龍源，北川 大地，中井 喜裕，小畠 誠也（大阪市大院工）

1–P–18 ※ ジアリールエテンを用いた量子ドットの発光スイッチング
○瀬戸 佑弥，山田 理絵，北川 大地，小畠 誠也（大阪市大院工）

1–P–19 ※ ヘキサン中におけるスピロピランの紫外光照射による微結晶の生成
○水口 貴文，北川 大地，小畠 誠也（大阪市大院工）

1–P–20 放射光円二色性分光を用いた K4 メチル化ヒストン H3 の構造解析
○泉 雄大，松尾 光一（広大放射光）

1–P–21 ※ レーザー誘起プラズマと液液分散系を融合したシングルナノサイズ金ナノ粒子の生成
○岡本 拓也[1]，中村 貴宏[2]，迫田 憲治[1]，八ッ橋 知幸[1]（1：大阪市大院理，2：東北大多元研）

1–P–22 ※ ジアリールベンゼン誘導体の T 型フォトクロミズム
○塚原 直也，北川 大地，小畠 誠也（大阪市大院工）

1–P–23 ヒアルロン酸ナトリウムの放射線照射効果：分子サイズ分布
○山沖 留美[1]，木村 捷二郎[1]，太田 雅壽[2]（1：大阪薬大，2：活性固体研究所）

1–P–24 再処理廃液を仮焼した硝酸塩含有固体のガンマラジオリシス研究
○室屋 裕佐[1]，鈴木 晶大[2]（1：阪大産研，2：NFD）

＜**2** 日目＞
（9 月 27 日（木）11:15–12:05，コアタイム 11:15–11:45）

2–P–01 PVA-I ラジオクロミックゲル線量計の線量応答に対する増感剤の効果
○林 慎一郎[1]，小野 薫[2]，藤野 圭介[2]，池田 幸恵[2]（1：広国大保，2：広島平和クリニック）

2–P–02 フィラメント光源とコヒーレント遷移放射のスペクトル測定
○菅 晃一，神戸 正雄，近藤 孝文，楊 金峰，吉田 陽一（阪大産研）

2–P–03 置換型セルロースゲル中でのトリクロロメチルパーオキシドによるヨウ化物イオンの酸化反応効率
○中川 清子（都産技研）

2–P–04 ※ 液液界面を利用したフェムト秒レーザー照射によるシングルナノサイズ鉄ナノ粒子の生成
○堀川 雄輝，岡本 拓也，迫田 憲治，八ッ橋 知幸（大阪市大院理）

2–P–05 ※ X 線照射によるフルギド系フォトクロミック化合物の異性化反応
○河村 一朗，越水 正典，藤本 裕，川本 弘樹，浅井 圭介（東北大院工）

2–P–06 ※ フェリチンを用いた水溶性プルシアンブルーの合成
○池上 裕太，西岡 孝訓，中島 洋（大阪市大院理）

2–P–07 近赤外レーザーを集光することで形成する 温度

応答性高分子マイクロ粒子の顕微ラマン分光分析
○松本 充央[1]，東海林 竜也[1]，麻生 隆彬[2]，堀邊 英夫[3]，坪井 泰之[1]（1：大阪市大院理，2：大阪市大複合先端研，3：大阪市大院工）

2–P–08 ※ 銀添加リン酸塩ガラスにおけるラジオフォトルミネッセンス (RPL) 中心形成過程の RPL の温度依存性による探究
○川本 弘樹[1]，越水 正典[1]，藤本 裕[1]，岡田 豪[2]，柳田 健之[3]，浅井 圭介[1]（1：東北大院工，2：金沢工業大，3：奈良先端大）

2–P–09 ※ 液体フェニルシラン誘導体のパルスラジオリシス
○堀 成生[1]，岡本 一将[1,2]，山本 洋揮[3]，室屋 裕佐[2]，古澤 孝弘[2]，大沼 正人[1]（1：北大院工，2：阪大産研，3：量研高崎研）

2–P–10 ※ メゾスコピック構造と界面物性制御: 原子状水素による PMMA 薄膜改質
○松尾 朱莉[1]，高木 誠司[1]，西山 聖[1]，山本 雅史[2]，佐藤 絵理子[1]，堀邊 英夫[1]（1：大阪市大院工，2：香川高専）

2–P–11 ※ DDS 構築へ向けた電子線グラフと重合による pH 応答膜の作製
○三上 翔平[1]，山本 裕貴[1]，志村 亮弥[1]，大島 明博[2]，鷲尾 方一[1]（1：早大理工総研，2：阪大院工）

2–P–12 ※ 電子線グラフト重合法による温度応答性細胞培養膜の作製
○志村 亮弥[1]，末松 良隆[2]，山本 裕貴[1]，三上 翔平[1]，武岡 真司[3]，大島 明博[4]，鷲尾 方一[1]（1：早大理工総研，2：早大先進研，3：早大先進研，4：阪大院工）

2–P–13 ドデカンイオン化 *G* 値の推定
○近藤 孝文，神戸 正雄，法澤 公寛，菅 晃一，楊 金峰，田川 精一，吉田 陽一（阪大産研）

2–P–14 ※ マクロモノマー法を利用したポリフマル酸エステル含有グラフト共重合体の合成
○倉橋 洵一郎，玉利 昇，佐藤 絵理子，甲田 優太，堀邊 英夫（大阪市大院工）

2–P–15 ※ 新規溶解抑制剤の開発によるポジ型厚膜レジストの解像性向上
○外川 雄介，甲田 優太，佐藤 絵理子，堀邊 英夫（大阪市大院工）

2–P–16 ※ 架橋ポリペルオキシドを用いる易解体性接着材料 - 副反応の抑制による解体性の向上 -
○大森 千聡，佐藤 絵理子，甲田 優太，堀邊 英夫（大阪市大院工）

2–P–17 ※ 陽電子の低密度物質に対する *o*-Ps 生成シミュレーション
○大鷹 豊[1]，小山 晃広[1]，島添 健次[1]，澁谷 憲悟[2]，高橋 浩之[1]（1：東大院工，2：東大院総合）

2–P–18 ※ 2 つの S,S-ジオキシドベンゾチオフェン基を有するジアリールエテンの高効率フォトクロミック反応
○高橋 直子，北川 大地，小畠 誠也（大阪市大院工）

2–P–19 ※ 酸存在下におけるジアリールエテン誘導体の熱退色反応解析
○櫻井 桃香，北川 大地，小畠 誠也（大阪市大院工）

2–P–20 ※ 置換基導入によるジアリールエテンの熱開環反応の制御
○佐藤 雄太，北川 大地，小畠 誠也（大阪市大院工）

2–P–21 ※ ジアリールエテンとフルオレン誘導体を内包したポリマー粒子の蛍光スイッチング特性
○桐山 貴至，北川 大地，小畠 誠也（大阪市大院工）

2–P–22 ※ ジアリールエテンの光スタート型温度上昇センサー機能への極性置換基の影響
○神野 武史，北川 大地，小畠 誠也（大阪市大院工）

2–P–23 ※ 長鎖アルキル基を有するジアリールエテン結晶の光誘起結晶形状変化
○東口 拓矢，北川 大地，小畠 誠也（大阪市大院工）

2–P–24 半導体ナノ構造を利用した新しい光ピンセットによるピレン標識ポリマーの光捕捉
○後 健太[1]，東海林 竜也[1]，麻生 隆彬[1]，堀邊 英夫[2]，S. Juodkazis[3]，坪井 泰之[1]（1：大阪市大院理，2：大阪市大院工，3：Swinburne 工科大）

(大阪市立大学　堀邊 英夫)

# 放射線化学賞の授賞に係る審査報告書

2017 年度放射線化学賞の公募は 2017 年 11 月末日に締め切られた．授賞規定によれば，放射線化学賞選考委員会は，正会員の中から，会長により指名された委員長と委員長により委嘱を受けた委員若干名をもって構成することとなっている．これに従い，委員長は選考委員を 4 名依頼し，審査を行った．選考結果は平成 30 年 3 月 20 日の放射線化学会の第 108 回理事会に答申し，受賞者が決定した．

放射線化学賞

山本 洋揮 氏（国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構，高崎量子応用研究所 先端機能材料研究部，主任研究員）

研究業績

放射線化学によるポリマーフイルムへの金属ナノパターン形成

Synthesis of Metal Nanoparticles and Patterning in Polymeric Films Induced by Electron Nanobeam

対象論文

Synthesis of Metal Nanoparticles and Patterning in Polymeric Films Induced by Electron Nanobeam, *J. Phys. Chem. C*, **121**, 5335–5340 (2017).

最終評価

「放射線化学によるポリマーフイルムへの金属ナノパターン形成」の業績として授賞すべきである．

選考理由

申請業績は，産業応用上重要な金属粒子含有高分子デバイス素材の開発について，入手や調製が容易な原材料及びナノ電子ビーム照射装置等を用い，ポリマー基材中での金属粒子クラスターの形成及びその機構解明，それらの二次元での構造制御及び光吸収と電顕等による構造解析に基づく実証など，系統立てた基礎的研究の成果であることが明らかである．放射線架橋反応と放射線誘起微粒子形成という従来から知られている放射線技術を融合した新技術の提案であり，放射線化学反応を利用した新たなデバイス開発に向けた基本特許的な研究成果として，学術的に高く評価できる．

放射線化学賞の主旨によれば，「放射線化学及び関連分野の学術，技術，貢献においてなされた顕著な業績を顕彰することを目的とする．」とあり，本対象論文はこの中の放射線化学及び関連分野の学術の顕著な業績に値する．

なお，審査委員会においては，プロセス実証に向けた詳細なデータを加えた上での授賞でもよいのではないかとの意見も出された．過去のカーボンナノチューブの開発に際してなされた議論を思い起こした結果，基本的な技術をどのように使っていけるのかという実用化検討は主として産業界との共同であり，研究者として汎用な材料・装置を用いた技術開発によりその発展的な利用の可能性を十分に示唆した研究基盤をまずは確立したことは，放射線化学賞に十分ふさわしい業績とみなすことができると結論した．

(早稲田大学　　鷲尾 方一)

# 本　会　記　事

## 第 108 回 日本放射線化学会 理事会議事録

日時　平成 30 年 3 月 20 日（火）17:30–
場所　都立産業技術センター 研修室 243
出席者　吉田陽一（阪大），菊間博之（いいえんじ），山路 稔（群大），青木昭二（イー・シー・イー），伴 弘司（高エネルギー加速器研），小嶋拓治（ビームオペレーション），中川清子（都産技研），青木 康（住重），田川精一（阪大），平出哲也（原子力機構），山下真一（東大），伊藤賢志（産総研），岡 壽崇（東北大高教機構），田口光正（量研），前川康成（量研），廣木章博（量研）
議題

1. 前回（第 107 回理事会）議事録（案）（事務局）

- 第 107 回理事会の議事録が確認された．

2. 平成 29 年度役員名簿（事務局）

- 新役員等名簿が提案され，承認された．事務局が増員され，田口氏（量研）が就任した．

3. 平成 29 年度賛助会員名簿（事務局）

- 賛助会員名簿が示され，確認された．

4. 入退会者一覧（事務局）

- 入退会者および会員一覧が示され，承認された．小泉氏が新たに終身会員になった．
- 新規入会の学生には，学会誌 100 号記念号を進呈する（小嶋顧問）．学生会員のメリットをホームページに記載する（吉田会長）

5. 平成 29 年度予算執行状況（事務局）

- 予算執行状況が報告され，承認された．
- 会費未納の会員にメール連絡する（吉田会長）．未納の賛助会員には関連する人に対応を依頼する（小嶋顧問）．
- 審査員旅費は年度の区別がつくように記載する（小嶋顧問）．

6. 国際交流委員会報告（事務局）

- 関連する 2018 年度国際学会（4 件）の案内があった．これら国際会議に参加する若手研究者への補助の提案があった（事務局）．
- これまで，放射線化学会が関与している国際会議には若手支援を行ってきた（APSRC は放射線化学会が主催しているし，ICRR は放射線連合として関与している．）（吉田会長，田川顧問）．学生会員が支援の対象（吉田会長）．学会が関与する APSRC や ICRR 会議に援助する場合には，金額と人数に関する根拠や理由が必要（伊藤理事）．まずは，国際交流委員会の予算内（7 万 5 千円）で援助を検討してもらう（吉田会長）．

7. 企画委員会報告（事務局）

- 先端放射線化学シンポジウム 2018 の開催計画について報告があった．

8. 編集委員会報告（山下理事）

- 4 月末発行の 105 号について報告があった．秋に発行の会誌では，EUV リソグラフィに関する特集を検討している．
- 編集主任が山下氏から熊谷氏（名古屋大）に，編集委員の端氏（JAEA）から樋川氏（JAEA）に交代予定である．
- J-STAGE への会誌の登載に向け手続きを進める．
- ドロップボックスの使用維持費 5 万円/年は，編集委員予算で負担する予定である

（山下理事）．

9. 若手の会（事務局）

- 夏の学校（平成 29 年 9 月 27 –28 日開催）について開催報告，および決算報告があった．
- 今年は，8 月下旬に福井工大で開催を予定．担当は，砂川研究室の学生（事務局）．
- 学会からの若手の会に対する予算額は，15 万円であるが，まず 7 万円を補助し，不足の場合，事務局に相談するようにする（吉田会長）．

10. 放射線化学賞について（吉田会長）

- 審査結果について報告があり，承認された．

11. 学会誌の電子化について（事務局）

- 山下編集主任が準備を進め，J-STAGE に登録されることになった（事務局）．
- 学会誌のバックナンバーについて，学会としてはオープンにすることは問題ない（小嶋顧問，中川理事，平出理事）．

12. 学会ホームページについて（事務局）

- 伴理事のご尽力によりレイアウトやアイコンサイズ等の改善が行われたことが報告された（事務局）．
- バックアップサービスへの加入，およびレスポンシブルデザインへの移行が提案された（伴理事）．
- 今後のホームページ運営・維持管理について，専門家を集めた体制（例えば，HP ワーキンググループ）作りを検討することが提案された（吉田会長）．レイアウト作成には大して時間がかからない．現在の HP をどう継承するかが問題であり，過去 1 年分くらいの公開データを移行してから新ホームページをスタートしてはどうか（伴理事）．まずは，アウトライン作りについて伴理事と事務局を中心にまとめていただきたい（吉田会長）．6 月頃を目処に新しいホームページのレイアウトを提示する（伴理事）．

13. 会費滞納者について（事務局）

- 3 月 5 日現在の滞納者数，および合計未納額が報告された（事務局）．滞納者への督促は年 1 回実施している（事務局）．まずは，会員を継続したいか否かの意思確認が必要であり，支払い期日を決めて事務局からメールし，期日までに払わない場合，会員継続の意思なしと判断し，除名してはどうか（伊藤理事）．理事に滞納者リストを開示し，理事から関係する滞納者に支払いを働きかけるほうがよいのでは（平出理事）．滞納者が少なくなるような啓蒙活動が必要である（伊藤理事）．会費を討論会で徴収してはどうか（岡理事）．学会を健全に運営していく上で，滞納者を減らすことは重要である．次回理事会において，滞納者の除名の規定を含め，具体的な対応案を提示する（事務局）．

14. その他（岡理事）

- アイソトープ協会の若手ユーザー活性化専門委員会が放射線化学会の若手の会とコラボした企画を検討している（岡理事，山下理事）．次回理事会までに，企画委員会と共同して具体的な企画を提示してもらうこととする（事務局）．

以上

# 本 会 記 事

## 平成 30 年度役員等名簿（平成 30 年 9 月 26 日現在）

| | | |
|---|---|---|
| 会長 | 吉田 陽一（阪大産研） | |
| 副会長 | 鷲尾 方一（早大理工研） | 国際交流委員会担当 |
| | 平出 哲也（原子力機構・東海） | 編集委員会担当 |
| | 前川 康成（量研・高崎） | 事務局担当 |
| | 中川 清子（都立産技研） | 放射線サイエンス連合担当 |
| | 高橋 憲司（金沢大工） | 研究推進担当 |
| 常任理事 | 錦見 敏朗（NHV コーポレーション） | 辻 正治（九大炭素資源センター） |
| | 河内 宣之（東工大院理工） | 永石 隆二（原子力機構・東海） |
| | 丑田 公規（北里大理） | 真嶋 哲朗（阪大産研） |
| | 伊藤 賢志（産総研） | 堀邊 英夫（大阪市大院工） |
| | 浅井 圭介（東北大院工） | 田口 光正（量研・高崎） |
| | 青木 康（住友重機械） | |
| 理事 | 澤井 友次（放振協） | 砂川 武義（福井工大） |
| | 小泉 均（北大院工） | 竹中 康之（北教大） |
| | 小嶋 崇夫（大阪府大） | 中村 一隆（東工大セラミック研） |
| | 工藤 久明（東大院工） | 駒口 健治（広大院工） |
| | 熊谷 純（名大） | 斎藤 恭一（千葉大工） |
| | 鈴木 信三（京産大理） | 青木 昭二（イー・シー・イー） |
| | 関 修平（京大院工） | 泉 佳伸（福井大） |
| | 林 慎一郎（広島国際大） | 山路 稔（群馬大院工） |
| | 田中 真人（産総研） | 加藤 隆二（日本大） |
| | 岡 壽崇（東北大高教機構） | 菊間 博之（いいえんじ） |
| | 古澤 孝弘（阪大産研） | 廣木 章博（量研・高崎） |
| | 越水 正典（東北大院工） | 伴 弘司（高エネルギー加速器研） |
| | 楊 金峰（阪大産研） | 山下 真一（東大院工） |
| | 間嶋 拓也（京大院工） | 池田 時浩（理研） |
| 監事 | 勝村 庸介（日本アイソトープ協会） | 平岡 賢三（山梨大工） |
| 顧問 | 佐藤 伸 | 簇野 嘉彦 |
| | 田川 精一（阪大産研） | 濱 義昌（早大理工研） |
| | 田畑 米穂（原子力システム研究懇話会） | 南波 秀樹（放振協） |
| | 市川 恒樹（北大院工） | 中川 和道（阪大産研） |
| | 小嶋 拓治（量研・高崎） | |
| 名誉会員 | 近藤 正春 | |
| 編集委員会 | 委員長：平出 哲也（原子力機構・東海） | 山下 真一（東大院工） |
| | 主任：熊谷　純（名大） | 林 慎一郎（広島国際大） |
| | 岡本 一将（北大院工） | 伊藤 賢志（産総研） |
| | 甲斐 健師（原子力機構・東海） | 岡 壽崇（東北大高教機構） |
| | 加藤 昌弘（産総研） | 田中 真人（産総研） |
| | 菅 晃一（阪大産研） | 藤井 健太郎（量研・東海） |
| | 佐伯 誠一（量研・高崎） | 椎名 孝行（千代田テクノル） |
| | 樋川 智洋（原子力機構・東海） | 竹内 夕桐子（極東産業） |
| 企画委員会 | 委員長：越水 正典（東北大院工） | 須郷 由実（量研・高崎） |
| | 青木 康（住友重機械） | 藤井 健太郎（量研・東海） |
| | 駒口 健治（広大院工） | 室屋 裕佐（阪大産研） |
| 国際交流委員会 | 委員長：鷲尾 方一（早大理工研） | 泉 佳伸（福井大） |
| | 室屋 裕佐（阪大産研） | 林 銘章（中国科技大） |
| | 田口 光正（量研・高崎） | 楊 金峰（阪大産研） |
| 事務局 | 前川 康成（量研・高崎） | 廣木 章博（量研・高崎） |
| | 田口 光正（量研・高崎） | |

# 本 会 記 事

## 平成 29 年度会計決算報告書（決算日：平成 30 年 8 月 31 日）

収入の部　　（単位：円）

| 項目 | 29 年度予算案 | 29 年度決算 | 内容等 |
|---|---|---|---|
| 賛助会員 | 320,000 | 280,000 | 2017 年度契約数 30 口（17 社）<br>※未納 4 口（1 社× 3 年 +1 社× 1 年）40,000 円 |
| 個人正会員（190 名）<br>学生会員（13 名） | 969,500 | 848,500 | 正会員 入金金額 836,500 円（内預り金 10,000 円）<br>学生会員 入金金額 12,000 円（内預り金 7,500 円）<br>未納者（正：61 名，学生：7 名）<br>未納金額累積合計 830,000 円 |
| 終身正会員寄付金 | – | 50,000 | |
| 雑収入（利息等） | 5,000 | 23,947 | 著作権料　23,923 円<br>受取利息（国際文献分 13 円，事務局分 11 円） |
| 第 60 回 放射線化学討論会<br>補助金 剰余金返金 | – | 249,000 | 余剰金 200,000 円<br>要旨集広告費 49,000 円 |
| 積立基金からの繰り込み | – | – | |
| 前年度繰越金 | 811,380 | 811,380 | |
| 合計 | 2,105,880 | 2,262,827 | |

支出の部

| 項目 | 29 年度予算案 | 29 年度決算 | 内容等 |
|---|---|---|---|
| 通信連絡費 | 20,000 | 1,103 | 切手代・郵送料・レターパック代 |
| 振込手数料 | – | 2,916 | 国際文献社分 0 円，事務局分 2,91 6 円 |
| 事務委託費<br>年間業務費 | 700,000 | 714,812 | H29.6–8 月分 121,176 円<br>H29.9–11 月分 440,808 円<br>H29.12–H30.2 月分 75,654 円<br>H30.3–H30.5 月分 77,174 円 |
| 会議費 | 15,000 | 14,771 | H29.9 月理事会 5,627 円<br>H30.3 月理事会 9,144 円 |
| 放射線化学討論会援助 | 200,000 | 200,000 | 第 61 回 放射線化学討論会に援助 |
| 先端放射線化学<br>シンポジウム補助 | 100,000 | – | |
| 若手の会　夏の学校補助 | 150,000 | 70,000 | H29 年度分 70,000 円 |
| 学会賞 | 127,000 | 48,472 | H28 年度分 メダル付き表彰盾代 29,160 円<br>H29 年度分 審査員旅費 9,160 円<br>H29 年度分 表彰メダル代 10,152 円 |
| 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 | 55,000 | 4,838 | レンタルサーバー代 3,240 円<br>HP ドメイン更新料 1,598 円 |
| 予備費 | 200,000 | – | |
| 次年度繰越金 | 138,880 | 955,915 | |
| 合計 | 2,105,880 | 2,262,827 | |

# 本 会 記 事

## 入退会者一覧

入会

| 会員種別 | 会員番号 | 会員名 | 所属機関名 | 紹介者 |
|---|---|---|---|---|
| 正会員 | 736 | 山口 英俊 | 国立研究開発法人産業技術総合研究所 | 加藤 昌弘 |
| 正会員 | 746 | 小坂田 泰子 | 大阪大学 産業科学研究所 | 川井 清彦 |
| 学生会員 | 737 | 大鷹 豊 | 東京大学大学院工学系研究科 | |
| 学生会員 | 738 | 池亀 真由佳 | 東邦大学理学部物理学科 | 池田 時浩 |
| 学生会員 | 739 | 森 光正 | 東邦大学 理学部物理学科 | |
| 学生会員 | 740 | 永井 菜月 | 東京大学大学院工学研究科 | 山下 真一 |
| 学生会員 | 741 | 引間 宥花 | 東邦大学理学部物理学科 | 池田 時浩 |
| 学生会員 | 742 | 青木 祐太郎 | 福井工業大学大学院工学研究科応用理工学専攻 | 砂川 武義 |
| 学生会員 | 743 | 小西 涼香 | 京都大学大学院工学研究科 | 土田 秀次 |
| 学生会員 | 744 | 河村 俊哉 | 東邦大学大学院理学研究科 | 池田 時浩 |
| 学生会員 | 745 | 水谷 汐里 | 京都大学大学院工学研究科 | 間嶋 拓也 |

退会

| 会員種別 | 会員番号 | 会員名 | 所属機関名 | 退会日 |
|---|---|---|---|---|
| 正会員 | 90 | 片山 明石 | 北海道大学名誉教授 | 2018/6/1 |
| 正会員 | 208 | 高田 知哉 | 千歳科学技術大学理工学部応用化学生物学科 | 2018/8/31 |
| 正会員 | 328 | 藤崎 登 | | 2018/8/31 |
| 学生会員 | 727 | 佐藤 謙太 | 東邦大学 理学部物理学科量子エレクトロニクス教室 | 2018/4/20 |
| 学生会員 | 728 | 廣瀬 寛士 | 東邦大学 理学部物理学科量子エレクトロニクス教室 | 2018/4/20 |

## 平成 29 年度 日本放射線化学会賛助会員

住友電気工業（株）
http://www.sei.co.jp

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

レーベン館（株）
http://www.leben.jp

（株）イー・シー・イー
http://www.ece-ebara.com

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

岩崎電気（株）
http://www.iwasaki.co.jp

東邦金属（株）
http://www.tohokinzoku.co.jp

（公財）日本アイソトープ協会
http://www.jrias.or.jp

いいえんじ合同会社
http://iieng.jp

（株）NHV コーポレーション
http://www.nhv.jp

（一財）放射線利用振興協会
http://www.rada.or.jp

（株）環境浄化研究所
http://www.kjk-jp.com

（有）イーオーアール
http://www.eor.jp

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

量子科学技術研究開発機構
http://www.qst.go.jp

（株）イング
http://www.ing-co.jp

（株）千代田テクノル
http://www.c-technol.co.jp

放射線化学　第 106 号〈WEB 版〉

平成 30 年 10 月 31 日　発　行
発 行 所　　日 本 放 射 線 化 学 会

〒370–1292 群馬県高崎市綿貫町 1233
国立研究開発法人 量子科学技術研究開発機構
高崎量子応用研究所　先端機能材料研究部
e-mail: jsrc@qst.go.jp
TEL: 027–346–9410, FAX: 027–346–9443

編集委員長　平 出 哲 也
編 集 委 員　熊　谷　　純
岡 本 一 将　甲 斐 健 師
加 藤 昌 弘　菅　晃 一
佐 伯 誠 一　椎 名 孝 行
竹内 夕桐子　樋 川 智 洋
林 慎 一 郎　伊 藤 賢 志
岡　壽 崇　田 中 真 人
藤井 健太郎　山 下 真 一

郵便振替口座　　長野 00540–9–34599
日本放射線化学会

発 行 人　吉 田 陽 一