

東北大理

岡 好良[○]・加藤 豊明・野村 紘一・斎藤 達弥・蔡 惠澤

目的：20 MeV 制動輻射の照射による誘起される光核反応の種類と生成量に関する検討を行い、この光核反応、放射線残留核種と放射化学分析に利用する際の基礎的データとするため、本研究では (δ, p) 反応の生成曲線を求め、既報(岡他, 日化第19年会)の (δ, n) 反応の生成曲線と比較検討した。すなわち、 $Z = 12 \sim 80$ の10数種の元素を選び日本原子力研究所の LINAC で得られる 20 MeV 制動輻射による放射線化し、 (δ, p) 反応で生じる放射線残留核種を測定して個々の (δ, p) 反応の収率を算出し、ターゲット元素の原子番号との関係を探った。

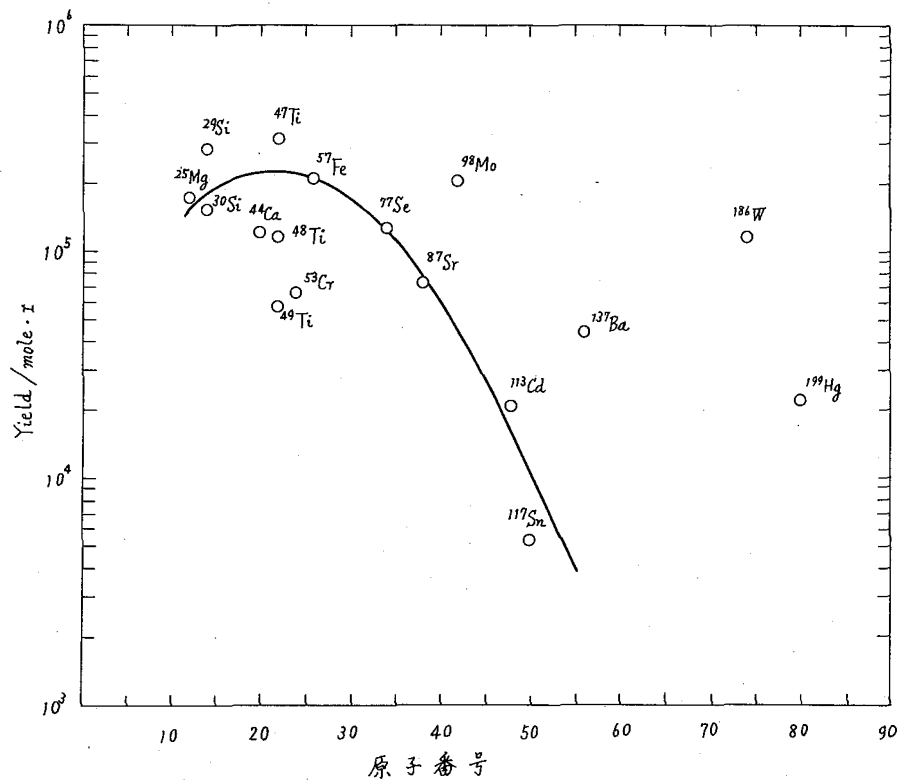
試料と照射： $^{12}\text{Mg} \sim ^{20}\text{Hg}$ の間の14元素の金属または塩をターゲットとし、それぞれ約 100mg とアルミニウム箔に包みか或いは内径 4mm の石英管に封入した。照射は LINAC で得られる 20 MeV 電子ビーム(平均 40 μA)を Pt コンバーターにより制動輻射に変換し、コンバーター直後に装着した試料をそれぞれ1時間ずつ照射した。本照射条件における γ 線量は Mn とモニタとして用いた $^{55}\text{Mn}(\gamma, n)^{54}\text{Mn}$ の生成量から求め、 $9.4 \times 10^6 \text{ I/min.}$ と得た。照射の Geometry の差異によって各試料の γ 線量の変動があるが、各試料には Au 箔を添付し $^{197}\text{Au}(\delta, n)^{196}\text{Au}$ で生じる ^{196}Au の放射線強度と比較して線量を求めた。照射後の試料は γ 線スペクトルの経時変化を $3\phi \times 3\text{ NaI(Tl)}$ クリスタルと 400 チャンネル波高分析器により測定し、 γ 線のエネルギーと半減期とから残留核種を確認した。 (γ, n) 反応残留核種の生成が顕著な (δ, p) 反応残留核種の明瞭に検出し得ない場合にはターゲットからの化学分離を行った。

反応収率：照射後の一時的に得られた γ 線スペクトルから対象核種の γ 線の光電ピークの面積計数率を求め照射終了時の値に換算し、測定、Geometry、クリスタル内部の全効率、 γ 線の吸収率、および内部吸収率とから変換数を求める反応収率 ($\text{mole}^{-1} \cdot \text{I}^{-1}$) を算出した。収率とターゲット元素の原子番号との関係のプロットして図示したところの結果を得た。比較的軽い核では収率は $10^4 \sim 10^5$ のオーダーで (δ, n) 反応のものと同程度であるが、 Z の増加と共に減少し $Z = 50$ 附近では約 10^3 となる。 Z の大きい核ではフロン障壁の影響が顕著に表れる結果であり、 $(\delta, n)/(\delta, p) < 10^{-3}$ となる。しかし、さらに Z の大きい ^{137}Ba , ^{186}W , ^{199}Hg では (δ, p) 反応の収率は生成曲線から期待されるよりは 2~3 桁高く求められたが、このような Z の大きい元素では直接過程の寄与が著しくなったのと考えられる。

Yield vs. Z は, Weinstock's (1954) の photoproton の収率と Z との関係と良く傾向一致を示した。

(γ, pn) 反応の収率は $^{60}\text{Ni}(\gamma, pn)^{58}\text{Co}$ については $1.2 \times 10^4 / \text{mole} \cdot \text{I}$ と求められ、 (δ, p) 反応の収率の 10% 以下であった。

一般に (γ, n) 反応の場合に比べて (δ, p) 反応残留核種の生成量は低いから、Mg, Si, Ca など比較的軽い元素の放射化学分析にはむしろ (δ, p) 反応の利用が有効である。



20 MeV 剝動輻射による (σ, p) 反応の収率と標の核、原子番号との関係

東北大理

岡好良, 加藤豊明, 野村紘一, 蔡忠澤

目的: 先報のように20 MeV. 制動放射による諸元素の照射では、生じる主反応は (γ, n) および (γ, p) 反応であって、放射化分析にもこれら核反応の残留核種を利用するのが有利であるが20 MeV. までのエネルギー領域では他に (γ, α) 反応も起り比較的軽い元素ではかなりの生成量となると考えられる。他方、 (γ, α) 反応の生成量に関する報告は、Greenbergら(1954年)の23 MeV. 制動放射による数種の元素の照射結果などをみることができ、系統的研究は少なく、 (γ, n) や (γ, p) 反応の生成量との比較を検討し難い。

本研究では、V, Cu, BrおよびMoをターゲット元素として選り、これらを日本原子力研究所の20 MeV. LINACで得られる制動放射で1時間づつ照射し、 (γ, α) 反応で生じる放射性残留核種をターゲット元素から化学分離した後、 γ 線スペクトロメトリーで生成量を求め反応収率を算出した。

試料と照射: V, Cu(それぞれ金属), LiBrおよびMoO₃を試料とし、それぞれの約100 mgを内径4 mmの石英管に封入してターゲットとし、ターゲットホルダーの比シババータ直後に装着して照射した。照射は20 MeV. 電子ビーム(平均40 μ A)より変換した制動放射でそれぞれ1時間行なった。 γ 線量はMnおよびAu箔をモニターとして、 (γ, n) 反応の残留核種の生成量によってその都度求めたが、 5×10^6 roentgen/minであった。照射後の試料は担体を加えて (γ, α) 反応残留核種を化学分離し、その γ 線スペクトルを $3'' \times 3''$ NaI(Tl)と400 Fv:ネル波高分析器によって求め、 γ 線のエネルギーおよび半減期の双方から残留核種を確認の上、生成量および反応収率を求めた。

結果: 核種の性質、生成量およびターゲットからの分離法を一括表示した。実験範囲内では、 (γ, α) 反応の収率は (γ, n) のものに比べて $1/500 \sim 1/5000$ であり、原子番号が大になると低くなって無視できる程度となる。また (γ, p) 反応の収率に比べれば $1/200 \sim 1/300$ である。 $^{60}_{Cu}(\gamma, \alpha)^{56}_{Co}$ の収率は 9.7×10^3 Yield/moleで最も高く得られた。一般に (γ, n) あるいは (γ, p) 反応の残留核種を利用する放射化分析に本反応の生成は妨害となる程度ではないうが、 $^{60}_{Cu}$ の0.160 MeV. の γ 線あるいは $^{60}_{Co}$ の0.065 MeV. の γ 線は、それぞれVおよびCuの放射化分析に利用されよう。より重核で (γ, α) 反応の収率がどの程度に得られるかも興味ある問題で現在検討中である。

20 MeV 制動輻射による(γ,α)反応の生成量

標的核種	残留核種	測定用γ線	生成量		ターゲットからの分離法
			μC/mg*	Yield/mole-r	
$^{51}_{23}\text{V}$ (99.76%)	$^{47}_{21}\text{Sc}$ ($T_{1/2}=3.4\text{d}$)	0.160 MeV (100%)	2.0×10^{-3}	2.8×10^3	非破壊
$^{65}_{29}\text{Cu}$ (30.9)	$^{61}_{27}\text{Co}$ (99 min)	0.068 (99)	7.2×10^{-3}	9.7×10^3	CuをHNO ₃ に溶解, Co ²⁺ 添加, 濃縮, Dowex 1×8 (Cl ⁻)-HCl系の陰イオン交換分離, α-ナトリウム-β-ナトリウムでCoを濃縮, 加熱, Co ⁶⁰ にて測定.
$^{81}_{35}\text{Br}$ (49.48)	$^{77}_{33}\text{As}$ (39 hr)	0.246 (2.8)	2.0×10^{-4}	4.3×10^2	LiBrを溶解, As ³⁺ , As ⁵⁺ 担体添加, SnCl ₂ でAsに還元して測定.
$^{92}_{42}\text{Mo}$ (15.86)	$^{88}_{40}\text{Zr}$ (85 d)	0.394 (100)	1.0×10^{-5}	4.0×10^3	MoO ₃ をH ₂ SO ₄ に溶解, Zr ⁴⁺ 担体添加, NH ₄ OHでZr(OH) ₄ 沈殿, 後HCl-HFに溶解, Dowex 1×8に吸着, 9NHCl-0.5NH ₄ FでZr ⁴⁺ 分離, Zr(OH) ₄ を濃縮, 加熱, ZrO ₂ として測定.

* 9.4×10^6 roentgen/min., 1時間照射直後の値

1 A 3 光核反応によるタングステン中のモリブデンおよびレニウムの放射化分析

東北大理

岡好良 加藤豊明 ○齋藤達弥

目的；電子線型加速器(LINAC)で得られる20 MeV 制動輻射によってタングステン，モリブデンおよびレニウムを放射化し，生じる光核反応の種類と生成量に関する基礎検討の後に，これらの残留核種を利用してγ線スペクトロメトリーによるタングステン中のモリブデンおよびタングステン中のレニウムの定量に応用し，その方法を確立した。

試料と照射；光核反応の基礎検討にはW(金属粉末)， WO_3 ，Mo(金属粉末)， MoO_3 ，Re(金属粉末)などを用い，定量法の検討には種々の混合比のW-MoおよびW-Re混合試料を用いた。

試料の一定量(約100mg)を内径4mmの石英管に封入してターゲットとし，日本原子力研究所のLINACで得られる20 MeV 制動輻射により放射化した。γ線量はほぼ 9×10^6 röntgen/minである。

照射時間はW-Mo系混合試料では15分間としたが，これ以外では全て1時間行なった。

γ線スペクトルの測定は $3\phi \times 3\phi$ NaI(Tl)と400チャンネル波高分析器によって行ない，スペクトルに示された光電ピークのエネルギーと計数率の減衰とから残留核種を確認し，定量に適するS/N比の良好な測定条件や分析感度などを求めた。

(γ, p)や(γ, α)反応の生成量を検討するにはターゲットからの化学分離を併用した。

残留核種と生成量；20 MeV 制動輻射の照射で起る主反応は(γ, n)および(γ, p)反応であるが，同時に(γ, α)，($\gamma, 2n$)，(γ, pn)，反応も起り得る。タングステン，モリブデンおよびレニウム3元素についてこれらの反応の生成量を求めるため3者を単独にγ線照射し，Dowex IX8-HCl-HF系の陰イオン交換法によりそれぞれ(γ, n)，($\gamma, 2n$)，(γ, p)，(γ, pn)および(γ, α)フラクションに分離し，γ線スペクトルを求めた。その結果を一括表示した。

タングステンからは ^{197m}W ($T_{1/2}=5.0$ min)の0.222 MeVのγ線および ^{185}Ta (48 min)の0.175 MeVのγ線の光電ピークが顕著に現われるが，これらの減衰の後には ^{181}W ， ^{185}W ， ^{183}Ta ， ^{182}Ta などからの弱いγ線が検出される程度となる。モリブデンからは ^{92}Mo (γ, n) ^{91}Mo および ^{98}Mo (γ, p) ^{99}Nb が最も顕著で ^{91}Mo の β^+ 消滅放射あるいは ^{99}Nb の0.665 MeVのγ線を利用してモリブデンを検出，定量できる。レニウムでは(γ, n)反応により ^{186}Re および ^{184}Re を生じるが後者からの0.904 MeVのγ線の光電ピークを効果的に利用できる。

定量法；多量成分のタングステンをγ線束強度の内部モニターとして，モリブデンおよびレニウムを非破壊で定量する方法とした。W-Mo系混合試料($Mo, 0.2-0.03\%$)を15分間照射し，γ線より ^{91}Mo の0.511 MeVおよび ^{185}Ta の0.175 MeVのγ線の光電ピークの面積計数率を求め，それぞれの半減期を使って照射終了時の値とし， $R_{91} = \text{CPM}(^{91}Mo, 0.511 \text{ MeV}) / \text{CPM}(^{185}Ta, 0.175 \text{ MeV})$ を算出した。 R_{91} と混合重量比 R_{91} との関係を求めたところ図1の通りの良い直線関係を得た。モリブデンの定量に ^{99}Nb の0.665 MeVを用いるのは消滅放射を測定する場合に比べて感度は低い，他の β^+ 放出核種の影響を受けない。

実試料の分析に当っては照射並みに測定条件を同一にして R_{A_0} を求めれば R_W を知る事ができる。定量下限は ^{91}Mo を使えば約 $5 \mu\text{g}$, ^{99}Nb では約 $20 \mu\text{g}$ である。つきに W-Re 系混合試料 ($\text{Re}, 27 \sim 0.026\%$) を 1 時間照射し, $R_{A_0} = \text{cpm}(^{184}\text{Re}, 0.904 \text{ MeV}) / \text{cpm}(^{183}\text{Ta}, 0.274 \text{ MeV})$ と $R_W (= R_{\text{Re}}/W)$ との関係を求め図 2 に示したが, 両者は良い比例関係となった。

レニウムの定量下限は約 $10 \mu\text{g}$ となり, 定量は非破壊で行なわれる。

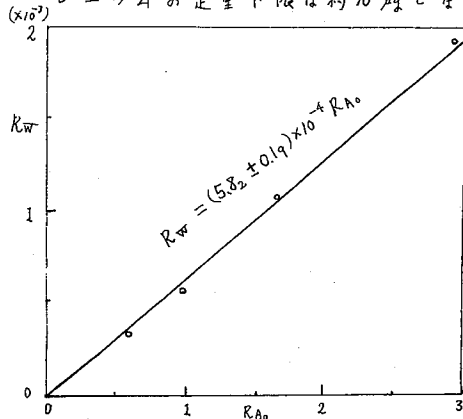


図 1. タングステン-モリブデン系の R_W vs R_{A_0}

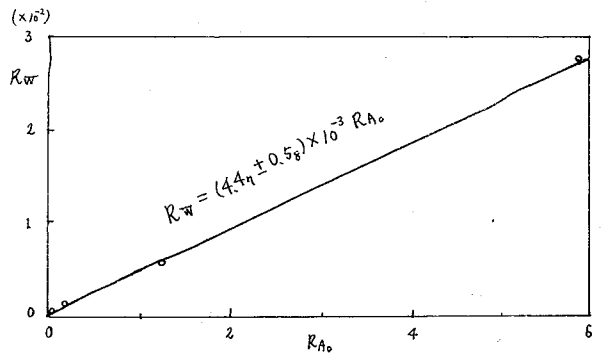


図 2. タングステン-レニウム系の R_W vs R_{A_0}

タングステン, モリブデンおよびレニウムの光核反応残留核と生成量

元素	光核反応	残留核種	半減期	照射エネルギー (MeV)	生成量* (cpm/mg)	備考
W	(γ, n)	^{177m}W	5.0 min	0.222	1.04×10^4	他に ^{185}W , ^{187}W 等の生成を確認。 $^{180}\text{W}(\tau, 2n)$ 反応に生成。
	(γ, p)	^{185}Ta	48 min	0.195 Me	6.59×10^3	Yield = 1.2×10^5 / mb. r. 他に $^{183}\text{Ta}(5.0 \text{ d.})$ 及び $^{182}\text{Ta}(115 \text{ d.})$ を確認。
	(γ, α)	γ線を検出できない				
Mo	(γ, n)	^{91}Mo	15.5 min	0.511	5.06×10^6	他に $^{91m}\text{Mo}(66 \text{ sec})$ 及び $^{99}\text{Mo}(67 \text{ hr})$ の生成を確認。
	(γ, p)	^{99}Nb	74 min	0.665	1.02×10^5	他に $^{95m}\text{Nb}(90 \text{ hr})$, $^{95}\text{Nb}(35 \text{ d.})$ 及び $^{91m}\text{Nb}(65 \text{ a.})$ を確認。
	(γ, α)	^{88}Zr	85 d.	0.394	7.55×10^0	Yield = 4.0×10^3 / mb. r. (γ, n), (γ, p) 反応に比し無視できる。
Re	(γ, n)	^{186}Re	70 hr	0.137 Me	2.38×10^4	$^{185}\text{Re}(\tau, 2n)$ $^{181}\text{Re}(68 \text{ a.})$ 生成せず
	(γ, n)	^{184}Re	38 d.	0.904 Me	5.51×10^3	
	(γ, p)	残留核種は非放射性				
(γ, α)	γ線を検出できない					

* 9.4×10^6 r/min で 1 hr 照射した直後, $3'' \phi \times 3''$ NaI(Tl) を 35 mm で測定。

東京原子力産業研究所 ○加藤英正 清野英昭

目的 著者は先に原子炉利用による(n,p)(n,α)反応等の競合反応を伴う場合の放射化分析の一方法について報告した。⁽¹⁾ その後、引続いて 2,3 の例について検討したので報告する。

方法 既に報告したカドミ比を測定する方法⁽¹⁾⁽²⁾によっている。

結果 測定は照射設備の中性子スペクトルを利用している。したがって実験に使用した照射設備の中性子スペクトルをあきらかにしておく。当所にある原子炉HTRの3群にわけた中性子束密度の比は熱中性子束密度を1にした場合表1に示される通りである。炉心照射の場合において、熱中性子束密度を1に規格化した場合の速中性子および熱外中性子のスペクトルを図1に示す。実線は日立の開発した計算コードJUPITER-5による計算値を示す。熱外中性子領域ではIn, Au, Co, MnによりWestcottの方法を拡張した方法で求め、速中性子領域ではしきい検出器TR²³² Fission, P³¹(n,p)Si³¹, Al²⁷(n,p)Mg²⁷, Si²⁸(n,p)Al²⁸, Mg²⁴(n,p)Na²⁴, Fe⁵⁶(n,p)Mn⁵⁶, Al²⁷(n,α)Na²⁴反応によりHughesの方法を拡張した方法で求めた。

表1 3群にわたる中性子束密度の比

測定場所	中性子束密度	熱中性子束密度	速中性子束密度
炉心(水中)	1	1.17 ± 0.10 (理論値1.20)	1.6 ± 0.1 (理論値1.70)
気送管(No.2)	1	0.44 ± 0.08	0.04 ± 0.01
熱中性子柱	1	0.008 ± 0.001	—

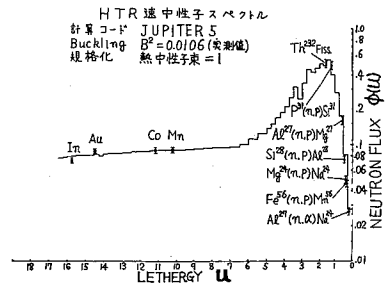


図1 HTR中性子スペクトル

速中性子による競合反応の例として表2に示されるFe中のMn, Al中のNa, Al中のMg, Mg中のNa, S中のP, P中のSi, Co中のMn, Zn中のCuについて検討することにした。これらの反応に対して上述の中性子スペクトルを用いて、既に述べた次式で示される競合反応の放射化分析の式⁽¹⁾の定数KおよびR₂を求めると表3のようになる。

$$\frac{W_2}{W_1} = k \times \left(\frac{1}{R_1 - 1} - \frac{1}{R_2 - 1} \right)^{-1} \quad (1)$$

表2 Examples of Competing Reactions

Examples	(n,γ) Reactions	(n,p) or (n,α) Reactions
Mn in Fe	⁵⁵ Mn(n,γ) ⁵⁶ Mn	⁵⁴ Fe(n,p) ⁵⁴ Mn
Na in Al	²³ Na(n,γ) ²⁴ Na	²⁷ Al(n,α) ²⁴ Na
Mg in Al	²⁶ Mg(n,γ) ²⁷ Mg	²⁷ Al(n,p) ²⁷ Mg
Na in Mg	²³ Na(n,γ) ²⁴ Na	²⁴ Mg(n,p) ²⁴ Na
P in S	³¹ P(n,γ) ³² P	³² S(n,p) ³² P
Si in P	³⁰ Si(n,γ) ³¹ Si	³¹ P(n,p) ³¹ Si
Mn in Co	⁵⁵ Mn(n,γ) ⁵⁶ Mn	⁵⁷ Co(n,α) ⁵⁶ Mn
Cu in Zn	⁶³ Cu(n,γ) ⁶⁴ Cu	⁶⁴ Zn(n,p) ⁶⁴ Cu

表3 定数kおよびR₂

Examples	HTR炉心		HTR気送管	
	k	R ₂	k	R ₂
Mn in Fe	9.05 × 10 ⁻³	11.2	6.33 × 10 ⁻⁶	34.5
Na in Al	1.37 × 10 ⁻³	20.8	9.58 × 10 ⁻⁶	44.4
Mg in Al	1.41	2.00	9.18 × 10 ⁻²	45.0
Na in Mg	2.56 × 10 ⁻³	2.03	1.79 × 10 ⁻³	44.4
P in S	4.47 × 10 ⁻¹	20.4	3.12 × 10 ⁻²	46.3
Si in P	12.8	2.00	0.90	45.0
Mn in Co	2.48 × 10 ⁻⁵	11.2	1.73 × 10 ⁻⁸	34.5
Cu in Zn	9.61 × 10 ⁻³	12.5	6.92 × 10 ⁻⁶	40.0

Fe中のMnの測定については本方法が有効であることを既に報告した。⁽³⁾
 ここでは、Al中のNa, Al中のMg, Zn中のCuについて検討を加える。

(1) Al中のNaの測定

図2および図3は高純度Al箔(純度99.998%,重量約10mg)を炉心で照射し、照射後約5時間経過後のγ線スペクトルを示す。図2はBare Al箔であり、図3はCdひびくしたAl箔に対するものである。図2、図3はほとんど Na^{24} のみによるγ線スペクトルを示しており、Cdひびくにより Na^{24} がほとんど減少してゐるのから $Al^{27}(n, \alpha)Na^{24}$ 反応による Na^{24} の生成が著しいことがわかる。図4、図5は同種のAl試料を気送管で照射し約2時間半経過後のγ線スペクトルを測定したものである。この場合もほとんど Na^{24} の標準スペクトルに近いものであり、Bare試料とCd Covered試料の差のないことから、やはり $Al^{27}(n, \alpha)Na^{24}$ 反応により生成したものであることがわかる。したがって、高純度Al中のNaの測定は本方法により、Matrixからの生成核種の妨害なしに非破かい的に測定し得ることがわかる。とくに Na^{24} の2.7 MeVのγ線についてカドミ比を求めるのが他の核種の妨害が少なくてよいであろう。勿論、炉心と気送管ではFe中のMnの測定について述べたと同様にNaの含有量に対する測定しやすい領域が異なる⁽¹⁾。Naの含有量の少ない場合は速中性子束の少ない気送管を用いた方がカドミ比 R_1 が大きくなるので測定誤差が小さい。

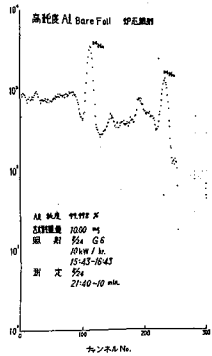


図2 Al Bare 炉心照射

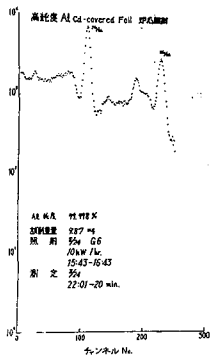


図3 Al Cd-covered 炉心照射

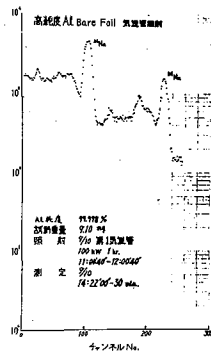


図4 Al Bare 気送管照射

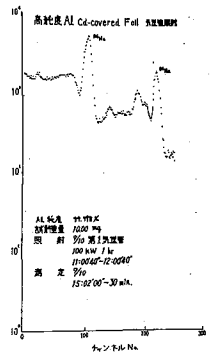


図5 Al Cd-covered 気送管照射

(2) Al中のMgの測定

図6、図7に上述の高純度Al箔を炉心で照射し、照射後約30分経過後に測定したγ線スペクトルを示す。図6はBare試料であり、図7はCdひびくした試料である。 Mg^{27} が顕著にあらわれており他の核種は Na^{24} だけである。図6、図7からCdひびくにより Mg^{27} の生成量はほとんど変化なく、速中性子による $Al^{27}(n, p)Mg^{27}$ 反応により生成された Mg^{27} であることがわかる。これらからAl中のMgは本方法によりMatrix元素からの他の反応の妨害なしに非破かい的に測定が可能であることがわかる。 Na^{24} の影響は Mg^{27} の減すの後に Na^{24} を測定し補正される。図8、図9は同種の試料を気送管で照射し、照射後約40分経過後に測定したものである。 Mg^{27} および Na^{24} が顕著であり他の妨害核種の影響は小さい。すなわち、Al中のMgは Na^{24} を補正し、非破かい的に測定し得る。 Mg^{27} は

半減期が短いので他の方法に比べ本方法による非破壊測定が有効と思われる。

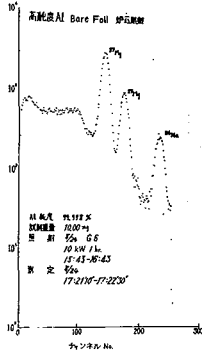


図6 Al Bare 炉心照射

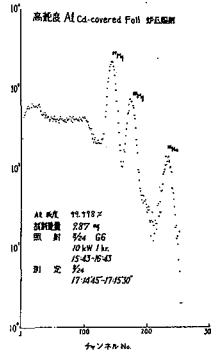


図7 Al Cd-covered 炉心照射

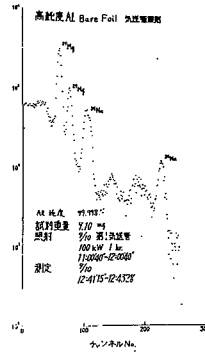


図8 Al Bare 気送管照射

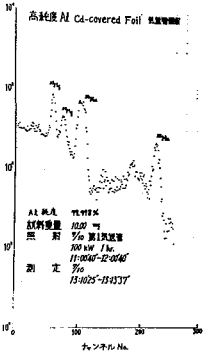


図9 Al Cd-covered 気送管照射

(3) Zn 中の Cu の測定

図10、図11に高純度 Zn 試料(純度 99.999%、試料重量約 10mg) を気送管で照射し、照射後約 33 時間経過後に測定した γ 線スペクトルを示す。図10は Bare 試料であり、図11は Cd Covered 試料である。Zn^{69m}、Cu⁶⁴、Zn⁶⁵ があらわれている。Zn^{69m} および Zn⁶⁵ は ν 中子による (n, γ) 反応により主として生成するため Cd 付近により著しく減少するが、Cu⁶⁴ はほとんど減少していない。これは Zn⁶⁴ (n, p) Cu⁶⁴ 反応により Cu⁶⁴ の大半が生成しているためである。Zn 中に含まれている不純物 Cu からは Cu⁶³ (n, γ) Cu⁶⁴ 反応で Cu⁶⁴ が生成する。炉心を照射に使用した場合は Cu⁶⁴ の生成はもっと顕著になる。しかし、Zn^{69m} の 0.438 MeV の γ 線が Cu⁶⁴ の annihilation 0.51 MeV にかなり近いので Cu の化学分離または電子計算機による最小二乗法による Zn^{69m}、Zn⁶⁵、Cu⁶⁴ の Fitting による解析が適当である。分離した後で同様にカドミウムを求め本方法により Zn 中の Cu の量が求められる。

- (1) 加藤; 第9回放射化学討論会
2A23
- (2) 加藤, 清野; 第7回日本アイソトープ学会誌 B/①-1
- (3) 加藤, 清野; Radioisotopes
Vol. 14 No. 6 (1965)

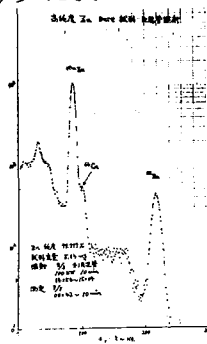


図10 Zn Bare 気送管照射

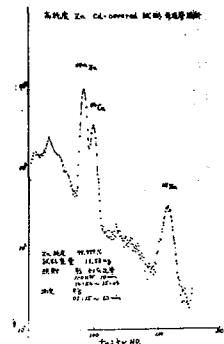


図11 Zn Cd-covered 気送管照射

1 A 5 高純度希土類中の不純物の電気泳動的挙動および定量についての検討

京大 原子炉 木曾義之, 高田実弥, 〇玉井 忠治

目的: 高純度希土類を中性子にて放射化し, (n, γ) 反応により生成した放射性核種の電気泳動的挙動を検討し, かつ試料中に存在する希土類の微量不純物を分離, 定量することを目的とする。

実験: 中性子放射化に用いた試料は, Pr, Nd, Smなどの高純度希土類 (Johnson-Matthey製, 純度: 99.9%) であり, その化学形はそれぞれ, Pr_2O_3 , Nd_2O_3 , Sm_2O_3 である。試料の核特性および生成核種について示したものが表1である。これらの粉末試料をそれぞれ, 20mg ずつとり, 石英管に別々に封入したのち, KURの圧気輸送管 No-3 (中性子束: $4.9 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$, カドミ比: 5.9) にて, 1時間, 中性子照射をおこなった。

希土類元素相互間の分離手段としては, 電気泳動法を用いた。この電気泳動法の試料としては, 中性子放射化した希土類の粉末試料を塩酸に溶解したものを使用した。Pr, Nd, Smの電気泳動的挙動の検討は, 主としてEDTA錯体についておこなったが, 錯化剤としてEDTAのほか, NTA, クエジ酸についても若干の実験をおこない, これらの錯化剤における希土類元素の挙動についても, あわせて検討した。すなわち, Pr, Nd, Smの各試料について, 錯化剤のpH, 電気泳動に要した時間, 錯化剤の種類およびその濃度, 試料の濃度, 加電圧などの変化が, 試料である希土類元素の移動状態にどのように影響をおよぼすかを検討した。

電気泳動をおこなう分離媒体としては, 東洋ろ紙 No. 50 を用いた。このろ紙を錯化剤溶液に浸したのち, 試料溶液をろ紙上へ線状に着床した。なお電気泳動に要した時間は 30~90分, 加電圧は 300V~1000Vの間であった。

通電後, ろ紙を乾燥させ, X線フィルムを用いてオートラジオグラムをとり, その黒化度を参照しながら, 放射性核種の存在する位置を決定した。また放射性核種の存在しているろ紙の部分を取り取り, その放射能強度を測定した。

試料の放射能強度の測定は, γ 線については, RCL-5124チャンネル多重高分析器 {結晶: 3"×3" NaI(Tl)} を用いておこない, β 線については, G-M計数管を

表1. 照射試料の核特性 および生成核種とその数量

元素	天然に存在する核種	存在比 %	放射化断面積 barn	(n, γ) 反応で生成する核種	半減期	KUR (Pr-3)C 検出器の検出数量 Ci/g/Rn
Pr	^{141}Pr	100	10 ± 3	^{141}Pr	19.2R	5.6×10^{-1}
Nd	^{146}Nd	17.18	1.8 ± 0.6	^{147}Nd	11.3d	4.4×10^{-5}
	^{148}Nd	5.72	3.7 ± 1.2	^{149}Nd	2.0R	3.4×10^{-2}
	^{150}Nd	5.60	3.0 ± 1.5	^{151}Nd	15 m	8.5×10^{-2}
Sm	^{152}Sm	26.80	140 ± 40	^{153}Sm	47.1R	3.0×10^{-1}
	^{154}Sm	22.88	5.5 ± 1.1	^{155}Sm	235m	5.5×10^{-1}

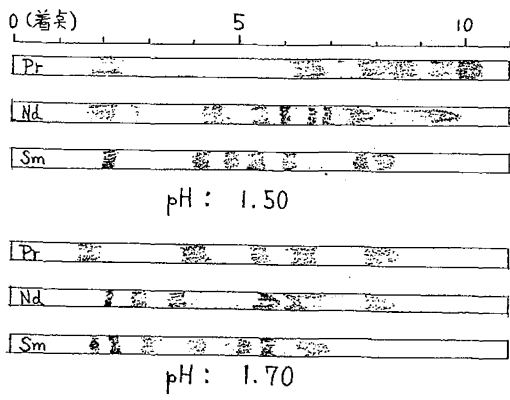


図1. 各pHにおける照射試料の泳動状態。
 泳動条件: 錯化剤濃度 $EDTA\ 3 \times 10^{-3} M/l$
 加電圧 $500V/30cm$
 泳動時間 $30分$

どれが存在しているSmやPrは、放射化されると、これらの放射能強度は、Nd, Sm, Prともに同程度となるからである。

これらの元素の分離条件の検討をおこなった結果の一例を図1に示す。図1の結果より、移動距離は、Sm, Nd, Prの順に大きくなっていることがわかる。また図1の条件を用いると、これら希土類元素を相互分離しうる事が判明した。

図2は、錯化剤溶液のpHにより、Smの移動状態がどのように影響されるかを示したものである。なお、溶液のpHの調整は、塩酸でおこなったものである。

図2によれば、pHが1.7前後では、Smはしま模様を形成することがわかる。Nd, Prについても同様の検討をおこなった結果、やはりしま模様が生じることが判明した。このしま模様の成因について検討した結果、錯化剤濃度を変化させても、試料濃度を変化させても、

用いておこなった。試料中に存在する核種の同定は、 β 線スペクトルおよびGM計数管を用いておこなった。また各測定時間における放射能強度より壊変曲線を作成し、標準体の放射能強度と試料のそれとを比較して、試料(Nd)中の不純物(Sm, Pr)の定量をおこなった。

結果および考察: 希土類元素中に含まれる希土類元素の微量不純物の定量は困難な仕事であるが、Nd中のSm, Prを定量することは、放射化分析法を用いると比較的容易であることが、表1より判明する。すなわち、その理由としては、Nd 1g 中について、 $10^{-4}g$ の割合で、それ

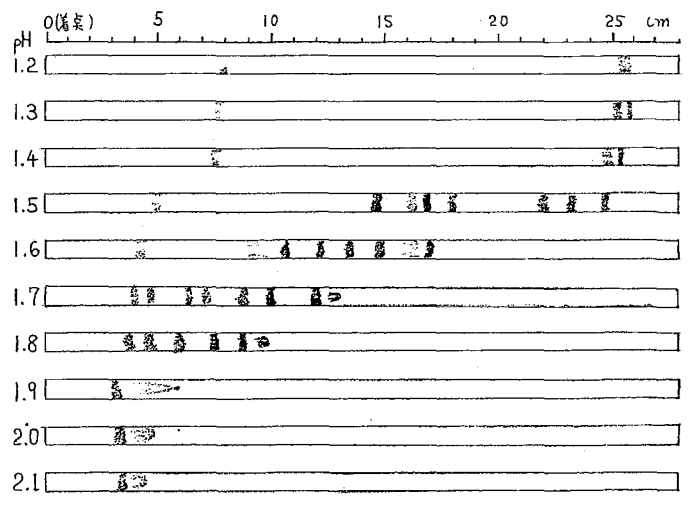


図2. 種々のpHにおけるSmの泳動状態
 泳動条件: 錯化剤 $EDTA\ 5 \times 10^{-3} M/l$
 加電圧 $500V/30cm$
 泳動時間 $90分$

しま模様^の成因には影響^しないことがわかった。またこのしま模様は、照射試料^の特性でもないことがわかった。すなわち、非放射性試料^を電気泳動させたのち、ろ紙^を中性子照射してもやはり、試料はしま模様^となっていることが判明した。このしま模様^の原因は、イオンの荷電数が異なるか、または、イオンの大きさが異なるかのどちらかによるものではないかと思われるが、目下不明である。

武蔵工大原研

○万里輝男・出縄和英・丸山芳明

目的) 半導体用シリコン中の不純物は、半導体の電気特性に大きな影響を与えると云われている。しかし不純物の量が非常に微量であるので、一般的分析方法により検出することは困難である。そこで放射化分析による分析方法が考えられ、すでにいくつかの報告がなされている。我々はすでに実用的な分析方法を確立するためにいくつかの検討をおこなってきたが、この実験においては、小型原子炉を用いて、ライフ・タイムのかなり異なったいくつかのシリコンの分析を試みた。中性子照射をした場合に得られる放射性核種の半減期により、検出元素を次のような二つのグループに分けておこなった。

(1) Ni・Mn・Zn・In

(2) Cu・Mo・Sb・As・Ga・Au・Na・K・Cd

実験方法) 照射はシリコン約1gをポリエチレンの袋に封入して、標準試料と共に TRIGA-II型原子炉の中央実験孔(熱中性子束 $2.2 \times 10^{12}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ 、速中性子束 $2.4 \times 10^{12}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$)で(1)のグループは5時間、(2)のグループは1日5時間ずつ3日間おこなった。

照射後シリコンをHF-HNO₃で表面を洗浄し、HF-HNO₃(1:1)の混酸に溶解した。

これに各元素のキャリアーを加え蒸発乾固し、さらに硝酸を加えて蒸発乾固をくりかえして、HFを完全に除去した。次に水を0.3-N塩酸に溶解し、下図のような分離方法にしたがって各元素を分離した。放射能の測定は2πガスフローカウンターによる。

又マルチチャンネル・γ-スペクトロメーターによる測定も試みた。

実験結果) ライフ・タイムの異なったシリコンを選んで、ライフ・タイムと分析値との関係を見たが、実験結果から明らかなようにはっきりした関係は認められなかった。ただ一般的にいうとライフ・タイムの小さいものほど多量の不純物が検出された。それらはMn・Zn・Cu等の元素であった。

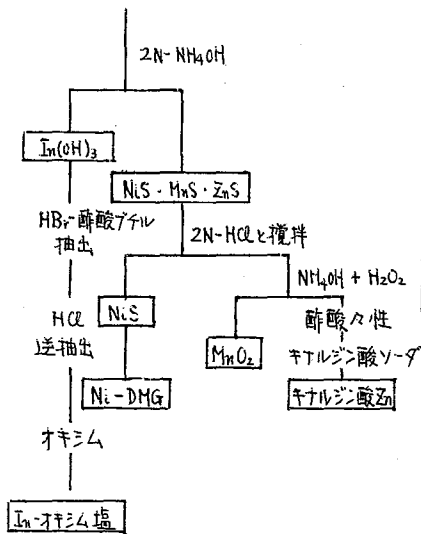
(1)のグループの核データ及び分析結果(ppb)

不純物 元素	核種	半減期	試料 (ライフ・タイム μsec)			
			14 ~ 50	28 ~ 70	46 ~ 98	700 ~ 1400
Ni	⁶⁵ Ni	2.6h	<30	2000	40	<30
Mn	⁵⁶ Mn	2.6h	0.08	1900	0.35	<0.03
Zn	⁶⁹ Zn, ⁶⁵ Zn	52m, 14h	90	9100	30	<10
In	^{116m} In	54m	<0.01	<0.01	2	<0.01

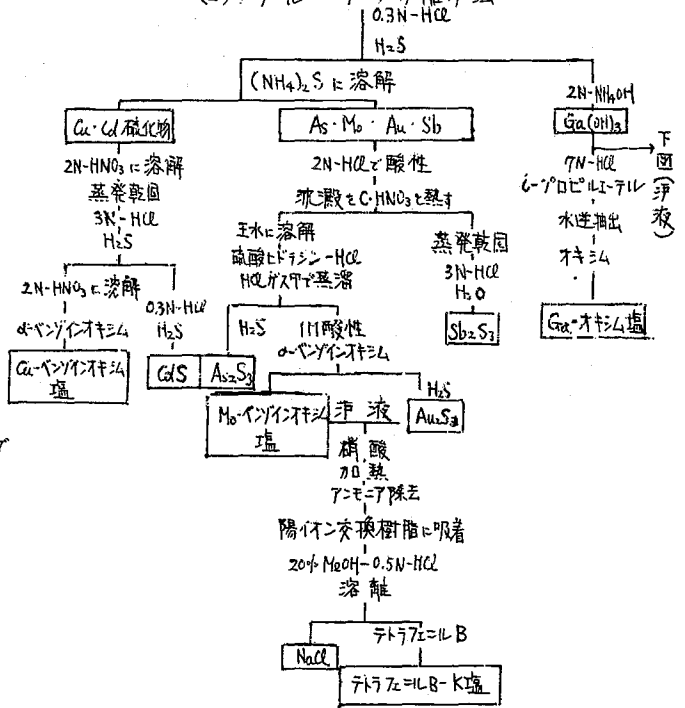
(2)のグループの核データ及び分析結果 (PPB)

不純物 元素	核種	半減期	試料(717914. μsec)	
			14 ~ 50	46 ~ 98
Cu	^{67}Cu	12.8h	0.2	0.4
Mo	^{99}Mo	67h	<20	<20
Sb	^{122}Sb	2.8d	<0.3	<0.3
As	^{76}As	26.5h	<0.1	<0.1
Ga	^{72}Ga	14.2h	<3	<3
Au	^{197}Au	2.7d	<0.02	<0.02
Na	^{24}Na	15.0h	<0.4	<0.4
K	^{42}K	12.5h	<3	<3
Cd	^{115}Cd	53h	<2	<2

(1)のグループの分離方法



(2)のグループの分離方法

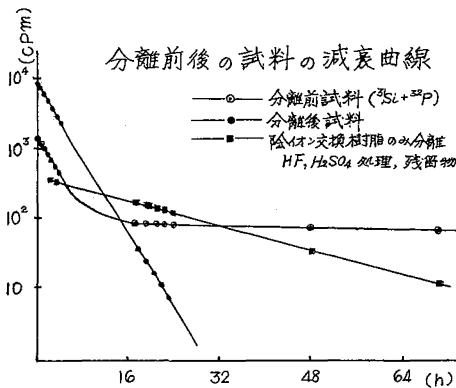


原研

坂東昭次

^{31}Si の生成反応は $^{30}\text{Si}(n, p)^{31}\text{Si}$, $^{30}\text{Si}(d, p)^{31}\text{Si}$, $^{34}\text{S}(n, \alpha)^{31}\text{Si}$, $^{31}\text{P}(n, p)^{31}\text{Si}$, その他が考えられるが、トレーサーなどとして使用する場合には出来るだけ比放射能が高く、またその調製法としては最も簡単であることが要求される。 ^{31}Si の生成において (n, p), (d, p) 反応ではターゲットとしてケイ素またはその化合物を使用するために比放射能は当然低く、またターゲットの処理と純度が問題となる。特に ^{31}Si の半減期 2.62 時間と短いことを考え合せると迅速にしかも放射化学的純度で求めることが必要となる。JRR-1, No.1 実験孔 (熱中性子束: $1 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$, 速中性子束: $1 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$) での ^{31}Si の生成量は (n, p) 反応と (n, p) 反応とを比較した場合 (n, p) 反応の方が 10 倍程度高い。これらのことから (n, p) 反応を利用して ^{31}Si の簡単な調製を試みた。

ターゲットはリン酸化合物のうち溶解処理の容易な $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ 試薬特級と選り、約 50 mg を JRR-1, No.1 実験孔で 1 時間の照射を行った。この実験孔における $^{31}\text{P}(n, p)^{32}\text{P}$ と $^{31}\text{P}(n, p)^{31}\text{Si}$ との生成放射能比を計算すると約 1:10 となり、当然 ^{32}P の分離が必要となる。試料を水に溶解し、陰イオン交換樹脂 (タイヤイオン SA #100 Cl 型 $1 \phi \times 11 \text{ cm}$) および陽イオン交換樹脂 (Dowex W 8X $1 \phi \times 8 \text{ cm}$) を接続した樹脂柱に流速 0.6 ml/min で流し、細いポリエチレン管をスパイラルにしたものと GM 管に導き、レートメーターによって溶出状態を調べた。水で洗浄し溶出液を集め一定量にし、一部を測定皿にとり GM カウンターでアルミニウム板による β 線の吸収および α 半減期の測定を行った。 β 線の飛程は 650 mg/cm^2 , 半減期は 2.6 時間で文献値とよく一致した。一方残りの溶液を白金皿に移しフッ化水素酸、硫酸を加え蒸発させた残留物について放射能を調べた結果はバックグラウンド程度であった。陰イオン交換樹脂のみの分離溶出液について同様にフッ化水素酸処理をしたものは照射 2 時間後約 2% 程度の放射能が認められ、半減期と β 線スペクトルの結果



から ^{24}Na と同定された。これはターゲット中の不純物と思われるが、一般に存在が予想される不純物のうち Na, Cu, As について放射化学分析を応用し定量を行った。即ち試料 1 g を JRR-2 気送管で照射し、酸性-硫化水素により Cu, As と沈澱分離し Cu を CuSCN , As を金属ととして測定した。Na は別試料より陰イオン交換樹脂によりリンと取り除き、 β 線スペクトルによって計測を行った。この結果、Na は数 ppm, Cu, As は 10^{-2} ppm が検出された。

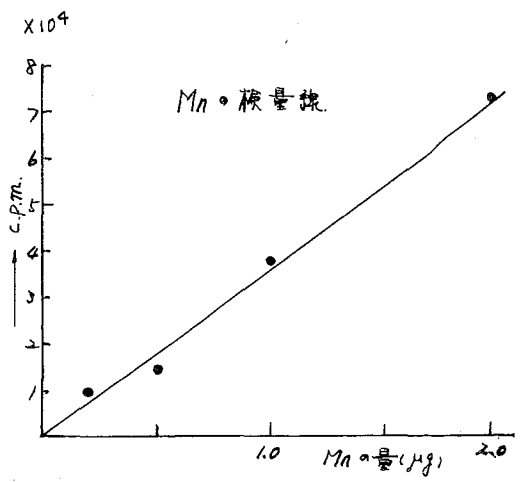
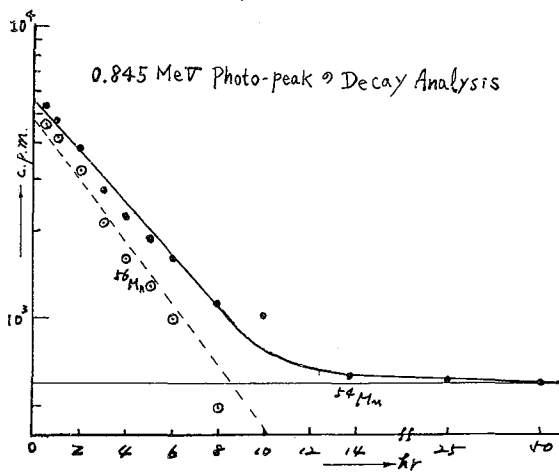
京大原子研

○ 笹島和久, 河合連一, 板下録治, 西川佐太郎, 岩田志郎.

目的: 演者らは現在, 京大炉(KUR)の炉芯照射($\phi_{th} 1 \sim 2 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$, $\phi_{fast} > 1 \text{ MeV}$) $\sim 5 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$)で, $^{54}\text{Fe}(n,p)$ 反応により無担体 ^{54}Mn を製造している。その際target中に存在するMnの量が, ^{54}Mn の比放射能を決定する大きなfactorになることは論を待たない。微量Mnの分析法としては $^{55}\text{Mn}(n,\gamma)^{56}\text{Mn}$ による放射能分析が最も感度が高いことは周知のとおりであるが, 大量のFeが存在する場合 $^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$ が同時に生成して妨害する。そこでFeを分離する必要があるが分離操作の際の微量のMnの挙動が問題である。そこで, 分離操作の際無担体 ^{54}Mn を添加して, Mnの分離収率を求め inner tracer放射能分析法を適用してMnの量を求めた。またこの方法を適用することによるMnの検出限界の検討を行なった。

実験方法: Fe_2O_3 1grを少量の HNO_3 を混じた HCl に溶解し, 無担体 ^{54}Mn 0.01 μC を加え, 乾固す前まで蒸発濃縮し, 再び $\text{HCl}:\text{HNO}_3:\text{H}_2\text{O}$ (8:1:1) 20 mlに溶解, 分液漏斗中で25 mlの酢酸アミルでFeを抽出除去(この操作を2回繰り返す)後, 水相を10~20 μl まで濃縮し, 2N HNO_3 で処理, 水洗した1.5cm角の東洋濾紙No.6にマイクロピペットで附着乾燥後, 井戸型NaIシンチレーションカウンタで ^{54}Mn の放射能を測定して, この操作の化学収率を求めた。その試料をKURの圧気輸送管($\phi_{th} 5 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$)で, 同様の処理をした濾紙に附着させた微量線用のMn標準試料と同一カプセルに封入, 5分, 30分, 1時間の照射を行ない Fe_2O_3 中のMnの量を定量し, 検出限界を求めた。

結果: Mnの検出限界は照射時間を長くすれば小さくなる等であるが, 実験の結果, 30分以上照射すると, HCl 中に混在していると考えられるBrの照射による $^{82}\text{Br}(36\text{hr})$ の0.75 MeVのPhoto-peakが妨害すること認められ, 最低検出限界は0.01 ppmであった。



2 A 1 ホットアトム効果による高比放射能⁵¹Cr製造技術上の基本的問題点

原 研

柴田長夫、望月 勉、天野 恕、鈴木恭平、伊藤太郎
○吉原賢二、海老原寛、井口 明、新井隆正

クロム酸カリウムをターゲットとして原子炉中で中性子照射し、ホットアトム効果によって高比放射能の⁵¹Crを製造する方法は、ホットアトム効果の応用例中もっとも大切なものであり、フランスではこれによる⁵¹Crの製造量は年間200に達している。本報では一部は第5回日本アイソトープ会議に発表されたランタン共沈・酸化溶出法の仕上げをおこなない、⁵¹Crの早急な国産化をはかることを目標に、製造技術上の問題点を検討した。ホットアトム効果によってRIを作る場合には、ホットアトム効果による分離収率 (Separation yield) および濃縮係数を定められた条件においてあらかじめ知っておかなければ、全生成量および比放射能を予測することができない。従来の報文ではこういう見地から厳格におこなわれた研究はないので、これらを原子炉のいろいろな照射孔と照射位置において求めるための実験をおこなった。JRR-2では照射試料の位置を正確に指定して照射をおこなうことができないため、実験は主としてJRR-3によっておこなった。RIを生産するという立場ではとくに全生成量や比放射能の再現性が問題であり、このため照射位置を限定して照射をおこなった試料を、処理工程にかけ再現性のよい結果が得られたので報告する。

Fig. 1 に示すように照射位置によって分離収率は変化し、炉心に近いVR照射孔は炉心から遠いVG照射孔よりも低い値を示す。1つの照射孔について言えば、中性子束の極大の位置に収率の極小値が見出される。分離収率を nvt の関数として見ると、収率は $\log(nvt)$ に対して近似的に直線的に減少する傾向を示している (Fig. 2)。この理由はいろいろ考えられるが、(1)再結合に有効なフラグメント数が炉内放射線の影響下に増加すること。すなわち再結合の速度 $f_1(R) = ax^n$ 、フラグメント濃度 x に関して n 次反応式と考えれば、 $x = kD$ (ここで D は炉内放射線量で nvt に比例するものと考えられる)であるから、 $f_1(R) = ak^n D^n$ である。(2)放射線誘起交換反応が起ること。この速度 $f_2(R) = bD$ とする。(2)は(1)に比べあまり重要でないと考えられるから、 $f_1(R) \gg f_2(R)$ として分離収率の減少量 $\Delta R = P_1 f_1(R) = aP_1 k^n D^n = A D^n$ の関数形にあらわすことができる。し

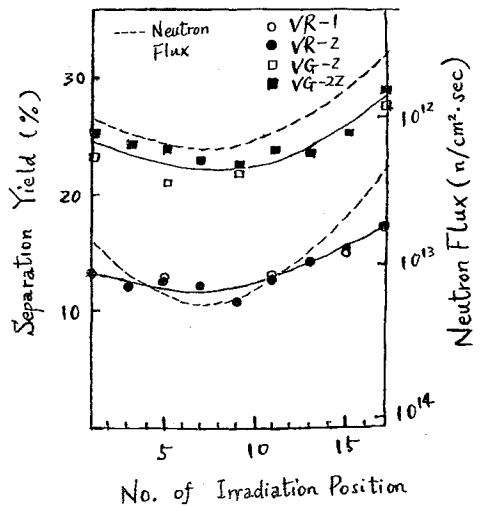


Fig. 1. Separation Yield and Irradiation Position

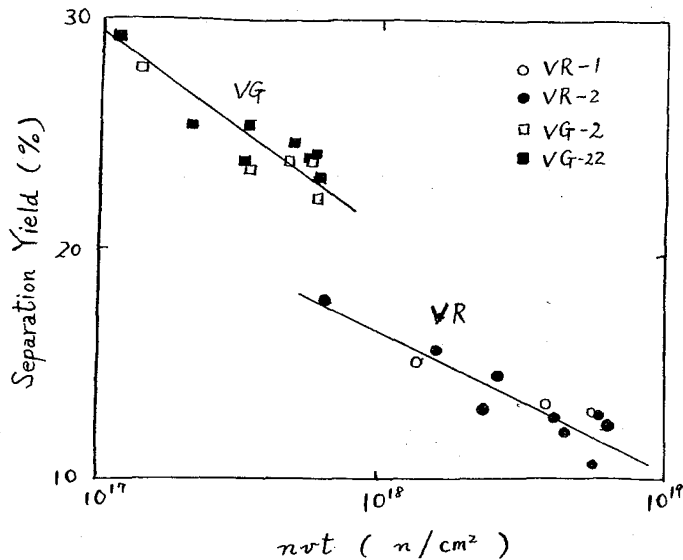


Fig. 2. Separation Yields and nvt

射孔について言えば、中性子束の極大の位置に濃縮係数の極小値が来る傾向がある。濃縮係数はターゲットのクロム酸カリウムの炉内放射線分解に関係するものであり、照射条件の変動に対して敏感である。しかしターゲットの選択および照射条件の規格化により再現性のよい結果を得ることができる。

高比放射能の ^{51}Cr の生成量はターゲット中の ^{51}Cr の全生成量と分離収率の積によって定められるものであり、全生成量は近似的には nvt に比例するので、 $(nvt) \times (\text{分離収率})$ が高比放射能の ^{51}Cr の生産上問題となる因子である。この積は本報の実験範囲内では nvt が増大すれば増大するものであることが示された。ただし nvt の増大は比放射能を若干低下させる場合があるので、この両者の因子を考慮して高比放射能の ^{51}Cr の生産をおこなう必要がある。本報においては VR 照射孔の 9~11 段目を実際の生産試験に用いた。

酸化溶出法の処理操作は第 5 回日本アイソトープ会議でその概要を報告したが、細目において検討すべき箇所が残っていたので、本報においてはこの方法実施上の問題点をさらにくわしく検討した。酸化溶出におけるランタン担体量の最適値は 2 ㊦前後であった。またそのさいの水酸化ナトリウム濃度は 0.1 N、過酸化水素濃度は 5% であった。加熱時間は装置によって当然変わってくるが、ふつうの装置では 20 分以上も加熱すれば ^{51}Cr はほとんど定量的に酸化溶出されてくることがわかった。

このような知見にもとづき、1 バッチ 100~200mc の高比放射能 ^{51}Cr を製造する装置を作り、JRR-3 で照射したクロム酸カリウムのターゲットの処理をおこなった。工程の主要な点はつぎの通りである。中性子照射したクロム酸カリウムを水に溶かし、ランタン担体を加えたのち水酸化ナトリウムにより沈澱を作り、この沈澱に 3 ㊦の ^{51}Cr を共沈させる。

たがって分離収率は $\log(nvt)$ に対して近似的に直線的な関係を満足することが理解できる。ただしこれは照射温度を一定としたものであり、照射温度の違い照射孔では厳格に 1 本の直線であらわすことができない。VG 孔と VR 孔ではおのおのは直線的であるが、直線の傾斜などに多少の食違いがある。

照射位置による濃縮係数の変化は分離収率の変化よりもずっとはげしい。VR 照射孔では VG 照射孔よりも低い濃縮係数が得られる。1 つの照

沈澱をろ過し、よく洗ったのち、塩酸に溶かし、水酸化ナトリウムによって再沈澱をおこなう。水酸化ナトリウムと過酸化水素で煮てクロムを沈澱中から溶出する。溶液をろ過し蒸発乾固し、過酸化水素を追出す。水に溶かし中和する。必要ならばシリカを除くためにろ過する。

JRR-3のVR孔の9~11段目で照射をおこなった2種類のターゲットについて、収率、比放射能などの再現性を調べた。A試料は関東化学特級試薬、なんの前処理もおこなわず、結晶状のまま照射したものである。B試料はおなじ試薬を粉末化し、130℃、1晩乾かしたものである。A試薬についての9回の処理結果は、収率 $9.40 \pm 0.92\%$ 、比放射能 $85.4 \pm 12.2 \text{ mc/}\mu\text{g}$ となり、B試薬についての11回の処理結果は、収率 $10.82 \pm 0.97\%$ 、比放射能 $75.7 \pm 10.2 \text{ mc/}\mu\text{g}$ となった。ただし比放射能は照射直後に換算した値であり、±の後の数値は標準偏差を示している。A、Bとも大差はないが、AがBよりも収率においては若干低く、比放射能においては若干高い傾向を見せている。データの再現性はほぼ満足すべきものであった。A試薬を同様な照射条件で照射し、フランスでおこなわれている方式で処理したときの収率は4~5%にとどまり、本報の方式がすぐれていることが立証された。

この製品中の不純物について分析をおこなったが、 ^{35}S が 10^{-7} のオーダー、 ^{124}Sb が 10^{-6} のオーダー検出された以外は、ほとんど放射性不純物の存在をみとめなかった。ランタンの担体は製品中にはまったく入っていないことが放射化分析の結果明らかにされた。

2 A 2

(n, r) 反応により製造する放射性希土類元素中の不純物
ユーロピウムターゲットの検討

原子力研

○久保田益充, 夏目 晴夫, 天野 恕

〔目的〕 (n, r) 反応によって放射性同位体を製造し, とくに精製を行わない場合にはターゲット中に含まれる不純物の検討が必要である。これまで演者らは高純度希土類元素酸化物 La_2O_3 , Sm_2O_3 , Tb_4O_7 , Ho_2O_3 , Tm_2O_3 , Yb_2O_3 , Lu_2O_3 , Y_2O_3 中に含まれる不純物を放射比分析法を用いて検討してきたが, 今回は Eu_2O_3 ターゲットについて報告する。

放射性同位体の使用目的からみて, 放射化分析法は最も適していることはいうまでもないが, この方法はまた希土類元素に対して高い検出感度をもつので有利である。しかし試料の熱中性子に対する自己遮蔽, 副反応による影響などとくに注意する必要がある。Euの熱中性子吸収断面積は4,300bと非常に大きいので, 球状の酸化物試料10 μ に対して自己遮蔽係数は約0.3~0.2と計算された。したがってターゲットの照射に際しては, 形状と量に注意して照射した。とくにEuターゲット中に含まれるGdの定量にあたってはGdの熱中性子吸収断面積も46,000bと非常に大きいことから, これらの点を充分考慮した。副反応による影響についてはEuターゲット中に含まれるGd, Smの定量においてとくに考慮した。すなわち ^{151}Eu の(n, r) β^- or EC (n, r) 副反応の結果生成する ^{153}Gd , ^{153}Sm の放射能により, Euターゲットと同時に同じ位置で照射したGd, Sm標準試料の放射能と比較して定量するとき, 大きな誤差を与えると考えられるからである。

演者らは以上二つの影響をとくに考慮して, Euターゲット中に含まれる不純物とこれから製造する放射性同位体 ^{152}Eu 中に含まれる放射化学的不純物について, とくにGdを中心として検討したので報告する。

〔実験および結果〕 (試薬および測定機器) Johnson Matthey社製のspecpure Eu_2O_3 をターゲットとして使用した。不純物の分離には α -ヒドロキシイソラク酸(pH3.78)を溶離剤とするイオン交換カラム(12mm ϕ ×48cmまたは10mm ϕ ×35cm, NH_4 型 Diaion SK-1 100~200メッシュ)法を用いた。r線スペクトルの測定には3 μ ×3 μ NaI(Tl)結晶を用いた。

(放射化分析-1) Euターゲット10 μ を秤量して石英管に封入し, アルミニウム製のカプセルに入れJRR-3(中性子束 $1.3 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$)で80時間の照射をした。照射後, 試料を塩酸に溶解, 不純物の分離をおこなった。その結果はFig. 1に示すように ^{44}Sc , ^{177}Lu , ^{169}Yb , ^{153}Gd , ^{153}Sm などの不純物が検出された。これら元素の定量は得られたr線スペクトルと, Euと同時に同じ位置で照射した不純物に対する標準試料のスペクトルと比較しておこなった。それぞれの分析結果としてSc(1ppm), Lu(22ppm), Yb(14ppm), Gd(87%), Sm(0.2%)をえた。

このようにGdが多量に含まれることは考えられないので, Gdの中性子吸収に際しての自己遮蔽は無視出来るとしてGdの定量を試みた。

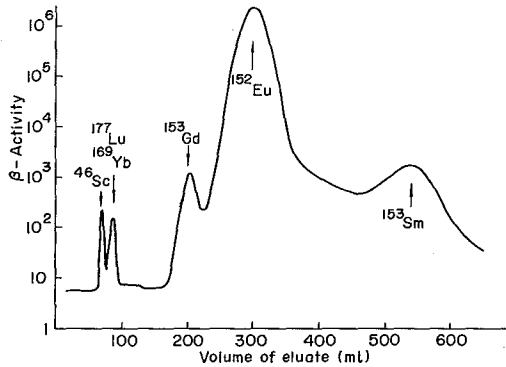


Fig. 1 Elution curve of europium target
Sample: Eu_2O_3 10.2mg column; 12mm ϕ x 48cm
eluant; 0.35M NH_4B : HB = 2:3

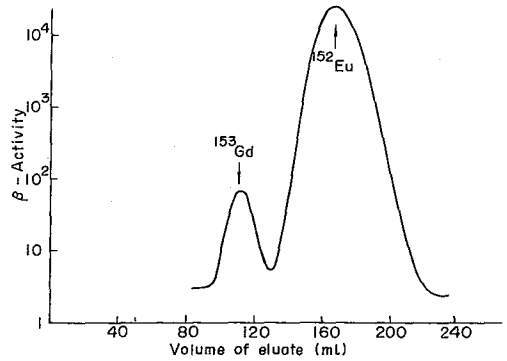
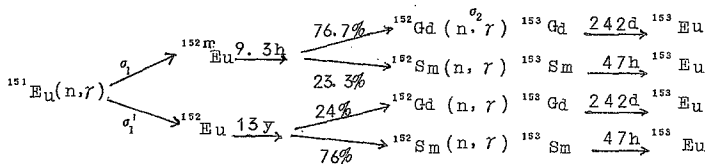


Fig. 2 Elution curve of europium target
Sample: Eu_2O_3 0.217mg column; 10mm ϕ x 38cm
eluant; 0.33M NH_4B : HB = 2:3

(放射化分析-2) Eu ターゲットを濃硝酸に溶解し、出来るだけ硝酸を蒸発除去したのち、この一部を銅箔上に秤取して照射試料 (Eu_2O_3 量 0.22 ㊦) とした。Gd 標準試料についても同様にして調製 (Gd_2O_3 量 0.02 ㊦) した。JRR-2 (1×10^{14} n/cm²/sec) で 130 時間照射後、銅箔ごと濃硝酸に溶解、最後に 6 規定塩酸溶液として陰イオン交換カラム (Cl 型 Diaion SA 100 ~ 200 ムッシュ 10mm ϕ x 15cm) に通した。このようにして銅イオンを除いた後、Eu を希塩酸溶液として陽イオン交換カラム (10mm ϕ x 38cm) に吸着させ、Ed-Gu の分離をおこなった。その結果を Fig. 2 に示す。このようにして得られた分析結果は Eu ターゲット量を約 1.8 倍上廻る Gd が存在する結果となり不都合な値となった。この原因は先きに述べたような 2 次反応による結果と考えられるので ^{153}Gd による定量をやめ、 ^{152}Gd (半減期 18 日間) の γ 線を対象として Gd の定量をおこなうこととした。

(放射化分析-3) ^{152}Gd を定量に用いるには Eu ターゲットを短時間照射する方法をとらねばならないが、 ^{152m}Eu の生成は非常に多く取扱いが危険であり、また ^{152m}Eu の γ 線エネルギーは ^{152}Gd よりも大きいことから通常の方法で Gd を定量することは不可能である。そこで照射以前に Eu ターゲット中に含まれる Gd 不純物を Fig. 2 の場合と全く同じ条件で定量的に分離し、Gd フラクションを硝酸溶液に変え石英管に封入し JRR-2 で 20 分間照射する方法をとった。照射後は陽イオン交換樹脂に Gd を吸着させ、0.25 モルクエン酸 (pH 3.20) で溶離精製し、 γ 線スペクトルを測定した。その結果 ^{152}Gd のピークは認められず、少なくとも Gd 不純物は 40ppm 以下であることが確認された。

[考察] 放射化分析-1, 2 で得られた Gd の定量値の相違は主に試料の自己遮蔽によるものと思われる。放射化分析-2, 3 で得られた Gd 定量値の相違は明らかに下記のような 2 次反応によって ^{151}Eu から ^{153}Gd が生成した結果である。



ここで放射化断面積 $\sigma_1, \sigma_1', \sigma_2$ をそれぞれ1700b, 7000b, 180b 熱中性子束 $1 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$, 照射時間130時間として ^{153}Gd の生成量を計算によって求めたところ $1.3 \times 10^5 \text{ dps/}\mu\text{g Eu}$ となりGd標準試料0.60 μg に相当した。Gdと同じ現象はSmの場合にも見られ ^{152}Sm の放射化断面積を244bとして上と同じ条件で計算したところ ^{153}Sm の生成量は $3.9 \times 10^5 \text{ dps/}\mu\text{g Eu}$ となり, Sm標準試料 $1.8 \times 10^{-3} \mu\text{g}$ に相当した。実験の結果はいずれの場合も計算値とほぼ一致した値であった。

[まとめ] 高純度の Eu_2O_3 をターゲットとして放射性同位体 $^{152}\text{Eu}, ^{154}\text{Eu}$ を製造する場合には, 不純物核種として ^{151}Eu から2次反応によって生成する $^{153}\text{Gd}, ^{153}\text{Sm}$ が主に問題となる。

Euターゲット1 μg を熱中性子束 $1 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ で130時間照射した場合に生成する放射能強度はそれぞれ下記のように計算される。

生成核種	半減期	生成量 (dps)
$^{152\text{m}}\text{Eu}$	9.3h	2.6×10^{10}
^{152}Eu	13y	1.2×10^8
^{153}Gd	242d	1.3×10^5
^{153}Sm	47h	3.9×10^5

したがって照射直後の ^{152}Eu 製品中には3.2%程度の ^{153}Sm が存在するが, $^{152\text{m}}\text{Eu}$ を充分減衰させた後の ^{152}Eu 製品中では無視出来る値となる。しかしながらこの場合 ^{153}Gd が放射化学的不純物として0.1%程度存在することになる。 ^{152}Eu の γ 線エネルギーは ^{153}Gd の γ 線エネルギーと比べてかなり大きいものであるから, 実際の ^{152}Eu の使用にあたって, このことを考慮すれば ^{153}Gd の妨害は無視出来る。

立教大・原研

○戸村健児，宮地延吉

1 結 言

近年，稀土類元素のアルファ放射体が多数発見され，その核的性質の研究は，非常に興味ある問題の一つとなった。アルファ放射性ガドリニウムについては Siivola 等¹⁾，Mahunka 等の研究があるが，それらにおいては，イオン交換クロマトグラフィーを使用している。しかし，この方法は熟練した分析技術を必要とし，処理に相当の時間を費さねばならない。さらに，この方法では大量の他の希土類元素よりガドリニウムを単離するにはかなりの困難がともなう。著者は，ユーロピウムを2価に還元することにより，ガドリニウムをイオン交換樹脂を使用することなしにプロトン照射したユーロピウムより分離する方法を検討した。その結果，アルファ線を測定するのに十分な経無担体にガドリニウムを分離することができた。

2 実 験

2.1. 試薬の調整，分離法の検討のため，次のようなトレーラーを使用した。

^{152}Eu トレーサー：9.6 μg の Eu を浸み込ませた濾紙を $5 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ で6時間照射し，30 ml の 0.1 N HCl に溶かし出す。

^{159}Gd トレーサー：5 mg の Gd_2O_3 を $5 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ で6時間照射，特に，比放射能の高いものが必要のときは $10^{12} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ で212時間照射し，0.1 N H_2SO_4 に適宜溶解。

液状亜鉛アマルガム：3 g の粒状亜鉛をカセロールに採り，5 ml の 1 N H_2SO_4 と 100g の水銀を加え，ゆるく攪拌しながら熱する。

セリウム担体：99.9% CeO_2 を 10 ml の 0.1 N H_2SO_4 に溶解し 4.12 mg Ce/ml にする。

バリウム担体 (10 mg Ba/ml)：1.71 g の $\text{BaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ を水 100 ml に溶解。

Eu_2O_3 ：純度 99.9%

2 M 臭素酸ナトリウム溶液：3 g の特級 NaBrO_3 を 10 ml の水に溶解。

メチルイソブチルケトン (MIBK) と他の試薬：特級試薬をそのまま使用。

2.2. $\text{Eu}^{2+}\text{SO}_4$ 沈殿に対する Gd の吸着検討

ポリエチレン管に 0.1 ml の ^{159}Gd トレーサー (15 μg Gd を含む)，16 mg の Eu^{3+} を採り，液を 3 ml の 0.1 N H_2SO_4 に調整する。約 5 g の亜鉛アマルガムを加え， N_2 ガスを通じて，ポリエチレン管の空気を追い出す。速かに栓をした後，10分間振とうし，遠心分離し，上澄液をピペットで他のポリエチレン管に分け取り，沈殿と上澄液のそれぞれの ^{159}Gd の放射能を井戸型ガンマ線レントレーションカウンターで測定する。17.1% の Gd が EuSO_4 に共沈。

2.3. BaSO_4 沈殿に対する Eu^{2+} の共沈

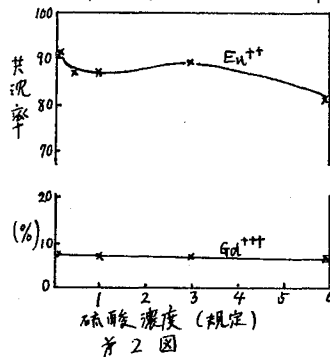
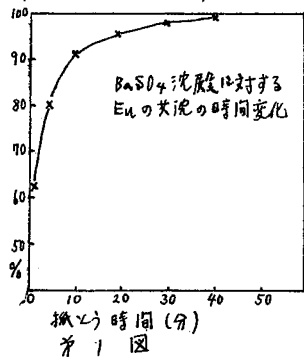
$\text{Eu}^{2+}\text{SO}_4$ 沈殿法で完全に除去できなかった Eu をさらに除くため， Eu^{2+} の BaSO_4 への共沈の

利用を検討した。20 mg の Ba 担体をポリエチレン管に採り、約 5 ml の 0.1 N H₂SO₄ を加え、攪拌した後、上澄液を捨てる。¹⁵²Eu トレーサー 0.5 ml を加え、液量を 3 ml、0.1 N H₂SO₄ に調整し、約 5 g の亜鉛アマルガムを加え、以下 2.2 と同様操作した。

3 結果ならびに考察

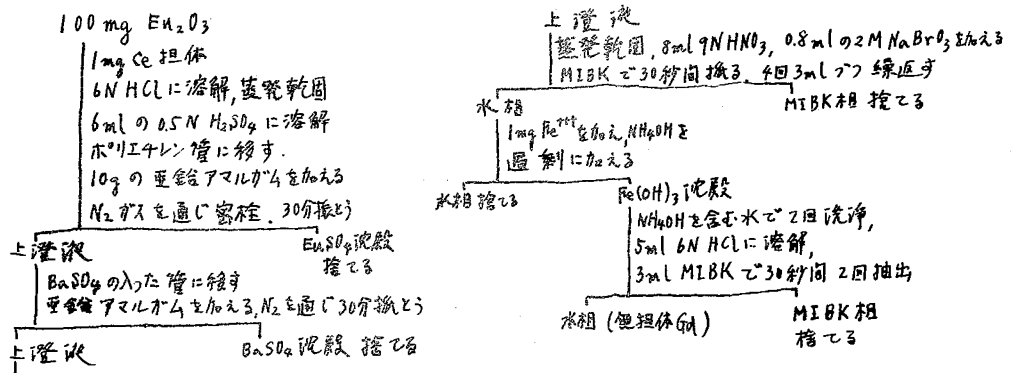
3.1. BaSO₄ 沈殿に対する Eu⁺⁺, Gd⁺⁺⁺ の共沈

第 1 図に振とう時間と Eu の共沈率との関係を示した。この結果、平衡に達するにはほぼ 30 分を必要とすることが明らかになった。また、硫酸濃度を種々変えた場合、BaSO₄ 沈殿へ共沈する Eu⁺⁺, Gd⁺⁺⁺ の割合が明らかに変化するかを調べた結果を第 2 図に示す。図より明らかのように、0.1 N ~ 6 N H₂SO₄ の範囲では共沈率は酸濃度に無関係であった。



3.2. プロトン照射した Eu₂O₃ より Gd の分離操作

以上検討したところでは、トレーサー少量の Gd はかなり Eu⁺⁺SO₄ ならびに BaSO₄ 沈殿に共沈し、収率を低下させるものと思われるので Ce を Gd の保持担体として加えた次のような操作法を確立した。

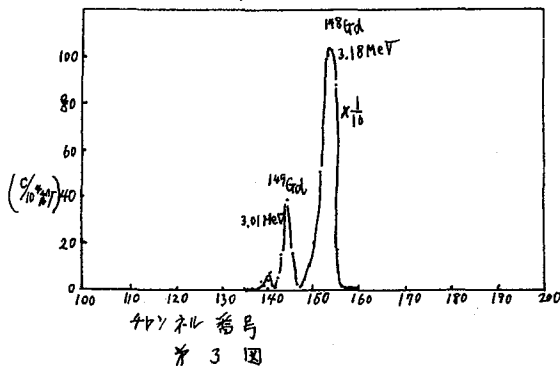


3.3. 除染率, 収率

以上の操作で得られた最終溶液を蒸発乾固しても, ほとんど残渣は認められない。なお, 中性子放射化分析で Eu を定量した結果, $6.6 \mu\text{g}$ Eu が見出されたが, α 線測定に妨害にならない。本操作の Eu の除染率は 1.33×10^4 , Gd の収率は 96% であった。

3.4. α 線の測定

東大核研のサイクロトロンで照射した 850 mg の Eu_2O_3 を 5 回に分け, 本操作で Gd を分離した後, pH 2 の NH_4NO_3 溶液よりステンレス陰極板上に 2 Amp で 2 時間電着を行った。(収率 50%)。シリコン半導体検出器を使い, α 線を測定し, ^{148}Gd の 3.18 MeV, ^{149}Gd の 3.01 MeV のアルファ線が明瞭に測定できた。得られたスペクトルを第 3 図に示す。



^{90}Sr - ^{90}Y , ^{140}Ba - ^{140}La よりそれぞれの娘核種をキャリアフリーで簡便迅速に分離するため、薄層クロマトグラフィを利用した。

方法：市販の薄層クロマトグラフィ用シリカゲルに結合剤として硫酸カルシウムを0~10%をまぜ(以下B0~B10とかく)水及び各種濃度の硝酸溶液でよくぬりませ、巾5cm、長さ20cmの平滑なガラス板上に厚さ300 μ にぬり風乾させた薄層板を用いた。展開剤としてイオン交換水、0.1~5N HNO_3 及びいろいろの濃度のNaCl, KCl, NH_4Cl , CaCl_2 , SrCl_2 , BaCl_2 溶液その他を用いた。

試料としては Specification のわかっている輸入した ^{90}Sr - ^{90}Y , ^{140}Ba - ^{140}La の塩化物溶液を10 $\mu\text{Ci}/10\mu\text{l}$ にうすめてそれをpH 5.6, 3.4のものをつくり、マイクロピペットを用いてチャージした。

作製後一夜放置した薄層板の下端より3cmのとこに10 μl の試料溶液をスポットし風乾後展開剤を入れた展開槽中に約1時間放置し展開する。

両成分の分離の状態は薄層板を端窓型GM計数管に接続した連動装置にのせスキャンングをおこない、その放射能のピークよりそれぞれのR_f値を求めた。また薄層板はX線フィルム(Fuji-100スクリーンタイプ100)で約15時間密着感光させてそのオートラジオグラフをつくり黒化した位置より分離態を確認した。かくして最適の薄層板のつくり方、展開剤を求めることができた。それらの結果の一例はそれぞれ表1に示した。

結果以上よりみるとシリカゲルB5を用い各種濃度の HNO_3 溶液でぬって薄層板をつくり水で展開したものは HNO_3 濃度が高くなるにつれて ^{140}La のR_f値は大きくなるが0.1Nをこえると逆に小さくなる。しかし ^{140}Ba は0.1N以上では HNO_3 濃度が高くなるにつれてR_f値も大きくなっていくのであるが ^{140}Ba の一部は原点にのっていることがシンチレーションカウンターその他によりわかった。したがって0.1N HNO_3 でぬった場合が最もよい分離がえられた。分離後薄層板上に直接pH指示薬Bしずをおとしてみると原点ではpH 6で先端にいくほど小さくなりフロントでは1.3程度になっていた。

シリカゲルを HNO_3 のかわりに水でぬり HNO_3 で展開した場合はテーリングがみられ両者の分離はうまくおこなわれなかった。シリカゲルB0を水でぬった薄層板を用い ^{90}Sr - ^{90}Y , ^{140}Ba - ^{140}La を各種の濃度のNaCl溶液で展開すると濃度が0.5N以上であればいずれもよく分離される。表は1NのNaCl, KCl, NH_4Cl , CaCl_2 , SrCl_2 , BaCl_2 で ^{90}Sr - ^{90}Y , ^{140}Ba - ^{140}La を分離したときのR_f値である。 ^{140}Ba - ^{140}La のR_f値は ^{140}Ba 0.95, ^{140}La 0.15でB5-0.1N HNO_3 処理で水で展開した場合のR_f値と逆転している。かくして分離したフラクションはそれに対応する部分の薄層をけぶりとりニ水を端窓型GM管で測定し減衰曲線をつくり又親核種の

フラクションからはそれぞれ娘核種の成長をみとめ予想どうりの成長崩壊曲線が得られた。又アルミ吸収法によりそのβ線エネルギーを求めた。かくしてそれぞれの娘核種の放射能特性がその文献値とよく一致することがみとめられた。また ^{140}La の場合には1254キボルトエネルギー線スペクトロメーターを用いた。

また一度B5-0.1N HNO₃ 処理薄層板を水で展開してわけて ^{140}La の部分の薄層をけぶりとりこれを水で予過分離したもの(PH 2.4)を用いてB0-水処理1N NaCl 展開とB5-0.1N HNO₃ 処理水展開の場合との分離能をしらべてみた。展開後2cm 間隔に薄層をけぶりとり水スルをくわえて測定管にいれウエル型シンチレーションカウンターにてはかつたところRf 0.1の位置に巾4cmの薄層に99.5%の ^{140}La が吸着しており、後者の場合にはRf 0.9の位置に巾4cmに69.8%の ^{140}La が吸着していることがわかり前者の方がすぐれているとみとめられる。同じようにB0-水処理1N NaCl 展開して分離した ^{90}Y についてニコソみた。 ^{90}Y の部分の薄層をけぶりとり1NHClで予過分離したものをPH4にしてもちいた。B0水処理薄層1N NaCl 展開をしたところ原実には99.9% ^{90}Y がのこっていた。かくして分離した ^{90}Y , ^{140}La を薄層より抽出する条件をしらべたところ ^{90}Y では1NHCl 15ccで1.65cc 濾紙をつかい予過したところ89.7%えられた。同じように ^{140}La では0.1N HNO₃ 30ccで99.7%えられた。これらの分離した部分の放射化学的純度は計数効率; 放射平衡などを考慮して調べた結果 ^{140}La では98%以上, ^{90}Y では99%以上であることがわかった。このさい用いた試料の放射化学的純度の高いものであるから両者の分離に重点を置いて調べたのみであり他の放射性核種の共存の場合についてはまた十分な検討をしていない。

表 1				表 2			
B5 HNO ₃ 処理	展開剤	Rf 値		B0-H ₂ O 処理	展開剤	Rf 値	
		^{140}Ba	^{140}La			^{90}Sr	^{90}Y
0.01N	H ₂ O	0.00	0.32	0.1N NaCl	0.25	0.00	
0.05N	"	0.00	0.75	0.5N NaCl	0.83	0.00	0.85 0.05
0.1N	"	0.00	0.95	1.0N NaCl	0.98	0.00	0.90 0.05
0.5N	"	0.05	0.86	2.0N NaCl	0.98	0.00	
1.0N	"	0.05	0.80	1N KCl	0.95	0.00	0.92 0.10
2.0N	"	0.10	0.56	1N NH ₄ Cl	0.93	0.00	0.90 0.05
B5 H ₂ O 処理	0.1N	0.00 tail	0.00 tail	1N CaCl ₂	0.90	0.00	0.95 0.15
	0.5N	0.25 tail	0.25 tail	1N SrCl ₂	0.92	0.00	0.85 0.15
	1.0N	0.30 tail	0.30 tail	1N BaCl ₂	0.95	0.00	0.95 0.10

2A5 フェロシアン化亜鉛によるセシウムの吸着

放医研化学 ○河村正一, 工楽華子, 伊沢正実

目的: アルカリ金属とくにセシウムを選択吸着する合成無機イオン交換体として種のフェロシアン化金属塩が知られている。このうちの1つ、フェロシアン化亜鉛と硝酸亜鉛とフェロシアン化ナトリウム(あるいはカリウム)から添加モル比を変えて作った粉末に対するセシウムの吸着を検討した。

実験: (A) フェロシアン化亜鉛の作り方 $0.1\text{ M/l Zn(NO}_3)_2$ と $0.1\text{ M/l Na}_4\text{Fe(CN)}_6$ あるいは $0.1\text{ M/l K}_4\text{Fe(CN)}_6$ をかきまぜながら同時に加え、生じた泥を水浴中で2時間加温する。1日放置後、濾過あるいは必要に応じて遠心分離して濾液と分離し、じゆうぶん水で洗い 60°C で24時間乾燥した。

(B) フェロシアン化亜鉛中の Na, K, Zn の定量 Na, K EDTA-4H にアンモニア水を加えて溶かして作った 0.1 M/l EDTA 10cc に約 30mg のフェロシアン化亜鉛を溶かし水を加えて一定量とし日立 EPF 2 型蛍光光度計で Na, K を測定しその百分率を算出した。亜鉛 フェロシアン化亜鉛の溶液にオキシムを加えて生じた泥を塩酸に溶かし容量分析法で定量した。あるいはフェロシアン化亜鉛を溶かした溶液の比放射能と泥を作るときに用いた硝酸亜鉛の比放射能から算出した。

(C) K_d の測定 フェロシアン化亜鉛約 0.1g に担体を加えない $^{137}\text{CsCl}$ と NH_4NO_3 を含む溶液 5cc を共栓試験管に入れ 25°C の恒温槽の中で2時間ふりまぜ遠心分離したのち上澄液の放射能を井戸型シンチレーションカウンターで測定し K_d を算出した。

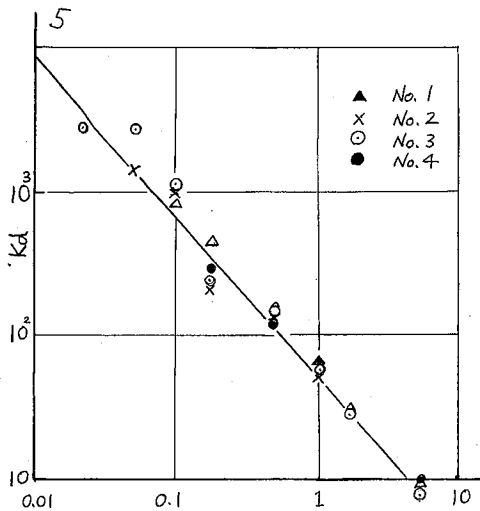
(D) ^{65}Zn でラベルしたフェロシアン化亜鉛への Cs イオンの吸着 実験(A)の方法で作った ^{65}Zn でラベルしたフェロシアン化亜鉛の泥を約 0.3g を共栓試験管に入れ ^{137}Cs でラベルした 0.01 M CsCl 5cc を加え 25°C の恒温槽の中でじゆうぶん平衡になるまでふりまぜた。平衡後、遠心分離しマルチチャンネル波高分析器で上澄液の放射能を測定し、Zn, Cs を同時定量した。

(E) ^{22}Na でラベルしたフェロシアン化亜鉛への Cs イオンの吸着 実験(A)の方法で作った ^{22}Na でラベルしたフェロシアン化亜鉛の泥を、約 0.3g を共栓試験管に入れ

(D) と同様に操作して得た上澄液をマルチチャンネル波高分析器で ^{22}Na と ^{137}Cs を同時定量した。

結果: $\text{Na}_4\text{Fe(CN)}_6$ あるいは $\text{K}_4\text{Fe(CN)}_6$ に対する $\text{Zn(NO}_3)_2$ の添加モル比を変えて粉末を作った。その組成をつぎの表に示す。

No	出発物質	モル比	Na%	K%	Zn%
1	$\text{Na}_4\text{Fe}(\text{CN})_6$ $\text{Zn}(\text{NO}_3)_2$	1 : 3	0	0	33
2	" "	1 : 1.3	5	0	24
3	$\text{K}_4\text{Fe}(\text{CN})_6$ "	1 : 1.5	0	8	26
4	" "	1 : 3	0	3	24



つぎに、これらの泥でんに ^{137}Cs を含む NH_4NO_3 溶液 5cc を加え実験：(C) の方法で K_d を測定した結果を左の図に示す。No. 1, 2, 3, 4 の粉末はいずれも直線にのるので、これらは Cs とイオン交換を行なうと考えた。

そこで、 Cs とイオン交換するフェロシアン化亜鉛中の元素と実験：(D) によってしらべた結果、Na, K を含まない粉末である No. 1 によって、吸着された Cs と溶出した Zn の比は、ほぼ 2 : 1 であるところから、フェロシアン化亜鉛中の Zn と Cs が交換されたと考えられる。一方、No. 2 と

No. 3 の粉末は Cs を吸着するが Zn をほとんど溶出しない。さらに、 ^{22}Na でラベルした $\text{Na}_4\text{Fe}(\text{CN})_6$ に対して $\text{Zn}(\text{NO}_3)_2$ のモル比で 1 倍、1.5 倍、2 倍加えて作った泥でんに対する Cs イオンの交換をしらべた。その結果、1 倍の場合、1.5 倍ともに Na と交換し、吸着した Cs と溶出した Na のモル比は 1 : 1 となった。2 倍の場合には、含まれる Na と交換し得る以上の Cs が存在する場合、Zn と交換することがわかった。

放射研 ○渡利一夫 今井靖子 伊沢正実

目 的

われわれは、イオン交換樹脂の特殊な利用法としてイオン交換樹脂と難溶性の金属塩とを組合せた"金属塩-イオン交換樹脂"の作成とその放射化学的利用について報告してきた。¹⁾²⁾³⁾ "金属塩-イオン交換樹脂"は金属塩の性質とともイオン交換樹脂の性質も保持しているので種々の方面への応用が考えられる。これまで金属塩として水酸化第二鉄、硫化銅などをとりあげたが、それぞれの共沈法に比し操作が容易で、とくに、海水のように塩濃度が大きくかつ多量の試水処理が必要な場合には有効であった。

さきに"フェロシアン化銅-陰イオン交換樹脂"が、水、海水、6M以下の塩酸および1M以下の硝酸溶液中の ^{137}Cs も極めて有効に捕集することを報告したが、本実験では引きつづき"フェロシアン化鉄-陰イオン交換樹脂"を作成し主として硝酸溶液中からの ^{137}Cs の捕集を検討した。また、この"樹脂"を用いて核燃料の再処理廃液中の ^{137}Cs の捕集および核分裂生成物の相互分離への応用も検討した。

実 験

"フェロシアン化鉄-陰イオン交換樹脂"の作成-----OH形にしたAmberlite IRA-904(50~100メッシュ)にフェロシアン化カリウム溶液を加えて十分にフェロシアン形にする。水洗したのち、硝酸第二鉄溶液を加えてイオン交換樹脂にフェロシアン化鉄を生成せしめる。これを水洗、風乾して使用した。この"フェロシアン化鉄-陰イオン交換樹脂"は暗青色粒状である。

操作-----吸着の基礎データはバッチ法で求めた。すなわち、 ^{137}Cs を加えた各種濃度の硝酸溶液に風乾した"フェロシアン化鉄-陰イオン交換樹脂"を加えふりまぜる。一定時間毎に水溶液中の放射能を測定し、はじめに加えた放射性セシウムの濃度と比較して吸着の程度をしらべた。

模擬再処理廃液は現在最も広く用いられているPurexプロセスにおける廃液を井家とBruceらの報告⁴⁾をもとにして合成したものを使用した。

また、核分裂生成物の相互分離は代表的な核種である ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 、 ^{144}Ce 、 ^{95}Zr 、 ^{106}Ru を対象とした。

結 果 および 考 察

得られた結果の一部を略記する。

1) 各種濃度の硝酸溶液中からの ^{137}Cs の捕集-----"フェロシアン化銅-陰イオン交換樹脂"の場合には硝酸濃度が1M以下では定量的に吸着されるが硝酸濃度の増大に従い吸着率は減少し2Mで85%、4Mで50%、6Mで25%、8Mで8%であり10Mではほとんど吸着しないのにくらべて、"フェロシアン化鉄-陰イオン交換樹脂"はかなり硝酸濃

振盪時間 硝酸濃度	15 min.	30 min.	1 hr.	3 hr.	24 hr.	備考
10 ⁻² M	97.8 %	98.7	99.2	99.3	99.8	備考 Batch Experiment, 0.5g "Resin"- 5ml Solution
10 ⁻¹ M	98.4	98.8	99.4	99.5	99.9	
1.0 M	98.7	99.4	99.6	99.8	99.9	
2.0 M	99.2	99.5	99.6	99.9	99.9	Amberlite IRA-904 には 全く吸着しない。
4.0 M	99.5	99.4	99.6	99.9	99.9	
6.0 M	86.6	92.7	94.8	95.8	95.0	
8.0 M	66.9	67.3	75.6	77.1	74.7	
10.0 M	39.1	46.0	54.8	52.3	46.4	

度が大きくても利用できる。

2) 模擬再処理廃液中からの¹³⁷Csの捕集

"樹脂"量	0.5 g			1.0 g			2.0 g			Batch Experiment 50ml solution
振盪時間	30 min.	1 hr.	3 hr.	30 min.	1 hr.	3 hr.	30 min.	1 hr.	3 hr.	
吸着率(%)	64.5	80.2	90.5	82.0	96.2	98.2	89.4	97.2	99.9	

表に示す如く模擬再処理廃液中の¹³⁷Csは効果的に"フェロシアン化鉄-陰イオン交換樹脂"に捕集されることがわかる。合成のフェロシアン化金属交換体でもすぐれた捕集効果のあることが報告されている⁵⁾が粒状固体で用いる必要がありその合成操作に難点がある。本法によれば希望する粒度のものが容易に作成できるので従来の方法に比し有利であると考えられる。

3) 核分裂生成物の相互分離-----"フェロシアン化鉄-陰イオン交換樹脂"に対する各核種の吸着挙動を求め、得られた結果をもとにしてカラム法による相互分離を行なった。この"樹脂"を用いれば本来の陰イオン交換能に加えてフェロシアン化鉄の性質も利用できるので分離分析をより有利に行なうことができる。従来行なわれている陰イオン交換樹脂による分離法⁶⁾を参考にして核分裂生成物の混合物を順次溶離することができた。

その他、放射線に対する安定性、担体量の影響、他核種の挙動について検討した結果を報告する。本研究の一部は、First International Congress of the International Radiation Protection Association (September 5-10, Roma, Italy) にて発表。

- 1) K. Watanai, M. Izawa; J. Nucl. Sci. Tech. 2, 321 (1965) 2) 渡利, 坪田, 小柳, 伊沢; 原子力学会誌 8, 170 (1966)
 3) 渡利, 坪田, 小柳, 伊沢; 原子力学会誌 8, 182 (1966) 4) F.R. Bruce; Disposal of Radioactive Wastes, Proc. Monaco Conf., IAEA, (1960)
 5) 見塩, 鴨志田, 角谷, 石原; 原子力学会誌 6, 2 (1964) 6) 矢島, 四方, 山口; 分析化学 7, 721 (1958)

東京理科大. 理

○坂入三男, 小池康昭, 関根達也

天然に存在するアクチニウム同位体には ^{227}Ac と ^{228}Ac がある。 ^{228}Ac は半減期は短かいが(6.13 hr) ミルキングによって ^{226}Ra (メソトリウム1)から容易に取り出すことが出来る。本研究はトレーサー実験に用いる放射能的に純粋な ^{228}Ac を ^{226}Ra から迅速に分離し精製する目的で行なった。

輸入された ^{226}Ra (6.7 yr)は ^{228}Ac の他に通常ある量の ^{228}Th (1.90 yr)およびその放射性壊変生成物を含む, また同時に ^{223}Ra (11.68d)および ^{224}Ra (1622yr)を含む可能性もある。本研究においては, まず試料中のラジウムを他の元素から分離精製してしばらく放置した後, ^{223}Ac を分離し, さらにこのフラクションに混入してくる ^{226}Ra の壊変生成物を除去精製することにより放射能的に純粋な ^{228}Ac を得た。

[実験]

試料として英国から輸入した後, 約1年半放置した後 ^{226}Ra を用いた。実験は全て25°Cの恒温室中で行なった。溶媒抽出は20ml入り栓付肉厚遠流管に2相を入れ手まは振とう機で3分間激しく振とうした後, 2相を遠心分離することによって行なった。試料の放射能は溶液のままウェルタリプシンテレシジョンカウンターで測定した。 ^{226}Ra の放射能は試料を分離後3日以上放置し ^{226}Ra と ^{228}Ac が放射平衡に達した後 ^{228}Ac を測定した。また, ^{228}Ac のみを含む試料の放射能は実験後直ちに測定した。

^{226}Ra の希硝酸溶液に酢酸アンモニウムを加えpHを約5に調節し, 0.1M TTA + 0.1M TBP-四塩化炭素溶液を加えて振とうする。水相を同容積のクロロホルムで2回洗滌した後, さらに0.1M TTA + 0.1M TBP-四塩化炭素溶液で抽出を繰り返す。つぎに水相に同容積の0.1M NaOHを加えさらに水相の全容積と等しい0.1M TTA-MIBK溶液を加えて振とうする。水相を一たんpH3にしてクロロホルムで洗滌後, 再び前と同様な操作を繰り返して得られた有機相を前の有機相と合する。

有機相に0.1M HCl O₂を加えて振とうし, 得られた水相を2回クロロホルムで洗滌して精製ラジウム溶液を得る。

この精製ラジウム溶液に酢酸アンモニウムを加えて, 溶液のpHを5に調節した後, 0.1M TTA + 0.1M TBP-四塩化炭素溶液を加えて振とうし, Acを抽出する。この有機相に0.01M HCl O₂を加え逆抽出する。水相をクロロホルムで洗滌した後, 再び前と同様な操作を繰り返す。得られた有機相をpH5の水溶液で洗滌した後, 0.01M HCl O₂でAcを逆抽出し得られた水相を2回クロロホルムで洗滌してAcのトレーサー溶液を得る。

[結果]

(TTA による Ra^{226} の溶媒抽出)

Ra^{226} は 0.1 M TTA - 四塩化炭素溶液により pH の全領域に於て、ほとんど抽出されない。しかしながら四塩化炭素中に MIBK, TBP, TOPO, を加えると TTA との共同効果によつて著しく抽出が増大する。例えば 0.1 M TTA - MIBK 溶液または 0.1 M TTA + 0.1 M TBP - 四塩化炭素溶液を用いると、 Ra^{226} は pH 7 においてほぼ定量的に抽出される。有機相中の Ra^{226} は 0.1 M の酸によつて容易に逆抽出される。

(Ac^{225} の溶媒抽出)

Ac^{225} は 0.1 M TTA - 四塩化炭素溶液により pH 6 で約 90% 抽出されるが、さらに pH を上げて抽出率はあまり増大しない。この四塩化炭素溶液に MIBK, TBP, TOPO, を加えると TTA との共同効果により著しく抽出が増大する。例えば、0.1 M TTA + 0.1 M TBP - 四塩化炭素溶液を用いると Ac^{225} は pH 4 に於てほぼ定量的に抽出される。有機相中の Ac^{225} は 0.1 M の酸により容易に逆抽出される。

(Ra 以外のラジウムの同位体による影響)

長期間保存した Ra 溶液中には ^{228}Th から生じた ^{226}Ra (3.64 d) が共存するがこれはラジウム分離後しばらく放置すれば消失する。もし ^{226}Ra が共存している場合には、これから生じた ^{222}Rn (3.825 d) が有機相に抽出されこのラジウムの壊変生成物がアクチニウムのフラクションに混入してくる。本実験に於ても上に述べた操作のうちラジウムをあらかじめクロホルムで洗滌しさらに最終的に得られたアクチニウムトレーサー溶液をクロホルムで洗滌する操作を省略するとかなりの量の γ 放射性不純物がアクチニウムのフラクションに見られ、その半減期は ^{222}Rn に近かった。またこの不純物の γ 線のエネルギーはこれが主として Bz (RaC) によるものであることを示した。

(^{225}Ac の放射能的純度と回収率)

上の操作で得られたアクチニウム中の不純物は主として ^{226}Ra の壊変生成物であるが、操作を注意深く行なった時には ^{225}Ac は γ 放射能的に純粋で 6.13 h の半減期を示した。またこの分離法による回収率は約 85% である。精製されしばらく放置されたラジウム溶液から ^{225}Ac を分離精製する操作は約 30 分で行うことが可能であり本方法が純粋なアクチニウムトレーサーを迅速に得る目的に適していることが結論された。

2A9 酸素気流のサイクロトロン照射を用いた放射性フッ素標識化合物の調製法

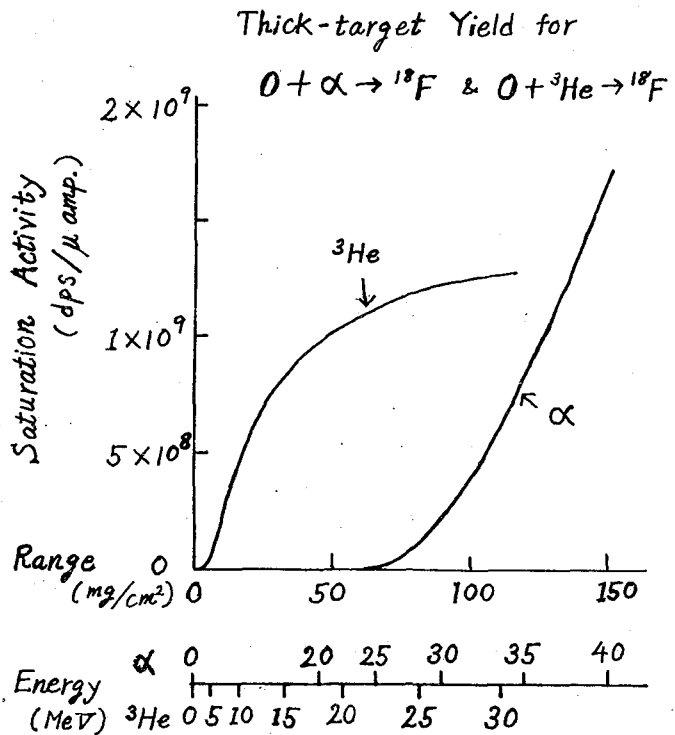
理 研 ○野崎 正, 島村 晃, 唐沢 孝

【着想・目的】 F-18の製造反応としては、サイクロトロンを用いる α または ${}^3\text{He}$ 粒子で酸素を照射するときのものが、原子炉を用いるものよりも優れている点が多い(昨年の化学会年会で講演)。酸素ターゲットとしては、水や高融点の酸素化合物よりも、酸素気流を用いた方が、つぎのような諸利点があると考えられる：(1) F-18の収率がよい、(2) 照射中の発熱にたいする冷却という難問題が緩和される、(3) 副生放射能がはなはだ少くなる、(4) 生成したF-18を連続的に取出せる可能性がある。さらに、生成したF-18は種々の材質の器壁にきわめて吸着されやすいことを見出したが、この性質もまた、うまく利用すれば、上の利点の一つに加えることができる。以上の諸利点を十分に活用した、種々のF-18標識化合物の調製法を開発し、同時に、気体の荷電粒子照射によるRI製造法の発展に貢献することを目的とする。

【方法】 α および ${}^3\text{He}$ で酸素単体を照射したときのF-18の生成量と入射粒子の飛程およびエネルギーとの関係を、既知の励起曲線から算出した。結果を右に示す。これをもとにして照射容器の設計をした。

38 MeV- $1\mu\text{amp}$. の α 粒子で 25 mg/cm^2 の酸素層を、また、14 MeV- $1\mu\text{amp}$. の ${}^3\text{He}$ で 20 mg/cm^2 の酸素層を照射したとき、ともに約20 mCiのF-18が飽和放射能として得られるはずである。

現在はまた、適したエネルギーの α や ${}^3\text{He}$ で照射する装置がないので、理研の小型サイクロトロン(3.6 MeV)の重陽子を用いて、酸素気流を照射して、F-18およびF-17を製造した。照射容器は、 $3\times 5\times 20\text{ cm}$ の細長い金属箱とし、一端を照射用の



日本原子力事業
* 東 芝 中 研

○長尾博之 *大井 昇 *田辺勇美

〔 目 的 〕

我々は前回¹⁾照射済硝酸ウランの融解による Xe-135 の製造についての基礎実験に関して述べたが、今回はそれを基として、実際に TTR-1 原子炉を用いて、1 回につき、約 2~3 mCi の Xe-135 を製造した。またその他に、Xe 放出の機構などについても検討を行なったので、それらの結果について述べる。なお Xe-135 は、医学において、診断用に使用される。

〔 実験方法 〕

TTR 原子炉の 100 KW 運転時に、AL 製水密パイプ (長さ 7.75 m, 径 8cm) を炉心壁に近づく (この点で熱中性子束は $2 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$)、その中に、AL 容器におさめた S.S. 製コンテナ中に、硝酸ウラン、8 水塩の 14 g を入れ (現在は天然ウラン)、4 時間照射した (図 1)。S.S. コンテナには、S.S. パイプ (10 mm ϕ) が 2 本つけてあり、それを通してヘリウムガスを流せるようになっていいる。照射後、10~15 時間たつたのち、炉外からスライダックにより、S.S. コンテナに巻きつけてあるリボンヒーターに通電して、硝酸ウラン、8 水塩 (M.P. 60.2 °C) を融解し、次に冷却固化させる。放出した Xe は、He ガスを 2~3 分流することにより、炉外にて捕集した。捕集用トラップとしては、活性炭を用いた。

〔 実験結果 〕

- (1) 1 回の操作で、Xe-135 を約 2~3 mCi 捕集した。この量は計算値とほぼ一致する。加熱前の He ガススリーブによつて、全量の約 1/5 を捕集した。この部分は、硝酸ウラン結晶から拡散放出したものらしく、加熱して放出する部分と殆んど同一の組成であつた。採取時の Xe-135 の純度は > 98%、Xe-133 + 135 の純度は > 99.9% で、Kr および Xe 以外の核分裂生成物のピークは認められなかつた。図 2 に原子炉運転中および照射終了後 15 時間たつて採取した核分裂生成ガスのスペクトルを示す。
- (2) 硝酸ウラン結晶からの Xe の放出は、結晶の融解および結晶水を失なう過程で行なわれることが解つた。その他反跳によつて硝酸ウラン表面から放出されるものがある。

1) オ 3 国 理 工 学 に お け る 同 位 元 素 研 究 発 表 会

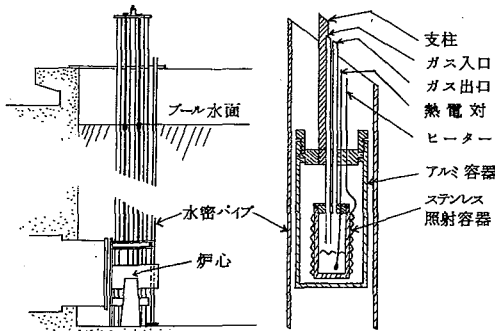


図 1. 水密パイプによる試料の照射

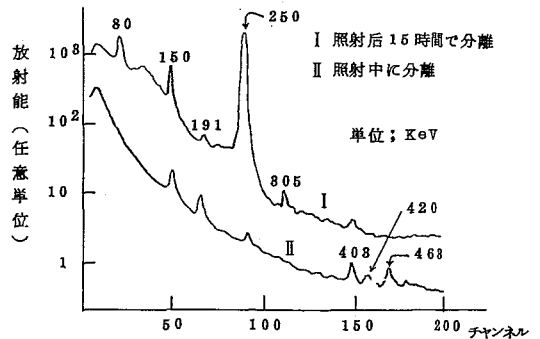


図 2. 核分裂生成ガスの γ 線スペクトル

ニッケル箔の窓とした。箱の内面は金メッキし、両端付近に酸素の入口と出口をつけた。また、ポリエチレン製の類似の照射容器も用いた。3~5 μ amp. 程度の重陽子で照射すると、F-17は数ミリキュリー、F-18は数十万cpm得られた。この照射装置や後述の諸方法は、 α や ^3He 照射を用いるときも、まったく同様に有用と考えられる。生成するF-18, F-17の振舞いを調べ、種々の標識化合物を得るに適した化学的操作を、いろいろと工夫しながら追求した。

【結果】 (1). 生成した F^{18} は、照射容器の内壁にきわめて吸着されやすい。どちらの容器の場合も、500 ml/min. 以下の酸素流速のときは、 F^{18} の90%以上が器内に吸着された。器内の、重陽子流および酸素气流にたいして等価の位置に、ポリエチレン、ガラス、ステンレスを置いたところ、ポリエチレンの単位面積上に存在する F^{18} の量は、他の2つものの $1/1.5 \sim 1/3$ であった。

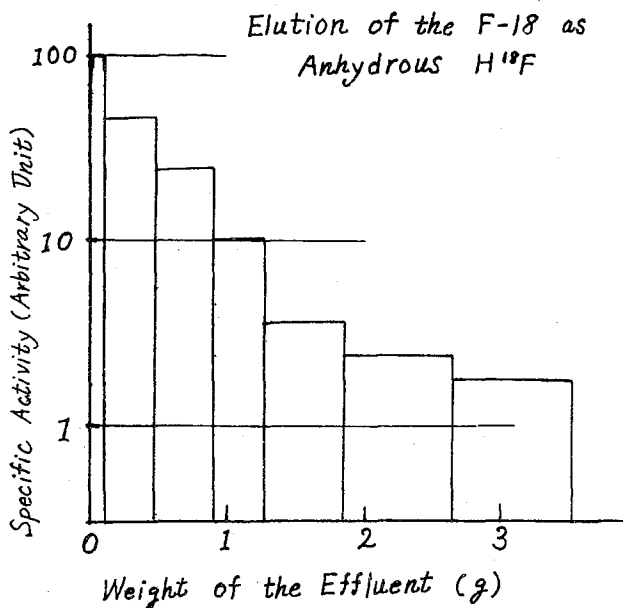
(2). 吸着された F^{18} は、一般に、水によって $2/3$ 以上が容易に洗い出される。とくにポリエチレン上にある F^{18} は、80~90%がたゞちに洗い出される。これは無体担 F^{18} の水溶液の優れた製造法であり、水を α や ^3He で照射する方法よりも有利な場合が多い。

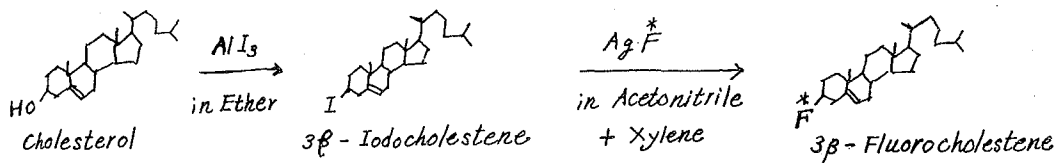
(3). F^{18} が吸着している照射容器に無水フッ化水素の気体を通じると、無水 HF^{18} が得られる。金属容器からのF-18の脱着を下の図に示す。約100 mg/min. の流速で無水フッ化

水素気体を、窒素ガスをキャリヤーとして(約100 ml/min. の流速)、 γ 加熱してある金属照射容器に送りこんだ。得られた HF^{18} はドライアイスで冷却して捕集した。この操作は、当然、照射を継続していてもできるから、この方法によって、照射しながら、生成したF-18を任意のときに取り出すことができる。

(4). フッ化銀のアセトニトリル溶液と、 F^{18} を吸着している金メッキ内壁とを接触させると、 F^{18} が容易に溶出されて $\text{Ag}F^{18}$ のアセトニトリル溶液が得られる。

これは、種々のF-18標識有機化合物をHalogen-interchangeによって合成するときのフッ化試剤として好都合と考えられる。その合成反応は、照射容器自身を反応容器としておこなえばよい。とくに、この $\text{Ag}F^{18}$ は、F-18標識 3β -Fluorosteroidsの合成に大変通していることを知った。F-18標識ステロイドは副腎のScintiscanningに有望と思われる。





(5). *Diagonium Fluoroborate* のアセトン溶液でも F^* は溶出され、その溶液にエーテルを加えれば標識された *Diagonium Fluoroborate* が沈殿し、その *Schlemann* 分解により、 F^* -標識フッ化アリールが得られる。

(6). 照射容器の内壁に種々の有機化合物を塗付しておき、生じた F^* で直接に標識する方法を考案しようとした。*Cholesterol* の場合は生じた F^* の 30~40% が有機結合中に入った。しかし、照射中に生じるオゾンによる試料の分解を考慮する必要があり、また当然、 F^* の分子内における位置も一定とは思えない。

以上の諸結果から、酸素気流のサイクロトロン照射は、 $F-18$ 標識化合物のもっとも優れた合成法を提供する場合が多いといえよう。しかし、合成反応の実際的な技術面等は、また、今後解決せねばならぬ問題を多く含んでいる。

金沢大 理 ○阪上正信・松浦昌孝・阿部正男

〔目的〕：原子炉内の中性子線束の分布、とくに速中性子線束の変化を知ることは速中性子によるRIの製造、放射化分析の感度推定、原子炉の特性を知るために重要である。このため ^{27}Al , ^{32}S , ^{31}P , ^{59}Ni , ^{55}Fe 等が *Threshold Detector* として利用されているが、下記のように ^{238}U および ^{232}Th もまた、速中性子束評価に用いるとともに低エネルギー中性子により別な核種も同時に生成され、興味がある。これら各核種の定量に有効な測定と化学分離法を検討し、それを応用し立教大学原子炉(トリガⅡ型)炉心貫通孔内の中性子線束の分布の評価を実験した。

低エネルギー中性子: $^{238}\text{U}(n, \gamma)^{239}\text{U} \longrightarrow ^{239}\text{Np}(T_{1/2}=2.346\text{d}); ^{232}\text{Th}(n, \gamma)^{233}\text{Th} \longrightarrow ^{233}\text{Pa}(T_{1/2}=27.0\text{d})$

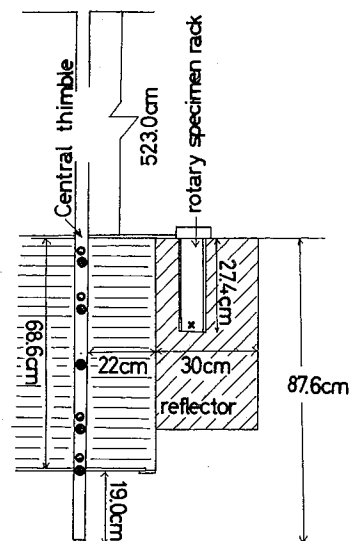
高エネルギー中性子: $^{238}\text{U}(n, 2n)^{237}\text{U}(T_{1/2}=6.75\text{d}) [E_{\text{thr}} \approx 7\text{MeV}]; ^{232}\text{Th}(n, f)\text{ F.P.} [E_{\text{thr}} \approx 1.5\text{MeV}]$

〔方法〕：炉心貫通孔の付図に示す位置に U_3O_8 (1~4mg) または $\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ (4~20mg) をポリエチレン容器に密封してAl wireにてつるし、100KW約6時間照射した。照射後試料のγスペクトルを取る。

照射ウランからのNpおよびUの化学分離は次のごとく行う。CHNO₃に溶解、Np-237(α)トレーサー一定量を加え、8NHCl-0.3NHF溶液にし、Dowex 1X8を通しUを捕集。0.1NHClで溶解後(このままの液からもU-237の定量と検討)、硝酸溶液に変え酢酸エチル抽出を利用して精製する。一方向通過液中のNpはAl³⁺でHFをマスクし、別のDowex 1X8に捕集、8NHCl-0.3NHF溶解を行いカラム容積の2~3倍の割合を分取する。測定線源はU(一部分取) Npとも3.5cmφステンシル板上に電着、ZnSシンチによるα計数、大型G.M.によるβ計数を行った。化学収率はいずれもα計数から求める。

トリウムについて、F.P.として $^{140}\text{Ba}(T_{1/2}=12.8\text{d})$ を用いることはRa混在のため不都合なので、Paとの関連から $^{97}\text{Nb}(T_{1/2}=74\text{m})$, $^{95}\text{Nb}(T_{1/2}=35\text{d})$ を考慮しB.P.A. (Benzoyl Phenyl Hydroxyl Amine) による逐次分離法を検討した。その実験中 $^{99}\text{Mo}(T_{1/2}=67\text{h})$ がB.P.A.により娘の $^{99\text{m}}\text{Tc}(T_{1/2}=6.0\text{h})$ からも分離されることを見出した。そこで時間的にも測定に便利は ^{99}Mo をF.P.として選ぶことが適当と考えた。すなわち試料を5NH₂SO₄に溶解、Pa-231(α)及び ^{99}Mo 担体を加え、Pa, MoをB.P.A.で抽出、PaはHFを加えたH₂SO₄溶液で逆抽出後DIBK (Diisobutyl Ketone)で精製し、電着、αおよびβ測定を行う。Moはアルカリで逆抽出 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ との過渡平衡を追いついでγ計測および比色を行う。

結果：U-237は電着板のαおよびβ計測のみによって定量したが、Np-239は直接照射試料のγスペクトルの228KeV, 278KeVのピーク計測値と、化学分離後電着板のαおよびβ計測による方法との間により相関があることがわかったので、特にNpの化学分離による定量は不必要と考える。PaおよびTh照射後のγ



スペクトルも $Pu-233$ の 95 KeV , 310 KeV のピークのみが顕著で、他の γ 放射体による妨害はほとんどない。

炉心貫通孔内の各反応に有効な中性子線束の相対的な分布は次式で得られる R_i から知ることが出来る。

$$R_i (\text{cpm/mg}) = \frac{C_i}{Y_i \cdot \omega_i \cdot e^{-\lambda_i t_i}}, \quad \begin{cases} C_i (\text{同一条件による } \beta \text{ または } \gamma \text{ 計数値}); \omega_i (\text{ターゲット中の } U, \text{Th の mg 数}) \\ Y_i (\alpha \text{ 計数値から求められる化学収率, スペクトル法では } Y=1) \\ t_i (\text{Decay time}); \lambda_i (\text{測定核種の壊変定数}) \end{cases}$$

この値より照射完了時の測定核種の壊変数 (A_{00}) を次式より概算した (照射による飽和係数を 1 に規格化)。

$$A_{00} (\text{dpm/mg}) = \frac{R_i}{d_i \cdot a_i \cdot P_i \cdot \epsilon_i \cdot \Omega_i (1 - e^{-\lambda_i t_r})}, \quad \begin{cases} d_i (\text{壊変様式による補正}); \Omega_i (\text{幾何効率}) \\ a_i (\beta \text{ 線の吸収補正, } \gamma \text{ 法では } a_i=1); t_r (\text{照射時間}) \\ \epsilon_i (\gamma \text{ 線の Total intrinsic efficiency}); P_i (\gamma \text{ スペクトルのピーク面積比}) \end{cases}$$

これより $T (\text{dps/atom}) = \int_0^\infty \phi(E) \sigma(E) dE$ が次式より求まる。 $T = \left(\frac{10^3 \cdot M}{60 \cdot N_0} \right) \cdot A_{00}$

上の式で $\phi(E)$ (中性子フルキ-E の flux), $\sigma(E)$ (微分断面積), N_0 (アボガドロ数), M (ターゲット核種の原子量)。

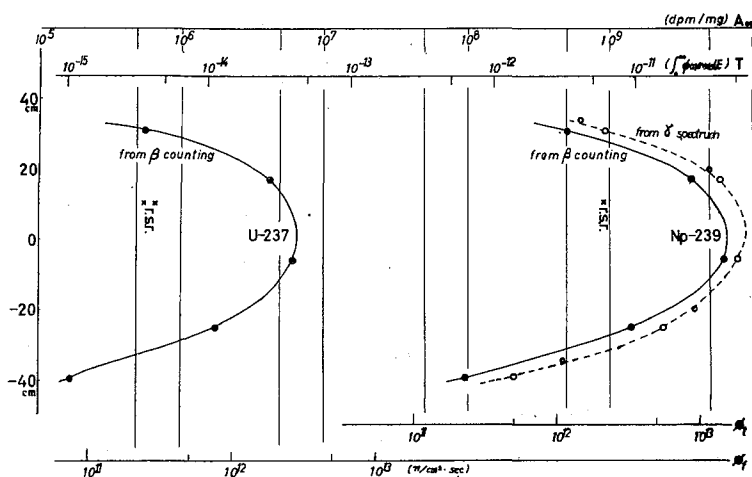
この T より $T = \bar{\sigma} \int_0^\infty \phi(E) dE = \bar{\sigma} \phi_f$ または $T = \sigma_{\text{eff}} \int_0^\infty \phi(E) dE = \sigma_{\text{eff}} \cdot \phi_{\text{eff}}$ なる関係より、 $\bar{\sigma}$ (平均断面積) または σ_{eff} (有効断面積) が与えられれば中性子線束が評価しうる。

いまウランにつき既存の文献等より、 $\sigma_{u(n,\gamma)} = 2.7 \text{ b}$ ($T_{1/2} = 2200 \text{ m/s}$), $\bar{\sigma}_{u(n,\gamma)} = 15 \text{ mb}$ ⁽³⁾

としてそれぞれ ϕ を計算すると、下図の ϕ_t または ϕ_f の軸により示される値となる。

なお下図には以前行った回転試験料棚の結果も示した。この他、他の各当性を検討するために、 $^{27}\text{Al}(n,\gamma)^{28}\text{Al}$ ($T_{1/2} = 2.31 \text{ m}$), $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$ ($T_{1/2} = 15 \text{ h}$), $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ ($T_{1/2} = 9.45 \text{ m}$) により求めた値との比較も実験する予定である。

なお以上の実験結果は、すでに測定された Cd ratio の値は炉心貫通孔内でかなり相違する



にもかかわらず、本実験に測定した核種の生成に有効な変換中性子以上のエネルギーをもつ中性子スペクトルは相対的にあまり変化していないことを示すようである。

- (1) S. Flügge; Handbuch der Physik XLV p107 p128 (1958)
- (2) D.J. Hughes, R.B. Schwartz Neutron Cross Section BNL-325 (1958)
- (3) JAERI 1102 p49 (1966) : J.C. Ray and Hawton AECL-1881 (1960) による平均値と示す。

2 A 11

放射化による Sb および Ga の同位体比測定にあつた
断面積，測定条件の検討

* 大阪大学 工学部

** 京都大学原子炉実験所

川 睦明*, 竹 味 弘 勝*, 玉 井 忠 治**

目的; 中性子放射化分析法により, 同位体比測定をおこなう場合, その感度を精度を決定する因子(主に断面積, 測定条件等)について検討した。試料としては, 二核種のみ天然に存在する元素のうち Sb および Ga を選んだ。Sb は Ga に比して共鳴吸収が大きく, かつ半減期が長いという特性を持っている。

実験方法; 試料の照射に用いた中性子源は KUR の圧気輸送管 No. 3 ($5 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$) であった。試料としては, $\text{Ga}(\text{NO}_3)_3$, 金属 Ga, Ga_2O_3 , 金属 Sb, SbF_3 , SbI_3 , SbS_3 , 吐瀉石などをを用いた。断面積について調べるために, 厚さ 0.5 mm の Cd 板で試料をつつんだものと, Cd 板で試料をつつないものとを比較し, 共鳴吸収の影響について検討した。照射時間は, 20 分間であった。放射線の測定は, 東電製多重チャンネル分析器 (100 channels) および $1' \times 1'$ の NaI (Tl) 結晶を用いて行なった。

結果および考察; 表 1 は ガリウム および アンチモン の核特性と存在比を示す。図 1 は, (n, γ) 反応により ^{69}Ga と ^{71}Ga とから生成した放射性核種 (^{70}Ga , ^{72}Ga) が放出する γ 線スペクトルを示す。 ^{70}Ga の 1040 Kev と ^{72}Ga の 1050 Kev との γ 線スペクトルの混合ピークが冷却時間とともに減少していることがわかる。 ^{69}Ga の存在比は, 測定した放射能強度を用いて次式で求めることができる。

$$^{69}\text{Ga} \text{ の存在比 (wt\%)} = \frac{1}{1 + \frac{n_1 M_1}{n_2 M_2}} \times 100 \quad (1)$$

$$\frac{n_1}{n_2} = \frac{A_2}{A_1} \times \frac{\sigma_2 (1 - e^{-\lambda_0 t})}{\sigma_1 (1 - e^{-\lambda_2 t})} \quad (2)$$

ここで, ^{69}Ga および ^{71}Ga については, それぞれ原子量を M_1, M_2 , 原子数を n_1, n_2 , 放射化断面積を σ_1, σ_2 で表わし, また生成した放射性核種である ^{70}Ga および ^{72}Ga については, それぞれ照射終了時の放射能強度を, A_1, A_2 , 壊変定数を λ_0, λ_2 で表わす。なお, 照射時間を t で表わす。

表 1. ガリウム および アンチモン の核特性と存在比

元素	天然に存在する核種	放射化断面積 (μb)	(n, \gamma) 反応により生成する核種	半減期	主要 γ 線 (MeV) と分岐率 (%)	存在比 (wt%)	
						文献値	実験値
Ga	^{69}Ga	1.4 ± 0.5	^{70}Ga	21.1 分	1.04 (0.74)	60.5	60.0 ± 2.8
	^{71}Ga	3.4 ± 0.7	^{72}Ga	14.3 時間	0.84 (100), 1.05 (5)	39.5	40.0 ± 1.9
Sb	^{121}Sb	6.8 ± 1.5	^{122}Sb	2.75 日	0.56 (66)	57.25	55 ± 3.5
	^{123}Sb	2.5 ± 0.5	^{124}Sb	60.2 日	0.60 (100), 1.69 (52)	42.75	45 ± 3.0

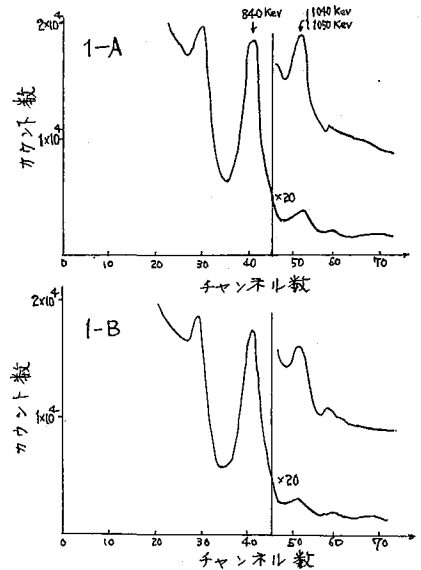


図 1. ガリウムの γ 線スペクトル
A) 冷却時間 9分
B) 冷却時間 24分

(2)式に含まれる A_2/A_0 を求める方法として、標準体を用いる方法について検討した。標準体としては、 ^{70}Ga については、 ^{70}Ga を用いる。 ^{70}Ga より放射される γ 線のうち、840 Kev, 1050 Kev のエネルギーのピークを問題とする。それぞれこの放射能強度を A_{840} および A_{1050} とすると、

$$A_{840}/A_{1050} = C \quad (C; \text{定数}) \quad (3)$$

となり、 C は実験的に求められる。また ^{70}Ga より放射される γ 線のエネルギーのうち、1040 Kev のものが本法の解析に用いられる。この 1040 Kev のピークは 1050 Kev のピークと混合ピークになる。この混合ピークの総放射能強度 A_t は、次式で与えられる。

$$A_t = A_{1040} + A_{1050} \quad (4)$$

(3), (4)式より、 A_{1040} および A_{1050} が分別定量できる。この結果を用いて A_2/A_0 を求めることができる。ただし壊変による γ 線の分岐率 (Γ_{1040} および Γ_{1050}) が判明していなければならぬ。

$$\frac{A_2}{A_0} = \frac{\Gamma_{1040} A_{1050}}{\Gamma_{1050} A_{1040}} \quad (5)$$

γ 線スペクトルの光電ピークの面積より放射能強度を求める場合、その面積のとり方に Covell 法がある。これはピークの最大カウント数を a_0 とし、高、低エネルギーへ同じチャンネル数だけとり、そのカウント数を b_n, a_n とし、面積 S を求める方法である。ただし、 n はピークよりチャンネル数を表す。

$$S = P - B$$

$$P = a_0 + \sum_{i=1}^n a_i + \sum_{i=1}^n b_i$$

$$B = \frac{(a_n + b_n)(2n + 1)}{2}$$

A_t は混合ピーク的面積から求める場合、840 Kev の γ 線の放射能強度が大であるため、そのピークのすそに目的とする γ 線ピークが重畳し、混合ピークは対称型にならない。

(図3参照) そこで γ 線スペクトルが対称型とみなして計算した Covell 法により A_t を求めた場合、 A_{840}/A_t を冷却時間に対してプロットするとその値はかなりばらつく。これを図2(A)に示す。

このような非対称型の混合ピーク的面積をとる方法として次のような方法を検討した。

図3のように非対称型のピークの最大カウント数を b_0 とし、

低エネルギー側のカウント数を a_i とし、 n チャンネルとする。高エネルギー側のそれらをそれぞれ b_i および m チャンネルとする。この場合 $n < m$ のとき、面積 S は次式で表わされる。

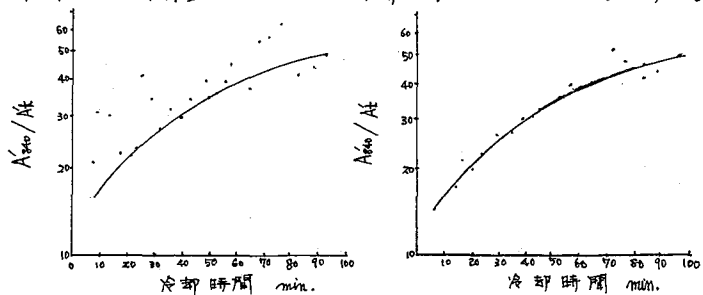


図2. 冷却時間による混合ピークに対する 840 Kev の光電ピークの比

A) Covell 法による方法 B) 本法による方法

$$S = P - B.$$

$$P = b_0 + \sum_{i=1}^n a_i + \sum_{i=1}^m b_i$$

$$B = \frac{(a_n + b_m)(n+m+1)}{2}$$

ピークの放射能強度を求めるときは、まず S を最大にする m の値を求める。すなわち、 $\sum_{i=1}^m b_i - \frac{(n+m+1)b_m + m a_n}{2}$ を最大にする m の値を求める。これは作図上では、図3の b_x , b_y のようにピークのすそに交わるものでなく、 b_m のように切線を描くものに相当する。そのときの面積を S_{max} とすると、あるエネルギー中の面積は S_{max} に比例した値となる。従ってこの方法で求めて、Covell法と同じように、 A_{obs}/A_t を冷却時間に対してプロットするとかなり理論曲線に近い実測値を得た。これを図2(B)に示す。この方法でガリウムの存在比を求めると、精度が5%以内で求められた。ただし、 $n \ll m$ はいけない。とくに $n=1$, $m=5$ などの場合は本法は適用しにくい。

また、測定時間の考察としては、冷却時間について行なった。すなわち冷却時間として、 G_2 の場合は20~60分の間をとることが望ましく、 S_b の場合は15日~20日の間をとることが望ましいことが判明した。

断面積の影響については、Cd板で被覆したものについての核種による差を検討したが、Cd板で被覆しないものと比較して若干の差が認められた。これについては、今後の実験データを数多くとって検討する予定である。

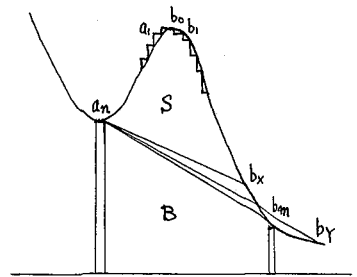


図3. 面積のとり方の模式図

2 A 12

$^{233}\text{U}(n, f)$ を線束コントロールした $^{232}\text{Th}(n, \gamma) \rightarrow ^{233}\text{Th} \rightarrow ^{233}\text{U}$ 反応

原 研 石 森 富太郎, ○上 野 馨, 星 三千男

$^{232}\text{Th}(n, \gamma) \rightarrow ^{233}\text{Th} \xrightarrow{\beta^-} ^{233}\text{Pa} \xrightarrow{\beta^-} ^{233}\text{U}$ 反応を利用し, トリウムターゲットを熱中性子で照射して ^{233}U を調製する場合, 副反応 $^{233}\text{U}(n, f)$ は γ 線放射体である核分裂生成物を生じ, 以後の化学操作を困難にするので, なるべく, 抑制したいものである。

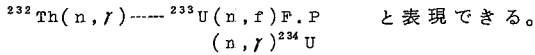
極めて大きな中性子線束で極めて短時間照射して, 事実上 ^{233}U が生成される以前に照射を終る方法が考えられるが, 現在原研にある原子炉には適用できない。

つぎに, 相当長期の照射を考え ^{233}U の生成は線束に比例し, $^{233}\text{U}(n, f)$ はその 2 乗に比例することに着目すると, やゝ低目の流束を用いた場合, ^{233}U の生成は線束に比例して減少するが, 放射性核分裂生成物の生成はその 2 乗に比例して減少することが利用できる。

計算結果

$^{232}\text{Th}, ^{233}\text{U}$ 近辺の核種の核的性質あるいは崩壊関係などを簡単に示せば, 次のようになる。

ここで ^{232}Th の中性子照射時間を ^{233}Th および ^{233}Pa の半減期を無視しうるほど, 長いものにすれば, ^{233}U および, その核分裂生成物の反応様式を更に簡単に



以上の関係から, t 時間照射後に生成する ^{233}U の量は

$$\frac{dN_{21}}{dt} = N_{00} \phi \sigma_{00} - N_{21} \phi \sigma_{21} - N_{21} \lambda_{21} \quad \text{① となる。}$$

放射性核分裂生成物の量は

$$\frac{dN_{F.P.}}{dt} = 2 N_{21} \phi \sigma_F - \lambda_{F.P.} N_{F.P.} \quad \text{② となる。}$$

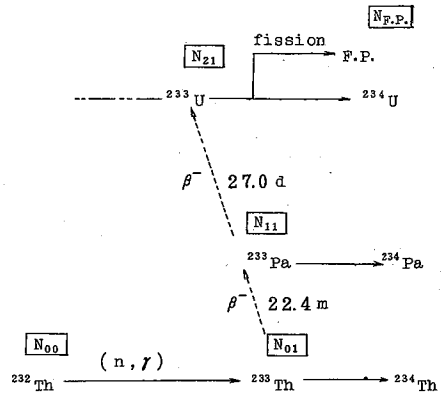
① ② の微分方程式を常法に従って解くと

$$N_{21} = \frac{N_{00} \phi \sigma_{00}}{\phi \sigma_{21} + \lambda_{21}} \{ 1 - e^{-(\phi \sigma_{21} + \lambda_{21})t} \} \quad \text{③}$$

$$N_{F.P.} = \frac{2 N_{00} \phi^2 \sigma_{00} \sigma_F}{\lambda_{21} + \phi \sigma_{21}} \left\{ \frac{1}{\lambda_{F.P.}} (1 - e^{-\lambda_{F.P.} t}) - \frac{1}{\lambda_{F.P.} - \lambda_{21} - \phi \sigma_{21}} [e^{-(\lambda_{21} + \phi \sigma_{21})t} - e^{-\lambda_{F.P.} t}] \right\} \quad \text{④}$$

となる。

中性子束を $10^{10} \text{ n cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ 照射時間が 700 日のような条件を考慮すると, $\phi \sigma_{21} = 5.78 \times 10^{-12} \text{ sec}^{-1}$, $\lambda_{21} = 1.38 \times 10^{-13} \text{ sec}^{-1}$ で, 核分裂生成物全体の半減期を 200 日と仮定すると $\lambda_{F.P.} = 4.02 \times 10^{-8} \text{ sec}^{-1}$ となり, これと比較して $(\phi \sigma_{21} + \lambda_{21})$ は無視でき, また $(\phi \sigma_{21} + \lambda_{21})t$



$= 3.5 \times 10^{-4}$ で 1 より非常に小さい。

この二つの効果をもとにして、③④式を書き改めると

$$N_{21} = N_{00} \phi \sigma_{00} t \quad \text{----- ⑤}$$

$$N_{F.P.} = \frac{N_{00} \phi^2 \sigma_{00} \sigma_{F.P.}}{\lambda_{F.P.}} t \quad \text{----- ⑥} \quad \text{が得られる。}$$

⑤, ⑥式より当然に

$$\frac{N_{21}}{N_{F.P.}} = \frac{1}{\phi} \times \frac{\lambda_{F.P.}}{\sigma_F} = \frac{C}{\phi} \quad \text{----- ⑦}$$

が導かれる。

これらの計算より前に述べた結論が得られる。

表 1 ^{232}Th 1 kg から生成する ^{233}U , F.P. の量

照射時間	中性子束	$10^9 \text{ n cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$	10^{10}	10^{11}
200 日	^{233}U	$1.27 \times 10^{-4} \text{ g}$	$1.27 \times 10^{-3} \text{ g}$	$1.27 \times 10^{-2} \text{ g}$
	F.P.	$9.31 \times 10^{-3} \text{ mCi}$	$9.31 \times 10^{-1} \text{ mCi}$	$9.31 \times 10^1 \text{ mCi}$
400 日	^{233}U	$2.54 \times 10^{-4} \text{ g}$	$2.54 \times 10^{-3} \text{ g}$	$2.54 \times 10^{-2} \text{ g}$
	F.P.	$1.86 \times 10^{-2} \text{ mCi}$	$1.86 \times 10^0 \text{ mCi}$	$1.86 \times 10^2 \text{ mCi}$
700 日	^{233}U	$4.45 \times 10^{-4} \text{ g}$	$4.45 \times 10^{-3} \text{ g}$	$4.45 \times 10^{-2} \text{ g}$
	F.P.	$3.26 \times 10^{-2} \text{ mCi}$	$3.26 \times 10^0 \text{ mCi}$	$3.26 \times 10^2 \text{ mCi}$

表 2 計算式の記号および数値

N_{00} : ^{232}Th の原子数	σ_{00} : ^{232}Th の中性子放射化断面積 7.83 b
N_{01} : ^{233}Th の原子数	σ_F : ^{233}U の核分裂断面積 525 b
N_{11} : ^{233}Pa の原子数	σ_{21} : ^{233}U の中性子吸収断面積 578 b
N_{21} : ^{233}U の原子数	λ_{21} : ^{233}U の崩壊定数
$N_{F.P.}$: 核分裂生成物の原子数	$\lambda_{F.P.}$: 核分裂生成物の崩壊定数

2 A 13

⁵³Mn の中性子放射化

東大物性研

中川英毅 ○今村峯雄
堀江絹子 本田雅健

⁵³Mn (t_{1/2} ~ 2 · 10⁶ yr) は電子捕獲によって崩壊し、約 5 KeV の X-ray を放出するので通常アルゴンガスフロー比例計数管を用いて測定されている。最近 ⁵³Mn(n, γ)⁵⁴Mn なる反応を利用することにより、この測定感度を増大する方法が提案された (H. Millard, '65)。本研究では鉄質イン石 Odessa より抽出した ⁵³Mn を通常の方法で測定し標準とした。Odessa は 10⁴ 年ほど前に地表に落下したと考えられ ⁵⁴Mn の妨害は無い。標準の Mn 酸化物 (担体を加えたもの Mn₃O₄) 24 mg を測定し、計数効率 4.9% で 4.2 ± 0.4 dpm ⁵³Mn を得た。原子炉で ⁵³Mn を放射化するには、速中性子による ⁵⁵Mn(n, 2n)⁵⁴Mn, ⁵⁴Fe(n, p)⁵⁴Mn の妨害反応があるので ⁵³Mn の抽出には Fe の除去に留意した。抽出精製は Mn 担体 (なるべく少量) を加えたあと、順次 エーテルによる Fe の除去、陰イオン交換、硫化銅、水酸化鉄の共沈によるスカベンジング、によって行い、最後にアンモニアアルカリ性で MnS を沈殿させこれを焼いて Mn₃O₄ とした。照射後再び化学処理を行い Fe を分離測定し、Fe による妨害反応の寄与を求めた。同時に ⁵⁴Mn 測定に妨害となる不純物 (P, Ir, Sc 等) を除いた。陰イオン交換、水酸化鉄の共沈によるスカベンジング、陽イオン交換を行って ⁵⁴Mn を精製した。化学収率は EDTA 滴定法によった。⁵⁴Mn の測定は通常の方法によりそのガンマ線スペクトルを求めて行った。原子炉は立教大学原子炉と東海村 JRR2 を用い各々について ⁵³Mn からの ⁵⁴Mn 生成量を求めた。同時に ⁵⁵Mn, ⁵⁴Fe からの ⁵⁴Mn も測定するため Mn, Fe の比較試料を照射し、上記の化学精製を行って ⁵⁴Mn の測定を行った。結果を表に示す。

原子炉	熱中性子束 × 10 ¹² n/cm ² sec	速中性子により生成する ⁵⁴ Mn dpm/mg Fe 中の Mn			⁵³ Mn(n, γ) ⁵⁴ Mn	
		⁵⁴ Fe(n, p) ⁵⁴ Mn	⁵⁵ Mn(n, 2n) ⁵⁴ Mn	比率	⁵⁴ Mn dpm/dpm ⁵³ Mn · 10 ¹⁸ 熱中性子	0n.γ _B
立大原研 (回転試料棚)	0.5	8900	430 ± 20	20	320 ± 90	140
JRR2 垂直実験孔 (1)*	20	440	35 ± 2	13		
(2)*	20	320	28 ± 1	12		
JRR2 垂直実験孔	13	120	14 ± 1	8	300 ± 30	130
JRR2 RI トレイン	3	35	5.5 ± 0.5	6		

* 同時に照射。(1)と(2)は原子炉中で互に4cm(垂直方向)離れていた。

標準試料は秤量して各々の場合の ^{53}Mn 量を計算した。全 ^{54}Mn 生成量から、 ^{54}Fe 、 ^{55}Mn より副生した ^{54}Mn を差引き、核反応断面積を求めた。それぞれ $T_{1/2}(^{54}\text{Mn}) = 314 \text{ d.}$; $T_{1/2}(^{53}\text{Mn}) = 2 \cdot 10^6 \text{ y}$ を使用した。熱中性子束は $^{58}\text{Fe}(n, \gamma)^{59}\text{Fe}$ ($\sigma = 1.0 \text{ B}$) 又は $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$ ($\sigma = 37 \text{ B}$) なる反応を用いて、その生成量から求めた。 $^{53}\text{Mn}(n, \gamma)^{54}\text{Mn}$ の反応断面積は10%程度の誤差をふくむものと考えられる。立大原研とJRR2ではば一致した値を得たが、後者の方が速中性子による副生 ^{54}Mn が少なかったので、信頼度の高いdataと思われる。上記標準試料について、立大原研の場合、 $^{53}\text{Mn}(n, \gamma)$ からの ^{54}Mn に対し $^{55}\text{Mn}(n, 2n)$ によるものが5倍多く生じたが、JRR2の場合は0.2倍であった。一方Feからの寄与はどちらの場合もほとんど問題とならない。

天然の ^{53}Mn を放射化する際には、どうしても ^{55}Mn の付随をまぬがれない。そこでなるべく速中性子の少ない原子炉を、又同じ原子炉でも速中性子の少ない位置を選ぶほうがよい。同じJRR2でもRIトレインは垂直実験孔に比べ、fluxは減少するが速中性子はそれ以上におちる。したがって副生 ^{54}Mn が少く、 ^{53}Mn の検出により適切といえる。

又表にあるように、同じ実験孔でも、位置が異なると速中性子のfluxが非常に違ってくるので注意する必要がある。(熱中性子束には、はっきりした違いが認められなかった。)したがってMn、Feの比較試料は同位置に置くことが必要である。

精度よい値を求めるには、かなり厳密な条件で行う必要があり、特に比放射能の高い、よい標準試料を得ることが望ましい。

- 我々は今迄放射化法を用いて 14 MeV 中性子による (n, 2n), (n, p), (n, α) 反応の励起関数を求めてこれを複合核模型を用いて検討してきた。
(n, 2n) 反応もとりあげた場合, 放出中性子のエネルギー, 角分布を調べる事は一試みられてはいるが測定精度の見地から大変困難でもあり問題もある。
そこで放射化法で励起関数を求めて, これを検討の対象にしてきたわけであるが, これに代る手段として (n, 2n) 反応によって生成する核異性体生成比も検討し複合核過程が成立するかどうかを考察した。
検討の対象とした (n, 2n) 反応の結果おる核異性体対は次の通りである。
 ^{44m}Sc (2.44 d), ^{44g}Sc (3.96 年); ^{75m}Ge (48 μc), ^{75g}Ge (82 m);
 ^{89m}Zr (4.4 m), ^{89g}Zr (79 年); ^{143m}Sm (1 m), ^{143g}Sm (9 m)
- 実験法: 中性子源としては東芝 NT-20 型中性子発生装置を用い, 重陽子の加速エネルギー変化 (150 ~ 200 KeV) と試料照射位置も重陽子ビーム方向に対して 45°, 90° および 135° と変化させる事によって 13.5 MeV から 14.8 MeV の中性子を得た。
照射試料は各々約 1 g の高純度物質で Sc に関しては Sc_2O_3 , Ge に関しては単体, Zr に関しては ZrCl_4 , Sm に関しては Sm_2O_3 も選んだ。
中性子モニタリングは中性子検出体としてプラスチックシンチレーターを用い照射中の中性子線束密度をできる限り一定にする様にした。
また試料照射位置での中性子線束密度の測定は短時間照射 (30 分以内) の場合は ^{63}Cu (n, 2n) ^{62}Cu (9.73 分), また長時間照射 (30 分以上) の場合は ^{19}F (n, 2n) ^{18}F (112 分) により試料と同時に照射しておこなった。
生成核種の放射能の測定は $1\frac{3}{4}$ " \times 2" の井戸型 NaI(Tl) シンチレーターを T.M.C. 256 区分波高分析器に接続しておこなった。
また放射能の絶対測定は上記シンチレーターのそれぞれのエネルギーにおける計数効率を求め, その関係曲線を利用しておこなった。
- 結果: 以上のようにして得られた励起関数を才 1 図から才 4 図に示した。
またこれらの結果に対して核化学的考察を加えた。
図中において ■印は ground state に対する記号であり, □印は high spin state に対する記号である。

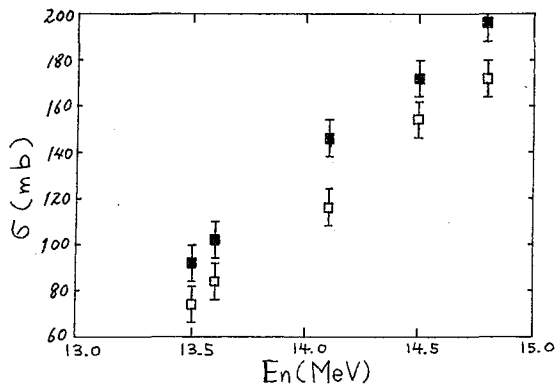


Fig. 1. $^{45}\text{Sc}(n, 2n)^{44}\text{Sc}$

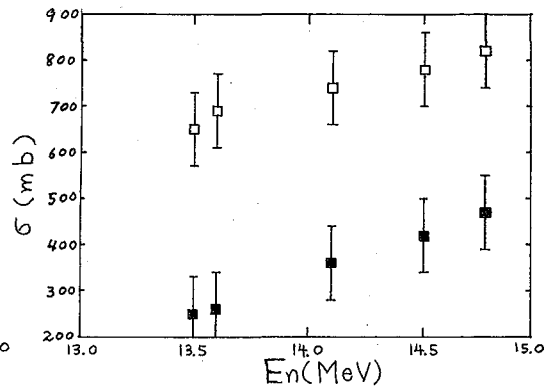


Fig. 2. $^{76}\text{Ge}(n, 2n)^{75}\text{Ge}$

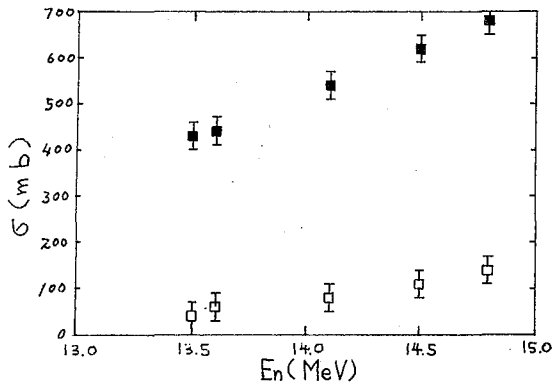


Fig. 3. $^{90}\text{Zr}(n, 2n)^{89}\text{Zr}$

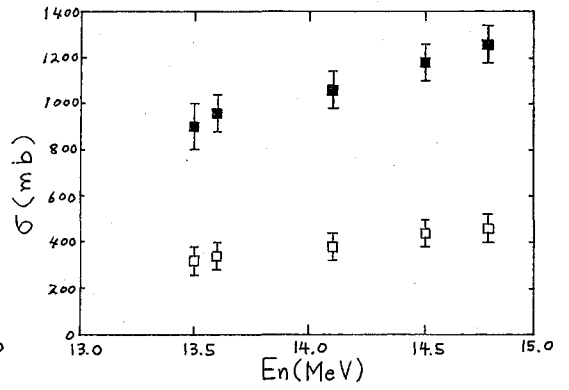


Fig. 4. $^{144}\text{Sm}(n, 2n)^{143}\text{Sm}$

2 A 15 ライナック制動X線の特性と (γ, n) RI生成上の問題

*近畿大原研**大放研 ○三木良太* 近藤嘉秀* 東俊雄**

1. まえがき

われわれは、周期律表が4周期以降の中重元素および重元素につき、 (γ, n) 反応によって生成されるRIの核種とそれらの生成量、半減期、 γ 線エネルギーなどの性質を調べることが目的として、電子ライナックにより発生させた高エネルギー制動X線を用い、各種の照射実験を行っている。その結果、制動X線の特性が (γ, n) RIの生成量にしばしば無視できないほどの影響をもたらすことが判明した。

電子ライナックのコンバーターによる制動X線を用いて (γ, n) RIの生成を行うに当たっては、電子ビーム・エネルギーの安定性、ビーム径、コンバーター物質の原子番号と厚さ、制動X線の全線量、光子密度の空間分布、試料の形状とコンバーターに対する幾何学的な位置などに対する考慮が必要なることはいうまでもない。更にこれら以外にも制動X線のエネルギー・スペクトルの空間依存性が、 (γ, n) RIの生成にかなりの影響を与えるのではないかと推定される実験結果がえられたので、異なった反応しきいエネルギー値をもつAu, Ag, Cu, In — Inのみは (γ, γ) 反応による——の4種の箔を用いて照射を行い、制動X線のエネルギー特性の空間依存性について実験を試みた。その結果について報告する。

2. 実験方法および結果

大阪府立放射線中央研究所の16 MeV電子ライナック (High Voltage Engineering Corporation, U. S. A.) を使用した。ライナックのビーム・エネルギーは16 MeV, エネルギー安定性は $\pm 1.5\%$, 平均ビーム電流 $30 \mu\text{A}$, ビーム径は約 $1 \text{ cm}\phi$ で運転し、水冷コンバーターには 0.52 mm 厚のAu箔を、また電子吸収用フィルターには 1 cm 厚のAl板を用いた。

なお初期の照射実験の結果、ビーム偏向用電磁石の残留磁気によって、運転前のビームチェック時と運転時とで、ビームの中心が時により変動する傾向が認められたので、現在では、水冷コンバーターの直前に、 3 cm 厚のAl板に $10 \text{ mm}\phi$ の孔をあけたビーム・モニターをとりつけ、モニターを流れる電流値をできるだけ少く、かつほぼ一定に保つことによって、ビームの中心位置の保持と監視を行っている。照射時の概要をFig. 1に示す。

a. 制動X線の相対的強度の空間分布の測定。

水冷コンバーターの後方における制動X線の相対的強度の空間分布特性を求めめる目的で、41個のAu箔 ($5 \text{ mm}\phi$, $50 \mu\text{厚}$) を種々の位置において、前述の条件の下に1時間照射した後、 (γ, n) 反応によるAu-196誘導放射能をGM計数管で測定した。減衰、試料の重量差による補正を行って求めた制動X線の相対強度 (Auのしきいエネルギー値以

上)の空間分布を才2, 3図に示す。コンバーターに近いところでは、ビームに直角な方向の強度の減少が急激であるが、コンバーターからの距離が大きくなるにつれて、ビームに直角な方向の強度の減少はゆるやかとなっている。このような強度の空間分布特性から、約1 cm ϕ 程度のビーム径の場合、直径1 cm以下の試料ならば、ほぼ一様な照射が期待できることが明らかとなった。

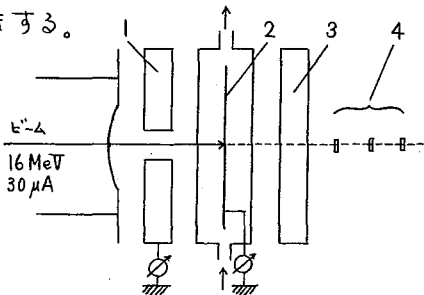
b. モニター箔の採用。

われわれは試料を照射する際に、厚さ1~3 mmのポリエチレン板の一端に5 mm ϕ の孔をあけた試料ホルダーに試料をつめた後、孔の両面からスコッチ・マジック・メンディング・テープ(No. 810)で押し、試料の位置に合せて5 mm ϕ 、50 μ 厚のAu箔をはりつけ、これを線量モニターとして照射を行っている。しかしモニターAu箔の誘導放射能強度で基準化しても、(γ, n)RIの生成量が時にかなりの変動を生ずることを経験した。この事実から、(γ, n)RIの絶対生成量を求めるに当って、単に全照射線量、または特定の箔線量モニターを使用するだけでは、必ずしも十分とはいえないのではないかとの疑問をもつに至った。文献によると、一般に高エネルギー制動X線のエネルギー・スペクトルは、ほとんど空間依存性がないとされているが、実測によるデータはあまり発表されていない。そこでこの点を確かめるため、以下の実験を行った。

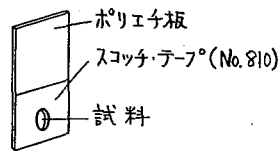
c. サンドイッチ箔による制動X線のエネルギー特性の空間依存性。

高エネルギー、高線量率の制動X線のエネルギー特性を直接精細に測定することは技術的に容易でないので、特性についての概畧の知識をうる一つの手段として、異なった反応しきいエネルギー値をもつAu, Ag, Cu, Inの箔を、反跳による寄与を避けるために電子線加工したポリエチレン・シートを介して重ね合わせたサンドイッチ箔をつくり、種々の空間位置に配して1時間照射を行った。

各位置のそれぞれの箔の誘導放射能(Au-196:半減期 5.6 d, E_{γ} 354 KeV, Ag-106:半減期 8.6 d, E_{γ} 513 KeV, Cu-64:半減期 12.8 h, $E_{\gamma}(E_{\beta^+})$ 510 KeV, In-115m:半減期 4.5 h, E_{γ} 335 KeV)を、3" ϕ x 3" NaIクリスタルとRCL-512 ch. PHAによって測定し、各しきいエネルギー値以上の光子の相対的強度の空間依存性を求めた。その一例を才1表に示す。これらの測定結果と文献記載の光核反応断面積データから推定した制動X線のエネルギー特性の空間依存性について報告する。



1. ビーム・モニター
2. Auコンバーター
3. Al吸収板
4. 試料



才 1 図

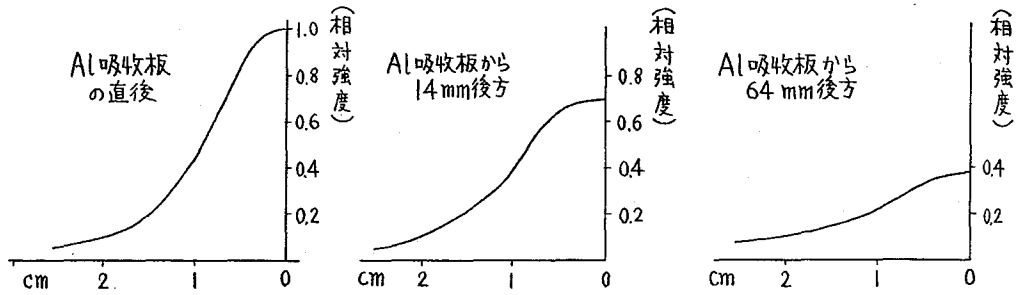


図 2

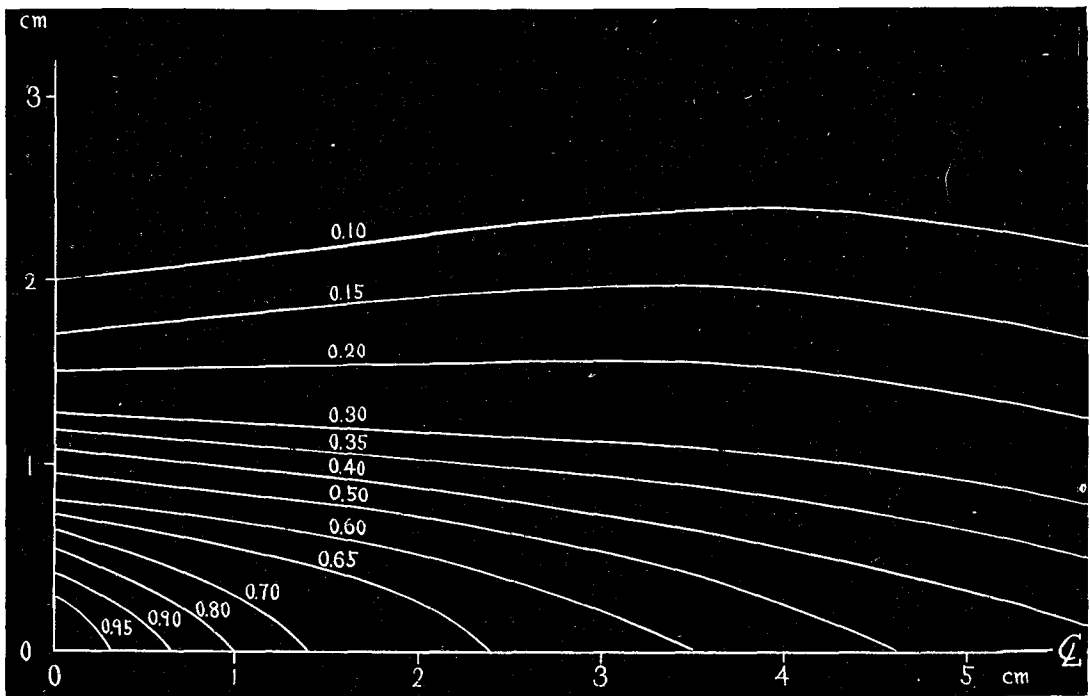
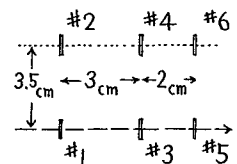


図 3

	In	Cu	Ag	Au
#1	1.000	1.000	1.000	1.000
#2	.096	.062	.048	.054
#3	.594	.626	.632	.625
#4	.104	.062	.056	.067
#5	.343	.469	.393	.392
#6	.096	.088	.065	.074



阪 大 理

吉 沢 康 和, ○ 福 島 昭 三, 下 山 好 美

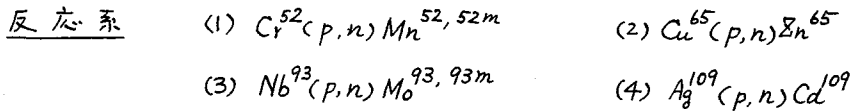
序 言 (p, n) 反応について, その閾エネルギーから 10 MeV 程度の励起エネルギーの範囲内で, その反応断面積を測定した研究は数が多い。そして, 今までに測定された励起関数は, 複合核生成を仮定する統計論的取扱いによつて可なり良く説明される。

それより高い励起エネルギーの領域では, (p, n) 反応断面積は, 他の多粒子放出反応に圧倒されて急激に減少する筈であると言つたのが, 複合核理論の予見する所である。しかし一方, 入射粒子の速度が増大するにつれて直接過程の寄与が大きくなると考えられるので, (p, n) 反応断面積はそれほど小さくならぬであろうと云う定性的議論もしばしば行われてゐる。しかし, 実際は (p, n) 反応の断面積もその閾エネルギーから数十 MeV の範囲にわたつて詳細に測定することは, 圧倒的優勢な他の反応の妨害があるので余程都合の良い反応系が与えられない限り困難であり, 今までに報告されてゐる確かな例は極めて少い。

本研究では, 色々の理論的予想はさておき, 一体 (p, n) 反応断面積はプロトンの入射エネルギーの増大と共にどのように変化するか, 確実な実験によつて見せわめようとするのが第一の目的である。信頼度の高い結果を得るためには, 好条件を備えた反応系とえらぶことが決定的に重要である。東大・核研の FM サイクロトロンを用いた一連の実験を計画するにあたり, 先づ次の二条件を考慮した。まづ第一に, ターゲット核は天然存在率 100% のものが, 天然の同位元素のうち最も重いもの, または, 99.9% 程度の S.I. が購入出来るものであること。このような場合, (p, n) 反応の生成核と同じ核種が他のターゲット核の (p, n) 反応によつても生成すると言ふことがなり。第二に, 問題の (p, n) 反応の生成放射能が他のすべての (p, n) 反応の生成放射能に比しずつと長寿命であるか, または, 問題の生成核が他のものとはつまり区別出来るような放射線を放出すること。このような場合, 化学分離さえ確実に行えば, 圧倒的大量に存在する他の反応生成物の妨害を受けることが少い。

以上の条件を満足して確実な測定の可能性を備えた反応系は余り多くなりませんが, さらに次の二つの条件も考慮した。すなわち, 取上げる反応例はなるべく広い質量数領域をカバーするものであること。これは, 一連の実験が終了した後, (p, n) 反応の一般論を論ずる上に好都合である。最後に, (p, n) 反応の生成核がスピン状態の異なる異性核をもつてゐる系は, 測定上多少の困難があつても優先的に取り上げる。これは核反応機構を論ずる上に, 角運動量が反応断面積とどう関連するかは, はなはだ興味があるからである。

結局, 上記の条件によつてえらび出した系のうち, 次の四つの反応系についで, 一たの実験結果を得たのでこゝに報告する。



実験方法と結果

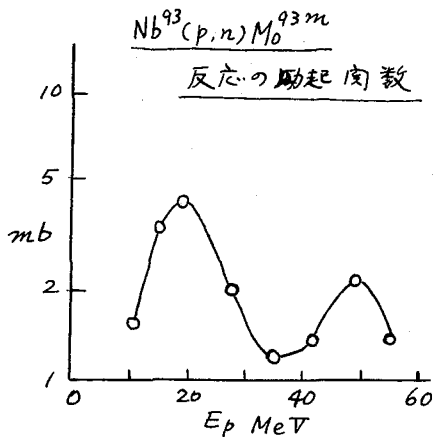
照射: プロトン照射用ターゲットとしては、 Cr^{52} は99.87%のS.I.を Cr_2O_3 の薄層としてAl箔上に沈降させたもの、Cu, Nb, Agはいずれも天然組成の金属箔を用いた。これらとAlの箔または板と適当に組合せて、いわゆるスタックとした。東大原子核研究所のFMサイクロトロンからのプロトンは、ビーム分析装置を通した後、ターゲットに照射した。プロトンエネルギーは、ビーム分析装置の磁場の強さから推定して55.31ないし55.36 MeVであった。ビームの径は最大7×20 mm²程度、強さは約0.1 μA、照射時間は目的生成核の寿命に応じて20分ないし12時間とした。

$Cr^{52}(p,n)Mn^{52m}$ (2/min) および Mn^{52} (5.6 d) : まづ Mn^{52m} のために数 mg/cm² の Cr_2O_3 ターゲットを0.1 μA × 20 min程度照射した。このとき妨害となる放射線は、バイプアーとして用いた有機ポリマーに生ずるものがあるので、照射後これをアセトンに溶解して Cr_2O_3 より分離し、直ちに3"×3" NaIで特徴的な1.43 MeVのγ線を測定し、その壊変曲線の解析より、 Mn^{52m} を定量した。 Mn^{52} については約0.1 μA × 2分照射した。約10日後に存在する妨害核種は、主として $Cr^{52}(p,2n)Mn^{51} \xrightarrow{\beta^+}$ で生ずる Cr^{51} 、および $Cr^{52}(p,\alpha n)$ で生ずる V^{48} である。そこで、 Cr_2O_3 ターゲットを K_2CO_3 で熔融、 CrO_4^{2-} として溶解し、Mn, Vのキャリアを加え、 Na_2O_2 で処理するとMnだけが沈澱単離する。この分離精製を2回繰返すと、γ線スペクトルには Mn^{52} 以外の存在はみとめられなかった。3"×3" NaIプロローブによるγ線強度を測定定量した。 Cr^{52} S.I.の手持ち量が少く、ターゲットが4枚しかなかったので Mn^{52m} および Mn^{52} について、それぞれ、30および55 MeVの2点、反応断面積を測定した。この2つの反応はどちらも30 MeVにおいて既に数 mbしかない。15 MeV位では当然100 mb以上にも達する筈なので、この結果は、20 MeVから30 MeVにかけて励起エネルギーの増大と共にその断面積は急激に減少することを示すものであり、複合核模型の様相が強い。しかし55 MeVにおける断面積の値は、30~55 MeVの間では励起関数は殆ど“横ばい”であることを示している。現在、もっと多くの測定点を得るため準備中である。

$Cu^{65}(p,n)Zn^{65}$ (245 d) : 厚さ約90 mg/cm²のCu板を約0.1 μA × 10分照射、約1ヶ月冷却期間を置いた後、γ線スペクトル測定を行うと、何も妨害放射能は無い予想であったが、 E_p 25 MeV以上では $Cu^{65}(p,\alpha n)$ および $Cu^{63}(p,\alpha n)$ で生じたと思われる Co^{60} (5.2y) と Co^{58} (7/d) が圧倒的に強く、化学分離が不可欠であった。そこで先づターゲットを HNO_3 に溶解した後、2 N HCl溶液としてアニオン交換樹脂Dowex / x 8のクラムに通じると、Cu, Coは容易に溶出し、Znだけが完全に吸着されることを利用して、Znを単離した。1.2"×2" NaI(井戸型)プロローブで1.1 MeV γ線を測定定量した。得られた励起関数はやはり複合核模型のようになって、 E_p 10~20 MeVにおいて断面積は100 mbをはるかに越えるが、その後、35 MeV付近まで

急激に減少して数mbとなり、それ以上はやはり“横ばい”傾向を示す。

$Nb^{93}(p,n)Mo^{93m}$ (7.0e) および Mo^{93} (>2Y 不詳)



厚さ約 24 mg/cm^2 の金属 Nb 箔を約 $0.1 \mu\text{A} \times 12 \text{ e}$ 照射し、直ちにピロ硫酸熔融を行い、シュウ酸塩として溶出、稀 HCl 性で Cu をキヤリヤとして H_2S で Mo を沈澱させ、小さな濾紙片上に捕集した。

Mo^{93m} はスピンの異常 ($21/2$) な核種なので、その励起関数は特に興味が深い。3" x 3" NaI を用いて特徴的な 1.48 MeV の γ 線などを測定したが、 $Nb^{93}(p,n)Mo^{90} \xrightarrow[5.7\text{h}]{\beta}$ Nb^{90} からの高エネルギー γ 線の妨害があり、 E_γ 30 MeV 以上では測定はやり困難であった。得られた結果は左図のようであり、非常に特異な形状をしている。より確実な結果を得るためには Nb^{90} の妨害を少なくするための化学分離操作の迅速化などの点で検討の余地がありそうである。

Mo^{93} の基底状態については上記 Mo^{93m} 用試料を約 1 ヶ月冷却した後、薄さ 5mm 厚 NaI で EC にともなう α 線を測定したが、予想される強度よりもいさぎよく弱く、正確な定量は困難であった。その文献記載の半減期 (>2Y) が疑問であるため、京都大学サイクロトロンで d ビームを用いて $Nb^{93}(d,2n)$ 反応で大量の Mo^{93m} を作り、その後生じた Mo^{93} を測定した所、その半減期は 10^4 y 程度と推定される。この系については各種の再実験を推進中である。

$Ag^{109}(p,n)Cd^{109}$ (470d)

約 30 mg/cm^2 の Ag 箔を約 $0.1 \mu\text{A} \times 10 \text{ e}$ 照射し、約 2 ヶ月を経過した後において、 $Ag^{107}(p,pn)$ 、 $Ag^{109}(p,p3n)$ で生じる Ag^{106} (8.3d) や、 $Ag^{107}(p,3n)Cd^{105} \xrightarrow[55\text{min}]{\beta}$ など生じる Ag^{105} (40d) などが測定を妨害する。そこでターゲットを HNO_3 に溶解後、Cd キヤリヤ存在の下で過剰の $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ を加え、Cd を沈澱分離した。分離を 2 度繰返すと、井戸型 NaI でとった γ 線スペクトルには、88 keV γ 線および X 線のみとなり、容易に定量出来た。得られた励起関数は、大勢においてやはり複合核模型のようである。

京大工研, 阪大理* ○西朋太, 藤原一郎, 音在清輝*, 久米三郎*, 岡村日出夫*, 三藤安佐枝*

1. 目的 さきに音在らは、 $^{142}\text{Ce} + d$ 反応の励起関数の実験値を、ストリッピング過程と複合核過程の両方を考慮した解析法によつて説明することに成功した。この研究では、その解析法の有効性をさらに検証する目的で、原子番号がかなり異つた三つのターゲット核について放射化法によつて励起関数を測定した。
2. ターゲット核の選択 $^{142}\text{Ce} + d$ 反応と同様に、解析に当つて手がかりになる反応、すなわち、 (d, p) 、 (d, n) および $(d, 2n)$ の各反応の断面積が放射化法によつて確実に測定できること、なるべく原子番号が広い範囲に互つていることの二つの基準でターゲット核をえらんだ。その結果、 ^{70}Ge 、 ^{96}Zr および ^{130}Te の三つの核について励起関数を測定した。
3. 生成放射性核 第1表にそれぞれの目的反応によつて生成する放射性核をその半減期とともに示してある。

第1表 生成放射性核

反応 ターゲット核	(d, p)	(d, n)	(d, 2n)	(d, 3n)	(d, α)
^{70}Ge	^{71}Ge (11 d)	^{71}As (65 h)	^{70}As (47 m)		^{68}Ga (68 m)
^{96}Zr	^{97}Zr (17 h)	^{97}Nb (72 m)	^{96}Nb (23 h)	^{95}Nb (35 d)	
^{130}Te	^{131}Te ($\frac{1}{2} \cdot \frac{2}{5}$ d)	^{131}I (8.3 d)	^{130}I (12 h)		

4. ターゲット 第2表にターゲット物質に関連した事項をまとめて示してある。それぞれのターゲット箔を、エネルギー減衰用のアルミニウム箔とスタックにして照射した。

第2表 ターゲット物質

核種	使用分離同位体中の 存在比 (%)	化学形	調製法	厚さ (mg·cm ⁻²)
^{70}Ge	92.6	GeO_2	エーテル懸濁液からアルミ箔上に沈降	3~5
^{96}Zr	57.4	ZrO_2	メタノール懸濁液からアルミ箔上に沈降	~3
^{130}Te	99.5	TeO_2	アセトン懸濁液中で電気泳動法でアルミ箔上に電着	~3

5. 照射 京都大学化学研究所原子核研究施設のサイクロトロン (105 cm) の「RI コース」で照射した。重陽子の公称エネルギーは14.4 MeVである。サイクロトロンエネルギーの日々の変動を知るために、 $^{107}\text{Ag}(d, 2n)^{107}\text{Cd}$ をモニター反応として用いた。 Ag 箔のスタックを照射日ごとに照射し、その励起関数の急勾配部分のエネルギー値の変化量から、重陽子の初期エネルギー値に補正を加えた。又重陽子イオンを捕集するフアラディ・カップについては、捕集電流に対する二次電子の影響が無視できる条件を定めた。

6. 生成放射能の測定 第1表に示した各生成放射性核の各ターゲット箔中での生成放射能は、第3表に示すように、それぞれに特有な放射線と方法とを用いて測定した。

第3表 生成放射能の測定法

目的核	測定した放射線(使用したNaIの大きさ)	計数効率の決定法
^{71}Ge	X線(44mm×3mm)	衰変率既知の親核種 ^{71}As からの生成放射能を測定
^{71}As	消滅510KeV γ 線(7.6cm×7.6cm)	^{22}Na 標準試料と比較
^{70}As	{消滅510KeV γ 線(同上) 2,03MeV γ 線(同上)}	同上 定立体角測定
^{68}Ga	消滅510KeV γ 線(同上)	^{22}Na 標準試料と比較
^{97}Zr	750KeV γ 線 + ^{97}Nb の665KeV γ 線 (7.6cm×7.6cm)	定立体角測定
^{97}Nb	665KeV γ 線(同上)	同上
^{96}Nb	~800KeVの3本の γ 線(同上)	同上
^{95}Nb	760KeV γ 線(同上)	同上
^{131}Te	^{131}I に壊変させて測定	
^{131}I	364KeV γ 線(4.4cm×5.1cm)	β - γ 同時計数法
^{130}I	{530KeV γ 線(同上) 660KeV γ 線(同上)}	^{22}Na 標準試料と比較 ^{137}Cs 標準試料と比較

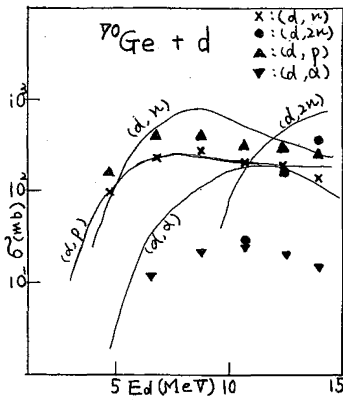
衰変率を決定する時に用いた核データは、主として Nuclear Data Sheets に記されているものを採用した。

7. 化学分離 第3表の測定を行うにあたって、共存放射能の妨害を除く必要のある場合には、第4表に示した方法で化学分離を行って測定用試料を調整した。

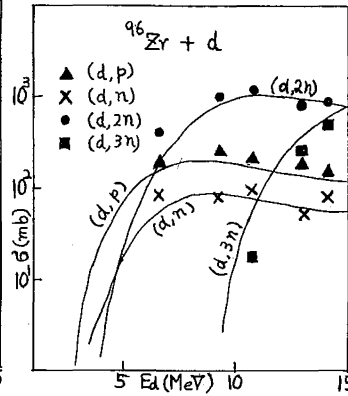
8. 実験結果 第1~3図に、三つのターゲット核に対する各反応の断面積の実験値を、それぞれの記号を用い、励起関数の型で示した。

第4表 化学分離法の概要

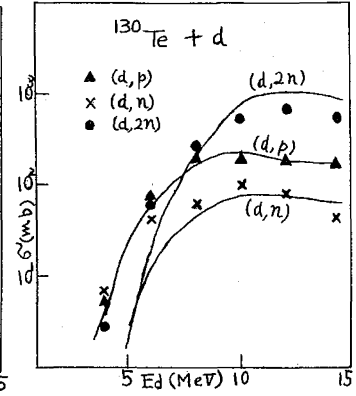
分離対象	ターゲットの溶解	分離法
Ga-Ge-As	過酸化ソーダ熔融	Dowex 1×8; HClの濃度を変えてAs, Ge, Gaの順に溶出, AsとGeは硫化物, Gaはタンニン酸で沈殿
Zr-Nb	KHSO ₄ 熔融	Dowex 1×8; HF+HClでZrを, NH ₄ Cl+HFでNbを溶出, それぞれクツペロンで沈殿
Te-I	王水に溶解	SO ₂ とヒドロキシールアミンでTeを金属に還元, 沪別



第1図 $^{70}\text{Ge} + d$ 反応の
励起関数



第2図 $^{96}\text{Zr} + d$ 反応の
励起関数



第3図 $^{130}\text{Te} + d$ 反応の
励起関数

2. 励起関数の計算値 三つのターゲット核について、音在らの方法で計算した結果を第1~3図中に実線で示した。これらの計算には、 $r_0 = 1.6 \text{ fm}$, $\beta = 2.2 \text{ fm}$, $\xi_n = \xi_p = 1.0$ のパラメーターの組合せを採用した。これらのパラメーターの値は、 $^{142}\text{Ce} + d$ 反応に対して、実験値に最も近い値を与えたものである。たゞ状態密度式中のパラメーター、 a には 3 MeV^{-1} (^{142}Ce の時は 5 MeV^{-1}) の値を用いてある。

3. 結果の考察 ^{96}Zr と ^{130}Te については、 ^{142}Ce の場合と同じ程度に、計算値は実験値によく一致している。ただ、クーロン障壁エネルギー以下の重陽子エネルギーに対しては、中性子放出反応の断面積の計算値が実験値を上廻る傾向が見られる。これは、計算におけるクーロン障壁の透過確率の取り扱いが不十分なことを示しているのであろう。 ^{70}Ge については、それぞれの反応の励起関数の型は、計算値のそれとかなり一致しているが、絶対値において大きな不一致が見られる。すなわち中性子放出反応では計算値は実験値を上廻っているのに反して、陽子放出反応では逆に下廻っている。このことは ^{70}Ge 核では、中性子の数が比較的少いことと関係している可能性もある。又 d 放出反応では実験値は励起関数のピーク付近で一桁近く小さい。 ^{142}Ce も含めて、これまで四つの核について得た結果を、パラメーターを改良することによつて、より良く、かつ統一的に説明できるかどうかを、ひきつゞき検討している。

阪大 理

福島昭三, 飯沢克幸, 久米三四郎

はじめに

$Pr^{141}(\alpha, n)Pm^{142}$ 及び $Pr^{141}(\alpha, 2n)Pm^{143}$ の励起曲線を測定し、複合核過程の統計論による解析を行った。この結果と昨年の放射化学討論会で発表した $Pr^{141}(p, n)Nd^{141}$ 及び $Pr^{141}(p, 2n)Nd^{142}$ の解析結果とを合せ比較検討した。

この実験の主要な目的は、励起曲線からの a (状態密度パラメーター) と A (質量数) の関係を調べることである。すなわち、すでに *Igo & Wegner (1956)* によって指摘されたことであるが、粒子スペクトル実験や中性子共鳴の実験から求められる a の値はほぼ $\frac{A}{10}$ の大きさを示し、原子核のフェルミ気体模型からの予想とよく一致するのに反し、励起曲線の解析から求まる a は A によらずほぼ一定で且つ小さいということ、これまで1つしかデータのない $A \sim 140$ で調べてみることである。

又、入射粒子として α, p を用いることにより励起曲線から求まる a に角運動量の影響があらわれるかどうかを調べることも目的の一つである。

実験

Pr^{141} (天然存在率100%) のターゲットは純度99.9%の Pr_2O_3 の粉末を電気泳動によりアセトン懸濁液中から Al フォイル上に $2 \sim 2.5 \text{ mg/cm}^2$ の厚みで電着させることにより作製した。 bombard には、核研FFサイクロトロンを用い、スタック法により $30.2 \sim 15.0 \text{ MeV}$ の α 粒子エネルギーの範囲で励起曲線を測定した。

Pm^{142}, Pm^{143} の相対測定は、 Pm^{142} の崩壊にともなう3本のカスケード γ 線が放射されることを利用し、 $5 \times 5 \text{ NaI}$ 結晶を用いての4 π ツオメトリの γ 線スペクトルの解析と、 $Pm^{142/143} \rightarrow Nd^{142/143}$ での Nd X線の測定を組合せることにより行った。絶対測定は、 Co^{60} 標準線源 (IAEA) により NaI 結晶の効率を決めることにより行った。尚、化学分離の必要はなかったが、一応希土類フラクションの分離を行っておいた。

結果と考察

a は1粒子放出と2粒子放出、2粒子放出と3粒子放出……の粒子放出の各段階間の競争に敏感な量である。そこで、図1, 図2に、核反応断面積を σ として $\sigma(\alpha, 2n) / \sigma(\alpha, n)$ 及び $\sigma(\alpha, 2n) / \sigma(\alpha, n)$ の実験値と理論計算値をプロットした。但し、理論計算には次の状態密度式を用いた。

$$W(E) = C(E - \delta)^2 \times \exp \left\{ 2 \sqrt{a(E - \delta)} \right\}$$

但し、 W は状態密度、 a は状態密度パラメーター、 E は励起エネルギー、 δ は陽子、中性子数の偶奇性による安定化エネルギー、 C は定数である。

図1より、入射粒子が α の場合は、ほぼ $Q = 6 \text{ MeV}^{-1}$ となる。高エネルギー部分で実験値と理論値との一致が悪くなる原因として、 (α, n) の直接過程の寄与、不純物等の寄与があるかもしれないが、そもそもこの領域では $(\alpha, 2n)$ と $(\alpha, 3n)$ の競争が主要なので Q は $G(\alpha, 2n)/G(\alpha, 3n)$ の理論と実験の比較より求めるべきであるから、このすれは Q を求めるには重要でない。

図2に入射粒子が p の場合を示した。 $(p, 2n)$ の Q 値が報告されていなかったのでもネミアナライズドビームを用いたこの反応の励起曲線実験より求めた。

しかし、約 $1.2 \times 10^8 \text{ eV}$ の不確かさが残った。しかし、図2からは、 Q 値のこの不確かさにもかかわらず、ほぼ $Q = 5 \sim 6 \text{ MeV}^{-1}$ となることがわかる。

ところで、 $A \leq 100$ のターゲットについて、これまで報告された励起曲線からの Q の値は $5 \sim 6 \text{ MeV}^{-1}$ である。

以上から $A \sim 140$ でも、入射粒子 α, p の場合とも先にのべた励起曲線からの Q の異常性がみられることがわかる。

ところで古川はわれわれと同じ A 領域でのターゲット $La^{139}(\frac{5}{2}^+)$, $Ce^{140}(0^+)$ を用いて $La^{139} + \alpha$, $Ce^{140} + p$ の複合核が同じである反応系について励起曲線を測定し、統計論にもとづき解析した。その結果、 $La^{139} + \alpha$ からは $Q = 7 \text{ MeV}^{-1}$, $Ce^{140} + p$ からは $Q = 11 \text{ MeV}^{-1}$ が求められた。これは、 γ 線の放出による失活過程と粒子放出過程との競争を^{考慮に}入れることにより、励起曲線からの Q の異常性を除去することができるというFroverの主張を支持するものと報告されている。というのは、 $La^{139} + \alpha$ によってできる複合核は $Ce^{140} + p$ による場合よりもはるかに大きな角運動量をもち、 γ 線放出による失活がより重要な役割を果たすと考えられるからである。

一方われわれの実験では、複合核が異なり、 $Pr^{141}(\frac{5}{2}^+) + \alpha$ と $Pr^{141} + p$ の複合核に期待される角運動量の差は、 $La^{139} + \alpha$, $Ce^{140} + p$ の場合ほど大きくないこともあるが、先にみたように Q の差はみとめられない。そこで、われわれの実験からは、角運動量の影響が Q にあらわれないと結論できる。

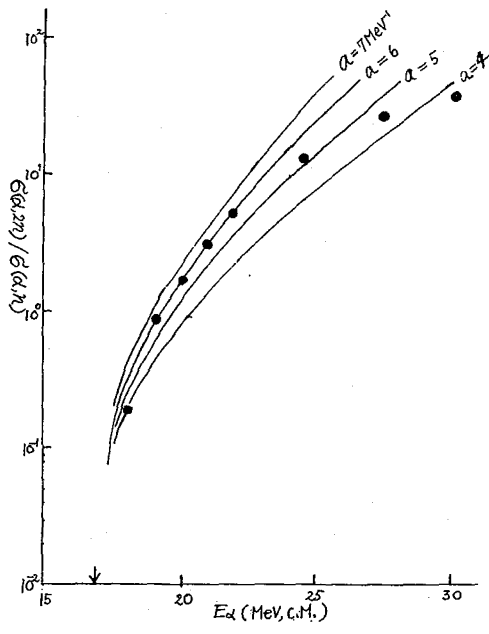


図1 $G(\alpha,2n)/G(\alpha,n)$
 ●は実験値；実線は $a = 4, 5, 6, 7 \text{ MeV}^{-1}$ の理論値；矢印は $Q(\alpha,2n)$ を示す。

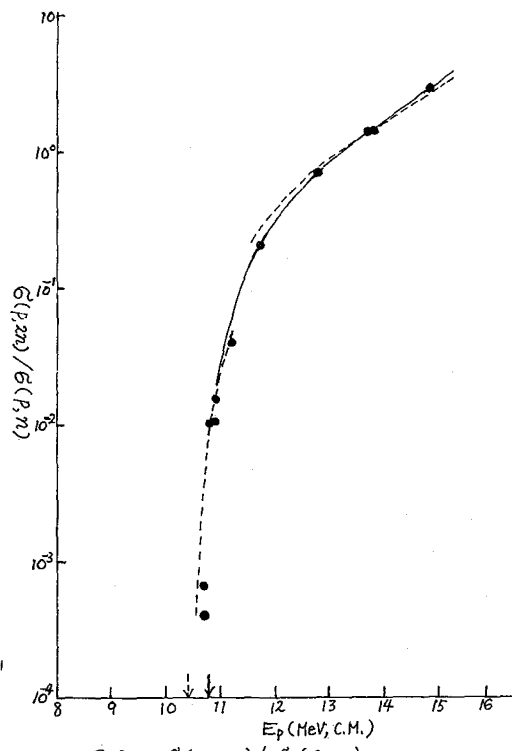


図2 $G(p,2n)/G(p,n)$
 ●印は実験値；実線は $a = 6 \text{ MeV}^{-1}$, $Q(p,2n) = 10.8 \text{ MeV}$, $b(0) = 0$ の理論値；点線は $a = 5 \text{ MeV}^{-1}$, $Q(p,n) = 10.4 \text{ MeV}$, $b(0) = 10^{-5}$ の理論値；矢印は $Q(p,2n)$ を示す。但し、 $b(0)$ は J.R. Grover, *Phys. Rev.*, 123 (1961) 267-, の(13)式による。

阪大理

岡村日出夫

〔序論〕われわれがある核反応の機作を研究しようとする時、励起函数の測定のように、その核反応に関係するすべての角運動量の和としての現象をとらえようとする場合と、核異性体生成断面積比の測定のように、個々の角運動量が変化する現象を知ろうとするような場合の二つがあつて、このいづれの結果も同一の機作で説明されなければならないものである。

複合核反応の核異性体生成断面積比については上記の二つの結果の間に矛盾のない計算を R. Vandenbosch と J. R. Huizenga が試み、可成りの成果をあげている。

所が、直接反応については、その核異性体生成断面積比についての定量的な説明がなされていない。

ここでは、 $^{130}\text{Te}(d,p)^{131}\text{Te}$ 反応の核異性体生成断面積比を実験的にもとめ、その結果について直接反応の立場から定量的な説明を試る。

〔実験〕ターゲット及び衝撃 天然組成の金属テルルを硝酸で溶解し焼いて TeO_2 とし、アセトン中にサスペンションしながら約 3 mg/cm^2 のアルミニウム箔上に電気泳動法で約 3 mg/cm^2 の厚さにつけた。衝撃は京大サイクロトロンからの初期エネルギー、 14.4 MeV の重陽子を用いた。一回の衝撃には、 TeO_2 付箔箱 2 枚をエネルギー降下用のアルミニウム箔と組込んだスタックを用いた。いづれの回も衝撃は約 $1 \mu\text{A}$ で約 20 分であつた。

分離と測定 衝撃したターゲットは約 10 日間放置すれば、放射能は ^{131}I のガンマ線となる。従つて衝撃直後化学分離して、テルルを単離し約 10 日間放置すれば化学分離時刻における $^{131m}\text{Te}(1.2 \text{ d})$ と $^{131g}\text{Te}(25 \text{ min})$ の両者の娘の ^{131}I の放射能が得られ。衝撃終了後 $^{131g}\text{Te}(25 \text{ min})$ が減びてしまつて後化学分離したテルル部分を約 10 日後に測定すれば分離時における $^{131g}\text{Te}(1.2 \text{ d})$ の娘の ^{131}I の放射能が得られる。この二つの場合の結果を用いれば核異性体生成断面積比を得ることが出来る。

化学分離法

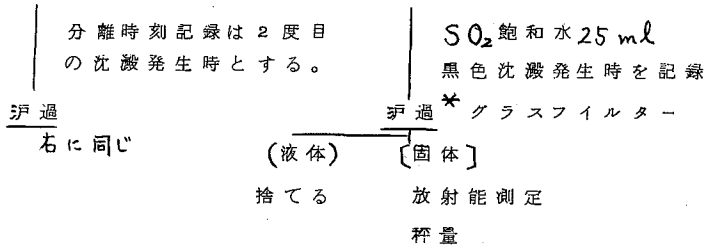
アルミニウム箔についた TeO_2 (秤量済)
 約 50 mg TeO_2 担体 (秤量済)
 5 ml 王水を加えて溶解乾固
 3 N HCl 100 ml で溶解
 試料を適当に 2 分、

試料 2 (5 時間後分離)

試料 1 (速時分離) (ホットプレート上)

試料 1 に同じ但し洗滌
 を 2 回繰返す。

SO_2 飽和水 15 ml
 15% ヒドラジン塩酸液 10 ml



* この一回の沈澱操作で沃素の除染係数は 10^2 以上である。

測定はグラスフィルターのまま $4.4 \text{ cm} \times 5 \text{ cm}$ NaI(Tl) シンチレーターで ^{131}I の 364 KeV のピーク値で行い。化学分離収率は重量法で行った。得た核異性体生成断面積比は第1図に示す。

[計算] この発表の前に、「重陽子反応の励起函数の研究」についての西らの報告があるが、そこにおいて示されるように $^{130}\text{Te}(d, p)^{131}\text{Te}$ 反応は完全な中性子ストリッピング反応としてその励起函数の説明がなされている。この励起函数の計算にはボルン近似を用いている。従つて今回の核異性体生成断面積比の計算もボルン近似を用い、励起函数の計算と矛盾のないものにする。

但しこの計算には (d, p) 反応の散乱の段階まではストリッピングとしてあつかうが、励起された生成核は複合核と考えガンマ線の放出は統計的な取り扱いができるとするいわゆる「混合反応」として考える。

ボルン近似で (d, p) 反応を論じた論文は二三あるが、A.B. Bhata らによれば角度分布は次の式であらわされる。

$$d\sigma(\theta) = \text{const} \times \frac{k_p^2}{\alpha^2 + |k_p - \frac{1}{2}k_d|^2} dk_p \sum_{2l_n} (2l_n + 1) \left[\left(\frac{\pi}{2kR} \right)^{\frac{1}{2}} J_{l_n + \frac{1}{2}}(kR) \right]^2 \quad (1)$$

k_d ; 入射重陽子の運動量

k_p ; 散乱陽子の運動量

k ; ターゲット核に捕獲された中性子の運動量

R ; ターゲット核の反応の半径

α ; 重陽子平均半径の逆数

l_n ; 中性子がターゲットに持ち込む軌道角運動量

(1) 式を散乱陽子エネルギー、全散乱角について積分すれば

$$\sigma = \text{const} \times \int_{E_d - I}^{E_d - I + E_n} \int_0^\pi \frac{k_p^2 \sin \theta}{\alpha^2 + |k_p - \frac{1}{2}k_d|^2} \sum_{2l_n} (2l_n + 1) \left[\left(\frac{\pi}{2kR} \right)^{\frac{1}{2}} J_{l_n + \frac{1}{2}}(kR) \right]^2 d\theta dk_p \dots (2)$$

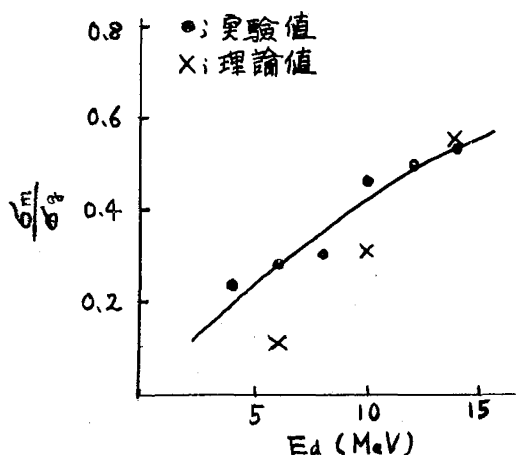
E_d ; 入射重陽子エネルギー

E_n ; ターゲット核と中性子の結合エネルギー

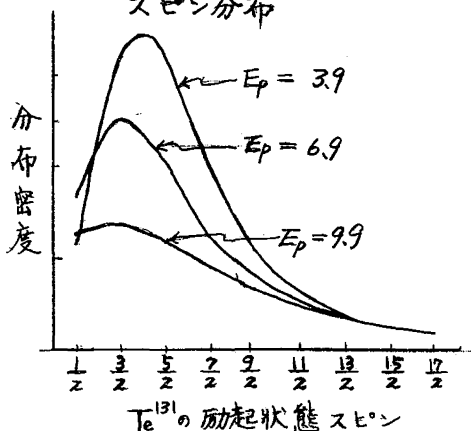
I ; 重陽子の結合エネルギー

ここでは(2)式を用いて $^{130}\text{Te}(d, p)^{131}\text{Te}$ 反応の具体的な計算を行つた。その値を下に示

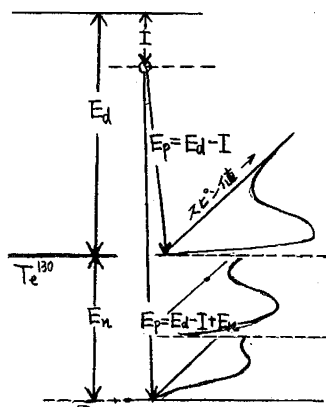
第1図



第2図
スピン分布



第3図



すと。 $E_d = 6-, 10-, 14-\text{MeV}$, $E_n = 6.31 \text{ MeV}$

$R = 1.6 \times A^{1/2} \times 10^{-13} \text{ cm} = 8.1 \times 10^{-13} \text{ cm}$ である。但し(2)式には

クーロンの影響を無視してあるが、ここでは励起関数の計算におけると同じ方法でクーロン補正をした。以上の操作により得た計算結果のうち $E_d = 14 \text{ MeV}$ の時の生成核の励起状態におけるスピン分布を第2図に示し第3図には E_d と E_p とスピン分布の関係を示した。

次に励起状態にある生成核のガンマ変換であるが次の条件を入れた。1) エネルギー単位密度パラメーター $a = 6 \text{ MeV}^{-1}$
2) 放出ガンマ線は双極子能。3) スピンを考慮したエネルギー単位密度式 4) $^{131m}\text{Te} (\frac{11}{2})$, $^{131g}\text{Te} (\frac{3}{2})$ の生成比は両者の平均のスピン $\frac{7}{2}$ を境界とする。この計算結果は第1図に

×印で示してある。

〔検討〕 一般に実験で求める核異性体生成断面積比はそれぞれの崩壊図式のあやしさから比にすれば更に大きな誤差になってしまう系統的に絶対値がづれてしまうことがある。

今回は理論値との比較のために ^{131}Te の二つの核異性体を娘の ^{131}I にして測定しているの

で前に述べたように系統的なづれはない。
第1図に示すように実験値及び理論値は互に絶対値及び形とも可成り良い一致をしていると判断される。このことより $^{130}\text{Te}(d,p)^{131}\text{Te}$ 反応に関しては励起関数を説明する機作でその核異性体生成断面積比を説明することができる。

尙実験誤差は今後の繰返し実験をもつて決定したい。