

# 目 次

発刊にあたって

第1章 日本における放射化学の黎明と進展（1907－1957）	1
第2章 放射化学討論会発足以降の研究の推移（1957－現在）	8
2.1 核化学	8
2.1.1 核分裂研究 70 年の歩み	8
2.1.2 原子核反応の核化学的研究	15
2.1.3 核分光・核構造	23
2.1.4 RI 製造	25
2.1.5 放射能測定	26
2.1.6 核と原子の相互作用（NEET など）	30
2.1.7 中間子化学	31
2.1.8 最近の動向と今後の展望	33
2.2 宇宙・地球核化学	37
2.2.1 はじめに（放射化学討論会発足の頃まで）	37
2.2.2 第Ⅰ期 宇宙線生成核種に関連した研究の始まり	37
2.2.3 第Ⅱ期 宇宙・地球核化学研究の進展	39
2.2.4 第Ⅲ期 宇宙線生成核種を用いた研究の展開（加速器質量分析法の開発・進展）	43
2.2.5 第Ⅳ期 日本放射化学会設立以降	47
2.3 ホットアトム化学	50
2.3.1 ホットアトム化学の流れ	50
2.3.2 気相のホットアトム化学	55
2.3.3 液相のホットアトム化学	60
2.3.4 固相のホットアトム化学	61
2.3.5 発光メスbauer分光	67
2.4 放射性核種の分離分析・挙動・溶液化学	71
2.4.1 はじめに	71
2.4.2 放射性核種の分離分析	72
2.4.3 放射性核種の挙動・溶液化学	73
2.5 放射化分析・放射化学分析	75
2.5.1 はじめに	75
2.5.2 中性子放射化分析	76
2.5.3 光量子放射化分析・荷電粒子放射化分析	84
2.5.4 放射化学分析	86
2.6 環境放射能	90
2.6.1 環境放射能研究の流れ	90
2.6.2 天然放射性核種	91

2.6.3	宇宙線生成核種	95
2.6.4	核実験生成核種	98
2.6.5	極低レベル放射能測定による環境放射能研究	102
2.6.6	加速器質量分析による環境放射能研究	103
2.6.7	ICP-MSによる環境放射能測定	105
2.7	核をプローブとする化学	107
2.7.1	メスバウアー分光	107
2.7.2	陽電子の化学	114
2.7.3	ミュオン化学	117
2.7.4	摂動角相関	117
2.8	関連領域	118
2.8.1	放射線誘起ルミネッセンスの化学	118
2.8.2	マルチトレーサの利用	119
2.8.3	放射線効果	121
2.8.4	核壊変現象を利用した年代測定	123
2.8.5	核燃料再処理と廃棄物処理	125
2.8.6	放射線教育	126
<b>第3章</b>	<b>主な放射化学関係研究施設および主な大学における放射化学研究の歴史</b>	<b>128</b>
3.1	財団法人 環境科学技術研究所	128
3.2	独立行政法人 日本原子力研究開発機構（原子力機構）	129
3.3	大学共同利用機関法人 高エネルギー加速器研究機構	134
3.4	独立行政法人 産業技術総合研究所	136
3.5	東京大学原子核研究所	138
3.6	独立行政法人 放射線医学総合研究所	143
3.7	独立行政法人 理化学研究所	144
3.8	国土交通省気象庁 気象研究所	146
3.9	財団法人 電力中央研究所	147
3.10	財団法人 日本分析センター	148
3.11	金沢大学 LLRL 施設	148
3.12	静岡大学放射化学研究施設	149
3.13	財団法人 九州環境管理協会	151
3.14	日本の研究用原子炉施設	152
3.15	主な大学における放射化学研究の歴史	161
<b>第4章</b>	<b>国際的なかわり</b>	<b>178</b>
4.1	APSORC（Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry）	178
4.2	ASR（Advanced Science Research）	179
4.3	テクネチウムに関する日ロセミナー	180
4.4	その他の主な国際会議	181

第5章 放射化学の散歩道 .....	184
5.1 日本放射化学会設立の経緯 .....	184
5.2 温泉の化学 .....	188
5.3 北投石 .....	190
5.4 米国アイソトープの輸入 .....	191
5.5 ビキニ原爆被災事件 .....	192
5.6 金沢大学における放射性同位元素利用研究の事始め .....	194
5.7 原子力事始め－原研の辿った道－ .....	198
5.8 天然原子炉（オクロ） .....	202
5.9 日本の加速器の歴史 .....	203
5.10 JCO 臨界事故 .....	209
5.11 マルチトレーサ法の応用研究 .....	210
5.12 ニッポニウムの X 線分光写真乾板 .....	212
5.13 軌道電子捕獲壊変核種 ${}^7\text{Be}$ の半減期 .....	214
5.14 113 番元素合成をめざして .....	217
5.15 大強度陽子加速器施設 .....	220
資料編	
放射化学関連の主な国際会議 .....	224
国内で講演を頂いた主な放射化学関係科学者 .....	229
会員の研究題目一覧 .....	232
放射化学関連講義一覧 .....	242
放射化学会賞受賞者一覧 .....	245
名誉・外国人特別会員一覧 .....	246
放射化学討論会の開催地の歴史 .....	247
年表 .....	251
編集者一覧 .....	254
あとがき .....	255



## 発刊にあたって

日本放射化学会 会長 近藤 健次郎

日本における放射化学研究は、飯盛里安先生、木村健二郎先生を始めとする放射化学の先達のもとに推進されてきました。その多くの研究成果は、放射化学研究者の集まりである放射化学討論会を中心に発表されてきました。従って、わが国の放射化学研究の歴史は放射化学討論会の歴史そのものと言っても過言ではないと思います。国内の放射化学研究者の集まりである第1回放射化学討論会が1957年に斎藤信房先生を世話人として、日本化学会、日本化学会関東支部の共催として学士会館（東京）で開催され、これにより放射化学の研究が大きく進展しました。放射化学討論会は研究者の集まりである放射化学研究連絡委員会の依頼を受けた日本化学会、日本分析化学会、日本原子力学会などの共催により、毎年開催され、わが国における放射化学研究の発展に大いに貢献してきたことはご承知の通りです。

この様に我が国の放射化学研究の発展は討論会と切っても切れない関係にあります。私が最初に参加した討論会は、学部学生の時、第7回討論会（仙台、1963）でした。当時、原子力に対する将来への明るい見通しもあり、放射化学及び関連分野の研究は大変活気づいていたことを覚えています。私の研究テーマは気相における核壊変に伴う化学的効果で、高い運動エネルギーや電荷を持つ反跳原子の特異な反応（ホットアトム反応）に大きな興味を持ったことを覚えています。その後、この分野の主要な研究は核壊変現象を用いない新しい研究手段の開発等により、大きく進展しました。

討論会における主題は、このような研究の進展等により、一部変遷はありますが、化学研究の手段として放射性同位元素の関わる研究という位置づけは、当初から一貫して引き継がれてきております。ここ数年来の討論会発表における主要な研究分野として、核化学、天然（環境）放射能、放射化分析・放射化学分析、放射性核種の溶液化学、放射性物質の挙動や分離分析、核をプローブとする化学などがあげられ、これらに関連した基礎及び応用的な幅広い研究が展開され、多くの研究成果が発表されています。

さて、昨今様々な要因により、放射化学分野を取り巻く研究環境は厳しさを増しておりますが、放射化学に関する基礎及び応用研究は、依然、社会からの強いニーズもあり、なくてはならない研究分野と考えております。放射性同位元素を用いた化学研究において今まで以上に特色ある研究成果を挙げるとともに、この分野の一層の推進を図る必要があると考えております。また、放射化学的な知識・技術などを必要とする原子力関連分野への人材供給においても、これまで大学などを中心に放射化学研究者の果たしてきた役割は非常に大きいものがあり、今後もその責任を果たしていく必要があります。

核化学・放射化学及び関連分野の研究の活性化と一層の発展を期し、1999年に日本放射化学会が設立されました。放射化学討論会は学会の主要な事業として位置づけられております。現在、学会は500名を超える会員及び多くの賛助会員からなる、学術研究登録団体とし

て、従来の討論会開催に加え学会誌等の出版など、放射化学及び関連分野の研究の活性化に向けた様々な取り組みが行われています。

日本放射化学会は、我が国における最近の放射化学研究で、大きな役割を果たしています。放射化学討論会が平成 18 年に記念すべき 50 周年を迎えるにあたり、放射化学討論会創設 50 周年記念事業組織委員会を立ち上げ、その事業内容について検討してきました。50 年にわたる日本における放射化学研究の数多くの輝かしい成果を振り返り、その研究の足跡を纏めると共に、これを温故知新とし、これからの核・放射化学および関連分野の研究を展望・考察することを目的に記念事業の一つとして「日本の放射化学研究 50 年のあゆみ」を発刊することにしました。この小冊子を多くの方にご一読いただければ幸いです。

平成 19 年 9 月

## 第1章

# 日本における放射化学の黎明と進展 (1907-1957)

(斎藤 信房)

### (1) 放射化学研究のあけぼの

H. A. Becquerel によるウラン化合物からの放射線の発見以来、日本の多くの化学者の放射能に対する関心は高まり、Curie 夫妻による Ra, Po の発見 (1898), A. Debierne による Ac の発見 (1899) については、当時一高教授であった松原行一 (のちに東京帝国大学教授) が、いち早く、1898 ~ 99 年に、東京化学雑誌にこれを紹介している。

一方、化学者以外の研究者により行なわれた早期の研究・調査のうち、歴史に残る貴重な業績としては、物理学者 石谷伝一郎、医学者 眞鍋嘉一郎による福島県飯坂温泉および兵庫県城崎温泉中のラドンの測定 (1910)、物理学者 木下季吉、西川正治、小野澄之助による大気中の放射性沈積物の研究 (1911)、物理学者 木下季吉、池内本による写真感光膜における  $\alpha$  線飛跡に関する研究 (1913)、内務省衛生試験所の石津利作、衣笠豊による多数の温泉中のラドンの測定 (1913)、および台湾総督府に在職した岡本要八郎による北投温泉における放射性沈殿物の発見 (1906) などがある。

これらの研究のうち、日本の化学者が最も強い関心を示したのは、北投温泉における沈殿物の発見であった。この沈殿物の放射能は、当時放射線の写真作用によって確かめられたが、鉱物としての特色は、重晶石に類似するものであった。その後この鉱物は東京帝国大学 (以下、職名を除き東大と略記) の神保小虎教授に送られ、神保は 1911 年に北投温泉を調査し、のちにこの鉱物を北投石 (Hokutolite) と命名した (1922)。化学教室においては、いち早く、北投石の分析が埜和為昌教授の指導の下に、化学科の学生であった飯盛里安、柿内三郎、青木芳彦の三名により行なわれた (1907)。その分析値は、「日本鉱物誌 (第2版) (1916) に掲載されている。この分析ではウランは検出されず、埜和教授は、「この鉱物は水成鉱物であるので、ラジウムだけが、偶然ウランから離れて沈積したものであろう。」との意見を持たれたが、この意見は今日から見ても卓見である。北投石の主成分は (Ba, Pb)  $\text{SO}_4$  であるが、その鉛の原子量は、その後 T. W. Richards と鮫島實三郎 (米国留学中) によって測定され、その値は 207.3 で、普通の鉛 (common lead) であることが示された (1920)。

学生時代に北投石の分析を行なった飯盛は放射化学に興味をもち、埜和教授指導のもとに分析化学を専攻した。1910 年大学を卒業したのち、しばらくは東大および第一高等学校において教育に従事したが、1917 年 9 月に新しく設立された財団法人理化学研究所 (以下、理研と略記) に研究員補として入所し、その後同所において長年にわたる研究活動のスタートを切ることになる。

歴史的に見て、飯盛の日本の放射化学教育に対する貢献は大きい。まず、1918 年 12 月にロンドン化学会で Oxford 大学の F. Soddy が行なった画期的な講演は、その要旨が、「放射変化の研究により拡張せられたる化学元素の概念に就て」の題目で東京化学雑誌に抄録された (1919)。その内容は日本の化学者の多大の関心を呼んだが、東大の雑誌会においても検討された。その席上、飯盛は“ISOTOPE”の邦訳として“同位元素”を提案し、櫻井錠二教授、池田菊苗教授、松原行一教授、柴田雄次教授列席の上で、承認された。

つぎに、飯盛は、大学において、長年にわたり放射化学の基礎を“放射体化学”の名称で講義を行ない、この講義は 1922 年から 1943 年まで 22 年間に及んだことは特筆に値する。この講義の

名称は、F. Soddy の著書、「The Chemistry of the Radioelements」(1915) に由来している。

東大理学部化学教室における初期の放射化学的研究としては、北投石の研究につづき、柴田雄次研究室による含希元素鉍石の研究がある。化学科の学生、木村健二郎は化学教室の柴田雄次教授の研究室に入り、第3学年の化学特別問題研究(いわゆる卒論)では、希元素鉍石に関する研究テーマを与えられた。

1920年東京化学会(日本化学会の前身)の第一回講演では2件の講演が行なわれたが、そのひとつは柴田雄次、木村健二郎による東洋産含希元素鉍石の研究である。この研究は、「東洋産含希元素鉍石の化学的研究(其一)、美濃苗木産苗木石、フェルグソン石及びモナズ石の分析(豫報)」(1921)として、柴田、木村の連名で印刷公表されている。

この仕事では、研究対象が放射性鉍物であるので放射能の測定が必要であったが、これについては物理学教室の木下季吉に教を乞い、アルミはく驗電器を使用した。木村は、1922年4月からは分析化学の講義と実験指導を開始し、同年11月には東京帝国大学助教授として、分析化学講座を分担した。

第一次大戦(1914-1918)のあと、放射性元素の研究を熱望する日本の有能な化学者は、櫻井錠二教授をはじめとする多くの指導者の応援を得て、欧州に渡り、F. Soddy, G. v. Hevesy などの泰斗に師事した。

飯盛里安は、1919年6月末日本を出発、1ヶ月半の旅程を経てロンドンに到着したが、当時Oxford大学に着任したばかりのSoddy教授からは研究設備の整うまで1年間は来室を待つように指示された。そのため、最初の1年間はCambridge大学のHeycock教授の下で分析化学の研究に従事したが、1920年10月からは、Soddy研究室において放射化学研究の指導を受けることができた。研究内容は、ウラン、トリウムの定量法及び放射性指示薬の使用法などであった。後年、飯盛は当時の実験をふまえて、ウラン $X_1$ を指示薬(トレーサ)とするトリウムの分析法を日本化学会誌に発表している(1929)。これは日本における放射性トレーサを用いた最初の研究である。飯盛は1921年11月に日本にもどり、理研における研究活動をはじめた。

1922年、Copenhagen大学理論物理学研究所のN. Bohrが原子構造論を発表し、つづいてG. v. HevesyとD. Costerがこの理論の証明となる72番元素ハフニウムの発見を1923年1月にNature誌上に報じたが、東大の木村健二郎はこれに感銘を受け、Bohr研究所への留学を希望した。木村は、1925年1月、北野丸に乗船し、40日間の航海ののち、マルセイユから汽車で3月5日コペンハーゲンに到着した。木村はHevesyの指導によりジルコニウムとハフニウムの化学分析法を研究したが、まもなく7月にHevesyがドイツのFreiburg大学に赴任したので、その後は、同研究所に滞在していた仁科芳雄と共にX線分光学的研究を行なった。X線分光法によるハフニウムの定量、X線吸収スペクトルの化学結合依存性の研究などはその時の仕事である。Hevesyとの共著「The solubilities of the phosphates of zirconium and hafnium」は1925年に、J. Am. Chem. Soc. に発表されている。1927年4月までコペンハーゲンに滞在した木村は7月に帰国し、8月には分析化学講座担任を命じられ、1933年東京帝国大学教授に任命された。

1930年代には、Freiburg大学教授となったG. v. Hevesyの許に、京都大学の石橋雅義および東京大学の宗宮尚行が留学し、放射性指示薬などについて指導を受けた。

なおHevesy教授は1931年来日し、各地における講演を通じて、日本の化学者に放射化学の最先端の話題を提供し、この分野への関心を喚起したことは喜ばしい出来事であった。

## (2) 天然放射能に関する研究

昭和初期から戦後に至るまで、日本における天然放射能の研究は順調に発展した。人工放射能の場合と異なり、GHQの指令などにほとんど影響されなかったことが幸せであった。この分野では、放射化学者のみでなく、地球化学者も大きな役割を果たしている。

### (2-1) 理研における研究

Oxford大学より帰国した飯盛里安は、早速研究体制を整え、1922年よりは、理研の飯盛研究室を主宰し、天然放射能の研究および放射線測定装置の開発に多くの業績を挙げた。日本産の鉱物中に含まれるウラン、トリウム、ラジウムの研究、天然水中のラドンの研究はよく知られているが、特に滋賀県田ノ上山産の放射性マンガンジュール中のラジウムの分析(1926)は、日本における鉱物中のラジウム定量の最初の報告として高く評価されている。

飯盛は、また、理研工作部の協力を得て放射線測定装置の製作に熱心に取り組んだ。その際、ラジウム標準としてはSoddy教授から分譲されたラジウム含有塩化バリウム製剤およびラジウム/ウラン比が精密に決定された英国コーンウォール産の閃ウラン鉱、また、トリウム標準としてはセイロン島産トリアナイトが大いに役立った。理研製の放射線測定装置としてはIM泉効計(IMは飯盛の姓のイニシャル。ラドン測定用)および理研製精密ラドン計(ラジウム測定用)などが研究用として最もよく用いられ、日本の放射化学者により多くのラドン、ラジウムの測定データが得られた。

### (2-2) 大学における研究

東大の木村健二郎研究室の行なった天然放射能の研究には、まず、柴田研究室から引き継いだ希元素を含む鉱物の研究がある。木村の門下生として最初に卒業研究を行なったのは篠田栄(のちに九州大学教授)であるが、木村、篠田は連名で「東洋産含希元素鉱石の化学的研究(其十六)、朝鮮順安産モナズ石の分析」(1931)を発表した。この研究は、鉱物成分の分析のみでなく、ウラン、トリウム及び鉛の分析値を用い、鉛法によって鉱物の年代決定を試みている点に特色がある。この系列の報文(其十八)では木村、三宅泰雄(のちに東京教育大学教授)により苗木石の年代決定が報告された(1932)。これらの研究では鉛についてcommon leadの補正を行っていないので、得られた年令は最大値を示すにすぎないが、我が国における放射能年代測定(radioactive dating)のさきがけとして評価できる。希元素鉱石についての一連の研究は、その後も門下生によって長年に亘り続けられ、1975年までに第66報まで発表されたことは注目値する。

1937年ごろから木村研究室は日本の温(鉱)泉水中の微量成分の研究に着手したが、温(鉱)泉水中の天然放射能に関する研究はその一環をなすものである。この領域における最初の研究は、門下生 中井敏夫による日本の温(鉱)泉および石油井湧出水のラジウムの定量(1937)であるが、中井はさらに約500の日本の温(鉱)泉につきラジウムを、また一部の温(鉱)泉につきラドンを定量し、95ページに及ぶ報文「Radium Content of Mineral Springs in Japan」(1940)をBull. Chem. Soc. Jpn.に発表した。これらの研究により、ラジウム含量の高い日本の温(鉱)泉は、兵庫県有馬新温泉を最高に、山梨県増富鉱泉、島根県の池田ラジウム鉱泉および湯抱温泉、鳥取県三朝温泉などであることが明らかになった。

ラジウムの定量は、温(鉱)泉のみでなく、日本および朝鮮半島の岩石、海底土、温泉沈殿物などについても広く行なわれた。

ラドンについては、放射能泉に関する一連の研究が特に優れている。黒田和夫(のちに米国のArkansas大学教授)は増富温泉においてラドン含量の極めて高い泉を見だし、この泉を詳細に研究した(1943)。さらに、木村、黒田、横山祐之(のちにフランスのSaclay研究所主任研究員)



は、放射能泉におけるラジウム、ラドンとその壊変生成物の間における放射非平衡の問題、ラドン源の問題について興味ある考察を行なっている。木村、黒田、横山の報文、「強放射能泉中におけるラドンとその壊変生成物との平衡関係」(1948)、黒田、横山の報文「On the Equilibrium of Radioactive Elements in the Hydrosphere」(1948)において得られた結論は、次の通りである。1) 泉水中のラドン、RaA, RaB, RaCの含量から計算すると、ラドンがその源から泉の湧出口に到達するのに要する時間は数分ないし数十分に過ぎない。2) ラドンの主たる供給源は温泉沈殿物と推定される。

ウラン、とくに微量ウランの分析は、ラジウムの分析より遅れていたが、門下生 中西正城は、海水、温(鉱)泉水、温泉沈殿物などのウラン含量を報告した(1947)。

1950年ごろから東大南英一研究室は、他大学からの研究協力者と共に、秋田県仙北郡の玉川温泉及び北投石について総合的な研究を行なった。

1898年、櫻井広三郎は玉川温泉(当時は渋黒温泉)において、新奇な鉱物を採取、東大地質学教室に保存されていたが、この鉱物は、神保教授により台湾産の北投石と同質とみなされて北投石の名称を与えられた。現在、北投石の結晶は天然記念物として特別許可なしには玉川温泉における採取が禁止されている。南グループの研究成果としては温泉水および北投石中のウラン、トリウム系の放射性元素の定量、北投石の成長速度の推定、玉川温泉の沈殿物硫黄華に含まれる北投石微晶(いわゆる“baby北投石”)の発見などがある。また、北投石中の鉛は台湾産と同様に普通の鉛(common lead)であることも明らかにされた。これらの成果は南英一教授退官記念論文集「Geochemistry of the Tamagawa Hot Springs」(1963)にまとめられている。

放射性の温泉沈殿物については、北投石の研究以外に、いくつかの注目すべき研究がある。

九州大学の岩崎岩次研究室は、「強放射能泉の地球化学的研究(第一報)」(1946)とその続報において、放射性沈殿物からのラドンの放出、温泉沈殿物へのラジウムの共沈のメカニズムなどに興味ある説を提出した。

また、岡山大学温泉研究所では、斎藤信房(東大と兼務)と芦澤峻が、それまで日本において知られていなかった、マンガンを主成分とし、極めて高いラジウム含有量を示す沈殿物を三朝温泉において見出し、その化学組成とラジウム含有量( $11800 \times 10^{-12}$  gRa/g)を報告した(1957)。

火山ガス中に含まれるラドン、トロンについては、岩崎岩次研究室と他大学の共同研究者が、多数の火山について研究し、その結果をまとめて、「Radioactivity of Volcanic Gases in Japan」(1956)の報文として、国際火山学会で公表した。

### (2-3) 天然放射能の利用

天然放射能の利用として重要なものにトレーサの利用がある。飯盛の行なったUX<sub>1</sub>をトレーサとするトリウム分析法については既に述べたが、Freiburg大学のHevesy教授の許に留学した、宗宮尚行、石橋雅義の両名もこの領域ですぐれた研究を行なった。宗宮は、Hevesyと連名の報文「Über Platinschwartz」(1934)をZ. Phys. Chem.に発表している。この研究は白金黒製造の際の鉛の挙動をThBをトレーサとして追跡したものである。また、石橋雅義研究室では、ThBをトレーサとして使用し、「放射性指示作用による分析化学的研究(第一報)、鉛サリチルアルドキシム塩の溶解度測定」(1934)を日本化学雑誌に報告している。同研究室はその後もこの系列の研究を少なくとも13報発表しており、多くの成果を挙げている。

## (3) 人工放射能に関する研究

### (3-1) 理研及び東大における人工放射能に関する研究

1937年、理研の1号サイクロトロン (65センチ, 23トン) が稼働してから、仁科芳雄らは早速人工放射能の研究を始めたが、核反応の研究では、照射されるターゲットを純粋にしたり、照射後ターゲットから生成物質を分離したりする化学的操作が必要である。仁科は、このような仕事を物理学者と協力して行なうパートナーとして、コペンハーゲン以来の親友である木村健二郎を選んだ。当時、木村研究室には井川正雄という化学分析の達人がおり、木村は仁科との共同研究に彼を参加させた。

そのころ、外国では、ウラン、トリウムなどを中性子照射してウランよりも高い元素番号を持つ元素や新しい放射能を見出そうとする試みが行なわれていたが、仁科、木村もサイクロトロンから二次的に得られる中性子でトリウム、ウランを照射する実験を1938年ごろから開始した。この実験に参加した研究者は、物理グループでは仁科、矢崎為一、江副博彦、化学グループでは東大の木村と井川であった。なお、1939～1940年には、東大木村研究室の卒論学生であった斎藤信房と松浦二郎は、木村教授から卒論のテーマとして、「中性子によるウランの核分裂について」および「第93番元素の生成」を与えられ、井川正雄の実験補佐として化学グループに参加した。

仁科らの研究の特色は、遅い中性子でなく、サイクロトロンからの速い中性子を用いた点にある。研究の内容は三つに大別できる。

(a) トリウムに中性子をあてて Th-231 を作る研究。

この研究では (n, 2n) 反応によって Th-231 が生まれるのであるが、トリウム系列 (4n) からアクチニウム系列 (4n+3) の核種が生成し、系列の転換が行なわれた点が重要である。

(b) ウランに中性子をあてて、(n, 2n) 反応によってウランの新核種 U-237 を発見した研究。

この仕事は、当時は天然に存在しないと考えられていた (4n+1) 系列 (今はネプツニウム系列とよばれる) の核種を最初につくった点でも注目に値する。

(c) 速い中性子によるウランの核分裂の研究。

この研究は、速い中性子を用いたために、外国の研究とは異なる結果が得られ、中程度の質量数を持つ新しい核分裂生成物が発見されている。それらは、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、銀、カドミウム、インジウムおよびスズの7元素に属する放射性核種である。

これらの研究のうち、(b) については、新核種 U-237 がベータ崩壊することが実験で確かめられたので、当然 93 番元素の生成が期待された。しかし、93 番元素の化学的性質についての予想が正しくなかったため、レニウム担体を用いる 93 番元素の捕集は不成功に終わった。

(c) の研究は、同じころ米国で E. Segre と G. T. Seaborg が研究を進めていた速い中性子によるウランの対称核分裂の研究に先行したものであることは Seaborg 自身が認めている。

また、仁科、木村のグループは、核分裂の発見の報が日本に届く前から、照射実験を行っており、中性子照射したターゲットを溶解して化学分離を行なうと、いろいろの元素のフラクションに放射能が散ってしまうことを知って困惑していたが、それが核分裂現象のためであることには気付かなかった。日本の研究は核分裂発見にあと一步のところまで進んでいたわけである。

仁科、木村の研究は、日本の放射化学の歴史上で、最も高い国際的評価を受けているので、関係の文献を記述しておく。

(a) の研究 : Y. Nishina, T. Yasaki, K. Kimura, M. Ikawa, *Nature*, **142**, 874 (1938).

(b) の研究 : Y. Nishina, T. Yasaki, H. Ezoe, K. Kimura, M. Ikawa, *Phys. Rev.*, **57**, 1182 (1940).

(c) の研究

(1) : Y. Nishina, T. Yasaki, H. Ezoe, K. Kimura, *Nature*, **144**, 547 (1939) ; **146**, 24 (1940).

(2) : Y. Nishina, T. Yasaki, K. Kimura, M. Ikawa, *Phys. Rev.*, **58**, 660 (1940) ; **59**, 323, 677 (1941).

(3) : Y. Nishina, K. Kimura, T. Yasaki, M. Ikawa, *Z. Phys.*, **119**, 195 (1942).

なお、日本で痕跡量のプルトニウムがつくられたのは、戦後再建された科研（株式会社科学研究所）のサイクロトロンによるウランの照射によってである。日本原子力研究所の木村健二郎と東大の斎藤信房研究室の共同研究であった。この研究は、第1回原子力シンポジウムにおいて報告され、この会合の報文集に印刷公表されている（1957）。

### (3-2) 核爆発に伴う放射能に関する研究。

歴史的に見て重要なものとしては、広島、長崎の原爆に伴う残留放射能、大気圏核爆発に伴う放射性降下物および“ビキニの灰”の放射化学分析がある。この分野では日本の放射化学者の活躍が目覚ましい。

広島、長崎の放射性降下物の分析は、まず、木村健二郎研究室において行なわれ、広島高須の試料については Sr-89, Ba-140, La-140 およびおそらく Zr-95, Nb-95, Y-91 の存在が、また長崎西山の試料については、Sr-89, Ba-140, Ce-144, Pr-144 および Y-91 の存在が確かめられた（1945）。その後長崎の試料は再び分析され、Cs-137, Ba-137m, Sr-90, Y-90, Ce-144, Pr-144 が確認されると共に、Pu-239 も検出された（1951）。

“ビキニの灰”の分析は、1954年、日本全国の放射化学者の総力をあげて行なわれた。この分析に参加した主要な研究室は、東大の木村健二郎、南英一研究室、静岡大学塩川孝信研究室、金沢大学木羽敏泰研究室、大阪市立大学山寺秀雄研究室などである。このほか京都大学では清水栄研究室を中心として物理、化学グループが分析に従事している。その結果、“ビキニの灰”の試料から少なくとも26種の核分裂生成物と P-32, S-35, Ca-45 および U-237, Pu-239 が検出されている。木村健二郎は、「ビキニの灰の分析をめぐって」と題する解説（1954）の中で、戦前に理研で行なったウラン、トリウムの中性子照射実験を回顧し、「今回の実験で、はからずもその時みつけた核種 Ru-108 や U-237 にふたたびめぐり会い、誠に感慨無量であった」と述べている。実は、U-237 の検出は極めて重要な結果で、ビキニ環礁における実験に使用された爆弾が 3F 爆弾であったことを示す証拠として国際的に注目を集めた。

大気圏核爆発に伴う降下物の分析については、“ビキニの灰”の場合よりも多数の大学の化学者が参加し、優れた業績を挙げた。特に、東京教育大学三宅泰雄研究室および金沢大学木羽敏泰研究室の貢献は大きい。

### (3-3) 人工放射能（アイソトープ）の利用

1950年に米国産アイソトープが輸入（別に本書に記載）されたのちには、化学者の間でアイソトープ利用についての関心が急速に高まった。1951年には、文部省科学研究費による“人工放射性同位元素総合研究”（委員長 木村健二郎）が発足し、放射化学者も多数参加した。研究成果は「Annual Report of the Research Committee on the Application of Radioactive Isotopes in Japan」[Vol. I, Part 1 (1951) および Part 2 (1951) ; Vol. II (1952) ; Vol. III (1956)] に収録されている。

## (4) 放射化学討論会の発足

1950年代の後半は、日本の原子力研究の黎明期で、1956年には東京大学原子核研究所が設立され、また日本原子力研究所が発足した。さらに1957年には日本原子力研究所の JRR-1 原子炉が臨界に達した。この時期に、東京大学では原子力の研究・教育を全学の関係学部・学科が協力して行なうための総合計画が決定し、その一環として放射化学講座が設立された。この講座は国内における最初の放射化学の講座である。その初代教授（兼任）となった斎藤信房は、放射性元素の研究に関心がある国内の科学者に、放射化学に関する討論会を開くことを提案した。アンケー

トの結果、柴田雄次教授をはじめとする 38 名の指導的化学者、応用化学者、地質学者などの賛同を得て、第一回討論会は同年 12 月 20, 21, 22 日に日本化学会、日本化学会関東支部の共催により学士会館において開催された。

討論課題は、(1) 天然放射能、(2) 放射性同位体の製造、(3) 放射能測定、(4) 放射化分析および放射化学分析、(5) ホットアトム化学、(6) 核燃料再処理および廃棄物処理における放射化学的問題、(7) 放射性フォールアウトおよび汚染された物質中の放射性核種の分離・定量に関する問題、(8) その他一般、である。3 日間に及ぶ会合では、特別講演 1 件、“総説講演” 9 件、一般の研究発表 43 件があった。また、参加者間の討論も極めて活発であった。その際の出席者の要望に応じて、討論会はその後も毎年 1 回開かれ、今日に至っている。

## 第2章 放射化学討論会発足以降の研究の推移 (1957-現在)

1957年に第1回放射化学討論会が開催されてからは講演要旨集が刊行されているため、記録がしっかりと残っている。この章では放射化学討論会要旨集を中心に放射化学研究の記録を年代順に纏めた。しかし、第1回から10回までの要旨集の部数が非常に少ないことや、当時の討論会参加者が定年を迎え、大学に在籍していないことなどもあり、執筆者はこの間の研究内容の掘り起こしに苦労した。当時を振り返ると研究内容の変遷もあり、研究のスピードや研究の目的の変遷などが伺える。要旨集の分類項目ごとに編集者を置いたため、境界領域の研究分野や研究者の少ない領域の研究が見過ごされた可能性がある。できるだけ広範囲に研究を概観するように努めたが、編集者の力量の足りなさのためにりっぱな研究が取り上げられなかった可能性を憂慮している。お許しを得たいと思う。各節ごとに個性ある纏め方がなされているが、あえて統一しなかった。研究分野ごとに個人研究が主体となるもの、グループ研究が主体となるもの、あるいは装置に依存する研究など個性ある研究方法があるため一つのスタイルで纏めることは困難であると考えたためである。研究紹介には精粗があるが、研究の流れはご理解いただけると思う。

### 2.1 核化学

核化学の研究領域は広範囲にわたり、かつ時代とともに変化が見られる。最近では新しく「超重元素の化学」という領域が確立され、多くの力が注がれている。放射化学討論会発足以来50年間にわたる研究の進展とそれに携わった研究者の系譜を、核分裂、核反応、核分光・核構造、RI製造、測定・データ解析法、核と原子・分子の相互作用、中間子化学の7分野に分けてまとめることを試み、最後に、最近の研究の動向を含め今後の展望を述べる。当然それぞれつながりがあるため、重複する部分も多く、逆に完全にカバーすることを目指したものでもないが、21世紀の核化学の方向を考える足がかりとなれば幸いである。

#### 2.1.1 核分裂研究70年の歩み

(中原 弘道・永目論一郎)

##### 世界に於ける核分裂発見の夜明け

わが国の核分裂研究は、ヨーロッパに於ける核分裂研究とほぼ同時期に始まるが、まずヨーロッパを中心にして核分裂がどのような経緯で発見されるにいたったかの話は、核・放射化学研究を志す人に非常に有益であるので、敢えてここに詳記する。

即ち、1934年頃からイタリアの Fermi, Amaldi 等は、Chadwick によって発見された中性子 (1932年) を、Curie 夫人が 1898 年に発見した  $^{226}\text{Ra}$  から放射されるアルファ線と Be 金属紛との反応で発生させて、中性子捕獲反応によってウランから 93 番元素の合成を試みていた (Ra-Be 中性子線源、 $10^5 - 10^6 \text{n/sec}$  を使用していた)。その予備実験として、水やパラフィンで減速させて得られる遅い中性子をアルミニウムなどの軽元素から Fe, Si, Cr, Ba, Na, Mg, Ti, Zn, Se, Sb, Br, La などの 60 種にも及ぶ元素に照射して、新しい  $\beta^-$  壊変する放射性核種が少なくとも 40 元素製造されることを確認した。そして、それらが  $\beta^-$  壊変して原子番号が 1 つ大きな元素の核種になるこ

とを確かめた。従ってウランから93番元素を合成するために、硝酸ウラニルを中性子照射する実験をおこなった。しかしいろいろな半減期で減衰する放射性核種が生成したので、生成物の化学分離を行う必要に迫られて放射化学の専門家であるD'Agostinoを研究グループに加えた。彼は硝酸ウラニル水溶液から二酸化マンガンの沈殿を作ったり、他の担体を加えて放射性核種の挙動を調べた。その結果、ウランの遅い中性子照射で生成した放射能は、ウランやその近隣元素のPa, Th, Ac, Ra, Bi, Pbの放射性同位体ではないことを示した(Nature, June, 1934)。彼の論文に反論する形で、ドイツの化学者Ida Nodackは同年のZeitschrift für Angewandte Chemieの9月号に、次のような見解を発表した。“His method of proof was not valid. His (Fermi's) new beta emitter was not protoactinium and then distinguished it from several other elements descending down the periodic table to lead, but it was not clear why he chose to stop at lead. Fermi therefore ought to have compared his new radioelement with all known elements”, さらに彼女は続けた。“any number of elements could be equally precipitated out of uranium nitrate with manganese. Instead of assuming the production of a new transuranic element, one could assume equally well that when neutrons are used to produce nuclear disintegrations, some distinctively new nuclear reactions take place which have not been observed previously.” “When heavy nuclei are bombarded by neutrons, it is conceivable that the nucleus breaks up into several large fragments, which would of course be isotopes of known elements but would not be neighbors. They would be, rather, much lighter elements farther down the periodic table than lead.” しかし、この論文はベルリンのHahnやパリのJoliot等の目にとまったが、彼女の推論には科学的根拠が示されていないとの理由で重要視されなかった。そして、多くの人達も“他人の仕事の批判に過ぎない”として、完全に無視した。パリでは、Irene CurieとPavel Savitchがウランの遅い中性子照射で生成する半減期3.5時間の帰属を研究していた。ランタンの担体を加えて化学分離すると、ウランから分離できることから、それは89番元素のアクチニウムか、あるいは化学的な性質がランタンに近いものであろうと報告した。Hahnは1938年5月号のComptes Rendusに掲載されたCurieらのこの分離に関する第2報目の論文を読んで大きなショックを受けた。当時の核反応の知識では説明できないので、ベルリンのMeitnerの誘いに応じてウランに遅い中性子を照射する実験に大学院生のStrassmannと共に取り掛かった。彼等はまず、半減期の異なる16種類の放射性核種の存在を確認し、次に溶液からバリウム担体で共沈した3種の核種はラジウムであると仮定して実験を進めた。それは、1938年末の12月17日(土)であった。Hahnはバリウムの硫酸塩ではなく、塩化物を担体として用いるようにStrassmannに指示し、それにラジウムとバリウムとの違いを確かめるために放射性トレーサのメソトリウム $\text{MsTh}_1$  ( $^{228}\text{Ra}$ )を加えるように指示した。担体のバリウムは再結晶化の際に結晶するが、メソトリウムは担体と一緒に結晶化せず、溶液中に残る。そして彼等が注目した半減期86分の放射性核種はバリウムと共沈することを確認した。更に、彼等は、この物質がもしラジウムなら $\beta^-$ 壊変生成物はアクチニウムであるはずだが、アクチニウムはランタンから分別結晶法で分離できるはずなので、その実験を行った。即ち、まず86分の核種を分離し、その $\beta^-$ 崩壊生成物に対して、ランタン、アクチニウムの分別結晶を行った。それは、1938年の12月19日(月)の夜であった。その結果、崩壊生成物はランタンと同じ化学挙動を示した。そして彼等はその結果をストックホルムに亡命していたMeitnerに直ぐに手紙を書き、Hahnは帰宅途中に投函して彼女の指示を仰いだ。それと同時に、12月23日の締め切り日に間に合うように、論文を書き、Naturwissenschaften誌に核分裂発見の論文を投稿した。

“We come to the conclusion that our “radium isotope” has the properties of barium. As chemists we

should actually state that the new products are not radium, but rather barium itself. Other elements besides radium or barium are out of the question.---As chemists we really ought to revise the decay scheme and insert the symbols Ba, La, Ce, in place of Ra, Ac, Th. However, as “nuclear chemists” working very close to the field of physics, we cannot bring ourselves yet to take such a drastic step which goes against all previous laws of nuclear physics. There could perhaps be a series of unusual coincidences which has given us false indications,”

### 日本に於ける核分裂研究の黎明期

以上のような核分裂発見のドラマがヨーロッパで繰り広げられていく少し前に、わが国では、1931年に理化学研究所（理研）に仁科研究室が創設され、昭和8年（1933年）に木村健二郎が東京帝国大学の教授として理学部化学科の分析化学講座担任に任命された。仁科らは1937年に理研にわが国初の26インチサイクロトロンを作り、東京帝国大学の木村研究室との共同研究でいろいろな核反応の研究を始めた。当時、このような荷電粒子加速器をもっていたのは日本とアメリカ・バークレーでLawrenceが作った37インチサイクロトロンだけで、ヨーロッパにはまだなかった。

この共同研究に参加していた人は、物理学者の矢崎為一、江副博彦、仁科芳雄、化学者の木村健二郎、井川正雄と学部3年生の斎藤信房、松浦二郎であった。仁科らはサイクロトロンで加速された3MeV重陽子をリチウムに照射して中性子を発生させ、減速させないでそのまま $U_3O_8$ 標的に照射して、93番元素の合成実験をおこなった。照射した試料を化学実験室まで持ち帰り、井川が中心となって酸化ウランを硝酸に溶かしてから、重金属のキャリアーを加えて定性分析で用いるイオン分族法を用いて同定を試みた。分族された試料の放射能は、仁科研手製のエレクトロスコープで測定された。しかし、どのフラクションにも放射能が検出されたので木村はじめ皆当惑した。だが、この間に(n, 2n)反応で生成するウランの新核種 $^{237}U$ を世界に先駆けて初めて発見した。また、同様に $^{231}Th$ を発見して、世界の注目を集めた。その後、1939年にHahnとStrassmannによって核分裂の発見が報告されてから、彼等は、核分裂生成物の中に7種の元素、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、銀、カドミウム、インジウム、スズが含まれていることを新たに発見し、また新核種 $^{103}Ru$ を発見した。さらに、ウランの速中性子核分裂ではこれらの対称分裂生成物が多いことを指摘した。このように、仁科—木村グループは、核分裂の初期段階で非常に先駆的な成果を挙げた。これがわが国に於ける核化学研究の揺籃期であり、物理学者と化学者の見事な連携プレーによって、歴史に残る成果が得られた良い例である。そして、1940年に理研に木村研究室が誕生した。

以上のように、核分裂発見のキーポイントはGeorge Hevesyが提唱した放射性担体radioactive tracerの使用を考えついたか否かにあった。

他方、京都大学の化学者萩原徳太郎はウランの熱中性子誘起核分裂1回当りに2.6個の中性子が放出されると発表した(The Review of Physical Chemistry of Japan, 13, 145 (1939))。この値は同じ頃にアメリカでZinnやSzilardらがそれぞれ発表した値と良く一致していた(Phys. Rev. 56, 619 (1939))。

なお萩原は、戦時中海軍の要請に応じて1941年5月に次のような講演を京都大学でおこなっている。“Concerning super-explosive uranium-235”という演題で次のように述べている。“if an appreciable quantities of U-235 could be manufactured and if a mixture of this U-235 and an appropriate concentration of hydrogen with an appropriate volume could be prepared, U-235 has the property of

becoming a useful detonator substance.”これは、萩原が世界に先駆けて、爆発的な連鎖反応を起こすにはU-235の濃縮が必要であることを指摘し、核分裂と熱核融合とを結びつける可能性、即ち水素爆弾について言及した講演として、戦後になって世界から高い評価を受けた。残念なことに、この講演の内容は、海軍の最高機密情報として戦争が終わるまで、陸軍にも伝えられずに隠されていた（陸軍は、海軍とは関係なしに、理研の仁科研究室に原爆製造の研究を委託していた）。また、荒勝文策は500keVのコッククロフト・ウォルトン加速器を1939年に京都大学に製作・設置し、 ${}^7\text{Li}+p$ 反応で6.17MeVガンマ線を発生させてUやThに照射して光核分裂の研究を行った。

### 核爆弾の放射能研究

#### ①終戦直後の広島・長崎の原爆災害調査

木村研究室では、1945年8月15日前後に広島・長崎の爆弾調査の依頼を受けた。村上悠紀雄が中心になって疎開先の秋田の研究室で広島のフォールアウト試料の化学分離を行い、分離精製したものを直ぐに列車で村上自身が東京へ持ち帰り、理研・仁科研の山崎文雄がその放射能を測定した。秋田の実験室にはガスもなく、七輪コンロで炭火をおこして加熱・分解・蒸発などの化学操作を行うという戦争直後の最悪な条件下での研究であった。その結果、広島高須の土に ${}^{89}\text{Sr}$ 、 ${}^{140}\text{Ba}$ 、 ${}^{140}\text{La}$ などの核分裂生成物と推定できる核種を見出した。さらに長崎西山の土の分離分析には斎藤一夫、大橋茂、山寺秀雄らが参加して行い、 ${}^{89}\text{Sr}$ 、 ${}^{140}\text{Ba}$ 、 ${}^{144}\text{Pr}$ 、 ${}^{95}\text{Zr}$ などを検出した。なおこの時の経験が後年のビキニの灰調査の時に非常に役立ち、大橋は金沢大で、山寺は大阪市大で調査に参加することになった。

#### ②ビキニの灰の調査

木村研究室と核分裂生成物との三回目の大きな出会いは、1954年の3月1日に起こったビキニ事件であった。第五福竜丸の船員が入院していた東京大学医学部の放射線科からムルロワ環礁の灰の緊急分析依頼が木村の下にきた。そこで化学教室の木村研究室と南研究室が昼夜兼行の実験に当り、約10日で分析を終えた。その結果、 ${}^{103}\text{Ru}$ と ${}^{237}\text{U}$ が早い段階で見つかった。これらの核種はいずれも、戦前に行った理化学研究所での仁科—木村共同研究におけるウランの速中性子照射実験の際に見つけたもので、木村にとって大変に感慨深いものであった。なお ${}^{237}\text{U}$ が見つかったことから、 ${}^{238}\text{U}$ がタンパーとして使われたことが予測され、 ${}^{103}\text{Ru}$ の存在から速中性子核分裂が多量に起きていたことが推定された。ビキニの核爆弾がいわゆる“汚い”3F（Fission-Fusion-Fission）爆弾であったことが示唆された。

### 1950年以降の核分裂研究の流れ（放射化学討論会での報告を中心に）

放射化学討論会で、最初に核分裂そのものの現象を扱った報告は1964年の第8回大会で、坂本浩（東大核研）と黒田和夫（アーカンソー大）が協力して行ったヘリウムならびに高エネルギー光子によるウランの核分裂収率曲線の研究である。翌年の第9回大会では、初めて核分裂セッションが設けられ、日本原子力研究所（原研）グループの梅沢弘一、夏目晴夫、馬場宏が ${}^{238}\text{U}$ の自発核分裂やウランの熱中性子における希土類核種の詳しい収率などをイオン交換樹脂を使って分離精製して報告している。

1960年代後半からは原研の馬場、馬場澄子、梅沢グループを中心に ${}^{238}\text{U}$ の陽子誘起核分裂の研究が東京大学原子核研究所（核研）のサイクロトロンを用いて精力的に行われた。陽子エネルギーが12 - 55MeVの範囲で、核分裂生成物の生成断面積、質量収率曲線および電荷分布などが



放射化学的手法を用いて詳細に測定された。とくに質量収率曲線の励起エネルギー依存性から、対称質量分割と非対称質量分割のエネルギー依存性の違いが明確に示された。また準位密度や殻構造を考慮した核分裂壊変における統計的な考察などを行い貴重な貢献をしている。さらに対称、非対称質量分割におけるそれぞれの電荷分布を系統的に調べ、two-mode fission 仮説 (対称、非対称質量分割という2つの分裂モードが存在するという考え) との関わりを議論している。この電荷分布に関する研究は現在でもよく引用されており、わが国の核分裂研究の戦後における代表的な優れた成果といえる<sup>1)</sup>。

1969年の第13回大会には、京都大学の西朋太研究室からも<sup>241</sup>Amの熱中性子(京都大学原子炉実験所(KUR)のカドミウム比5000の照射場で照射)核分裂研究の報告がなされている。西、藤原一郎、中原弘道、岡本弘信、今西信嗣らは非対称質量分割における質量収率曲線のピークと谷の比に関する考察や核分裂生成物の飛程、核分裂片の核構造などに関する研究を報告した。更に、今西、藤原、西らは報告例のほとんど無い<sup>233,235</sup>Uや<sup>239</sup>Puの熱中性子誘起核分裂における核異性体生成断面積比の測定を開始した。これはその後、西研究室で系統的に進められていった。この生成断面積比は、分裂時にそれぞれの分裂片が持つ角運動量に関する情報を与えるため、分裂片の変形度などとの関連から議論されている<sup>2)</sup>。また短寿命の核分裂生成物を測定するために、KURにヘリウムガスジェット型反跳核輸送装置が西グループとKURの岡野事行グループとの協力で設置された。この手法は、後に原研タンDEM加速器施設での実験へと継承されていく。1970年代後半になると、西グループは大阪大学核物理研究センターのサイクロトロンを用いて<sup>232</sup>Thの $\alpha$ 粒子誘起核分裂の研究を開始している。測定量は核分裂質量収率曲線や核異性体生成断面積比である。

1978年の第22回大会から、都立大学・中原弘道研究室による核分裂研究の報告が始まる。<sup>232</sup>Thの陽子誘起核分裂と重イオンを用いた中重核領域での核分裂に関する研究である。前者はアクチノイドの対称、非対称質量分割モードの研究としてその後長く継続されていくことになる。ここでは工藤久昭が中心となり、放射化学的手法を用いて、対称、非対称質量分割で生成する核分裂生成物の励起エネルギー依存性ならびに角度分布を詳細に測定した。そして二つの質量分割における核分裂障壁の違いならびにそれぞれの質量分割が異なる鞍部点を経由して核分裂に至るということを実験的に証明している<sup>3)</sup>。他方後者は、重イオンが持ち込む角運動量の効果で核分裂障壁が低下し、質量数100近傍の中重核領域でも核分裂が観測されるだろうという理論的予測を検証するために、中原研究室と河野功(理研)との共同研究として主に矢野倉実、永目論一郎が行った実験である。これまでの核分裂研究は、主として放射化学的手法を用いて、必要とあれば核分裂生成物を化学分離して生成物の断面積を求め、質量収率や電荷分布などを求めてきたが、中重核領域の核分裂研究では、 $\Delta E$ -Eカウンタテレスコープという粒子検出器を自作して用いている。これにより核反応生成物の原子番号を同定し、その運動エネルギーや角度分布を測定するという手法を導入している。この中重核領域の核分裂研究は、わが国の核物理研究者の関心も得て、理論の立場からの研究も進んだ。これはその後原研でも継続され、中重核領域の核分裂として確立されたといえる。

1980年代の半ばからは、上記都立大と永目(原研)グループによるアクチノイド元素(<sup>232</sup>Th, <sup>233,235,236,238</sup>U, <sup>237</sup>Np, <sup>239,242,244</sup>Pu, <sup>241,243</sup>Am, <sup>248</sup>Cm)の陽子誘起核分裂に関する研究が原研のタンDEM加速器を用いて精力的に行われる。特に質量収率曲線における分裂核の量子数依存性や励起エネルギー依存性の詳細なデータを取得し、対称ならびに非対称質量分割における核分裂障壁(しきい値)の違いを系統的に導き出している。一方、阪大・馬場(宏)研究室と原研・馬場(澄子)グルー

プとの共同研究として、横山明彦らによる重イオン誘起核分裂の研究も開始された。また金沢大・坂本(浩)研究室と藤原一郎(京大)、柴田誠一(東大核研)らのグループによる光子誘起による核分裂研究も東北大学の電子線加速器や核研のシンクロトロンを用いてこの頃から始められている。これらの多くは放射化学的手法を用いて質量収率や電荷分布を求める研究である。重イオン誘起核分裂では、阪大・馬場グループを中心に重イオンによって持ち込まれる角運動量と核分裂障壁の関係について詳しく調べて報告している。また高エネルギー物理学研究所の陽子シンクロトロンを用いた、阪大の馬場、篠原厚らのグループの静止負パイ中間子吸収に伴う核分裂研究もこの頃行われている。

1980年代後半からは、わが国でも研究設備や実験装置の充実が成され、それに伴って高精度の実験が行われるようになってきた。新潟大の工藤(久昭)グループは東北大学サイクロトロン施設の藤岡学・篠塚勉グループと共同研究を行い、イオンガイド型オンライン同位体分離器(IGISOL)を用いて、短寿命の核分裂生成物を多数測定して、貴重なデータを発表した。それに基づいてウランやトリウムの陽子誘起核分裂における電荷分布や核異性体生成断面積比の詳細な研究を行った。また都立大・中原-臼田重和・篠原伸夫(原研)グループによる、高速液体クロマトグラフ法にもとづく迅速化学分離装置の開発で、短寿命の希土類生成物の測定を可能にしている。それにより、塚田和明(都立大)らは、非対称質量分割の中でも、収率が小さく非対称性が大きい分裂片領域の生成物の収率を高精度で測定した。また原研-都立大グループによる二重飛行時間同時測定法を用いた核分裂片の速度測定がこの頃から始まる。この方法では、二つの分裂片の速度を同時測定することで、分裂片から中性子が放出される前の1次分裂片の質量数や運動エネルギーを高精度で見積もることができる。この研究は、先の核分裂障壁の系統的研究と組み合わせて、長年の懸案とされていた核分裂における two-mode 仮説の実験的検証へと発展して行く。なかでもこの時期の成果としては、精密な核分裂片の速度測定から、大槻勤(都立大)らが分裂片質量数 126-134 の領域において、それぞれの質量分割に伴う運動エネルギー分布に2つの成分が混在することを初めて実験的に見出すことに成功している<sup>4)</sup>。阪大・馬場研と原研グループによるウラン同位体の重イオン誘起核分裂における電荷分布の測定もこの頃集中的に行われた。

1989年には核分裂発見50年を記念して、世界各地で核分裂に関する会議が開催された。これと前後して1980年代前半から後半にかけて、米国のD. C. HoffmannやE. K. Huletらのグループによって報告された重アクチノイド核( $^{258,259}\text{Fm}$ や $^{260}\text{Md}$ など)の自発核分裂における bimodal fission は低エネルギー核分裂機構の研究に大きなインパクトを与えた。また多重モード核分裂理論の提唱とも相まって bimodal fission や multi-mode fission は、理論も含めて世界中の核分裂研究者の注目を集めるところとなった。このためアクチノイドより軽い質量領域あるいは中性子欠損アクチノイド領域における対称または非対称質量分割の探索や、アクチノイド領域における多重核分裂モードの探索などが盛んに行われた。一方重イオン誘起による通常の複合核を経由しない fast fission と呼ばれる新しい現象も観測されるようになった。このような世界的情勢を受けて、わが国でもこれまでの核分裂研究に加えて上述の観点からの研究もいくつか遂行されている。

1980年代後半から1990年代はわが国における核分裂研究の最盛期といえよう。都立大、阪大、新潟大、KUR、原研を中心にアクチノイド元素の質量分割機構に関する実験的研究が精力的に行われた。主な測定量は放射化学的手法による核分裂生成物の質量収率、電荷、角度分布、および核異性体生成断面積比などである。また飛行時間法を用いた分裂片の運動エネルギーや質量分布の測定も原研で集中的に行われた。さらに原研-阪大グループでは、原研タンデム加速器施設

に設置されたガスジェット搬送装置を用いてウランの陽子誘起核分裂における詳細な電荷分布の測定を行った。本方法により、多数の短寿命核種の測定が可能となり貴重なデータを数多く取得している<sup>5)</sup>。また阪大・馬場研ではウランの核分裂で励起エネルギー 14MeV 近傍における核分裂現象の異常をさまざまな核分裂系で系統的に調べ、分裂核の相転移という観点から解釈を試みている。KUR でも木村逸郎・中込良廣グループが飛行時間測定装置を導入し、西尾勝久 (KUR) らがウランやプルトニウムの熱中性子誘起核分裂における質量収率、運動エネルギー分布、さらには分裂片からの中性子測定を開始した。分裂片からの中性子数は核分裂における励起エネルギーの分配や分裂片の変形度などを反映しており、核分裂機構を調べる上で極めて重要な物理量である。

1990年代半ばになると、都立大・中原-原研・永目グループを中心に two-mode fission の実験的検証がなされる。これは 1970年代後半から始まった陽子誘起によるアクチノイドの核分裂に関する系統的研究の集大成といえる。先の対称ならびに非対称質量分割における核分裂障壁 (しきいエネルギー) や飛行時間法による分裂片運動エネルギーの 2 成分 (高い運動エネルギー成分と低い成分) に関する一連の実験から、低い分裂片運動エネルギーの成分は高いしきいエネルギーで生じる対称質量分割モードに属し、一方高い運動エネルギー成分は低いしきいエネルギーで起きる非対称質量分割モードに相当することがわかった。この結果、ウランやトリウムなどの低エネルギー核分裂には少なくとも 2 つの異なる変形経路が存在することを明らかにすることができた。すなわち一つは鞍部点において高いしきいエネルギーを要する過程で、切断の際に長く変形して分裂し、質量分割は対称に分割される。もう一つは、低いしきいエネルギーで生じる過程で、あまり変形せずに分裂し、質量分割は常に非対称分割の分裂片質量数 140 とその相補質量を中心とした分布になるような核分裂過程である<sup>6)</sup>。この非対称質量分割過程は、分裂片殻構造の影響を強く受けていると考えられる。この成果は two-mode fission 仮説の実験的検証として国際的にも高く評価されている。その後プルトニウムやキュリウム領域まで拡張した実験を行い、同様な結果を導き出している。

さらに種々の実験データにもとづき、対称、非対称質量分割で生成する分裂片の分裂切断点における変形の度合いを軽アクチノイドから重アクチノイド領域まで系統的に検討し、重アクチノイド領域で観測されている bimodal fission とアクチノイド領域の two-mode fission の関連を考察している。その結果変形度は、それぞれの分裂モードでは異なるが、同じモードについて比べると、軽アクチノイドから重アクチノイド領域まで広い領域に亘って同じであると Y. L. Zhao (都立大) らは報告している。詳細は重アクチノイド、超アクチノイド元素領域での今後の核分裂研究の結果を待たねばならない。また新潟大グループの核異性体生成断面積比の測定から、対称質量分割における断面積比が非対称質量分割でのそれよりも大きいことがわかった。これは先の対称質量分割では分裂片が長く伸びて分裂するため、角運動量も大きくなり核異性体比が大きくなることと一致している。逆に分裂片の殻構造の影響を受けている非対称質量分割生成物の核異性体生成断面積比が小さくなるのは、分裂片が変形していないため角運動量の寄与が少ないためと解釈している<sup>7)</sup>。

1990年代後半に入ると原研-都立大グループは、分裂片の二重飛行時間測定法とエネルギー測定法にもとづき、分裂片の質量数、運動エネルギー、分裂片からの中性子数を精度よく求め、それらの相関を明らかにした。これにより西中一郎 (原研) らは対称、非対称質量分割モードにおける励起エネルギーの分配や、それぞれの分裂モードにおける分裂片の変形度を詳しく考察し、上記 two-mode fission の更なる確証を得ている。また新潟大-原研グループによるウランやプル

トニウム同位体を用いた非対称質量収率曲線の詳細な研究から、分裂片殻構造と質量収率曲線の相関も議論されている。

核分裂過程は、大きな原子核の変形に伴う諸物理量を反映する現象であると同時に、原子核における多体系の集団運動である。したがって原子核理論の立場からも極めて興味深い研究課題である。初期の頃の岩本昭（原研）-山路修平（理研）らによる二中心殻模型や最近の阿部恭久（京大基研）-太田雅久・和田隆宏（甲南大）グループによる拡散模型（多次元 Langevin 方程式）を用いた分裂過程の動的な計算や、原研・岩本-米国ロスアラモス国立研究所・P. Möller グループによる多次元ポテンシャルを用いた静的な核分裂研究などは世界に誇れる理論といえる<sup>8)</sup>。とくに多次元ポテンシャルを用いて、two-mode fission を理論的に説明したことは大きな成果といえる。また最近はこれに動的過程を組み合わせた理論の研究も同グループで行われており、今後の進展が期待される。

## 文 献

- 1) H. Umezawa, S. Baba, and H. Baba, Nucl. Phys. **A160**, 65 (1971).
- 2) N. Imanishi, I. Fujiwara, and T. Nishi, Nucl. Phys. **A263**, 141 (1976).
- 3) H. Kudo, H. Muramatsu, H. Nakahara, K. Miyano, and I. Kohno, Phys. Rev. C **25**, 3011 (1982).
- 4) T. Ohtsuki, Y. Nagame, H. Ikezoe, K. Tsukada, K. Sueki, and H. Nakahara, Phys. Rev. Lett. **66**, 17 (1991).
- 5) A. Yokoyama, N. Takahashi, N. Nitani, H. Baba, R. Kasuga, T. Yamaguchi, D. Yano, K. Takamiya, N. Shinohara, K. Tsukada, Y. Hatsukawa, and Y. Nagame, Z. Phys. **A356**, 55-60 (1996).
- 6) Y. Nagame, I. Nishinaka, K. Tsukada, Y. Oura, S. Ichikawa, H. Ikezoe, Y. L. Zhao, K. Sueki, H. Nakahara, M. Tanikawa, T. Ohtsuki, H. Kudo, Y. Hamajima, K. Takamiya, and Y. H. Chung, Phys. Lett. B **387**, 26-30 (1996).
- 7) M. Tanikawa, H. Kudo, H. Sunaoshi, M. Wada, T. Shinozuka and M. Fujioka, Z. Phys. **A347**, 53 (1993).
- 8) P. Möller, D. G. Madland, A. J. Sierk, and A. Iwamoto, Nature **409**, 785 (2001).

### 2.1.2 原子核反応の核化学的研究

(古川 路明・馬場 宏・坂本 浩・柴田 誠一)

#### 軽粒子核反応

ここでは、主に低エネルギー領域の荷電粒子核反応の断面積とエネルギー依存性（励起関数）の測定に関係した研究について記す。

原子核研究の初期には、天然放射性核種から放出されるアルファ粒子が粒子源として用いられた。しかし、そのエネルギーと粒子強度には限界があり、1930年代半ばからは加速器の利用が重要になっていった。日本でもサイクロトロン建設が進められていたが、戦争の激化は研究の進行に大きな障害となった。敗戦後、占領軍の意向により原子核と原子力の研究は禁止され、サイクロトロンが海に捨てられるという信じがたいことまで起こった。日米講和条約発効後に情勢は変わり、1950年代後半には大型加速器も建設されるようになった。東大核研のFFサイクロトロンの共同利用も始まり、化学者が原子核研究に参加できる体制が整ってきたといえる。

放射化学討論会は、このような状況のもとに開かれることになった。1958年の第2回討論会では、田中重男（東大核研）が $^{58}\text{Ni}(p, pn)$ ,  $^{58}\text{Ni}(p, 2p)$ ,  $^{58}\text{Ni}(p, \alpha)$  反応、田中重男、古川路明

および三雲昂（東大核研）が $^{61}\text{Ni}$  (p, n),  $^{64}\text{Ni}$  (p, n) 反応の励起関数について報告している。測定結果の正確さには問題があるが、日本の化学者が核反応研究を手がけた初期の例として意味があるろう。

第3回討論会以後には、田中重男ら（東大核研）が $^{40}\text{Ar}$ ( $\alpha$ , p),  $^{40}\text{Ar}$ ( $\alpha$ , pn) 反応,  $^{55}\text{Mn}$ ,  $^{54,56}\text{Fe}$  の $\alpha$  反応, 福島昭三ら（阪大理）が $^{107,109}\text{Ag}$  の $\alpha$  反応, 翌年には田中重男らが $^{58,60}\text{Ni}$  の $\alpha$  反応,  $^{139}\text{La}$  の $\alpha$  反応, そして第5回には古川路明らが $^{66}\text{Zn}$  の $\alpha$  反応について報告するなど,  $\alpha$  粒子誘起反応が中心となっていた。多くの実験結果は, 複合核モデルに基づく理論計算の結果と比較され, 反応機構について議論されている。これらの研究の中から,  $^{54}\text{Fe}$  と  $^{107}\text{Ag}$  の反応を取り上げる。 $^{54}\text{Fe}$  については陽子放出を含む反応が中性子のみを放出する反応よりも起こりやすい点に特色がある。このような傾向は $^{50}\text{Cr}$ ,  $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{64}\text{Zn}$  のような偶々核の標的を $\alpha$  粒子で照射する際に見いだされ, Q 値の差と残留核の準位密度の核種による差に基づくと解釈されている。 $^{107}\text{Ag}$  の $\alpha$  粒子反応は, 中性子のみを放出する反応が有力であり, 測定値は複合核モデルに基づく理論計算と一致している。

1960年になると, 東大核研サイクロトロンでの稼動が始まり, 55 MeV までの陽子が利用できるようになった。このエネルギー領域の陽子を加速できる加速器は世界的に見ても数が少なく, 興味深い実験結果を提供できたといえる。主なものに, 1961年の第5回討論会における N. T. Porile (ブルックヘブン国立研) らによる  $^{69,71}\text{Ga}$  の陽子反応, 第7回に報告された古川路明らによる  $^{59}\text{Co}$  の陽子反応, 久米三四郎 (阪大理) らの Cd 同位体の陽子反応, 天野恕 (原研) らの  $^{148}\text{Sm}$  の陽子反応などがある。この中から  $^{69}\text{Ga}$  の陽子反応を取り上げる。多くの核反応の断面積を測定した例として教科書などに引用されているが, 複合核モデルに基づく理論計算の値と測定値との一致は必ずしもよくなかった。特に (p, n), (p, pn) 反応の高エネルギー側での不一致が目立っていた。この傾向は他の実験例についても認められ, 複合核モデルの適用に限界があることを示していた。

1965年の第9回討論会以降, 重陽子反応についても報告されている。音在清輝 (阪大理) らは標的核として  $^{142}\text{Ce}$  を使った反応を, 1968年には, 岡村日出夫 (阪大理) らが  $^{63,65}\text{Cu}$ , 西朋太 (京大原研) らが  $^{70}\text{Ge}$ , 三藤安佐枝 (阪大理) らが  $^{96,102,104}\text{Ru}$  を標的核として取り上げられている。これ中で,  $^{142}\text{Ce}$  の反応は注目すべきである。(d, p), (d, n) 反応では, ストリッピングの過程が寄与しているが, 重陽子反応においても複合核過程を経る核反応は多い。(d, 2n) 反応の断面積は (d, n) 反応の断面積よりも大きくなっている。複合核モデルとともに直接反応の寄与を含めた理論解析も成功している。この研究では,  $\beta$  線のみを放出する生成核を測定せねばならず, 化学分離が必要であり, 化学者の活躍できる状況にあった。

同じ複合核を異なる核反応でつくり, 複合核モデルを検証しようとする S. N. Ghoshal の論文は1950年に発表されている。彼は  $^{63}\text{Cu} + \text{p}$  反応と  $^{60}\text{Ni} + \alpha$  反応によって複合核  $^{64}\text{Zn}$  をつくり, 対応する反応の励起関数を比較して, 複合核モデルが妥当であると結論した。この研究が日本の核反応の研究者に与えた影響は大きく, 日本の実験もそれを意識したのが見受けられる。 $^{59}\text{Co} + \text{p}$  反応と  $^{56}\text{Fe} + \alpha$  反応による複合核  $^{60}\text{Ni}$  と  $^{69}\text{Ga} + \text{p}$  反応と  $^{66}\text{Zn} + \alpha$  反応による複合核  $^{70}\text{Ge}$  をつくる例がそれである。

断面積測定によって反応機構を探る研究とともに, 他の分野と関係する研究も進められた。1962年の斎藤一夫 (東大核研) らの発表に見られるように, 野崎正 (電電公社通研) を中心におこなわれたホウ素・酸素などの荷電粒子放射化分析には, それまでに得られた経験が役立っていた。また, 1970年には隕石, 月面岩石などに含まれる長寿命核種の測定と関連する研究として,

陽子照射による  $^{26}\text{Al}$  の生成断面積が古川路明ら (名大理) により測定されている。

ここまで、1970年までの研究に重点を置いて書いた。この頃は放射線測定器の発達が十分ではなく、ガンマ線測定はNaI検出器に頼らざるを得なかった。断面積測定に必要な絶対測定は各々が標準線源を調製し、目的とする核種に適当な測定法を工夫していた。いまから見ると、悪条件下で最善を尽くしていたともいえる。

その後の研究の進展について簡単に触れる。実験面では放射線測定器の進歩がいちじるしく、ガンマ線放出核種の生成断面積の測定は容易になっている。理論解析については現実的な要素を取り入れた計算が広く用いられるようになり、未測定の実験の断面積をある程度の正確さで予測できるようになった。しかし、ある問題意識をもったときには測定の必要もあろう。1970年代以降に行われた軽粒子核反応の研究は、宇宙化学研究の必要性から長半減期の生成物の励起関数を測定した研究が数例ある。系統的に行われたのは核分裂との関連で行われた京大原研の西グループによる  $^{232}\text{Th} + \alpha$  反応を除けば、1977年の第22回討論会から数年間にわたって発表される都立大の中原グループの永目論一郎らによる一連の  $^{197}\text{Au}$  と  $\alpha$  および  $^3\text{He}$  の反応がある。

高エネルギー領域の研究は、初期には日本に使用できる加速器がなかったため、討論会で発表された研究としては、音在-西グループが立ち上げ初期の高エネルギー物理学研究所 (KEK) で行った高エネルギーのパイ中間子による核反応の研究がはじめてである。0.4 ~ 3.3 GeV の負パイ中間子による核破砕反応生成物の放射化学的測定が主な内容である。1978年の第22回討論会から24回まで、西朋太、藤原一郎 (京大原研)、今西信嗣 (京大原研)、森山裕丈 (京大原研)、音在清輝、荒川隆一 (阪大理)、斎藤直 (阪大理)、常吉俊宏 (阪大理)、高橋成人 (阪大理)、林茂樹 (京大原子炉)、工藤久昭 (都立大理) からなるチームにより一連の成果が発表された。 $^{51}\text{V}$  と  $^{209}\text{Bi}$  の  $\pi^-$  による核破砕およびフラグメンテーションの反応断面積、および  $^{12}\text{C}$  や  $^{19}\text{F}$  の ( $\pi^-$ ,  $\pi^-n$ ) 反応について研究され、特に前者については既存の陽子反応との比較がなされその反応機構が検討された。同様の検討はその頃始まった光核反応でもより詳細に考察されることになる。この研究の中で、少し異彩な実験は、京大炉の林茂樹と岩田志郎による固体飛跡検出器による  $^9\text{Be}$  ( $\pi^-, \pi N$ )  $^8\text{Li}$  と、森山らが発表した高エネルギー陽子とベリリウムの反応によるポリニュートロンの捕獲の試みであろう。

## 重イオン反応

1960年代の重イオン反応の研究は殆どが核子移行反応とクーロン励起に限られていた。当時は複合核形成反応のような複雑な過程が起こりうるとは考えられていなかったからである。球体に近い原子核同士が融合して一つの大きな球体に大きく変型するというようなことは、特に理論家には想像できなかったからである。これはちょうど、ハーンとシュトラスマンによって実験的に証明されるまでは、誰も予想すらしていなかった核分裂事象の場合と同じである。

1969年頃になって始めて複合核形成反応が論じられるようになって、1970年には、fusion という概念が登場するようになる。それと共に、DubnaのFlerovらが、超重元素の合成を目指す実験にとりかかったが、これは結局成功しなかった。

そのような世界の趨勢の中で、1972年の第16回討論会において岩田志郎 (京大原子炉) の招待講演において、核化学における重イオン研究の紹介がなされたが、実際の研究成果が登場したのは第22回 (1978年) の都立大の村上悠紀雄・中原・矢野他のグループによる  $^{64}\text{Ni} + ^{14}\text{N}$  核反応の研究 (I) が最初であった。翌年には、彼等は、ターゲットを  $^{62}\text{Ni}$  に変えて標的核の同位体間での比較を試み、その後は研究の重点を  $^{62}\text{Ni} + ^{14}\text{N}$  反応系に移して、1982年まで複合格形成反

応や当時注目され始めた深部非弾性反応を研究した。

また、中原弘道をリーダーとする都立大のグループは、1980年から81年にかけて、 $^{20}\text{Ne} + ^{50,54}\text{Cr}$  反応を同位体効果に着目して研究を行なっている。

1981年には、原研の馬場宏・馬場・市川他のグループが  $\text{Au} + ^{16}\text{O}$  核反応の研究に着手し、以後この研究はメンバーの出入りがあったものの1997年まで継続することになる。第25回の放射化学的手法による反応生成物の同定定量実験に続いて、翌年の26回には、京大原子エネルギー研の藤原と今西がメンバーに加わり、インビーム測定により運動量移行と荷電粒子放出過程の解析を行なうと共に反応生成物の同位体分布の測定を行なった。1983年の第27回討論会以降は阪大の横山・篠原他や原研の永目が加わって、核融合反応や核子移行反応の入射粒子依存性、軽粒子放出過程また核分裂過程との競合下における粒子蒸発機構の研究等を行なった。

原研の篠原伸夫・広大の堀口・東大核研の柴田他は27回から29回の討論会にかけて超ウラン元素の重イオン照射をテーマにした研究に着手し、 $^{238}\text{U} + ^{16}\text{O}, ^{12}\text{C}$  および  $^{242}\text{Pu} + ^{16}\text{O}$  反応系の研究を行なった。我が国で初めて超ウラン元素、特にプルトニウムを重イオン照射のターゲットにすることを可能にした意義は大きい。

さらに、第27回の討論会では、都立大の末木啓介・間柄・浜島他が軽い系での重イオン融合反応断面積と複合核近傍生成核の励起関数の測定を行なっている。

第27回から36回にかけては重イオン核反応の研究が最も活発に行なわれた時期であった。28回から30回にかけて、新潟大の工藤久昭・理研・東大核研の野村、都立大の末木を中心とするグループが  $^{209}\text{Bi} + ^{16}\text{O}, ^{20}\text{Ne}$  反応を用いて核融合反応の臨界核運動量を求める実験をおこなった。28回、29回にかけて、都立大の間柄正明・新潟大の工藤・金沢大の浜島他のグループが  $^{238}\text{U} + ^{14}\text{N}$  反応により Es 同位体を生成する研究を行なっている。

27回にスタートした原研の関根俊明・馬場・畑他による  $^{93}\text{Nb} + ^{12}\text{C}$  反応の研究は、その後入射粒子を  $^{37}\text{Cl}$  に変え、様々な中重核をターゲットにする一連の複合核形成反応の研究に発展した。メンバーも原研の永目・阪大の横山らが加わり、1989年の第33回まで続けられた。

第29回以降は重イオン反応の研究の中で核分裂反応の比重が大きくなるが、そんな中で、1986年の第30回討論会で報告された、原研の間柄・都立大の吉川英樹・広大の岩田・東大核研の柴田・追手門学院大の藤原らのグループの  $^{245}\text{Cf}$  の壊変測定と都立大の初川・大槻他と理研の河野のグループによる Es 同位体の合成・壊変特性の実験は異彩を放っている。

34回の討論会から36回にかけては、古川路明(名大)・小島(愛知医大)・斎藤(阪大)・大久保(理研)・柴田(東大核研)他によって、中間エネルギーの  $^{14}, ^{15}\text{N}, ^{40}\text{Ar}$  ビームを用いる中重核の核破碎反応の研究が行なわれた。また、時を同じくして、横山・斎藤・高橋他の阪大グループも名大の篠原、理研の大久保らの協力を得て、様々な中高エネルギー入射粒子とターゲットの組み合わせによる核融合反応、不完全融合反応、ターゲット・フラグメンテーション、composite system からの質量分割等の実験を行なっている。この種の研究はさらに発展させて、1996年の40回討論会以降に、横山明彦を中心にする阪大グループと篠原を中心にする名大グループに理研の大久保と放医研の柴田を加えたメンバーが、高エネルギー重イオンによる核破碎反応の研究を放医研の HIMAC を使って精力的に行なっている。

38回から39回にかけて、初川雄一・塚田・篠原他の原研グループは、 $^{238}\text{U} + \text{Li}$  反応を利用して Am 同位体の合成を試み、2000年の第44回討論会では、都立大、新潟大、阪大、PSI、GSI のメンバーが加わり、 $^{261}\text{Rf}, ^{262}\text{Db}$  の合成を行ない、信頼度の高い励起関数を得た。

## 光核反応

1934年、台北帝大にいた荒勝文策は300 keVのコッククロフト・ウォルトン型加速器 (C. W.) を作り、日本初の核変換、 ${}^7\text{Li} + \text{p} \rightarrow 2{}^4\text{He}$ , を行い、1939年にはこのC.W.を京大に持ち帰って500 keVとして ${}^7\text{Li} + \text{p} \rightarrow 6.17 \text{ MeV } \gamma$ を光子源とするU, Thの光核分裂やFe, Cuの光核反応を研究した。第二次世界大戦による中断の後、1952年(サンフランシスコ条約)から原子核研究再開のための加速器建造がスタートした中で、光核反応に使える電子シンクロトロン (ES) が、東大物理教室の宮本梧楼によってAG集束型170 MeVマシンとして1953年に、東北大物理教室木村一治と北垣敏夫によって40 MeVマシンとして1954年に建造された。前者は1962年東大核研750 MeV ES (1966年に1.3 GeV)に、後者は70 MeV ESを経て1966年学内共同利用の原子核理学研究施設(核理研)発足となり、1967年300 MeV電子線ライナック (linac) の完成となった。この他、小型(20-30 MeV) linac やベータトロンも各地に設置された。これらの加速器は、初期には専ら物理実験に供された。

化学サイドでは、1950年代末、日本原子力研究所(原研)の吉原賢二と東京教育大の池田長生が ${}^{60}\text{Co}$ からの $\gamma$ 線による ${}^{115}\text{In}(\gamma, \gamma') {}^{115\text{m}}\text{In}$ の断面積測定と ${}^{60}\text{Co}$ 線源の線量測定への応用を行った<sup>1)</sup>。1960年頃からは小型 linac とベータトロンによるRI製造(富士電機:吉田稔, 原研:田中吉左右・柴田長夫・中村永子, 大放研・近畿大:三木良太・近藤嘉秀・東俊雄:大放研ら)が行われた。吉原は関根勉, ハンガリー同位体研 A. Veresらと共に核理研 linac を用いて ${}^{99}\text{Tc}(\gamma, \gamma') {}^{99\text{m}}\text{Tc}$ の積分断面積測定やその応用を研究した(1988-89年)<sup>2)</sup>。

1964年アーカンソー大の黒田和夫と東大核研の坂本浩は、隕石中のXe同位体スペクトルを説明するために、核分裂微細構造領域を調べる一環として、核研ESのパラサイト実験で ${}^{238}\text{U}$ の光核分裂収率を測定した<sup>3)</sup>。東北大の岡好良と加藤豊明らは、1960年代始めは原研ベータトロンと linac を、1960年代後半は核理研 linac を用い、 ${}^7\text{Be}$ から ${}^{202}\text{Tl}$ にわたる広範なRI生成率を、巨大共鳴領域を中心に広いエネルギー範囲で測定し、光量子放射化分析の基礎データを蓄積した<sup>4)</sup>。また、岡は斎藤達弥, 野村紘一と、九大の松田英毅, 柴田誠一, 梅本春次はそれぞれ光核反応によるRI生成について研究した。1970年代に入ると、地球化学試料などの光量子放射化分析が、加藤, 鈴木信男, 榎本和義らによって内標準法, 次いで不足当量法を導入しながら本格的に発展した(以下、放射化分析の項を参照)。

光子反応は核医学やその他の目的のための無担体RI製造に特徴を持つ。核理研の八木益男と近藤健次郎は強収斂電子ビーム照射装置を世界に先駆けて開発し、1975年頃より、 ${}^{47}\text{Sc}$ ,  ${}^{69\text{m}}\text{Zn}$ ,  ${}^{39}\text{Cl}$ ,  ${}^{38}\text{S}$ などを<sup>5)</sup>、金沢大の坂本浩と代田悦章は ${}^{167}\text{Tm}$ を<sup>6)</sup>、東北大の山名元, 三頭聡明, 鈴木進は ${}^{225}\text{Ac}$ を、八木と天野良平は ${}^{18}\text{F}$ を製造・調製した<sup>7)</sup>。また、この装置を使って、京大の西朋太, 藤原一郎, 今西信嗣は、最大エネルギー( $E_0$ )40-60 MeVでの ${}^{209}\text{Bi}$ ,  ${}^{\text{nat}}\text{Pb}$ ,  ${}^{197}\text{Au}$ の光核分裂しきい値を調べた(1976年)。光核破碎反応については、1968-70年に岡, 野村, 斎藤が30-65 MeVで ${}^{22}\text{Na}$ ,  ${}^{24}\text{Na}$ などの生成を、1974年に加藤豊明とHui-Tuh-Tsaiが250 MeVで ${}^{133}\text{Cs}$ からのI, Te, Sb同位体の質量分布測定を行っていた<sup>8)</sup>が、1979-80年にかけて坂本グループ(浜島靖典, 寅本尚男, 堂庭雅夫, 岡田喜久雄, 西尾正善)は $E_0 = 100 \text{ MeV}$ と $200 \text{ MeV}$ で ${}^{133}\text{Cs}$ ,  ${}^{139}\text{La}$ ,  ${}^{85,87}\text{Rb}$ ,  ${}^{\text{nat}}\text{Sr}$ ,  ${}^{89}\text{Y}$ からの $\Delta A \leq 15-20$ での質量・荷電分布を測定し、Rudstamのハドロンでの経験式を用いた光子反応での特徴を調べ始めた<sup>9)</sup>。

光子と原子核との相互作用は共鳴的である。keV - MeVの光子は軽・中重核の特定の準位への共鳴励起吸収が、20 MeV近傍では原子核の巨大双極子共鳴、30-140 MeVの光子は核内準重陽子の共鳴吸収、140 MeV( $\pi$ 中間子の静止質量)を超えると、核子の3,3共鳴による $\Delta$ 粒子(励起粒子)



生成が起こる。 $\Delta$ 粒子は瞬時 ( $10^{-24}$  s) に核子と  $\pi^{\pm,0}$  粒子に変わり、 $\pi^0$  は直ちに ( $2.3 \times 10^{-16}$  s) 2つの光子となるが、 $\pi^{\pm}$  は  $2.8 \times 10^{-8}$  s の寿命をもつので相方の核子ともども、またはどちらか一方は核内カスケードを起こす。 $\Delta$ 生成位置が核表面であるか (surface production)、核深部であるか (volume production) で反応過程が変わる可能性がある。 $\pi^{\pm}$  が核内吸収されれば 140 MeV の励起エネルギーが付加される。電子線加速器を用いる光核反応の放射化学的研究は、欧米では 1960-70 年代に既に数 100 MeV- 数 GeV 領域で多くの研究者によって行われていたが、連続スペクトルの制動放射線を使うために解析が複雑であり、核破碎チャンネルが圧倒的で別の反応チャンネル、すなわち  $\pi^{\pm}$  放出や、フラグメンテーションへの分岐は検出が難しく、核破碎や核分裂ですら、特に化学分離を併用しない測定では、研究者間での結果の違いが目立っていた。そして、1970 年代後半では、高エネルギー・高強度の電子線加速器の発展に合わせて標識光子 (加速電子と制動放射光子および光子イベントの同時計数) 装置, tagging system, と高分解能粒子検出器が発達し、連続スペクトルの光子を使う (化学) 実験は敬遠されるようになってきた。しかし、放出粒子を見る物理実験では、反応タイプの区別はできず、また粒子検出器の検出エネルギーのしきい値が高い ( $\pi^{\pm}$  で 40 MeV 程度) という制約がある。生成残留核を見る化学の方法ではエネルギーと角度の情報は積分的で終状態準位の解析が難しいという問題があるものの、細かい  $E_0$  ステップでの反応収率測定と生成核の放射化学的識別を行えば、物理測定で得られない情報を期待できる。光核反応では運動量の持ち込みが小さく、強い相互作用のハドロン反応とは反応開始の初期過程が全く異なる。この違いが最終チャンネルに反映するかどうか興味深いと考えられる。

このようなことから、坂本グループは、東大核研のち京大原子炉の柴田誠一、京大原研のち追手門学院大の藤原一郎、名古屋大のち四日市大の古川路明と共同で、核理研 linac の  $E_0 = 30-250$  MeV と核研 ES の  $E_0 = 250-1100$  MeV の  $\Delta E_0 = 30-100$  MeV ステップで、まず  $^{133}\text{Cs}$ ,  $^{51}\text{V}$  を照射し、 $^{133}\text{Cs}$  からは Ba, Cs, Xe, I, Te, Sb, Sn を相互分離し、それぞれの壊変からの  $\gamma$  線を徹底的に追跡して核種同定を行った (浜島靖典, 外大, 吉田学他)。ここでは、核破碎の他、初めて  $^{133}\text{Cs}$  ( $\gamma, \pi^+$ )  $^{133\text{m,g}}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Cs}$  ( $\gamma, \pi^- \text{xn}$ )  $^{133-\text{x}}\text{Ba}$ ,  $x = 0-7^{(10)}$ ,  $^{51}\text{V}$  ( $\gamma, \pi^+$ )  $^{51}\text{Ti}$ ,  $^{51}\text{V}$  ( $\gamma, \pi^- \text{xn}$ )  $^{51-\text{x}}\text{Cr}$ ,  $x = 0-3$ , の収率が得られた<sup>11)</sup>。このタイプの  $\pi^{\pm}$  放出反応は、1965-78 年にかけて何故か  $^{51}\text{V}$  についてのみ繰り返し 4 報告があり、誤りも互いの不一致も残されていた。この実験で問題となっていたのは、核破碎で発生する中性子と陽子がターゲット物質中で二次的に (n,p) および (p, n) や (p, xn) 反応を起こして、それぞれ ( $\gamma, \pi^+$ ) および ( $\gamma, \pi^-$ ), ( $\gamma, \pi^- \text{xn}$ ) 反応と同じ核種を生成することであった。この補正には多くの研究者が off-beam での観測やターゲット厚を多様に変化させるなどの工夫を重ねた。坂本グループも同じ検討を試みたがうまく行かず、最終的に、 $E_0$  を細かく変化させた収率曲線の  $\pi$  放出反応のしきい値より低いところに準二次反応の構造を見つけ、これをもとに全エネルギー領域での二次反応補正を行う方法を確立した。二次反応について補正された反応収率は、制動放射線スペクトルを Schiff 型と仮定し、K. Tesch (1971) の方法で解く J.T. Routti – J.V. Sandberg の LOUHI-82 コード (1980) で unfolding を行って、単色光子エネルギー当たりの断面積に変換して励起関数を求めることができた。そして、T. A. Gabriel – R. G. Alsmiller, Jr. (1969) による、核内カスケード・蒸発モデルを使うモンテカルロ計算、PICA コード (photon-induced cascade analysis code) による計算を試みたところ、実験値を大まかながら再現することがわかった。

これに勢いを得た坂本グループは 1984 年頃から 96 年にかけて  $^{63,65}\text{Cu} \rightarrow ^{63,65-\text{x}}\text{Zn}$ ,  $^{89}\text{Y} \rightarrow ^{89-\text{x}}\text{Zr}$ ,  $^{127}\text{I} \rightarrow ^{127-\text{x}}\text{Xe}$ ,  $^{175}\text{Lu} \rightarrow ^{175-\text{x}}\text{Hf}$ ,  $^{197}\text{Au} \rightarrow ^{197}\text{Pt}$ ,  $^{197-\text{x}}\text{Hg}$ ,  $^{209}\text{Bi} \rightarrow ^{209-\text{x}}\text{Po}$  へと測定を拡大し、次いで  $^7\text{Li}$ ,  $^{11}\text{B}$ ,  $^{\text{nat}}\text{Fe}$ ,  $^{59}\text{Co}$ ,  $^{75}\text{As}$ ,  $^{87}\text{Rb}$ ,  $^{88}\text{Sr}$ ,  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{107,109}\text{Ag}$ ,  $^{113,115}\text{In}$ ,  $^{138}\text{Ba}$ ,  $^{139}\text{La}$ ,  $^{181}\text{Ta}$  など  $^7\text{Li} - ^{209}\text{Bi}$  にわ

たる標的核の  $\pi^{\pm}$  反応<sup>12,13)</sup> および核破碎<sup>14)</sup> も合わせた実験を展開した (窪田康浩, 吉田学, 深沢拓司, 梶瀬彰, 小林一人, 長田和彦, 今坂新一, S.R. Sarkar, 大浦泰嗣, 宮本ユタカ, 羽場宏光, 松村宏他)。その結果,  $\pi^{\pm}$  および  $\pi^{\pm}xn$  放出反応の標的核質量, 特に核内の中性子 (N)/陽子 (Z) 比, 光子エネルギー依存性, 放出中性子数  $x$  への依存性などのきれいな系統性が明らかとなり, PICA 計算の基となる核モデルの見直し (核内中性子と陽子の比が体積全体にわたって均一ではなく, 核表面で中性子密度が高い) の指摘,  $\pi^{\pm}xn$  放出反応 ( $x = 0-10$ ) は  $(N/Z)_{\text{target}} \geq 1.3-1.4$  を境に核媒質効果, nuclear medium effect, が顕著になることの発見がなされた。光核破碎は, ハドロン誘起データの多い Cu の場合, 柴田誠一を中心に Rudstam 経験式のパラメータを基にして光子破碎との比較を行い, 両者の反応メカニズムの差異を考察できた (1986)<sup>15)</sup>。ハドロン反応では励起エネルギーは 2 GeV 以上で limit となるが, 光子反応では 600 MeV 以上となり, かつ後者では飽和エネルギーがかなり低いことが示された。以後, 他の標的核でも同様の比較を続けた結果, 初期過程の違いが終状態 (生成核) の荷電分布などへ強く反映することがわかった。Sarkar らは, Rudstam の式の光子核破碎への適用性を新たに検討し, より再現性の良い表式を得た。また PICA コードの核破碎再現性の問題点を示した (1990)<sup>14)</sup>。

重核 (<sup>197</sup>Au など) での核破碎の収率は, 標的核より離れると指数関数的に減少してやがて核分裂生成 (後述) と連続して安定核から遠い生成核が特別に多様になる一方で, 独立収率が測れる核種が少なくなる。窪田康浩は 1984 年頃壊変チェーンの流れ込み補正を行うために Bateman の式を Rudstam の式に組み込んだ一般式を考案し, これを非線形最小二乗フィットさせる計算プログラムを作り, 以後の質量分布の導出に用いた<sup>10)</sup>。

1980 年代後半から柴田誠一の主導で, 沖崎昌平, 土田早苗が <sup>16</sup>O, <sup>27</sup>Al, <sup>35,37</sup>Cl, <sup>89</sup>Y, <sup>107,109</sup>Ag, <sup>197</sup>Au から  $E_0 = 250-1050$  MeV の光子で作られる <sup>7,10</sup>Be の収率測定を行い, 陽子反応との比較がなされ, また核破碎の Q 値より低いエネルギーでの生成がみられフラグメンテーションのメカニズムを示唆した<sup>16)</sup>。質量数  $\leq 35$  の軽核の生成は, 高エネルギー陽子反応では 1950 年代から, 光核反応では 1960 年代後半から知られていたが, 軽核が励起核から直接放出される (フラグメンテーション) か核破碎残留核なのかの区別もなく, また中重核では核分裂説も出ていた。柴田を中心に行った 12 GeV 陽子照射の Al-Au にわたる 8 標的からの <sup>10</sup>Be と <sup>26</sup>Al の加速器質量分析 (AMS) 測定の成功<sup>17)</sup> をヒントに, 松村宏は後に鷲山幸信の協力を得ながら 1990 年代中頃より, この軽核光生成を系統的に調べた<sup>18)</sup>。標的は上記を含む軽 3 元素を  $E_0 = 250-1200$  MeV で照射して化学分離により <sup>7,10</sup>Be, <sup>22,24</sup>Na, <sup>28</sup>Mg と核破碎あるいは核分裂生成に近い <sup>39</sup>Cl, <sup>44m,44g,46,47,48</sup>Sc, <sup>59</sup>Fe, <sup>56,57,58,60</sup>Co の収率測定を行った。<sup>10</sup>Be は東大 MALT の AMS, <sup>22</sup>Na は金沢大尾小屋の低レベル Ge 検出器によった。この結果, 重・中重核からの生成も精度よく測定でき, これらの反応も最大励起が 400 MeV で (3, 3) 共鳴が主役であることを示し, また前に見つけた核破碎の Q 値以下での生成を確認するとともに標的核質量に対する収率分布は明確な 2 成分となり核破碎あるいは核分裂生成成分とフラグメンテーション生成成分を弁別できることを発見した。そしてフラグメンテーション過程は標的核の (中性子/陽子) 比が影響し, この比と (<sup>10</sup>Be/<sup>7</sup>Be) 生成比, (<sup>24</sup>Na/<sup>22</sup>Na) 生成比は良い直線関係をもつことを見出した。励起核内で prefragment の作られやすさはその核内の (N/Z) 比を強く反映するということである。また陽子反応との比較から, 両者には初期過程の違いの効果は見えないことがわかった。ただ, この観点からは陽子反応のデータが非常に不足していることもわかった。松村はさらに 400 MeV 近傍での中性子および  $\alpha$  粒子誘導反応へ拡張し, これらの業績により 2005 年度日本放射化学会奨励賞を受賞した。

光核分裂については, このグループ (深沢他) が 1985-86 年頃, Au 箔とポリエチレン箔を交

互に12組を重ねて  $E_0 = 600-900$  MeV の4点で照射し、また、ポリエチレンのみをまとめて  $\gamma$ 線測定を行って初めて質量収率分布を求めた。1992-96年に、低エネルギー粒子による核分裂を長年研究していた阪大の馬場宏は、14 MeV 付近の励起エネルギーを境にして起こる核分裂事象の急激な遷移を探る一環として核理研 linac で  $E_0 = 15, 30, 60$  MeV で  $^{238}\text{U}$  の核分裂を放射化学的手法で詳しく調べた。質量収率分布も荷電分布も15 MeV は30, 60 MeV と異なり巨大共鳴励起との(無)関係を論じた(山口貴行, 矢野大作他)<sup>19)</sup>。

坂本グループは1990年代後半になって、藤原一郎の指導のもと、羽場宏光、五十嵐学、笠岡誠が  $^{197}\text{Au}$ <sup>20)</sup> と  $^{209}\text{Bi}$ <sup>21)</sup> の光核分裂収率を  $E_0 = 300-1100$  MeV で50-100 MeV ごとにマイラ箔キャッチャー法で測定し、 $^{197}\text{Au}$  では、質量数  $A = 42-131$  をもつ58核種の、 $^{209}\text{Bi}$  では  $A = 56-135$  をもつ63核種のデータから  $E_0$  を関数とする収率曲線から(3,3)共鳴が主な核励起であるが、準重陽子共鳴も寄与することを示し、また質量収率、荷電分布の特徴を抽出し、両者の比較や PICA の改良版 PICA3/GEM コード(後述)との比較から詳細を議論できた<sup>22)</sup>。一方、羽場は厚いターゲット-厚いキャッチャー法により  $^{27}\text{Al}$ ,  $^{51}\text{V}$ ,  $^{63,65}\text{Cu}$ ,  $^{93}\text{Nb}$ ,  $^{107,109}\text{Ag}$ ,  $^{181}\text{Ta}$ ,  $^{197}\text{Au}$  について137核種の光核破碎と光核分裂生成核の前方・後方への反跳を  $E_0 = 60-1100$  MeV で測定し、平均飛程の光子エネルギー、放出粒子数、標的質量との関係を明らかにするとともに、L. Winsberg (1978) による2段階速度ベクトル法による動力的解析を行った。この際、陽子反応との対比を行いながら核破碎過程解析を行い、標的質量  $A_i \geq 100$  近傍での構造変化 (medium effect) を見出した<sup>23)</sup>。 $^{197}\text{Au}$  では、核破碎と核分裂の動力的な明確な違いを明らかにするとともに、PICA コードおよび PICA3/GEM コードによる計算とも比較しながら計算の再現力を検証した<sup>24)</sup>。この一連の研究で羽場は2001年度の日本放射化学会奨励賞を受賞した。坂本グループの実験研究は、1999年核研ESの shut-down まで続けられ、光核反応の核化学的研究の全貌は100 MeV 以下の低エネルギーと GeV 以上の高エネルギー部を除けば、ほぼ明らかにされた<sup>25)</sup>。理論面でも、1990年代後半から PICA コードの改良が次々と始まり C.Y. Fu の PICA-95 (1997)、T. Sato らの媒質効果も導入した PICA98/EVAP (1999)、PICA98/GEM (2000) が出され、上記のように坂本グループによっても検証されてきた。さらに最近(2005)、ロスアラモス国立研究所 S.G. Mashnik らは、30 MeV から1.5 GeV の光核反応を解く計算コード CEM03 と LAQGSM03 を開発し、坂本グループの実験結果をも照合に使っているが、いくらか問題が残っている<sup>26)</sup>。

## 文 献

- 1) 池田長生, 吉原賢二, *Radioisotopes*, **5**, 11 (1956); *ibid.*, **7**, 17 (1958); **8**, 17 (1959).
- 2) T. Sekine, K. Yoshihawa, Zs. Németh, L. Lakosi, A. Vértes, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **130**, 269 (1989); *Appl. Radiat. Isot.*, **42**, 149 (1991).
- 3) K. Sakamoto, P. K. Kuroda, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **28**, 679 (1966).
- 4) T. Kato, A. F. Voigt, *J. Radioanal. Chem.*, **4**, 325 (1970); T. Kato, Y. Oka, *Talanta*, **19**, 515 (1972); K. Masumoto, T. Kato, N. Suzuki, *Nucl. Instr. Meth.*, **157**, 567 (1978).
- 5) M. Yagi, K. Kondo, *Intern. J. Appl. Radiat. Isot.*, **28**, 463 (1977); *ibid.*, **29**, 757 (1978); M. Yagi, K. Kondo, A. Yamadera, *ibid.*, **30**, 123 (1979); M. Yagi, K. Kondo, **30**, 569 (1979).
- 6) K. Sakamoto, Y. Shirota, A. Ando, K. Hisada, *Jpn. J. Nucl. Medicine*, **12**, 128 (1975); *ibid.*, **12**, 143 (1975).
- 7) M. Yagi, R. Amano, *Intern. J. Appl. Radiat. Isot.*, **31**, 559 (1980); *ibid.*, **32**, 225 (1981).
- 8) K. Kato, H.-T. Tsai, Y. Oka, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **36**, 1 (1974).

- 9) K. Sakamoto, H. Toramoto, Y. Hamajima, K. Okada, M. Dohniwa, *Radiochim. Acta*, **37**, 69 (1984); K. Sakamoto, M. Nishio, M. Dohniwa, K. Okada, Y. Hamajima, *ibid.*, **37**, 83 (1984).
- 10) K. Sakamoto, Y. Hamajima, M. Soto, Y. Kubota, M. Yoshida, A. Kunugise, M. Masatani, S. Shibata, M. Imamura, M. Furukawa, I. Fujiwara, *Phys. Rev. C*, **42**, 1545 (1990).
- 11) K. Sakamoto, M. Yoshida, Y. Kubota, T. Fukasawa, A. Kunugise, Y. Hamajima, S. Shibata, I. Fujiwara, *Nucl. Phys.*, **A501**, 693 (1989).
- 12) Y. Oura, A. Yazawa, M. Yoshida, S. R. Sarkar, K. Sakamoto, S. Shibata, I. Fujiwara, M. Furukawa, *Radiochim. Acta*, **68**, 27 (1995).
- 13) K. Sakamoto, S. R. Sarkar, Y. Oura, H. Haba, H. Matsumura, Y. Miyamoto, S. Shibata, M. Furukawa, I. Fujiwara, *Phys. Rev. C*, **59**, 1497 (1999).
- 14) S. R. Sarkar, M. Soto, Y. Kubota, M. Yoshida, T. Fukasawa, K. Matsumoto, K. Kawaguchi, K. Sakamoto, S. Shibata, M. Furukawa, I. Fujiwara, *Radiochim. Acta*, **55**, 113 (1991); *ibid.*, **55**, 139 (1991); *ibid.*, **62**, 7 (1993).
- 15) S. Shibata, M. Imamura, T. Miyachi, M. Mutou, K. Sakamoto, Y. Hamajima, M. Soto, Y. Kubota, M. Yoshida, I. Fujiwara, *Phys. Rev. C*, **35**, 254 (1987).
- 16) S. Shibata, M. Imamura, K. Sakamoto, S. Okizaki, S. Shibutani, H. Matsumura, M. Furukawa, I. Fujiwara, H. Nagai, K. Kobayashi, *Radiochim. Acta*, **80**, 181 (1998).
- 17) S. Shibata, M. Imamura, H. Nagai, K. Kobayashi, K. Sakamoto, M. Furukawa, I. Fujiwara, *Phys. Rev. C*, **48**, 2617 (1993).
- 18) H. Matsumura, K. Washiyama, H. Haba, Y. Miyamoto, Y. Oura, K. Sakamoto, S. Shibata, M. Furukawa, I. Fujiwara, H. Nagai, T. Kobayashi, K. Kobayashi, *Radiochim. Acta*, **88**, 313 (2000).
- 19) N. Takahashi, A. Yokoyama, H. Baba, T. Yamaguchi, D. Yano, T. Saito, N. Nitani, Y. Hamajima, T. Ohtsuki, K. Masumoto, *Radiochim. Acta*, **80**, 171 (1998).
- 20) H. Haba, M. Igarashi, K. Washiyama, H. Matsumura, M. Yamashita, K. Sakamoto, Y. Oura, S. Shibata, M. Furukawa, I. Fujiwara, *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, **1**, 53 (2000).
- 21) H. Haba, K. Kasaoka, M. Igarashi, K. Washiyama, H. Matsumura, Y. Oura, S. Shibata, K. Sakamoto, M. Furukawa, I. Fujiwara, *Radiochim. Acta*, **90**, 371 (2002).
- 22) H. Haba, H. Matsumura, Y. Miyamoto, K. Sakamoto, Y. Oura, S. Shibata, M. Furukawa, I. Fujiwara, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **239**, 133 (1999).
- 23) H. Haba, H. Matsumura, K. Sakamoto, Y. Oura, S. Shibata, M. Furukawa, I. Fujiwara, *Radiochim. Acta*, **88**, 375 (2000).
- 24) H. Haba, M. Igarashi, K. Washiyama, H. Matsumura, M. Yamashita, K. Sakamoto, Y. Oura, S. Shibata, M. Furukawa, I. Fujiwara, *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, **1**, 69 (2000).
- 25) K. Sakamoto, *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, **4**, A9 (2003).
- 26) S. G. Mashnik, M. I. Baznat, K. K. Gudima, A. J. Sierk, R. E. Prael, *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, **6**, A1 (2005).

### 2.1.3 核分光・核構造

(関根 俊明)

半減期, エネルギー準位など原子核に関するデータは, 放射化学的研究の精度を高めるだけで

はなく、核構造の理解を深めるために必要である。核構造・核分光の分野は量子力学の実験場として主に物理学者によって開拓されたが、化学的方法によって原子核を研究した先駆者として、日本では音在清輝(阪大)と西朋太(京大)が挙げられる。後に述べるように、音在はダイニュートロン( ${}^2_0n$ )という最小の原子核の検出を試み、西は核模型に基づいて核分裂における核異性体生成比を解析すると共に、核分裂生成核種の分光学的研究を行った。

放射化学討論会の50年の歴史の中で、核構造・核分光に関する研究発表は凡そ70件に止まり、第7回(1963年)までは全く発表がない。これは、核分光実験には、核種の生成と放射線検出の両方の手段を備える必要があるからである。また、同時計数測定回路など高価な測定系も必要である。天然の核種を対象とする場合もあるが、今度は対象核種に限られる。1960年代になって、原研の原子炉JRR-1や東大核研のサイクロトロンの利用が可能になり、 $\gamma$ 線分光にNaIシンチレーション検出器と多重波高分析器が普及して、毎回1-2件発表された。さらに、京大原子炉や理研サイクロトロンが加わって、核種生成の手段が広がり発表件数も次第に増えて行った。1970年代には半導体検出器によって $\alpha$ ・ $\beta$ ・ $\gamma$ 線分光の分解能が飛躍的に向上し、1980年代には重イオン加速器の建設により核種生成の範囲が安定核近傍から不安定核領域へと大きく広がった。

秒のオーダーの半減期を持つ核種は、通常の化学分離操作ではターゲットから分離して測定することは不可能である。また、化学的手段では核種の質量数の決定が困難であるという、核分光では致命的な問題があった。これを解決するために、ターゲットに生成した核種を取り出してイオン化し、磁場で質量分離するオンライン同位体分離器(ISOL)が導入された。東大核研サイクロトロンに続いて、京大原子炉、東北大サイクロトロンに建設された。これらのISOLの建設には物理学者が中心になったが、原研東海タンデム加速器、原研高崎サイクロトロンのISOLの建設・利用においては化学者が中心になった。

最初の核構造・核分光学的研究発表は第8回の佐藤純(東京大)らによる「 ${}^{188}\text{Pt}$ ,  ${}^{188}\text{Ir}$ のDECAY」で、 $\text{Re}(\alpha, 3n)$ と $\text{Ir}(p, 4n)$   ${}^{188}\text{Pt}(\text{EC})$ 反応による ${}^{188}\text{Ir}$ の崩壊で ${}^{188}\text{Os}$ の回転バンドと $\gamma$ 振動バンドを同定した。注目すべきは、 $\gamma$ 線分光にはNaI検出器が用いられており、 $\gamma$ 遷移のエネルギーは内部転換電子分光によって決定されたことである。このための無担体電着線源が放射化学的に作製された。これに続く初期の核分光学的実験の報告は主に核分裂生成核種が対象であった。核分裂生成核種の高精度の崩壊データは、核分裂の反応機構研究のみならず、原子力発電における燃料の燃焼度の決定に重要であった。燃焼度研究に携わっていた梅沢弘一・鈴木敏夫(原研)は ${}^{134}\text{I}$ や ${}^{95}\text{Zr}$ の崩壊を明らかにし、前述の西朋太とそのグループ(藤原一郎, 中原弘道, 今西信嗣)は ${}^{77m}\text{Ge}$ ,  ${}^{128}\text{Sn}$ の崩壊図を報告している。また、京大原子炉のISOLを用いて、 ${}^{90m}\text{g}\text{Rb}$ の崩壊を研究した。

この他、 $\gamma$ 線分光と共に高分解能内部転換電子分光が比較的寿命の長い核種について行われた。福島昭三・三藤安佐枝(阪大)による ${}^{117m}\text{g}\text{In}$ の崩壊図の矛盾の解明や、今村峯雄(東京大)らによる ${}^{72}\text{Ge}$ ,  ${}^{118}\text{Sn}$ のE0遷移のK/L/M比の決定実験が挙げられる。

核データとして高精度を求めた研究に対して、核構造を系統的に明らかにする研究が理研サイクロトロンや原研タンデム加速器を用いて超ウラン元素について開始された。初川雄一, 間柄正明(都立大・原研), 中原弘道(都立大)らはウランや超ウラン元素ターゲットに陽子や重イオンを照射し、ターゲットからの化学分離や反跳核のHeジェット輸送を行って、 ${}^{243-249}\text{Es}$ や ${}^{245}\text{Cf}$ の $\alpha/\text{EC}$ 崩壊後の娘核種のエネルギー準位構造を明らかにした。

ISOLに関する最初の研究発表は、第16回の久米三四郎(阪大)による核研ISOLイオン源での亜鉛蒸発速度に関するものであった。この研究は、イオン源がISOL技術の核心であるという

点で重要である。世界的には、ヨーロッパの CERN, GSI などでは ISOL を利用する短寿命核研究が進んでおり、日本はそれに追いつこうとしていた。しかし、核研 ISOL ではイオン源に続く質量分離系に問題があったようで、残念ながら目立った成果は挙げられなかった。これに続く京大 ISOL ではヘリウムジェット輸送型熱イオン源で核分裂生成物の分離に成功し、東北大 ISOL ではイオンガイド型で軽い核や陽子誘起核分裂生成物を分離することに成功した。原研東海 ISOL では、市川進一、関根俊明 (原研) は藤原一郎 (京大) らと共に重イオンビーム用熱イオン源を開発し、前述の  $^{188}\text{Os}$  に類似した核構造領域の希土類元素核種の研究を開始した。なお、この研究では、希土類の各元素や、希土類元素に隣り合う元素 Ba の酸化物イオンが高温で安定性を異にするという化学的性質の違いが核種の同定において有効に利用された。

原研東海 ISOL では、重イオン核融合反応で新核種  $^{121}\text{La}$  の同定に続いて、河出清 (名大) グループの協力により、一連の中性子欠損 La 同位体のエネルギー準位・寿命、 $\beta$  線最大エネルギーなど詳細なデータを報告した。さらに、ヘリウムジェット輸送型熱イオン源により、ウランや超ウラン元素をターゲットに利用することを可能にし、 $^{238}\text{U}$  の陽子誘起核分裂による新核種  $^{159}\text{Pm}$ ,  $^{162}\text{Sm}$ ,  $^{165}\text{Gd}$ ,  $^{166}\text{Gd}$ ,  $^{166}\text{Tb}$  に加えて、重イオン核融合反応で生成した  $^{233,236}\text{Am}$  の同定等、短寿命の核分裂生成核種・超ウラン元素核種の詳細な崩壊特性研究を行った。また、原研高崎 ISOL では、 $^{36}\text{Ar}$  ビームと  $\gamma\gamma$  角度相関装置を用いて、原研と名大のグループは新核種  $^{125,127}\text{Pr}$  の同定、 $^{120\sim 130}\text{Ba}$  の新エネルギー準位の同定、等の研究成果を得た。

$^2_0\text{n}$  は 2 個の中性子がスピン反平行で結合した状態で、その存在の有無は核力に関する基本的問題であり、米国の B.L. Cohen らは原子炉の中性子場内で  $^2_0\text{n}$  を探索した。しかし、音在は中性子が 2 個同時に放出される反応系で探索し、馬場宏 (原研・阪大) らとの協力で  $^2_0\text{n}$  の生成確率の上限値を第 26 回に報告した。同様にその存在が原子核構造の基礎的な問題となっている  $^{229\text{m}}\text{Th}$  の研究が、三頭聰明 (東北大) を中心に阪大、京大、金沢大のグループによって進められている。最近、その励起エネルギーが 3.5eV という稀有な状態からの  $\alpha$  壊変を初めて確認し、3.5eV という紫外線領域の  $\gamma$  線の観測を目指している。

#### 2.1.4 RI 製造

(藤原 一郎)

第 2 次大戦前に日本には 5 台のサイクロトロンが存在したそうであるが、それでどのように RI が製造されていたかは分からない。終戦の翌日連合軍に接収され、東京湾か、大阪湾に廃棄されてしまった (11 月 24 日に)。その後原子核の研究は日本には禁止されていた。1954 年にビキニでの福竜丸の被ばくの事件があり降下物の分析で日本の核化学のレベルの高さを世界に示した。解禁されるのは 1955 年頃である。東大核研に FF サイクロトロンが完成し、共同利用が開始されるのは 1958 年からである。本格的に核化学の研究が開始されるのはそれからであったと思う。核化学のように物理か化学かとか其の存在意義とかが内部で絶えず議論された学問分野は他に余り存在しないのではないだろうか。一般に原子核の研究は物理であるという意識が強かったようである。1957 年の第一回放射化学討論会には輸入 RI によるもの以外にサイクロトロンによる製造での研究が見られる。一方原子力研究所では 1957 年に JRR-1 が臨界になっていて RI 製造が始まっていた。1958 年の第 2 回放射化学討論会には  $^{58}\text{Ni} + p$  反応での  $(p, pn)$ ,  $(p, 2p)$ ,  $(p, p\alpha)$  反応の断面積の励起関数が田中重男 (東大核研) らによって報告されている。JRR-1 の中性子による RI 製造では放射化分析などの例が幾つか出ている。1959 年の第 3 回には阪大・音在研 (音在清輝, 福島昭三, 久米三四郎, 岡村日出男, 坂本浩, 吉澤康和、林智) の  $(\text{Ag} + \alpha)$  反

応の励起関数が見られ、これは本格的な核反応の励起関数の研究の先駆けになった。1960年第4回には田中、古川路明(東大核研)、八木益男(東北大理)、天野恕(原研)らによる、 $^{139}\text{La}$ の $\alpha$ 反応の研究が見られる。原研では石森富太郎らによって中性子照射した $^{132}\text{Th}$ からの $^{133}\text{U}$ の製造がおこなわれている。核燃料の研究であるが重いRI製造の初期の例と言える。原子核の崩壊図式の研究は核物理、核化学がともに行なっていた。この頃 $\beta$ スペクトルや内部転換電子の精密測定に興味集中していた。これには無担体の線源を作成する必要があつて、荷電粒子照射して化学分離する製造がよく行なわれた。阪大-京大グループの藤原一郎、岩田志郎、重松恒信、田伏正之、樽本庸彦、吉沢康和、岡村日出男、坂本浩、東京大理の斎藤信房、横山祐之、荘司準、馬淵久夫などの研究はそれに当たる。核研ではFMサイクロトロンで50MeVまでの陽子が1958年から共同利用で使えるようになっており、田中ら日本のグループとN. T. Porileにより行われたp反応の励起関数の研究が第5回には見られる。第6回では京大工研の西朋太、岩田志郎、藤原一郎、重松恒信(京大化研)らによって $^{241}\text{Am}$ のような長寿命の超ウラン元素の原子炉照射が行われ、研究の可能性が広がってきた。さらに、京大の西グループに加え、原研の夏目晴夫、天野恕、梅沢弘一、竹腰英子により、相互分離が困難であった希土類元素の分離がイオン交換で容易になり新核種の発見や崩壊図式の研究が多数行なわれた。東京大グループを中心とし、古川路明、斎藤信房、馬淵久夫、富田功、佐藤純、荘司準、岡田勲、物井澄子(原研)により、加速器の低エネルギーの陽子、 $\alpha$ 粒子、 $^3\text{He}$ で種々の原子核を標的として核反応を行なわせ、n, p,  $\alpha$ などの粒子を放出して出来る生成物の生成断面積を放射化学的に測定して励起関数を複合核理論と比較する研究も多数行なわれている。第9回には原研の石森富太郎、上野馨、木村幹らによる $^{238}\text{U}$ の自発核分裂の核分裂収率についての詳しい研究が見られ、宇宙線の $\mu$ 中間子による岩石中の $^{26}\text{Al}$ の生成の研究の報告が田中茂男、坂本浩らによってされている。宇宙線の $\mu$ 中間子の反応の核化学的研究もこの頃からわが国で行なわれるようになった。第10回には重陽子の核反応の励起関数に関する研究が出されているが、重陽子内部の陽子と中性子の結合エネルギーが弱いためにストリッピングと呼ばれる反応が起こって一般的な複合核反応での励起関数の計算は出来なかったが、音清輝らのグループはPeasleeの理論の改良を行なって重陽子反応の全般の低エネルギー核反応の予測が出来るようにした。その後、阪大理、京大工研で原子核の広い範囲でこの種の研究が行なわれることになった。

原研の夏目晴夫、天野恕、竹腰英子、市川富士夫、梅沢弘一、五島博、馬場宏、鈴木敏夫、馬場澄子、佐藤忠らは、東大核研のFMサイクロトロンでの55MeV陽子での $^{238}\text{U}$ での核分裂の詳細な研究を行っている。

### 2.1.5 放射能測定

(馬場 宏)

放射化学研究の歴史は、放射能測定法の開発と不可分の関係にあった。放射化学討論会の発足当初においては、1957年の第1回(山崎文男(科研)による放射線測定器についての総説や第3回の菅浩一(東大核研)の各種シンチレータに関する特別講演、道家忠義、木越邦彦、岡田実など大御所による $\alpha, \beta, \gamma$ 線測定に関するパネル討論等、参加者に対する啓蒙的な色彩の強いプログラムが組まれていた。

当時は、トータルの放射能強度を測る場合は別として、放射性混合試料について、核種ごとに弁別してその強度を決定することは、まず不可能であり、核種の同定ですら、化学分離操作の併用なしでは困難であった。僅かに、第1回(1957年)における、原研の木村健二郎・柴田による「ベ-

タ線の吸収曲線について」と池田長生 (東京教大)・岡野 (科研)・堀江 (東京大) による「物理的方法による核種の決定の一つの試み」, 第2回における原研の渡辺鑠・馬場の「 $\gamma$ -spectrometryの際のベータ線の影響について」, 第3回における原研の村上悠紀雄・鈴木による「ウラン鉱物のガンマスペクトロメトリー」, さらに1963年に原総研の谷彰・松島による「 $\gamma$ スペクトルの解析による非破壊迅速放射化分析法」といった発表が認められるに過ぎない。

初期におけるその他の測定関係の仕事としては, 第1回の斎藤一夫・菅 (東大核研) による「鉛塩溶液のチェレンコフ放射を利用する荷電粒子検出用新装置」, 第2回の下島光 (東工大)・谷 (NAIG) と伊沢正実・坪田・河村他 (放医研) による液体シンチレーション・カウンタを利用した軟ベータ線の測定の発表, さらには1961年に中村朝郎 (味の素中研)・野崎 (電通研)・伊藤他 (東京大) による「気体計数方式による $^3\text{H}$ の測定」といった発表が見受けられる。

1964年の討論会は, 際立って測定関係の発表が多くなされた学会になった。小林義威 (原研)・道家・高橋 (立大) の低レベル $\alpha$ スペクトロメータによるSm—147,146の測定と黒沢竜平 (早大理工研) の同位体希釈法を併用したアルファ線スペクトロメトリーによる $^{230}\text{Th}$ の定量」の二つの $\alpha$ 線測定, 東芝中研の藤井勲・武藤による捕獲 $\gamma$ 線によるBの定量法の検討と東京大の佐藤純・横山・山崎によるReを使った摂動角度相関試験の測定という先駆的な仕事の他に, 東大物性研の堀江絹子・中川・本田による固体試料の微弱放射能測定, 高木仁三郎 (NAIGの) と大井 (東芝中研) による自発核分裂計数による $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比の測定, 梅本春次・池田 (岡山温泉研) による $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比と $^{230}\text{Th}$ の測定という3報の低レベル放射能測定の発表がなされた。

また,  $\gamma$ 線スペクトルの解析法が論じられるようになったのもこの討論会からであった。谷彰・松島 (NAIG) は放射化分析への応用のいう観点での $\gamma$ 線スペクトルの計算機による解析法を論じ, 日下讓 (甲南大)・辻・藤井他 (東芝中研) は14MeV中性子放射化分析への $\gamma$ 線スペクトロメトリーの適用を試みている。

1968年から $\gamma$ 線スペクトロメトリーが本格的に活躍するようになる。すなわち, 石川寛昭 (原研) と三輪・渡辺 (東京理大) による $\gamma$ 線スペクトロメトリーによる定量法の研究とその適用例としての核反応断面積の決定法について二つの報告がある。さらに, 本邦初のGe (Li) 検出器を用いた松島安義・大東・下島 (NAIG) による核分裂生成物のガンマ線測定と戸村健児・宮地 (立大原研) によるXe-158のガンマ線スペクトル測定が報告された。また, この年には $4\pi\beta$ 上下計数法と $4\pi\beta$ - $\gamma$ 同時計数法を用いた「核分裂生成物の絶対測定」という, 放射化学討論会の歴史上唯一のベータ線絶対測定法に関する報告が, 天野恕・夏目・梅沢他 (原研) らによって報告された。

NaI(Tl)シンチレーション検出器による定量的な核種分析は, その低エネルギー分解能もさることながら, 複雑な応答関数のゆえに非常に困難であり, 信頼性も低く, 実用的とは言い難かった。一方, 新しく登場したGe(Li)半導体検出器は, NaI(Tl)検出器の欠点を持たない, 理想に近い $\gamma$ , X線検出器であったが, その高エネルギー分解能を生かすために必然的にスペクトルのチャンネル数が従来の10倍程度になり, マニュアルで解析処理することが不可能になってきた。そのため, 馬場宏を中心とする原研のグループは, 1960年代末からNaI(Tl)スペクトルとGe(Li)スペクトルの計算機処理プログラムの開発を平行して進めていった。

前者については, 1970年に関根俊明・馬場・天野による「NaI(Tl)検出系におけるパルス・パイルアップによる誤差」が報告され, 翌年には関根俊明・馬場・馬場他による「NaI(Tl)検出器による $\gamma$ 線スペクトルの計算機解析」によって極めて普遍性の高い解析プログラムNAISAPの開発が報告された



後者に関しては、1970年に馬場澄子・鈴木・岡下他が「Ge(Li) 検出器による $\gamma$ 線スペクトル解析コード」、翌年に馬場宏・馬場・岡下他の連名で、「光電ピーク法による $\gamma$ 線スペクトルの解析」という報告を行ない、解析プログラムBOB7の完成を発表している。このプログラムは機能ごとにサブルーチンの形にモジュール化されており、アルファ線スペクトルやクロマトグラフのチャートなど、ほぼどんなスペクトルに対しても簡単に適応するプログラムを組むことが可能である。1977年の第21回討論会には、馬場宏がアルファ線スペクトル解析プログラムALPSの開発を発表している。

1970年には、上に触れた発表の他に環境放射能と放射化分析に関する4件の報告がなされた。すなわち、大森さよ子（大阪公衛研）と岩田・笹島（京大原子炉）による「Ge 検出器を用いた非破壊放射化分析法による毛髪中のヒ素の定量」に加えて、柴田貞夫・河村・伊沢他による「ベータ線スペクトロメトリーによる $^{95}\text{Zr}$ と $^{95}\text{Nb}$ の放射能比の測定」、鎌田博・三田・鈴木他による「低バックグラウンド $\beta$ 線スペクトロメータによる環境試料中の放射性核種の定量」、前林愛子・岩倉・檜田による「液体シンチレーション法による環境中の低放射能トリチウムの測定」の3件の報告が放医研のグループからなされている。

1973年には、工藤冽・重松・小林他（電通研）による「 $\gamma$ 線スペクトロメトリーによる高純度材料中の超微量成分の放射化分析」、笹島和久・岩田（京大原子炉）による「アルファ線励起蛍光X線分析の基礎的検討」、許俊男・鍛冶他（東北大）と俵（九大）による「荷電粒子励起X線測定による微量分析」という3件の発表があった。

1977年以降 $\gamma$ 線スペクトロメトリー関係の発表は間遠になる。そのうち、(1) 解析手法に関わるものは8件(2) 即発ガンマ線スペクトロメトリーとその放射化分析への応用に関する報告が7件、(3) その他が2件である。

まず(1)については、玉井忠治・松下・小山（京大原子炉）らによる「 $\gamma$ 線スペクトル解析法とその評価」（1977）、鈴木章悟・松本・平井（武蔵工大原研）による「放射化分析用 $\gamma$ 線スペクトロメトリー・システム開発」があり、1985年には、桜庭洋介、横山他（阪大）と馬場（原研）の連名による「 $\gamma$ 線スペクトロメトリーにおけるサム効果とその補正」（1986）、岸川俊明を中心とする熊大グループによる一連の仕事、「Ge ガンマ線スペクトロメトリー：新しいエネルギー較正法」（1991）、「光電ピーク波形を構成するランダムサミング成分」（1993）、「Ge スペクトロメータの精密エネルギー較正法」（1994）、「光電ピーク波形の全エネルギーピークにおよぼすランダムサミングの影響」（1995）が挙げられる。

(2)は、米沢仲四郎、星を中心とする原研のグループが他の研究グループと協力して開発した仕事である。1991年に伊藤泰男（東京大原総セ）と連名で「JRR-3 冷却及び熱中性子ガイドビームを使用した即発ガンマ線分析装置の開発」を発表、翌年にこの装置を物質中のホウ素の定量に適応した例を報告している。1993年には岸川他（熊大）、中村（秋大）との連名で「中性子捕獲による即発 $\gamma$ 線スペクトロメトリーにおける光電ピーク形状」、小林他（都立大）、澤幡（東京大原総セ）との連名により「中性子捕獲即発 $\gamma$ 線分析による大型試料の元素定量法に関する検討」を、さらに間柄正明・米沢・星の原研のみのメンバーで「中性子即発 $\gamma$ 線データライブラリーの作製」という発表を行なったほか、他に3件の即発 $\gamma$ 線を用いる放射化分析例の報告をしている。即発 $\gamma$ 線を用いる放射化分析はその後にも活発に行なわれ、毎回討論会の会場を賑わしている。

(3)のその他の仕事としては、1980年には馬場澄子・馬場・郡司他（原研）による「 $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ の半減期」がある。これは絶対測定法によって得られる放射能強度と質量分析によって決定した原子数から崩壊定数を求めたもので、絶対測定にはGe スペクトロメータと $4\pi\beta$ 計数装置との

同時計数を行なう世界初の手法を開発した。さらに、そのように異常に短い寿命の核種についての質量分析もまた、少なくとも我が国では後にも先にも唯一の実施例である。この年には他に2件、馬場宏・鈴木・畑（原研）による「 $^{237}\text{Pu}$ の半減期と特性X線の強度」と橋本哲夫・谷口・外林（新潟大）による「中性子放射化による $^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$ 比測定に関する問題点」という発表がなされている。

1983年から1987年にかけては、液体シンチレーション計測関係の報告が数多くなされている。まず1983年には、渡辺裕夫・遠藤・佐野（都立大）による「CEMS検出器用シンチレータの波形弁別の研究」と早乙女忠史、遠藤・堀内他（都立大）の「 $\alpha$ 線と $\beta$ 線励起による液体シンチレータのエネルギー伝達および発光機構」、荘司準（筑波大）による「液体シンチレータ法による $\alpha$ 線分光」、原研・日本分析セの野口正安・樋口・佐藤他による「液体シンチレーションカウンタによる $\alpha$ 放射体の定量(1),(2)」、慈恵医大・原研の瀧上誠・林・石川他による「液体シンチレーション計測法におけるケミルミネッセンスの補正法」、青木達（京大RIセ）による「低バックグラウンド液体シンチレーション計測に現れるラドンの影響」などの報告がなされた。その他にも、九大グループによる $^{210}\text{Pb}$ - $^{210}\text{Po}$ の液体シンチレーション測定などの報告がある。

1984年には、岸川俊明（熊大）による弁別的電子測定によるトリチウム計測、吉岡瀧江・長谷川によるクエンチング補正曲線を用いない液体シンチレーション計数法、小島貞夫・古川（名大）による液体シンチレーションカウンタによる $^{63}\text{Ni}$ の定量、荘司準による液体シンチレーション法による $\alpha$ 線計測におけるエネルギー分解能、早乙女忠史・堀内・遠藤他による波形弁別法を用いた液体シンチレータ中での $\alpha$ 線および $\beta$ 線励起の発光機構等が報告された。

1985年には、矢永誠人・遠藤他（都立大）と伊藤（東大原総セ）の連名によるシングルホトン計数による寿命測定と液体シンチレータ中のエネルギー伝達機構の研」と米沢伸四郎・星・立川（原研）による液体シンチレーション計数法による $^{55}\text{Fe}$ と $^{63}\text{Ni}$ の同時測定の一つの報告があった。また、橋本哲夫らのグループが「低レベルトリチウム測定における検出効率補正法の検討」（1986）、「 $\alpha$ 計数の時間相関によるTh系列核種の絶対測定」（1987）、「パルス時間間隔解析（TIA）法を用いたアクチニウム系列及びトリウム系列核種の選択的定量の検討」（1993,1995）という液体シンチレーションカウンタに関わる発表をしている。

1983年にはトリチウム関係の測定が集中的に議論された。1983年には高島良正・百島（九大）らのグループが環境トリチウムの測定と挙動に関する3件の報告をおこない、1984年には九大グループが2件の報告、橋本哲夫等のグループがHTO及びHTの測定法について1件、放医研・茨大の宮本霧子・井上らのグループが環境トリチウムの分布について1件の報告を行なっている。

本田雅健、田中、今村（東京大）を中心とする東大核研、物性研、東京大理、九大理、東京大原セの合同チームは、1980年頃から、当時殆ど休止状態にあった東京大のタンデム加速器に手を加えて、加速器質量分析の研究を開始した。その成果は、1981年から1988年にかけて放射化学討論会で報告された。1981年に、今村峯雄（核研）・永井（物性研）・橋本（東京大）・小林（九州大）・山根（原総セ）他の連名で「タンデム型イオン加速器を用いる長半減期放射性核種の測定」が報告され、メンバーの出入りはあったものの、「超微量放射性核種の検出」のタイトルで第2報から6報までの報告がある。さらに1988年にはメンバーに柴田誠一（核研）ら加わって、「AMSによる雨水中の $^{10}\text{Be}$ の測定」を、翌年には「加速器質量分析による $^{10}\text{Be}$ , $^{14}\text{C}$ , $^{26}\text{Al}$ の測定」、1991年には永井尚生（日大）・本田、今村他（東京大）がUCSDのArnold, LANLのReedyと連名で、「Salem隕石表面における太陽宇宙線の影響 - AMSによる $^{10}\text{Be}$ , $^{26}\text{Al}$ の深度分布測定」を、また1997年には、小林貴之（日大文理）・村山（北大院地環研）・吉田（東京大博物）・今村（歴

博)・小林(東京大原セ)他が「加速器分析法を用いた堆積物中の $^{10}\text{Be}$ 濃度測定」を報告している。彼等の業績の中で、 $^{10}\text{Be}$ 、 $^{26}\text{Al}$ の測定に成功したことは、年代決定の分野でこれまで抜けていた100万年オーダーの領域の測定を可能にしたという点で特に評価される。

1996年には小田寛貴・古川(名大)と中村(名大年代センター)が「加速器質量分析計による古文書の $^{14}\text{C}$ 年代測定」というユニークな報告を行なった。

その他にも、色々とユニークな試みが多数報告されている。たとえば、橋本哲夫らの熱ルミネセンス計測やイメージングプレート等、各種放射線計測器の検討(1984, 1993, 1995)、長谷川紈彦(静岡大)らのグループ(1987)と慈恵医大・東京医歯大の瀧上・藤井他(1987, 1995)によるチェレンコフ光の測定、白田重和(原研)によるホスイッチ検出器の開発(1995)、中島敏行(放医研)によるESRによる被ばく線量評価法の開発(1987)などである。

1982年には、今村峯雄・藤田(東大核研)が重イオン用 $\Delta E$ -E検出器・横型PPACの試作について、また1992年には、大槻勤(東北大核理研)、池添(原研)、末木(都立大)他の連名で「シンチレータを用いた軽粒子弁別とその応用」という二つの粒子弁別検出器関係の報告がなされた。

### 2.1.6 核と原子の相互作用 (NEET など)

(斎藤 直)

原子核と軌道電子の相互作用はすべての化学的現象の源であり、放射化学に限っても、ホットアトム効果、メスバウアー効果、 $\gamma$ 線摂動角相関(PAC)などの原因となっている。それらについては別のところで詳しく述べられるので、ここでは「電子遷移による核励起」(NEETという)とそれに類似の事柄だけに限ることとする。NEETは1973年に森田正人(阪大理)によって理論的に予測され、音在清輝、荒川隆一ら(阪大理)によって $^{189}\text{Os}$ において実験的に検証された比較的新しい現象である。原子の内殻に空孔が生じると、すぐに外殻から軌道電子が遷移して、その遷移エネルギーをX線あるいはオージェ電子として原子外に放出する。原子核の励起準位が偶然その遷移エネルギー近傍にあると、電子遷移に伴ってその原子核が励起する第3の過程(NEET)が起こる確率が出てくる。森田は $^{235}\text{U}$ においてNEET確率を検討したが、音在らは $^{189}\text{Os}$ の電子線照射によって5.7hの核異性体 $^{189m}\text{Os}$ の励起関数を測定することに成功して、NEETの実在を初めて証明した。

討論会での発表は1974年(第18回)からであり、 $^{237}\text{Np}$ のNEETが $^{237}\text{Pu}$ のEC壊変のX線スペクトルに現れることが、音在らと馬場宏、畑健太郎、鈴木敏夫(原研)によって発表された。1978年には、斎藤直、篠原厚、三浦太一ら(阪大理)によって制動放射を用いた $^{189}\text{Os}$ のNEET実験が報告された。これは、初めてNEETを検証した $^{189}\text{Os}$ 電子線照射実験のイオン化方法を電子から光子に代えたものであり、競合過程である電子によるクーロン励起の寄与を実験的に除外したものであった。 $^{237}\text{Np}$ のNEETも光子照射( $^{57}\text{Co}$ 線源)で再実験され、斎藤らによって1979年に報告された。1980年には、斎藤らはより高エネルギーの制動放射を用いた $^{189}\text{Os}$ のNEET実験を報告した。 $^{235}\text{U}$ のNEETは、篠原らによって1981年に報告された。1982年、篠原らは、サブナノ秒ストロボ分光法を用いた $^{197}\text{Au}$ のNEETの研究を報告した。1983年、篠原、横山明彦らは負パイオンの軌道遷移による核励起現象の実験の報告をした。1985年には、篠原らはKEK-PFのウィグラー放射光による $^{189}\text{Os}$ のNEETを報告した。NEET研究は $^{197}\text{Au}$ のNEETの報文<sup>1)</sup>以降は放射化学から離れて、しばらくの空白期間のち物理学者によってSPring8などを利用した実験が行われた。

内部転換に対する化学効果は、村松久和、三浦、中原弘道ら(都立大理)によって $^{119}\text{Sn}$ の

23.87keV 転移について研究され 1981 年に発表された。これは、村松らによって  $\Delta R/R$  の測定という形で次年度にまとめられた。1983 年、三浦、初川雄一、遠藤和豊ら (都立大理) は各種金属マトリックス中における  $^{125}\text{Te}$  の最外殻電子の内部転換強度の変化を報告し、それは次年度の  $^{125}\text{Te}$  のメスバウアー定数  $-\Delta R/R$  の測定へと、さらに翌年には核分光学的手法を用いた  $^{125}\text{Te}$  の核位置での電子密度の評価へと発展した。矢永誠人ら (都立大理) は、メスバウアースペクトルの測定及び分子軌道計算による  $^{121}\text{Sb}$  核定数  $\Delta R/R$  の評価を 1988 年と 1989 年に発表した。1994 年に、伊東誉、村松、三浦、関根俊明らは、メスバウアー定数決定を目的として金属中への  $^{133}\text{Xe}$  インプランテーションによる  $^{133}\text{Cs}$  の 81keV 遷移における内部転換電子測定を報告し、その後 1995 年～1999 年に同じ核種のメスバウアー分光および  $^{133}\text{Cs}$  の 81keV 準位における有効核電荷半径の測定が村松ら (信州大教育) によって報告された。

2000 年から 2005 年に、三頭聰明 (東北大金研) らは紫外線エネルギー相当の励起核  $^{229m}\text{Th}$  を探索し、その核異性体転移に電子架橋 (EB) 過程が作用していることを直接的にあるいは間接的に明らかにしようといろいろな試みを行ってきた。この新領域がどのような展開をみせるか、注目したい。

## 文 献

- 1) A. Shinohara, T. Saito, K. Otozai, H. Fujioka and K. Ura, Bull. Chem. Soc. Jpn., **68**, 566 (1995).

### 2.1.7 中間子化学

(篠原 厚)

核反応の節で触れられている京大・西研究室と阪大・音在研究室の協同研究として立ち上げられた KEK の 12GeV-PS で得られるパイ中間子を使った核反応実験は、1981 年の第 25 回討論会における林茂樹 (京大原子炉) らによる発表で一段落することになる。その頃、同研究グループを引き継ぐ形で、京都大学原子炉実験所の岩田志郎が責任者となり、上記研究グループの主要メンバー (藤原一郎 (京大原研)、今西信嗣 (京大原研) ら) に東北大学理学部の吉原賢二、鍛冶東海、KEK の吉村喜男らが加わった形で、京大、阪大、東北大の多くの学生も参加する“ $\pi\text{AX}$ ”と呼ばれる研究グループをつくり、パイ中間子の原子捕獲に関する化学的研究が新たに立ち上げられた。パイ中間子原子形成を示すパイオニック X 線の測定すら出来るかどうか分からない状況から、日本ではもちろん初めて種々の原子のパイオニック X 線を測定し、一連の簡単な分子への捕獲過程に現れる化学効果から、捕獲メカニズムの解明を目指す研究がスタートした。

その最初の成果は 1983 年の第 27 回討論会で一気に 7 件の研究として発表された。研究代表者である岩田らは、パイオニック X 線測定の方法論に関して、今西、藤原らは一連のホウ化ベリリウムへのパイ中間子捕獲率の測定結果を、吉原と鍛冶らはマンガンやヒ素の酸化物におけるパイオニック X 線の微細構造の化学形による変化についての報告を行った。また、別の観点の研究として、パイ中間子遷移による核励起の可能性やパイ中間子の  $^{209}\text{Bi}$  による核吸収反応の研究が、篠原厚 (阪大理) ら阪大・馬場研究室を中心になされた。84 年、85 年と同様の発表が続き、今西らは一連のホウ化物の分子構造とパイ捕獲率の関係から、これまで分子への捕獲過程のモデルとして支持されていた巨大中間子分子モデルを改訂し、より実験値を再現するモデルを提唱するに至った<sup>1)</sup>。同グループは、X 線測定に加え、水素への捕獲を測定すべく、 $\pi^0$  の壊変を示す一対の 70MeV ガンマ線を鉛ガラスチェレンコフカウンタで検出する測定装置を開発し、1986 年と

87年に、水素含有化合物や水素混合ガスへの捕獲率に関して4報の発表が篠原らによりなされた。特に  $\text{LiBH}_4$  に関する研究は、Hの動的な分子構造が捕獲率に反映されることを示したもので興味深い。

その後、使用していた KEK-PS のビームライン ( $\pi\mu$  チャネル) の改修に伴い、研究が一時ストップ (一段落) した。研究グループの興味は、より多様な化学結合系と中間子水素原子からのパイ中間子の転移現象に移り、1989年に名古屋大学に移った篠原を責任者とし、中間子水素原子の挙動をテーマとした第二期の研究が始まった。なお、これらの研究と平行して、KEKの中間子化学実験施設のミュオンを使った研究も盛んに行われているが、これらについては、核プローブの項 (2.6.3 節) で述べられているので、ここでは省略する。

新たな研究グループは名大-阪大-KEK (篠原厚 (名大理) ら十数名) からなり、水素を含有する固体、液体、気体試料について精力的な実験が行われた。まず、名大・古川研究室のグループが中心に、より複雑な系として一連のアセチルアセトナト錯体への捕獲過程に関する研究がなされ、1988年から1991年にわたって篠原や新帯淳一郎 (名大理・院生) らにより発表された。91年はまた、斎藤らにより金属の水素化物 (特に不定比化合物) についての内容がまとめられ、水素の存在状態プローブとしての可能性が示された。一連のアルカン、アルコール、カルボン酸、及び2成分系の溶液実験では、転移過程とその化学効果の発見がなされ、その成果は、92年から94年にわたって、篠原、室山俊浩 (名大理・院生)、村田千裕 (名大理・院生) らにより発表された。特に、重水素置換体を使った特定部位水素への捕獲率の測定は、転移過程が捕獲水素の化学状態を反映していることを示した特筆すべき研究である<sup>2)</sup>。95年から96年にかけては室山らにより転移過程を含んだ捕獲モデルの提案がなされ、97年から98年は、気相系の転移過程が主に研究され、初めて見出された圧力依存性の結果について篠原らが発表している。一方、数は少ないが、1993年には向山毅 (京大化研) と鍛冶、1998年には木野康志 (東北大理) らによる理論的な研究も発表されている。第二期の一連の KEK における実験は、KEK-PS の将来計画とも関連して1998年に終了した。長らく行われてきたこれらの成果は、1999年の日本放射化学会設立の記念学会の際に、篠原 (阪大院理) により「パイ中間子原子の生成と挙動」と題する依頼講演という形で総括された<sup>3)</sup>。

この種の研究は2年ほどのブランクの後、2000年から、再度、篠原厚 (阪大院理) らにより阪大-KEK-金沢大が中心となった少し小規模のグループが立ち上げられ、エキゾチック原子を化学種とした全く新しい化学の展開を目指して、パイ中間子原子形成後の原子の状態に着目した研究がスタートした。当初はテスト実験として方法論の開発から始まり、2005年12月の KEK-PS シャットダウンの瞬間まで断続的に実験が続けられた。03年の第47回討論会から二宮和彦 (阪大院理・院生) らによりパイオニックアトム形成時の電子系の X 線のエネルギーシフトに関する一連の測定結果が報告され、その原子番号依存性から電子状態の議論がなされている。また、同グループはミュオンを使った同様の実験も試み、05年に杉浦啓規 (阪大院理・院生) らにより、ミュオン原子における電子 X 線のエネルギーシフトの原子番号依存性が議論された。これらの研究は、ミュオン原子等が化学種としてどう振舞うかを調べるための基礎研究であり、今後の進展が期待される。

## 文 献

- 1) N. Imanishi, T. Fukumura, A. Shinohara, and H. Kaji, *Phys. Rev. A*, **35**, 2044-2050 (1987).
- 2) A. Shinohara, T. Muroyama, C. Murata, M. Furukawa, T. Miura, T. Saito, A. Yokoyama, and S. Kojima,

Phys. Rev. Lett., **76**, 2460-2463 (1996).

3) A. Shinohara, J. Nucl. Radiochem. Sci., **1**, 33-37 (2000).

### 2.1.8 最近の動向と今後の展望

(篠原 厚)

ここでは、現在集中して進められている研究テーマの最近の動向と近い将来を含めた計画を概観することで核化学の展望としたい。

#### 今後の核分裂研究

2000年代に入ると、放射化学討論会における核分裂研究の発表件数は徐々に少なくなってきている。世界的に見ても低エネルギー核分裂研究の活性度は以前ほどではない。しかし核分裂機構そのものが解明されたかという点、いまだ未解決だといわざるを得ない。two-mode fissionの実験的検証で核分裂の大まかな質量分割過程は記述できるようになった<sup>1)</sup>。しかし質量収率分布の広がりや微細な構造などはまだ定量的には説明できていない。今後は動的過程の解明が上記理論の進展とともに期待される。また新たな核分裂モードの探索なども世界的には引き続き行われている。例えば多重ガンマ線測定装置を用いた<sup>252</sup>Cfの自発核分裂において、中性子放出を伴わない cold fission という新しい現象も確認されている。核分裂の微細構造の解明も今後の検討課題の一つであろう。一方、重アクチノイドや超アクチノイド元素の自発核分裂における質量分割や半減期などの研究は、超重元素の安定性などを議論していくうえでも重要な課題である。先に述べた bimodal fission の分裂機構も十分に解明されているとはいえない。また two-mode fission と bimodal fission との関係を明らかにしていく上でも、今後の重核領域での核分裂研究の進展が待たれる。

#### 核反応の今後

核反応自身に関する研究発表は、最近かなり減少している。これは、既存加速器によるエネルギーやビーム種の条件では、反応として新しいメカニズムが期待される部分が少なく、かなり理解が進んだことが原因である。しかしながら、あらゆるエネルギー、ビーム領域で精密科学と称するまでには至っておらず、特定の目的のためには実際に反応の精密測定が必要となっているのが現状である。特に、中間エネルギー領域の重イオン反応では、核物質の相転移との関連などを含め新しいメカニズムの可能性がいまだ検討されている。また、以下に述べるように、J-PARC や RIBF などの研究施設が本格的に稼動した時には、核反応の研究にとっても新しい領域(自由度)が開かれる。特に不安定核ビームによる核反応研究は、当然系統的に進めるべき課題であると思われる。新たな展開が期待される。しかしながら、現時点では、新たな施設への核化学分野の研究者のコミットが少ないのが問題であろう。若い人たちの斬新なアイデアとパワーを必要としている。

#### 超重元素の化学的研究

核分裂研究の減少を補うように2000年代に入って盛んになってきたのが超重元素の合成と化学的研究に関するものである。超重元素の探査は、核化学の主要テーマとして古くから取り上げられている。初期には天然の中の存在の可能性を追求する研究が行われ、日本でも京大原子エネ

ルギー研の西朋太、藤原一郎らが中心となり、検出を試みているが発表する結果には至っていない。

平行して、核反応による合成の試みも多く行われ、日本でも第27～29回の発表にあるように、1980年代に篠原伸夫(原研)や藤原(京大原研)により日本で初めて原子番号が100番を超える元素の合成が行われたが<sup>2)</sup>、世界的な重核合成の競争からは一歩退いた位置にあった。その間世界では、米ソの超重核合成の競争が続くが、ドイツ GSI の反跳核分離機 SHIP を使った地道な積み上げによる 107, 109 番元素合成で、主導権はヨーロッパに移った。日本では2000年代に入り、理研の森田浩介らのグループが、気体充填型の反跳核分離装置 GARIS を武器とし 110, 112 番元素の合成の追証実験により世界の舞台に踊りだし、2004年7月23日に113番元素の合成に成功した<sup>3)</sup>。これらの研究には核化学のメンバーが大きく寄与しており、その成果は2002年、2003年の加治大哉(新潟大理)、森田浩介、工藤久昭(新潟大理)らによる反跳原子の平均電荷に関する基礎研究に続き、2004年には112番元素、2005年には113番元素の合成についての発表が同グループによりなされている。

一方、このように新たに合成された重元素の化学的性質を調べる研究も、合成と平行して徐々に進められ、最近特に、単一原子を対象としたオンライン化学実験を手法として超重元素領域(ここでは104番以上の元素をさす)の研究が盛んに行われている。日本では1990年代後半から永目諭一郎、塚田和明を中心とする原研グループが国際協力を通して準備を進め、ドイツ GSI を中心とした国際共同研究に加わった形で104番元素 Rf の陰イオン交換挙動に関する研究が、1999年(第43回)の討論会で超重元素の化学的研究として初めて発表された。原研のタンDEM 加速器施設には超重元素の合成とオンライン化学実験装置が開発設置され、原研の永目を中心とする全日本的核化学グループで溶液化学が進められている。その成果は2000年以降の討論会で盛んに発表されることになる。2000年には日本初の<sup>261</sup>Rf と<sup>262</sup>Db の合成および Rf の溶液化学の最初の成果が原研の塚田ら、および羽場宏光らによりそれぞれ発表され、以降、2001年に3件、2002年に8件、2003年に7件、2004年に8件、2005年に10件もの超重元素の化学に関連する研究が発表されるに至っている。この中で、原研グループを中心とした Rf の溶液化学研究では、熱力学的、定量的議論が可能なレベルのデータを得るような世界的にも最も精度の高い実験データを輩出しており、世界でいち早く第2世代レベルの化学研究に突入している。最近の Rf のフッ化物錯体の安定性に関する同族体と大きな差異の発見は、JACS 誌<sup>4)</sup>に大きく取り上げられ、さらに、原研実験のグループリーダーである永目氏は Rf の化学的研究への貢献により2004-2005年度の日本放射化学会賞に輝いた。

原研における実験と平行して、新潟大理では、工藤らを中心とするグループが気相実験の準備を進め、2001年以降数回にわたり、金子哲也(新潟大理)らが気相実験のための基礎実験の成果を発表した。さらに、篠原厚を中心とする阪大院理グループは、単一原子レベル化学の基礎研究や重アクチノイドに焦点をあわせた研究を進め、豊嶋厚史(阪大院理、後に原研)らが2002年以降 No のイオン交換挙動や2価から3価への酸化反応について発表している。また、最近では理研、東北大、阪大の加速器施設に新たに重核合成-オンライン化学実験装置が立ち上げられ、日本で超重元素の化学的研究をより広く進める地盤が整いつつある。

超重元素領域の化学的研究は、核化学・放射化学が化学(科学)全体に真の基礎的概念から大きく貢献できる重要な研究であり、本学会にとって21世紀の中心的テーマと位置付けられる。また、特に加速器を初めとする実験環境は、世界的にも有利な位置にあり、将来、世界的にも主導権を握ることができると期待される。

### J-PARC における放射化学研究

核プローブの項で触れられているミュオンをプローブとして使った研究も含め、2005年度で KEK-PS のシャットダウンに伴い、国内ではしばらく実験ができない状態である。この種の研究は、しかしながら、放射化学にとって新しいポテンシャルを持っているため、J-PARC の始動により新たな展開が期待できる。 $\mu$ SR などの方法論が確立した研究は J-PARC が出来るまでの間も、国外の施設を使って進めることが出来るが、J-PARC の強度を生かした新しい展開が期待される。2.1.7 節の最後で触れられた研究、すなわちミュオン原子を化学種とする新しい化学は、J-PARC のビーム強度でこそ可能となるもので、ぜひとも実現したいものである。

### 不安定核ビームによる放射化学

理研で進めている RIBF で得られる不安定核ビームは、核プローブの分野ではインビームメスバウアーや PAC など新しい展開が期待されるが、核化学においても、これまでは原子核反応の入射核に専ら安定核を用いてきたが、今後は不安定核ビーム (RI ビーム) により、新しい核化学の開拓に向かうと考えられる。不安定核ビームによる核反応研究や長寿命超重元素合成の可能性の追求など、夢のあるテーマは目白押しである。原研でも KEK の線型加速器を東海 ISOL に結合した「放射性核種ビーム加速実験装置 TRIAC」が誕生した。

以上で分かるように、現在の核化学の中心テーマである超重元素に関連する研究は、ますます環境が整備され、より活発に着実に進められると思われる。さらに、核化学のテーマと常に密接に関係してきた加速器施設に関しても、全く新しいフェーズのビームが得られる世界規模の施設の稼動が間近となっている。これまでの核化学の経験と自由な発想で、より積極的にこれらの施設の利用に乗り出すことも、新しい核化学を創出する確かな道であろう。基礎科学が苦境に立たされている現在であるが (核化学、放射化学はその最たるものではあるが)、核化学を取り巻く環境は必ずしも悪くはなく、その研究内容は確実に未来につながっている。世界の核科学や化学の基礎作りへのさらなる貢献が期待される。

### 文 献

- 1) T. Ohtsuki, Y. Nagame and H. Nakahara, "Heavy Elements and Related New Phenomena", W. Greiner and R. K. Gupta, ed., World Scientific, 1999, p.507.
- 2) N. Shinohara, S. Usuda, S. Ichikawa, T. Suzuki, M. Magara, H. Okashita, H. Yoshikawa, T. Horiguchi, Y. Iwata, S. Shibata and I. Fujiwara, Phys. Rev. **C34**, 909 (1986).
- 3) K. Morita, K. Moromoto, D. Kaji, T. Akiyama, S. Goto, H. Haba, E. Ideguchi, R. Kanungo, K. Katori, H. Koura, H. Kudo, T. Ohnishi, A. Ozawa, T. Suda, K. Sueki, H. Xu, T. Yamaguchi, A. Yoneda, A. Yoshida and Y. Zhao, J. Phys. Soc. Jpn., **73**, 2593 (2004).
- 4) H. Haba, K. Tsukada, M. Asai, A. Toyoshima, K. Akiyama, I. Nishinaka, M. Hirata, T. Yaita, S. Ichikawa, Y. Nagame, K. Yasuda, Y. Miyamoto, T. Kaneko, S. Goto, S. Ono, T. Hirai, H. Kudo, M. Shigekawa, A. Shinohara, Y. Oura, H. Nakahara, K. Sueki, H. Kikunaga, N. Kinoshita, N. Tsuruga, A. Yokoyama, M. Sakama, S. Enomoto, M. Schaedel, W. Bruechle and J. V. Kratz, J. Am. Chem. Soc., **126**, 5219 (2004).



表 2-1 核化学研究史

	1-10 回 (1957-1966)	11-20 回 (1967-1976)	21-30 回 (1977-1986)	31-40 回 (1987-1996)	41-50 回 (1997-2006)
発表件数	137	182	246	293	172
研究者	木村ら (東大), 音在ら (阪大), 岡田ら (東工試), 吉原ら (原研), 日下ら (甲南大), 本田ら (東大), 西ら (京大), 夏目ら (原研), 池田ら (東京教育), 久米ら (阪大), 福島ら (阪大), 岡村ら (阪大), 田中ら (核研), 古川ら (核研), Porile ら (核研), 岡ら (東北大), 斎藤 (核研), 三辻ら (東大), 谷ら (原子力事業), 藤原ら (京大), 八木ら (核研), 天野ら (原研), 海老原ら (原研), 梅沢ら (原研), 夏目ら (原研), 竹腰ら (原研), 塩川ら (東北大), 村上ら (RI 研修), 黒田ら (アーカンソー大), 坂本ら (核研), 物井ら (原研), 石森ら (原研), 岩田ら (京大炉)	村上ら (都立大), 品川ら (阪大), 田中ら (核研), 関根ら (原研), 西ら (京大), 藤原ら (京大), 今西ら (京大), 馬場ら (原研), 梅本ら (九大), 本田ら (東大), 今村ら (物性研), 浜口ら (東大), 音在ら (阪大), 久米ら (阪大), 吉澤ら (阪大), 中西ら (金沢大), 池田ら (東教大), 古川ら (核研), 中原ら (京大), 梅沢ら (原研), 岡ら (東北大), 塩川ら (東北大), 石森ら (原研), 岩田ら (京大炉), 三頭ら (東北大), 外林ら (新潟大), 源生ら (核研), 福島ら (阪大), 西泉ら (物性研), 玉井ら (京大炉)	中原ら (都立大), 坂本ら (金沢大), 馬場ら (原研), 塩川ら (東北大), 八木ら (東北大), 野崎ら (理研), 中西ら (金沢大), 篠原ら (原研), 柴田ら (核研), 西ら (京大), 藤原ら (京大), 今西ら (京大), 岩田ら (京大炉), 林ら (京大炉), 阪上ら (金沢大), 音在ら (阪大), 斎藤ら (阪大), 今村ら (核研), 本田ら (物性研), 赤岩ら (群馬大), 工藤ら (都立大), 天野ら (金沢大), 荘司ら (筑波大), 畑ら (原研), 近藤ら (KEK), 野口ら (原研), 小山ら (京大炉)	中原ら (都立大), 藤原ら (追手門大), 関根ら (原研), 坂本ら (金沢大), 馬場ら (阪大), 本田ら (日大), 市川ら (原研), 今西ら (京大), 今村ら (核研), 古川ら (名大), 永目ら (原研), 末木ら (都立大), 間柄ら (名大), 浜島ら (金沢大), 工藤ら (新潟大), 永井ら (日大), 吉田ら (東大), 篠原ら (名大), 篠原ら (原研), 畑ら (原研), 大久保ら (理研), 安部ら (理研), 大槻ら (都立大),	馬場ら (阪大), 中原ら (都立大), Zao ら (高能研), 永目ら (原研), 塚田ら (原研), 篠原ら (原研), 大槻ら (東北大), 初川ら (原研), 近藤ら (KEK), 関根ら (原研), 羽場ら (原研, 理研), 篠原ら (名大, 京大炉, 阪大), 高宮 (京大炉), 柴田ら (京大炉), 松村 (KEK), 小村 (金沢大), 市川ら (原研), 横山ら (阪大, 金沢大), 浅井ら (原研), 三頭ら (東北大), 佐藤ら (阪大), 森田ら (理研), 加治ら (理研), 後藤ら (新潟大)
研究主題	ベータ線測定器の開発, 低エネルギー核反応 (p, d, He, 3He 反応の励起関数など), RI 製造と無担体分離, 中性子誘起核分裂, ミュオンによる $^{26}\text{Al}$ 生成, ウランの光核分裂, 京大炉の照射系, 核理研移動放射による核反応, LSC による軟ベータ線測定	固体飛跡検出器の技術開発, Ge(Li) 検出器による測定技術, ガンマ線スペクトル解析法 (BOB シリーズなど), 液体シンチレーションカウンタによる $\beta$ 線・ $\alpha$ 線測定法, ヘリウムジェット反跳核輸送装置の開発, 軽粒子反応の励起関数測定, 核異性体断面積測定, 中性子誘起核分裂の分裂片測定 (収率, $Z_p$ , 核異性体), チャージスペクトロメータによる電離確率, 隕石中の宇宙線生成核種の測定, 宇宙線生成核種の励起関数測定, アポロ 14 号の月試料の分析	励起関数, 核異性体測定, 半減期測定, 壊変特性, 荷電粒子誘起核分裂の生成物分布, 高エネルギーパイ中間子核反応, 低エネルギー重イオン核反応 ( $^{64}\text{Ni}$ , $^{197}\text{Au}$ , ...), 光核反応 (核破碎, パイ中間子放出反応), 電子遷移による核励起 (NEET), 超ウラン元素合成 (Cf, Es, ...), ダイニュートロン検出, AMS の開発, 長寿命核の測定, ISOL 開発, IGISOL の開発	重イオン核反応, 中興エネルギー核反応, 光核反応, IGISOL, ISOL, GARIS の開発・利用, 核分裂片の運動エネルギー測定, アクチノイド・軽アクチノイド・重アクチノイド核分裂, 2モード核分裂, マルチトレーサー開発, 中間子水素原子の挙動, AMS による月面試料測定, 尾小屋極低レベル放射能測定施設の建設	陽子誘起核分裂 ( $^{232}\text{Th}$ など), ISOL による新同位体の探索 (Tb, Sm, Gd, Am 同位体など)・核特性研究, アクチノイドの2モード核分裂, 光核反応 (核破碎, 反跳核), Rf の化学的研究 (イオン交換挙動, 逆層クロマトグラフィー, 気相反応など), $^{261}\text{Rf}$ と $^{262}\text{Db}$ の合成・励起関数, 重元素研究のための同族体の化学挙動・単一原子化学・測定技術, No のイオン交換挙動, $^{229}\text{mTh}$ の核特性, No, Rf の核分光, 中間子原子形成過程の研究, 理研超重元素合成実験, KUR マルチトレーサー製造

\* 件数は境界的なものをどこまで入れるかにより分類により多少変動する

\* 件数には 41 回と 45 回の apsrc のデータはいれてない

## 2.2 宇宙・地球核化学

(坂本 浩・柴田 誠一)

### 2.2.1 はじめに (放射化学討論会発足の頃まで)

1911年、オーストリアの Victor Franz Hess が金箔検電器と共に気球に乗って“宇宙線”(Cosmic Ray, C. R.; Robert Andrews Millikan 命名)を発見して以来、その追試や物理的意義(C. R.の正体と起源・加速機構, C. R.の起こす核現象など)の認識には10数年を要し、必要な検出器の発達にはさらに数10年を要した。その中で、コペンハーゲンより帰国して理研に研究室を開いた仁科芳雄は、C. R.研究の重要性を認めて、1933年頃より石井千尋らと共に多くの観測を手掛け、 $\mu$ 粒子の発見・質量測定(1937年, 1939年)や湯川秀樹の中間子論との関連を含む理論との接触も行った。阪大の菊池正士は渡瀬譲と主に宇宙線シャワーの解明に寄与し、渡瀬は第2次大戦後に宇宙線研究を本格的に展開した。大戦中に大きな遅れをなした研究は、1950年に朝日科学奨励金によって乗鞍岳に観測所を設立し、さらに2, 3の山上および地下の観測所が利用された。東大核研の設立(1955年)に伴い、核研宇宙線部が発足して、乗鞍観測所を吸収、さらに1960年構内に地下観測所を竣工、またボリビア・チャカルタヤ山(5200 m)で空気シャワー実験を開始した。

このような状況の中で、化学では、1957-1958年東京教育大の濱口博と学習院大の木越邦彦がそれぞれシカゴ大学で隕石中のウラン・トリウムおよび易揮発性微量元素の中性子放射化分析を行い、東大理の本田雅健はカリフォルニア大で隕石中の宇宙線生成放射性核種の分離・定量による宇宙線照射年代の測定(1961年)<sup>1)</sup>や高エネルギー陽子による鉄の核破砕反応(1962年)<sup>2)</sup>の研究を行った。東大で戦前・戦中に放射性鉱物や温泉の放射・地球化学研究を行い、戦後に渡米(1949年)、3年後にアーカンソー大学に定着した黒田和夫はウランの自発核分裂や放射性フォールアウトの先駆的研究を開始しながら天然原子炉の仮説(1956年)<sup>3)</sup>、消滅核種<sup>244</sup>Puの予言(1960年)<sup>4)</sup>とその発見(1964年)<sup>5)</sup>などを行い、またシカゴ大学の早津了一は惑星間空間の有機物生成の新理論を展開した(1965年)<sup>6)</sup>。いずれも宇宙化学に大きなインパクトを与え、その後の日本の研究にも強く影響し、大きな流れを創った。(この分野の多くは地球化学や地球惑星科学連合あるいは極地研シンポジウムで発表されてきた。以下、ここでは放射化学討論会での流れのみを追う。)

1) M. Honda, J. P. Shedlovsky, J. R. Arnold, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **22**, 133 (1961).

2) M. Honda, *J. Geophys. Res.*, **67**, 4847 (1962).

3) P. K. Kuroda, *J. Chem. Phys.*, **25**, 781 (1956).

4) P. K. Kuroda, *Nature*, **187**, 36 (1960).

5) M. W. Rowe, P. K. Kuroda, *J. Geophys. Res.*, **70**, 709 (1964).

6) E. Anders, R. Hayatsu, M. H. Studier, *Science*, **149**, 1455 (1965); **182**, 781 (1973).

### 2.2.2 第I期 宇宙線生成核種に関連した研究の始まり

東京教育大に戻った濱口は、1958年第2回討論会で井出野英吉、遠藤正、原研の中井敏夫と隕鉄中のW, As, Sbの放射化分析を、1959年(第3回)ではケイ酸塩岩石と石質隕石中の痕跡元素の定量を発表した。木越邦彦は1963年(第7回)の特別講演で「宇宙核化学について」を、

東大物性研に拠点を開いた本田雅健は1964年（第8回）の特別講演で「天然における核破碎反応生成物」を紹介した。

このような時期の1963年から東大核研宇宙線部を拠点に学習院大の長谷川博一、木越、山越和雄、東大核研の小田稔、柴田進吉、齋藤一夫は樹齢2000年の屋久杉の年輪ごとの $^{14}\text{C}$ を測定し、比放射能から過去2000年の宇宙線変動を研究、地磁気変動との相関を明らかにした<sup>1)</sup>。また、長谷川、木越、本田、東大核研の田中重男、立教大理の伊藤謙哉らを中心に「宇宙物質研究会」が立ち上げられ、後に科研費総合研究(A)「核反応生成物による宇宙空間物質の研究」が実現することになった。

1964年、東大核研の田中と坂本浩は、宇宙線と地球物質との反応で生成する長寿命放射性核種で過去 $10^6$ - $10^7$ 年にわたる宇宙線の歴史あるいは地球の歴史を探る計画を立て、具体的には宇宙線 $\mu^-$ 粒子（当時は“中間子”と呼んだ）で出来る岩石（硅岩）中の $^{26}\text{Al}$ を探索する試みをスタートし、1965年（第9回）に紹介した。この研究は、榎本道子と井上照夫が協力し、1965年7月から高木仁三郎が加わった。そして、予想される極微量の $^{26}\text{Al}$ の $\gamma$ 線測定のためのNaI(Tl)同時計数装置の開発も始め、1965年10月鋸山微弱放射能測定施設を開設した<sup>2)</sup>。ここには、 $^{10}\text{Be}$ の $\beta$ 測定用低バックグラウンドGM計数装置も開発・設置された。

1967年（第11回）には、京大理に移った長谷川博一が「宇宙科学における放射性核種の利用」と題する特別講演を行ったが、この討論会で初めて“宇宙”の文字があるセッション“宇宙放射性核種”がもたれた。そして、本田グループの島正子、松田英毅、今村峯雄による鉄隕石中の宇宙線生成のチタンについてと鉄隕石の年代についておよび隕石中のアルカリ、アルカリ土類、希土類元素などの分布についての研究が発表された。東大理の馬淵久夫とフランスCNRSの横山祐之は隕石中の宇宙線生成核種の生成における太陽粒子の寄与を、東大核研田中グループからは坂本が現在の宇宙年代学の鍵の核種の1つとなっている長半減期核種 $^{176}\text{Lu}$ （と $^{180}\text{Ta}$ ）の半減期測定<sup>3)</sup>を、高木が深海底泥中の( $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$ )比を、そして田中が宇宙線 $\mu^-$ 粒子でできる $^{26}\text{Al}$ の第2報を発表した<sup>4)</sup>。翌1968年（第12回）、高木は宇宙線 $\mu^-$ 粒子の試薬コバルトによる捕獲反応<sup>5)</sup>を、さらに1969年（第13回）にはテルル鉱中の $^{129}\text{I}$ <sup>6)</sup>、田中は深海底泥中の $^{26}\text{Al}$ と $^{10}\text{Be}$ の測定結果を発表した<sup>7)</sup>。この時、宇宙線の超新星起源説を提唱した名大理の早川幸男は「太陽系の生成と元素の起源」と題する特別講演を行った。なお、1968年（第12回）では、東大物性研の島、今村、本田は鉄の核破碎反応による安定核種生成率の微細構造について講演した。また、東大理の柳田昭平、馬淵久夫、濱口博と東大物性研の堀江絹子は簡易低レベルGM計数管を製作し、1972年にはこの東大理グループの高橋宏は宇宙線生成EC壊変核種測定用X線カウンタ（比例計数管）を開発した。これらの測定器はともに鋸山施設に設置された。

1970年（第14回）には、都立大理へ移った高木仁三郎と京大理へ移籍の山越和雄は深海底堆積物から分離したsilicate spherules中の $^{26}\text{Al}$ の測定を、名大理へ移った古川路明は熊沢（現：志津里）公子と東大核研の田中、坂本、小村和久と共に、Mg, Al, Siの52 MeV陽子照射による $^{26}\text{Al}$ 生成励起関数を報告した<sup>8)</sup>。さらに古川は原研の夏目晴夫、東大核研の田中と共に長寿命 $^{138}\text{La}$ の半減期測定を報告した。

1972年（第16回）は、初めての“宇宙化学”のheadingで、今村峯雄が中性子放射化による隕石・月試料の $^{129}\text{I}$ の検出法を、東大理の柳田、馬淵、小嶋稔と東理大の増田彰正が原始惑星系での太陽宇宙線照射の証拠を求めてアポロ14号試料のLa同位体質量分析を、馬淵、高橋、中村裕二はAllende隕石中の大きな中性子束を $^{36}\text{Cl}$ 測定（鋸山GMと比例計数装置利用）から求めて $^{59}\text{Ni}$ などと比較した。東大核研の小村、坂本、田中は $^{176}\text{Lu}$ の濃縮同位体(71.6%, 8.06 mg)と天然試料(2.59

%、962 mg) を用いて、神戸商船大の道嶋正美の低レベル Ge(Li) と鋸山測定施設の井戸型 NaI(Tl) で半減期再測定と坂本 (1967 年) のデータ見直しを報告した<sup>9)</sup>。名大理の古川と志津里は東大核研シンクロサイクロトロン ( $E_p = 52 \text{ MeV}$ ) と理研サイクロトロン ( $E_p = 16 \text{ MeV}$ ) で  $\text{Fe} + p \rightarrow {}^{53}\text{Mn}$  の生成断面積を中性子放射化測定で、さらに彼らは東大物性研の本田グループの源生礼亮、武内節子、西泉邦彦とこれを質量分析した。金沢大理の中西孝は Norton County 隕石の輝石中のトラック長を TINCLE 法で測定・解析し、新潟大理の外林武、中原弘道、池田哲夫と京大原子炉の橋本哲夫はポリカーボネートで  ${}^{226}\text{Ra}$  の核分裂トラック長測定の基礎研究を報告した。

- 1) K. Kigoshi, H. Hasegawa, J. Geophys. Res., **71**, 1065 (1966).
- 2) S. Tanaka, K. Sakamoto, J. Takagi, Nucl. Instr. Meth., **56**, 319 (1967).
- 3) K. Sakamoto, Nucl. Phys., **A103**, 134 (1967).
- 4) S. Tanaka, K. Sakamoto, J. Takagi, M. Tsuchimoto, J. Geophys. Res., **73**, 3303 (1968).
- 5) J. Takagi, S. Tanaka, J. Geophys. Res., **74**, 3219 (1969).
- 6) J. Takagi, W. Hampel, T. Kirsten, Earth Planet. Sci. Lett., **24**, 141 (1974).
- 7) S. Tanaka, K. Sakamoto, J. Takagi, M. Tsuchimoto, Science, **160**, 1348 (1968).
- 8) M. Furukawa, K. Shizuri, K. Komura, K. Sakamoto, S. Tanaka, Nucl. Phys., **A174**, 539 (1971).
- 9) K. Komura, K. Sakamoto, S. Tanaka, Nucl. Phys., **A198**, 73 (1972); **A213**, 426 (1973).

### 2.2.3 第Ⅱ期 宇宙・地球核化学研究の進展

1973 年 (第 17 回) は、“宇宙・地球” のセッション名が付けられ、青学大理工の木村幹がシカゴ大の R. Lewis, E. Anders と行ったハワイ Mauna Loa, 太平洋 Gorda Ridge 玄武岩と月の石を擬した合成玄武岩の融解試料と鉄ニッケル合金との間の放射性  ${}^{198}\text{Au}$  の分配を報告した。東大理濱口研の馬淵、中村、高橋、今村は Allende 隕石中の宇宙線誘導核種  ${}^{60}\text{Co}$ ,  ${}^{36}\text{Cl}$ ,  ${}^{59}\text{Ni}$  (1972 年発表) に加え、 ${}^{22}\text{Na}$ ,  ${}^{26}\text{Al}$ ,  ${}^{44}\text{Ti}$ ,  ${}^{55}\text{Fe}$  を、初めて破壊法で測定、大きな中性子束を見出した (この測定では、鋸山各種測定器を総動員した)。馬淵は p- 過程元素の存在度パターンに新しい規則性を見出し、過去 4 年にわたって研究してきた消滅核種  ${}^{146}\text{Sm}$  の Juvinas achondrite の固化時の存在度 ( ${}^{146}\text{Sm}/{}^{144}\text{Sm}$ ) =  $0.39 \pm 0.14$  を説明しうる屋内 p- 過程を論証した<sup>1)</sup>。東大物性研の今村恵子、島、本田は 6 個の石質隕石の金属成分中の宇宙線生成  ${}^{40}\text{K}$  と 1 個の隕石 (Bruderheim) の  ${}^{50}\text{V}$  を測定し、( ${}^{22}\text{Ne}/{}^{40}\text{K}$ ) 比を用いて宇宙線照射年代および隕石サイズ (照射深度) を議論し、また月試料についての同様の試みを報告した。学習院大の秋光正子と木越は天然水中の  ${}^{234}\text{U}/{}^{238}\text{U}$  の非平衡を説明する  ${}^{234}\text{Th}$  の  $\alpha$ - 反跳を実験的に検証し、九大理の西田哲明、大崎進、梅本春次はジルコン中の核分裂飛跡研究の第 1 報を、東大物性研の吉田邦夫、宮島恭子、本田は  ${}^{252}\text{Cf}$  の中性子照射核分裂片を照射したポリカーボネートからの分裂片溶出性を報告した。東大理濱口研の馬淵、高橋、中村、野津憲治は宇宙化学への応用を目指して  ${}^{41}\text{Ca}$  の半減期を前報の X 線カウンタで測定、 $(8.85 \pm 0.35) \times 10^4 \text{ y}$  を得た<sup>2)</sup>。ここで、高橋はこの X 線カウンターの性能を報告した。東大核研の井上照夫と田中は、5 - 50 MeV 陽子による Li, Be, B, C, N, O からの  ${}^7\text{Be}$  生成断面積測定の結果の一部を報告した。九大理の高島良正、百島則幸、九大工の坂田武彦は気体増幅計数法による低レベル  ${}^3\text{H}$  測定法について報告した。この年、本田雅健は「宇宙核化学の展望」と題して 2 回目となる特別講演を行った。

1974年(第18回)はセッション名“宇宙・地球化学”を挙げて、まず東大理の野津と馬淵が今度はコンドライト, St. Severin, Abee, Allendeの比重分画あるいは選別分の構成成分のSmとNd同位体を同位体希釈質量分析し、隕石固化時の( $^{146}\text{Sm}/^{144}\text{Sm}$ )比を求めて宇宙年代学の基礎とした。この馬淵グループの中村と小山康直は、前年、前々年に続きAllende隕石の別の3試料の $^{26}\text{Al}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{53}\text{Mn}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{59}\text{Ni}$ を鋸山測定施設で測定して宇宙線二次中性子束スペクトルを調べた。東大核研の柳田と東大物性研の源生はAllende包含物と3種の石質隕石, Bruderheim, St Severin, Peace RiverのFe同位体比をシリカゲル法で質量分析し、星内e<sup>-</sup>過程での温度依存性を原始太陽系形成プロセスと合わせて検討した。また東大物性研の仁藤修, 源生, 本田, 東大核研の柳田はAllendeの高温での生成の白色包含物の鉱物種・化学種を調べ、星内α<sup>-</sup>過程に続く過程で生じる $^{24}\text{Mg}$ に注目してMg同位体比を質量分析し、α<sup>-</sup>過程核の $^{16}\text{O}$ ,  $^{20}\text{Ne}$ の生成と合わせて議論した。これは始源的隕石(Allendeもその一つ)で発見された純 $^{16}\text{O}$ 成分(R.N. Clayton, L. Grossman and T.K. Maeda, 1973)に関連しての研究であった。宇宙線生成核種 $^{53}\text{Mn}$ ( $T_{1/2} = 3.7 \times 10^6 \text{ y}$ )には東大物性研本田グループと九大梅本グループが早くから注目し、隕石・月試料での測定法(中性子放射化)が、半減期測定を含めて検討され、銀河(GCR)および太陽(SCR)宇宙線の強度変化、月面上のdynamicsの情報を期待した。この年は、月試料(アポロ12, 14号)での深度分布(0-5 g/cm<sup>2</sup>)でSCRの、アポロ15, 16号のコア試料(0-400 g/cm<sup>2</sup>)でGCRのプロファイルを得て、前者から削剥速度(12号で0.5 mm/10<sup>6</sup> y, 14号で2 mm/10<sup>6</sup> y)と照射年代 $5 \times 10^6 \text{ y}$ 以上を、後者からGCR強度が過去 $5 \times 10^6 \text{ y}$ で大きな変動がなかったことを見出した。九大理, 東大物性研グループによる $^{53}\text{Mn}$ の標準試料調製のための $E_d = 8.3\text{--}20 \text{ MeV}$ での $^{52}\text{Cr}(d, n)$ 反応による $^{53}\text{Mn}$ の製造が柴田誠一, 源生, 本田によって報告された。

東大核研に移った今村峯雄と井上, 田中および金子条太郎は中・南部太平洋(サモア沖)の深海底土のコア試料(KH-68-4, 70-75 cm)中の $^{53}\text{Mn}$ (宇宙塵中で, Fe + p反応で生成)を測定し、宇宙塵降下速度 $2 \times 10^5 \text{ ton/y-earth}$ の上限値を得た。1964年から始めた東大核研の田中, 坂本, 高木による宇宙線 $\mu^-$ 粒子による硅岩中の $^{26}\text{Al}$ の測定試料は、ドイツ・マックスプランク研究所の低レベル大型NaI(Tl)で高木がW. Hampelと再測定し、初めて有意の結果( $0.0068 \pm 0.0028 \text{ dpm/kg SiO}_2$ )を得た<sup>3)</sup>。これは地下5 mweでの生成速度に相当し、過去400万年 $\mu^-$ 粒子束は一定であったこと、地表削剥速度は100万年あたり10 mを越えなかったことなど、その後の地質・地球物理および宇宙線物理学研究に貴重な示唆を与えることとなった。金沢大理へ移った坂本浩は加賀公衛, 東大核研の小村和久と $^{35,37}\text{Cl} + 52 \text{ MeV-p} \rightarrow ^{32}\text{Si}$ の励起関数を半減期500 yを仮定して報告した<sup>4)</sup>。主な反応は $^{37}\text{Cl}(p, \alpha 2p)^{32}\text{Si}$ で、このような軽核でもI. Dostrovskyら(1959年)のモンテカルロ計算で再現できることが示された( $^{32}\text{Si}$ の半減期は1980年以降、ここでの試料を含めてAMSで決定された。現在値160 y)。名大理の古川は理研( $E_p = 16 \text{ MeV}$ )と東大核研( $E_p = 52 \text{ MeV}$ )で鉄の陽子照射で $^{53}\text{Mn}$ の他、 $^{55,56,57}\text{Co}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{51,52,54}\text{Mn}$ ,  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{48}\text{V}$ の生成断面積を測定した。東大核研の田中と井上は $^7\text{Be}$ 生成反応のうち、発熱反応の $^{10}\text{B}(p, \alpha)$ 反応の励起関数を東大タンデムで $E_p = 0 - 5 \text{ MeV}$ で測定し、 $^{11}\text{C}$ の励起レベルとのよい対応を得て、宇宙物理学へのよい示唆を与えた<sup>5)</sup>。一方、 $^{10}\text{Be}$ などの微弱 $\beta^-$ の測定に高感度の針型GMカウンタが、東大核研の藤田雄三のアイデアで田口康夫, 井上照夫, 今村, 田中によって試作され、その後の鋸山における $^{10}\text{Be}$ 測定に活用された<sup>6)</sup>。

1975年(第19回)は、“核化学”と“微弱放射能の測定と分布”のセッションで、前年に引き続き九大理の柴田, 高島, 東大物性研の源生, 本田が $^{53}\text{Mn}$ の調製の報告を行い、87%濃縮 $^{50}\text{Cr}$ ターゲットを用いた $^{50}\text{Cr}(\alpha, n)^{53}\text{Fe} \rightarrow ^{53}\text{Mn}$ と $^{50}\text{Cr}(\alpha, p)^{53}\text{Mn}$ による製法で( $^{54}\text{Mn}/^{53}\text{Mn}$ )比の低い試料

の調製に成功したと発表した<sup>7)</sup>。東大物性研の仁藤、源生、本田は前年議論の Allende 高温鋳物中の  $^{16}\text{O}$  異常との関連、および  $^{26}\text{Al}$  の壊変生成物と考えられている  $^{26}\text{Mg}$  との関連から、今回は  $E_p = 52 \text{ MeV}$  による  $^{27}\text{Al}$  からの  $^{26}\text{Mg}$  生成励起関数測定を試みたが Al ターゲットの極微量の Mg 不純物が問題となった。源生、西泉、本田は宇宙線生成核種  $^{59}\text{Ni}$  に注目し、 $^{59}\text{Co}(p, n)$  反応を理研  $E_p = 17 \text{ MeV}$  で調べ、生成断面積と放射能測定・質量分析により、半減期  $1.7 \times 10^5 \text{ y}$  を得た。東大核研の井上、今村、小村、藤田、柳田、田中は前年と同じサモア群島沖南北 500 km で水深 5000 m から採取の堆積物コア 7 m (南) と 3 m (北) について  $^{10}\text{Be}$  を針型カウンタで測定、第四紀の火山活動他の影響を見出し、また大容量井戸型  $\text{Ge}(\text{Li})$  で  $\text{Io}/\text{Th}$  と  $\text{K}$  の深度分布を測って堆積速度 ( $1.1 \text{ mm}/10^3 \text{ y}$ ) を求め、 $^{10}\text{Be}$  の結果を傍証した。さらに、これらのコア試料の  $^{10}\text{Be}$  分離残り試料から  $^{53}\text{Mn}$  を放射化法で測定し、北側試料についていくつかの前提のもと、宇宙塵流入速度 ( $2.3 \pm 2.7$ )  $\times 10^4 \text{ ton/y}$  を推定した。この年、木越邦彦は「長寿命のウラン系放射性核種の天然における非平衡」について特別講演を行った。

1976 年 (第 20 回) の“宇宙・地球”のセッションでは、まず東大理の佐藤純、斎藤信房、東大地震研の佐藤和郎が、岩質や噴出年代の異なる日本各地の火山岩中  $^{137}\text{Cs}$  を測定し、H. Meier ら (1974 年) が見出した  $^{239}\text{Pu}$  の起源に対する検証を試みようとしたが、 $^{137}\text{Cs}$  はフォールアウトで説明できた。東大核研の田中重男は、1966-68 年に行った深海底堆積物中の  $^{26}\text{Al}$  測定で得られた結果は上限値であったが、フランス・Gif 微弱放射能センターの J.-L. Reyss, 横山祐之と共同で、Gif で新開発の低レベル大型  $\text{NaI}(\text{Tl})\gamma\text{-}\gamma$  同時計数装置で再測定し、コアの 0-73 cm 相当からの  $\text{Al}_2\text{O}_3$  で ( $0.081 \pm 0.046$ )  $\text{dpm} / \text{kg dry sediment}$  を得た<sup>8)</sup>。以前の  $^{10}\text{Be}$  測定値を使い、コア年代の壊変補正を行うと ( $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$ ) =  $0.019 \pm 0.012$  となり、大気での生成推定値  $0.013 \pm 0.006$  と比較しうる。宇宙塵由来の  $^{26}\text{Al}$  流入は  $0.6 \times 10^9 \text{ dpm}/\text{cm}^2 \text{ y}$  で、大気起源 ( $5 \times 10^9 \text{ dpm}/\text{cm}^2 \text{ y}$ ) の 10 % 相当を推定できた。隕石研究では、金沢大理の山崎健治、横山士郎、高島拓也、坂本浩が Huckitta parasite 他と地球岩石の全岩および分離鋳物の各同一試料につき  $^{238}\text{U}(n, \gamma\beta^-)^{239}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{U}(n, f)^{133}\text{Xe}$  および  $^{238}\text{U}(n, f)\text{track}$  の測定から、ウランの鋳物間分布と  $^{133}\text{Xe}$  の加熱放出挙動 (鋳物の FP 希ガスの保持性) を調べた。九大理の柴田、加治俊夫、高島と東大物性研の源生、本田は Grant など 5 種の鉄隕石中の宇宙線生成 Cr 同位体注目して、Cr の質量分析を行い、 $^{53}\text{Mn}$  の放射化測定と合わせて、 $^{53}\text{Mn}$ - $^{53}\text{Cr}$  法による照射年代算出を試みた。源生と東大宇宙線研の柳田昭平、阪大理の高岡宣雄は、始源的炭素質隕石にみられる Ne の変わった成分 (NeE と呼ぶ; 固化時捕獲や宇宙線生成成分とは異なる  $^{20,21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$  をもつ) の起源が、消滅核種  $^{22}\text{Na}$  によるのか、太陽系内で生じたのかを実験的に証明するために、Allende 隕石を  $^{23}\text{Na}(p, \alpha)^{20}\text{Ne}$  のみが起こるよう東大タンデムの 6 MeV 陽子で照射して Ne と He の同位体を測定し、非照射試料のそれと比較したが、核破碎成分と同じ結果で、NeE は検出できなかったが、次の実験への示唆は得た。東大物性研の牧野 (現: 中西) 友子、堀江絹子、本田は、年代学への応用を目指して、Mo を JMTR で照射 ( $6.9 \times 10^{20} \text{ n}/\text{cm}^2$ )、Nb の長半減期核種  $^{91,92,94}\text{Nb}$  の直接法 (放射能測定 + 質量分析) による半減期測定を開始した。本田研の永井尚生と吉田邦夫は宇宙空間を擬した低温・高真空下で硝酸セルロースを  $^{241}\text{Am}$  の  $\alpha$  で、また白雲母、石英ガラスを  $^{252}\text{Cf}$  の FP で照射し、トラック生成への環境効果を研究した。有意の結果は見出せなかったが、重要な基礎研究であった。同じグループの仁藤は、前年に引き続き  $^{27}\text{Al}(p, x)^{24,25,26}\text{Mg}$  を調べたが、標的 Al 中の不純物 Mg に悩み続けた。東大宇宙線研の柳田、山越、東大物性研の源生は、前年来注目の  $^{59}\text{Ni}$  生成断面積を  $^{59}\text{Fe}(\alpha, x)^{59}\text{Ni}$  について  $E_\alpha = 25 \text{ MeV}$  まで測定した<sup>9)</sup>。

1977 年 (第 21 回) は、セッション名“地球宇宙化学・測定”のもと、金沢大理の小村和久、中西孝、

森本朋子, 阪上正信が, 前年に広島原爆ドーム in-situ 測定で  $^{152}\text{Eu}$  を見出していたが, この年長崎でも検出し, 原爆中性子束推定に利用できることを, 被爆瓦・庭石の花崗岩, ブランク花崗岩,  $\text{Eu}_2\text{O}_3$  試薬, Allende 隕石の  $^{152}\text{Eu}$  測定によって定量的に示した<sup>10)</sup>。早大理工研の長谷部信行, 高野聡, 木本俊史, 菊池順, 道家忠義は, 2年前より始めた大気降下物の連続観測で得た放射性核種のうち,  $^7\text{Be}$  と  $^{22}\text{Na}$  の降下率と季節変動を示した。この2核種は, 核実験フォールアウトでないこと, 観測値から宇宙線生成の理論的推定の再検討ができたこと, また田中らの深海底堆積物中の  $^{26}\text{Al}$  が主に大気起源であることを論じ,  $^{26}\text{Al}$  については前年の田中らと同じ結論となった。東大核研の今村峯雄, 立教大理の西泉邦彦, 東大物性研の本田は, 地下における宇宙線  $\mu^-$  粒子で Fe から生成する  $^{53}\text{Mn}$  の探索を検討し, まず地表近くから産出のパイライト ( $\text{FeS}_2$ ) を使って予備実験を行った。 $^{53}\text{Mn}$  は放射化法で測定し,  $(0.008 \pm 0.012)$  dpm  $^{53}\text{Mn}/\text{kg Fe}$  を得て, 静止  $\mu^-$  の吸収を仮定すると平均照射深度は 8 mwe 以下となった。金沢大理の坂本は, 隕石, 月, 地球の試料で測定されたすべての Xe 同位体データを解析して同位体構造を調べた。そのうち, 既知の核現象からは説明できない ( $^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe}$ ) 比が 1 を越える成分の存在を見つけ, 問題点を提起した。東大物性研の仁藤と本田は, 前々年来追求中の Al の陽子照射による Mg 同位体の生成について, 今回は  $E_p = 52$  MeV までの  $^{24,25,26}\text{Mg}$  と  $^{26}\text{Al}$  の生成励起関数測定に成功した。牧野 (現: 中西) は, この年は  $^{92}\text{Nb}$  の半減期,  $(3.3 \pm 0.5) \times 10^7$  y をまとめた後, 同一試料から  $^{91}\text{Nb}$  について  $(9.0 \pm 1.4) \times 10^2$  y を報告した<sup>11)</sup>。

1978年(第22回)には, “宇宙核化学”のセッション名が初めて付けられた。そして, 東大核研の今村, カリフォルニア大留学の西泉, 東大物性研の本田, 阪大理の高岡宣雄, 長尾敬介は「隕石の宇宙線多重照射の記録とその母天体の推定」と題して, 南極隕石, Yamato-7301 と Alan Hills No.8 の  $^{53}\text{Mn}$ ,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{22}\text{Ne}/^{21}\text{Ne}$  の測定値は, 大きな宇宙線遮蔽下での  $\geq 10^8$  年の照射と隕石放出前の母天体表面での  $10^6$  年オーダーの照射という明白な多重照射歴を示すとした。これには母天体表面情報のヒントがあるとされる。東大物性研本田研の小山康直は, Allende 隕石の形成・固化時における諸元素の同位体比の不均一性探索と  $^{247}\text{Cm}$  の壊変でできる  $^{235}\text{U}$  の探索を目指して, 全岩試料, 6N HCl 可溶部と不溶部および白色包含物中のウラン同位体を質量分析したが, 有意の異常は見出せなかった。次いで, 深海底堆積物中の宇宙塵起源の  $^{53}\text{Mn}$  の探索第3報が今村, 井上, 田中, 柳田, 山越, 西泉によって発表された。試料はサモアのコア試料南分 0-40 cm ( $^{10}\text{Be}$  測定用の 10 cm セクションの Mn fraction を合わせたもの) と北分 20-28 cm セクション, および KH67-5 (Stn. 17) のドレッジで, 質量分離器で  $^{53}\text{Mn}$  を 290-420 倍に濃縮後, 放射化は熱化度の高い Saclay EL-3 炉で,  $^{54}\text{Mn}$  の  $\gamma$  線測定は La Jolla の井戸型 Ge (Li) と鋸山設置の東大宇宙線研 Ge (Li) で行い, 南から  $(0.3 \pm 0.5) \times 10^{-3}$ , 北から  $(1.05 \pm 0.6) \times 10^{-3}$ , ドレッジから  $(0.9 \pm 0.3) \times 10^{-3}$ , いずれも単位は dpm  $^{53}\text{Mn}/\text{g Mn}$ , といずれも有意の結果を得つつあること, また  $(^{53}\text{Mn}/^{10}\text{Be}) = 0.13 - 0.16$  で, 宇宙塵流入  $3 \times 10^4$  tons/y が推測された。ちなみにコア試料の対象部分は  $^{10}\text{Be}$  年代から 10-30 万年以内に堆積したと見積もられた。今村と柳田は, 過去 1000 万年の宇宙線強度の変動を探る方法のうち, 鉄隕石中の宇宙線生成核種の中で, 特に  $^{53}\text{Mn}$  の生成率と  $^{21}\text{Ne}$  の照射年代による試みを行い, 500 万年前に宇宙線強度はそれ以前より 2-3 倍増加した可能性を見つけた。太陽系を包む熱い ( $\sim 10^6$  K), 低密度 ( $10^{-2}$  H/cc) の 100 pc 程度の空間, hot cavity, の存在をその発見の説明とした<sup>12)</sup>。ちなみに, 本田らは隕鉄中の宇宙線生成核種から過去数 100 万年間は現在と  $\pm 20 - 30\%$  以内で, 井上と田中は深海底土の  $^{10}\text{Be}$  年代と古地磁気年代の相関から過去 250 万年は  $\pm 10\%$  で, 宇宙線強度不変を導いている<sup>13)</sup>。

1979年(第23回)の“環境放射能, 地球・宇宙化学”セッションの“宇宙”では, 青学大

理工の綾部統夫, 平尾良光, 木村幹による石鉄隕石 Brenham の金属相とケイ酸塩相間の金, 銀, レニウムおよび白金族元素の分配を放射化分析で調べた報告があり, また, 金沢大理の浜島靖典, 伊藤和夫, 山口青志, 坂本がハワイ玄武岩, 浅間山安山岩, イラン産クロマイトの細分画比重分離した鉱物からの核分裂生成  $^{133}\text{Xe}$  の加熱放出パターンを Huckitta parasite のそれと比較し, 諸鉱物の希ガスの保持率を調べた報告があった。東大物性研の仁藤と本田は, 地球マントルの情報をもつダイヤモンド, 南アフリカ Premir 鉱山と Finsch 鉱山からの各 8 粒を放射化して K, Na など 10 元素以上を検出した。地球大気形成を論じるに必要な K 同位体は質量分析 (未完) が必要である。

1980 年 (第 24 回) の“核反応・測定”のセッションでは, 昨年に引き続き金沢大理の坂本グループは山崎健治を加えて, 耐火性鉱物からの  $^{133}\text{Xe}$  の加熱放出特性を隕石鉱物からの特性と比較し, “環境放射能”のセッションで, 仁藤, 永井, 本田, 西泉は宇宙化学で重要な長半減期核種の半減期の直接法による見直し測定を発表した。彼らはこれまで  $^{53}\text{Mn}$ ,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{91,92}\text{Nb}$ ,  $^{202}\text{Pb}^{14}$ ,  $^{32}\text{Si}$  について検討してきたが, 新たに  $^{26}\text{Al}$  と  $^{60}\text{Fe}$  の測定を開始した。台湾から留学中の東大核研の黄瑞耀は井上, 田中と共に,  $^{10}\text{Be}$  測定済みの深海底堆積物コア試料 8 本について, U と Th の分析, Io 法で堆積速度と沈降率を求めて  $^{10}\text{Be}$  法の結果と比較した<sup>15)</sup>。

- 1) K. Notsu, H. Mabuchi, O. Yoshioka, J. Matsuda, M. Ozima, Earth Planet. Sci. Lett., **19**, 29 (1973).
- 2) H. Mabuchi, H. Takahashi, Y. Nakamura, K. Notsu, H. Hamaguchi, J. Inorg. Nucl. Chem., **36**, 1687 (1974).
- 3) W. Hampel, J. Takagi, K. Sakamoto, S. Tanaka, J. Geophys. Res., **80**, 3757 (1975).
- 4) K. Sakamoto, K. Kaga, K. Komura, J. Inorg. Nucl. Chem., **40**, 1183 (1978).
- 5) T. Inoue, S. Tanaka, J. Inorg. Nucl. Chem., **38**, 1425 (1976).
- 6) Y. Fujita, Y. Taguchi, M. Imamura, T. Inoue, S. Tanaka, Nucl. Instr. Meth., **128**, 523 (1975).
- 7) S. Shibata, Y. Takashima, R. Gensho, M. Honda, J. Radioanal. Chem., **36**, 11 (1977).
- 8) J. L. Reyss, Y. Yokoyama, S. Tanaka, Science, **193**, 1119 (1976).
- 9) S. Yanagita, K. Yamakoshi, R. Gensho, Nucl. Phys., **A303**, 254 (1978).
- 10) T. Nakanishi, T. Imura, K. Komura, M. Sakanoue, Nature, **302**, 132 (1983).
- 11) T. Makino, M. Honda, Geochim. Cosmochim. Acta, **41**, 1521 (1977).
- 12) S. Yanagita, M. Imamura, Nature, **274**, 234 (1978).
- 13) T. Inoue, S. Tanaka, Nature, **277**, 209 (1979).
- 14) H. Nagai, O. Nitoh, M. Honda, Radiochim. Acta, **29**, 169 (1981).
- 15) S. Tanaka, T. Inoue, Z. Y. Huang, Geochem. J., **16**, 321 (1982).

## 2.2.4 第三期 宇宙線生成核種を用いた研究の展開 (加速器質量分析法の開発・進展)

1980 年から 3 年間, 日本の宇宙科学研究者を総動員した科研費特定研究「太陽系の進化と惑星環境の研究」(代表: 宇宙研大林辰蔵, 幹事: 京大理長谷川博一, 東北大理大家寛)の 9 研究班が組織され, 化学系は第 1 班「太陽系構成元素の起源と太陽系年代」(班長: 本田雅健, 本田停年後, 田中重男, 1982 年田中急逝後, 坂本浩)に入った。この班の重点は, 東大原子力研究総合センターのタンデム加速器を改良して加速器質量分析 (AMS) を可能とすることであった。



そして、1981年(第25回)の“核化学”セッションでは、このAMS第1報が東大核研の今村峯雄ら10名によって報告され、マシン性能と測定予定の $^{10}\text{Be}$ 、 $^{14}\text{C}$ 、 $^{26}\text{Al}$ 、 $^{36}\text{Cl}$ の条件設定が検討された。

“宇宙・地球化学”セッションでは、金沢大の小村和久、塚本政樹、柳沢美樹男、阪上正信の非破壊測定によるU系列非平衡研究の問題点が、また塚本、小村、阪上の非破壊 $\gamma$ 測定による隕石中の放射性核種が報告された。名大理の古川路明はアーカンソー大のP.K. Kurodaの招聘で行った隕石中諸元素の同位体組成異常と核反応の関係の研究を紹介した。

1982年(第26回)では、今村ら東大核研、物性研、原七、日大文理、九大理工よりなるグループは、AMSを用いる超微量放射性核種の検出と題する第2報として、 $^{10}\text{Be}$ の測定結果(標準試料、隕石、雨水、ブランク)と検出限界 $^{10}\text{Be}/\text{Be} < 1.9 \times 10^{-13}$ 、再現性7.8%を発表した。また、今村と藤田雄三はAMS用重イオン検出用として新たに $\Delta E$ -E検出器、parallel plate Avalanche counter、を試作し、その性能テストの結果を報告した。

1983年(第27回)の“宇宙地球化学”セッションでは、今村がAMS第3報で、 $^{10}\text{Be}$ による島弧火山機構解明への応用と題して、AMSのその後の改良( $^{10}\text{Be}/\text{Be}$ の精度3-4%)と東北火山フロントの溶岩7試料で $^{10}\text{Be}/\text{Be}$ の測定結果、 $(1-4) \times 10^{-11}$ 、を報告し、 $^{10}\text{Be}$ を含む深海底堆積物が太平洋プレートに乗って海溝下に沈み込み、プレート境界面で部分溶融したマグマと共に噴出したとして説明した<sup>1)</sup>。金沢大理の坂本は始源隕石中のKr、Xe同位体異常の星内起源説を主張した。名大理の古川は太陽ニュートリノの問題点(R. Davisの $^{37}\text{Cl}$ 検出器による $^{37}\text{Ar}$ 測定と標準モデルに基づく理論)について、関係する核反応の問題点を指摘した。

1984年(第28回)では、金沢大LLRLの小村和久、陳国竜、阪上正信が27の南極隕石中の $^{26}\text{Al}$ を非破壊測定し、既報の $^{53}\text{Mn}$ の結果と合わせて宇宙線照射年代と落下年代を推定できるダイアグラムを考案した。

1985年(第29回)では、東大AMSの第4報を吉田邦夫が代表して報告し、1983年2月の地震で2年間の中断後に行った $^{14}\text{C}$ 測定の検討で、検出限界 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} < 1 \times 10^{-14}$ 、再現性<5%を得た。

AMS第5,6報は1986年(第30回)“加速器とその応用”のセッションで出された。第5報は、前年検討の $^{14}\text{C}$ 測定で、考古学試料(ネアンデルタール人遺跡の種片と明石・西八木海岸出土木片)への適用結果<sup>2)</sup>、第6報は $^{26}\text{Al}$ のAMSの検討で、( $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ )比の検出限界 $5 \times 10^{-13}$ 、感度 $10^{-11}$ 程度の結果であった<sup>3)</sup>。日大文理の本田雅健は永井尚生、島村匡、秋沢繁、鴨川忠生、小林洋一と鉄隕石中の鉄に近いSc-Mn間の極微量親石元素を放射化法とグロー放電型質量分析で比較対照し、10億年の宇宙線照射年代をもつ小型隕石では安定核種でもppb-pptレベルの宇宙線生成( $^{45}\text{Sc}$ 、 $^{46}\text{Ti}$ 、 $^{51}\text{V}$ 、 $^{55}\text{Mn}$ )がみられることから、不純物吟味の重要性を指摘した。

1987年(第31回)は“放射化分析”セッションで、東大吉田邦夫が代表してAMS第7報を発表した。ここでは、これまでの $^{10}\text{Be}$ (中性子、光子による核反応断面積測定、月表面での深度分布、隕石でのシステムティクス、宇宙塵、溶岩、フォールアウト)、 $^{14}\text{C}$ (縄文人骨、火山ガス、泥炭、火山噴出物中の木炭、学習院大で $\beta^-$ 測定済木片の計95試料)、 $^{26}\text{Al}$ (隕鉄、石質隕石)の測定状況がまとめられ、また $^{36}\text{Cl}$ 測定への試みが予告された。日大文理の永井はグループを代表して、上記のうちの月表面岩石試料(アポロ16号)の3方向の $^{10}\text{Be}$ 深度分布結果を報告し、 $10^7$ 年スケールでの太陽宇宙線エネルギースペクトルを $^{26}\text{Al}$ 、 $^{53}\text{Mn}$ のデータと総合して議論した。この研究には、カリフォルニア大San Diego校のJ. R. Arnold、西泉邦彦、ロスアラモス国立研のR. C. Reedyも加わった。雨水中の $^{10}\text{Be}$ のAMS測定は、1988年(第32回)で、永井が代表して報告し、1974-75年、1983-87年に1-2ヶ月ごとに採取した雨水の $\gamma$ 線測定で $^7\text{Be}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ データを

得た試料で  $^{10}\text{Be}$  を測定, 平均降下速度から大気中での  $^{10}\text{Be}$  生成速度 (地球全体で  $0.03 \text{ atoms/cm}^2 \text{ sec}$ ) を推定した。また, 火山ガス (箱根, 草津, 有珠, 北海道駒ヶ岳, 那須) 中の  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  は共立薬大の吉川英樹が代表して発表し, 見かけの年代  $(3-4) \times 10^4 \text{ y}$  を推定した。

1989年 (第33回) では, 日大文理の永井が東大 AMS の状況の説明 (1988年度,  $^{10}\text{Be}$  120 試料,  $^{14}\text{C}$  90 試料,  $^{26}\text{Al}$  50 試料を測定) を行った。この時点で感度・再現性は  $^{10}\text{Be}$ :  $3 \times 10^{-14}$ , 2-3%,  $^{14}\text{C}$ :  $3 \times 10^{-16}$ , 1-2%,  $^{26}\text{Al}$ :  $1 \times 10^{-13}$ , 2-4% で, 安定性は世界トップレベルであるが,  $^{10}\text{Be}$  と  $^{26}\text{Al}$  の感度は 1/10 - 1/100 でイオン源性能に原因があったとした。この年, 東大核研, 東北大サイクロ, 日大文理, 東大 RI セ, 東大原セのグループは核研 SF サイクロトロンで (p + Be) からの高速準単色中性子,  $E_n \leq 35 \text{ MeV}$ , による  $^{16}\text{O}(n, x)^3\text{H}$ ,  $^{27}\text{Al}(n, 2n)^{26}\text{Al}$ ,  $^{nat}\text{Si}(n, p2n)^{26}\text{Al}$  の断面積測定を報告した。金沢大 LLRL の小村, 山本政儀, 上野馨は, 長寿命  $^{138}\text{La}$  と  $^{176}\text{Lu}$  の半減期再測定結果を報告し,  $T_{1/2}^{138} = (1.013 \pm 0.015) \times 10^{11} \text{ y}$ ,  $T_{1/2}^{176} = (3.63 \pm 0.03) \times 10^{10} \text{ y}$  と, 前者はこれまでよりやや短く, 後者は Komura et al. (1972) より少し長い結果であった。この年の特別講演は, 広大理の吉沢康和による「AMS と最近の  $\gamma$  線スペクトロスコーピー」で, ミュンヘン工科大のタンデム加速器での広島原爆被爆 (爆心から 107 m の位置で) の墓石花崗岩 158 cm コアの  $^{36}\text{Cl}$  測定と, NORD Ball (2 個の Ge と 6 個の BGO 同時・逆同時計数システム, Niels Bohr 研) 国際共同研究が紹介された。

1990年 (第34回) では, 前年に引き続き準単色中性子誘起反応 ((p + Be) 反応に加えて (p + Li) 反応も利用) による  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{14}\text{C}$  の断面積測定について東大核研の今村が報告した<sup>4)</sup>。その中で宇宙線二次中性子によるこれらの核種の生成率を評価し, 地球科学的応用にも言及した。東大核研の柴田誠一らは, KEK 12 GeV 陽子による  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$  の生成断面積の AMS 測定結果を報告し, 軽核の宇宙空間での生成との関連で, フラグメンテーション収率について検討した<sup>5)</sup>。また, 都立大理の小林貴之, 末木啓介, 塚田和明, 海老原充, 中原弘道は  $^{97,98}\text{Tc}$  の半減期見直しを提案した。

1991年 (第35回) “宇宙化学” セッションでは, 金沢大理の大浦泰嗣と坂本が希ガス (Kr, Xe) 同位体の既知の起源で説明できない観測値, HL 成分 (重い同位体と軽い同位体の相関成分, O.K. Manuel(1972)) を星内核合成理論と照合し, その妥当性を論じた。日大文理の永井は Salem (L6) 隕石 (1981年落下, 61.18 g) の小片  $6 \times 5 \times 2.5 \text{ cm}$  の  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$  の細かい深度分布を AMS で測定し, K. Nishiizumi et al. の  $^{36}\text{Cl}$  と合わせて, 隕石における太陽宇宙線の顕著な効果を初めて見出した。東大核研の今村は, 今後3年間でを行う東大タンデムの更新計画を説明した。金沢大 LLRL の小村は尾小屋鉦山跡のトンネル利用の極低レベル測定室設置計画を紹介した。都立大グループは,  $^{97,98}\text{Tc}$  半減期測定 of the 第3報を発表した。

1992年 (第36回) の“核宇宙化学”セッションでは, 日大文理の永井, 本田, 東大核研の今村, 東大原セの小林絃一が, 隕石中の宇宙線生成核種の量が (i) 宇宙線の強度およびスペクトル, (ii) 照射年代, (iii) 落下年代, (iv) 隕石の種類すなわち化学組成, (v) 隕石サイズ, (vi) 照射を受けた位置, shielding, などによるとして, すべての隕石にあてはまる核種生成の速度式を導出し, 数多くの  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$  の実測値を使ってこの式の適用性を検証した。また, 今村, 柴田, 永井は二次宇宙線による地表での核種生成率を高度, 地磁気, 緯度の関数として求め, さらに地表面岩石年代を調べて, 半減期の異なる核種の組み合わせから年代, 風化・隆起・沈降速度の地球科学的情報について議論した。都立大理の日高洋はフランス原子力庁 P. Hollinger, 理研の高橋和也, 電通大の増田彰正と共同で, オクロ天然原子炉ゾーン 10 の試錘孔 SF84 の炉心部と炉心をはさむ上下からの計7試料の U, REE, Rb, Sr, Ba の同位体を質量分析し, 中性子フルエンス  $(5.0 - 7.8) \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$  で核分裂生成 REE が鉦床内によく保存していることを見出した。金沢大 LLRL の小村

らは尾小屋トンネル内の宇宙線寄与を測定し、建設計画第2報を報告した。都立大理の小林貴之らは $^{97,98}\text{Tc}$ 半減期測定第4報を発表した。

1993年（第37回）“核反応”セッションで、東大核研の今村らは、原研高崎 AVF サイクロトロンで、p-Li 準単色中性子 15 – 65 MeV 領域で C – Cu の 10 数元素を照射、 $\gamma$ 線測定の他、長寿命 $^3\text{H}$ 、 $^{55}\text{Fe}$ 、 $^{63}\text{Ni}$  および $^{34}\text{He}$ 、 $^{21,22}\text{Ne}$ の測定計画に言及した。これまでと同じく、宇宙線生成と放射線施設での放射化を考える基礎データの取得が目的である。この他、“環境放射能”で、小村らは尾小屋施設予定地の環境放射能・放射線レベルを第3報として、“核壊変”で都立大理の小林らは、 $^{97,98}\text{Tc}$ 半減期測定第5報をそれぞれ発表した。

1994年（第38回）には、今村らにより 15 – 65 MeV 準単色中性子誘導反応の断面積測定の結果について第2報が出された。さらに今村は Ne 同位体生成率測定から、地表および天体表面での生成率との比較について報告した。都立大理の小林らは、 $^{97,98}\text{Tc}$ 半減期測定に関する第6報を出した。

1995年（第39回）には、今村は準単色中性子誘導反応断面積測定について、40 – 90 MeV のうち、41, 55, 64, 84 MeV での $^{209}\text{Bi}(n, xn)^{210-x}\text{Bi}$ 、 $^{12}\text{C}(n, 2n)^{11}\text{C}$ 、 $^{12}\text{C}(n, x)^7\text{Be}$ 、 $^{27}\text{Al}(n, x)^{22}\text{Na}$ の断面積・励起関数を報告した<sup>6)</sup>。また核研 SF サイクロトロンで、 $^{\text{nat}}\text{CaCO}_3$ 、 $^{40}\text{CaCO}_3$ 、 $^{\text{nat}}\text{KNO}_3$ 、 $^{39}\text{KNO}_3$ からの $^{36}\text{Cl}$ 生成断面積を $E_n = 15 - 40$  MeV で測定し、月表面での深さ分布を計算して、K. Nishiizumi et al. (1991) の測定値と比較し、過去 40 万年の太陽フレアの 100 MeV 以上の強度 80 – 100 p/cm<sup>2</sup>/s(4 $\pi$ )を得て、 $^{26}\text{Al}$ からのスペクトルと同じ結果を確かめた。同グループの柴田は、原爆速中性子線量評価との関連で、東北大ダイナミトロンからの p, d ビームを使って $^{63}\text{Cu}(n, p)^{63}\text{Ni}$ の $E_n < 15$  MeV での励起関数測定結果を報告した。日大文理の永井は東大更新タンデム加速器での AMS の性能テストの予備報告を行った。筑波大の宮崎紀彦、関李紀、長島泰夫、池田龍一は筑波大 AMS の現状を報告した。

1996年（第40回）は、放射能発見 100 年・木村健二郎先生ご生誕 100 年と第40回を記念した討論会となった。ここで4つの特別講演があり、そのうち本田雅健は「ビキニの灰から宇宙核化学へ」と題した特別講演を行った。この回では、“隕石・測定・原子炉”のセッションが設けられ、金沢大 LLRL の小村、井上睦夫、山崎誠二、村田祥全と科学博物館の米田成一は、この年1月7日につくば市地域に H5-6 石質隕石が落下、計 23 片 約 800 g が回収され、そのうち #1 片を6時間後に科博で測定し、 $^{24}\text{Na}$ を検出、#4, 5, 13, 16, 19 を尾小屋の施設で測定し $^{44\text{m}}\text{Sc}$ 、 $^{52}\text{Mn}$ など14核種を検出した。特に大きな #13 以外の小片では $^{26}\text{Al}$ 、 $^{56}\text{Co}$ 、 $^{46}\text{Sc}$ に大差なく、 $^{57}\text{Co}$ と $^{58}\text{Co}$ は2-3倍の差で、#13の $^{60}\text{Co}$  1.4 dpm/kg の低い値から落下前のサイズ 10 cm 以下を推定した。“放射化分析”では、都立大理の篠塚一典、海老原充、中原弘道は、太陽系元素存在度の演繹に重要な CI コンドライトの元素分析に標準となる Allende 試料について ICP-MS 法が RNAA に代わるかどうかを希土類元素分析で検討し、前者の利点を示した。

1997年（第41回）は、第1回の APSORC (Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry) との同時開催であった。前者の“環境放射能”セッションでは、日大文理の永井尚生らが大気中 $^{7,10}\text{Be}$ の生成速度と降下速度を、東大海洋研白鳳丸航海 KH94-3, KH94-4 で日本近海から南極海に至る海域で調べ、緯度分布、大気での滞留時間、 $^{7,10}\text{Be}$ の供給源を議論した。また、日大文理の小林貴之と東大 AMS グループは太平洋堆積物中のマンガン団塊の $^{10}\text{Be}$ を更新 AMS で測定し報告した<sup>7)</sup>。APSORC の方では、都立大理の Sk.A. Latif, Y. Oura, M. Ebihara, H. Nakahara が<sup>8)</sup>、隕石中の軽元素、特に Sc に注目した即発 $\gamma$ 線分析 (PGA) の結果を報告した。なお、Plenary Lecture 7 件のうちの1つで、広大理の日高洋が「オクロとバンゴムベの天然原子炉の同位体研究」を紹介した。

1998年(第42回)“環境・循環”で京大原子炉の紀野智裕, 服部学, 篠原厚, 柴田誠一, 日大文理の小林貴之, 永井尚生, 東大原セの小林紘一は大気エアロゾル中の $^7\text{Be}$ ( $\gamma$ 線測定),  $^{10}\text{Be}$ (AMS測定)の1996年10-12月の日変動から, これらの上空(成層圏, 対流圏上部)から地表までの挙動を論じた。また, 日大文理の永井, 小林, 多田亘は前年に引き続き白鳳丸航海KH96-5(太平洋, インド洋)において大気, 海水(深度0-150 m)中の $^7\text{Be}$ ,  $^{10}\text{Be}$ を測定し, 先と同様の緯度分布と海水中滞留時間, 沈降速度を求めた。“放射化分析の応用”では, 都立大理の石井友子, 大浦, 海老原, 中原と東北大の大槻は, 隕石への応用例がなかった光量子放射化分析(PAA)を試みた。以前に中性子放射化に供したAllende試料でFe, Ni, Siを含む約20元素を定量し, PAAの有用性を示した。都立大グループは, Sk.A. Latifが大型・不定形の4つの石質と4つの鉄隕石をその形のままで即発 $\gamma$ 線分析(PGA)を試み, 既知のFe含量を標準にCo, Niの値を得た。日大文理の小林貴之らと都立大理の末木啓介, 海老原, 中原, 国立歴史民俗博物館の今村峯雄は, 1990年来の $^{97,98}\text{Tc}$ の半減期測定の第7報で, これまでの結果のうち,  $^{97}\text{Tc}$ は $(4.21 \pm 0.16) \times 10^6$  yの値を,  $^{97\text{m}}\text{Tc}$  (91.4 d)のIT・EC分岐壊変と共に, また $^{98}\text{Tc}$ について $10^6 - 10^7$  yの推定値を報告した。

- 1) M. Imamura, Y. Hashimoto, K. Yoshida, I. Yamane, H. Yamashita, T. Inoue, S. Tanaka, S. Ohba, N. Takaoka, Nucl. Instr. Meth. **B5**, 211 (1984).
- 2) K. Kobayashi, K. Yoshida, M. Imamura, H. Nagai, H. Yoshikawa, H. Yamashita, S. Okizaki, M. Honda, Nucl. Instr. Meth., **B29**, 266 (1987).
- 3) H. Nagai, T. Kobayashi, M. Honda, M. Imamura, K. Kobayashi, K. Yoshida, H. Yamashita, Nucl. Instr. Meth., **B29**, 254 (1987).
- 4) M. Imamura, H. Nagai, M. Takabatake, S. Shibata, K. Kobayashi, K. Yoshida, H. Ohashi, Y. Uwamino, T. Nakamura, Nucl. Instr. Meth., **B52**, 595 (1990).
- 5) S. Shibata, M. Imamura, H. Nagai, K. Kobayashi, K. Sakamoto, M. Furukawa, I. Fujiwara, Phys. Rev. C, **48**, 2617 (1993).
- 6) E. Kim, T. Nakamura, A. Konno, Y. Uwamino, N. Nakanishi, M. Imamura, N. Nakao, S. Shibata, S. Tanaka, Nucl. Sci. Eng., **129**, 209 (1998).
- 7) T. Kobayashi, H. Nagai, K. Kobayashi, Nucl. Instr. Meth., **B172**, 579 (2000).

## 2.2.5 第IV期 日本放射化学会設立以降

1999年(第43回, 日本放射化学会設立)では, “環境放射能”で, 日大文理の多田, 永井, 小林, 九大理の百島則幸, 北大院地球環境の村山雅史が共同して, 白鳳丸航海KH96-3(太平洋), KH96-5(太平洋-インド洋, 先年発表分), KH98-3(太平洋-オホーツク海)と海洋技術セ・みらいのMR98-05(太平洋)で採取の大気試料の $^7\text{Be}$ ,  $^{10}\text{Be}$ および $^{210}\text{Pb}$ を測定し, 詳細な( $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ )比の緯度分布を得た。この比が $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$ と相関しないことから,  $^{7,10}\text{Be}$ が陸源ではないこと, また南・北半球とも夏に高い値を示すという季節変化を見出した。この比が高いのは, 滞留時間の長い成層圏からの春先における流入によるとされた。次いで, 永井, 多田, 小林は, 宇宙線の陽子(p)と中性子(n)スペクトル(Solar minimum時の $\lambda=42^\circ$  Nでの観測値と計算値)と $p, n + N, O \rightarrow ^{7,10}\text{Be}$ の励起関数(推定値を含む)から大気中の $^7\text{Be}$ ,  $^{10}\text{Be}$ の生成速度を深度別に計算

し、成層圏・対流圏での滞留時間をパラメーターとして実測値を評価した。また金沢大 LLRL の小村和久は環境中性子を放射化法で測定することに成功し、半減期の異なる 11 核種の例を示した。特に  $^{198}\text{Au}$  について、各種の金で実証し、次いで飛行機搭乗時や海拔高度の異なる場所での中性子束および Cd 比を求めた。さらにニューヨーク-成田飛行時の食卓塩とキッチンフォイルに誘導の  $^{23}\text{Na}$  ( $n, \gamma$ )  $^{24}\text{Na}$  と  $^{27}\text{Al}$  ( $n, \alpha$ )  $^{24}\text{Na}$  で熱中性子 ( $0.22 \pm 0.05 \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ ) と速中性子 ( $0.66 \pm 0.15 \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ ) の予備値を得た。小村と A.M. Yousef は銀の  $^{108\text{m}}\text{Ag}$  (半減期 420 年) 汚染 (1960 年代) 問題を、環境中性子誘導反応の視点から、江戸時代から現代の各種銀製品を極低レベル LEPS で測定し、1950 年代の人工汚染と推定した。一方、小村、山本、小藤久毅、佐々木圭一は尾小屋低レベル測定での S/N 比改善や  $\beta$  線検出器の改善と、これによる雨水と琵琶湖堆積物中の宇宙線生成  $^{32}\text{Si}$  の  $^{32}\text{P}$  のミルキング法による測定を報告した。金沢大理の中西孝は、橋本有司、新中浩介、坂本浩と行った深海底堆積物中の天然  $^{244}\text{Pu}$  の探索実験を報告した<sup>1)</sup>。1971 年に D. C. Hoffman らが希土類鉱物中で発見したとされる  $^{244}\text{Pu}$  の起源について、1974 年に坂本が太陽系外宇宙塵による流入説を提唱、これを実証する試みで、1 kg の試料から化学収率 40 % で抽出された Pu の  $\alpha$  測定を 546 日間行い、期待値と矛盾しない上限値  $4.8 \times 10^{10} \text{ atoms/kg}$  を報告した。都立大グループは、 $^{98}\text{Tc}$  の半減期測定 (第 8 報) で、前年の報告値  $10^6 - 10^7 \text{ y}$  について、新たに  $(6.6 \pm 1.0) \times 10^6 \text{ y}$  との予備的結果を報告した。筑波大グループの AMS による  $^{36}\text{Cl}$  測定の改良と、九大と金沢大 LLRL グループによる九大 AMS の  $^{36}\text{Cl}$  測定の例 (ソ連核実験場試料) の報告もあった。

2000 年 (第 44 回) には、隕石中の宇宙線生成核種  $^{53}\text{Mn}$  の半減期の再検討が、都立大理の永峯隆行、大浦、海老原、日大文理の本田、科学博物館の米田成一によって開始されたことが報告された。 $^{53}\text{Mn}$  による宇宙線照射年代や隕石の大気圏突入前のサイズ決定がなされ、近年では初期太陽系の時計として  $^{53}\text{Mn}$ - $^{53}\text{Cr}$  時計が注目されている。この間、本田 (1971) の値  $(3.7 \pm 0.4) \times 10^6 \text{ y}$  が使われてきたが、他の放射能時計による結果との間に違いが見られることから、測定法の進歩に応じた値を期待した。都立大理の仲本朝嗣、Sk.A. Latif、大浦、海老原は隕石中のハロゲン (F, Cl, Br, I) を同時定量するため放射化学分離を伴う光量子放射化法を、Allende 隕石、火成岩標準 JR-L、堆積岩標準 D-41-7 を用いて、特に照射中の揮散に注意して検討した。

2001 年 (第 45 回) は、APSORC-2001 と同時開催で、APSORC では、日大文理の永井が過去 20 年の東京降雨中の  $^7\text{Be}$  と  $^{10}\text{Be}$  をまとめ、季節変動、太陽黒点との関係を論じ、 $^7\text{Be}$  は主に対流圏、 $^{10}\text{Be}$  は主に成層圏で生成するとした。名大年代測定センターの中村俊夫らは、1983 年来の名大 AMS と 1996-7 年に更新のタンデトロンによる  $^{14}\text{C}$ -AMS の測定の状況を紹介した<sup>2)</sup>。また、前年紹介された都立大理グループによる  $^{53}\text{Mn}$  の半減期再測定では、化学処理した Canyon Diablo 隕鉄試料では  $^{53}\text{Mn}$  濃度が低い部分を用いて、さらに ALH77250 隕鉄を用いて再挑戦中との報告がなされた。従来 of 討論会 (年会) のセッションでは、日大文理の多田亘、永井、松村宏が、白鳳丸航海 KH00-03 (北西太平洋) で採取のエアロゾルと海水 (深度: 0 - 500 m) 中の  $^7\text{Be}$ 、 $^{10}\text{Be}$  濃度を報告した。金沢大理の木下哲一と中西孝は太陽系外起源の宇宙塵中の  $^{146}\text{Sm}$  の探索 (1999 年中西報告、 $^{244}\text{Pu}$  探索参照) に関連して  $^{146}\text{Sm}$  と  $^{147}\text{Sm}$  の半減期の再測定を行ってきた結果、後者については、1970 年来使われてきた  $1.06 \times 10^{11} \text{ y}$  ではなく  $(1.23 \pm 0.05) \times 10^{11} \text{ y}$  を得たと報告した。

2002 年 (第 46 回) では、金沢大理の木下、中西、横山明彦は、前年の  $^{147}\text{Sm}$  半減期について、さらに測定を継続した結果、 $(1.17 \pm 0.02) \times 10^{11} \text{ y}$  を報告した<sup>3)</sup>。都立大理、科学博物館、日大文理のグループが行ってきた  $^{53}\text{Mn}$  の半減期の見直しでは、新しく  $3.0 \times 10^6 \text{ y}$  (相対誤差 5 %) を得た。東大 MALT および筑波大の AMS による  $^{36}\text{Cl}$  の測定の状況 ( $^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl} \approx 10^{-13} - 10^{-14}$  で 10 % の精度)<sup>4)</sup> がそれぞれ報告された。金沢大 LLRL の小村と浜島靖典は 7 年目となる尾小屋地下測

定室にセットされている検出器の特性の現状を報告した<sup>5)</sup>。

2003年(第47回)においては、東大 MALT での  $^{36}\text{Cl}$  の AMS 測定で、 $^{36}\text{S}$  との分離がさらに改良された経過が報告された。京大原子炉の奥田康博、佐々木隆之、高宮幸一、沖雄一、柴田誠一、東大原セの松崎浩之は、1964 年来東大核研の田中重男らが数 10 kg という大量の硅岩試料から宇宙線  $\mu^-$  粒子で生成する  $^{26}\text{Al}$  の探索を行い、1975 年に有意の結果を出したものと同一場所の試料(地表、地下 1.0 m, 4.5 m)を採取し、0.5 – 1.5 g の硅岩から Al を化学分離して得た  $\text{Al}_2\text{O}_3$  について AMS で ( $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ ) 比を、中性子放射化分析で  $^{27}\text{Al}$  を定量し、1975 年の値を再確認し、かつ深度プロファイルを得た<sup>6)</sup>。特別講演で京大理の西川公一郎が「ニュートリノ振動実験の現在と今後」について紹介し、また、国立歴史民俗博物館の今村峯雄は「AMS による炭素 14 年代測定と考古学・歴史学への応用—現状と展望」を紹介した。

2004年(第48回)では、金沢大 LLRL の浜島と小村は、二次宇宙線の中性子の水中深度分布(淡水と海水 ~ 2 m)を、彼らが開発した 15 – 27 g の金板の放射化で初めて測定し、指数関数的減少を観測した。また、同所の桑原雄宇、田中究、村田祥全、井上睦夫、小村は、30 – 50 l の降水試料からの迅速化学分離(陽・陰イオン交換樹脂吸着)で、宇宙線誘導短寿命核種、 $^{24}\text{Na}$  ( $T_{1/2} = 14.96$  h),  $^{28}\text{Mg}$  (20.9 h),  $^{38}\text{S}$  (170.3 m),  $^{38}\text{Cl}$  (37.2 m),  $^{39}\text{Cl}$  (55.6 m) の測定を行い、 $^7\text{Be}$  と比較して雨源高度の情報を得ようとした。金沢大院自然の木下哲一、橋本知典、横山、中西は、都立大理の天川裕史、阪大理の高橋成人と共同し、2001 年の報告と同じ目的で 96 % 濃縮  $^{147}\text{Sm}$  の 50 MeV 制動放射線照射で  $^{146}\text{Sm}$  を、21 MeV 陽子照射で  $^{146}\text{Eu} \rightarrow ^{146}\text{Sm}$  を生成し、 $^{146}\text{Sm}/^{147}\text{Sm}$  の放射能比を  $\alpha$  測定で、原子数比を質量分析で求め、この時点で  $^{146}\text{Sm}$  の上限半減期  $1.4 \times 10^9$  y を得た。日大院総合基礎科学の藤原らは、東大 MALT での  $^{32}\text{Si}$  の AMS 開発状況報告を行った。

2005年(第49回)では、金沢大院自然の佐藤優子、木下哲一、横山、中西、日大院総合基礎科学の山形武靖、永井と共同で、1999 年に中西が報告した  $^{244}\text{Pu}$  探索の基礎として太平洋の水深 1551 m から採取のマンガン団塊(表面積 420  $\text{cm}^2$ , 厚さ 4.5 cm)の 5 mm スライス試料から Be, Th, Pa, U, Pu を分離し、 $^{10}\text{Be}$  (AMS 測定)、および  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{231}\text{Pa}$  ( $\alpha$  測定)の深度分布から成長速度 2.3  $\text{mm}/10^6$  y を求め、核実験起源の  $^{239,240}\text{Pu}$  は第 1 層 0 – 0.5 cm に大部分があり、 $^{244}\text{Pu}$  探索には 0.5 cm より深い部分が適当であることを見出した。日大院総合基礎科学の吉田忠英、南理絵、山形武靖、永井、斎藤敬、東大院工の松崎浩之は白鳳丸航海 KH003 (BO:2000) と KH03-1 (HY:2003) の北部太平洋採取のマルチプルコアを 1 cm 間隔で切り分け、 $^{10}\text{Be}$  (AMS 測定) と  $^{230}\text{Th}$  ex. ( $\alpha$  測定)の深度分布 0 – 30 cm を得た。ex.  $^{230}\text{Th}$  から得た堆積速度は 0.4 – 3.0  $\text{mm}/\text{kyr}$  で、 $^{10}\text{Be}$  濃度一定のコアと 7 cm 以深で減少のコアがあり、後者は蛍光 X 線分析で組成変化を観察し、 $^{10}\text{Be}$  フラックスの変動ないし堆積環境変化の可能性を指摘した。特別講演で東北大院理の鈴木厚人が「カムランドが切り開くニュートリノ科学の世界」と題して最新の成果を紹介した。

- 1) M. Paul, A. Valenta, I. Ahmad, D. Berkovits, C. Bordeanu, S. Ghelberg, Y. Hashimoto, A. Hershkowitz, S. Jiang, T. Nakanishi, K. Sakamoto, *Astrophys. J.*, **558**, L133 (2001).
- 2) T. Nakamura, E. Niu, H. Oda, A. Ikeda, M. Minami, T. Ohta, T. Oda, *Nucl. Instr. Meth.*, **B223-224**, 124 (2004).
- 3) N. Kinoshita, A. Yokoyama, T. Nakanishi, *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, **4**, 5 (2003).
- 4) Y. Nagashima, R. Seki, T. Matsuihiro, T. Takahashi, K. Sasa, K. Sueki, M. Hoshi, S. Fujita, K. Shizuma, H. Hasai, *Nucl. Instr. Meth.* **B223-224**, 782 (2004).
- 5) K. Komura, Y. Hamajima, *Appl. Radiat. Isotopes*, **61**, 184 (2004).

- 6) S. Shibata, Y. Okuda, K. Takamiya, Y. Oki, T. Sasaki, H. Matsuzaki, K. Sakamoto, J. Nucl. Radiochem. Sci., 7, 33 (2006).

以上、放射化学討論会で発表された宇宙・地球核化学に関連した研究報告の50年を回顧したが、この間、日本で開催され、この分野の研究者が関与した国際学会を参考として以下に掲げる。

- (1) 16<sup>th</sup> Int. Cosmic Ray Conf., Kyoto (1979年8月)
- (2) 5<sup>th</sup> Int. Conf. Geochronology, Cosmochronology, Isotope Geology, Nikko (1982年6-7月)
- (3) 1<sup>st</sup> China-Japan Joint Symp. Geochronology, Cosmochronology, Isotope Geology, Hakone (1989年3月)  
(2<sup>nd</sup> China-Japan Joint Symp. は、中国広州で、1991年1月に開催)
- (4) 2<sup>nd</sup> Japan-USSR Symp. Isotope Geology, Tokyo (1991年6月)  
(1<sup>st</sup> Japan-USSR Symp. Isotope Geology は、Irukutsk,USSRで、1987年6月に開催)
- (5) Todai Int. Symp. Cosmochronology, Isotope Geoscience, Tokyo (1996年1月)

## 2.3 ホットアトム化学

放射化学討論会50年のうち、はじめの30～40年は放射化学において隆盛を極めたホットアトム化学の研究も、それ自体を研究対象としたアクティビティは今日では低下しているようである。しかし、原子核転換に伴い生成した高エネルギー状態原子の化学の本質に肉迫しようとした、さまざまな角度からのアプローチにおいて編み出された、考え方・手法は現在静かに、そして確かに他分野に波及し発展している。本節から、その部分についても読み解いていただければ望外の喜びである。ホットアトム化学の研究は多岐にわたるため、分類することは難しいが、あえて単純に気相・液相・固相に分けることにした。また、メスbauer分光学については別の場所(2.6.1)で述べられるが、特に研究の発端にはホットアトム化学との関連が強いため、発光メスbauerはこの章で述べることにする。

### 2.3.1 ホットアトム化学の流れ

(富永 健)

ホットアトム化学(反跳化学)は、核変換に伴って大きな反跳エネルギーや高い電荷を得た原子や、それによって励起された化学種の挙動を研究する放射化学の分野である。

一般にホットアトムのもつエネルギーは、化学結合よりもずっと大きいため、通常の化学反応とは異った反応で特異な生成物を生ずることがある。これを、高比放射能のRIや標識化合物の製造に利用する応用的な研究と、ホットアトムの関わる高い励起状態の化学反応自体が対象となる基礎的研究が、ともに当初からスタートすることになった。最盛期には、放射化学討論会の発表件数の1/3近くをホットアトム化学関連の研究が占めるほど(1970年前後)重要な分野であった。

これは、ホットアトム化学が核変換の物理的側面よりも化学的な効果の面に着目するため、化学者の関心を引き易かったためであろうか。また当初は、通常の放射化学的な分離手法が主に分析で用いられ、高価な最新の分析・測定機器が必ずしもなくても、着想さえ優れていれば興味深い成果が得られたので、多数の研究グループの参加が容易であったのである。

しかし、ホットアトム化学の進展につれて、反跳エネルギーが巨大すぎることで、近傍での放

射線効果もあって凝縮相（とくに固相）での反応を複雑化させ、メカニズムの解析を難しくさせた。従来の放射化学的分析法（多くは溶解を伴う湿式法）では、固相でのホットアトム反応の初期像を明らかにするのは困難ではないかという懸念が生じることとなった。そこで、核変換の種類を変えて反跳エネルギーなどによる差異を比較検討したり、固相内の環境や分離分析手法に新たな工夫を試みたり、さらに原子核プローブ（たとえばメスバウアー分光法）を導入して初期状態の直接的な情報を求めるなどの方向にホットアトム化学は向かうこととなる。

このように、近年ホットアトム化学は当初の輝きを失って低迷期に入っているように見える。しかし、この50年間の日本の放射化学研究の歴史をふりかえてみると、とくに前半の戦後まもない研究費や設備の乏しい時代には、多くの研究室でホットアトム化学が活動の柱となって放射化学研究を支えてきたことは明らかで、研究面のみならず若い放射化学者を育てるといった教育的な面でも大きな役割を果たしてきたといえよう。

日本のホットアトム化学研究は、国内ばかりでなく海外からも高い評価を受けてきた。この分野での代表的な国際会議には「国際ホットアトム化学シンポジウム」があるが、そのうち第4回（1967年）、第13回（1987年）の2回にわたり日本で開催されているのもホットアトム化学の分野におけるわが国の国際的な地位を物語っている。これらについては後で詳しく述べるが、わが国のホットアトム化学研究が海外で初めて注目を集めたのは、実はそれ以前にIAEA（国際原子力機関）が主催したシンポジウムにおいてであった。そこで、国内で開催されたものではないが、このIAEAのシンポジウムについてまず簡単に紹介しておく。

IAEA主催の「核変換の化学的効果に関するシンポジウム」は、G. HarbottleとA. P. Wolfが提案し、A. G. MaddockがScientific Secretaryとなって、1960年10月チェコスロバキアのプラハ（プラハ）で開催され、200名を超える参加者があったが、わが国からの出席者は斎藤信房教授（東大）のみであった。シンポジウムでは、ホットアトム化学の理論から気相・液相・固相での反応、応用ホットアトム化学までさまざまな問題にわたって活発な討論が行なわれた。気相では、すでにチャージスペクトロメータによって核変換で生じたホットアトムの荷電スペクトルがしらべられており、固相では錯塩を対象とした研究が盛んでアニーリングの研究もはじまっていた。日本からの東大斎藤グループのコバルトアンミン錯塩およびヒ酸塩の反跳化学に関する2編の論文と、日本原子力研究所の中井敏夫らの核分裂片の反跳を利用する短寿命アイソトープの製造というすぐれたアイデアの研究（斎藤教授が代読）は、いずれも大きな関心をよび、とくにコバルトアンミン錯塩における臭素ホットアトムの配位子置換反応の研究（2.3.4参照）は、Harbottleらから高い評価を得た。4年後の1964年12月ウィーンでこのシリーズ第2回のIAEAシンポジウムが開催されたが、当時主催者側IAEAのアイソトープ部長であった斎藤教授以外には日本からの参加者はなかった。

さて、本稿（2.3.1）では、研究者の活動・人的交流などを通してわが国のホットアトム化学の流れをながめることになっているので、日本で開催された前記2回の国際ホットアトム化学シンポジウムのあらましを以下に紹介する。またその間に（1973年）わが国で開催された日米科学協力セミナー「放射化学的手法およびその応用における最近の進歩」では、ホットアトム化学を含む放射化学の広い領域で、初めて日米の主要な研究者間の組織的な研究交流が行なわれ、これがその後30年余にわたる両国放射化学者の研究協力、とりわけ人的交流の途をひらく出発点ともなったので、それについてもふれておきたい。

「国際ホットアトム化学シンポジウム」は、ホットアトム化学およびその関連分野（放射線化学、生物学、核医学、放射薬品学など）で最も重要な国際会議で、1959年に始まり、1987年の



第13回まで不定期に開催されて来た(表2-1)。その後は研究者人口の減少もあって中断されたままとなり、再開の動きはない。シンポジウムの開催地(国)や時期など運営方針をきめるのは、国際組織委員会(常置委員会)である。最初の委員会のメンバーは手もとに資料がないので、最も新しい第13回当時(1987年)の委員のリストを示しておく(表2-2)。

1967年、斎藤信房教授がわが国のホットアトム化学の研究者に呼びかけて Japanese Hot Atom Chemistry Group 主催という形で、第4回の国際ホットアトム化学シンポジウムを京都に誘致した。このときシンポジウム事務局として運営に参画したのは、主宰者斎藤教授のほか、藤永太一郎(京大)、岩田志郎(京大原子炉)、奥野久輝(立大)、柴田長夫(原研)、重松恒信(京大)、品川睦明(阪大)、谷野孝一(理研)、吉原賢二(原研)である。会議は1967年10月11日から13日まで洛北の京都国際会議場において開催され、約60件の発表が行われた。

シンポジウムの参加者には、国内の主要な研究者のほかに、海外からも S. Wexler, L. Lindner, A. P. Wolf, F. Baumgärtner, A. G. Maddock, K. H. Lieser, J. P. Adloff, R. Wolfgang, W. Herr, F. S. Rowland, H. J. Ache などこの分野を推進していた人々のなつかしい名前が見える。筆者(富永健)はちょうど在米中で参加しなかったため個人的な印象をのべることは出来ないが、講演要旨からは、気相から固相までさまざまな系で当時上り坂にあったホットアトム化学研究の世界的な活気が読みとれる。

1970年代には、気相におけるホットアトム反応の理論的な考察や、凝縮相においてもさまざまな反応モデルが提案されるなど、世界のホットアトム化学研究はすでにピークに達していた。一方、とくに固相でのホットアトム反応を十分に理解するためには、従来の固有の実験手法だけでは限界があることがわかり、固体内の状態をもっと直接的にとらえる物理的プローブの必要性が認識されるようになった。

また、当時のホットアトム化学は、核医学、核融合などエネルギー関連分野や、宇宙・地球化学などの周辺領域に学際的な拡がりを見せていた反面、基礎研究としての方向は転換期を迎え、核変換ばかりでなくレーザーなどの励起手法で作られ出した励起原子・分子としての新たな展開が求められるようになったのである。

このような展望の下に、筆者は第13回のシンポジウムを日本で開催することを提案し、第12回シンポジウム(1982年、ハンガリー)の際に次回は日本で開催と正式に決定した。

第13回国際ホットアトム化学シンポジウムは、1987年5月24日から29日まで山梨県山中湖畔のホテルマウント富士で開催された。京都の第4回シンポジウムからちょうど20年であった。このシンポジウムは、従来の気相・凝縮相のホットアトム化学や上記のような応用分野の研究に加えて、とくに「レーザーによるホットアトム化学」を重要な分野としてとりあげ、物理化学分野の第一線の研究者を招いてレーザー化学とホットアトム化学の交流を図り、今後のホットアトム化学を「開かれた領域」とする一つの方向性を打ち出した意欲的な試みであった。シンポジウムには19ヶ国から約140名(うち海外から約50名)が参加し、約120件の講演が行なわれた。

基調講演は、F. S. Rowland が “Intramolecular energy and atom transfer following energetic or thermal reactions of monovalent radioactive atoms” と題して  $^3\text{H}$ ,  $^{18}\text{F}$ ,  $^{38}\text{Cl}$  などの放射性ホットアトムの反応における分子内のエネルギーや原子移動について述べ、また Y. T. Lee (1986年ノーベル化学賞受賞) が “Molecular beam studies of hot atom reactions” と題して、核変換によらないでレーザーや分子ビームなどの手法を用いた気相ホットアトムの反応の機構について講演を行っている。

気相ホットアトム化学、有機凝縮系ホットアトム化学、無機ホットアトム化学、レーザー誘起によるホットアトム化学、応用ホットアトム化学、ミュオニウム・ポジトロニウム化学、エネルギー関連研究およびアクチニド化学などのセッションが設けられ、期待したように気相ホットア

トム化学とレーザー化学の接点には物理化学者からの関心も高かった。このほか、中間子化学とホット原子化学の接点としてトリチウムとミュオニウムにおける水素ホット原子反応の比較や、宇宙における有機分子の生成・化学進化でのホット原子過程の役割などの新しいトピックスも注目された。主要な招待講演者は J. P. Adloff, 安部文敏, K. Berei, G. R. Choppin, D. Fleming, P. Gaspar, P. Gülich, 篠野嘉彦, D. Hoffman, 井戸達雄, 伊藤泰男, 小谷野猪之助, S. Leone, L. Lindner, B. Myasoedov, 永嶺謙忠, 中原弘道, E. P. Rack, K. Rössler, L. Spicer, G. Stöcklin, M. Welch, A. P. Wolf などホット原子化学ばかりでなく、核医学, 放射化学, 物理化学など広い分野にわたっており、関連分野にひらかれたいわば「拡大ホット原子化学シンポジウム」とも云うべきこの国際会議の性格をよく反映している。

会議の中日には、バスで箱根方面へのエクスカージョンが行なわれ、参加者は京都(第4回)とはまた異なった日本の風景美や芦ノ湖に臨む箱根プリンスホテルでの昼食パーティを楽しんだ。また会議場での富士山を背景にした記念(集合)写真には、とくに海外からの参加者のため当日の天候では実は見えない筈の富士山が写っている合成写真も用意されて好評(?)であった。

第13回の国際ホット原子化学シンポジウムは、このようにわが国と世界のホット原子化学研究に新しい展望をひらき、またわが国の放射化学の一層の活性化に役立つように開催されたが、次の開催国(米国)で第14回への準備が進まず、以来中断されたままになったのは残念なことである。

時はややさかのぼるが、1971年ブルックヘブン(米国)で開催の第6回シンポジウムの際に、F. S. Rowland, A. P. Wolf, 斎藤信房など日米の放射化学者の間で、放射化学のさまざまな領域における日米の組織的な研究協力や交流を促進するために日米科学協力セミナーを開催することが合意された。こうして日本学術振興会およびNSFの主催のもとに、日米セミナー「放射化学的手法およびその応用における最近の進歩」が1973年11月5日～9日、神奈川県大磯町の大磯ロングビーチホテルで開かれた。

日米セミナーの参加者は、日本側が代表者木村健二郎東大名誉教授をはじめ、濱口博(東大)、池田長生(東教大)、木越邦彦(学習院大)、野崎正(理研)、斎藤信房(東大)、坂上正信(金沢大)、佐野博敏(都立大)、品川睦明(阪大)、塩川孝信(東北大)、立川圓造(原研)、富永健(Chief Scientific Secretary; 東大)、安部文敏(理研)、本田雅健(東大)、石森富太郎(原研)、岩田志郎(京大原子炉)、神原富尚(静岡大)、小山睦夫(京大)、工藤冽(電々公社)、本島健次(原研)、村上悠紀雄(都立大)、関根達也(理科大)、八木益男(東北大)、また米国側が代表者 F. S. Rowland 教授(University of California, Irvine) 以下 G. R. Choppin (Florida State University), R. H. Herber (Rutgers University), G. W. Reed, Jr. (ANL), H. E. Suess (University of California, San Diego), A. P. Wolf (BNL), L. A. Haskin (NASA) の合計30名であった。

このセミナーでは、放射化学研究の歴史的背景にはじまり、放射化学的分離・年代決定およびその他の地球化学的応用・放射化分析・核医学への応用・ラジオガスクロマトグラフィー・ホット原子化学・メスバウアー効果などの主題についてその最新の研究の現状や今後の課題に関する情報と意見の交換が行なわれた。また今回は異なった専門の放射化学者が一堂に会して討議に参加した結果、通常の単一分野の学会では実現の難しい関連分野間の横断的な交流・連携と相互理解を深める上で著しい成果があり、今後の研究の発展に大きな刺激となった。事実、それまでは日米の交流は主に個人的レベルにとどまっていたが、これ以降は組織的な研究協力や人的交流が大いに促進されて今日に至っている。日本の放射化学研究の発展に少なからぬ寄与があったといつてよいであろう。なお、このシリーズの第2回の日米セミナー「放射化学的手法のライフサ

イエンスにおける応用の最近の進歩」は9年後の1982年6月カリフォルニア大学で開催され（米国側代表者 F. S. Rowland, A. P. Wolf；日本側代表者 富永 健），ライフサイエンスや環境への応

表 2-2 国際ホットアトム化学シンポジウムの開催年次と開催地

第 1 回	(1959)	: University of Louvain, Louvain-la-Neuve, Belgium
第 2 回	(1963)	: Institute of Nuclear Physics Research, Amsterdam, Netherlands
第 3 回	(1966)	: Purdue University, Lafayette, Indiana, USA
第 4 回	(1967)	: Kyoto International Conference Hall, Kyoto, Japan
第 5 回	(1969)	: Cambridge University, Cambridge, United Kingdom
第 6 回	(1971)	: Chemistry Department, Brookhaven National Laboratory, Upton New York, USA
第 7 回	(1973)	: Institute for Nuclear Chemistry, Atomic Research Center, Julich, FRG
第 8 回	(1975)	: University of Louvain, Louvain-la-Neuve and Spa, Belgium
第 9 回	(1977)	: Virginia Polytechnic Institute and State University, Blacksburg, Virginia, USA
第 10 回	(1979)	: Loughborough University of Technology, Loughborough, United Kingdom
第 11 回	(1982)	: University of California, Davis, California, USA
第 12 回	(1984)	: Central Research Institute for Physics, Budapest and Balatonfured
第 13 回	(1987)	: Hotel Mt. Fuji, Yamanaka-ko, Japan

表 2-3 第 13 回国際ホットアトム化学シンポジウム国際組織委員会  
International Organizing Committee  
(13<sup>th</sup> IHACS, Mt. Fuji, May 24-29, 1987)

H. J. Ache	(FRG)
J. P. Adloff	(France)
D. Apers	(Belgium)
K. Berei	(Hungary)
S. Bulbulian	(Mexico)
P. Gaspar	(USA)
L. Lindner	(Netherlands)
A. G. Maddock	(UK)
D. J. Malcolm-Lawes	(UK)
B. F. Myasoedov	(USSR)
J. W. Root	(USA)
F. S. Rowland	(USA)
H. Sano	(Japan)
G. Stöcklin	(FRG)
T. Tominaga, Chairman	(Japan)
A. P. Wolf	(USA)
Liu Yuang Fang	(China)

注) このシンポジウムのシリーズに先立って、1948年米国ブルックヘヴン国立研究所（BNL）において R. W. Dodson らが、"Chemical Effects of Nuclear Transformations" という研究集会を開催した。A. P. Wolf は、これを「ホットアトム化学」という分野の幕あけとしている。

用という新しい展開にやや特化したものとなった。

余談であるが、この1973年秋の日米セミナーの際、コーヒーブレイクに Rowland 教授が「最近 postdoctorate の研究員に大気中のクロロフルオロカーボンの挙動を研究させている」と筆者に耳うちしたが、これが翌1974年にクロロフルオロカーボンによる成層圏オゾン層破壊として発表され、いわゆる地球環境問題のさきがけとなり、1995年のノーベル化学賞受賞にまで発展したことを思うと感慨深いものがある。因みに、この研究員とは共同受賞者の M. J. Molina 博士のことである。



13th International Hot Atom Chemistry Symposium, May 24-29, 1987

### 2.3.2 気相のホットアトム化学

(佐伯 正克)

放射化学討論会で「気相のホットアトム化学」の研究成果が報告されたのは、1959年(3回)における、F. S. Rowland 教授(当時 Kansas 大学)による特別講演「Tritium Chemistry」であったと推測される。しかし、当時の要旨集に、Rowland 教授の講演要旨は収録されておらず、その内容を知ることは出来ない。なお、この討論会では、留学から帰国した神原富尚により、気相と液相における反跳トリチウムと水との反応に関する研究成果(Recoil tritium reactions with water (神原富尚: 静岡大, F. S. Rowland))が発表されたが、要旨には気相における反応の定量的結果は記載されていない。1962年には、理研の田中穰による「有機物のホットアトム化学」と題した特別講演が行われたが、やはり要旨は収録されていない。

1963年に、塩川孝信・佐藤敏郎・伊沢郡蔵(東北大理)により、「有機ハロゲン化合物における( $\gamma$ , n)反応の化学的効果」が報告された。この研究自体は液相関連であるが、その後臭素の気相におけるホットアトム化学は非常に活発に行われるようになり、その魁となった研究といえるであろう。1964年には、やはり液相における研究であるが、同研究室の伊沢および近藤健次郎により、

臭素およびヨウ素の (n, 2n) 反応の結果が報告され、その後、さらに (n,  $\gamma$ ) 反応や  $^{80m}\text{Br}$  の核異性体転移による反跳臭素に拡張され、1967年まで毎回1ないし2の発表が続けられた。

1968年に初めて「気相中における  $^{82m}\text{Br}$ (I.T.)  $^{82}\text{Br}$  の化学的効果」と題する研究が立川圓造・岡本次郎(原研)により発表された。 $\text{CH}_4$  との反応では、生成物として  $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$  と  $\text{CH}_2^{82}\text{BrBr}$  を確認し、前者は強いモデレーター効果を示すことから、主にホット臭素の水素置換反応により生じており、後者は主に核異性体転移時に生成する多価臭素イオンが  $\text{Br}^+$  まで中和された段階で、熱イオン反応により、まず  $(\text{CH}_4^{82}\text{Br})^+$  を生成し  $\text{CH}_2^{82}\text{Br}$  ラジカルと臭素の反応を経て生成するのであろうと結論している。さらに  $\text{CH}_3\text{Br}$  と反跳  $^{82}\text{Br}$  の反応を調べ、主生成物は  $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$  と  $\text{CH}_2^{82}\text{BrBr}$  であり、両生成物ともに主にホット反応で生成していること、後者の生成機構が  $\text{CH}_4$  系と異なるのは、系のイオン化電圧が  $\text{CH}_4$  系に比べ低いためであると結論した。この会では、特別講演としてモスコウ大学の B. G. Dzantiev 教授による「ソ連におけるホットアトム化学の現状」が報告されているが、要旨集に予稿の収録が無く、内容を知りえない。

1969年には八木益男(東北大核理研)により、「メタン中における  $^{130m}\text{I}$  (9.2分) IT 壊変の化学的効果」が報告された。Wisconsin 大の J. E. Willard 教授のもとで行われた成果であり、 $^{130m}\text{I}$  の核異性体転移と  $^{127}\text{I}$  (n,  $\gamma$ )  $^{128}\text{I}$  反応で生ずる反跳ヨウ素原子の反応性を比較し、有機収率は親物質が  $^*\text{II}$  (ヨウ素) 系では (n,  $\gamma$ ) 反応系の方が大きく、 $^*\text{IH}$  (ヨウ化水素) 系では核異性体転移系の方が大きいと報告した。立川らは「気相中における反跳  $^{80}\text{Br}$  とエタンとの反応」を発表し、 $^{80m}\text{BrBr}$  の核異性体転移による反跳臭素の生成物は  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ 、 $\text{C}_2\text{H}_5^{80}\text{Br}$  および  $\text{CH}_2^{82}\text{BrBr}$  であり、いずれもキセノンの添加により収率が減少していくがモデレーター 1.0 モル分率 (mf) でもゼロに外挿されず、ホット反応の他にイオン分子反応が寄与していると結論した。

1970年になると、気相のホットアトム反応の研究は更に活発となった。東北大の塩川研究室が、 $^{80m}\text{Br}$  の核異性体転移による反跳臭素の気相における研究を開始し、原研の研究も本格化してきた。小林孝彰(東北大理)らは、親物質  $\text{H}^{80m}\text{Br}$  の核異性体転移による反跳臭素と  $\text{CH}_3\text{Br}$  の反応を調べ、主な生成物は  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$  と  $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$  であるが、 $^{80m}\text{BrBr}$  の系と異なり両生成物ともに主にホット反応以外の機構により生成していると報告した。近藤らは反応物質を  $\text{CH}_4$  に変えて研究し、親物質が  $\text{H}^{80m}\text{Br}$  の場合にはやはりホット反応以外の機構が主反応であり、 $^{80m}\text{BrBr}$  の系より反跳エネルギーが低い為であると結論している。立川らは、親物質  $^{80m}\text{BrBr}$ 、反応物質  $\text{C}_3\text{H}_8$  の系について調べ、生成物が  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ 、 $\text{C}_2\text{H}_5^{80}\text{Br}$ 、 $i\text{-C}_3\text{H}_7^{80}\text{Br}$ 、 $n\text{-C}_3\text{H}_7^{80}\text{Br}$  および  $\text{CH}_2^{82}\text{BrBr}$  であり、モデレーター効果からいずれもホットアトム反応で生じ、また圧力効果から  $^{80}\text{Br}$  for sec-H の反応は  $^{80}\text{Br}$  for prim-H 反応より低エネルギー側で起こっていると結論した。

1971年には、特別講演として吉原賢二(東北大理)により「ブルックヘブン国際ホットアトム化学会議に出席して」が企画されたが、要旨の記録は無い。沼倉研史・佐伯正克・立川(原研)は、 $^{80m}\text{BrBr}$  からの反跳  $^{80}\text{Br}$  と  $\text{CH}_4$  との反応における、イオン分子反応による生成物に対する結果が東北大学グループの結果と異なるのは、モデレーターの高濃度側における臭素濃度の差に起因すると考え、Kr 濃度 0.8mf で臭素濃度を変化させて実験した。 $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$  に関しては、Kr 濃度 0.8mf 以上で収率がほぼ一定になり、ホットアトム反応のみで生成しているのではなくイオン分子反応も寄与していること、 $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$  については、熱イオン反応が主反応であると結論した。沼倉と立川は、 $^{80m}\text{BrBr}$  からの反跳  $^{80}\text{Br}$  と  $\text{C}_3\text{H}_8$  との反応における、 $\text{C}_3\text{D}_8$  などとの同位体効果を炭素-水素結合との関連から調べ、生成物収率に基づく同位体効果の大きさは、C-H/C-D が 1.4 程度であること、炭素-炭素結合切断には同位体効果は認められないこと、さらに、 $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$  に対する同位体効果は、 $\text{CH}_2^{80}\text{Br}$  ラジカルを生じる際に起こる炭素-水素結合解離に対する同位体効果に

に基づいていることを示した。八木, 近藤らは, 反跳  $^{80}\text{Br}$  と  $^{82}\text{Br}$  でモデレーター効果に差が生ずる場合があることから, 前者には第2ステップの半減期 7.4ns の 37keV レベルからの内部転換過程があり, これが化学的に作用している可能性があると考え,  $^{80\text{m}}\text{BrBr}$  からの反跳  $^{80}\text{Br}$  と  $\text{CH}_3\text{Cl}$  との反応を調べた。その結果,  $^{80\text{m}}\text{Br}$  の第1ステップ生じた反跳臭素は  $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$  または単原子状態で存在し, 第2ステップの内部転換する 61% の大部分は, その状態で特異的な反応性を与えられる可能性が強いことを示唆した。さらに, 佐伯, 沼倉, 立川は,  $(n, \gamma)$  反応で生ずる反跳  $^{80}\text{Br}$  と  $\text{CH}_4$  および  $\text{CD}_4$  の反応を研究し, 生成物は核異性体転移で生ずる反跳臭素の反応系と同じであり,  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$  と  $\text{CD}_3^{80}\text{Br}$  の収率から得た同位体効果は約3であるが, 臭化メチレン ( $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$  と  $\text{CD}_2^{80}\text{BrBr}$ ) 間の同位体効果が非常に小さいこと, 臭化メチルの収率が核異性体転移系に比べ非常に大きいのは反跳エネルギーの差に起因すること, 臭化メチレンには核異性体転移系のような Kr 高濃度側での付加的生成が無く, 反跳臭素生成時の電荷の差に起因していることなどを報告した。

1972年には, 気相ホットアトムセッションが設けられた。富永健・岩田錬・巻出義紘(東大理)はフレオンと反跳  $^{82}\text{Br}$  の反応を,  $\text{CF}_2\text{Cl}_2$ ,  $\text{CFCl}_3$  および  $\text{CF}_2\text{ClCF}_2\text{Cl}$  を反応物質として研究し,  $^{82}\text{Br-for-Cl}$  は起こり易いが  $^{82}\text{Br-for-F}$  は起こり難いこと, 反跳  $^{82}\text{Br}$  による C-C 結合切断も起こりやすいことを見出した。また, フレオンの放射線分解はホットアトム反応の起こりやすい結合においてやはり起こり易く, ホットアトム反応と相補的關係にあることを示唆した。伊沢郡蔵ら(東北大理)は,  $\text{C}_2\text{H}_5^{80\text{m}}\text{Br}$  を合成し, 核異性体転移に伴う分解過程を調べ, 生成物は  $\text{CH}_2\text{BrCH}_2^{80}\text{Br}$  および  $\text{CH}_2\text{CH}^{80}\text{Br}$  であり, 主にイオン分子反応で生成していることを示した。近藤らは,  $\text{CH}_4$  と  $^{80\text{m}}\text{Br}$  および  $^{82\text{m}}\text{Br}$  の反応を親分子が臭素および  $\text{HBr}$  系で調べ, 臭素系ではホット反応で生じる  $\text{CH}_3^*\text{Br}$  の収率に大きな差は認められなかったが, 熱イオン反応で生ずる  $\text{CH}_2^*\text{BrBr}$  の収率は  $^{80\text{m}}\text{Br}$  系が高いこと, および  $\text{H}^*\text{Br}$  系では臭素の親核種に依存せず有機収率はほぼ同じであるが, 生成物の収率は臭素系と異なり  $\text{CH}_2^*\text{BrBr}$  の方がいずれも高いことを示した。さらに, 先に立川らが報告した Kr 高濃度側で熱イオン反応が助長されることを追認した。小林孝彰らは,  $^{80\text{m}}\text{BrBr}$  からの反跳  $^{80}\text{Br}$  と  $\text{CH}_4$  との反応を詳しく調べ,  $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$  の収率が  $\text{CBrF}_3$  などの添加により, 特異な挙動を示すことから励起状態にある  $^{80}\text{Br}^+$  が  $\text{CBrF}_3$  などの添加物と共鳴的に電荷移動を行っていることを示唆した。佐伯と立川は,  $(n, \gamma)$  で生ずる反跳  $^{80}\text{Br}$  と  $\text{C}_2\text{H}_6$  の反応を調べ, 先に報告した核異性体転移系の結果と比較した。生成物は両系とも同じで,  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ ,  $\text{C}_2\text{H}_5^{80}\text{Br}$  および  $\text{CH}_2^{82}\text{BrBr}$  であるが, 収率は順に 1.5, 2.2 および 2.4 倍であった。 $\text{C}_2\text{H}_5^{80}\text{Br}$  および  $\text{CH}_2^{82}\text{BrBr}$  はほとんどホット反応により生じているが,  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$  の収率には  $(n, \gamma)$  系でもイオン分子反応が寄与しており, 寄与率は  $(n, \gamma)$  系の方が少ない。これらの結果は  $(n, \gamma)$  系の方が反跳エネルギーが高く, 電荷が少ないためであると結論している。

1973年には, 小林慎江(京大原子炉)と H. D. Denschlag (Mainz 大)が,  $^{235}\text{U}$  の核分裂で生ずる  $^{131}\text{I}$ ,  $^{133}\text{I}$ ,  $^{134}\text{I}$ ,  $^{135}\text{I}$  と  $\text{C}_2\text{H}_4$  の反応を詳しく調べ, 生成した  $\text{C}_2\text{H}_5^*\text{I}$  および  $\text{C}_2\text{H}_3^*\text{I}$  の収率は, 核分裂における独立収率の高い  $^{135}\text{I}$  が他のヨウ素同位体を含む生成物より高いことを明らかにした。伊沢と塩川は,  $(n, \gamma)$   $^{80\text{m}}\text{Br}$  と臭化エチルの反応における励起生成物 1,2- $\text{C}_2\text{H}_4^{80\text{m}}\text{BrBr}$  分解過程を研究し,  $\text{C}_2\text{H}_3^{80\text{m}}\text{Br}$  への分解過程が存在するものの, 全圧力下で励起分子の収率は一定であると仮定し, RRKM 理論を応用し, ホットアトム反応のエネルギー領域は 2.7 から 3.5eV であることを示唆した。佐伯と立川は,  $(n, \gamma)$  反応で生ずる反跳  $^{80}\text{Br}$  と  $c\text{-C}_3\text{H}_6$  および  $c\text{-C}_3\text{H}_5\text{Br}$  の反応を比較し, 励起  $c\text{-C}_3\text{H}_5^{80}\text{Br}$  の分解過程は開環して  $\text{CH}_2\text{CHCH}_2^{80}\text{Br}$  ラジカルとなった後さらに,  $\text{CH}_2\text{CH}$  ラジカルと  $\text{CH}_2^{80}\text{Br}$  ラジカルに分解することを実験的に確認し, RRK 理論や反応の励起

エネルギーから励起生成物の平均励起エネルギーは、Br-for-Hは90kcal/mol以上、Br-for-Brは48から90kcal/molの間にその大部分が存在することを見出した。近藤と八木は、 $H^{80m}Br$ と $H^{82m}Br$ からの反跳臭素と $CH_4$ の反応における熱イオン反応による同位体効果を調べ、 $H^{82m}Br$ 系では生成物収率が $CH_2^{82}BrBr > CH_3^{82}Br$ であるが、 $H^{80m}Br$ 系では逆転していることや、HCl濃度に対する収率変化から両系には明らかな同位体効果が認められるが、 $^{80m}Br$ 系での中間生成物の挙動などさらに検討を加える必要があると報告している。なお、北里大の新澤和裕と瀧幸が $^{35}Cl(n, p)^{35}S$ 反応で生ずる反跳硫黄と液相有機化合物の反応を報告したが、後に気相反応に発展した。

1974年には、八木と近藤が、 $H^*Br$ からの反跳臭素と $CH_4$ の反応をさらに調べ、COのような双極子モーメントを持つ添加物が存在すると、 $CH_2^{82}Br^+$ とイオンクラスターを生成すると報告した。佐伯と立川は、 $(n, \gamma)$ 反応で生ずる反跳 $^{80}Br$ と $c-C_4H_8$ および $c-C_3H_{10}$ の反応を生成物の分解過程を中心に調べ、一次生成物の励起エネルギーは約5eVを中心とした広い拡がりを持つと推論した。

1975年には、まず生田茂・奥野賢二・吉原・塩川(東北大理)がT標識化合物の $\beta$ 壊変による分解過程を理論的に考察し、 $C_2H_5T$ の場合 $C_2H_5^+$ が大部分で $C_2H_3^+$ 、 $C_2H_2^+$ 、 $C_2H^+$ などが少ないのは、 $He^+(2S^1)$ への遷移の方が $He^+(1S^1)$ より多く、前者から得る $C_2H_5^+$ の内部エネルギーでは分解が起こらないためとしている。奥野らは、 $C_2H_5^+$ をスタンディオンとして、生田などの結果を検証した。八木と近藤は、 $H^{80m}Br$ と $H^{82m}Br$ からの反跳臭素の熱イオン反応による同位体効果を、反応物質を $CH_3X$ ( $X=H, F, Cl, Br$ )に拡張して調べ、いずれの系においても同位体効果が存在することを確認し、その原因は $^{80m}Br$ が中間に半減期7.4nsのレベルを有することにあると結論した。富永・巻出らは、 $Br_2$ 存在下でのクロロフルオロカーボン(CFC)の放射線分解と反跳 $^{82}Br$ とCFCの反応結果とを比較し、放射線分解では炭素数1から3のCFCにおいて、同一分子内の結合切断は $C-Cl > C-C > C-F$ の順であること、C-F結合の開裂は分子内のC-F数が多いほど起こり易いこと、 $C_2$ 化合物ではC-C切断に大差ないが、 $C_3$ 化合物ではCl原子を含む結合が切れやすいこと、反跳 $^{82}Br$ 化合物と放射線分解生成物の収率には相関が認められることなどを明らかにした。佐伯と立川は、 $^{125}Xe$ のEC壊変で生ずる $^{125}I$ と $CH_4$ の反応を調べ、反応生成物は $CH_3^{125}I$ のみであり、反応収率は非常に高く61%程度であること、添加物に対する効果から約9%は最大12.9eVの反跳エネルギーに基づくホット反応で、残りは約20%が $^{125}I^+(^1D_2)$ による、また約30%は $^{125}I^+(^3P_2, ^3P_1, ^3P_0)$ によるイオン分子反応によっていることを報告した。

1976年に生田らは、ab-initio法により $\beta$ 壊変時にHT、 $CH_3T$ 、 $C_2H_5T$ から生じるイオンの分布を理論的に考察した。その結果、HTでは親から娘の基底状態へ遷移した場合、 $HHe^+$ イオンの結合解離エネルギーより小さいが、 $CH_3He^+$ イオンでは娘の基底状態への遷移が反発型であり、 $CH_3^+$ とHeへ解離しそれ以上の分解は起きない、 $C_2H_5He^+$ でも反発型であろうと報告した。さらに、彼らは $NH_2T$ とOHTについても調べ、前者は $NH_2^+$ を、後者は $OH^+$ を与えることを示した。八木と近藤は、 $H^{80m}Br$ と $CH_4$ の反応を $CH_2=CH_2$ を添加して調べた。熱イオン反応で生ずる $CH_2^{80}BrBr$ の先駆体に $CH^{80}Br$ ラジカルが存在するか否かを確認する目的であったが、直接的に確認することは出来なかった。新澤と瀧は、 $^{35}Cl(n, p)^{35}S$ 反応で生ずる反跳硫黄と $C_2H_6$ の反応を、NOをスカベンジャーとして調べ、液相反応と同様C-C結合への挿入反応は大部分ホット反応であり、直接挿入反応であるが、C-H結合への挿入には熱的な反応が大きく寄与していることを示した。

1977年には、近藤と八木が、 $H^{80m}Br$ と $H^{82m}Br$ からの反跳臭素の熱イオン反応に関し、 $CH_3X$ ( $X=F, Cl, Br$ )との反応を用いて調べ、 $CH_3F$ 系の有機収率が高いこと、F置換生成物が認められないことなどから、イオンクラスターが効率よく形成され、 $CH_2^{80}BrBr$ などを生じさせていると

報告した。新澤などは、反跳硫黄と  $C_2H_6$  の反応をさらに調べ、圧力効果の結果および C-S-H/C-S-C 比が 0.023 と C-C への挿入反応が多いことから、硫黄が挿入した複合分子の励起状態は C-C への挿入のほうが低いと結論した。

1978 年には近藤と八木が、 $H^{80m}Br$  と  $H^{82m}Br$  からの反跳臭素の熱イオン反応に関し、 $C_6H_5X$  ( $X=H,F,Cl,Br,CH_3$ ) との反応を用いさらに調べ、 $^{80m}Br$  系に比べ  $^{82m}Br$  系では分子内配向性が大きく、パラ位置換が最も起こりやすいことを報告した。新澤と瀧は、反跳  $^{35}S$  と  $C_2H_6$  の反応に  $C_2H_5SH$  を添加することによりさらに調べ、スカベンジャが存在しない場合の  $C_2H_5^{35}SH$  収率は 4.2% 程度となり、熱イオン反応で生成する初期収率の約 38% が分解していることを示した。

1979 年の要旨集には、気相のホットアトム反応の報告はない。1980 年には、F. S. Rowland 教授が特別講演を行っているが記録は無い (時期的にホットアトム化学の講演でない可能性が大きい)。新澤と瀧は、反跳  $^{35}S$  と  $C_2H_6$  の反応における  $H_2^{35}S$  の生成について調べ、ホット収率は 3%、熱反応収率は 5% であり、SH ラジカルを経由する反応では生成していないことを報告した。生田茂・佐野博敏 (都立大理) は、 $CH_3^{80m}Br$  の壊変で生成する  $CH_3^{80}Br^{n+}$  多重正電荷イオンの分解過程を理論的に検討した。

1981 年には、八木が  $H^{80m}Br$  と  $H^{82m}Br$  からの反跳臭素と  $CH_4$  の反応の結果を総括し、両系の差は  $^{80m}Br$  の 2 段階目 B 過程 (内部転換する 61%) に起因しており、2 段階目以前に形成されるイオンクラスターが重要な働きをしていることを示唆した。新澤和裕 (北里大) と野崎正 (理研) は、ベビーサイクロトロンからのプロトンを水素添加した窒素ガスに打ち込んで合成した無担体  $^{11}CH_4$  に対する放電実験を行い、有機合成出発物質である  $H^{11}CN$  の合成を試みた。メタン担体を加えた場合には最大 20% が  $H^{11}CN$  となるが、無担体では微量存在する酸素により 60% 程度が  $^{11}CO$  になってしまうことを示した。さらに新澤と瀧は、反跳  $^{35}S$  と  $C_2H_6$  の反応に対する Ar の添加効果を調べ、Ar 濃度の高い領域で  $H_2^{35}S$  の相対生成率が高くなることから、わずかな運動エネルギーを有する反跳  $^{35}S$  が直接  $C_2H_6$  と反応し生成していると結論した。

1982 年の要旨集には、気相のホットアトム反応の報告はない。1983 年および 1984 年には、新澤などが「 $^{14}CO_2$  の放電反応」および「担体無添加  $^{11}CH_4/C_2H_4/Ar$  系の気相における放電反応」を報告している。いずれも医療用の有機合成出発物質を効率良く得る手法を探索したものである。1985 年の要旨集には、気相のホットアトム反応の報告はない。

1986 年には、小高正敬・小比田智之・佐藤伸 (東工大原子炉研) が「T とトリフルオロエチレンの反応」について 2 件の報告を行い、 $CF_2CHFT$  ラジカルにおける F 原子の 1, 2 シフトはエネルギー的に可能であること、および  $CF_2CHFT$  と  $CH_2CF_3$  ラジカルの再結合が起こっていると結論しているが、ホットアトム反応に対する言及は無い。1987 年から 1990 年の要旨集には、気相のホットアトム反応の報告は見当たらない。

1991 年には、酒井陽一 (大同工大) と R.S. Iyer・F.S. Rowland (カリフォルニア大) の 2 件の報告があった。 $^{37}Cl(n, \gamma)^{38}Cl$  からの反跳  $^{38}Cl$  と  $Sn(CH=CH_2)_4$  の反応を調べ、まず、低圧側では収率が 95% 近く、熱化した  $^{38}Cl$  のほとんど全てが  $CH_2=CH^{38}Cl$  の形になること、全圧が高くなるにつれ、収率は減少し高圧側では一定値 (約 65%) になることを見出し、単分子分解反応と安定化が等しい速度で起こる圧力が 500 から 800 Torr にあることから、 $(CH=CH_2)_3SnCH=CH^{38}Cl$  ラジカルは Sn によって励起エネルギー移動がブロックされている非 RRKM 挙動を示していることを明らかにした。次いで、反跳  $^{38}Cl$  と  $M(CH_3)_4$  ( $M=C, Si, Ge, Sn, Pb$ ) の反応を調べた。 $CH_3^{38}Cl$  が検出されたのは  $Sn(CH_3)_4$  と  $Pb(CH_3)_4$  の系のみであった。 $H^{38}Cl$  は直接検出できなかったが、既知のエタンからの水素引き抜き反応と  $CH_2=CHBr$  の臭素置換反応の速度定数を組み合わせ、5 つの



系の水素引き抜き反応の速度定数を決定した。1992年には、Hot Atom Chemistry MINI symposiumが開催され、Hot Reactions in Spaceと題する講演がK. Roesslerにより行われているが、要旨の収録は無い。1993年以降の要旨集には、気相のホットアトム反応の報告は見当たらない。従って、酒井などによる報告が本会における気相ホットアトム反応の最後の報告である。本会での気相ホットアトム反応の報告は、神原とRowlandの講演で始まり、彼の連名講演が最後となったことにやや因縁めいたものを感じた。

以上、放射化学討論会に報告されたほとんど全ての気相ホットアトム反応に関する要旨の要約を試みた。

佐伯の誤解などが含まれている可能性は否めないが、お許しいただきたい。本会に報告された気相のホットアトム反応は、ハロゲン特に臭素に関するものが圧倒的であり、ヨウ素、硫黄がこれに次ぎ、Tその他に関する報告は比較的少ない。臭素に関しては、原研グループはホット反応そのものを主な対象とし、東北大グループはイオン分子反応や $^{80m}\text{Br}$ と $^{82m}\text{Br}$ 間の線源同位体反応を対象として、それぞれ多くの成果を挙げている。ヨウ素に関しては、 $(n, \gamma)$ 反応、EC壊変、核分裂生成物と線源は変化に富んでいるが、系統的に研究されるまでには至らなかった。硫黄に関しては、かなり系統的に研究されたが、熱イオン反応の関与が大きく、明確な結論に達しなかった観があり残念である。わが国の気相ホットアトム化学の研究は、欧米でのTなどに関するホットアトム反応研究に参与した諸先輩により開始されたが、この時点ですでにTに関する研究は一段落しており、ハロゲンその他が対象になったと回顧される。機構解明に最も相応しい系ではあるが、励起反応生成物の分解を完全には制御しきれなかったため、反応エネルギー領域などの本質的問題には迫り得なかった。気相ホットアトム反応研究の限界がこの辺りに在ったと考えるのは、筆者だけであろうか？

### 2.3.3 液相のホットアトム化学

(富永 健)

ホットアトム反応はそもそも液相で最初に発見されたものである。1934年L. SzilardとT. A. Chalmersがヨウ化エチルを中性子照射した際に、 $(n, \gamma)$ 反応で生成した $^{128}\text{I}$ の一部が反跳によりC-I結合を切って遊離し、水と振り混ぜるとヨウ化物イオンとして水相中に抽出分離されることを見出した。このため、ホットアトム反応はかつてSzilard-Chalmers反応と呼ばれていたこともある。

液相のホットアトム反応は、気相や固相に比べてあまり特徴的ではない。液相は気相に比べて密度が大きく、反跳で生じたフラグメントは周囲の分子の壁に囲まれているため拡散するよりも再結合しやすい(「かご効果」という)。液相でのホットな反応と再結合のような二次的反応を識別するため、いろいろな物質がスカベンジャとして予め添加されることが多い。また液相での反応は、励起された化学種が溶媒分子などとの衝突で過剰のエネルギーを失いやすく、気相で圧力を高めた圧力効果極大の場合と同様、分解過程の寄与が小さいと考えられる。

わが国における液相のホットアトム化学の研究は有機液体や金属錯体の溶液系などが中心であったが、ホットアトム化学全体から見ればその数は少ない。

有機液体のホットアトム化学としては、1960年代初めから塩川孝信ら(東北大理)がハロゲン化アルキルにおける反跳臭素などの化学効果を研究しており、これらは後に気相での反応の研究に発展してゆくことになる。

錯体溶液系での反応としては、セリウムEDTA錯体の $^{144}\text{Ce}$ の $\beta$ 壊変で生ずる $^{144}\text{Pr}$ の化学効果

が、1960年代に塩川孝信らによって研究されている。壊変に伴うホットアトム効果で結合が切れる例として注目された。同じく1960年代に松浦辰男・泉水義大ら(立教大)は、コバルトやクロムのアンミン、オキザラト、シアノ錯体などをイオン交換樹脂に吸着し、溶離液を流しながら(流動法)原子炉で中性子照射すると、生成した標識化学種のうち親物質と電荷の異なるものが溶離されるが、再結合反応が抑制された結果、バッチ法よりも高い比放射能や放射化学的収率が得られることを示した。

1970年代には、富永健ら(東大理)がコバルトやクロムのアセチルアセトン錯体のベンゼン溶液などを中性子照射し、生成した $^{60}\text{Co}$ や $^{51}\text{Cr}$ の反跳化学種の挙動を研究し、微量の金属塩を添加したときのスカベンジャ効果を見出した。 $^{60}\text{Co}$ (または $^{51}\text{Cr}$ )反跳化学種のうち親物質と同じ化学形の収率(リテンション)に着目すると、錯体溶液に微量のFe(III)、Alなどの金属塩を予め添加しておけば、再結合反応が抑制されてリテンション値が低下する顕著なスカベンジャ効果が見られ、その効果の大きさはその金属(塩)がアセチルアセトン錯体を作るときの生成定数の大きさと関連することがわかった。これらは、反跳化学種の再結合反応および配位子移動反応と、スカベンジャ金属塩の錯生成反応を組み合わせで説明されている。このような溶液中でのスカベンジャ効果は、二次的な反応をできるだけ抑えて、溶液中あるいは照射固体を溶解分析するときの真のリテンション値を求める手法として注目されている。

### 2.3.4 固相のホットアトム化学

(吉原 賢二)

#### (1) はじめに

第1回放射化学討論会が東京一ツ橋の学士会館で開催されたのは1957年12月20日～21日のことであったが、その第2日目に東京大学理学部の斎藤信房らのホットアトム化学の発表があった。古川路明・富田功ら共同研究者の研究はヒ酸イオンをチャージした陰イオン交換樹脂を中性子照射し、樹脂からはずれる放射性ヒ素 $^{76}\text{As}$ を分離するというもので、大へん新鮮味のあるテーマであった。これが日本における以後何百件というホットアトム化学の始まりであり、また固相ホットアトム化学の原点となった。

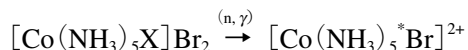
第50回の放射化学討論会を迎えるに当たり、学問分野の「栄枯盛衰」ということを考えさせられる。今は下火になったとはいえ、ホットアトム化学で多くの輝かしい実績が上げられたことをここでしっかりと記録にとどめたいものである。

表2-3には日本の固相ホットアトム化学の研究史を10年区切りで概観してみた。もちろんこの表は番付表のようなものではないから、ただちに研究の優劣を示すわけではなく、年代ごとに研究がどこで行われたか、主題は何か、を掴む参考としてあげた。300件以上のすべてを記載することは不可能なので、ここにあげられていないものでも価値あるものは当然あるはずである。表2-3を見ると、やや便宜的な言い方だが、最初の10年は成長期、次の10年は成熟期、その後は本来のホットアトム化学がほかのテーマとの関係で特化し、徐々に拡散する傾向を見せ、ついには特別にホットアトム化学的手法を必要とする対象に限って問題とされるようになってゆく。これがさきに述べた「栄枯盛衰」の内容ともいえる。しかしホットアトム化学は放射化学の中で大切な意味をもった分野であり、その研究成果は忘れてはならないものである。

#### (2) 初期 (1957 - 1966)

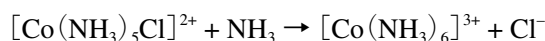
表2-3に見るとおり、初期10年は東大理学部斎藤信房研究室の貢献が圧倒的に多い。第2回(1958年)以後、ヨウ素酸塩、ウラン塩、テルルなどのホットアトム効果が研究され、さらに

1959年からはコバルト錯体の研究に入った。コバルト錯体については富永健・佐野博敏ら（東大理）の共同研究者が推進し、数々の興味ある成果を生み出していったことを、同時代人として鮮明に記憶している。中でも特色あるものを挙げればつぎの反跳原子によるコバルト錯体の配位子置換反応である。

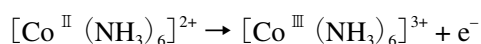


すなわち中性子照射により放射化された外圏の臭素イオンがコバルトの配位子Xを置換し、ペンタアンミン錯体を生成する。放射性臭素 $^*\text{Br}$ は配位子として入り、放射化学的分離によって非配位の外圏 $^*\text{Br}$ 陰イオンと区別される。ここでXを種々のものに変え、置換収率の変化を調べる。この反跳臭素の $\text{Br}^*$ -for-X反応の収率に深く関わるのは主としてリガンドXの入った錯体の安定性（分光学的な第一吸収帯波長で示される）であることがわかった。

またこの時期の特色として挙げなければならないのは、ホットアトム化学の応用としての放射性同位体 (RI) の濃縮(enrichment)製造である。これは1934年のSzilardのホットアトム効果の発見以来しばしば用いられて来た手法ではあるが、はじめは実験室規模の小さなスケールにとどまっていた。原子炉の出現が事情を変え、実用的なRI製造に用いられたのはフランスその他の国であった。わが国でも1958年の日本原子力研究所(原研)の第1号原子炉JRR-1の臨界ののち、RI製造にホットアトム化学を応用する目的の基礎研究がはじまった。原研の柴田長夫・吉原賢二・海老原寛らによってこの研究がおこなわれ、第2回討論会以後その発表がみられる。クロム酸塩による $^{51}\text{Cr}$ 、フタロシアニン銅による $^{64}\text{Cu}$ のほか、各種のオキシ錯体を用いる濃縮RIの製造が検討され、 $^{47}\text{Ca}$ の場合ははじめての濃縮に成功した。ただし最終的に実用化され、カタログ化されて、特殊RIとして売り出されたのは $^{51}\text{Cr}$ 、 $^{64}\text{Cu}$ であった。基礎研究が実用化されることへの喜びしさは、この場合もそうであった。少数であってもホットアトム化学を応用したRI生産の実現という事実が大切であろう。 $^{33}\text{P}$ を含まない $^{32}\text{P}$ 製造は特許がとれた(田中吉左右)。固体のホットアトム化学では、熱を加えることによって反跳化学種の分布が変化する現象が知られ、通常は親化学種(リテンション)が増加する。これを熱アニーリングと称し、同様な効果は放射線の後照射によっても得られる。固体に特有の現象であるが、その機構は、はじめ反跳化学種の移動・拡散が律速であると考えられていた。池田長生(東教大)・吉原・見塩規行・山岸滋らは $[\text{Co}(\text{NH}_3)_6]\text{Cl}_3$ の中性子照射によって生成した $[\text{Co}(\text{CH}_3)\text{Cl}]^{2+}$ の化学種を $^{60}\text{Co}$ でも、また $^{38}\text{Cl}$ の放射能でも認めることができた。彼らはこの化学種の熱アニーリングによる消失を



の化学的過程によって説明し、実測の活性化エネルギーからも裏付けている。かなりの反跳エネルギーをもつ反跳原子の周囲では、 $\text{NH}_3$ のフラグメントも多く存在するであろうから、上のような反応は容易に起こり得る。これはアニーリングをしっかりと研究した報告として大へん特色のあるものである。その後吉原はニッケルのアンミン錯体を用い、 $(\gamma, p)$ 反応による $^{57}\text{Co}$ 反跳生成物と $^{57}\text{Ni} \rightarrow ^{57}\text{Co}$ 壊変( $\beta^+$ およびEC)による $^{57}\text{Co}$ 反跳生成物のアニーリングの比較をした。両者は著しい違いを見せた。大きな反跳エネルギーによって損傷を受けた $(\gamma, p)$ 反跳 $^{57}\text{Co}$ の周辺では、フラグメントの $\text{NH}_3$ や $\text{Cl}$ と $^{57}\text{Co}$ を含むリガンド欠乏種 $[\text{Co}(\text{NH}_3)_x]$ との再結合は熱によって容易に行われる。これに対し、 $^{57}\text{Ni} \rightarrow ^{57}\text{Co}$ 壊変では反跳原子の周辺の損傷は小さく、かつ電子分布のアンバランスもあるから、リガンドの再結合だけでなく、少なくとも部分的には電子放出による安定化、



のような過程によって  $[\text{Co}^{\text{III}}(\text{NH}_3)_6]^{3+}$  が増加してもおかしくはない。 ( $[\text{Co}^{\text{II}}(\text{NH}_3)_6]^{2+}$  は周囲の  $[\text{Ni}^{\text{II}}(\text{NH}_3)_6]^{2+}$  と同形であるが、水溶液にする分析過程では  $\text{Co}^{2+}$  として分解する。) これはホットアトム化学のアニーリング過程に複雑な要素が絡むことの例証として大へん面白い ( $\text{Co}^{\text{II}}$  錯体については後述の金沢大の坂上正信・天野良平らの項参照)。一方、斎藤・安川民男らの同様な系についてのアニーリングの研究ではアンモニア雰囲気収率が収率に大きく影響する。溶解過程に合成的な反応が関わっていると見られる。

この期間に、他のテーマで興味あるものがあるが、紙面の関係で詳細にふみ入ることはできない。

### (3) 興隆期 (1967 ~ 1976)

1967年秋、第4回国際ホットアトム化学が開催され、斎藤信房教授が京都でこれを主催した。初期10年の間にこれだけ立ち上がった日本の研究レベルの高さが評価されたものと思われる。京都の国際会議の立派な会議室と、その裏の北山の風景が目につかぶ。F. S. Rowland (Univ. California, Irvine, 1993年ノーベル化学賞受賞) や R. Wolfgang のような大家もやって来た。この二人についてははげしい議論が交わされていたことを思い出す。会議は大成功で、外人も日本滞在を満足したようだ。ドイツの Baumgärtner 教授はシベリヤ鉄道経由で遅れて着いたとかで、あわただしくしており、京都を観光するひまもなく鹿児島島の知人を訪ねると言っていたエピソードがある。

さて、1967年以降興隆期を迎えた中で、表2-3に見る九大の大橋茂・高島良正・与座範政・中村照正・氏本菊次郎らのグループのリン酸塩関連の研究はしっかりしたもので、内容的にも重要なものと考えられる。この方面の研究は、Linder と Harbottle の原子炉低温照射、高電圧の電気泳動分離によるすぐれた研究が発表されていた。大橋らは陰イオン交換樹脂を用い、溶解時に担体を加えておく方法で詳細な検討をおこない、反跳化学種として重合度  $n=6$  のポリリン酸までを検出した。これは反跳反応領域がかなり大きいことを示す結果として注目された。東大教養の松浦二郎・林清科ら、京大原子炉の木會義之・小林慎江・北岡祥伯・川本圭造・高田実弥らのリン酸系研究も興味深い。

反跳エネルギーと反跳化学種収率の関係は重要であるが、十分な研究がなかった。吉原・工藤博司(原研)らは  $(\gamma, \gamma')$  反応をインジウム錯体に適用し、低反跳エネルギーから高反跳エネルギーに至る広い範囲で  $^* \text{In}^{3+}$  収率との関係を調べた。錯体からはずれる  $^* \text{In}$  イオン収率はあるエネルギーのところで0から立上り、高エネルギーで一定となる。このしきいエネルギーは「出現エネルギー」と呼ばれ、固体物理学で見られるフレンケル対の形成エネルギーよりずっと大きい。Lu 錯体についての出現エネルギーは In 錯体より小さい。この研究の反響は大きく、固相の反跳化学の基本として引用されるようになった。

吉原・海老原寛・揚末雄(原研)らと工藤によって研究されたフタロシアニン錯体のホットアトム化学についても一筆する必要がある。フタロシアニン銅の反跳化学種が結晶形によって異なる初期リテンションとアニーリング挙動を示すことが明らかになったが、高温度での  $\alpha \rightarrow \beta$  の結晶形変化のさいに、とくに大きな収率変化がみられ、反跳原子周辺の環境変化が Stored energy の放出とともに影響しているらしく思われる。またカドミウム・フタロシアニンは酸により分解しやすいが、 $^{115}\text{Cd}$  の娘核種  $^{115\text{m}}\text{In}$  はフタロシアニン錯体として安定であることを利用し、カドミウム・フタロシアニンの反跳化学種を  $^{115\text{m}}\text{In}$  で調べる「娘核種追跡法」が提案された。これはカ

ドミウムのホットアトム化学として画期的なことであり、*Nature* に採用された。

この時期印象に残るのは、阪上正信・天野良平・代田悦章（金沢大理）らのグループの昇華法によるホットアトム化学の研究である。ふつうに行われるホットアトム化学研究では、照射した固体は水などの溶媒に溶解してから分析するが、溶解のさいに化学変化を起こすことがある。昇華法を使えばその欠点を避けられる場合がある。その典型的な例として阪上らの中性子照射した  $[\text{Co}^{\text{III}}(\text{acac})_3]$  錯体からの  $[\text{Co}^{\text{II}}(\text{acac})_2]$  の昇華クロマトグラフィー (sublimatography) による分離があげられる。かれらはこの方法を他の昇華性錯体にも適用した。

塩川孝信・葉有財・大森巍（東北大理）は照射したクロム・アセチルアセトン錯体  $[\text{Cr}^{\text{III}}(\text{acac})_3]$  からイオン交換体で  $[\text{Cr}(\text{acac})_2(\text{H}_2\text{O})_2]^+$  や  $[\text{Cr}(\text{acac})(\text{H}_2\text{O})_4]^{2+}$  を分離した。これは照射固体中の  $^*\text{Cr}(\text{acac})_2$  や  $^*\text{Cr}(\text{acac})$  などの断片（ただし電荷状態は問わない）の存在を示す。コバルト錯体など、他の錯体の場合もそうだが、反跳化学種には周囲に複雑な断片の存在があることが推定され、これがアニーリングの回復（親化学種の増加）現象に対応するのであろう。

岸川俊明・大吉昭・四宮知郎（熊本大工）らは反跳臭素の反応を研究した。Hofmann 型包接化合物での反応は興味深い。

森川尚威・大橋國雄・島村修（東大 RI センター）らはリチウムをトリチウム源として、トリチウムによる有機化合物の標識化を研究した。 $^{14}\text{C}$  標識有機化合物とともにトリチウム標識化合物は研究現場でよく用いられ、それに関連した基礎研究として意義あるものであろう。

このころ工藤・田中吉左右（原研）らは核融合関連のトリチウム研究に入った。

#### (4) 第3期 (1977-1986) - 研究多様化の影響

この期は表 2-3 に見るように研究件数が減少しはじめる。固相ホットアトム化学を従来の溶液化学的手法だけでやっては、初期過程の精密な情報が得にくいとか、核反跳のエネルギー・スペクトルが広がっていて正確なエネルギー依存性がわからない、電荷分布も巾がありすぎる、などなどの欠点があった。メスbauer分光法に移行した佐野、富永、高島らの俊秀は精密な物理的裏付けをもつ原子核プローブの利用が重要と考えたのであろう。メスbauer分光法の導入は外国では 1960 年台はじめからあり、ホットアトム化学者が発光メスbauer分光法に魅力を感じたのはむしろ自然の成行といえるかもしれない。

この第3期は表 2-3 にあるように摂動角相関 (Perturbed Angular Correlation = PAC)\* や時間依存摂動角相関 (Time-dependent perturbed angular correlation = TDPAC) あるいはその関連現象であるサムピーク強度比変化が入ってくる (サムピーク法)。そのほか  $K_\alpha/K_\beta$  X線強度比変化も観測された。

TDPAC の研究は理研グループ (安部文敏ら) が活躍した。 $^{111}\text{Cd}$  の壊変によって生成する  $^{111}\text{In}$  を物性研究に応用するものである。リン酸銀や  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  を用いる研究がおこなわれた。

サムピーク法は東北大グループ (吉原・鍛冶東海・工藤哲・土橋宣昭ら) によって提案され、摂動角相関が物質によって変化するために  $\gamma$  線サムピーク強度が影響されることを基礎としている。生体関連試料に対して適用されてポジティブな結果が得られ、人血清アルブミンの測定にも応用された。

\* 摂動角相関で有名な研究は、佐藤純らの  $\text{KReO}_4$  のホットアトム効果の観測である (J. Sato et al., *Radiochim. Acta* 5 115 (1966))。  $\text{KReO}_4$  は中性子照射をしてもリテンション 100% で、見かけ上ホットアトム効果が見えない。しかし PAC では中性子照射したものはしないものと明らかにパターンが相異なる。in situ 測定の強みで、溶液処理をしていないためにホットアトム効果が観測されたものと考えられる。(ただしここで採用された PAC は詳しくいえば時間積分型 TIPAC であって TDPAC のような精密情報は得られない。)

反跳インプラネーションはイオンインプラネーションとともに、前期間の終わりごろから吉原らによって研究がはじめられた。最初は新しい化学種の合成に使われた。テクネチウムやレニウムのフタロシアンが生成したほか、プロメチウム・ジピバロイルメタン ( $\text{Pm}(\text{dpm})_3$ ) の生成が昇華クロマトグラフィーによって認められた(阪上らとの共同研究)。2価テクネチウムの昇華性錯体  $\text{Tc}(\text{acac})_2$  も得られた(東北大理: 関根勉, 吉原)。

その後反跳インプラネーションは類似のホットアトム反応に比べ、同条件でも反応収率がずっと高くなる現象が起ることがわかった。これを解明するためにこの期間の終わりごろから薄膜法が採用されることになった。その結果は後述する。

X線強度比の化学的環境による変化は玉木洋一・大森巍・塩川孝信(東北大理)によって認められた興味ある現象である。

池田長生・荘司準(東教大)らは混晶系の中心金属置換反応についてのホットアトム化学を研究した。さらに進んでポルフィリン系の会合性錯体を用いる研究も遂行した。

#### (5) 第4期 (1987 - 1996)

表2-3に見るように発表数の減少が続く。原子核プローブ重視の傾向はさらに強まってゆく。この期間で重要なことは第13回国際ホットアトム化学シンポジウムがまた日本で開催されたことである。富永健東大教授の主催で1987年富士山のすぐ近く見える場所が選ばれたが、20年前の1967年の京都の第4回シンポジウム(斎藤信房教授主催)とは違った意味で日本を象徴する適切なところであった。1986年ノーベル化学賞受賞の李遠哲教授(Y. T. Lee, カリフォルニア大, 台湾出身)が招かれたことが印象に残る。

この期間に吉原・関根勉・宮川篤(東北大理)らは反跳インプラネーションで薄膜法を使った特色ある発表をおこなった。照射はクロム金属薄膜をキャッチャーとしての鉄アセチルアセトン錯体  $\text{Fe}(\text{acac})_3$  薄膜に重ねておこない、 $^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$  反応により生成した  $^{51}\text{Cr}$  のインプラネーションによる  $^{51}\text{Cr}(\text{acac})_3$  の収率を測る。この  $^{51}\text{Cr}$  for Fe 置換収率はエネルギーが大きくなるほど大きい、約80keV程度で飽和する。他の金属膜などを用いても同様な傾向である。ところでPd薄膜(A)とRh(acac)<sub>3</sub>蒸着膜(B)を重ね、 $\gamma$ 線照射をおこなうと、Pd膜では $^{106}\text{Pd}(\gamma, p)^{105}\text{Rh}$ 反応が起り、 $^{105}\text{Rh}$ は反跳エネルギーをもってRh(acac)<sub>3</sub>膜(B)中にインプラネされて $^{105}\text{Rh}(\text{acac})_3$ を生成する。一方Rh(acac)<sub>3</sub>中では $^{103}\text{Rh}(\gamma, n)^{102}\text{Rh}$ 反応が起ってRh(acac)<sub>3</sub>膜(B)中で $^{102}\text{Rh}$ 反跳原子のホットアトム反応により $^{102}\text{Rh}(\text{acac})_3$ が生成する。つまりRh(acac)<sub>3</sub>は $^{105}\text{Rh}$ と $^{102}\text{Rh}$ で同時にラベルされる。 $^{105}\text{Rh}(\text{acac})_3$ の反跳インプラネーション収率が約6%であるのに対し、 $^{102}\text{Rh}(\text{acac})_3$ のホットアトム反応収率は約0.6%にすぎない。インプラネーションによる置換反応はホットアトム反応に比べ、異常に大きいことがわかった。

この原因は高エネルギーの原子が外部から侵入するときの衝撃によりクラック形成、局所的な熱や圧力などが関与するらしく、衝撃波の研究グループから注目された。

また吉原・松江秀明・関根(東北大理)らはシクロデキストリン中に包接されたメタロセンが、中心金属の核反応によってエネルギーを得、分子として外に飛出す分子ロケット反応を研究した。この分子ロケットは、低エネルギーのとき有利であるが、かなりのエネルギーになっても消失しない。その理由はいったん壊れたメタロセンがシクロデキストリン中で一部再結合し、それから外に分子ロケットとして飛出す、二次的な成分があるためと考えられる。

吉原・大森・飯原順次らはクロムのLX線強度比の化学効果について研究をおこなった。またニオブやモリブデンについても周囲の環境によりLX線強度比が変化することを確かめた。ウイーンの国際会議で好評だった。

またフラーレンの化学が発展する中, これに核的手法を加えて新しい研究面を開拓する仕事が, 中原弘道・末木啓介 (都立大) らのグループや大槻勤・榎本和義 (東北大核理研) によっておこなわれた。大槻らは  $\gamma$  線照射による核反応  $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$  反応で生成するフラーレンの2量体や3量体を認めた。またあとでフラーレンのケージ内にとりこまれた  $^7\text{Be}$  の半減期は異常に短くなることがわかった。

以上のほか泉水義大・戸村健児 (立教大) らの原子炉内反跳重陽子による  $^{13}\text{N}$  と有機物との反応は前期の終わりごろからはじめられ, 今期も継続された。

朝野武美・桐谷玲子・藤田慎一ら (大放研) は核酸関連物質に対するトリチウム壊変の影響を検討した (ウラシルを  $^{14}\text{C}$ ,  $^3\text{H}$  二重標識として調べたほかチミンなども調べた)。

(6) おわりに

固相ホットアトム化学の歴史的回顧はこれくらいにして, あとは現役の方々に現状をレビューしていただくのがよいだろう。

ひと言つけ加えるならば, 1992年に立教大松浦辰男教授の尽力により “International Seminar on the High Energy Atoms” が東京で開催された。これには老齢の A. G. Maddock 博士が車椅子で参加し, 講演もおこない, 聴衆はその気力に驚いた。研究者として見習うべき生き方といえるだろう。

表2-4 固相ホットアトム化学研究史 (放射化学討論会プログラムより)

	1 - 10 回 (1957-1966) 78 件*	11 - 20 回 (1967-1976) 95 件*	21 - 30 回 (1977-1986) 85 件*	31 - 40 回 (1987-1996) 67 件*	41 - 50 回 <sup>+</sup> (1997-2006)
研究者と発表件数	37 件 (東大) 斎藤信房ら 9 (原研) 柴田・吉原ら 4 (東教大) 池田ら 2 (静大) 塩川ら 2 (九大) 大橋ら 2 (東北大) 鈴木進ら 2 (東大教養) 松浦二郎ら 2 (原研) 村上ら	9 件 (九大) 大橋ら 8 (東北大) 塩川ら 8 (金沢大) 阪上ら 6 (東北大) 吉原ら 6 (原研) 工藤ら 6 (東大) 森川ら 5 (東大教養) 松浦二郎ら 5 (静大) 長谷川ら 4 (筑波大) 池田ら 4 (京大炉) 木曾ら	21 件 (東北大) 吉原ら 14 (筑波大) 池田ら 8 (原研) 工藤ら 6 (東北大) 塩川ら 5 (東大) 森川ら 3 (立教大) 石森ら 3 (大放研) 朝野ら	22 件 (東北大) 吉原ら 5 (筑波大) 池田ら 5 (立教原研) 松浦辰男ら 5 (千葉大) 大橋ら 5 (大放研) 朝野ら 4 (都立大) 中原ら 3 (立教大) 泉水ら 3 (原研) 工藤ら	(都立大) 中原ら (東北大) 大槻ら (筑波大) 荘司 (静大) 奥野ら (大同工大) 酒井ら
主題	Co 錯体, ヒ酸樹脂, RI 製造, 酸素酸塩, ハロゲン酸素酸塩, アニールン	錯体反跳, リン酸塩反跳, 昇華分離, アニールン, 出現エネルギー, 有機化合物のトリチウム化臭素化	反跳インプランテーション, 混晶系反跳, 原子核プローブ (サムピーク, KX線化学効果), トリチウム反跳標識	反跳インプランテーション, 混晶系反跳, 原子核プローブ, トリチウム, フラーレン, 分子ロケット	フラーレン, $\beta$ -壊変安定性, イオン会合体反跳, 核融合関連, 即発 $\gamma$ 線ドップラー広がり法

\* 件数は境界的なものをどこまで入れるかにより多少変動する。

<sup>+</sup> 歴史よりは現状に近いので詳細省略

## 2.3.5 発光メスバウアー分光

(佐野 博敏)

「日本の放射化学 50 年の歩み」に関する研究は、放射化学討論会・放射化学学会年会（以下、放化と略記）の他に日本化学会年会（以下、日化年会と略記）、日本アイソトープ協会の理工学における同位元素研究発表会（以下、理工学同位元素と略記）などや他の内外の学会に口頭や論文で発表されている。発光メスバウアー分光法もその例外ではないが、主要な発表が放射化学討論会でされているので、本学会提供の「放化」講演要旨を指標に他の発表も参考にして研究の流れを概観する。発光メスバウアー分光法がホットアトム化学の節にあるのは、メスバウアー効果が固相線源を試料としてメスバウアー核準位に先立つ核壊変の後遺効果-ホットアトム化学-の非破壊観測を可能としたからである。そこでその前史となる当時の固相ホットアトム化学との脈絡から説き起こそう。

ホットアトム化学における Billiard Ball Model を修正すべく、凝集相では多様な結合解裂が起こるとする Random Fragmentation Model, 衝突運動エネルギーが衝突周辺に広く高温領域をもたらすという Hot Zone Model などが提唱されていた。しかし、反跳原子は核変換に伴う電子の再配置で多少ともイオン化されるから、重粒子イオンの固相内放射線相互作用との視点から、当時、錯体の  $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$  のホットアトム化学の  $^{60}\text{Co}(\text{II})$  収率や、シュウ酸錯体など当該 Co 錯体の  $\gamma$  線照射  $G(\text{Co}^{\text{II}})$  値との相関性から、ホットアトム化学の放射線化学的解釈が提唱されていたが（放化, 1960: 斎藤信房, 佐野博敏, 富永健 (東大理); 1963: 斎藤, 佐野, 松原典子), これらの研究では試料を“破壊分析”するほかに、固相内変化を直接観測することができず、モデルは到底推測の域を出ない状況であった。

当時、発光メスバウアー分光法で  $^{57}\text{Co}(\text{III})(\text{acac})_3$  の anomalous valence state が米国で報じられていた。シュウ酸鉄などの放射線分解で鉄の還元が吸光メスバウアー法で観測され（理工学同位元素, 1964: 佐野, 富永, 安部文敏, 袋井登美, 斎藤; 放化, 1964: 佐野, 富永, 安部, 斎藤),  $^{57}\text{Co}(\text{II})$  シュウ酸塩では anomalous valence state の  $^{57}\text{Fe}(\text{III})$  生成が少なく大部分が  $^{57}\text{Fe}(\text{II})$  であり、シュウ酸イオンの還元作用に帰せられたのがわが国の発光メスバウアー分光法の最初の発表であった（理工学同位元素, 1965: 佐野, 荒谷美智, 橋本富貴子）。その後、一連の  $^{57}\text{Co}$  化合物の anomalous valence state 収率が配位子の分極率で説明された（放化, 1965: 佐野, 荒谷, 大矢とし江 (お茶大理); 1967: 佐野, 荒谷; 1968: 佐野, 菅野光子）。 $^{57}\text{Co}(\text{II})(\text{acac})_2(\text{py})_2$  錯体には anomalous valence state がないが  $^{57}\text{Co}(\text{II})(\text{acac})_2(4,4'\text{-dipy})$  では見出された（放化, 1969: 安部, 安部静子, 斎藤 (理研)）。いっぽう、モノマー、ポリマー異性体の  $^{57}\text{Co}$  標識  $\text{Co}(\text{py})_2\text{Cl}_2$  で、 $^{57}\text{Fe}(\text{py})_2\text{Cl}_2$  がホスト Co 化合物の相転移点で四極分裂の急激な温度変化を示すこと、ポリマーは大きい無反跳分率と小さい温度依存（ポリマー効果）を示すこと、生成  $^{57}\text{Fe}$  がホスト格子のセンサーとなること、モノマー  $^{57}\text{Co}$  錯体の EC 壊変から  $\text{Fe}(\text{py})_2\text{Cl}_2$  にもモノマー異性体のあること、 $^{57}\text{Fe}$  ドープにより  $\text{Ni}(\text{py})_2\text{Cl}_2$  にも相転移のあることなど、後遺効果以外の成果も発見された（放化, 1967: 佐野, 荒谷）。

当時まで  $^{119\text{m}}\text{Sn}$  標識化合物の IT 壊変では、 $^{57}\text{Co}$  標識化合物に多く見られる anomalous valence state が認められなかった。その原因は、EC 壊変では IT 壊変と異なり、元素が変わりイオン半径の大きい生成  $^{57}\text{Fe}$  がホストの Co 結晶格子から受ける圧力効果のため、とされていた。しかし、ホスト格子の圧力がないはずの  $\text{Fe}(\text{III})(\text{acac})_3$  に分散させた無担体  $^{57}\text{Co}(\text{III})(\text{acac})_3$  の場合にも anomalous valence state が認められなかった。いっぽう、IT 壊変でも内部転換電子を放出するので、EC 壊変後との類推からシュウ酸イオンの還元効果を期待して  $^{119\text{m}}\text{Sn}(\text{IV})$  シュウ酸化合物で



anomalous valence state の Sn(II)を見出したことから、圧力効果説が否定された(放化, 1969: 佐野, 菅野, 佐藤恵子)。メスバウアー効果の化学・放射化学的応用の紹介もされ、普及し始めた(放化, 特別講演, 1970, 佐野)。

前述の  $^{57}\text{Co}(\text{II})(\text{acac})_2(\text{py})_2$  の acac に置換基をもつ錯体, py の代わりに配位子 B をもつ  $^{57}\text{Co}(\text{II})(\text{acac})_2\text{B}_2$  錯体や種々の陽イオン M をもつ  $\text{M}^{57}\text{Co}(\text{II})(\text{acac})_3$  錯体,  $^{57}\text{Co}(\text{II})$  標識ピリジン誘導体化合物の発光メスバウアースペクトルのピーク主成分が Fe(II)であること, 異性体シフトや四極分裂と置換基との関連が報告された(放化, 1971: 魏和祥, 竹田満洲雄, 斎藤(東大理))。  $\text{K}_2^{57}\text{Co}[\text{Fe}(\text{CN})_6]$  で生成する  $^{57}\text{Fe}$  の化学状態に注目した研究は、後年旧ソ連と西独での時間分析発光メスバウアー分光学的研究で矛盾の出た興味ある対象であるが、スペクトル強度不足で困難があった(放化, 1968: 斎藤, 竹田, 魏ら)。類似の金属六シアノ錯体では高スピン Fe(II), Fe(III) が報告され(理研シンポジウム, 1970: 竹田, 大木和雄, 魏ら; 日化春季年会, 1970: 斎藤, 大木, 竹田), 金属シアノ錯陰イオンの  $\text{Co}^{2+}$  塩でも同様な研究がされた(放化, 1972: 竹田, 後藤敏子, 安田顕, 斎藤)。

$\gamma$ 線照射した  $(\text{Mn}, ^{57}\text{Fe})(\text{acac})_3$ ,  $(\text{Co}, ^{57}\text{Fe})(\text{acac})_3$ ,  $(\text{Fe}, ^{57}\text{Fe})(\text{acac})_3$  の吸収メスバウアースペクトルと,  $(\text{Mn}, ^{57}\text{Co})(\text{acac})_3$ ,  $(\text{Co}, ^{57}\text{Co})(\text{acac})_3$ ,  $(\text{Fe}, ^{57}\text{Co})(\text{acac})_3$  の各発光メスバウアースペクトルとの類似性から、壊変原子周辺にラジカルなど常磁性化学種の存在が提言された(放化, 1970: 佐野, 岩上宏子; 1971: 岩上, 佐野)。また、一連の Co 錯体の  $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$  反応のホットアトム化学の結果と、当該  $^{57}\text{Co}(\text{III})$  錯体の結果の類似性(放化, 1973: 大沼敏明, 佐野(都立大理)), シュウ酸を第一配位圏に 3, 2, 1 個持つ場合と対イオンとして第二配位圏に持つ場合から、その順に  $^{57}\text{Co}(\text{II})$  の収率が減少し、既述のホットアトム化学や放射線分解での Co(II) 収率との良い相関があり、古典的な化学分析の結果への信頼性が初めて実証的に得られた(放化, 1975: 原田雅幸, 佐野)。  $^{57}\text{Co}(\text{oxin})_3$  の発光メスバウアースペクトルと  $(\text{Al}, ^{57}\text{Fe})(\text{oxin})_3$  混晶の吸収メスバウアースペクトルの比較からも、  $^{57}\text{Co}(\text{III})(\text{acac})_3$  と同様にラジカルなど常磁性化学種の生成が指摘された。これら Co(III) 錯体は低スピン反磁性であり、  $^{57}\text{Co}(\text{III})$  錯体から EC 壊変で生ずる常磁性  $^{57}\text{Fe}$  化学種はホストの反磁性 Co 化学種中に孤立していて、磁気分裂した発光メスバウアースペクトルを示すはずなのに、常磁性化学種に囲まれたスペクトルを示す。実際に反磁性 Co(III)(acac)<sub>3</sub> や Al(III)(acac)<sub>3</sub> に高スピン化学種の  $^{57}\text{Fe}(\text{III})(\text{acac})_3$  を分散した混晶試料では磁気分裂した吸収メスバウアースペクトルを示すことから、  $^{57}\text{Co}(\text{III})$  錯体で生ずる  $^{57}\text{Fe}$  近隣で、ラジカルなど常磁性化学種の発生と存在がメスバウアー分光学的に検証された(放化, 1977, 原田雅幸, 田中秀男, 遠藤和豊ら(都立大理))。

カルコゲン関連化合物の系統的研究として、  $^{119\text{m}}\text{TeO}_2$  の EC 壊変で生ずる  $^{119\text{m}}\text{Sb}$  の II, III 価の化学状態への分布が、従来の破壊的的化学分析で研究されたあと(放化, 1972: 安部, 安部, 斎藤(理研)),  $^{119\text{m}}\text{Sb}$  から EC 壊変で生ずる  $^{119\text{m}}\text{Sn}$  は、その発光メスバウアースペクトルから、すべて Sn(IV) 状態となり、  $\text{TeO}_2$  ホスト中では  $^{119\text{m}}\text{Sn}(\text{IV})$  が安定化するが、  $\text{TeI}_4$  では Sn(II) も生じ、ヨウ素の化学的効果のあること、シュウ酸 Sb(V) では Sn(IV), シュウ酸 Sb(III) では Sn(IV) よりも Sn(II) が多量となる還元効果などが示された(放化, 1973: 安部, 安部, 斎藤)。  $\text{Sb}_2\text{S}_3$ ,  $\text{Sb}_2\text{Se}_3$ ,  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$  などの  $^{119}\text{Sb}$  標識化合物の発光メスバウアースペクトルからも、カルコゲン元素の電気陰性度の小さいほど  $^{119}\text{Sb}$  からの  $^{119}\text{Sn}$  は Sn(II) 状態に多く分布し、  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$  では Sn(IV) 状態が認められないなどの化学効果も報告された。他方で、これらカルコゲン化合物を  $^{119}\text{Sb}$  や  $^{119}\text{Te}$  で標識し、生成する  $^{119\text{m}}\text{Sn}$  の発光メスバウアースペクトルから、  $^{119\text{m}}\text{Sn}$  原子の周囲が Te, Sb, または Sn の場合の吸収スペクトルと比較して、先行する核壊変過程の反跳エネルギーが結

晶内原子の変位エネルギー以下か同程度かにより説明された (日化秋季年会, 1973: 安部, 安部, 斎藤)。さらに SnTe を陽子照射し,  $^{120}\text{Sn} (p, 2n) ^{119}\text{Sb}$  とその  $^{119}\text{Sb}$  の EC 壊変による  $^{119}\text{Sn}$  が Sn (II) と Sn (IV) の両成分を示すことから, (p, 2n) 反応で生じた反跳  $^{119}\text{Sb}$  原子は格子内で変位することが示され (放化, 1974; 1975: 安部, 安部 (理研)),  $^{117}\text{SnSe}$  を  $\alpha$  照射した場合には, 生成  $^{119}\text{Sn}$  の環境は大きい損傷のある Sn (II) と Sn (IV) の両成分が示された (放化, 1979: 安部, 安部)。これは, 固相ホットアトム化学で理論的にのみ推論されていた反跳エネルギーと格子点原子の変位エネルギーの関係を適切な対象試料の選択と加速器利用とにより初めて体系的に検証し, 後述のインビーム発光メスバウアー法の原型となったと言えよう。

$^{119\text{m}}\text{Sn}$  標識化合物での IT 壊変に伴う anomalous valence state の出現は,  $\text{SnCl}_2$  や  $\text{SnBr}_4$  の付加化合物でも Sn (II) と Sn (IV) の両成分が報告され, 前者では付加塩基による電子捕捉, 後者では autoradiolysis による還元により説明された (放化, 1977; 1979: 市坂純雄, 山田雅明, 欄宜田久男 (広島大理))。これらの凍結有機溶媒溶液からも同様の結論や, フェニル基を含む場合は放射線分解に安定であることなどが示された (放化, 1982: 市坂, 山田)。

前述の EC 壊変で推定される常磁性化学種がラジカルであることが, 三オキザラト, 三カルボナト, 三グリシナト, 三エチレンジアミン  $^{57}\text{Co}$  (III) 錯体などで研究された。また, ラジカル生成を緩和する芳香環置換基を持つアセチルアセトンと, 同程度の分子サイズの飽和脂肪族置換基を持つアセチルアセトンの各  $^{57}\text{Co}$  (III) 錯体の発光メスバウアースペクトルの比較から, 芳香環置換基導入で緩和スペクトルが出現し, ラジカル生成が抑制されていること, 他方で, 芳香環をもつ樹脂にドーブした  $^{57}\text{Co}$  (III) (acac)<sub>3</sub> で現れた緩和スペクトルが, これに著しい還元効果をもつシュウ酸のドーブで消失すること, などでさらに確かめられた (放化, 1978: 酒井陽一, 浅野和成, 遠藤ら (都立大理); 1980: 酒井, 遠藤, 佐野; 遠藤, 魏, 佐野; 魏, 遠藤, 佐野; 1984: 渡辺裕夫, 佐野)。これらの全体像は内外の招待講演で総括された (ACS-JCS ハワイ年会, 1979: 放化, 1982: 国際ホットアトムシンポジウム, Davis, 1982: ACS 25 years of Chem. Mössbauer Spectroscopy, 1984: 佐野)。

スピン平衡 Co (III) 錯体 (放化, 1978: 明石潤子, 遠藤, 佐野; 1982: 明石, 佐野) や Co (II) 錯体 (放化, 1979; 1980: 前田米蔵, 大塩寛紀, 高島良正 (九州大理)) の  $^{57}\text{Co}$  発光メスバウアースペクトルの研究は, anomalous valence state として生成する  $^{57}\text{Fe}$  化学種のみならず, EC 壊変後もスピン状態が維持されている可能性もあるので, ホットアトム化学でいうリテンション-もとの結合状態の保持・回復率-の推測上でも興味ある対象である。しかし, Co 化学種に相当する  $^{57}\text{Fe}$  化学種のほかに, 新規の壊変化学種も認められたが, スピン平衡はわずかな結晶状態の差によっても電子状態が影響を受けやすく, 結合状態の保持・回復の推論は困難でその議論はない。発光メスバウアー法の非メスバウアー元素の状態分析への拡張では, ビタミン B12 類縁の  $^{57}\text{Co}$  化合物や  $^{57}\text{Co}$  テトラポルフィリンなどの研究があり (放化, 1980: 寺井善郎, 安部, 野崎正 (理研); 1981: 寺井, 山本喜代子, 野崎), 耐熱藍藻の  $^{57}\text{Co}$  の発光メスバウアースペクトルからビタミン B12 の生合成などが推測された (放化, 1988: 安部静子) が, 生成  $^{57}\text{Fe}$  化学種の局所的な放射線化学的效果の理解なしにはスペクトル情報の帰属は難しい。その影響が無視できる場合として, コランダム磁性酸化物の  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  表面に吸着した  $^{119}\text{Sb}$  の  $\text{Fe}^{3+}\text{-O}^{2+}\text{-Sb}^{5+}$  の結合形成などの情報 (放化, 1980; 1985: 安部, 安部, 岡田卓也, 関沢尚),  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  や  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  での吸着  $^{57}\text{Co}$  の異なる相互作用 (放化, 1981: 安部, 安部, 岡田ら), 吸着  $^{119}\text{Sb}$ ,  $^{57}\text{Co}$  によるフェリ磁性体の表面構造の知見 (放化, 1982; 1983: 安部, 安部, 岡田ら; 1987: 安部, 安部, 岡田), YIG 表面に吸着させた  $^{151}\text{Gd}$  の発光メスバウアー法 (放化, 1987: 安部, 安部, 岡田ら) などが報告

された。 $^{57}\text{Co}$  標識ステアリン酸  $\text{Co}(\text{II})$  累積膜で  $^{57}\text{Fe}(\text{II})$  の四極分裂ピーク強度の著しい非対称性が示された (放化, 1983: 初川雄一, 三浦太一, 遠藤, 中原弘道, 石井淑夫 (都立大理ほか))。テルル酸化物ガラスでの  $^{128}\text{Te}$  ( $n, \gamma$ )  $^{129}\text{Te}$  による  $^{129}\text{Te}$  の発光メスバウアー分光法では, 生成  $^{129}\text{I}$  に後遺効果はなく,  $\text{Te}$  原子周辺環境の分布や線幅増大の成分依存が示された (放化, 1985: 酒井宏, 姜信珪, 前田豊 (京大原子炉))。  $^{125}\text{I}$  でドーブしたポリビニールアルコール膜の延伸方向とメスバウアー  $\gamma$  線方向の関係と四極分裂ピーク比などから,  $\text{I}$  および生成  $^{125}\text{Te}$  の存在状態が推定された (放化, 1991: 瀬戸誠, 前田豊, 松山奉史, 山岡仁史, 酒井宏)。  $^{99}\text{Ru}$  の ( $p, n$ ) 反応で得た  $^{99}\text{Rh}$  をドーブした YBCO 形高温超伝導体 (放化, 1991: 1992: 大久保嘉高, 小林義男, 安部ら (理研)) や  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  (放化, 1991: 大久保, 小林, 浅井吉蔵ら) で  $\gamma$  線角相関も併用して  $^{99}\text{Ru}$  の状態が研究された。

発光メスバウアー分光法は, 壊変後の当該核励起準位平均寿命の状態の積分値を教えるが, さらに短い情報を得る一方法として,  $\gamma$ - $\gamma$  遅延同時計数発光メスバウアー法が  $^{57}\text{Co}(\text{phen})_2(\text{CN})_2$  に適用された (放化, 1982: 遠藤, Rüdiger Grimm, Philipp Gütlich)。他の方法には,  $^{57}\text{Co}$  の EC 壊変後約 30% は K-X 線, 約 60% が K-オージェ電子の放出で, 後者は前者より多くの低エネルギーオージェ電子放出を伴うことに着目し, K-X 線-メスバウアー  $\gamma$  線同時計数発光メスバウアースペクトルと従来のスペクトルを比較する後続オージェ過程の後遺効果の識別法がある。後者の例では  $^{57}\text{CoCl}_2$  の結晶水の局所的放射線分解による  $^{57}\text{Fe}(\text{III})$  の増加,  $^{57}\text{Co}$  でドーブした硫酸塩の硫酸イオン酸素原子や近接殻の影響などの研究がある (放化, 1985: 小林隆幸 (滋賀医大), J. M. Friedt; 1986: 小林, 牧田知子; 1987: 小林, 福村和子; 1989: 小林, 牧田, 福村)。 X- $\gamma$  同時計数法による  $^{57}\text{Co}(\text{IO}_3)_2$ ,  $\gamma$ - $\gamma$  遅延同時計数法での  $^{57}\text{Co SeO}_4$  水和物, 両方法を組み合わせた X- $\gamma$  遅延同時計数法での  $^{57}\text{Co}(\text{BrO}_3)_2$  などの周辺陰イオン, 配位子, 水和水, オージェ電子についての研究 (放化, 1986: 渡辺, 遠藤, 佐野, 村松久和; 1987: 渡辺, 遠藤, 佐野; 1988: 中田正美, 渡辺, 三浦ら (都立大理); 1990: 中田, 為ヶ谷和美, 遠藤ら), 測定装置の改良や凍結  $^{57}\text{Co}$  硝酸溶液などの観測 (放化, 1993: 佐伯正克, 中田, 正木信行 (原研); 中田, 正木, 佐伯) もある。核準位寿命内の限られた時間区分ではあるが, なお応用が期待できよう。

EC 壊変での結合状態の保持・回復率-いわゆるリテンション-の考察のために,  $\text{Fe}(\text{II})\text{Fe}(\text{III})\text{Fe}(\text{III})$  と同形の  $\text{Co}(\text{II})\text{Fe}(\text{III})\text{Fe}(\text{III})$  の各種三核鉄コバルト脂肪酸錯体での  $^{57}\text{Co}$  発光メスバウアー法が研究され, 三角  $\text{Fe}(\text{II})\text{Fe}(\text{III})\text{Fe}(\text{III})$  錯体の吸収メスバウアースペクトルと同様な原子価平均化の温度依存性が, 同じ脂肪酸  $^{57}\text{Co}(\text{II})$  錯体の発光メスバウアースペクトルでも認められることが多様な試料の対比から示された (放化, 1989: 佐藤琢真, 片田元己, 中田ら; 1994: 佐藤, 安部)。  $\gamma$ - $\gamma$  遅延同時計数法でも原子価交換速度が調べられて, 壊変後早い時期には分子内原子価交換可能な結合の回復・保持されていることが認められ (放化, 1990: 佐藤, 石下貴代美, 中田ら; 1993: 佐藤, 安部, 片田ら), 壊変後の局所的な放射線化学的後遺効果過程の全体像が総括された (IX Intern. Symp. Nucl. Chem., Radiochem. & Radiation Chem. Mexico, 1992, 佐野; 放化-APSORC 2001, 佐野)。

ペロブスカイト  $\text{Fe, Co}$  置換体の吸光・発光メスバウアー法で,  $\text{Co}$  は  $\text{Fe}$  と異なる環境にあり  $\text{CO}_2$  吸収に影響されるなどの報告はあるが, この頃発光メスバウアー分光法の発表は激減している (放化, 2000: 野村貴美, 澤田嗣郎, Z. Homonnay ら (東大工ほか); 放化-APSORC 2001, Z. Homonnay, 野村, G. Juhasz ら)。

EC, IT 壊変の後遺効果は発光メスバウアー法で体系化はされたが, 長寿命メスバウアー線源核種で研究可能な対象は限られる。この限界を超え得るインビーム・メスバウアー分光法では,

加速器により、中性子、重イオン、短寿命核、メスバウアー核やその親核などを試料に注入し、生成メスバウアー核励起準位の発光メスバウアースペクトルを観測でき、ホットアトム化学の研究対象拡大のほか、無担体極超微量線源メスバウアー核をセンサーとする試料の状態研究の新分野も期待できる。注入法やメスバウアー遷移観測の技術的課題などはあるが、Cr化合物で $^{54}\text{Cr}(\alpha, p)^{57}\text{Mn}$ と $\beta$ 壊変からの $^{57}\text{Fe}$ の研究(放化, 1989: 久保謙哉, 三嶋, 富永ら(東大理)); 1990: 中田正美, 渡辺ら), 測定法を工夫し(放化, 1995: 小林義男, 吉田豊, Häöleinら),  $^{56}\text{Fe}(n, \gamma)^{57}\text{Fe}$ 反応や $^{57}\text{Fe}$ のクーロン励起で得た $^{57}\text{Fe}$ の鉄中の挙動, 希ガス固体やグラファイト内のジャンプ過程,  $^{59}\text{Co}$ 核破碎で $^{57}\text{Mn}$ をSiに注入し生成した $^{57}\text{Fe}$ の研究(放化, 1993: 小林, 吉田, Sielemannら; 1996: 小林, 吉田, 行平憲一ら(理研ほか)); 放化-APSORC 1997, 小林, 中村, 稲辺ら; 放化, 1998: 小林, 吉田, 吉田ら)がされた。 $^{133}\text{Xe}$ 注入合金が $^{133}\text{Cs}$ 発光メスバウアー法で研究された(放化-APSORC 1997, 村松久和, 石井, 田中ら(信州大教))。 $^{57}\text{Mn}$ の $\text{KMO}_4$ 内注入で高酸化数 $^{57}\text{Fe}$ の生成を認め(放化, 2000: 小林, 久保, 山田康洋ら),  $\text{Fe}(\text{VIII})$ と推定された(放化-APSORC 2001: 小林, 久保, 斎藤ら)。固体酸素内注入で,  $\text{FeO}$ ,  $\text{Fe}(\text{O}_2)$ ,  $\text{Fe}(\text{O}_2)_2$ ,  $\text{O}_2\text{Fe}(\text{O}_2)$ などの生成も推定された(放化, 2005: 小林, 宮崎, 野中ら)。インビーム $^{56}\text{Fe}(n, \gamma)^{57}\text{Fe}$ 反応では鉄やステンレス鋼で後遺効果はなかったが, 三オキザラト $\text{Fe}(\text{III})$ 錯体では吸収メスバウアースペクトルと異なるスペクトルとなり(放化-APSORC 2001, 小林, 久保, 酒井ら; 放化, 2003: 久保, 小林, 斎藤ら),  $\text{FeS}_2$ では親化学種と異なる成分が認められた(放化, 2004: 久保, 小林, 根本ら; 2005: 小林, 鶴岡, 久保ら)。

一般に物理化学的観測手段は事象の一断面や側面しか与えず, 多様な別手段でのクロスチェックなしでは説得力が乏しい。発光メスバウアー分光法も無担体線源の極超微量化学状態を知り得るユニークな手段である反面, 他に独立した検討手段がないから, 系統的に実験条件を変えた考察, 試料の固体物理学的議論などの裏打ちなしには, 結論への信頼性が得難く, 他分野から眺めて独り善がりと思われる恐れがある。したがって, その十分な検討が備わった場合に, はじめて独自の研究分野として大きい発展が期待されよう。

## 2.4 放射性核種の分離分析・挙動・溶液化学

(中西 孝)

明治時代～第1回放射化学討論会(1957年)及び1970年代までの我が国における放射性核種の分離分析研究の要点が, 「日本の化学百年史」(日本化学会編, 東京化学同人(1978))の「放射化学」の歴史の中で斎藤信房によって分かり易く記載されている。ここでは第1回放射化学討論会以降1957～2005の約50年間を対象に放射性核種の分離分析・挙動・溶液化学の我が国における研究の目ぼしいところをピックアップする。放射性核種の分離分析・挙動・溶液化学の研究成果は, 研究対象の元素・核種, 化学分離等の研究手法, 研究機関・研究者がそれぞれ多数に及んでおり, それらの複雑な組み合わせに, さらに時間軸も入れることには困難が伴い, 網羅的な紹介を避けた概観を述べることにする。

### 2.4.1 はじめに

放射性核種の分離分析研究の歴史は, 世界的にはCurie夫妻のピッチブレンドに施した系統的化学分離によるポロニウムとラジウムの発見(1898)に始まり, 我が国においては北投石の研究

(1906～)などにおける天然放射性核種の分離分析に端を発している。核反応・核分裂の研究及び応用が行われるようになってからは、核反応収率の測定や放射性トレーサの製造などのために微量放射性核種の分離分析研究が行われ、環境試料からのフォールアウト核種の分離分析も行われるようになった。

放射性核種の実験分析は、主に溶液系での化学操作における諸元素及び化学種の化学的挙動の違いを利用している。その化学的挙動の違いは、元素の化学形（化学種）に起因するので、化学分離・挙動・溶液化学は相互に密接に関連する。放射化学よりも歴史が長い分析化学の成果（元素及び化学種の相互分離の成果）を参照しながら放射性核種の実験分析が行われることが多いが、放射性核種の実験分析・挙動・溶液化学研究の最大の特徴は超微量の元素を扱うことである。

放射線測定器の性能が高くなかった時代には、化学分離は元素・核種同定のために必要不可欠な操作であった。エネルギー分解能が高い半導体検出器と多重波高分析器が普及してからは、高度な化学分離を施さなくても放射性核種の実験分析が可能になった。しかし、自己吸収が無視できる線源の調製を要する $\alpha$ 放射体の分析や極微量放射性核種の実験分析では、今日でも化学分離は不可欠である。

## 2.4.2 放射性核種の実験分析

大気圏内核実験（1945～1980）による環境汚染・人体汚染の実態解明の必要性が高まり、我が国に最初の放射化学講座が開設されたのを契機に第1回放射化学討論会が開催された（その半年前の1957年6月に「放射性同位元素等による放射線障害の防止に関する法律」が公布されている）。

そのような背景を反映して、放射化学討論会（以下、討論会と記す）の初期の頃には核分裂生成物（以下、FPと記す）の実験分析に関する研究が多かった。主な研究対象核種は $^{95}\text{Zr}$ - $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{127}\text{Te}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{140}\text{Ba}$ - $^{140}\text{La}$ であり、東北大、新潟大、金沢大、群馬大、原研、東大、東京教育大、国立予防研、気象研、静岡大、名工試、京大、大阪市大、神戸大などの多数の研究者がイオン交換樹脂カラム法（京大理：石橋雅義ら）、無機イオン交換体カラム法、溶媒抽出法、ペーパークロマトグラフ法、ろ紙電気泳動法、電気化学的方法、蒸留分離法、共沈法などの分析化学的手法（京大理：石橋雅義ら）を駆使して分離及び実験を行った。放射線検出器の性能が高くなかった頃であったから、核種の同定・定量には熟練した実験分析技術が必要であり、簡便な実験分析法の開発が盛んに行われた。また、第1回討論会ではPuの実験分析に関する研究（東大・立教大）、天然放射性核種（Po, Tn）・人工放射性核種（S, Sb）の化学的特性に関する研究（東大、東工大、静岡大）、核燃料再処理及び廃棄物処理のためのU及びFP、超ウラン元素の実験分析（原研）の実験分析について発表されている。

第2回討論会（1958）以降の実験分析については、任意に時間軸を入れながら、主なトピックスを取り上げてみる。対象元素・核種で研究を分類した場合、多くの実験分析法の実験分析が行われたのはTc( $^{99}\text{Tc}$ )である。九州大、放医研、日本分析センター、環境科学技術研究所などで環境試料中のTcの実験分析の研究が行われ、東北大・静岡大でTcの化学種分析の実験分析が行われている。そのほか、東教大/筑波大で行われた放射性I（ヨウ素）分析の実験分析、放医研で行われた環境Po実験分析法の研究、半導体工業界からの要請に応えた金沢大のリン酸中Poの実験定量研究、緊急時対応の抽出クロマト樹脂を用いた環境Pu迅速分離分析法の最近の実験分析（環境科学技術研究所）などが注目されるであろう。

分離分析法に注目すると、東北大の鈴木信男らが考案した不足当量同位体希釈分析法（1958）を、放射性トレーサを添加する同位体希釈分析や放射化分析による微量元素の定量に適用するために、除染係数が十分高い不足当量分離法が種々開発された。とくに溶媒抽出法が不足当量分離に適しており、主にNTTや静岡大で研究が進められた。この新しい同位体希釈分析法については2.4.4節に別途記載があるが、1985年にヘベシー賞（Hevesy Medal Award）が授与されたことを付記しておく。今後、微量放射性核種の化学種分析への展開が期待される。

溶媒抽出法による分離については多数の研究があり、その中で原研の石森富太郎らによる有機リン化合物、有機アミンなどを抽出剤とする各種の溶媒抽出系における諸元素の分配挙動に関する系統的研究（1958頃～）は注目される研究の一つである。この一連の研究成果は1963～1966に順次冊子体で公表され、多くの研究者が放射性核種分離分析に利用するところとなった。また、使用済核燃料の再処理研究が進む中で行われたアクチノイド分離用の耐放射線性が高い新抽出剤TODGAの開発（原研：館盛勝一ら2000）は、酸濃度の高い水溶液から全アクチノイドの高効率かつ簡便な回収を可能にする画期的な成果として注目される。また、奥野久輝（所属：）はルテニウムの共沈を発表している。2005年、宮下直・矢永誠人・佐藤伊佐務（東北大金研）・菅沼英夫は、原子炉溶液化学で解決が望まれていた簡便なLn(III)とAn(III)の完全分離法として、ジオクチルアンモニウムジオクチルジチオカーバメイト抽出法とそのin situ抽出剤形成抽出法を確立した。

イオン交換樹脂カラム法による長半減期アクチノイド諸元素の逐次分離定量及び放射年代測定への展開（金沢大：阪上正信ら）、イオン交換クロマトグラフィーによる希土類元素の相互分離（京大：西朋太ら）、多孔質シリカ担持3級ピリジン樹脂を開発（1996）して3価アクチノイドと希土類元素の分離をカラムクロマトグラフ法で可能にした成果（東工大：藤井靖彦ら）などはイオン交換、抽出クロマト法において注目される研究である。

無機イオン交換体を用いた分離研究は東北大、静岡大、原研、放医研などで続けられ、東工大の阿部光雄らの一連の研究は系統的行われている。中性子吸収法による $^{10}\text{B}$ の同位体分析も四宮知郎ら（熊大工）により行われた。

高電圧ろ紙電気泳動法（広大理：山本勇麓ら）、焦点クロマトグラフ法（広大理：品川睦明ら）は短寿命FPの迅速分離及びFP核種の壊変特性（半減期、放出 $\gamma$ 線エネルギー）の決定に威力を発揮した。

超アクチノイド核種は短半減期であり核融合反応による生成率が極めて低いため、化学的性質を研究するためには単一原子のための迅速化学分離が不可欠であり、迅速自動化学分離法の研究が阪大、京大、都立大、原研などの研究者によって行われている。彼らの最近の104番元素Rfの化学的性質に関する研究成果は世界的にもトップレベルにある。

### 2.4.3 放射性核種の挙動・溶液化学

放射性元素・核種の溶存状態、化学種に関する研究をほぼ50年間にわたって継続的に行ったのは静岡大の研究グループで、Bi, Po, Sn, Sb, ランタノイド、アクチノイドについて研究が行われた。1950年代後半に静岡大理の神原富尚は放射性Sbの溶液化学を開始し、長谷川園彦・柏平伸幸・鈴木淳亮・中村俊夫らと塩酸溶液中におけるSb(III)とSb(V)の交換反応、その溶存化学種、及び分離について解明した。このSb化学の研究はその後、Sb元素等の放射化分析の研究及び吉岡潤江（静岡大理）が中心となって行われた同位体希釈分析法（酸化還元不足当量

法, 過不足当量法) の確立に寄与した。Sb の溶存状態の研究は東大でも一時行われた。Po 及び Bi は加水分解し易いため, pH 領域水溶液中で極微量濃度における定量的な熱力学的パラメータ値が殆ど無かった。静岡大理の波多江一八郎・菅沼英夫らは 1970 年代初めから研究を行い, それらの溶存状態を明らかにした。1980 年代後半から, 菅沼・大森巍・佐藤伊佐務 (東北大金研)・G. R. Choppin (Florida State Univ.) らは原子炉溶液化学で最も重要な f ブロック元素 (Ln と Am) の混合溶媒系の熱力学的な諸量を求め, Ln (III) と Am (III) の化学的挙動に差を作り出すための基礎データを得た。2001 年, 有阪真・木村貴海・吉田善行 (原研)・菅沼は濃厚塩化物濃度のメタノール混合溶媒系において, Cm (III) と Eu (III) の溶媒和分子まで含めた化学種の違いを定量的に解明した。

Ru の分離研究も含めた溶存状態, 吸着挙動の研究は, 京大, 広島大, 立教大, 原研, 放医研, 名工試などで行われた。また, ハロゲンの溶媒抽出・イオン交換挙動の研究が阪大で引き続き行われ, ランタノイド, アクチノイドの錯形成に関する研究が東京理科大で行われた。

Tc の種々の化学形のイオンや錯体の溶媒抽出挙動, イオン交換樹脂への吸着挙動, 錯形成に関する研究は, 東北大, 青山学院大, 静岡大, 原研などで行われた。大森は Tc の放射化学及び錯塩化学的研究を行なった。また, Zr イオンのイオン交換吸着などが放医研 (伊沢正実ら) で行われた。

アクチノイドに関しては, 原研の吉田らによる溶液化学の系統的研究, 東北大の鈴木進らや金沢大の阪上正信らによる Pa の溶媒抽出挙動・イオン交換挙動に関する一連の研究, 東北大 朽山修らの Np の錯生成に関する一連の研究がある。Am や Cm のイオン交換挙動 (原研), Am 錯体の研究 (東北大), Np 錯体に関する研究 (熊本大) も討論会で報告されている。

先にも述べたが, 原研等の研究者による Rf のイオン交換挙動, 逆相クロマトグラフィー, 錯形成に関する系統的研究は国際的にトップレベルである。また, No や Db のイオン交換挙動の研究 (阪大, 原研など) も始まっている。

マルチトレーサ法が開発されると (理研:安部文敏ら 1993), 元素の吸着挙動, イオン交換挙動, 錯形成挙動, 生体内挙動などが多元素同時に研究できるようになり多くの成果が生まれ, マルチトレーサ法の開発に対して 1998 年に科学技術庁長官賞が授与されている。

放射性核種の環境内挙動に影響する配位子として重要視されてきたものの一つはフミン酸であり, ランタノイド, アクチノイド, テクネチウムとの錯形成や挙動特性への影響について, 東大, 東北大, 北大で研究が行われた。アクチノイド・ランタノイドの環境中錯生成・吸着挙動の研究 (東大/広島大:高橋嘉夫) に対して, 2004 年放射化学会奨励賞が授与された。

1980 年代から, 高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価研究が始まり, この視点からの放射性核種の挙動・溶液化学の研究が東北大, 東大, 名古屋大, 京大, 九大, 動燃 (サイクル機構) で行われるようになり, 今に続いている。

そのほか, アルコール混合溶媒-陰イオン交換樹脂系におけるアクチノイドの挙動 (原研:白田重和), 海水中微量元素の化学種・挙動に関する研究 (放医研:小柳ら), 放射性核種内包フラーレンのクロマト的溶離挙動の研究 (都立大/筑波大:末木啓介ら), 気相における錯形成反応に関する研究 (新潟大:工藤久昭ら), 無担体 Cd, Ag の製造と化学的挙動に関する研究 (理研:安部ら) がある。

放射性核種の環境内挙動の研究についても言及しておく, 天然放射性核種, フォールアウト核種, 原子力施設から放出されたアクチノイドなどについて, 九州大, 京大, 筑波大, 金沢大, 放医研, 新潟大で研究が行われた。たとえば小山誠太郎ら (新潟大理) が中国第 12, 13 回核爆

発実験のファールアウトについて報告している。環境 Tc の分析と挙動に関する研究（放医研：田上恵子ら）に対して、2002年放射化学会奨励賞が授与されている。また、チェルノブイリ事故（1986）に由来する核種の土壌・植物系における挙動について九州大、青山学院大、放医研などで研究が行われた。Rn 及びその娘核種の気相中物理化学的挙動や放射化物の加工に伴って発生する放射性エアロゾルの挙動の研究が高エネ研で行われている。1980年からの地震予知と結び付けた静岡県下の地下水中ラドン含有量変動の定期測定が波多江一八郎によって現在も行なわれ、膨大なデータを蓄積した。静岡大理の塩川孝信、長谷川は1962年硫酸チタン溶液を用いる高レベル  $\gamma$  線の新しい線量計を利用し、種々の塩の溶液内の放射線化学反応機構解明をした。この研究は1984年の吉永光一、長谷川らによる DNA 放射線損傷解明の一連の研究、それに続く吉岡、長谷川らのその損傷に対する茶カテキン防御の解明、そして吉岡、大橋康典、吉岡寿らによる活性酸素による生体影響とその防御に関する研究へと発展している。

## 2.5 放射化分析・放射化学分析

（海老原 充）

### 2.5.1 はじめに

放射化分析とは、まず安定な原子核を適当な核反応によって高励起状態の原子核に変換し、その生じた高励起状態の原子核がよりエネルギー状態の低い状態に遷移する際に放出する放射線を利用して元素の定性および定量分析を行う方法である。不安定核種（放射性核種）は放射壊変をして、再び安定核種に変わる。放射性核種が壊変によって初めの個数の半分になるのに要する時間を半減期と定義する。半減期は核種に固有であり、また壊変に伴って放出される放射線のエネルギーも核種に固有である。従って半減期や放射線のエネルギーを測定することにより核種を同定することができ、放射線の強度を求めることにより核種の量（個数）を決めることができる。このように、放射化することによって生じた不安定核種の放出する放射線を測定して、はじめに存在した安定核種からなる元素を分析する方法を放射化分析（activation analysis）という。

安定核種を放射化する手段としては、中性子、荷電粒子、光子（ $\gamma$ 線）などが用いられる。このうち、中性子はそれ自身電荷をもたないことから原子核に容易に近づくことができる。なかでも運動エネルギーの小さな熱中性子は原子核に捕獲される確率が高く、多くの原子核と核反応を起こしやすい。中性子源として研究用原子炉が利用出来るようになって中性子放射化分析は汎用的な放射化分析法として広く利用されるようになった。光子や荷電粒子を用いる放射化分析法では加速器が利用される。このように、放射化分析法の特徴は、原子炉や加速器などの大型の施設を利用せざるを得ず、そのような施設の稼働状況によって研究の活性化が左右されるという現実がある。

本稿では放射化分析に加えて放射化学分析についても記述するが、この放射化学分析という言葉はそれ自体非常に広い意味を持ち、例えば理化学辞典（第5版；岩波書店）によると、放射性核種を用いた定性・定量分析をさすとされ、放射化分析や放射滴定分析なども含むとされる。本稿では放射化分析と切り離して、別項として記述した。またその定義も後述するとおり、やや絞った内容として取り扱う。以下においては、放射化分析の発展の道筋を、中性子放射化分析、荷電粒子放射化分析と光量子放射化分析、放射化学分析の3つの項目に分けてそれぞれについて概観する。なお、これまでの放射化学討論会における放射化分析のセッションで、荷電粒子励起 X



線分析 (PIXE) の発表が行われていることがあった。荷電粒子励起 X 線分析も強制的に原子核を励起し、その緩和過程で放出される放射線を測定するという点では放射化分析と同様であるが、核反応を伴わないことから本稿では取り上げない。

表 2-5 ホットアトム研究史 (気体および液体)

	1-10回 (1957-1966)	11-20回 (1967-1976)	21-30回 (1977-1986)	31-40回 (1987-1996)	41-50回 (1997-2006)
発表件数 (ホットアトム全体の件数)	95	144	134	66	
研究者	塩川ら (東北大) 岡本ら (原研) 松浦ら (立教大) 森川ら (東大理) 稲荷田 (理研) 岩崎ら (東工大) 神原ら (静岡大)	塩川ら (東北大) 森川ら (東大理) 木曾ら (京大炉) 蒲原ら (静岡大) 四宮ら (熊本大) 立川ら (原研) 島村ら (東大理) 富永ら (東大理) 森川ら (東大理) 阪上ら (金沢大) 八木ら (東北大核) 西ら (京大炉) 山寺ら (名大) 瀧ら (北里大)	塩川ら (東北大), 森川ら (東大理), 岸川ら (熊本大), 八木ら (東北核), 瀧ら (北里大), 松浦ら (立教大), 井戸ら (放医研), 佐伯ら (原研), 富永ら (東大理), 工藤ら (原研), 海老原ら (筑波大), 高橋ら (阪大), 吉原ら (東北大), 野崎ら (理研), 池田ら (筑波大), 佐藤ら (東工大), 今村ら (都立大), 佐野ら (都立大)	森川ら (東大理) 池田ら (筑波大) 松浦ら (立教大) 佐伯ら (原研) 戸村ら (立教大) 荘司ら (筑波大) 酒井ら (大同工大) 馬場ら (阪大) 吉原ら (東北大)	荘司ら (筑波大) 荒殿ら (原研) 工藤ら (新潟大)
研究主題	有機ハロゲン化合物, 臭素及びヨウ素化合物, イオン交換樹脂系, ビリジン-芳香族系, ブロムベンゼン系, セレン系, イオウ系のホットアトム反応, 反跳トリチウムの反応	メタン系, エタン系, 臭化エチル系, 臭素系, 臭素-ブロパン系, リン酸-水系, イオン交換樹脂系, 有機金属錯体, アセチルアセトナト錯体-ベンゼン系, リン化合物-ベンゼン系のホットアトム化学, フレオンと反跳臭素の反応, 反跳トリチウムの反応	炭化水素, アセトン, エーテル系, トルエン-トリチウム系, エタン, メタン, コバルトセン, 有機凍結溶媒系, 水溶液ポルフィリン錯体系, 臭化水素, 臭化メチル系, および液体アンモニア中のホットアトム化学, $^{160}\text{p}$ , $^{150}\text{pn}$ などの反応系, 反跳トリチウムと有機化合物や黒鉛などとの反応, 溶媒和イオンの反応, 反跳臭素の熱イオン反応	$^3\text{He}(n, p)^3\text{H}$ による有機化合物のトリチウム化学, 水溶性ポルフィリン錯体系のホットアトム化学, 凍結溶液における初期リテンション, 反跳ヨウ素の化学的挙動, フラーレンの溶出挙動, カルボン酸系における $^{13}\text{N}$ の反応	水溶性ポルフィリン錯体系の反跳効果, トリチウムの水素引き抜き反応, 気相系における錯形成反応

\* 件数は境界的なものをどこまで入れるかにより分類により多少変動する

\*40 回以降については, 研究領域の広がりのため分類がむずかしいため統計は省略した。

## 2.5.2 中性子放射化分析

中性子を用いた放射化分析の最初の例として引き合いに出されるのは Hevesy と Levi による イットリウム中の不純物ジスプロシウムの定量で, このときの中性子は, ラジウムから放出され

る $\alpha$ 線をホウ素にあてて得られたものであった。戦後、研究用原子炉が普及して中性子源として広く利用されるようになるが、それまではこのような核反応によって中性子を得る必要があった。原子核が中性子を吸収すると、その直後（ $10^{-14}$ 秒以内）に即発 $\gamma$ 線、または捕獲 $\gamma$ 線と呼ばれる $\gamma$ 線を放出する。この一連の反応は（n,  $\gamma$ ）反応と呼ばれ、放射化分析で最もよく利用される核反応である。分析にあたっては、この即発 $\gamma$ 線を測定するよりも、中性子を捕獲して生じた不安定核種が安定核種に壊変する際に放出する放射線を測定することのほうが多い。しかし、後述するように、我が国においては現在、この壊変 $\gamma$ 線と即発 $\gamma$ 線の両方を用いて活発な研究が展開されるに至っている。以下においてこのような展開に至る過程を含めて、第1回討論会（1957年）から第44回討論会（2000年）までの中性子放射化分析に関連する研究の流れを年代順に概観する。中性子放射化分析以外の放射化分析に関しては次項で述べる。

第二次世界大戦後、研究用小型原子炉が普及するにつれて、中性子の利用が格段と容易になった。原子炉には中性子放射化分析に都合のよい熱中性子が豊富に存在するので、その普及によって中性子放射化分析が元素分析法として大きく発展した。我が国でも、1957年に最初の研究炉（JRR-1）が、現在の日本原子力研究開発機構（旧日本原子力研究所）東海研究所内に建設され、臨界に達した。1958年以降、中性子放射化分析への利用が可能となり、中性子放射化分析が急速に発展した。1957年は放射化学討論会の発足した年でもあり、その中に討論主題として「放射化分析および放射化学分析」のセッションが生まれ、浜口博（東教大）が「放射化学分析の現状」と題する総説を発表している。その中で放射化分析の現状についても言及されたものと推察される。当時の認識として（も）、放射化分析は放射化学分析の一部と考えられていたと推察される。現在では放射化分析、とくに中性子放射化分析ではいわゆる機器中性子放射化分析（INAA）が主流であるが、当時の放射化分析では、放射化されて生じた放射性核種を放射化学的な分離操作によって分離精製することが普通であったことからそのように認識されるのは至極当然のことであった。第1回の討論会では放射化分析関係の発表はこの総説を含めて4件あり、実際の分析例としては日下譲・辻治雄（甲南大理）によって「Ra+Be 中性子源によるホウ素の定量」と題する研究が1件だけ発表された。残りは関連する半減期や放射化断面積測定に関するものであった。翌1958年には放射化分析に関連する発表が11件と急増する。これは全発表件数64件に対して少なからぬ数の発表である。臨界に達したJRR-1を用いた中性子放射化分析の発表がその過半数を占めていることが注目される。この第2回放射化学討論会にはGeorg von Hevesy教授が特別講演される予定であった。その講演題目は“Historical Survey of the Application of the Tracer Methods in Analytical and Inorganic Chemistry”で、自信のノーベル賞受賞対象となった研究を紹介する予定で、必ずしも放射化分析に関連した講演を意図したものではなかったと想像される。しかし、JRR-1臨界による中性子放射化分析の本格的実施の年にHevesy教授を日本に招くことは大変意義深かったに違いないが、残念ながら急病のために講演は中止になった。放射化分析に関する発表としては中井敏夫ら（原研）による「核燃料中の不純物の放射化分析」、原子炉材料中の不純物の放射化分析、中井・浜口による「JRR-1原子炉を利用する放射化分析の感度」等に加え、浜口を中心とするグループにより隕鉄中の痕跡元素の放射化分析に関する研究が3件発表されている。中性子放射化分析は原子炉中性子によるばかりでなく、ラジウム+ベリリウム中性子源による分析も実施され、この線源を用いた研究が第1回討論会に続いて日下・辻により第2回、第3回討論会でも発表されている。第3回討論会（1959）にはこれ以外に8件の放射化分析の研究が発表されたが、発表内容は前年の傾向をそのまま引き継いでいる。1960年の第4回討論会は原研で開催され、7件の放射化分析関係の報告が行われているが、その中で「立教大学原子力研

研究所ホットラボの設計について」と題する発表が松浦辰男によって行われているのが興味深い。この年、山縣登（国立公衆衛生院）と田島栄作（群馬大）による「生体中のセシウムの放射化分析」と題する発表があり、生体試料が分析対象として採り上げられているのが注目される。

第5回討論会（1961年）は立教大学で開催され、初日と二日目は池袋構内で行われたが、三日目は横須賀市長坂（佐島）の同大学原子力研究所で特別講演と施設見学会が行われた。この年に原子力研究所のTRIGA-II型原子炉が臨界になったことを記念したものであった。討論会においてはJRR-1を用いた研究が3件発表されている。「中性子放射化分析法によるイッテルビウムの迅速定量」（東工試・原研：岡田実，亀本雄一郎），「ビスマス中塩素およびマンガンの放射化分析」（原研：亀本，山岸滋）および「非破壊法による作物体銅の放射化分析」（農技研・原研：渋谷政夫ら）である。翌1962年の第6回討論会で注目されるのは14MeV中性子による放射化分析で、装置の開発（「14MeV中性子による放射化分析装置の研究」とともに、分析例（「14MeV中性子による酸素の放射化分析-石炭中の酸素定量への応用」「14MeV中性子によるプラセオジウム、ネオジウム混合物中のプラセオジウムの放射化分析」）も報告されている（東芝中研：藤井勲ら）。第7回討論会（1963年）は東北大学で開催され、放射化分析のセッションに初めて中性子捕獲反応以外の反応を用いた放射化分析の実験結果が報告された。これは光核反応によるもので、詳細は2.5.3を参照されたい。中性子を用いる放射化分析関係の発表は8件で、そのうち4件が方法論に関係するものであり、それまでの各論的な発表と趣を異にする。例えば亀本・山岸滋（原研）による「中性子自己遮蔽について」などはその例である。

1964年は京都大学原子炉実験所の原子炉が臨界に達した年であり、この年大阪で開催された放射化学討論会（8回）での放射化分析関係の発表件数は17件で、前年の10件に比べると大幅な増加であり、大変活発であったことが伺える。この年の放射化分析関連の。分析対象としては金属や鋼中の放射化分析が多い。この年に立教大学原子炉を用いた研究「原子炉の速い中性子を利用する放射化分析（III）- $^{28}\text{Si}(n,p)^{28}\text{Al}$ 反応の利用」が戸村健児・樋口英雄により報告されているのが、その発表を挟むように四方英治（原研）の「放射化分析における炉内速中性子の影響」、塩川孝信（東北大）の「速い中性子による核反応断面積（IV）TD反応により発生する速い中性子エネルギー分布」「速い中性子による核反応断面積（V）種々の核種における（n,p）反応断面積の測定」が配されており、興味深い。この年の討論会で荷電粒子放射化分析の発表が行われた（2.5.3参照）。翌1965年には放射化分析のセッションが「放射活性化分析」と名付けられており、10件の発表が行われている。その中で、日下らの「即発 $\gamma$ 線分析によるホウ素の分析（アメリカシウム・ベリリウム中性子源使用）」と題する発表を行っているが、日本における即発 $\gamma$ 線分析に関する初めての報告であろうと思われ、注目される。また、放射化学分析との組み合わせで行われたヨウ素の分析法の発表が2件（原研：村上悠紀夫ら「生物体中の放射性ヨウ素の分析法」、東教大・池田長生ら「同位体交換法によるヨウ素の放射化分析」）行われているのも興味を引く。1966年（10回）には放射化分析のセッションにおいての11件の発表があったが、武蔵工大炉（1963年1月臨界）と京都大学炉（1964年6月臨界）の中性子を用いた発表の存在（前者の例として万里輝男らによる「小型原子炉による半導体Si中の不純物の放射化分析」，「放射化分析によるたばこの葉の中の水銀，ヒ素の定量」，後者の例として笹島和久らの「Inner Tracer法による高純度鉄ターゲット中の微量マンガン放射化分析」）が注目される。翌1967年の第11回討論会では10件の放射化分析関係の発表が行われた。そのうち、京大原子炉の岩田志郎らによる「筋萎縮側索硬化症発症地域の環境要因の放射化分析」と題する発表は病気と環境との因果関係を放射化分析を用いて明らかにしようとする意欲的な研究として注目される。また、高純度材料中の不純

物元素の定量は放射化分析の最も得意とする課題の一つであり、「半導体高純度シリコン中の不純物の放射化分析」(原研：中山了司，本島健次，板東昭次)，「中性子放射化分析による高純度リン中銅，ヒ素，アンチモンの定量」(原研：板東，三井金属工業中研：岸肇)の報告がなされた。

1968年の第12回討論会では放射化分析関連の発表は18件と盛況であった。そのうち、ゲルマニウム半導体に関連する放射化分析の発表が3件行われた。うち2件は東芝中研の藤井らによるスペクトル解析に関するもの(「Ge(Li)および電算機を使用した放射化分析」，「Ge(Li)検出器による $\gamma$ 線スペクトルの計算機による処理」)であるが、もう1件は立教大学原研の樋口らによる岩石試料中の微量元素分析に関するもの(「Ge(Li)検出器を利用した岩石中のストロンチウム・バリウムの放射化分析」)である。従来の放射化分析では放射化されて生成した放射性核種を分離精製し、放射線を測定するのが普通であったが、分解能良く $\gamma$ 線を測定できるゲルマニウム半導体検出器が利用できるようになり、放射性核種を分離精製せずに測定できるようになった。こうして、中性子放射化分析は新しい局面を迎えた。このほかの発表としては14MeV中性子による放射化分析に関するものが3件、宇宙化学に関連する放射化分析の発表が3件行われている点が注目される。このうち後者の発表は東大物性研の本田雅健を中心に行われ、隕石中における消滅核種 $^{53}\text{Mn}$ ，および $^{129}\text{I}$ の存在度を放射化分析で求めようとする意欲的な研究である。翌1969年の第13回討論会では放射化分析関連の発表件数は7件と前年に比べて半分以下に減少した。その中で、環境試料分析に関する発表が3件あった。これらの対象となったものは、降下煤塵・浮遊塵埃(原研：板東，今橋強「降下ばいじん，浮遊じんあいの放射化分析(Sc, Cr, Fe, Co, Zn, Sbの定量)」，土壌(武蔵工大原研：丸山芳明ら「放射化分析による土壌中の水銀の定量」)，天然水(京大他：藤永太一郎ら「天然水試料中のバナジウム，アルミニウムおよび銅の放射化分析(有機捕集剤の適用)」)で、それぞれ原研炉，武蔵工大炉，京大炉を利用した研究である。1970年には発表も11件と増え、非破壊の機器中性子放射化分析，14MeV中性子による分析，放射化学分離を伴う分析と、方法も多岐にわたっている。この年にはNAIG：湯浅嘉之らの「パルス中性子による短寿命核種の放射化分析」と題する報告が行われており、注目される。また、この時代の状況を反映してか、環境汚染の程度をモニターすることを目的とした研究発表が目につく。たとえば、ヒ素(京大原子炉他：岩田志郎・荷福正隆「微量ヒ素の放射化分析法」；大阪公衛研他：大森さよ子「Ge検出器を用いた非破壊放射化分析法による毛髪中のヒ素の定量」)や水銀(原研：板東・今橋「水中水銀，ヒ素の放射化分析」)などの分析結果について報告されている。翌1971年の第15回放射化学討論会における放射化分析関係の発表の中にも粉塵，海水，海産物などの環境試料が含まれている。たとえば近大原研他：合田四郎らは「海水中のヒ素，アンチモンの放射化分析」を報告している。この年の討論会では放射化分析の発表が9件あり、そのうち3件(立教大理：奥野久輝ら「放射化分析による亜鉛同位体比の測定」；立教大原研：戸村「中性子照射した水，炭化水素の短寿命核種」；立教大原研：樋口・戸村「岩石中のウラン，トリウムの同時放射化分析」)が立教大原子炉を利用したものである点が注目される。同様の傾向は1972年の第16回討論会においても認められる。この年8件の放射化分析関係の発表があったが、天然水，河川水，地下水，海水，海産物，毛髪，玄米と多岐にわたる試料が分析対象とされた。この年の年会のプログラムから「放射化分析グループ分科会」の枠が設けられ、金沢大：寺田喜久雄が世話人をつとめている。1973年，第17回討論会における放射化分析関係の発表は11件で、方法論に関係する発表が5件と、約半数を占めている。前年は8件中3件あり、この時代の放射化分析の発表における傾向を見て取りことができる。この年、臭素の定量に関する発表が2件(東北大：宮田ら「臭素の非破壊放射化分析」；京大理他：藤永ら「血液中の臭素の放射化分析」)行

われている。臭素は中性子放射化分析で高感度に分析される元素の一つであり、非破壊で分析出来ることが中性子放射化分析の大きな利点といえる。

1974年（18回討論会）には12件の放射化分析関係の発表があり、それに加えて3件のPIXEによる元素分析に関する発表が行われた。PIXEは1970年にスウェーデンのヨハンセンによって元素分析法として提唱され、日本でも基礎的な研究が始まった。また、この年の討論会では「加速器による放射線化学・放射化学」と題するパネル討論会が行われ、4件の発表のうち、理研：野崎正「理研サイクロトロンによる放射化分析」、京大：岩田「荷電粒子励起X線測定による微量分析」と題する2件の発表が行われていることが注目される。1975年の第19回討論会には9件の放射化分析関係の発表があり、茨城電通研の工藤洸らのグループによる2件の不足当量法による高純度材料中の超微量成分分析の発表（「高純度材料中の超微量成分の放射化分析（5）置換不足当量法によるインジウム、銅、ニッケルの定量」、「同（6）不足当量法によるクロム定量」）が注目される。不足当量分析法は、東北大学の鈴木信男と工藤洸によって1972年に考案された定量分析法で、放射化分析と組み合わせることによって高感度でかつ高確度な分析値が得られる特徴がある。翌1976年の第20回放射化学討論会には11件の放射化分析関係の発表があった。そのうち5件が溶液試料（温泉水、天然水、純水、河川水、海水）中の微量元素の定量に放射化分析法を適用した結果を報告している。第21回討論会（1977年）には発表件数が23件と大きく増加した。これは中性子照射以外の方法による放射化分析の研究が増えたこと、中性子放射化分析に利用できる原子炉が多くなったことなどが理由として考えられる。この年の討論会で京大原子炉を利用した研究発表の件数が8件を数え、その中には松下録治・小山睦夫の「複数コンパレーター法による放射化分析法」と題する発表が行われていることが注目される。翌1978年の第22回討論会では放射化分析関連の発表件数は26を数えるが、当時は原研炉、京大炉、武蔵工大炉、立教大炉がすべて健在で、それらを利用した中性子放射化分析の研究が活発に行われていたことが伺われる。その一方で、原研の研究者による発表が全くないことが注目される。この年、武蔵工大原研：平井昭司は「前処理無しの水試料の放射化分析」、「放射化分析によるガソリン・軽油中の重金属の分析」の2件を発表するほか、同所・鈴木章吾との連名で「高計数率測定時における不感時間の補正」と題する発表を行っていることが注目される。翌1979年（23回討論会）には放射化分析関係の発表は22件を数える。この年から討論会でポスター発表が始められ、1件のポスター発表があった。この年の発表では、原研：米沢伸四郎・小森卓二による「同位体希釈中性子放射化分析によるジルコニウムおよびジルコニウム合金中のハフニウムの定量」という発表が注目される。1980年の第24回討論会には放射化分析関連の発表件数は27件に達した。この頃の放射化分析の発表の内容は多方面にわたり、分析対象が多岐にわたること以外に、分析手法、計測手法など非常に広い分野での発表が行われた。そうした中で、日本分析センター他：木村敏正らの「放射化分析における放射性ナトリウムの除去」と題する発表は放射化後の化学分離を前提とした放射化分析に利用するための操作法に関する発表で、注目される。1981年（25回討論会）には口頭発表18件（うちポスター発表2件）の放射化分析関係の発表があった。環境試料と生体試料が主な分析対象試料であることはこの頃の共通した特徴である。この年には、「切込焼古窯出土品の放射化分析」（名工試：川島達郎、松野外男）、「長野県内遺跡出土須恵器の産地推定」（奈良教大：三辻利一、山本成顕）、「古代ガラスの放射化分析」（東大理ほか：富沢威ら）と考古学的試料の分析に関する発表が3件あり、注目される。

1982年の第26回放射化学討論会は日本化学会秋季大会と合同で行われたために、放射化学討論会の枠内で発表された放射化分析関係の発表件数はわずか2件で、うち中性子放射化分析に関

する発表はゼロであった。しかし、翌1983年（第27回討論会）には20件の放射化分析関係の発表（うち1件はポスター発表）があった。武蔵工大原研：鈴木らは「放射化分析システム（GAMAシステム）の開発」と題する発表を行ったが、このGAMAシステムはその後改良を加えながら放射化分析における $\gamma$ 線スペクトル解析プログラムとして多くの利用者に支持されることとなった。1984年の第28回放射化学討論会では放射化分析関係の発表は口頭22件、ポスター2件を数えた。ランタノイドは一般に中性子放射化分析で高感度に定量される元素群であるが、この年、ランタノイドの中性子放射化分析に関する研究が4件発表された。そのうちアクチバブルレーザー前濃縮法を用いる発表が明治大他：塚田らと都立大理他：山下らにより報告されているのが注目される。そのほか、岩石試料中のランタノイドを照射後に放射化学分離を行って分析する、いわゆる放射化学的中性子放射化分析の研究が群馬大教養：海老原充、金沢大理：窪田らによって発表された。1985年（29回討論会）には放射化分析のセッションにおいてJ. Radioanal. Nucl. Chem. 誌の編集長であるハンガリー Eötvös 大学の T. Braun 教授が「Selective Radiochemical Separation of Sodium-24 by a New Type of Isotopic Exchange Reaction」と題する招待講演をされた。この年には口頭25件、ポスター3件の放射化分析関係の発表があった。翌1986年の第30回放射化学討論会では口頭27件、ポスター1件の発表があった。この頃の放射化分析セッションにおける発表内容の特徴として、多様な放射化分析法、中性子放射化分析法における近大炉を含めた多種類の原子炉の利用、方法論の展開、多様な分析対象試料等が挙げられ、放射化学討論会における放射化分析関連の発表に関して、一つの頂点を形成していた時期ではないかと回想される。その傾向は翌1987年の放射化学討論会（第31回）でも伺うことができ、放射化分析関係の発表件数がポスター5件を加えて33件に達し、発表件数においてもピークを記録した。このころの中性子放射化分析の発表の特徴として、旧日本原子力研究所（現日本原子力研究開発機構）の原子炉を利用した研究発表に比べて、武蔵工大炉、立教炉、京大炉を利用した発表が相対的に多いことが挙げられる。これはそれぞれの研究施設、あるいはそこに在籍する研究者の施設共用に対する取り組みの違いを反映する結果となったものと理解される。このことは今後の大型施設の共用を考える場合、施設を運営する側に立つ側の人には是非とも重く受け止めて頂きたいことである。1988年の第32回放射化学討論会には放射化分析関係の発表は口頭21件、ポスター2件で、分析対象は相変わらず多岐に渡るが、都立大理：桂木らによる「火山ガス中の微量元素の機器中性子放射化分析」はガス試料を対象にしている点で注目される。

1989年からは放射化分析の発表件数が減少する傾向があらわれた。同年の第33回放射化学討論会では13件の放射化分析関係の発表があったが、内7件は中性放射化分析以外の放射化分析に関する研究である。中性子を用いた放射化分析の研究としては東北大金研他：三頭聡明らのJMTRを利用した「高中性子束炉による放射化分析」、武蔵工大炉を利用したNTT光工研他：米沢洋樹らの「即発 $\gamma$ 線分析によるホウ素の定量」が注目される。翌1990年の第34回討論会では15件の発表があり、うち5件が中性子放射化分析以外の発表であった。この1989年以降の放射化分析、なかでも中性子放射化分析関連の発表が減少する傾向を、京大炉・小山睦夫教授の急逝と関連づけるのは単純すぎるであろう。なお、1990年には旧日本原子力研究所の3号炉（JRR-3）が、改造三号炉JRR-3Mとして運転が再開された。JRR-3は1962年に臨界に達し、1985年に改造のために一次運転を停止していた。再開されたJRR-3Mは改造によって高性能の研究用原子炉と生まれ変わった。一番大きな変更点は原子炉の外に中性子ビームを引き出し、中性子ビームを用いた様々な実験が可能になったことであろう。中性子放射化分析に関して言えば、中性子誘導即発 $\gamma$ 線分析（PGA）の実施が可能となったことが特筆される。JRR-3M運転開始の翌年、1991年の

第35回討論会においてPGA装置の製作に関連する発表が2件(うちポスター1件)含まれている。このPGAによる研究は、旧原研と東大原総センターを中心とする大学研究者との共同研究(協力研究)の形態で始められた。基礎研究に関しては装置の立ち上げから旧原研の米沢の努力によるところが大きく、この年の2件の発表はいずれも米沢らによるものである(「JRR-3冷及び熱中性子ガイドビームを利用した即発 $\gamma$ 線分析装置の制作」, 「JRR-3即発 $\gamma$ 線分析装置 $\gamma$ 線スペクトロメーター(Ge-BGP)の特性」)。翌年1992年の第36回討論会において、早速PGAによって得られた分析結果に基づく研究発表が2件あった(原研他:米沢ら「JRR-3M即発 $\gamma$ 線分析装置による各種物質中のホウ素の定量」;慶大文他:富沢ら「古代ガラスの原子炉中性子即発 $\gamma$ 線分析」)。続く1993年(37回討論会)にはPGA関連の発表件数がさらに増え、6件の発表があった(熊大工他:岸川ら;原研:間柄ら;都立大他:小林ら;原研:米沢ら;慶大文他:富沢ら;都立大他:海老原ら)。これはJRR-3MのPGA装置の利用が効率的に行われてきたことに加えて、熱中性子とともに冷中性子のビームを利用することができ、少ないマシンタイムにも関わらず、感度の高い分析が可能になったことを反映した結果と考えられる。1991年から1993年にかけての放射化分析関連の発表件数は18, 17, 16とほぼ横ばいであり、即発 $\gamma$ 線分析以外の発表件数は減少傾向を示すが、発表内容は多岐に渡り、セッションとしては活性化を保っているとの印象をもつ。

1994年の第38回討論会においては放射化分析関連の発表は口頭16件、ポスター3件と横ばい状態が続いているが、発表内容は充実している。例えば三菱マテリアル中研他:桜井宏行らの「光量子放射化分析による標準岩石中のフッ素の定量」、原研他:松江秀明らの「中性子誘起即発および遅延 $\gamma$ 線測定による塩素の同位体分析」、都立大他:末木啓介らの「中性子放射化による金属フラーレンの研究」等の研究は注目される。最後の例は元素分析ではないが中性子捕獲核反応の特徴をうまく利用した研究として特筆される。翌1995年(39回)の討論会で、ベルギーのGhent大学のFrns De Corte教授による“Fundamental aspects, installation and practical applications of ko-standardized neutron activation analysis”と題する特別講演が行われた。ko標準化法は放射化分析の新しい流れとして、特にヨーロッパを中心に利用されだしてきたデータ解析法で、デ・コルテ教授はその開発者の一人として活躍された方であった。尚この講演の座長を務めた東北大核理研の榎本和義は前年1994年の討論会でDe Corteと共著で「ko法による中性子放射化分析のための標準物質の検定」と題する発表を行っている。この年の放射化分析関係の発表は口頭9件、ポスター4件とやや低調であったが、都立大他:佐藤渉らの「即発 $\gamma$ 線による大型試料中の主成分元素の非破壊定量法の検討」は即発 $\gamma$ 線分析の特徴を發揮した優れた報告であった。

1996年の第40回放射化学討論会では「不足当量法の創始と発展」と題する記念講演が、この方法の創始者である鈴木信男(石巻専修大)によって行われた。この講演を含め、この年にはポスター5件を含めて18件の放射化分析関連の発表があり、内5件がPGAに関係する発表であった。炉内中性子照射を用いた放射化分析の研究例としては都立大理:篠塚一典らの「隕石中の希土類元素の定量:放射化学的中性子放射化分析法と誘導結合プラズマ質量分析法の比較」は微量元素分析法としての2つの分析法を比較した興味ある報告であった。翌年の1997年はAPSORCと合同開催され、討論会としての活動は空白となるが、翌1998年の第42回討論会では放射化分析関係で口頭13件、ポスター4件と、従来通りの数の発表があった。この年の発表の中ではko法と即発 $\gamma$ 線分析を融合させた分析法が原研の松江・米沢によって行われているのが注目される。また、生体試料としてラットを用いて亜鉛と他の微量元素の吸収挙動を調べた興味深い研究が静岡大理の矢永誠人のグループによって2件報告されているのが注目される。翌年の1999年は放射化学会発足の年で、討論会としては第43回に相当するが、この年の招待講演として中国

科学院高能物理研究所の柴之芳教授が“Modern Nuclear Analytical Techniques and Their Application in China”と題する講演を、また招待講演として武蔵大学の葉袋佳孝教授が「地球化学・環境化学における中性子放射化分析の先端的利用」と題する講演をそれぞれ行った。放射化分析関係の発表は口頭12件、ポスター7件と盛況であった。このうち、原研の初川雄一らの「ゲルマニウム検出器系の分析化学への応用」という発表は、その後の多重 $\gamma$ 線分析による高感度非破壊微量分析への端緒を拓くもので、注目される。また、都立大院理他：永峯隆行らの「放射化学的中性子放射化分析による高純度ケイ素の元素分析」は定量限界値としてこれまでにないチャンピオンデータを示した点で特筆される。翌2000年の第44回放射化学討論会では7件の口頭発表に対して10件のポスター発表が行われた。ポスター発表のうち、旧日本原子力研究所内にある旧東京大学原子力研究総合研究センター東海分室（通称、開放研）における放射化分析関連施設の改良に伴う発表が伊藤泰男らによって3件（「大学開放研究室におけるko標準化放射化分析の整備状況」、「大学開放研究室における2検出器自動 $\gamma$ 線スペクトル測定装置」、「JRR-4の放射化分析用照射孔の安定性について」）行われたことが注目される。また、環境中に存在する有機体ハロゲン（EOX）の分析に関する愛媛大農他：河野公栄らの研究はここ数年継続して行われているものであるが、環境汚染指標としてのEOXの重要性を明らかにしたもので、非常に興味深いものである。

以上述べた発表件数の年ごとの推移については表2-8にまとめて示す。また、中性子源として利用されて来た研究用原子炉について表2-7にまとめて示す。

表2-6 中性子放射化分析で分析対象とされた試料<sup>1</sup>

討論会 回（西暦）	分析対象試料	討論会 回（西暦）	分析対象試料
1 (1957)		23 (1979)	合金, 水, 古銭, 石炭, 爪, 生体
2 (1958)	原子炉材料, 鋳床, 半導体, 隕鉄	24 (1980)	軽油, 水, 石炭, 土器, 生体, 母乳
3 (1959)	Si, 鋳物, 試薬, 核燃料, 岩石, 隕石	25 (1981)	水, 藻, 樹木, 粘土, 土器, 生体, 骨
4 (1960)	生体, 試薬	26 (1982)	
5 (1961)	試薬, 農産物	27 (1983)	環境, 岩石, 生体, 土器, 植物
6 (1962)	岩石, 海底土, 試薬	28 (1984)	石炭, 金属, 岩石, 動植物, 土器
7 (1963)	貝殻, 金属	29 (1985)	岩石, 考古, 堆積物, 水, 試薬, 生物
8 (1964)	金属, 生体, 海水, 試薬, 鋳物, 煤煙	30 (1986)	岩石, 炉剤, 金属, 考古, 生物, 水
9 (1965)	生体, 金属, 試薬	31 (1987)	貝, 血清, 岩石, 植物, 地理, DNA
10 (1966)	植物, 米, 小麦, 海水	32 (1988)	生体, 考古, 堆積物, 水, 雪水, 岩石
11 (1967)	環境, Si, P (いずれも高純度金属)	33 (1989)	火山噴出物, 植物
12 (1968)	金属, 天然水, 降下煤塵, 土壌, 隕石	34 (1990)	岩石, 地下水, 堆積物, 鉄, ガラス
13 (1969)	降下煤塵, 金属, 天然水, 土壌	35 (1991)	岩石, 包装物, 温泉水, 土壌, 考古
14 (1970)	骨, 水, 錯体, 毛髪	36 (1992)	考古, 鉄鋼, 生体, 温泉, 岩石
15 (1971)	水, 金属, 塵, 岩石, 海水, 海産物	37 (1993)	水, 鉄鋼, 金属, ガラス, 頭髪, 土器
16 (1972)	合金, 天然水, 海水, 海産物, 毛髪	38 (1994)	メモリ, 岩石, 考古, 隕石, フラレン
17 (1973)	ガラス, 生物, 血液, 河川水	39 (1995)	食品, 動植物, 金属, 素材, 考古
18 (1974)	岩石, 石炭, 燃料, 灰, 海水, 毛髪	40 (1996)	鉄鋼, 考古, 岩石, 試薬, 隕石, 底質
19 (1975)	土器, 水, 生物, 隕石	42 (1998)	考古, 鉄, 生体, 動物, 塵, 隕石
20 (1976)	高純度材料, 天然水, 純水, 海藻	43 (1999)	動植物, 地理, 素材, Si, 隕石, 岩石
21 (1977)	岩石, 土器, 生物, 底質, 水, 血清	44 (2000)	考古, 海産物, 動植物, 岩石
22 (1978)	岩石, 堆積物, 天然水, 試薬, 土器		

<sup>1</sup> スペースの制約から、すべての試料を網羅していない。



表 2-7 中性子放射化分析に利用された研究用原子炉

原子炉	臨界	運転停止	備考
日本原子力研究所 <sup>1</sup>			
JRR-1	1957.8	1970.3	
JRR-2	1960.11	1996.12	
JRR-3	1962.9	1983.3	国産第1号炉, 金属ウラン
(JRR-3M)	1990.3	→ <sup>2</sup>	20% 濃縮ウラン
JRR-4	1965.1	1996.1	90-93% 濃縮ウラン
	1998.7	→	20% 濃縮ウラン
近畿大学炉	1961.11	→	
立教大学炉	1961.12	2001.12	
武蔵工大炉	1963.1	1989.12	
京都大学炉	1964.6	2006.3	
	2008.4(?) <sup>3</sup>		

<sup>1</sup> 現・日本原子力研究開発機構.

<sup>2</sup> 現在稼働中.

<sup>3</sup> 予定.

### 2.5.3 光量子放射化分析・荷電粒子放射化分析

第1回の放射化学討論会（1957年）において「 $(\gamma, \gamma)$  反応による放射化について」という題名で吉原賢二（原研）と池田長生（東教大）により発表が行われているのが光量子放射化分析に関連する放射化学討論会での初めての発表であろう。この反応は  $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma)^{115\text{m}}\text{In}$  反応の放射化断面積を測定した結果の報告で、前記発表タイトルに「第三報」とされているところから推察するに、それ以前に他の学会で2報を発表した実績を踏まえた上での報告と思われる。第2回討論会（1958年）では東大核研のサイクロトロンを用いたニッケルをターゲットとした核反応の励起関数を求める実験結果が、放射化分析関連の報告に挟まれて発表されている。放射化分析が今のように元素分析法の1つの手段という認識に加えて、核反応そのものにも注目されていた状況を反映するものであろう。

討論会での光核反応による放射化分析（光量子放射化分析）の結果の発表は1963年の第7回討論会での報告が初めてということになる。これは東北大学の佐々木三千夫・加藤豊明による発表（「光核反応によるインジウムあるいはタリウムの中のガリウムの放射化分析」, 「光核反応によるガリウムあるいはインジウムの中のタリウムの放射化分析」）で、この分野の先駆けとなった。翌1964年（第8回討論会）には野崎正（理研）が理研のサイクロトロンを使って「 $^{14}\text{N}(p, \alpha)^{11}\text{C}$  によるグラファイト中の窒素の放射化分析」と題する発表を行っている。この研究も荷電粒子放射化分析の先駆けとなるもので、この年、中性子放射化分析関係の発表が14件あることを考えると、この時期は日本における放射化分析の幕開けと呼ぶにふさわしい時代である。それに先駆けて1957年に発足した放射化学討論会は放射化分析の成果を発表する場として最適な場であり、会の発足がまことにタイムリーであったことがこの分野からも伺える。1965年の第9回討論会において、岡好良ら（東北大理）による2件の光核反応を用いた放射化分析の発表があった。続く1966年（第10回討論会）、1967年（第11回討論会）では同じ東北大理のグループがそれぞれ

れ3件、2件の光量子放射化分析関連の研究発表を行っている。第13回討論会（1969年）にも1件の発表があった。1970年の第14回討論会において野崎（理研）らによって荷電粒子放射化分析を用いた半導体素材中の微量軽元素（炭素、窒素、酸素）の定量の結果が2件報告された。1973年（第17回討論会）において荷電粒子放射化分析と光量子放射化分析に関する研究がそれぞれ1件ずつ行われた（理研：野崎ら「酸素の荷電粒子放射化分析における $^{18}\text{F}$ の化学分離」；岩手大教養他：佐藤允美ら「光量子放射化法による標準岩石中の諸元素の同時定量」）。

1974年（18回討論会）に「加速器による放射線化学・放射化学」と題するパネル討論会が行われ、その中で野崎（理研）が「理研サイクロトロンによる放射化分析」と題して、荷電粒子放射化分析についての成果を報告した。同じパネル討論会の中で岩田四郎（京大）が「荷電粒子励起X線測定による微量分析」と題する講演を行っていることも注目される。この年、荷電粒子励起X線測定（PIXE）分析に関する研究が3件発表された。この時期、討論会における放射化分析の発表件数はどちらかというところ低迷していた。恐らく中性子を利用する放射化分析を含めて様々な模索が続いていた時期であろう。この時期の模索はいわば醸成過程であり、その成果がやがて1970年代終わりからの放射化分析隆盛期を迎えることにつながったと理解される。1976年（第20回討論会）、1977年（第21回討論会）に東北大理のグループを中心に光量子放射化法に関する報告が1件ずつ行われた。翌1978年には放射化分析関連の発表が26件を数えるが、そのうち荷電粒子放射化分析2件（ともに理研：野崎ら）、光量子放射化分析1件が含まれる。この中で榎本和義・鈴木信男（東北大理）の「 $\gamma$ - $\gamma$ 同時計数法を併用する地球化学的試料中のニッケルの選択的光量子放射化分析」は注目される発表である。1980年の第24回討論会では光量子放射化分析1件、荷電粒子放射化分析4件の発表があった。後者の発表の中で、鈴木ら（東北大理）の「生物・地球化学的試料中の多元素荷電粒子放射化分析」は荷電粒子放射化分析を用いて多元素同時分析を試みた例として注目される。

1980年代に入ると東北大理理研の八木益男・榎本によって電子線加速器を用いた光量子放射化分析の研究が活発に行われた。同大学のサイクロトロンを用いたPIXEや荷電粒子放射化分析の研究とともに、放射化分析を含めた核的手法を用いた分析において東北大学が一つの拠点となった。八木と榎本による内部標準法を用いた光量子放射化分析は確度の高い定量値を与える方法として注目された。1981年（第25回討論会）、1982年（第26回討論会）ともに荷電粒子放射化分析2件、光量子放射化分析1件の発表があった。また、1983年（第27回討論会）においては光量子放射化分析関連の発表が3件有り、この内の1件は「安定同位体希釈放射化分析法とその応用-光量子および荷電粒子放射化分析によるSrの定量」（東北大理理研：榎本・八木）で、方法論的に意欲的な発表であった。1984年（第29回討論会）でも同じ研究者により、荷電粒子放射化分析1件、光量子放射化分析2件の発表が行われた。1985年（第29回討論会）では荷電粒子、光量子の放射化分析各1件の発表があった。

荷電粒子放射化分析や光量子放射化分析は産業界での利用も活発となり、1986年の第30回放射化学討論会では荷電粒子放射化分析3件、光量子放射化分析2件の発表があり、内3件は産業界と大学の共同発表であった。翌1987年（第31回討論会）では光量子放射化分析の発表が4件（いずれも大学研究者による報告）、1988年（第32回討論会）では光量子放射化分析2件、荷電粒子放射化分析1件の発表がそれぞれ行われた。1989年（33回）には光量子放射化分析2件に対し、荷電粒子放射化分析が5件と大きく増加した。これは住友重機やNTTのグループが自前の加速器を使って主に純物質中の軽元素の定量に関する報告を行っているため、荷電粒子放射化分析法や光量子放射化分析法が実用分析法として機能することを実証した。一方で、この年は

中性子を用いた放射化分析の発表は4件と激減した。翌1990年（第34回討論会）では荷電粒子放射化分析2件、光量子放射化分析3件で、前者はNTT電応研の重松俊男を中心とするグループ、後者は東北大理核理研の八木・榎本グループによる発表である。1989年から1991年（第35回討論会）にかけてが光量子放射化分析と荷電粒子放射化分析の発表件数でピークを形成している。この年（1991年）には光量子放射化分析5件、荷電粒子放射化分析2件で、このうち1件ずつは両手法を利用している研究（東北大理：岩田吉弘他「光量子並びにアルファ粒子放射化分析による種々の海藻中の主要及び微量元素の定量」）であり、両方の件数に重複して数えている。同年、NTT境界領域研の鹿野弘二らにより「Mg, Al, S, Ti, Vの荷電粒子放射化分析の基礎検討」と題する研究が発表されているが、同研究所の加速器を利用した研究の展開を期したものであると推測されるが、その後の経緯を考えると感慨深いものがある。翌1992年（第36回討論会）では荷電粒子放射化分析、光量子放射化分析それぞれ2件の発表があった。この年に、前年に引き続き、阪府大付属研他の朝野武美らによる光量子放射化分析の発表が有り、1991年は高純度ジルコニウム、1992年は高純度ニオブを対象に、その中の重金属不純物の定量を行っている。この年を境に、その後、光量子放射化分析と荷電粒子放射化分析に関する発表は減少する。

1993年（第37回討論会）では荷電粒子放射化分析、光量子放射化分析ともに発表がなかった。この状況は1995年（第39回討論会）でも同様であり、間の1994年（第38回討論会）では光量子放射化分析の発表が1件（三菱マテリアル中研他：桜井宏行ら「光量子放射化分析による標準岩石試料中のフッ素の定量」）あった。1996年（第40回討論会）には光量子放射化分析の発表が2件あり、そのうち1件では中性子放射化分析を併用している。APSORC1997を挟んだ翌1998年（第42回討論会）では光量子、荷電粒子、各放射化分析の発表がそれぞれ1件ずつあったが、そのうち荷電粒子放射化分析は産業界からのもの（住友重工試験検査他：八木宏親ら「荷電粒子放射化分析を用いた環境中の炭素量測定法の開発」）である点が注目される。1999年（第43回討論会）では光量子放射化分析に関する発表が5件と大幅に増加しているが、このうち3件は中性子放射化分析と併用してできるだけ多くの元素の定量値を求めようとするもので、光量子放射化分析法が多元素同時非破壊分析法として機能することを実証する場となった。尚、この3件の対象試料はマウス臓器（金沢大他：広瀬由起子ら）、隕石（都立大他：瀬戸口美奈ら）、食品（原研他：宮本ユタカら）と多様である点が注目される。翌2000年（第44回討論会）では荷電粒子放射化分析、光量子放射化分析ともに1件の発表があった。このうち光量子放射化分析の発表（都立大：仲本朝嗣ら）は照射後に化学分離を行い、隕石中のハロゲン4元素の定量を目的とするもので、中性子放射化分析では実行不可能な分析操作として注目される。

1990年後半以降の傾向として、放射化分析一般について当てはまることであるが、分析手法そのものに対する研究は少なくなり、得られた分析値に対する考察を目的とする研究発表が増えてきた。そのために、同一試料に対して、複数の放射化分析を適用し、できるだけ多くの元素についての分析値を得ようとする試みが見られる。中性子放射化分析に加えて、光量子放射化分析、荷電粒子放射化分析が成熟した分析法となったためと解されるが、このことは放射化分析を主題とする研究発表の場として放射化学討論会が果たしてきた役割に変化が表れることを予測させることでもある。今後の動向に注目したい。なお、発表件数の年ごとの推移を表2-8に示す。

#### 2.5.4 放射化学分析

放射化学分析という言葉の定義を「放射化学的な手法による元素分析」とすると（日本放射化

学会編「放射化学用語辞典」より)、放射線計測の手法を用いた元素分析ということになり、放射化分析はその代表と言ってもよい。ここではそれ以外の放射化学分析に関する研究発表を放射化学討論会の中からとりあげ、その発表内容から過去50年の日本のこの分野の研究の流れを概観する。なお、ここでいう元素分析を放射化分析同様、「定量分析」に限定して取り扱うことにする。また、環境中に存在する放射性核種の分析も上記の定義に従えば放射化学分析に含まれると考えられるが、本稿では除外した。

すでに述べたとおり、第1回討論会(1957年)において討論主題の一つとして「放射化分析および放射化学分析」が取り上げられ、浜口(東教大)により「放射化学分析の現状」と題する総説が発表された。この主題のもとに放射化分析関係の発表が4件続くが、同じ討論主題のもとで放射性核種の化学的挙動に関する研究発表が続き、さらには「溶媒抽出法による放射性元素の分離について」と題するもう一つの総説が木羽敏泰(金沢大)によって行われた。この当時の「放射化学分析」の言葉の持つ意味は上記の定義といささか異なることに興味を覚えるが、この討論主題に関係するセッション以外でもイオン交換樹脂と溶媒抽出法に関する研究発表が少なからず行われている。両方法が放射性核種の分離に有効な分離法であることが当時すでに研究者間で十分理解されており、盛んに研究されていた状況を伺うことができる。放射化学分析の代表的な研究例と考えられる「微量重金属の同位体元素希釈定量-植物中の水銀の分析」(鈴木信男:東北大)が「その他一般」のセッションの最後におかれていることがやや理解に苦しむところである。

1958年の第2回討論会において、同位体希釈定量法による微量元素の定量に関する研究が2件(東北大:鈴木;東北大:天野恕)、 $\beta$ 線後方散乱を利用する金属の分析に関する研究が1研(東北大金研:後藤秀弘・池田重良)あった。第4回討論会(1960)においては「温泉水中のRaAの分離定量法」(岡山大温研:杉原健)、「濾紙電気泳動法による無担体硫黄-35製品の化学形の決定ならびに不純物の定量について」(原研:馬場宏)の2件の発表があった。1961年の第5回討論会でも2件の発表があり、うち1件は放射滴定を応用して比放射能を求める研究である(徳島大:亀谷富士夫・原研:木村幹)。1962年(第6回討論会)においても2件の発表があり、蒸留法による核分裂生成物の定量、およびクペロン抽出による温泉水中のRaCの定量について報告された。翌1963年(第7回討論会)には放射化学分析関連の発表はなかったが、続く1964年の第8回討論会においては5件の発表があった。その中で工藤(電通研)・鈴木(東北大)の発表(「同位体希釈定量法を併用する新放射化分析法(第2法)-比較法による金の定量」)は放射化学分析と放射化分析を組み合わせる手法として注目される。それ以外にもタイトルに放射化学分析としながらも、その内容は必ずしも上記放射化学分析の範疇には入らないものが1件あった。続く1965年(第9回討論会)には、「U-232の調製と天然アルファ放射体逐次定量法の改良」(金沢大理:坂上正信・小村和久)ほか2件の発表があった。翌1966年の第10回放射化学討論会には5件の放射化学分析関連の発表があった。うち4件は天然放射性核種の定量に関する発表で、海水中のウランの定量2件、河川水中のトリウムと尿中のポロニウム-210の定量が各1件あった。1967年(第11回討論会)から1970年(第14回討論会)までは放射化学分析関連の発表は発表件数0と1が交互に繰り返された。続く1971年(第15回討論会)、1972年(第16回討論会)には発表はともに0件であった。

1973年(第17回討論会)に工藤・重松・小林健二(電電公社茨城通研)らによって放射化分析にサブストイキオメトリ(不足当量法)を適用した高純度材料中の微量元素の精密定量に関する研究発表が行われた。続く1974年(第18回討論会)において、同様のサブストイキオメトリ関連の報告が3件(静岡大:神原ら2件、電電公社茨城研1研)あった。1975年(第19回討論

会)にも茨城電通研による2件の不足当量分析の発表があり、それに加えて、「微量Pu諸同位体( $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ 等)の放射化学的定量」(金沢大理:久島俊一・坂上)の発表があった。翌1976年(第20回討論会)では「酸化還元不足当量を用いる同位体希釈分析」(静岡大理:神原ら)による分析結果が2件、「高純度材料中の微量元素の不足当量分析」(電電公社茨城研:小林ら)の研究が2件あった。1977年(第21回討論会)では不足当量分析関連の発表が2件に加えて「クラウンエーテルを用いる $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ の分析」(日本分析セ:木村敏正ら)の報告があった。このクラウンエーテルによるSrの定量に関しては翌1978年(第22回討論会)でも放医研の河村正一らにより行われた。この年の放射化学的分析の研究発表はこの1件だけである。1979年(第23回討論会)には3件の発表があり、うち2件は静大理:神原らの放射性アンチモンの不足当量分析、及び酸化還元放射滴定に関する発表で、残りは放射化分析と組み合わせた同位体希釈分析法の発表であった。

1980年(24回討論会)には不足当量法関連の発表として「生物試料中のカルシウムの不足当量法」(東北大:湯沢正幸, 鈴木), 「アンチモンの不足当量法」(静岡大:神原, 吉岡潤江), 「リンの不足当量法による定量」(電電公社茨城研:重松, 工藤), 「TTAによる鉄の不足当量分離法」(電電公社茨城研:小林, 工藤)の4件が報告されている。そのほか、「 $^{99}\text{Mo}$ を含むモリブデンアンモニウムによるヒ素の定量」が城西大薬の丸山芳明・長岡康子により報告されている。1981年(第25回討論会)には6件の放射化学分析関連の発表が有り、うち3件は不足当量分析関連(茨城電通研:重松ら), アンチモンに関する同位体希釈分析と酸化還元滴定分析各1件(静岡大理:神原他), 他の1件は「放射性同位体を用いる金属錯化容量の定量法」(九大理:大崎進ほか)である。1982年(第26回討論会)には不足当量分析2件(東北大:鈴木ほか, 静岡大理:宮崎誠ほか), 同位体希釈分析(電々茨城研:米沢洋樹・工藤), 溶媒抽出分析(日本分析セ:森本隆夫ほか)の計4件の報告があった。1983年(第27回討論会)には2件の放射化学分析関連の発表(「濃縮同位体を用いた前濃縮」, 「不足当量分離を用いたコンパレータ法」)があったが、いずれも放射化分析と組み合わせたものである。後者は加藤正明・工藤(電電公社・茨城研)による不足当量分離とコンパレータ法を組み合わせた微量元素定量法の報告で、微量元素を正確に、かつ簡便に定量するための方法として提案されたものであり、放射化分析と放射化学分析を組み合わせた新しい試みの提案として注目された。1984年(第28回討論会)には放射化学分析関連の発表はなかったが、翌1985年(第29回討論会)には2件の発表(「損傷DNAの同位体希釈定量分析」(静大理:吉岡ほか), 「不足当量分析によるGaAs中の炭素の分析」(NTT茨城研))があった。

1986年(第30回討論会)には8件の照射化学分析関連の発表があり、うち不足当量分析関連5件(NTT茨城研, 東北大), 同位体希釈分析2件(静大理), および「 $^{15}\text{N}$ 共鳴核反応による軽水素分析法の定量性」(名大工:雨宮進ほか)である。翌1987年(第31回討論会)にはNTT研のグループによって5件の不足当量分析関連の発表があった。このように、NTT茨城研のグループによって、1986年から1987年にかけて不足当量分析法に対する研究が精力的にすすめられ、精度・確度ともに高い分析値を得るための努力が重ねられた。この時期が放射化学分析のこの分野における一つのピークを形成したことは間違いなく、その研究成果は大きな資産として受け継がれるべきものといえる。1988年(第32回討論会)では不足当量分析(NTT光エレ研)と酸化還元同位体希釈分析(静大理)の各1件の発表があった。翌1989年(第33回討論会)には酸化還元同位体希釈分析(静大理)の発表が1件あった。

1990年代以降は元素分析、特に微量元素分析に適用できる機器分析法が普及した。たとえば全試料(bulk sample)中の微量元素を測定する手法として誘導結合プラズマ(ICP)原子発光分

析 (ICP-AES) や ICP 質量分析 (ICP-MS), 表面の局所分析として二次イオン質量分析 (SIMS) がその代表的分析法である。また, 加速器質量分析法 (AMS) による長半減期放射性核種の測定は放射能測定による方法を感度の点ではるかに凌駕するに至った。こうした時代背景を受け, 1990 年 (第 34 回討論会) からは放射化学分析関係の発表はほとんど無くなり, 2000 年 (第 44 回討論会) までの間に僅か 3 件を数えるのみである。このうち 1 件は 1996 年 (第 40 回討論会) での記念講演 (「不足当量法の創始と発展」(石巻専修大:鈴木信男)) であり, 残りの 2 件 (1995 年, 1996 年) は NTT 基礎総研の重松による不足当量法に関する発表である。このように放射化学分析に取って代わるように, 前記の ICP-AEA, ICP-MS, SIMS, AMS が普及・発展してきたが, これらの機器分析法による値の信頼性は必ずしも保証されず, 高確度な分析値が得られる放射化学分析法は今後も分析法として十分アピールするものと期待される。今後の課題は, アピールする機会をどのようにもつかであり, 放射化学討論会の中だけでの閉じた議論では期待できず, できるだけ周辺分野に積極的に働きかける必要があるだろう。このことは, 放射化分析についても同様にいえることである。なお, 各討論会ごとの放射化学分析関連の研究発表件数を表 2-8 に示す。

表 2-8 討論会ごとの放射化分析, 放射化学分析関係の発表件数

討論会 回 (西暦)	放射化分析 <sup>1</sup>				放射化 学分析	討論会 回 (西暦)	放射化分析 <sup>1</sup>				放射化 学分析
	総計	n	$\gamma$	CP			総計	n	$\gamma$	CP	
1 (1957)	4	3	1	0	1	23 (1979)	22 (1)	20	0	1	3
2 (1958)	11	9	1	0	3	24 (1980)	27	21	0	4	4
3 (1959)	9	9	0	0	0	25 (1981)	18 (2)	14	1	2	6
4 (1960)	7	7	0	0	2	26 (1982)	2	0	1	2	4
5 (1961)	4	4	0	0	2	27 (1983)	20 (1)	10	7	1	2
6 (1962)	9	9	0	0	2	28 (1984)	24 (2)	17	2	1	0
7 (1963)	10	8	2	0	0	29 (1985)	28 (3)	23	1	1	2
8 (1964)	17	14	1	0	5	30 (1986)	28 (1)	17	2	3	8
9 (1965)	10	7	2	0	3	31 (1987)	33 (5)	14	4	0	5
10 (1966)	11	8	3	0	5	32 (1988)	23 (2)	19	2	1	2
11 (1967)	8	6	2	0	0	33 (1989)	13	4	2	5	1
12 (1968)	18	16	0	0	1	34 (1990)	15	8	3	2	0
13 (1969)	7	6	1	0	0	35 (1991)	18 (1)	11	5	2	0
14 (1970)	11	9	0	2	1	36 (1992)	17	10	2	2	0
15 (1971)	9	6	0	0	0	37 (1993)	16	13	0	0	0
16 (1972)	8	7	0	0	0	38 (1994)	19 (3)	15	1	0	0
17 (1973)	11	9	1	1	1	39 (1995)	13 (4)	10	0	0	1
18 (1974)	13	12	0	1	3	40 (1996)	18 (5)	15	2	0	2
19 (1975)	10	9	0	0	3	42 (1998)	17 (4)	15	1	1	0
20 (1976)	11	10	1	0	4	43 (1999)	19 (7)	16	5	0	0
21 (1977)	23	15	1	1	3	44 (2000)	17 (10)	8	1	1	0
22 (1978)	26	17	1	2	1						

<sup>1</sup>n,  $\gamma$ , CP はそれぞれ中性子, 光子, 荷電粒子を利用した放射化分析の発表件数を表す。複数の手法を使っている場合は重複して数えた。総計はこれらに加えて, 方法論的発表等を含めた総数を表す。括弧内の数値はポスター発表件数で, 総計の内数。

## 2.6 環境放射能

### 2.6.1 環境放射能研究の流れ

（百島 則幸）

ウランやトリウム鉱物の分析に端を発した放射能の研究において、キュリー夫人は放射化学分析法を駆使して新元素のラジウムやポロニウムを発見した。このことを考えると、環境放射能（天然放射能）は、放射化学研究の出発点と言える。天然鉱物中の放射能を出発点とした環境放射能研究は、宇宙線生成核種、核実験放出核種、原子力施設や再処理施設などの核エネルギー平和利用に付随して産生される人工放射性核種へとその研究領域を広げていった。これらの研究成果は、環境放射能の実態を明らかにするとともに、環境放射能や環境放射線によるヒトの被ばく線量を評価するための基礎データとなった。環境放射能の研究対象は、大気、海洋など、実にさまざまな環境媒体であり、そのため、水、土壌、植物など多様な環境試料の分析が必要で、環境放射能の研究は時間を要する研究といえる。したがって、まだ取り組まれていない部分も多い。放射化学討論会でこれまで研究発表がなされた主な研究主題と研究グループについては表 2-9 に取り纏めた。

環境放射能の研究発表を中心として定期的に行われる国際会議には次のようなものがある。

- (1) 青森県六ヶ所村の（財）環境科学技術研究所（環境研）では広く内外の研究者を集めて定期的に国際会議を開催している。環境研にある3つの研究部門のうち、環境動態研究部が主催する国際会議は環境放射能を中心としたものとなっている。これまで環境動態部の主催で4回開催され、その主題テーマは1997年「放射性物質の挙動に及ぼす気象の影響」、2000年「環境における放射性核種の分布と存在形態」、2003年「放射生態学と環境の放射線被ばく」、2006年「環境モデリングと放射生態学に関する国際検討委員会」となっている。
- (2) 環境放射能を表題に掲げた国際会議としては2002年にモナコで第1回が開催された International Conference on Radioactivity in the Environment がある。主催は The International Union of Radioecology (IUR) で Journal of Environmental Radioactivity (JER) と IAEA が協賛している。第2回は2005年にフランスのニースで開催された。
- (3) 生体及び環境試料中のアクチニド・長半減期核種の低レベル測定 (International Conference on Low-Level Measurements of Actinides and Long-lived Radionuclides in Biological and Environmental Samples) の国際会議がある。第1回が1986年にスウェーデンのルンドで開催され、わが国ではこれまで3回開催されている。1988年(第2回)秋田、1994年(第5回)青森、2000年(第8回)大洗で開催された。2年ごとに開催されてきたが、第8回後は開催されていない。
- (4) ハワイで3年ごとに開催されている MARC (Methods and Applications of Radioanalytical Chemistry) は、放射能分析法の研究を中心とする国際会議であるが、環境放射能のセッションも設けられている。1987年の MARC I から始まり、2006年に MARC VII が開催された。

環境放射能研究はこれまでさまざまな観点から取り組まれているが、近年、国際放射線防護委員会は ICRP Publ.91 (2005) でヒト以外の生物種に対する電離放射線のインパクト評価の枠組みの必要性に言及している。すべての生物は、環境放射能から被ばくを受けているが、従来はヒトの線量評価のみがもっぱら行われてきた。今後、環境生物の被ばく評価を念頭においた環境放射能研究の展開が求められることになるであろう。

表 2-9 環境放射能研究史

	1-10回 (1957-1966)	11-20回 (1967-1976)	21-30回 (1977-1986)	31-40回 (1987-1996)	41-50回 (1997-2006)
発表件数	42	34	228	220	252
研究者	三宅ら(気象研), 松村ら(大放研), 斎藤ら(東大理), 小山ら(新潟大理), 山県ら(群馬大工), 塩川ら(静岡大理)	阿部ら(放医研), 阪上ら(金沢大), 木村ら(東教大), 池田ら(東教大理), 高島ら(九大理), 佐伯ら(放医研), 村上ら(都立大理), 古川ら(名大理), 笠井ら(原研)	野仲ら(日本分析セ), 古川ら(名大理), 木村ら(青学院大理工), 高島ら(九大理), 富永ら(東大理), 柴田ら(大放研), 安部ら(放医研), 杉村ら(気象研), 池田ら(筑波大理), 中原ら(都立大理), 阪上ら(金沢大理), 外林ら(新潟大理), 中西ら(金沢大理), 圓尾ら(動燃東海)	木村ら(青学院大理工), 上野ら(金沢大 LLRL), 堀内ら(都立大理), 橋本ら(新潟大理), 高島ら(九大理), 小柳ら(放医研), 柴田ら(大放研), 近藤ら(高エネ研), 池田ら(筑波大理), 中西ら(金沢大理), 平野ら(放医研), 古川ら(名大理)	小村ら(金沢大 LLRL), 佐藤ら(明治大理工), 永井ら(日大文理), 近藤ら(高エネ研), 関ら(筑波大), 橋本ら(新潟大理), 百島ら(熊大理), 前田ら(九大理), 佐久間ら(核融合研)
研究主題	質量比の測定, 放射性物質の挙動, 大気圏内核実験降下物の挙動, 海洋中ウラン分布	環境試料分析法の研究, 中国核実験フォールアウトの挙動, Sr-90 環境分析法の開発, 米中炭素-14 の分析, 海水中のフォールアウトの挙動解析, 松葉中のフォールアウトの分析	シンチレーション測定法の開発, チェルノブイリ事故由来の放射能, Sr-90 分析法の開発, フォールアウト核種の環境動態, 大気中の K r-85 分析, 放射性鉍物の非平衡解析, 大気中の H-3, C-14, Be-7, Be-10 などの分析, タバコの Po-210 分析, 堆積物の放射能分析, Tc-99 分析法の開発	トリチウム測定, Tc-99 分析, 海水中の Pu 分析, Ra-226 の分析, 超ウラン元素の分析, Rn の分析, 植物試料中の放射能, 堆積物中の放射能	大気中の Be-7, Be-10, Pb-210 などのエアロゾル挙動, 放射性鉍物における反跳と非平衡, 海洋中の U, Ra 分析, JCO 事故, 環境中の中性子評価, 加速器トンネル中の放射能

\* 件数は境界的なものをどこまで入れるかにより分類により多少変動する

\* 件数には陽電子, 中間子の発表件数は入れてない

\* 件数には 41 回と 45 回の apsrc のデータは入れてない

## 2.6.2 天然放射性核種

(堀内 公子)

レントゲンによる X 線発見のあと, すぐに, ベクレルはウラン化合物からも未知の放射線が放出されていることを発見した。ウランやトリウム鉍物の研究は放射壊変という新しい概念を我々に与え, 元素は不変であるというこれまでの考え方を否定することになった。キュリー夫妻による新元素発見, ラザフォードによるトリウムエマネーションの発見など初期の研究成果は, さまざまな天然放射性核種の研究へと導いた。

### (1) ラドン, トロン

1957 年放射化学討論会発足当時には, 全国にわたる温(鉍)泉水中のラドン含有量の測定, 大気からの放射性沈積物 ( $^{218}\text{Po}$ ,  $^{216}\text{Po}$  を捕集) の測定, 飯盛里安(理研 1931) による IM 泉効計



の開発 (IM 法), 黒田和夫 (東京大理 1948) による鉱泉水中のトロン ( $^{220}\text{Rn}$ ) 測定, 白鳥勝義 (東北大)・初田甚一郎 (京大)・岡部茂 (京大) らによる地震予知の観点からのラドン連続測定などの成果があり, それらが今日のラドン研究の途を開いたと言えよう。

放射能研究に測定器の開発は極めて重要である。1960年代の液体シンチレーションカウンタ (LSC) の開発と導入がラドン研究を飛躍的に発展せしめた。LSCによる $\alpha$ 線計測は自己吸収や外部吸収を無視して $4\pi$ 計数ができ, しかも計数効率100%で定量できる利点がある。ラドンが有機溶媒によく抽出されることを利用した原研の野口正安・村上悠紀雄 (1964) による先駆的なLSCによる水中のラドン測定が試みられ, LSC測定上の諸課題を明らかにし, その後の展開をもたらした。本間義夫 (都立大理 1977) はLSCの独立3チャンネルを利用して低エネルギー側のノイズを除去し, 全てのパルスを計数する積分計数法によりラドンの絶対測定を可能にし, 固体試料中の微量のラジウムが測定できることを報告した。同年堀内公子 (都立大理) は, 積分計数法で天然試料水のラドンを測定し, トルエン抽出-LSC測定法 (抽出法) を提案した。また, 低バックグラウンドLSCを用いたラドン濃度測定 (九州大理: 百島則幸) も検討された。石河寛昭 (原研 1970) により提案された効率トレーサ法は, 市販されているLSCにマルチチャンネル波高分析器 (MCA) とデータ処理機が内蔵されるようになった1985年以降に実用化した。以後積分計数法と効率トレーサ法はLSCによるラドンの絶対測定法として普及し, 今日広く環境中のラドン測定に利用されている。その後, LSC測定法におけるバイアルの壁・体積・温度効果などLSC利用上で必要になる研究が進められた。フィールドワークにおける利便性から, 抽出法の容器としてはポリエチレン瓶の使用が多かったが, 抽出にポリ瓶を用いた場合には, 容器壁へのラドン吸着の妨害があり, 長時間使用した場合には補正を必要とすることが明らかとなった (1983)。斉藤正明 (都立アイソトープ 1996) は分配係数の計算法を修正し, 抽出法の新しい計算法を提案した。100mLの大型テフロンバイアルに試料水50mlと乳化LS50mLを入れて直接測定する方法 (1988), 市販のPICO RADソフトを使用してバイアル内にLS10mLと試料水10mLを共存させ二層のまま測定する方法 (1994) が報告され, 安岡由実 (神戸薬大 2004) は米国材料試験協会 (ASTM) の方法に基づき, バイアル内にLS10mLに試料水10mLを採取後振とうし, 積分計数法で絶対測定する方法 (直接法) を提案した。

時間分解計測のできる液体シンチレーション測定には速い成分と遅い成分がある。 $\alpha$ 粒子は $\beta$ 粒子よりも電離能がはるかに大きいので,  $\alpha$ 粒子による遅い成分の発光量は $\beta$ 粒子による発光量よりはるかに多い。1983年から2-3年の間にパルス波形弁別法が検討され, 測定回路, 試料の調製などの報告が相次いでなされた。パルス波形弁別の分解能の向上にはLSにナフタレン (5~30%) の添加がよいことが示された (原研: 野口)。ラドン計測の際には,  $^{222}\text{Rn} + ^{218}\text{Po} : ^{214}\text{Po}$  のピーク面積の比は2:0.78 (日本分析センター: 佐藤兼章), 2:0.96 (都立大理: 遠藤和豊) になるとされている。

$\alpha$ 粒子が空気中の窒素分子を励起した時に発生するルミネッセンスは, LSCにより計測できることから, 空気中のラドンによるルミネッセンスが, LSCにより計数効率42%で測定された (本間 1987)。そして, ラドンの空気ルミネッセンススペクトルは, 0~18keVの極めて低エネルギー側にあるため,  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$  測定の誤差の原因になり得ると報告された。堀内はこの方法を利用し, プラスチックミニバイアルで濃度を定めたラドン全量を, IM 泉効計の電離槽内に入れ, LSCによる測定値との比較を行い, LSCの方が~6%高い結果を得た (1996)。

1980, 90年代に入ってIM 泉効計の電離槽中に試料を直接導入せず, 他の容器内に試料水をフローさせながらバブリングし, 駆出したラドンを電離槽中へ導く方法で, 地下水ラドン濃度の

連続測定を行い、同時にIM法による同一地域の約13年間の連続測定値とあわせて解析することで、変動パターンの類型化が確立された(静岡大理:波多江一郎・長谷川罔彦)。IM法と抽出法(1982,1992,1994)、IM法、直接法、抽出法(1994)三者のデータを比較検討し、IM法が他の方法に比べ系統的に高い値を示すことが明らかになっている(愛知衛研:大沼章子、静岡大理ほか:矢永誠人ら)。

1980年代に入ってラドン、トロン野外実験に適応する可搬式LSCが試作された。バックグラウンドは汎用の室内装置より高いが、火山ガス、温泉ガス中のラドン、トロンを直接測定することに成功した(明大工:佐藤純、都立大理:吉川英樹)。可搬式 $\alpha$ 線半導体検出器を用いた温泉水、温泉ガス中のラドン濃度測定も試みられた(1983)。可搬可能なパルス波形弁別式LSCを用いて、地下水中、湧水中のラドン濃度を測定し、LSC法と比較して値を定めているが、本器の絶対測定の計数効率は90%と報告されている(2005)。

田坂茂樹(岐阜大教育)はPINフォトダイオード(PD)を用いた静電捕集型のラドン検出器を改良・開発した(1992~96年)。これはPD型ラドン検出器に機能性ガス分離膜を取り付け、水中に沈めた状態で水中ラドン濃度を測定できる水没型・小型原位置水中ラドン検出器である。毎分約1Lの割合で地下水を検出器に導入し、測定容器とその中に組み込んだPDの間に、-120Vの電位差をかけ、正に帯電しているラドン娘核種をPDの表面に捕集し、その $\alpha$ 線エネルギーの計数値からラドン濃度を評価する方式である。計測データは1時間に1回、接続されたパソコンに転送・保存され、長期間のデータをとることができる。阪神大震災で大きな被害の出た兵庫県西宮市の井戸で、地震の直前に地下水中のラドンの急激な変化を記録したのもこの測定器であり、その結果は直ちにScienceに掲載された(広大理:五十嵐丈二)。

空気中のラドン計測に関しては、空気6LをLSに通しLSCにて外部標準線源比法により測定する方法(1980)、120Lの空気中のラドンをドライアイス温度で活性炭に吸着させ、娘核種 $^{214}\text{Pb}$ の $\gamma$ 線を測定する方法(1991)、各種活性炭への吸着状況を調べ、活性炭の比表面積・細孔分布とラドンの吸着効率との関係(1994)を明らかにするなどの研究が進められた。市販の屋内空気中ラドン測定器PICO RAD(活性炭吸着)を用いた放射能泉の浴室内ラドン濃度分布の解析(堀内1995)、PICO RADソフトを使わずに測定器を直接使用する方法による屋内のラドン濃度の測定(共立薬:村瀬裕子1999)など屋内ラドン濃度の評価が行われた。

矢野倉実ら(都立大理:1976)は抽出法によるラドン、トロン試料をGe(Li)半導体検出器とLSCで測定し、両者のメリット、デメリットの比較検討を報告している。また、トロンが崩壊した後の $^{212}\text{Pb}+^{222}\text{Rn}$ の崩壊曲線の解析にバネープロット法を適用し、半減期の短いトロンを計測する方法(大放研ほか:堀内・柴田せつ子1975~81)、 $\alpha$ トラック法によるラドン、トロン計測の基礎研究(都立大理:中原弘道1980)、トロン/ラドン比が0.5以下の場合 $^{214}\text{Pb}$ , $^{212}\text{Pb}$ まで壊変させた後トロンを定量する方法(中原1986)、ラドン娘核種を捕集するためのエレクトレットの作成(金沢大医技短:天野良平1986)など、ラドンの測定にはいろいろなテクニックが考案されており今後の利用が期待される。

## (2) U/Th系列

(橋本 哲夫)

我が国の放射化学研究は、オックスフォード大学のソディ教授の研究室に留学(1919-1921)した飯盛里安(東京大理)の帰国後、理研で開始された。飯盛は本邦産の放射性鉱物中のUやTh・Raの分析化学的な研究を手始めに、温泉や鉱泉水中のRnの測定を幅広く行った。この時

飯盛が開発した Rn 測定用の IM (Iimori より由来) 泉効計が、その後各地の温泉の Rn 含量測定に活躍したことは今日なお知られている。

飯盛の“放射体化学”の講義に参加した木村健二郎は、東京大学理学部化学科において、本格的な放射・核化学の研究を開始した。木村研の天然放射性物質に関する化学的研究は枚挙に暇がない。とくに理研のサイクロトロンを使用して 1938 年から 1942 年にかけて仁科芳雄の研究室と共同して行った Th や U への速中性子の核反応の研究が挙げられる。U をターゲットとした (n, 2n) 核反応で生成した  $^{237}\text{U}$  は、天然に存在しないネプツニウム(4n+1)系列として今日知られる系列核種の発見である(1940)。しかしながら、戦中ならびに広島・長崎市への原爆投下に続く敗戦の間は、放射化学の研究もしばらくは停滞せざるを得なかったものの、木村研では原爆由来の放射性降下物の分析・測定のみならず、戦後すぐに温泉などの Ra・Rn の測定を再開している。

1950 年代は、アメリカからの  $^{125}\text{Sb}$  の寄贈(1950)、理研サイクロトロンの再建と稼働開始(1952)、ビキニでの第五福竜丸乗組員の被ばく事件(1954)、我が国最初の原子炉 JRR-1 の運転開始(1957)など、人工放射性物質が世間の話題となり、放射化学者の活動が目立った時代であった。

第1回放射化学討論会では2件の U/Th に関する発表が記録に残っている。その後25回の討論会までの内容については第25回放射化学討論会記念誌として刊行された“日本の放射化学25年”にまとめられている。それまでは、U や Th 系列核種は分離と放射能測定に基づく分析化学的研究が主体であった。核燃料製造としてマクロな量での研究は、日本原子力研究所（現在は日本原子力研究開発機構）でのみ行われていた。

我が国の放射化学の研究は測定機器の開発もあり、この25年間に大きく進展してきている。親核種としての U や Th (Pa も含めて) についても中性子放射化分析、遅発中性子測定、極微量検出も可能な核分裂片飛跡 (フィッシュントラック) 法が適用・開発された。(原研:石森富太郎, 金沢大: 阪上正信, 京大炉: 橋本哲夫・岩田志郎, 学習院大: 木越邦彦, 九州大: 梅本春次, 立教大原研: 戸村健児・樋口英雄, 武蔵工大原研: 平井昭司・岡田往子, 青学大: 木村幹)

天然壊変系列核種の殆どが  $\alpha$  放射体であるため、放射能測定に ZnS(Ag)、シンチレーション測定器、電離箱や液体シンチレーション法が適用された。1960～1970年代は捕集が比較的容易な地下水・天然水や大気中の Rn・Tn や Rn とその子孫核種が測定され、地球化学的研究が数多く見られる(東京大: 斎藤信房・佐藤純, 都立大・大妻女子大: 村上悠紀雄・堀内公子, 金沢大: 阪上正信・小村和久, 青学大: 木村幹・斎藤裕子)。

格子付き電離箱、半導体検出器およびマルチチャンネル波高分析器の開発により、 $\alpha$  線のエネルギー測定が可能となったため、1960年代後半は U・Th 系列内での放射平衡や非平衡を用いた分析・環境・地球化学的な研究が多く発表されている。天然物試料については、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  比、 $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  比、 $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  比、および  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  比の測定が開始された(金沢大, 学習院大, 原研, 九州大, 気象研, 明治大工, 地調, 新潟大, サイクル機構)。

$\alpha$  線のエネルギー測定には放射化学分析が必要で、化学収率の評価にトレーサ核種を使うことにより系列内での放射平衡・非平衡状態を知ることができる。貝殻、化石骨中やマンガンノジュール、堆積物などを試料として  $\text{Io} (^{230}\text{Th}) / \text{U} (^{238}\text{U})$  比と  $\text{Pa}/\text{U}$  比や  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  比を測定して年代測定(新潟大, 金沢大 LLRL, 学習院大)がなされた。また、天然水や温泉水の供給と移行機構、堆積機構などが放射性核種を利用して探られている(青学大, 金沢大 LLRL, サイクル機構)。

$\gamma$  線スペクトル測定による放射平衡・非平衡の測定は大型の Ge 半導体検出器の出現で可能となった。Ge 半導体検出器は化学分析を要しない非破壊分析が可能で、かつ簡便であるため現在では多用されている。

放射非平衡が生ずるメカニズム解明へのアプローチも1970年代以降研究されており、 $\alpha$ 壊変の際に放出される $\alpha$ 反跳原子の物質中での挙動や、放射性鉍物を対象とした各種酸溶液による天然放射性核種の溶出挙動が調べられた(学習院大, 新潟大, 東大理:小橋浅哉, 金沢大:中西孝, 地調:金井豊)。

UやTh系列を構成する $\alpha$ 崩壊核種は自然界のあらゆる所に存在している。高集積LSI半導体中に存在する微量 $\alpha$ 放射体の壊変がメモリーの誤動作を引き起こすことが分かり、1980年代前半に課題となってきたため、電子材料中の極微量U・Thの測定が材料試験炉(JMTR)などを用いて行われた(武蔵工大:平井昭司, 東北大金研:三頭聡明)。

自然界および最先端の科学における $\alpha$ 放射体の挙動を研究する意見交換の場として、1982年に $\alpha$ 放射体研究会が発足し、現在では放射化学討論会のおりに $\alpha$ 放射体・環境放射能分科会が開催されている。

### 2.6.3 宇宙線生成核種

(永井 尚生)

三宅泰雄(東大理)らによる降水中の $^7\text{Be}$ (1959)と木越邦彦(学習院大理)らによる大気中の放射性炭素の濃度変化(1959)が宇宙線生成核種についての最初の報告である。木越は「宇宙核化学について」(1963), 本田雅健(東大物性研)は「天然における核破碎反応についての現状について」(1964), 長谷川博一(京大理1967)は「宇宙科学における放射性核種の利用について」レビューを行っている。以降の研究報告について対象(分野)ごとに述べる。

#### (1) 隕石など地球外物質

隕石中など地球外物質は、地球の物質と比べ遙かに高濃度の宇宙線生成核種を含み、その種類も多いことから、加速器質量分析(AMS)による測定感度の革命的向上がなされる以前においては、主要な研究対象であった。隕石中の宇宙線生成核種に関する研究は、この分野の中心的役割を果たしていた東京大学物性研究所の本田のグループ、および東京大学理学部馬淵久夫(および濱口博)のグループによるものが大部分を占めている。今村峯雄・島正子・本田(東大物性研1967)による宇宙線生成チタン、島・本田による鉄質隕石の年代、横山祐之(フランスCNRS)・馬淵による鉄隕石中の宇宙線誘導核種生成における太陽粒子の研究が挙げられる。また宇宙化学において注目されていたAllende隕石については、中性子線束(東大理:馬淵・高橋宏・中村裕二1972), 宇宙線誘導核種(中村・馬淵・高橋他1973), 中性子束分布(中村・馬淵ら1974), Fe同位体比測定(東大物性研:源生礼亮, 東大核研:柳田昭平), と多数の研究があり、今村恵子・島・本田は石質隕石中の宇宙線生成 $^{40}\text{K}$ , 西泉邦彦(立教大理1975)・本田・今村(東大核研)は月表面試料中の $^{53}\text{Mn}$ ( $3.7 \times 10^6$ 年), 中性子放射化法による極微量 $^{53}\text{Mn}$ の測定-月・隕石試料への適用を研究した。その後の宇宙線生成核種の研究は、隕石中のクロム同位体比の測定(九州大理:柴田誠一・加治俊夫・高島良生ら1976), 隕石・月・地球試料における“奇妙な”宇宙線生成Xe(金沢大理:坂本浩1977), 隕石の宇宙線による多重照射の記録とその母天体の推定(今村・柳田1978), 南極隕石中の $^{26}\text{Al}$ ( $7.05 \times 10^5$ 年)の測定と落下年代の推定(金沢大LLRL:小村和久・坂上正信ら1984), 鉄隕石中微量成分の分布(日大文理:本田・永井尚生, 丸文KK:島村匡ら1986)などが行われた<sup>1)</sup>。その後は、AMSを用いた、月表面岩石試料中の $^{10}\text{Be}$ ( $1.5 \times 10^6$ 年)の深度分布測定(永井・今村, 東大原セ:小林紘一ら1987), 隕石中の宇宙線生成核種の生成率推定(永井・今村・小林ら1991)へと展開されて行った。一方日本国内に落下した隕石を回収直後に測定を行い、短寿命の宇宙線生成核種の検出に成功した研究として、1995年2月18日落

下の根上隕石 (小村, 金沢大理: 宮本ユタカ・中西孝ら 1995), およびつくば隕石 (小村, 金沢大 LLRL: 井上睦夫, 科博: 米田成一ら 1996) の測定が挙げられる。

### (2) 宇宙線生成核種の生成核反応断面積, 半減期などの測定および製造

半減期が  $3.7 \times 10^6$  年と長く, 壊変形式が EC,  $\text{no}\gamma$  のため, 測定がほとんど不可能に近い  $^{53}\text{Mn}$  は, 地球上に存在したかどうかなど注目を集めていた。今村・堀江絹子・本田は, 中性子放射化法を適用し  $^{53}\text{Mn} (\text{n}, \gamma) ^{54}\text{Mn}$  により  $^{54}\text{Mn}$  に変換して測定する方法 (1966, 1968) について, 松田英毅・梅本春次 (九大理 1970) は, 光核反応による  $^{53}\text{Mn}$  の調製について成果を得た。古川路明ら (名大理 1972) および源生・西泉・本田ら (1972) は, 鉄の陽子照射による  $^{53}\text{Mn}$  の生成断面積を中性子放射化分析と質量分析の2種類の方法を用いて評価した。加速器による  $^{53}\text{Mn}$  の調製 (柴田・高島・源生ら 1975) も行われた。その後暫く報告が途絶えていたが最近,  $^{53}\text{Mn}$  の半減期 (都立大理: 永峯隆行・大浦泰嗣, 米田ら 2000-2002) が測定された。

宇宙線で生成する多様な核種について研究が行われ成果が得られている。鉄の核破砕反応で生成する安定核種生成率の微細構造 (島・今村・本田 1968) の解析, 放射化分析を利用した  $^{129}\text{I}$  ( $1.57 \times 10^7$  年) の測定 (本田・堀江 1968, 今村・堀江 1972),  $^{41}\text{Ca}$  ( $1.0 \times 10^5$  年) の半減期測定 (馬淵・高橋・中村ら 1973) がある。石質隕石中の宇宙線生成核種に関連した研究としては, Mg, Al, Si の陽子照射により生ずる  $^{26}\text{Al}$  の生成断面積の測定 (古川, 東大核研: 田中重男・坂本ら 1970), Al(p,x)Mg 反応に由来する Mg 安定同位体の生成率と断面積の測定 (東大物性研: 仁藤修・源生・本田 1975-1977), 陽子照射した隕石中の Ne 同位体比の測定 (源生・柳田, 阪大理: 高岡宣雄 1976) がある。 $^{59}\text{Ni}$  ( $7.6 \times 10^4$  年) に関連した研究としては,  $^{59}\text{Co} (\text{p}, \text{n}) ^{59}\text{Ni}$  の核反応断面積と  $^{59}\text{Ni}$  半減期の測定 (源生・西泉・本田 1975), 鉄の  $\alpha$  粒子照射による生成断面積の測定 (東大宇宙線研: 柳田・山越和雄, 源生 1976),  $^{59}\text{Ni}$  生成核反応断面積の測定 (名大理: 成田緑・篠原厚・古川ら 1990) がある。その他,  $^{10}\text{Be}$  半減期測定のための調製法 (東大物性研: 牧野友子・源生・本田ら 1974),  $^{26}\text{Al}$  等の核種の半減期 (仁藤・永井・本田ら 1980) の研究が行われた。高速準単色中性子を用いる長寿命放射性核種  $^3\text{H}, ^{26}\text{Al}$  の生成断面積の研究 (今村・柴田ら 1989), 加速器質量分析を用いる  $E_n=38\text{MeV}$  までの  $^{16}\text{O} (\text{n}, \text{x}) ^{14}\text{C}$  (5730 年) および  $^{28}\text{Si} (\text{n}, \text{x}) ^{26}\text{Al}$  反応励起関数の研究 (今村・柴田・永井ら 1990) が行われ, Ca(p,x) $^{36}\text{Cl}$  ( $3.0 \times 10^5$  年) 反応断面積の測定から過去 40 万年の太陽宇宙線の強度とエネルギースペクトル (今村・柴田・西泉ら 1995) が評価された。

### (3) 深海底堆積物

深海底堆積物中の宇宙線生成核種の研究は, 東京大原子核研究所田中重男のグループにより始められ, まず深海泥中の  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  比 (東大核研: 田中・坂本・高木仁三郎ら 1967, 69) が明らかにされ, これに続いて  $^{10}\text{Be}$  (東大核研: 井上照夫・今村・小村ら 1975),  $^{26}\text{Al}$  (仏 Gif: J.-L. Reyss, 横山・田中 1976),  $^{53}\text{Mn}$  (今村・井上・小村ら 1975, 1978) の研究が行われた<sup>2)</sup>。そのほかコア中の  $^{53}\text{Mn}$  による宇宙塵流量の推定 (今村・井上・田中ら 1974) も行われた。AMS の発展でこれらの核種の測定が容易になったため, 研究は近年ふたたび活発となっており,  $^{10}\text{Be}$  濃度測定によるマンガン堆積物の成長速度の推定 (北里大衛: 小林貴之, 都立大理: 海老原充ら 1994, 小林・永井ら 1997), 北部太平洋における海底堆積物中の  $^{10}\text{Be}, ^{230}\text{Th}$  の分布 (日大総合基: 吉田忠英・山形武靖, 永井ら 2005), マンガンクラスト中の核実験フォールアウトの深度分布と年代測定 (金沢大院自然: 佐藤優子・木下哲一, 山形ら 2005) などの研究が行われている。

### (4) 表面照射 (*in situ production*)

大気上層と比較すると 1/1000 程度に減衰している宇宙線により岩石中に直接核種が生成する現象は, 今日, 表面照射 (*in situ production*) として研究が広まっている。先駆的研究は東大核

研田中グループによるもので、宇宙線 $\mu$ 中間子により岩石中に生成する $^{26}\text{Al}$ の検出の試み(田中・坂本ら1965,1967)が最初である。さらに、宇宙線由来 $\mu$ 中間子の、コバルトによる捕獲反応(高木・田中1968)、テルル鉱物中の $^{129}\text{I}$ (高木・田中1969)、ケイ石中の $^{26}\text{Al}$ (マックスプランク研:W.Hampel, 高木・坂本ら1974)、 $^{53}\text{Mn}$ の測定(今村・西泉・本田1977)へと研究は発展した。近年、二次宇宙線による地表での核種生成と表面年代測定(今村・柴田・永井1992)、二次宇宙線により珪岩中に生成した核種 $^{26}\text{Al}$ の定量(京大院工:奥田康博・高宮幸一・柴田2003)が行われている。

#### (5) 大気・雨水・海水における分布

大気や雨水に含まれる宇宙線生成核種の研究は、全体的には環境放射能としての研究が多いと言える。1970年代に行われたものには、井上・田中(1973)による5-50MeV陽子による軽元素からの $^7\text{Be}$ 生成断面積の研究、長谷部信行・道家忠義(早大理工研1977)らによる $^{22}\text{Na}$ を中心とした宇宙線生成核種の生成率の研究がある。1970年代以降は、開発されたGe半導体検出器を使用する継続的な観測研究が多くなっている。 $^7\text{Be}$ は濃度が高く $\gamma$ 線の検出効率も高いので、 $^7\text{Be}$ を目的としない研究においても検出されるという特徴がある。環境放射能の研究においては、チェルノブイリ事故(1986)あたりを境として、それ以前は核実験フォールアウト核種をターゲットとした研究が多いが、それ以降は $^7\text{Be}$ などの宇宙線生成核種と $^{210}\text{Pb}$ などの系列天然放射性核種の研究が多い。ここでは、主に後半の研究について天然放射性核種も含め、機関あるいはグループ単位で述べる。

大気浮遊塵中の $^7\text{Be}$ の追跡を主目的として、阿部道子・阿部史郎・幸操ら(放医研)は、サンプリング法、日変動、大気オゾンとの関係などについて研究した(1979-1983)。

名大理では、降水中の $^{22}\text{Na}$ と $^7\text{Be}$ の濃度とその時間変化(古川・小島貞男ら1986)、宇宙線生成核種 $^7\text{Be}$ の降下量と経年変化(愛知医大:小島, 小田寛貴・古川1992)、さらに名古屋における降水中 $^7\text{Be}$ 濃度と $^{210}\text{Pb}$ 濃度の経年変化(曾我恭子・小田・篠原ら1995)、について研究した。

金沢大理 LLRL の阪上・小村・山本政儀らは、たばこ中における $^{210}\text{Pb}$ と $^{210}\text{Po}$ の定量分析(1983, 1985)、をはじめ、環境におけるラドンと長寿命核種( $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Po}$ ,  $^7\text{Be}$ )(岩田悦夫ら1984)、桜島とその周辺地域の大気と火山灰中の $^{210}\text{Pb}$ と $^{210}\text{Po}$ (内田賢吾ら1989,1990)、琵琶湖湖底堆積物と湖水中の天然( $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ )及び人工( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$ )放射性核種(吉田義久ら1996, 大塚良二ら1998, 坂口綾ら2002)について研究を行った。さらに $^{137}\text{Cs}$ ,  $^7\text{Be}$ を用いた林地土壌の移動・浸食の推定(浜島靖典ら1996)、降水中の短寿命宇宙線誘導核種の検出(桑原雄宇ら2004, 2005)、大気中の放射性核種変動の高解像度同時観測-気象条件や自然災害の影響-(山口芳香ら2005)と環境放射能を用いて実用的成果を挙げてきた。

九州大理では初め百島則幸・高島らにより、後に杉原真司・大崎進・前田米蔵が軸となって研究が行われた。液体シンチレーション計数法による $^{210}\text{Pb}$ - $^{210}\text{Bi}$ - $^{210}\text{Po}$ の測定(1983)をはじめ、 $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{210}\text{Bi}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ などの土壌中における分布と移動(1989, 1990)、火山灰土壌中の宇宙線起源 $^{32}\text{P}$ と $^{35}\text{S}$ の定量(1991)、大気浮遊粒子中の放射性核種 $^7\text{Be}$ ,  $^{32}\text{P}$ ,  $^{35}\text{S}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Po}$ などの分布(田川祐子1991, 1993, 1997, 2005)について研究が行われた。松葉中における $^{210}\text{Pb} \rightarrow ^{210}\text{Bi} \rightarrow ^{210}\text{Po}$ の非平衡(1992)、雲仙普賢岳周辺における降下ばいじん中の $^{210}\text{Po}$ の分析(九環協:芦川信雄1992)、森林生態系内における放射性降下物 $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Po}$ の測定(田川1994, 大崎2001,2002, 馬場智子1996, Efrizal2003)、微生物活動によるポロニウムの大気への放出(宋麗香1999, 熊本大院自然:福田紋子2005)、降雨時の大気中 $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ の濃度変化(2002)など理学的研究成果がある。

永井(日大文理1988)らはAMSによる研究に取り組み、雨水中の $^{10}\text{Be}$ の測定-宇宙線による大気中の $^{10}\text{Be}$ 生成速度と降下速度(1997, 1999, 2001)、大気・海洋表層と降水中の $^{10}\text{Be}$ ・ $^7\text{Be}$ (1998,

2001) について成果を得ている。多田亘らは西部北太平洋の大気・海洋表層水中の  $^7\text{Be}$ ,  $^{10}\text{Be}$  分布 (1999, 2001) について研究を行い, さらに山形 (2005) らは北東アジア大気中の  $^7\text{Be}$ ,  $^{10}\text{Be}$  と  $^{210}\text{Pb}$  に研究を広げた。

明大理工では佐藤純らにより, 筑波の大気中の  $^7\text{Be}$  と  $^{210}\text{Pb}$  の濃度の変動 (明大理工: 瀬川透, 国環研: 土井妙子 1993), のほか東アジア (土井・佐藤深 1998), 中華人民共和国 (土井・佐藤深 2000), 北海道猿払村 (猿払拓心中: 佐藤深, 明大理工: 小池裕也・齊藤敬 2001, 2002), 川崎市 (久木田和彦・小池 2004) について研究を行った。筑波については環境研の土井妙子による研究がある (2004)。

気象研では, 筑波における降水中の  $^{210}\text{Po}$  および  $^{210}\text{Pb}$  (杉村行勇・広瀬勝己ら 1981), 大気上層トレーサとしての  $^7\text{Be}$  (五十嵐康人・広瀬ら 1996), 富士山頂での  $^7\text{Be}$  の濃度変動 (1999), について研究している。環境放射能を用いて, 日本各地の環境動態の研究が進みつつあり, 将来の環境動態の予測ができるようになると推定される。<sup>3)</sup>

そのほか, 大気中の  $^7\text{Be}$  や  $^{210}\text{Pb}$  に関しては石川陽一 (宮城県原セ 1992), 紀野智裕 (京大炉 1998), 今村博香 (鹿児島県環境セ 2001), 中村成孝 (長崎大院環 2003), 草野祐也 (熊本大院自然: 2002, 2004, 2005), 村松和久 (信州大教 2005), 長谷川英尚 (環境研 2005), 恵和子 (阪府大先科研 1999), 上野隆 (原研 2001) らなど, 日本の広い範囲において研究が行われている。堆積物中の  $^7\text{Be}$  や  $^{210}\text{Pb}$  に関しては金井豊 (地質調 1996), 藤安得博 (長崎大院環 2003) らの研究が挙げられる。

- 1) M. Honda, K. Nishiizumi, M. Imamura, N. Takaoka, O. Nitoh, K. Horie and K. Komura, *Earth and Planet. Sci. Lett.*, **57**, 101-109 (1982)
- 2) S. Tanaka, T. Inoue and M. Imamura, *Earth and Planet. Sci. Lett.*, **37**, 55-60 (1977)
- 3) K. Hirose, T. Honda, S. Yagishita, Y. Igarashi, M. Aoyama, *Atmospheric Environment*, **38**, 6601-6608 (2004)

#### 2.6.4 核実験生成核種

(百島 則幸)

原爆製造を目指すマンハッタン計画を第二次世界大戦中に開始した米国は, 1945年に人類最初の核爆発実験をネバダの核実験場で行った。その後, 米国, ロシア及び英国は, より高性能な核兵器を得るための開発競争を展開し, 1950年代後半から1960年代前半に大気圏内核爆発実験を集中して行い, 極めて多量の放射能を環境へ放出した。1963年に3国で大気圏内核実験停止条約が結ばれるまでに放出された放射性核種は, グローバルファールアウトとして世界中に降下し, 地球規模での環境汚染を引き起こした。一方, 最初の大気圏内核実験を1964年に行った中国は, 1980年まで大気圏内核実験を繰り返した。中国の風下に位置するわが国は, 中国核実験のフォールアウトの影響を強く受けることになった。核実験フォールアウトとしてもたらされた  $^{137}\text{Cs}$  や  $^{90}\text{Sr}$  は, 現在も多くの環境試料から検出される。

##### (1) $^3\text{H}$ , $^{14}\text{C}$ , $^{85}\text{Kr}$

環境中に天然起源の  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$  が存在することが確認されたのは, 1950年および1946年のことである。1945年からの核実験により人工起源の  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$  の環境中への放出が始まっていたため,

核実験の影響がない環境データの報告は極めて少ない。核実験の影響は、1950年代から始まる水爆実験により加速度的に大きくなり、大気圏内核実験停止条約が締結されるまで放射能の環境レベルは増加した。核実験以前の $^3\text{H}$ 、 $^{14}\text{C}$ の環境レベルについては、光合成で年輪中に取り込まれた $^3\text{H}$ 、 $^{14}\text{C}$ の分析を行うことで、後年明らかにされた。特に $^{14}\text{C}$ は加速器質量分析法（AMS）による極微量分析法が可能になったことから、詳細な変遷が調べられている。一方、 $^3\text{H}$ は低レベル液体シンチレーション計測法（LSC法）を用いても、極低濃度試料をトリチウム濃縮を行わず直接測定することは難しい。 $^{85}\text{Kr}$ は核分裂生成物で核実験、原子力発電所や核燃料再処理施設から環境に放出される希ガスであり、大気中に拡散し、その濃度は、大気圏内核実験停止後も核エネルギーの平和利用の増大により年々増加している。

環境 $^3\text{H}$ と $^{14}\text{C}$ に関して、学習院大学の木越邦彦とカンサス大学のF.S.Rowlandによる特別講演が、1959年の討論会で行われている。1970年代になると高島良正・幸松彦・長田美弥子ら（九州大理）らによる米中の $^{14}\text{C}$ 濃度の分析（1970）、高島・百島則幸（九州大理）らによる $^3\text{H}$ 測定法（1973,1975）の研究が始まった。1970年代のこれらの研究で用いられた測定法は、 $^3\text{H}$ 、 $^{14}\text{C}$ とも気体計数法であり、 $^{14}\text{C}$ の計数ガスは二酸化炭素やルテニウム触媒を利用して合成したメタンであった。 $^3\text{H}$ は金属Mgや金属Znを使う還元反応により発生した水素であった。その後、大容量のバイアルを使用できる低バックグラウンドのLSCが開発されたことから、環境 $^3\text{H}$ や $^{14}\text{C}$ の測定はLSCにとってかわった。

1980年代以降は、LSCを用いる測定法の開発や環境試料の分析が活発に行われるようになった。 $^{85}\text{Kr}$ については、岡井富雄（九州大工）・高島らがLSC法（1980）による大気中濃度測定法（1981,1984）の研究を行った。最近、GM計数管を用いる $^{85}\text{Kr}$ 分析法を気象研の五十嵐康人・青山道夫・広瀬勝巳ら（2000）は提案している<sup>1)</sup>。 $^{14}\text{C}$ の分析手法の開発が川村秀久・百島・高島ら（1992,1993）により進められLSCの利用が進んだ。柴田せつ子・川野瑛子ら（大阪府大付属研、後に大阪府大先端研）は、メタノール合成法による $^{14}\text{C}$ 測定法を開発し、大気（1989,1991,1992,1994,2003）、米（2002）、杉（1999）などの多くの環境試料に応用し成果を上げた。

トリチウムは水素の同位体であり、多様な環境試料中に見出されることから、それぞれの環境試料に適した試料処理法や分析法が開発されてきた。いずれにしても低い環境レベルに対応するため、測定には低バックグラウンドのLSCが使用された。環境水中のトリチウムの濃縮には水の電気分解法が用いられるが、金属電極を使用した電気分解法の研究（新潟大理：橋本哲夫ら1984,1987-8,1991、九州大理：加治俊夫ら1988）、イオン交換膜を使用した電気分解法の研究（名大院工：小金澤孝之・飯田孝夫、核融合研：佐久間洋一ら2002、核融合研：佐久間・山西弘城、名大院工：飯田ら2004）が進められ、地下水や河川水などに含まれる低濃度のトリチウムの高精度測定が可能になった。植物試料や生物試料中のトリチウム分析のための燃焼法の開発も行われた（放医研：井上義和・金試侠・岩倉鉄男1987；岡井、松岡信明（九環協）、高島ら1989）。大気中に水蒸気、水素、炭化水素として存在する $^3\text{H}$ の化学形別分析法の研究が、岡井・高島ら（1983-1987,1991,1993,1997,2001）や佐久間・飯田・小金澤ら（2002,2003）により進められた。大気中の化学形別トリチウム濃度の長期データは高く評価されている<sup>2)</sup>。上述の分析法を駆使して多様な環境試料の $^3\text{H}$ 分析が精力的に行われ、1980年代以降の核実験の影響が漸次減少していく状況が明らかにされた。これらの研究成果は、陸水、雨、地下水のトリチウム濃度とその滞留時間の解析、海洋や離島環境のトリチウム分布解析など広範囲に及ぶ。生物試料の $^3\text{H}$ については、植物・生物・尿（百島・高島ら1985,1986）、人体組織（京大RIセンター：青木達、京大炉：上野陽里ら1987）、樹木年輪（北陸大薬：山田芳宗、金沢大LLRL：上野馨1987、小村和久ら



1988) などの分析が進み、核実験由来のトリチウムによる一般公衆の被ばく線量は無視できるレベルであることが示された。

核実験起源によるトリチウムの環境影響は、減少の一途をたどると予想され、今後は原子力施設とその関連施設周辺の局所的な環境動態の研究へ進むであろう（高エネ研：三浦太一・近藤健次郎，1996）。核融合炉の燃料として元素状トリチウムは極めて大量に使用される予定であることから、核融合炉周辺環境のトリチウム動態解析は、近い将来、最重要事項となるであろう。元素状トリチウムの環境動態に関する研究（百島，高島ら 1987, 1988, 1990, 1996）をさらに進める必要がある。

- 1) Y. Igarashi, M. Aoyama, K. Nemoto et al., *J Environ. Monit.*, **3**, 688 (2001).
- 2) T. Okai, N. Momoshima Y. Takashima, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **239**, 527 (1999).

## (2) 陸域環境における超ウラン元素

(山本 政儀)

92 番元素ウラン U よりも原子番号の大きい元素を総称して超ウラン元素と呼んでいる。このような元素が一般環境中に広く分布・存在するようになったのは、地球規模のフォールアウトに由来する。その他に、局地的ではあるが核燃料電池を搭載した人工衛星の落下事故、原子炉、核兵器、核施設での事故、核燃料再処理を含む原子力関連施設からの漏洩と事故、さらにチェルノブイリ原発事故などによる。代表的な環境中の超ウラン元素はプルトニウム (Pu) で、その他にアメリシウム (Am)、ネプツニウム (Np) が極微量ではあるが存在している。超ウラン元素の諸核種は、それ自身化学毒性が強く、しかも生物学的に危険な  $\alpha$  線を放出し、かつ物理的半減期の長い核種が多く、キャリアーフリー状態で自然界に存在する。このため超ウラン元素の濃度レベル、分布、移行挙動が人体への放射線影響など環境安全と放射線防護の観点から、重要な研究対象となってきた。また、地球化学的研究のトレーサとしての応用面からも重視されてきた。

日本における環境試料中の超ウラン元素の測定は、1951 年に齋藤信房（東京大理）らが長崎の西山地区の試料から  $^{239,240}\text{Pu}$  を検出したことに始まり、木村健二郎（東京大理）らによる 1954 年のビキニ灰からの  $^{239,240}\text{Pu}$  の検出に続く。その 4 年後の 1958 年に三宅泰雄（気象研）らが大気降下物中の  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  を含む  $^{239,240}\text{Pu}$  を観測している。これが日本における超ウラン元素、特に Pu の環境放射能研究の先駆けといってもよい。国内で陸域環境試料に回収率モニタ  $^{236}\text{Pu}$ （原研：石森富太郎 1969）を添加して、正確な Pu 濃度を測定したのは阪上正信（金沢大 1970）らである。阪上らは 1960 年代後半から  $\alpha$  放射体の分析・測定法を開発していて、長崎西山地区の表層土壌試料（1969 年採取）中の  $^{239,240}\text{Pu}$  および  $^{238}\text{Pu}$  の化学分離・ $\alpha$  線スペクトロメトリーに、このモニタを適用し、高精度の分析を可能にした。1975 年頃から科学技術庁が、核実験や原子力施設から放出される放射性核種などを対象とした環境放射能分析・測定法の整備に着手し、プルトニウム分析法、次いでアメリシウム分析法が制定された。制定には環境放射能研究者が中心的な役割を果たし、これまでの多くの研究成果が取り入れられた。これを受けて日本分析センター、動力炉・核燃料事業団、日本原子力研究所をはじめとする種々の研究機関で陸域を含む環境試料中の Pu 同位体、および  $^{241}\text{Am}$  が測定されるようになった。1980 年代前半には、広瀬勝巳、杉村行勇（気象研）が全国主要 10 河川水中の Pu 測定を行い、ひとたび地上に降下した Pu は、長く地上に留まり長期間にわたり影響が及ぶことを示した。木村幹（青学大 1980）らも伊豆大島で土壌中の Pu 測定を行った。広瀬ら（1981）は筑波で大気や降水中の  $^{239,240}\text{Pu}$  の測定を、日本原子力研究所

の笠井篤ら（1985）は東海村で大気中のPu粒度分布を測定した。1980年代後半から1990年代にかけて、山本政儀ら（金沢大）は土壌中の $^{239,240}\text{Pu}$ や $^{241}\text{Am}$ の蓄積量および深度分布を精力的に測定すると共に、長崎、広島、土壌中のPu同位体、 $^{241}\text{Am}$ の分布と蓄積量、さらに福井県三方五湖でこれら核種の堆積挙動を調べ（1988）、陸域環境における環境動態解明に貢献した。また、農業技術研究所は1957年から全国の国立農業関係試験場で採取していた水田、畑土壌についてPu同位体（ $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ）、 $^{241}\text{Am}$ 、および $^{237}\text{Np}$ を測定し、蓄積レベルや時間的推移、土壌中での滞留時間などを評価した（1993）。馬原保典（電中研）と工藤明（オタワ大学）らは長崎西山地区での土壌中Puの移動性について研究を始めた。

1990年代始めには、これまでの $\alpha$ 線スペクトロメトリーに加えて、プラズマをイオン源とする誘導結合プラズマ質量分析法（ICP-MS）が開発され、長寿命放射性核種への適用が急速に進んだ。これにより、 $\alpha$ 線スペクトロメトリーで測定が困難であった $^{239}\text{Pu}$ と $^{240}\text{Pu}$ の同位体測定、さらに極微量の $^{237}\text{Np}$ の測定が比較的容易にできるようになった。このような方法を駆使して、山本政儀ら（金沢大学）は、1994年頃から旧ソ連セミパラチンスク核実験場周辺地域の土壌中のPu汚染レベル、および $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比および $^{137}\text{Cs}$ の濃度を広範囲に調査した。チェルノブイリ原発事故に絡むPuの土壌中での挙動、存在状態の研究が木村幹および天野光（原研1996,2001）らによって、また国内の湖底堆積物中の $^{137}\text{Cs}$ やPuの存在状態の研究が長尾誠也ら（原研1997）によって実施された。中西孝（金沢大理）らは土壌粒子塵中の $^{239,240}\text{Pu}$ および $^{241}\text{Am}$ レベルを（1988）、村松康行（放医研）らは全国から採取した表層土壌の $^{239,240}\text{Pu}$ レベルおよび $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比を明らかにした（2001）。国分陽子（原研2003,2004）らは、長崎西山の貯水池堆積物のPuレベルおよび $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比の深度分布を、藤川陽子ら（京大炉2003）は、土壌有機物とPuとの相互作用を調べるために、土壌腐植酸中のPuの分析を行い、大塚良仁（環境科学技術研究所、2003）らは、国内初となる商業用大型核燃料再処理施設が立地する青森県六ヶ所村を中心に土壌中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度および蓄積量を $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比と共に測定し、Puの移行挙動を調べている（2002,2004）。

最近、固相抽出クロマトグラフィー樹脂を利用したこれらの核種の迅速分離・測定（大塚ら2004）が可能となり、国内では事故などに対応した緊急時迅速分析法も整備されている。

### (3) 大気降下物

成層圏に達した大気圏内核実験生成物は数年の滞留時間を持ち、徐々に対流圏に移行するので長期間にわたり大気降下物として検出される。代表的な核種として、比較的半減期の長い $^{137}\text{Cs}$ や $^{90}\text{Sr}$ があるが、核実験直後には短中半減期の核種も検出される。

わが国における核実験フォールアウトの研究は、核実験開始後の早い時期から活発に行われていた。すでに第1回討論会（1957）では、雨とフォールアウトに含まれる $^{90}\text{Sr}$ が気象研（三宅泰雄、杉浦吉雄、猿橋勝子、葛城幸雄）、国立予防研（伊沢正美ら）、新潟大学（小山誠太郎、外林武）、静岡大学（塩川孝信、八木益男ら）により、食品・人体・土壌等に含まれる $^{137}\text{Cs}$ が山県登ら（群馬大）により、フォールアウトに含まれるプルトニウムが斎藤信房（東大理）により発表されている。日本海側はフォールアウトが多いのが特徴であるが、新潟におけるフォールアウトを小山と外林（新潟大1957, 1958, 1959）は精力的に研究した。中国の大気圏内核実験は、地理的に日本に近いため大きな影響を与えたが、第1回中国核実験（1964）が行われた翌年には、中国核実験フォールアウトの研究報告が三宅ら（気象研）により行われた。中国は1980年までに23回の大気圏内核実験を行った。中国核実験のフォールアウト研究には、三宅らの気象研グループ（1966, 1981）、新潟大の小山、外林、中原弘道ら（1972）、湯川雅枝・鎌田博・佐伯誠道（放医研1972）、名大の古川路明、小島貞夫（1981）らが携わった。

フォールアウトの捕集は、水盤法、エアースンプラー法などの他に植物をフィルターとして用いる方法がある。名大の古川路明ら（1976, 1977）は松葉を分析することでフォールアウトが評価できることを明らかにし、百島ら（1978, 1979）は環境放射能指標植物としての松葉の有効性を検討した。現在、わが国では、ほとんどすべての原子力発電所周辺の環境モニタリングにおいて、松葉はモニタリング植物として分析されている。

## 2.6.5 極低レベル放射能測定による環境放射能研究

（小村 和久）

宇宙・地球化学、分析化学、環境放射能の研究分野では、低レベル放射能測定技術が果たす役割はひじょうに大きい。検出したい放射性核種を確実に検出し精度よく定量するには、多量の試料採取、乾燥、灰化、共沈、イオン交換法などによる濃縮・分離、究極の手段としての同位体濃縮など、試料サイドからの努力が必要であり、さらに高性能検出器の充実、すなわち検出効率が高くバックグラウンド計数の低い検出器の整備が必要である。わが国の環境放射能測定における低バックグラウンド放射線検出器の開発とそれらを駆使した研究は多くの成果をもたらしている。さらに低バックグラウンド放射能測定を飛躍的に可能にした水深換算 270m の尾小屋地下測定室は特筆に値する。

### （1）低バックグラウンド検出器の開発

我が国ではじめて本格的な極低レベル  $\gamma$  線測定に取り組んだのは、東大原子核研究所の田中重男らのグループであろう。はじめは深海底泥中の宇宙線生成核種  $^{26}\text{Al}$  及び  $^{10}\text{Be}$  の検出を試みたが果たせなかった（田中ら 1968）。その後、硅岩中に宇宙線のミュオン捕獲反応で生成する  $^{26}\text{Al}$  の検出を目的に、千葉県鋸山の旧陸軍の地下壕（水深換算約 30m）内に地下測定室（鋸山微弱放射能測定孔）を建設し、NaI(Tl) 検出器を主検出器とする  $\gamma$  線同時計数装置を組み立てた。鋸山では  $^{26}\text{Al}$  を検出できなかったが、その後、大型の NaI(Tl) 検出器による測定で検出に成功した（Hampel ら 1973）。鋸山地下測定室で開発された極低バックグラウンド放射線検出器として、低レベル X 線カウンタ（原燃工業：高橋宏ら 1973）や GM 式 Needle Counter（東大核研：藤田雄三・田口康雄ら 1974）がある。東大宇宙線研究所の山越和雄らは、ここに井戸型 NaI(Tl)-GM 計数管の同時計数装置を開発・設置して、深海堆積物中の宇宙線生成核種の検出を試みている（1975）。その後井戸型 Ge 検出器による研究も行われたが、1999 年に歴史的使命を終えた。鋸山の流れは、千葉県柏に移転した宇宙線研究所に新設された地下測定室（水深換算 20m）に受け継がれている。我が国で開発されたユニークな  $\beta$  線カウンタとして、プラスチック検出器と GM カウンターを組み合わせた同時・反同時カウンタ（放医研：田中栄一 1970）、100mL の大容量バイアルが使える液体シンチレーションカウンタ（アロカ）が挙げられる。

金沢大の小村・阪上は、1983 に岐阜県白川村の電源開発御母衣（みほろ）地下発電所の回廊（水深換算 660m）に測定小屋を設置して、極低レベル放射能測定の基礎研究を行った。Ge 検出器の設置には至らなかったが、井戸型 NaI(Tl) 検出器による反同時計数でバックグラウンド低減をはかった Si  $\beta$  線検出器を開発した。この検出器は後に尾小屋地下測定室（後述）に移設され、宇宙線誘導核種  $^{32}\text{Si}$  の測定（金沢大 LLRL: 小藤久毅 1999）や、JCO 臨界事故で漏えいした速中性子誘導核種  $^{32}\text{P}$  の測定に活用された（新潟大理：小藤ら 2000）。新潟大の橋本哲夫らにより開発された  $\alpha$  線の時間間隔を利用するトリウム測定も、新しい低レベル放射能測定の手法として興味深い。

### （2）低レベル放射能関連の研究（ICP-MS, TIMS, AMS による測定は除く）

隕石、海底土、月試料中の宇宙線誘導核種の測定は、低レベル放射能測定の代表的な例といえる（田中重男ら 1969, 今村峯雄ら 1971, 馬淵久夫ら 1971, 西泉邦彦ら 1974, 長谷部信行ら 1976, 小村和久ら 1981）。原爆中性子による誘導核種  $^{152}\text{Eu}$  の発見（阪上正信・小村 1976）を契機に原爆線量再評価を目的とする被ばく試料の精力的な測定が中西孝・小村ら（金沢大）、静間清ら（広島大）、岡島俊三・宮島純子（長崎大）によって行なわれた。その結果、実測値と計算値が一致しないことが明らかになり、原爆線量の再々評価に繋がった。最終的には、kg レベルの花崗岩試料を用いた尾小屋地下測定室での測定で解決された（小村ら 2002）。さらに 2005 年には  $^{152}\text{Eu}$  より 3 桁感度が高い  $^{108\text{m}}\text{Ag}$  による新しい原爆中性子評価が開発された（小村）。雨水中の短寿命宇宙線誘導核種（桑原雄宇ほか 2005）、河川水や海水中のラジウム同位体（明治大理工：佐藤純ら、金沢大 LLRL：井上睦夫ら）、大気中の  $^{22}\text{Na}$ （福井県原セ：徳山秀樹）をトレーサとする琵琶湖湖水の循環の研究（金沢大 LLRL：大塚良仁ら、坂口綾ら）など低レベル測定技術は広く利用されている。1950 年代から現在まで核実験フォールアウト核種を継続して測定・発表している気象研究所地球化学部の広瀬勝己、青山道夫、五十嵐康人らの研究は世界的に高く評価されている。

### (3) 尾小屋地下測定室

我が国の代表的な極低レベル放射能測定施設として、小村和久が旧尾小屋銅鉍山のトンネル内に建設し、1995 年から稼動している水深換算 270m の地下測定室がある。地下測定室は当初 2 台の Ge 検出器で出発したが、2005 年 10 月現在、大型の井戸型 Ge 検出器 9 台、平板型 Ge 検出器 4 台、同軸型 Ge 検出器 1 台を備えた世界トップクラスの測定室として広く知られるようになった。2006 年に低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタが設置され、極低レベル  $\beta$  線測定も開始された。2005 年度から 5 カ年にわたり文部科学省の特別教育研究経費の交付を受け、測定設備の整備が開始されつつあり、2008 年度には全国共同利用施設として開放が予定されている。

### (4) 今後の展望

放射能の検出感度を 1-2 桁向上させることによって、測定時間や測定経費を大幅に節減できる。これは新しい研究領域を拓く有力な手段ともなる。地下室での測定はその実現をはかる最もよい近道であり、我が国でも尾小屋クラスの測定室を複数持つことが望ましい。 $\gamma$  線測定について言えば、市販の遮蔽体には検出器の性能を十分に発揮できる無放射能材料ほとんどない。Radioisotopes 誌に 2006 年 4 月号から 9 回にわたり「超低レベル放射能測定の現状と展望」というテーマで連載講座が掲載され低バックグラウンド化のためのノウハウや研究例が多く紹介された。また、将来の極低レベル放射能測定に備えて、廃棄された鉛や鉄などの遮蔽材を尾小屋地下測定室に収集保管して共同利用に供する予定である。

## 2.6.6 加速器質量分析による環境放射能研究

（関 李紀）

1977 年 Müller によって提案された加速器質量分析法（AMS）は、長半減期の放射性核種の高感度測定を可能にするもので、特に環境放射能の研究に適している。

日本の放射化学分野における AMS 利用研究の報告は、1981 年の放射化学討論会に東京大核研の今村峯雄をはじめその他 9 名による「タンデム加速器を用いる長半減期核種の測定 (1)」として発表されたのに始まる。その後、同グループのメンバーによって一連の発表（1982-1987, 1984 欠）があり、宇宙化学の分野における AMS の威力が発揮される研究が開始された。その後、永

井, 今村ら（日大文理ほか 1988）は, 雨水中の  $^{10}\text{Be}$  の AMS 測定結果をもとに宇宙線による大気中の  $^{10}\text{Be}$  の生成速度などを研究した。それらの研究は 1984 年に論文として発表されている<sup>1)</sup>。また, 同年, AMS による  $^{14}\text{C}$  の測定が吉川英樹, 篠原宏志ら（共立薬大, 東大, 東工大, 日大, 都立大のグループ）によって行われている<sup>2)</sup>。これらの研究は既存の東大のタンデム加速器（加速電圧：4 MV）を用いたものであった。

日本最初の AMS 専用加速器は, 名古屋大年代測定総合研究センターにタンデトロン (2 MV) が 1981 年に導入され, 考古学的試料などの年代測定に威力を発揮している。同じ頃, 京都大 (8 MV), 九州大理 (10 MV), 筑波大 (12 MV) では既存のタンデム加速器の AMS への改造が始まっている。

1992 年に東大原子力研究総合センタータンデム加速器研究施設 (MALT) に 5 MV のタンデム (ペレトロン) が AMS 用の加速器として導入され, 本格的な運用が始まった。1995 年に最初の報告が永井, 今村ら（日大文理ほか）によって行われた。その後, 永井を中心として, 大気 (1999 年), 雨 (2001 年) などの試料中の宇宙線起源の  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$  の測定が進められ, 自然界でのこれらの核種の生成速度が, 環境測定データと加速の 120 MeV 陽子による生成速度の結果とあわせて議論されている<sup>3)</sup>。最近では半減期の短い  $^7\text{Be}$  (半減期: 53d) も AMS で測定することが可能になり,  $^{10}\text{Be}$  の測定と合わせて研究されるようになった。東大 AMS ではそのほかに  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{32}\text{Si}$  の測定法の開発を進めており, 阿勢貴博, 藤村匡胤ら（日大総合基礎ほか 2002）が, 気体充填型電磁石を導入した結果を報告している。その結果, これまでに測定されている  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{129}\text{I}$  とともに,  $^7\text{Be}$ ,  $^{32}\text{Si}$ ,  $^{36}\text{Cl}$  などの測定も可能となり, 宇宙科学・核化学ばかりでなく, 環境放射能分野でも新しい研究を推進できると期待される。

名古屋大では年代測定総合研究センターに 2 号機 (タンデトロン 3 MV) が 1996 年に導入され, 考古学などの分野で, 貴重な試料の年代測定に成果を挙げている。放射化学分野では古文書の  $^{14}\text{C}$  年代測定 (名大理: 小田寛貴・中村俊夫・古川路明 1996) がある。その後も小田らによって古文書, 経典および筆切などの年代測定法の開発が行われ, 放射化学分野に新たな分野を開いた (1997, 2000, 2002)<sup>4)</sup>。

筑波大では既存の加速器ペレトロン 12 UD の加速エネルギーが高いことを利用して, 他の加速器では測定困難な  $^{36}\text{Cl}$  の AMS 測定を中心に開発が進められ, 最初の成果が 1995 年に発表された (筑波大化: 宮崎紀彦・関李紀ら)。この加速器は AMS 専用加速器ではないため, 加速電圧の制御にパイロットビームとして分子負イオンを使うなど独特の工夫がなされている。それを利用して, JCO 事故の試料 (筑波大化ほか: 新井大輔, 関, 長島 2000)<sup>5)</sup>, 広島原爆の中性子線量再評価用の花崗岩 (筑波大化: 松広岳司, 関, 長島 2002)<sup>6)</sup>, 国内の多種の加速器内の遮蔽用コンクリート (高エネ機構と筑波大: 別所浩太郎, 松村ら, 2003)<sup>7)</sup> 中の  $^{36}\text{Cl}$  が測定された。また中性子線量の測定に関連した研究や日本国内の表層土壌などの試料 (筑波大化: 松広岳司, 関ほか 12 名, 2003) の  $^{36}\text{Cl}$  測定<sup>8)</sup> にも威力を発揮している。

国内には, これまで述べた機関のほかに, AMS 用に建設された加速器が北から, 旧日本原子力研究所むつ事業所 (現日本原子力開発機構: タンデトロン 3 MV), 国立環境研究所 (5 MV), 旧サイクル機構東濃地科学センター (現日本原子力開発機構: ペレトロン 5 MV) にある。それらの装置では主として  $^{14}\text{C}$  の測定が行われているが, むつ事業所では  $^{129}\text{I}$  の開発も行われている。これらの装置を用いた研究の発表は放射化学討論会では今のところない。環境研の AMS を用いた研究は長尾誠也 (北大院地球環境 2004) らによって「十勝川河川水の懸濁態有機物の移行動態研究」が報告され, その後, 一連の溶存物質に関する成果はすでに論文として発表されている<sup>9)</sup>。既存の加速器で AMS 測定をする試みは京都大, 九州大でも続けられているが, 放射化学討論会

では発表されていない。

環境放射能のレベルは非常に低くなっており、環境動態を正確に把握するために AMS を利用する必要性が今後高まっていくだろう。しかし、新規に導入するには装置が高価で、専用のスタッフをそろえなくてはならないなど障害は多く、研究所間の連携等で、多くの研究者が有効に既存の装置を利用できることが望ましい。 $^{14}\text{C}$ については加速器分析研究所 (3 MV) と (株)パレオ・ラボ (500 kV) で依頼分析が可能になっている。

日本に AMS が導入されてから 20 年以上経過し、国際的にも評価されるようになり、2002 年には名古屋で国際会議が開催された。しかし、AMS を利用した環境放射能研究は実質的には緒に就いたばかりで、今後ますます発展する分野である。

## 文 献

- 1) M. Imamura, Y. Hashimoto, K. Yoshida, I. Yamane, H. Yamashita, T. Inoue, S. Tanaka, H. Nagai, M. Honda, K. Kobayashi, S. Ohba, N. Takaoka, Nucl. Instr. Meth., **B5**, 211-216 (1984).
- 2) K. Kobayashi, K. Yoshida, M. Imamura, H. Nagai, H. Yoshikawa, H. Yamashita, S. Okizaki, and M. Honda, Nucl. Instr. Meth., **B29**, 173-178 (1987).
- 3) H. Nagai, W. Tada, H. Matsumura, T. Aze, M. Noguchi and H. Matsuzaki, Nucl. Instr. Meth., **B223-224**, 237-241 (2004).
- 4) H. Oda, T. Nakamura, M. Furukawa, Radiocarbon, **40**(2), 701-705 (1998).
- 5) R. Seki, D. Arai, Y. Nagashima, T. Imanaka, T. Takahashi, T. Matsuihiro, J. Radioanal. Nucl. Chem., **255**, 245-247 (2003).
- 6) Y. Nagashima, R. Seki, T. Matsuihiro, T. Takahashi, K. Sasa, K. Sueki, M. Hoshi, S. Fujita, K. Shizuma, H. Hasai, Nucl. Instr. Meth., **B223-224**, 782-787 (2004).
- 7) K. Bessho, H. Matsumura, T. Miura, Q. Wang, K. Masumoto, Y. Nagashima, R. Seki, T. Takahashi, K. Sasa, K. Sueki, Radiochim. Acta **94**, 801-805 (2006).
- 8) R. Seki, T. Matsuihiro, Y. Nagashima, T. Takahashi, K. Sasa, K. Sueki, Y. Tosaki, K. Bessho, H. Matsumura, T. Miura, Nucl. Instr. Meth., **B259**, 486-490 (2007).
- 9) S. Nagao, H. Kodama, T. Aramaki, N. Fujitake, K. Yonebayashi, Nucl. Instr. Meth., **B259**, 552-557 (2007).

### 2.6.7 ICP-MS による環境放射能測定

(田上 恵子・村松 康行)

ICP-MS (Inductively coupled plasma mass spectrometry: 高周波誘導結合プラズマ質量分析法) は 1980 年に R.S.Houk らによって最初に発表され、その後、装置の性能向上と相まって幅広い分野で利用されるようになった。検出感度に優れていることから、微量元素の定量に留まらず長半減期核種や同位体の分析にも威力を発揮している。

放射化学討論会の発表タイトルの中で最初に ICP-MS が登場したのは 1988 年の五十嵐康人ら (筑波大) による生体試料中の Th と U の分析である。その後は、 $^{99}\text{Tc}$  (筑波大: 森田重光ら 1989, 九州大理: 百島則幸ら 1991, 放医研: 田上ら 1993), Th (筑波大: 五十嵐ら 1990), Pu (九州大理: 柿内秀樹ら 1994) の分析に用いられた。利用分野は限られていたが、わが国で進められた ICP-MS による環境放射能研究は世界をリードするものであった。

1995 年以降になると、応用範囲も広がり、また、上述した元素以外にもさまざまな元素 (核種)

の分析にも利用されるようになった。研究内容を大きく分類すると、a. 環境試料中の人工及び天然の長半減期核種の測定と環境挙動、b. 微量元素分析への応用、c. 安定同位体を使用した環境科学及びトレーサ実験への利用、の3つにまとめることができる。

まず、長半減期核種の測定は、地球化学や環境科学の分野で主に使用されており、これまでに行われていた $\alpha$ 線測定や放射化分析（NAA）に代わる方法として提案されている。岩石や堆積物、河川水中のUやThの濃度測定と環境挙動の解明に利用されはじめ（金沢大：小藤久毅ら1996,1998，都立大：Jianyu Chaiら2001,2002，京大：幸進ら2002），現在ではその特性を生かして、 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 同位体比の測定に多用されている。ICP-MSのための最適な分離・濃縮法（田上ら1999，京大：藤川陽子ら2000，放医研：Jian Zhengら2005）も積極的に研究された。さらにプルトニウムについては、その濃度及び $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ 比の違いから汚染源（核実験や原子力事故など）を特定する試みがなされるなど、Puの環境動態解明への貢献は大きく（放医研：村松康行ら2001，藤川ら2003，山田正俊ら2005，原研：国分（斉藤）陽子2004，気象研：広瀬勝己ら2005，日本分析セ：及川真司ら2005，学習院大：村松ら2005），そのための分析法の開発（村松ら2003）や妨害イオンの除去法についての研究（日本分析セ：岸本武士ら1999）も進められた。また、前述の $^{99}\text{Tc}$ も近年のICP-MSの性能向上により極低レベルの測定ができるようになったことから、 $^{99}\text{Tc}$ の環境挙動についての研究も進展している（田上ら1998,2005，筑波大：近藤宗晴ら2001）。ICP-MS法は、地球化学の分野だけではなく、原子力の平和利用のためにも有効活用が図られており、その一つが未申告の原子力活動を検知する保障措置手法である。特にスワイプ試料などに付着した極微量のウランの同位体比を測定するために、分析環境や分析手法の改善を目的とした研究が行われ（原研：臼田重和ら1998,2003，齋藤ら2001，間柄正明ら2004，宮本ユタカら2005），国際的にもICP-MS法は極めて有力な手法として注目されている。また、環境試料ばかりではなく内部被ばくモニタリング用に尿中Uの分析もICP-MSの積極利用が進められている（原研：桑原潤2005）。さらに、1999年に発生した濃縮ウラン加工工場（JCO）での事故後では、 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 同位体比を迅速に測定する手法として活用された（金沢大：川端良子ら2000）。このような経験を踏まえて、ICP-MSを用いた長半減期核種の迅速測定法が開発されるなど（環境研：大塚良仁ら2004,2005），環境モニタリングにおける重要度も益々高まっている。

微量元素の分野では、従来、NAAを用いて行われていた微量元素分析に関連して、ICP-MS利用の有用性がNAAとの比較で議論されている。例えば、ICP-MSを用いた環境試料中の白金族元素の極低濃度分析への応用が挙げられる（中国高エネルギー物理研：Chifang Chai1996，都立大：篠塚典一ら1996）。これまで生体試料中の希土類元素測定では、存在濃度が低いため数元素しか定量できなかったが、ICP-MSを用いるとほとんどの希土類元素を測定できるようになった（京大：川本圭造ら1998）。希土類元素以外の微量元素の定量についてもNAAに代わる方法として利用されはじめている（岸本ら1999年，放医研：内田滋夫ら2001，愛知医大：小島貞男ら2003）。近年、NAAに利用できる研究炉の数が減少していることに加え、実験室で排出される放射性廃棄物の処分や微量被ばくも課題になっており、ICP-MSの役割が益々重要視されつつある。

環境科学及びトレーサ実験への利用の分野では、放射性元素の代わりにナチュラルアナログを使用する方法として、安定同位体がトレーサ実験に利用されている（田上ら2002,2004，広大：高橋嘉夫ら2004）。その他、考古学への応用として鉛汚染源を特定するために鉛同位体をICP-MSで分析した例を挙げることができる（九環協：松岡信明1995，川村秀久1997）。今後もICP-MSは、地球化学をはじめ、環境科学，材料化学，生命科学など幅広い分野で利用されていくことが期待される。

## 2.7 核をプローブとする化学

### 2.7.1 メスバウアー分光

（酒井 宏・片田 元己）

メスバウアー効果に関する研究がはじめて放射化学討論会に登場するのは、1964年の第8回の開催であった。お茶大理の佐野博敏、東大理の富永健・安部文敏・斎藤信房による「メスバウアー効果の化学への応用—鉄化合物の放射線分解」<sup>1)</sup>と、九大理の高島良正・大橋茂による「数種の鉄鉱物の Mössbauer スペクトル」<sup>2)</sup>である。メスバウアー効果（無反跳核  $\gamma$  線の共鳴吸収）は1958年当時西ドイツの Rudolf L. Mössbauer によって発見され、1961年ノーベル物理学賞が与えられたのであるが、それからわずか数年で、わが国の放射化学の研究者たちに応用されるようになった。その後、この分野の研究は大きく広がり、各地の大学、研究所などで盛んに研究されるようになり、またその方法もメスバウアー分光法として確立していったのである。以下に、日本の放射化学の研究者たちによってメスバウアー効果研究が発展させられてきた過程を述べる。

翌年には、前述の東大理および九大理のグループによる発表に加え、お茶大理の佐野・荒谷美智・大矢とし江によるメスバウアースペクトルの化学への応用、さらに、日本原子力事業の下島光・兵頭宏道・松島安義による鉄化合物のメスバウアースペクトルが発表され、メスバウアー効果の化学への応用研究が大きな広がりを見せている。1966年には、荒谷が<sup>119m</sup>Snの線源づくりを発表し、東芝中研の吉岡亨・河野宏子はシリカゲル上に分散した酸化鉄微粒子のメスバウアースペクトルを発表した。当時は線源作りから始めなければならなかったのである。

1967年から1971年にかけては、メスバウアー効果がメスバウアー分光法として発展するにつれて、その応用分野も広がり、研究者人口が急激に増えていった時期でもある。放射化学討論会においては、その討論主題からメスバウアー分光の放射化学的研究に関する発表が多くなっていく。佐野、荒谷による<sup>57</sup>Co崩壊のメスバウアースペクトルに関する研究や、斎藤・竹田満洲雄・魏和祥（東大理）らによる $K_2Co [Fe(CN)_6] \cdot xH_2O$ のホットアトム化学的研究、さらには安部・安部静子（理研）・斎藤（東大理）によるEC壊変の化学効果への利用に関する研究など線源実験が多く発表されている<sup>3)</sup>。いっぽうでは理論的研究も活発で、前田米藏・高島・中山祐輔（九大理）は電子計算機による四極分裂の温度依存性の解析を発表している。市坂純雄・酒井宏・瀬川宜田久男（広島大理）、前田豊（京大原子炉）らが、京大原子炉においてZn<sup>129</sup>Te線源をつくり、<sup>129</sup>Iのメスバウアー効果の測定を開始したのもこの頃である<sup>4)</sup>。

1972年から1976年にかけて、メスバウアー分光法の応用は非常に多くの分野に広がりを見せ、この分光法独自の成果、すなわち他の分光法では得られない情報、を出すようになる。都立大理に移った佐野、お茶大理の武藤淑子が<sup>119</sup>Sn(C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>)<sub>4</sub>をドーピングしたゲルマニウム、錫化合物の反跳エネルギーの伝わり方の研究を発表している。佐野は、Rutgers大学のHans.A. Stöcklerと共同で、ポリマーの次元性と無反跳分率の関連性について研究し、この成果はメスバウアー効果の特徴を生かした研究として世界の研究者が注目するところとなった<sup>5)</sup>。安部・安部・斎藤は固体中の格子欠陥の<sup>119</sup>Sb—メスバウアースペクトルを報告している<sup>6)</sup>。また、酒井拓彦と富永（東大理）は混合原子価錯体である鉄（Ⅱ）鉄（Ⅲ）フッ化物の研究でこの化合物の原子価の複雑さを報告している。同じく佐藤春雄、富永は有機鉄化合物の熱分解反応へメスバウアー効果を応用している。高島・村上是郎は鉄錯体の $\gamma$ 線照射効果を発表している。さらに、高島・西田哲明・甲斐徳久はメスバウアースペクトルをガラスの欠陥構造の解析に応用した。この研究はメスバウアーパラメータとガラスの物理的性質とを結び付けようとするもので、これを出発点としてその後、鉄



を含むガラスの研究へと発展させている<sup>7)</sup>。遠藤和豊・渋谷守・佐野(都立大理)らはメスバウアースペクトルを内部転換電子の飛程の測定に応用し<sup>8)</sup>、富永・竹田・岸本和枝と国立文化財研の馬淵久夫は共同でメスバウアースペクトルを考古学試料へ応用している<sup>9)</sup>。

1977年から1981年にかけて、メスバウアー分光法に関する研究はますます増加し、発表件数も増加していった。市坂・山田雅明・瀬宜田(広島大理)らは、 $\text{SnCl}_2$ 付加化合物の $^{119}\text{Sn}$ の発光メスバウアースペクトルを研究し、配位子の autoradiolysis 還元機構を提案した<sup>10)</sup>。都立大の片田元己と Rutgers 大の R.H. Herber らはメスバウアースペクトルを用いて  $\text{Fe}_x\text{TiS}_2$  の格子力学的研究を開始した。格子温度なる概念を提案する研究で、格子温度と相構造との関係を明らかにした<sup>11)</sup>。竹田・富永・東大原子力センターの伊藤泰男・高野武美らは $^{197}\text{Au}$ のメスバウアースペクトルを研究し、金(III)錯体の構造化学的研究を日本で初めて開始している。また松尾・佐藤・竹田・富永による気体増幅管を用いた低温での散乱メスバウアースペクトルの研究、などなど、枚挙にいとまがない。さらに葉袋佳孝・竹田・富永らがメスバウアー分光法の地球化学への応用を報告している<sup>12)</sup>。変わったところでは、メスバウアー分光法ではないが、浅井吉蔵・関沢尚・安部・安部(理研)らによる摂動角相関(TDPAC)による $^{111}\text{In}$ のスピンの緩和についての報告もなされるようになった。これは高温で後遺効果のないデータを得て成功したものであった。

1982年から1986年にかけてはそれぞれについて到底記述することはできない。メスバウアー分光法の変った適用例、面白い研究例を記す。山田康洋・佐藤・富永(東大理)らはマトリックス単離した化学種のメスバウアー分光を発表し、カルボニル錯体が時間経過とともに均一系から不均一系へ変化する様子、不安定化学種の存在を示した。マトリックスの中に閉じ込められた単分子状態の化学構造を明らかにしようとする研究で、実験と理論の両方から不安定分子の構造を同定するユニークで基本的な研究である<sup>13)</sup>。これ以降、山田はマトリックス単離した化学種のメスバウアー分光の研究を続けた。また、松尾・佐藤・富永らは円筒鏡型電子分光器を用いた散乱電子メスバウアー分光法の研究を開始した。その後、マイクロチャンネルプレートを検出器とした散乱電子メスバウアースペクトルの測定に発展させた。村松久和・三浦太一・中原弘道(都立大理)、藤岡学(東北大サイクロ RI センター)、田中英二(東北大理)、橋爪朗(理研)は共同で $^{119}\text{Sn}$ の内部転換に対する化学効果として $\Delta R/R = (1.19 \pm 0.05) \times 10^{-4}$ と報告<sup>14)</sup>し、その後、中原らは $^{121}\text{Sb}$ の $\Delta R/R = -10.2 \times 10^{-4}$ と評価している。 $\Delta R/R$ なる基本的物理量を求めた精力的研究であった(1989)。都立大理の遠藤とマインツ大の Grimm・Gütlich らは同時計数メスバウアー分光を使って不安定化学種の研究を開始した。さらに小島友子・内田佳夫・明石潤子・片田・佐野は鉄やスズのオキサト錯体の $^6\text{Li}(n, \alpha)T$ 反応の効果をメスバウアー分光法により調べた<sup>15)</sup>。 $^6\text{Li}(n, \alpha)T$ 反応系の研究はその後4年ほど続いている。市坂・山田(広島大理)は $^{119m}\text{Sn}$ の核異性体転移、内部転換の後遺効果を報告し、この研究は、以後数年間続いた。西田らはスズを含むゲルマン酸塩、ホウ酸ガラス、塩化亜鉛ガラスの結晶化反応へメスバウアー分光法を利用し、ガラスの化学結合、配位数や局所構造を論じている<sup>7)</sup>。同じく前田・小川・高島らはシクロデキストリン内孔中のゲスト分子の動的挙動の研究へメスバウアー分光法を利用し、内孔中での宿主分子の回転を報告している。千葉百子(順天堂大医)は都立大と一緒にマウス中のスズの分布と化学状態の研究にメスバウアー分光法を利用した。安部・安部・野崎は大豆中の $^{57}\text{Fe}$ の生体内挙動の研究にメスバウアースペクトルを利用するなど、この時期は生物化学的方面への利用も多くなされている<sup>16)</sup>。また、生田茂・本山泉・佐野(都立大理)はフェロセン誘導体にたいしてメスバウアーパラメータのMO計算をしている。酒井宏・姜信珪・前田(京大原子炉)は原子炉照射により $^{128}\text{Te}(n, \gamma)^{129}\text{Te}$ 反応を用いて $^{129}\text{Te}$ 線源をつくり、テルル酸化物ガラスの発光メスバ

ウァースペクトルを報告した。小林隆幸 (滋賀医大), J. M. Friedt (CNRS) らは  $^{57}\text{CoCl}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$  ( $n=2, 6$ ) 中での後遺効果, その後硫酸塩中での後遺効果の研究へメスバウァースペクトルを応用した。藤波真紀・氏平祐輔 (東大工) は  $\text{B}^+, \text{C}^+$  イオン注入した鉄薄膜のメスバウァー解析を報告し, その後内部転換電子用カウンターを用いて鉄鋼の階層的さびの研究に発展させた。さびと防錆の研究は高く評価されている<sup>17)</sup>。小林義男・片田・佐野 (都立大理), 岡田卓也・浅井・安部・安部 (理研) は理研サイクロトロンで陽子照射して得た  $^{99}\text{Rh}$  を  $\gamma$  線源として,  $^{99}\text{Ru}$  のメスバウァースペクトルの測定を報告した。この  $^{99}\text{Ru}$  の研究は当分続くこととなる<sup>18)</sup>。

1987年から1996年までの10年間は, メスバウァー分光研究の爛熟期といえるであろう。 $^{57}\text{Fe}$  や  $^{119}\text{Sn}$  以外の核種におけるメスバウァー分光研究も活発に行われるようになったことがこの時代の特色である。安部・安部・岡田・関沢は YIG 表面に吸着された  $^{151}\text{Gd}$  の発光メスバウァースペクトルを報告している。高橋正・大山隆一・竹田 (東邦大理) らはアンチモン錯体の  $^{121}\text{Sb}$  メスバウァースペクトルを引き続き測定し, 多くのデータからメスバウァーパラメータと錯体の化学構造との関連を論じている。これらの研究は現在まで続き, 日本放射化学会賞の受賞研究の一部となっている<sup>19)</sup>。また, 酒井・前田 (京大原子炉) らはテルル化合物における  $^{125}\text{Te}$  のメスバウァースペクトルと  $^{129}\text{Te}$  の発光メスバウァースペクトルを比較検討し, 相平衡図の作成, 安定相の同定を行っている。生沢英典・高橋・竹田 (東邦大理), 高野・伊藤 (東大原センター) は種々のヨウ素化合物の  $^{127}\text{I}$  のメスバウァースペクトルを発表している<sup>20)</sup>。東大理, 都立大理, 理研のグループは共同研究により  $^{57}\text{Mn}$  の発光メスバウァースペクトルの測定に成功し,  $^{57}\text{Co}$  線源との違いを報告している。大久保嘉高・小林・安部 (理研), 浅井 (電通大) らは  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  中の  $^{99}\text{Ru}$  の  $\gamma$  線振動角相関と発光メスバウァースペクトルを測定し, 磁性研究への応用を報告している。佐伯正克・中田正美・正木信行 (原研基礎センター) らは  $^{237}\text{Np}$  メスバウァー分光法を開発し, ネプツニウム化合物の電子状態と結合性に関する研究を大きく発展させた<sup>21)</sup>。また, 東邦大との共同研究で  $\text{NpO}_2\text{-UO}_2$  などのネプツニウム化合物の研究報告もある。竹田らは  $^{166}\text{Er}$  (III) 化合物のメスバウァー分光を発表するとともに,  $\text{Sb-Fe}$  結合を有する hypervalent な有機アンチモン化合物および環状有機化合物の  $^{121}\text{Sb}$  のメスバウァースペクトルを発表している。小林・岡田・安部 (理研) は, 日立映像研, 金材研と共同で, 理研 AVF サイクロトロンを用いて  $^{61}\text{Cu}\gamma$  線源を作り,  $^{61}\text{Ni}$  核のメスバウァースペクトルの測定を報告している。田中英司・石井寛子・村松 (信州大教) らは  $^{133}\text{Cs}$  の 81KeV 準位における有効核電荷半径の測定, および金属中に注入された  $^{133}\text{Xe}$  のメスバウァー分光を報告している。筒井智嗣・那須三郎 (阪大基礎工) らは原研先端研との共同研究で  $^{238}\text{U}$  メスバウァースペクトルを測定し, ウラン化合物の磁性研究に応用している<sup>22)</sup>。

また, メスバウァー分光測定装置の開発や新しい測定法の開発なども試みられている。例えば, 小林・福村和子 (滋賀医大) らは, 硫酸鉄中での  $^{57}\text{Co}$  の EC 壊変の研究および京大 RI センターとの協同研究で, 表面酸化物の散乱メスバウァースペクトルの測定を発表した。小林・福村の研究は内部転換電子を測定するカウンターの製作に注がれ, そのノウハウは多くの研究者の内部転換電子を測定するカウンターに生きている<sup>23)</sup>。渡辺裕夫・遠藤・佐野らは遅延同時計数法を用いた EC 壊変にともなう後遺効果の研究, 三橋正充・佐藤春雄 (東京理大理) はマイクロチャンネルプレートを用いたエネルギー選別内部転換電子メスバウァー分光器の試作を発表した。佐伯・中田・正木らは極低温用発光メスバウァー分光用クライオスタットの開発, リストモード化した同時計数メスバウァー分光測定装置の開発を行なった。また, 小林, 安部らのグループと静岡理工大の吉田豊のグループは共同で理研加速器を用いたインビーム・メスバウァー分光によるスペクトル測定を試み, 希ガス固体中の鉄原子の生成に関する研究を報告している<sup>24)</sup>。

研究対象としてはスピントロソオーバー錯体や混合原子価錯体など、スピン状態の温度依存性に興味を持たれ、メスバウアー分光法がその現象解明に大いに利用され、有効性を発揮した。例えば、前田・宮本誠・大塩寛紀らは多くの鉄(Ⅲ)錯体を合成し、メスバウアー分光法によるスピントロソオーバー現象の発見およびその発現機構について詳しく解析した<sup>25)</sup>。その研究は現在に引き継がれている。同じグループの河野耕太らは $[\text{Fe}^{\text{II}}\text{Fe}^{\text{III}}(\text{bpmp})\text{L}_2](\text{BF}_4)_2$ における電子移動速度に及ぼす架橋基の効果、速水真也らはスピントロソオーバー錯体における置換基、およびカウンターイオンによる効果を明らかにした<sup>26)</sup>。混合原子価錯体については、飯島誠一郎(工技院生命研)らによる混合金属オキサラト錯体の研究、都立大理の中本忠宏らによる混合原子価三核錯体のメスバウアー分光学的研究がある。中本の研究はアメリカのHendricksonの研究とともに、この分野の先端的研究であった<sup>27)</sup>。中島(広島大理)らによる長鎖アルキル基をもつ二核フェロセン誘導体の、混合原子価状態のメスバウアースペクトルの研究などが報告されている。1996年以降になると、メスバウアー分光を生業としている大半の研究者は、放射化学討論会(発展して日本放射化学会年会)に参集するようになり、毎年20件ちかくの口頭・ポスター発表がなされるようになる。まさに、この討論会は研究発表の場のみならず情報交換や研究活動を支える重要な場となっていくのである。討論会に参加する常連は以下のようなメンバーであり、それぞれ特色ある研究を展開している。竹田満洲雄・高橋正・北澤孝史(東邦大理)のグループは、主に $^{121}\text{Sb}$ や $^{127}\text{I}$ など $^{57}\text{Fe}$ や $^{119}\text{Sn}$ 以外の核種のメスバウアースペクトルの測定に情熱を傾けている。前田米藏・速水真也(九大理)らは、スピントロソオーバー鉄錯体の電子状態と構造、混合原子価鉄(Ⅱ)鉄(Ⅲ)錯体の原子価状態と構造の研究をライフワークとしている<sup>28)</sup>。片田元己(首都大院理工)らは、メスバウアースペクトルの温度依存性を測定し、格子力学的研究を行なっている。野村貴美(東大院工)らは、置換による複合酸化物の構造化学的局所変化の研究および固体材料の表面化学の研究にメスバウアー分光法および核共鳴散乱法を利用している<sup>28)</sup>。松尾基之(東大院総合文化)らは、河川・干潟や湖の底質及び層状チャート中の鉄の化学状態をメスバウアー分光法により測定し、底質中の化学変化の解明やそれらが堆積した時代の環境評価を行っている<sup>30)</sup>。小林義男(理研)・久保謙哉(国際基督教大)・酒井陽一(大同工大)らは共同で、理研のリングサイクロトロンを用いて、種々の核種のメスバウアー分光研究を行なっている。また、最近では原研のグループと共同で、中性子ビームを用いての測定も行なっている<sup>31)</sup>。山田康洋(東京理大理)らは、レーザー蒸発した鉄化学種のメスバウアー測定に情熱を長年傾けている。栄長泰明(慶応大理工)らは、光感受性鉄錯体のスピン挙動をメスバウアー分光より研究している<sup>32)</sup>。村松久和(信州大教育)らは単結晶によるメスバウアー $\gamma$ 線の偏光について研究を進めている<sup>33)</sup>。中島覚(広島大N-BARD)らは、二核フェロセン誘導体の混合原子価状態をカチオン対称性及び集積構造との関係から議論すると共に、多孔性集積型錯体の構造制御によるスピントロソオーバー現象発現の研究を行なっている<sup>34)</sup>。西田哲明(近大産業理工)らは、リチウムイオン電池や廃棄物リサイクルガラスなどの構造・導電性・磁性・水質浄化にメスバウアー分光法を利用している<sup>35)</sup>。飯島誠一郎(産総研)らは、種々の混合原子価錯体の電子移動をメスバウアースペクトルの温度依存性より明らかにしようとしている<sup>36)</sup>。酒井宏、藤井敏司(甲南大理工)らは、二核鉄錯体の磁氣的相互作用について、磁化率の温度依存性とメスバウアースペクトルの異性体シフトとの関係を研究している。メスバウアー効果は鉄化合物の化学結合の研究に対しては非常に重要な研究手段である。それぞれの特徴を生かした研究が広く行われており、日本のみならず世界のメスバウアー分光研究をリードし、重要な位置を占めている。このように見ていくと、メスバウアー分光法でしか得られない情報を活用し、さらなる発展を続けていくに違いない。近年

シンクロトロンを線源にしたメスbauer効果も実用段階になっているので、今後線源に依存しないメスbauerスペクトルが発表される機会が多くなるだろう。いっぽうでは、メスbauer分光を使用する分野が広がるとともに、他の討論会で発表する機会が多くなり、放射化学年会での発表の求心力が、近年低下している傾向もみられる。

メスbauer分光学関連の国際会議としては、「International Conference on the Applications of the Mössbauer Effect (ICAME)」があげられる（表2-10）。メスbauer効果がR. L. Mössbauerによって論文として始めて公表されたのは1958年（“Kernresonanzfluoreszenz von Gammastrahlung in  $^{191}\text{Ir}$ ”, Z. Physik. **151**, 124 (1958))であるが、その後 $^{57}\text{Fe}$ や $^{119}\text{Sn}$ など多くの核種についてメスbauer効果が観測され、1960年には、米国、Urbanaにおいて最初の国際会議が開催された。3回目は

表2-10 ICAME の開催年と開催地

開催年	開催地	開催年	開催地
1960	Urbana, USA	1981	Jaipur, India
1961	Saclay, France	1983	Alma-Ata, USSR
1962	Dubna, USSR	1985	Leuven, Belgium
1963	Ithaca, USA	1987	Melbourne, Australia
1964		1989	Budapest, Hungary
1965		1991	Nanjing, China
1966		1993	Vancouver, Canada
1967		1995	Rimini, Italy
1968	Varna, Bulgaria	1997	Rio de Janeiro, Brazil
1969	Tihany, Hungary	1999	Garmish-Partenkirchen, Germany
1970		2001	Oxford, UK
1971	Dresden, DDR	2003	Muscat, Oman
1972	Ayeleth Hashahar, Israel	2005	Montpellier, France
1973	Bratislava, CSSR	2007	Kanpur, India
1974	Bendor, France	2009	Austria, Wien
1975	Cracow, Poland	2011	Japan?
1976	Corfu, Greece	2013	
1977	Bucharest, Romania	.....	
1978	Kyoto, Japan	.....	
1979	Portoroz, Yugoslavia	.....	

1962年にソ連のDubnaで開催されたが、その後は東西で別々に開催され、両会議の統一は1981年のインドでの開催からとなり、以後2年ごとに開催されている。放射光を利用した研究もかなり増えており、メスbauer分光法の広がりや更なる発展を期待したい。会議の規模は開催地によって多少の差はあるが、40数カ国、300人～400人の間で推移している。日本での開催は、ほぼ30年前の京都で開催されたICAME '78となる。議長には大野和郎（東京大）が、プログラム委員長として佐野博敏（都立大）が務めた。現在、2011年以降の開催をめざして準備が進められている。

産業への応用を中心とした国際シンポジウムとして「International Symposium on the Industrial Applications of the Mössbauer Effect (ISIAME)」がある。1回目は、1984年にHonoluluで開催された第1回「環太平洋国際化学会議」でのシンポジウムがそれに当たるが、その後4年ごとに

開催され、1992年の大津での開催は、当時龍谷大学に移っていた中村陽二が中心となって、開設間もない龍谷大学瀬田キャンパスで行われた。このISHIAME '92とHFI-IX (IXth International Conference on Hyperfine Interactions) のサテライトシンポジウムとして、「RIKEN International Symposium on Unstable Nuclei and Particles as Probes in Physics and Chemistry (UN3PC92)」が安部文敏(理研)を世話人として和光市で開催された。この会議は、2008年にハンガリーで開催の予定である。

その他、南米を中心とした国際会議「Latin American Conference on Application of the Mössbauer Effect, LACAME」が1988年にブラジルのRio De Janeiroで開催され、2004年にMexico Cityで開催された第9回目LACAME '04では、竹田満洲雄(東邦大)が $^{121}\text{Sb}$ のメスバウアー分光について招待講演をした。

ドイツJohannes Gutenberg大学のP. Gütlichの提唱により1978年に始まった「Seeheim Workshop on Mössbauer Spectroscopy」がある。ほぼ5年ごとに開催されており、6回目が2006年6月に開催された。さらに、このWorkshopを中心にして、Annual European Mössbauer Spectroscopy Seminar (EMS)が企画されている。米国でも1976年に、Nassau Community College (ニューヨーク, Garden City)において、「Nassau Mössbauer Conference」が開催された。2006年の1月には4回目の会議が開催され、定着の様子が窺える。また、同じニューヨークでは、「Symposium on Mössbauer Effect Methodology」が1965年から1976年まで毎年開催された。そのプロシーディングは、「Mössbauer Effect Methodology」として10巻のシリーズ本として出版され、メスバウアー分光法の発展に大いに寄与した。佐野博敏の有機スズ化合物におけるスペクトル強度の異方性に関する論文も第5巻(1970年)に掲載されている<sup>5)</sup>。

ほぼ5年ごとにHonoluluで開催されている「環太平洋化学会議」では、2000年及び2005年の会議において、竹田や前田を世話人とするシンポジウム「Nuclear Hyperfine and Exotic Particle Techniques for Studying Chemical State」が開催され、ポジトロンやメスバウアー分光法、摂動角相関法などに関する研究発表の場となっている。

そのほか、ロシアでは「International Conference “Mössbauer Spectroscopy and Its Applications” (ICMSA)」が開催されており、前回は2004年に開催された。ハンガリーEötvös大学のAttila Vertés教授の70歳の誕生日を記念して、2004年に「Eötvös Workshops and Conferences in Science 2004 (EWS '04)」がBudapestで開催された。日本からは約半数の11名の参加者があり、Vertés教授の親日ぶりを窺い知ることができる。3回目となった2004年のワークショップの開催には西田哲明(近畿大学)の貢献が大きかった。2001年には、NQRの国際シンポジウム「XVI INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON NUCLEAR QUADRUPOLE INTERACTIONS」が奥田勉(広島大)を世話人として開催され、メスバウアー分光に関する研究も発表された。

終わりに、国際会議とは直接関係はないが「Mössbauer Effect Data Center」の存在をあげておく。この組織は世界のメスバウアー研究グループを支えると同時に、メスバウアー研究グループによって支えられているというユニークな組織で、ノースカロライナ大学に設置され、メスバウアー関連のデータ(Mössbauer Effect Reference and Data Journal)や情報を発信し続けている(<http://orgs.unca.edu/medc/>)。

## 参考文献

- 1) N. Saito, H. Sano, T. Tominaga, F. Ambe, Bull. Chem. Soc. Jpn., **38**, 681 (1965).
- 2) Y. Takashima, S. Ohashi, Bull. Chem. Soc. Jpn., **41**, 88 (1968).

- 3) H. Sano, *Radioisotopes*, **24**, 357 (1975).
- 4) S. Ichiba, H. Sakai, H. Negita, Y. Maeda, *J. Chem. Phys.*, **54**, 1627 (1971).
- 5) H. A. Stöckler, H. Sano, "Mössbauer Effect Methodology", Vol. 5, Bu I. Gruverman, (ed.), Plenum, New York (1970), pp 3-25.
- 6) F. Ambe, S. Ambe, H. Shoji, N. Saito, *J. Chem. Phys.*, **60**, 3773 (1974).
- 7) T. Nishida, "Mössbauer Spectroscopy of Sophisticated Oxide", A. Vertes, Z. Homonnay (eds.), Akademiai Kiado, Budapest (1997), pp 27-87.
- 8) M. Shibuya, K. Endo, H. Sano, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **51**, 1363 (1978).
- 9) T. Tominaga, M. Takeda, H. Mabuchi, Y. Emoto, *Radiochem. Radioanal. Lett.*, **26**, 221 (1977).
- 10) S. Ichiba, M. Yamada, H. Negita, *Radiochem. Radioanal. Lett.*, **35**, 31 (1978).
- 11) M. Katada, R. H. Herber, *J. Solid State Chem.*, **33**, 361 (1980).
- 12) T. Tominaga, Y. Minai, *Nucl. Sci. Applications*, **1**, 749 (1984).
- 13) Y. Yamada, Y. Minai, H. Sato, T. Tominaga, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters*, **96**, 503 (1985).
- 14) H. Muramatsu, T. Miura, H. Nakahara, M. Fujioka, E. Tanaka, A. Hashizume, *Hyperfine Interact.*, **15/16**, 209 (1983).
- 15) J. Akashi, Y. Uchida, T. Kojima, M. Katada, H. Sano, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **57**, 1076 (1984).
- 16) S. Ambe, F. Ambe, T. Nozaki, *J. Agricultural Food Chem.*, **35**, 292 (1987).
- 17) M. Fujinami, Y. Ujihira, *Appl. Surface Chem.*, **17**, 265 (1984).
- 18) K. Kobayashi, T. Okada, K. Asai, M. Katada, H. Sano, F. Ambe, *Inorg. Chem.*, **31**, 4570 (1992).
- 19) R. Ohyama, M. Takeda, M. Takahashi, *Hyperfine Interact.*, **156/157**, 359 (2004).
- 20) H. Ikezawa, M. Takahashi, M. Takeda, Y. Ito, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **66**, 1959 (1993).
- 21) M. Saeki, M. Nakada, N. Masaki, *J. Nucl. Sci. Technology*, **31**, 864 (1994).
- 22) S. Tsutsui, M. Nakada, M. Saeki, S. Nasu, Y. Haga, E. Yamamoto, Y. Onuki, *Phys. Rev. B*, **60**, 37 (1999).
- 23) T. Kobayashi, K. Fukumura, Y. Isozumi, R. Katano, *Hyperfine Interact.*, **39**, 419 (198).
- 24) Y. Yoshida, Y. Kobayashi, A. Yoshida, X. Diao, S. Ogawa, K. Hayakawa, K. Yukihiro, F. Shimura, F. Ambe, *Hyperfine Interact.*, **141/142**, 157 (2002).
- 25) Y. Maeda, H. Oshio, Y. Takashima, M. Mikuriya, M. Hidaka, *Inorg. Chem.*, **25**, 2958 (1986).
- 26) Y. Maeda, T. Manago, S. Hayami, H. Oshio, S. Osaki, H. Hasuyama, R. H. Herber, *J. Chem. Soc. Dalton*, **1999**, 1001.
- 27) T. Nakamoto, M. Katada, H. Sano, *Chem. Lett.*, **1990**, 225 (1990).
- 28) S. Hayami, K. Danjobara, K. Inoue, Y. Ogawa, N. Motsumoto, Y. Maeda, *Adv. Mater.*, **16**, 869 (2004).
- 29) 野村貴美, リコフ・アレキサンドル, 佐久間洵子, 竹田満洲雄, 依田芳卓, 三井隆也, 「原子核プローブ生成とそれを用いた物性研究」専門研究会報告(Ⅱ)(平成18年度), 京都大学実験所, pp. 60-68 (2007).
- 30) A. Kuno, M. Matsuo, Q. Wang, C. J. Zhang, *Hyperfine Interact.*, **166**, 637 (2005).
- 31) Y. Kobayashi, Y. Tsuruoka, M. K. Kubo, H. Nonaka, Y. Yamada, Y. Sakai, H. Shoji, W. sato, A. Shinohara, Y. Watanabe, and H. Matsue, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **272**, 623-626 (2007).
- 32) Y. Einaga, Z.-Z. Gu, Y. Kobayashi, O. Sato, T. Iyoda, F. Ambe, K. Hashimoto, A. Fujishima, *Hyperfine Interact.*, **116**, 159 (1998).
- 33) 村松久和, 「放射線と原子核をプローブとした物性研究の新展開」専門研究会報告(V)(平

- 成 15 年度), 京都大学原子炉実験所, pp. 141-145 (2004).
- 34) M. Atsuchi, H. Higashikawa, Y. Yoshida, S. Nakashima, K. Inoue, *Chem. Letters*, **36**, 1064 (2007).
- 35) T. Shiratsuki, S. Okada, J. Yamaki, T. Nishida, *J. Power Sources*, **159**, 268 (2006).
- 36) H. Ohta, Y. Sunatsuki, Y. Ikuta, N. Matsumoto, S. Iijima, H. Akashi, T. Kambe, M. Kojima, *Material Sci.*, **21**, 191 (2003).

## 2.7.2 陽電子の化学

(伊藤 泰男)

### (1) 陽電子研究の流れ

1930 年代初頭の陽電子発見から 50 年代頃までは、陽電子およびポジトロニウム (Ps) そのものが研究の対象であったが、続く 20 ~ 30 年では、陽電子や Ps が物質とどのように相互作用するかについて理解が深められた。その研究分野は「陽電子消滅」と呼ばれたが、Ps の化学反応性に着目する場合は、別に「ポジトロニウム化学」と呼ばれた。これらの研究の中から、物質のミクロ構造をプローブする粒子としての陽電子および Ps の特質が明らかになってきて、1970 年代以降、エレクトロニクスと放射線測定技術の発展に後押しされて、応用へと開花していく。この時期には低速陽電子ビームの技術も開発されて、陽電子の利用範囲が大幅に広がったことも重要である。

日本に陽電子の知識が最初に紹介されたのは、小谷正雄の「物質中における陽電子の消滅」(岩波講座現代物理学“放射線物性”, 1959) であるが、実験研究としては、1960 年代中頃藤原邦男 (東大) が角相関測定法を用いて銅および銅合金のフェルミ面測定を開始したのが最初である。銅が選ばれたのは、日本原子力研究所の研究炉 JRR-2 で Cu 片を熱中性子照射すると 1Ci 程度の  $^{64}\text{Cu}$  が生成されるので、それを内部線源として用いることができたためである。この照射は原研施設共同利用・大学開放研究室を利用して行うことができた。2,3 年後には堂山昌男 (東大)、長谷川雅幸 (東北大) ら数グループが参入した。藤原グループと堂山グループからは物理系陽電子消滅の多くの優れた人材が輩出している。当初陽電子消滅は、金属・合金の不純物に影響されることなくフェルミ面情報を与えると思われていたので、フェルミ面研究が上記グループの中心課題であった。研究を進める内に、空孔型の欠陥が ppm 程度あると陽電子は効率的に欠陥に捕捉されて、欠陥の大きさと数に関する情報を与えることが 1970 年中頃から明らかになった。以後陽電子消滅は、フェルミ面研究をコンプトン散乱に譲って、格子欠陥のプローブとしての位置を確立していく。金属中の格子欠陥が容易に生成されかつ移動して、消滅あるいは成長することを明らかにした陽電子の功績は大きい。

ポジトロニウムを研究するためには、陽電子より寿命の長いオルト-ポジトロニウム (o-Ps) の寿命を測定するのであるが、1ns 程度以下の時間を測定するために用いられていた遅延同時計数法は手間がかかる。しかし、真空管がトランジスタに置き換わろうとしていた当時、田畑米穂 (東大・放射線化学)、長谷川賢一・小方厚 (東大・放射線計測、放射化学) らはトランジスタ時間波高変換器を製作して o-Ps による長寿命成分を観察することに成功した (1965 年)。日本における Ps 化学はこの時に誕生したといえる。翌年このグループに伊藤泰男が大学院学生として参画した。1970 年代末頃から、高速光電子増倍管やディスクリミネータ、時間波高変換器、多重波高分析器などのモジュール類が市販で入手できるようになると、寿命測定法は Ps 化学だけでなく、物理・金属の陽電子消滅でも共通の道具となっていく。また、Ge 半導体検出器を用いて 511.0keV 消滅ガンマ線のドップラー効果による線形を測定すると、分解能は及ばずながらも原

理的に角相関法と等価の運動量情報が得られるので、簡便で高感度な実験法として、寿命測定法と同じく陽電子消滅の全ての分野で利用されるようになった。

## (2) ポジトロンとポジトロニウムの化学

「ポジトロニウム化学」と呼ばれた分野では、Psの生成と反応が研究の対象であり、当時Ps形成機構に関して唯一のモデルであったOreモデルによれば、Psはホット原子として生まれてくるはずであり、ホット原子化学と放射線化学との境界にあった。しかしPs形成機構や挙動の理解が進み、利用が進められるようになるのに伴って、今は「ポジトロンとポジトロニウムの化学 (Positron and Positronium Chemistry)」とやや長たらしい名前と呼ばれるようになってきている。「Ps化学」の当初、世界ではGoldanskii (ソ連)、Maddock (仏)、Ache (米・独)が著名だったが、日本でも放射化学からPs化学に参入した研究者が少なくない。1970年初頭、名古屋大学・放射化学研究室(山寺研究室)の大学院学生であった遠藤和豊は、Psと金属錯体のスピン交換反応に関する研究で学位を取得している<sup>1)</sup>。氏平祐輔(東大)がメスバウアー効果と陽電子消滅によって得られる情報の相違又は相補性の視点からPs化学を始めたのは1970年代後半である。ごく最近では、関根勉・木野康志(東北大)が超臨界状態におけるPsの形成と消滅の研究を開始している。氏平グループからは小林慶規(化技研・産業技術総合研究所)、中西寛(現米国KEMIA, Inc.)、他の化学系陽電子消滅の研究者が生まれている。小林はo-Psのバブル構造と化学反応性、高分子材料中の陽電子やポジトロニウムの挙動などで成果を上げている<sup>2,3)</sup>。中西が定式化した自由空間の大きさとo-Ps寿命の関係を記述する半経験式(Tao-Eldrup-Nakanishiの式<sup>4)</sup>)は広く用いられるようになった。

1974年にO. Mogensen (デンマーク)が凝集状態の物質内でのPs形成機構に関してspurモデルを提案した。以後Oreモデル対spurモデルの論争が、ミュオニウム形成機構の問題にも広がって、20年余にわたって行われ、伊藤らも検証実験を行っている<sup>5)</sup>。Ps形成機構のモデル論争はspurモデル寄りに決着されつつあるが、最近spurモデルの延長線上にblobモデル(ロシア:S.Stepanov)や捕捉電子からのPs形成(原研:平出哲也)などの知見が加わってモデルが精密になりつつある。

o-Psの強度( $I_3$ )と寿命( $\tau_3$ )が相変化に敏感であることについては、Ps化学の初期の頃から多くの報告がある。田畑・伊藤による固相重合系のPs化学はその初期の例である。Psは電子を持っているために分子から斥力を受けて電子密度の小さいマイクロ空間に捕捉されると考えられるようになり、Tao-Eldrup-Nakanishiの式が提案されると、Psは自由空間やナノ空孔のプロープとしての位置を確立し、高分子材料などを自由空間の側面から評価する手法として用いられるようになった。1985年頃陽電子消滅研究を開始した鈴木健訓(八戸工大・KEK)は高分子材料の放射線耐性を調べる目的に陽電子消滅を適用するなど、実用に向けた広範囲な研究を行っている。空孔構造をPsでプローブすることは材料の機能評価のために重要であり、現在産業界でも陽電子消滅法を採用するところが現れ始めている。

## (3) 陽電子ビーム

陽電子消滅研究は、 $^{22}\text{Na}$ のような陽電子放出RIからの陽電子をそのまま用いて簡便に行う方法が今でも最も一般的に行われているが、1980年代に、高エネルギー陽電子を減速材に注入し再放出してくる低速陽電子をビームとして取り出す技術が開発されると、研究の手法も対象も大幅に広がった。日本では1980年頃末岡修(東大)が $100\mu\text{Ci}$ 以下の $^{22}\text{Na}$ から陽電子ビームを得



て陽電子散乱実験を開始したのが最初であるが、1985年以降、高強度の陽電子ビームを発生することが東大工学部、原研東海研究所、電総研の電子線リニアックを用いて相継いで行われた。1990年代中頃には、短寿命の陽電子放出体をサイクロトロンで生産し、オンラインで低速陽電子ビームを作る試みが理化学研究所で試みられた。またAl板にプロトンビームを照射して、低速陽電子ビームを得る方法が住友重機で開発されている。しかし短寿命陽電子放出体を用いた低速陽電子ビーム発生は、得られる強度が十分大きくないことと、サイクロトロンのマシンタイムの制約を受けることから、実用にはならなかった。

現在日本には、1GBq前後の $^{22}\text{Na}$ を線源とする実験室レベルの低速陽電子ビームが少なくとも9台、電子線リニアックを用いたより高強度の低速陽電子ビームが3台あり、欠陥や構造の深さ方向プロファイリング、陽電子消滅誘起オージェ電子分光、反射高速陽電子線回折など、陽電子ならではの新しい分析手段が実用化されている。

#### (4) 展望

陽電子消滅の伝統的な会議ICPA (Int. Conf. on Positron Annihilation) は1967年以降3年ごとに行われている。その中から化学領域の部分がPPC (Positron and Positronium Chemistry)、陽電子ビームの部分がSLOPOS (Slow Positron) というワークショップとして派生して行われている。ICPA-5 (1979年)、SLOPOS-6 (1994)、PPC-6 (1999)、ICPA-11 (2003) が日本で開催されている。

日本の陽電子研究ソサエティで特筆すべき事は、「陽電子科学研究会」が1991年から存在していることである。その発足の背景には、当時「ポジトロンファクトリー計画」が浮上していたこともあるが、この計画が頓挫した後、年2回のニュース発行を中心に地道に活動しており、物理系と化学系に分かれていた陽電子研究が陽電子科学へと融合する場となっている。その為もあって、日本の陽電子科学の研究者人口は2005年現在、世界で最も多く、研究面でも世界を先導する成果を多く上げている。

「陽電子消滅」、「ポジトロニウム化学」という枠組みで始まった陽電子研究は、格子欠陥や自由空間孔のプローブとして実用化の段階にあるだけでなく、物理、化学の違いを越えて陽電子科学として統合された形になりつつある。裏を返せばそれはある意味で収束に向かいつつある姿でもある。

陽電子科学の将来は、現在認識されている実用性がどこまで現実のニーズに応えられるか、さらに潜在的にあり得る利用を保障するための技術 (放射線利用の法制上の問題も含む) がどこまで進むかにかかっていると云えよう。

- 1) K. Endo, M. Furukawa, H. Yamatera, "Positron decay in benzene solutions of 3d transition metal acetylacetonates and dipivaloylmethanates" *J. Phys. Chem.*, **80**(14), 1540-3 (1976).
- 2) Y. Kobayashi, "Quenching of positronium atoms by nitrobenzene in various solvents", *J. Chem. Soc., Faraday Transact.*, **87**, 3641-3645 (1991).
- 3) Y. Kobayashi, K. Haraya, et al., "Evaluation of polymer free volume by positron annihilation and gas diffusivity measurements", *Polymer*, **35**, 925-928 (1994).
- 4) H. Nakanishi and Y.C. Jean, in "Positron and Positronium Chemistry" Schrader and Jean, eds., Elsevier (1988), Chapter 5.
- 5) Y. Ito, T. Azuma et al. "Parallel Study between Electron Scavenger Effects on Positronium Formation Probability and Fluorescence Intensity in cyclohexane" *J. Phys. Chem.*, **88**(9), 1921-1926 (1984).

### 2.7.3 ミュオン化学

(久保 謙哉)

日本唯一のミュオン科学研究施設は、高エネルギー物理学研究所の陽子シンクロトロンの前段加速器であるブースターシンクロトロンからの 500MeV 陽子線を利用する東京大学理学部附属中間子科学実験施設で、1980年に最初のミュオンビームを取出すことに成功した。

施設建設時から参加していた東大理の富永健グループは、施設の山崎敏光・永嶺謙忠・西山樟生(現高エネ研)らと水中の不純物や常磁性の溶存酸素を極力排除することにより、水中のミュオニウムのスピン緩和速度がそれまでの報告例よりかなり遅く、水中のミュオニウムが長寿命であることを示した。

放射線化学的興味からミュオニウムに着目していた東大工の田畑米穂グループ(原子力研究総合センター:伊藤泰男, 現 KEK:三宅康博, 現首都大学東京:東俊行)は、四塩化炭素やクロロホルムなどの有機溶媒中でのミュオニウムの生成率や、ミュオンのスピン緩和速度の研究、ミュオンスピン共鳴法を用いてのベンゼンやベンゼン置換体でのミュオンラジカルの生成と反応速度の研究を行った。

負ミュオンの原子捕獲過程における化学効果の研究は、富永健グループの酒井陽一(現大同工業大学)・久保謙哉(現国際基督教大学)・石田勝彦(現理研)によって行われ、捕獲確率が原子番号に比例するという Fermi-Teller 則からのずれが、価電子数や不対電子密度、それらの軌道に関係することを見いだした。

気相のミュオニウムの反応の研究は、東大理の朽津耕三を中心に進められ、近藤保(現豊田工業大学)・松下明・菅井俊樹(現名古屋大)らによって、アルゴン中のミュオニウムの安定性や、一酸化窒素とミュオニウムの反応速度、スピン交換速度などの研究が行われた。金属錯体中のミュオンが錯体の磁性のプロブとして有効であることを示したのは、酒井や久保であり、スピントロスオーバー錯体や反磁性コバルト錯体中でのミュオンの挙動の研究が行われた。永嶺を中心とするミュオン触媒核融合の研究においては、トリチウムと重水素の系での触媒としての負ミュオンのリサイクル数が鍵となる。工藤博・加藤・棚瀬(原研東海)らはこの研究で妨害となるトリチウム中に生成する  $^3\text{He}$  を取除くシステムの開発に協力し、このグループによるパルスミュオンの特性を生かしたミュオン X 線収率の測定に大きな貢献をした。この施設は 2006 年 3 月で閉鎖となり、現在茨城県東海村に建設中の J-PARC のミュオン施設 MUSE に発展的に解消される。

### 2.7.4 摂動角相関

(大久保 嘉高)

摂動角相関 (PAC) 法は、励起核のスピンなどを決定するための一手段である角相関法から派生した。角相関の理論は 1940 年に D. R. Hamilton によって、PAC の理論は 1946 年に G. Goertzel によってつくられた。1951 年 H. Aeppli らは世界で初めて、PAC 法を、核壊変による核外電子の再配置が角相関に及ぼす影響を調べる物性研究に用いた。また、1952 年 H. Aeppli らは、外磁場下での PAC によって、世界で初めて、励起核の磁気モーメントの測定を行った ( $^{111}\text{Cd}$  の 245 keV 準位)。

日本において PAC を利用する研究は 1964 年頃に始まる。佐藤純・横山祐之(東大理)と山崎敏光(東大核研)は、 $^{188}\text{Os}(\leftarrow ^{188}\text{Re})$  の PAC 測定を行い、中性子照射された固体  $\text{KReO}_4$  中の励起 Re の大部分はホットアトム効果により照射前と異なる位置を占める、という結果を得た(佐藤, 横山, 山崎, 1964)。これが日本で初めて PAC を物性研究に応用した研究であると思われる<sup>1)</sup>。

その後、PACによるホットアトムの研究は、塩川孝信（東北大理）らによっても行われた（塩川，八木益男，鍛冶東海，他，1967）。1960年代後半には川瀬洋一・林竹男（京大炉）が液体試料における核スピンの常磁性緩和の研究に $^{166}\text{Er}$  ( $\leftarrow ^{166}\text{Ho}$ )を，また，1970年代前半には田巻繁（新潟大理）が液体試料における四重極緩和の研究に $^{111}\text{Cd}$  ( $\leftarrow ^{111}\text{In}$ )のPACを用いた。理研では安部文敏の呼びかけでPACを物性研究に用いる計画が1975年頃進められ，その後しばらくして浅井吉蔵を中心に，関沢尚・安部静子らによって $^{111}\text{Cd}$  ( $\leftarrow ^{111}\text{In}$ )を用いた $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ の磁性の研究が行われた。同じ頃，PACの短い観測時間を有効に利用して，目片守（京大理）らは，近藤合金 $\text{La}_{1-x}\text{Y}_x$ 中に導入した微量の $^{140}\text{Ce}$  ( $\leftarrow ^{140}\text{La}$ )の4f電子スピンの揺らぎの観測に成功した。

その後，電子回路モジュールの普及と簡便な4検出器システムの開発により，多くの研究室でPACを用いた物性研究が行われた。放射化学の分野では，安部・浅井・安部らが $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 中における $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$ のEC壊変の後遺効果などを調べた（浅井，安部，安部，他，1984）。<sup>2)</sup> また，安部・大久保嘉高・小林義男らが $\text{Fe}_3\text{O}_4$ などの磁性酸化物及び高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 中の $^{99}\text{Ru}$  ( $\leftarrow ^{99}\text{Rh}$ )のPAC実験を行った（大久保，小林，安部，他，1990）。大久保（京大炉）と斎藤直（阪大RI）らは， $^{117}\text{In}$  ( $\leftarrow ^{117}\text{Cd}$ )のPACを用いて， $\text{LiTaO}_3$ の強誘電相転移機構を調べた。さらに，末木啓介・佐藤渉・中原弘道（都立大院理）らはフラーレンに内包されたCeの奇妙な振る舞いを $^{140}\text{Ce}$  ( $\leftarrow ^{140}\text{La}$ )のPACにより観測した（佐藤，末木，菊池耕一，他，1998）。<sup>3)</sup> 佐藤（阪大院理）は2003年度の日本放射化学会奨励賞を受賞した。最近，横山明彦（金沢大院自然）らは，生体高分子の活性位の構造について，PACを利用した研究を始めた（橋本知典，横山，片岡邦重，他，2003）。

- 1) J. Sato, Y. Yokoyama, T. Yamazaki, *Radiochim. Acta*, **5**, 115 (1966).
- 2) F. Ambe, K. Asai, S. Ambe, T. Okada, H. Sekizawa, *Hyperfine Interact.*, **29**, 1197 (1986).
- 3) W. Sato, K. Sueki, K. Kikuchi, K. Kobayashi, S. Suzuki, Y. Achiba, H. Nakahara, Y. Ohkubo, F. Ambe, K. Asai, *Phys. Rev. Lett.*, **80** 133 (1998).

## 2.8 関連領域

この節には前節までの研究枠にまとめられなかった領域の研究が纏めてある。しかし，現在は， $\alpha$ 放射体については懇談会があり，マルチトレーサについては研究会があり，今後大いに発展する領域である。また放射能を利用した年代測定，放射線誘起ルミネッセンス（発光）現象や放射線教育など放射化学と関連する研究発表もある。核燃料再処理と廃棄物処理については，法律との関係で大学での研究がやりにくく，ほとんどの研究が日本原子力研究開発機構でなされ，主として他の学会で発表されている。また，核医学に関する研究発表もその基礎的な部分や核種の製造においては放射化学討論会で発表されているが，残念ながらこの節にまとめていない。

### 2.8.1 放射線誘起ルミネッセンスの化学

（橋本 哲夫）

放射線がリン酸塩鉱物などに作用したとき蛍光が観察できる。このシンチレーション放射線検出は今日でも放射線検出の基本の一つとして知られている。

宇宙線や天然の放射性物質からの放射線は岩石鉱物等に常に作用しており，蛍光や熱として放

出されなかったエネルギーのごく僅かの部分は準安定状態として蓄積する。この準安定状態は加熱によって発光（ルミネッセンス）現象をもたらす。古代人も蛍石の発光現象で経験していたと考えられている。

最初のルミネッセンスの記述はボイルによる肌身に付けたダイヤモンドからの発光と言われている。白色鉱物からの熱ルミネッセンス（TL）が一過性であることから、輝尽発光とも呼ばれ、放射線誘起現象であることが確認されたのは20世紀初頭に、X線などの放射線照射によりルミネッセンス現象を再現できたことに始まる。

ごく一部分であるが、吸収されてもすぐには光や熱にならず、長い年月にわたって岩石の中に蓄積するルミネッセンス源成分（放射線損傷部位）が存在する。この蓄積ルミネッセンスの強さを基に、火山灰地層の堆積や焼成遺物の焼成時以降の年代の見積もりが可能になる。鉱物を加熱で刺激する熱ルミネッセンス（TL）が一般的であるが、1986年 Huntley らは光励起によっても、放射線照射した鉱物からルミネッセンスが観測される光励起ルミネッセンス（OSL）現象を見出した。これらのルミネッセンスは放射線線量の見積もりや年代測定に利用できる。

市川米太（奈良教育大学）らは0.1mm程度の粒径を有する石英粒子を用いる石英粗粒子法を開発した。この方法を基に1960年代に、広島県の被爆瓦の被ばく線量評価を行い、1970年代には広島県帝釈峡の岩陰遺跡の土器片の年代測定を行った。1980年代には長崎県泉福寺洞穴遺跡や大分県二日市遺跡からの炉跡や土器片からの石英粒子を使った青色TL(BTL)年代測定を行い、1万年以上古い世界最古の土器として注目を浴びた。市川等の結果は、石英粒子からのBTL年代測定法を用いており、再度の測定が必要であろう。

1980年代に橋本哲夫（新潟大理）は世界に先駆けて石英からの赤色TL(RTL)現象を新潟砂丘砂から発見し、火山灰層や焼成考古遺物に含まれる石英粒子はほとんど例外なくRTL特性を有していることを、鴈澤好博（北海道教育大函館校）とともに確認した。これらの結果を踏まえ、橋本などはRTLの原因追究を基礎から研究してきている。これらの成果に引き続いて、RTLを用いた年代測定法の信頼性が高いことを、火山灰地層や縄文土器片を試料に用い明らかにした。後者については、1990年代後半において、新潟県奥三面川遺跡からの様式の異なる縄文土器片を蓄積放射線線量を評価し、RTL源がBTL、OSLや長石粒子による赤外光励起ルミネッセンス(IRSL)源よりも確実に安定であることから、信頼性高い年代値を与えることを確認している。更に、2000年代に入って、橋本は小形X線発生器を搭載し、年代測定に特化した高感度ルミネッセンス自動測定システムの開発に成功しており、この方面の先端的研究を行っている。

## 2.8.2 マルチトレーサの利用

（榎本 秀一）

RIトレーサ法は放射性物質の検出感度が極めて大きいことを利用し、その系における物質の移動や分布、化学反応の過程などを調べる手法である。従来から汎用されてきたRIトレーサ法に量的革新を与えたのが、マルチトレーサ法である。マルチトレーサ法は、1991年に理化学研究所の安部文敏らによって考案された<sup>1)</sup>。これは理化学研究所のリングサイクロトロンで加速される重イオンの多様性とそのエネルギー領域での核反応の特徴を生かし、多元素の化学的、生物学的挙動の同時追跡を可能にする新しいトレーサ技術であり、マルチトレーサ法と命名された。マルチトレーサ法研究の黎明期は、理化学研究所の安部静子らを中心にその効率的製造法の開発、イオン交換体における吸着現象の研究、ホテイアオイや大豆などの植物における放射性核種取り込み現象に関する研究、フミン酸における吸着挙動に関する研究などが精力的に行われた。1994

年に安部（文）と榎本，遠藤和豊（昭和薬科大学）および矢永誠人（現静岡大理）らは，動物における微量元素研究にマルチトレーサ法が有効であることを予測し，微量元素の生体内挙動に関する知見と従来の研究成果との比較をすることから研究をスタートした。現在まで生物，医学，化学，環境科学など多くの研究分野でマルチトレーサ法を用いた応用研究がなされている。

このマルチトレーサの応用研究発展の背景には，理研シンポジウム“生体微量元素の役割が大きい。このシンポジウムは，日本化学会その他の協賛をいただき1996年3月に最初の会議が開催された。マルチトレーサ法は，1991年に開発されて以来，放射化学の研究者からの認知はあったが，このシンポジウムにおいて，放射化学以外の生物・医学・薬学系研究者に対して，マルチトレーサの有効性とその展望を示したといえよう。また，この年に理化学研究所機関誌 **RIKEN Review No.13** “The Multitracer, its application to chemistry, biochemistry and biology” が発刊され，この時期までのマルチトレーサ法の応用研究が集大成された。この雑誌にはマルチトレーサ法の製造法，化学分離法， $\alpha$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$ の吸着現象，フミン酸に関する研究（東京大理：富永健ら），イオン交換樹脂の吸着現象（青山学院大：木村幹ら），土壌の吸着に関する研究（放医研：内田滋夫ら）などをはじめ，大豆，コメ，ラット，マウス，亜鉛欠乏動物，金属過剰症動物，2型糖尿病モデル動物などの生物学的アプローチの研究が目立った。1997年は，前年来のマルチトレーサ法の宣伝と成果発表もあって，生物，医学，薬学系のマルチトレーサユーザーが飛躍的に増大した年といえる。マルチトレーサユーザーの相互の交流と安定的製造供給体制の構築，応用研究の推進を目的とした“マルチトレーサ研究会”が発足した。また，同年8月，**RIKEN International Symposium on Bio-Trace Elements '97** を主催し，国内外の著名な微量元素に関する研究者を集め，生体微量元素研究の最先端の成果に関する討議をおこなった。1999年は，マルチトレーサ研究の大きな転換点に当たる。すなわち，「マルチトレーサ製造技術の高度化と新規計測技術の開発」のテーマにより，科学技術庁原子力総合科学研究の推進テーマに採択され，原子力カクロスオーバー研究 マルチトレーサ研究交流委員会が発足した。この研究プロジェクトの成果によって，マルチトレーサ製造ラインの再構築，化学分離技術の高度化，高効率化，オンライン化が行われた。特に理化学研究所のシステムの改良における羽場らの貢献は大きい。もうひとつの大きな成果としては，郷農靖之（九州大理）らの貢献による電極分割したゲルマニウム半導体検出器を用いた複数核種同時 $\gamma$ 線イメージング装置（ $\gamma$ -ray emission imaging GREI）のプロトタイプが完成したことであろう。一方，1999年には3月と12月に2回の理研シンポジウム生体微量元素'99と'99.12を開催している。この会議の概要とマルチトレーサ研究の成果が **RIKEN Review No.35** “Focused on New Trends in Bio-Trace Elements Research” にまとめられている。また，同年の12月には，理研シンポジウム“マルチトレーサ研究の新展開”が開催された。理研シンポジウム“核医学画像診断における測定技術の進歩”が開催され，マルチトレーサの新規計測法の開発によって生まれたGREIを核医学分野への応用を見据えるさきがけとなるシンポジウムとなった。2002年10月には **International Symposium on Bio-Trace Elements 2002**（Joint Symposium of **RIKEN** and **Yamanashi Institute of Environmental Science**）が開催され，マルチトレーサの応用研究の成果の発表も多く行われた。また，近年，京都大学原子炉実験所を利用した核分裂生成物を用いたFissionマルチトレーサも実用化され，環境科学分野の応用研究が推進されている。今後，理化学研究所においてもRIビームファクトリーの完成も間近く，今後の発展が期待されている。また，日本アイソトープ協会との連携による国内RI供給体制構築の計画もスタートし，理化学研究所が希少RI製造の拠点となる日は近いと思われる。

## 参考文献

- 1) Enomoto S., Development of multitracer technology and application studies on biotrace element research, Biomed. Res. Trace Elem., **16**, 233-240, (2005).

## 2.8.3 放射線効果

(朝野 武美)

放射化学討論会の要旨集の放射線化学研究に目を注ぐと、研究例は100件を越す。研究内容を類別して紹介する。

(1) 放射線効果の研究に用いられる放射線源は原子炉や荷電粒子加速器で得られる電離放射線・原子核の散乱や核反応を起こす中性子線、放射性核種から放出される放射線 ( $\alpha$  線,  $\beta$  線,  $\gamma$  線, 軌道電子) および宇宙線などの自然放射線である。さらに紫外線, 可視光線もある。

放射化学者の放射線化学の研究の動機は多様である。原子炉や荷電粒子加速器と各種放射線検出器を利用し, いろいろな放射性核種や無機・有機化合物, 生体構成物質などを取り扱うなかで放射線効果の研究が行われる。また, 放射性同位体の核変換や核壊変に伴う化学的特異性を考える上で, 核変換や核壊変効果と自己放射線効果を合わせて考えなければならない。放射線化学はホットアトム化学に対して相補的なものである。生体におけるRIの取り込みや放射線被ばくを想定した放射線効果関連の研究に, 放射化学的手法が有用である。核 $\gamma$ 線共鳴に現れるメスバウアー分光の研究において, マトリックス中で起きる放射線作用の解明は重要である。放射線と固体物質の相互作用を各種放射線計測技術と放射化学的手法を用いて研究する根拠には, 放射化学的な課題が存在している。機能性材料や核融合材料の開発研究に放射線化学的課題が含まれている。

放射線効果に関する発表件数を研究内容で類別すると, おおよそ次のとおりである。ホットアトム化学における放射線効果の研究は00件に対して, ホットアトム化学以外の研究目的における放射線効果の研究は00件である。また固相系の研究発表00件に対して液相系の研究は0件であった。固相系における放射線効果は主に放射線の間接作用の寄与によるものであり, 液相系では主に直接作用によるものと考えられる。反応内容としては酸化還元反応に関する研究は00件, 分解反応に関する研究は00件, LET効果に関する研究は00件であった。

(2) 放射線効果に関する研究発表は1961年の松浦二郎(東京大教)・栗村芳実による「Sb水溶液の自己放射線酸化分解」と馬場宏(原研)・田中吉左右による「無機リン化合物に対する $\gamma$ 線の作用」が最初である。1963年の放射化学討論会に放射線効果に関するセッションが設けられ, 塩川孝信(東北大理)ら, 小山睦夫(京都大理)らによる3件の研究発表があった, 1964年に松浦らによるトリポリリン酸の $\gamma$ 線分解に関する研究発表があった。この年以降, 放射線効果のセッションは設けられていない。ちなみに, 第1回日本放射線化学討論会が1958年に開催されている。1965年(第9回)に富永健(東京大理)らはコバルト錯塩の化学的安定度と分光学的性質に関する研究において, ホットアトム効果と $\gamma$ 線分解の違いを報告した。1967年に長谷川罔彦(静岡大理)はヨウ素酸塩の放射線分解における $\gamma$ 線や反跳荷電粒子によるLET効果について発表した(続報:1969, 1970, 1975)。1968年に小林慎江らは有機リン化合物のベンゼン溶液中での中性子照射によるホットアトム化学における $\gamma$ 線の影響を研究し, 放射線分解生成物である $^{31}\text{P}$ リンラジカルは,  $^{32}\text{P}$ に対して捕捉剤効果を示すことを明らかにした。1969年に松浦らは, トリポリリン酸ナトリウム(縮合リン酸塩)の原子炉照射でホットアトム化学反応によって生じる低酸化数の $^{32}\text{P}$ 化学種の,  $\gamma$ 線照射による酸化過程について報告した。長谷川は原子炉速中性

子と水との弾性衝突で生成する高 LET 粒子 (プロトンなど) によるヨウ素酸塩などの放射線分解を研究して, 分解収率が高いことを示した。1970 年に佐野博敏 (都立大理) らは発光メスバウアー分光法によるコバルトアセチルアセトン錯体の EC 壊変にともなう固相ホットアトム効果の研究において, 低酸化状態の化学種の生成に及ぼす放射線効果の影響を研究した。放射線によって中心金属原子近傍にある配位子の分子・原子が励起され, 金属-配位子間電荷移動が起こり, 中心金属の還元に必要な役割をしていると推測した (続報: 1971, 1974)。高島良正 (九州大理) らは硫化リンのホットアトム効果で生成した  $^{32}\text{P}$  反跳化学種に対する  $\gamma$  線の影響について報告した。長谷川は過塩素酸リチウムを熱中性子照射して, リチウムの (n,  $\alpha$ ) 反応で生じる反跳  $\alpha$  粒子による過塩素酸の放射線分解について報告している。1971 年に小林らはリンのオキソ酸のホットアトム化学反応において, 原子炉速中性子との衝突で生成したプロトンが  $^{32}\text{P}$  反跳化学種のリンの酸化数を低くすることを報告した。佐野らはメスバウアー分光法により 3 価コバルトアセチルアセトン錯体の EC 壊変に伴う固相ホットアトム効果による鉄の化学状態と  $\gamma$  線照射した 3 価鉄アセチルアセトン錯体中の鉄の化学状態を比較し, 両者の試料の 2 価の鉄の化学状態に類似性があること, および 2 価の鉄の生成機構について考察した。高島らはメスバウアー分光法により, 多環芳香族を有する鉄錯体の放射線分解について報告した (続報: 1972) 藤原鎮男 (東京大理) らは ESR 法により, テトラシアノ亜鉛酸(II)カリウムなどの無機錯体の  $\gamma$  線照射による中心金属の還元について研究した (続報: 1972) 1974 年に長谷川らはシュウ酸リチウムを用い, 原子炉照射と  $\gamma$  線照射による放射線分解を比較し, 反跳荷電粒子 ( $\alpha$  線やトリチウム) の LET 効果について報告した。立川圓造 (原研) らは硝酸リチウム水溶液を中性子照射して, 反跳トリチウム粒子による水の放射線分解を研究し, 水素引き抜き反応による HT の生成について報告した。(続報: 1975) 西朋太 (京都大原炉) らは硝酸ウラニル (U(VI)) 水溶液の中性子照射による核分裂で生じる Te 核種の原子価について報告した。水溶液にあらかじめ酸化作用のある OH ラジカルのスカベンジャとして多量の非放射性 Te(IV) イオンを添加して照射を行ったところ, 放射線効果が抑制されて Te は 4 価として生成していることが分かった。スカベンジャが無い場合は放射線効果により 6 価の Te に酸化される。(続報: 1975) 池田長生 (東京教大) らは固相ホットアトム効果における放射線効果の影響を研究した。クロム酸カリウム (Cr(VI)) 一塩化アンモニウム混合試料を中性子照射したところ, 還元的に働くアンモニウム塩の存在下では中性子照射中の  $\gamma$  線が還元作用に影響し,  $^{51}\text{Cr(VI)}$  のリテンションが減少する。試料を予め  $\gamma$  線アニーリングしてから中性子照射すると, さらに還元作用が増加することが分かった。1975 年に長谷川らはシュウ酸リチウムにホウ酸を添加し, 原子炉照射で生成した  $\alpha$  反跳粒子と  $^7\text{Li}$  反跳粒子によるシュウ酸塩の放射線分解と  $\gamma$  線照射による放射線分解を比較し, 反跳荷電粒子の LET 効果について報告した。立川らは氷結した硝酸リチウム水溶液を中性子照射して, 反跳トリチウム粒子による氷結水の放射線分解を研究した。HT の初期収率は液相の結果と同じで, 照射時間とともに経時変化して HTO になる。富永らは  $^{60}\text{Co}$   $\gamma$  線照射を用いたクロロフルオロカーボンの放射線分解およびクロロフルオロカーボン/臭素混合試料を中性子照射してクロロフルオロカーボンと反跳臭素のホットアトム反応を報告した。立川らは  $^{125}\text{Xe}$  の EC 壊変で生じる  $^{125}\text{I}$  とメタンのホットアトム反応における放射線分解の影響を研究した。富永らは金属アセチルアセトナト錯体の放射線分解を報告した。

## 2.8.4 核壊変現象を利用した年代測定

（今村 峯雄）

現代の年代測定の根幹をなす放射年代測定法は20世紀初頭に Rutherford により開発された。その後、質量分析法の開発・高度化により K-Ar, Rb-Sr, 鉛-鉛法など多くの測定法が開発され、20世紀半ばまでには数百万年より古い時代を対象とする地質年代測定に対して、主要な測定法がほぼ出そろった。その後の大きな流れは、従来法の高度化・精密化、もう一つは人類紀を対象とする百万年より新しい時代を対象とする年代測定である。過去50年のあゆみの中で放射化学が関わるのはおもに後者である。ここでは、 $^{14}\text{C}$ 年代測定法、ルミネッセンス法・ESR法、フィッシュン・トラック法、その他について取り上げた。なお、年代測定法の研究は、物理学・地学など他分野の研究者も携わっており、成果の発表も応用に関わる学会や論文誌に発表されることが多いので、それらの情報も若干加えた。放射化学以外の関係者の寄与については、主要な記述のみに止めた。

### a. $^{14}\text{C}$ 年代測定法

$^{14}\text{C}$ 法は1946-49年に W. F. Libby によって開発され、1950年代に考古学などの分野で実用化が進んだ。日本においては、早くも1951年に科研費による研究が開始された。1959～1961年に理化学研究所、学習院大学が実用化を達成した。1959年には木越邦彦（学習院大理）が、50年間の大気  $^{14}\text{C}$ 濃度のデータを報告している。その後、東京大学、九州大学、京都産業大学などの測定施設も加わった。測定は、当初、ガス比例計数管によって行われ、その後液体シンチレーション計数法が実用化され、市販の装置が販売されるようになり測定を行う研究室は全国的に十数カ所を数えた。柴田せつ子（府立大付属研）らは、メタノールを試料として液体シンチレータによる環境中の  $^{14}\text{C}$ 測定を1989年から発表しており、埋没材の年代についても発表した（1997,1999）。一方、1977年に加速器質量分析法（AMS）が Science 誌に発表されると、 $^{14}\text{C}$ 法の研究は AMS法にシフトすることになった。AMS法による  $^{14}\text{C}$ 年代測定は、名古屋大学の中井信之・中村俊夫らが米国・HV社の装置を1982年に導入し、1983年から開始した。東京大学では、今村峯雄・永井尚生・吉田邦夫らが、核物理研究用のタンデム加速器（東芝製）を改造し、1982年から  $^{10}\text{Be}$ の AMS測定を開始したが、1985年には  $^{14}\text{C}$ 測定が可能となり考古学に応用した（吉田邦夫ら1985）。両機関とも、1990年代にそれぞれ、第2世代の市販の高性能機を導入し、その後国立環境研究所、日本原子力研究機構が加わり、さらに民間の2機関が  $^{14}\text{C}$ の定常測定を行うようになった。その多くは年代測定に関わる測定である。

これらの研究の中で、木越邦彦らによる  $^{14}\text{C}$ 測定は、AMSが本格的に応用される以前における、日本の地質学・考古学にかかわる年代値の大半を産みだし  $^{14}\text{C}$ 測定における中心的な役割を担った。1990年までに得られた  $^{14}\text{C}$ 年代データによって、日本の縄文時代の年代の大枠が確定した。また、1950年代には大気中の  $^{14}\text{C}$ 濃度の変動が議論されるようになったが、木越邦彦らはいち早く屋久杉年輪試料の  $^{14}\text{C}$ 測定に取り組み、過去の大気中の  $^{14}\text{C}$ 濃度変動が地磁気強度の変動によることを示し、国際的に高い評価を受けた（1966）。AMS以降における研究では、小田寛貴（名大理）が、AMSの特徴を生かした古文書などの歴史資料研究に1996年から取り組んだ（2000,2002）。史料年代と  $^{14}\text{C}$ 年代とを比較し、較正曲線と極めてよく一致していることなどを示し（2001）、AMS- $^{14}\text{C}$ 法の歴史研究への可能性を具体的に示した。また、今村峯雄らのグループは縄文時代や弥生時代の絶対年代を AMS- $^{14}\text{C}$ 法で体系的に研究し、縄文時代・弥生時代の実年代の精密化を行った（2003）。特に、弥生時代の開始年代について従来の通説より約500年早まるという結果を発表し、日本の水稻文化の起源と伝播について再検討を促した。



## b. ルミネッセンス法・ESR法

熱ルミネッセンス法（TL法）による年代測定は、F. Danielらによって1953年に提唱され、国内では市川米太（奈良教育大）によって体系的な研究が行われ1963年に土器の年代測定に成功した。市川は、縄文土器から分離した石英粒子からのTLを観測して年代を測定したが、その年代は、現在の年代観とおおむね矛盾していない。しかし縄文時代草創期の年代など、現代の年代観から数十%の乖離がみられる場合があり課題を残した。TL法はその後、橋本哲夫（新潟大理）、長友恒人によって研究が続けられた。特に、橋本哲夫らは個々の粒子からのルミネッセンスの画像化の方法を開発し（1983）、石英鉱物における赤色ルミネッセンスの現象を発見した（1987）。その後、発光機構など基礎的な研究についても精力的に研究を行い、赤色ルミネッセンスによる方法が年代測定に優れた方法であることを示した。また、光励起ルミネッセンス法（OSL法）による年代測定にも取り組んだ。実際の年代測定では、旧石器時代（1993など）から縄文時代（2002など）、歴史時代（2003など）など、さまざまな時代の資料に適用を試みた。縄文土器等でTL年代と $^{14}\text{C}$ 年代による実年代との比較を行い、整合性について検証した。

直接結晶中の不対電子を測定するESR年代測定法は1967年Zellerによって提唱された。それが実際に可能であることを、池谷元伺（山口大工短大）は鍾乳石で示すとともに（1975）、他のさまざまな物質で、年代測定が可能であることを明らかにした。1991年に池谷によるレビュー講演が行われた。

## c. フィッション・トラック法

1963年に、Fleischerらが、化学エッチング法による $^{238}\text{U}$ の自発核分裂トラック（FT）の観察法を発表したのを機に、我が国でも阪上正信・中西孝（金沢大理）ら、岩田志郎・橋本哲夫らのグループが研究を行い、年代測定への応用では西村進（京都大理）や鈴木正男（立教大理）が精力的に研究を進めた。1984年に西村によるレビュー講演が行われた。

## d. その他の年代測定法

Uから生成される $\text{Io} (^{230}\text{Th})$ 、Paを測定しIo/U、Pa/U比から年代を決定する年代測定法はウラン系列法あるいは、それぞれIo法、Pa法とよばれる。木越邦彦（1967）は火山岩の年代測定にはじめてIo法を適用した。阪上正信ら（1970）は旧石器時代の化石骨の年代測定に適用した。中西孝（1991）は地下水の年代測定について報告した。また、測定は通常 $\alpha$ 線スペクトル法により行われるが、小村和久（金沢大LLRL）は非破壊 $\gamma$ 線スペクトル法による年代測定法（1982）を研究し、石筍への適用（1997）などを発表している。

湖沼や海洋の堆積物は、過去の地球環境を研究する重要な資料となっているが、その年代情報を得る方法として、その酸素同位体パターンとともに放射性核種が利用される。海水はウランを多く含み、そこから生成したIoが沈降堆積する現象を利用することで、堆積速度の情報が得られ、年代を推定する有効な情報となる。同様に、宇宙線生成核種として海洋堆積物に含まれる $^{10}\text{Be}$ は、数百万年の堆積情報を与える。 $^{10}\text{Be}$ については田中重夫（東大核研）らが先駆的に取り組んだ。田中らの結果は、宇宙線強度が過去数百万年おおむね一定であったことを明らかにするとともに、地磁気逆転の記録との比較から、 $^{10}\text{Be}$ が海洋堆積物の年代測定に有効であることを示し、1978年に京都で行われた国際宇宙線会議の総括講演で大きく取り上げられた。 $^{10}\text{Be}$ による研究法は現在堆積物による環境調査の重要な調査項目となっている。

このほか、地表の岩石が二次宇宙線との核反応によって生成する $^{10}\text{Be}$ 、 $^{26}\text{Al}$ などの核種の蓄積量を測定する方法は、1980年代にK. Nishiizumi（UCB）らによって始められ、表面照射年代法（in-situ exposure age dating）として、地形の変動を研究する地学分野で応用が広がっている。

## 2.8.5 核燃料再処理と廃棄物処理

（森田 泰治）

使用済核燃料より U 及び Pu を分離回収する再処理の技術は、核燃料サイクル成立の要である。1956年の第1回原子力長計では、我が国の再処理事業を自主技術により進める考え方が示され、この年相次いで発足した日本原子力研究所（原研）及び原子燃料公社（原燃公社）に対し、前者が基礎的研究と小規模中間試験を、後者が大規模な中間試験及び実用規模の施設を分担するという方針が定められた。原研では、PUREX法を基本とする再処理試験場計画を策定すると共に、基礎的研究として、湿式分離法では、溶媒抽出の体系化、ウランの溶液化学、超ウラン元素の合成と溶液化学的性質の測定、揮発性FPの分離精製等の研究が、乾式分離法では、高温冶金法、ビスマス溶融塩電解法、金属抽出法、塩化物蒸留法を含むハロゲン化揮発法、フッ素化反応データの取得等の研究が実施された。わが国においても、今から40年前までに再処理技術として可能性のあるほとんどの分離手法が検討されていると言えよう。

1961年の原子力長計では、再処理技術が実証済の確立された技術であるとの認識のもと、技術導入により0.7～1t/dの実用規模の再処理工場を原燃公社が建設するという方針転換がなされた。これを受け、原燃公社およびこれが改組され1967年に発足した動力炉・核燃料開発事業団（動燃）では、欧米の技術の調査の上、フランスからの技術導入を決めて、東海再処理工場の建設準備が進められ、1971年建設着工となった。この間、原研では、当初の計画からは縮小されたものの、高放射性物質の処理装置と操作技術の開発及び研究用Pu試料の確保を目的とした再処理試験計画が進められた。そして、1968年にはJRR-3の使用済燃料約600kgを用いた3回のホット試験が実施され、成功裏に200gを超えるPuが回収された。この内の約4gのPuは1970年に開催された大阪万国博覧会を記念するタイムカプセル内に5000年を計時するプルトニウム原子時計として収納されている。この原子時計は1個あたり約1gのPuを内蔵し、その $\alpha$ 崩壊で生成するHeの量より経過時間を求めている。

その後、高速炉燃料の再処理技術開発を目指し、動燃において湿式法、原研において乾式法を研究開発するという分担のもと、動燃ではPUREX法の改良研究が、原研ではフッ化物揮発法の研究が実施された。前者では、高レベル放射性物質研究施設（CPF）において使用済MOX燃料による再処理試験が実施され、1984年にはCPFで回収されたPuがMOX燃料に加工された上で高速実験炉「常陽」に再装荷されて、小規模ながら高速炉核燃料サイクルの輪が繋がれた。その後の安全性研究へのニーズから、原研においても湿式再処理法の研究が、平成6年に完成した燃料サイクル安全工学研究施設（NUCEF）を中心に実施された。

東海再処理工場は、1977年に運転開始となり、2005年12月までに使用済燃料の処理量として約1102トンの実績を上げた。我が国の再処理需要の一部を担いつつ、プラント規模での様々な技術開発が行われ、その経験は日本原燃（株）の六ヶ所再処理工場へ引き継がれている。六ヶ所再処理工場は、2007年5月の時点で、2006年3月に開始された使用済燃料を用いたアクティブ試験が進行中である。

一方、基礎的研究では、揮発性放射性核種の捕集・閉じ込めが重要テーマの一つとなり、1960年代後半よりトリチウム、ヨウ素の挙動解明に関する研究が開始された。ヨウ素に関しては、燃料溶解液中でのヨウ素の存在状態の把握、有機ヨウ素の生成機構の解明、再処理溶液中の放射性ヨウ素除去法の開発、ヨウ素捕集法の開発等多くの成果を得た。また、放射性Krの回収、 $^{14}\text{C}$ の分離固定化の研究も実施されている。

放射性廃液処理では、再処理研究開始と同時に、試験実施によって発生する廃液の処理という

現実問題もあり、イオン交換法、蒸発濃縮法、凝集沈殿法、吸着法等様々な手法についての研究開発が進められた。高レベル廃棄物のホウケイ酸ガラスによる固化の研究は1960年代にすでに開始されている。動燃では、直接通電セラミックメルト方式によるガラス固化法について研究開発を実施し、1977年からのコールド工学試験、1982年からのモックアップ試験、1986年からのCPFにおけるホット試験を経て、ガラス固化技術開発施設（TVF）でのプラント規模での実証試験へと発展させている。この間1983年からは、原研の廃棄物安全試験施設（WASTEF）において、原研-動燃の共同研究で、実際のガラス固化体中では1万年間に起こる $\alpha$ 崩壊を、短寿命核種を用いることによって約2年間でおこす加速試験が実施され、ガラス固化体の特性において安全評価上重要な変化はないとの結論を得ている。TVFでは、2005年9月末までに約190本のガラス固化体が製造されており、その経験は日本原燃（株）六ヶ所再処理工場のガラス固化施設へ反映されている。

再処理の研究は、経済性向上、燃料組成変化への対応等を目的とし、今なお新しい分離手法の研究が実施されており、これを支える放射化学を含む基礎研究の重要性は言うまでもない。Uの錯体研究からウラニルイオンを選択的に沈殿させるN-シクロヘキシル-2-ピロリドンが発見され（2000年）、沈殿法による再処理プロセスの研究が開始されたという例もある。多様な視点とねばり強い取り組みが重要である。

## 2.8.6 放射線教育

（松浦 辰男）

### (1) はじめに

放射化学の50年の歴史において、放射線教育という名前での研究分野があったわけではなく、従って放射化学討論会でそのようなセッションが設けられたことはなかったと思う。しかし、現在では日本原子力学会の春秋の研究発表会や日本アイソトープ協会の「理工学における同位元素研究発表会」（旧称）で「原子力教育」や「放射線教育」という名前のセッションがあり、最近ではこれらの、「教育」の名前のつくセッションが徐々に盛んになってきているように思える。

すべての自然科学分野において、それぞれの細分された専門分野についてまだよく知らない初心者に対して、この分野が何を扱うものであり、どのような学問的意義があり、あるいは有用な技術に関連しており、その結果いかに社会的にも重要な意味があるかを解説することは重要である。そして、この分野への関心を起こさせ将来の人材を確保しようとするのは、この分野の専門家にとって本来の研究と同時に行うべき大切なことである。これはその専門領域への入門コースといった性格のもので、大学であれば一般教養か、さらに重要な基本的知識についてはそれ以下の初等中等教育の段階でその「教育」が行われることが望ましい。さらに、ここで取り上げる「放射線教育」は学校教育においてのみならず社会全般に対しても非常に重要なものである。

### (2) 「放射線教育」の定義・範囲

これを分類すると、

- a. 放射線・放射能の本質（原子核の現象としての $\alpha$ ・ $\beta$ ・ $\gamma$ 崩壊、核分裂、基礎的素粒子など）、環境におけるその存在、放射線やアイソトープの（諸分野の研究・医学・産業・農業等への）利用、放射線の生物影響の正しい情報
- b. 原子核エネルギー、臨界、原子力発電の原理、核燃料、廃棄物処理などの基礎
- c. 資源エネルギー問題、環境問題と原子力の関連

d. 放射線・原子力の利用に伴うリスク・ベネフィット，価値判断の問題，社会へのコミュニケーション

など，多岐にわたるが，(a)～(c)の純然たる自然科学的な問題のみならず，(d)の社会科学的な問題が重要である点が，通常の科学教育・技術教育とやや類を異にしている。

### (3) 「放射線教育」の意義と今後の方向

放射線教育が重要であるのは，日本が原爆の災害を経験したことやマスコミの一般的な報道姿勢などの理由で，放射線・放射能というものに対する日本人全体の意識が，その利用による利便性よりもそれに対するリスク感覚が科学的真実以上に非常に強すぎる。このために，放射線や原子力の利用に不安感をもっており，それを改善する必要がある。放射線は微量でも人体に悪い影響があるとの仮定による現在の厳しい法的規制にも原因がある。

放射線教育がゆきわたれば，それは理科教育全般にも通じることであるが，当然ながら若い学生が放射線や原子力，広くは科学技術に関する関心が高まり，将来これに関連する分野に進もうとする人口が増えることになり，現在のわが国の科学技術の水準を維持し，また原子力推進を国是とするわが国の方針に合致することになる。

そのためには，社会全体がこの教育の重要性を認識し，協力する必要があるが，その基本となる情報として，放射線・放射能は身の回りにも存在しているものであって，この程度の少量の放射線であれば何ら危険でないものであるということ，今後の学校教育で，できれば小学校や中学校のレベルで，必修科目の中で適切な教育を行う必要がある。そのような方向に導くように，専門家も現在の初等中等教育に，またそこで使用されている教科書，さらにその基本となっている文部科学省が決める「学習指導要領」という指針の文書（これは原則として10年ごとに改定される）にも関心をもつ必要がある。最近では政府の方針がかなり細かい点まで情報公開されるようになってきたので，その機会に専門家として意見をどしどし行政当局に伝えることが望ましい。また，教科書はもちろんのこと，マスコミ報道や出版物で科学的に誤った記述を見出し，それが社会に例えば風評被害のような悪影響を及ぼすと判断されるような場合には，専門家はその誤りを指摘する努力を怠ってはならない。

著者は，現役の時代から放射線教育に関心があったので出版物とか，一般化学の授業の中で放射線や原子力の基礎を教えるようなことをしてきたが，大学を定年後は，1994年から「放射線教育フォーラム」というボランティア組織を設立して種々の活動を行っている。日本の現在の教育環境は，十分な理科系の知識と意欲を持った学校教員が小・中学校という義務教育のレベルで不足しているために，学校教育において放射線・原子力に限らず理科教育が決して十分に行われていない現状である。この現状を改善するために，われわれ理工系の専門家あるいはいわゆる「ものづくり」の技術を持っているものは，中高年の年齢になっても持っている知識・技術・経験を若い人たちに伝授することができるような社会的システムをつくる必要があるように思える。

備考 NPO 法人放射線教育フォーラム，<http://www.ref.or.jp/>

## 第3章

# 主な放射化学関係研究施設および主な大学における放射化学研究の歴史

国内における放射化学研究施設は大学以外に、国立の研究機関、企業や団体の研究機関などいくつかの施設がある。その中で放射化学会員が多くいると推定される国立の研究機関、企業や団体の研究機関について、各施設の設立の経緯、研究の歴史、現在の研究内容などについて解説してもらった。また、大学については、放射化学講座のある大学をはじめ、放射化学の研究を長年にわたって続けている研究室に研究者の人脈と主な研究について解説してもらった。後継者が退職されて、実情の掴めない大学もあり、全てを網羅しているとは言いがたいが、現状は理解してもらえらると思う。大学の研究施設における研究人脈については各研究施設の節に記載されている。会員の相互理解と学生の進路の参考資料となれば幸いである。

### 3.1 財団法人 環境科学技術研究所

(久松 俊一)

財団法人環境科学技術研究所（環境研）は1990年に当時の科学技術庁所管の財団法人として青森県六ヶ所村に設立された。設立目的は六ヶ所村に立地している国内初の大型商用再処理施設の環境影響研究及び低線量率長期放射線被ばくの生体影響に関する実証的試験と情報提供、知識の普及啓発である。ここでは、本会と関連の深い環境影響研究について述べる。

環境研における環境研究は大型再処理施設の安全評価に用いられた自然科学的あるいは社会科学的なパラメータの安全裕度確認から始まり、自然放射線の県内分布調査、再処理施設から排出される放射性核種のバックグラウンド調査へと進められた。環境中に存在する放射能や安定元素を用いた挙動調査が平行して行われ、それらの結果を基にして再処理施設由来の放射性核種に関する現実的且つ中長期的環境移行・線量評価モデルを開発している。再処理施設においては現在実燃料を用いたアクティブ試験が行われており、その後本格操業へと移行することになっている。アクティブ試験及びそれに続く本格操業においては実際に放射能が環境中に放出されるため、それらを用いた環境挙動研究を今後重点的に行い、線量評価モデルの検証と高度化を行う予定である。

実地における研究は環境挙動研究の根幹をなすものであるが、制御された系における室内実験は各種の移行パラメータに対する環境要因の影響を調べる上で重要である。このため、環境研では環境放射能関連研究用に全天候型人工気象実験施設を有している。本施設は気象条件が放射性核種の環境挙動に与える影響を調査するため、1995年度から2000年度にかけて建設された。施設内には降雪、降水、霧発生各装置を備えた大型人工気象室が設けてあり、日本全国の気象条件をほとんど全て模擬することが可能である。その他、小型人工気象室、RI実験設備、各種分析装置を整備してあり、これらを駆使した放射生態学研究を行っている。

青森県や旧科学技術庁の委託を受け、これまでに行われてきた調査研究の中からそのいくつかを紹介したい。自然放射線県内分布調査では再処理施設の立地県である青森県内市町村を対象として環境 $\gamma$ 線レベル、ラドン濃度調査が行われた。環境 $\gamma$ 線レベル調査はガラス線量計を用いた年間の線量測定を県内109地点について行い、詳細な線量分布地図を作成している。ラドン濃

度調査も県内全域を対象に住居と職場環境を合わせて300地点を越える測定点に関して行われ、県民の受けるラドンとその子孫核種による被ばく線量を算出している。2006年度からは日常食と各種食品に関する測定を開始する予定であり、これによって算定される内部被ばく線量を加えて、青森県民の県民線量を提示する運びとなっている。

天然にも存在するが再処理施設から放出される放射性核種である $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{129}\text{I}$ を中心に施設稼働前の各種環境試料中のレベル調査を実施するとともに、Pu,  $^{99}\text{Tc}$ などを含めて測定を行い、これらの核種の分布と挙動について研究を進めている。

有機型 $^3\text{H}$ 分析には崩壊生成物である $^3\text{He}$ を質量分析器で測定することにより $^3\text{H}$ の定量を行う手法を取っており、現状の植物などの $^3\text{H}$ レベルに対応できる感度を有している。Puについては高分解能型多重検出器ICP-MSにより数%の精度で $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比の測定が可能であり、環境中Puの起源推定に用いることができる。また、北日本におけるコンプ中 $^{99}\text{Tc}$ のバックグラウンド濃度測定を行っているが、高感度型のICP-MSを使用することにより精度の高い定量値が得られている。更に、周辺海域の海水中の濃度調査も試みており、表面海水であれば、50 L程度の試料水中の $^{99}\text{Tc}$ が測定でき、これまでのような大量の試料は不必要となった。加えて、ICP-MSを用いた安定元素の形態別分析手法を開発し、これを放射性核種の環境挙動研究に生かす試みを行っている。淡水中U、希土類などについての分子量別分画（サイズ排除クロマトグラフィ）が可能となり、六ヶ所村内の河川水などに応用している。

最後に環境研における環境影響研究の中長期的展望について述べたい。環境放射能研究はその分布実態の記述から始まり、挙動の記述・予測、挙動を制御している機構の研究、更には挙動の制御へと進んで来ている。環境研においても事情は同様であり、分布実態の把握、挙動を記述・予測するためのモデル開発を行いつつ、挙動機構解明の研究に向けての分析技術開発やモデル植物開発を行ってきた。前者はICP-MSを利用した安定元素の形態別分析手法として結実しつつあり、後者は1遺伝子起源のCs要求性変異を持つ実験用植物の確立へと繋がった。今後は形態別分析手法を生かした挙動機構研究を進めて環境移行モデルの高度化を行うとともに、実験用植物を用いた移行低減化・環境浄化研究を行っていく。更に、人体に対する放射線防護だけではなく環境自体の防護の必要性が認識されつつあり、環境研の地域性を生かした研究を行う考えである。

## 3.2 独立行政法人 日本原子力研究開発機構（原子力機構）

平成17年10月に、日本原子力研究所（原研）と核燃料サイクル開発機構（サイクル機構）が統合されて、日本原子力研究開発機構（原子力機構）が設立された。ここでは、基礎・基盤的な研究を進めてきた原研と、実用的な研究を実施してきたサイクル機構及びその前身の動力炉・核燃料開発事業団（動燃）における放射化学に関連する研究を紹介する。

### (1) 旧日本原子力研究所（原研）

旧原研における化学の研究は、1957年に核燃料再処理のための溶媒抽出法とフッ化物揮発法の研究が開始されたのを契機に本格化した。爾来、核燃料・炉材料の開発と核燃料サイクルの確立に必要な基礎から応用までの研究は主に当時の化学部で、さらにラジオアイソトープの製造と利用などに関する研究はアイソトープ製造部で精力的に進められたが、放射化学の研究はこれらのなかで最も主要な部分を占めていた。

1965年までの放射化学の研究は、(i) 使用済み核燃料の再処理法開発のための溶媒抽出法の体系化、ウランやトリウム化合物の合成と物性の研究、(ii) ウラン、超ウラン元素の合成と溶液化学的性質の研究、(iii) イオン交換法によるウランの同位体濃縮法の研究、(iv) 核燃料・炉材料の分析法の開発及び分析用標準試料の作製、(v) ラジオアイソトープ製造技術の基礎研究などである。

これらのうち1957年に初臨界を達成したJRR-1の利用により開始された超ウラン元素の研究では、1959年に $^{239}\text{Np}$ と $^{239}\text{Pu}$ を単離、確認するとともに、これらをトレーサとして利用してネプツニウムとプルトニウムイオンの溶媒抽出挙動やイオン交換挙動の基礎データを取得した。続いて1960年には $^{241}\text{Am}$ の中性子照射で合成した $^{242}\text{Cm}$ の単離に成功した。また、原子力研究の開始と同時に核燃料・炉材料の分析が始まり、ついで放射性廃棄物、使用済み燃料、環境物質などの多種多様な試料を対象として、化学分析、分光分析、質量分析、放射能分析、放射化分析などによる分析法の開発と実試料の分析が進められた。ラジオアイソトープ製造の研究では、JRR-1、JRR-2、JRR-3の利用開始にあわせて、照射用ターゲットや照射キャプセルをはじめとする照射技術の開発と、ラジオアイソトープ製造プロセス技術の開発を進めた。

昭和40年代(1965年)になると、材料の放射線損傷、核分裂生成物のホットアトム反応、超プルトニウム元素の化学的挙動に関する研究が始まり、また、原子炉の安全性や環境安全に係るトリチウム、ヨウ素の挙動解明、プルトニウム廃液の処理法の開発などの目的指向の強い課題も目立ってきた。分析の分野では、プルトニウムの分析、高温ガス炉や高速炉の燃料・材料の分析や保障措置分析が新たに加わった。

この時期の主な研究の成果は以下の通りである。JMTRで $^{241}\text{Am}$ を長期照射して $^{238-242}\text{Pu}$ (1967年)、 $^{242\text{m}, 243}\text{Am}$ (1967年)、 $^{244, 245}\text{Cm}$ (1972年)、 $^{249, 250, 252}\text{Cf}$ (1973年)及び $^{249}\text{Bk}$ (1974年)の合成に成功した。一方JRR-1やJRR-2を用いて多くの放射性核種を合成し、有機リン化合物、高分子アルキルアミン化合物などを抽出剤とするナトリウムからキュリウムに至る元素の膨大な溶媒抽出データを蓄積した。開発した分離法を応用して、JMTRで照射した1.3 kgの $\text{ThO}_2$ から、 $^{233}\text{U}$ 約10 mgを単離することに成功した。

原子炉燃料の燃焼率測定法の開発では、1966年のJRR-2燃料の燃焼度測定を皮切りに、イオン交換法、 $\gamma$ 及び $\alpha$ スペクトロメトリー、質量分析法などを組み合わせた燃焼度測定システムを開発し、研究炉や「美浜」、「玄海」、「敦賀」、「ふげん」などの実際の原子炉からの使用済み燃料に適用した。1971年からはウラン、プルトニウムなどの同位体比から燃焼率やプルトニウム生成量を計算する解析プログラムの開発に取り組み、本研究の成果の一部はIAEAとの研究契約及び支援計画に組み入れられ、再処理施設の保障措置技術の向上に貢献した。

放射性ハロゲンに関する研究は、反跳臭素原子の運動エネルギーの測定と化学反応性の把握に始まり、使用済み核燃料の再処理時における放射性ヨウ素の生成機構の解明へと進展した。有機ヨウ素 $\text{CH}_3\text{I}$ は反応系内の有機不純物 $\text{R-CH}_3$ を炭素源として、熱硝酸により酸化した原子状ヨウ素(I)とメチルラジカル $\cdot\text{CH}_3$ の反応で生成することを始めて明らかにするとともに、 $\text{O}_2$ などのラジカル捕捉剤を共存させることによってその生成を抑制することができることを裏付けた。この成果は、空気中の二酸化炭素が炭素源であるとする当時の定説を覆す画期的なものであり、その後原子炉事故時の有機ヨウ素の生成挙動の解明へと繋がった。またHTTR雰囲気においては、有機ヨウ素の生成率は軽水炉事故時の条件を超えないこと、ヘリウム中で生成した有機ヨウ素は比較的低温で分解すること、酸素や水の混入は有機ヨウ素への変換率を低下させることなども見出した。

ラジオアイソトープ製造と利用の研究では、1967年に30核種、41品目の精製ラジオアイソトープの製造を達成した。特に需要の伸びが著しかった $^{99}\text{Mo}$ 及び $^{99\text{m}}\text{Tc}$ については、核分裂法及び(n,  $\gamma$ )法の両法を用いる製造技術を開発した。さらに $^{14}\text{C}$ で標識した有害物質PCBの合成をはじめ、 $^3\text{H}$ 、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ などの標識化合物を合成し、所内外からの要求に応えた。JRR-3を利用して均一な放射線分布の $^{60}\text{Co}$ 線源、工業用非破壊検査や医療照射で用いる $^{192}\text{Ir}$ 線源などの製造技術、公害調査や産業用プラント内装荷物のインベントリ評価などのためのトレーサ技術、放射線応用計測技術、 $^{252}\text{Cf}$ 線源を用いる放射化分析や $^{192}\text{Ir}$ を線源とする非破壊検査などへのラジオアイソトープ利用技術の開発がこの時期に大いに進展した。

核化学の研究は1962年ごろから始まり、当初製造部（後にアイソトープ部）や化学部を中心に核分裂生成物の壊変に関する研究が行われた。その後核分裂生成物の電荷分布の系統的研究、ウランの陽子誘起核分裂における対称、非対称核分裂収率に関する研究、原子炉中性子を用いた二重中性子捕獲反応断面積の系統的研究などで成果が得られた。

昭和50年代（1975年）に入ると、核燃料サイクルの高度化と環境保全、核融合炉開発に関する化学の研究が活発になった。トリチウムの化学的挙動の解明や、原子炉一次冷却系内放射性腐食生成物（クラッド）の性状と生成抑制への取り組みが始まった。燃料の高温化学の研究でウラン、プルトニウム化合物の基礎物性と照射挙動の解明が進み、高レベル廃棄物の合成鉱物化の研究が行われた。分析の分野では核融合炉関連の燃料・材料分析法の開発が、ラジオアイソトープ製造の分野ではトリチウム製造技術の開発が進んだ。

この時期の主な成果は次の通りである。1976年にJRR-2で $^{249, 250, 252}\text{Cf}$ を照射して $^{253}\text{Es}$ の合成に成功した。原子炉水中でのトリチウム（T）の挙動を明らかにするとともに、二酸化ウランなど多くの物質中でのトリチウムの拡散係数を求めた。また、核融合炉用のトリチウムの大量製造ターゲットであるLi-Al合金中でのトリチウムの拡散係数は、わずか200 ppmのリチウムが存在するだけで一桁以上小さくなることを見出した。また、反跳作用で物質中に導入したトリチウムは、熱的に導入したそれより拡散係数が数桁小さくなることを検証し、その挙動を、“トリチウムはそれ自身が作った損傷内で構成元素と化学結合し、この損傷は熱エネルギーの伝播を阻害するため”とするホットゾーンモデルで説明した。さらに、黒鉛中のトリチウムの拡散係数は黒鉛の受ける照射損傷の程度とともに小さくなること、及びトリチウムは黒鉛の基底面間を拡散していることを実験的に証明した。

1981年以降、クラッドの性状及び問題となる $^{60}\text{Co}$ の配管表面への蓄積抑制法の開発を進めた。高温高圧ループやJMTRに設置した実験ループを用いて、ステンレス鋼（SUS-304）からのコバルトの溶出速度、放出量の測定、水中クラッドと付着クラッドの関係を調べ、コバルトと化学的性質が類似するニッケルや亜鉛を冷却材中に共存させ、 $^{60}\text{Co}$ の配管への付着を抑制する方法の開発につなげた。引き続き1982年からは原子炉解体技術の一環として、原子炉の除染に関する研究に着手した。JPDRの配管に付着したクラッドの性状を調べ、既存の除染法ではクロムの溶解対策が不十分であることを突き止めるとともに、最適な除染剤を探索して、硫酸-セリウム(IV)系化学除染プロセスを確立した。

ラジオアイソトープ製造の研究では、ウランの核分裂反応を利用する無担体 $^{99}\text{Mo}$ の製造技術の開発を続けた。また、核融合研究の始動に伴い、1976年からはトリチウム製造の研究に着手し、試験製造工場を利用して1988年ごろまでに40 TBq/バッチの製造技術を確立した。これによってトリチウム取り扱い技術の基盤を提供するとともに、ホットアトム効果の研究とあわせて所内外における放射化学的研究の発展に寄与した。



昭和60年代(1985年)には、原子炉事故時の放射性ヨウ素の挙動の把握、ステンレス表面へのトリチウムの吸着抑制法の開発、原子炉解体前化学除染法の開発などで成果をあげた。また、タンデム加速器を用いる超プルトニウム元素の合成実験が軌道にのり、新核種の合成とその核データの取得が進んだ。改造されたJRR-3Mでの即発 $\gamma$ 線分析法、赤外レーザーによる同位体分離法、再処理溶液中の放射性ヨウ素の除去法の開発で成果を挙げた。主な成果は次の通りである。

タンデム加速器を用いる超ウラン元素の研究では、 $^{238}\text{U}$ や $^{242}\text{Pu}$ ターゲットに重イオンを照射して100番元素フェルミウムの合成に成功した。この研究のために、鉍酸-アルコール系イオン交換法による迅速分離法を開発し、合成した超ウラン元素の溶液化学的研究は大いに進展した。これと前後してオンライン同位体分離器(ISOL)を使った短寿命核の壊変研究を開始した。 $^{32}\text{S} + \text{Mo}$ 反応で生成するランタノイド核種の分離を行い、 $^{121}\text{La}$ が半減期5.3秒で壊変する新核種であることを確認したのをはじめ、 $^{122-126}\text{La}$ の核構造及び娘核バリウムの崩壊図を完成し、核種間のエネルギー順位の系統性を見いだした。さらには、ガスジェット搬送装置とISOLを組み合わせた複合装置を開発し、 $^6\text{Li} + ^{233,235}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ 反応で生成する新核種 $^{233,236}\text{Am}$ ,  $^{237}\text{Cm}$ ,  $^{241}\text{Bk}$ を発見するとともに、 $^{238}\text{U}$ の陽子誘起核分裂で生成する新しいランタノイド核種 $^{159}\text{Pm}$ ,  $^{161,162}\text{Sm}$ ,  $^{165,166}\text{Gd}$ ,  $^{166,167,168}\text{Tb}$ の同定に成功し、これら核種の半減期を決定した。また高崎研TIARA施設に設置したISOLでは、タンデム加速器では合成困難な領域の未知核種の探索などを行い、 $^{125,127}\text{Pr}$ を発見した。核分裂に関する研究も大いに進展し、1990年から核分裂片の運動エネルギーと質量数を精度よく測定するための飛行時間同時測定装置を設置し、アクチノイドの陽子誘起核分裂研究を精力的に進め、アクチノイドの核分裂における二つの変形経路の存在を初めて実験的に検証した。これら重元素の核化学的研究は、その後強化されたタンデム加速器を用いて現在でも活発に続けられている。

また、アクチノイド分析法の研究では、カラム電極電解法により各種組成のウラン、ネプツニウム、プルトニウムイオンの酸化還元、不均化、錯形成などの反応データを取得し、それをもとにイオンの酸化状態別分析法、フロー系インライン分析法を開発した。また液々界面ボルタンメトリーを開発し、アクチノイドイオンの水相/有機相界面での促進イオン移動反応に対応した電流-電位曲線の測定に成功するとともに同反応に基づく電解イオン移動分離法を開発した。

材料表面でのトリチウムの吸着・脱着に関する研究では、トリチウムはステンレス鋼(SUS-316)表面で4つの異なったサイトに吸着し、全吸着量は $37\text{ GBq/m}^2$ 以上に達すること、鋼の表面処理により吸着量は大きく変化し、20時間不動態化処理すると約一桁減少することを見出した。さらにトリチウムで汚染したステンレス鋼の真空加熱-表面酸処理を組み合わせた除染法を提案し、実際にトリチウム製造装置配管の除染に適用した。

平成(1989年)になると、世界レベルに達したわが国の原子力の新展開を図る必要性が指摘され、将来の原子力革新のための新原理の構築や新現象の発見を目指す基礎研究の実施が内外から要請された。このような状況の中で原研における放射化学の研究は、超原子価分子や原子トンネル反応などの化学的研究、タンデム加速器を用いる超アクチノイドの核化学の研究、アクチノイドの溶液化学の研究、重元素と微生物との相互作用の研究、アクチノイドのメスバウアー分光法による研究などの基礎研究として発展することとなった。

超原子価結合の研究は、「 $\text{Li}_3\text{O}$ は、オクテット則に従って8個の原子価電子をもち安定に存在する酸化リチウム( $\text{Li}_2\text{O}$ )より形式的に過剰な原子価電子をもつにもかかわらず、熱力学的により安定である」ことを発見した1978年の成果に端を発するが、平成年代(1989年)に入って同分野の研究が進展した。 $\text{ClLi}_6$ ,  $\text{Li}_4\text{O}$ ,  $\text{Li}_2\text{F}$ ,  $\text{Li}_4\text{S}$ ,  $\text{Li}_4\text{P}$ ,  $\text{Li}_2\text{CN}$ などの多くの超原子価分子(超リチウ

ム化分子)の存在を確認し、熱力学データの取得と非経験的分子軌道法による理論計算によって、分子構造と電子状態を解明した。さらにレーザーアブレーションによる超原子化分子及びクラスターの創製と分光学的な研究に発展した。

アクチノイドのメスバウアー分光法の研究では、アクチノイドの化学的特性に大きな影響をもつ5f電子の働きを解明するため、 $^{241}\text{Am}$ 金属を線源とするメスバウアー分光装置を開発整備するとともに、これを用いて各種錯体中におけるネプツニウムの化学状態、配位状態及び磁性に関する体系的なデータを取得した。

超アクチノイドの核化学の研究では、わが国ではじめてラザホージウム(原子番号104)とドブニウム(原子番号105)の合成に成功した。さらに1分間に2原子の割合で生成する半減期78秒の $^{261}\text{Rf}$ を対象に、迅速イオン交換分離装置を用いてその化学的挙動を調べた。ラザホージウムが周期表第4族に属する元素であることを実証するとともに、周期表の同族元素(Zr, Hf)の挙動との間に明確な違いを見出した。

アクチノイドの溶液化学的研究では、超臨界二酸化炭素を抽出媒体として用い、水溶液中あるいは固体中からウラン、プルトニウムなどを効率よく抽出分離する新しい方法を開発した。また、レーザー誘起蛍光分光法などを駆使して、各種溶液中でのウラン、アメリシウム、キュリウム、ランタノイドなどのイオンの配位状態、酸化状態に関する基礎データを取得し、同イオンの溶液化学挙動の解明につなげた。

これらの先端的基礎研究と並行して、レーザー照射による選択的結合解離に基づく反応経路制御法の探索と同原理に基づく同位体分離の研究、新規なアクチノイドなどの溶媒抽出分離系や新抽出剤の合成が開始された。また1999年度からは環境中の物質循環の解明及び環境負荷低減技術の開発を行っている。2001年にはクリーンルーム施設を備えた高度環境分析研究棟(CLEAR)を完成させ、原子力の平和利用のために、保障措置環境試料に関する極微量分析技術の開発や包括的核実験禁止条約(CTBT)に関する放射性核種分析技術の開発を進めている。

バックエンドに関連する分析として、JPDRの解体に伴い発生した廃棄物のうち、放射能レベルが極めて低い生体遮蔽コンクリートを主対象として、測定が困難な $\beta$ 線、低エネルギーX線放出長寿命核種( $^{41}\text{Ca}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{63}\text{Ni}$ )の分析法の開発を進めた。さらに環境試料分析では、大気浮遊粒子状物質(SPM)の分析法開発を進め、二次イオン質量分析法による個々の鉛粒子の同位体比測定法を開発し、SPMには起源が異なる鉛粒子が存在することを明らかにした。また、放射化分析や即発 $\gamma$ 線分析法(PGA)をベルシャ湾岸戦争後の原油や海洋土壌などをはじめとして、岩石、文化財、生体試料など様々な物質に適用して有用な非破壊多元素同時定量法として確立した。特にPGAによる血液中のホウ素定量法は、JRR-4における脳腫瘍のホウ素中性子捕捉療法に欠かせない手法になっている。

以上、旧原研における放射化学の長い歴史のなかの特に目立った成果についてまとめた。しかし本稿に記載した以外にも、再処理プロセスに関する化学の研究、放射性廃棄物の地層処分に関連する環境中でのアクチノイドや核分裂生成物の挙動解明のための研究、原子炉水の放射線分解挙動の解明に関する研究など、貴重な成果が多数ある。紙面の都合でこれらの詳細は割愛したが、別の資料(「原研四十年史」,「日本原子力研究所史」など)を参照されたい。

## (2) 旧核燃料サイクル開発機構(サイクル機構)

旧核燃料サイクル開発機構(サイクル機構:1998年設立)及びその前身である旧動力炉・核燃料開発事業団(動燃:1967年発足)における放射化学的な研究開発は、再処理、地層処分、環境

監視などの部署で進められてきた。これらの部署においては定常業務の一環として、また、研究開発課題として取り組んでいる。

再処理プロセスでは、ウランやプルトニウムはもとより、主要な核分裂生成核種についても濃度変動を迅速に検知する必要がある。最新の分析技術を採用して分析作業の迅速化と省力化を図るにしても、分析試料が高い放射能を有するため、試料をセル内などにおいて遠隔操作により取り扱わなければならない。そのための装置の開発や測定条件の最適化などの技術開発を行ってきた。開発してきたものの一つがK吸収端分析装置であり、X線発生管と検出器及び試料セルを鉄製の遮へいセル内に設置する型のものである。また、工程によっては核分裂生成物濃度が低く燃料溶液に濁りが少ないことから、ウランやプルトニウム及び酸濃度をリアルタイムに測定する方法としてインライン光吸収セルと光ファイバーを用いた吸光光度分析装置を開発した。

地層処分では、地下水の流動や地球科学に関する研究や岩盤中での物質の移行に関する研究などの地層科学的研究を進めている。地層処分研究施設のひとつである地層処分放射化学研究施設(QUALITY)において、低酸素不活性雰囲気中で放射性同位元素を使用して、(i)地下水への核種溶解度試験、(ii)人口バリア中の核種の吸着・拡散試験、(iii)天然バリア中の核種移行試験を計画・実施している。

環境監視業務のうち、特に再処理工場からの気体及び液体廃棄物の放出については、その重要性に鑑み、法令においても環境モニタリングの実施が定められている。環境監視に万全を期す観点から定常の環境放射線(能)の監視体制の整備と並行して、環境放射線の分析手法の開発を進めてきた。主な分析法としては、(a)大気中<sup>85</sup>Kr分析法、(b)大気中トリチウムの化学形態別捕集分析法、(c)中性子放射化分析法による環境試料中極低レベル<sup>129</sup>I分析法、(d)プルトニウム-アメリカシウム系の系統分析法などである。これらの分析法は、文部科学省の分析マニュアルとして採用されたものも多い。なお、再処理施設周辺環境放射線(能)モニタリング結果は原子力安全委員会の専門部会及び茨城県の環境放射線監視委員会に毎年度報告され、審議を受けている。

以上、旧動燃及び旧サイクル機構において実施されてきた放射化学に関連する研究開発を簡単に紹介した。本稿以外にも採鉱や核燃料分野も含め、幅広い核燃料サイクルの輪の中で放射化学的研究開発が行われており、詳細は、「動燃三十年史」、「核燃料サイクル開発機構史」などを参照されたい。

### 3.3 大学共同利用機関法人 高エネルギー加速器研究機構

(藤原 一郎)

ここでは高エネルギー物理学研究所の設立初期の頃の研究の様子を省み、その後の加速器の研究については5.9節と5.15節で述べられる。

1971年にKEK(高エネルギー物理学研究所)は設立された。その後、2004年に高エネルギー加速器研究機構と改められた。陽子加速器(PS)が8GeVまでの加速に成功したのは1976年であった。ヨーロッパやアメリカではまずCERNで1959年にCPSで、28GeVの加速が行なわれたのに続いてさらに高いエネルギーの加速器が建設され粒子物理、核物理とともに核化学の研究も盛んに行なわれていた。KEK建設のグループから働きかけがあって核化学のグループもKEKでの研究を開始することになった、1971年ごろから阪大理音清輝研究室と京大工研西朋太研究室が共同で高エネルギー核化学研究の準備をはじめ文献を調査し、どのような研究がKEKで可能で意義があるかかの検討を進めた。其のころは大学紛争の時代で騒然とした雰囲気の中で

阪大や京大に交互に集まって研究会を行なったことを記憶している。さらに KEK でのビームコースや測定装置の準備の作業にも参加した。1977年 PS による共同利用実験が開始された。わが国には高エネルギーの加速器は存在しなかったため高エネルギー核化学の経験は持っていなかった。欧米では既に非常に高いエネルギーの陽子での原子核の照射が行なわれ、spallation や fragmentation の反応収率なども測定され two-step model の計算との比較も行なわれていた。それに比べて 8GeV ではエネルギーが低いので同じような研究を行なっても余り特徴が無いと考えた。 $\pi^-$  と複雑な原子核との核反応はそれ程研究されていなかったため、 $^{51}\text{V}$  を標的として 0.87GeV  $\pi^-$  で照射して spallation, fragmentation の生成物を放射化学的に測定した。ビーム強度は  $2 \times 10^4/\text{s}$  と非常に少ないので、厚みの大きいターゲットを使用した大量のターゲット物質からの微弱な生成物の化学分離や測定は大変な労力が必要であった<sup>1)</sup>。その後 3.36GeV の  $\pi^-$  での照射を行なった<sup>2)</sup>。2つのエネルギーでの結果は良く一致していて、two-step model のモンテカルロ計算でよく再現され、3GeV の陽子の実験結果とほとんど変わりがなかった。次に、より複雑な原子核の例として  $^{209}\text{Bi}$  の 0.87GeV  $\pi^-$  照射の実験を行ない、spallation と fission の生成物の収率を測定した。Spallation の収率は陽子のものとだいたい良く一致したが、two-step model の計算とは一致しないところがあった。核分裂反応は 1GeV の陽子と比べてかなり小さかった<sup>3)</sup>。さらに  $\pi^-$  のエネルギーが可変であることを利用して  $^9\text{Be}$ ,  $^{12}\text{C}$  及び  $^{19}\text{F}$  のような複雑な原子核の 0.4 ~ 1.9GeV のエネルギー範囲での励起関数をもとめた。(3, 3) 共鳴を始めとして、核子と中間子の間の共鳴構造の影響が強く残っていることがわかった<sup>4) 5)</sup>。少し変わった研究としてセルローズナイトレートの固体飛跡検出器を用いて  $^9\text{Be}$  ( $\pi^-, \pi^- n$ )  $^8\text{Be}$  の  $^8\text{Be}$  の飛跡とそれが停止して 2 個の  $\alpha$  粒子になって出来るハンマートラックを検出してこの反応のメカニズムを研究している例がある。宇宙線の研究に良く用いられた核乾板以来の伝統を引くやり方といえる<sup>6) 7)</sup>。低エネルギーの  $\pi^-$  が運動エネルギーを失った状態で原子に捕らえられ中間子原子の軌道をカスケードダウンして最低の軌道から強い相互作用で原子核に捕らえられる X 線を計測することにより中間子 X 線の収率、ライン巾、エネルギーシフト、ライフタイムなどの基本的な情報を得た。これらの物理量への化学状態の影響を調べて、それら情報の物理化学、核化学、化学分析、分子化学などの化学研究への利用、その他工学的、医学的応用の可能性を探る研究を始めることにした。負中間子原子のうちミューオンックアトムからの X 線については諸外国で高エネルギー加速器でのデータが集積され、化学効果についての議論がされていた。しかし、パイオニックアトムからの X 線についてはビーム中の  $\pi^- \mu^-$  のクロスコンタミネーションの評価に伴う実験的困難や、パイ中間子の受ける強い相互作用である核力の影響によるライン巾の変化やエネルギーシフトなどの問題があり、研究例が少なかった。KEK の  $\pi^- \mu^-$  コースは 12GeV 陽子シンクロトロン K2 ビームラインの  $\pi^-$  コンバーターターゲットにより発生された 250MeV  $\pi^-$  を導いてくるビームコースで東大理学部山崎・中井グループにより 1979 年度に整備された<sup>8)</sup>。 $\pi^-$  が  $\mu^-$  の汚染の少ない良質のビームとして得られ、充分パイオニック X 線の研究に使用できることを確かめたので、この分野の研究を進めることにした<sup>9)</sup>。東北大理の吉原賢二などの  $\text{MnO}_2$  と、 $\text{Mn}_2\text{O}$  や  $\text{As}_2\text{O}_5$  と  $\text{As}_2\text{O}_3$  の間のパイオニック X 線の測定結果からの議論<sup>10), 11)</sup>、京大原研今西信嗣などのホウ化ベリリウム、ホウ化クロムの組成を異にする多くの化合物でパイオニック X 線の測定を行いそれぞれの組成に相当する混合物と比較して分子構造の影響を議論している<sup>12), 13)</sup>。

#### KEK における核化学事始の文献

- 1) 第 22 回放射化学討論会 (B04) 0.87GeV  $\pi^-$   $^{51}\text{V}$  の spallation 及び fragmentation の断面積 (京

- 大原研) 西朋太, 藤原一郎, 今西信嗣, 森山祐丈 (阪大理) 音在清輝 荒川隆一, 齊藤直  
常吉俊宏 高橋成人 (京大原子炉) 林茂樹 (都立大理) 工藤久明
- 2) 第23回放射化学討論会 (3A06) 0.67 及び 3.36 GeV  $\pi^-$  による破砕反応の断面積 (京大原研, 阪大理, 東大核研, 都立大理, 京大原子炉, 京大工, 東大物性研) 西朋太, 藤原一郎, 今西信嗣, 音在清輝, 荒川隆一, 齊藤直, 常吉俊宏, 高橋成人, 柴田誠一, 工藤久明, 林茂樹, 守山祐丈, 吉田邦夫
  - 3) Bulletin of the Institute for Chemical Research, Kyoto University Vol.60, No2, 1982.  
Negative Pion induced Reaction in Bismuth at 0.87 GeV Kyoteru Otozai, Ryuichi Arakawa, Tadaki Saitou, Toshihiro Tuneyoshi, Narito Takahashi, Shiro Iwata, Shigeki Hyashi, Seiichi Shibata, Hisaki Kudo and Kunio Yoshida
  - 4) 第23回放射化学討論会 (3A06) 0.4 ~ 1.9 GeV エネルギー領域での  ${}^9\text{Be}$ ,  ${}^{12}\text{C}$  と  ${}^{19}\text{F}$  核負パイオン励起核反応の断面積 (京大原研, 阪大理, 東大核研, 都立大理, 京大原子炉, 京大工, 東大物性研 (西朋太, 藤原一郎, 今西信嗣, 音在清輝, 荒川隆一, 齊藤直, 高橋成人, 柴田誠一, 工藤久明, 林茂樹, 森山祐丈, 吉田邦夫
  - 5) Nuclear Physics A352 (1981) 461-476, Cross Section of Negative-Pion-Induced. Reactions in  ${}^9\text{Be}$ ,  ${}^{12}\text{C}$  and  ${}^{19}\text{F}$  Nuclei between 0.4 and 1.9 GeV. T. Nishi, I. Fujiwara, N. Imanishi, H. Moriyama, K. Otozai, R. Arakawa, T. Saito, T. Tsuneyoshi, N. Takahashi, S. Iwata, S. Hayashi, S. Shibata, H. Kudo and K. Yoshida
  - 6) 第22回放射化学討論会 (1B04) セルローズ ナイトレート track Detector による  ${}^9\text{Be}$  ( $\pi^-, \pi^-n$ )  ${}^8\text{Be}$  反応の研究 (京大原子炉) 林茂樹, 岩田志郎
  - 7) 第24回放射化学討論会 (1A07) 固体飛跡検出器による  ${}^9\text{Be}$  ( $\pi^-, \pi^-n$ )  ${}^8\text{Be}$  における  ${}^8\text{Li}$  の角度分布の研究 (京大原子炉) 林茂樹, 岩田志郎
  - 8) T. A. Shibata et al. KEK Preprint 80-8 August 1980, Nucl. Instrum. Meth., 179, 67 (1981).
  - 9) 第27回放射化学討論会 (2A10) 負パイ中間子原子からの X線の測定 (京大原子炉, 京大原研, 東北大理, 阪大理, 理研, 東大理総研) 岩田志郎, 藤原一郎, 今西信嗣, 古谷俊直, 吉原賢二, 鍛冶東海, 関根勉, 八木功, 村野宣史, 岡本隆文, 篠原厚, 林茂樹, 伊藤泰男, 島邦祐
  - 10) 第27回放射化学討論会 (2A11)  $\text{MnO}_2$ ,  $\text{MnO}$  の pionic X線 (東北大理, 京大原研, 京大原子炉) 鍛冶東海, 吉原賢二, 関根勉, 野村宣史, 八木功, 今西信嗣, 岩田志郎
  - 11) 第27回放射化学討論会 (2A12)  $\text{As}_2\text{O}_5$ ,  $\text{As}_2\text{O}_3$  の pionic X線 (東北大理, 京大原研, 京大原子炉) 吉原賢二, 鍛冶東海, 関根勉, 今西信嗣, 岩田志郎
  - 12) 第27回放射化学討論会 (2A13) パイ中間子原子と化学構造-1 (ほう化ベリリウム) (京大原研, 阪大理, 東北大理, 京大原子炉) 今西信嗣, 藤原一郎, 古谷俊直, 福村卓也, 大橋成介, 岩崎又衛, 篠原厚, 横山明彦, 鍛冶東海, 岩田志郎
  - 13) 第27回放射化学討論会 (2A14) パイ中間子原子と分子構造-2 (ほう化クロム) (京大原研, 阪大理, 東北大理, 京大原子炉) 今西信嗣, 藤原一郎, 古谷俊直, 福村卓也, 大橋成介, 岩崎又衛, 篠原厚, 横山明彦, 鍛冶東海, 岩田志郎

### 3.4 独立行政法人 産業技術総合研究所

(金井 豊)

産業技術総合研究所では, 2001年4月に独立行政法人となる前は工業技術院傘下の15研究所

として我が国の鉱工業・産業技術の発展・資源エネルギーの確保などに貢献し、各研究所の特性を生かした研究項目の中で放射化学に関連した研究がなされ、独法後にはフラットに組織替えしたユニットにて継続されている。ここではそれらの一部を紹介する。

工技院時代の電子技術総合研究所の前身、電気試験所では、ウラン精錬などを研究していた部署があり、1957年の日本工業技術展にウラン、トリウム、ベリリウムを出展したとの記録がある。その後、原研さらに放医研の発足時に多くの研究者が移動しており、現在では放射線や放射能の標準確立と供給に関する研究が行われている。

当時の繊維高分子材料研究所では、1980年に共同利用施設として $^{60}\text{Co}$  (110 TBq) の照射施設が設置され、主に機能性材料の開発研究に利用されてきた。水溶性高分子の水溶液に $\gamma$ 線を照射することにより、生体適合性人工硝子体や生分解性高吸水性ハイドロゲル、温度変化により膨潤・収縮を繰り返す感熱性ゲルなど、通常の化学反応では得られない機能性材料が開発されてきた。また、あるモノマーの結晶に照射すると高度に配向した $\pi$ 電子共役高分子結晶を得ることができ、非常に大きな非線形効果が得られることを解明し、高機能材料を簡便に合成できることを明らかにしてきた。

また、化学技術研究所では1990年ごろからアイソトープを用いた陽電子消滅実験が開始され、ポジトロニウム形成の基礎研究とともに高分子材料の自由体積や薄膜中のナノ空孔分析への応用が行われた。後者の研究は現在も継続されている。新規磁性材料開発を目指して、Fe/EuOx ナノ多層膜を作製し、自然界に約2%含まれる $^{57}\text{Fe}$ 及び約50%含まれる $^{151}\text{Eu}$ 安定同位元素を利用して、各々 $^{57}\text{Co}$ 、 $^{151}\text{Sm}$ 密封放射線源を用いたメスbauer分光法で磁性研究が行われた。その結果、Fe/EuOの反強磁性界面磁気結合やFe/Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>界面歪み効果によるとと思われるFeの垂直磁気異方性などの新規物性が見いだされた。

$^{57}\text{Fe}$ メスbauer分光法に関しては、当時の繊維高分子材料研究所時代から分子性磁性体、スピントロニクスオーバー錯体、混合原子価化合物などの機能性金属錯体についての研究が行なわれた。すなわち、各種の架橋配位子を有する集積型金属錯体が冷却によってバルクの秩序磁性体(磁石)に転移することを確証し、また、オキサト架橋構造を有する混合金属二次元錯体において、含有金属イオンの磁気異方性を利用して自発磁化方向の制御に成功した。また、複数の鉄サイトを有するため複雑な磁気挙動を示すスピントロニクスオーバー錯体について、サイト毎の低スピン/高スピン比を求めて転移メカニズムを解明した。更に、混合原子価二核フェロセン類の平面型有機ドナー塩における原子価の平均化、金属酵素活性中心モデル錯体の構造・電子状態、などについて研究を行っている。

ウランについては、海水からのウラン吸着・回収技術に関する研究などが四国工業技術研究所で、存在挙動については地質調査所などで行われていた。

地質調査所では、地質調査と資源調査研究の一環として1950年代に全国のウラン調査が行われ、ウラン研究には多くの研究者が関与した。人形峠ウラン鉱床が発見されると一部研究者は原子燃料公社(動燃の前身)へと移動した。その後のウラン鉱床研究は一部で継続された。当時の技術部化学課では岩石や堆積物のウラン分析法の研究を進め、温泉水や河川水・地下水中のラジウム・ラドン研究は地震予知研究へと進展して地震化学課が新設された。環境中放射性核種の化学的挙動の研究としては、地質試料中のウラン系列核種( $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ )や $^{137}\text{Cs}$ に注目して、堆積物の続成・風化作用の解明、岩石・水反応、堆積速度の研究などが行われている。放射線利用研究としては、地表における元素分布を表す地球化学図のプロジェクトにおいて放射化分析システムを導入して、希土類元素などの微量元素を用いた地球化学研究に応用

している。放射線照射利用による ESR 年代測定法の研究や、K-Ar 年代測定及び変質した火山岩試料でも年代測定可能とする Ar-Ar 年代測定法の研究を進めている。また、中国から飛来する風送ダストやウラン濃集地質試料などを対象として高エネルギー加速器研究機構の放射光を利用する XANES, EXAFS 分析法などで元素の存在状態を解明する研究、地層処分に係る地質情報データ整備に関連したウラン・希土類元素のナチュラルアナログ研究やウラン研究も大学などと共同で行われている。

### 3.5 東京大学原子核研究所

(柴田 誠一)

東京大学原子核研究所(東大核研)は昭和 30 (1955) 年 7 月に設置され、翌年の昭和 31 (1956) 年 4 月に低エネルギー部、高エネルギー部、宇宙線 A 部、宇宙線 B 部、理論部の 5 研究部の研究組織がスタートした。そして、昭和 32 (1957) 年 5 月に放射性同位元素取扱室(通称 RI 室)が竣工し、同年 9 月の FF サイクロトロン、翌昭和 33 (1958) 年 5 月の FM サイクロトロンの完成に合わせて、化学室としての研究活動が始まった。当時、化学室は低エネルギー部に含まれていた。

以下に研究活動の概要を化学室関係者の異動を含めて記す。

昭和 31 (1956) 年 斎藤一夫助教授 着任

昭和 31 (1956) 年 田中重男助手 着任

昭和 31 (1956) 年 槌本道子技官 着任

昭和 33 (1958) 年 古川路明助手 着任

#### (1) 核構造研究用 RI 線源調製

$\beta$  線スペクトロメータおよび角度相関測定用  $\gamma$ - $\gamma$  同時計数装置などによる原子核構造の研究のために必要な各種 RI 線源の調製が行われた。サイクロトロン照射により生成する目的元素をターゲット元素および他の妨害元素から化学的に分離する仕事である。この研究には多くの分析化学者が参加し、調製された RI は核構造の研究に用いられ多くの成果が得られた。またその RI をトレーサとして用い、化学分離法の改良も行われた。調製された RI は、昭和 38 (1963) 年までの 6 年間で 30 種類を超える。

斎藤一夫(東大核研)ほか、池田重良、井上康、斉藤誠、鈴木進、鈴木信男、瀬戸邦夫(東理大・理および東北大金研)ら多くの分析化学者が参加。

#### (2) 核反応の励起関数に関する核化学的研究

放射化法による中重核の陽子および  $\alpha$  粒子反応の励起関数の測定が系統的に行われた。各種中重核ターゲットをサイクロトロンの陽子又は  $\alpha$  粒子で照射し、生成核の放射能の絶対値を測定することにより反応断面積が求められた。昭和 37 (1962) 年以降は、 $^3\text{He}$  反応および核分裂の研究もなされた。これらの得られた励起関数は核反応の複合核理論の統計的計算と比較され、ターゲット核および核反応の種類並びに入射粒子エネルギーなどに関して統計理論の適合限界および直接反応の寄与などが論じられ、核反応機構の解明に対する多くの成果が得られた。測定された反応は 100 種にも達し、信頼できる核反応の基礎データとして重要な役割を果たしている。これらのデータは、宇宙科学、核医学などの分野でも広く利用されている。

田中重男, 古川路明 (東大核研), 岩田志郎 (阪大・理), 八木益夫 (静大・理), 天野恕 (東北大・理), 三雲昂 (東大核研), 井口明 (東邦大・理), 千葉実 (金材研), N. T. Porile (Brookhaven National Lab.), 音在清輝, 吉沢康和, 久米三四郎, 福島昭三, 坂本浩 (阪大・理), 西朋太, 藤原一郎 (京大工研), 夏目晴夫, 梅沢弘一, 馬場宏, 鈴木敏夫, 佐藤忠 (原研), 中原弘道 (新潟大・理), 黒田和夫 (Arkansas Univ.)

### (3) 錯体の同位体交換反応の研究

昭和 32 (1957) 年より昭和 39 (1964) 年までの間, サイクロトロンで製造した RI をトレーサとして, ガリウム, インジウム, タリウムの EDTA 錯塩に関する同位体交換反応の研究が行われ, 錯塩化学的に有用な知見が得られた。

斎藤一夫, 槌本道子 (東大核研)

### (4) シリコン半導体材料の酸素による表面汚染の研究

昭和 36 (1961) 年より昭和 38 (1963) 年の間, シリコンの酸素による表面汚染を研究する有効な手段としてサイクロトロンからの  $\alpha$  粒子による放射化分析法が開発された。

野崎正 (電通研), 斎藤一夫, 田中重男, 古川路明 (東大核研), 鄭華生 (清華大)

昭和 35 (1960) 年より昭和 39 (1964) 年までの間, 宇宙線部との共同で, いくつかの新しい試みがなされた。

### (5) $^{14}\text{C}$ による宇宙線経年変化の研究

樹齢 2000 年の屋久杉の各年輪中の  $^{14}\text{C}$  比放射能を測定することにより, 過去 2000 年にわたる宇宙線の変動が研究された。その結果観測された  $^{14}\text{C}$  の変動は過去の地磁気の変動による宇宙線強度の変化に対応することがわかった。木材年輪の測定による  $^{14}\text{C}$  の経年変化はその後 7000 年までさかのぼって測定されている。

木越邦彦, 長谷川博一, 山越和雄 (学習院大・理), 小田稔, 柴田進吉, 斎藤一夫 (東大核研)

### (6) 有機蛍光体セキシフェニールの合成

シンチレーション検出器の高エネルギー粒子に対する感度を増すためにクォータフェニールよりさらに重いセキシフェニール検出器の開発がなされたが, 実用には至らなかった。

斎藤一夫, 槌本道子, 菅浩一 (東大核研), 野崎正 (電通研), 福井崇時 (名大・理)

昭和 38 (1963) 年 斎藤一夫助教授 東北大学へ転出

昭和 38 (1963) 年 古川路明助手 東京大学理学部へ配置換

昭和 38 (1963) 年 槌本道子助手 配置換

昭和 38 (1963) 年より昭和 43 (1968) 年まで, 低エネルギー部の同位体室に所属していた増田彰正により, 次の研究が行われた。

### (7) 希土類元素の地球化学的研究

希土類元素の存在度パターンにより地殻とマンツルの成因機構を論ずる新しい説が提唱された。

昭和 39 (1964) 年 坂本 浩助手 着任

昭和 39 (1964) 年 井上照夫技官 着任

昭和 40 (1965) 年 高木仁三郎助手 着任



昭和 39 (1964) 年より (5) の延長として、地球物質と宇宙線の反応によってできる長寿命放射性核種で  $10^6 - 10^7$  年にわたる宇宙線の歴史あるいは地球物質の歴史を探ることのできる核種の探索が始められた。これらの天然長寿命核種は極めて微量にしか存在しないため、高感度の低レベル放射能測定装置の開発が要求される。昭和 41 (1966) 年より、その前年に完成した鋸山の微弱放射能測定施設に各種低レベル放射線計数測定装置が設置され、以下の研究が行われた。

#### (8) 宇宙線ミュー粒子でできる岩石中の $^{26}\text{Al}$ の研究

約 100 kg の硅岩から化学的にアルミニウムを分離し、その中の  $^{26}\text{Al}$  の比放射能が測定された。その結果、宇宙線の過去数百万年にわたる積分強度は現在の強度と変わらないことが指摘された。また、試料採取地点の浸食速度が推定された。

田中重男, 坂本浩, 高木仁三郎, 榎本道子, 野中到 (東大核研), W. Hampel (Max-Planck, Heidelberg)

昭和 44 (1969) 年 高木仁三郎助手 東京都立大学へ転出

昭和 44 (1969) 年 小村和久助手 着任

昭和 44 (1969) 年 田口康夫技官 着任

#### (9) 長寿命放射性核種の核反応断面積および崩壊形式の研究

宇宙塵, 隕石, 月, 地球, 惑星など宇宙空間物質中の長寿命放射性核種の生成, 崩壊の研究に必要な基礎核データが各種加速器と低レベル放射能測定装置を併用して測定された。

古川路明, 志津里公子 (名大・理), 小村和久, 坂本浩, 田中重男, 榎本道子 (東大核研), 高木仁三郎 (都立大・理)

昭和 47 (1972) 年 坂本 浩助手 金沢大学へ転出

昭和 47 (1972) 年 田口康夫技官 辞職

昭和 48 (1973) 年 今村峯雄助手 着任

#### (10) 月面試料中の $^{26}\text{Al}$ および $^{53}\text{Mn}$ の研究

太陽および銀河宇宙線と月面物質との核反応でできる長寿命核  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{53}\text{Mn}$  の岩石および砂中の深度分布が測定解析された。その結果、過去  $10^6 - 10^7$  年にわたる太陽活動および宇宙線強度は平均として最近 200 年間あまり変化していないことが立証された。また岩石の浸食速度, 砂の乱れなどに関する知見も得られた。

今村峯雄, 小村和久, 田中重男 (東大核研), 西泉邦彦 (東大物性研), 坂本浩 (金沢大・理)

#### (11) 地球外物質の地球への降下量に関する研究

深海底堆積物中の  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{53}\text{Mn}$  を測定することにより宇宙塵の地球降下量の推定が行われた。その結果によれば、年間約 1 万トンの降下量で実験結果が説明される。

田中重男, 榎本道子, 井上照夫, 今村峯雄 (東大核研), 坂本浩 (金沢大・理), 高木仁三郎 (都立大・理), J-L Reyss, 横山祐之 (CNRS-CEA, France)

#### (12) $^{10}\text{Be}$ による海底堆積年代決定法の研究

深海底堆積物コア中の  $^{10}\text{Be}$  比放射能の深度分布が測定され、古地磁気変動の測定で堆積速度が見かけ上一定に見えても各反転時期間の堆積速度が激しく変わっていることが発見された。そ

の原因が過去の火山活動などの地球物理的変動を反映するものと提案され、この $^{10}\text{Be}$ 法が過去数百万年の火山活動などの編年に使用できることが示唆された。この研究において、低エネルギー部の藤田雄三により開発された極低レベル $\beta$ 線の高感度測定のためのニードルカウンタが用いられた。

この研究において得られた一連の $^{10}\text{Be}$ の定量結果は、その測定感度、精度とも、加速器質量分析法が開発される以前では、他の追隨を許さず、各国の研究者により広く引用された。

田中重男、井上照夫、田口康夫、今村峯雄、柳田昭平（東大核研）、陳炳耀（清華大）

昭和 51（1976）年 小村和久助手 金沢大学へ転出

昭和 51（1976）年 柴田誠一助手 着任

### （13）加速器質量分析法の開発研究

加速器質量分析法は、放射線測定法に代わる長半減期核種の超高感度測定法として昭和 52（1977）年に提案された研究手法であり、この提案の後すぐに東京大学原子力研究総合センターのタンデム加速器を用いて開発研究が開始された。この開発に際しては、地震による2年間の運転停止などの困難もあったが内部ビームモニター法による高精度分析法の開発に成功し、 $^{10}\text{Be}$ 、 $^{14}\text{C}$ 、 $^{26}\text{Al}$ の高精度測定を達成した。この方法により、これらの核種を生成する核反応の生成断面積の測定、宇宙線生成核種の生成率に関する研究等が行われた。

今村峯雄、田中重男、井上照夫、柴田誠一（東大核研）、吉田邦夫、永井尚生、本田雅健（東大物性研）、橋本淑夫、山根功、山下博（東大原セ）、小林紘一（九大・理）

昭和 57（1982）年 田中重男助教授 逝去

昭和 58（1983）年 井上照夫技官 辞職

昭和 60（1985）年 佐藤信吾技官 着任

昭和 60（1985）年に、研究組織が改組され、5研究部、1研究室（核物理部、中間エネルギー物理部、高エネルギー物理部、理論物理部、加速器部、学際研究室）体制となった。化学室は放射線管理室と合同し、研究面では学際研究室として、管理面では放射線安全管理室として発足した。またこの年、鋸山微弱放射能測定施設が東京大学宇宙線研究所に移管された。以下には、学際研究室発足後に行われた核化学・放射化学関連研究を記す。

### （14）準単色中性子による核反応断面積の測定

SFサイクロトロンに準単色中性子ビームコース（当初は、陽子-ベリリウムターゲットシステムで生成した中性子を利用、その後陽子-リチウムターゲットシステムに更新）が設置され、中性子エネルギー 40 MeV までの核反応断面積が酸素からビスマスに至る各種元素をターゲットとして、放射化法により測定された。 $^{10}\text{Be}$ 、 $^{14}\text{C}$ 、 $^{26}\text{Al}$ などの長寿命核種については、東京大学原子力研究総合センターのタンデム加速器を用いた加速器質量分析法により測定され、宇宙化学的にも有用なデータが得られた。

今村峯雄、上蓑義朋、中村尚司、柴田誠一、大久保徹、佐藤信吾（東大核研）、永井尚生、本田雅健（日大・文理）、小林紘一（東大原セ）

### （15）高エネルギー光核反応の放射化学的研究

高エネルギー光核反応では、入射光子と核内核子との相互作用により  $\Delta$  アイソバーが生成する。この  $\Delta$  アイソバーはただちに核子と  $\pi$  中間子に崩壊し、この二つの粒子によりカスケード過程が引き起こされ、その後の蒸発過程を経て、最終生成核が得られる。ハドロンによる高エネルギーの核反応と比較すると、この反応開始の初期過程は明らかに異なっている。この初期過程の違いが最終反応生成核種の分布に、どのような影響を与えるかを目的の一つとして、電子シンクロトロンからの制動放射線を用いて実験が行われた。この研究は、その後、光核反応に特徴的な  $\pi$ -放出反応、光核分裂、光フラグメンテーションの研究へと発展した。

柴田誠一, 今村峯雄 (東大核研), 坂本浩, 浜島靖典, S. R. Sarkar, 大浦泰嗣, 羽場宏光, 松村宏 (金沢大・理), 藤原一郎 (追手門学院大), 古川路明 (名大・理)

#### (16) Langmuir-Blodgett 法による $\beta$ 線源調製

ニュートリノの質量はゼロかあるいは非常に小さいとされているが、1980年に旧ソ連のグループにより、トリチウムの  $\beta$  崩壊を用いて、ニュートリノの質量に対し  $14\text{eV} < m_\nu < 46\text{eV}$  と初めて下限値が報告された。この結果を受けて、東大核研でも、高エネルギー部、低エネルギー部、学際研究室のメンバーからなる研究グループが結成された。そして、この結果を検証するために、空芯  $\beta$  線分析器を用いたトリチウムの  $\beta$  崩壊によるニュートリノ質量測定の実験が開始され、その  $\beta$  線源調製を担当した。この実験では、高分解能を得るために均一性がよく、エネルギー損失の影響が少ない線源が必要とされ、かつ統計精度を上げるため高放射能線源が必要とされた。この相矛盾する要求を満足させるため Langmuir-Blodgett 法により大面積で非常に薄いアラキジン酸カドミウムの2分子膜線源の調製に成功した。最終結果として、旧ソ連のグループの下限値を否定する  $m_\nu < 13\text{eV}$  が得られた。

柴田誠一, 川上宏金, 大島隆義, 鶴飼熊太郎 (東大核研), 羽賀勝彦 (東北大・理), 庄司善彦, 鈴木健, 内藤富士雄, 永淵照康 (東工大・理), 繁田正昭 (神戸大・理), 野川憲夫 (東大 RI セ), 岩橋楨夫 (北里大)

また、この実験終了後、 $^{63}\text{Ni}$  の  $\beta$  崩壊を利用して、 $17\text{keV}$  の重ニュートリノが存在するかどうかの検証実験が空芯  $\beta$  線分析器を用いて行われ、電着法により  $^{63}\text{Ni}$  線源を調製した。そして、 $17\text{keV}$  の重ニュートリノの存在を明確に否定する結果が得られた。

柴田誠一, 川上宏金, 鶴飼熊太郎 (東大核研), 大島隆義 (高エネ研)

これらの実験には、多くのメンバーが参加したが、ここでは線源調製にかかわったメンバーのみを記載した。

#### (17) 常温核融合の検証実験

平成元 (1989) 年、常温核融合の可能性が発表された。この実験では低バックグラウンド中性子の明確な検出が重要であり、この検証実験のために、低バックグラウンド  $^3\text{He}$  中性子検出装置を鋸山微弱放射能測定施設内に設置し、重水の電気分解の際に放出されるはずの中性子の測定を行った。この測定はバックグラウンドの測定と平行して行われたが、有意の中性子発生は観測されず、常温核融合を否定する結果となった。

柴田徳思, 上叢義朋, 今村峯雄, 柴田誠一, 大久保徹, 佐藤信吾 (東大核研)

#### (18) 原爆速中性子により生成した $^{63}\text{Ni}$ の測定

平成3 (1991) 年の FM/FF サイクロトロン撤去に際し、サイクロトロンの各部における残留放射能の測定を行った。(FM サイクロトロンの最後の運転は、1981年12月の金沢大・坂本グループの RI 製造実験であった。) この時、銅の速中性子反応で生成する  $^{63}\text{Ni}$  が、化学的に分離、精製されたニッケル試料から、液体シンチレーション法により測定された。この時に開発された

化学分離、測定法を、原爆の速中性子により銅試料中に生成した<sup>63</sup>Niの測定に応用した。原爆の速中性子による生成核種の測定は、原爆投下直後に測定された<sup>32</sup>Pのデータのみであり、他はすべて熱中性子による生成核種の結果であった。原爆の中性子線量については、実験と計算による評価を比較すると、爆心から遠方へ行くに従い実験値の方が大きくなるという傾向が指摘されており、その検証のために、速中性子反応による生成核種の測定が望まれていた。

また、この比較検討のために、基礎データとして不可欠な<sup>63</sup>Cu (n,p) <sup>63</sup>Niの断面積測定も行った。

柴田徳思、今村峯雄、柴田誠一、上菟義朋（東大核研）、野川憲夫（東大RIセ）、馬場護、岩崎信、松山成男（東北大・工）、葉佐井博己、星正治、静岡清（広大・工）

平成8（1996）年 柴田誠一助教授 京都大学へ転出

平成8（1996）年 今村峯雄助教授 国立歴史民俗博物館へ転出

平成8（1996）年 伊藤 寛助手 着任

平成9（1997）年 榎本和義助教授 着任

平成9（1997）年、東京大学原子核研究所と高エネルギー物理学研究所の統合により、高エネルギー加速器研究機構が設立された。それに伴い学際研究室も高エネルギー加速器研究機構の放射線科学センターへ移行した。

### 3.6 独立行政法人 放射線医学総合研究所

（湯川 雅枝）

放射線医学総合研究所は、第5福竜丸の被ばくをきっかけとして1957年に創立され、放射線の生体影響とその機構解明、放射線診断や放射線治療などの放射線利用を研究目的として活動してきた。発足の過程から想像されるように、環境放射線や、環境中に放出された放射性核種から受ける人体の被ばく線量評価が研究所の大きな目標となり、環境中の放射性核種の濃度や分布、経年変化などの研究が始められた。以下に、日本化学会の連合討論会である放射化学討論会（後に放射化学会）での放医研の研究発表をまとめた。ただし、筆者の把握しうる第14回放射化学討論会からのまとめであることをお断りしておきたい。

#### (1) 放射性核種の弁別・捕集に関する研究（1970-1998）

環境中に存在する、非常に低濃度の放射性核種の捕集や弁別に関して、様々な工夫がなされた（伊澤正美、河村正一、渡利一夫、今井靖子など）。鉄共沈、フェロシアン化金属塩、クラウンエーテルによる捕集に始まり、非イオン性樹脂（MR樹脂）を吸着剤の保持体とする研究が広範に展開された。様々な錯イオン形成と組み合わせでの捕集とともに、吸着体の溶媒抽出による化学形別の捕集にも拡張され、従来困難であったRuの化学形別測定法へと発展した。また、吸着保持体として入手が容易な、もぐさ、ポリウレタンフォーム、活性炭を利用した捕集も行われ、MR樹脂との相補的な研究がなされた。

#### (2) 測定法・分析法開発（1970-現在）

放射性核種分析においては、田中栄一などによって開発された低バックグラウンドβ線スペクトロメータが環境試料中のβ線放出核種分析に応用された。JCO事故時には、犠牲となられた作業員の骨中P-32及びCa-45の測定データから被ばく時の姿勢を推定し、より精度の高い線量評価に寄与した（渡辺嘉人、湯川雅枝、宮本霧子、武田洋、西村義一など）。また、ICP-MSの

普及に伴い、従来大量の試料を必要とした $\alpha$ 放射性核種の分析が容易になり、同位体比による汚染源の特定も行われた。また、Iの化学形別高感度分析法が開発された。これらの研究は村松康行、吉田聡、坂内忠明、五十嵐康人などによっておこなわれた。中島敏行により、環境中の放射線による被ばく線量測定法として、砂糖のESR測定が提案され、JCO事故の際に活用された。

### (3) 環境中の放射性核種測定 (1970-現在)

大気圏核実験が行われた時期には、大気浮遊粒子中の放射性核種の測定がさかんに行われた。平常時でのバックグラウンドを把握する意味でも重要で、本郷昭三、湯川雅枝などにより継続されたが、大気中の放射性核種レベルの低下に伴い終息した(1970-1986)。また、阿部史朗、阿部道子などにより、集塵や測定の手法を用いて、大気の循環を研究する試みがBe-7を対象として行われた。

陸上試料中の放射性核種の測定は、河川水、井水、土壌、植物を対象とし、宮本霧子などによるトリチウムの水文学的動態研究や、田上恵子、内田滋夫などによるTc-99の測定に的を絞った研究がなされている(1984-現在)。Tc-99は核分裂収率がCs-137と同程度であり、核燃料再処理などを含む放射性廃棄物処理の安全評価上も重要であるが、極低濃度であることから、濃縮方法や分析精度管理に関する研究がなされ、実環境試料も測定されている。

海に関する試料は、海産生物、海水であり、小柳卓、平野茂樹などによる海水中のCo, Ceの化学形別分析が行われ、石井紀明らにより、海産生物中の微量元素の化学形や分布の分析がEXAFSを用いて行われた。また、山田正俊などにより、表面海水中のPuの同位体分析による発生源の推定もなされている。

環境放射能に関する研究は、2000年以降高エネルギー加速器研究機構で開催されているWorkshop on Environmental Radioactivity(放射化学会共催)での発表に集約されつつあり、超大量海水試料の処理法(青野辰雄など)を含めた実環境試料の分析報告が精力的になされている。

### (4) 放射化分析・PIXE分析・マルチトレーサ利用分析 (1979-2000)

機器中性子放射化分析法が環境・生体試料中の微量元素分析に応用され、放射性核種のアナログとして、分布や挙動の解明に用いられた。また、加速器からの高エネルギー荷電粒子を用いるPIXE法が用いられるようになり、放射化分析に代わって、より微細な元素分布の解明に用いられるようになった(湯川雅枝、喜多尾憲助など)。この研究は、PIXEシンポジウムに発表の場を移している。

理研において開発されたマルチトレーサ技術の応用として、重粒子線を用いたマルチトレーサ製造が大阪大学との共同研究で試みられた。多くのRIをキャリアフリーで含む溶液を得られることから、MR樹脂などの吸着体への分配係数の測定において、成果が得られている。(柴田貞夫など)。

## 3.7 独立行政法人 理化学研究所

(安部 文敏)

戦前の木村健二郎先生らによる $^{237}\text{U}$ の発見などの輝かしい成果以来、理化学研究所の放射化学は加速器利用を中心に進められてきた。戦後は再建された小型サイクロトロンを利用して研究が始まり、1966年には160cmサイクロトロンが完成して研究が本格化した。その後1981年には線形加速器RILAC、1986年にはリングサイクロトロンRRC、1989年にはAVFサイクロトロンと順次新しい加速器が完成し、放射化学の分野でも最先端のユニークな研究が可能になった。放

射化学の研究は、斎藤信房先生の主宰された分析化学研究室と核化学研究室、両者が合併した核分析化学研究室、ついで野崎正先生が主宰されのち安部文敏が引き継いだ核化学研究室を中心に行われた。現在は仁科加速器研究センターで多彩な研究が展開されている。

野崎らは、軽元素不純物の荷電粒子放射化分析を推進し、また RI の製造と標識化合物合成の研究で多くの成果を挙げた。半導体ケイ素中の C, N, O の分析では、 $^{12}\text{C}$  ( $^3\text{He}$ ,  $\alpha$ )  $^{11}\text{C}$ ,  $^{14}\text{N}$  (p,  $\alpha$ )  $^{11}\text{C}$ ,  $^{16}\text{O}$  ( $^3\text{He}$ , p)  $^{18}\text{F}$  反応で生ずる  $^{11}\text{C}$  と  $^{18}\text{F}$  の迅速化学分離法を考案して高感度分析手法を確立し、極低濃度領域における状態図と赤外吸収分析用の校正曲線を作成し、また拡散速度や表面存在量を測定した。さらに、 $^3\text{He}$  照射によりケイ素自身から生成する種々の軽元素 RI を用いる新トレーサ法なども併用して、半導体ケイ素の製造過程における軽元素不純物の挙動を解明した。RI の生産・利用では、 $^{18}\text{F}$  標識化合物の有望性に着目し、Schiemann 反応により種々のフッ化アリアルを合成した。これは世界初の  $^{18}\text{F}$  標識有機化合物の合成で、現在広く行われている PET 診断へつながる第一歩と言える。その他、20 種以上の有用な RI を製造し、その多くを医学診断や土壌学・環境科学用トレーサとして広く提供した。

また、野崎正、荒谷美智らは、線形重イオン加速器 RILAC を用いるラザフォード前方散乱や  $^{15}\text{N}$  との核反応により、アモルファスシリコンなどの H や D の定量と深さ分布の測定や、火災事故の原因の究明のための現場試料の分析などを行った。

メスバウアー分光では、安部文敏・静子らによりサイクロトロンで製造される  $^{61}\text{Cu}$ ,  $^{119}\text{Sb}$ ,  $^{119\text{m}}\text{Te}$  を用いる  $^{61}\text{Ni}$ ,  $^{119}\text{Sn}$  の化学状態に関する研究が行われた。 $^{119}\text{Sb}$ ,  $^{119\text{m}}\text{Te}$  を用いる発光メスバウアー分光では、EC 壊変や核反応で生成する原子の状態を明らかにした。また、磁性体表面での磁氣的相互作用を利用して、酸化物表面に吸着したトレース量の  $^{57}\text{Co}$  や  $^{119}\text{Sb}$  の化学状態が明らかにされた。その他、大豆などの植物中の鉄の状態を明らかにする研究なども行われた。

小林義男らは  $^{99}\text{Ru}$  を線源とする  $^{99}\text{Ru}$  メスバウアー分光を開始し、塩化物、ルテノセン誘導体などに関する研究を行なった。ついで、AVF サイクロトロンを用いるクーロン励起メスバウアー分光により固体 Ar と Xe およびグラファイト中での Fe 原子の動的挙動を観測した。さらに、リングサイクロトロンから得られる  $^{57}\text{Mn}$  ビームを利用したインビーム・メスバウアー分光を行ない、Si 単結晶中の Fe 原子の占有位置と拡散の研究、 $\text{KMnO}_4$  や固体酸素に注入された  $^{57}\text{Mn}$  から生成する  $^{57}\text{Fe}$  原子の化学状態の研究を行った。

$\gamma$  線摂動角相関の応用としては、安部らが  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  などにおける  $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$  の EC 壊変の効果を調べた。ついで、大久保嘉高らは  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  などの磁性酸化物及び高温超伝導体  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  中の  $^{99}\text{Ru}$  の研究などを行った。

伊東芳子らは、AVF サイクロトロンを利用して、偏極した高強度低速陽電子ビームの開発を行い、メゾスコピック領域のシリコン結晶などについて陽電子寿命およびドップラー拡がりの測定から有用な情報を得た。

安部らはリングサイクロトロンから得られる重イオンビームによる核破碎反応により多種の放射性核種が生成することに着目し、マルチトレーサ法を開発して種々の分野への応用の道を開いた。特に、生体微量元素については、榎本秀一らにより精力的に研究が展開され、微量元素間の相互作用や細胞内・細胞間の情報伝達・金属輸送のメカニズムの解明に寄与し、新たな放射性医薬品の開発につながる成果を得た。現在、マルチトレーサあるいはグループトレーサを自動的に製造する装置の開発が行われており、多元素の同時イメージングを可能にする GREI の開発や次期加速器 RIBF の建設と合わせて、シングルトレーサを含むトレーサ技術の高度の飛躍が期待される。

超重元素の化学的性質の研究では、羽場宏光らが気体充填型反跳分離装置 (GARIS) の末端に

ガスジェット搬送装置を設置することによって、ビームや副生成物から物理的に分離された超重元素を化学分析装置に導入する新しいシステムの開発を進めており、現在 GSI や LBNL との国際協力が進められている。

新元素の合成については、森田浩介、羽場宏光、加治大哉らがコールドフュージョン反応によって合成される超重核を探索し、 $^{209}\text{Bi}$  ( $^{70}\text{Zn}$ , n) 反応によって 113 番元素の同位体  $^{278}113$  の観測に世界に先駆けて成功した。 $^{278}113$  は、原子番号と質量数が実験的に決定された原子核の中で最も重い原子核であり、新元素の発見と考えられる。

### 3.8 国土交通省気象庁 気象研究所

(五十嵐 康人)

気象研究所地球化学研究部は、ひろく大気と海洋の物質循環にかかわる研究（環境放射能と温室効果気体が主）を研究所の発足当時（1947年）から繰り広げてきた。わずか10名の小さな研究部ではあるがそのルーツは古く、戦前の1935年、中央気象台の気象化学掛設置にさかのぼる。とりわけ、現在問題となっている地球環境問題に、極めて初期の段階から取り組んできたことを特徴としている。

ところで、日本における環境放射能研究は、1954年に米国がビキニ環礁で実施した水爆実験で漁船第五福竜丸が被曝を受けた事件を契機にして、本格的に始まった。当時の気象研究所地球化学研究室は、環境の放射能を分析・研究できる日本で有数の研究室であり、三宅泰雄の指導の下、海洋及び大気中の放射能汚染の調査・研究に精力的に取り組んだ。その結果、当時予想されなかった海洋の放射能汚染、さらに大気を経由した日本への影響など地球規模の放射能汚染の実態を明らかにした。栄えある第1回放射化学討論会（1957年）にも三宅他により「雨及び落下塵の放射性ストロンチウム」が発表されている。その後も観測を継続し時系列データを得ており、放射化学討論会にとどまらず、ひろく気象・海洋・分析・地球化学、放射線影響などの関連諸学会で発表された。対象とした核種は、 $^3\text{H}$ （井上他、第25回）、 $^{90}\text{Sr}$ （三宅他、第3回）、 $^{137}\text{Cs}$ （三宅他、第9回）をはじめ Pu（広瀬他、第25回）、トリウム、ウラン（広瀬他、第26回、杉村他、第25、27回）に至るまで幅広い。

大気関連の成果をまとめると、人工放射性核種の降下量は、大規模大気圏核実験の翌1963年に最大だった。その後、「部分的核実験禁止条約」で米ソの大気圏核実験が中止され、降下量は約1年の成層圏での滞留時間を反映し減少した。1970年代では中・仏により核実験は継続し降下量は増減を繰り返した。1980年の最後の大気圏中国核実験の後、降下量は成層圏滞留時間で減少し、1985年には観測開始以降最低レベルになった。しかし、1986年4月のチェルノブイリ原発事故により、大気中の $^{131}\text{I}$ 、 $^{134}\text{I}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ などの濃度は日本でも1963年に近いレベルにまで増加した（青山他、第30回）。大部分の核種は対流圏の滞留時間で減少したが、一部 $^{137}\text{Cs}$ は成層圏に輸送されたことが分かった。1990年以降、人工放射性核種の降下量は低いレベルで推移しているが、成層圏の降下から推定される降下量より高いことが明らかになった。この原因は、一度地上に降下した放射性核種の再浮遊に由来している。特に、再浮遊に黄砂の果たす役割が大きいことがわかってきた（広瀬他、第43、46回）。

一方、海洋の放射性核種については、日本周辺海域に限らず、太平洋の広域に亘ってその実態を解明してきた（三宅他、第3、16回；猿橋他、第21回）。1960年代後半～70年代には、表面海水中の放射能は降下量の緯度分布に従ったが、最近では、海洋内部の物質循環に支配されて

いる（青山他，第43回）。さらに，分析法を高度化し，少量の海水試料での分析を可能として $^{137}\text{Cs}$ の精密鉛直断面を得た。その結果，大気圏核実験由来の放射能の主な部分は北太平洋の亜熱帯中層に存在していることが明らかになった。1993年旧ソ連/ロシアによる放射性廃棄物の日本海などへの投棄が判明したため，それに伴う日本海の調査に参加した。その影響は検出されなかったが，日本海固有水の生成過程及び生成場所についての知見を得ることができた。

最近の話題では，1997年「アスファルト固化処理施設」の火災爆発事故，1999年JCO臨界事故がある。気象研究所は東海村からは60kmの距離にあり，地理的な関係からも臨時観測を行った。幸い，放射能の汚染は極めて低いレベルで環境への影響は殆どなかった。しかし，放射能汚染は過去の問題ではない。今後とも，環境放射能の研究は重要であり，気象研究所では現在でも積極的に取り組んでいる。近年，内外の研究機関との共同研究も進展しており，懸案だった大気中 $^{85}\text{Kr}$ の分析法を確立して（五十嵐他，第44回），10年近い大気中 $^{85}\text{Kr}$ 濃度の変動を明らかにした。この他，天然の放射性核種をトレーサとして利用する研究も進めており（五十嵐他，第43回），環境中の放射能の動態の研究にとどまらず，地球規模の物質循環研究においてどのように環境放射能を位置づけて利用するかに留意し研究している。

### 3.9 財団法人 電力中央研究所

（塚本 政樹）

財団法人電力中央研究所では1971年ごろから放射化学関連の研究を開始した。中立研究機関であると同時に，電気事業の中核研究機関という立場から，原子炉冷却水の放射能測定，放射化学分析や環境放射能測定の迅速化といった研究を通じて，原子力発電所の定常業務の能率化や分析時間の短縮化を試み，従業員の被ばく量低減に寄与してきた。しかしながら当時は放射線管理区域を有する研究施設が無く，日本原子力研究所の施設を利用するなどしてデータ取得に努めた。

1976年3月に電中研の狛江地区に放射線管理施設（現第5実験棟）が完成することにより，水化学，環境放射能，原子燃料サイクルバックエンドの研究分野で放射性核種を用いた実験研究が本格化した。例えば，BWR条件下での一次系配管材料への放射能蓄積・除染の研究では，配管系ならびに高温高压水条件を模擬した大がかりな試験装置を用い，種々の配管材料への放射能（ $^{60}\text{Co}$ ）蓄積挙動に，材料中の金属成分や流速が影響することなどを明らかにした。また，石炭火力発電で発生する石炭灰の埋立地の環境影響評価を目的として，原位置における環境放射線測定や，石炭や土壌試料中の放射能測定も実施した。

バックエンド研究では，1985年ごろから，放射性廃棄物の固化媒体であるアスファルトからの $^{137}\text{Cs}$ などの浸出データ，高レベルガラスの材料であるホウケイ酸ガラス中での $^{237}\text{Np}$ の熱拡散データや成分元素の浸出データ，固化体周囲に設置される人工バリア候補材料としてのベントナイト（膨潤性の鉱物を主成分とする粘土状物質）やセメント材料，オーバーパックなど鉄製容器の腐食生成物，および天然バリアとしての土壌や岩石などの種々の材料を対象とした，放射性核種の吸着や拡散のデータを多く取得した。これら実験データの解釈と浸出・吸着・拡散挙動のモデル化を通じて，放射性核種の移行挙動に関する知見の蓄積と評価手法の確立に役立てた。

上記の施設では種々のFP核種を使用可能であるが，核燃料物質や十分な量のアルファ核種を扱うことができなかった。この点を補うために，放射性ホウケイ酸ガラスの浸出試験に関わる国際共同研究（「JSSプロジェクト」）をはじめとする共同研究を活用し，スウェーデンのスツズビク社や英国のAEAテクノロジー社，スイスのパウル・シェラー研究所といった諸外国の研究機



関に職員が赴き、自らがアルファ核種を用いた実験に携わることで、多くの貴重なデータを取得してきた。放射性廃棄物の地中処分安全評価に必要なデータ蓄積のため、今後も放射性核種を利用した諸研究を実施していく予定である。

### 3.10 財団法人 日本分析センター

(及川 真司)

財団法人日本分析センターは、1974年5月1日（昭和49年）に設立された環境放射能・放射線に関するわが国唯一の中立的な分析専門機関である。主な業務は、文部科学省からの委託による、わが国への米国原子力艦寄港に係る放射能調査、全国規模の放射能水準調査、環境放射線データベースの構築と運用、わが国の環境放射線などモニタリングデータの精度管理にかかわる業務として全国の都道府県分析機関との相互比較を行う分析確認調査や、実務担当者を対象とする環境放射能分析研修の実施、環境試料を対象とした放射性核種分析法マニュアル（文部科学省放射能測定法シリーズ）の原案作成などである。また、環境省からの委託により、離島などの遠隔地における環境放射線などモニタリングにかかわる業務も実施している。

近年では、従来から実施している大気圏核爆発実験由来の $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ などの全国規模の水準調査に加え、ラドン濃度、中性子線量率などの調査、各種環境試料や食品試料中の $^{40}\text{K}$ 、 $^{210}\text{Pb}$ 、 $^{210}\text{Po}$ 、 $\text{Th}$ 、 $\text{U}$ などの天然放射性核種を対象とする放射化学分析、 $^{99}\text{Tc}$ 、 $^{129}\text{I}$ 、 $\text{Pu}$ 、 $\text{Am}$ など人工放射性核種を対象とする迅速分析法の開発、高分解能型ICP質量分析計によるPu同位体測定、AMSによる $^{129}\text{I}$ 分析法の開発並びに放射化分析法、ICP-AES、ICP-MSなどによる極微量元素分析などを実施している。これら調査・検討結果の一部は毎年12月に開催される環境放射能調査研究成果発表会をはじめ、放射化学討論会などで発表している。

分析データの精度管理面で、IAEAやWHO-IRCなどの国際機関が実施する相互比較分析への積極的参加や、ISO9001認証取得、ISO/IEC17025試験所認定を受けるなど、日ごろから分析技術の維持・向上はもちろん、国際的品質システム面からも「信頼できるデータ」の提供に努めている。

全国で実施されている放射能・放射線の分析・測定結果は前述の環境放射線データベースに蓄積しており、その数は約300万件になる。これらはインターネット上で一般公開されているので（[www.kankyo-hoshano.go.jp](http://www.kankyo-hoshano.go.jp)）、参照されたい。

原子力平和利用の需要が増大する中、放射能への社会的不安を払拭するため、環境放射能にかかわる分析専門機関として信頼できるデータを今後も提供する。

### 3.11 金沢大学 LLRL 施設

(小村 和久)

「金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設」は1968年の日本学術会議勧告「全国共同利用環境放射能研究所」設立構想にルーツを持つ施設である。

学術勧告を受け、金沢大学理学部放射化学講座の阪上正信教授（故人）が中心となり「環境放射能研究所」の概算要求書が毎年提出されたが実現に至らなかった。一気に実現に向かったのは1974年発覚の日本分析化学研究所の「データねつ造」事件であった。

1975年度予算で「環境放射能研究所」は大幅な縮小案「低レベル放射能実験施設」として設置されることになった。複数の大学が検討されたが、「ビキニ被災事件の死の灰の分析」や「北日本放射線影響研究者会議」の活動などで実績のある金沢大学理学部の附属施設として設置されることになり、総面積403平米の小さな研究棟がメインキャンパスから25km南西の辰口キャン

パス（現能美市和気町）に建設された。予算定員は助教授1，技官1で，初代施設長には理学部放射化学講座の阪上正信が兼任した。専任助教授には東京大学原子核研究所助手の小村和久が，技官には加藤岩夫，事務補佐員（定員外職員）が地元から採用され，1976年5月に開所式が挙行された。「全国共同利用環境放射能研究所」への昇格を目指す設立準備委員会が何度か開催されたが，実績を積んでからの要求が妥当との判断で以後行なわれなくなった。

1980年に建屋403m<sup>2</sup>の増設，1979年に教授1が増員され，阪上が施設専任教授として1986年まで施設長を務めた。2代目施設長として日本原子力研究所から上野馨が就任した。1986年に助手1の定員増で北陸大学から山本政儀（現，教授）が就任した。1997年に研究機関研究員（ポスト）2と研究支援職員1が認められ研究環境が飛躍的に改善された。1995年に小村と山本がそれぞれ教授，助教授に昇任し，助手のポストに井上睦夫が採用された。

全国共同利用研をめざす試みは，大学のキャンパス移転計画に埋もれ実現の見込みがない状況が続いた。2001年に学内施設の統合の動きが活発化し，理学部附属施設であった臨海実験所，植物園，LLRLと工学部電磁場制御実験施設の4施設をベースに理学部と工学部の環境関係の教官が加わって，全学教育研究施設「自然計測応用研究センター」が2002年に設立された。設立に際し，理学部化学科から浜島靖典が助手として加わり教授2，助手4名の4人体制になった。センターの附属施設として低レベル放射能実験施設（LLRL）の名称は残っており，加えて1995年に稼動した水深換算270mの尾小屋地下測定施設（Ogoya Underground Laboratory: OUL）も附属施設として公認された。

#### 教育研究活動

LLRL設立当初から理学部化学科の卒研究生を受け入れており，大学院修士課程（博士前期課程）及び社会人を含む博士課程の院生とともに研究を行っている。研究成果は国内外の学会や学会誌への発表するほか，「年次報告・研究概要」を毎年発行している。小村と山本は2002年採択の21世紀COEプログラム「環日本海域の環境計測と短期長期変動予測」のメンバーとして放射能分野の研究を担当している。2004年度に特別教育研究経費「極低レベル放射能測定による新領域の開発と全国共同利用微弱放射能測定拠点の形成」（5年計画）が採択され，全国共同利用を目指して尾小屋地下測定施設の整備が行われている。

尾小屋には2005年現在で15台の極低バックグラウンドGe検出器が設置され，台数においては世界一の規模を誇る施設となった。

### 3.12 静岡大学放射化学研究施設

（菅沼 英夫）

1951年（昭和26）7月，静岡大学における放射性同位体の利用および放射化学に関する研究が教育学部化学教室において開始された。その研究に用いられた放射能測定器は静岡県から寄付された国産最初のものであった。その後，1954年1月，大岩地区（現在の静岡城北公園）の理科館の一部に，特殊設計を加えたラジオアイソトープ実験室が設けられ，その実験室は学内共同利用にも供された。同時に静岡大学放射性同位元素研究会が発足した。同年3月，アメリカ合衆国はビキニ海域で水爆実験を行った。ちょうどその近くを航海していた第五福竜丸が被災するという事件に遭遇した。静岡大学では行政側の事件処理に対して，適切な助言をすると共に精力的にビキニの灰の分析にあたった。同年5月，ビキニの灰の詳細な分析結果は日本分析化学討論会において報告され国内外から注目された（第一番目の論文は「ビキニの灰（1954年3月1日）

の放射化学的研究〔その1〕の題で塩川孝信、尾崎徳郎、神原富尚、八木益男らが分析化学(1954年)に発表)。それによって静岡大学のこの分野における研究業績が認められた。この事件を契機に、放射化学に関する研究範囲および実験量が飛躍的に増大した。1956年理科館第二期工事完成とともに天然放射能実験室が完成した。同年9月、アメリカ原子力学術雑誌“Nucleonics”誌上で、日本原子力研究所、東大原子核研究所と並んで、静大放射化学実験室の設備および放射性物質分析の研究業績の卓越性が紹介された。1957年、国連科学委員会の要請により、フォールアウトに関する世界の科学的データが求められた。静岡大学からは、茶葉中のストロンチウム-90濃度の分析結果を提出した。これは国内外に大きな反響を呼び、貴重な資料となった。

当時は放射化学および放射線化学の研究が日進月歩で進展し、そのために、設備・人員の拡充が要望されるようになった。1956年放射化学研究施設の設置申請の運動が始まり、文部省と折衝の末、1958年4月設置が認可され、教官3名、事務官1名で発足した。翌1959年3月、高放射能実験室の建設を機に静岡県からの寄付によってコバルト-60(37テラベクレル)照射装置が設置された。同年10月、ローランド教授(「フロンによる成層圏のオゾン層破壊の解明」の研究で1995年ノーベル化学賞受賞)が来学し、文理学部で講演した。その後、ローランド教授は3回も来学し、その都度深い感銘を与えてくれた。

1965年4月には、放射化学研究施設は文理学部改組にともない理学部附属施設に改められ1969年4月に第2部門(同位体化学)が設置された。同年8月、理学部と共に大谷地区に移転し、新しい研究施設で研究活動を続け、理学部のみならず、全学における放射能利用研究活動の中心としての役割を果たしてきた。その間、教育面では、学部学生に対しては化学科4年生の一部を受け入れ、卒業研究の指導を行っている他、放射化学、同位体化学及び放射線化学の講義を担当した。1976年大学院理学研究科(修士課程)、さらに1996年大学院理工学研究科(博士課程)の新設にともなって、両部門はそれぞれ博士前期課程では化学専攻、博士後期課程では物質科学専攻に属して大学院講義および研究指導を行ってきた。現在までに多くの有能な原子力関連の研究者、技術者、教育関係者を養成してきた。2006年4月からは時代の要求に応えられる人材を供給するために、理工学研究科(前期課程)は理学研究科(修士課程)に、理工学研究科(後期課程)は創造技術大学院(博士課程)に改組される。

ビキニ事件直後の十数年間は、全国の理学部に放射化学講座あるいは放射線化学講座が新設され、工学部には原子力工学関連の講座が立ち上がった。その後しばらくして、放射能・放射線関連の講座の改組、改廃、名称の変更などで、新設時の名称を維持しているところは数えるほどに減少した。この間、放射化学研究施設においても例外ではなかったが、改組・改廃だけは免れた。

この間大学の放射線教育が全国的に衰退し、将来的に放射線・原子力にかかわる人材が不足する恐れが懸念されることを訴え続け、2002年度には放射化学研究棟及び実験棟の全面改修が行われた。別の場所にあった2つの実験室の管理区域を統合し、 $\alpha$ 放射体を含む使用核種数及び使用数量を増やして施設の建物を一体化して機能的なものとし、全館を管理区域とした新たな名称を放射科学実験棟とした。

2004年4月の国立大学法人化に伴い設定が義務付けられた中期目標・中期計画においては、研究・教育内容が明確で外部から見えるようにした。2005年1月には二つの研究部門名を改め、それに加えて放射線管理室を設けた。併任又は客員教員からなる新たにラジオバイオジオサイエンス研究部門を2007年10月に立ち上げる。

各研究部門の研究・教育方針は以下のとおりである。

- ①放射線環境影響評価研究部門 (奥野健二教授、吉岡潤江教授(2006年3月退職)、大矢恭久

准教授 (2006年4月赴任))

トリチウムを中心とした $\beta$ 放射体の核エネルギーシステムからの環境への影響評価,  $\beta$ 線による生体物質への影響評価および防御に関する研究・教育

② 放射性同位元素環境負荷低減化研究部門 (菅沼英夫教授, 矢永誠人准教授)

核分裂炉から生じる超プルトニウム元素の化学的挙動と分離, 生体内に入った場合の影響とその除去による生体内影響を調べる研究・教育

③ ラジオバイオジオサイエンス研究部門 (2007年10月設置)

長半減期の放射性同位体の微生物への取り込みと濃縮, 長半減期の放射性同位体の地球環境での移動に関する研究・教育

他方で多くの学生に対する放射線・放射能教育の重要性を訴えてきた結果, 全理学部生を対象として放射科学教育をカリキュラムに取り入れられるようになった。放射化学研究施設が中心となって, 全理学的な放射線教育を行うことによりエネルギー環境問題, 放射線・原子力分野の将来の人材確保と育成の教育, そして理学部以外の学生には日常生活における放射線・放射能の教育を展開し始めた。

時代と社会の要請する放射線・放射能に関する研究・教育の課題がある限り, それに応えられるように日々誠実に任務を放射化学研究施設は担い続ける。

(この小文は静岡大学50年史の一部を抜粋し, その他に放射化学研究施設にかかわる記事を集め, それらを参考にして執筆したものである。)

### 3.13 財団法人 九州環境管理協会

(松岡 信明)

財団法人九州環境管理協会は1971年に九州および山口県の学識経験者が中心となって設立され, 自然科学と人文科学の両面から環境問題に取り組んでいる。

当初は, 九州初の原子力発電所である玄海原子力発電所が運転を開始したことから, 発電所周辺の環境放射能モニタリング技術の習得と開発を行った。その後業務として環境放射能の測定・調査を実施するかたわら, 研究・開発にも力を注ぎ, 1970年代後半から1980年代は, 主としてラドンや放射性希ガスの測定技術開発を行った。1986年のチェルノブイリ原発事故に際しては, 事故直後から大気中と海藻中の放射能を継続的に観測し, これらの環境動態について貴重な知見が得られた。1990年代には, 放射性炭素やトリチウムの測定法開発と環境動態の解明を行うと同時に, 火山由来のポロニウムなどの研究も行った。1990年代後半から2000年代にかけて, 鉛, 炭素, 硫黄などの安定同位体比による環境汚染発生源の研究を行っている。

研究・開発と並行して, 放射線・放射能測定技術の一般調査部門への導入を積極的に行った。特に希土類元素をトレーサとする水文学的調査は, ダム, トンネル, 廃棄物処分場などの水流動の解明において威力を発揮している。また,  $^{210}\text{Pb}$ と $^{137}\text{Cs}$ を利用する水底堆積物の堆積速度調査を各地で行い, 堆積環境について貴重な知見が得られた。1993年以降放射性炭素年代測定を実施し, 西日本における唯一の測定機関として考古学研究に寄与している。つい最近では, メスバウアー分光法を熔融スラグ中の金属鉄の評価に適用し, 社会のニーズに応じている。

国際交流の面では、1990年代に中国輻射防護研究院と研究協力協定を締結し、5年間にわたって研究員の相互交換を行った。

### 3.14 日本の研究用原子炉施設

#### (1) 原研施設共同利用

(伊藤 泰男)

##### a. 原研施設共同利用の誕生

日本原子力研究所（以下原研）が設立され、原子力基本法による制度的な枠組みが作られた1955年ごろ、政官財界のイニシャチヴを警戒する学術会議は「原子力の研究と利用に関し公開、民主、自主の三原則」を原子力基本法に盛り込ませることに成功した。しかし同時に、国立大学協会からの申し出によって「原子力委員会設置法、関連行政機関の原子力利用に関する経費には、大学における研究経費を含まないものとする」という決議が国会で行われた。この通称“矢内原原則”によって原子力予算が大学の研究者に直接流れる道が閉ざされ、後世に悔いを残すことになったが、大学研究者が原研の施設を用いた研究にかかわりを持つ道として委託研究や協同研究などがあった。大学研究者は当初このルートを用いて科学研究費班を組織して研究炉 JRR-1 などを用いる研究に参画した。

しかし、原子力基礎研究は全国的な重要課題と考えられていたため、原研施設の利用をより積極的に推進する方法が模索され、東京大学工学部・原子力教育施設管理部にその運営が付託され、1961年に「大学開放研究室」が原研・東海研究所に置かれたのであった。この教育施設管理部は、当時東大にも新設された原子力学科の教育を支援する目的で、臨界未満実験装置、コバルト 60 $\gamma$ 線照射装置、中性子発生装置などの教育・研究機器を管理して学内の共同利用に供する目的で作られたものであったが、原研施設共同利用は“当分の間”という条件付きで付加的な業務としての付託であった。

##### b. 共同利用と協力研究

原研施設共同利用では、コバルト-60 $\gamma$ 線照射施設（'58）、JRR-2（'63）、ホットラボラトリー（'63）、電子線リニアック（'65）、高崎研コバルト-60 $\gamma$ 線照射施設（'66）、JRR-3、高崎研一号電子線加速器（'68）、高崎研二号電子線加速器（'69）が共同利用に供された（カッコ内は共同利用開始年）。これら施設の外部利用は原研の設置目的の中に読みとることができないため、これら施設は“共同利用施設”として大蔵省に申請し、利用料金を対価として照射などの便宜を供与する仕組みであった。共同利用の原研の窓口は業務課であり、共同利用の成果は共同利用料金収入や照射件数で測られ、原研の研究者も共同利用を支援することはあっても共同利用の主体となることはなかった<sup>1</sup>。一方、大学側の原研施設共同利用委員会は自立的に指導・評価の役割を担い、大学内の公平な利用を運営した。この中で、原子炉物理はもちろん、核物理、核化学、放射線物理、放射線化学などの研究者で原研施設共同利用の恩恵を受けない人は居なかったとさえ言って過言でない<sup>2</sup>。

しかし、原研施設共同利用は“照射利用”の域を出るものではなかったし、共同利用として認可されていない施設にも大学の研究者にとって魅力あるものが少なくない。そのようなケースに対応すべく'68年に「協力研究」制度が発明された。それは“原研の研究に協力するもの”とされ原研オリエンテッドの制度であって問題も少なくなかったが、大学の研究者は自ら所有できな

い大小の研究設備を利用できたし、逆に大学の先生の面倒を見る羽目になった若い原研研究者の中には良き指導と刺激を得て大きく延びることが出来た者も居た<sup>3</sup>。省庁縦割りの中では「原研の研究に協力する」と明記されている「協力研究」のために文部省が予算支援をする筈もなく、予算上の裏付けはほとんどなかったにも関わらず、大学側はこの「協力研究」制度を最大限活用すべく運用した。JRR-3Mに即発 $\gamma$ 線分析装置が設置されたのは、この協力研究の成果の一つであった。

原研施設共同利用は初めの10数年までが最も活発であり、原子力教育施設管理部が原子力研究総合センターに改組された'74年ごろには、放射化やホットアトム化学などの基礎研究の多くはピークを過ぎて、照射利用は放射化分析や中性子回折などの応用の段階に移行しつつあった。大学開放研究室がイニシャチヴをとって「放射化分析研究会」を設立したことにも、このような背景がある。

### c. 大学・原研プロジェクト共同研究

このような中で、大学と原研の協力関係を一層追求するものとして、かつ予算獲得の切り札として「大学・原研プロジェクト共同研究」が大きな期待に支えられて生まれた。当時の原子力開発利用長期計画でも、大学と科学技術庁傘下の研究所との間の協力の必要性が強調されていたこともあって、関係者から広い支持が得られ、検討が進められた。

プロジェクト共同研究の最初のテーマは「核燃料サイクルバックエンド化学」であった。原研が科学技術庁に申請した概算要求が認可される一方、原子力研究総合センターが文部省に出した要求は通らなかったため、原子力研究総合センターは従来の「原研施設共同利用」予算を運用することによってプロジェクト共同研究を支えざるを得なくなった。予算上の困難はあったものの、プロジェクト共同研究は研究を進めるうえで有効であることが強く認識され、第2のテーマ「放射線高度利用研究」も立ち上げられた。原子力発電とならんで原子力平和利用の重要な柱の一つである放射線利用については、それまでのガンマ線や電子線による照射とは放射線の種類、エネルギー範囲、利用面などで大きく異なるイオンビーム研究施設が原研・高崎研究所において計画中であり、ここでも、原研と大学の協力を有機的かつ活発に進めることが望まれていたのである。

バックエンド化学はTRUリサイクルのための核化学的研究、燃料・廃棄物の固体化学的研究、再処理の基礎化学的研究、廃棄物処分の基礎化学的研究の4つのグループに分けて'86年～'99年まで行われた。放射線高度利用研究は2000年まで行われたが、主な研究課題を拾い上げてみると、イオンビームによる生物影響に関する研究、低速陽電子の発生と材料研究への応用に関する研究、高分子材料のイオン照射効果に関する研究、オンライン同位体分離器を用いたアイソトープの核分光・核物性研究、加速器放射線の遮蔽及び挙動に関する研究、イオンビーム利用による材料解析法の研究、核融合炉材料照射損傷に対する核変換生成物の影響に関する研究、ポジトロン放出核種を用いた植物の生体機能解明、マイクロPIXEなどである。どれも放射化学に関係が深く、多くの放射化学研究者がこれらの研究にたずさわったが、同時に他分野からの参画も少なく

<sup>1</sup> 原研には“大学に使わせてやる”という姿勢があるという批判が多く出たのも、研究における連携の考え方が希薄であったことが原因と言える。

<sup>2</sup> 言うまでもないことであるが、原研施設以外にも、'63に京大・原子炉実験所のKURが臨界、'69には東北大学・金研の材料試験炉利用施設開所、東大原子炉“弥生”臨界、'74立教炉共同利用開始、'76武蔵工大炉共同利用開始、'80近畿大学炉開始などの流れが並行して、原子力基礎研究が広く支えられたのである。

<sup>3</sup> もちろん、そのような良い話ばかりがあったわけではない。協力関係のどちらかに一方にストレスがかかるケースも少なくなかったことは率直にしておかなくてはならない。

なかった。このように研究課題と研究者層がシフトしつつあるのは、放射化分析や中性子散乱など多くの分野で見られることである。

10年以上にわたったプロジェクト共同研究は、'02年度からは「連携重点研究」と名前を改めて、今に引き継がれている。

#### d. 新しい段階に向けて

東京大学の独立行政法人化、原子力研究総合センターの改組、原子力2法人の統合と独立行政法人化が相継いで断行される中で、“当分の間”ということで原子力研究総合センターに付託された原研施設共同利用がどのように取り扱われるかは重要な関心事である。大学と研究機関の連携がうたわれているので原研施設共同利用が終了させられることはないだろうが、逆に、当初から不備であった共同利用制度に抜本的な変革が加えられることが期待されるのである。しかし、これまでのところそのような兆しが見えないまま、原研施設共同利用は、原子力研究総合センターの統合先である東京大学・大学院工学系研究科原子力専攻に移管されて持続されている。新しい方向を生み出す力が研究者達の中からわき起こってくることを期待したいところである。

## (2) 立教大学の原子炉

(戸村 健児)

立教炉は General Atomic 社製の出力 100 kW の TRIGA II 型炉で、米国聖公会より寄贈された。1961 年 12 月の臨界以来、広範囲の研究・教育に利用されて来たが、一私大で原子炉を維持していくことの難しさから、2001 年 12 月に廃止のやむなきに至った。

その間 1974 年度から 25 年間、東京大学原子力研究総合センターを窓口とした立教炉全国大学共同研究制度<sup>1)</sup>の下に放射化学を中心とした幅広い分野の研究に利用された。全国大学共同研究に採択された年間の課題数ならびに利用者数はそれぞれ約 50 課題、400 人であった。

熱出力 100kW と小型のため、照射などの取り扱いが簡単で、しかも、生成放射能は放射化学の諸研究に必要な量が得られた。炉物理、放射化学の専門家以外の研究にも手軽に利用された。また大型研究炉では難しい液体や気体試料の照射も可能であり、立教炉で、前駆的に検討を行った経験を大型研究炉に移行して花を咲かせた研究も多い。小型で使いやすいメリットを活かし、放射化学関係の学部学生、院生などの教育にも貢献した。

炉心の周辺で 40 試料を同時に照射し、しかも水を潜らせることなく、試料の出し入れができる回転試料棚を備え、多数試料の分析を必要とする調査研究にも利用された。炉心に照射パイプを挿入した気送管などは小型炉でありながら高線束密度で中性子照射ができた。しかも熱外中性子比率の高い照射が可能であり、共鳴吸収核反応断面積の高いウランなどの定量には熱中性子化が十分なされた大型炉よりも優れていた。次にこの炉を使って得られた研究成果についてのべる。

#### (a) 中性子放射化分析

高分解能のゲルマニウム半導体検出器（以下、Ge 検出器）がガンマ線測定に利用されるようになり、非破壊・同時・多元素中性子放射化分析が可能となった。立教原研ではこの検出器が市販される前から、手作りの検出器を利用し地球科学試料中のランタノイド元素などの分析を行い、注目されて来た。全国大学共同研究制度が発足し、性能の高い Ge 検出器が立教炉の施設内に設置されると、放射化学以外の広い分野の研究者も中性子放射化分析に飛びついた。

原子炉に隣接する測定室に Ge 検出器が設置されていたので、短寿命核種を生成する元素も含めて約 40 元素が定量された。放射化分析は試料と標準を照射し、放線線量率を比較するだけの

単純な原理に基づいている。また、核反応と放射性壊変を利用した分析であり、試料中の元素の物理的・化学的状态や実験条件に左右されない。従って、熟練者でなくても正確な微量元素分析が出来る。日本原研の諸施設に加えて立教炉が全国大学共同研究に組み込まれ、多分野の研究者に放射化分析が普及した意義は大きい。

放射化分析の初期に活躍した放射化学的放射化分析も、Ge 検出器と組み合わせることにより、従来では困難であった金属、隕石、岩石中の超微量の Cl, Br, I などの定量を可能にした。炉室の近くに放射化学実験室を配した立教原研は放射化学的放射化分析においても他の大型施設に劣らぬ貢献を果たした。

#### (i) 宇宙・地球科学

放射化分析では多くのランタノイド元素が非破壊で定量できる。岩石、鉱物試料中のランタノイド元素濃度を隕石の一種であるコンドライトと比較したコンドライト・ノーマライズド・パターンは岩石などの成因、生成の解明に不可欠である。Ce, Eu は他のⅢ価のランタノイド元素と異なり、Ⅳ価とⅡ価の原子価状態も取りうる。従って、Ce, Eu の異常から生成環境の酸化還元状態が分かり、古い時代の日本海のような閉鎖海域の研究にも役立った。

海底堆積物中の宇宙起源物質の研究や巨大隕石の落下による恐竜の絶滅に関して Ir の定量が行われた。水底堆積物のコアサンプルや、地球化学図の作成など多数試料の分析を必要とする研究にも立教炉は貢献した。

#### (ii) 環境科学

大気粉塵を濾紙上に吸引捕集し、放射化分析をすることにより、30 元素以上が定量できる。環境庁では 1975 年より毎月国内 16 地点の大気粒子状物質を立教炉を使い分析し、日本における大気汚染の地域、季節、経年変化などを知る貴重なデータを提供した。

樹木、雨水、土壌試料を分析し、Mn, V, Co, Sb のような人為起源元素が森林に保持される傾向が強く、森林の汚染浄化を科学的に立証できた

#### (iii) ライフサイエンス

生物中の微量元素の役割については不明な点が多い。海産生物であるホヤには V が含まれている。V は短寿命核種を生成する元素であるが、放射化分析の感度は非常に高い。ある種のホヤの血球中には海水中の 1,000 万倍の V が濃縮されることや濃縮に関与する結合蛋白質とその遺伝子が解明された。

#### (iv) 考古学

石器の産地同定は古代における交易や社会の仕組みを知る手がかりとなる。マグマが急冷した黒曜石は産地ごとに化学組成が均一であり、化学成分による産地推定が容易である。主成分元素によっても推定は可能であるが、濃度変動の大きな微量元素がより有効である。

関東周辺で遺跡出土の石器は長野県産の黒曜石の他、神津島産が古くから使われ、北海道の礼文島の遺跡では小樽の近くの赤井川産が多い。このことは古代日本では海上交易が頻繁であったことを物語っている。

#### (b) ホットアトム化学

中性子捕獲核反応で放射性同位元素が生成するとき、即発ガンマ線が放出され、反跳により特異な化学状態をとる。この現象を追求するのがホットアトム化学であり、日本の放射化学者の多くがこの問題に取り組んだ。

常温では初期状態の保存が困難であり、立教炉でもドライアイスや液体窒素で冷やしたドライアイスを使い照射を行い、速やかに放射化学分離が行われた。液体試料を流動させながら、中性



子照射を行う研究も注目された。

(c) フィットジョントラック法

鉱物やガラス中にウランなどの核分裂性核種が存在すると自発核分裂を起こし、試料中に傷ができる。化学的エッチングで傷を広げると顕微鏡で核分裂の飛跡が観察できる。自発核分裂飛跡の数は試料のウラン含有量と生成年代に比例する。従って、自発核分裂飛跡数を測定し、誘導核分裂飛跡数からウランを定量すれば鉱物の生成年代が推定できる。日本におけるこれら研究の大半は立教炉で行われた。

フィットジョントラックは熱により消滅するので、火山活動の岩石への影響や石器が加熱されてから後の年代を知ることも出来る。この方法は人体試料や歯科材料中の微量ウランの定量にも用いられた。ホウ素は中性子を捕獲して、アルファ線を放出するのでその $\alpha$ 飛跡を観測し、金属中のホウ素の挙動も明らかにされた。

(d) 中性子ラジオグラフィ

立教炉には4本のビームポートがあり、ビーム状の中性子照射が可能であった。その中の1本を中性子ラジオグラフィに使った。中性子は金属を透過しにくいガンマ線と異なり、水素、ホウ素、カドミウムなどの特異な元素に吸収される。中性子コンバータを使い透過像を撮影すれば、エックス線やガンマ線ラジオグラフィと異なった像が得られる。立教炉では主として、画像処理法など基礎的な検討と植物のような大型試料中の水の移動に関し、前駆的な研究を行った。自動車部品の欠陥やヒートポンプなどの実用的研究も行われた。

(e) 核物理・放射線測定

短寿命核分裂生成核種を電気泳動法で分離して、ガンマ線を測定する核分光学的研究や $^{137}\text{Cs}$ などの長寿命核種の中性子捕獲断面積を測定する長寿命核種消滅の基礎実験も行われた。

シンチレータと光ファイバーを組み合わせた炉内放射線の測定、原発用の中性子インコアモニタの較正なども立教炉が関与した重要な仕事であった。

小型炉でなければ果たせない研究や将来期待の持てる研究を多数抱えながら、立教炉が廃炉の道をたどったことは時代の流れとは言え誠に残念である。

1986年11月に立教原研が行った、第1回アジア地域研究用原子炉シンポジウムはその後のアジア地区における放射化学の発展に寄与するところ大であった。中国大陸と台湾の研究者が同席し、研究炉の問題を議論したこと、内戦の傷跡癒えぬベトナムの放射化分析の研究について知り得たことなどつい昨日のように思われる。

(文献)

- 1) 「立教炉利用共同研究二十五周年史」東京大学原子力研究総合センター（2000）

### (3) 武蔵工業大学の原子炉

(平井 昭司)

放射化分析の活動から武蔵工大炉を振り返ってみる。武蔵工業大学所有の研究原子炉 MITRR は、最大熱出力 100kW の TRIGA-II 型で、1963 年（昭和 38 年）1 月に臨界に達している。右図には年度毎の運転出力を示している。大きく分けて 1973 年（昭和 48 年）度以前と 1974 年度から 1984 年（昭和 59 年）度と 1985 年度以降の三期に分けられる。第一期は開始から縮小までの時期と、第二期は再生から隆盛への時期と、第三期は新燃料棒による新展開の時期である。第一期では、「原子力の平和利用」を旗印にいろいろの分野の研究に利用されてきたが、一私立大学が原子炉を安全にかつ有功に運営するにはあまりにも経費がかかりすぎ、徐々に利用形態や運営が縮小され、1970 年に入るとかろうじて維持するのが精一杯な状態になってきた。一方、この当時のわが国における研究用原子炉の数は 10 基にも満たなかったが、その利用価値は多くの分野の研究者から認められるようになってきた。このような背景の第二期の 1974 年に、武蔵工大炉を中性子放射化分析によって再び生き返らそうと計画され、送りこまれたのが筆者で、筆者の放射化分析研究の始まりでもあった。まずは、財政的基盤を固められるように信頼性が高い放射化分析システムを構築し、委託分析を行いながら、第二期から第三期での原子炉利用への普及を図ってきた。その成果は着実に進み、新燃料棒を購入し、更なる発展を目指して第三期を迎え、その後 1989 年の水漏れ事故で原子炉が停止するまでの 15 年間、武蔵工大炉は隆盛のごとく活動していた。その後は、社会における原子力関係の不祥事の影響も伴って、再開の日を見ることなく、2003 年 5 月に廃炉の宣告が行われた。筆者が携わってきた第二期と第三期での研究活動・分析業務を通じて武蔵工大炉を振り返ってみる。

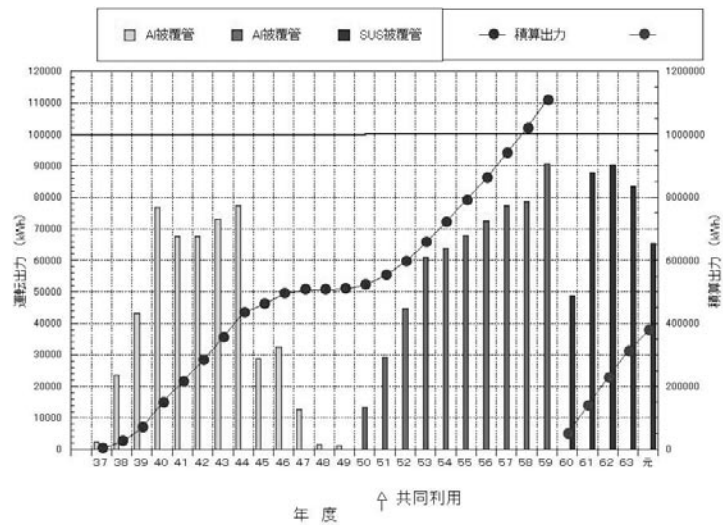


図 3-1 武蔵工大炉の年度別の運転出力と積算出力の様子

第一期では、「原子力の平和利用」を旗印にいろいろの分野の研究に利用されてきたが、一私立大学が原子炉を安全にかつ有功に運営するにはあまりにも経費がかかりすぎ、徐々に利用形態や運営が縮小され、1970 年に入るとかろうじて維持するのが精一杯な状態になってきた。一方、この当時のわが国における研究用原子炉の数は 10 基にも満たなかったが、その利用価値は多くの分野の研究者から認められるようになってきた。このような背景の第二期の 1974 年に、武蔵工大炉を中性子放射化分析によって再び生き返らそうと計画され、送りこまれたのが筆者で、筆者の放射化分析研究の始まりでもあった。まずは、財政的基盤を固められるように信頼性が高い放射化分析システムを構築し、委託分析を行いながら、第二期から第三期での原子炉利用への普及を図ってきた。その成果は着実に進み、新燃料棒を購入し、更なる発展を目指して第三期を迎え、その後 1989 年の水漏れ事故で原子炉が停止するまでの 15 年間、武蔵工大炉は隆盛のごとく活動していた。その後は、社会における原子力関係の不祥事の影響も伴って、再開の日を見ることなく、2003 年 5 月に廃炉の宣告が行われた。筆者が携わってきた第二期と第三期での研究活動・分析業務を通じて武蔵工大炉を振り返ってみる。

1975 年代における放射能測定は、NaI (TI) シンチレーション検出器から Ge (Li) 半導体検出器に移行し、波高分析器も真空管からトランジスタ化になり、400 チャンネルから 1024, 4098 あるいは 8192 チャンネルへと進み、分析の形態が大きく変わる時期でもあった。すなわち、従来の放射化学中性子放射化分析から機器中性子放射化分析に変わり、試料を化学的処理をしないで、直接測定する方式が一般化してきた。このような背景の中、迅速性と高信頼性を目指して新しい放射化分析システムづくりを行ってきた。このシステムは、波高分析器にミニコンピュータを接続し、データ収集から解析までを独立に、かつ、併行に実行できる世界に先駆けた高性能の  $\gamma$  線スペクトロメトリーシステム (GAMA システム) であった。GAMA システムは、人と機械とが対話的に操作できる機能を備え、画面は大きく誰もが容易に扱えるように操作性に重点を置いたシステムであった。その後、1980 年代に入るとミニコンピュータの時代からマイクロコンピュータの時代に、さらに、1990 年代にかけてパーソナルコンピュータの時代へとコンピュータが移り変わるに従い、GAMA システムも変遷の一路をたどり、1994 年には 5 号機までを製作し、利用者への便を図ってきた。いずれのシステムも操作性に重点を置き、また、データ収集から解析

までのプログラムを自前で製作したことにより、システム評価をいつでも容易に行える特徴を有していた。特に、操作性に重点を置いたシステムは、その後の市販のシステムにかなりの影響を及ぼしてきた。また、 $\gamma$ 線測定システムには Ge (Li) 検出器と NaI (TI) 検出器の2台の検出器を組み合わせた同時・反同時計数法による特別な測定機能を備え、市販の装置よりも検出感度の向上や複合ピークの分離を容易に行え、さらに1980年代からは大容量の多数の試料を無人で測定できる自動交換機能をも付帯し、応用分野の拡大を図ってきた。

放射化源となる照射設備についても小型原子炉の最大限の機能を引き出すため、ハード面で行った。いくつかの開発を行ってきた。短寿命核種の生成・測定のための自動気送管システムの開発、極短寿命核種用の高速繰返し気送管システムの開発、大容量水溶液試料の照射設備の開発などを1980年～1990年代にかけて行った。また、ソフトの面では、中性子フラックスモニタを利用する照射量の標準化を図った。このような試料数の効率化と分析値への信頼性向上への取り組みは、1990年代の日本原子力研究所の JRR-3M, JRR-4 原子炉の照射設備の設置ならびに開発に少なからず影響を残していると思われる。

第二期における放射化から測定、解析への一貫したトータルシステムの開発は、わが国の放射化学分析システムの先導的役割を担い、トータルシステムを利用した微量元素分析への応用は、時の社会的ニーズに応え得る幅広い分野の数多くの試料を対象に分析を行うことができた。地球科学、環境科学、農学、薬学、医学、栄養学、文化財科学、考古学、化学工学、電子工学、金属学などの分野の様々な試料を分析するチャンスに恵まれ、その時代におけるその分野での微量元素の役割を身近に肌で感じることができた。1970年代から1980年代にかけては、ppm レベルの微量元素が主役となっていたが、1980年代から1990年代にかけては ppb レベル、1990年代から2000年にかけては ppt レベルと分析に要求される濃度レベルが年々低下し、中性子放射化分析の必要性がますます増加してきた。このような動向は放射化分析の分野だけで起こったのではなく、原子吸光分光分析から ICP 発光分光分析、そして ICP 質量分析の手法が広く一般に普及してきたことと密接に関係し、その中で中性子放射化分析法は感度の点でいつも一歩二歩他の分析法よりは先行していた。

以下に、武蔵工大炉を使った特徴あるいくつかの分析例を紹介する。

半導体分野における RAM あるいは CCD メモリーの  $\alpha$  放射体による誤動作に関連してこれら材料中に含有するウランやトリウムをサブ ppb レベルで精度よく定量するのに本法を適用し、その後のルーチン分析となる ICP 質量分析や他の分析法の参照分析法ともなり、未だにメモリー構成材料の評価には欠かせない分析法に位置づけた。

放射化分析の難点の一つに長い処理時間があるが、半減期 17.5 秒の  $^{77m}\text{Se}$  に着目したセレンの定量は、開発した自動気送管システムを利用して照射から解析終了まで1試料あたり約2分間と驚異的な短さで結果を出すことができた。セレンはビタミン E の代替え、水銀やカドミウムに対する拮抗作用や抗がん作用などが生体中で起こることから、生物学、栄養学、薬学、医学などの分野で注目され、本法の活用成果により生体中における細胞レベルでのセレンの挙動を詳細に検討するまでに到っている。

貴重な文化財や考古学遺物などの分析に威力を発揮してきたのが本法で、精力的な分析により従来困難と思われてきた鉄器類を分析し、新しい指標元素を探り、鉄原料の産地推定や鉄生産技術の解明などを行う、新しい考古学への道筋を付けることができた。

特定の元素に絞った分析以外にも本法が威力を発揮してきたのが、多元素分析の特徴を活かした標準物質の認証である。本法は、化学分析法と異なり、操作中に着目元素の汚染や揮散の恐れ

が少なく、測定する放射能も原理的に質量と直接結びつくため、分析値の真度は多くの分析法の中でも優れていることが知られている。認証標準物質の必要性が増すと伴に本法の価値もますます高まってきている。

#### (4) 京都大学原子炉実験所での共同利用

(柴田 誠一)

##### a. 原子炉実験所の設置と施設整備

京都大学原子炉実験所は、「原子炉による実験およびこれに関連する研究」を行うことを目的として、昭和38(1963)年に設置された全国大学などの共同利用研究所である。

原子炉実験所の中心施設である研究用原子炉の設置計画案が京都大学工学研究所から文部省に提出されたのは、昭和30(1955)年のことであった。この年、日本学術会議で開催された「原子力に関するシンポジウム」において、関東および関西の大学に研究炉を1基ずつ設置するという意見が一致し、文部省での審議の結果、翌年、京都大学に研究用原子炉1基を設置する案が科学技術庁に提出された。そして、さまざまな協議を経て、京都大学に関西研究用原子炉設置準備委員会を置くこととなり、この委員会で原子炉設置に関する計画、原子炉の型、設置場所、管理運営の方法などを検討、立案することとなった。この第1回会議で、当時原子力委員であった、湯川秀樹京都大学理学部教授が委員長に選任された。こうして、全国科学者の共同利用研究炉としての関西研究用原子炉の建設に向けての取り組みがスタートし、努力が続けられたが、原子炉設置予定地の住民の反対により、研究炉敷地決定に至るまでには、その後5カ年の歳月が費やされた。そして、紆余曲折を経て、最終的に建設地が大阪府下の熊取町に決定した。昭和36(1961)年に京都大学は現地に熊取出張所を開設し、その年の12月1日に起工式が執り行われ、建設が開始された。

京都大学研究用原子炉(KUR)は、開所から1年後の昭和39(1964)年に初臨界に達し、1 MWでの運転を開始した。そして昭和43(1968)年に出力が5 MWに増強され、以来本年(平成18(2006)年)2月まで継続して運転され、毎年、数千人・日の研究者の共同利用に供されてきた。KUR利用研究は、放射化学に関連した中性子放射化分析、放射性同位体の製造などの他、中性子散乱による物質の構造解析、材料試験、新材料創生、新同位体の発見、中性子反応を利用したがん治療など多岐に亘っている。KURは、今後2年間は運転を休止するが、新しい燃料を取得して、2008年には運転再開の予定である。KURのほか、実験所には中性子発生装置(電子線型加速器)(1965年～)、臨界集合体実験装置(KUCA)(1969年～)、 $^{60}\text{Co}$ ガンマ線照射装置(1969年～)などの実験装置があり、それぞれ共同利用研究に供されている。

##### b. KURを用いた放射化学関連研究

中性子源としてのKURとそれに直結した、放射性同位体に加えて核燃料物質の取り扱いが可能な、ホットラボ施設を有している実験所の特徴を活かして、これまでに核化学、放射化学の分野で多くの成果が得られている。そのうちの主なものを以下に紹介する。

###### (i) 短寿命核の核物理・核化学的研究

短寿命核の核構造研究では、加速器を用いる研究とは相補的に研究炉では核分裂を利用することにより中性子過剰核の研究が可能である。昭和50(1975)年ごろから、 $^{235}\text{U}$ の核分裂による中性子過剰の短寿命核の系統的研究のために、名古屋大学、京都大学原子エネルギー研究所(現:エネルギー理工学研究所)の協力を得て、ヘリウム・ジェットを用いたオンライン同位体分離装

置(KUR-ISOL)が開発された。これにより、質量数150近傍の中性子過剰核の系統的研究が行われ、多くの新同位元素が発見された。このオンライン同位体分離装置は、RIビーム注入装置として、放射性イオンを種々の物質に注入することにより物性研究にも利用されている。

#### (ii) メスバウアー分光法

放射線を利用した物質科学の研究の一つとして、物質の構造や特性を解析する手段としての利用法がある。この利用法のうち、メスバウアー分光法では原子核によるガンマ線の共鳴吸収を用いるため、放射性同位体(RI)を線源として使用する必要がある。特に短寿命RI線源を用いる場合にはその線源作成に原子炉や加速器が必要となる。原子炉実験所では、初期のころからRIを用いたメスバウアー測定など独自の研究および共同利用研究が行われており、最近では、 $^{129}\text{Te}$ や $^{197}\text{Pt}$ などの短寿命核を用いた研究がなされている。

また、核分光法の手法を物性研究に応用する試みも開所の初期のころから実践され、いくつかの原子核をプローブとした摂動角相関法による物性研究が行われた。

#### (iii) 中性子放射化分析

原子炉実験所では、熱中性子による試料照射管や放射線測定装置を整備し、多数の試料の中性子放射化分析を行える環境を整えてきた。共同利用研究の開始以来ほぼ40年に亘って、中性子放射化分析に関する研究件数は、共同利用件数全体の約1/3を占めている。実験所で行われた研究の一部を次に紹介する。

ヒト毛髪の微量元素の放射化分析：1976年、国際原子力機関(IAEA)は、環境汚染物質による人体の汚染を調べるための第一歩として、各国での基準となる毛髪中の微量元素濃度を調査するよう呼びかけを行った。これに応える形で国内各地から集められた毛髪試料の分析が行われ、日本人毛髪中の元素濃度の平均値が求められた。さらに、重金属汚染地域住民の毛髪を採取、分析し、先に得られた平均値との比較が行なわれた。

樹木葉面に沈着したエアロゾル元素を指標にした大気汚染の診断：自動車、ゴミ焼却場、工場などが排出する大気汚染物質の多くは、ガスや微粒子として放出され、一部は遠方まで運ばれる。樹木の葉面は疎水性のワックスのような物質で覆われているため、エアロゾル、とりわけ人為起源の炭素質エアロゾルを容易に沈着する。この性質が特に著しいスギを利用して、葉面に沈着したエアロゾルを分離し、その元素組成の分析が行われている。現在はアンチモンが指標元素として選ばれ汚染度の評価が行われている。

植物葉中の微量元素の分布と特異集積の研究：植物体を構成する元素組成には土壌中の元素分布が影響することが考えられるが、これとは別に、植物が特定の元素を体内に特異的に濃縮することが知られている。この植物葉中の微量元素の分布が放射化分析法を利用して測定され、吸収・集積特性を組み合わせると生育土壌の環境指標として有効なことが明らかとなった。

#### (iv) 放射性トレーサの製造とその利用

中央に白金原子が存在し、周囲にアンモニアと塩素が2個ずつ配位した化学構造をもつシスプラチンという制がん剤があるが、これらの配位子がシス型に配位した場合に制がん作用を持ち、トランス型の場合にはその効果がない。この制がん作用機構を解析するために、原子炉中性子照射により $^{195\text{m}}\text{Pt}$ を製造し、それをトレーサとして用いてシスプラチンが合成され、解析に利用された。

理研において重イオン加速器を用いてマルチトレーサの調製法が開発されたが、同様に原子炉中性子による $^{235}\text{U}$ の核分裂により生成する核分裂生成核種をマルチトレーサとして利用するための調製法が開発された。得られたマルチトレーサは放射化学関連研究分野のみならず医生物、

地球化学関連分野の研究者に供給され利用されている。

(v) リンのホットアトム化学

リンは生体を構成する元素として重要であり、有機化合物、無機化合物、生体関連物質などの広範囲のリン化合物を対象に、熱中性子捕獲反応で生成する  $^{32}\text{P}$  原子の化学形を調べることにより、 $^{32}\text{P}$  標識反跳生成物の種類や収率が、被照射物の化学形、中性子束、ガンマ線量、照射温度などの照射条件や化学分離などの分析条件にどのように依存しているかについて実験が行われた。それらの結果に基づいてホット  $^{32}\text{P}$  原子の反応機構が検討された。

(vi) 熱中性子による核分裂に関する研究

$^{241}\text{Am}$  の核分裂に関する研究が、京都大学原子エネルギー研究所のグループにより行われた。KUR で照射された  $^{241}\text{Am}$  に放射化学的分離手法を適用し、ガンマ線スペクトロメトリにより核分裂質量収率曲線が決定された。この研究により奇-奇核の核分裂反応の特性について貴重な知見が提供された。その後の  $^{233}\text{U}$  の核分裂の研究では、二重速度・二重エネルギー測定法により即発中性子数の測定も行われた。また、イオンクロマトグラフ法による短寿命核分裂生成核種の分離に関する研究も行われた。

(vii) 超ウラン元素の核的・化学的特性に関する研究

1995年の実験所改組にあたって、超ウラン元素に関する研究が実験所における研究の5本柱の一つとして取り上げられた。この中には超ウラン核種の核分裂や中性子吸収反応の断面積や反応の特徴を測定する研究、超ウラン元素や核分裂生成物の放射化学的分析や化学処理に関する研究が含まれており、これまでに基礎化学だけでなく原子力燃料サイクルの工学的な分野にも貢献する多くの成果が得られている。

c. KUR の運転再開と今後

KUR は、2006年2月で、高濃縮燃料での運転を終了した。2008年には低濃縮燃料に切り替えて運転を再開することが認められ、その準備が現在進行している。この、KUR の2年間の休止を契機として、新しい試みとして韓国原子力研究所の研究用原子炉 (HANARO) を利用する国際共同利用研究が検討された。その結果、原子炉実験所を窓口として全国の大学に、まず中性子ラジオグラフィーと中性子放射化分析の分野で HANARO 利用研究公募を行い、2007年度から共同利用研究が実現する運びとなった。実験所では、再開後の KUR の定格出力は1 MW で、運転期間を10-15年としており、長期的な展望では、アジアの研究炉に眼を向けた国際共同研究が不可欠であろう。そのような観点からも、今回の HANARO 利用共同研究の開始はこの国際共同研究の先駆けとしてその成果が期待される。

一方、原子炉実験所が将来計画として位置づけている「中性子ファクトリー計画」の実現へ向けて、2004年3月には、この計画のための主装置である加速器を設置するための建屋が完成した。入射器のイオンペータ ( $E_p = 2.5 \text{ MeV}$ ) は既に導入され、さらにブースターリング ( $E_p = 20 \text{ MeV}$ )、主リング ( $E_p = 150 \text{ MeV}$ ) の導入、設置のための準備が進んでいる。

### 3.15 主な大学における放射化学研究の歴史

放射化学講座を持つ大学を中心に「大学の研究歴史人脈」ということで、記事を集めることにしました。しかし、放射化学講座がない場合には、2代続いて（間があってもよい）放射化学会（旧討論会）に参加していたと推定される研究室がある場合も原稿執筆をお願いしました。しかし、

執筆者を探しえず記載もれの大学があることをお詫びいたします。

## 東北大学

(関根 勉)

東北大学において放射化学分野に関わった研究者は、理学部および工学部を中心に数多い。理学部化学科においては、分析化学講座の箱守新一郎教授(1948-1957)、瀬戸邦夫助教授(1945-1984)(後に工学部教授)の指導のもと、鈴木信男助手(1970-1993)(後に分析化学教授)、加藤豊明助手(1963-1993)(後に教養部及び薬学部教授)らが放射性同位元素を用いた研究を始めたことが放射化学の始まりである。昭和34年に放射化学講座が創設されると、塩川孝信教授(1969-1980)を静岡大学より迎えたが、2年間は静岡大学との併任であった。瀬戸邦夫助教授、鈴木信男助手が分析化学講座より移り、放射化学講座がスタートした。昭和35年には静岡大学より八木益男助手(1960-1991)が加わり、昭和36年には塩川孝信教授が仙台に移って核壊変・核反応に伴うホットアトム化学、コッククロフト加速器を用いた核反応研究、核分裂生成物の溶媒抽出分離法などの研究が開始された。八木益男助教授が核理研に転出した後に、原研より吉原賢二助教授(1968-1993)が加わり、荷電スペクトロメトリーも研究テーマに加えられた。これらの研究に関わったのは佐藤敏郎助手(1962-1965)(後に宮教大教授)、大森 巍助手(1963-1991)(後に静岡大教授)、伊澤郡藏助手(1968-1989)(現文星芸大教授)、鍛冶東海助手(1964-1998)である。 $\beta$ 壊変や核反応による化学的効果(気相、液相、固相)が実験的及び理論的に幅広く研究されたほか、PIXEやX線強度比の研究なども行われた。その後、吉原賢二教授が研究室を担当し、関根 勉助手(1982-2005)(現高教センター教授)が加わって、反跳インプランテーション反応機構の研究、テクネチウム化学研究、素粒子原子化学研究などが行われた。工藤博司教授(1994-2005)は3代目として研究室を担当し、木野康志助手(1995-)、高山 努助手(1995-2006)(現大同工大准教授)がスタッフに加わり、テクネチウム化学研究に加えて、超原子価原子の化学、エキゾチック原子化学の研究が行われた。現在は木野康志准教授が放射化学研究室を担当し、関根 勉教授が化学専攻兼任教授としてサポートしている。

分析化学講座は、箱守新一郎教授の退官後、岡 好良教授(1959-1970)が選研より赴任し、加藤豊明助手(1963-1993)を中心として光核反応を用いた分析手法の開発に着手した。加藤豊明氏は教養部教授として転出した後も光核反応による放射化分析法に従事した。昭和45年には4代目の教授として鈴木信男氏(1970-1993)を選研より迎えた。鈴木信男教授は溶媒抽出法に同位体希釈を応用し、不足等量分析法を開発したほか、放射化分析やPIXE法などの分析法を、井村久則助手(1981-1988)(現金沢大教授)、岩田好弘助手(1989-1993)(現秋田大教授)らと開発した。

理学研究科附属原子核理学研究施設では、八木益男助教授、近藤健次郎助手(1969-1979)(高エネ研名誉教授)が、主に気相における有機化合物のホットアトム化学研究、光核反応を利用した放射性核種の製造研究などを展開したほか、学内外の多くの研究者の共同利用を推し進めた。また、分析化学研究室から移動した榎本和義助手(1978-1997)(現高エネ研教授)は内標準法を放射化分析法に導入するとともに、生物試料や岩石試料等を含む環境試料にも光量子放射化法の利用を推し進めた。平成3年に大槻 勤助手(1991-)が原研より赴任し、フラーレン化合物の合成やフラーレン中における放射性核種の半減期の変化を詳細に検討した。これらの一連の研究成果により、2006年に放射化学会学会賞を受賞した。

金属材料研究所では、金属分析化学研究部門担当の後藤秀弘教授(1940-1969)が、理学部化

学科と時期を同じくして鈴木 進助教授 (1948-1987), 天野 恕助教授 (1959) らと放射性同位体を用いての分離法の研究を開始した。昭和 33 年放射線金属化学研究部門が新設され (後藤教授兼担), 昭和 38 年に鈴木 進助教授が教授に昇任し, 井上 泰助教授 (1959-1997) (後に工学部教授) らと本格的な研究に着手した。原 光雄助手 (1966-2005), 三頭聰明助手 (1968-2007), 佐藤伊佐務助手 (1974-), 塩川佳伸助手 (1971-) を迎えて, 主にアクチノイド化学および核化学研究を推し進めた。鈴木教授退官後は, 八木益男教授を迎え, 茨城県大洗町にアクチノイド研究棟を建設して共同利用を開始した。現在は, 塩川佳伸教授が引き継いでいる。

選鉱精錬研究所 (現多元物質科学研究所) では, 岡教授が転出後, 菅野卓治教授 (1945-1984) が担当し, 鈴木信男助教授, 秋葉健一助手 (1962-2003) を迎えて本格的な RI を用いる溶媒抽出法の研究が始まった。東北大学のサイクロトロンが運用が始まると, 伊藤勝雄助手 (1964-2004) はテクネチウムを製造し, その化学的挙動について研究を始めた。

工学部における放射化学研究は, 原子核工学科が設置された昭和 37 年に遡ることができるが, 本格的な研究が開始されたのは井上泰教授が金研から移動した昭和 40 年からである。井上泰教授は朽山修助手 (1971-) と共にアクチノイド研究に従事した。なお後に朽山 修教授は多元物質化学研究所に移動し, 桐島 陽助手 (2005-) を迎えてアクチノイド化学研究を進めている。桐島 陽助手は水溶液中における 4 価ウランイオンの発光現象を見だし, 2005 年に放射化学会奨励賞を受賞した。

サイクロトロン・ラジオアイソトープセンターは昭和 52 年度に設置され, 昭和 55 年度には核薬学研究部門が新設された。井戸達雄教授 (1980-2005), 岩田錬助教授 (1981-) 等によって, PET 用の放射性医薬品の合成が開始された。またこのセンターは, 学内外の共同利用施設として, 核理研と並んで RI 製造, 放射化分析, PIXE など, 多くの研究者が利用している。

## 茨城大学

(篠原 伸夫)

茨城大学の研究者による放射化学研究では, その地域性を生かして原研 (現在の原子力機構) と協力する研究が多い。1988 年に原研 (古川勝敏, 大野新一) との共同研究として小林正明と平山昌甫は, 「77K 氷に対する高エネルギー粒子衝撃効果」について研究し, 100keV イオンの衝撃を受けた 77K 氷の表面からのスパッタ生成物の生成機構を考察している。2000 年には仲野義晴が原研の成田弘一, 矢板毅, 館盛勝一とともに, 「多座配位ジアミド化合物による 3 価ランタノイドの抽出」として Am(III) の抽出挙動を研究している。また 2000-2001 年には, 一政満子は原研の柿内秀樹, 天野光とともに, 「微生物培養中の Sr, Cs, Ba 挙動」を研究し, 陸域環境にある微生物の生命活動に伴う代謝産物の上記元素への影響を明らかにした。2002 年に, 扇柳仁は原研の目黒義弘らと「超臨界二酸化炭素リーチング法による固体試料からのウランの分離」を行い, 固体から金属を直接抽出する方法を開発した。野口高明は, 2003 年に原研の初川雄一らと「多重ガンマ線分析法を用いたイリジウムの微量分析」を行い, 地球科学研究のための非破壊微量分析法を検討した。同年には一政祐輔と一政満子は熊本大学の百島則幸らと, 「大気水蒸気の枯葉への移行」について重水を用いて研究し, 植物葉の気孔との関連を明らかにしている。2006 年からは, 當銘勇人が原子力機構の永目諭一郎グループの下で超重元素核化学の研究に従事している。

茨城大学にはこれまで放射化学の講座が無かったため, 原研から星三千男, 吉田善行, 永目諭一郎らが出向いて学部学生を対象とする放射化学の講義を行ってきた。また同大学の大学院理工学研究科においては, 原子力機構など外部研究機関が支援する連携大学院が 1997 年に発足し,



館盛勝一，北條喜一，篠原伸夫，矢板毅が放射線科学分野の講座を担当して，放射化学を中心とした原子力科学を講義するとともに，原子力研究の後継者育成に取り組んでいる。

## 東京大学

### 東京大学理学部化学教室

(富永 健・野津 憲治)

日本の放射化学の黎明期に，東大理学部化学教室が果たした役割は，斎藤信房名誉教授によって本書の冒頭に述べられている。1950年代半ばまでは，柴田・木村・南各研究室（無機化学および分析化学の講座）を中心に，含希元素鉱物や温（鉱）泉水の天然放射能をはじめ，サイクロトロンによる人工放射能，核実験による放射性降下物などの放射化学研究が行われたが，詳細は第1章を参照されたい。

その後，化学教室では，木村研究室の後をうけて斎藤研究室（無機化学講座）が発足し，1957年新設の放射化学講座も斎藤教授が兼担した。1964年から1975年までは，放射化学講座は浜口博教授が担任したので，この間10余年は斎藤・浜口両研究室でそれぞれ放射化学研究が行われた。浜口教授の退官により1975年から斎藤教授が放射化学講座に担任がえとなり，さらに斎藤教授の退官により1977年から1996年まで同講座の担任は富永健教授であった。このように講座の担任がえのため錯綜するので，斎藤・浜口・富永の3研究室にわけて記述する。

斎藤研究室（1956-1977年）1956年木村健二郎教授の退官に伴い，斎藤信房教授が無機化学講座の担任となり，さらに翌年わが国で最初に設置された放射化学講座も兼担した。発足時の斎藤教授の研究室で放射化学研究にあたったのは，無機化学講座の村上悠紀雄講師，佐野博敏助手と放射化学講座の横山祐之助教授，馬淵久夫助手，富田功助手で，その後富永健助手（のちに助教授），佐藤純助手，岡田勲助手，竹田満洲雄助手，巻出義紘助手が加わった。斎藤研究室においては，木村・南両研究室の伝統を受けついで放射化学分析，天然放射能（とくに鉱泉沈殿物の放射能），放射性鉱物における放射非平衡・年代測定や，錯体などの固相ホットアトム化学，同位体分離（融解塩の交流電気泳動法，アマルガム系での同位体交換法），メスバウアー分光法による無機化合物の光・放射線分解などの研究が行われた。また，この時期に理学部共用として設置された放射性同位元素研究室には，化学教室で標識化合物の合成も行っていた島村研究室（有機化学第二講座）から森川尚威助手が着任した。

浜口研究室（1964-1975年）1964年に放射化学講座の担任として浜口博教授が着任し，日本原子力研究所や立教大学の原子炉を用いた放射化分析の研究を進めた。発足当初のスタッフは，馬淵久夫講師（のちに助教授），古川路明助手，小沼直樹助手であったが，後に菅野等助手と今村峯雄助手が加わった。また，理学部放射性同位元素研究室の脇田宏助手も浜口教授のもとで研究を行った。この講座は，1960年創設の工学部原子力工学科の協力講座でもあり，卒業研究の学生や大学院生は理学部と工学部の出身者がまじって活気を呈していた。そこで行われた研究は，放射化分析法の開発とその地球・宇宙化学および環境問題への応用，隕石や地球物質中の核反応で生成する宇宙線照射核種の研究，太陽系の起源の研究，サマリウム-ネオジウム年代測定法の開発と宇宙年代学，溶液系の同位体効果の研究など多岐にわたった。

富永研究室（1977-1996年）1977年斎藤教授退官の後をうけて富永健教授が放射化学講座の担任となり，斎藤研究室から引きついで竹田満洲雄助手，巻出義紘助手（のちに助教授）とともに研究を開始し，その後佐藤春雄助手，酒井陽一助手，葉袋佳孝助手（のちに助教授），久保謙哉助手，山田康洋助手がスタッフに加わった。また，理学部放射性同位元素研究室の小橋浅哉助手（のちに助教授）も協力して研究を行った。富永研究室では，主として液相や凍結溶液系など

のホットアトム化学や、メスバウアー分光法の新たな応用分野（考古化学，地球化学，環境化学など）および分析手法（固相表面の反応や低温マトリックス単離した系での無機光化学反応の状態分析）の開発などの研究が進められた。また，中間子科学実験施設において，ミュオンをプローブとしてその化学的挙動や物質の磁性を調べる中間子化学の研究も行った。なお，1980年代以降は，これら放射化学の研究に加えて，大気化学の研究（大気中の超微量成分気体の精密分析の確立）にも取り組み，地球環境問題（オゾン層破壊）の解明にも重要な寄与を果たした。1996年富永教授退官の後は無機化学研究室（西原寛教授）となり，化学教室における放射化学研究の歴史に終止符がうたれた。

#### 東京大学のその他の学部・研究所 （伊藤 泰男・野村 貴美・田中 知・巻出 義紘）

1965年に東京大学工学部原子力工学科放射線化学教室の田畑米穂，放射線計測の長谷川賢一，放射化学の小方厚らが共同でトランジスタ時間波高変換器を試作して $o$ -Psによる長寿命成分を観察することに初めて成功した。同研究室の伊藤泰男はその後，原子力研究総合センターにおいて，陽電子およびミュオニウム化学の研究を行った。

航空宇宙研究所から異動した仁木榮次教授が工学部工業分析化学第3講座を担当した（1963-1981年）。ポーラログラフィ分析機器の開発とともに熱ルミネセンスや液体シンチレータの研究を行った。メスバウアー分光装置の開発も手がけた。水池 敦講師（後に助教授）が放射性トレーサーの研究を行った。氏平祐輔助手（後に教授）は内部転換電子メスバウアー分光法，陽電子寿命測定の研究を始め，その後，先端科学技術センターで研究を推進した。メスバウアー分光法による固体表面や機能酸化物の解析研究は，工学部放射線管理室の野村貴美助手（後に助教授）が継承した。

その他の，工学系の，原子力工学科（1993年改組），システム量子工学専攻，原子力工学研究施設（2005年原子力専攻に改組），原子力研究総合センター（2005年改組），原子力国際専攻における放射化学関連研究は次のとおりである。核燃料に係る放射化学的研究は，向坊研究室，菅野研究室，高橋研究室で行われてきたが，その後，寺井研究室で行われている。ウラン・トリウムやそれらの化合物に関する燃料製造・高温物理化学特性に関する研究が行われ，近年は高温化学再処理プロセスにおけるウラン・プルトニウム・TRU・FPの分離と回収，これらの放射性物質の除染プロセスが検討されている。核燃料サイクル，放射性廃棄物管理，核融合炉燃料材料に係る放射化学的研究は，山本研究室，清瀬研究室，鈴木研究室で行われ，その後，田中研究室，長崎研究室で行われている。アクチニド化学，とくにアクチニド元素の存在状態の決定や吸着挙動のモデリング構築，コロイドとの相互作用の機構解明，核融合炉増殖材料中トリチウムの挙動に関する研究が行なわれている。放射線科学に関連した研究は，大島研究室，田村研究室，田畑研究室，石樽研究室で行われ，その後，勝村研究室で行われている。水の放射線分解，特に原子炉に関係する高温水，超臨界水の放射線分解が中心に研究されている

アイソトープ総合センターでは，1971年から森川尚威講師（後に教授 1984-1989年）が標識有機化合物の合成・分析，放射線管理に係る研究などを行なった。後任として理学部化学教室から着任した巻出義紘教授（1989-2007年）は，超微量物質の高精度分析法の開発，地球環境や高純度物質における挙動の研究などを行なっている。

#### 東京都立大学－首都大学

（海老原 充・片田 元巳）

東京都立大学－首都大学における放射化学の教育に携わった研究者の繋がりを記す。都立大学

において放射化学の教育を正面から取り上げた最初の先生は村上悠紀夫先生で1968年（昭和43年）4月に日本原子力研究所ラジオアイソトープ研修所所長から東京都立大学理学部教授として着任された。大気中のラドンに注目され、各種環境試料中のラドンの濃度を測定する仕事を堀内公子助手とともに精力的にすすめられた。温泉水やガス中のラドン濃度の測定の係わりから温泉科学会の運営に深く関わられた。先生は1979年（昭和54年3月）に都立大学を定年退職された。村上先生の教授時代の中原弘道先生が新潟大学理学部から助教授として赴任され、村上先生退職後、教授に昇任された。中原先生は核化学・放射化学のいろいろな分野で研究を行われたが、特に核分裂機構の研究では顕著な研究成果を収められた。中原先生の在任中、遠藤和豊助教授、末木啓介助手が相次いで赴任し、堀内助手と共に「一般化学研究室」を運営された。その後、1988年3月に群馬大学から海老原助教授が赴任した。1991年春、八王子市南大沢新キャンパスへ移転したのを機に、「無機化学第二研究室」と研究室名が改名され、その後、大学院重点化を機に「放射化学研究室」に再度改名された。この間堀内助手、遠藤助教授が転出し、日高洋助手の赴任→転出を経て、大浦泰嗣助手が赴任した。1999年3月に中原先生が定年退職後、2000年1月に海老原助教授が教授に昇任した。海老原教授は研究室名を「宇宙化学研究室」と改名したものの、放射化学を宇宙化学と共に研究室の2本柱に据え、これに分析化学を融合させて研究室運営を行っている。近々篠塚一典助教が赴任予定である。

他方、都立大学には、放射化学と関わりのある研究グループとして、1972年（昭和47年）4月に、無機化学講座の教授として着任した佐野博敏教授（現大妻女子大学理事長・学長）のグループがある。佐野教授は、村上教授と同門で東京大学時代（助手）に、固相ホットアトム化学の研究を手がけ、メスバウアー分光法が有効であることを示した。その後、助教授として赴任したお茶の水女子大学では、有機スズ化合物を中心に分子間相互作用がメスバウアースペクトル強度に及ぼす効果を「ポリマー効果」として完成、確立させている。都立大学では、1) 原子核壊変に伴う化学的後遺効果、2) 分子内化学状態、3) 固相内での分子間相互作用と分子運動を主な研究テーマとして研究・教育活動を行い、放射化学分野のみならず無機化学全般にわたって成果をあげた。教養部長を経て1989年に総長に就任したため、理学部教授は併任となり1991年3月に定年退職となった。佐野教授に対して1988年に日本化学会賞（昭和62年度）が、2001年には日本放射化学会学会賞木村賞（平成13年度）が授与されている。

佐野教授の在任中に在籍した教員は多岐にわたり、本山泉（有機金属化学、助教授：1973-1986）、荒木匡（無機分析化学、助手：1972-1974）、大矢とし江（磁性物理化学・メスバウアー分光、助手：1972-1975）、片田元己（無機化学・メスバウアー分光、助手：1975 - 1986、助教授：1987-1991）、遠藤和豊（放射化学・ポジトロン化学、助手：1975-1982）、（放射化学・計算機化学、助手：1977-1983）佐藤（岩井）久美子（無機化学：メスバウアー分光、助手：1982-1988）、益田祐一（錯体化学・NMR、助手：1984-1989）、久保厚（物理化学・NMR、助手：1988-1991）、川田知（錯体化学・ESR、助手：1989-1991）らがいる。

片田助教授は、1991年の全学移転に伴って新設されたRI研究施設担当の教授に昇任し、大学の放射線管理の総括者としてその職務を果たすとともに、大学院（化学専攻）担当として、これまでのメスバウアー分光法を用いた研究を同位体化学研究室として継続してきた。2005年の首都大学東京の発足により、化学に定員が移されたため、都市教養学部理工学系化学コース（大学院理工学研究科分子物質化学専攻）の所属となった。2006年9月には、秋山研究員（助教）が加わり、現在に至っている。

## 東京工業大学

(藤井 靖彦)

東京工業大学原子炉工学研究所は1956年(昭和31年)理工学部附属原子炉研究施設として発足、炉化学部門が設置された。本部門に垣花秀武教授(1958-81)が着任し、大滝仁志助手(1959-65)、森芳弘助手(1960-65)、小島隆技官(1959-80)(助手1980-90, 助教授1990)、福富博助教授(1964-73)、菊池出技官(1964-67)の研究陣容が形成され、化学平衡における同位体効果と同位体分離の研究が開始された。理論面では錯形成同位体効果の2相分配、実験面では質量分析計アトラス MAT-CH4 が設置され、イオン交換樹脂を使った同位体分離の研究が行われた。森の後任岡本眞實助手(1966-74)はリチウム等金属元素の電気泳動同位体分離を行っている。小高正敬助手(1973-2000, 助教授2000)は同位体効果の理論的計算と弱塩基性陰イオン交換樹脂を用いるホウ素同位体分離の研究を行った。一方福富博教授(1973-87)は富安博助教授(1981-94, 教授1994-2000)と共に無機錯体の反応速度論的研究を展開した。その後原子炉工学研究所にトリチウム化学部門が新設され、岡本眞實助教授(1974-84, 教授1984-96)が核融合炉ブランケットに充填するトリチウム増殖材の研究を開始した。バリアン MAT-CH5, フィニガン MAT261 などの質量分析計も導入され、野村雅夫技官(1971-97, 助手1997~2007, 助教2007-)は、ジルコニウムの原子量測定、天然ホウ素の同位体比変動など精密同位体比測定の開発を行っている。旭化成より赴任した藤井靖彦助手(1974-87, 助教授1987-92, 教授1992-)はイオン交換法ウラン濃縮法の原理研究を行い、野村のウラン同位体精密分析により、質量に依存しない同位体効果の発見に至った。本グループに若狭湾エネルギー研究センターより鈴木達也助手(2000-07, 助教2007-)が加わり、プラズマを用いる表面反応から溶液系での希土類、マイナーアクチノイド分離など、精密分離法の研究を展開している。現在このグループはリチウム、カルシウム、亜鉛同位体などのクラウンエーテル分離法、イオン交換法による $^{15}\text{N}$ 高濃縮法の開発、新しい再処理システムの構築などの研究を行っている。

## 東邦大学

(高橋 正)

東邦大学理学部における放射化学研究は比較的新しく、1978年の斎藤信房教授(東大名誉教授:1978-1987)の着任による。翌年10月に竹田満洲雄助教授(1979-2007)が着任し、そのあと1981年9月にはRI実験室が竣工して研究体制が整った。続いて1984年に高橋正博士(1984-), 1991年に北澤孝史博士(1991-)がそれぞれ助手として着任した。この間、1982年から1986年まで竹田教授が初代RI実験室長として研究環境の整備に尽力した。北澤助教授も2005年より2007年までRI実験室長を務めた。初期にはリン鉱石中のウランの放射平衡の研究、 $^{121}\text{Sb}$ メスbauer分光法によるアンチモン(III)化合物の立体化学と $^{57}\text{Fe}$ によるFe(III)ポリアミノカルボン酸錯体の研究が行われた。1980年後半から1990年半ばにかけて、 $^{121}\text{Sb}$ や $^{127}\text{I}$ を用いた超原子化合物の電子状態の研究が推進された。1996年に2次元高分子錯体シアノ架橋鉄(II)-ニッケル(II)錯体においてスピントスオーバー現象が発見され、強力に研究が行われた。2005年に北澤助教授が錯体研究室を主催して独立し、このテーマをアクチノイド化学とともに引き継いでいる。90年代半ばから、竹田教授および北澤助教授は原子力研究所の佐伯正克博士、中田正美氏、正木信行氏ら(のちに中村彰夫博士が参加)のメスbauer研究グループと共同して、ネプツニウム化合物の $^{237}\text{Np}$ メスbauer研究を開始した。同じ頃から、希土類化合物のメスbauer研究が、 $^{155}\text{Gd}$ ,  $^{161}\text{Dy}$ ,  $^{166}\text{Er}$ などを用いて行われるようになった。最近はこれに $^{151}\text{Eu}$ も加わっている。

その他、医学部の中村幹夫教授との共同研究で非平面ポルフィリンの Fe(III) 錯体の  $^{57}\text{Fe}$  メスバウアースペクトルやオーストラリア RMIT 大の S. K. Bhargava 教授との共同研究で環状二核有機金錯体の  $^{197}\text{Au}$  測定も進められてきた。無機化学教室ならびに錯体化学教室において多くの学生が研究をおこなったが、なかでも高田稔博士（リン鉱石）、王軍虎博士（ $^{237}\text{Np}$  および希土類化合物のメスバウアー）、北代邦彦博士（ $^{197}\text{Au}$  メスバウアー）ならびに川崎武志氏（ $^{237}\text{Np}$  メスバウアーおよびスピנקロスオーバー錯体）は、博士課程学生として多くの研究に貢献した。

## 東京理科大学

（山田 康洋）

東京理科大学理学部第二部化学科で、佐藤春雄助教授（1986-1996）がメスバウアー分光法に関する研究を始めた。吸着分子や光化学反応に関するメスバウアー分光法研究の他、大気化学に関する研究も行った。佐藤春雄助教授が海の事故で亡くなられた後、約1年間研究室は閉鎖されていたが、山田康洋教授（1997-）が研究室を引き継ぎ、低温マトリックス単離法を用いた光化学反応のメスバウアー分光法による研究を行っている。また、新たにレーザー蒸着膜のスピン配向の研究を進めている。

## 明治大学

（佐藤 純）

明治大学は講座制ではなく講義制であるので、教員一人ひとりがそれぞれ就任時に一つの研究室を開き、退任時にその研究室を閉じる。したがって、研究室は教員一人と配属された学生で構成されている。明治大学での放射化学の研究は、佐藤 純が1977年に当時の工学部工業化学科に助教授として着任し、無機化学第2研究室を開いたのが始まりである。後に研究室名が放射化学研究室に変更になった。工学部は1989年に理工学部になり、工業化学科は2005年に応用化学科に名称変更になった。明治大学には放射性物質を取り扱える施設がなく、人工の放射性核種を用いることはできないので、天然の放射性核種を対象にして研究が進められた。火山噴出物中のウラン系列核種とトリウム系列核種を対象とした研究、地下水中のラドンを対象とした研究などが初期の研究の中心であった。その後、研究対象が広がり、大気中の放射性鉛や天然水中のラジウム同位体や放射性鉱物から溶出するラジウムも研究対象となった。2007年に佐藤 純が定年退職して、放射化学研究室は消滅した。現在、大学などの研究機関に所属している研究室出身者に齊藤 敬（日本大学文理学部化学科助手）、小池裕也（東京大学アイソトープ総合センター助）、中野朋子（京都大学原子炉実験所助手）がいる。

## 立教大学

（佐々木 研一）

立教大学における放射化学の研究拠点は、1) 理学部化学科無機化学第1（放射化学）研究室、および、2) 一般教育部自然科学科化学研究室（一般教育部解散後は理学部化学科研究室）であった。各研究室は現在閉じられている。

1) 理学部化学科無機化学第1（放射化学）研究室（詳細：「立教大学理学部30年史」1979）

1949年理学部化学科の創設に当たり、奥野久輝教授は、無機化学研究室を開設した。その後数年間に無機化学、分析化学および放射化学に関する研究、教育に携わったメンバーは、奥野久輝（1949-1972）、本田雅健（1949-1953）、石森達二郎（1952-1993）、松浦辰男（1950-1959）、中

井重次 (1951-1958), 笠井康一 (1949-1957, 兼任)。研究課題は  $^{14}\text{C}$  を用いる桑の葉の同化作用, 三フッ化ホウ素の精製と  $^{10}\text{B}$  の濃縮, ラジウム D / E / F の共沈, イオン交換の分析化学・無機化学への応用, 放射性物質汚染除去など。1957年, 化学科が7研究室体制となり, 奥野久輝の下に新たに放射化学研究室が組織された。メンバーは奥野久輝, 山寺秀雄 (1958-1966), 石森達二郎, 岩島清 (1958-1961), 水町邦彦 (1959-1994), 広田玲子 (1963-1999), 三木瑛一 (1968-2005)。研究課題は放射性物質汚染除去, 核分裂生成物に含まれるルテニウムの化学, ニッケル錯体の有機溶媒中の同位体交換反応, ニッケルの同位体分離/放射化分析, また, 放射化学ではないが, ルテニウム/ロジウム/オスmium等白金族元素の錯体化学。フェナントロリン等を配位子とする錯体については, 光学異性と関連させたホットアトム化学の研究が行われた。放射化学研究室は2005年三木瑛一の定年と共に閉じられた。

## 2) 一般教育部自然科学科化学研究室 (一般教育部解散後は理学部化学科研究室)

泉水義大 (1975-2001) は立教大学原子力研究所から移籍後, 無機および有機マトリックスにおける  $^{13}\text{N}$  のホットアトム化学, 大気浮遊粉塵粒子中微量元素の放射化分析 (以上立教原研戸村健児と共同研究) を研究課題とした。佐々木研一 (1987-2007) の研究課題は金属錯体のホットアトム化学 (立教原研松浦辰男と共同研究), プール型原子炉燃料破損連続検出 (立教原研松浦辰男/林脩平と共同研究), 土壌中ウラン/ $^{137}\text{Cs}$  の挙動, 肥料/石膏中ウランの放射非平衡。両教員の共同研究として河川堆積物の放射化分析。なお, 1995年に一般教育部は解散し, 両教員は理学部総合科学講座へ, 翌1996年に理学部化学科へ移籍し, それぞれ新たに研究室を構え, 上記研究を継続。両研究室はそれぞれ教員定年時に閉じられた。

## 日本大学

(永井 尚生)

日本大学文理学部化学科の放射化学研究は, 本田雅健教授 (1982-1991), 永井尚生助手 (1982-) の赴任から始まり, 隕石の放射化分析, 加速器質量分析法の開発と, 隕石・雨水などの宇宙・地球化学への応用が行われた。その後赴任した米田成一助手 (1988-1992) により, 隕石中の希土類元素の分布について研究が行われた。1992年からは永井講師 (その後助教授, 教授) が研究室を主宰し, 大気エアロゾル・海水・堆積物など地球化学試料についての加速器質量分析法の応用研究が行なわれた。また, 小林貴之助手 (1996-2000) によりマンガン堆積物中の  $^{10}\text{Be}$  の分析と成長速度の推定について, 松村 宏助手 (2000-2002) により光核反応における  $^7\text{Be}$ ,  $^{10}\text{Be}$  生成収率について, 齊藤 敬助手 (2003-2007) により温泉水中の Ra 同位体濃度と季節変動について, 田副博文助手 (2007-) により Nd 同位体を用いた海洋循環について, それぞれ研究が行われている。

## 大妻女子大学

(堀内 公子)

大妻女子大学の場合, 学部によって研究グループの形態が少しずつ違っているが, 放射化学会関係者が所属しているのは社会情報学部だけであり, 社会情報学部は個人研究室制とも言うべき体制である。1992年4月社会情報学部が発足した。大森佐與子教授 (1992-) は発足初年度赴任し, 放射化分析による毛髪試料中の微量元素定量を手がけ, 人体中の微量元素の病態分析を行っている。堀内公子教授 (1992-) も同様で, 温泉水, 地下水, 河川水等水中のラドン濃度測定を行い, 地球化学的, 水文学的検討および放射線教育の普及をテーマに研究を行なっている。佐野博敏学長・理事長 (1995-2000: 社会情報学部教授, 2000.4-: 学長, 2003.7-: 理事長) は1995年4月教

授として赴任，教授時代には混合原子価鉄錯体が示す分子内電子移動の速度論的解析を行い，学長・理事長時代には学校運営に専念する傍ら化学教育・放射線教育へのメスバウアー分光の有効性等を検討した。

## 青山学院大学

(木村 幹)

理工学部（1965年4月世田谷キャンパス開学）において1969年放射化学（村上悠紀雄講師・東京都立大学）開講予定，同年および1970年木村幹（東京教育大学池田長生研究室）代講，1971年大学院博士課程設置にあたり無機化学第3研究室開設につき木村幹教授着任（-1977），平尾良光（1973-1987 主管），村上正喜（1988-89），小林義男（1989），矢板毅（1989-92 博士課程），原川裕章（1992-95），古里直久（1995-96）の各助手と放射性元素を含む希元素の分析化学，放射化学，地球環境化学を総括的標題として研究した。そのため，放射線使用施設を立ち上げ，木村幹（1974-97），佐羽内（大野）真利子（1977-79），齋藤裕子（1980-）の放射線取扱主任者と研究を進めた。有機化学光延旺洋教授（1966-2003），伊藤尚教授（1965-2004）はそれぞれ標識付きの制限酵素，インシュリンの合成研究を行った。生物化学鮫島達也教授（1965-2000），高木美也子助手（1979-81），生命化学田代朋子教授（2000-）は標識化合物を利用して研究を行っている。電気電子工学科太田恵造教授（1965-94）は新しい金属間化合物および酸化物の磁性のメスバウアー効果による研究を開始，永田勇二郎教授（1980-）は4d遷移金属を含む酸化物における強磁性等について研究を継続している。物理学科では石井千尋教授（1966-73），横井敬教授（1971-2000），柴田徹教授（1973-）が宇宙線の研究を，また，吉田篤正教授（2001-）がX線・ $\gamma$ 線測定による天体现象の研究を，関連して柴田研の小林正講師（1966-），榊直人助教（2005-），吉田研の山岡和豊助教（2005-）は検出器の開発・放射線源を用いた特性試験研究を行っている。栗屋隆教授（1973-2001）は環境放射能など微弱放射能の測定について正確な解析法を提案，実証的な測定を行った。2003年相模原キャンパスに移転，施設は新設されている。

## 新潟大学

(工藤 久昭)

新潟大学の放射能研究は，1954年のビキニ環礁における水爆実験による放射能を新潟市に降った雨水中に検出したことに始まる。この観測を契機に，医学部公衆衛生学教室，理学部化学科無機分析化学研究室，工学部工業数学教室，及び農学部土壌学教室が中心となって環境放射能研究グループが組織された。ここでは，理学部化学科における放射化学研究のみに限定する。無機分析化学研究室の小山誠太郎教授（1952-1977）と外林武助教授（1952-1987，教授1971-）による放射性降下物の放射化学分析に始まり，1971年には無機化学研究室が分離し外林武助教授が教授に昇任されてこれに移籍し，助教には中原弘道（1971-1975）が着任した。この時期の主な研究テーマは，環境物質中の微量元素の放射化分析，中性子核分裂などである。中原弘道助教の都立大学への転出に伴い，橋本哲夫助教（1975-2007，教授1987-）が着任し，放射線による絶縁鉱物の損傷に伴う熱ルミネッセンスによる年代測定と，微弱アルファ放射核種の定量法の開発を行った。1983年に工藤久昭（1983-，助教1987-）が助手として着任し，低エネルギー原子核分裂の機構の研究，および超重元素の合成と化学の研究を行っている。2001年には後藤真一助手（2001-，2003年より機器分析センター助教）が着任し，工藤助教と共同研究を行っている。

## 信州大学

(村松 久和)

信州大学（教育学部）における放射化学に関係した研究は、掛川一夫教授（1945-1980）が本学の前身である長野師範学校に赴任したのが始まりである。掛川教授は、昭和20年（1945）に長野師範学校教授に就任し、同24年（1949）に信州大学助教授兼長野師範教授を経て教育学部教授（化学）として、地球化学を専門分野としながら、河川水や温泉水の分析化学を中心に教育・研究に従事した。飯島南海夫教授（1948-1988）は、専門分野は岩石学であったが、1978年を前後して、東京都立大学理学部村上悠紀雄教授、中原弘道教授、金沢大学理学部阪上正信教授らとともに、長野県白馬地域姫川沿いの温泉水中のラドン濃度測定、 $\alpha$ トラック法による断層探査の研究を行った。1987年に村松久和教授（1987-）が赴任し、 $^3\text{H}$ 、 $^7\text{Be}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{222}\text{Rn}$ などの自然界に存在する放射性核種の動態研究、 $^{57}\text{Fe}$ 、 $^{133}\text{Cs}$ のメスバウアー分光学的研究、ポジトロンの消滅寿命測定を利用した物質科学的研究が開始された。理学部では、中村俊夫教授（1969-）が、金属中の微量アンチモンの分析や非水溶液中の化学種の溶存状態・溶解平衡の解明のために放射化分析を用いた研究を行った。また、吉野和夫教授（1981-）は、核化学の講義を担当するとともに、同位体化学（中性子捕捉療法、同位体分離）の研究を行った。

## 金沢大学

(中西 孝)

1954年3月にビキニ水爆実験による第五福龍丸の被災事件が起こり、第五福龍丸から陸上げされたマグロが金沢の市場にも入荷した。そのマグロに付着していた放射性核種の分析を理学部化学科の分析化学講座と無機化学講座の共同で行ったのが金沢大学における放射化学研究の始まりである。それが端緒となり、1961年に金沢大学理学部化学科に放射化学講座が開設された。開設当初は、分析化学講座の木羽敏泰教授（1949-1979）が放射化学講座の主任を兼務し（1961-1962）、分析化学講座の高木友雄助手（1949-1972）が放射化学講座助手に転じた（1961-1966、1966-1972 アイソトープ総合研究室専属の講師・助教授）。1962年には阪上正信教授（1962-1979、1979-1987 低レベル放射能実験施設の専任教授）と大沢眞澄講師（1962-1971、1963 助教授）が着任し、アルファ放射体の分離・定量・放射化分析に関する基礎研究と応用研究が開始された。その後、中西孝助手（1969- 現在、1980 講師、1987 助教授、1999 教授）、坂本浩 助教授（1972-2000、1981 教授）が着任し、粒子トラック法によるアルファ放射体の分析、隕石鉱物の放射化分析、光核反応の系統的研究、海洋プルトニウムの研究、原爆中性子誘導放射性核種の研究などが行われた。1984年には濱島靖典助手（- 現在、2002- 低レベル放射能実験施設助手）が着任し、希ガスの宇宙化学などの基礎研究を行った。その後、横山明彦助教授（2001- 現在）が着任し、ガンマ線摂動角相関や重元素核化学などの研究を開始した。

## 名古屋大学

(篠原 厚・小島 貞男)

名古屋大学における放射化学関係の教育研究は、理学部化学科の同位体化学研究室で行われた。山寺秀雄（1967-1987）が教授として就任し、放射化学の教育研究がスタートした。山寺教授自身は、ビキニの灰の分析等にも参画し、前任地の立教大学では放射化学の研究にも携わっていたが、名古屋大学では、錯体化学・溶液化学を展開した。スタッフは吉川雄三（1968-1986）と佐々木研一（1967-1987、立教大学に転出）の2人の助手に、1968年に核研から古川路明助教授（1968-1997）



が加わった。放射化学の研究教育は、主に、古川助教授と佐々木助手により進められ、主に軽粒子核反応、宇宙核化学、ホットアトム化学、環境放射能などについて研究が行われた。山寺教授の退官後、生物無機化学を専門とする山内脩教授（1987-2000）が就任したが、同時期、佐々木助手の後任として篠原厚（1987-1998、京大原子炉に転出）が助手として着任し、古川助教授と篠原助手により放射化学は半講座的に存続した。研究テーマは、これまでの環境放射能に、稼動を開始した理研リングサイクロトロンを使った重イオン核反応やパイ中間子原子の形成と挙動などが加わった。特に降下物や雨水の放射能測定は古川助教授により長期に渉り継続的に測定された。

古川助教授は、1995年の大学院重点化の折に、新しく創設された関連化学研究室の教授に就任し、1997年まで放射化学の研究教育を継続した。

また、RI総合センターでは、小島貞男（1979-1988、愛知医科大に転出）が教務職員として就任し、環境放射能の研究が行われた。年代測定資料研究センター（2000年より年代測定総合研究センター）ではAMSによる $^{14}\text{C}$ 年代測定が行われ、放射化学の一分野として小田寛貴助手（1997 - 現在）が主に歴史資料を対象に新たな方法論の開発も含め研究を行っている。

## 大同工業大学

（酒井 陽一）

大同工業大学・化学教室の放射化学関連研究は、酒井陽一（1991-）の助教授着任（1996年に教授昇任）から始まった。はじめは立教大学原子力研究所の原子炉を利用した水試料中のセレン、バナジウムなどの化学前濃縮／中性子放射化分析が研究テーマとされた。1993年からは日本原子力研究所のJRR-3Mの即発ガンマ線分析装置を使った即発ガンマ線ドップラー広がり試料中のホウ素の状態の関連を調べる研究に、アクティビティが集中された。1996年にメスバウアー分光器が導入され、工学材料、環境試料中の鉄の状態分析が開始・継続されている。2006年に高山努助教授（2007年から准教授）が着任し、テクネチウム化学など、それまでの研究を継続するとともに、新しい放射化学の展開を模索している。

## 京都大学

（柴田 誠一・佐々木 隆之・森山 裕丈）

理学部化学科の分析化学講座の石橋雅義教授（1936-1959）のもとで、有機化合物を用いる分析化学、電気分析化学（示差ポーラログラフィ、電流規制ポーラログラフィの開発）、海洋化学（海水中の微量溶存成分の決定）などの研究が開始された。石橋教授の後には、藤永太一郎教授（1960-1982）が講座を担当した。この講座の主な研究テーマは、無機化合物の分析法、特にクーロポテンシオメトリなどの機器分析法の開拓にあるが、放射化学に関連した研究としては、電気化学的方法による放射性同位元素の分離に関するものがある。

化学研究所では、放射化学研究部門の重松恒信教授（1957-1980）により、放射性核種の分離分析の研究（ビキニの灰の分析、放射性核種などの排水処理に関する研究など）や、石橋研究室の流れを引き継いだ海洋化学研究が継続された。また、核放射線研究部門の清水榮教授（1952-1979）は、 $\beta$ 線・ $\gamma$ 線の測定による核分光學、核崩壊定数に対する化学結合その他の外的条件の影響に関する研究などを行った。両部門は当時、全国共同利用施設である放射性同位元素総合研究室（のちに改組により放射性同位元素総合センターとして独立）を協力して管理・運営し、放射性元素の全学利用体制の整備に努めた。重松教授の後任である松井正和教授（1982-1999）、

木原壯林助教授（当時，1983-1994）は，長寿命放射性核種の地球・環境動態研究，2相間分配平衡と分離分析に関する研究，アクチノイド元素に関する電気化学的研究などを展開した。

工学研究所（1971年原子エネルギー研究所に改組，1996年エネルギー理工学研究所に改組）では，西朋太教授（1957-1981）により，ランタノイド，アクチノイドなどの重核を原子炉または加速器で照射し，化学的手法を用いることにより核反応の励起関数の測定，放射性核種の壊変様式および核分裂機構の解明などの研究が行われた。西研究室では，藤原一郎助教授（当時，1965-1986），中原弘道助手（当時，1967-1971），今西信嗣助手（当時，1968-1976，その後助教授1976-1987）が，研究遂行に携わった。

農学部では片山幸士助教授（当時，1995-2001）により，中性子放射化分析法を用いた環境物質中の微量元素の測定研究などが行われた。

工学研究科の原子核工学専攻では，原子炉実験所より転任した森山裕丈教授（2001-），佐々木隆之助教授（2003-）により，高温融体や水溶液中のアクチノイド・ランタノイドの化学的挙動，熱力学的データに関する研究が行われている。

原子炉実験所（1963年設置）では，金属試料，生体試料の中性子照射効果に関する研究，RI製造，ホットアトム化学効果に関する研究，核分裂の核化学的研究などが行われている。（原子炉実験所での研究内容については別項を参照のこと。）原子炉実験所における放射化学関連研究に携わった研究者は以下の通りである。

岩田志郎（1963-1991），木曾義之（1963-1973），赤星光彦（1964-2000），小林慎江（1965-1997），北岡祥伯（1965-2001），玉井忠治（1966-1992），小山睦夫（1974-1989），森山裕丈（1993-2001），山名元（1996-），柴田誠一（1996-），大久保嘉高（1996-），篠原厚（1998-1999），佐々木隆之（1999-2003），藤井俊行（1999-），高宮幸一（2000-），沖雄一（2001-）

京都大学関係者が世話人となって開催した放射化学討論会は，第2回（1958年）代表世話人：石橋雅義，第15回（1971年）代表世話人：重松恒信，第47回（2003年）代表世話人：柴田誠一である。

また，昭和37年（1962年）には，西朋太らの提唱により，核化学夏の学校が開催され，以後この活動は現在も継続して行われている。

（人名に職名が付いている場合の括弧内の年号は，その部局におけるその職での在職期間を示す。それ以外は，着任時—退職（または転任）時を示す。）

## 大阪大学

（篠原厚）

大阪大学理学部に放射化学の講座が設立されたのは，1958年（昭和33年）4月である。ちょうど原子力が時代の潮流に乗っていた時で，阪大では中之島の理学部でサイクロトロンが動き，東大・原子核研究所のサイクロトロンが完成間近であった頃であった。放射化学研究室は，当初は理学部長直属（当時の学部長は伏見康治）の教室外研究室として，まさに化学と物理の学際的な研究室としてスタートしたが，1960年に化学科に第9番目の講座として編入され，現在に至っている。現在でも，理学研究科附属原子核実験施設の放射化学部門の兼任研究室である。初代の教授は音在清輝（1958-1981）で，久米三四郎講師（1958-1989）と福島昭三助手（1951-1989，助教授1989-1992）に物理から吉澤康和助教授（1958-1971 広島大学へ転出）が加わった4人でスタートした。音在研究室の初期の研究は，加速器を使った核反応に集中され，特にアルファ粒子誘起核反応や重水素反応におけるストリッピング反応で多くの業績を上げた。その後，ガスク

ロマトグラフィーについての経験則を提案し、超重元素の探査のための連続ガスクロマトグラフィーの開発、核反応によるダイニュートロンの探査、および電子遷移による核励起 (NEET) の研究を行った。スタッフはその後、岡村日出男助手 (1961-1982 逝去) と技術職員として三藤安佐枝 (1961-1996, 助手 1996-2001) が加わった。1981 年の音在教授の退官後、1982 年 6 月に原研の馬場宏 (1982-1998) が 2 代目の教授として就任した。スタッフは、1982 年に斎藤直、1987 年に高橋成人 (1987-)、1991 年に横山明彦 (1991-2001 金沢大理に転出) が助手として加わった。その間、1984 年にはラジオアイソトープ総合センターが活動を開始し、福島助手が兼任としてセンターの放射線管理に当たった。馬場研究室の研究は、原子核分裂を中心とし、中間エネルギー重イオン核反応、アスタチンの化学、協同研究として中間子化学、PAC による核物性研究などであった。特に核分裂の研究では、重イオン誘起核分裂の角運動量効果、マルチモード核分裂、早い核分裂の研究などが行われた。1998 年に馬場宏教授の退官後、1999 年 10 月に京大原子炉実験所の篠原厚 (1999-) が 3 代目の教授に就任した。2001 年に三藤助手が退官、横山助手が金沢大理へ転出し、2002 年 12 月に佐藤渉 (2002-)、2003 年 4 月に吉村崇 (2003-) が助手としてスタッフに加わり、高橋助手と合わせて 4 名体制となった。篠原研究室の研究テーマは、(超) 重元素の化学的研究とエキゾチックアトムの化学を中心に、Tc や U などの放射性元素の錯体化学、放射性核プローブによる物性研究、また、協同研究として核医学有用核種の製造法の開発や中高エネルギー重イオンおよび中性子核反応の核化学的研究など広範囲にわたっている。

ラジオアイソトープ総合センターは、1980 年ごろから設立の機運が高まり、1982 年に設置が認められ、1983 年 12 月に吹田本館、1984 年 1 月に豊中分館が竣工した。放射化学が関係する豊中分館化学部門は、当初から理学部馬場研究室が主たるユーザーとして共同利用されてきた。豊中分館管理室は理学部馬場研究室の福島助手が、後に斎藤助教授が兼任の形で運営した。1997 年に斎藤助教授が同センターの専任の助教授になり、物理学専攻の協力講座として陽電子消滅による物性研究を開始した。2003 年 4 月には斎藤助教授が教授 (2003-) に昇任し、化学専攻にも協力講座として加わり、不安定粒子・核放射線をプローブとする核物性研究、環境放射能の化学的動態の研究を進めている。

そのほか、工学部の品川研究室でも放射化学的研究がなされた。

## 近畿大学

(鶴田 隆雄)

近畿大学原子力研究所放射線計測学研究室では、鶴田隆雄教授 (1983- 現在) が、フィッシュオントラック年代測定法における外部検出器として DAP 樹脂を開発し、白雲母を使用した場合と比較して原子炉照射後の検出器の放射能を大幅に低減させ、飛跡の自動測定への道を拓いた。また、CR-39 樹脂と DAP 樹脂を用いた  $\alpha$  線及び核分裂片検出法により  $^{238}\text{U}$  の自発核分裂壊変定数の測定を行った。近畿大学産業理工学部生物環境化学科では、荒川剛教授 (1989- 現在) が、 $^{151}\text{Eu}$  のメスバウアー効果を用いて化学センサーの構造研究を、西田哲明准教授 (2000- 現在) が  $^{57}\text{Fe}$  のメスバウアー効果を用いて導電ガラスや高分子ゲルの構造解明を行っている。

## 甲南大学

(酒井 宏)

甲南大学理学部 (2001 年理工学部へ改組) の放射化学研究は、1954 年助教授として赴任した日下讓 (1954-1994) の中性子放射化分析の研究に始まる。その後 1958 年辻治雄 (1958-2003)

が助手となり研究陣が整備され、武蔵工大との共同研究により、主に河川水や温泉水などの陸水に溶存する各種イオンの放射化分析の研究を展開した。1995年酒井宏（1995-）が教授として赴任しメスバウアー分光の研究を開始し、インターカレーション化合物の磁氣的挙動や種々の二核鉄錯体の磁化率とメスバウアーパラメータとの関係を研究した。

## 岡山大学

岡山大学温泉研究所の梅本春次教授（-1967）はフィシオントラックを使って年代測定の研究およびウラン同位体比の研究をした。その後、酒井均教授が種々の温泉水から岩石までの酸素、炭素、硫黄の安定同位体比の研究をした。

## 広島大学

（中島 覚）

広島大学では理学部化学科の分析化学講座で品川睦明教授（1951-61）、木曾義之助手（1958-64）が放射性カルシウムを用いて各種リン酸塩の分析化学的研究などを行った。その後、山本勇麓教授（1961-85）が分析化学講座を引き継ぎ放射化学分析の研究を続けた。また、木曾義之教授（1973-92）は工学部共通講座で竹味弘勝助教授（1973-98）とともに核分裂生成物の迅速分離法の研究などを行った。一方、化学科無機化学講座では瀬川久男教授（1947-82）は含水塩結晶の生成および脱水過程における同位体効果の研究をした。その後、市坂純雄助教授（1966-90）とともにメスバウアー分光法を用いて電荷移動錯体の研究を開始した。市坂教授が無機化学講座を担当して磁性体中にドーピングしたスズの化学状態について研究した後、酒井宏教授（1989-95）が引き継ぎ、中島覚助手（1991-）と共に超イオン導電体や混合原子価錯体の研究を行った。アイソトープ総合センターへ転出した中島助教授（1995-）は混合原子価錯体、スピנקロスオーバー錯体の研究を進めている。さらに固体物性化学研究室に速水真也助教授（2007-）が赴任し、機能性錯体、マルチフェロイックマテリアルの研究を開始した。理学部地球惑星システム学科では日高洋教授（1995-）が地球環境下における放射壊変生成物ならびに核分裂生成物の移行挙動の研究を進め、高橋嘉夫助（1998-）教授が放射化学的手法を用いた微量元素の移行挙動に関する研究を行っている。

## 九州大学

（前田 米藏）

九州大学理学部化学科の分析化学講座で、大橋茂教授（1964-1987）、与座範正助手（1965-1998）、中村照正助手（1966-1979）、それに箱崎地区 RI 実験室の氏本菊次郎助手がリン酸塩のホットアトム生成物の研究を開始したのが九州大学の放射化学研究の始まりである。1967年に九州大学理学部化学科に放射化学講座が開設され、梅本春次教授（1967-1973）、高島良正助教授（1954-1993）、松田英毅助手（1968-1972）、大崎進助手（1971-2005）の陣容で、フィシオントラックを用いたウランの定量分析の研究が始まった。その後、大崎助手は RI 実験室箱崎地区実験室へ勤務換えになり、高島教授になってから、村上是郎助手（1974-1978）、前田米藏助手（1970-）が赴任し、スピנקロスオーバー錯体の転移機構の研究が始められた。その後、赴任した西田哲明助手（1977-2000）は硝子の組成と局所構造との関係に関する研究、百島則幸助手（1979-1999）は環境中のトリチウムなどの天然放射性核種の動態研究を開始した。高島教授の後任は前田教授

となり、速水真也助手（2000-2006）が赴任し、液晶性スピントロスオーバー錯体の研究が開始された。箱崎地区 RI 実験室では氏本助手（1965-1970）から前田助手、大崎教授、百島教授（2006-）と交代し、大崎は杉原真司助教（1981-）と環境中の放射性核種の動態研究を進めた。工学研究院量子線照射分析実験施設の岡井富雄准教授が大気中トリチウム濃度の変動及び変動解析を、工学研究院エネルギー量子工学部門の若林源一郎助教は  $^{14}\text{C}$  を用いた年代測定を行っている。

## 熊本大学

（岸川 俊明）

熊本大学工学部工業化学科の第2講座（有機工業化学）で、四宮知郎教授（1949-1971）が1953年に放射線測定器を購入し、1955年に工学部 RI 実験室を開設してトレーサ実験を開始したのが熊本大学の放射化学研究の始まりである。1963年には中性子照射研究室が開設され、コッククロフト・ウォルトン型中性子発生装置（日立製 150kV, 14MeV 中性子）が導入された（1970年、ニュークリアシカゴ製に更新）。1965年、大学院工学研究科工業化学専攻の設置に伴い放射能及び分析化学講座が開設され、四宮教授、大吉昭助教授（1966-1979）、岸川助手（1967-2005）の陣容で、 $\text{Br-82m}$  核種の発見を受けた臭素ホットアトム化学、アクチノイド核種及び放射化分析応用の研究が原研共同利用、KUR 共同利用、立大炉共同利用等と呼応して始まった。1968年には四宮教授を世話人として第12回放射化学討論会が開催された。その後、四宮教授の後任は大吉教授となり、竹味弘勝助手（1972-1974）が赴任し、岸川助手は黒髪地区放射性同位元素総合研究室へ勤務換えになった。同講座は、応用科学化工業化学基礎大講座への組織替えに伴い1986年に閉鎖された。岸川は有機分子化合物2成分型のホットアトム化学、核融合燃料研究（トリチウム貯蔵・計量）、ガンマ線エネルギー精密計測法の開発を進めた。1997年には、放射化学討論会の世話人を指名された岸川が、国際放射化学シンポジウム'97（英文公称：Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry '97, 略称：APSORC '97）を討論会と併せて開催した。理学部環境理学科（後に理学科）では百島則幸教授（1999-2006）が  $^{210}\text{Po}$  などの環境放射能の動態研究を開始した。

## 琉球大学

（棚原 朗）

琉球大学では主に地球化学の分野で放射化学手法を取り入れて行われ、理工学部化学科の分析化学講座で兼島清教授（1951-1984）、平良初男助手（1967-2004）によって、それぞれリン鉱石中のウランに関する研究、陸生マンガンノジュールのウラン-トリウム年代に関する研究で始まった。その後大森保助手（1972）が加わり、沖縄に豊富な炭酸塩の研究が行われ、平良助教授による  $^{210}\text{Pb}$  を用いた沖縄地域の湖沼や沿岸堆積物の年代測定も始まった。1980年に理学部は首里キャンパスから現在の西原千原地区キャンパスに移転し、改組によって理学部化学科分析化学講座となった。大森助手による沖縄トラフ熱水鉱床の年代学的研究も開始された。兼島教授の後任は平良教授となり、棚原朗助手が赴任し（1989）大気エアロゾル中の放射性核種や化学成分、鍾乳石の年代測定が行われた。大森助教授になってから竹富海底温泉の研究にラドンが用いられた。棚原助教授は機器分析センターに勤務換えになり（1996）、洞窟内のラドン濃度、堆積物の年代学に関する研究が始められた。平良教授の後任は大森教授で沖縄トラフ熱水鉱床の年代学的研究に加え、サンゴや海綿中の天然放射性核種、 $^{14}\text{C}$  およびプルトニウム同位体の動態研究が行われるようになった。その間、兼島教授で始まった京都大学原子炉実験所での放射化分析は、2005

年まで継続して行われ、化学成分の分析に役立った。研究室は異なるものの、大出茂助手が理工学部海洋学科に赴任（1978）、立教大学原子炉（東大原子力センター共同利用研究）を利用した、炭酸塩の放射化分析に関する研究を始めた。理工学部は理学部へ、また、理学部の組織改革で、現在は理学部海洋自然科学科化学系（教授）に属し、立教原子炉の共同利用が終了後、原研施設（東大）を使って放射化分析を続け、炭酸塩の地球化学研究を行っている。なお、琉球大における「放射化学」と「放射化学実験」（学部）、「放射化学特論」（大学院）は棚原助教授によって開講されている。

## 第4章 国際的なかわり

### 4.1 APSORC (Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry)

(岸川 俊明)

**APSORC** Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry は放射化学討論会 (SORC; Symposium on Radiochemistry) と呼応して発足した日本発の国際会議である。第1回, 第2回は日本, 第3回は2005年10月17-21日中国の北京で開催され, 第4回はH. Nitsche (California 大 Berkley 校) が2009年米国西海岸で開催することに決定している。この国際会議は開催国・開催年・オーガナイザーを決定する権能を有する APSORC 国際委員会の監理のもとに, 開催国の国内組織委員会が運営にあっている。名称中の Asia-Pacific は開催地域を指し, 参加は全世界に開かれている。

**APSORC1997** 日本放射化学会 (JNRS) 創立に逆上る2年前の1997年, 放射化学討論会を国際会議とすることで第1回 APSORC1997 が岸川俊明 (熊本大) が組織委員長, 熊本大学工学部を会場にして開催された。International Advisory Board (IAB) には各国から齋藤信房 (東大), 高島良正 (九大) を含む17氏が就任した。招待講演者16人は, 文部省国際シンポジウム開催経費交付金を得て, 全世界から招聘された。4日間の会期中, 初日が SORC-41 で, 引き続いて APSORC'97 で, 最終日は見学会であった。基調テーマ「放射能発見第2世紀—フロンティアをめざして」の下に学会参加者数は外国人48人を含む347人であった。プロシーディングスは Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry (JRNC 誌) の Vol. 239 (全682ページ) として刊行された。

会議には記念市民フォーラムが2日間, 講演, パネル討論および放射能実験の3部構成で併催されたが, その加者数は延べ970人であった。

**APSORC2001** 2001年の放射化学討論会・JNRS 年会在組織委員長前田米藏 (九州大) のもとに第2回 APSORC として, 福岡の博多都ホテルで開催された。討論主題は14項目。各々の分野から5人が基調講演を, 9人が招待講演を行なった。さらに主催国を代表して齋藤信房 (東大) の特別講演「Japanese Pioneers in the Field of Nuclear and Radiochemistry」がもたれた。JNRS 年会の部では, JNRS 学会賞木村賞受賞者佐野博敏 (大妻女子大) および同賞奨励賞受賞者による受賞講演があった。

さらに特筆すべきことは, APSORC が国際賞である Hevesy 賞の授与式の会場となったことである。筆者(岸川)の司会でセレモニーがもたれ, 続いて今回の受賞者 A. Chatt (カナダ Dallhousie 大) の受賞講演が行なわれた。

プロシーディングスは, 招待および受賞講演が本学会誌 JNRS に, 一般講演が JRNC 誌に掲載された。参加者は国外が18カ国から51人, 国内が242人であった。

一般向け啓発イベントとして市民フォーラムが第1回同様に開催された。

**APSORC 国際委員会** APSORC2001 では, APSORC の今後のあり方を協議するため, IAB の参加委員および組織委員中の JNRS 理事会4役に前田と岸川を加えた有志で, 中原弘道 (JNRS 会長) を座長とする懇談会がもたれた。そこでは, APSORC の恒常的運営には APSORC 国際委員会の設置が必要であるとの結論に達し, 委員候補が推薦された。さらに, 次回を中国で開催したい旨の申出が Yuanfang Liu (北京大) からあり, 正式には APSORC 国際委員会で決定することで了承された。

APSORC 国際委員会 (IC-APSORC) は、このような経緯のもとに 2002 年 11 月設立され、会長には中原弘道 (都立大) が、副会長には Yuanfang Liu (北京大) Heino Nitsche (California 大) および前田が、事務局長には岸川が就任した。そこでは、開催は原則的に 3 年毎とし、次回開催国 = 中国、開催年 = 2005 年およびオーガナイザー = Yuanfang Liu 氏および Zifang Chai (IHEP) の 2 氏が正式に決定された。

一方、JNRS 理事会では、今後 APSORC が日本でも開催されることを念頭におき、IC-APSORC 事務局長は JNRS 理事会に理事またはオブザーバーとして参加できるよう配慮している。

若い学生・研究者へ APSORC が我が国発の国際会議の場として着実に成長していることは頼もしい限りである。若い学生・研究者の皆さんは国際的な場で大いに活躍してほしい。

APSORC の設立は日本化学会、日本分析化学会、日本原子力学会および日本薬学会をはじめ、JRNC 誌エディター T. Braun 教授 (ハンガリー) など大勢の方々の助言、御支援に支えられたものであり、ここに各方面の方々に厚く御礼申し上げる。

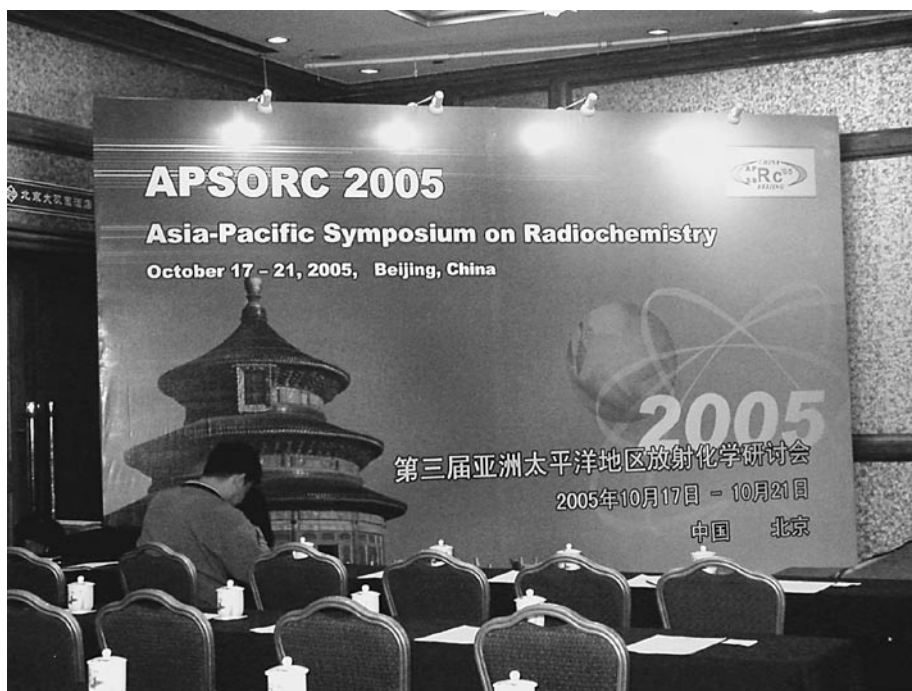


写真 APSORC2005 の講演会場 (北京)

## 4.2 ASR (Advanced Science Research)

(永目 諭一郎)

本シンポジウムは、日本原子力研究所 (当時)・先端基礎研究センターが、わが国の基礎研究の中核的拠点として世界の当該分野の研究をリードし、活動の国際的展開を推進することを目的として、また当センターの成果を広く発信するとともに情報交換を行う場として 2000 年から毎年 (2003 年を除く) 原研東海 (現: 原子力機構・原子科学研究所) で開催されている。討論主題は当センターの研究テーマにもとづいている。研究テーマはセンター発足からつぎの柱に分類されている。



## 1. 放射場科学 (Science in Radiation Field)

原研の多様な施設、装置を使って得られるさまざまな放射線場の中でみられる現象を追求する領域。課題としては、新規物質合成、中性子・放射光科学、放射線利用などが含まれている。

## 2. 重元素科学 (Heavy Atom Science)

ウランを含むアクチノイド元素にかかわる科学。これらの元素を扱うには種々の規制により原研以外では本格的な基礎研究が困難である。超重元素核化学、アクチノイドの物性、化学などがこの分野に属している。

## 3. 基礎原子科学 (Basic Atomic Science)

理論グループを含めた特殊環境下での物性研究などが含まれている。

以下にこれまで開催されたシンポジウムを列記する。

表 4-1 これまでの ASR の会議

回	開催年	主 題	日 程	国 外 参加者	国 内 参加者	組織委員長
1	2000	中性子散乱の進歩	10月31日 -11月2日	53	約200	山田 安定
2	2001	重元素科学における最近の進歩	11月13-15日	37	72	中原 弘道
3	2002	f-電子系における物理の進歩	11月12-14日	23	84	R. E. Walstedt
4	2004	重元素マイクロバイオロジーの研究の進歩	11月15-16日	11	86	A. J. Francis
5	2005	アクチノイド化合物の物理と化学の進歩 <sup>a)</sup>	9月27-29日	19	79	堀田 貴嗣
6	2006	核・放射化学のフロンティア <sup>b)</sup>	10月26-27日	19	約200	永目諭一郎

a) 世界物理年 (WYP) 記念シンポジウム ASR-WYP-2005

b) 第50回放射化学討論会との共同開催

## 4.3 テクネチウムに関する日口セミナー

(大森 巍)

テクネチウムは安定同位体が存在しない元素であるが、核分裂生成物中には放射性同位体として多量に存在する。しかしその複雑な化学的性質のために、核分裂生成物からの分離法についての研究が1950年代に行われた後は、系統的な研究は行われていなかった。1970年代後半になると、<sup>99m</sup>Tcの物理的性質に加えてその化学的性質から放射性医薬品として注目されるようになり、<sup>99m</sup>Tc標識放射性医薬品の開発と並んでテクネチウムの錯体化学の基礎的研究がマクロ量取り扱える<sup>99</sup>Tcを用いて世界各地で始まった。

テクネチウムの錯体化学と放射性医薬品に関する国際会議は1982年から数年間隔でイタリアにおいて開催されてきたが、東北大学の吉原教授は1993年にこれらのテーマにテクネチウムの

核的性質，核燃料サイクル，環境化学を加えた国際会議「Topical Symposium on the Behavior and Utilization of Technetium」を仙台で開催した。その折にロシアの Kryutchkov 教授から日ロセミナーの提案があり，これを日本側が受け入れたことから日ロセミナーが始まった。

第1回の日ロセミナーは，1996年7月にモスクワのロシア科学アカデミー物理化学研究所において開催され，日本からは東北大，九大，金沢大，静岡大，原研，放医研から10名が参加した。1. Reprocessing and geosphere behavior of technetium, 2. Environmental and analytical chemistry of technetium, 3. Coordination chemistry of technetium, 4. Radiomedicine, radiopharmaceuticals based on technetium-99m, <sup>99m</sup>Tc-generators, 5. Nuclear and general physics and chemistry of technetium, 6. Other aspects of physics and chemistry of technetium; prospects of technetium utilization を討論主題として，3日間のセミナーで39の講演があった。ロシアの研究については，それまであまり知られてはいなかったが，ソ連邦崩壊の後で経済的には苦しい状況の中にあっても地味ではあるが堅実な研究成果をこのセミナーを通じて知ることができた。

第2回のセミナーは，1999年11月に静岡大学で開かれた。ロシア側からはレディーコースの婦人二人を含めて20名が参加した。討論主題は，基本的には第1回と同じであったが，錯体化学と放射性医薬品についてはレニウムの化学が付け加えられた。これは<sup>99m</sup>Tc標識化合物が診断薬として利用されているのに対して，放射性レニウム化合物が治療薬として利用できるのではないかという研究が始められたことによる。3日間のセミナーを通じて，46件の講演があったがその内25件はロシア側からの発表であった。またこのセミナーを機に理論化学の分野で静岡大学とロシアの物理化学研究所との共同プロジェクトが始まったことでも，このセミナーは有意義であった。セミナーの後の scientific tour では，中部電力浜岡原子力発電所を見学し，原子炉運転の模擬体験を経験することができた。

第3回のセミナーは，2002年6月にモスクワ近郊の Dubna で，モスクワの生物物理学研究所の Kodina 博士が責任者となって行われた。日本からは東北大，静岡大，埼玉大，原研，放医研，動燃から10名が参加した。回を重ねる毎に討論主題は絞られて，Analytical and environmental chemistry(9件)，Coordination chemistry(10件)，Reprocessing of spent nuclear fuel(20件)，Radiopharmaceuticals (22件)，その他(9件)の発表があった。ここでは先の日ロ共同プロジェクトの成果が発表されたことに加えて，核燃料再処理過程におけるテクネチウムの分離に関する報告とレニウムを扱った研究の報告(13件)が，両国よりかなり報告されたのが注目された。

第4回は日本の順番であったが，日ロの枠を超えてテクネチウムに関する国際会議「International Symposium on Technetium – Science and Utilization –」として2005年5月に大洗で開催された。この会にはドイツ，スイス，スペイン，フランス，ロシア，アメリカ，南アフリカからの参加者があった。次回は Gerber 教授が主催して，2008年に南アフリカで開催される予定である。

#### 4.4 その他の主な国際会議

(木村 貴海)

##### a. アクチノイドに関する国際会議 (ACTINIDES) の紹介

アクチノイドに関する国際会議は第2章の研究領域の範疇とは異なるために，下記に記することにする。ACTINIDES 会議は，超重元素の科学からアクチノイドの物理・化学，原子力バックエンド技術までの幅広い分野を対象とする総合的な国際会議である。アクチノイドおよび超アクチノイド元素の科学の進展を総括するとともに，基礎物理・化学，材料科学，環境

科学など多分野の専門家ならびにアクチノイドと関わりのある原子力分野の研究者が議論を深めることのできる伝統のある会議でもある。1975年の第1回会議“Plutonium 1975 and Other Actinides”（バーデンバーデン、ドイツ）以降、それまで別に開催されていた会議“Transplutonium Elements”および“Electronic Structure of the Actinides”と合体し、ACTINIDES-81（アシロマー、米国）、ACTINIDES-85（エクサンプロバンス、フランス）、ACTINIDES-89（タシケント、旧ソ連）、ACTINIDES-93（サンタフェ、アメリカ）、ACTINIDES-97（バーデンバーデン、ドイツ）、ACTINIDES-2001（葉山、日本）、ACTINIDES-2005（マンチェスター、英国）と4年ごとに開催されてきた。会議の規模は開催地によって変動はあるものの、ACTINIDES-93以降、発表件数で約300件、参加者は20-30カ国から350名前後である。ACTINIDES-2001（国内約200名参加）を除けば、日本からは大学、旧原研、旧サイクル機構などから毎回50名前後が参加している。

会議の構成は、ACTINIDES-2005を例にとると、5件の基調講演の他、74件の招待および一般講演、および196件のポスター発表で構成され、次に示す8つのセッションに分類された。

1. 分析、環境および生物による化学状態変化（講演13件+ポスター35件）
2. 配位化学と有機金属化学（講演10件+ポスター25件）
3. 重元素（講演3件+ポスター5件）
4. 核燃料、原子炉材料および廃棄物（講演17件+ポスター37件）
5. 分離および溶液化学（講演9件+ポスター65件）
6. 分光、磁性および超伝導（講演11件+ポスター29件）
7. UKアクチノイド化学ネットワーク（講演5件）
8. アクチネット、ヨーロッパ・アクチノイド化学ネットワーク（講演6件）

これらのうち、7と8はそれぞれ英国内およびヨーロッパ内でのアクチノイドの研究ネットワークに関する活動報告である。アクチノイド研究は利用できる施設が限定されるため、日本国内でも同様の組織化された研究活動が必要になると考えられる。

#### b. 地層中におけるアクチノイドと核分裂生成物に関する国際会議（MIGRATION）の紹介

MIGRATION会議は、放射性廃棄物地層処分の長期的安全評価に資するため、アクチノイドや核分裂生成物などの長寿命放射性核種の移行挙動を制御する様々な物質との相互作用についての情報交換を行う会議である。とくに基礎化学実験に力点が置かれているのが特徴であり、アクチノイド化学および地層処分研究に関わる研究者の貴重な情報交換の場として、世界的にも高い評価を受けている。1987年にミュンヘン工科大学のJ.I. Kim教授らを中心として、第1回会議MIGRATION'87（ミュンヘン、ドイツ）が開催されて以来、'89（モントレイ、米国）、'91（ヘレス、スペイン）、'93（チャールストン、米国）、'95（サンマロ、フランス）、'97（仙台、日本）、'99（タホ湖、米国）、'01（ブレゲンツ、オーストリア）、'03（慶州、韓国）、'05（アヴィニョン、フランス）と隔年で開催されてきた。本会議は特定の学会や組織が運営する通常の国際会議とは異なり、Kim教授（'03まで）を委員長とする国際運営委員会が開催を呼びかけ、開催国周辺の組織より編成委員会が組織されて開催される。会議の規模は、発表件数が約250件、参加者は約25カ国から300人前後である。日本からは、ACTINIDES会議と同様に大学、旧原研、旧サイクル機構などから毎回20-30名が参加している。

会議の構成は、MIGRATION'05を例にとると、6件の招待講演、55件の一般講演、および251件のポスター発表で構成され、次に示す3つの分野と国際研究活動のセッションに分類された。

1. アクチノイドと核分裂生成物の溶液化学（講演32件+ポスター131件）

溶解度と溶解反応, 固溶体と第二相形成, 無機イオンと有機配位子との錯形成, 酸化還元反応と放射線効果, 固液界面反応, コロイド生成, 革新的実験方法

2. 放射性核種の移行挙動 (講演 19 件 + ポスター 78 件)

吸脱着現象, 拡散と移行プロセス, コロイド移行, 微生物と有機物の効果, フィールド実験, ナチュラルアナログ

3. 地球化学及び移行モデリング (講演 10 件 + ポスター 32 件)

データの選定と評価, 結合化学と移行, モデルの開発と応用, モデル評価, 性能評価へのモデルの応用

4. 国際研究活動 (ポスター 10 件)

本会議は, 口頭発表の会場が 1 会場だけであり, 参加者が全ての発表を聞くことができるため活発な議論が行われるのが特徴である。また, MIGRATION'01 からポスター賞が設けられ, 毎回 3 件のポスターが選ばれる。MIGRATION'03 では 3 件中 2 件が日本からの発表であり, わが国もこの分野の研究の発展に大きく貢献していることが示された。

c. 希土類に関する主な国際会議 (RERC, ICFE) の紹介

希土類に関する国際会議は, 北米, ヨーロッパ, およびその他の地域で各 3 年のローテーションで毎年 1 回行われている。それらは希土類に関わる研究者が集う年中行事として定着しており, 世界で年に一度行われる唯一の希土類元素の会議となっている。参加する研究者, 技術者, 学生の専門分野は多岐にわたっており, 物理・化学の理論・実験はもとより, 生物・地球科学・環境科学から材料科学・資源・工業に至るまで, 自然科学分野をほぼ網羅する極めて広範で学際的な学会である。「希土類」というキーワードだけが共通しており, その中で「アクチノイド」は正確には希土類ではないが, 原子力開発研究の歴史的背景, 希土類の性質との類似性などにより, 会議の一分野として含まれている。会議名はホスト国・地域によって異なり, 北米で開催される場合は Rare Earth Research Conference (RERC), ヨーロッパでは International Conference on f-Elements (ICFE) と決められているが, その他の国の場合は特に決まった会議名はなく, その都度, 開催国の主催者により決められる。最近開催された会議は, 24<sup>th</sup> RERC (2005 年, キーストーン, 米国), ICFE'5 (2003 年, ジュネーブ, スイス), Rare Earths '04 in Nara, JAPAN (2004 年, 奈良, 日本) である。会議の規模 (参加者) は, 最近の例では, RERC で 200 名以下, ICFE で約 400 名, 奈良の会議で 500 名以上であった。国外開催の場合, 日本からは主に大学などから毎回 20 名程度が参加している。

会議の構成は, 2004 年の奈良の会議を例にとると, 希土類の磁性と極限物質, 希土類合金・金属間化合物, 希土類のバイオテクノロジー, 希土類を利用した有機合成化学, 希土類の固体科学と燃料電池, 希土類の発光と蛍光体, 希土類の配位化学・錯体・分離・分析, 希土類固体触媒・セリウム材料, アクチノイド元素, 希土類産業と希土類磁石の 10 シンポジウムからなっていた。口頭発表 155 件, ポスター発表 353 件の最新の研究成果が発表された。

## 第5章 放射化学の散歩道

放射化学会（討論会）の50年の歴史を振り返ると、この間には研究用原子炉の臨界と廃炉、日本放射化学会の設立などいろいろな出来事があった。歴史とともに研究内容が動き、歴史とともに研究が飛躍的に進展した状況が窺える。この間にあった話題をいくつか拾ってみることにした。

### 5.1 日本放射化学会設立の経緯

（工藤 博司）

日本放射化学会は第43回放射化学討論会の前日、1999年10月12日に発足した。今年、満8歳の誕生日を迎える。日本学術会議に認められた学術団体として活動をつづけ、会員数も500名を超えるまでに成長した。9年前に本会設立準備委員会委員長を務めたことから、当時を振り返り、設立までの経緯を綴ってみたい。

記念すべき第50回を迎えた放射化学討論会は、1957年12月の第1回（東京・学士会館、世話人斎藤信房）以来、放射化学研究連絡委員会が中心となって開催されてきたが、学会組織ではなかった。学会設立の動きも幾度かあったが、インフォーマルな会合こそが討論の場に相応しいとの考えが長い間底流になっていたこともあって、実現には至らなかった。

しかし、放射化学を取り巻く状況の変化もあって、再び学会設立の機運が芽生えた。それは放射能発見100年にあたる1996年10月に理研で開催された第40回討論会（和光市、世話人安部文敏）のときだった。それが具体的に動き出したのは、翌年10月に熊本でAPSORC '97 (Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry) として開催された第41回放射化学討論会（熊本市、世話人岸川俊明）のことである。そのときの研究連絡委員会で学会設立が話題になり、討論会の今後の在り方を検討する「幹事会」が設置された。翌1998年7月2日につくば市の高エネ研で開催された第1回幹事会には委員18名（安部文敏、伊藤泰男、遠藤和豊、大森巍、岸川俊明、工藤博司、近藤健次郎、酒井陽一、酒井宏、坂本浩、柴田誠一、鈴木健訓、関根勉、関根俊明、中原弘道、橋本哲夫、前田米蔵、榎本和義）が集まり、学会設立の必要性やメリットについて自由に意見を交換した。日本学術会議会員を推薦できる必要条件である300名以上の会員を確保できるのであれば、ぜひ学会を設立すべきであるとの意見が主流であった。また、APSORC '97組織委員会から、学会を立ち上げるのであれば基金（100万円）を提供するとの表明を受け、学会設立の方向が固まった。準備小委員会をつくって細部を検討することになり、同年8月5日に伊藤、遠藤、工藤、近藤、酒井（陽）、中原の6名が高エネ研に集まり、学会設立の理念や準備の進め方を協議した。

1998年9月16日から仙台国際センターで開催された第42回放射化学討論会初日の第2回幹事会で学会設立意思を確認した上、翌日の研究連絡委員会に学会設立準備委員会の設置を提案し、承認された。工藤博司\*（東北大）を委員長とする33名の設立準備委員は荒谷美智（環境技研）、安部文敏（元理研）、伊藤泰男\*（東大）、今西信嗣（京大）、海老原充\*（都立大）、遠藤和豊\*（昭和薬大）、大西俊之（北大）、大森巍（静岡大）、岸川俊明（熊本大）、近藤健次郎\*（高エネ研）、斎藤直（阪大）、酒井宏（甲南大）、酒井陽一\*（大同工大）、坂本浩（金沢大）、佐々木研一（立教大）、柴田貞夫（放医研）、柴田誠一（京大）、鈴木健訓\*（高エネ研）、関根俊明（原研）、関根勉\*（東北大）、竹田満洲雄（東邦大）、佐藤兼章（分析セ）、飛田和則（核燃サイクル）、中原弘道\*（都立大）、永

目論一郎(原研), 橋本哲夫(新潟大), 前田米藏(九大), 卷出義紘\*(東大), 榎本和義(高エネ研), 三頭聡明\*(東北大), 薬袋佳孝\*(武蔵大), 吉田善行\*(原研)であった。翌年10月に予定されていた第43回放射化学討論会(つくば市, 世話人近藤健次郎)の前日に設立総会を開催することにして準備に取りかかった。33名の委員全員が集まることには無理があるため, 実際には\*印を付した13名で準備小委員会を編成し実務作業を進めた。

1998年10月23日に第1回準備小委員会を高エネ研で開催し, 日本放射化学会(仮称)設立の理念, スケジュール, 会則(案)などの具体的検討に入った。第2回(1998年12月27~28日), 第3回(1999年3月8日)と準備小委員会を高エネ研で開き, 学会および学会誌の名称, 組織, 事業と予算, 会費などについて詳細に検討を重ねた。電子メールが普及し, 資料の検討や単純な意見の交換は楽になったのだが, 議論が込み入ってくると顔を合わせて徹底的に煮詰める必要があった。さもないと, 議論は振り出しに戻ってしまうのである。予算がゼロの委員会にとって, 旅費などの経費もバカにならなかった。近藤委員が, 高エネ研を会場とする研究会を何度も設定し, 会合の場を用意してくれたのは何よりありがたかった。高エネ研の宿舎で夜を徹して議論を重ねたこともあった。

学会の名称は最後までもめた。日本語の名称を「日本放射化学会」とすることはすんなり決まったが, 英語名をどうするかについてはなかなか意見がまとまらなかった。最終的には Japan Society of Nuclear and Radiochemical Sciences になったが, 設立総会の場での採決にまで持ち込まれたのであった。Nuclear は Chemical に係るのか, それとも Sciences に係るのか。Physical Science はあるが, Chemical Science は聞いたことがない。なぜ Sciences と複数するのか。様々な意見が出た。竹田委員は英国の知人に問い合わせ, 意見を求めた。名は体を表すというように, それこそ新しく発足する学会の理念に関わる非常に重要なことであった。議論に多くの時間と労力を注いだ, それはけして無駄ではなかった。

新しい学会の理念, 規則, 役員人事などの運営体制を整え, 3月29日の設立準備委員会(神奈川県横浜キャンパス, 日本化学会年会会場)に漕ぎ着けた。別掲の設立趣意書が承認され, 発起人257名の賛同を得て, 設立総会を第43回放射化学討論会の前日(10月12日)につくば国際会議場で開催することが決まった。学会設立の日に会報誌「放射化学ニュース」第1号を特別号として発行し, 討論会の要旨集を学会誌の別冊として発行することも決まった。

同年4月には会員(および賛助会員)の募集を開始した。関連学協会が発行する日本原子力学会誌, 日本保健物理学会誌, アイソトープニュースなどに学会設立の紹介記事を掲載し, 金沢市での日本原子力学会バックエンド部会では坂本委員が新学会を紹介する講演を行い, 会員の募集に努めた。その後, 準備小委員会は実務者会合と名を変え, 4月27日と7月3日の2回, 学会事務局を引き受けることになった高エネ研で開催した。「放射化学ニュース」第1号および3月発行の学会誌 The Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences (JNRS) 創刊号の装丁と編集, 印刷所の選定, 会員名簿と会費の管理, 寄付金の依頼, 予算編成, 内規などの整備, 設立総会の運営など様々な仕事をこなした。準備委員長である私は旗振り役に徹していればよかったが, 総務担当の鈴木委員と関根(勉)委員ならびに編集担当の薬袋委員の獅子奮迅の働きは今でも忘れられず, 頭が下がる。

8月3~4日に高エネ研で開催した第2回日本放射化学会設立準備委員会と4日の臨時放射化学研究連絡委員会(これが最後の研究連絡委員会)でこれまでの準備作業と設立総会に諮る議案が承認され, 日本放射化学会の骨格が固まった。その後も, 設立総会の案内状および委任状の送付, 「放射化学ニュース」と JNRS の編集, ホームページの立ち上げ, 祝賀会の準備などと実務

担当者の奮闘は続いた。

1999年10月12日(火)、ついにその日がやってきた。午後3時からつくば国際会議場中ホールで開催した設立総会で会則、役員人事、予算および初年度事業案が承認され、中原会長を船長とする日本放射化学会は378名の会員(学生会員66名を含む)と賛助会員(23法人)を乗せてめでたく船出した。会員の内訳は、企業関係者31名、公的研究機関に所属する者114名、大学関係者(学生を含む)214名、その他19名であり、役員構成は[会長]中原弘道(都立大)、[副会長]坂本浩(金沢大)、工藤博司(東北大)、[事務局長]近藤健次郎(高エネ研)、[理事]伊藤泰男(東大)、遠藤和豊(昭和薬大)、大西俊之(北大)、岸川俊明(熊本大)、酒井宏(甲南大)、酒井陽一(大同工大)、柴田誠一(京大)、鈴木健訓(高エネ研)、関根勉(東北大)、竹田満洲雄(東邦大)、橋本哲夫(新潟大)、巻出義紘(東大)、三頭聰明(東北大)、薬袋佳孝(武蔵大)、吉田善行(原研)、[監事]大森巍(静岡大)、前田米藏(九大)であった。

午後5時半から設立祝賀会が同会議場101室で盛大に催された。中原会長と斎藤信房東京大学名誉教授の挨拶につづいて赤岩秀夫群馬大学学長、齋藤伸三日本原子力研究所理事ならびに大和愛司核燃料サイクル開発機構理事の三氏から祝辞をいただいた後、祝宴(会費千円)に移った。また、翌13日午後6時から、第43回放射化学討論会の一環として、パネル討論会「新学会に期待する」(司会:近藤健次郎)を開催し、学会の事業(パネリスト:坂本浩、薬袋佳孝)、学術会議関係(パネリスト:柴田徳思)、分科会の在り方(パネリスト:工藤久昭、海老原充、中西孝、久保謙哉、山名元)などについて意見を交換し、本会の発展に備えた。

以上、日本放射化学会設立までの経緯を記した。設立総会の場面が昨日のことにように脳裏をかすめるが、思い出せないこともある。本会の歴史の重要な一コマであり記述に誤りは許されないが、勘違いなどがあればご指摘いただきたい。なお、学会設立までと設立後3年間事務局員を務めた高エネルギー加速器研究機構(高エネ研)の会員諸氏の並々ならぬ努力があったからこそ、本会の運営が軌道に乗ったことを忘れてはならない。



平成14年9月25日 日本放射化学会 理事会 於 KKRホテル札幌

## 日本放射化学会設立趣意書

放射化学は、原子核の構造と性質およびその変換に起因する種々の化学現象の解明と応用を目的とする学問分野と位置づけられます。わが国における放射化学研究は、第二次世界大戦後に本格化しました。1945年の広島への原爆投下後の残留放射能分析、1954年の第五福竜丸事件の「死の灰」の分析などを節目として発展し、1957年には第1回放射化学討論会が東京で開催されました。本討論会はその後毎年1回開催され、本年10月にはつくば市で第43回放射化学討論会が開催されます。放射化学研究者にとってわが国唯一の研究発表と交流の場となっている本討論会には、毎回300名近くの研究者と学生が参加し、核化学、放射化分析、加速器化学、重元素化学、生体および環境中のトレーサ化学、メスバウアー分光などの研究発表がなされています。

最近、この歴史ある放射化学討論会を土台に、放射化学および関連研究のさらなる発展と研究の活性化をめざし、研究者の組織化を望む声が高まってまいりました。放射化学は学際的研究であり、素粒子・核・原子物理学、放射線物理学、保健物理学、無機・分析化学、放射線化学、宇宙・地球化学、加速器科学、材料科学、環境科学、放射線生物学、核薬学、核医学、放射線医学などと広く接点を有しています。ラジオアイソトープの製造と利用、核医薬品の開発、核燃料サイクル技術の確立などにも寄与し、人類の福祉向上に欠かせない研究分野です。そこで、下記の趣旨で「日本放射化学会 / The Japan Society of Nuclear and Radiochemical Sciences」を設立する次第です。将来的には、日本学術会議会員を推薦できる学会になることをめざします。

### 記

- ア. 従来の核・放射化学にとどまらず、関連する基礎および応用分野を広く包含する研究交流組織と位置づけ、放射科学(サイエンス)の発展に貢献する。
- イ. 放射化学討論会を主催するとともに学会誌(The Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences)を発行し、放射化学および関連研究の活性化と研究の質的向上を図る。また、放射化学及び関連研究の成果を応用技術開発に波及させ、人類の福祉向上に貢献する。
- ウ. 海外に開いた公式の窓口として、海外の研究者との連携を強化するとともに情報発信に努め、わが国の放射化学および関連研究がアジアと世界で指導的役割を果たす機会と活躍の場を創出する。
- エ. 放射化学及び関連研究の若手研究者の育成などに努め、研究の継続的発展に資する。
- オ. 放射化学および関連研究の啓蒙を積極的に行い、社会的認識の向上に努める。また、中学校・高等学校等における放射線教育の普及活動を支援する。
- カ. その他、放射化学および関連研究の発展に必要な事業を展開する。



## 5.2 温泉の化学

(堀内 公子)

### (1) 発見と歴史

温・鉱泉試料中のラドンの存在は1903年 H. S. Allen によって Bath の Kings Spring で認められ、1904年 H. Mache が Bad Gestein の温泉沈殿物のなかにラジウムを発見した。それ以後世界各地で温・鉱泉試料中のラジウム、ラドンの調査・研究がはじまった。マッヘ単位（水1Lに含まれる飽和電離電流が  $10^3$  e.s.u. であるとき1マッヘ）はラジウム・エマナチオンの濃度を表わす単位として H. Mache によって提案されて普及し、わが国では現在でも温泉の分野で通用している。

わが国のラドン研究はエングラ・ジーベキングらによって開発された泉効計を用いて湯河原・伊豆山・熱海などの温泉で1909年に始まった。わが国最初の温泉のラドン濃度測定結果は1915年パナマ万国平和博覧会を契機に刊行された「The Mineral Springs of Japan」に記載されている。

全国477ヶ所の温・鉱泉と15の石油及び天然ガス地域に於ける試料水のラジウム測定データが中井敏夫により1940年に発表された。これはラジウム測定データとして最もまとまったものであるが、わが国のラジウム資源を鉱泉に求めるには経済的価値の低いことも述べられている。ちなみに温泉から取り出されたLiとCsはそれぞれ軽合金の半田溶接の際や光電管製造に使われたが、蒸発濃縮した温泉の濃厚溶液からの分離には苦勞したと言われている。液体シンチレーションカウンタ(LSC)が開発されると、同一試料中のラジウム、ラドンを測定した結果が119の温泉につき報告された(1978)。従来、温泉水中のラドンは親核種ラジウムとは非平衡に多く存在することが知られているが、ここでもそれが証明されている。

温泉水の中には主としてラドン(Rn： $^{222}\text{Rn}$ )とその同位体トロン(Tn： $^{220}\text{Rn}$ )が存在するが、半減期が54.5秒と短いトロンのフィールドでの検出はなかなか困難であり、データはあまり多くない。

温泉の放射能は測定すれば殆どどこにでもあり、ただ多いか少ないかの違いだけである。現在、温・鉱泉水中のラジウム、ラドンは温泉の分析項目の一つであり、温・鉱泉水中での存在が確認されて以来研究と利用との二つの面から測定され今日に至っている。

### (2) 放射能泉の定義

現在わが国の温泉は環境省自然保護局の所管行政で、「温泉法」により管理・監督されており、泉質は昭和26年制定され、53年に改定された鉱泉分析法指針により分析すべき項目と分析方法が定められている。指針によれば、放射能による鉱泉の定義は

ラドン (Rn)  $20 \times 10^{-10}$  Ci 以上、常水との区別、鉱泉と認める濃度 (5.5 マッヘ単位以上) (a)  
ラジウム塩 (Ra として)  $1 \times 10^{-8}$  mg 以上

ラドン (Rn)  $30 \times 10^{-10}$  Ci 以上、特殊成分を含む療養泉 (放射能泉) (8.25 マッヘ単位以上) (b) で示される。しかし療養泉は温泉法の対象ではなく、温泉医学の経験から医療効果の期待出来る温泉という考え方である。ドイツ医学の流れを汲むわが国では温泉・温泉医学の分野でも例外ではなく、わが国の鉱泉の基準は常水と区別する鉱水の限界値を定めたドイツのナウハイム決議(1911年)に準じている。ラドンによる鉱泉・療養泉の定義をベクレル表示に換算すると、それぞれ74Bq/L、111Bq/Lとなる。

### (3) 温・鉱泉分布図による、わが国の放射能泉の特徴

1992年に金原によってまとめられた温・鉱泉分布図によると、わが国の放射能泉は全体の7.7%

(総数 3,659) にあたり、全国の放射能泉の数を都道府県別に集計すると特徴的にフォッサマグナ以西の西日本に多く分布していることが示された。従来放射能泉は花崗岩地帯に湧出していることが知られているが、放射能泉の分布図を花崗岩の分布図とを重ね合わせるとよく一致する。

環境省の報告によると 2005 年 3 月現在わが国には 27,644 本の源泉(含む未利用源泉)が存在し、総湧出量は 2,712,140 L/min である。従って、源泉 1 本当たりの平均湧出量は 98 L/min となる。放射能泉の湧出量別頻度分布図を描くと 20 ~ 50 L/min をピークとし、量の少ない方に寄った非対称型を示すことから、わが国の放射能泉の湧出量は平均的に他の泉質の温泉の半分以下と見られる。泉温は 15 ~ 20°C の冷鉱泉が 86.5% をしめ地下水の温度領域に近い。また液性は弱酸性泉 4.3%、中性泉 49.4%、弱アルカリ性泉 27.2%、アルカリ性泉 19.1% で、ラドン以外の化学成分を含むもの(ラドンを含有し他の泉質名を合わせ持つもの)は 9.4% にすぎない。よってわが国の放射能泉の湧出量は温泉の平均湧出量の 1/2 ~ 1/3 と少なく、液性は中性から弱いアルカリ性を示し、ラドン以外ほとんど他の溶存化学成分を含まない単純冷鉱泉が主体と言える。従ってわが国の放射能泉地は高名ではあってもこじんまりした温泉地が多く、泉温も高く規模も大きい三朝温泉などは例外と言えよう。

C. Genser は放射能泉を次の三つのタイプに分類した(1933)。

- ① ラジウム及びそれと平衡量或いは平衡量以下のラジウム・エマナチオンを含むラジウム鉱泉(例: Heidelberg, 有馬唐櫃かた越, 玉造松之湯)
- ② ラドンタイプ: ラジウム及びラジウムとの平衡量以上のラジウム・エマナチオンを含むラジウム塩含有ラジウム・エマナチオン鉱泉(例: Oberschlama, 池田 8 号泉, 増富)
- ③ ラジウムを全然含まずガス状のエマナチオンのみを含有するラジウム・エマナチオン鉱泉(例: 恵那ラジウム鉱泉, 他)

わが国にはいずれのタイプの温泉も存在するが、②、③が主流である。トロンが多く含まれる鉱泉が発見され、トロン泉またはトロンタイプと呼ばれたが(例: 三朝大橋霊泉, 玉川 4 号泉など)以後の報告はない。地殻の中にはウランの約 3 倍のトリウムが存在することから温泉などでもより多くのトロンの存在が期待されるが現段階ではあまり多くの報告はない。放射能泉の生成機構を含めて今後の研究課題と言えよう。今後トロンの研究がすすめば増える可能性はあるが、今までの定量例からみて、ラドンがなくトロンのみと言う例は余程特殊な場合をのぞいて存在しそうにない。

#### (4) 放射能泉の成因

放射能泉の成因については昔から多くの報告が見られるが何れも定説とは言い難く未だ研究段階である。温泉水中のラドン>ラジウムの非平衡を説明するために強放射能泉地域(増富, 三朝, 有馬)を中心に数多くの研究がなされている。

##### a. 温泉沈殿物説

放射能泉は花崗岩地域に多く湧出しているが普通の花崗岩のラジウム含有量程度では強放射能泉の説明は難しい。一方、温泉沈殿物の中にはラジウムが濃縮されているものがあるので、齊藤信房は一応これがラドンの供給源と考えられると報告した(1976)。花崗岩や温泉沈殿物から放射性物質が溶け込む場合、通常主としてラドンのみが溶出する。

一般にラドン濃度の高い泉は湧水量が少ない。その上、ラドン含量は水中に存在するラジウムの放射平衡量より著しく大きいことを考慮すると比較的少量の鉱水がラジウム濃度の高い放射性沈殿物などと地下のあまり深くない所で、接触すると非常に濃いラドン含有水を生ずる可能性が

ある。

#### b. “ラドン地下水” 説

温度の高い三朝，城崎，湯村などで同じようにラドンの供給源を検討した結果，温泉水にラドンは少なく，高濃度のラドンを溶存した地下水が混入して含量が高くなっており，ラドンの年齢はほぼ 20～170 分位との報告がある。三朝温泉山田区共同湯のラドン含量は季節的に変動し，周囲の水田に灌水するとラドンが増える。浅いところの温泉沈殿物が付近一帯に均一に分布したとしても，そこを通る水が湧出する温泉水中のラドン濃度には至らない。そのため堀内公子らは地表近くにある温泉沈殿物層を通った地下水の他に，さらに深い層に含まれる高濃度のラドンを含む地下水，即ち“ラドン地下水”の存在を想定し，湧出の途次に混入して来ると考えた。

#### (5) 終りに

わが国は世界に誇る温泉国であり，泉質の種類の高さでも群をぬいている。その中でもラジウム，ラドン，トロンを含む温泉はそのユニークな性質から周辺の地域より高い放射線環境になる。放射化学の発展と共に，生活の場としての温泉地域に於けるトータルの放射線環境の解明が期待される。

### 5.3 北投石

(百島 則幸)

北投石は，発見された台湾・台北市・北投温泉の地名にちなみ hokutolite と命名された世界でもまれな放射性鉱物である。北投石はラジウムを大量に含む温泉水から生成した温泉沈殿物で含鉛重晶石（硫酸バリウム）であり，発見は 1905 年（明治 38 年）までさかのぼる。当時の台湾は日本国の統治下にあり，台湾総督府国語学校の教員として赴任してきた，地質学者・岡本要八郎が，北投温泉の瀧乃湯で入浴した折に付近の川で発見した。北投石は，日本・秋田県の玉川温泉（当時は渋黒温泉と呼ばれていた）でも産出することが桜井広三郎（東京帝国大学）により 1898 年（明治 31 年）により報告されている。北投温泉と玉川温泉の温泉沈殿物が同じものであることが明らかになったのは 1920 年（大正 9 年）のことであった。北投石に含まれているラジウムは 1898 年にキュリー夫妻が新元素として発見し，そしてラジウム原子が崩壊して鉛原子を生成することが当時次第に明らかになってきたところであった。また，火山性の温泉が放射能を持つことがわかってきたことから，北投石についても放射能の有無が調べられた。そして，写真乾板が感光したことから 1908 年（明治 41 年）に放射性鉱物であることが確認された。貴重な北投石の発見は，わが国の放射化学研究の先駆けであり，その後も，北投石を含めた“温泉の放射能”の研究は，放射化学や地球化学分野の研究者により活発に続けられることになった。

北投石は先にも述べたように温泉水から生成した含鉛重晶石であり，硫酸バリウム（ $\text{BaSO}_4$ ）と硫酸鉛（ $\text{PbSO}_4$ ）が任意の割合で混ざり合ったものである。北投石の研究は，鉱物結晶学的な研究と放射化学的研究に分けることができる。鉱物結晶学的な研究に関しては，東京大学理学部の綿抜邦彦，湊秀雄，佐々木信行（現香川大学）らの仕事がある。格子定数の測定から，北投石は，硫酸バリウムと硫酸鉛の混合比に応じた値を取ることが明らかにされた。ちなみに北投石に占めるバリウムのモル%は，玉川温泉産で 80-97%，北投温泉産で 71-72%であると佐々木は報告している。また，北投石が，硫酸バリウムと硫酸鉛の任意の割合で混じった混晶であることは，人工的に合成した北投石の格子定数を測定することで確認されている。台湾・北投石は，玉川温

泉産より鉛が多く、ストロンチウムを1%程度含有している。イオン半径から、ラジウムは、おそらくバリウムの位置に置換されているものと推定されている。

北投石の放射化学的研究は、初期には東京大学の齊藤信房や浜口博らによる放射化学分析を駆使した仕事がある。ウラン系列のRa-226(半減期1600年)、トリウム系列のRa-228(半減期5.7年)、及びRa-224(半減期3.7日)が含まれているが、放射化学分析は、ラジウム同位体と放射平衡にある娘核種を分離精製して娘核種から放出されるベータ線を測定した。Ge半導体検出器の進歩により、ラジウムと放射平衡にある娘核種の $\gamma$ 線を直接測定することで、比較的簡単にラジウム同位体を測定することができるようになった。玉川温泉産北投石のガンマ線スペクトロメトリー分析を、大久保隆と阪上正信(金沢大学)及び橋本哲夫(新潟大学)らが報告している。北投石は、高温で湧出した温泉水が冷却されることで、溶存していた鉛とバリウムの硫酸塩の溶解度が下がり生成すると考えられている。台湾・北投石の成長速度を、表面から深部へのRa-228/Ra-226の放射能比の変化から百島則幸らは推定している。

玉川温泉の北投石は、1922年(大正11年)に天然記念物に、1952年(昭和27年)には特別天然記念物に指定されて保護されてきたが、昨今、がんに効くという風説が広まり、残念なことに玉川温泉のほとんどの北投石は盗掘されてしまったと聞いている。一方、台湾・北投温泉の北投石は、一時、場所がわからなくなるなど、保護は必ずしも十分ではなかったが、2000年には「自然文化景観」に指定され、現在は保護運動が活発に進められている。岡本要八郎が台湾北投温泉で北投石を発見してから100年目にあたる2005年に、台湾・台北市において北投石発見100年を記念する国際会議が開催されたが、日本からは30人以上の参加があった。1928年(昭和3年)に帰国した岡本要八郎は、63歳の1939年に九州大学の講師となり鉱物学実験を担当し、実に83歳まで職を勤めた。これまでの業績により1958年には、九州大学から理学博士が授与されたが、1960年に84歳で亡くなった。北投石発見100年記念国際会議に招待されていた岡本要八郎のご長男は、九州大学講師になる63歳までの岡本要八郎の鉱物学は趣味であり、九州大学に講師として奉職してはじめて鉱物学が本業となったと話された。趣味嵩じて偉業を成した例である。

## 5.4 米国アイソトープの輸入

(齋藤 信房)

終戦の年から1950年(昭和25年)までは、放射能を研究する日本の科学者にとっては、困難に満ちた日々であった。

1945年(昭和20年)9月22日付占領軍総司令部(GHQ)指令第3号第8項には“ウランから $^{235}\text{U}$ の同位体分離、またはいかなる放射性的同位体分離を来たすことを目的とするすべての研究または開発を禁止する”と記されている。また1947年(昭和22年)1月30日付の極東委員会による「原子力の分野における日本の研究ならびに活動」と題する文書には、“日本における原子力分野のすべての研究は基礎または応用的性格のいずれも禁止されるべきである。この研究には次のものが含まれる。(1)核分裂性核種の生産を目的とするすべての研究または開発、(2)化学元素の天然同位体混合物より核分裂性的同位体を分離または濃縮することを目的とするすべての研究または開発”と記載されている。

しかし、理研の仁科芳雄博士のアイソトープの研究と利用に関する熱意は少しも衰えず、GHQや米国からの使節団などに対し、繰り返し熱心な要望を行った。仁科博士の考えは、理研のサイクロトロンが破壊されアイソトープの国内生産が不可能になった状況下では、米国で生産

されたアイソトープを入手して研究を再開するしかないということであった。1946年(昭和21年)1月にGHQ経済科学局科学技術課に着任したH. C. Kelly博士ら、1947年(昭和22年)に来日した米国学士院の第1次科学使節団、さらに1948年(昭和23年)の暮れに来日した第2次科学使節団などに対し、仁科博士はアイソトープ輸入の実現を情熱をこめて要望した。

いろいろ困難はあったが、仁科博士の希望はついに実現し、1950年(昭和25年)にAmerican Philosophical Societyの好意によってオークリッジ国立研究所(ORNL)でつくられたラジオアイソトープが仁科博士あてに寄贈された。輸入アイソトープ第1号を受領した仁科博士は、その利用を直ちに木村健二郎研究室(当時木村は東大教授のほか旧理研の解体で生れた(株)科学研究所の主任研究員でもあった)に依頼したのである。

1950年(昭和25年)4月10日に輸入アイソトープ第1号の $^{125}\text{Sb}$ が到着し、仁科研究室から原禮之助博士(元・セイコー電子工業(株)社長)が本郷の東大化学教室に運び、4月11日の午後、化学教室の中庭で研究室員監視の下で開封作業が行われた。主な作業者は、原禮之助、垣花秀武(現・東京工業大学名誉教授)と斎藤信房であったが、内容物はスズの金属粒子を中性子で照射したままの、いわゆる“Irradiated Unit”であって、 $^{125}\text{Sb}$ はこの粒子の中に生成しており、分離した $^{125}\text{Sb}$ そのものではなかった。

$^{125}\text{Sb}$ はスズの粒子中に生成しているので、これをトレーサとして研究に使用するためには、まずスズとアンチモンの化学分離を行わねばならなかった。米国原子力委員会(USAEC)のカタログには、この製品の中には $^{125}\text{Sb}(\beta) \rightarrow ^{125}\text{Sb}$ で生成のほかに $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{121}\text{Sn}$ ,  $^{123}\text{Sn}$ が混在すると記されている。しかし、実際に分析してみると、この製品にはトレーサとして有用な他のアイソトープも含まれていることがわかった。 $^{113\text{m}}\text{In}$ ,  $^{125\text{m}}\text{Te}$ がそれであって、前者は $^{113}\text{Sn} \rightarrow (\text{EC}) \rightarrow ^{113\text{m}}\text{In}$ で生成し、後者は $^{125}\text{Sb} \rightarrow (\beta) \rightarrow ^{125\text{m}}\text{Te}$ で生まれる。これらのアイソトープはAECのカタログには記されていないが、いずれもトレーサとして有用なアイソトープであることが木村研究室の実験でわかった。

分離の実験で木村研究室の業績として発表されたものは、イオン交換樹脂によるスズとアンチモンの分離、スズより無担体放射性インジウムの分離などがある。 $^{113}\text{Sn}$ と $^{113\text{m}}\text{In}$ は半減期が非常に違い、 $^{113}\text{Sn}$ の半減期は115日、 $^{113\text{m}}\text{In}$ の半減期は1.6時間であり、スズの硫化物の沈殿をつくっておけば、それから $\text{H}_2\text{S}$ を含む希塩酸で $^{113\text{m}}\text{In}$ をミルクキングできる。この方法は池田長生博士(筑波大学名誉教授)が創案した。斎藤は $^{113\text{m}}\text{In}$ のトレーサ利用を考え、斎藤一夫博士(のちに東北大学教授)とともに、発光分光分析の際の炭素電極中のインジウムの挙動の追跡に用い興味ある結果を得た。上記の研究結果は科研のSci. Papers I.P.C.R.に発表されている。 $^{125}\text{Sb}$ の方は松浦二郎博士(のちに東京大学教授)が亜鉛の電解時に、電解溶液中にアンチモンが存在する場合の微量アンチモンの挙動の追跡にトレーサとして使用した。このように、輸入アイソトープ第1号は有効に利用されたのである。

## 5.5 ビキニ原爆被災事件

(山本 政儀)

1954年3月1日、マグロ延縄漁船・第五福竜丸がマーシャル諸島のビキニ環礁で米国が行った核実験(高性能火薬15MTの爆発量に相当)に遭遇し、乗組員23名が被災した不幸な事件が発生した。被曝した漁船は856隻もあり、マーシャル諸島の島民数百人も被曝した。この年は年配の先生方にとって今なお忘れ難い年であると同時に、我が国の環境放射能研究がこの事件を契機

に組織的に始まったと言っても過言ではなからう。第五福竜丸が3月14日母港の焼津に帰港した後、放射線被曝した乗組員の診察・治療、原爆放射能マグロ、放射能雨、久保山愛吉さんの死など国内は騒然とした。3月16日に木村健二郎（東京大学）の研究室に降灰試料が持ち込まれ、南英一（東京大学）の研究室も含めて総力態勢で放射化学分析・測定が行われた。また、静岡大学（塩川孝信ら）、大阪市立大学（山寺秀雄、西脇 安ら）、金沢大学（木羽敏泰ら）、さらに後日京都大学（清水 栄ら）でも各自で採取したビキニ関連試料の分析が精力的に実施され、第五福竜丸の帰港以来二ヶ月あまりで、研究者の努力により核分裂生成核種に加えて、誘導放射性核種 $^{35}\text{S}$ 、 $^{45}\text{Ca}$ 、さらに原爆材料に由来する超ウラン核種 $^{237}\text{U}$ 、 $^{239,240}\text{Pu}$ を検出し、降灰の本質が究明された。当時の放射能測定で最も特筆すべきことは、降灰試料中に $^{237}\text{U}$ ( $T_{1/2}=6.75\text{d}$ )を検出し、その放射能が大きな割合（ $20\pm 10\%$ ）を占めることであった。この事が、核爆発時に $^{238}\text{U}(n, 2n)^{237}\text{U}$ 反応が起こっていたことを示すものであり、図らずも米国政府が秘密にしていた水爆の構造（3F爆弾、Fission-Fusion-Fission）の解明に決定的貢献をした。それらの成果は、世界の学会に公表された。その後、政府は、我が国の水産業の重要性を考慮し、南方漁場の放射能汚染状況を早急に把握するために、学会および関係官庁に協力を求め、俊鷲丸によるビキニ海域とその付近の放射能影響調査を2回実施した（一次調査：1954年5月15日出港、二次調査：1956年5月26日出港）。これらの調査により、海域の広範囲の汚染をシンチレーションカウンタで把握できることや放射能汚染魚の分布から放射性核種が海流の動きの追跡子として利用できることなどの新知見を得た。このような背景には、1937年に完成した理研サイクロトロンを用いて、仁科芳雄（理化学研究所）、木村健二郎（東京大学）らが核分裂生成物の研究を行い、7元素の核分裂生成物、さらに $^{237}\text{U}$ の発見、広島・長崎原爆関連の放射能汚染試料の分析、さらに占領下の中、1950年にアメリカから初めて放射性同位元素が輸入され、各大学にアイソトープ実験室が不完全ながらも設けられていたことを忘れてはならない。この年から、アイソトープの学術的利用を促進するために、文部省科研費で人工放射性同位元素の応用に関する総合研究が発足した。また、学術会議が1954年春、放射線影響調査特別委員会を発足させ、檜山義夫（東京大学）を班長として10年間文部省科研費を受けて今日の原子力安全研究のための基礎を築いた。さらに1957年に放射線医学総合研究所が設立され、その後環境放射能に対する社会の関心が高まる中、環境放射能研究所として1976年金沢大学に理学部附属低レベル放射能実験施設が開所した。施設が出来てまもなくのころ、ビキニ被災事件後25年経た1979年4月下旬ごろに阪上正信（金沢大学）、小村和久（金沢大学）らが東京・夢の島の第五福竜丸展示館を訪ね in-situ Ge 検出器で、船体のほか、延縄や延縄の浮きの目印に使用していたボンテンチク（シュロ）、船体塗料などの放射能測定を行い、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{125}\text{Sb}$ 、 $^{155}\text{Eu}$ 、 $^{241}\text{Am}$ 、また、山本政儀（金沢大学）らは、被災から40年目に降灰を含むこのシュロ試料から初めて $^{237}\text{U}$ の壊変生成物 $^{237}\text{Np}$ （ $T_{1/2}=2.14\times 10^6\text{y}$ ）を検出した。すでに、この事件からもう50年が経過した。もし第五福竜丸がビキニ環礁の東方160 km（危険区域の外側約30 km）よりも遥か遠方において被災を免れ、大気圏での核実験が継続していたならば、我が国の放射能研究がどのような方向に進んでいたかを想像することは非常に興味深い。この事件は、放射能に関する核化学や放射化学研究の進展のみならず、医学、物理、化学、農学その他多くの専門分野がこの問題に取り組み、殆ど未開拓の我が国の環境放射能や放射線防護の学際的研究を飛躍的に進展させたことで歴史的意義を有するものと言える。

## 5.6 金沢大学における放射性同位元素利用研究の事始め

(木羽 敏泰)

本稿は、金沢大学名誉教授・木羽敏泰先生（分析化学）が定年ご退官の折に行われた最終講義「定性から定量まで」（1979年（昭和54年）3月22日（木）開催）の講義録の中から、とくに「金沢大学における放射性同位元素利用研究の事始め」に関連した部分を、「日本の放射化学50年のあゆみ」のために、先生のご了解を得て抜粋させていただき、さらに校閲していただいたものです。放射化学討論会が50回記念となるにあたり、今日の我々の研究環境の礎がどのように築かれたかを知ることができ、また、ともすれば我々が忘れてしまいそうなことに注意を向けさせて下さっている玉稿を「日本の放射化学50年のあゆみ」にお寄せ下さいましたことに深く感謝致します。

(編集委員会)

### (1) 金沢大学開学当時の様子などについて

私が金沢大学へ参りましたのは1949年（昭和24年）です。その7月25日に金沢大学の第1回入学式があるが、正式の発令は全国の新制大学が同時に発足するため文部省でも渋滞して遅れるかも知れないけれど、とにかくその入学式には参列してほしいという速達が初代の理学部長・庄司彦六先生から当時名古屋大学におりました私のもとに届いた。これは出席しなければならないと考えましたが、入学式に参列しただけでまた名古屋へ帰るのも無駄に思えたので、家族を引き連れて思い切って引っ越して来ました。その当時、名古屋－金沢間の直通列車にどのようなものがあつたかという、夜の21時50分に名古屋を出る米原行という普通列車がある。その前部の3輦に富山行きという札がかかっている。これに乗ると米原でこの車輛は切り離されて、大阪から来る新潟行き普通列車の後尾につながれて来る。金沢駅へ朝の5時40分に着く。駅のホームからはみ出しているのでハシゴのようなもので線路の傍に降りる。というのが唯一の直通列車、いいえ直通車輛であつて、今日の「しらさぎ」（特急）のようなものではなく難行苦行であつた。そのようにして第1回の入学式に参列したのであるが、その当時まだ学長が決まっておらず、文部次官の伊藤日出登氏が学長代理として式辞を述べられた。式は四高講堂で行われたが、なんといっても新制大学の発足であるから、知事、市長その他何人もの方が祝辞を述べられた。大変立派な式で風格があつたとの印象が今でもあつて、それ以後、金沢大学で入学式、卒業式やその他の式にもほとんど出席したがいずれもつまらないと思う。私が停年まで30年にわたって金沢大学に奉職しえたのも、おそらくはこの第1回入学式に参列させていただいたことが何か責任になっていたためではないかと今になって思う。

金沢大学は市内にあつた大学、専門学校、高等学校などが統合して、昭和24年5月31日に発足したのであるが、その当時はすべて校名の上に金沢大学というのを冠するようになった。たとえば金沢大学金沢医科大学付属薬学専門部といった具合である。

さて私が勤務した理学部もこの年から発足したが学部学生はまだいないので、教養課程の授業をやってほしいとのことであつた。教養の授業のかたわら、理学部化学教室の造営を行ったのであるが、その場所は今は中央公園になっている旧四高の敷地で、赤レンガの本館は石川近代文学館になっている。その建物の西側、つまり香林坊寄りのところに、南北に木造の教室が並んでいた。物理学教室はこれと対称の東側、今は県庁と公園の間の道路になっているあたりに南北にあつた。これはただ旧制高校の教室がガランとして並んでいるだけであつて、驚いたことに木の床張りで、ガス、水道はもちろんのこと電灯さえついていない。全くの空屋である。ここで化学の研究室をつくって行くということは大変なことであると思った。しかし、まあやり甲斐はあると考え、追々に水道を引き、ガスを引き、実験台を入れて、電灯やコンセントをつけて整備して行っ

た。予算も少なく、物資も乏しいころであったがなつかしい思い出である。今でも中央公園を通ると思い出します。東側に化学科の無機化学と分析化学の研究室があった。有機化学、理論化学、生物化学の研究室はずっと奥の方で、今は芝生になっているあたりである。その当時を顧みると今日の理学部の建物や設備は金殿玉楼にも例えられるような立派なものである。

ところで、金沢大学の創立から現在に至る発展を考えてみますと、これは一朝一夕にでき上がったものではない。金沢の地で私の研究が学界で多少とも認められる程度にできたということは金沢における学問の伝統に負うところが多い。石川県及び金沢からは伝統的に偉い学者が出ておられる。それに四高の伝統は全国的に知れ渡っていたし、そこからはわが国の有名な学者を多く輩出している。私が金沢大学理学部の創設にあたって、がらん洞の教室をあてがわれて、ここで化学教室をつくるように言われたときに、他の土地なら逃げ出したかも知れないが、ここならばできるという希望と情熱を与えてくれたのは他ならぬこの伝統の重みであります。

## (2) 金沢大学におけるアイソトープの使用

占領下のわが国にアメリカから初めて放射性同位元素が輸入されたのは1950年（昭和25年）7月17日のことであります（なお、アメリカから寄贈された放射性元素は同年4月10日に東京に到着）。ラジオアイソトープ（RI）を研究に利用することは将来分析化学のみならず自然科学の各種の研究を遂行する上で必要欠くべからざるものであるとの認識をもって、近い将来に我々の研究室でも使用することを念願していました。同年の秋、中泉正徳、山崎文男、清水 栄、吉川春寿、筧 弘毅らの先生方が来学になり、RI使用に関する研究打合せ会があり、中央機関との連絡ができるようになりました。この会には金沢大学の全学から関心のある先生方が出席され、本学でのRIの使用についての受け入れ体制や学内の運営について討議しました。その結果、1950年（昭和25年）末に金沢大学放射性同位元素研究委員会が当時の戸田学長を会長に、医学部の平松教授を委員長に組織された。理学部からは千田教授（物理学）と私が参加した。こういう新しいものを導入するとき先駆的に熱中されるのは医学部の先生方で、東大でも放射線科の中泉先生、外科の都築先生らが熱心であった。本学でも医学部の先生が熱心であった。専用の実験室をつくることになり、医と理で取り合いが始まったが戸田学長の鶴の一声で理学部に設置されることになった。戸田先生は衛生学が専門であったが、基礎科学を重視される方で、医学部の主張を押さえて、大学では応用面ばかりに走っていると遂には破たんを来すので、基礎をしっかりやらないと悔を残すと言われた。このことは後に、医学部内にアイソトープ実験室を置いた岡山、熊本、新潟などの各大学で測定器の故障、汚染の拡大、取り扱いのミスなどで全学的にアイソトープ実験が停止するという事態になったと聞いたが、本学では医学部の研究者たちには不便をかけたけれども、そのようなこともなく順調に運営された。

アイソトープ実験室を理学部のどこに造るかについて論議されたが、すべて床の高い旧四高の木造校舎であるため適当なところがない。さいわい旧四高の寮の浴場が独立家屋になって空き家になっている。広さも相当あり、銭湯のように床はタイル張りになっている。これなら汚染しても水で洗い流すのに便利だということになり、実験室風に測定室、実験室、貯蔵室などという間仕切りをして改装された。昭和27年の冬のことである。この改装中に、当時ドラフトや流しは全て鉛板を用い、また放射線の遮へいに鉛ブロックが購入されていた。明けて正月の初め、アイソトープ実験室から鉛が盗まれたという連絡で、急いで行って見ると、流しに張ってあった鉛板までごっそりとはがして持ち去ってある。新聞に「アイソトープ実験室の鉛盗まれる、高度の放射能付着の恐れあり」と全国版に出たから大騒ぎとなった。警察が追跡すると、犯人は当時柿木



畠（現在の片町2丁目）の古物商に売り払い、その古物商は大阪の地金問屋へ送ったとのことである。大阪府警はその問屋のある東区道修町近くを通行止めにしたそうである。その時、警察からの依頼で放射能の有無を調べに動員させられたのが、当時大阪市立大の西脇 安博士であった。新品で放射能がついているはずもなく事なきを得たが、西脇さんは私に会うたびに、「あの時は金沢大学のために迷惑した」と云われるので閉口した。彼は私の高校の友人で、今はウィーンの国際原子力機構 IAEA に勤務している。さて、鉛を盗んだ犯人を警察が探し出して調べたところ、工事をしていた職人であった。あいた口がふさがらなかった。

分析化学研究室で初めて用いたアイソトープは C1-36 で、1952 年（昭和 27 年）9 月から共沈機構の解析に利用したが、放射能の測定はローリッチェン検電器で行った。まだ GM 管計測器は本学には入荷していなかった。その労苦を思い知るべきである。

### (3) 原爆マグロ

かくしてアイソトープ実験室の整備が進むうちに、1954 年（昭和 29 年）3 月 1 日のビキニ水爆実験による第五福竜丸の被災事件が起こる。この大事件は 3 月 16 日付読売新聞朝刊でスクープされ、全国的な波紋を広げる。これに先立って焼津港へ帰った福竜丸では捕れたマグロを甲板を引きずって陸上げし、木箱に詰めて全国の市場に発送されたという。同日のうちに東京中央市場、大阪中央市場などでマグロに放射能が検出されたという。金沢では県衛生部からの依頼で、医学部の平松教授が助手の津川洋三氏とともに近江町におもむき、アイソトープ実験室のサーベメータを持ち出して測定したところ、焼津から来たマグロ 6 尾に放射能が検出された。4 尾は野田山に埋め、2 尾は放射能の実体を詳細に調べるために、新設間もない理学部構内のアイソトープ実験室に運び込まれた。アイソトープ実験室の跡は今はなく、中央公園になっているが、現在の消防署の向かい側の公園入口付近であったろうと考える。

運ばれて来たマグロの箱は棺桶のようで、その中に横たわってマグロが入っていた。その大きさに驚いた。詳細に調べると、放射能はマグロのウロコの部分に多く付着していた。このトゲのようなウロコをマグロから一本ずつ抜いて、これにどのような核種がついているかを調べようとした。しかし、そのカウント数を測ってもまことに僅かで、超微量であることを示していた。大橋先生（理学部化学科）は大学院生の時、長崎西山地区の雨樋にたまっている土の中の放射性核種の分離を手伝われたことがあるが、普通の沈殿法による分離で核種を分けて行く手法では不可能だろうとの見解であった。私は直感的にペーパークロマトグラフィーによる分離を考えた。

当時、無機化学講座は教授が森元七先生、助教授に外崎巧一、土屋亮吉両先生、助手が久野栄進先生という陣容であったが、外崎先生が弘前大学教授に栄転されたあとへ、東工大の大学院を出られた柴田村治先生が来られた。柴田先生は今は錯塩化学の大家であるが、大学院の博士論文は「無機ペーパークロマトグラフィーの研究」であって、分析化学的研究をされていたのでその報文は学会誌で逐一拝見していた。それで着任間もない柴田先生に協力を頼んで、展開溶媒その他の知恵を授けてもらった。すなわち既知の非放射性的の塩類の水溶液を展開し、その Rf 値を求め、マグロのウロコを分解して水溶液にしたものを同じく展開して、同じ Rf 値のところに放射能を見出すことができれば、その放射能を出している核種を同定できる。この実験を開始したのは 3 月 17 日で、ちょうどその日は化学科の第 2 回卒研発表会の日であったが、私たち（木羽、大橋、柴田、高木）はそれに欠席させてもらって実験を進めた。幸にして、一週間ほどで 5～6 種の核種が同定でき、U-237 も微かながらみとめられた。この報告会は 5 月 30 日京都大学での日本分析化学会討論会の席で東大、静岡大、大阪市立大の報告とともに行われ、多数の報道陣が詰めか

けるという、熱気にあふれたものであった。なお、私たちにとって学問的によかったのは、直感的に思いついたペーパークロマトグラフィーによる分離が核分裂生成物については未だ世界で行われていなかったということであった。以後、放射性核種をペーパークロマトグラフィーを用いて分離する研究は世界各国で行われるようになった。Sr-90とY-90の分離など私たちの研究室からの報告は現在どの放射化学の教科書や実験書にも出ている。

そのころから降雨、降雪、大気降下塵などの放射能測定が全国の大学で行われるようになり、われわれの研究室も盆も正月もない忙しさになった。ビキニ事件以来のわが国の研究態勢などの詳細は、三宅泰雄先生著「死の灰と闘う科学者」(岩波新書 834)に述べられている。

#### (4) 日本学術会議と放射化学

1954年(昭和29年)5月1日、日本学術会議に放射線影響調査特別委員会が設置され、基礎班15名、医学班14名、生物班12名、水産班15名、地球物理班10名からなる大委員会であった。本学からは私が基礎班に、平松教授が医学班に指名され、参加した。また、東北、北海道、北陸地区には委員の出ていない大学が多いので、その連繁をはかるため、北日本フォールアウト会議を設置して、各地の研究者との会合を毎年1回持つことにした。日本学術会議ではこの委員会とは別に原子力問題委員会がわが国の原子力の研究や利用について討議していたが、第17回総会で公開、自主、民主の三原則が決議された。その後、原子力特別委員会が設置され、主として大学における教育と研究に関しての論議をすることになった。その後、東大の木村健二郎先生のお薦めで、私は1959年(昭和34年)4月からこの委員になった。理学部化学系の委員は三宅泰雄、斎藤信房両先生と私の三人で、工学、医学系や物理の委員の方たちとはずいぶん論争しなければならなかった。現東大校長の向坊隆先生は工学系の委員で旗頭であった。工学系からは旧帝大と東工大に原子力工学科の設置という広大な案を、物理学系からは実験用原子炉や大型サイクロトロンを巨大予算を提案するという次第で大波に呑み込まれたようなものである。私たちはビキニの分析の例もあって基礎化学の重要性を説いたが話がかみ合わない。正午で終わる会議を夕方までねばって、委員長・伏見康治先生の認めるところとなった。そのころは文部省と学術会議の関係が今日のように冷たくなかったので、文部省から岡野審議官も同席されていたと思う。「それでは放射化学を全国で10講座つくることにして」ということになり、静岡大文理の研究施設、金沢大理というような順になった。東大は原子力学科の基礎講座として理学部に置くという話であった。

このようにして1961年(昭和36年)4月、金沢大学理学部に放射化学講座が開設された。同じ年の3月には、宝町キャンパスに医薬学共同利用のRI研究室ができ、特色ある放射性同位元素利用研究が一層活発になった。金沢大学ではその後もRI・放射線利用研究を行う講座や施設が増え続け、放射性同位元素利用者数は飛躍的に増大した。

#### (5) おわりに

これから大学が一体どうなっていくか。本学創立当時はどうしても旧帝大に追いつけ、追い越せということで一生懸命に全学的に努力したが、経済成長の時代に入ってから大学も増えた関係もあって、金沢大学は国立大学一期校であるという看板に甘んじてきたようなところがある。学生諸君も一期校へ入ったのだから、勉強は余りやらなくても社会は歓迎してくれるであろうという考え方が風靡したと思う。研究その他においては複写機が発達して、ゼロックスというような便利なものができたため、書物を読まなくなり、複写によるコピーがただ積まれてある状況に

なった。それに、情報が過多であって、かえってその雑音によって落ちついて研究ができず、左右を見てばかりいて、自分自身の研究を浅くしている。ところが、経済成長はもう期待できないとすると厳しい選別の時代に入ると思う。大学で学問をきちんとやった人間、あるいは学問を立派にこなしていける人間のみが社会に迎えられるのであって、単位をそろえただけでは駄目であると思う。私は金を勘定するような単位制には好感がもてない。講義時数などに無関係に勉強すべきだと思う。私はその考えで、学生実験などもきわめて濃厚にやらしたと思う。これからは時間数だけすませばよいというのではなく、濃密な教育が実施される必要があると思うし、また、そうでなければ大学教育の使命を果たせないと思う。金沢大学が将来いかなる評価を受けるかは、学生数が多いからとか、クラブ活動が盛んだと言うことでなく、学問がここで濃密に教育され、独創的な研究がなされるということにかかっている、大学の看板だけでは立ち行かない。そのような時代はすでに来つつあると思う。次に、学問が細分化されて行くから、相互の協力がますます必要になってくる。学問は全てのためにあるので、ある特定の個人の趣味や名声のためにあるのではないと思う。学部全体、また大学全体の協力がきわめて必要と思う。初代学長の戸田正三先生が偉かったと思うのはこのことを提唱され、また推進された。アイソトープ実験室を置くとき、医学部の反対を押し切って、基礎が大切だといって、他大学のことは知らぬが本学では理学部に最初に置き、それから他学部の方へ拡張するようにと、自ら会議で主張された。また、測定機器などの予算の陳情に行くと、他学部にあるかどうかを調べさせて、一応すぐそれを利用するように手配された。その点でも戸田先生は学者であり、研究者であったと思う。大学の中が連繋して研究を行うことが、これからますます大切になると思う。もちろん、数学とか理論物理学では個人の研究が重視されるかも知れないが、実験を伴うものでは個人研究や一講座だけの研究というものは難しくなってきた。各講座、各学科の壁を越えて協力し合うことが必要であって、かならずしも直接手を下すというようなことでなくても、たとえばアイソトープ施設とかの運営に理解を示すことが大切であろう。

### 編集委員会追記

ビキニ環礁原爆のことについては「遠き峰々—木村健二郎その時代」木村健二郎先生記念誌編集委員会著、岩波ブックサービスセンター製作に多くの方々の手記が掲載されています。

## 5.7 原子力事始め—原研の辿った道—

(馬場 宏)

第二次世界大戦の終結以来、わが国の原子力研究は一切禁止され、理化学研究所のサイクロトロンも進駐軍の手で解体され、東京湾に投棄された。

日米講話条約が発効した次の年に当たる昭和28年、米国はニューヨークの国連総会に「原子力平和利用提案」を行い、世界的な原子力平和利用を推進することが決議された。翌年の12月には「原子力平和利用に関する国際協力」が決議され、IAEAの設立と平和利用国際会議の開催が定められた。

わが国では、29年3月衆議院予算委員会に、自由党、改進黨、自由民主党の3党共同修正案としてわが国初の原子力予算が提案され、「原子炉築造のための基礎研究費及び調査費」2億3,500万円が認められた。しかし、これは国内各界に大きな波紋を投げかけ、必ずしも歓迎的な雰囲気では無かった。

ことに、自らが要求した原子核研究所の予算が削減される一方で、原子力予算が突如提案されたことで日本学術会議は強く反発し、学会無視への抗議を決議すると共に、「原子力予算は平和的にしか使わぬとの決議を」との要望を国会に申し入れた。さらに、同年4月23日の日本学術会議第17回総会において「原子力研究は民主・自主・公開の3原則に従って行う」との声明が発表され、以後“民主・自主・公開”はわが国の国是となった。

昭和30年11月に原子力利用準備会により、わが国初の原子炉を熱出力50kWのWB型原子炉とすることが決定され、政府の承認を経て31年3月に米国NAA社との間で本契約が結ばれた。それと並行して、2号炉としてCP-5型原子炉の導入計画が進められた。

研究所の設立は、まず土地の選定から始まった。“綿密な検討”が行われ、31年初めに、神奈川県武山地区、茨城県水戸郊外の米軍射爆場、群馬県岩鼻の旧陸軍火薬廠跡と高崎の観音山の4候補地が原子力委員会に報告された。東京からの距離や水利条件などの点で、武山が他を引き離していたが、群馬県の候補地との間で政治的な綱引きに巻き込まれた正力松太郎原子力委員長は、第3の候補地である茨城県水戸郊外を選ぶことに傾き、結局東海村の国有林に落ち着くことになった。後に、武山には立教大学の原子炉が、岩鼻には原研の高崎研が置かれることになる。

敷地選定に関しては、当時からいろいろと噂があったが、われわれの原研入所当時の所員研修の場で、「最終的に東海村が選ばれたのは関東ローム層という強固な地盤の上に乗っているので大地震の心配が無いからである」という説明を受けた。とたんに鹿島灘を震源とする強い地震が頻発して、研修生同士で笑い話にしたことを覚えている。しかし、それから半世紀を経た今になってみると、一度もマグニチュード6を超えるような地震は起きていないし、心配されている東海大地震予想範囲からは外れているし、あながち的外れの議論では無かったという気もしている。

昭和31年5月に日本原子力研究所法が制定公布され、それまでの財団法人を引き継ぐ形で特殊法人「日本原子力研究所」が誕生した。これと並行するように、31年8月には日本原子燃料公社、32年7月には放射線医学総合研究所が設立された。

職員の採用は昭和31年から随時行っていたが、32年度には公募による第1期生の採用が開始された。物理・化学系を中心とする研究職員は、東海村に研究棟が完成するまで、東大、理研などの研究機関に分散して間借り生活をするようになった。

昭和32年に相次いで研究棟や宿舎が完成し、7月には東海研究所の開所式が行われた。研究員達は順次東海村に移って来て、研究環境の整備に没頭することになる。この年のハイライトはJRR-1の臨界であった。原子炉燃料の調整では化学部門が活躍した。理事である木村健二郎東大名誉教授の指揮の下に実際の作業にあたったのは、内藤奎爾、原礼之助、梅沢弘一、鈴木敏夫の4名であった。

こうして誕生したJRR-1は、化学屋の眼から見れば裸の原子炉であった。JRR-1の建屋でわれわれの記憶に残る実験装置と言えば、地下実験室一杯に占拠していた真空管式の256チャンネルのマルチ・チャンネル・アナライザー位のものであったが、その折角のマルチはあまりにも貴重で、取り扱い免許を許された一握りのシニア研究員しか使うことができなかった。

原子炉とはいえば、試料を照射するための照射孔こそ開けられていたものの、照射試料を出し入れするための装置は何一つ無く、照射孔を塞ぐプラグの装脱着すら二、三人の人間の手で、じかに行わねばならなかった。われわれはこの作業を揶揄して、肉弾三勇士と呼んでいた。

照射試料を装着するときには、試料を入れたカプセルに、尻尾を付けるように長いセロテープを取り付けた上で、アルミの長い棒で照射孔の奥に押し込む。取り出すときには、原子炉本体の壁に背中を着けて、ゴルゴンの首を取った時のペルセウスよろしく手鏡に写した照射孔の内部

を見ながら、差し込んだアルミ棒の先にセロテープを貼り付けるように操作して引っ張り出すという案配であった。

ゼロから始まった原子炉実験のこととて色々戸惑いもあったが、重大なミスや事故も無く推移したのは喜ばしいことであった。とはいえ、スケールを間違えて、10数mgのナトリウム化合物を照射する筈のところを10数gを照射してしまい、生成した放射能が強すぎて取り出せなくなり、長いこと原子炉の中に入れっぱなしになっていたというようなこともあった。

化学系の研究者は、化学部と放射線応用部の二部門に配属された。化学部は放射化学、物理化学、分析化学の3研究室から構成されていた。放射化学研究室では、超ウラン元素の製造と溶液化学の研究、乾式再処理法の研究、半均質炉プロジェクトの再処理法の研究などがすすめられた。物理化学研究室での研究テーマは、フッ化物揮発法による燃料再処理、U、Puなどの核燃料物質非金属固体化合物系の熱力学、核分裂生成核種の分離法などであった。分析化学研究室では、核燃料、炉材料に始まり、放射性廃棄物、使用済燃料、環境物質など多様な試料の分析法の開発を行い、その手段として化学分析、分光分析、質量分析、電子顕微鏡、X線分析、放射化分析といった分析手法の整備・拡充を図った。また、分析用の標準試料の作製も手掛けていた。

放射線応用部は放射線利用研究室とRI製造研究室でスタートした。前者は<sup>60</sup>Co照射室と電子線ライナックを擁して、放射線照射実験や放射線化学・物理の基礎研究を行うことを目指して、当時の原研にしては化学・物理にわたって豊富な人材を揃えていた。この研究グループは後に、高崎に移って、高崎研の中核を担うことになる。一方、RI製造研究室はRI製造の基礎研究として核化学・放射化学の研究、原子炉照射技術の開発、さらには、将来商品として頒布することになるアイソトープのための放射能検定技術の開発などを目指し、早くも昭和37年6月には短寿命6核種の販売を始めるに至った。RI製造研究室は40年にRI製造部に改組され、製造技術課、製造課、検査課からなる部課室制に改められた。さらに、大洗研のRI利用開発室と併せてRI事業部となって、東海研からは独立することになった。

発足して間も無い研究所の例にもれず、原研にはチーム・リーダーになり得る中堅以上の研究員が極端に不足していた。放射線利用研や副主任研究員が3人もいた固体物理研究室などは例外で、殆どの研究室では学部卒や修士終了の若者が路頭に迷っているような有様であった。その上、外界から切り離された陸の孤島に島流しにされて、満足な食事も与えられず、ロクな娯楽施設も無い境遇で、若い者の不平不満ははげ口も無く、鬱積した状態が続いていた。当時はコンビニも無く、買い置きできるようなインスタント食品なども世に出ておらず、その上、独身寮の周辺にはうら寂れた飲み屋以外に食堂とて無く、一旦寮の不味い夕食を食べ損なうと翌朝まで空腹を抱えていなければならないという情けない状況であった。それらの鬱憤のはげ口は組合活動に向けられ、人権闘争や研究態勢の確立などという組合闘争とは異質な要求を掲げた闘争が繰り広げられた。今にして思えば、このような要求を突き付けられた理事者側もさぞ当惑したことと同情の念に耐えないが、組合と当事者能力を失った理事会との間で抗争は完全に泥沼化して、原研労組は34年6月15日の創立3周年記念式典をボイコットすると共に、17日には原研初のストライキを敢行した。

こじれにこじれた事態を解決するために調停に動いた中曾根康弘代議士に直訴した組合側の要望が実って、東大核研所長の菊池正士教授を3代目の理事長に迎えることになった。原研の研究体制の革新を果たすべく、意欲を持って乗り込んで来られた菊池先生であったが、頼りになる部下に恵まれず研究態勢は一向に改善されなかった。その上、労使紛争はますます泥沼化する状態で、39年6月、菊池理事長は失意の内に原研を退任された。同時に、化学の木村健二郎先生も、

周囲の慰留を振り切って、菊池先生に殉ずる意思を持って原研を退職された。原研は、一挙に二枚の大看板を失ったのである。

長年の労使紛争のせいで、原研は赤の巣窟であるというレッテルを政府、産業界から貼られ、そのために、動力炉開発研究は原研から取り上げられ、原子燃料公社を改組した動力炉・核燃料開発事業団が担当することになった。われわれ化学屋には殆ど関係は無かったけれども、炉物理関係の研究者にとっては、まさに晴天の霹靂であり、動燃ショックは彼らの間に長く続くことになった。

JRR-2が臨界に達したのは、昭和35年10月であり、原子炉実験の重点は、2、3年の間に徐々にJRR-1からJRR-2へと移行して行った。JRR-1が運転を停止したのは43年10月で、JRR-1は以後見学者用の展示物になった。

使用原子炉がJRR-1からJRR-2に変わったことで、中性子強度が一挙に100倍になり、扱う試料の比放射能が格段に高くなった。そのため、それまで問題が無かった取り扱い手法が通用しなくなって、実験室や廊下での放射能汚染が頻繁に起こり、研究員達は何度も除染作業に追われることになった。この汚染騒ぎは、各研究者が一通り身にしみて経験するまでは収まらなかった。この体験から、線形の世界に住んでいる人間にとって、指数関数の世界である放射能と付き合うのが如何に難しいかを思い知らされた気がしたものである。

発足当初の新卒研究員もやがてそれなりに育って、徐々に成果が上がり始め、それに伴って学会における原研の重みも増してきた。そして、あれほど激しかった労使紛争も次第に収まってきた。

原研の研究活動が最盛期を迎えようとしていた時期に、動燃の登場に次ぐ第2のターニング・ポイントが訪れた。それは、核融合研究の本格始動であった。原研の核融合研究は、核融合・直接発電開発準備室に始まり、核融合研究部を経て、昭和53年に核融合研究開発推進センターが発足したころから本格化し、原研の予算全体を大きく圧迫するようになった。そのみならず、新規採用者も核融合関連以外は、一時は殆どゼロに近く、欠員の補充さえ認められなかった。さながら原研は核融合という卵を抱えた雌のシシャモといった状態が長いこと続くことになる。

ピークを迎えた原研の研究活動は、初期に入所した研究員が定年でいなくなるに連れて下降線を辿るようになる。研究員の世代交代がスムーズに行われなかったというよりは、そもそも交代すべき人間を補充しなかったと言うべきであろう。そのため、人間がいなくなる度に、その人間が背負っていた仕事も消滅していったのである。ここに来て、幹部級の人材が手薄になったことは否めない。しかし、逆にいえば、頭の上の重しが取れた若い研究者達の頑張り如何では大きな飛躍も夢ではないともいうことができよう。

2005年10月に行われた原研と動燃の後身であるサイクル機構との統合は、研究所としての原研の息の根を止めてしまったように見える。残存する数少ない有為の人材は、研究の場から切り離されて、施設管理の責任者に棚上げされてしまった。新たに誕生した日本原子力研究開発機構では、箱物の管理運営が重視され、多くの純粹基礎研究部門は組織図の上から姿を消してしまい、その結果は実験施設の改造といった大きな予算要求を出す道をも完全に断ち切られるという深刻な事態を生みだしている。このような苦境を脱するためには、若い研究者達の並々ならぬ苦闘が必要だろう。

所内の親睦を図る目的で、昭和33年度から始められた所内運動会の第1回大会で、化学部と放射線応用部の合同チームは仮装行列の出し物に、頭が竜、尾が蛇の“原子力と言う名の宇宙怪獣”が50年後には東海村の砂の中に埋もれ、知る人もいなくなるというパロディを演出して喝

采を博したものであった。奇しくもまさに創立 50 年にして、このパロディが現実のものとなる可能性を否定できない。原研とサイクル機構の統合という木に竹を継ぐという政府の無定見な方策が、原研の研究所としての生命を断ち切る結果に終わらないことを望んでいる。

#### 参考文献

1. 「日本原子力研究所史」 日本原子力研究所（2005）
2. 木村繁「原子の火燃ゆ ----- 未来技術を拓いた人たち -----」 プレシデント社（1982）

## 5.8 天然原子炉（オクロ）

（日高 洋）

アフリカのガボン共和国東部オクロ地区のウラン鉱床の一部が過去に核分裂連鎖反応を起こした痕跡を示すことについてフランス原子力庁が公表したのは 1972 年 9 月であった。1956 年に黒田和夫は、天然のウラン鉱床が核分裂連鎖反応を起こすための臨界に達する条件を提示し、天然原子炉の存在の可能性があることをすでに説いていたが、この天然原子炉理論はオクロ鉱床の存在とともに 16 年の後に一躍脚光を浴びることとなった。

その後の詳細な現地調査と同位体分析の結果から、オクロ鉱床内における 16 か所と、オクロ鉱床に隣接しているオケロボンド鉱床、およびオクロから南東に 30km 離れたところにあるバゴンベ鉱床の各 1 か所において核分裂連鎖反応を起こした部分（原子炉ゾーン）が確認されている。これらの鉱床が天然原子炉と成り得た理由は主に 3 つある。

- (1) 20 億年前に形成されたものであったこと：熱中性子に対して核分裂を起こしやすい  $^{235}\text{U}$  の存在度は現在  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U} = 0.00725$  であるが、 $^{235}\text{U}$  および  $^{238}\text{U}$  の半減期から逆算すると 20 億年前には  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U} = 0.0381$  という 5 倍以上高い値を示していたことになる。これは現在、原子力発電等で燃料として使用する濃縮ウラン同位体比に匹敵する。
- (2) 堆積性のウラン鉱床であったこと：ウラン鉱床が形成される過程において周囲に多量の天然水が存在し、それが中性子のエネルギー減速材としての働きを成した。また、岩石中に存在するウランが酸化して天然水中へ溶出し、堆積物中の天然有機物等によって還元されて濃集するという作用により徐々に大規模で高品位なウラン鉱床を生み出し、核分裂連鎖反応を起こすに十分なウランの絶対量が確保された。

以上から考えると 20 億年以前に形成された堆積性の大規模なウラン鉱床であれば天然原子炉となり得る可能性を秘めているわけであるが、上記に加え、オクロ鉱床には他のウラン鉱床と大きく異なる固有の地球化学特徴として第 3 の理由があげられる。

- (3) ウラン鉱物中に不純物として含まれる「中性子毒」の存在量の低さ：例えば希土類元素などは、中性子と相互作用を起こしやすいため、原子炉内で円滑な核分裂連鎖反応が起こるうえで妨害となる元素、いわゆる中性子毒であるが、ウランとの化学的親和性から通常はウラン鉱物中に多量に含まれる。これに対し、オクロ鉱床内のウラン鉱物における希土類元素の含有量は、通常のものにくらべて 1/100 ~ 1/1000 倍と極端に少ない。核分裂によって生じる中性子が、中性子毒の存在によって妨害を受けることなく効率良く次の核分裂を引き起こしていったと考えられる。

上記 (2) と (3) は密接に関係している。オクロ鉱床が最終的に形成されるまでの間には複数回にわたって堆積作用を受けた形跡があり、ウラン鉱物の溶解・再結晶が複数回繰り返される過程

でウランとその他の元素の間で徐々に化学分別が起こり、不純物元素の大部分が排除されていったと考えられる。

天然原子炉内で生じた核分裂生成物の存在量や消費された<sup>235</sup>Uの総量から、その反応のスケールを見積もることが可能となる。これまでの研究から、放出された全エネルギーは約15,000MW/yrで、数万年～数十万年の期間にわたり断続的に原子炉反応が起こっていたと考えられている。天然原子炉の存在は、単に科学的な興味のみならず、実用的な面から我々が学ぶことは多い。天然原子炉で生じた多量の核分裂生成物は20億年を経た現在では全て放射壊変し尽くしてしまい、安定核種となっている。時間の経過とともに核分裂生成物が原子炉内外に拡散・移行していく過程を各元素の安定同位体組成の変動からトレースすることが可能である。近年ではイオンマイクロプローブを用いた微小領域の同位体分析も可能になっており、特定の鉱物に特定の放射性核種が選択的に濃集する現象がいくつか報告されている。これらの事実は、放射性廃棄物の地層処分を検討するうえで基礎的かつ重要な情報となり得る。

さらに、天然原子炉がもたらす情報からは、一見まったく無縁とも思える物理定数が時間とともに変化する可能性についても議論することができる。1976年、ロシアの物理学者Shlyakhterはオクロ天然原子炉内で起こった<sup>149</sup>Smの中性子捕獲反応に起因する同位体比変動のデータに基づき、素粒子の結合定数に関する微細構造定数の時間変化について非常に厳しい制約を導き出した。それはこれまで他の解析方法によって求められたどのデータよりも小さい上限を与えた例として、以来現在に至ってもなお議論され続けている。

オクロ鉱床などでは偶然の自然条件が重なったゆえに天然原子炉と成り得たわけであるが、これらの自然条件は20億年以上前の堆積性のウラン鉱床であれば整う可能性が高い。オクロ鉱床など以外でも天然原子炉が発見される可能性は少なからずあるのではないだろうか。

## 参考文献

- P.K. Kuroda On the nuclear physical stability of the uranium minerals. *J. Chem. Phys.* **25**, 781-782 (1956).  
 P.K. Kuroda On the infinite multiplication constant and the age of the uranium minerals. *J. Chem. Phys.* **25**, 1295-1296 (1956).  
 A. Shlyakhter Direct test of the constancy of fundamental nuclear constants. *Nature* **264**, 340 (1976).

## 5.9 日本の加速器の歴史

(坂本 浩)

ここでは日本の加速器を用いた研究（放射化学中心）の歴史について概観することにする。

### (1) 初期 (1934-1945)

加速器は、原子核、素粒子の研究手段として発明され、より高エネルギーへと発達し、物質の根源解明・自然観の変革を促すほどに進化してきたが、一方で多様なRIを作り、自然科学の多方面でのトレーサ利用や物質分析の手段として、また放射線源として計測や物質改質、医療など様々な分野を拓いてきた。加速粒子による原子核変換は、1932年英キャベンディッシュ研究所J. D. CockcroftとE. T. S. Waltonが、倍電圧回路を用いた加速器（以下C.W.）を発明して陽子(p<sup>+</sup>)を500kVで加速しLi核破壊に成功したのを嚆矢とする。すでに1930年頃から高周波共鳴加速の研究に成功しつつあったE. O. Lawrenceは、1932年春、直径28cm(11")の電磁石を用いたサイクロトロンでp<sup>+</sup>を1.2MeVに加速し、Li他の軽核破壊を追試した。同年12月には27"を作り、



翌年3月5MeV - 重水素 ( $d^+$ ; 1931年 H. C. Urey が発見, '33年 G. N. Lewis が電解濃縮に成功) を初めて加速した。1934年2月には F. Joliot & Irene Curie の人工放射能の論文 ( $Po-\alpha+^{27}Al \rightarrow ^{30}P \rightarrow \beta^+$ ) を読んだ30分後に  $3MeV-d^+ + ^{12}C \rightarrow \beta^-$  放射体の実験を行った。このサイクロトロンでは他の誘導放射能や中性子発生が調べられ, 1935年弟の J. H. Lawrence がネズミへの照射実験も試みている。1936年には37" で  $8MeV-d^+$ , 1939年には60"  $16MeV-d^+$  (後に  $20MeV-d^+$ ,  $40MeV-\alpha$ ), と大きくした。この時期もう1つ静電加速器, ベルト起電機による R. J. Van de Graaff (VdG) のマシンは100万Vを発生したが放電に悩まされ, 1935年に R. G. Herb, D. W. Kerst らによる高圧ガスタンクの中に閉じ込めた装置として完成, 1938年には2.4MV, 1940年には4.0MVを達成した。また, D. H. Sloan と E. O. Lawrence の線型加速器 (ライナック) は1931年  $1.25MeV-Hg^+$ , 1934年  $2.8MeV-Hg^+$  を得たが, 第2次大戦後までの高周波技術の発達を待たなければならなかった。

このような初期の頃, 荒勝文策は台北帝大に在任中の1934年7月300kVのC.W.を作り日本初の $^7Li+p \rightarrow ^4He$ を再現した。1936年にはこのC.W.を京大に持ち帰り, 500kV-C.W.として  $Li+p \rightarrow \gamma$  による U, Th の光核分裂や Fe, Cu の光核反応,  $e^+$  対発生を研究した。1930年新設の阪大に着任の菊池正士は1934年9月300kVのC.W.で  $Li+p \rightarrow ^4He$  の観測したのを手はじめに  $D+D \rightarrow n$  による速・緩中性子を用いた実験を行い, さらに1936年27" サイクロトロンを建設し,  $4MeV-d^+$  を得て,  $^{12}C+d \rightarrow ^{14}N$  や  $^{24}Na$ ,  $^{38}Cl$  の  $\beta$  放射能研究や  $\beta - \gamma$ ,  $\gamma - \gamma$  同時測定,  $^{65}Zn$  の EC 壊変発見などを行っている。1940年には1.5MVのVdGを作って中性子散乱の研究を行った。一方, 理化学研究所 (理研) の仁科芳雄は東大西川正治と協力して, 1935年原子核実験室を作り, 26" サイクロトロンと1000kV-C.W.の建設を目指し, 同時に計数管や霧箱などの整備をした。C.W.では上記の F. & I. Joliot Curie の人工放射能の論文を見て直ちに  $^{30}P$  を作り  $\beta^+$  スペクトルを調べている (仁科他, 1934)。サイクロトロンの方は1937年4月来日中の N. Bohr に  $d^+$  ビーム ( $3.5MeV$ ) の安定性を見せるまでに完成し, 多量の中性子を発生させて重元素核との衝突実験, 特に東大化学の木村健二郎, 井川正夫らと共同のウラン照射で新 RI  $^{237}U$  (当時未知の Np ( $4n+1$ ) 系列核) の発見 (長寿命娘核  $^{237}Np$  は核分裂生成物から分離できなかった), トリウム照射で  $^{231}Th$  (アクチニウム ( $4n+3$ ) 系列への変換) の発見や速中性子による対称核分裂の発見 ('40 仁科他) がなされ, また Ga, As, Mo, Re などの新 RI の同定 (E. O. Lawrence の所から帰国の嵯峨根遼吉や井川らによる新元素 Tc の第2の核種  $^{101}Tc$  の発見 -  $^{101}Ma$  と標記, '40, を含む), これらのトレーサー利用, 中性子のネズミの脾臓, 植物 (ソバ, アサ), 光合成, ウサギ臓器, インフルエンザ・ウイルスおよび生体細胞への影響などが盛んに研究された ('37 ~ '42)。仁科は1937年から60" サイクロトロンの建設に入り, 1944年  $15MeV-d^+$  の加速に成功し, E. O. Lawrence と並び世界第1級のものとした。この頃, 京大でもサイクロトロン磁石を完成したが, 理研, 阪大 ('42年末より戦争激化で運転休止) 共々, 1945年11月米軍の手によって解体, 東京湾, 大阪湾に投棄された。この蛮行はアメリカ側の研究者からも非難されると共に日本のその後大きな遅れを生んだ。なお, 1939年頃より, 各大学 (東北大, 東大, 阪大, 九大) はそれぞれ独自設計の ~ 2MV VdG の建設が進められたが, 戦争のために中断した。静電加速器 (理研, 京大, 阪大, 東北大, 東大) の破壊はなされなかった。

## (2) 第2次大戦後中興期 (1950's ~ 1960's)

1945年8月 (敗戦) から1952年4月 (サンフランシスコ条約調印) までは, 研究は占領米軍への届出制下にあり, 原子核研究者達は広島, 長崎の被爆地調査や戦時中からの真空技術, 電波技術の開発を物資不足の中で続けた。これらの技術は早速に加速器再建にも生かされ, 1954年

には杉本朝雄を中心に理研（当時、科研；26"）と菊池正士指導の阪大（44"，5.2-6.4MeV-p<sup>+</sup>他），1955年木村毅一中心の京大（105cm，7MeV-p<sup>+</sup>他）の各サイクロトロンが稼動し，理研は野崎正らの荷電粒子放射化法の開発や多種のRI製造とそれらの化・医・生物学研究への利用，阪大は若槻哲雄研究室の国府雄次郎，吉沢康和らの核物理 $\beta$ - $\gamma$ グループと音在清輝，久米三四郎の核化学共同研究を含む核反応・核構造， $\beta$  $\gamma$ 放射能研究，京大は核反応，イオンと物質との相互作用，西朋太，藤原一郎らによる放射化学研究がなされた。1953年には東大物理教室宮本梧樓がAG集束型の170MeV電子シンクロトロン（ES），東大理工研（後の宇宙航空研）で熊谷寛夫がエネルギー可変（1-2MeV-d<sup>+</sup>，2-4MeV- $\alpha$ ）の16"サイクロトロンの建設をはじめ，次の加速器建造に生かされた。また，東北大では木村一治，北垣敏男が1954年に40MeV-電子シンクロトロンを建造した。

この頃，全国共同利用を目的とした大施設を置き，更に将来の高エネルギー化に備える方向が議論され，1953年5月学術会議は東大付置の原子核研究所（核研）設立を勧告し，1957年9月に63"FF（周波数固定）サイクロトロン（7.5-16MeV-p<sup>+</sup>，15-21MeV-d<sup>+</sup>，30-42MeV- $\alpha$ ）を完成し，1958年6月に共同利用を開始した（1968年まで運転）。さらに58年5月には同じ磁石でFM（周波数変調）としてエネルギー可変（p<sup>+</sup>≤57MeV）に成功し，1960-80年の間，共同利用に供して日本の原子核研究再興の中核として活躍した。田中重男グループ（古川路明，八木益男，岩田志郎，天野 恕ら）や阪大音在清輝グループ（吉沢康和，久米三四郎，福島昭三，林 智，岡村日出夫，坂本 浩ら），京大西朋太グループ（藤原一郎，今西信嗣ら），原研グループ（夏目晴夫，梅沢弘一，馬場 宏ら）および核研 $\beta$  $\gamma$ グループと共同した東大理佐藤 純らなど本格的な核化学研究もここに於いてはじまった。阪大のマシンは第2室戸台風（'61年9月）で浸水，3年後に豊中新キャンパスで再建した。核研は1962年750MeV-ESを完成，翌年4月共同利用開始し，1966年9月には1.3GeVとし，1999年まで坂本 浩らの核化学を含む数多くの第1級の成果を生んだ。

一方，理研は1966年日本初の重イオン加速器としてK=90MeVの60"サイクロトロンを完成，エネルギー可変で8-17MeV-p<sup>+</sup>，70-150MeV-<sup>16</sup>O<sup>5+</sup>などd<sup>+</sup>，<sup>3</sup>He<sup>2+</sup>，<sup>4</sup>He<sup>2+</sup>，B<sup>3+</sup>，C<sup>4+</sup>，N<sup>4+,5+</sup>を含めて核物理の他にその伝統として放射化学，RI製造やそれらの生物学などへの利用研究が盛んに行われた。

東北大では1966年理学部附属「原子核理学研究施設（核理研）」を設置，翌年300MeV電子線ライナックを完成，学内共同利用を開始し，核物理では電子散乱，光核反応，中性子回析（'71-'92年）の研究が，また八木益男と近藤健二郎は強収斂装置を用いる高強度電子ビーム・制動放射線照射装置を開発し，高比放射能RI製造やホットアトム化学の，また鈴木信男，加藤豊明らの光量子放射化分析，光核反応の放射化学研究に寄与し，多くの学外研究者の利用も加わった。ちなみに，このマシンは，1972年からは学外利用に門を開き，1981-94年パルス・ストレッチャーを，'97年からは1.2GeVストレッチャー・ブースターリングを付置し，'98年から共同利用している。

### (3) 拡充・発展期（1970-2005年）

1970年代に入ると状況は大きく変わった。1971年筑波研究学園都市に「高エネルギー物理学研究所 KEK」が，阪大に「核物理研究センター RCNP」が，いずれも全国共同利用施設として設置された。核研設立の頃より議論の続いた“高エネルギー”加速器実現に向けて1964年「素粒子研究所準備室」が核研内に置かれ，紆余曲折の後に1976年3月，KEKは0.75MeV-C.W.，20MeV-Alvaret型陽子ライナック，500MeV-ブースターシンクロトロンと12GeV-主リングから

なる 12GeV-陽子シンクロトロン (PS) を設置した。まず 3 月当初目標の 8GeV, 12 月 12GeV の加速に成功して '77 年 5 月から共同利用を開始し, 京大西 朋太, 藤原一郎, 今西信嗣らは  $\pi$ -粒子の核化学を行った(阪大篠原 厚らの  $\pi$  中間子原子の化学は今も続行中)。ブースター PS は, 2.5 秒当り 50 パルスの中, 約 40 パルスを中性子散乱, 中間子特に  $\mu$  粒子科学 (東大), 粒子線医科学 (筑波大) の各実験室へ導き, '80 年から原子核, 物性, 医・生物学研究に供用した。

RCNP は 1973 年 4 月磁極径 230cm で  $K=120\text{MeV}$  の AVF (円周方向に変化する磁場で強収束する) サイクロトロンを完成, 最大加速エネルギー 75(85) MeV- $p^+$ , 65(70) MeV- $d^+$ , 150(175) MeV- $^3\text{He}^{2+}$ , 120 (140) MeV- $^4\text{He}^{2+}$ , 120(140) Z<sup>2</sup>/A MeV- 軽イオンを得て ( ( ) 内は後年達成), 付属設備完成後の 76 年 4 月共同利用を開始した。

1973 年には, 科学技術庁放射線医学総合研究所 (放医研; '57 年発足, '61 年に病院開設し X- $\gamma$  治療を, '71 年から V d G による速中性子利用) が,  $K=110\text{MeV}$  の AVF サイクロトロンを設置, 90MeV- $p^+$ , 43MeV- $d^+$ , 100MeV- $^3\text{He}^{2+}$  を利用して専らビーム及び RI の医学利用に供してきた。この頃, 東大医科研 ('73 年), (株) 日本メジフィジクス社 ('74 年), 少し遅れて (株) 第 1 ラジオアイソトープ研究所 ('82) も AVF を設置, 照射治療・RI 製造 (後の 2 社は RI 標識医薬品の開発・販売) を行うようになった。東大核研も '74 年原子核研究用として  $K=68\text{MeV}$  のエネルギー可変 AVF (SF: sector focusing と呼ぶ) サイクロトロンを設置 (共同利用開始は '77 年), 7.5-45MeV- $p^+$ , 15-35MeV- $d^+$ , 23-90MeV- $^3\text{He}^{2+}$ , 30-70MeV- $^4\text{He}^{2+}$  を供給, 中原弘道, 今村峯雄らの放射化学研究にも寄与し, いくつかの改修・増強を経て, '97 年核研が KEK (高エネルギー加速器研究機構と改称) に合併を機に, 東大原子核科学研究センター (CNS) へ移管され, 2000 年理研構内に後述の "RI ビームファクトリー" の一環として移設された。

1975 年には理研は  $K=540\text{MeV}$  のリングサイクロトロン (分離セクター型; RRC) を設置し, 200MeV- $p^+$  の他, 核子当り 100MeV の  $^{12}\text{C} \sim ^{84}\text{K}$  を供給, これへの入射器として '82 年重イオン線型加速器 (RILAC; 核子当り 0.6-4MeV, M/Q=2-28) 及び '86 年 AVF サイクロトロン (210MeV- $p^+$  他) を設置し, '86 年 12 月初ビーム取り出し以降, 重イオン科学の中心として原子, 原子核・核化学・放射線生物の広範囲に利用されてきた。中でも安部文敏による RRC での核破砕反応を利用したマルチトレスナー法の開発, 最近の森田浩介らの RILAC を用いた 108 番 (Hs), 110 番 (Ds), 111 番 (Rg), 112 番の各超重元素の追試の成功 (2002 ~ 04 年) と 113 番元素の発見 (2004 年 7 月と 2005 年 4 月) は耳新しい快挙である。

1977 年東北大は「サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター」を設置,  $K=50\text{MeV}$  の AVF サイクロトロン (40MeV- $p^+$ , 50MeV- $^4\text{He}^{2+}$  他) に中性子 TOF, ISOR, PIXE, PET (これは順次, 多段 PET ('86), TOF-PET ('87), 3D-PET ('95) と増強) を付設し, 学内共用の核物理・核化学 (新潟大工藤久昭らの核分裂研究他)・核医学の利用に供し, 1998 年次期計画実現 ( $K=130\text{MeV}$  の AVF に更新, 2001 年 4 月完成: 陽イオン; 10-90MeV- $p^+$ , 他 20-633MeV- $^{129}\text{Xe}$ : 負イオン; 10-50MeV- $p^-$ , 10-25MeV- $d^-$  でタイムシェアリングの 3 ビームコース設置で多目的化) まで活躍した。

阪大 RCNP は 1991 年  $K=400\text{MeV}$  のリングサイクロトロンを設置, 既設の  $K=140\text{MeV}$  AVF を入射器とするカスケードとして 400MeV- $p^+$ , 200MeV- $d^+$ , 510MeV- $^3\text{He}^{2+}$ , 400MeV- $^4\text{He}^{2+}$ , 400MeV Q<sup>2</sup>/A の重イオンの共同利用を開始した。RCNP は阪大の伝統として原子核研究 (阪大馬場 宏らの核化学を含む) に重きを置き, 偏極ビーム発生や高分解能 (Grand REIDEN) や大口径スペクトログラフなどが特徴的である。

KEK は, '82 年 6 月に 400m 長の 2.5GeV 電子線ライナックに直径 60m の蓄積リング (PFAR ;

60の実験ステーション付放射光リング(150mA, max500mA)を附設したフォトン・ファクトリー(PF)を完成して共同利用を始めた。これに加え、'84年 $e^+$ を6GeVに蓄積・単バンチ予備加速する直径100mの入射蓄積リング(AR, 1994年12月まで利用)と直径1kmの30GeV('88年達成, 当初25.5GeV)のトリスタン大リング(TRISTAN: Transposable Ring Intersecting Storage Accelerator in Nippon。途中, 電子・陽電子衝突を見る4つの実験室設置)を完成, 先端的素粒子実験に供されてきた。さらにトリスタン大リングを $e^+$ 用と $e^-$ 用の2つのリングとしKEK-Bリングと称し, 実験室の1つをBelle実験室として8GeV- $e^-$ と3.5GeV- $e^+$ の衝突でB中間子を作るBファクトリーとその崩壊を調べるBelle測定器を備え, CP対称性の破れを検証するとして'99年6月から実験が行われている。

一方, 非加速器実験(超新星1998A, 太陽, 大気中宇宙線, 原子炉からのニュートリノ観測(ニュートリノ振動))の成果が脚光を浴びているが, これの更なる検証のため, 1999年KEK12GeV-PSで $\pi \rightarrow \mu \rightarrow \nu_\mu$ で $\nu$ をつくり, 250km先のスーパー・カミオカンデに飛ばすK2K長基線実験が行われて成功している。KEKは, 現在(2005年), 衝突エネルギー250GeVからTeV領域を目指す電子・陽電子リニアコライダー(ILC)の計画を推進中である。

原研高崎研は1964年3月開所していたが, 1991年から93年にかけて, AVFサイクロトロン(5-90MeV- $p^+$ , 5-55MeV- $d^+$ , 100-700MeV-Ar, 200-630MeV-Kr, 310-620MeV-Xe), 3MV tandem V d G(0.8-6.0MeV- $p^+$ , 0.8-15.0MeV-C, Ni, Au), Single V d G(0.4-3.0MeV- $p^+$ ,  $-d^+$ ,  $^4\text{He}^{++}$ ,  $e^-$ )及びC.W.型イオン注入装置(0.025-0.4MeV-He, Ni, Au)を単独または複合連結し, ビーム強度の高い装置を完成し, 物質の照射効果, 改質, RI製造などを行っている。

前述の放医研は1993年4月「重粒子線治療センター」を設置し, '94年5月平尾泰男の指揮でHeavy Ion Medical Accelerator in Chiba, HIMACを設置した。HIMACは, 8keV/AのPIGとECRイオン源を持ち7.3m長のRFQライナックで800keV/A, 24m長のAlvarezライナックで6MeV/A, 直径約42mのPS(2組)で800MeV/AのHe, C, Ne, Si, Arビームを供給, 治療用ビームライン3本の他, 生物照射用, 物理および汎用のビームラインと中エネルギー(6MeV/A)照射コースを備え, 核化学グループでは近年, 篠原厚らが, 理研加速器と共に重イオン核反応の研究に活用している。

なお, 短寿命核( $^{11}\text{C}$ ,  $^{13}\text{N}$ ,  $^{15}\text{O}$ ,  $^{18}\text{F}$ )の製造用医学専用小型AVFサイクロトロン(ベビーサイクロトロン)が国内2メーカー(住友重機と新日本製鉄)で開発され, 1980年頃から各地の病院でin-house利用がなされ, またメーカーによる中性子ラジオグラフィや放射化分析がなされている。一方, 病院・製造工場における放射線源として小型電子線ライナックの普及も著しいがここでは詳細には触れない。

以上の他, 原研タンデムVdG(18MV, '82設置)は現在, 核物理研究の他に永目論一郎らの超重元素研究で活気を見せているが, C.W.など静電加速器は低エネルギーながらエネルギー精度が高いため1960年代以降諸大学・研究所および各種製造工場に多数設置され, 化学としてはPIXEなどに活用されている。特に1980年ごろから加速器質量分析(AMS)としてのタンデムVdGの利用が目され, 日本では京大, 東大, 名大で, 1990年前後から筑波大, 九大で, さらに'90年代中頃以降は環境研, サイクル機構東濃研, 原研ムツ研, 名大(更新)で核物理などとの共用あるいは専用機として活躍している。2002年9月には3年ごとに開催の国際会議(AMS-9, 於名大)を主催するまでとなった。

また, KEKで述べた放射光施設(フォトン・ファクトリー, PF)は, 1961年核研ESで初観測した放射光を利用すべく'63年第1回ESの共同利用からパラサイトとして利用され, 1974年

物性研用として 300MeV 電子蓄積専用リング (SOR) を ES に附設したことはじまる。1981 年には電総研が 500MeV- 電子ライナックから 600MeV-SOR (TERAS) を, 1983 年岡崎分子研は初の化学系専用の 750MeV UV-SOR を設置した。原研と理研が共同開発した大型放射光施設は(財)高輝度光科学研究センターの運営として 1997 年, 兵庫県播磨科学公園都市に Spring-8 (Super Photon Ring-8GeV; 1GeV linac-8GeV ES と周長 1436m で 100mA 出力の貯蔵リング (62 本のビームライン, 現在 46 本稼動, 内共用 25, 原研, 理研, 阪大などの専用 21 本) を供用開始している。Spring-8 は世界 3 大放射光専用施設 ( $\geq 5\text{GeV}$ ) の 1 つで硬 X 線 (300keV) から真空紫外 (300eV) の世界最高輝度, さらに GeV- ビームや赤外も利用でき RI 施設をも付置している。

#### (4) 近未来 (2005 ~)

2005 年末現在, 建設進行中の 2 つの大計画がある。1 つは, 理研 “RI ビームファクトリー計画” で, 既設重イオン加速器システムにリングサイクロトロン, RC, 3 基: 固定周波数型 RC (fRC,  $K=570\text{MeV}$ ), 中間段 RC (IRC,  $K=980\text{MeV}$ ), 超伝導 RC (SRC,  $K=2500\text{MeV}$ ) を多様に組み合わせて  $^{238}\text{U}$  までの安定核の核子あたり 100-500MeV を大強度 ( $10^{12} \sim 10^{13}$  個/sec) で加速し, 入射核破碎反応で生成する RI を RI ビーム生成分離装置 (BigRIPS) で 3000 種を超える RI ビームを発生させる (以上は 2006 年度総合調整実験開始予定)。さらに, RI ビーム実験施設として, ゼロ度スペクトロメータ (新 RI の A,  $T_{1/2}$  などの測定, 2006 年度完成), 大立体角多重粒子磁気分析装置 (SAMURAI; 新 RI の核構造決定), 超低速 RI ビーム生成装置 (SLOWRI; RI イオンのレーザー分光, 質量・核半径測定), 高分解能 RI ビームスペクトロメータ (SHARAQ; 東大 CNS による特異な RI ビームを一次ビームとする核構造研究) を 2010 年度までに完成予定となっており, その他, 稀少 RI リング, 偏極 RI ビーム工房, 自己閉じ込め RI 標的 (SCRIT; 300MeV 電子ライナック・蓄積リングを含む) および新たな重イオン・ライナックを予定している。

もう 1 つは, KEK- 原研の共同で, 2001 年度から原研東海キャンパスに “大強度陽子加速器施設 J-PARC” の建設に着手し, 2008 年度からの稼動を目指している。その構成は, イオン源からの  $50\text{keV-H}^+$  を RFQ 加速管で収束しながら  $3\text{MeV}$  に加速し, 3m の中エネルギービーム輸送系 MEBT で後段加速のためのビーム調整しながら Alvarez 型ライナックで  $20\text{MeV}$  に, 次いで周長 350m の  $3\text{GeV-PS}$  (1MW) に入射し  $300\mu\text{A}$  ビームを得る。最後にこれを周長 1600m の  $50\text{GeV-PS}$  (0.75MW) で加速して, 原子核・素粒子実験とニュートリノ実験 (神岡スーパーカミオカデに向う長基線実験) に供する。 $3\text{GeV-p}^+$  ビームは物質・生命科学実験にも供される。 $3\text{GeV}$  及び  $50\text{MeV-p}^+$  は共に大強度の特長を生かして中性子, ミュー粒子, K 中間子, 反陽子, ニュートリノなどの二次粒子の利用で様々な分野への利用がはかられる。特に世界最強のパルス中性子は加速器駆動消滅処理, 高温超伝導, 新素材の開発, 生命現象の解明などの期待が大きい。

KEK, 原研共同の “短寿命核ビーム施設 Tokai Radioactive Ion Accelerator Complex, TRIAC” が 2005 年度内の完成を目指して, 一部予備実験に入っている。これはタンデム VdG (20MV) で融合, 移行, 分裂の核反応での生成核を ISOL で分離した後, 荷電増幅を行い, 同軸分割 (SC) RF のライナックと重イオン (HI) ライナックで  $0.14\text{-}1.09\text{MeV/A}$  (可変) の, さらに超伝導 (SC) ライナックで  $1.1\text{-}8.52\text{MeV/A}$  (可変) の RI ビームを得て, 天体核物理, 原子核物理, 核化学 (超重元素化学), 物質科学の研究に供しようとしている。理研の計画と合わせて超重元素や安定核から遠い中重・重核の核化学の進展が間もなくなされるであろう。

## 5.10 JCO 臨界事故

(小村 和久)

### 調査班発足の経緯

ウラン加工工場 JCO で発生した我が国初の臨界事故（1999 年 9 月 30 日）は、広島・長崎の原爆投下（1945）、ビキニ水爆実験被災（1954）に続く放射能・放射線被ばく関連の3度目の歴史的事件であった。事故のさい、「JCO 臨界事故の環境影響に関する学術調査研究（文部省科研費：代表 金沢大学小村和久）」が組織され、漏えい中性子による環境影響評価が行われた。

### 調査班結成までの経緯

事故の重大さをいち早く認識し、非政府組織による調査活動の必要性を発信したのは、気象研究所化学部の五十嵐康人、青山道夫、広瀬勝巳であった。呼び掛けに応じ全国の大学、国公立研究機関などで放射能測定に関わっている研究者（多くは放射化学会、放射線影響学会、保健物理学会の会員で複数学会に所属）が参加した。その大半は、2ヶ月前に行われた第1回環境放射能・放射線夏の学校（1999年7月25日、於金沢大学共同研修センター）の参加者であった。事故後、放射線影響学会会長の佐々木正夫（京都大学放射線生物研究センター長）は、直ちに文部省、科学技術庁、原子力安全委員会、東海村当局と交渉し、科研費（研究促進経費）交付の約束をとりつけた（決定1999年10月22日）。研究を円滑に遂行するためメーリングリスト `jco-accident@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp` を立ち上げた（管理者：気象研）。短時間に研究テーマを公募し、「環境放射能研究班」（班長：小村和久）と「人体影響研究班」（班長：佐々木正夫）の2グループで研究を推進することになった。研究費配分額は、平成11年度1,000万円、平成12年度300万円であった。

### 調査活動

事故発生1週間後の10月7日にJCO構内への立ち入り許可が下りた。2時間という制限内で構内でのサンプリングを行った。しかし、事前の打ち合わせに従って行動したため、短時間ながら極めて効率良くサイト全域にわたって土壌や植物試料などが採取された。翌日、グループに別れてJCOサイト近傍を中心に、東海村と那珂町の民家や商店を訪れ、食卓塩、食器などの台所用品、指輪やネックレスなどの装飾品、コイン、各種の金属製品など被ばく評価に使えそうな物品の借用や購入を行い、合わせて400点を超える試料が収集された。集会場の1室を借り、品名、収拾者、採取地点などの記録をした後、測定可能な試料を参加者それぞれが持ち帰り、研究が開始された。現場でのサンプリングや測定は2000年2月までに6回に及んだ。

調査活動参加グループは、東北大（理、金研大洗）新潟大（理）、茨城大（理）、茨城工専、気象研、国立環境研、放医研、筑波大、金沢大（理、低レベル放射能実験施設）、愛知医大、京大（原子炉）、広島大（工、原医研）、石川衛研などであった。試料採取地点などの詳細は *Journal of Environmental Radioactivity* 特集号 Vol. 50（2000）を参照されたい。

### 測定結果の発表

構内調査の僅か1週間後の、10月13-15日に筑波国際会館で第43回放射化学会年會が開催されるという偶然があった。討論会実行委員会の好意で、調査結果を発表する特別セッションが設けられ、被ばくした金の $^{198}\text{Au}$ や土壌中の $^{24}\text{Na}$ の測定結果などの発表と記者会見が行われた日に研究成果の中間報告会が金沢大学共同研修研究センターにおいて開催され、20余の研究成果が

発表された。報告会には JCO 関係者、東海村助役、NHK 記者がオブザーバとして参加した。研究成果を *Journal of Environmental Radioactivity* で発表することが決まり、1 週間以内で論文を執筆することになった。JER 誌には 21 編の論文が提出された。1 月 26 日付けで全論文が受理され、5 月 19 日発行の JER Vol. 50 で臨界事故に関する世界初の論文集として発表されたほか、同日の *Science* 誌に紹介記事が掲載された。当日は、広島で開催中の IRPA-10 国際会議の最終日に JCO 事故の特別講演会が開催され、世界各国からの参加者の注目を浴びた。

科研費による調査は事故を様々な角度から検討した貴重なもので、迅速性においても歴史に残る成果である。特長ある研究を以下にあげる。

1. サーベイメータによる  $\gamma$  線線量の迅速測定と方向依存性の確認
2. 可搬型 Ge 検出器による核分裂数の in situ 測定
3. 中性子誘導核種  $^{198}\text{Au}$ ,  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{32}\text{P}$  生成量の距離依存性
4. イメージングプレートによる植物の葉の中の放射能分布の可視化
5. 漏えいした濃縮ウランによる土壤汚染の確認
6. 理論計算グループの活動
7. 外国研究者の測定協力

#### 学術調査の意義

原研・サイクル機構による測定は政府関係の事故調査委員会が求めるデータの取得にあったが、本調査は非政府機関による独自調査であり、「事故調」報告と比較して様々な角度から事故の本質に迫ることを目的としている点に特徴がある。広島・長崎の原爆の影響調査（1954 年に報告書発行）、ビキニ水爆によるいわゆる原爆マグロの放射能調査（1954 年）に匹敵する環境放射能研究者あがりの調査であった。

使用可能な Ge 検出器の不足のために、収拾した約 400 試料のうち測定できたのは半数を下回るものと推定される。 $^{198}\text{Au}$  の測定で 1.4km 地点まで事故の影響を確認したこと（広島原爆では  $^{152}\text{Eu}$  の測定で 1.4km）や  $^{35}\text{Cl}(n, \alpha)^{32}\text{P}$  反応による速中性子の評価は尾小屋地下測定室での極低バックグラウンド放射能測定でなければ不可能であった。尾小屋クラスの極低レベル放射能測定が可能な施設が複数必要であろう。これは被ばく事故の調査のほか、放射能関連の研究推進に寄与することが大きいと期待されるからである。

EU の研究機関 IRMM（ベルギー）の M. Hult 氏は、JCO 臨界事故にさいしての影響調査グループの迅速対応に学び、ヨーロッパ諸国でも事故に即応できる体制が必要だと考え、欧州各国の極低レベル放射能研究グループ CELLAR を 2001 年に組織し、情報交換や勉強会を定期的に行っている。

詳細は放医研環境セミナーシリーズ No. 28「ウラン加工工場臨界事故に対する環境測定・線量推定」（藤本憲三編，2001）や JER 特集号を参照していただきたい。JER 特集号及び科研費報告集の残部が筆者のところにあるので希望の方は [komura@yu.incl.ne.jp](mailto:komura@yu.incl.ne.jp) に連絡して欲しい。

### 5.11 マルチトレーサ法の応用研究

（榎本 秀一）

マルチトレーサ法は完全同一条件で同時に多元素の情報が得られるため、確実に精度の高い元素間の比較が可能であり、各種元素に関わる様々な領域の研究に応用され、その有用性を発揮し

ている。マルチトレーサ法の歴史やその背景などについては、本書の2.8.2 マルチトレーサの利用において述べた。本章ではマルチトレーサの応用研究のうち、代表的な結果についてご紹介しよう。

まず、環境科学領域では、放射性核種や有害元素の環境汚染に関する基礎研究に応用されている。高橋らは地層表層に広く分布する花崗岩の間隙水を対象として、花崗岩-水系での各種元素の拡散を統一的に解析できるモデルを構築し、岩石の表面拡散係数がイオンポテンシャルに大きく依存することを示唆した。この報告は地層中での各種元素の拡散現象をマルチトレーサ法により探求しており、フォールアウトした放射性核種や有害元素の廃棄処理を考える際に特に重要な知見となろう。一方、曾雌らは、植物・微生物複合系におけるホールアウトした放射性核種が汚染する土壌浄化の手段として、ファイトレメディエーションシステムの効率化を利用することを提案している。この研究は *Neotyphodium lolii* や *Gibberella fujikuroi* などの根圏微生物が宿主植物の効率的放射性核種の取込みにかんしてマルチトレーサ法で研究を行った。すなわち、*G.fujikuroi* をイネに感染させると、Mn, Co, Zn, Sr, Cs の取込みを増加させた。このように根圏微生物の利用により、効率的な汚染土壌の浄化が期待できることを証明した。

医学、薬学、生物学領域での生体内の各種元素動態に関する研究において、マルチトレーサ法は最も多く応用され、有効性を実証してきた。柳谷らはメタロチオネインノックアウト細胞を利用して、Cd に対する耐性獲得機構に関する研究にマルチトレーサ法を用い、Cd の細胞への取り込みに必須金属である Mn の取込み系が利用されている可能性が初めて示唆された。必須金属や有害性重金属の細胞内輸送機構については知見が少なく、哺乳動物における金属の輸送および毒性発現機構に関する研究に新しい方向性を示すものと考察されている。また、創薬分野においては、経口糖尿病治療薬として期待される V イオンやその錯化合物の研究が挙げられる。安井らはストレプトゾチン投与による1型糖尿病モデルラットに対してマルチトレーサ法を適用して各種微量元素の相互作用を検討した。すなわち、インスリン様作用を有する V(IV)化合物( $\text{VO}_2^{2+}$ )投与により V, Cr, Mn, Fe, Co, Zn, Se の血中から各種臓器への移行性が上昇することを明らかにした。また、栄養学分野の研究のひとつであるが、五十嵐らは Fe 欠乏症の改善を目的とした種々の Fe 剤食品添加が他の微量元素吸収におよぼす影響を検討した。一般的に鉄欠乏性貧血の治療に用いられている  $\text{FeSO}_4$  または易溶性で食品の味に影響を与えない  $\text{NaFeEDTA}$  を用い、Fe 欠乏貧血ラットにマルチトレーサとともに摂食させた。 $\text{NaFeEDTA}$  は食物中の吸収阻害物質の存在する条件でも吸収され、他の必須微量元素群の吸収にもほとんど影響を与えないことを明らかにし、 $\text{FeSO}_4$  のように食物中の阻害物質の影響を受けにくいこと示した。この成果は現在、実際にベトナムにおける鉄欠乏性貧血の対策に  $\text{NaFeEDTA}$  を投与するプログラムに生かされている。

次に放射性医薬品開発に関連する分野における研究であるが、玉野らは各種微量元素の脳腫瘍への集積性について、マルチトレーサ法を用いて検討し、Mn, Zn, Rb が脳腫瘍に高く取り込まれることを明らかにした。これらの脳腫瘍集積性は腫瘍形成による血液脳関門の破壊が重要な要因と考えられたが、Rb は K と類似した挙動を示し、Mn は腫瘍に必要な栄養素であることから、これらの金属の脳腫瘍への集積もその代謝活動と関連したものであることを示唆した。さらにこの結果をもとに、武田らは現在臨床で使用されている脳腫瘍の画像診断薬である *fuluorodeoxyglucose* との比較検討を行い、短寿命の  $\gamma$  線放出核種  $^{69\text{m}}\text{Zn}$  の新たな脳腫瘍イメージング剤としての有効性を示した。また、金山らは各種微量元素の投与経路の違いによる脳内移行挙動への影響についてマルチトレーサ法を用いてスクリーニング実験を行った。結果から、嗅覚輸送と呼ばれる鼻腔から脳内への直接輸送系による  $\text{Rb}^+$  の高い脳取込みを明らかにし、 $\text{Rb}^+$  と同



様に  $K^+$  類似性を示す放射性医薬品  $^{201}\text{TlCl}$  による新たな嗅覚系イメージングの可能性を示した。

一方、計測法の開発に関する研究では、GREI ( $\gamma$ -ray emission imaging) の開発が挙げられよう。これまでのマルチトレーサ応用研究では、非破壊的に対象中のマルチトレーサを測定またはイメージングすることは出来なかった。マルチトレーサ中には非常に多くの放射性核種が同時に存在するため、放出される  $\gamma$  線のエネルギーも 100 ~ 2000keV の範囲に約 100 個もの多岐に渡って存在し、測定には高いエネルギー分解能が要求されるためである。さらに、既存の  $\gamma$  線イメージング装置のコリメータでは 300keV 以上の  $\gamma$  線エネルギーでは空間分解能が悪化する問題もある。これらの問題を解決するため、コンプトンカメラシステムを用いてマルチトレーサの優位性を生かした複数核種同時  $\gamma$  線イメージング装置 (GREI) を製作し、新規の計測・分析手法を創出する研究が行われている。GREI は非破壊で複数核種同時分析が可能であり、生物学、基礎医学、臨床医学などの広範な応用研究の展開が期待されている。

他にも多くの応用研究の成果があり、紙面の都合で割愛させていただいた。ご関心のある諸兄は、総説をご参照いただきたい。

## 5.12 ニッポニウムの X 線分光写真乾板

(吉原 賢二)

小川正孝のニッポニウムが 75 番元素レニウムと同一であり、論文発表当時の新元素であったことが確実になった (2003 年)。1908 年のニッポニウムの論文についてはレニウムらしいという推測はあったが、それ以上に踏み込んだ論証はなされていなかった。1996 年、「元素発見」国際シンポジウムで吉原はニッポニウムとレニウムの性質の一致—とくに光学スペクトルの一致を論じ、ニッポニウムは小川の思い違いで周期表上ひとつ上の 43 番 (現在のテクネチウム) の位置に置かれてしまったことを明らかにした。これは非常に反響があった。

ここまでくると、なにかそれ以上の物証が欲しくなるのが一般人の気持ちであろう。できればニッポニウムの試料そのものを目の前に見せて欲しいと。しかし、小川が亡くなって 70 年以上も経った現在、それは到底無理な注文である。日本では講座が代替わりするごとに古い物は捨てられる。私も尋ねてみたが、誰も知らなかった (現在は史料館、博物館のある大学もあるが、不十分であり、今後の問題点である)。

それにつけても実験済みの大切な試料あるいは実験ノートの保存はきわめて重要なものと思う。それはアメリカ・カリフォルニア大学の 118 番元素のデータ捏造、韓国ファン教授のヒト ES 細胞の論文捏造などの不祥事について問題となるばかりではない。不当な疑惑を退け、発見の優先権を守るためにも必要である。その例は高峰譲吉のアドレナリンである。高峰の死後、ジョンズ・ホプキンス大学の Abel はこの物質の発見の優先権を強く主張し、高峰が自分の研究を盗んだとした。しかし、高峰の実験助手の上中啓三の実験ノートがずっと後で発見され、この疑惑は打ち消された。

私は“もしかして”と思って小川正孝の遺族のところを尋ねてみた。1996 年 7 月 16 日に、小川正孝四男、小川四郎東北大学名誉教授のお宅に伺い、関係資料がないかどうか聞いてみた。四郎氏は物理学者で、化学のことはあまりわからないが、と断った上で、小川正孝の資料として手持ちのものを見せてくれた。第 1 回桜井褒章 (1910 年受賞) のメダルのほかに、試薬ビンやガラス器具があった。試薬ビンのラベルは白金族錯体関連のもので、レニウムの名はなく、私は少しガッカリした。小川正孝の実験ノートについて聞いたが、あるのは一高教授時代のものかと思

われる無関係のノートだった。四郎氏によると1930年父正孝の死後、化学的な資料は兄の英次郎九州大学教授（正孝二男）のところに引き取られ、英次郎が1945年に急死したので、自分が主なものを仙台に持ち帰ったとのことであった。

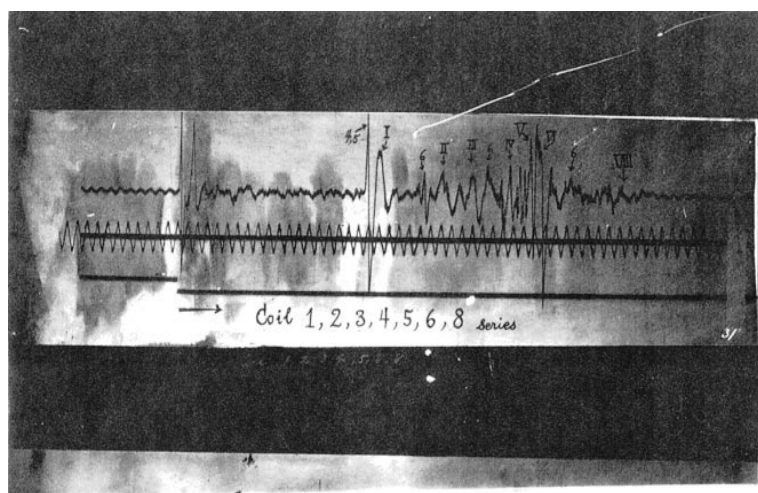
そのうちに1999年4月に小川四郎氏も亡くなった。私は正孝の遺品が散逸しないうちにもう一度調べたいと思い、小川四郎夫人芳子様と連絡し、2002年3月23日にお宅に参上した。そのさい、入手できたのは前述の試薬ビン、ガラス器具（内部に微黄色結晶が入って封じ切っている）、フランスの大化学者ベルテローのレリーフ入り銅版であった。そのとき電気部品のような雑品に混じって、古い写真乾板が見えた。無関係なものかも知れないと思いながら、一応念のため、頂いて検討することにした。

これが私にとってたいへん幸運であった。無関係だったのは試薬ビン中の粉末やガラス器具で、写真乾板こそニッポニウムに関係が「大あり」だった。しかし、写真乾板は正孝のニッポニウム関係の遺品の中にあっただけで、説明文がついているわけではなく、スペクトルらしいものがあることはわかる（写真5-1）が、それ以上のことは全然見当もつかなかった。スペクトル解読に数ヶ月かかったのである（このことは後でもう一度述べる）。

2002年6月21日、私は福岡で開かれた化学史学会のおり、小川正孝の末娘繁さんと夫の青峰重範九州大学名誉教授にお目にかかる機会を得た。そして青峰教授が小川正孝の遺品のルツボを持っていることをうかがったので、それを検査のために頂戴することにした。

ルツボは放射光施設 SPring-8 で分析され、レニウムは検出されなかったが、イリジウムは検出された。小川正孝は晩年イリジウム・オスミウム含有のイリドスミンという鉱物を扱っていたという周囲の人の証言を裏付けるものであった。これは小川が晩年ニッポニウムが43番ではなく、75番元素であるらしいと気づいたためではないか。とすれば、76、77番のオスミウム、イリジウムの側から未知の元素を追ったことになる。残念ながらイリドスミン中のレニウム含量は恐ろしく小さく、当時の方法では検出できるはずもなかった。

そこで、さっきの写真乾板中のスペクトルの解読にかかる。山崎一雄名古屋大学名誉教授のご意見を伺い、東北大学金属材料研究所に1929年小川の弟子青山新一助教授がX線スペクトロメー



研究 A.1773.744

写真 5-1

タを導入したことを確認した。小川正孝が青山にニッポニウム関係の試料の測定を依頼したこともつきとめられた。写真乾板には金研と書いてあるから、ニッポニウムのX線スペクトルの測定を青山がやって、結果を小川に報告した。それがこの写真乾板である—私はこの仮説を立てて検証することにした。さらにスペクトルのピークにはローマ数字 I, II, III, …, VIIIの数字があるがVIIだけは欠けている。天然に存在しないTeを除き、1族から8族までの元素Rb, Sr, Y, …, Ruを標準に入れてX線測定をやる。これは青山新一がコペンハーゲンで習得した技術である。こうして実測スペクトルをこれらの元素の $K_{\alpha}$ ,  $K_{\beta}$  X線波長と比較すると、きれいに合う。そしてKX線だけでなく、UやThのLX線もでており、さらに左端にはレニウムのLX線が出ていることもわかった。これは主成分がThとUのトリアナイト鉱石から分離したニッポニウム、すなわちレニウムであった。ニッポニウムがレニウムであることの物証はこのようにして得られた。フランスのAdloff教授に激賞され恐縮であった。

小川正孝は東大の木村健二郎助教授（当時）のX線スペクトログラフでもニッポニウム試料を測定してもらっていた。「それはきれいなレニウムだった」と木村は親友井上敏に語った。東北大の結果と完全に一致した。しかし、小川は測定後急死し、青山も木村も結果を公表しなかった。愚痴をこぼさなかった小川は偉いが気の毒だった。小川は実質的なレニウムの発見者として再評価すべきではないか。

私は小川の名誉回復を願って働き、10年走った。43番元素テクネチウムも75番元素レニウムも放射薬品として有用なものも奇縁というべきか。小川家遺族にお世話になったことを深謝しつつ。

### 5.13 軌道電子捕獲壊変核種 ${}^7\text{Be}$ の半減期

（大槻 勤）

現在、私たちは多くの放射性同位体（RI）を身近に利用している。もし人為的にその半減期をコントロールすることができるとすると被ばくも軽減できるだろうし、後世に負の遺産（廃棄物）を遺さないなど、その利用価値はさらに上がる。これは誰しもが一度は考えることであろう。

物理学辞典には「RIの壊変定数（半減期）は放射性原子核が単位時間に壊変する確率（ $\lambda$  [ $\text{s}^{-1}$ ])で表され、この $\lambda$ は環境や時刻によって変わらない」と書かれている。しかし、 $\beta$ 壊変のひとつの形式である軌道電子捕獲壊変（Electron Capture (EC) 壊変）では、半減期は物理的・化学的環境（たとえば、結晶形、化学形等）によって変わる可能性があるとされている。なぜなら、EC壊変は原子核位置に存在する軌道電子（主に1sや2s電子）を原子核に取り込んで壊変し（ $p+e \rightarrow n+\nu$ ）、その壊変確率は軌道電子の原子核位置での密度に依存するからである。この問題はイタリア人科学者のE. Segr'eらにより1947年に論文が発表されてから60年近くになる。しかし、最も軌道電子の影響を受けやすいとされるEC壊変核種である ${}^7\text{Be}$ の半減期でも、0.15%程度のわずかな変化が報告されているにすぎなかった。そして、この実験結果は現在においても十分に検証されているわけではない。

一方、異原子内包フラーレン（ $\text{M}@\text{C}_{60}$ と表す；Mは異原子）は原子レベルでの有害物質の閉じ込めや安定なデバイス、生体への応用、新しい磁性や超電導の出現などの機能性物質として注目を浴びている。そこで、RIの閉じ込めやそのナノコンテナとしての応用など、 $\text{C}_{60}$ の機能的側面を放射化学的観点からも研究してみる価値がありそうである。筆者は「ナノコンテナ“ $\text{C}_{60}$ ”にEC壊変核種である ${}^7\text{Be}$ を内包させた場合に、その半減期がどの程度変化するか？」というような考えに到ったが、実は、核的反跳法を用いて ${}^7\text{Be}$ を $\text{C}_{60}$ 内に内包できることを実際に見出して

いたからである。

実験では系統誤差を少なくするために、物理形や化学形の異なった試料を全く同じ条件で比較測定することが重要である。(1) まず、RI を  $C_{60}$  へ内包させることから始める。高エネルギー  $\gamma$  線や荷電粒子による原子核反応では、その生成核から数 MeV の中性子や荷電粒子、即発  $\gamma$  線の放出などをもたない、生成された RI は反跳を受ける。この反跳を利用して RI を  $C_{60}$  へ飛び込ませるのである。 $C_{60}$  に内包させたい RI と製造する核反応を考慮すれば、どのような RI が内包可能かわかってくる。まずこの手法で成功したのは  ${}^7\text{Be}@C_{60}$  の製造である。詳しく言えば、リチウム化合物と  $C_{60}$  の混合物をサイクロトロンを利用して 16MeV の陽子で照射する。 ${}^7\text{Li} (p, n) {}^7\text{Be}$  反応によりエネルギーをもった  ${}^7\text{Be}$  が生成され、反跳を受けた  ${}^7\text{Be}$  が  $C_{60}$  と衝突して、うまく  $C_{60}$  中に入ってくれる場合がある。この物質を HPLC を用いてきれいな  ${}^7\text{Be}@C_{60}$  を含んだ  $C_{60}$  フラクションを取り出すことができる。(2) 金属ベリリウム中に  ${}^7\text{Be}$  を均一にドーパさせた比較試料を以下のような過程で作成する。石英管内に Be 金属 (10 $\phi$ 0.3t の板状のもの) を真空封入した後、電子ライナックで 50MeV に加速された電子線を制動放射に変換し、高エネルギー  $\gamma$  線のみ照射する。この照射によって核反応  ${}^9\text{Be} (\gamma, 2n) {}^7\text{Be}$  が起こり、Be 金属内に均一に分布した  ${}^7\text{Be}$  を適量製造することができる。真空中で 1150 $^{\circ}\text{C}$  で約 1 時間放置することにより、放射線損傷を受けた金属格子 (hcp 構造) を回復させる。

調製されたふたつの試料を、自動試料交換連続測定装置 ( ${}^7\text{Be}@C_{60}$  と Be 金属 ( ${}^7\text{Be}$ ) それぞれの試料を取り付けたアームが Ge- $\gamma$  線検出器の前面に交互に移動する装置) に取り付け、半減期の測定を行った。この装置の測定位置の再現精度は 0.01mm 以下である。また、測定室内温度は  $20 \pm 1^{\circ}\text{C}$  に保たれており、測定中の Ge- $\gamma$  線検出器に対する幾何学的配置は十分な精度で再現できる。Ge- $\gamma$  線検出器では、 ${}^7\text{Be}$  壊変後の  ${}^7\text{Li}$  の励起状態から放出される 478keV の  $\gamma$  線を検出する。Ge-検出器の優れた分解能 (半値幅: 1.8keV) により、 ${}^7\text{Be}$  線源以外からの  $\gamma$  線は排除できる。正確な時間間隔で測定を行うために、標準時刻の電波を受信して、自動的に正しい時刻・日付に修正するシステムを測定用コンピュータに導入した。本システムにより、測定開始時間は日本標準時間との差が 1 秒以内に保たれている。試料の 1 回の測定に要する時間を 6 時間 (21600 秒) とし、実際の測定に 5 時間 59 分 30 秒 (real time)、残りの 30 秒を試料の試料移動時間とした。測定は 170 日連続で行い、ひとつの試料につき  $\gamma$  線スペクトルを 330 回取得した。また、測定された各々のスペクトルにつき、1 回の測定時間 (21570 秒間) での dead time は 8 秒~9 秒であり、測定期間 (170 日間) を通じて dead time の変動は 2 秒以内であった。よって、この変動は最終的な半減期測定結果に有意な誤差を与えない。

Ge- $\gamma$  検出器で得られた  $\gamma$  線解析の手法は確立されていて、高精度で光電ピーク面積が計算できる。図 5-1 にふたつの試料の  ${}^7\text{Be}$  の放射性壊変の様子を測定経過日数の関数として示した。ここでは測定開始時の計数率 (cps) を 2.7cps に規格化し、ふたつの壊変曲線を直接比較できるようにプロットし、また、120 日から 162 日のプロットを拡大して、壊変速度の違いが分かるようにしてある。この 2 本の壊変曲線を MINUIT program を用いて誤差付きで解析し、 $C_{60}$  中と Be metal 中での  ${}^7\text{Be}$  の半減期はそれぞれ  $T_{1/2} = 52.68 \pm 0.05$  日及び  $T_{1/2} = 53.12 \pm 0.05$  日と求められた。図 5-1 から分かるように、このような比較において半減期の差を目で確認できるような測定結果を示した例はないであろう。本実験で求められた  $C_{60}$  中の  ${}^7\text{Be}$  の半減期は Be metal 中の半減期より 0.83% 短く ( $[100 \times (\lambda(C_{60}) - \lambda(\text{Be metal})) / \lambda(\text{Be metal})]$ ), さらにこの値は、これまでのさまざまな化学形や金属中、高圧下で測定された、どの値よりも短い値を提示している。

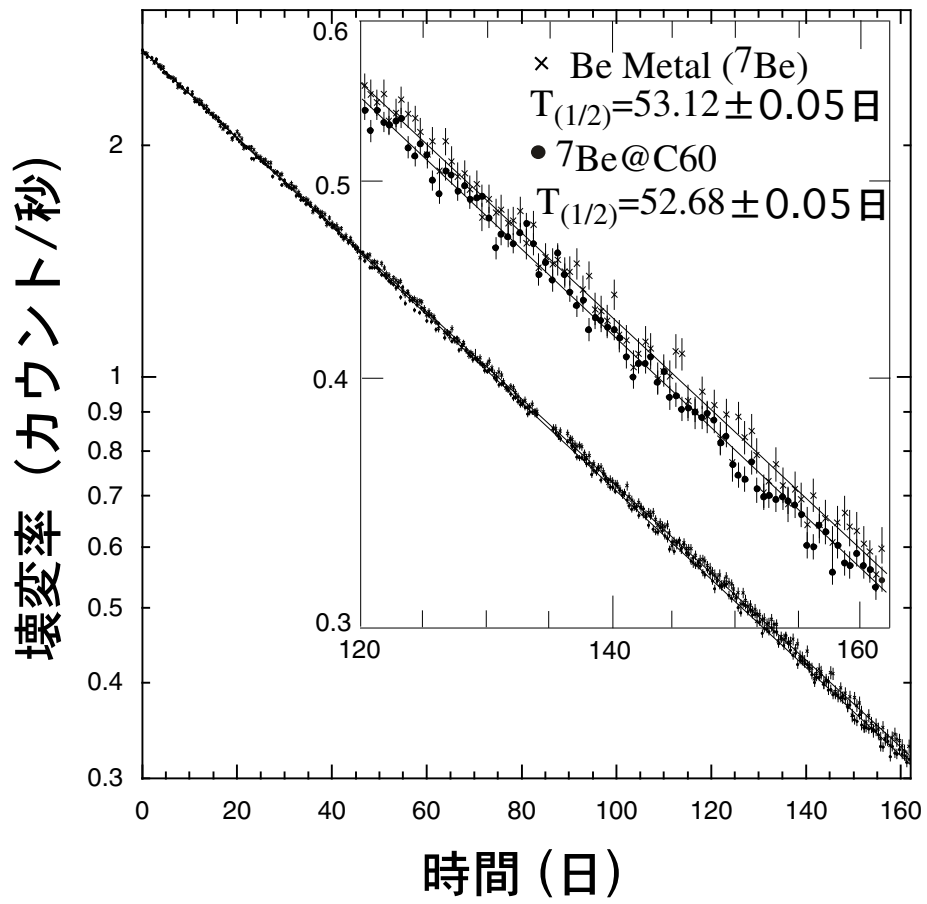


図 5-1

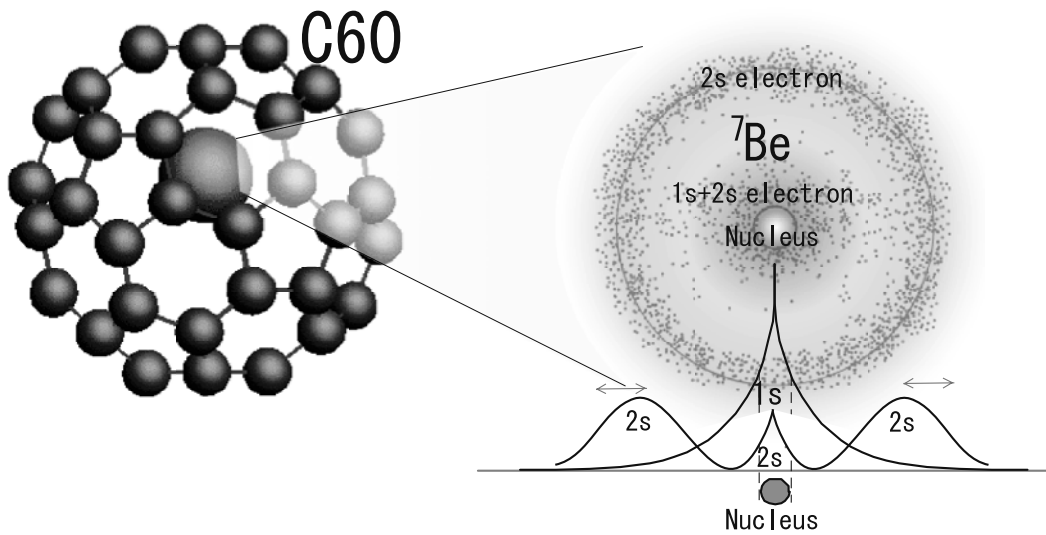


図 5-2

この事実の定性的説明として、次のようなことが考えられないか。すなわち、 ${}^7\text{Be}$  原子はさまざまな環境（結晶や化合物）中で正の価数を持ち、 $(1s+2s)$  電子の原子核位置での存在確率は中性原子孤立系よりも小さいのではないか。報告されている半減期はこのような環境下で測定され、原子孤立系ではない。しかし、 $\text{C}_{60}$  内部にある  ${}^7\text{Be}$  は原子孤立系として存在し、得られた  $\text{C}_{60}$  中の  ${}^7\text{Be}$  の半減期は、Be 原子孤立状態に似た電子状態 ( $1s^2 2s^2$  をとった電子構造) を反映しているのではないか。

参考までに図 5-2 に Be 原子の  $1s$  及び  $2s$  電子がどのような分布を持つか概略を示す。理論的には孤立系 Be 原子の原子核位置での  $1s$  (K殻) 及び  $2s$  (L殻) 電子の軌道電子捕獲比 (L/K capture ratio;  $1s$  電子に対する  $2s$  電子の原子核位置での存在確率) は 10% 程度と見積もられている。ここでは前述のように環境の影響を受けやすい  $2s$  電子の原子核位置での電子密度の増減が、この半減期の変化を引き起こしているのであろうか。その場合に相対的に  $1s$  電子はどのように振る舞うのか興味をもたれる。

注) 図 5-2 は日本物理学会誌 V60 (2005) からの転載である。

## 5.14 113 番元素合成をめざして

(工藤 久昭)

日本の放射化学 50 周年にあたり、日本が超重元素合成の最先端を走っているという現状を報告することができるのは意味深いものとする。

元素の周期表としておなじみの表はどこまで拡張していくのであろうか。未だ発見されていない元素が発見されたとしたら、どこに配置したらよいのだろうか。原子の中心にある原子核が原子核として存在できる限界があるだろうか。このような疑問は、科学者ならずとも興味の惹かれるところである。

現在天然にみられる最も原子番号 ( $Z$ ) の大きな元素はウラン ( $Z=92$ ) である。ウランより重い元素は、全て原子核反応によって合成されている。新元素の発見ということは、元素を合成し、その確認を行うことである。理化学研究所で森田浩介氏を中心とするグループにより発見された 113 番元素の合成と確認方法についての概略を紹介する。

### 合成方法

フェルミウム ( $Z=100$ ) までは、原子炉中で生成されるが、それより重い元素はすべて重イオン核反応によって合成されている。それぞれの原子核が正電荷 ( $Z_1, Z_2$ ) を持っているため、2つの原子核が近づくと、互いの核は電荷による静電反発力を感じるようになる。それ故、原子核反応を起こすためには、一方の原子核を加速して、静電反発力に打ち勝って核の表面同士が接触するところまで近づけなければならない。加速 (入射) エネルギーが十分であると、核反応が起こるようになるが、ほとんどは、また二つに分かれるので、融合した原子核 ( $Z_1 + Z_2$ ) ができる確率は極わずかである。さらに、融合直後の原子核は励起状態にあるため、ほとんどが核分裂してしまう。極わずかが中性子を放出して脱励起すると、目的の重元素が合成されることになる。従って、合成に際しては、融合が起こりやすく、なおかつあまり励起されない融合核ができるような原子核の組み合わせと入射エネルギーを選ぶことが重要となる。

標的原子核とビーム原子核の組み合わせとして、大別して2種類の方法がある。一つは、使

用可能ななるべく重い元素（例えば、放射性的の $^{238}\text{U}$ や $^{248}\text{Cm}$ など）に比較的小さい原子核ビーム（ $^{48}\text{Ca}$ や $^{50}\text{Ti}$ など）を照射する方法である。この方法では、融合する確率は比較的大きいが、形成される融合核の励起エネルギーが高いため、核分裂する確率は高い。もう一つは、標的に安定な $^{208}\text{Pb}$ や $^{209}\text{Bi}$ を用い、 $^{64}\text{Ni}$ や $^{70}\text{Zn}$ のビームを用いる方法である。この方法では、融合する確率は小さいが、融合核の励起エネルギーが低いという利点がある。励起エネルギーの高低により、前者を熱い融合（hot fusion）、後者を冷たい融合（cold fusion）とすることがある。今回の113番元素は、後者の方法（ $^{209}\text{Bi} + ^{70}\text{Zn}$ ）で合成された。

最適入射エネルギーは、 $^{208}\text{Pb} (^{64}\text{Ni}, n) ^{271}\text{Ds}$ 及び $^{209}\text{Bi} (^{64}\text{Ni}, n) ^{272}\text{Rg}$ 反応で生成する110番元素 $^{271}\text{Ds}$ と111番元素 $^{272}\text{Rg}$ の励起関数を求め、そこから推測した。すなわち、複合核の励起エネルギーとして1n放出チャネルの断面積が最大となるように入射エネルギーを選択した。実質ビーム照射時間が80日間の実験の結果、一個の113番元素の候補を観測した。このときの生成断面積は約55 fb（ $5.5 \times 10^{-38}\text{cm}^2$ ）に相当し、cold fusionでの1n放出チャネルの最大断面積の原子番号依存の傾向によく一致している。（図5-3）

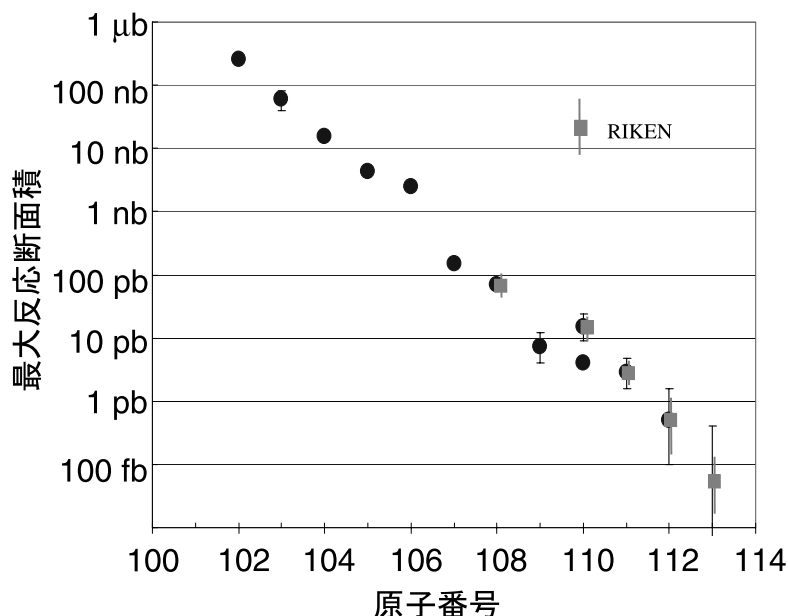


図5-3  $^{208}\text{Pb}$ ,  $^{209}\text{Bi}$  を標的とした重イオン核反応で、中性子1つが放出されて重い元素が生成するときの最大断面積

### 確認方法

生成率の極めて小さい元素を合成するため、大強度ビームを照射する必要があるが、目的元素が合成されたことを確認するためには副生成物やビームから極めて効率よく分離しなければならない。薄い標的にビームを照射すると、生成原子はイオンとなって標的から前方方向へ飛び出す。この飛んでいるうちに、ビーム粒子や副生成物から分離する装置を反跳分離装置という。原理的には質量分離装置であるが、生成率が極めて小さい原子を対象とするので、収集効率が良く、なおかつビーム粒子からほぼ完全に分離できなければならない。標的から飛び出したイオンは種々の価数をもっている。通常の質量分離の方法では、ある特定の価数のイオンしか集めることがで

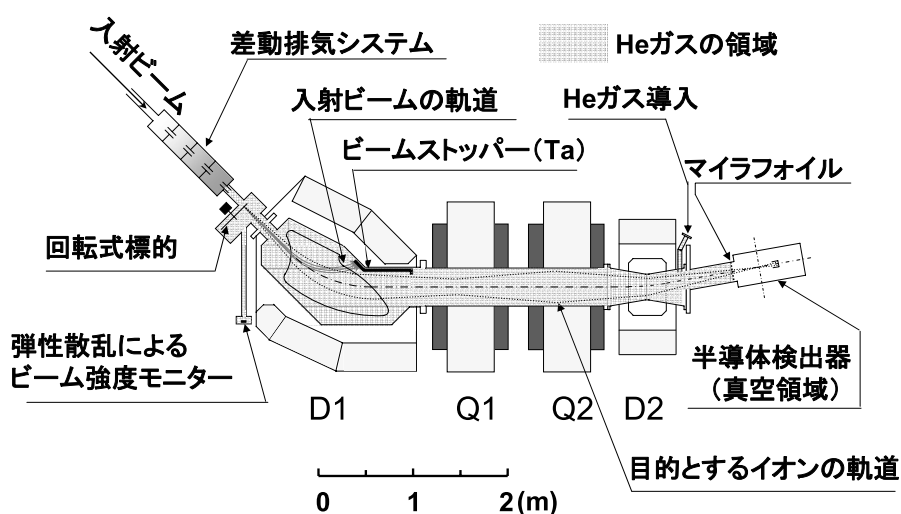


図 5-4 気体充填型反跳分離装置 (GARIS)  
D1, D2 : 双極子電磁石, Q1, Q2 : 四極子電磁石

きないため、収集効率が小さい。今回の実験で用いた装置は、気体充填型反跳核分離装置 (GARIS) と呼ばれるもので、適当な圧力 (75 Pa 程度) のヘリウムガスが充填されている。(図 5-4) 生成イオンとヘリウムガスが衝突し、荷電交換を繰り返すことにより、磁場中のイオンは、あたかも一つの電荷 (平衡電荷) を持ったイオンのような軌道を描く。しかも、その軌道はイオンの質量と原子番号だけに依存する。この原理により、収集効率が高くなるわけであるが、新元素を探索する上で最も重要となるパラメータの一つである重元素の平衡電荷を、種々の核反応を用いて測定し、平衡電荷を見積もる経験式を導出した。この経験式が有用であることを 108, 110, 111 番元素を合成して確認した。このときの収集効率は約 80% であり、113 番元素に対しても同様の効率が期待できる。

入射ビームは D1 電磁石内のビームストッパーで止められるが、このとき多量の荷電粒子が発生し、バックグラウンドの主な原因になる。ビームストッパーをタンタルとし、そこで発生した粒子を焦点面検出器に入射させないように D2 電磁石を配置した。その結果、GARIS の性能は、107 から 112 番までの元素の発見に用いられたドイツ重イオン科学研究所の装置 (SHIP) と比べて、収集効率が 2 倍強、分離効率が約 100 倍良いものとなっている。このバックグラウンドがどのくらい低いものであるか例を挙げておく。典型的なビーム強度 ( $2.4 \times 10^{12}/s$ ) のとき、後述する検出器全体で計数率 2 cps 程度であり、これは 1 秒間の相関事象 (寿命が 1 秒の場合) に対する偶然事象の確率は  $8 \times 10^{-6}$ 、1 ミリ秒では  $8 \times 10^{-9}$  に相当するものである。

分離されて検出器にたどり着いたものが、目的原子核であるかどうかの測定原理を図 5-5 に示す。GARIS を通り抜けた生成物イオンは 2 つの箔検出器を通過して、位置感应型半導体検出器 (PSD) に打ち込まれる。薄い箔をイオンが通ると、箔から電子が弾き飛ばされる。2 枚の箔の間隔は決まっているので、この電子による信号の時間差を測定することにより、イオンの速度が求められる。PSD のエネルギー情報と組み合わせることにより、打ち込まれた生成物イオンのおおよその質量がわかることになる。また、箔検出器の信号が無いときに、PSD に信号が観測されると、その信号はビーム由来ではなく、崩壊事象によるものであると言える。PSD (60 mm x 60 mm) は 16 個の短冊形 (3.75 mm x 60 mm) に分割されており、一つ一つの短冊は長軸方向に



位置分解できるようになっている。すなわち、位置分解能 (0.6 mm) を考慮すると、60 mm x 60 mm の中に、3.75 mm x 0.6 mm の検出器が 1600 個あるのと同じことになる。重い原子核が打ち込まれたその場所で、引き続いて起こる  $\alpha$  崩壊を観測することにより、目的原子核の崩壊連鎖を確認することができる。PSD 表面から外側に出る  $\alpha$  粒子も観測できるように 4 枚の SSD 検出器 (60 mm x 60 mm) で PSD を囲ってある。

延べ約 160 日間の実験で観測された 113 番元素の 2 つの崩壊連鎖を図 5-5 に示してある。連鎖最後の 2 つの原子核はすでに報告されているものであり、それらの寿命とエネルギーが従来報告された値と矛盾のないことから、これに先立つ 3 つの崩壊が  $^{278}113 \rightarrow ^{274}111 \rightarrow ^{270}\text{Mt} \rightarrow$  という崩壊であると結論付けられた。

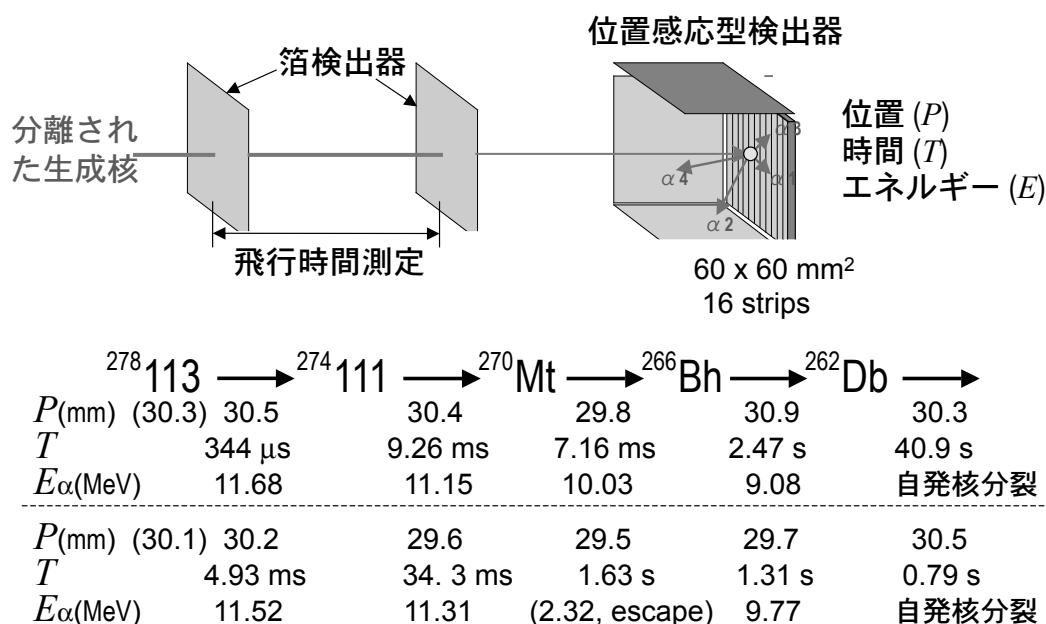


図 5-5 測定原理と観測された 113 番元素の崩壊連鎖

## 5.15 大強度陽子加速器施設

(三浦 太一)

### (1) はじめに

大強度陽子加速器施設 (J-PARC : Japan Proton Accelerator Research Complex) は、高エネルギー加速器研究機構 (高エネ研) と日本原子力研究開発機構 (原子力機構) が共同で原子力機構原子力科学研究所南敷地に建設中の、最大出力 1MW の世界最大規模の複合加速器施設である。この施設を利用して、中性子、ミュオン ( $\mu$ 粒子) を利用した物質科学や生命科学の研究、K 中間子などを用いた原子核・素粒子物理の研究、ニュートリノ物理の研究、更には核変換処理技術の研究が行われる。J-PARC は、リニアック、3 GeV シンクロトロン及び 50 GeV シンクロトロンの 3 つの陽子加速器と、物質・生命科学実験施設、ハドロン実験施設、ニュートリノ実験施設及び核変換実験施設の 4 つの実験施設からなる。これらの加速器、実験施設のうちリニアック及び 3 GeV シンクロトロンはすでに完成しており、現在試運転が行われている。また核変換実

験施設を除く他の施設も2008年の供用開始を目指し、現在建設中である。なお核変換実験施設は、二期計画として建設予定である。以下第一期で建設される各施設の概要について簡単に紹介する。

## (2) 各加速器の概要

リニアックは長さ約330mあり、最大25Hzの繰り返しでパルス運転され、負水素イオン(H<sup>-</sup>)を400MeV(当初は181MeV)まで加速し、333 $\mu$ Aの陽子ビームを3GeVシンクロトロンに供給する。更に核変換実験施設完成後は、50Hzで運転し陽子ビームを2分割し、25Hzを3GeVシンクロトロンに供給し、他の25Kzの陽子ビームをさらに600MeVまで加速し核変換実験施設に供給する。

3GeVシンクロトロンは、周長約350mで、リニアックから入射したH<sup>-</sup>イオンを荷電変換膜を通し陽子に変換し、3GeVまで加速したあと、物質・生命科学実験施設及び50GeVシンクロトロンに陽子ビームを供給する。物質・生命実験施設へ供給する最大陽子電流は333 $\mu$ A、又50GeVシンクロトロンへの最大陽子電流は、15 $\mu$ Aの最大出力1MWの世界最大級の加速器である。

50GeVシンクロトロンは周長約1600mで、50GeVシンクロトロンから入射した陽子ビームを最高50GeVまで加速し、ハドロン実験施設及びニュートリノ実験施設に最大15 $\mu$ Aの陽子ビームを供給する、最大出力750kWの加速器である。

## (3) 実験施設の概要

物質・生命科学実験施設は、パルス中性子とミュオンを利用し、タンパク質の構造機能解析などの生命科学、新素材の開発や物質の構造解析を行う物質科学等の研究を行う実験施設である。

ミュオン生成用標的は厚さ約2cmの黒鉛で、ビームコースは最終的には数本設置されるが、供用開始時点では超伝導ソレノイド磁石を用いた表面・崩壊ミュオンチャンネル1本のみである。しかしながら、供給されるミュオンの強度は、10<sup>7</sup>個/秒オーダーと高エネ研の施設に比べ2桁以上大きく、 $\mu$ SRやミュオン触媒核融合実験はもちろんのこと、近年阪大篠原グループにより進められている、ミュオン原子を新たな化学種としてとらえ化学反応の本質を探る試みにとっては最適のビームラインである。

中性子生成用標的は水銀で、熱中性子などを利用できるビームラインが最終的に23本設置される予定である。共用開始時に設置されるビームラインは、8本の予定であるが、そのうち2本は茨城県により設置され大学関係者のみならず、産業界の利用が大いに期待されている。各々のラインには、各種の非弾性散乱装置、回折計装置、生命物質解析装置などが設置され、酸化物高温超伝導機構の解明、生命機能の解明(タンパク質構造解析)、機能性物質の構造解析、機能解明など様々な分野での成果が期待されている。

ハドロン実験施設では、750kWの陽子ビームをNi標的に照射し生成するK中間子や一次陽子ビームを用いる。宇宙創生の起源解明や自然の基本原則に関する原子核、素粒子物理の研究を行う実験施設である。共用開始時に設置が予定されているビームラインは、K1.8と呼ばれるビームラインで、最高運動量2GeV/cの荷電K中間子を用いたハイパー核分光研究が行われる。2002年の研究テーマ募集には、世界中から30件の実験テーマが寄せられており、現在実験設備の設計・製作が行われている。また共用開始時は、標的及び二次ビームラインとも1つであるが、第二期計画も含めると、二次ビームラインは数本に増え、その他一次陽子ビームの利用やテスト実験設備の建設も考えられている。また $\pi\mu$ チャンネルも具体的な建設予定は決まっていないが、将来実

験室内に設置が可能な設計となっており、パイ中間子原子の研究にも大きな期待が寄せられている。ハイパー核分光実験以外では、K 中間子束縛系の研究、K 中間子稀崩壊実験、核物質内でのベクトル中間子の性質を調べる実験などが予定されている。

ニュートリノ実験施設は、その名の通り 750kW の陽子ビームを黒鉛標的に照射し生成するニュートリノを用い、ニュートリノの質量などの諸性質を詳細に測定する実験施設である。J-PARC で生成したニュートリノは、敷地内に新たに設置した前置検出器と東海から約 300km 離れた岐阜県飛騨市神岡町で既に稼働中のスーパーカミオカンデ検出器で測定され、ニュートリノ物理に関する研究が行われる。高エネ研での強度に比べ約 2 桁ニュートリノの強度が大きいことを利用し、本実験ではミューニュートリノの消失及び電子ニュートリノの出現を観測し、より詳細にニュートリノ振動についての実験が行われる。

#### (4) おわりに

J-PARC は最大出力 1MW と世界の既存の加速器と比べ約 1 桁大きく、高エネ研陽子加速器施設に比べれば約 2 桁大きい世界最大規模の複合加速器施設である。また J-PARC は、建設にあたり加速器システムは勿論、実験設備、安全設備についても世界最先端の技術が使われており、加速器施設、実験施設として世界最高水準の施設である。供用開始後は、優れた成果が出るものと期待されている。

# 資料編

放射化学関連の主な国際会議

国内で講演を頂いた主な放射化学関係科学者

会員の研究題目一覧

放射化学関連講義一覧

放射化学会賞受賞者一覧

名誉・外国人特別会員一覧

放射化学討論会の開催地の歴史

年表

## 放射化学関連の主な国際会議

放射化学会会員の出席している国際会議には、放射化学一般に関するものから、個々の分野の専門的な国際会議、IAEAの主催する国際規約に関する会議、放射線の防護・影響に関する会議、放射線教育、アクチノイド、原子力の利用から廃棄物に関するものまで広範囲に及んでいる。会員が出席している主な放射化学関連の国際会議をまとめてみた。ここに掲げる国際会議は会員が過去に出席したと申し出た国際会議をまとめたものである。したがって一般的な化学に関する国際会議も含まれているが、あえて削除することはしなかった。

### (1) 周期的に開催されている放射化学関連の主な国際会議

#### a. 放射化学のいろいろな分野を含む国際会議

Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (**APSORC**)

Council on Ionizing Radiation Measurements and Standards (**CIRMS**)

IEEE Nuclear Science Symposium

International Conference on Isotopes (**ICI**)

International Nuclear Chemistry Congress (**INCC**)

International Conference on Application of Radiotracer in Chemistry, Environmental and Biological Sciences

International Symposium on Isotopes Effects in Physics, Chemistry and Rare Earths, この会議の会議名は一定していない。

International Conference on Nuclear and Radiochemistry (**NRC**)

International Conference on Tritium Science and Technology

International Radiocarbon Conference

International Conference on Luminescence and Electron Spin Resonance Dosimetry

International Symposium on Technetium-Science and Utilization

International Symposium on Radiology

National Symposium on Nuclear and Radiochemistry

Nuclear and Radiochemistry Symposium (**NUCAR**)

Radiochemical Conference (Czech Republic)

#### b. 環境に関する国際会議

Aquatic Forum 2004

Bioassay, Analytical, and Environmental Radiochemistry Conference

Environmental Radioactivity Conference (**APER**)

ICRM-Low-Level Radioactivity Measurement Techniques

International Symposium on Advanced Nuclear Energy Research-Global Environment and Nuclear Energy

International Symposium of Environmental Radiochemical Analysis

International Conference on Radioactivity in the Environment

International Congress on Isotope and Nuclear Analytical Techniques for Health and Environment

International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation (**ICEM**)

International Conference on Low-Level Measurements of Actinides and Long-lived Radionuclides in

Biological and Environmental Samples

IUAPPA Regional Conference for Pacific RIM on Air Pollution and Waste Issues

c. 分野の限られた会議

ACTINIDES

International Conference on f-Elements (ICFE), or Rare Earth Research Conference (RERC), 会議名は主催国によって異なる。

International Conference on the Chemistry and Physics of the Transactinide Elements (TAN)

International Conference on Capture Gamma-Ray Spectroscopy (CGS)

International Conference on Nuclear Analytical Methods in the Life Sciences (NALMS)

International Conference on Methods and Applications of Radioanalytical Chemistry (MARC)

International Symposium on Nuclear Analytical Chemistry (NAC)

International Conference on Accelerator Mass Spectroscopy (AMS)

Hops Lends of National Radiation and Radiation Dose and Health Effect

International Congress on Analytical Sciences (ICAS)

International Conference on Modern Trends in Activation Analysis (MTAA)

Radiobioassay and Radiochemical Measurements Conference (RRMC)

International Conference in Advances in Liquid Scientific Spectroscopy

International Conference on the Applications of the Mossbauer Effect (ICAME)

International Symposium of Industrial Application of Mossbauer Effect (ISIAME)

Latin America Conference of Application of Mossbauer Effect (LACAME)

Seeheim Workshop on Mössbauer Spectroscopy

Eötvös Workshop (EWS)

Mössbauer Spectroscopy for Material Science (MSMS)

International Conference on Hyperfine Interactions (HFI)

International Symposium on Nuclear Quadrupole Interactions (NQI)

International Workshop on Positron and Positronium Chemistry (PPC)

International Conference on Positron Annihilation (ICPA)

International Symposium on Technetium

The Russian and Japanese Seminar on Technetium

International Conference on the Chemistry and Migration Behavior of Actinides and Fission Products in the Geosphere (MIGRATION)

Nuclear Data

World Conference of Neutron Radiography

Topical Meeting of Neutron Radiography

d. 安全, 防御および教育に関する会議

Nuclear Fuel Cycle Safety Engineering Research Facility (NUCEF)

International Radiation Protection Association (IRPA)

International Conference on Radiation Shielding (ICRP)

International Symposium on Radiation Safety and Detection Technology (ISORD)

National Council on Radiation Protection and Measurements (NCRP)

Asian and Oceanic Congress for Radiation Protection (AOCR)

International Symposium on Radiopharmaceutical Chemistry  
 International Symposium on Technetium in Chemistry & Nuclear Medicine  
 International Symposium on Radiation Education (ISRE)

e. 化学一般に関する会議

Annual Meeting of American Chemical Society (ACS)

Goldshmit

Lunar and Planetary Science Conference

PacifiChem（環太平洋国際化学会議）が1984年以来5年ごとに開催されている。PacifiChem 2005では次のシンポジウムが開催された。

#34 Nuclear Hyperfine and Quantum Beam Technique for Studying Chemical States

#238 Science with Rare Isotope Beams

#244 Frontiers of Nuclear Chemistry in the Heaviest Elements

#306 Actinides and the Environment: A Paradigm for Interdisciplinary Research

PacifiChem 2000では

#27 Nuclear Hyperfine and Exotic Particle Techniques for Studying Chemical States

#67 Environmental Chemistry and Microbiology of Actinides

#135 Radioisotope Production and Applications in the New Century

#169 Science with Radioactive Beams

PacifiChem 1995では

#507 Research with Radioactive Nuclear Beams

#616 Chemical and Nuclear Properties of Actinides

#618 Nuclear Medicine

#619 Nuclear Science in 2020

PacifiChem 1989では

Artificial Elements: A Half Century

Frontiers in Radiopharmaceutical Chemistry

The Chemical Behavior of Radioactive Substances in the Environment

PacifiChem 1984では

Frontiers in Nuclear and Radiochemistry

Industrial Applications for the Mossbauer Effect and Solid State Chemistry

が開催された。なお1984年のシンポジウムはPAC CHEMと呼ばれた。

(2) 国内で過去に開催された放射化学関連の主な国際会議

- a. 以下に掲げる国際会議は、会員が過去に国内で開催した国際会議である。国際的かつ周期的に開催されている国際会議が主であるが、単発的に開催された小グループの国際会議については、世話人が退職されている事情もあり、網羅的にデータを集めることが難しかった。このため、会員から申し出のあったもののみが掲載されている。また、これ以外に旧日本原子力研究所、理研および放射線医学総合研究所で主催される国際会議には多くの放射化学会員が運営に参加している。

会議名、開催地、開催年、参加者数、組織委員長などを下記に掲げる。

International Conference: Nuclear Energy Systems for Future Generation and Global

- Sustainability (Global), 筑波, 2005 年, 700 名
- International Symposium on Technetium: Science and Utilization (**IST**), 大洗, 2005 年, 80 名
- 3<sup>rd</sup> International Symposium on Radiation Education (**ISRE**), 長崎, 2004 年, 141 名
- Rare Earths '04 in Nara, 奈良, 2004 年, 500 名以上
- International Conference on Positron Annihilation (**ICPA**), 京都, 2003 年
- International Conference on Accelerator Mass Spectroscopy (**AMS**), 名古屋, 2002 年
- International Symposium on Transfer of Radionuclides in Biosphere, 水戸, 2002 年, 150-200 名
- ACTINIDES-2001, 葉山, 2001 年
- Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry '01 (**APSORC '01**) 福岡, 2001 年, 293 名 放射化学会主催
- International Conference on Tritium Science and Technology, 筑波, 2001, 400 名  
(放射化学会協賛)
- International Symposium on Advanced Science Research, Advances in Heavy Element  
Research (**ASR**), 東海, 2001 年, 109 名, 48 件, 国外から 37 名 (放射化学会協賛)
- International Congress on Analytical Sciences (**ICAS**), 東京, 2001 年, 900 名
- International Conference on Low-Level Measurements of Actinides and Long-Lived Radionuclides in  
Biological and Environmental Samples, 大洗, 2000 年, 100 名
- International Radiation Protection Association (**IRPA**), 広島, 2000 年,
- The 2<sup>nd</sup> Russian and Japanese Seminar on Technetium, 静岡, 1999 年, 100 名
- International Workshop on Positron and Positronium Chemistry (**PPC**), 筑波, 1999 年
- International Symposium on Radiation Education (**ISRE**), 湘南, 1998 年, 178 名
- 6<sup>th</sup> International Conference on the Chemistry and Migration Behavior of Actinides and Fission  
Products in the Geosphere (**MIGRATION**), 仙台, 1997 年, 400 名
- Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry '97 (**APSORC '97**), 熊本, 1997 年, 347 名, 放射化  
学討論会主催
- Todai Int. Symp. Cosmochronology, Isotope Geoscience, 東京, 1996 年
- CHRT FORUM, 東京, 1995 年, 富永 健
- International Symposium on Technetium, 仙台, 1993 年, 100 名
- International Seminar on the Chemistry of High Energy Atoms, 東京, 1992, 59 名, 松浦辰男
- 2<sup>nd</sup> Japan-USSR Symposium Isotope Geology, 東京, 1991 年  
(1<sup>st</sup> Japan-USSR Symposium Isotope Geology は, Irkutsk, USSR で, 1987 年 6 月に開催)
- 1<sup>st</sup> China-Japan Joint Symposium Geochronology, Cosmochronology, Isotope Geology, 東京, 198x  
年に開催
- 13<sup>th</sup> International Hot Atom Chemistry Symposium, 富士, 1987 年, 140 名うち国外から 50 名,  
富永 健
- Council on Ionizing Radiation Measurements and Standards (**CIRMS**)
- 5<sup>th</sup> International Conference Geochronology, Cosmochronology, Isotope Geology, 日光, 1982 年
- International Conference on Positron Annihilation (**ICPA**), 1979 年
- 16<sup>th</sup> International Cosmic Ray Conference, 京都, 1979 年
- International Conference on the Applications of the Mossbauer Effect (**ICAME**), 京都, 1978 年
- 放射化学的手法およびその応用における最近の進歩, 日米化学協力セミナー, 大磯, 1973 年
- 4<sup>th</sup> International Hot Atom Chemistry Symposium, 京都, 1967 年, 60 件, 国外から 31 名,



齋藤信房

研究用原子炉の利用に関する会議, 1967年, 東海, IAEA 主催

- b. その他, 理研, 原研, サイクル機構, 放医研の主催する国際会議など (一例を以下に掲げる) がある。

The International Symposium: Transfer of Radionuclides in Biosphere-Prediction and Assessment (JAERI-Conf 2003-010)

Nuclear Data, 東海, 2003年, 150名

RIKEN Symposium "Condensed Matter Studies with Radioactive Ion Beams" 2002

Workshop on Application of Cosmogenic Nuclides to Geoarchaeology, National Museum of Japanese History, 2002

RIKEN International Symposium on Bio-Trace Elements, 2002

The Workshop on the Results of the Cooperative Research between JAERI and CHESCIR concerning the Study on Assessment and Analysis of Environmental Radiological Consequences of the Chernobyl Accident (JAERI-Conf-2000-016)

RIKEN International Symposium on Bio-Trace Elements, 1998

RIKEN International Symposium-Unstable Nuclei and Particles as Probes in Physical and Chemistry, 和光, 1992

## 国内で講演を頂いた主な放射化学関係科学者

### (1) 国内で講演をいただいた外国人科学者

初期においては積極的に外国人科学者を国内に招いた。また海外から訪問された研究者も多い。現在は、むしろ外国からの留学生や研究者を積極的に受け入れたり、訪問研究者も多くなっている。主として1957年以降に放射化学関連で国内での講演のためにたびたび日本を訪れた科学者のお名前を下に掲げる。下記のリストは、討論会や国内シンポジウムの招待講演者および会員から挙がってきたリストを集めたものである。情報源が限定されていたこともあり、下記に掲げられていない方も多いと推定される。また、推薦のあった方は全て下記のリストに掲げている。学会の招待講演者から個人的なレベルで講演を依頼された方まで含んでおり、編集委員会で取捨選択に手を加えることはしていない。

Austria, Dr. Din D. Sood, IAEA

Belgium, Prof. Frans De Corte, University of Ghent

Brazil, Prof. Elisabete A. De Nadai Fernandes, Universidade de Sao Paulo

Canada, Prof. R. E. Jervis, University of Toronto

Canada, Prof. David C. Walker, University of British Columbia

Canada, Prof. Amares Chatt, Dalhousie University

Canada, Dr. B. D. Amiro, Canadian Forest Service, Northern Forestry Centre

China, Prof. Yuanfang Liu, Peking University

China, Prof. Yuanfu Hsia, Nanjing University

China, Dir. Huating Yang, China Institute of Radiation Protection

China, Dr. Chiefang Chai, High Energy Institute

China, Prof. Xiangyun Wang, Peking University

China, Prof. Z. F. Chai, Institute of High Energy Physics, Peking

Fed. Rep. Germany, Prof. Holst Müller, University of Freiburg

Fed. Rep. Germany, Prof. Matthias Schädel, Gesellschaft für Schwerionenforschung (GSI)

Fed. Rep. Germany, Prof. G. Münzenberg, Gesellschaft für Schwerionenforschung (GSI)

Fed. Rep. Germany, Dr. Sigurd Hofmann, Gesellschaft für Schwerionenforschung (GSI)

Fed. Rep. Germany, Prof. Jens V. Kratz, Johannes Gutenberg-Universität Mainz

Fed. Rep. Germany, Prof. Kurt Rössler, Kernforschungsanlage Jülich (現 Forschungszentrum Jülich)

Fed. Rep. Germany, Prof. Klaus Schwochau, Kernforschungsanlage Jülich (現 Forschungszentrum Jülich)

Fed. Rep. Germany, Prof. Syed M. Qaim, Kernforschungsanlage Jülich (現 Forschungszentrum Jülich)

Fed. Rep. Germany, Prof. J.-I. Kim, Forschungszentrum Karlsruhe, Institut für Radiochemie der Technischen Universität, München

Fed. Rep. Germany, Prof. Herr, MaxPlanck Forschung

Fed. Rep. Germany, Prof. Uli Gonser, Universität des Saarlandes

Fed. Rep. Germany, Prof. Philippe Gütlich, Johannes Gutenberg-Universität Mainz

Fed. Rep. Germany, Prof. F. Baumgärtner, Institut für Radiochemie der Technischen Universität, München

Fed. Rep. Germany, Prof. H. O. Denschlag, Johannes Gutenberg-Universität Mainz

Fed. Rep. Germany, Prof. G. Stöcklin, Kernforschungsanlage Jülich  
 Fed. Rep. Germany, Prof. G. F. Herrmann, Johannes Gutenberg-Universität Mainz  
 Fed. Rep. Germany, Prof. Burkhard Fricke, Universität Kassel  
 Germany, Dr. Hermann Stoll, MPI für Metallforschung  
 Germany, Prof. Goester Klingelhofer, Johannes Gutenberg-Universität Mainz  
 France, Prof. M. Haissinsky, Université de Paris, Institut du Radium, Laboratoire Curie  
 France, Dr. J. W. Müller, Bureau Int'l des Poids et Mesures  
 France, Prof. J. P. Adloff, Centre de Recherches Nucléaires de Strasbourg  
 France, Dr. P. Faugeras, フランス原子力研究所  
 France, Prof. Véronique Michel, Institut de Paléontologie Humaine  
 Hungary, Prof. A. Veres, Institute of Isotopes of the Hungarian Academy Sciences  
 Hungary, Prof. T. Braun, Eötvös Loránd University  
 Hungary, Prof. Attila Vertes, Eötvös Loránd University  
 Hungary, Prof. Erno Kuzmann, Eötvös Loránd University  
 Hungary, Prof. Zoltán Homonnay, Eötvös Loránd University  
 India, Dr. N. R. Das, Saha Institute of Nuclear Physics  
 India, Prof. V. G. Dedgaonkar, University of Pune  
 India, Prof. S. P. Mishra, Banaras Hindu University  
 India, Prof. S. Lahiri, Saha Institute of Nuclear Physics  
 Korea, Prof. Youn-Keun Oh, Cheju National University  
 Korea, Prof. Jae-Woo Park, Cheju National University  
 Korea, Prof. Yong-Hce Chung, Hallym University  
 Monaco, Dr. P. P. Povinec, IAEA, Marine Environment Laboratory  
 Norway, Prof. J. Alstad, University of Oslo  
 Poland, Prof. Tomasz Goworek, Maria Curie-Skłodowska University  
 Republic of China, Prof. Tieh-Chi Chu, National Tsing Hua University  
 Republic of China, 魏和祥教授 (淡江大學)  
 Rumania, Dr. Dorin N. Poenaru, 国立物理・原子力研究所  
 Russia, Prof. Boris F. Myasoedov, USSR Academy of Sciences  
 Russia, Dr. B. G. Dzantiev, University of Moscow  
 Russia, Prof. V. P. Shantarovich, KEK  
 Russia, Prof. M. G. Itkis, FLNR  
 Russia, Prof. Yuri Oganessian, FLNR  
 South Africa, Prof. A. E. Pillay, University of Eitwatersrand  
 Switzerland, Prof. H. R. von Gunten, University of Bern  
 Switzerland, Prof. G. Stöcklin, Institut für Nuklearchemie Forschungszentrum Jülich  
 Switzerland, Prof. Heinz W. Gäggeler, University of Bern  
 Thailand, Dr. N. Rativanich, Office of the Atomic Energy for Peace  
 Thailand, Mr. Paitoon Wanabongse, Office of the Atomic Energy for Peace  
 Turkey, Prof. N. K. Aras, Middle East Technical University  
 U. K., Prof. A. G. Maddock, Cambridge University

U. K., Prof. N. M. Spyrou, University of Surrey  
U. K., Prof. D. J. Silvester, MRC Ciklotron Unit  
U. S. A., Dr. D. C. Stewart, Argonne National Laboratory  
U. S. A., Dr. F. H. Spedding, Ames Lab., USAEC)  
U. S. A., Prof. Gregory R. Choppin, Florida State University  
U. S. A., Prof. Frank Sherwood Rowland, University of California, Irvine  
U. S. A./Germany, Prof. H. Ache, Virginia Polytechnic Institute and State University in Blacksburg/  
Kernforschungszentrum Karlsruhe (現 Forschungszentrum Karlsruhe)  
U. S. A., Dr. T. A. Carlson, Oak Ridge National Laboratory  
U. S. A., Dr. A. P. Wolf, Brookhaven National Laboratory  
U. S. A., Dr. G. Harbottle, Brookhaven National Laboratory  
U. S. A., Dr. S. Wexler, Argonne National Laboratory  
U. S. A., Prof. Yuan Tseh Lee (李遠哲), University of California Berkeley; Lawrence Berkeley  
Laboratory (現在は台湾・アカデミアシニカ総裁)  
U. S. A., Prof. D. C. Hoffman, University of California Berkeley; Lawrence Berkeley Laboratory  
U. S. A., Prof. R. H. Herber, Rutgers, The State University of New Jersey  
U. S. A., Prof. David. N. Hendrickson, University of Illinois  
U. S. A., Dr. Norbert T. Porile, University of Chicago, 現 Purdue University  
U. S. A., Dr. Bruce J. Dropesky, Los Alamos National Laboratory  
U. S. A., Prof. J. A. Jungerman, University of California, Davis  
U. S. A., Dr. T. Sugihara, Lawrence Livermore National Laboratory  
U. S. A., Dr. E. K. Hulet, Lawrence Livermore National Laboratory  
U. S. A., Dr. R. M. Lindstrom, National Institute of Standards and Technology  
U. S. A., Prof. Joseph R. Peterson, University of Tennessee  
U. S. A., Dr. G. V. Iyengar, Biomineral Science; National Institute of Standard and Technology  
U. S. A., Prof. J. R. Huizenga, Rochester  
U. S. A., Prof. Paul J. Karol, Carnegie Mellon University

故人

Hungary, Prof. Georg von Hevesy  
Hungary, Prof. Kores, Eötvös Loránd University  
India, Prof. H. J. Arniker, University of Pune  
U. S. A., Prof. P. K. Kuroda, University of Arkansas  
U. S. A., Prof. John H. Reynolds, University of California, Berkeley  
U. S. A., Prof. Glenn Theodore Seaborg, University of California, Berkeley  
U. S. A., Dr. A. P. Wolf, Brookhaven National Laboratory

## 会員の研究題目一覧

日本の放射化学研究の現状をまとめるに当たって、各研究ブロックごとにまとめることも検討したが、共同研究の推進という観点から、誰がどんな研究をしているかが明確なことが重要であるということになり、研究者個人の研究テーマを示すこととした。アンケート用紙は金沢での第49回年会のうちに配布した。アンケートの回収率は60%でした。このため会員全員へのアンケートの周知が徹底していない恐れがあるので今後さらにデータの完成度と更新に努めて生きたい。回答のあったデータを年会における分科会の分類を参考にして研究分野ごとに分類して示す。この題目一覧を、研究者間の相互理解ばかりでなく、産官学の共同研究の推進や大学院生の進路選択の材料などに使用していただきたい。アンケートでは、個人の研究テーマを一つずつ提出してもらうことにした。しかし研究が多岐にわたる研究者も多く、どうしても研究テーマが一つに絞れない場合は、編集者の権限で二つに絞って掲載することにした。

### 1a 核反応, 核構造

- 浅井 雅人 (原子力機構) : 核構造の研究  
 永目諭一郎 (原子力機構) : 核分裂機構  
 西中 一朗 (原子力機構) : 核分裂機構の解明  
 松村 宏 (高エネ研) : 中高エネルギー核反応  
 阪間 稔 (徳島大医) : 超, 重アクチノイド核種領域の核化学的研究  
 親松 和浩 (愛知淑徳大) : 不安定原子核の構造  
 大澤 孝明 (近畿大理工) : 核データライブラリーに収録するための核データの計算評価  
 大島 真澄 (原子力機構) : ガンマ線核分光による原子核構造の研究  
 佐藤 哲也 (原子力機構) : 中性子過剰ランタノイド領域における新核種探索, 超重元素の気相化学  
 小浦 寛之 (原子力機構) : 原子核質量および原子核崩壊の理論計算  
 末木 啓介 (筑波大院数理物質科学) : 超重元素の探索, 超アクチノイド元素の化学的性質  
 後藤 真一 (新潟大機器セ) : アクチノイドの低エネルギー核分裂機構に関する研究  
 森田 浩介 (理研) : 未知核の探索  
 長 明彦 (原子力機構) : 壊変核分光による中性子過剰核の低励起状態の研究  
 高宮 幸一 (京大原子炉) : アクチノイド核種の核反応特性の研究  
 市川 進一 (原子力機構) : 極限領域に位置する中性子過剰核種の崩壊と核構造研究  
 横山 明彦 (金沢大院自然) : 重イオン核反応の反応機構の研究  
 加治 大哉 (理研) : 未知超重核の探索  
 中原 弘道 (元東京都立大学) : 核分裂機構・核構造の解明  
 坂本 浩 (金沢) : 中・高エネルギー光核反応の放射化学  
 柴田 徳思 (原子力機構) : 連続スペクトルを生じる核反応

### 1b 超アクチノイド化学

- 工藤 久昭 (新潟大理) : 気相化学反応による超重元素の化学

高橋 成人（阪大院理）：重元素の化学的挙動  
 羽場 宏光（理研加速器）：超重元素の核化学的研究  
 永目諭一郎（原子力機構）：超重元素の化学的、核的性質、重元素の合成  
 塚田 和明（原子力機構）：超アクチノイド元素の核的・化学的性質の研究  
 豊嶋 厚史（原子力機構）：超アクチノイド元素の溶液化学的研究  
 篠原 厚（阪大院理）：超・重アクチノイド元素の化学的研究  
 高宮 幸一（京大原子炉）：超アクチノイド化学のための迅速化学装置開発  
 平田 勝（原子力機構）：超アクチノイド元素の化学的性質の予測研究  
 笠松 良崇（原子力機構）：

### 1c 加速器利用

永井 尚生（日大文理）：加速器質量分析法の開発  
 羽場 宏光（理研加速器）：RI 製造高度化研究  
 渡辺 智（原子力機構）：RI 製造・利用  
 榎本 和義（高エネ研）：加速器による放射化分析、加速器放射化物の評価法の開発  
 馬場 祐治（原子力機構）：放射光による物質・材料科学研究  
 鈴木 健訓（高エネ研）：加速器施設における機器の放射化  
 中村 尚司（清水建設）：高エネルギー中性子の生成と物質透過  
 柴田 誠一（京大原子炉）：加速器質量分析法による地球環境中における長寿命放射性核種に関する研究  
 工藤 博司（元東北大院理）：放射線場におけるテクネチウムナノ粒子生成機構  
 吉田 努（茨城県）：  
 大槻 勤（東北大院理）：  
 湯川 雅枝（放医研）：PIXE 法による医学・生物学試料中の微量元素分析  
 大浦 泰嗣（首都大院理工）：光量子放射化分析法による宇宙物質と環境試料の元素分析  
 中西 友子（東大院農）：植物 PET

### 2a 環境放射能（分布、動態）

杉原 真司（九大院理）：環境放射能の挙動に関する研究  
 長崎 晋也（東大院工）：アクチノイドのコロイド形成、移行挙動  
 葉袋 佳孝（武蔵大人文）：アクチノイドと腐植物質・粘土鉱物との相互作用  
 村松 久和（信州大教育）：松代象山地下壕内のラドン濃度の季節変化  
 大崎 進（九大 RI セ）：環境放射能による環境動態の測定  
 百島 則幸（熊本大理）：環境の  $^3\text{H}$ ,  $^{210}\text{Po}$  の動態解明  
 石川 陽一（宮城県原子力セ）：大気中  $^7\text{Be}$  などの変動、フォールアウトの分布、海産物の放射能、 $^{137}\text{Cs}$  の高感度分析、天然  $\gamma$  核種の測定法  
 佐藤 純（明治大理工）：火山岩や地下水などについての天然放射性核種の分布と挙動  
 佐藤 深（猿払拓心中）：大気中の  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^7\text{Be}$  の濃度  
 天野 光（原子力機構）：環境中における放射性核種の分布および挙動解析  
 森田 裕子（共立薬大）：食品中放射能の測定  
 森本 隆夫（日本分析セ）：人工・自然放射性核種の水準把握

- 土井 妙子 (国立環境研) : 環境中における放射性核種の挙動に関する研究  
 岸本 武志 (日本分析セ) : 環境試料中の放射性核種の分析  
 黒崎 拓 (NIST) : Development of NIST oyster SRM for environmental radiochemistry  
 濱 克宏 (原子力機構) : 地下水の起源・年代測定  
 阪間 稔 (徳島大医) : 徳島県における環境水中のウラン・トリウム核種の同位体比および放射能測定  
 野川 憲夫 (東大 RI セ) :  $^{131}\text{I}$  の分別捕集法の開発  
 山田 正俊 (放医研防護体系 G) : 海洋におけるプルトニウム同位体の動態解析  
 山田 芳宗 (北陸大薬) : 樹木年輪中のトリチウムおよび  $^{14}\text{C}$  の時間的空間的変動  
 長尾 誠也 (北大院地球環境科学) :  $^{14}\text{C}$  をトレーサとした陸部から海洋への有機物の移動挙動の研究, アクチノイドと腐植物質との錯体研究  
 桜木 智史 (放医研) : 海水中の人工放射性核種の分析法の開発とその挙動に関する研究  
 國分 陽子 (原子力機構) : 環境試料中のウランおよびプルトニウムの同位体比精密測定とその分布  
 日高 洋 (広島大院理) : 長寿命放射性核種の宇宙・地球環境中での挙動  
 川村 秀久 (九環協) :  $^{14}\text{C}$  の環境動態  
 小橋 浅哉 (東大院理) : 紙類など環境試料に含まれる放射能  
 坂本 義昭 (原子力機構) : 放射性廃棄物処分の安全評価にかかわるアクチノイド元素などの環境中での吸着移動挙動  
 三浦 太一 (高エネ研) : 加速器施設周辺環境中での放射能動態の研究  
 五十嵐康人 (気象研地球化学部) : 大気中の人工・天然放射能の動態研究と大気化学でのトレーサ利用  
 山口 芳香 (大阪市大) : 大気中の放射性核種変動の高解像度同時観測  
 永井 尚生 (日大文理) : 宇宙線生成核種の分布と挙動  
 堀内 公子 (大妻女子大社会情報) : ラドンを指標とした地下水の動態解析  
 廣瀬 勝己 (気象研) : 大気と海洋における人工放射性核種の挙動に関する研究  
 小藤 久毅 (日本海洋科学振興財団) : 海洋での放射性核種の動態  
 金井 豊 (産総研) : ウラン系列核種の動態と地球化学的応用  
 岡井 富雄 (九大院工) : 大気中トリチウムの環境動態  
 中西 孝 (金沢院自然) : 海洋におけるフォールアウトプルトニウムの分布と沈降挙動  
 小崎 完 (北大院工) : 放射性廃棄物地層処分における放射性核種の移行挙動  
 榎本 秀一 (理研) : マルチトレーサによるファイトレメディエーション, 環境浄化のための基礎研究  
 半澤有希子 (原子力機構) :  
 佐藤 治夫 (原子力機構) : 地質媒体中での放射性核種の拡散移行挙動  
 内田 滋夫 (放医研) :  $^{129}\text{I}$  や  $^{99}\text{Tc}$  等長半減期核種の環境動態解明とモデル開発  
 今中 哲二 (京大原子炉) : 環境中の放射能汚染評価  
 吉澤 秀 (飯山市立飯山小) : 大気浮遊粒子に付着した  $^7\text{Be}$  の挙動  
 斎藤 直 (阪大 RI セ) : ガンマ核種の分布と移行  
 大塚 良仁 ((財)環境研) : 青森県六ヶ所村等における放射性核種の分布と挙動の研究  
 柿内 秀樹 ((財)環境研) :  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{129}\text{I}$  の環境中での分布と挙動の研究

藤川 陽子 (京大炉) :  
 柴田 誠一 (京大原子炉) : 原爆中性子により生成した放射性核種に関する研究  
 小島 貞男 (愛知医大医) : 環境中の放射性核種の分布と挙動  
 本多 照幸 (武蔵工大工) : 大気, 海洋及び地圏における放射性核種の分布と挙動  
 鈴木 崇史 (原子力機構) : 加速器質量分析装置を利用した  $^{129}\text{I}$  の環境動態に関する研究  
 皆川 昌幸 (中央水産研) : 大気海洋における放射性核種の動態に関する研究

## 2b 環境放射能 (測定技術, 分析法開発)

宮本ユタカ (原子力機構) : 環境試料の極微量ウラン・トリウム・鉛の同位体組成分析法の開発  
 永井 尚生 (日大文理) : 宇宙線生成核種の分布と挙動  
 及川 真司 (日本分析セ) : ICP 質量分析計による環境試料中の長半減期放射性核種の定量  
 緒方 良至 (名大医保) :  
 長崎 晋也 (東大院工) : アクチノイドのレーザー分光, 分析, コロイド計測  
 佐藤 兼章 (日本分析セ) : 環境試料中の放射性核種分析  
 篠原 伸夫 (原子力機構) : 核不拡散のための極微量放射能測定技術の開発  
 森田 裕子 (共立薬大) : ラドン測定法の開発  
 森本 隆夫 (日本分析セ) : 簡易分析法の作成  
 安田健一郎 (原子力機構) : 極低レベル放射線検出器の開発  
 別所光太郎 (高エネ研) : 加速器コンクリート中の難測定核種の分析  
 高木 伸司 (神奈川大理) :  
 橋本 哲夫 (新潟大理) : 時間間隔分析と液シンを用いた新規微量  $\alpha - \beta$  放射体の分離解析  
 鈴木 崇史 (原子力機構) : 加速器質量分析装置を用いた  $^{129}\text{I}$  高感度測定  
 江坂木の実 (原子力機構) : 環境中の核物質含有微粒子分析  
 李 致圭 (原子力機構) : 微小な核分裂性粒子の同位体比分析法の開発  
 川村 秀久 (九環協) :  $\beta$  線, AMS による  $^{14}\text{C}$  測定法  
 三浦 太一 (高エネ研) : 加速器施設で生成する  $^{55}\text{Fe}$  等の難測定核種の測定法の開発  
 五十嵐康人 (気象研地球化学部) : 放射性気体の測定法など  
 近藤健次郎 (高エネ研) : 空気中エアロゾル核種の測定, 粒径分布測定法の研究  
 堀内 公子 (大妻女子大社会情報) : 天然水中のラドン濃度の測定, 測定法の研究  
 白田 重和 (原子力機構) : 保障措置に係わる環境試料分析技術の開発とその応用  
 岡井 富雄 (九大院工) : 環境中微量放射性核種の分析法開発  
 田上 恵子 (放医研) :  $^{99}\text{Tc}$ , U 同位体比測定などの長半減期核種分析  
 山口 喜朗 (阪大 RIRC) : 環境放射能測定法および試料処理法の開発  
 佐久間洋一 (核融合研) : 極低レベルトリチウム測定  
 村松 康行 (学習院大理) : ICP-MS, AMS 放射化分析法を用いた Pu, U,  $^{129}\text{I}$  などの分析  
 内田 滋夫 (放医研) : 極低濃度長半減期核種及び微量元素の分析法開発  
 大塚 良仁 (環境科学技術研究所) : ICP-MS 等による放射性核種の分析技術開発  
 石川 陽一 (宮城県原子力セ) :  $^{137}\text{Cs}$  の高感度分析, 天然  $\gamma$  核種の測定方法  
 佐藤 純 (明治大理工) : 地球化学的試料中の放射非平衡の確認  
 岸本 武志 (分析セ) : 長半減期核種の分析・測定法の開発  
 油井 多丸 (元原研) : LSC 測定法 (効率トレーサ法)



緒方 良至 (名大医保) : トリチウムの測定・水素同位体の分離

### 3a 放射線の測定方法

野村 貴美 (東大院工) : 散乱メスバウアー分光用検出器の開発と固体表面分析

黒寄 拓 (NIST) :  $^{90}\text{Sr}$  analysis in environmental samples, Resin bead sample loading technique for TIMS

吉沢 幸夫 (東京慈恵会医科大学 RI 実験施設) : 高屈折率セラミックを用いた低エネルギー  $\beta$  核種のチェレンコフ測定

鈴木 章悟 (武蔵工大工) : 微弱ガンマ線測定法とガンマ線スペクトル解析法の開発

若林源一郎 (九大院工) : 医療用重粒子線入射核反応研究のための検出器システムの開発

近藤健次郎 (高エネ研) : no-gamma 核種の放射能定量法・測定法の確立

佐久間洋一 (核融合研) : TL シートによる中性子線の二次元測定

中村 尚司 (清水建設) : 中性子測定器の開発

柴田 貞夫 (原安セ) : 標準分散規格化スペクトル測定法の開発

西澤 邦英 (名大 RI セ) : 放射性ヨウ素を中心とする体内放射能の対外計測法

中西 友子 (東大) : ポジトロンを利用したリアルタイム計測装置とイメージング装置の開発

### 3b 分離分析

佐々木研一 (立教大院理) :  $^{234}\text{U}/^{230}\text{Th}$  分離, 雨水からの凝集沈殿分離

菅沼 英夫 (静岡大理放射研) : 三価 4f と 5f ブロック元素イオンの分離

佐藤伊佐務 (東北大金研) : 3 価アクチノイドと 3 価ランタノイドの分離

竹味 弘勝 (広島国際大保健医療) : 超微量の分離分析 (Am-Cm, 希土類)

吉田 善行 (原子力機構) : アクチノイドの分離法・分析法の開発, 原子力への適用研究

森田 泰治 (原子力機構) : 使用済燃料の再処理, アクチノイド及び核分裂生成物の分離

目黒 義弘 (原子力機構) : 超臨界二酸化炭素を媒体とするアクチノイドの分離法開発

北辻 章浩 (原子力機構) : 電気化学的手法を用いたアクチノイドの分離法開発

鈴木 達也 (東工大原子炉研) : アクチノイドおよび放射性同位元素の分離

深沢 哲生 (日立) :

白田 重和 (原子力機構) : アクチノイドの分離とその同位体比分析および放射能分析

森田 浩介 (理研) : 気体充填型反跳分離器

藤井 靖彦 (東工大原子炉研) : イオン交換クロマトグラフィーによる元素分離と同位体分離

### 3c 錯体の性質, 溶液化学, 溶媒抽出

北澤 孝史 (東邦大理) : アクチノイド錯体の合成と結晶構造

佐々木隆之 (京大院工) : アクチノイド元素と有機配位子との錯形成反応

吉田 善行 (原子力機構) : アクチノイドなどの溶液, 電気化学の基礎研究

長尾 誠也 (北大院地環) : アクチノイド腐植物質錯体の特性研究

須郷 由美 (原子力機構) : 溶媒抽出法によるアクチノイドの分離に関する研究

藤原 健壮 (原子力機構) : Np の溶解度試験, 溶媒抽出法を用いた加水分解定数の評価

森田 泰治 (原子力機構) : アクチノイド溶液化学, 溶媒抽出

松村 達郎 (原子力機構) : アクチノイド元素の分離  
 目黒 義弘 (原子力機構) : アクチノイドの溶液化学, 溶媒抽出  
 桐島 陽 (東北大多元研) : アクチノイドの溶液化学・熱力学・物理化学  
 高山 努 (東北大院理) : 新規テクネチウム錯体の合成と性質の解明  
 木村 貴海 (原子力機構) : アクチノイドの溶液化学, 分離化学  
 吉村 崇 (阪大院理) : テクネチウム錯体の合成と性質  
 平田 勝 (原子力機構) : アクチノイド元素分利用抽出剤の研究開発  
 榎田 洋一 (名大エコトピア研) : アクチノイドの溶媒抽出および超臨界流体抽出  
 佐藤 正知 (北大院工) : フミン酸存在下における Am, Cm の吸着分配係数と移行挙動  
 館盛 勝一 (原案委) : 核燃料サイクルの分離技術の研究  
 矢板 毅 (原子力機構) : アクチノイド錯体化学に関する研究

### 3d 同位体化学

高橋 成人 (阪大院理) : アスタチンの化学的挙動  
 日高 洋 (広島大理) : 質量分析を用いた同位体測定による自然界での同位体分別効果  
 藤井 靖彦 (東工大原子炉研) : 化学平衡における同位体効果とこの原理に基づく同位体分離  
 秋山 和彦 (筑波大数物) : アクチノイド元素を内包した金属フラーレンの研究  
 朝野 武美 (元阪府先端研) : 標識化合物の核壊変の化学的効果の研究

### 3e ルミネッセンス, $\alpha$ 放射体

橋本 哲夫 (新潟大理) : ルミネッセンス線量測定法の開発, ルミネッセンス年代測定法, ルミネッセンスメカニズム解析  
 枋山 修 (東北大多元研) : アクチノイド化学, アクチノイドの溶液化学  
 平井 昭司 (武蔵工大工) : 環境試料および半導体試料中の U・Th 同位体と他の  $\alpha$  放射体の挙動  
 森山 裕丈 (京院工) : 核エネルギー資源のリサイクルの方法や廃棄物の処理処分に関わる放射性物質の研究  
 岡田 往子 (武蔵工大) : 環境水中のアルファ放射体測定法に関する研究  
 高橋 成人 (阪大院理) : アスタチンの化学的挙動  
 露崎 典平 (RPG テクニクス) : ランダムパルスの生成

### 3f アイソトープの挙動

菅沼 英夫 (静岡大理放射研) : 極微量金属イオンの溶液化学  
 沖 雄一 (京大原子炉) : 放射線施設で生成する放射性核種の挙動  
 林 巧 (原子力機構) : 高濃度トリチウムの反応性および各種材料中での挙動  
 梅澤 弘一 (原安委事務局) :  
 中西 友子 (東大院農) :  
 田部井 健 (東京ニュークリアサービス) : RI のバリア材への吸着, 拡散, 遅延に関する研究

### 3g 放射性標識化合物, 放射性化合物の合成, 放射性医薬品

趙 宇亮 (Chinese Academy of Science) : Radioisotope labeling of Nanoparticles  
 橋本 和幸 (原子力機構東海) : ガン治療用 RI の製造とその標識研究

- 鹿野 直人（茨城県立医療大保健医療）：膜輸送蛋白に特異的な診断薬の開発  
 丸山 芳明（城西大薬）：有用な放射性同位体の調製  
 渡辺 智（原子力機構）：放射性同位元素内包フラーレンの製造及びその化学的性質に関する研究  
 石岡 典子（原子力機構）：加速器利用 RI の製造法に関する研究  
 野川 憲夫（東大 RI セ）：放射性 Re 薬剤の合成  
 原野 有教（日本メジフィジックス創薬研）：放射性医薬品の研究開発  
 五十嵐 隆（第一ラジオアイソトープ研）：ヨード化合物，キレート化合物の合成標識とイメージング  
 鷺山 幸信（金沢大院医）：壊変系列核種の医学利用に関する研究  
 天野 良平（金沢大院医系保健学）：放射性金属による脳神経機能イメージング法の開発

#### 4a 放射化分析

- 宮本ユタカ（原子力機構）：大気浮遊塵および隕石試料の元素組成分析  
 葉袋 佳孝（武蔵大人文）：堆積物・岩石の微量元素地球化学，文化財科学への応用  
 初川 雄一（原子力機構）：  
 福島美智子（石巻専修大理工）：生物試料の中性子放射化分析・化学種分析  
 大浦 泰嗣（首都大院理工）：宇宙物質と環境試料の元素分析・分析法の開発  
 榎本 和義（高エネ研）：高純度材料及び環境試料などの分析  
 小林 貴之（日本大文理）：宇宙化学  
 平井 昭司（武蔵工大工）：環境・組成標準物質の認証値の決定，考古鉄遺物中の微量元素の挙動  
 矢永 誠人（静岡大理）：亜鉛欠乏マウス臓器中の生体微量元素の中性子放射化分析  
 河野 公栄（愛媛大農）：有機ハロゲンの環境化学  
 松尾 基之（東大院総合）：固体環境試料および地球化学的試料の放射化分析  
 小島 貞男（愛知医大医）：環境中の微量元素の分布と挙動  
 斎藤 裕子（青山学院大理工）：宇宙塵，隕石中の元素分布  
 野崎 正（ピュアレック）：超高純度物質の内部及び表面に存在する極微量軽元素の定量  
 海老原 充（首都大学東京院理工）：宇宙地球化学的試料の元素組成  
 岡田 往子（武蔵工大）：高純度鉄及び考古学資料の鉄中の微量元素の分析，標準試料の認証値決め  
 鹿野 弘二（函館高専）：光通信用材料の放射化分析  
 湯川 雅枝（放医研）：生体試料中の微量元素分析  
 本多 照幸（武蔵工大工）：地球化学及び環境試料の中性子放射化分析と微量元素の挙動  
 廣瀬 勝己（気象研）：海水中の放射性核種のスペシエーションについて  
 大森佐興子（大妻女子大）：生体・環境試料の多元素放射化分析  
 中西 友子（東大）：植物試料中の微量元素動態の解析，食品中の重金属元素分析  
 笠原 茂（北大）：葉に含まれている元素の分布研究

#### 4b 即発ガンマ線分析

- 酒井 陽一（大同工大）：ドップラー広がり法による放射化非破壊状態分析の可能性の追跡  
 鹿野 弘二（函館高専）：光通信用材料の放射化分析

大島 真澄（原子力機構）：多重ガンマ線放射化分析法，多重即発ガンマ線分析法による微量元素分析

松江 秀明（原子力機構）：即発ガンマ線分析法の研究開発

山内 繁（秋田県立大木高研）：木質材料中のホウ素分析

海老原 充（首都大学東京院理工）：

中原 弘道（元東京都立大学）：大型試料中主要元素の非破壊定量法の開発

### 5a メスバウアー分光

前田 米藏（九大院理）：スピン平衡，多核錯体など動的電子状態の研究

速水 真也（九大院理）：スピントロスコピー錯体の LIESST 現象

野村 貴美（東大院工）：高機能性鉄酸化物の物性と状態の解析

荘司 準（東京都立大院理）：中性子ビーム中における *in site* メスバウアー発光分光

村松 久和（信州大教育）： $^{57}\text{Fe}$ ,  $^{133}\text{Cs}$  メスバウアー分光法による種々の化合物中の Fe, Cs 原子の電子状態に関する研究

北澤 孝史（東邦大理）：スピントロスコピー錯体の評価

小林 義男（理研）：不安定短寿命核  $^{57}\text{Mn}$  と中性子捕獲反応を利用したインビームメスバウアー分光， $^{99}\text{Ru}$ ,  $^{151}\text{Eu}$ ,  $^{61}\text{Ni}$  のメスバウアー分光，注入原子の拡散と化学結合

酒井 陽一（大同工大）：物質科学へのメスバウアー分光の応用

中島 覚（広島大 N-BARD）：集積型錯体のスピントロスコピー現象

飯島誠一郎（産総研）：機能性鉄錯体のメスバウアー分光，分子磁性，スピントロスコピーなど

山田 康洋（東理大理）：低温マトリックス単離法による不安定化学種の研究，レーザー蒸着膜の物性

松尾 基之（東大院総合）：固体環境試料および地球化学的試料の状態分析に関する研究

佐野 博敏（大妻女子大）：分子内・分子間動的結合状態の研究

宮崎 淳（東理大理）：

西田 哲明（近畿大院産業技術）：導電性ガラス，磁性ガラス，リチウムイオン電極，リサイクル品

久保 謙哉（国際基督教大教養）：中性子および  $^{57}\text{Mn}$  インビーム法による新規不安定化合物の合成とキャラクタリゼーション

酒井 宏（甲南大理工）：二核鉄錯体の磁気的挙動

高橋 正（東邦大理）：鉄 (III) 錯体のスピン状態，Sb, I, Au, Gd 化合物の構造と結合

栄長 泰明（慶大理工）：光制御型磁性材料の創製と評価

片田 元己（首都大院理工）：鉄化合物の分子間-分子内結合状態の研究， $^{119}\text{Sn}$ ,  $^{151}\text{Eu}$  のメスバウアー分光

竹田満洲雄（東邦大理）：Ni, Sn, Sb, Te, I, Dy, Eu, Gd, Er, Au, Np のメスバウアー分光

### 5b 陽電子

近藤健次郎（高エネ研）：高分子材料中の空隙測定法の研究

鈴木 健訓（高エネ研）：陽電子消滅の基礎過程，液体や高分子材料における陽電子消滅

関根 勉 (東北大高等教育セ) : 超臨界状態における陽電子消滅機構の研究  
 工藤 博司 (元東北大理) : 超臨界流体中におけるポジトロニウム生成機構  
 木野 康志 (東北大院理) : 陽電子と物質との相互作用および消滅機構の研究  
 小林 慶規 (産研) : ポジトロニウム化学

### 5c PAC

佐藤 渉 (阪大院理) : 超微細場観察による物性研究  
 大久保嘉高 (京大原子炉) : 短寿命核を用いた物性研究  
 横山 明彦 (金沢大院自然) : 金属タンパク質の超微細場測定

### 5d アイソトープの利用

松岡 弘充 (原子力機構) : RI の製造・利用  
 今村 峯雄 (人間文化研究機構, 国立歴史民俗博物館) : 高精度  $^{14}\text{C}$  年代測定法およびその考古,  
 歴史研究への応用  
 山岡 聖典 (岡山大医) : ラドン温泉の適応症とその機構に関する研究  
 矢永 誠人 (静岡大理) : タンパク質と金属との親和性  
 田上 恵子 (放医研) : 微量元素の環境挙動解明のためのトレーサ利用  
 村松 康行 (学習院大理) : RI トレーサ実験を用いた土壌—植物—大気における元素の移行  
 遠藤 和豊 (昭和薬大薬) : 酸化ストレスと微量元素動態  
 野崎 正 (ピュアレック) : 特殊の溶液からのナノ粒子の固体表面吸着  
 卷出 義紘 (東大 RI セ) : 物質挙動のトレーサ利用解析, 地球環境試料分析  
 山林 尚道 (千代田テクノ) : アイソトープの製造, 利用技術の開発  
 中西 友子 (東大) : リアルタイムイメージング, トレーサ実験

### 6a 放射線の影響 (人体および物質)

吉岡 潤江 (静岡大理) : 生体物質の放射線損傷とそれに対する抗酸化物質による防御機構  
 山岡 聖典 (岡大医) : 低線量放射線の健康への影響と医療への応用に関する研究  
 中山 督 (東京電力) :  
 吉沢 幸夫 (東京慈恵会医科大学 RI 実験施設) : 日用品に含まれる放射能による被ばく  
 馬場 祐治 (原子力機構) : 放射光 X 線による表面改質  
 大野 新一 (理論放射線研) : 重イオン照射による水の分解過程  
 結城 秀行 (東北大院理) : 電子線照射によるラジカル生成の研究  
 関根 勉 (東北大高等教育セ) : 放射線によるナノ粒子の生成過程の研究  
 古田 悦子 (お茶の水女子大) : 放射性コンシューマープロダクトによる被ばく線量評価

### 7 放射性廃棄物, 放射線安全研究, その他

井口 一成 (原子力機構) : フィッショントラック法を用いた環境試料中の核物質の分析  
 西 正孝 (原子力機構) : 核融合炉燃料プロセスに関わる諸反応  
 篠原 伸夫 (原子力機構) : アクチノイドの核・放射化学  
 松村 宏 (高エネー研) : 加速器安全研究  
 玉木 洋一 (宮城教育大) : 原子核壊変に伴う化学的効果

- 吉田 努 (宮城県警科捜研) : 放射線を利用した分析
- 中山 真一 (原子力機構) : 放射性廃棄物処分, 地下環境における元素の挙動
- 吉川 英樹 (原子力機構) : 放射性廃棄物処分研究, 深部地下環境における微生物, 放射性核種の挙動, 考古学試料による金属安定性の研究
- 佐野 博敏 (大妻女子大) : 核壊変に伴う化学的効果—ホットアトム化学—の研究
- 佐藤 正知 (北大院工) : 放射性廃棄物処分の安全性評価に関する研究
- 塚本 政樹 (電中研) : 放射性廃棄物処分における放射性核種の移行挙動
- 大澤 孝明 (近畿大理工) : 核分裂の物理
- 末木 啓介 (筑波大院数理物質科学) : 放射化学的手法を用いた新規フラーレンの探索とその物性
- 久保 謙哉 (国際基督教大教養) : 物質中のミュオンの挙動と, ミュオンを利用した物性研究, ミュオン X 線による非破壊分析
- 吉岡 潤江 (静岡大理) : 放射線を用いる抗酸化能測定法の開発
- 大矢 恭久 (東大 RI セ) : ホットアトム化学
- 河野 公栄 (愛媛大農) : 放射化学的手法によるハロゲン分析法の開発と環境動態解析
- 松浦 辰男 (放射線教育フォーラム) : 放射線教育 (中学, 高等学校の教科書における放射線関連の記述調査)
- 篠原 厚 (阪大院理) : 中間子化学
- 吉原 賢二 (東北大名) : 科学史, 化学史で放射化学を紹介
- 関根 勉 (東北大高等教育セ) : テクネチウム科学
- 工藤 博司 (元東北大理工) : エキゾチック原子・分子のエネルギー状態, 超リチウム化分子の構造と結合状態
- 榎本 秀一 (理研) : リングサイクロトロンと AVF サイクロトロンによる RI 製造, マルチトレーサの製造
- 勝又 啓一 (地球・人間フォーラム) :
- 高橋 嘉夫 (広島大院理) : アクチノイド, ランタノイドを含めた環境中での微量元素のスペシエーション
- 高橋 正人 (東芝) : BWR 原子炉の炉心燃料に関わる全般的設計業務
- 趙 宇亮 (Chinese Academy of Science) : Application of radioisotope techniques for new materials sciences
- 塩川 佳伸 (東北大金研) : ウラン・レドックスフロー電池の研究, ネプツニウム金属間化合物の物性研究
- 市川 進一 (原子力機構) : 核反応で生成する短寿命核のオンライン同位体分離に必要なイオン源の研究開発
- 松岡 信明 (九環協) : 放射線・同位体技術の環境科学への応用
- 遠藤 和豊 (昭和薬大薬) : 胆汁酸ミセルへのステロールとコレステロールの優先的可溶化
- 柴田 貞夫 (原安セ) : 原子力防災モニタリングロボットの開発
- 今中 哲二 (京大原子炉) : 原子力施設の事故・汚染にともなう被ばくと災害規模の評価
- 橋本 雅史 (原子力機構) : 現在, 出向中
- 白神 宜史 (日本メジフィジックス) : 業務管理
- 巻出 義紘 (東大 RI セ) : 放射線安全管理
- 野村 貴美 (東大院工) : 放射線管理学

- 中島 覚 (広島大 N-BARD) : 放射線安全管理学  
 木野 康志 (東北大院理) : エキゾチック原子分子の構造および反応の研究  
 尾崎 卓郎 (原子力機構) : 放射性核種の環境挙動への微生物の作用解明  
 木村 幹 (元青山学院) : 希元素の放射化学的研究  
 坂本 浩 (元金沢大院理) : 核現象—同位体変動—から見た太陽系の進化



## 放射化学関連講義一覧

### 国内の大学における放射化学関連の開講講義名

このデータは各大学のカリキュラムにより調べたものではなく、会員からの申し出により作成されています。そのため開講学科や講義科目の取捨選択がまちまちであり、統一したものではありません。( )内の数字は単位数を示す。記載の無いものは2単位です。(非)は非常勤講師による科目です。しかし、以下のデータから、各大学の理、工、医薬系で放射化学関連の講義が広く開講され、放射化学および放射線化学の基礎的な科目は全学的に開講されていることが分かります。

開講学部あるいは学科	開講講義名 (放射化学の内容が含まれる講義名)
北海道大学工学部	放射化学, 原子工学実験Ⅰ(3), 原子工学実験Ⅱ(3), 放射線科学, 放射線計測, 加速器応用工学
総合薬学科	放射化学
獣医学科	基礎放射線学
保健学科	放射線計測学Ⅰ
秋田県立大院生物資源科学	ラジオアイソトープ取扱法および測定技術(1)
東北大学工学部量子エネルギー工学科	放射化学
理学部	放射化学 A, B (各 1), 無機分析化学概論, 放射化学実験
工学部	放射化学, 環境工学, 航空実験(1), 量子サイエンス入門
農学部	放射化学
筑波大学数理物質科学	放射化学 (隔年(1), 無機分析化学実験)
茨城県立医療大学保健医療	放射化学(1), 放射化学実験(1)
茨城大学大学院	核燃料の化学特論, 核放射化学特論

新潟大学理学部	放射化学 I, II, 無機化学実験
国際基督教大学教養部	分析化学特論
首都大学東京化学コース	放射化学 I, II
都市教養理工	放射化学 I, II
理学部共通	放射線実験法 I, II
東京大学理学部	放射化学, 分析化学無機化学実験(4)
大学院総合	システム測定学, 放射線安全学
工学部	構造解析
工学部	放射線計測化学 (大学院用)
東京慈恵会医科大学	大学院のカリキュラムの中で 32 時間
東邦大学理学部	放射化学, 放射化学概論, 放射線生物学
大妻女子大	生活環境論, 環境化学
お茶の水大学理学部	放射化学 (隔年)
東京工業大学工学部	核・放射化学, 燃料サイクル工学, 核化学と放射線化学, 放射線化学
東京理科大学理学部	無機化学(4)
薬学部	放射化学, 放射薬学
工学部	放射線化学計測(1)
立教大学理学部	放射化学
共立薬科大学	放射化学 (0.5), 放射薬品学(1), 医療系実習( )
武蔵工大工学部	放射線計測学, 放射線工学, 放射化学, 環境エネルギー基礎実験, 環境エネルギー応用実験
明治大学理工	放射化学
日本大学文理学部	放射化学 I, II, 機器実験(1)
北里大学理学部	放射化学(非)
学習院大学理学部	分析化学(3), 地球化学
青山学院大学理工	無機化学実験(1)
武蔵工業大学環境エネルギー工学科	放射線工学, 環境エネルギー基礎実験(0.5), 環境エネルギー応用実験(0.5), 放射化学
武蔵工業大学工学部	放射線計測
神奈川大学理学部	放射化学
城西大学薬学部	放射化学(1.5)
北陸大学薬学部	放射薬品学(1.5), 物理化学系実習(1), 放射薬品学特論(大学院用(1)
金沢大学医学部	放射化学(3), 放射線計測学, 放射線物理学, 臨床放射線・核医学
保健学科	放射化学, 放射化学実験, 放射性同位元素検査技術学演習, 放射線機器学, 放射線計測学, 放射線薬品学, 放射線計測学実験 I, II, 放射線生物作用学, 放射線衛生管理学
薬学科	放射化学
理学部	放射化学 I, II, 放射化学実験, 応用放射化学, 地球化学
全学	放射能・放射線と人間, ゆったり湯学, 地球年代学概論
自然科学研究科	環境放射能学, 核・放射化学



信州大学教育学部	核・放射化学, 化学特論Ⅱ(大学院用)
理学部化学科	核化学, 放射線安全実習
静岡大学理学部化学科	放射化学Ⅰ, Ⅱ, 放射化学概論
理学部	放射線計測・管理学概論, 放射線管理実習(1)
生物学科	放射化学概論, 放射線生物学概論
物理学科	放射線物理学概論
名古屋大学工学部	
医学部	放射化学及び放射線化学, 放射線計測学, 放射線管理学, 放射化学実験(1), 放射線計測学実験(3), 放射線管理学実験(1)
京都大学原子炉	物理科学課題実習, 原子核物理
工学部	放射化学, 核燃料サイクル, エネルギー理工学設計 演習実験
工学部物理工学科	放射化学
薬学部	放射化学
大阪大学理学部	放射化学Ⅰ, Ⅱ, 無機放射化学実習(1), 放射化学実験, 核化学, 無機化学
工学部電子情報エネルギー	量子エネルギー基礎論
甲南大学理工	エネルギー変換化学
近畿大学産業技術	環境材料化学
理工学部	量子線工学, 放射化学(薬学部用)
岡山大学医学部	放射化学, 放射化学実験(1), 放射線計測学(1), 放射線計測学実験, 放射線安全管理学, 放射線安全管理学実験(1)
広島大学理学部化学科	放射化学, 地球化学実験, 宇宙化学, 固体地球化学(1)
地球惑星システム学科	固体地球化学
総合科学部	放射線と自然科学
工学部	応用原子核物理学
広島国際大学保健医療学部	放射化学, 放射化学実験(1), 放射線計測学, 放射線計測学実験(1)
徳島大学医学部	放射化学Ⅰ, Ⅱ, 放射化学実習(1), 核医学計測学実習(1)
徳島文理大学薬学部	放射化学
九州大学全学	放射線とは何だろうか, 自然科学概論
理学部化学科	放射化学Ⅰ, Ⅱ, 分析化学実験
工学部	量子線物理計測, 量子理工学実験, 創造科学工学基礎実験
薬学部	放射化学Ⅰ, Ⅱ
医学部	放射線基礎医学, 臨床検査・放射線医学
歯学部	歯科放射線学・口腔画像診断学
保健学科	放射化学, 放射化学実験, 放射線計測学, 放射線計測学実験Ⅰ, Ⅱ, 放射性同位元素検査機器学, 放射線機器学実験, 加速器概論放射線管理学, 放射線管理学実験, 放射線診断物理学
福岡大学理学部	放射化学Ⅰ, Ⅱ, 放射化学実験, 分析化学実験
熊本大学理学部	原子分子化学
医学部	基礎放射線画像検査学, 放射化学, 放射化学演習, 放射線医学, 放射線計測学, 放射線治療計測学, 放射線物理学Ⅰ, Ⅱ, Ⅲ

## 薬学部 放射化学 I, II, 放射薬品学

(非)は非常勤講師による講義科目を示す。その他下記の大学で放射化学関連の講義が開催されている。

北陸先端大学

金沢医科大学

中央大学理工学部 基礎科学

茨城大学理学部 放射化学

福山大学薬学部 放射化学

お茶の水女子大学理学部 放射化学

早稲田大学理工学部 放射化学

横浜国立大学工学部 無機化学

RI施設、X線作業施設を持っている大学、研究所では放射線作業従事者の初期研修、及び再講習を行っている。これらの施設で放射線作業取り扱い主任者となっている会員は48名にものぼる。このことは放射線作業取り扱い業務の管理者には放射化学出身者が適務であることを示している。

## 放射化学会賞受賞者一覧

会員の多くは、日本放射化学会設立以前には放射化学と学問的に密接に結びついている学会である日本化学会、日本分析化学会、日本原子力学会など他の学会に多重に在籍しています。そのためこれらの学会から受賞された方が多数おられます。他学会からの受賞者も掲載すべきですが、研究の境界が明確でないため、日本放射化学会からの受賞者のみを掲載することにしました。学会賞には、学会賞(木村賞)、学会賞、奨励賞の3つがあります。さらに2006年からはJNRS誌論文賞を設けることにしました。

### 日本放射化学会からの受賞者一覧

#### 日本放射化学会賞(木村賞)

2000-2001年度 佐野 博敏 「核壊変に伴う化学的後遺効果(ホットアトム効果)の発光メスbauer分光学的研究」

#### 学会賞

2003-2004年度 永目 諭一郎 「ラザホージウム等の核化学研究における新展開」

2004-2005年度 竹田 満洲雄 「多くの核種のメスbauer分光による無機化合物の構造と結合状態に関する研究」

2005-2006年度 大槻 勤 「フラーレンに内包されたベリリウム-7の半減期短縮と電子状態」  
奨励賞

1999-2000 年度

- 速水 真也 「メスバウアー分光法を用いた動的電子状態に関する研究」  
 塚田 和明 「新アクチノイド核種の発見と中性子不足アクチノイド核種の壊  
 変特性に関する研究」

2000-2001 年度

- 羽場 宏光 「中高エネルギー光核反応の放射化学的研究 -核破砕ならびに核  
 分裂反応の核反跳法による動力学的研究-

2001-2002 年度

- 田上 恵子 「環境試料中の Tc-99 の分析ならびに環境挙動の解明に関する研  
 究」

2002-2003 年度

- 佐藤 渉 「新規  $\gamma$  線摂動角相関法の開発とフラーレンの物性研究への展開」

2003-2004 年度

- 高橋 嘉夫 「アクチノイドおよびランタノイドの環境中での錯生成ならびに  
 固相吸着に関する研究」

2004-2005 年度

- 桐島 陽 「水溶液中における 4 価ウランイオンの発光現象の研究」  
 加治 大哉 「ヘリウムガス中を運動する超重元素の平均平衡電荷に関する基  
 礎研究 - 超重元素合成実験への寄与 -」  
 松村 宏 「中高エネルギー領域における軽核生成核反応の研究」

2005-2006 年度

- 北辻 章浩 「液液界面イオン移動反応の電気化学的研究とアクチノイド分離  
 への応用」  
 鈴木 達也 「3 級ピリジン樹脂を用いるランタノイドとアクチノイドの分離」

## 名誉・外国人特別会員一覧

### (1) 国内名誉会員

- 天野 恕 元名古屋大学教授  
 池田 長生 日本アイソトープ協会  
 岩田 志郎 京都大学名誉教授  
 河村 正一 神奈川大学総合理学研究所  
 木越 邦彦 加速器分析研究所白河センター  
 木村 幹 青山学院大学名誉教授  
 齋藤 信房 東京大学名誉教授  
 佐野 博敏 大妻女子大学  
 高島 良正 (財)九州環境管理協会  
 夏目 晴夫 元原研特別研究員  
 野崎 正 理化学研究所名誉研究員

藤原 一郎 追手門学院大学  
 本田 雅健 東京大学名誉教授  
 松浦 辰男 放射線教育フォーラム  
 吉原 賢二 東北大学名誉教授

## (2) 外国人特別会員

Darlane C. Hoffman Nuclear Science Division, Lawrence Berkeley National Laboratory,  
 University of California  
 F. Sherwood Rowland University of California, Lrvine  
 Gregory R. Choppin Department of Chemistry, The Florida State University  
 Jean-Pierre Adloff Universite Louis Pasteur (Centre de Recherches, Nucleaires Chimie  
 Nucleaires)  
 Robert E. Jervis Chemical Engineering and Applied Chemistry, University of Toronto  
 Rolfe H. Herber Racah Institute of Physics, The Hebrew University of Jerusalem

## 放射化学討論会の開催地の歴史

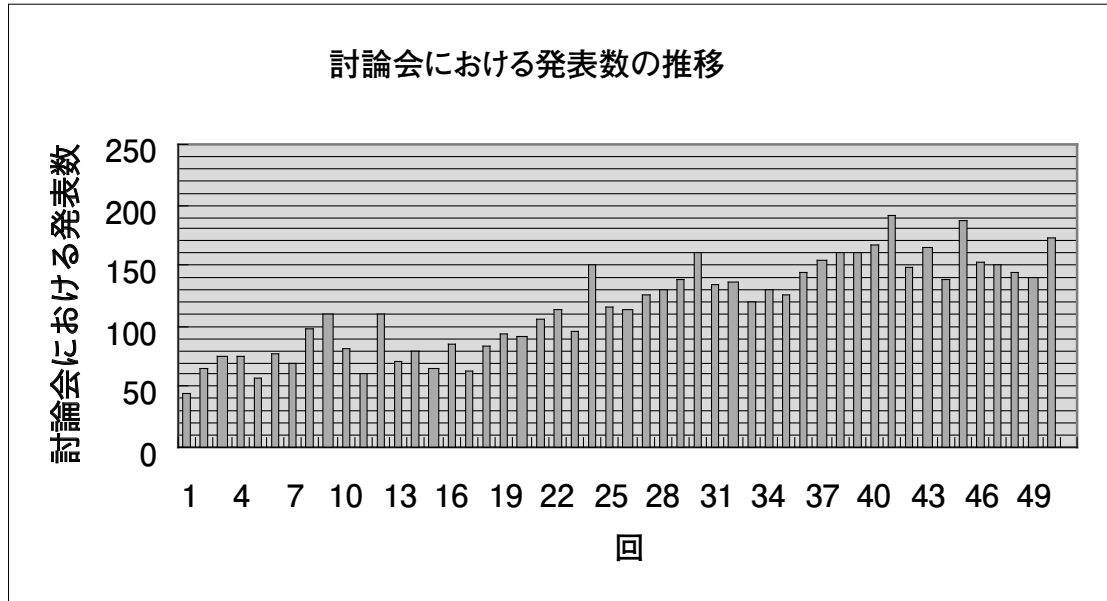
放射化学討論会および放射化学年会は日本化学会、日本分析化学会、日本原子力学会及びこれらの支部との共催のもとに開催されてきました。近年は日本薬学会の共催支援も頂いています。下記に放射化学討論会から引き続いている日本放射化学会年会の過去 50 年の開催地について纏めています。討論会における発表数をグラフ化したものを次のページに示しました。年会の開催地は日本全国を巡っています。発表会への参加者の数は年ごとに増えていますが、今後は若い学生の参加、および発表会と同時に社会に開放された年会の形態、社会へのアピールが望まれています。第 25 回討論会（筑波）では第 25 回放射化学討論会記念誌が、第 40 回討論会（和光）では記念資料が発行されました。

## 放射化学討論会（年会）開催地一覧

回	開催期日	開催地	世話人	発表論文数**	主な特別講演者等
1	1957 12/20 ~ 22	東京・学士会館	東大理 斎藤信房	44	木村健二郎
2	1958 11/2 ~ 3	京都・京都大学	京大理 石橋雅義	65	G.V.Hevesy, F. Feigl
3	1959 10/8 ~ 10	静岡・静岡大学	静岡大理 塩川孝信	76	山本 寛, 菅 浩一, 石橋雅義, F.S.Rowland
4	1960 10/6 ~ 8	東海・原研	原研 中井敏夫	76	P.C.Stewart
5	1961 10/30 ~ 11/1	東京・立教大学	立教大理 奥野久輝	46	吉田 稔, 角谷省三, 高石哲男
6	1962 10/4 ~ 6	金沢・金沢大学	金沢大理 木羽敏泰	78	飯盛里安, 田中 穰
7	1963 9/26 ~ 28	仙台・東北大学	東北大理 塩川孝信	70	木越邦彦, 木村健二郎

8	1964 11/4 ~ 7	大阪・科学技術センター	阪大工 品川睦明	97	清水 栄, 本田雅健
9	1965 10/11 ~ 14	広島・広島大学	広島大理 山本勇麗	108	柴谷篤弘, 垣花秀武, R.E.Jervis, 斎藤信房
10	1966 10/5 ~ 8	東海・原研	原研 中井敏夫	82	品川睦明, 清水 己, F.H.Spedding, T.A.Carlson
11	1967 10/6 ~ 8	東京・東京教育大学	東教大理 池田長生	59	渡辺 鑲, J.P.Adloff, 長谷川博一
12	1968 10/28 ~ 30	熊本・熊本大学	熊本大工 四宮知郎	107	B.Dzantiev, 濱口 博, P.Faugeras, 園田正明
13	1969 10/16 ~ 18	名古屋・市立科学館	名大理 山寺秀雄	68	笛木賢二, 早川幸男
14	1970 10/21 ~ 23	千葉・放医研	放医研 伊沢正実	79	田中栄一, 佐野博敏
15	1971 10/23 ~ 26	宇治・京大化研	京大化研 重松恒信	64	吉原賢二, 眞室哲雄
16	1972 10/11 ~ 13	新潟・新潟大学	新潟大理 小山誠太郎	84	岩田志郎, 三宅泰雄
17	1973 11/15 ~ 16	東京・学士会館	東大理 濱口 博	64	本田雅健, A.P.Wolf
18	1974 10/4 ~ 5	仙台・東北工業大	東北大理 塩川孝信	81	P.K.Kuroda, J.P.Adloff, G.Stocklin
19	1975 10/17 ~ 19	福岡・九州大学	九大理 高島良正	93	大野和郎, 木越邦彦, N.Rativanich
20	1976 10/4 ~ 6	静岡・静岡大学	静岡大理 神原富尚	93	松浦二郎, 斎藤信房, 塩川孝信, 品川睦明
21	1977 10/5 ~ 7	辰口・総合福祉会館	金沢大 阪上正信	106	A.Veress, 三宅泰雄
22	1978 10/1 ~ 3	東京・都立大目黒	都立大理 村上悠紀雄	107	J.A.Jungerman, 中井洋太
23	1979 10/11 ~ 13	豊中・大阪大学	阪大理 音在清輝	96	森田正人, 井本正介
24	1980 10/28 ~ 30	弘前・弘前市民会館	弘前大医 篠崎達世	154	木村健二郎, 高橋信次, 村上悠紀雄, F.S.Rowland
25	1981 10/7 ~ 9	筑波・研究交流センター	筑大化学系 池田長生	116	由良 治, D.C.Walker
26	1982 10/2 ~ 4	新潟・新潟大学	新潟大理 外林 武	119	佐野博敏
27	1983 10/21 ~ 23	名古屋・名古屋大学	名大理 山寺秀雄	126	内藤奎爾, 恒元 博
28	1984 10/3 ~ 5	神戸・甲南大学	甲南大理 日下 讓	133	西村 進
29	1985 10/1 ~ 3	船橋・東邦大学	東邦大理 斎藤信房 竹田満洲雄	140	野崎 正, 藤井 勲, B.F.Myasoedov, T.Braun
30	1986 10/22 ~ 24	仙台・仙台市記念館	東北大金研 鈴木 進	161	P.K.Kuroda, D.N.Hendrickson
31	1987 10/13 ~ 15	福岡・九州大学	九大理 高島良正	133	T.T.Sugihara, 西脇 安
32	1988 10/3 ~ 5	東海・原研	原研東海 立川圓造	121	H.R.von Gunten, J.Alstad
33	1989 10/4 ~ 6	広島・広島大学	広島大理 市坡純雄	127	吉沢康和, P.Gutlivh
34	1990 10/1 ~ 3	東京・学士会館	東大理 富永 健	131	G.R.Choppin, 永嶺謙忠
35	1991 11/1 ~ 3	大阪・大阪大学	阪大理・馬場 宏	127	池谷元伺, G.Stocklin
36	1992 10/26 ~ 28	東京・都立大理	都立大理・佐野博敏, 中原弘道	147	D.C.Hoffman, 広瀬立成, A.G.Maddock, R.H.Herber
37	1993 10/6 ~ 8	金沢・金沢大学	金沢大理・坂本 浩, 上野 馨	155	石原健彦, 更田豊治郎,

					G. F. Herrmann
38	1994 9/26 ~ 28	静岡・静岡大学	静岡大理・長谷川罔彦,	161	J.V.Kratz, P.P.Povinec, 森永晴彦
39	1995 10/2 ~ 4	新潟・新潟大学	新潟大理・橋本哲夫	161	阪上正信, Frans De Corte, Veronique Michel,
40	1996 10/22~24	東京・理研	理研・安部文敏	166	谷畑勇夫, Y.Liu,
41	1997 10/6-9	熊本・熊本大学	熊大工・岸川俊明	35+189	N.M.Spirou, J.W.Muller, D.C.Hoffman, H.Hidaka, B.D.Amiro, M.Takahashi, M.D., P.Gutlich
42	1998 9/16 ~ 18	仙台・仙台国際センター	東北大院理・工藤博司	151	早野龍五, M.Schadel, J.I.Kim
43	1999 10/13~15	筑波・筑波国際会議場	KEK・近藤健次郎	164	永宮正治, K.E.Gregorich
44	2000 9/12 ~ 14	神戸・甲南大学	甲南大理・酒井 宏	139	菊田惺志, 赤星光彦
45	2001 10/30~11/1	福岡・都ホテル	九大院理・前田米藏	188	J.V.Kratz, R. M.Lindstrom, R.H.Herber, Y. Liu, H.Kudo
46	2002 9/23 ~ 25	札幌・かでる	北大 RI セ・大西俊之	154	S.Hofmann, 大熊康修, 桑原幹典, 鬼柳善明
47	2003 10/1 ~ 3	大阪・泉の森ホール	京大原子炉・柴田誠一	151	今西信嗣, 三島嘉一郎, A.Vertes, 西川公一郎, 今村峯雄
48	2004 10/27~29	東京・東京大学	東大 RI セ・巻出義紘	145	G.Klingelhofer, 西原寛
49	2005 9/28 ~ 30	金沢・観光会館	金沢大理・中西 孝	140	藤林靖久, 鈴木厚人 V.P.Shantarovich
50	2006 10/24 ~ 27	水戸及び東海	原子力機構・吉田善行	189	A.Chatt, Y.F. Liu, D.C.Hoffman
					今村峯雄, 中西友子, 海老原充, 永目諭一郎, 中原弘道, 前田米藏, 斎藤信房



## 年 表

年	新元素の発見 および合成	世界と日本の状況
1895 (明治 28)		東京化学会設立は 1879 年, 日本薬学会設立は 1880 年 (明治 13 年) です。 X線の発見 (レントゲン)
1896 (明治 29)		ウランの放射能の発見 (ベックレル)
1898 (明治 31)	${}_{84}\text{Po}, {}_{88}\text{Ra}$	ポロニウム・ラジウムの発見 (キュリー)
1905 (明治 38)		北投石の発見 (岡本要八郎)
1908 (明治 41)		ガイガー計数管
1911 (明治 44)		霧箱の発明 (ウィルソン)
1913 (明治 46)		同位体の発見 (ソディール)
1917 (大正 06)		財団法人理化学研究所設立
1918 (大正 07)		天然放射性トレーサー利用開始 (ヘベシー) 工業試験所を東京工業試験所に改称
1922 (大正 11)		このころ IM 泉効計の開発 (飯森里安)
1927 (昭和 02)		X線による突然変異の確認
1928 (昭和 03)		ICRP (国際放射線防護委員会) の前身設立
1932 (昭和 07)		中性子の発見 (チャドウィック)
1934 (昭和 09)		人工放射能発見 (キュリー)
1937 (昭和 12)	${}_{43}\text{Tc}$	テクネチウムの発見 (セグレ) 理研サイクロトロン運転開始 →人工放射線・アイソトープの利用開始
1939 (昭和 14)	${}_{93}\text{Np}, {}_{87}\text{Fr}$	核分裂の発見 (ハーン)
1940 (昭和 15)	${}_{85}\text{At}, {}_{94}\text{Pu}^*$	
1945 (昭和 20)	${}_{95}\text{Am}, {}_{96}\text{Cm}^*$	広島原爆, 長崎原爆 日本無条件降伏, 国連設立 GHQ 理研サイクロトロンを破壊・投棄 →日本国内でのアイソトープの製造・利用中断
1946 (昭和 21)		米国でアイソトープの一般利用開始 日本国憲法公布
1947 (昭和 22)	${}_{61}\text{Pm}$	米国でアイソトープの国外提供開始 炭素-14 年代測定法
1948 (昭和 23)		大気圏内核実験の最盛期 商工省工業技術庁設立
1949 (昭和 24)	${}_{97}\text{Bk}$	ソ連第 1 回核実験 京都大学放射性同位元素研究委員会発足
1950 (昭和 25)	${}_{98}\text{Cf}$	日本に米国から寄贈のアイソトープ第 1 便到着→東大・理研等で利用再開 日本に政府貿易によるアイソトープ第 1 便入 (人工 RI Sb-125) 東京大学 RI 委員会 ICRP (国際放射線防護委員会) 発足
1951 (昭和 26)		日本放射性同位元素協会創立 東京大学放射性同位元素総合研究室開設 日米講和条約締結 日本に民間貿易によるアイソトープ第 1 便入荷 米国で世界初の原子力発電



年	新元素の発見 および合成	世界と日本の状況
1952 (昭和 27)	$^{99}\text{Es}$ , $^{100}\text{Fm}$	京都大学放射性同位元素総合研究室開設 理研にサイクロトロン再建 日本分析化学会設立
1953 (昭和 28)		国連総会でアイゼンハワー米大統領の「Atoms for Peace」演説 理研サイクロトロンによる国産アイソトープの配分開始
1954 (昭和 29)		ビキニ事件 東京大学にビキニ灰, 10 数核種分析, 静岡大学 22 核種分離確認 俊鶴丸によるビキニ水域調査
1955 (昭和 30)	$^{101}\text{Md}$	原子力研究所設立 (1959 開所) 原子力基本法公布 東京大学原子核研究所設立 人形峠で放射能鉱床を発見
1956 (昭和 31)		京都大学工学研究所に原子核工学研究所開設 原子力委員会発足, 日本原子力研究所発足, 原子燃料公社設立 科学技術庁発足, 日本が国連に加盟 天然原子炉の予言 (黒田和夫)
1957 (昭和 32)		東京大学理学部に放射化学講座開設, 放射線障害防止法公布 IAEA (国際原子力機関) 憲章発効 日本原子力研究所研究用 1 号炉臨界, 放射線医学総合研究所創立 第 1 回放射化学討論会
1958 (昭和 33)	$^{102}\text{No}^*$	大阪大学理学部に放射化学講座開設, 静岡大学文理学部に放射化学研究施設の設置認可, R.L.Mössbauer によるメスバウアー効果の発見
1959 (昭和 34)		日本原子力学会設立, 東北大学理学部に放射化学講座開設, 静岡大学文理学部に高放射能実験室設置
1960 (昭和 35)		大阪大学工学部に原子炉工学講座開設 日本原子力研究所 JRR-2 炉臨界
1961 (昭和 36)	$^{103}\text{Lr}$	立教大学研究用原子炉臨界 金沢大学理学部に放射化学講座開設
1962 (昭和 37)		原研から国産アイソトープ配分開始 大気圏内核実験の最盛期
1963 (昭和 38)		武蔵工業大学研究用原子炉臨界 日本で最初の原子力発電
1964 (昭和 39)	$^{104}\text{Rf}$	京都大学研究用原子炉臨界 第 1 回中国核実験, 中国第 1 回核実験による $\text{Np-239}$ を金沢で検出
1965 (昭和 40)		日本における最初のポジトロニウム観測 (田端, 長谷川, 小方) 東京教育大学に放射化学講座開設, 熊本大学工学部に「放射能および分析化学」講座開設
1967 (昭和 42)		九州大学理学部に放射化学講座開設, 名古屋大学理学部に放射化学講座開設, 4th International Hot Atom Chemistry Symposium (京都)
1969 (昭和 44)		米国スリーマイル島原発事故
1970 (昭和 45)	$^{105}\text{Db}$	①東京大学アイソトープ総合センター設置
1971 (昭和 46)		②京都大学アイソトープ総合センター設置 高エネルギー物理学研究所設立
1974 (昭和 49)	$^{106}\text{Sg}$	原子力船「むつ」放射線漏れ事故
1975 (昭和 50)		③筑波大学アイソトープセンター設置

年	新元素の発見 および合成	世界と日本の状況
1976 (昭和 51)		④名古屋大学アイソトープ総合センター設置 金沢大学 LLRL 設置
1977 (昭和 52)		⑤東北大学サイクロトロン・アイソトープセンター設置
1978 (昭和 53)		⑥北海道大学アイソトープ総合センター設置 NEET の存在を実験的に確立 (音在清輝) ICAME (京都)
1979 (昭和 54)		米国スリーマイル島原発事故
1980 (昭和 55)		⑦金沢大学アイソトープ総合センター設置, 放射化学討論会 25 回記念, ⑧九州大学アイソトープ総合センター設置
1981 (昭和 56)	$_{107}\text{Bh}$	
1982 (昭和 57)		⑨大阪大学アイソトープ総合センター設置
1983 (昭和 58)	$_{108}\text{Hs}$	
1984 (昭和 59)	$_{109}\text{Mt}^*$	
1986 (昭和 61)		ソ連チェルノブイリ原発事故 このころから高強度陽電子ビームの発生
1987 (昭和 62)		⑩岡山大学アイソトープ総合センター設置 13th International Hot Atom Chemistry Symposium (富士)
1991 (平成 03)		⑪長崎大学アイソトープ総合センター設置
1992 (平成 04)		⑫千葉大学アイソトープ総合センター設置
1993 (平成 05)		⑬新潟大学アイソトープ総合センター設置
1994 (平成 06)	$_{111}\text{Rg}$	⑭熊本大学アイソトープ総合センター設置
1995 (平成 07)	$_{110}\text{Ds}$	⑮広島大学アイソトープ総合センター設置
1996 (平成 08)	$_{112}\text{X}$	⑯神戸大学アイソトープ総合センター設置
1997 (平成 09)		APSORC 発足 (熊本), ⑰東京工業大学アイソトープ総合センター設置
1998 (平成 10)		⑱東京医科歯科大学アイソトープ総合センター設置
1999 (平成 11)	$_{114}\text{X}$	⑲鹿児島大学アイソトープ総合センター設置 日本 JCO 臨界事故 日本放射化学会設立
2000 (平成 12)		⑳徳島大学アイソトープ総合センター設置
2001 (平成 13)		第 2 回 APSORC (福岡), (21)鳥取大学アイソトープ総合センター設置
2005 (平成 17)	$_{113}\text{X}$	第 3 回 APSORC (Nanjing) 113 番元素合成の発表 (森田浩介, 他)
2006 (平成 18)		放射化学討論会 50 周年記念

\* 発見年については諸説があり, 編集委員会では世界的に認められている情報を確認できません  
でしたのでその一つを掲載しています。日本放射化学会が認定しているわけではありません。

\*\* この歴史年表は金沢大学で私的に書かれた表をもとに追記して作成しています。

# 編集者一覧

第2章は各節に責任編集者を定めて、編集を行いました。資料編は編集部で資料を集めて編集しました。最後に中原弘道と坂本浩および富田功と古川路明が全体の校正と監修を行いました。責任編集者は下記の方にお願ひしました。各節の執筆者はその節の初めに記してあります。

- |                        |                    |
|------------------------|--------------------|
| 2.1 核化学                | 責任編集者：篠原 厚         |
| 2.2 宇宙・地球核化学           | 責任編集者：坂本 浩, 柴田 誠一  |
| 2.3 ホットアトム化学           | 責任編集者：酒井 陽一, 山田 康洋 |
| 2.4 放射性核種の分離分析・挙動・溶液化学 | 責任編集者：中西 孝         |
| 2.5 放射化分析および放射化学分析     | 責任編集者：海老原 充        |
| 2.6 環境放射能              | 責任編集者：百島 則幸        |
| 2.7 核をプローブとする化学        | 責任編集者：前田 米蔵        |
| 2.8 関連領域               | 責任編集者：前田 米蔵        |

## 参考資料

- 第25回放射化学討論会記念 日本の放射化学25年 筑波大学 池田長生 1981年  
第40回放射化学討論会 記念資料 理化学研究所 安部文敏 1996年  
「日本の化学—100年のあゆみ」 日本化学会, 井本稔 著, 化学同人, 1978年  
「博覧精思」 金沢大学 坂上正信 1997年  
「放射能研究の初期の歴史」 清水 榮, 丸善出版サービスセンター, 2004年  
「遠き峰々—木村健二郎その時代」, 木村健二郎先生記念誌編集委員会, 岩波ブックサービスセンター 1990年

## あ と が き

今年、放射化学討論会が50周年を迎えるおめでたい年となりました。学問においては、長く蓄積された知識が尊い研究成果をもたらすと考えられます。私たちの研究成果はpdfファイルに保存され、未来の研究に向かつての礎になって行かろう。

このような記念すべき年を前に、日本放射化学会では理事会のもとに、記念事業計画が持たれました。

1. 記念式典
  2. 「放射化学研究50年のあゆみ」の刊行
  3. 放射化学討論会講演要旨集全巻のpdf化とDVDの作成
  4. 「放射化学用語辞典」の刊行
  5. 放射化学教科書の企画・編集
3. は巻出義紘副会長のもとに、4. は吉田善行副会長のもとに進められ、5. は中原弘道元会長のもとに編集委員会が設置されています。2. は次のメンバーからなる「日本の放射化学研究50年のあゆみ」編集委員会がつけられ、その編集委員会のもとに纏められました。

委員長 前田 米藏（九州大学理学部）  
委員 白田 重和（日本原子力研究開発機構）  
篠原 厚（大阪大学理学部）  
中西 孝（金沢大学理学部）  
山田 康洋（東京理科大学理学部）

また、理事会とは別に、放射化学討論会創設50周年記念事業 組織委員会が組織された。組織委員会は、上記記念事業を成功させるために募金活動をして来ました。委員長 中原弘道（元東京都立大学）委員（五十音順）天野良平（金沢大学）、白田重和（日本原子力研究開発機構）、海老原充（首都大学東京）、大槻 勤（東北大学）、大森 巍（元静岡大学）、奥野健二（静岡大学）、岸川俊明（元熊本大学）、工藤久昭（新潟大学）、工藤博司（元東北大学）、久保謙哉（国際基督教大学）、近藤健次郎（高エネルギー加速器研究機構）、斎藤 直（大阪大学）、酒井陽一（大同工業大学）、坂本 浩（元金沢大学）、佐藤正知（北海道大学）、篠原 厚（大阪大学）、篠原伸夫（日本原子力研究開発機構）、柴田誠一（京都大学）、鈴木健訓（高エネルギー加速器研究機構）、関根 勉（東北大学）、飛田和則（日本原子力研究開発機構）、中島 覚（広島大学）、中西 孝（金沢大学）、中西友子（東京大学）、平井昭司（武蔵工業大学）、前田米藏（九州大学）、巻出義紘（東京大学）、榎本和義（高エネルギー加速器研究機構）、三浦一（高エネルギー加速器研究機構）、三頭聡明（東北大学）、薬袋佳孝（武蔵大学）、村松康行（学習院大学）、百鳥則幸（熊本大学）、森山裕丈（京都大学）、山田康洋（東京理科大学）、山名 元（京都大学）、吉田善行（日本原子力研究開発機構）

記念誌の作成にはまず会員の個人データが必要であるので、2005年年会のうちに日本放射化

学会員にアンケート用紙を配布して、研究テーマの登録をしてもらいました。回収率が60%を超えたところで、アンケート用紙の回収の催促をやめました。歴史を紐解くことが多い事業であり、データの正確さを求めようとすると多大な時間がかかります。執筆原稿を含め、できるだけ正確になるように気をつけましたが、文献が2次データになることも多く、不正確なことも多いかも知れません。また、編集委員会としては、できるだけ記事やデータの均一性に努めたつもりですが、編集委員が古き時代を細かく回顧できないために、原稿が一部の分野に偏り、そのためにデータの記載漏れや、データの均一性が保持されていないのではないかと恐れます。その責任は当編集委員会にあります。一部の執筆者には多大な原稿をお願いし、多くの時間を執筆に割いていただき、感謝に堪えません。この冊子は平成18年9月に出版する予定でしたが、1年遅れの出版になりました。そのため会長をはじめ役職などが交代になっておりますが、当時の肩書きでまとめております。

放射化学の研究は原子炉など設備に依存する部分が多大にありますが、原子炉の廃炉が続いています。それとともに研究内容も変わりつつあります。一時代をおう歌したホットアトムの研究はその典型的な例であります。しかし放射化学の研究には未開拓の領域が数多く残されています。研究費と比例して研究は発展していくことを考えますと、放射化学の研究は民間からの助成金の得にくい研究領域であり、会員は自前の研究費の捻出に苦勞しています。次世代のエネルギーは原子力であり、原子力を安全に扱う学生の確保が急務であります。原子力産業を支える労働者には放射化学出身者が多いと思われれます。優秀な労働者を育てるには優秀な人材を確保する必要があります。科学研究資金の配分に再考あることを望みます。放射化学の研究分野には若い学生を含めて優秀な人材が大勢いることは指導する側にとっても心強いกำลังใจであります。次世代の平和で豊かな社会を実現するために、放射化学の基礎研究の発展が大きな役割を果たすことが期待されます。時代は長い経済インフレから脱出しようとしており、これから科学の基礎研究への資金も豊かになることを期待していきたい。

50周年を迎え、この小冊子から先達の足跡を顧み、さらに新しい時代へ向けて新しい発想で、先端的研究の励みになれば幸いです。

「放射化学研究 50年のあゆみ」編集委員長 前田 米藏

放射化学研究 50 年のあゆみ

---

平成 19 年 9 月 23 日 発行

編 者： 日本放射化学会

発行者： 「放射化学研究 50 年のあゆみ」編集委員会

発行所： 日本放射化学会

〒 319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

日本原子力研究開発機構 高度環境分析研究棟(CLEAR)内

E-mail: [jnrs.office@radiochem.org](mailto:jnrs.office@radiochem.org)