

# 中性子放射化分析と宇宙化学



海老原 充  
Ebihara Mitsuru

## 1. はじめに

RI (放射性同位元素) は放射壊変を起こす。この壊変現象に興味を持ったきっかけは、小学生のときに見た NHK-TV の夕方の番組であった。上半身は人形で、手だけ人が動かす「ケペル先生」が登場する番組で、その質問コーナーで「なぜ古い年代が求まるの?」という視聴者からの質問に対して、放射壊変現象を使うと求まる、ということ平易に説明してくれた。後年、「放射年代測定法」だと知ることになるが、その内容は小学生にとって衝撃的であった。これが筆者にとっての RI との邂逅<sup>かいこう</sup>ということになる。

鉄腕アトムは心躍るテレビ番組だった。お腹に入っている小型原子炉がエネルギー源だなんて! 原子力とはどういうものかを知らないままに、我々の世代は原子力にある種のあるかがれや夢を持っていた。そうした思いが、中学、高校時代と育っていき、大学では原子力工学科に進学するのが自分の中の既定路線となっていた。

## 2. 大学と大学院時代 (1970年4月~1979年3月)

入試のなかった翌年、東京大学理科一類に入学した。2年次前期終了時の専門課程への進学振分けのとき、岡田漱平さんに相談した。岡田さんとは小学以来の知己であり、中学、高校、大学の先輩で、当時は原子力工学科の大学院生だった。正直なところ、小学生のときから岡田さんに憧れていて、原子力工学科を目指したのもその影響もあってのことだった

ように思う。岡田さんは工学部原子力工学科でなく、理学部化学科放射化学研究室を勧めてくれた。筆者の人となりや、筆者が抱えている原子力の中身をよく理解してくれていたのだと思う。化学のイメージは大学に入ってだいぶ変わったとは言うものの、化学科進学は考えていなかったが、結果として、4年次の卒業研究では濱口博教授の放射化学研究室に配属となり、希望が叶えられた。大学入学後に専門を決める制度がなかったら、今頃どういう人生を歩んでいただろうか? 岡田さんは後に日本原子力研究所(原研)理事を務められたこともあり、後年、色々な場面でお会いすることになった。筆者の人生の恩人の第一号である。

中性子放射化分析 (neutron activation analysis, NAA) との付き合いは卒業研究以来、現在まで続いているので、半世紀を超える。付き合いのきっかけは卒研のテーマとして提示された「毛髪<sup>けい</sup>の非破壊中性子放射化分析」を選択したことにある。当時、濱口先生が科研費の代表をされていた課題に関連して行ったと記憶している。濱口先生と一緒に本郷の構内からタクシーで、千鳥ヶ淵にあった科学警察研究所に試料を受け取りに行った思い出がある。中性子照射は原研の JRR-2 で行ったと思う。東海村にあった東大の宿舎(確か、弥生宿舎)に1人で泊まったことも懐かしい思い出である。

卒研終了の直前、日本分析化学研究所のいわゆる「放射能データ捏造事件」が起り、急遽、濱口研の卒研生4名と東京教育大学の池田長生教授の研究室の学生2名が駆り出され、海水中の放射性核種(確か、<sup>90</sup>Sr と <sup>137</sup>Cs) の分析を行うことになった。場

所は、現在日本アイソトープ協会本部のある敷地に残っていた旧理化学研究所の建物内の化学実験室で、理研の嘱託という身分で実験に従事した。発煙硝酸法によるストロンチウムの分離操作を、白衣を着て濱口先生自ら教えてくれた姿を今でも鮮明に覚えている。濱口先生は2人目の恩人である。

小さいときから研究者以外の仕事は考えていなかったもので、大学院に進学したが、濱口先生の定年1年前ということもあり、物性研究所の本田雅健教授の研究室に移った。ここで宇宙化学と出会った。宇宙化学は放射化学や核化学と同根で、事実、当時の宇宙化学の国内外の大御所の多くは、核化学、放射化学と関係の深い研究室出身だったように思う。大学院の研究テーマは、隕石中の微量元素、特に希土類元素 (rare earth elements, REE) の存在度に基づく太陽系形成過程の解明であった。元素分析法としては主に NAA 法を用いたが、表面電離型質量分析計による同位体希釈分析や、電子線走査微小分析を始めとする X 線利用分析も利用した。NAA では原研炉に加えて、立教大学炉 (立大炉) も利用した。当時の原研には JRR-2, JRR-3, JRR-4 が動いていて、どれを使うか迷うくらい贅沢な時代であった。立大炉は相模湾に面した横須賀市長坂の立教大学原子力研究所 (立大原研) の敷地内にあった。立大炉での短時間照射の実験のときには本田先生の運転する車に乗って行くこともあり、熱外中性子照射のためにカドミウムカプセルを使った照射をするとき等には、本田先生が人間の盾になって、率先して実験に参加された。博士課程に進学してからだと思うが、学生自ら運転して出かけるようになり、6時間照射して試料を持ち帰るとき等、待ち時間を利用して研究所の脇の海で泳いだり、三浦半島をドライブしてスイカを買って食べたりして楽しんだ。本田先生もちろん恩人の1人で、3人目ということになるか。

### 3. シカゴ大学でのポストドク時代 (1979年9月~1982年2月)

1979年3月に大学院博士課程を終了したものの、当時はアカデミックポストが底をついていた時代で国内での就職のあてがなく、D3のときから国外でのポストドクを前提に求職活動をしていた。欧米のめ

ばしい大学や研究機関に手紙を出し、結果として、シカゴ大学のエドワード・アンダース教授の研究室に決まり、家内と一緒に8月末に日本を発って、9月から異国生活が始まった。米国のポストドク生活は今では懐かしく思い出されるが、そのときは必死だった。というのも、日本に職を持って、その職を保留して (休職か、中には出張扱いで) 滞米する人が少なくなかった中で、日本に職はなく、アメリカでの働きで生きていく必要があったからである。でも、米国の同業の研究者と競いながら、場合によっては1年で解雇されることもあり得る環境での研究生活は、その後研究者として生きていくうえで、随分プラスになったことは間違いない。同じポストドクで、戻る場所がある知り合いの研究者が、滞在期間が終わって帰国するときには、シカゴのオヘア空港に見送りに行った。あの飛行機に乗れば半日後には日本の土を踏めるのにとの思いを胸に帰宅すると、その日から数日間は家の中はお通夜状態だった。今でもそのときのことを思うと、涙ぐむことがある。

シカゴ大学では隕石と月の石の微量元素を、放射化学分離操作を伴う NAA (radiochemical NAA, RNAA) で定量した。利用した研究炉は目的に応じて、NBS (現 NIST) 炉、ミズーリ大学炉、イリノイ大学アーバナ・シャンペーン校 (UIUC) 炉を使った。シカゴ近郊のアルゴンヌ国立研究所には歴史的にも有名な CP (Chicago pile) -5 炉があり、ぜひ使ってみたかったが、残念ながら1979年の春に運転を停止していて、ポストドクでの仕事には間に合わなかった。シカゴ滞在中に CP-5 の見学に行ったが、JRR-2 は同炉と同じ型の原子炉だったということを知り、なにか因縁を感じた。アンダース研での RNAA による隕石の研究は1960年代からの長い実績を持ち、特に1969年以降、アポロ宇宙船が持ち帰った月の石の研究にも適用され、数多くの研究成果を挙げてきた。筆者がポストドクでいた頃は RNAA による研究の終末期で、事実、シカゴでの2年半の滞在で RNAA に携わったのは最初の1年ちょっとで、あとは貴ガスの質量分析の仕事に転向した。

アンダース研の RNAA 最後の仕事として、CI タイプの炭素質コンドライト (CI コンドライト) の分析を行った。CI コンドライトとは太陽と同じ元素組成を持つ隕石で、太陽系を作った物質の化石とみなされるものである。RNAA によって Ag, Au, Bi,

Br, Cd, Ce, Cs, Eu, Ge, In, Ir, Lu, Nd, Ni, Os, Pd, Pt, Rb, Re, Sb, Se, Sn, Tb, Te, Tl, Yb, Zn の 27 元素を定量した。この内、REE 6 元素 (Ce, Nd, Eu, Tb, Yb, Lu) を除いた 21 元素の RNAA による定量はアンダース研での定番メニューだったが、その RNAA スキームに REE を組み込むことを提案し、半減期の長い核種を使って分析できる 6 元素を追加した結果、27 元素となった次第である。この CI コンドライトの分析によって、宇宙化学的に非常に面白い成果が得られ、早速論文として発表した<sup>1)</sup>。アンダースはこれだけで終わらすのはもったいないと考え (多分)、この成果をもとに、できるだけ多くの元素に対して正確な太陽系の元素存在度を決めようと考えた。筆者は 1982 年 2 月に日本に戻ったが、その年の夏に 3 か月間シカゴに滞在し、アンダースと一緒に太陽系の元素組成プロジェクトに没頭した。多分、その後の研究者人生でもこれほど充実した時間はなかったのではないかと思うくらい、とにかく有意義な、楽しい時間であった。その甲斐があって、発表した太陽系の元素存在度値<sup>2)</sup> はその後、驚くほど多くの研究者に利用され、論文の被引用数でも飛び抜けた数値が記録されることになった。RNAA による REE の定量については忘れられない思い出がある。放射化学分離の化学収率は再放射化法で求めることにした。その照射のために大学の大型ヴァンで UIUC に出かけたとき、雪のインターステート 57 号線でスリップし、道路上で数回回転するというハプニングに見舞われた。幸い、後続車がなく、路側帯でかろうじて停車したので、自力で道路上に戻ることができ、なんとか照射予定時間に間に合った。照射後、試料を鉛容器に格納して、今度は慎重に運転し、無事大学に引き返すことができた。実験の結果にアンダースは喜んだが、まかり間違えると大変なことになったところだった。ま、運が良かったということで、今では良い思い出になっている。アンダース教授はクラシック音楽とワインに造詣が深く、ワインはともかく、音楽での話で意気投合したことも懐かしい。4 人目の恩人である。

#### 4. 群馬大学時代(1982年3月~1988年3月)

1982年3月に群馬大学教養部に講師として就職した。アンダースからはこの先も米国にいることを

提案されたが、色々な立场上、その選択肢はなかったもので、いくつか公募に応募した。採用前の面接は、今ならば on-line で行えるところだが、当時は一時帰国するしかなく、久しぶりに日本の土を踏めた。幸い、採用となり、書類提出は父母に代行してもらった。群馬大学には 6 年 1 か月在籍した。幸いなことに、工学部に赤岩英夫教授が在籍していて、それまで面識はなかったが、大学院生の指導を任される等、色々便宜を図っていただいた。中でも、放射線取扱主任者代理として、工学部の RI 施設を任されたことは研究を進めるうえで非常に助かった。他に利用する人がほとんどいない状態だったので、ほぼ独占して利用できたのである。群馬大学時代は、主に NAA による隕石を含めた固体岩石試料の元素分析を行った。学生を車に乗せて、東海村の原研や横須賀の立大原研に通った。赤岩教授は分析化学界の重鎮だったこともあり、筆者自身、宇宙化学よりも分析化学に比重を置いた研究活動にシフトした。1984 年 12 月にハワイのホノルルで開催された環太平洋学会議に参加したとき、赤岩先生と街を歩いていたら、親子と間違えられたことも懐かしく思い出される。このときの会議の議長はカリフォルニア大バークレー校のグレン・シーボーク教授で、宇宙化学のシンポジウムではアンダースや本田先生と同じ会場で研究発表するという、貴重な機会を持った。赤岩先生は 5 人目の恩人である。

#### 5. 東京都立大学時代(1988年4月~2005年3月)

1988 年 4 月に東京都立大学理学部に異動した。所属は化学科放射化学研究室 (中原弘道教授主宰) で、教養科目担当の研究室という位置づけのためか、遠藤和豊助教授 (後、昭和薬大教授) との助教授 2 名という変則講座であった。当時の都立大は目黒区と世田谷区にあり、3 年後の八王子移転を控えて、落ち着かないところもあったが、群大時代と違って、学科や、なによりも研究室の活動が活発で、大いに充実感を感じた。1991 年度からは現在の八王子市の南大沢キャンパスに移り、新しい環境での教育・研究生活が始まった。移転に伴って、RI 研究施設が建設された。旧キャンパスでは理学部棟の地下に RI 実験室があったが、使い勝手から言うと雲泥の差で、その後の研究を行うにあたって非常に助かった。

中原教授の退職に伴って、広い意味での無機化学分野での教授が公募され、2001年1月から教授に昇任した。それに伴い、研究室名を「宇宙化学」とした。これは、放射化学や核化学を軽視したのではなく、むしろ、その分野を踏まえて、より拡大した捉え方として宇宙化学を名乗ったものである。学部での授業では、通年で放射化学を教えた。学生がより効率的に学習ができるようにとの思いから、2005年に放射化学の教科書（「現代放射化学」化学同人刊）を出版し、補助教材とした。都立大での研究の中身は宇宙化学が中心で、隕石の元素組成に基づく太陽系形成初期における物質進化を研究テーマとした。引き続きNAAを主体とした研究活動であったが、NAAを分析化学的研究対象とすることはなかった。ただ、目的に応じて改良を加える必要があれば、随時行った。特に、石質隕石を含めた固体岩石試料中のハロゲン3元素（Cl, Br, I）のRNAAによる定量に関しては、多方面から、かなりしつこく取り組んだ。中性子照射には従来どおり、立大炉、原研炉（JRR-3, JRR-4）を利用した。立大炉はNAAには非常に使い勝手の良い炉であったが、残念ながら、2001年に40年の歴史に幕を閉じることになった。一方、原研炉では、JRR-2が1996年に、JRR-4が2010年に運転を停止した。国産初の研究炉JRR-3は1962年に臨界に達し、改造後、1991年に再臨界を迎えた。改造に併せて中性子ビーム実験が行えるように、ビームホールとビームラインが整備され、熱中性子と冷中性子ビームを利用した様々な実験が行えるようになった。NAAの分野では、中性子誘起即発ガンマ線分析（neutron-induced prompt gamma-ray analysis, PGA）が実施できるようになり、NAAの幅が大きく広がった。JRR-3は2011年の東日本大震災以降運転が止まっていたが、2021年に運転を再開し、現在でも稼働している。PGAについては、ビームホール建設時に実験装置が設置できるかどうか、どこに設置できるか、という話し合いで劣勢に立たされ、大学研究者が団結して原研の研究者を支援してなんとか設置場所を確保できたという経緯がある。若輩者であったが、PGAの有望性を声を大にして訴えたことを思い出す。現在、JRR-3のPGAによるデータの質は世界トップと言っても言い過ぎではなく、頑張った甲斐があったと思っている。

## 6. 首都大学東京時代(2005年4月~2018年3月)

2003年の都知事選で石原慎太郎氏が2期目の当選を果たし、公約どおり、都立大学の廃止と、それに代わる新大学「首都大学東京」の設立が決まり、2005年4月に開学となった。この新大学発足の前後数年は、まさに大学にとって激動の時代で、筆者自身、学科主任の時期とも重なり、教育・研究以外に、随分余分なエネルギーを費やさざるを得ない時期であった。とは言え、その後の首都大時代は筆者の教育人生、研究人生のうちで最も重要な時期であったことは間違いない。この間、留学生を含め、多くの学生や優秀な同僚と時間を共にできたことはすごく幸せなことだった。

筆者にとっての首都大時代の大きな出来事が2つ、ほぼ同時に起こった。1つははやぶさ探査機による小惑星イトカワからの試料回収であり、もう1つは東北地方太平洋沖大地震である。2003年5月9日に鹿児島県内之浦から無事打ち上げられたはやぶさは2005年夏に小惑星イトカワに到着した。表面物質を採取し、紆余曲折の末、2010年6月13日にオーストラリアのウーメラ砂漠に無事帰還した。試料格納カプセルを開けるまで、本当に小惑星試料が回収されているのかどうか分からなかったが、ごくわずかとは言うもののカプセル内に微粒子が入っていて、確かにイトカワの試料だと判ったときは興奮した。早速、初期分析チームの一員として元素分析を行った。ここでは、放射化学操作を伴わずに放射線測定機器に大きく依存するNAA（instrumental NAA, INAA）法を適用した。中性子照射はJRR-3が停止中だったので、京都大学原子炉実験所（現、複合原子力科学研究所）の研究炉（京大炉）で行った。分析した試料は数 $\mu\text{g}$ の粒子1粒で、肉眼ではほとんど見えず、悪戦苦闘の末、なんとか12元素（Na, Sc, Cr, Fe, Co, Ni, Zn, Se, Sm, Eu, Hf, Ir）の定量値を得ることができた。予想を超える面白い解析結果が得られ、予定どおり2011年3月10日、米国ヒューストンで開催された「月惑星科学会議」で発表した。翌11日、学内業務のために会期中で帰国せざるを得ず、アトランタ経由で成田に向かった。そのアトランタ空港のテレビ画面で東北地方での地震と津波災害、それによって引き起こされた東電福島第一原子力発電所事故のニュースを見た。不安を抱えな

がら成田に到着し、混乱の中、無事帰宅できたときはひとまずホッとした。イトカワ試料の分析結果は世の中混乱の中、その年の8月に無事 *Science* 誌に掲載された<sup>3)</sup>。

ヒューストンから戻った翌々日、別の国際学会出席のため、再度米国に飛んだ。夜の羽田空港は日本を脱出する大勢の外国人で異様な雰囲気だった。この2度目の米国滞在中、当時、日本地球化学会の会長をしていたことから、大震災と原発事故に対して学会としてなにかできないか、役員間で議論を始めた。更に帰国後、この動きが基になって、地球・惑星科学関連の6学会が団結して一緒に活動しようという話がまとまり、筆者が代表となって、文科省に緊急の科研費補助金を申請することになった。事業内容の説明のために文科省まで足を運んだが、その後今に至るも、採択、不採択の返事は聞いていない。謎である。この科研費の申請内容とは直接関係しないが、有志で、原発事故によって大気中に放出された核分裂性放射性核種の分析を始めた。東北、関東地方の約100か所の観測ステーションで1時間ごとに採取された大気浮遊粒子 (suspended particulate matter, SPM) 試料を用いて、 $^{137}\text{Cs}$  と  $^{129}\text{I}$  ( $^{131}\text{I}$  の代替) の濃度を測定した。大気中における放射性セシウムと放射性ヨウ素の時空間分布から、事故時の拡散状況を再現することを目指したものである。 $^{137}\text{Cs}$  の定量は $\gamma$ 線測定で、 $^{129}\text{I}$  の定量は化学分離をして加速器質量分析法によって行った。2011年度から、まず $^{137}\text{Cs}$  の分析から始め、一段落の後の2015年頃から $^{129}\text{I}$  の分析を始め、すべての測定が終了したのは2018年の春で、首都大退職後1年間勤めた特任教授としての仕事の切りをつけた格好であった。 $^{129}\text{I}$  の測定では約1000試料を化学分離したが、一度の失敗もなかったことは密かな自慢である。首都大の最後の2年間(2015年4月~2017年3月)は大学の副学長、うち最後の1年は法人の理事も兼務し、昼間は大学業務、夜は研究室対応、それが済んで、深夜に $^{129}\text{I}$  の化学分離操作という生活で、その日は結局、研究室に泊まることになった。2晩、3晩連泊ということも珍しくなく、今考えると空恐ろしい生活であった(が、とても懐かしい)。一連のSPM関連の仕事は学生のテーマとすることはせず、あくまで自分の仕事として行ったもので、 $^{137}\text{Cs}$  の測定は大浦泰嗣准教授と、 $^{129}\text{I}$  の分離実験は白井直樹助教(現、神奈川大理

学部准教授)と共同で行った。2人の協力なくしてはできなかった仕事であった。2017年の春にベトナムからの博士課程留学生カオ・ドン・ヴ君(現、ダラット原子核研究所所長)に博士の学位を授与し、1988年からの都立大・首都大での教員生活に無事、終止符を打つことができた。

## 7. 早稲田大学時代(2018年4月~2022年3月)

首都大退職後の1年間、特任教授として在職し、翌2018年から4年間、早稲田大学に勤めることになった。所属は教育・総合科学学術院 理学科地球科学専修で、地球化学研究室の看板を掲げた。初代ということになるが、筆者の退職後、後任の教員が地球化学研究室を継いでいる。地学教育のなかで地球化学が重要であることを認識してもらえたのかな、と思う。2019年暮れから猛威をふるいだした新型コロナウイルスの影響で、2020年度からは口頭での授業ができず、それまでとは随分違った大学生活を経験することになった。後に、ゼミ等の少人数の講義は研究室で行えるようになったが、教室での通常授業に関しては結局、最後まで遠隔で行わざるを得ず、ちょっと残念な気がした。このような状況では研究活動にも制限があり、筆者の責任ではないとは言うものの、学生諸君には申し訳なかったように思う。ただ、個人的には、早稲田での4年間は大変有意義であった。例えば、SPM中の $^{129}\text{I}$ の定量結果を論文としてまとめることができたし<sup>4)</sup>、京大炉を使ったRNAAによる隕石中のハロゲン元素の定量実験を終結することができた。特にハロゲンに関しては、群大以来の長年の課題に終止符を打つことができたことは大変意義深いことであった。現在、そのときのデータをもとに、ハロゲン元素の宇宙化学についての論文を執筆中である。

## 8. 再び東京都立大時代(2022年4月~現在)

70歳で第2の定年を迎え、古巣の都立大に客員教授として受け入れてもらって、現在に至っている。仕事とは対価を伴うものだと理解していて、だから、今も隕石の放射化分析を行っているが、もはや仕事をしているつもりはない。身を崩すことはないと思うので、道楽と言うのも言い過ぎかもしれないが、

どちらかといえばあたっていていると思う。実験準備からデータ整理、論文執筆と、ほぼすべて自分で行うなんて何年ぶり、いや、何十年ぶりだろう！本稿を執筆している最中に、PGAの結果をまとめた投稿論文の採用連絡を受けた<sup>5)</sup>。今更研究業績を挙げてどうするの、という声がないでもないが（特に身近なところから）、周りに迷惑をかけない範囲で、もう少し道楽を楽しみたいと思っている。

## 9. おわりに

NAAを分析手法として、結果として生涯続けてきたのは、隕石を化学的に、特に元素組成をもとに研究する手段として、最適な手法だからである。NAAに代わって、最近よく用いられる分析法に誘導結合プラズマ質量分析法（inductively coupled plasma mass-spectrometry, ICP-MS）がある。都立大・首都大の時代に、ICP-MS装置を3台購入した。最初の装置は学科内の予算で手当されたものであったが、あとの2台は競争的資金で入手した。ICP-MS

法の良さはもちろんあり、研究や教育に随分役立ったが、NAAを凌駕するものではなく、筆者の中では相補的なものと位置づけてきた。NAAについてはまだまだ書きたいことがあるが、紙面の制約もあり、ここで終わりにしたい。長々と、役にも立たない個人的経験を書き連ねてきたが、目を通していただいた読者の方々には感謝したい。

## 参考文献

- 1) M. Ebihara, *et al.*, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **46**, 1849-1861 (1982)
- 2) E. Anders and M. Ebihara, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **46**, 2363-2380 (1982)
- 3) M. Ebihara, *et al.*, *Science*, **333**, 1119-1121 (2011)
- 4) M. Ebihara, *et al.*, *Journal of Environmental Radioactivity*, **250**, 106907 (2022) ; M. Ebihara, *et al.*, *Data in Brief*, **45**, 108621 (2022)
- 5) M. Ebihara, *et al.*, *Geochim. Cosmochim. Acta* (印刷中)  
<https://doi.org/10.1016/j.gca.2024.10.026>

(東京都立大学客員教授 (首都大学東京名誉教授))