

講演発表

第1日 10月13日(火)

核 反 応 1A01~1A17

放 射 化 分 析 1B01~1B17

環 境 放 射 能 1C01~1C07

ホットアトム化学 1C08~1C14

メスバウアー効果 1C15~1C16

(都立大・理) 初川雄一、大槻勤、塚田和明、○末木啓介、中原弘道、
(理研) 河野功

序)

核子数が多い重アクチノイド領域での、原子核の状態については、核分裂、及び超重元素に関連して興味を持たれている。しかしながら、重アクチノイド領域では、短寿命核種が多く、また合成が困難であるために十分な知見が得られていない。本研究では、重アクチノイドの一つであるアインスタイニウム (Es) 同位体の壊変特性について研究を行い、特にアルファ線スペクトルの微細構造からアインスタイニウム同位体のアルファ壊変によって生成する娘核種バークリウムの基底状態及び励起準位における核特性に関して考察を行った。

実験)

実験は、重イオン核反応を用いてアインスタイニウムの合成を行った。反応系は、 ^{238}U (^{14}N , $x\text{n}$) $^{252-x}\text{Es}$ ($x=5,6,7$), ^{237}Np (^{12}C , $x\text{n}$) $^{249-x}\text{Es}$ ($x=4$) 反応を用いて $^{247,246,245}\text{Es}$ を合成した。生成物は He-Jet System により反応槽からテープ上に輸送される。次に、検出部にテープで運ばれて、半導体検出器により α 線を測定した。それぞれの核種の同定は励起関数によった。He-Jet System ではエアロゾルに付着した反跳生成核を測定系へ輸送するが、余分のエアロゾルは、 α 線源として厚みを与え α 線の分解能を劣化させる。そこでエアロゾルの量や成分を調整し、さらにエアロゾルの捕集部を加熱 (195 °C) することにより、良い α 線源を得ることができた。得られた α 線の分解能は、7.27 MeV (^{211}Po) で、FWHM = 27 keV であった。

結果と考察)

得られた α 線スペクトルのうち、7.73 MeV のピークに微細構造が認められ解析の結果 4 本の複合ピークであることがわかった (Fig.1)。これら 4 本は同じ半減期を持つものでそれぞれ ^{245}Es に帰属するものとした。 $^{246,247}\text{Es}$ の α 線として帰属されるピークは、1 本のピークとして解析した。本研究で得られた結果を Table 1 にまとめた。次に ^{245}Es の 4 本の α 線について考察してみると、既知の奇偶核アインスタイニウム同位体、及び奇偶核バークリウムの基底状態は、それぞれ $7/2+ [633]$, $3/2- [521]$ である。(サブシェル状態にあるとされる $N=152$ の ^{251}Es , ^{249}Bk 除く) これより ^{245}Es とその娘核種の ^{241}Bk の基底状態を $7/2+ [633]$, $3/2- [521]$ と仮定すると、スピン、パリティの違いより基底状態から基底状態への遷移は阻害されることが予想される。さらにニルソンダイアグラム¹⁾より変形度 $\epsilon = 0.2 \sim 0.3$ では、 $7/2+ [633]$ と $3/2- [521]$ とが接近しているので Bk の基底状態 $3/2- [521]$ の数十 keV 上に $7/2+ [633]$ が在ることが予想される。以上より ^{245}Es の 4 本の α 線のうち、最大エネルギーを持ちながら阻害されて遷移確率の小さな 7.78 MeV は、基底状態から基底状態への遷移 ($7/2+ \rightarrow 3/2-$) と予想される。最も遷移確率の高い 7.73 MeV は、親核と娘核のスピン、パリティが同じな Favored 遷移 ($7/2+ \rightarrow 7/2+$) であろう。7.70 MeV, 7.65 MeV は、その強度比から Favored な遷移の回転帯への遷移と考えられ、これらはそれぞれ ($7/2+ \rightarrow 9/2+$), ($7/2+ \rightarrow 11/2+$) となる (Fig.2)。 ^{247}Es の α 壊変についても同様に α 線に微細構造が現れることが期待されるが、今回の実験では、50 keV 高エネルギー側に

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

ある ^{246}Es の7.36 MeVのピークが妨害するので ^{247}Es の α 線スペクトルの微細な構造についての議論はできない。今後 ^{246}Es のQ値以下での照射を行い ^{247}Es のみのスペクトルを測定する計画である。

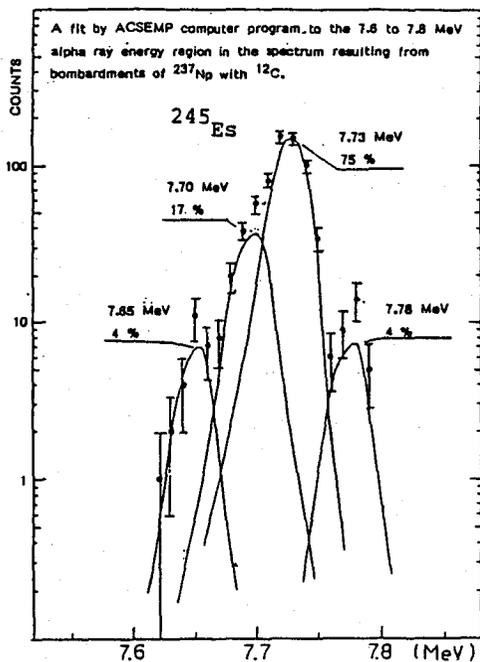
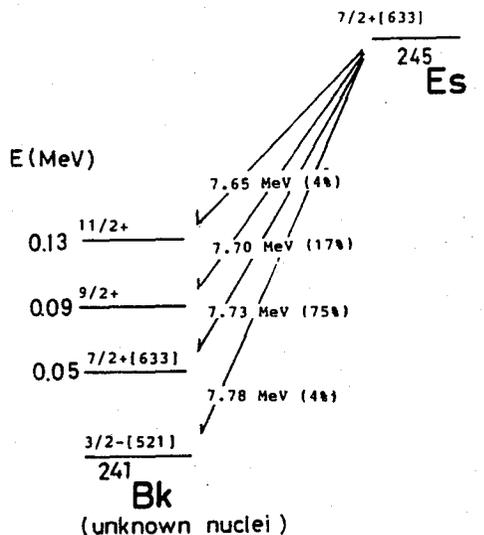


Fig. 1



Decay Scheme of ^{245}Es
Fig. 2

Table 1

Summary of experimental results on einsteinium isotopes with mass numbers 245 through 247.

	$E \alpha$ (MeV)	$T_{1/2}$
^{247}Es	7.31 (7.31 ± 0.03)*	3.1 ± 1.5 min (4.7 min)*
^{246}Es	7.36 (7.36 ± 0.03)*	8.2 ± 3.7 min (7.7 ± 0.5 min)**
^{245}Es	7.78 (4%) (7.73 ± 0.02)*	83 ± 4 sec (1.33 min)**
	7.73 (75%)	
	7.70 (17%)	
	7.65 (4%)	

1) C.M.Ledere and V.S.Shirley, Table of Isotope 7th ed.

STUDY ON THE DECAY PROPERTIES OF EINSTEINIUM ISOTOPES

Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University

Institute of Physical and Chemical Research

Yuichi HATSUKAWA, Tsutomu OHTSUKI, Kazuaki TSUKADA, Keisuke SUEKI,

Hiromichi NAKAHARA, Isao KOHNO.

1A02 中性子欠損La, Pr 同位体の崩壊

(原研、阪大・理*) ○関根俊明、畑健太郎、永目諭一郎、市川進一、
飯村秀紀、大島真澄、高橋成人*、横山明彦*

はじめに 演者らは重イオン核反応とオンライン質量分離器を用いてランタンとブラセオジム同位体の崩壊を調べた。対象核種は ^{121}La , ^{122}La , ^{123}La , ^{124}La , ^{126}La , ^{128}Pr , ^{130}Pr である。これらの核種のうち ^{121}La は新核種であって、他の核種も半減期が知られているにとどまり、 β 崩壊についてはほとんど報告が無い。

実 験 目的のランタン、ブラセオジム同位体は原研タンデム加速器に接続されたオンライン質量分離器を用いて生成、質量分離した。 160 MeV の ^{32}S ビームを天然同位体組成のモリブデン (4.1 mg/cm^2) または濃縮 ^{92}Mo ターゲット (3.06 mg/cm^2) に照射してランタン同位体を合成し、 $175\text{-}200\text{ MeV}$ の ^{32}S ビームを ^{103}Rh (3.8 mg/cm^2) ターゲットに照射することによってブラセオジム同位体を合成した。別の講演¹⁾で報告するように、生成物は熱イオン源を用いて、ランタンは酸化物イオン LaO^+ として、イオン化することにより副生成物のバリウム、セシウム同重体から分離した。一方、ブラセオジムは金属イオン Pr^+ として質量分離した。これによりセリウム、ランタンの同重体からある程度分離される。

質量分離ビームはアルミニウム被覆したマイラーテープに受け止めて放射能測定を行った。まず、テープを動かさずに放射能を収集しつつ、2台のGe検出器で γ - γ 同時計数測定を行い、一定時間後にテープを隣の測定ポートに移動させた。ここではGe検出器と厚さ2 mmのプラスチック・シンチレーターを備え、 γ 線シングル・スペクトルと共に β 線と同時検出された γ 線のスペクトルが得られる。 γ 線スペクトルは予め定めた時間ずつ8個または16個連続的に測定した。同時に、 β 線を波高分析器のマルチチャンネル・スケーリング・モードで計数した。以上の測定を繰り返し、事象を蓄積した。

結 果 図1に β 線と同時計数した γ 線のスペクトルを質量数128, 130, 138 ($^{122}\text{La}^{160+}$), 140 ($^{124}\text{La}^{160+}$) について示す。どのスペクトルにも $2^+ \rightarrow 0^+$, $4^+ \rightarrow 2^+$ 遷移が顕著に認められる。 ^{124}La と ^{130}Pr では回転バンド内遷移に加え、回転バンド間遷移を含む多数の γ 線が同定された。

図2には質量数137 ($^{121}\text{La}^{160+}$) で得られた β 線の時間スペクトルを示す。観測された計数値からバックグラウンドを差し引いて $8 \pm 2\text{ sec}$ の半減期を得た。この β 線の起源は反応断面積、半減期の予測値を考慮して、新核種 ^{121}La と結論された。

講演では、 ^{123}La , ^{126}La を含め、崩壊スキームについて報告する予定である。

せきねとしあき、はたけんたろう、ながめゆいちろう、いちかわしんいち、
いいむらひでき、おおしまますみ、たかはしなると、よこやまあきひこ

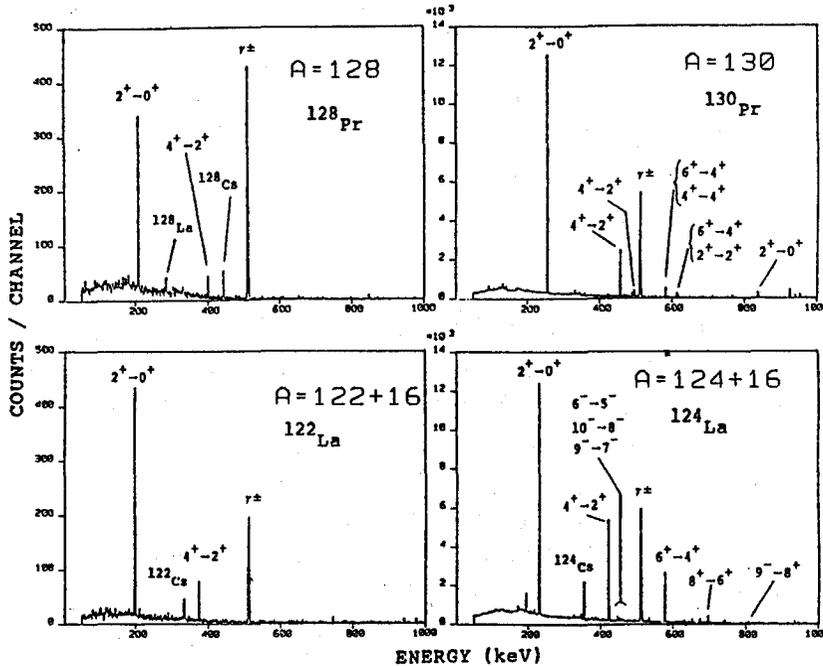


Fig.1 β -coincident γ -ray spectra obtained at $A=128$ and 130 in the reaction $^{32}\text{S} + ^{103}\text{Rh}$, and at $A=138$ and 140 in the reaction $^{32}\text{S} + \text{nat. Mo.}$

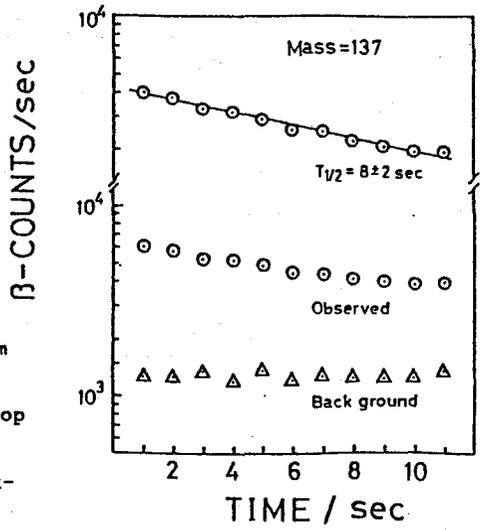


Fig.2 β time spectrum obtained at $A=137$ ($^{121}\text{LaO}^+$). At the top the spectrum corrected for the background is plotted.

1)市川進一，他，” 稀土類領域における酸化物イオンのオンライン質量分離”，本討論会 1A17.

DECAY OF SOME NEUTRON DEFICIENT ISOTOPES OF LANTHANUM AND PRASEODYMIUM

Japan Atomic Energy Research Institute, Toshiaki SEKINE, Kentaro HATA, Yuichiro NAGAME, Sin-ichi ICHIKAWA, Hideki IIMURA, Masumi OSHIMA Faculty of Science, Osaka University, Naruto TAKAHASHI, Akihiko YOKOYAMA

(名大工, 原研^A, 都立大理^B, 広大理^C, 東大核研^D, 追手門学院大^E)
 ○間柄正明, 篠原伸夫^A, 白田重和^A, 市川進一^A, 鈴木敏夫^A, 飯村秀紀^A,
 永目諭一郎^A, 小林義威^A, 山本忠史^A, 初川雄一^B, 堀口隆良^C,
 柴田誠一^D, 藤原一郎^E

【はじめに】

重イオン核反応によって生成する中性子欠損重アクチノイド核種の性質を調べることは、核構造を理解する上で有用な情報を与える。しかし、その生成断面積は小さく、しかもその測定においては、同時に生成する多量の核分裂生成物の影響を除かなくてはならないため、得られるデータは限られてくる。

前回の本討論会では、これまでデータ少ない²⁴⁵Cfの崩壊特性^{1,2)}、特に半減期、 α 線強度比、 $\alpha/E C$ 分岐比について議論したが、その測定精度は充分とは言えなかった。そこで、²³⁸U + ¹²C 反応によるCf同位体の生成条件を再検討するとともに、²⁴⁵Cfの崩壊データの精度向上をはかった。今回は、これらの結果を報告するとともに、本核種の崩壊様式について考察する。

【実験】

実験方法は昨年本討論会での報告と同じであるが、次の2点について改善した。励起関数の測定では、²⁵²Cfトレーサーを用いて化学分離におけるCfの回収率を求めた。また、²⁴⁵Cfの崩壊特性の測定において、BkとCfの分離を確実にするために、陰イオン交換法とともにHDEHPによる溶媒抽出法を利用した。

【結果と考察】

1) 崩壊データ

²³⁸U(¹²C, xn)反応によって生成するCf同位体の励起関数を図1に示す。²⁴⁵Cfの最大生成断面積は、 $90 \mu\text{b}$ (at $E_{\text{Lab}}=74\text{MeV}$) であり文献値³⁾と非常に良く一致した。なお、²⁴⁵Cfの生成断面積の計算には本研究によって得られた核データを用いた。

この結果を基に、最適エネルギーの¹²Cイオンを厚いウランターゲットに照射して²⁴⁵Cfを生成し、その崩壊特性を調べた。 α 線の測定より半減期と α 線相対強度を決定し、さらにBkの特性K x線と²⁴⁵Cfの娘核種である²⁴⁵Bkの γ 線との定量値から $\alpha/E C$ 比を決定した。K電子捕獲と全電子捕獲の比は、 0.82 ± 0.07 で理論値0.83とよく一致した。表1に、本研究で得られた²⁴⁵Cfの核データをまとめて示す。

2) 崩壊様式

E C崩壊について $g \rightarrow g$ 遷移を仮定して $\log ft$ を求めると5.4となる。これは許容遷移に相当し、スピンおよびパリティの変化はそれぞれ、0 or 1, noである。²⁴⁵Bkの基底状態は、3/2-であることが知られており、また、中性子数 147の陽子偶数核のsystematics

まがらまさあき, しのはらのぶお, うすだしげかず, いちかわしんいち, すずきとしお,
 いいむらひでき, ながめゆいちろう, こばやしよしい, やまもとただし, はつかわゆういち,
 ほりぐちたかよし, しばたせいいち, ふじわらいちろう

から ^{245}Cf の基底状態は $5/2+$ である可能性が高い。このことから、 ^{245}Cf のEC崩壊は、 ^{245}Bk の基底状態はなく励起状態へ遷移していると考えられる。さらに、 α 崩壊についても ^{241}Cm の基底状態に遷移するのか励起状態に遷移するのかは、わかっていない。そこで、今後 $\alpha-\gamma$ 、 $X-\gamma$ 同時計数の実験を行ない、このことについても議論する予定である。

- 【参考文献】 1) A. CHETHAM-STRODE et. al.; Phys. Rev. 102 747(1956).
 2) W. Kusch et. al.; JINR-E6-3992(1968).
 3) T. Sikkeland et. al.; Phys. Rev. 169 1000(1968).

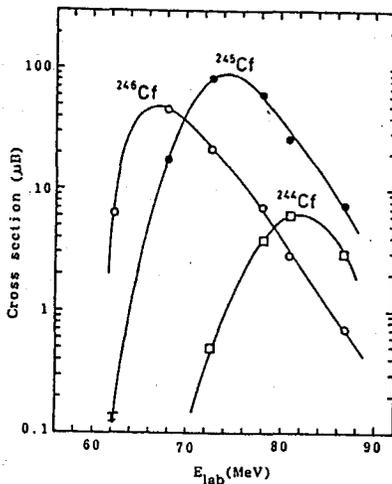


図1. $^{238}\text{U}(^{12}\text{C}, xn)^{250-x}\text{Cf}$
 反応の励起関数

半減期	46.4 ± 0.3
α 線 相対強度	7.137 100
	7.084 8.56 ± 0.68
	7.036 0.49 ± 0.14
	6.983 0.48 ± 0.15
6.886 Weak	
α/EC	0.56 ± 0.04 (α 36%, EC 64%)
EC(K)/EC	0.82 ± 0.07

表1. ^{245}Cf の核データ

DECAY OF ^{245}Cf

Faculty of Engineering, Nagoya University, Masaaki MAGARA

Japan Atomic Energy Research Institute, Nobuo SHINOHARA, Shigekazu USUDA,

Shin-ichi ICHIKAWA, Toshio SUZUKI, Hideki IIMURA, Yuichiro NAGAME,

Yoshii KOBAYASHI, Tadashi YAMAMOTO,

Faculty of science, Tokyo Metropolitan University, Yuichi HATSUKAWA

Faculty of science, Hiroshima University, Takayoshi Horiguchi

Institute for Nuclear Study, University of Tokyo, Seiichi SHIBATA

School of Economics, Ottemon Gakuin University, Ichiro FUJIWARA

○梶瀬 彰・今坂新一・海野智之・長田和彦・小林一人
 深沢拓司・吉田 学・浜島靖典・坂本 浩(金沢大理)
 今村峯雄・柴田誠一(東大核研) 藤原一郎(追手門学院大経)
 古川路明(名古屋大理)

【序】昨年までは、Al, V, Y, I, Cs, Auに制動放射線を照射し原子番号が ± 1 変化する(γ, π^+)及び(γ, π^-xn)型の光核反応の収率測定を行い、制動放射線の最大エネルギー(E_0)及び標的核質量数(A_t)依存性を調べてきた^{1), 2)}。その際二次粒子によっても同じ核種を生成する可能性があるが、その寄与の見積りを行うことは出来なかった。ところで、本年は上記標的核に新たに ^{209}Bi を加えて $E_0=350\sim 1050\text{MeV}$ までの照射再実験を行うと共に、 $E_0=40\sim 210\text{MeV}$ 以下での精度の高い照射を行ったところ二次粒子反応の効果と思われる結果を見付けることができた。本講演では、これらの実験結果をまとめて報告する。

【実験】1)照射: 東大核研ES ($E_0=350\sim 1050\text{MeV}$, 昨年までの分を加えて50MeV毎)及び東北大理研LINAC ($E_0=40, 55, 64, 120, 175, 210\text{MeV}$)でそれぞれ2hr, 10min及び3~5min照射した。2)モニター: $E_0 \leq 65\text{MeV}$ ではAu箔($^{197}\text{Au}(\gamma, n)^{196}\text{Au}^{31}$)、 $E_0 \geq 100\text{MeV}$ ではAl箔($^{27}\text{Al}(\gamma, 2pn)^{24}\text{Na}^{41}$)を用いた。照射終了後、試料の一部は直ちに化学分離を行い、また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 $T_{1/2}$ により核種を同定定量した。下表にこれまでの対象標的核と定量生成核及び化学分離法を示す。

標的核	定量核種		化学分離(非破壊はND)
	π^+	π^- (放出nx)	
^{27}Al	^{27}Mg		ND
^{51}V	^{51}Ti	Cr(0,2,3)	^{51}Ti ; ND, Cr; $\text{V}_2\text{O}_5 \xrightarrow{\text{NaOH, H}_2\text{O}_2} \text{EtAc抽出} \rightarrow \text{BrCrO}_4(\text{ref.2})$
^{89}Y		Zr(0,1,2,3)	$\text{Y}_2\text{O}_3 \xrightarrow{\text{HCl}} \text{TTA-Xylene抽出} \rightarrow \text{ZrO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{ref.1})$
^{127}I		Xe(0,2,4,5,6)	Xe; 減圧下で融解, 活性炭トラップ(ref.1)
^{133}Cs	^{133}Xe	Ba(0,2,4,5,7)	Xe; 全上, Ba; $\text{CsCl} \xrightarrow{\text{H}_2\text{O}} \text{BaCO}_3 \rightarrow \text{Ba}(\text{NO}_3)_2 \rightarrow \text{BaCO}_3(\text{ref.1})$
^{175}Lu		Hf(0,2,4,5,7)	$\text{Lu}_2\text{O}_3 \xrightarrow{\text{agua reg.}} \text{TTA-Xylene抽出} \rightarrow \text{Hf}(\text{OH})_4(\text{ref.2})$
^{197}Au		Hg(0,2,4,5,6,7)	減圧下で融解, 冷Ag箔に捕集(ref.2)
^{209}Bi		Po(2,3,4,5,6,7)	$\text{Bi}_2\text{O}_3 \xrightarrow{\text{HCl}} \text{Ag箔へ自然電着}$

【結果と考察】

図1~5にCs \rightarrow Baの収率を E_0 に対して示した[図中, 実線, ($^{133-x}\text{Ba}$)_{obs.}]。何れの場合も E_0 が数十MeVから収率が急激に立ち上がり、百数十MeV(π しきい値, 図中 Q_π)付近で一旦肩となり、さらに再び立ち上がり400MeV以上でゆるやかとなる。この傾向は他の標的核についても同様である。この最初の立ち上がりと肩を二次粒子反応の証拠と考え、二次陽子スペクトルと($p, x'n$)反応の励起関数を参考に $E_0 \leq Q_\pi$ での二次粒子による収率を見積って[図中, 破線, ($^{133-x}\text{Ba}$)_{p}]、これを補正した[図中, 点線, ($^{133-x}\text{Ba}$) _{π }]。($^{133-x}\text{Ba}$) _{π} で示した収率曲線の立ち上がりは π しきい値と矛盾しない。補正法は次の講演}}}

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

1 A 0 5 参照。他の標的核についてもほぼ同様である。そこでこれらの $E_0=400\sim 1050\text{MeV}$ の値を加重平均し、放出中性子数(X)に対してプロットし図6に示す(質量収率曲線)。 A_t が大きくなると全体として、かつ放出中性子数の大きい反応の収率が增大するが、 $A_t=175(\text{Lu}), 197(\text{Au}), 210(\text{Bi})$ では大差がなくなりまた、 (γ, π^+) に較べて $x \geq 1$ の中性子放出を伴う反応の確率はるかに大きくなるなど A_t (及び E_0)についてのいくつかの系統的变化が見られる。より詳細な解析については、次々講演1 A 0 6 参照。

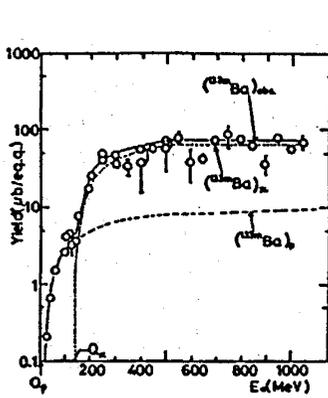


図1 Ba-133mの収率

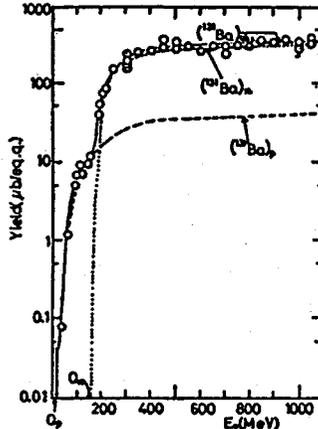


図2 Ba-131の収率

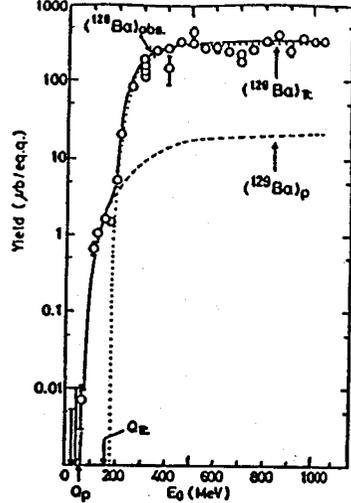


図3 Ba-129の収率

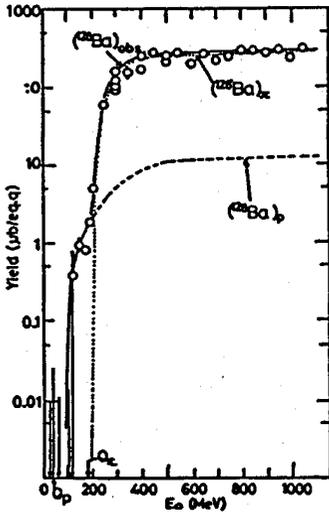


図4 Ba-128の収率

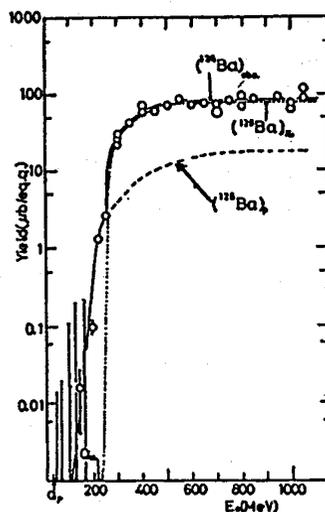


図5 Ba-126の収率

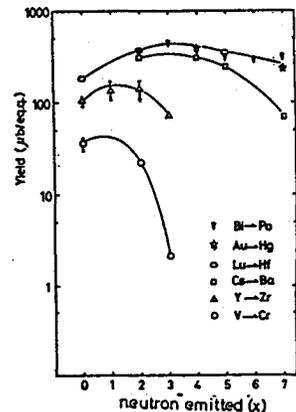


図6 質量収率曲線

文献 1)浜島ら, 1985年度放射化学討論会要旨集 2)浜島ら, 1986年度放射化学討論会要旨集 3)K.Lindgren and G.G.Jonsson, Nucl.Phys.A116(1971) 4)B.Johnsson et al., Z.Phys.A273(1975)

PION EMITTING REACTIONS BY BREMSSTRAHLUNG

1. EXPERIMENT AND RESULTS

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

(金沢大・理、東大・核研*、追手門学院大・経済**)

○浜島靖典、深沢拓司、吉田学、窪田康浩、坂本浩、
柴田誠一*、藤原一郎**

【はじめに】 前報(1A04)で述べたように、制動放射線を用いた(γ , π -xn)型の反応を調べる際、同じ生成核種を作る(p, xn)型の二次反応の寄与の見積が大きな問題である。以前(第29回放射化学討論会)、我々はターゲットの厚さを変えて照射を行い、depth profileから二次粒子反応の寄与の見積を試みたが、定量的結果を得ることはできなかった。そこで今回は、前報で例示したように、制動放射線の最大エネルギー(E_0)が210 MeV以下の精度の高い E_0 での照射及び350~1050 MeVまでの再照射実験を行い、二次反応の明確な効果を見ることができた。そこでこれを定量的に見積るために、放出二次粒子のエネルギースペクトルと陽子反応の励起関数を基に、二次粒子反応の収率を計算し、我々の実験結果との照合を試みた。ここでは、 $V \rightarrow Cr$ と $Cs \rightarrow Ba$ の結果を例にその方法と結果を報告する。

【二次粒子の寄与の見積】 π 粒子放出反応のしきい値($Q_\pi \approx 150$ MeV)以下での観測値は、二次粒子反応によるものと考えられる。 $E_0 > Q_\pi$ ではこれに π 放出反応が重畳している。問題は、この重畳部分での二次反応の見積である。その方法は、①エネルギースペクトルを、炭素の結果¹⁾をもとに、希望の E_0 での形を内外挿し求める(図1)。各ターゲット中でのスペクトルは、これと相似で $(NZ/A)_t / (NZ/A)_c$ 倍した(t:target c:Carbon)ものを仮定²⁾し、角度異方性は無いものとした。②二次粒子の励起関数は、ALICEコードによる計算値を実験値と照合(表1)しながら用いた。なお、表からも分かるように、実験値の乏しいものもある。③このエネルギースペクトルと、励起関数を、10 MeVのbinで積分し、二次粒子反応の収率を求めた。なお、計算には、厚いターゲット中での二次粒子のエネルギー損失は考慮に入っていない。

【結果と考察】 実験値と計算値を比較すると、収率曲線の形は再現できるが、0.3-2倍の絶対値の差が現れた。この差は、特に低エネルギーの陽子スペクトル(図1)の曖昧さによるものと思われる。そこで、約150 MeV以下での観測値で計算値を規格化し、その寄与を見積った。Cr-51の例を図2に、Cr-49の例を図3に示す。(ほかの例については、前の講演1A04を参照。)二次粒子反応の収率は、 Q_p 値付近から急激に増大し、 $E_0 = 300$ MeV以上では、その増加が鈍る。この結果は、二次粒子反応の収率は $E_0 \geq Q_\pi$ では $E_0 \leq Q_\pi$ の値と等しいかそれ以下とした既報の結果³⁾と大きく異なる。 $E_0 \geq 300$ MeVでの二次反応の寄与は、表2のように、放出中性子数が少ないほど大きいことがわかる。また、(γ , π^-)反応に対する(p, n)反応の寄与率は標的核に依存するよう見える。

以上述べたように、二次反応の寄与は、特に放出中性子数の少ない反応では重要となる。従って、この種の測定では、目的反応のしきい値以下での精度よい実験が絶対に必要である。討論会では、 $Au \rightarrow Hg$ 、 $Bi \rightarrow Po$ など、他の核種についても報告する予定である。

はまじまやすのり、ふかさわたくじ、よしだまなぶ、くぼたやすひろ、さかもとこう、しばたせいいち、ふじわらいちろう

表1 励起関数の計算値と照合した実験値のエネルギー点 (MeV), ()内は、データ点の数。

標的核	(p, n)	(p, 3n)	(p, 4n)	(p, 5n)	(p, 6n)	(p, p2n)
V	3-90(26)	60(1)	60(1)	---	---	---
Cs	5-40(13)	26-100(7)	---	46-100(7)	80-100(2)	15-50(14)

表2 (γ , π -xn) 反応に対する (p, xn) 反応の寄与率 ($E_0=800$ MeV) (%)

標的核	(p, n)	(p, 3n)	(p, 4n)	(p, 5n)	(p, 6n)	(p, 7n)
V	83	12	11	---	---	---
Cs	12	11	5.0	4.1	---	1.7

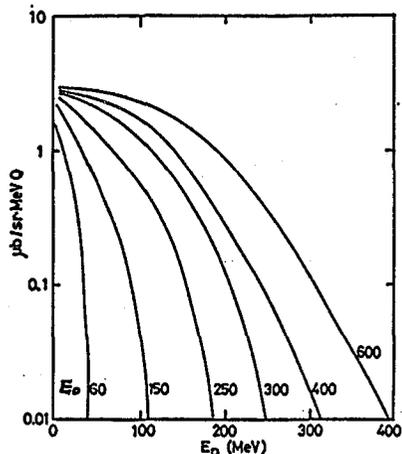


図1 二次陽子のエネルギースペクトル

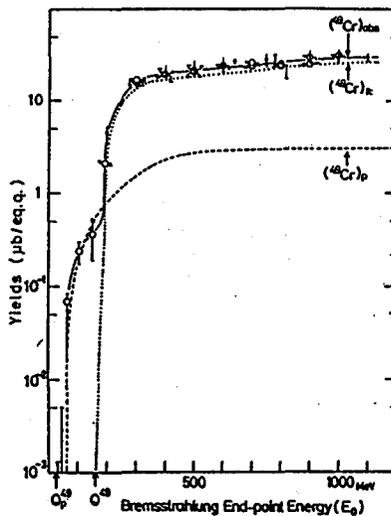


図3 Cr-49の収率曲線

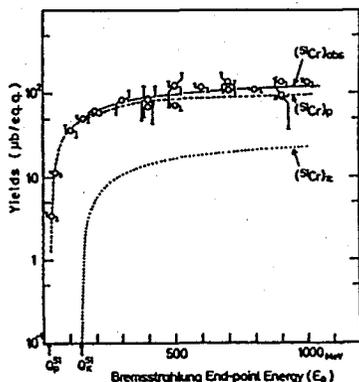


図2 Cr-51の収率曲線

文献 1) 例えば G. Andersson et al., Z. Physik. A 272, 263(1975).

2) N. N. Kaushal et al., Phys. Rev. 175, 1330(1968).

3) G. Nydahl and B. Forkman, Nucl. Phys., B7, 97(1968).

PION EMITTING REACTIONS BY BREMSSTRAHLUNG.-2 STUDY OF SECONDARY REACTIONS
 Fac. of Science, Kanazawa Univ., Inst. for Nucl. Study, Univ. Tokyo*, Ottemon-
 gakuin Univ.**, Yasunori HAMAJIMA, Takuji FUKASAWA, Manabu YOSIDA, Yasuhiro
 KUBOTA, Koh SAKAMOTO, Seiichi SHIBATA*, Ichiroh FUJIWARA**

1A06

制動放射線による π 中間子放出反応

3. - Unfolding 法と励起曲線 -

(金沢大・理、東大・核研^{*}、追手門学院大・経済^{**})

○深沢拓司、吉田学、浜島靖典、坂本浩、柴田誠一^{*}、藤原一郎^{**}

【はじめに】 前報 (1A04, 1A05) で述べたように、我々は、制動放射線を用いた光核反応のうち π 中間子放出反応については、二次粒子反応の補正を行うことができ、これを基に核反応収率 ($\mu\text{b}/\text{eq. q.}$) のターゲット依存性、同位体収率分布等の考察を行ってきた。しかし、反応機構の見地に立てば、単色光子当りの反応断面積をもとめる必要がある。そこで、得られた実験値から、Unfolding 法による光子当りの反応断面積の計算を試みた。ここでは、その結果得られた励起曲線について考察する。

【Unfolding 法】 制動放射線による反応収率 $\sigma_a(\mu\text{b}/\text{eq. q.})$ とエネルギー k の光子による反応断面積 $\sigma_k(\mu\text{b})$ の関係は、次のように表される。

$$\sigma_a(E_0) = \frac{\int_0^{E_0} \sigma_k(k) \cdot N(E_0, k) dk}{(1/E_0) \cdot \int_0^{E_0} k \cdot N(E_0, k) dk}$$

ここで、 E_0 は、制動放射線の最大エネルギー、 $N(E_0, k) dk$ は、連続分布する光子のうちエネルギー k と $k+dk$ の間にある光子の数を表す。分母の積分項は、ターゲットに入射した制動放射線の総エネルギーを示し、それを E_0 で除した値 (上式の分母) は、等価光子 (equivalent quantum) で、実験値、 $\sigma_a(E_0)$ の単位としている。制動放射線スペクトルすなわち、 $N(E_0, k) dk$ が分かれば、反応断面積 $\sigma_k(\mu\text{b})$ がもとまる。一般に積分方程式を解くことは、Unfolding と呼ばれる。我々は、Schiff のスペクトル¹⁾、 $N(E_0, k) dk$ を使い、Tesch²⁾ の Photon-Difference 法をもとに作られた Unfolding プログラム LOUHI 82³⁾ を用いて反応断面積 $\sigma_k(k)$ を求めた。

【結果と考察】 図 1 に、Unfolding で得た $V \rightarrow \text{Ti, Cr}$ の断面積 (μb) を実線で示す。励起曲線の形は、それぞれ、図の光子エネルギー範囲で共鳴形の単一ピークとなり、かつ、放出中性子数の増加と共に、ピークエネルギーは大きくなる。また、 $\text{Cr}-51, 50$ (推定), 49, 48 の和を図に "Total" として示す。図 2 は、 $\text{Cs} \rightarrow \text{Ba}$ の場合で、各反応の励起曲線の変化は Cr と同様である。 Ba の "Total" は図中に示さなかったが、 Ba, Cr について、個々の励起曲線及び、"Total" のピークエネルギー、半値幅を下表に示す。 Cs も Ba も "Total" のピークエネルギーは、核子との (3,3) 共鳴から予想される値、300 MeV, より小さい。

Cr, Ba	ピークエネルギー (MeV)	半値幅 (MeV)
Cr ($x=0-3$)	225-290	90 ± 5
Cr "Total"	250	110 ± 10
Ba ($x=0-7$)	220-305	75 ± 5
Ba "Total"	290	80 ± 5

(γ, π^+) 及び ($\gamma, \pi^- xn$) の理論値として、 $^{27}\text{Al} \rightarrow ^{27}\text{Mg}$ 、 $^{51}\text{V} \rightarrow ^{51}\text{Ti}$ 、 ^{49}Cr の例が報告されている。図 3 に、 ^{51}Ti 、 ^{49}Cr (点線 a⁴⁾、点線 b⁵⁾) について、我々の値 (実線) との比較を試みたが、両者は、ピークエネルギー、ピークの断面積のどちらも一致しない ($^{27}\text{Al} \rightarrow ^{27}\text{Mg}$ の場合も同じ)。

図 4 に、二次反応の寄与を補正した収率の $E_0 \geq 400 \text{ MeV}$ の平均値を、放出中性子数 x ごとにマークを変え、ターゲット質量数 A_t に対しプロットする。◆◇ ($x=0$)、● (1)、○ (2)、▲ (3)、△ (4)、■ (5)、□ (6)、● (7) をそれぞれ結ぶ線は目安で、点線は外挿値である。左上の 3 つの破線は、 A_t° 型の収率分布を表す。($\gamma, \pi^- xn$) 収率は、どの x も、 $a > 2$ の急激な立ち上がりを見せ、かつ A_t が大きくなると緩やかな増加となり、表面反応 ($a=0.67$) とか体積反応 ($a=1$) モデルとは直ちに結び付かない。◆印の (γ, π^+) は、 ^{51}Ti 、 ^{133}Xe (?) 以外は文献値 (^{27}Mg 、 ^{51}Ti ⁵⁾、 ^{41}Ar 、 ^{65}Ni 、 ^{88}Rb 、 ^{138}Cs ⁶⁾) であるが、全体としてみれば、表面反応型に近い分布を示す。しかし、これまで言われている

ふかさわ、よしだ、はまじま、さかもと、しばた、ふじわら

$\sigma(\pi^-)/\sigma(\pi^+)=1.2$ とはならない。 (γ, π^\pm) については、二次反応の寄与が大きいため(1A05参照)、低 E_0 の実験がさらに必要と思われる。現在、 $Y \rightarrow Zr$, $Lu \rightarrow Hf$, $Au \rightarrow Hg$, $Bi \rightarrow Po$ についても二次反応の寄与の見積り及び、Unfolding を継続して行っており、討論会ではその結果も報告する予定である。

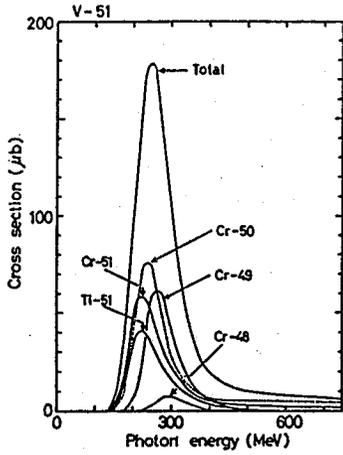


図1. V→Ti, Cr の励起曲線

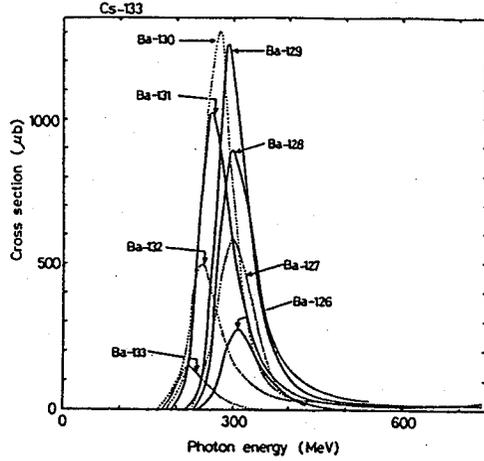


図2. Cs→Ba の励起曲線

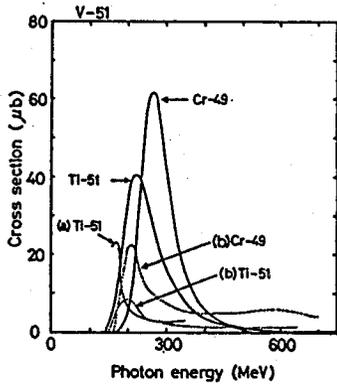


図3. ^{51}Ti , ^{49}Cr :理論値との比較

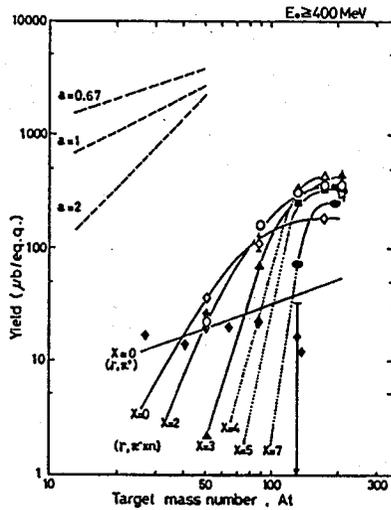


図4. 収率 VS. A t

- 文献 1) L.I.Schiff, Phys. Rev., 83(1951)252.
 2) K.Tesch, Nucl. Instrum. Methods, 95(1971)245.
 3) J.T.Routti and J.V.Sandberg, Comput. Phys. Commun., 21(1980)119.
 4) I.Blomqvist et al., Phys. Rev., C15(1977)988.
 5) G.Nydahl and B.Forkman, Nucl. Phys., B7(1968)97.
 6) I.Blomqvist et al., Nucl. Phys., A162(1971)193.

PION EMITTING REACTIONS BY BREMSSTRAHLUNG.

3.- UNFOLDING METHOD AND EXCITATION CURVES -

Fac. of Science, Kanazawa Univ., Inst. for Nucl. Study, Univ. Tokyo*, Ottemongakuin Univ.**

Takuji FUKASAWA, Manabu YOSHIDA, Yasunori HANAJIMA, Koh SAKAMOTO,

Seiichi SHIBATA*, Ichiroh FUJIWARA**

(東大核研¹・金沢大理²・追手門学院大³・名大理⁴・東大原セ⁵・東大理⁶
日大文理⁷)○柴田誠一¹、今村峯雄¹、宮地孝¹、武藤正文¹、坂本浩²、
浜島靖典²、窪田康浩²、吉田学²、深沢拓司²、沖崎昌平²、藤原一郎³、
古川路明⁴、小林紘一⁵、吉田邦夫⁶、永井尚生⁷

はじめに 昨年、一昨年 of 討論会では、光核反応のうち破碎反応について、光子による核破碎反応の方が陽子・重イオンによる核破碎反応よりターゲットに持ち込む励起エネルギーが小さく、しかも飽和に達するエネルギーが陽子・重イオンの 2-3 GeV に対して 600MeV と低いという相違点について報告した。

この結果が他にどのような影響を与えているのかを検討するため、光核反応におけるフラグメンテーション過程により生成する軽い核(今回は⁷Be、¹⁰Be)について測定した。Beを選んだ理由は、加速器質量分析法により¹⁰Beの高感度測定が可能になったことと、陽子と中重核ターゲットとの相互作用の生成断面積のデータが既にいくつか報告されており比較可能なことからである。ターゲットはCuのほか、H₂Oを用い酸素からの⁷Be、¹⁰Be生成収率(μb/eq.q.)を測定した。

実験 照射は制動放射線の最大エネルギーが300MeV以上では東大核研の電子シンクロトロン、250MeV以下では東北大核理研の電子ライナックを用いて行った。ビーム強度はAlのモニター反応により求めた。

照射後数10日経過後、CuターゲットをBeキャリアー約150μgを加えて硝酸に溶解した。それからFe³⁺共沈の後、アセチルアセトンを加え、Beとの錯体を形成させ、EDTAで妨害元素をマスクした後、四塩化炭素でBe錯体を抽出した。その有機相を蒸発乾固させて、その残渣の⁷Beのγ線測定を行った。⁷Be測定後、残渣を塩酸に溶解しアンモニア水でBeを沈澱させる操作を数回繰り返して蒸発乾固した。最後に¹⁷Oを濃縮したH₂Oで処理し真空中で焼いてBeOとし、銀粉と混合して加速器質量分析の測定用コーンにつめ込み試料とした。また⁷Beについては非破壊測定も行った。

酸素ターゲットの場合は、石英蒸留水をアクリル製の容器に入れて照射した。照射後、Beキャリアー約300μgを加えて塩酸で洗い出し蒸発乾固して⁷Beのγ線測定を行った。その後、塩酸で残渣を溶解し、アンモニア水でBeを沈澱させる操作を数回繰り返して、Cuの場合と同様にして加速器質量分析用試料とした。

結果と考察 Cuターゲットの場合⁷Beについては、これまで3回の測定を行ったがそれぞれの結果は誤差の範囲内で良く一致した。¹⁰Beについてはまだ1回の測定しか行っていない。酸素ターゲットについては全て1回の測定結果である。表1にCuおよび酸素からの⁷Be、¹⁰Beの生成収率の比を示す。また比較のために、陽子の反応による生成断面積の比を表2

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、くぼたやすひろ、よしだまなぶ、ふかさわたくし、おきざきしょうへい、ふじわらいちろう、ふるかわみちあき、こばやしこういち、よしだくにお、ながいひさお

に示す(文献1)。フラグメンテーションの寄与が少ないと思われる酸素からの生成比は光子と陽子でほぼ同様の結果を示している。一方、全く同一のターゲットについての結果ではないが、陽子の場合のFe、Niターゲットからの結果と、光子の場合のCuターゲットからの結果を比較すると、光子の場合の方が ^{10}Be の収率が大きいことがわかる。これは、光子と陽子とでフラグメンテーション過程での収率の相違によるのではないかと考えられるが、今後更にデータを蓄積して結論を出したい。

参考文献

1) G.M.Raisbeck and F.Yiou, Spallation Nuclear Reactions and Their Applications, edited by B.S.P. Shen (Reidel, Boston, 1976)p83.

Table 1. Yield ratios ($^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$) in photon-induced reactions.

Target	E_{max} (GeV)	σ ($\mu\text{b}/\text{eq. q}$)		$^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$
		^{10}Be	^7Be	
Cu	0.8	21 ± 4	41 ± 4	0.52 ± 0.11
	0.9	36 ± 15	41 ± 7	0.87 ± 0.39
	1.0	32 ± 5	39 ± 5	0.83 ± 0.17
O	0.55	55 ± 5	205 ± 14	0.27 ± 0.03
	0.85	61 ± 4	273 ± 15	0.22 ± 0.02
	1.05	68 ± 5	303 ± 17	0.22 ± 0.02

Table 2. Cross section ratios ($^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$) in proton-induced reactions.*

Target	E_p (GeV)	σ (mb)		$^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$
		^{10}Be	^7Be	
Fe	0.6	0.44 ± 0.09	4.0 ± 0.5	0.11 ± 0.03
	21	4.6 ± 0.8	11.4 ± 1.2	0.40 ± 0.07
Ni	3.0	2.2 ± 0.5	11.3 ± 1.0	0.19 ± 0.05
O	0.6	0.6 ± 0.24	7.0 ± 1.7	0.09 ± 0.04
	2.1	2.1 ± 0.3	10.1 ± 1.2	0.20 ± 0.04
	19	1.0 ± 0.4	10.8 ± 1.4	0.09 ± 0.04

* Raisbeck and Yiou (1976)

FRAGMENTATION PROCESS IN PHOTONUCLEAR REACTIONS

Inst. for Nuclear Study, Univ. of Tokyo,¹ Fac. of Sci., Kanazawa Univ.,² Ottemongakuin Univ., Fac. of Sci., Nagoya Univ., Research Center for Nuclear Sci. and Tech., Univ. of Tokyo, Fac. of Sci., Univ. of Tokyo, Coll. of Humanities and Sci., Nihon Univ.³
 Seiichi SHIBATA,¹ Mineo IMAMURA,¹ Takashi MIYACHI,¹ Masafumi MUTOH,¹ Koh, SAKAMOTO,² Yasunori HAMAJIMA,² Yasuhiro KUBOTA,² Manabu YOSHIDA,² Takushi FUKASAWA,² Shohei OKIZAKI,² Ichiro FUJIWARA,³ Michiaki FURUKAWA,⁴ Koichi KOBAYASHI,⁵ Kunio YOSHIDA,⁶ and Hisao NAGAI⁷

1A08

東大核研GARISによる短寿命 α 壊変核種の研究

(阪大理) 宮武宇也 (都立大理) ○末木啓介 (理研) 森田浩介

(東大核研) 野村亨・久保野茂・川上宏金・田中仁市・小柳津充宏

(東北大サイクロ) 篠塚勉 (新潟大理) 工藤久昭

〔緒言〕東大核研のSFサイクロトロンにおいて図1に示すようなQ-Q-D-Q-Q型のガス充填型反跳同位体分離装置(GARIS)が設計され、製作された。この分離法は1958年CohenとFulmer⁽¹⁾が最初に提唱し、Julich⁽²⁾で主に核分裂生成物の研究用に開発された。また、DubnaのBachor⁽³⁾とLBLのGhiorso⁽⁴⁾もまた同様な方法の装置を用いて重イオン反応の研究に応用している。この装置の特徴は反跳イオンの速度がある程度大きくなるとイオン電荷が充填されたガスとの間で相互作用して磁場内で平均電荷を持つように振舞う、そのために反跳のできる電荷分布がある一つの電荷に収束される。その結果、通常同位体分離装置のようにそれぞれの電荷について考える必要がない。しかし、焦点面上での像が大きくなり質量分離能は小さいそのために捕集面が大きく質量分離自体はほとんど不可能である。反跳そのものを利用して、重イオン反応の蒸発残留核などに注目した場合には、飛行時間で1 μ sec程度と速く短寿命核の研究には有効な装置である。また、 α 壊変核種の場合には娘核種の確認により質量数なども求めることができるので観測する核種を同定することができる。そこで、今実験では半減期が1~数10 μ secと予想されるまたは報告されている、アクチニウム、トリウムとプロトアクチニウムの中性子数が129~130の核種について調べてきたのでここに報告する。

〔実験〕標的核に²⁰³Tl、²⁰⁵Tl、²⁰⁶Pb、²⁰⁷Pb、²⁰⁹Biなどを選び、入射核には¹⁶O、²⁰Neを選んで(HI, xn)反応により生成する原子核からの α 線を表面障壁型Si検出器を使って測定した。使用した検出器は直径4in.の広面積を有していて、GARISの焦点面上に置いた。そして、反跳核を検出器の中にインプラントして α 線を検出した。測定に際しては反跳核のインプラントの際のシグナルでTACの開始とし、その後40 μ sec以内に発生したシグナルで終了として時間情報とエネルギースペクトルを得た。また、1.5msecのONとOFFの繰り返しによるパルスビームを用いてオフビーム時に半減期の長い核種についてもスペクトルを得た。ビームは本来反跳核とは分析磁石内で分離されるが、今回のような検出器にインプラントする方法では、ビームが充填されているHeと衝突するためにその反跳イオンも同時に観測されてS/Nが悪くなってしまう。そこでビームについてはターゲットから10~12cmの距離にストッパーを置くことにより解決した。

〔結果〕今回までに得られた結果は、すでに調べられている²¹⁸Ac、²¹⁹Ac、²¹⁹Th、²²⁰Thによって実際に測定などが正しく行なわれているかを確認した。これにより²¹⁹Th($t_{1/2}=1.05\mu$ sec)が観測されて、予想したように1 μ sec程度の半減期の核種の観測が可能であることが示された。娘核種の半減期が0.1 μ sec程度と非常に短い場合にはそれぞれのピークと共にサムピークが観測される。

次に、²⁰⁹Bi(¹⁶O、4n)²²¹Paについて調べた。図2に得られた α 線スペクトルを示す。また半減期については図3に示す。解析にはSALSによる最小自乗法で求め5.2 \pm 1.4 μ secを得た。これは、GSIのSHIPで6イベントから得られた報告値⁽⁵⁾6.1 \pm 1.7 μ secとよく一致しており、より精度の高い測定ができた。更に、²⁰⁹Bi(¹⁶O、5n)、²⁰⁵Tl(²⁰Ne、5n)²²⁰Paについても調べているが入射粒子のエネルギーが低くてまだ有為な結果は得られていない。

みやたけひろあり・すえきけいすけ・もりたこうすけ・のむらとおる・くぼのしげる・かわかみひろかね・たなかじんいち・おやいづみつひろ・しのづかつとむ・くどうひさあき

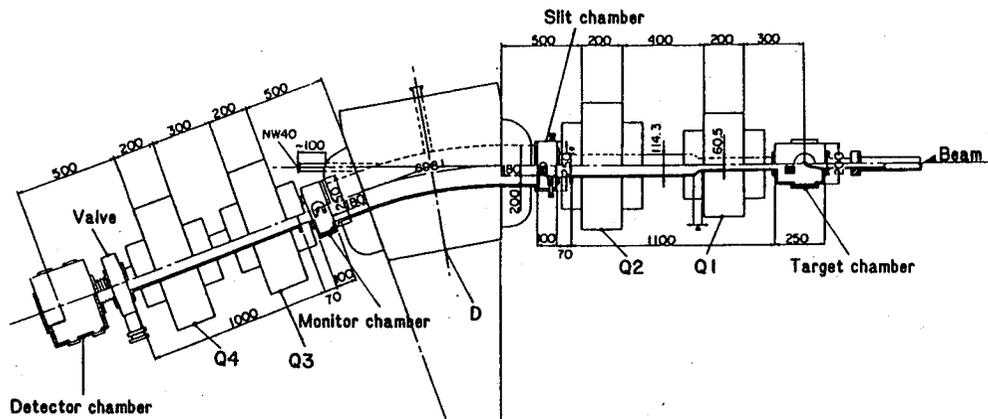


図1 GARISの磁石等の配置図 (D: Dipole magnet, Q: Quadrupole magnets)

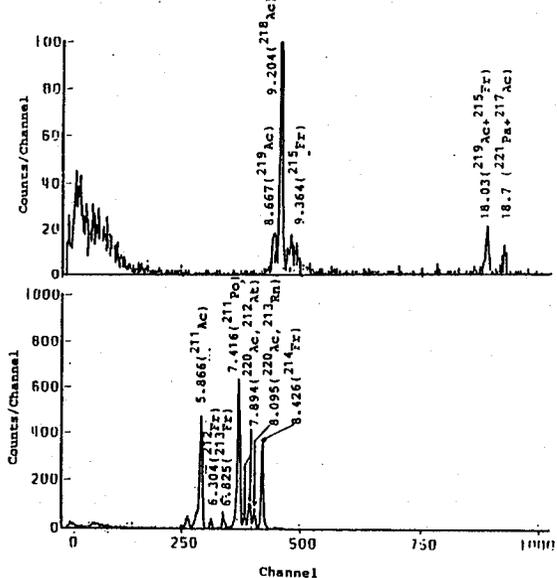


図2 100 MeV $^{16}\text{O} + ^{209}\text{Bi}$ 反応系で得られた α 線スペクトル。

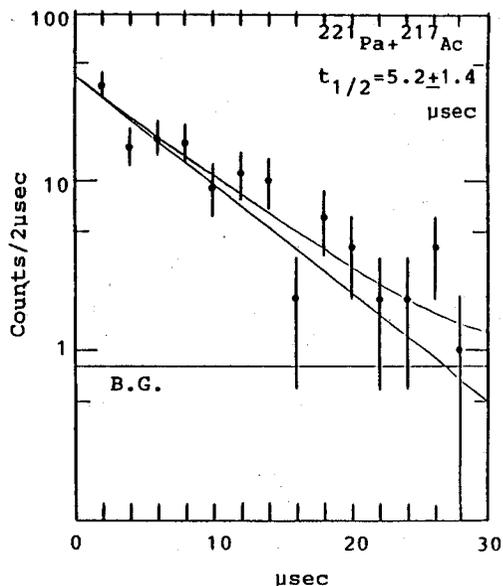


図3 $^{221}\text{Pa} + ^{217}\text{Ac}$ の sum peak から得られた崩壊曲線。

[参考文献]

- (1) B.L.Cohen and C.B.Fulmer, Nucl. Phys. 6(1958)547.
- (2) H.Lawin et al., Nucl. Instr. and Meth. 137(1976)103.
- (3) I.Bacho et al., JINR p13-4453(1969).
- (4) A.Ghiorso et al., Ann. Rept. of LBL, LBL-15955(1984).
- (5) R.Higmann et al., Z. Phys. A313(1983)141.

STUDY ON SHORT-LIVES α -DECAY NUCLEI BY INS GARIS.

Faculty of Science, Osaka University, Hiroari MIYATAKE,
 Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, Keisuke SUEKI,
 Cyclotron Laboratory, the Institute of Physical and Chemical Research, Kohsuke MORITA,
 Institute for Nuclear Study, University of Tokyo, Toru NOMURA, Shigeru KUBONO, Hirokane
 KAWAKAMI, Jinichi TANAKA, Mitsuhiro OYAIZU,
 Cyclotron and Radioisotope Center, Tohoku University, Tsutomu SHINOZUKA,
 Faculty of Science, Niigata University, Hisaaki KUDO.

(阪大理, 名大理*, 原研**) ○横山明彦, 斎藤 直, 若松智之,
馬場 宏, 篠原 厚*, 畑健太郎**, 永目論一郎**, 市川進一**,
馬場澄子**, 関根俊明**

重イオン誘起核子移行反応は準弾性散乱および深部非弾性散乱という二つのカテゴリーによる反応機構によって説明されてきた。特に深部非弾性散乱は、入射粒子の運動エネルギーの消失や相互作用する二つの原子核間の多核子移行等によって特徴づけられている。それについて、拡散モデル¹⁾による反応生成物の運動エネルギースペクトルや質量分布(元素分布)の再現が試みられ、ある程度の成功を収めているが、質量の非対称な系においてはうまく適用しないことが指摘されている。そこで、非対称な $^{197}\text{Au} + ^{16}\text{O}$ 反応系の核子移行反応を調べ、その深部非弾性散乱の特徴についての知見を得ることを目的とし、 6.6MeV/u および 8.8MeV/u の二つのエネルギーで入射粒子類似生成物($Z = 3 - 9$)の角度分布を測定した。実験手法については以前の討論会で報告した。²⁾

図1に、反応生成物のエネルギースペクトルの最尤値(丸印)と分布の巾(三角印)を各元素について示した。黒い印は 8.8MeV/u 系の場合、白い印は 6.6MeV/u 系を示す。二つの実線は、各々のエネルギーで運動エネルギー消失の無いとした計算値で、点線は出口チャネルのクーロン反発エネルギーを示し完全消失に相当する。消失の程度は、 Z の小さい程、また入射エネルギーが小さい方が大きい。また巾の大きさも Z が小さい程大きい。

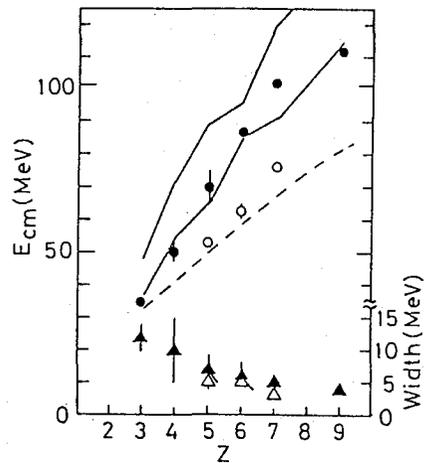


図1 反応生成物の運動エネルギーの最尤値および分布の巾。

よこやまあきひこ, さいとうただし, わかまつさとし, ばばひろし,
しのはらあつし, はたけんたろう, ながめゆいちろう, いちかわしんいち,
ばばすみこ, せきねとしあき

図2に、角度について積分した生成物の断面積を白丸でプロットし、加えて拡散モデルの計算値(実線)とsum rule model(SRM)³⁾による計算値(棒グラフ)を示した。Z = 7および8で実測値が大きいのは準弾性散乱の寄与があるためと思われるが、Z = 6付近の断面積の増大や全体の分布の形などについて、拡散モデルより、殻効果が考慮されているSRMの方が実験値を良く再現する。これは反応生成物が、拡散過程よりも短い反応時間の過程で生成されることを反映していると思われる。よって、先に見たエネルギー消失の傾向も反応時間の違いよりも移行核子数が増えるに従って反応チャンネルの巾が広がることを示すと考えると矛盾しない。

[参考文献]

(1) G. Wolschin and W. Nörenberg, *Z. Phys. A* **284** (1978) 209; S. Agarwal, *Z. Phys. A* **297** (1980) 41. (2) 畑ら, 第29回放射化学討論会講演予稿集 (1985) 1A14. (3) J. Wilczyński et al., *Nucl. Phys. A* **373** (1982) 109.

NUCLEON TRANSFER REACTION OF THE $^{197}\text{Au}+^{16}\text{O}$ -6.6MeV/u AND 8.8MeV/u SYSTEMS

Faculty of Science, Osaka University, Akihiko YOKOYAMA, Tadashi SAITO,
 Satoshi WAKAMATSU, Hiroshi BABA
 Faculty of Science, Nagoya University, Atsushi SHINOHARA
 Japan Atomic Energy Research Institute, Kentaro HATA, Yuichiro NAGAME,
 Shin-ichi ICHIKAWA, Sumiko BABA, Toshiaki SEKINE

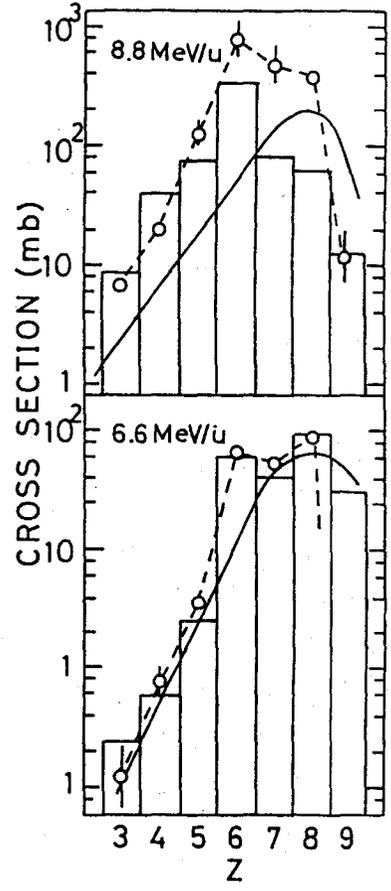


図2 反応生成物の元素分布および拡散モデル, SRMの計算値.

(原研、阪大理*、都立大理**) ○永目諭一郎、横山明彦*、
初川雄一**、間柄正明、畑健太郎、市川進一、関根俊明、馬場澄子、
井出野一実、池添博

【緒言】 重イオン核反応で生成される高励起複合核の崩壊過程を質量数100近辺の領域で調べているが^{1), 2)}、今回は、170MeV $^{37}\text{Cl} + ^{68}\text{Zn}$ 反応系で生成される重粒子(原子番号 $Z \geq 6$)を、カウンターテレスコープ法で測定し生成物のエネルギースペクトル、角度分布等から、これら重粒子の放出過程を調べた。とりわけ核分裂一類似(複合核の対称分割)生成物に関しては、輸送現象による質量移行反応に伴う生成過程、及び高励起複合核からの対称核分裂による生成過程の二つの観点から検討を試みた。またこれら両過程の中間状態(Transitional Dissipative Process)が、より重い系を中心に研究されているが、軽い系での存在の可能性についても検討を行ってみた。更に最近中間エネルギー領域で観測されている高励起複合核からの重粒子放出³⁾の可能性についても質量非対称崩壊模型⁴⁾に基づいて検討を試みた。

【実験】 ターゲットには、 ^{68}Zn 濃縮同位体(99.34%)フォイル($\sim 800 \mu\text{g}/\text{cm}^2$)を用い、照射は、原研タンデム加速器にて、 ^{37}Cl ビームで、入射エネルギー170MeV、ビーム電流 $\sim 150\text{nA}$ にて行った。反応生成物の測定には、ガス電離箱 ΔE (イソブタン: 15torr)と、シリコンの表面障壁型半導体検出器(300 μm 厚)から成る ΔE -Eカウンターテレスコープと、同じくガス ΔE と、E検出器に位置感応型のシリコン半導体検出器(45mm \times 8mm、450 μm 厚)を用いた ΔE -E(PSD)カウンターテレスコープの2台を同時に使用した。データ収集は、各々の検出器でそれぞれシングルの測定を行い、核分裂一類似生成物に関しては両検出器間において、重心系 180° を中心にコインシデンスの測定を行い角度相関を求めた。各測定角度における断面積の規格化はラザフォード断面積を用いて行った。

【結果と考察】 ΔE -E 測定法により、原子番号(Z)毎に識別された各反応生成物のエネルギースペクトルを求めた。図1 に、実験室系の角度($\theta_{\text{lab}}=45^\circ$)で観測されたエネルギースペクトルのダンプした成分(弾性散乱及び準弾性散乱ピークを除く)だけを積分して得られた電荷分布を示す。図2 には生成物の重心系における最適運動エネルギーを Z の関数で示してある。電荷分布は、入射粒子(Z_p)を中心に極めて非対称な形状を示している。質量移行反応を輸送理論に基づくと仮定した場合の計算値を図中点線で示してある。 $11 \leq Z \leq Z_p$ の範囲では、実験データを比較的よく再現しているが、 $Z \sim Z_{\text{CN}}/2$ (Z_{CN} は複合核の原子番号)近辺や $Z_p \leq 10$ の領域では、別のピークが現れている可能性がある。複合核の質量非対称崩壊⁴⁾に従えば、図3 のポテンシャルエネルギー面が示すように、 $1 \sim 40$ 以下では非対称分裂過程が主に関与し、 $1 \geq 40$ ($l_{\text{crit}}=70h$)では対称

ながめゆいちろう、よこやまあきひこ、はつかわゆういち、まがらまさあき、
はたけんたろう、いちかわしんいち、せきねとしあき、ばばすみこ、いでのかずみ、
いけぞえひろし

分裂過程が主として寄与する結果を予測することになる。従って、 $Z_{CN}/2$ 付近のデータは対称核分裂の存在を示唆しているものと思われる。またこれら生成物の最適運動エネルギーは、2つの球形核を仮定した時に得られるクーロンエネルギーより更に小さく(図2)、かなり変形した状態で放出されていることを示している。また、 $Z \leq 10$ の生成物に関しては、図2の運動エネルギーが、クーロンエネルギーにほぼ等しいことから、入射粒子の Break up 成分等とは考えにくく、現在角度分布のデータを含めて検討中である。講演では、角度分布のデータ、及びコインシデンスのデータ等も合せて報告する。

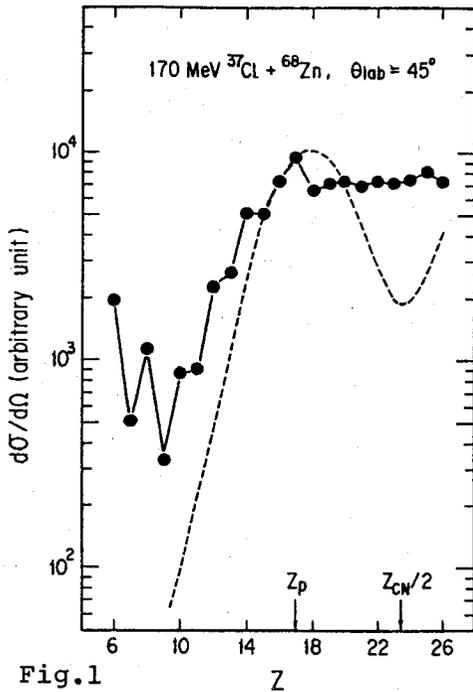


Fig.1

References

- 1). 永目他、第30回放射化学討論会、1A17(1986).
- 2). 畑他、第31回放射化学討論会、1A11(1987).
- 3). L.G.Moretto, LBL-21380(1986).
- 4). L.G.Moretto, Nucl. Phys. A247, 211(1975).

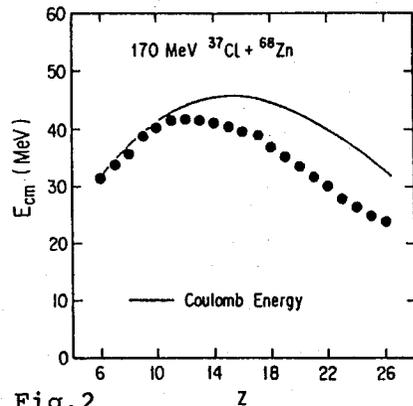


Fig.2

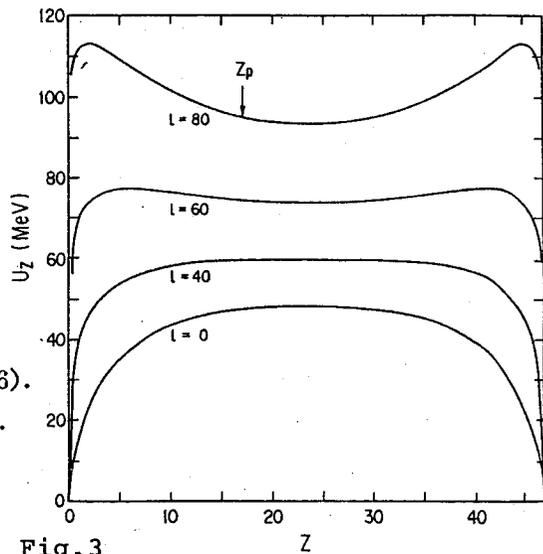


Fig.3

HEAVY PARTICLE EMISSION PROCESS IN THE $^{37}\text{Cl}+^{68}\text{Zn}$ HEAVY ION REACTION

Japan Atomic Energy Research Institute, Yuichiro NAGAME, Masaaki MAGARA,
 Kentaro HATA, Sin-Ichi ICHIKAWA, Toshiaki SEKINE, Sumiko BABA,
 Kazumi IDENO and Hiroshi IKEZOE.

Faculty of Science, Osaka University, Akihiko YOKOYAMA.

Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, Yuichi HATSUKAWA

1A11 複合核 ^{105}Ag の生成と崩壊について (II)

(原研, 阪大理*) ○畑健太郎, 永目論一郎, 関根俊明, 馬場澄子, 横山明彦*

【緒言】 我々は、質量数100付近の高励起・高角運動量状態にある複合核の生成と崩壊について研究している。前回の討論会では、 $^{12}\text{C} + ^{93}\text{Nb}$ および $^{37}\text{Cl} + ^{68}\text{Zn}$ 反応系で生成する複合核 ^{105}Ag の崩壊生成物に関する実験結果について報告した¹⁾。そこでは、複合核からの蒸発過程による生成物として、AgからMoまでの同位体が観測された。これらの結果は、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こっている事を示している。このような系を解析するには、核分裂と蒸発過程の競争、特に荷電粒子との競争過程を考慮する必要がある。また、その際、荷電粒子が持ち出す角運動量の効果も無視する事は出来ないであろう。

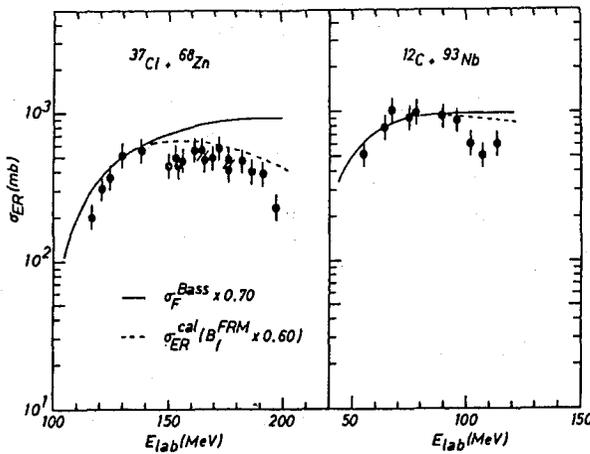
今回は、前回の実験結果をもとにして、統計モデル計算コードP A C E 2による解析を行い、中核領域の複合核に対するFinite Range Modelに基づいた核分裂障壁の妥当性、および荷電粒子放出を含む蒸発過程を再現するのに必要な諸パラメータについて検討した結果を報告する。

【計算】 複合核の崩壊過程の計算に用いたコードP A C E 2²⁾の特徴は、1) 蒸発過程の進行をモンテカルロ計算によってシミュレートしている、2) 軽粒子放出に伴う角運動量効果が考慮されている、3) 核分裂過程が崩壊形式として考慮されている、などである。核分裂障壁 (B_f) は、特に指定しなければ Rotating Finite Range Model (RFRM)³⁾ に基づいて計算される。我々は先ず $^{37}\text{Cl} + ^{68}\text{Zn}$ と $^{12}\text{C} + ^{93}\text{Nb}$ の両反応系で観測された蒸発残留核の生成断面積をそれぞれ入射エネルギー別に総計して、全蒸発断面積 (σ_{ER}) とした。(第一図参照) 次に両反応系についてBassモデル⁴⁾による全融合反応断面積 (σ_{F}) の計算を行い、低エネルギー側の $\sigma_{\text{ER}}(E)$ を再現出来るようにフィッティングを行った結果 $\sigma_{\text{ER}}^{\text{Bass}}(E) = 0.70 \sigma_{\text{F}}^{\text{Bass}}(E)$ という関係が得られた。ここで、これら低エネルギー範囲では核分裂反応断面積 (σ_f) は無視できるとした。Bassモデルは $A=150$ 以上の複合核系に対しては $\pm 10\%$ 程度の精度で $\sigma_{\text{F}}(E)$ の実験値を再現出来るとされているが⁵⁾ 本反応系に対しては、励起関数の形はよく再現しているものの、絶対値は過大評価になっている。次に $\sigma_{\text{F}}(E) = \sigma_f(E) + \sigma_{\text{ER}}(E)$ の関係を利用して、高いエネルギー範囲までの $\sigma_{\text{ER}}(E)$ の実験値を再現するようにP A C E 2による $\sigma_f(E)$ の計算を行った。この際、複合核の角運動量分布はsharp cut-off を仮定し、残留核の準位密度パラメータは $A/8$ とした。そして saddle point と基底状態での準位密度の比 a_f/a_{gs} 、およびRFRMによる核分裂障壁にたいする係数Fの二つを 調節パラメータとしてフィッティングを行い、 $a_f/a_{\text{gs}} = 1.10$, $F = 0.6$ という結果を得た(第一図参照)。これらのパラメータを使って、荷電粒子放出により生成する蒸発残留核の励起関数をP A C E 2で計算した例を実験値と共に第二図に示す。1個の α 粒子を放出して生成する ^{101}Rh についてはかなり良く実験値を再現している。放出粒子数の多いチャンネルから生成する場合は、励起関

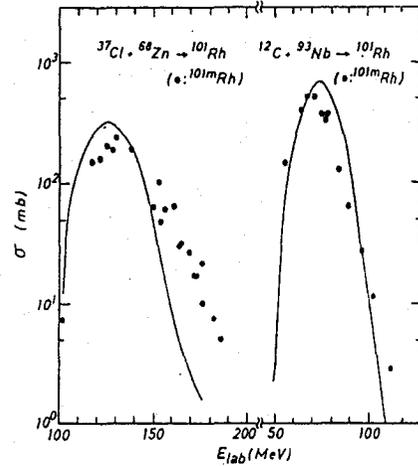
はたけんたろう, ながめゆいちろう, せきねとしあき, ばばすみこ, よこやまあきひこ

数が立上る部分は良く合うが、ピークの部分は差が大きくなる傾向がみられた。

【結果】 回転液滴模型 (RLDM) を改良して、核表面の diffuseness や 核力の finite range を考慮に入れた RFRM による予測では、 $A = 100$ 付近の複合核における核分裂障壁は、従来の RLDM による予測よりも約 $3/4$ に減少するという結果を出している。このような傾向は本実験でも確認されたが、係数 F は RFRM による予測よりも更に低い値を示唆している。講演では複合核の崩壊過程に関する更に詳しい考察を行う予定である。



第1図 $^{37}\text{Cl} + ^{68}\text{Zn}$ と $^{12}\text{C} + ^{93}\text{Nb}$ 反応系に対する全蒸発断面積の実験値 (黒丸) と計算値 (点線)。実線は Bass モデルによる全融合断面積の計算値。



第2図 両反応系からそれぞれ生成した ^{101}Rh の励起関数。黒丸は ^{101}Rh に対する実験値。実線は PACE 2 による計算値。

- 1) 永目他, 第30回放射化学討論会, 1A17 (1986).
- 2) A.Gavron, Phys.Rev. C21 (1980) 230.
- 3) H.J.Krappe, et al., Phys.Rev. C20 (1979) 992.
- 4) R.Bass, Phys.Rev.Lett. 39 (1977) 265.
- 5) J.van der Plicht, et al., Phys.Rev. C28 (1983) 2022.

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

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

1A12 アクチノイド元素の低エネルギー核分裂に於ける質量分割

(都立大理) ○大槻勤, 末木啓介, 初川雄一, 中原弘道
(原研) 篠原信夫, 永目諭一郎

<緒言>

核分裂に於ける質量分割については、今日まで saddle point で決まるのか、scission point で決まるのか、あるいは saddle から scission の移行過程で決まるのか議論されてきたが、未だに解決されていないと言ってよい。

これらの問題の解明の一端として、我々は特に自発核分裂、熱中性子核分裂、陽子誘起核分裂等の質量収率曲線の形状に着目して複合核の質量数、励起エネルギーに対してどのような系統性があるか調べてみた。特に、非対称分裂部分の半値幅 (FWHM) をとり、複合核の質量に対してプロットしてみると Fig. 1 の様に、自発核分裂、熱中性子核分裂では複合核の質量数が 240 までは増加するが複合核の質量数が 240~245 付近で急に FWHM が減少することわかった¹⁾。また、質量収率曲線の非対称分裂部分の形状を再現するのにガウス曲線を用いたフィッティングも試みたが、自発核分裂、熱中性子核分裂に関しては二つのガウス曲線ではほぼその形状を再現できることが解った。

Wilkins²⁾らの報告によると、scission point に於いて変形の小さなところ ($\beta: 0 \sim 0.2$) で $N=82$ の shell の存在と変形の大きなところ ($\beta: \sim 0.6$) で $N=88$ の shell の存在が理論的に示されている。しかし、彼らの計算によって示されている質量収率曲線は実験値をよく再現しているとはいえない。我々は観測された運動エネルギー分布³⁾により、分裂片の電荷中心間の距離を求めて検討した結果、分裂片の質量数 130~135 付近、また 145 前後に急な電荷中心間の距離に変化があることがわかったが、これらの核構造の影響と関連があるとも考えられる。自発核分裂、熱中性子核分裂とともに陽子誘起核分裂についてもガウス曲線を用いた解析とこれらの shell との関係を確認することは核分裂を理解するうえで重要であると考えられる。

昨年は²³⁵U+p, ²⁴³Am+p, ²⁴²Pu+p, ²⁴⁴Pu+p について陽子の入射エネルギー 12 MeV について FWHM を調べる実験をおこなったが、今回は陽子の入射エネルギー 18 MeV に上げて実験をおこなったのでこの結果について報告する。また、²³²Th+p, ²³⁷Np+p, ²³⁸U+p 等のいままで得られた実験結果については Two Mode の概念を用いて対称分裂と非対称分裂に分ける解析ができるかどうか検討し、この解析結果についてガウス曲線のフィッティングをこころみて報告したい。

<実験>

濃縮同位体核種²³⁵U, ²⁴³Am (²⁴³Am:99.612%, ²⁴¹Am:0.107%, ²⁴⁴Cm:0.281%), ²⁴²Pu (²⁴²Pu:99.849%), ²⁴⁴Pu (²⁴⁴Pu:97.89%, ²⁴¹Pu:0.07%, ²⁴²Pu:1.33%) をイオン交換法を用いて精製し、イソプロピルアルコール溶液よりアルミニウム箔に電着しターゲットを作成した。

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,
しのはらのぶお, ながめゆいちろう。

また、それらのターゲットの厚さは α 線を測定することによって求めた。次に分裂片を捕集するために適当な厚さのアルミニウム箔を重ね合わせて、日本原子力研究所のタンデム型バンデグラフ加速器により陽子のエネルギー18MeVで照射をおこなった。照射後、直ちにGe(Li)半導体検出器を用いて生成した分裂片の γ 線を測定し、質量収率曲線を求めた。

<結果及び考察>

1) 自発核分裂、熱中性子核分裂そして入射エネルギー12MeVの陽子誘起核分裂ともに半値幅(FWHM)が複合核質量数240~245付近で減少する結果が出ているが、さらに陽子の入射エネルギー18MeV(複合核の励起エネルギー23MeV前後)でFWHMの傾向が再現できるかどうか現在解析中である。

2) Two Mode の概念を用いて陽子誘起核分裂における質量収率曲線の対称分裂の収率と非対称分裂の収率を概算できるとすれば核分裂現象をより理解しやすくなると考えられる。我々はいままで行なってきた陽子誘起核分裂の実験結果(励起関数、P/V ratio 等)に基づいて解析を試みている。

3) 二つのガウスフィッティングによって検討すると、もしこれら二つのガウス曲線が分裂片の核構造(N=82、N=88)と関係していることが示唆されたが、このことから相対的質量収率は shell に関連して説明できる可能性があり、さらに複合核の励起エネルギーの増加とともにガウスフィッティングの様子がどの様に変化するか陽子誘起核分裂についても2)の解析後検討して報告する。

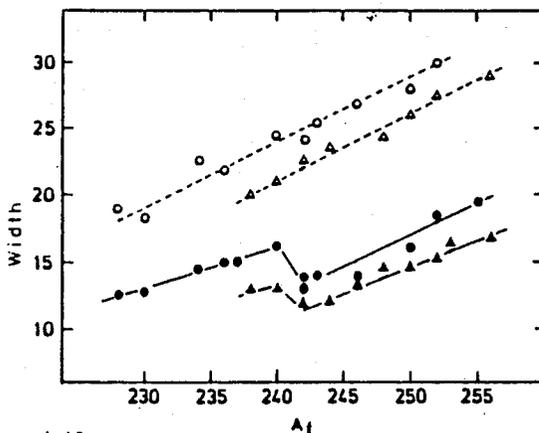


Fig. 1. Width of asymmetric peaks of mass yield curves versus mass number of fissioning nuclei (A_f). Δ , spontaneous fissions and \circ , thermal-neutron induced fissions are full width at a half of maximum height (FWHM) of mass distribution, and \triangle , spontaneous fissions and \circ , thermal-neutron induced fissions are full width at one-tenth of maximum height (FWTM) of mass distribution. The solid and dashed lines connecting data points are merely drawn to guide eyes.

<文献>

- 1) 大槻ら、第30回放射化学討論会 1A11 (1986)
- 2) Wilkins et al. Phys. Rev. C14, 1832 (1976)
- 3) J. C. D. Milton et al. Can. J. Phys. 40, 1626 (1962)
- 4) H. Kudo et al. Phys. Rev. C25, 3011 (1982)

MASS DIVISION IN LOW ENERGY FISSION OF ACTINOIDE ELEMENTS

Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University,

*Chemistry Division, Japan Atomic Energy Research Institute

Tsutomu OHTSUKI, Keisuke SUEKI, Uichi HATSUKAWA, Hiromichi NAKAHARA,

Nobuo SHINOHARA*, Yuichiroh NAGAME*

(阪大理、名大理^A、追手門学院大経済^B、都立大理^C、金沢大理^D)

○吉崎信樹、斎藤 直、若松智之、庄司正秀、横山明彦、杜 明進、
高橋成人、鹿取謙二、馬場 宏、篠原 厚^A、古川路明^A、藤原一郎^B、
初川雄一^C、末木啓介^C、浜島靖典^D

【はじめに】 重イオン誘起核分裂では、系に持ち込まれる角運動量が大きい。この角運動量は核分裂裂障壁や核分裂片の角度分布等に大きな影響を及ぼす。そこで、これらの角運動量依存性を調べるために、 $^{209}\text{Bi}+^{12}\text{C}$ 、 $^{209}\text{Bi}+^{14}\text{N}$ 、 $^{208}\text{Pb}+^{14}\text{N}$ 及び、 $^{207}\text{Pb}+^{14}\text{N}$ の重イオン反応系について、90-155MeVの範囲にわたり核分裂微分断面積を測定した。前回は、得られたデータから核分裂障壁について考察したが¹⁾、今回は、新たに155MeV- ^{14}N のデータを加え、核分裂片の角度分布のエネルギー依存性を調べた。

【実験】 実験は阪大核物理研究センターのAVFサイクロトロン²⁾の90-155MeVの ^{14}N ビームと90-140MeVの ^{12}C ビームを使用して行なった。ターゲットは ^{209}Bi 、 ^{207}Pb 、 ^{208}Pb を用い、測定は、2個の表面障壁型半導体検出器(SSD)によりE-Eシングル測定と、核分裂片の180°相関を利用したE-Eコインシデンス測定を行なった。なお、これらの詳細は前回の討論会¹⁾で述べた通りである。今回行なった155MeV- ^{14}N の実験ではさらに、半導体位置検出器(PSD)を2台、in planeとout of planeに配置し、SSDとのコインシデンス測定を行なった。なお測定した核分裂片が完全核融合核分裂であることは、角度相関から155MeVの ^{14}N ビーム時を除き確かめた。そのデータについては、現在検討中である。

【結果と考察】 得られた相対断面積に対してLegendre多項式fittingを行ない、角度異方性($W(170^\circ)/W(90^\circ)$)を求めた。図1に、その結果をエネルギーに対してプロットした一例を示す。

核分裂片の角度分布はStatistical Transition-State Model (TSM)の取り扱いの枠内で、核の変形に関する情報を含んでいる。Saddle Point Shapeの変形を表わす実効慣性モーメント(I_{eff})はTSMによる式を使い、測定した角度異方性を再現するパラメーター K_0^2 と仮定した核温度(T)から求めた。 T はPre-Fission Neutronの補正²⁾を行なった場合と、行なわない場合の2種類の場合をそれぞれ考えた。得られた I_{eff} の平均角運動量 $\langle J^2 \rangle^{1/2}$ に対する変化を、Rotating Finite Range Model (RFRM)より求めた I_{eff} のそれと比較した一例を図2に示す。これで分かるように高角運動量領域では、 I_{eff} の傾向がRFRMと異なってきている。講演ではこのような高角運動量領域におけるTSM等の取り扱いの妥当性について考える。また K_0^2 は本来 J の関数であるが、一般にはConstantとして近似的に取り扱われている。そこで、中性子数が一つ違う複合核 ^{221}Ac と ^{222}Ac のデータ

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

から J の平均値 $\langle J^2 \rangle^{1/2}$ ではなく、狭い J 窓を持った特定の J に対する $W(\theta)/W(90^\circ)$ を実験的に抽出することも考える。

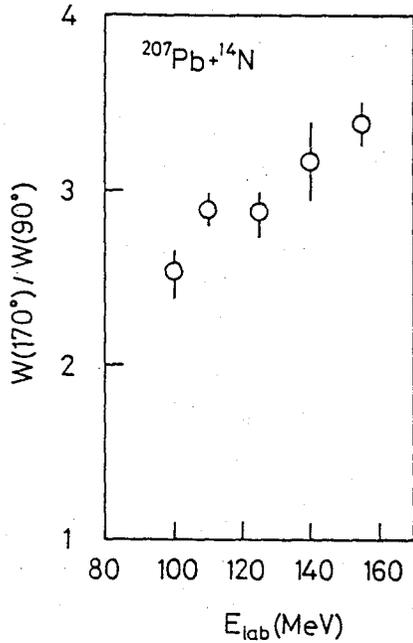


図1 $^{207}\text{Pb}+^{14}\text{N}$ の系における角度異方性のエネルギー依存性

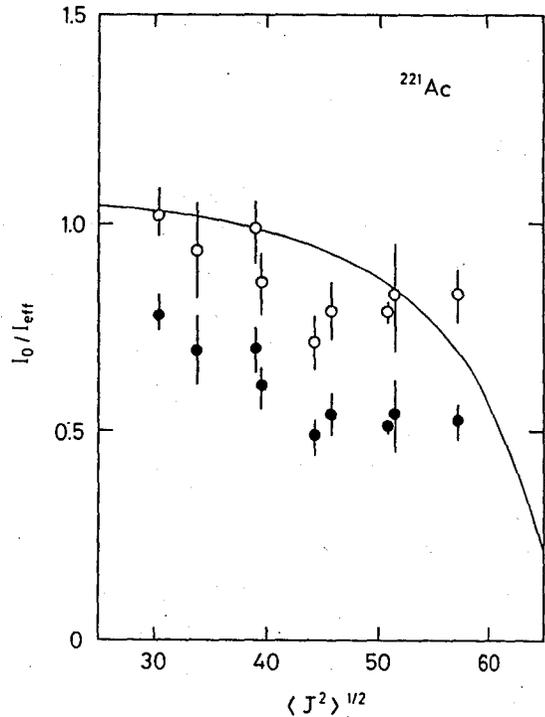


図2 $\langle J^2 \rangle^{1/2}$ に対する I_0 (球形核の慣性モーメント) と I_{eff} の比。●はPre-Fission Neutronの補正を行なったもの、○は補正を行なわなかったもの。実線はRFRMによる計算値。

【参考文献】

- 1) 篠原ら、第30回放射化学討論会、1A07 (1986)。
- 2) D.J.Hinde, Proceedings of the Second International Conference on Nucleus-Nucleus Collisions, Visby, Sweden, 1985, Vol. 1, p.68.

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

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

Faculty of Science, Nagoya University, Atsushi SHINOHARA and Michiaki FURUKAWA

School of Economics, Otomon Gakuin University, Ichiro FUJIWARA

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

Faculty of Science, Kanazawa University, Yasunori HAMAJIMA

(阪大理、原研*) ○杜 明進、高橋成人、横山明彦、馬場 宏、
*馬場澄子、*畑健太郎、*永目論一郎

[緒言]

核分裂における観測諸量のうちで、核電荷分布は二次的な情報と見なされるのが普通である。特に重イオン誘起核分裂では核電荷分布はいわゆるUCD仮説で良く近似されると考えられており、それ以上突っ込んだ追求はなされていない。ところが、かつて指摘されたように¹⁾、核電荷分布のエネルギー依存性を調べることは、実は核分裂機構について重要な知見を与える。なかでも、核分裂の際のpre-fission neutron とpost-fission neutron の放出数が、エネルギーの関数としての Z_p の解析から導き出され、核分裂において中性子放出機構の解明が基本的な重要性を持つことが示された。ここでは、 ν_{pre} を決定する方法として核電荷分布の測定を行なうことによりfissioning mass を決定し、 ν_{pre} のエネルギー依存性を求めることを目的とする。

[実験]

実験には日本原子力研究所のタンデム加速器を用い ^{238}U , ^{235}U , ^{233}U をターゲットとして ^{12}C (90 MeV)を衝撃した。三種類のターゲットから形成される複合核の励起エネルギー($E_x = 50$ MeV)を同じにするようにアルミ箔のdegraderの厚みを調節した。ターゲットは硝酸ウランのisopropanol 溶液からアルミ箔(22.5 μm)上に1~1.5 mgU/cm²の厚さに電着したのを用いた。またすべての核分裂生成物を捕集するために22.5 μm のアルミ箔をキャッチャーとして置いた。適当な照射時間として20分と2時間の2種類の照射を行なった。ターゲットとキャッチャーを分けて非破壊 γ 線スペクトロメトリーをおこなった。 γ 線測定にはGe検出器と4096チャンネル波高分析器をもちいた。

[結果と考察]

測定ならびにデータの解析はまだ進行中であるが、現在までに求められた核分裂生成物の予備的な反応断面積をTable 1 に示す。残念ながらバックグランド及び捕獲箱中に生成する短寿命放射能のために一時間以下の半減期の核分裂生成物の検出定量には成功していない。しかしながら現在までの結果でも92, 132, 133及び140については二つ以上の同位体が観測されているのでこれらの質量数については最適核電荷 Z_p を求めることが期待される。一方ヨウ素とアンチモンについては三つ以上の同位体が観測されているので、同位元素について生成量のN/Z 依存性から最適核電荷を求める方法²⁾も試みている。そして、三つのCf同位体を複合核とする核分裂のデータから Z_p の複合核の質量A についての偏微分係数¹⁾を求めて報告する。また表にはターゲットとキャッチャーについて別々に測定した結果を合計した値を示してあるが、これについても前方と後方の分布に分けた考察を行な

どうみんな、たかはしなると、よこやまあきひこ、ばばひろし、ばばすみこ、
はたけんたろう、ながめゆいちろう

う。もし近傍の核種の間で飛程に大きな差がなければ核電荷分布を求めるのに全量を補集する必要がなくなるので短寿命核の測定の際のバックングやキャッチャーの妨害を避けることが可能になりヘリウムジェット等の迅速測定手段の利用が可能になると期待される。また特にSb, Te, I のフラクションについては特に詳細な測定をすることが望ましいのでこれらの化学種については化学分離操作を導入する計画である。

[参考文献]

- 1) H. Umesawa et al., Nucl. Phys. A160 (1970) 65, S. Baba et al., Nucl. Phys. A175 (1971) 177.
- 2) S. Saruker and L. Yaffe, Can. J. Phys. 54 (1976) 2349.

TABLE 1. THE CROSS-SECTION OF FISSION PRODUCTS

NUCLIDE	HALF-LIFE	STATE	TYPE	CROSS-SECTION(mb)		
				U-238	U-235	U-233
Sr-91	2.71d		C	2.8	5.4	7.9
Sr-92	2.71h		C	1.9	3.7	15.5
Y-92	3.54h		C	4.0	—	32.3
Y-93	10.10h		C	—	—	19.2
Mo-99	2.75d		C	4.6	10.1	12.3
Ru-105	4.44h		C	6.4	13.1	46.9
Cd-117	3.36h	m	C	4.7	8.7	23.4
Sb-126	12.40d	g + m	I	2.5	3.8	2.5
Sb-127	3.85d		C	3.0	3.8	2.2
Te-127	9.35h	g	C	77	175	555
Sb-128	9.01h	g + m	C	4.0	6.0	2.4
Cs-129	32.10h		C	—	—	0.7
Sb-129	4.32h		C	1.2	—	—
I-130	12.36h	g + m	I	2.8	6.2	4.9
Te-131	30.0 h	m	C	1.5	—	1.3
I-131	8.02d		C	5.2	6.9	5.2
Te-132	2.28h		C	2.0	1.8	1.0
I-132	3.26d	g + m	I	3.6	4.4	10.7
Cs-132	6.47d		I	1.3	7.5	9.9
Xe-133	5.29d	g + m	C	6.0	7.8	15.0
Xe-133	2.19d	m	C	3.6	5.8	3.5
I-133	20.80h	g + m	C	2.2	3.1	4.6
Ba-133	1.62d	m	C	—	—	2.4
I-134	0.87h	g + m	C	4.4	—	5.0
Xe-135	9.08h	g + m	C	5.0	5.8	7.6
Cs-136	13.16d	g + m	I	2.8	4.5	2.9
Ba-139	1.38h		C	—	—	11.2
La-140	1.68d		I	1.5	6.2	3.1
Ba-140	12.75d		C	2.3	2.8	2.3
La-142	1.52h		C	2.5	—	6.8
Ce-143	1.38d		C	3.6	4.6	3.9
Pm-148	5.30d		I	—	2.6	4.9
Pm-149	2.20d		C	—	—	12.2
Pm-151	1.18d		C	1.5	3.5	1.5

d: day h: hour g:ground m: meta
C: cumulative I:independent

^{12}C INDUCED FISSION OF ^{233}U , ^{235}U AND ^{238}U

Faculty of Science, Osaka University, Ming-Jinn DUH
Naruto TAKAHASHI, Akihiko YOKOYAMA, Hiroshi BABA
Japan Atomic Energy Research Institute, Sumiko BABA
Kentaro HATA, Yuichiro NAGAME

(阪大理) ○若松智之, 斎藤 直, 吉崎信樹, 古谷栄樹, 馬場 宏

1) はじめに

対称性核分裂が主体のプリ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コンパクトな切断形状を経由するもう一つの核分裂モードの存在を示す最近の報告がある。^{1, 2)} 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つのモードの核分裂の存在を $^{14}\text{N} + ^{209}\text{Bi}$ 反応系の融合核($^{228}\text{-}\nu\text{Th}$)の核分裂について核化学的手法を用いて調べてきたが、決定的な結果を得るには至らなかった。³⁾ そこで今回は、より明白な結果が期待出来ると思われる $^3\text{He} + ^{232}\text{Th}$ 反応系を選び、核分裂片の質量分布ならびに運動エネルギー分布の核化学的測定を中心にした実験を行なった。

2) 実験

実験は、阪大理原子核実験施設(OULNS)のサイクロトロンで加速された $25\text{MeV}\cdot^3\text{He}$ ビームにより行なった。ターゲットは約 $5\text{mg}/\text{cm}^2$ 厚Al箔上に蒸着した ThF_4 ($1.4\text{-}1.9\text{mg}/\text{cm}^2$ 厚)を用いた。核分裂生成物の質量分布測定用として、ターゲットを約 $5\text{mg}/\text{cm}^2$ 厚捕集用Al箔で覆ったスタックを、長寿命核用と短寿命核用の二種類についてそれぞれ照射を行なった。また、核分裂生成物の運動エネルギー分布は核分裂片のAlキャッチャー中での飛程より求めた。飛程測定用にも長寿命核用と短寿命核用の二種類のスタックを用意した。長寿命核用としてはターゲットの前方方向に8枚の約 $0.4\text{g}/\text{cm}^2$ 厚捕集用Al箔を重ねたものを、短寿命核用としては1枚の約 $3.6\text{mg}/\text{cm}^2$ 厚のAl箔と、2枚の約 $0.4\text{mg}/\text{cm}^2$ 厚のAl箔を重ねたものを用いた。核反応生成物の測定はGe半導体検出器を用い試料を非破壊のまま γ 線測定を行なった。

3) 結果と考察

得られたそれぞれの入射エネルギーに対応する核分裂片の質量分布を図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。得られた質量分布は解析が完全に終了していないためばらつきがあるものの、台形状を示している。これは同じ反応系についてカウンター実験(44.5MeV)で報告されているものと似た傾向である。⁴⁾ 核分裂片の微分飛程の測定結果の一例を図2に示す。各ピンが、捕集用Al箔中に捕集された相対放射能を示す。計算は多重散乱を考慮したOSCAR-85コード⁵⁾を用い、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ている。講演では現在解析を進めているこれらについて2モード核分裂の判定という観点から考察を行なう。

わかまつさとし, さいとうただし, よしぎきのぶき, ふるやしげき, ばばひろし

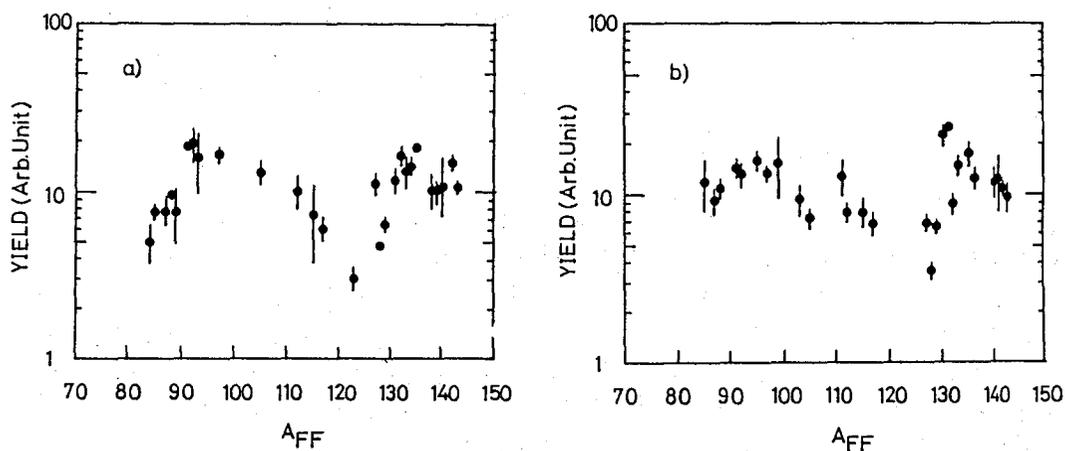


図1. ${}^3\text{He} + {}^{232}\text{Th}$ 反応で生成した核分裂片の質量分布。a) 23.8MeV b) 22.0MeV

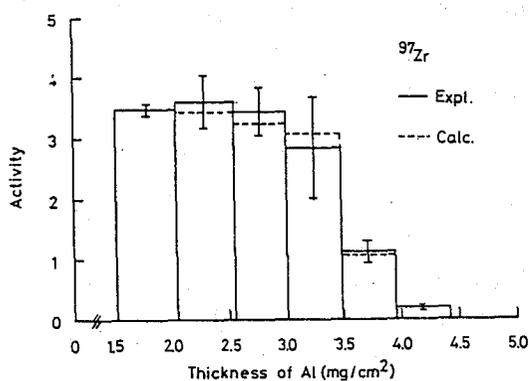


図2. 核分裂片の微分飛程測定の一例。OSCAR85で放射能比の再現を試みたものを点線で示す。

References

- 1) M. G. Itkis et al. Z. Phys. **A320**, 433 (1985).
- 2) E. K. Hulet et al. Phys. Rev. Lett. **56**, 313 (1986).
- 3) 若松ら, 第30回放射化学討論会講演予稿集(1986) 1A05.
- 4) F. D. Becchetti et al. Phys. Rev. **C28**, 1217 (1983).
- 5) K. Hata, private communication.

${}^3\text{He}$ INDUCED FISSION OF ${}^{232}\text{Th}$

Faculty of Science, Osaka University, Satoshi WAKAMATSU, Tadashi SAITO,
Nobuki YOSHIZAKI, Shigeki FURUYA, and Hiroshi BABA

(京大原子炉) 〇小山睦夫, 山田 繁, 崔 虎林, 高田実弥,
松下録治

はじめに

マルチコンパレータを用いれば対応する元素標準を用いるので、 γ 線スペクトル上で検出される全ての元素の定量が可能である。検出効率が求められているGe検出器を用いれば、照射時間、測定までの冷却時間、測定時間、およびコンパレータに用いる若干の数の元素の絶対量が実験的に必要なデータであって、試料中の元素濃度は熱中性子断面積、レゾナンスインテグラル、 γ 線分岐比、半減期、同位体存在比等の核データを用いて計算される。核データ表に記載されている数値データの中では、放射化学分析の目的に対しては、半減期は十分に正確であるものが多いが、熱中性子断面積、レゾナンスインテグラル、 γ 線分岐比の中には実用上満足なデータがいくつか残されている。よく熱化された中性子照射場で放射化した時には、熱中性子断面積と γ 線分岐比は比例定数的に作用するから、絶対測定により γ 線分岐比を決定するのが確実な方法である。レゾナンスインテグラルの寄与が大きい核種では、中性子スペクトルの硬さの異なる照射場で照射すると誤差の源が γ 線分岐比にあるか、あるいは熱中性子断面積にあるかを推定することができる。今回、放射化学分析でごく一般的に分析されている元素の正確さと、 ^{115}Cd 、 ^{177}Er について絶対測定を行なった結果について述べる。

実験

元素標準は、単体、酸化物、塩等の秤量形のもの、純氷、硝酸等で溶解し ρ 標準溶液を作成し、20~100 μL をマイクロピペットで分取し、ミリポアフィルター、口紙等に着染したものをを用いた。フラックスモニターとしては Co (25~100 μg)、 Cr (25~100 μg)、 Sb (10~20 μg)、 U (2~10 μg)を同一の支持体に着染したものをを用いた。

照射は、KUR圧気輸送管(P_n-1 、 P_n-2 、 P_n-3)、黒鉛設備内にもうけた $\text{Te}-P_n$ 等で行なった。

結果

Table 1に、各元素の採取量とマルチコンパレータ法によって求められた定量値と再現性を示す。ここに示した定量値は、各元素標準を着染し ρ フィルターに相当量の Co を着染し(放射化後測定(計算したものであり)、ラビット内における中性子フラックスの不均一性($\pm 5\%$)は、 ^{60}Co の放射能で補正した。

^{114}Cd を原子炉照射すると ^{115}Cd ($T_{1/2} = 53.4\text{h}$)と $^{115\text{m}}\text{Cd}$ ($T_{1/2} = 44.8\text{d}$)とが生成するが $^{115\text{m}}\text{Cd}$ の断面積が極めて小さく半減期も20倍程度大きいので絶対測定を照射後迅速に行なうと $^{115\text{m}}\text{Cd}$ の γ 線の寄与は無視できる。結論としては熱中性子断面積に大きな問題があるとすれば、個々の γ 線分岐比についても若干の修正が必要であることが分った。 ^{177}Er についても同様のことか当てはまる。その他 Sc 、 Sb についても言及する。

こやまおつお、やまだしげる、さゝこりん、たかだじつや、まつしたるくじ

Table 1. Determination of rare earth and several other elements by neutron activation analysis using multi-comparators(Cr, Co, Sb, U)

nuclide	(barn)	RI (barn)	T _{1/2}	E _γ (keV)	B. R.	element taken (μg)	determined value (μg)	average (μg)
¹⁴⁰ La	9.20	11.1	40.27h	1596.5	0.955	10.0	9.79, 9.83, 9.84, 9.75	9.80
¹⁴¹ Ce	0.57	0.49	32.55d	145.4	0.484	100.0	104, 103, 101	103
¹⁴² Pr	11.5	14.0	19.20h	1575.6	0.0368	100.0	100, 112, 98.1	100
¹⁴⁶ Nd	1.30	2.8	10.98d	531.0	0.120	100.0	110, 113	112
¹⁵³ Sm	210	2900	46.80h	103.2	0.283	5.35	5.21, 5.28, 5.22	5.24
^{152m} Eu	3300	2600	9.30h	1389.1	0.00749	0.895	0.836, 0.893, 0.930	0.886
¹⁵² Eu	5300	7000	12.40y	1408.1	0.220	0.895	0.820, 1.02	0.91
¹⁵³ Gd	1100	3000	241.6d	97.5	0.273	100.0	73.2, 79.7, 69.3, 70.1	73.1
¹⁶⁰ Tb	23	42	72.1d	879.4	0.300	10.0	10.7, 10.2, 10.1, 9.81	10.2
¹⁶⁴ Dy	2660	800	140.0m	94.7	0.0360	1.83	1.78, 1.74, 2.00	1.91
^{164m} Dy	1800	--	1.257m	108.2	0.030	1.83	1.78, 1.74, 1.92	1.81
¹⁶⁶ Ho	63	660	26.83h	1581.2	0.0018	100.0	104, 99.9, 97.9	101
¹⁷¹ Er	5.7	35	7.52h	308.2	0.643	126.0	176, 180, 176	177
¹⁷⁰ Tm	103	1700	128.6d	84.3	0.032	100.0	41.7, 35.6	38.7
¹⁶⁹ Yb	3200	25000	32.02d	177.2	0.217	5.0	4.69, 4.82	4.81
¹⁷⁵ Yb	65	31	4.19d	396.3	0.060	5.0	10.6, 10.8, 10.8	10.8
¹⁷⁷ Lu	2100	2400	6.71d	208.0	0.110	5.0	4.94, 5.06, 4.82, 4.96	4.95
⁴⁶ Sc	26.5	10.2	83.8d	889.3	1.00	10.0	11.8, 11.5, 11.4, 11.7	11.6
⁸⁶ Rb	0.46	7.0	18.82d	1076.6	0.0879	100.0	101, 101, 102	101
¹³⁴ Cs	29	465	2.062y	795.7	0.8544	50.0	50.4, 48.1, 49.0, 49.6	49.3
¹¹⁵ Cd	0.3	20	53.38h	527.7	0.675	100.0	53.8, 53.0, 53.1, 53.3	53.3

cross sections: cited from Technical Report Series No. 156 "Handbook on Nuclear Activation Cross-Sections" IAEA (1974) Vienna

Photo emission yields(B. R.): cited from Table of Isotopes ed. C. M. Lederer, V. S. Shirley (1978) John-Wiley & Sons, Inc., New York

CROSS SECTIONS OF (n,γ) REACTIONS AND PHOTO EMISSION YIELDS OF SEVERAL NUCLIDES

Research Reactor Institute, Kyoto University, Mutsuo KOYAMA, Shigeru YAMADA, Korin SAI, Jitsuya TAKADA and Rokuji MATSUSHITA

1A17 希土類領域における酸化物イオンの オンライン質量分離

原研：〇市川進一、関根俊明、大島真澄、飯村秀紀
阪大理：高橋成人

1. はじめに

希土類元素の一酸化物MOのイオン化ポテンシャルは金属Mに比べて0.3~0.7 eV程度低いことが知られている(例えば $\text{LaO}^+ : 4.9 \text{ eV}$; $\text{La}^+ : 5.58 \text{ eV}$, $\text{CeO}^+ : 5.2 \text{ eV}$; $\text{Ce}^+ : 5.45 \text{ eV}$)。また、希土類酸化物を真空中で加熱し生成した化学種の測定では、ほとんどMOとなるLaから、順次原子番号が増加するにつれてMOの割合が減少すると報告されている¹⁾。

このことは、オンライン質量分離器の熱イオン源内において核反応生成物La, Ceの一酸化物が高い割合で生成されるならば、金属をイオン化する場合よりイオン化効率の向上が望めると共に、副生成物である他の同重体からの分離が期待される。

演者らは、オンライン質量分離器を用い、新核種 ^{121}La を含む ^{122}La , ^{123}La , ^{124}La , ^{126}La , ^{128}Pr , ^{130}Pr の崩壊について研究を進めている²⁾。これら核種の実験には、Laは一酸化物イオン LaO^+ として、Prは金属イオン Pr^+ としてイオン化する方法を応用した。

ここでは、熱イオン源による①酸化物を出発物質としたBa及び希土類元素のイオン化挙動の比較、② $^{32}\text{S} + \text{Mo}$ 反応で生成したCs, Ba, La同重体からの $^{124}\text{LaO}^+$ の実験、③オンラインにおける LaO^+ の生成とイオン化について報告する。

2. 実験

実験には原研タンデム加速器に接続したオフ/オンライン質量分離器及び熱イオン源を用いた。オフラインに於ける MO^+ , M^+ イオンの電流(i)測定には、質量分離器のイオン収集箱に設置されたファラデー・カップを用い、イオン源温度、2000 ~ 2700 K、真空度 $\sim 6 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ の条件で行った。また、オンラインにおける分離核種の放射能測定には、イオン収集テープ装置に設置したGe検出器を用いた。オン/オフライン共、質量分離器の磁場の較正には、イオン源内にマス・マーカーとして入れた天然同位体組成の酸化バリウムのイオン(Ba^+)にて行った。

3. 結果

3.1 酸化物を用いたイオン化挙動

La, Ce, Pr, Nd, Sm及びEuの酸化物を出発物質に用いたオフラインに於ける MO^+ 及び M^+ イオンの測定結果は以下の通りである。

1) 観測した MO^+ イオンの割合は、イオン源温度; 2550 K、真空度; $6 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ において、La, Ce $\geq 80\%$ 、Pr $\sim 20\%$ 、Nd $\sim 5\%$ と原子番号が増加するにつれて減少し、Euでは検出されなかった。2) この測定において、質量分離器の磁場を走査し種々のイオン種の存在を調べたが、測定対象元素については MO^+ 及び M^+ 以外認められなかった。3) また、マス・マーカーとして用いたBaについても MO^+ イオンを測定したが確認できなかった(検出限界; $i(\text{MO}^+)/i(\text{MO}^++\text{M}^+) = 10^{-5}$)。

いかわしんいち、せきねとしあき、おおしますみ、いいむらひでき、たかはしなると

3. 2 Cs, Ba, La同重体からLaの分離

$^{32}\text{S} + \text{Mo}$ 反応で同時に生成するCs, Ba, La同重体から、イオン化挙動の差異を利用しLaの分離を試みた。すなわち、生成する質量数124の核種 ^{124}Cs ($T_{1/2}=30.6$ s), ^{124}Ba ($T_{1/2}=11.9$ min), ^{124}La ($T_{1/2}=29$ s)を一定時間分離収集し、その γ 線の成長・減衰を測定した。質量分離器の磁場は質量数124または140 ($^{124}\text{M}^{16}\text{O}^+$) に一致させた。

質量数124の γ 線スペクトルでは、 ^{124}Cs , ^{124}Ba の崩壊に伴う170 keV及び354 keVの γ 線が、質量数140の γ 線スペクトルでは ^{124}Ba の回転バンドの遷移に一致する230 keV ($2^+ \rightarrow 0^+$), 422 keV ($4^+ \rightarrow 2^+$), 577 keV ($6^+ \rightarrow 4^+$)の γ 線が同定され $^{124}\text{La} 0^+$ の分離が確認された。 γ 線の成長・減衰の解析から、 $\text{La} 0^+ \geq 93\%$, $\text{La}^+ \leq 7\%$ と結論された。また、 ^{124}Cs 及び ^{124}Ba の MO^+ の形成は、 $\leq 0.1\%$ と求まった。

4. La 0^+ イオンの生成とイオン化

Fig. 1に $^{32}\text{S} + \text{Mo}$ 反応を用い、質量数を137に設定し分離・観測した β 線計数と、オフラインで求めた $^{138}\text{Ba}^+$ イオンの電流値、真空度並びに温度の時間変化を示した。図から明らかなように、イオン源温度が一定になった後、 $^{138}\text{Ba}^+$ イオンの量は単調に減少しているのに対し、 β 線の計数は始め増加し最大値に達した後、ゆっくりと減少する。このことは次の様に解釈できる。すなわち、始めの部分はマスマーカーである $^{138}\text{Ba}^+$ イオンの量が多く、かつ真空度が悪いので微量元素のイオン化が抑制されている；熱イオン源によるイオン化効率はプラズマ圧力³⁾に逆比例することが知られている。次に β 線計数が最大値を示した後なだらかに減少するのは、酸素供給源と考えられる酸化バリウムが減少する為であると推定される。

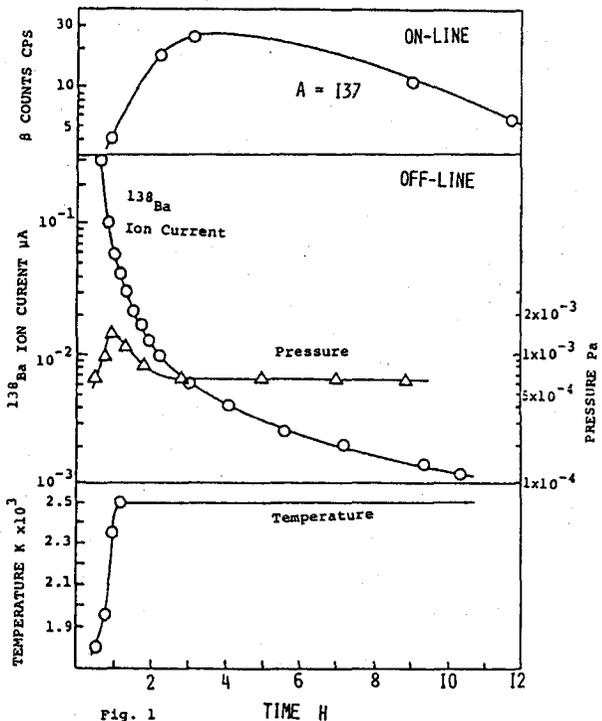


Fig. 1

- 1) L-D. Nguyen et al., Int. J. Mass Spectro. Ion Phys. 9 299 (1972)
- 2) 関根俊明、他、"中性子欠損La, Pr同位体の崩壊"、本討論会1A02
- 3) R. Kirchner and A. Piotrowski, Nucl. Instr. Meth. 153 291 (1978)

ON-LINE MASS SEPARATION OF THE MONOXIDE IONS IN THE LIGHT RARE-EARTH REGION

Japan Atomic Energy Research Institute, Shin-ichi ICHIKAWA, Toshiaki SEKINE
Masumi OSHIMA, Hideki IIMURA
Faculty of Science, Osaka University, Naruto TAKAHASHI

1. はじめに

不足当量分析法のうち、比較標準試料を用いる方法は、比較標準と分析試料の比放射能の変化量から目的元素を定量する。目的元素の量に応じて、RI添加法と中性子放射化法が使われる[1]。いずれの方法も、原理が簡潔な上、誤差の要因が少なく、優れているが、選択できる化学反応系が限られ、また、比較標準および分析試料から等しい量を不足当量分離する必要がある、化学操作に熟練を要する。

一方、半導体検出器と多重波高分析器が多用され、不足当量分析法でも、必ずしも目的元素を化学的に純粋に分離する必要がなくなっている。また、市販の小型サイクロトロンにより、原子炉で得にくい無担体放射性同位元素(RI)の製造が容易になっている。

これらを踏まえて、本法では、中性子放射化およびその生成放射性核種と異なる放射性同位元素を添加する方法を組み合わせることにより、不足当量分離しながら、必ずしも等量を分離する必要がない、より操作が簡便な方法を見いだしたので報告する。

2. 原理と特徴2.1 従来法

(1) RI添加法; 分析試料(目的元素: M_x) および既知量(M_s)の比較標準試料を用意する。 M_x 、 M_s に比べ、担体量が無視できるRI(放射能; A 、担体量; M)を両試料に等しく加える。このとき、比放射能 S_x 、 S_s は、(1)式で表される。

$$S_x = A/M_x, S_s = A/M_s, M_x = (S_s/S_x) M_s \quad (1)$$

最終的に、両試料より不足一定量(m)を分離し、それぞれの放射能、 a_x 、 a_s を測定すれば、 $S_x = a_x/m$ 、 $S_s = a_s/m$ であり、 M_x は(2)式より算出される。

$$M_x = [(a_s/m)/(a_x/m)] M_s = (a_s/a_x) M_s \quad (2)$$

この方法は、 M_x 、 M_s M の条件が成り立つ組成分析に適する。

(2) 中性子放射化法; 既知量の比較標準(M_s)を分析試料(目的元素; M_x)と共に中性子放射化する。生成放射能をそれぞれ A_x 、 A_s とすれば、比放射能 S は、

$$S = A_x/M_x = A_s/M_s, M_x = (A_x/A_s) M_s \quad (3)$$

である。 M_x 、 M_s に比べて大過剰の担体(M)を両試料に加えれば、比放射能は、それぞれ $S_x (= A_x/M)$ 、 $S_s (= A_s/M)$ となり、(3)式から(4)式を得る。

$$M_x = (S_x/S_s) M_s \quad (4)$$

両試料より一定量(m)を不足当量分離し、それぞれの放射能 a_x 、 a_s を測定する。比放射能は、 $S_x = a_x/m$ 、 $S_s = a_s/m$ であり、(4)式は(5)式になる。

$$M_x = [(a_x/m)/(a_s/m)] M_s = (a_x/a_s) M_s \quad (5)$$

この方法は、 M_x 、 M_s M の条件が成り立つ微量分析に適している。

2. 2 新たな方法

(1) 新RI添加法；既知量の比較標準と分析試料を中性子放射化する。生成放射能をそれぞれ A_{ox} 、 A_{os} とすれば、比放射能 S_o は、(3) 式と同様、次式で示される。

$$S_o = A_{ox} / M_x = A_{os} / M_s \quad (6)$$

続いて、担体量が無視できる、放射化による生成放射性核種と異なる放射性同位元素（放射能； A 、担体量； M 、但し、 M (M_x 、 M_s) を両試料に等しく加える。最終的に、分析試料、比較標準試料から m_x 、 m_s を不足当量分離し、半導体検出器と多重波高分析器により、添加RIの放射能 a_x 、 a_s を測定すれば、 M_x は(2)' 式から算出される。

$$M_x = [(a_s / m_s) / (a_x / m_x)] M_s \quad (2)'$$

同時に不足当量分離され、 a_x 、 a_s とともに計測される生成放射性核種の放射能を a_{ox} 、 a_{os} とすれば、(6) 式の S_o は、(7) 式になり、

$$S_o = (a_{ox} / m_x) = (a_{os} / m_s) \quad (7)$$

この関係を(2)' 式に代入することにより、 M_x は(8) 式から算出される。

$$M_x = (a_s / a_x) (a_{ox} / a_{os}) M_s \quad (8)$$

(2) 新中性子放射化法；従来法と同様に放射化し、大過剰の担体 (M) を分析試料および比較標準試料に加える。続いて、 M に比べて担体量が無視できる、生成放射性核種とは異なる放射性同位元素（放射能； A_o 、担体量； M_o 、但し、 M_o (M) を両試料に等しく加えれば、加えたRIの比放射能 S_o は、両試料で等しく、(9) 式となる。

$$S_o = (A_o / M)_x = (A_o / M)_s \quad (9)$$

分析試料、比較標準試料から m_x 、 m_s を不足当量分離し、 γ 線スペクトロメトリイにより生成放射性核種の放射能 a_x 、 a_s を測定すれば、 M_x は(5)' 式から算出される。

$$M_x = [(a_x / m_x) / (a_s / m_s)] M_s \quad (5)'$$

同時に不足当量分離され、 a_x 、 a_s とともに計測される添加RIの放射能を a_{ox} 、 a_{os} とすれば、(9) 式の S_o は(7) 式と同様に表される。この関係を(5)' 式に代入することにより、 M_x は(10) 式より算出される。

$$M_x = [(a_x / a_s) (a_{os} / a_{ox})] M_s \quad (10)$$

2. 3 特徴

新しい方法に、放射化あるいはRI添加の操作を加えることにより、基本的には、分析試料、比較標準試料から一回の不足当量分離と放射能測定により目的元素を定量できる。また、妨害元素などに対する不足当量分離法の利点を生かすとともに、分析試料と比較標準試料から等量分離 ($m_x = m_s$) する必要がないなど多くの特徴がある。

3. 参考文献；(1) T. SHIGEMATU, K. KUDO, 日化 (1981) 103-109

NEW SUBSTOICHIOMETRIC ANALYSIS (1) PRINCIPLES AND FEATURES

NTT Opto-electronics Laboratories,

Toshio SHIGEMATSU

1. はじめに

新しい不足当量分析法の原理と特徴をバリウムとイットリウムの定量により確認した。始めに、イットリウムを用いて基本検討を行ない、続いて、新RI添加法によりBa-Y-Cu-O系超伝導酸化物中のバリウム、イットリウムの定量を行なった。また、微量分析に優れた新しい中性子放射化法により、Rb₂CO₃中のイットリウムを定量したので報告する。

2. 実験2. 1 試薬、試料、中性子照射および装置

RIの製造；⁸⁷Y (T=80.3 h, E_γ=484.9 MeV) は、Rb₂CO₃を³He照射し、Rb (³He, xn) ⁸⁷Y 反応により製造し、1半減期冷却後、酸に溶解して調製した。また、⁸⁸Y (T=106.6 d, E_γ=0.898, 1.836 Me) は、TBPによる方法(1)で精製した。なお、¹³³Ba (T=10.7 y, E_γ=355.9 MeV) は、アイソトープ協会より購入した無担体RIを使用した。

分析試料；Ba-Y-Cu-OとBa-Sr-Y-Cu-Oは、X線回折により、単一組成であることを確認(2)し、定量に供した。また、Rb₂CO₃は、純度99.99%の市販品を用いた。

中性子照射；日本原子力研究所原子炉JRR-4気送管 (f=3X10 n/cm²/s) で10分照射した。比較標準試料は、Y金属およびBaCO₃で、純度99.99%の市販品を用いた。なお、定量には、生成放射性核種の⁹⁰Y (T=3.2 h, E_γ=479.5 MeV)、¹³¹Ba (T=11.8 d, E_γ=496.3 MeV)を使用した。

装置；放射能計測は、Ge(LI)半導体検出器—多重波高分析器を用いて行なった。

2. 2 新しい方法の原理の検討

(1) イットリウム分離の試薬量依存性

イットリウムの不足当量分離は、ジエチレントリアミン五酢酸(DTPA)を不足当量試薬とする方法(1)によった。中性子照射したY金属を溶解後、無担体の⁸⁸Yを加え、イットリウム担体量が3.53 μmol、pH6の溶液に調整する。過剰のテノイルトリフルオロアセトン(HTTA)—ベンゼン溶液で抽出したのち、1.56 から4.68 μmolのDTPA水溶液で逆抽出した。水相の⁸⁸Y放射能は、DTPA量が0—3.2 μmolの範囲でDTPA量に比例する。反応当量点近傍で直線から外れるが、⁸⁸Yと⁹⁰Yの放射能の比はDTPA量にかかわらず実験誤差内で一定であり、異なる2つのRIの化学的挙動が同一なことを確認した。

(2) イットリウム分離の担体量依存性

⁸⁸Yで標識された、担体量が2.34 から3.70 μmolの溶液に、それぞれ一定量の無担体⁸⁸Yを加えて溶液のpHを6に調整する。過剰のHTTA溶液で抽出したのち、DTPAでイットリウムを不足当量分離した。DTPA量は、1.56 μmolを基準に、—10%程度増加させた。図1に、Y担体量に対して水相の放射能および⁸⁸Yと⁹⁰Y放射能の比をプロットした結果を示す。

^{90}mY 放射能 (○) は、 $1.56\ \mu\text{mol}$ のDTPAで分離した担体量が2.34、 $2.69\ \mu\text{mol}$ では、 $0.2\ \mu\text{Ci}$ であり、不足一定量のイットリウムが分離されている。同様に、 $1.56\ \mu\text{mol}$ のDTPAを用いる時の ^{88}Y 放射能 (●) は、担体量の増加にともない、破線の理論曲線に従って減少する。DTPA量を増加した残りの3点では、水相の ^{90}mY および ^{88}Y の放射能はいずれも増加している。しかし、両放射能の比から得られる希釈率 (Δ) は、加えた担体量から算出される理論線と一致して

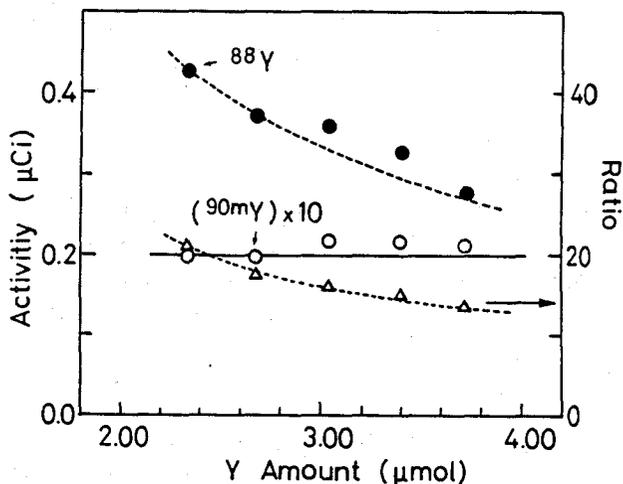


図1 不足当量分離のイットリウム担体量依存性
 いる。即ち、不足当量分離量が異なっても、目的元素が正確に定量できることがわかる。

3. 結果と考察

3. 1 新しい中性子放射化法による Rb_2CO_3 中のイットリウムの定量

原研原子炉JRR-4で10分照射したのち、分析試料および比較標準試料は、酸に溶解、所定の濃度に希釈された。分析には、その一定量を分取し、使用した。両溶液に大過剰のイットリウム担体および無担体の ^{88}Y を加え、溶液のpHを6に調整した。不足当量分析の結果、得られたイットリウム濃度は8.5ppm以下であった。

3. 2 新しいRI添加法による超伝導酸化物セラミックスのイットリウム、バリウムの定量

(1) イットリウムの定量：中性子照射した超伝導酸化物および比較標準のイットリウム金属を酸に溶解後、それぞれ所定の濃度に希釈した。一定量を分取し、それぞれに等量の無担体 ^{87}Y 溶液を加え、pHを6に調整する。過剰のジチゾン、HTTAが共存するベンゼン溶液を加えて振とうし、イットリウムを有機相に抽出したのち、不足当量のDTPAにより逆抽出した。定量値として、Ba-Y-Cu-Oで13.3wt%、Ba-Sr-Y-Cu-Oで13.7wt%を得た。

(2) バリウムの定量：バリウムの定量は、 SO_4^{2-} イオンを不足当量試薬とする方法(3)を用いた。比較標準試料は、 BaCO_3 である。なお、無担体RIとして ^{133}Ba を添加した。定量値として、Ba-Y-Cu-Oで38.1wt%、Ba-Sr-Y-Cu-Oで36.7wt%を得た。

4. 参考文献；(1) 加藤ら、本要旨集 ”高確度、高精度不足当量分析(3)”

(2) M. ODA et al., J. J. Appl. Phys., 26 (1987) L804

(3) M. KATOH, K. KUDO, J. Radioanal. Nucl. Chem., 84 (1984) 277

NEW SUBSTOICHIOMETRIC ANALYSIS (2)

DETERMINATION OF BARIUM AND YTTRIUM IN SUPERCONDUCTING OXIDE

NTT Opto-electronics Laboratories,

Toshio SHIGEMATSU, Masaaki KATOH, Koji SHIKANO

1B03 高確度・高精度不足当量分析 (3)

超伝導酸化物のイットリウムの定量

(NTT光エレクトロニクス研究所)

○加藤正明, 重松俊男, 鹿野弘二, 米沢洋樹

1. はじめに

前報では, RI添加不足当量分析法による高確度・高精度定量法について理論的に検討し, 1%以内の誤差での定量が可能な条件を明らかにした [1]. 本報では, 液体窒素温度以上で超伝導となる酸化物セラミクスのうち, Y-Ba-Cu-O系[2,3]に着目し, 構成元素のイットリウムについて, サイクロトロンで製造した無担体の⁸⁸Yを使用して正確で精度の高い分析を試みたので報告する.

2. 実験

2.1 試薬および分析試料と装置

⁸⁸Y(T= 106.6 d, E_γ=0.898, 1.836 MeV)は, 炭酸ストロンチウムを16MeVプロトンで照射し, ⁸⁸Sr(p,n)⁸⁸Y 反応を利用して製造した. これをリン酸トリブチル(TBP)により抽出分離し, 無担体溶液に調製した [4]. なお, 炭酸ストロンチウム中のイットリウム濃度は5ppm以下であった.

分析試料には, X線回折より単一組成であることを確認したY-Ba-Cu-Oと Y-Ba-Sr-Cu-Oセラミクス[3]を用いた. これらは塩酸に溶解後, 100 ~ 200 μg/ml溶液とした.

放射能測定には, NaI(Tl)シンチレーション検出器, Ge(Li)半導体検出器を使用した.

2.2 イットリウムの不足当量分離

ジエチレントリアミン五酢酸(DTPA)を不足当量分離試薬とするイットリウムの不足当量分離法を検討した. 実験のため⁸⁸Yで標識したイットリウム(担体量 100 ~ 200 μg/ml, 比放射能 0.4 ~ 0.8 μCi/mgY)を, テノイルトリフルオロアセトン(HTTA)-ベンゼン溶液で有機相に抽出し, 水相を除去した. 次に, イットリウムに対して不足当量のDTPAを含む緩衝液を有機相に加え振とうし, これをDTPA錯体として水相へ分離した. 上記のイットリウム担体量に対して, pH = 6.0の時, HTTA濃度が 0.04 ~ 0.06Mの範囲で不足当量分離が可能である. また, 試料中の銅がイットリウムの不足当量分離を妨害するため, 銅に対して過剰のジチゾン共存下でHTTA抽出およびDTPAによるイットリウムの不足当量分離を行ない, 銅-DTPA 錯体の生成による妨害を防いだ.

2.3 超伝導酸化物セラミクスのイットリウムの定量

分析試料溶液と既知量のイットリウム比較標準溶液(イットリウム量はそれぞれ, M_x, M_s)に⁸⁸Y無担体溶液を等量加え, 2.2で確立した方法によりイットリウムを不足当量分離する. これらの放射能計数値(a_x, a_s)から分析試料中のイットリウム量は次式で得られる.

$$M_x = (a_s / a_x) M_s \quad (1)$$

3. 結果と考察

イットリウムの定量結果を表1に示す. 試料1, 試料2はY-Ba-Cu-O, Y-Ba-Sr-Cu-O セラ

かとうまさあき, しげまつとしお, しかのこうじ, よねざわひろき

ミクスを、また、-1, -2はそれぞれ同一ロッドの異なる部分を示す。

比較標準の量 M_s は、分析試料中の目的元素量 M_x を試料作製時の組成より推定して、 $M_x/M_s \approx 1.0$ となるよう決定した。 M_x/M_s の値は いずれも0.974 ~ 1.025であり、最適条件からの偏差は 2.6% 以内に抑えられている。また、 ^{89}Y 溶液中のイットリウム量 ΔM と M_s の比の値、 $\Delta M/M_s$ は 0.001以下であり、これによる定量値の誤差は0.1%以下と推定できる(図1)。また、定量値の相対標準偏差は0.6%以下であり、今回の不足当量分析法により、イットリウムが正確に、かつ、精度よく定量できることがわかる。

表1. 超伝導酸化物セラミックスのイットリウムの定量

試料	Y (μg)		M_x/M_s	Y 濃度(%) [*]	
	推定値	比較標準 M_s			
1-1	194.3	194.3	189.3 \pm 0.9	0.974	13.07 \pm 0.06
1-2	194.8	194.3	189.8 \pm 0.9	0.977	13.10 \pm 0.07
2-1	192.2	194.3	190.1 \pm 0.5	0.979	13.15 \pm 0.05
2-2	201.4	194.3	199.2 \pm 0.2	1.025	13.12 \pm 0.02

* : (3回の平均値) \pm (標準偏差)

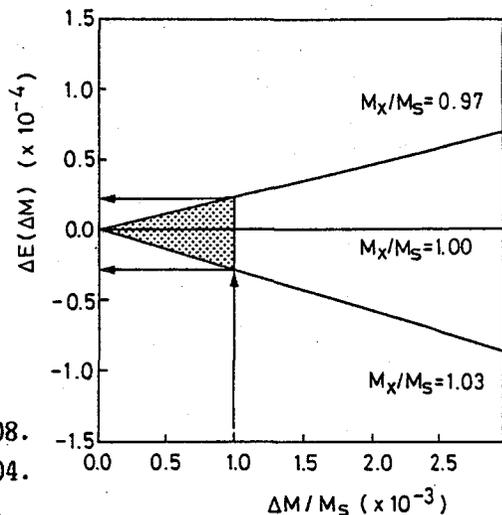


図1. 定量値の誤差の推定

[文献]

1. 加藤他, 第30回放射化学討論会講演要旨集, p.160, 1986.
2. M.K.WU et al., Phy.Rev.Lett., 58(1987)908.
3. M.ODA et al., J.J.Appl.Phys., 26(1987)L804.
4. K.SHIKANO et al., J.Radioanal.Nucl.Chem. Lett., to be published.

ACCURATE AND PRECISE SUBSTOICHIOMETRIC ANALYSIS (3).
DETERMINATION OF YTTRIUM IN SUPERCONDUCTING OXIDE.

NTT Opto-electronics Laboratories,
Masaaki KATO, Toshio SHIGEMATSU, Koji SHIKANO, Hiroki YONEZAWA

1B04

高確度、高精度不足当量分析(4)

— 超伝導酸化物の酸素の定量 —

(NTT 光エレクトロニクス研究所)

○鹿野弘二、米沢洋樹、加藤正明、重松俊男

1. はじめに

$^{18}\text{O}(^3\text{He}, p)^{18}\text{F}$ 反応を用いるY-Ba-Cu-O系超伝導酸化物中の酸素の高確度、高精度な放射化分析法の検討を行った。はじめに、マトリックス構成元素のY、Ba、Cuに対する ^3He エネルギー依存性(Thick target yield)を明らかにし、非破壊分析の照射条件を求めるとともに、比較標準試料中の酸素分析を行い、正確さを検討した。続いて、 ^{18}F の不足当量分離を併用する荷電粒子放射化分析を行なった。これらの結果を報告する。

2. 実験

2.1 試料 Thick target: Y、Cuの金属シートおよび錠剤成型した BaCO_3 、 SrCO_3 。比較標準試料: 熔融石英 (SiO_2)、サファイア (Al_2O_3)、チタン酸ストロンチウム (SrTiO_3)およびチタン酸バリウム(BaTiO_3)。分析試料: 単一組成のY-Ba-Cu-O(YBC)およびY-Ba-Sr-Cu-O(YBSC)系セラミクス[1]。

2.2 照射と放射能測定 ^3He の照射はNTTのサイクロトロンにより行った。21MeVに加速された ^3He を種々の厚さのAl箔で減衰後、電流値 0.5-1.0 μA で1 min照射した。放射能測定は、Ge(Li)検出器 - 4096ch波高分析装置または2つのBGO検出器からなる同時計数装置により行った。

3. 結果と考察

3.1 非破壊荷電粒子放射化分析 図1にY、Ba、Sr、Cu、Oに ^3He を照射した場合のThick target yieldを示す。 ^{18}F の生成量は8MeV以上ではほぼ一定の値(約100 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A}/\text{min}$)となる。また、生成放射性核種として、Yから ^{90}Nb (半減期14.1hr)、Cuから ^{61}Cu (3.4hr)と ^{66}Ga (9.4hr)、Srから $^{87\text{m}}\text{Y}$ (12.9hr)と ^{89}Zr (78.4hr)が生成した。生成量はいずれも8MeV以上で照射エネルギーの増加にともない増大し、15MeVで ^{18}F の生成量に対し、0.1-1.3%に達することがわかる。これらはいずれも ^{18}F と同様に陽電子崩壊する核種であることから、非破壊分析は妨害核種からの影響のない8.5MeVで照射を行った。表1に SiO_2 を比較標準試料とした場合の Al_2O_3 、 SrTiO_3 および BaTiO_3 中の酸素を分析した結果を示す。酸素濃度はAverage cross section法[2]およびAverage stopping power法[3]により算出した値を理論濃度で規格化した。なお、 ^3He の飛程および阻止能はWilliamson[4]およびZiegler[5]の表より算出した。 Al_2O_3 ではいずれの結果も1.2%以内で理論濃度と一致したが、他の試料においては、Average cross section (ACS)法で理論濃度より2-3%低く、一方、Average stopping power (ASP)法では使用

しかのこうじ、かとうまさあき、しげまつとしお、よねざわひろき

する阻止能の値によって、定量値が異なり1.4-4.4%の間で変化した。Al₂O₃以外での定量値のバラツキは、Williamsonの表では、Ti、Sr、Ba に対する³Heの飛程および阻止能を補間法で算出しなければならないこと、また、Zieglerの表では全元素に対する³Heの阻止能を⁴Heの阻止能から算出しなければならないことに起因すると思われる。以上の結果から、8.5MeVと低エネルギーな照射での酸素の定量値は使用する飛程および阻止能の値により大きく異なっており、非破壊分析による正確な酸素の定量には飛程および阻止能の見直しが必要なことが明かとなった。

3. 2¹⁸Fの不足等量分析 酸素の正確な定量を行うため、¹⁸Fの不足等量分離を併用する放射化分析を検討した。15MeVの³Heを照射した酸化物セラミックスをフッ素担体(NaF)とともに酸に溶解後、溶液を過塩素酸および酸化ケイ素とともに加熱し、ケイフッ化水素酸を蒸留した。得られた留出液にフッ素に対し不足等量のランタンを加え、フッ素をフッ化ランタンとして不足等量沈殿分離した。得られた沈殿の放射能測定より、¹⁸Fだけが分離されたことが分った。本法により、YBC、YBSC系酸化物セラミックス中の酸素を分析した。これらの結果を報告する。

表1 酸素の非破壊分析

試料	定量値 (%)		
	ACS法1*	ASP法2*	ASP法3*
Al ₂ O ₃	101.2	101.2	100.7
SrTiO ₃	97.8	101.4	102.4
BaTiO ₃	97.2	101.3	104.4

1* 文献[4]の核定数使用

2* 文献[4]の核定数使用

3* 文献[5]の核定数使用

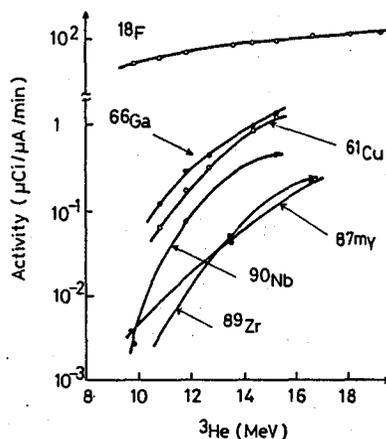


図1 Thick target yield

文献

[1]M.Oda, et al., Jpn.J.Appl.Phys.,26(1987)L804,
 [2]E.Ricci, R.L.Hahn, Anal.Chem.,37(1965)742,
 [3]K.Ishii, et al., Nucl.Inst.Meth.,150(1978)213,
 [4]C.F.Williamson, et al., Report CEA-R3042(1966),
 [5]J.F.Ziegler, "The Stopping and Ranges of Ions in Matter", vol.3-4, Pergamon Press, 1977.

ACCURATE AND PRECISE SUBSTOICHIOMETRIC ANALYSIS (4)
 DETERMINATION OF OXYGEN IN SUPERCONDUCTING OXIDE

NTT Opto-electronics Laboratories,

Koji SHIKANO, Masaaki KATOH, Toshio SHIGEMATSU, Hiroki YONEZAWA

1. はじめに

放射化分析法は様々な試料の諸元素組成を明らかにするうえで非常に有効な方法である。とくに、各種の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標準添加内標準法は、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、荷電粒子放射化分析に本法を適用し、その有効性を確かめてきた。本研究ではフライアッシュ試料を選び、標準添加内標準法による光量子放射化分析法を適用し、微量18元素の同時定量を実施した。

2. 実験

試料はNBSおよびBCR配布のcoal fly ash試料を選んだ。定量目的元素はAs、Ba、Ce、Co、Cr、Cs、Mo、Nb、Ni、Pb、Rb、Sb、Sr、Tl、U、Y、ZnおよびZrの18元素である。標準添加試料は以下のように調製した。まず、試料約1gに上記元素の標準溶液を一定量添加後、濃硝酸を加えてテフロン加圧分解容器中で150°C、5時間放置し、分解した。次に、一旦硝酸を蒸発し、希硝酸およびテトラエチルシリケートをそれぞれ2ml加えてゲル化させた。生成したシリカゲルは電子レンジおよび電気炉中で乾燥させ、粉末状とした。照射にはその一部をとって直径10mmのペレット状に成型したものをを用いた。また、未処理の試料はそのまま約300mgをペレット状に成型した。

照射は東北大学電子ライナックにおいて、加速エネルギー30MeV、平均電流約150 μ A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を用いて γ 線測定を行なった。定量核種からの γ 線を最適SN比で検出するため、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(γ, n)や(γ, p)反応によって ^{22}Na 、 ^{24}Na 、 ^{43}K 、 ^{46}Sc 、 ^{47}Sc 、 ^{48}Sc 、 ^{54}Mn および ^{56}Mn が生成し、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 線を内標準として利用することができた。

やぎますお*、ますもと かずよし

* ; 現在 東北大・金研

本法では、試料に定量目的元素を一定量均一に添加するという操作が不可欠である。そこで、目的元素を添加後、マグネチック・スターラーを使って攪拌しながらゲル化させたところ、鉄を内標準としたときにのみいずれの元素の定量値もばらつきが大きくなった。試料中に含まれる鉄が強磁性であったため、スターラーによる混合の際に不均化したものと判断された。そこで、テフロン製加圧分解容器（ユニシール）を使ってあらかじめ濃硝酸で分解したうえでゲル化させたところ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、少なくとも硝酸による分解操作は不可欠と判断された。また、本定量法では処理過程での定量目的元素の損失や汚染についても同時に知ることが可能であるが、CrやAsなどについて調べたところその事実は認められなかった。

表1にNBS配布のSRM-1633aの定量結果を保証値などとともに示した。PbとUで保証値よりやや低め、Znでやや高めの結果が得られた。Zrでは他の文献値はいずれも本結果に比べ高い値を示している。その他の元素では、保証値と良く一致した。また、再度同様にして行った定量結果やほとんどの妨害核反応が無視できる20MeVでの照射実験の結果も、表1で示した結果と良く一致した。

以上、本法によりYやNbなどこれまで報告のない元素も含めて、数多くの微量元素を精度良くかつ正確に定量できることが示された。

表1. Concentrations of trace elements in NBS SRM-1633a Coal Fly Ash ($\mu\text{g/g}$).

Element	No.1	No.2	No.3	No.4	Average	Certified	Literature* (n)
As	150	142	135	134	140 \pm 7	145 \pm 15	144 \pm 2 (2)
Ba	1410	1450	1360	1520	1440 \pm 70	(1500)*	1400 \pm 200 (14)
Ce	164	171	170	176	170 \pm 5	(180)*	175 \pm 8 (7)
Co	43.4	44.8	45.5	44.9	44.6 \pm 0.9	(46)*	43 \pm 4 (8)
Cr	209	198	194	188	197 \pm 9	196 \pm 6	193 \pm 5 (9)
Cs	11.3	11.2	10.9	11.3	11.2 \pm 0.2	(11)*	10.0 \pm 0.4 (7)
Mo	29.1	28.9	31.6	30.9	30.1 \pm 1.4	(29)*	31 \pm 4 (3)
Nb	30.5	30.3	29.9	30.9	30.4 \pm 0.4		
Ni	128	126	131	126	128 \pm 2	127 \pm 4	124 \pm 12 (4)
Pb	66.5	59.5	65.7	66.9	64.6 \pm 3.5	72.4 \pm 0.4	65 (1)
Rb	131	129	127	131	130 \pm 2	131 \pm 2	140 \pm 12 (8)
Sb	6.0	6.2	5.9	6.3	6.1 \pm 0.2	(7)*	7.1 \pm 0.6 (6)
Sr	835	819	820	795	817 \pm 17	830 \pm 30	
Tl	6.4	6.1	5.8	5.2	5.9 \pm 0.5	5.7 \pm 0.2	4.4 (1)
U	9.2	8.9	9.9	8.9	9.3 \pm 0.5	10.2 \pm 0.1	10.4 \pm 0.2 (4)
Y	79.0	82.9	81.4	82.2	81.4 \pm 1.7		
Zn	231	243	248	254	244 \pm 10	220 \pm 10	235 \pm 16 (7)
Zr	228	228	229	231	229 \pm 1		370 \pm 50 (4)

* : Information value, + : Compiled data (Gladney, 1986).

INSTRUMENTAL PHOTON ACTIVATION ANALYSIS OF ENVIRONMENTAL MATERIALS
 BY INTERNAL STANDARD METHOD COUPLED WITH STANDARD ADDITION METHOD.
 Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University,
 Masuo YAGI and Kazuyoshi MASUMOTO

放射化分析における内標準法は内標準に定量目的元素以外の元素を利用するか、もしくは定量目的元素の同位体のひとつを利用するかによって、まず基本的に二種に分類されよう。このことは、放射化分析法が元素分析法であるとともに同位体分析法でもあるという性質に依っている。さらに、それぞれの定量法は比較試料として試料そのものを利用するか、別個の比較試料を利用するかによって二分できよう。前者は、標準添加を前提としておりマトリックス効果を相殺できる点で優れている。また、後者は簡便さの点で特徴があるが、分析試料中の内標準元素の濃度は正確に分っている必要がある。ここでは、以上の四種の内標準法のなかで標準添加内標準法について述べることにする。

すでに、演者らはこの標準添加内標準法を各種のマトリックス組成の試料の光量子あるいは荷電粒子放射化分析に活用し、その有用性を示してきた。そこで、これまで行ってきた各種試料の分析例をもとに本法の特徴あきらかにするとともに、今後の新たな活用法について考察を加えることにする。

本法の定量式は以下のように与えられる。すなわち、定量目的元素を未知量 x g 含む試料に目的元素を y g 添加したものを比較試料とし、未処理の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を試料(R)と比較試料(R*)について測定すれば、 $x = y / [(R^*/R) - 1]$ と非常に簡便な式から未知量 x g を求めることができる。通常、この生成放射能の比(R*/R)は γ 線ピーク面積の比として求められる。式からあきらかなように、(R*/R)を求めることによって、放射化や測定にともなう各種の補正係数(照射線束、測定ジオメトリなど)が相殺されることになる。また、試料の重量は標準添加の際に一度正確に秤量しておけばよく、実際に照射・測定に供する試料は任意量とればよいことになる。

試料と比較試料の元素組成が類似していることは、幾つかの利点となる。すなわち、照射の際の自己遮蔽や測定の際の試料による自己吸収などのいわゆるマトリックス効果が相殺されるだけでなく、解析の際の γ 線ピークの評価が同一条件下で行えることになる。また、試料内に共存する元素を内標準に利用することによって、試料内部に照射された線束を最も正確に評価できることになる。

本法の短所としては、試料に手を加えるために非破壊分析ではない、通常法より試料量を多く必要とし、微量の試料や貴重な試料の分析には向かない、分析試料それぞれに比較試料を調製しなければならないという点が挙げられる。しかし、本法は本来日常分析法というより標準試料の調製といった精度・正確さに重点を置いた定量法として位置づけられるべきものといえよう。

本法の正確さは、汚染や損失を起こさずに、定量目的元素を正確にかつ均一に試料に添加できるか否かにかかっている。それゆえ、本法を実際の試料に適用する際には、より簡便でかつ確実な方法を工夫しなければならない。演者らは、試料に定量目的元素を添加後、

ますもと かずよし、 やぎ ますお* * ; 現在 東北大・金研

一旦酸分解したうえで、シリカゲルとして固化するという方法によって、固体試料への非常に均一な添加ができることを示した。

ところで、これまでの定量法では定量結果がばらつくとか、偏るなどの場合、試料そのものによるのか、照射などの実験条件によるものかを直接知ることができなかつた。しかし、本法では生成放射能の比をとるために、放射化などの実験条件による誤差要因が取り除かれ、これまで得ることが難しかった試料に関する多くの情報が同時にもたらされることになる。たとえば、本法では試料および比較試料の均一性を自己評価できるという特徴をもっている。すなわち、前記の定量式で R および R^* の値を複数の試料、複数の内標準で相互に比較したとき、 R^* のばらつきに比べて R のばらつきが大きい場合は、試料そのものの不均一を反映している。このような例は、公害研配布の自動車排気粒子中の Zn の定量の際にみられた。また、逆に R^* のばらつきのほうが R に比べて大きいのは、標準添加の操作中に不均一が生じたことを意味している。このような例は、 $IAEA$ 配布の土壌試料や NBS 配布のフライアッシュ試料にたいし簡便な添加法を用いた場合にみられたが、硝酸による分解処理を加えることで解決できることも確かめられた。さらに、特定の元素だけが、どの内標準に対してもばらつくときは、その元素が不均一であり、特定の内標準元素でのみ R がばらつくのは、その内標準元素の方が不均一であることを示唆している。なかには、特定の元素と特定の内標準元素のみが対となって試料内に不均一に分布していることまでも推定できる場合もある。

また、試料処理の際に定量目的元素の損失や汚染が生じたかどうかについても容易に知ることができる。すなわち、特定元素のみを加えない標準添加試料を調製し、その元素について (R^*/R) を求めると、もし汚染や損失が試料の調製過程で生じたときには1より大きいかもしくは小さい値を示すことになる。

本法においても、妨害核反応の補正は避け難い。通常は定量元素と妨害元素の高純度の単体などを同一照射条件で照射して求められる。しかし、それぞれの元素から生成する目的核種の生成量は数桁異なっているため、正確な算定が難しい場合が多い。もし、定量目的元素と妨害元素の濃度が分っている試料に本法を適用すると、定量結果が正の誤差を示すことから、逆に妨害の程度を正確に算定することができる。また、均一性の確かめられた試料について複数の内標準元素を使って得られた定量結果を相互比較することで、試料と比較試料に照射された粒子のスペクトルを比較できる可能性もあろう。

このように、本法が単なる定量法としてだけでなく、同時に試料や照射などに関する種々の情報を得ることができるという特徴を生かすことで、今後様々な応用面が開けるものと期待される。

THE INTERNAL STANDARD METHOD COUPLED WITH STANDARD ADDITION METHOD;
ITS CHARACTERISTICS AND NEW DEVELOPEMENT.
Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University
Kazuyoshi MASUMOTO and Masuo YAGI

1. はじめに

放射化分析法が分析手段として確立されるとともに、地球科学、生物科学および材料科学といった、放射化学以外の諸分野の利用者が増加する傾向にあり、だれでも容易に利用できるような定量法の開発が必要とされている。そこで、演者らはこれまでの精度、正確さに重点をおいた定量法とは異なり、ルーチン分析を目的として、比較法に基づく光量子放射化分析用の自動定量プログラムを開発し、実際試料の分析に適用することを試みることにした。

比較法では、比較標準試料中に含まれその濃度が分っている元素であれば定量可能であるが、ここではタリウムおよびウランの2元素の定量結果について報告する。タリウムは放射化分析では定量の難しい元素とされており、これまで定量例は少ない。また、ウランは環境科学や材料科学の分野で非常に関心が高い元素のひとつであるが、光量子放射化分析の例は数少ない。それゆえ、これらの元素の光量子放射化による定量可能性を明らかにすることは有意義であろう。

2. 実験

試料にはNBS、IAEA、BCRおよびNRC配布の環境試料を選んだ。比較試料にはNBS配布のSRM-1633a coal fly ashを利用することにした。これらの試料はあらかじめ乾燥させたうえで、約300mgをとって高純度アルミニウム箔に包み10mmφベレット状に成型した。試料3個毎に比較試料を1個並べ、石英管に封入した。

照射は東北大学電子ライナックにおいて、加速エネルギー30MeV、平均電流約150 μ A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を用いて γ 線測定を行なった。

解析プログラムでは、まず、自動収集されたスペクトルデータのなかからあらかじめ指定した γ 線ピークの解析、減衰補正、ピーク重なり補正を実行する。次に、照射試料の重量や照射位置などの照射記録のファイルおよび比較試料中の定量目的元素の含有量を使って定量計算が実行される。その際、制動輻射の強度は白金コンバータからの距離にしたがって指数関数的に減衰するものとして各試料に照射された線束の補正を行った。

3. 結果と考察

タリウムの定量には $^{203}\text{Tl}(\gamma, n)^{202}\text{Tl}$ 反応(半減期: 12.2日、440keV γ 線)を利用した。また、ウランの定量には $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$ 反応(半減期: 6.75日、208keV γ 線)を利用した。いずれも、副反応による妨害や γ 線の重なりによる妨害は無視できる程度であった。

比較試料に利用したSRM-1633a coal fly ashはタリウムおよびウランの保証値が報告されており、しかもそれぞれ 5.7 ± 0.2 および $10.2 \pm 0.1 \mu\text{g/g}$ と定量に十分な濃度で含まれているため、比較試料として最適であると判断した。また、これらの値は標準添加内標準法

ますもと かずよし、 やぎ ますお* * ; 現在 東北大・金研

で得られた値とも良く一致した。

表1にタリウムおよびウランの定量結果を保証値などとともに示した。タリウムの保証値が示されているのはNBS SRM-1645のみであるが、本法の結果は良い一致を示している。定量したすべての試料で数ppm もしくはそれ以下の値を示した。本実験条件での定量感度は0.2~0.3ppm であった。それゆえ、本法ではタリウムがppm 以上の濃度で含まれていれば、十分な精度で定量可能であることがわかった。

ウランはタリウムに比べて保証値が求められている試料が多い。本実験ではNBS SRM-1648のみがやや高めの値を示した以外は、定量値と保証値は良く一致した。本条件下での感度は0.3~0.5ppm という値が得られた。今回、定量した環境試料はすべて数ppm 以上の濃度でウランが含まれており、十分な感度で定量可能であることがわかった。

以上、本研究では比較法に基づく光量子放射化分析用プログラムの実用性をテストする意味で、光量子放射化分析で特徴的であるにもかかわらずこれまで定量の報告の少ないタリウムとウランを選び、実際に定量を行った結果、再現性も良く、正確な定量が期待できることが示された。しかし、一般に両元素とも濃度が ppm以下では非破壊定量は難しくなることがわかった。今後は、電子ライナックによる光量子放射化分析の一般利用をより容易にするため、測定条件の決定、測定、核種同定、定量までの一貫した実験者支援システムの開発を進めていく予定である。

表1. Concentration data of Tl and U in various environmental reference materials.

designation	sample description	Thallium		Uranium	
		This work	Certified	This work	Certified
NBS 1645	river sediment	1.4±0.2	1.44±0.07	1.1±0.1	1.11±0.05
NBS 1646	estuarine sediment	0.6±0.1	0.5*	3.0±0.2	
NBS 1648	urban particulate matter	2.8±0.4		6.1±0.1	5.5±0.1
IAEA SOIL-5	soil	0.9±0.1		3.0±0.1	3.15±0.45
IAEA SD-N-1/2	marine sediment	1.2±0.2		2.4±0.2	2.41±0.12
IAEA SOIL-7	soil	0.6±0.2		2.4±0.2	2.6 +0.7, -0.4
IAEA SL-1	lake sediment	1.0±0.3		3.9±0.1	4.02±0.32
BCR 38	fly ash	2.8±0.2		6.8±0.2	
BCR 146	sewage sludge	1.4±0.2		2.5±0.1	
BCR 176	city waste incineration ash	3.0±0.2		4.0±0.3	
NRC BCSS-1	marine sediment	0.6±0.1	0.6*	2.6±0.1	3*
NRC MESS-1	marine sediment	0.8±0.1	0.7*	3.9±0.3	5*

* : Information value.

INSTRUMENTAL PHOTON ACTIVATION ANALYSIS OF THALLIUM AND URANIUM.
Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University,
Kazuyoshi MASUMOTO and Masuo YAGI

(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、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が、生物の種類やその生物の生理調節の影響を受けることが多い。二枚貝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。そこで本研究では昨年度に引き続き、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。この一部は0.45 μ mのメンブランフィルターでろ過し試料とした。これらの液1mlに濃硝酸10 μ lを加えたもの100 μ l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。

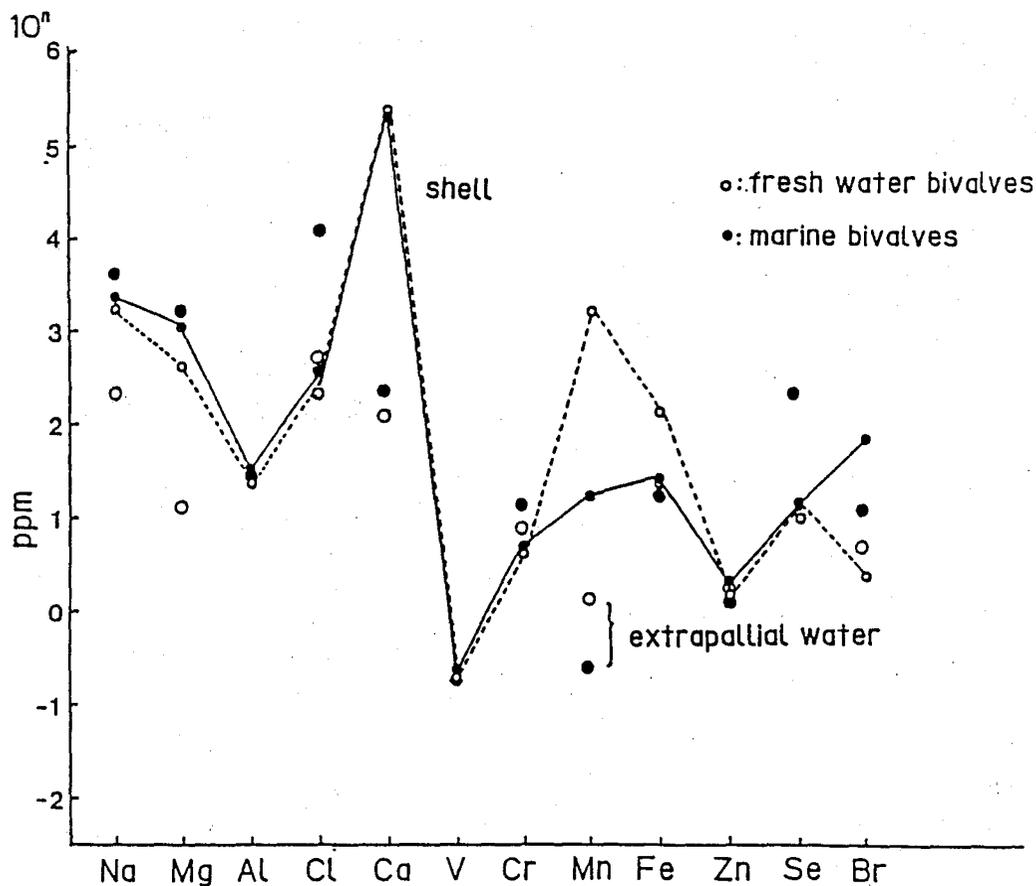
照射および γ 線スペクトロメトリー 試料の照射は立教大学原子力研究所のトリガII型のR.S.R.で行い、I, Br, Mg, V, K, Al, Mn, Cl, Na, Ca および Se, Cr, Fe, Znの γ 線スペクトルを測定した。

2、結果と考察

図に淡水産および海水産二枚貝の貝殻中の化学組成のパターンと、外套液中の各々の元素含有量を示す。海水産種の貝殻中にはNa, Mg, Cl, Br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、淡水産種のはMnの含有量が著しく多く、

よしおかさよこ、てらいみのる

またドブガイではFeを著しく濃縮している。MgやMnのようにCaよりイ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。そのためムラサキガイのcalciteから成る外層の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。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、殻中に取り込まれる元素である。外套液中の元素と有機物との関係を調べるためろ過した試料との比較を行った。また個体別の違いについても報告する。



BEHAVIOR OF TRACE ELEMENTS IN MOLLUSCS SHELL FORMATION No.2

Aichi University of Education,
Tokyo Metropolitan Institute of Technology,

Sayoko YOSHIOKA
Minoru TERAJ

1B09

セリウム内標準中性子放射化分析法による血清中のセレンと亜鉛の定量

(原研東海, 東大医*, 国立公害研**) ○米沢 伸四郎, 星 三千男, 佐伯 正克,
立川 國造, 今井 秀樹*, 兜 真徳**, 鈴木 継美*

1 まえがき 血液中の微量元素濃度等と発癌との関係を明かにするため、原爆被爆者の保存血清を使用し、血清中のセレン、亜鉛及び各種ビタミン類の分析が行われている。この分析において、試料数が約1000個と多い、使用できる試料量が 0.2 ml と少ない、及び要求される分析精度が約 5 % 以下である、等からセレンと亜鉛の定量には長寿命の ^{75}Se ($T_{1/2} = 118.45 \text{ d}$) と ^{65}Zn ($T_{1/2} = 244.0 \text{ d}$) を測定する機器中性子放射化分析法 (INAA) が適しており、演者等はその検討を行った。照射キャプセル内の中性子束の変動による誤差、及び放射能測定の際のジオメトリの違いによる誤差を小さくするためセリウム内標準法の検討を行い、0.1~0.2 ml の試料で 1 試料当たり約 4000 sec 以下の放射能測定により、セレンと亜鉛を 6.7 % 以下の精度で同時に定量できる方法を確立した。

2 分析方法 血清試料 (0.1~0.2 ml) とセリウム標準溶液 (Ce 125 ng) を合成石英(スプラシル-2) 製アンプル (内径 4 mm, 長さ 40 mm) に秤りとり、凍結乾燥後減圧封入する。セレン-亜鉛標準溶液 (Se 4.51~45.8 ng, Zn 55.1~560 ng) とセリウム標準溶液も同様にアンプルに秤りとり、凍結後減圧封入し比較標準試料とする。試料と比較標準試料を JRR-2 垂直実験孔 (VT-7,8, $\phi_{th} = 2 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$) で 265 h 照射し、約 1 ヶ月間冷却する。試料と比較標準試料を取り出し、46 % フッ化水素酸中に室温で 4 min 浸しアンプル表面をエッチング後、水洗乾燥し γ 線スペクトルを測定する。測定条件は、相対検出効率 10~37 % の Ge 及び Ge(Li) 検出器で、試料と検出器間距離 70~80 mm, 測定時間 2000~4000 sec である。 ^{141}Ce 145.4 keV, ^{75}Se 264.6 keV, ^{65}Zn 1115.5 keV γ 線のピーク面積からセレン及び亜鉛量を求めた。

3 結果及び考察 内標準法の検討 内標準としては、(1)中性子放射化分析の感度が高い、(2)生成核種の γ 線スペクトルが単純で、 ^{75}Se と ^{65}Zn の γ 線と重ならない、(3)血清及び合成石英中の含量が低い、(4)凍結乾燥により飛散しにくい、(5)生成核種の半減期が比較的長い、(6)溶解が容易で水溶液中で安定である、(7) (n, γ) 反応の際マトリックスの影響を受けにくい、等の条件からセリウムとツリウムを選びその検討を行った。内標準としてセリウムを用いる方法とツリウムを用いる方法を比較した結果、セリウム内標準法の方が生成核種の ^{141}Ce の γ 線エネルギーが高いことからジオメトリの補正が良く出来ること、及び (n, γ) 反応の際マトリックスの影響を受けにくい、等の点で優れている事が判明した。

試料調製法の検討 試料容器としては不純物含量の少ない合成石英管 (スプラシル-2) を用い、アンプルへの加工は金属元素の汚染を避けるため石英製酸素-水素ガスバーナーを使用して行った。中性子照射の際の放射線分解による血清中の水と固形物への分離、及び内圧上昇を防ぐた

よねざわ ちゅうしろう, ほし みちお, さえき まさかつ, たちかわ えんぞう,
いまい ひでき, かぶと みちのり, すずき つぐよし

め試料の凍結乾燥を行った。凍結乾燥は 1 試料当たり約 4 時間で完了したが、そのまま凍結乾燥操作を最大 20 時間まで行ってもセリウム、セレン及び亜鉛の飛散は認められなかった。

放射能測定法の検討 測定前のフッ化水素酸による試料容器表面の約 5 μm のエッチングにより ^{46}Sc , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{51}Cr , ^{65}Zn , ^{182}Ta が取除かれ、試料容器の放射能は無視する事ができた。同一の血清試料 14 個を用い、三種類の γ 線スペクトロメーターによる測定条件の検討を行った。結果を Table 1 に示す。何れのスペクトロメーターの場合でも 2000~4000 sec の放射能測定により、セレンと亜鉛を 6.7 % 以下の精度で定量することができた。更に測定時間を増加することにより鉄、クロム、コバルト、スカンジウム、セシウム、ルビジウム等の定量も可能であった。

Table 1 Comparison of analytical results measured by three γ -ray spectrometers

標準試料等の分析

本法による標準試料等の分析例を Table 2 に示す。本法による定量値はケイ光光度法、原子吸光光度法による定量値及び表示値と良い一致を示した。更に NBS との共同分析等により本法の正確さを吟味した。

Spectrometer	A	B	C
Relative detection efficiency (%)	10.3	15.9	36.6
Source-detector distance (mm)	70	70	80
Measuring time (sec)	4000	4000	2000
Se Determined (ng/g)	126 \pm 6.8	127 \pm 3.8	127 \pm 6.3
C.V. (%)	5.4	3.0	5.0
Zn Determined (ng/g)	887 \pm 59	929 \pm 48	927 \pm 50
C.V. (%)	6.7	5.2	5.4

Sample number (n) = 14

Table 2 Analytical results of several samples

Sample	Se Contents		Zn Contents	
	Present method	Other method	Present method	Other method
Pool serum (ng/g)	132 \pm 7.8 (n=6)	130 \pm 4.8*	950 \pm 37 (n=6)	920,918**
Serum NIES CRM No.4 (ng/g)	108 \pm 6.9 (n=10)		914 \pm 55 (n=10)	
Bovine liver ($\mu\text{g/g}$)	1.22 \pm 0.10 (n=5)	1.1 \pm 0.1***	146 \pm 15 (n=5)	130 \pm 13***

* Fluorometry, ** AAS, *** Certified values

DETERMINATION OF SELENIUM AND ZINC IN SERUM BY CERIUM INTERNAL STANDARD NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS

Japan Atomic Energy Research Institute, Chushiro YONEZAWA,
 Michio HOSHI, Masakatsu SAEKI, Enzo TACHIKAWA
 The University of Tokyo, Hideki IMAI, Tsuguyoshi SUZUKI
 National Institute for Environmental Studies, Michinori KABUTO

(青学大理工・地調)^{*} ○吉原 剛、斎藤裕子、木村 幹、
石原舜三^{*}

<序論>

中性子放射化分析法の発達に伴って岩石中の金の定量値は増加してきた。これまで、アメリカ西部の岩石について金含量は塩基性岩で高く、酸性岩で低いという結果が得られている¹⁾。しかし、日本の深成岩についてはこれと逆の結果が得られている (Table 1)²⁾。本研究は日本産花崗岩体中の金を定量し、金の結晶分化作用における挙動を明らかにすることを目的とする。

Table 1 Gold abundance in ppb of plutonic rocks

Rock type	Japan		Western U.S.A.	
	Range (n)	Av.	Range (n)	Av.
Gabbroids	0.2-5.3 (10)	1.1	0.6-11.6 (7)	3.9
Diorite-tonalite	0.4-5.8 (4)	2.4	0.2-11.3 (19)	2.7
Granodiorite	0.2-6.1 (13)	3.0	0.1- 5.2 (60)	1.2
Granite	0.4-7.1 (10)	3.8	0.1- 2.7 (29)	0.8

<試料>

岩石試料は磁鉄鉱系花崗岩類として丹沢・新島・谷川岳の岩体を、干タニ鉄鉱系として大崩山・高月山、両者が共存するものとして甲府・対馬の岩体を用いた。対馬の花崗岩類は塩素含量が高いことで特異的である。また、丹沢・新島・甲府(芦川型)は K_2O/Na_2O 比が低いことで特異的である。

<方法>

金の定量は金-195E 収率トレーサーとして用い、放射化前分離法により行った。詳述は前報³⁾に報告した。概略を以下に示す。

岩石試料(0.5~0.1g)に金-195トレーサーを一定量加え、塩酸・硝酸・フッ化水素酸・過塩素酸を用いて加熱分解する。蒸発乾固後、3M塩酸系とし、酢酸エチルにより金を抽出分離する。酢酸エチル相を蒸発乾固し、硝酸を用いてポリエチレンカプセルに固着する。収率は α -ミニ干レーショニカウンターにより金-195の γ 線(99 keV)を測定することにより求めた。中性子照射は日本原子力研究所JRR-4(Tピイ70)にて20~30分間行った。

<結果>

丹沢・新島および甲府の結果をFig. 1, 2に示す。磁鉄鉱系では金は SiO_2 含量の増加に対し、ほぼ一定が増加する値向が見られた。甲府の干タニ鉄鉱系では金含量はばらついている。このうち金含量の高い試料(8.0ppb)は硫黄含量(3860ppm)も高く、この

よしはらつよし、さいとうゆうこ、きむらかん、いしはらしんどう

試料はマグマの上昇の過程で大量の堆積岩と反応したものであると考えられる。

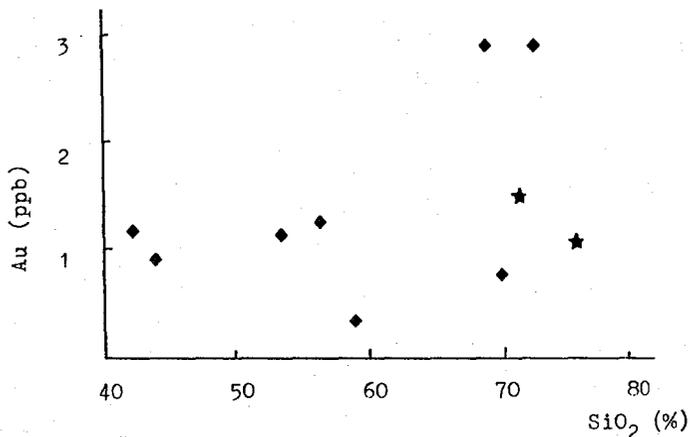


Fig.1 Gold-silica plots of Tanzawa and Niijima samples

◆ Tanzawa
★ Niijima

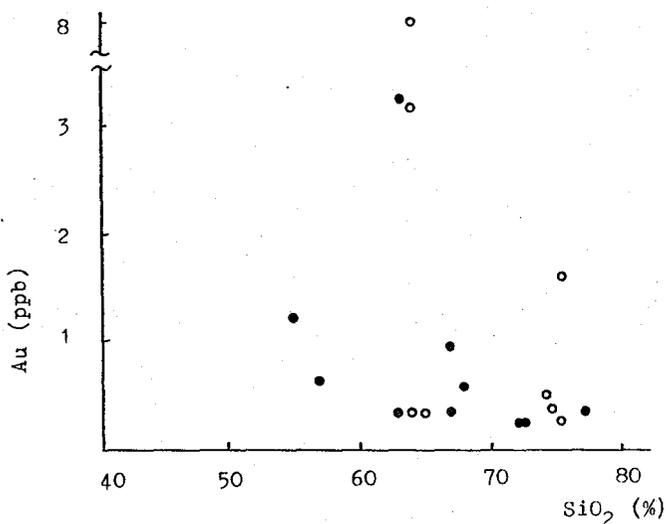


Fig.2 Gold-silica plots Kofu samples

● magnetite-series
○ ilmenite-series

- 1) Gottfried, D. et al., U.S. Geol. Surv. Prof. Paper, 727, 42p (1972)
- 2) 石原翁三・他, 鉱山地質, 35, 295 (1985)
- 3) 斎藤裕子・他, 第30回放射化学討論会講演予稿集, 180 (1986)

NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS OF GOLD IN NEOGENE GRANITOIDS.

College of Science and Engineering, Aoyama Gakuin University,
Tsuyoshi YOSHIHARA, Yuko SAITO, Kan KIMURA
Geological Survey of Japan, Shunso ISHIHARA

(武蔵工大・原研) ○中西 幸雄 鈴木 章悟 平井 昭司

1. 緒言

多くの試料中の希土類元素の定量には、ICP発光分光法、同位体希釈法、蛍光X線分析法、中性子放射化分析法などが用いられている。希土類元素は、一般に高い中性子放射化断面積を有するため、中性子放射化分析法を定量手段とすると高感度に検出することが可能となる。本研究では、通常の γ 線測定に使われる同軸型Ge検出器と γ 線エネルギーが100 keV前後の低エネルギー領域で有効な平板型Ge検出器を用いる方法と同軸型Ge検出器と井戸型NaI(Tl)検出器とを併用する同時・反同時計数法を使用することで機器中性子放射化分析法により石炭中の希土類元素を正確に精度良く定量する方法を検討したので報告する。

2. 実験

分析試料は、国内および国外の40種類の石炭約100mgを精ひょうし、ポリエチレン袋に二重封入した。照射は、武蔵工大炉を使用し、生成核種の半減期により短時間照射、長時間照射の二種類の条件で行った。短時間照射試料は、気送管(熱中性子束密度 $1.2 \times 10^{12} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$)で2分間照射し、40~60分間冷却して γ 線測定を行った。長時間照射試料は、中央実験管(熱中性子束密度 $3.8 \times 10^{12} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$)で5時間照射し、冷却時間(3~5日と30~40日)を変えて2回の γ 線測定を行った。また、新たに I^{131}m , La^{139}m の定量のため、照射溝(熱中性子束密度 $7.5 \times 10^{11} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$)で1時間照射し、7~24時間の冷却時間の後、同時・反同時計数法による γ 線測定を行った。

3. 結果および考察

ウランが含有する試料を照射すると分析目的核種が生成されると同時に ^{235}U の核分裂により、質量数約90と140の核分裂生成物が試料中に生成される。そのため分析目的核種の質量数が約90あるいは140の近傍である場合、その定量値はウランの濃度の量によって影響を受ける場合がある。希土類元素の生成核種は質量数140~177であることから、石炭中の希土類元素を正確に定量するには、ウラン濃度との関係により補正が必要となる。特に、ランタン、セリウム、ネオジム、サマリウム、イットリウムには、その影響が多少現れ、なかでもサマリウムは有効数字2桁目に影響がみられる。NBSの石炭標準試料SRM 1632aを分析し核分裂生成物の影響を補正した結果をTable.1に示す。また、この試料のウラン含有量は、 $0.988 \pm 0.071 \text{ ppm}$ (本分

なかにし ゆきお すずき、しょうご ひらい しょうじ

析)であり、これから生じる希土類元素の含有量をTable.1に示す。

得られた定量値をXRF法で規格化し、希土類元素分布パターンと石炭産地、石炭化度との関係についても報告する予定である。

Table.1 Concentration of Rare Earth Element in NBS coal SRM 1632a (ppm) U;0.988ppm

Element	This work	Literature value			Fission Product
		Ref.1,2	Ref.3	Ref.4	
La	13.1±0.6	10.7±0.4	10.9±0.5	8.88±0.74	0.022±0.002
Ce	26.9±0.5	29.0±1.0	27±4	—	0.31±0.03
Pr	3.0	4.6±0.5	—	—	—
Nd	13.6±1.0	16.9±1.4	—	—	0.24±0.02
Sm	1.93±0.13	2.9±0.2	1.1±0.1	—	0.48±0.04
Eu	0.482 ±0.015	0.50±0.06	0.54±0.08	0.49±0.05	0.013±0.003
Gd	2.19±0.18	3.4±0.3	—	—	—
Tb	0.343 ±0.012	0.26±0.02	—	0.33±0.12	—
Dy	1.90±0.02	2.4±0.2	—	—	—
Ho	0.407 ±0.03	0.34±0.11	—	—	—
Er	0.91	—	—	—	—
Tm	0.297 ±0.025	0.38±0.04	—	—	—
Yb	1.13±0.14	1.03±0.08	—	1.14±0.20	—
Lu	0.206 ±0.016	0.21±0.02	0.134 ±0.013	0.163 ±0.010	—

Referance

- 1)鈴木 章悟, 平井 昭司 : 分化, 31,443 (1982)
- 2)鈴木 章悟, 平井 昭司 : 分化, 33,181 (1984)
- 3)K.N.Kostadinov,R.G.Djingova :Radiochem.Radioanal.Letters.,45,297(1980)
- 4)M.S.Chaudhary,S.Ahmad,A.Mannan,I.H.Qureshi:J.Radioanal.Chem.,83/2,387 (1984)

DETERMINATION OF RARE EARTH ELEMENT IN COAL BY INSTRUMENTAL NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS

Atomic Energy Research Laboratory , Musashi Institute of Technology ,
Yukio NAKANISHI, Shogo SUZUKI, Shoji HIRAI

1B12

植物—人間間の微量元素循環

(都立科技大、愛教大、都立立川短大、都立農試)

○寺井 稔、吉岡 小夜子、吉田 勉、加藤 哲朗

1. はじめに

宇宙ステーションのように空間的にも物質的にも極めて限定された場所で生物が生命を維持して行くためには、非常に多くの問題を考慮しなければならないことは周知のとおりである。このような場所での生存システムを検討する場合に、生命現象に関する基礎的な研究も重要なことである。生体が生命を維持するのに必要なエネルギー源や呼吸系に関する研究は多く見られるが、生体内の化学反応を正常に進行させるために必要な微量元素の問題に関する研究報告はほとんど見られない。生物の体内には約50種の元素が、存在すると報告されている。この内炭素(C)、水素(H)、酸素(O)、窒素(N)、リン(P)、カルシウム(Ca)、ナトリウム(Na)、カリウム(K)など生物の構成成分となる多量あるいは微量元素については、食物の生産システムが変化しても大きな問題は生じないことが予想される。しかし、生体の要求量は微量であっても必要不可欠の元素がある。例えば、コバルト(Co)、クロム(Cr)、銅(Cu)、鉄(Fe)、よう素(I)、マグネシウム(Mg)、マンガン(Mn)、モリブデン(Mo)、いおう(S)、セレン(Se)、スズ(Sn)、亜鉛(Zn)などの微量元素である。これらの微量元素は、生体内では主として酵素系の中心元素となって重要な作用を示しその量が不足すると生体に重大な影響を及ぼすことがある。

2. 生存システムの模式図

宇宙ステーションに利用される生存システムでは、養液栽培が中心となることが予想されるので上記の微量元素の養液—植物—人間システムにおける挙動を検討する必要がある。植物—人間間の微量元素循環システムは図1のような様式が考えられる。閉鎖空間内で植物がいろいろな微量元素を含む各種の食品を生産する。それを人は体内に取り込み吸収できなかった微量元素は排泄物として体外に

てらい みのる、 よしおか さよこ、 よしだ つとむ、 かとう てつお

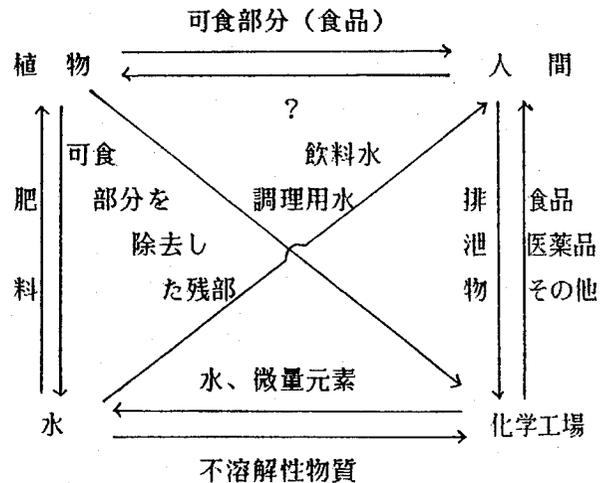


図1. 植物—人間間における微量元素循環システム

出す。排泄物は、化学処理工場に送られて再利用可能な状態にされ水に溶かされて再び植物に送られる。化学処理工場で処理されても再利用不可能な状態の物質が生成される可能性がある。この分は損失量として系外から移入しなければならない。本研究では、宇宙生存システムに関する基礎的研究の第一歩として養液栽培によって生産された食物に含まれる上記の微量元素量を測定し養液栽培の妥当性を検討することを目的とする。

3. 養液栽培に使用される養液の成分について

現在市販されている養液栽培に使用される肥料の例を表1に示す。養液肥料の成分を見ると、植物の種類あるいは生長の時期によって使用する肥料成分が異なるようで

(1) 窒素、リン酸、カリウムを中心にしてマグネシウム、マンガン、ほうそ(B)、いおうを混合したもの、(2) 窒素とカルシウムだけのもの、(3) 窒素、カリウムに銅、亜鉛およびモリブデンを添加したものの三種類に分類することが出来るようである。植物の種類によっては微量元素としてこの外にニッケル(Ni)、コバルト(Co)ケイ素(Si)、スズ(Sn)等の元素を必要とするものもある。

表1. 市販養液栽培用肥料の成分表* (%)

No.	TN	AN	NN	P ₂ O ₅	K ₂ O	CaO	MgO	MnO	Fe	B ₂ O ₃	Cu	Zn	Mo
1	10	1.5	7.5	8	24		5	0.1	0.18	0.1			
2	6	6			9			2	5.7	2	0.04	0.08	0.04
3	10	1.3	7.5	8	26		5	0.1	0.18	0.1			
4	3.6	3.6		18.4			13.2	0.11	0.37	0.17	0.025	0.08	0.015
5a	7.6	0.2	7.4		3.2	7.8	3.3	0.01	0.11	0.05			
5b	1.5	0.3	1.2	2.7	6.7								
6								0.77	70ppm	2.47	0.007	0.16	0.63

*: この表は全農連農業技術センターの脇岡氏の好意により転用させていただいた。

4. 養液栽培により生産された野菜中の微量元素含量

市販されている養液栽培された野菜中の微量元素含量を中性子放射化分析によって測定した。放射化分析は、立教大学原子力研究所で行った。

5. 今後の研究計画

この研究は、新たに始めたものであり今後外的な条件を一定にした状態で養液栽培したものと土耕によって栽培したものと植物中に含まれる微量元素含量を測定したものとを比較してヒトが宇宙空間で生存していくための栄養問題に関する基礎的なデータを蓄積していく予定である。

TRACE ELEMENTS IN PLANT-HUMAN SYSTEMS

Tokyo Metropolitan Institute of Technology, MINORU TERAI

Aichi University of Education, SAYOKO YOSHIOKA

Tachikawa College of Tokyo, TUTOMU YOSHIDA

Tokyo Metropolitan Agricultural Experiment Station, TETUO KATO

(武蔵工大・原研) ○遠藤美徳, 平井昭司

【はじめに】

大気汚染は環境汚染の中でも特に重要な問題であり、その中でも自動車交通を汚染源とする大気汚染は、身近な問題である。この解決策として排出ガス規制などの対策が行われているにもかかわらず、人口の過密した大都市、幹線道路周辺では現在も深刻な問題となっている。

このような問題を解決するには、多くの学問的アプローチによる環境調査が重要であり、一般環境大気測定局での二酸化窒素濃度の環境基準の達成や沿道植物による大気浄化効果の研究などがその一例である。しかし、自動車交通は移動排出源であるため、周辺環境への影響予測などの解決が困難な問題も多い。

本研究では、道路周辺環境で強く排出ガスの影響を受けている道路沿いに堆積した塵埃に注目して、高感度分析法のひとつである中性子放射化分析法を用いて塵埃中の臭素・塩素といくつかの微量元素の濃度分析による環境調査を試みた。

【実験】

採取試料として、どこにでもありかつ雨の影響の少ないと思われる歩道橋階段裏に付着した塵埃を用いる事にした。塵埃は、東京都内の幹線道路沿いの数10ヶ所の歩道橋階段裏から一定の高さで筆で軽く擦ることにより、数mgから数10mgを採取した。採取後、塵埃の重量を測定し、洗浄したポリエチレン袋に二重封入して分析試料とした。

分析試料の照射は当研究所の原子炉で行い、短寿命の核種の分析では気送管(熱中性子束密度： $1.5 \times 10^{12} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$)で2分間照射後・15-20分間冷却・900秒 γ 線測定、中寿命の核種の分析では照射溝(熱中性子束密度： $7.5 \times 10^{11} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$)で5時間照射後・3-7日間冷却・1-2時間 γ 線測定を行った。各 γ 線測定には、Ge(Li)検出器とマルチチャンネルネルボ高分析器とを用いた。収集した γ 線スペクトルデータの解析はパーソナルコンピュータにより行い、表1に示すような核種に注目してBr・ClだけではなくAl・V・Mn・Na・Feの7元素の定量を行った。

表1 測定した核種

核種	半減期	γ 線エネルギー (keV)	
Br-82	35.87時間	554.3	776.5
Na-24	15.02時間	1368.5	1732.1
Fe-59	44.6日	1099.2	1291.6
Cl-38	37.3分	1642.2	2167.6
Al-28	2.24分	1778.7	
Mn-56	2.58時間	1810.7	2113.1
V-52	3.75分	1434.1	

えんどうよしのり, ひらいしょうじ

【結果および考察】

1] 2]

図1に得られた定量値を(1)式に代入して求めた各元素の土壤に対する濃縮係数を示す。図のMn・Fe・V・Naの濃縮係数が小さなばらつきで1に近いことから、歩道橋階段裏に付着した塵埃は、かなり土壤の影響の強い物質であることがわかる。しかし、Br・Clに関しては、その濃縮係数が1よりかなりばらついて大きいことから、この二つの元素は他に大きな影響を及ぼすものと予測される。ここで、ガソリン中のBr・Cl^{3]}の存在から階段裏に付着した塵埃には、土壤などが舞上がったものに排出ガスを排出源とするBr・Clが付着してできたものと考えられる。

$$\text{濃縮係数 [EFi] }_j = \frac{X_{ij}/X_{kj}}{X_{is}/X_{ks}} \dots\dots(1)$$

X_{ij}: 塵埃中の各元素濃度
 X_{kj}: 塵埃中のAl濃度
 X_{is}: 土壤中の各元素濃度
 X_{ks}: 土壤中のAl濃度

図2に採取地点付近での自動車交通量とBr濃度の関係を示す。両者の間には、相関係数0.83というよい関係がみられた。Clについても同様であった。ただし、この関係は道路の周辺環境が似ている採取地点でのBr・Cl濃度の間に成り立っている。

以上により、道路沿い塵埃中のBr及びClを定量する環境調査により、自動車交通による周辺環境への影響を評価できるのではないと思われる。

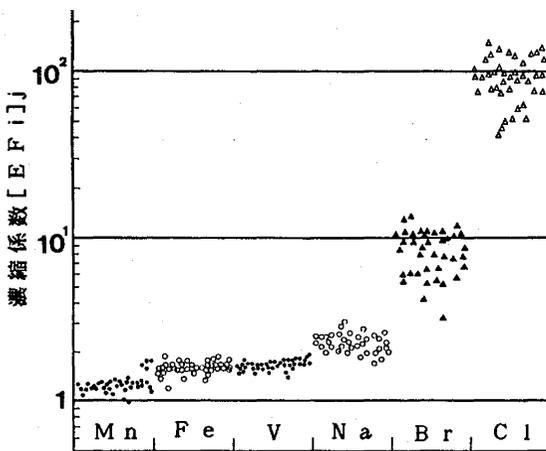


図1 各元素の濃縮係数

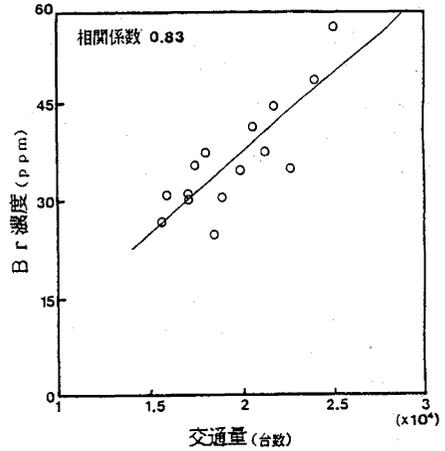


図2 Br濃度と自動車交通量の関係

参考文献

- 1] 溝畑朗・松田八束・坂本和彦・角脇伶(1986) 粒子状大気汚染物質の化学組成. 大気汚染学会誌
- 2] H. J. M. Bown: Trace Elements in Bio-chemistry, p39, Academic Press, New York (1966)
- 3] 鈴木章悟・平井昭司(1983) 放射化分析によるガソリン, 軽油中の微量元素の含有状況. 日本化学会誌
- 4] 警視庁交通部(1985) 交通量統計表

DETERMINATION OF BROMINE AND CHLORINE IN DUST ALONG ROAD BY INSTRUMENTAL NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS

Atomic Energy Research Laboratory Musashi Institute of Technology, Yoshinori Endo, Shoji Hirai

(金沢大・理、金沢女子短大*)

○宮本ユタカ、青田尚美*、小三田栄、深沢拓司、尾崎裕司、梶瀬彰、
浜島靖典、坂本浩

〔序〕 日本地質調査所発行の標準岩石の中性子放射化分析を希土類元素を中心として行い、すでに一部報告済みであるが、火成岩シリーズは昨年3試料が追加され下記の如く計15種となり、また今年には堆積岩シリーズの最初として3試料が調製発行された。そこで今回はこれらの新試料の分析結果、及びこれまでの他の試料の再分析の結果を合わせて報告する。

〔試料〕・GSJ旧試料/JB-1(北松浦玄武岩) データは、安藤('86)及び海老原他(85a)

・GSJ新試料/火成岩シリーズ;安山岩[JA-1('82), JA-2('85), JA-3('86)]

玄武岩[JB-1a('83), JB-2('82), JB-3('82)]

花崗岩[JG-1a('83), JG-2('85), JG-3('86)]

長石 [JF-1('85), JF-2('86)]かんらん岩[JP-1('83)]

流紋岩[JR-1('82), JR-2('82)]はんれい岩[JGb-1('82)]

堆積岩シリーズ;湖底堆積物[JLk-1('87)], 石灰岩[JLs-1('87)]

ドロマイト[JDo-1('87)]

・合成試料/ $\text{SiO}_2 + \text{希土類元素 (Sm, Tb, La, Yb, Lu)}$

$\text{SiO}_2 + \text{希土類元素 (Er, Nd, Ho, Ce, Dy, Eu, Pr)}$ } それぞれ濃度の

異なるものを3種類

〔実験〕 各試料約 100mgを秤取し、ポリエチ管に熔封。これの適当な組合せ12-14個を1カプセルとして京大炉圧気輸送管(Pn-2)で 1, 30, 60分照射。適当な冷却後再秤取し、非破壊及び一部は希土類元素の属分離、ハロゲンの各個分離を行ってGe(Li)検出器による γ 線スペクトロメトリーを行った。核種の帰属、定量はすべて壊変を追跡し、光電ピークのエネルギー及び半減期によって行い、最小二乗法で照射終了時における試料の単位重量当りの cps値を求めた。
〔濃度定量〕 希土類元素は各カプセルにいた合成試料及びJB-1中の各元素核種毎にその含有量(mg)-cpsをプロットし、JB-1と合成試料から検量線の直線性とJB-1との一致性を検討して最小二乗法で検量線を作成した。また、ハロゲン元素及び希土類元素以外の元素については、非破壊法でJB-1とのcps/mg値の比較定量から求めた。

〔結果、考察〕 対象元素は30程度で全試料の我々の分析結果については討論会場にて配布するが、新試料のJA-3, JG-3, JF-2とこれらと同種試料、及び新堆積岩シリーズのJDo-1, JLs-1および JLk-1の結果を表1に掲げた。Ti, Mg, Vは分析値の数が極端に少なく、また誤差が大きい。いずれも短寿命核種で定量が難しい。また、Nd, Prも属分離を行ったがピークが低いために誤差が大きい。表のうち安山岩JA-1, 2及び 3を例に他の研究室の結果[Δ ; 安藤ら('86)、 \diamond ; 青木ら('85)、 \square ; 葉袋ら('85)、 \circ ; 海老原ら('85b)]と比較したのが図1である。概して相互の一致は良いように見えるが、JA-1, 2, 3共にいずれの研究室とも合わない場合(Ta, V, Pr, Dy)、一部または大部分の研究室と合うがある研究室とは合わない場合(JA-1のK, Ba, Sm, Eu)がある。

同じ岩石種間でみると、安山岩シリーズで、JA-1はJA-2及び 3と較べて例えば軽希土では濃度が低い重希土では高いし、Rb, Csの微量アルカリ元素では極端に低い。図にはないが他の岩石種シリーズ、例えば花崗岩シリーズ(JG-1a, 2, 3)の希土類元素では概して互いに似ているがJG-2のEu, JG-3のDyでは他の2つのJGとは大きく異なる。長石シリーズ(JF-1, JF-2)では、ややJF-1の方が濃度が高い傾向があるがBa, Co, Cr等で大きく異なる。長石シリーズはK, Ba, Rbを除いて他の火成岩シリーズよりもほぼ1桁濃度が低い。堆積岩シリーズではJLk-1が他の2つよりもほぼ1桁濃度が高くまた、希土類元素の濃度は全般として安山岩、花崗岩シリーズよりも高いことがわかる。残りの2つの堆積岩は表中の火成岩シリーズよりも全体的に低く、用途により試料を使い分けることができよう。

みやもとゆたか、あおたなおみ、こさんださかえ、ふかさわたくじ、おざきゆうじ
くぬぎせあきら、はまじまやすのり、さかもとこう

表1

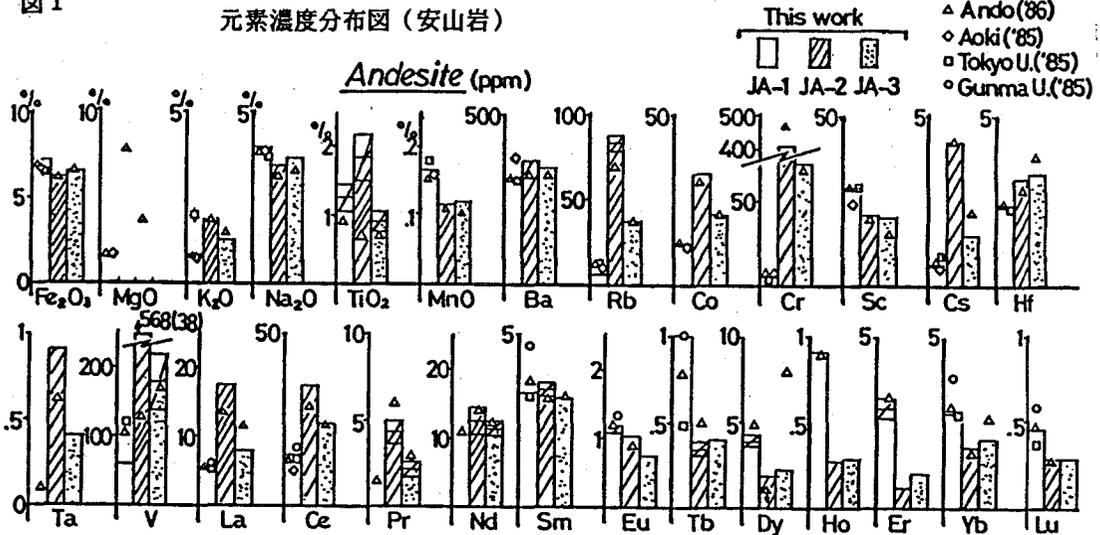
新標準岩石濃度表

* 及びLa以下はppm ()内の数字は誤差

	JA-1	JA-2	JA-3	JG-1a	JG-2	JG-3	JF-1	JF-2	JDo-1	JLs-1	JLk-1
MnO(%)	.164(.004)	.114(.003)	.123(.004)	.060(.002)	.017(.001)	.079(.001)	8.53(.41)*	9.81(.47)*	.086(.008)	.030(.003)	.029(.002)
Na ₂ O(%)	4.00(.08)	3.37(.09)	3.66(.17)	3.31(.05)	3.53(.28)	4.20(.27)	3.72(.02)	2.67(.15)	.23(.03)		1.17(.14)
K ₂ O(%)	.81(.08)	1.86(.20)	1.18(.17)	3.27(.47)	13.0(1.3)	2.65(.11)	3.27(.47)	9.80(.51)	12.7(.83)		
TiO ₂ (%)	1.25(.21)	1.83(.30)	.88(.16)								
HgO(%)									14.1(5.5)	3.90(1.3)	
Fe ₂ O ₃ (%)	7.18(.17)	6.28(.11)	6.55(.10)	1.86(.07)	1.01(.01)	3.66(.04)	.088(.003)	.059(.002)			7.05(.12)
La	5.31(.13)	17.73(.48)	8.24(.16)	20.21(.25)	19.73(.61)	22.72(.41)	3.04(.05)	.65(.01)	8.24(.29)	.172(.008)	40.62(.81)
Ce	14.71(.19)	34.9(1.2)	23.76(.80)	48.0(1.2)	48.0(1.7)	38.6(1.0)	4.69(.26)	1.10(.06)	3.31(.17)	1.67(.13)	95.1(3.0)
Pr		4.33(.58)	2.08(.54)	6.70(1.18)	6.66(2.55)	6.62(.71)					7.30(1.30)
Nd		12.6(2.0)	11.6(.8)	29.2(2.5)	37.6(3.5)	16.9(1.6)	1.45(.17)		5.99(1.24)		46.0(3.5)
Sm	3.36(.08)	3.31(.15)	3.25(.07)	4.60(.11)	5.95(.33)	3.55(.22)	.372(.01)	.061(.005)	.807(.029)	.191(.018)	8.09(.32)
Eu	1.12(.03)	1.05(.02)	.78(.014)	.750(.022)	.056(.002)	.948(.025)	.850(.013)	.582(.011)	.236(.019)		1.55(.08)
Tb	1.07(.11)	.339(.040)	.403(.031)	.848(.066)	1.20(.19)	.440(.039)	.067(.006)		.092(.009)		1.20(.079)
Dy	3.95(.192)	1.90(.345)	2.32(.095)	4.33(.19)	5.87(.33)	1.65(.15)	.256(.010)	.017(.004)	1.05(.06)	.030(.002)	
Ho	.923(.089)	.272(.049)	.294(.025)	.684(.072)	1.31(.07)	.244(.031)	.107(.011)	.021(.004)			
Er	2.89(.27)	.584(.049)	1.01(.06)	2.00(.28)	3.76(.42)	.930(.061)					3.81(.62)
Yb	2.76(.16)	1.76(.08)	2.05(.07)	2.77(.08)	3.04(.12)	1.88(.08)	.348(.016)	.059(.009)	.185(.071)		4.19(.29)
Lu	.48(.017)	.293(.014)	.288(.014)	.38(.02)	.331(.027)	.249(.012)	.051(.003)	.025(.003)	.042(.006)	.033(.004)	.710(.069)
Ba	311(19)	359(16)	344(19)	452(19)	169(27.3)	517(26)	1752(92)	323(18)		749(94)	422(61)
Co	10.80(.29)	31.74(.43)	21.32(.35)	5.07(.21)	2.74(.06)	12.28(.13)	.115(.019)	.764(.030)			18.58(.43)
Cr	5.15(.57)	410.2(7.1)	71.0(1.0)	14.1(.6)	9.15(.91)	21.49(.41)	4.22(.12)	.578(.069)	7.32(.59)	3.67(.45)	62.8(2.2)
Cs	.579(.057)	4.18(.15)	1.53(.07)	10.27(.20)	5.32(.17)	1.58(.10)	1.69(.08)	.901(.035)			7.52(1.01)
Hf	2.35(.03)	3.13(.11)	3.37(.06)	.377(.14)	5.62(.11)	4.13(.10)	1.22(.04)	.360(.096)		.282(.092)	3.85(.17)
Rb	7.38(1.60)	83.5(5.0)	37.5(2.3)	173(7)	289.4(8.3)	77.2(5.3)	286.5(7.5)	215(23)			
Sc	29.2(.3)	20.5(.1)	20.27(.34)	6.21(.20)	2.36(.05)	9.00(.04)	.224(.015)	.077(.002)	.126(.008)	.032(.004)	15.95(.48)
Ta		.898(.078)	.406(.098)	2.62(.15)	2.90(.45)	.789(.054)	.089(.031)				1.85(.18)
V	59.5(3.8)	569(38)	178(42)								

図1

元素濃度分布図 (安山岩)



(文献) A.Ando et al., Private Comm.('86)
 K.Aoki et al., Research Report of LNS 18,336,('85)
 Y.Minai et al., Private Comm.('85)
 M.Ebihara et al., Anal. Sci. 1,209,('85a), Private Comm.('85b)

NUTRON ACTIVATION ANALYSIS OF GEOCHEMICAL REFERENCE ROCKS

(Faculty of Science, Kanazawa Univ., Kanazawa Women's Junior College*)
 Yutaka MIYAMOTO, Naomi AOTA*, Sakae KOSANDA, Takuji FUKASAWA, Yuji OZAKI,
 Akira KUNUGISE, Yasunori HAMAJIMA, Koh SAKAMOTO

(武蔵工大・原研) ○鈴木章悟, 松本妃代, 岡田往子, 平井昭司

1. はじめに 環境科学において微量元素が注目されるに従い、環境試料の分析の重要性は今後もますます高まるものと思われる。環境試料の分析においては、広い濃度範囲にわたって含有されている種々の元素を正確に定量しなくてはならない。このため分析値の校正と評価のために環境標準試料が必要となる。特に多元素・同時定量に有効な機器中性子放射化分析法 (INAA) においては、これら標準試料を比較標準試料として使用することができる点からも重要である。このため多数の元素の定量値が得られているほど標準試料として有用になる。そこで、我々ではできるだけ多数の元素を定量するために通常の照射・測定法以外の手法を取り入れた INAA を行った。

試料としては国立公害研究所 (N I E S) の環境標準試料を用いた。N I E S では約10年前から環境標準試料の調製を行っており、¹⁾ 現在、10種類の試料が調製され、7種類の試料の保証値が定められている。今回この中から頭髮、茶葉、自動車排気粒子、²⁾ ホンダワラなどについて分析した。

2. 実験方法 各々の N I E S 環境標準試料は50~1000mgを精秤した。分析法の信頼性を高めるため試料量を変化させて、10試料程度の照射・測定を繰り返した。分析元素の定量は、分析試料と比較標準試料とによる比較法で行った。比較標準試料は原子吸光用標準液 (関東化学備製) と、単体または化合物を硝酸等に溶解し、調製した保存溶液とを用いた。これらの溶液から各々一定量 (10~200 μ L) をマイクロビレットで採取し、ろ紙に浸み込ませ、ポリエチレン袋に二重封入した。

照射は武蔵工大炉 (M I T R R) で行った。生成核種の半減期により、短時間 (30秒~2分) 照射と長時間 (5時間) 照射に分けている。照射方法は次の2通りの方法で行った。

- ① フィルターなしの通常熱中性子照射
- ② カドミウムフィルターを用いた熱外中性子照射

測定は短時間照射、長時間照射とも冷却時間を変えて2回ずつ GAMA システム³⁾ を用いて行った。 γ 線スペクトルの測定方法は次の4通りの方法で行った。

- ① 同軸型 Ge 検出器による通常 γ 線スペクトロメトリ
- ② Ge 検出器と井戸型 NaI(Tl) 検出器とを組合わせた反同時測定法 (アンチコンプトン計測法)
- ③ Ge 検出器と井戸型 NaI(Tl) 検出器とを組合わせたエネルギー相関性による同時測定法
- ④ 平板型 Ge 検出器を用いた低エネルギー光子スペクトロメトリ (LEPS)

これらの照射方法と測定方法を組み合わせて分析を行った。 γ 線スペクトルの解析はミニコンピュータまたはパーソナルコンピュータを用い、ピークサーチから最小二乗法によるピークフィッティング、注目核種による半減期補正、含有量・濃度の計算を自動的に行うシステムにより行った。⁴⁾

3. 分析結果 表1に頭髮、自動車排気粒子、ホンダワラの分析結果を示す。誤差は試料量を変えて分析した繰り返し精度を示す。自動車排気粒子では55元素の分析を試みて52元素が定量できた。

すずきしょうご, まつもとときさよ, おかだゆきこ, ひらいしょうじ

頭髪とホンダワラではそれぞれ43元素と38元素が定量できた。多くの元素が通常の方法である熱中性子照射・ γ 線スペクトロメトリで検出されているが、一部の元素については通常の方法では検出されず、その他の照射・測定法の組み合わせにより検出できるようになった。結果からわかるように通常の測定方法以外では、反同時測定法が検出できる元素数が一番多かったが、 ^{72}Ga などのカスケード状に γ 線を放出する核種については、検出できなかった。またLEPSによる測定では ^{32}P の β 線による制動放射のため通常の γ 線スペクトロメトリより検出しやすくなる元素はなかった。

頭髪、自動車排気粒子、ホンダワラは硫黄が5%程度含まれており、高速中性子による $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ 反応で生成される $^{32}\text{P}(T_{1/2} 14\text{d})$ の β 線の制動放射によって低エネルギーのバックグラウンドが高くなり、カドミウムフィルター照射法の長寿命核種の検出感度はあまり向上しない。またホンダワラは共鳴積分断面の大きいBrが高濃度であり、 ^{82}Br のために中寿命核種の検出は難しくなった。

表1 NIES環境標準試料の分析結果

元素	頭髪	自動車排気粒子	ホンダワラ	元素	頭髪	自動車排気粒子	ホンダワラ
Na	26 ±1	1670 ±80	14000 ±500	In	< 0.0072	0.078 ±0.006	< 0.11
Mg	220 ±19	1100 ±150	6900 ±600	Sn	1.62 ±0.37	9.5 ±0.6	< 1.3
Al	240 ±16	3000 ±100	210 ±20	Sb	0.073 ±0.006	5.9 ±0.2	0.039 ±0.004
Si	12500 ±800	18900 ±1900	—	Te	< 0.18	0.15 ±0.08 ^a	0.46 ±0.07
S	49000 ±1000	50000 ±9000	53000 ±6000	I	0.62 ±0.08	3.0 ±0.3	520 ±20
Cl	250 ±4	840 ±30	43000 ±2000	Cs	0.0141 ±0.0007	0.24 ±0.01	0.042 ±0.003
K	36 ±8	1110 ±90	59000 ±3000	Ba	3.1 ±0.6	128 ±5	9.4 ±1.4
Ca	640 ±30	4900 ±200	12000 ±700	La	0.184 ±0.012	1.08 ±0.03	0.094 ±0.010 ^a
Sc	0.046 ±0.001	0.51 ±0.03	0.090 ±0.004	Ce	0.47 ±0.03	2.9 ±0.3	0.18 ±0.01
Ti	22 ±7	270 ±30	< 75	Pr	—	< 0.47 ^a	—
V	0.67 ±0.01	15.8 ±1.0	1.0 ±0.2	Nd	0.30 ±0.05	0.80 ±0.07 ^a	< 0.30 ^a
Cr	1.24 ±0.07	23 ±2	0.19 ±0.03	Sm	0.0197 ±0.0014	0.193 ±0.010	0.083 ±0.009
Mn	4.7 ±0.1	63 ±7	20 ±1	Eu	0.0037 ±0.0006	0.049 ±0.008	0.0069 ±0.0005
Fe	210 ±6	4600 ±500	180 ±10	Gd	—	< 0.37	—
Co	0.099 ±0.004	2.9 ±0.2	0.11 ±0.01	Tb	0.0034 ±0.0017	0.031 ±0.006	0.0041 ±0.0007
Ni	1.73 ±0.12	14.1 ±0.9	0.45 ±0.04 ^d	Dy	< 0.023	0.185 ±0.017	< 0.21
Cu	16.1 ±0.9	70 ±7	< 3.8 ^a	Ho	< 0.34	0.025 ±0.006 ^d	—
Zn	164 ±4	900 ±80	13 ±1	Tm	—	< 0.019 ^a	—
Ga	—	0.47 ±0.09 ^c	< 28 ^c	Yb	0.025 ±0.005	0.108 ±0.007	0.0024 ±0.0009
As	0.109 ±0.039 ^a	2.6 ±0.1	120 ±10	Lu	< 0.0019	0.020 ±0.002	< 0.0032
Se	1.29 ±0.03	1.25 ±0.12	0.044 ±0.003 ^b	Hf	0.0106 ±0.0016	0.21 ±0.01	0.011 ±0.001 ^b
Br	92 ±2	57 ±1	270 ±10	Ta	0.0064 ±0.0005	0.116 ±0.007	< 0.00085
Rb	0.157 ±0.033	4.1 ±0.3	22 ±1	W	< 0.041	5.0 ±0.4	< 0.14 ^a
Sr	3.5 ±0.8	115 ±17	990 ±40	Au	0.0127 ±0.0004	0.0029 ±0.0006	0.015 ±0.003
Zr	< 1.14 ^a	12.4 ±1.3	4.3 ±0.5 ^a	Hg	4.5 ±0.3	0.33 ±0.08 ^a	< 0.061
Mo	< 0.12	6.0 ±0.2	0.56 ±0.20 ^a	Th	0.022 ±0.002	0.32 ±0.01	0.0052 ±0.0010 ^a
Ag	0.095 ±0.005	0.20 ±0.01	0.30 ±0.01	U	0.020 ±0.004	0.093 ±0.014	0.37 ±0.02
Cd	0.23 ±0.10	1.34 ±0.13	< 1.0				

照射・測定方法: ^a 熱中性子照射・反同時測定法, ^b 熱中性子照射・同時測定法, ^c 熱外中性子照射(カドミウムフィルター)・ γ 線スペクトロメトリ, ^d 熱外中性子照射(カドミウムフィルター)・反同時測定法, その他は熱中性子照射・ γ 線スペクトロメトリ

文献 1)K.Okamoto,K.Fuwa :Anal.Sci.,1,206(1985) 2)S.Suzuki,S.Hirai :Anal.Sci.,3,193(1987)
3)S.Suzuki,S.Hirai :Anal.Sci.,3,91(1987) 4)鈴木章悟,平井昭司 :Radioisotopes,34,155(1985)

INSTRUMENTAL NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS OF NIES ENVIRONMENTAL REFERENCE MATERIAL
Atomic Energy Research Laboratory, Musashi Institute of Technology,
Shohgo SUZUKI, Kisayo MATUMOTO, Yukiko OKADA, Shoji HIRAI

(武蔵工大・原研) ○ 岡田往子 ・ 平井昭司

1. 目的

半導体中に極く微量に含まれているU、Thから生じる α 粒子によって半導体メモリーが反転するソフトエラーは、半導体製作する上で、重要な問題となっている。そのためU、Th含有量を大幅に減少させる高純度化の技術が必要とされ、それに伴う微量分析法の確立も要求されている。本研究では、高感度である中性子放射化分析法とイオン交換クロマトグラフィーを併用することによって 選択的に分析目的核種を分離し、極微量のU、Thを定量する方法を開発したので報告する。今回、分析試料として二酸化ケイ素、白金および銅を選んだ。

2. 分析方法

分析試料をポリエチレン袋に二重封入し、武蔵工大の原子炉(MITRR)の中央実験管(熱中性子束 $3.8 \times 10^{12} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$)で5時間照射した。数日の冷却期間後、イオン交換クロマトグラフィーの操作に入る。二酸化ケイ素では、照射試料を秤量し、テフロンビーカー中でフッ化水素酸で溶解し、加熱してシリカをフッ化物として揮発させ、12NHClに溶解し、乾固後9NHClに溶解する。次にCl型陰イオン交換樹脂カラム(7mm ϕ \times 50mm)に流す。使用した陰イオン交換樹脂は室町化学工業株式会社製ムロマック(1 \times 8、100-200 mesh、Cl型)である。9MHC1を流し、ナトリウムなどの不純物元素を除去し、次に5Mのフッ化水素酸を流して目的のNp-239、Pa-233を溶離した。溶離後テフロン製の容器に採取し、乾固後容器ごと低バックシャヘイ体付きGe検出器と波高分析器とで γ 線を測定した。

白金では、照射試料を王水で溶解し、蒸発乾固し、二酸化ケイ酸と同様に12NHClで処理し、9NHClで溶解し、Cl型陰イオン交換樹脂カラムにかける。白金には多量のインジウムが入っているので9NHClを多量(150ml程度)に流すことで除去し、0.05Mフッ化水素酸でPa-233、Np-239を溶離し、テフロン容器で乾固し、 γ 線測定を行った。銅では白金同様に王水で溶解蒸発乾固し、12NHCl処理し、9NHClで溶解して陰イオン交換カラムにかける。銅では母体の銅を除去するために9NHClを多量に流した。その後、5MHFでPa-233、Np-239を溶離し、テフロン容器に乾固し γ 線の測定をした。

おかだ ゆきこ ・ ひらい しょうじ

3. 結果

7種の含有量の異なった二酸化ケイ素をINAA（機器中性子放射化分析）およびRNAA（イオン交換を用いた中性子放射化分析）した結果をTable 1に示す。表中の誤差は繰り返し誤差を示す。誤差をみると、どの試料もほぼよい一致がみられる。しかし、SiO₂-Fのように誤差が大きくなっているのは、試料の均一性によるものと考えられる。また照射試料をフッ化水素酸で蒸発乾固する際のテフロンビーカーへNp-239およびPa-233が吸着する検討も行った。

白金および銅の分析値をTable 2に示す。

Table 1 Analytical result for uranium and thorium in SiO₂

Sample	Concentration (ppb)			
	U		Th	
	INAA	RNAA	INAA	RNAA
SiO ₂ -A	70 ± 6.5	69 ± 0.3	76 ± 8	63 ± 2.1
SiO ₂ -B	6.8 ± 0.9	7.6 ± 0.5	7.6 ± 1.4	9.0 ± 0.5
SiO ₂ -C	17 ± 1.6	18 ± 2	14 ± 1.1	14 ± 2
SiO ₂ -D	8.8 ± 0.9	8.3 ± 0.7	6.6 ± 0.2	6.7 ± 0.2
SiO ₂ -E	0.69 ± 0.06	0.80 ± 0.02	1.4 ± 0.1	1.4 ± 0.1
SiO ₂ -F	ND	0.063 ± 0.005	0.77 ± 0.3	0.48 ± 0.23
SiO ₂ -G	ND	0.13 ± 0.02	0.43 ± 0.03	0.40 ± 0.07

number of analysis

INAA A:3, B, C, D, E:3, F:4, G:5
RNAA A:2, B, E, F:3, D:4, C, G:5

Table 2 Analytical result for uranium and thorium in platinum and copper

Sample	Concentration (ppb)			
	U		Th	
	INAA	RNAA	INAA	RNAA
Pt-1	<420	0.95	<540	2.5
Cu-1	—	<0.49	—	4.6

DETERMINATION OF TRACE URANIUM AND THORIUM IN SEMICONDUCTOR MATERIALS BY NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS

Atomic Energy Research Laboratory, Musashi Institute of Technology,

Yukiko OKADA, Shoji HIRAI

1B17 フィッション・トラック法によるppbレベルの ウラン濃度の定量

(金沢大理) 中西 孝

1. 目的

半導体集積回路を格納するパッケージからの α 線がメモリー反転の原因としてクローズアップされてから10年になろうとしている。この間、 α 放射体濃度の低い材料を工業的に生産するための改善等が続けられ、低レベルの α 線放射率 ($10^{-3} \text{ cm}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 以下) と低濃度の α 放射体 (U や Th の濃度にして 5 ppb 以下) の日常的測定・分析法の研究も続けられてきた。 $10^{-3} \text{ cm}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 以下の放射率の α 線の直接測定は依然として困難であり、代替法として U や Th の濃度を定量して間接的に α 線放射率を推定するのがもっぱらの評価法である。

本研究では、天然 U に対して選択的で高感度なフィッション・トラック法による ppb レベルの U 濃度の定量を日常分析的に行えるようにすることを主目的に、実験操作に若干の改善を加え、ブランクの U 濃度が十分に低い高純度石英ガラス板の市販品をトラック検出材とし、 10^{17} cm^{-2} 程度のフルエンスで熱中性子を照射することにより、0.1 ppb 程度までの天然 U を再現性よく定量できるに至ったので、ここに報告する。

2. 実験

本研究における U 濃度定量用被検試料の大部分は石英で、粉末状または塊状である。塊状試料は板状片を切り出した。洗浄して差支えない試料は、照射試料調製直前に、原則として希硝酸、蒸留水、メタノール (MeOH) で順次超音波洗浄して表面汚染を除去し、十分に乾燥させた。U 濃度定量の比較標準として、NBS glass SRM 617 (U 濃度 72.37 ± 0.89 ppb; $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 原子数比 0.00616 ± 0.00001 ; 天然 U 換算で 61.92 ± 0.77 ppb) を用いた。12mmφ, 1mm厚の市販品を四分し、照射試料調製直前に希硝酸、蒸留水、MeOH で順次軽く洗浄し、十分に乾燥させた。フィッション・トラック検出材 (以下 検出材と言う) には、予備試験で U 濃度が最も低く、表面のキズも十分に少ないことが確認された高純度石英ガラス板 (信越石英 Viosil-SMS, U のブランク 0.040 ± 0.005 ppb) を用いた。10mm×5mm (粉末試料用) または 10mm×10mm (板状試料用) の小片に切断したものにガラス切りで通し番号をつけ、アセトン、硝酸、蒸留水、MeOH で順次洗浄、乾燥して実験に用いた。なお、洗浄操作は、洗浄済みのテフロンびんで行い、そのテフロンびんごとポリエチレン (PE) 袋に入れて減圧乾燥した。次に、照射試料調製操作を試料毎に新しい PE 袋の中で行った。洗浄、乾燥済みの PE カプセル (内径~6mm, 内高~17mm) に検出材小片を入れ、さらに粉末状被検試料をかたく詰めてふたをし、照射試料とした。板状試料、比較標準は 2 枚の検出材小片の間に密着させて PE 袋中に真空封入し、照射試料とした。一方、検出材小片 4 枚を重ね合せて PE 袋中に真空封入して、ブランク評価用照射試料とした。各照射試料毎にステンレス針金を巻きつけ、相対フラックスモニターとした。中性子照射は、武蔵工大・原研の TRIGA-II 型原子炉の照射溝 ($\phi_{\text{th}} \sim 7$

なかにし たかし

$\times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$)で0.1~50時間行い、約1週間冷却後、検出材を取り出して持ち帰った。次いで、底に穴をあけた PE 試験管に検出材を1枚ずつ入れて、 $\sim 20^\circ\text{C}$ の46% HF 浴中に2分間浸し(超音波を印加)フィッション・トラックをエッチングした。エッチングの停止は、検出材を PE 試験管ごと蒸留水浴に浸して行った。フィッション・トラックの計数は、顕微鏡テレビ(総合倍率 900 or 1800)の画面を見ながら行った。被検試料と比較標準の間でトラック密度を比較し、照射熱中性子フルエンスとプランクの補正も行って U 濃度を求めた。

3. 結果と考察

トラックの判定 (Fig. 1 参照) と判定基準の維持において肝要なことは、100%の確実さでそれと判定できるもののみを計数することであろう。種々の熱中性子フルエンスで照射した比較標準についてのトラック密度から、1 ppbの天然 U を含む石英を $\phi_{\text{th}} \sim 7 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の熱中性子束で50時間照射した場合、本研究においては、 $650 \pm 31 \text{ cm}^{-2}$ のトラック密度となることが再現性よく確認された。また、U 濃度とトラック密度の直線的比例関係の成立を0.1~62 ppbの範囲で確認した。実際の定量例を Table 1 に示す。本実験で示した程度の注意を払えば、0.1 ppb程度までは繰り返し定量の再現性は良い。しかし、相当の労力を、とくにトラック計数のために要することも事実である。

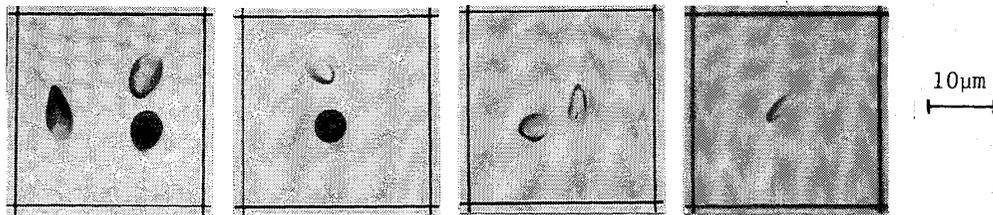


Fig. 1 Etch pits of these shapes in Viosil-SMS were counted as real fission tracks.

Table 1 Natural uranium concentrations of powdered high-purity quartz samples

Sample	U (ppb)	Sample	U (ppb)
Rock crystal -A	0.31 ± 0.04	Fused quartz glass -c	2.2 ± 0.1
	0.32 ± 0.04		2.4 ± 0.1
	0.35 ± 0.04		2.4 ± 0.1
	0.37 ± 0.05		2.5 ± 0.1
Rock crystal -B	0.18 ± 0.03	Fused quartz glass -d	7.7 ± 0.2
	0.20 ± 0.03		7.9 ± 0.2
	0.21 ± 0.04		8.0 ± 0.2
	0.25 ± 0.04		8.0 ± 0.2
Fused quartz glass -a	0.36 ± 0.04	Fused quartz glass -e	0.09 ± 0.03
	0.39 ± 0.05		0.11 ± 0.03
	0.41 ± 0.05		0.12 ± 0.03
	0.44 ± 0.05		0.14 ± 0.03
Fused quartz glass -b	1.8 ± 0.1	Fused quartz glass -f	2.0 ± 0.1
	1.8 ± 0.1		2.2 ± 0.1
	1.9 ± 0.1		2.2 ± 0.1
	2.0 ± 0.1		2.2 ± 0.1

DETERMINATION OF URANIUM AT PPB LEVEL BY FISSION TRACK METHOD

Faculty of Science, Kanazawa University, Takashi NAKANISHI

(青学大理工) ○斎藤裕子、前田 進悟、木村 幹

序論) 樹木はその根から栄養分や水分をとり年輪を形成しながら成長していく。したがって樹木は成育した環境を記録している可能性がある。本研究では樹木の年輪ごとのストロンチウム-90とセシウム-137を定量し、核実験との関連性や地域的なフォールアウト汚染の違いとの関係、またおのおの同族元素をも定量することにより樹木に取り込まれてからの元素の移動などについて考察することを目的とした。

試料) 樹木は樹皮、辺材、心材とよばれる部分からできている。辺材は水分通導や養分の貯蔵機能を持っており生活機能を持つ生きている細胞からなっている。心材は機会的支持機能のみ持ち、生活機能を持たない死細胞からできている。辺材部分は樹木の成長に伴いいずれ心材となっていく。試料としては、心材と辺材の区別がはっきりしており、放射組織がなく北海道を除く日本各地に成育している杉を選んだ。

杉は5年ごとの年輪別に切り出し、炭化、灰化し試料とした。

分析) ストロンチウム-90、セシウム-137: 灰試料は酸分解し、その後同一試料からセシウム-137はリンモリブデン酸アンモニウム法、ストロンチウム-90はイオン交換樹脂法により分離、濃縮しそれぞれ γ 線、 β 線測定により定量した。

ストロンチウム: 灰試料を酸分解し放射化前分離(^{85}Sr トレーサーを用い、しゅう酸塩沈殿)を行ない定量した。

セシウム、ルビジウム: 灰試料を用いて非破壊放射化分析により定量した。

カルシウム、ナトリウム、カリウム: 酸分解した後、原子吸光分析により定量した。

結果) 定量結果の一部を表に示す。この試料は新潟県村上営林署管内の杉材で、樹齢40年、1943~1963年が心材、1964~1968年が移行材、1969~1983が辺材となっていたものである。セシウム-137の濃度は皮と一番外側の1979~1983年を除くと心材が辺材の約2倍近い値となっている。ナトリウム、カリウムそしてルビジウムも一番外側を除く辺材部より心材部での方がその濃度が高い傾向があるように思われる。この傾向は他の地域の杉材についてもみられる。セシウム-137が、1945年以前の試料から検出されているのは、アルカリ金属は辺材から心材に移動しているからではないかと考えられる。

さいとうゆうこ、まえだしんご、きむらかん

表 新潟県杉材中のナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウム、セシウム-137

	Na (g/kg air dry)	K (mg/kg air dry)	Rb (mg/kg air dry)	Cs (μ g/kg air dry)	^{137}Cs (pCi/kg air dry)
1943~48年	0.16	2.2	2.2 \pm 0.4	15.1 \pm 1.1	9.8 \pm 1.6
49~53	0.22	2.1	0.71 \pm 0.07	1.3 \pm 0.2	11.5 \pm 1.9
54~58	0.17	2.1	0.70 \pm 0.06	2.2 \pm 0.3	10.5 \pm 1.9
59~63	0.14	1.6	0.59 \pm 0.05	1.7 \pm 0.2	6.0 \pm 1.2
64~68	0.12	1.1	0.45 \pm 0.04	1.8 \pm 0.2	5.5 \pm 1.2
69~73	0.11	0.72	0.19 \pm 0.02	0.6 \pm 0.2	5.0 \pm 1.1
74~78	0.13	0.50	0.56 \pm 0.15	2.2 \pm 0.1	4.2 \pm 1.0
79~83	0.43	1.2	1.6 \pm 0.4	7.9 \pm 1.0	25 \pm 3
Bark	1.10	2.2	2.1 \pm 0.6	40 \pm 4	75 \pm 10

DISTRIBUTION OF ^{90}Sr AND ^{137}Cs IN TREE RINGS OF JAPANESE CEDAR

College of Science and Engineering, Aoyama Gakuin University,
Yuko SAITO, Shingo MAEDA, Kan KIMURA

緒言 南極における環境放射能レベルを把握するため、ビクトリアランド南部のドライバレー地域及び昭和基地周辺の環境試料を1984-1987年の3年間にわたり採取し、これら試料中の人工放射性核種(^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$)の分析を行った。採取した試料は土壌、海水、湖水、藻類、苔類、魚類の内臓、ペンギンの排泄物である。前者3試料は、環境レベルを直接的に把握することを目的として選定した。後者4試料は、放射能レベルが低いと言われている南極において放射性核種が濃縮されていることを期待して選定した。

海水等水試料中の人工放射性核種のデータは、そのレベルが低いため、現在まで定量的に測定された例が極めて少ない。本調査では、カラム法と共沈法により1000ℓの試料を現地処理し、定量することが出来た。

分析方法 海水及び湖水については試料1000ℓを、フェロシアン化コバルト・カリウム塩と二酸化マンガンで固定したアクリル繊維充填カラムに通過させ、 ^{137}Cs 等を捕集した。また別の1000ℓから水酸化鉄共沈法によりPu等を捕集した。持ち帰ったアクリル繊維と水酸化鉄の沈澱は、灰化等の前処理後Ge半導体検出器によりγ線スペクトロメトリを行った。水酸化鉄の沈澱は、さらにPuの放射化学分析を行った。この他、試料水100ℓを持ち帰り ^{90}Sr の放射化学分析を行った。

土壌については乾土を、藻類、苔類、魚類の内臓、ペンギンの排泄物については灰化物をGe半導体検出器により測定したのち、 ^{90}Sr とPuの放射化学分析を行った。

結果 ドライバレー地域の結果をTable-1に、昭和基地周辺の結果をTable-2に示す。海水及び湖水中の ^{137}Cs 濃度は $\sim 2\text{pCi}/1000\ell$ であり、日本における濃度の1/50であった。また、 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は $\sim 0.1\text{pCi}/1000\ell$ であり、日本における濃度とほぼ同じであった。

土壌中の ^{90}Sr は $\sim 10\text{pCi}/\text{kg}$ と比較的一定であるが、 ^{137}Cs は30 \sim 500 pCi/kg と採取地点により大きく異なった。これらは、土質及び地形等の相違によるものと考えられる。これら濃度は、日本における濃度の1/10 \sim 1/20である。 ^{238}Pu 及び $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は、それぞれ0.2 \sim 2 pCi/kg 及び0.1 \sim 10 pCi/kg であった。これらの測定値から求めた $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ の値は0.2であり、日本における値と比較すると10倍高い値である。これはSNAP-9Aの落下による影響であろう。

藻類及び苔類中の ^{90}Sr の濃度は3 \sim 150 pCi/kg 、 ^{137}Cs 濃度は40 \sim 600 pCi/kg 、 ^{238}Pu 濃度は0.5 \sim 3 pCi/kg 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は0.1 \sim 10 pCi/kg であった。 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ の値は0.2であり、土壌と同様に日本より高い傾向であった。

魚類の内臓中の ^{90}Sr 濃度は0.2 pCi/kg 、 ^{137}Cs 濃度は1 \sim 2 pCi/kg であり、Puは検出下限値以下であった。

ペンギンの排泄物中の ^{90}Sr 濃度は160 pCi/kg 、 ^{137}Cs 濃度は120 pCi/kg 、 ^{238}Pu 濃度は1 pCi/kg 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は6 pCi/kg であった。 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ の値は0.2であり、土壌と同様に日本より高い傾向であった。

いけうちよしひろ、もりもとたかお、はしもとたけお、よしみずかつみ、とりいてつや

考察　　ドライバレー地域と昭和基地周辺とは、距離的に大きく離れているが、本調査では、放射能濃度に大きな差は認められなかった。

本調査で対象とした試料中の放射能濃度を、日本における濃度と比較すると、水試料は明らかに低い値であったが、その他の試料についてはほぼ同じ値の試料も見出された。

Table 1 Environmental radioactivity at Dry Valley in Antarctica Unit : Soil (pCi/kg), Algae, Moss (pCi/kg fresh), Water (pCi/1000 ℓ)

Sample	Sampling point	Sampling date	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²³⁸ Pu	
Soil	South Fork	1984.12. 9	9.2 ± 2.2	—	0.16 ± 0.14	ND	
	L-4 pond	1984.12.14	4.8 ± 1.6	—	0.35 ± 0.15	ND	
	Don Juan Pond (0~2cm)	1984.12. 9	ND	ND	ND	ND	
	Don Quixote Pond (0~2cm)	1984.12.18	5.4 ± 2.0	37 ± 15	0.75 ± 0.20	ND	
	Cape Bird	1984.12.18	18 ± 2.7	—	ND	ND	
	Lake Fryxell	1985.12.11	4.8 ± 1.4	ND	0.092 ± 0.087	ND	
	Labyrinth E-3 pond	1985.12.24	100 ± 4	170 ± 14	4.9 ± 0.60	0.42 ± 0.18	
	Crater Pond	1986.12.19	3.8 ± 1.6	ND	ND	ND	
	Don Juan Pond (east side)	1986.12.29	4.7 ± 1.3	ND	ND	ND	
	Taylor Gl. (north of term.)	1987. 1. 1	14 ± 1.7	ND	ND	ND	
	Bull Lake	1987. 1. 9	50 ± 3.4	120 ± 22	4.4 ± 0.51	0.88 ± 0.25	
	Lake Vanda	1987. 1.10	8.6 ± 1.6	32 ± 8.3	0.36 ± 0.15	ND	
	Lake Vida	1987. 1.10	13 ± 2.1	34 ± 10	0.40 ± 0.17	ND	
	Cape Bird (near Rookery)*	1987. 1.12	56 ± 4.6	60 ± 19	2.0 ± 0.36	0.35 ± 0.14	
	Sea Water	Ross Sea	1986.12.17	—	1.8 ± 0.30	0.055 ± 0.012	0.0072 ± 0.0065
	Pond Water	Crater Pond	1986.12.19	—	2.1 ± 0.53	0.041 ± 0.012	0.018 ± 0.0088
		Lake Vanda	1987. 1. 6	—	2.2 ± 0.55	0.16 ± 0.022	0.042 ± 0.011
Algae	South Fork	1984.12. 8	36 ± 4.7	—	2.2 ± 0.55	0.37 ± 0.30	
	Nork Fork 1-2 pond	1984.12.19	29 ± 3.8	—	6.0 ± 0.79	0.70 ± 0.27	
	E-5 Pond	1984.12.17	8.4 ± 3.7	150 ± 17	3.1 ± 0.49	0.68 ± 0.23	
	Lake Vanda	1984.12.20	4.5 ± 2.8	—	0.092 ± 0.067	ND	
	Lake Canopus	1984.12.26	24 ± 3.4	440 ± 19	9.3 ± 0.85	2.1 ± 0.36	
	Lake Fryxell	1985.12.11	36 ± 2.0	120 ± 5	2.6 ± 0.25	0.62 ± 0.10	
	Lake Canopus	1986. 1. 5	23 ± 2.8	500 ± 17	11 ± 0.9	3.0 ± 0.39	
	SF-1 Pond	1986.12.28	19 ± 2.2	62 ± 5.6	1.5 ± 0.17	0.42 ± 0.09	
	Lake Canopus	1987. 1. 7	3.3 ± 1.0	150 ± 3.9	3.2 ± 0.23	0.55 ± 0.077	
	Lake Canopus	1987. 1. 7	23 ± 4.8	580 ± 18	12 ± 0.9	2.6 ± 0.33	
	Moss	Lake Fryxell	1984.11.26	150 ± 8	330 ± 16	5.6 ± 0.91	0.83 ± 0.42
Cape Bird		1986. 1.19	56 ± 8.0	—	2.8 ± 0.65	ND	
Excreta of Penguin	Cape Bird	1987. 1.12	160 ± 7	120 ± 13	5.7 ± 0.63	0.96 ± 0.24	
Viscera of Mawsonii	Ross Sea	1986. 1. 5	—	2.0 ± 0.64	—	—	
	Ross Sea	1987. 1.14	0.18 ± 0.12	1.3 ± 0.40	ND	ND	

* : ²²³Ra was detected (650 ± 23 pCi/kg)

Table 2 Environmental radioactivity near Syowa Station in Antarctica Unit : Soil (pCi/kg), Moss (pCi/kg fresh), Water (pCi/1000 ℓ)

Sample	Sampling point	Sampling date	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²³⁸ Pu
Soil	Langhovde	1986. 1.18	9.7 ± 1.8	250 ± 12	4.6 ± 0.52	0.81 ± 0.21
	Torinosu Bay	1986. 1.19	12 ± 2.0	30 ± 13	0.82 ± 0.20	0.26 ± 0.12
	Miharasi (Ogul Is.)	1986. 1.22	11 ± 1.8	530 ± 20	11 ± 0.9	2.3 ± 0.37
	Rundvagsbetta	1986. 1.25	2.4 ± 1.4	ND	ND	ND
Moss	Hunazoko Pond	1986. 1.19	20 ± 1.1	160 ± 5	3.7 ± 0.26	0.62 ± 0.074
	Torinosu Bay	1986. 1.19	68 ± 2.8	330 ± 6	8.6 ± 0.60	1.3 ± 0.16
Sea Water	Breid Bay	1986. 2.13	—	12 ± 10	—	—
	Rundvagsbetta	1986. 1.25	96 ± 6.4	5.6 ± 4.0	0.61 ± 0.11	ND

ペンギンの排泄物中の⁹⁰Srと¹³⁷Cs濃度が高い値であったことから、海洋生態系の試料を分析することで、興味ある結果が得られることであろう。

ARTIFICIAL RADIOACTIVE NUCLIDES IN ANTARCTICA

Japan Chemical Analysis Center, Yoshihiro IKEUCHI Takao MORIMOTO
Takeo HASHIMOTO Katsumi YOSHIMIZU Tetsuya TORII

1C03

神岡陽子崩壊実験所周辺の天然放射能のバックグラウンドレベル

(金沢大LLRL, 東大宇宙研*, 福井衛研**)

○ 山本政儀, 須田英博*, 手島政広*, 五十嵐修一**, 小村和久, 上野 馨

【はじめに】

岐阜県の神岡鉱山(神岡鉱業所茂住鉱)の地下約1000m(2700m.w.e.)に図1に示すような世界でもユニークな巨大な水槽(直径:15.5 m、高さ:16 mの円筒径の鉄製タンク、純水約3000 t、約1000個の直径20インチの大口径光電子増倍管を1m毎に配列:全壁面積の20%)を用いた水チェレンコフ測定器の地下宇宙線観測所がある。現在、この装置で東大理学部、高エネルギー物理学研究所、東大宇宙研究所が協力して陽子崩壊、天体・宇宙ニュートリノなどの観測を行っている。

本研究は、このような希な頻度でしか起こらない放射線の物理測定に際して、バックグラウンド(B.G.)要因の1つとしての天然放射能の影響を評価するための基礎データを提供することを主目的に、観測所周辺の大気、岩石、地下水、並びに実験に使用している純水中のU、Th同位体、 ^{226}Ra 、 ^{222}Rn などの測定を実施してきた。今回は、これまでに得た結果を中心に、測定器へのB.G.寄与の検討も含めて報告する。

【装置の概要とB.G.の要因】

実験に用いている水は、タンク内に入れた地下水約3000tを高性能フィルター、陰・陽イオン交換樹脂カラム、キレート樹脂カラム、更に紫外線照射カラムに流速 $5\text{m}^3/\text{h}$ で循環させながら純水化している。タンク上部は1987年3月以降、鉄製の蓋を取り付けラドン除去装置からの空気を流している($1\sim 2\text{m}^3/\text{h}$)。測定に関しては、現在電子エネルギーに換算して7.5MeV相当以上のチェレンコフ光を全て測定している。従って、B.G.としては① ^{238}U の自発核分裂(8MeVまでの β 線と γ 線)② $^{226}\text{Ra}\rightarrow^{214}\text{Bi}$ (3.26MeVの β 線は、検出器のエネルギー分解能により8MeV相当の信号になる事があり得る)③宇宙線 μ 粒子と ^{16}O との核反応(^{16}N , ^{12}N , ^{12}B , ^8B , β 線; $10\sim 12\text{MeV}$)等の考慮が特に必要である。

【放射能測定】

岩石： γ 線スペクトロメトリーにより ^{226}Ra を定量、その後、試料1~5gをアルカリ溶融、放射化学分離を行い α 線スペクトロメトリーによりU、Th同位体を定量した。大気：主に ^{222}Rn を活性炭放置 γ 線測定法(活性炭100gをタッパーに充填し1日放置)および冷却活性炭トラップ γ 線測定法(内径7mmの銅管に活性炭14gを充填しドライアイス・エタノール冷媒で約 -75°C に保ち、流速 $5\sim 7\text{m}^3/\text{min}$ で $0.5\sim 1\text{h}$ 吸引)により定量した。また、ハイボリュウムエアサンプラーで採取した試料を用いて ^{210}Pb の測定もLEPSで試みた。

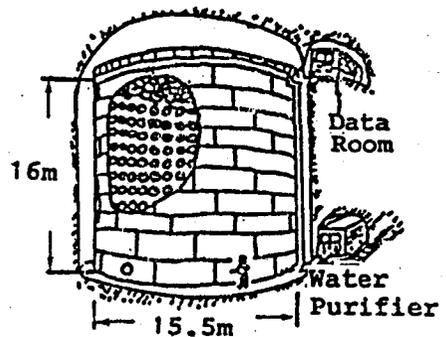


Fig.1 Design of KAMIOKANDE

やまもとまさよし、すだてるひろ、てじままさひろ、いがらししゅういち、こむらかずひさうえのかおる

地下水および純水：地下水10~20l、純水30~40l(HCl, HNO₃で充分加熱洗浄した5lビーカーを用いて純水のみ約500mlに蒸発濃縮)を用いて、要旨集1C04に示した方法によりU同位体、²²⁶Raを、また地下水0.5~1lを用いてトルエン抽出-液体シンチレーションカウンター法により²²²Rnを定量した。

【結果と考察】

観測所周辺で採取した岩石(飛驒変成岩:7試料)中のU,Th,K含量は、それぞれ0.98(0.13-2.23)ppm、3.16(0.80-7.73)ppm、1.56(0.04-3.40)%であった。ドーム内外の大気(湿度:90%以上、気温:13-14℃)中の²²²Rn濃度(図2)は、夏場で約1500Bq/m³と高く、冬場は逆に約200Bq/m³と低くなる。地下水の²²²Rn濃度は、190-370Bq/lであった。現在のタンク内空気の²²²Rn濃度は、図2に示すように活性炭を通して流している空気の²²²Rn濃度(10-15Bq/m³)と等しく成っている。図3には、純水中の²³⁸U、²²⁶Ra濃度の変化を示した。図3の左端に示した地下水の²³⁸U、²²⁶Ra濃度と比べて、純水中の²³⁸Uは約1/1000、²²⁶Raは約1/100に減少しており、共に目標とするレベルに達している。測定器の現在のトリガー頻度は、0.45ヘルツ(0.45cps)で、0.37ヘルツは宇宙線のμ粒子に、残りの0.08ヘルツは、測定器周辺の岩石、純水、及び測定器関係の各種材料中の放射能に由来していると考えている。

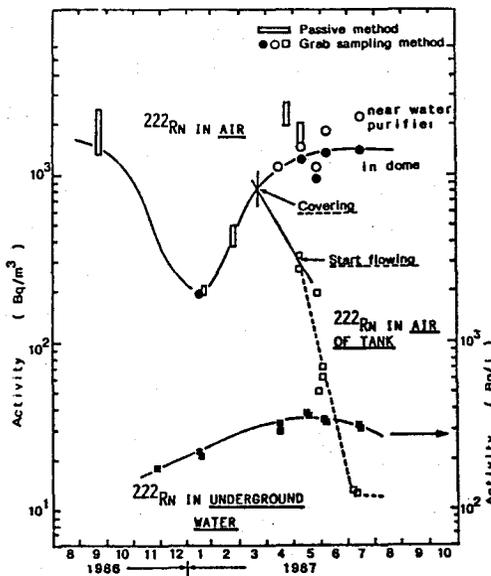


Fig. 2 Concentration of ²²²Rn in air and underground water surrounding the KAMIOKANDE

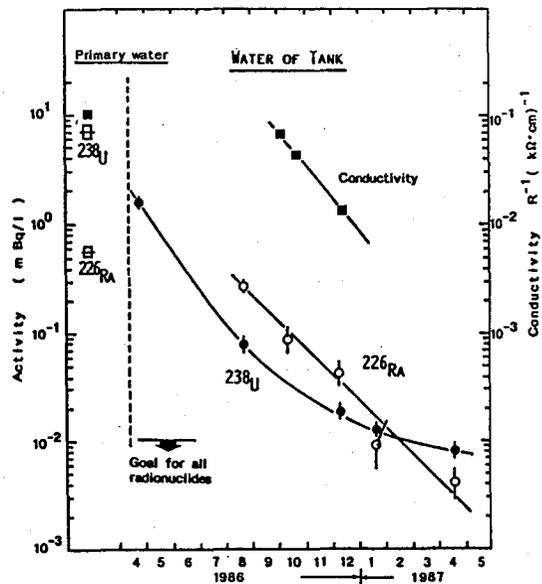


Fig. 3 Concentration of ²³⁸U and ²²⁶Ra, and conductivity in KAMIOKANDE water

BACKGROUND LEVELS OF NATURAL RADIOACTIVITIES SURROUNDING THE KAMIOKA PROTON DECAY EXPERIMENT FACILITY

Low-level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University
 Institute for Cosmic Ray Research, University of Tokyo*
 Fukui Prefectural Institute of Public Health**

Masayoshi YAMAMOTO, Teruhiro SUDA*, Masahiro TEJIMA*, Shuichi IGARASHI**
 Kazuhisa KOMURA and Kaoru UENO

1C04

^{226}Ra 収率トレーサーを用いた α 線スペクトロメトリーによる 環境試料の微量 ^{226}Ra の定量

(金沢大・理・LLRL) ○山本政儀, 小村和久, 上野 馨

【はじめに】

天然に存在するRa同位体、とりわけウラン系列の ^{226}Ra の測定は、 ^{238}U - ^{234}U 、 ^{230}Th の測定とともにその系列の放射平衡についての地球化学的な知見を与えるのみならず、近年関心の高まっている屋内ラドンの建築材料中の ^{226}Ra との量的関係、さらにそれ自身長寿命 α 放射体であるため内部被曝の面からも重要視されている。一方、測定面では、Ge(Li)検出器による非破壊もしくは BaSO_4 共沈試料の γ 線測定の外、 ^{226}Ra からのラドンの測定、放射化学分離後、 α 線スペクトロメトリーまたは液体シンチレーションカウンターによる測定など種々の方法が開発されている。

本研究では、主に水試料の微量 ^{226}Ra をできるだけ正確に定量するため、収率補正用トレーサーとして ^{225}Ra ($T=14.8$ d, β^-) を用い、放射化学分離・ α 線スペクトロメトリーによる方法を検討した。

【実験】

収率補正用トレーサーの ^{225}Ra は、親核種 ^{229}Th ($T=7.1 \times 10^3$ y, α) からミルキングせずに ^{229}Th 溶液 (^{225}Ra と平衡) をそのまま用いた。図1にRa分析のフローシートを示す。試料中のRaは、UやThとともにまず $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 、 CaCO_3 共沈処理を施して予備濃縮し、その後ただちに BaCrO_4 共沈処理を行い、RaとBaを大量のアルカリ、アルカリ土類金属から分離した。BaとRaの分離には比較的多量のBa存在下でもRaとの分離が有効なCyDTA系からの陽イオン交換分離法¹⁾を用いた。図2に今回用いたカラム (内径6mm 樹脂高さ 100mm, 0.3ml/min) でのRaとBa(20mg)の分離条件を示す。精製したRaは1M HCl(1ml)-イソノール(15ml)溶液からAg板上に電着(0.3A, 15-20V, 2h)し、 ^{225}Ra からの娘核種 ^{217}At の成長(1~2週間)を待って α 線スペクトロメトリーにより定量した(図2)。試料中の ^{226}Ra 濃度(A; pCi/l or g) は以下に示す式より算出した。

$$A = \frac{C1}{C2} \times A0 \cdot f1 \cdot f2 \cdot \frac{1}{2.22} \cdot \frac{1}{m}$$

$A0$: 添加した ^{229}Th (^{225}Ra) 量(dpm)
 $C1$: ^{226}Ra の計数率(cpm)
 $C2$: ^{217}At の計数率(cpm)
 $f1$: BaCrO_4 共沈からRaを電着するまでの ^{225}Ra の減衰補正項
 $f2$: 電着から測定までの ^{217}At の成長項
 m : 試料量 (l or g)

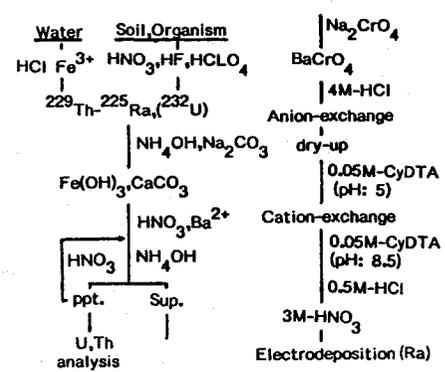


Fig.1 Separation scheme of Ra

やまもとまさよし・こむらかずひさ・うえのかおる

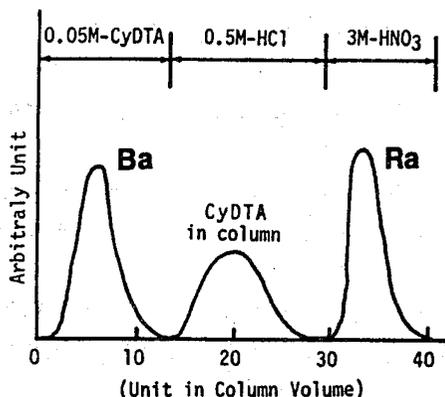


Fig. 2 Elution diagram of Ba, CyDTA and Ra from cation exchange column

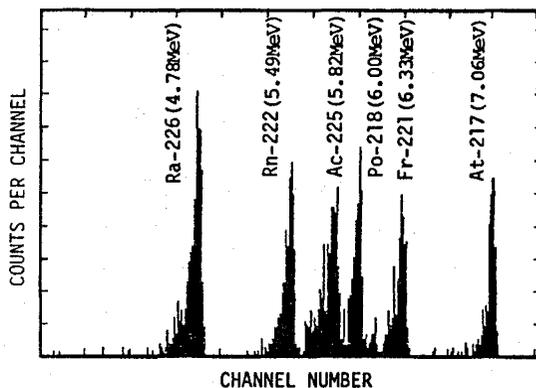


Fig. 3 Alpha spectrum of radium (2 weeks after electrodeposition)

[結果と考察]

まず始めに用いる試薬類に混入している ^{226}Ra 含有量をチェックした(表1)。Ca試薬は通常不必要だが、特にCaレベルの低い水試料を対象とする場合を考慮して検討した結果、いずれのCa試料もかなりの ^{226}Ra ($0.4\sim 0.6\text{dpm/g}\cdot\text{Ca}$)を含んでいた。BaCrO₄共沈処理を繰り返して ^{226}Ra -freeのCa溶液を調整した。Ba試薬については、 ^{226}Ra 含有量の少ないBa(OH)₂·8H₂Oを用いた。

この分析法について既知濃度の ^{226}Ra を添加した水試料1lを用いて分析した結果を表2に示すが、バックグラウンドを補正した値は、添加量と非常に良い一致を示した(収率は85~95%)。

現在、この方法を用いて神岡の地下水及び実験水、南極の湖水などの ^{226}Ra の分析を行っている。

1) G. Gleason, in: Radioelement Analysis, p. 49, (Ann Arbor Science, Ann Arbor, 1979)

Table 1 ^{226}Ra contamination levels in chemical reagents

Reagents	Activity(dpm)	Remarks
G ¹ CaCO ₃	0.59 ± 0.03/g.Ca	Lot No.030-00385, WAI1978 ^{##}
G CaCl ₂ ·2H ₂ O	0.45 ± 0.05/g.Ca	Lot No.3-43, LL0348 ^{##}
G CaCl ₂ ·2H ₂ O	0.51 ± 0.04/g.Ca	Lot No.031-00435, LAJ3705 ^{##}
SSG ² CaCl ₂	0.44 ± 0.04/g.Ca	Lot No.034-00501, WKO7744 ^{##}
Purified Ca ³	< 0.01/g.Ca	Lot No.031-00435, LAJ3705 ^{##}
G Na ₂ CO ₃	N.D. /20 g	Lot No.199-01585, STR3420 ^{##}
G Na ₂ CrO ₄	N.D./25%, 20ml	Lot No.605A1076 ^{##}
G BaCl ₂	26.3 ± 1.4 /g.Ba	(?) ^{##}
EP ³ BaCl ₂	18.2 ± 1.2 /g.Ba	(?) ^{##}
G Ba(OH) ₂ ·8H ₂ O	6.45 ± 0.38/g.Ba	Lot No.911R1166 ^{##}

¹: Guaranteed Reagent, ²: Super Special Grade Reagent, ³: Extra Pure Reagent
^{##}: The ^{226}Ra in Ca stock solution was separated by the procedure of co-precipitation with BaCrO₄. #: Wako Pure Chem. In., LTD., ##: Kanto Chemical Co., INC.

Table 2 Analytical results of ^{226}Ra for spiked water sample(one liter)

^{226}Ra added (dpm)	^{226}Ra found (dpm)	^{226}Ra corrected* (dpm)
0.043±0.001	0.097±0.007	0.05±0.01
0.230±0.003	0.283±0.022	0.23±0.02
0.459±0.006	0.508±0.030	0.46±0.03
1.148±0.016	1.182±0.046	1.13±0.05

*: corrected by subtracting the background value(0.052±0.003 dpm)

DETERMINATION OF LOW LEVEL ^{226}Ra IN ENVIRONMENTAL SAMPLES BY α -SPECTROMETRY USING ^{225}Ra AS YIELD TRACER

Low Level Radioactivity Laboratory, Faculty of Science, Kanazawa University, Masayoshi YAMAMOTO, Kazuhisa KOMURA, Kaoru UENO

(都立大理、原子力安全技術センター) 岡内公子、村上徳記雄

【目的】 ラドンを含んだ大気中にオープンバイアル(容量20ml LS)を一一定時間放置して溶解したラドンを積分計数法により液体シンチレーションカウンターLS Cで測定する方法を提案した(城内、村上: J. Radioanal. Chem., 80 153~163 (1983))。

最近環境放射能としてラドン及びその崩壊生成物が注目されている。本法の測定下限は 0.5×10^{-12} Ci なので、この適用により土壌大気中に拡散してくるラドンの濃度を測定できる。また本法による地下室、居室などのラドンの測定を試みる。

【方法】

土中に深さ30~35cmの穴をほり、オープンバイアルを一一定時間放置した後とり出し、積分計数法を用いてLS Cにより測定するとラドンのキュリー数を求めることが出来る。同時に硝酸セルロースフィルム(Kodak LR115)を用いて比較を試みた。またガラス密封型容器にラジウム標準溶液をセトトレ、人工的にラドン源を作り、岐阜県ウラン鉱山の土壌を用いてラドンを発生させるなどして検討した。

【結果】

一定量のラジウム標準溶液を小型容器中で凝固させたラジウム線源を容器内の空気を逃がさないように工夫した密封型容器に入れ、オープンバイアルをセトトレ、露出時間の検討をおこなった。

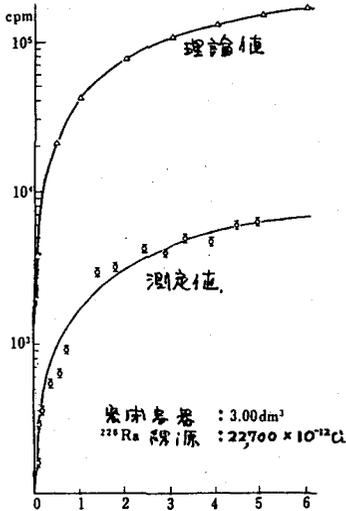
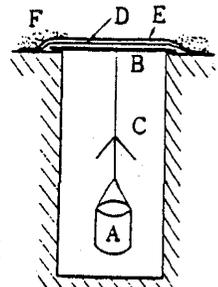


図2 露出時間(日)
オープンバイアル法によるビルトアップの測定



A) オープンバイアルホルダー
B) 刺はし C) 3線
D) ホリエクレンシート
E) 鉛皿 F) 土壌
図1 オープンバイアル設置図

一方ラジウム線源からビルトアップしたラドン量を求めた(図2)。線源から生成するラドンが容器中に全部放出されると(理論値と測定値の曲線を示しているが、これにより容器内の大気中に存在するラドンの一定量をオープンバイアルからしめることがわかった。また同様につくった密封型を一回毎に容器内のラドンを排除しては新たにオープンバイアルをセトトレして5~17時間迄の露出時間の検討の結果を図3に示した。実測値より単位時間あたりのラドンの溶解量をみるとほとんど一定していることがわかった。

この結果オープンバイアルを屋外で用いる場合は図1の如き穴を掘って行うが、土壌より穴の中に放出されるラドンの放射平衡(3時間10分、トロンでは3時間40

ほりラジウム、むらみゆきお

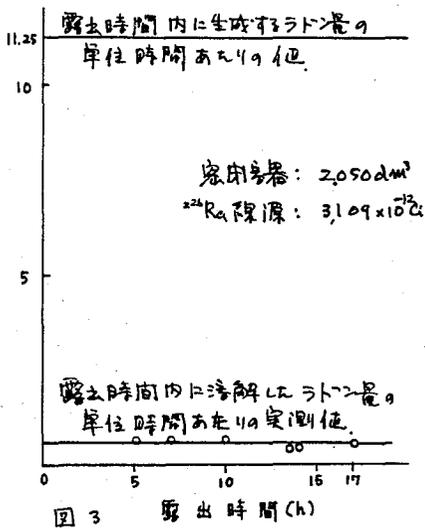


図3 露出時間(h)

合(毎) になった時間以後にオープンバイアルをセロトシ、あそ一定時間放置して定量する。この方法とCNフィルムを用いたピット法も同時に検討した。板状地区で断層線を横断した測隙に試みの結果1日の露出による変化のみられた。溶解したラドンの崩壊生成物 ^{214}Pb のγ線を測定し、オープンバイアルへのラドンの溶解の状況を考察した。

次に地表面、屋内にオープンバイアルを放置して大気中のラドン量を求め、バイアルに与えらるラドン量より分配率によりある容積の大気中のラドン量を求めた。この場合全く無風であれば、室内空気の流束もあり、どの位の容積の大気が分配器に隣接しているのかを定むのは困難である。したがって、この範囲はラドンの拡散のみによるとして濃度が $1/100$ の減り距離を拡散距離として計

算すると 140 cm^3 の $(0.14)^3 \div 2\text{ m}^3$ となる。これを用いて算出した値を表1に示した。これは 2 m^3 中のラドン量は $1/100$ の拡散距離なので(中央はオープンバイアルがある)不足するであろう。しかし、実際には風の流束があり、これをばらばらにすればなる。空気量の測定は別に試みがあり、報告する予定である。有珠山の噴出口脇の測定例はこのようなラドンの状態を知り一つの手がかりといえよう。

図1に示したような方法を所行った土壌大気中のラドン濃度の測定は1年余り継続しておこなった。ラドンの放射量はつうは気圧の変化、温度変化、雨量などに与うてその影響がいろいろあることにより測定されうる。またその結果もいろいろと相反するよう傾向も示されている。(しかし気温とは正の相関があり、気圧とは逆の相関があることは報告した(第15回理工学における同位元素研究発表会 29A-II-3 (1978))。しかしこれらの点を別にして測定値よりラドンの放射率を求めるとは試み

測定場所	露出時間 h	CPM	Ra量 $\times 10^{12}\text{Ci}$	拡散距離内10-12分間のRa量 $\times 10^{12}\text{Ci}$
地表面測定1	9	11.3	1.02	9,595
" 2	9	11.1	1.00	9,407
屋内測定1	15.3	6.3	0.62	5,833
" 2	23	5.8	0.58	5,362
" 3	23	4.9	0.41	3,857
有珠山麓	1	2.32	0.23	2,164
有珠噴出口1	1	10.4	1.15	10,818
" 1	2.7	77.8	11.21	105,456
" 2	2.7	4.3	0.44	4,139
" 2	2.7	4.6	0.43	4,045

表1. オープンバイアル法による大気中ラドン測定例。気温 25℃

MEASUREMENT OF EMISSION RATE OF RADON IN SOIL AIR FROM THE GROUND SURFACE BY THE OPEN VIAL METHOD

Tokyo Metropolitan University, Kimiko HORIUCHI
Atomic Power Safety Engineering Centre, Yukio MURAKAMI

(日本分析セ) 樋口英雄, 野中信博, ○森本隆夫

1. はじめに

原子力施設周辺の環境放射能モニタリングにおいて海水中の放射性核種の濃度や経時変化を知ることは重要である。このため指標生物たとえばホンダワラやムラサキガイなどを対象試料とする場合がある。生物試料は季節や生育条件などによって濃度変動がおきていることを考慮しなくてはならない。しかし、人工的な捕集材を用いれば海水からの放射性核種をある程度定量的に捕集できる。本研究では海水中の放射性核種の捕集のため、アクリル繊維製捕集材と積算型捕集装置を作製し実際の海水中に係留し捕集実験を行った。回収した捕集材に ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{103}Ru などが吸着することについて前回報告した。今回はこの海上実験をさらに続け放射性核種の積算型捕集法について検討し経時変化などについて調べたので報告する。

2. 海中捕集実験

2.1 捕集材

アクリル繊維 (MnO_2), アクリル繊維 (KCFC) の作製方法は既に報告した方法 (第27・28回講演予稿集) と同じである。

2.2 捕集装置

前回報告した装置 (第30回講演予稿集) と同様に塩ビ製の長方形枠 (330x510mm) に捕集材を取り付けた。

2.3 捕集実験

捕集装置を浮子に取り付け海中に係留した。1回の設置期間は1~2か月で61年4月から10月の間に5回実験を行った。設置した所は相模湾奥水深1~2mで潮流はあまり激しくはなく生活廃水の流入もある。

2.4 海水の採取

捕集材への吸着量を海水中濃度と比較するため捕集装置の回収時に付近の海水を採水した。

3. 放射性核種の定量

回収した捕集材は付着している藻や泥を除去するため純水でよく洗浄し乾燥後約5mm四方に切り刻み測定容器に詰めGe検出器で測定・定量した。海水中の ^{134}Cs , ^{137}Cs はリンモリブデン酸アンモニウムで捕集しGe検出器で測定・定量した。

ひぐちひでお, のなかのぶひろ, もりもとたかお

4. 結果と考察

134 、 137 Cs について KCFC 布への吸着量の経時変化と海水中濃度を図 1 に示す。

実験 No. 1 の実験を開始してから、20 日目にソ連原子炉事故があったが、この影響は実験 No. 1 より実験 No. 2 の実験に顕著に現れている。これは、実験 No. 1 では事故前のレベルの低い期間の寄与が大きいためである。実験 No. 3 以後の 137 Cs 値は $0.2 \text{ pCi}/100 \text{ cm}^2 \cdot \text{日}$ 前後、 134 Cs 値は $0.02 \text{ pCi}/100 \text{ cm}^2 \cdot \text{日}$ 前後で一定となり、 134 Cs、 137 Cs の捕集は再現性よく、ほぼ定量的に行われていたと考えられる。

海水の分析結果から、 137 Cs 値は $0.052 \sim 0.14 \text{ pCi}/\text{l}$ 、 134 Cs は実験 No. 1 で捕集装置を回収した際の採取分からは $0.033 \text{ pCi}/\text{l}$ を検出したが、それ以後は検出できなかった。このことから KCFC 布を用いることによって通常の分析では、検出の困難な低濃度の 134 Cs を捕集できることがわかった。

これらの実験結果より
海水中の 137 Cs 濃度を
 $0.1 \text{ pCi}/\text{l}$ 、KCFC 布への 137 Cs の吸着量を $0.2 \text{ pCi}/100 \text{ cm}^2 \cdot \text{日}$ とすると、本装置では 1 日で海水 2 l 相当の 137 Cs が吸着する。 137 Cs の Ge 検出器での定量下限値を 1 pCi とすると 1000 cm^2 の KCFC 布を、半日海中に係留すれば 137 Cs を捕集・定量できる。同様に考えると、 MnO_2 布で

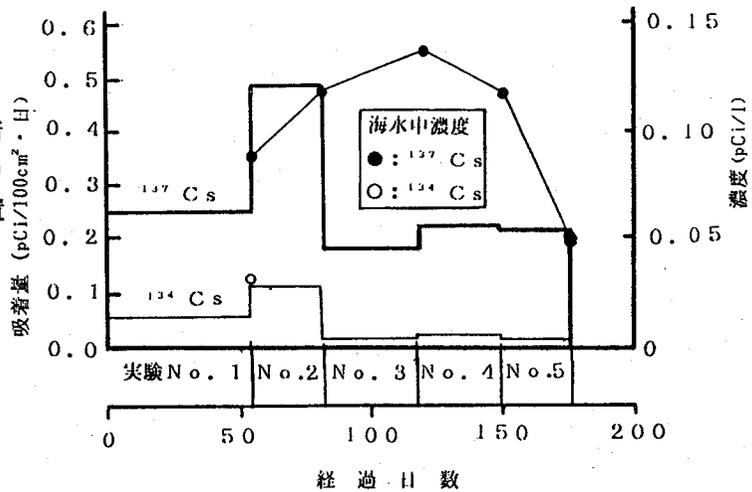


図 1 KCFC 布に吸着した 134 、 137 Cs 量の変化と海水中の 134 、 137 Cs 濃度

も 1000 cm^2 の布を 100 日間係留すれば、 ^{60}Co ($5 \times 10^{-4} \text{ pCi}/\text{l}$ と仮定) 含む海水から 1 pCi の ^{60}Co を捕集できる。

今後は、捕集された核種の放射化学分析法の検討を進め、環境放射能モニタリングへ応用するシステムを確立したい。

IN SITU INTEGRATING CHEMISORPTION OF RADIONUCLIDE FROM SEA WATER.

Japan Chemical Analysis Center,

Hideo HIGUCHI, Nobuhiro NONAKA

Takao MORIMOTO

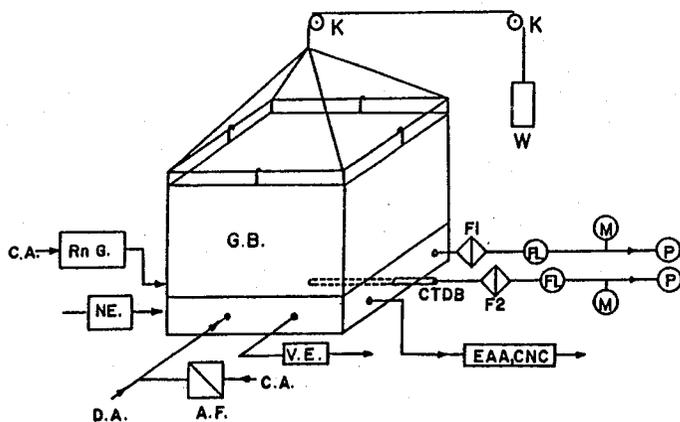
1C07 RaA (^{218}Po) の拡散係数

(信州大教、高エネ研) ○村松久和、近藤健次郎、三浦太一

緒言 空气中に生成するRn娘核種の物理化学的挙動には、まだ不明な点が多い。演者らはこれまで、ラドンガスバッグを用いて実験条件のコントロールされた条件下でのラドン娘核種の種々の挙動を調べてきた。今回の報告では、“unattached”RaAの拡散係数の湿度依存性についての実験結果を中心に“unattached”RaAの性質について検討した。“unattached”という用語は、これまで多くの文献の中で使われてきたが、それはRnの崩壊によって生成した娘核種が周囲のエアロゾルに付着していない状態を指している。もともとこの用語が使われ始めたのは、ChamberlainらによるRaA (^{218}Po) の“free ions”または“unattached”粒子に対する拡散係数(D, diffusion coefficient)が $0.054 \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1}$ であったという報告以後であった。それ以降、この用語はかなり曖昧な使われ方がされてきている。また“unattached”RaAの拡散係数の測定においては、いくつかの矛盾する結果が報告されている。

実験 用いたラドンガスバッグ及び諸装置の配置を図1に示した。 ^{222}Rn ガスは、 $^{226}\text{RaCl}_2$ 水溶液(～ $5 \mu\text{Ci}$)をバブリングすることによって、内容積約 8 m^3 のネオプレンゴム製ガスバッグに、エアロゾルの混入をさけるためにメンブランフィルターを通じて導入した。ガスバッグ内への空気の入力には市販の純粋乾燥空気を用い、エアロゾルフリー状態にするため空気清浄装置を通して、比較的高湿度での実験では加湿器を併用しながら行った。エアロゾルフリーであることは、CNC (Condensation Nuclei Counter) 及びEAA (Electrical Aerosol Analyzer) を用いて確認した。“unattached”成分の割合は、500meshの wire mesh screenにほとんどの“unattached”成分が拡散吸着することを利用して求めたところ、エアロゾルフリーの

図1 Schematic diagram of measurements.



G.B.:neoprene rubber gas bag,
W:weight, K:pully, C.A.:clean air,
D.A.:dry air, NE.:nebulizer, A.F.:
air filter, F1,F2:membrane filter,
FL:flow meter, M:Hg manometer, P:
air pump, CTDB:cylindrical tube
diffusion battery, Rn G.:radon
generator

むらまつひさかず こんどうけんじろう みうらたいち

空気中ではRaAの90%以上が“unattached”RaAとして存在していることが判明した。拡散係数の測定には、直円筒型の拡散チューブ（ステンレス製、長さ145 cm、直径2 cm）が用いられた。このような円筒内を層流状態で粒子が流れる場合についてはいくつかの解析解があるが、ここではGormleyらによる解を用いた。透過率 N/N_0 は、SSDを用いたRaAからの α 線測定により得られる放射能比 A/A_0 で置き換えることができる。 N 、 A 及び N_0 、 A_0 はそれぞれ拡散チューブを通過後及び通過前の粒子個数あるいは放射能を示している。この比と流量 q との関係から拡散係数を求めることができる。

結果 図2に湿度の異なる3種の空気について得られた A/A_0 と流量の関係（透過曲線）を示した。前述のGormleyらの解を用いた解析から“unattached”RaAの拡散係数はほぼ同様な値を示し、 $D = 0.05 \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1}$ であった。従来報告されてきた値は、種々の湿度の下で、およそ $0.035 \sim 0.085 \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1}$ の範囲にあり得られた値は、最初に報告したChamberlainらの値 $0.054 \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1}$ に近いものであった。“unattached”RaAの直径を $3.8 \times 10^{-8} \text{ cm}$ と仮定すると、気体分子運動論から予測される拡散係数はおよそ $0.1 \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1}$ であり、実測されたものに比べてかなり大きいものである。このことは、RaAが周囲の水や酸素やその他微量気体と反応することによってRaAイオンを含むクラスターのようなかなりmassiveな状態で存在していることを示唆していると思われる。湿度依存性に関しては、これまでの報告には湿度の増大とともに D は大きくなるというものと、それとは反対に D は小さくなるというものがあつたが、今回我々の得た結果では、測定された湿度範囲においては湿度依存性が認められなかった。

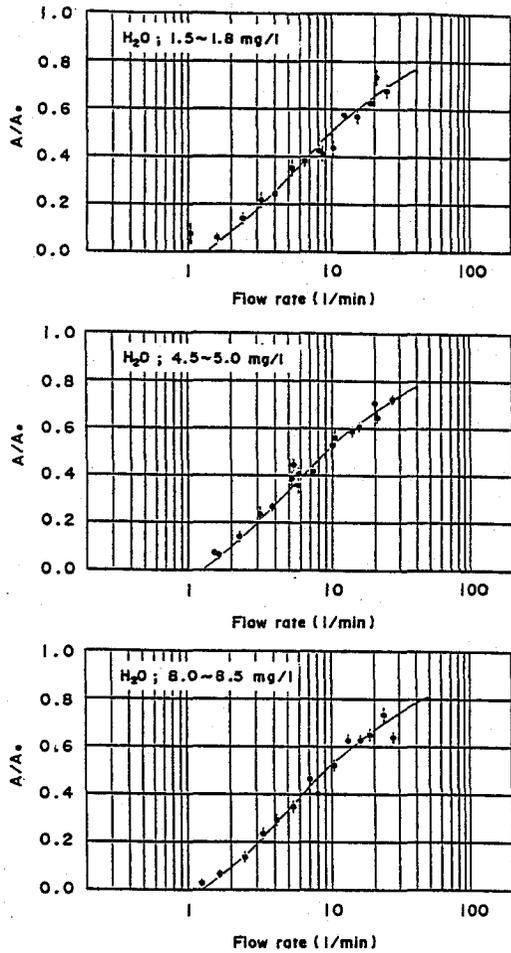


図2 The relations of A/A_0 vs flow rate(q) for unattached RaA in the Rn gas bag.

DIFFUSION COEFFICIENT OF UNATTACHED RaA(^{218}Po) PARTICLES

Faculty of Education, Shinshu University, Hisakazu MURAMATSU
National Laboratory for High Energy Physics, Kenjiro KONDO
Taichi MIURA

1C08 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 統報

(筑波大・化) ○沖 雄一・荘司 準・池田長生

1. 緒言

固相のホットアトム化学においては一般に、反跳生成物の収率は、単一のホットアトム反応によって決定されるのではなく、複数の素反応が寄与した結果である。この各素反応の寄与の評価は、通常の単成分系を試料とする限りほぼ不可能であって、単成分系試料の一種のシミュレーションをなんらかの多成分系試料で行ってはじめて知見を得ることが可能である。

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反跳原子の挙動解明を目指しており、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いる。昨年の本討論会においては α -コバルトフタロシアニン (α -CoPc) - α -亜鉛フタロシアニン (α -ZnPc) 混晶系を照射試料として、光核反応におけるリテンションの傾向を述べた。¹⁾ 今回は (n, γ) 反応の結果、また真空中で照射した場合の結果を加え、以前報告した α -銅フタロシアニン (α -CuPc) - α -ZnPc 混晶系等における結果と合わせて考察する。

2. 実験

【試料】 CoPc及びZnPcは、それぞれ高純度金属粉末と o -フタロニトリルを $\sim 270^\circ\text{C}$ に保つことにより合成し、減圧昇華 ($10^{-2} \sim 10^{-3}$ Torr, 500°C) 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。

真空雰囲気試料は、調製した混晶を真空ライン中で $\sim 140^\circ\text{C}$ に加熱しながら、 1×10^{-6} Torrまで脱気し、吸着している気体分子を除いた後、石英管中に溶封することによって調製した。なお、この条件下では試料の結晶形は変化しない。

【照射】 熱中性子照射は日本原子力研究所JRR2炉気送管で3分間ドライアイス温度で行った。制動放射線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リ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】 照射した試料は、 Co^{2+} 、 Cu^{2+} 、 Zn^{2+} の担体を含む冷濃硫酸に溶解後、氷上に注ぐことにより、リテンション部分のみを沈澱させて分離した。これを濾別し、沈澱濾液双方の放射能を半導体検出器で測定しリテンション値を算出した。

3. 結果及び考察

次に示す核反応に着目した。 $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$ 、 $^{59}\text{Co}(\gamma, 2n)^{57}\text{Co}$ 、 $^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{58}\text{Co}$ 、 $^{64}\text{Zn}(n, \gamma)^{65}\text{Zn}$ 、 $^{68}\text{Zn}(n, \gamma)^{69\text{m}}\text{Zn}$ 、 $^{64}\text{Zn}(\gamma, 2n)^{62}\text{Zn}$ 、 $^{66}\text{Zn}(\gamma, n)^{65}\text{Zn}$ 、 $^{70}\text{Zn}(\gamma, n)^{69\text{m}}\text{Zn}$ 、 $^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Cu}$ 。

おき ゆういち、 しょうじ ひとし、 いけだ ながお

結果の一部を (n, γ) 反応を中心に図1~3に示す。図中の直線は最小自乗法によってもめたものである。 (n, γ) 反応では亜鉛に大きな同位体効果が認められた(図2)。コバルトと亜鉛のリテンションは、いずれの核種も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。CuPcやCoPcはZnPcよりも化学的に安定であることが知られており、コバルトと亜鉛の反跳原子がマトリックスのフタロシアニンと反応する際に、競争反応のプロセスでリテンションが生成する可能性が考えられる。しかし以前報告したCuPc-ZnPc混晶系においては、銅のリテンションはZnPcのモル分率が増加すると減少しており、同様な説明を全ての系で適用できるわけではない。

真空中で照射した場合(図1、2の■)、リテンション値には有意な差は認められず、この系においては外部雰囲気はリテンション決定に関わる主要因子ではないといえよう。

コバルトは図3に示したように (n, γ) 反応と光核反応では、リテンション値がほぼ平行となり、その差約1.5%はモル分率に依存しない成分と考えることができる。この成分はおそらく不十分な反跳によって、中心金属-配位子間の化学結合が切断されなかった場合や、切断されても即座に再結合したものに对应すると思われる。すなわち、 (n, γ) 反応の際の ^{60}Co のリテンション値のうちには、これらの成分が少なくとも約1.5%含まれていると考えられる。

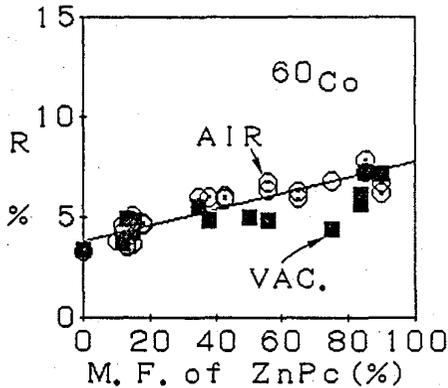


図1 (n, γ) におけるコバルトのリテンション

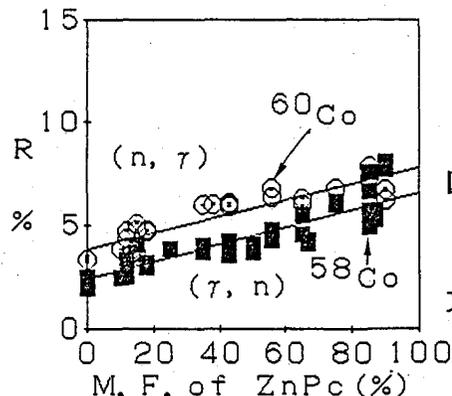


図3 (n, γ) 反応と (γ, n) 反応との比較

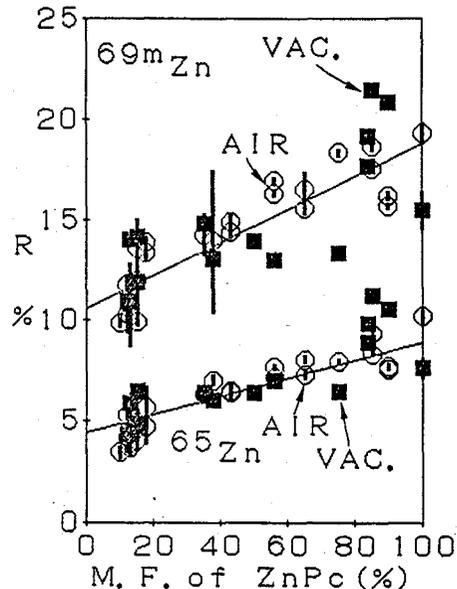


図2 (n, γ) 反応における亜鉛のリテンション

文献1) 第30回放射化学討論会講演予稿集
1C15, p.108 (1986)

HOT ATOM CHEMISTRY OF COBALT AND ZINC PHTHALOCYANINE MIXED CRYSTALS, CONTINUED

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

(筑波大化)○荏司 準, 沼田 靖, R.B.Cantú, 池田長生

序 固相内における原子核変換に伴う反跳原子の挙動は、周囲のマトリックスとの複雑な相互作用が関係し、その全体像の解析には実験的および理論的困難が併せ存在するが、現時点では意義のある実験データの集積がますます必要となっている。本研究グループでは、このような問題に対する有効な実験系の開発をめざす一環として、水溶性ポルフィリン錯体に着目し、これまでに、銅および亜鉛を中心金属とするテトラキス(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)錯体イオンの新に見出した1:1会合体固相における、制動放射線照射ならびに熱中性子照射の際の中心金属の反跳挙動、特に生成銅核種の挙動の異常性について報告を行ってきたが、今回は同じく水溶性ポルフィリン錯体であるが、図1に示すTMPyP錯体とテトラキス(p-スルフォフェニル)ポルフィン(略称TPPS₄)錯体の1:1会合体で中心金属を銅とコバルトにした系につき、熱中性子照射実験を試みたので、まだ予備的段階ではあるが今までに得られた傾向につき報告する。

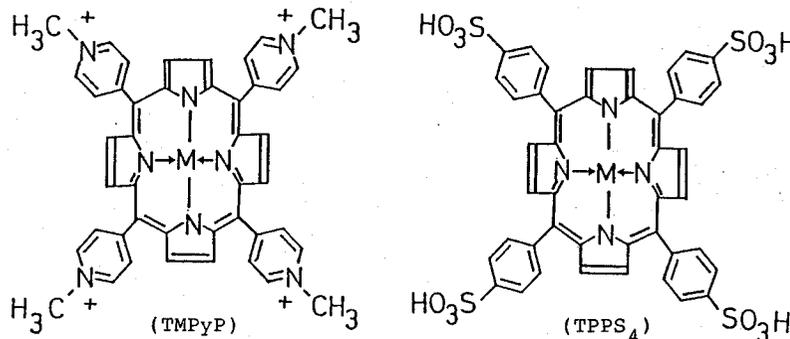


図1 Structural Formulas for Water-soluble Metalloporphyrins Used

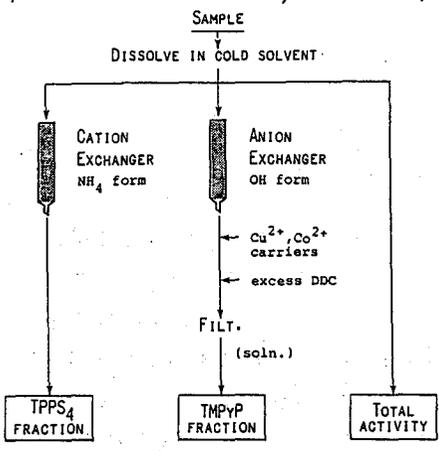
実験 1) 試料の調製 市販の無金属TMPyPおよび無金属TPPS₄を購入し、文献の方法に従い主として還流法によりこれらに中心金属を導入した。次に目的とする会合体試料に対応する金属TMPyP錯体と金属TPPS₄錯体の水溶液を合し、10時間以上放置し会合体の沈殿を得た。調製した錯体イオン会合体は次の4種である。すなわち、 $[Cu(TMPyP)][Co(TPPS_4)]$, $[Co(TMPyP)][Cu(TPPS_4)]$, $[Co(TMPyP)][Co(TPPS_4)]$, $[Cu(TMPyP)][Cu(TPPS_4)]$ 。元素分析ならびに紫外可視吸光分析を必要に応じて行って純度を確認した。

2) 照射 熱中性子照射は立大原研TRIGA MARK II炉F孔でドライアイス冷却下で実質2時間以上行った(熱中性子束; $1.4 \times 10^{12} n/cm^2 \cdot sec$)。化学分離開始時まで、照射試料をドライアイス中に保存した。

3) 化学分離 これまでに報告したTMPyP錯体-TCPP錯体系に対するものと同様であるが、照射した各試料を担体(Cu^{2+} , Co^{2+} および必要な場合には中心金属が逆になつ

しょうじひとし、ぬまたやすし、あーるびーかんとう、いけだながお

いる錯イオン)を含む氷冷した $3\text{MNH}_4\text{Cl}-1\text{MNH}_4\text{OH}$ -エタノール(1:1:2)の混合溶媒に溶かした後、図2に示すイオン交換法、 NaDDC を用いた沈殿法により



TMPyP 錯体および TPPS_4 錯体フラクションに分離し、それぞれの 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。

結果と考察

熱中性子照射の際着目した生成核種は ^{64}Cu , ^{60}Co の二種である。照射した4種のポルフィリン会合体の内 $[\text{Cu}(\text{TMPyP})][\text{Cu}(\text{TPPS}_4)]$ は水溶液系の溶媒に非常に溶けにくく、照射後の化学処理に未だ成功していない。目下溶媒を検討中である。他の3種の組合せのものについては、照射後の溶解性は以前行った $\text{TMPyP}-\text{TCPP}$ 会合系の場合より幾分高く溶解処理はやや容易であった。またイオン交換、沈殿用担体をこらに加えてからの沈殿分離の際も別に困難は認められな

図2. Chemical Separation Schemes

かった。得られた錯体収率は再現性のチェックを未だ十分には行えない状況にあるが、得られた傾向として、 ^{64}Cu は $[\text{Cu}(\text{TMPyP})][\text{Co}(\text{TPPS}_4)]$ では数%の収率ながら双方にほぼ均等に分布し、 $[\text{Co}(\text{TMPyP})][\text{Cu}(\text{TPPS}_4)]$ では TMPyP 側にはほとんど来ず、 TPPS_4 側の収率は低いながら前述の会合体におけるそれとほぼ同様であった。一方 ^{60}Co はいずれの場合も TMPyP 側に多く、10%を越える錯体収率を示し、これに対し TPPS_4 側では数%であった。今回の会合体の場合、以前行った銅、亜鉛を中心金属とする $\text{TMPyP}-\text{TCPP}$ 会合系の場合と様相は異なり、前者に見られた銅核種のはじめ銅のなかった側のフラクションへの高い濃縮現象は見られず、その代りいずれの場合も ^{60}Co と TMPyP 配位子との結びつきが顕著であった。

このような水溶性ポルフィリン錯体会合系固相での中心金属の反跳挙動で、普遍的傾向とみなせるものがあるのかどうかはこれからの問題であり、今回の結果はそれを確かめるための一段階である。

RECOIL BEHAVIOURS OF CENTRAL METAL ATOMS IN METALLOPORPHYRIN DERIVATIVES.

Department of Chemistry, University of Tsukuba, Hitoshi SHOJI, Yasushi NUMATA, Roberto BENAVIDES CANTU, and Nagao IKEDA

1C10 反跳インプラネーションによる化学反応機構：配位子効果

東北大理 ○関根 勉、吉原賢二

はじめに

反跳インプラネーションによる化学反応は新しい化合物の合成に適用されるばかりでなく、従来の固相のホットアトム化学反応を評価するうえで重要な知見を与えるものと考えられる。われわれは、捕集体として分子性である金属 β -ジケトン錯体を用い、1)異なる配位子をもつIII価金属錯体の混合物中への反跳インプラネーション反応、2)捕集錯体の中心金属効果、3)幾何異性体を用いた場合のホットアトム反応と反跳インプラネーション反応の比較、などを行ってきた。2)では、アセチルアセトナト錯体の中心金属を変化させた場合の ^{51}Cr インプラント原子との中心金属置換収率は、捕集錯体の中心金属と配位子間の結合の強さに関連のあることがわかった。これらの実験の一環として、今回は、中心金属をFe(III)と限定し、 β -ジケトン配位子を変化させた場合の中心金属置換収率について調べたのでここに報告する。

実験

配位子としては、ジベンゾイルメタン(H·dbm)、ジピバロイルメタン(H·dpm)、テノイルトリフルオロアセトン(H·tta)、アセチルアセトン(H·acac)、トリフルオロアセチルアセトン(H·tfa)、ヘキサフルオロアセチルアセトン(H·hfa)を選び (Table 1)、それぞれのFe(III)を中心金属とするトリス錯体を合成した。ターゲットは、それぞれの捕集錯体とクロム金属粉末をメノウ乳鉢にて混合しペレットとしたものを用いた。照射は、東北大学原子核理学研究施設の 300 MeV ELINAC により得られる制動放射線 (最大エネルギー 50 MeV、カレント 100~150 μA 、1mm厚白金コンバーター) で約8時間行った。目的とする核反応は $^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$ 反応である。試料は、liq. N_2 で冷却した N_2 ガスを吹き付けることにより冷却した。照射を終えた試料は、分析時までドライアイス中に保存した。化学処理は、アルミナカラムクロマトグラフィあるいは、シリカゲルカラムクロマトグラフィによった。測定は、Ge(Li)検出器、あるいは pure Ge検出器-4kPHAによって行った。

結果と考察

Table 1 に、それぞれのFe(L)₃を捕集錯体とした時の ^{51}Cr -Fe中心金属置換収率を示した。なお、捕集錯体中にインプラントされた ^{51}Cr の総量を100%とした。Table 1 に掲げた順番は、左から、大きな収率が得られた順とした。まず、 ^{51}Cr による中心金属置換収率は、捕集錯体の配位子が変わると8%から40%ぐらいまで大きく変化していることがわかる。以前に、アセチルアセトナト錯体のIII価中心金属を変化させるとやはり置換収率が変化し、その関係は捕集錯体の中心金属-配位子間の結合の強さに関連していた。今回得られた結果では、たとえば、アセチルアセトンの CH_3 基を CF_3 基の一つずつ置き換えた tfa、

せきねつとむ、よしはらけんじ

Table 1. The percent yield of $^{51}\text{Cr}(\text{L})_3$ for Fe(III) β -diketonates.

Catcher	Fe(dbm) ₃	Fe(dpm) ₃	Fe(tta) ₃	Fe(acac) ₃	Fe(tfa) ₃	Fe(hfa) ₃
R ₁		$\text{CH}_3-\overset{\text{CH}_3}{\underset{ }{\text{C}}}-\text{CH}_3$		CH ₃	CF ₃	CF ₃
R ₂		$\text{CH}_3-\overset{\text{CH}_3}{\underset{ }{\text{C}}}-\text{CH}_3$	CF ₃	CH ₃	CH ₃	CF ₃
Cr(L) ₃ yield (%)	44.2 40.6 46.7	29.8 27.4	23.2 25.3 23.9 23.5	20.2 22.4 18.8	12.5 13.6 12.2 12.9 14.0	8.6 13.2 8.4 8.9
av. (%)	43.8 ±3.1	28.6 ±1.2	24.0 ±0.9	20.5 ±1.8	13.0 ±0.8	9.8 ±0.3

hfa錯体では、その順番に置換収率が小さくなっているのが見いだされる。これらの捕集錯体の中心金属-配位子間の結合に関しては、CF₃基の電子吸引性のためこの順番に結合の弱くなるのがよく知られているが、置換収率もそれに対応して変化しているように見える。また、中心金属-配位子間の伸縮振動の波数もその順番を示している。すなわち、結合力の強い錯体についてより大きい収率を与えていることになる。これは以前に報告した中心金属の影響（中心金属とアセチルアセトン配位子の間の結合の弱い場合により大きな置換収率を与える）とは一見逆の傾向を示しており、これらふたつの効果を同時に説明するためには少なくとも前後する二つの過程を経て反応が進行していると考えざるを得ない。すなわち、第一段階として反跳原子が反応にあずかる捕集体分子にエネルギーを与える。この際の錯体の分解過程では分子としての性質が反映される。ちなみに、これらβ-ジケトン錯体の電子衝撃によるイオン出現ポテンシャルでは中心金属の効果はほとんど見られず、それを大きく変えるのは配位子の性質である。すなわち、このエネルギー付与により逐次分解が優先してしまつては置換反応生成物は与えられないのである。このとき、もとに近い形のままで残ったもののみが次の過程に移行可能となると考えられる。したがってエネルギー付与に対して強いものほど次の過程に進む割合が高くなると考えられる。第二段階としては、もともと結合にあずかっていた中心金属原子と反跳原子の間の競争反応であり、より強い結合を作る方向に生成物を与える。

REACTION MECHANISMS OF RECOIL IMPLANTATION INDUCED REACTION : LIGAND EFFECTS.

Department of Chemistry, Faculty of Science, Tohoku University, Tsutomu Sekine
Kenji Yoshihara

(東北大・理) ○宮川 篤、関根 勉、吉原 賢二

【緒言】

固相中におけるホットアトム化学反応に関連した現象として、60年～70年代にかけて Andersen らはイオン・インプラネーション法を用いてインプラント核種の化学反応のエネルギー依存性の研究をおこなった。しかし、この方法ではマクロ量のイオンによる照射効果の影響を強く受けるデメリットがあり、その後は大きな進歩もなく現在に至っている。これに対し、核反応を用いた反跳インプラネーション法では、キャリアフリー量の元素をインプラントできるため照射効果の影響が少ない。

しかし、前回の討論会で演者らは、薄膜を反跳源として入射エネルギーを変化させることができ、インプラネーション反応のエネルギー依存性の研究を進めることが可能であることを示した。

今回、この方法を用いて各種のβ-ジケトン錯体に対する中心金属置換反応のエネルギー依存性を、いくつかの核反応について比較検討した。

【実験】

ターゲットは前回同様、マイラー膜上にクロム金属を蒸着し、このクロム薄膜の上に、捕集体としてアセチルアセトン錯体 ($M(acac)_3$; $M = Fe, Al$) を昇華法でつけた。また、クロム薄膜の厚さは放射化分析法により求めた。

照射条件は以下のとおりである。

$^{50}Cr(n, \gamma)^{51}Cr$: 日本原子力研究所 JRR-2 および JRR-4
立教大学原子力研究所 TRIGA II

$^{52}Cr(\gamma, n)^{51}Cr$: 東北大学原子核理学研究施設 BLINAC

$^{51}V(p, n)^{51}Cr$: 東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター
AVFサイクロトロン

照射後、アセチルアセトンをベンゼンで洗い落としシリカゲル・カラムクロマトグラフィーにかけて、 $^{51}Cr(acac)_3$ とその他の成分に分離した。

【結果・考察】

反跳原子の入射エネルギーの評価は、 (γ, n) 反応については前報で採用した

みやかわあつし、せきねつとむ、よしはらけんじ

Cortiniら¹⁾による中性子スペクトルを、 (n, γ) 反応については捕獲 γ 線のスペクトルをもとにした。平均入射エネルギーは薄膜が厚くなるにつれて低くなり、厚さが ^{51}Cr の最大反跳飛程を超えると一定となる。

(γ, n) 反応について $^{51}\text{Cr}(\text{acac})_3$ の収率をみると(図1)、その膜厚依存性はかなり小さいように見える。しかし、膜厚の薄い側(平均エネルギーの大きい側)の平均値と膜厚の厚い側(平均エネルギーの小さい側)の平均値を比較すると、前者は後者よりやや大きな値となる。また、 (n, γ) 、 (γ, n) 、 (p, n) の3つの核反応での結果を比較してみると(図2)、収率は反跳エネルギーの対数の増大にしたがって明らかに変化して、 (γ, n) 反応の領域でみられた傾向と一致する。従来、固相ホットアトム反応では反跳エネルギーがある程度以上大きくなると収率はほぼ一定となるといわれていたが、図2のインプラントーションの化学反応の傾向はそれとは違った様相を示していることが注目される。

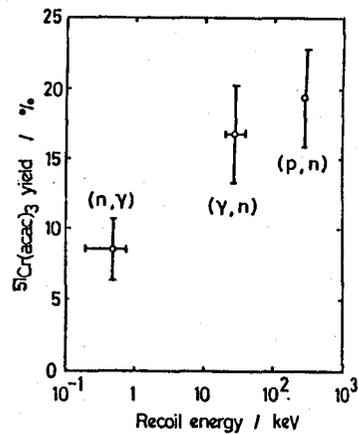
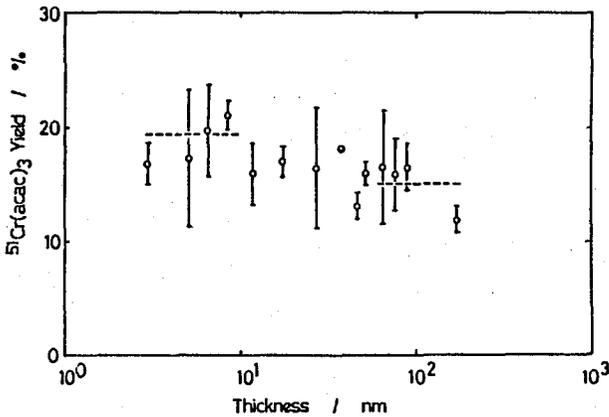


図1 $^{51}\text{Cr}(\text{acac})_3$ 収率の膜厚依存性
((γ, n) 反応)

○: 実験の平均値
点線: 区間の平均値

図2 $^{51}\text{Cr}(\text{acac})_3$ 収率の
エネルギー依存性

ref.

1) G.Cortini et al., Nuovo Cim., 9 (1), 85 (1958).

ENERGY DEPENDENCE ON RECOIL IMPLANTATION REACTION

Faculty of Science, Tohoku Univ., Atsushi MIYAKAWA, Tsutomu SEKINE,
Kenji YOSHIHARA

1C12 ^{51}Cr と ^{55}Cr のホットアトム化学挙動における同位体効果と照射温度効果

(立教大・原研, 立教大・一般教育*) ○松浦辰男, * 佐々木研一, 栗原英明, 永原照明

1. 目的 リテンション値の同位体効果について, (1) 同位体効果が最大反跳エネルギーから常識的に予想される傾向と一致するかどうか, (2) 『"primary retention" に近く, すなわちリテンションが小さいほど同位体効果は大きくなる』という推論は正しいか, ということを確認するため, また照射温度効果に関して, リテンションの諸成分のうちRcすなわち「いったんは結合が切れるがcage内反応によってもとのフラグメントと直ちに再結合する割合」の温度係数は負であるべきなので, 『アニーリングがほとんど起らず, "primary retention" に近い値が得られる実験条件では, 低温照射よりもかえって室温のほうが低いリテンション値が得られるはずである』という推論を確認するため, 既報¹⁾にひきつづいて照射試料としてCr(acac)₃を対象とし, スカベンジャーを含む溶液系について実験をおこなった。また ^{55}Cr と ^{51}Cr の中性子捕獲 γ 線のデータから反跳エネルギースペクトルを算出し, 実験値と比較した。

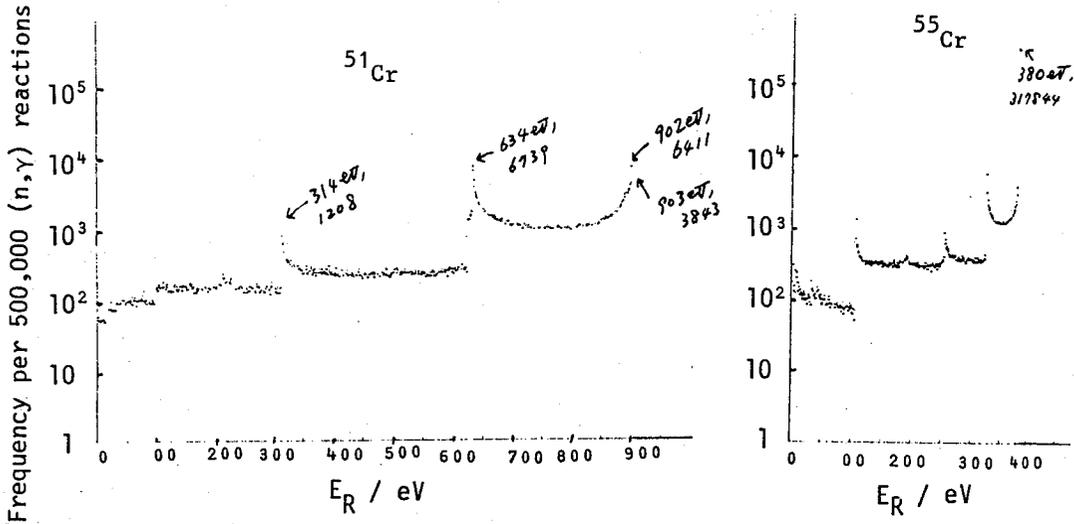
2. 実験と反跳エネルギースペクトルの計算 Cr(acac)₃を, スカベンジャーとしてFe³⁺イオンをベンゼン溶液に溶かして照射試料とし, 室温で溶液のまま, あるいは液体窒素温度までの種々の温度で凍結溶液として原子炉で2分間照射し, 同一の実験条件で0.25M シュウ酸溶液で溶媒抽出により迅速分離し, 水層と有機層の2つのフラクションをただちにGM管—MCA系で β 線を測定し, 既報¹⁾の方法により壊変曲線を解析して ^{55}Cr のリテンションを求めた。 ^{51}Cr のリテンションはあとでGe(Li)により求めた。反跳エネルギースペクトルの計算は捕獲 γ 線の放出が等方的であると仮定してモンテカルロ法をもちいた。

3. 結果 結果を既報¹⁾のスカベンジャーを含まない場合とともに表に示す。表中〔 〕は ^{55}Cr にたいする値であり()は実験数である。また ^{55}Cr と ^{51}Cr の反跳エネルギースペクトルをそれぞれ図1と図2に, これから計算したR値と E_R の関係および同位体効果($^{55}\text{R}/^{51}\text{R}$ の比)と E_R の関係を図3に示す。

4. 考察 表から, 照射温度効果についてはスカベンジャー系ではあきらかに室温のほうが低温のときよりも低いリテンション値が得

照射 温度	固体		ベンゼン溶液 (または凍結溶液)		
		照射後直ちに 0.01 mol/l scavenger を 含むベンゼン に溶かした時	純溶液	scavenger を含む溶液	
				0.005 Mol/l Fe ³⁺	0.01 Mol/l Fe ³⁺
室温	5.05% (7) (5.69%) (7)	3.90% (3) (4.41%) (3)	3.66% (3) (4.13%) (3)	0.26% (4) (0.68%) (4)	0.097% (3) (0.35%) (2)
-3℃~ -12℃				0.32% (4) (0.24%) (2)	0.35% (1)
Dアイ ス温度	4.13% (1) (4.70%) (1)		3.69% (3) (4.05%) (3)	0.65% (9) (1.19%) (7)	0.51% (1)
液体N 温度		3.75% (1)		0.92% (8) (1.32%) (8)	0.16% (3) (1.61%) (3)

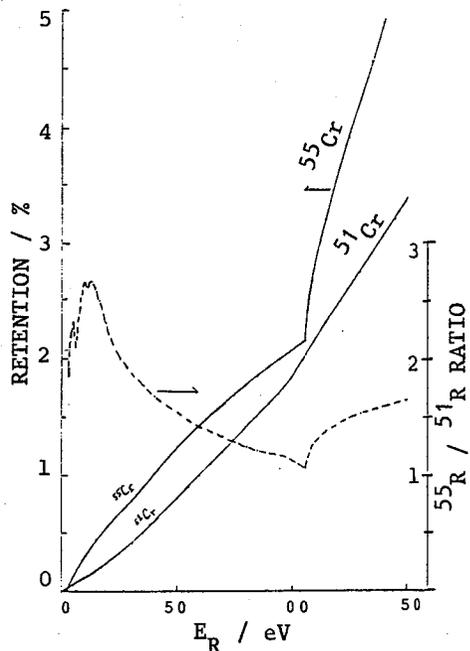
まつうらたつお, ささきけんいち, くりはらひであき, ながはらてるあき



られており、上記の照射温度効果に関する推論は正しいと結論できる。同位体効果についても、実験値から (1) ^{55}Cr のほうが ^{51}Cr よりもリテンションはつねに大きく、クロムについては同位体効果は最大反跳エネルギーから予想される傾向と合致することがわかったほか、(2) スカベンジャーを含む系では同位体効果は大きくあらわれていて、『初期リテンションに近い実験条件では本質的に同位体効果の大きい成分である Rn すなわち「カスケード」線の放出により実効反跳エネルギーが小さいことによりはじめから分解のおこらぬ割合」の寄与が大きくなるので、同位体効果は大きくなる』という上記の推論は正しいことがわかった。

しかし、第2図から、反跳エネルギースペクトルは一般に複雑な様相を示し、第3図から同位体効果については上記の1の命題が一般的には必ずしも成立するとは限らないこと、 E_R が小さくなくても同位体効果が大きくなるとは限らないことがわかる。なお、今回の実験値と第3図から、この系でホットアトムを生じさせる最低のエネルギー“Appearance Energy”として室温で10~20eV、ドライアイス温度で35~45eV、液体窒素温度で55~65eVと見積ることができ、この値はほぼリーズナブルなものであると考えられる。

† T. Matsuura et al, J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett., 106, 175 (1986)



ISOTOPIC AND IRRADIATION-TEMPERATURE EFFECTS IN HOT-ATOM-CHEMICAL BEHAVIOR OF ^{55}Cr AND ^{51}Cr

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

(大放研) ○朝野武美、桐谷玲子、藤田慎一

緒言 トリチウムの生物学的影響の原因として、放射線照射効果 (R 効果) と放射性壊変にともなう効果 (T 効果) が考えられる。ここでは、T 効果によるトリチウム (³H) 標識核酸塩基の分解について研究する。既に、[2-¹⁴C, 5-³H]シトシンについて、放射線分解を抑制するための‘希釈剤添加法’を用いることにより、T 効果によるシトシンの分解の様子を観測することに成功し、分解率などを求めた。今回は、[2-¹⁴C, 5-³H]ウラシルの酸素飽和水溶液中における同様な研究について報告する。

実験 [2-¹⁴C, 5-³H]ウラシル (340 μg, ³H 29 mCi, ¹⁴C 170 μCi, ³H 標識率 32 %, ¹⁴C 標識率 86 %) を合成した (富山大学トリチウム科学センター施設を利用)。

合成された放射性ウラシルの水溶液に、希釈剤として 60 倍、180 倍 および 360 倍の重量比に相当する非放射性ウラシルを加え、酸素飽和水溶液下、5 °C で 数 100 日間放置した。反応条件を Table 1 - Conditions に示す。試料を放置した後、反応溶液について、2 次元薄層クロマトグラフ分離を行い、スパークチェンバー・カメラで分解生成物を観測するとともに、HPLC 分離を行い、溶離液の放射能を液体シンチレーションカウンターで測定した。放射性ウラシルの分解率および分解生成物の収率を次式によって求めた。

$$\text{Decomp.} \quad \% / ^3\text{H decay} = \frac{B - A}{0.32(1 - e^{-\lambda t})(1 - R)} \quad (1)$$

$$\text{Yield of Products} \quad \% / ^3\text{H decay} = \frac{D - C}{0.32(1 - e^{-\lambda t})(1 - R)} \quad (2)$$

A (または C) は ³H 放射能から求められた放射性ウラシルの分解率 (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 ¹⁴C 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。0.32 は ³H 標識率である。

結果と考察 放射性ウラシルの分解に関して、Table 1 - Results 1 と - Results 2 に示す。希釈剤添加法を用いることにより比放射能を小さくし、放射性ウラシルの放射線分解を抑制し、T 効果による分解を観測することができた。トリチウムの壊変率が小さいため、数値は大きく変動しているが、T 効果による放射性ウラシルの分解率の平均値は約 55 %/³H壊変、また分解生成物の総収率の平均値は約 34 %/³H壊変であった。これらの値は先に [2-¹⁴C, 5-³H]シトシンの酸素飽和水溶液について得られた値 (それぞれ 79 % 及び 71 %) よりも小さい。Fig. 1 は分解生成物の HPLC-ラジオクロマトグラムである。10 個の分解生成物のピークが見つかった。ピークの希釈剤濃度依存性を調べることにより、ピーク c, d, e, f, g, および j は T 効果及び R 効果によって生じたものであり、ピーク h 及び k は R 効果によって生じたものであことが推測された。ピーク e は T 効果によって比較的に多量生じ、イソバルビツル酸のピークの保持容量と一致した。

あさの たけよし、きりたに れいこ、ふじた しんいち

Table 1. Decomposition of (2-¹⁴C,5-³H)Uracil and yield of products following β -decay of tritium in oxygenated aqueous solution.

Conditions		Run	1	2	3
		Rad. act. soln.	³ H μ Ci/ml	333	332
		¹⁴ C μ Ci/ml	1.93	1.92	1.84
Wt. ratio,		Ur	60	180	360
		[2- ¹⁴ C,5- ³ H]Ur			
Decay time / days			124	207	197
Results 1	Decomp. of uracil	A (³ H) / %	1.56	1.37	1.33
		B (¹⁴ C) / %	2.15	1.61	1.74
	B - A / %		0.59	0.24	0.41
	0.32(1 - e ^{-λt})(1 - R)		0.0060	0.0100	0.0095
	Decomp./ %/tritium decay		98	24	43
average (55 \pm 31) %/tritium decay					
Results 2	Yield of Products	C (³ H) / %	1.22	1.05	1.05
		D (¹⁴ C) / %	1.56	1.14	1.39
	D - C / %		0.34	0.09	0.34
	0.32(1 - e ^{-λt})(1 - R)		0.006	0.0100	0.0095
	Yield of prods./ %/tritium decay		57	9	36
average (34 \pm 20) %/tritium decay					

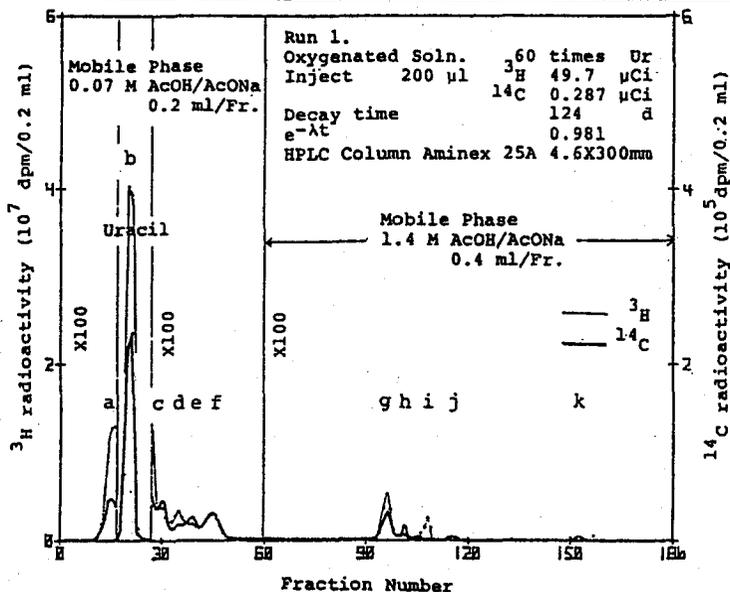


Fig. 1 HPLC-radiochromatogram of (2-¹⁴C,5-³H)Uracil in oxygenated aqueous solution (Run 1) stored in refrigerator.

CHEMICAL EFFECTS OF β -DECAY IN TRITIUM LABELLED URASIL IN OXGENATED AQUEOUS SOLUTION. Radiation Center of Osaka Prefecture.
Takeyoshi ASANO, Reiko KIRITANI, Shinichi FUJITA.

(東大・R I, 千大・教養¹⁾, 原研・東海²⁾) ○野川憲夫, 大橋國雄,¹⁾
 松岡弘充²⁾, 茂木照十三²⁾, 守屋 孝²⁾, 森川尚威

はじめに

$^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$ 反応を利用する標識法は, $^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$ 反応による方法に比べて, 放射線分解が少なく, 反応後のターゲット物質の除去操作が不要という利点から, これまで, 演者らは, この核反応を利用して, トリフェニルメタンや安息香酸などの有機化合物, テトロドトキシンや β -ブソイドウリジンなどの生体関連物質の標識化を行ってきた。この標識法での実用上の問題点の1つはいかに比放射能の高い標識化合物を得るかということである。このため, ポリエチレンテレフタレート薄膜の積層試料のトリチウム化を行い, 表面からどの程度の深さまでトリチウムが反応しているかを調べて, 照射試料の最適な厚みについて考察したので報告する。

実験

厚さが0.5~1 μm の極薄ポリエステルフィルム(商品名エンブレット, ユニチカ製)を20~30回巻き重ねて, 外径が9 mm ϕ で長さが20 mm, 外径が15 mm ϕ で長さが25 mmの2種の円筒状の試料を作成した。これらの試料の外側に変形防止のためにテフロン管あるいはポリエチレン管を付け, それぞれを長さが100 mmと115 mmの石英アンブルに, 圧力の異なるヘリウム-3と共に封入した。アンブルには金およびコバルトの放射化検出器を付け(図1),

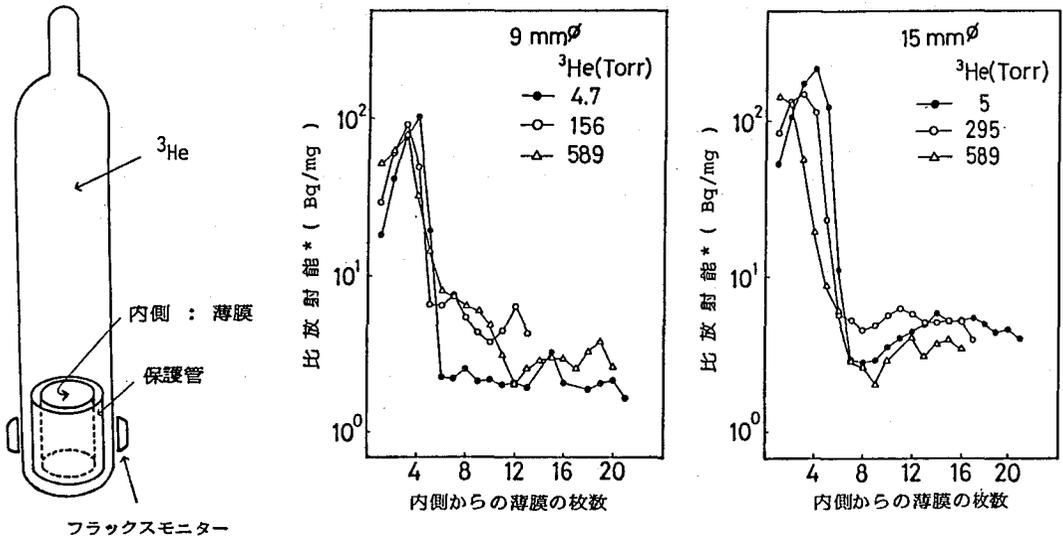


図2 薄膜のトリチウムの取込み

図1 照射試料

*中性子フルエンスを $1 \times 10^{15} \text{ n cm}^{-2}$ と ^3He 圧(1 Torr)および温度 20°C で標準化

のがわのりお, おおはしくにお, まつおかひろみつ, もぎてるとみ, もりやたかし, もりかわなおたけ

原研のJRR-4のTまたはSパイプで0.5分もしくは、5分間中性子照射し、クーリングの後、アンプルを開封した。トリチウム発生数の多かった試料の内側の膜ほど黄色を呈していた。積層した膜は1枚ずつ分離し、マイクロ天秤で秤量後、サンプルオキシダイザ(型式B306, パッカード製)で酸化処理し、液体シンチレーションカウンタ(型式4530, パッカード製)でトリチウムの放射能を測定した。図2に薄膜の放射能の測定結果を示す。

結果と考察

図2に示すように内側から5枚目(厚さ: 0.48 mg cm^{-2})までの比放射能が、それより外側の放射能の膜の放射能より高くなっている。これは主として5枚目までは、円筒内のヘリウム-3ガス内で発生した反跳トリチウムにより、それ以降は、巻き重ねの作業時に膜間に生じた隙間に入り込んだヘリウム-3により標識されたことを示すと考えられる。よって比放射能の高い標識化合物を得るには、5枚目程度の厚さに試料を調製すればよい。それより厚い部分は、比放射能を下げた原因となる。1枚目の放射能がヘリウム-3の圧力の上昇と共に高まるのは、ヘリウム-3ガス内でのヘリウム-3によるモデレータ効果により奥の膜に到達すトリチウムの割合が少なくなり、試料表面での反応割合が高くなることに起因すると考えられる。表面での反応は、より低いエネルギーのトリチウムで起こり、それより奥での反応は、より高いエネルギーのトリチウムが到達して起こると考えられる。ポリエチレンテレフタレートは $[-\text{OCH}_2\text{CH}_2-\text{OOC}(\text{C}_6\text{H}_4)-\text{CO}-]_n$ を単位とするポリマーであるので、仮に $n=1$ を1分子と考え5枚目までの膜の平均の比放射能を、分子数と試料の円筒内でのトリチウムの発生数との比に対してプロットすると(図3)、すでに報告した凍結乾燥法により照射試料を調製したトリフェニルメタンの場合と比較しても、径が9mmφ, 15mmφのいずれの場合にも、その比放射能は高い。よって厚みを適当に選らば薄膜試料による標識化も有効であることがわかった。

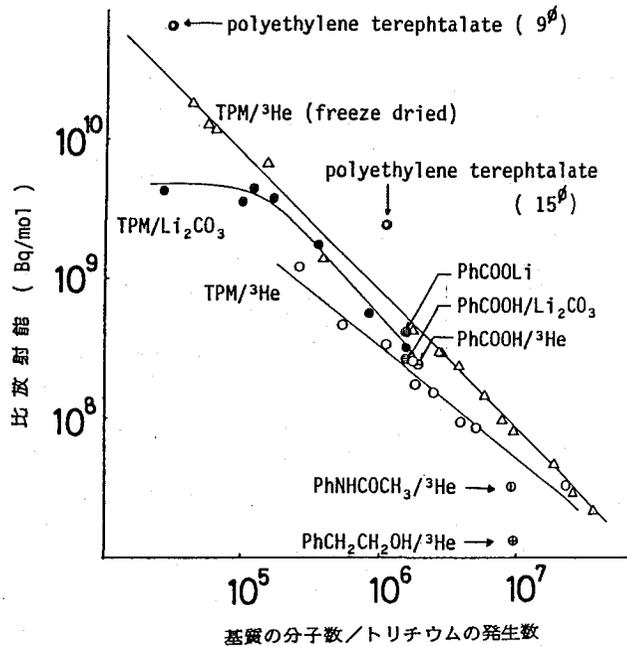


図3 基質の比放射能と基質の分子数/トリチウムの発生数との関係

Recoil Tritiation of Laminated Polyethylene Terephthalate by $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$ Reaction
 Radioisotope Centre, The University of Tokyo, Norio NOGAWA, Naotake MORIKAWA
 Department of Chemistry, College of Arts and Sciences, Chiba University, Kunio OOHASHI
 Japan Atomic Energy Research Institute, Hiromitsu MATSUOKA, Terutomi MOKI
 Takashi MORIYA

(滋賀医大) 小林隆幸、○福村和子

前回の討論会で我々は硫酸塩中での⁵⁷Co EC崩壊の後遺効果について報告したが、今回はそのうち $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ (⁵⁷Co)中での後遺効果を、我々が以前提案したγ-X同時計数メスバウアー分光法^{(1),(2)}によってより詳しく調べたので、その結果を報告する。

[実験原理]

⁵⁷CoがEC崩壊すると、約30%がK-X線放出を、約60%がK-Auger効果を起こす。K-X線が放出された場合は、K殻には1個だけのvacancyができるが、K-Auger効果の後には2個のvacancyができる。このK-vacancyはより外側の殻(L, M殻)からの電子によって埋められるが、その際K-L, K-LM, L-MM Auger効果が起こり低エネルギー(数十~数百eV)の電子が放出される。又、K-L, K-M, L-M遷移により低エネルギーのX線も放出される。これらの低エネルギーの電子線、X線により娘核⁵⁷Feの周りが破壊され、これが後遺効果として観測される。⁵⁷CoのEC壊変後K-X線を放出した場合にはK-Auger効果を起こした場合に較べてK-vacancyの数が少ないので、後遺効果は少ない予想される。γ-X同時計数法による測定の目的は、K-X線が放出された時のみのメスバウアースペクトルを同時計数法を用いて記録し、これから得られた結果と通常の方法によって得られたそれとを比較することによりEC壊変後に起こっている現象をより詳しく調べようというものである。

[実験]

濃度1Mの硫酸鉄の0.5N硫酸溶液2.5μlに数μCiの⁵⁷Coを加え、室温で約1日放置して試料とした。測定に用いた6.5 keV K-X線と14.4 keV γ線用の検出器は1インチ径1mm厚のNaI(Tl)である。同時計数スペクトルは通常のスローコインシデンス法により観測した。

[結果]

得られたスペクトルを図1に、それらの解析結果を表1及び図2に示す。表1にある $\text{Fe}^{2+}(1)$ は通常の $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 中での Fe^{2+} の状態に相当するものであり、coincidence spectrum中でのintensityが通常の場合より増えている理由は実験原理より明らかである。

$\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 中でのFeから酸素までの距離を計算したのが図3(Fe-H₂O間及びFe-SO₄²⁻間)であるが、大まかに云ってFe原子から約2ÅのところにH₂Oが、約4ÅのところにSO₄²⁻が配位している。Fe³⁺の同定はそのISの値からしたのであるがcoincidence conditionでそのintensityが大幅に減少していることから、多分これは最近接H₂Oのradiolysisに関係しているものであろう。Fe²⁺の正体は不明であるが多分高電荷のイオンであり、その生成にはSO₄²⁻のradiolysisが関係しているものと思われる。ただ、それがQSを持つかどうかは不明である。Fe²⁺(2)はSO₄²⁻のradiolysisの結果生じたものと思われる。SO₄²⁻ → SO₃⁻ + O⁻と分解されても、それらは遠方にあるために⁵⁷Feを

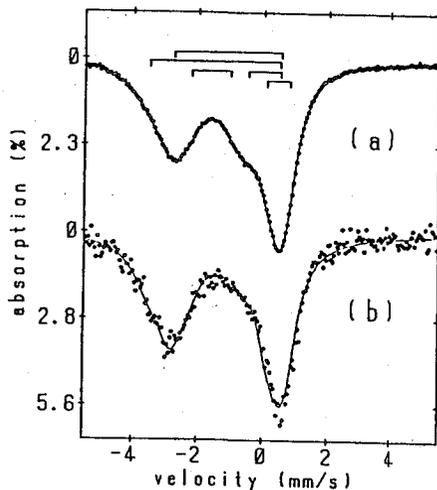


図1 メスバウアー・スペクトル ((b)はコインシデンス法による)

こばやしたかゆき、ふくむらかずこ

State	I.S. (mm/s)	Q.S. (mm/s)	[Conventional]		[Coincidence]	
			width (mm/s)	intensity (%)	width (mm/s)	intensity (%)
Fe ²⁺ (1)	-1.15±0.01	3.31±0.03	1.01±0.03	32.9	1.10±0.08	51.7
Fe ²⁺ (2)	-1.52±0.04	3.97±0.06	1.24±0.06	18.4	1.22±0.15	23.7
Fe ²⁺ (3)	-1.64±0.01	1.22±0.03	1.09±0.02	19.7	0.87±0.16	9.5
Fe ³⁺	-0.02±0.03	0.99±0.06	0.72±0.02	14.9	0.62±0.10	4.0
Fe ⁺	0.43±0.02	0.69±0.02	0.72±0.02	14.1	0.62±0.10	11.1

表 1

酸化しにくい。これらが再結合せずにそのままの状態ではばらく存在していたり、他のFeイオンを酸化した場合には局所的対称性が低くなる。大きなQSの値はこのことを反映しているものと思われる。Fe²⁺(3)はどのような機構によって出現したのかよく分からない。しかし、この component は CoCl₂ · 2H₂O の場合にも存在した⁽²⁾ので硫酸鉄特有の現象だとは思われない。両者に共通することは、ligand layer がほぼ二層に分かれていることである (FeSO₄ · 7H₂O は H₂O 層と SO₄²⁻層、CoCl₂ · 2H₂O は第一及び第二の H₂O 層)。

今回得られた結果は全体としては、CoCl₂ · nH₂O (n=2,6) の実験結果⁽²⁾との整合性はよい。

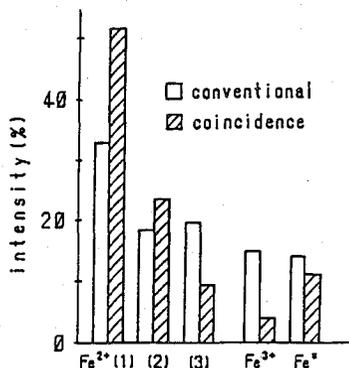


図2 相対強度

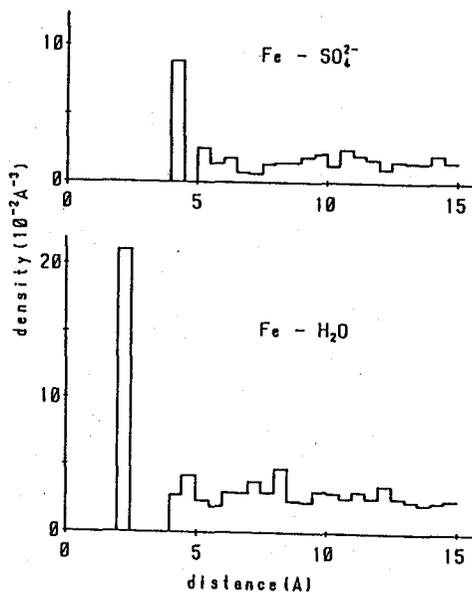


図3 Fe, O間の距離

References

- 1) T. Kobayashi, K. Fukumura and T. Kitahara, Nucl. Instrum. Methods, 166, 257 (1979).
- 2) T. Kobayashi and J. M. Friedt, Bull. Chem. Soc. Jpn., 59, 631 (1986).

INVESTIGATION OF ⁵⁷Co EC DECAY EFFECTS IN FERROUS SULFATE
 BY THE γ-X COINCIDENCE MOESSBAUER METHOD
 Department of Physics, Shiga University of Medical Science,
 Takayuki KOBAYASHI, Kazuko FUKUMURA

(都立大・理) ○渡辺裕夫、遠藤和豊、佐野博敏

【緒言】

核変換過程に伴うオージェ効果により生成される低エネルギー電子、空孔は、核変換後の異常原子価状態生成の主な原因であると考えられているが、特に固相においては、それらの不安定な短寿命化学種の挙動について不明な点が多く残されている。

しかしながら生成される短寿命化学種は、極めて微量であるため、通常の物理化学的分析手段では観測が困難である。発光メスbauer分光法は、壊変原子個々の状態を非破壊で観測することができ、そのような微量分析には、たいへん優れた手段である。さらに同時計数法と組み合わせ、時間分割で観測することにより、短寿命化学種の動的な解析が可能となる。

今回は、前回のX、 γ 同時計数法と同様に¹⁾、⁵⁷Coでラベルした、ヨウ素酸コバルトを線源とし、 γ 、 γ 同時計数メスbauerスペクトルを観測することにより、⁵⁷CoのEC壊変に伴い生成される、短寿命化学種の初期生成割合、及び平均寿命 τ を算出し、化学的緩和過程について検討を行った。

【実験】

線源としては、⁵⁷Coでラベルしたヨウ素酸コバルト、 $\text{Co}(\text{IO}_3)_2$ をMeusserの方法により硝酸コバルトより合成し²⁾、示差熱分析、および熱重量分析により、無水物であることを確認した。また合成された線源の放射能強度は約60 μCi であった。吸収体としては、⁵⁷Fe濃縮310-ステンレス箔を用い、図1に示すファーストスローコインシデンス法を用い、同時に複数の時間領域について計測を行った。²²Naの γ 線を用いて測定した本システムの時間分解能は、 $10.0 \pm 0.3 \text{ ns}$ であった。得られたスペクトルは、Fe(II)およびFe(III)の2成分とし、短寿命な不安定化学種をFe(II)($\text{IO}_3)_2$ として、SALSによるGaussian最小自乗法により解析を行った³⁾。

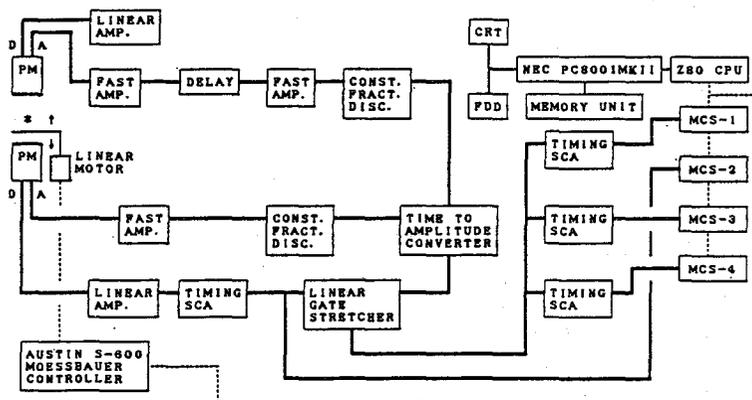


図1. Schematic diagram of the apparatus for the delayed coincidence Mossbauer experiments.

わたなべやすお、えんどうかずとよ、さのひろとし

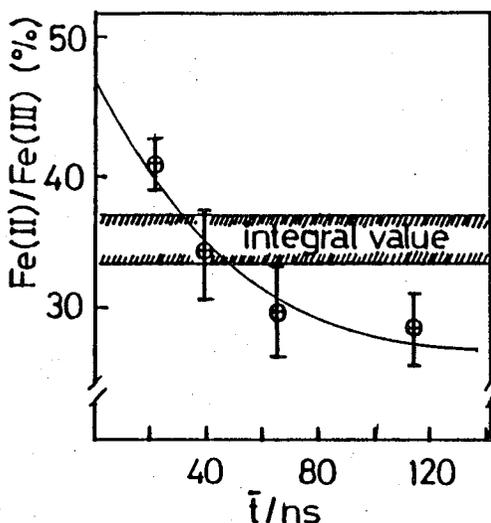


図2. The ratio of the absorption peak area of Fe(II) to Fe(III)-species vs mean time \bar{t} .

【結果】

得られた時間分割 γ , γ 同時計数メスバウアースペクトルより算出された Fe(II) 成分の存在比を、設定した時間領域の平均時間に対してプロットしたものを図2に示す。それぞれの時間領域は、a): 0 - 45 ns / AVE. 21 ns, b): 45 - 88 ns / AVE. 65 ns, c): 88 - 148 ns / AVE. 115 ns, d): 0 - 88 ns / AVE. 39 ns とした。

この結果より算出された短寿命化学種、Fe(II)(10_3)₂ の平均寿命 τ_c は、 $\tau_c = 43 \pm 5$ ns [$\lambda_c = (2.3 \pm 0.3) \times 10^{-2}$ ns⁻¹] であった。また 14.4 keV のメスバウアーレベルにおける Fe(II) 成分と Fe(III) 成分の初期分岐比は、 0.46 ± 0.13 と求められた。

この結果は、Fe(II)(10_3)₂ の合成の際、非常に酸化されやすい事実と一致し、また

壊変後の⁵⁷Feの電子状態の安定性は、親核種であるコバルトの化合物中での電子状態に依存しないが、周りの配位子、あるいは陰イオンの安定性に依存することが確かめられた。

参考文献

- 1) 渡辺、遠藤、佐野、村松 第30回放射化学討論会講演予稿集、112(1986)。
- 2) A.Meusser, Ber. 34(1901)2434.
- 3) T.Nakagawa and Y.Oyanagi, "Program System SALS for Nonlinear Least-Squares Fitting in Experimental Sciences" in Recent Developments in Statistical Inference and Data Analysis, editor, K.Matsushita, (North-Holland, Amsterdam, 1980) p.221.

STUDY OF TIME-DEPENDENT ⁵⁷Fe-SPECIES IN ⁵⁷Co-LABELED Co(10_3)₂ USING COINCIDENCE MÖSSBAUER SPECTROSCOPY

Department of Chemistry, Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University
Yasuo WATANABE, Kazutoyo ENDO, Hirotoishi SANO

