

## 特別講演

### アルファ反跳現象・原子炉中性子反応・FT・ ルミネセンス研究の40年をふり返って 橋本 哲夫\*

\* 新潟大学（名誉教授、元理学部），Niigata University.

#### はじめに

平成19年3月末で41年間の大学での研究・教育の期間を終えた現在，その間の色んなことが走馬灯のように蘇ってくる。

ごく最近の出来事として，本年（平成19年）7月16日柏崎地方を襲った中越沖地震は，東電の柏崎・刈羽原子力発電所施設にも大被害をもたらしたため，放射化学を専門としてきた私は，二日後にはテレビ局からの依頼，更に五日後には新潟県からの被害調査員として現地に入った。従って，都合二回に亘って柏崎・刈羽地区訪れることとなり，倒壊した家屋やひび割れし凹凸の激しい道路などの他，原子力発電所施設に関連した被害状況をつぶさに見させて頂いた。自然科学を専門としてきたが，自然には人力ではどうしようもない災害が存在することを再度実感した。実は私自身小学一年生のときに福井地震（昭和23年）に遭遇しており，200軒余りの私の村落の家屋や小学校の全壊を経験している。

ひと一人の人生を全うする時には全て無事な時ばかりでなく，地震のような自然災害のみならず最近では人為的な被害を受けることも多くなりつつある。しかしながら，長年に亘って人間のDNAにはそれらの対処法も組み込まれているようであり，その結果として被害や悲惨さからの立ち直りも次第に速くなってきているような気がしている（忘れるのも速くなってきているのかも知れないが）。事実，被災者の方々の御努力により柏崎地区や原子力発電所も訪れるたびに復旧しつつあるし，

私の地震体験も今では思い出に残るだけである。

定年により私の研究生生活は黄昏の時期を迎えた。他の人からは順調そのものの研究の歩みであったと見えるかも知れないが，私にとってはこれらの研究の途中には困難状況にも多く出会い，やっと世間に問えるような幾ばくかの成果を残せたかなあと安堵の中に現在ある状態である。私自身よりはむしろ私を支えてくれた研究室の学生や院生たちのほうが，若い頭脳や体力を駆使して茨の道を切り開いてくれた。彼らの協力の賜物が，まさに自信を持って開陳できる研究成果であったと言える。自然災害時と同じ様に特に若い方々の前向きな人間力やDNA情報が，困難な研究の道筋を全て切り開いてくれたと今考えている（橋本，2003；橋本，2005）。

#### 京大原子炉実験所時代

昭和30年後半ころは原子力の分野が華々しい未来科学と喧伝されており，その渦中で研究生生活を始めたことになる。環境放射能の分野で多大な業績を残された阪上正信教授に卒業課題研究の御指導を受けたことがこの道にはいるきっかけとなった。1960年代の初期に黒鉛（電子顕微鏡）や白雲母への核分裂片の損傷部位の化学腐食処理から光学顕微鏡観察可能なフィッショントラック（核分裂片飛跡，以下FTと略記）が見出され，その後自然科学の多方面にFT法が展開していったのは周知のとおりである。大学院のゼミで論文を紹介しようとして阪上先生に *Geochimica Cosmochimica*

Acta の論文青焼き（その頃はアンモニア臭の青焼きコピーであった）をお見せしたところ、大変興味を持たれた。その後、阪上教授が FT の分野で日本での第一人者となられたきっかけであったことを今では懐かしく思い出す。

1966 年に金沢大学理学部の修士課程を修了し、京都大学原子炉実験所（KUR）に職を得た。その前後に研究指導して頂いた先生方と研究課題については表 1 にまとめた。天然  $\alpha$  放射性核種の分離分析とその地球化学的応用が私の卒業研究テーマであり、修士研究では立教大学原子炉を使用した人工放射性核種 ( $^{237}\text{U}$ ) の製造であった。そんな関係から KUR での中性子利用の放射化学研究へ違和感なく移ることができ、原子炉中性子を用いた反応断面積測定や FT 法を用いて微量ウランの定量や原子炉化学の研究などを行った。

ミュンヘン工科大学の放射化学研究所（郊外のガルヒンクにある）への研究留学から帰国して直ぐに新潟大学教員の公募にアプライし、幸運にも助教授に採用されたので研究教育の二足の草鞋を履くこととなった。

### 新潟大学へ赴任してから

新潟大学理学部化学科の無機化学講座（教授と助教授の二人講座）は、アメリカ・ロシア・中国などが大気圏内核実験を行っていた 1960 年代に、金沢大学や静岡大学などとともに核実験後の放射性降下塵の研究を行っていたことで知られていた。特に、強放射性粒子状物質の世界に先駆けた発見（ジャイアントパーティクルと小山教授が命名）は特筆すべき成果であったが、学会誌よりもむしろ新聞や週刊誌などマスメディアに発表したため

学問分野からのプライオリティはアメリカなどに奪われてしまったのは残念であった。

そんな研究室の歴史的背景もあり、一般的な放射線測定器は赴任当時揃っていたが、先端なものではなかった。KUR との繋がりもあり、FT や  $\alpha$  反跳粒子由来のトラック（飛跡）の研究を新潟大学で開始した。特に、 $\alpha$  反跳トラック観察実験は、自然界での放射壊変系列の放射非平衡をもたらす大きな原因ともなっており、私どもの特異的な研究成果の一つとなった (Hashimoto, 1994; 橋本, 1975)。

### $\alpha$ 反跳トラックと FT の研究

気水圏では天然壊変系列の核種間は殆んどが放射非平衡状態になって存在している。その典型的なものが、大気中のラドン ( $^{222}\text{Rn}$ ) の存在であり、人類発生以来空気中のラドンを否応なく呼吸で取り込んでいる。ラドン自身は希ガス元素（周期律の 18 族）であり、不活性ガス元素としての化学的挙動が親核種のラジウム ( $^{226}\text{Ra}$ ) からの分離の主たる原因となっている。壊変系列核種間の化学的な挙動の違いが非平衡の原因となっていることは、海水などの天然水中にウラン ( $^{238}\text{U}$ ) が存在しているのにも拘らず、直接の子孫核種であるトリウム ( $^{234}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ) が平衡量よりごく少ないことが普遍的であり、水中で加水分解して沈殿しやすい。この Th の放射非平衡特性を用いて、海底や湖底堆積物や化石の年代測定が行われている。

しかしながら、放射非平衡をもたらす原因として  $\alpha$  壊変の際の物理的作用である  $\alpha$  反跳原子がいま一つ重要な役割を果たしている (Hashimoto, 1994; 橋本, 1975)。表 2 に見られるように、 $\alpha$

表 1. FT・ $\alpha$  反跳トラックなど 1970 年代前後の研究課題

1966 年 3 月	金沢大学大学院理学研究科化学専攻 修士課程修了（指導教官：阪上正信教授） $\alpha$ 放射体分析、壊変系列内の非平衡、ホットアトム化学（立教大学原研、横須賀市、松浦辰男教授）
1966 年 4 月	京都大学原子炉実験所助手 フィッション ( $\alpha$ 反跳) トラック・ $\alpha$ 反跳現象・原子炉化学（岩田志郎教授：核整列核分裂実験）
1974 年 3 月	理学博士の学位を取得（九州大学、大橋、高島教授）
1974 年 3 月～1975 年 3 月	ドイツ・ミュンヘン工科大学放射化学研究所客員研究員 ウランの 4 価と 6 価の溶媒抽出 (Dr. J.I. Kim, RI の自然界でのマイグレーション研究、ミュンヘン工科大学 & カールスルーエ大学元教授)
1975 年 10 月	新潟大学理学部助教授、同大学院理学研究科兼任 $\alpha$ -反跳現象の実験的基礎研究（飛程見積もり、放出率、 $\alpha$ 反跳トラック観察等）、フィッション ( $\alpha$ 反跳) トラック応用（ホット粒子の星状 F.T）、環境トリチウム挙動

表2. 雲母中のウラン系列子孫核種の $\alpha$ 反跳飛程の見積もり (LSS 飛程計算)

Recoil atom	Recoil energy, keV	Range, $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ; (Å)		
		Biotite $\text{H}_2\text{K}(\text{Mg}, \text{Fe})_2\text{Al}(\text{SiO}_4)_2$ $\rho=3.0 \text{ g}/\text{cm}^3$	Muscovite $\text{KAlSi}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ $\rho=2.99 \text{ g}/\text{cm}^3$	Phlogopite $\text{KMg}_3\text{AlSi}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ $\rho=2.95 \text{ g}/\text{cm}^3$
$^{232}\text{Th}$	71.79	7.4 (247)	7.2 (246)	7.2 (254)
$^{230}\text{Th}$	82.96	8.2 (273)	7.9 (270)	7.9 (276)
$^{228}\text{Ra}$	82.88	8.2 (273)	7.9 (270)	7.9 (276)
$^{226}\text{Ra}$	86.13	8.4 (280)	8.2 (280)	8.2 (287)
$^{210}\text{Po}$	100.78	9.4 (313)	9.1 (311)	9.1 (318)
$^{214}\text{Po}$	112.15	10.1 (337)	9.8 (334)	9.8 (343)
$^{214}\text{Pb}$	146.48	12 (400)	11.6 (386)	11.6 (406)
$^{210}\text{Pb}$	103.01	9.5 (317)	9.2 (314)	9.2 (322)
$^{210}\text{Bi}$	125.23	10.8 (360)	10.5 (358)	10.5 (367)
$^{214}\text{Bi}$	104.95	9.7 (323)	9.4 (321)	9.3 (325)
$^{214}\text{Tl}$	91.07	8.7 (290)	8.5 (290)	8.5 (297)
$^{214}\text{Th} \rightarrow ^{214}\text{Pb}$		26.2 (873)	25.3 (863)	25.3 (885)

壊変に伴う $\alpha$ 反跳原子は数十 keV 以上の運動エネルギーを有する重イオン粒子と見なすことができ、それらの雲母中の飛程は 25-40 nm、鉛の安定核種までの総計では約 90 nm と見積もられる。これらの飛跡は雲母表面ではフッ化水素酸エッチング処理により位相差顕微鏡観察可能となる大きさまで拡張され $\alpha$ 反跳トラックと呼ばれる。図1に白雲母上で観察された $\alpha$ 反跳トラックの例を示す。

ウラン ( $^{238}\text{U}$ ) やカリフォルニウム ( $^{252}\text{Cf}$ ) 電着線源を使用して、グラファイトや金薄膜を蒸着して、捕集板と対置させた状態で真空中で集めた $\alpha$ 反跳原子の放射線測定とか、白雲母捕集板上の $\alpha$ 反跳トラックの観察から、蒸着物質中の $\alpha$ 反跳原

子 (キュリウム:  $^{248}\text{Cm}$ ) の飛程を実験的に求めることに成功した (Hashimoto, 1994; 橋本, 1975)。天然鉱物での $\alpha$ 反跳トラック密度は FT に比べて百万倍以上多いと見積もることができる。この $\alpha$ 反跳トラック関連の研究は地味ではあるものの、基礎的研究なので今後再度光の当たる研究分野のような気がしているし、今なお粒子トラック関係者にとって手付かずの課題の多い領域であるように思える。

FT 関係の仕事としては、よく知られた阪上正信著「粒子トラックとその応用」(南江堂)の表紙の右上に掲載されたトンボ状の FT トラックパターンは、ウランを微量含む溶液に浸した白雲母を原子炉中性子で照射後エッチングした際に、偶然雲母の端のほうに浸みたウランの核分裂で生成したものであり、真ん中にウラン ( $^{235}\text{U}$ ) が存在し、 $180^\circ$ 方向に確かに核分裂片が飛んでいるのが観測できた最初のトラック写真である。この結果を踏まえて、ラジウム ( $^{226}\text{Ra}$ ) の核分裂研究を試みたが、ウランの妨害が大きいため不成功に終わった。また、ウラン電着線源から $\alpha$ 反跳原子が線源表面上でウランのスパッタリング現象を起こしているこ

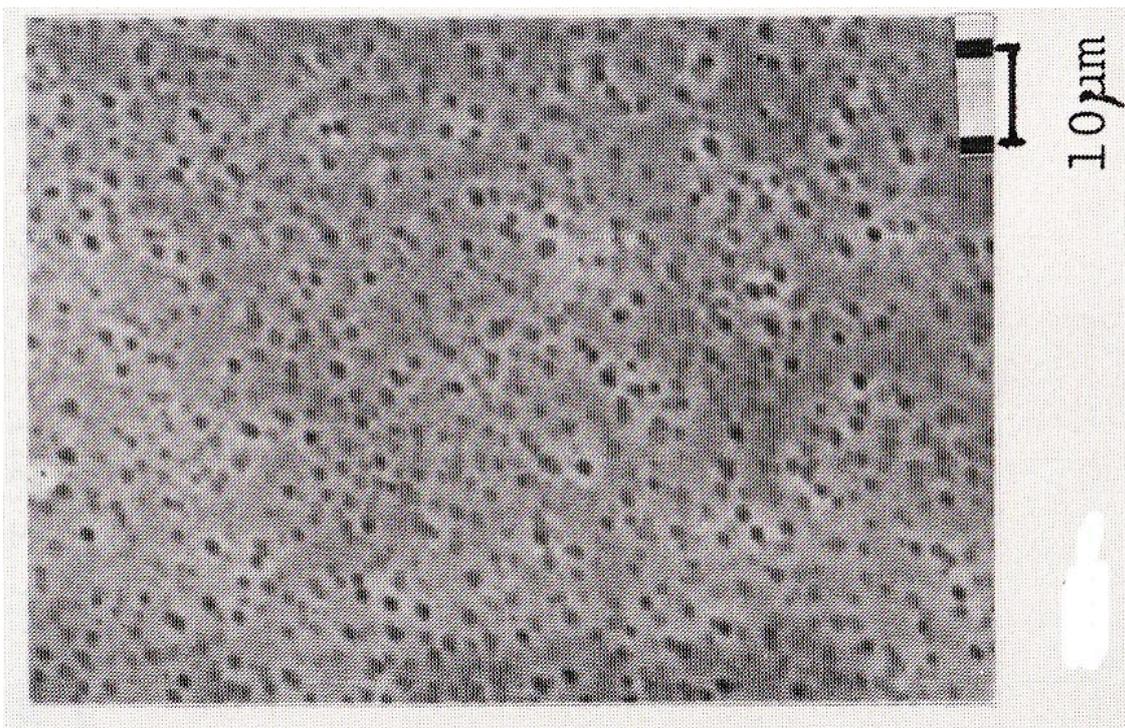


図1. 位相差顕微鏡による天然白雲母表面上の $\alpha$ 反跳トラック観察 (HF 処理済み)

とを FT 法で見出した。この結果は、Fleischer がプルトニウム ( $^{239}\text{Pu}$ ) 線源を使用して、 $\alpha$  反跳原子としてのウラン ( $^{235}\text{U}$ ) の検出実験を FT 法を用いておこなっているが (Fleischer, 1980), 実際にはスパッタリングで放出されたプルトニウム ( $^{239}\text{Pu}$ ) を測定している可能性が大であり, 再実験が必要であることを再度指摘しておきたい (Hashimoto, 1994; 橋本, 1975)。

## ルミネセンス研究

ミュンヘン工科大学に滞在中にボスであるキム教授 (滞在していた当時は講師) から, 帰国後は今流行っていない研究を地道に行うよう忠告されたことが, 常に頭から離れなかった。新潟大学への転任から数年経った頃, 佐渡の見える新潟砂丘を歩いていたとき, 足元の砂の放射線誘起現象であるルミネセンスの研究を行うことを思いついた (橋本, 1993; 橋本, 1997)。

ルミネセンス現象は FT 現象とも固体の放射線損傷由来の現象という面では類似しており, FT は放射線の高い LET (線エネルギー付与) 効果を利

用した飛跡の生成であり, ルミネセンスは低い LET の放射線からの鉱物への極微量の蓄積エネルギーをルミネセンス (発光) に換えて測定していることになる。ルミネセンス強度から年代測定を行える点も FT 法に類似しているが, 適用年代範囲がルミネセンス法は 20~30 万年より若いところが FT 法と違っている。

私どものルミネセンス研究の推移については表 3 にまとめておいた (橋本, 2005)。これらルミネセンス研究での特筆すべき成果は, ①熱ルミネセンス (TL) への簡便な高感度写真観察の適用, ②カラー写真観測からの赤色熱ルミネセンス (RTL) 石英粒子の最初の発見, ③微弱光観測用スペクトロメータの製作と RTL の分光測定, ④高感度 RTL 測定器の製作と石英粒子を用いた最初の RTL 年代測定 (橋本, 2007), ⑤小型 X 線発生器を搭載した各種波長領域での自動 TL と光励起ルミネセンス (OSL) 測定システムの製作と単分画再現法 (SAR) 法適用の実現 (Hashimoto et al., 2005), ⑥焼成考古遺物から抽出した石英粒子の SAR 法を用いた RTL, BTL, OSL 年代測定結果の相互比較 (橋本, 2005; Hashimoto et al., 2005), ⑦各種二次元ルミネセンス観測法の開発, ⑧迅速パルスデータ記録・処理・表示システムによる新しい OSL 測定 (八幡, 2006), ⑨石英粒子からの RTL の原因究明, ⑩その他, である。

## 今後への展望

表 4 に私どもが近年全力を注いできたルミネセンス方面の研究を中心にした今後の展望をまとめて示す。

前節⑧で記した測定システムは私の退職の半年前に (株) Z-COSMOS の伊藤成樹社長が開発したものであり, OSL 測定以外に利用範囲は広く空気中に塵埃に付着するラドンとその子孫核種の  $\alpha$ ・ $\beta$  測定および  $\beta$ - $\alpha$  相関事象の連続測定を, 1 マイクロ秒の時間分解能で行える (Hashimoto et al., 2005)。従来から報告してきたパルス時間間隔解析 (TIA) 法からの相関事象率を用いた壊変系列の簡便測定はもとより, 164 マイクロ秒のビスマス ( $^{214}\text{Bi}$ ,  $\beta$ ) とポロニウム ( $^{214}\text{Po}$ ,  $\alpha$ ) の短時間

表 3. 放射線誘起ルミネセンス研究の進展

1980 年頃	ルミネセンス研究開始, パソコンの進展 (one-board マイコンの出現, 杉山君), パルス時間間隔解析 (TIA) 法を考案 (U, Th 系列の相関事象の選択計測, 放射線計測器からの出力パルス計数からのラドンとトロンとの弁別測定)
1983 年 3 月~4 月	オーストリア・ウィーン IAEA 研究所 (サイベルスドルフ), 文部省在外研究員として共同研究: ウランの蛍光分析, 標準物質
1980 年代初頭	TL のカラー写真観察, 赤色 TL (RTL) 石英粒子発見 (世界初), TL 装置の自作, TL スペクトル (微弱光分光器製作) 観測, RTL 年代測定法適用 (火山灰層・焼成考古遺物など)
1987 年 4 月	新潟大学理学部教授, 同大学院理学研究科・大学院自然科学研究科兼任 (博士指導, 課程 10 名, 論文 3 名)
1900 年代以降	2-3 次元ルミネセンス観測法 (TLCI, AGCI, OSL, IRSL 等), 時間間隔解析法 (TIA) 法の理論式・検出限界の見積もり, 原子力・核燃料取扱い施設へのモニター利用
2000 年以降	RTL・OSL 測定ルミネセンス自動測定器の開発 (小型 X 線発生器搭載)
2006~現在	<ul style="list-style-type: none"> <li>○迅速データ記録・処理・表示システム開発 (1 マイクロ秒分解能)</li> <li>○パルス OSL 測定への利用</li> <li>○空気塵埃中のウラン系列測定—<math>\alpha</math> 放射体漏洩のオンラインモニターへの利用</li> </ul>

表4. 今後への展望

①ルミネセンス関連

簡便測定法の開発 (その場測定を含む)  
安価な測定器開発  
実験誤差の少ないルミネセンス (年代) 測定法  
簡便な年間線量評価 (TIA 法・低温側 TL 発光利用・異なるルミネセンス利用等)  
RTL の発光メカニズム解明  
VTL (紫色 TL) の BTL 発光センター解明  
P-OSL (パルス OSL) の利用  
その他

②オンラインデータ解析システム関連

TIA 法でのラドン同位体間で TIA 法で U と Th 系列測定の可能性  
長石を含む石英粒子成分で P-OSL の適用で 2 つの方法からの線量測定  
鉱物分離無しでの線量測定 (デンマーク, リソ研究所)  
ラドン放出率測定  
その他

壊変由来の相関事象も測定可能なことを確認できた。そこで、空気塵埃に付着した放射壊変系列についての正確な連続測定に基づき、原子力施設や放射性物質取り扱い施設からの人工放射性核種、特にプルトニウム核種の連続モニタリング利用に向けて基礎実験を退職後も自宅で行っている。

FT 専門論文誌として Nuclear Tracks 誌が 30 年ほど前に Dr. Durrani により英国から刊行され、その後 Nuclear Tracks and Radiation Measurements と雑誌名を長くした頃、私どものルミネセンス研究は始まった。ただ今は、ご承知のように Radiation Measurements 誌として、固体の放射線損傷や放射線誘起ルミネセンスの分野の論文が増加している。なんとなく、私どもの研究はこの雑誌に歩調を合わせて変化してきたように考えることがある。

その結果として、FT 研究からはしばらく距離を置いていたので、FT 分野での正確な展望は語ることが出来ないことをお許し願いたい。FT 法よりも信頼性を高めたり、より幅広い温度情報を正確に求める努力以外に、他の分野で開発されている方法を今後とも積極的に取り入れたり交流を深める

ことも重要であろう。レーザーアブレーション ICP-MS による二次元ウラン分布測定や FT 計数の自動測定も欧米に大分遅れて採用してきたように聞いている。科学的研究はオリジナリティが一番重要なので、是非とも新しいことに挑戦することを一つのモットーにして頂けたらと願いたい。

## 謝辞

私自身は放射化学の分野で先端的な研究を目指して精一杯努めてきたつもりであるが、不思議なことに放射化学分野からの評価はないか、あるいは無視されている。翻って、国内外のルミネセンス分野や FT 研究者・保健物理とか文化財・原子力方面の方々の私どもの研究への暖かな眼差しを近年強く感ずる。これらの分野の方々からのご注目とご支持・ご援助に対してこの場を借りて深く感謝したい。最後に当たって、私の 30 数年間の教育研究期間中に、献身的に協力して下さった学生・院生・ポスドク生・研究生や周辺関係者の方々に、深甚の感謝をする次第である。みなさま本当に有難うございました。

## 文献

- 橋本哲夫, 2003, 日本原子力学会誌, 45, 497-501.  
橋本哲夫, 2005, “ルミネッセンス (発光) で探る古代情報”, 新潟大学ブックレット. 新潟日報事業社.  
Hashimoto, 1994, Radioisotopes, 43, 212-223.  
橋本哲夫, 1975, 化学, 27, 616-619.  
Fleischer, R. L., 1980, Science, 207, 970-981.  
橋本哲夫, 1993, 応用物理, 62 (No.6), 584-588.  
橋本哲夫, 1997, ぶんせき, 147-152.  
橋本哲夫, 2007, 考古学と自然科学, 55, 31-44.  
Hashimoto, T., Yawata, T. and Takano, M., 2005, Geochemical J., 39, 201-212.  
八幡崇, 坂上央存, 伊藤茂樹, 橋本哲夫, 2006, 日本原子力学会誌, 5, 221-228.