

第 3 日 (10月10日) 午前

48 ラジウムナベリリウム中性子源によるインジウムの放射化分析。

(第二報) 溶液照射法の検討。

(甲南大理) 日 下 譲 ○ 辻 治 雄

一般に低レベル中性子源による放射化分析法に於ては、中性子減速剤としてはパラフィンを使用し、その中心に中性子源を置きパラフィン中で熱中性子束の出来るだけ大きな位置に試料を置き中性子照射をする。

本報に於ては、中性子源として $\text{Ra } 50 \text{ mg} + \text{Be}$ 混合物を使用し減速剤として水を用い試料として水溶液資料を照射する方法を検討し前者と比較検討した結果を報告する。

分析元素としてはインジウムを選び (γ, n) 反応により生ずる ^{116m}In の放射能を測定した。先ず減速剤中での中性子束の強度分布をパラフィンおよび水について比較検討した。この際中性子検出器としてはインジウム円板 (直径; 2.2 cm , 重さ; 2.1 gr) を用い、熱中性子強度はカドミウム板 (重さ; 0.6 cm) にはさまれたインジウム板の生成放射能をカドミウムをはさまない場合の生成放射能より差し引いて求めた。中性子照射時間を2時間として、照射后5分をおいて10分間 G. M. 管により生成放射能を測定した。

この結果によれば、水減速剤 ($4.8 \times 3.3 \times 3.3 \text{ cm}$) についてもパラフィン減速剤 ($3.0 \times 3.0 \times 3.0 \text{ cm}$) と同様、中性子源より約 1 cm の距離で熱中性子束の極大が認められた。

次に一定容積の丸底フラスコ (軟質ガラス製) 中にインジウム含有水溶液試料を入れ、その中央に中性子源を置き、フラスコの周囲を水でかこむ放射化分析法を検討した。この際フラスコ中のインジウム量を一定とし、フラスコ容量を種々変えた場合の生成放射能の変動を検討した。中性子照射を2時間とし、20分后より10分間、井戸型レンチレーターを用いて生成放射能を測定した。この結果約 200 cc の容積で生成放射能の極大が得られた。

次に試料容積を 200 cc としインジウム含有量と生成放射能の関係を求めた。その結果約 600 mg のインジウム含有量迄は含有量に比例して生成放射能は増加した (比放射能が一定)。

これをパラフィン減速剤を使用し固体試料(酸化インジウム)を照射した場合と比較すると前者は後者に比してインジウムによる中性子の吸収効果が極めて少ない。

さらに、この様な水溶液照射法に於ては中性子照射后試料の溶解操作がはぶけるので迅速な化学処理に適している。

この様に水を減速剤とし水溶液を照射試料とする方法は、放射化分析法およびホットアトム化学等に対して興味ある応用分野を持つものと考える。

49 高純度ケイ素中のハロゲンの放射化分析

(電々公社通研)野崎 正 馬場英夫 荒木日出磨 川島 敏

前回の放射化学討論会において、ケイ素中のヨウ素の放射化分析につき報告したが、今回は、ケイ素中の塩素、臭素、ヨウ素の三者を同一の試料より分離定量する方法と、それによつて塩素と臭素の定量を行つた結果について報告する。

高純度ケイ素はハロゲン化ケイ素を経て精製されているが、その際ハロゲンの一部がケイ素中に残る恐れがあり、それらがトランジスター用ケイ素の特性に影響を及ぼすと考えられるのでその定量法を検討した。

ケイ素中のヨウ素については、前回報告した通り、ヨウ化ケイ素熱分解によつたケイ素には数PPMのヨウ素が含まれ、塩化物法で精製されたケイ素にも0.005~0.05PPMのヨウ素が含まれていること、ヨウ化カリウムをキャリアーとしたアルカリ溶融法が適切な方法であることなどを知つた。そこで臭素や塩素の定量にあつても前回と同様アルカリ溶融法によつた。なおハロゲンの相互分離はつぎに示すように分別蒸留によつた。

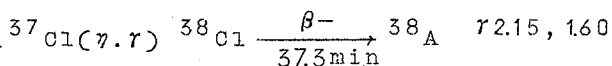
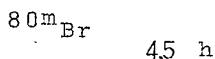
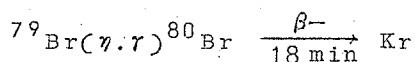
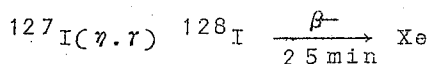
高純度ケイ素をハロゲン標準試料と共に、JRR-1で一時間照射し、そのケイ素粉末を融点より少し高温の状態にある水酸化カリウム中(それぞれのハロゲンの塩をキャリアーとして

含む)に少しずつ入れ溶解し、それを硫酸液で処理した。つぎに、無水クロム酸を加え、硫酸の濃度が1.5 N程度になるように硫酸を加え、蒸留を行うと、まず臭素が溜出し、臭素溜出後更に蒸留を続けると塩素が溜出する。このようにして得られた各溜分から次のようにして臭素および塩素の測定用試料を調製した。

臭素：亜硫酸ナトリウム溶液をリン酸酸性とし、過マンガン酸カリウム溶液を加え臭素イオンを臭素とし四塩化炭素で抽出し、つぎに硫酸ヒドロキシルアミン水溶液で逆抽出後臭化銀として沈殿させ、計数用試料とした。

塩素：亜硫酸ナトリウム溶液で受けた塩素は特に精製することなく塩化銀として沈殿させた。なお、ヨウ素を定量しようとするときには臭素と塩素を蒸溜したあと過剰のシユウ酸を加えてヨウ素酸を還元してから蒸溜すればよい。

計数：ハロゲン化銀の放射能測定は、次の核反応によつて生成される核種にもとづき行つた。



塩化銀試料には ${}^{31}\text{Si}$ その他の微量不純物が含まれることも考えられるので、 ${}^{38}\text{Cl}$ のエネルギーの高い γ 線を、シングルチャンネル γ 線波高分析器(大型シンチレーター付属)により測定した。

化学分離にはおよそ1時間を要し、収率は50%前後であつた。塩化物法で精製されたケイ素の一つは、0.4 PPMの塩素、0.08 PPMの臭素、0.05 PPMのヨウ素を含んでいた。

50 セレン77mによるセレンの放射化分析

(原子力研) (東工試) 中井敏夫 矢島聖使 ○岡田 実 柴 是行

イオウおよびイオウ化合物の中の微量のセレンに対する迅速定量法としてJRR-1原子炉による中性子放射化分析法の研究を行ない良好な結果を得た。試料の放射化には上記原子炉のNo.16実験孔を使用し、試料の出し入れは気送管によつた。利用した中性子束密度は約 3×10^{11} n/cm²/sec である。使用した計数装置はRCL社製の256チャンネル波高分析器に井戸形NaI(Tl)シンチレーター(直径1³/₄インチ、厚さ2インチ;井戸の直径³/₄インチ、深さ1¹/₂インチ)を接続したものであつて、0~0.4 Mevの範囲のγスペクトルをペンで自動記録させた。各試料はいずれもポリエチレン製棒ビンに封入したまま照射と計数を行なつた。空試験用試料も単独に計数させ、その結果をペン記録させた。各試料とも、中性子照射時間、冷却時間、計数時間をそれぞれ20秒、15秒、20秒に取り、さらに20秒間冷却してからふたたび20秒間の計数を行なふことにより、1試料ごとに2枚のγスペクトルを取つた。このようにしてγエネルギーと半減期の両者からセレンを同定した。定量用の標準としては、たがいに濃度の異なる一連の標準試料を作り、これを使つて $10^{-1} \sim 10^2$ μgの範囲のセレン量に対する検量線を描いた。実際に分析した試料8種のセレン含量は最高70 P P m、最低は0.01 P P m未満であつた。

試料のうち硫酸に対しては前処理を行なつた。すなわち、特級アンモニア水約30 mlを1ℓのガラス製円筒に入れ、これをゆり動かしながら硫酸試料を滴下し、溶液がアルカリ性であるうちに滴下をやめ、溶液を沈殿物とともに蒸発ガラへ移し、ゆるく加熱して乾燥させ、ここに得られた硫酸アンモニウムを正確にはかりとつてポリエチレン製棒ビンに封入した。これに対する空試験用試料として特級アンモニア水約5 mlをポリエチレン製棒ビンに入れ、100℃に数時間保つて乾燥させたのち、ビンの口をガス炎で封じた。さらに、この試料に対する空試験のための試料として何も入れないポリエチレン製棒ビンを用意し、このビンの口を上記同様にガス炎で封じた。

前記の半減期測定法を検討するために、各種元素から中性子照射によつて生ずる放射性核種のうち、0.162 Mevのセレンのγ線と誤認されるおそれのあるようなγ線を出す核種を同位

体表から求めると ^{77m}Ge , ^{185m}W , ^{161}Gd , ^{70}Ga , ^{233}Th , ^{123}Sn ,
 ^{111m}Cd , ^{139}Ba , ^{85m}Kr , ^{188}Re , ^{199}Au , ^{177m}Sn , ^{123m}Te ,
 ^{139}Ce , および ^{181}W があるが、これらの中で ^{77m}Se の半減期が一番近い半減期を有
するものは ^{77m}Ge であるから、ペン記録された γ スペクトルの山からセレンを同定するため
にはそれが ^{77m}Ge の山でないことを証明することが必要である。 ^{77m}Ge の半減期は 54 秒で
あつて ^{77m}Se の半減期 17.5 秒から相当離れているから前記のように 1 試料につき 2 回のスペ
クトロメトリーを行なうだけで十分であると思われる。

本法によるセレン定量値の変化係数は、数 μg のセレンに対して 10 % 程度と推定される。

5.1 閃亜鉛鉱中のインジウムの放射化分析

(東工試)

青木文雄、

○大久保悌二

インジウムは、閃亜鉛鉱、方鉛鉱等の鉱物に含まれ、亜鉛、鉛の副産物と
して、これらの鉱滓から回収されているが、原鉱石に含まれるインジウムの量は、含有量が比
較的大きいものでは、比色法、蛍光法による定量が適用され得るが、一般には、きわめて微量
であるため、これらの方法での定量は困難である。我々は、多くの閃亜鉛鉱の中の微量のイン
ジウムを定量するため、JRR-1 原子炉を用いて、中性子放射化分析を行った。

精選した試料の粉末 300 mg を経 3 mm のポリエチレン管に秤取し、封入する。5 ケの試料と
2 ケの標準試料を、1 ケのポリエチレン製照射用容器に入れ、1 週間の中性子照射を行った。
この場合、試料の自己遮蔽による影響はみとめられず、カドミウムを 1 % 程度含む試料でも、
その影響は、無視することが出来る程度であつた。

用いた核種は、 ^{113}In より γ 反応によつて生ずる ^{114}In で、測定には、アトミック
社製シングルチャネル γ スペクトロメーター及び科研製端窓型 G.M 計数装置を用いた。

照射された試料を王水に溶かし、スカベンジャーとして Ag^+ , Cu^{2+} , Cd , Sb , をそれぞれ2 mg, キャリヤーとして In^{3+} を5 mg加える。砂皿上で蒸発させて、硝酸を除き、濃塩酸を加えて熱し、水を加えて濾過する。濾液を酸濃度0.3 Nに調節し、硫化水素を通じて濾過水洗を行う。濾液に、過酸化水素を加えた後、煮沸して、過剰の過酸化水素を除き、塩化アンモニウム及びアンモニア水を過剰に加え、水酸化亜鉛の沈澱が、完全に容解してから濾過水洗をする。再沈澱後、沈澱を3 Nの硫酸に溶かし、等容の3 Mヨウ化カリウム溶液を加え、エチルエーテルを用いて、インジウムを抽出する。エーテル層を0.1 Nの塩酸の上で蒸発させ、オキシソル溶液を加えてオキシソル塩を沈澱させ、オキシソル塩を熱湯で洗って、乾燥後、試料皿に盛って計数を行う。

インジウムオキシソル塩は、 γ 線スペクトル、 β 線エネルギー及び半減期の測定より放射化学的純度を、確認することが出来た。

この方法により、JRR-1原子炉で実質15時間の照射で、最低1 P P m程度のインジウムを検出することが出来た。また比較的少量にインジウムを含む試料について、オキシソル法による比色定量の結果と比較して、よく一致した値が得られた。

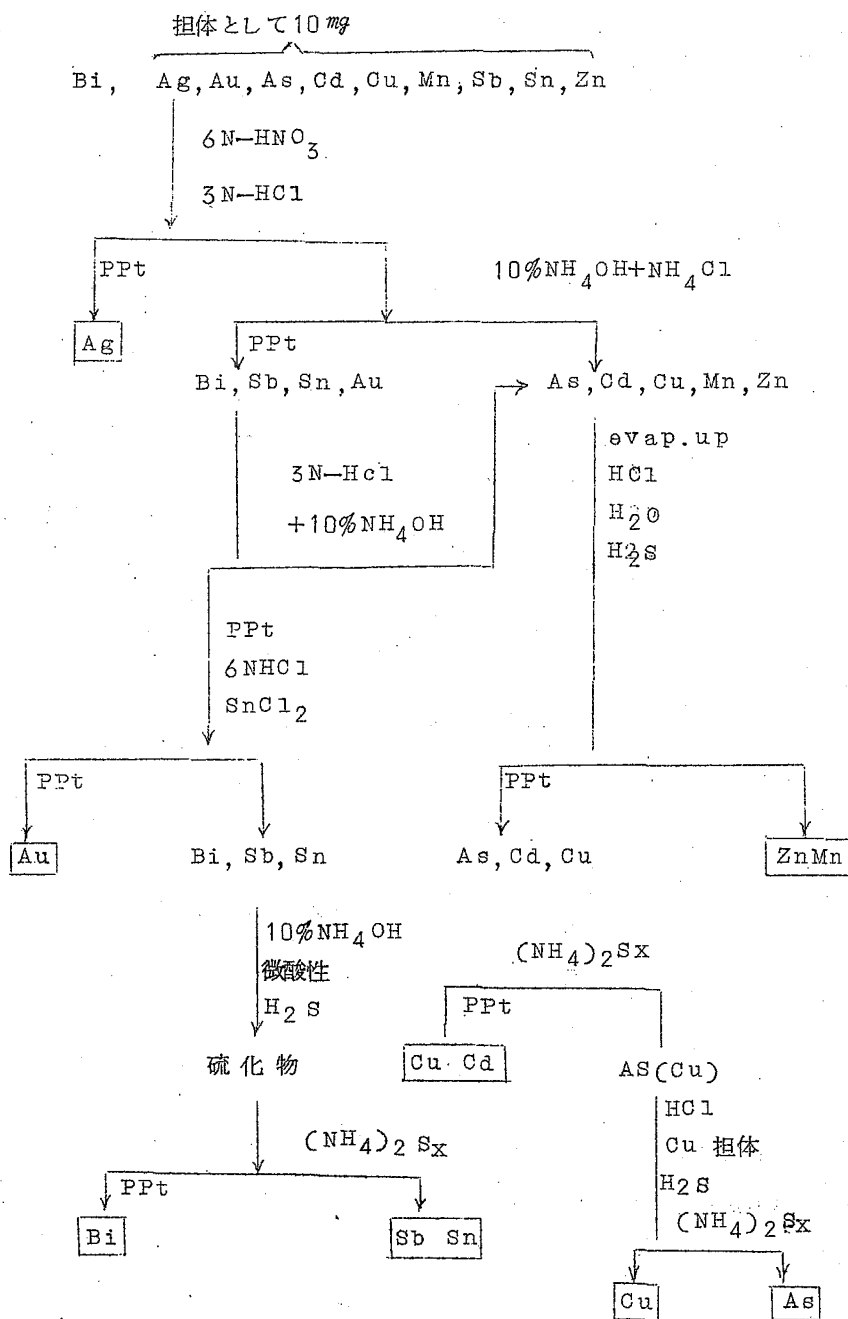
5.2 ビスマス中の不純物の放射化分析

(原子力研) 中井敏夫 矢島聖使 (早大理工研) ○黒田籠平

最近半導体材料および原子炉冷却材としてビスマスが注目されはじめた。原子炉の材料としてビスマスを使用する場合は、含有不純物の中性子吸収断面積の値が問題となり、特に吸収断面積の大きい Ag , Au , Cd , Cu などの量に注意しなければならない。

本実験では種々の製法によつてつくつたビスマス中の不純物を次のような放射化分析法によつて求めた。不純物中に半減期のやゝ長い Ag , Cd があるのでJRR-1により3日間の比較

的長い中性子照射を行い、さらに次のような分離操作の後、各fractionの γ -線スペクトルと標準試料の γ -線スペクトルの比によって定量を行った。



元素が2種類混在する fraction は γ -線エネルギーおよび半減期によつて分離定量した。このようにして求めた例を示すと

単 位 ppm	Au	Ag	Cu	Sn	Sb	Zn	Cd	As
電解精製ビスマス	0.5	60	30	—	0.03	—	?	<0.004
上記のものを Zone Melting により精製した試料	—	—	2.2	—	0.4	—	?	<0.004

さらに種々の試料について上記の方法で不純物量を求めた。それらの結果について発表する。別に半減期24.2秒のAg-110を対象として、ビスマス試料中の銀の非破壊迅速分析法を試みた。その際の照射条件は照射10秒、冷却110秒、測定60秒であり、Ag-110の放射する0.66 Mevの γ 線光電ピークに着目した。分析結果は長時間照射による銀の分析結果と一致した。

53 ゲルマニウムその他高純度金属の中の不純物の放射化分析

(原研) 中井敏夫 矢島聖使 (東工使) 岡田 実

(住鉱東京研) 今井照男

前回の討論会で報告されたゲルマニウム中の不純物の定量法においては、蒸留によるマトリックスの分離操作に、問題点があつたので、更に検討を行つたので報告する。

i) 強熱を避け、約100 ml 留出液/2時間程度の蒸留速度で蒸留する。その際の液性は、第1回、水20 ml+濃塩酸30 ml~50 ml+濃硝酸30 ml~40 ml、第2回以後は濃塩酸20 ml+濃硝酸10 ml、最後に濃塩酸20 ml、であり、残留液が約15~5 ml程度にな

るまで蒸留する。以上の方法で、As と Ge の分離は殆んど完全と思われる。

ii) 不純物は、ダイヤイオン SA[#] 100 C₁₈ 型陰イオン交換樹脂を用いて分属し、γスペクトロメトリーにより定量する。金属ゲルマニウム及び酸化ゲルマニウムを試料とした場合の分析例について報告する。

高純度アルミニウム及びマグネシウム中の不純物の放射化分析についても、ゲルマニウム同様既に報告されたが、不純物の中でもとくに Na については、Na の (n, γ) 反応以外に母体自身から (n, p) 又は (n, α) 反応で ²⁴Na が生成されるため、極微量の Na 定量には問題があるので、(n, γ) 反応以外による ²⁴Na 量の補正について検討をおこなったので報告する。

カドミウムを用いて熱中性子を吸収させる方法を取り、カドミウムをまいた試料とまかない試料とを、同時に照射し、生成される ²⁴Na の量を比較した。

5.4 核燃料用トリウム中の個々の稀土類元素の放射化分析

(東芝マ研) 藤井 勲 (原子力研) 夏目 晴夫

核燃料用トリウム中の個々の稀土類元素を定量するために放射化分析法を用いた。試料には硝酸トリウムを用いその 100 mg をサクレー原子力研究所の原子炉 BL-2 の実験孔に入れ熱中性子束密度 1.8×10^{12} Neutrons/cm²/Sec で 150 時間照射した。

照射後、試料を硫酸塩にかえ担体としてランタン 5 mg を加え、苛性ソーダ溶液によつて pH = 2.3 に調節し、陰イオン交換樹脂 Dowex 1×8 (50メッシュ) のカラム (φ 20 mm × 250 mm) に通じてトリウム及びプロトアクチニウムを分離した。流出液にアモニア水を加えて稀土類元素を沈澱させ遠心分離したのち、沈澱を塩酸に溶解陽イオン交換樹脂ダイヤイオン SK

#1のカラム($\phi 8\text{ mm} \times 250\text{ mm}$, 87°C)に通じて稀土類元素を樹脂に吸着させた。次に乳酸0.5 M溶液($\text{pH}=3.30$)を通じてサマリウムまでの稀土類元素を溶離し以下の稀土類元素の溶りのためには $\text{pH}=3.44$ の乳酸0.5 M溶液を用いた。稀土類の分離にあたっては、溶離曲線を自動的に書かせるために自動記録装置を試作した。

又、この方法によるときに予想されるトリウム核分裂について考慮しその核分裂生成物 Te-132 の抽出を行い結果の補正を行った。

5.5 酸化トリウム及び金属トリウム中の稀土類元素の放射化分析(続報)

(原子力研) 中井敏夫、矢島聖使、○亀本雄一郎、柴是行

高純度トリウム中に含まれる微量の稀土類元素の定量法を確立することは原子炉開発上重要である。演者らは前回の討論会より引き続き、放射化分析による稀土類元素の定量法の検討を行なつて来た。前回において Dy , Sm , La の定量法を検討し、その結果を報告した。今回は更にその方法の一部を改め、上記3元素以外に Eu も定量することが出来た。前報と異なる主な点を列挙すると、

1. 試料の中性子照射を2時間行なう以外に長時間—3日間(1日最大5時間)の照射も行なつた。この長時間照射は Sm , La など比較的半減期の長い核種の定量に有利である。
2. 担体として La を約 1.3 mg 加えて、化学操作途中の損失を減少させることにつとめた。
3. La , Sm の定量においては、前回は報告した方法に更に数段階の精製法を加え、 Th を完全に除去することにした。
4. 得られた稀土類元素の放射能の壊変をこまかく追跡した結果 Eu を新に定量し得た。
5. 今回は金属トリウム以外に高純度酸化トリウムを定量した。

分析法の概略をのべると次の様である。試料を JRR-1 原子炉中で2時間(Eu , Dy の定量)

又は3日間(La, Smの定量)中性子照射をする。中性子束は約 2×10^{11} n/cm²/Secである。照射後3~4時間放置して²³³Thを全て²³³Paに変変させる。

照射した試料に13mgのLaを担体として加える。試料が金属トリウムの場合は約6Nの塩酸にとかし、酸化トリウムの場合は過酸化ナトリウムによる熔融か、又は重硫酸カリウム+フッ化ナトリウムによる熔融により稀塩酸に溶解する。この溶液にアンモニアを加えて、トリウム及び稀土類元素を水酸化物として沈でんさせ、濾過し、塩酸にとかし。次に前回に報告したイオン交換法により²³³Paを除去した。

Eu, Dyの定量の場合は、このイオン交換法の溶出液を約5mlにまで濃縮し、ポリエチレン製棒状瓶に入れ、井戸型シンチレーター付256チャンネルγスペクトロメーターにより放射能を測定する。

La, Smの定量の場合はイオン交換法の溶出液を適当にうすめ、チオ硫酸溶液を加えて、トリウムを沈でんさせ濾過する。濾液にアンモニアを加えて、稀土類元素を水酸化物として沈でんさせ、塩酸に溶解し、シュウ酸を加えて再び沈でんさせる。この沈でんから取量を求め、Eu, Dyの場合と同様にして放射能を測定する。

いずれの場合も得られたγスペクトルの各ピークの衰変を追跡し、解析してその半減期とγエネルギーより核種を決定し、ピークの高さを各標準試料のそれと比較して定量した。

定量結果の一例として高純度金属トリウムの分析結果を示すと、Dy~1p.p.m., Eu~1p.p.m Sm 検出されず、La検出されず、であつた。

稀土類各元素の検出限界についても検討したので、その結果も合せ報告する。

5.6 中性子放射化によるケイ酸塩岩石中および石質隕石中の痕跡元素の定量

(教育大理) ○浜口 博・亀本雄一郎・井出野栄吉・遠藤 正

安永 力

さきに隕鉄中のパラジウム、白金、イリジウム、タングステン、ヒ素、アンチモンの放射化分析法を確立し、得られた結果を発表した(第2回放射化学討論会、於京都)が引続き石質隕石についての結果を報告する。照射試料は過酸化ソーダ融解によつて分解、塩酸に溶解して蒸発乾固して不溶のシリカを除き、溶液につき隕鉄の場合と同様の化学分離操作により放射化学的純粋な試料を調製した。

得られた結果を第一表に示す。

第一表 石質隕石中の痕跡元素含量 (P. P. m.)

Meteorite Element	Forest City (chondrite)	Modoc (Chondrite)	Nuevo Laredos (achondrite)	Admiral County (Pallasite, Silicate Phase)
Pd	1.0 ± 0.3	0.73 ± 0.09	*	< 0.04
Pt	1.0 ± 0.2	0.10 ± 0.1	*	*
Ir	0.4 ± 0.25	0.3 ± 0.08	*	*
W	0.24 ± 0.06	0.13 ± 0.02	0.11	—
As	2.59 ± 0.31	1.79 ± 0.30	0.0179 ± 0.0008	0.0168
Sb	0.124 ± 0.013	0.118 ± 0.033	0.0096 ± 0.001	0.0214

* not detectable

得られた結果に基づき、これらの元素の地球化学的特性(親鉄、親石性など)と宇宙存在量を論議する。また白金、イリジウム、タングステン、アンチモンについては2種の放射性核種が得られ、その放射能比から隕石物質中のこれら元素の同位体存在比を検討した結果、地球上の同位体存在比に一致することを論ずる。

57 放射化分析によるリン酸トリブチルの水に対する溶解度の測定

(原子力研)

梅沢弘一・野村真三・原礼之助

TBPその他のalkyl phosphatesの水に対する溶解度は極めて小さく、かつ微量の有機のリンに対する通常の化学分析は困難である。このためTBPおよびその関連Alkyl phosphatesの水に対する溶解度を測定するため水相のリンを放射化分析することを試みた。

実験はTri-n-butyl, iso-butyl, sec.-butyl Phosphatesにつき行つた。これらの有機リン酸エステルは減圧蒸留で精製しこれの1 mlをイオン交換水1.5 mlとより第1回の水相はすて、新に水を1.5 ml加えて1時間20°Cでふりませ2相を分離する。水相1 mlをピペットでろ紙上にしみこませ室温で放置し水分の大部分を蒸発させる。これを予めHNO₃でよく洗浄したポリエチレンシートに封入しJRR-1で15時間照射し数日放置してろ紙またはポリエチレン中の短い半減期の不純物、また(P, n, P)反応で生ずる³¹Siの放射能を減衰させた後、³²Pのβ線をGM Counterで測定する。標準試料は純粋のリン酸トリブチルをベンゼンに希釈して約5 g/lの溶液としてこれをマイクロピペットで10 μl、50 μl、100 μl、150 μlとり試料と同様にろ紙に吸着せしめてポリエチレンシートに封入し実験の度に試料と同一条件で照射した。これら標準試料はTBPとして約50、250、500、750 μgに相当する。これによつて実験ごとに検量線を描き定量を行つた。

ろ紙およびポリエチレンには長寿命の不純物があり、back-groundは約100 cpmであつた。

放射化した試料の放射能は50 μg TBPを含むサンプルの場合、その放射能はback-groundの約2倍程度である。

Tri-n-butyl Phosphateについてはその溶解度は0.3 g/lでありこれはMcK-ay等の0.5 g/lとほぼ一致する。

またTri-iso, Sec.-butyl Phosphateはn-butylにくらべ溶解度は非常に高くTri-Sec.-butyl Phosphateでは約2 g/l程度であつた。

58 $^{40}\text{A}(\alpha, p)^{43}\text{K}$ および $^{40}\text{A}(\alpha, pn)^{42}\text{K}$ の励起函数の測定

(東大核研) 田中重男・三雲 昂・○古川路明・八木益男
岩田志郎・天野 恕

放射化法による核反応断面積の測定で気体をターゲットとする実験はあまり知られていない。また $Z=20$ 付近の核については α 粒子による核反応断面積の測定例は殆どない。この研究は $Z=18$ に相当するアルゴン (^{40}A) をターゲットとして 10 MeV から 40 MeV のエネルギー範囲にわたって (α, p) および (α, pn) 反応の励起函数の測定をし、核反応の反応機構の解明の一助とすることを目的とした。(なおこの実験では表記の反応以外に妨害放射能を生ずる反応はない。) また実験方法としては電極に負の高圧を与えてアルゴンガス中に生じた生成核を集める操作を試みた。

ターゲットシステムとしては角型の鉄製の箱を作り、その一端に 50μ の厚さのアルミニウム箔をはりビームの入射する場所とした。箱はアルミニウム製のしきりで六つの部分に分け、しきり板の中央には 30 mm の円型の穴をあけ α 粒子のエネルギーを落とすためにアルミニウム箔をはつた。箱の隅には粒子の入射方向と平行に白金線をはり、箱自身との間に 300 V の負の高圧を与えた。この箱は同時にフラデー・カップとして用いられ、入射粒子電流の測定にあてられた。照射は核研 160 cm サイクロトロンで加速されたヘリウムイオン (He^{++}) {エネルギー巾 1% 以内、ビームの拡がり約 $7\text{ mm} \times 7\text{ mm}$ } で行われ、入射粒子のエネルギーは 32 MeV および 40 MeV を使用した。

照射終了後、アルゴンガスを 0.1 N 塩酸を通過させてから真空にしたガラス容器中にぬき出した。白金線を取り外し各々のしきり毎に切離してからポリエチレン製の管の中に移し一定量の 0.1 N 塩酸で洗った。一方箱内のアルミニウム製の仕切りは 0.05 N 水酸化カリウム水溶液で洗い、残留している放射性カリウムを除いた。それを定容にして同様にポリエチレン製の管に入れた。

このようにして得られた試料は $2'' \phi \times 2''$ の NaI 結晶を用いてシンチレーション計数法を適用し、 ^{43}K の相対値は 0.37 MeV および 0.62 MeV の γ 線による光電ピークをとり ^{42}K によるコンプトン連続帯を差引いて求めた。 ^{42}K の相対値は波高解析により 1.52 MeV

の γ 線による計数値のみを求める事によつて得た。 ^{43}K の絶対値は (α, pn) 反応のしきい値以下の試料について $4\pi\beta$ 計数法を行つて求めた。

^{42}K についてもなるべく ^{43}K の少ない試料を選んで $4\pi\beta$ 計数法を行い、 ^{43}K 寄与は GM 計数管による擾変曲線の解析結果を参考にして差引いた。

得られた核反応断面積の値は別表の通りである。また生成した放射性カリウムは 300 V の負の高圧を白金線に与えた場合約 85% が電極に集められ、この操作が有効な事を示していた。

α 粒子のエネルギー (E_α) _{lab} (MeV)	核 反 応 断 面 積 (m b)	
	(α , p)	(α , pn)
3.6	1.0	1.19
3.3.5	1.3	1.58
3.1	1.5	1.65
2.8	2.1	1.74
2.6	2.5	1.35
2.2	4.6	5.9
1.8.5	6.7	8
1.5	4.1	0
1.1.5	1.5	—

59 Fe の α 反応の励起函数

(東大核研) 田中重男・古川路明・三雲 昂 (静岡大放射化学
研) 八木益男 (東北大金研) 天野 恕 (阪大理) 岩田志郎

〔目的〕 30 MeV 程度以下の低エネルギー粒子で中重核を衝撃した場合の核反応は複合核生成過程を経る統計論に従うことが知られているが、近年核反応、核構造の研究が進むにつれて直接反応の寄与が問題になってきている。此のような観点から主として陽子過剰核である ^{54}Fe の α 反応の励起函数および α 粒子の ^{56}Fe , ^{57}Fe などに対する反応の解析を目的として、これら励起函数の測定を放射化法によつて行つた。また $^{56}\text{Fe}(\alpha, pn)^{58}\text{Co}$ 反応の σ_m/σ_g の測定も行つた。

〔実験〕 (1) 照射 約 7.7 mg/cm^2 の厚さの天然同位体組成の純鉄箔を Stacked-foil technique によつて核研 160 cm サイクロトロン の直線コースで照射した。入射 α 粒子のエネルギーには 3.2 MeV および 4.0 MeV を用い、それぞれ 1.0 MeV および 3.0 MeV までエネルギーを落した。照射条件は 3.2 MeV の場合は平均 $0.5 \mu\text{A}$ で約 6 時間、計 10,300 マイクロクーロン、4.0 MeV の場合は平均 $0.5 \mu\text{A}$ で約 5.5 時間、計 10,500 マイクロクーロンであつた。

(2) ターゲット ローラー加工した約 7.7 mg/cm^2 の純鉄箔で、分光分析により検出された不純物は $\text{Ca, Mn, Si} > 0.1\%$, $\text{Al, Ni} < 0.1\%$, Cr 痕跡 V, Ti なし

天然同意体組成比 ^{54}Fe 5.82%, ^{56}Fe 91.66%, ^{57}Fe 2.12%, ^{58}Fe 0.33%

(3) 測定した反応; $^{54}\text{Fe}(\alpha, n)^{57}\text{Ni}$, $^{54}\text{Fe}(\alpha, 2n)^{56}\text{Ni}$, $^{54}\text{Fe}(\alpha, p)^{57}\text{Co}$
 $^{54}\text{Fe}(\alpha, pn)^{56}\text{Co}$, $^{54}\text{Fe}(\alpha, p2n)^{55}\text{Co}$ { 此の反応は $^{54}\text{Fe}(\alpha, 3n)^{55}\text{Ni}$ と分けて

測定することができず、両者の核反応断面積の和のみが得られる。} $^{54}\text{Fe}(\alpha, \alpha'pn)^{52}\text{Mn}$
 $^{54}\text{Fe}(\alpha, \alpha'2n)^{52}\text{Fe}$, $^{56}\text{Fe}(\alpha, pn)^{56}\text{Co}$ $^{56}\text{Fe}(\alpha, \alpha'pn)^{54}\text{Mn}$, $^{57}\text{Fe}(\alpha, \alpha'p)^{56}\text{Mn}$

(4) 化学分離および測定試料調製 ターゲットを王水処理した後

(i) 4.0 MeV 照射の場合 10N HCl にして陰イオン交換樹脂 Dowex 1-X8 (200 ~ 400 \times ツジユ) の $13 \text{ mm}\phi \times 150 \text{ mm}$ カラムを用い、10N HCl, 7N HCl, 4N HCl, お

よび0.5 N HCl でそれぞれ Ni, Mn, Co および Fe を相互分離し、各フラクションより GM測定用および γ 線シンチレーションスペクトル測定用試料を調製した。

(ii) 32 MeV 照射の場合 8 N HCl について DowEX 1-X (200~250メッシュ) で $7\text{ mm}\phi \times 75\text{ mm}$ カラムを用い 8 N HCl, 4 N HCl, および 0.5 N HCl でそれぞれ Ni, Co Fe を分離し、40 MeV の場合と同様の測定試料を調製した。

(5) 放射能測定 イオン交換分離した各フラクションについて (i) 相対測定 ① GM計数器による β 線の衰変曲線の解析 ② $2''\phi \times 2''$ NaI および $1\frac{3}{4}''\phi \times 2''$ NaI 井戸型シンチレーターを用いたシンチレーションスペクトロメーターによる生成核特有の γ 線の光電ピークの測定 (^{56}Co 845 KeV, ^{57}Co 122 KeV, ^{58}Co 810 KeV, ^{52}Mn 1.43 MeV, ^{54}Mn 842 KeV)

③ $\beta^+ - \beta^+$ 同時計数の測定

などによって各反応の生成核の放射能の相対測定を行った。なおこれら全ての測定に対して Al 箱中の反跳核の放射能を測定して相対値の補正を行った。

(iii) 絶対測定; $4\pi\beta$ 計数法、 β 線定立体角測定法、 γ 線定立体角法などを併用して各反応の生成核の放射能の絶対測定を行った。

結果

反応 エネルギー (E _a) _{lab} (MeV)	⁵⁴ Fe(a,n) ⁵⁷ Ni		⁵⁴ Fe(a,p) ⁵⁷ Co		⁵⁴ Fe(a,2n) ⁵⁶ Ni		⁵⁴ Fe(a,pn) ⁵⁶ Co		⁵⁶ Fe(a,pn) ⁵⁸ Co		σ _m /σ _g
	σ (mb)	反跳率 (%)	σ (mb)	反跳率 (%)	σ (mb)	反跳率 (%)	σ (mb)	反跳率 (%)	σ (mb)	(%)	
31.0		4.26		4.26	3.83	6.45	4.33	6.45	5.60	6.22	1.7
29.3	11.4	3.85		3.85	3.44	5.57	4.70	5.57	6.40	5.66	2.6
27.6	13.4	3.16		3.16	3.09	5.00	4.75	5.00	5.95	5.50	3.0
25.8	19.8	4.50	1.25	4.50	2.23	4.62	4.57	4.62	5.73	5.24	2.7
24.0	30.4	4.67	1.66	4.67	2.15	4.45	3.97	4.45	5.44	4.65	3.1
22.0	47.5	5.18	2.06	5.18	2.05	4.20	3.14	4.20	4.46	3.87	2.8
19.9	83.5	4.33	3.09	4.33	1.64	3.42	1.82	3.42	2.55	2.79	2.7
17.9	12.6	4.00	4.32	4.00	0.15	1.51	6.8	1.51	7.7	1.29	2.1
16.3	15.2	2.98	4.90	2.98							
15.6	14.2	** (3.60)	5.09	** (3.60)							
13.3	10.7	** (3.60)	3.88	** (3.60)							
10.0	(45)*		(147)*								

- (註) ① ⁵⁴Fe(a,p)⁵⁷Co, ⁵⁴Fe(a,n)⁵⁷Niの反跳率は衝撃後約1ヶ月してAl箔中の⁵⁷Coを測定したものである。
 ② ⁵⁴Fe(a,2n)⁵⁶Ni, ⁵⁴Fe(a,pn)⁵⁶Coの反跳率にも衝撃後約1ヶ月してAl箔中の⁵⁶Coを測定したものである。
 ③ *は反跳補正をしていない値
 ④ **はtarget systemが他のものと異っているもの
 ⑤ 40MeV~32MeVの結果については、目下整理中

60 Mn の α 反応の励起函数

(東大核研) 田中重男・古川路明 (静岡大放射化学研)

八木益男 (東北大 金研) 天野 恕 (阪大理) 岩田志郎

〔目的〕 さきに陽子過剰核である ^{54}Fe の α 反応の励起函数について考察したが、これと比較するために、質量数が54に近く、しかも陽子過剰でも中性子過剰でもない核として ^{55}Mn を選び、放射化法によつて励起函数の測定を行つた。

〔実験〕 (1) 照射 東大核研の160 cm サイクロトロンを用い、照射条件は32 Mev の場合は平均0.5 μA で約3時間、計5000マイクロクーロン、40 Mev の場合は平均0.25 μA で約4時間、3300マイクロクーロンであつた。

(2) ターゲット 約3 mg/cm² の Al 箔を表面活性剤で洗浄后 Mn を真空蒸着させたもので、Mn の純度は99.9%である。

(3) 測定した反応 $^{55}\text{Mn}(\alpha, n)^{58}\text{Co}$

$^{55}\text{Mn}(\alpha, 2n)^{57}\text{Co}$, $^{55}\text{Mn}(\alpha, 3n)^{56}\text{Co}$, $^{55}\text{Mn}(\alpha, 2pn)^{56}\text{Mn}$, $^{55}\text{Mn}(\alpha, d, n)^{54}\text{Mn}$

(4) 化学分離および測定試料調整 ターゲットを発煙硝酸で処理してマンガンをアルミニウム箔から溶解分離した後、7 N HCl 溶液として陰イオン交換樹脂 Dowex 1-X (200 ~ 250 メッシュ) で7 mm ϕ \times 75 mm のカラムを用い、7 N HCl, 4 N HCl でそれぞれ Mn, Co を溶離し、各フラクションより GM 測定用および γ 線シンチレーションスペクトル測定用の試料を調製した。また発煙硝酸で処理したターゲットのアルミニウム backing を塩酸で溶解し、7 N HCl 溶液として上記と同じカラムを通し、7 N HCl および 4 N HCl でそれぞれ Al+Mn および Co を溶離し、それぞれのフラクションより反跳核の γ 線シンチレーションスペクトル測定用試料を調製した。なおアルミニウム backing に残っている可能性のある Mn の分析を比色法で試みたが検出されなかつた。

(5) 放射能測定 イオン交換分離した Mn および Co フラクションについて

(i) 相対測定 ① GM 計数器による β 線壊変曲線の解析 ② 2" ϕ \times 2" NaI および 1 $\frac{3}{4}$ " ϕ \times 2" NaI 井戸型シンチレーターを用いた γ 線シンチレーションスペクトロメーターによる生成核特有の γ 線の光電ピークの測定

により各反応生成核の放射能の相対測定を行った。なおこれらすべての測定に対してアルミニウム箔中の反跳核の放射能を測定することにより相対値の補正およびターゲットの厚みの不均一性の補正を行った。

(ii) 絶対測定 $4\pi\beta$ 計数法、 β 線定立体角法、 γ 線定立体角法などを併用して各反応生成核種の絶対測定を行った。

〔結果〕 次の表に示す通りである。

反 応	$^{55}_{54}\text{Mn}(\alpha, \alpha' n)$	$^{55}_{56}\text{Mn}(\alpha, 3n)$	$^{55}_{57}\text{Mn}(\alpha, 2n)$	$^{55}_{58}\text{Mn}(\alpha, n)$	
	σ (mb)	σ (mb)	σ (mb)	σ (mb)	σ_m/σ_g
α -エネルギー (E_α) _{lab} (MeV)					
38.5	125	115	118	6.5	
36.8	164	91	136	6.6	
34.2	146	76	219	12.8	
32.5	151	55	275	16.2	
31.3	153	41	343	19.3	2.40
30.7	134	37	364	21.0	
29.4	140	17	392	22.1	2.54
27.4	118	3.9	470	32.8	
25.3	73	0.8	565	48.2	4.43
23.0	29		552	75.3	4.48
21.0	6.6		562	134	5.00
18.5			482	227	4.38
16.0			357	388	3.69
13.1			31	569	1.39
9.9				332	1.20

(註) ① $(\alpha, 3n)$, (α, n) 反応の断面積は放射能の絶対測定を γ 線定立体角法で測つたもので $^{56}\text{Co}(\beta^+ 20\%)$, $^{58}\text{Co}(\beta^+ 15\%)$ として 4π 計数法で測つたものは ^{56}Co について此の1.50倍、 ^{58}Co について1.18倍になる。

② 相対測定の誤差は $\pm 5\%$ 以内である。

③ $^{55}\text{Mn}(\alpha, 2pn)$ ^{56}Mn については目下整理中

第 3 日 (10月10日) 午前

61 (Ag+α) 反応の励起函数(I)

(阪大理) 福島昭三、久米三四郎、岡村日出夫、音在清輝、坂本浩、吉沢康和、(大阪学研) 林 智

活性化法による核反応の研究の一環として中重核とα粒子との反応をとりあげ、その一つとして(Ag+α)反応を対象に、その励起函数を測定した。(Ag+α)反応についてはこれまでも二、三の研究が行われているが、われわれは励起函数がまだ求められていない反応についてのデータを得ること、およびすでに研究されている反応については、α粒子のエネルギー領域をひろげること、断面積の値の精度を向上させることに主な目的を置いて実験した。断面積の決定には壊変図式の正確な知識が必要なので、壊変図式研究グループと協力して実験を行つた。とりあげた反応を次表に示す。

ターゲット \ 反応核	(α, n)	(α, 2n)	(α, 3n)	(α, p n)	(α, α' n)	(α, α' 2n)	(α, 2p)
¹⁰⁷ Ag	¹¹⁰ In, ^{110m} In	¹⁰⁹ In	¹⁰⁸ In, ^{108m} In	¹⁰⁹ Cd	¹⁰⁶ Ag (2α)	¹⁰⁵ Ag	—
¹⁰⁹ Ag	—	¹¹¹ In	¹¹⁰ In, ^{110m} In	—	—	—	¹¹¹ Ag

この報告では衝撃の条件と化学分離法について述べ、放射能測定および結果については報告(II)で述べることにする。

衝撃用のターゲットには7~11 mg/cm²の銀箔をつみかさねて用いた。銀箔はとり扱いに便利なようにアルミニウムのわくに接着剤ではりつけて使用した。衝撃には主として東大原子核研の63インチサイクロトロンを用い、フォーカシングマグネットを経たαビームを使用したターゲットの前方に炭素ブロックのスリットを設け、ビームの巾を約1cm×1cmにした。ファラデーカップでビームを受け積分計で電流を測定した。短寿命の核種では約1000マイクロセコンドで5~30分間、長寿命のものでは約5000マイクロセコンドで3~4時間かゝって活性化した。α粒子の最初のエネルギーは40 MeVと30 MeVの二つを用い、各箔におけるエネルギーは既存の飛程一

エネルギー曲線を用いて求めた。一部の実験には阪大の44インチサイクロトロンを用いた α 粒子のエネルギーは2.3 MeVで、衝撃は外部ターゲットの位置で行い、電流は記録計を用いて記録した。いづれの衝撃においても衝撃電流の時間変化および衝撃中の放射能の減衰を考慮して放射能測定値から断面積を算出した。

後述するように対象の核種のうち必要なものについて化学分離を行った。In, Cd, Agの相互分離が必要であつたが短寿命の ^{109}In (4.3時間)の分離を行うために、まづ水酸化鉄を捕集剤としてアンモニア性でInを他と分離し、ついで塩化物としてAgを、さらに硫化物としてCdをそれぞれ沈澱として分離した。それぞれの操作を2~3回くり返すことによつて次表に示すような分離効率を得ることができた。

目的元素	化学収率 (%)	除 染 係 数		
		In	Cd	Ag
In	99	—	$>1.3 \times 10^3$	$>1.3 \times 10^3$
Cd	97	1.3×10^2	—	1.0×10^3
Ag	99	1.0×10^3	2.5×10^2	—

分離後の沈澱はそれぞれ溶解し、一定量をとつてそのまま又は蒸発乾涸して放射能測定用試料とした。

6.2 (Ag+ α) 反応の励起函数 (II)

(阪大理) 福島昭三、久米三四郎、岡村日出夫、音在清輝、坂本浩、
吉沢康和 (大阪労研) 林 智

前報に述べたターゲット系、 α 粒子の衝撃、化学分離の諸方法に基づいて、以下の如く各放射

性核種の特徴的放射線を測定し、まづ各反応の相対的励起函数を求め、続いて放射能の絶対測定より各反応断面積の絶対値を算出した。

A) 相対的励起函数の測定

1) $^{107}\text{Ag}(\alpha, n)^{110}\text{In}$, $^{109}\text{Ag}(\alpha, 3n)^{110}\text{In}$, $^{107}\text{Ag}(\alpha, 3n)^{108}\text{In}$
衝撃した銀箔を枠のまま、 ^{110}In (66 min) の 2.3 Mev β^+ および ^{108}In (40 min) の 3.5 Mev β^+ を GM 計数管で測定した。 ^{110}In の 1.5 Mev β^+ 、 ^{108}In の 1.4 Mev β^+ は適当な Al 吸収板で吸収分離、多くの核からの γ 線は非吸収成分として差引いた。また壊変曲線を解析して ^{110}In 、 ^{108}In のそれぞれを分離測定した。

2) $^{107}\text{Ag}(\alpha, n)^{110\text{m}}\text{In}$, $^{109}\text{Ag}(\alpha, 3n)^{110}\text{In}$, $^{107}\text{Ag}(\alpha, 3n)^{108\text{m}}\text{In}$
0.88 Mev 附近には他の ($\text{Ag} + \alpha$) 反応の生成核種からの強い γ 線は認められないので、 $^{110\text{m}}\text{In}$ (4.9 h) の 0.88 Mev γ および $^{108\text{m}}\text{In}$ (55 min) の 0.89 Mev γ をシンチレーション分光測定を行い、壊変曲線を解析して $^{108\text{m}}\text{In}$ 、 $^{110\text{m}}\text{In}$ を分離測定出来た。化学分離も不要であった。

3) $^{109}\text{Ag}(\alpha, 2n)^{111}\text{In}$ ターゲットより In を化学分離し、3日を経た後、 ^{111}In (28d) の 0.17 Mev および 0.24 Mev γ をシンチレーション分光測定を行えば妨害は何もなかった。

4) $^{107}\text{Ag}(\alpha, 2n)^{109}\text{In} \rightarrow ^{109}\text{Cd}$ In を化学分離し、約2ヶ月後では他のすべての放射能は消滅して ^{109}Cd (470d) だけが残っているので井戸型シンチレーション計数管で測定した。ただし生成核の一部は化学分離の時期以前に ^{109}Cd となり Cd 部分に入るのでこれを補正する。

5) $^{107}\text{Ag}(\alpha, pn)^{109}\text{Cd}$ Cd を化学分離し、暫時放置すれば ^{109}Cd 以外の放射能は存在しないので井戸型シンチレーション計数管で測定する。前記 $^{107}\text{Ag}(\alpha, 2n)$ 反応の生成核も含まれるからこの分を補正する。

6) $^{107}\text{Ag}(\alpha, \alpha' n)^{106}\text{Ag}$ (8.2d)、 $^{107}\text{Ag}(\alpha, \alpha' 2n)^{105}\text{Ag}$ Ag を化学分離して数日を経れば Ag の γ 放射体はこの二つだけなので γ 線シンチレーションスペクトルをとり、1 Mev 以上の E_{γ} の γ 線は ^{106}Ag のものと見做し、この分の Compton peak を適当に推定した後、0.3 Mev 附近の特徴的 Peak を以て ^{105}Ag の量を定めた。ただし壊変図式が未

だ不明確なので測定値も正確は期し難い。

B) 核反応断面積の絶対値の測定

1) ^{110}In , $^{110\text{m}}\text{In}$, ^{108}In , $^{108\text{m}}\text{In}$ の絶対測定

$E_{\alpha} \sim 14\text{Mev}$ 附近の (α , n) 領域で衝撃した銀箔を β スペクトロメーターに入れ 0.66Mev γ の変換電子の壊変曲線を求め解析して $^{110}\text{In}/^{110\text{m}}\text{In}$ の存在比が得られた。別に同様の試料をとつて $0.94-0.88\text{Mev}$ γ の同時計数より $^{110\text{m}}\text{In}$ の絶対値が得られ、これより ^{110}In の絶対値も算出した。

また $E_{\alpha} \sim 40\text{Mev}$ の (α , 3n) 領域で衝撃した銀箔の β スペクトルを測定し、これを解析してこのターゲット中の $^{108}\text{In}/^{108\text{m}}\text{In}/^{110}\text{In}$ の存在比を決定し、これより ^{108}In , $^{108\text{m}}\text{In}$ の絶対値を算出した。

以上の結果を総合して $^{107}\text{Ag}(\alpha, \text{in})$ ^{110}In , $^{110\text{m}}\text{In}$; $^{107}\text{Ag}(\alpha, 3\text{n})$ ^{108}In , $^{108\text{m}}\text{In}$; $^{109}\text{Ag}(\alpha, 3\text{n})$ ^{110}In , $^{110\text{m}}\text{In}$ 反応断面積の絶対値を算出した。

2) ^{109}Cd の絶対測定

^{109}Cd は 0.088Mev の定立体角法により絶対測定を行つたが、 $^{107}\text{Ag}(\alpha, \text{pn})$, ($\alpha, 2\text{n}$) 反応で生成した ^{109}Cd は微量であつたので、別に $^{109}\text{Ag}(\text{d}, 2\text{n})$ ^{109}Cd 反応により製造した大量の標準 ^{109}Cd について絶対測定を行い、これと微量 ^{109}Cd との比を井戸型シンチレーション計数管により定めた。これにより $^{107}\text{Ag}(\alpha, 2\text{n})$ ^{109}In ; $^{107}\text{Ag}(\alpha, \text{pn})$ ^{109}Cd 反応の断面積を算出した。

3) 其他 以上の他 GM 計数管による測定から ^{105}Ag , $^{106}\text{Ag}(8.2\text{d})$ ^{111}Ag の生成量の概略値を求め、 $^{107}\text{Ag}(\alpha, \alpha' \text{n})$ $^{106}\text{Ag}(8.2\text{d})$ $^{107}\text{Ag}(\alpha, \alpha' 2\text{n})$ ^{105}Ag , $^{109}\text{Ag}(\alpha, 2\text{p})$ ^{111}Ag の各反応断面積の概略値を推定した。

結論 以上の実験より $^{107}\text{Ag}(\alpha, \text{n})$ ^{110}In , $^{110\text{m}}\text{In}$; $^{107}\text{Ag}(\alpha, 2\text{n})$ ^{109}In , $^{107}\text{Ag}(\alpha, \text{pn})$ ^{109}Cd ; $^{107}\text{Ag}(\alpha, 3\text{n})$ ^{108}In , $^{108\text{m}}\text{In}$; $^{109}\text{Ag}(\alpha, 2\text{n})$ ^{111}In ; $^{109}\text{Ag}(\alpha, 3\text{n})$ ^{110}In , ^{110}In 反応の励起函数を $E_{\alpha} 0-40\text{Mev}$ の範囲で絶対測定した。また $^{107}\text{Ag}(\alpha, \alpha' \text{n})$ ^{106}Ag ; $^{107}\text{Ag}(\alpha, \alpha' 2\text{n})$ ^{105}Ag ; $^{107}\text{Ag}(\alpha, 2\text{p})$ ^{111}Ag 反応断面積についても若干の知見を得た。

また各種測定法の精度、および得られた励起函数について二三の考察を行つた。

$^{115}\text{In}(\alpha, p_n)^{117m}\text{Sn}$ 反応の励起函数と無担体 ^{117m}Sn の製造

(阪大理) 福島昭三、久米三四郎、岡村日出夫、音在清輝、坂本浩、吉沢
康和、(大阪労研) 林 智、(阪市大理) 国府雄次郎

變換図式の研究のために無担保 ^{117m}Sn を製造することが必要となつた。これまで無担体 ^{117m}Sn は $^{116}\text{Cd}(\alpha, n)^{117m}\text{Sn}$ 反応によつて製造されていた。ところが $(\text{Cd}+\alpha)$ 反応では同時に Sn の他に RI (^{115}Sn 、 ^{119m}Sn など) も生成され、放射化学的に純な ^{117m}Sn を得ることはむづかしい。われわれは ^{117m}Sn を生成核種とするいくつかの反応を検討した結果、 $(\text{In}+\alpha)$ 反応においては、 α 粒子のエネルギーが 40 Mev 程度では、 $^{115}\text{In}(\alpha, p_n)^{117m}\text{Sn}$ 反応によつて生じる ^{117m}Sn 以外には Sn の RI は生成されないだろうということを見出した。しかし、 (α, p_n) 型の反応についてはほとんど核反応断面積が測定されていないので、上記の (α, p_n) 反応について励起函数を求め核反応収率を検討することにした。一方この反応によつて ^{117m}Sn を製造するためのターゲットや化学分離法についても研究した。

(1) 励起函数の測定 励起函数を求める実験では、ターゲットとして、厚さ約 25 mg/cm^2 の銀箔上にシアン化物溶液から In を約 0 mg/cm^2 の厚さに電鍍した箔をつみ重ねて使用した。衝撃には東大原子核研の 63 インチサイクロトロンで加速した 40 Mev のエネルギーの α 粒子を用いた。ビーム電流は積分計で測定したが、約 3 時間かゝつて 1,000 マイクロクーロン程度で活性化した。各箔における α 粒子のエネルギーは銀についての飛程—エネルギー曲線を用いて求めた。活性化された箔を 18 規定熱硫酸にとかし、Sn と Cd の担体を加えた後、まづアンモニア性で Ag、Cd から In と Sn を分離、ついで 0.5 規定塩酸性で硫化水素を通じ In、Cd から Sn を分離した。得られた硫化物を塩酸にとかした後、一定量をとつて井戸型 NaI 結晶中で放射能を測定し、反応断面積を求めた。得られた励起函数は 33 Mev 附近で最大値 130 mb を与えている。励起函数と飛程—エネルギー曲線とを用いて厚いターゲットの核反応収率を算出した。

(2) 無担体 ^{117m}Sn の製造 ^{117m}Sn 製造用のターゲットには、銀板上に In 金属を厚さ約 1 mm に接着したのを用い、これを水冷した銅ブロック上に“インジウムづけ”して衝撃した。衝撃には阪大の 44 インチサイクロトロンを用い、外部ターゲットの位置で 23 Mev のエネル

ギーの α 粒子で活性化した。2~4 μ Aのビーム電流で衝撃したが、ターゲットには少くとも外見上は何らの変化も見られなかつた。活性化されたターゲットはSbの放射能の減衰を待つために2, 3日放置した後、銀板とともにとりはずし、塩酸でIn部分だけを溶かす。アンモニアを用い水酸化インジウムを捕集剤としてSnを共沈させた後、0.5規定塩酸性で硫化水素を用い、硫化銅を捕集剤としてInから分離、さらにアニオン交換樹脂—塩酸系でCuから分離し、硝酸で溶離して無担体 ^{117m}Sn を得た。上記の操作でとくにSnのラジオコロイドの生成を防ぐことに留意した。製品のガンマースペクトルは予期通り放射化学的に純な ^{117m}Sn が得られたことを示している。核反応収率については目下検討中である。

6.4. オスミウムおよびレニウムの放射性核種について

(東大理) 斎藤信房、横山祐之、佐野博敏、馬淵久夫、富田功、松島巖

レニウム、オスミウムおよびイリジウム元素の放射性核種のうち、性質のよく知られていないもの(または未知のもの)を研究することを目的として実験を行った。

このため、東京大学原子核研究所の160cmサイクロトロンを用いてレニウム・ターゲットに α 粒子を衝撃し、生成核種の分離、測定を行った。一方、JRR-1原子炉により、レニウム、およびオスミウムを中性子照射して生成核種の分離測定を行った。

1 ターゲットの製法 市販の金属レニウムは分光分析の結果、Si、Mg、Al、Ca、Cu、Tiなどの不純物を含んでいるので、つぎの方法で精製した。

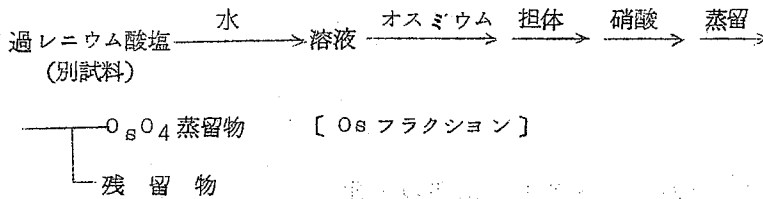
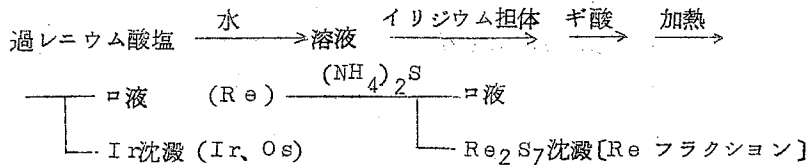
過酸化水素水(30%)で溶解したのち、塩酸性から硫化水素による沈澱を3回くりかえす。最後の硫化物沈澱はアンモニア水と過酸化水素で溶解後、蒸発乾固、水で抽出、抽出部分にアンモニアガスを吹込んでから蒸発乾固し、過レニウム酸アンモニウムとする。金属レニウムとする場合は、電気炉を用い、水素気流中で過レニウム酸アンモニウムを約1000~1050°Cにおいて還元して金属粉末を得る。

サイクロトロンターゲットは1回の照射に金属レニウム約30mg、または過レニウム酸カリウム

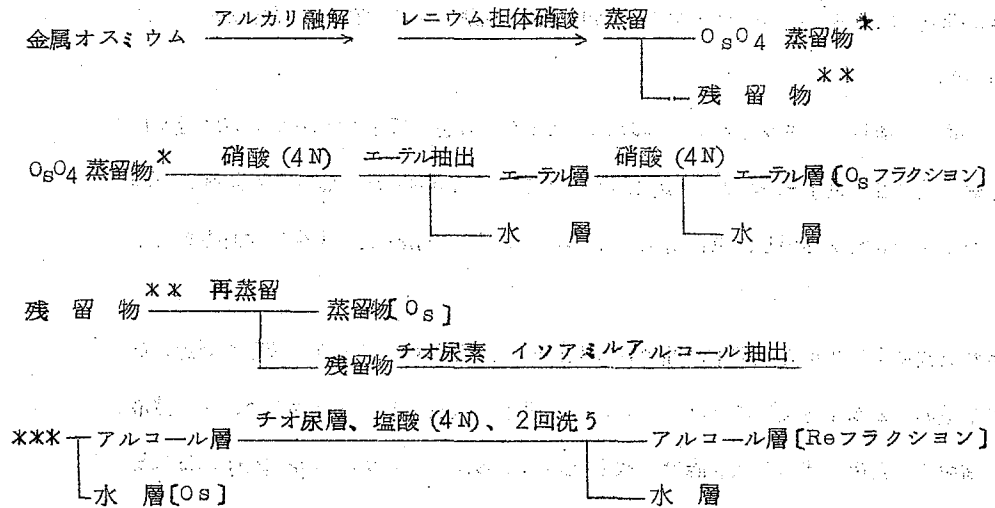
(またはアンモニウム) 約100 mgを用いた。これらの粉末を30×30×0.1mmの高純度のアルミニウム板上に拡げ、上を厚さ約7μmのアルミニウムはくでおおつてターゲットとした。

原子炉のターゲットは、過レニウム酸アンモニウム100 mgおよび金属オスミウム粉末150 mgを別々にポリエチレン容器中に封入して作成した。(金属オスミウムは市販品を用いた)

2 化学分離法 サイクロトロンターゲットは照射後、つぎの方法で分離を行った。



原子炉ターゲットは照射後、つぎの方法で分離を行った。



3 実験結果 サイクロトロンにより、37—43MeV のアルファ粒子で過レニウム酸カリウムを衝撃した場合、オスミウムフラクションに半減期約28分の核種の存在を認めた。

一方、原子炉で中性子照射した金属オスミウムについては、どのフラクションにもこの半減

期の核種を認めなかつた。Seaborg の同位体表には、これに相当するオスミウムの同位体はまだ記載されていないが、半減期28分の核種が、オスミウムの同位体であるか否かについてはまだ疑問の余地があり、今後の検討を要する。

また、サイクロトロンによる実験では、半減期約1時間の核種の存在が認められたが、これは Seaborg 表に ${}^m\text{Re}$ として記載されているものと考えられる。この核種も原子炉で中性子照射した過レニウム酸アンモニウムターゲットには検出されなかつた。

65. フェニル砒酸塩による ${}^{76}\text{As}$ のホットアトム化学の研究

(東北大金研) 鈴木 進、斎藤 節、○井上 泰

目的 フェニル砒酸塩による ${}^{76}\text{As}$ のホットアトム効果並びに反跳原子の存在状態等を研究する目的で実験を行つた。

実験方法 稀塩酸に不溶性であるフェニル砒酸のZr 錯塩を試料としてポリエチレン袋に封入し JRR-1 原子炉 (熱中性子束 $1\sim 2\times 10^{11}$ $\text{n/cm}^2/\text{sec}$) 中で2時間照射した。照射した試料は0.6N 一塩酸で10~20分間振盪抽出し、東洋濾紙No. 5A で濾過して濾液及び沈澱の放射能を測定した。

結果 照射された試料10mgから塩酸中に抽出された放射能は約 $1\mu\text{C}$ でその半減期を測定した結果 ${}^{76}\text{As}$ の半減期 (26.4時間) にほぼ一致した。又砒素を硫酸ヒドラジン存在下、塩酸溶液から完全に蒸溜除去した後に残つた放射能は全放射能の0.3%程度であり放射化学的にほぼ純粋なものと考えられる。更に濾液中に溶存する砒素をモリブデン青法によつて比色定量した結果 1.5×10^{-6} C/g の比放射能を有することが分つた。次に抽出された砒素の酸化状態を知るため
1) 塩酸酸性中における揮発法 2) ペーパークロマトグラフ法 3) イオン交換樹脂法 等を用いて研究した結果抽出しれた瞬間には90%以上3価の状態に溶存するが、2日以上放置した

場合5価に酸化されることが分つた。又Retentionは例へば照射11時間後には約10%であつたが、照射後抽出される迄の放置時間が増すに従つてほぼ指数函数的に増大する。

6.6. ヒ酸塩の中性子照射においてイオン交換樹脂相に保持されるAs-76 について

(東大理・理研) ○佐野博敏・富田 功・斎藤信房

さきにわれわれの研究室において、ヒ素、臭素、ヨウ素などの酸素酸塩を陰イオン交換樹脂に吸着させたものを中性子照射した場合、 (n, γ) 反応で生じたAs-76、Br-82、I-128などが強固に樹脂相に保持され、溶離困難でありしかもホットアトム効果によつて濃縮されていることが知られている。¹⁻³ ハロゲン元素の場合は、ハロゲンのホットアトムが炭化水素溶媒中での行動との類推によつて、樹脂相内にできている有機ラジカルと結合するものとして理解されるが、ヒ素の場合にはとくに水溶液などの状態ではAs-Cの結合の安定性から考えてハロゲンの場合と同様な解釈は困難となる。われわれはこの問題を解明するためにつぎのような実験をおこなつた。

三塩化ヒ素およびそれを無水エタノール、含水エタノール、石油エーテル、あるいは6N塩酸に溶かしたもの、およびヒ酸の水溶液、アンモニア性溶液、酒石酸をふくむ水溶液、あるいは酒石酸アンモニウムをふくむ水溶液各30mℓをつくり、これにアブデルヘルデン乾燥器でできるだけ脱水した陰イオンまたは陽イオン交換樹脂(Dowex 1もしくはDowex 50WDX-8, 100-200mesh) 3gを混合し、これを試料として中性子照射をする。中性子源は理研サイクロトロンを用い、Be-D反応で得られた中性子(流束約 10^7 neutrons/cm² Sec, 最大エネルギー約7 Mev)で減速剤をとくに置かず2~3時間照射した。照射後0.8×10cmのカラムに樹脂を入れ溶液の部分そのまま通して、さらにエタノール50mℓを通じ、ついで8N塩

酸、1.5 N 塩酸、および水の順に各50 mlずつ通す、三塩化ヒ素を用いないものではエタノールの使用ははぶいた。溶出部と樹脂相の γ 放射能は井戸型の γ 線用シンチレーションカウンタを用いて測定され、各部分とも減衰を追跡してAs-76の放射能であることをたしかめた(塩素、イオウから生ずるP-32などの β 線に由来する制動放射の寄与はみられなかつた)。この測定値から全放射能に対する樹脂相残留放射能の割合をもとめて相互に比較検討した。

その結果、樹脂相に残留するAs-76の量は無水のものよりも水分をふくむ媒体内において多くなり、また陽イオン交換樹脂についてもごくわずかながら残留するAs-76をみとめるが陰イオン交換樹脂に残る方がはるかに多いことがわかつた。さらに溶液がアンモニア性となつた方が残留する量が減り、また酒石酸アンモニウム溶液ではいちじるしく残留する量が減少する。樹脂相に残るAs-76の濃縮率は 10^3 以上と推定され、またAs-74をトレーサーとしてしらべた結果によると、上記条件による照射では溶離操作後樹脂相に残るヒ素(As-75とAs-74)の量は、照射しない場合に比べて数倍程度にしか増加しないことがわかつた。これらのことから考えあわせると、樹脂相に残るヒ素は、ホットアトム効果(周囲の水の分解など)によつてAs-76は一部ヒ素と重合し、その結果生じた陰イオンが不可逆的に樹脂に吸着されたものと推測される。

1) 斎藤、古川、富田、J. Chem Phys., 27, 1432 (1957)

2) 斎藤、富田、古川、第11回日化年会講演(1958)

3) 斎藤、佐野、塩見、第2回放射化学討論会講演(1958)

67. 酸素酸塩の中性子照射において、塩類の結晶水および陽イオンが“Retention”値に及ぼす影響について（第1報）と酸塩について。

（東大理・埋研）齋藤信房・○富田 功

固体結晶の中性子照射の際の Szilard-Chalmers 反応において、ターゲット物質のおかれている状態が Retention 値にどのような影響を及ぼすかについて、演者らはさきにと酸一水素ナトリウム七水化物の結晶の中性子照射をおこない、照射中および照射後の温度の影響を検討した。今回はターゲットになる結晶自身の状態が Retention 値に影響するか否かを若干検討した結果を報告する。前回はナトリウム塩のみを取扱ったが、結晶中の陽イオンの質量あるいはその化学的性質の相異が反跳原子の Retention に相異をもたらすことが考えられるので、ナトリウム塩のほかリチウム塩、アンモニウム塩、カリウム塩、ルビジウム塩、セシウム塩、バリウム塩、コバルト塩などを調製して、前記ナトリウム塩の場合と同一条件で室温で中性子照射をおこなった。この場合、いろいろな結晶についていろいろな数の結晶水を取り得るので、無水物が安定な場合には無水物を照射したが、そうでないものでは結晶水がいたまままで実験した。したがって多くの場合陽イオンのみの効果あるいは結晶水のみの影響を個別に観察することは困難で、この両者の総合的な影響が得られた Retention 値にあらわれてくる。

中性子照射は理研サイクロトロンにより、Be-D 反応で生成する中性子をパラフィン減速して用いた。照射物質は照射後1時間室温に放置してから、Ⅲ価のヒ素を担体として含む溶液の一定量に溶解し、マグネシア混液およびアンモニア水を加えてⅤ価のヒ素を沈澱させる。Ⅱ価後さらに hold-back carrier を加えて再沈をおこなう。Ⅱ液のⅢ価ヒ素は過酸化水素水を加えて酸化後、マグネシア混液で沈澱させる。各沈澱は塩酸に溶解して一定容として液浸型 GM 計数管で放射能測定をおこなった。得られた計数値から Retention 値を求める。いくつかの試料については照射後結晶の状態での放置時間の影響をしらべた。更に二三の場合については、低温で照射、保存したときの影響をも観察した。

各種ヒ素塩について求められた Retention 値をしらべると、各結晶について固有の値を示し、陽イオンが同じでも結晶が異なれば（一分子中にふくまれる陽イオンの数や結晶

水の数が異なる場合など) Retention 値は有意の差を示すようである。また現在までに得られたデータからは大凡の傾向として結晶水が多いと Retention 値は一般に低い(例外として $\text{Na}_2 \text{HAsO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$) ように見受けられる。とくに同じ化合物の水化物と無水化物とでは、水化物の方が常に低い Retention 値をもつようである。陽イオンの影響については、その質量の大小のほか結晶の化学的性質なども影響すると思われるので、単に衝突による反跳エネルギーの損失の度合などからは解釈できないような結果になる。この点、なお大いに検討を要すると思われる。

また以上は照射後1時間経つてから溶解したものについての比較であるが、各塩とも数時間ないし二十時間内外放置すると Retention 値は増加しているのが認められ、これは先に報告したナトリウム塩の場合に限らないことがわかる。またリチウム塩その他を低温で照射した場合には室温におけるより低い Retention 値を示し、これもナトリウム塩の場合と同じ傾向を示している。なお、先に報告したナトリウム塩 ($\text{Na}_2 \text{HAsO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$) の Retention 値 (65%) は、多くの結晶水をもつている塩としては例外的に高いものであつて、またリチウム、アンモニウム、カリウム或いはその他のナリウム塩など比較的軽い陽イオンを含む結晶の Retention 値 (40~55) と較べても高いことは注目される。

68. コバルト錯塩における臭素のホットアトム化学

(東大理・埋研) 斎藤信房・佐野博敏 ○富永 健

錯塩の配位子におけるホットアトム効果は従来殆んど研究されていない。筆者らは臭素を配位子又は陰イオンとして含む種々のコバルトアンミン錯塩を中性子照射し (n, γ) 反応で生成する $^{80\text{m}}\text{Br}$ 及び ^{82}Br の“配位子収率”と錯塩の配位子の種類との関係を検討することによつてホットアトムの反応の機構を明らかにすることを目的とする。既に結果は一部発表した。

が¹⁾その後新たに得られた知見と併せてここに報告する。

1. $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Br}]\text{X}_2$ (I); $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Y}]\text{Br}_{2,3}$ (II); $[\text{Co}(\text{en})_2\text{Y}_2]\text{Br}_{1,3}$ (III); などの錯塩の結晶粉末をパラフィン容器中で理研サイクロトロンの中性子 (Be-D 反応) の中性子束 $\sim 10^7 \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$) によつて 2-3 時間室温で照射する。照射終了後試料を水溶液とし陽イオン交換樹脂 Dowex 50WX-8 (100-200メッシュ、RH 形又は RK 形) のカラムに通し錯陽イオンを吸着分離すれば放射性臭素の大部分は陰イオンのフラクションに抽出される。樹脂上の錯陽イオンと共に残留する放射性臭素は、(I) の錯塩の配位子に生成した放射性臭素の中、結合を切らずに残留したか又は結合を切つた後再結合あるいは他の配位子を置換した部分、又は (III)、(IV) の錯塩で陰イオンの臭素から生じたホットアトムが錯イオンの配位子を置換した部分で、いずれも配位子として結合しているものと推定される。(この部分の全放射性臭素に対する比率を配位子収率とよぶ) 配位子の放射性臭素は錯イオンを水と加熱還流すればアロ化によつてほとんど完全に抽出される。臭素イオンは容量分析法又は比色法により定量し濃縮率及び比放射能を求めた。

2. (I) の錯塩で X (陰イオン) を $\text{I}, \text{NO}_3, \frac{1}{2}\text{C}_2\text{O}_4, \text{O}^1$ と変えても配位子収率には著しい差はない。放射性臭素の 80% 以上は 10^2 程度の濃縮率で陰イオンとして抽出される。X=Br の場合、即ち $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Br}]\text{Br}_2$ ではホットアトム効果による配位子中の放射性臭素の脱離と陰イオン中の放射性臭素の配位子への移行とが同時におけると推定されるがこれも他の場合と配位子収率に著しい差はない。 $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Br}]^{2+}$ を陽イオン交換樹脂に吸着して照射した場合は配位子収率は固体錯塩より低く、又相当量の放射能が樹脂中に残留して容易に抽出されない。水溶液中で (X= NO_3) 照射した場合は配位子収率は殆ど 0 になる。

3. $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Y}]\text{Br}_{2,3}$ 形の錯塩 (Y= $\text{NH}_3, \text{NCS}, \text{F}, \text{NO}_2, \text{OH}_2, \text{ONO}, \text{ONO}_2, \text{Cl}, \text{I}, \text{Br}$) では陰イオンの放射性臭素がホットアトム効果によつて配位子を置換し濃縮されることが認められた。Y を変えると配位子収率は上記の順に増大する。配位子中の放射性臭素の濃縮率は $\times 10^2 \sim 10^3$ の程度である。尚この形の錯塩の配位子が放射性臭素 Br^* で置換されるとき、 NH_3 の置換では $[\text{Co}(\text{NH}_3)_4\text{YBr}^*]^{2+}$, Y の置換では $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Br}^*]^{2+}$ が生成する。従つて配位子収率はこれらの和に相当するが、両者の Br のアロ化速度の著しい差を利用し適当な温度で適当な時間水溶液として放置した後樹脂で分離すれば前者の影響を除外し $[\text{Co}(\text{N}$

$H_2O_5Br^{*2+}$ の形の配位子収率、即ちYが置換される効果のみを求めることができる。

4. $[Co(en)_2Y_2]Br_{1,3}$ 形の錯塩 ($Y_2=en, 2NH_3, 2NCS, 2Cl, 2Br$)においても陰イオンの放射性臭素が配位に濃縮され配位子収率はYを変えると上記の順で増加する。 $Y_2=en$, 即ち $[Co(en)_3]Br_3$ では配位子収率はほぼ0で殆んど置換反応はおこらない。 $Y_2=2NCS$ 及び $2Cl$ についてはそれぞれシス型とトランス型の配位子収率を比較したが著しい差はみとめられなかつた。

5. (II), (III)の錯塩で配位子収率に対するYの影響を検討すれば臭素のホットアトム効果の機構が推定される。Yの供与体原子、及び臭素原子の質量をそれぞれ M, M' とすれば、臭素のホットアトムが供与体原子に衝突する時のエネルギーの最大損失(移行)率は $\nu=4MM'/(M+M')^2$ である。上の場合Yの ν 値が増大すると配位子収率もほぼ増加する傾向がみとめられた。このように配位子Yがホットアトムで置換される効率が ν の値に依存することから考えるとこの場合には力学的な衝突の効果が重要な役割をもつものと思われる。

文献 1) 斎藤・佐野・富永、錯塩化学討論会(昭和33年)および日本化学会第12年会(昭和34年)講演

69. アンミン錯塩のホットアトム化学(第3報)クロロペンタアンミンコバルト(III)塩化物の放射合成について

(東教育大・理)○池田長生 (原研)吉原賢二 (東教育大・理)山岸滋

原子核反応にともなう化学的効果を利用した放射合成(radiosynthesis)は、近年有機のラベルつき化合物の合成に応用されているが、この方法を無機化合物の分野に適用できるかどうかは興味ある問題である。演者らはヘキサアンミンコバルト(III)塩化物 $[Co(NH_3)_6]Cl_3$ をターゲットとし、これに熱中性子を照射したところ、生成した ^{38}Cl の約7%がクロロペンタアン

ミンコバルト⁶⁰塩化物 $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5^{38}\text{Cl}]\text{Cl}_2$ の形になっていることがわかった。

クロロペンタアンミン錯塩の生成を確認するには、これをターゲットのヘキサアンミン錯塩から純粋に分離することが必要である。クロロペンタアンミン錯塩の分離および定量にはつきのような方法を用いた。すなわち、中性子照射を行なったヘキサアンミン錯塩を一定量 (50 ㎍前後) の担体のクロロペンタアンミン錯塩を含む一定量の水に溶解する。そのうち 5 ml をとって ^{38}Cl の放射能を測定する。これより容易に生成した全放射能値を求めることができる。残りの溶液に塩酸を加え、酸性度を 1.5 N にして、かきまぜながらクロロペンタアンミン錯塩を析出させる。遠心分離後、沈澱を 1.5 N 塩酸で洗浄する。沈澱を水に溶解し、なお混入しているおそれのある Cl^- の形の ^{38}Cl を除去するために、Amberlite IRA-400 (RNO_3 形、100~200 メッシュ、1 cmφ × 7 cm) の樹脂柱に通す。通過液の一部をとり、その放射能と、クロロペンタアンミン錯塩の量とを測定して比放射能を求め、逆希釈法の原理で、生成した放射性クロロペンタアンミン錯塩の放射化学的収率を求めた。なおこの操作の過程における Cl^- と $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Cl}^{24}]$ との間の塩素の交換反応は別に ^{38}Cl をトレーサーとして検討したところ、非常に僅かで、無視できる量であることがわかった。

中性子源としては理研サイクロトロンと原研 JRR-1 を使用し、放射能の測定には Baird-Atomics 社製シンチレーション線スペクトロメーターを用いた。

このようにして得られた結果を表 1 および表 2 に示す。

表 1 理研サイクロトロンによる場合

	照射時間 (hr)	重陽子電流 ($\mu\text{A}\cdot\text{hr}$)	$[\text{Co}(\text{NH}_3)_5^{38}\text{Cl}]\text{Cl}_2$ の放射化学収率 (%)
I	1	7	6.5
II	2	12	6.2

表 2 JRR-1 による場合

	照射時間 (min)	$[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Cl}^{24}]$ の放射化学収率 (%)
I	3	6.7
II	5	7.3

	照射時間 (min)	$[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Cl}]^*\text{Cl}_2$ の放射化学収率(%)
	7	7.1
IV	10	7.3
V	15	7.2
VI	20	5.9

これらの結果から、クロロペンタアンミン錯塩の放射化学収率は、中性子線束密度や照射時間にはほぼ無関係に、7%前後となつている。これは反跳エネルギーを付与された ^{38}Cl が結晶中において、ほぼ一定の確率でアンミングループに衝突し、これと置換することを示唆している。このような機構について一考察をこころみた。

なお ^{60}Co の放射能に着目した場合、ヘキサアンミンコバルト錯塩化合物に中性子を照射するとき、生成する ^{60}Co の数が $[\text{Co}^*(\text{NH}_3)_5\text{Cl}]^{2+}$ の化学形であることが示された。これについては後報する予定である。

70. 高比放射能のラジオアイソトープの製造に関する研究(第3報) 8— ハイドロキシキノリンの金属錯塩のホットアトム効果について(その2)

(原子力研) ○海老原 寛・吉原賢二

目的

前報にひきつづき高比放射能のラジオアイソトープを製造する目的で8-Hydroxyquinoline (Oxine と略す) の金属錯塩のホットアトム効果について研究した。
 今回はマンガン、タングステン及びカルシウムについて行つた実験の結果について報告する。

方法

結晶水を除去したオキシンの金属錯塩に原子炉中で中性子照射をし、それを有機溶媒に溶解して、マンガンとタングステンの場合は種々のPHのMichaelis氏緩衝溶液と振とうして兩層を分離し、放射能から抽出率(%)を出し、また抽出した部分については半減期とγ線スペクトルを調べ、同時に比色定量法によつて抽出された金属イオンの全量を出して濃縮係数を算出した。カルシウムの場合は約1ヶ月の中性子照射を行つたにも拘らず生成する放射能が非常に少なく、またカルシウムのオキシン塩を良く溶かす溶媒がみ当らず、アニリンに溶かして緩衝溶液と振とうして兩層を分離して液浸型のGM計数管で測定する方法は計数値が少なく確実な結果を得ることは不可能であつた。そこでイオン交換法による分離を試みることにした。まず照射したカルシウムオキシン塩をn-butylamineに溶かしたものをH型の陽イオン交換樹脂に通し、流出するn-butylamine及び後に塩酸で溶離したカルシウムのフラクションの兩層からリン酸カルシウムとしてカルシウムを捕集してGM計数管で測つて結果を出した。

結果
[⁵⁶Mn] マンガンのホットアトム分離の例としては、ターゲットとして無機マンガン化合物(例えば酸化マンガン、過マンガン酸塩、炭酸マンガン等)を用いたものは数多く報告されているが、有機マンガン化合物を用いた報告は少ないように思われる。

マンガンのオキシン塩は分析化学の知識によれば、 $p_{\text{H}}8 \sim 9$ で定量的に有機層に抽出されてくる。従つてホットアトム分離もこの範囲で期待できる。実験によればこの範囲では抽出率は約10%、また過マンガン酸イオンの比色による定量値から濃縮係数を計算すると約 10^3 の値を得ることができた。

[¹⁸⁵W + ¹⁸⁷W] タングステンのホットアトム分離に関しては現在までに報告がない。タングステンのオキシン塩では $p_{\text{H}}3.0 \sim 4.3$ でホットアトム分離が期待できる。実験によればこの範囲での抽出率は30%であつて、またチオン法による比色の定量値から得られる濃縮係数は130~150程度である。ところが p_{H} の値が4.3よりも高い所でも定量値は減少して $p_{\text{H}}7$ で最小となり、この時の濃縮係数は400程度である。尚抽出率の方はほとんど変らない。

[⁴⁵Ca] カルシウムのホットアトム分離は現在までに成功した例は報告されてない。オキシンを用いてカルシウムを分析する場合には比較的少量のカルシウムに関して重量分析をした例については報告があるが、微量のカルシウムをオキシンで抽出して分析することは困難であつて、

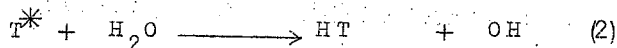
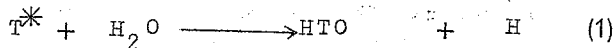
抽出できる pH 範囲などについての報告はみ当たらない。

イオン交換法による分離の結果、抽出率は～8%を示した。また、またる N 塩酸で溶離したカルシウムのフラクションをムレキシドによつて直接定量をすることを試みたが、これは検出限界以下であつたので、リン酸カルシウムによる間接定量法によつてその量を測定した。これらの値から濃縮係数を計算すると40～120程度の値を得ることができた。

7.1. 水に対する反跳三重水素の化学反応

(カンサス大学) F.S. ローランド ○ (静岡大学) 神原富尙

${}^6\text{Li} (n, \alpha){}^3\text{H}$ および ${}^3\text{He} (n, p){}^3\text{H}$ による核反応で生じた反跳三重水素原子(T^*)は、それら核反応によるいくらかの反跳エネルギーを保ち乍ら化学反応を行う。それが水と反応する時にはつぎの二つの反応が可能である。



(2) の反応は約0.3 eV の吸熱反応であるから、反跳エネルギーを持たない三重水素原子(T)によつては、この反応は行われ得ない。しかし反跳エネルギーを持つた三重水素原子にとつては、この反応は重要である。

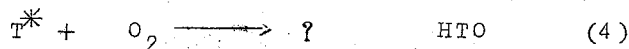
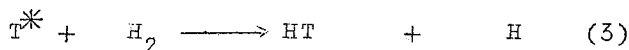
反応(1)と(2)とは双方共行われ得るのであるが、何れが大きな割合を占めるかを検討した。すなわち Li^+ を含む水溶液および He を含む混合ガスを試料として用い、それらを熱中性子照射して生じたHTとHTOとの相対量をしらべた。

試料はつぎの如くにして分析した。試料を Vacuum Line 中で明けて ${}^4\text{He}$ の担体ガスを用いてHTを計数管に導入する一方、HTOは H_2O の担体と共に液態窒素により-196°C に保つてHTから分離した。HTはプロパンガスを加えた比例計数管により計数した。HTOを含む H_2O

は金属亜鉛と共に燃焼管中で燃焼してHTに還元してから、上記同様 Vacuum Line を用い、比例計数管中で計数した。

多種の塩類を含有させた水溶液 ($p_{\text{H}}=1\sim 13$) について、HT/H₂O の値を求めた。その結果、全部にわたってその値は 0.10 ± 0.12 であつた。この比の値は液相に於ての反応(2)と(1)とが行われる割合を示している。なおまたその比の一定であることは、それら反応は溶質の添加によつては左右されないことを示している。

気相系についてそれら反応をしらべた。すなわち、³He ガスを三重水素源として、H₂¹⁸O ガスに対して H₂ ガスあるいは O₂ ガスを共存させた試料等について、その熱中性子照射によつて結果した HT/H₂O の値を求めた。これらの場合に於ては、さらにつぎの二つの反応が起り得る。



これら反応について HT/H₂O の値は(1)と(4)との反応に対する(2)と(3)と反応の起り得るところの割合を示している。これら気体試料について得られた反応速度の比の近似値は、 $k_1/k_2 \sim 20$ 、 $k_1/k_3 \sim 5$ 、 $k_4/k_1 \sim 2$ であつた。 k_1, k_2, k_3, k_4 = 各反応速度常数) なおこれらの比の値は反跳三重水素原子のもつエネルギーによつて変るであろうと推定される。

7.2. 反跳法による核分裂生成物より I-131 の分離、精製

(原子力研) 中井敏夫、矢島聖使、市城純雄 ○半田宗男

茂木照十三

核分裂性物質の粒子の直径を核分裂反跳の飛程以下にしてある媒体と混合して中性子照射を行うと、核分裂生成物の大部分を媒体中に捕獲できるということに着目して反跳法による I-131 の分離を試みた。

媒体として水溶性性物質を用いると照射後混合物を水に溶解し、この水溶液よりスパージングによつてI-131を分離でき、金属ウランをターゲットとした場合のわずらわしいウランの硝酸による溶解を避け、分離後の精製を簡略化し得、残留溶液を分別するのみでウランを回収できるなどの利点がある。

酸化ウランとシユウ酸の混合物（混合比1：10）をペレットとし、JRR-1の実験孔中にて照射後約8日間冷却した後、水に溶解してシユウ酸水溶液中に加熱空気を吹込んで留分を捕集し実験を行つた。スパージングの条件としては、温度、空気の流速、シユウ酸水溶液濃度、時間等が考えられ、これら色々を変化して収率を調べた。収率の決定はスパージング後、スクラッパ中に捕集されたI-131と残留溶液中より常法により抽出したI-131を、256チャンネルガンマ線シンチレーションスペクトロメータでI-131の0.364MeVのエネルギーのスペクトルのピークの高さより定量して定めた。

冷却時間は照射後I-131の同位体、特にI-133の存在比がI-131に比して2%以下になる時間が必要であり計算および実験により8日間以上が必要であることを確認した。

本研究の結果により反跳法によるI-131の製造が可能であり、従来の方法に比較して分離、精製の過程が著るしく簡略化されることがわかつた。

73 有機リン化合物のウラン抽出能に対する有機電子論的考案

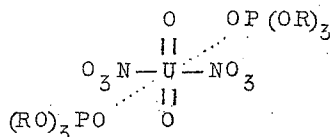
（京大工研）西 朋太・浅野 満

有機リン酸エステルによつて硝酸ウラニルおよび硝酸ナトリウムがよく抽出されることはすでに述べた。^{1), 2)} この時有機電子論的考案からすればリン酸エステルのアルキル基の長さが長くなる程、またノルマルアルキル基よりイソアルキル基の方が抽出能が高くなる事が説明でき

る。またこの仮設を用いれば如何なる有機リン化合物が最もよい抽出能を有するかを推定することができるはずである。

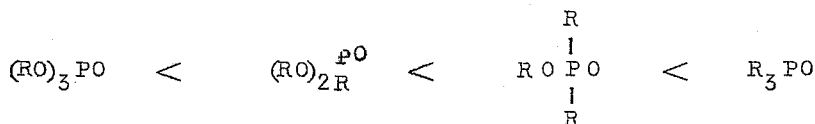
例えば硝酸ウラニルが各種のトリアルキルリン酸エステルによつて抽出される場合を考えると

$UO_2(NO_3)_2 \cdot 2aH_2O + 2(RO)_3PO_{org} \rightleftharpoons UO_2(NO_3)_2 \cdot 2(RO)_3PO_{org}$ なる反応によつて抽出され、その時



なる形によつて抽出されると考えられる。(RO)₃POの共鳴極限構造式は→P=O、→P→O、→P⁺—O⁻と考えられ、ウランカチオンをよく抽出するためには→PO基の—Oの電子密度が高い方がよい。この時アルキル基の立体障害による影響があまり大きくないとすれば、アルキル基は電子供給性であり、アルキル基の長さが長くなる程電子供給性が強くなり、従つて→PO基のOの電子密度が高くなつて高い抽出能を有することになる。またアルキル基が長くなると電子供給性の増加する割合が漸減して行き、アルキル基の短いエステルの方がアルキル基による影響は顕著に現われる筈である。またイソアルキル基の方がノルマルアルキル基より電子供給性が高く高い抽出能を有する。事実プロピルリン酸エステルではイソプロピルエステルの抽出能がノルマルプロピルエステルに較べて著しく高い。¹⁾

アルキルリン酸エステルにおいてはアルキル基の→PO基におよぼす影響が—O—結合を徑て作用するため—O—によつてアルキル基の電子供給性が幾分遮蔽されてしまう。従つてPに直接アルキル基が結合している有機リン化合物の方が高い抽出能を有することになる。このような理論から考えれば



トリアルキル フォスフェート	ジアルキルアルキル フォスフォネート	アルキルジアルキル フォスフィネート	トリアルキル フォスフィンオキサイド
-------------------	-----------------------	-----------------------	-----------------------

の順に抽出能が高くなつて行くと考えられ、さらにアルキル基の影響を考えればノルマルより分岐したアルキルフォスフィンオキサイドがこの種の有機リン化合物としては最も高い抽出能を有すると推定出来る。

トリフェニールリン酸エステルやトリクレジールリン酸エステルでは硝酸ウラニルや硝酸トリウムを抽出することはできない。これはフェニール基が電子受納性であり、Pの電子がフェニール基の方に引張られ、 $\rightarrow P=O$ 基のOの電子密度が下るためであろうと考えられる。この際トリベンジールリン酸エステルではフェニール基の電子受納性が $-CH_2-$ によつて幾分遮蔽され、直接 $\rightarrow P=O$ 結合に影響することはないと考えられるが硝酸ウラニルを抽出することはできなかった。

トリシクロヘキシルリン酸エステルではトリイソプロピルリン酸エステルと同程度かまたはそれ以上の抽出能が期待出来る。

前述の理論の裏付けを得るために各種の有機リン化合物を合成し、硝酸ウラニルに対する抽出能を検討した。

- 1) 西・浅野；第3回原子力シンポジウムVI-4 (1959年)
- 2) 西・浅野；第3回原子力シンポジウムIII-7 (1959年)

