博士論文要録

生体試料、石炭試料及び高純度材料の放射化分析に関する研究

微量元素から超微量元素への応用

岡田 往子

学位授与：千葉大学（1994年11月4日）

現代社会は生命、環境、資源、エネルギーなど多くの問題を抱えている。それらのどの問題にも微量元素は深い関係を持っている。そのため、微量元素の役割を理解し、それをどのように適用・利用していくかが極めて重要な課題となる。それに伴い、注目している微量元素の正確な含有量を知ることが必要となる。しかし、定量したい微量元素の種類は分野、目的及び対象試料等によって異なり、その分析対象になる含有量の範囲も広い。

本研究は微量元素を分析する方法として、精度・正確さで共に評価の高い中性子放射化分析法を用い、それぞれの目的元素、試料等にあった最適な分析条件を子細に検討し、様々な対象試料への応用を目的としている。

本論文は10章からなっている。第1章“序論”においては、研究の背景、本研究の目的と概要を示した。

第2章“中性子放射化分析法”ではその原理と方法及び化学分離を用いた放射化学的分離法について説明した。

第3章から第5章までは生体試料中の微量元素分析についての研究を記述した。

第3章“機器中性子放射化分析法による生体中の白金及びセレンの定量”ではラットの臓器中の白金の定量を正確に精度良く、かつ迅速に分析する方法の開発を行った。又、抗がん剤であるシスプラチン（白金化合物）とその副作用に対して軽減作用を有するセレン（亜セレン酸ナトリウム）をラットに同時投与して、臓器への取り込みを調査した。その結果、同時投与すると単独投与の場合に比べ、じん臓及び肝臓にセレン及び白金が増大することが分かった。

第4章“機器中性子放射化分析法による大豆中のセレンの定量”では、セレンの分析目的核種として ^{77m}Se 及び ^{75}Se に注目した。 ^{75}Se では2種類の測定方法を用い、分析した。その結果、大豆中の数～数百ppbのセレンを定量し、国内、国外産大豆の産地別含有量の検討を行った。

第5章“機器中性子放射化分析法による食用植物中

の微量元素の定量”では食品のアクと含有微量元素の関係についての検討を行った。又、熱水と水抽出による微量元素の挙動についても調査した。

第6章“機器中性子放射化分析法による石炭中の微量元素の定量”では地球化学や環境科学の分野で注目されている石炭中の微量元素の分析を行った。2種類の照射方法（熱中性子照射、熱外中性子照射）と4種類の測定方法（同軸型Ge検出器、Ge検出器とNa(I)Tl検出器の反同時と同時測定法、低エネルギー光子スペクトロメトリー）を組み合わせることで54の微量元素の定量を可能にした。

第7、8、9章においては半導体材料及びその周辺材料の極微量なウラン及びトリウムを定量する方法として、化学分離を伴う放射化学中性子放射化分析法を開発した。

第7章“高純度二酸化ケイ素中のウラン及びトリウムの放射化学中性子放射化分析法”では、塩酸系陰イオン交換分離法とフッ化ランタン共沈法により、ウラン及びトリウムの目的核種である ^{239}Np 及び ^{233}Pa を選択的に分離する方法を開発した。その結果、ウラン及びトリウム共に数pptレベルの定量を可能にした。

第8章“高純度アルミニウム中のウラン及びトリウムの放射化学中性子放射化分析法”では、機器中性子放射化分析法によるウラン及びトリウム分析の問題点と限界について検討した。更に放射化学中性子放射化分析法で分析することで数pptレベルの定量を可能にした。

第9章“高中性子束炉を利用したウラン及びトリウムの放射化学中性子放射化分析法”では更に微量なウラン及びトリウムの分析を行うために、熱中性子束密度 1.0×10^{14} の日本材料試験炉を用い、放射化学中性子放射化分析法に改良を加えた。その結果、ppt以下の定量を可能にした。更に高純度銅では硝酸系陰イオン交換分離を用いた方法を開発し、酸化ニオブではリン酸トリブチル溶媒抽出を加えた放射化学中性子放射化分析法を開発した。

第10章“総括”，本研究では機器中性子放射化分析法の非破壊・多元素同時分析という特徴を更に拡大し、最大54元素の分析を可能にした。それぞれの対象試料

及び目的元素に最適な照射条件及び測定条件を選択することで、機器中性子放射化分析法は更に多くの分野に適応できることが本研究で分かった。又、半導体や電子材料などの分野からの ppb レベル以下の定量要求には、照射後の化学分離操作を取り入れた放射化学中性子放射化分析法が有効であることが明らかとなった。

本研究により中性子放射化分析法が、ppm レベルから ppt レベルまで対応できる元素分析法として広い分野に適用できることが分かった。

公表論文

- 1) 岡田往子, 平井昭司, 桜井 弘, 原口紘彦: 分析化学 (*Bunseki Kagaku*), **39**, 271 (1990).
- 2) 岡田往子, 鈴木章悟, 平井昭司: 分析化学 (*Bunseki Kagaku*), **36**, 856 (1987).
- 3) 岡田往子, 平井昭司, 野田克彦: 家政学会誌, **37**, 245 (1986).
- 4) 鈴木章悟, 岡田往子, 平井昭司: 分析化学 (*Bunseki Kagaku*), **34**, 217 (1985).
- 5) 岡田往子, 平井昭司: 分析化学 (*Bunseki Kagaku*), **40**, 549 (1991).
- 6) 岡田往子, 平井昭司: 分析化学 (*Bunseki Kagaku*), **42**, 249 (1993).
- 7) 岡田往子, 平井昭司, 三頭聡明: 分析化学 (*Bunseki Kagaku*), **42**, 779 (1993).
- 8) Y. Okada, S. Hirai, Y. Suzuki, T. Mitsugashira: *Sci. Rep. Res. Inst., Tohoku Univ.*, **A40**, 25 (1994).

Digest of Doctoral Dissertation

Research on Neutron Activation Analysis of Biological Samples, Coals and High Purity Materials —Determination of Trace Elements and Ultra-trace Elements—

Yukiko OKADA

Atomic Energy Research Laboratory, Musashi Institute of Technology

971, Oozenji, Aso-ku, Kawasaki-shi, Kanagawa 215

(Awarded by Chiba University dated November 4, 1994)

In the first study, the analytical conditions for the determination of platinum in biological samples by instrumental neutron activation analysis (INAA) were optimized. The distributions of platinum and selenium in organs of rats treated with cisplatin and sodium selenite were determined. In the second study, selenium in soybean originating from Japan, China, Formosa, Burma, Brazil, Argentina and U.S.A. was determined by INAA. The γ -ray spectrometry was three counting methods, two conventional countings for ^{75}Se and $^{77\text{m}}\text{Se}$, and a coincidence counting for ^{75}Se . Concentration of selenium in analyzed soybean ranged from 5~200 ppb. In the third study, the contents of about 50 elements in very bitter edible plants and the less bitter edible plants were determined by INAA. Especially, the contents of Al, Mg, Mn, K, Co, Cr, Fe and Te in very bitter edible plants were higher than in the less bitter edible plants. In the fourth study, distributions of 54 elements in coal samples were determined by INAA. In the fifth and sixth study, uranium and thorium in a high purity silica and an aluminium were analyzed by radiochemical neutron activation analysis (RNAA) with anion exchange chromatography and coprecipitation of LaF_3 . The lower limit for the determination of uranium or thorium was found to be on the ppt level. In the seventh study, ultra-trace amounts of uranium and thorium in high purity silica, aluminium, copper and niobium oxides were determined by RNAA using the Japan Materials Testing Reactor (JMTR).

(Received 11 December 1995)

Keywords instrumental neutron activation analysis; biological samples; coals; high purity materials; radiochemical neutron activation analysis; trace elements; ultra-trace element.