

(東大理) O野津憲治 馬淵久夫

消滅核種は、初期太陽系の歴史を知る上で、二通りの有用性をもっている。一つは、*nucleochronology* (原子核年代学) と呼ばれる分野での有用性であり、太陽系形成期に惑星系が固定した時点での消滅核種の量と、原子核合成理論から計算できる推定量とを比較して、両者の量を結びつけるパラメーター (例えば、宇宙の年齢、核合成活動度の時間変化、*formation interval*) を決めることができる。今一つは、*condensation chronology* (凝縮年代学) と呼ばれる分野での有用性であり、太陽系を構成している物質 (地球、月、惑星、隕石など) が固定した際の消滅核種の量を相互に比較して、それぞれが形成されるのにどれだけの時間差があるかを知り、どういう順序で形成されたかを知ることができる。

この様な多くの知見を得ることができる消滅核種で、最も研究が進んでいるのは、 ^{129}I - ^{129}Xe 系である。 ^{129}I 以外にも消滅核種はいくつかあり、実験も行なわれているが、その痕跡の検出が困難をきわめており、上にのべた様な細かな議論の対象にはなっていない。何故なら、惑星や月の固化時に凍結した消滅核種の量が測定されなければ、細かいタイムスケールへの応用などおぼつかないからである。

本研究は、半減期 1.03×10^8 y の消滅核種 ^{146}Sm を用いて、上記の *chronology* を行なおうとするものであり、3種のコンドライトについて行なった結果を報告する。 ^{146}Sm の最大の特徴は *p-process* 核という点であり、*r-process chronology* との比較からも多くの知見が期待できる。固化時の ^{146}Sm 量の推定 (厳密には $^{146}\text{Sm} / ^{147}\text{Sm}$ 比) は、 ^{146}Sm の娘核種である ^{142}Nd の変動から調べるアイソクロン法を用いた。この方法は、固化時に各相 (たとえば各鉱物) 間で Sm/Nd の分別が起こっていることを利用し、同一試料中の Sm/Nd 比の異った相での Nd 同位体比変動から求める方法である。

実験に用いた隕石は、St. Séverin (LL6), Abee (E4), Allende (C3) であり、それぞれ次の様なフラクションに分けた。

St. Severin ① $d > 3.72$ (主は Troilite) ② $3.52 < d < 3.72$ (主は Olivine)

③ $3.32 < d < 3.52$ (主は Hypersthene) ④ $3.12 < d < 3.32$ (主は Diopside) ⑤ $2.70 < d < 3.12$ (主は Merrillite など RE に富む部分)

⑥ $d < 2.70$ (主は Feldspar)

Abee ① $d > 3.26$ (主は Troilite) ② $3.15 < d < 3.26$ (主は Enstatite)

③ $3.05 < d < 3.15$ (主は Enstatite) ④ $2.85 < d < 3.05$ (主は Merrillite など RE に富む相) ⑤ $d < 2.85$ (主は Feldspar および Oldhamite)

Allende ① コンドルール ② fine-grained white inclusion ③ coarse-grained white inclusion ④ 磁性の強い部分 ⑤ $3.12 < d < 3.42$ の磁性の弱い部

のつけんじ・まぶちひさお

分

これらの成分と各隕石の全岩試料について、同位体稀釈法によるNdおよびSmの定量とNd同位体比測定とを行なった。

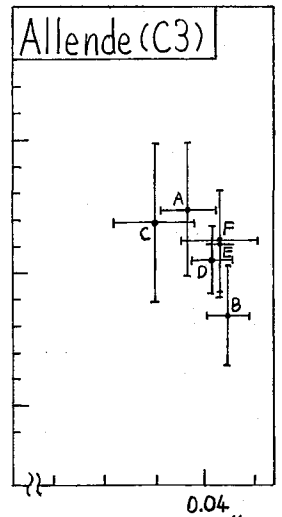
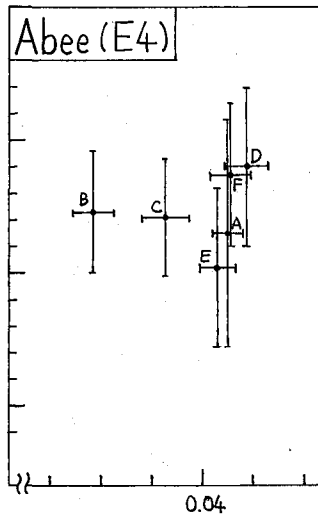
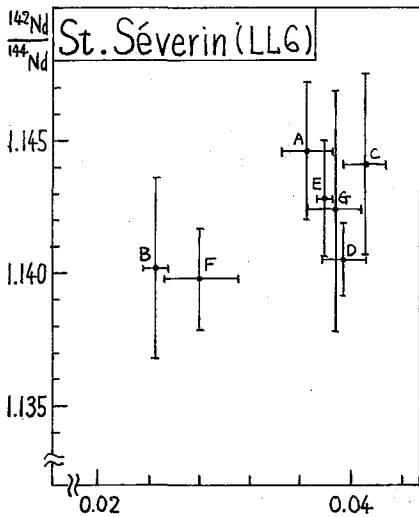
その結果のアイソクロンプロットは下図に示した通りである。この結果は、どの隕石のどの部分からも誤差の範囲内で $^{142}\text{Nd} / ^{144}\text{Nd}$ 比の変動はなかったことを示しており、標準に用いている試薬の値とも一致した。York法によるデータ処理で各測定点の最適アイソクロンを作ると次の様になった。

St. Séverin $(^{146}\text{Sm} / ^{144}\text{Sm})$ (固化時) = 0.16 ± 0.14

Abee " = 0.06 ± 0.13

Allende " = (作成できず)

誤差はいずれも1σであり、2σまで考慮あると傾き0を含み、かつJuvinasについて報告した 0.39 ± 0.14 とも矛盾しない。しかし、最近、Juvinasについて追実験が行なわれ、 $^{146}\text{Sm} / ^{144}\text{Sm} \leq 0.013$ という我々の結果を否定した報告がなされた。(SCHEININ, LUGMAIR and MARTI, Meteoritical Soc. Meeting No. 80 (1974))



- A 全岩
- B $3.52 < d < 3.72$
- C $3.32 < d < 3.52$
- D $3.12 < d < 3.32$
- E $2.70 < d < 3.12$
- F $d < 2.70$
- G $d < 2.70$ (極細粒)

- A 全岩
- B $d > 3.26$
- C $3.15 < d < 3.26$
- D $3.05 < d < 3.15$
- E $2.85 < d < 3.05$
- F $d < 2.85$

- A 全岩
- B コンドルール
- C Coarse White Inclusion
- D Fine White Inclusion
- E 磁性の強い部分
- F 磁性の弱い部分

(東大理) O中村裕 = 小山康直 馬淵久夫

序。隕石中では宇宙線照射による二次中性子束が小さく、共鳴吸収の大きさは ^{60}Co を除いて、一般には (n, γ) 反応の寄与は顕著ではない。しかしAllende隕石の場合、中性子の拡散、減速が充分に行われる程の大きさをも有しており、他隕石に比して中性子束、特に熱中性子束が大きく、 ^{60}Co , ^{59}Ni , ^{36}Cl などの高い比放射能、あるいは通常測定困難な ^{41}Ca が見出されている。隕石中での中性子の拡散、吸収は'60年代以後、Geiss, Lingenfelterなどの多くの研究者により、計算がなされてきたが、実際の隕石中での中性子スペクトルは未だ明確とは言い難い。

中性子吸収反応による微弱放射能の生成は、熱中性子および、いわゆる“1/v”領域の中性子吸収の他、共鳴吸収などによって起り、これから各エネルギー領域の中性子による寄与を見積ることは簡単ではない。我々は隕石中での中性子スペクトルを近似的に、

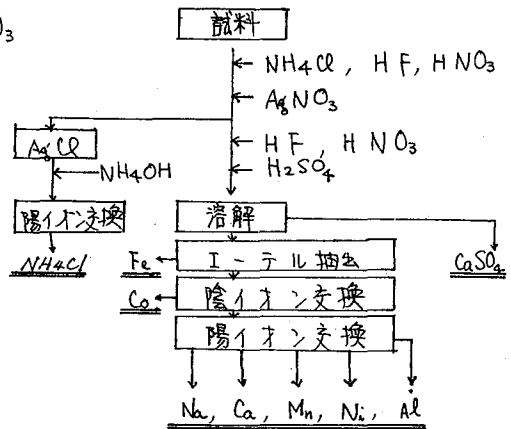
i) 熱中性子領域: Maxwell-Boltzmannの熱平衡スペクトル。

ii) epithermal 以上の領域: $n(E) dE \propto E^{-\alpha} dE$ $\alpha \sim 1.0$

と仮定することにより、標的原子核のResonance integral $\langle I_r \rangle$ を用いて、各領域の中性子束の大きさな推定を試みた。我々は数個のAllende隕石について、これから中性子吸収反応による生成核種と高エネルギー反応による生成核種 ^{26}Al , ^{53}Mn , ^{55}Fe (中性子吸収反応の寄与も存在する)とを調べ、隕石中での中性子スペクトルの概様を検討した。

実験。Allende隕石NMNH 3702, 3837, 3882をそれぞれ30gの試料として用いた。

化学分離。200メッシュ以下に粉碎した隕石試料に NH_4Cl を担体として加え、 HF , HNO_3 を用いて室温で分解し、 AgNO_3 を加えて AgCl を沈殿分離し、さらに NH_4OH で溶解後陽イオン交換を行って NH_4Cl を回収する。又残留試料は HF , HNO_3 , H_2SO_4 を用いて加熱溶解した後エーテル抽出により Fe を抽出、陰イオン交換により Co を分離する。さらに2~3段の陽イオン交換を行ない目的とする元素を分離する。放射能測定用の試料形態は、 Fe , Ni , Co は精製後、電着法による金属試料、 Cl は昇華法によって精製した NH_4Cl , Mn は $\text{Mn}_2\text{P}_2\text{O}_7$, その他 Al_2O_3 , CaF_2 を用いた。



放射能測定。 ^{41}Ca , ^{53}Mn , ^{55}Fe , ^{59}Ni はガスフロー型比例計数装置によるX線測定, ^{36}Cl , ^{60}Co はガスフロー型GM計数装置による β 線測定を行なった。これらの測定器は果大原子核

なむらうじ, こまやせすなお, まぶちひさお.

研究所 隕石微弱放射能測定室に設置してあるものである。また ^{26}Al , ^{60}Co は東大物性研究所の Ge(Li) の線測定装置を用いた。

測定結果。現在までに得られている結果は表1のようになっている。Allende 隕石の照射年代は $\sim 5\text{m.y.}$ であり, ^{53}Mn を除いてすべて飽和値に達していると思われる。 ^{60}Co , ^{36}Cl , ^{59}Ni の各生成率において, 高エネルギー反応だとせば $^{56}\text{Fe}(n, sp) ^{36}\text{Cl}$, $^{60}\text{Ni}(n, p) ^{60}\text{Co}$, $^{60}\text{Ni}(n, 2n) ^{59}\text{Ni}$, ... などの方が寄与は小さく, ほぼ全部が (n, γ) 反応による寄与と考えられる。原子核1個当りの生成率は, $n(E)dE \propto E^{-1}dE$ の中性子スペクトルを仮定すると近似的に

$$\langle P_i \rangle = \int_E n(E) \sigma(E) dE \simeq A \langle \sigma(kT) \rangle + B \langle I_r \rangle$$

$$A = A(\langle n_{th} \rangle)$$

$$\langle n_{th} \rangle; \text{熱中性子束}$$

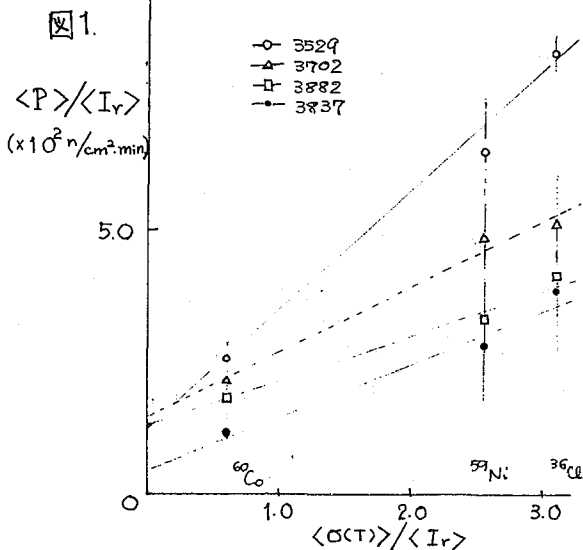
$$B = B(\langle n_e \rangle)$$

$$\langle n_e \rangle; E > E_{th} \text{ の中性子束}$$

と表わせる。従って比放射能と $\langle I_r \rangle$ との比および温度 T における中性子吸収断面積 $\langle \sigma(kT) \rangle$ と $\langle I_r \rangle$ との比を調べることにあつて熱中性子束と $E > E_{th}$ 領域の中性子束の大きさを推定できよう。図1に $T = 200\text{K}$ を仮定した場合の相関を示す。なお ^{36}Cl , ^{60}Co の比放射能は文献資料において行なつた放射化学分析により得た濃度, 表2を用いて計算している。

表1.

	半減期	3702	3837	3882	3529 ¹⁾
^{26}Al	$7.4 \times 10^5 \text{y.}$	65 ± 13	32 ± 13	58 ± 13	56 ± 14
^{36}Cl	$3.08 \times 10^5 \text{y.}$	36 ± 6	25 ± 6	30 ± 6	54 ± 2
^{53}Mn	$3.7 \times 10^6 \text{y.}$	91 ± 15	40 ± 8	65 ± 8	76 ± 7
^{55}Fe	2.6 y.	300 ± 39	185 ± 41	250 ± 46	250 ± 30
^{60}Co	5.26 y.	122 ± 13	68 ± 15	89 ± 14	122 ± 17
^{59}Ni	$8 \times 10^4 \text{y.}$	103 ± 10	61 ± 12	69 ± 11	141 ± 11



(単位は dpm/kg. meteorite)

表2.

No.	Cl (ppm.)	Co (ppm.)
3702	242	730
3837	305	750
3882	330	620
3529	300	680

1) 中村裕二, 馬淵久夫, 高橋茂, 今村 峯雄, 渋谷博; 放射化学討論会 (1973, 東京)

(東大核研) 柳田昭平

(東大物性研) 源生礼亮

1. 序: Allende いん石はもっとも始源的物質とされる炭素質コンドライト(C3)に属するいん石である。このいん石中には、white inclusionとよばれる高温鉱物が存在する。inclusionは眼で容易に識別することができ、1mm~10mmの大きさでその形状は種々雑多である。この高温鉱物はいくつかの特異な性質を示す。(i)酸素の同位体比測定から $\delta^{17}\text{O} - \delta^{18}\text{O}$ 相関関係を求めると、その勾配が1となり、化学的同位体効果では説明し得ない。 ^{16}O pure成分が外部から加ったとすると説明し得る実験値を示す。(ii) white inclusionは spinel, melilite などからなる高温鉱物であり、Siが少なく、Ca, Alに富んでおり、Allende bulkとは異なる化学組成を持つ。(iii)Xeの同位体比測定から、 ^{129}I 年代はある同年代を示すのではなく、4m.y.程度の年代の違いが存在する。上述したwhite inclusionの特異な性質、特に酸素同位体比異常は、太陽系生成時の化学的分別効果によるのではなく、white inclusionが他の大部分の太陽系物質とは原子核合成の歴史を異にすることによる可能性が大きい。この仮説の決め手となるのは、 $\delta^{17}\text{O} - \delta^{18}\text{O}$, $^{22}\text{Ne}/^{20}\text{Ne} - ^{21}\text{Ne}/^{20}\text{Ne}$ 相関関係の測定に続き、非揮発性元素の同位体比異常であろう。Feは比較的良く解明されているe-プロセスで合成されると考えられており、その同位体比の星内でのe-プロセス平衡温度に対する依存性は、

$$\frac{^{56}\text{Fe}}{^{57}\text{Fe}} = 0.128 \times 10^{13.16/T_q} \left(\frac{^{54}\text{Fe}}{^{56}\text{Fe}} \right)^{1/2}$$

と推定されており、大きな温度依存性を持つ。従って、非揮発性元素であるFeの同位体比を測定すれば、Allende いん石のwhite inclusionが異った原子核合成の歴史を経てきたか否か、更に経てきたとすれば、そのFeが合成された際のe-プロセスの平衡温度が推定できる。そこで本実験ではこれに注目してFeの同位体比測定を試みた。

2. 実験: (i) Feの化学分離: いん石試料は Bruderheim (L6), Peace River (L6), St. Séverin (LL6), Allende いん石 matrix, white inclusion 各1mgを用いた。各試料は容量~1ccのテフロンカップ中でHF 1 drop + HNO₃ 1 dropで分解し、HCl 1 dropを加え蒸発乾固した。これに9N HCl 1滴を加え溶解し、陰イオン交換樹脂(Dowex-1, 100~200 mesh, カラム径5mm, カラム容量0.7cc)に通しFeを吸着させた後4N HClで洗滌後、0.5N HClで容離を行い質量分析用試料とした。(ii) 質量分析: 一回の測定ごとにFe試料は~20μgを用い、ツリカゲルと共にReフィラメント上に塗布し、固体型質量分析計(R=30cm, 90°型)で測定を行った。測定には、二次電子増倍管(17段 Cu-Be, 増幅率 1×10^5)を用いた。Feをツリカゲルと共に塗布した場合、イオン流は増大するが、各温度でイオン流の減衰があり安定したビームを得ることは困難である。Feの同位体比測定に妨害となるのは ^{54}Cr であるが、これは ^{53}Cr より補正した。 ^{50}Fe は存在度が低く(0.31%), 本実験では測定を行わなかった。

3. 結果: 現在までのところ測定したFeの測定値を表に示した。二次電子増倍管による質量効果は, $^{54}\text{Fe}/^{56}\text{Fe}$ については $\times\sqrt{54/56}$, $^{57}\text{Fe}/^{56}\text{Fe}$ については $\times\sqrt{57/56}$ の補正を行った。

Sample	$(^{54}\text{Fe}/^{56}\text{Fe})_m (\times 10^{-2})$	$(^{57}\text{Fe}/^{56}\text{Fe})_m (\times 10^{-2})$	$(^{57}\text{Fe}/^{56}\text{Fe})_{\text{correct}} (\times 10^3)$
St. Severin	6.370 ± 0.013	2.334 ± 0.004	2.352 ± 0.014
	6.370 ± 0.036	2.340 ± 0.006	2.358 ± 0.036
	6.350 ± 0.022	2.352 ± 0.014	2.370 ± 0.026
Bruderheim	6.509 ± 0.020	2.370 ± 0.008	2.392 ± 0.022
	6.420 ± 0.036	2.432 ± 0.013	2.453 ± 0.038
	6.290 ± 0.070	2.528 ± 0.022	2.545 ± 0.073
Allende-G56	6.431 ± 0.033	2.362 ± 0.008	2.382 ± 0.034
	6.389 ± 0.040	2.402 ± 0.013	2.421 ± 0.042
Nier	6.35		2.39

Feの測定値は, 各測定ごとに質量差別効果が生ずるが, 文献値(Nierの測定)を用いて, $^{54}\text{Fe}/^{56}\text{Fe}$ の値 (=0.0635) を補正し, $^{57}\text{Fe}/^{56}\text{Fe}$ の変動の値を示した。誤差は標準偏差1σを示す。現在のところwhite inclusionについてはビームが不安定なため良い結果が得られていない。以上により測定した値についてはいん石, Bruderheim, St. Séverin, Allende matrix相互には著しい変動は見い出されなかった。

4. 考察: 序に述べた様に, Feの同位体比は大きな温度依存性を持つ。Nierの値, $^{54}\text{Fe}/^{56}\text{Fe} = 0.0635$, $^{56}\text{Fe}/^{57}\text{Fe} = 41.84$ を用いるとe-プロセスの平衡温度は $T_q = 4.23$ となり, $^{54}\text{Fe}/^{56}\text{Fe} = 0.0635$ に基準をとると, $T_q = 3.8 \sim 5.0$ °C, $^{56}\text{Fe}/^{57}\text{Fe} = 93.7 \sim 13.8$ の範囲で大きく変動する。本実験の結果では, Allende いん石のwhite inclusion, matrix と, 他のいん石との同位体比の差がない。従って, この結果からだけではwhite inclusionが異なった原子核合成の歴史を経てきたかどうか結論は出せない。同位体比の異常が見い出されない理由を挙げると, (i) 異なった原子核合成を経てきたが, 例えばNova様に酸素の辺までしか原子核合成が進まない物質が入りこんだために, 酸素では同位体比異常が見い出され鉄には出ないが, ほとんど同じ条件下で起こったe-プロセスで鉄が合成された。(ii) white inclusionにも様々なものがあり, 酸素同位体比異常が必ずしも見い出されるわけではないので, 本実験で用いたサンプルでは酸素同位体比異常も見い出されない。(iii) white inclusionの特異的な性質は, 異なった原子核合成の歴史によるのではなく, 原始太陽系内で起きた分別現象で説明される。Allende いん石の謎を解くには, 今後, 低い存在度の同位元素を持つ非揮発性元素の同位体比異常を更に探す努力が必要と考えられる。

3P04

Allendeいん石中のwhite inclusionを構成する化学種、およびMg等の同位体比

(東大物性研) 〇仁藤 修 源生礼亮 本田雅健
(東大核研) 柳田昭平

1. 序 Allendeいん石中のwhite inclusionとよばれる高温鉱物は、酸素の同位体比異常から原子核合成の α -プロセスによる ^{16}O -pure成分の生成を記憶しているのではないかとしてその起源が注目されている。本実験は、 α -プロセスでは飛いて生ずると思われる ^{24}Mg に着目し、white inclusionを構成する高温鉱物を化学的溶出法を用いて分離しMgの同位体比測定を行った。その結果、Mgの同位体比はいずれのフラクションについても5%を越える同位体比異常は見出せなかった。この結果は、white inclusionが他の原子核合成の歴史を経てきたものではないかという推論に大きな制限を与えることになる。

2. 実験 ・試料 Bruderheim(L6), Allende(C3) いん石のbulkを基準とし、酸素の同位体比異常の見出されているAllendeのwhite inclusionを用いた。 ・鉱物の同定 粉末精晶法により、デバイシェラーカメラを用いてX線回折像をとり鉱物の同定を行った。実験に用いたwhite inclusionは、spinel (MgAl₂O₄), Melilite (Ca₂Al₂SiO₇-Ca₂MgSi₂O₇), Grossularite (Ca₃Al₂Si₃O₁₂)から構成されていた。

・化学分離 図-1に示すように、試料0.3mgに2N-HCl 0.2mlを加え超音波をかけながら1時間溶解しこの溶液を分離(HCl-fraction)、残渣を白金ろつぽに移しHF 0.1mlを加えケイ酸塩を分解したのちHClO₄ 2dropsを加えて蒸発乾固し、これに2NHClを加えて溶解した部分。(HF-fraction)。さらにこの残渣はNa₂CO₃ 1mgを加えて溶解を行った。(Na₂CO₃-fraction)、各フラクションは蒸発乾固後0.5NHClで溶解し、陽イオン交換樹脂(Dawex-50W X8, 100~200 mesh)に通し1NHClで分離し7~8カラムの分離液を質量分析試料とした。

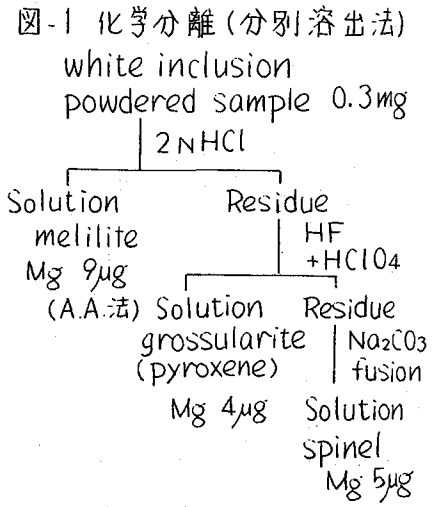
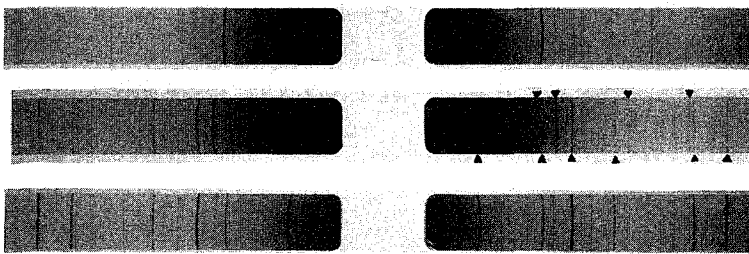


図-2 デバイシェラーカメラによるX線回折像
カメラ半径 57.3mm, X線 Fe-K, 35KV-20mA, 露出 3時間



- 試料: Melilite-richのwhite inclusion
- A. 試料そのまま
Meliliteの回折像のみ
 - B. HCl溶解後の残渣
▼ Grossularite
▲ Spinel
 - C. HF溶解後の残渣
Spinelの回折像のみ

にとうおさむ・げんしょうれいすけ・ほんだまさたけ・やなぎだしょうへい

・溶液法による鉱物分離 図-2

に示すように、あらかじめ別に用意したMelilite-richのwhite inclusion 試料(図2-A)を同じ化学分離をし残渣のX線回折像をとった。HCl溶解後の残渣にGrossularite, Spinel(B)が、HF処理後の残渣にはSpinel(C)が認められ、主としてMeliliteはHCl-fractionに、GrossulariteはHF-fractionに溶出することがわかった。

・質量分析

化学分離したMg~2μgをシリカ

ゲルと共にRe-フィラメントに塗布し固体試料用質量分析計(R=30cm)で二次電子増倍管を用いて測定した。

3. 結果 二次電子増倍管による質量効果の補正($\times \sqrt{m_2/m_1}$)を行った測定値を図-3に示した。同一試料で勾配 $1/2(^{25}\text{Mg}/^{26}\text{Mg})$ 上を変動するのは固体型質量分析計による質量差別効果および試料の蒸発による質量分別効果による。測定値 $(^{25}\text{Mg}/^{24}\text{Mg})_m$ から $(^{25}\text{Mg}/^{24}\text{Mg})_0 = 0.12663$ を基準にヒケ補正係数を求め、この値を用いて補正した $(^{26}\text{Mg}/^{24}\text{Mg})_c$ を表-1に示した。表にあるようにwhite inclusionの各フラクションの同位体比は基準としたBruderheim 隕石に比較し±5%以上の変動を示さなかった。

4. 考察 (i)溶液法による鉱物分離 極微量の鉱物試料の同位体比を測定する場合、化学的溶出法で鉱物分離することは、試料の逸散や汚染をおさえ、さらに同位体比異常が一部の鉱物にある際にはそれを濃縮できる点ですぐれた方法である。

(ii) Mgの同位体比 Allendeの酸素同位体比は $\delta^{17}\text{O} = \delta^{18}\text{O}$ なる変動を示すが、これは ^{16}O -pure成分の外層からの混入として説明されている。また炭素質コンドライト構成鉱物が固化時に捕捉したNeの同位体比は $(^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne})_{\text{trap}} = 4$ となることが報告されている。本実験の結果による ^{24}Mg 、さらに ^{16}O 、 ^{20}Ne について総合して検討した場合、酸素の同位体比異常が $^{16}\text{O} + \alpha \rightleftharpoons ^{20}\text{Ne}$ の過程以外に影響を与えていないか、または微量成分に対する他の核反応の効果ではないかと考えられる。例えば $^{17}\text{O} = 0.0037\%$ は同位体存在度が非常に低く、Neは存在量自身少ない。もし同位体比異常がこのような微量のものに表われているとすると不揮発性元素の場合にもCa, Baのような低い存在度

をもつ同位体を有するものについて調べることも考えられる。

$$\text{error} = 2\sqrt{\sum \Delta^2/n}$$

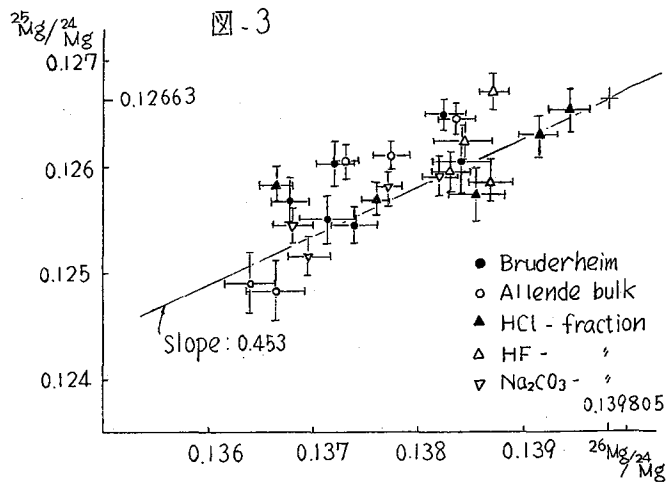


表-1 結果	$(^{26}\text{Mg}/^{24}\text{Mg})_{\text{correct}}$	Δ_{26} (‰)	$(^{26}\text{Mg}/^{24}\text{Mg})_m = 1 - \epsilon$ $(^{26}\text{Mg}/^{24}\text{Mg})_0$ $(^{26}\text{Mg}/^{24}\text{Mg})_c = \frac{(^{26}\text{Mg}/^{24}\text{Mg})_m}{(1 - \epsilon)^2}$ $\Delta_{26} = \frac{(^{26}\text{Mg}/^{24}\text{Mg})_c - (^{26}\text{Mg}/^{24}\text{Mg})_{\text{std}}}{(^{26}\text{Mg}/^{24}\text{Mg})_{\text{std}}}$
Bruderheim bulk	0.13952 ± 38	0 ± 2.7	
Allende bulk	0.13961 ± 68	$+0.6 \pm 4.9$	
HCl-fraction	0.13967 ± 60	$+1.1 \pm 4.3$	
HF-fraction	0.13963 ± 56	$+0.8 \pm 4.0$	
Na ₂ CO ₃ -fraction	0.13984 ± 31	$+2.3 \pm 2.2$	
Wasserburg's	0.139805	$+2.0$	

(東大物性研) ○西泉邦彦・本田雅健

(東大核研) 今村峯雄

実際に手にする事ができる月試料, イン石は宇宙科学の重要な情報源であるが, 太陽系の既知の位置(1 A.U.)での宇宙線照射を受けた月試料は太陽宇宙線(S.C.R.), 銀河宇宙線(G.C.R.)の歴史をひもとく上で1つのカギとなっている。特に宇宙線生成核種 ^{53}Mn ($T_{1/2} = 3.7 \times 10^6 \text{y}$)は過去数百万年にわたる宇宙線の強度変化, 月面上の dynamics 等に関して興味ある情報をあたえてくれる。 ^{53}Mn の重要な生成反応は宇宙線の90%近くをしめる陽子による $^{56}\text{Fe}(p, \alpha)^{53}\text{Mn}$, $\text{Fe}(p, X)^{53}\text{Mn}$ である。(図-1)

〈実験方法〉 ^{53}Mn は Millard の提唱した高感度な中性子放射化学法 - $^{53}\text{Mn}(n, \gamma)^{54}\text{Mn}$ ($T_{1/2} = 312 \text{d}$, 834.8KeV) - を用いる事により少量の試料(200 mg 以下, あるいは $0.001 \text{dpm } ^{53}\text{Mn}$ 程度)で測定が可能である。照射前処理: 試料を HNO_3 (1:1) + HF で溶解, Fe, Mn を原子吸光で定量後, イソプロピルエーテルによる溶媒抽出, 1NHCl - 陽イオン交換, イソプロピルアルコール + HCl - 陰イオン交換を用い Mn を化学分離する。中性子照射: 高純度 Al 箔上で Mn 酸化物物に変え, ^{53}Mn standard Fe, Mn 金属と共に原子炉で照射。速中性子による $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$, $^{55}\text{Mn}(n, 2n)^{54}\text{Mn}$ の妨害反応を極力押さえ,かつ, 熱中性子束 10^{19}n/cm^2 以上を得る必要がある為, 試料により JRR-3, CP-5 を用いた。照射後処理, 測定: $\text{dil HNO}_3 + \text{H}_2\text{O}_2$ で Al 箔から Mn を溶出, Fe, Co, Sc 等の担体を加え, 陽, 陰イオン交換, TTA 溶媒抽出を経て T 線測定用試料とし収率は原子吸光を用いた。測定は物性研 100 cc Ge(Li)検出器(計数効率率4%, B.G. 0.01 cpm/keV - 835 KeV)あるいは La Jolla の 5mm 中 45cc 井戸型 Ge(Li)検出器を用いた。各試料は $0.3 \sim 3 \text{cpm } ^{54}\text{Mn}$ に相当した。

〈結果・考察〉 ①太陽宇宙線の影響をみる為アポロ12号の Basaltic Rock 12002 ($d = 3.39/\text{cm}^3$, $\text{Fe} = 16.8\%$), 同14号 Basaltic Rock 14310 ($d = 2.98/\text{cm}^3$, $\text{Fe} = 6.38\%$), breccia 14321 ($d = 2.659/\text{cm}^3$, $\text{Fe} = 10.9\%$)の3試料について分析を行ない表面よりの深さと ^{53}Mn の関係 - depth profile - を得た。(図-2) 標的核はほとんど Fe と考えられるので異なる試料間の比較にも都合のよい $\text{dpm } ^{53}\text{Mn}/\text{kg Fe}$ である。表面付近の実測値は S.C.R. と G.C.R. 両宇宙線の影響の重ね合わせの為, Reedy-Arnold モデルとコア試料の測定値をもとに G.C.R. 成分を見積り(表面で約 $170 \text{dpm } ^{53}\text{Mn}/\text{kg Fe}$) S.C.R. だけの値を求めた。S.C.R. が Power スペクトル $dJ/dE = \alpha E^{-\beta}$ で近似できるとした理論計算と実測値との比較を示す。宇宙線照射が 2π に対して等方的とし, 最近の観測による $\beta = 2.4$, $J_0 (> 10 \text{MeV}) = 100 \text{protons}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ の値と実験的に求めた図-1 の励起関数を用い, 半径 6cm ($189/\text{cm}^2$) の球型の標的(3試料の平均の大きさ)に対する計算を行なった。各種の放射能測定あるいはトラックの観察から月面上では各種放射線や micro meteorites 等の衝突により岩石は長い期間かかって少しづつ削りかかっていると考えられる(erosion)。この erosion 速度として 12002, 14310 に対し $0.5 \text{mm}/\text{my}$,

にしいずみくにひこ・ほんだまさたけ・いまむらみねお

軟かい 14321 に 2.0 mm/my を仮定, 照射年代 5my 以上で ^{53}Mn の放射能が飽和しているとして計算した depth profile を図-2 に実測値と共に示した。かなり良い一致が見られる。しかし S.C.R. の人工衛星, バルーン等による直接観測は, 太陽が過去 200 年で最も活動的だったと考えられる 19 cycle (1956-66) から始められた為, σ , J_0 の値は慎重に検討する必要がある。更に power スペクトルと Rigidity スペクトルによる違いを検討する。

② 銀河宇宙線の影響に関しては 15号 (416 g/cm²), 16号 (364 g/cm²) の長いコア試料について

実験を行ない 図-3 の結果を得た。両試料共良好一致を示しているが約 10 g/cm² までは S.C.R. の影響が大きい。表面より 50 g/cm² 付近までは G.C.R. による二次宇宙線と共に ^{53}Mn の量も深さと共に増加するが, 約 70 g/cm² 以下になると指数関数的に減少する。これは Reedy-Arnold モデルとして理論的に計算されており 図-3 に実線で示した様に実測値とも良く一致する。この事より G.C.R. の強度が過去 5my にわたって大きな変動がなく, また 15号, 16号 着陸地点において約 1.5m の範囲にわり同じく約 5my 以上攪拌がなかったものと思われ, 月面上の dynamics に関して新しい情報を与えている。現在 soil の S.C.R. による影響を見る為, 表面付近のコア試料中の ^{53}Mn の分析を準備している。

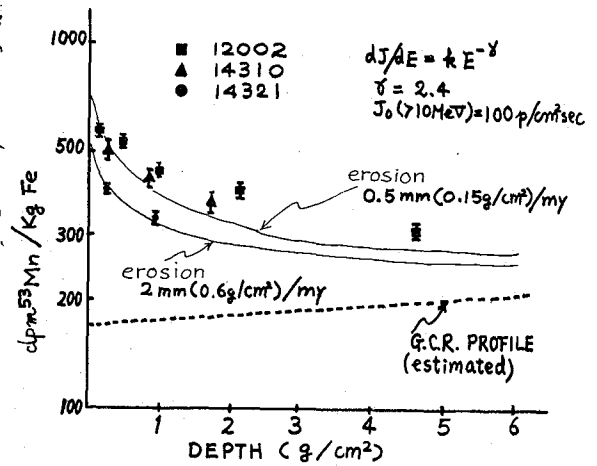


図-2

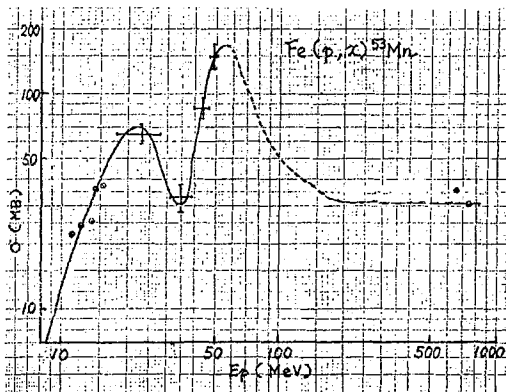


図-1

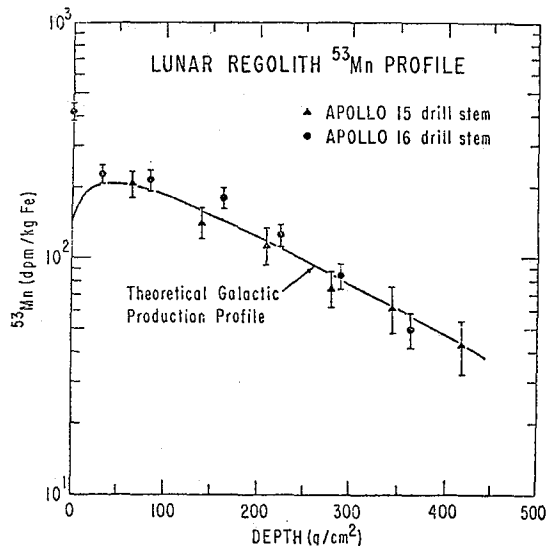


図-3

(東大核研) ○今村峯雄・井上照夫・田中重男・金子桑太郎

深海堆積層は千年につき mm オーダーのゆっくりした堆積速度で各時代の海洋の環境を反映させ記録しつつ数百米程度までの厚い層を形づくっているが、この堆積層に秘められた情報は地球環境の時代変化を解明する上での極めてユニークな手段を提供している。これらの中で特に宇宙線によって生成した核種を追うことにより、大気圏での宇宙線の経年変化あるいは宇宙じん等の地球外物質の流入量およびその変化を調べることができ、単に地球の宇宙環境の解明だけでなく、宇宙線、宇宙じん等の origin に対し有力な知見を与えることが期待される。既に田中らは深海底コア中の ^{10}Be ($T_{1/2} = 1.6 \times 10^6$ 年) の深度分布の測定を行ない宇宙線の過去数百万年の経年変化を調べようとしているが、他の長半減期核種の測定についてはその測定上の困難からこの種の深度分布は測定されていないのが現状である。

長半減期放射性核種の中で ^{53}Mn はその半減期が 3.7×10^6 年と長く、一千万年までの変化を追えるばかりでなく、その生成過程は ^{10}Be の場合と異なり、大気との破砕反応からはほとんど生成せず、ほとんど太陽宇宙線あるいは銀河宇宙線と宇宙塵との相互作用で Fe から生成し地球に流入するものと考えられるので、宇宙塵等地球外物質の流入量などに関する知見を得るのに有効である。我々は新しく質量分離と放射化分析を組み合わせる方法により ^{53}Mn の測定を試みた。その予備的結果を報告する。

○実験方法

<試料および Mn の分離> 実験に使用した試料は South-Central Pacific ($10^{\circ} 56.8'S, 169^{\circ} 59.3'W$) で採取されたコア試料, KH-68-4, で深さ 70 ~ 75 cm に相当する試料, K, を用いた。(図1)。乾燥後粉碎し、一部を分析用試料として保存し、残り (375g) を化学処理し、Be, Mn の分離を行なった。フッ酸処理による試料の分解後、NaOH (excess) による水酸化物沈殿によってアルカリ、Be, Al 等より Mn を分離する。続いてイソプロピルエーテル抽出で Fe を除去し、陰イオン交換によりアルカリ、アルカリ土類、Ni, Co 等から Mn を分離、更に陽イオン交換で Ti, Cr 等を分離し、最後に HCl-イソプロピルアルコール系陰イオン交換で Mn を精製した。溶液を蒸発して $\text{MnCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ の結晶を得、これを石英試料管中で、真空下、 $200-250^{\circ}\text{C}$ に加熱し無水の MnCl_2 (m.p. 650°C) 粉末結晶とし、質量分離用試料として用いた。

<質量分離> 原子核研究所に設置され

ている deflection angle 60° , イオン軌道半径 $\rho = 90\text{cm}$ の同位体分離器を用い ^{53}Mn の天然 ^{55}Mn より濃縮分離を行なった。

試料 MnCl_2 0.6g を粒状 SiO_2 0.65g (熱媒体) と共に load した。イオン源温度 500°C くらいでビ-4 が観測され始め、

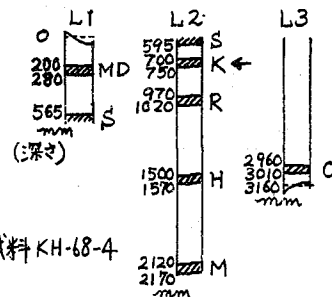


図1. 試料 KH-68-4

いまむらみねお・いのうえてるお・たなかしげお・かねこ くめたろう

600°C では $^{55}\text{Mn}^+$ として数 mA のビーム強度を得た。質量分離したイオン流は、 ^{55}Mn についてはポケット状コレクター（内面を Al 箔で coat）に受け、直接電流値を讀んでモニターしつつ、一方 ^{53}Mn は高純度の Al 箔に implant させた。Ar を MnCl_2 vapor の担体ガスとしてイオンソースに送ることにより分離効率を高めることができた。分離終了後ポケットコレクター、および Al 箔をとりはずし、それぞれ同じ image 部分に相当する領域の ^{55}Mn の定量を行なった。ポケットコレクターから回収された ^{55}Mn は 7mg でビーム収率 3.2% が消費された MnCl_2 (0.5g) から判明した。 ^{53}Mn を implant した Al 箔は立教大学原子炉の回転試料棚で ^{55}Mn の放射化分析を行なった (5分間)。 ^{55}Mn 量は 42 μg で $53/55$ の separation factor として 170 を得た。またこの程度のビーム密度 ($\sim 2\mu\text{g}/\text{cm}^2$) では implantation の際の sputtering による loss は無視できると考えられる。

< ^{53}Mn の放射化分析 >

予想される ^{54}Mn の量は極めて少いと考えられるので、試料およびブランクの処理は、照射前はもちろん照射後も汚染のないよう低レベル用化学実験室でそれぞれ行なった。

質量分離した ^{53}Mn は、Fe の hold back carrier を加えて、Al 箔より化学処理により分離精製した後、Al 箔 (99.94%) 上に MnO_2 の形でマウントし、標準試料と共に JRR3 V63L で 2 cycle 照射 ($\phi_{nt} = 4 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$) した。同時に $^{55}\text{Mn}(n, 2n)$, $^{54}\text{Fe}(n, p)$ の妨害反応の寄与を見積もるため試薬の Mn, Fe 標準を照射した。照射後陽イオン交換および陰イオン交換と 2 回の TTA 抽出で ^{54}Mn を精製し、物性研設置 (本田研) の 100 cc Ge(Li) F によって ^{54}Mn の 834.8 KeV の photopeak の検出を行なった。測定結果を表 1 にまとめた。(計数率は照射直後に換算)

○ 結果

表 1. 放射化分析の結果 (化学収率補正後)

表 1 の結果からこの海底土試料として $(1.1 \pm 1.6) \times 10^{-2}$ dpm/g Mn の比放射能の結果を得た。この試料に対する堆積速度の data を欠いているので宇宙塵の influx に関する結論を直接導き出せないが海水の Mn が宇宙塵由来の Mn と同位体交換しているという仮定をすれば influx の上限として $2 \times 10^5 \text{ ton/y. earth}$ となる。実験としては今後高い中性子束を用い感度をあげ、更に質量分離の試料を増して約 20 倍感度を上げる予定で、コアの他の試料について計画を進めている。

試料	K (42.2 $\mu\text{g Mn}$)	ブランク (41.9 $\mu\text{g Mn}$)
化学収率	86.7 %	68.7 %
Gross ^{54}Mn (cpm)	0.0225 \pm 0.0058	0.0125 \pm 0.0071
妨害反応 $^{55}\text{Mn}(n, 2n)$ (JRR3)	0.0087 \pm 0.0005	0.0086 \pm 0.0005
$^{54}\text{Fe}(n, p)$	0.0091 \pm 0.0007	0.0018 \pm 0.0002
(立教原研) $(n, 2n) \leq 0.0001$		—
$(n, p) \leq 0.0004$		—
Net ^{54}Mn (cpm)	0.0042 \pm 0.0059 (1 σ)	0.0021 \pm 0.0071 (1 σ)
^{54}Mn (dpm)	$(0.8 \pm 1.1) \times 10^{-4}$	

表 2. コア試料 K の化学組成

Na	Mg	Al	Ca	Mn	Fe	Ni
2.74 %	3.28 %	6.19 %	2.41 %	0.134 %	8.73 %	0.029 %

μ 中間子源として宇宙線を用い地殻岩石をターゲットとした反応で生成する誘導放射能の検出についての実験を報告する。田中ら(1967¹⁾, 1968²⁾, 1974³⁾)は宇宙線中の μ 中間子成分と地殻の主要構成成分である ^{28}Si との反応によって生ずる長寿命放射性核種 ^{26}Al (半減期 7.4×10^5 年)を検出することにより、過去数百万年の間に大きな宇宙線強度の変動があったかどうかを知らうという実験を行った。この実験は大量のターゲット岩石から化学的にアルミニウム(^{27}Al)を分離精製し、その中に微量に存在する ^{26}Al の出す放射線を測定して ^{26}Al の生成量を決定するという大変難かしいものであった。~~この~~ ^{26}Al の半減期に比して十分長い半減期をあまり受けていない硬い露岩として岐阜県八津町久田見という所の珪石(水晶)を選び、その約100kgをHFに溶解した。アルミニウムが両性元素であることを利用し、単純に酸とアルカリによる水酸化物の分別沈殿によって精製し、最後にアンモニウムみょうばんによる分別結晶によってさらに精製した。放射能測定試料としては Al_2O_3 の形にし円板状に固めたものを用いた。 ^{26}Al は β 崩壊をし1.83 Mevの γ 線を放出するが β の消滅 γ 線511 KeVにゲイトを用いて γ - γ 同時計数スペクトルをとることによって比放射能を測定した。この微弱放射能測定のため、千葉県富津市金谷の地下測定室(鋸山微弱放射能測定孔)に7.6cm ϕ x 7.6cm NaI(Tl)検出器2個を対置した特別設計の重いシールドをした γ - γ 同時計測定装置を設置した。測定の結果、採石時の深さ1m.w.e.の岩石に対して (0.003 ± 0.015) dpm $^{26}\text{Al}/\text{kg SiO}_2$ という上限値しか得られなかった。最近西ドイツのハイデンヘルクにあるマックス・プランク研究所の15.2cm ϕ x 10.2cm NaI(Tl)検出器を使った低レベル γ - γ 同時計数測定装置で、この測定試料の4個分をまとめて(原石27.7kg相当)測定した結果、表-1の最終値を得た。この (0.0075 ± 0.0032) dpm $^{26}\text{Al}/\text{kg SiO}_2$ の実測値とつぎのように計算した推定値とを比較する。地下宇宙線中の静止 μ による ^{26}Al の生成率 P_{μ} を $P_{\mu} = I_{\mu} \cdot f_{\mu} \cdot f_i \cdot f_c \cdot f_e \cdot f_g$ と表わす。ここで I_{μ} は水晶 SiO_2 1kgあたり毎分静止する μ の数、 f_{μ} は SiO_2 結晶の中で静止した μ が~~崩壊~~ ^{28}Si 原子に捕獲される確率、 f_i は ^{28}Si の同位体存在比、 f_c は μ ^{28}Si 原子の中で μ が崩壊せずに核に吸収される確率、 f_e は吸収後の複合核 ^{28}Al から2個の中性を放出し ^{26}Al になる確率、 f_g は ^{26}Al の 7.4×10^5 年の半減期を持つ基底状態に落ち着く確率(^{26}Al には半減期6.4秒で β 崩壊する準安定状態がある)とする。表-1の地下5m.w.e.における計算値はつぎのパラメータを使ったものである。

表-1 宇宙線 μ により生成する珪石中の ^{26}Al	
比放射能 $\text{dpm } ^{26}\text{Al}/\text{kg SiO}_2$	
Hampel et al. (1974) 実験値	0.0075 ± 0.0032
計算値*	0.008 ± 0.004
Tanaka et al. (1968) 実験値	0.003 ± 0.015
Charalambus (1971) 計算値**	0.013 ± 0.04

* 地下5 m. w. e. の値
** 地表の値

$$I_{\mu} = 0.28 \text{ stopped } \mu / \text{min} \cdot \text{kg SiO}_2 \text{ (高木と田中, 1968}^{4})$$

$$f_{\mu} = 0.28 \text{ (Sens 1958}^{5}) ; \text{Zinov 1966}^{6})$$

$$f_i = 0.92$$

$$f_c = 0.65 \text{ (Eckhaus 1966}^{7})$$

$$f_e = 0.20 \text{ (Macdonald 1965}^{8})$$

$$\text{Charalambus, 1971}^{9})$$

$$f_g = 0.75 \text{ (推定値)}$$

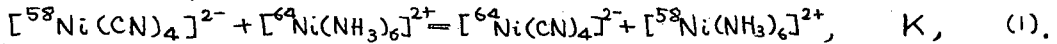
表-1でわかるように過去の平均の深土を5 m. w. e. として現在の1 m. w. e. の深土の測定値と合うことになっているが、これと浸食が一定の率で行なわれたいとして採石地帯の浸食速度を計算したところ $10 \text{ m}/10^6 \text{ 年}$ という結果を得た。

文 献

- 1) 田中重男・坂本浩・高木仁三郎・植本童子, 東大核研報告 INS-TCH-3 (1967)
- 2) S. Tanaka, K. Sakamoto, J. Takagi and M. Tsuchimoto, J. Geophys. Res., 73, 3303 (1968)
- 3) W. Hampel, J. Takagi, K. Sakamoto and S. Tanaka to be published in J. Geophys. Res. (1974)
- 4) J. Takagi and S. Tanaka, 東大核研報告 INSJ-110 (1968)
- 5) J. Sens, R. Swanson, V. Telegdi and D. Youanovich, Nuovo Cim., 9, 536 (1958)
- 6) V. G. Zinov, A. D. Konin and A. I. Muklim, Sov. J. Nucl. Phys., 2, 613 (1966)
- 7) M. Eckhaus, R. T. Siegel, R. E. Walsh and T. A. Filippas, Nucl. Phys., 81, 575 (1966)
- 8) B. Macdonald, S. Diaz, S. Kaplan and R. Pyle, Phys. Rev., 139, B125 (1965)
- 9) S. Charalambus, Nacl. Phys., A166, 145 (1971)

(立教大理) 〇大田黒幹夫、三木瑛一、石森達一郎

ニッケル安定同位体のうち ^{58}Ni と ^{64}Ni とは質量差が大きく、また同位体比の測定には質量分析法のほか放射化分析法も適用できるので、これらの同位体は同位体濃縮、同位体効果の研究に適している。ニッケル同位体濃縮の一例として、陽イオン交換層に吸着したニッケルアンミン錯イオン帯をシアン化カリウム溶液で溶離すると溶出末端において ^{58}Ni が濃縮することが見出された。この過程にはつぎの溶液中の平衡(1)が大きく寄与していると考えられ、平衡定数の推定もおこなった：



[実験] 使用した塩化ニッケル水和物は塩酸溶液中の陰イオン交換法により精製した。陽イオン交換樹脂にはグイイオンSK#1(分析用)を用いた。

陽イオン交換層による ^{58}Ni の濃縮。930 ml, 直径47 mmのアンモニウム形陽イオン交換樹脂層を25°Cに保って用いた。塩化ニッケル溶液に過剰のアンモニア水を加えて生成した $[\text{Ni}(\text{NH}_3)_6]^{2+}$ (Ni として32.3 g)も樹脂層に吸着させ1.5 M アンモニア水で洗浄し(樹脂層の上部約57%に吸着する), 0.2 M KCN-1.5 M NH_3 水溶液によって溶離する(流速2 ml/min)。溶出液の $[\text{Ni}(\text{CN})_4]^{2-}$ 溶液も分取し、ニッケル濃度と同位体比の定量をした。全アンミン錯イオンを溶出するには12.9 lの溶離液を要した。溶出液中の ^{58}Ni と ^{64}Ni の同位体比は、 $^{58}\text{Ni}(n, p)$ ^{58}Co , $^{64}\text{Ni}(n, \alpha)$ ^{65}Ni を用いる放射化分析法により測定した。2.3~2.5 mg Ni を含む、円板状ニッケルジメチルグリオキシムを照射試料とし、立大原研の原子炉回転試料棚で照射し(30~40時間, 5~7日冷却, 2~4時間), ^{58}Co と ^{65}Ni のそれぞれ0.81 MeV と1.115 MeV のγ線をGe(Li)検出器により計数して、つぎのRの値を求めた：

$$R = R_{\text{sample}} / R_{\text{ref}} = \{n_{58}/n_{64}\}_{\text{sample}} / \{n_{58}/n_{64}\}$$

ここで $R = (^{58}\text{Co}$ の計数率) / (^{65}Ni の計数率); $n_A = A\text{Ni}$ のモル分率;

上添記号^o: 標準試料を示す。

標準試料としては精製した塩化ニッケル水和物より作製したニッケルジメチルグリオキシムを用いた。標準試料9個についてのRの標準偏差は±1.8%であった。一部の試料については、表面電離による質量分析法により5つの同位体について同位体比を測定した。

[結果と考察] 樹脂層による濃縮の結果は次頁の図に示す。32 gのNi(II)を処理して溶出の最末端では $R = 1.5$ をもつNi(II) 10 mg がえられている。

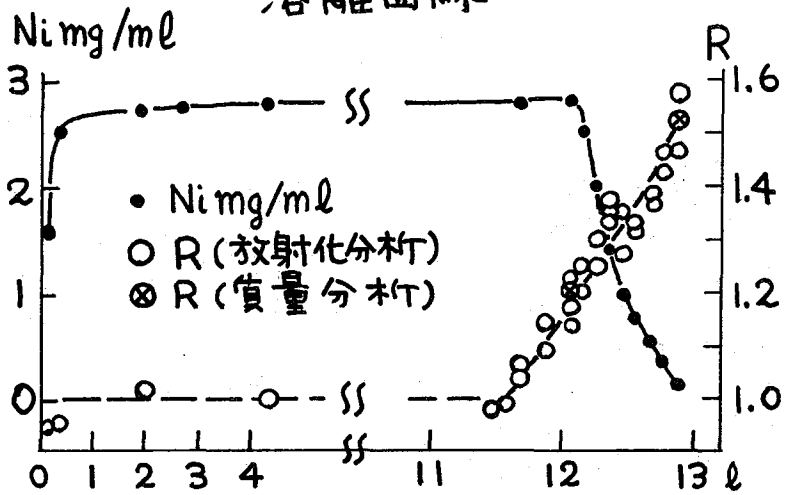
濃縮の機構には、溶液中の平衡(1)が主として寄与していると考えられる。なお平衡(1)の成立がはやいことは報告されている。アンミン錯イオンの陽イオン交換における同位体効果は極めて小さいと考えられるので、

$$\begin{aligned} \text{Kion-exch} &= \{ [^{58}\text{Ni}(\text{NH}_3)_6]^{2+} \}_R \cdot [^{64}\text{Ni}(\text{NH}_3)_6]^{2+} \}_S / \{ [^{58}\text{Ni}(\text{NH}_3)_6]^{2+} \}_S \cdot [^{64}\text{Ni}(\text{NH}_3)_6]^{2+} \}_R \\ &= 1, \quad [\]_R \text{ は mmol/g 樹脂, } [\]_S \text{ は mmol/ml 溶液} \quad (2). \end{aligned}$$

おたぐろみさお, みさえいいち, いしもりたつひろ

溶離曲線

2成分系に關する吸着帯の移動の解析¹⁾を参考にして、⁵⁸Niの濃縮量より平衡定数Kを推定した。溶離液の速度、⁵⁸Ni(II)と⁶⁴Ni(II)の移動速度をそれぞれ v_1 , v_2 とし、樹脂層中の空隙溶液容積と樹脂重量の比を d とすると、 v_1 と v_2 はつぎのように近似できる：



$$v_1 \equiv \nabla \left\{ \frac{[{}^{58}\text{Ni}(\text{CN})_4^{2-}]_s}{[{}^{58}\text{Ni}(\text{NH}_3)_6^{2+}]_e} \right\} \cdot d \quad (3)$$

$$v_2 \equiv \nabla \left\{ \frac{[{}^{64}\text{Ni}(\text{CN})_4^{2-}]_s}{[{}^{64}\text{Ni}(\text{NH}_3)_6^{2+}]_e} \right\} \cdot d \quad (4)$$

平衡(1)の平衡定数Kは(2), (3), (4)により、つぎのように表わされる：

$$K = v_2 / v_1 \equiv 1 + \epsilon \quad (5)$$

ここで、 ϵ は、溶出末端における⁶⁴Niを基準とした⁵⁸Ni過剰量と溶出した⁵⁸Ni全量との比として与えられる：

$$\epsilon = \left[\sum f_i (n_{58}^i - n_{64}^i (n_{58}^0 / n_{64}^0)) \right] / Q n_{58}^0 \quad (6)$$

ここで f_i は溶出各部をホシ、 f_i は溶出各部のNi量、 Q は使用した全Ni量。 n^0 は質量分析により求め、 n^i は同位体濃縮が質量差に比例するとして放射化分析の値より求めた。 $\epsilon = 0.010$ であり $K_{\text{obs}} = 1.010$ (25°C) をえた。

他方、Bigeleisen-Mayerの式によりKを計算した。 $[\text{Ni}(\text{CN})_4]^{2-}$ と $[\text{Ni}(\text{NH}_3)_6]^{2+}$ の基準振動²⁾のうち中心金属の関与する振動について、⁵⁸Ni-, ⁶⁴Ni-錯イオンの波数を計算した(表)。たがしアンミン錯イオンについてはNH₃を一体として取扱った。表の値を用いた計算値は、 $K_{\text{calc}} = 1.011$ (25°C) であり、 K_{obs} とよい一致がみられた。

表 ⁵⁸Niと⁶⁴Ni錯イオンの振動の波数 cm⁻¹

	[Ni(CN) ₄] ²⁻						[NiX ₆] ²⁺ (X=NH ₃)	
	ν_8 Eu	ν_9 Eu	ν_{10} Eu	ν_{11} Eu	$\nu_{12} A_{2u}$	$\nu_{13} A_{2u}$	ν_3 F _{1u}	ν_4 F _{1u}
天然比Ni	2130	543	427	78	448	(77)	(335)	(214)
⁵⁸ Ni	(2129.8)	(550.7)	(421.6)	(78.7)	(449.6)	(77.2)	(336.0)	(214.2)
⁶⁴ Ni	(2129.7)	(537.8)	(421.5)	(78.1)	(447.4)	(75.2)	(329.2)	(212.6)

() : 計算値

1) H. Kakehana, T. Kanzaki, Bull. Tokyo Inst. Technology, 1969, 77.

2) R. L. McCullough, L.H. Jones, G.A. Crosby, Spectrochim. Acta, 16, 929 (1960); T. Shimanouchi, I. Nakagawa, Spectrochim. Acta., 18, 89 (1962), *ibid.*, 22, 759 (1966).

1. 目的

制御核融合炉の開発は、最近かなりの具体性をもって推進されるようになってきた。最初に実現される可能性の高いものとしては、(D, T)反応を利用する核融合炉であると考えられており、炉心のみならず各方面からの研究が急速に進展しつつある。(D, T)反応にもとづく炉を考えた場合、炉の設計段階においてトリチウムの化学について多くの基礎知識の蓄積が要請されている。我々はその一環として、中性子照射したリチウム化合物中に生成するトリチウムの化学的挙動に関する研究に着手した。この問題の解明に先立って、中性子照射したリチウム化合物中に $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$ 反応によって生成するトリチウムの量を正確に把握しなければならぬが、これを実測する優れた方法は見あたらない。酸素を含むリチウム化合物においては $^{16}\text{O}(t, n)^{18}\text{F}$ 反応の存在が知られており、金属表面の酸素の定量、あるいは金属酸化物膜の厚みの測定に応用した例が報告されている。⁽¹⁻⁴⁾この反応を酸素を含むリチウム化合物中におけるトリチウム生成量の測定に応用した報告はみられないが、 ^{18}F を測定することにより系内のトリチウム生成量を求めることができれば、 γ -線スペクトル法を適用して、迅速かつ簡便な測定が可能になると考えた。この観点に立って、炭酸リチウムなど酸素を含む10数種類のリチウム塩を原子炉で照射し、ターゲット物質中での $^{16}\text{O}(t, n)^{18}\text{F}$ 反応について検討した。

2. 実験

ターゲット物質として、Table 1に掲げた10数種類のリチウム塩を用いた。硝酸リチウム、硫酸リチウムおよび水酸化リチウムは再結晶により精製し、熱重量分析法により結晶水の数を確認した上で使用したが、その他の化合物は試薬そのままを用いた。放射化学により試料中の不純物を検定したが、特に問題となるものは認められなかった。1011いし50 mgの粉末状試料を石英管に減圧封入(0.9×10^{-3} mmHg)し、原研JRR-4原子炉のターパイプ照射孔で20分間照射した。照射位置における熱中性子束はそのつどバルト管をモニターとして測定した。照射終了後、石英管を開封することなく試料中に生成した ^{18}F の γ -線を測定し、半減期を追跡した。 γ -線の測定には、NaI(Tl)シンチレーション検出器(7.4 cm中×7.4 cm)を接続したTMC 256チャンネル波高分析器を使用した。試料中のトリチウムを測定する場合には、試料を水に溶解し、Beckman LSD-100の液体シンチレーションカウンターを使用した。トリチウムを含む気体成分の測定には、比例計数管(有効体積10 ml)を備えたラジオガスクロマトグラフを使用した。炭酸リチウム、硝酸リチウムおよび水酸化リチウムについては、水溶液の状態での中性子照射をも実施した。

3. 結果および考察

Fig. 1に一例として中性子照射した炭酸リチウム中の ^3H および ^{18}F 生成量と試料量の

くどうひろし・たなかきちぞう・あまのひろし

関係を示した。これらの値は中性子束の変動を考慮して、 $n\sigma t = 3.6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ における生成量に換算してある (Table 1 の値についても同様)。参考のために ${}^6\text{Li} (n, \alpha) {}^3\text{H}$ 反応の放射断面積を 953 barn , ${}^6\text{Li}$ の存在比を 7.42% として計算した ${}^3\text{H}$ の生成量をも示した。液体シンチレーションカウンターにより実測した ${}^3\text{H}$ の生成量は計算値よりもかなり低くなっている。石英管を開封する際に放出されるトリチウムを含む気体成分として水素-ガスならびにメタン-ガスを観測されたが、その割合は実測された ${}^3\text{H}$ の 0.2% 以下であった。実測値と計算値との間に差のあることは他の塩についてもみられたが、その比は化合物によって異なることが認められた。

${}^{18}\text{F}$ の生成量は ${}^3\text{H}$ の生成量に比例している。同一化合物であれば、酸素原子の割合が一定であるから当然の結果といえる。種々のリチウム塩 1 mg あたりの ${}^{18}\text{F}$ 生成量を Table 1 に掲げた。これらの値は中性子束の変動のみを補正したものである。それ

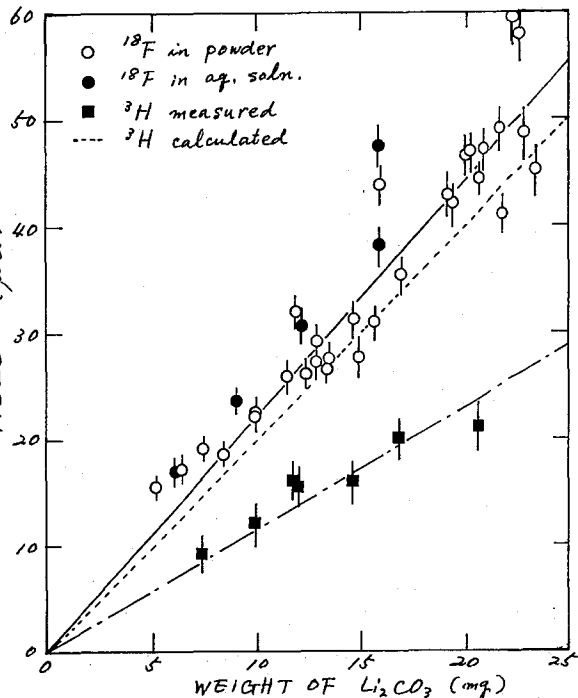


Fig. 1 Yields of ${}^3\text{H}$ and ${}^{18}\text{F}$ in neutron-irradiated Li_2CO_3

Table 1, Yield of ${}^{18}\text{F}$ in neutron-irradiated lithium salts

Target material	${}^{18}\text{F}$ ($\mu\text{Ci}/\text{mg}$)	Target material	${}^{18}\text{F}$ ($\mu\text{Ci}/\text{mg}$)
Li_2CO_3	2.24	$\text{Li}_3\text{C}_6\text{H}_5\text{O}_7 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$	0.57
LiNO_3	0.67	$\text{Li}_3\text{C}_6\text{H}_5\text{O}_7$	0.70
LiOH	1.73	HCOOLi	0.86
$\text{Li}_2\text{SO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$	0.84	CH_3COOLi	0.78
Li_2SO_4	0.87	CF_3COOLi	0.31
$\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$	0.42	$\text{CH}_3(\text{CH}_2)_{16}\text{COOLi}$	0.03
Li_3PO_4	1.60	$\text{C}_6\text{H}_{11}(\text{CH}_2)_3\text{COOLi}$	0.13
$\text{Li}_2\text{C}_2\text{O}_4$	0.91	$\text{LiC}_3\text{H}_5\text{O}_3$	0.51
		$\text{LiC}_4\text{H}_5\text{O}_6$	0.40

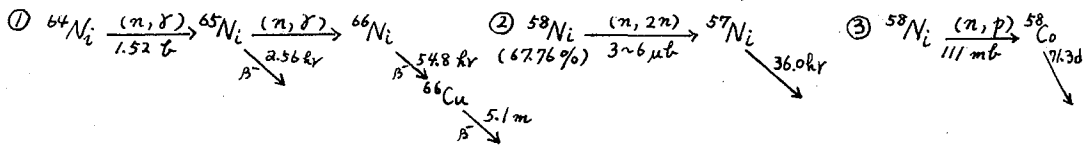
ないが、 ${}^{18}\text{F}$ の生成量から ${}^3\text{H}$ 生成量を求めることの可能性が示された。化合物中でのトリチウムのエネルギー変化および飛程なども考慮しながら、各種リチウム塩中における ${}^{18}\text{O} (n, \alpha) {}^{18}\text{F}$ 反応について検討したので、これらについてのべる。

- 1) R. G. Osmond, A. A. Smales, Anal. Chim. Acta, **10**, 117 (1954).
- 2) H. J. Born, N. Riehl, Angew. Chem., **72**, 559 (1960).
- 3) H. J. Born, P. Wilkniss, Intern. J. Appl. Rad. Isotopes, **10**, 133 (1961).
- 4) J. N. Barrandon, Ph. Albert, Rev. Phys. Appl., **3**, 111 (1968).

(原 研) ○関根俊明 馬場 宏 天野 恕

1. まえがき 安定核⁶⁴Niが中性子1個を捕獲して生じた⁶⁵Ni($t_{1/2}=2.56$ hr)が更にもう1個の中性子を捕獲する反応の断面積については二つの報告がある。一つはPinajian¹⁾による60-70 barnで、もう一つはSermentら²⁾による24.3 barnである。照射は高い中性子束を有する原子炉で行なわれており、中性子スペクトルの差に起因する結果の違いが出ることは仕方のないことであるが、この場合の違いは大き過ぎる。演者らはこれについて実験を行ない、結果を得たので報告する。

天然の同位体組成をもつニッケルを原子炉で照射した場合、次の核反応が起きる。



照射後⁵⁸Coを化学分離し、⁶⁵Niが減衰してしまうと⁶⁶Niと⁵⁷Niとが残る。⁵⁷Niの生成量を求めれば、核分裂中性子に対する⁵⁸Ni(n, 2n)⁵⁷Ni反応の断面積が求められる。これについての報告は少ないので、この断面積を求めることもまた意義あることと考えられる。

2. 実 験 照射 ターゲットとしてJohnson Matthey社製specpureニッケル線または板4-7 mgを用いた。これはまた③の反応による速中性子束モニターを兼ねている。熱中性子束モニターとしては0.475%のコバルトを含むCo-Al合金線を用いた。Table 1に実験条件を示す。ここで照射時間は原子炉出力停止時間を除いた合計の時間である。

Table 1 Details of the experimental condition

Run	Reactor	Nickel target(mg)	Irradiation time(hr)	Chemical yield(%)	Thermal neutron flux(n/cm ² .sec)	Fast neutron flux(n/cm ² .sec)
1	JRR-2	6.14	260	91	1.67 x 10 ¹⁴	1.70 x 10 ¹³
2	JRR-2	6.06	289	90	1.31 x 10 ¹⁴	1.10 x 10 ¹³
3	JRR-4	4.21	19.5	75	1.68 x 10 ¹³	2.64 x 10 ¹²
4	JRR-3	5.42	278	89	2.32 x 10 ¹³	4.62 x 10 ¹¹
5	JRR-3	7.45	254	97	1.19 x 10 ¹³	1.83 x 10 ¹¹

化学分離 照射後数日してからニッケル試料を、γ線スペクトルの測定後、王水に溶解した。塩酸を溶離液とするイオン交換クロマトグラフィによって⁵⁸Coを分離してから、ニッケルジメチルグリオキシム沈殿とし、γ線スペクトルの測定試料とした。

3. 測 定 IAEA校正線源によって校正されたGe(Li)検出器または3"x3" NaI(Tl)検出器によって生成放射能を測定した。⁶⁰Co, ⁵⁸Coの生成量から求めた熱中性子束、速中性子束をTable 1に示す。ここでは熱中性子束モニターをカドミウムでおおう実験を行なっていない

せきねとしあき・ばばひろし・あまのひろし

いので、熱中性子束の値は熱外領域の寄与を含んでいる。その寄与は他のデータから10%以下と推定される。

ニッケルジチマルグリオキシム試料の γ 線ピーク強度から放射能を計算するには、 ^{66}Ni については1039 keV γ 線の強度を9%、 ^{57}Ni については1379 keV γ 線の強度を86%とした。照射終了時の放射能をTable 2と3に示す。

Table 2 Reactor-neutron cross section of $^{65}\text{Ni}(n,\gamma)^{66}\text{Ni}$

Run	Activity of ^{66}Ni at the end of irradiation(dps)	Cross section(b)
1	4554 ±47	16.1 ± 1.8
2	3993 ±42	18.1 ± 2.0
3	8.57 ± 2.65	30.5 ±12.5
4	165 ±10	27.3 ± 4.4
5	40.8 ± 4.0	19.3 ± 3.8
Weighted mean		18.2 ± 3.2

Table 3 Fission-neutron cross section of $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$

Run	Activity of ^{57}Ni at the end of irradiation(dps)	Cross section(μb)
1	1753 ±15	3.78 ±0.22
2	1490 ±16	3.60 ±0.22
3	54.6 ± 9.3	3.56 ±0.24
4	72.5 ± 4.2	4.78 ±0.52
5	42.0 ± 2.1	4.63 ±0.46
Weighted mean		3.78 ±0.36

結果と考察 $^{65}\text{Ni}(n,\gamma)^{66}\text{Ni}$ 反応断面積 Table 2の得られた断面積の値に付した誤差は γ 線ピーク面積の標準偏差に、熱中性子束の誤差・計数効率の誤差として10%を加えたものである。Table 1に示した中性子束のデータから、熱中性子束と速中性子束との割合は用いた照射孔によってかなり違っているので、低エネルギーの中性子スペクトルもかなり違っているであろう。従って ^{66}Ni 生成量が照射孔の熱中性子束の違いだけでなく、中性子スペクトルによっても違ってくる。その意味で厳密に言えば、ここで得た断面積値は実験の行なわれた照射位置に関して有効である。各々のRunで得られた結果は熱中性子束が10倍も異なり、中性子スペクトルがかなり違っていると見られるにもかかわらず、大体一致した値を与えている。重みつき平均値は18.2 ± 3.2 barnでSermentらの24.3 barnに近い値が得られた。これに対してPinajianは60-70 barnという大きい値を報告しているが、用いた原子炉の熱中性子束が $2.45 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ で濱者ら及びSermentらのそれより1桁大きく、結果の違いは中性子スペクトルの差による可能性もある。

$^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$ 反応断面積 $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$ 反応断面積を111 mbとして計算した結果をTable 3に示す。断面積値に付した誤差は γ 線ピーク面積の標準偏差に計数効率測定等の誤差として5%を加えたものである。Run 5と6のJRR-3原子炉での値は他の値より大きい傾向が認められる。核分裂中性子スペクトルは照射孔によってはかなり歪む場合があり、異なる断面積値を与える可能性があるが、ここで得られた値は照射孔が異なるにもかかわらず良く一致していると思えるべきであろう。重みつき平均値は3.78 ± 0.36 μbarn で、今までに報告された値6及び3 μbarn ³⁾と矛盾してはいない。

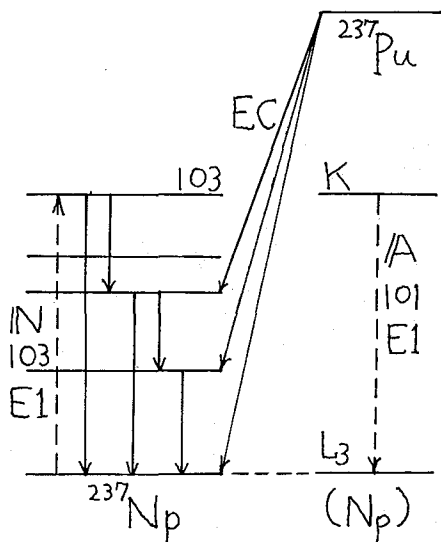
1) J.J. Pinajian, J. Inorg. Nucl. Chem. 31, 1241 (1969). 2) V. Serment et al, Nucl. Tech. 9, 662 (1970). 3) J.C. Roy and J.J. Hawton, AECL-1181 (1960).

(阪大理) 音在清輝 荒川隆一 森田正人

(原研東海) 馬場 宏 畑 健太郎 鈴木敏夫

1 原子準位の失活は普通X線とオーージェ電子の放出によって進行するが、この他にβ⁺の過程として原子核が励起される可能性を森田¹⁾が理論的に考察した。この過程、すなわち電子遷移による核励起(NEET)は音在ら²⁾によって¹⁸⁹O₈の場合について放射化学的に検出された。

2 ²³⁷Puは図のようにECによって²³⁷Npに崩壊するが、その内基底状態へのK捕獲の場合には原子はK電子孔という状態で励起され、L₃電子孔状態への遷移Aが起る。この遷移Aは核における励起Nと比べて、遷移エネルギーがほぼ等しく、かつスピンパリティ変化が同じであるために、NEETによって103 keVの核励起状態が生成される。



3 すると例えば103 keVのγ線が放出される。このγ線をキーとすればNEETの定量的研究が出来るが、実際には強度が非常に弱い。

4 一方K→L₃の電子遷移がNEETに流用されると当然X線スペクトルに異常が起る筈である。²³⁷PuのECのX線スペクトルを観測し、この異常を解析して²³⁷NpにおけるNEETに関する情報をえようとした。

5 理研サイクロトロンで²³⁸U(³He, t_n)²³⁷Puの反応を起し、夏目ら³⁾のイオン交換法によって²³⁷Puを単離した。X線スペクトルの測定はORTEC Ge(Li) low energy photon spectrometerとGEOS-Quanta 4000 channel PHAで行った。X線スペクトルの分解は馬場ら⁴⁾の

方法でコンピューターを使って行った。

6 KX線部分については103 keVと101 keVのピークの強度比 Q_{101}^{103} を、L₃X線部分については12 keVと14 keVのピークの強度比 Q_{14}^{12} を求めた。後者については解析のキーになる12 keVのピークに、たまたまL₂X線が重なり妨害となるため、これを排除く目的で、α崩壊によって同じく²³⁷Npを与える²⁴¹AmからのX線スペクトルを測定し、両者の Q_{14}^{12} の差 $\Delta Q_{14}^{12} = Q_{14}^{12}Pu - Q_{14}^{12}Am$

No.	ΔQ_{14}^{12}	Q_{101}^{103}
1	0.0075 ± 0.0015	$< 1 \times 10^{-4}$
2	0.0067 ± 0.0016	$< 1 \times 10^{-4}$
3	0.0063 ± 0.0006	$< 1 \times 10^{-4}$
平均	0.0065 ± 0.0006	$< 1 \times 10^{-4}$

を求めた。後者については解析のキーになる12 keVのピークに、たまたまL₂X線が重なり妨害となるため、これを排除く目的で、α崩壊によって同じく²³⁷Npを与える²⁴¹AmからのX線スペクトルを測定し、両者の Q_{14}^{12} の差 $\Delta Q_{14}^{12} = Q_{14}^{12}Pu - Q_{14}^{12}Am$

おとぎいさよてる・あらかわりゆういち・もりたまさと・ばばひろし・はたけんたらう・すぎとしお

を求めた。これらの測定結果を表に示した。

7 解析のために下の2式を導いた。

$$Q_{101}^{103} = \left[\frac{A}{\left(\frac{w_K}{w_K} \frac{1}{\beta} + \frac{B^2}{B\beta+A} \right) (A\beta+B)} \right] \left[A + B \frac{A\beta+B}{AB(\beta-1)^2+\beta} \frac{\beta+1}{\beta} r \frac{\lambda_K^x}{\lambda_{K\alpha 1}^x} \frac{w_r}{w_K} \right]$$

$$\Delta Q_{101}^{103} = \frac{AB}{\left(\frac{w_K}{w_K} + \frac{AB}{A\beta+B} \frac{1}{\gamma} + \frac{B^2\beta}{B\beta+A} + \frac{A^2\beta}{A\beta+B} + \frac{w_{L3}}{w_K} \frac{1}{\gamma} \right) (B\beta+A)\gamma}$$

ここで $A = \sin^2\theta$, $B = \cos^2\theta$ (θ は NEET の mixing angle), $\beta = \Lambda_K / \Lambda_{L3}$ (Λ_K と Λ_{L3} は 夫々 K と L_3 状態の全消滅速度), $\gamma = \Lambda_{K\alpha 1} / \Lambda_K$ ($\Lambda_{K\alpha 1}$ は $K\alpha 1$ 遷移全速度), w_K と w_K^x は 夫々 通常と NEET の場合の K 電子孔生成確率, r は 103 keV γ 遷移の分岐比, λ_K^x は KX 線全放出速度, $\lambda_{K\alpha 1}^x$ は $K\alpha 1 X$ 線放出速度, w_r は 103 keV γ 遷移の γ 線放出確率, w_K は K 蛍光収率, また w_{L3} は L_3 電子孔状態の全生成確率である。

8 上の2式の右辺の諸量の内 A , B および β 以外のものは計算で求めた。左辺の量は測定値で与えられる。これらの数値を代入し, β と θ をパラメータとして計算した結果 $\beta \approx 0.2$, $\theta \approx 2.9^\circ$ という値を得た。 β についての量子力学的計算値は 13.9 であって, これに比べてかなり小さい。

9 $\beta = 0.2$, $\theta = 2.9^\circ$ と考えて ^{237}Np における NEET の性格を求めた。

a Mixing ratio: $f = \sin\theta \cos\theta = 0.051$

b Coulomb interaction energy: $-E' = 96 \text{ eV}$

c Correction factor: $f = 0.038$

d NEET probability: $P = 0.015$

文献

- 1) M. Morita, Prog. Theor. Phys. 49 (1973) 1574
- 2) K. Otozai, R. Arakawa and M. Morita, Prog. Theor. Phys. 50 (1973) 1771
- 3) H. Natsume, H. Umezawa, H. Ohashita, T. Suzuki, T. Sonobe and S. Usuda, J. Nucl. Sci. Technol. 9 (1972) 737
- 4) H. Baba, T. Sekine, S. Baba and H. Ohashita, JAERI 1227, June, 1973

(京大原研)西 朋太 藤原 一郎 ○今西信嗣

はじめに: ^{128}Sn は半減期59.3分で β 崩壊して、 ^{128}Sb になる。 ^{128}Sb は、いわゆる奇核で、とくに陽子数は魔法数50より1だけ多く、堅い陽子コアのまわりに、はみだした1個の陽子が働いていると考えられる。さらに Sb 同位元素は、その中性子数が質量の増加とともに順次中性子魔法数82に近づくため、その影響およびはみだした陽子と中性子との間の相互作用を知らうことで、興味ある核種である。ここでは、 ^{128}Sn β 崩壊の実験結果について報告する。

実験方法:

1) 照射と化学分離

^{128}Sn の製造は通常の核反応ではできず、核分裂によるなければならぬ。その製造および分離方法は既報告¹⁾ありである。放射性不純物は ^{123}Sn (40.3 min), ^{127}Sn (2.2 h), $^{128}\text{Sb}^m$ (10.0 min)と $^{128}\text{Sb}^g$ (9.1 h)である。これらのうち後の2つは、いずれも ^{128}Sn の崩壊で生ずるものである。核分裂で直接生ずる Sb の混入は ^{129}Sb が観測されることから、1%以下と考えられる。

2) γ 線スペクトル

試料からの γ 線は; $38\text{ cm}^3\text{ Ge(Li)}$ 固体検出器(1332 keVで2.3 keV FWHM)あるいは $\text{Be窓 } 1\text{ cm}^3\text{ Ge(Li)}$ 固体検出器(122 keVで0.52 keV FWHM)および5.9 keVで0.26 keV FWHM)で測定した。エネルギー・チャンネル関係および検出効率約10種の標準線源を用いて行った。

$^{128}\text{Sb}^m$ の半減期は10.0 minと短いので、 ^{128}Sn の分離後すぐ放射平衡に達する。 γ 線の ^{128}Sn あるいは $^{128}\text{Sb}^m$ への帰属は、これらの γ 線の成長崩壊の摂扱から決めた。 $^{128}\text{Sb}^g$ の半減期は9.1 hと長いので、 ^{128}Sn の γ 線と紛れることはない。

オ1回は $1\text{ cm}^3\text{ Ge(Li)}$ 固体検出器でとつてX線および低エネルギー γ 線のスペクトルである。この図から、 ^{128}Sn 崩壊では強いX線カスケードが生ずる。これが推察される。

3) γ - γ コインシデンス

γ - γ コインシデンスを $38\text{ cm}^3\text{ Ge(Li)}$ 、 $24\text{ cm}^3\text{ Ge(Li)}$ 系で測定した。コインシデンス率は KX 線および 7本 の L 線、および 7本 の高エネルギー L 線-即ち L 線にうけた。コインシデンス率は80 nSである。

結果: ^{128}Sn の β 崩壊に伴う γ 線のエネルギーおよび強度を表1に示す。この表には L 線および sum 線も記している。強度は、 ^{128}Sn と放射平衡にある

に示ともた、ふじわらひちろう、いまのLのぶらぐ

$^{128}\text{Sb}^m$ β 崩壊に基づく γ 線強度を参照して求めた絶対強度を示してゐる。

γ 線間のエネルギーおよび相対強度バランス、同時性ならびに“sum”ピーク強度の解析から、 ^{128}Sn β 崩壊の崩壊図を組立てると次のようになる。

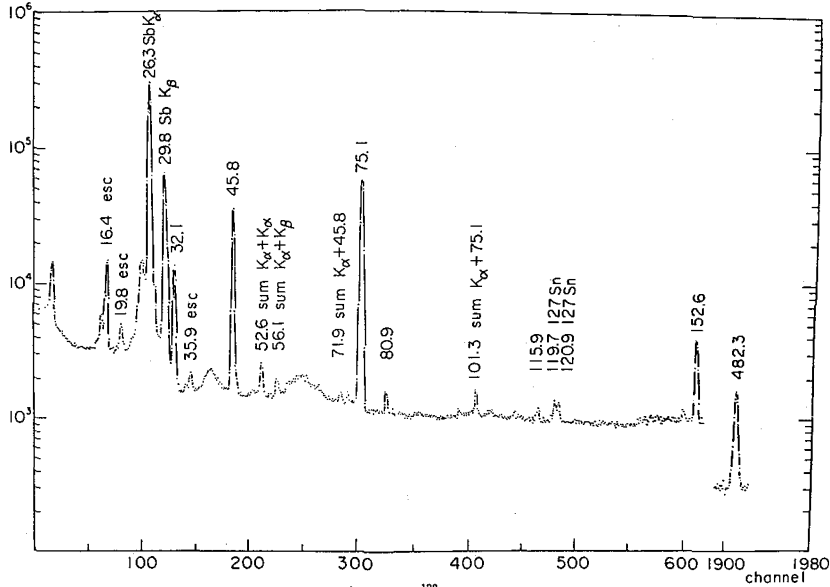
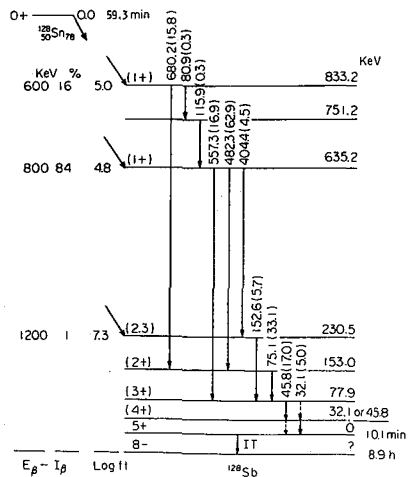


TABLE 1. γ TRANSITION DATA FOR 59.3 MIN ^{128}Sn DECAY.

E (KeV)	I_{γ} (%)
16.4 \pm 0.1	escape
19.8 \pm 0.1	escape
26.3 \pm 0.1	16.3, Sb K_{α} x ray
29.8 \pm 0.1	36.6, Sb K_{β} x ray
32.1 \pm 0.1	5.0
35.9 \pm 0.1	escape
45.8 \pm 0.1	17.0
52.6 \pm 0.1	sum
56.1 \pm 0.1	sum
71.9 \pm 0.2	sum
75.1 \pm 0.1	33.1
80.9 \pm 0.2	0.3
101.3 \pm 0.2	sum
115.9 \pm 0.2	0.3
152.6 \pm 0.1	5.7
404.4 \pm 0.1	4.5
482.3 \pm 0.1	62.9
557.3 \pm 0.1	16.9
680.2 \pm 0.1	15.8



1) 昭和48年度 放射化学討論会講演要旨集

(原研) O畑 健太郎 馬場 宏

1 序論 陽子から α -粒子に至る軽い荷電粒子を入射粒子として ひき起さる核反応の励起関数は、現在までにぼう大なデータが集積されている。我々はこれらのデータをもとにして励起関数の系統性を調べ、未知の核反応の励起関数を予測するための経験則を求めようと試みた。今回は励起関数の特徴として極大値の位置と高さ、およびピークの中の三つの量をとり上げ、 (p, xn) , (d, xn) , $(^3\text{He}, xn)$, ならびに (α, xn) 反応についてこれらの量の間に成り立つ系統性を調べた。

2 考察 $(-, xn)$ 型の反応は高エネルギー部を除いては 複合核を経て生成し、その複合核形成断面積はしきい値 E_{th} で立ち上り、急激に最大値に到達したあとプラトー状になると仮定する。一旦生成した複合核は中性子の連続的な放出によって崩壊する。もし入射粒子に対するクーロン障壁が反応のしきい値よりも高い場合には 障壁のために反応が押しえられ、 E_{th} が高エネルギー側にシフトする効果が現われるであろう。この効果は励起関数の極大値の位置と高さを変化せしめる。

極大値の位置 ある中性子放出過程の励起関数は次の過程が立ち上ることによって降下が始まると考えられる。即ち次の中性子または陽子放出に必要なエネルギーによってピークの位置が規制されるであろう。ピーク位置に対応する励起エネルギーが反応に対して必要とされる最小エネルギーをこえている場合には 放出中性子の運動エネルギーの分を考慮する必要がある。

極大値の高さ 複合核形成の励起関数のプラトーの高さ(σ_c)は幾何学的断面積(πR^2)と何らかの関係を有することが期待される($\sigma_c = \sigma_c(R)$)。また放出中性子の持つ運動エネルギーの値がひろがりを持つために 後段の過程になるほど励起関数の中が広がる。そのため隣接する励起関数と重なり合う程度が増加し、その分だけピークの位置が低下することが予測される。隣り合う励起関数同志では中性子の出易さの差がピークの高さの違いとなって現われるべきである。また高エネルギーの場合には直接過程の影響も考慮する必要がある。

3 結果

3.1 ピーク位置に対応する入射エネルギー (重心系) 以上の考察をまとめて最も簡単な関係式を求めると、 (g, xn) 反応の励起関数のピーク位置に対応する運動エネルギー (重心系) を与える式として

$$E_{\max}(g, xn) = S[-Q(g, xn)] + \{B_n(x+1), (B_p(x+1) + \frac{E_c^p}{g})\} + C_0 S[E_c^g - S(-Q(g, xn))] + C_2 + \sum_{i=1}^x T_i, \quad (1)$$

が得られる。ただし $Q(g, xn)$ はこの反応の Q -値, $B_n(i)$ は i 番目の放出中性子の結合エネルギー, $B_p(i)$ は $(i-1)$ への陽子が出たあとの陽子結合エネルギー, $\{A, B\}$ は A と B の小さい方を表わすものとする。 E_c^p は放出陽子の感するクーロン障壁, E_c^g は入射粒子に対するクーロン障壁, また $S[x]$ は $x \geq 0$ のとき $S[x] = x$, $x < 0$ のとき $S[x] = 0$ という階段関数である

はたけんたろう・ばはひろし

c_1, c_2 は定数, また $2T_i$ は i 番目の放出中中性子の運動エネルギーで, 核温度 T_i は

$$\frac{1}{T_i} = \frac{1}{t_i} - \frac{2}{U_i}, \quad (2)$$

$$t_i = \sqrt{\frac{E_{max} + Q(\beta, i, n) - 2 \sum_{j=1}^i T_j}{a_i}}, \quad (3)$$

で与えられる。ただし t_i は核の熱力学的温度, U_i は残留核に残されたエネルギー, a_i は核準位密度定数である。(α, xn) 反応に対する E_{max} の計算結果と実測値との比較をオ1図に示す。

3.2 ピークの高さ 励起関数の極大値は次式で表わされる。

$$\sigma_{max} = \sigma_0 R e^{-\lambda[S(E_{eff} - E_0) + S(Q(\beta, \alpha, n)) + S(\Delta B_n^{(1)} + \Delta B_n^{(2)}/2)]} \times e^{-a_1 \Delta E_\beta^2 - a_2 (\Delta E_\beta - 5)^2 + a_3 |\Delta E_\beta - 5|^3}, \quad (4)$$

ここで σ_0 は 300 mb とした。また $R = A^{1/3} + \lambda/r_0$ で, A はターゲットの質量数, λ は入射粒子のド・ブローイ波長, r_0 は核半径パラメーター (1.25 fm) である。そして

$$E_{eff} = \alpha E_{CM}; E_{CM} = E_{max} - S[-Q(\beta, \alpha, n)], \quad (5)$$

α はエネルギーが低いときは1であるが, 高くなるにつれて1より小さくなる係数である。

$$E_0 = S[E_\beta^2 - S(-Q(\beta, n))] + 6.5 \quad (6) \quad \Delta E_\beta^2 = S[E_\beta^2 - S(-Q(\beta, \alpha, n))] \quad (7)$$

$$\Delta B_n^{(1)} = B_n(\alpha+1) - B_n(\alpha-1) \quad (8) \quad \Delta B_n^{(2)} = B_n(\alpha) - B_n(\alpha-2), \quad \alpha \geq 2 \quad (9)$$

$$\Delta B_n^{(2)} = 0, \quad \alpha = 1 \quad (10)$$

a_1, a_2, a_3 は定数である。(α, xn) 反応に対する σ_{max} の計算値と実測値との比較をオ2図に示す。

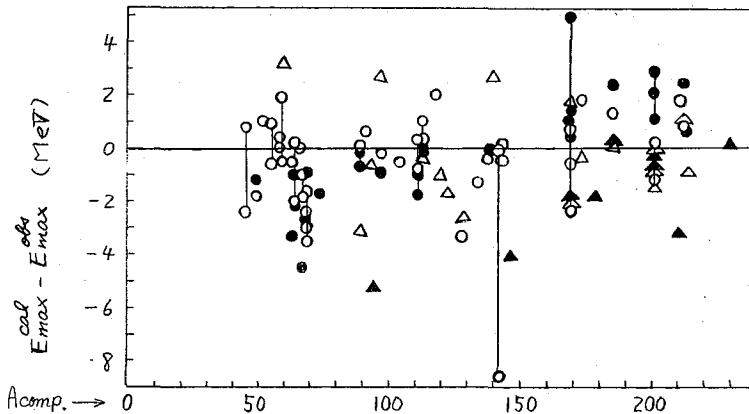


Fig. 1 The difference between the calculated and the observed maximum positions of the excitation function for (α, Xn) reactions

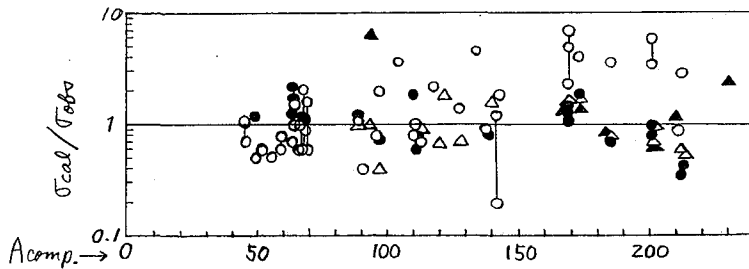


Fig. 2 Ratios of the calculated to observed cross sections at the maximum of the excitation function for (α, Xn) reactions

(都立大理) ○本間義夫, 那須爲行, 村上悠紀雄

[目的] ^{60}Co は半減期3.32年で陽電子壊変し(β^+ 60%, EC40%), 放出 γ 線(0.067 MeV-4%, 0.284 MeV-12%, 0.38 MeV-3%, 0.511 MeV-120%, 1.19 MeV-5%)も比較的低エネルギーで、特に0.284 MeVは測定上都合よく、従来用いられているCu(n, α)反応による ^{64}Cu (EC43%, β^- 38%, β^+ 19%)にくらべて被曝線量の小さいことが期待され、核医学の分野で有望と考えられる。本研究では、天然コバルトを電着しフオイル(20~30 mg/cm²)をつくり、これをスタックとして、理研サイクロトロンで40 MeVの α および ^3He 照射を行ない、各反応の核反応生成物を調べ、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 ^{60}Cu をつくるに適した照射条件を求めようとする研究をすすめてきた。

[実験] 硫酸コバルト溶液($\text{CoSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, 500g/l, NaClO_4 17g/l, H_2SO_4 45g/l)を電解セル(硬質ガラス, 中30mm)内で、白金線を陽極、銅シートを陰極とし、室温で、電流密度50~80 mA/cm²で電着し、コバルトのフオイルを作った。電着終了後、銅シートよりコバルトをはがし、10~12枚をスタックとして、 α および ^3He 照射を行った。照射粒子のエネルギーは最高40 MeV、ビーム電流約1 μA 、照射時間30~45 minであった。

天然コバルトの α および ^3He 照射によりおこると思われる核反応および、生成核種、核反応のQ-valueは次の表の通りである。

ターゲット	核反応	しきい値(MeV)	生成核種	Half-life	Type of decay	
^{59}Co	(α, n)	5.41	^{62}Cu	9.76m	β^+	(Half-life, Type of decay等は Table of Isotopes にある。しきい値は同じく Table of Isotopes の mass excess の値より計算した。)
〃	($\alpha, 2n$)	14.99	^{61}Cu	3.32h	β^+ 60% EC40%	
〃	($\alpha, 3n$)	27.41	^{60}Cu	23.4m	β^+ 93% EC7%	
〃	($\alpha, 4n$)	38.16	^{59}Cu	81.55	β^+ no EC.	
〃	($^3\text{He}, n$)	(Q+6.61)*	^{61}Cu			
〃	($^3\text{He}, 2n$)	5.34	^{60}Cu			
〃	($^3\text{He}, 3n$)	15.96	^{59}Cu			
〃	($^3\text{He}, 4n$)	29.32	^{58}Cu	9.5m	β^+	
〃	(α, p)	0.37	^{62}Ni	安定		
〃	(α, pn)	11.69	^{61}Ni	安定		
〃	($\alpha, p2n$)	20.05	^{60}Ni	安定		
〃	($\alpha, p3n$)	32.20	^{59}Ni	$8 \times 10^4 \text{y}$	EC, no β^+	
〃	($^3\text{He}, p$)	(Q+9.63)*	^{61}Ni			
〃	($^3\text{He}, pn$)	(Q+1.81)*	^{60}Ni			
〃	($^3\text{He}, p2n$)	10.10	^{59}Ni			
〃	($^3\text{He}, p3n$)	19.53	^{58}Ni	安定		

*: Q-value が正なるものである。

ほんまよしあ・存すためゆき・むらかみゆきあ

照射後、主として 15cm^3 Ge(Li) 検出器とマルチチャンネル波高分析器 (1024チャンネル) により、各フオイルごとの α 線スペクトルを測定し、これより生成核種の照射終了時の生成量を求め、また、別に計算によっても天然コバルト中の α および β 粒子の「飛程とエネルギー関係曲線」を求めておき、これと、周波数より得られる照射粒子のエネルギーから、各フオイルごとの照射粒子のエネルギーの算出を行った。

照射粒子数は beam current integrator の読みをとり、これを $\pm 5\%$ に、照射のときのターゲット面その他からの二次電子による見かけ上の電流の増加 (8%) を考慮して補正した。

【結果】 以上の結果を用いて、 $^{59}\text{Co}(\alpha, 2n)^{61}\text{Cu}$ 反応の励起曲線および厚いターゲット収率曲線をも求めた (Fig. 1)。

天然コバルト (^{59}Co 100%) の (α, n) , $(\alpha, 3n)$ 反応は、そのしきい値 (5.4 MeV, 27.4 MeV) から見ると可能だが、生成核種 ^{62}Cu , ^{60}Cu の半減期がそれぞれ 9.76 m, 23.4 m と短かく、いずれも安定な Ni となり、その生成は ^{61}Cu に対して問題にならないので、特に測定は行なわなかった。

また、 ^{59}Co の (α, p) , (α, pn) , $(\alpha, p2n)$ 反応により生成する ^{62}Ni , ^{61}Ni , ^{60}Ni はいずれも安定な核種であり、確認は行なわなかった。

以上の結果から、天然コバルトの α 照射によって ^{61}Cu をつくるには、40 MeV のエネルギーの α 粒子を $20\text{mg}/\text{cm}^2$ のターゲットに照射すればよく、そのときの ^{61}Cu の収率は $6\text{mCi}/\mu\text{Ah}$ である。また、副生すると思われる ^{62}Cu , ^{60}Cu は cooling により取り除きうるので、 $^{59}\text{Co}(\alpha, 2n)^{61}\text{Cu}$ 反応は ^{61}Cu の有用な製造法になると思われる。

α 線照射については、まだ実験を完了していないが、予備照射の結果よりみると、 α 照射にくらべて ^{61}Cu の生成に対する核反応断面積は小さく ^{60}Co の生成量の方が多い傾向がある。これらのデータの整理した結果にもとづき両者の最適条件を比較して、その優劣を考察した。ターゲットからの ^{61}Cu の化学分離については、 ^{60}Co , ^{61}Cu と ^{59}Ni (8x10⁴ y. EC) のターゲット (約 1.5 g) からの分離を考えると、沈殿法、溶媒抽出法、イオン交換法などを検討した。医学利用を考へ、従来の ^{64}Cu より優れている特色を出すためには、キヤリウムフリー分離がのぞましく、結局陰イオン交換樹脂による分離を検討している。

即ち、照射済ターゲットを溶解後、4N 塩酸酸性として、あらかじめ 4N 塩酸でよく洗った Flowex I (200~250 μm シズ, $\phi 0.75 \times 15\text{cm}$) に流速 $0.5\text{ml}/\text{min}$ で 2.5M 塩酸にて溶離すると約 20ml のフラクションに ^{61}Cu が溶離される。

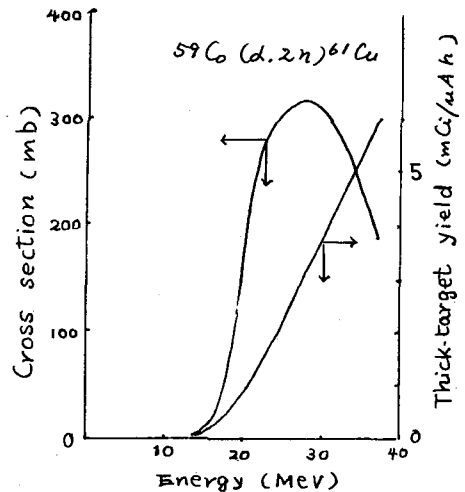


Fig. 1. $^{59}\text{Co}(\alpha, 2n)^{61}\text{Cu}$ の励起曲線および厚いターゲット収率曲線

4P03

中止

MEMO

[緒言] ^{32}Si は、半減期がよく判っていない ($100\sim 700\text{y}^1$) にも拘わらず、核種の ^{32}P の milking 測定が容易なこともあり、大気中 Ar からの宇宙線生成核種として地球化学、特に海洋化学的方面からの研究がよく行われてきている²⁾。一方、月、隕石、宇宙塵などでは α -ジェット核種の存在が低いことからあまり注目されていない。しかしこれらも、数 100 年の半減期をもつ軽核として興味深いので、その正確な半減期の値が知られ、さらには諸生成反応の断面積測定がなされることは強く望まれる。

我々は毎年 10 月に ^{32}Si の適当な製法の 1 つとして、塩素の 50 MeV 陽子との反応、 $^{37}\text{Cl}(p, \alpha 2p) + ^{35}\text{Cl}(p, 4p) ^{32}\text{Si}$, α 収率を stack 法で調べた。これを、半減期 500 年を仮定した励起関数の形で表わし、複合核モデルによる計算と比較してみた。同時に、 $^{37}\text{Cl}(p, \alpha pn) + ^{35}\text{Cl}(p, 3pn) ^{32}\text{P} - 14.3\text{d}$ および $^{37}\text{Cl}(p, \alpha p) + ^{35}\text{Cl}(p, 3p) ^{33}\text{P} - 24.4\text{d}$ についても予備的結果を得た。同様の計算と比較した。

[実験] 試薬特級 NaCl を細粉し、100~200 mesh 分を 1 ton press で直径 27 mm 厚さ 200~600 mg/枚の内板とし、2.3 mg/cm² の Al 箔に包んで stack にした。これを、東大核研 FM cyclotron の 51.8 MeV 陽子の 0.4 μA で 2.5 hr、27 日おいてさらに 2.5 hr の照射を行なった。全陽子数にして 4616¹⁶ に相当する。NaCl 板の照射部分は深紫色を呈し、光にさらすと退色した。1ヶ月の cooling 後、各内板を水に溶解、 Na_2SiO_3 (10 mg Si) と $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ (~5 mg P) の担体を加えてから 6N-HCl で $\text{SiO}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ とし、リンを 6N-HNO₃ で繰り返し抽出、洗浄した。焼くとき SiO_2 とし、放射能 4 μCi をしてから両液 PO_4^{3-} を加えてアルカリ熔融し、再び $\text{SiO}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ から直接生成の ^{32}P , ^{33}P を完全除去した。SiO₂ 形で ^{32}P の生長を測定。秤量後、 ^{32}P を分離測定して cross check とした。直接生成の ^{32}P と ^{33}P 、および ^{32}Si から ^{32}P のフラクションは、 $(\text{NH}_4)_2\text{MoO}_4$ および Mg 混液による沈殿を各 2~3 回繰返して精製し、 $\text{Mg}_2\text{P}_2\text{O}_7$ 形で測定した。放射能測定は薄窓 GM および低 BKG のカスフロ-GM による。 ^{32}P , ^{33}P , ^{32}Si の β max. energy は各 1.7, 0.25, 0.21 MeV で、それぞれ α 吸収測定を併用し、decay curve の解析からお互を区別した。計数効率、吸収補正等は各適当な標準試料を作成して求めた。

[結果] 次頁の図に、 ^{32}P , ^{33}P , ^{32}Si の断面積と大結果(実線)と、計算値(破線)と共を示す。 ^{32}Si は半減期 500y を仮定してある。実験値の誤差は、計数統計、自己吸収、Al 吸収板や GM 窓・管気による吸収、秤量にもなる不確かさを 10% 示した(誤差棒のないものは印能度)が、 ^{32}P については過少評価の恐れがある。陽子数は 100% feedback 型 current integrator を読み取った。 α -ジェット板が厚さを測った際の陽子エネルギーの校正は福島の方法³⁾で補正した。理論計算は Dostrovsky の方法⁴⁾と原理的に同じく、その他の input の式・数値は福島のもの³⁾と同じである。図の計算値は、 $10^3\sim 10^4$ 回の Monte Carlo 計算(全断面積 / b)の結果で、 ^{37}Cl と ^{35}Cl の両者の原子を加えたもの⁵⁾である。 ^{32}Si は、level density parameter $a = 1.5\sim 2.5 \text{ MeV}^{-1}$ 、核半径の parameter $r_0 = 1.5\sim 1.7 \text{ fm}$ の範囲を、 ^{32}P , ^{33}P

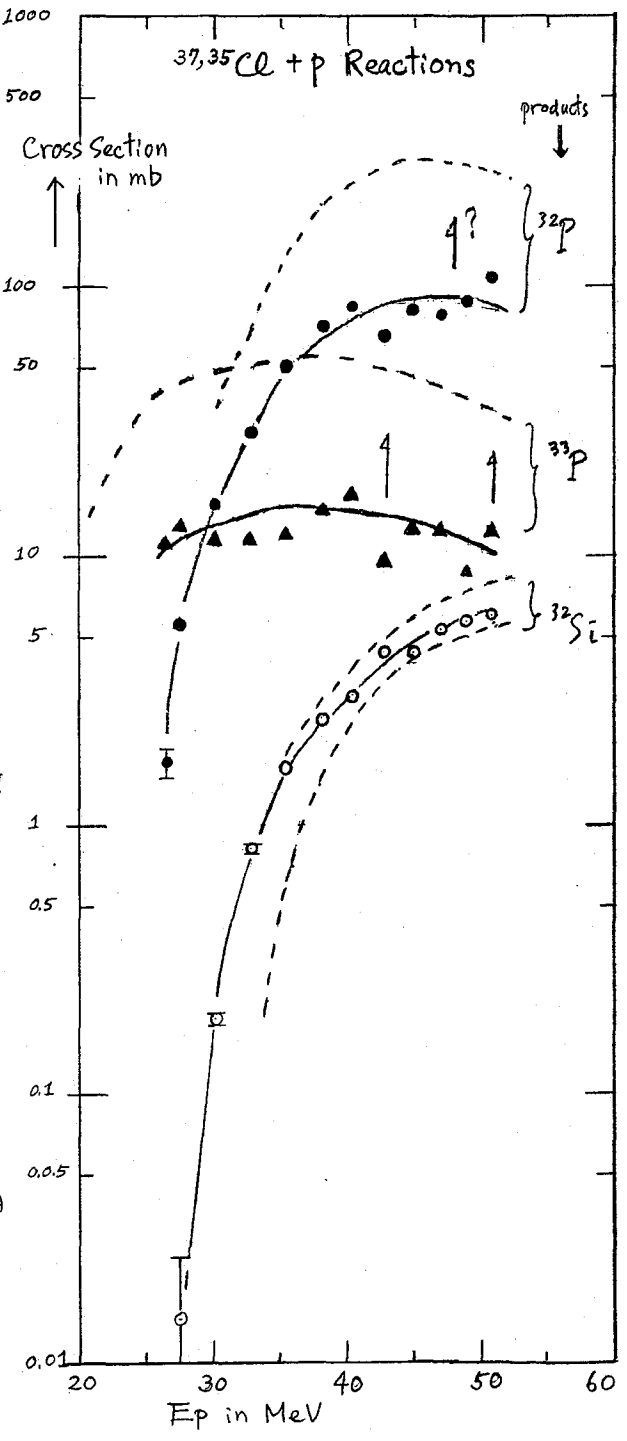
かがこうえい・さかもとこう・こむらかすひ

は、 $Q=2.0\text{ MeV}^{-1}$, $r_0=1.5\text{ fm}$ を用いた結果である。実験と計算の比較は、 ^{32}Si に関しては一致良く、 ^{32}P 、 ^{33}P は形はよく合う。 ^{32}P 、 ^{33}P の絶対値は、計算値が3~4倍大きい。実験にも問題があり測定値の体要がある。理論計算には、直接過程は考慮してないが、かなりの部分が複合核を経由してのものと云える。

^{32}Si の製造法としては、① $Z>15$, $A>33$ のクォーターの破砕反応、② 中性子の二次反応、 $^6\text{Li}(n,t)\text{He}$, $^{30}\text{Si}(t,p)$, ③ $^{30}\text{Si}(2n,\alpha)$, ④ $^{31}\text{P}(n,\alpha)^{32}\text{P}(n,p)$, ⑤ $^{31}\text{P}(n,p)^{31}\text{Si}(n,\alpha)$, ⑥ $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}(n,p)$, ⑦ $^{33}\text{S}(n,2p)$, ⑧ $^{34}\text{S}(n,2pn)$, ⑨ $^{235}\text{U}(n,f)$ などが考えられ、一部測定例もある。②③は無担体の観測から、また④も除却、⑤~⑧は収率その他の点から有望である。上記と同じ複合核モデルの計算から、荷電粒子反応は $\text{Cl}+p$ の他、 $^{30}\text{Si}(\alpha,2p)$: 20 mb at 34 MeV , $^{36}\text{S}(p,\alpha p)$: 15 mb at 32 MeV , $^{34}\text{S}(p,3p)$: 4 mb at 52 MeV が示される。以上から、半減期測定その他のための無担体 ^{32}Si の製造法には、 $(\text{Cl}+p)$ の反応が適者と結論された。

[文献]

- 1) C.M. Lederer, J.M. Hollander, and I. Perlman, "Table of Isotopes" 6th Ed. (John-Wiley, 1967); S. Forberg, Radiochim. Acta, 18 (1972) 194
- 2) 元々、D. Lal and B. Peters, "Handbuch der Physik", Vol. 46, p. 551 (Springer, 1967); D. Lal, V.N. Nijampurkar and B.L. K. Somayajulu, "GALATHEA Rept.", Vol. 11, p. 247 (Danish Sci. Press, 1970)
- 3) S. Fukushima et al., Nucl. Phys., 41 (1963) 275
- 4) I. Dostrovsky, Z. Frenkel and G. Friedlander, Phys. Rev. 116 (1959) 683



(名大理) 古川 路明

1 中重核に陽子を照射した際に生成する放射性核種の生成断面積についてはかなり多くの研究がなされているが、宇宙科学の研究にとって重要なターゲット核である鉄についてはまだデータは十分とはいえない。我々は宇宙科学の研究の際に重要な核種の1つである ^{53}Mn の生成断面積を測定してきたが、同時に生成している他の放射性核種についても生成断面積の測定を試みた。現在までに生成断面積の測定をほぼ完了した核種は $^{52,56}\text{Co}$ 、 $^{54,53,52}\text{Mn}$ 、 ^{54}Cr 、 ^{48}V の7つであるが、 ^{55}Fe については現在測定を継続中である。これらの結果は隕石、月面試料などの中に生成している放射性核種の測定値を解析するのに役立つとともに、核反応機構について考察する際にも重要である。今回は今までに得られた結果を総括して報告し、その中から興味ある結果を重点的に取りあげて考察する予定である。

2 陽子照射は理研サイクロトロン ($E_p = 16 \text{ MeV}$)、東大核研シンクロサイクロトロンを利用して行ない、陽子数を知るにはファラデー・カップとビーム・カレント・インテグレーターを用いた。ターゲットとしては、天然同位体組成の $10 \mu\text{m}$ 鉄箔または濃縮同位体 $^{56}\text{Fe}_2\text{O}_3$ をアルミ箔上に沈降させたものを用いた。入射エネルギーより低いエネルギーにおける結果を得るにはアルミ箔を利用したスタック・フォイル・テクニックを用いた。放射能測定は通常 NaI シンチレーション・カウンターは $\text{Ge}(\text{Li})$ 半導体検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーによったが、 ^{55}Fe の測定にはGM計数法、 ^{53}Mn の定量には中性子放射化分析法または質量分析法を利用した。

3 得られた結果の一部を *Figs. 1 ~ 3* に示した。*Fig. 1* には $^{56}\text{Fe}(p, \alpha)$ 反応の励起関数を示したが、 (p, α) 反応の断面積の測定結果はきわめて少なく、特に中重核については信頼できる結果が全くないので、 (p, α) 反応の機構を考察するには貴重な結果である。*Fig. 2* には鉄の各同位体に対する (p, α) 反応の励起関数を示した。ときい値の差がそのまま断面積の値に反映するような単純な関係が成立している。この中に $^{58,60}\text{Ni}(p, \alpha)$ 反応に対する測定値を加えてもこの傾向は変らない。一見残核のodd-evenの効果は反映されていないように見えるこの結果については、さらに考察が必要である。*Fig. 3* には種々の放射性核種に対する生成断面積の値を示した。(参考のため ^{56}Fe からこれらの核種が生成する反応とQ値をTable 1に示した。)これらの反応の中のいくつかについてはJenkinsら¹⁾およびWilliamsら²⁾の測定があるが、両者はそれほど良く一致していない。今回の測定値と比較した結果では、前者とより良い一致がみられるようである。

文 献

- 1) I. L. Jenkins, A. G. Wain, *J. inorg. nucl. chem.*, **32** 1419 (1970)
- 2) I. R. Williams, C. B. Fulmer, *Phys. Rev.* **162** 1055 (1967)

ふるかわみさあき

Table 1. Proton induced reactions on ^{56}Fe

Reaction	Q-value (MeV)
$^{56}\text{Fe}(p, \gamma)^{57}\text{Co}$	6.02
$(p, n)^{56}\text{Co}$	- 5.36
$(p, 2n)^{55}\text{Co}$	-15.45
$(p, pn)^{55}\text{Fe}$	-11.20
$(p, 2pn)^{54}\text{Mn}$	-20.31
$(p, \alpha)^{53}\text{Mn}$	-11.06
$(p, 2p2n)^{53}\text{Mn}$	-29.31
$(p, \alpha n)^{52}\text{Mn}$	-13.11
$(p, \alpha 2n)^{51}\text{Mn}$	-23.62
$(p, \alpha pn)^{51}\text{Cr}$	-19.65
$(p, 2\alpha n)^{48}\text{V}$	-21.77

Fig. 3 Formation of various nuclides from natural iron

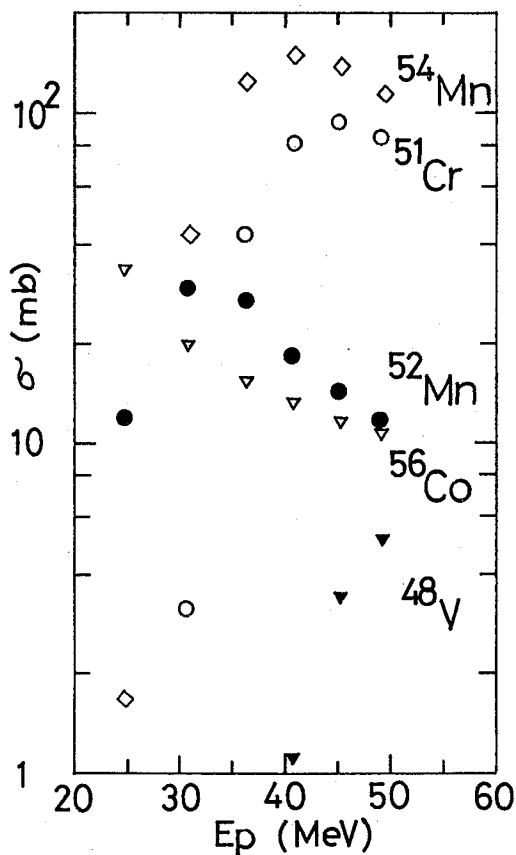


Fig. 1 $^{56}\text{Fe}(p, \gamma)^{57}\text{Co}$ reaction

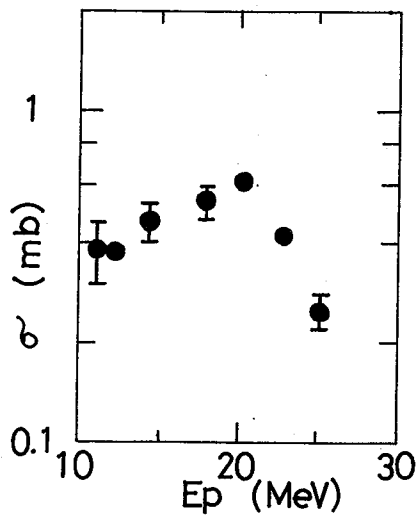
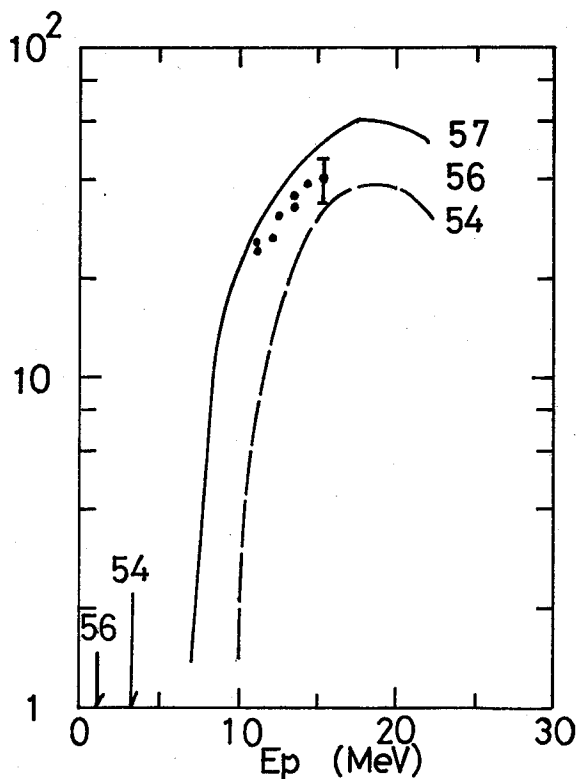


Fig. 2 (p, alpha) reactions of ^{54}Fe , ^{56}Fe and ^{57}Fe targets

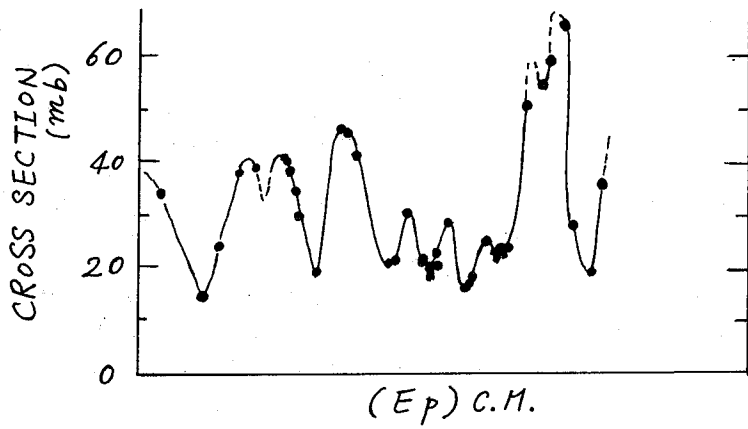
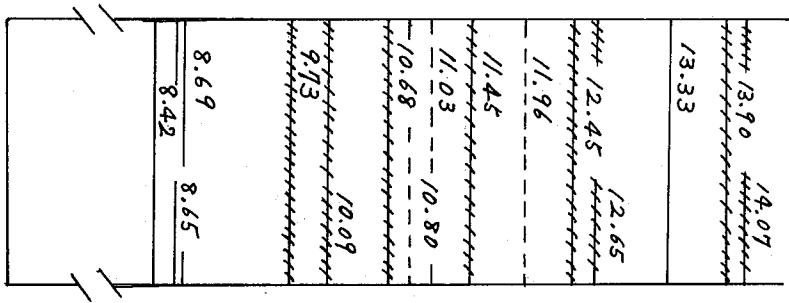


(東大枝研) 田中重男 ○井上照夫

^7Be は宇宙物理の研究で大切な役割をする放射性核種の一つで、軽元素 Li, Be, B の起源および星の中の組成、宇宙線の伝播、宇宙線と大気物質との反応など多くの問題に関連しています。また ^7Be は軽元素の安定同位体の核反応生成断面積を質量分析器で測る際のモニターに使われていますので、 ^7Be 生成断面積の絶対値の正確な測定が前提になります。以上の目的のために、われわれの研究室では Be, B, N, O, と 52 MeV までの陽子との核反応で生ずる ^7Be の生成反応断面積を陽子エネルギーの関数として系統的に測定していますが、今回の研究では発熱反応である $^{10}\text{B}(p,\alpha)^7\text{Be}$ 反応の 0~5 MeV の間の断面積を原子力研究総合センターのタンデム・バンデグラフを使用して測定しました。ターゲットにはホウ素金属粉(純度 99.5% 以上)を用い、薄いアルミニウム箔の上に電気泳動法によってホウ素を固着させたものを使用しました。ホウ素ターゲットの厚みは 0.2~0.6 mg/cm² で、前方反跳粒子(^7Be)をアルミニウム保持箔に捕獲するように数枚積み重ねて照射しました。陽子照射はタンデム・バンデグラフからの 5.00 MeV および 4.00 MeV 陽子で数回行い、一回の照射は約 30 分で 300 マイクロクーロン (1.88×10^{15} 個陽子)の線量を用いました。照射後 Ge(Li) 検出器で不純物からくる妨害放射能のないことを確かめ、 ^7Be (半減期 53.6 日)の生成絶対量は特に低レベル測定用に設計された井戸型 NaI 検出器で、その 478 KeV の γ 線スペクトルを測定することによって決定しました。急激な数枚のターゲットについてはベリリウム(化学分離精製)を行い上の測定の正確さを確認しました。断面積の絶対値の精度は $\pm 10\%$ と推定されます。現在までに得られた結果を Fig. 1 に ^{10}B のエネルギーレベル (F. Ajzenberg-Selove and T. Lauritsen, Energy Levels of A=10-20 Nuclei, Nucl. Phys. A114, 1968 より) と対比させて示します。また実験値が足りませんので複合核 ^{10}B の励起レベルと $^{10}\text{B}(p,\alpha)^7\text{Be}$ 反応断面積の共鳴ピークとの対応は完全にはとれていませんが、12.65, 12.45 MeV ; 10.80, 10.68 MeV および 10.09, 9.73 MeV の広い中のレベルのところではよく対応しています。しかし 11.45 MeV のところははまりしません。このように低い陽子エネルギーのところでは 20~60 mb もの大きな反応断面積を持っているということは元素合成など宇宙物理の問題に対して $^{10}\text{B}(p,\alpha)^7\text{Be}$ 反応が重要な意味を持つ可能性はあります。また実用的面で純金属、合金などの中の微量なホウ素の放射化学分析が他元素の妨害なく感度よく実行できることを示唆しています。

たなかしげお・いのうえてるお

表1 図 C のエネルギーレベルと $^{10}\text{B}(p,\alpha)^7\text{B}$ 反応の断面積



$^{10}\text{B} + p$
8.69

(新潟大理) 中原弘道, 宮野和政, 仁藤 修,

外林 武

核反応過程を説明するために, 励起関数, 核異性体生成断面積比及び生成反跳核の平均飛程を求めた。

ターゲットには ^{197}Au の箔 (10.26 mg/cm^2) を使用し, 生成反跳核の捕獲には Al 箔 (5.4 mg/cm^2) を使用した。飛程の求め方は, いわゆる厚いターゲット, 薄い捕獲箔の手法に従った。即ち, ターゲットの捕獲箔中の放射能をそれぞれ A_b, A_c とし, ターゲットの厚さを T とすれば, $R = T \cdot A_c / (A_c + A_b)$ で示せる。この値は平均飛程であって, LSS の理論に従って projected range になおすと $R_p = R(1 + 1/3)$ になる。照射は東大核研の 5.2 MeV 陽子ビーム ($I \approx 0.5 \mu\text{C}$) を Al スタックで減速して, 1~5 時間行った。目的とした反応は $^{197}\text{Au}(p, pn)$, ^{196m}Au であるが, $^{197}\text{Au}(p, 3n)$, ^{195m}Hg 反応と比較的容易に測定した。生成核種の半減期及び基底状態のスピンを表に示す。照射回数時間冷却してから Au と Hg の化学分離をターゲットと捕獲箔について行ない (捕獲箔の場合には Au の担体も加えた) 夫々の試料の溶解を 1 sec Ge(Li) 検出器で定立体角法によって測定した。化学分離には Au と Hg の単時間完全分離を行うために, 酢酸エタール-10% HCl に基づく蒸留法を用いた。化学収率は, Au と Hg の形で求めたが, Hg については EDTA に基づく定量法も併用した。断面積と飛程を求めるために使用した溶解及びその photon intensity を表の 4, 5, 6 カラムに示した。

結果を図に示す。予想されるように $(p, 3n)$ 反応では ^{195m}Hg , ^{195g}Hg 共に複合核形成過程に特有の励起関数を示すが, $E_p > 40 \text{ MeV}$ では尾を引いている。 $E_p > 40 \text{ MeV}$ で複合核過程以外の反応が大きく奇形していることは, 飛程のゲータ及び核異性体断面積比のゲータからも推察できる。 (p, pn) 反応では ^{196m}Au の高スピンのため ^{196g}Au の値スピンのくらべて断面積が 10 分の 1 以下である。 ^{196m}Au , ^{196g}Au の励起関数は共に同じ形をしており, 複合核過程では全く説明できないことがわかる。飛程のゲータからは, ^{196m}Au の生成反応が full momentum transfer に近い反応を通っていることがわかり, 逆に ^{196g}Au の生成反応は直接過程が主で, 全エネルギー領域に亘って飛程がほぼ一定であることがわかる。なお図に示した破線は full momentum transfer から予測される飛程を示すが, エネルギー・飛程の関係式は LSS の $\rho = 3.06 \text{ E}$ を使用した。また, 蒸留粒子による full momentum transfer からのずれは次式で近似される。

$$\text{前方に放出する場合: } \bar{R} = R_0 \left(1 + \frac{2}{3} \frac{E_{out}}{E_{in}} - \frac{1}{15} \frac{E_{out}^2}{E_{in}^2} \right)$$

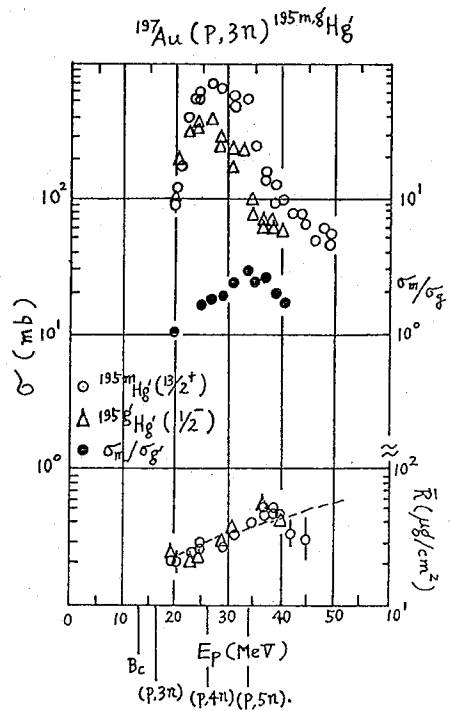
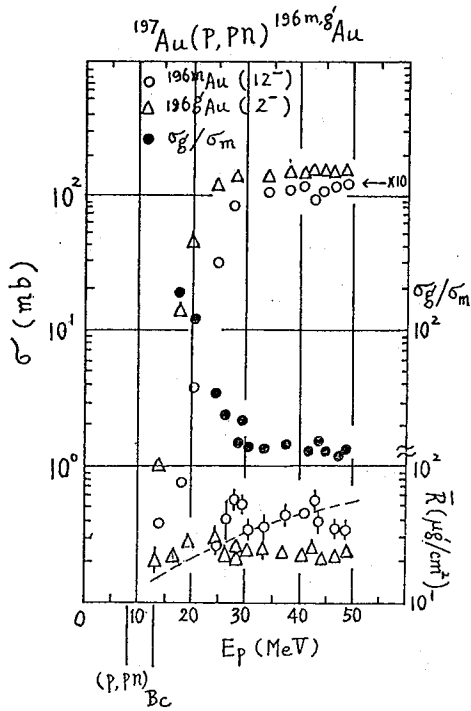
$$\text{前方のみに放出する場合: } \bar{R} = R_0 \left(1 - \sqrt{\frac{E_{out}}{E_{in}}} \right)^2$$

$$\text{前方及び後方に等しく放出する場合: } \bar{R} = R_0 \left(1 + \frac{E_{out}}{E_{in}} \right)$$

以上の実験結果と複合核過程, pre-equilibrium model 及び直接過程からの奇形を考慮しながら解釈を試みた。

なかほらひろみち・みやのかずまさ・にとうおさむ・せとほやしとけし

核種	$T_{1/2}$	J	E_γ	I_γ photon intensity
^{196m}Au	9.7 hr	12^-	147.8 keV	44.6 %
^{196g}Au	6.2 d	2^-	355.7	87.7
^{195m}Hg	40 hr	$13/2^+$	560.2	7.5
^{195g}Hg	9.5 hr	$1/2^-$	779.8	7.46



(東大物性研) ○吉田 邦夫 宮島 恭子 本田 雅健

ポリカーボネートは、硝酸セルロースと共に、SSTD(固体飛跡検出器)として、最もよく利用されているものの一つである。本研究では、ポリカーボネート・フィルムを用いて、飛跡に沿ったエッチング速度の変化を検討すると共に、エッチング試薬として、有機溶媒を用いることにより、再現性を増加させることを試みた。

1. 飛跡に沿ったエッチング速度の変化

高エネルギー粒子が物質に入射した際、飛跡に沿ってエネルギーを放出し、遂には静止する。標的物質に対する付与エネルギー、つまり物質の受ける損傷は、飛跡に沿って変化するものと考えられるが、連続的な顕微鏡観察では、飛跡方向のエッチング速度(V_T)の変化は検知できなかった。ここでは、厚さ60 μm の基材に、何種類かの厚さの同質の薄膜を通して、核分裂片を入射させ、トラック生成速度の差異を検討した。

厚さ2 μm のポリカーボネート・フィルム上に、 ^{235}U 水溶液を数滴、分散滴下、風乾し、約0.01 μg とし、線源に用いた。この線源から10mm離れたポリカーボネート・フィルムの直径8mmの円型内に、核分裂片を照射するようにし、4組の円型を1試料とした。ポリカーボネートは、エッチング用の60 μm のものを基材として、その上に、それぞれ厚さ、3, 6, 8, 10, 12 μm のものを密着させた。また、比較用として、薄膜だけの試料も用いた。(ポリカーボネート: Bayer, Makrofol KG)。試料は、立大原子炉 TRIGA MARK II で5分間照射した($5 \cdot 10^{11}$ n/sec. cm^2)。

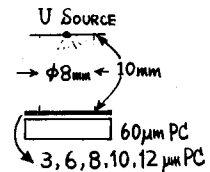


図 1.

照射後、エッチング用60 μm フィルムに入射した核分裂片の軽核および重核の分布を確認するために、薄膜、60 μm フィルム、それぞれについて、50 cc Ge(Li) 検出器により α -スペクトル(1 keV/d.)を測定した。薄膜8 μm を通した場合には、軽核の90%以上が60 μm フィルムに達しているのに対して、重核は60%前後に過ぎず、12 μm を通した場合には、軽核もほとんど60 μm フィルムに入射してはいないことを確認した。

照射後約1ヶ月、遮光して保存した後、エッチングは、0.1 M KOHメタノール溶液を用いて、同一試料について、30, 60, 90分(合計) 行なった。また比較のため、0.5 M 溶液によるエッチングも行なった。液温は $20 \pm 1^\circ\text{C}$ で、6試料を同時にエッチングした。

同一試料については、軽核および重核によると思われるトラックは、たがいにトラック長が異なり、識別が可能であった。また、トラック・ピットの直径も、違いがあるように観察された。飛跡に沿った損傷に起因するトラックのエッチング速度(V_T)は、図2に示したように、軽核、重核とも、入射した核分裂片のエネルギーに依存している。重核の場合には、残余飛程(R)が2 μm (薄膜6 μm)で、トラック長の測定が可能であり、薄膜8 μm の場合にも、トラックの存在が識別されているのに対して、軽核では、残余飛程2 μm (薄膜10 μm)の場合さえ、トラックの識別は困難であった。これは、バックグラウンドが

よしだくにお・みやじまきょうこ・ほんだまさたけ

原因であり、誤差は、主に検鏡誤差によるものである。δ線の影響により、ピットの直径が変化することも期待したが、検討するためには、更に精密な測定が必要とされる。直径0.5~2 μm 、長さ数 μm のトラックを正確に測定するためには、測定方法の改良が必要であり、現在、マイクローム・カッターによる縦断面の顕微鏡観察を試みている。

2. 有機溶媒を用いたエッチング

高分子フィルムのエッチングに有機溶媒を用いると、室温で迅速なエッチングが可能であることは、すでに報告した。この性質を利用して、揮発性の小さい溶媒を用い、顕微鏡下で、トラック生成を連続的に観察することも出来る。また、アルコール性溶液を用いると、界面活性剤を添加しなくても、均一で美しいトラックが得られる利点もある。

エッチング速度に影響を与える因子は、多種多様であり、ポリカーボネート・フィルムについても、紫外線、電場、雰囲気の影響などが知られている。特に再現性を高める上で重要なことは、アルカリ水溶液を用いてエッチングする際、ポリカーボネートの分解生成物の濃度が増加するに伴い、放射線損傷を受けていない膜の表面でのエッチング速度(V_G)が増加し、同時にトラック生成速度(V_T)も変化すると報告されている点である。ポリカーボネートの分解生成物は、主にビスフェノールA (p,p'-isopropylidenebisphenol) であると考えられる。アルコール溶液に対する、ビスフェノールAの溶解度は、水溶液の1,000倍程度であり、アルコール性アルカリ溶液を用いることにより、この影響を減少させることができるのではないかと考えた。そこで、1M KOHメタール溶液にビスフェノールAを溶解したエッチング溶液を用いて、 V_G を測定した。測定は、重量から厚さを算出し、別に、マイクローム・カッターによる縦断面の顕微鏡観察で確認した。

その結果、アルカリ水溶液とは逆に、0.1%のビスフェノールAを含んだ溶液で、すでに

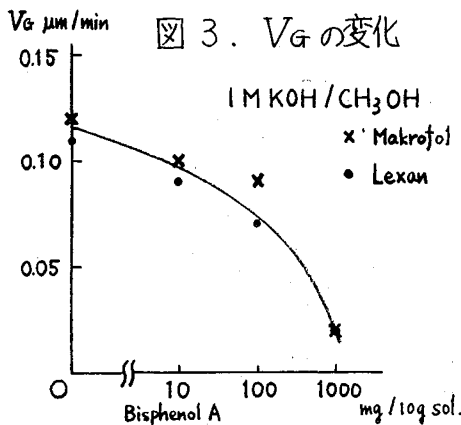


図3. V_G の変化

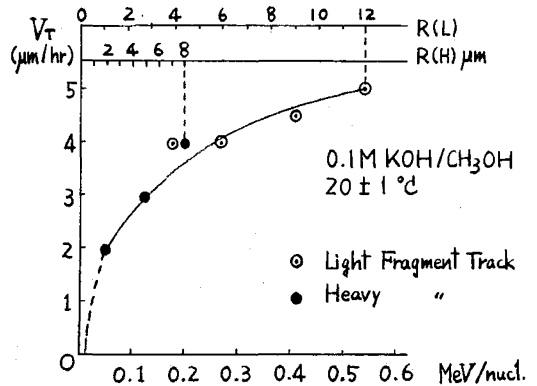


図2. エッチング速度の変化

V_G は減少を始め、飽和溶液では、 $V_G \sim 0$ となる結果が得られた。アルコール溶液でエッチングすると、長さ5 μm 程度のトラックまでは容易に得られるが、特に薄い溶液(細いトラック)を使うと、トラック長を5 μm 以上にするのに時間がかかる。これは、ピット内の溶液交換が困難となり、分解生成物の濃度が増大し、エッチング速度が遅くなるものと考えられる。従って、再現性を高めるためには、アルコール溶液の使用は適当ではなく、使用する際には、常に新鮮な溶液を用いるべきである。

東大物性研 牧野友子 源生礼亮 本田雅健
東大核研 金子条太郎

1. 序論

¹⁰Beの半減期測定は、1947年に2つの報告があり、 $(2.7 \pm 0.4) \times 10^6$ 年なる値が求められて以来久しく行なわれなかつた。1972年に、F. Yiou, G.M. Raisbeckらにより $(1.5 \pm 0.3) \times 10^6$ 年が求められ、また1947年の一つの報告の訂正(1972)が出されて、現在では 1.5×10^6 年が最ももらしい値となって来ている。長い半減期を測定するために、ここでは放射壊変の式 $A = \lambda N$ を利用して、A及びNの絶対測定を行なうことを試みた。そのためには、(1)β線測定による¹⁰Beの比放射能A、(2)原子吸光による⁹Beの量、(3)質量分析計により求まる同位体比¹⁰Be/⁹Beの3つの値が必要であり、半減期T_{1/2}は、

$$T_{1/2} = \frac{0.693 ({}^9\text{Beの原子数}) \cdot ({}^{10}\text{Be}/{}^9\text{Be})}{A}$$

により求まる。

今回は、¹⁰B(n, p)¹⁰Beと⁹Be(n, r)¹⁰Beを利用して半減期測定のための¹⁰Be試料の調製を行なつた。

2. 窒化ホウ素試料

窒化ホウ素板に東北大金研JMT Rでtotal 10^{20} nra/cm²の中性子照射を行なつた。速中性子により¹⁰B(n, p)¹⁰Beで生成した¹⁰BeをFig1のような化学操作により精製した。放射性不純物の同定はγ線測定により行なつた。主な不純物は、¹³⁴Cs, ⁵⁹Mn, ⁶⁰Coである。化学収率は試料中に¹⁰B(p, α)⁷Beで副生成していた⁷Beをトレーサーとして用いて求めた。

3. ベリリウム試料

フレーク状の金属ベリリウムにJMT Rによりtotal 3×10^{19} nra/cm²の熱中性子照射を行なつた。⁹Be(n, r)¹⁰Beによる試料の比放射能から¹⁰Be/⁹Be $\approx 3 \times 10^7$ である。照射により生じた主な放射性核種は⁴⁴Sc, ⁵¹Cr, ⁵⁹Fe, ⁶⁰Co, ¹¹²Ir, である。フレーク状金属約50mgにFig3のような化学処理を行ないBe(OH)₂とした。この試料を東大核研の同位体分離器を用いて¹⁰Beの濃縮を行なつた。Fig2のように、oven中にCCl₄ガスを導入し乾燥したベリリウム試料と反応させ 10^{-5} mmHg, 620°CでBeCl₂ gasを生成した。電子衝撃で生じたBe⁺イオンを銅箔にimplantした。この

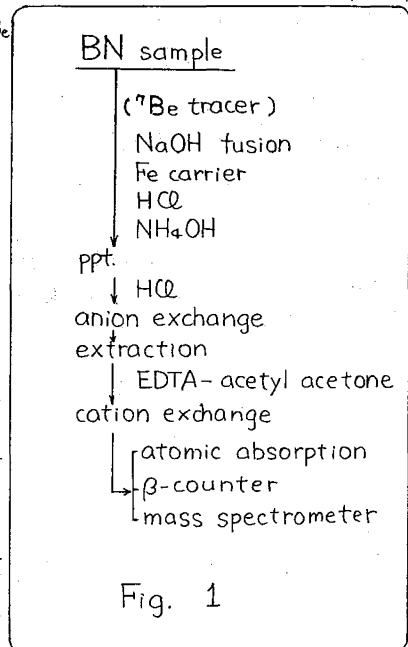
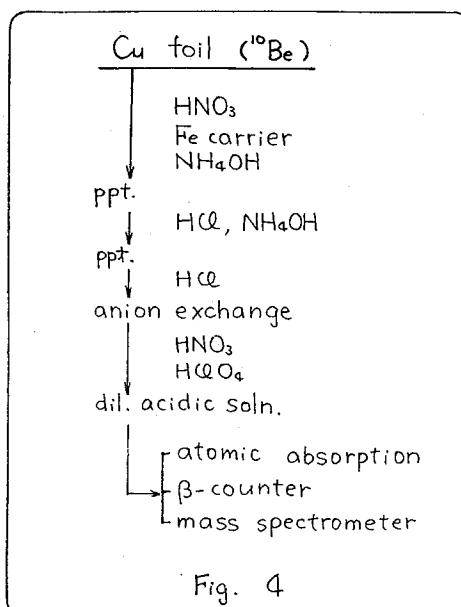
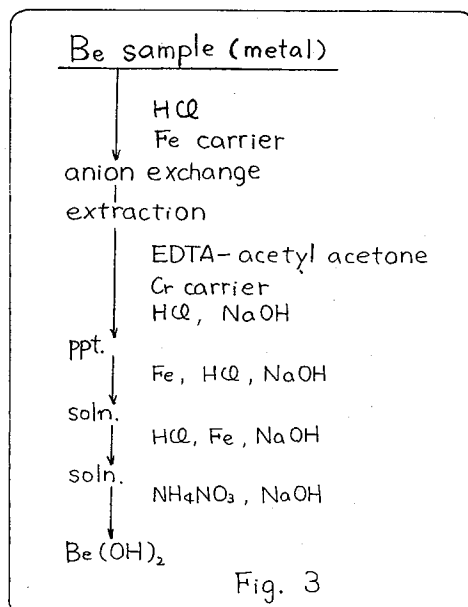
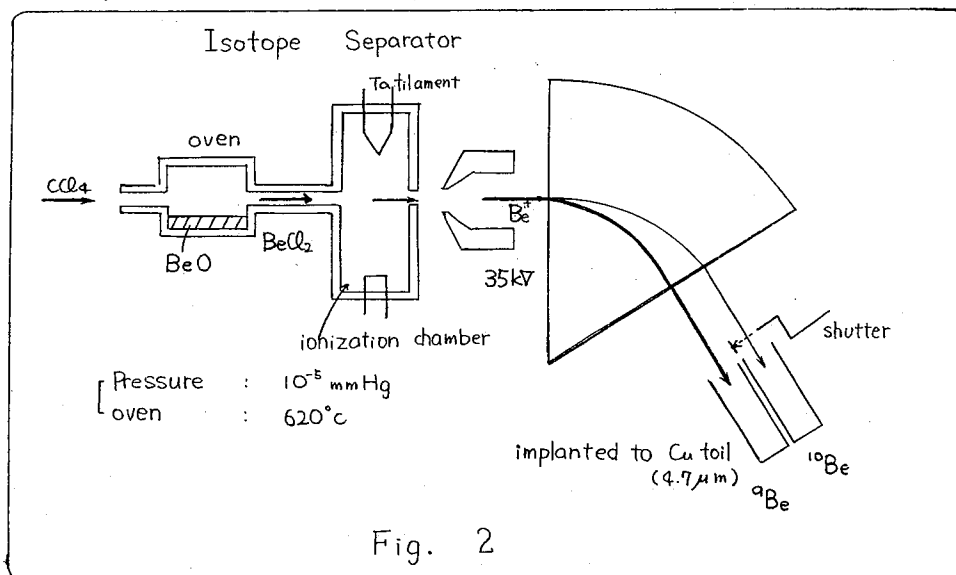


Fig. 1

まきのともこ・がんしょう水いすけ・ほんだまさたけ・かねこ くめたろう

ベリリウムを Fig 4 のような化学操作により精製した。回収された ^9Be は原子吸光で、 ^{10}Be は β -counter (B.G. 0.22 ± 0.01 cpm) で定量した。同位体分離による濃縮度は 10^3 であり、回収率は約 1% である。

この研究を通じ質量分析法によるベリリウムの同位体比測定が最も問題点となり、東大物性研の表面電離型固体試料用質量分析計を用いて、シリカゲルと共に、ベリウムシングルフィラメントを用いて同位体比を測定する方法を開発した。



(都立大理) 本間義夫 村上悠紀雄

〔緒言〕 α および β 放射体の絶対測定のさい、試料の自己吸収、散乱などを出来るだけ少くするために、試料の調製が困難で時間がかかり、存か存か厄介である。

一方、液体シンチレーションカウンター(以下LSCと略記)を用いる測定では、測定試料による α 粒子、 β 粒子の自己吸収を考えなくてよいので、試料の調製が比較的容易であるが、たえずクエンチング(quenching effect)に対して考慮しなくてはならぬ。したがって、クエンチングをできるだけ少なくし、測定の計数効率を高めることや、あるいは、計数効率を校正する必要がある。そのため、計数効率の校正法に關しては、チャンネル比法、外部線源法、内部線源法、希釈法などの方法が提案されている。これらの校正法に共通しているのは、いずれも校正するためのラジオアイソトープの標準溶液を必要としていることである。本研究でとりあげた積分計数法の特長は、このような校正用の標準溶液を必要とせず、絶対崩壊率を直接求めることができることにある。このことは、 ^{14}C や ^{3}H のような市販の校正用試料が乏しい核種、また、短寿命のため長期にわたって保存しうまい校正用試料を作成し得ない核種の測定法として極めて有利な点である。

積分計数法とは、LSCの積分計数率をディスクリミネーターのバイアスの関数としてとらえ、積分バイアス曲線を描き、適当な条件下における積分計数率のバイアスへの外挿値を求め、それが絶対崩壊率に等しくなることに基づく測定法である。本研究では、

^{4}Ar ガスフローカウンター等により測定し、絶対崩壊率を求めた試料を同時にLSCにより測定し、その結果を比較しその有用性を実証することを目的としている。

〔実験〕 1) ^{4}Ar ガスフローカウンターによる絶対測定: VYNSヘキサノン溶液で作った薄膜($10\sim 30\mu\text{g}/\text{cm}^2$)をアルミの支持リングに張り、さらに、これに金を薄く蒸着して十分な電導性を与えた。次に、この薄膜の中央にマイクロピペットでTable Iの各種ラジオアイソトープ溶液を滴下し、赤外線ランプ下で乾燥し測定試料とした。 ^{4}Ar ガスフローカウンターの印加電圧を50Vずつ上げながら計数率を測定し、プラト-曲線を求め、上下計数はあるいは、 β - β 同時計数法により、吸収補正など必要補正を行ない、絶対崩壊率を求めた。(Table I)。2) LSCによる測定; ^{4}Ar 絶対測定に用いた測定試料のついている薄膜の部分をリングより切りとり、LSC用の測定バイアルに入れ液体シンチレーター($\text{PPO } 4\text{g}/\text{l}$, $\text{POPOP } 0.1\text{g}/\text{l}$) 20 ml を加えよく振盪し、LSCにより測定を行った。測定はPackard社 Tri-Carb 3320型 LSC を用いた。まず、LSCのHVと計数率の関係を求めるため、HVを順次上昇させて、各種測定試料の計数率の变化を調べた。Fig. 1は ^{36}Cl の場合である。計数率はHVの coarse gain 3, fine gain 3~7 において、いずれもほぼ一定値に達するので、使用HVは coarse gain 3, fine gain 7とした。

次に、LSC 3320型の三つのチャンネルにおいて、その window 巾 A-B, C-D, E-F の上限をいずれも ∞ とし、下限をそれぞれ 50, 100, 150, 200, 300, ... 1000 に設定

6. 5に gain を 10%, 30%, 50%, ... 90% において, それぞれの計数率を求めると積分バイアス曲線が得られる。Fig. 2 に ^{36}Cl , ^{32}P の例を示す。

積分バイアス曲線は低い gain では下方へ、高い gain では上方へ移動し (Fig. 2), 5にまた、gain が上がるにつれて、より平坦になり、0 バイアスへの外挿による誤差は小さくなる。一方、gain 一定 90% の条件で、LSC の測定試料 ^{32}P に、1 回あたり約 0.05 ml のクロロフォルムをクエンチ剤として 3 回加え、添加の度ごとに順次積分バイアス曲線 Q_1 , Q_2 , Q_3 を測定すると Fig. 3 のようになる (Q_1 はクロロフォルムを加えていない)。これより、クエンチングが大きくなると積分バイアス曲線はより下方へずれることがわかる。従って、外挿による誤差を少なくするためには、gain を上げ、積分バイアス曲線の直接外挿に関係する部分をより平坦にする必要があるが、gain を上げれば、バックグラウンドも増加するので、最適な測定条件は gain を上げることによるバックグラウンドの増加と積分バイアス曲線の外挿による誤差の減少を比較して決定した。本研究に使用した LSC のバックグラウンドは gain の増加によってあまり増加しなないので、gain は 90% に設定した。

結果および検討 ^{40}K ガスフローカウンターと LSC

による同一試料の測定例を Table 1 に示す。(測定時間は ^{32}P 以外はいずれも 5 min である。) Table 1 の測定値の差を LSC の after-pulse, ^{40}K カウンターにおける揮発の自己吸収についての補正係数の誤差、および各測定器のバックグラウンドの差異等の観点から比較検討した。また、測定試料の α 線の測定値 (LSC) に及ぼす効果については、LSC の同時計数回路の分解時間 (10^{-6}sec), および液体シンチレーターの管光減衰時間 ($2.8 \times 10^{-9}\text{sec} \sim 3.0 \times 10^{-9}\text{sec}$) を考慮して、その計数効率に影響しなるとの結論を得た。

Table 1. Disintegration rate obtained by both methods.

Isotope	^{40}K count (dpm)	Integral counting rate (dpm)
^{32}P	1317.7 ± 21.0	1320.0 ± 1.8
^{35}S	4351.9 ± 53.3	4369.9 ± 29.7
^{36}Cl	347.1 ± 29.6	381.3 ± 9.4
^{40}Ca	3523.1 ± 48.2	3516.8 ± 26.7
^{46}Sc	2669.3 ± 42.0	2721.0 ± 23.4
^{86}Rb	2786.4 ± 41.9	2764.0 ± 22.8
^{203}Hg	3669.6 ± 49.4	3665.8 ± 27.3
^{204}Tl	5469.6 ± 66.5	5484.5 ± 32.3

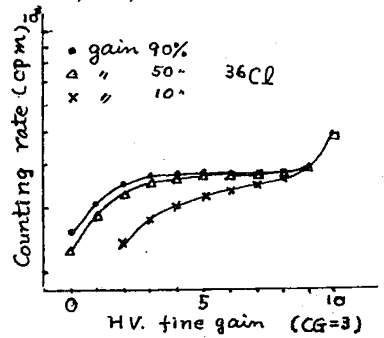


Fig. 1 High voltage vs. counting rate

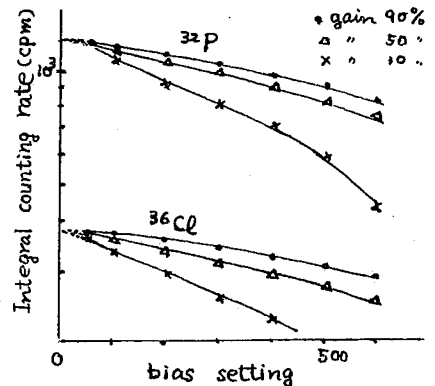


Fig. 2. Integral counting curves

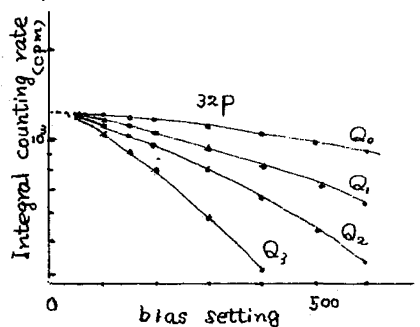


Fig. 3. Effect of quenching agents.

Ge(Li) 検出器によるγ線スペクトルの関数近似

(東大核研) 小村 和久

Ge(Li), Si(Li) など高分解能の半導体検出器によって得られるγ線またはβ線スペクトルの計算機による自動解析は、多くの人によって試みられており、ピーク検出法、スペクトルの関数近似等において様々な方法が提案されている。解析に用いる近似関数は、解析の精度や信頼性を支配するため、自動解析プログラムを作成する上で最も重要な部分の一つである。

現在、一般に用いられている方法は、スペクトルを、ピーク部分とすめらかなバックグラウンド部分に分けて考えるもので、ピーク部分には Gaussian または Gaussian に肩の付いた形の Tail をつけたものが成功裏に適用されている。一方バックグラウンドの引き方には 1 次、2 次または 3 次の多項式が広く用いられているが、大きなピークに近接する小さなピークの解析には大きな誤差を生ずるため有効ではない。これらの他、指数関数、Sigmoid 関数、Fourier 関数を用いてあらかじめバックグラウンドを全体にわたって差し引くもの、Fermi 分布に似た関数を用いるものなどが提案されている。これらのうち Sigmoid 関数はかなり成功を収めており、Fourier 関数による方法よりも注目される。

演者は、バックグラウンドの近似関数として、逆正接関数 (tan⁻¹αx) を用いる方法を試み、その適用性について様子を検討し、他の関数による結果との比較を行ない、逆正接関数が近似関数として極めて有益であることを見出したので報告する。

① γ スペクトルの関数近似

ピーク部分には Gaussian の指数関数の tail を付け加え、バックグラウンドには逆正接関数を基本型として用いた。N 個のピークが重なったスペクトルは、2N+4 個のパラメータ (ピークを Gaussian とすれば 2N+3 個) を用いて、

$$y_i = p_1 + \sum_{j=1}^N p_{2j+3} [F(i, p) + p_{2j+4} \tan^{-1} \alpha (i - p_{2j+2})] \quad (1)$$

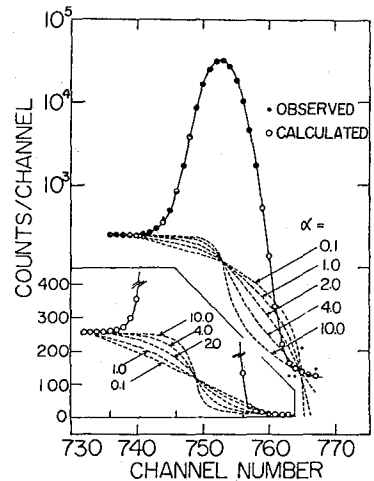
$$\text{または } y_i = p_1 + p_2 + \sum_{j=1}^N p_{2j+3} [F(i, p) + \beta \tan^{-1} \alpha (i - p_{2j+2})] \quad (2)$$

$$\text{ここで } F(i, p) = \begin{cases} \exp [p_3 + p_4 + 2(i - p_{2j+2})] & i \leq p_{2j+2} - p_3 \\ \exp [-p_4 (i - p_{2j+2})] & i > p_{2j+2} + p_3 \end{cases}$$

で表わされる。p₁, p₂, ..., p_{2N+4} は最小二乗法で適合されるパラメータで α および β はバックグラウンド形を支配する。

図に (2) 式を用いて α を変化させた場合のバックグラウンド形を示す。α=0.1 はほぼ直線を与え α が大きくなると Sigmoid 曲線に近くなる。

テストの結果 α=10 が最もよい適合を示すか、α≥5



こむらかすびき

ではほとんど改善されたいことがわかった。

◎結果

用いた関数近似の妥当性を調べるため、強度比、ローグ間隔、傾きの異なるコンスタン
 フラトニ（直線近似）を組み合わせるなどして得た合成スロケットルを解析し、結果の再現
 性を検討した。その結果、ローグがコンスタン端などのように大きな slope の上に置か
 れている場合には①式で α を固定して用いると極めて不都合な結果を生ずることがわかり、
 α を傾きに応じて $\alpha = 0.02 \alpha_0 (-R)^{-2.66}$ 、 $R = (\text{傾き} / \text{全ローグ高さ})$ で変化させて用いる
 か、あるいは、傾きの大部分を直線と引く②式を用いることにより、再現性が非常によ
 くなることか確かめられた。経験的には、γ線スロケットルに対しては $\alpha_0 = 10$ 前後、β線
 （空芯スロケットロダマで得た内部軽電子）スロケットルに対しては $\alpha_0 = 0.1$ （直線）がよい結
 果を与えるようである。強度比を変化させ（ローグ間隔を固定）た場合の解析結果を巻
 比較して示す。なお、1次、2次、3次および指数関数を用いたものではローグ形を Gaussian
 で近似している。比較のため①式を用いローグを Gaussian で近似した場合も示した。

*ローグ間隔は 1.9 fwr m (10 ケール)

強度比 (傾き) / (高味) / (ローグ面積)	計算結果		強度比		= (small peak / large peak) / calcd			
	(真の値)		強度比		(small peak / large peak) / true			
	適合に用いた関数形		Gaussian		Gaussian + ①式			
	②式	①式	a+bx	a+bx+cx ²	a+bx+cx ² +dx ³	a·exp(bx)		
1: 100	1.0755	1.1081	1.6467	1.7228	1.3926	1.9284	1.3944	
2: 100	1.0135	1.0392	1.3187	1.3649	1.1720	1.4706	1.1713	
5: 100	1.0079	1.0169	1.1369	1.1479	1.0327	1.2084	1.0712	
10: 100	1.0022	1.0065	1.0725	1.0813	1.0124	1.1114	1.0428	
20: 100	0.9985	0.9997	1.0401	1.0432	0.9999	1.0587	1.0202	
50: 100	0.9998	1.0002	1.0165	1.0187	0.9957	1.0250	1.0093	
100: 100	1.0003	1.0008	1.0112	1.0103	0.9967	1.0140	1.0058	
100: 50	0.9993	0.9979	0.9872	0.9897	0.9934	0.9894	0.9958	
100: 20	0.9996	0.9975	0.9775	0.9827	0.9786	0.9934	0.9948	
100: 10	0.9976	0.9936	0.9557	0.9755	0.9525	0.9875	0.9903	
100: 5	0.9957	0.9891	0.9196	0.9563	0.9052	0.9876	0.9845	
100: 2	0.9922	0.9866	0.8123	0.9127	0.7876	0.9886	0.9791	
100: 1	0.9898	0.9784	0.6612	0.8589	0.6377	0.9881	0.9663	

表からわかるように最も再現性がよいのは②式で①式は明らかに劣っている。ローグを
 Gaussianで近似した場合でも①式を用いた場合は、1次2次3次の多項式、指数関数より
 も優劣の結果を与えることから、バックグラウンド形として逆正接関数を用いる試みは一
 次成功を収めたものと結論することはできよう。

(東大核研) 田口康夫 ○藤田雄三 井上照夫 小村和久
今村孝雄 田中重男

針の鋭い先端を使ったカウンター(ニードル・カウンター)は放電領域を局部的領域に限ることができると共にカウンター製作上の簡便さがある。これらの利点はカウンター製作における絶縁対策上有利で、放電領域が狭い事から位置検出用カウンターとしての応用が拓ける。更に、有効容積が針先と平面の間に限られることから有効容積の極めて小さなカウンターの製作が可能であり、低バックグラウンドカウンターとしての使用が考えられる。

深海底土中から得られる ^{90}Po の微弱な放射能(試料当り ~ 0.1 cpm)を測定するためには、バックグラウンド計数率の非常に小さい測定系が必要である。

この為、自然放射能含量の少ない材料で作った有効容積約1ccのリング状アノード電極のベータ・カウンターが特別に作られ測定に使われて来た⁽¹⁾。今回試作した

^{90}Po 測定用のニードルカウンターの構造をオ1図に示す。カウンター本体は無酸素銅を用い、窓は 0.9mg/cm^2 のマイラ膜に金を蒸着して用いた。試料が 10ϕ の白金板に固定してあることからニードルカウンターの内径は 10ϕ にし、試料を密着して測定した。

針電極には市販の絹針を電解研磨により鋭く且つ予めあらかじめ仕上げたものを用いた。電極間距離は $\leq 5\text{mm}$ である。

ガードカウンターとして井戸型プラスチックシンチレーターを用い、ニードルカウンターと逆同時計数を取った。

容積1ccのニードルカウンターの計数特性をリングカウンターと比較して次に記す。

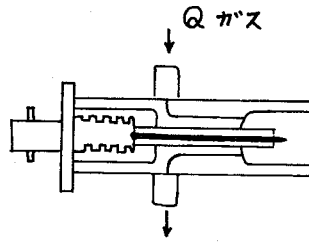
	<リングカウンター>	<ニードルカウンター>
バックグラウンド計数率	2.07 cpm	0.03 cpm
プラト-領域	870~970 V	850~1050 V
プラト-領域の傾斜	約 10% / 100 V	約 5% / 100 V
計数効率(37% (^{137}Cs)	35% (^{60}Co)

オ2図に得られたプラト-を示す。オ3図は 30ϕ のニードルカウンターの中心から周辺へ向っての相対計数率の変化を示してある。これは標準線源を 0.5ϕ のスリットに固定し、カウンターに対して移動させて得られたものである。

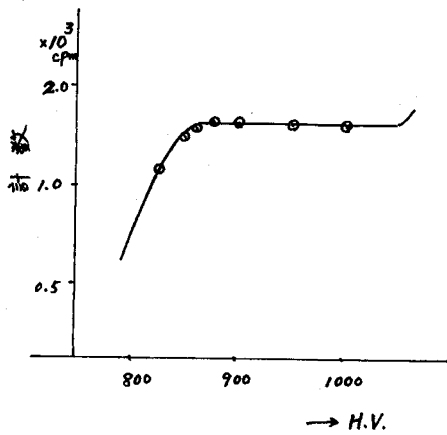
最近、XY検出器としてのニードルチェンバーをC. GrunbergとJ. Le Devehatが開発した⁽²⁾。

(1) 井上照夫ほか、東大核研報告 INS-TCH-6 (1971)

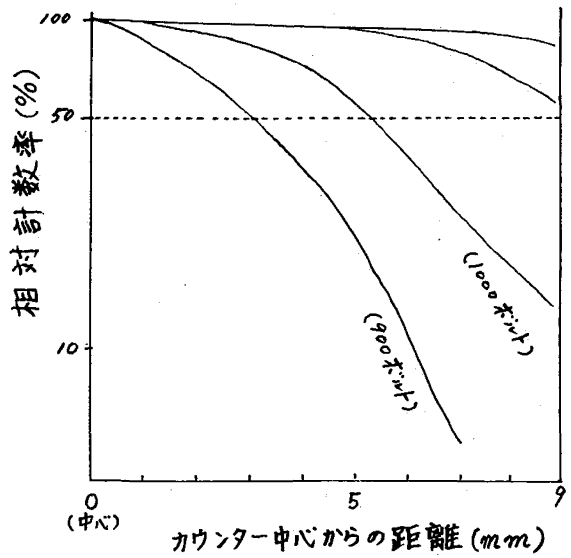
(2) C. Grunberg & J. Le Devehat, Nucl. Instr. Methods, 118, 457 (1974)



(オ1図) ニードルカウンター略図 (実寸)



(オ2図) フラット特性



(オ3図) H.V. による相対計数率の変化

(放医研) ○可村正一, 黒滝克己, 柴田貞夫, 竹下洋

セシウムを選択的に吸着捕集できる無機イオン交換体は比較的多いが、ストロンチウムを吸着できる吸着体は、あまり見かけないようである。演者らは溶液中の $^{89,90}\text{Sr}$ を無機イオン交換体によって吸着捕集する目的で一連の吸着体を作り、ストロンチウムに対する吸着特性を調べた。その結果、ストロンチウムを吸着する傾向がある吸着体は少なかったが、検討した範囲ではリン酸銅が比較的、高い吸着率を示すことが分かった。出発物質が同じでも混合比率が変わると、吸着体の組成や放射性核種の吸着特性は著しく異なることが認められている。リン酸銅の場合も、このような傾向がみられるかどうか、出発物質の混合比率を変えて生成した吸着体の組成および種々の放射性核種の吸着特性を検討した。

実 験

吸着体の調製： $0.2\text{M Cu}(\text{NO}_3)_2$ に対し濃度それぞれ 0.2M の Na_2HPO_4 , NaH_2PO_4 , および Na_3PO_4 溶液をそれぞれ加えて3グループの流殿を作った。このほか $0.2\text{M Cu}(\text{NO}_3)_2$ に硝酸を加えた溶液と $0.2\text{M Na}_2\text{HPO}_4$ に硝酸を加えた溶液を混合し、木酸化ナトリウム溶液を加えて pH を12にして流殿を作った。これらの流殿は予過、水洗、風乾後、 Cu , PO_4 の分析に用い。バッチ法にはふるいどふるい200-300メッシュにして用いた。

分配比の測定： 吸着体 0.1g に放射性核種を含む溶液 5ml を加え、一定時間ふりまぜたのち遠心分離 (3000rpm , 2分間) し上澄液の放射能を井戸型シンチレーション計数装置で測定し、常法により分配比を算出した。

吸着体の Cu と PO_4 の定量： 吸着体 0.2g に濃塩酸を加えて蒸発乾固したのち、塩酸を加えて 8M 塩酸溶液とし AG1-X8 ($1.5 \times 20\text{cm}$) カラムに通し Cu を吸着させた。 8M 塩酸 110ml を通し、流出液を蒸発乾固し水を加えて PO_4 溶液とした。溶液の一定量まで $\text{Mg}(\text{NH}_4)\text{PO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ の流殿を作り、 EDTA で PO_4 の間接滴定を行なった。つぎに 2M 塩酸をカラムに通し Cu を溶出し蒸発乾固した。水を加えて溶解し溶液の一定量まで EDTA 標準液で Cu を直接滴定した⁽²⁾。

結 果

1 出発物質の種類、混合比率と生成した流殿の組成との関係

PO_4 に対し Cu を 10, 5, 2, 1, $1/2$, $1/3$, $1/5$, $1/10$ の割合に混合した流殿を作り、流殿の Cu と PO_4 の比率を調べた (表1)。

(A) $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$ と Na_2HPO_4 の場合： 混合比率 Cu/PO_4 が $10 \sim 0.1$ の範囲内で作った流殿の Cu/PO_4 は1であった。このことから恐らく生成した流殿は CuHPO_4 を組成にもつのではないかと推定できる。

(B) $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$ と NaH_2PO_4 の場合： 混合比率 Cu/PO_4 が 10, 5 では流殿が生成しなかった。混合比率 $3 \sim 1$ での流殿の Cu/PO_4 は 1.3 で混合比率が低くなると流殿の Cu/PO_4 比率も低くなり、混合比率 0.1 では流殿の Cu/PO_4 は 1.1 と

かわむら しよういち。 くるたき かつみ。 しばた さだま。
たけした ひろし。

なった。 $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$ と NaH_2PO_4 を²出発物質として作った、これらの一連の液殿の Cu/PO_4 比率から、恐らく2種類以上の化合物が混合したものが、あるいは、かなり複雑な組成をもつ化合物ではなからうかと考えられる。

(C) $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$ と Na_3PO_4 の場合：混合比率 Cu/PO_4 が10~1の範囲では液殿の Cu/PO_4 比率は1.5であった。このことは、生成した液殿の組成が $\text{Cu}_3(\text{PO}_4)_2$ であることも考えられる。混合比率 Cu/PO_4 が1/2の時の液殿の Cu/PO_4 比率は2.6, 1/5では3.2となり、混合比率が低くなると液殿の Cu/PO_4 比率が高くなる傾向がみられた。なお、1/10では液殿は作れなかった。

(D) $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$ 溶液に HNO_3 を加えた溶液と、 Na_2HPO_4 溶液に HNO_3 を加えた溶液を混合した場合：混合比率 Cu/PO_4 が10~1の範囲内で作った液殿中の Cu/PO_4 の比率は1.5であった。このことは液殿の組成が $\text{Cu}_3(\text{PO}_4)_2$ である可能性を示す。混合比率 Cu/PO_4 が小さくなると、液殿の Cu/PO_4 比率は大きくなる傾向を示し、この点(C)と同じような傾向であった。

表1 出発物質の混合比率 Cu/PO_4 と生成した液殿の Cu/PO_4 比率の関係

	出 発 物 質 の 混 合 比 率 Cu/PO_4								
	10	5	3	2	1	1/2	1/3	1/5	1/10
(A) $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2/\text{Na}_2\text{HPO}_4$ を出発物質とした場合の液殿中の Cu/PO_4 比	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
(B) $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2/\text{NaH}_2\text{PO}_4$ を出発物質とした場合の液殿中の Cu/PO_4 比	液殿せず	1.3	1.3	1.3	1.3	1.2	1.1	1.1	1.1
(C) $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2/\text{Na}_3\text{PO}_4$ を出発物質とした場合の液殿中の Cu/PO_4 比	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	2.6	2.8	3.2	液殿せず
(D) $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$ と Na_2HPO_4 にそれぞれ HNO_3 を加え NaOH を加えて作った液殿の Cu/PO_4 比	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	2.4	2.9	3.5	3.8

2 各種吸着体による放射性核種の吸着：¹の実験からリン酸銨の吸着体^{の組成}として CuHPO_4 (吸着体1), $\text{Cu}_3(\text{PO}_4)_2$ (吸着体2) および混合物が、それぞれ考えられるが、これらの吸着体を使って分配比を調べた。その結果は表2に示すように ^{59}Fe , ^{144}Ce , ^{95}Zr などの分配比は高く

表2 各種吸着体の0.1M HNO_3 中の分配比

核種	吸着体1	吸着体2	混合物
^{59}Fe	650	5300	6600
^{60}Co	<1	<1	<1
^{65}Zn	2	8	6
^{144}Ce	1960	9970	1300
^{137}Cs	20	30	7
^{95}Zr	2100	4200	1200
^{85}Sr	1100	190	550

^{85}Sr のそれは比較的高かった。しかしながら一般に ^{60}Co , ^{65}Zn の分配比はきわめて低く、 ^{137}Cs も低かった。

- 1) A. I. Vogel: A text-book of quantitative inorganic analysis including elementary instrumental analysis. Third Edition, p 448, Longmans (1961).
- 2) 上野景平: キレート滴定法 p253, 南江堂 (1960).

1. 緒言

巨大網状構造、多孔性ポリマーの合成吸着樹脂(Amberlite XADシリーズ)は、水溶液中の種々な有機物に対して大きな吸着能を有し応用範囲もきわめて広い。

さらに、この合成吸着樹脂、Amberlite XAD-2に対する放射性核種の吸着挙動について検討し、オキシシン、7ペロン、 α -ニトロフ・ β -ナフトールなど分析化学上有用な有機試薬の共存下でそれぞれの核種に特長的な吸着をしめすことを見出した。^{1), 2)}

本実験では、引き続きジチゾンの効果について検討を加え、合成吸着樹脂の放射化学分析への利用を図るための基礎データを集めた。

2. 実験

対象とした放射性核種は¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ⁹⁵Zr, ¹⁴⁴Ce, ¹⁰⁶Ru, ⁶⁰Co, ⁵⁹Fe そして⁶⁵Znなどで、試料溶液は主として酢酸-酢酸ナトリウムの各種pH溶液を用いた。この他、塩酸、海水なども用いた。

合成吸着樹脂は、Amberlite XADシリーズのうち表面積 $300 \text{ m}^2/\text{g}$ 、平均孔径90Å、20~50メッシュのAmberlite XAD-2を用いた。

吸着の基礎データは、バッチ法で求めた。すなわち、放射性核種を加えた50mlの各種試料溶液に0.2gの樹脂を加え、これにジチゾン-アセトン溶液を滴下したのち、振盪器でふりまぜる。一定時間後に試料溶液中の放射能を測定し、はじめに加えた放射性核種の濃度と比較して吸着挙動をしらべた。

3. 結果

得られた結果の一部として、⁶⁵Znの吸着挙動について、図1および図2にしめす。

酸性領域での吸着は低い。中性から弱アルカリ性領域では、比較的短時間でほぼ定量的に吸着される。

また、オキシシンの効果と比較すると⁶⁵Znの場合には、ジチゾンの方が高い吸着率をしめす。

ジチゾン、オキシシンなどの有機試薬を共存させない時には、⁶⁵Znは、ほとんど吸着されない。

樹脂に吸着された⁶⁵Znは、クロロホルムなどの有機溶媒を用いることにより、脱着することができる。

亜鉛の担体(10μg)を用いて同様の吸着実験をおこない、クロロホルムにより脱着した有機相の吸収スペクトルを測定した結果、亜鉛のジチゾン塩に個々の吸収スペクトルが得られた。

ジチゾンは、中性から弱アルカリ性領域において亜鉛と錯紋に反応し、抽出試薬、沈殿試薬として用いられているが、本実験で得られた結果からも、⁶⁵Znは、亜鉛の

わたりかずお・いまいきよこ・いざわまさみ

ジチゾン塩として樹脂の網状構造内に吸着しているものと思われる。

その他の放射性核種は、それぞれに特有なジチゾンの効果がしめされたが、 ^{137}Cs と ^{90}Sr の場合には、この樹脂には吸着されない。

ジチゾンの場合には、 ^{65}Zn の吸着がすぐれているが、 α -ニトロソ・ β -ナフトールには ^{60}Co 、アピロンには ^{59}Fe が最も吸着されやすい。そして、オキシンには、これらの核種に加えて、 ^{144}Ce 、 ^{95}Sr 、 ^{106}Ru (クロロ化合物) も吸着される。これらの核種の吸着する pH 領域は、一般にそれぞれの核種と有機試薬とが難溶性の塩を生成する pH 領域とほぼ同様の傾向のあることがたしかめられた。

したがって、合成吸着樹脂は、適当な有機試薬を組み合わせることにより、放射化学分析に利用できることをしめしている。

Adsorption of ^{65}Zn on AmberliteXAD-2

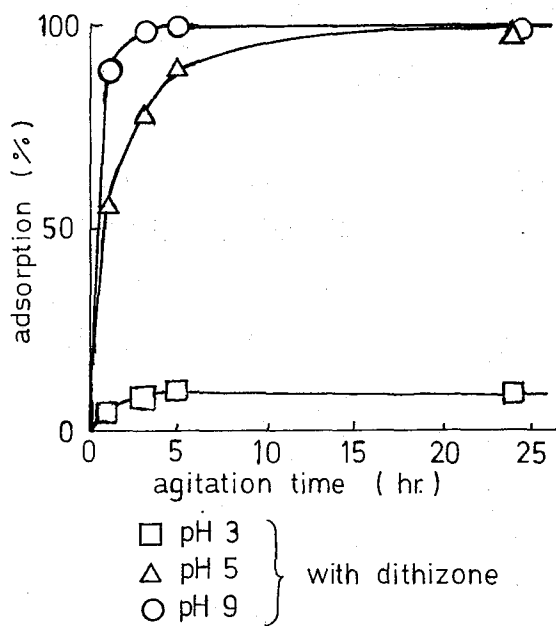


Fig. 1

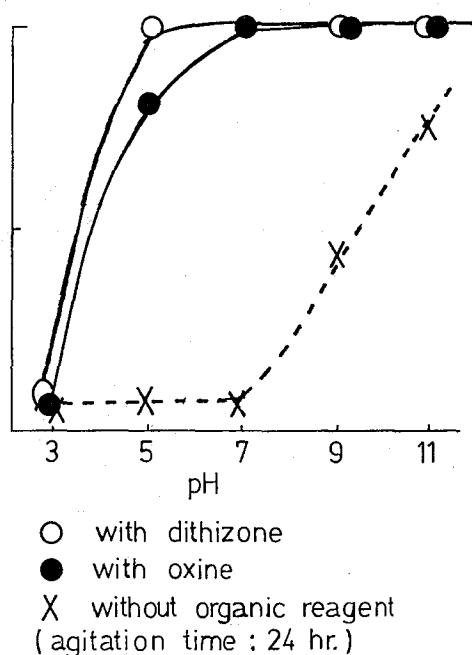


Fig. 2

文献

- 1) 渡利 今井 伊沢 : 第16回放射化学討論会 (1972)
- 2) 渡利 今井 伊沢 : 第17回放射化学討論会 (1973)

大気浮遊塵中の⁹⁵Zr-⁹⁵Nb組成

(放医研) ○湯川 雅枝, 鎌田 博, 渡部 輝久

〔緒言〕

核分裂生成物の一つである⁹⁵Zrが崩壊してその娘核種⁹⁵Nbと放射平衡に達するまでの放射能比(⁹⁵Nb/⁹⁵Zr)の変化はその起源を推定するために有用である。著者らは中国核爆発実験のフォールアウトで汚染された大気浮遊塵を対象にその影響の大きさの分別定量と、もっとも新しい汚染の時期推定にこの放射能比の変化を適用する試みを行ってきた。

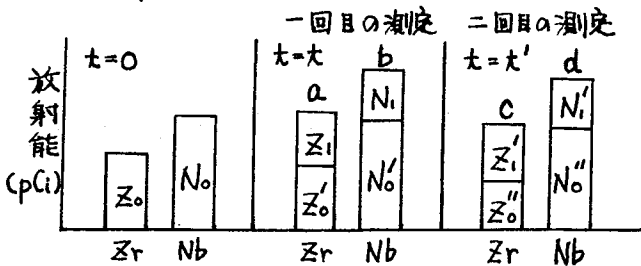
いくつかの生成時期を異にする核分裂生成物による汚染程度の分別定量は、定期的なサンプリングにより汚染が起る前の基礎データを得ておけばかなりの精度で可能であること、生成時期未知のものについては適当な間隔において放射能比の変化とおえば生成後あまり時間のたっていないものであれば生成時期推定可能であることと既に報告した。¹⁾²⁾

今回は、分別定量及び汚染時期推定の精度を上げるため、最小自乗法を用いるとともに、各段階のプログラミングを行ない、できるだけ簡便に結果が得られるようなシステムの検討を行なったので報告する。

〔方法〕

2ヶ月間連続集塵を行なって、集められた塵をフィルタと共に灰化しサンプルとした。⁹⁵Zr, ⁹⁵Nbの放射能はGe(Li)半導体検出器により1〜2週間間隔で数回測定した。

1. 分別定量のモデル



t: 新たに汚染をひきおこした核分裂がおきてからの経過時間

Zo, No, Z'1, N'1, Z''1, N''1; 以前から大気浮遊塵中に存在し、すでに平衡に達しているものの放射能とそれぞれの減衰した値

Z1, N1, Z'1, N'1; 新しい核分裂によるものa放射能とそれぞれの減衰及び生成した値

a, b, c, d; 計測値 (pCi)

これらの間に成り立つ関係

$$\begin{cases} N_0 = 2.18 Z_0 \\ N'_0 = 2.18 Z'_0 \\ N''_0 = 2.18 Z''_0 \\ Z'_0 + Z_1 = a \\ N'_0 + N_1 = b \\ Z''_0 + Z'_1 = c \\ N''_0 + N'_1 = d \\ Z'_0 = Z_0 e^{-\lambda_1 t} \\ Z''_0 = Z'_0 e^{-\lambda_1 (t'-t)} \\ Z''_0 = Z_0 e^{-\lambda_1 t'} \\ N'_1 = \frac{\lambda_1 \lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} Z_1 \left\{ e^{-(t'-t)\lambda_1} - e^{-(t'-t)\lambda_2} \right\} + \frac{\lambda_2}{\lambda_1} N'_0 e^{-\lambda_2 t} \end{cases}$$

* λ_1, λ_2 ; ⁹⁵Zr, ⁹⁵Nbの崩壊定数 2.18; 平衡時の放射能比

ゆかわまさえ, かまだひろし, わたべてるひさ

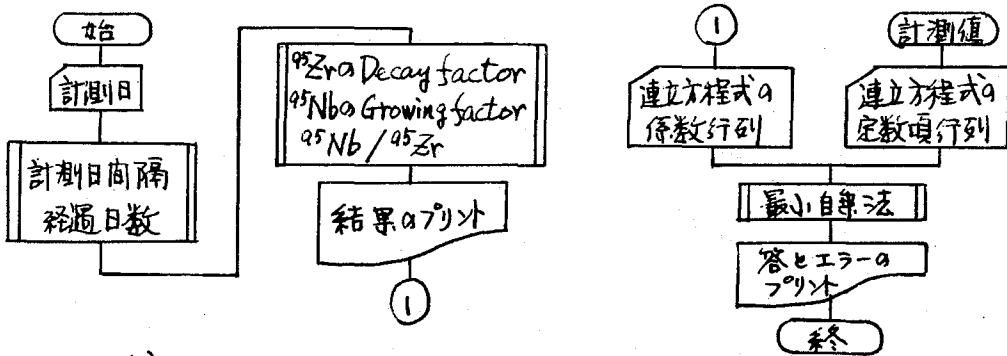
この多元連立方程式を最小自乗法で解き、誤差も算出する。得られた Z_0' , Z_1 , Z_0'' , Z_1' の値より新しい核分裂の影響の大きさを推定することができる。

2. 時期推定のモデル

前記モデルの $t=0$ からの経過時間不明であることを除けば同様の考え方で関係式を導き、最小自乗法で解く。得られた結果より $(^{95}\text{Nb}/^{95}\text{Zr})$ 比を求めて $t=0$ からの経過時間を知ることができる。

3. 解析の手順

簡単なフローチャート以下に示す。



[結果と考察]

次に解析結果の一例を示す。試料は1973年7月6日～9月6日まで集塵されたものであり、同年6月27日に行われた15回中国核実験の影響をうけているものである。

1. 分別定量

以前から存在した ^{95}Zr	$248 \pm 16 \text{ pCi}$
15回核実験による ^{95}Zr	$235.4 \pm 2.4 \text{ pCi}$
15回核実験による ^{95}Zr の寄与率	0.495 ± 0.004

* ^{95}Zr の放射能は Z_0' , Z_0'' , Z_1 , Z_1' などから Decay 補正して求めた。

2. 経過日数推定

6月27日～8月15日	解析値	実際の日数
一回目の計測	58日	
= "	97日	
= "	198日	
平均	118日	132日

以上の結果より、この方法を用いれば分別定量は90%以上の精度で行なうことができ、また、同一試料を3回以上測定することにより、 ^{95}Zr の Decay と ^{95}Nb の Growing の過程をさええば、経過日数推定はかなりの精度で可能であることがわかった。しかし、計測値自身の誤差はこれらの計算に大きく影響を及ぼすので、あまり程度以上の放射能をもったサンプルでないとは解析困難となる。

リ 16回放射化学討論会

2) 日本化学会誌 No. 2, 1974

(広島大工*・京大原子炉) ○木曾義之* , 竹味弘勝* ,
松下録治, 高田実弥, 玉井忠治

[諸言] ^{235}U の熱中性子による核分裂生成核種の質量分布は、質量数72のZnから163のPmまで及び数多くの元素が生成する。そのうち収率0.1%以上の質量数をもつ核種としては表1のようにAs-84から始まってPr-149までの23元素があり、0.1%以下の元素としてZn, Ga など14種類の元素が生じる。短寿命核種の分離の対象となる元素は表1の0.1%以上の23元素となる。本実験では、この23元素を濾紙電気泳動法により、10~20秒間の分離時間による分離の可能性について検討した。

[分離原理] 10^{-2}M HClO_4 溶液と支持電解質として泳動させたとき、陽イオン性を示す元素はRb, Sr, Y, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Pm, Ndの10元素、陰イオン性の元素はAs, Se, Br, Mo, Te, Sb, Iの7元素、中性的挙動を示して全く泳動しないものがSn, Te, Xe, Nb, Kr, Zrの6元素である。

上述の短寿命核種は泳動中、 β 壊変により娘核種を生成するため、目的核種を他核種の汚染なしに単離するには、陰陽いずれのイオンの場合も、最大の移動度となるように工夫する必要がある。目的元素の泳動度より、大きいものがある場合には、それらの元素と泳動時に酸化、還元または適当な化学反応を利用して、移動度を目的元素の移動度より減少さすか、または、吸着剤を泳動前にあらかじめ泳動媒体に塗ってストップさすかによって多数のイオンを移動帯の先端にする必要がある。

[実験] $2 \times 10^{-2}\text{M}$ の90%濃縮硝酸ウラニル溶液 $5\mu\text{l}$ をKURのPm-3で10~30秒間照射を行った。長寿命核種の実験のときには、10分間照射した。前者は照射直後直ちに泳動分離し、後者は充分冷却後分離した。分離状態はオートラジオグラフィによって調べ、各分離帯中の核種の同定および他核種の汚染度は γ 線スペクトロメトリーによった。

[結果と考察] 図1は 10^{-2}M HClO_4 と支持電解質としてpHを2から12まで変化させたときの相対移動度の変化を示したものである。右側の分離図はpH2と12のときの分離図を示したものである。図2は目的元素の泳動帯の近傍の核種の移動度を変化し、分離能を上げた結果を示したものである。以下その分離条件を簡単に述べる。図2の陽イオン、陰イオンは 10^{-2}M HClO_4 , pH2での分離図である。

表1. $^{235}\text{U}(n,f)$ による核分裂生成収率

Fission Yield	Chemical Element
Y > 5 (%)	Kr Rb Sr Y Zr Nb Sn Sb Te I Xe Cs Ba La
5 > Y > 1	As Se Br Mo Ce Pr Pm Nb Tc
Y < 1	Zn Ga Ge Ru Rh Pd Ag Cd In Sm

(下線の元素は本法により核持性を求めた)

きそよしゆき, たけみひろかつ, まつしたろくじ, たかだじつや, たまいただはる

Rb, Cs; Rb, Csは陽イオンの中では最大の移動度を示すが、後続するBa, Srの泳動帯はEDTA, NTAの錯化剤と支持電解質に入れることにより、移動度を減少させることができる。RbとCsの分離は、フェリシアン化カリウムと支持電解質に入れることにより分離可能となる。

Ba, Sr; $10^{-2}M$ NTA, pH 4の泳動条件でRE核種を陰イオンに転換させ、 $10^{-2}M$ クロム酸カリウムを泳動前に20 μ l 試料着床近傍に塗着することによりBaの移動度を低下させ、SrとBaの分離が可能となる。

La, Ce, Pr, Pm, Ndの相互分離;
 $5 \times 10^{-3}M$ EDTA pH 1.8 (分離時間40秒)で分離可能となる。Ruの分離帯と重なる可能性があるがその汚染率は無視できる。Ba, Sr, Cs, Rbの移動度がREより大きいことが汚染の原因となる。

Ru; pH 2.5で分離可能である。Br; pH 2ではI⁻イオンはIO₃⁻に酸化される。近傍のSeO₄²⁻はBaCl₂によりストップ可能である。I; TeO₄²⁻のバンドの後にIO₃⁻の化学形で存在する。Br⁻は泳動前に泳動支持体の試料着床位置(陽極側近傍)のあらかじめ塗着したAgBrによりストップする。Se; AgNO₃によりBr⁻, I⁻イオンはストップし、Seは最大移動度となる。Mo; pH 12でMoO₄²⁻は最大移動度となり、近接するSeO₄²⁻はBaCl₂でストップする。Te; Br⁻, I⁻, BrO₃⁻はAgBrで、SeO₄²⁻はBaCl₂でストップする。Sb; BaCl₂, AgBr, AgIでSeO₄²⁻, Br⁻, BrO₃⁻, IO₃⁻はストップする。TeO₄²⁻の先泳のため娘核種のRuの汚染の原因となる。

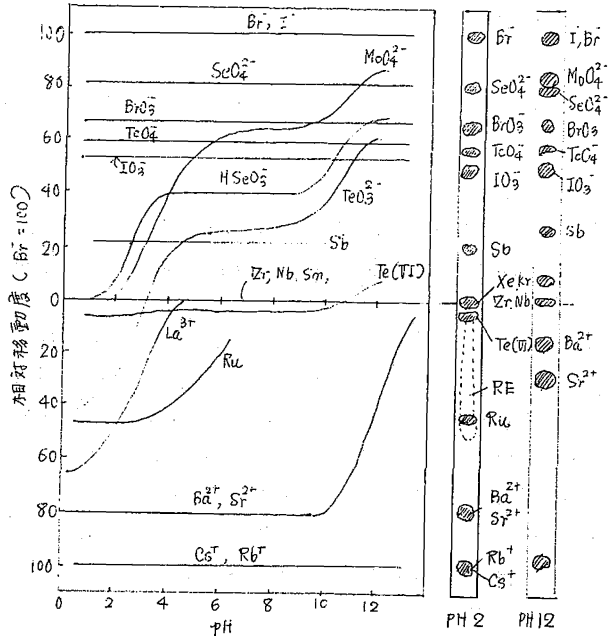


図1 支持電解質 HClO₄ $10^{-2}M$.

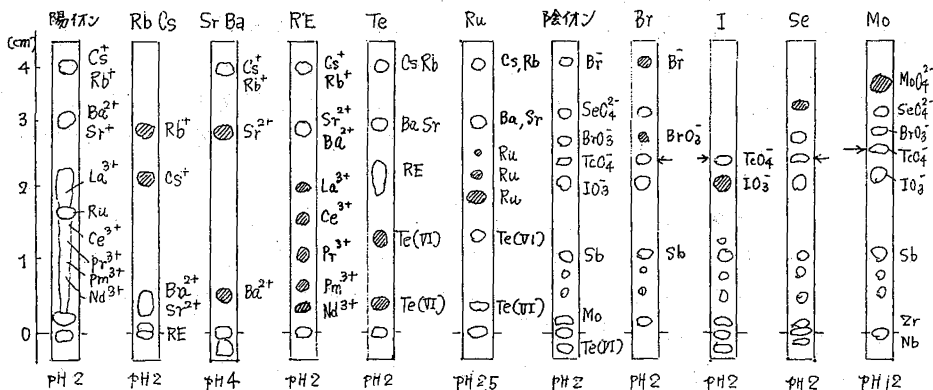


図2 長寿命核種の分離図

支持電解質溶液; $10^{-2}M$ HClO₄ 加電圧; 5,000 V/10 cm 泳動時間; 20秒
 注; 斜線の分離帯は単離目的元素を示す。←印はKMnO₄の泳動帯の先端の位置を示す。

(原研) ○梅沢弘一 市川進一 鈴木敏夫 岡下 宏
夏目晴夫

1 はじめに

原子炉の使用済燃料中には、核分裂生成物のほか、ウランの中性子逐次捕獲によって、多くの超ウラン元素が生成する。これらの生成量は、いずれも、炉心における中性子束に密接に関連している。したがって、燃焼率すなわち燃料中での核分裂数、あるいは中性子束強度およびスペクトル指数などとも、何らかの関係があるであろう。実際の使用済燃料について、このような関係を研究し、原子炉特性の解明、あるいは核燃料管理などに有用な技術開発の基礎となる知見を累積することが望ましい。このような目的で、原研動力試験炉 JPDR - I 炉心の A-20 燃料集合体から採取された 24 試片の燃焼率測定をおこなうにあたり、ウランならびに核分裂生成物の分析と並行して、超ウラン元素諸核種の放射化学分析をおこなった。本報では、これらの分析手法について述べるとともに、測定された諸核種の生成量と燃焼率あるいはポルトニウム生成量との間の関係を考察する。

2 分析方法

測定する各元素は、イオン交換法により、同一試料からすべて系統的に分離した。分離測定システムの概要は図に示す。

試料 ($UO_2 \sim 5g$) は、既知量の銅片とともに硝酸に溶解した。この一部をとり塩酸で希釈し、塩酸 9M - 硝酸 0.1M の組成に調節して、最初の陰イオン交換分離に供した。本実験の UO_2 試料は濃硝酸のみで完全に溶解されたが、もし良く溶けないときにはフッ化水素酸を加える。この場合には、溶解後ホウ酸を加えてフッ化水素酸をマスクする。なお、分析供試料と試料全量との比率は、溶解のとき添加した銅を分離定量して求めた。

ウラン：全ウラン量は、定電位電量分析により定量した。さらに、いくつかの試料については、 ^{235}U あるいは ^{235}U をスパイクして、質量分析法による同位体希釈分析をおこなった。また、同位体組成は、全試料につき質量分析で測定した。

核分裂生成物：核分裂数 $M = 9$ として、 ^{146}Nd を同位体希釈分析で定量した。スパイクには、 ^{142}Nd および ^{150}Nd を用いた。セシウムは、図に示すようにほかの諸元素とともに分離してから測定することとできるが、ここでは、原試料溶液の一部 (0.1ml) を別にはかりとり、 γ 線スペクトロメトリによって、 ^{137}Cs をはじめ、若干の放射能核種を測定した。

ポルトニウム：質量分析法による同位体比測定、Si 検出器による α 線スペクトル測定、校正した 2 π 比例計数管による α 計数、ならびに Ge(Li) 検出器による γ 線スペクトル測定も、全試料についておこなった。さらに約半数の試料については、 ^{242}Pu をスパイクして質量分析法による同位体希釈分析で定量した。

ネプツニウム： α 計数法により定量した。 ^{237}Np は比放射能が低く、かつポルトニウムに比べて生成量がきわめて少ないので、99% 以上の放射化学的純度を導くには、一度

うめざわひろかず・いちかわしんいち・すぎとしを・おかしらひろし・なつめはるを
*) IAEA 研究契約 1119/R1/RB

プルトニウムから分離した後、濃塩酸溶液としてヨウ化水素酸で処理し、再度陰イオン交換分離をくりかえして精製する必要があった。

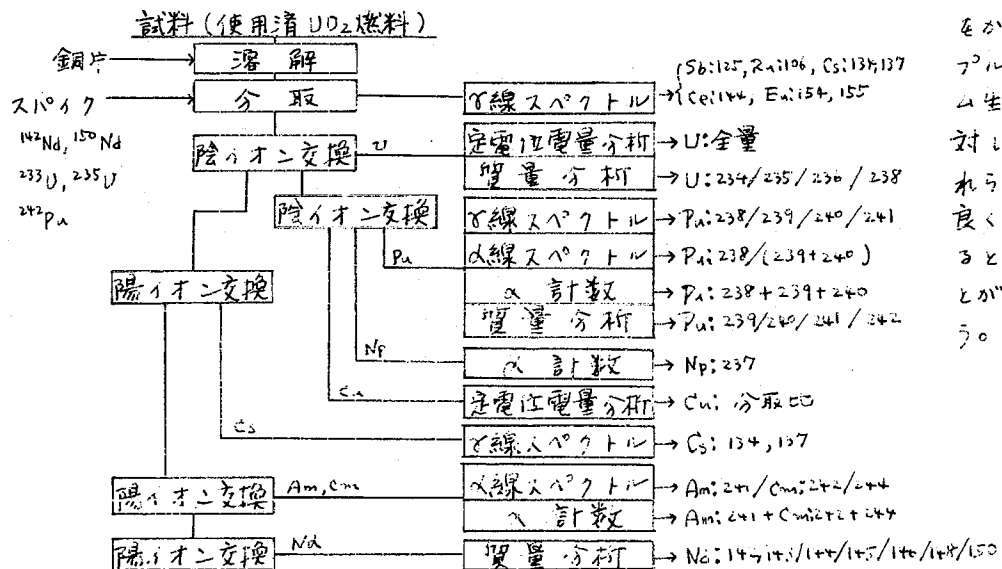
超プルトニウム元素：アメリシウムとキュリウムを測定した。これらはまとめて希土類元素から分離し、 α 計数をおこなって全 α 放射能を定めた。さらに、別に測定した α 線スペクトルの結果を用いて、各核種の量を求めた。

3 燃焼率と超ウラン元素生成量

核燃料物質の初期原子数に対する核分裂総数の比率と定義した燃焼率は、本質的には、 ^{235}U の核分裂がどの程度おきたかできます。すなわち、熱中性子束にほぼ比例する。一方、超ウラン元素は、初期には含有されず、ウランにはじまる一連の中性子捕獲とそれに続く β 壊変の結果生成する。質量数が一ずつ増す度に、それぞれ中性子束に比例する結果になる。したがって、任意の二対の超ウラン核種生成量の比をとって、燃焼率に対して両対数プロット上にプロットすると、それらの質量数の差に相当する勾配の直線がほぼ表わされる。

プルトニウム、アメリシウムおよびキュリウムの各核種の生成量の比と燃焼率との関連をしらべた。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 、および $^{241}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ 比は、燃料集合体中の試料採取位置に関係なく、燃焼率と良く対応する結果であった。これにたいして、 $^{241}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ 、 $^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 、 $^{244}\text{Cm}/^{242}\text{Cm}$ 比、あるいは全Pu/全U比などは、炉心上半部にあたるところから採取された試料と下半部から採取された試料との間に系統的な差がみられ、燃焼率に対する両対数プロットは二本の線にわかれる結果になった。

^{235}U の核分裂、および $^{239}\text{Pu}(n,\gamma)^{240}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}(n,\gamma)^{241}\text{Pu}$ などの反応では、熱中性子断面積が大きく、共鳴積分の項はほとんどきかぬ。一方、プルトニウム生成を律する $^{238}\text{U}(n,\gamma)^{239}\text{U}$ あるいは $^{240}\text{Pu}(n,\gamma)^{241}\text{Pu}$ などの反応では共鳴積分の値が大きく、熱外中性子束の寄与が大きい。このため、冷却水中にボイドが発生して中性子スペクトルがたかくなる炉心上部では、 $^{241}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ 比などは熱外中性子束によるぶんだけ大きな結果になる。これは、見方をかえれば、プルトニウム生成量に対して、これらの比が良く対応すると言うことができてしまう。



(東京教育大・理) 荏司 準

目的; 演者はトレーサー濃度のSb(Ⅲ)の水溶液系における溶存状態の解明にジチゾン(ジフェニルチオカルバジン)を用いた溶媒抽出法が適用可能なことを見出し、これまでに過塩素酸塩系を水相としてSb(Ⅲ)の加水分解につき報告を行ってきた。水相を塩化物系に替えてみると、Sb(Ⅲ)の抽出挙動は前の場合よりはるかに複雑な様相を呈するが、まず有機相中に抽出される化学種間の平衡関係から解析を進めているので、現在までの経過を報告する。

実験; 無担体のSb-125(熱中性子による放射化分析の結果から $[Sb] < 10^{-8} M$)をトレーサーとし、希塩酸中からの抽出により有機相(クロロホルム)中に $Sb^{*}(Ⅲ)$ のジチゾン錯体を生成させておき、この有機相を含むジチゾンのクロロホルム溶液と3.0M(H, Na)(Cl, ClO_4)の二相系において、逆抽出の手法でアンチモンの分配比を放射能測定から求めた。

結果と考察; まず結果を概観してみると、塩化物イオンの分配比への影響は酸濃度の増大とともに著るしく大きくなる。いわゆるpH領域ではかなり高濃度の塩化物イオンが存在しても分配比には殆んど影響がない。強酸性領域では0.01M程度の塩化物イオンでもかなり分配比を変化させる。水相中に塩化物イオンが存在しない場合、強酸性領域およびpH領域での極低濃度Sb(Ⅲ)の主要な存在状態は、それぞれ1価の陽イオン $\{Sb(OH)_2^+$ 或は $SbO^+\}$ および電気的に中性な化学種 $\{Sb(OH)_3$ 或は $SbO(OH)\}$ であることを考えると、塩化物イオンとの錯形成におけるこの1価の陽イオンと無電荷の化学種間の差がこれ等の結果を支配している因子の内の一つであると言うことはできよう。

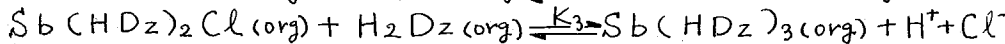
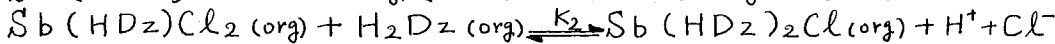
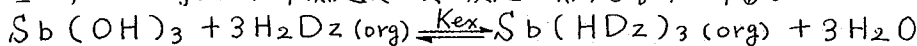
水相を一定組成とし有機相中のジチゾン濃度を系統的に変えて $\log D$ (Dは分配比)(縦軸)と $\log [H_2Dz]_{org}$ (H_2Dz =非解離のジチゾン分子)(横軸)の関係を見ると、Fig. 1のように $[H^+]$ と $[Cl^-]$ の積が大きい程傾斜はゆるやかで(勾配の最小は+1)、 $[H^+] \cdot [Cl^-] < 0.01$ ともなると曲線と言うより+3の勾配を持つ直線となる。傾斜の変化はジチゾン濃度の変化に対して非常にゆつくりしたものである。また酸濃度の大きいところでは、ある濃度範囲の塩化物イオンが共存した方がそうでない場合よりも分配比が大きくなることも観察された。これ等のことから塩化物系の場合の抽出化学種は水相の組成および有機相中のジチゾン濃度により変化するが、 $Sb(HDz)_3$ 、 $Sb(HDz)_2Cl$ および $Sb(HDz)Cl_2$ の3種の間の平衡であると判定された。これは過塩素酸塩系の場合抽出化学種が水相の組成および有機相中のジチゾン濃度のいかにかわらず常に $Sb(HDz)_3$ であったことと著るしい差異を示す。

この段階で分配比の一般式をつくってみると①式のようになり、また①式の右辺を解析のために平衡定数をいくつか使って変形した上、両辺の対数をとると②式のように表現できる。

$$D = \frac{[Sb(HDz)_3]_{org} + [Sb(HDz)_2Cl]_{org} + [Sb(HDz)Cl_2]_{org}}{\sum_m \sum_n [Sb(OH)_m Cl_n]} \quad (1)$$

$$\log D = \log \left\{ \frac{K_{ex}}{K_2 K_3} [H^+]^2 [Cl^-]^2 \right\} + \log \left\{ \frac{K_2 \cdot K_3 [H_2Dz]_{org}^3}{[H^+]^2 [Cl^-]^2} + \frac{K_2 [H_2Dz]_{org}^2}{[H^+] [Cl^-]} + [H_2Dz]_{org} \right\} - \log \left\{ \sum_m \sum_n \frac{[Sb(OH)_m Cl_n]}{[Sb(OH)_3]} \right\} \quad (2)$$

但し、ここで導入した平衡定数は次の反応に関するものとする。



K_{ex}, K_2, K_3 の決定には現段階ではすべてカーブフィッティング法を用いている。 K_2 に関しては有機相中に $Sb(HDz)Cl_2$ と $Sb(HDz)_2Cl$ のみが共存するような条件下で、 $\log(D/[H_2Dz]_{org}) \leftrightarrow \log[H_2Dz]_{org}$ のプロットに基準曲線 $\{Y = \log(v+1); X = \log v\}$ を平行移動で重ね合わせ、その漸近線の交点の座標から計算した。水相をいろいろ変えても $\log K_2$ の値としてはかなりよい一致が見られた。現在のところ $\log K_2 = +2.3$ である。 K_3 については $Sb(HDz)_2Cl$ と $Sb(HDz)_3$ のみが共存していると思われる領域を選び、 $\log(D/[H_2Dz]_{org}^2) \leftrightarrow \log[H_2Dz]_{org}$ のプロットから全く同様の方法で解析を行った。 K_3 を求める際は K_2 の場合と異り分配比の非常に高い領域を相手とせねばならぬという困難が伴う。現段階では $\log K_3 = \sim +0.2$ と推定されている。一方 K_{ex} は過塩素酸塩系の $\log D$ と $-\log[H^+]$ の関係における長いプラトの高さからきまる定数で $\log K_{ex} = +8.6$ という結果が得られている。今迄のところ K_3 の値の信頼度がやや不十分なので、さらに多くの測定点をとる作業を続けている。

水相中の化学種の解析はまだ今後の問題であるが、一定ジテゾン濃度の有機相に対し水相の組成を変化させた場合の分配比の傾向を图示しておく。

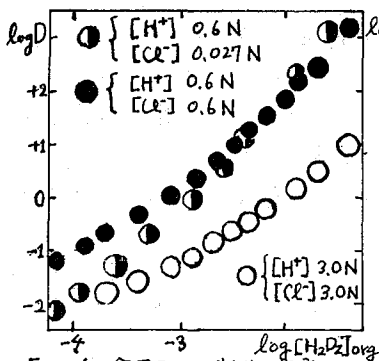


Fig. 1. 分配比とジテゾン濃度

しょうじひとし

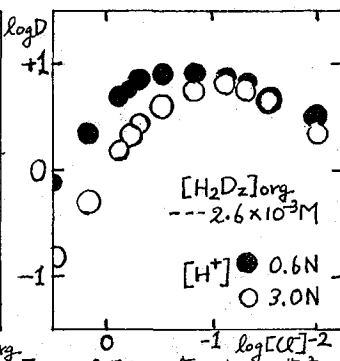


Fig. 2. 分配比と塩化物イオン濃度

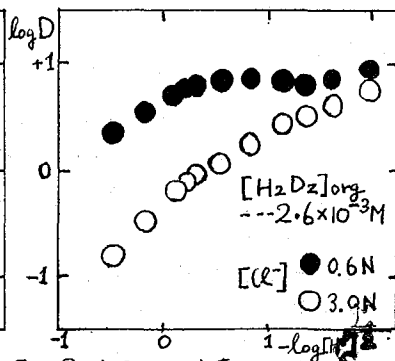


Fig. 3. 分配比と水素イオン濃度

BPHAを用いるアンチモン(3価)の抽出分離 —— 放射化
 分析におけるSubstoichiometryの基礎的研究
 (静大理放射研 の榊原富尚 吉岡潤江 三羽宏明)

1. BPHA(N-Benzoyl-N-Phenyl Hydroxylamine)を用いたSb(III)のSubstoichiometryのための抽出分離(不足当量分離)についてB.M. Tejamらにより検討され放射化分析に應用された。著者はTejamらの実験を再検討した。すなわち、BPHAの CHCl_3 溶液を用いてHCl溶液からのSb(III)の不足当量抽出分離を試み異なった結果を得た。またBPHAの CCl_4 溶液を用いて同様にSb(III)の不足当量抽出分離を試みた。これらの結果から、BPHA抽出法の不足当量分離のための有用性を検討した。

2. BPHAはドータイト試薬あるいはその再結晶したものを用いた。 CHCl_3 は試薬等級あるいはその蒸留したもの、 CCl_4 は蒸留したものを用いた。トレーサーには ^{125}Sb を用い、これをconc HCl中で1時間煮沸(還流)して還元して $^{125}\text{Sb(III)}$ として用いた。

分液漏斗にBPHA溶液とSb(III)のHCl溶液($^{125}\text{Sb(III)}$ でラベル)とをそれぞれ10mlとり、10分間振とう。数分放置後水相および有機相から一定量取り、それぞれ用シンチレーション計数管(NaI(Tl))で計数して抽出率を求めた。また亜鉛(1~8mg)の共存させてSb(III)のこのような抽出分離を検討した。

3. HCl濃度と抽出率との関係: 0.01M BPHA(CHCl_3 溶液)を用い、Sb(III)溶液のHCl濃度を0.1~3Mにあたって変えて抽出したときHCl濃度が0.5~1.5Mで抽出率が最大($\geq 99\%$)を示した。よって CHCl_3 溶液を用いたときはHCl濃度を0.8Mとして不足当量分離において用いた。0.005M BPHA(CCl_4 溶液)を用い同様にしてしらべた結果、最大抽出は0.2~0.6MHClにおいて認められた。よって CCl_4 溶液の場合、0.6MHClで不足当量分離の検討を行った。

不足当量分離の結果: (a) BPHAの CHCl_3 溶液による抽出分離の結果; 0.8MHCl溶液中にSb(III) (+ $^{125}\text{Sb(III)}$) を0.1~8mgにあたりいろいろ変えて添加したものを0.01MBPHA(CHCl_3 溶液)とふり抽出した結果 Fig. 1の(A)に示すような関係を得た。すなわち当量以上に達してからも何らかの反応がともなうらしく当量以上にSb(III)が抽出されることを見出した。この結果はTejamらの結果と著しく相違したので、これは抽出試薬の不純物によるのではないかと考えて再結晶したBPHAおよび蒸留した CHCl_3 を用いて同様に抽出分離を試みた。その結果同様の不足当量以上の抽出がおこることを確認した。以上の結果からTejamらの結果を否定できると考えている。すなわち CHCl_3 の効果により不足当量以上のSb(III)の抽出がおこると考えられた。

以上のような不足当量以上のSb(III)の抽出を抑えるため、1~3MHClを用いて有機相の洗滌を試みた。Sb(III)を5mg添加して抽出したときは1MHCl 10mlで30秒有機相を洗うことにより当量に相当するSb(III)の抽出が可能であることを見出した。

かんばらとみひさ・よしおかひろえ・さんばひろあき

(b) BPHAの CCl_4 溶液による抽出分離の結果; 0.6 M HCl溶液中にSb(III) (5 μ g)

を0.1~8mgにわたりいろいろ変えて添加したものを0.005 M BPHA(CCl_4 溶液)とついで抽出した結果、Fig. 1 (B)に示すような関係を得た。これは $CHCl_3$ 溶液を用いた分離結果(A)にくらべ当量以上の抽出量がわづかぞ、せまい領域ながら不足当量に相当する一定量の分離ができるものと結論できた。

(c) 亜鉛共存のさいのSb(III)の不足当量分離; 亜鉛中の微量アンチモンの中

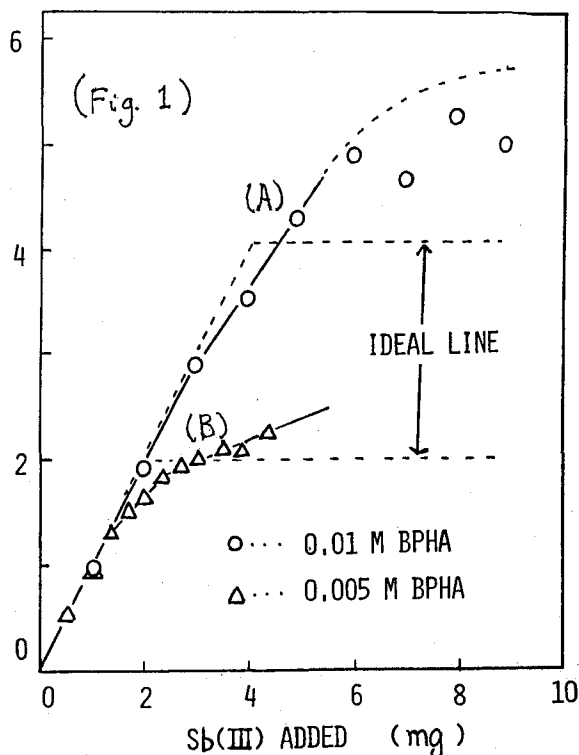
性子放射分析にかようなSb(III)の不足当量分離を適用するため、亜鉛と共存させたさいの影響をしらべた。すなわち0.005 M BPHA(CCl_4 溶液)抽出分離液を用い亜鉛を添加した溶液からSb(III)の不足当量分離を試みた結果、亜鉛の影響は見えられなかった。またこのさい亜鉛はBPHA相に抽出されな

いので放射化分析において母元素の亜鉛から容易にSb(III)を分離できることがわかった。

まとめおよび考察; a) 0.01 M BPHA($CHCl_3$ 溶液)を用い0.8 M HClからSb(III)の抽出分離を試みた結果、不足当量の一定量を分離するためには有機相を洗浄する必要がある。これに関連してTejamar¹⁾の示した結果については疑問が残された。b) 0.005 M BPHA(CCl_4 溶液)により抽出すると有機相を洗浄する必要がなく、 CCl_4 溶液による抽出分離の方がすぐれていた。c) BPHAを用いるSb(III)の不足当量抽出分離を金属亜鉛中のアンチモンの放射化分析に適用できることを裏付けすることができた。またH. Förster³⁾による多くの元素についてのBPHAによる抽出分離の研究結果から、本分離法は銅、鉄、銀などの金属元素中のアンチモンの放射化分析に適用できると考えられた。d) Sb(III)は低濃度のHCl中でBPHAで抽出されない³⁾のでSb(III)の一定量を一部酸化してSb(V)に変えた後、BPHAによるSb(III) (残った一定量)を抽出分離する、すなわち一定量酸化を利用したSb(III)の不足当量分離がよい結果を返ると期待された。

文 献

- 1) B. M. Tejmar, B. C. Halder, Radiochem. Radioanal. Letters 2, 189 (1972)
- 2) 神原富尚・長谷川国彦・吉岡翔江・福岡達二, 第17回放射化学討論会要旨集 p. 84 (昭48)
- 3) H. Förster, J. Radioanal. Chem. 6, 11 (1970)



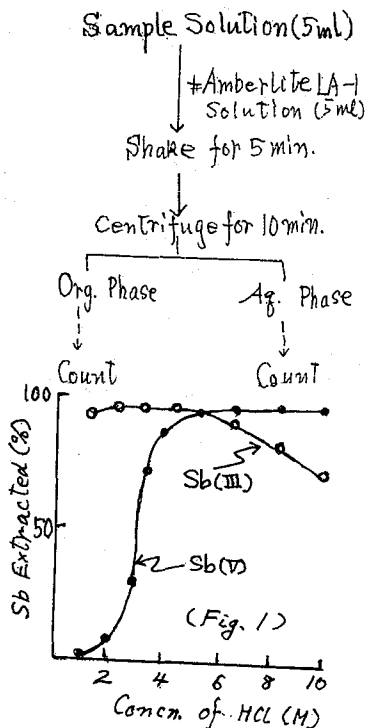
Amberlite LA-1を用いるアンチモン(5価)の抽出分離——
放射化分析における Substoichiometry の基礎的検討
(静大埋放射研) 〇神原富尚 吉岡潤江 瀬戸昭

1. 液体陰イオン交換剤である Amberlite LA-1 (N-ドデシトリルアルキルメチルアミン) のキシレン溶液を用いて、塩酸溶液からの Sb(V) および Sb(III) の抽出率と HCl 濃度との関係が常用¹⁾ によって報告されている。著者は ^{125}Sb を用いたトレーサー法によりこれらの関係を検討した結果、Sb(III) の抽出については一致し、Sb(V) の抽出では 1~2M HCl の領域で若干異なった結果を得た。しかし 6M HCl 以上ではほぼ定量的に Sb(V) が抽出分離されることは申川の結果とよく一致した。かような高塩酸濃度でアンチモンを Sb(V) として Amberlite LA-1 により抽出分離を行うことは、金属中のアンチモンの放射化分析のさいアンチモンをターゲット元素および不純物元素から定量的に分離するため有用と考えた。且つこの領域で Sb(V) の Substoichiometry のための分離、すなわち Sb(V) について不足当量分離が可能であればなお有用と考え、これを検討した。また Substoichiometry を用いる金属亜鉛中のアンチモンの放射化分析のための基礎的検討を試みた。

2. Amberlite LA-1 (キシレン溶液) は 1N HCl および 1N NaOH とで処理したものを用いた。 ^{125}Sb をトレーサーとして用い $^{125}\text{Sb(V)}$ は殊外線酸、 $^{125}\text{Sb(III)}$ は煮沸還元法で調製した。これらは 6M HCl 溶液とし冷蔵庫にたくわえて用いた。計数には井戸型シンケレーションカウンター (NaI(Tl)) を用いた。抽出分離操作は Table 1 に示すとおりである。

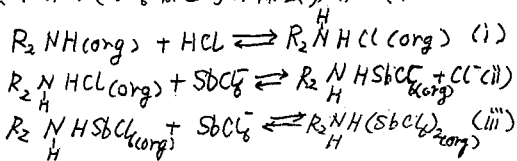
3. アンチモンの抽出率と HCl 濃度との関係: 10% Amberlite LA-1 溶液 (キシレン溶液) を用い、 $^{125}\text{Sb(III)}$ ($\text{Sb} + ^{125}\text{Sb}$) および $^{125}\text{Sb(V)}$ ($\text{Sb} + ^{125}\text{Sb}$) をそれぞれ HCl 溶液 (50 mg/5ml) から抽出し、抽出率と HCl 濃度との関係をしらべた。その結果は Fig. 1 に示す通りで、Fig. 1 から 6M HCl 以上で Sb(V) は 6M HCl 以上の HCl 濃度でほぼ定量的に Amberlite LA-1 により抽出分離されることがわかる。これによって 6M HCl 以上の HCl 濃度で Sb(V) の不足当量抽出分離を試みることにした。なお同様にして Amberlite LA-2 (シクロヘキシル-N-オクタールアミン) を用いて $^{125}\text{Sb(III)}$ および $^{125}\text{Sb(V)}$ を HCl 溶液から抽出したが、結果は似た抽出率と HCl 濃度の関係を得た。また Fig. 1 から Amberlite LA-1 を用いて 1~2M HCl 溶液から定量的に Sb(III) と Sb(V) とを抽出分離できると推定した。

Table 1. Extraction Procedure



かんばらとみひさ・よしあかひろえ・せとあきう

Sb(V)の不足当量分離の結果: 一般にAmberlite LA-1のような高分子量の液体陰イオン交換剤による陰イオン(SbCl₆⁻など)の抽出分離機構は



のように考えられている。そこで適当な分離条件により(ii)の反応に示す当量関係で分離ができれば, Amberlite LA-1のような液体陰イオン交換剤によるイオン交換当量にもとづく不足当量分離が成立すると考えてこれを検討した。すなわち2% Amberlite LA-1溶液(キシレンおよびベンゼン溶液)を用いて, 6~10M HCl溶液から*Sb(V)を抽出分離計数して一定量のSb(V)が抽出される条件を求めてみた。その結果はFig. 2

に示す通りで, 2%あるいは1% Amberlite (キシレン溶液)を用いて6MHCl溶液からSb(V)を抽出分離したとき, 一定量のSb(V)が抽出されてくる領域があることも見出した。なおこれらの領域でのSb(V)の抽出量が, (ii)式に相当する不足当量に相当するものか否かは今後の検討を要すると考える。またHClの濃度の差によるFig. 2に示されるSb(V)の抽出量の差は, 各HCl濃度でのSb(V)の溶存状態の差によると考えられた。すなわちSbCl₆⁻, Sb(OH)Cl₅, Sb(OH)₂Cl₄などの溶存形の変化が10~6MHCl溶液で著しいことにもとづくのである。

亜鉛共存時のSb(V)の不足当量分離: 上記のようなSb(V)の一定量分離法を金属亜鉛中のアンチモンの放射化分析に適用するため, 亜鉛共存の条件でその影響をしらべた。その結果, 亜鉛の共存ではFig. 3に示すような補正曲線を用いる必要があることがわかった。なお現在亜鉛中のアンチモンの放射化分析に, 本分離法を適用して検討を行っている。

文 献

- 1) 中川元吉, 日化, 81, 750 (1966)
- 2) N.A. Bonner, W. Goishi, J. Amer. Chem. Soc. 83, 85 (1961)

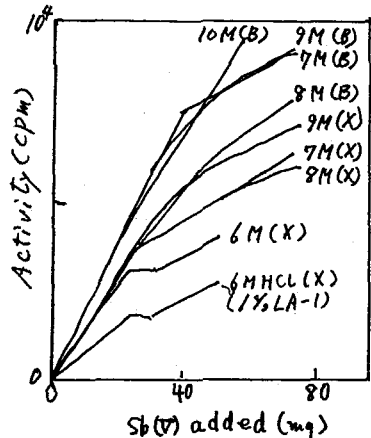
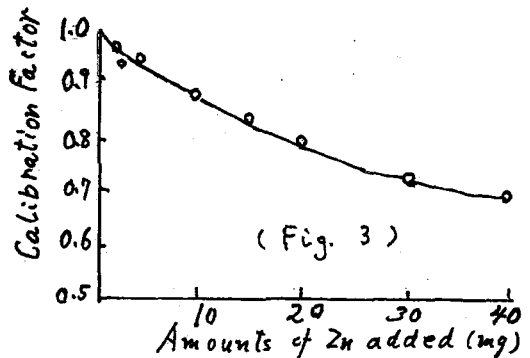


Fig. 2 Extr. by 2% Amb. LA-1 (X --- in Xylene) (B --- in Benzene)



(Fig. 3)

(理研)野崎 正 岩本正子 (放医研)井戸達雄 鈴木知年
(中野病院)原 敏彦

1 核医学に於いて心臓機能診断に有用であると考えられ、また ^{13}N 標識各種アミノ酸および $^{13}\text{N}_2$ の合成の中間体としても重要な“無担体Salt free $^{13}\text{NH}_3$ ”を高収率、高純度でかつ迅速に製造する方法を開発する。また製造した $^{13}\text{NH}_3$ の動物体内での分布を調べる。

2 水の ^3He 照射により ^{16}F を製造している経験から、水の陽子照射による $^{16}\text{O}(p,\alpha)^{13}\text{N}$ 反応を利用するのが照射技術の点から有利であると考えてこの反応を選んだ。まずマイラーのStacked foil および酸素ガスターゲットを用いてこの反応の励起曲線を16 MeVまで測定し、その結果からThick Target yieldを算出した。水の照射容器は全金属チタン製(内容積30ml)でチタン箔の照射窓と水の放射線分解生成ガスの再結合のための触媒カラムおよび水冷管を備えたものを使用した。

入射陽子は10 MeVとし、陽子線束および照射時間を種々変えて、生成物を調べた。

生成物の確認は、 γ 線スペクトルと崩壊曲線を用いた。化学種の分析には、1) テトラズニールホロンによる沈澱法(NH_3 の確認)、2) イオン交換樹脂法、3) 電気泳動法、4) アルカリ性液からの蒸留法、を用いた。つぎに得られた ^{13}N の化学種を $^{13}\text{NH}_3$ にそろえる方法を種々検討した。製造した無担体 $^{13}\text{NH}_3$ 水溶液を C_3H 系マウスに静注し、5分後に解剖し、各臓器における ^{13}N の濃度分布を調べ、各臓器の重量から、単位重量あたりの臓器取込率を算出した。

3 単体酸素を陽子で照射した時の ^{13}N の生成のThick Target Saturation Activity (Production Rate)をFig. 1に示す。

これによれば $^{16}\text{O}(p,\alpha)^{13}\text{N}$ 反応は収率がきわめて高く、実用上有用であることがわかる。

水を低線束(0.5 μA 以下)で短時間(5分以下)照射した時には、生成した ^{13}N の約90%が $^{13}\text{NH}_3$ として検出された。しかし、一度に多量の ^{13}N を得るために、線束を高め照射時間を長くすると ^{13}N の大部分が陰イオンの形で検出された。このことは、一度生じた $^{13}\text{NH}_3$ が水の放射線分解生成物により酸化されていくことを示唆している。

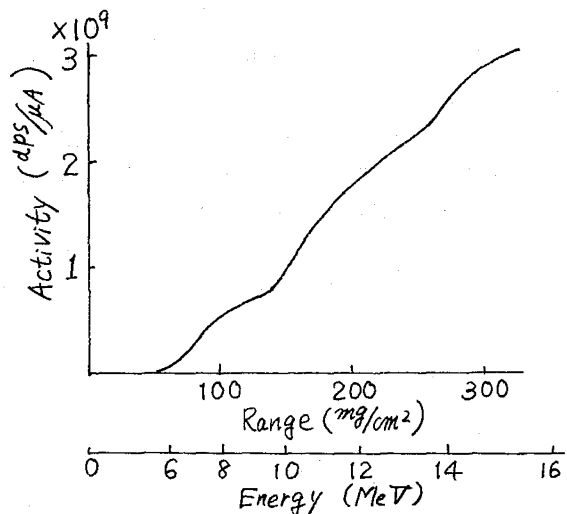


Fig. 1 Thick Target Saturation Activity of ^{13}N

のざきただし・いれもとまさこ・いじたつお・すすきかずとし・はらとしひこ

生じた ^{13}N を $^{13}\text{NH}_3$ に還元するには、デバルダ合金(Al-Zn合金)を用いるのが有効であることがわかった。すなわち、ターゲットの水に照射後デバルダ合金粉末と水酸化ナトリウムを加え加熱し、生成した $^{13}\text{NH}_3$ を水とともに留出させればよい。現在のところ、化学操作に10分を要し、 ^{13}N の60%が $^{13}\text{NH}_3$ として得られるが、さらに方法の改良を検討中である。

一度生成した $^{13}\text{NH}_3$ が照射中に酸化されるのを防ぐためにシュウ酸カリウムを加えたところ $^{13}\text{NH}_3$ として存在する ^{13}N の割合が増加した。この割合とシュウ酸カリウム濃度との関係をFig.2に示す。 $^{13}\text{NH}_3$ の割合はシュウ酸カリウム濃度の増大とともに増加するが2Nシュウ酸カリウムで約60%の飽和収率に達する。この照射液からSalt-freeの $^{13}\text{NH}_3$ を得るには水酸化ナトリウムを加え加熱蒸留する。

このようにして得られた無担体のSalt-freeの $^{13}\text{NH}_3$ (0.5ml, 10 μCi)をマウスの尾静脈に注射してから5分後の臓器内分布をTable 1に示す。この表からわかるように $^{13}\text{NH}_3$ は短時間で非常によく心臓に取り込まれる。

【結論】水の陽子照射により ^{13}N が高収率で生じ、デバルダ合金を用いる還元蒸留で短時間で無担体、Salt-freeの $^{13}\text{NH}_3$ として得られることがわかった。またこの $^{13}\text{NH}_3$ は核医学において心臓機能診断に有望であることがわかった。なお、この照射では $^{18}\text{O}(p,n)^{18}\text{F}$ 反応により ^{18}F が副生するが、これはアルカリ溶液からの蒸留のさいに除去される。 ^{13}N は短寿命のため、一般に使用量の数十倍の ^{13}N を製造せねばならないので、生産者の被曝を少なくするための技術の開発が重要な課題である。

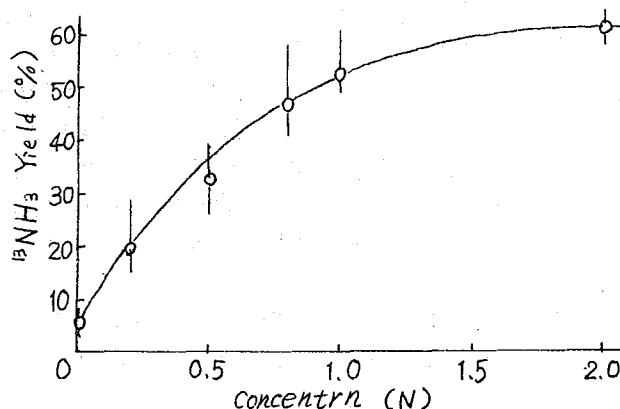


Fig. 2 $^{13}\text{NH}_3$ Yield vs $\text{K}_2\text{C}_2\text{O}_4$ Concentration

臓器	臓器重量(g)	^{13}N の攝取率(%)	単位重量当りの攝取率(%/g)
心臓	0.12	4.9	40
腎臓	0.53	10.2	19
肺臓	0.14	2.2	16
肝臓	1.16	12.4	11
脾臓	0.11	1.0	9.3
腸	2.02	13.0	6.5
血液	0.51	2.7	5.2
全身	27.3	100	3.7

Table 1. $^{13}\text{NH}_3$ の静注5分後における ^{13}N の臓器分布

1 緒言

14MeV中性子放射化分析に限らず、固体を分析する場合の一つの問題は、標準試料であるが、水溶液であればその解決の一つと云えよう。

14MeV中性子もちらいた水溶液もしくはスラリー状の試料の放射化分析法による連続分析について検討されているが、この場合の一つの問題は、水溶液のマトリックスの水の水素原子が14MeV中性子によって反跳されて陽子を生成し、この陽子が核反応をおこすことである。実際に反跳陽子は水の酸素原子と $^{16}\text{O}(p, \alpha)$ 反応によって ^{13}N を生成し、 ^{13}N は陽電子放射体であるので、14MeV中性子放射化分析の主核反応の一つである(n, α)反応からの生成物のほとんどが陽電子放射体であるので妨害になり、壊変曲線の解析が必要となる。

本研究においてはまず基礎的検討として、生成する ^{13}N の化学種に対する溶液の状態の影響を調べ、 ^{13}N の妨害除去の問題についてこの基礎データを得ることにした。

2 実験

試料はポリスチロール製の円筒型のカプセル(内径20mm, 長さ10mm, 容量約3.2ml)に入れ照射した。中性子発生装置はNT-200型(東芝)を用いた。10分照射後、1mlをとり、 NH_4NO_3 キャリアを入れたポリエチレンカプセルに注入した(標準)。別に2mlをとり、 NH_4NO_3 キャリア中に注入し、10モル NaOH 溶液を加え、アルゴンガスをキャリアとして加熱しながら NH_3 を揮発させ、ポリエチレンカプセルに入れた2モル塩酸溶液に吸収させた(NH_3 フラクション)。残液にデビルグ合金を投入し、残留する酸性の ^{13}N をアニモニアに還元すると同時に蒸留し、円筒にポリエチレンカプセルに入れた2モルの塩酸に吸収させた(NO_x フラクション)。

それぞれの化学収率は測定終了後、塩化白金酸もちらいで重量分析をおこなったが、いずれもほぼ100%に近い結果を得ることができた。

照射終了後、以下の操作に要する時間も含めて10分間冷却し、 $2 \times 1 \frac{3}{4}$ "の NaI(Tl) 井戸型結晶のシンチレーションデテクターを用い、TMC404を、そのメモリーを四分割して同時に測定した。測定は陽電子消滅線についておこなった。

測定結果のデータ処理にはNEAC-3100を用いた。

3 実験結果

重陽子の加速電圧を100kVから180kVまで段階的に変化させて NH_3 フラクション、 NO_x フラクション、 N_2 フラクション(標準)らう前は著に相当する計数値をいし引いて求め

E値)の比の変化を調べたが、著しい影響は認められなかった。即ちこの程度の重陽子の加速エネルギーの変化に対応する中性子のエネルギーの変化による反跳陽子のエネルギーによつては各フラクションの比は影響をほとんど受けていないことがわかった。

次に、放射化による溶液を酸性もしくはアルカリ性にした場合のフラクションの比の変化について検討したが、明らかな影響は見られなかった。

また、放射化による溶液の酸化性還元性について検討をおこなったが、溶液が還元性の場合には明らかに NH_3 フラクションの比が増大したが、共存する還元性物質によつてその比は変化する。

この場合には共存する元素は蒸留する時に同時に溜出するおそれのない元素、14 MeV中性子で放射化しにくい元素、また放射化しなくても生成放射性核種が短寿命で実験条件では妨害にはならないような元素をえらんだ。実際にはイオウ、ナトリウムをもちい、硫酸とそのナトリウム塩、亜硫酸、チオ硫酸のナトリウム塩、および水酸化ナトリウムをもちいた。

4 考察

$^{16}\text{O}(p,\alpha)$ 反応によつて生成される ^{13}N は、その核反応の際の ^{13}N の運動エネルギー(約5 MeV)が考慮してフリーラジカル状態になり、更にそのフリーラジカルと水分子との化学反応で NH_3 、 NO_x 、 N_2 を生成するものと考えられる。

還元力のあまり大きくないチオ硫酸ナトリウムの水溶液でも NH_3 フラクションの増大はフリーラジカルとチオ硫酸との直接的な反応によるもので、硝酸もしくは他の窒素酸化物の還元によるものではないと考えられる。

NO_x の酸化状態の確認は短寿命であるため比較的少量の放射性核種をしか生成しないのでそれ以上はおこなわれなかった。

カプセルのポリスチロールの $^{12}\text{C}(p,\alpha)^{13}\text{N}$ による反跳 ^{13}N も考えられるが、この実験では無視することにした。

より強力な還元剤の共存でおこなえば更に NH_3 フラクションを増加させるものと考えられる。

(九大理) ○柴田誠一

(東大物性研) 源生礼亮・本田雅健

宇宙線と隕石などの地球外物質との核破砕反応により生成する ⁵³Mn は、特徴ある長い半減期 (3.7 × 10⁶ 年) を持つことと、中性子放射化法などにより高感度で測定できることなどから宇宙化学的に、²⁶Al、³⁶Cl、¹⁰Be などと並んで非常に興味ある核種の 1 つである。

また、良く定量された ⁵³Mn の試料は、中性子放射化法などにおける standard として、不可欠である。このような目的を満足する試料を人工的に作ることの可能性を求めて、まず濃縮同位体 ⁵²Cr を重陽子照射する ⁵²Cr(d,n)⁵³Mn 反応により一連の実験を行、た。

電着法によるターゲットの作製

得られた濃縮同位体は、酸化クロム (Cr₂O₃) であり、たので、これを硝酸ナトリウムで融解し、水にとかし水溶液とする。これを陽イオン交換カラムに通し、多量に存在する Na⁺ と除く。こうして得られた液を蒸発乾固し、100~200 mg Cr/ml 程度の濃度の溶液とする。この溶液 ~3ml に 1 滴の濃硫酸を加えて、1 回分の電着用溶液とする。電着装置を図 1 に示す。

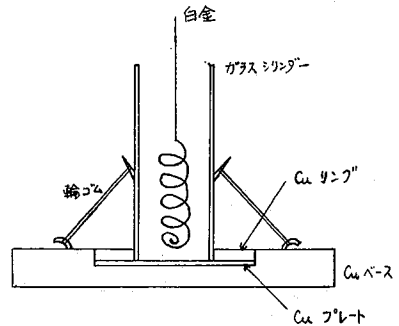


図 1. 電着装置

照射

照射は理研のサイクロトロンを用いて行、た。照射条件は次の通りである。

表 1

Ed (MeV)	Target Cr (mg)	Thickness (mg/cm ²)	Total Dose (mC)
8.3	81.15	48.59	62.7
9.0	92.75	55.54	100.5
10	113.70	68.08	165.0
20	76.25	45.66	105.9

Mn の分離・精製及び ⁵³Mn の定量

照射後、ターゲットを塩酸にとかし、陰イオン交換により多量の Cr を除き、次に TTA 抽出により Mn を抽出する。ここで、質量分析の際の Cr の補正のために natural の Cr を ~50 μg 加える。この後更に、陽イオン交換、陰イオン交換、過塩素酸処理を行、て Mn を精製する。この分離過程においては、副生成物 ⁵⁴Mn をトレーサーとした。

精製した Mn フラクションについて、⁵³Mn を中性子放射化法により定量し、また質量分析により ⁵³Mn / ⁵⁵Mn 比を求め、両者の結果より ⁵³Mn 生成量を求めた。

しばたせい いさ・げんしょうれいすけ・ほんだまさたけ

Ed: 10 MeV の時のマススペクトルの例を、図 2 に示す。

結果及び考察

得られた結果をまとめて、表 2 に示す。

Mn の化学分離の収率は 30-60% であり、 ^{53}Mn の比放射能は、Ed: 10 MeV において ~ 95 dpm/ $\mu\text{g Mn}$ に達した。このことは、照射前の、他の類似反応 $^{50}\text{Cr}(d,n)^{51}\text{Mn}$ 、 $^{54}\text{Fe}(d,n)^{53}\text{Co}$ との比較により、 $^{52}\text{Cr}(d,n)^{53}\text{Mn}$ の励起閾値は ~ 9 MeV 付近で最大値を取るであろうという予想をうけけるものである。

しかしながら、 $^{54}\text{Mn}/^{53}\text{Mn}$ 放射能比は、いずれの場合も ~ 5000 であった。得られた ^{53}Mn 生成量と照射条件とから、Cr の厚さを考慮して平均核反応断面積を求めると 20-100 mb で、 ^{54}Mn に対しても、全て $^{52}\text{Cr}(d,n)^{54}\text{Mn}$ により生成したと仮定して同様の計算を行なうと ^{53}Mn の場合と同様の結果が得られ、 $\sigma_{33}/\sigma_{34} \approx 1$ である。

これらのことから、 ^{53}Mn の比放射能としてほかなり高いものが得られたが、 ^{53}Mn の直接測定を妨害する ^{54}Mn (312B) も生成し、その生成放射能比が大きいのという問題点が残った。また、もう一つの妨害核種として ^{52}Mn (5.6B) が考えられる。これは、 $^{52}\text{Cr}(d,2n)^{52}\text{Mn}$ により生成し、この反応のしきい値が ~ 8.0 MeV であることから、重陽子エネルギーが高くなるとかかりの生成量に依存する。従って、Ed が 10 MeV 以上に存在すると (d, 2n) の方が (d, n) より反応の確率が高くなるため、 ^{53}Mn の大量製造という目的に対しエネルギーの上限を与える。

以上のことから、この方法による ^{53}Mn の製造に対しては、Ed: ~ 10 MeV での照射が最適条件であろうと結論づけられる。

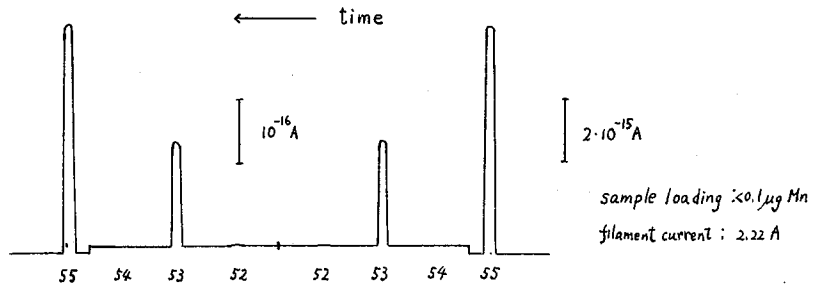


図 2 マススペクトル (Ed: 10 MeV)

表 2

Ed (MeV)	^{55}Mn (Activation)	$^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$	^{53}Mn	^{54}Mn
8.3	$1.88 \pm 0.17 \mu\text{g}$	$2.39 \pm 0.04 \times 10^{-3}$	17.6 ± 1.6 dpm	$9.3 \pm 0.8 \times 10^6$ dpm
9.0	1.05 ± 0.07	9.44 ± 0.16	38.8 ± 3.2	17.7 ± 1.1
10	0.86 ± 0.06	24.2 ± 0.04	81.9 ± 6.0	43.7 ± 2.1
20	0.43 ± 0.04	3.42 ± 0.04	5.8 ± 0.5	4.3 ± 0.3

[緒言] 最近、悪性腫瘍病変部などのシンクスカンナーとして種々の放射性核種が検討され、そのいくつかが注目されている。中でも、ランタノイドは腫瘍親和性が強く、ことに¹⁶⁷Tmはシンクスカンニングに好適なエネルギー(208 keV)と臨床応用目的に都合のよい半減期(9.24d)をもつ核種である。従来、¹⁶⁷Tmはサイクロトロンにより¹⁶⁷Er(p,n)、¹⁶⁵Ho(α,2n)¹⁾や¹⁶⁷Er(d,2n)²⁾などで作られているが、長寿命の¹⁶⁸Tm(93d)や¹⁷⁰Tm(129d)が生成して臨床応用には不適当である。我々は新しい方法として、リニアックによる¹⁶⁸Yb(γ,n)、¹⁶⁹Yb $\xrightarrow[17.7\text{min}]{EC}$ ¹⁶⁷Tm の反応を検討した。この方法では、¹⁶⁸Tmは原理的に作られないし、(γ,p)による¹⁷⁰Tm、¹⁷¹Tm(1.91y)の収率はかなり低いことが予想される^{3,4)}。他方、¹⁶⁸Ybは同位体存在比が低い(0.14%)莫が難莫である。本研究では、¹⁶⁷Tm、その他生成諸核種の収率を調べるとともに、ターゲットのYb₂O₃から¹⁶⁷Tmを無担体分離するためα-hydroxyisobutylic acid(α-HIBA)を溶離剤とする陽イオン交換を適用したが、その室温での溶離条件と、YbSO₄沈殿濃縮法ともあわせ検討した。

[実験と結果]

1. 照射実験 ターゲットとして、天然同位体組成のYb₂O₃と、22.5%¹⁶⁸Yb₂O₃のそれぞれ数100~数mgを石英管に密封し、東北大核物理電子線リニアックのRIコースで2mm厚白金コンバータ4枚のスグ後方、水冷プール内に一列に並べて照射した。照射後、ターゲットの一部を英状線源とし、Ge(Li)-PHAでスペクトロメトリ-を行なった。右光電ピークのエネルギーと半減期(生長、減衰)から核種を同定し、いくつかの標準線源を使ってこれらの生成量を求めた。主生成核種は、図の(B)でもみられるように、Ybでは(γ,n)による¹⁶⁹Yb(32d)と¹⁷⁵Yb(4.2d)で、Tmでは¹⁶⁷Tmの他に(γ,p)による¹⁷²Tm(64hr)と¹⁷³Tm(8.2hr)が僅かに認められる。特に、濃縮ターゲットでは¹⁶⁸Yb(γ,2n)¹⁶⁶Yb $\xrightarrow[57.5\text{hr}]{EC}$ ¹⁶⁶Tm、¹⁶⁸Yb(γ,3n)¹⁶⁵Yb $\xrightarrow[70\text{min}]{EC, \beta^+}$ ¹⁶⁵Tm の右¹⁶⁶Tm(7.7hr)と¹⁶⁵Tm(30.1hr)が若干みられるが、いずれも¹⁶⁷Tmと較べ短寿命で問題に存らるない。また、(γ,p)による長寿命の¹⁷⁰Tm、¹⁷¹Tmは2cc(Gelli)による~80 keV附近のスペクトルでも認められなかった。これら生成諸核種のいくつかについての結果を、照射条件と共に表

Yield Data for Tm and Yb Isotopes in the (Yb+30±60MeV) Reactions

Maximum energy	30MeV	60MeV	
Beam Current*	2.9μA×(60±15)	3μA×(60±15)	
Irradiation time	3.1hr	6.7hr	
Target	μCi/mg	μCi/mg	
Enriched ¹⁶⁸ Yb ₂ O ₃ 22.5%	¹⁶⁷ Tm	5.1×10 ⁻²	5.7
	¹⁶⁶ Tm	2.5×10 ⁻²	2.1
	¹⁶⁵ Tm	2.0×10 ⁻²	3.5
	¹⁶⁹ Yb	1.0×10 ⁻²	0.78
	¹⁷⁵ Yb	5.4×10 ⁻²	4.6
Natural Yb ₂ O ₃ 0.14%	μCi/g	μCi/g	
	¹⁶⁷ Tm	0.35	35
	¹⁶⁶ Tm	0.13	13
	¹⁶⁵ Tm	—	—
	¹⁶⁹ Yb	6.8	1.8×10 ²
¹⁷⁵ Yb	2.3×10 ²	4.6×10 ²	

*Beam current=(monitor value)×(efficiency)

さかもとこう・しろたよしあき・あんどうあつし・ひさだきんいち

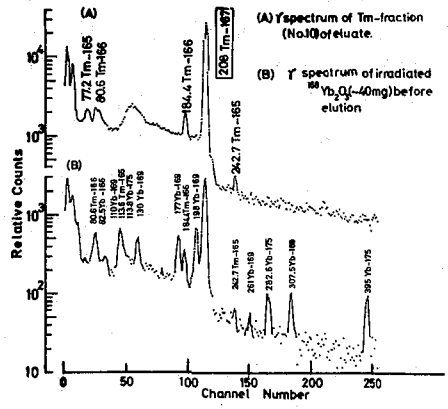
に示す。生成量の値は、照射位置によってかなり変動するが、一応の目安として掲げた。

2. 化学分離 臨床的にヒトの悪性腫瘍描画のために投与する¹⁶⁷Tmの量は数100 μ Ci~1mCiである。1.の実験よりみると、22%濃縮のターゲットで~100mg, 天然ターゲットでは数10gを照射し、これから¹⁶⁷Tmを無担体分離しなければならぬ。このことを念頭に次のような分離法を検討した。最終的には希土類元素相互分離に優れている α -HIBAを溶離剤とする陽イオン交換法を採用することとし、操作的に簡便な室温条件下、かつ実験室規模を考慮して ≤ 100 mg Yb₂O₃からの分離をまず検討した。Dowex 50W \times 8 (NH₄⁺形, 100~200 mesh, 1.5cm ϕ x 40cm)のカラムについて、流速15ml/hr, α -HIBA 0.12Mとして、pHの影響を調べた。pHは低いほど分離度はよくなるが、溶離は遅い。キヤージあるYb量がよくなるほど溶離曲線の中が増大し、かつ溶離も遅くなる。さらに、流速を大きくすると分離は悪くなる。これらの結果から、~100mg Yb₂O₃に対しては、Tm7ラフションへのYbの混入は若干避けられぬが、上記カラム条件下流速15ml/hr, pH3.8とすると数100~1で溶離できることが判った。濃縮ターゲットの場合は直接この陽イオン交換分離にかけられるが、天然ターゲットからの分離法として、Gd保持担体存在下でのYbSO₄沈殿除去による¹⁶⁷Tmの濃縮前処理を試みた。そこで、Na-7マルカムによるYb(II)の安定溶液は得られたが、その沈殿条件等にはまた検討の余地がある。

3. 動物実験用¹⁶⁷Tmの調製 担吉田岡腫ラットならびに骨折ラットにおける種々の比較射能の¹⁶⁷Tmの右臓器分布を調べるために、上記1, 2の結果をもとに無担体¹⁶⁷Tmを製造調製した。ターゲットには22.5%¹⁶⁸Yb₂O₃の40.2mgを用い、30MeVと60MeVで電子線強度平均250 μ A, 22時間の照射を行った。その結果、約0.5mCiの¹⁶⁷Tmが得られ、上述のイオン交換のみにて分離・精製した。才1回分離では実験の再現性がやや悪く、~1lの溶離剤を要し、Tm部分へのYbのtailingが大きかった。tailingのある部分は再イオン交換処理を行ない、前のTm部分と合して動物実験に供した⁵⁾。分離前後の γ スペクトルを右図に示す。

[文献]

- 1) Chandra, Braunstein, Thein and Tilbury, *Intr. J. Appl. Rad. Isotopes*, 22 (1971) 489
- 2) Steinberg, Rasmussen, Ennow, Roy-Poulsen, Voetmann, Poulsen and Andersen, "Radiopharmaceuticals and Labelled Compounds", Vol. II, p.151, IAEA-SM-171/27 (IAEA, Vienna, 1973)
- 3) 加藤豊明, 東北大学核理研報告, 1 (1972) 137
- 4) 加藤豊明, *ibid*, 5 (1972) 133
- 5) 坂本 浩, 代田悦章, 安東 醇, 久田 欣一, *ibid*, 7 (1974) 204



京大原研 ○西 明太 藤原一郎 今西信嗣 森山裕丈

1) 緒言: 原子炉中性子の多段吸収による ^{238}U からの超プルトニウム元素の生成については、その Build up path がよく知られて居り、最近はその path に含まれる各種超ウラン元素の中性子捕獲断面積及び共鳴積分値の正確な値が知られるようになって超ウラン元素生成量の予測も可能になった。一方このような製造の可能な高中性子束炉としてJMTRが建設されたので、その試用期間に当って天然ウランの照射を行ない、超ウラン元素を化学分離して Pu, Am, Cm の同位元素についてその生成量を α 線測定及び原子炉中性子による放射化法によって定めた。更にその結果を超ウラン元素の生成の計算と比較し、JMTRの反射体領域のキャプセル中の熱中性子束と共鳴中性子束を推定したので、それらの結果について報告する。

2) 実験: US (天然ウラン) 2.4g を JMTR のベリリウム反射体領域 E-10 で約 30 MW で 3 サイクル 3 ヶ月にわたって照射し、照射後約 1000 日冷却して、東北大学金属材料研究所材料試験炉若同利用施設 (大流) の鉛セル中の溶解化学分離設備を使用して分離した。試料は先ず 6 ml の濃 HNO_3 に溶解し、オ 1 図に示す方法で化学分離を行った。

測定: 最初の試料溶解原液のごく一部を取出し先ず α 線スペクトルの測定を行った。その結果をオ 2 図に示す。これによって ^{238}U に対して、 ^{239}Pu , ^{241}Am , ^{242}Cm の α 線強度を定めることができた。また、U フラクション中の ^{235}U 存在比は KUR の中性子放射化によって天然ウランと比較して求めた。次に Pu フラクションについて α 線の測定を行って ^{239}Pu に対する ^{240}Pu の存在比を定め、化学分離後の ^{241}Am の生長を測定して ^{241}Pu の存在比を定め、更に原子炉 (KUR) の中性子放射化で ^{242}Pu (n, γ) ^{243}Pu 反応を利用して ^{243}Pu の α 線測定で ^{242}Pu の存在比を求めた。Am, Cm フラクションについては、 α 線スペクトルより大体の同位元素組成を求めたが、微量成分の詳しい測定は目下続行中である。それらの結果をオ 1 表に示す。

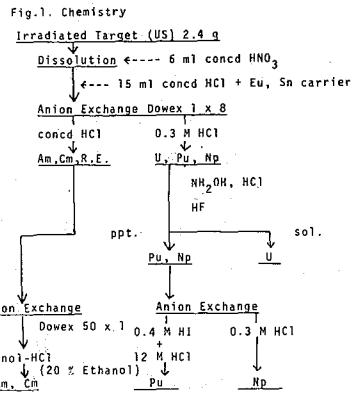


Table.1. Yields of Transuranium Nuclides.

	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu	^{241}Am	^{242}Cm	^{244}Cm	^{235}U burn-up
YIELD ($^{238}\text{U}=1$)	2.1 $\times 10^{-7}$	2.3 $\times 10^{-3}$	1.3 $\times 10^{-4}$	2.0 $\times 10^{-5}$	1.5 $\times 10^{-6}$	2.1 $\times 10^{-7}$	4.9 $\times 10^{-9}$	9.5 $\times 10^{-11}$	27.1 %
ISOTOPIIC ABUNDANCE %	0.009	93.8	5.3	0.82	0.06				

にしとまた・ふじぬらいちろう・いまにしのおつぐ・もりやまひろたけ

3) 議論: 実験で求めた Pu, Am, Cm の各同位元素の生成量を計算による予測と比較するためには、あらかじめ熱中性子束及び中性子スペクトルを知り、計算を行うべきであるが、JMTRのBe 反射体中でのステンレススチールのキャプセル中の試料位置での中性子束やスペクトルは現在の所よくわかっていないので、 ^{235}U のBurn upを再現するように Φ_{th}/Φ_{epi} をパラメーターとして Φ_{th} を求めた。さらに Φ_{th}/Φ_{epi} をパラメーターとして、中性子束は炉出力に比例して変化するものとし、JMTRの運転経過に従って各超ウラン元素の生成量を計算した。その結果をFig. 3に示す。特に注意すべきことは ^{238}U は共振領域での自己吸収が大きく、実効捕獲断面積は今回用いた6. mm ϕ x 10. mm (US)では無限に薄いターゲットと比較して非常に小さくなる。実効共振積分として、

$$I_c = 4.57 + 29.1 \sqrt{S/M} \quad (S \text{ は 試料表面積, } M \text{ は 試料質量})$$

を用いて計算し、Fig. 3(b)を使用した。また捕獲断面積の1/νから大きくは算出される ^{239}Pu 及び ^{241}Pu の断面積は Westcottの補正式に基づき、中性子温度を70°Cと仮定した時の値を用いた。Fig. 3(a)から $\Phi_{th}/\Phi_{epi} = 10$ に近い値が妥当とすれば、 ^{235}U のBurn up から $\Phi_{th} = 9 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 、フルインテグレーション = 4.3×10^{20} の照射を行なったことになる。

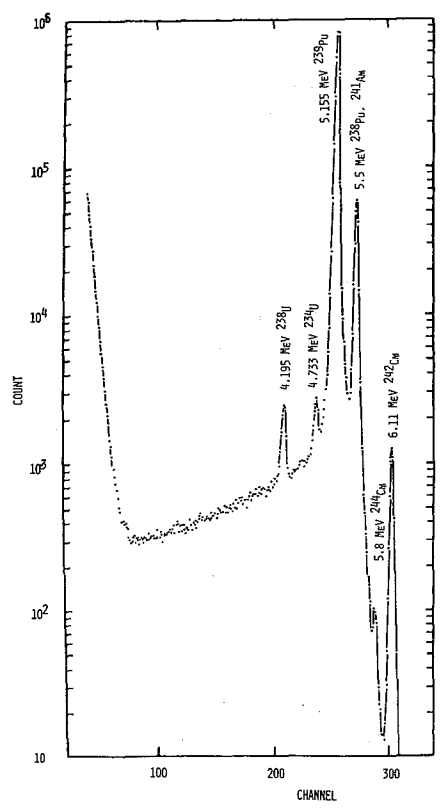


Fig. 2. α -spectrum

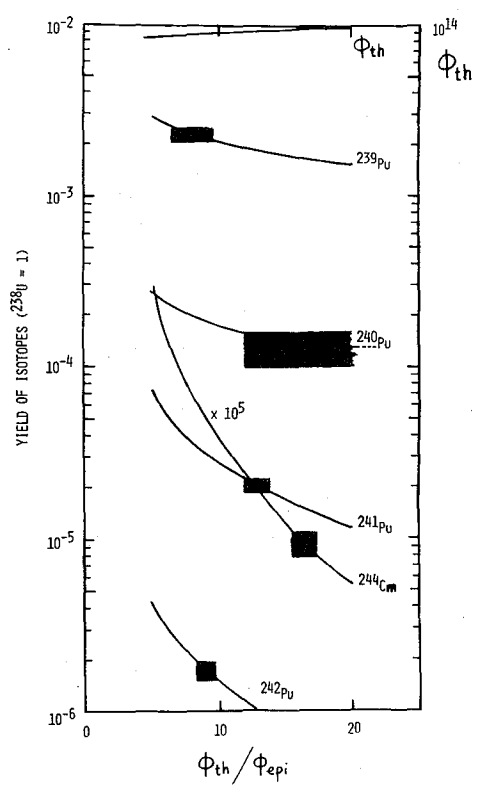


Fig. 3. The experimental and calculated yields of isotopes.

超ウラン元素の製造に関する研究 (I) セル内溶解分離精製装置の製作

(東北大学研) の佐藤明子 川筋伊佐務, 三頭聰明 原元雄
鈴木進

日本原子力研究所大洗研究所に設置されている材料試験用原子炉 (JMT R) は、現在我が国で学術研究用に利用できる原子炉中で最大の高中子束炉であり、除熱も十分に考慮されているため材料試験以外に超ウラン元素の製造にも利用することができよう。

私達は、JMT R の運転開始と共に大学共同利用が可能となる途が開かれたので、この炉を利用して超ウラン元素を製造し、その化学的性質の研究を行なう計画を立案した。勿論、Am までは比較的容易に、かつかなりの量で輸入でき、現在までこれら諸元素については若干の研究を行なってきたので、むしろこれらをターゲットとして、もつと重元素の製造を行ない、その研究を行なうことを主眼とするのは当然である。Cm, Bk, Cf 等を製造するための出発核種として私達可以利用できるものは、 ^{238}U , ^{239}Pu , ^{241}Am , ^{243}Am 等であるが、このような核種から出発しても、化学実験に利用できる程度の量の Cm, Bk さらには Cf 等を得ようとするには 10^{21} n/cm² 以上の照射が必要である。

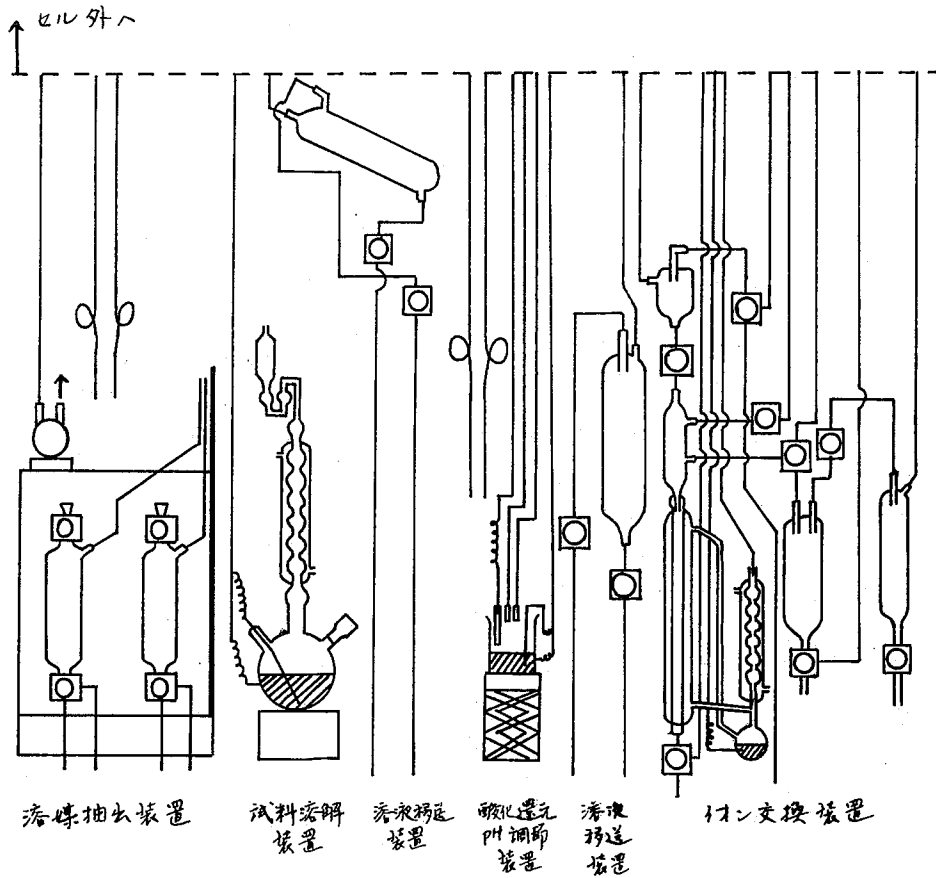
しかしながら、私達にとってこのような照射は始めてのことであり、またそれに伴って大量に生成する核分裂生成物の分離が必要である。比較的少量の試料を用い、照射終了後1年以上冷却したとしても、数 Ci の核分裂生成物を含む試料を取扱う必要があり、このような高レベルの放射能を有する試料の取扱について、私達にとっては未経験の分野である。さらに JMT R の炉内構構について、よく判っていない点があると考えられる。

以上の点を考慮して、JMT R の試用期間における照射実験に際して、まず第一段階として天然ウランを照射を行なうこととした。今回はその実験の報告である。

東北大学金属材料研究所附属材料試験炉利用施設本棟ラボラトリ内のオ6セルを化学実験用として使用するための内装を理当した。このセルは鉛15 cm 相当の鉄板製で、内部に巾150 cm, 高さ80 cm, 奥行80 cm の鉄板製インナーボックスが設備されている。なおこのセルには少量の試料を取り出して若干の実験を行なえるようにグローブボックスが接続されている。このセルは私達の今回の実験だけでなく、他の研究者も使用するので、内装設備も多目的、汎用とすることが要求された。また、本セルには専属のオペレータが配置されないこともあり、比較的経験の浅い研究者が操作せざるを得ないことを予想して、なるべく操作しやすいこと、確実に作動すること、こわしにくいこと、操作の容易なことなども要求されている。予め利用者に対してアンケート調査を行なった結果、セル内に試料溶解装置、酸化還元および pH 調節装置、溶媒抽出実験装置およびイオン交換実験装置を組み込むこととした。実験装置はガラス製、コックはテフロン製で、これらの連結には照射ポリエチレン管をアルルダイトで固定した。これらの装置の操作のほとんどは鉛ガラス製しゅへい窓を介して内部を注視しながらマニプレータ2本の巧みかてコッ

さとうあきこ・かわすじい・まむ・みつがしらとしあき・ほらみつお・すずきすすむ

クを回転させる以外は、セル外部前面のコックあるいはスイッチの操作によって変換できるよになっている。これらの装置の概要を図に示した。組立て完了後にコールドランを繰返して完全に操作できることを確認したので、詳細な操作マニュアルを制作した。



1 東北大学金属材料研究所付属材料試験炉利用施設のホットラボラトリーのNo. 6セル内に設置されている溶解分離精製装置は強度の放射能を有する照射済試料の化学分離を行える様に設計されたものである。利用する研究者の研究目的と試料によって実験内容は多様であることが予想されるが、本装置の有する機能といういろいろな操作の組合せによって、どの程度の実験が可能かということは、本装置を使用しての実験を計画している研究者にとって重要な問題である。本研究は超ウラン元素の製造に関する研究の一環として企画され、本装置を最初に使用して照射済天然ウラン試料の化学分離を行った研究である。試料の溶解から、酸化還元反応と溶媒抽出法の適当な組合せによるウラン(U)、プルトニウム(Pu)、アメリシウム(Am)および核分裂生成物(FP)の化学分離までが、イオン交換装置以外のすべての装置を使って行なわれた。大部分のFPを除去した後の実験は試料溶液をセル外に取り出して続行された。本研究を通じて通常の化学実験では予想もできないような貴重な体験が得られ、それらは今後超ウラン元素の製造に関する研究を進める際に役立つものと思われる。

2 NA-Kキャプセルに天然ウラン試料(UO_2 として2.75g)と他の試料と共に詰め、材料試験炉(JMTR)の試用期間にBe反射体領域で全熱中性子束 3.3×10^{20} nut (原研データ)照射した。この照射済試料は原研東海ホットラボラトリでクラッドを切断して取り出され、約1年9ヶ月の冷却期間を経てから本装置を使用して化学分離された。その操作の概要を図1に示す。溶解装置に照射済試料を入れ6M硝酸を導入した。加熱して二酸化ウランを溶解した後、等量の0.06M $NaNO_2$ を加えてPuをIV価状態にした。溶液を溶媒抽出装置に移し、TBP (tri-n-butyl phosphate)抽出を行ない、抽出されたUとPuを希硝酸で逆抽出してU-Puフラクションを得た。はじめのTBP抽出の際の水相の少量をFPフラクションとして分取し、残りの水相を酸化還元およびpH調節装置に移した。酸化剤を添加してからアンモニア水を加えてpHを1に調整し溶液を加熱した。放冷後酢酸ナトリウム溶液を加えてpHを4に調整して溶媒抽出装置に移し、TTA (2-thenoyltrifluoroacetone)抽出を行った。ここで大部分のFPが抽出除去された。水相を再び酸化還元およびpH調節装置に移し、Am(IV)を硫酸ヒドロキシルアミンでIII価に還元した。Am(III)は溶媒抽出装置においてTTA抽出および1M硝酸による逆抽出によって分離精製され、AmフラクションとしてU-PuおよびFPフラクションとともにセル外に取り出された。多量のFPを含む溶液は別途に廃棄した。

各フラクションについてGe(Li)検出器を用いての γ 線スペクトルの測定、Si検出器を用いての α 線スペクトルの測定を行ない、U-PuフラクションについてはUとPuの分離精製を行った。すなわち一担蒸発乾固し5M HNO_3 -0.03M $NaNO_2$ 溶液で溶解してUとPu(IV)とTBPで抽出した。TBP相をFe(II)溶液と振り混ぜてPuをIII価として逆抽出し、残ったUと

すずさすむ・さとうあきこ・はらみつお・みつがしらとしあき・かわすじいさむ

純水で逆抽出した。Pu(III)を NaNO_2 でIV価とし、TBPで抽出した後純水で逆抽出した。

3 中性子を重照射した二酸化ウラン試料は硝酸に容易に溶解した。温度調節、溶媒抽出、pH調整、溶液の注入および移送、測定試料の採取とセル外の搬出など、すべての操作は綿密な準備とスケジュールに従ってほぼ順調に遂行された。TBPによるUとPuの抽出は定量的であったが、TBP相からのUとPuの逆抽出は希硝酸よりも純水を使う方が効果的であることが以後の検討で知った。溶解分離精製装置を使用した実験は試料中の放射能の主成分であるFPの除去に主眼が置かれたが、FPフラクションの α 線スペクトルの解析の結果、主なるFPとして ^{144}Ce - ^{144}Pr 、 ^{106}Ru - ^{106}Rh 、 ^{137}Cs - $^{137\text{m}}\text{Ba}$ 、 ^{95}Zr - ^{95}Nb が検出され、その他に ^{134}Cs の存在を示すような605および796 KeVの α 線が観測された。U-Puフラクションに残留したFPの割合は ^{144}Ce - ^{144}Pr の2.9%、 ^{106}Ru - ^{106}Rh の4.5%、 ^{137}Cs - $^{137\text{m}}\text{Ba}$ の1.6%、 ^{95}Zr - ^{95}Nb の5.2%であった。それらは予測値とほぼ一致しており、分離が順調であったことを示している。Amフラクションには ^{144}Ce - ^{144}Pr の22.3%と予測値よりも多く残留していたが、これはAmの分離精製時に抽出管からの溶液のものを発見し、抽出時間と短縮したためである。

各フラクションについての α 線スペクトル測定の結果によると、照射済天然ウラン試料中に生成していた α 線放射体は主として ^{239}Pu と ^{240}Pu であり、その他に微量の ^{238}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{242}Cm の存在が認められた。 ^{239}Pu 標準線源との比較測定により、照射済試料中に約1.5 μg の ^{239}Pu が生成していたと推定された。UとPuの分離精製は α 線スペクトル測定の結果十分満足すべきものであり、UとPuの各フラクションは蒸発濃縮して同位体比測定に使われた。

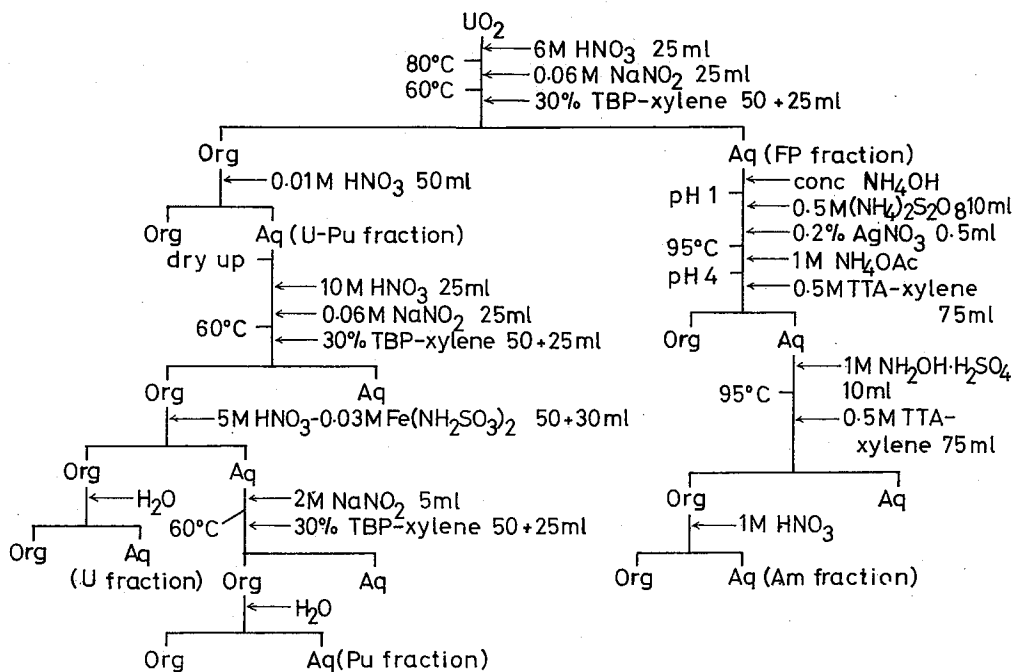


Fig. 1. Flowsheet for chemical separation.

超ウラン元素の製造(3) 照射済ウランターゲット中のウラン
プルトニウムの同位体比と照射条件の検討

(東北大金研) ○三頭聰明、岸本睦義、山村義信、川筋伊佐務
原光雄、佐藤明子、鈴木進

中性子照射によって、天然ウランターゲットから超ウラン元素を製造する過程に關与する主な核種の核的性質を表1に示す。今回我々が行ったJMTFでの照射では、照射孔がBe反射体領域にあったので、充分減速された中性子による照射であって、速中性子反応を除外して、熱中性子及び熱外中性子による反応によって炉内反応を推定する事ができる。

超ウラン元素の製造のためには、核分裂による損失を少なくして、有効に中性子捕獲反応が起ることが望ましい。 ^{238}U の核変換量の大部分は ^{239}Pu になるが、 ^{239}Pu の(n,f)反応による損失の(n,γ)反応に対する割合は10%の熱外中性子の存在によって、約15%減少し、 ^{240}Pu の生成速度は約50%増加する。同じことが ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , ^{235}U , ^{236}U 等についてもいえるので結局、熱外中性子が存在する事が望ましいといえる。

以上のような観点より、照射済試料から分離精製したUとPuについて、同位体組成を測定して、熱中性子と熱外中性子の割合について検討した。

U, Puの同位体組成

原子炉内中性子に対する有効断面積の値は、熱中性子断面積と共鳴積分の値を用いて、Westcottの方法で求めることができる。我々の照射では、照射孔がBe反射体領域にあ

表1 U Np および Pu 同位体の核的性質

核種	半減期	壊変型式	熱中性子吸収断面積(バーン)		共鳴積分(バーン)	
			捕獲	核分裂	捕獲	核分裂
^{234}U	$2.47 \times 10^5 \text{ yr}$	α	95	0.65	700	
^{235}U	$7.1 \times 10^8 \text{ yr}$	α	100	579.5	100	270
^{236}U	$2.39 \times 10^7 \text{ yr}$	α	5.5		257	
^{237}U	6.75 day	β^-	480	2		
^{238}U	$4.5 \times 10^9 \text{ yr}$	α	2.72		280	
^{239}U	23.5 km	β^-	22	14		
^{237}Np	$2.14 \times 10^6 \text{ yr}$	α	170		700	
^{238}Np	2.1 day	β^-		2000		
^{239}Np	2.35 day	β^-	60	1		
^{238}Pu	86.4 yr	α	560	17.5	150	28
^{239}Pu	24390 yr	α	270	740	1500	2000
^{240}Pu	6580 yr	α	280		9000	
^{241}Pu	14.8 yr	β^-	370	1010	1000	1800
^{242}Pu	$3.75 \times 10^5 \text{ yr}$	α	20		1180	
^{243}Pu	4.98 h	β^-	75	196		

みつがしらとしあき・きしもとむくよし・やまむらよしのぶ・かわすじいさむ
はらみつお・さとうあきこ・すずきすすむ

たこと、減速材が水で減速率が大きいこと等からこの方法が有効であると考えられる。そこで表1のデータを用い、熱外中性子の割合と、U, Puの同位体組成との関係を出力変動を考慮した計算によって求めた。実際の出力行動は、極めて短時間の変動を除けば、サイクル間の中断と27~32MWの比較的狭い範囲の変動であったので、出力と全中性子束は比例し、熱外中性子の割合は一定であると仮定した。計算結果を図1に示す。

熱中性子の割合が大きくなると相対的に ^{244}Pu の生成量が多くなる。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比についても、 $^{241}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ 比程ではないが熱外中性子の割合の増加による増加が認められる。 ^{238}U から生成する ^{239}Pu の量も熱外中性子の割合の増加と共に増加することは表1のデータより明らかである。従って図1に示された重いPu同位元素の収率の増加は、極めて顕著に ^{242}Pu , ^{241}Am , ^{243}Am 等のより重い核種の収率の増加に結びつくものであるといえる。図1に太線で示したのは実際の照射試料についての質量分析から得られた実験値である。U, Puの同位体組成の測定値は 1.9×10^{20} nvt として、熱外中性子の割合を0.03~0.04とした計算結果で統一的に説明できる。このことは JMT RのBe反射体領域での中性子照射に対して Westcottの方法が有効であることを示すものである。尚、JMT R照射課より報告された全照射量は熱中性子で 3.3×10^{20} nvtであり、我々の測定はそれよりかなり低い値であった。

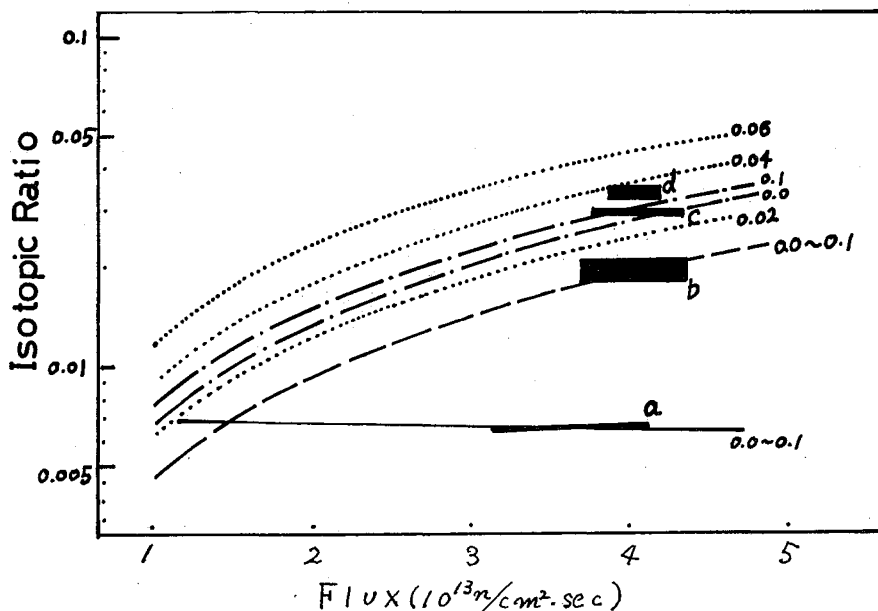


図1 U, Puの同位体組成と中性子束の関係
 図中に示した数字は熱外中性子に対する熱中性子の割合を示す。——は $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$,
 - - -は $^{236}\text{U}/^{235}\text{U}$, - · - ·は $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$, · · · ·は $^{241}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ の計算値を示し、aは
 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$, bは $^{236}\text{U}/^{235}\text{U}$, cは $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$, dは $^{241}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ の実験値を示す。