
招待講演

I. 木村 健二郎

II. 高橋 信次

招待講演 I

放射化学昔話

日本学士院会員
東大名誉教授

木村健二郎

1 私は1912年旧制中学4年生のとき、化学の授業で始めて放射性元素について学んだ。そのときの教科書の放射性元素に関する記載は本文200字足らず、周期表や“万国原子量表”にはウラン・トリウム・ラザウム・ニトン(ラドンのこと)の4つの放射性元素の名が出ているに過ぎなかった。

2 私は柴田雄次・飯盛里安・N. BOHR・G. HEVESYの諸先生について学んだ。これらの諸先生より賜った学恩の一端について述べる。また、周知のとおりトレーサーの創始者はHEVESY先生であるが、先生より承った先生がトレーサーを始めるいきさつについても紹介する。

3 仁科芳雄博士らは1938年理化学研究所にサイクロトロンを建設し、原子核に関する研究を強力に推進された。私は仁科博士のご依頼を受け、化学方面でいささか協力するところがあった。1938年から1941年にわたって仁科研究室と私どもの研究室の連名で発表した業績のうち、主なものをあげると、(a)U-237の発見 ウランに速い中性子をあて、 $(n, 2n)$ 反応でできるウランの新しい核種U-237を発見した。これは $(4n+1)$ 系列メンバーをつくった最初の例である。(b)ウランの核分裂生成物中にRu・Rh・Pd・Ag・Cd・In・Snの7元素が存在することを始めて指摘した。(c)トリウムからウランYの生成— $4n$ 系列から $4n+3$ 系列への転換。

4 1945年8月広島・長崎に原子爆弾が投下された際の放射性降下物の分析は終戦直後私どもの研究室にて行なわれた。広島の試料は村上悠紀雄氏が分析し、Sr-89・Ba-140・La-140などが存在すること、また長崎の試料は大橋茂・齋藤一夫・山寺秀雄の諸氏が分析し、Sr-89・Ba-140・Ce-144・Pr-144・Zr-90の存在することを明らかにした。これらは終戦直後のガスも水道もない実験室であげた成果である。長崎の試料の一部は保存しておき、1951年南英一・齋藤信彦・佐佐木行義・国分信英の諸氏と西が分析を行ない、残存せる長寿命核種とそれから生ずる核種の決定を行なった。また爆弾の材料と推定されるPu-239をも検出した。

5 “ビキニの灰”の分析 1954年3月ビキニにおける核爆発実験によって生じた強い放射能を有する降灰がわが国の漁船第五福龍丸に降りかかり、乗組員が身体に著しい障害を受けた。この降灰の本体をつきとめるため、東大では私どもと南英一教授のグループ、静岡大学の塩川孝信教授のグループ、大阪市立大学の山寺秀雄教授のグループ、金沢大学の木羽敏彦教授のグループ、京都大学の石橋雅義教授のグループは互に連絡をとりながら各独立に分析を急いだ。その結果はからずも実験に用いた新型爆弾の本体と推測する手掛りを得てその開発阻止に役立ったと考える。

6 第93番元素の捜索について 1915年コペンハーゲンにおける試みおよび1940年東京における試みについて述べる。

きむらけんじろう

愛知県がんセンター総長 高橋 信次

1928年に、第2回の国際放射線医学会が、ストックホルムで開かれた。そのときに、病院の放射線科で注目され始めた‘放射線による障害’から作業者を守るためX線とラジウムの放射線防護の国際的な委員会が、イギリスの Kaye の提唱で結成された。メンバーは、病院の放射線科に勤務してゐる物理学者であった。委員会の目的は、病院内の放射線に対する環境の改善を主として考えておいた。しかし、1950年の第6回ロンドンの国際放射線医学会議において、この委員会は5つの専門部会を持ち、原子力工業及び環境の放射線防護をも、その領域とする様になり国際放射線防護委員会(ICRP)と改組された。それで、アメリカあるいはソビエトで行った核爆発実験による環境の問題、原子力発電の作業者の問題等に活動の範囲を拡げたのである。

ICRP委員会及び各専門委は、一年に一度は会合するが、全委員会は、2年毎に合同委員会を開いて、活動方針を論じ又情報を交換する。委員会の大きな仕事は、放射線防護について勧告を出すことである。ICRPの基本勧告ともいふべきものがあってICRP公刊9が、1965年に出されたが、最近ICRP公刊26で、勧告が1977年に出された。これらの勧告は、ほとんどすべての国で法律と同じよう取り扱われているのが普通である。元来ICRPは、WHO、ILO、IAEA、IEC、あるいは、ECのような国際機関と、独立ではあるが密接に意見の交換をし乍ら活動している。それらの機関は放射線防護に関しては、ICRPの勧告が出るのを待って、これに準じて刊行物をつくっていくのが普通である。また、この勧告を出す土台となったデータもしくは、考えも公刊する。またStatementも出す。1977年から、Annals of ICRPをPergamon Pressから刊行し、ICRPの刊行物は、総てこの中に収録することになった。これによりICRPの発刊は極めて豊富多彩になって居る。ICRPの勧告は、放射線防護の一種のBibleのように考えられた時代がある。しかし、放射線の利用が増え、その被爆が広範囲となるばかりでなく、一方、被爆に対する生物学的疫学的情報が増加して来るので、勧告の内容の変更は当然起ってくる。

国際放射線防護委員会の活動として、今後も勧告は次々に行われるであろう。委員は少数ではあるが、各方面の練達者であり、そのゆえに、放射線防護の勧告は、現在最も信頼されているのである。

たかはし しんじ

特別講演

I. 村上悠紀雄

II. F. S. ROWLAND

特別講演 I

サイクロトロンによる短寿命核種の生成とその応用

北里大衛生学部

村上悠紀雄

科学の発展の歴史でサイクロトロンはシンクロサイクロさらに高速のトロン系加速器の一里塚として忘れられていた。しかし今やサイクロはリバイバルを味わっている。科学の歴史でこのような事は珍しいことといわねばならない。それは第二次大戦の科学技術の大きなスピン効果といえよう。A.F.F.の実用化は進み小型化安定化したことであり、かつての「ジャジャ馬駒らしの域を脱した」ことにある。その長い暗黒の時代も実は原子炉のラジオアイソトープ (RI) の大量生産、そして理工学、医学への利用のはげばなしのためであった。しかし、原子炉による中性子過剰核の生産は被曝の大きい故に次第に反省すべき多くの現象を起こしていた。これに対して、原子炉で出来ない RI をつくろうとして、Medical Research Council が Hammersmith 病院で古典的なサイクロを組立て (1955年) 中性子欠損核をつくり、 β^+ 、EC核種の医学利用に今日のサイクロのリバイバルをよぶきっかけとなった。

β^+ 核種は Dinac によりその存在は予言 (1930年) されており Anderson がその存在を実験的に証明した (1932年) のに始まるがその経過を文献で見ると (図1), 1965年以降急速にその数を増して第一回のアタイレーション研究の国際会議をひらき、1979年日本で第五回が開催されたほどで年率20%くらいの生長ぶりが見られる。これは一つには格子欠損での大きなメリットに始まり、安価な安定な加速器の出現によっているといわれる。

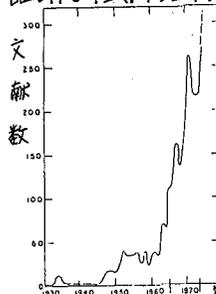


図1. β^+ 関係論文の増加
活動状況 (M. Lambrecht)

物質中で熱平衡になり平均寿命は0.1~0.5 nsであり、非破壊で物質の30 μm^2 くらいをスキャンでき、しかも30~150 mg/cm^2 くらいの情報を与えることにある。ついでには、物質中の電子と消滅して二個の511 keV光子が180°方向にできることにある。例えば、 ^{22}Na (1.28 MeV, 2.62y) では、1.28 MeVの誕生と511 keVの発生が寿命ということであり、この寿命測定、角度相関測定などにより、金属格子の電子構造、格子欠陥などにきわめて重要な手段を与えてくれる。これらには、 ^{22}Na (2.62y, β^+ 90.6%), ^{59}Co (71.3d, β^+ 15%), ^{64}Cu (12.80h, β^+ 19%) の10 mCi又はそれ以上が用いられている。

また、化学では分子中の β^+ の行働は周囲の電子をとり、ポジトロニウムをつくることに基づく現象は興味がある。水素の二倍の大きさで分子中の比較的大きな空隙の中にできることである。これについては、One gap と spur model の二つが考えられている。いずれにせよ、 ^1S のバラと ^3S のオリソ型のあることで、前者は125psで消滅と線を出すことで物質中のフリー β^+ と似ているが、後者は選択律で消滅と線は禁じられて140 nsで三個の光子を出すことであり、周囲の物質と複雑な化学反応をすることが注目される。そして、ガラスの無定型ではポジトロニウムができるが、結晶型ではつくりにくい (1953年) など興味のある研究が始まった。

これらの研究に触れさらにサイクロなどでつくられる短寿命 RI について、いくつかの興味ある問題に触れると共に放射化学の人々が解決していくべきいくつかの方向に挑戦してみたい。

むらかみ ゆきお

図2. 医用サイクロトロン(Dr. D. J. Silvester)の活動

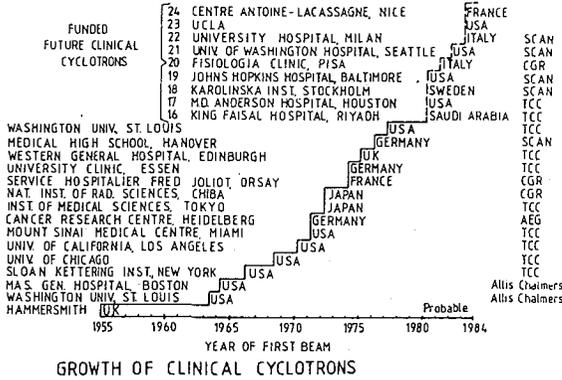


表1. 各国の医用RI生産サイクロ

設置	稼働年	メーカー	P	d	α	β
理研	1966	東芝	4×18	8×25	16×60	5×50
教医研	1974	Thomson CSF	8×60	15×35	32×70	24×43
東大医科研	1974	CS-30	27	16	30	40
日本メジック	1974	CS-30	27	15	30	40
国立中野病院	1977	日本型鋼	9	4.5	9	12
東北CRIセンター	1977	CGR-MeV	3×16	5×25	19×50	7×65

表2. 極短寿命RIの特性

核種	半減期	崩壊	比放射能 Ci/mol	α線 MeV	β線 MeV
¹¹ C	20.4min	β ⁺ 99%	9 × 10 ⁸	0.38(0.96)	1.2(4.1)
¹³ N	10.2min	β ⁺	1.9 × 10 ¹⁰	0.48(1.20)	1.7(5.6)
¹⁵ O	124s	β ⁺	9 × 10 ¹⁰	0.70(1.74)	2.8(8.2)
¹⁸ F	110min	β ⁺ 97%	1.7 × 10 ⁸	0.26(0.66)	0.7(2.5)

図3. サイクロトン生成核種と人体構成元素

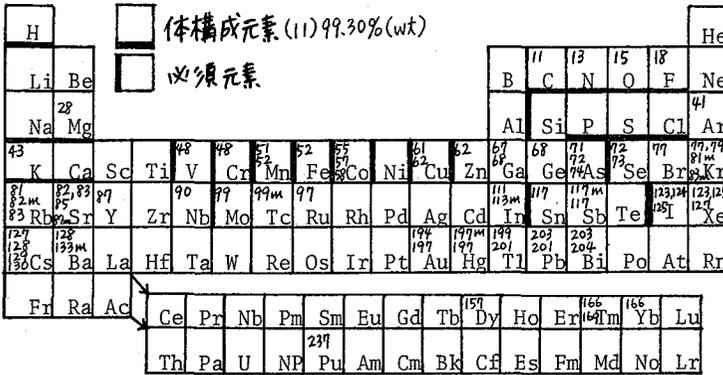


表4. ¹¹CH₃Iによるアルキル化と反応時間

化合物	収率	反応時間
choline	98%	10min
acetylcholine	90	10
N-methyl-aniline	55	5
N-methyl-benzylamine	88	21
N-methyl-benzylamide	100	12
N-methyl-acetanilide	65	12
	75	50

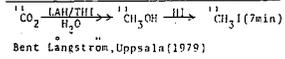


図4. 標識化合物の生産

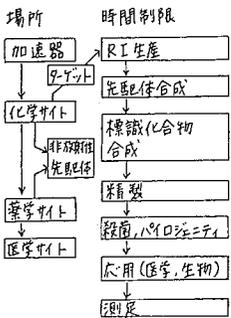


表5. 核反応と生成物の化学型

核反応	¹¹ CO	¹¹ CO ₂	¹¹ CH ₃ I	¹¹ NN	¹¹ OO
¹¹ B(p,n) 7.0MeV, 40A	1.11	98%	-	0.90%	-
¹¹ N(p,n) 7.4MeV, 40A	<1	99	-	<0.1	<0.1
¹¹ B(d,n)	86	8.7	5.2	<1	-
¹¹ B(d,2n) 14MeV, 40A					

(J. C. Clark, P. D. Backingham)

表3. 放射性ヨウ素と甲状腺線量

核種	半減期	β線 MeV	γ線 MeV	rad/uCi	γ/min/rad
¹³¹ I	8.05d	0.606	0.364	1520	4
¹³² I	2.26h	2.12	0.773	17	46
¹²⁵ I	60.2d	EC	0.035(7%)	1120	-
¹²³ I	13.5h	EC	0.159(83%)	16	100
¹²⁴ I	4.15d	EC(92%) β ⁻ 2.14	0.605(67%)	42	2

サイクロによるRIは図3の如しで人体にとり有用なものも短半減期で(表2)被曝線量も少なく, 大量繰返し投与が可能(表3)であり, しかも消滅γ線によるEmission Computed Tomographyにより形態的なものより動態的に生化学的な変化を追いつけるようになった。しかし, 有用な標識化合物をつくることは難しく(表4), 更に核反応の条件では生成物の化学型(表5)も変わってくるなどの問題もあり, 医用のための固有の必要操作(図4)を伴っている。さらに, キレート核種にし, 更にレセプターが判明し, さらに新薬も期待でき, 臨床化学で微量元素の行動解明を助けよう。

特別講演 II CHEMICAL REACTIONS OF COSMOGENIC RADIOISOTOPES IN THE ATMOSPHERE

F. S. ROWLAND

Department of Chemistry, University of California,
Irvine, California 92717, U. S. A.

The chemical reactions of ^{14}C formed in the stratosphere by the $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ nuclear reaction lead to ^{14}CO , and eventually to $^{14}\text{CO}_2$. The subsequent reactions of $^{14}\text{CO}_2$ lead to its incorporation in all of the living matter on earth, and are the basis for ^{14}C -Dating (W. F. Libby) which has been used to place much of the archaeology of the last 15,000 years on an accurate time scale. The reactions of ^3H formed by high energy proton reactions with ^{14}N and ^{16}O can be used for dating water in various environments, and provide information over the past 100 years.

Cosmic ray bombardment of ^{40}Ar creates the short-lived radioisotopes ^{38}Cl ($t_{1/2} = 37$ minutes) and ^{39}Cl ($t_{1/2} = 55$ minutes). These isotopes participate in the chlorine cycle in the atmosphere and form chemical compounds such as H^{39}Cl , ^{39}ClO , $^{39}\text{ClONO}_2$, HO^{39}Cl , etc. Samples containing these radiochlorine isotopes have been collected in the stratosphere, in the troposphere, and in rainwater. The information from such experiments is useful in understanding the behavior of chlorinated compounds in the atmosphere, and in estimates of the effects of the ClO_x catalytic chain reaction upon the total concentration of stratospheric ozone.

