

# 記 念 講 演

第 2 日 10 月 23 日 (水)

記念講演 1 齋藤信房

記念講演 2 木村 幹

記念講演 3 本田雅健

記念講演 4 鈴木信男

記念講演 5 音在清輝

## 2M01

### 放射化学領域における木村健二郎博士の業績

(理研・東大理) 齋藤信房

日本における放射化学研究の先駆者である木村健二郎先生は、アンリ・ベックレルが放射能を発見した1896年に宇都宮において誕生された。従って本年は放射能発見百周年であるとともに、木村先生ご生誕百年の記念すべき年である。

先生は、横浜市の戸部小学校、県立第一横浜中学校、第一高等学校を経て1917年東京帝国大学理科大学化学科に入学され、柴田雄次先生の研究室において卒業実験をされている。先生の研究の最初は、岐阜県苗木産苗木石、フェルグソン石およびモナズ石の分析であるが、その成果は、先生が大学を卒業された1920年にいち早く柴田雄次、木村健二郎の連名で、東洋産含希元素鉱石の研究として東京化学会の第1回講演会において発表されている。その後先生はコペンハーゲンにご留学ののち、東京(帝国)大学理学部化学教室および理化学研究所において放射化学領域における研究に従事され、多くの輝かしい業績をあげられた。

先生の業績は多彩であるが、大別すれば、天然放射性元素に関するものと人工放射性元素に関するものに分類することができる。

天然放射性元素については、本邦産の岩石、鉱物、天然水とくに鉱泉水中に含まれるウラン、トリウム、ラジウムおよびラドン(娘核種を含む)の含有量についての広汎な研究がある。その中でも放射能泉に関する研究は最も注目に値するもので、増富鉱泉、池田鉱泉などのラドン含有量が極めて高いこと、有馬温泉、増富鉱泉、池田鉱泉などのラジウム含有量が高いことが確かめられ、さらに鉱泉中のラジウム含有量とラドン含有量の間には一般的に見て比例性のないことも明らかにされた。これらの研究の大部分は、戦前に行われたものであるが、戦後もこの分野の研究は木村研究室において続けられ、増富においては世界的に見て最高のラドン含有量をもつ泉源を見出すとともに、鉱泉中のラドンの源について興味ある考察が行われた。

これらの研究によって日本列島の放射地球化学的特性が明らかにされた。それは日本の岩石のウラン、ラジウム含有量は外国の岩石に比べても異常は認められず、ウラン、トリウムの大鉱床は存在しないにも拘らず、ラドン、ラジウムの含有量の極めて高い放射能泉が存在することである。

人工放射性元素に関する業績としては、先ず第一に、理化学研究所の仁科芳雄博士らと共に、理研の小サイクロトロン(1937年より稼働)を用いて行った一連の研究がある。これらは、サイクロトロンから二次的に得られる中性子、とくに速い中性子をウラン、トリウムにあてて得られる人工放射能に関するもので、その研究成果は国際的に著名な外国の学術誌に発表され、現在でも国際的に高く評価されている。重要な仕事としては、(1)ウランに中性子をあてて、 $(n,2n)$ 反応によりウランの新核種  $U-237$  を発見した研究、(2)速い中性子によるウランの核分裂により、数種の新しい核分裂生成物を発見した研究、および(3)トリウムに速い中性子をあててアクチニウム系列の  $Th-231$  をつくった研究がある。(1)の研究は、新核種の発見に止まらず、 $(4n+1)$ 系列の核種を最初につくった点で注目に値し、(2)の研究は、米国の研究に先行した点で重要である。このことは、G.T. Seaborg が1989年東京で行った講演において、「ところで、1940年私と Segrè が研究を進めていた速い中性子によりウランを照射した際に起こる対称核分裂は、

同じ年のもっと早い時点で日本の理化学研究所の仁科、矢崎、江副と東京帝大の木村、井川のグループによって発見されていたのであった」と述べたことから明らかになった。核分裂の発見が日本の研究者に知れわたる前から、仁科、木村のグループはウランの中性子照射実験を行ってをり、木村先生は照射したウランのターゲットを溶解したのち化学分離を行うと、種々の元素のフラクションに放射能が散って見出されることを実験的に確かめておられたのであるが、それが核分裂に起因することには思い及ばれなかったのは残念であった。

戦後しばらくは日本の核科学の研究は連合軍の指令によって禁止されたが、仁科芳雄博士は、ラジオアイソトープの輸入を米国に懇願し続けた。その努力はついに実り、1950年米国よりラジオアイソトープSb-125が仁科先生の下に到着した。仁科先生の盟友である木村先生は早速門下生とともにこれをトレーサとして使用し、一連の化学的研究を行ったが、これが戦後のアイソトープ利用の幕開けとなった。間もなく科研費による「人工放射性元素の応用に関する総合研究」が開始されたが、先生はこの研究班の班長として活躍された。

原爆投下や原爆実験に伴う放射性降下物などの調査研究についても、先生の業績は極めて大きい。広島、長崎における放射性降下物の分析は、1945年から数年にわたり木村研究室で行われたが、その後1954年のビキニ事件の際には、先生は非常な熱意をもって“ビキニの灰”の分析に取り組み、木村研究室のみならず姉妹研究室である南英一研究室の協力も得て立派な成果を挙げられた。灰の中からは、多種類の核分裂生成物、いくつかの軽元素の誘導放射能のほかに、U-237、Pu-239も検出された。このうちのU-237の検出はビキニの実験で用いられた爆弾が3F爆弾であったことを示す重要な証拠となり、国際的に注目を集めた。

先生は東京大学を退官されてから、新設の日本原子力研究所の理事として活躍されたが、1957年には東大理学部と共同で、再建された科研のサイクロトロンによりウランを照射して痕跡量のプルトニウムをつくられた。これは、原研の原子炉によるプルトニウムの製造に先行するものである。

木村先生の研究業績は放射化学分野に止まらず、分析化学、地球化学の領域にも及んでをり、これらの業績に対し帝国学士院賞ほかの賞を受けられたが、1961年には日本学士院会員になられた。晩年の先生は学会などに努めて出席され、後進の研究者を暖かく指導激励されたが、1988年92歳で逝去された。

ご生誕百年にあたり、先生の輝かしい業績と遺徳を偲び、感慨深いものがある。

## DR. KENJIRO KIMURA. HIS CONTRIBUTIONS TO THE AREAS OF NUCLEAR AND RADIOCHEMISTRY

Nobufusa SAITO, RIKEN and the University of Tokyo

The late Dr. Kenjiro Kimura (1896-1988), a pioneer radiochemist in Japan, made significant contributions to fundamental science in the areas of nuclear and radiochemistry. This lecture will present his important work which includes radiogeochemical research on natural radioactivity in Japanese rocks, minerals and mineral springs at the University of Tokyo, and studies of artificial radioactivity such as discovery of U-237 and new fission products at RIKEN.

## 2M02

### 木村 健二郎 - 時代と生涯

(青学大理工) 木村 幹

「1896年3月に放射能が発見された直後の5月12日に木村先生はお生まれになった。そしてその御生涯は、東大、理研、原研時代の45年を通じて放射能との出会いであり、その解明にささげられたのである。」(注1)

1896年5月12日繁四郎、くにの次男として宇都宮で生まれる。

「1912年旧制中学の4年生のとき、はじめて元素の周期律について学んだ。……周期表はスカンジウム、ガリウムおよびゲルマニウムの3元素はもちろん記載されており、0族の欄が設けられるなど一応完成に近づきつつあったが、少年の私にさえ不思議に思われる点は、一で示す未発見元素の席が14もあることであった。当時希土類元素についてはまったく教えられなかったから、この初期の周期表で希土類元素が不適当な位置に無理に押しこまれていたことなどは全然知らずにいた。」(注2)

1909年4月~1914年3月 神奈川県立第一横浜中学校に在学

「旧制高等学校の生徒のとき初めて希土類元素について学び、これが周期表の“邪魔物”扱いになっていることを知り、そのことが私の気がかりの種となった。」(注2)

高等学校の化学の担当は飯盛里安先生であった。「先生はのちに放射化学の権威 Soddyの所で研究を積まれ、ご帰国後は理化学研究所主任研究員として飯盛研究室を主宰され、わが国で初めて本格的な放射化学の業績をあげた方である。……私はのちに東大で飯盛先生の放射化学に関する特別講義を聴講し、種々ご指導をいただくのであるが、早くも高等学校で飯盛先生から化学を学ぶ機会に恵まれたことはたいへん幸せであった。」(注3)

1914年7月~1917年7月官立第一高等学校に在学

「私は高等学校から柴田先生について無機化学の研究をしたい希望をひそかに抱いていたから、第三学年になって許されて柴田先生の研究室に入り、卒業実験を行なうことになったときの喜びは筆紙に尽くしがたきものがあつた。」(注3)

「柴田先生は1910~1913年にわたり3年間海外留学を命ぜられ、……最後の1年はソルボンヌのURBAIN教授のもとで研究を完成された。先生は初めその教室のお家芸である希土類の研究に取り組むおつもりであった。しかし、URBAIN教授は“希土類分離の数千回に及ぶ分別結晶などはどうてい短期滞在の外国留学生のなし得ることではない”として、HANTZSCHのところでおぼえた吸収スペクトルの手法とWERNERのところ習った錯塩合成法とを生かし、コバルト錯塩溶液の吸収スペクトルの研究をしてはどうかとすすめられ、……その結果はCOMPTE RENDUEに掲載された。

一方、先生はのちに著名な分光分析者となったBARDETという若い講師と懇意になり、この人からアークスペクトルによる分光分析法の伝授を受けた。そして日本特産の鉱物苗木石の分光分析も手がけておられる。

このように先生は留学中分光分析の重要性を感知され、“これを母国に移植し、大学教育に組み入れるべきであると熱心に考えるに至った”と述べておられる。」(注4)

「柴田先生はわが国における錯塩化学・分光化学・地球化学の開祖ともいえるべき方である。私どもが学生のころには錯塩の研究に最も力を入れておられたが、私には希元素鉱物の問題が与えられた。すなわち、柴田先生のご研究の“東洋産含希元素鉱物の化学的研究”の一部として岐阜県苗木産苗木石、フェルグソン石およびモナズ石の分析を命じられたのである。これらは放射性元素を含む鉱物なので放射能の測定も必要となり、

これは物理学教室の放射能作学講座担当の木下季吉先生に教えていただいた。当時は現在のような便利で精密な測定装置はなく、もっぱらアルミニウムの箔を張った簡単な検電器を愛用したのであった。(注3)

1917年9月東京帝国大学理科大学化学科入学～1920年同理学部化学科卒業

「先生はかって私に苗木石、山口石等の名はジルコンを細分するためにつけたので、ジルコンで……希土酸を含むものを苗木石、リン酸を含むものを山口石とすれば、ジルコンの化学組成を論ずるに便でしょうと言っておられた。」(注5)

「この卒業研究の直後の1922年にコペンハーゲンのボーアは原子構造論を発表し、それに基づくと希土類元素は第71番元素で終わり当時未知の第72番元素はジルコニウムと同じ第4族との考えにより、ヘヴェシーはジルコニウムの鉱物を試料としてX線分光分析法によって新元素ハフニウムを発見した。木村先生にとってこのことは多年の希土類元素に関する疑点が開明されたことであり、かつそれが苗木石の主成分であるジルコニウムについて起こったのである。このとき先生は大きな感激、興奮を覚えられたであろう。そして、先生はこの直後、ボーアの主宰するコペンハーゲン大学の理論物理研究所のヘヴェシー先生のもとに留学し、当のハフニウムの分離とX線によるその定量法の研究をされるのである。……」(注6)

1925年1月～1927年4月 ボーア研究所留学

「柴田雄次先生、飯盛里安先生とそれからNiels Bohr先生、Georg de Hevesy先生、この四人の先生方はもちろん学殖の優れた方でありましたが、そのみならずお人柄の非常にりっぱな方でありまして、私はこの四人の先生に指導を頂いたことを非常に幸福だったと思います。(注7)

注1 木村健二郎先生記念誌編集委員会編“遠き峯々 木村健二郎 その時代”の編集後記から 鳥居鉄也、村上悠紀雄の文による

注2 木村健二郎、木村幹、“元素の周期律”、化学教育 28、395-400 (1980)

注3 木村健二郎“放射線と私”、放射線照射振興協会：放射線と産業、No.1(1976)~No.10(1978)

注4 木村健二郎“柴田先生と分光器”、東京大学理学部広報 12(2)、2-3 (1980)

注5 木村健二郎先生をしのぶ 日本分析化学会、ぶんせき、1988(12)、942-945中 桜井欽一の文より

注6 注1の本中 藤原鎮男の文より

注7 注1の本所載 木村健二郎 放射化学昔話 第24回放射化学討論会(弘前大学)招待講演 1980年10月28日

KIMURA, Kenjiro -----Life and Scientific Circumstances

Kan KIMURA

College of Science and Engineering, Aoyama Gakuin University

Circumstances of inorganic chemistry in his growing period, four professors from whom he learned, and encounter with many prominent seniors and colleagues.

# 2M03

## ビキニの灰から宇宙核化学へ。

本田雅健 東京大学名誉教授、1920年生

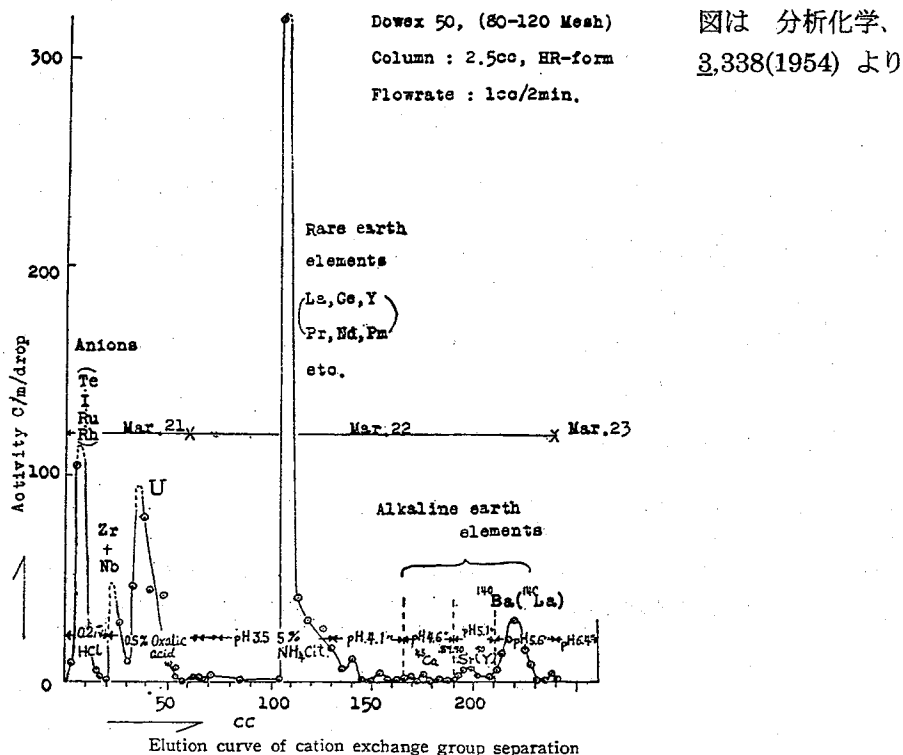
# ビキニの灰、即ち第5福竜丸に降った核爆発実験の産物、についての調査 (1954)。

当時の分析化学会誌に報告された内容を中心に回顧を試みる。

今から42年前になる事件で、振り返って観ると学会にとっても20世紀後半の大きな刺激を受けた出来事といえるであろう。あの頃は化学実験室にガイガー計数管の測定器が1台は使える程度であった。後々の事であるが、アメリカに居た頃、“日米の違いはあるが我々はお互いに、博士論文を書くまえに counter のスイッチに触ったこともないんだぞ”とあまり自慢にもならない事を言い合ったものである。

私はうかつにも、ビキニの灰とやら、イオン交換で試してみたい、と木村先生に申し出た。私にとってはイオン交換に入れ込んでおり処女出版の著書も出来たばかりであったのでこれは責められない申し分であったと思われる。所があまりに世間の関心が尋常でなく、どんどん追い詰められてしまったのが実状であった。

結果はとっくにご承知のとおりで、といたいところであるが、なにぶん古い話である。当時学生として仕事に携わった人たちでも、とっくに定年を迎えるに到っている。其処で、乞われるままに、素人ながら、なるべく歴史に忠実に、人に迷惑のかからないよう、記憶をたどって解説を試みることにした。



# 1958年以降宇宙核化学に関係する1連の研究実験のなかより2-3の例を挙げて説明を試みる。これらは、隕石または広く地球外物質中の長短各放射性及び安定核種の研究に含まれるが、前2者はピキニの灰の場合と類似した面を持っている。

### 1. 月面試料のなかに分布している放射能の測定 (1969)。

多人数の学生と協力して行なった、Apollo 11 試料中の太陽宇宙線生成物の調査。試料や実験の性格から米国南 California の古巣 UCSD の実験室で仕事をした。実は1968年の夏より準備実験に入っており、十分時間的余裕を持って待機していたのであるが、何分夢のような話であり、世間との応対や多くの研究協力者との意志の疎通等に問題があったのはピキニの場合とよく似ている。

まず試料全体の処理から分族迄を受け持ち個々の元素別の精製と計測を若い人達に任せた。此の当時は Ge 検出器は実用になっておらずもっぱらベータ、X線計数管及び NaI に頼っていた。それまでに隕石試料についてのいろいろの条件における核反応生成物を観察してきたが太陽宇宙線の効果ははじめてみる事ができた。

### 2. 落下直後の隕石中の放射能測定。

隕石が落下してからすぐ放射能測定を行う方法がある。1959年には鉄隕石、Yardmyly (Aroos) meteorite がロシアに、1960年には、Bruderheim chondrite, (L6) がカナダに落下した。何分突然の事であったが、ピキニの灰の様な珍客なのでこれらの対応に追われた。何分当時のことである。Q gas flow low background counter が主力であり、大量の試料の化学処理が不可欠であった。850g の chondrite を HF と硫酸で 500cc の白金皿で溶解しなければならない。最も困ったのは 15% もある Mg であり、ammonia で中和すると大量の水酸化物が析出してしまった。

時間的にもものんびりしていた。両方とも落下後2-3ヵ月してから検出器に入っているのは止むをえないことである。それに比べて現在は何と忙しくしかし楽なことであろう。100グラム前後の試料をガンマ検出器の上に置くだけでよいのだから。問題は如何に早く試料を測定室に持ち込めるかにかかっている。現在の記録は落下後9時間であり、わずか 62g の筑波隕石から Na-24, 1368keV, が明らかにあらはれている(121±23dpm/kg, t=0)。しかし将来はどうなるのであろうか？

### 3. 長半減期核種の測定。(1970-80)

寿命の長い核種の存在そのものが既に宇宙核現象である。45億年に及ぶ年代測定のために U-235 (7E8 y.) よりも長い所謂天然放射能はもとより、遙かに短い E6 y. のものでもその化石が元素の生成の歴史に登場してくる。Mn-53 (3.7E6 y.), Be-10 (1.5E6 y.) 等を手がけた後、E8y. にも及ぶ核種として印象的なのは、Nb-92 であった。Mo-92(n,p) によって Nb-92 と Nb-92m が同じ割合に生成するとして 2E8y. が発表された(1972)。もしこれが正しければ U-235 の如く現在でも微量ながら天然放射能として存在するはずである。ついで試薬の Nb に 935 keV の activity が見られたと報告された。これらは大変怪しい話であるがほっておくわけにも行かない。JMTR で照射した Mo 中の Nb の質量分析を試み、Nb-92 と Nb-94 の両者(1974)を観察することが出来、3.3E7y. を確定したのは 1977年であった。

## 2M04

### 不足当量法の創始と発展

(石巻専修大・理工) 鈴木信男

#### 【はじめに】

今日ほど広範囲な分野で分析化学的手法が重要な役割を果たしている時代はないだろう。各分野からの際限のない要求に対応して、実に多種多様な機器分析法が導入されている。核反応を利用する超微量分析法としては、何といても放射化分析法がその導入の初期の頃から実力を発揮し、各種の放射化分析法の発展も目覚ましいものがある。またいろんな放射性同位体をトレーサーとして用いることにより、これまで基礎研究やその応用分野において極めて有用な幾多の知見が得られた。確かにトレーサー利用は分析化学の分野においても多くの貢献をしたが、放射能測定の容易さや高感度などの特長をそのまま定量法に生かした方法は、放射沈殿分析や放射滴定分析などわずかの例に止まり、しかもこれらの方法は、その原理から選択性や感度に限界もあり実用性は極めて低い。

いわゆる不足当量法は、1958年に新しい微量分析法として実試料の微量分析例と共に提案された。本法の概要は、試料に目的成分の放射性同位体を添加後、目的成分の任意一定量を再現性よく分離し、その放射能を測定するという簡単な操作でありながら、放射能測定のみで定量できる新しい方法である。この原理はそのまま各種の放射化分析へ適用できるので応用分野も広い。こうして1968年には、'Substoichiometry in Radiochemical Analysis'が出版されるに及び、Substoichiometry (不足当量法) という術語は定着した。

#### 【定量式】

一般の同位体希釈法では、目的成分のある一部分について、その同位体比の変化をあらためて質量分析法などの方法で測定している。しかし不足当量法では、意識的に常に任意の、ただし不足一定量に着目するという新しい発想である。操作も簡単になるし、ここでその根拠で討論する余裕はないが、不足当量分離という条件により、目的成分定量の選択性が大幅に向上するという大きな利点がある。



### 【不足当量分離】

不足当量法においては、不足当量分離された量は、最終の定量式においては消去されて無関係ではあるが、微量の目的成分を正確に精度良く定量するためには、不足当量分離という操作が重要である。つまり、ある任意一定量を再現性よく分離する不足当量分離系の選択は極めて重要である。化学分離法については分析化学の進歩と共に膨大な研究の蓄積があるが、手軽さや実用性も考慮すると、これまで不足当量分離に用いられた分離法はやはり溶媒抽出系が多い。種々のレト抽出系、さらに協同効果抽出の利用も効果的であり、またイオン交換系も用いられている。

### 【まとめ】

不足当量分析法および不足当量放射化分析法は、これまで各種の生物試料、環境試料や工学材料などの分析に応用されており、60余の微量元素成分や金属化学種の定量が試みられている。また酸化還元不足当量法やsuper-equivalence法など多彩な提案もあり、興味を持たれる。

本法の長所や問題点については早い時期から総説や解説でも指摘されてきたが、放射能測定のみで定量できる自律的分析法であり正確さや精度も高く、また化学種分析の可能性があるなど幾つかの長所がある。しかし今のところ本法が放射能利用分析法であることは、やはり本法の広範囲な普及の大きな制約となっている。また操作は単純ながら、現実には不足当量分離という化学的操作を行うことは、機器分析全盛の今の時代には敬遠されよう。前者については、質量分析計がようやく我が国でも一般的になっているので、安定同位体の利用なども十分期待できるし、後者についても、若干試みられているように、別に化学的分離操作でなくてもよい。いろいろな工夫で、今後ますます重要な化学種分析の可能性も含め、本法の長所がもっと生かされることを期待している。

Origination and development of substoichiometry

Nobuo SUZUKI

Ishinomaki Senshu University

# 2M05

NEETとは何か？

(神戸女子大学家政学部) 音在清輝

[はじめに]

NEETとは Nuclear Excitation by Electron Transition の略称で、「電子遷移による核励起」という現象です。原子内の電子の遷移が核を励起するからです。

私は「化学の眼で物理を見る」ことをモットーとして来ました。化学の本質は電子です。それで電子で核に変化を与えようとしたのです。これが多くの方々のご援助と、偶然と、幸運とによってNEETにたどり着きました。

[第3の道]

色々考えた後、電子による刺激によって核に変化を与えることが出来ないかと、大阪大学理学部の核理論の森田正人教授にくどくどと質問しました。その頃丁度日本に到着されたアメリカの学者と話し合ったりして、Fig.1 に示したように、原子に電子を当ててKレベルの電子を外へ飛ばしたら、Lレベルの電子がKレベルに落ち、その時に生れたエネルギーが、①X線放出、②オージェ効果の外に、第3の道として③NE

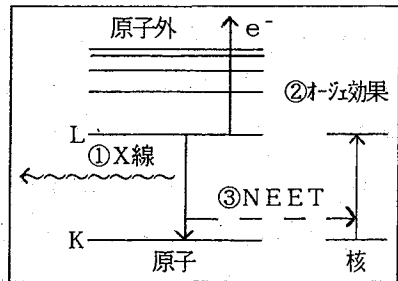


Fig.1 The third road (NEET)

ETと名付けた現象が起こり、核が励起されることが起こってもおかしくないと教えられました。

[オスミウム-189の選択]

Fig.1 のようなNEETが本当にあるのか、これを実証するには化学者の知恵を発揮しなければならない。元素の周期表の中央にVIII族の三つ組元素というグループがあり、これは色々な面で中間的な性質を持っている。「ひょっとして原子と核との仲立ちをする役に適しているのではなからうか？」と考えて、三つ組元

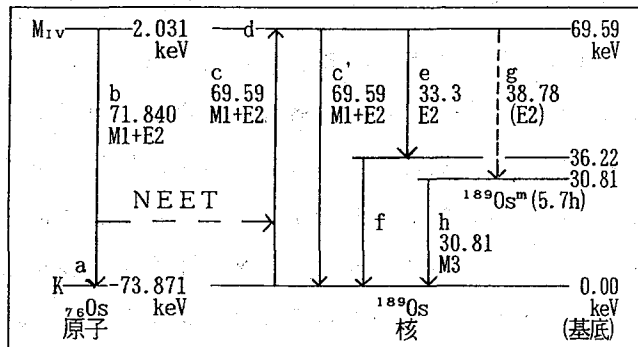


Fig.2 Energy levels & transition types of  $^{76}\text{Os}$  &  $^{189}\text{Os}$

素の核内のエネルギー・レベル、及びレベル間の遷移形式を徹底的に調査した。そしたら Fig.2 のように、5.7 時間という長い半減期の  $^{189}\text{Os}^m$  という放射性状態があることが見付かった。「 $^{76}\text{Os}$ に電子を当て、半減期 5.7時間の  $^{189}\text{Os}^m$  を発見すれば NEET OK!」。ここで (m)の印は (metastable state) = (準安定状態) という意味で、(十分長い寿命を持つ励起状態) のことである。

Fig.2 を少し詳しく説明する。  $^{76}\text{Os}$ 原子に 73.871 keV より大きいエネルギーの電子を当てると、Kレベルの a の所の電子が放出され、M<sub>1v</sub> レベルの電子がこの穴を埋め、71.840 keV のエネルギーを

持ち M1+E2 という遷移形式の b の遷移が起こる。(M1とは核内の陽子の運動に基づく双極的な磁場の変化による遷移で、E2とは核内の陽子の分布に基づく四極的な電場の変化による遷移である)。すると $^{189}\text{Os}$  核の 69.59 keV, M1+E2 の c という励起が遷移形式が同じだし、エネルギーもほぼ等しいので共鳴して NEET 現象が起こり、核は状態 d になる。すると核は d→基底の c' 遷移; d→e→f→基底; 及び d→g→h→基底の連続遷移が起こり、ここで  $^{189}\text{Os}^m$  が生ずる。

[半減期による $^{189}\text{Os}^m$ の確認]

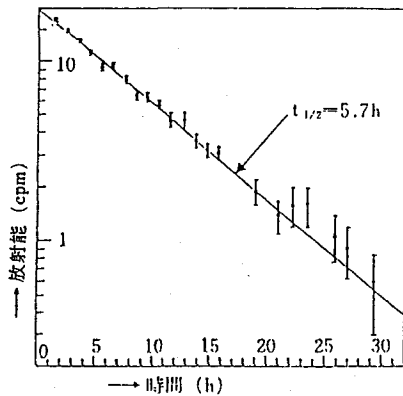


Fig. 3 Decay curve of the produced radioactivity

$\text{Os}$ の金属粉を強力圧縮した金属板をターゲットとし、電子顕微鏡で74 keV 以上の電子を当て、低バックグラウンドのGMカウンターで測定して Fig. 3 の生成放射能の減衰曲線から、5.7 時間の半減期を確認した。(メモ) 院生の荒川隆一君が放射能発生を初めて報告した時に握手をしたこと、初めての学内報告の時に若槻哲雄先生が「顕微鏡で放射能を作ったね」と言われたことが忘れられない。

References

- 1) K. Otozai, R. Arakawa, M. Morta, Prog. Theor. Phys., A129, 165 (1969).
- 2) K. Otozai, Bulletin of Kobe Women's University, Vol. 24H, 321, (1990).

WHAT IS NEET?

Kiyoteru OTOZAI

Faculty of Home Economics, Kobe Women's University

NEET is the abbreviation of Nuclear Excitation by Electron Transition. The proof process of NEET phenomenon using the radioactivity of  $^{189}\text{Os}^m$  (metastable state), which was generated in the  $^{76}\text{Os}$  plate bombarded by electrons from an electron microscope, was explained plainly.

[NEETの追確認]

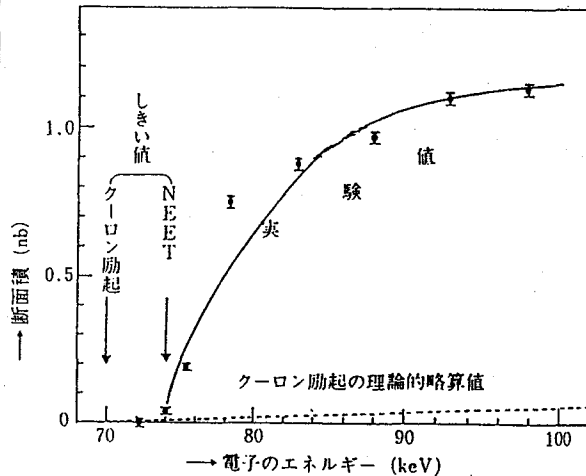


Fig. 4 Excitation function of  $^{189}\text{Os}^m$  production by electron irradiation

- a) 電子照射で  $^{189}\text{Os}^m$  が発生するには Fig. 2 から分かるように、71.840  $\approx$  72 keV 以上の電子エネルギーが必要で、この(しきい値)以下では発生しない筈である。Fig. 4 での電子照射による  $^{189}\text{Os}^m$  生成の励起関数の実験でこれが確認された。
- b) ついでに、核の近傍を荷電粒子が通った時、電磁波的相互作用によって核が励起されるかも知れないクーロン励起の影響を略算したが、Fig. 4 のように心配がなかった。



# 特別講演

第1日 10月22日(火)

特別講演1 谷畑勇夫

第3日 10月24日(木)

特別講演2 Yuanfang Liu

1101

RI ビームファクトリーでの RI 新利用  
New Usage of Radioactive Isotopes  
at RI Beam Factory

Isao Tanihata

RIKEN

2-1 Hirosawa, Wako, Saitama 351-01, Japan

The RI Beam Factory project at RIKEN accelerator research facility has been proposed to the Ministry of Finance from the Science and Technology Agency this summer. Thousands of RI will be delivered as high energy beams at this facility.

In the present talk, I will show, i: how beams of radioactive isotopes (RI beam) are produced, ii: what is the useful properties of RI beams, iii: recent topics using RI beams in nuclear physics, and iv: future possibilities at the RI beam factory.

i: Production of energetic RI beams become possible in mid 80th. At that time, it was well known that the projectile fragmentation of high-energy heavy-ion collisions provides the best mean to produce various isotopes. In addition to large production cross sections, it was found that all those isotopes are emitted at same speed into a small forward angular cone. These properties of projectile fragments were used to produce RI beams by a simple separation technique using an electromagnetic separator. Since the produced RI's are running fast, the separation time is as short as several hundred ns. Therefore, all beta unstable nuclei can be separated, in principle, before their decay and can be delivered in to an experimental system by a usual ion beam line.

ii: This method has following advantages for scientific uses;

1. An element can be selected freely.
2. The implantation depth and position can be controlled in high precision.
3. The detection efficiency is very high because the radiation technique can be used.
4. The lifetime can be selected in a wide range.
5. The spin can be selected freely.

These properties are expected to provides new applications in nuclear chemistry, nuclear physics, biology, and others.

iii: RI beams have been successfully used in nuclear physics and in nuclear astrophysics. In nuclear physics, RI beams provided the first opportunity to study ground state structures, such as radii, of short live nuclei. From these studies, new forms of nuclear density distribution, neutron halos and neutron skins, have been discovered. These new properties had not been expected before and essentially all nuclear models are now being tested from a new view point.

iv: At the end, selected new research possibilities at the RI Beam Factory will briefly be presented.

Yuanfang Liu

Department of Technical Physics, Peking University,  
Beijing 100871, China

Before talking about the main topic, the present research activities of my group are briefly reported. We have been conducting researches as follows:

1. Application of accelerator mass spectrometry in quantification of adduction of trace toxic organic compound on DNA and proteins *in vivo*. Adductions of tobacco-specific nicotine and nicotine derived nitrosamine NNK on DNA of mouse liver in a range of low exposure dose were determined with a high detection sensitivity of 1 adduct/ $10^{11}$  nucleotides. Similarly, the adduction of nicotine on histones (H1 and H3) in nucleosome of mouse liver cells were measured, attaining a highest detection sensitivity to date, 4.7 adduct/ $10^{12}$  aminoacids.
2. Radiolabeling of IgG and MoAb with  $^{186,188}\text{Re}$ . It was performed directly by the modification of protein with reductant  $\text{NaHSO}_3$  or 2-mecaptoethanol and transchelating agent tartarate or glucoheptonate. For the indirect labeling, 4 new bifunctional chelating agents of  $\text{MAG}_3$  analogs were synthesized.
3. Preparation of  $^{186}\text{Re}$  via reaction  $^{185}\text{Re}(n, \gamma)$  in high specific activity by Szilard-Chalmers reaction. 7 Re complexes were synthesized and tested. A high enrichment factor of 210 was achieved while  $\text{ReN}(\text{S}_2\text{CNET}_2)_2$  used as irradiated target. The thermal and radiolytic stabilities of this compound were examined under the simulating condition of a neutron flux of  $10^{14}\text{n/s/cm}^2$ .
4. Mechanism and kinetics studies of ligand substitution reactions of  $[\text{}^{99}\text{Tc}(\text{tu})_6]^{3+}$  ions by UV-Vis spectrometry.

As a background of radiochemistry researches, an overview of China's civil nuclear industry, mainly the nuclear power plants and radioisotope production, is introduced.

China is gearing up its nuclear power plant industry to bridge the large demand-supply gap of energy. It has determined to accomplish 8 new nuclear power plants ( besides the present 3 units ) in the coastal industry zone with a total capacity of 6,600 MW during 2001-2003. 20,000 MW is expected in 2010. An experimental fast breeder reactor (electric output 20 MW) will be developed in 2000. Development of a test reactor of high temperature gas-cooled reactor has been started too.

Based on the full operation of 2 reactors and 3 cyclotrons in 3 production centers, supply of more categories and larger quantity of radioisotopes may basically satisfies the demands of the whole country. At present, 20% of radioisotopes used is imported.

China's natural uranium resource is not so rich. The reliable reserve can meet the demand of nuclear power plant by 2010. After 2010 it depends upon the further exploitation of the prospective reserve. The total predictable reserve is ca. 1.7 million t of uranium.

The presentation on status and progresses of radiochemistry is composed of 4 parts in brief. Only some representative work and prominent achievements are presented.

#### I. Nuclear Fuel Chemistry:

1. A pilot reprocessing plant for power plant spent fuel: It will be built in 2000 near Lanzhou in northwestern China. This plant adopts a conventional 3-cycle PUREX process with an annual throughput of 60 t  $\text{UO}_2$ .



2. Removal of actinides from highly active waste (HAW): Laboratory study of a liq.-liq. extraction process using TRPO as an extractant is underway. TRPO is a mixed trialkyl phosphine oxide domestically produced in petrol industry. It can tolerate a rather high acidity of feed solution, 1 mol/L HNO<sub>3</sub>.

3. Separation of Am and Ln by HBTMPDTP extraction: Bis (2,4,4-trimethylpentyl) dithiophosphinic acid (HBTMPDTP) was obtained from a Canadian commercial product Cynex 301 by purification. Extraction yield of Am: 99.9999%; extraction yield of Ln: 0.14%; decontamination factor of Am: >106. It is a promising extractant for Am/Ln separation.

#### II. Radwaste Treatment and Disposal:

1. Low and medium level wastes: Treatment by methods of compaction, incineration and cementation are in operation, and bituminization and polymerization are in study. In situ bulk grouting process and hydraulic fracture disposal are also in study. 3 repositories are being designed and constructed near the sites of 2 nuclear power plants and 1 nuclear facility.

2. High level waste solidification: A full scale cold equipment for vitrification in borosilicate glass is under design. The immobilizing properties and fabrication process of 2 categories of synthetic rock (synroc), freudenbergite Na<sub>2</sub>Al<sub>2</sub>Ti<sub>6</sub>O<sub>16</sub> and perovskite (Na<sub>0.5</sub>Nd<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub> are investigated.

3. Ultimate disposal of the high level waste: A permanent repository is planned to be built in a granite geological structure near Lanzhou by 2040, or even later.

4. Nuclear migration studies: Matching with the long-term radwaste disposal, a series of basic studies on nuclide migration were carried out on several geological materials, various key nuclides and by different methods. In my Department the diffusion method has been developed.

#### III. Basic Nuclear Chemistry:

1. Heavy ion reaction: Target residues from the interaction of Cu with 20-46 MeV/ nucleon <sup>12</sup>C ions were studied using the thick-target and thick catcher recoil technique. From the experimental data the excitation functions, isobaric yield distributions, mass yield distributions, linear momentum transfer and excitation energy were deduced.

2. Fission reaction: Forty fission products yields from 11.3 MeV neutron induced fission of <sup>238</sup>U were determined, resulting in a mass-yield curve. In <sup>252</sup>Cf spontaneous fission, yields of few nuclides were measured by radiochemical method. Precise half-lives of long-lived fission products <sup>79</sup>Se and <sup>126</sup>Sn were determined by radiochemical method.

3. Synthesis of new nuclides: In 1991-1996, 6 new nuclides were synthesized: <sup>208</sup>Hg, <sup>185</sup>Hf, <sup>202</sup>Pt, <sup>237</sup>Th, <sup>90</sup>Ru and <sup>235</sup>Am. Excepting <sup>90</sup>Ru, all were discovered by means of fast radiochemical separation.

#### IV. Radioanalytical Chemistry:

1. Molecular neutron activation analysis: Rare earth elements (REE) containing proteins were extracted *in vivo* from the leaves of a plant fern. The compositions of REE and proteins were determined by INNA and SDS-PAGE respectively. Molecular weight of the REE binding proteins were determined too.

2. Multitracer technique used in China: Adsorption of fission products on mud and sand in the Yellow River was studied by the multitracer technique. Also, a planned project is being carried out to study the adsorption of elements on red soils using multitracers which will be produced by reaction Au(<sup>14</sup>N, ) at HIRFL.

In addition, the distributions of the institutions involving in radiochemistry as well as the higher education of radiochemistry (Master's program, Doctoral program and Post-Dr. program) in universities and institutes are sketched by map.

