

## 放射性物質の気相電着

品川 睦 明\*

### ことの起こり

放射性沈積物 (Radioactive Deposit) と言われる「よごれ」がよく実験装置の内壁や時には実験室の壁、天井に至るまで付着することがある。なぜ、このようなことが起きるかについてはあまり問題にされていない。

昭和6年頃、京大石橋雅義先生が G. v. Hevesy (トレーサ技術をはじめた人) のもとよりラジオトリウム・ソース (Rd Th) を持って帰られた。それは  $^{228}\text{Th}$  でこれからトリウム系列の  $^{212}\text{Pb}$  (トリウムB) がとれる。 $^{212}\text{Pb}$  は、ベータ放射体だからトレーサとして使うのに適している。これによる鉛化合物の分析や、鉛と化合物をつくるアニオンの分析、そのアニオンと化合物をつくる他種の金属の分析などが石橋研究室では昭和15年頃まで行われた。これがわが国のトレーサの始まりである。

ところで  $^{212}\text{Pb}$  を  $^{228}\text{Th}$  (Rd Th) からとる方法であるが、空気中で電着させるのである。つまり  $^{228}\text{Th}$  の酸化物がいてある金属皿を陽極とし、皿上数 cm 離して対面させた白金板を -100 ボルト程度の陰極にしておく。すると白金板上に放射性沈積物がつくのである。これが  $^{212}\text{Pb}$  なので、うすい酢酸で溶かせば、放射性の酢酸鉛溶液がえられる。これをトレーサに使うわけである。

### 自明の不明

$^{228}\text{Th}$  から  $^{212}\text{Pb}$  ができたのは、トリウム系列の崩壊であるから疑いのないところである。しかしなぜ  $^{212}\text{Pb}$  が陰極まで数 cm 飛んでくるのかというのは確かに疑問である。私の研究は、ここから始まった。

大方の人は、この疑問を軽く考えてしまう。つまりトリウム系列が鉛にまで崩壊する途中に

は、トロンを経るではないか。トロンは、ラドンの同位体で希ガス元素であるから、 $^{228}\text{Th}$  源から気化し、これが拡散して陰極に着くのであって、疑う余地のない自明のことであるとするのである。

これは常識であり、試験の答案に書いても通るし、これに反したことを述べて学会誌のレフリーに却下された例もある。

多分天然放射性物質の研究が行われた過去においては、上の「自明」のことは、それ以上疑わなくてすんできたのであろう。しかし、稀ガスの拡散のみに依存するならば、何故に陰極板を使うのか。ただの板でよさそうなものである。

そこでトロンが拡散で板の近くにきて、アルファ崩壊したときにイオン化するので、それが陰極板に吸い寄せられると識者は付け加えるにちがいない。実験では、点線源の陽極から 4 cm 離れたところにある半径 1 cm の陰極板への立体角は約 0.03 の程度であり、拡散では生れるラドンの 3% ほどしか到達する可能性はないところを、実際には少くとも 50% は電着できる。つまり拡散は物質移動の主因ではなさそうであるが、上のイオン化による電着が拡散の上に重なったことに帰すると、陰極界面のイオン濃度の低下が、バルク濃度より拡散補給されたとせざるをえない。とてもそれでは、3% が 50% には追いつけまい。数ミリキュリーの線源では  $10^8$  個に満たないトロン原子が 1 秒に生産されるにすぎず、1 時間分溜めておいたにしても  $3.6 \times 10^{11}$  個、すなわち  $10^{-12}$  モル以下である。これから 0 モル領域へ濃度差による拡散が起こったとしてもとても追いつけまい。

このように考えると、上の自明のことは不明のことになってしまいます。そこで、いろいろ実験をしてみた。

\* 品川睦明 (MUTSUAKI SHINAGAWA), 阪大工学部原子力工学, 教授, 理学博士, 原子核化学

拡散支配でないことがわかった実験

陽極と陰極との間に、1枚グリッドを挿入してみた。陽極は、約1ミリキュリーの $^{228}\text{Th}$ 源で半径1cmの平底円皿で、縁の高さは5mm、ステンレス製である。さらにそれに蓋をして中央に0.5mm径の穴を設けた。陰極は、ニッケル板(径4cm、厚み0.5mm)、グリッドは、ステンレス網(0.1mm針金、網目0.5mm)をニッケル製の環で支えた。陰陽極間隔は1.5~15cmとし、その間にグリッドをおいた。陰陽極間電位差は0~1500V、グリッドは陽極に対し+400~-1500Vを試みた。雰囲気は、乾燥空気1気圧である。

その結果、大体次のようなことが挙げられる。

- (1) グリッドを用いないとき、電圧を上げるに従って陰極に電着したものの放射能は増し、400V程度までの上昇度は大きく、それ以上では飽和曲線となる。また放射能は、電着時間に大体比例する。

これらの放射能は、 $^{212}\text{Pb} > ^{208}\text{Tl}$ の関係にある。

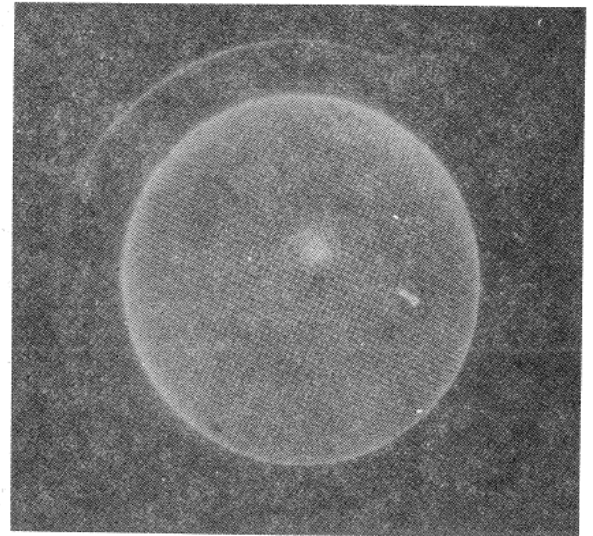
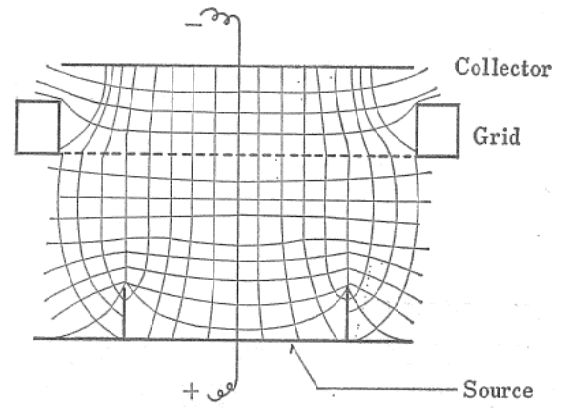
- (2) グリッドを入れると、やはり電圧上昇と共に飽和曲線となる放射能が陰極上に電着するが、 $^{208}\text{Tl} < ^{212}\text{Pb}$ となる。グリッドに電圧をかけないときでも、負加電圧のときでもこの関係は同じである。グリッド上では、 $^{212}\text{Pb} > ^{208}\text{Tl}$ である。つまり分別電着ができる。

グリッドに正加電圧をかけ、陰極はグリッドに対し負にしておくと、その正加電圧を増すほど陰極上の放射能は減少する。

- (3) 電圧を加えないで、陰極に用いたニッケル板コレクターを、陽極に用いた線源に近づけたり遠ざけたりすると、近いほど沈着放射能は多く、3cmまでは急激に遠いほど下り、それ以上では非常に微弱となり10cmに至っても一定となる。

- (4) 一旦電着したグリッドを陽極にして気相電着を行っても陰極上に $^{208}\text{Tl}$ がえられ、その量は電圧によって多くなり飽和曲線を示す。

以上は、参考のため実験の様子を述べたが、物質移動が拡散に支配されているかどうかの評議にはあまり関係ない。しかし上述の分別電着



Convergence of lines of electric force by peripheral frame of grid.

は拡散では説明できない。

さてこの実験で、一つ目ざましいことが見付かった。それは、陰極のニッケル板を電着後写真のフィルムと腹合せにしてみた。つまりオートラジオグラフ写真をとったのである。するとグリッドの網目が出てきたのである。拡散ではいかに平面拡散をしても、網を通過してあと数cmもの移動中網目模様を示すはずがない。もしそれなら濃淡による拡散とは言えない。何にしても拡散は否定された。

つぎは、網目が投影されるほど放射性原子が、直進するのは何故かという問題がのこる。

イオンと電場との関係

上の実験で、もう一つ奇妙なことがあった。グリッドのオートグラフ写真は、網目そのままではなくて、全体の円形の周辺に近づくにつれて網目は収斂して、あたかも地球儀の経緯線のようなであった。そしてグリッドの直径よりオート

グラフ写真の図形の直径は小さかった。

網目が写るのは放射性物質が直進したことを意味する。この際点線源から直進したとすればグリッドを通して陰極上には、むしろ円形が拡張されて写るべきである。

このような疑問がのこった。その解決には、暇どったが、問題はグリッドを支えたニッケルの円環にあった。この円環は5mmほどの厚みがあり、グリッドの陰極側に向けていたので陰極に向う電気力線を絞っていたのである。これで上の疑問は解けた。その電気力線の様子は、カーボン紙上に銀ペーストで全装備の断面を線画きして、両極に電位を数ボルトかけた上で、等電位線をプロットし、その等電位面に直角な線を作図して求めた。その方式で、次に上のニッケル棒の厚みに相等するところを強調すると、グリッドのパターンは絞りが強くなることを知った。そこで、実験として、ニッケル棒のところに、金属性の円錐形（底がなく上を切った形）の筒をおいたところ、網目の収斂の強い、半径の非常に小さいオートグラフのパターンがとれた。この円錐形の高さを増すとますます絞りが強く、ついに点となった。

その後の研究でわかったことは、次のようである。

- (1)  $\alpha$ 崩壊や $\beta$ 崩壊のさい、原子は反跳をうけ多価荷電体となって飛出すことは知られている。この反跳飛程は小さい。また拡散も小さくて線源の近傍の物質移動に寄与するのみで、とても数cmには及ばない。
- (2) 崩壊のさいの正の多価荷電体は（平均約10価）、雰囲気中のガス分子と衝突して低価荷電体となる。たとえば $^{208}\text{Tl}$ は、空気やアルゴン中では1価、ヘリウムやネオン中では2価で安定で電気力線に沿って陰極へ動く。

(3) このような現象は、点線源であっても、平面線源であっても同様であり、プラスチック製の障害物を挿入して電場を変えた場合そのジオメトリーに応じて様々なパターンがとれる。

(4)  $^{212}\text{Pb}$ を電着によって採取し、それを線源として陽極において、気相電着を試みた場合も同様の結果であり、系列中にトロンを経なくても電着ができる。

(5) 線源と同一平面に近くに壁がある場合陰極上に行くものと同一核種の放射性沈積物ができる。これも電気力線で説明できる。

これらのことから頭書の疑問は解決した。そしてこの実験から、生れた結果は次のようである。

- (1) ラジオアイソトープの反跳粒子を1気圧下で収斂できる。そこで化学反応とくに酸化還元反応の研究ができる。（ $^{208}\text{Tl}$ の例では線源から反跳で気相に飛出す率は約70%程度であり、その80%以上が陰極電着される。）
- (2) 陰極上にセルロイドフィルムなどをおくとトラックがとれるので、それから電着分布、エネルギーなどがわかる。
- (3) トリウム系列のみならず他種のラジオアイソトープについても気相電着実験が行われることを見出した。これにより崩壊形式、エネルギー測定、半減期測定などが計画できる。またホットアトム化学の研究や核種の分類、分別などができる。

以上は、比較的安上りの研究で、しかも新局面の多いものであり、私の手がけた多くの高価につくものに比し軽妙な感じがする。しかも1気圧で空気中でもできるので案外研究されていない領域である。