

A 会 場

○本間義夫* 村上悠紀雄**

*都立大学理学部・日本原子力研究所(RIS) **都立大学理学部

〔目的〕 テルルの α , ^3He 反応による核反応生成物について調べその比較を行った。特に ^{123}I , ^{130}I , ^{123}Xe などを対象として励起曲線 厚いターゲット 収率曲線をもとめるため、テルルを電着して $20\sim 30\text{mg/cm}^2$ のフオイルをつくり、これをスタックとして理研サイクロトロンで $38\sim 42\text{MeV}$ の α および ^3He 粒子を照射して核反応生成物を調べた。照射エネルギーとそれぞれの核種の収率および励起曲線をもとめて、目的の核種をつくるのに適する照射条件を検討し、さらに α 反応と ^3He 反応との比較を行った。また、この際 shielded nuclide である ^{130}I については特に注目し調べた。

〔実験〕 テルルは脆く、薄板をつくるのが困難とされていたが、亜テルル 塩カリウムのカセイソーダ溶液 ($\text{Te } 150\text{g/l}$, $\text{NaOH } 100\text{g/l}$) を用い、鉄線を陽極、 35μ の銅板を陰極とした円筒状の硬質ガラス製電解セルを直列に7本つなぎ、室温、 20mA/cm^2 の電流密度で $30\sim 45$ 分間電着を行い、 $20\sim 30\text{mg/cm}^2$ のフオイルを得た。電着終了後、テルルを銅板よりはがし、Xeの散逸を防ぐためアルミ箔 (10μ) に包み約10枚をスタックにして照射に用いた。

テルルの α , ^3He 反応で生成する反応のしきり値は下表の如くである。

生成核種	α 線 (MeV)	核反応	しきり値 (MeV)	生成核種	核反応	しきり値 (MeV)
^{123}I	0.159	$^{120}\text{Te}(\alpha, n)$	6.5	^{123}I	$^{122}\text{Te}(^3\text{He}, pn)$	3
	0.430	$^{122}\text{Te}(\alpha, p2n)$	24		$^{123}\text{Te}(^3\text{He}, p2n)$	10
	0.529	$^{123}\text{Te}(\alpha, p3n)$	31		$^{124}\text{Te}(^3\text{He}, p3n)$	19
		$^{124}\text{Te}(\alpha, p4n)$	41			
^{123}Xe	0.090	$^{120}\text{Te}(\alpha, n)$	10	^{123}Xe	$^{122}\text{Te}(^3\text{He}, 2n)$	8.6
	0.110	$^{122}\text{Te}(\alpha, 3n)$	28		$^{123}\text{Te}(^3\text{He}, 3n)$	13
	0.149	$^{123}\text{Te}(\alpha, 4n)$	35		$^{124}\text{Te}(^3\text{He}, 4n)$	24
^{130}I	0.669	$^{128}\text{Te}(\alpha, pn)$	15.50	^{130}I	$^{128}\text{Te}(^3\text{He}, p)$	0
	0.743	$^{130}\text{Te}(\alpha, p3n)$	30.40		$^{130}\text{Te}(^3\text{He}, p2n)$	9.14

これを考慮して、 $38\sim 42\text{MeV}$ の α および ^3He 粒子を用い、ビーム電流 $0.8\sim 1.1\mu\text{A}$ で、 $20\sim 30$ 分間照射を行った。

照射後の各フオイルの放射能は、Ge(Li)半導体検出器 (15CC) とマルチチャンネル波高分析器 (1024 チャンネル) を用い測定した。

α 線の計数効率 は同一の測定条件で、標準 α 線線源 (IAEA 検定 ^{57}Co , ^{22}Na , ^{137}Cs)

^{54}Mn , ^{60}Co 等)を用いて求めた。

また、入射粒子のエネルギーは照射のつど次の式によって求められ、その精度は±%と言われる。

$$E = 0.108 f^2 M$$

ただし、 E は入射粒子エネルギー(MeV)、 f は高周波加速電極の周波数(MHz)、 M は加速粒子の質量数である。

さらにテレル中の α , ^3He 粒子の飛程については[Sternheimer, R. M., *Phys. Rev.* 115, 137, (1959)]に基づいて「飛程-エネルギー関係曲線」をつくり、各スタックごとのエネルギー算出に用いた。

入射粒子数はターゲットホルダーに接続した *beam current integrator* より求めた。

以上の結果より照射終了時の ^{123}I , ^{123}Xe , ^{120}I 等の生成量(dps)を求め、ついで核反応断面積(mb), 励起曲線, 厚いターゲット収率曲線を算出した。

なお、照射時間を t , 生成核種の半減期を T , ターゲットの原子数を N (原子数/cm²), 粒子線束を I (粒子数/sec), 生成核種の生成量を A (dps), 飽和係数を $[1 - \exp(-0.693t/T)]$ とすると、核反応断面積 σ は次の式で与えられる。

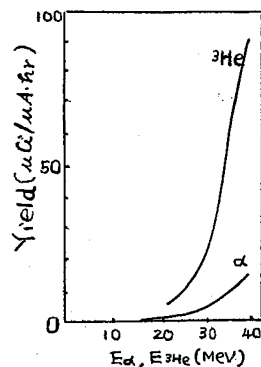
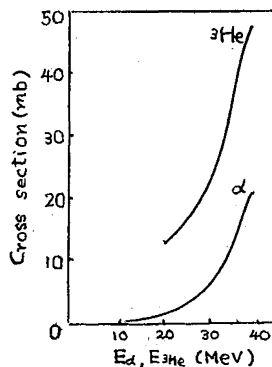
$$\sigma = A / I \cdot N \cdot [1 - \exp(-0.693t/T)]$$

【結果】 ^{123}I を生成する励起曲線および厚いターゲット収率曲線の一例を示す。

たとえば ^{123}I の収率は38 MeVの ^3He 照射で89.3 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A}\cdot\text{hr}$ であるが、一方38 MeVの α 照射の収率は140 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A}\cdot\text{hr}$ である。

また、 ^{123}Xe , ^{120}I の生成についても収率は ^3He 照射の方が高かった。

これらの結果より、 α 反応と ^3He 反応による ^{123}I , ^{120}I , ^{123}Xe , ^{125}Xe , ^{127}Xe などの生成について比較検討を行なう。



$^{151}\text{Eu}(p, 4n)$ 反応による α 放射体 ^{148}Gd の調製とその α 反応について

東大核研 小村 和久
金沢大理 上杉 正樹, 阪上 正信

α 放射体 ^{148}Gd は α 線エネルギーが低い ($E_\alpha = 3.18 \text{ MeV}$) こと及びその化学的挙動の類似性から Am その他の III 価アクチノイド諸核種の Yield Tracer として有用な核種である。

^{148}Gd の生成には $^{151}\text{Eu}(p, 4n) \rightarrow ^{148}\text{Gd}$ 及び $^{153}\text{Eu}(p, 6n) \rightarrow ^{148}\text{Gd}$ 反応が利用できるが、これら反応の初起断面積および副反応によって生成する Gd ならびに Eu 同位体の初起断面積はよく知られていない。また ^{149}Gd は分岐率が小さいが α 線変化するのど、なるべく純粋な ^{148}Gd を得るためにもその初起断面積の測定が望まれる。

実験

^{148}Gd 及び他の Gd , Eu 同位体の初起断面積の測定は若狭み屋おぼろで行った。

Eu ターゲットは Eu_2O_3 (99.9%) 粉末をアセトン中に懸濁させ、1000V の電圧をかけた $7 \mu\text{m}$ の Al 箔上に分子蒸着により調製した。この方法により、1.4 ~ 2.5 mg/cm^2 の均一厚みのターゲットを得、その 1 枚をスタンプに組込んで照射試料とした。

照射は東大核研のシンクロサイクロトロンからの 51.8 MeV 陽子により、0.5 μA による時間を行った。

2 日間の冷却後、次の一連の測定を行った。

- (1) $\text{Si}(\text{Au})$ 検出器による全 α 放射能の測定。
- (2) $\text{Ge}(\text{Li})$ 検出器による α 線スペクトルの測定。
- (3) セルロースナイトレートによる α トラップの観察
- (4) 化学分離後、 $\text{Si}(\text{Au})$ 検出器による Gd フラクションの α スペクトロメトリ。

Eu と Gd の化学分離は次のように行った。

Eu_2O_3 を $3\text{N-H}_2\text{SO}_4$ により溶解して Al 箔よりはずし、 N_2 ガスを通じた後、 Zn アマルガムにより $\text{Eu}(\text{III})$ を $\text{Eu}(\text{II})$ に還元し、 Eu を EuSO_4 として沈殿させて除去した。さらに上澄み液に残存する微量の Eu を除くため BaSO_4 沈殿により Eu を共沈させ、 T.O.A (Tri Octyl Amine) 抽出により Zn の除去の後、電着法により Gd の α 線源を作製した。化学収率の測定には ^{151}Gd の α 線を用いたが、誤差が大きかったため、 ^{241}Am を収率測定のためのトレーサーとして用い、再測定を試みている。

[結果]

★1図にγスペクトロメトリ及びα線の全計数測定により得られたGd及びEu同位体の初起崩壊数を示す。また表に、計算に用いた核データを示す。図からわかるように、¹⁴⁸Gd生成反応のピークは37~38 MeVと約900 mbとあり、50 MeV以上では¹⁵³Eu(p, n)¹⁴⁸Gd反応の寄与がみられる。¹⁴⁸Eu以外のEu同位体はGd同位体からの流れ込みの寄与が大きいこと、及び(p, p'n)反応の新面積が(p, n)反応に比べて小さいことなどから信頼性あるデータが得られなかった。表に示したようにγ線分岐比及び半減期の値の不確かさ、計数効率の測定誤差などを考えると絶対値の誤差は±50%程度と考えられる。

★2図にGdのαスペクトルの例を示す。この試料は、¹⁴⁹Gdの生成が最も大きい陽子エネルギーに対応するもの。 ¹⁴⁹Gd/¹⁴⁸Gdのα線強度比及びγ線強度の値から¹⁴⁹Gdのα壊変の分岐比と $1 \sim 5 \times 10^{-4}\%$ を得た。

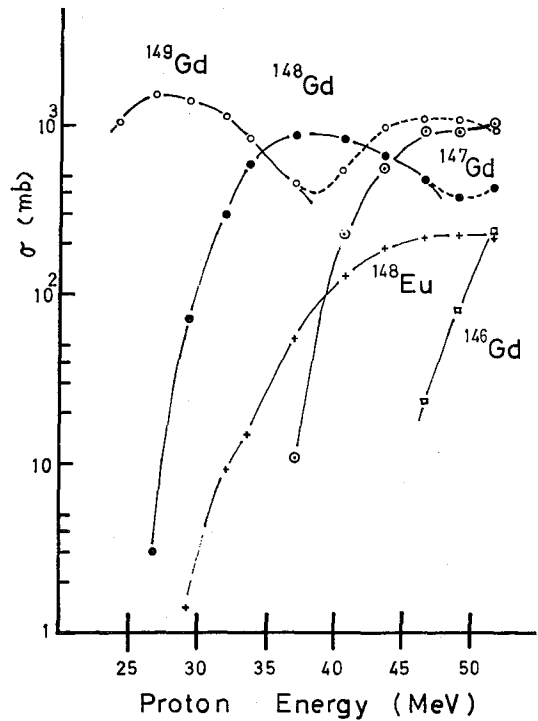
以上の結果から¹⁴⁸Gdの製造は、34~40 MeVの陽子と照射イオンの最も適切な¹⁴⁹Gdの混入が少いと結論される。

なお複合核模型を用いた¹⁵¹Eu + p及び¹⁵³Eu + p反応の初起崩壊数の計算も行っており、これと実験値とを比較について考察する予定がある。

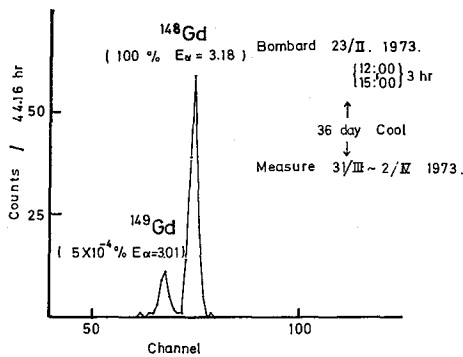
表 1

Nuclide	Half life	Radiation detected Energy	Branch abundance	Other value
¹⁴⁶ Gd	48.3 d	154.6 keV γ	44 % ^{*1}	38 % ^{*1}
¹⁴⁷ Gd	21.7 h ^{*2}	229.3 keV γ	76.8 %	35 h ^{*2}
¹⁴⁸ Gd	93 y ^{*3}	3.185 MeV α	100 %	84 y ^{*3}
¹⁴⁹ Gd	9.25 d	149.8 keV γ	48 % ^{*4}	72 % ^{*4}
¹⁶⁰ Eu	54 d	550.2 keV γ	99 %	

★1図



★2図



阪大・工 品川 睦明 ○西沢 嘉寿成

1) (n, γ) 反応の γ の反跳により、核反応生成物は運動エネルギーを得るとともに、内部転換によってイオン化することが期待される。1回の核反応によって放出する多数の γ 線のため、互のキャンセレーションで運動エネルギーはそれほど大きくないであろうが、それでも固体表面でおきた核反応では、その表面を離れることができるであろう。(n, γ) 反応によってできる励起核は内部転換で励起解消することがあり、内部転換は主に内殻電子について主におこることが期待できるから、続いておこるベータ崩壊で、多荷電イオンが生成する。²⁾ このような核反応が固体でおこる場合には、まず γ の反跳により運動エネルギーを得た反応生成物が固体表面から中性粒子の状態を脱び出してもとの表面を離れ、続いて内部転換²⁾ さらにベータ崩壊によって多価にイオン化する。したがって、このイオンはもとの固体と相互作用することなく電荷が保存されることになる。このため、このイオンは荷電プレートに引きつけられ、吸着される。

2) 図1に示した一種のゲージスペクトロメーターを原子炉の実験孔に挿入して、 γ の反跳による運動エネルギーと電荷分布を推測した。このゲージスペクトロメーターはツイオン源として、金属表面にできるだけ薄く試料を塗りつける。たとえば、金属インジウムなどは、溶融して銅板の表面に融着させたものをこのツイオン源とした。このような方法がとれないもの、酸化物試料などは、銅表面に真空蒸着アタールを塗りつけ、その上に細かい粉状の試料をそそいで乾燥させて用いる。このようにして調整したツイオン源は高電圧をかけて、この電子をツイオンを押し出すことになる。

もとの固体表面をははれくさすツイオンはスリットを通過することによって、比較的細いビームとなり平行平板電極に導かれる。この電極の間を通過して、イオンはその荷電数に応じて位置を負電極の上に落ち込み、そこで電荷交換して吸着される。この平行平板電極のうち、負電極側は、銅表面に水銀メッキしたものである。

電極に吸着された核反応生成物は放射能測定法によって検出した。このため、もとの試料は中性子吸収によって放射化されるような核種に限られる。Ge(Li) 検出器(1000ch. P.H.A)で特定のエネルギーのガンマー線について、その強度を測定しツイオンインテンシティを決定した。最終的には、水銀メッキした負電極

を小さく切って、各細片の放射能強度を測定し、チャージ分布を推定することになる。

このチャージスペクトロメーターは全体がガラス管中にセットされており、あらかじめ拡散ポンプで排気している。原子炉で照射する前の真空度はほぼ 10^{-5} Torr.と推定される。

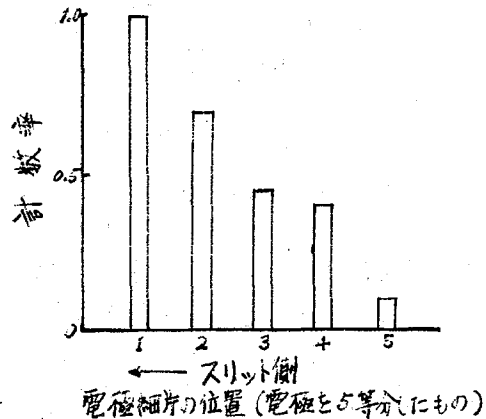
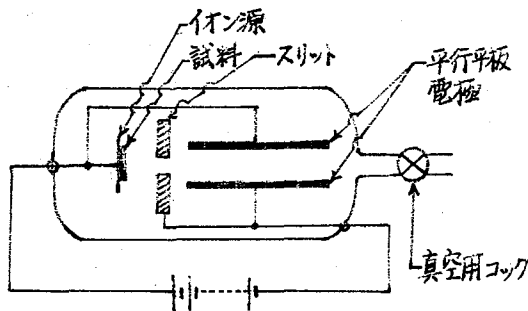
3) 図2は天然の同位体存在比の金属インジウムを試料として用いた場合のチャージスペクトルを示したものである。(1)で述べたように、イオン化が内部転換→ペーカンシーカスケードという過程をとおるならば、当然電荷分布はある電荷のところ(電極細片のある位置)で最大値を持つような型となるはずである。試料として、銅表面に融着したインジウムの厚みが相当あり、このようなイオン源では、固体表面だけでなく、比較的内部でできたイオンが真空中に跳び出すことも考えられる。このような場合には、もとの固体と核反応でできたイオンとが電荷交換を起すことも充分考えられる。したがって、低電荷側に電荷分布が片寄ることになったと推定する。

イオン引き出し電圧(イオン源プレートとスリットの間にかかる電圧)と平行平板電極にかけている電圧がそれぞれ最適値をのびたということも考えられる。

4) イオン引き出し電極の最適値をさがし出すとともに、試料の厚みを減らすことが、このチャージスペクトロメーターの改善すべき点として今後に残された課題である。さらに得られた電荷分布から、(n, p) 反応によるイオン化過程を追求する。

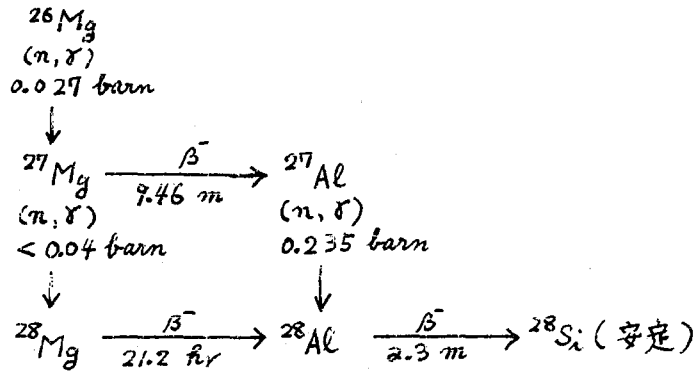
参考文献

- 1) K. Nishizawa, K. Narisada, H. Teramatsu, M. Soga and M. Shinagawa, *Mass Spectroscopy*, 21, 45 (1973).
- 2) J. L. Thompson and W. W. Miller, *J. Chem. Phys.*, 32, 2499 (1963).



^{26}Mg 二重中性子捕獲反応断面積

(原研) ○関根俊明・馬場宏・天野恕

1. 緒言 ^{26}Mg (11.29% 存在比) の中性子捕獲によって次の核反応が起る。

この ^{27}Mg (n, γ) ^{28}Mg 反応断面積は Roy と Yaffe¹⁾ により GM 管を用いた β 線測定によって研究されたが、 ^{28}Mg を検出できず 0.04 barn 以下と報告されている。演者らは、Ge(Li) 検出器を用いた γ 線スペクトル測定によって、より精度の高い値が得られる見通しを得たので、これを試みた。

2. 実験 Johnson Matthey 社製 spec pure 酸化マグネシウム約 3g を石英アンプルに封じ、コバルト・アルミニウム合金中性子束モニターと共に JRR-2 の熱中性子束 $5 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ の照射孔で 65 時間照射した。

数時間後に濃塩酸で溶解した後、赤外線ランプで蒸発乾固した。濃塩酸 15 ml を加えて、濃塩酸で満した陰イオン交換カラム (Dialon SA#1, 100~200 メッシュ, 20φ×180 mm) に加え、濃塩酸 45 ml で Mg^{2+} を通過させた。これを濃縮してから、6N HCl で満した陰イオン交換カラム (Dialon SA#1, 100~200 メッシュ, 14φ×120 mm) に加え、6N HCl 20 ml で Mg^{2+} を通過させた後、蒸発乾固した。約 10 ml の水を加えて溶解し、陽イオン交換カラム (H 型, Dialon SK#1, 100~200 メッシュ, 30φ×250 mm) に加えた。約 200 ml の水を流した後、0.5N HCl 1300 ml で ^{24}Mg (n, p) ^{24}Na 反応によって生じた ^{24}Na を除去し、1N HCl 570 ml で Mg^{2+} を溶離した。これに 10% リン酸水素ニアンモニウム溶液 200 ml と濃アンモニア水を加えて MgNH_4PO_4 を沈殿させた後口過し、6N HCl で溶解してメスシリンダーにとり、体積を 40 ml として Ge(Li) 検出器で γ 線スペクトルを測定した。

このジオメトリーにおける γ 線計数効率率は既知量の ^{60}Co を含む Co-Al 合金を塩

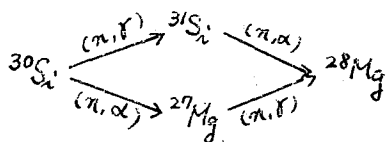
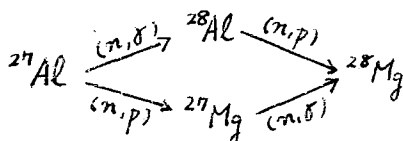
酸で溶解して40 ml としたものを測定して校正した。この際1173 keV, 1332 keV の両γ線の同時計数の補正(4%)を行ない、計数効率のγ線エネルギー依存性は点状線源のそれを用いた。

3. 結果 40 keV 間の計数によって、 ^{28}Mg の放出する401 keV, 941 keV, 1341 keV のγ線とその娘核 ^{28}Al の放出する1777 keV のγ線を検出した。また、1777 keV のγ線の半減期は21時間であることが確かめられた。

Co-Al合金中に生成した ^{60}Co の量から、半減期5.275年、 ^{59}Co の熱中性子吸収断面積36 barnを用いて熱中性子束 $5.4 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ を得た。

$^{26}\text{Mg}(n,\gamma)^{27}\text{Mg}$ 反応の断面積0.027 barn, ^{27}Mg の半減期9.46 m, ^{28}Mg の半減期21.2 hr, 熱中性子束, ピロリン酸マグネシウム重量法によって求めた化学収率を使い, $^{27}\text{Mg}(n,\gamma)^{28}\text{Mg}$ 反応の断面積として $0.14 \pm 0.02 \text{ barn}$ が得られた。また、同様な実験により熱中性子束 $4.1 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$, 断面積 $0.17 \pm 0.04 \text{ barn}$ を得た。

^{28}Mg を生ずる妨害反応としては不純物のAl及び石英アンプルのSiによる次の反応が考えられる。



検出された ^{28}Mg の量を説明するには、Al不純物の場合、不純物含量が数パーセントでなければならず、Siの場合(n,α)反応の断面積がこの付近の核の数ミリバールであることを考慮すると、これらの反応は無視できると考えられる。しかし、Li不純物が存在する場合、1 ppm程度でもLi(n,α)t, $^{26}\text{Mg}(t,p)^{28}\text{Mg}$ 反応による妨害が起きると考えられるので、この点の検討を行なう。

1) L. P. Roy and L. Yaffe, Can. J. Chem. 35, 196 (1957)

京大原研 西 朋太 藤原一郎 今西信嗣 森山裕丈

1) 235Uの熱中性子核分裂での核荷電分布はすでに多くの人々によって測定されているが、質量数130~136では中性子及び陽子の二重の魔法の影響とも考えられる不規則性がZp及び分布の中に認められる。しかしこの附近のデータは相互の一致があまりよくないために、この不規則性が中性子放出に対する魔法数の影響であるのか、或は他の効果であるのか明確でない。この質量数領域の特に131、132、133の連鎖については出来るだけ詳しい荷電分布がわかるように多くの核種での独立収率を求めた。また233Uの核分裂での荷電分布の測定値は多くないので、235Uと同じ核種について独立収率を求め両者の核荷電分布を比較することにした。

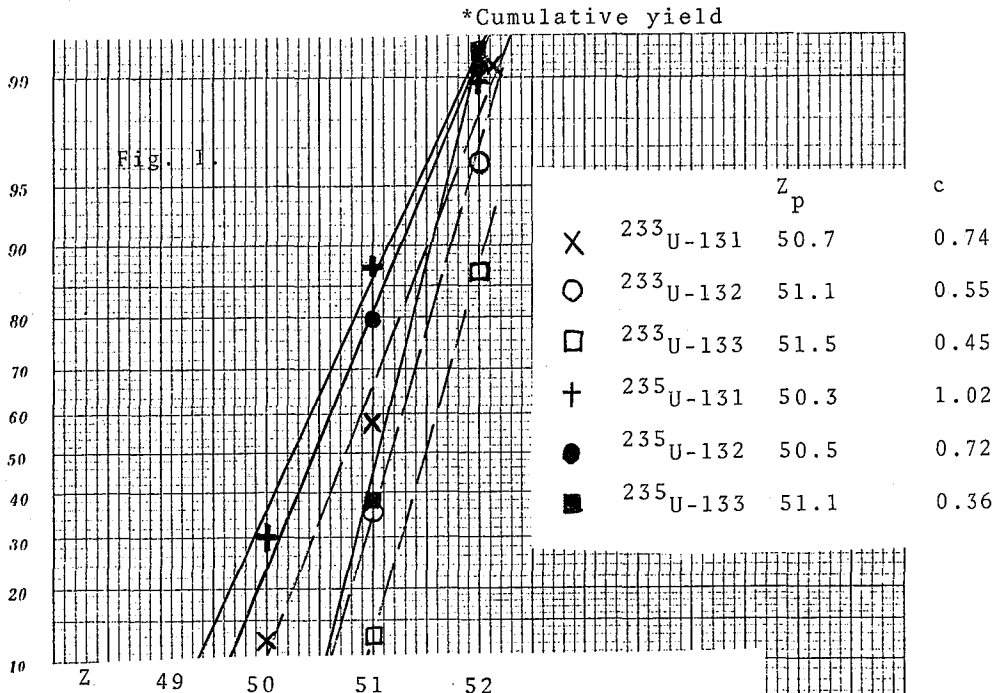
2) 235U或いは233Uの0.1mgをKURの気送管で30秒照射し、Sn、Sb、Te、Iの中親子関係の2元素の1組とSrの担体を加え、上記元素の一つを迅速化学分離してGe(Li)検出器でγ線を測定し目的とする核種の生成量を求め、親子関係による歪み込みを実測値を用いて補正し、 ^{87}Sr の収率に基準化して核分裂の独立収率とした。その結果をTable Iに示す。131、132、133の連鎖では235U、233Uについてそれぞれ3個以上の独立収率が測定されており、これによって充分詳しい検討が出来ると考えられる。次にこれらの結果を正規確率紙にプロットした結果とそれによって求めたZとCをFig. Iに示す。Strom²⁾等によって求めらした235Uでの結果と比較するとZが0.4程度小さくなっている以外は良く一致している。131連鎖では荷電分布の中が著しく大きくなり、133連鎖では逆に中が小さくなる傾向が明瞭らかに認められた。そしてこの傾向は程度は異なり、233Uの場合にも同じように認められる。これらの荷電分布の不規則性が中性子放出に対する魔法数の影響で定量的に説明出来るかどうかについては今後検討を進める。

Reference

- 1) A.C.Wahl et al., 2nd IAEA Symposium on Physics and Chemistry of Fission, 813 (1969).
- 2) P.O.Strom et al., Phys. Rev., 144 984 (1966).

Table I.
Cumulative or independent % yields of Sn, Sb, Te and I nuclides.

233-U								
	128	129	130	131	132	133	134	135
Sn	0.62* ±0.04	1.11* ±0.08	0.86* ±0.08	0.51* ±0.15				
Sb	0.104 ±0.008	0.26 ±0.02	0.88 ±0.06	1.42 ±0.10	1.63* ±0.15	0.84* ±0.05		
Te				1.35 ±0.08	2.76 ±0.2	3.77 ±0.3	3.77*	
I				0.027 ±0.01	0.16 ±0.03	0.68 ±0.05	1.67 ±0.10	5.352* ±0.004
Chain	0.72	1.37	1.74	3.31	4.55	5.29+Xe	5.44+Xe	
235-U								
	128	129	130	131	132	133	134	135
Sn	0.25* ±0.01	0.92* ±0.07	1.41* ±0.11	0.80* ±0.07				
Sb			0.52 ±0.08	1.54 ±0.1	3.14* ±0.25	2.29* ±0.12		
Te				0.28 ±0.02	0.73 ±0.05	3.76 ±0.2	6.98*	
I				0.03 ±0.02	0.025 ±0.01	0.04 ±0.03	0.64 ±0.06	6.30* ±0.4
Chain	0.25	0.92	1.93	2.65	3.90	6.09	7.62+Xe	



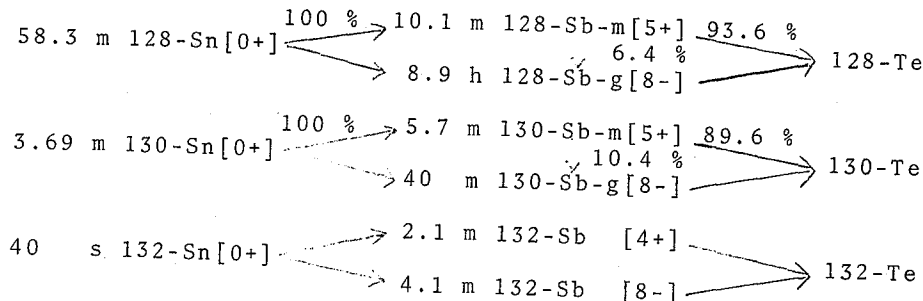
^{233}U および ^{235}U 熱中性子誘起核分裂における

^{128}Sb , ^{130}Sb 核異性体生成断面積

京大原研 西 朋太 藤原 一 郎 〇今西信嗣

目的：原子核分裂に伴ない生じた核分裂片の初期状態のスピンの値を推定することは核分裂シンチオン時の状態を知るための一つの手がかりになると考えられる。このスピン値は核分裂で生ずる核異性体の生成断面積から求めることができる。 ^{233}U および ^{235}U 熱中性子誘起核分裂において 2~3 の Sb 核種について生成断面積を求めたので報告する。

方法：質量数 128, 130 および 132 の鎖列は図に示すとおりで、 $\text{Sb}^{m, g}$ は直接核分裂で生ずるもののほか先行核の β 崩壊で流れこむものがある。この流れこみを少なくするため、短時間照射、迅速化学分離を行ない、かつ Sn/Sb の化学分離までの Sn から Sb に流れこむ量を計算で補正して、Sb 生成断面積を得る。この流れこみ量の補正のために Sn の生成断面積も求めおく必要がある。



実験： $^{233}\text{U}_3\text{O}_8$ (^{233}U にして $100 \mu\text{g}$) あるいは $^{235}\text{U}_3\text{O}_8$ (^{235}U にして $100 \mu\text{g}$) を京大原子炉 Pn2 で 30 秒間照射した。照射後ただちに Sn, Sb および Sr 担体を加えた。Sn の分離は MNH_4SCN 溶液から $\gamma 70^\circ\text{C}$ の Et_2O で Sn を抽出し、 SnS_2 の形で測定試料とした。Sb の分離は、 Zn 粉末で Sb を SbH_3 とし揮発させ、 $6\text{M} \cdot \text{HCl} - \text{Br}_2$ 溶液に捕集し、 SbS_3 形で回収して測定試料とした。Sn/Sb の分離時間は実験により異なるが約 2 分程度である。分離後ただちに 38 cc Ge(Li) 固体検出器 - 4 K PHA で γ 線スペクトルを観測し、化学収率、検出効率および γ 線分岐比を補正して、所定の核種の崩壊率を求めた。核分裂全数を知るため、 ^{92}Sr の収量測定を行なった。それ以外の核種の崩壊観測に用いた γ 線を Table 1 に示す。

Table 1. γ rays used in the analysis of data.

Nuclide	Nuclide γ energy [keV]	(intensity/decay)
128-Sn	128-Sn 478	(0.66)
128-Sb	128-Sb-m 742	(0.94), 128-Sb-g 742 (1.0)
130-Sn	130-Sb-m,g	840
130-Sb	130-Sb-m 840	(0.9), 130-Sb-g 840 (1.0)
132-Sb	132-Sb-m 976	(1.0), 132-Sb-g 976 (1.0)

結果: ^{233}U 熱中性子誘起核分裂における ^{128}Sn , ^{130}Sn と $^{132}\text{Sb}^m$ の累積収率および $^{128}\text{Sb}^m$ と $^{130}\text{Sb}^m$ の独立収率を Table 2 に示す。またこの表には、 ^{235}U を用いた場合の ^{130}Sn と $^{132}\text{Sb}^m$ の累積収率および $^{130}\text{Sb}^m$ の独立収率を示してある。核異性体生成断面積は以上の収率から求めることができた。

Table 2. Indep. or cum.(*) yields [%] and isomeric c.s. ratios.

	92-Sr	Sn	Sb-m	Sb-g	Sb	high/low
233-U-128 chain	6.6	0.62*	0.035	0.069	0.104	1.97
	(chain)	± 0.04	± 0.004	± 0.004		
233-U-130 chain		0.86*	0.46	0.42	0.88	0.91
		± 0.08	± 0.03	± 0.03		
233-U-132 chain			1.201*	0.43*	1.63	0.36
			± 0.1	± 0.04		
235-U-130 chain	6.0	1.41*	0.26	0.26	0.52	1.0
		± 0.11	± 0.04	± 0.04		
235-U-132 chain			2.17*	0.97*	3.14	0.45
			± 0.2	± 0.1		

検討: 核異性体生成断面積は ^{233}U (5/2+) と ^{235}U (7/2-) の場合でほとんど一致がみられず、Sb の質量数によって大きく変化する。つまり核異性体生成断面積を高スピン状態生成率/低スピン状態生成率で表わした場合、Sb の中性子数が魔法数 $N=82$ から離れるにつれて急激に増加する傾向がみられる。このことは、中性子数が魔法数から離れるほど、核分裂で高スピン状態が生成されやすいことを意味していると考えられる。目下、核分裂片初期状態のスピン分布の決定を行っている。

原 研 ○馬場 宏、馬場澄子

序論 核分裂の理論計算としては、核分裂性核異性体の存在を説明することに成功した Strutinski の方法が現在主流となっている。しかし、核分裂事象は極めて複雑であり、この方法を以ってしても重い核の核分裂にみられる非対称性をはじめの種々の観測結果を説明するには至っていない。特に、Strutinski 法の弱点は、シェル効果が消滅すると考えられる高エネルギー励起の場合に依然として観測される非対称質量分布その他の異常性を説明出来ないことである。

モデル 本報告では、Strutinski の方法を含めて、殆どどの理論計算の中で最も重要な量である液滴ポテンシャルの改良を試みた。すなわち、Myer¹⁾によって質量公式の中に導入された曲率効果 (Curvature effect) と圧縮性効果 (Compressibility effect) を Saddle point のポテンシャルの計算の中に取り入れて計算を行った。その際、Saddle point configuration については、とりあえず、2つの回転楕円体から成る系で近似し、この2つの楕円体の中心間の距離の接触楕円体間々それに対する比を任意パラメーターとして残した。なお、既に指摘されたように²⁾、重い核の核分裂の様相は高エネルギーと低エネルギーで明らかに異なる。ここでは、系統性の良く知られている高エネルギー核分裂を対象とすることとし、したがって、Strutinski 流のシェル補正の項は無視した。しかし、Myer-Swiiatecki のシェル補正は考慮してある。この近似での独立変数は、質量フラクション q 、核電荷フラクション z 、および2つの楕円体の変形パラメーターの計4々である。前述の任意パラメーター α は neck の部分を無視したために必要となるパラメーターである。

結果 (1) フラグメントの変形度および質量分布：圧縮性効果は変形度の決定には関与しない。Myer-Swiiatecki 型のシェル補正も変形度に影響を与える程には強力でない。曲率効果を導入しない場合には、フラグメントの変形度が双方共に大きい程エネルギー的に有利になる。これに対し、曲率効果を導入した場合には、中間の変形度のところでエネルギー最小となるばかりでなく、エネルギー面の極小点を与える族がいくつか現われるという特徴が見られる。特に、非対称変形と対称変形とのエネルギー関係に着目すれば、パラメーター α が1.0から1.5まで変化する間に、前者は相対的に高くなり、後者は低くなることを見出された。後述する運動エネルギー等を考慮して大体 Saddle point configuration に近いと思われる $Z = 1.2$ 附近では、 ^{201}Tl では対称変形が、 ^{258}Fm では非対称変形が有

利であり、中間の ^{236}U や ^{239}Np 等では両者が大体同程度であるという結果は興味がある。質量フラクションの関数として見た時のポテンシャル面は、 ^{268}Fm を除いて極めて平らであり、これは質量分布曲線が広いピークを有することに対応する。一方、 ^{268}Fm については、質量フラクション $q=0.52$ 附近をピークと有する比較的中の狭い質量分布曲線を与えるが、これも実測結果と矛盾しない。

(2)核電荷分布：現在のモデルでは、曲率効果、圧縮性効果ともに核電荷分布の決定に直接関与しない。たゞ、曲率効果はフラグメントの変形度の決定に大きく寄与するという意味で、間接的に核電荷分布の決定に関係する。核電荷分布の様分布(UCD)からのズレは、フラグメントの変形度が大きくなる程大きくなる。高エネルギー非対称核分裂について見出された核電荷分布の系統性²⁾は、核電荷の分布が、分裂時の質量分布によって規定されると考えたのでは説明出来ないことが結論された。逆に、Saddle pointで規定されると考えるならば、少なくともその主要部分は再現されることを見出された。すなわち、 ^{236}U 、 ^{239}Np 等の分裂核に対しては、最適質量フラクションが大体0.59であることを考慮して、二次の項まで含めて核電荷分布の計算を行うと、文献2のFig. 12をよく説明する関係が得られる。この際、最適質量分布と最適変形度が類似している核分裂系では核電荷分布は殆んど同じになることも見出された。逆に ^{268}Fm のような系では、核電荷分布が全然異った様相を呈することが期待される。同様にして、対称核分裂に対しても異った核電荷分布を得る。Blannの報告にある($\text{Au} + ^{12}\text{C}$)系の核分裂のデータ³⁾を解析したところ、UCDよりは、このモデルによって求めた核電荷分布の方が、はるかに良好の結果を与えることを見出された。

(3)運動エネルギー：運動エネルギーは分裂点におけるフラグメント間のクーロン反発エネルギー+運動エネルギーで与えられるが、後者は高々10 MeV程度であると計算されている。したがって、Saddle pointにおける潜在フラグメント間のクーロン反発エネルギーを以ってフラグメント運動エネルギーとみなしてもそれ程の誤差は生じない。しかし、クーロン反発エネルギーは、パラメーター α とフラグメントの変形度に強く依存するので、現在のモデルでは独立に定めることは出来ない。逆に実測の運動エネルギーと比較して $\alpha \approx 1.2$ という結論を得た。

(4)内部励起エネルギー：フラグメントの変形エネルギーは内部励起エネルギーに転換され、最終的には中性子および γ 線放出の形で脱励起される。フラグメント当りに放出される平均中性子数は実測値と比較して、モデルの近似度から見てよく一致しているといえる。

1) W.D. Myer, UCRL-18214, Ph.D. Thesis (1968)

2) H. Umezawa, S. Baba and H. Baba, Nucl. Phys. A160, 1 (1960);
H. Baba and S. Baba, ibid. A175, 199 (1971)

3) M. Blann, Phys. Rev. 123, 1356 (1961)

阪大理 久米三四郎

1. はじめに さる5月、日本原子力産業会議は、同会議が組織した「核分裂生成物総合対策懇談会」での1年半の検討結果を受けて、「放射能クローズド・システム構想」を、原子力発電所からの放射性廃棄物の処理の解決策として発表した。その構想の中で、最もユニークなものとしていられるのが、核反応による消滅処理である。原子力発電所開発計画の是非をきめる問題の一つである、放射性廃棄物の処理が解決できるという発表であるだけに、それはすでに一定の社会的効果を生み出している。しかし、私がこれまで調べた限りでは、発表された消滅処理法は「野心的」であるだけに、その発想の出発点、原理および実現性について、多くの疑念を含んでいる。現在までのところ、同会議の報告書を読んでいないが、同構想についての解説論文¹⁾が公表されているので、主としてそれを対象にして問題点のいくつかを指摘し、原子力発電所問題に関心を持つ放射化学者の討論に供したい。

2. 期待されているような熱中性子束が得られるだろうか? 発表された計画(以下計画と略)は、お手本になったSteinbergらの発想²⁾と同じように、カナダのIntense Neutron-Generator (ING)計画をモデルにしている。ING計画では、1 GeV, 65 mAの陽子ビームで、鉛-ビスマス共融合金ターゲットを照射し、破砕反応および二次反応によって、 10^{19} sec^{-1} の率で中性子を発生させ、 D_2O 中での熱化によって、最高 $10^{16} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ の熱中性子束を得ることを狙っている。これではまだ不足であるとして、計画では、ターゲットを核分裂反応の断面積の大きいウランに変えるとともに、入射エネルギーを10 GeVにあげることによって、結局、 $10^{17} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ 以上の熱中性子束を得て、実用的な消滅装置の実現を期している。しかし、ウランターゲットは果して有効なのであるか。INGのために行われた、核反応のモンテカルロ計算の文献³⁾にもすでに指摘されているように、ウランに変えることによって、ターゲットでの中性子発生量は確かに約2倍となるが、ウランの熱中性子吸収断面積が大きいため、かえってビスマスの場合より熱中性子束は減少するであろう。陽子の入射エネルギーに比例して発生中性子も増加するであろうという、全く確認されていない仮定をたとえ認めても、熱中性子束が $10^{17} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ を越えることは容易であるという期待はあてはずれではないだろうか。

3. ターゲットでの発生熱量の推定は誤っている。 解説¹⁾で見ると、計

画は、ターゲットでの発熱量について Steinberg の結果をそのまま採用し、溶融ウランを約 $6 \text{ t} \cdot \text{sec}^{-1}$ で循環させて約 500°C の温度上昇がある程度と推定している。しかし、彼らの計算にはミスがあり、Milton の³⁾計算結果を用いると、IN G でターゲットをウランにした場合、その発熱量は約 190 MW に達する。入射エネルギーの増加に比例して発熱量も増大するとすると、計画では実に 2000 MW 近くになる。これは、計画などが想定している、溶融ウランの循環可能速度 $13 \text{ t} \cdot \text{sec}^{-1}$ をはるかに越えた値である。

4. ターゲット中での生成放射能 計画では、ターゲット中での放射能生成反応として、破砕反応および核分裂反応を主として想定しているようである。しかし、ウランターゲットでは、前述の ^{238}U の中性子吸収反応によって生成する ^{239}Pu が一番問題である。ターゲット中で生成される ^{239}Pu の量は、おそらく、数 $100 \text{ kg} \cdot \text{y}^{-1}$ の程度であり、循環中のウランからそれを分離することが技術的にいしは保健衛生的に果して可能なのであろうか。たとえ核分裂生成物の消滅が可能になっても、一方で、さらに厄介な荷物を背負いこむことにならないのであろうか。

5. 超高速中性子の漏洩 入射エネルギーを 10 GeV に高めることによって、当然、発生中性子のエネルギースペクトルも高エネルギー側に広がる。その推定は、モンテカルロ計算さえ無いために困難であるが、 1 GeV における計算結果から類推して、計画の場合には、ターゲット表面での 100 MeV 以上の超高速中性子束は、 $10^{16} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ 以上と予測できる。このような高エネルギー、高強度の中性子束を、有効に遮へいする方法が考えられているのだろうか。

6. 実現性 実現性については、さすがに計画もそれほど樂觀的でないようである。計画の中心となる加速器についても、周到な準備をつみ重ねた IN G 計画すら、1966年に提案されたものの、カナダ政府によって1968年に却下され、いまだに日の目を見ていないのである。IN G 規模の加速器の経験もなしに、一足とびに計画のような加速器が実現できると信ずる人は、よほどの楽道家である。解説にも述べられているように、加速器以外にも多くの問題が待ち構えている。海のものとも、山のものとも分らない目標にこだわることは、科学にとっては必ずしも無意味なことではない。しかし、問題なのは、その目標の成否と無関係に、原子力発電所計画の進行によって、一方で大量の放射性毒物が生産され蓄積されて行くということである。そんなことを心配するのは取り越し苦労であると、果してわれわれは国民に保証できるのであろうか。

1) 天野恕, 化学と工業 26(1973)56

2) M. V. Gregory & M. Steinberg, BN L-11915(1967)

3) J. C. D. Milton & J. S. Fraser, AECL-2259(1965)

電子線放射体の迅速測定に用いる多重チャンネルβ線スペクトロメータの試作

(阪大理) 福島昭三, 三藤安佐枝
(阪大医技短大) 森川 薫

序論 β線や転換電子の測定には、従来Si-Si SSD (I), 有機シンチレータ (II), 磁場偏向β線スペクトロメータ (III) などを用いられる。このうち (III) は、分解能、スペクトル解析の容易さ、適用エネルギー範囲、 e^+ と e^- の分離などの点では (I), (II) に比し圧倒的にまさるが、その欠点は迅速測定ができないことであり、短寿命核の研究には不向きとされて来た。(III) の従来の型はいわゆるシングルチャンネル方式で偏向磁場の強さを変化させて一果一果測定するので時間が長くかかる。またこの方式では、短寿命核を対象とするときしばしば必要となる測定途中の試料減衰の補正が甚だわずらわしく、さらに一回の測定で十分な計数値が得られないとき、計数値を積算するため、何回も試料線源を交換したりすると、各試料の強度や組成が異なる場合にはその補正がほとんど不可能になる。

われわれは、昔からβ線スペクトログラフに用いられて来た平面軌道180°収斂方式を採用し、電子線の検出部分を微小な多数のGM管の列とし、広いエネルギー領域にわたってマルチチャンネル的に同時に測定できる簡易なβ線スペクトロメータを試作した。この装置は短寿命核からの電子線の測定に非常に有力な手段となることが明らかとなった。

装置の主要構造 偏向電磁石は、磁極面の大きさ150mm × 250mm, ギャップ50mm, 均一磁場として、最大磁束密度約4k Gauss, 電子の最大軌道半径106mm, 0.1~10MeVの電子線が測定可能である。

GM管は微小化に努力し、窓の巾8mm × 高さ25mm のガスフローGM管を、焦点面に沿って $r = 40 \sim 100$ mm の間に11mmおきに12本設置した。その前面にはくし状の出口スリット板を置いた。このGM管の

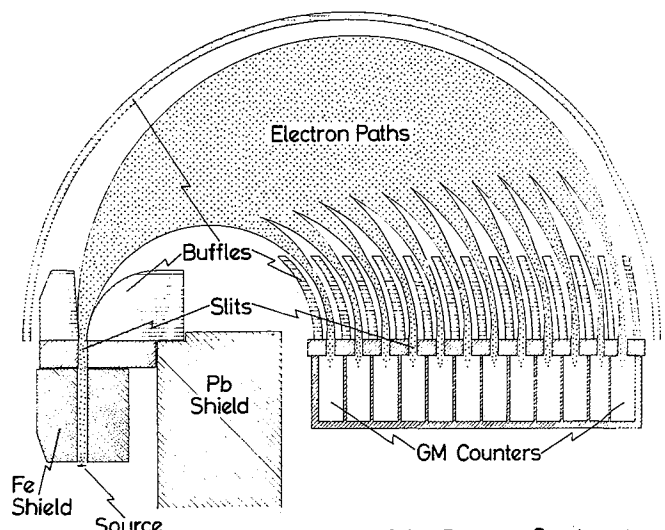


Fig. 1 Layout of the Beta-ray Spectrometer

列は外部からの操作で焦点面にそって位置を約15mmスライドさせることができる。

散乱電子を減らすため、各チャンネルの電子軌道にそって隔壁状のプラスチック製バッフル板を設けた。

線源、入口・出口スリット、バッフル、検出器などの配置をFig. 1図に示す。なお、線源を真空箱に持ち込むと排気に時間がかかるので、迅速を要するときは、線源は $0.8\text{mg}/\text{cm}^2$ のマイラー膜の窓の外に置き、真空を破らない。

各GM管からの信号は、整形アンプを通してそれぞれ固有波高値とした後、混合する。最後に波高分析器にかけて、各信号はどの位置のGM管のものかを識別する。複数のGM管が同時に働いて異常波高信号が出たときは、重畳検出回路によりその信号を除く。以上の信号処理の系統をFig. 2図に示す。

校正 軌道半径と磁束密度を測定して、BP値を求めるが、ガウスメーターは別に校正する。各チャンネルを一定磁場内で並列的に働かせて得た各計数値は、異なる検出器を用いたための検出効率の補正、および、異なる軌道を通したための透過効率の補正を行って規格化する。それぞれの補正係数は予備測定により校正しておく。

測定の実例 Fig. 3図に巾2mmのスリットを用いた ^{113}Sn - $^{113\text{m}}\text{In}$ の転換電子スペクトルを示す。このとき $\Delta BP(\text{FWHM})/BP \div 1.3\%$ 、透過度は $S=98\text{mm}$ で 1.3×10^{-4} である。またスリット巾4mmでは $\Delta BP/BP \div 2.8\%$ 、透過度は $S=91\text{mm}$ で 3.3×10^{-4} である。

Fig. 4図はスリット巾4mmで得た ^{144}Ce - ^{144}Pr の β^- 線のFermi-Plotを示す。

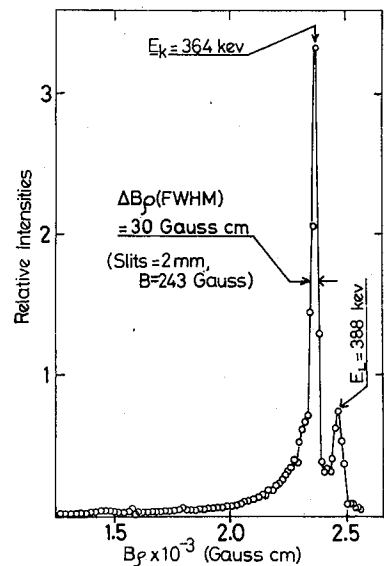
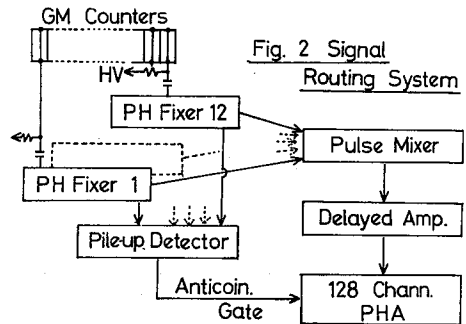


Fig. 3 Spectrum of ^{113}Sn Conversion Lines

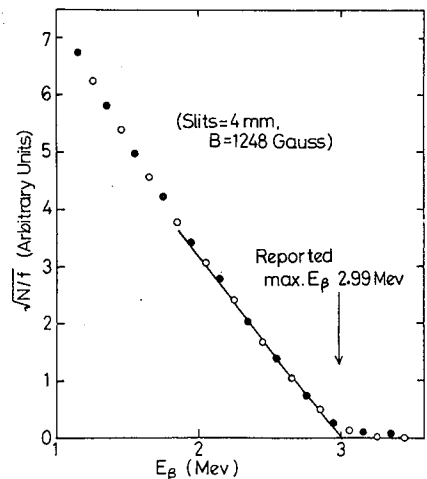


Fig. 4 Fermi Plot of ^{144}Ce (^{144}Pr) Beta-rays

(理研) 〇野崎 正, M. Foitjik, 田口 郁夫

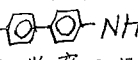
〔目的〕 超高純度金属、半導体中の酸素の定量は、放射化分析のもつとも重要な応用の一例と考えられ、主として荷電粒子照射による $^{16}\text{O}(^3\text{He}, p)^{18}\text{F}$ または $^{16}\text{O}(\alpha, pn)^{18}\text{F}$ 反応を用いておこなわれている。しかし、現在までに分析されたマトリックスの種類は少数に限られている。それは、生じた ^{18}F を化学分離しなければならぬ場合が多いのに、この分離法の研究が不足していたためと思われる。われわれは、種々のマトリックスの溶解法と ^{18}F の化学分離法を検討することにより、種々の高純度物質中の酸素の荷電粒子放射化分析法のマニュアル設定作業を開始した。 (^{18}F : $T_{1/2} = 110 \text{ m}$, β^+ , 10 r)

〔方法〕 ^{18}F の損失の恐れがなく、担体を含む溶液中へマトリックスを溶解させるため、つぎの諸法を調べた。なお、担体は F^- の形で $2 \sim 10 \text{ mmol}$ 加えておいた。(1) アルカリ性溶液への溶解、(2) 密封系における酸溶解 (発生した H_2 等は、接触的に酸化剤に吸収させる)、(3) 試料表面からは気体を発生させないような、いろいろな電気化学的溶解法。得られた溶液中のフッ素の分離には、(1) H_2SiF_6 としての蒸留、(2) 種々な化学形としての沈殿、(3) カラムを用いる放射化学的精製、等について検討した。これ等の研究中には、水を ^3He で照射して製造した ^{18}F やその他の RI をトレーサーとして用いた場合もある。フッ素の担体回収率の測定には、主として種々の滴定法を比較検討した。実際の分析試料の放射化には、理研のサイクロトロンでの ^3He ビーム (15 MeV , $2 \sim 5 \mu\text{A}$) によつて照射した。

〔結果〕 マトリックスの溶解 マトリックスの溶解には、つぎの諸法が適していることが知れた。(a) Al, Si は NaOH の $20 \sim 50\%$ 溶液に溶解し、Ge は KOH-KNO_3 の熱濃溶液に溶解し、Se, Te は KOH の熱濃溶液に H_2O_2 を滴下しながら溶解する。(b) Mg, Fe, Zn, Sn は、少量の酸を含む CuSO_4 溶液に電気化学的置換により溶解し、析出した銅物を浄別する。(c) ステンレス鋼, U, Ti は、 $6 \sim 11\text{N}$ の塩酸中で正の電圧を加え、負の極だけから気体を発生させながら溶解し、また、Cu, Ag は、おのおの CuSO_4 , AgNO_3 溶液中で電解溶解する。残りのマトリックスは上のいづれかの方法により溶解できると考えられるが、Ta 等の少数の試料には適当な方法が見出されていない。なお、密封系中の酸溶解は、ほとんど、うまくいかなかった。

^{18}F の分離 得られた溶液中の ^{18}F の分離には、 H_2SiF_6 としての蒸留がもつ

とも有効であり、つねに用いるべき方法と考えられる。しかし、この蒸留のための液は、 H_2SO_4 または $HClO_4$ を加えて高沸液 ($135 \sim 150^\circ C$) にしておかねばならない。 Al , Mg , Zn 等を溶解したときは、液に $HClO_4$ と石英粉を加えてフッ素を蒸留することもできるが、いつたんフッ素を沈殿分離してから蒸留にかけた方が、放射化学的に純粋になり好都合なことが多い。また、ゲル状のケイ酸やゲルマニウム酸が存在すると、フッ素の留出速度がはなはだ小くなる。 Si や Ge を溶解したアルカリ性溶液は、フェノールフタレインを加え、硝酸により pH 9 程度まで中和し、つぎに液が無色となるまで $Zn(NO_3)_2$ を加えて、生じた沈殿を分別することによりマトリックス元素を除去する操作がよかつた。母液中のフッ素は、 $PbFCl$ の沈殿として容易に集められる。その他のマトリックスにたいしては、溶液に $NaOAc$ を加えて pH 約 3 とし、 LaF_3 として沈殿分離したことが多い。

$PbFCl$ や LaF_3 を $HClO_4$ に加え、水蒸気を通じながらフッ素を蒸留すると、一般に 10 分間で 80% 以上留出させられた。現在まで、放射化分析において、留出した ^{18}F は $PbFCl$ の化学形として放射能を測定後担体回収率を求めていたことが多い。しかし、 ^{18}F トレーサー実験の結果、急速に沈殿させると $PbCl_2$ を含む $PbFCl$ が析出し、そのため、分析最終結果として酸素含量を 10% 余り過少評価していたことが多いことがわかつた。そこで、留出液を *Benzidine* のアセトン溶液 (3%, 50~100 ml) に導いて、 H_2N -- $NH_2 \cdot H_2SiF_6$ の形の沈殿とする方法を考案して、よい結果を得た。担体回収率の測定には、上の沈殿を水を含む KOH のエタノール溶液に溶解し、酢酸で中和して、フッ素電極を用いる $La(NO_3)_3$ 標準溶液による滴定がもつとも信頼できることがわかつた。

^{18}F の高度精製 上記の方法により、たいてりの場合、 ^{18}F は 50% 以上の回収率で高純度に得られたが、または得られると推測できる。しかし、マトリックス自身から揮発性の RI (As , Se 等) が生ずるときは、さらに精製を考慮しておくべきである。このためには、蒸留で得た H_2SiF_6 を一度アルカリ性とし、酢酸で中和してから、 Ag_2CO_3 のカラムを通じ、 $LiCl$ のエタノール溶液に加えて、 LiF の沈殿を得るのが大変有効なことが知れた。

分析の一例 Ge の 3He 照射ではヒ素の RI が生ずるが、 Ge を分析したときは Ag_2CO_3 カラムを用いなくても、 ^{18}F は満足な純度と回収率で、*Benzidine Fluorosilicate* の沈殿として得られた。これは、マトリックスを亜鉛の塩として沈殿除去するとき、ヒ素等も同時に除かれたためと思われる。引き上げ法で作製した半導体ゲルマニウムの酸素含量は 50~150 ppb であつたが、この値は同じ方法で作製した半導体ケイ素の 1/10 以下である。酸素の定量下限は、1~10 ppb の場合が多い。

○戸村健児 (立教大・原研), 太田直一 (静立大・理)

骨中のフッ素の分析は病理学的に興味があるのみならず, 化石骨の年代推定の面からも興味ある問題である。従来, 放射化分析でフッ素を定量する場合, 光核反応あるいは荷電粒子による核反応が利用され, 半減期 110 分の ^{18}F を分離, 計数していた。

原子炉中性子でフッ素を定量するには $^{19}\text{F} (n, \gamma) ^{20}\text{F}$ 反応で生成する半減期 11.2 秒の ^{20}F から放出される 1627 KeV γ 線を計数する必要がある。なお, この核反応の断面積は 9.8 mb である。

[実験]

1. 照射は立教大学・原子力研の TRIGA-II 型原子炉の回転試料棚 No. 1 (熱中性子束: $5 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{秒}$) で 15 秒行ない, 照射後 25 秒より 40 秒まで Ge(Li) 検出器 (有効体積: 50 cc, 分解能: 1332 KeV で 2.1 KeV) と Geos 製 4000 チャンネル波高分析器でガンマ線スペクトルを測定した。ピークを中心に約 7 チャンネル (1 KeV/チャンネル) の計数の和を求め, その前後 5 チャンネルから求めたバックグラウンドを差し引いた後, Live Time を基に計数率を計算した。

2. CaCO_3 粉末に CaF_2 を添加し, 0.01, 0.1, 1% CaF_2 を含む標準試料を作成し, 約 0.5 g を照射し, 検量線を求めた。

3. 0.11 g の Na_2CO_3 粉末をカドミウムで包んだ場合と裸の場合につき検討し, $^{24}\text{Na} (n, \alpha) ^{20}\text{F}$ 反応の妨害を検討した。

[結果]

1. 0.01 ~ 1% CaF_2 in CaCO_3 の範囲で検量線は直線性を有する。

2. 0.2 g の試料を使えば, 50 ppm 程度のフッ素も非破壊的に定量できる。

3. ポリエチレンの袋に試料を入れ照射し, そのまま測定してもポリエチレンからのブランクは全く無視できる。

4. Na_2CO_3 をカドミウムで包んだ場合も裸の場合もほとんど等しい ^{20}F の放射能が観測された。1 g の Na から (n, α) 反応で生成する ^{20}F の放射能は同じ条件で 7.1 mg の F から生成する ^{20}F の放射能に等しい。

5. 上記の妨害を実際の人骨試料で補正するには, ^{24}Na の 1731.6 KeV のピークにつき同一スペクトル上から ^{24}Na の計数率を求める。この結果と, 前項 4 の Na_2CO_3 試料で得られた ^{20}F の 1627 KeV と ^{24}Na の 1731.6 KeV のピー

ク面積比を用いれば、1回の測定でナトリウムの妨害を補正できる。

6. 人骨試料ではフッ素と同時に、カルシウム、ナトリウム、塩素、アルミニウム、バナジウム、ヨウ素、マンガンなどが定量できる。

7. 同一骨試料につき6回繰返し分析した結果、標準偏差は5.8%であった。

8. 頸椎後縦靱帯骨化症患者の骨を分析した結果は次表の通りである。

試料番号	重量 (g)	全計数 (bgd)	Live Time (秒)	比放射能 (Naの寄与) (カウント/15秒/g)	含有量 (ppm F)
1	0.2074	84 (21)	13.88	328 (80)	510
2	0.4283	161 (64)	12.78	266 (89)	390
3	0.2321	172 (30)	14.18	647 (97)	1130
4	0.1856	172 (17)	14.75	850 (23)	1590
5	0.6404	450 (56)	13.55	681 (11)	1330
6	0.3635	195 (21)	14.42	498 (6)	1030
7	0.2980	51 (8)	14.70	147 (7)	620
8	0.0743	17 (5)	14.85	163 (13)	350
9	0.3361	71 (18)	13.99	169 (22)	370
10	0.1666	38 (9)	15.14	173 (43)	320 510
11	0.1940	90 (18)	19.83	281 (43)	510 670
12	0.2500	95 (15)	14.68	327 (3)	670 (51)
std.1	0.4640	46 (18)	14.14	64 (48)	(51.3)
std.2	0.3346	142 (32)	16.79	294 (48)	(51.33)
std.3	0.3334	904 (46)	13.50	2859 (48)	(5133) +20
CaCO ₃	0.5266	55 (30)	13.39	53 (5)	1203 080
Na ₂ CO ₃ (裸)	0.11	225 (70)	12.72	1661	3080
Na ₂ CO ₃ (Cd)	0.11	188 (4)	15.14	1657	3080

[考察]

本法で1試料の分析に要する時間は約1分に過ぎず、多数試料を分析しなければならぬような問題の場合に特に有利である。鉱物や岩石等の地球化学試料に適用できる可能性もある。病変部の骨には他の正常部分に比し、約2倍のフッ素が含まれるような結果も得られたが、結論を出すには今後さらに分析例を増やす必要があるように思われる。

高純度材料中の超微量成分の放射化分析(第1報) ガラスおよびガラス原料のγ線スペクトロメトリー

電電公社茨城通研 工藤 測 重松俊男 ○小林健二 磯 宏

目的; 近年、材料の高純化と相まって、これら材料中に含まれる超微量成分の定量が強く望まれている。例えば、通信材料として注目されている光学ガラス繊維では超微量の遷移金属元素の存在によって、その特性が大きく影響される。

放射化分析法は、このような超微量成分の定量法として優れており、とりわけγ線スペクトロメトリーを用いる非破壊放射化分析法では、定量操作が簡単で多くの元素を同時に定量できる長所を有している。本報では、ガラスおよびガラス原料中の遷移金属元素(Mn, Cu, Co, Cr, Fe)のγ線スペクトロメトリーに關し、検討した結果を述べる。

実験方法および装置

照射; 短半減期核種(^{56}Mn , $T_{1/2}=2.58\text{h}$ ^{64}Cu , $T_{1/2}=12.8\text{h}$)を定量する場合には、JRR-2($f=4\sim7\times 10^{13}\text{cm}^{-2}\text{sec}$)で20min照射し、長半減期核種(^{60}Co , $T_{1/2}=5.3\text{y}$ ^{51}Cr , $T_{1/2}=45.1\text{d}$ ^{59}Fe , $T_{1/2}=27.8\text{d}$)については290hr照射した。また、定量元素の既知量を標準試料として分析試料と同一のポリエチレン、または石英管に封入した。

装置; γ線スペクトロメトリーは、Ge(Li)半導体検出器-4096ch波高分析装置、3"×3"NaI(Tl)検出器-800ch波高分析装置で行ない、試料から検出された各核種の光電ピーク面積と標準試料のそれとの比較により各元素の濃度を決定した。

ガラスおよびガラス原料; ガラスとしては、超高純度溶融石英およびNBSの標準ガラス(微量成分濃度0.02, 1, 50ppm)を使用した。また、ガラス原料としては、 SiO_2 , CaCO_3 , Na_2CO_3 , MgO , MgSO_4 を使用した。

試料の溶解および定量核種のγ線エネルギー;

中性子放射化した試料は、希酸で溶解し、ポリビニルに入れγ線スペクトルを測定した。 SiO_2 およびNBSガラスは、硫-フ酸によって溶解し、一定量採取し、γ線スペクトルを測定した。ガラスおよびガラス原料中の遷移金属元素の定量は、表-1に示した核種、γ線エネルギーにもとづき行なった。

表1 定量核種のγ線エネルギー

元素	Mn	Cu	Co	Cr	Fe
核種	^{56}Mn	^{64}Cu	^{60}Co	^{51}Cr	^{59}Fe
半減期	2.58h	12.8h	5.3y	27.8d	45.1d
γエネルギー (keV)	847	511	1173 1332	320	1099

結果および考察

表-2には、ガラスおよびガラス原料中のMn, Cu, Co, Cr, Feの定量結果を、図-1には、ガラスおよびガラス原料のγ線スペクトルの1例を示す。表-2から、溶融石英はガラス原料にくらべて不純物の濃度が極めて低いことがわかる。このこと

は、熔融石英とガラスの光の吸収損失の差を表わしているように思われる。

また、Mn, Cu, Co, Cr, Fe 以外の元素として、つぎの元素が検出された。すなわち、熔融石英では、Ag (^{110m}Ag , $T_{1/2}=270\text{s}$)、Ir (^{194}Ir , $T_{1/2}=19\text{h}$, ^{192}Ir , $T_{1/2}=74.4\text{d}$) が観察された。ガラス原料の場合、MgO では、Ag, Sc (^{46}Sc , $T_{1/2}=83.9\text{d}$), Br (^{82}Br , $T_{1/2}=1.5\text{d}$), Mo (^{99}Mo , $T_{1/2}=66\text{h}$), Sb (^{123}Sb , $T_{1/2}=2.7\text{d}$), Ta (^{182}Ta , $T_{1/2}=115\text{d}$) が、MgSO₄ では、Au (^{198}Au , $T_{1/2}=2.7\text{d}$) が検出された。

MgO 中の Co の定量において、NaI(Tl) 800chPHA を使用した場合には、 ^{60}Co の 1173 と 1332 keV の γ 線が単一ピークとして現われたのに対し、Ge(Li)-4096chPHA では 1173~1332 keV の領域で ^{60}Co 以外に ^{182}Ta ($E_{\gamma}=1189, 1258\text{ keV}$) のピークが検出された。

ガラス原料中の Mn, Co については、分離法の結果とよく一致することが確かめられた。

表-3 は、NBS ガラス中の Co, Fe の定量結果であり、いずれも認定された値と良く一致した。

以上の結果から、 γ 線スペクトロメトリが光学用ガラス材料中の超微量成分の定量法として有用であることが示された。

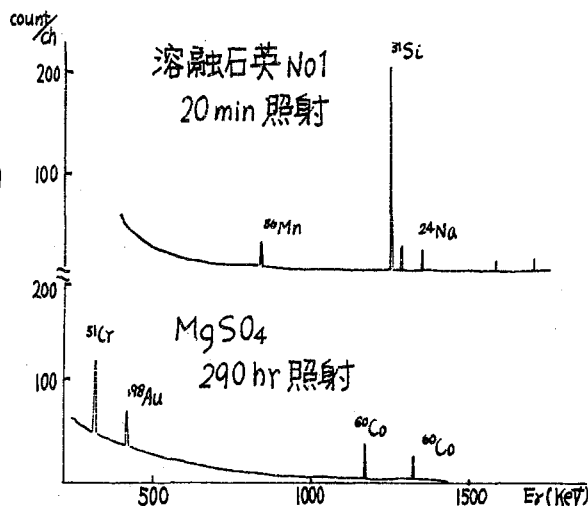


図-1 ガラス, ガラス原料の γ 線スペクトル

表-2 ガラス, ガラス原料中の超微量成分の存在量 (単位 PPM)

	Mn	Cu	Co	Cr	Fe
熔融石英-No1	0.002	<0.01	<0.001	0.03	<0.4
熔融石英-No2	0.003	0.09	<0.001	0.02	0.55
CaCO ₃	0.026	—	0.22	0.23 ₂	2.55
SiO ₂	0.020	0.20	0.06 ₃	0.64 ₄	—
Na ₂ CO ₃	<180	<0.59%	0.51 ₈	0.64 ₄	—
MgO	19.8	—	0.07 ₂	—	—
MgSO ₄	2.3	—	0.05 ₂	—	—

表-3 NBS ガラス中の Co, Fe の存在量 (単位 PPM)

試料番号	Co		Fe	
	測定値	認定値	測定値	認定値
SRM-617 (0.02ppm)	0.037	—	—	(11±2)
SRM-615 (1ppm)	0.72	0.71±0.05	—	(13.5±1.1)
SRM-613 (50ppm)	33.1	(35.5±1.2)	50.7	51±2

高純度材料中の超微量成分の放射化分析 (第2報)

サブストイキオメトリによる銅, マンガン, コバルトの定量

電電公社茨城通研 工藤列, 重松俊男, 小林健二

目的

最近, 光学用ガラス繊維が通信用材料として注目されてきている。この場合、微量の不純物はその光学特性に大きく影響するところから含まれる微量成分の分析が強く望まれている。通常, これらの材料中に含まれる各微量不純物濃度は数 10 ppb 以下である。したがって, マトリックスの複雑な試料ではγ線スペクトロメトリによる非破壊放射化分析では定量が困難な場合も多い。本報では, 特に要望の強い Mn, Cu, Co の 3 元素の定量をサブストイキオメトリ (不足当量法) - 放射化分析により行った。

方法

Mn, Cu の定量は既報の塩化テトラフェニルアルソニウムおよびジチザンの不足当量法によった。Co(II) の定量には 1-ニトロソ-2-ナフトールを用いた。本試薬での不足当量法の定量条件を検討し, 抽出率の pH 依存性, 熟成時間, 抽出時間, 共存イオンの効果などから, 試薬濃度 $25 \times 10^{-6} M$, pH 6.2 (50% pH ≤ 9.0), 抽出時間 3 分を定めた。また, 0.01 M 酒石酸ナトリウムをマスクング剤として用いることにより, 共存元素の影響を無視することができた。

実験および定量結果

試料および標準試料を JRR-2 ($f=7 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$), JRR-3 ($f=3 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$) で 2 分 ~ 290 時間照射し, それぞれ所定の期間冷却したのち, 担体を加え, 分離操作を行ない, 試料と標準試料の放射能を比較することによりそれぞれの元素の定量をした。定量結果を表 1 に, 定量結果の再現性の例を表 2 に示した。表から明らかのように, 非常に精度の良い結果が得られている。また, NBS 標準ガラスでの結果は, NBS の認定値とよく一致しており, 本法の信頼性の高いことが示された。

考察

1-ニトロソ-2-ナフトールによる,

表 1 試料中の不純物の定量結果
(単位: ppb)

	Mn	Cu	Co
SiO ₂ (JM)	19.5 ± 0.3	175 ± 2	63
、(小松)	27.4 ± 0.4	6.8 ± 0.05	3.2 ± 0.01
CaCO ₃ (JM)	29.8 ± 0.4	22.4 ± 3	17.9 ± 4
Nb ₂ O ₅ (JM)	54.7 ± 0.1	45.7 ± 4	55.2 ± 8
ガラス A	169	—	129
、 B	127 ± 4	18.4 ± 4	116

(単位: ppm)

NBS615	1.19 ± 0.05 (1.41)	1.34 ± 0.03 (1.34 ± 0.03)	0.76 ± 0.04 (0.71 ± 0.05)
NBS617	0.605 ± 0.004 (0.65)	0.60 ± 0.01 (0.65 ± 0.02)	0.034 (—)

Coの不足当量法での抽出に
関し、理論的な検討を行な
った。

1) pH範囲 Rumickaらの
溶媒抽出理論に従えば不足
量抽出の可能なpH領域は
(1)式より算出できる。线々
の実験条件を代入し計算し
たところpH領域として $5.0 \leq$

$pH \leq 9.6$ の値を得た。これは実験による値 $5.0 \leq pH \leq 9.0$ とよく一致するものであった。

$$pH \approx \frac{1}{n} \log \left(\frac{C_{HA}}{C_{A^-}} \right) - \frac{1}{n} \log \left(C_H - \frac{V_{org}}{V_{aq}} \right) - \frac{1}{n} \log K - \log(0.001 C_{HA}) \quad (1)$$

$$pH \approx pK_{HA} + \log f_{HA} + \log \left(\frac{V_{org}}{V_{aq}} \right)$$

2) 共存元素の効果 共存元素の効果はCoの抽出に対しCuが最も大きく影響する。
そこで実験と同じ条件で許されるCu濃度を(2)式より算出した。

$$\frac{[CoA]}{[CuA]} = \frac{K_{CoA} (1 + \beta_{Cu} [CB]^{2}) [HA]^{3-2} [C]}{K_{CuA} (1 + \beta_{Cu} [B]^{3}) [H]^{3-2} [Cu]} \geq 100 \quad (2)$$

マスキング剤が存在しない場合、 $[B] = 0$, $K_{CoA} = 11.04$, $K_{CuA} = 11.7$ の値より、Co
の担体量 $100 \mu g$ を加えた場合ではCu $1 \mu g$ が許される最大濃度となる。0.01 M 酒石酸
ナトリウムをマスキング剤として加えた場合には、 $\beta_{Co} = 0$, $\beta_{Cu} = 0$, $\beta_{2Cu} = 5.11$ と
なり、許されるCuの存在量は $13 \mu g$ となる。これらの計算値はすでに検討した実験
値と良く一致する。そしてこのことは、用いた試料中のCu濃度が 1 ppm 以下であ
ることから、Cuによる妨害が無視できることを示すものであり、したがって、他
の共存元素の妨害も無視し得ることを意味する。

3) 他マスキング剤の効果 マスキング剤として、酢酸アンモニウム¹⁾ ($\beta_{2Cu} = 1.93$
 $\beta_{Cu} = 3.20$), クエン酸塩²⁾ ($\beta_{2Cu} = 4.46$, $\beta_{Cu} = 3.32$)を用いた例が報告されている。
前者では共存するCuの許される最大量は、 $1.6 \mu g$ と考えられる。実際の場合には、
クッペロンで初期抽出を併用している。一方、クエン酸塩の場合には完全にCuを
マスクできるがCo(III)も安定な単塩を形成する。このことは、水溶液で安定な
Co(III)イオンが試薬と安定なCo(III)に酸化される過程で酸化が妨害され、キレート生
成にかかりの時間を要することを意味する。実際、両者とも過酸化水素により酸化
を行なっているが、クエン酸塩では30分以上を要している。
以上の結果から、酒石酸がマスキング剤として最もすぐれているといえる。

文献

- 1) Galik, A., Diploma Thesis, Faculty of Technical and Nuclear Physics, Prague, (1963)
2) R.A. Nadeem, B.C. Haldar, Radiochem. Radioanal. Letters, 11, 237 (1972)

表2 Na₂CO₃中のCoの測定結果

Sample	W (mg)	Wst (10 ⁹ g)	A (cpm)	Ast (cpm)	Content (10 ⁶ g)	Concentration (ppm)
1-1	88.32	1.04	2870	60.0	0.0497	0.563
2-1	120.74	"	3890	"	0.0673	0.560
3-1	75.63	"	2500	59.8	0.0435	0.571
3-2	"	"	3063	61.1	0.0533	0.520
4-1	102.61	"	2384	59.8	0.0406	0.537
4-2	"	"	3312	61.1	0.0564	0.550

新島大. 理 中原弘道 〇仁藤 修 外林 武
菅野 浩

生体試料中の微量元素を放射化分析により定量する際に ^{24}Na , ^{82}Br を除去する必要がある。二酸化マンガン(MDO)は0.1M HNO_3 酸性で約30の元素を定量的に吸着することが知られており²⁾, ^{24}Na , ^{82}Br については全く吸着しない。MDOが吸着しないCu, Zn等は硫化物として沈殿させることにより, Na, Brから分離できる。これらの方法を組合せることによって, マウス生体試料中の13元素の定量を行なったのでこれを報告する。

実験方法

試料: 同じ条件で飼育したマウス2匹のうち, メラノーマ癌を植え付けたもの(マウスT), 健康なマウス(マウスN)とする。(表1, 2参照)

照射: 各試料(20~40 mg)を京大原子炉で, 気送管照射, 40分。水圧管照射20時間中性子照射した。また, 各元素を濾紙に浸み込ませて試料と共に照射して標準試料を調製した。

前処理: Pr-照射試料は3時間冷却, Hy-照射試料は2日前冷却したのち, 濃 HNO_3 5 ml, 30% H_2O_2 で分解し, おたやかに蒸発乾固して HNO_3 をとばし, 0.05 M HNO_3 10 ml (Pr-試料は0.1 M HNO_3), MDO (>100メッシュ) 50 mgを加え, バック法により恒温槽で60°C, 1時間放置した。MDOを濾取, 濾液に担体(Cu^{2+} , Zn^{2+} を各5 mg), および Na^+ 10 mgの保持担体を加えた後, アンモニア水で中和, FeS を通じて CuS , ZnS の沈殿を作り濾別した。

測定: MDOおよび硫化物測定試料をGe(Li)検出器(24cc-40% Ch波高分析器, 15cc-800 ch波高分析器)でγ線測定を行なった。

結果と考察

Pr-試料は照射後7~16時間後に測定。MDO-試料は ^{56}Mn , ^{42}K が強く, 硫化物試料は ^{56}Mn , ^{64}Cu が主であった。Hy-試料からはMDO吸着元素として, ^{76}As , ^{99}Mo , ^{75}Se , ^{203}Hg , ^{51}Cr , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{85}Rb , $^{100}\text{m}\text{Ag}$, ^{125}Sb , ^{124}Sb , 硫化物共沈元素として ^{64}Cu , $^{69}\text{m}\text{Zn}$, ^{65}Zn , ^{60}Co , ^{198}Au , ^{199}Au が検出された。 ^{76}As , ^{99}Mo , ^{64}Cu , $^{69}\text{m}\text{Zn}$ は2~3日, その他の元素は10日以上経たのちのデータより定量した。As, Mo, Seは硫化物中に全くなくMDOに完全に吸着され, Cu, Znは吸着されなかった。MDOと硫化物の双方に見出された ^{56}Mn , ^{60}Co のMDOへの吸着率は表2のようになり, 大きなばらつきがあり再現性がとばしいので, 定量値としてはこれらの値を用いた。Hg, Fe, Crは殆どどの試料でも完全に吸着していたが, 毛のHg, 血液, 腎のFe, 血液のCrでは硫化物中にもあって部分

吸着であった。Rbは最終溶液中に残った ^{86}Rb を測定して、この吸着したRbの値を示す。

本法において ^{24}Na , ^{82}Br はほとんど吸着共沈することなく、As定量の一部をのぞいて完全に妨害を除去でき、表1に示す元素およびSb, Agについては定量が可能であった。MDOにはPb(Pb)が吸着するので、その制動放射線により、 ^{75}Se , ^{203}Hg 等は妨害を受けて精度が低下している。

表-1 分析結果

分析元素 測定γ線(keV)	冷却時間 分離法	脳 (ppm)	肝臓 (ppm)	腎臓 (ppm)	血液 (ppm)	こう丸 (ppm)	毛 (ppm)	マリーマ (ppm)
Mn 847 (^{56}Mn)	7~16h 部分吸着	T 0.078 C 0.055	0.33 0.44	0.26 0.30	0.0015 0.0029	0.21 0.11	0.061 0.16	0.030 —
Fe 1099 (^{59}Fe)	10~15d MDO吸着	T 50 C 46	350 380	150 —	650 870	71 63	74 91	52 —
Co 1173 (^{60}Co)	10~15d 部分吸着	T 0.011 C 0.020	0.090 0.072	0.072 —	~0 ~0	0.019 0.050	0.056 0.27	0.018 —
Cu 511, 1346 (^{64}Cu)	2.5d 硫化物	T 1.2 C 0.9	1.3 1.4	1.0 —	0.45 0.16	0.4 0.7	3.3 3.6	0.20 —
Zn 438 (^{60m}Zn), 1115 (^{65}Zn)	2.5d 硫化物	T 56 C 63	111 102	72 —	21 18	96 154	480 480	35 —
Se 265 (^{75}Se)	10~15d MDO吸着	T ~0 C ~0	0.35 0.58	0.15 —	0.26 0.25	0.48 0.45	0.61 0.60	0.28 —
As 559 (^{76}As)	2.5d MDO吸着	T 0.017 C ~0	0.039 0.050	0.077 —	~0 ~0	~0 0.021	0.36 0.55	~0 —
(Rb) 1077 (^{86}Rb)	10~15d MDO吸着	T 1.8 C 1.1	3.8 3.5	0.56 —	0.97 ~0	3.3 3.0	1.4 1.9	2.4 —
Mo 140 (^{99}Mo)	3d MDO吸着	T ~0 C ~0	3.8 5.4	3.6 —	~0 ~0	~0 5.2	~0 ~0	~0 —
Hg 279 (^{203}Hg)	10~15d MDO吸着	T ~0 C ~0	0.0078 ~0	0.033 —	0.0092 0.011	0.020 0.028	0.11 0.19	0.014 —

表-2 MDOへの吸着率 (%)

	脳	肝臓	腎臓	血液	こう丸	毛	マリーマ
Mn	20.7 31.6	26.8 28.9	31.3 24.2	(100) 36.1	76.5 38.8	66.5 39.8	30.6
Co	(100) 34.1	41.0 29.7	7.8 —	— —	40.3 28.5	(0) 9.8	26.9

文献

- 1) C. Bigliocca, et al. Anal. Chem., 39 (13) 1634 (1967)

東北大 理

宮田 孝元 ◎山寺 亮 塩川 孝信

〔緒言〕

Br化合物は、農薬、殺虫剤、医薬等に広く用いられており、中にはきわめて毒性の強い化合物がある。近年、これらBr化合物の生体に与える影響が問題とされつつある。生体試料中のBrの定量方法としては、中性子放射化分析($^{81}\text{Br}(n,\gamma)^{82}\text{Br}$ 0.55, 0.57 MeVの γ 線を利用)が広く行なわれているが、生体試料中には多量のNa, Cl, Ca, Fe等を含み、それらからの放射能(特に ^{24}Na)が強く、非破壊定量はむずかしい。

一方、光量子放射化分析では生体試料中のマリロ成分からの放射能をかなり少なくすることができ、Brの定量核種として ^{80m}Br からの37 KeV γ 線を用いれば、非破壊定量の可能性がある。

著者らは、この可能性を検討するために、生体試料と組成の類似した、海水中のBrを非破壊定量することを試み、良好な結果を得たので報告する。

〔実験〕

1. 試料及び照射; 照射試料は、日本標準海水、深沼海水(宮城県、仙台市、沼沼地区)及び、Br核量線水(NaCl と NaBr との混合水溶液)であり、これを内径8mm厚さ2mmの太鼓形石英セルに0.1ml入れ、乾燥させた後、封したものである。照射は、東北大、核理学研究施設の電子ライナックで加速した30 MeV電子線を、厚さ3mmの白金コンバーターで制動放射線に変換して行なった。試料はコンバーター後方の試料ホルダー内に、ビーム軸に沿って並べて照射した。照射時間は3時間とした。

2. 測定; 照射した石英セルは、2時間冷却した後、そのまま ^{80m}Br からの37 KeVを測定した。測定系は、Ge(Li)検出器(ORTEC社製 2cm \times 0.5cm(d))と4096cPHA(東芝社製)である。検出器は10 KeVないし100 KeVで100%の検出効率を示し分解能は37 KeVのピークで0.8 KeVであった。測定位置は検出器表面から3cmの距離とし、測定時間は100秒ないし2000秒とした。制動放射線量の補正は、照射後10日たってから、 ^{22}Na の0.511 MeV γ 線を測定して行なった。

〔結果と考察〕

得られた深沼海水の γ 線スペクトルを図1に示す。37 KeVのピークは、半減期4.4時間で減衰し、 ^{80m}Br と同定された。12 KeVのピークは ^{80}Br のK-X線であろう。Br核量線試料では、この他にも49 KeVに ^{80m}Br のピークを示すが、海水試

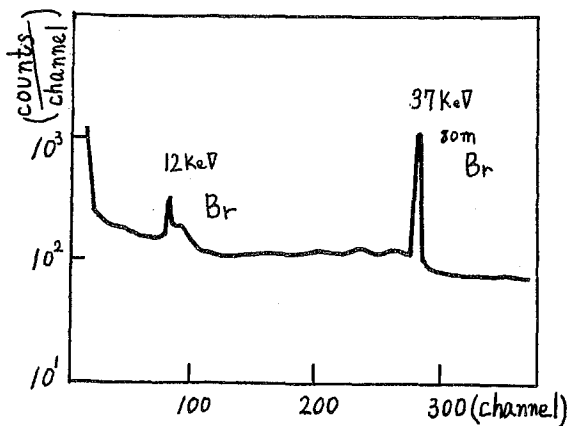


図1, 深沼海水のγ線スペクトル

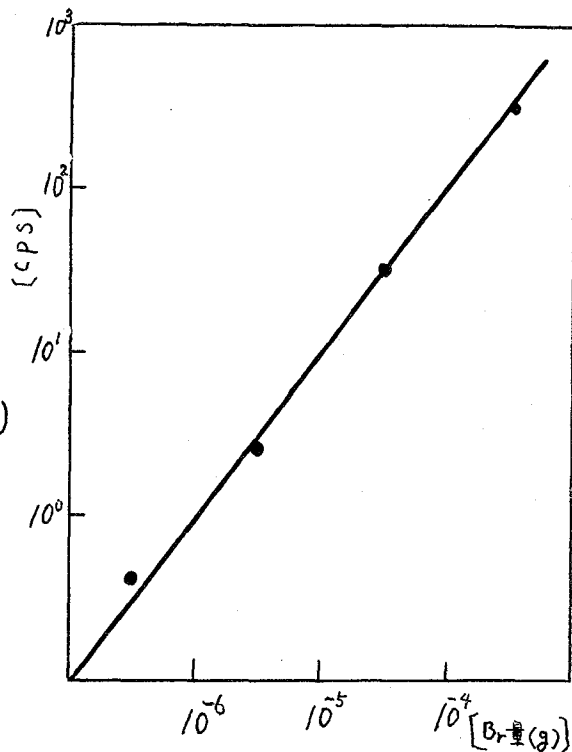


図2 検量線

料では、back groundが高く、ピークは見られぬ。図2に、Brの検量線を示す。グラフは直線を示し、かつその傾きは1であることから、 ^{80m}Br の計数率とBr量(g)との間には比例関係がある。この検量線から、日本標準海水、及び、深沼海水中のBr濃度を求めた結果を表1に示す。標準海水中のBrの値は、配合値と良好一致を示している。深沼海水中のBrの値は、多少ばらつきがあるが、ほぼ妥当な値である。

表1. Brの分析値

	Na含有量	Br含有量
日本標準海水	$1.07 \times 10^4 \text{ ppm}$	68 ppm (66 ppm 註1) 64
深沼海水	$1.01 \times 10^4 \text{ ppm}$	60 (65 ppm 註2) 77

註1 配合値

註2 平均海水中のBr含有量

Brの検出限界は照射試料の重さ0.1gとして、0.1 ppm以下と算出された試料の量を増加することにより、検出限界をなお下げることが可能である。全体試料にはBrが1 ppm ないし100 ppm含まれており、本方法は、全体試料中のBrの定量に

用して 良好な結果が期待できる。

血液中の臭素の放射化分析

1 A 16

京大理[†], 京大保健管理センター^{††}, 京大原子炉^{†††}
藤永大一郎[†], 堀智寿[†], 小山隆夫[†], 宮田尚之^{††}, 小川隆三^{†††}
武内孝之^{†††}

血液中の微量成分の放射化分析による定量は数多く試みられている。しかし、多量塩素共存下の微量臭素, よう素の定量には放射化分析が方法論的に優れているにも拘らず血液中の臭素の例は少ない。今回, 高血圧, 神経障害に關係のあるといわれる臭素の血中濃度を, 非破壊で放射化分析する方法を検討し, 若干の問題点及び新しい知見が得られたので報告する。

試料の前処理: 採取した血液は, 血餅の沈析, 腐敗, その他の取扱いの簡便さを考へて凍結乾燥を試みた。ところが, 試料はきわめて不均質になり, 乱砕でよく粉細混合しても無機塩と有機物の比重の相違によると思われるが, フラフシヨネーションが生じている恐れがあった。そこで, 血液0.5mlを内径0.6mmの肉厚ポリエチレン管にとり凍結乾燥後溶封することにより採取した全血液を照射試料とした。

放射化のスタンダード: i) Brとして1~50 $\mu\text{g}/\text{ml}$ を含むKBr溶液の10~50 μl をミクロピペッターを用い, 塩希硝酸で浸漬, 水洗後よく乾燥したミリポアフィルターに着実し乾燥後ポリエチレン袋, 肉厚ポリエチレン管, 石英アンプルの三種の容器につめた。ii) 上記標準溶液と試料血液に加え乾燥した。iii) KBr及びKBrO₃の結晶及び粉末と石英アンプルのものはポリエチレン袋に溶封した。iv) Co(acac)₃をオトキシテフタレンに均一に溶解した粉末

照射: 各アンプルの0.2mm厚のポリエチレン袋にさらに溶封し, KUR気送管用のラビットに5~10ヶつめ, 5M運搬時にPm-1又はPm-2で10~60分間照射した。中性子束は $\approx 2 \times 10^{13} \text{ n}/\text{cm}^2/\text{sec}$ である。

測定: γ 線スペクトロメトリーを行おう場合には, KUR 24 cc Ge(Li)検出器付1024ch段高分析器日しは, 京大RI総合センターの50 cc Ge(Li)検出器によつて約3日間冷却後⁸²Brの各種 γ 線を測定した。^{80m}Brの γ 線を測定する場合には, Si(Li)検出器により約3時間冷却後BrのK α 11.9 KeV及び37 KeVの γ 線を測定した。

結果: i) ミリポアフィルターに着実しポリエチレン袋に溶封した試料では, 内容物とポリエチレン袋に分けて測定したところ, 還元性アルカリ溶液, アセトン, トルエン等で洗浄しきつない⁸²Brが約20%程度ポリエチレン袋に見出された。一元参照のためCo(NO₃)₂をミリポアフィルターに着実した場合にもポリエチレン袋に残留する放射能は最大5%以内であった。また石英アンプルの注入した

場合には、石英アンポル部分には ^{82}Br バリコイルインシ E 形跡は認められなかった。したがって、有機物がある場合にはホルフトマトム効果によってかなりの Br 原子が有機物と反応結合しているものと考えられる。血液中に標準添加した試料では、容器に付着した ^{82}Br はほとんど認められなかった。この理由としては、乾燥血液がかなり高く、ほとんど試料内で反跳原子が結合してしまうこと、Ce イオンが多く、反跳反応の経路が変わること等が考えられるが、いづれにしても、 ^{82}Br は放射化分析を行う場合には、マトリックス如何によってかなりの放射性 Br の損失がみられることは明らかである。KBr, KBrO_3 の単結晶 5mg 以上を照射した試料では、生成放射能は理論値より 20~40% 程度減少し自己吸収 (中性子) がみられる。1mg 以下の微細結晶ではほとんどその効果は見られず、生成放射能は予想値と一致した。ii) 次に述べた様に、Br は多少とも損失のおそれがあるためポリエチレンのいしは石英アンポルごとううしか之なりで測定した。その結果、各試料の定量値は 5~13 $\mu\text{g Br/ml Blood}$ の範囲にあり、外国で測定した例 2~6 $\mu\text{g Br/ml Blood}$ の約 2 倍と日っている。この相違は、生活環境の相違に由来するものかも知れないが、それだけの理由にしてはあまりにも差が多過ぎるようで、さらに検討が必要であると思われる。iii) Si(Li) 検出器を用いれば、 ^{82}Br の $\text{K}\alpha$ X 線および $\text{K}\beta$ X 線の ^{82}Br の $\text{K}\alpha$ X 線が、多量 ^{232}Th 共存下で検出可能である。したがって、X 線測定によれば、冷却に要する時間も不必要で迅速かつ高感度の定量が可能であろう。

東ア研. ○永塚澄子, 谷崎良之, 堀口泰裕, 岡野寿夫

水試料中の微量元素の放射化分析法については、まだ解決されねばならないいくつかの困難点がある。その一つとして、小型原子炉以外の利用においては、水溶液試料の照射には種々の制限があり、現在では何らかの前処理により、化学形を変えなければ照射できないことである。そのため一般には水試料の蒸発残渣を照射試料としているが、この方法は乾固時における揮発性元素の損失があるので、Hg などの定量は困難であり、また水試料中に多量に存在する Na などからの誘発放射能により、Cu, Cd, As など比較的短い半減期の核種の測定が妨害される場合が多い。

今回われわれは、比較的大きな汚染の少ない、バッファグランドレベルと考えられる多摩川上流に流入するいくつかの淡水中の微量元素の分布を明らかにする目的で、京大原子炉 (KUR) を利用し、いくつかの前処理法を検討した。

試水はポリエチレン瓶に採取後、pH を 1 に調節し、直ちに孔径 0.5μ のミリポアフィルターで濾し、今回はその濾液について分析した。試水は予めエバポレーターで濃縮し、その一定量を分取し次のような調製を行った。

- (1) 蒸発乾固法: 蒸発皿にとった試水を赤外線 70° で乾固し、その残渣 50 mg 前後を短時間照射の場合はポリエチレン袋に、長時間照射の場合は、石英アンプルに封入
- (2) 硫化物共沈法: Hg, Cu, Cd, As etc などを対象に、硫化物共沈液から PbS として沈殿させ、濾過、乾燥後濾紙ごとポリエチレン袋に封入
- (3) 鉄共沈法: 蒸発乾固試料から測定困難な短寿命核種を対象として、中性付近から $\text{Fe}(\text{OH})_3$ として共沈させ、濾過、乾燥後ポリエチレン袋に封入

照射は熱中性子束 $4.6 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ で 80 時間, $2.3 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ で 1 時間, 10 分間, $1.9 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ で 1 分間それぞれを行ない、測定は Ge(Li) 検出器と 4096 チャンネル波高分析器を利用し、放射化後はいづれも非破壊法で定量した。

蒸発残渣の 80 時間照射試料からは Ca, Ba, Cr, Sb, Se, Fe, Eu, Cs, Ag, Rb, Zn, Co, La, Sr etc の、10 分照射試料からは Na, Mn, Mg, K, Ca 等、硫化物共沈試料からは Cu, As, Au, Cd, Hg etc の、鉄共沈試料からは V, Al, As などを定量することができた。

硫化物灰泥、鉄灰泥試料のブランク値は、十分検討を要するが、Cu, Cd, Hg, V, Al, Se などは低い値であり問題にはならなかったが、As については、両者共に高く、これについてはさらに検体の必要があった。また鉄灰泥試料からの Se は照射時間をも十分とることができたので検出できなかった。また鉄灰泥試料からの値と比較検出はできなかったが、Se についても今後検出の必要があった。

なお、今回の試水は重金属元素の測定のために酸を添加してあるので、ハロゲン元素については定量していない。

本法により多方向に流し流るるいくつかの沢から採取した試水についての分析結果の一例を下表に示した。これらの結果についての考察は、巻頭から「23 地球化学討論会」にて報告する。

(単位 $\mu\text{g/l}$)

	Na	Mg	Al	K	Ca	Se	V	Fe	Co	Cu	Zn	As	Se	Rb	Sb	Cs	Ba	La	Eu	Au	Hg	Ag	Cd	Mn	Sr
	$\times 10^3$	10^2	10	10^2	10^3	10^3	1	1	10^2	1	1	10^1	10^2	10^1	10^2	10^2	1	10^2	10^3	10^3	10^2	10^2	10^1	1	1
1	1.9	0.5		0.5	0.2	1.4	3.6	1.2	1.2	2.0		2.9	0.8	1.3	1.2	2.5	4.6	2.6	2.7				3.7	5.4	
2	2.4			0.3	3	2.0	1.0	5	1.2			4.2		2.9	4.1	1.0	1.3	9.0	1.1	4.6	0.6				
3	2.2			0.7	0.3	6	4.2	2.2	1.4	2.8	4.9	5.6		4.0	1.7	3.7		6.7	18.0	4.1	1.1				
4	2.5	0.2		0.4	0.1	7	2.9	0.9	3	6.6		3.9		0.7	1.8	5.9		2.0	36.9	0.4			0.7	4.8	
5	2.2	0.8		0.6	0.2	3.4	5.8	1.4	2.0	3.8	2.8	3.6		1.5	2.5	1.2		3.0	3.6	38.8	4.8	7.4	0.3	62.7	
6	2.9	1.3		0.3	1.2	3.5	1.4	6	5.5		4.4		2.2	3.0	1.6			2.3	18.1	2.5	4.7	0.8	35.0		
7	1.8	13.7	5.5	7.6	3.4	5.1	3.5	9.0	8.3	1.4	4	5.7	3.4	4.3	1.4	2.1	3.2	2.6	3.5	5.2	2.3	3.7	0.5		
8	1.3	3.9	0.5	8.1	3.5	0.6	1.3	6	1.9	0.8	2	7.2		3.1	0.6	0.4	0.2	1.0	2.4	3.9	6.3				
9	2.1	0.8	4.3	4.0	1.0	1.1	6	3.1	1.7	4	6.2			2.0						3.5	9.3				
10	1.6	11.5	0.8	1.4	10.4	1.9	0.2	4	1.5	0.6	2	6.3	4.8	11.7		4.8				3.6	18.8		1.4		

混合試薬による水中微量元素の放射化分析

原研 ○坂東昭次, 今橋 強

水中微量元素の放射化分析には感度の向上と水の放射線分解をさけるため、目的元素をあらかじめ濃縮し、分離などの前処理の操作を行なっておく必要がある。前処理濃縮法としては蒸発法、沈殿法、溶媒抽出法、イオン交換法などが用いられている。われわれは多元素分析の目的から多くの元素と錯塩を作り且つ有機溶媒によって抽出されるオキシシキンは2-メチルオキシシキンはDDTCの混合試薬を用いる捕集法を検討した。またこの方法を河川水、海水に適用し、微量元素の定量を試みた。なお、抽出物の収率補正に内部標準法をとり入れ、短寿命核種の場合はTiを、長寿命核種の場合にはHfを使用した。この方法によればクロロホルム量は適当量でよく、抽出された有機層も一定量採取する必要がないので操作が非常に簡略化される。

試料の調製：採取した試料はミリポアフィルター(0.45 μ)で濾過し、6M-HClを20 ml/lの割合に加えて分析試料とした。

Cu, V(短寿命核種)：試料水100 mlにTi 100 μ g, アスコルビン酸(5%) 5 ml, 2-メチルオキシシキンは(5%) 5 ml, 酢酸アンモニウム(2M) 3 mlおよびアンモニア水を加えpH 5.0に調節する。更にDDTC-NH₄(2%) 3 mlを加え分液ロートに移す。クロロホルム10 mlを加え、5分間振り混ぜる。有機層は酢酸アンモニウム(0.1M) 20 mlで洗浄する。脱水後抽出物を小さな石英ビーカに移し、赤外線ランプで蒸発し脱脂綿に集めポリエチレン袋に封入する。JRR-2気送管(8 $\times 10^3$ n/cm².sec)で5秒間照射する。5分間冷却しNaI(Tl) 3 $\times 3$ " ϕ 検出器接続の波高分析器で γ 線スペクトルを測定する。同時に生成する⁵²Tiの0.32 MeV γ 線スペクトルより抽出収量の補正を行なう。

Fe, Co, Zn, Hg他(長寿命核種)：試料水100 mlにHf 0.1 μ g, オキシシキンは(5%) 5 ml, 酢酸アンモニウム(2M) 3 ml, アンモニア水を加えpH 5.0に調節する。更にDDTC-NH₄(2%) 3 mlを加え分液ロートに移す。クロロホルムを加え5分間振り混ぜる。有機層は酢酸アンモニウム溶液で洗浄する。抽出物は脱水後石英ビーカに移し赤外線ランプで殆んど蒸発させたのち石英管に移す。赤外線ランプで加熱し、クロロホルムを蒸発させ封入する。JRR-4(3 $\times 10^{13}$ n/cm².sec)で3時間照射する。1~2日冷却後Ga, Moなどを、また約30日冷却後Fe, Co, ZnなどをGe(Li) 40 cc 検出器接続の波高分析器で各 γ 線スペクトルを測定する。同時に生成する¹⁸¹Hfの0.842 MeV γ 線スペクトルより抽出収量の補正を行なう。

本法における各元素の抽出収量を求めた結果を表1に示す。また蒸留水に各元素を添加し中性子照射後のγ線スペクトルを測定したものを図1に示す。更に海水中のバナジウムについて分析した結果を表2に示す。

表 1 混合試薬抽出による各元素の抽出率 (%)

元素	量(μg)	2-x41抽出	DDTC	Mix	元素	量(μg)	オキシ	DDTC	Mix
Ti	30	100	—	100	Hf	34	101	0	99
V	0.1	99	2	97	Fe	410	—	100	100
Co	0.5	0	101	100	Co	0.5	95	101	100
Cu	20	96	96	98	Zn	24	78	103	103
Mo	30	94	67	96	Ga	20	—	33	98
					As	2	0	103	90

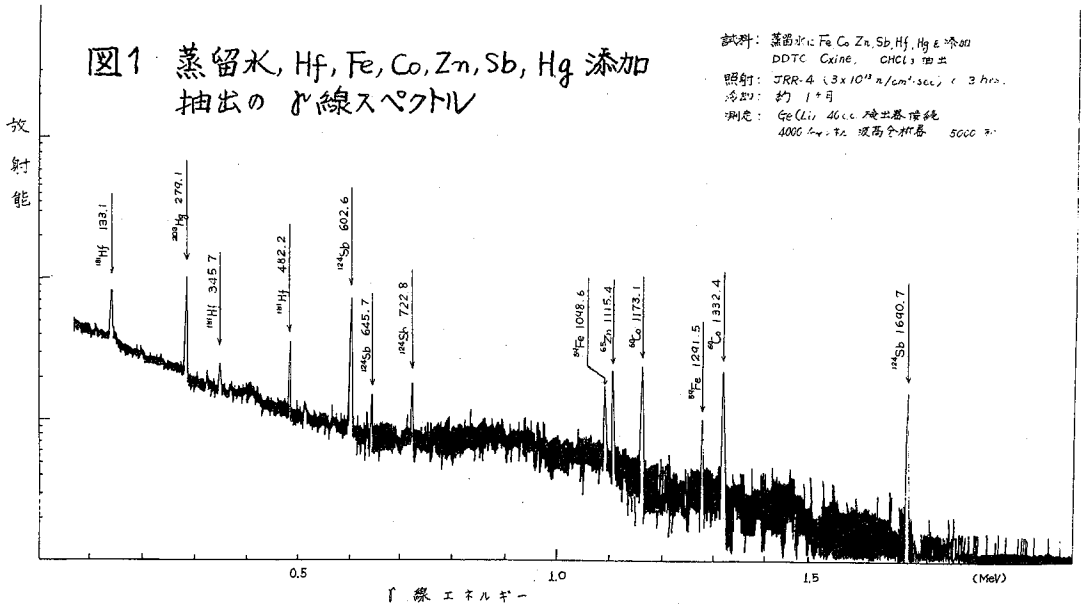


表 2 海水中バナジウムの分析結果

試料採取場所	塩分(%)	Ti 収率(%)	1.43MeVの計数(cpm) 収率補正值	V含有量(μg/l)
(A) 35°29'0N, 142°24'0E	34.712	89, 86	3381, 3379	1.63±0.06, 1.63±0.07
(B) 37°01'0N, 144°03'0E	34.431	90, 91	3587, 3195	1.73±0.06, 1.55±0.06
(C) 38°28'2N, 144°00'3E	34.442	97, 94	3142, 2889	1.52±0.06, 1.40±0.06
(D) 40°30'0N, 144°00'0E	33.308	91, 92	3658, 3587	1.77±0.06, 1.73±0.07
(E) 34°39'0N, 139°42'2E	34.431	83, 87	3180, 3466	1.54±0.08, 1.67±0.06

Cu はいずれも < 3 μg/l, (試料は東海大、岡部教授の御好意による)

(岩手大教養・東北大理*) ○佐藤允美・加藤豊明*・鈴木信男*

緒言：放射化と半導体検出器による σ 線スペクトロメトリーを組み合わせた分析法は、地球化学試料や生物体、環境試料などの多成分元素の非破壊同時定量の目的に大変有利に使われている。この際、簡単な化学分離も併用して多元素分析の効果も挙げている場合も多い。熱中性子による放射化法は鋭敏であるが、Mn, Na, Sc, Co などのような (n, σ) 反応断面積の大きい元素を含む試料では非破壊分析は制限をうける。高エネルギー σ 線による放射化分析はこのような難点を伴わず、 (σ, n) , (σ, p) 反応などの生成物を計測することによって前者とは異った選択性と特異性のある方法とよえると考えられる。本研究では U. S. G. S の標準岩石 G-1 および W-1, 日本地質調査所より配布の JG-1 および JB-1 を試料として選り 30 MeV 制御輻射で放射化し、残留核を Ge(Li) 検出器で計測する方法で諸元素の非破壊同時定量を試み、本法の鋭敏度や正確さを検討した。

実験：標準岩石の一定量(粉末 400~500 mg)をアルミニウム箔に包装して 9mmφ × 4mm に成型した。比較試料は主成分の混合物 (SiO₂ 66.51%, MgO 5.92%, TiO₂ 1.06%, Fe₂O₃ 5.29%, Na₂CO₃ 11.91%, CaCO₃ 9.31%) に微量成分 (Ba, Ce, Co, Mn, Nb, Rb, Sr, Y, Zr) を含む溶液の一定量を加えて 110°C に乾燥させたもので、同様にアルミニウム箔に包んで 9mmφ × 4mm に成型した。マグネシウムは ²⁵Mg(σ, p)²⁴Na によって定量できるが ²⁷Al(n, α)²⁴Na が妨害となるので別に酸化マグネシウムを比較試料として放射化後、アルミニウム包装を取り除いて測定した。岩石試料の両側に比較試料を並べ、東北大学理学部の電子線型加速器からの 30 MeV 制御輻射で 4 時間照射した。測定には主として 24cm³ Ge(Li) 検出器と 1024 チャンネル波高分析器を用い、 σ 線エネルギーと減衰の双方から核種を確認の後に各成分元素の含有量を算出した。

結果と考察：4 種の標準岩石について得られた結果を表 1 に示した。2 分析の結果は相互に良く一致し、精度はほぼ ±3% 以内であった。G-1 および W-1 の定量値は文献値 (Fleischer¹⁾, recommended value) と 8% 以内で一致しており、JG-1, JB-1 については他の分析法による結果²⁾と比較してもほぼ満足すべき値を得た。本法はストロンチウム、ジルコニウムには特に鋭敏で今後、種々の試料の分析に利用できると思われる。またイットリウムやニオブの非破壊定量は他の方法では困難であるが、本法では好結果が得られる。

1) M. Fleischer, *Geochim. et Cosmochim. Acta*, **33**, 65 (1969).2) A. Ando, H. Kurasawa, T. Ohmori and E. Takeda, *Geochim. J.*, **5**, 151 (1971).

表 1 定量結果

	G-1		W-1		JG-1		JB-1	
	本法	文献値 ¹⁾	本法	文献値 ¹⁾	本法	文献値 ²⁾	本法	文献値 ²⁾
主成分 (%)								
Na ₂ O	3.33 3.37	3.32	2.26 2.31	2.15	3.21 3.29	3.28-3.43	2.72 2.73	2.72-2.90
MgO	0.39 0.42	0.38	6.44 6.65	6.62	0.78 0.79	0.67-0.76	8.03 7.88	7.72-7.79
CaO	1.17 1.30	1.39	12.0 11.6	11.0	2.33 2.31	2.00-2.28	9.62 9.07	9.15-9.35
TiO ₂	0.26 0.25	0.26	1.12 1.07	1.07	0.25 0.26	0.26-0.34	1.21 1.21	1.33-1.51
MnO	0.036 0.031	0.03	0.22 0.18	0.17	0.057 0.054	0.059-0.06	0.13 0.14	0.15
Fe ₂ O ₃	1.78 1.88	1.94	10.7 11.2	11.1	2.06 2.08	1.93-2.14	8.70 8.77	8.25-9.02
微量成分 (ppm)								
Co	2.6 2.4	2.4	5.7 5.4	5.0	4.8 4.9	3.9-11	4.1 4.3	2.7-4.9
Rb	210 195	220	23 24	22	173 178	168-207	48 44	34-45
Sr	265 277	250	193 191	180	184 181	160-191	448 447	417-547
Y	15 15	13	25 26	25	31 30	<30	27 26	—
Zr	210 207	210	96 95	100	102 110	74-160	146 141	—
Nb	19 17	20	11 12	10	12 11	—	16 14	—
Ce	212 201	170	24 24	23	45 44	41.9-47	68 72	65-67.9
Ba	1050 1050	1200	—	180	—	430-470	—	320-454

ルテニウムの放射化分析

名工試 ○甲田善生 河島達郎
京教大 山本俊夫 手塚 守 木守正幸 大橋嘉彦

1. 演者はさきに放射性ルテニウムを三角フラスコ中で酸化剤とともに加熱して揮発させ、ポリエチレンフィルムに固着させて定量する方法を報告したが、^(今回は)この方法を非放射性的のルテニウムに適用し、無機薬品、海草、海底土などの中の微量のルテニウムをポリエチレンフィルムに固着させ、多数のフィルムを同時に原子炉に入れて放射化し、効率よく定量することを試みた。

2. 無機薬品の一定量を溶解して三角フラスコにとり、硫酸などの還元性のない酸で酸性にし、これにペルオキシ硫酸アンモニウム、過ヨウ素酸カリウムなどの酸化剤と微量の塩化物を加えて口をポリエチレンフィルムで覆い、湯浴上で2時間以上加熱してルテニウムを定量的にフィルムに固着させた。このフィルムをポリエチレン管に封入し、約10本をラビットにつめ、京大原子炉気送管 ($10^{13} n/cm^2 \cdot sec$) で60分間照射した。各ポリエチレンフィルムは井戸型 NaI (TL) に入れてγ線を波高分析した。照射後約1ヶ月の頃に ^{103}Ru ($T_{1/2} = 39.5 d$) の497 keV のピーク面積を測定して定量した。

別にこの定量法の反応と同じ条件で ^{106}Ru をトレーサとして用い、三角フラスコ中で反応を行なわせ、ポリエチレンフィルムに固着するルテニウムの収率を求め、上記定量値を補正した。

3. ポリエチレンは不純物が少なく、そのうえフィルムとして1試料に50 mg 程度しか要せず、担体からの放射能の妨害を少なくできるので比較的簡単な方法で $0.01 \mu g$ のルテニウムまで容易に定量することができた。これ以下の含量のものでは定量値が不確かになるので、更に長時間の照射を行なう必要がある。

使用するポリエチレンフィルムは高压法によって作られた0.02 mm 厚のものを中性洗剤中で絹布でこすって表面を洗い、三角フラスコはフッ化水素アンモニウムの溶液につけて表面を完全に洗浄しておく必要がある。塩化物の添加は微量のルテニウムの収率を定量的にするためのもので、ハロゲン化物を含む試料には必要ない。反応液に加える酸は硫酸のほか、硝酸、リン酸などが使用できる。

$U(n, f)$ ^{103}Ru による生成ルテニウムの誤認を避けるために ^{97}Ru の確認を行なう必要がある。ポリエチレン中の微量の不純物による放射能についても注意をはらわなければならない。

海草、海底土中のルテニウムについては確かな値を得るに至っていないが、無機薬品については多数の値を得たので右に示した。

原子番号	元素	化学式	品質(級)	Ru含有量(ppb)
3	Li	LiNO ₃	1	< 5
4	Be	Be(NO ₃) ₂ · 3H ₂ O	—	≈ 16
12	Mg	MgSO ₄ · 7H ₂ O	特	< 5
13	Al	Al(NO ₃) ₃ · 9H ₂ O	特	< 5
20	Ca	CaCl ₂ · 2H ₂ O	特	< 5
21	Sc	Sc(NO ₃) ₃	99.9%	53,000 (1700)
24	Cr	CrO ₃	1	< 5
25	Mn	MnCl ₂ · 4H ₂ O	保証	< 5
26	Fe	Fe(NO ₃) ₃ · 9H ₂ O	特	< 5
27	Co	Co(NO ₃) ₂ · 6H ₂ O	特	< 5
28	Ni	Ni(NO ₃) ₂ · 6H ₂ O	1	< 5
29	Cu	CuSO ₄ · 5H ₂ O	特	< 5
30	Zn	ZnSO ₄ · 7H ₂ O	—	< 5
31	Ga	Ga(NO ₃) ₃ · 8H ₂ O	99.99%	583
37	Rb	Rb ₂ SO ₄	99%	< 5
38	Sr	Sr(NO ₃) ₂	特	< 5
39	Y	Y ₂ O ₃	99.9%	< 5
40	Zr	ZrO(NO ₃) ₂ · 2H ₂ O	特	< 5
42	Mo	(NH ₄) ₆ Mo ₇ O ₂₄ · 4H ₂ O	1	16
45	Rh	Rh(NO ₃) ₃	> 99.5%	220
46	Pd	Pd(NO ₃) ₂	特	160
47	Ag	AgNO ₃	特	< 5
48	Cd	CdSO ₄ · 2 ² / ₃ H ₂ O	特	≈ 7
49	In	In ₂ (SO ₄) ₃ · 9H ₂ O	99.9%	20
55	Cs	CsCl	—	< 5
56	Ba	Ba(NO ₃) ₂	特	< 5
57	La	La(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O	保証	< 5
58	Ce	(NH ₄) ₄ Ce(SO ₄) ₄ · 2H ₂ O	特	< 5
74	W	H ₄ SiW ₁₂ O ₄₀ · 14H ₂ O	特	< 5
78	Pt	H ₂ PtCl ₆ · 6H ₂ O	特	275
79	Au	HAuCl ₄ · HCl	特	< 5
81	Tl	TlNO ₃	保証	< 5
82	Pb	2PbCO ₃ + Pb(OH) ₂	特	≈ 7
90	Th	Th(NO ₃) ₄ · 4H ₂ O	1	< 5
92	U	UO ₂ (NO ₃) ₂ · 6H ₂ O	特	≈ 5

玄武岩-鉄ニッケル合金系における金の分配

シカゴ大・青山学院大
○木村 幹, R. S. Lewis, E. Anders

目的 鉄ニッケル合金と玄武岩(融解物)との間の金およびレニウムの分配を1400~1600℃で実測する。結果を地球、月表面の玄武岩などの中の金、レニウム
の存在度との関連において考察する。

実験 分配比(次式)の測定はトレーサ法によった。

$$\text{分配比 } D = \frac{\text{合金相中の金(またはレニウム)の濃度 [g/g]}}{\text{玄武岩相中の金(またはレニウム)の濃度 [g/g]}}$$

玄武岩試料: 玄武岩試料としては、ハワイ Mauna Loa 産のもの(TLW67-75)と太平洋 Gorda Ridge からのもの(#1154), およびアポロ 11号による月試料 10022, 10058 の平均組成に相当する合成玄武岩の3種を選んだ。

合成試料は、2価の鉄酸化物をのぞく成分試薬を秤取、混合し、白金るつぼ中で1350℃に加熱融解後急冷して、まずガラスを得る。このガラスを粉砕し、計算量の一酸化鉄(ウスタイト)を加え、鉄のるつぼに入れて減圧密封する。これをさらに石英管に真空封入し1350℃で再融解し、急冷してガラス状試料を得た。

合金試料: 地球試料については90%, 合成月試料については30%(原子%)のニッケルを含む合金を用いた。合金は、鉄、ニッケルの所定比率の溶液から水酸化物を沈殿し、これを真空容器に入れ、450℃で水素還元をくり返し、最終的には550℃に加熱して調製した。見かけの粒子直径は0.4μmであった。

トレーサ: Specpureの金、過レニウム酸アンモニウム(〜10⁻⁶g)を10¹⁹-10²⁰の中性子束で照射して得た。金は王水に溶解、蒸発、塩酸溶液に変えて原液とした。レニウムについては、熱水に溶解して用いた。

測定試料の調製: 分配が平衡に達しているかどうかを明らかにするために、放射性トレーサを玄武岩相に加えた場合と、合金相に加えた場合とについて、それぞれ加熱、測定をおこなった。玄武岩に加える場合は、トレーサ溶液の少量をアルミナるつぼ中の玄武岩試料(0.3~0.5gを秤取)に加え、乾燥後、1200℃、1時間真空中で高周波誘導加熱し、融解した。これに約1/5量の合金を加えて測定用試料とした。一方トレーサを含む合金の調製は、トレーサ溶液の少量を水素還元前の鉄-ニッケル混合水酸化物に加えてのち、乾燥、真空にし、水素をつめて還元を繰り返す方法によった。金は一度酢酸エチルに抽出し、抽出液を水酸化物に加えた。調製した合金および玄武岩試料を同様アルミナるつぼに秤取して測

定用試料とした。なおるつぼり材料としては、酸化カルシウムを安定剤とした酸化ジルコニウムが、融解物に対しても耐蝕性があったが、しばしばむび割れが生じたので、多くアルミナ（アラシダム）を用いた。

加熱：るつぼ入りの測定試料を真空炉中のモリブデンるつぼに入れ誘導加熱した。平衡温度は最初1200℃にとったが、この温度では25時間加熱を続けても平衡に達しないことがはつきりしたので、1400~1600℃、主として1500℃において測定をおこなった。温度の測定は、モリブデンるつぼと試料るつぼの間に挿入したW(3% Re)-W(25% Re)熱電対によりおこない、随時光高温計を併用した。

二相分離：加熱後二つの相互をそれぞれ純粋に分離してとることは重要である。アルミナるつぼを洗浄後破砕すると、合金相は1~3個の金属塊となり、たやすくひろい出すことができたが、玄武岩相には合金の微粒子が入っている可能性があり、顕微鏡下での検査で透明なものを選り出すとともに、場合によってはCuCl₂-KCl混合溶液および臭素水による精製処理をおこなった。

計数：シングルチャンネル波高分析器つきγ線計数装置を用いた。放射化学的純度は半減期追跡(2~3半減期以上)およびGe(Li)標準体検出器によるγ線スペクトルによつてしらべた。

結果 結果の一部を示す

試料	加熱温度・時間		$D_{Au} \times 10^{-3}$	$D_{Re} \times 10^{-3}$
Mauna Loa TLW 67-75	1500℃	150分	30 ± 1 (SM)	24 ± 7 (SM)
“	1500℃	150分	35 ± 4 (MS)	890 ± 210 (MS)
Gorda Ridge # 1154	1500℃	150分	180 ± 30 (SM)	—
“	1500℃	150分	740 ± 50 (MS)	—
Synthetic Lunar (Apollo 11)	1500℃	150分	19 ± 10 (SM)	1.77 ± 0.08 (SM)
“	1500℃	150分	—	2.21 ± 0.03 (MS)

SMはケイ酸塩にトレーサを添加し、加熱測定した場合。

MSは合金相にトレーサを添加し、加熱測定した場合。

これらの値と熱力学データ、今までに得られた推定値などと比較、考察する。

Allende 隕石中の宇宙線誘導核種

(栗久・理) 中村裕二, 馬淵久夫, 高橋宏, 今村孝雄,
法口博

序論

従来、隕石中の宇宙線誘導核種は、隕石の照射年代、宇宙線の永年変化の研究に関連し、微弱放射能測定、放射化学分析法などの手段によって数多く測定され、さまざまな情報を与えてきた。炭素質コンドライト C3 に属する Allende 隕石中の微弱放射能についても、L. A. Rancitelli¹⁾, J. Toubailen & D. Nordemann²⁾, P. J. Cressy Jr.³⁾ らによって報告されてきた。すべて非破壊分析法によるγ線測定である。我々はこの Allende 隕石の破壊分析によって X 線、β 線核種の測定を行なうとともに隕石中の熱中性子の影響を調べることを試みた。Allende 隕石はその大きさからみても他隕石に比べて熱中性子束が大きいと予想される。事実、上記の報告にある ^{60}Co の値は大きいと言える。熱中性子の影響に顕著に現れる核種としては、 ^{60}Co の他に ^{36}Cl , ^{59}Ni , ^{44}Ca が考えられる。我々はこれらの核種を測定するとともに ^{22}Na , ^{26}Al , ^{44}Ti , ^{55}Fe の測定を行なう。

実験

化学分離

試料 C (これは Allende 隕石中、NMNH 3529 (33 kg) を 100% 用いた。Cl 分離のため NH_4Cl を carrier とし、加え HF, HNO_3 を用いて低温で分解し、 AgCl の形で Cl を分離した。残留物は HF, HNO_3 , HClO_4 で溶解し、エーテル抽出法による Fe を分離、さらに陰イオン交換法で Co を分離した。その他の核種はそれぞれ 2~3 段の陽イオン交換で分離精製した。

放射能測定

Fe, Ni, Co は電着法により無酸素銅板上に電着し、X 線および β 線、γ 線測定用試料とした。X 線測定装置は Takahashi⁵⁾ によって作製されたものであり、β 線測定装置は Yanagita⁶⁾ によるものであり、いずれも東京原子核研究所鉛山測定室内に設置されている。なお ^{60}Co の γ 線測定は物性研究所の Ge(Li) 測定器を用いた。 ^{22}Na , ^{26}Al はそれぞれ NaCl , Al_2O_3 の形で試料を作り、上記測定室内に設置されている γ-γ 同時計数装置を用いた。 ^{44}Ca , ^{55}Mn はそれぞれ CaF_2 , $\text{Mn}_2\text{P}_2\text{O}_7$ を試料形として X 線測定、 ^{44}Ti は TiO_2 形で β 線測定を行なう。

測定結果

^{59}Ni , ^{36}Cl の測定結果は既に報告されている⁴⁾。その他の核種にわたる測定結果の一例を示すと次のようになる。比較のために他報告による結果を示し

である。 ^{59}Ni , ^{36}Cl の結果から隕石中で γ 大子 β 熱中性子束が見出されたことは、 ^{60}Co の存在も当然の事であり、 ^{60}Co も現われており、大子 β 値を示している。また $^{56}\text{Fe}(n, 2n)^{55}\text{Fe}$, $^{56}\text{Fe}(p, pn)^{55}\text{Fe}$ 反応の他に $^{54}\text{Fe}(n, \gamma)^{55}\text{Fe}$ が大子 β 束を与えており、ほぼ $\frac{1}{2}$ が熱中性子による影響であると解釈される。なお討論会では ^{41}Ca , ^{55}Mn , ^{26}Al , ^{90}Tm の測定結果、及び放射化法による ^{55}Mn の測定結果も報告がなされた。

図1.

	^{22}Na (dpm/kg Meteor.)	^{60}Co (dpm/kg Meteor.)	^{55}Fe (dpm/kg Meteor.)
L. A. Rancitelli NMNH 3515 3499	69 ± 2 76 ± 3	41 ± 2 73 ± 3	————— —————
J. Tobaillem NMNH 3529 3525	67 ± 7 81 ± 2	121 ± 8 127 ± 3	————— —————
P. J. Cressy Jr. NMNH 3530 3531 3529 C1 C5 22-1	81 ± 2 84 ± 2 89 ± 4 85 ± 5 89 ± 3	77 ± 2 90 ± 2 181 ± 5 185 ± 6 166 ± 4	————— ————— ————— ————— —————
This work NMNH 3529	56 ± 11	220 ± 15	300 ± 35

- 1) L. A. Rancitelli et al.; Science. 166 (1969) 1269
- 2) J. Tobaillem, D. Nordemann; C.R. Acad. Sc. Paris. 271 (1970) 1249
- 3) P. J. Cressy Jr.; J.G.R. 77 (1972) 4905
- 4) 馬淵久夫・高橋宏, 中村裕二; 放射化学討論会(1972, 新潟)
- 5) 高橋宏, 馬淵久夫, 沢口博; 放射化学討論会(1972, 新潟)
- 6) 柳田昭平, 馬淵久夫, 沢口博, 堀江頼子; 放射化学討論会(1968, 熊本)

東大・理 馬淵 久夫

(1) 序

観測者のグループは4年前より隕石核種¹⁴⁶Smの研究を行ってゐるが, Juvinas achondrite について実験した結果, 固化時 (4.4×10^9 年前) の $^{146}\text{Sm}/^{149}\text{Sm} = 0.39 \pm 0.14$ という値が得られた (Notsu, Mabuchi, Yoshinaka, Matsuda, Ozima, Earth. Planet. Science Letters 17, 1973, 29~32)。この値を宇宙年代学に生かすのに不可欠となるのは, 両核種の生成速度 (両者とも p-process による生成) の比 P_{146}/P_{149} である。p-process のメカニズムとしては, r-process と同様, 超新星爆発時に s- or r-process nuclei と seed として起った p, γ または γ, n 反応との既が存力であるが, 理論的計算では存在度カーブ全体を定量的に説明できる条件 (T, ρ_p, ρ_n) を見出し得ないのが現状である。その他, ($p, \alpha n$), 破砕反応, 核分裂, (e^+, γ), (γ, e^-) などの反応が提案されてゐるが, いずれも信頼性に乏しい。

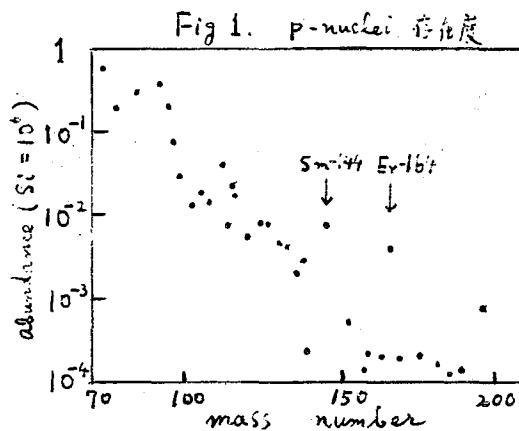
Audouze と Schramm (Nature 237, 1972, 471) は最近¹⁷⁰Smの重要性を指摘し, 理論計算が信頼できるもので, 単純な存在度カーブ (Fig 1) より内挿し, $P_{146}/P_{149} = 0.35 \sim 0.6$ の値を提案してゐる。しかしこのカーブが靠さないので, 特に¹⁴⁷Smの $N=82$ magic number なることから言へば, この置き位致せざるを得ない。観測は存在度パターンを基本から考え直す方向で試行錯誤した結果, p-nuclei と seed nuclei の存在度に smooth curve が得られる条件を見出した。この curve を使って求めた P_{146}/P_{149} を報告する。

(2) Criteria

考察を進める際の criteria としてつぎの二つを採らた。

A. isst-pair の p-nuclei について $N(Z, N)/N(Z, N+2) \approx 1$ であることを説明すること。

B. ¹⁶⁴Er の異常に高い存在度を説明すること。この核は核子の magic number に関係せず, p-nuclei の中の謎に乏しい。



(3) Seed Nuclei, 反応の時期と継続時間についての仮定

i) 反応は p, γ が主であるとする。……もし γ, n が主であるとすると $(\gamma, n)^2$ と $(\gamma, n)^4$ の products が 1:1 の存在度であることが説明できない (Criterion A)。 (p -nuclei/seed ≤ 0.1 なのでも $\frac{\gamma, n}{p, \gamma}$ の平衡に到達してはいるかと考えられる。)

ii) p -process の起った時期は γ -process と同時期とし、その有効反応時間は ~ 20 分とする (Criterion B と関連)。…… seed nucleus が $\gamma + s$ の場合、 γ -process の multiple neutron capture の γ 、20 分以内の shield で安定核にたどり着くと主には $\gamma + s$ が seed として有効。もし 20 分以上の shield nucleus がある場合には、 s の分が seed として働く。

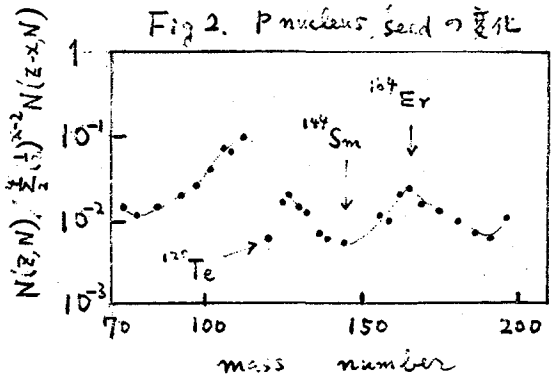
iii) $N(Z, N)$ の p -nucleus になるための seed となる同中性子体の質量数は γ のように仮定する。(Criterion A と関連)。

$$\begin{array}{l} N(Z-2, N) \frac{(p, \gamma)^2}{N(Z, N)} = 1 \\ N(Z-3, N) \frac{(p, \gamma)^3}{N(Z, N)} = \frac{1}{2} \\ N(Z-4, N) \frac{(p, \gamma)^4}{N(Z, N)} = \frac{1}{4} \end{array}$$

$(p, \gamma)^5$ 以上は negligible である。

(4) p -nucleus/seed nuclei の mass number curve

(3) の諸条件を用いて $N(Z, N) / \sum_x (\frac{1}{2})^{x-2} N(Z-x, N)$ と質量数の関係を表わしたのが Fig. 2 である。この図には s -process weak loop の核、 ^{138}La と ^{140}Te (odd-odd nuclei) は入れていない。図より明らかなように N magic の近傍で minimum があり、他はゆるい波打の滑らかなカーブである。 ^{164}Er は異常な位置を占めない。わずかに ^{120}Te のみがカーブから飛び出している。異常のように見えるが、seed の ^{118}Sn が $Z=50$ magic であるのが原因である。

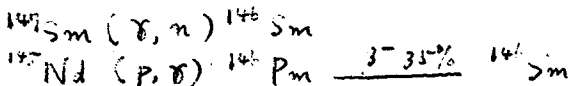


(5) P_{146} / P_{147}

Fig 2 の内挿により $N(^{146}\text{Sm}) / \text{seeds} = 0.0078$ と読み取れる。これより

$$(P_{146} / P_{147})_{p, \gamma} = 0.13 \text{ となる。}$$

これは ^{146}Sm は他の p -nuclei に比べて特別な事情があるので、その分も考慮に入れて必要があるが、現在のところ見解はできていない。



故に現在のところでは $P_{146} / P_{147} \geq 0.13$ である。

東京大学物性研究所、同理学部化学教室*

マックス・プランク研究所**

○今村恵子 今村孝雄* 島正子** 本田雅健

(1) 石質隕石の金属成分中の、宇宙線生成 ^{40}K .

我々は、熱の作用や解析上の困難が少ないと思われる、金属成分中の宇宙線生成核種を測定することと試み、61の隕石中の ^{40}K 、11の隕石中の ^{50}V を測定できた。まずマクネットで選別した金属粒を超音波洗滌等により精製し、溶解した後、 ^{39}K -濃縮同位体(と、トレーサ- ^{49}V)を加え目的元素を化学分離し、同位体比測定を行なった。Vについては、カーボンと共に Re-フィラメント上に塗付することにより、感度を上げ、安定なビームが得られた。珪酸塩等の混入は0.1~0.4%であった。隕石相互間の比較を行なうため、文献値を用いて、 $^{22}\text{Ne}/^{40}\text{K}$ の値を求めた。Thick Target Calculationの結果から、表中の先の4隕石はほぼ中程度の大きさ、深さで説明できたが、BruderheimとBreitscheidは低い値をもち、これら2隕石の放射能測定を考慮すると、 ^{22}Ne の逃げた可能性が考えられる。なお、Bruderheimで得られた ^{50}V は $(2.7 \pm 0.5) \times 10^{12}$ 原子/g-Feであり、 $^{50}\text{V}/^{40}\text{K} = 5.1$ は、小さな鉄隕石 Treysa の値 4.9 と比べて reasonable である。先の4隕石については size-depth から、 ^{40}K の生成速度は 1.5×10^{10} 原子/my と推定され、得られた ^{40}K -年代は、 ^{22}Ne -年代と近い値を示した。(Cf. Treysa で算出した生成速度 1.4×10^{10} 原子/my) Bruderheim と Breitscheid については、 ^{40}K -年代は ^{22}Ne -年代と比べて、70~100% 高りとみられる。なお、 ^{22}Ne -年代算出に当っては、生成速度、 1.2×10^{11} 原子/my を仮定した。Peace River, Bruderheim, Breitscheid については、 ^{40}K として、2~4回測定の前平均値を示した。

Chondrite	生成 K-40	Ne-22 TOTAL	K-40 age (my)	Ne-22 age (my)
	(10^{11} 原子/g Fe)	K-40 METAL		
Richardton	3.1 ± 0.6	9.0 ± 1.8	21 ± 4	23
Peace River	5.9 ± 0.7	7.8 ± 1.2	39 ± 5	38
St. Séverin	1.9 ± 0.4	8 ± 2	13 ± 3	12
Holbrook	2.1 ± 1.0	11 ± 5	14 ± 7	20
Bruderheim	5.3 ± 0.4	5.9 ± 0.7	35 ± 5	26
Breitscheid	6.3 ± 0.2	4.5 ± 0.5	42 ± 5	27

(2) 月面珪酸塩中の⁴⁰K.

既に、石質隕石中K含量の低いAchondriteについて、⁴⁰Ca (n, p) ⁴⁰Kの反応の結果生じた spallogenic ⁴⁰K がわずかに一例ながら検出されている。Wasserburgらは、Ca-poor Achondrite, Enstatite Achondrite として有名な Norton Countyについて測定を行ない、約2% Ca, 約100 ppm K, 照射年代 $1 \cdot 10^8$ yの条件下に、1.5%程の⁴⁰Kの濃縮を報告している。我々はこの結果を当然予測できる範囲内のものと考え、月試料から同様の反応による⁴⁰Kを検出して照射年代算を求める予備的な実験を試みた。月面試料は短いもので 10^7 y, 長いもので $4 \cdot 10^8$ yに及ぶ照射を受けており、かつ試料によってはK含量が低く、Ca含量はいずれも高いので、組合せ次第では、⁴⁰Kの濃縮度の高い試料を見出すことは間違いないものと判断した。また質量分析法におけるKの検出感度は高いので、1 μ g以下で充分であり、10 mg以下の試料でも測定が可能である。試料はHF処理後陽イオン交換によりKを分離し、過塩素塩の形で回収した。トレーサとして⁴²Arよりミルキングした⁴²Kを利用し、 β 計数法により化学収率を求めまた絶対量はフレーム法で求めた。表面電離法、Re又はW単一フィラメント法により⁴⁰K/⁴¹K(二次電子増倍管使用)を求めると、コレクターのみを迅速に交換して、³⁹K/⁴¹K(イオン電流をD.C.で直接増倍)の測定を同時に行ない質量差別及び分別効果を補正した。質量差別効果は1 massあたり1%にも達したが、補正後は再現性として $\pm 0.4\%$ 以下に収めうる見通しを得た。今回は殆ど純粋なCaAl₂Si₂O₈から成る60015を試料としたが、Kが50 ppm程度であるにもおかわらず、誤差範囲内で濃縮を認められた。これは試料が偶々 10^7 y程であったことにほかならないものと解された。今後は 10^8 y以上の測定容易な試料によって月面での⁴⁰Kの生成率をおさえてゆく予定である。尚、この目的に適した試料は、15号

中では15418, 15415, 15668, 15076等であろう。将来は土壌試料から鉍物分離して、K含量の低い部分について研究がなされるべきであろう。

	Peak Right ratio		normalized** Ca		K
	39/41	40/41*	40/41*	%	
試薬					
K ₂ CO ₃ 1 μ g	13.79	1.734	1.734		
"	13.91	1.752	1.744		
61241, 7	13.54	1.727	1.743	11	608
(soil)	13.56	1.722	1.737		
60015, 45	14.0	1.745	1.729	13	70
"	14.2	1.77	1.74		
60015, 28	14.14	1.760	1.738	13	54

** to 39/41 = 13.79 * $\times 10^{-3}$.

α -recoil をうけた ^{234}Th の固体中の行動とその地球化学的意義

学習院大学 理学部

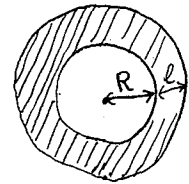
○ 秋光 正子
木越 邦彦

天然水中の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ の非平衡の主な原因として、 α -recoil による ^{234}Th の固体表面からの放出が考えられることは、すでに発表されている。この現象と共に、固体表面にある化石化された ^{234}Th の α -recoil の飛跡によって、 ^{234}Th あるいは ^{234}U が液相に徐々にとけだることも考えうるものがのべられてきたが、それを支持する直接の実験結果は示していなかった。ここでは、我々はこのような固体表面に顔を出している ^{234}Th の α -recoil の飛跡によって、 ^{234}Th あるいは、その壊変生成核 ^{234}U がまわりの水中にとけだすゆくことがどの程度おこりうるか、またその過程がどのようなものか、固体中の α -recoil range がどのくらいかを見る目的で実験を行った。

実験：硝酸ウラニルの濃水溶液 (^{238}U について $(1.81 \pm 0.03) \times 10^{21}$ atoms/ml) に直径 $140 \pm 17 \mu$ のガラスビーズ 100 gr を約 280 日浸し、 α -recoil をうけた ^{234}Th をガラスビーズの中に射ち込ませた後、ガラスビーズの表面をきれいにあらう。このビーズを、一定の温度の下で水に浸し、一定時間の間に水中にしみ出してくる ^{234}Th の量を測定した。水温は、 5.0°C と 48.4°C の場合について報告する。

実験の結果と考察：前述の洗ったガラスビーズに含まれている ^{234}Th の含有量は 840 ± 16 dpm/gr で、洗いのこされたと考えられる ^{238}U は 2.66 ± 0.01 dpm/gr で殆ど無視しうる量であった。

このガラスビーズを半径 R の球とし、右の図のようにそのまわりの l の距離、すなわち $R+l$ の半径の球内で ^{238}U が壊変したとき、(図の斜線の部分の硝酸ウラニル溶液内で壊変したとき) 長さ l の飛程をもつ ^{234}Th が、半径 R のガラス球には入りこむ確率を計算すると、



$$P = \frac{1}{\frac{4}{3}\pi((R+l)^3 - R^3)} \pi l \left(R^2 - \frac{l^2}{12} \right)$$

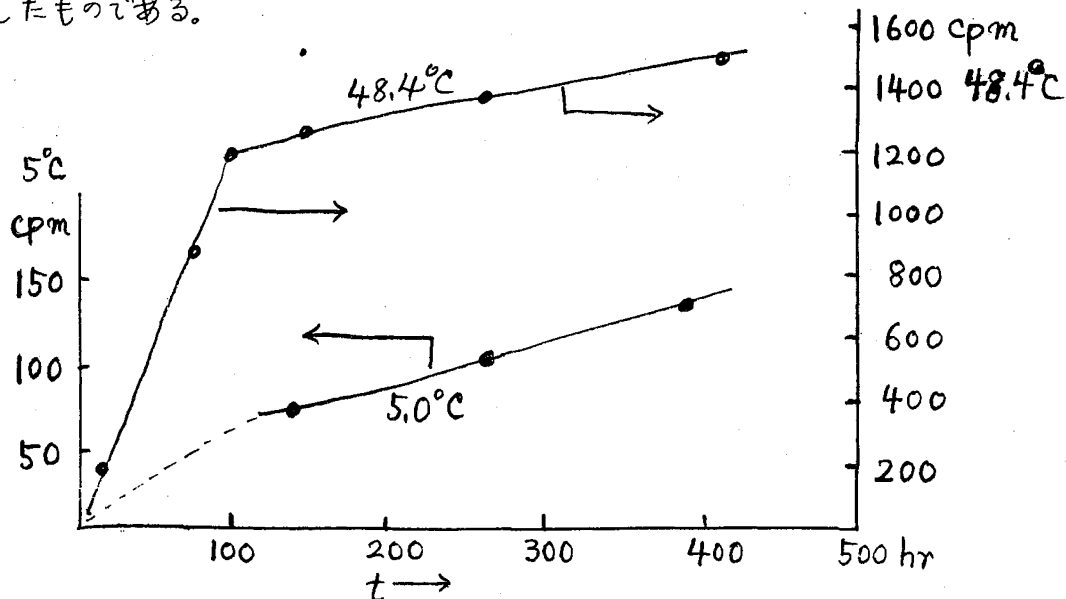
となる。1g のガラスビーズの球の数を N 、硝酸ウラニル水溶液中の ^{238}U の濃度を P (atoms/ml) としたとき、 N 個のガラス球中にはいつている ^{234}Th の原子数

の時間による変化は

$$n = N \times \pi l \left[R^2 - \frac{l^2}{12} \right] \times \rho \times \lambda_{238U} (1 - e^{-\lambda_{234Th} t}) / \lambda_{234Th}$$

で与えられる。ここで n はガラス球を硝酸ウラニル溶液につけはじめたからの時間で、 λ はそれぞれ、 λ を示した核種の壊変定数である。この式に実測された n の値を入れて、 l を求めると、 $928 \pm 24 \text{ \AA}$ となった。この飛程は硝酸ウラニル水溶液中のもので、飛程が密度に逆比例するとして、ガラス中の 234Th の飛程を求めると、 $836 \pm 22 \text{ \AA}$ となり、前に報告したジルコン中の飛程とよく一致した結果が得られた。

このガラスビーズを 5°C および 48.4°C の水中に放置したとき、水中にしみ出してくる 234Th の積算量は下図のグラフのようになる。このグラフで、 t 軸にとった 234Th の量は、ガラスビーズを水中に入れはじめたときの 234Th の量に換算した値で、溶出の現象をみるために、 234Th の壊変による減少がない場合に換算したものである。



この図から見られるように、化石化した飛跡からの溶出の機構はかなり複雑で、少なくとも2つの全く異なる機構を考えねばならないことが予想されるが、詳細は更に実験を重ねねば論じ得ないようである。しかし溶出機構がどのようなものであれ、 α -recoil を受けた核種が、その飛跡によって溶出してくる事実は、天然水中の $^{234U}/^{238U}$ 比を説明するとき、無視することはできない現象であると考えられる。

ジルコン中の核分裂片飛跡 I

九大 理 ○西田哲明 大崎進 梅本春次

セイロン, 福岡県糸島および南畑, インド, 台湾産の五種類のジルコンについてエッチング条件, アニールング曲線, 反応次数の決定および各々の次数における活性化エネルギーを求めた。その結果反応次数を従来のように一義的に一次として扱うことに疑問が持たれた。

エッチングは水酸化ナトリウム 20 g + 水 1 ml の沸騰溶液 (ステンレスビーカー中) で行ない水分の損失を防ぐためにステンレスビーカー上に還流冷却器をつけた。各々の試料に対する適当なエッチング条件はセイロン (180 ~ 200 分), 福岡県糸島 (25 ~ 40 分), 同じく南畑 (35 ~ 45 分), インド (30 ~ 50 分), 台湾 (70 ~ 90 分) という値が得られた。 (図1)

アニールング実験はシリコント電気炉中で 300 ~ 800 °C の温度範囲で一時間加熱後ピットの長さ と 密度 について光学顕微鏡下で計測を行った。

その結果セイロンのジルコンについてピットの平均の長さは 550 °C 付近から減少が観察され 730 °C 付近で約 1/2 に減少した。またピットの平均密度は 500 °C 付近から減少が見られ 620 °C 付近で約 1/2 に、また 700 °C 付近で約 1/4 に減少した。

福岡県糸島産のジルコンについては、ピットの平均の長さが 550 °C 付近から減少を示し 710 °C で約 1/2 に減少した。またピットの平均密度については 550 °C 付近から減少を示し 700 °C 付近で約 1/2 に、790 °C で約 1/4 に減少した。

一方インドのジルコンについては、ピットの平均の長さが 625 °C 付近から減少を始め 760 °C 付近で約 1/2 に減少した。またピットの平均密度は 580 °C から減少を始め、625 °C で約 1/2 に、700 °C で 1/4 に減少した。 (図2)

アニールング実験から得られた、各温度におけるピットの平均の長さ と 平均のピット密度の値を、

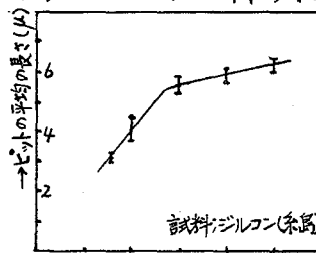


図1. エッチング条件

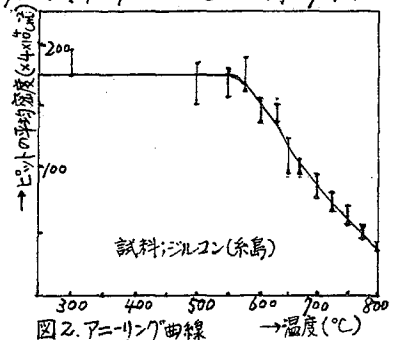
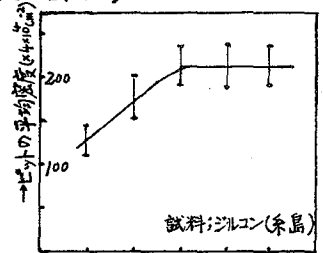


図2. アニールング曲線

一般的な速度論の式に代入して一次から五次ぐらいまでのみかけの速度定数を求めた。すなわちアニーリングをうけていないときのピットの平均の長さを R_0 、ある温度におけるそれを R_i とすると一次反応については、

$$k = 1/t \cdot \ln(R_0/R_i)$$

n 次反応については、

$$k = 1/t(n-1) \cdot [1/R_i^{n-1} - 1/R_0^{n-1}]$$

(但し k は速度定数、 t は時間)

同様にアニーリングをうけていないときのピットの平均密度を N_0 、ある温度においてアニーリングをうけたときのそれを N_i とすると一次反応について、

$$k = 1/t \cdot \ln(N_0/N_i)$$

n 次反応については、

$$k = 1/t(n-1) \cdot [1/N_i^{n-1} - 1/N_0^{n-1}]$$

測定値を代入して、速度定数を求めた。

このようにして得られた各次数における速度定数の比の対数値を絶対温度の逆数に対してプロット (Arrhenius Plot) を行ない、活性化エネルギーが一定という仮定のもとで、直線性からセロンジルの場合には、ピットの平均の長さから見ると一次であり直線の傾きから 1.7 eV という活性化エネルギーが得られた。またピットの平均密度の側からは三次が妥当で活性化エネルギーは、同じく 1.7 eV という値が得られた。

福岡県糸島産のジルコンについては、ピットの平均の長さ、平均密度のいずれの場合からも四次が最も妥当と思われる。活性化エネルギーは、ともに 2.3 eV という値であった。図3)

インドのジルコンについても糸島産のジルコンの場合と同様にピットの平均の長さ、平均密度のいずれからも四次が妥当で、直線の傾きから活性化エネルギー 2.6 eV が得られた。

福岡県南畑および台湾産のジルコンについては、同様の実験を目下行っている。

従来実験室におけるアニーリング実験の値から自然界における鉱物等の年代推定を行なうとき一義的に一次反応としてアニーリングを扱い、一次反応における活性化エネルギーの値を用いて年代の推定がなされてきた。これに対してアニーリング実験の値に普通の速度式を適用することにより適当な反応次数が見つかり、活性化エネルギーの値は次数によって大きく異なる。このことから、ただ一義的に一次反応として取扱うことによって低い温度におけるアニーリングの補正を行なうことに対して疑問が持たれる。

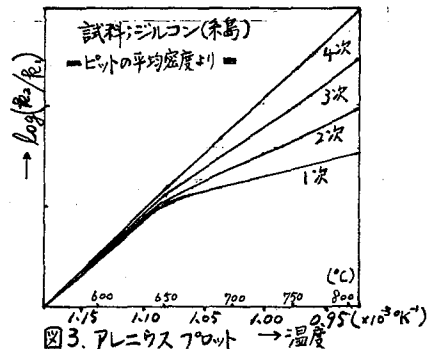


図3. アレニウスプロット

フィシヨントラックよりの核分裂片の溶出

2 A 11

東大物性研 ○吉田 邦夫 宮島 恭子 本田 雅健

序. 高エネルギー粒子が物質に入射した場合、物質の種類、粒子あたりのエネルギー、質量等によって定まる飛程の間にエネルギーを失ない静止する。その間、飛跡に沿って、物質の構造に損傷を与えるが、各種絶縁性固体では、適当なエッチング法により、いわゆるトラックを生成させることができ、広範な応用がはかられている。

本研究では、ポリカーボネート・フィルムに対するエッチング条件を検討し、更に、捕捉された粒子を溶出させる予備的実験を試みた。

1. ポリカーボネートに対するエッチング条件の検討

^{252}Cf の核分裂片を照射したポリカーボネート (Lexan) を用いて、常温での、簡便、迅速なエッチング条件を検討した。線源 (約 $0.01\mu\text{C}$) から 5 mm 離して厚さ 200μ のレキサンを置き、直径 8 mm の円形内に数分~数十分照射した。トラック密度は $10^5\sim 10^6/\text{cm}^2$ であった。種々の化学試薬を用いてエッチングし、顕微鏡下で観察したところ、有機溶媒の効果が大きいことがわかった。

Table 1. Etching Time for the Track - $2\mu\phi$, 5μ deep.

Etchant		Time
$(\text{CH}_3)_4\text{NOH}$ in CH_3OH	10%	5 min
	5%	15
	2.5%	36
$(\text{CH}_3)_3(\text{C}_2\text{H}_4\text{OH})\text{NOH}$ in CH_3OH	13%	5
$(\text{CH}_3)_3(\text{C}_6\text{H}_5\text{CH}_2)\text{NOH}$ in CH_3OH	18%	< 2
10% $(\text{CH}_3)_4\text{NOH}$ $\text{CH}_3\text{OH} : \text{H}_2\text{O}$		
	90 10	6.5
	80 20	13
	50 50	80
	0 100	~4 days

図. トラックの形状 (5.6% $\text{KOH} \cdot \text{CH}_3\text{OH}$)

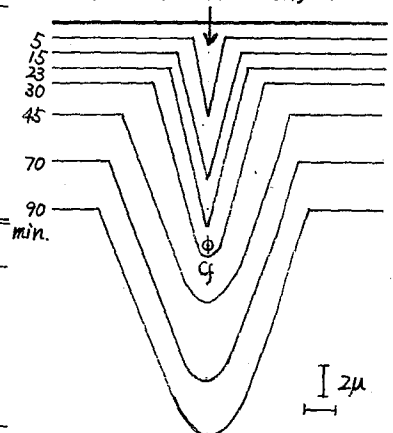


Table 2. Cone Shape at 10 min Etching

	ϕ	d	5.6% $\text{KOH} / \text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$		
			4	7	
4% $\text{NaOH} / \text{CH}_3\text{OH}$	2	5	$\text{C}_3\text{H}_7\text{OH}$	5	8
$\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$	2	5	$\text{C}_4\text{H}_9\text{OH}$	4	7
5.6% $\text{KOH} / \text{CH}_3\text{OH}$	4	7	$\text{C}_5\text{H}_{11}\text{OH}$	4	8

2. 核分裂片の溶出実験

前述の実験に見る通り、粒子停止点を越えて更に深くエッチングされる。従って適当なエッチングを行えば、核分裂片は溶液中に溶出する。 $^{235}\text{U}(n, f)$ によって生ずる核分裂片の質量とエネルギー(飛程)との間には一定の関係があり、軽い分裂片ほど高いエネルギーを有し、トラックは長くなると思われる。そこで、化学試薬により適当なエッチングを行おうと、まず重核が溶出するはずであるが、粒子通過の損傷と溶解速度の関係は一様ではないので、実際には、複雑な様相を呈するであろう。ここでは、天然ウランの中性子核分裂片をポリカーボネート・フィルムに捕捉し、エッチングにより重核と軽核を選択的に溶出させることを試みた。

照射 線源に近い距離で、しかも垂直方向に近いトラックが得られるような幾何学的条件を満たす方法を考えた。幅8mm長さ62.8mmのポリカーボネートフィルム(バイエル社製、Makrofol KG)60 μ をアクリル製フロックの直径20mmの円筒内に装着した。厚さ2 μ のポリカーボネート・フィルム上に、天然ウラン水溶液を滴下、風乾し、約1 μg とし、この線源を円筒状フィルムの中心に設置した。サンプルは、上記フロックを2個1組とし、立大原子炉 TRIGA MARK II で30分間照射した($5 \cdot 10^{11} \text{ n/sec}\cdot\text{cm}^2$)。トラック密度は、重なり合うことを避ける為、 $< 10^6/\text{cm}^2$ としている。

溶出、放射能測定 エッチングは、5.6% - KOHメタノール溶液を用いて、同一サンプルについて、10分、15分、20分[合計]行なった。エッチング試料は、それぞれ50cc Ge(Li)検出器により、 α スペクトル(1keV/d)を測定し、標準試料(非エッチング試料)のそれと比較することによって、核分裂片の溶出を検討した。核種の確認は、壊変曲線を求めて行ない、一致するもののみ用いた。

Table 3. Retention of Fission Fragments

Energy	Fragment	T $_{1/2}$	Etching Time	Retention %		
				10	15	20 min
Heavy	150 keV ^{131}Te	24.8m	100	92 \pm 3	72 \pm 7	44 \pm 2
	166 ^{139}Ba	84	100	101 \pm 1	71 \pm 2	53 \pm 8
	190.4 ^{141}Ba	18	100	82 \pm 6	65 \pm 18	7 \pm 7
Average in Heavy Particles			100	92	69	35
Light	307 keV ^{104}Tc	18	100	82 \pm 0	94 \pm 1	100 \pm 9
	358 ^{101}Tc	14	100	81 \pm 19	57 \pm 10	59 \pm 4
	920 ^{94}Y	20.3	100	80 \pm 5	95 \pm 5	65 \pm 9
Average in Light Particles			100	81	82	75

軽核が保持されている傾向がみられるが、はっきりした結果が得られなかったのは、幾何学的条件が十分に満たされていないためと思われる。

^{41}Ca の半減期測定

(東大・理) 馬淵久夫, 高橋宏, 中村裕二, 野津寛治,
糸口博

^{41}Ca は、E. C. 壊変で ^{41}K になり、その際カリウムのX線を放出する。この ^{41}Ca の半減期測定は、この核種の半減期が約 10^5 年と比較的長いこと、X線のエネルギーが低いこと(3.3 keV)などのため難しく、現在まで、YAFFEらによる二例： $(1.1 \pm 0.3) \times 10^5 \text{ y}$ (1953), $(7.5 \pm 1.1) \times 10^4 \text{ y}$ (1962)とWAHLINによる一例： $1.2 \times 10^5 \text{ y}$ (1966)があるにすぎない。この核種は、宇宙化学的にも重要であり、隕石中から検出されることが期待されているが、検出例はまだ一例(Granes中: MABUCHI et. al (1968))しかなく、この値を用いて細かい議論ができるところまで達していない。しかし、低バックグラウンドの精能のよいX線測定器を用いれば、 ^{41}Ca の定量的検出も困難でなく、 ^{41}Ca の半減期をできるだけ正確に測定しておく必要が生じる。

本測定では、従来の ^{41}Ca 半減期測定が、 ^{41}Ca を作成する際のフラックスモニターとして Co を用いるのに替え、 Ca 試料中にわずかに含まれる ^{44}Ca の(n, γ)反応でできる ^{45}Ca を用いた。原理は次の様である。 Ca 試料を熱中性子で照射したのちにできる放射性 ^{41}Ca と ^{45}Ca の放射能を A_{41} , A_{45} とする。

$$A_{41} = N_{40} \int \sigma_{40} (1 - e^{-\lambda_{41}t}) \quad (1)$$

$$A_{45} = N_{44} \int \sigma_{44} (1 - e^{-\lambda_{45}t}) \quad (2)$$

(但し、 N_{40} , N_{44} は試料中の ^{40}Ca , ^{44}Ca の原子数、 \int は熱中性子束、 σ_{40} , σ_{44} は ^{40}Ca , ^{44}Ca の熱中性子捕獲断面積、 λ_{41} , λ_{45} は ^{41}Ca , ^{45}Ca の壊変定数、 t は照射時間)

となる。(1)式では、 $\lambda_{41}t \ll 1$ が成り立つので、

$$A_{41} = N_{40} \int t \sigma_{40} \lambda_{41} \quad (1')$$

とおけるが、(2)式では、

$$A_{45} = N_{44} \int t \sigma_{44} \lambda_{45} a \quad (2)$$

$$a = (1 - e^{-\lambda_{45}t}) / \lambda_{45}t$$

の様には補正值 a を用いて書き直す。(1')(2)より

$$\frac{A_{41}}{A_{45}} = \left(\frac{N_{40}}{N_{44}}\right) \left(\frac{\sigma_{40}}{\sigma_{44}}\right) \left(\frac{\lambda_{41}}{\lambda_{45}}\right) \left(\frac{1}{a}\right) \quad (3)$$

となるので、 ^{41}Ca の半減期を T_{41} , ^{45}Ca の半減期を T_{45} とすると、

$$T_{41} = \left(\frac{N_{40}}{N_{44}} \right) \left(\frac{\sigma_{40}}{\sigma_{44}} \right) (T_{45}) \left(\frac{1}{a} \right) \quad (4)$$

となる。(4)式から分る様に T_{41} は f に無関係な値として求めることができる。

試料は ^{40}Ca 濃縮同位体(化学形は CaCO_3 , $^{44}\text{Ca}/^{40}\text{Ca} = 2.2 \times 10^{-4}$)を用い、照射は、JRR-2で1969年7月28日から8月9日にかけて289時間56分行った。(fluxは $\sim 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$)。照射試料をdil HNO_3 にとかしたのち、陽イオン交換分離を含む通常の Ca 精製法で不純物を分離し、最終的には CaC_2O_4 の形で測定試料とした。試料の重量の異なる4試料(サンプル番号 e_{41} , e_{42} , e_{43} , e_{44})を作成し、夫々について、 ^{45}Ca β線絶対測定と、 ^{41}Ca X線絶対測定を行なったが、後者の測定に際して ^{45}Ca のβ線が妨害となるので、X線測定はβ放射能が非常に低くなるまで待って行った。そのため ^{41}Ca β線測定は1970年1月16日に行ない、 ^{41}Ca X線測定は1973年7月に行なった。また、β線測定は1972年12月19日にも行ない、半減期の確認を行なったところ、一般に用いられれている165日と一致していた。

夫々の測定値と、計数効率、自己吸収、マイラーによる吸収等の補正さほどにした照射直後の放射能値とを表にして次に示す。X線測定の際の W_K 値は0.150, $K/K+L$ 値は0.909 (MABUCHI et. al (1968)の用いた値)を用いた。

サンプル	^{45}Ca β線測定		^{41}Ca X線測定		$\frac{A_{45}}{A_{41}}$
	測定値(70年1月16日) cpm	照射直後の絶対値 dpm	測定値(73年8月) cpm	照射直後の絶対値 dpm	
e_{41}	1705.6 ± 14.0	4644.7 ± 38.1	1.70 ± 0.11	41.9 ± 2.7	110.9 ± 8.1
e_{42}	2674.2 ± 23.8	7542.5 ± 67.1	2.70 ± 0.18	71.1 ± 4.7	106.1 ± 8.0
e_{43}	3319.4 ± 26.4	9362.2 ± 74.5	3.58 ± 0.36	94.3 ± 9.5	99.3 ± 10.9
e_{44}	3921.0 ± 28.6	11192.3 ± 81.6	3.65 ± 0.23	99.6 ± 6.4	112.4 ± 8.0
平均値 (σ^2 で重みつき)					108.2 ± 4.3

σ_{40} , σ_{44} の値としては最近の測定例、 $\sigma_{40} = 0.40 \pm 0.04 \text{ b}$, $\sigma_{44} = 1.03 \pm 0.09 \text{ b}$ (CRANSTON and WHITE ('71))を用い、ここで得た測定値とともに(4)式に代入すると、

$$T_{41} = (8.85 \pm 0.35) \times 10^4 \text{ y}$$

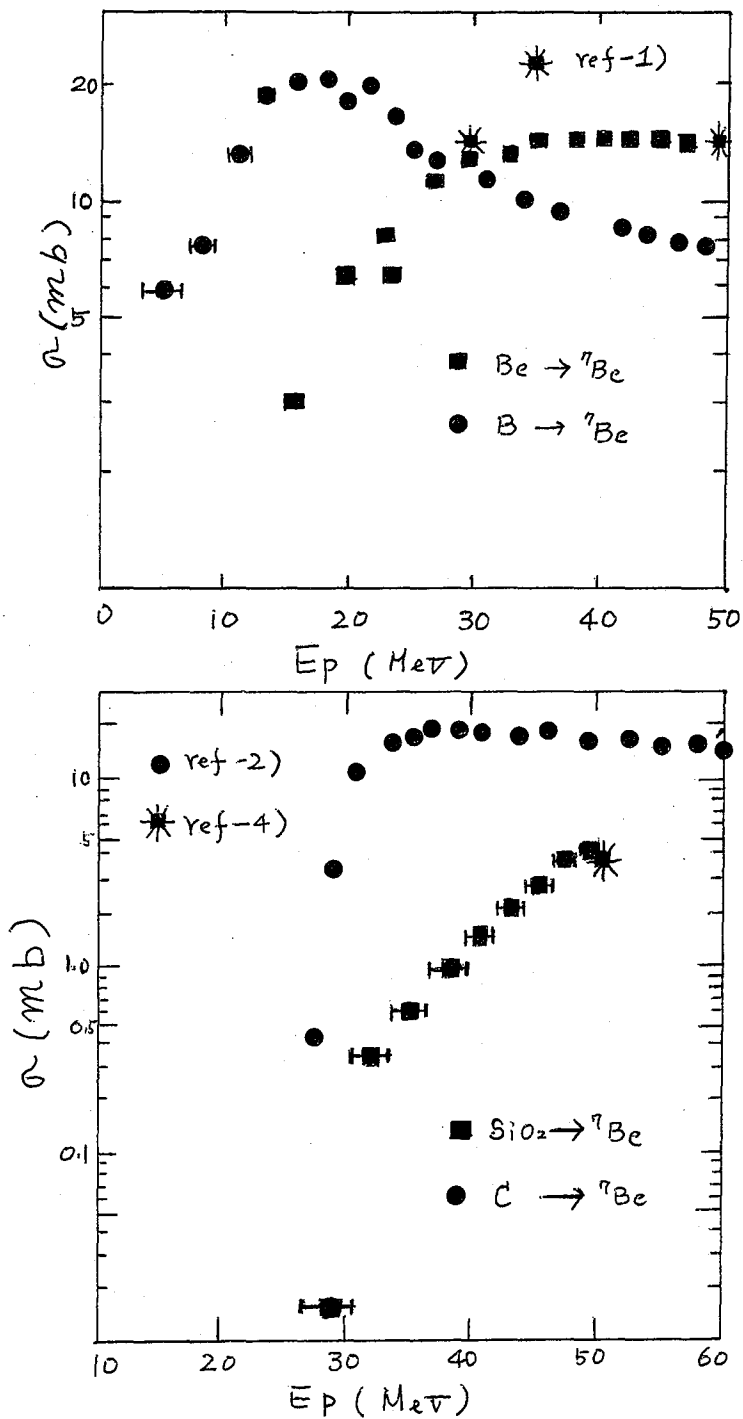
となる。(尚、補正值 a の値は0.9750である)。この値は σ_{40} , σ_{44} の測定の誤差や測定者間の誤差が居まれているが、 σ_{40} , σ_{44} 測定の誤差を考えると、10%以上の誤差を見込まねばならない。また、 σ_{40} , σ_{44} は測定者によって最大100%異なる値が報告されていることにも注意しなければならぬ。YAFFEらの1962年のデータを我々の用いた W_K , σ_{40} 等で計算し直すと $1.7 \times 10^5 \text{ y}$ となり我々の値と倍近く異なる。

○井上照夫・田中重男(東大核研)

Table 1. ⁷Be producing Reactions below 50 MeV

Target	Reaction	Threshold Energy (MeV)
Li (Li ₂ O-powder)	⁷ Li(p, n)	1.9
Be (Be-Metal)	⁹ Be(p, t)	13.4
	(p, dn)	19.5
	(p, p ₂ n)	22.8
B (B-Metal)	¹⁰ B(p, α)	1.2
	(p, p ₁ t)	20.5
	(p, ³ He n)	21.1
	(p, 2d)	25.0
	(p, 2p ₂ n)	29.9
	¹¹ B(p, α n)	11.2
	(p, p ₁ t n)	32.8
C (Graphite)	(p, ³ He ₂ n)	33.7
	(p, 2d n)	37.2
	(p, 2p ₃ n)	42.1
	¹² C(p, ⁶ Li)	24.5
	(p, α d)	26.1
N (VN-powder)	(p, α p n)	28.5
	(p, t d p)	47.6
	¹⁴ N(p, ⁸ Be)	10.5
	(p, 2α)	11.2
	(p, ⁷ Li p)	29.8
O (SiO ₂ -glass) (CaO-powder)	(p, ⁶ Li p n)	37.6
	¹⁶ O(p, ¹⁰ B)	26.8
	(p, ⁶ Li d)	31.6
	(p, 2α d)	33.1
	(p, ⁹ Be p)	33.8
(p, 2α p n)	35.5	
²⁸ Si(p, ²² Na)	25.1	

軽元素(Li, Be, B, C, N, O)と5~50 MeV 陽子との反応による⁷Beの生成断面積を測定した。必要な場合は化学分離を行い, Ge(Li)および NaI-Wellで⁷Beの477 KeV γを測定した。図中の断面積は天然同位体組成の軽元素をターゲットとした値である。Cは ref-2)の値であり, Li, N, O, ターゲットについては現在実験中である。これらの結果は宇宙における軽元素の同位体組成に関する研究の基礎データとして役立つものであり, さらに⁷Be以外の軽核の生成断面積を質量分析器によって測定する際の基準になる。また軽元素を不純物あるいは合金微量成分として金属などの放射化分析にも応用できよう。



References

- 1) Be - M. Barbier and S. Segnier, J. inorg, Nucl, Chem. 33, 2720 (1971)
- 2) C - I. R. Williams and C. B. Fulmer, Phys. Rev. 154, 1005 (1967)
- 3) N - M. Epherre and C. Seide, Phys. Rev. C-3, 2167 (1971)
- 4) SiO_2 - R. Bimrot and H. Gauvre, Compt, Rend, Series B 273, 1054 (1971)

新潟大. 理. ○小山誠太郎 外林武 鈴木俊雄 中原弘道
 岡田建紀 仁藤修 加藤信弥
 新潟県公害研 殿内重政

第15回中国核爆発実験は昭和59年6/27, 12時5分(日本時間)に西部地区上空で行なわれた。新潟では7/1日早朝最初の放射能(雨)を検出。次いで7/2から数日にわたってシイアントパーティクル(GP)が降下。GMサーベイメータ(1.5 mg/cm² 雲田窓)で測定した所, 300~11,000 cpmのGPが1m²当り1~2個検出。これらのGPのうち~2,000 cpm以上のものを採取し, 顕微鏡観察, Ge(Li)検出器によるγ線測定およびEMP分析を行なった。今回のGPは従来のものとはかなり異なっていて極めて微弱な核力的力によって1μm以下の放射性微粒子に分かれたため, 顕微鏡下で確認できたもの(表1のGP 1~10)は10個にすぎない。GP-2, 10は高比放射能の球形粒子で従来のものによく似ている。単一体として分離できなかった微粒子は一まとめにして"集合体"として表1に示す。

γ線測定により確認した核種及び爆発時における各核種の原子数の⁹⁹Moの原子数に対する比(Fractionation 値)を表1に示す。参考のため第12回(雨)および第13回(GP)のFractionation 値をも示す。今回のGPが示すFractionationの傾向は第12, 13回の傾向および文献に記されているものとはくらべて極めて特異的である。従来は, 雨中に¹⁰³Ru, ¹³¹I, ¹³²Te, ¹⁴⁰Ba, ²³⁷U, ²³⁹Np が多く含まれ, GPには^{95,97}Zr, ¹⁴¹Ce, ¹⁴⁰Nd などが多かったが, 今回はGP中に¹⁰²Ru 等が多く, ⁹⁷Zr 等はほとんど検出されず。今回の雨はGPと差異が認められなかったので, 7/11雨をミリポアフィルタ(0.45μ)で濾過した。濾液中には放射能が検出されず, 残渣にのみ少量の放射能を検出。この残渣のFractionationは集合体のものと似ていて, 今回の雨には微粒子が多いことが分った。なお, 集合体のFractionationはGP-1~10のもの平均値を示している。

¹⁰⁵Ru-¹⁰⁵Rh が検出された(表1)。これは第12, 13回でも, また従来の文献にも発表された例はない。この核種のFractionationは(²³⁵U+n_{th})の核分裂生成率を假定する場合, GP-1, 3, 7では~100の異常に大きな値である。²³⁷U/²³⁹Npは従来一定と考えられていたが, 表に示すように今回は0.8~4.0までバラバラしている。今回のFractionationに因する上述の特異性および表中の値の分布から核種間の相関性を求めるのは困難なように見えるが, 2核種間のFractionation 値をX, Y軸にプロットすると(¹⁴⁰Ba, ¹³²Te); (¹⁴⁰Ba, ¹⁰⁵Rh); (¹⁰⁵Rh, ¹³²Te); (¹⁰⁵Rh, ¹⁰³Ru); (¹³²Te, ²³⁷U)の向に有意の相関性が見出されたが, ¹³¹Iおよび²³⁷Uについては有意な関係がなく, 例えば, (¹³¹I, ¹⁴⁰Ba)と(¹³¹I, ²³⁷U)では粒子によって二種類の関係が存在する。

顕微鏡観察によれば, GPは核力的力に非常に弱く, 多数の微粒子にくだけ易く,

GP-2, 10.Eのせけは、すべて球形からほど遠い奇形である。各粒子の顕微鏡下での断面積を表中に示し、相対的大きさの目安とした。粒子の色はすべて無色に近く、従来のような褐色または黒色に近いものはなかった。

EMPによるGPのホスト物質の分析結果によると、GP-3 [Si > Ca > Al, (K, Fe)]; GP-4 [Ca > Si > (Fe, Mg, S)]; GP-8 [Al > Si > K > Fe (Mg, Br)] となり、それぞれ(長石, CaCO₃); (CaCO₃, SiO₂); (白雲母)のような炭酸塩物が相当するものと考えられることかできる。

第1表 中国第15回核爆発実験によるフォールアウトのFractionation (⁹⁹Moに対する比)

sample	nuclide fission yield cooling time (%)	⁹⁹ Mo- ^{99m} Tc	¹⁰³ Ru	¹⁰⁵ Ru- ¹⁰⁵ Rh	¹³¹ I	¹³² Te- ¹³² I	¹⁴⁰ Ba- ¹⁴⁰ La	²³⁷ U *	²³⁹ Np *	²³⁹ Np/ ²³⁷ U	粒子 断面積 (μ ²)
		6.06	3.0	0.95	3.1	4.7	6.35	—	—	—	
Rain(7/1)2L	4.51 ^d	1.00	0.27	1.69	1.31	0.41	~0	0.72	0.57	0.80	
Rain(7/1)50L	5.16 ^d	1.00	~0	~0	0.73	0.23	~0	0.89	0.81	0.91	
Rain(7/1)500 ppt.	16.59 ^d	1.00	8.40	—	0.60	2.76	1.15	1.95	—	—	
GP-1(五角形)	6.60 ^d	1.00	16.6	105.2	~0	2.58	1.77	1.96	1.72	0.88	844
GP-2(球)	5.62 ^d	1.00	1.73	~0	1.77	1.68	0.24	9.27	15.4	1.67	98.5
GP-3(四角形)	6.11 ^d	1.00	16.2	102	~0	2.68	2.55	~0	~0	—	710
GP-4	7.57 ^d	1.00	14.3	48.4	1.14	3.03	0.80	0.78	1.21	1.54	2090
GP-5(と31)	8.01 ^d	1.00	0.92	7.61	~0	0.26	0.48	0.10	0.33	3.22	
GP-6(と31)	8.59 ^d	1.00	11.8	72	~0	3.54	2.67	0.79	1.95	2.45	540
GP-7	9.00 ^d	1.00	7.95	98	2.56	9.05	4.32	1.23	4.85	3.96	554
GP-8(と31)	10.16 ^d	1.00	285	44	~0	1.28	2.02	0.72	2.79	3.88	940
GP-9	11.55 ^d	1.00	16.5	—	0.52	3.41	2.12	3.61	6.59	1.83	617
GP-10(球)	10.71 ^d	1.00	~0	17.4	~0	0.31	0.48	0.20	0.58	2.90	340
集合体	9.69 ^d	1.00	8.00	53	0.51	2.38	1.45	1.46	2.55	1.75	
Rain(第12回)	6.19 ^d	1.00	3.52	~0	3.76	1.12	1.42	3.65	8.9	2.5	
GP-2(第13回)	4.25 ^d	1.00	~0	~0	0.23	0.15	0.20	0.12	0.38	3.2	

*) ²³⁷U, ²³⁹Np は原子数の比を示す。

**) ¹⁰⁵Ru-¹⁰⁵Rh の比は (²³⁷U + n_{th}) の核分裂生成率を假定する場合、この値の0.22倍になる。

文献: 小山地: 第16回放射化学討論会要旨集 p.141 (1972, 新潟)。

低レベルX線カウンターのバックグラウンドについて

原子燃料工業武山研究所 の高橋 宏
 東京大学 理学部 物理 霜越 丈夫
 東京大学 理学部 化学 馬淵 久夫 浜口 博

〔序論〕 昨年の才16回放射化学討論会に於て、筆者らの製作した低レベルX線測定装置の紹介をした。その段階で、装置は筆者らの研究目的を達成するに充分な性能を備えてはいたが、更に装置の自然計数を下げる為、pulse rise time discrimination の適用を試みた。

Pulse rise time discrimination では、残念ながら自然計数を顕著に減少させることはできなかった。しかしその実験の過程で、X線カウンターのバックグラウンドについてかなりはつきりした知見を得ることができた。

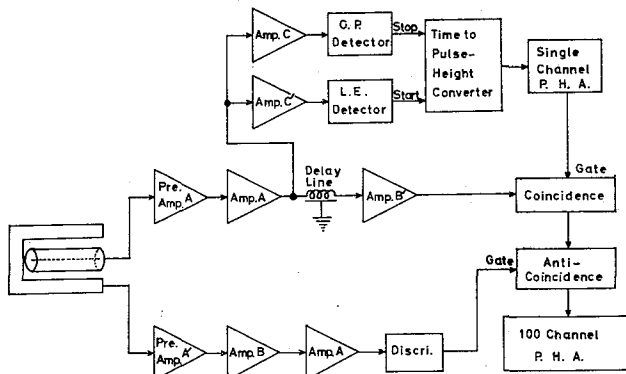
即ち充分な物質的遮蔽及び逆同時計数法による回路技術的遮蔽を施してなお残存する自然計数の主因は、カウンター材料中に含まれる放射性不純物であると推定される。

カウンター材料に関しては、文献も調べ充分な注意を払い、その結果として無酸素銅を使用したのであるが、無酸素銅中には10 keV以下のエネルギーを持った放射線を出す不純物が含まれていると考えられる。また断定するわけではないが、この推定を裏付けた有力な事実として、カウンター内面をニッケルでコーティングしたところ自然計数が約10分の1に減少したことが挙げられる。

〔Pulse Rise Time Discrimination〕 近年X線天文学の分野では、宇宙空間のX線を観測する為ロケットに積み込むX線カウンターの自然計数を除去する方法として、pulse rise time discrimination を採用するようになって来た。

才 1 図

Block Diagram of Low Level X-Ray Counting System With Pulse Rise-Time Discrimination Circuits



これはX線カウンターに於て、測定可能なX線によって生ずる電流パルスの立ち上がり時間 (rise time) は速く、自然計数の主因である宇宙線によって生ずる電流パルスの rise time は遅いことに着目し、これを回路的に選別して自然計数を除去するものである。従来の逆同時計数装置に較べ、重量的に、また空間的に、ロケットの負担を大幅に軽減するものとして考えられた。

のである。筆者らはこの装置を、物質的遮蔽を十分に施し逆同時計数装置を備えた筆者らのX線測定装置に更に付け加えてみた。

装置全体のブロックダイアグラムはFig. 1のようになる。図の装置では、パルスのrise timeを検出するには、パルスを微分し、微分パルスの立上り瞬間(leading edge)と微分パルスが零点を通過する瞬間(cross point)を検出し、その時間的間隔をtime to pulse height converterでパルス波高に変換している。次のsingle channel波高分析器により、波高の低いもの即ちrise timeの速いパルスのみを選別し、それとカウンタ-の出力パルスとをコインシデンスをとり、rise timeの遅いパルスは除去するようになっている。

Rise timeを検出する回路の詳細は、巻の第10回理工学に於ける同位元素研究発表会に於て発表したもので、ここでは省略する。

【結果と考察】 まずtime to pulse height converterの出力パルスを100 channel波高分析器の入力に入れて ^{55}Fe の標準線源及び自然計数パルスの立上り時間の分布(pulse rise time spectrum)を調べた。その結果 ^{55}Fe 標準線源パルスは大部分が一定の速いrise timeを持ち、一方自然計数パルスのrise timeは標準線源に較べて広く分布している事が認められた。但しその幅がそれほど程顯著ではなかった。

そこでFig. 1に示した装置の組合せにより自然計数パルスを調べた。実験の要点はsingle channel波高分析器のwindow幅の設定、即ち選択すべきパルスのrise timeの幅の決定であった。window幅を狭く設定すると装置の自然計数は減少するが測定すべきX線の計数効率も落ちてしまう。計数効率を落とすまいとすれば自然計数はほとんど減少しない。

装置及び回路の工夫を種々試みたが、結局筆者らの装置の自然計数パルスにはrise time discriminationによって除去できるようなものは殆んど残っていない、残存自然計数の原因はむしろカウンタ-の内部にあるのではないかと考えを強めた。

【カウンタ-内壁のニッケルコ-ティング】 筆者らは既に幾つかの厚石中の ^{59}Ni の定量を本装置を用いて行った。測定はニッケル試料をカウンタ-内壁に電着する方法を採用している。

但し、ニッケル試料を電着した場合の方が電着する以前に較べて若干装置の自然計数が減少する現象があり、それ程大きな注意を払ってはいなかった。しかしrise time discriminationの実験結果を踏まえて仔細に検討した結果、ニッケル試料を電着した土居の場合に自然計数が減少し、しかも電着したニッケル試料が多い程自然計数の減り具合が大きい事が明らかになった。これはカウンタ-本材料の無酸素雰囲気中に放射性不純物が含まれており、その放射線をニッケル試料が遮蔽する為と解釈すれば説明できる。

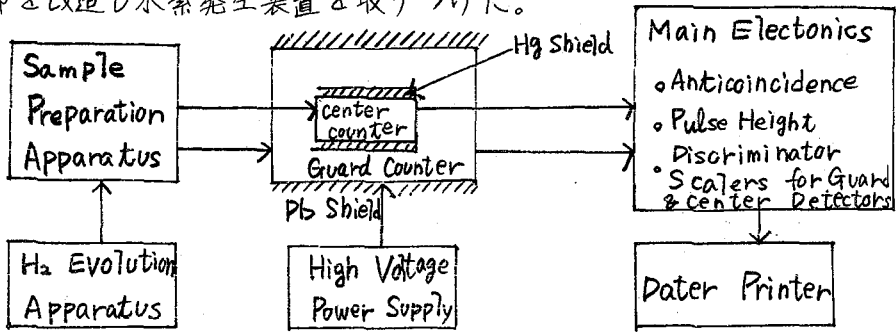
そこで、試薬特級の塩化ニッケルのニッケルを約 $41\text{mg}/\text{cm}^2$ の厚みで電着(コーティング)した処、自然計数は何も電着してない場合に較べて10分の1に減少した。即ち4 keVから5 keVまでの1 keV当りの自然計数は、現在0.1cpmである。

気体増幅計数法による低レベルトリチウム測定法の考察

(九大理) 〇高島良正 ・ 百島則幸
(九大工) 坂田武彦

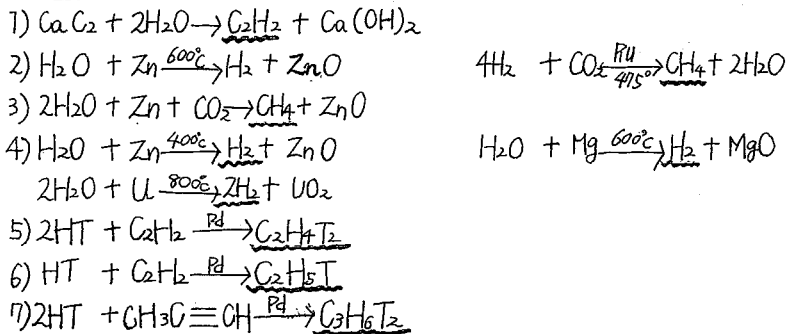
目的 天然に通常存在する程度の低レベルトリチウム(0~1000T.U.)をできるだけ短時間に、正確に測定する方法を考案することを終局の目的とする。まず第一段階として、気体増幅計数法によるトリチウム測定法のいろいろな条件を検討しどの方法が低レベルトリチウム測定に最も適しているかを見出すことを目的とした。

装置の概要 装置としては、1969年以来九大放射性同位元素総合実験室に設置され、放射性炭素年代測定に利用されているものを利用した。ただし、試料調製装置部を改造し水素発生装置を取りつけた。



水素発生装置で作られた水素は試料調製装置に導入し、精製して Center counter に入れる。Center Counter は体積がスルで、そのすぐ周りは厚さ2cmの30蒸留水銀次にかードカウンター、さらに厚さ10cmの鉛で囲まれている。高圧電源は大阪電機製HT-108型および Power Disigns Pacific社製の5000V電源を用いている。計数信号は主エレワトニクス部に送られ、次に結果が自動的にプリントされる。

試料気体調製法 試料気体調製法として次の反応を利用したものと考えられる。



これらの反応の中で1)と2)はIsotope fractionationの起こることが考えられるので、

好ましくない。5)・6)・7)ではトリチウムを含む水素のほかに、トリチウムを含まない炭化水素化合物を原料に用いるので、生成物中のトリチウムが希釈されるという欠点がある。そこで本研究では3)と4)の反応を利用することにし、考察した。その結果、 Pt-Ru など固相系に $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ・蒸気などを少量ずつ流して反応を行なわせるいわゆるフロー式では3)の反応は殆んど進行せず、4)の反応も満足に進行しないことがわかった。そのため約5Lの密封されたステンレス製容器の中で反応させる、いわゆるバッチ式を採用することにした。このバッチ式によれば4)の反応は短時間で完結するが3)の反応には10時間以上も要することがわかった。

いろいろな気体組成に対する計数特性 $\text{CH}_4(\text{Xタン})$ ガスは、極めてすぐれた計数用ガスであることが、すでに放射性炭素測定の場合に証明されている。それゆえ CH_4 ガスは調製さえうまくゆけば、計数上の問題は全くない。また CH_4 ガスの利点は測定終了後200ml程度の小さいポンベにトラップして保存し、同じガスをいつでも再測定できることである。

一般に低レベル放射性測定を効果的に行なうにはカウンターのBack Groundを小さくし、しかも試料を大量にとる必要がある。一定容積の気体増計数管を用いる場合には、大量の試料をとるため試料気体を計数管に高圧に封入しなければならない。できるだけ高圧が望ましいが、計数管の耐圧性・高圧に伴うガス漏れ、印加電圧を考慮して圧力がきめられる。使用した装置の場合には、 $\sim 220\text{cmHg}$ 程度までは問題なく測定できることがわかった。水素ガスを1気圧以上封入するのは、まず発生した水素ガスを、液体窒素で冷却した300mlのシリカゲルトラップに捕集した後、それを加熱してカウンターに押し込む方法をとった。水素ガスを単独に計数ガスとして用いると、カウンターに放電が起こり測定できないので、消止ガスとして少量のメタン・プロパンなどの有機性ガスを混合する必要がある。そこで試料水素ガスと有機ガスの混合比を次のとおりに変化させてプラトー特性を調べた。

水素	(cmHg)	150	170	190	200	210
メタン又はプロパン		70	50	30	20	10

その結果、水素-メタン系は混合比200 : 20より少ない領域で300~400Vのプラトーがみられ、210 : 10の混合比でも100~150Vのプラトーがみられた。それに対し水素-プロパン系では200 : 20より水素が少ない領域では $\sim 300\text{V}$ のプラトーがみられるが、210 : 10ではプラトーは全くみられない。プラトーの中心電圧は、水素-メタン系では4300Vであるのに対し、水素-プロパン系では3700Vである。この点から考えると水素-プロパン系が有利である。

応用 深井戸の水、雨水、河川水など 実際の試料の測定結果についても述べる。

