

工業における将来性あるラジオアイソトープの利用

加 藤 正 夫

1. 緒 言

ここに述べる内容は、去る9月14日から16日まで3日間にわたって開催された第3回日本アイソトープ会議においてもたれた同じ標題のパネル討論会において著者が行なった講演をさらにわかりやすく解説したものである。

最初に、標題中の“将来性ある”の意味を述べる必要があると思う。わが国で原子炉で作った人工ラジオアイソトープ（以下 RI と略称する）を初めて使ったのは、1950年に American Physical Society の好意によって ^{125}Sb 、 ^{60}Co が贈られたのがきっかけとなった。以来わが国における使用量はキカ級数的に増大し、1958年の輸入総額は55万ドルに達し、これを使用する機関の数は300をこえ、使用件数は8,000をこえている。このうち工業関係は約20%とみておけばよいが、使用する RI の種類は最も多いと考えられる。このように今日わが国で多種類の RI が多量に使われてその効果が大いに挙げられてきているが、まだまだ活用されていない RI があるし、また適当な原子炉をもたないために使えないものもある。さらに現在欧米の先進国で開発されつつあるがまだ一般に利用される段階には至っていないものや、特殊な目的以外には一般に出されなかったものもある。このようなわけで現在は一般的になっていないが将来はこのような方面にこのようにして効果的に活用し得るであろうという RI を拾い上げて解説してみることにする。

2. トリチウム (tritium)

トリチウムとは質量数3の水素である。すでによく知られているように水素爆弾の原料であって、米・ソ・英などの国においては大量に作られていたが一般には使うことができなかった。しかし本年はじめ頃からかなり安い値段で一般の利用に供せられるようになった。

トリチウムは原子炉の冷却水中にかなり生成するものであるが、これを濃縮することは大変なことであって、一般にリチウムをターゲットにして原子炉中で ^6Li (n, α) ^3H 反応によって作られる。このようにして得られたトリチウムは一般にガスまたは T_2O (つまり水) として売り出されている。無担体の RI であるからトレーサーとしての利用に好都合で、 10^{12} 程度の大きな稀釈も可能である。半減期が 12.4 年、 β 線だけの放射体である。

また放射線障害度の最も小さな RI であって、体内の最大許容量は $2 \times 10^3 \mu\text{C}$ 、飲料水中のそれは $0.2 \mu\text{C}/\text{cc}$ 、大気中のそれは $2 \times 10^{-5} \mu\text{C}/\text{cc}$ である。

しかしこのように重要な利用価値の高い RI が今日まであまり使われずにきたのは、上に述べた事情だけでなくその β 線のエネルギーが 18.9 KeV max. という非常に小さいので測定が困難であったという理由もある。しかし今日ではその難点も克服されつつある。この測定法について以下に少し述べておく。すなわちトリチウムの β 線の飛程は $0.7 \text{ mg}/\text{cm}^2$ であるから端窓式 GM 管の窓をとおして測ることができない。したがってガス状にして検出器内に封入して測る方法、液体シンチレーションによる方法および写真乳剤による検出法などが考えられる。

第1のガス状にして測る方法は、試料を燃焼あるいは蒸発させて、水素、メタン、アセチレンなどにし、これに計数を安定させるためのアルコール、メタンなどのガスを加えて、計数管内に導入して測るのである。ガイガー域、比例計数域、電離槽域ともに用いられるが、GM 管は封入し得るガス量に限度があり、また安定度・直線性ともに比例計数管より劣るため、比放射能が大きい場合以外はあまり用いられない。ガス状検出法の主な欠点は検出器内にトリチウムが吸着・吸収・交換反応などによって残留することである。この汚染をなるべく少なくする対策についてはここでは省略する。GM 管・比例計数管による測定回路は通常の回路のほかに真空装置を付加すればよい。電離槽による場合は、イオン電流の検出に主として振動容量型電位計が用いられる。トリチウムの分析限度は $5 \times 10^{-18} \text{ A}$ 程度で、この場合自然放射能によるものがほぼ $3 \times 10^{-16} \text{ A}$ である。この電流はトリチウムの濃度を広い範囲に変えても崩壊数に比例し、ガス圧や電極電圧による変動が少ないという特長をもっていて、しかも精度が大きい。標準測定に用いられる理由でもある。

第2の液体シンチレーションによる検出法も近年実用の段階にはいつてきている。トリチウムの有機化合物は大抵はシンチレーターに溶けるので問題はないが、水は溶けにくいのでエタノールなどを加えて溶かす必要がある。固体はシンチレーターをゲル状にしてやればよい。この方法で問題となるのは、まずシンチレーターの作り方である。普通溶媒としてトルエン、キシレンなど、シ

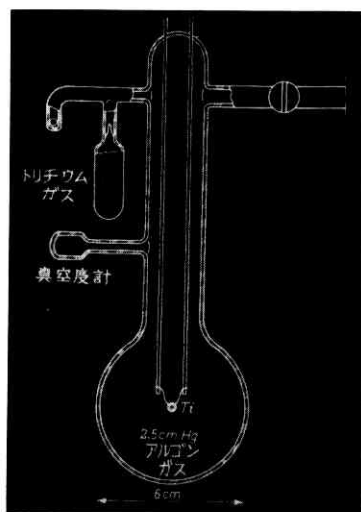
ンチレーターとしてターフェニールを用いることが多く、さらに光電子増倍管の感光特性にシンチレーターの発光特性をあわせるためにシフターを加え、また発光の吸収をさけるためナフタレンなどを用いる必要もおこる。それぞれの試料と測定装置に適したシンチレーターをえらび、かつそれらの量の比の最適条件を求めて測定する。必要とあれば超音波によるガス抜き(おもに酸素)なども考慮する。つぎに光電子増倍管および付属回路から発生する雑音の問題がある。一般に動作温度を低下させると雑音量が急激に減るため冷却装置を用いて検出部を -25°C 前後に保つ方法が採用されている。また光電子増倍管として最も雑音発生の少ない管を選択することも大切である。さらに計数回路として2本の光電子増倍管を用い、高低2種のディスクリミネーターを備え、同時回路・逆同時回路により熱雑音による計数値を減少させる方法が一般に用いられている。この方法で絶対測定をするには標準試料の検出結果と比較すればよい。計数効率率は20~30%以下で、 $2.5 \times 10^{-5} \mu\text{c}$ まで検出可能である。他の方法に比して比較的簡単に検出し得るといふ特長を有するが、正確な定量が困難であるという欠点はまだ十分に解決されていない。またこの方法では、 ^{14}C などの他の核種が混在しているときの分離測定が簡単に行ないうる。

最後に写真乳剤によるオートラジオグラフィ法であるが、原子核乳剤を用いて20日間の露出で $3 \times 10^{-10} \text{A}$ まで検出しえたことが報告されている。このように他の方法にくらべて感度の最も高い方法であるから、表面化学などの研究には最も効果的な測定方法である。しかしトリチウムの β 線エネルギーは非常に小さいので一般の β 線オートラジオグラフィとは違った注意が必要である。すなわち原子核乳剤を用いた場合には、乳剤膜の下面1ミクロン以内の部分に黒化がおこる。また支持板と乳剤膜との双方に背面散乱がおこるので、黒化にあずかる電子数のなかにはこれらの散乱電子が含まれる。さらに露出時間を長くすると、試料支持板表面に電荷がたまって乳剤膜からの散乱電子を追い返すことになり、支持板の密度から計算される散乱電子より多くの電子が黒化にあずかるというトリチウム特有の現象がおこる。X線フィルムはハライド銀粒子のサイズが大きいので大部分の電子は粒子に到達しないことになり、同じ写真濃度にするには、原子核乳剤膜の約10倍の電子数が必要である。その他今後の研究にまつべき問題がある。

このトリチウムは工業の分野においてはトレーサーとしてまた放射線源としてきわめて広いそして大きな利用価値がある。まずトレーサー的应用には、ガスとしてまた標識化合物として、(1)土木工学の分野では水(T_2O)の形で水文学や凍結現象の研究に、(2)建築・衛生工学の分野ではガスの形で大気汚染の研究に、(3)化学

工業の分野ではガスまたは各種の標識化合物の形で石油化学をはじめとして有機化学の各種の研究に、(4)冶金工業の分野ではガスの形で金属に含まれる水素ガスの挙動の研究に、その他枚挙にいとまがないであろう。

つぎに β 線源としての応用について述べる。場合によってはガス状のままでは使えないこともないが、一般にはこれを安定に固定することが必要である。従来トリチウムはトリチウム-ジルコニウム・ターゲットとして粒子加速器による中性子発生用に用いられていた。これは白金のディスクにジルコニウムを薄い膜に蒸着させ、これにトリチウムを吸収させて、ORNLのカタログによれば、膜厚 $20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ (0.03μ)の場合 $6.6 \text{ mc}/\text{cm}^2$ 、 $500 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ (0.74μ)の場合 $155 \text{ mc}/\text{cm}^2$ の程度に固定させたものである。このターゲットをそのまま β 線厚み計などの線源に使えないこともないが、高価であることと多様な用途に対する融通性に欠けている。そこでここにReifenschweilerの試作したトリチウム線源を紹介しておく。この方法は安価なチタンを粉末にしてその金属粒子にトリチウムガスを吸収させて固定するのである。チタン粒子の径が数 μ 程度では平均エネルギー5.7 KeVの β 線の大部分を自己吸収してしまうので、 0.1μ 以下にすることが必要である。 2.5 cm Hg のアルゴン・ガス中でタングステン・フィラメントから蒸発させることによって約 0.03μ 径の微粒子を作ることができる。第1図に示す装置で以上の操作を行なった後にトリチウムガスを導入し、常温でこれを吸収させ、さらにエチルアセテート、アセトン、ニトロセルローズの混合液を注



第1図 チタン粉末を作りかつトリチウム・ガスをこれに吸収させる装置

入し、超音波処理によって黒色インクのような懸濁液にする。この液は筆で塗るだけで均一な放射性表面にすることができ、その放射能の強さは約 $400 \mu\text{c}/\text{cm}^2$ となる。もしチタン粒子を稠密な単粒子層にならべれば数 mc/cm^2 程度になる。この場合の自己吸収はわずかに10%

にすぎず、また固定の安定性は 350°C まで保証されることもわかった。

末と混合して発光塗料を作ることができ、また蛍光型・半導体型・2次電子増倍型原子電池のエネルギー源として使用することも容易となる。このような応用においてトリチウムの有利なことは、その半減期が長いことのほかにエネルギーが小さいから蛍光体や半導体の放射線損傷による性能の劣化を著しく少なくすることである。また放電間隙に塗布して放電特性を改善するのにも利用されるほか、前に述べたβ線厚み計や静電気除去器のβ線源としても便利に使用できるのである。

トリチウムの工業利用の成果は今後の実験研究に期待されるものが多いが、その利用価値はすばらしく大きいと考えられる。

3. 放射性ガス

従来主として用いられていたのはラドン・ガスであったが、それ自体比重の非常に重いガスであって、ガス・トレーサーとして必ずしも適当でない場合が多い。すでに述べたトリチウムをはじめ、アルゴン-37、クリプトン-85、ゼノン-127、およびゼノン-133などの放射性ガスが今日作られている。このうち後の3者はウランなどの核燃料の分裂に際して分裂生成物としてかなり多量に得られるものである。しかもこれらは化学的不活性ガスである。

ガス・トレーサーとして用いる場合に、(1) 化学反応を起こさないこと、(2) 温度の低下によって液化または固化しないこと、(3) 流動粘性(絶対粘性/比重)が被追跡ガスに近似していること、などが必要条件となる。

さきに挙げた放射性ガスはこれらの条件をよく満たしており、第1表に示したような放射特性を有し、ガス・トレーサーとしての利用価値が高い。

第1表 放射性ガス

RIの種類	半減期	放射線 (MeV)	大気中の最大許容濃度 (μc/cc)
(H-3)			
A-37	35日	EC	6×10^{-3}
Kr-85	10.4年	β 0.67, γ 0.52	10^{-5}
Xe-127	5.27日	β 0.35, γ 0.08	10^{-5}
Xe-133	36.4日	EC, γ (低エネルギー)	—

とくにクリプトン-85は10.4年という長い半減期を有しかつ中位のエネルギーのβおよびγ線を放射しているので線源の利用価値もある。すでに試作されたものには、(1) この放射性ガスを封入した電源のいらぬ蛍光灯(安全灯・標識灯など)、(2) 蛍光型原子電池、(3) γ線厚み計、などがある。(3)のγ線源としてこのガスを細長い合成樹脂のカプセルに封入し、自己吸収が少ないから、その軸方向の強い放射能を有効に利用することができる。

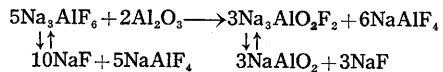
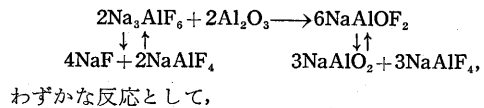
4. 工業的に重要な数種の RI

原子炉で(n, γ)反応によって作られるMg, Al, Si, TiなどのRIは、いずれも数分以下のごく短い半減期であって、これら重要な元素には実用に供しうる適当なRIがなかった。ところが数年前の頃、第2表に示すように、長半減期のこれらのRI ^{26}Mg , ^{26}Al , ^{32}Si および ^{44}Ti などが加速器を用い他の核反応によって作られるようになった。

第2表 工業的に重要な RI

RIの種類	半減期	放射線 (MeV)
Al-26	8×10^5 年	β 1.16 (84%), EC (16%) γ 1.83 (96%), 2.96 (0.3%), 1.12 (3.7%)
Mg-28	21.2時間	β 0.42 γ 0.032, 0.40, 0.95, 1.35
Si-32	~710年	β ~0.10, γ なし
Ti-44	~1,000年	EC γ 0.16

たとえば ^{26}Al は ^{26}Mg (存在比 10.2%) を重水素核で衝撃し(d, n)反応によって作るのである。 8×10^5 年という非常に長い半減期であるので、所要の放射能の強さを得るには大きな粒子束で長時間の衝撃を必要とする。したがって高価なRIであるが、Aluminum Co. of America ではこの ^{26}Al を用いて、アルミニウムの溶融塩電解機構に関して研究を行ない、今日まで他の方法ではほとんど不可能であった機構の解明に成功した。すなわち、大部分の電解電流は Na^+ によって運ばれ、その約1%が AlO^+ (そのいくぶんかは AlO_2^+) によって運ばれる。この反応を化学式であらわすと、



であって、イオン直径とイオン電荷とから考察すると、氷晶石-アルミナ溶融塩中には Al^{3+} , Al^{2+} , O^{2-} , F^{-1} などのイオンは本質的に存在し得ないこともわかった。このようにして科学的にも経済的にも大きな意義をもった工業技術の発展がさらに促進されていくことであろう。

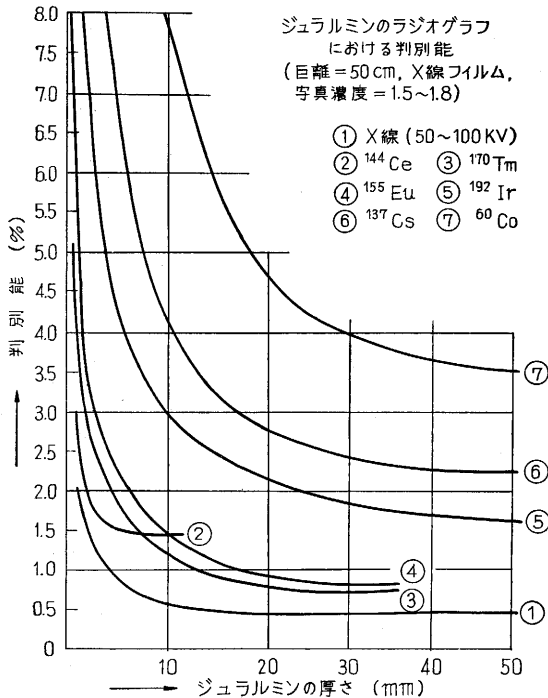
5. 低エネルギーγ線源

50 KeV ないし 100 KeV 程度の低エネルギーγ線は薄肉の金属製品や合成樹脂ならびに軽金属など比重の小さい材料で作られた製品の非破壊検査に適している。従来この目的にスリウム-170だけが実用に供せられたが、129日という比較的短い半減期のために、使いにくい欠点がある。また高エネルギー・長半減期のβ線(たとえば

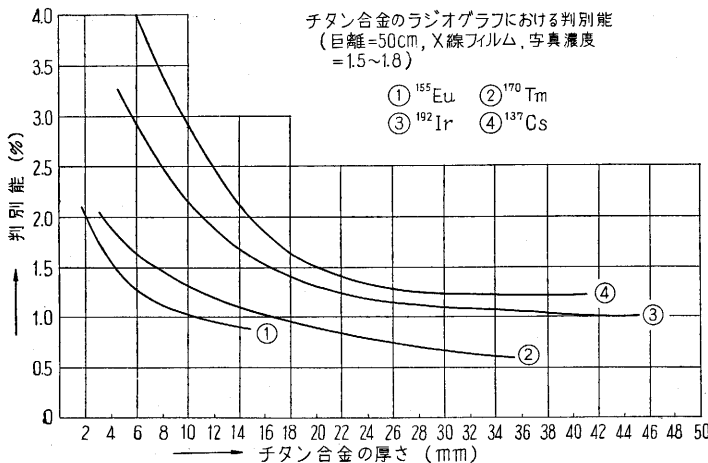
第3表 低エネルギーのガンマ線源

RIの種類	半減期	おもなガンマ線 (KeV)
Tm-170	129日	84(24%), EC(弱)
CePr-144	282日-17.5分	Ce-144 34, 54, 80 Pr-144 60(強), その他(弱)
Eu-155	1.7年	87(強), 106(強), その他(弱)
Am-241	470年	60(40%), その他(弱)

⁹⁰Sr-⁹⁰Y などを高原子番号(たとえば鉛など)のターゲットにあてて得られる制動放射線を利用しようとい



第2図 X線(50~100KV), ¹⁴⁴Ce, ¹⁷⁰Tm, ¹⁵⁵Eu, ¹⁹²Ir, ¹³⁷Cs, および ⁶⁰Co を用いて撮ったジュラルミンのラジオグラフにおける判別能の比較



第3図 ¹⁵⁵Eu, ¹⁷⁰Tm, ¹⁹²Ir および ¹³⁷Cs を用いて撮ったチタン合金のラジオグラフにおける判別能の比較

う試みもいろいろなされたのであるが、その変換効率がたかだか数%にすぎず十分実用になっていない。

そこで、第3表に示すように、ウランなどの核分裂生成物中比較的多くできるセリウム-プラセオディミウム-144 やユーロピウム-155, また超ウラン元素であるアメリカシウム-241 などの RI がエネルギーの点からも半減期の点からも以上の要求をよく満足するものであることがわかっている。これらの RI を用いてラジオグラフィにおける判別能を他の高エネルギーγ線と比較試験を行なった Ramyantsev の研究結果を第2図および第3図に示す。参考のために判別能(S)の定義を説明しておく。

$$S = 0.02 \times \frac{dx}{4D \cdot x} \times 100$$

ここに、0.02; 肉眼で判別し得る最低の写真濃度

x; 試験体の肉厚

4x; 試験体中の欠陥部の厚さ

4D; 欠陥に基因する写真濃度差

したがって、Sの数値は小さいほど判別能が大きいのであり、2.0%以下が実用の範囲である。図から明らかのように、低エネルギーγ線源はいずれも高い欠陥判別能を示しており、比重2.8のジュラルミンに対しては比重4.6のチタンよりもセシウム-137 やコバルト-60 の高エネルギーγ線源と比較して著しくすぐれていることがよくわかるであろう。このほか密度計・濃度計などの線源の応用にも有効に使える。これらの低エネルギーγ線源のうちユーロピウム-155 が最も近い将来に実用化されるであろうと考えられている。

6. イリジウム-192

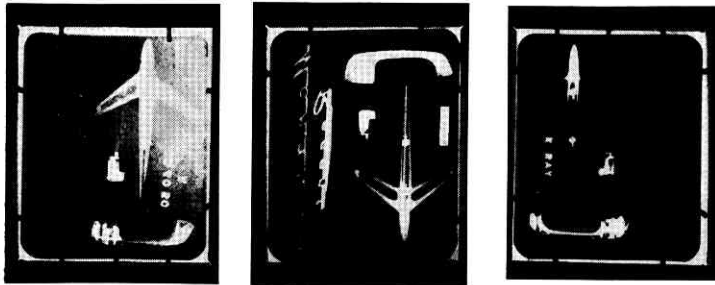
この RI は海外において、とくにヨーロッパにおいて、ラジオグラフィ用γ線源として実用されており、世界的にみれば将来の RI とはいえないが、わが国では

ほとんど使われていない。なぜかというところ、74日という比較的短い半減期のゆえである。しかし非常に特徴ある性質をもっているのである、すなわち、

(1) 最高 0.613 MeV から最低 0.136 MeV の間に約 11 種類のエネルギー・レベルのγ線を放射し、そのスペクトルの幅は白色X線の幅よりはるかに大きい(第4表)

(2) したがって、第4図からわかるように、試験体の厚さ変化に対して白色X線よりも大きなラティチュードをもっている。

(3) 半減期は比較的短い、¹⁹¹Ir (存在比 38.5%) は熱中性子に対して 269 バーンという大きな放射化断面積を有しているので再放射化による再生が容易である。



(a) Ir-192 で撮った γ 線ラジオグラフ, (b) 低電圧 X 線と撮った X 線ラジオグラフ, (c) 高電圧 X 線で撮った X 線ラジオグラフ

第 4 図 肉厚の変化の多い亜鉛合金ダイカスト部品を Ir-192 と X 線とで撮影したラジオグラフィーの比較, Ir-192 が非常に広いラティチュードをもっていることがよくわかる

第 4 表 イリジウム-192 の放射特性

半減期:	74日
放射線: β 線	—0.66 (MeV)
γ 線	—0.136, 0.201, 0.206, 0.296(0.50), 0.308(0.55), 0.316(1.1), 0.468(1.0), 0.485, 0.588(0.10), 0.604(0.30), 0.613

注. 括弧内の数字はそれぞれの γ 線強度の比較値を示す.

第 5 表 ラジオグラフィー用 Ir-192 γ 線源の現行規格 (アメリカ)

直径 (mm)	長さ (mm)	重量 (gr)	線源の放射能強度 (キュリー)
1.58	3.17	0.14	0.01~5
3.17	3.17	0.56	30 (最大)

注. この核種の 1 キュリーは 1 m の距離で 0.55 r/hr の比線量を与える.

第 6 表 ラジオグラフィー用 γ 線源の経済性の比較

RI の種類	半減期	1 キュリー当りの価格
1,200 KeV Co-60	5.3年	10 キュリーまで 2 ドル
600 KeV Cs-137	30 ± 3年	25 ドル
400 KeV Ir-192	74日	2 キュリーまで 15 ドル

ただしそのためには 10^{14} 程度の高熱中性子束の原子炉が国内にあってこの目的に使えることが条件となる.

したがって将来わが国にこのような条件がととのえばイリジウム-192 が使えるようになり, コバルト-60 や

セシウム-137 などの単色 γ 線源と併用して特色ある γ 線ラジオグラフィーの技術が生まれるであろうことが期待されるのである. 参考までにアメリカにおけるラジオグラフィー用線源の現行規格とその経済性を第 5 表と第 6 表とに示しておく.

7. α 線源

従来 α 線源としてはラジウム-226 (半減期 1620 年) かポロニウム-210 (半減期 138.4 日) が用いられていた. しかし, 前者は高エネルギー γ 線の放射を伴いかつ高価のゆえに, また後者は人工的に

作ることができて比較的安価ではあるが半減期が十分に長くないという理由でいずれも使いにくいのである. そこでもしプルトニウム-239 が平和利用に開放されるならば, 半減期も長く (24,360年), 5.147 MeV のエネルギーを主体 (72.5%) とするこの程度のレベルの α 線を利用することができる. あるいは前に述べたアメリカシウム-241 も α 放射体であり同じ目的に利用できるであろう.

たとえば, α 線源とベリリウムをまぜたものは (α, n) 反応を起こして速中性子を放出する. たとえば 1 キュリーの ラジウム-ベリリウム中性子源は, 直径約 1 インチ程度の形状となるが, 10^7 程度の中性子束を生ずる. 水分計その他の中性子源には高エネルギー γ 線を伴うものは困るので, 一般にポロニウム-210 が用いられているが, 半減期の点からいえば ^{239}Pu や ^{241}Am を使うことが最も好ましい. また原子電池の開発で将来性を期待されている熱電対型のもは, その熱接点を高エネルギーの α 粒子で衝撃すると温度が上がりやすいので, α 放射体をエネルギー源として用いている. これらの原子電池は温度・圧力・電場・磁場・放射能などの影響を受けないので, とくに宇宙ロケット用の電源として好適であり, 現にアメリカのロケットに用いられているときく. その他気体の電離用, たとえばアルファートロンなどへの応用も期待される.

8. 結 言

以上に述べたほかになおとり上げるべきことがいろいろあると考えられるが, 紙面もつきたのでこのあたりで筆を擱くことにする. (1959.10.14)