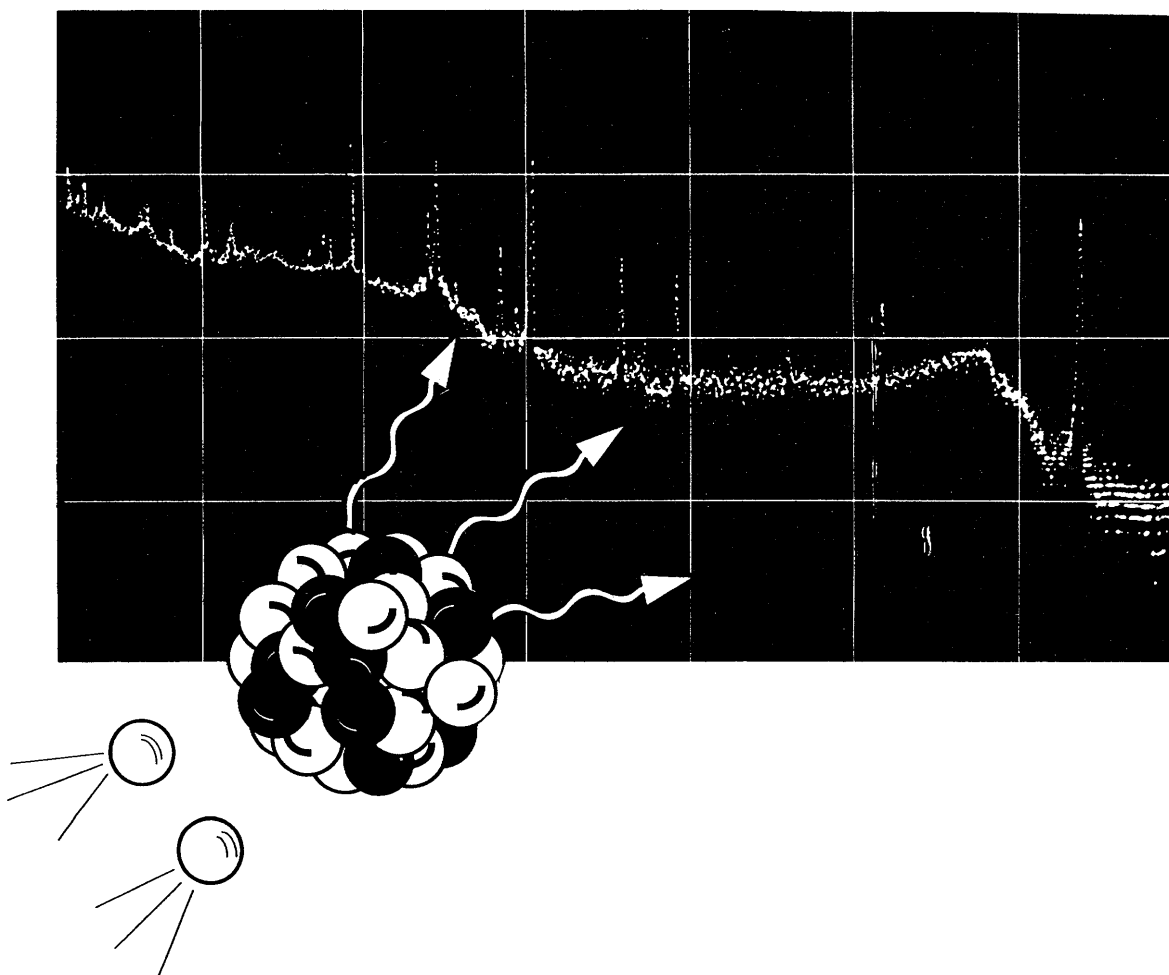


1997年11月

放射化分析

No. 6



放射化分析研究会

放射化分析研究会

Japan Association of Activation Analysis

(JA³)

会誌「放射化分析」

Activation Analysis

題字は 川又睦子さん（大学開放研究室）によるものです。
表紙は 岡田往子さん（武蔵工大原研）によるものです。

目次

特別寄稿

退職にあたって 木村 幹 先生 ... 1

いま思うこと - 放射能とつきあって40余年 古川路明 先生 ... 3

特集 中性子放射化分析に利用される照射孔の中性子束変動

・京大炉の中性子束変動と放射化分析法での分析値誤差について 松下録治 ... 7

・立教炉における中性子束の変動について 戸村健児

・立教炉における照射試料中の中性子束の変動について 海老原充

・武蔵工大炉における中性子束の変動について 鈴木章悟

・原研炉の放射化分析用照射設備における中性子束の変動 原研・研究炉利用課

研究紹介

放射化分析で見た葉面付着エアロゾルの元素組成特性とその植生生態 ... 27

高松武次郎、佐瀬裕之、高田実弥、松下録治

機器中性子放射化分析法による中国製生薬製剤中の微量元素の定量 ... 32

遠藤和豊、串田一樹、矢永誠人、太田英樹、

蛭沼利江子、本田智香子、塚田正道

若い声 放射化分析の魅力 片岡達彦 ... 36

放射化分析についての雑感 篠塚一典 ... 37

資料

放射化分析ソフトウェアに関するアンケート調査のまとめ 鈴木章悟 ... 38

標準物質について (ホームページ紹介) 武内孝之 ... 44

談話室 北京の放射化学関連研究施設を訪ねて 海老原充 ... 47

研究会報告

第34回 理工学における同位元素研究発表会 ... 53

APSORC-1 / SORC-41

放射化分析支援システム研究会

動向

研究用原子炉の現状と今後のあり方 伊藤泰男 ... 59

立教大学原子炉の共同利用継続に関する要望の運動 ... 69

編集後記 ... 70

会員名簿 ... 71

広告 ... 76

木村 幹 先生 (元青山学院大学)

思えば、青山学院大学に呼んでいただいたのは昭和46年(1971)年であった。理事長の大木金次郎先生は採用の辞令を渡しながら「うちは原子力はやりません」といわれた。その時とっさに、これは「うちは原子炉はもちません」という意味であると理解してしまったが、その後のいろいろな状況から、この直観的“読み替え”は正しかったと考えている。同じ年の10月には、立教学院理事会が立教炉閉鎖を決められたことに立教炉利用希望者が署名を集めて存続を願い出ようという緊急の手紙が回っている。立教炉は昭和36年(1961)年12月8日臨界に達しているから、10年の節目を迎えていたことになる。そうして、多くの先輩方の努力と才知により東大原子力研究総合センターを窓口にして共同利用研究に供されるまでには、なお3年の歳月を要したが、特にこの共同利用研究が公私立機関にも開かれた形で始まったことは、前述のわが理事長の発言もあることで、まことに心に食い入る痛みとそれに百倍千倍する喜びと感謝を覚えた。それより24年、今年度もより濃密な形で立教炉の共同利用研究が進んでいる由、小回りのきく原子炉の利用として研究と教育に対する国家的貢献ははかりしれない。

話は前後するが、私大に移って一つの悩みは、研究目的にあった原子炉を如何に時間的、費用的に有効に利用できるかであった。と、公立大の某先生より、京大炉は私大にも開かれている旨教わった。中性子フルエンスは申し分なく、早速申請し初年度打ち合わせ採択の知らせを受けたときは本当に嬉しかった。ホットラボ部門の岩田志郎先生が担当になって下さり、下半期から試験照射、放射化分析の道が開かれた。いよいよ本番、それは岩石中の貴金属の定量であった。貴金属は通性として金属になりやすく、あるいは硫化物を作りやすい。全貴金属を一からげに集められないか。例えば、1gのケイ酸塩岩石と少量の金属・硫化物の熔融体間の分配は、金属あるいは硫化物とるつぼの純度さえよければ有望と考えられるが、融解のための炉は経常の予算ではそう簡単には買えず、少量の陰イオン交換樹脂に不溶解成分ともども捕集することや、水銀に集めることなども検討したが、一網打尽という思惑通りにはなかなかならなかった。メンデレエフ以来、一組の元素族として扱われてきた8族元素も今やIUPACの推奨により、8, 9, 10族と分けて呼ばれるようになってきている。新8族のオスミウム、ルテニウムは酸化されて四酸化物になりやすいなど、個々の元素族は相応の特性を持っていること当然とも言える。こうして放射化前に全貴金属を予備的に濃集する試みは、断念し、正当的な放射化後に放射化学分離を行い放射能測定する方法をとることとして、京大炉で岩石、海底堆積物の貴金属定量実験を続けさせていただいた。

因みに、現在ケイ酸塩中の貴金属の定量法として、50gの試料を30gの炭酸ナトリウム、60gのホウ酸ナトリウムと1000℃で融解、このとき酸化ニッケル20g、硫黄華10gも入れておき、貴金属を硫化ニッケルに集める方法が採られている。低含量の岩石にまで適用できるか心配であるが、

甚だ大陸的、貴族的で貴金属の濃集にふさわしい一方法と言うべきであろう。

では何で貴金属の定量か。クラーク数は一応与えられているが、地殻の存在比などは必ずしも豊富なデータに拠っているとは思えない。島弧・海底の岩石の含量は覽。このような一般的な興味はもともと持っていた。実は今だから言えるが、青學大に移ってもう一つの悩みは、卒研生の数とテーマの問題である。もう少し視野を深め、拓げないとテーマ不足に陥ること明白で焦りを禁じ得ない状況の時、先輩のおすすめでシカゴ大で月の石の放射化分析を行う話がふってわいた。留学の許しが出て、吹雪のシカゴについてみると、放射化分析グループの前任者が急に他に移らないことになった。研究室に長くおられた早津了一博士の言葉をかりれば「アンダースはお金持ってるからよかったけれど、普通だったら（ファンド無ければ）木村さん到着早々即刻クビですよ」。そう、シカゴ大のE. Anders教授に師事したのだが、教授はテーマ豊富で、研究費も持っておられ、月の石の放射化分析の代わりに2つのテーマを示され、結局ケイ酸塩と鉄ニッケル合金の間の貴金属の分配実験を仰せつかった。酸化鉄(II)を合成して月の石組成の岩石も合成した。誘導加熱炉の部分はR. Lewis博士が設計してくれた。ルイスはバークレー校物理学専攻出身の心やさしい男で、テーマが決まると「木村がどういう仕事を行おうとしているかを聞く会」を研究室で企画実施してくれたりといろいろ細かい世話をしてくれた。10⁴程度と想定される分配比を求めるとき如何にすべきか、私は当然のこのように放射性同位体によるトレーサー法で行くと決めた。トレーサーの調製、添加、加熱分配、両相の放射能測定と11ヶ月の歳月は一瞬のように過ぎてしまったが、金とレニウムについていくらかの分配比の値を得た。これが帰国して、隕石・鉱物・岩石中の貴金属の放射化分析へとつながっているわけで、何とも不思議な流れであり、感謝である。

そうこうするうちに、昭和53(1978)年には原研施設の共同利用が公私立研究機関にも開かれることになった。定年の片づけの時に、国立大の教官を代表者にたてて利用研究が行われるとのメモが出て来た。原研炉は中性子フルエンス率の高い特性を活かして、短寿命核種による放射化分析と、多元素同時放射化定量を目ざし、一部放射化学分離を行ってきた。こうして、200人を越す卒研究生、修士、博士が研究室を通過して行ったが、そのうち3/4以上が一度は原子炉の実験に参加して実質体験を持つことができ、このことは本人にとっても広い意味で将来に亘ってプラスの面が大きいと考え、各原子炉の共同利用研究の制度を築かれた先輩方、問題が起きるたびに知恵をもって制度を維持して来られた各位に改めて敬意を表し、感謝したい。

さて退職に当たって、ふりかえってみるとき一つの象徴的な実験がある。

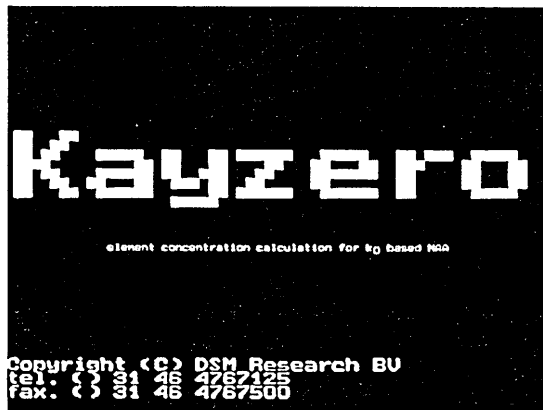
それは温泉水・懸濁物のハフニウムの放射化定量で、その一方法として¹⁷⁵Lu(p, n) 反応で比放射能の高い¹⁷⁵Hfを調製し、これを回収率のモニターにして温泉水中のハフニウムを抽出濃縮し、^{179m}Hf(半減期18.7秒)を用いて放射化定量したのであった。これら放射化分析、収率トレーサー両手法の創始とハフニウムの発見は、すべてde Hevesy 教授によるわけで、いわばヘヴェ

シー手の平公園の泉に遊ぶ無邪気な孫、曾孫である。その孫も年をとった。

目の奥の残像：

- (1) 放射化分析を行っている、ng であってもその原子数はまだまだすばらしく大きな数である事を実感する覧-
- (2) 「その元素の標準を照射していなかったのでは」定量できなかったと言うのでは残念至極、原研原子炉でK_α法を併用活用したかった。また解析しきれないピーク、“ばけもの”ピーク、に出会うことがあるが、K_α法ソフトで解析するとその正体は何であるか、知りたい。
- (3) 貴金属の分布もかなりはっきりしてきたが、地殻縁辺の濃集、減損はまだまだデータ不足、まさにしんどい RCNAAの仕事であっても、いや結局楽しい仕事として発展を希う。手の平公園のうるさい管理じじいも滞った管理報告を書くために去った。
- (4) 皆様の御発展を祈り、もろもろの感謝を込めて終。

(1997年8月31日)



K_α標準化法に用いる

解析ソフトウェア「KAYZERO/SOLCOI」

のオープニング画面

いま思うことー放射能とつきあって40年

特別寄稿-2

古川路明先生

(元名古屋大学理学部 / 四日市大学環境情報学部)

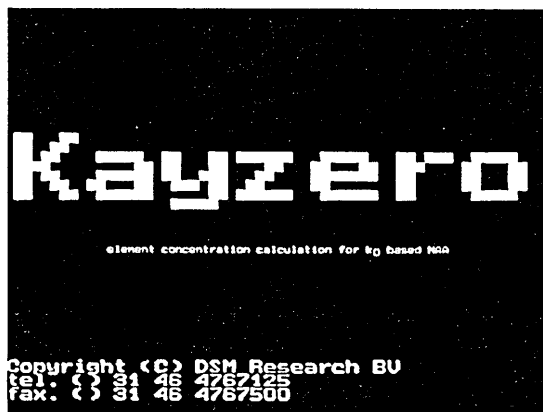
今年3月末で28年8ヶ月にわたって勤務した名古屋大学を停年退職し、私立大学の新設学部において「地球と環境」の題目で新入生に講義している。就学年齢人口の減少にともなう私学経営の厳しさは以前から語られていたが、いよいよ現実の問題となってきた。この大学でも、短期大学部を再編成し、幼稚園保育養成を目指す幼児教育課程(定員50名)のみを残し、生活科学部の定員150名に純増分50名を加えて「地球環境学部」を新設した次第である。新学部での講義は、学生の基礎知識と興味が多様なこともあって、決して楽ではなく、前期は手探りをしている間に過ぎていった。しかし、この名の学部は、他に慶應義塾大学と武蔵工業大学に設置されてい

シー手の平公園の泉に遊ぶ無邪気な孫、曾孫である。その孫も年をとった。

目の奥の残像：

- (1) 放射化分析を行っている、ng であってもその原子数はまだまだすばらしく大きな数である事を実感する覧-
- (2) 「その元素の標準を照射していなかったのだから」定量できなかったと言うのでは残念至極、原研原子炉で K_0 法を併用活用したかった。また解析しきれないピーク、“ばけもの”ピーク、に出会うことがあるが、 K_0 法ソフトで解析するとその正体は何であるか、知りたい。
- (3) 貴金属の分布もかなりはっきりしてきたが、地殻縁辺の濃集、減損はまだまだデータ不足、まさにしんどい RCNAAの仕事であっても、いや結局楽しい仕事として発展を希う。手の平公園のうるさい管理じじいも滞った管理報告を書くために去った。
- (4) 皆様の御発展を祈り、もろもろの感謝を込めて終。

(1997年8月31日)



k_0 標準化法に用いる

解析ソフトウェア「KAYZERO/SOLCOI」

のオープニング画面

いま思うこと—放射能とつきあって40年

特別寄稿-2

古川路明先生

(元名古屋大学理学部 / 四日市大学環境情報学部)

今年3月末で28年8ヶ月にわたって勤務した名古屋大学を停年退職し、私立大学の新設学部において「地球と環境」の題目で新入生に講義している。就学年齢人口の減少にともなう私学経営の厳しさは以前から語られていたが、いよいよ現実の問題となってきた。この大学でも、短期大学部を再編成し、幼稚園保育養成を目指す幼児教育課程(定員50名)のみを残し、生活科学部の定員150名に純増分50名を加えて「地球環境学部」を新設した次第である。新学部での講義は、学生の基礎知識と興味が多様なこともあって、決して楽ではなく、前期は手探りをしている間に過ぎていった。しかし、この名の学部は、他に慶應義塾大学と武蔵工業大学に設置されてい

るが、決して悪いものではない。生かすも殺すも今後の教官と学生の努力次第である。ここと長い間はお付き合いできない私ではあるが、理科系でも文科系でもない新たな方向を打ち出すことができると考えている。例外はあるにしても「一芸に秀でる学生」はこの学部には必ずしも適当でないような気がする。

このような時点で、私が「放射化分析」について述べるのは、不適當な面もあると思うが、いま思いつくことを気楽に書き並べてみたい。

1. 放射能と付き合い始めた頃

放射能と関わるようになったのは、理学部化学科に進学した1954年（昭和29年）のことである。3月1日に起こったビキニ環礁における焼津を母港とするマグロ漁船、第五福龍丸の被曝事故は全国民を驚かせた。その夏休みに、同級生の神山秀雄君とともに当時は高円寺にあった気象研究所の地球化学研究室で海水中の放射能を測定する手伝いをしたのが放射能との長い付き合いの始まりであった。海水中に鉄とバリウムの担体を加え、アンモニア水で中和した際に生じる沈澱に集まる放射能をガイガー計数管で測定した。この研究所では、三宅泰雄、木越邦彦、北野康、猿橋勝子、杉浦吉雄の諸先生に多くを教えていただいた。私があまりにも幼かったために吸収し得たことは多くはなかったが、後になって考えてみると非常に貴重な経験であった。

1956年に学部を卒業し、大学院に進んだ。最初は木村健二郎先生の指導を受けたが、先生は停年を前に日本原子力研究所に移られ、その跡を継いだ斎藤信房先生の門下生となった。今になってみると、富田功君とともに最初の放射化学を専攻する学生になったように感じる。放射能の絶対測定（壊変率の決定）に関する仕事が最初のテーマであったが、その方向へは進まずに「酸素酸塩のホットアトム化学」の研究に従事する結果となった。理化学研究所の小型サイクロトロンからの中性子でヒ素や臭素の化合物を照射し、古典的な化学分析法で生成放射能の各化学状態への分布とその比放射能を決定していった。

私にとっては、この時期に絶対測定の勉強をしたことが1958年に修士課程を終えて就職した東京大学原子核研究所（通称、核研。現在は、高エネルギー加速器研究機構田無分室）で核反応に関する研究を始めたときに大いに役立った。核反応断面積を求める仕事では、生成する放射性核種の壊変率を決定せねばならない。難しくはないにしても根気のいる仕事であった。4 π β計数法、γγコインシデンス法などを用いて、研究に関係する多くの核種に対する測定器の較正が終わったのはほぼ1年後であった。

「その時のことばかり考えずに、基礎的なことは若い内に勉強しなさい。」とある有機化学の先生にいわれたことがあるが、絶対測定に関する私の体験はそれを実証するような好例だと思っている。今は、このような苦言を呈する先生の数も少ないし、それを覚えている学生の比率も低いように思うが、学生は意外に先生の言葉を覚えていることがある。「先生」と呼ばれる身となった後は、若者に対する言葉には注意を払っている。

2. 放射化分析と私

「放射化分析」の創刊号には、濱口博・斎藤信房・本田雅健・日下讓・野崎正・鈴木信男の諸

先生が寄稿しておられる。どの先生も私が大変お世話になった先生であり、先生方との関わりをたどっていけば、私と放射化分析の関係が見えてくるように思える。

放射化分析という術語を初めて使ったのは斎藤先生だと思っている。先生の指導で、理研サイクロトロンからの中性子を利用して「タンタル中のニオブの定量」を試み、東京国立文化財研究所の江本義理先生に協力し、古文化財に関連して「金箔中の銀の定量」にもあたった。中性子流束は $107\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ 程度だったために利用できる試料は限られていたが、残留放射能はきわめて少なく、後に問題の残らない実験であった。

濱口先生が、1950年代半ばにシカゴ大学で「隕石中のウランとバリウムの定量」について重要な研究を完成させたことはよく知られているが、先生も述べておられるように、完成にいたるまでには多大の苦労があった。特にウラン定量のためのネプツニウムの分離精製は難題であったようにみえる。私が1966年から1968年までシカゴ大学のエンリコ・フェルミ原子核研究所（後にエンリコ・フェルミ研究所）に滞在したときに先生の共同研究者のReed博士に出会い、そのころの状況について聞いた。Np(IV)とNp(VI)の化学的性質の差を利用する酸化還元サイクルによる精製では化学者としての技術の差が出やすく、Reed博士は自分が石質隕石を処理すると回収率がきわめて低くなるので、主として隕鉄の方を引き受けていたとの話であった。放射線測定器が端窓式比例計数管のみであったので、高い放射性核種純度が要求されたのである。

1964年春から1966年夏まで、私は濱口先生と同じ研究室で過ごす機会を得た。先生と小沼直樹さんに協力して「コンドライト中のヒ素・スズ・アンチモンの放射化分析」に取り組んだのは有益な経験であった。先生が沈澱をつくり、ろ過して、るつぼを焼く過程は芸術的でさえあった。その道に長じた先達から学ぶことは多いのである。

本田先生は私が化学科に進学したときの分析化学研究室の助教授であった。学生実験のときから指導を受けているが、特に先生との関わりが深くなったのは私が名古屋大学に移った後である。宇宙物理学者の長谷川博一先生がお世話した総合研究班では、先生の活躍はめざましかった。私も班員の一人としてこの研究班に参加することを楽しんだ。本田先生からも教わることは大変多かったが、教え子の一人で、現在アメリカで活躍している西泉邦彦さんも同じような感想をもらっていた。「鉄の陽子照射の際の ^{53}Mn の生成断面積」の測定の際には、実験の面でも考察についてもすっかり先生に頼っていた。

日下先生には核研の初期の実験で一緒に、その後も放射化学討論会の席などでよく声を掛けていただいた。先生は放射化分析に初期から興味をもたれ、第一回の放射化学討論会でも発表しているし、要領よくまとめあげた「放射化分析」（共立出版）の好著でもよく知られている。この本が絶版なのは残念である。（もっともこの傾向は最近の書籍出版について一般的であり、よい書物は早く購入しておかねばならない。）

野崎先生とは、核研サイクロトロンを利用する「荷電粒子放射化分析」の際に共同で実験をした。斎藤一夫・田中重男・鄭華生の諸先生とも一緒であったが、まだ経験していない実験に携わることは、計画・実験・取りまとめ、すべての段階において楽しく、かつ有益な体験であった。先生は、特に半導体材料中の炭素・窒素・酸素などの軽元素の挙動に興味をもたれ、その分野を

開拓する先駆者であったが、後には¹¹C, ¹⁸Fなどの短寿命核種で標識した「放射性医薬品」として役立つ化合物の研究に手を染め、その分野でも日本の研究をリードしていった。先生は学部学生の時是有機化学の研究室に所属していたが、先生の広い分野での活躍にはそのような経歴が十分に活かされているように感じる。

鈴木先生は、斎藤一夫先生の招きに応じて、核研によく来られた。一緒に食事をしたり、様々な話題についてお話したことを覚えている。先生は「不足当量法」と呼ばれる放射分析法の創始者として国際的にも高く評価されているが、この研究の初期から内容を知っていたはずなのに、私はその意義を全く理解できないでいた。斎藤信房先生から「同位体希釈法」を取り扱った授業を受けていたし、分からなければいけないのであるが、そうならなかったのは私の化学者として素養が乏しかったためである。

3. いま放射化分析について思うこと

放射化分析の創始者のHevesi, Leviの論文が出てから60年が経過した。この論文はよく書けていて、分析法の基礎についてはほぼ尽くされているのではないかとさえ感じる。どのような研究課題、どのような研究分野に適用できるかが、私がこの方法に関係したときの状況であったと思っている。1960年代後半のゲルマニウム半導体検出器の導入はガンマ線測定に革命をもたらし、放射化分析にも多大の影響を与えた。実験操作は簡単になり、広範囲の研究者がこの方法を利用するようになった。反面、原子炉が設置されている共同利用機関の担当者の負担は重くなり、研究内容も安易に流れる欠点をもつようになった。反省すべき時期が来たと思う。

アメリカでは、1960年代末から研究用原子炉の閉鎖が始まった。日本にもその流れは伝わってきている。放射化分析にとって厳しい時代になっていることは否めないが、まだ日本では比較的に利用しやすい原子炉がなお稼働していることは救いである。

ICP発光分析法のような有力な微量分析法が導入されている現在では、放射化分析の長所を生かした広い分野への適用を考えねばなるまい。貴重な少量の試料への適用は今後も続けられなければならない。また、放射化分析に供した試料を他の研究に再使用することも重要であろう。この際に「放射線障害防止法」による規制が問題になるが、解決可能な問題だと思う。機器分析のみに頼らず、ある程度の化学処理を併用することはぜひ必要である。

現在の重要課題である「地球環境問題」、放射能に関連しては原子炉からの「高レベル廃棄物長期保管」の問題；このような課題の解決に放射化分析が役立つかどうか？

21世紀は今世紀の延長線上にはないような気がする。物事は連続的に動くのがふつうであるが、突然の変化も避けられないことがある。年を経た私に手の出る課題ではないが、若い世代による異なった価値観の確立が必要な現在ではなかろうか。

特集

中性子放射化分析に利用される照射孔の中性子束変動

本誌 Q&A 欄に読者から照射孔中の中性子束の変動に関する質問が寄せられた。照射孔及び中性子照射中の中性子束の変動は分析値の精度・正確さに大きな影響を及ぼすため、これらについて良く把握しておくことが重要と考える。現在、我国で中性子放射化分析に利用されている原子炉は5基（4機関）あるが、Q&A 欄でその質問に答えることは困難であり、特集として取り上げるようになった。本特集では、各原子炉に熟知した各施設の担当者等に各原子炉の照射孔について解説していただいた。本特集が今後の中性子放射化分析において参考にされることを願う。

（担当幹事 米沢伸四郎）

I. 京大炉の中性子束変動と放射化分析法での分析値誤差について

京都大学原子炉実験所 松下 録治

1. はじめに

原子炉中性子放射化分析法によって高精度の分析を行う場合、よく解説されているように、分析試料の作成段階からデータ処理までの各段階で、それぞれ重要なポイントがある。中性子束の変動についての注意点もこれらの重要ポイントの一つである。詳細は以下に述べるが、このポイントを無視した実験では10%以上の誤差を伴う可能性があり、中性子束の変動の測定結果でもって全く事象の異なる現象を考察することになりかねない。また、分析精度を向上させるには、単に特定エネルギー領域の中性子束変動ばかりでなく、スペクトル全体の変動をも含めて考える必要がある。

2. 照射設備における中性子束の変動因子

照射設備は原子炉の構造のある特定の位置に固定されているが、さまざまな原因でそこでの中性子束が変動している。

特定の照射設備のある固定点を考えると、長期的には（一サイクル以上：KURの場合、一サイクルは火曜日から金曜日まで）炉心配置変更（核燃料のBurn upのため、燃料要素の交換、移動、その数の増減など）が中性子束変動の原因になると考えられる。定性的には、燃料要素の数を増加させると、原子炉の熱出力が同じである場合、炉全体の平均中性子束は低下するので、炉心のある特定位置での中性子束も低下すると考えられるが、さまざまな理由により、このようになるとは限らない。短期的には（一サイクル以内）、制御棒の駆動の影響が考えられる。KURの粗調整用制御棒の位置は起動時には下から約35cmであるが、金曜日の原子炉停止時には70cm弱まで引き抜かれる。微調整用制御棒は約30cmから約53cmの間を常に上下駆動している。なおPn-1,2,3の場合、キャプセルの先端が炉心の底から34cmの位置で照射される。その他、制御棒駆動以外にも、原子炉運転上の都合で、短期的な変動がある。筆者の経験では、ある運転サイクルで

の照射と次のサイクルでの照射 (Pn-2) で Au-197 の放射化率が約 10% 異なっていたことがあった。この際の炉心構成の違いは Pn-2 とは反対側の燃料要素一本が交換されていたが、この交換だけが放射化率の変動の原因かどうかは明確でない。制御棒駆動による中性子束変動の影響については何度か調べたが、現在のところ正確に把握していない。

3. 中性子束の変動が分析値におよぼす影響

中性子束の変動があっても、通常、分析試料と同時に参照試料を照射するため、中性子スペクトルの変動がなければ、データ処理段階で補正され、分析値に大きな影響はない。しかし、スペクトル変動があった場合はデータ処理時に適切な補正がおこなわれなため、分析値に影響する。特に、絶対法(ある特定の核反応率を基準にして、分析対象の反応率を評価する方法)ではこの影響が大きい。

4. その他の大きな誤差発生原因

以上はある照射設備のある固定点における中性子束変動について一般論を述べたが、実際の照射は照射用カプセルに試料をいれて照射するため、照射位置は“点”ではなく立体的な大きさを持っている。原子炉本体の体積に比べ、カプセルのそれは非常に小さいので“点”であると仮定できそうな気がするが、実際にはこのカプセル内の中性子束分布が分析値におよぼす影響が大きい。

このことをご理解いただくために、筆者の実験データをみていただきたい。このデータは実験目的は果たせなかったが、実際によく起こりそうな失敗例であり、またカプセル内の中性子束分布による分析値への影響を直感的に理解しやすい。

所期の実験目的は Al 材を母材とした Au 稀薄合金線 (0.03%) 中の Au の分布の測定であった。合金線の両端と中間部分を約 8 cm ずつ 20 個無作為に採取し、これらをそれぞれ蚊取り線香状に巻き、直径 1 cm ぐらいの円盤状のものを試料にした。これらをガーゼで巻き込むようにして包み、これを照射カプセルに挿入した。このカプセルは Pn-2 で 60 分照射し、生成した Au-198 を測定した。412keV の光電ピーク面積から相対反応率をもとめ、これら値の平均値からの偏差をプロットしたのが Fig. 1 の No.1 である。

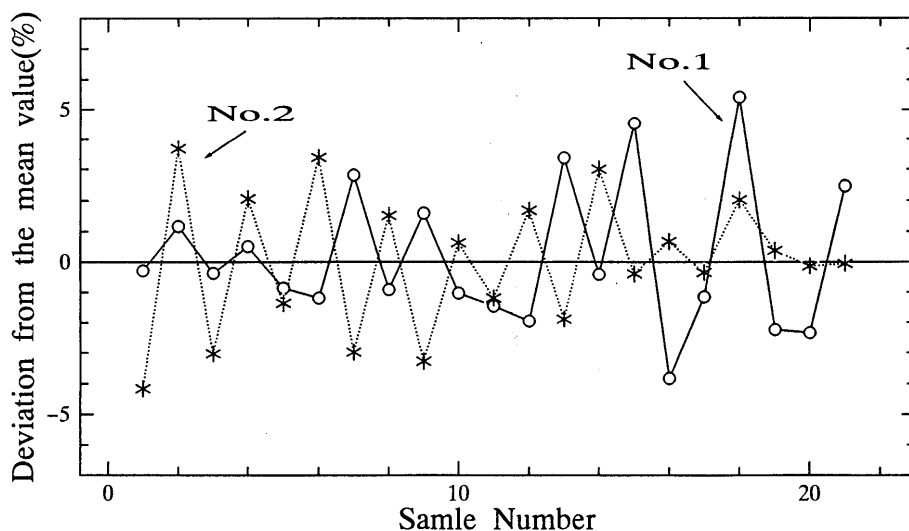


Fig. 1. Experiment of homogeneity check in an Al-Au alloy wire

このデータから最大5%以上平均値からずれていること。これらの値の偏差にはAu-198の測定誤差、合金線中のAuの分布、そしてカプセル内の中性子束分布を含んでいる。しかし、試料は左側の試料から右側のそれらへと順にガーゼに巻き込んでいるので、左側がカプセルの内側（中心線側）であり、右側がその外側に設置したことになる。データの値が波状になっていること、内側から外側に向かってその波長が大きくなっていることから、中性子束分布の寄与が大きいことが分かる。このことを確かめるため、試料のAu-198を十分冷却し、同一試料を逆順にガーゼに巻き込み、さらに、3分ずつ5回照射してカプセル内の中性子束分布による影響を少なくするように試みた。その結果をFig. 1のNo.2に示す。このデータから、予想どおり外側に配置した試料の偏差が大きいこと、5回照射したことで、ほとんど改善されていないこと、さらに、個々の試料のデータについてNo.1とNo.2を比較すると、合金中のAuの分布とはほとんど関係ないことが分かる。つまり、この実験は結果として合金中のAuの分布を測定したのではなく、カプセル内の中性子束分布を測定したことになった。

5. カプセル内の中性子束分布と中性子スペクトル変化

前述の実験結果から、カプセル内の中性子束分布が分析値に大きく影響することは明らかになったので、より定量的にカプセル内の中性子束分布を調べた。

「実験」

実験方法の詳細は省略しますが、御関心のある方は文献¹⁾を御覧ください。調べた照射設備はPn-2である。使用した検出器核種の核特性をTable 1. に示す。

Table 1. Nuclear data of neutron monitors

Induced nuclides	Isotopic Abundance %	Cross-section, σ	Cross-section I	I / σ	Contribution of epithermal
Fe-59	0.28	1.31	1.28	0.97	0.029
Co-60	100	37.1	74	1.99	0.057
Au-198	100	98.65	1550	15.7	0.323
Sb-124	42.7	4.08	118	28.8	0.467
Sn-117m	14.5	0.00596	0.336	56.3	0.631
Zr-97	2.8	0.0213	5.28	248	0.883
Co-58	67.76				

これらの検出器はそれぞれ熱中性子、熱外中性子、速中性子に対する感度が異なっている。最も右側の覧の値はKUR Pn-2の公表中性子束値を仮定した場合、熱外中性子によって生成する割合を示しており、Fe-59の場合約3%、Zr-97の場合約90%が熱外中性子によって生成すること意味している。Co-58は速中性子によって生成する。

検出器はFig. 2に示すように、カプセルの底、最上部、長さ5mmのアルミニウム細管の中、カプセルの中心線上に設置した。

「実験結果」

照射後、放射能を測定し、相対放射化率を計算した。

—— カプセル縦方向の中性子束分布 ——

底での放射化率を基準にし、ここから中心線に沿って最上部までの相対中性子束分布の測定結果を Table 2. に示す。これらの値は7回照射の平均値である。Table 2. からカプセルの中心線に沿った中性子束は底から5 cmまでほとんど一定であり、ここから最上部にかけて5%ほど低下していること、またどの核種の値もほぼ同値であることから、中性子スペクトルの変化はほとんどないことがわかる。

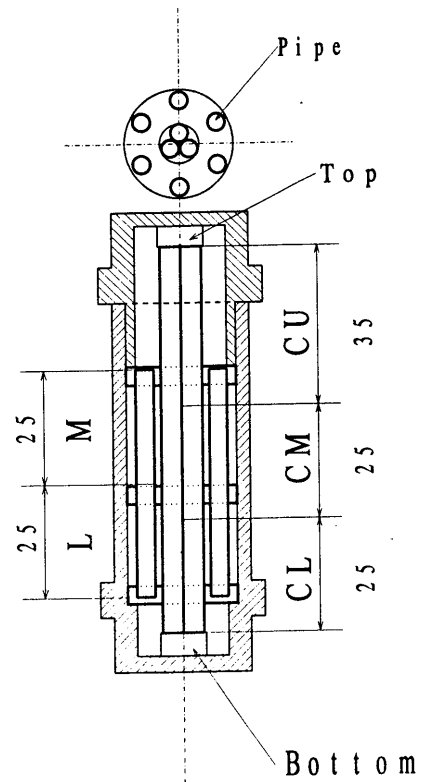


Fig. 2. Cross-section view of capsule

Table 2. Relative activation rate in the axial direction of the capsule

Monitor	Position in the capsule			
	CL	CM	CU	TOP
Fe-59	1.001 ± 0.0028	0.989 ± 0.026	0.974 ± 0.026	0.953 ± 0.027
Co-60				0.947 ± 0.012
Au-198	0.999 ± 0.019	0.991 ± 0.021	0.968 ± 0.029	0.944 ± 0.027
Sn-117m				0.950 ± 0.036
Zr-97				0.94
Co-58				0.959 ± 0.026

—— カプセル横断面方向の中性子束勾配 ——

カプセル横方向の勾配は5 cmのアルミニウムパイプに設置した検出器の放射化率のバランスから計算で求めた。その結果を Table 3. に示す。

Table 3. Horizontal gradients in the capsule

Nuclide	position	Average gradient (/ cm)	Standard deviation (σ)
Fe-59	L	0.045	± 0.007
	M	0.051	± 0.012
Au-198	L	0.054	± 0.012
	M	0.058	± 0.018
Sn-117m	L	0.091	± 0.025
	M	0.091	± 0.021
Zr-97	L	0.096	± 0.020
	M	0.095	± 0.015
Co-58	L	0.094	± 0.007
	M	0.097	± 0.016

Table 3. から、熱中性子束勾配 (Fe-59 の値) は $5\% / \text{cm}$ ぐらいであり、熱外および速中性子束勾配は $9\% / \text{cm}$ 以上であることがわかる。また、カプセルの底から 5 cm までは、これらの勾配がほとんど変化していない (Position M, と L の比較) こともわかる。

これらの測定結果で注目すべき点は二つある。一つはカプセルの横断面方向の中性子束勾配が大きいことである。KUR のカプセルの内径は 2.4 cm であるから、カプセル内への照射試料の配置によって、熱中性子で最大 12% 、熱外および速中性子で 20% 以上放射化率が異なる可能性があること。もう一つは中性子エネルギーによって勾配が異なることは試料の位置によって、中性子エネルギースペクトルが異なることを意味しており、特に絶対法での適切な中性子エネルギー補正が困難になることである。相対法でも、もちろん誤差要因になる。

6. カプセル内の中性子束分布の影響を小さくする方法

以上の実験結果から、高精度の分析結果を得るためにはカプセル内の試料の配置が非常に重要であることがわかる。また、これらの特性から、その対策方法がわかる。以下にその理想的な試料配置法による実験例を示す。カプセル内の試料配置を Fig. 3 に示す。

分析試料と共に中性子検出器を層状に積み重ね

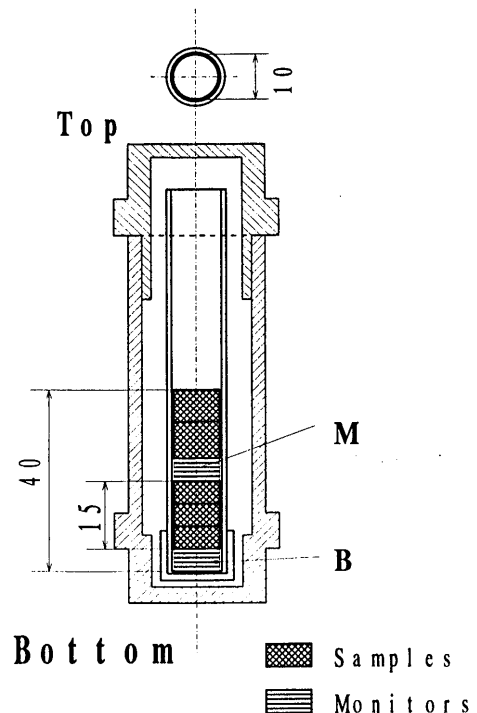


Fig. 3. A stack configuration for reducing the uncertainties from flux gradient variations

た。このように配置したカプセルを3本作り、照射後、それぞれの検出器の相対放射化率を計算した。この結果を Table 4. に示す。Table 4. から熱および熱外中性子による放射化率の測定誤差は放射能測定時の計数誤差に依存しており、カプセル内の中性子束勾配による影響をよく吸収していることがわかる。ただ、速中性子の場合には計数誤差以上であり、なお影響が残っている。実際の放射化分析ではこのような試料配置にすることが困難な場合も多いが、高精度の分析値を得るためには、カプセル内の中性子分布特性を理解し、理想的な試料配置となるように努力することが非常に重要であることがわかる。ちなみに、Fig. 1 での実験を Fig. 3 のような配置にして再実験をした結果、標準偏差で 0.61% の値を得た。この中には放射能計数誤差が含まれているので、AuAl 合金中の Au は非常に均一であることがわかった。

Table 4. Relative activation rates obtained with a stack configuration

Monitor nuclide	γ -ray (keV)	Position	Relative activation rate			Standard deviation	Counting error
			1	2	3		
Fe-59	1099	B	0.9872	1.0171	1.0033	± 0.0117	± 0.011
		M	1.0048	1.0011	0.9956		
Co-60	1173	B	1.0132	0.9844	1.0049	± 0.0105	± 0.010
		M	0.9921	0.9941	1.0113		
Au-198	411	B	0.9988	1.0000	1.0046	± 0.0024	± 0.009
		M	0.9970	1.0013	0.9984		
Sb-124	1691	B				± 0.0142	± 0.019
		M	0.9877	0.9923	1.0199		
Sn-117m	159	B	0.9997	1.0009	0.9939	± 0.0071	± 0.005
		M	0.9922	1.0142	0.9991		
Zr-97	743	B	1.0260	0.9654	1.0213	± 0.0235	± 0.025
		M	0.9740	1.0146	1.0118		
Co-58	810	B	0.9735	0.9920	0.9991	± 0.0161	± 0.0004
		M	1.0029	1.0045	1.0276		

7. おわりに

本稿は編集方針を理解しないまま、勝手に「中性子束と分析誤差」と考えて書きました。これらは私の KUR での経験から、私自身、常に注意していることでもあります。KUR 利用者の方々のなかには、カプセル一杯に照射試料を詰め込まれる方も見受けられますが（カプセルの数を制限していることもその原因であると理解しています）、このような照射では高精度の分析値は期待できません。高精度の分析値を必要な方は、是非、本稿のデータを参考にしてくださいよう御願いたします。

文 献

- 1) R. Matsushita, M. Koyama, S. Yamada, M. Kobayashi and H. Moriyama: J. Radioanal. Nucl. Chem., **216**, 95 (1997).

II. 立教炉における中性子束の変動について (1)

立教大学原子力研究所 戸村 健児

1. はじめに

立教大学研究用原子炉の照射孔で放射化分析に主として利用される設備は炉心内中央に設置されている中心実験孔と炉心の最も外側のFリングに設置されているF 21, F 24照射孔, 気送管と炉心を囲む反射体上部に設置されている回転試料棚(RSR) と更にその外側にあるグラファイトを充填した熱中性子柱である。

これら各照射施設における中性子線質と中性子束分布について記す。また, 最近 k_0 法の発展に対応するため, 熱外中性子領域における $1/E$ からのズレを $1/E^{1+\alpha}$ で表すための α 因子についても測定を行ったので, 暫定的の値ではあるが, 参考のために記した。

立教炉の中性子束については東京大学原子力研究総合センターより共同利用者に配布される「立教大学原子炉等共同利用のしおり」(以下, 「しおり」と言う)にも, かなり詳細に記載されているので, これに沿った説明を先ず行い, 更にその後のデータも加えて解説を行った。

2. 各照射設備における中性子線束等の概要

第1表はフル出力100 kW運転時の熱・速中性子線束密度 Cd (Au) 比, γ 線量率の主要照射設備におけるデータを「しおり」から転用したもので放射化分析の検出感度, 速中性子による妨害核反応の寄与等について検討する際有効なデータであろう。

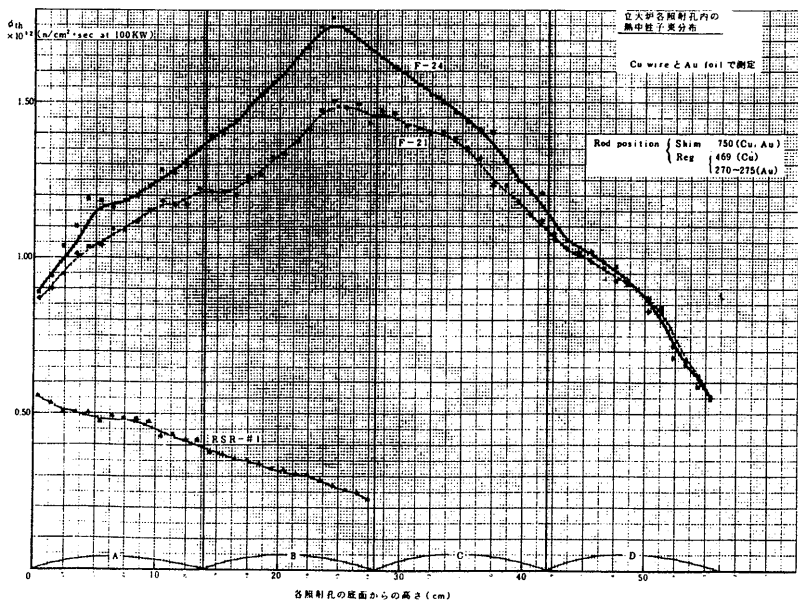
第1表 立教炉主要照射実験孔の特性 (100 kW)

照射孔	熱中性子束密度 n/sec · cm ²	速中性子束密度 n/sec · cm ²	カドミウム比	γ 線量率 r / hr	備 考
回転試料棚 *(RSR) 下	5.5 × 10 ¹¹	4.7 × 10 ¹⁰	3.5	1.4 × 10 ⁶	}カプセルI使用
" 上	3.8 × 10 ¹¹	2.7 × 10 ¹⁰	—	—	
Fリング孔 A	0.9 × 10 ¹²	0.8 × 10 ¹¹	—	—	}カプセルI使用
" B	1.4 × 10 ¹²	4.8 × 10 ¹¹	3.4	—	
" C	1.7 × 10 ¹²	6.0 × 10 ¹¹	3.2	1.2 × 10 ⁷	
気送管	1.5 × 10 ¹²				ラビットI使用
中心実験孔 *(CT)	3.7 × 10 ¹²	2.0 × 10 ¹²	~3	3 × 10 ⁷	水中, カプセルII使用
熱中性子柱 *(TC)	3.0 × 10 ¹⁰ (6 cm) 4.4 × 10 ⁹ (56 cm) 4.9 × 10 ⁸ (106 cm)	1 × 10 ⁸	34 350 5700	2.2 × 10 ⁴	10 cm × 10 cm × 1.2 mのグラファイト棒の引き抜き可能。距離は最奥部からの値
水平実験孔 *(BP)		3.5 × 10 ¹⁰		2.2 × 10 ⁶	最奥部の値
* 略号はそれぞれ (RSR) Rotary Specimen Rack, (CT) Central Thimble, (TC) Thermal Column, (BP) Beam Port の略語です。 ** 照射用容器について I : ポリプロピレン製で内のり寸法は 25.5 mm φ × 91 mm (第3図) II : アルミニウム製 (水密にするためゴムパッキング使用) で内のり寸法は 20 mm φ × 80 mm です。 ラビット I : ポリエチレン製で内のり寸法は 14 mm φ × 45 mm です					

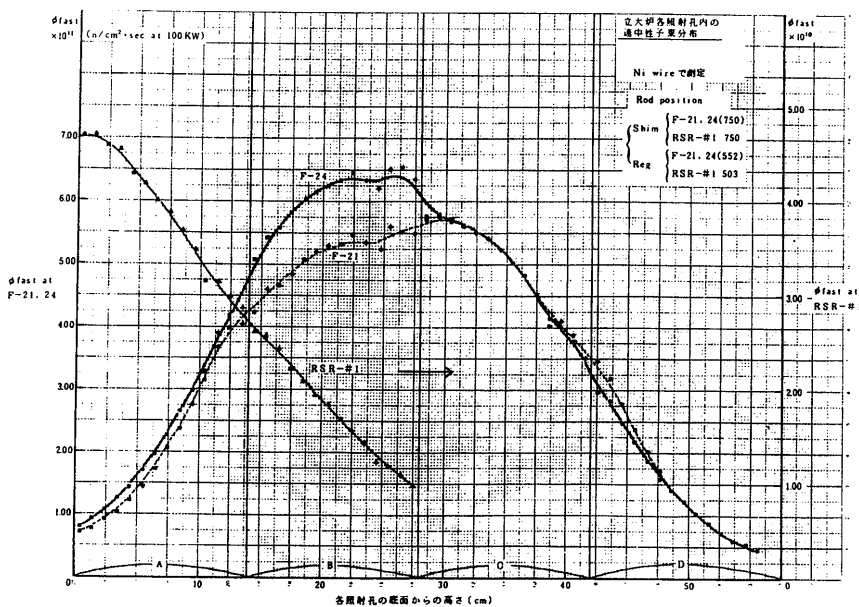
3. RSR と F21, F24 照射孔における熱・速中性子速の垂直方向分布

第1図と第2図は「しおり」より転用した熱・速中性子束の垂直方向分布に関するデータである。RSR には所定のキャプセルを上下2段に積み重ねて照射することも出来、F21, F24 照射孔は3段もしくはそれ以上重ねて照射することが出来る。RSR 下段キャプセルの底は燃料棒のほぼ中央の高さに相当するので、キャプセルの底から上に行くに従い徐々に中性子束は減少する。F21, F24 照射孔の底は燃料棒の最下部の高さにほぼ一致するので、キャプセル2段目までは高さと共に中性子束が増加し、3段目以上のキャプセルでは高さと共に減少する。

通常、F照射孔の1段目は空のスペーサ・キャプセルを挿入し、2段目(B位置)では長時間照射を行い、3段目(C位置)で短時間照射を行っているが、最下段(A位置)にも長時間照射試料を挿入することが出来る。その場合、キャプセルの底にポリエチレン等を充填し、その上に試料を置くと中性子束をより大きくすくことが出来る。



第1図 RSRとF21, F24の熱中性子束の垂直分布



第2図 RSRとF21, F24の速中性子束の垂直分布

4. RSR内の各照射孔における熱中性子束とCd(Au)比の変動

RSRはほぼ同心円上にRSR No.1からNo.40まで40箇所の照射孔が配置されている。照射試料の出し入れの時のみ回転させ、運転時には固定されている。RSR No.1からNo.40まで40箇所の熱中性子束とCd(Au)比を原子吸光分析用標準溶液を濾紙に滴下乾燥して作った金の標準試料(25 μ g Auを含む)を使って測定した結果を第2表に記す。

RSRの各照射場所で 4.10×10^{11} n/cm²/secから 5.26×10^{11} n/cm²/secまでの変動が観測された。No.10～18とNo.30～36に極大が見られた。これは減速材であるグラファイトが詰まっている熱中性子柱やサーマライジング・カラムに近い場所では減速のため熱中性子の比率が高まるためと考えられる。RSR内の場所による熱中性子束とCd(Au)比の変動は極めて緩やかであり、RSR内の近い番号の照射孔での照射の場合は熱中性子束の変動は殆どないと考えても差し支えない。

第2表 RSR内における熱中性子束とカドミウム比の水平変動

RSR No.	Cd(Au)比	熱中性子束 (10 ¹¹)	RSR No.	Cd(Au)比	熱中性子束 (10 ¹¹)
0 1	2.24	4.37	2 1	2.30	4.90
0 2	2.33	4.50	2 2	2.29	4.81
0 3	2.25	4.50	2 3	2.35	4.86
0 4	2.13	4.10	2 4	2.39	4.76
0 5	2.15	4.31	2 5	2.32	4.57
0 6	2.12	4.15	2 6	2.45	4.74
0 7	2.10	4.36	2 7	2.51	4.91
0 8	2.12	4.58	2 8	2.49	4.87
0 9	2.13	4.80	2 9	2.50	4.73
1 0	2.16	4.91	3 0	2.48	5.03
1 1	2.17	5.06	3 1	2.49	4.93
1 2	2.18	5.26	3 2	2.47	5.18
1 3	2.21	5.12	3 3	2.49	5.14
1 4	2.22	5.19	3 4	2.48	5.23
1 5	2.23	5.16	3 5	2.41	5.15
1 6	2.24	5.02	3 6	2.44	5.11
1 7	2.24	5.15	3 7	2.43	4.82
1 8	2.24	5.24	3 8	2.24	4.59
1 9	2.26	4.97	3 9	2.38	4.93
2 0	2.28	5.08	4 0	2.36	4.55

5. 熱外中性子スペクトルの1/Eからのズレ

k_0 法では熱外中性子のエネルギー・スペクトルを1/Eでなく、 $1/E^{1+\alpha}$ に依存すると仮定して、実験的に α の値を求め、これを使って共鳴積分と熱中性子断面積との比を修正した後、 k_0 値を使って元素濃度を計算する。

α の測定には種々な方法が提案されているが、最も簡便と思われるCdケースを使わずに裸で

金とジルコニウムを照射して ^{198}Au と ^{95}Zr , ^{97}Zr の 3 核種の生成量から α の値を計算する方法を採用した。キャプセル内の底と上部 2 箇所 に試料を配置し、照射を行い RSR の No.12 と F21 照射孔の α の値を測定した。

F21 照射孔では下から上に向かって F21A 下 F21A 上 F21B 下 F21B 上 F21C 下 F21C 上の 6 箇所での α の値の変動を調べた。結果を第 3 表に記す。従来の多くの α の値は殆ど 0 に近い値が報告されているが、我々の値は 0 からかなり隔たっていた。 α の値を求めるためにいくつかの方法が提案されているので、別の方法で α の値を決めたいと考えている。しかし、われわれの α の値を使って k_0 法で定量したところ、そんなにおかしくない結果が得られたことも付記しておく。

第 3 表 立教炉における α の値

照射孔	RSR12 下	RSR12 上	F21A 下	F21A 上	F21B 下	F21B 上	F21C 下	F21C 上
α の値	-0.319	-0.308	-0.366	-0.351	-0.235	-0.224	-0.268	-0.260

6. おわりに

熱中性子束の時間的変動については、詳細なデータは持ち合わせていないが、1 日 6 時間の運転時間内での変動はほとんど問題にならないと考えている。中性子温度についても鹿児島大学の鈴木達郎先生と共同で測定を行ったデータがあるが、これについては次の機会に回したい。

おわりに RSR における熱中性子束とカドミウム比の変動に関する研究はインドネシアから留学されたスルヤディ、スルヤント両君に負うところが多かったことを記したい。

III. 立教炉における照射試料中の中性子束の変動について (2)

東京都立大学大学院理学研究科 海老原 充

立教大学原子炉の炉の特性による中性子束の変動に関しては戸村健児氏が詳細に記述されている。ここでは立教炉における照射試料間での中性子束の変動について、これまでの実験結果に基づいて述べることにする。ここに記載される結果は照射場や試料の特性によって異なるものであり、従って一般性をもつものではないが、今後実験を計画する際の一つのヒント、あるいは目安になれば幸いである。それぞれの事例に関連する実験内容や研究内容は各論文中に詳述されているのでそちらを参照していただきたい。

1. $^{127}\text{I}(n, \gamma)^{128}\text{I}$ 反応を用いた岩石試料中の微量ヨウ素の定量¹⁾

(1) ヨウ化パラジウム試薬による中性子の吸収 (I) (遮蔽効果)

岩石中のヨウ素を放射化学的中性子放射化分析で定量するために、中性子照射後ヨウ素をヨウ化パラジウムの形で沈殿させて ^{128}I (半減期 25 分) の放射能を測定し、ヨウ素の化学収率を再放射

金とジルコニウムを照射して ^{198}Au と ^{95}Zr , ^{97}Zr の 3 核種の生成量から α の値を計算する方法を採用した。キャプセル内の底と上部 2 箇所に試料を配置し、照射を行い RSR の No.12 と F21 照射孔の α の値を測定した。

F21 照射孔では下から上に向かって F21A 下 F21A 上 F21B 下 F21B 上 F21C 下 F21C 上の 6 箇所での α の値の変動を調べた。結果を第 3 表に記す。従来の多くの α の値は殆ど 0 に近い値が報告されているが、我々の値は 0 からかなり隔たっていた。 α の値を求めるためにいくつかの方法が提案されているので、別の方法で α の値を決めたいと考えている。しかし、われわれの α の値を使って k_0 法で定量したところ、そんなにおかしくない結果が得られたことも付記しておく。

第 3 表 立教炉における α の値

照射孔	RSR12 下	RSR12 上	F21A 下	F21A 上	F21B 下	F21B 上	F21C 下	F21C 上
α の値	-0.319	-0.308	-0.366	-0.351	-0.235	-0.224	-0.268	-0.260

6. おわりに

熱中性子束の時間的変動については、詳細なデータは持ち合わせていないが、1日6時間の運転時間内での変動はほとんど問題にならないと考えている。中性子温度についても鹿児島大学の鈴木達郎先生と共同で測定を行ったデータがあるが、これについては次の機会に回したい。

おわりに RSR における熱中性子束とカドミウム比の変動に関する研究はインドネシアから留学されたスルヤディ、スルヤント両君に負うところが多かったことを記したい。

III. 立教炉における照射試料中の中性子束の変動について (2)

東京都立大学大学院理学研究科 海老原 充

立教大学原子炉の炉の特性による中性子束の変動に関しては戸村健児氏が詳細に記述されている。ここでは立教炉における照射試料間での中性子束の変動について、これまでの実験結果に基づいて述べることにする。ここに記載される結果は照射場や試料の特性によって異なるものであり、従って一般性をもつものではないが、今後実験を計画する際の一つのヒント、あるいは目安になれば幸いである。それぞれの事例に関連する実験内容や研究内容は各論文中に詳述されているのでそちらを参照していただきたい。

1. $^{127}\text{I}(n, \gamma)^{128}\text{I}$ 反応を用いた岩石試料中の微量ヨウ素の定量¹⁾

(1) ヨウ化パラジウム試薬による中性子の吸収 (I) (遮蔽効果)

岩石中のヨウ素を放射化学的中性子放射化分析で定量するために、中性子照射後ヨウ素をヨウ化パラジウムの形で沈殿させて ^{128}I (半減期 25 分) の放射能を測定し、ヨウ素の化学収率を再放射

化法で求めた。上記核反応の中性子吸収断面積は熱中性子に対しては6.2バーンとさほど大きくないが、熱外中性子に対しては150バーンと大きいので、カドミウムカプセルを用いて中性子照射を行った。化学収率を再放射化法で求めるので、ヨウ素（ヨウ化パラジウム）沈殿量と中性子の自己遮蔽の関係を調べた。ヨウ化パラジウムとして3.61 mgから38.0 mgまでの幅で5種類の試料（直径16 mmのディスク状）を作り、フラックスモニタとともに、1試料ずつ回転試料棚にて照射した。その結果、図1に示すように試料量の増加と共に放射能強度（比放射能）が減少する傾向が見られたが、5試料の変動が 1σ で5.4%であり、現実的にはヨウ化パラジウムの沈殿量が10 mgを越えることはないので、自己遮蔽による中性子の変動による効果は事実上無視できるとした。

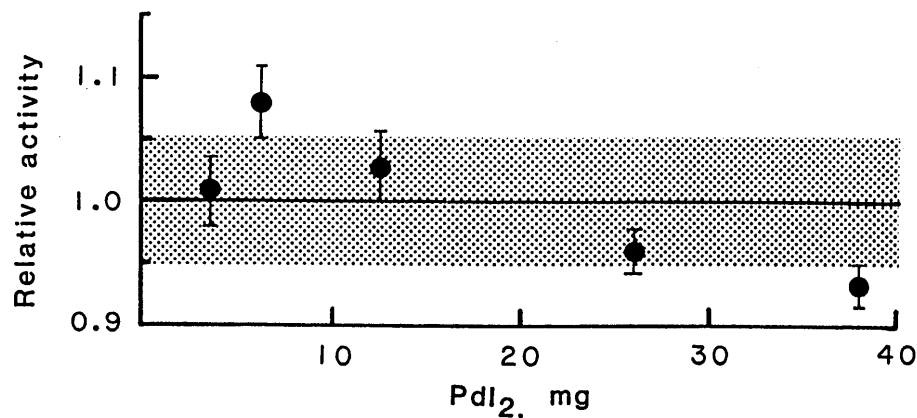


図1 ヨウ化パラジウム沈殿の量と生成した¹²⁸Iの比放射能の関連性

(2) ヨウ化パラジウム試薬による中性子の吸収 (II) (shadowing 効果)

(1)の場合とは同一試料中における中性子の吸収の影響が問題であったが、複数の試料を重ねて照射する場合、試料間で中性子強度が変化する可能性がある。上記のヨウ素の収率測定の際には複数の試料を重ねて一度に再放射化するのが効率的である。そこで、10 mgのヨウ化パラジウム沈殿（直径16 mmのディスク状）を5試料重ねて1組とし、2組を互いに90度の角度をとりつつ垂直に位置するように配置し、回転試料棚

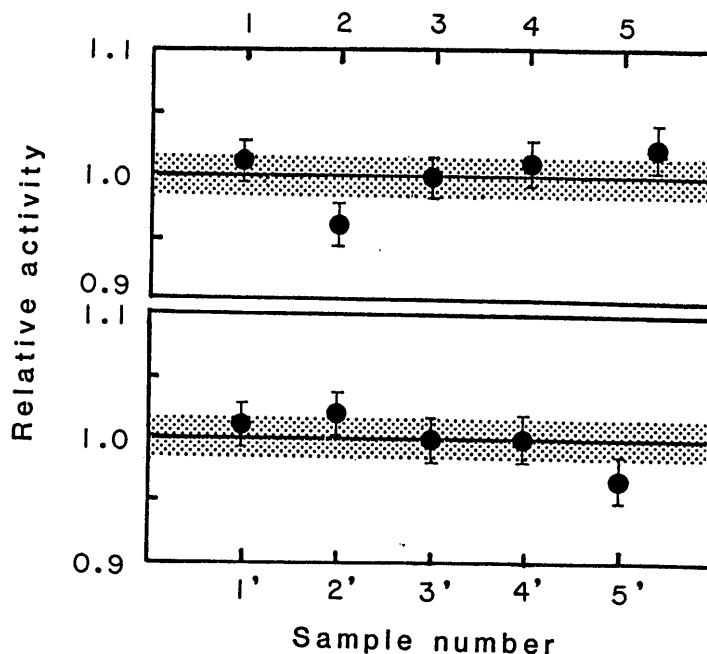


図2 重ねて照射したヨウ化パラジウム試料間の生成¹²⁸I放射能の比較

で20秒間中性子照射した。このように配置したのは、炉心方向に対する照射中の試料の位置関係が分からないため、shadowing 効果が生じればどちらかのセットで検出できると考えたためである。各試料間で ^{128}I の比放射能を比較したのが図2である。2組が垂直方向で異なる位置にあったことによる中性子束の違いの効果は生じたが、各セット間では標準誤差(1 σ)がそれぞれ1.85%, 1.72%と、試料間での変動は事実上認められず、試料間での中性子束の変動は無視できることがわかった。

(3) リチウムによる熱中性子吸収

このヨウ素の分析では、比較標準試料にヨウ化カリウム水溶液を希釈し、濾紙上に一定量とり、乾固して用いた。このとき、ヨウ素が酸化して揮散するのを防ぐために標準溶液に水酸化リチウム水溶液を加えてpHを約10に調整した。リチウムの同位体の一つである ^6Li が $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{He}$ 反応に対して大きな核反応断面積をもつため、この効果を検討した。直径16mm濾紙上に溶液を滴下し、リチウム含有量として0.01~1.0 mgcm $^{-2}$ の範囲で5試料を調整した。フラックスモニタと共にカドミウムキャプセルにいれ、回転試料棚において1分間照射した。リチウム含有量と ^{128}I 相対放射能強度の関係を図3に示す。その結果、標準誤差3.3%(1 σ)の範囲で変動が認められなかった。

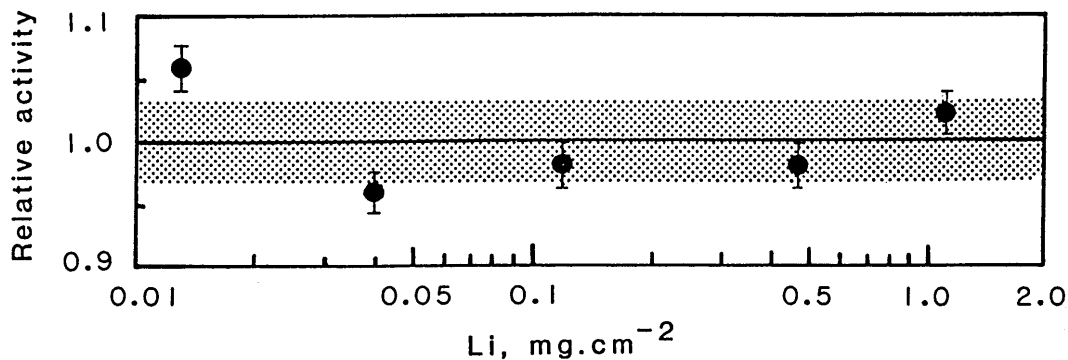


図3 リチウム含有量と ^{128}I 相対放射能強度

2. $^{238}\text{U}(n, \gamma)^{239}\text{U}$ 反応を用いた岩石試料中の微量ウランの定量²⁾

放射化分析によるウランの分析では通常、上記の核反応で生じた ^{239}U が β 壊変して生じる ^{239}Np の放出する γ 線を測定することが多い。本法では半減期23.5分の ^{239}U を用いるため、破壊法を利用する場合、迅速な化学分離操作を行う必要がある。この実験ではウランを最終的にオキシン塩として沈殿させ、再放射化法で化学収率を求めた。比較標準試料は試薬から調整したウラン標準溶液を濾紙上に乾固させ、ポリエチレン袋に封入したものを用いた。上記核反応の反応断面積は熱中性子に対して2.68バーン、熱外中性子に対する共鳴積分値が277バーンであることを考慮し、(1)の場合同様、試料をカドミウムキャプセルに入れて照射してウランの分析感度を相対的に高くした。ここでは1.のヨウ素の場合の(1)と(2)に対応する検討を行った。その結果を図4、図5に示す。図4はウランの標準試料に対する検討で、実際に用いるウラン量を異なる量の保持物質(ここではシリカゲル)に希釈して、生成する ^{239}U の量を比較した。6つの異なる重さの保持物質(うち1試料は実際に用いる濾紙)に対して ^{239}U の生成量は標準偏差1.2%(1 σ)以内で一致した(ただし、濾紙の場合が最も生成量が小さかったのは注目される)。また図5は、ウランの収率を求める際に、試料を重ねて照射する場合の中性子の吸収の程度を検討した結果を示

す。疑似試料4 試料を濃度既知の5つのモニター試料で挟み、回転試料棚で30秒中性子照射を行い、 ^{239}U の放射能強度を測定した。その結果、標準偏差1.26% (1σ) 以内で5モニター試料の ^{239}U 生成量が一致した。

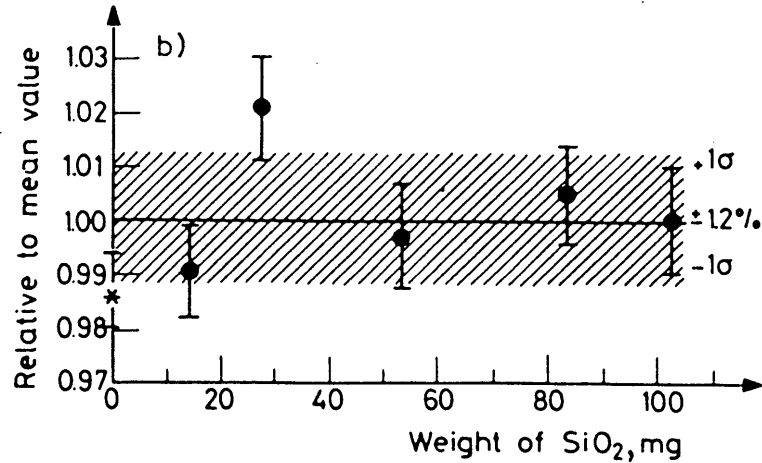


図4 ウランの保持物質（シリカゲル）量に対する生成 ^{239}U 放射能（星印は濾紙試料）

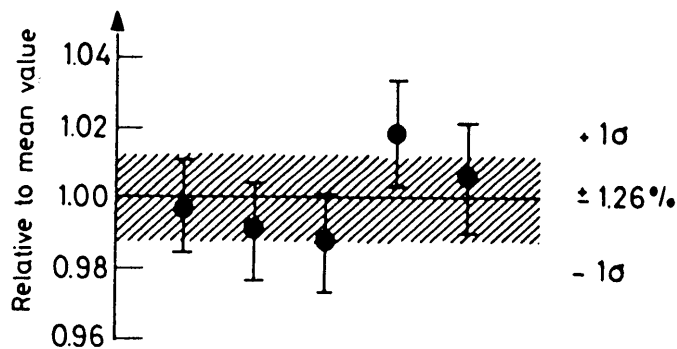


図5 重ねて照射してウランオキシソルゲル試料間の生成 ^{239}U 放射能の比較

3. $^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In}$ 反応を用いた岩石試料中の微量インジウムの定量³⁾

$^{116\text{m}}\text{In}$ は半減期 54 分の核種であり、非破壊分析を行う場合は 1. , 2. の場合同様照射後の迅速な化学分離を要する。上記の核反応の熱中性子に対する核反応断面積は 75 バーンなのに対して熱外中性子に対する共鳴積分値が 2600 バーンと大きく、1. のヨウ素や、2. のウランの場合と類似する。そこで、この場合に対しても 1. の (1) と (2) に対応する実験を行った。結果を図 6, 図 7 に示す。この場合も用いた実験条件の範囲では試料中、及び試料間でインジウムによる中性子の吸収の影響は表れないことがわかった。

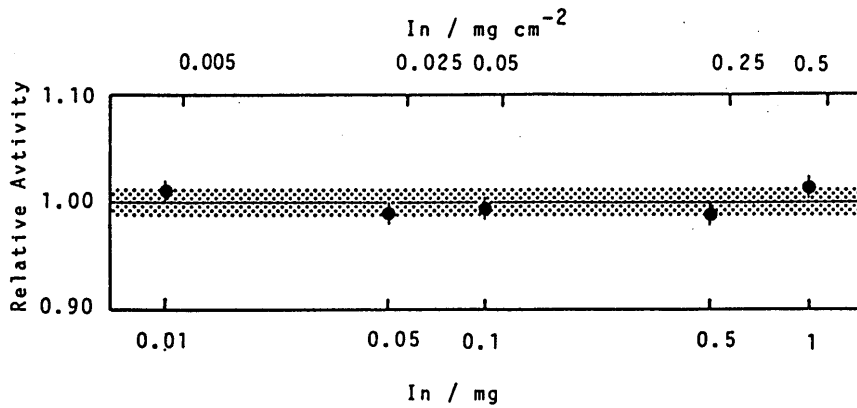


図6 インジウムオキシ塩の量と生成した ^{116m}In 放射能との関係

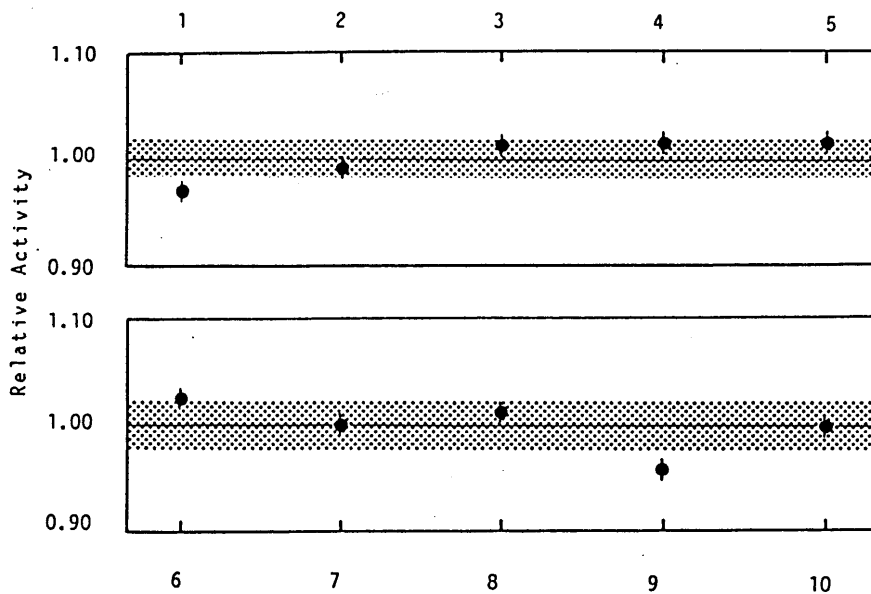


図7 重ねて照射したインジウムオキシ塩試料間の生成 ^{116m}In 放射能の比較

4. $^{41}\text{K}(n, \gamma)^{42}\text{K}$ 反応を用いた岩石試料中の微量カリウムの定量⁴⁾

岩石試料のカリウムの含有量は通常、蛍光分析や原子吸光分析法で求められることが多いが、これらの方法で ppm レベルの低濃度のカリウムを正確に定量するのは非常に難しい。このような場合、上記核反応を利用した放射化学的中性子放射化分析法を用いることにより、さらに ppb レベルまでのカリウムを定量することが可能となる。実験では、中性子照射後岩石試料を溶解し、カリウムをテトラフェニルホウ酸塩として沈殿させ、 ^{42}K の放出する γ 線を測定した。カリウムの化学収率は重量法と再放射化法で求めたが、重量法では主に融剤からくるナトリウムの共沈のために概して大きな値を与えるので、再放射化法を採用した。しかしテトラフェニルホウ酸塩を照射する際、沈殿に含まれるホウ素の中性子吸収が無視できない可能性があり、ホウ素の量と中性子照射によって生成する ^{42}K の比放射能の関係を調べた。その結果を図8に示す。図で明らかのように、ホウ素による中性子の吸収が無視できないことがわかり、補正曲線を求めて(図9)この吸収を補正して正しいカリウムの化学収率を求めた。

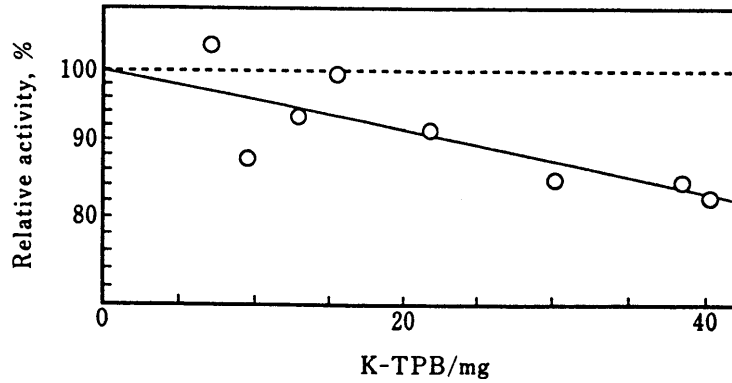


図8 カリウム - テトラフェニルホウ酸塩の重量と生成⁴²Kの比放射能の関係

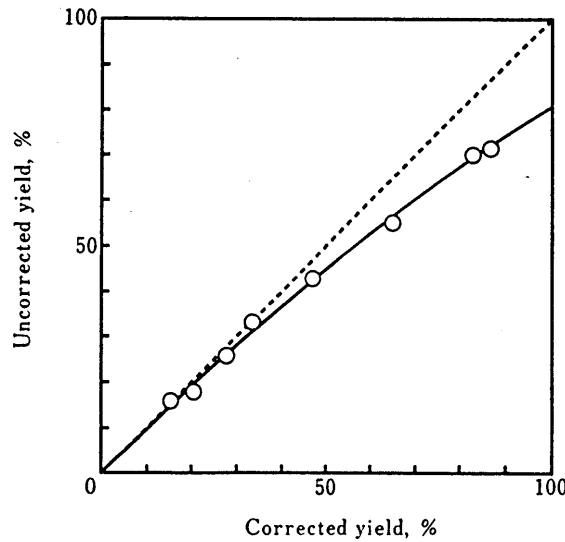


図9 カリウムテトラフェニルホウ酸塩を用いた再放射化法による収率の補正

5. 多数試料を同時に照射する際の試料間における中性子束の変動⁵⁾

非破壊中性子放射化分析においては多数の試料を同一カプセル内で同時に照射することが良く行われる。このとき正確な分析値を得るためには、試料間の中性子束の変動を許容範囲(数%?)に押さえるか、あるいは変動をモニタする必要がある。ここでは隕石試料(コンドライト質隕石の全岩, 金属成分, 非金属成分)を少量ずつ(約10~100 mg)ポリエチレン袋(約1 cm x 1 cm)に封入し, 30 試料を一度に照射した。このときすべての試料を1つのポリエチレン袋(約2 cm x 2 cm x 2 cm)に再度封入し, 試料が水平に位置するか, 垂直に位置するかで, 試料間の中性子束がどの程度異なるか調べた。その結果, 表1で示されるように, 2 cm 厚では垂直方向の中性子束の変動は2%以内に抑えられるのに対して, 水平方向では最大8%の変動が認められた。これはやや予想外の結果であったが, オレゴン州立大学の炉(立教炉と同様の TRIGA 炉)でも同様の傾向が認められる。炉心からの距離の変化と, ポリエチレン中の水素による中性子散乱による効果であろう。

表1 異なる幾何学的位置での時間補正生成放射能 (cpm)

standard group	element	vertical			horizontal		
		set 1	set 2	deviation	set 1	set 2	deviation
IV	Cr	948	977	0.1	514	480	6.8
	Fe	352	353	-0.3	112	105	5.9
	Co	1260	1250	0.8	721	677	6.3
	Ni	265	265	0.0	140	132	5.9
	Zn	1400	1410	-0.7	679	639	6.1
	Se	12100	12100	0.0	8270	7840	5.3
V	Ga	88800	86900	2.2	34200	31800	7.3
	Mo	4580	4620	-0.9	1680	1540	8.7
	Sb	4000	3950	1.3	1220	1140	6.8
	W	22300	22200	0.4	6580	6050	8.4
	Au	6490	6260	3.6	2030	1880	7.7
VI	Ru	672	670	0.3	331	318	4.0
	Ag	760	760	0.0	454	440	3.1
	Re	23300	24200	-3.8	2250	2130	5.5
	Os	1250	1240	0.8	726	689	5.2
	Ir	2350	2360	-0.4	374	366	2.2
	Pt	2550	2580	-1.2	988	950	3.9

文 献

- 1) M. Ebihara, N. Saito and H. Akaiwa.: J. Radioanal. Nucl. Chem. **108**, 241 (1986).
- 2) H. Ebihara, K. Tomura and M. Masutani: J. Radioanal. Nucl. Chem. **109**,69 (1987).
- 3) M. Ebihara, A. Nemoto. and H. Akaiwa, H.: Anal. Sci. **4**, 169 (1988).
- 4) K. Shinotsuka and M. Ebihara: Anal. Sci. **10**, 783 (1994).
- 5) P. Kong, M. Ebihara and H. Nakahara: Anal. Chem. **68**, 4130 (1996).

IV. 武蔵工大炉における中性子束の変動について

武蔵工業大学原子力研究所 鈴木 章悟

1. はじめに

武蔵工大炉の照射設備の中性子束変動を短時間照射用と長時間照射用に分けて報告する。

短時間照射用の気送管では、カプセル内の中性子束分布、中性子束経時変化、中性子束経日変化、照射直線性の4項目について¹⁾、長時間照射用の中央実験管では、中性子束経日変化について測定し²⁾、誤差の要因と対策を検討した。

武蔵工大炉は現在停止中であり、運転が再開した場合の各照射場での中性子束の絶対値は以前と多少変わるが、変動はそれほど変わらないと考えられる。

2. 短時間照射における中性子束変動

(1) 気送管カプセル内の中性子束分布

中性子照射における系統誤差の要因として、照射位置を取り上げ、ポリエチレン製気送管カプ

表1 異なる幾何学的位置での時間補正生成放射能 (cpm)

standard group	element	vertical			horizontal		
		set 1	set 2	deviation	set 1	set 2	deviation
IV	Cr	948	977	0.1	514	480	6.8
	Fe	352	353	-0.3	112	105	5.9
	Co	1260	1250	0.8	721	677	6.3
	Ni	265	265	0.0	140	132	5.9
	Zn	1400	1410	-0.7	679	639	6.1
	Se	12100	12100	0.0	8270	7840	5.3
V	Ga	88800	86900	2.2	34200	31800	7.3
	Mo	4580	4620	-0.9	1680	1540	8.7
	Sb	4000	3950	1.3	1220	1140	6.8
	W	22300	22200	0.4	6580	6050	8.4
	Au	6490	6260	3.6	2030	1880	7.7
VI	Ru	672	670	0.3	331	318	4.0
	Ag	760	760	0.0	454	440	3.1
	Re	23300	24200	-3.8	2250	2130	5.5
	Os	1250	1240	0.8	726	689	5.2
	Ir	2350	2360	-0.4	374	366	2.2
	Pt	2550	2580	-1.2	988	950	3.9

文 献

- 1) M. Ebihara, N. Saito and H. Akaiwa.: J. Radioanal. Nucl. Chem. **108**, 241 (1986).
- 2) H. Ebihara, K. Tomura and M. Masutani: J. Radioanal. Nucl. Chem. **109**,69 (1987).
- 3) M. Ebihara, A. Nemoto. and H. Akaiwa, H.: Anal. Sci. **4**, 169 (1988).
- 4) K. Shinotsuka and M. Ebihara: Anal. Sci. **10**, 783 (1994).
- 5) P. Kong, M. Ebihara and H. Nakahara: Anal. Chem. **68**, 4130 (1996).

IV. 武蔵工大炉における中性子束の変動について

武蔵工業大学原子力研究所 鈴木 章悟

1. はじめに

武蔵工大炉の照射設備の中性子束変動を短時間照射用と長時間照射用に分けて報告する。

短時間照射用の気送管では、カプセル内の中性子束分布、中性子束経時変化、中性子束経日変化、照射直線性の4項目について¹⁾、長時間照射用の中央実験管では、中性子束経日変化について測定し²⁾、誤差の要因と対策を検討した。

武蔵工大炉は現在停止中であり、運転が再開した場合の各照射場での中性子束の絶対値は以前と多少変わるが、変動はそれほど変わらないと考えられる。

2. 短時間照射における中性子束変動

(1) 気送管カプセル内の中性子束分布

中性子照射における系統誤差の要因として、照射位置を取り上げ、ポリエチレン製気送管カプ

セル(内径 15mm, 内長 93mm)内の位置の違いによる中性子束の差, すなわち, 中性子束分布の測定を行った。

高純度鉄のワイヤー約 50mg 秤量し, ポリエチレン袋で二重封入し, カプセル内の図 1 の位置に配置した。照射は, 気送管にて 30 秒間行い, 約 15 分冷却後, Ge 検出器にて 5 分間 γ 線測定(試料位置 20mm)し, ^{56}Fe の(n,p)反応で生成する ^{56}Mn の 847keV の比放射能を求めた。

図 1 に結果を示す。縦軸に放射化量の指標として, 比放射能を取り, 横軸には, カプセルの上端からの深さを取った。放射化量の違いが, そのまま位置による中性子束の違いを表している。図では, 中性子束の分布をわかり易くするために, 最小二乗法により二次関数で当てはめてある。カプセル内の位置により中性子束に差があるのは明白であり, カプセルの深部ほど中性子束が小さくなっている。その差は, 測定点だけを見ても約 3.7% あった。

この中性子束の“偏り”をなくすためには, 試料位置を正確に決める方法を取るか, あるいは, フラックスモニタを用いて補正を行う方法が考えられるが, 試料の大きさを考えると, 試料を上端から 20mm 程度の位置に毎回置くようにすれば, 変動はそれほど大きくないことが判った。

(2) 気送管における中性子束の経時変化

中性子照射における偶然誤差の要因として, 中性子束の変動を取り上げ, 気送管照射場における 1 日(原子炉運転時間 5 時間)の中性子束の変動の測定を行った。

試料は Dy 原子吸光用標準溶液の 20 μl をろ紙に浸み込ませ, ポリエチレン袋で二重封入したものを用いた。照射は, 約 15 分毎に気送管にて 30 秒間行い, 約 20 分間冷却後, Ge 検出器にて ^{165}Dy 95keV の γ 線を測定した。

図 2 に結果を示す。縦軸に放射化量の指標として, 比放射能を取り, 横軸には, 照射回数を取ってある。横軸は, 1 目盛りが約 30 分に相当す

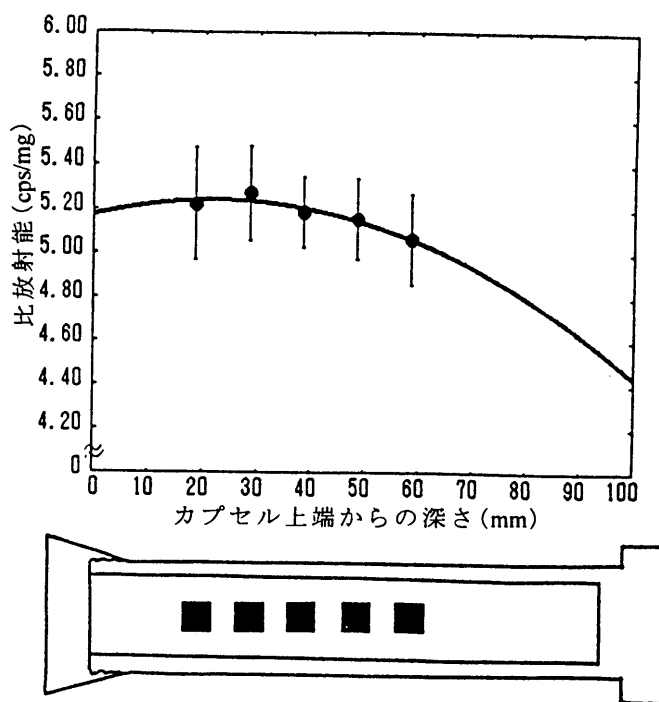


図 1 気送管カプセル内の中性子束変動

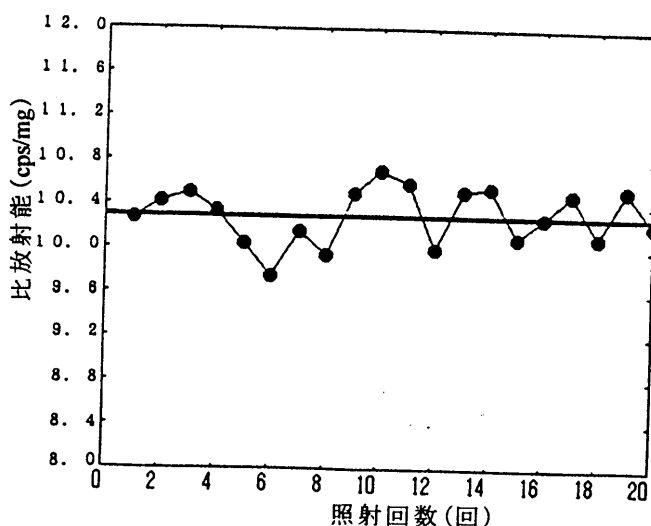


図 2 気送管における中性子束の経時変化

る。比放射能の平均は10.3cps/μg, 相対標準偏差が2.49%であった。この”ばらつき”から試料調製やγ線測定時の誤差を考慮にいれて計算すると、変動は約1.8%となった。計数誤差程度の”ばらつき”であり、フラックスモニタなどを使用しての補正する必要のない程度の変動であった。

(3) 気送管における中性子束の経日変化

気送管照射場における照射日による中性子束の違い、つまり経日変化の測定を行った。

試料は経時変化と同様にDyを用いた。1日の照射・測定は、原子炉運転中に適当な間隔で30秒間照射を4回行い、それを10日間繰り返した。

表1に結果を示す。この表には、測定日、4回の測定における¹⁶⁵Dyの比放射能の平均、及びその標準偏差が表示されている。この10日間の比放射能の平均は11.2cps/μg, 相対標準偏差が2.3%であった。このことから経日変化も大きくなかった。

このように短時間照射場の気送管での中性子束の変動は、後述する長時間照射場に比べてずっと小さく、カプセル内の同じ位置で照射するようにすれば、フラックスモニタが必要ないことが実験から判った。

(4) 気送管における照射直線性

気送管照射における、照射時間の正確さを調べるため、照射時間と放射化量の関係、つまり照射直線性の測定を行った。

試料はカプセル内の変動と同様に高純度鉄のワイヤー約50mgを用いた。照射時間は3秒間~30秒間で12種類行った。Ge検出器で測定を行い、放射化量の指標として⁵⁶Mnの847keVの比放射能を求めた

図3に結果を示す。最小二乗法を用いて一次関数に当てはめてある。半減期が照射時間に比べて十分長い場合、照射時間と生成放射能の関係は原点を通る直線で表せる。図のようになかなか良く直線に乗っていたが、原点はわずかにはずれていた。この原因は照射時間の偏りであり、計算すると0.1秒であった。照射時間の正確さを確認できた。

表1 気送管における中性子束の経日変化

日付	Ave. (cps/μg)	%S. D. (n=4)
'89 9/12	11.584	1.986
9/13	10.761	3.044
9/14	11.336	2.289
9/18	11.233	2.040
9/19	11.211	2.376
9/21	11.192	2.120
9/22	11.196	0.641
9/27	10.727	2.754
9/28	11.057	1.549
9/29	11.277	1.684

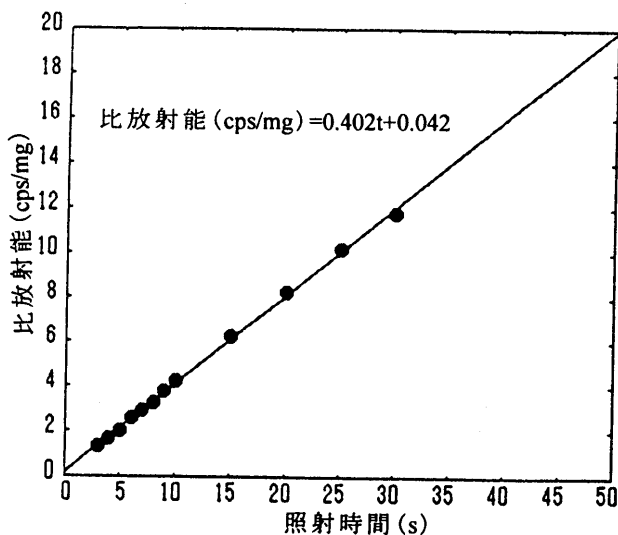


図3 気送管における照射直線性

3. 長時間照射における中性子束変動

熱出力 100kW の武蔵工大炉では中・長寿命核種を使った分析には1日の運転中照射を行うことが多い。この場合、照射時間は5時間となり、中性子束の変動はかなり大きい。中央実験管における照射日による中性子束の違い、つまり経日変化の測定を行った。

測定にはフラックスモニタとして使用している Al-0.15%Sb 合金ワイヤー(約10mg) を用いた。

このフラックスモニタを照射カプセル(内径 26mm, 内長 200mm) の下端に分析試料や比較標準試料に密着させて照射を行った。約7日間冷却後、Ge 検出器にて約10分間 γ 線測定(試料位置 20mm)し、 ^{122}Sb (半減期 2.7日)の 564, 693keV と ^{124}Sb (半減期 60.2日)の 603, 646, 723, 1691keV の比放射能を求めた。それぞれのピークで面積が違うので重みを変えて合計・平均した。

図4に結果を示す。約10~15%の変動があった。変動の理由としては、毎回 Al-0.15%Sb 合金ワイヤーの添付位置が多少異なっていること、分析試料の種類ならびに形状が異なっていること、同時に他の照射場所での照射が行われていることなどが考えられる。この変動はフラックスモニタを用いて補正する必要があった。

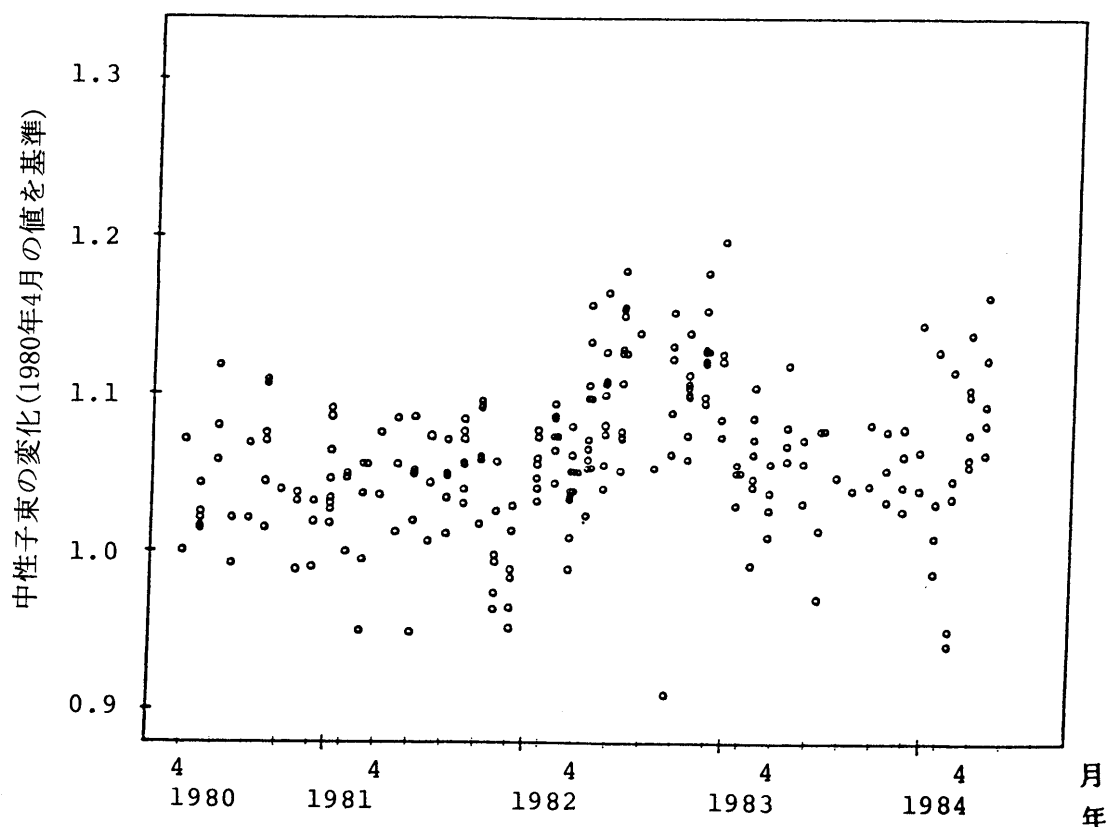


図4 中央実験管における中性子束変動

文 献

- 1) 関典之：武蔵工業大学原子力研究所報，通巻16号，P.240 (1990)
- 2) 平井昭司,岡田往子,鈴木章悟：第28回放射化学討論会講演要旨集，p.29 (1984)

V. 原研炉の放射化分析用照射設備における中性子束の変動について

日本原子力研究所 研究炉利用課

現在使用可能な JRR-3M の放射化分析に適した照射設備としては、気送照射設備(PN)、水力照射設備(HR)、放射化分析用照射設備(PN-3)の設備がある。JRR-3M 照射設備の概要については、既に「放射化分析 NO.2」において紹介しているため参考とされたい。

中性子束の変動については、JRR-3M がサイクル運転（4 週間連続）であるため、デイリー運転の原子炉と比較し制御棒の入れ替えも少なく安定している。これについては、PN-3 照射設備に挿入されている中性子検出器(SPND)の信号により、中性子束の変動を確認することができる。この SPND の信号から得られた 4 日間の中性子束の平均値に対する比率を図 1 に示す。これより、PN-3 設備における 1 日の中性子束の変化は 1 %以内であり、4 日間においても約 1 %である。また、PN,HR 照射設備における中性子束の変動については、重水反射体領域の同様な場所に位置するため、PN-3 照射設備とほぼ同等である。

また、PN,HR 照射設備においては、原則的に 2～3 個のラビットを同時照射する多段照射であるため、上記の制御棒の入れ替え等による中性子束変動の他に他のラビット（試料）の挿入・取り出しによる中性子束の変動がある。なお、PN-3 設備は、1 個ずつ照射するため他のラビット（試料）からの影響を受けない。

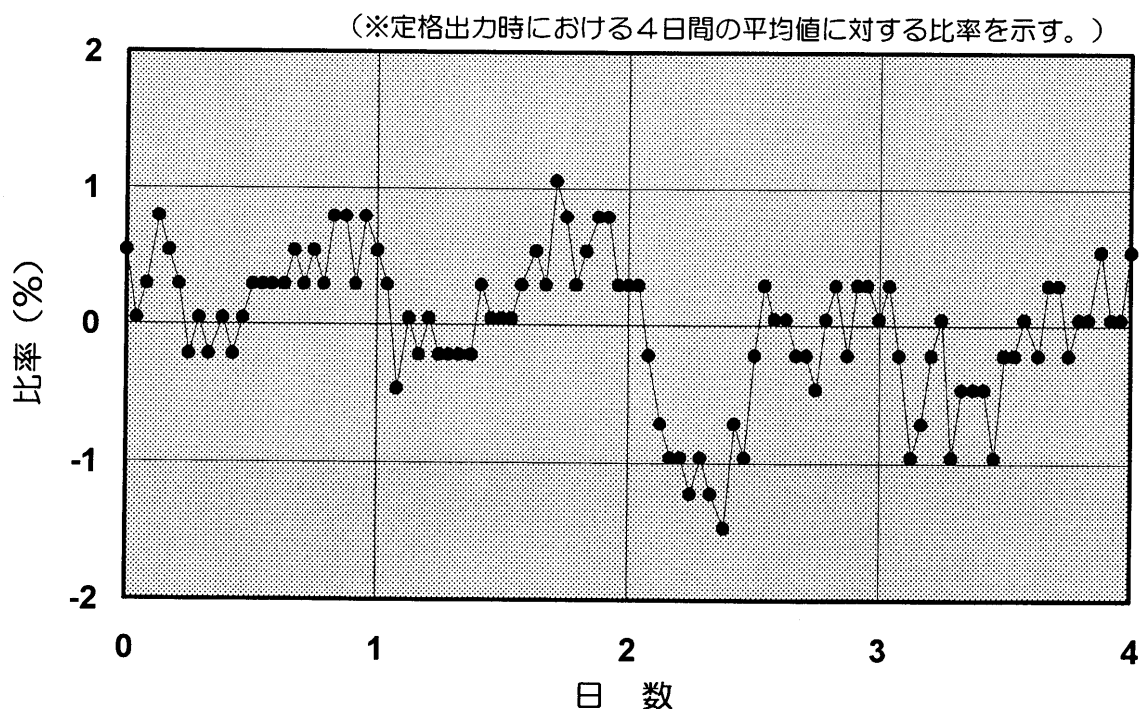


図1 SPNDによる中性子束の変化

放射化分析で見た葉面付着エアロゾルの 元素組成特性とその植生影響

国立環境研究所 高松武次郎

千葉大学自然科学研究科 佐瀬裕之

京都大学原子炉実験所 高田実弥・松下録治

1. はじめに

近年日本の各地で植生の衰退が報告されている。全国のマツ、丹沢山系や福岡県宝満山のモミ、赤城山と日光周辺のダケカンバやオオシラビソ、及び都市域、特に関東・関西地域のスギなどに見られる枯損はその代表的なものである。これらの衰退の要因として、これまでにSOx、NOx、オキシダントなどの大気汚染物質の直接影響、酸性降下物に起因すると思われる土壤の酸性化、及び都市化による水分条件の悪化や、潜在的な環境汚染が引き起こす病害虫や菌類の異常繁殖、さらには風害や凍害などの自然環境の突発的な変化などが検討されてきた。しかしいずれの場合も、衰退は単独の要因によるものではなく、様々な要因が複合的に影響した結果であると考えられ、未だ原因を特定するには至っていない。そのため、今後は新たな要因の発見を含め、さらに詳しく検討していく必要がある。

樹木の葉面は、エピクチクラワックスと呼ばれる疎水性の層で覆われ、水分や養分の損失、病害菌や汚染物質の侵入、及び害虫の攻撃などを防いでいる。しかし、その疎水的な性質は、大気汚染物質、特に排気ガスなどに由来する炭素を主成分とするエアロゾルを葉面に特異的に集める原因にもなっている。写真1は、汚染の程度が異なる埼玉県蕨町（神明神社）と鷲宮町（鷲宮神社）、茨城県つくば市（環境研）、及び屋久島の山間部のスギの1年葉（前年に出た葉）について、エアロゾルの実際の沈着密度を再現したものである。都市域では、多量のエアロゾルの沈着が見られ、これが樹木の活性に影響していることも十分考えられる。

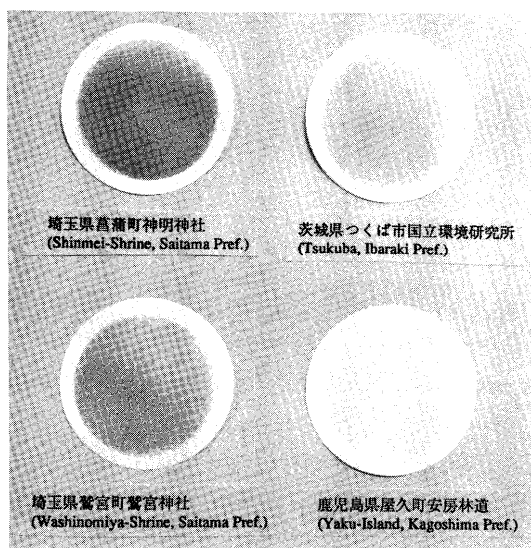


写真1 スギ葉面のエアロゾル沈着密度

我々はこれまで、日本各地の樹木、特にスギの葉面に沈着しているエアロゾルを分離し、中性子放射化とICP-AESで分析して、その元素組成の特徴を明らかにするとともに、含有元素の汚染指標としての有効性やエアロゾルの植生影響などについても検討してきた。ここではその一端を紹介する。

2. 方法

図1は本研究に関連した実験操作の概略を示したものである。一連の研究では、放射化分析以

外にも、酸分解/ICP-AES、CN分析、及び酸化分解/IC分析などを用いて、エアロゾルに含まれる40以上の元素を分析するとともに、エピクチクラワックスの特性もエアロゾル沈着の影響や大気汚染との関連で調べているが、今回は放射化分析での結果に限定して紹介する。

2-1. 試料採取と沈着エアロゾルの分離・捕集

関東、東北、屋久島などの地域において、樹齢約30年以上の樹木（主にスギ）の2～5mの高さから200余りの葉試料を、約30cmの枝と共に採取した。また、樹高の影響を調べるための試料は、樹木の頂点と着葉最下部を含む3層から採取した。葉（スギの場合は約5cmの細枝共）は葉齢別に切り取った後、図1の操作に従って、葉に沈着していたエアロゾルを石英ウール上に捕集し、分析試料とした。

2-2. 中性子放射化分析

中・長寿命核種の分析：
捕集したエアロゾルを石英ウールごと高密度ポリエチレン袋に二重に融封した。試料15個を標準（ミリポアに添着した30μgのCo）と共にカプセルに詰め、京都大学原子炉実験所（KUR）の圧気輸送管（Pn-2）を用いて50分間照射した。放射化した試料は4～5日間冷却した後、外袋を替え、γ線スペクトルを8,000秒間測定した。スペクトルは、（故）小山睦夫博士と本稿の著者の一人である松下が開発した解析プログラムで処理し、中寿命核種を定量した。試料は約1ヶ月後に再び100,000秒間測定して、長寿命核種を定量した。

短寿命核種の分析： 上と同様に調製した試料2～3個と標準（10μgのMn）をカプセルに詰め、KURのPn-3で20秒間照射した。放射化した試料は直ちに外袋を替え、100～200秒間γ線スペクトルを測定して、短寿命核種を定量した。なお、Alの分析で対象とした²⁸Alは石英ウールの²⁸Si(n, p)²⁸Alによっても生成するので、濾過に使うウールの量を一定にし、その寄与を補正して定量した。

短寿命核種の分析： 上と同様に調製した試料2～3個と標準（10μgのMn）をカプセルに詰め、KURのPn-3で20秒間照射した。放射化した試料は直ちに外袋を替え、100～200秒間γ線スペクトルを測定して、短寿命核種を定量した。なお、Alの分析で対象とした²⁸Alは石英ウールの²⁸Si(n, p)²⁸Alによっても生成するので、濾過に使うウールの量を一定にし、その寄与を補正して定量した。

3. 結果と考察

3-1. 葉面沈着エアロゾルの元素組成の特徴

葉面に沈着したエアロゾルの元素組成をSc（汚染との関係が少なく殆どが土壌などの地殻物質に由来する）と考えられ、かつ、中性子放射化で精度良く定量できる元素）で規格化して土壌の元素組成と比較した結果、エアロゾルには、Se、Cr、Au、Br、As、Sb、Ag、Zn、I、Clなどが地殻物質

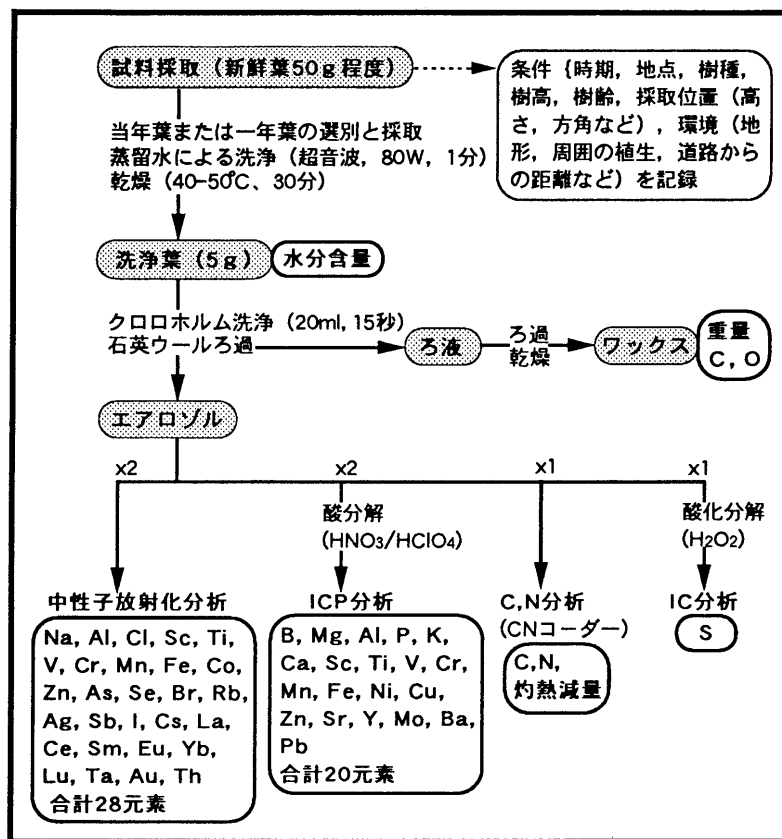


図1 葉面沈着エアロゾルの分離・分析方法

(土壌)に比べて豊富に含まれていた。図2は、Sc濃度を基準にして土壌起源の元素画分を差し引き、沈着エアロゾルに含まれる非土壌画分、すなわち人為起源もしくは海塩・火山ガス起源の元素の割合を求めた例である。全地域を平均して見た場合、Au、Ag、Sb、Cl、Se、及びIでは90%以上が、Br、Zn、及びAsでは80~90%が、Cr、Cs、Co、及びVでは40~60%が、そしてFeとNaでは約30%が非土壌性の元素である。これらの元素の中の陽イオン性ものは、塩素と強く結合する元素(Au: $pK_1=8.5$, Ag: 9.8など)や比較的低沸点の塩素化合物を生成する元素(Sb: $b.p.=223^\circ\text{C}(\text{SbCl}_3)$, Se: $178^\circ\text{C}(\text{SeOCl}_2)$, As: $130^\circ\text{C}(\text{AsCl}_3)$, Cr: $117^\circ\text{C}(\text{CrO}_2\text{Cl}_2)$ など)であり、エアロゾル中のCl濃度も高いので、化石燃料の燃焼、海塩の飛散、火山ガス(通常多量の塩酸を含む)の噴出の際などに塩化物として大気に放出されたものと推測される。中でもSbは、殆ど全てが化石燃料(主に車の排ガス)由来であり、中性子放射化での分析精度も高いので、汚染の指標元素として最適であると考えられる。なお、葉面に沈着したエアロゾルは降雨に曝され、易溶性の元素(アルカリ金属、陰イオン性元素など)は溶脱するので、これらの沈着量は実際には分析値より相当大きかったと考えられる。

また、図2に見られる様に、沈着エアロゾルの元素組成は地域特性をも良く反映する。例えば、

恐山では火山ガス由来のAsが多いこと、屋久島で唯一石炭と重油を使用している化学工場(屋久電工)の近くではCo、V、Mnなどが顕著に多いこと、そして海に近い恐山と屋久島では、つくば市の環境研の場合に比べてI、Cs、Naなどの海塩起源の成分を多く含むことなどである。

3-2. エアロゾル沈着量の樹種・樹高特性

図3はエアロゾルとして葉面に沈着した元素量を樹種間で比較したものである。ここでは、葉の新鮮重当たりの沈着量で示したが、乾重量や葉面積当たりで見ても傾向は同じで、沈着量は一般的に広葉樹より針葉樹で多く、特にスギでは著しく多い。エアロゾルの沈着は、葉の形態、エピクチクラワックスの形態と化学特性の他、冬期には葉面に帯びる静電気にも関係すると考えられるが、詳しくは分かっていない。

図4は、色々な環境に生育するスギの孤立木について、枝の高さの影響をエアロゾル中のSb量で比較したものである。道路からの直接影響の少ない孤立木の場合(つくば市以外の例)、樹木の先端と下部は汚染大気からほぼ同

図2 葉面沈着エアロゾルに含まれる元素の非土壌画分の割合

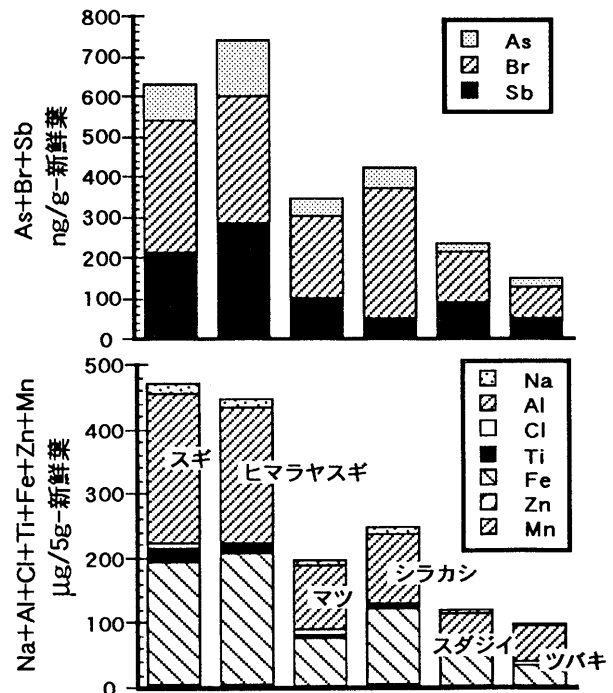
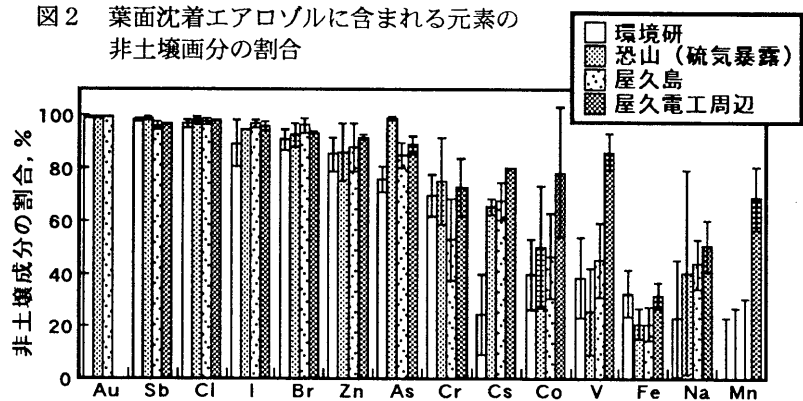


図3 エアロゾル沈着量の樹種間比較
調査地: つくば市環境研.

程度の影響を受けるため、沈着量の高低差は殆ど認められない。しかし道路沿いの木（つくば市の例）では、車の排気ガスの影響で、下部の蓄積量が著しく増大する。また図には示していないが、林内の木では、突出した先端部に比較的多量のエアロゾルが沈着する。このような傾向は、マツ、ヒバ、ヒノキなどの樹種でも同様であった。

3-3. エアロゾル沈着量の経時変化

図5は沈着量の経時変化をやはりエアロゾル中のSb量で追跡したものである。エアロゾルの沈着は5月頃の若葉（当年葉）の出現と同時に始まり、沈着量は時間と共にほぼ直線的に増加して（多くの場合秋から冬にかけて沈着速度が少し増加する）、冬期に最大に達した後はほぼ一定に保たれる。そのため、1年葉では、沈着量の時期的な変化は少なく、沈着量と洗脱量

が平衡に達しているものと考えられる。多くの元素はSbとほぼ同様の蓄積パターンを示すが、アルカリ金属など一部の易溶性元素は比較的早い時期に定常に達したり、不規則な変化を示したりする場合もある。

3-4. 葉面沈着エアロゾルによる大気汚染の評価

上で述べた様に、エアロゾルの沈着量は1年葉では既に定常に達していて、そのレベルは樹木が生育する環境の大気汚染の程度を反映すると考えられる。図6は、スギの1年葉に沈着したエアロゾル中のSb量を汚染度の異なる地域間で比較したものである。埼玉県が飛び抜けて高く、以下茨城県平野部、東北都市部、

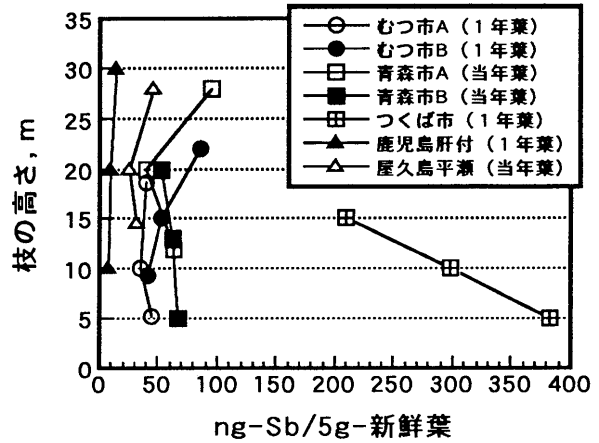


図4 エアロゾル沈着量 (Sb量) と枝の高さの関係

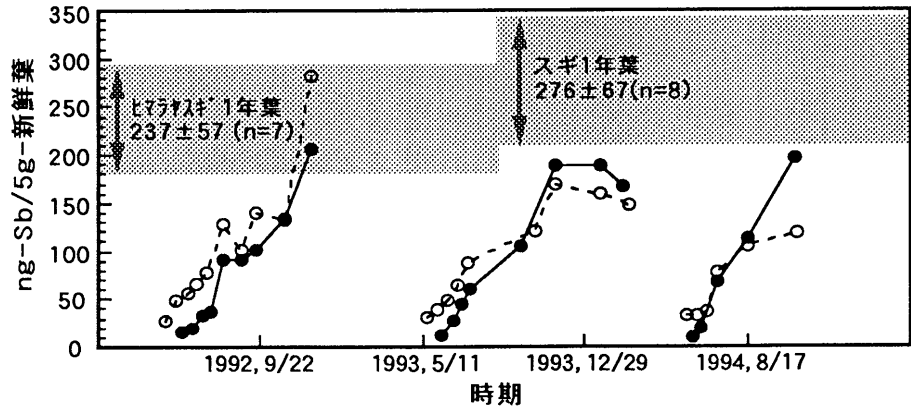


図5 エアロゾル沈着量 (Sb量) の経時変化
調査地： つくば市環境研、(●)スギ、(○)ヒマラヤスギ。

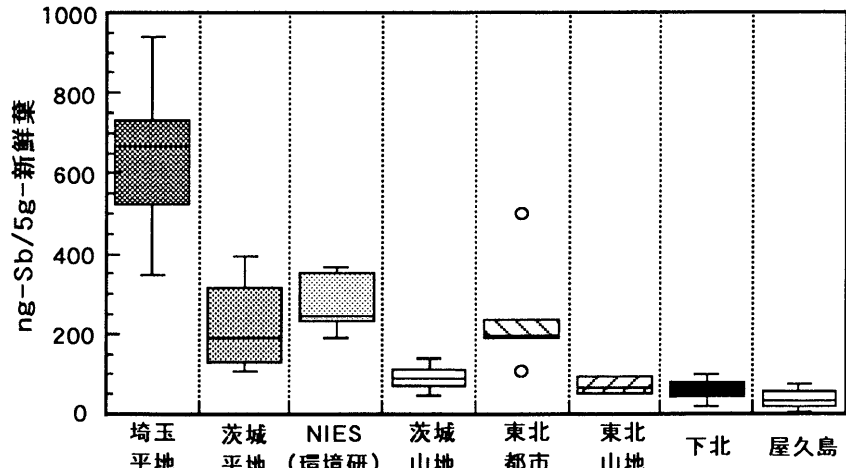


図6 エアロゾル沈着量 (Sb量) の地域間比較 —スギの場合—

茨城県山地、東北山地、下北半島、屋久島の順で、埼玉県では屋久島の10倍程度の沈着が見られる。また図7は、日光周辺のおオシラビソの葉に沈着したエアロゾル中のSb量を那須や八幡平のものと比較した結果である。沈着量の比較的多かった地域、すなわち念仏平、金精峠、男体山南東面、及び那須男鹿岳は、おオシラビソの衰退が見られる地域でもある。

3-5. 葉面沈着エアロゾルの植生影響

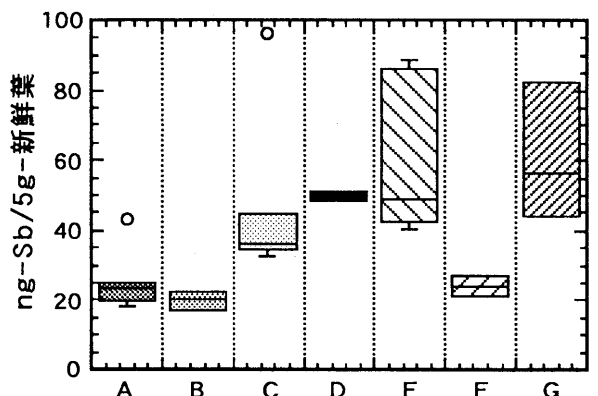
葉面に沈着したエアロゾルが樹木にどのような影響を与えているかは現在殆ど分かっていないが、エアロゾルにはSb、

As、Seなどの毒性の高い元素が濃縮されているばかりでなく、ダイオキシンやベンツピレンなどの有害物質も含まれているので、それらの影響は否定できない。また、エアロゾルは、葉面のエピクチクラワックス層に吸着するだけでなく、気孔内部にも侵入する。特に針葉樹では気孔が窪んでいるため、エアロゾルが気孔に捕捉され易く、一度入ったものはなかなか洗脱されない。図8は、スギの気孔に詰まったエアロゾルの電子顕微鏡写真とX線スペクトルである。この様にエアロゾルが気孔に侵

入ると、いずれは気孔の開閉が阻害され、蒸散やガス交換のコントロールが出来なくなってしまう。エアロゾルの沈着量が著しく多い埼玉県のスギでは、この様な原因で蒸散（葉面からの水分損失）が異常に速くなっている事実も既に確かめている。また、気孔阻害は栄養塩類の異常な溶出も引き起こす。

4. おわりに

この研究を通して、葉面に沈着したエアロゾル中の特定元素（例えばSb）の量は大気汚染の有効な指標であることが分かった。スギやマツは全国に分布しているので、この方法で全国レベルの汚染調査が行える。また、エアロゾルの沈着は植生に相当な影響を与えていることが予想されるため、今後、植生衰退の重要な要因としてクローズアップされる可能性も高い。なお、ここで紹介した内容は殆どが未発表であり、類似の研究も非常に少ないので、文献引用は省略した。



A: 日光志津林道, B: 男体山北東面, C: 念仏平, D: 金精峠, E: 男体山南東面, F: 八幡平, G: 那須男鹿岳

図7 図6と同じ —おオシラビソの場合—

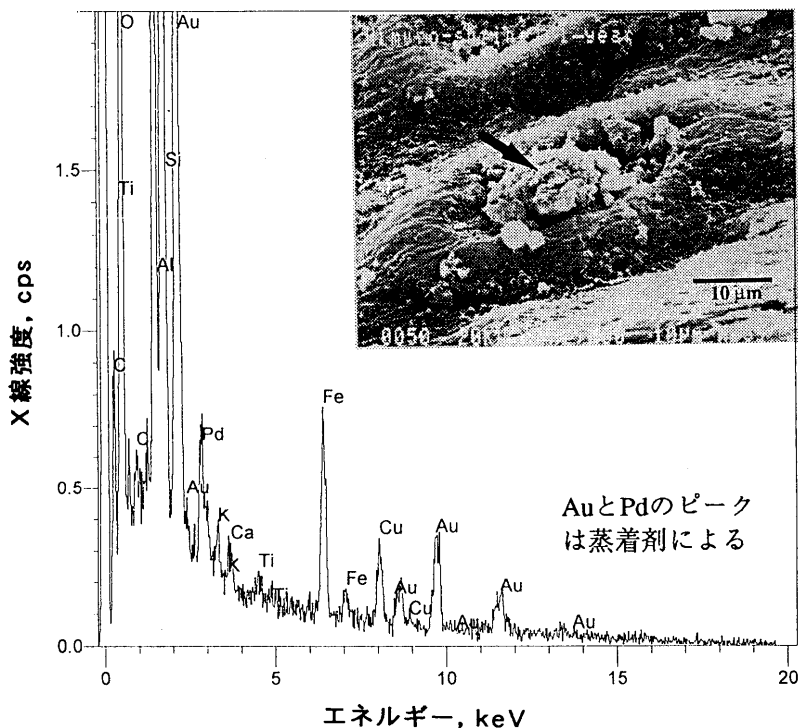


図8 スギ一年葉（埼玉県）の気孔のSEM写真とX線スペクトル

機器中性子放射化分析法による中国製生薬製剤中の 微量元素の定量

(昭和薬大・薬) 遠藤和豊、串田一樹、矢永誠人、太田英樹、蛭沼利江子、本田智香子
(明治大・農) 塚田正道

【はじめに】日本は高齢化社会を迎え、65歳以上の高齢人口が占める割合は年々高くなっていくことが予測されており、また平均寿命を他国と比較すると最も高い部類にはいる。高齢化社会の到来の原因は生活水準の向上や医療技術の発展、人間ドッグおよび健康診断の普及による病気の早期発見、早期治療などが挙げられる。そして健康に対する意識改革や食生活の改善を取り入れるだけでなく、健康増進のために積極的にあらゆるものを試みて健康管理を行なっている。このような健康思考が高まる中、病気治療だけでなく健康維持、健康増進を目的とする中国医学が注目されている。

中国医学は小児の虚弱性、老人の老化現象がもたらす漸進的な症状、婦人特有の不定愁訴など現代医学での病名では全体像が把握しがたい状態に対して体質、体力、病状を基礎にして処方薬を適性に使い分けるとき、大きな効果が期待でき、しかも副作用がないと言われている。中国医学の薬物療法の特徴は植物生薬、動物生薬、鉱物生薬の多種類の生薬を配合する伝統的な処方であり、これを煎剤や丸剤、散剤等にして用いられている。処方中の鉱物生薬は動、植物生薬に比べて少なく、そのため関心が低い。また、中国製生薬製剤の研究対象はおもに有機成分で鉱物生薬に対する報告はほとんどない。本報告では非破壊分析のできる機器中性子放射化分析法により中国製生薬製剤中の微量元素を定量した。

【実験】分析に用いた中国製生薬製剤は丸剤で外側にワックスのあるものはワックスをはずして、また金粉（箔小片）が付いているものはピンセットでできるかぎり取り去った。分析試料は再現性をみるために1種類につき2個ずつとして、1個の試料約50mgを精秤してポリエチレン袋に入れ二重に封入した。中性子照射は短時間（1分）、中時間（1時間）、長時間（18時間）とした。標準試料はそれぞれ試薬特級を用い、照射時間と対応する測定核種に対応して3つのグループにわけて調整した。バナジウムについては精秤後、水浴で少量の希硝酸で溶解後、メスフラスコに移し精製水で100mlとし、標準溶液とした。1分照射用標準試料はBaCO₃, (NH₃)₆MoO₂₄・4H₂O, KIO₃, MgO, V₂O₃, ((NH₄)₆Mo₇O₂₄・4H₂O), CaCO₃, CuSO₄・5H₂O, (HgSO₄)各元素につき1000ppmの溶液を調整した。

中時間照射用の標準試料の調整はAs₂O₃, KBr, NaCO₃を用いた。As₂O₃は精秤後、少量のアンモニア水を加えて溶かし、希硝酸により中和して精製で全量を100mlとした。

長時間照射用の標準試料の調整はNaSeO₄, Hg[Co(SCN)₄], Co(SCN)₂, KC₄H₄O₆(SbO)・1/2H₂O, (NH₄)₂Fe(SO₄)₂・4H₂Oを用いた。Co(SCN)₂は少量のエタノールに溶かしてのち精製水で全量を100mlとした。濾紙はTOYO ADVANTECの硬質濾紙4Aを直径2cmに切りそれぞれ調整した標準溶液をグループごとにマイクロピペットで30μlずつ濾紙に

滴下してはじめに赤外線ランプでつぎにシリカゲルデシケータ中で乾燥させ、ポリエチレン袋に2重に封入した。

試料：分析に用いた生薬は次の14種類である。1) 牛黄清心丸（丸衣金粉無し，北京同仁堂），2) 牛黄千金散（北京中薬厂），3) 牛黄解毒片（北京同仁堂），4) 再造丸（北京中薬厂），5) 安宮牛黄丸（丸衣金粉有り），6) 六神丸（北京中薬厂），7) 牛黄清心丸（丸衣金粉有り，北京同仁堂），8) 北京中真丸（丸衣金粉有り，北京同仁堂），9) 小儿金丹片（天津市第一中薬厂），10) 蘇合香丸（北京同仁堂），11) 杞菊地黄丸（広州聯合製薬），12) 参茸補血丸（広州聯合製薬），13) 双料参茸丸（広州聯合製薬），14) 純正珍珠丸（広州聯合製薬）。

中性子照射と γ 線測定： 中性子照射は立教大学原子力研究所のTRIGA-II型原子炉の長時間照射はF-24, 中時間照射はRSR, 短時間照射は気送管を用いた。長時間照射試料は照射後一週間してから γ 線スペクトルを測定した。中時間照射試料は照射1日後から測定を行なった。 γ 線スペクトルは高純度Ge検出器と4096チャンネル波高分析器によりおこなった。定量に用いた核データをTable 1に示す。

Table 1 分析に使用した核のデータ

元素	標的核種	同位体 存在比	核反応 断面積 (バーン)	生成反応	生成核種	半減期	γ 線エネルギー (keV)
Na	²³ Na	100	0.534	(n, γ)	²⁴ Na	15h	1368.5
Mg	²⁶ Mg	11.17	0.027	(n, γ)	²⁷ Mg	9.45m	1014.5
Ca	⁴⁸ Ca	0.185	1.1	(n, γ)	⁴⁹ Ca	8.5m	3084
K	⁴¹ K	6.88	1.24	(n, γ)	⁴² K	12.5h	1525
V	⁵¹ V	99.76	4.9	(n, γ)	⁵² V	3.76m	1434
Fe	⁵⁸ Fe	0.33	1.2	(n, γ)	⁵⁹ Fe	45.1d	1098.6
Co	⁵⁹ Co	100	17.2	(n, γ)	⁶⁰ Co	5.2y	1173
As	⁷⁵ As	100	4.3	(n, γ)	⁷⁶ As	26.5h	559
Br	⁸¹ Br	49.46	3.1	(n, γ)	⁸² Br	35.9h	776
Mo	¹⁰⁰ Mo	9.63	0.25	(n, γ)	¹⁰¹ Mo	14.4m	192
Hg	²⁰² Hg	29.80	4.5	(n, γ)	²⁰³ Hg	48d	279
Sb	¹²³ Sb	42.75	2.5	(n, γ)	¹²⁴ Sb	60d	602.4
I	¹²⁷ I	100	6.2	(n, γ)	¹²⁸ I	25m	443
Ba	¹³⁸ Ba	71.66	0.35	(n, γ)	¹³⁹ Ba	85m	166

【結果】中国医学の薬物療法は、植物生薬、動物生薬、鉱物生薬を配合する処方で、これを煎剤や丸剤、散在にして用いられてる。分析できた元素は試料により異なるが、表には14元素についてまとめた。植物生薬が多く配合されている杞菊地黄丸、参茸補血丸、双料参茸丸、純正珍珠丸には当然Na, K, Caが、多く含まれている。牛黄清心丸（丸衣金粉有り）、牛黄千金散、牛黄解毒片、再造丸、安宮牛黄丸（丸衣金粉有り）、六神丸、牛黄清心丸（丸衣金粉有り）、北京中真丸（丸衣金粉有り）、小儿金丹片、蘇合香丸には重金属であるHg, Asが多く含まれている。その濃度はHgの場合、六神丸がもっとも多く10.1%、牛黄千金散で8.9%に達している。水銀の化学形としては牛黄千金散、再造丸の場合には朱砂（HgS）と明記されており、ほかの製剤でも同じと思われる。Asについては成分に記載されているものはないが、多く含まれているものには安宮牛黄丸（丸衣金粉有り）では2.9%、牛黄解毒片では0.87%の含有率のあることがわかった。

古来の薬物が新しい用途に使用されたり、新しい生薬が見つけれられている。また、薬物の剤型が改革され、錠剤、カプセル、エキス、注射剤などの剤型が増え、治療効果が高まり、便利になってきている。ここに分析した製剤はすべて丸剤である。丸剤製剤の成分は明示はされているが、その全成分の詳細は不明のままにされている。とくに、微量元素についてはその傾向が著しい。ここに分析した生薬は1990-1991年に北京で市販されていたものであり、同じ品名でもその成分は採集された場所と年で異なると思われる。

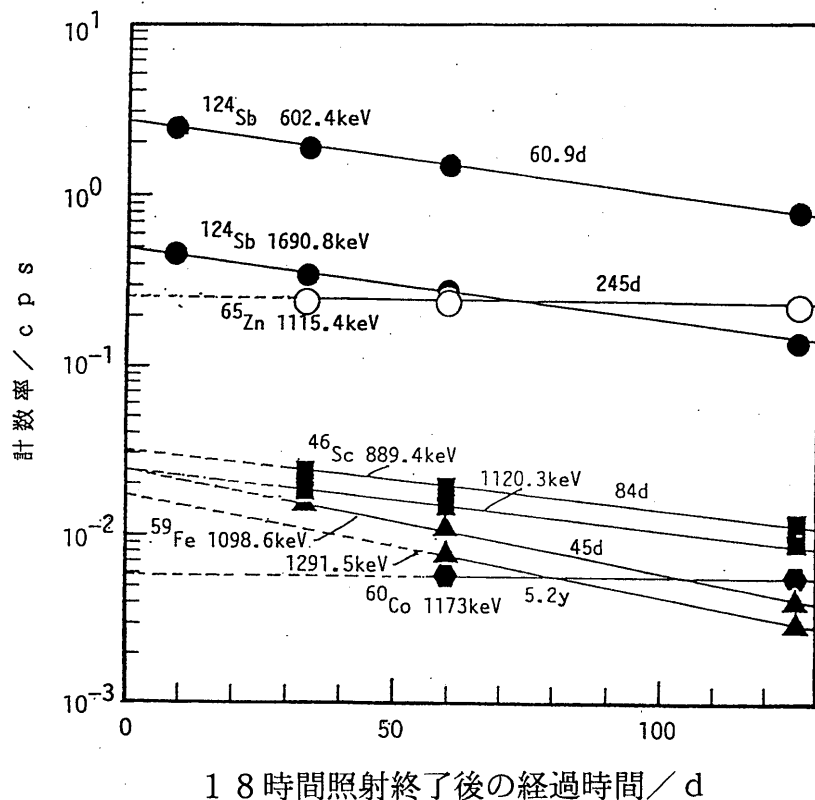


図 牛黄解毒片のγ線のピーク強度

表 中国製生薬製剤中の元素濃度

元素	牛黄清心丸 (丸衣金粉無し)	牛黄千金散	牛黄解毒片	再造丸	安宫牛黄丸 (丸衣金粉有り)	六神丸	牛黄清心丸 (丸衣金粉有り)
Na	347 ± 46.3	10356 ± 728	1239 ± 130	1349 ± 118	638 ± 80.6	1980 ± 167	412 ± 50.1
Mg	-----	715 ± 218	1065 ± 236	565 ± 148	588 ± 175	1464 ± 320	456 ± 116
Ca	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----
K	5369 ± 963	9504 ± 1476	9867 ± 1594	4986 ± 771	-----	6013 ± 917	5301 ± 901
V	-----	-----	-----	0.65 ± 0.27	-----	3.18 ± 0.70	-----
Fe	-----	-----	-----	483 ± 91.8	-----	2089 ± 579	-----
Co	-----	-----	-----	0.31 ± 0.08	-----	0.91 ± 0.40	-----
As	5627 ± 250	-----	8674 ± 358	5.53 ± 1.18	29014 ± 922	34.5 ± 4.81	5031 ± 215
Br	-----	-----	-----	-----	-----	98.4 ± 21.7	-----
Mo	316 ± 95.1	635 ± 102	647 ± 84.4	-----	-----	1148 ± 167	-----
Hg	17157 ± 555	89833 ± 2092	52096 ± 1345	3873 ± 85.7	44322 ± 1122	101146 ± 2058	16627 ± 536
Sb	76.7 ± 8.95	9.52 ± 1.92	47.6 ± 6.28	0.61 ± 0.10	213 ± 18.4	1.1 ± 2.01	21.8 ± 3.35
I	6.15 ± 2.21	-----	-----	-----	-----	-----	-----
Ba	142 ± 36.0	530 ± 107	-----	-----	-----	446 ± 92.4	-----

元素	北京中真丸 (丸衣金粉有り)	小儿金丹片	蘇合香丸	杞菊地黄丸	参茸補血丸	双料参茸丸	純正珍珠丸
Na	364 ± 62.3	2003 ± 173	364 ± 43.7	948 ± 16	1362 ± 21	1106 ± 12	2208 ± 38
Mg	338 ± 112	762 ± 186	378 ± 105	70 ± 16	64 ± 16	81 ± 22	-----
Ca	-----	-----	-----	-----	60.0 ± 8.0	27.6 ± 5.3	4083 ± 79
K	4780 ± 839	7440 ± 1157	4109 ± 691	4377 ± 231	3539 ± 179	4253 ± 267	-----
V	0.33 ± 0.09	0.58 ± 0.17	0.29 ± 0.08	1.36 ± 0.16	0.63 ± 0.14	1.26 ± 0.15	-----
Fe	2139 ± 832	-----	1169 ± 507	22.69 ± 0.42	23.48 ± 0.32	18.46 ± 0.45	12.31 ± 0.31
Co	-----	-----	-----	0.12 ± 0.01	0.13 ± 0.01	0.27 ± 0.02	0.22 ± 0.01
As	4531 ± 183	6.10 ± 2.11	30.9 ± 4.51	-----	3.09 ± 0.43	2.51 ± 0.57	-----
Br	-----	67.4 ± 2.2	75.6 ± 18.0	-----	-----	-----	-----
Mo	-----	755 ± 120	491 ± 81.6	-----	-----	-----	-----
Hg	17731 ± 572	8884 ± 598	70498 ± 1561	-----	-----	-----	-----
Sb	28.3 ± 4.14	21.8 ± 3.35	50.0 ± 6.02	-----	-----	-----	-----
I	-----	8.76 ± 1.99	-----	-----	-----	-----	-----
Ba	-----	444 ± 91.2	219 ± 51.4	-----	-----	-----	243 ± 34

単位：ppm

私は、中西友子先生のご指導の下、研究に勤しんでいる博士課程の大学院生です。研究テーマは「植物根におけるアルミニウム(AI)毒性メカニズムおよび耐性機構の解明」です。

AIは、酸性土壌における作物生産の最大の障害とされ、昔から研究されているのにも関わらず、放射性同位元素の入手が非常に困難であること、高感度な検出法がなかなか確立されないために、AIの組織内の挙動については、未だに十分に把握されるには至っておりません。そこで私は、AI特異性の高感度な蛍光色素(ルモガリオン)染色による根組織内のAI動態の解析方法の開発を試みました。一連の染色操作の条件設定は、何とか整えることができたのですが、解析に用いた共焦点レーザー顕微鏡から取り込んだ画像の定量化の問題が、最後まで残されました。中西先生にご相談申し上げたところ、組織観察を行った切片を、蛍光強度別に切り出して収集し、放射化分析による定量を勧められ、その結果、組織内のAI濃度と蛍光強度は、高い相関性を有していることが確認されました。この細かい作業は、忍耐を要しましたが、他の元素と比べて研究の進展が遅れていたAIの組織内分布の簡易で、かつ高感度な検出法を確立することができました。放射化分析の威力を感じた実験でした。

それまで、定量といえば、試験の磨砕・反応・測定の一連の操作が当たり前であった私にとっては、非破壊での測定は非常な驚きでした。高感度な検出法であるが故に、試料作製時に多少の注意が必

要とされますが、その後の取り扱いに注意する限り、試料は半永久に測定可能であることも大きな魅力です。現在、AIの定量には、ほとんどの研究者が原子吸光を用いています。放射化分析による定量は、AIの場合、Pの寄与の問題を抱えておりますが、研究者の利用希望は多いと思われます。また、研究テーマとは関係無しに、私の周りの院生の中には、自身の実験に放射化学の利用の可能性を考えたことのない人も多いのが実状のようです。私もまだ放射化学のほんの一端をかじらせていただいただけですが、過去の本雑誌に掲載されている様々な実験手法の紹介を読ませていただく度に、その未知の世界に惹かれています。

実験施設の職員の皆様には大変親切にさせていただき、実験の環境は非常に恵まれていると感じました。以前、データを保存したフロッピーから、解析を試みたときに、フォーマットが異なっていたために、コンバーターによる変換が必要なことがありましたが(この点が、改善されると私のようなコンピューターに弱いものにとって、非常に有り難いのですが)、その際にも、開放研の沢幡・小野寺さんには、たいへんお世話になりました。今後、さらに実験を行う上で、皆様にご教授願うことが多々あると存じますが、どうぞよろしく願いいたします。

隕石及び岩石試料中の希土類元素、特に Y-Ho の分別を観察するため、RNAA を行うことが、卒研時に与えられたテーマでした。中性子照射した試料を酸分解後、蒸発乾固、塩酸系陽イオン交換で主成分及び Sc を除去し、その後希土類元素フラクションを濃酢酸アンモニウム水溶液で分離、これを口紙上に滴下して β 線測定試料とする。その日は、朝早くから集合して試料の到着次第化学分離を始めるのですが、王水で酢酸アンモニウムを分解するのに時間がかかるのと、半減期 1.12 d の ^{166}Ho 測定のため、当日は徹夜の作業となりました。3ヶ月に渡る測定、再放射化による化学収率補正を経て希土類全元素の分析値を得るのですが、ノートの記録ミスや計算ミスがないか不安で、整合性良いデータがでてくると非常に嬉しかったのを覚えています。

その後、博士課程に入学し ICP-MS に携わることになりました。その頃、ICP-MS の感度は年々上昇し、極微量多元素同時分析法として、鳴り物入りの時期でした。ところが実際に扱ってみますと、マトリックス元素共存下では感度が刻々と変化し、存在しているのかわからないような微量元素を分析するのは予想外に困難でした。ブランクの管理及び装置の状態を良好に維持することに大変な労力を割かれました。まともなデータの出ない時は、放射能で元素を追跡できる NAA の安心感を何度も羨ましく思い、ICP-MS を諦め RNAA に切り替えた時期もありました。

ICP-MS では分析値の信頼性は分析者の熟練度による処が大きく、RNAA の時、右も

左も分からない卒研生が先生方にご迷惑をかけながらも何とか分析をこなすことができたのとは対照的です。

現在では、卒研時と同じ元素群の分析が、はるかに小さな誤差で、しかも非常に迅速に可能になり、かかる手間の少なさと得られるデータの質を考えると、この種のケースでは、NAA は ICP-MS と比較して勝負にならないというのが実感です。

NAA が、ICP-AES、MS などの高感度機器分析に取って変わられ、下火になってきているという話を時々耳にします。ある意味では、ナノグラムあるいはピコグラムレベルの極微量分析では、これまで NAA の独壇場だったのですから、後発の分析法の出現によって、活躍の場を奪われて行くのは自然の成り行きと言えるのではないかと思います。一方で、NAA による分析値の高い信頼性は、他の分析法の類を見ないことも事実だと思います。

そんな中で、放射化分析研究会が発足し、放射化分析の新たな気運が盛り上がってきたのは、若手研究者にとって非常に有り難いことだと思います。より他分野の研究者に開かれた分析法に昇華するための K_0 法の開発、PGAA、CPAA、PAA などの NAA 以外の分析法の紹介、その一方で NAA を特殊な手法と見ずに他分析法と合わせて活用して行く立場など、この冊子に載せられた記事は、非常に興味深く読ませていただいております。一若手として、この分野に自分がどんな貢献をして行くことができるのだろうか、研究者としての出発点に経つ今、模索の時間が過ぎて行きます。

放射化分析解析ソフトウェアに関するアンケート調査のまとめ

武蔵工業大学 鈴木章悟

1. はじめに

本誌の Question & Answer で取り扱って欲しい問題として、「 γ 線スペクトロメトリーで用いられている解析ソフトにどのようなものがあり、使い勝手はどうか」というものがありました。放射化分析にとって解析は大変重要なものであるため、まず会員がどのような解析ソフトを使っているのかアンケートをとることになり、7月に全会員158人へアンケートを送付しました。その結果、37件(連名回答があり、人数は41人)の回答が寄せられました(回収率26%)。ここにその集計結果を報告いたします。

2. アンケート回答者に関して

アンケート回答者の分類は図1のようになり、大学関係者が多かった。

地域別では、関東地方が全体の62%、近畿地方が14%、北海道、東北、中部、中国・四国地方がそれぞれ5%、九州地方が3%であった。

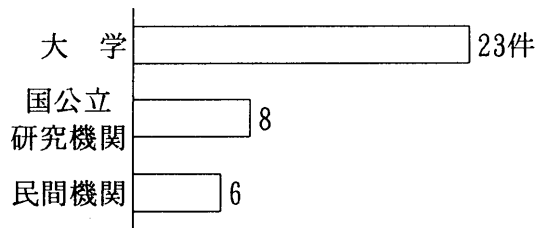


図1 回答者の分類

3. 集計結果

3.1 分析試料について (以下、複数回答可)

研究分野は図2のように環境科学が多く、地球・宇宙科学が次いでいる。試料名としては、土壌、食品、岩石、鉱物、隕石、堆積物、火成岩、ホタテガイ、植物、河川底質、浮遊塵、毛髪などが挙げられている。

分析元素は多元素が33件、特定元素が8件で、目的元素としては、Hf, Nb, Ir, As, Al, V, O, C, F, I, ハロゲン、希土類、白金族などが挙げられている。

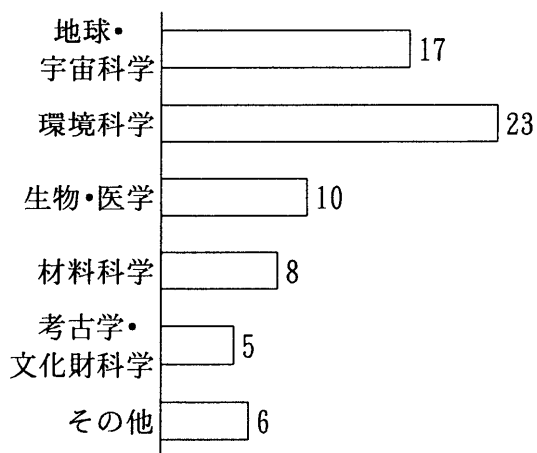


図2 研究分野

3.2 標準試料はどのようなものを使っていますか

自作	30件
購入	22

標準溶液を濾紙に添加して乾燥させる方法やNIST, NIES, 地質調査所などの標準試料を使う方法が多かった。

3.3 照射について

原研炉(ほとんどがJRR-3M)	21
立教炉	16
京大炉	9
東北大核理研 ライナック	2
東北大 サイクロトロン	1
KEK田無 サイクロトロン	1
京大炉 ライナック	1
阪大産研 ライナック	1

9割が原子炉での中性子放射化分析をおこなっていた。

3.4 定量方法はどのようにしていますか

比較法	34
シングルコンパレータ法	6
k ₀ 法	1
その他	3
内標準法	2

比較法がほとんどであり、k₀法は1件であったが、k₀法を利用したかったとの意見があった。

3.5 γ 線スペクトル測定はどこで行っていますか

自施設	27
他施設	24
主な施設	
立教原研	12
原研東海(開放研含む)	11
京大原子炉実験所	5

照射施設としては原研炉が一番多かったが、 γ 線測定を行う施設としては立教原研が一番多くなっていた。

3.6 γ 線スペクトル測定に使っているマルチチャンネルアナライザについて

メーカー	型式	
SEIKO EG&G	MCA7800	13
CANBERRA	S-35 plus	9
NAIG(東芝)	NLAB-MCAなど	7
ラボナトリ・イクイメント	MCA/PC98など	4
SEIKO EG&G	MCA7700	2
SEIKO EG&G	92X	2
CANBERRA	S-35	2
CANBERRA	S-40	1
SEIKO EG&G	EMCA	1
SEIKO EG&G	918	1
Oxford	Multiport	1
SEIKO EG&G	型式記入なし	4
CANBERRA	型式記入なし	2

MCA7800が一番多く使われており、シリーズ35plusが次いでいる。2台とも専用機タイプのMCAである(MCAについては機関誌No. 3講座も参照)。

3.7 γ 線スペクトル解析はどのように行っていますか

面積計算から初めて全て手計算	2
面積計算以外は手計算	9
計算機利用	26
その他	4

- その他
- ピークの判定のみ人間
 - 面積のみ手計算以降は自作ソフト
 - 面積は手計算と計算機利用、以降はロータス1.2.3
 - ピーク範囲を目視で決定

3.8 計算機利用の場合の解析ソフトについて記入して下さい

解析ソフト	メーカー又は製作者	
MCAエミュレーション・環境 γ 線核種分析	SEIKO EG&G	7
SEIKO EG&G その他	SEIKO EG&G	3
SAMPO90	CANBERRA	1
MCA. EXE	ラボラトリ・イクイメント	1
ガンマトラック	Oxford	1
SPY	大学開放研	1
(名前なし)	立教原研 栗原英明	4
(名前なし)	京大炉 小山・松下録治	3
(名前なし)	名大 田中剛	2
GAMA98	武蔵工大原研 鈴木章悟	2
SPECanal	金沢大 浜島靖典	1
BOB	阪大 馬場宏 他	1
自作		9

面積計算はほとんどが計算機を利用しているが、使われている解析ソフトはそれほど多くなかった。SEIKO EG&Gの解析ソフトがよく使われていた。しかし、SEIKO EG&G MCA7800マルチチャンネルアナライザのユーザ13人のうちMCAエミュレーション・環境 γ 線核種分析ソフトを使っているのは4人と少なかった。SAMPO90以外のCANBERRAの解析ソフトはだれも使っていなかった。SPECanalとBOBは放射化分析用でないので、減衰補正、定量などは自作ソフトで行っていた。

3.9 その解析ソフトでどのような作業をやらせていますか

ピーク面積計算	31
ピークフィッティング	12
台形法	13
核種同定	18
減衰補正	20
計数効率補正	11
γ 線のコインシデンス補正	3
試料のジオメトリ補正	4
定量計算	19
その他(試料容器による吸収補正)	1

3.10 その解析ソフトが使われた理由

マルチチャンネルアナライザに添付されていたから	11
その他	18

その他の主な理由

- 立教原研の測定器補正ができるから
- 使い勝手を考慮して
- 通常ソフトが信用できなかったから
- 適したものがないため
- 簡便に他元素定量ができるから
- データフォーマットの一貫性から

3.11 その解析ソフトの操作性はいかがですか

意見を以下に示す。

- 使い易い
- いくつかバグがあるが概ね良い

- 手間がかかる
 - 良い
 - 手計算に近い操作に仕上げてあり何をしているかわかりやすい
 - 一度にピーク面積が簡単な操作でできる
 - 操作は簡便
 - メニュー方式は使い易い
 - 少し煩雑な感じ
 - 複雑でやや大変
 - 簡単ですぐ覚えられる。(自作ソフトに対するコメントはのぞく)
- SEIKO EG&GのMCAエミュレーションについては操作が複雑であるとの意見が、立教原研の栗原氏のソフトについてはわかりやすいとの意見が多かった。

3.12 その解析ソフトの良い点

意見を以下に示す。

- 処理時間が短い
- 問題があったとき生データにもどって簡単に訂正ができる
- 解析精度が比較的高い
- スペクトルの表示、解析、データ形式の変換ができる。核データが搭載されておりスペクトルの表示ソフトから利用できる
- 面積計算時、自分でスタート、ストップチャンネルが選べるのでダブルピークの時など便利。減衰補正ができる
- 一度に核種ごとに面積計算をする
- テキストファイルであれば、どのようなフォーマットでもデータを読み込む。線形パラメータの初期設定を正しく行えば正確に解析する
- ある程度の精度の範囲では簡単に分析結果が出る
- 自分の目で確認しながらピークのフィットができる
- 自分でベースラインを決められる
- 測定から解析まで一貫して行える。説明書が日本語
- 定量計算まで行うことができる
- 他元素定量ができる
- 自作のため改良等ができる
- 何を行っているか理解し易い
- 照射時刻、測定時刻、重量等の基本データを入力すれば定量値が出力される。

3.13 その解析ソフトの問題点

意見を以下に示す。

- ピークサーチ感度の設定が難しい
- 台形法でバックグラウンドの誤差を拾う
- 短半減期と長半減期核種の同時解析ができない
- 4kチャンネルまでのスペクトルしか扱えない
- 1核種ずつ面積計算をする。一度にできない
- 減衰補正ができない
- 説明書が理解しにくい。小さなピークのフィッティングがあまり良くない。高価である
- 汎用性に乏しい
- データのチェックが簡単にできない
- 旧型コンピュータのみで作動
- 時間がかかる
- std. との比較ができない
- ピークの判定を人がやる
- 複合ピークの分割ができない

- 他社のMCAや解析ソフトを使う場合、データフォーマットの変換が面倒。ファイルフォーマットが非公開。環境γ線用で定量計算ができない。一括処理しかできず、ピークを見ながらの解析ができない
- キャリブレーションをうまくやらないとピークを誤認
- 計数効率が既知の装置にしか用いられない
- 一つのソフトでないため、データの取り扱いが煩雑
- ピークに対応した核種の定量値が全て出力され、人がその中から選択しなければならない
- 小さなピークが正しく計算されない○WINDOWSに対応していない。

3.14 解析ソフトにはどのような機能が欲しいですか

意見を以下に示す。

- 操作性がよく、短半減期から長半減期まで同時に解析できる
- 手計算で行う方法をスペクトルを見ながらできる
- ユーザーがベースラインを決められる
- 減衰補正
- マウス操作でメニュー選択、スペクトル画面操作
- ピークサーチでピークと判定したものの形状をまとめて印刷する。基本となるデータ集から必要な核種のデータをコピーできる
- ピーク面積を目視で確認できる
- ピークを確認しながら左右のベースラインを別々に設定できる
- マニュアル処理と一括処理の選択
- 妨害ピークの認識と差し引き、誤差計算
- 編集・作表機能
- 定量までの自動処理
- 多くのデータフォーマットの読み込みに対応するか、それを使用者がカスタマイズ可能にする。目的ピークを見ながら解析領域の設定、ピーク位置、ベースラインの設定、ピーク形状関数の決定等ができる
- 正確な核種同定と定量計算
- より正確なピークフィッティング
- 操作が簡単で汎用性に優れている
- 照射時刻などを自動入力する
- 機種やOSに依存しないで動作すること。

3.12から3.14をまとめると解析ソフトとしてピークを目視しながら、台形法のベースラインを設定できるような機能を評価していることがわかる。

3.15 使ってみたい解析ソフトがあれば記入して下さい

Hypermet-PC	2
OSQ/Plus	1

3.16 データフォーマットの統一化(機関誌No.5 p.57参照)についてご意見を記入下さい 意見を以下に示す。

- ぜひお願いします。機種が違ってもスペクトルデータに互換性があると大変うれしい
- 同一フォーマットでデータを共通に使えるとよいと思う
- ぜひ統一化してほしい
- 特に統一する必要はないと思う。相互に互換できるソフトがあればよい。統一化は実際問題非常にむずかしいのではないか。大学で作製するソフトは統一した方がいいかもしれない
- 統一化が今の議論を経て進むことを希望する
- データフォーマットの統一化には賛成です
- マッキントッシュでも使えるソフトがあればありがたい

- 異なるデータフォーマットはソフトウェアで処理できるので、波高分析器側にデータフォーマットの統一を要求する必要はない。チャンネルデータフォーマットの前に放射化分析関係のデータを配置すると、多重波高分析器データを他の目的に利用する場合に邪魔になる。放射化分析関係のデータとチャンネルデータを別のファイルに作っておき、後から結合するようにすれば良いのではないだろうか
- よそ様でデータをとると、帰ってからデータ形式を調べる作業から解析が始まる。データフォーマットが統一されておればあんなことはしなくてもよかったのにとおもいます
- ぜひ実現をよろしくお願い致します
- だれでも、どこでも使用可能なテキストフォーマットであってほしい
- できれば便利かと思えます。ただ自分の方式とかけはなれたものになった時、統一化されても実際に利用するかどうか
- 表計算ソフトで使用できるTXT, CVSファイルであると良いが、ファイルが大きくなってデータの持ち運びには不便なのでファイル変換用ルーチンが有効かも知れない。ネットワーク化されたMCAならこの問題は解決される
- スペクトルデータのみならず、ピーク解析結果の出力についても統一されていると良いと思う
- 統一フォーマットのデータ部をバイナリーにするよりは、すべてテキスト形式にしてデータの可読性を高める方が良いと思えます。直接データファイルに書き込むヘッダは1行程度、測定日時、コメント程度でいいと思えます。その後、1列にテキストデータを連ねるのでいいのではないのでしょうか。これだと、MS-EXCELをはじめほとんどの汎用ソフトでそのまま利用できるようになります。詳細なヘッダ情報は形式を定めて別ファイルに保存したほうがよいと思えます。どんな形式にしる標準が一つ定まっていればそれを中心にしてデータのやり取りが便利になります
- 非常によい提案である。ぜひ実行すべき
- 賛成です
- ぜひ共通化していただきたい。特に、共同利用施設においては、データを持ち帰ってからも使えるように統一化が望まれる
- マルチによってデータが異なるので、それぞれに対してフォーマット対応しなければいけないので、できれば統一してほしい
- 統一化は賛成です。しかし各施設でやり方がそれぞれ違うので、それをまとめて行くのが大変だと思います
- 統一化を進めたい。

このように統一化を望む意見が多かった。統一化問題も含め、解析ソフトに関しては原子炉施設側でソフトを提供している場合もあり、施設側の対応が非常に重要であると感じた。

最後に、夏休み中ということもあったが、アンケートの回収率が悪かったことが残念であった。出し忘れていた方は今からでもお送り下さい。アンケートにご協力頂いた方々に対し、厚く御礼申し上げます。

標準物質について

標準物質は世界各国で作製され、販売されている。1995年12月にIAEA（国際原子力機関）から、Survey of reference materials(Vol.1~2)が発行されているので、今回その中から放射化分析に関係のある物質を選んで、京大炉にホームページを開設した。このホームページに載せた標準物質は、①生物標準物質148種類、②環境標準物質132種類、③燃料標準物質54種類、④地質鉍物標準物質60種類、⑤人工廃棄物標準試料26種類、⑥土壌標準物質34種類、⑦土壌（可溶性成分）標準物質15種類、⑧その他の標準物質12種類である。このホームページのアドレスは<http://www1.rri.kyoto-u.ac.jp/NAA/INTRM.HTM>である。

このホームページにリンクすると図1に示すような標準物質一覧表が現れる。この中で必要な項目をクリックすると、図2に示すような例えば生物標準物質一覧表が標準物質の記号のABC順に現れる。この一覧表の中から必要な標準物質の記号部分（アンダーラインの付いている場所）をクリックすると、例えば図3に示すようにその標準物質の製作者名と住所、証明者、証明された日付け、販売する単位、分析に使用すべき最低重量、単位単価が示され、最後に各元素等の濃度と誤差（分かっている場合）などの一覧表が示されるようになっている。

なお、生物標準試料と環境標準試料については、創和科学株式会社（〒110 東京都台東区台東2-10-7 丸山ビル5F TEL 03-3833-8899・8477、03-3353-7297 FAX 03-3833-8894）においてカタログが作成され、日本円で販売してくれるので、必要な方はそちらに連絡をとると良い。

図1. 標準物質一覧表

ようこそ標準物質一覧表へ

1. 生物標準物質
2. 環境標準物質
3. 燃料標準物質
4. 地質鉍物標準物質
5. 人工廃棄物標準物質
6. 土壌標準物質
7. 土壌標準物質（可溶性成分）
8. その他の標準物質

ご意見、ご質問は



takeuchi@rri.kyoto-u.ac.jp



図 2. 生物標準物質一覧表 (一部)

生物標準物質一覧表へようこそ!

1. AMI B1001 Lead in Lyophilized Human Blood
2. AMI B1002 Lead in Lyophilized Human Blood
3. AMI B1003 Lead in Lyophilized Human Blood
4. AMI B1004 Lead in Lyophilized Human Blood
5. AMI B1005 Lead in Lyophilized Human Blood
6. AMM-CL-1 Cabbage Leaves
7. ARC/CL-CP Carrot Powder
8. ARC/CL-HDP Total Diet
9. ARC/CL-MP Milk Powder
10. ARC/CL-WF Wheat Flour
11. BCR-CRM 060 Aquatic Plant (*L. major*)
12. BCR-CRM 061 Aquatic Plant (*P. riparioides*)
13. BCR-CRM 062 Olive Leaves (*O. europaea*)
14. BCR-CRM 063R Skim Milk Powder
15. BCR-CRM 100 Beech Leaves
16. BCR-CRM 101 Spruce Needles
17. BCR-CRM 129 Hay Powder
18. BCR-CRM 150 Spiked Skim Milk Powder (low level)
19. BCR-CRM 151 Spiked Skim Milk Powder (high level)
20. BCR-CRM 184 Bovine Muscle
21. BCR-CRM 185 Bovine Liver
22. BCR-CRM 186 Pig Kidney
23. BCR-CRM 189 Wholemeal Flour
24. BCR-CRM 190 Whole Rapeseed (med. level)
25. BCR-CRM 191 Brown Bread
26. BCR-CRM 194 Pb and Cd in Blood (low level)
27. BCR-CRM 195 Pb and Cd in Blood (med. level)
28. BCR-CRM 196 Pb and Cd in Blood (high level)
29. BCR-CRM 273 Major Elements in a Single Cell Protein
30. BCR-CRM 274 Single Cell Protein
31. BCR-CRM 278 Muscle Tissue
32. BCR-CRM 279 Sea Lettuce (*U. Lactuca*)
33. BCR-CRM 281 Rye Grass

IAEA-V-10

図 3. 標準物質の説明

Hay Powder

International Atomic Energy Agency

Analytical Quality Control Services

P. O. Box:100 A-1400 Wien AUSTRIA

Tel: +43 2254 73951 233 Fax: +43 2254 73951 222

CERTIFYING BODY:IAEA Laboratory Seibersdorf

Date Certified: 85-07

Unit Size: 50g

Min. Wt. : 0.1g

Unit Price: \$110

Measurand	Conc	Type	Error%	Remarks
Ba	6	certified	25	mg/kg
Br	8	certified	25	mg/kg
Ca	21 600	certified	3	mg/kg
Cd	0.03	certified	50	mg/kg
Co	0.13	certified	12	mg/kg
Cr	6.5	certified	12	mg/kg
Cu	9.4	certified	5	mg/kg
Fe	185	certified	4	mg/kg
Hg	0.013	certified	27	mg/kg
Mg	1 360	certified	4	mg/kg
Mo	0.9	certified	28	mg/kg
Ni	4	certified	14	mg/kg
P	2 300	certified	9	mg/kg
Pb	1.6	certified	34	mg/kg
Rb	7.6	certified	3	mg/kg
Sc	0.014	certified	11	mg/kg
Sr	40	certified	9	mg/kg
Zn	24	certified	13	mg/kg
Al	47	non-certified		mg/kg
Cs	0.017	non-certified		mg/kg
Eu	0.0024	non-certified		mg/kg
K	21 000	non-certified		mg/kg
La	0.07	non-certified		mg/kg
Mn	47	non-certified		mg/kg
Na	500	non-certified		mg/kg
Sb	0.02	non-certified		mg/kg
Se	0.022	non-certified		mg/kg

北京の放射化学関連研究施設を訪ねて

都立大大学院理学研究科

海老原充

去る6月22日から1週間、中国科学院高能物理研究所柴之芳（Chai Chifang）教授の招きで北京に滞在する機会を得た。この間北京近郊の観光地とあわせていくつかの放射化学に関連する研究機関を訪問し、いろいろな知見を得ることができた。ここではその訪問記を記すことにする。

6月22日夕方、成田空港から一路北京を目指した。接続便の都合で出発が1時間以上遅れ、北京には夜10時過ぎに着いた。丁度この日は雷雨が激しく、空港が一次閉鎖されていたとかで、成田での遅発が幸いしたようであった。空港で柴教授と運転手に長いこと待っていただいたのには恐縮した。おまけに運悪く、預けたスーツケースが破損して、その処置をとっていたことも長い待ちぼうけにつながってしまった。空港から小1時間ほどで中国科学院の Guest House に着いた。いくつかある Guest House のなかで1番良い施設というだけあって、寝室が別になった、空調のきいた快適な部屋であった。次の日からの予定表を受け取り、翌朝の待ち合わせ時間を確認して早々に柴教授と別れた。

翌日（23日）は月曜日であったが、柴教授の作成した日程に従い、まず北京の市内観光を行うことになっていた。多少の後ろめたさを感じつつ、でも初めて中国の顔を見る期待に胸膨らむ思いであった。朝食は毎日決まった時間に部屋まで届けられた。インスタントコーヒーとミルク（これもインスタント）、それに饅頭の朝食であった。残念ながら、ミルクだけはいつも残して（というより手を付けずじまいにして）しまった。朝食後、約束時間に昨日の運転手と柴教授の研究室のポスドクの人がガイドとしてやってきた。以後帰るときまでこの運転手には毎日のようにお世話になった。言葉は通じなかったがとても誠実な人で、この訪問を快適にそしてとても良い印象のうちに終わらせてくれたと深く感謝している。ポスドクの人とは英語で会話することができた。この日は天安門、故宮、北海公園を見学し、夜、柴教授の研究室の人たちや北京大学の Liu Yuan-fang 教授とともに北京ダックをご馳走になった。

翌24日（火曜日）に柴教授の研究室を訪問し、講演を行った。高能物理研究所は2つの異なる場所に研究施設を持ち、柴教授の研究室のある施設は北京の中心から西北の方向に位置する海淀地区の中関村にある。ここには中国科学院に属する多くの研究所があるほか、北京大学や清華大学などが集まり、北京

の、というより中国の文教地区ともいうべき場所である。はじめ筑波学園都市を連想していたが、あまりの違いに戸惑いを感じた。一つには「村」という呼び方が日本の「村」とは全然違う意味を持つことによるもので、中関村は北京の中心地からやや離れているものの市街地の1部であった。また、研究所の敷地に隣接していろいろな店がところ狭しと営業していて、筑波のような、良くいえば整然とした、悪くいえば人間くささの感じられないイメージと正反対であった。道端には露天市場が続く様には圧倒された。それだけこの文教地区は活気があるということになるわけで、話によれば、研究所に働く人以外にも一般の人の居住区として人気が急上昇しているとのことであった。

柴教授の仕事は広い範囲に及ぶが、大きな柱の一つが放射化分析に関する仕事といえる。放射能測定室にはゲルマニウム半導体検出器が2台稼働しており、コンピュータで制御している様は日本の研究室で見慣れた光景であった。部屋の入り口にまだ箱に入った新しいOrtec社製測定装置が2台有り、近々設営するとのことであった。恐らく中国の経済状態からすれば、ゲルマニウム半導体検出器は一昔前の日本での価値以上に高いものであろうことを考えると、この普及の程度は中国一般の状況を見ているというよりも、中核研究室の特殊事情と見なす方が妥当であろう。中性子放射化分析は非破壊分析もさることながら、どちらかといえば破壊法を積極的に利用しているようであった。破壊分析としては、中性子照射後に目的元素（核種）を放射化学的分離手法を用いて分離精製するいわゆる放射化学的中性子放射化分析法に加えて、放射化する前に目的元素を分離した後、中性子照射する方法も積極的に利用されていた。そのための実験室は測定室とは別の棟にいくつか並んでいた。見学をしたのは午前中の比較的はやい時間であったが、すでに多くの学生がてきぱきと仕事をしているのを印象深く見ることになった。決して「やらせ」でないことは容易に想像できた。分析対象としては、地質学的、及び生物学的環境試料が多いようであり、これは中国においても時勢なのであろうが、研究費を獲得しやすいという事情も反映されているところは日本と同様の状況のようである。分析元素としては白金族元素に特に注目しているようであった。

講演は「太陽系の元素存在度～より信頼できる値を求めて」という題で行った。隕石の話の前振りにして、どのようにして太陽系の元素存在度は求められているか、今後どういう手段を用いればより信頼できる値が求められるか、という筋で、今後21世紀の宇宙探査計画によりこの目的がかなえられるであろうということで話を締めくくった。講演の後でいろいろな質問を受け、そのやりとりも含めてとても充実した講演会であったと、少なくとも自分自身では満

足であった。

午後は高能物理研究所のもう一つの研究施設に出かけた。場所は北京の郊外というべき場所で、敷地面積からいえばこちらの方がはるかに広く、古い建物から近代的なものまで木々の中に散在していた。柴教授のこちらでの主な研究はシンクロトロン放射を用いた蛍光 X 線分析で、そのために用いられる加速器の装置に案内された。一見してかなり近代的な設備で、丁度、筑波の高エネルギー物理学研究所の photon factory に足を踏み込んだような錯覚を覚えるほどであった。当日は加速器の運転は休みで、その分、いろいろなところに足を踏み入れることができた。研究所の印象が日本のそれに近いものであっただけに、研究所周辺の、あるいはそこに至る道筋で車の窓越しに見た一般庶民の生活の、日本のそれとの違いが妙にコントラストをなし、強く印象に残った訪問であった。

翌水曜日（25日）は午前中、また観光であったが、心の痛みは少なかったように記憶している。中国流に馴染んできたのであろうか。この日は北京の西北郊外にある西太后愛用の離宮である頤和園に出かけた。ここはもともとは清朝の離宮で、英語名として Summer Palace で通っている。なかなか風光明媚なところで、北京の市街地からさほど離れていないのにも関わらず、都会の喧噪は全くなく、決して大げさでなく中国の時の流れを感じさせる佇まいであった。この日の案内は柴教授のもとで学位を取ろうとしている博士課程の学生で、観光案内は程々にして、研究の話に熱がこもり、その点でも非常に印象的な観光であった。

午後は北京大学の Liu 教授を訪問した。教授自ら Guest House まで迎えに来られたのには恐縮したが、それ以上に驚いたのは、単パンに T シャツという出で立ちであった。Liu 教授は中国科学院会員であるために終身北京大学教授の立場にいます方で、現在70歳をはるかに越えられていると伺っていたが、その若々しさに驚嘆させられた。中国の核・放射化学の権威であるが、現在では核医学や核生物学の方面に仕事をシフトさせ、加速器質量分析計を利用しながら、世界第一線級の業績を挙げているのも驚きであった。なお、加速器質量分析に用いられている加速器はイギリスのサッチャー首相が訪中した際に寄贈されたもの（中古品）で、その後いろいろ手を加えて使っているとのことであった。この施設は北京大学でも中心からかなり離れており、タクシーを利用してメイン・キャンパスに向かった。

北京大学のキャンパスは広く、まるで公園のようであった。どの建物も中国古来の建築物の特徴をそなえた外見をしており、この点も印象的であった。キ

キャンパス内にある考古物博物館には中国4000年（現在ではさらに数千年古くまで遡るといふ）の歴史を物語る考古学的遺品が陳列されており、Liu教授の弟子が考古学の研究室にいたとかで、無料で拝見することができた。北京大学であったLiu教授の学生、弟子、共同研究者はどの人もはつらつとしており、また英語が達者なのには驚かされた。楽しく、かつ立派な夕食をこれらの人たちと共にすることができ、この日もとても有意義な日であった。

26日（木）は中国原子力研究所をたずねた。同研究所は北京の西南にあり、柴教授の研究室のある場所からは途中高速道路を利用して約1時間半程度でたどり着いた。途中廬溝橋を通過したときには、さすがに過去の日中の歴史を思い出さずにはいられなかった。高速道路は完成すれば香港まで通じる幹線道路とのことでまだ利用する車も少なく、快適そのもの。高速からおり、研究所までの道の両側では至る所で西瓜を売っていた。日本の西瓜が1個1000円以上するという話をしたら、それだけ払えば荷台一杯の西瓜が買えるとのこと。もっとも安いからといって、そんなに食べられるものではないけれども。

この研究所は1950年に建設されたもので、全体に古い建物が多く目に付いた。ここには高中性子束（ 10^{14} n cm⁻² sec⁻¹程度）の研究用原子炉があり、柴教授の研究室でも化学分離を伴う中性子放射化分析にはここの原子炉を利用している。この研究所で非常に印象に残ったのは放射化分析専用ともいべき小型原子炉であった。これは小型中性子源原子炉（Miniature Neutron Source Reactor, MNSR）と呼ばれるもので、熱出力30 Kwで、中性子束が 10^{12} ~ 10^{11} n cm⁻² sec⁻¹程度。燃料には1 kg以下の90%濃縮ウランが直径60 cmのシリンダー状の筒に格納されており、これが直径2.7 m高さ6.5 mのプールに納められている。これでは、TRIGA型原子炉をすこし小型にしたようなイメージを持たれるかも知れないが、その操作性に大きな違いがある。炉の運転は原子炉の上にある卓上型計算機（いわゆるパソコン）で行うのである。炉の運転に精通していれば、運転をしながら照射を行い、別室でγ線測定を行うこともできる。測定室には複数のゲルマニウム半導体測定器が設置してあり、自動試料交換機も備わっていた。試料の照射は気送管方式で、試料容量も2種類選ぶことができ、ある程度大型の試料にも対応できるようにしてある。炉の運転に関しては、仮に日本に設置されても中国と同じようには運営できないかもしれないのでその点は差し引くとしても、中性子放射化分析、特に機器中性子放射化分析を行う炉としては誠にうってつけな炉であると痛感した。この日に同行してくれた柴教授の研究室のポスドクの人はこの研究所で学位を取ったこともあり、この原子炉には運転も含めて良く精通している人であった。この日訪問したときには原子炉

は運転されていなかったが、着くなり運転をして見せてくれた。あれよあれよという間に定格運転になり、実験できる状況になった。彼は、必要とあらば日曜日でも、また 365 日でもこのように実験をすることができるとのことであった。この炉は研究用、教育用原子炉として、現在まで中国国内で 3 カ所、国外（発展途上国）で 4 カ所に建設されている。時価にして数億円とか。日本の諸規制に適するかどうかはともかく、放射化分析をする上でこのような炉が近くにあれば随分便利であろうと痛感した。

この日は午後、中国科学院考古人類学研究所を尋ねた。柴教授がここの研究者と共同で行っている研究があり、それに我々も一枚噛んでいるからである。この共同研究とは、恐竜の卵の放射化分析である。中国で多くの恐竜の化石のすることはニュース等で報道されるので良く知られているが、この研究所はこうした中国の恐竜の研究の中心でもあり、実にいろいろな種類の恐竜の化石が展示してあった。もっとも、試料が多すぎて、展示物はほんの一部とのことであった。恐竜の卵の化石にしてもしかり、いくつもの引き出しに一件無造作に、ごろごろと保存されていた。なぜか以前読んだ、中国から西側（主にアメリカ）に、ブラックマーケットを通して恐竜の卵の化石が流出しているという National Geographic 誌上に掲載されていた記事をふと思い出した。共同研究については現在進行中であり、最終的な結果が得られた時に詳しく報告できればと思う。ねらいは非常に面白いのであるが、途中までの結果の解釈で今悩んでいるところである。

さて、1 週間の滞在も残すところ 1 日となってしまった。この帰国 1 日前の 27 日（金）は、またもや観光 day となった。中国、しかも北京に来て行かない人はいないという、万里の長城について出かけた。万里の長城は北京の北部から西北部の山岳地帯に残されており、現在北京からは高速道路がかなり近くまで通じており、現在もその延長工事が至るところで行われていた。もう 1、2 年すれば、北京から万里の長城として最もポピュラーな八達嶺まで、所要時間 1 時間弱で全線高速道路で結ばれるのではないかと思われる。この日はガイドとして新疆出身の大学院生が同行した。大学と大学院修士までは蘭州大学に学んだ、やはり向学心燃える青年であった。万里の長城の見学には場所によってはかなり険しい道を登ることになるため、途中観光用にロープウェーが建設されていたが、「男子たるもの自分の足で上って一人前」との信条を我々も全うした。帰路、北京西北郊外にある明十三陵を尋ねた。これは明代の皇帝の墓（陵）で、北京から約 50 km 位しか離れていないにも関わらず、広大な敷地が自然のままの佇まいを残しており、中国のスケールの大きさを感ずることがで

きた。ここはいつか機会があれば1日かけてじっくり散策してみたいと思っている。

さて、最後の晩、柴教授のお宅に招待されて夕御飯をご馳走になった。実はこの日（27日）が筆者の誕生日であることを Guest House の手続の際に柴教授が知り、送別を兼ねた誕生パーティーを企画してくれたのである。Liu 教授も来られ、柴教授の奥様の本格的中華料理をいただくことができた。西洋料理と違い、用意したものをテーブル上に所狭しと並べられた様は壮観であった。このような形で誕生日を祝っていただくとは夢想だにせず、それだけ大いに感激した。翌日は柴教授と Liu 教授は朝から一緒に会議があるとかで、この日にお礼を申し述べ、柴教授のお宅を後にした。

翌28日（土）、帰国の日は良く晴れ渡った日であった。この1週間、とにかく暑い日が続いた。日本では梅雨の真っ最中で、東京より高緯度の北京でのこの気候はとても信じられないものであった。6月がこれでは8月はどうなるのかと心配になったが、そこは大国中国のこと、悠揚迫らず、マイペースで過ごすのであろう。研究所の activity も低下するとのこと、むべなるかな、である。1週間はあっという間に終わってしまった。この間、悪い印象を何一つ持つことがなかったのは柴教授の心遣いの賜と、感謝の言葉もない。



第34回 理工学における同位元素研究発表会 報告者 宮本 進

第34回 理工学における同位元素研究発表会は1997年6月30日～7月2日まで国立教育会館（東京）にて開催され、放射性同位元素の製造から放射線測定技術、環境放射能に至るまでの広い研究分野における発表が行われた。放射化分析については、パネル討論も行われているが今回は、口頭で発表された以下の5題について紹介したい。

2a-III

- 1.中性子放射化分析法による象牙の産地推定の試み（Ⅱ）
（京大・原子炉、九大・比較社会文化研）武内孝之、中野幸廣、小池裕子
- 2.14MeV中性子を用いた放射化分析による鉄鉱石試料に含まれたケイ素および鉄の定量
（近畿大・原研、近畿大・理工）近藤嘉秀、堀 修平、藤井達也、中井洋太
- 3.海岸付近で栽培された無農薬野菜の機器的放射化分析
（神奈川県衛生研、立大・原研）飯島育代、高城裕之、戸村健児
- 4.原子炉中性子即発ガンマ線分析法による動物試料中ホウ素の定量
（農水省・畜産試・草地試・遠洋水産研、東北大・農、原研・東海）
宮本 進、須藤まどか、塩本明弘、山崎慎一、西村宏一、西口靖彦、兼松伸枝、
米沢仲四郎、松江秀明、星 三千男
- 5.即発 γ 線分析による火山岩中ホウ素の高確度定量
（京大・総合人間、学習院大・理、東北大・理、原研・東海、東大・原総センター）
佐野貴司、福岡孝昭、長谷中利明、米沢仲四郎、松江秀明、澤幡浩之

1.では、アフリカ産の象牙について、Br,Ca,Fe,Mg,Na,Sc,Zn等の元素を対象として、放射化分析を実施し、それらのデータを用いて主成分分析を行い象牙の産地の推定を試み、一部の試料については推定可能であることを示している。2.では、小型加速器より発生する14MeV中性子を用いてSiおよびFeを対象とした鉄鉱石標準試料の放射化分析を行い、得られた値は概ね認証値と一致し、この方法は鉄鉱石中のSi,Feの定量法として有効であることを明らかにしている。3.では、生産手段等が作物の元素組成に与える影響について調べるため、海岸地域で栽培した無農薬野菜中のNa,Cl,Brについて放射化分析を行い、一般市販品と比較し、NaおよびBr濃度で違いが見られた。

4.5.は即発ガンマ線分析(PGA)で、4.ではホウ素を添加した飲料水を動物（羊）に与え、PGAによりホウ素含有量を求め、ホウ素の糞への排泄、臓器および血漿への移行を調べた結果、飲料水のホウ素は速やかに吸収され、臓器等にも蓄積することを明らかにしている。5.では、岩石中ホウ素をPGAにより定量する際の誤差原因を解明し、分析確度の向上を試み、ホウ素ピークの右半分の使用、SiO₂含有量を用いることにより分析感度の低下補正が可能であること、ホウ素の検量線に対して水素（水）の影響が大きいことを明らかにしている

APSORC-1 / SORC-41

【大同工大 酒井陽一】

2年前の放射化学研究連絡委員会で、次々回の放射化学討論会の開催地が熊本大学、世話人は岸川俊明先生に決定した。国際シンポジウムとして行いたいとの所信表明があった。先日10月6-9日、熊本で第41回放射化学討論会(41st SORC)とAsia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC'97)の合同シンポジウムが、実行委員会の弛みない努力により、盛大かつ実質的に開催された。放射化学討論会の国際化という初めての試みは、猛烈なる苦勞、自己犠牲なしには成し遂げられるものではないだろう。新しい企てには様々なフリクションもあったかもしれない。熊本は「火の国」だそうだ。おだやかな風貌、物腰の岸川先生のなかに、我が国の放射化学の発展への燃える思い、信念があったにちがいない。参加者は国外より56名、国内より228名であった。連絡委員会では、次回の世話人である東北大学工藤博司先生より、来年9月16-18日に仙台国際センターで、従来の形式で第42回討論会が開催されることが報告された。次々回は筑波で近藤健次郎先生(KEK)のお世話で開かれることが決定した。

以下に会議の詳細と感想をまとめた。

【九州大学理学部 百島則幸】

初めての国際放射化学シンポジウム(APSORC'97)が秋晴れのもと、熊本大学でにぎやかに開催された。毎年持ち回りで行われていた放射化学討論会を国際シンポジウムに発展させたもので、第41回放射化学討論会の開催責任者である熊本大学工学部・岸川俊明先生を組織委員長として準備を進め実現に至った。従来の放射化学討論会と国際放射化学シンポジウムの合同開催の形式を取り10月6日から10月9日までの4日間に渡った。初日に第41回放射化学討論会がこれまで通りの日本語による口頭発表として行われ、3会場で合計34件の一般講演と1件の特別講演が行われた。引き続き核化学分科会、原子核プローブの化学分科会、放射化分析分科会が開催され、従来の放射化学討論会は終了した。なお、 α 放射体・環境放射能研究懇談会と若手の会シンポジウムは前日の10月5日に開催された。放射化学討論会に引き続き、国際放射化学シンポジウムの歓迎会が夕方から屋外で催された。ビール片手に屋外という開放感とも相まって和気あいあいとして歓談が進み、外国からの参加者もすぐ打ち解けた雰囲気であった。

国際放射化学シンポジウムには22ヶ国からの参加があり、185件の発表のうち海外は62件であった(表1)。発表は10月7日と8日の2日間に渡り、初日はオープニングセレモニーに引き続き6件の招待講演が行われ、夕方からは2会場に分かれ前半のポスター発表が行われた。放射能発見に続くこの100年の間に放射化学・核化学は大きな発展を見せたが、本シンポジウムは放射能発見後の第2世紀の出発点として1997年を捉え、核エネルギーや生命科学などを含めた広

範囲な分野における放射化学・核化学の研究者の参加を目指していた。発表分野の内訳は表2に示すようになってきているが、国内では核化学、材料、環境が多く、国外からは環境関連の発表が多いのを見て取れる。8日の午前中は分野別に4会場に分かれ25件の一般口頭講演と6件の招待講演が行われた。一般講演の時間は15分であったが熱心な討論で時間が超過することが多く、もう少し講演時間がほしいと感じられた。午後からは1会場に戻り3件の招待講演が行われ、その後2会場に分かれ後半のポスターセッションが行われた。ポスターはカラー作成が一般的になってきているが、筆を使ったペインティングは芸術作品と見間違ふほどであった。最後の招待講演に引き続きクロージングセレモニーが行われたが、会場には最後まで多くの聴衆が見られ、初めての国際放射化学シンポジウムのテクニカルセッションは無事終了した。

懇親会は7日の夜に熊本城近くのホテルで行われたが、アトラクションとして山鹿灯籠踊りが披露された。9日は阿蘇と文楽見学のエクスカージョンが行われ、九州の自然と文化を堪能した。

表1 参加者リスト

国	発表 (人)
オーストリア	1
ブラジル	3 (2)
カナダ	4 (4)
中国	3 (3)
デンマーク	1
フランス	1
ドイツ	1
ハンガリー	3 (2)
インド	10 (9)
日本	123
韓国	10 (8)
オランダ	1
フィリピン	1
ルーマニア	1
ロシア	10 (8)
サウジアラビア	3 (1)
南アフリカ	1
台湾	1
トルコ	1
ウクライナ	2
英国	1
アメリカ	3

表2 発表分野リスト

Session	Japan	Overseas	total
Plenary	2	5	7
Lead Lecture	1	8	9
Nuclear Chemistry	21	1	22
Isotope Research	8	3	11
Material Science	30	3	33
Life Science	9	6	15
Nuclear Energy Related	6	3	9
Environmental Assay	19	26	45
Metrology & Measurement	6	1	7

【金沢大学・理学部 宮本ユタカ】

今年の国際学会では放射化分析関連の発表はかなりあり、その方法論的な展開よりも各分野に応用したものについての話題が多かった。その中でも最近、生体微量元素の挙動に関する研究に利用されている例が増えてきているように思える。特に招待講演の Dr.Spirou 氏の in-vivo NAA とガンマ線トモグラフィを組み合わせさせた研究は放射化分析の興味ある1つの展開であると感じた。

放射化分析を一般的な元素分析方法として様々な広い分野の研究者も利用する色合いが濃くなっているが、それは一度に多くの試料を簡単な調製であまり労力をかけずに定量できる点によるところが大きい。分析方法が複雑あるいは解析に必要な知識やパラメータが多いときには、様々な面でサポートする体制も整えておかないとその方法がいくら特徴的であっても利用者は敬遠するのではないだろうか。また、今回はインドの V.G.Dedgaonkar(Nana)教授と親密に話す機会を持てたこともあり、この学会の参加は非常に有意義であった。

【高エネルギー加速器研究機構 榎本 和義】

APSORC'97 ではアジア、太平洋が表題にある。これは開催場所を意味するだけでなく、アジア、太平洋地域の研究者の集まりと放射化学研究の国際協力をを意図しているといえる。欧米の協力体制に比べて、アジア、太平洋地域での協力はまだまだ遅れている。APSORC'97 がその礎石となり、研究協力が花開くことをことを期待したい。我が国では、研究環境が悪くなってきているが、アジアでは、いま設備が新設されたり、研究者も育成しようとしているところもある。研究協力は大いに意義があるといえよう。

APSORC'97 は分析化学会と重なるなどの心配もあったが、非常に盛会であった。岸川先生はじめ、組織委員の皆様のご尽力に心から感謝したい。

放射化分析支援システム研究会

「中性子放射化分析と周辺の分析技術の得失の比較 (II)」

日時：1997年10月23日 (月曜日)

場所：富国生命ビル 21階 会議室

主催：放射線利用振興協会・放射化分析研究会

最近毎年1回行われている放射化分析支援システム研究会が今年も10月23日に開催されました。ICP-MS、ICP-AESなどを代表格として、放射化分析のライバルとなる元素分析法が多々ある中で、放射化分析のメリットはどこにあるのか、そのアイデンティティを自覚したいとの意図から生まれた昨年の研究会(1996年11月1日)のタイトル「中性子放射化分析と周辺の分析技術の得失の比較」が今年も引き継がれたのですが、やはり今重要な課題だからなのでしょう。昨年は時間がタイトで十分議論を尽くせなかったこともタイトルが継続された理由の一つです。

今年、最初に K_0 法のソフトウェアを開発しているR. van Sluijs (オランダDSM Research社)がAPSORC-1で日本に来られるのを折りに、招いて K_0 法の開発と応用について解説をお願いしました。続いて K_0 法を実際に用いているグループから利用経験の報告がありました。東大・原子力研究総合センター・大学開放研究室(報告:澤幡)と原研・分析センター(報告:松江)はまさにvan Sluijsらが開発したKAYZERO/SOLCOIを用い、標準試料を用いた試験利用を行っていますが、手法とソフトウェアに習熟する段階を終了して、利用の段階に入りつつあるようです。大学開放研究室の K_0 法は原研施設利用共同研究に開放されて、既に何人かのユーザーが使いだしているとのこと。立教大学原子炉(報告:戸村)は市販のソフトウェアを使わないで K_0 法を試みています。

次のセッションでは、INAAとRNAAの正確度と精度について、経験豊かな方達から良く整理された発表がありました。放射化分析は正確度の高い分析値が容易に得られる手法ではあるけれども、当然標準試料の秤量や均等な照射条件を確保することが必要であること、さらに放射化分析特有の問題として、同定を間違えやすいガンマ線ピークの存在や妨害反応に注意深くなければならないこと、などが強調されました。

第2部「周辺の分析技術」および第3部「分析手法の得失の比較」は豊かで具体的な実践例にもとづいて手法の比較がされました。全体に、どの手法の方が勝っているというような論調は無く、個々の得失をよくわきまえて公平な姿勢が感じられました。

昨年の例にならったのか?、熱心な発表が行われた一方で、最後の討論はやはり時間が不足してしまったのが残念でした。「放射化分析は何故一次測定法として認められていないのだろう」という重松俊男先生の問いかけはもっと時間をとって議論する必要があるでしょう。放射化分析を客観的に見直す助けにもなりますし、科学哲学にもひたれそうです。

プログラム

第1部 放射化分析技術

- 1.1 K_0 法解析プログラム KAYZERO/SOLCOI の開発とその応用 R. van Slujs
・コメント 沢幡 (東大)、戸村 (立教大)、松江 (原研)
- 1.2 照射・測定・解析段階の INAA の正確度について 鈴木章悟 (武蔵工大)
- 1.3 宇宙・地球科学試料の INAA の正確度について 福岡孝昭 (学習院大)
- 1.4 RNAA の精度と確度について 海老原充 (都立大)

第2部

- 2.1 蛍光 X線分析法による微量元素の定量について 山本鋼志 (名古屋大)
- 3.2 シンクロトロン放射光蛍光 X線分析について 中井 泉 (東京理科大)
- 4.3 高分解能 ICP-MS による超微量元素の定量 高久雄一 (丸文)

第3部

- 3.1 照射試料の調整法について 岩田吉弘 (秋田大)
- 3.2 家畜飼料分野への応用 宮本 進 (農水省)
- 3.3 IAEA 比較標準物質における INAA/ICP-MS/ICP-AES の比較 武内孝之 (京大原子炉)
- 3.4 討論 重松俊男 (NTT 研)

その他 原研・研究炉の現状について 桜井文雄 (原研)

「放射化分析支援システム研究会」は、原研炉における放射化分析システムを構築するために放射化分析研究会が協力する側面と、放射化分析研究会自体の活性化を支えてもらう側面とが車の両輪のように携えてある。これまでの実績が実って展開していくことを願ってやまない。

(東大・原総センター 伊藤泰男)



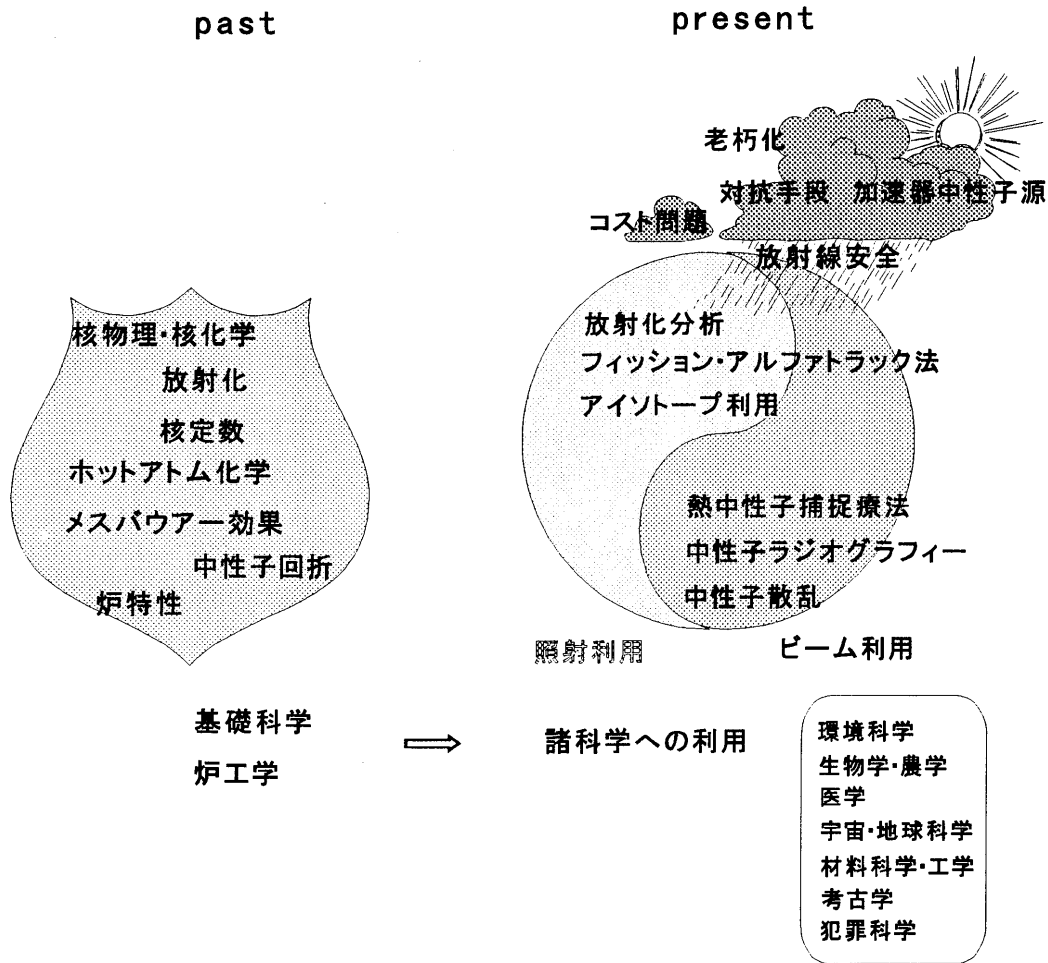
研究用原子炉の現状と今後のあり方

1. 研究用原子炉の推移

1950-60年代原子力のバラ色の夢が描かれていた頃、研究・訓練用に導入された研究用原子炉は、バルク中性子源として広範な基礎研究を支えてきた。それは一言で言えば、中性子と物質の相互作用とそれによって生ずる核変換に伴う種々の放射線過程を知るものであるが、核物理学・核化学という大きな枠の中で、放射化分析、ホットアトム化学、メスバウアー効果、放射線化学、中性子回折などの専門分野ごとに深められていった(図1)。今これら専門分野のほとんどは成熟ないし収束しつつある。そして科学・技術の発展の論理に従って、これらの研究成果は利用へと継承されている。図1ではこれらを照射及びビーム利用という2つの利用形態が巴になって進められている様子で示している。後に照射利用の細部の記述をするが、中性子源利用の重心が基礎から利用にシフトしたことに伴って、参画する研究者層も交替している。過去においては研究用原子炉は核物理・核科学・放射線科学・原子力工学という広い意味での「原子力」コミュニティの専有物であったが、今は図1に記載してあるような諸科学に広く分散して利用されていると云って良いであろう。象徴的に言えば、原子炉を使っている「原子力」研究者は今は居ない。このように、以前は「原子力」に求心力があったが、今は焦点が分散した結果、研究用原子炉の姿が見えにくくなっていることの意味は重大である。焦点がぼやけた結果、(外から見ると)研究用原子炉の重要性が認識されにくく、(内から見ると)同じ中性子利用をしていても研究分野が異なると連携・協力することもない、という脆弱な構造に陥っているのである。最近、中性子科学研究会、フィッション・トラック研究会、放射化分析研究会などが設立されているのは、それぞれの分野で連携をはかろうとしてしている現れであるが、さらに全体の連携がはかられないと、現在の困難は乗り切れないであろう。

図1には、照射・ビーム利用という2つ巴の実が成っているにも関わらず、その展開に対して暗雲が垂れ込めていることを描いてある。それは表一に示すように、外的要因・内的要因・科学上の変化に分けることが出来る。外的要因とは、原子力に対する政策の転換と公衆の理解度の硬化が主要なものであり、それに伴って安全対策や管理が堅固・硬直になり、コストの増大に連動している。内的要因とは、原子炉施設とスタッフが老朽化していることを指すが、外的要因の影響を受けて更新・新陳代謝などの活性化がはかられることはない。更に、中性子に関する新しい研究課題が欠如していること、また、利用段階に入ったとはいえ、中性子を用いなくても同等の目的を果たせる手法がライバルとして立ち現れていること(表二)、加速器ベースの中性子源の方が好まれ出したことなど科学・技術発展の中での問題もある。これらの暗雲に立ち向かってどのような解決があり得るだろうか? 問題はまさに”生きるべきか死ぬべきか”というハムレットの悩みのレベルで突きつけられているのである。

図1 研究用原子炉の 過去→現在→未来?



表一 研究用原子炉に垂れ込める暗雲

<u>外部要因</u>	
後退, 政治上の変化	(核燃料保障措置、....., 動燃事故)
公衆の態度	(チェルノビル事故、.....、放射線恐怖症)
安全対策・管理の堅固化	(新しい利用者へのバリア)
<u>内部要因</u>	
老朽化	(施設・スタッフともに老朽化)
運転コストの高騰	
<u>科学上の変化</u>	
新しい核的手法の欠如	
代替手法の出現	
加速器ベースの中性子源	

表二 原子炉中性子利用技術とそのライバル達

Nuclear techniques	Competitive
Analytical Radiochemistry activation analysis K ₀ standardization method Prompt Gama-ray Analysis	ICP-ES ICP-MS XFR
Radioisotope Applications (tracer・auto radiography) neutron radiography	X-ray tomography NMR Stable isotope MS (Accelerator MS)
Neutron beam research prompt gamma-ray analysis focused neutron beam SANS High resolution neutron diffraction Neutron reflectometry	Optical techniques Synchrotron radiation Computational physics
Medical applications RI for medical use neutron capture therapy	heavy ion beam therapy

2. 研究用原子炉利用の現状

1997年6月30日、理工学における同位元素研究発表会で「研究用原子炉を用いた研究の動向と新展開」というパネル討論が開催された²⁾(表三)。このパネルは、立教大学や武蔵工業大学の原子炉について、まさに”生きるべきか、死ぬべきか”という現状があることを背景に企画されたものである。以下ここでの話題をもとに現状をかいつまんでみる。このパネルでは中性子の粒子・波動特性を用いる”中性子散乱”の話題は割愛したが、これはそれだけでも十分多くの時間をとることになる上、中性子散乱は大型中性子源志向であるために、目下問題になっている私大炉のような小型研究用原子炉の有用性とは切り離して考えられるためである。一方、このように切り離してみると、表二に現れている中性子利用はほとんどが中性子による核変換過程を利用しているものであることが分かる。

表三 パネル討論 プログラム

第34回 理工学における同位元素研究発表会		
パネル企画 研究用原子炉を用いた研究の動向と新展開		
日時	6月30日(月曜日) 9:30-12:00	
場所	国立教育会館	
(1) 研究用原子炉利用研究の現状と問題点	伊藤泰男	(東京大学)
(2) 中性子放射化分析		
・ 機器中性子放射化分析 (自動化と K_0 標準化法)	鈴木章悟	(武蔵工業大学)
・ 放射化学分離操作を用いた中性子放射化分析	海老原 充	(都立大学)
・ 即発ガンマ線分析	米沢仲四郎	(原研)
(3) フィッションアルファトラック		
・ フィッショントラック年代測定法	田上高広	(京都大学)
・ アルファトラックエッチング法	柴田浩司	(東大工)
(4) 中性子ラジオグラフィ	小林久夫	(立教大学)
(5) ホウ素中性子捕捉療法	松村 明	(筑波大学)
(6) 放射性医薬品の製造	安東 醇	(金沢大学)
(7) 新しい中性子ビーム	川端祐司	(京大原子炉)

2-1 中性子放射化分析

中性子放射化分析は、最も広く行き渡っている原子炉中性子利用の一つ中である。試料を原子炉の中に挿入してやると、試料中の核種はそれぞれ固有の断面積で中性子を吸収して放射化するので、その放射能を測定してやれば、元の核種の量が分かるという原理に基づいている。原理的に簡単であり、用いる放射線(熱中性子とガンマ線)の透過性が高いために試料を破壊・溶解する必要がなく、かつ確度の高い測定が可能である。しかしながら、その精度はあまり良くなく、かつ多元素同時分析という(教科書には常に記されている)特徴も実際には生かされてこなかった。

放射化の原理は簡単である。中性子吸収断面積 σ の n 個の核種を熱中性子束 ϕ の中性子場で時間 t 照射すると、

$$A = n \sigma \phi \{1 - \exp(-0.693 t / T_{1/2})\} \quad (1)$$

の放射能を生ずる。ここで $n=fN$ (f :核種の自然存在比、 N :元素の数)である。この放射能を測定するのに、半減期 $T_{1/2}$ で崩壊して放出するガンマ線(γ)を測定するので、ガンマ線計数率は

$$G \propto \varepsilon(\gamma, \Omega) f N \eta \sigma \phi \{1 - \exp(-0.693 t / T_{1/2})\} \quad (2)$$

となる。 $\varepsilon(\gamma, \Omega)$ はガンマ線の検出効率である。ここで G が測定値、 N が求めるべき物理量であるが、 $f \eta \sigma$ という核定数の積が両者の比例係数として入っている。これらの核定数としてデータベースからひっぱってきた値を用いると、誤差が掛け算されて

分析値として使い物にならない。従ってこれまで、目的とする元素について別途標準試料 (N^s) を準備し、試料と同時に照射しかつ同じ条件で測定してガンマ線計数率 G^s の比から求める方法が広く行われてきた (比較法)。

$$N=N^s (G/G^s) \quad (3)$$

このような比較法では目的元素ごとに標準が必要なので多元素分析に馴染まない。近年ヨーロッパで開発された方法は、上記核定数を $K_0=f \eta \sigma$ という実効的なパラメータとして考え、 K_0 の (金の K_0 に対する) 相対値を実験的に別途決定しておくというものである。この場合、試料と同時に金標準試料一つを同時に照射すれば(2)式から、

$$N/N^s = 1/K_0 G/G^s \varepsilon(\gamma^s, \Omega) / \varepsilon(\gamma, \Omega) \quad (4)$$

が得られる。試料 (金) と目的核種の異なるガンマ線についての検出効率の補正は容易である。これが K_0 法の要点である。検出された全てのガンマ線について精密な分析値を得ることが出来るし、検出されていないガンマ線についてはバックグラウンドに埋もれているとして最大でもどの程度の量が存在するかを見積もることが出来る。これによって真の多元素同時分析が可能になり、未知の試料についてスクリーニング調査が容易に行える。

中性子放射化分析はまた、武蔵工業大学原子炉での例に見られるように、試料の照射からガンマ線スペクトル測定を行って解析する一連の過程を自動化することが可能である。これが K_0 法と結合されれば機器中性子放射化分析 (INAA: Instrumental Neutron Activation analysis) は「バカチョンカメラ」の域に近づくことさえ可能である。科学から技術への発展の利用的な姿を思い浮かべるとき、放射化分析のバカチョン化はもっと精力的に目指されるべきものである。

また「放射化学分離操作を用いた中性子放射化分析」 (RNAA: Radiochemical Neutron Activation analysis) は通例中性子照射後に化学操作を行う手法で INAA の分析感度を高める手法であるが、分析一般における2つの主要な誤差要因 (汚染と不確かな収率) を避けることが出来るという際だった特徴があるので、信頼性が極めて高い。現在放射線嫌いの風潮と新しい対抗手段の出現に押され気味であるが、RNAA の利点は簡単に捨て去ることが出来ないものを持っている。RNAA の重要性は今後再認識されるようになるであろう。

ここで、放射化分析の最大のライバルである ICP-MS (Inductive Coupled Plasma Mass Spectroscopy: 誘導結合プラズマ質量分析) との比較してみる (表四)。検出感度は ICP-MS が圧倒的に優れているように見える。実試料ではマトリクス効果のために ICP-MS もこれだけの検出感度を発揮することは出来ず、検出限界値では両者大差ないことになるのであるが、それにしても、分析精度、分析所要時間などを含めて総合点で ICP-MS に分があるように見える。にも関わらず、既に述べた分析確度が高いという放射化分析の特徴は他の追随を許さないものであり、唯一この特徴をもってして、放射化分析を他の分析手法の標準であると位置づけることが出来るのである。また最近では、鉱物などの固体試料では ICP-MS の困難が認識され、試料を溶液化する必要のない放射化分析が見直されつつある。RNAA・INAA による分析は、ICP-MS

などによる分析値の検定ないしバックアップとして信頼性を確保しつつ、失敗の許されない貴重な試料は自信を持って引き受けることの出来る手法として高い位置に置かれるべきである。

表四 放射化分析と ICP-MS の得失の比較

	放射化分析 (RNAA)	ICP-MS
検出感度 signal atom ⁻¹ s ⁻¹	10 ⁻¹⁰ - 10 ⁻¹⁴ 感度は核ごとに異なる 感度の無い元素もある	~5x10 ⁻⁷ 全元素ほぼ等しい感度
検出限界値	~ppb	~ppb
分析精度	良くない (~2%)	高い
分析確度	高い	
溶液試料	容易ではない 溶液の照射に制約	容易
固体試料	容易	容易ではない 不完全溶解 溶解中の汚染・損失
分析所要時間	≦数ヶ月	数日
利用環境	原子炉施設	実験室
コスト	高い	.

例として、自動車排気の標準試料の認証値を得るための種々の手法による Round Robin 測定結果³⁾を引用する。8種類の分析法で59元素が定量されたが、コンプトン低減を併用した INAA で52元素、コンプトン低減の無い INAA で38元素が定量出来た。他の7種類の分析方法を用いた機関が定量した元素数の平均 7.2 に比べると INAA の多元素・同時定量性の特徴が良く現れている。

表五 自動車排気粒子標準試料 (NIES) の共同分析による
分析方法別の定量元素数³⁾

分析方法	分析機 関数	定量元素	延べ 定量元素数
AAS(原子吸光法)	7	14	50
GFAAS(黒煙炉原子吸光法)	2	8	9
IDSIMS(同位体希釈質量分析法)	1	5	6
ICP-AES(プラズマ発光分析法)	7	24	83
SP(吸光光度法)	1	3	3
FES(炎光光度法)	3	2	6
SF(蛍光光度法)	1	2	2
INAA・コンプトン低減法併用	1	52	52
INAA・コンプトン低減なし	6	38	107

2-2 即発ガンマ線分析 (PGA : Prompt Gamma-ray Analysis)

即発ガンマ線分析は、原子核が中性子を吸収した時に即時に放出されるガンマ線 ((n, γ) 反応と書いたときのガンマ線) を測定することによって行う分析手法である。中性子照射とオンラインで測定しなければならないので、熱中性子・冷中性子がビームガイドを通して輸送することが可能になった最近になって実用的な測定が可能になった。日本では JRR-3M の中性子ビームホールに設置されたものが良い成果を上げているが、NIST(USA)、Texas 大学、Julich 研究所 (独)、ハンガリーに類似の装置がある。即発ガンマ線分析で感度の高い元素は B, Cd, Gd, Sm, Eu などであるが、他の方法では分析が困難な H, N, Si, S などに対しても感度があるので、ライフサイエンスに馴染みやすい研究手法である。文字通り非破壊多元素同時分析法であるので、考古学試料のような大きな、かつ破壊することの許されない材料も取り扱える。

2-3 フィッション・アルファ・トラック法

2-3-1 フィッショントラック年代測定法

フィッショントラック (FT: Fission Track) 法は、 ^{238}U が天然で起こす自発核分裂を利用する年代測定法である。自発核分裂の回数を核分裂飛跡の数を数えることによって知り、親核種 ^{238}U を定量するために熱中性子照射による ^{235}U の誘導核分裂を用いる。1960-70 年代に開発されて 1980 年代半ばに成熟したこの方法は、今では実験の自動化・迅速化が行われて地球惑星科学分野でマーケット化されるまでになっている。さらにトラックの長さから過去の熱履歴に関するデータも抽出するなど、精密な手法になってきている。

2-3-2 アルファ・トラック・エッチング法

材料中の $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応で生じた α 粒子のトラックを観測することによってボロンの位置や存在状態を知る手法である。鉄鋼材料中の B は ppm 量で材料の性質を大きく変化させる重要な元素なので、B の挙動を知ることは鉄鋼材料の基礎研究・開発研究に不可欠であり、その目的でアルファ・トラック・エッチング法が広く用いられるに至っている。それは、高感度 (1ppm 以下でも測定可能) で、鋼中の他の元素の影響を無視でき、SIMS よりも分解能が良く (数 μm)、操作が比較的容易であることなどの利点に恵まれているためである。これによって、B が結晶粒界に偏析する様子や機構を解明したり、ボライドを利用して結晶粒の微細化などに役立てる研究などに利用されている。この方向では、日本鉄鋼協会において平成 9 年度から「材料の組織と特性に及ぼすボロンの影響」フォーラムが発足している。

2-4 中性子ラジオグラフィ

中性子ラジオグラフィの技術は 1960 年代初頭にほぼ完成し、国外では宇宙 (火工品)・航空物品 (タービンブレード、航空機のウイング)、使用済み核燃料棒などの検査に実用されている。国内では中性子ラジオグラフィの実用は加速器を用いた民

間の施設で宇宙・航空機物品の検査に用いられている程度で、研究炉を定常的に実用に供している例は無い。しかし、国内の原子炉を用いて高感度、高速度撮像を中心とした開発が精力的に行われてきた結果、流れの可視化、伝熱流動解析、植物・土壌中の水分の分布の可視化等、近接学問分野へはば広く応用することでは、日本の研究は世界に先駆けて新しいフェイズに突入しているように見える。

2-5 硼素熱中性子捕捉療法 (BNCT : Boron Neutron Capture Therapy)

BNCTは1951年にBNLで最初に行われたのをかわぎりに、1960年代にMITで17ケース、1968年からの20余年間に島中坦によって100余件が行われ、これ以外にもHTR(968-74)、MITR(1977-89)、JRR-2 (1990-1996)で行われた。BNLでは1995年からBNCTを再開し、HFR Petten (The Netherlands) では1996年にlicensing待ちの状態である。

日本では武蔵工業大学が現在停止中であるが、KURで京大、京都府医大、神戸大、国立香川小児病院、JRR-2で国立香川小児病院、筑波大が実績がある。JRR-2は1996年にシャットダウンしたが、現在JRR-4に医療照射設備を整備中である。

現在のBNCTの実績は上記の程度であるが、BNCTを在来研究用原子炉の活性化の目玉と位置づける物が多く、MNRC (McClellan Air Force Nuclear Radiation Center)、Hungary, Czech (LVR-15 Reactor), Argentina (RA-6 reactor) で開発中である。Planning, Proposal, Surveillanceの段階のものも中国、タイ、スロベニア、ブラジルなどにみられる。

2-6 その他

放射性医薬品の製造は依然として重要な利用分野であるが、日本では主として採算の面での制約から利用が縮小している。またNTD(Neutron Transmutation Doping)など新しい材料開発の余地が十分あるとみられる分野もあるが、これは原子炉のおかれた社会的な条件の中では模索型の研究が行いにくいこともあって、発展への希望は大きくない。

3. 研究用原子炉の今後のあり方

3-1 研究用原子炉は無くなっていきつつある

前節のように整理してみると、研究用原子炉利用研究は広い可能性をはらんでいながら、十分開花していないことが明らかと思われる。現在の原子炉利用研究の低迷の原因は利用研究そのものの中というよりも、コスト、利用体勢(堅固な管理)など周辺の状況により大きく制動されているのではないだろうか。

日本の研究用原子炉のリストを表六に示す。立教大学原子炉は経営の困難で廃炉の準備を始めており、武蔵工業大学の原子炉は運転再開への準備をすすめているものの社会的な障壁が大きい。KURは現在の濃縮燃料が使えなくなる関係で2004年以降の状態が不透明である。そして、これらの負の状況を埋め合わせるような積極的な計画

が全く無いという状況を改めて認識して、愕然とせざるを得ない。日本は原子力発電路線を推進しているわけであるが、他方で研究用原子炉についての計画を持たないというのは如何にも片手落ちである。ちなみに、ドイツでは原子力発電路線に一定の歯止めをかけているが、研究用原子炉の新設（FRM-II：Forschungsreactor Munchen - II, 20MW, under licensing on 1996）には積極的である。FRM-IIはJRR-3Mに非常によく似た原子炉である。

表六 日本の研究用原子炉

原研炉	JRR-3M	
	JRR-4	
	JMTR	
		/大型であることのmerit & demerit
KUR		/燃料問題（2004年3月以降）
立教大学原子炉		/経営問題
武蔵工業大学原子炉		/運転再開への障碍
		/小回りのきく炉の展望は明るくない
近畿大学原子炉		
東京大学工学部弥生炉		
次世代中性子源		
中性子科学研究センター構想		/中性子利用についての公平な目配りがされているか？
JRR-3M 拡充計画		

現在日本には「中性子科学研究センター」のプロジェクトが提案されており（日本原子力研究所・東海研究所）、これが現在唯一の次世代中性子源計画である。しかし、放射化分析、中性子ラジオグラフィ、その他本稿で述べた分野の研究者集団はこのプロジェクトに希望を述べる場が無いことで不満を持っており、中性子捕捉療法に至っては明らかに全く考慮されていない。早急に公平な目配りがされることを望みたい。JRR-3M 拡充計画はごく最近現れてきた考え方なのでまだ社会的に認知されていない。中性子科学研究センターだけで将来の中性子利用をカバーすることは不可能なので、JRR-3M 拡充計画は真剣に考えられるべきであろう。

3-2 既存原子炉の有効利用

近未来の中性子源に期待するところはあるものの、現在の低迷にテコ入れするという立場で今を考える必要がある。このままでは第2節に記載した幾つかの研究は、適切なタイミングを逸する可能性がある。例えば今、放射化分析やフィッション・アルファ・トラック法の新しいフェイズを展開させようとしている研究者達に喪失感を味わわせるべきではない。従って、立教大学原子炉、武蔵工業大学原子炉が健全であり

ながらも利用出来ないという状況が続けることは好ましくない。2つの原子炉が抱えている問題は異なるが、それぞれに膠着している今、両者の問題を複合的に解決する試みも必要である。例えば公的な資金援助によって「中性子利用分析センター」のようなものを設立し、2つの原子炉を駆使して利用展開をはかるという案が、ユーザーから出されている⁴⁾。この中性子利用分析センターは中性子利用の研究開発機関でありながら、**market oriented**なものでもあるべきである。

3-3 研究用原子炉の問題で社会的な連携を

研究用原子炉の問題に解決をもたらすための、社会的なモーメントが生み出されねばならない。これまでは研究用原子炉の問題は施設ごとに個別化され、原子炉が社会的な財産として認識されるには至らなかった。立教大学が原子炉の維持管理費を全額負担し続けることの重圧に耐えきれず、ついにこれを手放す決意をしなくてはならなかった背景には、この原子炉を立教大学に押しつけたままの社会の無責任がある。しかし、立教大学原子炉の取り扱いについて立教大学当局のギリギリの選択が明らかになった今、学界はようやく眠たげな目を上げだしたようである⁵⁾。

他方ユーザー、例えば放射化分析という手段を共通にする研究者達も、宇宙地球科学、生物学、考古学、、、という専門の縦割りの壁を突き破って協力するということが無かった。「放射化分析研究会」はまさにこのことを反省して1995年に設立されたものである。他に中性子科学研究会、フィッシュントラック研究会、「材料の組織と特性に及ぼすボロンの影響」フォーラムなどの存在がある。これらのユーザーの力がさらに大きく結集されれば、状況は良い方向に向かう可能性がある。

各関係者がそれぞれの立場で奮起していけば、打開はあり得ると信じるのである。

文献

- 1) M. de Bruin "To Be or Not To Be: Strategy and Policy of Univeristy Research Reactors"; J. Radioanal. Nucl. Chem., 192(1), 9-15 (1995)
- 2) 第4回理工学における同位元素研究発表会要旨集、p.205-238 (1997)
- 3) S. Suzuki and S. Hirai, Anal. Sci., 8, 437 (1992)
- 4) 「立教大学研究用原子炉の共同利用継続に関する要望書」(1997年7月)
- 5) 「私立大学に設置されている研究・訓練用原子炉による教育研究活性化のために公的援助を増強することについて」第16期日本学術会議、原子力工学研究連絡委員会・原子力基礎・放射線科学研究連絡委員会・核融合研究連絡委員会 要望書 (1997年4月)

1997年7月

東京大学・原子力研究総合センター 伊藤泰男

立教大学原子炉共同利用の存続に関する運動の進捗について

標記の運動進めてきておりましたが、集まった署名（833名+3学会）はとりまとめて下記の関係機関に送付しました。10月26日現在までのところ、原子力産業会議、電力中研などで本署名活動が目にとまったという程度の反応がありましたが、残念なことに、格別の進展状況はありません。

また、この署名活動と並行して、何人かの方々がそれぞれのお立場で運動を下さっています。その進展・成果については追ってご報告する予定ですが、今は、これらの方々のご努力に深甚の感謝を表明し、引き続きご努力をお願いするものです。

（東大・原総センター 伊藤泰男）

立教炉問題要望書・署名送付先リスト

1997年8月5日現在

立教大学 総長
原子力研究所長
東京大学 原子力研究総合センター長
立教大学原子炉利用共同研究委員会 委員長
原研施設利用共同研究委員会 委員長
文部省 学術国際局 井田局長
学術国際局 研究機関課長
同上 研究助成課長
科学技術庁原子力局 石田事務次官
調査室長
研究技術課長
通産省資源エネルギー庁 江崎長官
谷口審議官
原子力委員会
同上 田畑委員
学術会議 原子力工学基礎研連委員会 委員長
原子力基礎・放射線研連委員会 委員長
核融合研連委員会 委員長
日本原子力産業会議 向坊隆 会長
電力中央研究所 依田 理事長
科学・技術推進議員連盟 代表 中川太郎
前衆議院科学技術委員会理事 鮫島宗明氏
原子力システム研究懇話会 運営委員会委員長 安 成弘氏

編集後記

会誌 No. 6、予定を大幅に遅れることなく刊行の運びになりました。

昔サイクリングや山歩きを楽しんだ時、体力の弱い人に合わせた行動計画を立てることが人数の多少によらずルールと教えられました。それでもいつも思わぬハプニングがあって、行程は遅れるのが当たりと思われました。私も山歩きでは足の遅い方で、皆に面倒をかけないように必死で歩いたものです。

本会の会誌編集作業も似たような面があります。企画の当初から日程の遅いところに規準を合わせて無理のないように計画を立てるのですが、どうしても遅れます。

一般社会では”体力”の弱い部分への寛容を保つべきですが、本会のように目的を持って存在している集団で、また特に放射化分析を含めて研究用原子炉利用の動向が安泰でない現在、“体力”が不足する部分に寛容であり過ぎると集団の活性を低めるかもしれません。

括弧付きで”体力”と書いた部分は“やる気”、“余裕”、“誠実”などと置き換えてみると、無いのもやむを得ないという気がしてきて妙に納得出来てしまえますね。今の時代は、...

(I. Y.)

本会誌の内容および投稿募集

放射化分析研究会の情報媒体は、定期刊行機関紙「放射化分析」と不定期のニュース紙「放射化分析研究会ニュース」を主とします。

会誌「放射化分析」は下記の記事で構成されます。

講座・特集・解説

専門的な記事を毎号企画していきます。

記事の内容についてのご希望や提案をお寄せください。

研究紹介

放射化分析に関する研究、放射化分析を用いた研究を紹介していきます。研究の当事者にまとめた内容を執筆していただくものと、秀れた論文を紹介するものがあります。特に紹介したい研究についてご意見をお寄せください。

実験手引き Q & A

会員から質問を受けて、回答やアドバイスを掲載します。どのような質問でも結構です。回答者は幹事会が責任をもって会員の中から選定します。

施設・研究室紹介

放射化分析を行うことができる施設については、毎回情報を提供します。また放射化分析を行っている研究室の紹介を適宜行います。

談話室（要望、話題、新刊書籍紹介、その他）

会員の気軽なおしゃべりの場です。どのような内容でも結構ですので、お寄せください。

若い声

学生や若手研究者およびこれから放射化分析を手がけようとする方々の新鮮な声を反映させる欄です。

研究会報告・最近の動向等

最近開催された研究会の報告です。放射化が取り扱われている研究は広範囲な分野に顔を出している筈です。放射化が関係している研究課題が1件でもあれば、この欄に取り上げたいと思います。会員の皆さんからの情報提供をお待ちしています。

アナウンスメント

課題採択一覧

放射化分析関係の共同利用、共同研究が行われている施設で採択されている研究課題を適宜掲載します。

会員名簿

以上の項目に対応する記事を積極的にお寄せください。

原稿は A4 横書き、40字×40行、上下マージン 25mm、左右マージン 20mmを標準として、そのままオフセット印刷又はコピーして使える形に清書して送付して下さい。編集の際にレイアウトを工夫させていただくこともありますので、念のためファイルをフロッピーディスク添付して下さい。（ファイルは MS-DOS のテキストモードが最適ですが、Macintosh のファイルやワープロ専用機のファイルもかなりの程度処理できます）

放射化分析研究会

事務局

319-11 茨城県那珂郡東海村 日本原子力研究所内 大学開放研究室

TEL 029-282-5516 FAX 029-287-2464

幹事

井口 明	伊藤泰男	海老原充	大槻 勤	武内孝之	重松俊男
鈴木章悟	戸村健児	豊田和弘	中西友子	増澤敏行	榎本和義
薬袋佳孝	米沢仲四郎				