工業における放射化学の利用†

小 林 昌 敏

日本原子力研究所高崎研究所

370-12 高崎市綿貫町1233

Key Words: radiochemistry, industrial application, tracer application, activation analysis, radiorelease

1. はしがき

本稿は1978年10月4日、理化学研究所の主催で開催された理研シンポジウム「今後推進すべき放射化学の応用分野」において行った筆者の講演をもとに本誌の総説としてまとめたものである。

「工業における放射化学」という主題そのものが困難な表題であって、上記シンポジウムの講演にさいしても講演者としてかなりとまどった記憶がある。結果的にははなはだ不満足なものであるが、工業的なトレーサ利用や放射化分析の利用を中心に筆者なりのまとめ方をしてみた。不十分な点に関しては識者のご叱正、ご教示をお願いするしだいである。

2. 放射性同位体利用の推移と現状

わが国における放射性同位体の利用研究は実質的には昭和24、25年ごろから始められた。もちろん第2次世界大戦以前においてもサイクロトロンを利用した微量の放射性同位体の製造や、核反応を応用した放射化分析の研究などが行われているが、第2次世界大戦終了後アメリカから原子炉で生産した各種の放射性同位体が生産されるようになり、続いて英国やフランスで生産された放射性同位体も輸入されるようになって、利用が急速に発展したものである。

科学技術庁の「放射線利用統計」を見ると、わが国における放射性同位体元素等の使用事業所数の急激な増加が認められる。すなわちその総数は昭和27-82, 昭和28-91, 昭和29-120, 昭和30-172, 昭和40-1, 204, 昭和52-3, 498, 昭和53-3, 710という増加を示し、現在でもその数は漸増を示している。

使用事業所総数のうち密封線源のみを使用している事業所数は2,838で、事業所総数の76.5%を占め、このうち民間企業のみを取って見ると総数1,413のうち密封線源のみを使用している事業所数は1,239で87.7%を占めている。民間企業で非密封線源を利用している事業所数は135で、全体の11%弱になっており、民間企業における放射性同位体の利用が密封線源の利用に集中していて、非密封線源の利用はきわめて少ないことを示している。このことは放射性同位体の放射化学の利用が民間企業ではあまり普及していないことを示唆しているものと思われる。

医療機関における非密封線源の使用量に比較すると民間企業での使用量は少ないが、民間企業で使用されているおもな核種の使用量はつぎのとおりである。

³ H	605 Ci	用途	標識化合物, ほか
¹⁴ C	290 mCi	用途	標識化合物, ほか
³⁵ S	360 mCi	用途	標識化合物, ほか
⁸⁵ Kr	300 Ci	用途	ラジフロ, 原子炉のトレーサ, ほか
¹⁴⁷ Pm	1930 Ci	用途	塗料, 表示管

この表を見ても非密封の放射性同位体として購入されているもののうち純粋に化学的トレーサなどの用途に用いられているものは多くないことがわかる。

放射性同位体利用の初期においては放射性トレーサの利用がかなり多く行われたが、その目的としては化学的反応の機構の解明、製造工程の工程解析、材料の研究および品質管理などを挙げることができる。とくに大量の放射性トレーサを用いた工程解析の実験は各所で行われ、産業界の近代化や技術革新に大きな貢献を果たして日本の高度成長の一つの原因をつくった。

† Industrial Applications of Radiochemistry. Masatoshi KOBAYASHI: Japan Atomic Energy Research Institute, Takasaki Radiation Chemistry Research Establishment, 1233 Watanuki-cho, Takasaki-shi.

いっぽう土木、水文学などの分野でも野外における放射性トレーサの実験が頻繁に行われ、とくに放射性核種で標識したガラス砂を用いる海底漂砂の移動の追跡実験では日本が先駆的な役割を果たした。

放射性トレーサの利用法では化学的な反応機構を追跡する化学的トレーサと物質の移動を追跡する物理的トレーサとに分けられる。化学的トレーサの実験は実験室規模で行われることが多く、これに対して物理的トレーサの実験は工場の現場や野外で行われることが多い。

わが国における放射性同位体の利用の動向は1956年以降続けられてきた日本アイソトープ会議、1964年以降続けられてきた理工学における同位元素研究発表会などの研究発表から伺うことができる。第1回日本アイソトープ会議（1956）以降第3回日本アイソトープ会議（1959）までの報文集には工業利用関係の発表のなかに多数のトレーサ利用の研究結果が報告されているが、第4回日本アイソトープ会議（1961）以降はほとんどの論文が密封線源利用の研究報告になっている。これに対して放射化分析の利用はその後発展し、材料の分析（とくに微量不純物の分析）から始まって転炉製鋼における溶湯中の酸素の分析のような現場での利用も発展し、最近では環境汚染物質の分析にさかんに用いられている。

第1回～第3回日本アイソトープ会議で発表された工業的なトレーサ利用研究は製鋼反応、電解精錬、摩耗の研究など金属工学に関連するものが多く、金属組織の研究にはオートラジオグラフィの応用も行われている。現場や野外における放射性トレーサ研究に続いてアクチバブル・トレーサの利用も行われたが、最近では食塩電解槽の水銀在庫量の測定のようにある限られた目的に対しては放射性トレーサの利用が続けられている。

第1回～第3回日本アイソトープ会議の発表論文のうち、放射性トレーサ、オートラジオグラフィ、放射化分析などの技術を工学的な目的に用いた研究報告はつぎのとおりである。

1) 金属工学関係

^{35}S による溶接移行現象の研究 永井ほか（第1回 1956）

ラジオアイソトープの鉄冶金学への応用 斉藤ほか（第1回 1956）

オートラジオグラフィによる合金の研究 加藤ほか（第1回 1956）

放射性同位元素 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ を用いた銅陽極中の銀の

挙動に関する研究 加藤ほか（第1回 1956）

銅反射炉内の溶湯の流動について 真鍋勝美ほか（第2回 1958）

^{32}P による鋼塊偏析のマクロオートラジオグラフ 原田良夫ほか（第3回 1959）

電着における有機光沢剤のトレーサー実験 大野明ほか（第3回 1959）

ラジオアイソトープ利用による溶鉄中のイオウの活量の測定 斉藤恒三ほか（第3回 1959）

ラジオアイソトープによる溶鋳炉炉壁の侵食調査 富永在寛（第3回 1959）

ラドンによる 1,000 t 溶鋳炉内ガス通過時間の測定 芹沢正雄ほか（第3回 1959）

金属中の酸素の中性子放射化分析 小林昌敏ほか（第3回 1959）

アルミニウム地金中の不純物の放射化分析 小林昌敏ほか（第3回 1959）

中性子放射化分析による電解銅中の金の定量 平野四蔵ほか（第3回 1959）

(1)活性化による冶金学的研究 (2)活性化による金属の誘導放射能に関する研究 武谷清昭ほか（第3回 1959）

2) 摩耗関係

Radioactive tracer による芳香族化合物の減摩耗性に関する研究 永田ほか（第1回 1956）

RI による金属の摩耗機構の研究 佐田登志夫（第2回 1958）

放射能追跡子によるエンジン摩耗の研究(第1報) 重水素核衝撃による放射性ピストンリングについて 加藤正夫ほか（第2回 1958）

^{35}S を追跡子とする極圧潤滑油の潤滑機構に関する研究 桜井俊男ほか（第3回 1959）

放射能追跡子によるエンジン摩耗の研究(第2報) 中性子衝撃による放射性ピストンリングについて 加藤正夫ほか（第3回 1959）

放射性超硬切削工具による材料の被削性の解明 佐田登志夫ほか（第3回 1959）

3) 化学工業

ラジオアイソトープを応用する食塩電解の研究 (第1報) 水野 滋ほか（第2回 1958）

ブチルゴムにおけるイオウの挙動 横瀬恭平ほか（第2回 1958）

ラジオアイソトープを用いた化学工場の製造工程解析に関する研究 木村長右衛門ほか（第2回 1958）

化学工場におけるラジオアイソトープの利用数例

について 園田 晋ほか (第2回 1958)

アイソトープによるロータリー・キルン内硫化鉍

粒子移動速度の測定 杉村 献ほか (第3回 1959)

ラジオアイソトープを応用する食塩電解の研究

(第2報) 水野 滋ほか (第3回 1959)

同位体希釈分析による船底塗料毒物溶出速度の測定

加藤正夫ほか (第3回 1959)

絶縁油中の有機酸の吸着特性について 神山弘章

ほか (第3回 1959)

電着における有機光沢剤のトレーサー実験 大野

明ほか (第3回 1959)

高温電気化学工業における RI の利用 園田 晋

(第3回 1959)

4) その他

放射性同位元素による水圧鉄管内の流速測定 大

塚 巖ほか (第2回 1958)

RI による地下水調査法に関する研究 有泉 昌

ほか (第3回 1959)

^{222}Rn による地中埋設管の気体漏洩探査について

大谷寛治 (第3回 1959)

鉱山選鉱における RI 応用試験について 伏見 弘

(第3回 1959)

3. 製造工程における放射性トレーサの利用

製造工程における放射性トレーサの利用ではいわゆる化学的トレーサの利用は少なく、多くの場合物理的トレーサとして使われている。とくに化学工業においては反応槽内における流速、滞留時間、混合度、流れのパターンなどの測定に放射性核種が物理的トレーサとして用いられてきた。滞留時間の測定では反応槽の入口において放射性トレーサを瞬間的に投入し、反応槽の出口において放射性トレーサの通過を測定すると図1(a)のようなグラフが得られる。放射性トレーサの濃度と時間との関係を示す曲線によって囲まれた部分の面積重心Gを通る垂直線は放射性トレーサの平均滞留時間 $\bar{g}$ を示し、いっぽう $g=1$ の垂線は反応槽の全容積を流量で割った理論的な滞留時間を示している。図1(a)に見られるよう実際に得られる平均滞留時間が理論的滞留時間よりも短くなる場合が多く、このことは流れに関与しない“ヨドミ”の体積があることを示している。図1(b)は滞留曲線を積分して得られる曲線であるが、ハッチを施した矩形の部分($\bar{g}$ と $g=1$ の間の部分)が“ヨドミ”の体積を示している。滞留時間の測定例としては製紙工場の漂白塔内のパルプの移動を追跡するために ^{131}I で標識したセルローズが用いら

(a) 出口におけるトレーサ濃度の時間的変化

(b) (a)の曲線を積分したもの

図1 滞留時間の測定における放射性トレーサ濃度の時間的変化

図2 密封線源トレーサによる滞留時間の測定

れた¹⁾。筆者らは製紙工場の蒸解塔内における木材チップの滞留時間を測定するために ^{60}Co 密封小線源を内蔵したプラスチック片数十個を用い、蒸解塔出口にレートメータを設置してそれぞれのプラスチック片の通過をパルスとして記録させ、図2に示すような記録を得た。この図から単位時間内に通過するプラスチック片の数の時間的変化を求めると図2(b)に示すような滞留曲線が得られる。海外では蒸解塔のトレーサ実験に ^{140}La を密封したプラスチック片や ^{24}Na 塩を密封したテフロン片を用いた例がある¹⁾。わが国における滞留時間測定の実験としてはアルミナ製造工程でドルシクナ内においてアルミン酸ソーダと赤泥を分離する工程について ^{32}P を用いて滞留時間と流れのパターンを測定した例²⁾や、 ^{32}P などを用いてセメント用キルン内の移動速度と滞留時間を測定した例³⁾などがある。

流速、流量の測定も物理的トレーサとしての応用であるが、製造工程における流速、流量の測定のほか、水文学の分野では河川、導水管、地下水などについて

の測定例が数多くある。流量測定のためのトレーサ法としては、peak-timing 法、total-count 法、continuous sampling 法、dilution 法などがあるが、これらの方法についてはかつて本誌でも説明されたことがある⁴⁾ので説明を省略する。

食塩電解槽の水銀在庫量の測定

食塩水を電解して塩素とソーダを製造する工業では電解槽 1 槽あたり 1.5 トン以上の金属水銀を陰極として使用している。工場では各電解槽について年 1～2 回の割合で水銀在庫量の測定を行う必要があり、これを水銀インベントリーの測定といっている。この測定は当初昭和電工 K.K. が自社の工場において ^{197}Hg を使い、同位体希釈分析法の原理を応用して測定を行った。その後筆者らも同様の実験を行ったが、のちになって原研ではこの方法の規格化⁵⁾を図り、専門家以外の人でもこの方法を容易に適用できるようになった。

この方法では電解槽 1 槽あたり 3～8 mCi の ^{197}Hg を投入し、陰極の液状水銀が循環ポンプによって均一に拡散したのちに試料採取を行って比放射能を測定する。投入する ^{197}Hg の重量を m_0 、比放射能を a_0 。均一に拡散したのちの採取試料の比放射能を a とすれば、陰極水銀の総量 M は

$$M = m_0 \left(\frac{a_0}{a} - 1 \right)$$

で与えられる。図 3 (a)には食塩電解槽の原理的構造を、図 3 (b)には放射性トレーサを投入した直後から一定時間ごとに試料採取を行って比放射能を測定した場合に得られる測定値のバラツキの大きさを示した。

わが国のソーダ工業界では現在ほとんどの工場がこの方法を用いて水銀インベントリーの測定を行っており、原研では注文生産によって規格化された ^{197}Hg を供給している。図 4 には原研法における ^{197}Hg の製法の図式を示した。昭和 52 年度に原研が供給した ^{197}Hg のサンプル数は 405 本で、非破壊検査用の ^{192}Ir 線源とともに重要な収入源になっている。

4. 自動車排ガスの分析

古くから行われている放射化学的な手法の応用にラジオリリース (radiorelease) 法⁶⁾がある。この方法は放射性核種で標識した化合物を用いて化学反応を行わせたさいに遊離されて出てくる放射性核種の放射能を測定することによって反応量を測るもので、そのうち ^{85}Kr で標識した化合物を用いる方法がとくに知られている。 ^{85}Kr で標識された包摂物 (クラスレート) を用いて相変態や滴定中和点における ^{85}Kr 遊離ガスを

図 3 食塩電解槽における水銀在庫量の測定

図 4 原研における ^{197}Hg トレーサの製造工程

図5 ^{85}Kr クラスレートによる自動車排ガス分析装置の原理図

測定する方法が米国で開発され、その後米国では ^{85}Kr クラスレートを用い自動車排ガスに含まれる CO , NO_x , HC を簡単に定量する装置が研究された。この装置の原理図は図5に示すもので、3種類の ^{85}Kr クラスレートのそれぞれに自動車排ガスを通じ、これらのクラスレートと CO , NO_x , HC との反応によって遊離される ^{85}Kr ガスの放射能の強さからそれぞれの化合物の濃度を測定することができる。CO センサーとして PdCl_2 -クリプトネート、 NO_x センサーとしてヒドロキノン-クリプトネート、HC センサーとして PtO_2 -クリプトネートが用いられている。

5. 放射化分析

放射化分析についての解説は本誌でも何回か取り上げられているのでここでは省略することとし、この方法の工業的な利用面について記述することとしたい。

放射化分析の利用が開始された初期のころにおいてはこの手法の特徴は超微量の分析方法としてその可能性が注目され、とくに高純度材料中の微量不純物の分析が多く行われた。戦前斉藤らが行ったアルミニウム中の Na 不純物の定量、戦後野崎らが行った半導体材料としてのシリコン中の不純物の定量はその代表的なものである。高純度アルミニウム中の不純物の定量については P. Albert らの一連の研究⁷⁾があるが、筆者らもこれと同様の研究を行ったことがある。

当初 γ 線スペクトロメータ用検出器として $\text{NaI}(\text{TI})$ が用いられたが、エネルギー分解能があまり良くないため微量不純物から得られる光電ピークの検出が困難であった。このため高純度材料に含まれる微量不純物の定量には化学的な分離操作と γ 線スペクトロメトリ

ーを併用する方法が用いられた。図6には原子炉中で83時間照射したときに得られる高純度アルミニウム（純度99.99%）の γ 線スペクトルを示す。この図からもわかるように高純度アルミニウムに含まれる各種の微量元素を γ 線スペクトルから定量することは困難であって、筆者らは図7に示すような系統的分離法を用い、化学分離をした各フラクションについて γ 線スペクトロメトリを併用した⁸⁾。表1はこの方法で得られた定量結果である。

最近 γ 線スペクトロメトリに Ge (Li)半導体検出器が用いられるようになり、エネルギー分解能がすぐれてい

るために非破壊放射化分析法 (nondestructive activation analysis) の利用価値が大きくなり、とくに多元素同時定量の可能性が注目されるようになった。検出器のエネルギー分解能が大きくなるのに応じて波高分析装置 (パルスハイト・アナライザ) のチャンネル数も多くなり、ふつう4000チャンネル程度のものが利用されるようになった。そこで波高分析器から得られる多量のデータを短時間で処理するためにコンピュータが導入され、放射化分析の自動化が促進された。

図6 放射化した高純度アルミニウムの γ 線スペクトル

照射: 8 hrs (JRR-2)

冷却: 6 days

図8は真室らが行った高純度アルミニウムの γ 線スペクトロメトリの結果の1例⁹⁾を示すもので、コンピュータを用いて γ 線スペクトルの解析を行うことにより約40種類の微量不純物元素の同時定量を行うことができた。

筆者らが行った高純度アルミニウムの研究では、帯

図7 純アルミニウムの系統的放射化分析における分離法

Table 1 Analytical results of the impurity elements contained in high purity aluminum

	A1	A2	A3	A4	A5	A6	B6	C1	C6
Cu	2.5	2.6	3.6	3.3	2.5	2.5	1.4	10	7.9
Ga	0.15	0.10	—	—	—	0.13	0.05	—	0.17
Mn	1.5	1.2	1.1	1.2	2.4	1.9	3.1	1.3	5.3
Cd	<1					<1	<1	<1	<1
Ni	<1					<1	<1	<1	<1
Sb	0.23	0.22		0.24		0.23	0.28	0.06	0.05
Dy	—	—	0.80	0.72	0.60	0.73	1.0	3.1	1.2
La	0.3	0.2	0.2	0.2	0.1	0.2	—	—	0.06
Sm	0.1	0.07	0.05	0.04	0.02	0.04	—	—	0.03
Sc	0.1	0.08	0.08	0.08	0.09	0.08	—	—	0.04
Fe	—	(20)	—	(20)	—	(20)	8		
Co	—	0.09	—	0.09	—	0.09	0.02		
Zn	—	0.4	—	0.7	0.8	0.7	0.4		
Cr							0.07

図8 放射化した純アルミニウムの γ 線スペクトル(真室哲雄ほか)
照射 熱中性子束 $9.30 \times 10^{10} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 70時間
冷却時間 10 d
測定時間 40,000 s

図9 ゾーンメルティングを行ったAl-0.005%U
試験片におけるUの濃度分布
(各曲線はゾーンの通過回数の異なることを示す)

溶融精製法 (zone melting) によって超高純度アルミニウムを製造するための不純物の精製機構を検討した。高純度アルミニウムに含まれるいろいろな不純物元素の溶融精製による除去率を求めるために、アルミニウムとこれらの不純物のそれぞれの元素との2元系合金について実験を行った。高純度アルミニウムに各元素の微量を添加し、Al-Sm, Al-Sc, Al-Mn, Al-Fe, Al-U などの2元系合金の棒状試験片を作成した。こ

れらの試験片について溶融精製を行ったのち放射化分析法を利用して試験片の長さ方向に対する添加元素の分布曲線を求め、除去率の検討を行うと同時にその2元系平衡状態図の考察を行った。図9は溶融精製を行ったAl-U 2元系試験片のUの分布曲線で、溶融精製の回数の増加とともにUの含有率が少なくなることがわかる。

検出感度が高いこと、非破壊的に迅速な定量が可能なのが放射化分析法の特長であるが、最近では各種の機器分析法が進歩したため、放射化分析法の特長は多元素同時分析の可能な点に集中されている。

放射化分析の新しい応用面としては環境汚染物質の分析をあげることができる。

加速器による放射化分析は古くから行われてきたが、コッククロフト・ワルトン型の中性子発生装置を用いる放射化分析が注目された時期がある。この方法にはD-T反応で生成する14 MeVの速中性子による核反応を用いる場合と、減速材によってこの速中性子を減速して得られる熱中性子による核反応を用いる場合とがある。14 MeVの速中性子による放射化分析の利用でとくに注目されるのは酸素の定量法¹⁰⁾である。放射化分析による微量の酸素の定量は早くから試みられたが、核反応としてはつぎのものが利用された。

14 MeVの速中性子による酸素の定量では $^{16}\text{O}(n, p)^{16}\text{N}$ の核反応で生成する ^{16}N (半減期7.1秒, γ 線エネルギー6.13 MeV)を測定することにより酸素量を決定する。 ^{16}N の半減期が短いので迅速な測定が要求されるが、 γ 線のエネルギーがきわめて大きいため、

6. 13 MeV の光電ピークだけを測定するようにγ線スペクトロメータを設置しておけば、ほとんど妨害元素の影響をうけることがない。この方法はかつて転炉製鋼のさい溶鋼中に含まれる酸素の現場でのルーチンの分析に実用化された。

6. ^{252}Cf の利用

^{252}Cf の利用については米国では ^{252}Cf Market Evaluation Program という計画が長年月にわたって進められてきた。工業的な利用では中性子水分計の中性子源、原子炉の始動のための中性子源、核燃料の燃焼率測定のための放射化用中性子源など、密封小線源としての利用はすでに確立されているということが出来る。現在大きな期待が持たれているのは中性子ラジオグラフィと放射化分析であり、 ^{252}Cf 1 mg～数 mg を用いての研究が各所で行われている。

^{252}Cf を用いる放射化分析では ^{252}Cf の使用量に限界があるため大きな中性子束密度が期待できない反面、原子炉とちがって企業に設置しやすいという利点があり、また長時間にわたる on-line の分析に適している。このような利点を活かして現場で単目的の分析装置として利用される可能性が大きい、とくに注目される応用例として原油中のバナジウムを連続的に定量する on-stream 分析法¹¹⁾がある。図10にこの方法の原理図を示したが、この装置では ^{252}Cf 500 μg を用い、減速材の内側のコイル中を一定流量で原油を流し、バナジウムの分析結果に応じて原油に加えるマグネシウムの量を自動的に制御するように Mg/V 比制御装置のコンピュータで制御している。マグネシウムは高蒸留燃料の防食添加剤として用いられるものである。この分析装置では 0.1～数百 ppm のバナジウムに対し、0.01 ppm の分析精度が得られている。

図10 ^{252}Cf を用いた“on-stream”バナジウム分析装置

7. 工業利用における問題点

過去20年間にわたって工業界では放射性同位体の利用に大きな関心を示し、いろいろな手法を積極的に取り入れてきた。高度成長の時代においては生産工程の合理化、工程の自動化の傾向のなかでとくに密封小線源装備機器の利用が促進され、いっぽう生産工程の工程管理の目的で放射性トレーサの現場利用が初期のころに集中して行われた。

放射性同位体の利用が工業界に与えた経済効果は予想以上にばく大なものであるが、経済効果を算定でき

ないケースも多いためにその全体を量的にあらわすことは困難である。とくに日本が一流先進国として米国につぐ生産技術を確立するための技術革新に放射性同位体が演じた役割は小さくない。

放射性トレーサの現場利用は最近ほとんど行われなくなったが、業界の意見ではこれは法的手続の複雑なことや実験後の廃棄物の処分に対する法的規制が厳しいこと、などが理由であるといっている。工業界にとっては経済性を損うような法規制のもとでは利用の促進を望むべくもなく、合理的な法規制を望む声強い。

文 献

- 1) Lars G. Erwall, Hans G. Forsberg and Knut Ljungren: "Industrial Isotope Techniques", Munksgaard Copenhagen (1964)
 - 2) 木村長右衛門, 安立一郎, 岡田昇: 第2回日本アイソトープ会議報文集 (1958)
 - 3) 杉村献, 荒川鉄太郎, 松田隆, 桑田富士雄, 松沢寿俊: 第3回日本アイソトープ会議報文集 (1959)
 - 4) 佐藤乙丸, 堀口泰裕: *Radioisotopes*, **25**, (3) 171~181 (1976)
 - 5) アイソトープ希釈法による食塩電解槽内水銀量測定技術, JAERI-M 5097, 日本原子力研究所 (1973)
 - 6) 小林昌敏編著: 放射線利用に関する最新研究資料, 第一巻, 176~181, フジ・インターナショナル K.K. (1973)
 - 7) P. Albert: *Analyse par Radioactivation*, (Paris)
 - 8) M. Kobayashi, S. Nagatsuka and T. Sawai: *Radioisotopes*, **13**, 26 (1964)
 - 9) T. Mamuro and A. Mizohata: *Annual Report of Radiation Center of Osaka Prefecture*, **13**, 23 (1972)
 - 10) ピエール・レベック, セルジュ・メイ, 小林昌敏: 第3回日本アイソトープ会議報文集 (1959)
 - 11) Californium-252 Progress, No. 15, May (1973)
-