講　演　発　表

第１日　10月22日(水)

第１日　10月22日(水)

核　反　応　１Ａ０１～１Ａ１７

放射化分析　１Ｂ０１～１Ｂ１８

ホットアトム化学　１Ｃ０１～１Ｃ１７

1A01　^{197}Auの光核反応　-核破砕と核分裂-

(金沢大理・東大核研*・追手門学院大**・名大理***)
○深澤拓司・吉田　学・長田和彦・小林一人・桐瀬　彰・浜島靖典・
坂本　浩・柴田誠一*・今村峯雄*・藤原一郎**・古川路明***

【序】我々は、これまで Cu～La の標的核について、最大エネルギー (E_α) が 100～1000 MeVの制動放射線による光核破砕反応収率の測定を行い[1),2)]、荷電粒子による破砕反応から導かれた Rudstamの経験式[3)] (講演〔1A02〕 参照) の適用性を調べてきた。(講演〔1A02〕,〔1A03〕 参照)。ここでは標的核の質量領域を広げるため、さらに重い Auを標的核として選び、E_α=45～1000 MeVで収率測定を行った。(γ,xn) については文献との比較を行うと共に破砕収率分布の結果を調べ、Rudstam の式と照合した。また、破砕反応と競争する核分裂生成核種の収率測定を上記のE_αで試み、初めて有意の結果を得た。

【実験】i)破砕反応：Au箔 (純度>99.9%；^{197}Au 100%) の① 1cmφ (約80mg/cm^2)、② 2.5cm角 (約 100,または 200 mg/cm^2) を ①は東北大核理研電子 LINAC (E_α=45～200 MeV) で 5分、②は東大核研 ES (E_α=300～1000 MeV) で 0.5～2 時間、ビームモニターの Al板 (箔)、あるいは Al箔と Au箔とともに照射した。照射後、Pt,Ir,Os,Re,Wを化学分離し、一部は非破壊のままγ線スペクトロメトリーを行い、E_γ と $T_{1/2}$に基づき生成核種を同定・定量した。化学収率は、同時照射の非破壊ターゲットとの比較ないしキャリアの回収率より求めた。 ii)核分裂：約 100mg/cm^{2}の Au箔と同サイズのポリエチレン (約 10mg/cm^2) を交互に 12組重ねて、各 E_αでビームモニターの Al箔とともに照射し、ポリエチレンのみをまとめて、反跳捕集核種のγ線スペクトロメトリーを行った。

【結果と考察】i)破砕反応：図１に E_α=300～1000 MeV の収率曲線の例を示す。挿入図は (γ,n) 反応の収率曲線 (●印) を文献値 (○,◇,▽[4)],○[5)]) と比較した。なお図１には示さないが (γ,xn),x＞１についての比較も行った。図１のような破砕収率の E_α依存性は他のターゲットの場合と同様の傾向である。図２に E_α=900 MeV の同位体収率分布を例示する (E_α=400～1000 MeV ではどの E_αでも、各元素でほぼ同形を示した。)。図中の実線は Rudstam の経験式への最小二乗フィットの結果であり、点線はJonssonら[6)]のパラメータ値に基づく結果である。実線と点線の一致はよくない。質量収率曲線の傾きとして求まる P を E_αに対して図３にプロットした。破線は Jonsson らの経験表式[6)]；$P=1460\cdot E_\alpha^{-0.81}\cdot At^{-0.89}$ ($E_\alpha \leqq 600$ MeV；Atはターゲット質量数)、$P=7.66\cdot At^{-0.89}$ (E_α>600 MeV) による。我々の結果は破線よりも大きい傾向を示す。また、荷電分布の幅を表す R は E_α による変化はなかったが、Jonsson らの値[6)]；$R=11.8\cdot A^{-0.45}$ (A は生成核質量数) より大きく、我々の Cu～La の場合と比べるとさらに大きい。他のパラメータについても検証した結果、Rudstam の式を Auに適用する場合、Jonsson らのパラメータ表式は若干、修正する必要があると思われる。各パラメータの詳しい標的核依存性の検討は講演〔1A03〕を参照。　ii)核分裂：^{197}Auの光核分裂片相対収率 (反跳収率はすべての核種について同じと仮定) の有意の結果を初めて得た。定量核種は ^{88}Kr, ^{91,92}Sr, ^{90m,92}Y, ^{97}Zr, ^{95}Nb, ^{99}Mo, ^{103,105}Ru であり、照射時間、ビーム強度により定量核種数に差がでた。図４に E_α=600 (●), 670 (◆), 800 (■), 900 (▲) MeVについて、質量数 99 の収率に規格化した質量収率分布を示す。E_αによる質量収率の変化はほとんど無いことがわかる。図中の○印は、ν=10 (≈破砕反応の平均核子放出数) を仮定した場合の各E_αの質量収率の平均値である。実線は目安のために示した。詳しい議論のためには、化学分離を併用する精度よい測定が望まれる。

ふかさわたくじ・よしだまなぶ・おさだかずひこ・こばやしかずと・くぬぎせあきら・はまじまやすのり・さかもとこう・しばたせいいち・いまむらみねお・ふじわらいちろう・ふるかわみちあき

図1．（γ，xnyp）反応収率

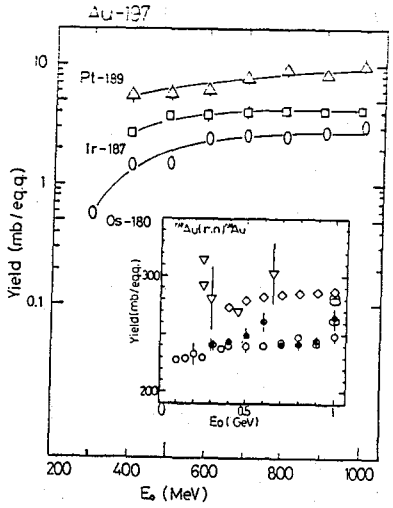


図2．同位体収率分布　（白ヌキ印は fitting に使用せず。）

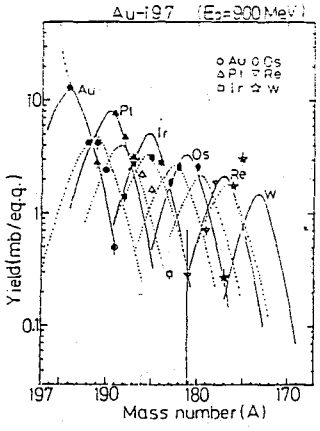


図3．パラメータ P vs. E_0

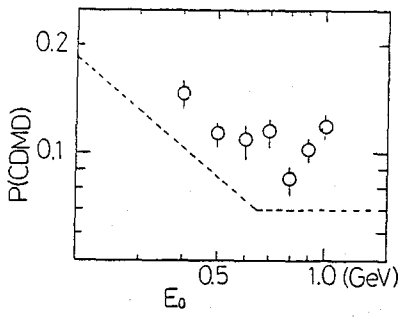
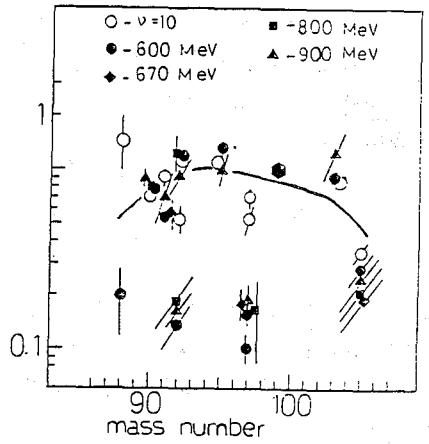


図4．質量収率分布　（●は規格化点）



（文献）　1) K. Sakamoto et al., Radiochim. Acta 37(1984)69.; 37(1984)83.

2) K. Sakamoto et al., 核理研研究報告 18(1985)290.　3) G. Rudstam, Z. Naturf. 21a(1966)1027.

4) K. Lindgren et al., Nucl. Phys. A166(1971)643.

5) H. G. de Carvalho et al., Nucl. Phys. A126(1969)505.

6) G. G. Jonsson and K. Lindgren, Physica Scripta 15(1977)308.

PHOTONUCLER REACTIONS ON Au-197 : SPALLATION AND FISSION

Fac. of Sci. Kanazawa Univ., Takuji FUKASAWA, Manabu YOSHIDA, Kazuhiko OSADA,
Kazuto KOBAYASHI, Akira KUNUGISE, Yasunori HAMAJIMA, Koh SAKAMOTO
Inst. for Nucl. Study, Univ. of Tokyo, Seiichi SHIBATA, Mineo IMAMURA
Ottemongakuin Univ., Ichiroh FUJIWARA
Fac. of Sci. Nagoya Univ., Michiaki FURUKAWA

1A02　Cuの光核破砕反応（II）

（東大核研）　○柴田誠一、今村峯雄、宮地　孝、武藤正文
（金沢大理）　坂本　浩、浜島靖典、外大、窪田康弘、吉田　学
（追手門学院大）　藤原一郎

はじめに　一般に高エネルギー核破砕反応の反応機構は Serber (1) により提唱された二段階モデル — 高エネルギー入射粒子とターゲット核内核子との衝突によりカスケードがひき起こされ、ターゲット核から粒子がはじき出される第一段階、そして励起エネルギーを失い最終生成核となる第二段階 — によって説明される。

光子入射の場合、そのエネルギーがπ中間子生成のしきい値（~140 MeV）を越えるようになると、光子とターゲット核内核子との相互作用によりΔアイソバーが生成され、それが直ちにπと核子とに崩壊し、それらの粒子からカスケードがひき起こされる。この反応開始の最初の過程は陽子あるいは重イオンによる核破砕反応の場合とは明らかに異なっており、この相違が生成核の収率分布などにどのように反映されるかは非常に興味深い点である。昨年の討論会では、このような目的で行った実験結果から主に質量収率曲線（mass yield curve）のスロープに相当するパラメータPについて、解析の途中経過を報告したが、今回はその後の解析について、他のパラメータの結果も含めて報告する。

実験　実験手順は昨年の報告と全く同様である。

結果と考察　γ線測定により得られた生成収率（mb/eq.q.）は Rudstamの式 (2) を用いて解析した。

$$\sigma(Z,A) = \frac{\hat{\sigma}\, P\, R^{2/3}}{1.79\,(e^{PA_t} - 1)} \exp[PA - R|Z - SA + TA^2|^{3/2}]$$

ここで、σ(Z,A) はターゲット核 (Zt,At)から生成した核種の断面積であり、Pは前述のスロープに相当するパラメータであり、Rは charge dispersion curve の幅、SとTはそのピーク位置、$\hat{\sigma}$は全非弾性収率に関するパラメータである。

解析の結果得られた各パラメータ値のうち、Pの照射最大エネルギーに対するプロットを図1に示す。ここには比較対照のため Cu の陽子および重イオンによる核破砕反応の結果 (3)も合わせて示した。図より

1．陽子、重イオンによる核破砕反応の場合、スロープ（P）は 2 - 3 GeV 以上で一定値になるが、光子の場合は 600 MeV 以上で一定となる。
2．光子の場合の方がスロープ（P）の値が大きい。

ということがわかる。光子による核破砕反応は光子源として連続スペクトルを持つ制動放射線に依存するため、陽子、重イオンの結果と直接比較するためには、得られた結果を単

しばたせいいち、いまむらみねお、みやちたかし、むとうまさふみ、さかもとこう、はまじまやすのり、そとまさる、くぼたやすひろ、よしだまなぶ、ふじわらいちろう

色エネルギーの光子による結果に変換することが必要である。現在、このために unfolding 法による変換を検討しているが、制動放射線に対し 1/E スペクトルを仮定して 300 - 1000 MeV での各核種の平均生成収率を求め、それを Rudstam の式で解析した結果も上記の二つの相違が生じることを支持した。パラメータPは入射粒子によりターゲットに持ちこまれた励起エネルギーに対する間接的な尺度を与える。（Pが小さい程、励起エネルギーが大きくなることに相当する。） 従って、図1からは光子による核破砕反応の方が、陽子、重イオンによる核破砕反応よりターゲットに持ちこむ励起エネルギーは小さく、しかも飽和に達っするのが陽子、重イオンの 2 - 3 GeV に比較して 600 MeV と低いことがわかる。このことは、光子による核破砕反応が、ハドロンによる核破砕反応と明らかに異なった特徴を持っていることを示している。このような違いがなぜ生じるのかは最も興味ある点であるが、前述の反応開始の最初の相互作用の違いに部分的には帰因されると思われる。（核子一核子の相互作用によるπ中間子発生のしきい値は、光子一核子の相互作用による場合より大きい。） 他のパラメータ、RおよびS，Tの解析からもこのことを支持する結果が得られた。

また、光子によるフラグメンテーション反応について検討するために ^{7}Be および ^{10}Be の測定を行った。 （^{10}Be には加速器質量分析法を適用） この場合も、陽子による $^{7}Be/^{10}Be$ 生成比とは全く異なった結果が得られた。これについても報告する。

参考文献

(1) R. Serber, Phys. Rev. 72, 1114 (1947).

(2) G. Rudstam, Z. Naturf. 21a, 1027 (1966).

(3) J.B. Cumming et al., Phys. Rev. C17, 1632 (1978).

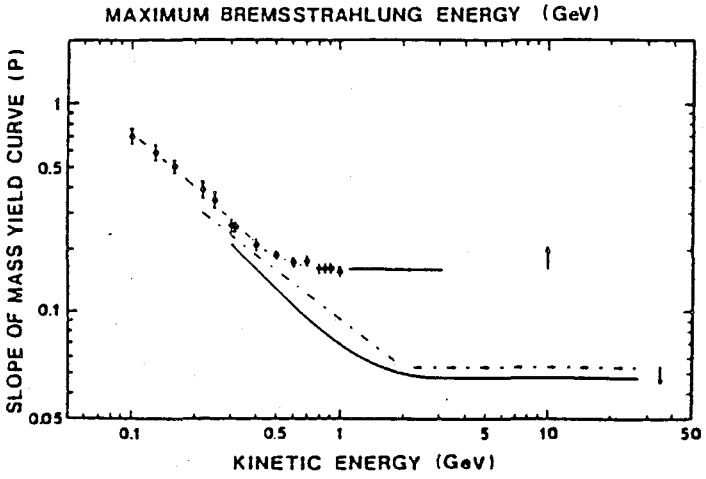


Fig.1. Logarithmic slope of mass yield curve (P).
● : this work
solid curve : ref.3
dash-dotted curve : ref.2

PHOTONUCLEAR SPALLATION REACTIONS IN Cu

Inst. for Nucl. Study, Univ. of Tokyo, Seiichi SHIBATA, Mineo IMAMURA, Takashi MIYACHI, Masafumi MUTOU, Fac. of Sci. Kanazawa Univ., Koh SAKAMOTO, Yasunori HAMAJIMA, Masaru SOTO, Yasuhiro KUBOTA, Manabu YOSHIDA, Oitemongakuin Univ., Ichiro FUJIWARA.

1A03

光核破砕反応のシステマティクス（Rudstam式のパラメーター）

（金沢大理・東大核研[*]・理研[**]・名大理[***]）○吉田学・窪田康治・深澤拓司・長田和彦・小林一人・椚瀬彰・浜島靖典・坂本浩・柴田誠一[*]・今村峯雄[*]・藤原一郎[**]・古川路明[***]

〈はじめに〉 我々は光核破砕反応収率の入射光子エネルギー及びターゲット質量数(A_t)に対する依存性を検討するために，制動放射線の最大エネルギー(E_0)とターゲットを変えて収率測定を行ってきた[1]。これらの結果は荷電粒子（主にプロトン）による核破砕反応から導かれたRudstamの経験式（CDMD式）に適用した。（講演1A02参照。）この式に含まれる5個のパラメーターについては，既にJonssonらが制動放射線照射の場合の予想式を与えている[2]。しかし，我々が昨年報告したようにPとRに問題が見い出された[1]。そこで^{51}V，^{133}Cs，^{127}Iをターゲットとした補追の実験と新たに行ったAuの実験（講演1A01）とを合わせて，Jonssonらの予想値と比較しつつ，パラメーターのA_tあるいはE_0依存性を再検討する。

〈実験〉 V，I，Csの実験方法は昨年の報告[1]と同様である。（Au，Cuについては講演1A01，1A02参照。）ターゲットは，ビームモニターのAl板（^{27}Al(γ,2pn)^{24}Na）あるいはAu板（^{197}Au(γ,n)^{196}Au）と共にいくつかをスタックにして，東大核研ES（E_0=300～1000 MeV）東北大核理研LINAC（E_0=30～250 MeV）で照射した。今回の実験におけるE_0の誤差はESで0.3％，LINACで5％以下であった。照射後，Vは非破壊で，I，Cs，Auは化学分離を併用して，それぞれγ線スペクトロメトリーを行いEγと$T_{1/2}$により生成核種を同定・定量した。

〈結果と考察〉 ①パラメーターの決定と同位体収率分布：生成核種の収率で同重体からの壊変蓄積を無視できない場合は照射時間や冷却時間を考慮してその寄与を補正した上で，非線形最小二乗法のコンピュータープログラムによってCDMD式のパラメーターを決定した[3]。^{133}Cs（E_0=900MeV）の同位体収率分布の例を図-1に示す。実線は測定値のfitting結果，破線はJonssonらの予想式に基づく結果である。両者の一致は良いとはいえない。I，Auにおいても同様であった。一方，V，Cu，Yでは比較的良く一致した。重いターゲット核で両者のずれは大きくなっている。

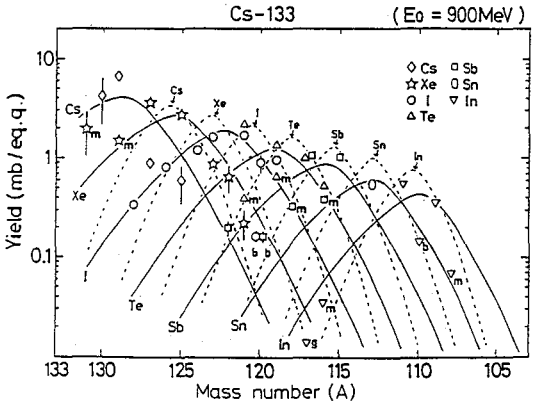


図-1. 同位体収率分布

②パラメーターの検証：Pは質量収率曲線の傾きであり，ターゲット核に付与された励起エネルギーを間接的に示すといわれている。図-2にA_t及びE_0によるP値の変化の例を示す。E_0が大きくなるにつれP値は減少し，600 MeV以上で一定値になる傾向が見られる。また，A_tが増加するとP値は小さくなっている。Jonssonらの予想式，$P=1460\cdot E_0^{-0.51}\cdot A_t^{-0.89}$（$E_0<600$MeV），$P=7.66\cdot A_t^{-0.89}$（$E_0\geq 600$MeV），が示すように600 MeV以上で$E_0$依存性が消えるのは確からしい。$E_0\geq$

よしだまなぶ・くぼたやすひろ・ふかさわたくじ・おさだかずひこ・こばやしかずと。くぬぎせあきら・はまじまやすのり・さかもとこう・しばたせいいち・いまむらみねお・ふじわらいちろう・ふるかわみちあき

600 MeV の P の平均値と At の関係を図-3に示す。ここで白抜き印は文献値[2]，黒印は我々の実験値，破線は Jonsson らの予想値を示す。実験値は予想値から少しはずれる傾向にある。

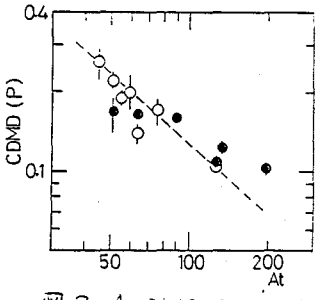


図-3. At に対するパラメーター P

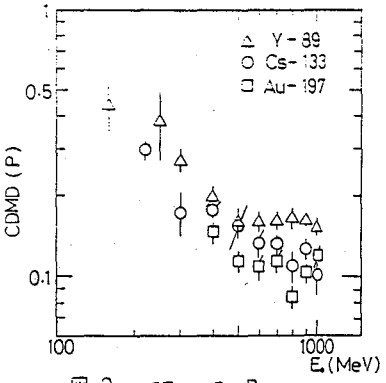


図-2. パラメーター P

R は同位体収率の分布幅に関係する。E_0 に依らずほぼ一定値を示した。生成核種の平均質量数(Am)と R 値の関係を図-4に示す（印等は図-3と同じ）。Am と R の値は $E_0 \geq 600$ MeV の平均値である。Am が増加するにつれて R は小さくなるが，Au は非常に大きい値を示した。Jonsson らは R を生成核種の質量数(A)の関数として，$R = 11.8\,A^{-0.45}$ を与えている。（図-4では A≈Am とし破線で表した。）I，Cs では R が小さい値となり，Au を除けば予想値として実線の方が良さそうに思われる。（Au については目下理由不明）

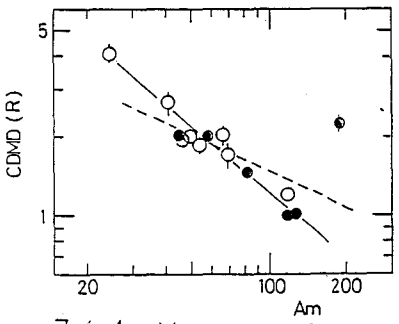


図-4 Am に対するパラメーター R

S と T は荷電分布の中心電荷(Zp)を $Zp = SA - TA^2$ で与える。Jonsson らは S=0.486, T=0.00038 として E_0 と At(Am)には依存しないとしたが，我々の fitting ではかなり異なる値を得ている。図-1における実験値の fitting では S=0.559, T=0.00103 となり，実線と破線のずれは主にこの S と T によるものである。S と T は E_0 に対しては独立であるが，質量数の依存性があるように思われる。Y～Au では，予想値よりも大きな値となっている。

$\hat{\sigma}$ は全非弾性散乱断面積に関係する。$\hat{\sigma}$ の E_0 と At 依存性は Jonsson らの予想式と一致する結果を得た。

以上，中重核領域では Jonsson らの予想式を用いた CDMD 式により実験値を良く再現できることが確認された。しかし，個々のパラメーターを見ると詳細な点では一致しなかった。特に ^{127}I，^{133}Cs などではパラメーターの予想式からはずれている。

<参考文献>

1) 柴田，窪田，吉田他，第29回放射化学討論会 1A05～1A07
2) G.G. Jonsson and K. Lindgren, Phys. Scripta 7, 49 (1973); 15, 308 (1977)
3) 坂本他，核理研研究報告 18, 290 (1985)

PHOTONUCEAR SPALLATION SYSTEMATICS (ON THE PARAMETERS OF RUDSTAM FORMULA)

Faculty of Science, Kanazawa Univ., Manabu YOSHIDA, Yasuhiro KUBOTA, Takuji FUKASAWA, Kazuhiko OSADA, Kazuto KOBAYASHI, Akira KUNUGISE, Yasunori HAMAJIMA, Koh SAKAMOTO
Inst. for Nucl. Study, Univ. of Tokyo, Seiichi SHIBATA, Mineo IMAMURA
Ottemongakuin Univ., Ichiroh FUJIWARA
Faculty of Science, Nagoya Univ., Michiaki FURUKAWA

1A04　Lu-175とAu-197の（γ，π-xn）反応

（金沢大理，東大核研*，追手門学院大**，名大理***）○浜島靖典，吉田学，
深沢拓司，長田和彦，小林一人，椚瀬彰，坂本浩，*柴田誠一，
*今村峯雄，**藤原一郎，***古川路明

【はじめに】　光核反応によって，原子番号が±１変化する反応に着目し，昨年Cs-133，I-127 ターゲットを中心にπ放出反応と，２次反応の寄与について議論した(ref.1)．本年はこれに関連し，制動放射線の最大エネルギー（Eo）が100MeV以下及び精度の高いEoによる100 ～200MeVでの再実験を行った．また，Eo＝30～1000MeV のV-51の再実験及び，新にLu-175，Au-197 からの収率を求め，標的核質量（At）依存性を調べた．

V →Crでは，Cr-48の結果が文献値(ref.2) と大きく異なる事，また，収率は，π反応の証と思われるAt**2/3 ないしAtには比例しない事が分った．従って，π反応なら，単純な表面或いは体積反応では説明し難い結果となった．

【実験】　①ターゲット：V，Luは酸化物の特級試薬をプレス成型した円板（～0.6 g/㎠），Auは0.25 g/ ㎠の箔．②照射：昨年と同様(ref.1) であるが，東北大学LINAC では，30，45，65 MeVをRIコースで，104，149，195MeV をそれぞれ±5%，±5%，±3%の精度で直線コースで照射した．③モニター：Al-27(γ，2pn)Na-24 及びAu-197(γ，n)Au-196反応(ref.3及び本要旨集1A01を利用.)　④化学分離：V →Cr：NaOH溶液に過酸化水素水を加え溶解し，硫酸にてpHを～3 とし，酢酸エチルで抽出．KOHで逆抽出後，クロム酸バリウム沈殿．Lu→Hf：王水に溶解後TTA-キシレンで抽出し，HClで逆抽出後，水酸化物沈殿．Au→Hg：減圧下で溶融しAg箔に蒸着．其の他の反応の分離及び⑤測定，解析，⑥化学収率の決定は，昨年(ref.1) と同様

【結果と考察】　V-51からは，Cr-48，49，51，Ti-51，　Au-197からは，Hg-190，191m，192，193m+g，193m，195g，197m の生成が確認できた．CsとLuについては，現在データ解析中．

図１にはV →Crの収率(open)を文献値(closed)(ref.2) と共にEoに対して示す．いずれの生成物も収率は百数十MeV から急激に立ち上がり，約400MeV以上でその増加は鈍る．Cr-49は文献値(ref.3) とほぼ一致しているが，Cr-48 の今回の結果はその約1/20である．文献値が異常である事は，いくつかの標的核についての質量収率曲線の比較（図２）からも明らかである　図３には，Au→Hgの収率をEo(>300MeV) に対し示す．傾向は，V →Cr並びに昨年報告したY-89→Zr，I-127 →Xe，Cs-133→Baとも同じである．

図４には，収率（400 ～1000MeV の平均）をπ+ 放出の文献値(refs.4,5)と共にAtに対して示す．（γ，π-），（γ，π+）の収率は，Atが増加すると共に減少する．（γ，π-xn）（X ≧1）は，Atと共に増加するが，Auでその増加は鈍り，減少するものもある．中性

はまじま　よしだ　ふかさわ　おさだ　こばやし　くぬぎせ　さかもと　しばた　いまむら　ふじわら　ふるかわ

子放出の有無で，この様に収率のAt依存性が全く異なるのは興味深い．☆印で示した（γ，π-xn）反応の収率（ΥAt(x)）の和（ΣΥ．x=0 →∞）の傾きは2である．これらの反応がπ放出反応であるなら，表面反応モデル（a=0.67）及び体積反応モデル（a=1.0）から予想されるAt依存性（共に図中に，破線で傾きを示した．）とは異なり，別の新しいモデル或いは説明を要する．

文献 (1)浜島ら，1985年度放射化学討論会要旨集(2)di Napoli et al., J. Inorg. Nucl. Chem., 40, 175(1978) (3)Johnsson et al., Z. Phys., A273, 97(1975) (4)Nydahl&Forkman, Nucl. Phys., B7, 97(1968) (5)Blomqvist et al., ibid., A162, 193(1971)

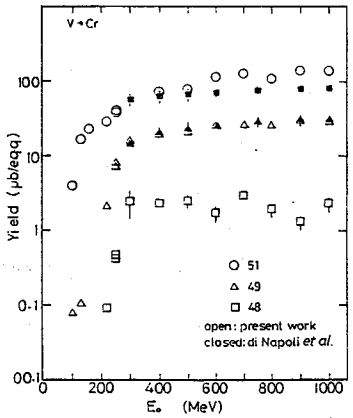


図1．V-51→Cr-51, 49, 48 の収率．

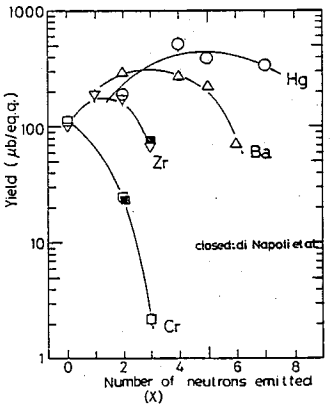


図2．放出中性子数xに対する収率変化

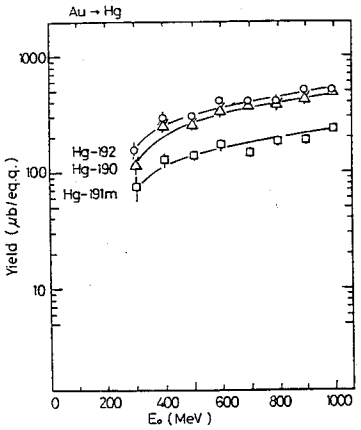


図3．Au→Hgの収率

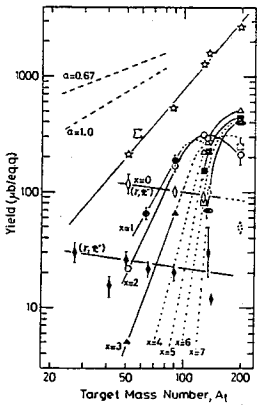


図4．収率（400 ～1000MeV の平均）のAt依存性

（γ，π-xn）REACTIONS ON Lu-175 AND Au-197

Faculty of Science, Kanazawa University, Yasunori HAMAJIMA, Manabu YOSHIDA, Takuji FUKASAWA, Kazuhiko OSADA, Kazuto KOBAYASI, Akira KUNUGISE, Koh SAKAMOTO
Institute for Nuclear Study, Seiichi SHIBATA, Mineo IMAMURA
Ottemongakuin University, Ichiroh FUJIWARA
Faculty of Science, Nagoya University, Michiaki FURUKAWA

1A05　放射化法によるTWO－MODE　FISSIONの検証

（阪大理）○若松智之，斎藤　直，横山明彦，篠原　厚，庄司正秀，
高橋成人，吉崎信樹，馬場　宏

1）はじめに

対称性核分裂が主体のプレアクチニド及び重アクチニド領域で，純然とした液滴型の核分裂の他に，生成途上の核分裂片の殻効果のためにもっとこじんまりした切断形状を経由するもう一つの核分裂の存在を示す報告が，核分裂片の運動エネルギー分布及び質量分布の測定をすることによりされている。[1,2]

そこで我々は，軽アクチニド核種の領域においても期待されるこの２モードの核分裂を $^{14}N+^{209}Bi$ 反応系の融合核の核分裂について調べることにし，放出される核分裂片の運動エネルギー及び質量分布を核化学的手法を用いて測定した。

2）実験

実験は阪大核物理センター(RCNP)のAVFサイクロトロンおよび原研のタンデム加速器の ^{14}N ビーム(88,95MeV)により行なった。運動エネルギー分布は核分裂片のAl中での飛程より求めた。飛程測定用には，Al箔上に蒸着した金属 Bi(1.87-2.01mg/cm^{-2}厚)の前方方向に１１枚の約 0.2g/cm^{2}厚捕集用Al箔を重ねたもの(RCNP)と，５枚の約 0.5mg/cm^{2}厚のAl箔を重ねたもの（原研）をスタックとして用いた。またBiの前後を約５mg/cm^{2}厚捕集用Al箔で覆ったスタックを質量分布測定用として用いた。γ線測定はGe半導体検出器を用い試料を非破壊のままで行なった。

3）結果と考察

得られた質量分布を図１に示す。核分裂生成物の独立または集積収率から，ガウス形の荷電分布を考慮して，各質量数の全収率を得た。なお，図中の実線は目安のためである。また，この曲線を積分することによって核分裂の反応断面積 $\sigma=0.24b$ を得た。これは Polikanovと Druin[3] が求めた値に比べいくらか小さい値である。核分裂片の微分飛程の結果の一例を図２に示す。各ビンが，捕集用Al薄箔中に捕集された相対放射能を示す。飛程の解析は，多重散乱を考慮したOSCAR-85計算機コード[4]を用い，

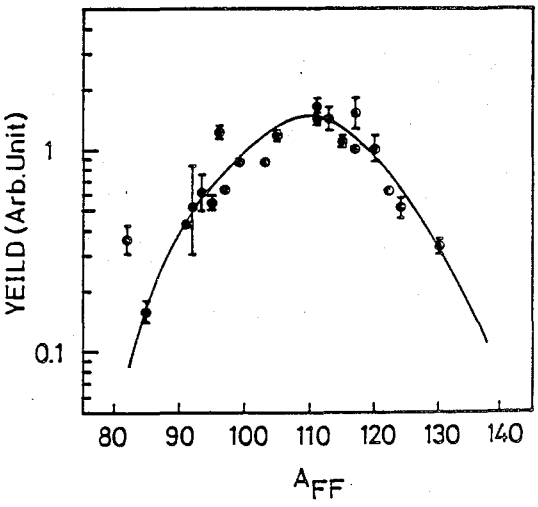


図１．95MeV $^{14}N+^{209}Bi$反応で生成した核分裂片の質量分布。

わかまつさとし，さいとうただし，よこやまあきひこ，しのはらあつし，しょうじまさひで，たかはしなると，よしざきのぶき，ばばひろし

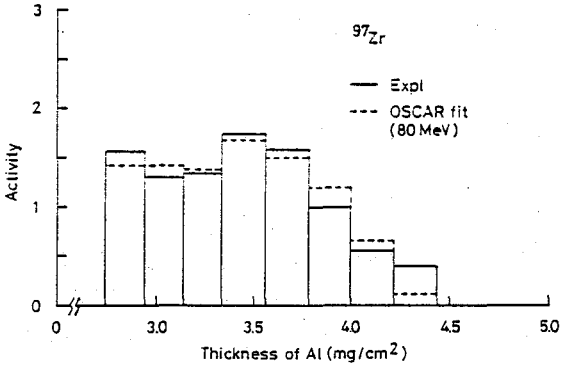


図２．　核分裂片の微分飛程測定の一例。OSCAR85で放射能比の再現を試みたものを点線で示す。

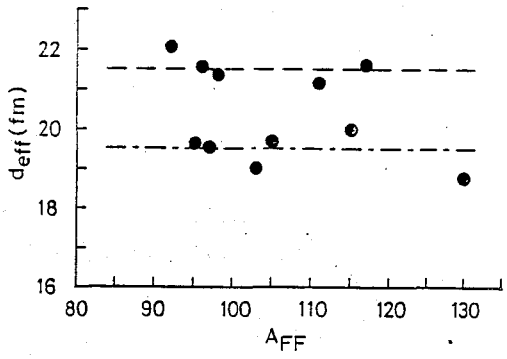


図３．　核分裂片の生成時の実効相互作用距離。点線は21.5fmを，鎖線は19.5fmを示す。

核分裂片の初期運動エネルギーを変化させて，実測値を最も良く再現する運動エネルギーを求めた。生成時における核分裂片間の実効相互作用距離を，核分裂片の電荷を点電荷として，先に求めた運動エネルギーから計算した。その結果を図３に示す。図から分かるように実効相互作用距離がd_{eff}=21.5fmの一群と，d_{eff}=19.5fmの群に分けられる。各群がそれぞれ異なったモードの核分裂に由来するものと考えられる。なお，この結果は昨年報告した110MeVでの結果と矛盾する点もあり，これの再検討も含め講演ではその他のデータを加えて発表の予定である。

References

1) M. G. Itkis, V. N. Okolovich, A. Ya. Rusanov and G. N. Smirenkin, Z. Phys. A320, 433 (1985).
2) E. K. Hulet, J. E. Wild, R. J. Dougan, R. W. Lougheed, J. H. Landrum, A. D. Dougan, M. Schadel, R. L. Hahn, P. A. Baisen, C. M. Henderson, R. J. Dupzyk, K. Summerer and G. R. Bethune, Phys. Rev. Lett. 56, 313 (1986).
3) S. M. Polikanov and V. A. Druin, Sov. Phys. JETP. 36, 522 (1959).
4) K. Hata, private communication.

RADIOCHEMICAL STUDY ON THE TWO-MODE FISSION

Faculty of science, Osaka University, Satoshi WAKAMATSU, Tadashi SAITO, Akihiko YOKOYAMA, Atsushi SHINOHARA, Masahide SHOJI, Naruto TAKAHASHI, Nobuki YOSHIZAKI and Hiroshi BABA

1A06　重イオン核融合反応断面積と高い角運動量下での核分裂障壁

（阪大・理，原研 *）　○横山明彦，*馬場澄子，馬場　宏

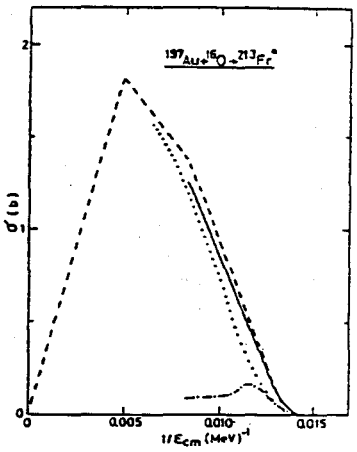
［緒言］重イオン核融合反応において，蒸発残留核生成反応が核分裂と競合するようなpre-actinide，およびその前後の元素を複合核とする領域では、融合反応断面積を得るために，核分裂と残留核を両方とも測定することが必要である．そして，これらの断面積（核分裂断面積，蒸発残留核生成断面積，以上の和になる融合反応断面積）の入射エネルギー依存性は，核分裂障壁の大きさや融合の臨界軌道，原子核－原子核ポテンシャル等の情報を与えるので重要である．

我々は放射化法やカウンター法[1]によって，この領域での励起関数をいくつか測定してきた．これらの結果をふまえて，重イオン融合反応の代表的なモデルである Bass model[2]と実験値との比較を行いモデルの正確さを調べるとともに，融合反応に関する新しい知見を探索することを試みた．また，励起関数から求められる新しい情報として，我々は前回の放射化学討論会で，一つの複合核につきただ一つ，狭い窓の間の角運動量に対する核分裂障壁を求める方法[3]について発表した．前回の発表では multichance fission の寄与について考慮していなかったので，この過程の寄与について考察をする．

［結果］融合反応の断面積は通常は単に入射エネルギーに対してプロットすることが多いが，入射エネルギーの逆数に対してプロットすると依存性が直線的になり， Bass modelとも比較しやすい．多くの文献値をも含めてこの方式でプロットし検討を行ったが，ここには二例を，Fig.1，Fig.2に示した．Fig.1は^{197}Au+^{16}Oの系における核分裂の文献値[4]（点線）および我々の放射化法による蒸発残留核のデータ（鎖線），これら二つの和の融合断面積（実線），を示したものである．そして Bass modelによる融合断面積の計算値を破線で示した． Bass modelは融合の領域を三つに分け，低エネルギー領域（摩擦力の効いていない領域），中エネルギー領域（摩擦力の効いている領域），高エネルギー領域（融合臨界角運動量が飽和して一定になる領域）の各々で計算を実行する．前二つの領域では、エネルギーの増加に対して断面積が増加するが，三つめの領域では減少する．実験値のほとんどは低エネルギー領域に集中している．Fig.2は^{197}Au+^{12}Cの系の場合で線の意味はFig.1と同様である．Fig.1，Fig.2の計算値と実測値の比較をしてみると，傾向は良くあっているが傾きが少々異なって計算値の方が大きめにでている．　次にこれらの励起関数から求められる特定の角運動量に関する核分裂障壁を他の文献等も含めてJ／A$^{1/3}$（J；複合核の角運動量，A；複合核の質量数）に対してプロットしたのがFig.3である．前回の報告よりプロットを増やしているのに加えて，multichance fission が効き始めていると思われるものを三角でプロットして区別している．また，横線で結んであるものは同じ複合核で一つの値になるはずの値であり，この誤差を考えれば，1st chance fission が主であると思われる点は直線に近い依存性があることがわかる．しかし，軽い pre-actinide

よこやまあきひこ，ばばすみこ，ばばひろし

の領域でずれている点がいくつかあり，これはこの領域では深部非弾性散乱等の複合核を経由しない反応と核分裂の区別がつきにくいために，融合断面積の決定が難しい事情を反映しているものと思われる．



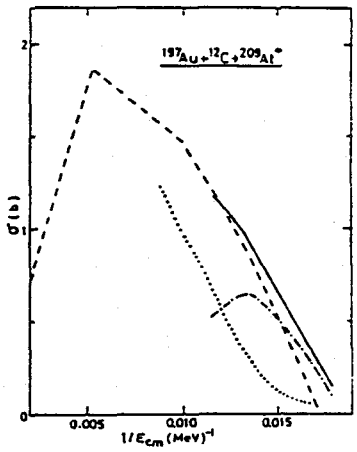


Fig.1 （左図）^{197}Au+^{16}O反応の融合断面積

Fig.2 （右図）^{197}Au+^{12}C反応の融合断面積

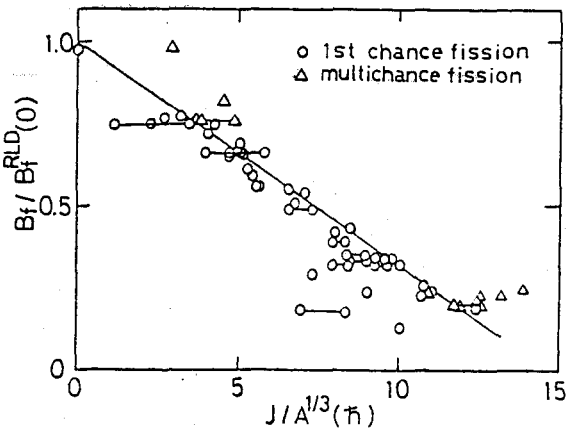


Fig.3 核分裂障壁の角運動量依存性．核分裂障壁の値は，J＝0の回転液滴模型の計算値に対する比で表わしている．斜めの線はデータから導いた依存性を示す．

［参考文献］ (1)篠原ら，第30回放射化学討論会講演予稿集(1986) 1A07 (2)R. Bass, Nucl. Phys. A231 (1974) 45; R. Bass, Phys. Rev. Lett. 39 (1977) 265. (3)横山ら，第29回放射化学討論会講演予稿集(1985) 1A15 (4)T. Sikkeland, Phys. Rev. 135B (1964) 669; G. E. Gordon et al., Phys. Rev. 120 (1960) 1341.（前者が^{16}Oのデータ，後者が ^{12}Cのデータ）

COMPOUND FORMATION CROSS SECTION OF HEAVY NUCLEI AND ITS ANGULAR MOMENTUM DEPENDENT FISSION BARRIER

Faculty of Science, Osaka University, Akihiko YOKOYAMA, Hiroshi BABA
Japan Atomic Energy Research Institute, Sumiko BABA

1A07　重イオンによる^{209}Bi、^{208}Pb、及び^{207}Pbの核分裂

（阪大・理、都立大・理[A]、金沢大・理[B]、追手門大・経[C]、名大・理[D]）
○篠原　厚、斎藤　直、高橋成人、横山明彦、庄司正秀、若松智之、杜　明進、吉崎信樹、鹿取謙二、馬場　宏、末木啓介[A]、初川雄一[A]、浜島靖典[B]、藤原一郎[C]、古川路明[D]

【はじめに】　重イオン誘起核分裂では、持ち込まれる角運動量が大きいため、核分裂障壁（B_f）に対する角運動量効果が顕著になる。この効果は、前講演[1]で述べられたように、ある特定の角運動量（J）に対するB_fが実験的に求められればより有効な議論が可能となる。そこで、我々は前講演の議論に基づき、データの不足しているJの小さい領域のデータを得るため、重い系の重イオン核分裂及び蒸発残留核生成の励起関数を測定している。今回は、融合核^{221}Acを生成する^{12}C+^{209}Biと^{14}N+^{207}Pb、^{222}Acとなる^{14}N+^{208}Pb、及び^{223}Thに至る^{14}N+^{209}Biの反応系を選び、核分裂断面積（σ_f）を測定したので、その結果を報告する。

【実験】　実験は、大阪大学核物理研究センターのＡＶＦサイクロトロンで行なった。90、100、110、125、140MeVの^{14}Nビームと、90、106、120、140MeVの^{12}Cビームを使って、上記の反応系についてσ_fを測定した。^{209}Biターゲット（0.3-0.6mg/cm^2）は蒸着により、^{207}Pb及び^{207}Pbターゲット（0.2-0.4mg/cm^2）はNiバッキング上に電着して作成した。測定は、核分裂片を２個の表面障壁型半導体検出器(SSD)で、その180°相関を利用したコインシデンス法により検出して行なった。一方の検出器（1.0msr）で相対微分断面積を測定し、大きい立体角（60msr）を持ったもう一方の検出器は、核分裂片のかたわれを捕獲できるように設置した。測定した核分裂が完全核融合核分裂であることは、核分裂片の角度相関の測定で確かめた。また、コインシデンス測定が困難な前方、及び後方もカバー

表１　核分裂断面積（σ_f）の測定結果

Projectile	Energy (MeV)	Fission cross section (mb)		
		^{209}Bi	^{208}Pb	^{207}Pb
^{12}C	89.2	839±27	-	-
	106.4	1241±42	-	-
	118.8	1322±68	-	-
	138.5	1547±67	1421±60	-
^{14}N	89.2	695±35	-	671±42
	99.1	1070±52	-	889±46
	108.9	1211±30	1095±30	1097±30
	123.8	1499±68	-	1361±61
	138.5	1577±36	1466±51	1482±48

しのはらあつし、さいとうただし、たかはしなると、よこやまあきひこ、
しょうじまさひで、わかまつさとし、どぅみんじん、よしざきのぶき、かとりけんじ、
ばばひろし、すえきけいすけ、はつかわゆういち、はまじまやすのり、ふじわらいちろう、
ふるかわみちあき

出来るように、シングルス測定も併用した。得られた相対断面積は、弾性散乱ピークに対し規格化し、別に求めた核ポテンシャルパラメーターを使って"ELAST2"により計算した理論弾性散乱断面積と比較して、絶対値に変換した。

【結果と考察】　表1に得られたσ_fをまとめた。また一例として、$^{14}N+^{207}Pb$の系について、σ_fの1／Eに対するプロットを図1に示した。蒸発残留核生成（σ_{ER}）の断面積は今のところ得られていないので、Bassモデル[2]による核融合断面積（σ_{fu}）の計算値（図1中の破線）からσ_fを差し引くことにより推定した（図1中の□印）。前講演で述べられた方法を使って、このデータから、$J_{ER}=15\pm2$、及び$B_f(J_{ER})/B_f(0)=0.74$を得、これと同じ値を与えるべき$^{12}C+^{209}Bi$のデータから、$J_{ER}=19\pm1$、$B_f(J_{ER})/B_f(0)=0.75$を得ている。この不一致の原因は主に核融合断面積にあると考えられるので、現在この計算の改良、もしくはσ_{ER}の実測について検討している。講演では、他の系の結果も含め、核分裂の角運動量効果などについて議論する。

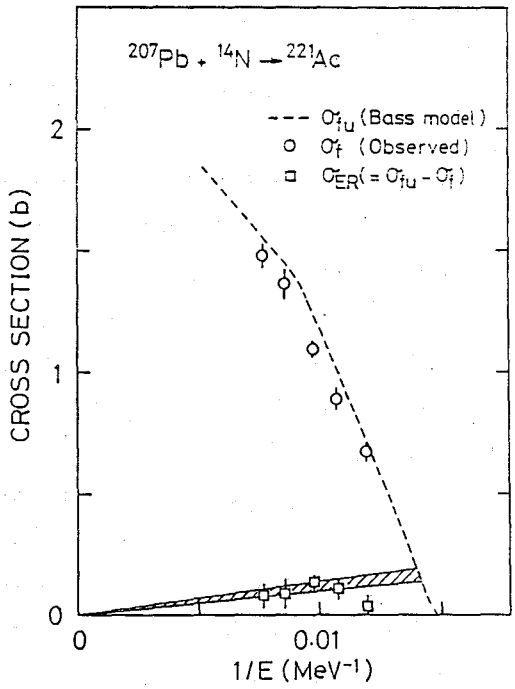


図1　$^{14}N+^{207}Pb$における1／Eに対するσ_{fu}、σ_f、及びσ_{ER}の励起関数。

【参考文献】

1) 横山 ら、第30回放射化学討論会、1A06 (1986).

2) R. Bass, Phys. Rev. Lett., 39, 265 (1977).

HEAVY ION INDUCED FISSION OF ^{209}Bi, ^{208}Pb, AND ^{207}Pb

Faculty of science, Osaka University, Atsushi SHINOHARA, Tadashi SAITO, Naruto TAKAHASHI, Akihiko YOKOYAMA, Masahide SHOJI, Satoshi WAKAMATSU, Ming-Jinn DUH, Nobuki YOSHIZAKI, Kenji KATORI and Hiroshi BABA

Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, Keisukem SUEKI and Yuichi HATSUKAWA

Faculty of Science, Kanazawa University, Yasunori HAMAJIMA

School of Economics, Otemon Gakuin University, Ichiro FUJIWARA

Faculty of Science, Nagoya University, Michiaki FURUKAWA

1A08　Biのα誘導核分裂

（金沢大，都立大*，理研**）○浜島靖典，大槻勤*，初川雄一*，末木啓介*，
中原弘道**，河野功**

【緒言】一昨年，昨年それぞれTh，Uの低エネルギー核分裂の質量分割について報告した．そこでは，分裂片の質量毎の角度分布の測定及び，詳細な励起関数の測定を行い，その結果は，「対称・非対称分割に導く異なる2つのサドルポイントが存在し，そこで分裂様式が決定される」というモデル(ref.1) を支持することを述べた．

本研究では，このモデルに関連して，Biのα誘導核分裂での①分裂片の角度分布の入射粒子エネルギー依存性を，Eα＝34～42 MeVまで，2 MeV おきに調べ，②34 MeVでは，分裂片の角度分布の分裂片質量に対する依存性をMH ／ML ＝1.0 ～1.5 について測定した．さらに③これらの結果を上記のモデルに基ずく理論計算と照合した．

【実験】　①約200 μg / cm²のセルフサポートのBiターゲットを約300nA の34～42MeV （2 MeV おき）α粒子を理研サイクロトロンで照射し，90°，150°，190°（Lab ）に置いたS.S.D.で分裂片をシングルで測定し角度異方性を求めた．②100 ～300nA の34MeV α粒子を入射し，ターゲットをはさんで置いた2個のS.S.D.で分裂片を25°，30°，40°，70°，90°（Lab ）で同時測定し，分裂片の質量比毎の角度分布を求めた．Set up，Data taking，解析方法は昨年(ref.2) と同じ③本実験のエネルギー範囲でのBiの核分裂は，single- chance fissionであると仮定し，核温度及び統計論に基ずく分裂片の角度分布(ref.3) を計算した．

【結果と考察】②の実験の90°（Lab ）で得られた質量収率曲線を図1に示す．典型的な対称分裂の様子を示し，ピークの中心は，106.5AMUであり，34MeV では確かに（α，f）である．また，分裂片の全運動エネルギーは，151MeVであり，Viola のシステマッティックス(ref.4)と一致している．なお注目する質量比1.4 での収率は0.9%，1.5 では0.3%である．

角度異方性の入射粒子エネルギー依存性を図2に示す．（誤差は，測定の統計及び $a + b \cdot \cos^2\theta$ へのフィットの誤差のみ考慮し，異方性W(0)/W(90)は1＋b/a で示す．図3も同様．）Huizengaの結果(ref.5) 及び③で求めた計算値（○）と比較すると，このエネルギー範囲での角度異方性はほとんど変化しないという傾向（●）は一致するが，絶対値は異なる．

図3に，Eα＝34MeV での角度異方性の分裂片質量比依存性を示す．統計不足のため，誤差は大きいが，質量比依存性は見られない．③の計算値を表1に示す．対称・非対称分割で，計算値では大きな差が表われるはずであるが，実験値では，誤差を考慮に入れても，計算値が示すほどの差は現れていない．

はまじまやすのり　おおつきつとむ　はつかわゆういち　すえきけいすけ
なかはらひろみち　こうのいさお

以上から，「緒言」のモデルで，角度異方性の入射粒子エネルギー依存性の傾向は，うまく説明できる．一方，Eα＝34MeV における質量比依存性は見られない事から，このモデルに従うなら，Biの核分裂は大部分対称分裂を導くサドルポイントを経由し，非対称分裂を導くサドルポイントは経由していないと言える．質量分布の広がりは，その後のゆらぎによるのもと思われる．

文献 (1)Moller&Nilsson, Phys. Lett., 31B, 283, (1970) (2)浜島ら，1985年度放射化学討論会要旨集 (3)Vandenbosch&Huizenga, NUCLEAR FISSION, p. 184, Academic Press, New York (1973) (4)Viola Jr., Nucl. Data. Sect., A1, 391(1966) (5)Vandenbosch&Huizenga, NUCLEAR FISSION, p. 194, Academic Press, New York (1973)

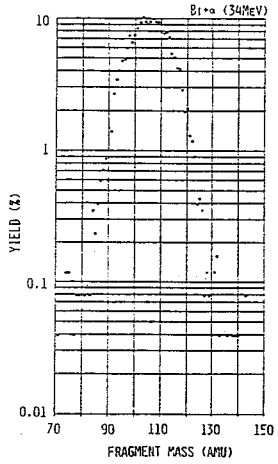


図１．質量収率曲線

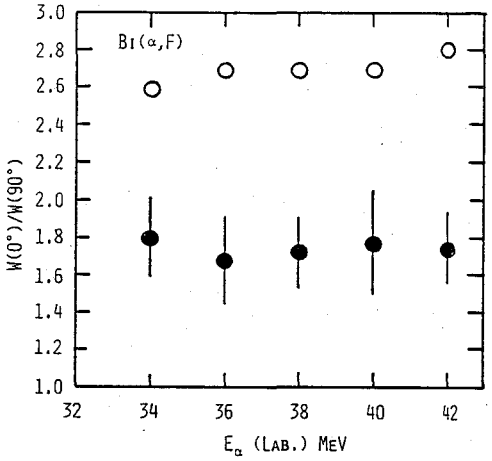


図２．角度異方性のEα依存性

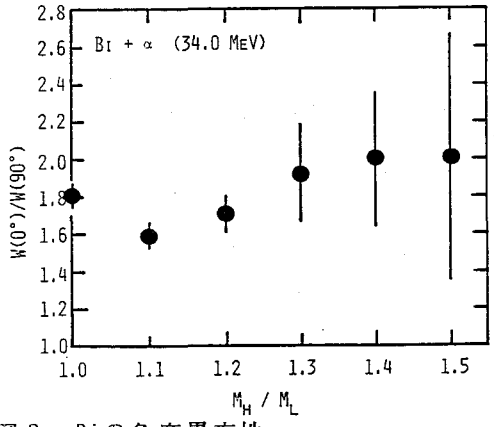


図３．Biの角度異方性

表１．角度異方性の計算値

	Bi+α (34.0 MeV)				
	B_f	E_{ex}	t	K_0^2	W
asym.	19.8	4.31	0.402	23.0	3.4
sym.	16.8	7.31	0.524	35.5	2.6

B_f: fission barrier hight (MeV)

E_{ex}:excitation energy at saddle (MeV)

t :nuclear temp. (MeV)

W :angular anisotropy W(0°)/W(90°)

α INDUCED NUCLEAR FISSION ON Bi

Faculty of Science, Kanazawa University, Yasunori HAMAJIMA

Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, Tsutomu OHOTSUKI, Yuuichi HATSUKAWA, Keisuke SUEKI, Hiromichi NAKAHARA

The Institute of Physical and Chemical Research, Isao KOHNO

1A09　$^{209}Bi + ^{20}Ne$反応における核分裂

（新潟大・理，都立大・理*）○堀越裕三，藤本　光，工藤久昭，
*初川雄一，橋本哲夫，外林　武

〔はじめに〕新同位体合成法として現在重イオン核反応が広く用いられており、超アクチニド元素や超重核種の合成を目的とする研究においては必要不可欠なものである。新同位体合成法としては融合反応後の軽粒子蒸発過程により生じる蒸発残留核が重要であるが、複合核が重くなるにつれてこれと競合する反応として核分裂反応が問題となってくる。これまでに核分裂については数多くの研究がなされてきたが、今だ統一的な理論を確立するには至っていない。本研究では、$^{209}Bi + ^{20}Ne$反応におけるクーロン障壁近傍での核分裂生成物の電荷分布と質量収率曲線を放射化学的手法を用いて測定し、核分裂反応断面積を求めるとともに、これらの分布について幾つかの考察を試みたので報告する。

〔照射〕約3mg/cm² のアルミ箔にBiを約1mg/cm²真空蒸着し、核分裂片を完全に捕えるためにアルミ箔を重ねたものをターゲットとした。これを理化学研究所サイクロトロンで124 MeV（ターゲット中心で106MeV）に加速した$^{20}Ne^{6+}$イオンビームを1時間から数時間照射した。$^{20}Ne^{6+}$ビームフラックスはカレントインテグレータを接続したファラデーカップを用いて測定した。ビーム電流は約10nAであった。

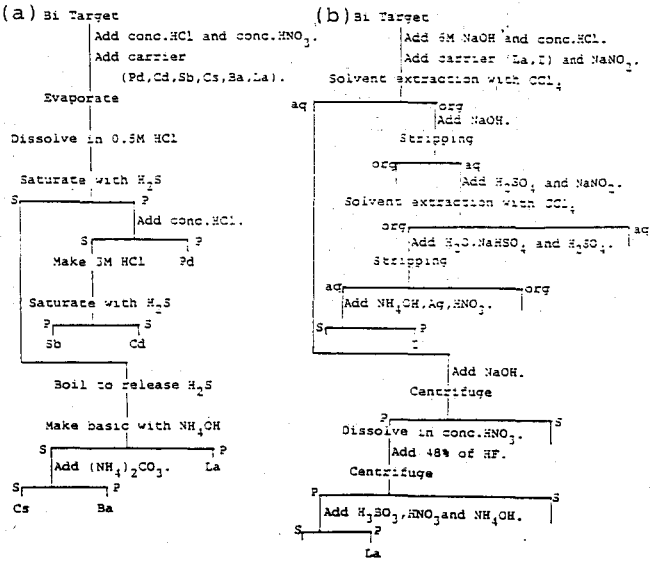


Fig.1. 化学分離フローチャート

〔測定〕4~5時間照射したターゲットは、アルミ箔とともに直接γ線測定を行なった後、Fig.1(a)の化学分離を行ない長寿命核種のγ線測定を行なった。またこれとは別に1~2時間照射したターゲットは、Fig.1(b)のような迅速化学分離を数元素について行ない、短寿命核種のγ線測定を行なった。化学分離を行なったサンプルは繰り返しγ線測定を行ない壊変曲線を追うとともに、測定終了後キャリアーを定量し化学収率を補正した。γ線測定には80cm³ Ge(Li)検出器と4096チャンネル波高分析器を用いた。この他、He-jet輸送装置を用いて数分から数十分の半減期を持つ核種についても測定を試みている。γ線スペクトル解析では、ピークとして認識できるものを全て同定した後、大きなピークについてはピーク自動解析プログラムにより、また小さなピークについては手計算により放射能強度を求めた。さらにこの値より核分裂生成物の反応断面積は、親娘関係が明らか

ほりこしゆうぞう，ふじもとひかる，くどうひさあき，はつかわゆういち，
はしもとてつを，そとばやしたけし

なものについては壊変による寄与を考慮に入れ計算を行なった。

【結果・考察】現在までに求められた核分裂生成物の反応断面積をTable.に示す。次に電荷分布はFig.2のように質量数の同じ核種についてガウス分布で近似することにより求めた。ここで分布の中のパラメータ $2\sigma^2$ は低エネルギー核分裂で得られている値0.9を用いた。核分裂片の電荷分布がUCDモデルで表現されるとすると、質量数92, 97の電荷密度(Z/A)は約0.416であるからNpの同位体が核分裂核であるとすると見かけ上の分裂核は $^{223\sim224}$Npとなり複合核より5~6個中性子欠損側へシフトしていることになる。一方電荷分布のピークとなる原子番号 Z_p が質量数Aの一次関数で表わされるとすると $Z_p(A)=0.3782\times A+3.57$ となる。この関数を用い他の核種の反応断面積を質量収率に換算しプロットしたものをFig.3に示す。図よりN=82, Z=50のShellに相当する質量数の部分を除くと質量収率曲線はほぼ一山構造となっている。質量収率曲線をガウス分布で近似すると、全核分裂反応断面積は74mb, 半値巾は30.7, 分布のピークの質量数は111.5となる。半値巾は低エネルギー重イオン核分裂で得られている値とほぼ同じであった。電荷分布より得られたピークとなる原子番号と質量数の一次の関係が質量収率曲線のピーク質量数111.5においても適用できると仮定すると、ここの電荷分布のピークは45.7であり、核分裂過程で中性子が2個放出されるとすると見かけ上の核分裂核は ^{225}Paと推定される。現在迅速化学分離より得られたデータが解析中であり、ALICE code, Break up fusionを考えたモデル計算により種々検討中である。

Table. 核分裂生成物の反応断面積

* :Measuring method, D:Direct C:Cemicall separated
**:Cross section type, I:Independent C:Cumulative

nuclide	γ-energy (keV)	γ-intensity (%)	method	type	cross section (mb)	error (%)
^{85m}Kr	151.1	75.0	D	C	0.609	19.9
^{91}Sr	555.6	94.9	D	C	1.08	44.0
^{92}Sr	1383.9	90.0	D	C	0.857	22.6
^{92}Y	934.5	13.9	D	I	0.54	53.8
^{97}Zr	743.3	98.5	D	C	1.63	13.8
^{96}Nb	568.9	55.7	D	I	1.10	27.8
^{97}Nb	658.5	6.98	D	I	0.778	185.
^{99m}Mo	140.5	87.7	D	C	4.12	18.2
^{105}Ru	469.4	17.3	D	C	4.91	10.3
^{111m}Pd	172.2	33.5	C,D	I	2.01	19.7
^{112}Pd	617.4	42.5	C	C	4.85	7.62
^{117m}Cd	1066.0	23.1	D	I	2.39	21.9
^{113}Ag	316.1	10.1	D	C	9.97	19.8
^{129}Sb	812.8	43.5	D	C	0.689	34.4
^{130}I	536.1	99.0	D	I	0.899	12.0
^{135}I	249.8	90.4	D	C	0.295	57.4
^{132}Te	228.2	88.1	D	C	1.75	59.1
^{143}Ce	293.3	42.8	C	C	0.699	41.4

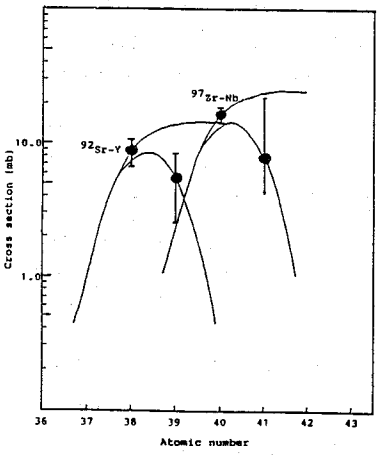


Fig.2. 電荷分布.

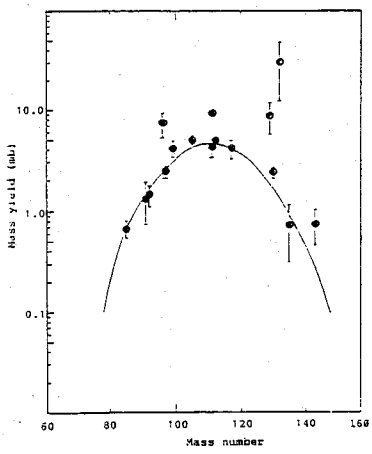


Fig.3. 質量収率曲線.

MASS DISTRIBUTION OF FISSION PRODUCTS IN THE SYSTEM OF ^{20}Ne ON ^{209}Bi.

Faculty of Science, Niigata University, Yuzo HORIKOSHI, Hikaru FUJIMOTO, Hisaaki KUDO, Tetsuo HASHIMOTO, Takeshi SOTOBAYASHI
Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, Yuichi HATSUKAWA

1A10　軽質量系の重イオン核反応における質量分割

（都立大理）○末木啓介・中原弘道
（理研）　河野功
（信大繊維）　松瀬丈浩

［緒言］今までに$^{20}Ne+^{50}Cr$、$^{16}O+^{54}Fe$、$^{12}C+^{58}Ni$重イオン核反応系における入射核より重い粒子の運動エネルギー分布、電荷分布などについて実験結果を報告してきた。得られた反応系での反応生成物の特徴をまとめると二つの種類となる。一つは、入射核からZで3～4ぐらいまでの生成物で、角度分布は前方ピークをエネルギー分布は前方から後方へ次第に低くなりエネルギーの移行が起こっていることを示した。他方は、入射核よりZで4～5以上離れた対称分割生成物で、角度分布は$1/\sin\theta$となりエネルギー分布についても角度によってほとんど変化しない。前者は、深部非弾性過程の特徴が強く表れていて、後者は、非常に反応時間の長い深部非弾性過程か複合核形成した後の核分裂過程であろうと考えられた。しかし、これら2つの過程は重なり合って観測されているため、分離して各々の反応機構について議論することが困難であった。今回は、軽質量系の重イオン核反応における深部非弾性過程（非平衡過程）と核分裂過程（平衡過程）について更に検討してきたので報告する。

［解析と結果］深部非弾性過程と核分裂過程について考えるに当たって二つの段階で考えた。第1段階は核分裂過程の可能性及びその分裂片の電荷分布について理論予想を検討した。第2段階は、実験で得られた電荷分布に核分裂過程の寄与を除いて、電荷移行を拡散模型によって解釈した。

（第1段階）核分裂過程について

軽質量系の重イオン核反応において、持ち込まれる角運動量が大きくなると核分裂障壁が低くなり核分裂現象が起こり易くなることが、rotating liquid drop 模型において示された。[1]また、実験結果からも140MeV$^{20}Ne+^{50}Cr$と$^{20}Ne+^{54}Cr$反応系において、標的核の質量依存性が示された。[2]これは、fissility parameter（Z^2/A）の影響によるものと考えられ、蒸発過程との競争を考えた統計模型プログラムALICEによっても同様な示唆が得られた。次に、核分裂片の質量及び電荷分布について予想することが必要となる。これについては、拡張されたHauser Feshbach法により求めることが出来た。この方法では、核分裂片そのものを蒸発過程と同様に取り扱うことにより生成する核分裂片の質量及び電荷分布を求めることができる。そして、OeschlerらのA≅100前後の反応系[3]及び$^{48}Ti+^{16}O$、$^{35}Cl+^{27}Al$反応系についてその質量及び電荷分布を説明することに成功した。[4]これを今までに得られた実験結果に対して、計算した結果を図1a～2aに示した。図1は125MeV$^{16}O+^{54}Fe$反応系で、図2は120MeV$^{12}C+^{58}Ni$反応系である。図からわかるように対称分割生成物の周辺ではかなり良い一致を示した。

すえきけいすけ・なかはらひろみち・こうのいさお・まつせたけひろ

（第２段階）深部非弾性過程について

実験で得られた電荷分布に計算で得られた核分裂の寄与を引くと、深部非弾性過程による電荷分布が得られる。これらの結果は図１ｂ、２ｂにそれぞれ示した。次に、この結果に対して拡散模型から電荷分布について考える。Nörenberg らの拡散模型によると次式で表すことが出来る。

$$P(Z_1,\tau_{int}) = (4\pi D_Z \tau_{int})^{-1/2} \exp\left(-\frac{(Z_1 - Z_0 - v_Z\tau_{int})^2}{4 D_Z \tau_{int}}\right)$$

ここで、D_Zはdiffusion係数であり、v_Zは drift係数である。また、τ_{int}は反応時間である。更に、Z_0は電荷分布の中心である。 この式から、我々は、電荷分布をガウス分布として近似した。その際、$v_Z\tau_{int}=0$であることと$Z_0=Z_P$であることを仮定して電荷分布の変化について調べた。これらの計算結果から深部非弾性過程について議論する予定である。

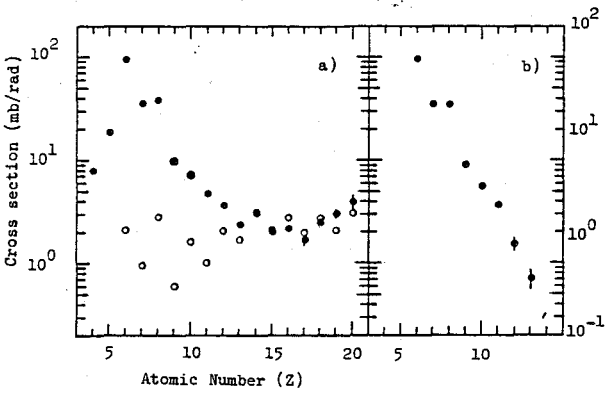


図１　１２５MeV^{16}O+^{54}Fe反応系
a)　● $\theta_{cm}=40^\circ$で得られた電荷分布のデータ、
　　○ 理論計算により得られた核分裂生成物の電荷分布
b)　a）のデータの差をとったもの。

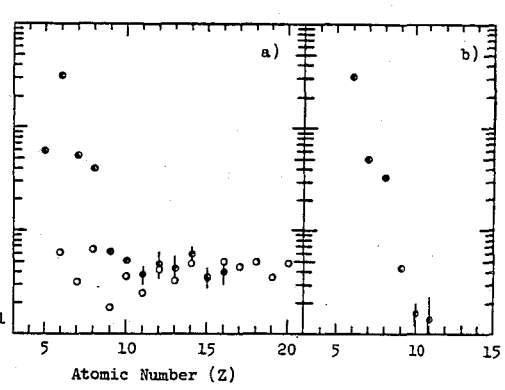


図２　１２０MeV^{12}C+^{58}Ni反応系
a）、b）の説明は図１と同じ。

References
1) S.Cohen et al.,Ann. Phys. 82, 557(1974).
2) Y.Nagame et al.,Z. Phys. A317, 31(1984).
3) H.Oeschler et al.,Phys. Lett. 87B, 193(1979) and other papers.
4) S.M.Lee et al.,The symposium on THE MANY FACTS OF HEAVY ION FUSION REACTIONS, Argonne National Laboratory(1986).
5) W.Nörenberg,Phys. Lett. 53B, 286(1974) and other papers.

MASS SPLITTING OF HEAVY ION REACTIONS IN LIGHT MASS SYSTEM.

Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, Keisuke SUEKI,
Hiromichi NAKAHARA,
Institute of Physical and Chemical Research, Isao KOHNO,
Faculty of Textile Science and Technology, Shinshu University, Takehiro MATSUSE.

1A11　アクチノイド元素の低エネルギー核分裂における質量収率曲線の形状

（都立大理・理研*・原研**）○大槻勤・末木啓介・中原弘道
河野功*・篠原伸夫**・間柄正明**・永目諭一郎**

[緒言]

近年，アクチノイド元素について自発核分裂，熱中性子核分裂，あるいは軽イオン入射による核分裂から重イオン入射による核分裂まで多くの研究がなされてきた。特に質量収率曲線については多数のモデルが提唱されているが、分裂核が分裂に到るメカニズムについて理論的にも核子数が200個以上の核について変動方程式を解くのは容易なことではない。よって，どのような考え方をすれば実験的事実をよく説明することができるかについては今だにわかっていない。

本研究ではアクチノイド元素の低エネルギー核分裂における質量収率曲線の形状について、どのような性質があるか調べてみた。熱中性子核分裂，自発核分裂等では非対称分裂核種が多く生成する二重山になることが知られているが、それらは理論的に得られた質量収率曲線の形状とは一致しているとは言えない。我々はこれらの質量収率曲線の形状，主にその非対称分裂部分の半値幅（FWHM）を分裂核の質量，中性子数、陽子数などについて系統的に調べ、現在まで行なわれてきた実験事実を解釈するにあたって、その結果などのような傾向にあるか検討したので報告する。又、これらの一端としてアクチノイド元素の低エネルギー陽子誘起核分裂についても調べてみたが，陽子誘起による核分裂についての報告は少なく，我々は $^{235}U+p$，$^{237}Np+p$[1]，$^{238}U+p$[2]，$^{241}Am+p$，$^{242}Pu+p$，$^{243}Am+p$，$^{244}Pu+p$ 等の反応系において実験を行し、それぞれの質量収率曲線の形状、特にその非対称分裂部分のFWHMについてもすでに報告がなされている実験結果とともに、どのような傾向にあるかについて調べたので報告する。

[実験]

それぞれの核種（^{235}U，^{237}Np，^{238}U，^{241}Am，^{242}Pu，^{244}Pu）をイオン交換法などにより精製し，アルコール溶液より数百マイクログラムづつをAl箔に電着し，ターゲットを作製した。又，それらのターゲットの厚さはα線スペクトロメトリー等によって求めた。次に分裂片を補収するために適当な厚さのAl箔をキャッチャーホイルとして重ね照射を行なった。照射は日本原子力研究所、タンデム型バンデグラフ加速器により、それぞれの系について励起エネルギーをほぼとろえて、陽子約1μAの強度で適当な時間照射を行なった。照射後直ちに、Ge(Li)半導体検出器により分裂片核種のγ線を測定した。解析は半減期解析法によりそれぞれの核種の収率を求めた。次にFWHMの解析には、東京大学計算機センターで開発された最小二乗法によるfittingのプログラムであるSALSを用いて適当な関数型によるfittingを行ない、できるだけ実験で求められた質量収率曲線を再現するようにして求めた。

おおつきつとむ，すえきけいすけ，ながはらひろみち，こうのいさお，しのはらのぶおまびきまさあき，ながめゆいちろう

[結果及び考察]

熱中性子核分裂，自発核分裂及び陽子誘起による核分裂の分裂核の質量数（A_f）とFWHMとの関係を図1に示す。A_f=240 前後において熱中性子核分裂，自発核分裂，陽子誘起核分裂ともにギャップが認められた。又、図2，図3にお熱中性子核分裂，陽子誘起核分裂について、それぞれの分裂核の陽子数とFWHMの関係，中性子数とFWHMの関係を示す。N VS FWHMでは，N=145～150においてFWHMは減少したがZ VS FWHMではそのような傾向はよくわからない。FWHMの解析（SALS）にはいろいろな関数型を用いたが二つのガウス型曲線の組み合わせが一番よりフィット示した。今回はFWHMとA_f, Z, Nの関係，又ガウスフィットの内容等を中心に、これらのことから考えられる質量収率曲線の性質などについて考察を加えたい。

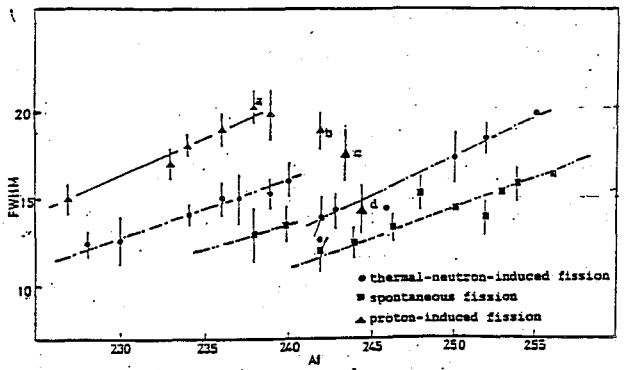
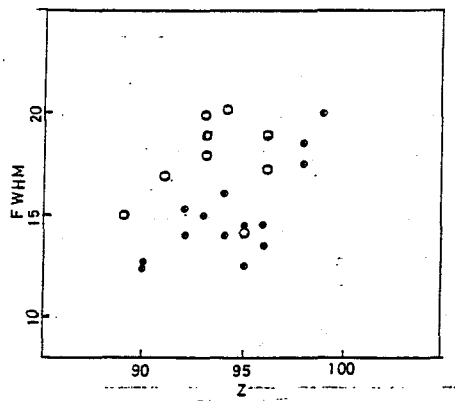
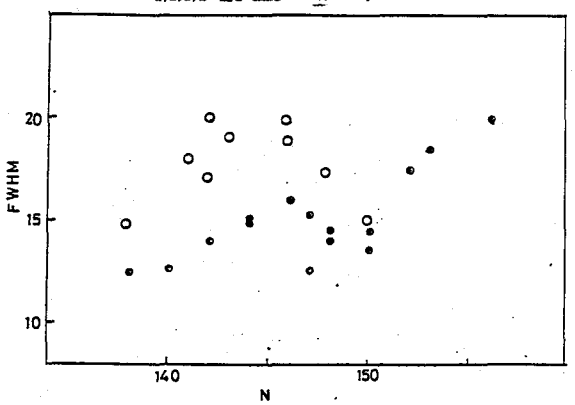


Fig.1 Widths of distributions (FWHM=full width at one-half of maximum heigth) for various fissioning nuclides and for different types of fission
a,b,c,d are this warks



● thermal-neutron-induced fission
○ proton-induced fission

Fig 2



● thermal-neutron-induced fission
○ proton-induced fission

Fig 3

[文献]

1) 大槻勤・他 第29回放射化学討論会 1A10 (1985)
2) 浜島靖典・他 第29回放射化学討論会 1A09 (1985)

CONFIGURATION OF MASS YIELD CURVES IN LOW ENERGY FISSION OF ACTINIDE ELEMENTS

Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, Tsutomu OHTSUKI
Keisuke SUEKI
Hiromichi NAKAHARA
The Institute of Physical and Chemical Research, Isao KOHNO
Japan Atomic Energy Research Institute, Nobuo SHINOHARA, Masaaki MAGARA
Yuichiro NAGAME

1A12　^{237}Npの陽子誘起核分裂の励起関数

(都立大理・理研*)
○大槻勤・末木啓介・初川雄一・中原弘道・河野功*

[緒言]

核分裂に伴う諸現象のうち、実験的にもっともよく研究されているものは質量収率曲線であり、しかし依然として、この曲線についての解明はなされていないと言ってより。これらの理解のために分裂核が分裂に到るモデルとしていろいろな考え方（たとえばsaddle point model，あるいはscission point model，又、saddle pointからscission pointまでのdynamicsを考慮したモデル等）が提唱されてきたが、質量収率曲線の疑問に十分答えている理論はまだ提唱されていない。

当研究室では特にアクチノイド元素の低エネルギーによる陽子誘起核分裂の実験を行なうことにより、質量収率曲線の持つ性質について調べてきた。本研究では^{237}Npの陽子誘起核分裂[1),2)]について、昨年は16 MeVから9 MeVまで報告した。今回はこれに32 MeVから14 MeVまでの実験を行なった。このエネルギー領域で質量収率曲線の入射エネルギー依存性、励起関数の形状、multiple chance fission，又、陽子の入射エネルギーに対する対称分裂と非対称分裂領域の核種の比（P／V ratio）がどのように変化するかなどについて詳しく調べたので報告する。

[実験]

^{237}Npを硝酸系により陰イオン交換法を用いて精製し、アルコール溶液よりそれを約200 $\mu g/cm^2$ Al箔に電着をし、ターゲットを作製した。^{237}Npの厚さはα線スペクトロメトリーにより行なった。分裂片の捕収のためキャッチャーホイルでターゲットを包み、又、陽子の入射エネルギーモニターのためのCu箔とAg箔をそれぞれ適当な間隔に配置してスタックを組んで使用した。実験は東京大学原子核研究所SFサイクロトロンにより、約2μAの強度で入射エネルギーを変えて数回照射を行なった。照射後直ちにGe(Li)半導体検出器による測定を行なった。解析はγ線のエネルギーおよび、半減期からCLSQによる解析を行ない、それぞれの核分裂収率を求めた。

[結果および考察]

陽子の入射エネルギー32 MeVから9 MeVまで約1 MeVの間隔で質量収率曲線を求めたが、図1には32 MeV，27 MeV，21 MeV，15 MeV，10 MeVのそれぞれの質量収率曲線を示す。陽子の入射エネルギーが高くなるにつれて非対称分裂領域の形状が変化しないのに対して、対称分裂領域の形状は特に低エネルギー部分で大きく変化している。この傾向は$^{232}Th + p$[3)]，$^{238}U + p$の結果と同様の傾向を示した。又、陽子の入射エネルギー32 MeV付近では10 MeV程度の入射エネルギーによる結果と比較すると、非対称分裂のピークの位置は狭くなる傾向がある。P／V ratioについては、低エネル

おおつきつとむ，すえきけいすけ，はつかわゆういち，なかはらひろみち，こうのいさお

領域については昨年発表したが、対称分裂核種どうしの収率の比、あるいは非対称分裂核種どうしの収率の比はあまり変化がないのに対して、対称分裂核種の収率と非対称分裂核種の収率の比は、14 MeV ~ 16 MeV では変化は少ないが、その他の入射エネルギー領域ではかなりの変化が見られた。討論会ではこれらの現象に加え、対称分裂領域と非対称分裂領域の中間の領域ではこれらの比はどのようになるかなど検討して報告したい。又、得られた結果について蒸発過程と核分裂過程の競争の計算を用いて核分裂の障壁の高さ及び level density のパラメーター等と適当に変化させることによに、実験値の励起関数の形状、及び P/V ratio 等の再現を試みる。^{232}Th + P, ^{238}U + P 等の実験結果及び理論計算結果の比較検討なども併せて報告する予定である。

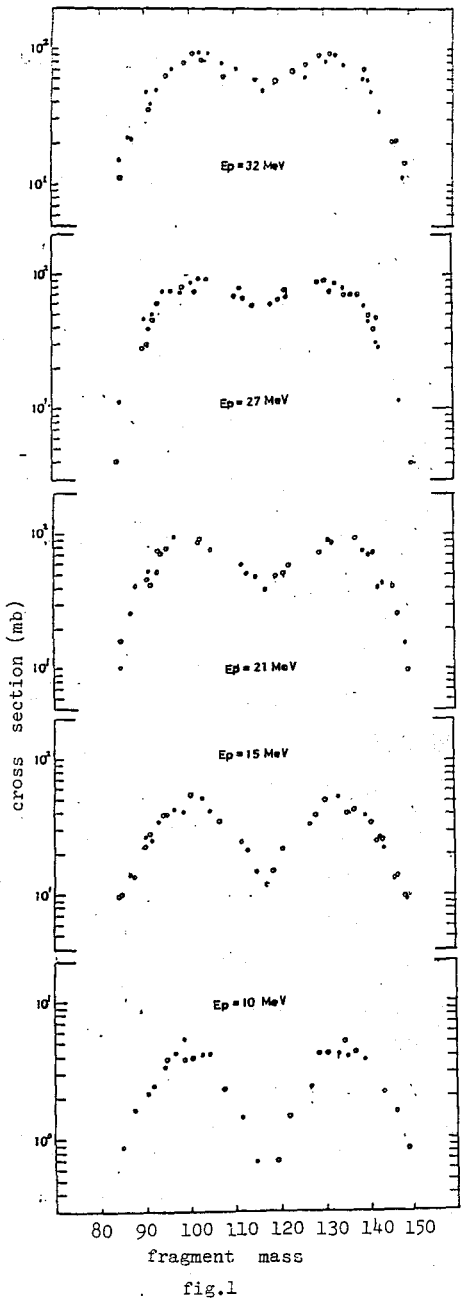


fig.1

[文献]

1) 大槻勤・他，第29回放射化学討論会 1A10，東邦大学 1985.

2) P. Polak et al. J. inog. nucl. chem., 42 641-653 (1979).

3) H. Kudo et al. Phys. Rev. C, 6 3011-3021 (1982)

4) 浜島靖典・他，第29回放射化学討論会 1A09，東邦大学，1985.

CROSS SECTION OF ^{237}Np PROTON INDUCED FISSION

Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, Tsutomu OHTSUKI
Kisuke SUEKI
Youichi HATSUKAWA
Hromichi NAKAHARA

The Institute of Physical and Chemical Research, Isao KOHNO

1A13　IGISOLの開発

（理研、東大核研[A]、東北大サイクロ[B]、都立大理[C]、筑波大[D]、新潟大理[E]）
森田浩介、稲村　卓、野村　亨[A]、田中仁市[A]、宮武宇也[A]、藤岡　学[B]、篠塚勉[B]、浜　広幸[B]、吉井正人[B]、田口和博[B]、末木啓介[C]、初川雄一[C]、古野興平[D]、○工藤久昭[E]

［序］　最近イオン源をもたないオンライン質量分離器（Ion Guide Isotope Separator On-Line）が Ärje らによって開発された[1]。この質量分離器は通常のものとは異なりイオン源を持っていないため、1)室温で作動する、2)分離に要する時間が短い、3)消耗部分がないので寿命の制限がない、4)収率は元素によらず高融点元素にも適用できる、5)しかも高収率である、等のすぐれた性質を持っている。この質量分離器の原理は次の通りである。標的室内に入った入射粒子は標的と核反応を起こす。反応生成核は反跳エネルギーによりイオン状態となって標的から飛びだし、標的室内のヘリウムガス中でエネルギーを失い熱化される。熱化された反跳核は、ある割合で、ある時間だけ1+のイオン状態になっている。この1+イオンをヘリウムガスとともに小さい出口孔から電圧をかけつつすばやく引き出して質量分離器の引き出し電極によって加速する。後は従来の質量分離器の場合と同様に電磁石によって質量分離、収集する。この種の質量分離器は主に軽イオン反応で成功をおさめてきたが、これを重イオン反応に適用するには種々の問題がある。すなわち、重イオン反応においては反跳エネルギーが大きいことから、反跳核が熱化されるためには高いガス圧あるいは大きな標的室が必要となる。また一方では重イオンの大きなエネルギー損失のために高密度プラズマが標的室内に形成される。このような状況下において反跳生成核が1+イオンの状態で存続可能かどうかは大いに疑問である。演者らはこれらの問題について種々の実験を試み、検討したので報告する。

［実験・結果］　Fig.1 に本研究で用いられた IGISOL の中心部分を示す。円筒形の標的室は直径 16 mm、長さ 10 mmであり、直径 1.5 mm の出口孔を持っている。標的室は排気速度 4200 m³/h のルーツポンプで排気された真空箱の中におかれており、ポンプと共に 60 kV の電圧に耐えるようグランドから浮かしてある。Fig.2 に質量分離器のそれぞれの位置での典型的な輸送効率を示す。全輸送効率は約 2% であった。Fig.3 には、複合核の励起エネルギーが等しい反応により生成する ^{28}Alの相対収率を示す。図の横軸は入射粒子の標的室内でのエネルギー損失と入射粒子の数の積であり、入射粒子の通り路に形成されたプラズマ密度に比例していると考えられる量である。図より明らかなようにすべての実

験点は、なめらかな曲線上にのっている。このことは、反跳生成核の収率は入射粒子の種類によらずプラズマ密度に主に依存していることを示す。

参考文献

1) J.Ärje and K.Vali, Nucl. Instr. & Methods, 179, 533(1981) and J.Ärje et al., Phys. Rev. Lett., 54, 99(1985)

Fig.1

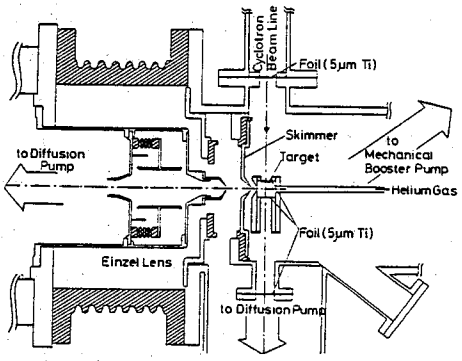
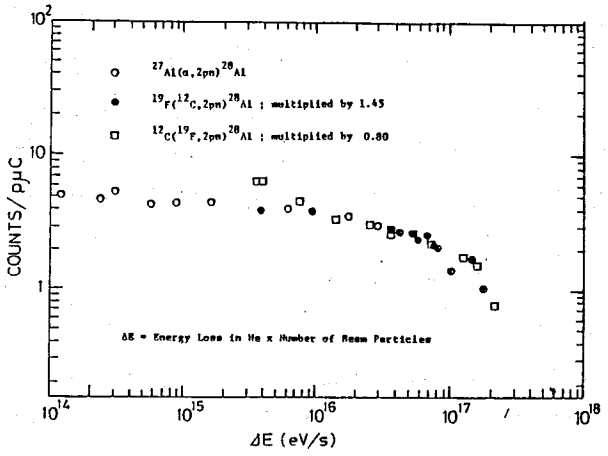


Fig.3



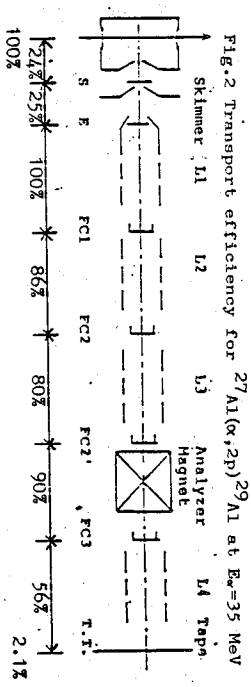


Fig.2 Transport efficiency for ^{27}Al(α,2p)^{29}Al at E_α=35 MeV

DEVELOPMENT OF IGISOL

Institute of Physical and Chemical Research, Kohsuke MORITA, Takashi INAMURA
Institute for Nuclear Study, University of Tokyo, Toru NOMURA, Jinichi TANAKA
Hiroari MIYATAKE
Cyclotron and Radioisotope Center, Tohoku University, Manabu FUJIOKA, Tsutomu SHINOZUKA, Hiroyuki HAMA, Masato YOSHII, Kazuhiro TAGUCHI
Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, Keisuke SUEKI, Yuichi HATSUKAWA
Institute of Physics and Tandem Accelerator Center, University of Tsukuba, Kohei FURUNO
Faculty of Science, Niigata University, Hisaaki KUDO

1A14　「^{209}Bi + ^{16}O, ^{20}Ne　反応」核子移行反応を中心として

（新潟大・理、東大・核研[A]、都立大・理[B]、原研[C]）
○工藤久昭、堀越裕三、橋本哲夫、外林　武、野村　亨[A]、末木啓介[B]、
初川雄一[B]、間柄正明[C]

［序］　重イオン核反応における核子移行過程においては、入射粒子近傍の同位体生成断面積はいわゆるQ_{gg}依存性を示すことが知られている。これは、 composite system において部分的平衡が成り立っているとした統計論によって説明されており、[1] そこから核温度が推定されている。同様に、標的核近傍の同位体生成断面積に関しても（^{14}N + ^{62}Ni の系における Co の同位体）、Q_{gg}依存性を示し、しかもそこから算出された核温度は入射エネルギーに依存しないことが最近報告されている。[2] 一方、 240 MeV ^{12}C + ^{197}Au の系における標的核近傍（標的核のZより大きい元素）の同位体生成断面積は明らかにQ_{gg}依存性を示さない。[3] この理由として入射粒子のエネルギーが高いため、第一段階で核子移行によって生成した核が高励起状態にあり粒子蒸発が引き続き起こったためと考えることもできるが、低エネルギーの重イオン反応においてもQ_{gg}依存性がないという報告もあり、[4] いまだ確立されていない。

演者らはこれまで ^{16}O + ^{209}Bi および ^{20}Ne + ^{209}Bi の融合反応を用いて、それぞれプロトアクチニウムとネプツニウムの新同位体の合成を試みてきた。[5] これらの新同位体の検出方法としてα－スペクトロメトリーを主に用いたが、この際副反応である核子移行反応によると思われる生成物が多数観測された。今回はこれらの生成物の生成機構について検討したので報告する。

［実験］　実験の詳細は前回の報告の通り[5]であり、測定方法としては、

（１）　He-jet transport system （$T_{1/2} \gtrsim 100$ ms ）

（２）　In beam α-spectrometry （ 10 ms$\gtrsim T_{1/2} \gtrsim$ 0.1 ms,　$T_{1/2} \lesssim 0.2\mu$s ）

（３）　Recoil catcher foil method　（$T_{1/2} \gtrsim$ 10 min ）

を用いた。

［結果と考察］　Fig.1 に ^{16}O + ^{209}Bi の系における Fr の同位体の励起関数を示す。図の下部の実線は複合核形成を仮定した ALICE code[6] による計算値である。この図より、Fr の同位体は明らかに複合核由来の生成物とは異なっていることが推定される。二体を仮定したQ　に対する生成断面積をプロットしたのが　Fig.2 である。^{14}N + ^{62}Ni における Co 同位体に見られたようなQ_{gg}依存性[2]は示さず、むしろ 240 MeV ^{12}C + ^{197}Au におけ

くどうひさあき、ほりこしゆうぞう、はしもとてつを、そとばやしたけし、のむらとおるすえきけいすけ、はつかわゆういち、まがらまさあき

る標的核近傍のう同位体収率[3]と類似した様相を呈している。すなわち核子移行によって高励起状態の核が生成しそこから軽粒子（主に中性子）が蒸発したと思われるような分布を示している。しかし、たとえば入射^{16}O核が標的核と衝突してこわれ、入射粒子と等しい速度の^{12}Cあるいは^{8}Beが^{209}Biと融合したとして、励起された$^{221}Ac^{*}$あるいは$^{217}Fr^{*}$の統計論的脱励起によっては、これを説明できない。

参考文献

1) V.V.Volkov, Phys. Rep. 44, 93(1978)

2) K.Sueki et al., Radiochim. Acta, 38, 117(1985)

3) H.Kudo et al., Phys. Rev. C30, 1561(1984)

4) J.C.Jacmart et al., Nucl. Phys. A242, 175(1975)

5)工藤ら，第29回放射化学討論会講演予稿集(1985)1A16

6) F.Plasil, ORNL Report, TM-6054(1977)

Fig.1

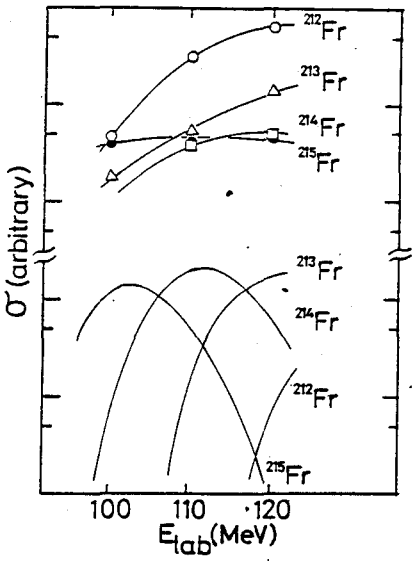
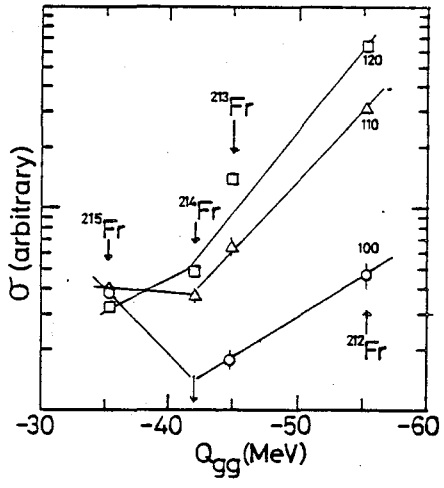


Fig.2



TRANSFER REACTION IN THE SYSTEMS OF ^{16}O AND ^{20}Ne ON ^{209}Bi

Faculty of Science, Niigata University, Hisaaki KUDO, Yuzo HORIKOSHI, Tetsuo HASHIMOTO, Takeshi SOTOBAYASHI

Institute for Nuclear Study, University of Tokyo, Toru NOMURA

Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, Keisuke SUEKI, Yuichi HATSUKAWA

Japan Atomic Energy Research Institue, Masaaki MAGARA

1A15　$^{3}He+^{197}Au$反応系における核子移行過程

（阪大・理）庄司正秀，○斎藤　直，篠原　厚，横山明彦，若松智之，
馬場　宏

われわれは，これまで標的核^{197}Auに入射する低エネルギー^{3}Heによって誘起される核反応を放射化法[1]とカウンター法[2]を用いて研究してきた。励起関数と平均反跳飛程の放射化学的測定から，Tl同位体を生成する（^{3}He,xn）反応は，典型的な複合核過程であり，Au同位体を生成する反応は非複合核過程であることがわかった[1]。検出された質量数198，196,195,194のAu同位体の生成過程を，直接反応的な中性子移行で一括して捉えることには無理がある。そこで，（^{3}He,αxn）過程の寄与が大きいと考えられる軽いAu同位体を生成する反応に特に注目して，α粒子の測定を行なったところ，前平衡過程からの放出が観測された[2]。今回，その再測定を行ない，これまでのデータ[1,2]を総括して，各Au同位体生成反応の機構がいちじるしく異なっているという興味ある結論に達したので報告する。

【実験】

実験には、阪大理110cmサイクロトロンの25MeV ^{3}Heビームを用いた。実験の詳細は，まえに述べたとうりである[1,2]。図１に，Si(Au)カウンターテレスコープで測定した軽粒子のE-ΔEマップの１例を示す。各粒子間の分離はきわめて良い。35°-150°の各測定角におけるα粒子のエネルギースペクトルは，磁気テープにリスト入力したデータをオフライン解析で粒子識別を行なって得た（例えば，文献[2]の図２を見よ）。３種のエネルギー値を

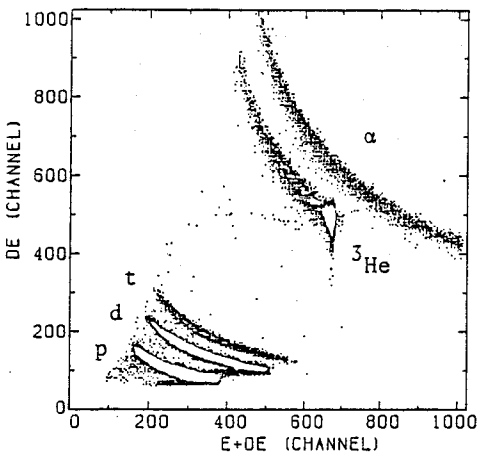


図１．150°（実験室系）で測定した軽粒子のE-ΔEマップ。

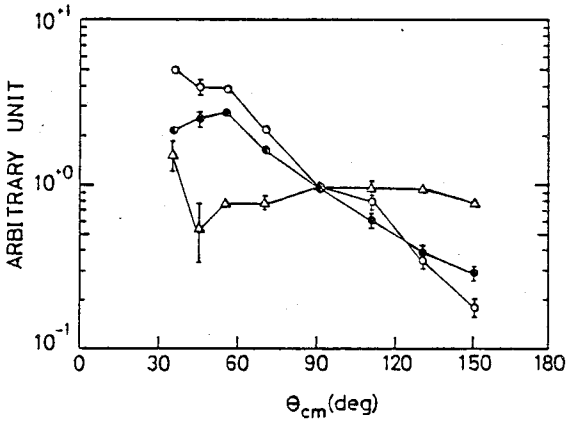


図２．36.4(○),30.0(●),22.0(△)MeVのエネルギー(幅±0.4MeV)をもつα粒子の角分布。90°で規格化してある。

しょうじまさひで，さいとうただし，しのはらあつし，よこやまあきひこ，
わかまつさとし，ばばひろし

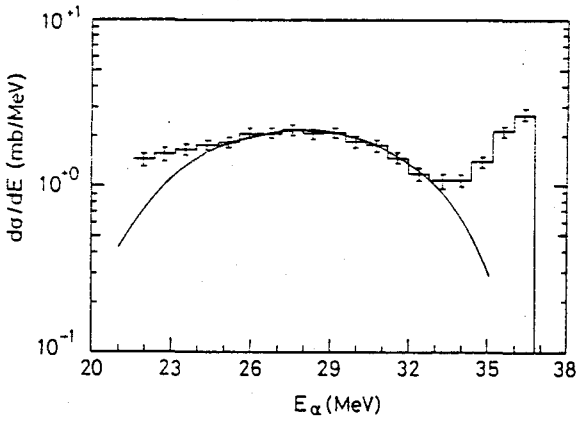


図３．角度積分したα粒子のスペクトル。
実線は、ＥＣ模型を用いた計算値。

もつα粒子の角分布を図２に示す。α粒子は22MeVでは等方的に放出され、より高エネルギーでは前方方向に優勢的に放出されていることがわかる。また，全角度について積分したα粒子スペクトルを図２のヒストグラムで示す。

【考察】

高エネルギーα粒子には，ピックアップ反応に対応する離散的な共鳴ピークがみられた。低エネルギーα粒子は連続的なスペクトルを示し，角分布から複合核過程でなく，前平衡過程から放出されると考えられる。この（^{3}He,α）反応の残留核^{196*}Auが中性子分離エネルギー以上の励起状態に残されると^{195}Auへと壊変する。その励起エネルギー分布をα粒子スペクトルから推定すると，σ(^{195}Au)／σ(^{196}Au)＞１となり，放射化法の結果と一致した。前平衡過程から放出されるα粒子スペクトルを，Exciton-Coalescence（ＥＣ）模型[3]を用いて計算した。それは，前平衡過程で励起核子が結合して複合粒子を形成することを考慮したものである。放出陽子スペクトル[4]に合わせた初期exciton数(p,h)=(5,1)と，任意パラメーターγ(α)を用いて，図３に示すように実験の良い再現ができ，γ(α)=9.55×10^{-3}を得た。この結合パラメーターγ(α)は，他の物理量と比較はできないが，^{62}Ni+^{3}He実験の解析結果[5]には近い値であった。従って，^{195}Auは前平衡過程からのα粒子放出とそれに続く中性子蒸発で生成すると考えてよいといえる。^{196}Auは主にピックアップ反応で，^{198}Auはストリッピング反応で生成する。^{194}Au生成の励起関数は，^{197}Tlと同様に統計模型で再現できたので，複合核からのα粒子と中性子の蒸発で生成すると考えることができる。

【文献】

1) 庄司ら，第28回放射化学討論会要旨集（神戸，1984）p.93.
2) 庄司ら，第29回放射化学討論会要旨集（船橋，1985）p.266.
3) H. Machner, Phys. Rept., 127, 309 (1980).
4) M. Kitamura, R. Murakami, T. Motobayashi, K. Okada, and H. Ejiri, OULNS Ann. Rept. 1979, p.15.
5) H. Machner, Phys. Rev. C., 21, 2695 (1980).

NUCLEON TRANSFER PROCESSES IN THE ^{3}He + ^{197}Au REACTION SYSTEM.

Faculty of Science, Osaka University, Masahide SHOJI, Tadashi SAITO, Atsushi SHINOHARA, Akihiko YOKOYAMA, Satoshi WAKAMATSU, and Hiroshi BABA

1A16 $^{37}Cl+^{103}Rh$反応系における核子移行反応

（原研、阪大・理*） 馬場澄子、○畑健太郎、関根俊明、松岡弘充、
永目諭一郎、横山明彦*

［序］ これまで我々が行ってきた、金と軽い重イオンとの反応の実験や[1]、Kratzらの金とキセノンとの核反応の研究[2]において、ターゲットからの中性子移行反応生成物である金同位体に関して、高スピン核異性体と低スピン核異性体が、入射粒子とターゲット間の相互作用の程度の異なる反応過程で生成するという結果が示されている。すなわち、高スピン核異性体は主として深部非弾性散乱反応により、また低スピン核異性体は主として準弾性散乱反応により生成すると考えられている。核異性体が数多く見られるロジウムの場合も、中性子移行反応において2種類の反応過程が区別できるかどうかの検討を目的として、ロジウムと ^{37}Cl との反応に関して、以下に述べる実験を行った。

［実験］ 原研タンデム加速器からの、170-200 MeV の ^{37}Cl イオンビームを、約 0.5mg/cm^2 の厚さのロジウム箔に照射した。^{104m}Rh ($T_{1/2}$ = 4.34 分)以外のロジウム同位体の生成断面積は、約3時間照射した後、ターゲット中のロジウム同位体のγ線とキャッチャーのアルミニウム箔中に反跳されたロジウム同位体のγ線とをそれぞれGe(Li)検出器により測定して求めた。ここで、キャッチャー中のロジウムに関しては、化学分離を行った後にγ線測定を行った。^{104m}Rh の場合は、キャッチャーとして金箔を使用し、5分間照射した後、直ちにターゲットとキャッチャーのγ線測定を行った。

また、ターゲットの下流に約 2mg/cm^2 の金箔をキャッチャーとして数枚重ねて照射し、キャッチャー中のロジウム同位体分布を測定して、微分反跳飛程を求めた。

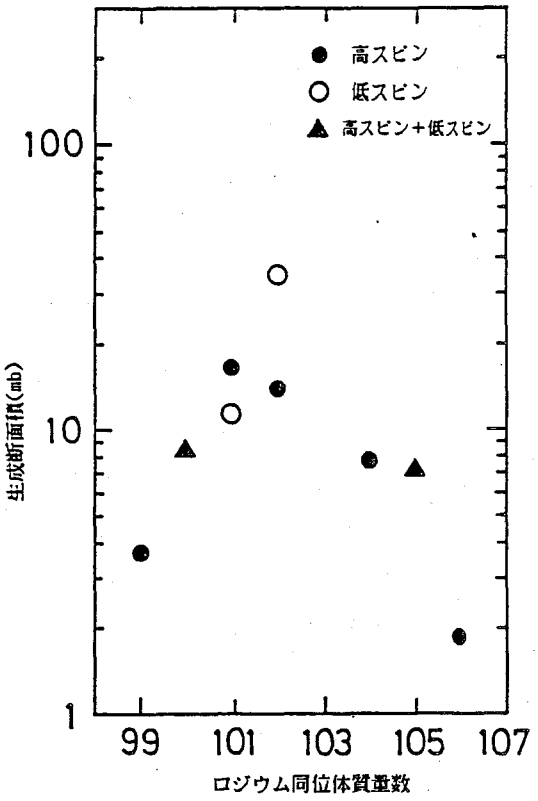
［結果］ 第1表に、^{103}Rh 周辺のロジウム同位体のスピンと崩壊の性質を示し[3]、右側の欄に生成断面積の測定を行った核種と、金箔中での反跳飛程を測定した核種を示した。第1図に、ロジウム同位体生成断面積の一例として、^{37}Clの入射エネルギー 200MeV の結果を示す。一般に、核異性体生成比は反応によって持込まれた角運動量を反映している。本実験で核異性体対の断面積が求められた ^{102}Rh(ΔN = -1) と ^{101}Rh(ΔN = -2) について、その核異性体生成比(σ_h/σ_l)は興味深い違いを示している。^{102}Rh では σ_h/σ_l = 0.4 に対して、^{101}Rh では逆に σ_h/σ_l =1.4 となっている。ΔN = -1 から -2 での、核異性体生成比の急激な変化は、序論で述べた2つの過程の存在とそれらの寄与の違いとして説明し得る。即ち、^{102}Rh の生成には主として準弾性散乱が寄与し、^{101}Rh の生成においては深部非弾性散乱の寄与が増加していると考えられる。

ばばすみこ、はたけんたろう、せきねとしあき、まつおかひろみつ、ながめゆいちろう、
よこやまあきひこ

講演においては、他の照射エネルギーで得た同位体断面積分布と金箔中での平均反跳飛程の結果と、それらの入射エネルギー依存性について報告する予定である。

第1表　ロジウム同位体のスピンと崩壊の性質

質量数	スピン	半減期	IT(%)	生成断面積	反跳飛程
99m	9/2+	4.7h	0	Y	Y
99g	1/2-	15.0d			
100m	5+	4.7m	93		
100g	1-	20.8h		Y	Y
101m	9/2+	4.34d	7.2	Y	Y
101g	1/2-	3.3y		Y	
102m	2-	206d	5	Y	Y
102g	6+	2.9y		Y	
103m	7/2+	56.1m	100		
104m	5+	4.34m	99.8	Y	
104g	1+	42.3s			
105m	1/2-	45s	100		
105g	7/2+	35.4h		Y	
106m	4,5,6+	130m	0	Y	
106g	1+	29.8s			



第1図　$^{37}Cl+^{103}Rh$反応におけるロジウム同位体の生成断面積

References

1). A.Yokoyama et al., OULNS Ann.Rep.1984(1985)116.

2). J.V.Kratz et al., Nucl.Phys.A357(1981)437.

3). C.M.Lederer and V.S.Sirley, "Table of Isotopes", 7th ed,Wiley,N.Y.,1978.

NUCLEON TRANSFER REACTIONS IN THE SYSTEM $^{37}Cl+^{103}Rh$

Japan Atomic Energy Research Institute, Sumiko BABA, Kentaro HATA,Toshiaki SEKINE, Hiromitsu MATSUOKA and Yuichiro NAGAME.

Faculty of Science, Osaka University, Akihiko YOKOYAMA.

1A17　複合核^{105}Agの生成とその崩壊について

（原研、阪大・理*）　○永目諭一郎、間柄正明、横山明彦*、
松岡弘充、関根俊明、畑健太郎、馬場澄子

［緒言］　軽中核領域での高励起・高角運動量状態にある複合核崩壊の特徴として、蒸発過程では、重い核と比較した場合、中性子蒸発よりも荷電粒子を含んだ多粒子放出がかなり高い確率で起きることがあげられる。従って、崩壊過程の解析に於ては、荷電粒子の持出す角運動量等の考察が必要となっている。また、複合核が高角運動量状態の場合、その核の核分裂障壁（B_f）が基底状態にある核のB_fより低下し、軽い核においても核分裂の可能性が回転液滴模型[1]（Rotating Liquid Drop Model：RLDM）により予測された。これに対する定性的な実験結果は得られつつあるが、実験的検証の困難さのため十分な結果が得られているとはいえない。その後、RLDMを改良したFinite Range Modelに基づく核分裂障壁[2]（Rotating Finite Range Model:RFRM）が提案された。これによると、特に従来のRLDMに比べてA=100近辺において著しい違いが生じており、B_fの値が約3/4に減少するという結果が得られている。

本研究では、A=100近辺の質量領域における核分裂現象の実験的検証，及びB_fの決定と同時に、蒸発残留核との競争過程、特に荷電粒子との競争過程（Γ_ν/Γ_f）も考慮に入れた高励起・高角運動量状態の複合核の脱励起過程の検討を目的とした。実験系としては、入射粒子の持込む角運動量分布の差による効果を顕著にするために、^{12}C+^{93}Nb及び^{37}Cl+^{68}Zn反応系を選択した。この系については、^{99}Rhの核異性体比に注目して、その結果を既に報告しているが[3]、今回は前記観点から広範囲な核種に着目し、その生成過程を放射化学的手法により調べた。

［実験］　ターゲットには、^{93}Nbフォイル（約3mg/cm^2）、及び^{68}Zn濃縮同位体（98.5%）をAlフォイル（約5mg/cm^2）上に電着したもの（約0.3mg/cm^2）を用いた。照射は、原研タンデム加速器にて、それぞれ^{12}C、及び^{37}Clビームで行った。照射エネルギーは、複合核の励起エネルギー（E_{CN}^*）範囲を同じにするために、70MeV<E(^{12}C)<110MeV，及び、120MeV<E(^{37}Cl)<180MeVで行った。生成核種の測定は、照射後、Ge(Li)検出器にてγ線測定を行い、γ線のエネルギーと半減期から核種を同定した。

［結果と考察］　このエネルギー範囲では、複合核からの蒸発過程による生成物としては、Pd(Z=46)からMo(Z=42)までの同位体が観測され、Ag(Z=47)同位体は観測されなかった。ここで、^{12}C+^{93}Nb反応においては、ターゲットからの核子移行反応生成物も同時に生成されているが、この区別は生成物の反跳飛程の測定及び、核異性体を生成する核種については、生成物の核スピンの大きさを勘案することにより行った。図1(a)-(c)に、生成物^{99}Pd,^{99m}Rh 及び^{97}Ruの励起関数を示す。^{99}Pd生成の励起関数は両反応系でほとんど同じ形を示し、軽イオン反応で見られるような典型的な複合核反応の励起関数を示している。この傾向は^{12}C+^{93}Nb反応系では、^{99m}Rh,^{97}Ruの生

ながめゆいちろう、まがらまさあき、よこやまあきひこ、まつおかひろみつ
せきねとしあき、はたけんたろう、ばばすみこ

成においても同様である。しかし、$^{37}Cl+^{68}Zn$反応においては放出粒子が多くなるに従い、励起関数の形が$^{12}C+^{93}Nb$系のそれから大きく変化していることがわかる。これは、複合核からの種々の脱励起チャネルが混じりあった結果であると考えられる。図中の実線と点線はORNL ALICEコード[4]を用いた計算値である。融合反応に関与する最大部分波には、Bass[5]の臨界角運動量値(l_{crit})を用いて計算した。ここでは、^{99m}Rh、及び^{97}Ruの多粒子放出反応生成物に関しては比較的よい一致を示しているが、^{99}Pdではよい再現性は得られなかった。現在はこの3核種についてのみしか行っていないので、引続き全融合反応断面積や、他の生成物も含めた励起関数のfitting、あるいはHauser-Feshbach法を用いた計算による解析を検討中である。

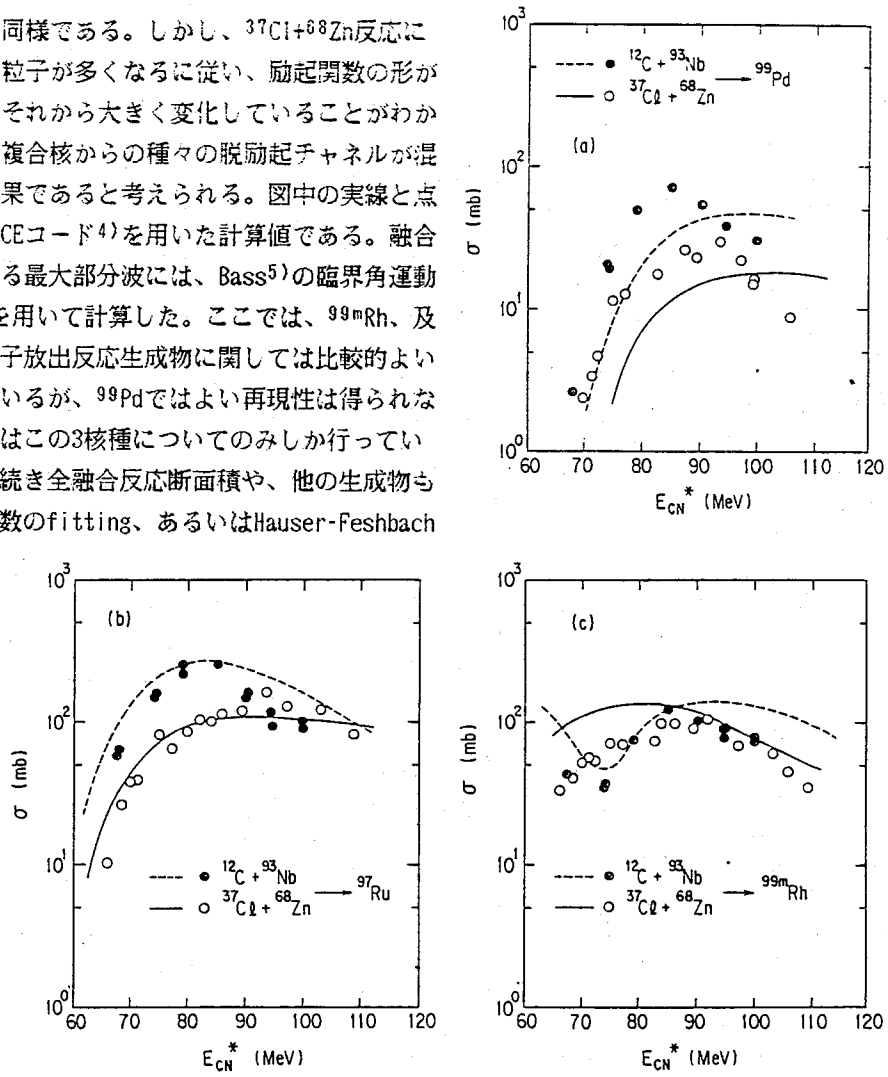


図1(a)^{99}Pd,(b)^{99m}Rh,及び(c)^{97}Ru生成に関する励起関数(実線及び点線はALICEによる計算値)

References

1).S.Cohen,et al.,Ann.Phys.(N.Y.) 82,557(1974). 2).H.J.Krappe,et al.,Phys.Rev.C20, 992(1979). 3).関根他、第27回放化討論会、1A11(1983); 関根他、第28回放化討論会、2A12 (1984). 4).F.Plasil,ORNL/TM-6054(1977). 5).R.Bass,Phy.Rev.Lett.39,265(1977).

FORMATION AND DEEXCITATION OF THE ^{105}Ag COMPOUND NUCLEUS

Japan Atomic Energy Research Institute, Yuichiro NAGAME, Masaaki MAGARA,
Hiromitsu MATSUOKA, Toshiaki SEKINE, Kentaro HATA and Sumiko BABA.
Faculty of Science, Osaka University, Akihiko YOKOYAMA.

1B01　石英粒子からの赤色および青色熱蛍光発光について

（新潟大・理）　橋本哲夫　○横坂恭一　葉葺久尚

1．　熱蛍光(TL)現象は、放射線の電離作用に基づく捕捉電子の加熱による脱励起の際の発光現象である。天然放射線の作用による鉱物中の蓄積捕捉電子数に由来する天然ＴＬを利用した各種鉱物のＴＬ年代測定法が今日開発されている。光透過性が良好でかつ長期間捕捉電子を準安定な状態で保存し得る鉱物として石英がＴＬ年代測定に多用されており、数十万年より若い考古学や火山灰試料の年代評価法となってきつつある。

石英粒子のＴＬ年代測定への利用に先立って、我々の研究室ではＴＬ現象の基礎的性質の解明に関する研究を行なってきた。まず、花こう岩薄片を用いて^{60}Coγ線で照射後加熱し放出されるＴＬを高感度フィルムで熱蛍光カラー写真撮影(TLCI)できることを報告してきた[1]。引き続く海岸砂や火山灰からの石英砂のTLCIにおいて、赤色と青色に大別出来る石英群が存在するという興味深い結果を得た[2]。火山灰からの（β）石英は赤色発光を示し、花こう岩など深成岩起源の（α）石英は一般に青色発光を示すことも確認出来た[3]。これら石英からのＴＬ発光色の異なる原因を調べるため、Ｘ線回折法による構造の差異や、加熱溶融による石英ガラス化後の発光色をTLCIで観察したが変化は認められず、構造変化によるものが原因とは認められなかった。そこで石英中に含まれる不純物に着目し特に発光色との関連で注目される希土類元素(REE)含量とTLCIやTLスペクトル、ガラスフィルターを使用したTLグローカーブの測定[4]を行ない相互の関係を調べてみたので以下報告する。

2．　ＴＬ測定用試料として石英砂（海岸砂と湖岸砂）及び石英ガラス原料としての石英結晶から細粒化した石英粒子を使用した。これら粒子状石英(32-60mesh）試料を400℃で15分間アニール処理の後、^{60}Coγ線により既知線量照射した。TLの測定は光子計数法を基本とする装置とTLCI法により行ない、前者についてはモノクロメータを併用することによりTLスペクトルの測定も出来た。石英中の不純物含有量は、中性子放射化分析法により求めた。

3．放射化分析による不純物定量の結果 Mn,Li,Na など典型元素および遷移金属元素には、赤色，青色二種の石英群間に顕著な差異が認められず、赤色ＴＬ石英群が 2～ 3倍多めの値を示した。これに比較して REE含量には両群間に図1 に示すように著しい差異が観察された。赤色ＴＬ石英群は、軽 REE含量が、青色のそれに比べ 1桁以上多い物も見られる。

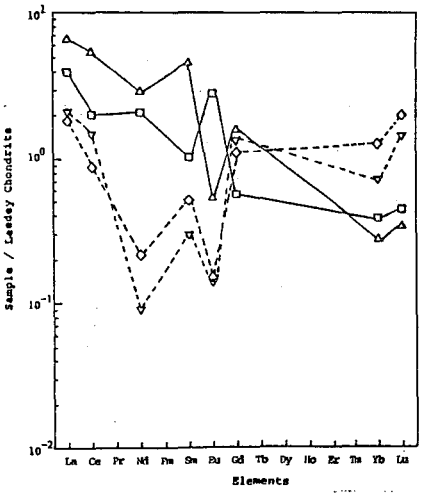


図１希土類元素の存在比パターン。
△，□；赤色ＴＬ
▽，◇；青色ＴＬ

1)橋本、木村、小柳ら；Radioisotopes,32,525-532(1983)
2)橋本、横坂、林ら　；Geochem.J., 印刷中
3)橋本、横坂、林ら　；Nuclear Tracks, 印刷中
4)橋本、横坂、葉葺ら；Nuclear Tracks, 投稿中

はしもとてつを、○よこさかきょういち、はぶきひさなお

重 REEでは逆転現象が生じていた。従って赤色発光の原因の一つとしてREEが大きな役割を果していることが示唆された。

特徴的な青，赤色TLCIを示す石英砂からのＴＬスペクトル例を図2 に示す。前者からは、青色帯に属する470nm にピークを有するスペクトルが、後者からは620nm にピークを有する巾広いスペクトルが得られており、TLCI観察結果とよく一致している。同一試料につき、図2 の結果をもとに、青色フィルターと赤色ガラスフィルターを使用してＴＬグローカーブの測定を行なった結果を図3 に示す。この結果から青色ＴＬは190℃ にピークを有し高温側で肩をもつ発光を、赤色ＴＬは330℃ 付近にピークを有する高温側で顕著な発光を示している。この結果から赤色発光の捕捉電子は、青色のものに比べて深い捕捉位置にあり、長期間準安定のまま存在し得ることがわかり年代測定には赤色発光石英が適していることがわかった。

合成カルサイトおよび合成石英中に各種 REE不純物を混入させ、TLCIおよびＴＬスペクトル観察した結果Sm,Eu 混入の試料から赤色のＴＬ発光が得られた。これらの結果をもとに天然石英12種につき放射化分析法により、SmとEuの含量を求めたものを図４に示す。高含量の A～F と低含量の G～ Lに大別出来る。この結果は、8.8kGyの照射試料からのTLCIパターンで前者が赤色、後者が青色発光を示すことと一致しており発光色へ REEが関与しているとみなされた。

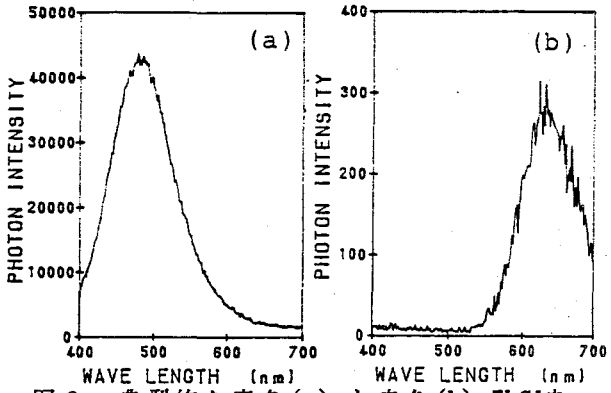


図２　典型的な青色(a) と赤色(b) TLCIを示す石英砂からのTLスペクトル
Mozambique産(a) と田沢湖産(b)
石英を8.8kGy（吸収線量）照射

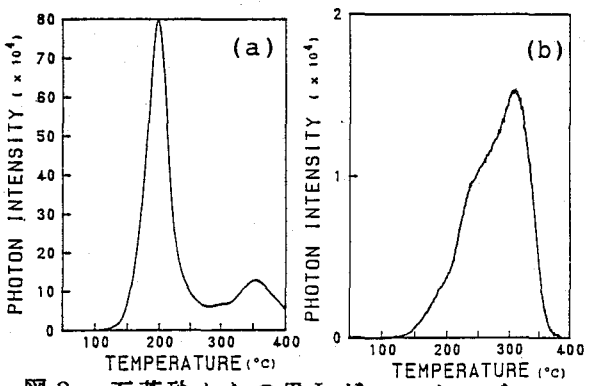


図３　石英砂からのＴＬグローカーブ
試料および吸収線量は図２と同じ
青色(a) と赤色(b) フィルター

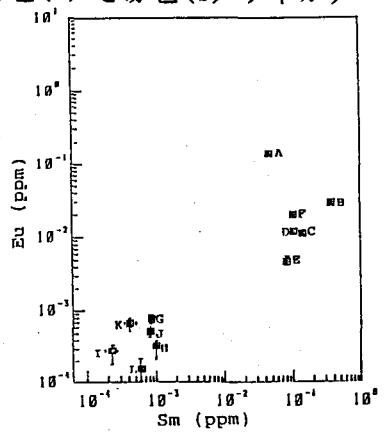


図４　石英砂中のEuとSm含量

RED AND BLUE EMISSION OF
THERMOLUMINESCENCE FROM QUARTZ GRAINS

Department of Chemistry, Faculty of Science, Niigata University,
Tetsuo HASHIMOTO, Kyoichi YOKOSAKA, and Hisanao HABUKI

1B02　岩石試料中の微量ヨウ素の中性子放射化分析

（群馬大・教養　群馬大・工）○石原　充・赤岩英夫・○斉藤直美

1、岩石中のハロゲン元素は、その岩石にまつわる地球化学的現象を指示する可能性があるために注目されているが、その含量が少ないためフッ素を除いては高感度な中性子放射化分析（ＮＡＡ）により定量されるのが一般である。ハロゲン元素のうちでもヨウ素はその含量がとくに低く、またＮＡＡに用いることのできる核種が短半減期の^{128}Ｉ（$t_{1/2}$=25min）のみであるため定量が難かしく、現在まで信頼できるデーターがほとんどないといっても過言ではなかろう。演者らは極微量のヨウ素について精度の高い分析値を得るために岩石を放射化後、ヨウ素を化学分離することを前提にした分析法を確立すべく検討を行った。^{128}Ｉは短半減期のため、放射化後、直ちに化学操作を行う必要があるが、この場合ヨウ素以外の岩石中のマトリックス元素による放射能被爆が問題になる。ここでは^{127}Ｉが熱外中性子に対して大きな共鳴核反応断面積を持つことに注目し、試料をカドミウムキャプセルに入れ中性子照射した結果、生成放射能を大巾に減少させることができ、下記実験条件での被爆線量は検出限界以下であった。

2、粉末状の岩石試料をよく洗浄したポリエチレン製容器に密封し、一定量のヨウ素標準溶液を口紙上に乾固し、ポリ袋に封入したものとともにカドミウムキャプセルに入れ、さらに標準照射用キャプセルに入れて中性子照射した。中性子照射は立教大炉（ＴＲＩＧＡ Ⅱ型）でＲＳＲ（熱中性子束5×10^{11} n cm^{-2} sec^{-1}）またはＦ21孔あるいはＦ24孔（熱中性子束1.5×10^{12} n cm^{-2} sec^{-1}）で30分間行った。照射終了後、直ちに試料をジルコニウム製ルツボに移し、ヨウ素担体（Ｉ$^-$:10mg）存在下で水酸化カリウムを用いてアルカリ融解した。融塊を水に溶解し、次亜塩素酸ナトリウム水溶液を数滴加え加熱した後、遠心分離により水酸化物沈殿を除去した。上澄み液に6Ｍ塩酸を加え溶液を酸性にして加熱放冷後、6％亜硫酸ナトリウム溶液、次いで塩化パラジウム溶液を加え、ヨウ素をヨウ化パラジウムとして沈殿させた。加熱熟成後、沈殿を口紙上に捕集し、水で洗浄して素早く乾燥させ、セロファンテープで密封して測定用試料とした。通常、2試料を同時に照射し、化学操作を平行して進めた。初めの試料は照射終了後40-60分で測定可能であった。γ線測定は高純度Ge製半導体検出器と4098チャンネルのマルチチャンネル波高分析器を用い、^{128}Ｉの放出する443KeVのγ線を計測した。なお試料のγ線強度は一般に弱く、検出器に密着した状態で計測を行った。従って、測定器の幾何学的位置は常に同一になる様細心の注意を払った。なお、ヨウ素の化学収率は測定用試料を一定量のヨウ素標準試料とともに再放射化し、それぞれの^{128}Ｉの放出するγ線の強度比から求めた。

3、本法による実試料の定量値並びに文献値[1]をTable 1 に示した。Table 1 の試料名のうちD-41-1が凝灰岩である他はすべてシルト岩である。またAllende, St. Severin, Modocは隕石試料であり、JB-1は玄武岩である。分析は現在までのところ、3回のrunに分けて

えびはらみつる・あかいわてでお・さいとうなおみ

行い、それらを便宜上86-I-1, 86-I-2, 86-I-3とした。同一試料をくり返し分析した結果、86-I-1の数試料を除いて一般に良い値が得られたが、以前報告された値に比べると低い値であった。また、86-I-1の最初の4試料ではそれ以降の分析値に比べて高い値が得られたが、これは標準試料調製の際のヨウ素の損失によるものと考えられ、ヨウ素標準試料調製に対しては細心の注意を払う必要があることを示している。標準試料調製の際のヨウ素の揮散以外でも、分析試料への汚染、燐融の際の担体ヨウ素の揮散などの誤差要因がすべて分析値を大きくするものと考えると、相対的に小さな値をえた本法による分析値は、以前報告された値より信頼できるものであると考えている。次に文献値の臭素含量と本法により分析したヨウ素含量との相関関係を調べ、Fig.1に示した。このときの相関係数は0.71であり、比較のため文献値の臭素含量と文献値のヨウ素含量との相関係数を調べたところ0.54であった。これはヨウ素定量値の信頼度が増した結果、臭素との相関がよりはっきりしてきたものと考えている。3つの隕石についての分析値も文献値とよい一致を見た。またTable1に示した誤差は1線測定の際の統計誤差であるが、実際にはそれ以外にも多くの誤差を与える要因が考えられる。そこで本分析法に伴う誤差要因のいくつかについて考察した。ここではヨウ素の化学収率を求める為に再放射化を行うが、この時の試料自身による中性子自己吸収および自己遮へいがどの程度の誤差要因になるか、さらにヨウ素標準溶液調製の際、ヨウ素の損失を防ぐため少量の水酸化リチウムを加えたが、その時のリチウムの(n,α)反応による中性子吸収がどの程度誤差要因になるかを考察した結果についても述べる。

Table 1 Analytical results

Run	Sample name	Sample amount (mg)	Irradiation site	Iodine (ppm)	Error (%)	Chemical yield (%)	Literature value (ppm)
86-I-1	D-54-04	108.22	F	2.2	3.1	62	2.2
	D-54-15	104.66	R	5.3	4.3	72	2.5
	D-41-07	98.48	R	7.2	4.5	75	3.2
	JB-1	199.09	F	0.18	7.8	50	
	D-41-03	113.52	R	0.26	7.2	71	0.48
	D-41-09	111.85	R	1.2	4.2	70	10
86-I-2	D-54-04	118.24	F	0.40	4.3	53	2.2
	D-54-06	116.14	R	0.44	7.0	81	2.0
	D-54-08	113.97	R	0.56	6.2	63	1.9
	D-54-15	150.55	F	0.91	4.7	39	2.5
	D-41-03	112.57	F	0.26	6.7	61	0.48
	D-41-07	97.38	F	0.94	2.2	73	3.2
	D-41-09	118.83	R	1.2	5.9	54	10
	D-41-11	98.00	R	1.2	4.8	81	8.4
86-I-3	D-54-15	108.8	R	0.84	8.8	70	2.5
	D-41-03	135.5	R	0.21	10.9	58	0.48
		118.3	F	0.22	5.0	71	0.48
	D-41-07	127.7	R	0.93	4.3	74	3.2
	D-41-09	111.4	R	1.0	4.4	79	10
		119.3	F	2.0	2.2	74	10
	Allende	120.0	R	0.16	10.3	68	0.17~0.26
	St.Severin	195.5	R	0.13	22.3	13	(0.067~0.12)
	Modoc	174.9	F	0.058	8.3	59	0.030~0.076
	JB-1	207.4	F	0.022	13.3	69	

* F: F24C R: RSR

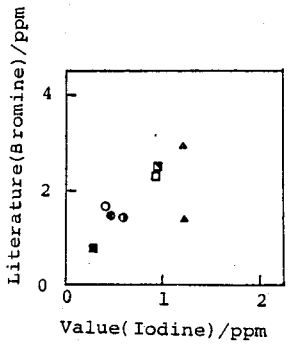


Fig. 1 Relationship between value(I) and literature (Br) contents of sedimentary rocks

○ D-54-04 ◐ D-54-06
● D-54-08 □ D-54-15
■ D-41-03 ▣ D-41-07
△ D-41-09 ▲ D-41-11

1) 赤岩英夫・田島栄作・相沢省一　地球化学・12・1978

NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS OF TRACE AMOUNTS OF IODINE IN ROCKS.

Faculty of General Education, Gunma University, Mitsuru EBIHARA
Faculty of Engineering, Gunma University, Hideo AKAIWA, Naomi SAITO

1B03　花崗岩類の分析化学的研究（第2報）　近畿地方の花崗岩類

（奈良教育大）○三辻利一，杉　直樹，黒瀬雄士　吉田和美
有明知恵子

1）花崗岩類の分析化学的研究の意味

演者らは「分析化学的手法による古代土器の産地推定」に関する研究を進めているが，その根底に在るのは各地の須恵器には地域差があるという事実である。この事実はほぼ十年にわたる年月を費して立証されたが，では，どうしてこのような地域差があるのかという問題が出てくる。この問題が解決されない限り，安心して分析化学的手法による産地推定は出来ない。粘土を高温で焼成しても化学特性に変動がないところから，須恵器の化学特性は素材として使った粘土の化学特性である。したがって，その化学特性は地質学的要因に大きく支配されていることは容易に推察される。このことをどのようにして立証していくのかが問題である。ここで演者らは日本列島を構成するもっとも基本的な基盤岩石である花崗岩類を分析対象としてとり上げることにした。日本地質図をみると，花崗岩類は全国各地に点々と露出していることが分かる。これらを片っ端から分析していくと，須恵器にみられる地域差に対応するようにして花崗岩類にも地域差が出てくるのではないかと考えた。

2）これまでの研究成果

演者らはまず，全国の代表的な花崗岩類を分析し，花崗岩類にも地域差があるかどうかを調べるところから研究をスタートとした。そのため，島根大学伊藤晴明教授らの援助によって，全国各地の代表的な花崗岩，300余点を分析した。その結果，花崗岩類にはRb rich型とSr rich型の2型があることが判明した。Rb rich型の花崗岩には通常，Sr量は少なく，逆に，Sr rich型の花崗岩にはRb量が少ない。前者は主としてフォッサマグナより西側に分布し，後者は東側に分布することが判明した。この結果は西日本の須恵器にはRb量が多く，東日本の須恵器にはRb量が少ないというデータとよく対応した。よく，Srにその対応がみられないのは，Coとともに，Srは風化が速く進むことに基因すると推察された。

このように，花崗岩類にも地域差があることが立証された段階で，より詳細に地上に露出する花崗岩類を分析し，その化学特性分布図を作成しようと計画した。その一環として，今回は近畿地方の花崗岩類の分析結果について報告する。

3）近畿地方の花崗岩類の分析結果

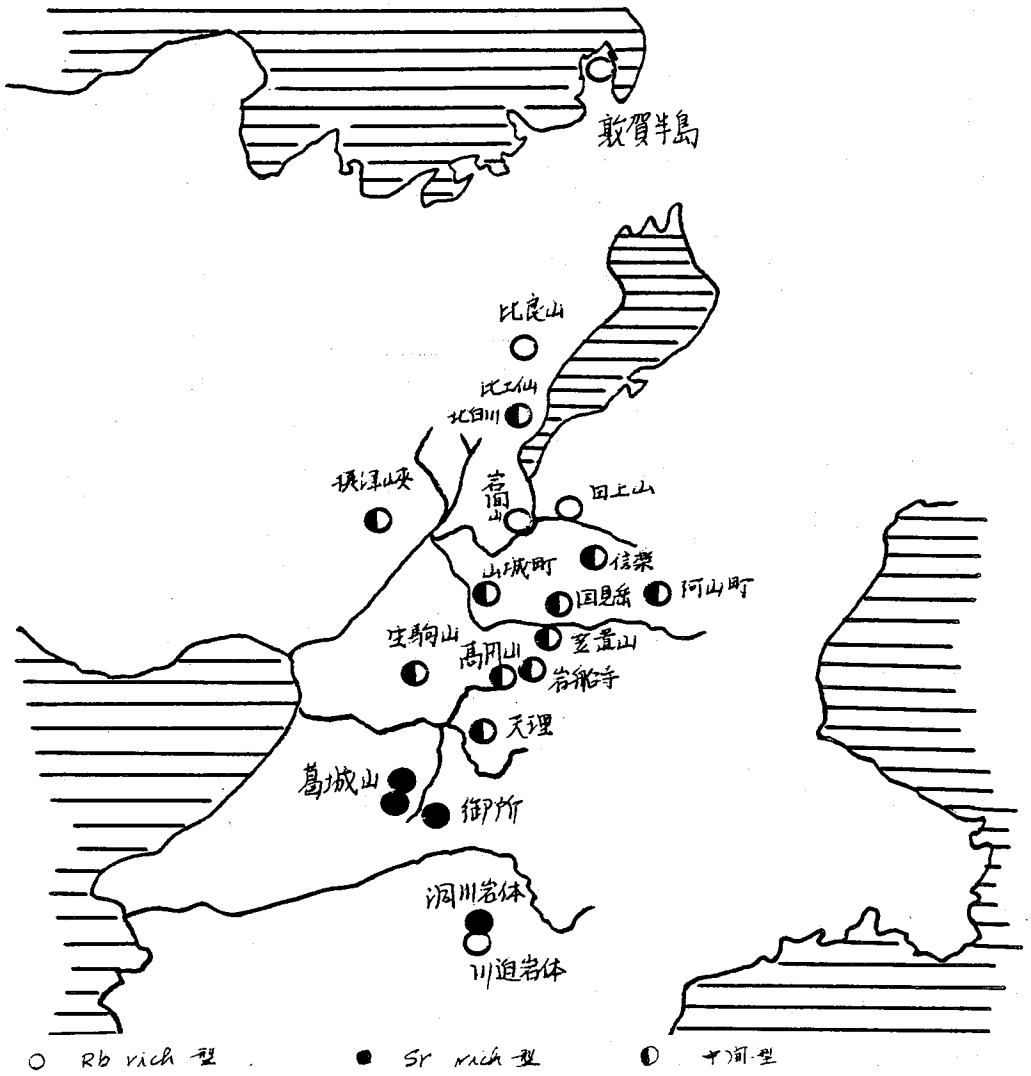
近畿地方にも2型の花崗岩があることが判明した。福井県敦賀半島，滋賀県比良山，田上山など近畿北部にRb rich型が分布しているが，今回，奈良県南部の高取山にSr rich型の花崗岩を新たに検出した。そして，その中間の地域にはRb rich型に近いもの，Sr rich型に近いものが分布した。

この結果を京都出土須恵器の分析結果と対応させると，福井県三方郡美浜町にある興道

みつじとしかず，すぎなおき，くろせゆうじ，よしだかずみ，あるじうかこ

寺窯跡や滋賀県の窯跡出土須恵器にRb量が多いことはその後背地の花崗岩がRb rich型であることに関連し，また，葛城山系の西側にある古市古墳群内の誉田白鳥窯の埴輪がSr量が多いのは，その後背地にある葛城山の花崗岩がSr rich型であることに関係すると推察される。

このように近畿地方の北部と南部で花崗岩の化学特性が異なるのは，中部地方から三重県，奈良県，四国と南西に向って延びる中央構造線に関連する可能性がある。この点については今後，中部地方，四国，中国地方の花崗岩を詳細に分析する必要がある。



ANALYTICAL STUDY OF GRANITIC ROCKS(PART 2), GRANITIC ROCKS IN KINKI DISTRICT

Laboratory of Physical Chemistry, Nara University of Education,
Toshikazu MITSUJI, Naoki SUGI, Uji KUROSE, Kazumi YOSHIDA, Chikako ARUJI

1B04　中性子放射化ー液液抽出分離法による原子炉材料及び LSI構成材料中の ppbレベルのウランとトリウムの定量

（原研，放照協*）
○米沢仲四郎，星　三千男，立川円造，山本克宗，*上沖　寛

1．まえがき　近年コンピューター分野ではメモリー用大規模集積回路(LSI及び超 LSI)中の微量α放射体による，いわゆるソフトエラーの問題からその構成材料中のウランとトリウムを ppbレベルまたはそれ以下で定量する必要性が増大している．また原子力分野においても原子炉の一次冷却水中の核分裂生成物の発生源が，i)燃料破損，ii) 燃料棒被覆管表面の汚染ウラン，又は iii) 構成材料中の不純物ウランによるものかの判断をするため，原子炉材料中のウランの定量が必要とされている．しかしながら原子炉材料中のウラン含量は ppb又はそれ以下と低く分析が困難なため，ほとんど定量されていない．ppb レベルまたはそれ以下のウランとトリウムの分析法としては，Np-239及びPa-233を放射化学的に分離する中性子放射化分析法が適している．今回は，先に開発し ppmレベルのウランの定量に使用したTTA 液液抽出法 (1)を，Pa-233も分離出来る様に改良し，日本原子力研究所の材料試験炉（JMTR）の構成材料を中心とした原子炉材料と，酸化マグネシウム等のLSI 構成材料中のウランとトリウムの分析に適用した．

2．分析方法　試料（≃100mg)とウラン及びトリウム標準溶液をJRR-2 及びJRR-4 で，熱中性子束（5.5 ～ 8）×10^{13} n/cm^2 /secで 0.3～6 時間照射し，約1日以上冷却後 Fig.1 に示す分離操作でNp-239とPa-233を分離した．分離液の放射能をGe(Li)検出器で測定し，γ線スペクトロメトリーにより，ウランとトリウムを定量した．

3．結果及び考察　TTA 液液抽出分離法の検討　Np-239は塩化第一鉄の存在下で 1M 塩酸溶液から 0.5M TTA-キシレン中に定量的に抽出されるが，この条件下でのPa-233の抽出率を測定した結果，98.2±0.1%であった．Zr-95,97および Fe-59等の影響を避けるため，硫酸及び硝酸によるNp-239とPa-233の逆抽出の検討を行った．硫酸の場合 5M 以上の濃度ではNp-239もPa-233も定量的に逆抽出される．また，硝酸の場合Np-239は7M以上の濃度で定量的に逆抽出されるが，Pa-233 は10% 以下しか逆抽出されなかった．これらの事から Np-239 は10M 硝酸で逆抽出し，その後Pa-233を 5M 硫酸で逆抽出する事にした．逆抽出での振り混ぜ時間は両方とも 2分間で十分であった．本法によるジルカロイ，ステンレス鋼，鉄からのNp-239及びアルミニウム，マグネシウム，岩石からのNp-239とPa-233の回収率を測定した結果，90%以上であった．

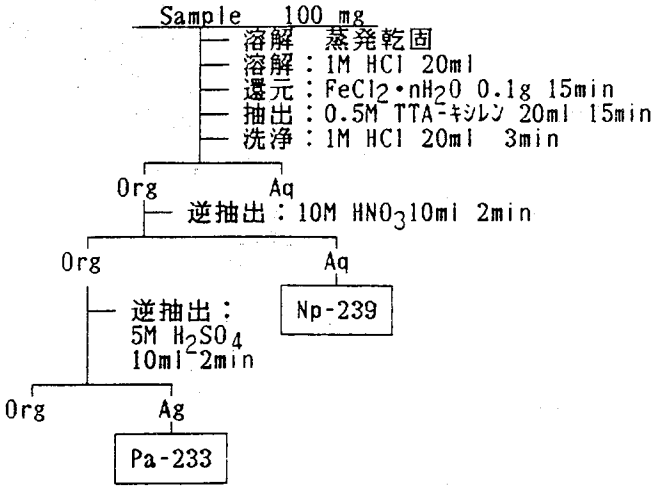


Fig.1 分離操作

よねざわ　ちゅうしろう，　ほし　みちお，　たちかわ　えんぞう，
やまもと　かつむね，　かみおき　ひろし

標準試料の分析　本法による定量値の正確さを確認するため，ジルカロイ及び岩石標準試料の分析を行った．ジルカロイ標準試料JAERI-Z2,Z3,Z11,Z12 及び NBS SRM 360中のウランを定量し，各々の表示値と良い一致を示した．またウラン無添加の標準試料JAERI-Z1,Z13,Z14,Z15,Z16 中のウランを定量し，37 ppb (JAERI-Z1)，230 ppb (JAERI- Z13)，160 ppb (JAERI-Z14) 及び 2 ppb以下(JAERI-Z15,Z16) を得た．岩石標準試料 JB-1 及びJG-1 中のウランとトリウムを定量した結果，JB-1では1.6 ppm (U)，8.5 ppm (Th) 及びJG-1では 3.6 ppm (U)，14 ppm (Th) の値を得た．これらの値は他の研究者らによる値と良い一致を示した．

検出限界　本法によるウラン及びトリウムの検出限界を，Np-239の 277keV 及びPa-233の312 keV γ線に相当する部分のバックグラウンド計数値の標準偏差の 3倍 (3σ) として，各種材料中の検出限界を求めた．その結果，ウランはジルコニウム，ジルカロイ，アルミニウム中で 1～5 ppb,鉄及びステンレス鋼では 20 ～ 40 ppb，マグネシウム，水，黒鉛では 0.3～ 0.5 ppbであり，トリウムはマグネシウム中で 2 ppbであった．鉄及びステンレス鋼の場合，Fe-59 の混入が有り，検出限界が比較的高くなった．

分析例　JMTRの炉心構成材料を中心とした原子炉材料及びアルミニウム，マグネシウム及び酸化マグネシウム等の LSI構成材料の分析結果の一例を Table 1に示す．　表中黒鉛とベリリウムは化学分離をせず，γ線スペクトロメトリーだけにより定量した値を示す．JMTR炉心構成材料ではベリリウム中に 10 ppm 以上のウランが含まれている事がわかり，一次冷却水中の放射性ヨウ素の発生源はベリリウムである事が判明した(2) .

Table 1　分析結果

試　料	U 及び Th 含量			
	U	Av.	Th	Av.
ｼﾞﾙｶﾛｲ-2 A (ppb)	110,130	120	———	
ｼﾞﾙｶﾛｲ-2 B (ppb)	50, 60	55	———	
ｽﾃﾝﾚｽ 鋼　(ppb)		< 40	———	
JMTR　脱塩水 (ppb)		< 0.5	———	
黒鉛　IG-11　(ppb)		< 0.4	———	
Be JMTR 第一世代(ppm)	9.2, 10	9.6	———	
Be JMTR 第二世代(ppm)	41, 44	42	———	
Be JMTR 第三世代(ppm)	23, 24	24	———	
Al JMTR 燃料側板材(ppb)	320,310,320	320	———	
Al JMTR 燃料被覆材(ppb)	170,200,210	190	———	
Al 99 % (ppb)	850,830	840	100, 97	98
Al 99.9999 % (ppb)	4.7,4.7,4.9	4.8	0.96,0.91,1.5	1.1
Mg　(ppb)	< 0.6		< 3	
MgO (ppb)	< 5		< 6	

文献　(1) 吉田，米沢：分析化学，19，238 (1970)．　(2) 山本　他：原子力誌，投稿中．

DETERMINATION OF URANIUM AND THORIUM IN REACTOR MATERIALS AND LSI CONSTITUENT MATERIALS BY RADIOCHEMICAL NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS

JAPAN ATOMIC ENERGY RESEARCH INSTITUTE, Chushiro YONEZAWA, Michio HOSHI, Enzo TACHIKAWA, Katsumune YAMAMOTO
IRRADIATION DEVELOPMENT ASSOTIATION, Hiroshi KAMIOKI

1B05　放射化分析による串木野地区の金の分布

（青学大理工，地調*）　○佐々木祐二，平尾良光，木村幹，*森下祐一

【目的】

当研究室は地球化学試料中、貴金属元素の定量を行なってきた。この研究の一環として比較的金の濃集した地区の試料に着目した。金の濃集地域に鹿児島県の串木野を選んだ。串木野地区は我が国の金銀鉱床区においてたいへん重要であり、日本で有数の金銀鉱山、串木野鉱山が存在する。本研究は放射化分析法を用い、この地区の金の分布を調べ、濃集の特徴を化学的に明らかにしようとした。

【試料】

串木野鉱床の富鉱部は石英脈中で方解石と共存する部分に含まれている。従って本研究は脈中の石英，方解石を分析の対象とした。

試料は右図（Fig.1）に示す9本のボーリングコアから採取したものである。岩石試料はおもに安山岩を母岩として、板状のすき間を埋める形で石英、方解石脈が走っている。脈幅は大小異なるが、1～2㎜のものから10cm程度のものである。

岩石を切断し、石英、方解石脈のみを取り出しめのう乳ばちにて粉状にしたものを試料として用いた。

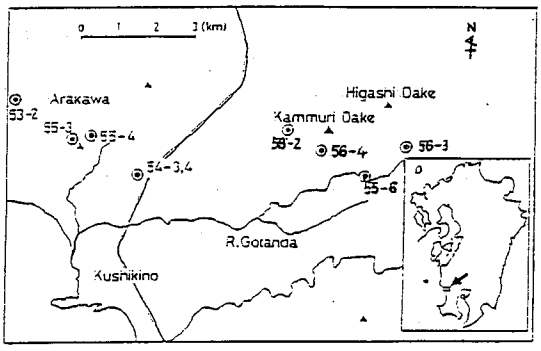


Fig.1 Map of Boring Stations

【分析方法】

試料の主成分が石英，方解石であるため、化学分離を行なわないいわゆる非破壊試料を測定してもそのバックグラウンドはたいへん低く、金の光電ピークは十分に検出された。従って分析法は非破壊放射化分析法を用い、金以外の元素についても同時定量を行なうことにした。

試料約0.05(g)を正確に秤取し、ポリエチレン袋に2重封入した。おのおのの元素の比較標準物質は、封入した試料の大きさと同じ大きさに切ったろ紙に固着し、2重封入した。試料と標準は日本原子力研究所のJRR-4（Tパイプ，$f = 8 \times 10^{13}$ n/cm²·s）などで照射し、中性子束密度の変動は金のフラックスモニターを用いることにより補正した。測定はおのおの核種の半減期を考慮して、1～2日冷却，3～5日冷却，1～2か月冷却後に測定した。

ささきゆうじ、ひらおよしみつ　きむらかん　もりしたゆういち

【結果】

照射試料中、観測された核種を示す（Table 1）。

Table 1 Observed Nuclides

Harf Life	Nuclides
＜10h	^{28}Al, ^{31}Si, ^{49}Ca, ^{52}V, ^{66}Cu, ^{152m}Eu
10h－40h	^{24}Na, ^{42}K, ^{76}As, ^{82}Br, ^{187}W
40h－4d	(^{47}Ca)→^{47}Sc, ^{122}Sb, ^{140}La, ^{153}Sm, ^{198}Au
4d＜	^{46}Sc, ^{51}Cr, ^{59}Fe, ^{60}Co, ^{65}Zn, ^{75}Se, ^{86}Rb, ^{110m}Ag, ^{124}Sb, ^{134}Cs, ^{141}Ce, ^{152}Eu, ^{154}Eu, ^{160}Tb, ^{169}Yb

次に、ボーリングの位置、試料採取地点の深度と金の濃度の関係を下に示す（Fig.2）。さらに一例として、ヒ素の分析結果をまとめて図－3に示した。

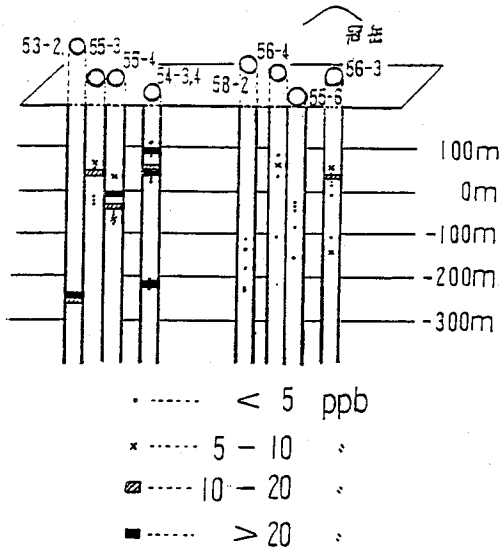


Fig. 2 Distribution of Gold

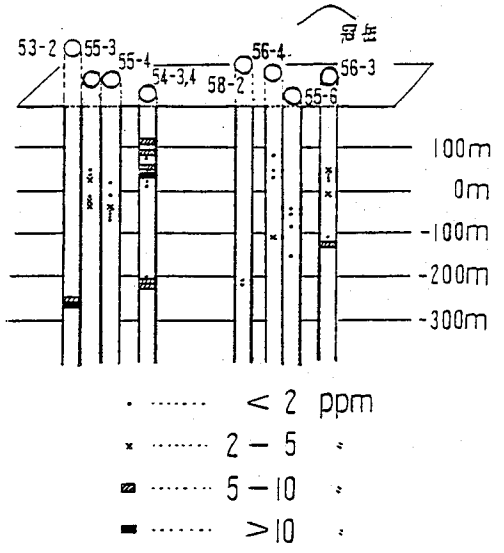


Fig. 3 Distribution of Arsenic

以上の結果より、金とヒ素はたいへん類似した分布のパターンを示している。又図には示していないが、クロム、タングステンはこれら元素分布と全く別の分布のパターンを示していた。

（本研究は深部鉱物資源のポテンシャリティー評価に関する研究の一部である。）

DISTRIBUTION OF GOLD IN KUSHIRINO DISTRICT BY NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS
Yuji SASAKI, Yoshimitsu HIRAO, Nan KINURA
College of Science & Engineering, Aoyama Gakuin Univ.;
Yuich Morishita
Geological Survey of Japan

1B06　荷電粒子放射化分析法によるアルミニウム中の炭素の定量

(理化学研究所、日軽技研＊)○佐藤和広、　泉　巖＊、野崎　正、

【目的】

アルミニウムを精製する際、陰極、陽極共に炭素電極を使用しているが、この炭素が溶融アルミニウムに対して、どのような挙動をするかについては、データが少なく、よくわかっていない。しかし、実際の製造過程においては経験にもとずく炭素含有量低減のための処理を行なっている。よって今回荷電粒子放射化分析法をもちいてアルミニウム中の炭素の含有量を定量する方法を確立するとともに、経験にもとずいて行なわれてきた事項について数値的に確認した。

＜１＞^{12}Cを(d,n)反応によって^{13}Nに放射化し、この^{13}Nを分離精製し、固定する方法を確立する。

＜２＞電解炉温度を、854°,787°,750°,701°,662°として、それぞれ炭素がどれくらい溶解するかを定量する。

＜３＞溶融アルミニウムに、フッ化アルミニウムを加えることによって、炭素含有量が減少すると言われているので、それを数値的に確認する。

＜４＞一度凝固させたアルミニウムを、再び溶融すると炭素含有量が減少するといわれているので、これを数値的に確認する。

【実験】

実験は、理研160cmサイクロトロンの９MeVの重陽子を用い、３～５μＡで10分間照射して、$^{12}C(d,n)^{13}N$反応により炭素を定量した。

非破壊測定をすると、^{13}N以外のRIによって妨害されるため、化学処理を行ない^{13}Nを分離精製した。

アルミニウム試料は日軽技研K.K.において実際の製造工程から採取し、さらに目的の処理をほどこし、20×20×1mmの板状に加工して分析用試料とした。

定量については、グラファイトを標準試料にしてアルミニウムと同様に放射化し、測定条件も同一にして比較法を用いてアルミニウム中の炭素量を定量した。

【実験結果】

＜１＞　^{13}Nの化学分離

a　濃塩酸15mlと担体塩化アンモニウム0.1N 10.00ml、飽和硫酸銅水溶液12mlを100mlビーカーに入れ、ここに照射終了したアルミニウム試料を入れ完全に溶解させる。

b　溶解液を50ml分液ロートに移し、あらかじめナス型フラスコに水酸化ナトリウム約10gを入れておいた所に滴下するとともに、マントルヒーターで加熱する。

c　水蒸気とともに発生してきたアンモニアガスを、テトラフェニルほう酸ナトリウム水溶液を入れてあるフラスコに通し、白色沈澱($NH_4[B(C_6H_5)_4]$)として^{13}Nを固定する。

さとう　かずひろ、いずみ　いわお、のざき　ただし

d　この沈殿をろ過捕集し、NaI(Tl) well型シンチレーションカウンターで0.511MeVの制動放射線を測定する。

以上のような方法で^{13}Nを分離固定すると、他のＲＩからの妨害は全くなく、数ppbオーダーまで定量することができた。

＜２＞　溶融アルミニウムに対する炭素の溶解量(wt. ppm)

同一溶融温度に於ける幾つかの試料について測定した結果をまとめると以下の表になる。

	試料番号			
溶融温度	No 1	No 2	No 3	No 4
854°	4.37	4.08	17.5	
787	3.92	3.55	4.62	
750	3.33	3.34	3.32	
701	2.81	0.33	2.80	4.78
662	2.64	2.51	2.94	

この結果炭素はあまり溶解しないことが確認できた。

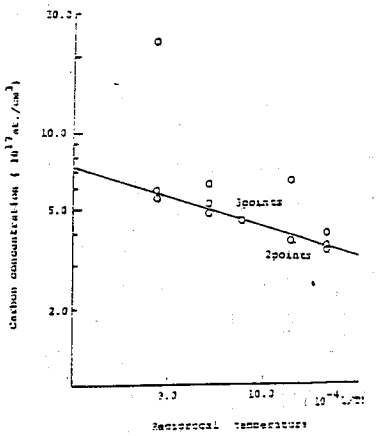


図１　溶融アルミニウムに対する炭素の溶解量

＜３＞　不純物炭素の除去処理効果(wt. ppm)

フッ化アルミニウム処理の効果について行なった実験の結果をまとめると、

	試料番号			
	No 1	No 2	No 3	No 4
処 理 前	5.13	5.64		
処理１回	1.76	2.24		
処理２回	1.12	2.95	1.07	1.34

上記結果より明らかなように、溶融アルミニウムにフッ化アルミニウムを加えることによって、炭素含有量が半分以下になることが確認できた。しかしこの処理１回と２回とではそれほど含有量の差が出なかったので、この方法で不純物を取り除く場合、１回の処理で十分であることがわかった。

＜４＞再融解時における炭素含有量

854° の溶融アルミニウム(前述＜２＞の試料)を一度凝固したのち、再び溶融して、748°でサンプリングした３つの試料は各0.97, 0.99, 1.03(wt.ppm)という含有量となった。

処理前の853° 溶融アルミニウムを一度凝固したのち、再び溶融して、719° でサンプリングした３つの試料は同様に 0.88, 0.87, 0.85(wt. ppm)という含有量となった。

再融解をしたのちのサンプリング温度が最初より低くなっているが、実験＜２＞のデータより、含有量と温度との補正をしてみても、再融解することによって炭素含有量が半分近く減少することが確認出来た。

DETERMINATION OF CARBON IN ALUMINIUM BY CHARGERD PARTICLE ACTIVATION ANALYSIS,

Riken and Niikeigiken＊ Kazuhiro SATO ,Tadashi NOZAKI and Iwao IZUMI＊

1B07　荷電粒子放射化分析法を用いたMg中のCの定量

(都立大理・核研[1]・東邦大理[2]・理研[3]・吉河マグネシウム[4])
○吉川英樹・中原弘道・今村峯雄[1]・佐藤和広[2]・三浦太一[3]・
野崎　正[3]・木村守一[4]

〔緒言〕　我々のグループは地熱地帯の火山ガス、温泉ガス中の天然放射能の^{222}Rn・^{220}Rnを定量する事により、それら核種の起源について地球化学的に検討してきた。地質学的な年代や、火山ガスの起源に関しての情報をより多く得る為に、火山ガスの非凝縮性ガス中に60%近く存在するCO_2ガスに着目し、それらガス中の^{14}Cの測定を検討している。地質学的に見ても数万年以上古いものである事が予想される上、サンプリングが難しく試料の量が限られてしまう。そこで試料が少なくてすみ、定量限界の低い加速器質量分析法を用いる事にした。火山ガスはカーボンフリーのNaOH水溶液の入った真空びんを用いて捕集し、このCO_2を吸収したアルカリ溶液からバリウムの炭酸塩として C を回収した。炭酸バリウムを真空ライン中で50%リン酸と反応させる事によりCO_2ガスを発生させ、金属マグネシウムと950℃で反応しCに還元される。このCにAg粉末をまぜターゲットにし^{14}C測定する。しかし^{14}Cの測定における B.G(現代カーボンの混入)の問題は年代測定に大きく影響してくる。実際に古い炭酸塩の試料と、火山ガスの測定結果を右に示す。試料そのものを測定すると55000～60000年前であるが[1]、CO_2ガスにして化学分離を行うと、30000年前として観測されてしまうので、正確な火山ガスのデーターを出す事ができない。一連の化学操作はN_2ガス雰囲気で行われているので、この現代カーボンの汚染源は還元に用いる金属マグネシウムと考えた。昨年の討論会において野崎らは、GaAs中の不純物C, Bの定量を目的として化学分離を含む荷電粒子放射化分析法を報告した[2]。そこで同法を用いて金属マグネシウム中のCの定量を試みた。

Table ^{14}C background in measurements of ^{14}C with AMS.

Target	Equivalent age (y BP)
NBS RM-49 oxalic acid	60300 ± 2100 (ref.1) 55500 ± 1700 (ref.1)
NBS RM-49 oxalic acid (chemical treated)	30400 26700
Hakone volcano owakudani	≧30300 ± 400 ≧27600 ± 400

〔実験〕　照射は理研160cmサイクロトロンを使用し、9MeVの重陽子をビーム電流約1μAで5～10分間行った。Mgは4ッ7°状(1～2mm角)のものと粉末状のものとがあるがどちらもφ25mmのペレット状にプレス成形しN_2ガス中に保存した。Mgターゲットは照射後希塩酸溶液に浸しエッチング後、2N塩酸溶液に溶解した。NaOH水溶液で中和後NH_3ガスを発生させカリボナールく$Na(B(C_6H_5)_4)$〕水溶液に捕集し沈殿を沪別

よしかわひでき，なかはらひろみち，いまむらみねお，さとうかずひろ，みうらたいら．
のざきただし，きむらもりかず．

した。 $^{12}C(d,n)^{13}N$ 反応によって生成する半減期9.96分の^{13}Nの測定は、Ge(Li)検出器又は、一対のBGOシンチレーターにより陽電子消滅ガンマ線を測定した。化学収率はNH_4Clをトレーサーとして用い、グラファイトを標準試料として濃度を求めた。

C中の放射能A_Cは

$$A_C = I_C \times n \times d_C \times \sum_{i=1}^{E_0} (\sigma(E_i) \times (Rd\text{-}C)_i) \times {}^{12}C\%$$

Mg 1mg の放射能A_{Mg}は Mg 1mg 中に C が W mg あるとすると

$$A_{Mg} = I_{Mg} \times n \times d_C \times \sum_{i=1}^{E_0} (\sigma(E_i) \times (Rd\text{-}Mg)_i) \times {}^{12}C\% \times W$$

両者の比をとり、又Edで空気中のPの飛程よりdのC中(Rd-c) Mg中(Rd-Mg)での飛程の比を求めた所、約1.234であった。

$$\frac{A_{Mg}}{A_C} \simeq 1.234 \times W \times \frac{I_{Mg}}{I_C}$$

照射時間(t_{Mg}, t_C) 電流値(I'_{Mg}, I'_C) 化学収率(Y_{chem} %)を考えると

$$W_{(ppm)} = \frac{A_{Mg}}{A_C} \times \frac{1-\exp(-\lambda t_C)}{1-\exp(-\lambda t_{Mg})} \times \frac{1}{1.234} \times \frac{I'_C}{I'_{Mg}} \times \frac{100}{Y_{chem}} \times 10^6$$

で求まる。

〔結果〕 市販の2種類のMgと特別に精製したMg(古河マグネシウム製)の分析結果を示す。 20 mg-C に対して 300 mg-Mg を用いるとして、化学操作による BG を 60000年±2000年前 とするには、12 ppm 以下の C 濃度にならなければならない。 精製により 5ppm にまで不純物Cを押えられた事が、本法により確認された。

Results of C Content in Mg-matrices with Charged Particle Activation Analysis

No.	Sample	C-content (ppm)
1	和光純薬 Mg-Powder Assay min. 99.0 %	53± 8
2	Goodfellow Mg-Powder 50 μm purity 99.8%	1400± 200
3	古河マグネシュウム	10.8± 0.9
4	同 精製-1	6.8± 0.4
5	同 精製-2	5.0± 0.4

〔文献〕

1) Nakamura.K. et al. Japanese J. Applied Phys. 1916, 1985

2) 野崎ら、第29回放射化学討論会 2A04、東邦大学, 1985.

DETERMINATION OF CARBON IN MAGNESIUM BY CHARGED PARTICLE ACTIVATION METHOD

Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, Hideki YOSHIKAWA, Hiromichi NAKAHARA
Institute for Nuclear Study, The University of Tokyo, Mineo IMAMURA
Faculty of Science, Toho University, Kazuhiro SATO
The Institute of Physical and Chemical Research, Taichi MIURA, Tadashi NOZAKI
Furukawa Magnesium Chemical Co., Morikazu KIMURA

1B08　鉄鋼及び銅金属中の微量炭素の光量子放射化分析

(三菱金属中研,東北大・＊核理研)　○吉岡　明・野村　紘一・竹谷　実・志村　和俊・＊八木　益男・＊桝本　和義

1．はじめに

金属材料中に存在する不純物として、軽元素(C,N,O)は金属材料の性質に大きな影響を及ぼす。特に最近では高純度材料や高度の品質管理が要求されるようになり、これに対応した分析法の研究開発が行なわれている。本研究では東北大学核理学研究施設の直線加速器を利用し、鉄鋼及び銅金属中の微量炭素の定量法を検討した。定量法として日本工業規格の炭素分析における酸化法と $^{12}C(\gamma,n)\,^{11}C$ ($T_{1/2}=20.38$ min)の核反応を用いた光量子放射化分析を併用することにより、精度良く定量できたのでここに報告する。

2．実験

2－1　試料及び照射試料の調製

炭素定量用標準物質は日本鉄鋼協会製の鉄鋼標準試料JSS－011－2を用いた。これは炭素含有量が47ppmである。分析に用いた試料は鉄鋼及び銅金属の６種である。各試料は炭素表面汚染を完全に除去するためHNO_3(１＋１)でエッチングした。これら試料は前後を光量子照射線量モニターとしてニッケル箔ではさみ、それをアルミニウム箔で包んだ後、石英管に入れて照射試料とした。

2－2　制動輻射照射

調製された各試料は一個づつ水冷式照射ホルダーの白金コンバーターの後方に固定し、電子加速エネルギー30MeV、平均電流約100～150μAの2mm厚白金による制動輻射で20分間づつ照射した。この際、制動輻射が試料中央に照射されるよう電子ビームは直径約5mmに収れんさせた。

2－3　炭素の化学分離及び放射能測定

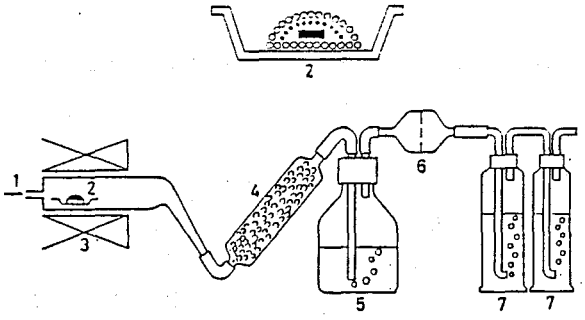
照射後の試料は空気中の炭酸ガスなどによる表面汚染を除去するためHNO_3(１＋１)でエッチングした後、第１図に示したようにアルミナボートに錫0.5g、照射試料、炭素含有鉄チップ1g、さらに錫0.5gの順に積み重ね、直ちに1350℃に設定してある管状電気炉に入れ酸素気流中(500cm³/min)で５分間熔融燃焼させた。発生したCO_2は二連式$BaCl_2$含有希NaOH溶液に補集した後、生成した$BaCO_3$の沈澱を直ちに吸引ろ過し放射能測定用試料とした。^{11}Cの511keVβ^+のγ線はGe(Li)あるいはpure Ge検出器と4000ch波高分析器で測定した。そして511keVのピーク面積を求め照射線量補正をした後、さらに照射終了後の値に補正し相互比較した。

3．結果と考察

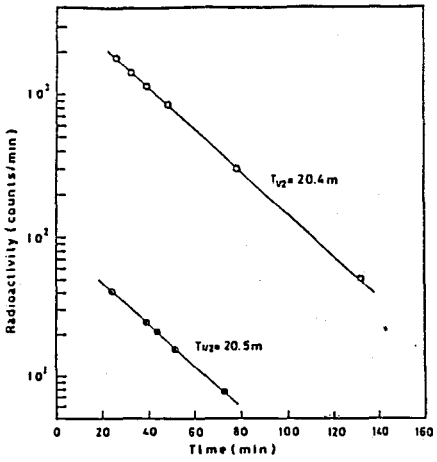
3－1　分離炭素の半減期

標準鉄鋼試料JSS－001－2と銅金属試料についての減衰曲線を第２図に示す。得られた半減期は文献値と良く一致した。これらの結果から本化学分離法において、炭素はCO_2としてマトリックス元素等に由来する放射性核種で汚染されることなく極めて高い純度で分離されることが実証された。

よしおか　あきら・のむら　こういち・たけや　みのる・しむら　かずとし・＊やぎ　ますお　＊ますもと　かずよし



第1図　炭素の化学分離装置。
1）酸素　2）アルミナボート　3）電気炉
4）Schutze管（I_2O_5）　5）硫酸洗浄ビン
6）テフロンろ紙　7）$BaCl_2$含有希NaOH捕集ビン



第2図　分離炭素の半減期
○：JSS－001－2試料
●：銅金属試料

3－2　鉄鋼及び銅金属中の炭素の定量

得られた結果を第1表に示す。

第1表　　鉄鋼及び銅金属中の炭素定量値

試料	定量値(ppm)	表示値(ppm)
鉄鋼標準試料JSS－159－2	41.7 ±1.0	40
A社 銅線	0.28±0.06	
B社 銅線	0.22±0.04	
C社 電気銅	3.75±0.14	
D社 電気銅	2.95±0.14	
銅標準物質(BAM)	11.0 ±0.7	(16) 参考値

従来行なわれてきた炭素分析法では炭素濃度が低くなると定量値がバラツキ、しかも比較的高い値となる結果がもたらされてきたが、これは分析中における炭素の汚染が最大の原因と考えられる。放射化分析法を用いることでこの障害を除去できるため、微量炭素を精度良く定量することができた。

DETERMINATION OF LOW CONCENTRATION OF CARBON IN STAINLESS STEEL AND COPPER METALS BY PHOTON ACTIVATION ANALYSIS.

Central Research Institute , Mitsubishi Metal Co. , Akira YOSHIOKA・Koichi NOMURA
Minoru TAKEYA・Kazutoshi SHIMURA
Laboratory of Nuclear Science , Tohoku University , Masuo YAGI・Kazuyoshi MASUMOTO

1B09　内標準法を応用した血清試料中のP, Cl, KおよびCaの荷電粒子放射化分析

（東北大核理研）　○八木益男・榊本和義

1．はじめに

演者らは内標準法[1]による多元素同時定量放射化分析の有用性を実証するため、光量子放射化[1-3]、荷電粒子放射化[4]というような両極に位置する放射化分析にそれを適用したり、また生体[1]、環境試料[2,3]あるいは金属[4]のような広範な試料にそれを適用したりすることによって継続的な研究をおこなってきた。結果としてこの方法は、放射化法にはなんら影響されないばかりか、従来の放射化分析法より極めて高い精度で多元素同時定量を可能にすることを明らかにした。さらにこれは図らずも、あらゆる物質の研究室内、研究室間標準物質作成に適した新しい標定法であるという評価を受けた[5]。

本研究ではこの方法の適用範囲をより一層拡大するため、放射化分析法としてはかなり困難をともなうが、生体試料にたいしてはその特色が十分発揮されるα放射化法による血清中のP, Cl, KおよびCaの標定にこれを適用して、人血清中の上記四元素に関する研究室内標準試料作成を試みることにした。ついでさらにこれは、市販コントロール血清中の同四元素の通常法によるα放射化分析の比較標準として利用し、内標準法の一つの典型的な応用例を示すことを試みた。

2．実験

内標準法による標準試料作成には、まだ公定値が与えられていない国立公害研究所製人血清（NIES CRM-No.4）を利用した。その他の分析試料としては、市販コントロール血清をそのまま用いた。内標準法では、内標準元素として選んだ元素は定量できないという欠点を持っている。それ故、血清のα放射化分析においては、内標準元素が分析対象元素から除外されると、定量可能元素数が少なくなってしまうという結果がもたらされる。しかし本研究ではこの問題はKあるいはCaを内標準元素とする二つの比較標準試料を作成することで解決した。したがって、比較標準試料は試料に定量目的元素ーP, Cl, Kあるいは P, Cl, Caーを標準添加法で添加し、凍結乾燥することで二種類調製した。また、内標準法、通常法ともに試料および比較標準試料は、入射α線エネルギーにたいして十分な厚さを持つペレットに成型し照射した。放射化は回転照射台を用い12ケのペレットを同時に入射エネルギー17 MeV[6]、約1 μAのα線ビームで30分間照射することでおこなった。一方γ線スペクトルはGe(Li)検出器を4 K 波高分析器に接続し測定した。

3．結果および考察

照射人血清のγ線スペクトルはFig. 1に示した。これから定量可能元素はP, Cl, KおよびCaであることがわかる。内標準法によるPの定量は1157 keV(^{44}Sc)または373 keV γ線(^{43}Sc)にたいする146 keVγ線(^{34m}Cl)の計数比を、Clの定量は同上二内標準核γ線にたいする2168 keV γ線(^{38}K)の計数比を、Kの定量は373 keV γ線(^{43}Sc)

やぎ　ますお、　ますもと　かずよし

にたいする 1157 keV γ線（^{44}Sc）の計数比を、また Ca の定量は 1157 keV γ線（^{44}Sc）にたいする 373 keV γ線の計数比を測定することでおこなった。えられたNIES CRM No.4中の四元素の定量結果は参考値とともにTable 1 に示した。いずれも再現性良く各平均値は参考値と良い一致を示した。ついでこれを通常法による市販コントロール血清中の四元素濃度定量の比較試料として利用し、えられた結果はTable 2 に示した。用いた比較標準試料の化学組成および物理的形態が試料のそれらと全く同じであったため、えられた結果は再現性に優れ各平均値はメーカーによって与えられた参考値と極めて良い一致を示した。

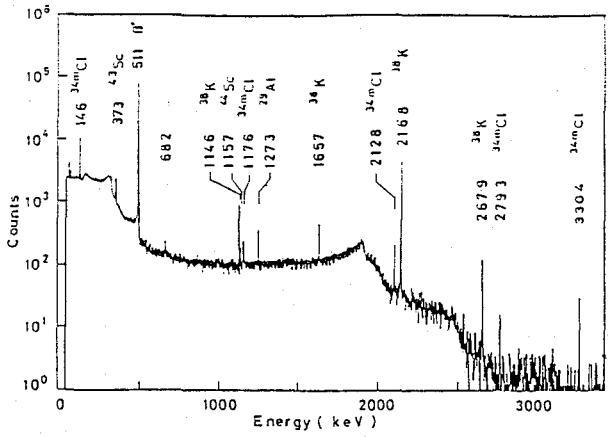


Fig. 1. Gamma-ray spectrum of the NIES CRM-No.4.

Table 1. Determination of P, Cl, K and Ca in the NIES CRM-No.4.

Internal standard	Concentration of element (μg/cm^3)			
	P	Cl	K	Ca
K (^{43}Sc)	112.2	3094	·····	81.5
	105.1	3190	·····	76.6
	101.2	3533	·····	82.7
	110.5	3287	·····	80.3
Ca (^{44}Sc)	107.6	3425	173.2	·····
	104.3	3049	165.0	·····
	105.9	3112	163.7	·····
	108.2	3191	174.1	·····
Average value	106.9±3.5	3235±170	169.0±5.4	80.3±2.6
Reference value	107	3200	173	78

Table 2. Determination of P, Cl, K and Ca in several control serums.

Sample	Concentration of element(μg/cm^3)			
	P	Cl	K	Ca
Validate	100.0	3719	222	98.1
	92.6	3581	228	92.2
	94.0	3798	212	96.0
	95.5	3707	221	97.1
	Av. 95.5±3.2	Av.3701±90	Av. 221±7	Av. 95.9±2.6
Validate A	117.6	2968	254	123.3
	107.0	3541	250	122.7
	121.4	3343	260	125.9
	117.0	3282	255	123.5
	Av.115.8±6.2	Av.3284±238	Av. 255±4	Av.123.9±1.4
Omega I	125.0	3136	144	100.7
	127.4	3213	142	98.1
	126.9	3284	143	103.4
	128.1	3214	151	100.1
	Av.126.9±1.3	Av.3212±60	Av. 145±4	Av.100.6±2.2
Omega II	194.6	3800	253	125.5
	194.7	3977	242	130.2
	192.9	3759	238	126.3
	197.7	3700	241	121.0
	Av.195.0±2.0	Av.3809±119	Av. 244±7	Av.125.8±3.8

1) M.Yagi, K.Masumoto, J.Radioanal.Nucl.Chem., 83(1984) 319.
2) K.Masumoto, M.Yagi, J.Radioanal.Nucl.Chem., 100(1986) 287.
3) M.Yagi, K.Masumoto, J.Radioanal.Nucl.Chem., (in press).
4) M.Yagi, K.Masumoto, J.Radioanal.Nucl.Chem., 91(1985) 379.
5) W.D.Ehmann, S.W.Yates, Anal. Chem., 58(1986) 49R.
6) K.Masumoto, M.Yagi, Ann.Rept. CYRIC, Tohoku Univ., (1982) 69.

DETERMINATION OF P, Cl, K and Ca IN SEVERAL HUMAN SERUMS BY CHARGED-PARTICLE ACTIVATION ANALYSIS APPLYING THE INTERNAL STANDARD METHOD

Laboratory of Nuclear Science, Faculty of Science, Tohoku University,
Masuo Yagi and Kazuyoshi Masumoto

1B10　土壌試料の内標準法による多元素光量子放射化分析

（東北大・核理研）　○ 増本和義・八木益男

1．はじめに

放射化分析法は様々な試料の諸元素濃度を明らかにするうえで非常に有効な方法である。とくに、各種標準試料の分析に活用されてきたことは良く知られている。しかし、このような目的には、実験上の補正係数が不要で、高い精度と正確さが実現できる定量法の開発が望まれる。演者らにより報告されてきた内標準法は、試料に定量目的元素を一定量添加したものを比較試料とするために、照射や測定時におけるマトリックス効果が相殺でき、さらに試料内に含まれる元素を内標準にして照射線量をモニターするために、試料に照射された線量を正確に求めることができるという特徴を持つものである。そのため、環境試料のように複雑な組成の試料に含まれる微量元素の定量を行なう場合には、有効な定量手段となることが期待される。すでに、各種生物試料や沈積物試料の光量子放射化分析[1-2]、荷電粒子放射化分析[3-4]に本法を適用し、その有効性を確かめてきた。

本法では、照射前に試料に定量目的元素を一定量添加することが不可欠であるが、その際汚染させることなく、かつ均一に添加する必要がある。本研究ではとくに複雑な組成の試料として土壌試料を選び、内標準法による光量子放射化分析法を適用し、微量15元素の同時定量を実施した。とくに、比較標準は二つの異なる試料処理法によって作製し、定量結果の再現性について両者の相互比較を行なった。

2．実験

試料はＩＡＥＡ配布のSoil-5およびＢＣＲ配布の数種の土壌試料を選んだ。定量目的元素はAs、Ba、Ce、Co、Cr、Cs、Nb、Ni、Pb、Rb、Sb、Sr、Y、ZnおよびZrの15元素である。比較標準は、試料約1gに各定量目的元素の標準溶液の一定量を加え、一方はただちに４Ｎ硝酸を加え、撹拌しながらテトラエチルシリケートを加えてゲル化させた。もう一方は、濃硝酸を加えテフロン加圧分解容器中で 150℃、５時間放置し、主に有機物を分解したうえでテトラエチルシリケートを加えてゲル化させた。ゲルは電子レンジおよび電気炉で乾燥させたのち、その一部をとって直径10mmのペレット状に成型した。また、未処理の試料も添加試料と同様に成型した。

照射は加速エネルギー30MeV 、平均電流約150μAの電子線を厚さ2mm の白金板で制動輻射に転換して行なった。試料は石英管に封入し、白金板後方10～15cmの位置で３時間照射した。照射後、各試料はアルミニウム箔で再包装し、マイクロ・ロボットを利用した自動測定装置[5]を用いてγ線測定を行なった。生成核種からのγ線をＳＮ比良く検出するため、約１～５時間、３～４日、７～10および３～４週間後の４つの測定期間に分けて測定を繰り返した。

3．結果と考察

内標準元素には、環境試料中の主要成分であるNa、Mg、Ca、Ti、MnおよびFeの６元素を選んだ。これらの元素からは^{22}Na、^{24}Na、^{43}K、^{46}Sc、^{47}Sc、^{48}Sc、^{54}Mnおよび ^{56}Mnが生

ますもと かずよし、　やぎ ますお

成し、それぞれ測定に適したγ線を放出する。これらの核種は半減期が数時間から年のオーダーのものまであるため、いずれの測定期間においても複数の核種からのγ線を内標準ピークに利用することができた。

本法の定量式は以下のように与えられる。すなわち、定量目的元素をx g 含む試料に、y g 添加したものを比較試料とし、試料とともに照射後、定量目的元素と内標準元素から生成する放射能の比(通常はγ線ピーク面積比)を 試料(R)と比較試料(R*)について測定すれば、未知量x g は　$x = y/[(R^*/R) - 1]$　と非常に簡便な式で求めることができる。それゆえ、比較試料に標準添加が均一に行なわれたか否かは、ゲル化した試料を4分割したうえで照射し、それぞれのR* を測定することによって確かめることができる。土壌試料Soil-5の場合、酸分解を行なわずにゲル化させたものは、照射試料による定量値のばらつきが大きく、均一な混合ができないと判断された。それにたいし、酸分解したうえでゲル化させた試料で得られたR* のばらつきは未処理の試料でのRのばらつきと同程度となり、均一性が改善された。以上のように、本法では完全な溶解は不要であるが、土壌試料については最低限の処理として硝酸による分解操作は不可欠と判断された。

ここでは、表1に酸分解した場合のSoil-5中の15元素の定量結果を示す。定量値のばらつきはCrとNbで10%を越えたが、その他は5%以下であり、非常に良い再現性が得られた。また、定量結果は、Niを除いて、IAEAの推奨値の範囲内で良く一致した。

表1. Concentrations of trace elements in IAEA CRM Soil-5(μg/g).

Element	No.1	No.2	No.3	No.4	Average	Certified
As	102	109	99	105	103±3	93.9±7.5 *1
Ba	543	507	480	528	515±27	562±53 *1
Ce	60.2	63.6	63.5	58.9	61.6±2.4	59.7±3.0 *1
Co	16.5	15.1	16.3	16.3	16.1±0.6	14.8±0.76*1
Cr	31.9	28.3	35.7	29.2	31.3±3.3	28.1±1.5 *2
Cs	61.8	63.3	57.5	57.5	60.0±3.0	56.7±3.3 *2
Nb	11.6	11.1	9.8	12.8	11.3±1.2	(9) *3
Ni	6.6	6.3	5.9	5.8	6.2±0.4	(13) *3
Pb	127	138	128	142	133±7	129±26 *2
Rb	137	136	131	136	136±3	138±7.4 *1
Sb	15.2	17.3	16.4	15.2	16.0±1.0	14.3±2.2 *2
Sr	327	327	355	336	336±13	(330) *3
Y	21.1	22.6	22.0	21.7	21.8±0.6	(21) *3
Zn	375	393	359	370	374±14	368±8.2 *1
Zr	224	238	222	213	224±10	(221) *3

*1: recommended values with a relatively high degree of confidence,
*2: recommended values with a reasonable degree of confidence,
*3: non-certified values.

以上のように、本法では定量目的元素の添加法が精度を左右することになるから、より簡便かつ確実な方法の工夫が望まれよう。なお、複数の内標準を定量に利用することによって、定量の正確さを向上させることができるとともに、試料の均一性や内標準元素と定量元素が試料内で同一の分布をしているか否かなど他の定量法では得られない情報を得ることができることは本法の附随する特徴といえよう。

1) M.Yagi, K.Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. A,83(1984)319.
2) K.Masumoto, M.Yagi : J. Radioanal. Nucl. Chem. A,100(1986)287.
3) 桝本,八木: 第29回 放射化学討論会 予稿集 (1985)p.250.
4) K.Masumoto, M.Yagi : J. Radioanal. Nucl. Chem. A, to be published.
5) M.Yagi, K.Masumoto, M.Muto : J. Radioanal. Nucl. Chem. 98(1986)31.

MULTIELEMENT PHOTON ACTIVATION ANALYSIS OF SOIL SAMPLES USING THE INTERNAL STANDARD METHOD

Laboratory of Nuclear Science, Faculty of Science, Tohoku University,
Kazuyoshi Masumoto and Masuo Yagi

1B11　土壌標準試料の放射化分析による多元素同時定量

（明大・農，都立大・理）　○塚田正道，大槻　勤，矢永誠人，遠藤和豊，中原弘道

現在までに日本地質調査所から出されてきた（ＧＳＪ）－ＪＧ－１黒雲母花崗閃緑岩，ＪＢ－１アルカリ玄武岩に代表される各種の標準岩石試料，国立公害研究所から出されている（ＮＩＥＳ）－No.1，No.3，No.6（Pepperbush，Chlorella，Mussel）などの標準生物試料についてランタノイド元素の分析を行ない、同時にこの分析法に対する前濃縮法を検討してきた。

最近、このような試料とは別に、日本土壌肥料学会は土壌分析の精度向上をめざして、公式の標準土壌試料として４種の試料を作成し広く頒布するようになった。これまで扱ってきた標準試料に比べて有機質、無機質の混合比が大きく異なるが、これは土壌としての特徴であり、この点で特殊な標準試料といえる。この試料の無機元素含有量が直接に植物と関連をもつとは考えられないが、土壌の可給態成分の分析や、環境とのかかわり（公害，生物系の代謝など）を追求する上での基礎データとして、各元素の絶対量を決定しておくことが必要である。また、このような試料に対する分析法も検討しておくことも必要である。このようなことから、この４種の標準土壌中のランタノイドおよびその他の元素の放射化分析法による定量分析を行った。ランタノイドについては演者等がこれまで行ってきた Activable Yield Tracer 法，常法の放射化学分離法，非破壊法を比較した。その他の元素は標準岩石を利用した非破壊法のみによった。

試料：ＮＤＧ－１（黒ボク土畑作土，栃木県農試分場，鹿沼赤層），ＮＤＧ－２（黒ボク土畑心土，同、下層）；ＮＤＧ－３（黄色土畑作土，静岡県三方ヶ原，洪積土表層），ＮＤＧ－４（黄色土畑心土，同、下層）

ＮＤＧ－１

項　目	平均値	ＣＶ％
水分率　（％）	12.9	2.9
pH	5.21	2.7
ＥＣ　（mS）	0.097	3.6
Ｔ－Ｃ　（％）	6.98	3.6
Ｔ－Ｎ　（％）	0.439	4.6
ex－CaO（mg）	69.0	7.2
ex－MgO（mg）	5.78	9.6
ex－K_2O（mg）	13.2	9.3

ＮＤＧ－２

項　目	平均値	ＣＶ％
水分率　（％）	15.7	2.3
pH	5.40	2.2
ＥＣ　（mS）	0.123	4.7
Ｔ－Ｃ　（％）	1.56	3.1
Ｔ－Ｎ　（％）	0.136	7.9
ex－CaO（mg）	84.2	6.8
ex－MgO（mg）	9.23	3.1
ex－K_2O（mg）	14.1	7.2

上記の表は２種の試料に関する日本土壌肥料学会の保証値および参考値を示したもので、これらの試料は、いずれも、１mm以下の風乾細土になったものの分析値である。試料は約１００mgを精秤して非破壊分析に用いた。化学分離を伴う場合、約２５０mgを精秤した。

実験操作：Activable Yield Tracer 前濃縮法＝試料はニッケルルツボに入れ、^{156}Dyの濃縮安定同位体をトレーサーとして 3.9 μg（200 μl）加え、化学分離後、別に準備し

つかだまさみち，おおつきつとむ，中ながまこと，えんどうかずとよ，なかはらひろみち

た標準トレーサーとともに放射化した。更に、簡単な分離操作を加えてから、その放射線強度を標準トレーサーの放射線強度と比較し、補正を加えて回収率を算出した。

常法の化学分離操作法：試料の放射化後、担体を加えて常法どうり行った。回収率は再放射化によって求めた。

準破壊法では短寿命核種のためには5分間（RSR），中寿命核種に対して2時間（Fe，リング）、長寿命核種に対しては24時間（RSR）照射を行った。原子炉はいずれも立教大学原子炉TRIGA-MARK II（RSR：flux $=5\times10^{11}n\cdot cm^{-2}\cdot s^{-1}$，Fe：flux $=1\times10^{12}n\cdot cm^{-2}\cdot s^{-1}$）を使用した。

分離、濃縮：前濃縮法ではトレーサー添加後，常法の化学処理法では放射化後、担体を加えてから、先ず、NaOH（約10g）とNa_2O_2（約1g）を加えて溶融し、$Fe(OH)_3$共沈物を得る（前濃縮法では、これを放射化する）。conc. HClに溶かし、Dowex 1-×8，Cl型陰イオン交換樹脂に通してから希化物生成、最終的に水酸化物として40 cm^3-Ge(Li)検出器にてγ-線スペクトロメトリーを行った。

結果：下表にNDG-1のランタノイド元素，一部の長寿命核種から得られた元素含量（NDG-2についても）を示した。現在，他の元素についても検討中である。

Element	NDG-1 Content(μg/g) Pc-NAA	RNAA	INAA	Element	NDG-1 Content(μg/g) Pc-NAA	RNAA	INAA
La	15.8 ±0.8	14.5 ±0.7	15 ±1	Tb	0.36 ±0.03	ND	ND
Ce	18.5 ±0.9	18 ±2	19 ±2	Dy	3.25 ±0.07	4.7 ±0.6	4.3 ±0.7
Pr	2.8 ±0.4	3.4 ±0.7	ND	Ho	0.53 ±0.04	0.52 ±0.07	0.09 ±0.02
Nd	33 ±3	ND	ND	Er	1.2 ±0.3	0.9 ±0.2	ND
Sm	3.74 ±0.07	3.54 ±0.05	3.5 ±0.1	Tm	ND	ND	ND
Eu	0.977 ±0.004	0.88 ±0.02	0.99 ±0.06	Yb	0.32 ±0.03	0.29 ±0.06	ND
Gd	3.2 ±0.4	ND	ND	Lu	0.073 ±0.005	0.27 ±0.09	0.36 ±0.08

Sc	25.7 (NDG-1)	34.5 (NDG-2)
Fe	68.7 (〃)	82.0 (〃)
Co	27.8 (〃)	34.9 (〃)

単位はμg/g

DETERMINATION OF ELEMENTAL CONCENTRATION IN JAPANESE STANDARD SOILS BY NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS.

Faculty of Agriculture, Meiji University, Masamichi TSUKADA
Faculty of Science, Tsutomu OTSUKI, Makoto YANAGA, Kazutoyo ENDO, Hiromichi NAKAHARA

1B12　複写機用トナーの中性子放射化分析

（科警研）　○岸　徹，角田紀子，灘野大太，大木　博

1．はじめに

ゼロックスに代表される電子写真による複写機の普及は近年めざましいものがあり，この複写機によりコピーされた文書が犯罪に関連した資料として問題となる場合がでてきている．この際問題となるものの１つにその文書がどの複写機でコピーされたものであるかという機種推定がある．

複写機の機種推定はそのコピーされた文書の縮小率などから判別する方法もとられているが，近年拡大縮小率の同程度のもの，ズーム機能をもったものなどが販売され，困難となってきている．

そのため，この縮小率以外の情報から機種の推定が可能であるかどうかとの視野にたち，複写機に用いられるトナーがその機種に固有のものであることに着目してトナー成分を分析することにより機種推定が可能であるかどうかの検討を行った．　最近はカラーコピーも散見されるようになったが，今回は黒色のコピーのみについて検討した．一般に用いられている黒色トナーは，着色剤としての無機成分とバインダーとしての高分子材料からなり，種々の元素を含有していることが予想されるため，放射化分析法により分析を試みた．

2．実験

（1）試料

今回，分析した試料は各社から提供されたもので４社５４種類であり，一成分トナー，二成分トナーなどの現像方法の異なるものを含んでいる．

試料は微粉末であるためそのまま扱うのが困難であり，ガラス板上で加熱軟化させたものを固化して約１００ｍｇを薬包紙に包んで後ポリエチレン袋に封入して照射用試料とした．

（2）放射化分析

中性子照射は武蔵工業大学原子力研究所の原子炉（ＴＲＩＧＡ－Ⅱ，最大出力１００ｋＷ）の気送管（熱中性子束：$1 \times 10^{12} n cm^{-2} sec^{-1}$）で２００ｓｅｃ行った．また，一部の試料については照射溝での５時間照射も行った．

γ線スペクトルは，Ｇｅ（Ｌｉ）検出器と４０９６チャネル波高分析器を用いて測定した．

3．結果及び考察

気送管による短期照射を行った場合，複写機用のトナーは大きく２つのグループに分け

きしとおる，つのだのりこ，なだのだいた，おおきひろし

られることが明らかとなった．すなわち，Mnの含有量が約３０００－１０００μｇ／ｇのものと約５００μｇ／ｇ以下のものの２つのグループに分けられた．前者については3社１５試料あったが，これらはすべて一成分系のトナーであり，フェライトを主成分としていることに起因する．後者のグループに属するトナーについては表１に示したようにＣｌ，Ｖ，Ｎａ，Ａｌ，Ｍｎ，Ｂｒ，Ｍｇ，Ｔｉ，Ｚｎ，Ｓｎ，Ｉｎが検出された．

トナーを特定するさいには検出率の低い元素，分布範囲の広い元素ほど有効なため，今回分析した元素の検出率，濃度範囲，その平均値を表１に示した．Ｃｌ，Ｖ，Ｎａ，Ａｌについてはほとんどの試料から検出されており，Ｉｎは１試料のみから検出されまたＺｎは２社４試料から，Ｓｎは１社３試料から検出された．この結果，Ｉｎ，Ｓｎ，Ｚｎなどの低検出率の元素はそのトナーを特定するさいには非常に効果的であることがわかった．

Ｍｎが多量に含まれている一成分系のトナーについては，さらに５時間照射を行い分析した結果，Ｆｅ，Ｚｎ，Ｌａ，Ｅｕ，Ｓｍ，Ｃｅなどの元素が検出されたが，Ｌａ，Ｅｕの含有の有無，Ｚｎ／Ｍｎ値などに顕著な差異が見いだされた．この結果，一成分系のトナーについては長期照射による分析が有効であることが明らかとなった．

表１　トナーから検出された元素の検出率と濃度範囲

元素	検出率（%）	濃度範囲（μｇ／ｇ）	平均値±ＳＤ（μｇ／ｇ）	
Ｃｌ	１００	６－１４１０	１５１	±２６７　（ｎ＝３９）
Ｖ	１００	０.０２－７.６	０.８６	±１.５３　（ｎ＝３９）
Ｎａ	９５	１４－５６０	１５８	±１７２　（ｎ＝３７）
Ａｌ	９５	８－５４００	４３８	±８７０　（ｎ＝３７）
Ｍｎ	５９	０.１－５２４	２４.８	±１０９　（ｎ＝２３）
Ｂｒ	４１	０.２－８７	１０.１	±２１.６　（ｎ＝１６）
Ｍｇ	３３	１３－３１０	８５	±７７　（ｎ＝１３）
Ｔｉ	１３	４－６７	１８.２	±２７.３　（ｎ＝５）
Ｚｎ	１０	４１０－２３００	１０３９	±８７４　（ｎ＝４）
Ｓｎ	８	４８０－５３０	４９６	±２６　（ｎ＝３）
Ｉｎ	３	８７	８７	（ｎ＝１）

＊全試料数は３９，ｎは各元素が検出された試料数．

INSTRUMENTAL NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS OF TONER

National Research Institute of Police Science, Tohru KISHI, Noriko TSUNODA, Daita NADANO and Hiroshi OHKI

1B13

日本の古代遺跡における朝鮮半島産陶質土器の検出（その3報）　小路古墳，星塚古墳（奈良県）

（奈良教育大　京大原子炉）○三辻利一，中野幸弘，西川佳見　伊藤尚志，山尾みどり

1）朝鮮半島産陶質土器検出の意義

8世紀以後の我国と朝鮮半島の諸政治権力集団との間の交渉については記紀，および，それ以後の文献資料にも書かれているが，8世紀以前の交渉については中国正史や朝鮮半島の歴史資料に若干書かれている。また，古墳から出土する鏡や馬具などの金属遺物が中国や朝鮮半島からの渡来物であることも考古学者によって指摘されている。一方，須恵器生産技術が渡来した5世紀頃の日本の古墳から，器形からみて朝鮮半島産ではないかと云われる陶質土器が出土する。これらが果して朝鮮半島で作られたものであるかどうかは材質分析によって確かめられる。このような陶質土器が5～6世紀代の日本の古墳にどのように分布しているのか，また，朝鮮半島産陶質土器が何故，日本の古墳に埋葬されるようになるのか，このような点が日本歴史研究の上に意味をもってくるようになる。

2）これまでの研究結果

演者らは畿内の古墳に朝鮮半島産陶質土器が検出されるかどうかという観点から研究を始めた。ここでことわっておくが，日本で作られた陶質土器のことを須恵器という。朝鮮半島で作られた陶質土器を須恵器とは云わない。しかし，須恵器も陶質土器も本質的には同じ技法で作られた土器である。5～6世紀における畿内の最大の須恵器生産場所は大阪陶邑（現，堺市）である。したがって，大阪陶邑産須恵器と朝鮮半島産の陶質土器が材質分析によって相互識別が可能であるかどうかが問題になる。演者らの研究の結果，Sr，Laの2因子がとくに有効であることが判明した。また，その結果を使って，和歌山市周辺にあるいくつかの古墳に朝鮮半島産陶質土器を検出した。これは畿内政権の配下で水軍としての役割を荷なった紀氏が和歌山市周辺を根拠として勢力をはったことと関係すると思われる。しかし，和歌山市周辺だけに陶質土器があるとは思えない。古代史からみると，むしろ，古代政権の中枢である奈良県下や大阪府下にもっと多くの陶質土器があるものと推察される。このような観点に立って今回は奈良県天理市にある星塚1，2号墳，小路古墳から出土した土器を分析した。これらの古墳はいずれも豪華な金具を出土したことで知られる古墳である。

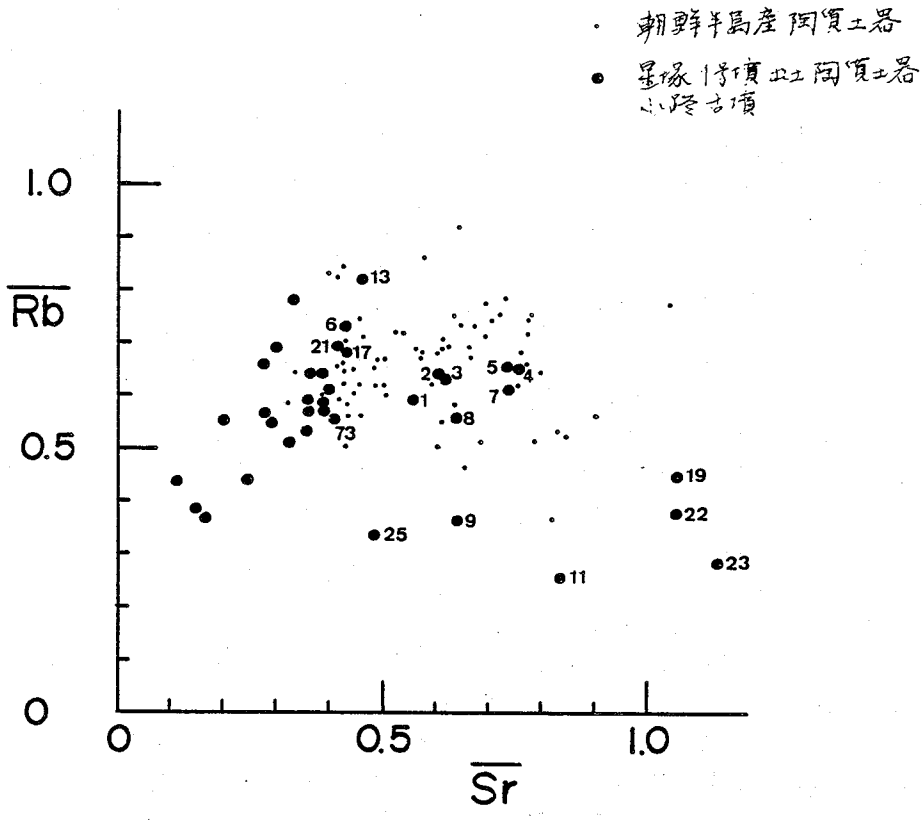
3）星塚古墳，小路古墳出土陶質土器の分析結果

Rb－Sr分布図の一例を次図に示す。図時に朝鮮半島産陶質土器の分析結果も示してある。これらは神戸商船大，化学研究所が提供されたものであり，主として慶州，金海のものである。そうすると，星塚古墳，小路古墳出土土器のうち，No.1，2，3，4，5，7，8，13，17，21，23などは朝鮮半島産である可能性をもち，Srの量の少ないものは大阪陶

みつじとしかず，なかがわゆきひろ，にしかわよしひろ，のとうひさし，やまおみどり

邑産の可能性をもつ。また、No.7、11、19、22、23、25の6点は弥生陶邑産でも朝鮮半島産でもなく、むしろ、古千古墳群内で埴輪とともに焼成された須恵器の可能性もある。これらを放射化分析し、Ca因子より産地を推定した結果について報告する。

図2　星塚1号墳出土陶質土器のRb-Sr分布図
小路古墳



DETECTION OF KOREAN POTTERY IN JAPANESE ANCIENT TOMB SITES(PART 3), SHOJI AND HOSHIZUKA TOMB SITES IN NARA PREFECTURE

Laboratory of Physical Chemistry, Nara University of Education,
Toshikazu MITSUJI, Yukihiro NAKANO, Yoshihiro NISHIKAWA, Hisashi ITO,
Midori YAMAO

1B14　5～6世紀の大阪陶邑産須恵器の分布（才十報）　お花山古墳群（山形県）の須恵器

（奈良教育大）○三辻利一，岡井　剛，杉　直樹，大津裕一

1）古代土器の分析化学的研究の意味

演者らはこれまでも考古学系学会のみならず，種々の自然科学系学会においても土器の分析化学的研究の成果について部分的に発表して来た。今回の発表にあたり，このような研究の意味，すなわち，何故，土器の分析化学的研究をそれまでに進めるのか，また，その結果，どういう成果が期待されるのかについて述べておきたい。

従来の概念で云えば，歴史学とは歴史学者が文献資料を通して展開する学問研究である。ここでは文献中の語句，文章の解釈とか文献資料の信ぴょう性とかが問題になり，自然科学者には無関係の分野である。ところが，人類の過去を探る研究は文献史学ですべて解釈できるかというと，そういう訳にはいかない。たとえば，日本における最も古い文献は古事記（710年），日本書紀（720年）である。記紀には8世紀以前の歴史についても書かれているが，その信ぴょう性については歴史学者が多く疑問のはさむところである。そのため，8世紀以前の歴史研究は従来の歴史学では解明し難いところである。一方，最近の考古学研究の進展は著しく，全国各地で多数の遺跡が発掘され，夥しい数の遺物が出土している。これらの遺物は過去の人々が残した歴史遺物であり，それらを通しての歴史研究も可能である。したがって，8世紀以前の歴史研究には考古学に期待するところが多大である。ところが，文章に書かれている文献資料とは違い，無言の考古遺物に歴史を語らせることは容易なことではない。考古遺物の中で最も多く出土するのが土器である。土器に関する考古学研究はその型式分類による相対編年として集成されている。しかし，土器の生産と流通に関する問題は殆んど未解決の状態である。「土器の生産と流通」に関する問題解決こそ考古遺物としての土器を歴史研究に生かす上に重要である。土器の素材は岩石が風化してできた粘土である。土器の材質に関する研究には自然科学的手法が有効である。ここに土器を分析化学的に研究する意味が出てくる。勿論，この研究に十分な意味を持たせるためには全日本の土器を分析化学的に研究しなければならない。多数の土器を分析し，土器の生産と流通に関する問題を解決しつつ，土器に歴史を語らせること，これが古代土器の分析化学的研究に期待される成果である。

演者らは下図に示すように，出土遺物の考古学研究に加えて，その材質的研究を自然科学者が推進し，これらから得られるデータを基礎にして総合的歴史学を展開するのがこれからの歴史学ではないかと考える。

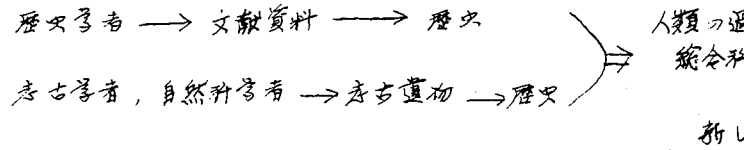
歴史学者 ⟶ 文献資料 ⟶ 歴史

考古学者，自然科学者 ⟶ 考古遺物 ⟶ 歴史

⇒ 人類の過去を探る総合科学としての歴史学

↓

新しい歴史学へ



みつじとしかず，おかいたけし，すぎなおき，おおつゆういち

2）5・6世紀代の須恵器の生産と流通

上述のような視点から土器の分析化学的研究を進める上に最も都合のよい土器は須恵器である。都合がよいというのは①生産場所である窯跡が残っていること，②全国各地に窯跡が残っているところに美がある。そのため演者らは全国の窯跡出土須恵器を長年にわたって分析し，地域差のあることを立証した。この地域差を使えば何処で作られた須恵器が何処の古墳へ供給されているのかが分かる。つまり，古代社会における須恵器の生産と流通の関係が分かる訳である。この研究を遂行する上に最も扱い易いのが5・6世紀の須恵器である。この時期には須恵器生産は十分に普及しておらず，ごく限られた地域でしか須恵器生産は行われていないため窯跡数は少なく，分析化学的手法を適用し易いからである。このような訳で，全国各地の5・6世紀代の古墳出土須恵器が何処から供給されたものであるかを追跡するのが当面の演者の目的である。

今回は関東・東北地方唯一の5世紀代の須恵器窯跡である仙台市大蓮寺窯の須恵器が何処へ供給されているのか，また，その周辺の古墳出土須恵器はすべて地元産であるのかどうかという観点から，山形県下の古墳出土須恵器が分析対象となった。

3）東北地方に於ける大阪陶邑(スエムラ)産須恵器が検出された

蛍光X線分析によるK，Ca，Rb，Sr因子，放射化分析によるLa，Sc因子より，が花山古墳群には地元，大蓮寺窯の須恵器が検出されたが，同時に地元産ではない須恵器も検出された。この須恵器の化学特性は大阪陶邑産須恵器に対応した。同様にして，物見台遺跡にも大阪陶邑産と推定される須恵器を検出した。

以上の結果，九州，四国，中国，北陸，関東に加えて東北地方にも5ヘ6世紀の古墳には大阪陶邑産須恵器が供給されていることが明らかになった。このことは中国の正史の一つである「宋書倭国伝」にある倭王武の上奏文「…東征毛人，五十五國，西服衆夷，六十六國，…」と一致する。そこから，結論として，5ヘ6世紀代の大阪陶邑産須恵器の分布は倭王の征服した古代王国の版図を示すのではなかろうかという仮説が導き出される。

4）引用文献

① 三辻利一　「古代土器の産地推定法」　考古学ライブラリー 14　（ニューサイエンス社）　（1983）

② 富永健，馬淵久夫 編　「続・考古学のための化学10章」　（東大出版）　（1986）

③ 三辻利一　　科学朝日　12月号　（1985）

DISTRIBUTION OF SUEKI WARE PRODUCED IN OSAKA SUEMURA IN 5-6 CENTURY(PART 4), OHANAYAMA TOMB GROUP SITE IN YAMAGATA PREFECTURE

Laboratory of Physical Chemistry, Nara University of Education,
Toshikazu MITSUJI, Takeshi OKAI, Naoki SUGI, Uichi OTSU

1B15　INAAによるヒト血清および血球中の微量元素分析（病態解析へのアプローチ）

（弘前大・教育，東大・原子力セ*，弘前大・医**）○秋葉文正，*高野武美，**蝦名祐一，**今充

1. 緒言

我々は，主として生体内必須微量元素の存在量と役割に注目し，これまで原研施設の共同利用研究により，生体試料の中性子放射化分析（NAA）に関する基礎的データの集積に努めてきた。本研究の目的は，従来の経験から医学・臨床栄養への応用面の一端として，ヒト血清および血球中微量元素濃度の測定にINAAを適用し，病態解析に役立つ方途を見出すことである[1]。とくに関心のある元素は，Cr, Mn, Fe, Co, Zn, Se, I, などのほかに Na, Mg, Al, P, Cl, K, Ca, V, Br, などがある。本来，ヒト血液は生体の内部環境として最も重要であり，ホメオスターシス機構が強く働いて健康時の血液中成分濃度はかなり狭い範囲に分布する。無機成分のうち，ナトリウム，カリウム，カルシウム，塩素などは基本的生存状態にかかわるため，とくに恒常性が高いとされている。しかし，一般に疾患時にはその病態に応じた濃度変動がある筈であり，それらの知見は病態解の一般的把握に役立つものと考えられる。また，本研究の動機は，最近，日本原子力研究所JRR-4原子炉に気送管施設が改修整備され[2]，短寿命核種放射化分析の共同利用が実現したこと，および大学開放研で独自に開発した「ガンマ線簡易解析システム」の利用が可能となった事情などと大きく関わっている。目下，鏡意実験継続中で，データ解析はまだ十分に行われていないが，これまで得られた結果について述べる。

2. 実験の方法

(1) 分析試料：血液試料は弘前大学医学部第二外科学教室より提供された。各種疾患の入院患者より1回の採血量8mlとし，遠心分離法で血清と血球区分にわけ，直ちに−20°Cで保存し，凍結乾燥の後注意して粉砕し密封容器に入れてデシケータ中に保存した。

(2) 原子炉照射と放射能測定：血清および血球の凍結乾燥粉末，各100mg前後を精秤し，長寿命核種測定用（石英アンプル封入）および短寿命核種測定用（ポリエチレン袋封入）の照射試料を作った。比較標準試料には，NBS標準物質（Pine needles, Tomato Leaves, および Bovine Liver），生体試料のための合成標準物質（東北大・理，鈴木研究室試作），他に自作簡易標準試料を用いた。長寿命核種の測定はJRR-4 Sパイプ（ϕ_{th} 5.5×10^{13} $n/(cm^2\cdot s)$）で6時間照射，4週間以上冷却し，ピュアGe検出器と2Kチャネル PHAで2000秒γ線計測を行った。短寿命核種の測定はJRR-4気送管の(a) Cdフィルター無しの場合 ϕ_{th} 4.5×10^{13}, ϕ_f 8×10^{12} $n/(cm^2\cdot s)$ (b) Cdフィルター有りで ϕ_{th} 1.5×10^{12}, ϕ_f 9.5×10^{12} $n/(cm^2\cdot s)$）で，10秒照射，90秒冷却し，ピュアGe検出器と4Kチャネル PHAで200秒γ線計測を行った。なお，データ解析は大学開放研で開発した「ガンマ線簡易解析システム」によった。

3. 実験結果と考察

あきは ふみまさ，たかの たけみ，えびな ゆういち，こん みつる．

本研究は1984年度に着手し，'85年度では消化器系ガン疾患の症例が多い患者50人分の試料の分析を可能とした。表1.と表2.に分析値の一部を示す。

表1. 長寿命核種の測定による血清・血球区分の分析例（暫定値）

性	年令	試料区分(mg)	Fe(mg)	Zn(μg)	Se(μg)	Cr(μg)
♂	66	S 237.8	ND	9.4±0.6	0.23±0.07	0.26±0.06
		BC 985.6	3.38±0.08	43.1±2.5	0.99±0.24	0.80±0.25
♂	60	S 356.2	ND	6.0±0.5	0.28±0.07	0.09±0.04
		BC 1137.2	3.39±0.07	46.1±2.2	0.79±0.19	0.43±0.12
♂	60	S 421.8	ND	5.4±0.4	0.46±0.06	0.24±0.07
		BC 1266.6	3.52±0.08	44.6±2.3	0.67±0.23	0.23±0.20
♀	60	S 296.8	ND	4.3±0.6	0.29±0.08	0.18±0.06
		BC 642.8	2.00±0.05	20.3±1.5	0.24±0.14	0.68±0.16
♀	36	S 171.8	ND	5.1±0.6	0.38±0.08	0.20±0.06
		BC 571.3	2.23±0.05	51.1±2.1	2.25±0.23	2.29±0.27
♀	73	S 383.9	ND	9.3±0.6	0.39±0.08	0.28±0.08
		BC 615.9	1.99±0.04	28.2±1.2	0.39±0.11	0.42±0.07

ND = not detected, S = Serum, BC = Blood Cells

表2. 短寿命核種の測定による，血球区分の分析例（暫定値）

性	年令	試料(mg)	Na (mg)	K (mg)	Ca (mg)	Mn (μg)	Cu (μg)	Al (μg)	P (mg)	Cl (mg)	Br (μg)	I (μg)
♂	67	711.4	0.91	7.0	0.16	4.3	13.4	ND	ND	3.62	10.2	1.5
♂	65	645.4	0.77	6.5	0.06	2.8	10.2	0.32	1.32	3.99	8.2	0.8
♀	42	452.2	0.40	5.6	0.08	4.5	5.4	1.15	0.89	2.52	11.5	2.9
♀	43	879.7	1.54	10.3	0.15	13.6	11.9	0.93	1.92	5.81	15.3	1.8

ND = not detected

一般にINAAによる分析値の精度は劣ると言われるが，測定精度に関する実際上の問題点にも言及する。個々の分析試料は採血時の病歴や症状も多様であることを考慮すると，健康人の正常値と比較検討する必要がある。しかし，従来の文献値によるとコバルトやクロムの正常値は報告者により大差があり[3),4)] ナトリウムなども測定法や機器により分析値が大幅に異る場合がある。従って，試料の採取・調製法を基準化し，同じ分析法で信頼度の高いデータを集積する必要がある。血液中の元素濃度は通常μg(mg)/mLで示すことが多い。我々の経験では，凍結乾燥試料は4～5%の水分を含み，血清・血球区分の全重量は個人差があり，健康人と患者の無作為抽出各25名の平均重量は，血清では健康人の340±28mgに対し患者は302±52mg，血球では(健)1448±131mg，(患)960±191mgであった。表1および表2の分析値は，暫定値として分析試料全量中のmg又はμgで示した。

1)秋葉他，原研施設共同利用研究報告書，昭59，60年度　2)高野他，第29回放射化学討論会講演予稿集 P06 (1985)　3)日本化学会編，生化学データブックII (1979)　4) W. Williams (ed.,) Hematology, 2nd. Ed. (1977) Mac Grow-Hill, New York.

SIMULTANEOUS DETERMINATION OF TRACE ELEMENTS IN HUMAN SERUM AND BLOOD CELLS BY INSTRUMENTAL NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS (AN APPROACH TO DISEASE ANALYSIS).

Faculty of Education, Hirosaki University, Fumimasa AKIHA
Research Center for Nuclear Science and Technology, The University of Tokyo,
Takemi TAKANO
School of Medicine, Hirosaki University, Yuichi EBINA and Mitsuru KON

1B16　放射化分析による生物試料中の有害元素（Hg, Se, As, Sb, Crなど）の定量とその問題点

（放医研）　村松康行

はじめに

環境安全の観点から生物試料中の有害元素（特にHg, Se, As, Sb, Crなど）の濃度を知ることは興味深い。これらの元素の測定方法として中性子放射化分析法は有効な手段である。毛髪などのように、これらの元素濃度が高い試料では非破壊放射化分析法（INAA）で同時定量も可能であるが、多くの生物試料においては濃度が低い為、照射後、化学分離を伴う分析（RNAA）によらなければならない。分離法としてはイオン交換樹脂を用いる方法、溶媒抽出による方法、チャコールに吸着させる方法、異ったPHの条件で硫化物として沈殿させる方法など種々の分析法がおこなわれている。しかし、これらの操作は一般に複雑であったり、また、名人芸的な要素も含まれている場合もあり、必ずしも簡単にはいかないことが多い。これらの方法のいくつかを実際に試みた時の問題点を報告する。また、筆者はHgとSeについては簡易な同時分離法を開発したので、その方法を紹介し、人体臓器中のHg, Se及びその他の元素の分析結果について述べる。

放射化分析によるHg, Se, As, Sb, Crの分析の諸問題

NBSのグループはHMD（Hydrated Manganese Dioxide）のカラムを用い、As, Se, Sb, Crなどを分離濃縮する方法を開発し多くのNBSのスタンダードの分析に用いている。筆者がこの方法を試みたところ、試料液中のマトリックスの濃度が濃くなるとCr, As, SbのHMDへの吸着率が悪くなった。また、照射した比較標準物質を用いて分析をおこなったところ、^{32}PがHMDに吸着するため、Ge-半導体検出器による測定時のバックグラウンドが高くなり、良い検出感度を得ることができなかった。そこで^{32}Pを除くため、HMDカラムを0.002 mol/lのH_3PO_4溶液で洗ったところ、^{32}Pの影響をある程度下げることができたがCrの一部がHMDから溶離してしまった。分析試料のマトリックス、試料の分解法、試料溶液のカラムへの流速、^{32}Pの除去法などの点に問題があると思われた。Hgの分析法として、NBSのグループが用いている方法は、石英管中に照射試料を加熱し、揮発した水銀を液体チッ素でトラップする方法である。しかし、石英管とトラップとのジョイントなどの部分に問題があり、必ずしも高い収率が得られなかった。

Espera（イタリー）のSabioni, Pietraなどのグループは、TDC, AAC, HAPなどの無機イオン交換樹脂への各元素吸着条件を調べ、放射化分析の化学分離に用いている。しかし、試料溶液の状態や、樹脂の作成のしかたにより元素の吸着率に変化がみられた。

Pelten（オランダ）のD.H.Das & van der Slootのグループは、水試料（海水や河川水など）のPHやキレート剤の条件をかえ、高純度活性炭に目的元素を照射前に分離濃縮し、放射化分析をおこない良い結果を得ている。しかし、この方法を生物試料の照射後の化学分離に用いたが、マトリックスなどの影響の為か、良い吸着が得られなかった。（特にCr）。

むらまつ　やすゆき

生物試料中のHgとSeの迅速放射化分析法

上記のように、同一試料から同時にHg, Se, As, Sb, Crなどの目的元素を分離する方法は困難が伴ったため、今回は、HgとSeに的を絞り、それらの簡易な同時分離法について検討した。HgおよびSeが揮発し易い性質を利用し、図-1に示す石英燃焼管を用いて分離をおこなった。照射した試料を活性炭（粒径3～5mmの活性炭を約3mmトラップをはけた石英管の中に入れ、管状炉で約1000℃で10分間酸素気流中で加熱する。さらに石英管を動かしトラップの直前まで良く加熱し、揮発したHgとSeを活性炭トラップに追い込む。次に、ケッ素気流に変え、まず1番目のトラップ（図のT-1）を700～800℃で加熱するとHgのみがまず2番目のトラップ（T-2）に移動する。T-1には^{75}Seの他に^{82}Brが吸着されており、これは850℃以上でトラップを加熱しない限りT-2には移動しない。^{75}Seに比べると^{82}Brは半減期が短いので、しばらく冷却してから測定することによりSeの定量が可能である。^{203}Hg（279 keV）のγ線測定の時^{75}Seの280 keVのピークが妨害となることがしばしばある時、この方法を用いることによりそれが解消された。

人体臓器及び毛髪中のHgの含有量

毛髪の放射化分析は環境汚染及び体内の汚染モニタリングの目的で多くおこなわれている。しかし、一方では毛髪の値が果して体内の有害元素の指標となり得るかという疑問がある。そこで、スウェーデンの検剖体の試料から採取した肝臓、腎臓、毛髪の放射化分析（Hg, Se, Fe, Zn, Coなど）をおこなった。その結果、Hgに関して毛髪と腎臓との間に正の関係があったが、毛髪と肝臓との間には関係は認められなかった。（図-2）。他の元素では毛髪及び臓器の間に関係は見られなかった。

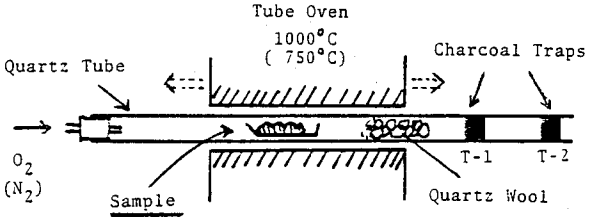


図-1 Hg分離用石英燃焼管

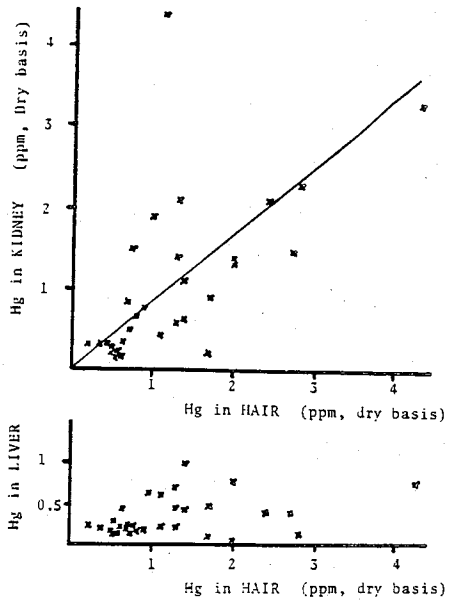


図-2 毛髪，腎臓，肝臓中のHg

(追記) * この研究は筆者が1985年にIAEA Seibersdorf研究所でおこなったものである。

* 核技術を用いた環境研究に関するIAEAのプロジェクトの問い合せ及び出版物［TECDOC-323, -330, および IAEA/RL/128 (Survey on Stanadard Reference Materials)］の請求は，Dr. R.M. Parr, IAEA, P.O. Box 100, A-1400 Vienna, Austria まで。

DETERMINATION OF MERCURY, SELENIUM, ARSENIC, ANTIMONY AND CHROMIUM IN BIOLOGICAL MATERIALS BY RADIOCHEMICAL NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS.

National Institute of Radiological Sciences, Yasuyuki MURAMATSU

1B17　中性子放射化分析法によるリョウブ標準試料のアルミニウムの定量

（近畿大・理工，京大原子炉*）○水本哲弥，日下部俊男，*笹島和久
*玉井忠治，*岩田忠郎

1. はじめに　植物の標準試料としてMn，Coなどの金属元素を高濃度に含むリョウブが国立公害研究所で作成され，29くの元素に対して含有量の保証値が報告[1]されている。しかしAlに対しては，中性子放射化分析法(INAA)，原子吸光分析法およびプラズマ発光分析法から定量されているが，その値にはかなりのバラツキがあり，特にINAA法からの定量値間には436～747$\mu g \cdot g^{-1}$の約2倍の違いが見られ，保証値の確立がまたれている。INAA法のバラツキの原因としては，$^{27}Al(n,\gamma)^{28}Al$反応からの短寿命核^{28}Al（$T_{1/2}$：2.24m）の測定中の減衰に対する補正，Mnの強い誘導放射能にともなう信号のパイルアップ(PU)に対する補正，共存するSiおよびPの速中性子による$^{28}Si(n,p)^{28}Al$，$^{31}P(n,\alpha)^{28}Al$反応からの^{28}Alの寄与などのγ線スペクトロメトリーにおけるピーク計数値に対する補正の有無が推定される。

本研究では，Ge(Li)検出器を用いたINAA法により，これらの補正係数について検討した後，外部標準法でリョウブ中のAl含有量をより正確に定量し，これまでの結果と比較した。

2. 補正係数　Al含有量は，リョウブと標準試料のピーク計数率および照射試料の重量から容易に求められる。照射終了時でのピーク計数率Aは，測定から得られたピーク計数値A_m，測定時間（ライブタイム）t_m，照射終了時から測定開始までの経過時間t_eおよび崩壊定数λを用いて次式より算出した。

$$A = f_1 \cdot f_2 \cdot f_3 \cdot (1-f_4) \cdot (1-f_5) \cdot e^{\lambda t_e} \cdot A_m / t_m$$

ここでf_1は，測定中の減衰に対する補正係数であり，測定時間（リアルタイム）t_m'を用いて$\lambda t_m' / (1-e^{-\lambda t_m'})$として与えられる。$f_2$は，PUに対する係数で，全計数率，比例増幅器のシェーピングタイム(τ)に依存する。f_3は，リョウブと標準試料の線源形状の違いに対する係数で，線源と検出器間の距離(d)などに関係する[2]。f_4, f_5は，共存するSi, Pからの^{28}Alの寄与に対する係数で，SiおよびP含有量，熱中性子束(ϕ_{th})と速中性子束(ϕ_f)の比に依存する。

3. 実験　リョウブ試料は，シリカゲルを入れたデシケータ中で10日間以上乾燥させた後実験に用いた。ほかこの間に約7％の重量減少があった。検量線用の標準試料には，高純度のAl箔，Si金属片および$(NH_4)_2HPO_4$を用いた。約50 mgのリョウブおよび適量の標準試料は，京大原子炉の圧気輸送管No.3にて5MW出力（$\phi_{th}=2.3\times10^{13}$, $\phi_f=4.8\times10^{12}$ n·cm^{-2}·sec^{-1}）で1分間照射された。γ線スペクトルは，50 cm^3 Ge(Li)検出器からの信号を比例増幅器（τ：2μsec）で増幅の後，1024 ch.の波高分析器(PHA, 100 MHz のADC)でt_mで40.96 sec 間測定した。線源の形状は，リョウブは15 x 15 mm，他は直径2mm以下であり，いずれも厚さは薄くγ線の自己吸収は無視した。

4. 結果および考察　リョウブ試料のγ線スペクトルの1例をFig.1に示す。予想されたようにリョウブ試料では^{56}Mn（$T_{1/2}$：2.58h）の放射能が強く（PHAのデッドタイム(DT)は22～14％(d＝10～22 cm)），^{28}Alのピーク計数値および半減期を考えると，f_1, f_2が無視できるよ

みずもとよしひこ，くさかべとしお，ささじまかずひさ，たまいただはる，いわたしろう

うな理想的な状態での測定は困難であった。まずf_1についてはt_mから計算され，その値はリョウブに対して$f_1=1.14\sim1.12$，標準試料に対して$f_1=1.11$であった。次にf_2については，^{28}Al，^{54}Mnおよび^{87m}Srの単一γ線放出線源によるγ線スペクトル上のピーク計数率と全計数率の関係から見積った。その結果をFig.2に示す。規格化されたピーク計数率は，全計数率が約1000 cps以下ではPUの影響をうけることなく一定であるのに対し，それ以上になると減少し補正が必要となる。なおこの1000 cpsという値は，今回の測定系におけるPHAのDTでは2～3％に相当する。Fig.2よりリョウブに対して$f_2=1.11\sim1.05$，標準試料に対して$f_2=1.0\sim1.01$の値を得た。次にf_3については，dが十分に長いためにここでは無視できた[2]。以上の補正係数値の妥当性を検討するために，補正されたピーク計数率の減衰曲線に対する半減期を調べた結果，その値は2.26mで文献値[3]とよく一致した。最後にf_4，f_5については，リョウブ中のSi（1900 $\mu g\cdot g^{-1}$）[4]，P（1200 $\mu g\cdot g^{-1}$）[5]含有量と標準試料からの^{28}Alピーク計数率から見積り，$f_4=0.02$，$f_5=0.01$の値を得た。これらの値は，$\Phi_{th}/\Phi_f\fallingdotseq5$での値であり，この比が小さな照射場ではさらに大きな値となろう。

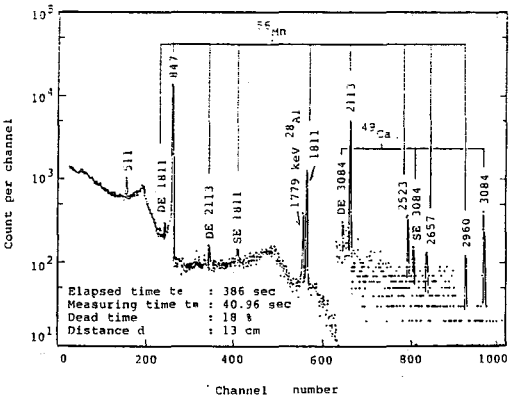


Fig.1 Gamma-ray spectrum of PEPPERBUSH sample measured by a 50 cm^3 Ge(Li) detector.

以上のようにして補正されたピーク計数率を用いて検量線を作成し，リョウブ中のAl含有量を求め，その結果をTable1に示す。検量線は，原点を通る良好な直線関係を示し，その変動係数は約1％であった。4回の実験から得られたAl含有量は，いずれも誤差範囲内で一致し，その平均値は599±28 $\mu g\cdot g^{-1}$であり，これまでのINAA法による報告値の中間の値となった。この値は，f_1～f_5の補正係数の有無により10～20％のバラッキが生じ，これがこれまでのバラッキの原因の1つではないかと考えられる。

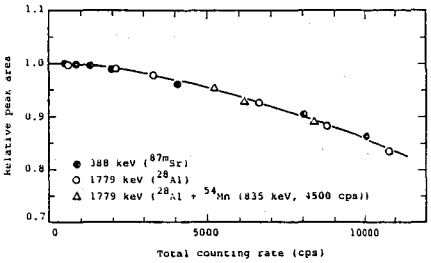


Fig.2 Dependence of peak area on the total counting rate for 388 and 1779 keV gamma-rays.

Table 1 Al content in PEPPERBUSH

Exp. No.	Al content ($\mu g\cdot g^{-1}$)
1	619 ± 37
2	586 ± 28
3	615 ± 34
4	576 ± 55
Average	599 ± 28

（文献）

1) K.Okamoto(Ed.): Research Report from The National Institute for Environmental Studies, 18 (1980)

2) 水本良彦,他: Radioisotopes, 35, 411 (1986)

3) C.M. Lederer, et al. (Eds.): "Table of Isotopes (7th. Ed.)" John Wily & Sons Inc., New York (1978)

4) Radioisotopes へ投稿予定

5) 水本良彦,他: 近畿大学理工学部研究報告, 21, 259 (1985)

DETERMINATION OF ALUMINIUM IN PEPPERBUSH STANDARD REFERENCE MATERIAL BY NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS.

Faculty of Science and Technology, Kinki University, Yoshihiko MIZUMOTO, and Toshio KUSAKABE
Research Reactor Institute, Kyoto University, Kazuhisa SASAJIMA, Tadaharu TAMAI and Shiro IWATA

1B18　二枚貝の貝殻形成における微量元素の挙動

（愛教大、都立科技大）　○吉岡小夜子、寺井　稔

はじめに　生物起源の炭酸塩中に含まれる微量元素は、生物の種類やその生物の生理調節、環境水の化学組成や温度、炭酸塩の結晶形などによって規定される。貝殻を持つ軟体動物は、環境水から種々の成分を体内へ取入れ、外套膜上皮細胞より分泌し貝殻物質を形成しているが、微量元素の取込などその詳細な機構は明らかでない。そこで本研究では生息地の異なる二枚貝について貝殻物質および外套膜、外套液中の微量元素含有量を中性子放射化分析によって分析し、種々の元素が外套膜を通して貝殻中へどのように移行し、分配されるかを知るための予備的研究を行った。

1、実験方法

試料の採取　生息地、貝殻の鉱物組成を考慮し、淡水産二枚貝としてイケチョウガイ(Hyriopsis schlegeli)、ドブガイ(Anodonta woodiana)、海水産二枚貝としてウチムラサキガイ(Saxidomus purpuratus)、ムラサキイガイ(Mytilus edulis) をいずれも中部日本で採集した。採集した貝は直ちにshell openerを差込み透き間を作り、貝殻内層と外套膜中心部の間に長い注射針を挿入し、外套液を採液した。この液1mlに濃硝酸10μlを加えたもの100μlをNo.6のろ紙に浸みこませ風乾し、これを折り畳み2重のポリエチレン袋に封入した。外套液採液後、外套膜を切り取り五酸化リンで完全に乾燥させた。身を取り除いた殻を蒸留水で洗浄後風乾させ、貝殻の外層、内層、先端部に分けてそれぞれを粉末にした。外套膜および貝殻の粉末試料約20mgを2重のポリエチレン袋に封入し、分析試料とした。

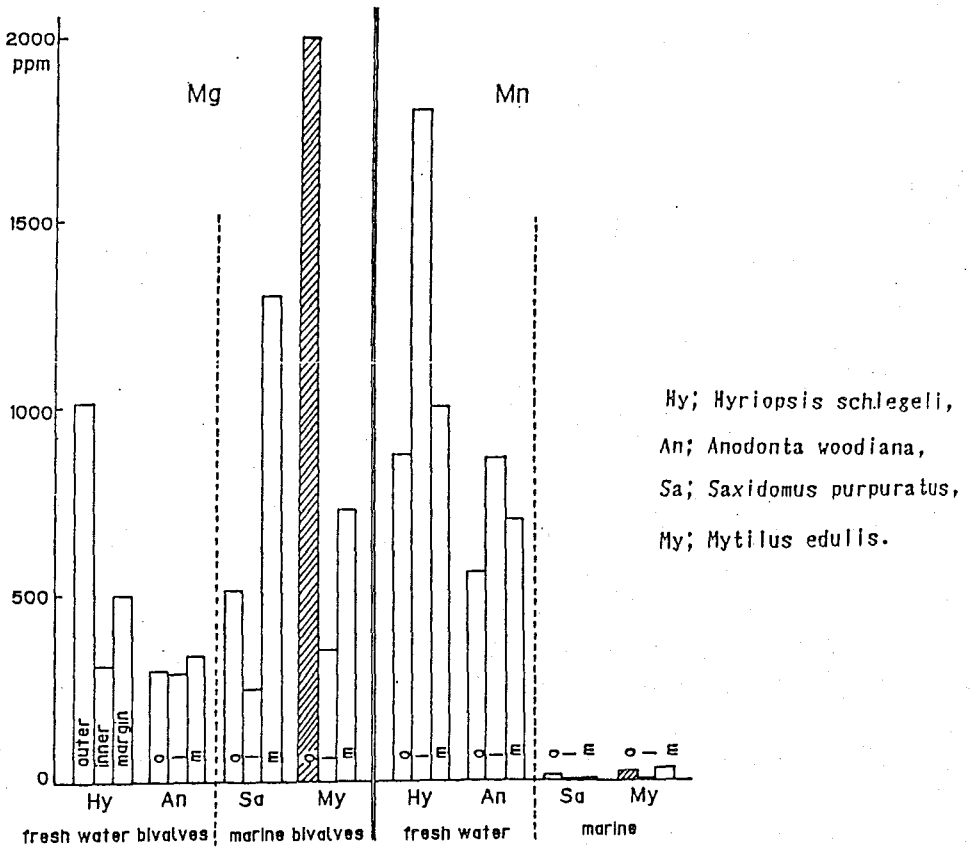
照射およびγ線スペクトロメトリー　試料の照射は立教大学原子力研究所のトリガII型のR.S.R.で行い、Br, Mg, V, K, Al, Mn, Cl, Na, CaおよびSe, Cr, Fe, Znのγ線スペクトルを測定した。

2、結果と考察

海水産種の貝殻中にはNa, Mg, Clの含有量が多く環境水の化学組成が反映されている。それに対し、淡水産種のものはMnの含有量が著しく多く、またドブガイではFeを著しく濃縮している。貝殻の外層、内層、先端部のMg,およびMnの含有量を海水産種と淡水産種について比較して図に示す。Mgは海水産種に多いが、環境水中の高いMg濃度に比べてその貝殻中の含有量は少ない。これは貝殻の結晶形がaragpniteであることによる。ムラサキイガイの外層にはcalciteがみられる。MgやMnのようにCaよりイ

よしおかさよこ、てらいみのる

オン半径が小さいイオンは、結晶上の制約によりcalcite形の炭酸カルシウム中に取り込まれやすい。そのためムラサキイガイの外層のMg含有量が他に比べて多い。しかしMnはaragoniteの結晶形にもかかわらず淡水産種に多い。このことは淡水産二枚貝の殻中のMnは$(Ca,Mn)CO_3$の形では僅かであり、有機物との関係を考慮する必要があると思われる。外套液および外套膜中でも淡水産種中のMn濃度は高く、環境水より著しく生体内に濃縮され、殻中に取込まれる元素である。Naの含有量が多いのは、結晶がaragoniteであることと結晶表面への吸着が考えられる。Al, Vは海水産種と淡水産種個体間、貝殻の部分での大きな違いは見られない。



BEHAVIOR OF TRACE ELEMENTS IN MOLLUSCS SHELL FORMATION

Aichi University of Education, Sayoko YOSHIOKA
Tokyo Metropolitan Institute of Technology, Minoru TERAI

1C01　トリチウム原子とトリフルオロエチレンの反応（1）
トリフルオロエチルラジカル中のフッ素原子の1,2-シフト

（東工大原子炉研）○小高正敬・小比田智之・佐藤伸

（序）Siefert等はホットなトリチウム原子と1,2-ジフルオロエチレンとの反応メカニズムを詳細に検討した結果，反応の途中で生成するラジカル $CHTF-\dot{C}HF$ においてフッ素原子の1,2-シフトが起きているはずであるという興味ある結論を導びいている。そこで本研究では，同じエチレンのフッ素誘導体の一つであるトリフルオロエチレン（$CF_2=CFH$）と $^3He(n,p)T$ 反応で生成されるトリチウム原子との反応においても，同様なフッ素原子のシフトが見られるかどうか，ラジオガスクロマトグラフィーを用いて反応生成物を分析することによって検討したので報告する。また，比較のため，1,1-ジフルオロエチレン（$CF_2=CH_2$）及びフッ化ビニル（$CHF=CH_2$）の反応系についても検討したので，そのことについても述べる。

（実験）エチレンのフッ素誘導体（$CF_2=CFH$, $CF_2=CH_2$, あるいは $CFH=CH_2$；3～15 torr），^3He（40～60 torr），及び ^4He（0～数百 torr）をパイレックス製の反応容器に封入し，武工大原子炉トリガ II 型の照射溝（熱中性子束 $\sim 1\times10^{11} n\cdot cm^{-2}\cdot s^{-1}$）にロープで吊り下げてセットし中性子照射した。$^3He(n,p)T$ 反応で生成したトリチウム原子と $CF_2=CFH$ 等との反応生成物の分析は，ガスクロマトグラフ島津 GC-6AM もしくは GC-7A と，ガスフロー型比例計数管 Packard Model 894，サンプル導入系，及びトリチウム化合物処理系から構成されているラジオガスクロマトグラフ装置を用いて行った。すなわち，反応生成物を Porapak-N（80～100メッシュ）を充てんしたカラム（3 mmφ×4 m）に負荷し，カラム温度 50°C，キャリアガス（He）の流量 40 ml/min の条件で分離し，比例計数管によってその放射能を測定した。検出された個々の反応生成物の同定は保持時間によった。

（結果と考察）実験で得られた反応生成物のラジオガスクロマトグラムの実例を図－1及び図－2に示す。^4He の圧を変えたときの，反応生成物の相対収率の変化を表－1に示す。$CF_2=CFH$ とトリチウム原子との反応系の場合，（1）$CF_2=CFH$ 3 torr と ^3He 40 torr を20分間中性子照射したときには，主反応生成物は $CF_2=CHT$ であった。そしてトリチウム化した親分子 $CF_2=CFT$

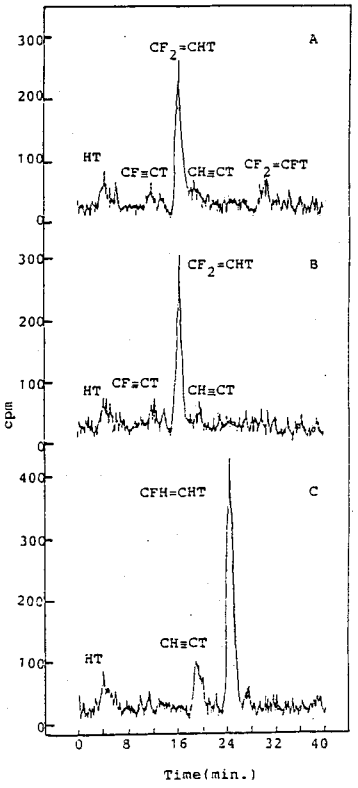


Fig. 1. Radio gas chromatograms of tritium-labelled products from the reactions of energetic tritium atoms with (A) $CF_2=CFH$, (B) $CF_2=CH_2$, and (C) $CFH=CH_2$. each fluorinated ethylene, 3 torr; ^3He, 40 torr; irradiation time, 20 min.

こたかまさひろ・こひだともゆき・さとうしん

は少量しか生成しなかった(図-1), (2) CF_2=CFH 15torr, ^{3}He 60 torr, および ^{4}He 336torr を1時間中性子照射したときには，主反応生成物は CF_2=CHT, CH≡CT, CF_2=CFTであり，そのほか CF_3-CH_2T, CF≡CT等が少量生成した(図-2), (3) 共存する ^{4}He が増えるに従って CF_2=CHT等の反応生成物の量が増えた(表-1)。CF_2=CH_2 ならびに CFH=CH_2 の反応系の場合，図-1の条件の下では，CF_2=CFH系の場合と違って主反応生成物はトリチウム化した親分子 CF_2=CHT, CFH=CHTであった(図-1)。

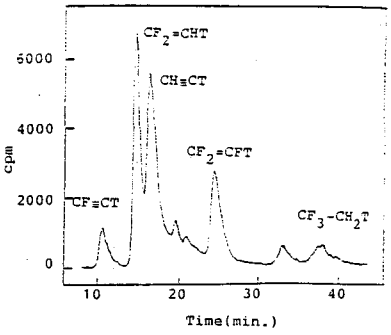


Fig. 2. Radio gas chromatogram of tritium-labelled products from the reaction of energetic tritium atoms with CF_2=CFH
CF_2=CFH, 15 torr; ^{3}He, 60 torr; ^{4}He, 336 torr; irradiation time, 1 h.

エチレンのフッ素誘導体の場合，水素原子は結合したフッ素原子の数の少い炭素原子へ選択的に付加することが知られている。トリチウム原子も同様に付加すると考えて良いだろう。CF_2=CFHの場合，トリチウム原子は選択的に=CHFグループに付加し，ラジカル $\dot{C}F_2$-CFHTを生じる。C-F結合はC-TやC-H結合より強いので，このラジカルが単分子分解すれば，トリチウム化した親分子が主に生成し，CF_2=CHTばかり少量しか生じないはずである。またこのラジカルからは CF_2H-CFHTの生成も考えられるが，CF_3-CH_2Tの生成は考えにくい。しかし実験では，多量の CF_2=CHT が生成し，その上 CF_3-CH_2Tも見い出されている。この矛盾は，フッ素原子の1,2-シフトがラジカル $\dot{C}F_2$-CHFTで起きるとすれば解決する。すなわち，このラジカルの-CHFTグループのフッ素原子が1,2-シフトしてラジカル CF_3-$\dot{C}$HTを生じれば，その-CF_3グループからフッ素原子が脱離して容易に CF_2=CHTが生成すると考えられる。また，CF_3-CH_2Tの生成も可能となるだろう。

なお，ラジカル $\dot{C}F_2$-CH_2F及び $\dot{C}$FH-CFH_2 について，フッ素原子の1,2-シフトの活性化エネルギーを分子軌道法(INDO)によって計算したところ，それぞれ20.8 kcal/mol, 23.4 kcal/molであった。この結果から，ラジカル $\dot{C}F_2$-CHFTにおけるフッ素原子の1,2-シフトはエネルギー的に充分に可能であると考えられる。

Table 1 Helium effect on energetic tritium reactions with trifluoroethylene

	gas pressure, torr		
CF_2=CFH	15	15	15
^{3}He	60	60	60
^{4}He	39	138	336
	relative yields*		
CF_2=CHT	826	1063	2108
CH≡CT	238	837	1891
CF_2=CFT	1000	1000	1000
CF_3-CH_2T	76	188	453

* CF_2=CFT yield is normalized to 1000.

ENERGETIC TRITIUM REACTIONS WITH TRIFLUOROETHYLENE (1)
1,2-FLUORINE ATOM MIGRATION IN TRIFLUOROETHYL RADICAL

Research Laboratory for Nuclear Reactors,
Tokyo Institute of Technology,
Masahiro KOTAKA, Tomoyuki KOHIDA, and Shin SATO

1C02　トリチウム原子とトリフルオロエチレンの反応（2）

C4・反応生成物について

（東工大原子炉研）　○小比田賢之・小高正敬・佐藤伸

1．はじめに　$^3He(n,p)T$ 反応によって生成するT原子とトリフルオロエチレン（以下TFE）と反応させ、ラジオガスクロマトグラフで分析したところ、（1）で述べられたように種々のC_2化合物が生成されることがわかったが、初期に生成される $\cdot CF_2CHTF$ ラジカルのラジカル再結合反応により、C_4化合物が生成する可能性がある。そこで、それまで行っていた分析の条件のうち、カラムの温度を50℃から150℃に上げると、今まで見つかっていなかった数種の生成物ピークが後続して出現した。そのうちのいくつかは、C_4化合物のものであると推測される。反応が予測されるようなC_4フッ素化合物が別に入手できる場合には、ガスクロマトグラフの保持時間などから同定は比較的容易になるが、我々の場合、このような化合物は入手できなかった。そこでT原子のかわりにH_2分子の水銀光増感分解によって生じるH原子をTFEと反応させ、同じ条件で分析してみると、共通な生成物が数種、生成していることがわかったので、以下にその内容を報告する。

2．実験　1）H+TFE系　標準的な真空系の一部についた反応セル（石英 359ml）にTFE 1.0 torr，水素（モレキュラーシーブ、液体窒素温度のトラップで精製）20-760 torr，水銀数滴を導入し、ファンで撹拌した後、低圧水銀灯の波長2537Åの紫外光を2-10分照射し、水銀光増感分解によって生じるH原子をTFEと反応させた。反応生成物を液体窒素温度でトラップし、残留水素を排気した後、生成物をガスクロマトグラフで分析した。（カラム Porapak-S，8m，70→150℃昇温）未知の生成物については分取し、質量分析、NMRで同定した。

2）T+TFE系　20mlのパイレックス製反応容器にTFE 15torr、^3He 60torr及びモデレーターとして ^4He を0-650 torr封入した。この試料に熱中性子を60分間照射した。（武蔵工大 $n\sim1\times10^{11}n\cdot cm^{-2}$）反跳T原子をTFEと反応させた。生成物をラジオガスクロマトグラフを用いて分析した（カラム Porapak-N 4m 150℃，50→170℃昇温）。

3）H+TFE系の生成物を混入し、同時に分析した。

3．結果、T+TFE系の生成物にH+TFE系の生成物を混入してラジオガスクロマトグラフにかけると、TCD、比例計数管の双方に共通に検出される化合物がある。（Fig 1．TCDに検出されるのはほとんどH+TFE系生成物）。そのピークのうちA.B.CはH+TFE系の主生成物である。それらの化合物について、初期の水素圧と対する生成量をFig 2に、又、未知生成物Aに対する ^{19}F-NMRスペクトルをFig 3に示す。Aについては モデレーター圧が高圧になるに従って生成量が減少していく点、質量分析の結果 C_3以上のフッ素化合物である点、（フッ素を含むC_4化合物で最大質量は C_4F_8 の $m/e=138$ であるがAの最大フラグメントは $m/e=148$）さらに ^{19}F-NMRスペクトルより、磁気的に等価で相互作用のないフッ素原子が複数あるいは1コだけ存在する点などから $\cdot CH_2CF_3$ ラジカル

○ひだともゆき・くたがまさひろ・さとうしん

を ソースとした打要すなわち $CF_3CH_2CH_2CF_3$ であると同定される。又未知化合物 β、C についても 質量分析で $CF_3CH_2CH_2CF_3$ と類似したフラグメントパターンを得ており、現在NMRスペクトルで検討中である。(1)で述べられたように H+TFE系で CF_3CH_3 という生成物の生成機構を説明するためには、初期に生成される・CF_2CH_2F ラジカルにおけるフッ素原子のハンシフト反応 すなわち ・CH_2CF_3 ラジカルの生成が不可欠である。従ってラジカル再結合により生成するヘキサフルオロブタンには2種類のラジカル・CF_2CH_2F ・CH_2CF_3 から生成する3種類の異性体 $CH_2FCF_2CF_2CH_2F$, $CH_2FCF_2CH_2CF_3$, $CF_3CH_2CH_2CF_3$ が考えられ、$CF_3CH_2CH_2CF_3$ が実際に生成していることは、妥当である。以上のようにH+TFE系との比較により、T+TFE系において C4化合物の生成と、初期のラジカル・CF_2CH_2F のフッ素原子の ハンシフト反応が確認された。

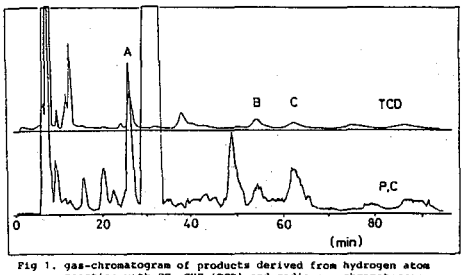


Fig 1. gas-chromatogram of products derived from hydrogen atom reaction with CF_2=CHF (TCD) and radio gas-chromatogram of products derived from energetic tritium reaction with CF_2=CHF (P,C).

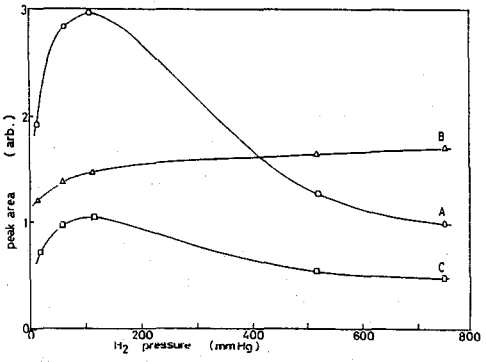


Fig 2. peak area of products A,B,and C derived from hydrogen atom reaction with CF_2=CHF at various pressures of moderator.

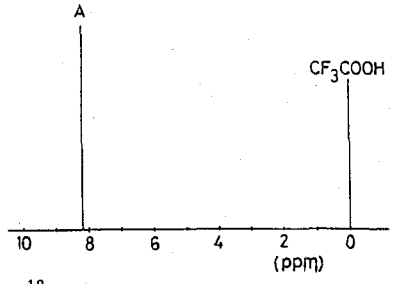


Fig 3. ^{19}F NMR spectra of product A ($CF_3CH_2CH_2CF_3$).

ENERGETIC TRITIUM REACTIONS WITH TRIFLUOROETHYLENE (2)
ANALYSIS OF C_4 PRODUCTS

Research Laboratory for Nuclear Reactors,
Tokyo Institute of Tecnology,
Tomoyuki KOHIDA, Masahiro KOTAKA, and Shin SATO

1C03　^{3}H標識シトシンのβ壊変にともなう化学的効果－II

（大放研）　○朝野武美、桐谷玲子、藤田慎一

緒　言　ＤＮＡ中の核酸塩基にとり込まれたトリチウムがβ壊変を起こすと、そのＤＮＡを含む細胞に突然変異が生じること（F. Funk and S. Person 1969；V.G. Korolev and L. Ivanov 1985）や、（2-^{14}C,5-^{3}H）シトシンを大腸菌にとり込ませると、シトシンはβ壊変によってウラシルに変わること（F. Krasin, S. Person and W. Snipes 1976）が報告されている。我々は希釈剤添加法という新手法を用い、トリチウム標識核酸塩基のβ壊変による分解について研究を行った。今回は脱気水溶液中のシトシンの分解について報告する。

実　験　(1)　（2-^{14}C,5-^{3}H）シトシン水溶液　（2-^{14}C,5-^{3}H）シトシン（80μg、^{3}H 40 mCi、^{14}C 80μCi、^{3}H標識率 86 %、^{14}C標識率 81 %）を合成し、高速液体クロマトグラフ（HPLC）で精製の後、その試料に 15倍、83倍または 360倍 の重量比に相当する非放射性シトシン（希釈剤）を混ぜ、1 ml の水溶液とした。それを 4 cc のブレークシールアンプルに入れ、脱気して、溶封したものを冷蔵庫中で 400 - 600 日間放置した。反応条件を表 1 に示す。　希釈剤の添加により比放射能は減少し、放射性シトシンの放射線分解は抑制される。　その結果、^{3}Hβ壊変効果が観測され易くなるとともに、希釈剤濃度依存性を示さないβ壊変効果による分解生成物を見つけだすことができる。

(2)　分析および放射能測定　試料を放置した後、反応溶液の分析を 2 次元薄層クロマトグラフおよび HPLC で行い、クロマトグラムの放射能を測定し、β壊変効果による放射性シトシンの分解率および分解生成物の収率を求めた。

(3)　^{3}H β壊変効果による放射性シトシンの分解率及び分解生成物の収率を求める式

$$\text{Decomp.}\quad \%/^{3}\text{H decay} = \frac{B - A}{0.86(1-R)(1-e^{-\lambda t})} \qquad (1)$$

$$\text{Yield of products}\quad \%/^{3}\text{H decay} = \frac{D - C}{0.86(1-R)(1-e^{-\lambda t})} \qquad (2)$$

A（または C）は ^{3}H 放射能から求められた放射性シトシンの分解率（または分解生成物の総収率）を％で表わした値、B（または D）は ^{14}C 放射能から求められた同様な値である。　R は放射線分解率で、ここでは A/100 に等しい。 0.86 は ^{3}H 標識率 である。B - A（または D - C）は、放射線分解によらない、^{3}H β壊変効果のみによる放射性シトシンの分解百分率（または分解生成物の総生成百分率）を表す。　式の分母は 1 個の ^{3}H 壊変当りの値を求めるための補正値である。

結果と考察　Table 1 の Results 1 および Results 2 は、それぞれ放射性シトシンの分解率および分解生成物の収率に関するものである。　希釈剤の添加によって、放射線分解率はほぼ予想通りに減少した。　分解率と生成収率が一致していないのは、分解生成（主に放射線分解によるもの）の一部が HPLC カラム中に残っているためと推測される。(1) 式より求められた Run 4 および Run 5 のβ壊変効果による放射性シトシンの分解率は 100 %/^{3}H壊変 を越えた。これは、長期間の放置中に、分解によって生じたトリチウ

○あさの　たけよし、　きりたに　れいこ、　ふじた　しんいち

Table 1. The percentage decomposition of [2-^{14}C,5-^{3}H]cytosine and the percentage yield of products following β-decay of tritium in degasses aqueous solutions.

	Run		4	5	6		
Conditions	Rad. act. soln.	^{3}H mCi/ml	0.63	1.60	0.55		
		^{14}C uCi/ml	1.28	3.14	1.08		
	Wt. ratio, $\frac{Cy}{[2\text{-}^{14}C,5\text{-}^{3}H]Cy}$		15	83	360		
	Decay time/d		518	379	443	601	601
	(Dose/eV) X 10^{-18}		5.94	11.04	4.43	6.01	6.01
Results 1	Decomp. of cytosine / %	A (^{3}H)	27.4	18.2	11.4	12.5	11.3
		B (^{14}C)	35.7	25.3	15.4	16.0	14.3
	B - A / %		8.3	7.1	4.0	3.5	3.0
	$0.86(1-R)(1-e^{-\lambda t})$		0.048	0.040	0.050	0.067	0.068
	Decomp. / %/tritium decay		173	177	80	52	44
Results 2	Yield of products / %	C (^{3}H)	14.9	3.5	1.3	1.7	1.8
		D (^{14}C)	16.7	5.0	3.1	4.7	5.3
	D - C / %		1.8	1.5	1.8	3.0	3.5
	$0.86(1-R)(1-e^{-\lambda t})$		0.048	0.040	0.050	0.067	0.068
	Yield of prods./ %/tritium decay		38	37	36	44	51

ムが非放射性シトシンと反応し、^{3}H標識シトシンが生成したためではないかと推測される。 Run 6 の結果から、β壊変効果よる分解率として、58±15 %/^{3}H壊変（平均値）という値が得られた。 (2) 式より求められたβ壊変効果による分解生成物の総収率は、いずれもよい一致を示し、41±6 %/^{3}H壊変（平均値）であった。Fig. 1 は Run 4 の HPLC-ラジオクロマトグラムである。6 個の分解生成物のピークが見られる。 ピーク a、b、e は放射線分解およびβ壊変効果によって生じたものであると推測された。 ウラシル（ピーク d）はβ壊変効果によって生じなかった。 ピーク e は、先にβ壊変効果に特有な生成物として酸素飽和水溶液中で見つかったものと同一物質であることがピークの溶離位置から推測された。 その生成収率は約 19 %/^{3}H 壊変であった。脱気水溶液中におけるβ壊変効果による分解率および生成収率は、先に報告された酸素飽和水溶液中における値より低いことがわかった。

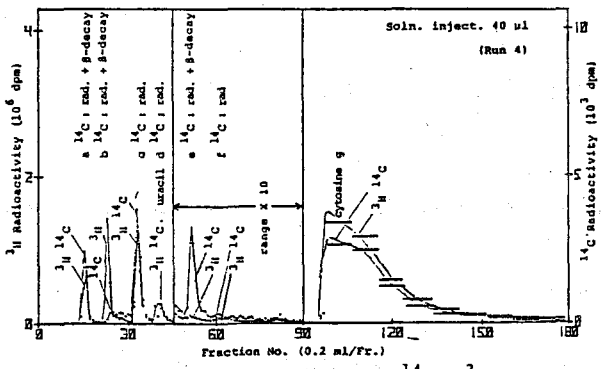


Fig. 1. HPLC-radiochromatogram of [2-^{14}C,5-^{3}H]cytosine in degassed aqueous solution stored for 518 days in refrigerator (Run 4). Column: reverse-phase nucleosil QC_{18} 4 X 350 mm; Mobile phase: water.

CHEMICAL EFFECTS OF β-DECAY IN TRITIUM LABELLED CYTOSINE IN DEGASSED AQUEOUS SOLUTION. (Radiation Center of Osaka Prefecture) ○Takeyoshi Asano, Reiko Kiritani, Shinichi Fujita.

1C04　反跳インプランテーションによる化学反応機構：反跳置換と競争反応

（東北大・理）　○吉原賢二、関根　勉、佐野正明

反跳インプランテーションによる化学反応は新しい化合物の合成に用いられるとともに従来よくわかっていなかったホットアトム化学反応機構を解明する手がかりとなる。たとえば固体無機ホットアトム化学でよく問題となるリテンションは、1）化学結合解裂、2）化学結合解裂後のすみやかな再結合、3）反跳原子飛程末端の分子に対する置換反応、4）熱アニーリング反応、5）分離操作の際に生ずる反応、等の多くの因子を含み、これらの解析は困難であった。インプランテーションによる化学反応は通常のホットアトム化学におけるリテンションのように複雑ではなく、もっと単純化できる可能性がある。われわれは反跳置換反応を中心としてインプランテーションによる化学反応機構を解明することを試みた。

【実験】

γ線照射は東北大学原子核理学研究施設の 300 MeV ELINAC の電子線をγ線に転換して掃引磁場により電子を除き、低温照射を行った。陽子照射は東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンターの AVF サイクロトロンによって行った。詳細は以前に発表した通りである。

試料のβ-ジケトン錯体は常法により合成した。反跳源は Ru、Cr、V 金属、捕集体はアセチルアセトン錯体（$M(acac)_3$ および $M(acac)_2$）単一系、およびβ-ジケトン錯体混合系（凍結乾燥混合 $M(acac)_3 + M(dbm)_3$ および $M(acac)_3 + M(dbm)_3$ ）を用いた。反跳源と捕集体はメノウ乳鉢により混合した。

照射した試料はシリカゲルカラムによって分離した。ただし $M(acac)_2$ は昇華法によって分離した。放射能測定は Ge(Li) 検出器によった。詳細は以前からの発表と同様である。

【結果と考察】

図１に示すのは $^{98}Ru(\gamma,n)^{97}Ru$ 反応および $^{100}Ru(\gamma,p)^{99m}Tc$ 反応により $M(acac)_3$ に打ち込んだ ^{97}Ru および ^{99m}Tc の錯体収率と M - O 結合（金属原子とアセチルアセトン配位子との結合）の力の定数の逆数 1/K(M-O) との関係である。図に見られるように収率 Y と力の定数の逆数はほぼ直線関係にあり、1/K(M-O) の増加と共に Y も増加している。$Ru(acac)_3$ および $Tc(acac)_3$ は以前に発表した通り大部分反跳置換生成物と考えられる。Rossler らがレニウム化合物 K_2ReX_6 の生成反応で提案した反跳引き

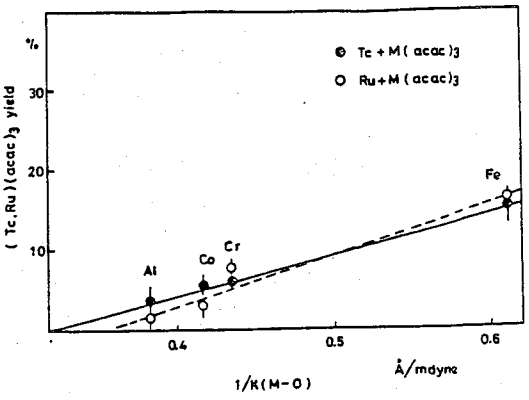


図１ Ru,Tcの$M(acac)_3$への反跳インプランテーション反応

よしはらけんじ、せきねつとむ、さのまさあき

抜き反応（競争反応）と同様な傾向である。図２には同様に $M(acac)_2$ に ^{99m}Tc を打ち込んだ場合の $^{99m}Tc(acac)_2$ の収率と 1/K(M-O)の関係を示した。この場合には前の場合とは異なり、Y は 1/K(M-O) に対してほとんど影響を受けないように見える。ただし、K のわかっている化学種で かつホットアトム化学的に意味のあるものは限られており、本実験ではその制約はやむを得ない。Co、Ni の錯体は配位水を分子内に持つことが知られており、今回の実験ではそのまま使用したが、従来のホットアトム化学の知識では、分子性結晶の水分子は収率分布にわずかな影響を与えるのみである。水は無視して議論することが本実験の誤差範囲内では許されよう。ビス錯体では、競争反応の特徴である 1/K(M-O)依存性が見られないのはトリス錯体の場合と対比して興味深い。

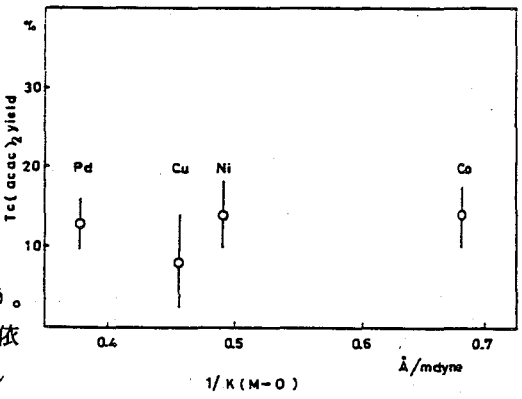


図２ TcのM(acac)$_2$への反跳インプランテーション反応

図３は ^{51}Cr を $M(acac)_3$ に打ち込んだ場合である。M = Cr である場合は $^{51}V(p,n)^{51}Cr$ 反応のデータでそれ以外は $^{52}Cr(\gamma,n)^{51}Cr$ 反応のデータである。この場合は図１に似ているが、勾配が少し急な直線的増加を示している。また Co のところで特異点がある。また図中、Ru はまだ文献に K(M-O) のデータの記載がなく仮に図１の Ru の直線の勾配が K に比例するとして Cr との比較から求めた K の値を使用したものである。Co がなぜ大きくはずれるのかは現在のところ理由はよく分からない。 また、Meinhold らの核分裂反跳でも Co は特異的な振舞いをする。

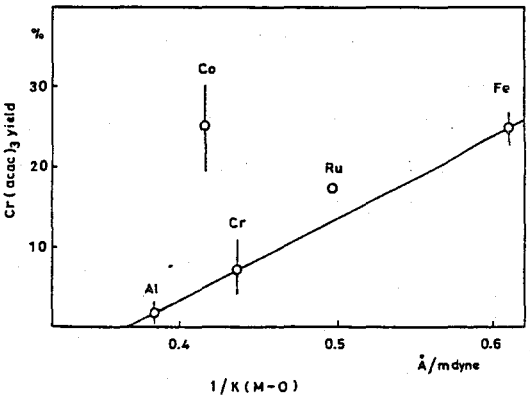


図３ CrのM(acac)$_3$への反跳インプランテーション反応

以上のようなことから反跳インプランテーションによる化学反応は 1) もとの構造が保持されるような化合物を与えるように起こっている・・・・少なくとも一部はリテンションタイプの化学種を与えている(Adaptation Rule)。 2) 競争的な置換反応が起こっている(Competition Rule)。Rossler は引き抜き反応においても競争が働くことを述べたが、置換反応における競争はもう少し複雑な要素の組合せであろう。

MECHANISMS OF CHEMICAL REACTION INDUCED BY RECOIL IMPLANTATION : RECOIL REPLACEMENT AND COMPETITION REACTIONS.

Faculty of Science, Tohoku University, Kenji YOSHIHARA, Tsutomu SEKINE, Masaaki SANO

1C05　反跳重陽子を利用した^{13}N／マロン酸-d_4系の反応

（立教大・一般教育、立教大・原研*）　○泉水義大、*戸村健児、*増谷民雄

はじめに　反跳重陽子による(d,n)反応で生成する^{13}Nとターゲットの酢酸-d_4との反応ではα・C－H結合へのインサーションが起き得ることを、前回の本討論会において、[^{13}N]-グリシンの生成によって既に示し、標記の系については予備的な報告を行なった。今報はその第二報として、マロン酸-d_4結晶、重水溶液および凍結試料について得られた知見を報告する。

実験方法　マロン酸-d_4は、使用に先立って、重水の飽和溶液から再結晶し、凍結減圧乾燥により精製した。この精製でハロゲン濃度は5ppm以下になった。照射試料としては、結晶および濃度1.94～5.2 mol/kg の重水溶液を選び、21～34℃の水温およびドライアイス温度で20分間速中性子照射した。試料の入手、照射、化学分離および測定方法は基本的には前報と同様である。

結果と考察　前報で報告したように、^{13}N／酢酸-d_4系では [^{13}N]-Gly が生成され、また、未報告の予備的実験では^{13}N／プロピオン酸／D_2O系において [^{13}N]-Ala が生成されることが確認された。これらの結果に習えば、今報の系ではマロン酸のα・炭素に $^{13}NH_x$ が結合した[^{13}N]-アミノマロン酸の生成が予想される。しかし、アミノマロン酸はいわゆる天然物の加水分解アミノ酸ではなく、不安定で合成が必ずしも容易ではないので、既報のようにクロマトグラフィーのキャリアとしては Asp を代りに用いた。Asp-フラクションの放射化学的収率すなわち [^{13}N]-アミノマロン酸の放射化学的収率を溶液濃度から換算したターゲットのマロン酸-d_4 分子相互間距離の関数としてプロットすると図1を得る。凍結溶液(195k)のデータは分散しているが、曲線全体の形は室温の結果と同じ傾向を示した。両曲線は約5A(約1.5分子のD_2O)まではほぼ同じかやや増加し、その後急減する。照射下の高濃度水溶液系での競合反応において少量生成物の考察は難解であろうが、α・炭素との反応に隣接マロン酸分子内の(d,n)反応に起因する^{13}Nまたは $^{13}NH_x$ が関与し得ると推定できよう。

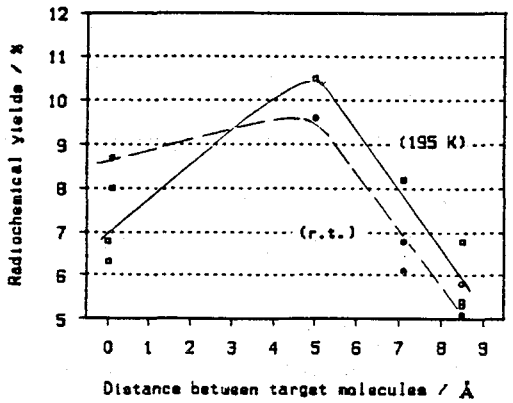


図1
Effects of distance on the yields of aminomalonic acid

今報の系における主要生成物の[^{13}N]-アンモニアの生成量はターゲット分子間距離に比例して増加した（図2）。この系での核反応ではD_2Oは主にdeuteron source として寄与し、H_2Oの場合と異なりそれ自体のなかで

せんすいよしひろ、とむらけんじ、ますたにたみお

の^{13}Nの生成はない。 したがって、図2が示す[^{13}N]-アンモニアの増分は、マロン酸分子内で生成した^{13}Nまたは $^{13}NH_x$ がマロン酸分子から周囲の重水中に流出して$^{13}NH_3$ が生成される過程と関係づけることができよう。 また、195 K (凍結溶液)の曲線の勾配が室温(液体)の曲線の勾配より小さいことから拡散過程が関与していることが推定できる。

クロマトグラフィーではカラムに吸着せずに溶出するフラクションには $C^{13}N^-$ および ($^{13}NO_3^-$ + [^{13}N]-アセトアミド) が 0.20±0.02 対 0.80±0.02 の比率で結晶および凍結溶液において共に含まれる。このフラクションの放射化学的収率は図2とは対照的にターゲット分子間距離に逆比例する (図3)。 現段階では図3における放射化学的収率の変化の主役が$^{13}NO_3^-$か[^{13}N]-アセトアミドかを単純に推定できない。

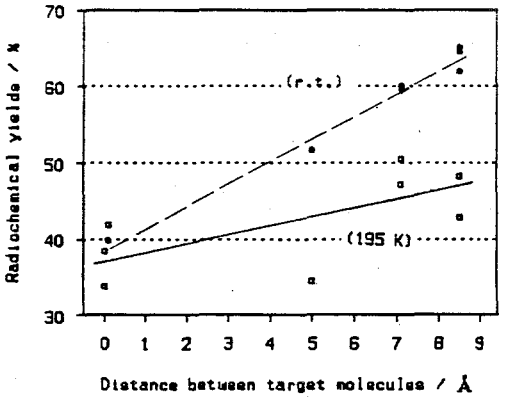


図2 Effects of distance on the yields of Ammonia

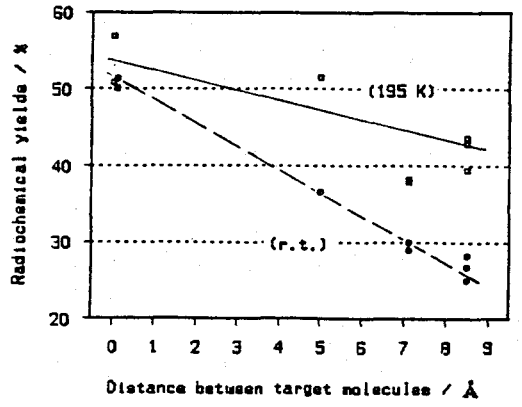


図3
Effects of distance on the yields of Inorg. anions

図2と3の関係では$^{13}NH_3$ と$^{13}NO_3^-$の生成反応が競合するとも考え得る。 一方、マロン酸が熱分解によって容易に酢酸に変わることは一般に知られている。しかし、Welchらは ^{13}N/酢酸系において[^{13}N]-アセトアミドの生成を報告していない。従って、$^{13}NH_3$ と $CH_3CO^{13}NH_2$ との生成の競合を考えることには無理があるかもしれない。

文献 Welch M.J. and Straatmann M.G.; Radiochim. Acta, 20, 124 (1973)

泉水義大 他；第29回放射化学討論会講演予稿集1B05

Reactions between Malonic Acid-d_4 and ^{13}N produced by Recoil Deuterons in a Pile.

Faculty of General Education, Rikkyo University, Yoshihiro SENSUI
Institute for Atomic Energy, Rikkyo University, Kenji TOMURA and Tamio MASUTANI

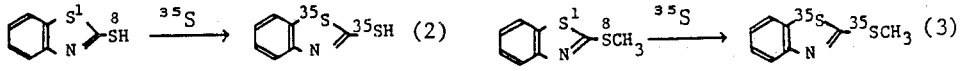
1C06　反跳硫黄原子，^{35}Sおよび^{37}S，と二硫化炭素との反応

○新沢　和裕，　松浦　辰男*　龍　幸（北里大，*：立教原研）

[序]　これまで核反応によって生成する硫黄原子の研究は主として核反応^{35}Cl(n,p)^{35}S，^{34}S(n,γ)^{35}Sおよび^{40}Ar(p,3p)^{38}S等が用いられてきた．類似の反応系について収率等を比較すると反応性等に違いが認められる．下式(1)の気相系での反応では

$$C_2H_6 + \begin{matrix} ^{35}S \\ \diagup \\ \diagdown \\ ^{38}S \end{matrix} \xrightarrow{H_2S} C_2H_5SH \qquad (1)$$

双方の原子とも熱的な状態にまでスローダウンした原子が主として挿入に関与しているが，その電子状態は^{38}S原子では^{1}D状態，また^{35}Sでは^{3}P状態が優勢に関与している．また反応系への硫化水素の役割は^{38}Sでは挿入生成物生成の際の水素供与体として，^{35}Sでは硫黄原子のスカベンジャーとして働くことが認められている(1,2)．液相系での反応では下式(2),(3)に示すベンゾチアゾール系の化合物中の硫黄と^{34}S(n,γ)^{35}Sおよび^{35}Cl(n,p)^{35}Sからの硫黄原子との交換反応が調べられており，常に8位の位置の方が1位よりも大きなリテンション値を示し，しかも(n,γ)反応の方が(n,p)過程よりも優勢であるとの報告がある(3)．



今回は反応物および硫黄原子の生成源として二硫化炭素を用い，これと反応系に同時に生成する硫黄原子(^{35}Sおよび^{37}S) の液相における反応性の相違について検討した結果を報告する(Table 1 参照)．

[実験]　試料：　二硫化炭素(100-150 mg)および添加物としてpropane,benzeneおよびpropene(9×10^{-5}-1×10^{-4} mol)等は低温蒸留により精製したものを用いた．
これらを石英製アンプル（容積：　0.2−0.3 ml，試料量：100−150 mg）に脱気封入し，立教大学原子力研究所Triga Mark II　原子炉により熱中性子照射を５分間，炉温にておこなった（熱中性子束：約　1.2×10^{12} n/cm^2/s）．これと同時にstandardとして二硫化炭素のみを封入したものを照射した．照射終了後，^{35}Sおよび^{37}S標識二硫化炭素のリテンションはガスクロマトグラフ的分離精製後，このフラクションの大半を回収し，放射能測定時の幾何学的位置を同一にするためガラスアンプルに封入した．
放射能測定：　反応系に生成した硫黄の放射性核種は分離精製および測定形にするまでに放射能が残存している核種は^{35}S，^{37}Sおよび^{32}Pであった．このことから回収した二硫化炭素はγ−spectrometerおよび液体シンチレーションによりそれぞれの放射能を測定した．尚，^{35}Sの場合は^{32}Pが含まれているため液体シンチレーションによるエネルギー弁別を行い，更に^{35}Sの放射能はこれを考慮して求めた．各々の核種によって標識された二硫化炭素のリテンションは回収した二硫化炭素の放射能とstandardの全放射能との比較から求めた．

にいさわかずひろ，まつうらたつお，たきこう

［結果および考察］　本実験系の特色は^{35}Sおよび^{37}S原子の双方によって標識された二硫化炭素が同一系に生成することにある．従って分析時の変動が双方に影響することから各々の生成の収率の比，即ち同位体効果比はこれを反映したものであると考えることができる．
Table 1は真空下(約10^{-3}torr)での揮発性成分と不揮発性成分の割合を示したものである．核種によってこれらの分布が異なっている．このことは明らかにこれら核種の二硫化炭素に対する反応性に相違があることを示唆している．Table 3は二硫化炭素の生成についてその効果を記したものである．添加物として用いた有機化合物はthemalize した硫黄原子を効率よくスカベンジする事が知られており，更に今回用いた添加物等は原子のspin stateについて知見を得ることが可能な添加物である．このような添加物の効果は既にベンゾチアゾール系の反応によって認められている(4)．しかしながら本反応系では生成に対する添加物の効果はこのような添加濃度では認められなかった．
各々の核種によって標識された二硫化炭素の収率は僅かに^{35}Sの方が大きなリテンションを示しており，これは初期の高い運動エネルギー領域からthermalizationに至る過程が核種により異なっていることに起因しているためと考えられる．更にthermalizeした原子の寄与を調べるため反応温度等について検討した上，硫黄同位体の反応性の相違について言及する．

Table 1.　Some characteristics of sulfur isotopes.

nuclide and nuclear reaction	$^{34}S(n,\gamma)^{35}S$	$^{36}S(n,\gamma)^{37}S$
abundance (%)	4.22	0.0136
half life	87 d	5.05
decay mode	β^-	β^-,γ
maximum initial recoil energy(KeV)	0.75	0.28

Table 2. Yield of volatile and non-volatile fraction from irradiated CS_2

	volatile (%)	non-volatile
^{35}S-labelled	99.5±0.1	0.5±0.1
^{37}S-labelled	85.9±2.0	14.1±2.0

Table 3. Yield of labelled CS_2 in a few concentration of additive.

CS_2/additive (in molar ratio)	$CS^{35}S$ (%)	$CS^{37}S$ (%)	ratio of product yield
none	32.6±2.8	23.8±2.0	1.37±0.16
benzene additive 14.1±2.4	37.8±0.9	31.4±2.4	1.20±0.10
propane additive 20.7±1.7	33.3±2.6	27.8±6.7	1.20±0.30
propene additive 26.7±1.7	33.3±1.2	26.9±1.6	1.20±0.10

References

1) K. Niisawa and K. Taki, Bull. CHem. Soc. Jpn., 52 , 3271 (1979).
2) L. Lindner, G.A.Brinkmann and j. TH. Veenboer, Radiochim. Acta, 27, 95 (1980).
3) K. Taki, Bull. Chem. Soc. Jpn., 43, 2626 (1970).
4) K. Niisawa and K. Taki, Bull. Chem. Soc. Jpn., 50, 57 (1977).

REACTION OF ^{35}S AND ^{37}S ATOMS SIMULTANEOULY GENERATED IN LIQUID CARBON DISULFIDE

Faculty of Industrial Hygiene, Kitasato University, Kazuhiro Niisawa and Ko Taki

Institute for Atomic Energy, Rikkyo University, Tatsuo Matuura

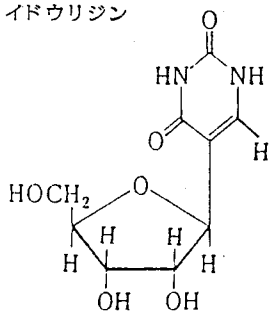
1C07　生体関連物質の $^{3}He(n,p)^{3}H$ 反応による反跳トリチウム化

（東大ＲＩセンター，東大農 *1，静岡大理 *2，原研 *3）○野川憲夫，大橋國走，*2 草間憲一，*1 渡部終五，*1 佐藤之紀，*3 松岡弘充，*3 茂木照十三，*3 守屋孝，*1 橋本周久，森川尚威

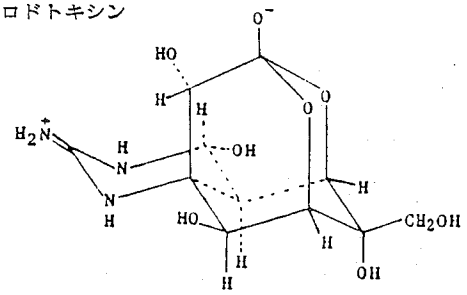
1. はじめに

$^{3}He(n,p)^{3}H$ 反応による有機化合物のトリチウム化は，$^{6}Li(n,\alpha)^{3}H$ 反応によるトリチウム化に比べてトリチウムの取り込み率が大きく，放射線分解が少ない。今回は，照射試料の調製法を工夫して，分解しやすい β-プソイドウリジンやトリチウム標識化合物の得られていないテトロドトキシンの反跳合成を試みた。

β-プソイドウリジン



テトロドトキシン



2. 実験

β-プソイドウリジン：ＣＡＬＢＩＯＣＨＥＭ社のＡ Grade の粉末状の β-プソイドウリジンを石英容器Ｓ型（4 mm i.d.，80 mm ℓ）とＬ型（16 mm i.d.，18 mm ℓ）に入れ，ヘリウム-3を室温で約 200 mm Hg 充填し溶封した。この石英容器の外側には，^{59}Co あるいは安息香酸リチウム放射化検出器を装着した。中性子照射は，日本原子力研究所のＪＲＲ-4原子炉のＴ-パイプまたはＳ-パイプを利用し，10～330 分行った。照射後，ゲルクロマトグラフィ（Sephadex G-10，カラム 1 cm φ × 150 cm ℓ），イオン交換クロマトグラフィ（Dowex 1×8，カラム 1.2 cm φ × 2.3 cm ℓ），ペーパークロマトグラフィ（Whatman 3MM，溶媒イソ酪酸－1Ｎアンモニア水（5:3）），さらにペーパークロマトグラフィ（Whatman 3 MM，溶媒 n-ブタノール（水飽和））により精製を行った。

テトロドトキシン：活性炭処理，Bio-Gel P-2 によるゲル沪過及び Bio-Rex 70 イオンカラムクロマトグラフィにより単離した，毒性が約 11,000 ＭＵ（マウスユニット）の 2.2 mg のテトロドトキシンを粉末状でＳ型の石英容器に，また約 6000 ＭＵの 1.3 mg のテトロドトキシンを内壁に広がるよう凍結乾燥法によりＬ型の石英容器に入れた。これにヘリウム－3を室温下で 200 mm Hg 充填し溶封した。中性子照射は β-プソイドウリジンと同様に行った。照射後，溶媒として 0.03 Ｎ酢酸を用い，1 mℓ／ｍｉｎの流速で Bio-Gel P-2 カラム（2 cm φ × 96 cm ℓ）によるゲルクロマトグラフィを行った。得られた溶出液のうち，毒性画分を再度同様の条件

のがわのりお，おおはしくにお，くさまけいいち，わたべしゅうご，さとうゆきのり，まつおかひろみつ，もきてるとみ，もりやたかし，はしもとかねひさ，もりかわなおたけ

で精製した。その結果，毒性及び放射能ピークは一致し，試料No.4の場合の比放射能は25.8 μci／mmoleであった。また，セルロース・アセテート膜電気泳動法の結果から得られたテトロドトキシンは単一スポットを示すことがわかった。

表 1　$^{3}He(n,p)^{3}H$ 反応による生体関連物質のトリチウム化

化合物名		β－プソイドウリジン							テトロドトキシン	
試料 No.		7	8	2	3	9	10	13	4	12
照射時間（分）		10	20	60	120	40	40	330	60	330
照射孔		T	T	T	T	T	T	S	T	S
Total nvt ($\times 10^{16}$)		1.70	3.40	10.0	18.5	7.69	8.7	67.9	10.4	78.2
照射量（mg）		29.02	32.33	31.40	30.19	30.91	28.40	23.50	2.20	1.30
^{3}He	充填圧（mmHg）	193.9	193.9	193.9	193.9	193.9	200	200	193.9	200
	量（μg）	26.4	24.5	25.4	26.5	25.4	26.5	93.4	25.9	94.2
モル比（基質/^{3}He）		13.5	16.2	15.2	13.9	14.9	13.2	3.10	0.80	0.13
石英容器	S：4 i.d., 80 ℓ L：16 i.d., 18 ℓ	S	S	S	S	S	S	L	S	L
回収率 [A]（%）		75	79	32	56	35	76	28	100	0.1
比放射能 [B]（μCi/mmol）		7.79	11.2	24.9	36.0	44.2	10.9	176	25.8	
メリット値 [A]×[B]/100		5.9	8.9	8.0	20	16	8.3	50	26	

3. 結果と考察

照射条件及び測定結果を表1に示す。生体関連物質は単離するのに時間と労力を要し，高価で貴重な化合物が多い。これらのトリチウム標識化合物を生物実験に供するには，回収率（%）×比放射能／100で定義されるメリット値の高いトリチウム標識化法が望ましい。図1にβ-プソイドウリジンについての全熱中性子数とメリット値との関係を示す。これによるとこの中性子照射条件下ではメリット値は全熱中性子数の増加と共に上昇する。また，L型照射容器を用い全熱中性子数を増すと，50というメリット値が得られた。これは過去における$^{6}Li(n,\alpha)^{3}H$による低温標識化法を上回る高い値となった。また，テトロドトキシンのメリット値はβ-プソイドウリジンより高い値を示した。なお，得られたトリチウム標識化合物は動物実験に使用し成果を上げている。

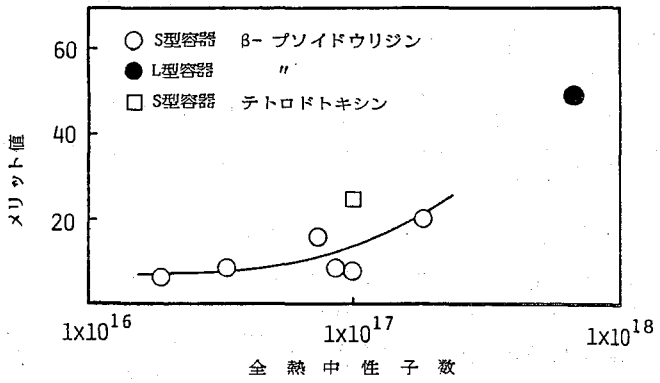


図 1　全熱中性子数の増加に伴うメリット値の変化

RECOIL TRITIATION OF COMPOUNDS OF INTEREST IN BIOLOGICAL RESEARCH BY THE $^{3}He(n,p)^{3}H$ REACTION

Radioisotope Centre, The University of Tokyo,　Norio NOGAWA, Kunio OOHASHI, Naotake MORIKAWA
Faculty of Science, Shizuoka University,　Keiichi KUSAMA
Faculty of Agriculture, The University of Tokyo,　Shugo WATABE, Noriyuki SATOH Kanehisa HASHIMOTO
Japan Atomic Energy Research Institute,　Hiromitsu MATSUOKA, Terutomi MOKI, Takashi MORIYA

1C08　Li_2O結晶中におけるトリチウムの存在状態と化学挙動

（原研）　○工藤博司　奥野健二

1．はじめに

核融合炉ブランケットでは、トリチウム増殖材としてリチウム含有物質を使用する。現時点において、液体ブランケット材としては$Li_{17}Pb_{83}$合金（融点235 ℃）が、固体ブランケット材としては酸化リチウム（Li_2O：融点1483℃）あるいはアルミン酸リチウム（$LiAlO_2$：融点1610℃）の使用が最も有望視されており、ブランケットの設計研究が進められている。最近ではin-situ トリチウム回収実験も行われ、この分野の研究は現実的な方向へと展開されつつある。しかしながら、トリチウム回収概念の確立のためには、基礎データの蓄積は依然として欠かせない。

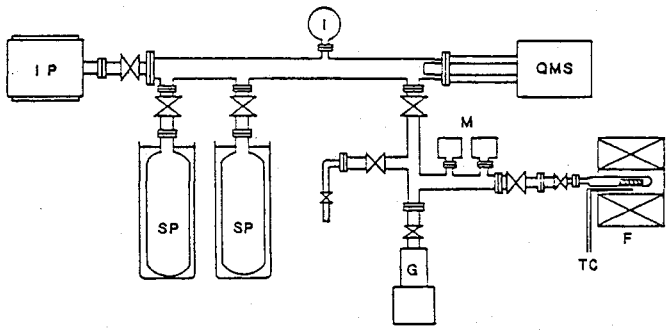
演者らはこれまで、酸化リチウムを中心にその物理化学的性質及びトリチウム放出挙動を研究してきた。中性子照射した酸化リチウム中に$^6Li(n,\alpha)T$ 反応で生成するトリチウムは、真空中での加熱によりその大部分はT_2O の化学形で気相に放出されるが、その放出過程は固体内でのトリチウムの拡散と固体表面からのT_2O 分子の脱離反応とから成ることを明らかにした。このトリチウム放出機構をより深く理解するため、本研究では酸化リチウム結晶中へのトリチウムの溶解及び溶存状態について得られた実験結果と対比しながら、トリチウムの化学挙動を検討する。

2．実験

酸化リチウム粉末結晶（純度99%，平均粒径10μm ）はCerac/Pure社より購入したものを、超高真空下で650 ℃に加熱し、不純物として存在するLiOH及びLi_2CO_3を分解除去後に試料として使用した。

熱中性子照射にはJRR-4 原子炉（熱中性子束5×10^{13} cm^{-2} s^{-1} ）を、14 MeV中性子照射には核融合炉物理用中性子源(FNS) を用いた。

試料へのトリチウムガス（HT）の溶解には図１に示す装置を使用した。New England Nuclear 社より購入したT_2ガス（約1 Ci）が高純度水素（99.99999%）とともにウランベッド（Nukem UTB-10000）に吸収させてあり、必要量のHT（0.9 Ci/l）を系内に取出し、定温定圧下で15時間以上試料と接触させトリチウムを溶解した。トリチウムの存在状態は、先に報告した”重水溶解－ガスクロマトグラフ法”によって分析した[1] 。



IP : Ion Pump　　QMS : Quadrupole Mass Spectrometer
SP : Sorption Pump　　M : Capacitance Manometer
I : Ion Gauge　　G : Tritium Getter (U-bed)
TC : Thermocouple　　F : Electric Furnace

図１

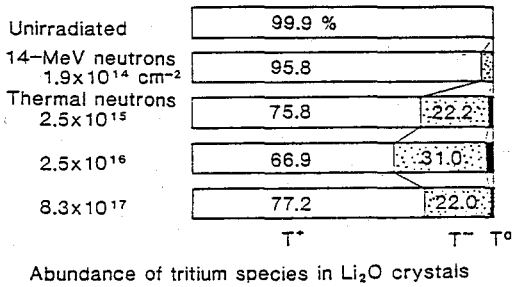
くどう　ひろし、　おくの　けんじ

3．結果及び考察

(1) トリチウムの存在状態：　本実験で用いた分析法によれば、間接的ではあるが、酸化リチウム結晶中に存在するトリチウムをT^+、T^-及びT^0状態に区別することができる。得られた分析結果を図2に示す。熱平衡条件下（600 ℃，67 kPa）で導入したトリチウムは殆ど全てがT^+状態にある。これに対して、中性子照射した試料中にはT^-状態のトリチウムの存在が認められた。T^-の存在率は中性子フルエンスとともに増加する傾向を示している。また、T^-成分は中性子照射後の熱アニーリングによって変化し、300 ℃以上に加熱すると全てのT^-はT^+に変換することが判明した。このT^-の挙動は、熱アニーリングによるF^+中心（酸素の空孔に電子が1個入ったもの）の消滅挙動と密接に関連していることが明らかになり、F^+-T^- 相互作用が考えられる。

(2) HTガスの溶解と加熱放出挙動：　酸化リチウム結晶へのHTの溶解は圧力の 1/2乗に比例し、溶解したトリチウムがT^+として存在する事実と考え併せ、HT分子は溶解時に解離し、結晶中ではOT^-として存在することが示唆される。しかしながら、溶解熱は圧力範囲によって異なり、0.01～1 kPa では16.5±2.0 kJ/mol、 1～67 kPaでは24.3±0.9 kJ/molであった（図3）。

溶解したトリチウムの加熱放出挙動は、中性子照射した試料と同様であったが、拡散の活性化エネルギーは41.6±0.4 kJ/molとなり、中性子照射した試料で得られた値77.4±5.6 kJ/molに比較して小さな値であった。



Abundance of tritium species in Li_2O crystals

図2

[1] H.Kudo et al., J. Radioanal. Nucl. Chem., Lett., 93, 55 (1985).

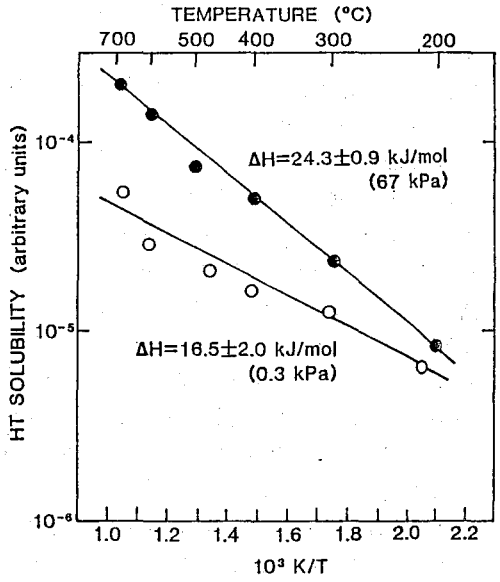


図3

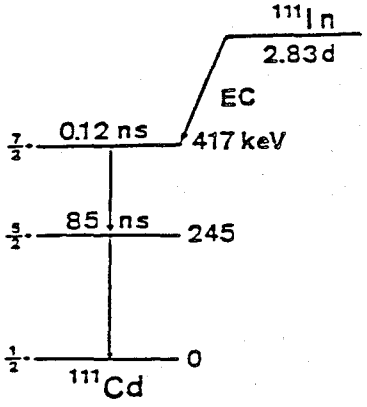
VALENCE STATES AND CHEMICAL BEHAVIOR OF TRITIUM IN Li_2O CRYSTALS

Japan Atomic Energy Research Institute, Hiroshi KUDO
, Kenji OKUNO

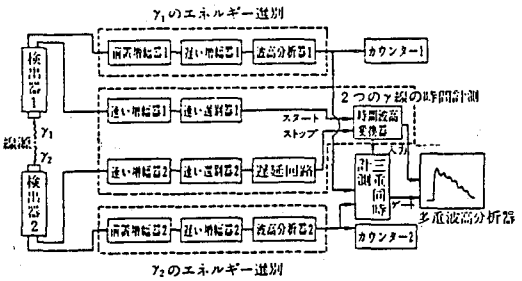
1C09　リン酸銀中（$^{111}In \rightarrow$）^{111}CdのTDPAC

（理研）浅井吉蔵・○安部静子・岡田卓也・安部文敏

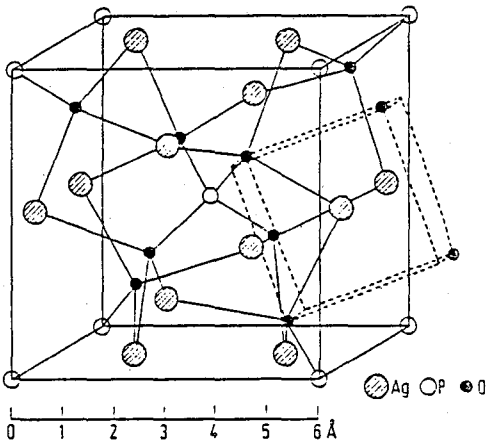
カスケードガンマ線の時間微分摂動角相関（TDPAC）は発光メスバウアー分光法とならんで核壊変直後の原子の化学状態を直接観測する優れた手段であり、後者と比較しても、化学状態の時間変化が追える（遅延同時計数メスバウアー法に相当）、高温まで測定ができるなどの長所をもっている。本講演では銀化合物の中では比較的放射線に強いリン酸銀(Ag_3PO_4)を直接α－粒子で照射し、$^{109}Ag(\alpha,2n)$反応で生成する^{111}Inについて^{111}Cdのカスケードガンマ線のTDPACを測定した結果を報告する。



実験　硝酸銀の希硝酸溶液を燐酸二水素ナトリウムの水溶液に加え、撹はんしつつ希水酸化ナトリウム水溶液を滴下して中和しリン酸銀を合成した。この試料の粉末X線パターンは単相で不純物のピークは全く見られなかった。リン酸銀粉末をアルミニウム板の上に拡げ80μmのアルミニウム箔で覆い、アルミニウム板の裏側を直接水で冷却しつつ、アルファ粒子で照射した。リン酸銀試料の量は64mg/2cm²で、試料層通過時のアルファ粒子のエネルギーは約25-21MeV、ビーム電流は約3μA/2cm²で約10時間の照射を行なった。照射を終わった試料は冷却の不充分な中間層を除き放射線分解して完全に黒化していた。これを空気中800°Cで 90min加熱するとリン酸銀本来の橙黄色に戻った。約80μCiの^{111}Inを含むリン酸銀試料について２台のNaIシンチレーションカウンターに図に示すコインシデンス回路を接続した装置を用いて液体窒素温度から高温までTDPACの測定を行なった。



摂動角相関測定用電子回路系.



結果と考察　えられたTDPAC時間スペクトルを図１と２に示す。

あさいきちぞう・あんべしずこ・おかだたくや・あんべふみとし

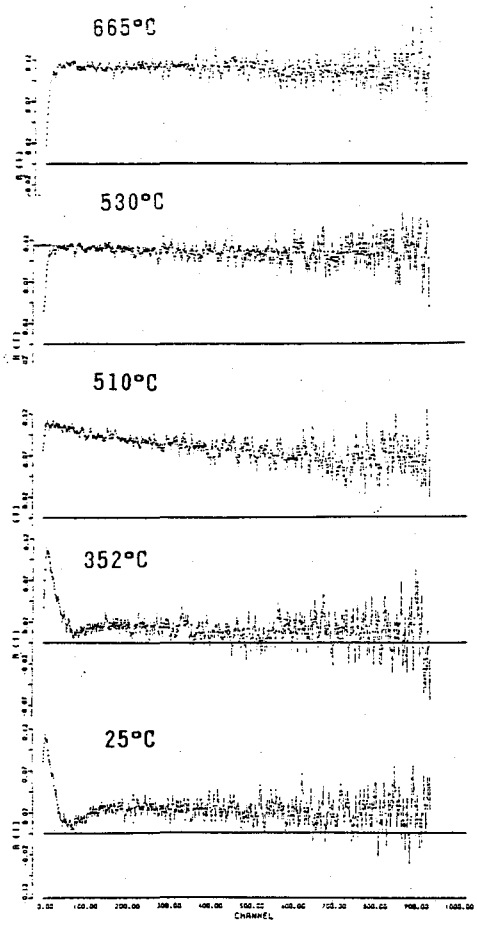


図１　1 channel=0.33ns

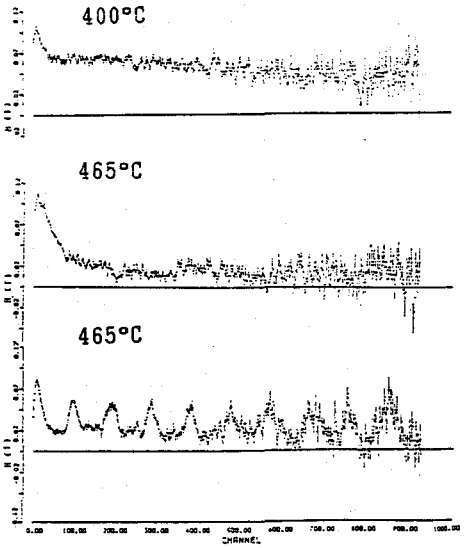


図２　1 channel=0.33ns

リン酸銀の室温における結晶構造を左ページの図に示す。結晶全体としてはcubicであるが、銀イオンのsite symmetryはcubicではない。約520°Cで結晶変態することが知られて居り、高温型もcubicであるが結晶構造は分かっていない。

図１に見られるように、液体窒素温度から350°C付近まではEC壊変のafter-effectsにより角相関の異方性が急にダンプしてしまう。一方510°C以上では、最初の異方性がほとんどそのまま保たれ、^{111}Inから生成した^{111}Cdがcubicに近い環境に有ることが分かり、高温ではafter-effectsがTDPACの観測時間より遥かに短い時間でアニールされていることが結論される。これらの中間の温度では極めて再現性が悪く、試料により図２に示すような種々のスペクトルが観測されている。これはafter-effectsで生成した励起状態がマトリックス中の微量の不純物と相互作用している結果を示すものと考えられる。以上の結果を結晶構造など関連して考察する。

TDPAC OF (^{111}In→)^{111}Cd IN SILVER PHOSPHATE

The Institute of Physical and Chemical Research
Kichizo Asai, Shizuko Ambe, Takuya Okada and Fumitoshi Ambe

1C10　TDPACによるα-Fe_2O_3中における^{111}InのEC壊変の化学効果

（理研）浅井吉蔵・○安部文敏・安部静子・岡田卓也・関沢　尚

ガンマ線の時間微分摂動角相関（TDPAC）は核壊変のafter-effectsで生成する固体中の励起状態を研究する有力な方法として期待されているが、実際にはこの方法により壊変後の異常な化学状態が同定された例はないと言ってよい。(^{111}In→)^{111}Cdはカスケードガンマ線のエネルギー・親核種の半減期・娘核種の中間レベルの寿命がTDPACの測定に最適であるが、after-effectsにより乱されたスペクトルの解析は全く行なわれていない。我々は先に絶縁性の反強磁性体α-Fe_2O_3中にドープした^{111}Inについて、まず，after-effectsによって生成した励起状態が十分早くアニールされる高温におけるTDPACスペクトルの測定から、after-effectsによる撹乱を受けていない(^{111}In→)^{111}Cdの超微細磁場・電場勾配にもとづくangular frequency ω_L, ω_Qを決定した。これらのデータをもとに室温までのスペクトルがω_Qまたは超微細磁場と電場勾配の主軸との間の角θに分布を仮定することにより解析できることを示し、[1] またこの結果をα-Fe_2O_3中の^{119}Sbの発光メスバウアースペクトルと比較した。[2] しかし、ここまでの方法では分布に寄与する励起状態をα-Fe_2O_3の結晶構造と関連して推定することは不可能であった。そこで今回はα-Fe_2O_3中でθの値が90°変化するMorin転移(250K)の下まで測定を行ないafter-effectsによって生成する励起状態の同定を試みた結果を報告する。

実験　試料は前回同様無担体の$^{111}In^{3+}$を水溶液からα-Fe_2O_3の粉末の表面に加水分解的に吸着させ、水洗・乾燥ののち、空気中で1000°Cに２時間加熱して$^{111}In^{3+}$をα-Fe_2O_3粒子の内部に拡散させて調製した。約80 μCiの^{111}Inを含む試料について、２個のNaIシンチレーションカウンターにfast-slow系を接続した装置により、ヒーターを備えた液体窒素クライオスタットを用いて室温以下でTDPACスペクトルを測定した。

結果　測定の結果を、すでに報告した室温以上における代表的スペクトルと共に図１に示す。縦軸は高次の項を無視したTDPAC係数である．Morin点の上下で明らかにスペクトルの変化がみられる。

考察　α-Fe_2O_3中のFe^{3+}イオンには6個のO^{2-}イオンが歪んだ正八面体状に配位していて、電場勾配の主軸は<111>方向にある。Fe^{3+}のスピン、したがってFe^{3+}の核の位置に於ける超微細磁場の方向はMorin点の上では<111>に直交し、Morin点の下では<111>に平行となる。

α-Fe_2O_3中に拡散した^{111}InはマトリックスのFe^{3+}イオンを置換すると考えられる。約400°C以上では^{111}InのEC壊変のafter-effectsはTDPACの観測時間より短い時間でアニールされ、α-Fe_2O_3のFe^{3+}の位置にあって近傍に励起状態のない^{111}Cdに対する超微細磁場・電場勾配にもとづくangular frequency ω_L, ω_Q(Neel点(963K)以上では後者のみ)の重なったTDPACスペクトルが観測される　(図１(a)と(b))。これ以下の温度では、えられたスペクトルはθ=90°または0°, η=0を仮定した上での単一のω_L, ω_Qの組では解

あさいきちぞう・あんべふみとし・あんべしずこ・おかだたくや・せきざわひさし

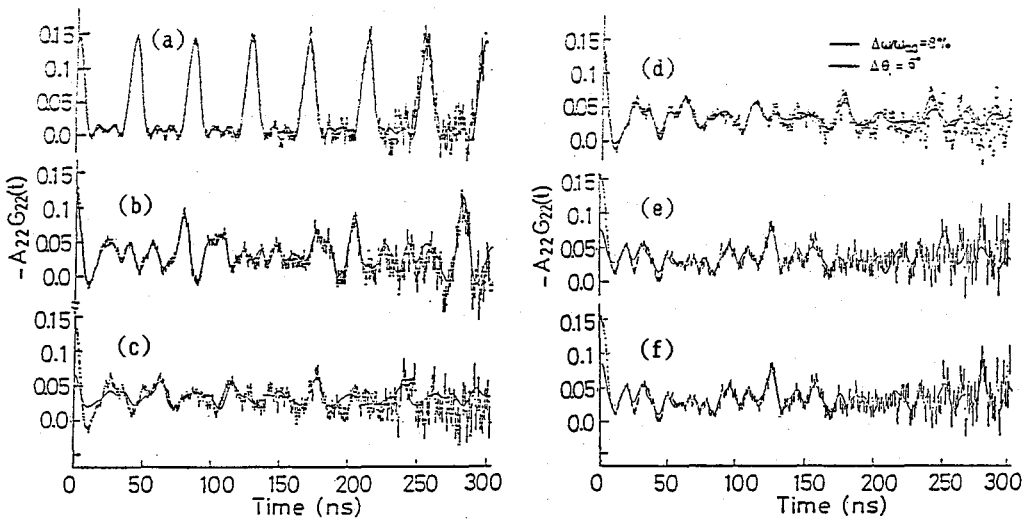


図1　α-Fe_2O_3中における($^{111}In\rightarrow$)^{111}CdのTDPACスペクトル：(a)987K, (b)693K, (c)と(d)293K, (e)と(f)85K. (a)-(c)と(e)の曲線はθ=90°または0°, η=0を仮定した上での単一のω_L, ω_Q の組による解析結果; (d)の曲線はω_Qまたはθにgauss分布を仮定した結果; (f)の曲線はθ, ηを自由にして、単一のω_L, ω_Qの組で計算した結果。

析不能であり(図1(c)と(e))、明らかにafter-effectsにより^{111}Cdの近傍に励起状態が生成していることが分かる。室温までのスペクトルはすでに報告したようにω_QまたはθにGauss分布を仮定すると図1(d)の様に解析できるが、Morin点の下85Kのデータはこの仮定のもとでは、満足すべき結果はえられない。そこで、θ=0°, η=0 の仮定をおかず、t≧50nsの範囲で両パラメーターに自由度を持たせてフィッティングを行なった結果、図1(f)に示すようにt≧50nsの範囲で良い結果をえた。

これらの結果から85Kにおいてはt≦50nsで消滅する短寿命の励起状態と観測時間300ns程度の寿命を持つ励起状態とがafter-effectsにより生成していることが結論される。後者は本来の^{111}Cdに近いパラメータをもっていて、これらの平均がt≧50nsの領域で観測され、θおよびηのゼロからのずれとして解析結果に現われているものと考えられる。室温においては後者の励起状態の寿命が短くなり、その比率の時間的変化がω_Qまたはθの分布として解析されたものと思われる。

1) K. Asai, F. Ambe, S. Ambe and H. Sekizawa, J. Phys. Soc. Japan, 53, 4109(1984).
2) F. Ambe, K. Asai, S. Ambe, T. Okada and H. Sekizawa, Hyp. Int., 29, 1197(1986).

CHEMICAL EFFECTS OF THE EC DECAY OF ^{111}In IN α-Fe_2O_3 BY TDPAC

The Institute of Physical and Chemical Research
Kichizo Asai, Fumitoshi Ambe, Shizuko Ambe, Takuya Okada and Hisashi Sekizawa

1C11　1C11. サムピーク法による摂動角相関現象の生体関連試料への応用

（福島医大・東北大金研*・東北大理**）○工藤　君・土橋宣昭
油井徳雄・三騎聰明*・鍛冶東海**・吉原賢二**

1.はじめに：カスケードにγ線を放射する摂動角相関（PAC）核種のγ線スペクトルをゲルマニウムデテクタで測定すると、個々のγ線ピークの他にサムピークの生成が認められ、その計数率 I_{sum} の単一ピーク計数率 I に対する比は、対象PAC核種の置かれた物理化学状態に対応して変化することが見出されている。積分型PAC関数は

$$W(\theta) = (1/4\pi)(1 + A_{22}\bar{G}_{22}P_2(\cos\theta)) \qquad (1)$$

のように積分減衰係数 $\bar{G}_{22}$ に依存して変化するから、サムピーク比 I_{sum}/I は一定の幾何学的条件及び分解時間を保って測定する限り $\bar{G}_{22}$ のみによって決定される筈であり、従って、サムピーク強度比を測定することによって、対象核種の置かれた環境に関する情報を得る方法 ― サムピーク法 ― は、原理的に時間積分型PAC測定と同様の情報を与える方法であるといえる。代表的なPAC核種である ^{111}In は、$^{111}In^{3+}$ の状態と血小板に標識された場合とで夫々0.52, 0.17と大きく異った $\bar{G}_{22}$ の値を持つことが報告されているが[1]我々のサムピーク測定からは、この $\bar{G}_{22}$ の変化が10%程度のサムピーク比の変化となって現われることが分った。このことはサムピーク比 I_{sum}/I の測定だけで $\bar{G}_{22}$ の値を充分に決定できる可能性を示すものである。我々はすでに I_{sum}/I と $\bar{G}_{22}$ を結ぶ関係式を導出し、$\bar{G}_{22}$ を決定するための簡便法として提案してきたが、この方法が実際に $\bar{G}_{22}$ の決定に適用できたので報告する。

2. I_{sum}/I と $\bar{G}_{22}$ を結ぶ関係式：カスケードγ線1,2の放出率；検出効率を夫々 r_1, r_2；$\varepsilon_1', \varepsilon_2'$ とすれば、サムピーク強度 I_{sum} は次式で与えられる。

$$I_{sum} = A \cdot r_1\varepsilon_1' \int_\Omega \frac{d\omega_1}{4\pi} r_2\varepsilon_2' \int_\Omega \frac{1}{4\pi}(1 + A_{22}\bar{G}_{22}P_2(\cos\theta))\,d\omega_2 \qquad (2)$$

ここで、Aは試料のアクティビティ（dps），Ωは試料から検出器を見た立体角，$d\omega_1$, $d\omega_2$ は夫々γ線1,2の放出方向に関する微分立体角である。ω_2 に関する積分は ω_1 の関数となるので(2)式に於る積分は分離できない。(2)は書きかえられて以下のように表わされる。

$$I_{sum} = A r_1\varepsilon_1 r_2\varepsilon_2 \frac{\int_\Omega \frac{d\omega_1}{4\pi}\int_\Omega \frac{1}{4\pi}(1 + A_{22}\bar{G}_{22}P_2(\cos\theta))\,d\omega_2}{\left(\int_\Omega \frac{d\omega}{4\pi}\right)^2} \qquad (3)$$

$$= A r_1 r_2 \varepsilon_1\varepsilon_2 (1 + A_{22}\bar{G}_{22}K) \qquad (3')$$

ただし、$\varepsilon_1 \equiv \varepsilon_1'\int_\Omega \frac{d\omega}{4\pi}$，　$\varepsilon_2 \equiv \varepsilon_2'\int_\Omega \frac{d\omega}{4\pi}$，　$K = \int_\Omega \frac{d\omega_1}{4\pi}\int_\Omega \frac{d\omega_2}{4\pi}P_2(\cos\theta) \Big/ \left(\int_\Omega \frac{d\omega}{4\pi}\right)^2$　(4)

(3)'式より、γ線1,2に対するサムピーク比 I_{sum}/I_1, I_{sum}/I_2 は夫々

$$I_{sum}/I_1 = r_2\varepsilon_2(1 + A_{22}\bar{G}_{22}K), \quad I_{sum}/I_2 = r_1\varepsilon_1(1 + A_{22}\bar{G}_{22}K) \qquad (5)$$

で表わされ、これらがサムピーク比と $\bar{G}_{22}$ を結ぶ式である。　(4)式より明らかなように $\varepsilon_1, \varepsilon_2, K$ は測定系の幾何学的条件のみによって決まる量であるから、これらを決定しておけば、サムピーク比 I_{sum}/I の測定だけで $\bar{G}_{22}$ が求められることが分る。

3.実験：3つの試料 $^{111}In^{3+}$，血小板に標識した ^{111}In イオン，及びBSAに標識した ^{111}In イオンのサムピーク比を測定した。$^{111}In^{3+}$ 及び血小板に標識した ^{111}In イオンについてのサムピークデータと、

くどうてつ，つちはしのぶあき，ゆいとくお，みつがしらとしあき，かじはるみ，
よしはらけんじ

夫々の試料についてのG22の値0.52及び0.17[1]を用いて、3つの定数ε1, ε2, Kを算出した。これらのε1, ε2, Kを用いてBSAに標識したIn-111についてのサムピークデータより、この場合のG22を算出した。サムピークほからもとめたG22と比較するため、同じ試料を用いて時間積分型PAC測定を行った。血小板にIn-111を標識する手順は図1に示してある。

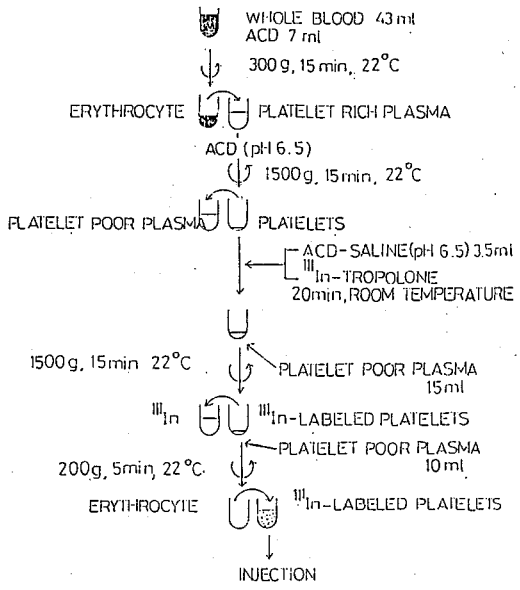


図1. In-111を血小板に標識する手順

4.結果と考察：In-111のγ線1, 2及びこのサムピークはそれ171, 245, 416 keVに現われる。In-111及び血小板標識したIn-111から得たサムピーク比Isum/I1, Isum/I2はそれぞれ0.005208±0.000160, 0.006556±0.000194 (In3+)；0.005750±0.000092, 0.007247±0.000107 (In-血小板)であった。これらのデータと対応するG22の値0.52, 0.17を用い(5)式に従って算出したε1, K；ε2, Kの値はそれぞれ0.008333±0.000166, 1.447±0.463；0.006397±0.000148, 1.432±0.487であった。BSAに標識したInのサムピーク測定から得られたIsum/I1, Isum/I2はそれぞれ0.005426±0.000058, 0.006868±0.000092であり、この結果と上述のε, K；ε2, Kの値を用いて算出されたBSAについてのG22はそれぞれ0.379±0.154；0.362±0.143であった。一方、時間積分型PAC測定からもとめられたG22は0.300±0.074であった。サムピークほよりもとめたG22は、PAC測定の場合と誤差の範囲内で一致している。以上のようにサムピークほという簡便な方法でG22を決定し、医学生物学等に応用しうることが示された。

5.謝辞：本研究を遂行するにあたり、InCl3を提供して下さった日本メジフィジックス(株)に感謝致します。

6.参考文献：(1) S. Poulian et al. Int. J. App. Radiat. Isot. 33 33 (1982)

APPLICATION OF PERTURBED ANGULAR CORRELATION PHENOMENA TO BIOLOGICAL SPECIMEN BY SUM PEAK METHOD

Fukushima Medical College, Tetsu Kudo, Nobuaki Tsuchihashi, Tokuo Yui
The Research Institute for Iron, Steel and Other Metals,
Tohoku University, Toshiaki Mitsugashira
Faculty of Science, Tohoku University, Harumi Kaji, Kenji Yoshihara

1C12　γ線スペクトロメトリーにおけるサム効果とその補正

（阪大理）○桜庭洋介、横山明彦、斎藤　直、馬場　宏
（原研）　馬場澄子

はじめに

線源と検出器の距離がごく近い状態でγ線測定を行なう場合、いわゆるサム効果が顕著になる。つまり、検出効率が大きいためにカスケードによって同時に放出されるγ線を同時に感じて、問題のγ線の光電ピーク強度の減少が起こる。

一般に、i番目のγ線γ_iについて実測したピーク面積N_i'はカスケードγ線によるサム効果を考慮すると次式で与えられる。

$$N_i' = N_0 f_i \varepsilon(E_i, d) - N_0 f_i \varepsilon(E_i, d) \sum_j W_{ij}(0) p_i(\gamma_j) \varepsilon_t(E_j, d)$$

$$+ N_0 \sum_{j,k} f^{<}_{jk} W_{jk}(0) \varepsilon(E_j, d) \varepsilon(E_k, d) \qquad (1)$$

ただし、N_0は単位時間当たりの壊変数、f_iはγ_iの放出確率、$\varepsilon(E, d)$と$\varepsilon_t(E, d)$はそれぞれ、検出器の有効域の端から線源までの距離がdの時、エネルギーEなるγ線に対する光電ピーク計数効率と全計数効率である。さらに、$W_{ij}(\theta)$はγ_iとγ_jの角度相関関数、$p_i(\gamma_j)$はγ_jのうちγ_iとカスケード関係にあるものの割合、$f^{<}_{jk}$はγ_iとクロスオーバーの関係にあるγ_jとγ_kの放出確率のうちどちらか小さい方の値を表わし、式中の和は該当するすべてのγ線の組について取るものとする。

（1）式右辺第一項はサム効果が無視できる条件で得られる光電ピーク面積N_iに等しい。もし、εとε_tが（2）式のようにジオメトリーに無関係な因子とエネルギーに無関係でジオメトリーのみに依存する関数との積の形

$$\varepsilon(E_i, d) = \varepsilon^0(E_i) \times F(d)$$
$$\varepsilon_t(E_i, d) = \varepsilon_t^0(E_i) \times F'(d) \qquad (2)$$

と近似的にみなすことができ、さらにF'＝Fと近似することが許されるならば、（1）式は簡単に（3）式で表わすことが可能になる。

$$\frac{N_i'}{N_i} = 1 - k_i F(d) \qquad (3)$$

ここでk_iはジオメトリーに依存しないγ_iに固有な量である。

実験

この近似が許されるか否かを知るために、^{152}Euの各ピークについて、（3）式の普遍的な関数F（d）を見出すことを試みた。まず、（3）式左辺の量は単色γ線標準線源で求めた

さくらばようすけ、よこやまあきひこ、さいとうただし、ばばひろし、ばばすみこ

真の計数効率に対するγ$_i$の見かけの計数効率の割合で与えられる。その結果、Fとして

$$F(d)=\begin{cases}0 & \text{for } d\geqq d_i\\ d^{-1}-d_i^{-1} & \text{for } d<d_i\end{cases} \qquad (45)$$

が実測値をよく再現することが見出された。ただし、d_iはγ$_i$により異なる定数である。この定数d_iは又検出器が異なれば異なる値をとるが、検出器毎にd_iの最小値を見出すことが出来る。

（4）式にまとめられた結果は、関数Fが個々のγ線に特有の定数d_iを含むことを示しており、これは初めの要請（(2)式）と矛盾している。しかし、現実には1%以上の放出確率を持つ^{152}Euのγ線のほとんどについて（4）式が成立することが確かめられたので、むしろ積極的に（3）式と（4）式によって、現象論的ではあるが簡単にサム効果を記述する方法を見出したと言える。

次に、この方法を適用して、近いジオメトリーで未知のγ線を測定した場合のサム効果に対する補正方を考える。試料のγ線測定を少なくとも検出器に近い二、三点の距離で行うことは現実問題として可能と考えてよい。その時サム効果があれば、注目するγ線の光電ピーク面積を計数効率で割った値は、d^{-1}に対してそのγ線固有のd_iまで直線的に変化するであろう。ただ、充分離れた位置での測定が可能でなければ、d_iを求めることは出来ない。

結果

今回3つの異なった検出系について^{152}Euのγ線を用いて検討したが、そのうちの1例をFig,1に示す。もし、充分離れた位置でのデータがないとするとF＝0になる点が不明となり、絶対γ線強度を与える縦軸との交点は図中の斜線を施した範囲のどこかになる。すなわち、この手法で求めた絶対強度には余分な不確定要素が加わるが、ここで想定したような劣悪な条件では許容しうる程度の不確定さであると言える。

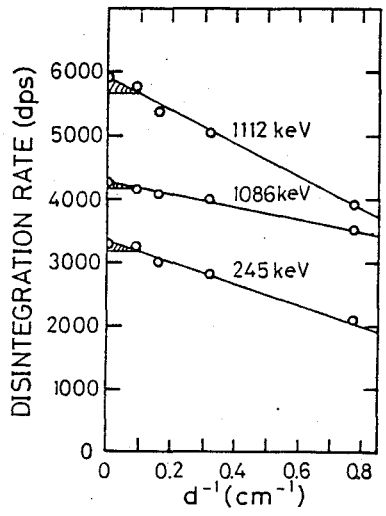


Fig.1 Examples of evaluating unknown γ-ray intensities applied to ^{152}Eu γ-rays measured with large sum effects.

GAMMA-RAY SPECTROMETRY ACCOMPANYING APPRECIABLE AMOUNT OF THE SUM EFFECTS

Faculty of Science, Osaka University, Yosuke SAKURABA, Akihiko YOKOYAMA, Tadashi SAITO, Hiroshi BABA,
Japan Atomic Energy Research Institute, Sumiko BABA

1C13　固相テトラフェニルポルフィリンにおける反跳トリチウムの反応 Ⅲ
薄膜を用いた反跳トリチウム反応

（東北大学・理）　○ 伊澤郡蔵、　関根　勉、　吉原賢二

（緒言）

メソーテトラフェニルポルフィリン（5,10,15,20- テトラフェニルポルフィリン、ＴＰＰと省略する）は、ピロール環とベンゼン環を分子内に持つ大共役環状化合物である。ＮＨ基、ピロール環のＣＨ基、およびベンゼン環のＣＨ基の三種の化学状態の異なる水素を分子内に持ち、これらと反跳トリチウムの置換反応は固相における反跳トリチウムの化学的挙動に興味ある知見が得られると考えられる。前回までの報告で、固相でも気相と同様に酸素スカベンジャーの効果は認められたが、ヘリウムモデレーターの効果は反跳トリチウムの減速の大部分がＴＰＰ固体中で起こるために気相とは異なった。

今回の報告では、反跳トリチウムの減速がＴＰＰ中で起こらない厚さの薄い薄膜状のＴＰＰターゲットを作成し、T-for-H 置換反応のトリチウム分子内分布を酸素スカベンジャー、ヘリウムモデレーター系について求め、粉末または気相における結果と比較検討した。また、ヘリウムモデレーター系の結果の考察のためにＬＳＳ理論による反跳トリチウムの減速過程を理論的に計算した。

（実験）

15×15mm の Mylar 膜にＴＰＰを反跳トリチウムのＴＰＰ中の飛程の約 1/10 である 10～20 ng/cm^2 の厚さで蒸着しターゲットとした。内径 18mmΦ の石英アンプルに ^{3}He 15cmHg 、酸素スカベンジャー、ヘリウムモデレーターと共に封入し日本原子力研究所のＪＲＲ－４炉で 3 分間熱中性子の照射を行ない、生成物の分離は図１に示した。ＨＴは窒素気流中でアンプルを開封し酸化銅 550℃ で酸化し、Mylar 膜は酸素気流中 700 ℃ で酸化し HTO としてトラップした。ＴＰＰは Mylar 膜からクロロホルムで溶出し、水で抽出しＮＨ基、ラビール水素に分布するトリチウムを求めた。クロロホルムから精製したＴＰＰは、ベンゼン溶液でクラウンエーテルを触媒として過マンガン酸カリウムで安息香酸に酸化分解した。安息香酸とＴＰＰの比放射能の比較からベンゼン環とピロール環のトリチウムの分布を求めた。

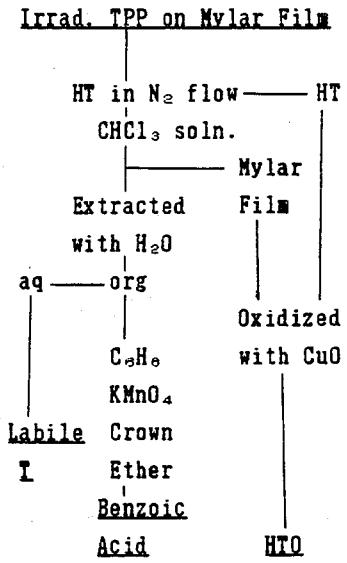


図１．生成物の分析法

いざわぐんぞう、　せきねつとむ、　よしはらけんじ

（結果と考察）

酸素スカベンジャー系：　薄膜状態のＴＰＰでも粉末状態と同様に酸素のスカベンジャー添加により添加しない系よりもＣＨ結合に分布するトリチウム収率は減少しスカベンジャー効果が認められた。ＣＨ結合の内容であるベンゼン環とピロール環のトリチウムの分子内分布は薄膜状と粉末状のＴＰＰで一致し、スカベンジャー添加の両系では同等の T-for-H 置換反応が起こっていることが明らかとなった。また、高エネルギー領域で反応すると推定されるベンゼン環へのトリチウムの分布は酸素スカベンジャー添加で増加した。しかし、薄膜状態のＴＰＰでは酸素を添加しない系でもラビール水素に分布するトリチウムは粉末状のＴＰＰよりも多く、薄膜表面に吸着された水、または酸素分子が酸素のスカベンジャーと同等の作用をしていることが認められた。

ヘリウムモデレーター系：　ＬＳＳ理論による反跳トリチウムの減速過程の計算はヘリウムモデレーターの圧力 40、70cmHg、1.6 気圧について内径 18mm の円筒形のターゲットについて行なった。計算の結果ヘリウムモデレーター系について次のことが推定された。(1) ヘリウムモデレーターの圧力に依存せず反応に関与するトリチウムのエネルギースペクトルは相似となる。　ヘリウムモデレーターの圧力 40cmHg、1.6 気圧におけるベンゼン環とピロール環のトリチウムの分子内分布は一致し、実験的にもこの結果は認め得るものであった。

ヘリウムモデレーター中の反跳トリチウムの飛程は 40cmHg、1.6 気圧で 1.6、0.56 cm であり、ターゲットからこれ以上の距離で生成する反跳トリチウムは完全に減速されて反応に関与しない。その結果 (2) この反応に関与できるトリチウムの数はヘリウムモデレーターの圧力で約 1/5 に減少する。しかし、全トリチウムに対するＨＴ、ＣＨ結合、ラビール水素、 Mylar 膜におけるトリチウムの収率はヘリウムモデレーターの圧力の増加に従ってＨＴの収率は増加し、 Mylar 膜の収率は減少したが、その他のＣＨ結合、ラビール水素の収率は変化しない。これは、完全に減速された熱領域のトリチウムもＣＨ結合、ラビール水素に反応し得ることを示し、さらに検討が必要である。

Table 1. Intramolecular Distribution of Tritium in TPP

Target	Target Form	O_2 Pressure cmHg	Benzene Ring	Pyrrole Ring
Free TPP	Thin Film	0	61	39
	Powder	0	54	46
TPP + O_2	Thin Film	30	64	36
	Powder	20	59	46
	Powder	54	64	36

THE RECOIL TRITIUM REACTION WITH TETRAPHENYLPORPHIRIN III.　THE RECOIL TRITIUM REACTION USING THIN TARGET.

Faculty of Science, Tohoku University, Gunzo IZAWA, Tsutomu SEKINE, and Kenji YOSHIHARA

1C14　水溶性ポルフィリン錯体会合系固相における反跳化学

（筑波大・化）小川公也，○荘司 準，池田長生

序　固相金属錯体系における反跳化学では，従来リテンション値がしばしば興味の対象とされ，同位体効果やアニーリング挙動などにもとづいて，その機構や反跳飛程，結晶の格子欠陥などが議論されてきた。しかしリテンションは，ほとんど全ての場合単一のプロセスによって生じるものではなく，いくつかのプロセスの寄与の和の結果としてあらわれる。さらに，リテンション値や別の反跳生成物の収率から，これらのプロセスの寄与の度合いを評価できる実験系はまことに数少ない。このような点を克服すべく，本研究では，金属ポルフィリン錯体をとり上げ，水溶液でのモル吸光係数の非常に大きな超高感度比色試薬として最近開発が進められている水溶性ポルフィリン錯体の中で，図1に示すテトラキス（4－N－メチルピリジル）ポルフィン（略称TMPyP）錯体イオンと，テトラ（p－カルボキシフェニル）ポルフィン（略称TCPP）錯体イオンの（1：1）会合物が固体として得られることを見出したので，中心金属を銅と亜鉛にした以下に示すような組合せの錯体の4種の会合物，すなわち
[Zn(TMPyP)][Cu(TCPP)],
[Cu(TMPyP)][Zn(TCPP)],
[Zn(TMPyP)][Zn(TCPP)],
[Cu(TMPyP)][Cu(TCPP)]
を合成し，これらを制動放射線照射および熱中性子照射に供し，主な生成核種についての錯体収率を測定し，反応のプロセスについての考察を試みた。

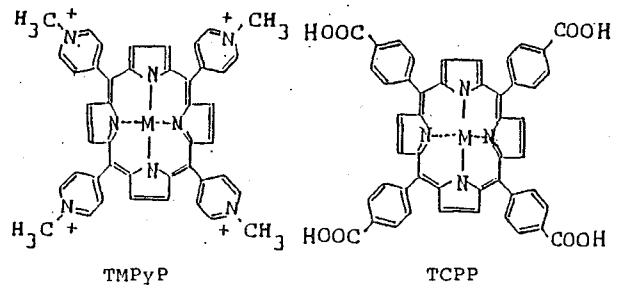


図1. Structural Formulas for Water-soluble Metalloporphyrins

実験　1)試料の調製　市販の無金属TMPyPおよび無金属TCPPを購入し，主に文献の方法に従ってこれらに中心金属を導入した。次に目的とする会合体試料に対応する金属TMPyP錯体と金属TCPP錯体の水溶液を，含まれる錯体の量が等モルになるように混合し数時間以上放置したのち，目的とする組合せの試料の沈殿を得た。

2)照射　制動放射線照射は東北大核理研の電子ライナックで行った。最大γ線エネルギーは50MeVで，未転換電子はスィープマグネットにより除去した。照射の際試料を冷室気流により－130℃程度まで冷却した。熱中性子照射は立大原研TRIGA MARKⅡ炉回転試料棚で，ドライアイスで冷却しつつ2時間行った。

3)化学分離　照射した各試料は担体を含む3MNH$_4$Cl－1MNH$_4$OH－エタノール(1：1：2)冷混合溶媒に溶かした後，図2に示すイオン交換法を主とした湿式化学操作により，TMPyP錯体およびTCPP錯体フラクションに分離し，そのγ線スペクトルから各フラクションにおける着目核種の錯体収率を求めた。

おがわきみや，しょうじひとし，いけだながお

結果と考察

それぞれの照射の際，着目した核反応を表1,2に示す．各照射の際の着目核種の各フラクションにおける錯体収率を表3，4に示す．これらの錯体収率をもたらしたと考えられる反応プロセスとしては，表5に示すような過程が挙げられるが，これらのプロセスの寄与の割合を正確に判定するには，かなり大胆な仮定を設けても非常な困難が伴う．しかしいずれにせよ，中心金属が異なる金合系における銅核種の錯体収率は非常に特異的であると言わざるを得ず，また中には単一のプロセスによって決定されたと判定される錯体収率もあり，これらの点を含めて全体を概観しつつ考察を加えていくこととする．

表1. Nuclear Reactions in Bremsstrahlung Irradiation

$^{65}Cu(\gamma,n)^{64}Cu$	(12.7h)
$^{70}Zn(\gamma,n)^{69m}Zn$	(13.8h)
$^{66}Zn(\gamma,n)^{65}Zn$	(244 d)
$^{68}Zn(\gamma,p)^{67}Cu$	(62.0h)
$^{64}Zn(\gamma,2n)^{62}Zn$	(9.13h)

表2. Nuclear Reactions in Thermal Neutron Irradiation

$^{63}Cu(n,\gamma)^{64}Cu$	(12.7h)
$^{64}Zn(n,\gamma)^{65}Zn$	(244 d)
$^{68}Zn(n,\gamma)^{69m}Zn$	(13.8h)

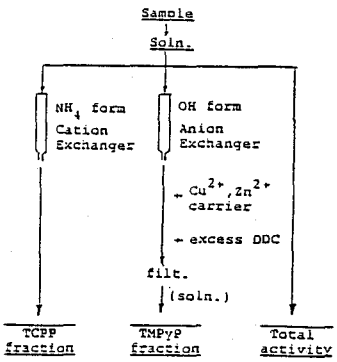


図2. Chemical Separation Scheme

表3. Complex Yields (%)

Sample	[Zn(TMPyP)][Cu(TCPP)]		[Cu(TMPyP)][Zn(TCPP)]	
Fraction	TMPyP	TCPP	TMPyP	TCPP
Yield ^{64}Cu	9±1	2.8±0.6	2.8±0.4	21±2
^{67}Cu	9.0±0.1	3.0±0.1	2.5±0.1	22.1±0.3
^{62}Zn	2.3±0.4	3.8±0.3	3.3±0.4	4.6±0.5
^{65}Zn	2.2±0.4	3.6±0.5	4±1	4.0±0.7
^{69m}Zn	1.5±0.8	3.9±0.6	4.4±0.8	2±2

Sample	[Zn(TMPyP)][Zn(TCPP)]		[Cu(TMPyP)][Cu(TCPP)]	
Fraction	TMPyP	TCPP	TMPyP	TCPP
Yield ^{64}Cu	-	-	2.3±0.4	2.3±0.4
^{67}Cu	5.5±0.2	19.0±0.3	-	-
^{62}Zn	2±1	5±1	-	-
^{65}Zn	3±1	4±1	-	-
^{69m}Zn	3±1	5±1	-	-

Irradiation: Bremsstrahlung
(Tohoku Univ. Electron LINAC)

表4. Complex Yields (%)

Sample	[Zn(TMPyP)][Cu(TCPP)]		[Cu(TMPyP)][Zn(TCPP)]	
Fraction	TMPyP	TCPP	TMPyP	TCPP
Yield ^{64}Cu	9.1±0.2	3.6±0.2	2.4±0.2	19.7±0.5
^{65}Zn	2.4±0.1	3.6±0.1	3.3±0.2	2.7±0.3
^{69m}Zn	6.8±0.2	3.6±0.2	3.1±0.2	6.9±0.4

Sample	[Zn(TMPyP)][Zn(TCPP)]		[Cu(TMPyP)][Cu(TCPP)]	
Fraction	TMPyP	TCPP	TMPyP	TCPP
Yield ^{64}Cu	-	-	2.4±0.1	2.3±0.1
^{65}Zn	2.4±0.2	2.3±0.2	-	-
^{69m}Zn	4.2±0.1	4.5±0.1	-	-

Irradiation: Thermal Neutron
(Rikkyo Univ. TRIGA MARK II)

表5. Possible Recoil Reactions Which Compose Complex Yields

Reaction Type	Elementary Reaction Process	Abbrev. Symbol
(1) Primary Retention	CuTMPyP ----- Cu*TMPyP	(PR1)
	CuTCPP ----- Cu*TCPP	(PR2)
	ZnTMPyP ----- Zn*TMPyP	(PR3)
	ZnTCPP ----- Zn*TCPP	(PR4)
(2) Reaction Retention	Cu* for Cu in CuTMPyP	(RR1)
	Cu* for Cu in CuTCPP	(RR2)
	Zn* for Zn in ZnTMPyP	(RR3)
	Zn* for Zn in ZnTCPP	(RR4)
(3) Substitution	Cu* for Zn in ZnTMPyP	(S1)
	Cu* for Zn in ZnTCPP	(S2)
	Zn* for Cu in CuTMPyP	(S3)
	Zn* for Cu in CuTCPP	(S4)
(4) Self Substitution	ZnTMPyP ----- Cu*TMPyP	(SS1)
	ZnTCPP ----- Cu*TCPP	(SS2)

RECOIL CHEMISTRY IN WATER-SOLUBLE METALLOPORPHYRIN ASSOCIATES IN THE SOLID PHASE.

Department of Chemistry, University of Tsukuba, Kimiya OGAWA, Hitoshi SHOJI and Nagao IKEDA

1C15　コバルトフタロシアニン－亜鉛フタロシアニン混晶系のホットアトム化学 その基本的な様相

（筑波大・化）○沖　雄一・荘司　準・池田長生

1．目的

演者らはコバルト、銅、亜鉛などを中心金属とする遷移金属フタロシアニン錯体における中心金属の反跳挙動の詳細な解明を目指している。その手段として、以前からそれらの混晶試料に対して照射実験を行っており、銅フタロシアニン－亜鉛フタロシアニン混晶系を用いた実験についてはその一部を既に報告した。[1] 本発表はコバルトフタロシアニン－亜鉛フタロシアニン混晶系を対象とする研究の第１報であり、結晶形がα形の試料を制動放射線照射したときのリテンション値について報告する。

2．実験

［試料］　コバルト、亜鉛両フタロシアニン（ＣｏＰｃ、ＺｎＰｃ）は、それぞれの高純度金属粉末とｏ－フタロニトリルを～２７０℃に保つことにより合成し、減圧昇華（10^{-2}～10^{-3} Ｔｏｒｒ、５００℃）及び洗浄を繰り返して精製した。α形の試料は精製したフタロシアニンを冷濃硫酸に溶解した後、氷水中で結晶化させて調製した。α形の混晶試料は昇華精製した両フタロシアニンを一定のモル分率で混合した後、同様の濃硫酸処理を行って調製した。

［照射］　照射は東北大学原子核理学研究施設の電子ライナックで行い、白金コンバーターから発生する最大５０ＭｅＶの制動放射線を、～８時間照射した。照射の際には未転換電子をスイープマグネットで除去すると共に、低温の窒素気流を噴射して試料を冷却し、不要な効果を可能なかぎり除いた。照射終了後、試料は分離直前までドライアイス中に保存した。

［分離］　照射した試料をCo^{2+}、Cu^{2+}、Zn^{2+}の担体を含む冷濃硫酸に溶解し、氷上に注いで錯体部分を結晶化させた。これを濾別して、ゲルマニウム半導体検出器により、沈澱、濾液双方の放射能を測定し、初期リテンション値を算出した。

3．結果

着目した主な核反応は以下のものである。

$^{59}Co(\gamma, n)^{58}Co$　（７０．８ｄ）
$^{59}Co(\gamma, 2n)^{57}Co$（２７１ｄ）
$^{68}Zn(\gamma, p)^{67}Cu$　（６１．９ｈ）
$^{66}Zn(\gamma, n)^{65}Zn$　（２４４ｄ）
$^{70}Zn(\gamma, n)^{69m}Zn$　（１３．８ｈ）

コバルトと亜鉛のリテンション値（図１，２，４，５）は、いずれもＺｎＰｃのモル分率が増加するに従って大きくなる傾向を示した。それに対して、^{67}Cuのリテンション値（図３）はモル分率にほとんど依存しないことがわかった。以前報告した銅と亜鉛のフタロシアニン混晶系においては、銅のリテンション値はＺｎＰｃのモル分率が増加すると減少しており、今回のコバルトの挙動とは大きく異なっている。

おき　ゆういち、　しょうじ　ひとし、　いけだ　ながお

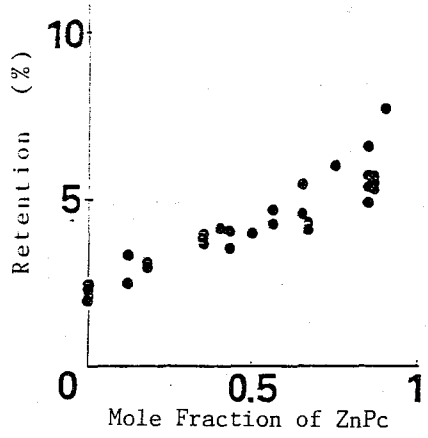


図1 ^{58}Coのリテンション値

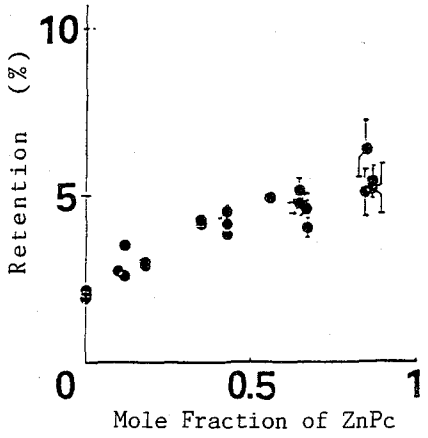


図2 ^{57}Coのリテンション値

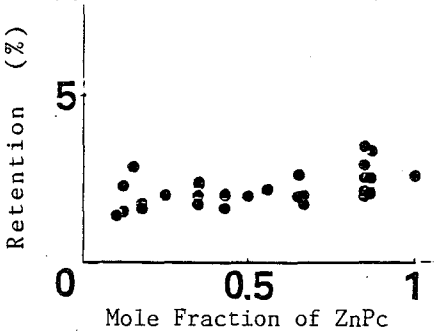


図3 ^{67}Cuのリテンション値

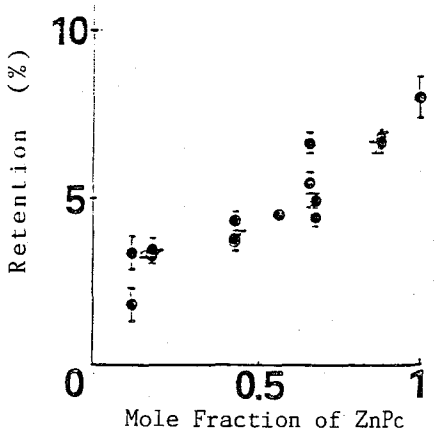


図4 ^{65}Znのリテンション値

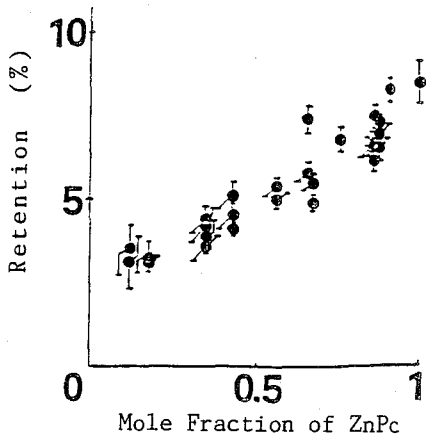


図5 ^{69m}Znのリテンション値

文献1）第28回放射化学討論会講演予稿集
2C17, p.199 (1984)

HOT ATOM CHEMISTRY OF COBALT AND ZINC PHTHALOCYANINE MIXED CRYSTALS
——— GENERAL FEATURES ———

Department of Chemistry, University of Tsukuba
Yuichi OKI, Hitoshi SHOJI, Nagao IKEDA

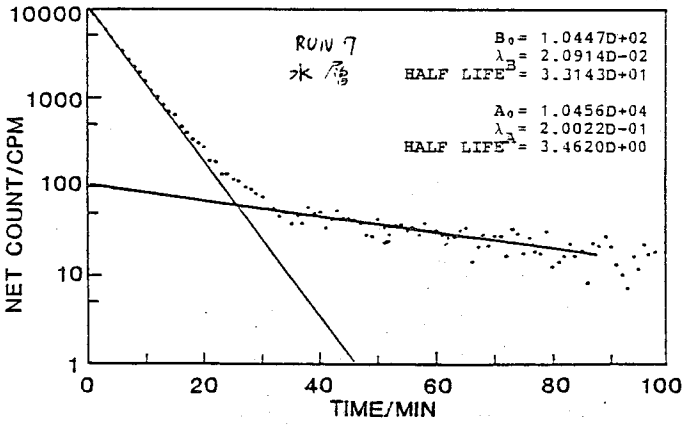
1C16 $Cr(acac)_3$における^{55}Crのホットアトム化学とリテンション値の同位体効果

（立教大・原研，名大・理＊）○松浦辰男，栗原英明，永原照明，
＊佐々木研一

1．はじめに　クロムに関するこれまでのホットアトムの研究は^{51}Crに関するものがそのほとんどをしめ，それ以外のものは非常に少ない。とくに$^{54}Cr(n,\gamma)^{55}Cr$でできる^{55}Crについては，その半減期は3.55s,[1] 3.50s,[2] 3.52s[3]と種々の値が表に記載され，またその一番最近のデータはCollins らにより 3.497±0.002sと報告されているが,[4] そのＨＡＣについては，1961年に池田らがサイクロトロンからの中性子による$Cr(NH_3)_6(NO_3)_3$で濃縮した報告があり,[5] また1973年にCollins らがK_2CrO_4で^{51}Crと^{55}Crの収率について比較しCr（VI）のリテンション成分については同位体効果がなかったとの報告があるだけである。[6]

さてリテンション値の同位体効果の研究については２つの課題がある。１つはその元素のリテンション値の大小は反跳エネルギーから予想される傾向すなわち「反跳エネルギーが大なもののほうがリテンションが小さい」と合致する部類に属するかそうでないかということであり，あと１つは，いわゆる初期リテンション（primary retention ）との関連で，同位体効果はこの初期リテンションにおいてのみ大きく現れるはずであるので，「リテンションが小さいほど初期リテンションに近いはずだから同位体効果が大きくあらわれる」かどうか，すなわち「同位体効果の大きさが初期リテンションの指標となるかどうか」ということである。[7]

本研究は，$Cr(acac)_3$をターゲット物質としてこれを中性子照射したときに^{50}Crと^{54}Crの(n,γ)反応によってできる^{51}Crと^{55}CrのＨＡＣ挙動につき，とくにリテンション値にたいする同位体効果があるかないか，またターゲットが固相のときと液相のときでどうなるか，また照射温度を変えたりスカベンジャーを加えてリテンション値を小さくしたときどう現れるかをしらべようとするものである。



2．実験　$Cr(acac)_3$約100mgを固体のまま，またはベンゼン溶液（10ml）として室温またはドライアイス温度で原子炉のF24孔で２分照射し，照射後ただちにベンゼン溶液とし0.25M シュウ酸溶液で２回振ってＨＡＣ

まつうらたつお，くりはらひであき，ながはらてるあき，ささきけんいち

効果により水溶性となっている放射性クロムを水層に抽出し，つぎに水層およびベンゼン層の一部を試料皿上に蒸発乾固して^{55}Crからのβ線をタイムアナライザーモードのMCAつきGM管で測定し，その結果を特にこの目的のために開発した計算機プログラムにより解析して^{55}Crのリテンションを求めた。また^{51}Crは同一試料につきGe（Li）検出器で0.320MeVのγ線ピークを測定することにより求めた。

Run No.*1	Irrad. Phase*2	Irrad. Temp.*3	R-value /%/ ^{55}Cr		^{51}Cr		R-value Ratio	Note *4
1	S	R	4.38		4.64		1.052	RSR-3min*5
2	S	R	5.97		5.51		1.046	RSR-3min*5
3*	S	R	6.08	aver.	5.43	aver.	1.120	4min
4*	S	R	6.44	5.57	5.65	4.93	1.140	4min
5	S	R	5.97		4.60		1.298	
6	S	R	5.95		5.37		1.108	RSR-4min
7	S	R	4.54		4.14		1.095	
11	S	D	4.70		4.13		1.138	
8	B/E/	D	3.12		3.28		0.951	
9	B	R	3.57		2.92		1.222	
10*	B/Sc/	R	2.71	aver.	2.68	aver.	1.011	
12	B	R	4.13	3.90	3.43	3.53	1.204	
13	B	R	4.73		4.63		1.022	
14*	B/F/	D	5.11		3.93		1.300	
15*	B/F/	D	3.93		3.86		1.108	

*1) Asterisk denotes the "Single GM-MCA pair counting".
*2) S: Solid sample, B: benzene solution sample, /F/: frozen phase, /Sc/: Cr^{3+} in very small amount is contained as scavenger.
*3) R: room temperature, D: dry ice temperature.
*4) The normal irradiation condition was at the F-position of TRIGA reactor /100kW/ for 2 min, except otherwise noted. RSR: irradiation was done at the "rotary specimen rack", where the neutron fluence is 5 x 10^{11}n/s.cm^2/.
*5) Extraction was done only once.

3．結果と考察　結果の一部を表に，また^{55}Crの測定データの解析の例を図に示す。表からわかるように，^{55}Crのリテンションは^{51}Crよりも大きく，両者の比を全部について平均するとその値は 1.115±0.027 である。この傾向は^{55}Crと^{51}Crの反跳エネルギーの大小（最大反跳エネルギーはそれぞれ380eV，903eVである）に一致しており，これはRu，Zn，Feなどでみられる傾向とおなじである。ここで注意すべきことは，ターゲットが固体のときと溶液のときとを比較すると，溶液のときには明らかにリテンションが低下しているにもかかわらず，同位体効果の大きさはまったく変りがないことである。本研究はまだ進行中であって，溶液系でFe^{3+}イオンなどをスカベンジャーとしてリテンションが<1 %となった場合同位体効果はどうなるか，大変興味がある。

1. C. M. Lederer et al., Table of Isotopes, 7th Edn., 1978.
2. W. Seelmann-Eggebert et al., Karlsruhe Nuklidkarte, 5th Edn., 1981.
3. K. Yoshihara et al., Periodic Table with Nuclides and Reference Data, 1985.
4. K. E. Collins et al., J. Inorg. Nucl. Chem., 39, 1706 (1977).
5. N. Ikeda et al., Bull. Chem. Soc. Jpn., 34, 1705 (1961).
6. C. H. Collins et al., 166th ACS National Meeting, Aug. 1973.
7. T. Matsuura, in Hot Atom Chemistry, Kodansha, 1984, p.303.

HOT ATOM CHEMISTRY OF ^{55}Cr IN $Cr(acac)_3$ AND ISOTOPE EFFECT OF RETENTION VALUE

Institute for Atomic Energy, Rikkyo University, Tatsuo MATSUURA,
Hideaki KURIHARA, Teruaki NAGAHARA
Faculty of Science, Nagoya University, Ken'ichi SASAKI

1C17　X－γ同時計数メスバウアー分光法による、ＥＣ過程の研究

（都立大・理）　○渡辺裕夫、遠藤和豊、佐野博敏
（高エ研）　村松久和

これまで、核変換過程に伴う化学的後遺効果によって生成される異常原子価状態は、その初期過程においてオージェ過程によって生成される低エネルギー電子及び空孔が原因の一つであるといわれている。しかしながら、この過程は極めて短時間のうちに起こり、また生成した異常化学状態のものは、不安定なものが多く、特に固相においてはまだ多くは解明されていない。

発光メスバウアー分光法では、壊変原子一個一個の状態を、非破壊で観測することができ、ＥＣ、ＩＴ壊変に伴う化学的後遺効果の解明には特に優れた手段であるが、観測時間がメスバウアー励起状態の寿命程度（ ^{57}Coで約140nsec ）であり、それ以上早い事象の解明には不向きである。しかしながら、^{57}Co のように二段階にカスケードに壊変するものでは（ 図1）、二本のγ線 （ ^{57}Coでは122keV及び14.4keVのγ線 ）により遅延同時計数メスバウアー分光法が適用でき、かなり早い事象まで観測できる。しかしこの手法を用いても、不確定性原理による線幅の変化やタイムフィルタリング効果によりあまり早い事象の観測は不可能である。数年前、小林等により提唱されたX－γ同時計数メスバウアー分光法[1]は、ＥＣあるいは、ＩＴ壊変の直後の状態を明らかにする可能性があり興味ある分光法である。またX－γ同時計数メスバウアー分光法は、カスケードに二本のγ線を放出する核種である必要はなく、^{119}Sb → ^{119}Sn や、^{125}I → ^{125}Te の様な第二励起準位を通らない壊変形式のものであっても、測定が可能で応用範囲が広い。

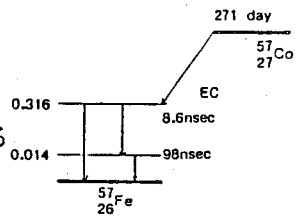


図1 ^{57}Coの壊変図

^{57}CoではＥＣ壊変の際、その60%がＫオージェ効果を起こし、30%がＫ－Ｘ線を放出するが、これらの事象は、相反する事象であり、このＫ－Ｘ線と14.4keVのメスバウアーγ線とを同時計数することにより、初めの、ＥＣ壊変においてＫオージェ効果を起こさなかった核の、化学的状態を観測することができ、得られた同時計数メスバウアースペクトルと、通常の発光法によるメスバウアースペクトルを比較することにより、オージェ効果の化学的後遺効果への影響を評価することができる。

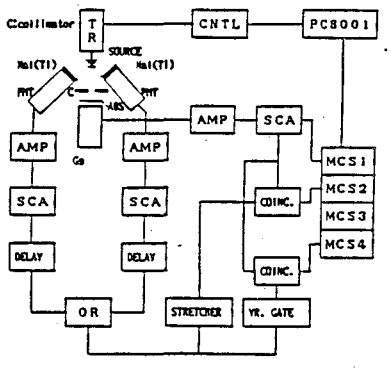


図2
X-γ同時計数メスバウアー分光法ブロックダイアグラム

わたなべやすお、えんどうかずとよ、さのひろとし、むらまつひさかず

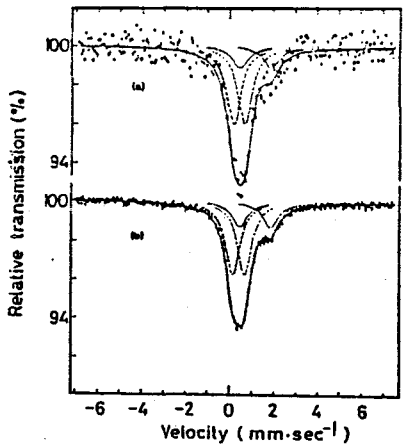


図3 Mössbauer spectra of $^{57}Co(IO_3)_2$ at R.T.
(a) : X-γ coincidence spectrum
(b) : conventional emission spectrum

····· Fe(II)

—— Fe(III)

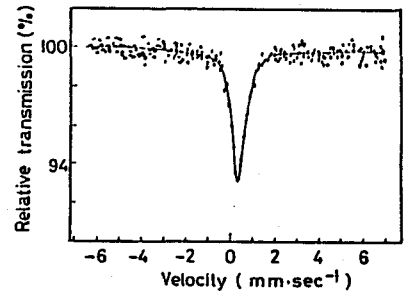


図4 Mössbauer spectrum of $Fe(IO_3)_3$ at R.T.

実験

今回は、ヨウ素酸コバルトを試料とし、これを^{57}Coでラベルしたもの $^{57}Co(IO_3)_2$ を線源とし、ステンレス箔（25μm）を吸収体として、室温でX－γ同時計数および通常の（時間積分された）発光メスバウアースペクトルを観測した。 また比較のため、ヨウ素酸鉄（Ⅲ） $Fe(IO_3)_3$ の透過法によるスペクトルも測定した。

測定系のブロックダイアグラムを図２に示す。マルチチャンネルアナライザーとしては、PC8001MKⅡを用いた４分割並列ＭＣＳ[2]を使用し、同時にX－γコインシデンスメスバウアースペクトルと通常の発光メスバウアースペクトルとを観測した。

^{57}Co線源の強度は、 約60μCiとし、分解時間は約 0.5 μsecとした。

結果

図３に得られた同時計数スペクトル及び発光スペクトルを、図４にヨウ素酸鉄（Ⅲ）の透過スペクトルを示す。これらを比較する限り、同時計数スペクトルと発光スペクトルとは、ほとんど一致しているといえる。しかしながら図３の 0.5mm/sec 付近の３価の鉄のピークを図４と比較すると、発光スペクトルでは Q．S．が観測された。

さらに現在 $Fe(II)(IO_3)_2$ のスペクトルを観測中であり この結果と併せて議論する予定である。本実験から明らかにされたことは、室温での実験ではあるがオージェ効果の有無に拘らず、同一の状態が結果的には得られたことになる、従って再配列は、オージェ効果の起こる以前に起こってしまい、壊変後の ^{57}Fe 原子をとりまく雰囲気により極めて早い段階で最も安定な化学状態となっていると考えられる。

[1] 小林　第29回放射化学討論会講演予稿集、48(1985)

[2] 遠藤、間柄、浜島、中原、細田　第28回放射化学討論会講演予稿集、57(1984)

X,γ-COINCIDENCE MÖSSBAUER SPECTRUM OF ^{57}Co-LABELLED $Co(IO_3)_2$

Department of Chemistry, Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University
Yasuo WATANABE, Kazutoyo ENDO, Hirotoshi SANO
The National Laboratory for High Energy Physics, Hisakazu MURAMATSU