

B 会 場

研 究 発 表 要 旨

1 B 1

〈

3 B 45

日本原子力研究所

○夏目 晴夫、佐藤 忠

^{155}Eu は低エネルギー γ 線放射体で、かつ無担体で調製できるので、 ^{170}Tm に代る有用な放射性同位元素として早くから興味を持たれたが、その製造についての詳細な検討は未だ見当らず、また秀れた製品も市販されていない。

われわれはさきに $\text{Sm}(p, xn)\text{Eu}$ 反応による ^{146}Eu の分離について報告し、 $^{154}\text{Sm}(n, \gamma) \beta^- ^{155}\text{Eu}$ の分離も同様にして可能である附記した。このほどこの ^{155}Eu の分離を行い、満足な結果がえられたので報告する。

照射、溶解 ^{149}Sm の高い中性子吸収断面積 ($5 \times 10^4 \text{b}$) による自己遮蔽と $^{152}\text{Sm}(n, \gamma) ^{153}\text{Sm}$ の無用な副生放射能 (放射化断面積: 150b) をさけるため、試料として濃縮安定同位元素 ^{154}Sm (同位元素濃度: 99.21%) を輸入して使用した。その酸化物 $500 \sim 580 \text{mg}$ をアルミハクで包み、JRR-2 の中性子束 $10^{15} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ で 3~4 サイクル (99~132hr) 照射した。不要の不純物および副生する ^{156}Eu の崩壊後 (3~6ヶ月)、酸化物を NHNO_3 溶解し、残存するアルミハクを洗浄除去して、溶液を蒸発乾固する。つきに 6NHCl 3ml を加えて乾固する操作を 3~4 回くりかえして塩化物に転換する。最後に 6NHCl $2 \sim 3$ 滴、水少量を加え、加熱溶解してから全容約 $20 \sim 30 \text{ml}$ とする。

分離 Daision SK-1, #100-200, NH_4R 型樹脂をつめた、 $18 \text{mm} \phi \times 15 \text{cm}$ および $12 \text{mm} \phi \times 31 \text{cm}$ カラム 2 本を接続する。これに前記試料溶液を通して希土類元素を吸着させる。少量の水で試料を入れたピーカーおよびカラム内壁を洗浄する。溶離液は、あらかじめ用意した原液、 2.5M α ハイドロキシイソラク酸およびそのアンモニウム塩 (NH_4B , pH: 6.97) 溶液から HB $77.5 \text{NH}_4\text{B}$ 22.5 の割合に混合した 0.5M 溶液をつくって用いる。溶離速度は約 60ml/hr 以下に保つ。流出液はポリエチレン管をひいてつくつた導管およびスパイラルを通して受器に導く。スパイラルに接して GM 計数管をおき、対数計数率計に接続する。記録された流出液の放射能を監視しつつ、適当な間隔で流出液滴を試料皿に受け、乾固してから放射能を測定する。試料溶液の通過部分とその後不純物の流出が認められた。後者は ^{156}Eu であるが前者については詳細検討中である。その後 ^{155}Eu の流出開始までは微量の放射能しか認められない。1例では ^{155}Eu は上記の条件で $950 \sim 1650 \text{ml}$ の間に流出し、ピークは 1205ml 、半値巾は 10.8% であつた。

Sm の回収 Eu が完全に流出してからカラムを水洗し、 0.5M クエン酸 (H_3Cit) 40 、クエン酸アンモン [(NH_4) $_2\text{HCit}$] 60 混合液で Sm を溶離する。 Sm は最初の 50ml 程度で完全に溶離される。これを HCl 酸性として飽和 $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4$ を同量加えて一夜放置してえた $\text{Sm}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3$ を口過、洗浄、焼灼して酸化物に転換する。 Sm の回収率は 99% 以上に達する。上澄液には ^{60}Co 、 ^{65}Zn と考えられる不純物が見出された。この後の操作では著しい不純物は全く認め

られなかつた。

濃縮 流出したEu溶液を約100mlずつ分取し、含まれる NH_4B と当量の0.5N HClを加え、2倍にうすめてDiaion SK-1, #100-200, 8mm ϕ \times 20cm, NH_4R 型カラムに通過させる。流出液を濃縮後、放射能を検したが微量しか認められなかつた。主なEuフラクションを処理した後、水洗し、0.25M $\text{H}_2\text{Cit}40$: $(\text{NH}_4)_2\text{HCit}60$ 混合液を5mlずつ流す。流出液を10ml ビーカーにとり、放射能を検査する。通常第2および第3番目のフラクションにEuのほとんど全量が流出する。しかし添加したHCl量の過不足により、第1フラクションに流出したり、あるいははるか後期のフラクションに流出したりすることもある。何れの場合にもフラクション2個、計10ml中にEuは集り、その他のフラクション中のEu量は無視し得る。

最終精製 前の操作でえたEu溶液10mlを濃縮操作に準じて酸性にして2倍にうすめる。4mm ϕ \times 15cmカラムに不純物除去処理をしたDiaion SK-1, #100-200, NH_4R 型樹脂をつめ、注意して精製した4N HClを十分流してHR型とし、水洗後上記の溶液を通してEuを吸着させる。再び水洗し、2N HClを3mlずつ流し、流出液を5mlビーカーに受ける。その放射能を検査し、溶液を蒸発乾固する。流出液中に放射能が明らかに認められるか、または蒸発残渣が望む程度まで減少したならば、溶離液を4N HClに切りかえる。その後の9~15ml中にEuは定量的に流出する。乾固した試料中に含まれる蒸発残渣量を知るためヒヨウ量を試みたが、ガラスビーカーによる吸着水分の変動のため、残渣量はビーカー1個あたり約50 μg 以下であることしか確かめられなかつた。

結果 原試料中に天然のEuを含めば ^{155}Eu 中に 152 , ^{154}Eu が含まれるが、回収した $^{154}\text{Sm}_2\text{O}_3$ をくり返し使用すれば完全に除去できる。最終製品中の他の不純物は直接検出できないので種々の見地から推定しているが、これまでの検討ではその可能性は見出されていない。

参考文献

- 1) 夏目晴夫ほか：第6回放射化学討論会 講演要旨集(1962), p.74
- 2) Eiko TAKEKOSHI et al: J. Phys. Soc. Japan 19, 587 (1964)

東北大理 堀川孝浩・八木益男・佐々木貞吉・林部昭吾

1. ^{96}Nb (23.4時間) および ^{96}Tc (4.3日) の壊変形式を研究するために、それぞれの無担体核種の調製をこなった。

^{96}Nb および ^{96}Tc の生成は ^{96}Zr および ^{96}Mo の (p,n) 反応もそれぞれ利用するのが最適である。しかしこれら核種の生成は、その調製目的から ^{96}Nb の場合は ^{90}Nb (14.7時間) および ^{92}Nb (10.1日), ^{96}Tc の場合は ^{95}Tc (6.0日) 等の同時に生成する核種をできるだけ少なくしなければならぬ。それ故特に存在比 2.8% の ^{96}Zr は濃縮ターゲットを利用しなければならぬし、存在比 16.5% の ^{96}Mo もまたそれを必要とする。

そこで上記二核種の無担体分離は、操作簡易で収率よく、かつ使用濃縮ターゲットの回収も簡易にできる操作とするべきがのぞまれる。

2. 照射 $^{96}\text{ZrO}_2$ および $^{96}\text{MoO}_3$ を内筒ターゲットとして、核研サイクロトロンにより、14 MeV 陽子で衝撃した。

3. ^{96}Nb の分離調製 $^{96}\text{ZrO}_2$ は重硫酸カリウムで溶融し融解物を 1N 硝酸に溶解する。弱アルカリ性にして水酸化物を沈殿させ、遠心分離後之固沈殿を沈澱する。沈殿を 7N 塩酸に溶解し、濃縮後 Dowex 1x8 (R-Cl 型) 樹脂柱に通し、6N 塩酸で沈澱することによって通過するジルコニウムを分離する。ついで 4N 塩酸によってニオブを分離し、えられたフラクションを濃縮して測定試料を調製する。ジルコニウムフラクションは濃縮後水酸化物とし、800°C で灼熱、 $^{96}\text{ZrO}_2$ として回収する。

4. ^{96}Mo の分離調製 $^{96}\text{MoO}_3$ をアンモニアに溶解し、過酸化水素水を添加、加温して酸化し蒸発乾固する。残渣を 1N 塩酸に溶解し Dowex 1x8 (R-Cl 型) 樹脂柱に通す。ついで 1N 塩酸で沈澱しモリブデンを分離、さらに 1N 水酸化ナトリウム溶液を流してモリブデンを完全に分離する。十分水洗してから 4N 硝酸でテクネチウムを分離し、テクネチウムフラクションは過酸化水素水を滴下しながら蒸発乾固する。最後にアンモニアおよび過酸化水素水で処理して ^{96}Tc の無担体溶液をうる。モリブデンフラクションは蒸発乾固後残渣をアンモニアに溶解し、過酸化水素水を滴下、蒸発乾固する。残渣は加熱分解することにより $^{96}\text{MoO}_3$ として回収する。

5. 結果 ^{96}Nb の収率は約 80%, ^{96}Tc のそれは約 70% で、それぞれの分離は良好であることが確かめられた。 ^{96}Nb の無担体溶液中に若干の有機物が認められたが、硝酸-過塩素酸法で分解除去することができた。 ^{96}Tc のベータ-線スペクトル測定用の長線源の調製は、電解法によってツンケル箔上に ^{96}Tc を析出させる方法もとつた。収率は約 50% であったが他の析出物は全く認められなかった。

1B3 プロトアクチニウムの化学工

^{231}Pa の精製及び ^{233}Pa の調製

東北大学 鈴木 進 井上 泰

プロトアクチニウムはアクチノイド元素としての一般的性質を備えていることはもうよくあるが、むしろ週期律表の第5族に置いた方が似つかぬような性質も数多く知られている。しかしプロトアクチニウムには何等実用性が見出されておらず、水溶液が加水分解を受け易いために取扱が難かしいので従来から研究の数も比較的少く、分るものも少ない。従ってプロトアクチニウムの性質を正確に理解するためには基礎的研究を更に推進する必要がある。また、プロトアクチニウムの化学的研究はトリウム-ウランサイクルの增殖炉に関連した核燃料化学的観点からも興味ある課題と考へられる。

本研究室では以上のより理由から、水溶液、非水溶液及び固体化合物等についてこのプロトアクチニウムの化学的性質を種々の方法論を駆使して研究している。本報では先ず研究用の ^{233}Pa のトレーサー調製法並びに市販 $^{231}\text{Pa}_2\text{O}_5$ の精製法についてこの研究結果を報告する。

1) ^{233}Pa トレーサーの調製: ^{233}Pa は Th の熱中性子照射による $^{232}\text{Th}(n, \gamma)^{233}\text{Th}$
 $\xrightarrow[23.3\text{m}]{\beta^-}$ ^{233}Pa の核反応に依りて生成する。熱中性子照射には日本原子力研究所のJRR-1又はJRR-2の気送管を用いた。前者を使用する場合には1gの ThO_2 をポリエチレンカプセルに封入して2時間、後者を使用する場合には0.2gの ThO_2 を石英アンパルに減圧封入して20分間照射した。照射後 ^{233}Th が完全に ^{233}Pa に変換するのを待つて化学分離に着手した。照射した ThO_2 を白金皿に入水(1:30)の HF を1~2滴添加して出来る限り少量の conc. HCl 中に加熱溶解する。溶解後 HF を除去するための HCl と共に蒸発乾固を繰返し、最後に 6N-HCl 溶液とする。ポリエチレン製分液漏斗に移し、等量の TBP を抽出する。 HCl 相を捨てる、 TBP 相を再び 6N-HCl と振盪する。 TBP 相中の Pa を $6\text{N-HCl} + 0.5\text{N-HF}$ 溶液と振盪して水相へ逆抽出する。水相に新しい TBP を加え、振盪後、水相を別の分液漏斗に移し、一部混合している TBP を除去するためベンゼンで抽出する。こうして得た Pa の $\text{HCl} + \text{HF}$ 溶液を白金皿に移し熱板上で蒸発させる。乾固近くになつて湯浴上に移し、丁度乾固する迄注意深く加熱する。残渣を出来るだけ少量の 10N-HCl に溶解し、あらかじめ用意した Cl^- 型のDowex 1X8陰イオン交換樹脂柱(100~200メッシュ)に通し Pa を樹脂上に吸着させる。樹脂柱を 10N-HCl で充分に洗浄したのち $9\text{N-HCl} + 1\text{N-HF}$ 溶液で Pa を溶離する。こうして得た ^{233}Pa 溶液は、分析した結果、完全に放射化学的、化学的に純粋であることを分った。

2) ^{231}Pa の精製: 原料として Pa_2O_5 の形で英国のRadiochemical Centerから購入したものを使用した。純度などに関して仕入れ書に何等記載がないので、発光分光分析で行うと共にメスベクトル、 γ 線スペクトルの測定により、化学的、放射化学的純度の検定を

行った。その結果化学的不純物として Nb が 3% 程度含まれていることが分った。希土類元素の検出は困難であったが、一応考慮に入らなければならないと考へられる。放射化学的には放射能を測定して不純物が数%程度含まれていることが分った。 ^{231}Pa の半減期から ^{227}Ac , ^{227}Th , ^{223}Ra が主として問題となる不純物と考へられる。このよう純度の Pa_2O_5 の精製に Kraus, Moore の Nb, Ta, Pa のイオン交換分離法を改良して適用し良好な結果を得た。分離の一例を示すと、 Cl^- 型の Dowex 1X8 (100~200メッシュ) 20ml の陰イオン交換樹脂柱 ($\phi = 9\text{mm}$) に Pa_2O_5 35mg を含む 9N-HCl 溶液を通過し Pa を樹脂柱に吸着させる。9N-HCl の樹脂柱を十分に洗浄した後、9N-HCl + 0.1NH₄F 溶液 30ml で Pa を溶離する。流速は 0.3~0.5ml/min。流出液を白金皿上に集め、ほぼ蒸発乾固した後水で希釈し、アンモニア水で中和し水酸化物を沈殿させ常法に従って Pa_2O_5 として秤量する。収量 29.8mg が完全に化学的、放射化学的に純粋であった。

184 プロトアクチニウムの化学 II TTA-ベンゼン抽出法による過塩素酸中 Pa(V) の挙動の研究

東北大金研

鈴木進 井上泰

Paの研究が比較的遅れている理由の1つはPaが比較的強い酸性溶液中でも加水分解を察しやすく、実験が技術的に困難であることに帰することが出来る。逆に考えるとこのような複雑な溶解状態を解明することはPaの化学の進歩に著しく貢献すると考えられる。従って本研究究、Paの化学に関する研究課題の1つとして水溶液中の5価のPaの挙動の研究を取り上げ、本報では手始めに最も基本的な系である過塩素酸系を取扱った。過塩素酸系を取扱った文献をいくつか見付けることが出来るが、用いた方法論によつて、又は研究者の描論の仕方によつて得られた結果はまちまちである。例へば Welch は陽イオン交換体とのイオン交換反応の研究から、0.1~3M HClO₄ 溶液中では Pa₂⁺ イオンの存在を暗示しているが Elson は有機溶媒抽出法によつて弱酸性溶液では Pa₂(OH)₄⁺、Pa₂O₂(OH)₂⁺ などの加水分解形、中程度の酸性度の溶液中では PaO³⁺、Pa(OH)₂³⁺、非常に酸性度の高い溶液中では Pa⁵⁺ のような形で存在していることを推定している。結局正確な知識を得るためにはどうしても統一的な観測から種々の方法論を駆使し、正確なデータを集積する必要があると考えられる。今回はテトラフルオロアセトン(TTA)-ベンゼンによる溶媒抽出法によつて検討した。

Paの過塩素酸溶液は以下のような操作で調製した。すなわち第1報のようにして得た²³³Pa及び²³¹Paの保存溶液の一定量を白金皿に採取し、湯浴上で丁度蒸発乾固する迄加熱する。過塩素酸を加へて残渣を溶解したのを目煙が發生する迄加熱し、冷却後一定濃度に希釈して使用した。この際保存溶液から由来するPbを完全に除去すると共に²³³Pa-²³¹Pa間の同位体交換を充分に行わせるよう留意した。溶液の酸性度は中和滴定で決定した。

TTAはドータイトの精級品を蒸溜精製したベンゼンに溶解して使用した。抽出は水溶液10mlベンゼン/溶液10mlをポリエチレン製試験管に入れ密封したのを30℃の恒温水槽に浸け温度平衡に達せしめたのちマグネチキサーで30分間攪拌して行った。2相分離したのを両相から一定量ずつ分取し、γ放射能を井戸型シンチレーションカウンターで測定し分配係数を計算した。

過塩素酸濃度を一定にしてTTAの活動度、付数と分配係数の付数を両軸にとると、1N以上の酸性度の100%分配はほぼ4に近い直線関係を示す。酸性度が1N以下になるとこの分配はだんだん緩やかに成り、0.3N以下の酸性度では直線関係を示さなくなる。すなわち、このように低い酸性度の溶液を調製してから抽出する迄の放置時間の長短に依つて著しく分配係数が変動する。さうにいふ、酸性度の溶液においてTTAの濃度が0.2~0.3M以上の分配係数がTTA濃度に依存しなくなる。次にTTA濃度を一定にした場合の酸性度と分配係数の関係を見るに一般に酸性度が1N程度で最も分配係数が低く2倍以上酸性

度が低くなると分配係数は著しく高くなる。しかし酸化度の低い領域では二の関係はTTAの濃度によつては必ずしも成立せず非常に複雑である。

これらの結果からP₂の過塩素酸中の溶存状態について若干の考察を加えたかと思ふ。

日本原子力研究所
ラジオアイソトープ研究所

○留目祐光, 久保興子, 野口正安, 村上悠紀雄

ラドンは従来精密ラドン計あるいはIM臭効計などではかられてきたが長時間を要し測定の際色々な放射性核種の一種である。これを液体シンレーションカウンターを用いてはかる方法について提案し日本化学会第16年会において発表した(講演番号2E07 野口村上)。

この方法はラドンの油脂有機溶媒中では比較的よくとりこを至利用したものでトルエンを用いた。トルエンにたいするラドンの溶解度は水にくらべて30~50倍、大きい。したがって水中のラドンはトルエンとふるとき、一定の分配率にて抽出できる。したがってトルエンに液体シンレータ(PPD 4g + POPOP 0.1g)/l の割合でこし(これをを用いてふり、相分離したのち、こ水を測定用ヴァルキとリ、液体シンレーションカウンターにて測定する。ラドンと水の核種の間には放射平衡が成立する。約240分を極大となり、こ水から1時間以内にて測定するに必要とす。Bernatの式飯盛の式などが提案されてゐる。しかし本法では少くとも、一日おいて2回測定しラドンの崩壊曲線にのることをたしかめ、これを尤=0に外挿するだけでよい。

この方法によるとき、ある鉱泉の例では19840 cpm(t=0)で $3.4 \times 10^{-7} \text{C}/\text{l}$ にあたるが、B.G.の γ まで有意に測定ができるとして、 $3.8 \times 10^{-12} \text{C}/\text{l}$ の測定は容易に行ふこととなる。

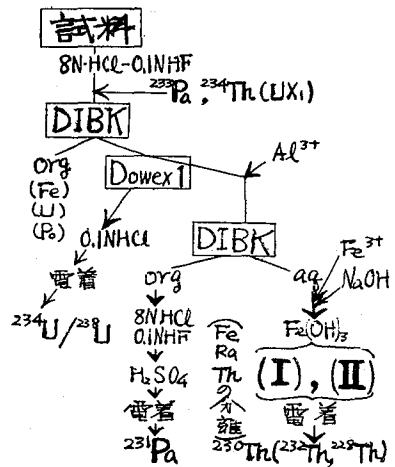
鉱泉分析法によれば、5.5マイクオンをもち、 $2 \times 10^{-9} \text{C}/\text{kg}$ が常水との區別であるが数百倍の低濃度まで十分はかることはできる。岐阜県土岐地方の井戸水20ヶ所あまり測定したがおよそ $4.5 \sim 204 \times 10^{-10} \text{C}/\text{l}$ の範囲であり、IM臭効計などでは正確にはかることのできない低濃度の測定が可能であった。

液体シンレーションカウンターが一番困る問題は、フエントであるが、この方法を實際に適用するにあたっては大切な点であり、この点につき水酸素の混入、エマルジョンの問題などにつき、実験室で行った結果につきのべる。たとえば酸素の影響は20%近くはんだ"ともあった。さらに塩素酸素分配率の問題もあるが、こ水からこつては別とをべる予定であるが、直立的に抽出を2夜行ふとき、こ水を測定値を m_1 (cpm)とすると、分配率 α との間には、 $\alpha = 1 - m_2/m_1$ の關係が成立する。こ水で事實上分配率の不確定な状況における場合の測定も可能となることを考へる。

本法の特色は試料調製が容易であり、計器の汚染がなく測定が容易であり、きわめて微量のラドン、たとえば $10^{-12} \text{C}/\text{l}$ の測定が容易に行ふ。上記の点を考慮しつつ精密ラドン計の結果と本法との結果とを合せて述べる。

金沢大 理 ○阪上 正信, 小村 和久

天然放射性核種の定量により年代決定を行う場合、Th-230・Pa-231などは半減期の点よりみて1万~100万年の年代決定に有効であり、地球化学的な点よりみてRa・Ac等核種の間接定量によるよりも、直接これら核種の定量を行うことが望ましい。このさい、同一のサンプルについて各種の年代決定のクロスチェックが必要であるとともに、貴重なサンプルを有効に用いると同時に、サンプリングによる誤差を少なくし化学分離の操作も簡単にするため、われわれの研究室ではその逐次定量法を検討している。なお $^{234}U/^{238}U$ の値により、Th-230/Uによる年代がいくらか変動するため、これを同時に測定する。とくに、分離後の定量はαスペクトルによるので、かなり長寿命の天然α放射性核種Ra-226 Po-210の分離をとくに注意する。すでに日化会17年会(2E06)において、別図に示すような方法(I)の場合を報告したが今回はとくに鉄共沈後のRa・Thの分離についての改良案(II)の方法等について報告する。DIBK抽出後の溶液(aq)に鉄を加えNaOHにより $Fe(OH)_3$ をつくりTRを捕集(Raをともなう)。加えたAlその他を除き後、まず8N-HCl陰イオン交換でFeをとり、さらに2N-HCl陽イオン交換によりRa・Thの分離を行う(I)の方法は複雑であるとともに、TRの一部がRaのフラクションに逃げるおそれがある。それゆえ、いままで C_2O_4 型陰イオン交換についての研究例は少ないが、これを用いる方法(II)の基礎条件を検討し、操作の簡易化とTRの収率増加をはかつた。 C_2O_4 型陰イオン交換樹脂をつくるには、Cl型陰イオン交換樹脂(Dowex 1×8, 1ml, オラム 0.45cmφ)に0.5M $H_2C_2O_4$ 約10ml 添せば十分であることを確かめ、これによつた。



- 基礎条件の検討として以下の実験を行った。(オラム法の場合流速はすべて0.1~0.2ml/min)
- [1.] LXI (C.F) を用いバッチ法でTRの捕集と $H_2C_2O_4$ 濃度の関係を調べ、0.02M~0.5Mの範囲で有効。またこれより2N-HCl以上ではTRは完全に分離、0.2N-HCl以下ではほとんど分離しないこと等を見とめ、オラム法によつてもこの点を確認した。
 - [2.] RdTh (TRX などの母核種の平衡量を含む) 溶液を用い、Th・Ra等の分離をオラム法によりγ計数の増加減少を測定し、TRX ははじめのフラクションに、TRB (Pb-212) は少しおくれて分離することを知った。またRdTh は完全に樹脂に捕集されることを、0.2M- $H_2C_2O_4$ によるThXのミルキング、2N-HClによる濃縮液からの母核種の生長等により確認。
 - [3.] 鉄を含む鉄を用い、バッチ法により0.02~0.5M $H_2C_2O_4$ 溶液より完全に捕集されること、

2~3 N-HCL の範囲では溶離が可能であるが、それ以上またはそれ以下の濃度では直接には溶離しないことを確かめた。

[4.] UX₁ と Fe を含む鉄との混合物につきカラム法でその分離を実験した。UX₁ は 8N-HCL 5ml で完全に溶離、このさいカラム上端に捕捉されていた黄緑色の鉄のバンドは黄褐色に変わり多少松がるが脱漏しない。その後鉄は稀 HCL 溶液で溶離できる。

以上の諸結果を利用して、DIBK 分離後の水酸化鉄の沈殿をまず 0.5M H₂CO₄ 約 5ml に溶解、上記 CO₂ 型カラムに流し、約 10ml で洗滌後、8N-HCL で Th を溶離し、これより電着箔液を作業するようにした。なおこれに用いたカラムは 8N-HCL を十分流し、樹脂自身を Cl 型に変えた後、0.1N-HCL で Fe を完全に溶離、0.5M-H₂CO₄ を流せば CO₂ 型樹脂として再生し得る。Th の電着は Pa の方法に準じて行っているが、この操作を簡易化し、更に収率を上げるため各種の研究を行いつつある。なお Pa の行動をトレーサーを用い検討中であるが、ウラニナイト等についての実験結果において U・Th・Pa の各フラクションの α スペクトルに Pa のピークが現われることはなく、その除去は完全である。化学的収率をみるため加える Th-234、Pa-233 の分離確認についてはすでに報告したので省略する。

先に外国産ウラニナイト等に (I) の方法を用い、その結果を報告したが、今回は上述の改良法を適用し、岐阜県土岐産ウラン二次鉱物-ウラノシルサイトおよびリンカイウラン石につき分析定量し、とくに後者については Th-230・Pa-231 の含有量が、ウランとの平衡値に比し少ないことから、Th-230・Pa-231 両法による年代決定をそれぞれ試みた。両サンプルは、それぞれ約 4mg を 8N-HCL-0.1NHF 混合溶液約 5ml に溶解し、その 1ml につき分枝した。電着した各フラクションの例と結果を次に示す。

	ウラノシルサイト		リンカイウラン石	
分析試料中の U 量	0.173 mg		0.236 mg	
²³⁴ U (<26-44ck>)/ ²³⁸ U (<5-25ck>)	1.01 ± 0.04		0.86 ± 0.02	
Th-230 (<24-43ck>)	cpm (23.01 ± 0.74)	dpm 175.2 ± 5.7	cpm (0.24 ± 0.02)	dpm 8.91 ± 0.99
Pa-231 (<28-54ck>)	(2.04 ± 0.05)	6.0 ₉ ± 0.17	(0.153 ± 0.025)	0.77 ₆ ± 0.12 ₈
B.G 1ckあたり平均	(0.015)		(0.015)	

() 内は最低1時間から最高40時間 格子付電着箱を用いた α スペクトルによる測定値 (B.G を除去) トレーサーの収率より dpm を計算 した

ウラノシルサイトではほぼ平衡値に近く、リンカイウラン石では、この結果より Th-230/U、Pa-231/U により、それぞれ年代を求めると、両法ともほぼ 5000 年の値となり、その成因につき重要な知見を与えた。

低バックグラウンドα線スペクトロメーターによる ^{147}Sm , ^{146}Sm の測定

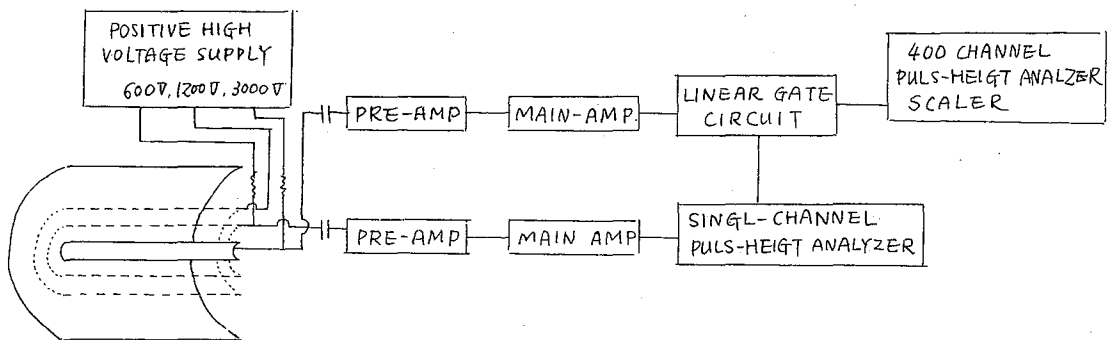
原研* 立大理** 小林義威*, 道家忠義**, 高橋吾郎**

稀土類附近における軽い核種のα放射体は、重い核種のそれと比べ、エネルギーが低く、半減期が長く、その測定は比較的困難である。このような強度の弱いα放射体の測定を行なうには、back groundの低い、有効試料面積の大きな、パルス電離箱が有効である。このため、われわれは、試料面以外からくる荷電粒子の寄与を最小にし得る、有効面積約10,000 cm² の二重グリッド付きパルス電離箱を作り、これを用いて samarium のα線の測定を行なった。

samarium の中には、 ^{147}Sm と ^{146}Sm がα放射体として報告されている。 ^{147}Sm は、natural samarium 中 15% 程度存在し、 1×10^{11} 年の半減期、そのα線のエネルギーは、約 2.2 MeV である。 ^{147}Sm は、低エネルギー領域におけるエネルギーの標準試料として便利な核種であるが、そのエネルギー値は、測定者によって種々の値 (2.18~2.46 MeV) が報告されている。一方 ^{146}Sm については、D. C. Dunlavey と G. T. Seaborg⁽³⁾ の報告 (2.55 ± 0.03 MeV, $\sim 5 \times 10^7$ 年の半減期) があるのみである。この半減期から推定するように、かつて地球上に存在したとしても、ほとんど検出不可能に近しい核種である。

(目的) 1) ^{147}Sm のα線エネルギーの決定。 2) natural samarium 中に ^{146}Sm が観測されるか否か。 3) natural samarium を 22 MeV のγ線で照射し $^{147}\text{Sm} (\sigma, n) ^{146}\text{Sm}$ の予想される核反応によって、 ^{146}Sm を作り、このγ線照射した samarium 試料によって、 ^{146}Sm が検出されるか否か。以上3点について実験を行なった。

(実験方法) パルス電離箱は、直径 40 cm, 長さ 100 cm の円筒型で、二重グリッド付きである。測定器の block diagram を図に示す。back ground を低くする



ため、collector puls と grid puls とが coincidence し互いの数を数えるようにした。

である。

エネルギー測定は、熱中性子による $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$, $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$ の核反応の、1.47, 2.05, 2.74 MeV の α 粒子のエネルギーを標準として行った。中性子源は、RAD-Be 30mc を用い、水および paraffin で減速した。

充填ガスは、主として argon 94%, methane 5%, nitrogen 1% を用いた。エネルギー測定の場合、速中性子による反跳陽子の寄与を少なくするため、argon 99.5%, methane 0.5% で行った。気圧は、いづれも 2 気圧である。

samarium の試料は、酸化物と硝酸塩にし、それを alcohol にとかして、円筒型のステンレスに電着⁽¹⁾し、後、赤熱した。Li および B の試料は、酢酸リチウム (炭酸リチウムに酢酸を加え蒸発乾固) および 硼酸を alcohol にとかし、ステンレス筒を回転させたがら、alcohol を蒸発させ、後、赤熱した。

(結果) 測定された ^{147}Sm の α 線のエネルギーは、2.24 MeV で R. D. Macfarlane と T. P. Kohman の測定値 $2.23 \pm 0.02 \text{ MeV}$ ⁽²⁾ と良く一致している。

natural Sm_2O_3 を 22 MeV の γ 線に約 20 hr を照射した。この試料は計算上では、2.6 dpm / $1 \mu\text{g Sm}_2\text{O}_3$ の ^{146}Sm が生成したと見なされる。この照射された試料、および、natural ~~not~~ samarium の試料の測定結果から、 ^{146}Sm について検討して見ると

(1) W. Parker, H. Bildstein and N. Getoff; Nucl. Inst. & Methods 26 55 (1964)

(2) R. D. Macfarlane and T. P. Kohman; Phys. Rev. 121 1758 (1961)

(3) D. C. Dunlavey and G. T. Seaborg; Phys. Rev. 92 206 (1953)

早大・理工研

黒澤龍平

現在我が国の核原料物質鉱山の坑内に於ける放射能物質の摂取にもとづく危険性の大部分は、²²²Rnの娘元素である²¹⁸Poの一部の元素によるものと考えられているが、大規模な採鉱が行われるようになると所謂放射能粉塵による危険性の占める割合が増加する。放射能粉塵中の放射能元素の大部分は天然ウランビニールと比較的少量の他のウラン系列の元素が含まれている。ウラン系列の元素の中の主な α 放射体の空気中の許容量(168^{時間}/週)は、天然ウラン： 2×10^{-11} 、²³⁰Th： 8×10^{-13} 、²²⁶Ra： 1×10^{-11} 、²¹⁰Po： 7×10^{-11} $\mu\text{C/cc}$ である。この種の放射能元素は²³⁸U \sim ²²⁶Ra、²³²Th \sim ²¹⁰Poの二群に分けて考えた方が便利であるが、両群を通じて²³⁰Thの許容量が最も低く、天然ウランの $\frac{1}{25}$ である。これは²³⁰Thが骨に沈着し実効半減期が 7.4×10^4 日であるのに反し、Uは腎臓に沈着し実効半減期が15日位であることに起因する。両者の許容量の計算の基準は異なるが、放射能粉塵の危険性を評価する場合に²³⁰Thの量を測定する必要があることには変りがない。ウラン鉱物中の天然ウランと²³⁰Thとは必ずしも放射平衡にあるのではなく、平衡から大きく離れていることが多いので、ウランの量から²³⁰Thの存在量を推定することはできず、そのため簡単な方法によって粉塵中若しくはその母体となったウラン鉱石中の²³⁰Thの定量する必要がある。

²³²Thの分析法については既にJISもあり工業的には問題ないが、²³⁰Thは 8.0×10^4 年程度の半減期を有し極めて微量しか存在せず、従って通常のcarrierを使用し且つ放射線検出器によって測定する必要がある。このため²³²Thをcarrierとし同位体希釋法と α 線スペクトロメトリーを併用して定量することを試みた。carrierとして使用したトリウムの中には²³²Th、²³⁰Th、²²⁸Th等の α 線を放射するトリウムの同位体が含まれている。しかしその混合比は同一試薬から調整する限り時局が多少変化してもほぼ一定であると考えられる。従ってcarrierや標準試料の比放射能も一定である。一方日本で採鉱の対象となっているウラン鉱石中にはトリウム系列に属する元素が含まれているから、²³⁰Thの量はcarrierの重量に比して充分小さく、分析した試料中のトリウムの重量はcarrierの重量に等しい。この結果分離の収率を求めることができ比放射能強度の変化から²³⁰Thの量を計算することもできる。又carrier(標準試料)と試料の両 α 線スペクトルの²³⁰Thと²²⁸Thのピークの比を比較して²³⁰Thの量が求められる。²³⁰Thの α 線のエネルギーは4.682、4.613 MeV.であり、²²⁸Th、²²⁶Thの α 線のエネルギーは夫々5.423、5.338 MeV、3.98 MeV.で²³⁰Thの α 線スペクトル上の位置の決定は容易である。

粉碎した試料を王水-硫酸、若しくは亜化ソーダと重硫酸カリによって分解し、Th、Bi、Pb、Te、Ba等をcarrierとして加える。硫酸によりRaをBaと共に沈殿させ分別した後、水酸化物とし塩酸で溶解し、樟酸によって希土類と共に沈殿させる。この沈殿を分解し次硫酸カリによって希土等を分離し再び樟酸塩とし小型の濾過器で濾過した後焼灼して酸化物

となし秤量して収率を求めた。この試料を磨り水で懸濁させメンブラン濾紙で濾過し前以って接着剤を塗った試料皿に移すか、或いは細磨した試料を希釋したラックーと混じり試料皿に移して乾燥させる。これ等を α 線検出器によつて測定した。

α 線検出器として2 π ガスフローカウンター、CsIシンチレーション検出器、Si半導体検出器を使用した。比放射能強度は2 π ガスフローカウンターによつて求めた。CsIシンチレーターとして厚さ0.5mm、直径38mmのものを使用し前置増中器、比例増中器、波高分析器、計数器を接続した。5MeV附近におけるCsIの理想的なf.w.h.m.は約250keVであるが、試料の核が、自己吸収、濾紙やラックーによる吸収のため実際の分解能は約15%位であった。シリコン半導体検出器として受感部面積200mm²、50mm²の2種のものを使用した。この検出器はdead layerのため幾何的配置が要しと分解能が低下する。分解能を良くするためアクリル樹脂によるコーティングを使用したが幾何効率は著しく悪くなり実用的ではなくエネルギー測定(エネルギー吸収の測定)のみに使用した。

CsIや半導体検出器はグリッド入電離室に比して空気やdead layerの影響を受け分解能が理想時より低なる欠点があるが、電場によつて放射体を含まない粒子がグリッドを汚染するようなことがなく使い易かった。半導体検出器にはsurface barrier型のものもありdead layerが薄く、従つて幾何効率を増しても分解能は低下せず極めて有利であるが、国内では産さず承ておらず輸入價格も高いので利用できなかった。

波高分析器として多重チャンネルのものが望ましかたが、単一チャンネルのものでもチャンネル巾が揃つておらずながらカウンターで計測した。又シンクロスコープによつてパルス波形を重畳してフィルムに記録し現像後マイクロフォトメーターで走査する方法も利用した。後者の分解能は短時間露出(2分間位)で数%であった。

このような方法で求めた²³⁰Thの量から核原料物質鉍山の粉塵の危険性の評価を行った。

東大物性研

O 坂江 絹子 中川 英毅 本田 雅健

天然物中又は人工的に核反応に伴って生成する微弱な放射性核種の測定法を検討した。一般に 1 dpm 以下のものを 10 dpm 位までの β 線又は γ 線を測定する必要がある。測定器の自然計数を可能な限り少なくすること、計数効率をなるべく下げたこと、長時間安定に測定出来ること、不能物の影響をうけないようにすること、等が要求される。これ等と考慮したのち、検出器を試作し、それらによって測定するに適した核種を検討した。

I. β 線測定

i) G-M 領域カスフロー計数管 試料を化学的に抽出精製したものを 1 g 以下の量で測定出来ることを目標とした。宇宙線を通常の逆同時計数によって除去するためには 2 種のカスフロー計数管を保護計数管として利用した。平板状の検出器に対してはアクリル樹脂製の $20\text{cm} \times 20\text{cm} \times 2.5\text{cm}$ (PL 型) の大きさのもの、一般には鉄及びアクリル樹脂製の径 15 cm、長さ 50 cm の有効部分をもつ中空円筒状のものも逆同時計数管とした。これらに外側の遮蔽材として通常鉛 10 cm、内張りに電気銅 1 cm のものを適用した。本実験全般を通じて使用材料についてはある程度それぞれ放射能を検討した上で採用した。例としては遮蔽用鉄材については Co^{60} の影響が小さく使用に適するものだった。

A) 扁平角型カスフロー計数管 (Lal 型) 上記 PL 型保護計数管が適用出来、比較的小規模な遮蔽箱で使用出来た。有効面積 $1\text{cm} \times 5\text{cm}$ 上下両面が使用出来、有効部分の厚さ 6 mm、両面を金蒸着マイラーとし Q ガスを使用する。PL 型計数管の中央に置いた時 $0.33 \pm 0.02\%$ 、周囲を 1 cm 厚のアクリル樹脂板で覆った場合 $0.13 \pm 0.01\%$ 、更に上下を 4 cm 程の電気銅板及び 2 cm の水銀層を重ねた場合 $0.08 \pm 0.01\%$ の結果を得た。又上記シリコン型保護計数管においては場合特に近接したシールドなしで $0.10 \pm 0.008\%$ であり実用上便利であった。この場合自然計数は宇宙線を含まない場合 3% 程度であったが約 $1/30$ の残留放射能を示した。 K^{40} に対する計数効率 34% である。少量の試料に適した検出器といえる。

B) 円筒型カスフロー計数管 (Sugihara-Lilly 型) 金蒸着マイラーを陰極とした径 1.4 cm \times 5 cm の円筒状の有効部分がある計数管に試料面積 25cm^2 程の、多量の試料の計測に適している。PL 型計数管と組合せると $0.5 \pm 0.15\%$ 程度の完全宇宙線を除去出来たもののシリコン型計数管内部で使用する必要があった。

C) 端面型計数管 無酸素銅製端面(金蒸着マイラー)カスフロー計数管は有効面積 7cm^2 で両面について保護計数管によっても残留放射能は $0.23 \pm 0.02\%$ 程度である。効率は K^{40} に対して 35% である。

これ等の数例にみられるように宇宙線に対するシールドはシリコン型計数管に十分であり、遮蔽の γ 線等による影響も少なりと認められる。現在までに得られた自然計数の最低値

は使用した材料よりくるものが大部分でこれ以上低いものは一般に増加その他によって困難であると考えられる。

4) プラスチックシンチレータ 有機シンチレータを利用して任意の形状のものも容易に製作出来るが一例として径2.5cm 厚さ3mmの円板2枚を使用し試料をサントレン状にはさんだ高圧エトリのβ検出器を試作した。上記PL型保護計数管によって残留計数率は4%以下に少なくすることが出来る。特に内部転換電子の波長分析に適している。

これ等の検出器のみを使用した場合 Be^{10} , P^{32} , S^{35} , Cl^{36} , Ca^{45} 等の純β放射体の測定に適しているのは、試料の純度など問題なければ高効率と利用して Na^{22} , Al^{26} 等の計数にも容易に利用出来る。なお計数を長時間記録することによって作動状態を監視することは有用である。

II. γ線測定

γ計数には化学的に精製した試料のみならず不純試料とも測定に供することもある。β線計数管の場合と同様の遮蔽を施したものとNaI(Tl)結晶と光電子増倍管とによるγ線測定の際には検算による自然計数 M_0 がかなり大きい。1.5"φ×1.5"結晶の場合に70%程度の検討をした。β線測定の結果では結晶の窓に使用した材料が最も大きな影響を及ぼしている。石英硝子の場合に比して普通硝子は約6倍の計数値を及ぼした。左として K^{40} , Ra 等によるものと考えられる。その部分とアクリル樹脂に換えたものとを利用した。なお結晶のAl製の容器はβ線測定にはれば自然計数93倍程の値を示し無酸素銅等で作った容器が望まれる。光電管については同様石炭窓のものがないが、ライトパイプをつけたことにより K^{40} 等の影響はかなり小さくすることが出来る。また宇宙線の影響は1.5 MeV以上の領域でのみ顕著であり上記のシンチレータ型保護計数管中で逆同時法が利用出来る。このようなγ線測定のみによる方法は今般述べた Be^7 , Mn^{54} , Co^{57} 等よりは100g以上の質量を持つ試料とすると更に Na^{22} , Al^{26} 等については有用と認められた。

同時計数法が使用出来るような核種に対しては、γ-γ同時法又はβ-γ同時法が考えられている。両者共β+の測定は効率が高いので比較的容易であり Na^{22} , Al^{26} , Ti^{44} に適している。一般に自然計数は極めて少なくすることが出来るが同時に計数効率もおろそかにせず長時間の連続測定を必要とする。これ等の場合には若くは計数効率の高い検出器と利用する。β-γ同時法は2重でよい有利であり適用範囲が大きいと認められる。上記の実験β線用検出器と3"φ×3"のNaI(Tl)等と併用した。

原研事業，東芝中研

○高木に三郎，大井昇

1. 目的 プルトニウム試料中に含まれる ^{240}Pu の量の決定は、 α スペクトロメトリーによつては困難で、一般には質量分析によつて行なわれているが、 ^{240}Pu の自発核分裂の寿命(1.3×10^4 年)が、 ^{239}Pu のそれ(5.5×10^4 年)に比べて非常に短いことから、自発核分裂片を計数して求めることもできる。この実験では、半導体放射線検出器と低雑音で長時間安定なトランジスタ化した測定系により、自発核分裂片の測定を試みた。

2. 実験

イ. Pu 試料 GETRで照射($\text{mCi} \sim 1 \times 10^{20}$)した UO_2 を硝酸で溶解後、 Pu をTTA—キシレンにより抽出し、イオン交換樹脂により精製した。

ロ. 線源の作製 Pu は0.25M硝酸—0.10Mシエウ酸アンモニウム溶液から、 $80 \text{mA}/\text{cm}^2$ の電流密度でステンレス板上に、約3時間定電流電解電着を行なった。測定に便利のように、線源の α 線の強度が 10^6dpm 程度とするようにした。

ハ. 測定 12.5mm中のP-n接合型半導体放射線検出器にほぼ密接して6mm中の線源をおき、あらかじめ ^{239}Pu と ^{240}Pu のアルファの全計数を求めておき、そのまゝのジオメトリーで自発核分裂片計数用の測定系につなぎ計数した。自発核分裂は、この強さの線源では0.2—0.5cpmの程度で起るから、統計誤差を10%程度でおさえる為には、数日時間の連続測定が必要で、測定系はこれに耐える安定性をもち、低バックグラウンドでなければならぬ。しかし、核分裂片は60—120MeVという高いエネルギーをもつから適当なディスクリミネーションにより一般のバックグラウンド、雑音等をおとすことが可能である。従つてトランジスタ化した増幅系を用い、水銀電池で駆動させ、得られたパルスを送り出し、ディスクリミネーターを通した後、ペン書きレコーダーで書くことが出来るよう調整した。

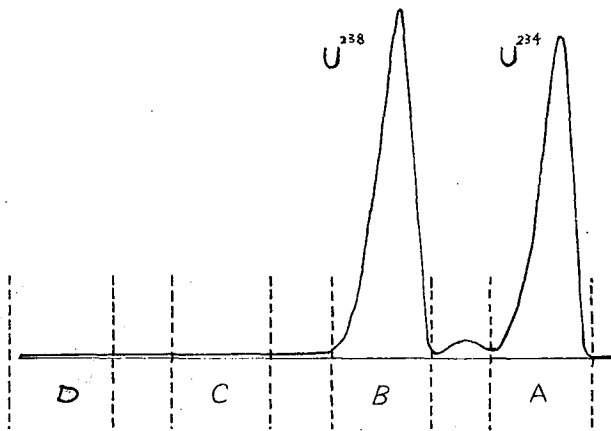
ニ. 結果 この測定系で、 ^{240}Pu により約百時間測定した結果、 α 粒子のパイルアップ、電気系の雑音その他によるバックグラウンドは無事出まるとわかった。次にSfピカの比が既知である ^{252}Cf の線源を用いてチェックした結果、核分裂片は完全に計数し得るようになった。

ここに述べたプルトニウム試料を用いたの二回の測定の結果では、全プルトニウムに対する ^{240}Pu の割合(重量)として(7.9±1.1)% (約120hr測定)、(8.6±1.0)% (約180時間測定)を得た。この値は、推定される ^{240}Pu の量から考えて妥当なものである。

岡山大・温研 梅本春次・池田耕三

U^{234}/U^{238} 比を測定するために、化学的に分離したウランを金箔板に電着し、α線スペクトロメトリーを行つた。得られたスペクトルについてこの比を求める方法として次の様な計算を行つた。

測定試料は7cm²に100μg以下のウランが電着されてあり、 U^{234} 及び U^{238} による自己吸収の差はないと假定した。



図に示された二つの領域 A, B, C 及び D における全計数を夫々 A, B, C 及び D とする。 U^{234} による夫々の領域における計数を a, a', a'' 及び a''' とし、 U^{238} による計数を b, b', b'' 及び b''' とする。

$$A = a$$

$$B = b + a'$$

$$C = b' + a''$$

$$D = b'' + a'''$$

$$a : a' : a'' = b : b' : b''$$

となり、又

$$a'' : a''' = a' : a'$$

と假定すれば、

$$C/D = a'/a'' = b'/b'''$$

次に設けた假定が近似的に成立するかどうかを確かめるために、ウラニタイトから分離したウラン ($U^{234}/U^{238} = n = 1, a = b$) についての測定結果にもとづいて、次式により計算を行つた。

$$n = \frac{a}{b} = \frac{A}{B - C(1 - \frac{D}{C})}$$

2 試料について、1,000 μ g (3 回測定)、1,000 μ g (4 回測定) の結果を得、假定が実験誤差の範囲内で成立する事を知つた。

次に実際の試料については凡そ必ずしも1ではないから上の計算式を用いる事は出来ない。したがって

$$\frac{a}{a'} = \frac{b}{b'} = 40, \quad \frac{a''}{a'''} = \frac{b''}{b'''} = 4$$

という測定値を用いると、

$$\frac{A}{B-C} = \frac{160}{3n+156} n \quad (n = \frac{A}{B})$$

$$\frac{\left(\frac{A}{B-C}\right)_{\text{sample}}}{\left(\frac{A}{B-C}\right)_{\text{standard}}} = \frac{159}{3n+156} n = n' \quad (1)$$

(standard = 2.12, n = 1)

となり、 n の代わりに n' を用いたとすれば、 $0.475 \leq n \leq 1.525$ の範囲内では n' を用いても1%以内の誤差に止まる。

(1) 式から

$$n = \frac{156n'}{159-3n'}$$

を得、この式に代入すれば、如何なる範囲でも利用出来る。

Th^{230} の定量については、セラナイトより分離した Th について得られた線スペクトルと試料より得られた線スペクトルを比較することによって定量し、化学的収率は Th^{234} をトレーサーとして用いた。

放射線測定器系の分解能は、ピークの半値巾を用いて定義されて居り、入射放射線のエネルギーがこの値よりも接近している場合には、このスペクトルを分解判定して核種同定を行う事が困難である。しかし、数学的には、この様な場合でも分解が可能であり、前回の報告に於て、フーリエ変換を用いた方法が示され、具体的に Ce^{137m} と Nd^{147m} のγ線の混合スペクトルに適用した例が述べられた。この方法の信頼性を示すために、ここでは実際に人工的に合成されたスペクトルを与えて、これを分解して見る事を行う。これにより、この方法を用いる事により分解能が實質的に10倍近く増大したのと同様な結果を得る事が出来る事が示される。

原理は、前回報告とも重複するが、全系をブラックボックスとして取扱ひ、入力、出力の関係にのみ着目する。入力として放射線のスペクトル分布、出力として波高分析器を通じて得られる出力波高分布を考へる。エネルギー (E) と交通の変数とすれば、それぞれを $f(E)$ 及び $g(E)$ で表すと、この間の関係は、 $\delta(E-E')$ に対する出力を $h(E-E')$ とすれば

$$g(E) = \int f(E') h(E-E') dE' \quad \dots (1)$$

と与えられる。核種同定の為に行う事は観測で得られた $g(E)$ から $f(E)$ を求める種々な方程式を解く操作であり、 $h(E)$ は単色放射線を観測する事により得られるので、これは可能である。

(1) はそれぞれ関数をフーリエ変換する事により簡単な型に表す事が出来る。すなわち、 f, g, h のフーリエ変換をそれぞれ $F(\omega), G(\omega), H(\omega)$ で表せば、 $(F(\omega) = \int f(E) e^{-i\omega E} dE, \text{etc.})$

$$G(\omega) = F(\omega) \cdot H(\omega) \quad \dots (2)$$

となり、これより $f(E) = \frac{1}{2\pi} \int (G(\omega)/H(\omega)) e^{i\omega E} d\omega$ と得られる。入力分布が単色放射線の電なりである場合例えは $f(E) = a_1 \delta(E-E_1) + a_2 \delta(E-E_2)$ の場合ならば、

$$F(\omega) = a_1 e^{-i\omega E_1} + a_2 e^{-i\omega E_2}, \quad \therefore |F(\omega)| = \{a_1^2 + a_2^2 + 2a_1 a_2 \cos \omega(E_1 - E_2)\}^{1/2}$$

とせば、 $|F(\omega)| = |G(\omega)/H(\omega)|$ を計算すれば、この函数の最大最小を求める事に依り、 $E_1 - E_2, a_1, a_2$ を求められ、誤差を大きくするフーリエ逆変換は不必要である。

實際に、単色放射線に対しての出力波高分布のピークの型を正規分布型で近似し、

$$h(E-E_1) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} a} \exp\left(-\frac{(E-E_1)^2}{2a^2}\right)$$

とし、二本の接近エネルギーの放射線に対する出力波高分布を

$$g(E) = \frac{a_1}{\sqrt{2\pi} a} \exp\left(-\frac{(E-E_1)^2}{2a^2}\right) + \frac{a_2}{\sqrt{2\pi} a} \exp\left(-\frac{(E-E_2)^2}{2a^2}\right)$$

とし、2.355 a 以上えられる半値巾より $E_1 - E_2$ を小さく与えて、一見ピークが一つにしか見えない $g(E)$ を合成し、得られた h, g 等のフーリエ変換を数値計算して求め、 $F(\omega) = G(\omega)/H(\omega)$ を得た。

一例として、 $a = 5.0$ とすれば、半値巾は、11.8 a となり、これより $E_1 - E_2$ が小さいと通常の方法では分解出来ない。

ここで $E_1 - E_2 = 6 \text{ ch.}$ (半値中の約半分) とし、 $a_1/a_2 = 2$ とすると合成して得られた $g(\epsilon)$ は図1に示す様に一つのピークを持たない。 $g(\epsilon), R(\epsilon)$ のフーリエ変換は、 ϵ の整数値に對してリンパルされた値を用いて計算された。計算は Filon 公式を用いて、IBM-7090 により行われた。この様にして得られた $F(\omega)$ の絶対値を圖2に示す。 $\omega_0 = 0.524 \text{ rad/ch.}$ に於き最小値 $|F(\omega)/F(0)| = 0.333$ より $E_1 - E_2 = 6.00 \text{ ch.}$ 、 $a_1/a_2 = 2.00$ と得る。これで實際に半値中以下にエネルギーが接近していても分解判定が可能の事が示されたが、同様の場合 ($a=5 \text{ ch.}$) に於て、 $E_1 - E_2 = 1 \text{ ch.}$ とした場合に於ても $|F(\omega)|$ に同様の傾向を持つた曲線が得られ、この場合でも 30% 程度の誤差で $E_1 - E_2$ を決定する事が出来た。

具体的には、 Zr^{95} の二本の接近した線 ($E_1 = 757 \text{ KeV}$ 、 $a_2 = 724 \text{ KeV}$) に應用した例を圖3、4に示す。

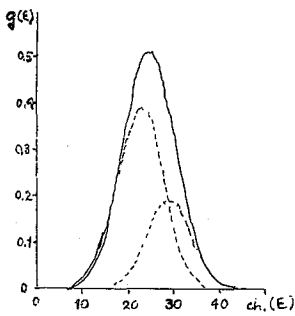


図 1.

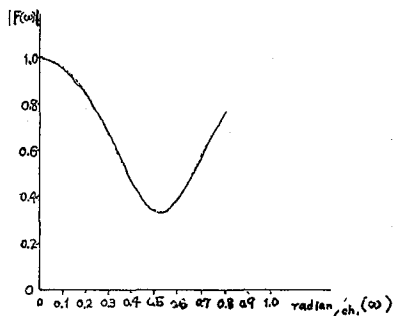


図 2.

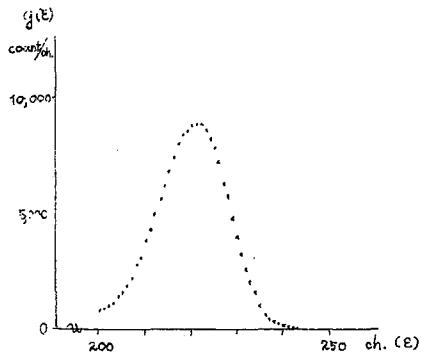


図 3.

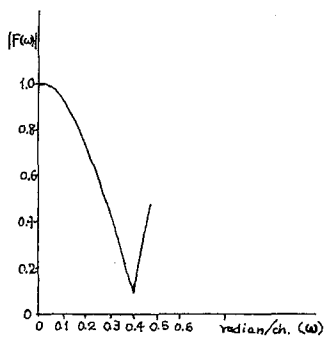


図 4.

*). 藤井 井上、武藤, Fourier 変換による X 線スペクトルの解析, 第 7 回放射化学討論会 2A 21 (1963)

東芝中研

○藤井 勲, 武藤治夫

通常の放射化分析法では、試料中の同位体と存している元素を放射化したのち、生成放射性核種から放出される電磁波又は粒子を検出して定性および定量分析がおこなわれる。こゝに報告する方法は上記の方法とは趣を異にし、同位体と存している元素の原子核が中性子を吸収して励起状態になったとき瞬間的に放出する γ 線(Capture γ rays)を利用するものである。この方法は米国の Armour Research Foundation において研究がすすめられているが実用化には多少時日を要すると言われている。

こゝでは Capture γ rays を利用する分析法が通常の方法のように試料を溶解することなく、また放射化分析のように生成核種の半減期による制約がない、核反応の結果、生成される核種が放射性である必要がないなど、従来の方法、特に放射化分析法に比べて特長面があるので、通常の方法では困難なホウ素の非破壊分析の検討をおこなったので報告する。

[反応]

^{10}B (18.8%) は (n, α) 反応によって ^7Li になる。反応断面積は 4010 バーンである。

^7Li は図に示めするエネルギーレベルを持ち、0.477 MeV の γ 線を放出して基底状態におちる。

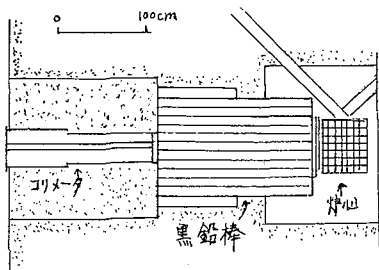
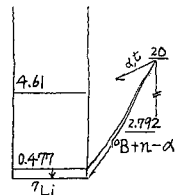
[実験]

1. 装置

1.1 中性子源

熱中性子源として東芝訓練用原子炉 TTR-1 (最高出力 100 kW) を用いた。 γ を向上させるため、熱中性子ビームは出来るだけコリメートされている方がよいので図に示めするようなパラシンのコリメータを用いた。コリメータは 12 mm 厚のステンレス鋼板で外箱をつくり中心軸上

^7Li のエネルギーレベル



中性子源

に内径 70 mm の孔を残してパラシンを流し込んだものである。実験に際しては、左図のように、予め熱中性子コラム中央にある 100 mm 角の可動黒鉛棒を炸びまで見透せるよう引抜いて上記コリメータを挿入して実験した。これから得られる熱中性子ビームの角は $2^\circ 20'$ で、中性子束強度はコリメータ出口において $25 \times 10^5 \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ であつた。また、コリメータ出口附近でのカドミウム比は 3.5 であつた。この使用条件は中性子ラゲドグラフィーの実験と同じも

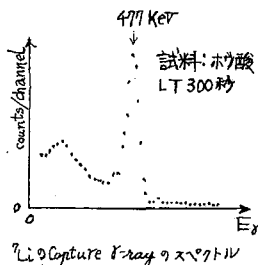
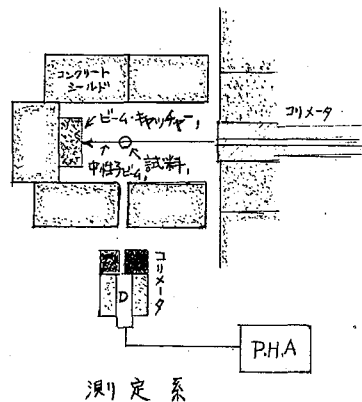
のである。

1.2 測定系

検出器：液化ナトリウム(TL)結晶, $1\frac{3}{4} \times 2$ " , シリダ-型。

測定器：東芝512物種超高分析器

右図に示すように、コンクリートシールドを試料の周囲に配置し、ビームがシールドに衝突する部分にホウ酸入りパラフィンを積み上げ、ビームキャッチャーとした。測定は試料に熱中性子ビームを当てながら、コンクリートシールドの向き(10cm)から行った。



2. 試料および試策

試料にはホウ酸、ホウケイ酸ガラスなどを用いた。試料はポリエチレン製罐(約200ml)を入れ、コンクリートシールドに取付けたモノレールによって熱中性子ビーム中におくようにした。測定結果を左図に示した。ホウケイ酸ガラスの分析結果については口頭発表時に詳細に説明する。

原子力事業

○谷 彰, 松島安義

演者らは迅速放射化分析法の確立を目標として、計算機によるガンマ線スペクトルの解析を試みてきており、すでに第7回放射化学討論会で報告⁽¹⁾を行なったが、今回はその後の改良と結果について報告する。

改良した諸点は、測定値の信頼度のチェック、測定系のゲイン・シフトおよびドリフトに対する考慮、ライブラリ・スペクトル⁽¹⁾の信頼度の増加等であり、これらの改良で得られる結果を示すとともに、結果の信頼度を示す χ^2 値と検出限界の関係、多成分ライブラリで解いた場合の結果をも報告する。

実験解析法の改良結果を示す実験には、長寿命R I核種 ^{22}Na , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{152}Eu を用いた。放射化分析への応用例としては、TRR(東芝教育訓練用原子炉)を用い、 Na , Mg , Al , Cl , Fe , Cu , 等を対象に選り、前回⁽¹⁾と同様な方法で行った。測定には、 $2^\circ \times 2^\circ \text{NaI}$ 検出器 256チャンネル波高分析器を用いた。

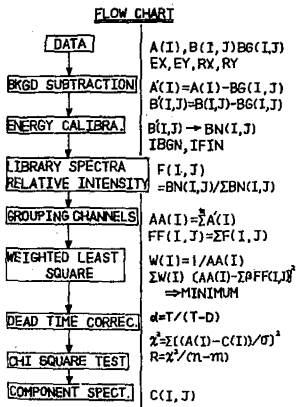
計算 第1回に計算手順のフロー・チャートを示す。使用した計算機はIBM-7090 である。

i) バックグラウンドを差引く。ii) ライブラリ・スペクトルと試料のスペクトルのエネルギーの対応をつけるとともに、測定系のゲインの変動を補正する。iii) ライブラリ・スペクトルの各チャンネル当りの相対強度比をつくる。iv) 必要に応じて数チャンネル毎にまとめる。v) 重みをつけて最少二乗法でとく。vi) 不感時間の補正をする。vii) χ^2 テストを行って計算の信頼度を確かめる。viii) 成分スペクトルの量を求める。

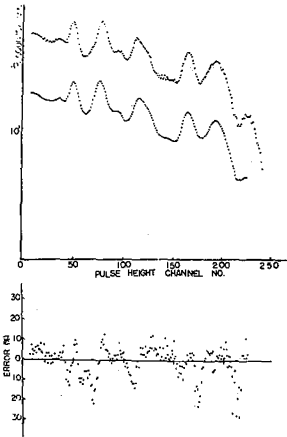
結果 第2回に ^{22}Na , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{152}Eu , でつくった試料の解析結果を示し、第3回にその3成分系のスペクトルを示す。示されるスペクトルのうち、上のは観測値を示し、下のは計算値を示す。縦軸は見やすくするためにずらせてある。下欄のプロットは両者のずれをあらわす。

第4回に Na , Mg , Al , Cl , Fe を含む合成試料の原子炉で照射して得られるガンマ線スペクトルの解析例を示す。

尚 計算に要する時間は、1試料につき10秒程度である。



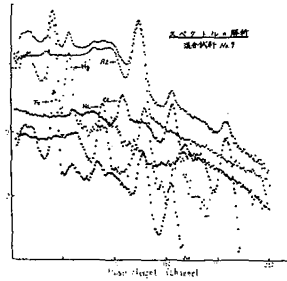
※ 1 図



※ 3 図

試料	種類	添加量	計算量	χ ² 値	誤差%
1	Na	12.09	12.33	0.9	+1.9
	Co	7.88	8.08		+2.5
2	Na	14.53	14.70	5.1	+1.2
	Co	8.01	8.07		+0.1
3	Na	14.56	14.21	8.4	-2.5
	Co	26.14	25.64		-1.9
	Ag	7.74	7.52		-2.9
4	Na	14.10	13.44	6.7	-4.8
	Co	24.70	25.53		+3.2
	Ag	7.20	7.33		+1.7
	Eu				

※ 2 図



※ 4 図

日本原子力研究所

本島 健次, 坂東昭次, 今橋 強

JRR-2ではVoid効果による影響と照射試料の冷却のためにVT-1およびVT-9実験孔に重水を注入し運転を行っているが、取出した重水が予想以上に放射能を帯びており、またVT-9重水では茶褐色ににごったコロイド状物質が検出された。これらの原因と確かめるためにいくつかの試料について放射性核種の分析を試みた。

試料の種類および形状

VT-1重水は無色透明であるが、わずかながら黒色のゴミのようなものが認められ、VT-9重水試料は茶褐色コロイド状のものが相当に含まれており、これらは比較的短時間に凝集沈殿した。検討を行った試料および状態を第1表にまとめる。

第1表

試料番号	実験孔	注入及び取出し	注入量(kg)	運転出力(MWH)	pH	蒸発残分(g/l)	灼熱残分(g/l)
1	VT-1	38.3.4~ 38.6.3	約10	338.8	5.2	0.06	0.02
2	VT-1	38.10.3~ 38.10.21	10.65	19.1	5.8	0.10	0.04
3	VT-1	38.10.3~ 39.2.3	9.20	1399.3	5.6	0.24	0.12
4	VT-9	38.10.21~ 38.11.2	4.93	530.9	7.8	2.56	1.71
5	VT-9	38.11.4~ 39.2.3	4.90	849.3	5.6	0.61	0.37

放射性核種の分離

灼熱残分の試料と塩酸にとかし、不溶物は少量の硫酸水素カリウムで溶融し分析試料とした。また常法に従い、金属分離分析を行い、結果、第3属(水酸化物沈殿)と第4属(塩基性硫化物沈殿)に放射能が検出され、X線スペクトルとあわせて⁵¹Cr, ⁵⁹Fe, ⁶⁰Co, ⁶⁵Znの存在が推定された。これら核種の相互分離に陰イオン交換樹脂による方法を応用した。即ち試料を蒸発乾固し2MHClに溶解して陰イオン交換樹脂Dowex 2X-8, 樹脂柱φ8×8cm, 流速0.5 ml/minに通す。Crは吸着されない。次に4MHClでCoを溶離し、最後に水でZn, Feを溶離した。Feの分離にはイソプロピルエーテル抽出を行い、分離した各溶液を濃縮しポリエチレン棒状に入れウエルタイプシンチレーションカウンタおよび256チャンネル波高分析器で放射能を測定し、⁶⁰Co, ⁶⁵Zn標準試料との相対値を求めた。この結果重水中に含まれていた放射性核種は⁶⁰Co, ⁶⁵Znが大部分であり、取出し時期における経過時間を補正し、MWHあたり平均熱中性子密度VT-1: 1×10^{13} , VT-9: 2×10^{12} n/cm². sec から逆算して重水中に含まれている量を算出した。なおVT-9重水のコロイド状物質はほとんどのものがアルミニウムであったが茶褐色のものについては不明である。

1B15 広島、長崎に於ける原爆投下時の中性子線量の推定

○伊沢正実, 三河村正一

放射石研

橋詰雅, 丸山隆司, 田中栄一

目 的 広島および長崎における原爆被災者の間に発生している放射線障害の線量-結果関係をさらに定量的にしらべるには、放射線障害の医学的、疫学的研究を進めると同時に、各人が当時うけた放射線量と、より正確に知る必要がある。原爆からの高速中性子線量として、今までに発表された値は物理学的方法に、もとづいた推定値であつて、最も信頼性の高い値でも、その誤差は広島で±50%、長崎で±100%といわれている。したがつて、現地での実測にもとづく、より正確な値を求めようとして、この研究をおこなつた。

方 法 さきに斎藤ら⁽¹⁾は熱中性子によつて放射化された⁶⁰Coを分析、測定して熱中性子束密度を推定し得ることを報告している。われわれは、この方法を準用して、当時、コンクリート中に埋まつていた鉄材の中に含まれているCoの誘導放射能を測定することによつて、その場所の(コンクリート中で減速される前の)高速中性子の線量を推定するという方法をとつた。

試 料 爆心地からの距離、コンクリート中の深さと爆撃点に対する方向、高さなどの、はつきり分かっている鉄材を分析に用いた。一方、ファン・デ・グラフ装置により発生させた高速中性子(重陽子をベリリウムターゲットにあてる)をコンクリートにあて、コンクリート内部の熱中性子分布をしらべた。その結果、表面から約8cmに、なだらかな最大値のあることがわかつたので、⁽²⁾「分析に用いる」データーとしては、8cmの深さにあつたものの分析値を用いるようにした。なお、はじめから存在する熱中性子は、この深さでは約1/3に減弱する。

分析法の大要 鉄材中からCoを分離、精製して測定試料とする方法の概略は次に示す。

1. 約50gの試料を濃塩酸に溶かし、イソプロピルエーテルで鉄を抽出除去する。
2. 強塩基性イオン交換樹脂を用い、溶離液の塩酸濃度を変える方法でCo分画を分取する。
3. 強酸性イオン交換樹脂を用い、混在のおそれのある微量のClを除去。
4. 得られたCo分画の一部を用いてCoの比色定量を行ない、のこりは白金板上に電着して放射能を測定する。
5. 要すれば、これらの操作の一部または全部を反復しておこなう。

放射能の測定 電着されたCoの放射能は、著者の一人によつて用ゐられた、β-β同時計数型β線スペクトロメーター⁽³⁾によつて測定した。この装置のブロックダイヤグラムを第1図に示す。⁶⁰Coの測定の際のバックグラウンドは0.1cpm程度であり、測定効率率は約13%である。1cpm程度の試料のβスペクトルを得ることができ、他核種による汚染を

有効に検出することができる。

結果

1. 同一地点から採取した試料の分析結果。同一地点から(広島銀行)同一条件のもとに中性子照射を受けたと思われる試料の分析結果は第1表の如くである。

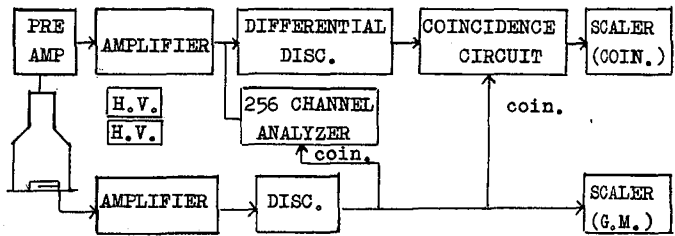
2. 距離別にとつた試料の分析結果。爆心地よりの水平距離で140mから1200mの向で採取した試料の分析結果を第2図に示す。サンプリングとえ適切であれば、少なくとも1000m以上の試料では測定可能と思われる。

線量の推定

このようにして得られた ^{60}Co CPM/Co mg の値から高速中性子線量を計算するには

1. コンクリート表面に対する照射角度、
 2. コンクリートに入射した熱中性子の寄与
- などの補正を加えなければならない。このために必要データをとるため、および線量-放射能関係の標準試料を得るため、コンクリート中に入れたCoをオークリッジ国立研究所の Tower Shielding Facility で照射している。

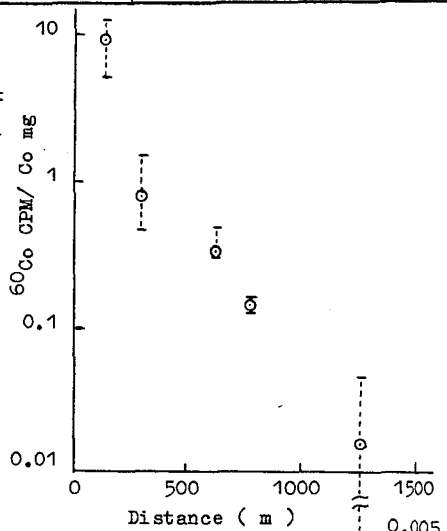
1. 日本放射線影響学会第2回研究発表会
於京都, 1960
2. 日本放射線影響学会第5回研究発表会
於札幌, 1963
3. Nuclear Instr. & Methods, 13, (1961)



第1図 β - β 同時計数型 β 線スペクトロメータのブロックダイアグラム

第1表 同一地点から採取した試料の分析結果

No	Amount of Co	^{60}Co CPM	^{60}Co CPM/Co mg
1	1.78 ± 0.06	3.52 ± 0.17	1.97 ± 0.06
2	2.90 ± 0.06	6.88 ± 0.20	2.36 ± 0.03
3	1.60 ± 0.10	1.87 ± 0.11	1.16 ± 0.25
4	2.62 ± 0.10	6.67 ± 0.21	2.53 ± 0.05
5	2.35 ± 0.20	7.43 ± 0.22	3.15 ± 0.09
6	2.25 ± 0.06	5.30 ± 0.21	2.35 ± 0.05
7	3.68 ± 0.02	10.11 ± 0.27	2.74 ± 0.02*
8	3.63 ± 0.13	10.46 ± 0.27	2.87 ± 0.04
9	3.45 ± 0.09	7.97 ± 0.24	2.30 ± 0.04



第2図 距離別にとつた試料の分析結果

日本原子力研究所

四方英治

1. 目 的

原子炉の中中性子を利用した放射化分析法は、その分析感度が高いこと;非破壊分析が可能なことなどのために、種々の試料の分析に利用されている。

放射化分析では多くの場合炉内の熱中性子による (n, γ) 反応が利用される。炉内には熱中性子の他に速中性子があり、炉内中性子で照射すると分析目的の元素の (n, γ) 反応と同時に速中性子による (n, p) 、 (n, α) のようなしきい反応が一般には起る。非破壊分析あるいはこのようなしきい反応が目的元素の (n, γ) 反応と同種のRIを生成するような場合にはこの反応は目的とする分析に影響をおよぼす。たとえばアルミニウム中の微量のナトリウムの放射化分析が実際に行なわれているが、この場合には $^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$ の反応と同時に $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ の反応が起り、ナトリウムの分析を妨害する。

この研究では、このような原子炉内の速中性子による主成分元素のしきい反応が分析目的の微量成分元素の (n, γ) 反応による放射化分析におよぼす影響を、アルミニウム・マグネシウム中のナトリウム、亜鉛中の銅、および銅中のニッケルの放射化分析の場合について炉内の熱および速中性子束の分布を考慮して検討し、その結果を報告する。

2. 実 験

十分に純度を吟味した金属アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化亜鉛、金属銅をJRR-1およびJRR-2原子炉の実験孔で照射し、それぞれ (n, α) あるいは (n, p) 反応で生成した ^{24}Na 、 ^{64}Cu 、 ^{65}Ni の量を求めた。同じ照射条件で (n, γ) 反応で生成するこれらRIの量を求めるために、アルミニウム・マグネシウムと炭酸ナトリウムを、亜鉛と銅を、銅とニッケルをそれぞれ同時に照射した。各照射孔の熱および速中性子束の大きさを知るために、それぞれのターゲット物質と同時に金箔とニッケルの小片を照射した。

照射後にアルミニウム・酸化マグネシウム中に生成した ^{24}Na の量は電離箱で測定した。酸化亜鉛銅中に生成した ^{64}Cu と ^{65}Ni はそれぞれ担体を加えてターゲット物質から分離し、 γ 線シンチレーションカウンターで測定してそれらの量を求めた。 (n, γ) 反応で生成した ^{24}Na 、 ^{64}Cu 、 ^{65}Ni の量はそれぞれ上記の方法で測定した。中性子束測定のために照射した金箔中の ^{198}Au とニッケル中の ^{58}Co の量はそれぞれ電離箱と γ 線シンチレーションカウンターで測定して中性子束を求めた。

このようにして得られた (n, p) 、 (n, α) 反応によるRIの生成量を対応する (n, γ) 反応によるRIの生成量と比較し、前者の反応で生成したRIが、これら反応のターゲット物質中の不純物の (n, γ) 反応で生成したものと見なした場合のその不純物の見掛けの含量を求め、これらしきい反応が (n, γ) 反応の実験におよぼす影響の度合を検討した。

3. 結 果

照射に用いた各実験孔の熱および速中性子束の大きさを Table 1 に示した。Table 2 に前述のようにしきい反応生成物を (n, r) 反応で生成したものと見なして計算したターゲット中の重量百分率を示した。

ここで用いたしきい反応のターゲット物質中には、極く微量の対応する (n, r) 反応のターゲット物質と同種の元素が含まれており、この (n, r) 反応で生成した RI がしきい反応で生成した RI の量の測定を妨害する。このような (n, r) 反応の影響を見るために、あらかじめターゲット物質中のこのような不純物の量を求めておき、この値と、同時に照射して対応する (n, r) 反応により生成した RI の量とから不純物の (n, r) 反応による RI の生成量を計算し、これのしきい反応収量に対する寄与を求めた。実際にはこのような不純物の含量は非常に小さく、しきい反応による RI の生成量に対する影響は無視し得る程度であつた。

Table 2 に示したように (n, p) 、 (n, α) の反応が (n, r) 反応の実験におよぼす影響は相当大きく、特に熱中性子束に比較して速中性子束の大きい JRR-1 の No. 1 実験孔でこの影響が著るしかつた。

4. 結 論

試料の主成分元素のしきい反応が分析目的の元素の (n, r) 反応と同種の RI を生成する場合に、 (n, r) 反応の実験を妨害する。この研究で取扱つた反応は比較的しきいエネルギーが低く、且つ反応断面積が大きいのでその影響が大きい。

このようなしきい反応の影響は試料の組成、あるいは照射条件によりその度合が異なり、あらかじめ炉内照射位置の熱および速中性子束の大きさの関係や、分析試料の成分元素の種類とその量的関係について十分検討することが必要である。

Table 1

Hole No.	thermal $n/cm^2/sec$	fast $n/cm^2/sec$
JRR-1 No.1	1.3×10^{12}	1.5×10^{12}
No.2	6.4×10^{11}	7.8×10^{10}
No.3	3.9×10^{11}	5.5×10^{10}
JRR-2 pneu- matic tube	3.6×10^{13}	9.3×10^{11}

Table 2

Reaction	Irradiation	Apparent content, %
$^{24}Mg(n, p)$	JRR-1 No.1	0.17 Na
^{24}Na	2	0.017 Na
	3	0.011 Na
$^{27}Al(n, \alpha)$	JRR-1 No.1	0.17 Na
^{24}Na	3	0.010 Na
$^{64}Zn(n, p)$	JRR-1 No.1	0.54 Cu
^{64}Cu	2	0.055 Cu
	JRR-2 pneuma.	0.01 Cu
$^{65}Cu(n, p)$	JRR-2 pneuma.	0.023 Ni
^{65}Ni		

立大 原子力研

○戸村 健児 樋口 英雄

放射化分析によるけい素の定量には従来、主として、 $^{30}\text{Si}(n,\gamma)^{31}\text{Si}$ 反応が利用されてきた。しかし、 ^{31}Si の壊変にはガンマ線をともなわず、放射化学操作の併用が必要である。しかも、2.5時間の半減期は化学操作にはやや短いきらいがある。

一方、14 MeV の中性子を使い、 $^{28}\text{Si}(n,p)^{28}\text{Al}$ 反応により、けい素を定量すること試みられているが、その適用範囲は、けい素を主成分とする鉱物に限られていた¹⁾。

原子炉中に熱中性子と共存する、速い中性子を利用し、 $^{28}\text{Si}(n,p)^{28}\text{Al}$ 反応により生じた ^{28}Al を測定することにより、けい素の含有量が、さらに低い試料についても定量が可能ではないかと思ひ、種々検討した結果、極めて簡単に、鉄中の0.2%程度のけい素も非破壊的に分析することができた。

照射はトリガⅡ型原子炉の回転試料棚で、熱出力100 KW (熱中性子束密度、 $5 \times 10^{11} \text{n/cm}^2/\text{sec}$)にて1分間行った。ガンマ線の計数には、3インチX3インチのNaIのクリスタルを供えた、100チャンネルのガンマ線スペクトロメーターを使用し、1.78 MeVの光電ピーク附近の7チャンネルの和をもって、 ^{28}Al の計数率とした。けい素の標準試料には新日本チツリ製の99.9999%の純度を有する金属けい素の粉末を用いた。

共存する熱中性子を除去するために、約 150 mg/cm^2 のCd板で試料を包み、金属ほう素粉末の入ったキヤアセル内で照射を行った。このような照射条件下で $^{28}\text{Al}(n,\gamma)^{29}\text{Al}$ 反応によるアルミニウムからの妨害がどの程度であるかを検討するため、99.99%アルミニウムを標準けい素と同時に照射した結果、1gのアルミニウムは、3gのけい素の存在に相当する正の誤差を生ずること明らかになった。従って、けい素に比し、アルミニウムの含有量が一般に無視できる鉄試料について、先ず、検討を行った。

すでに、数多くの化学分析で、けい素の含有量が十分知られている、NBSの標準試料をCdで包み照射し、ガンマスペクトルを採り、1.78 MeV 附近における計数の時間変化を調べたところ、 ^{28}Al に重って ^{56}Mn が妨害することを知った。従って、照射終了後すみやかに計数し、 ^{28}Al が減衰し終った頃、ふたたび計数して、 ^{56}Mn の補正をしなければならぬ。2%のけい素を含む鉄試料を照射終了時より2分経過した後、2分間計数した場合に、 ^{28}Al と ^{56}Mn による計数率はほぼ等しく、鉄中のけい素の分析感度は ^{56}Mn によるこのバックグラウンドに大いに支配される。また、 ^{56}Mn の妨害を考慮に入らず、ガンマ線スペクトルをとるのに十分な計数率(ピークの7チャンネルの和で100 cpm位)を生ずるに必要なけい素の重量をもって、分析感度とするならば、それは約 $100 \mu\text{g/g}$ である。

以上の検討の結果、次のような分析操作が採られた。

50~300 mgの鉄試料と約30 mgのけい素の標準試料を、それぞれ薬包紙に包み、なる

べく接近させて、一つのCd板でおおい、100KVで1分間照射する。できるだけ速かにステンレス製の試料皿に試料を移し、2分間1.78 MeV 附近の計数を²⁵Al。次に、同様な条件で標準試料についても2分間計数し、²⁵Alの壊変常数 $\lambda = 0.3094/\text{min.}$ を使い、先の試料と同時刻における計数に換算する。約20分後、試料について、2分間づつ3回計数し、⁵⁶Mnの壊変常数 $0.004984/\text{min.}$ を使い、それぞれの値を試料と同時刻における計数値に直し、3つの平均をとる。最初に試料について測った計数値より、この⁵⁶Mnによると考えられるバックグラウンドを差し引き、標準との比較により、ケイ素の含有量を計算する。

N. B. S. の鉄標準試料 NBS 7 (188% Si) を8回繰返し分析した結果は $2.03 \pm 0.14\%$ 、NBS 5 (2.44% Si) を6回分析した結果は $2.49 \pm 0.14\%$ であった。また、ケイ素の含有量がさらに低い、NBS 4, 130, 133 (それぞれ、134, 0237, 0.41% Si) を分析した結果は 1.46, 0.244, 0.581% Si であった。

以上の結果を見ると、いずれも真の値よりやや高い値を与えるが、非破壊の放射化分析としては精度、正確さともにほぼ満足すべきものと思われる。

また、分析の操作は極めて簡単で、所要時間は1時間に過ぎず、破壊して分析することが許されないような試料については、特に有効な方法だと思われる。

なお、アルミニウムを多く含んでいる、けい酸塩岩石については、アルミニウムによる妨害を補正し、けい素を定量することを検討している。

1) S. E. Turner, Anal. Chem. 28, 1457 (1956)

速い中中性子による核反応断面積 (オキ報)
 TD反応より発生する速い中中性子のエネルギー分布

東北大・理 塩川孝信, 八木益男, 銀治東海, 佐々木貞吉

1. TD反応を利用した東芝NT-20型コックロフトウォルトン型中性子発生装置は、トリチウムターゲット裏面を厚さ0.5 cmの流水槽で冷却しているため流水槽通過による発生中中性子の減速が問題となる。

またトリチウムターゲットは長時間使用した場合、加速重陽子がその表面を汚染し、引いてはDD反応による中中性子も発生する可能性があり、その発生比が問題となる。

前者については流水槽の厚さ0.16 cmで約8%の減速があると報告¹⁾されており、後者のDD反応による発生中中性子数はTD反応による発生中中性子数の25%にも達することがあると報告²⁾されている。

しかし、いずれの場合もその測定に関する詳細は明らかにされていない。

そこで上記の問題を検証するために東芝NT-20型中性子発生装置から発生する中中性子のエネルギー分布を測定することを試みた。

2. 測定法 $1 \times \frac{1}{2}$ スチルベン単結晶を用い Daehnick らの方法³⁾にしたがって測定した。測定法の概略は下図に示した。

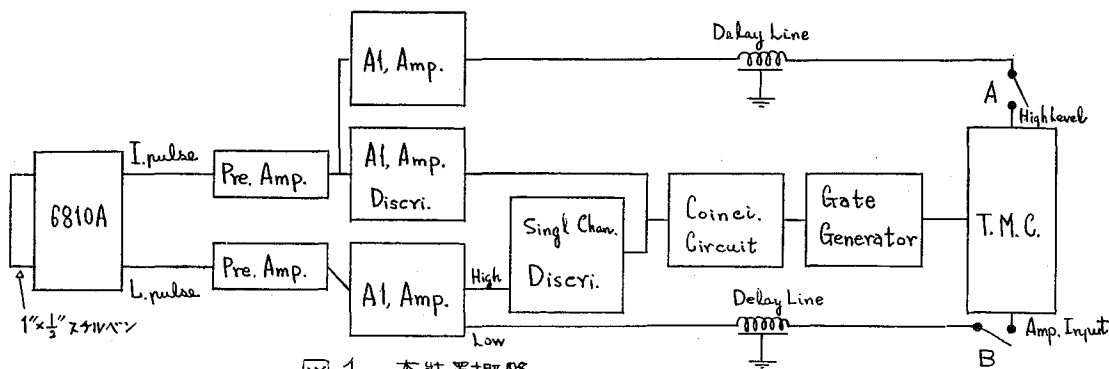


図1. 本装置概略

図のA部を用い、B部を用いて測定すれば図2に示されるようにガンマ線と中中性子はそれぞれ分離される。

この状態でディスプレイモニターも適当に設定してガンマ線を切り、次いでA,B部を逐々に用いるれば、中中性子のみの積分スペクトルが測定される。

3. 実験 直径2.8 cm, 厚さ0.13 mmの銅板, チタニウム蒸着層2.5 mg/cm², トリチウム吸着量4キュリーのターゲットを使用し, 重陽子加速エネルギーは80 KeV および200 KeVとした。

測定点はトリチウムターゲットの中心より距離4 cm, ビーム方向に対して, 0°, 45°

90°, および 135° の位置で図 3. にそれを示した。

各点の測定は発生中粒子束を微小にし、測定精度も上げるためにそれぞれ 100 分づつおこなった。

4. 結果 得られた結果のうち、重陽子加速エネルギー 80 KeV の場合の積分スペクトルを微分したものは図 4. に示すとおりであった。またこれから求めた、このエネルギー領域における分解能は 6% である。またこの実験条件では流水槽を通過する 0° および 45°, 流水槽を通過しない 90° および 135° 方向における中粒子のスペクトルの類似性から流水槽による中粒子の減速は略々無視できる。

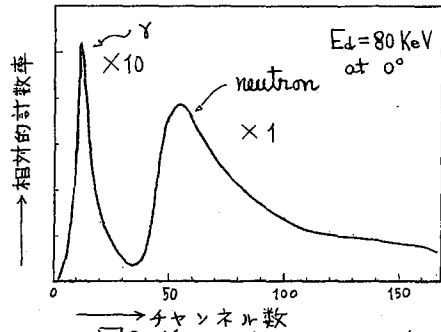


図 2. Y-γ 検出器の例

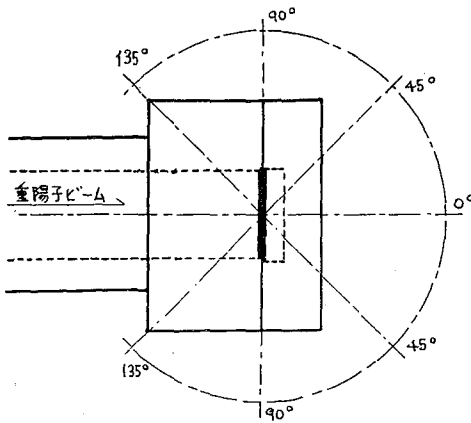


図 3. ターゲット部

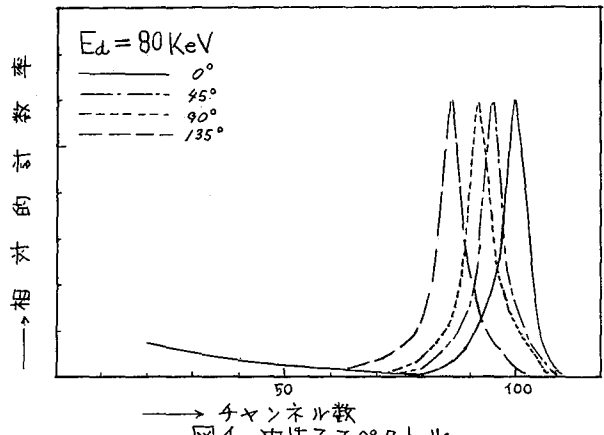


図 4. 中粒子スペクトル

- 1) Manny Hillman : Nuclear Phys., 37, 78 (1962)
- 2) R.G.Wille & R.W.Finke : Phys.Rev., 118, 242 (1960)
- 3) W. Daehele & R.Sherr : Rev. Sci. Instr., 32, 666 (1961)

東北大.理 塩川孝信・八木益男・鍛冶東海・佐々木貞吉

1. 従来, 14 MeV領域中性子による($\pi, 2n$)反応断面積の測定を実施してきたが, 同領域中性子による(π, p)反応断面積に関する知見も甚だ乏しい。

そこで放射化法による ^{23}Na , ^{24}Mg , ^{27}Al , ^{28}Si , ^{52}Cr , および ^{56}Fe 等の13.5~14.8 MeV中性子による(π, p)反応断面積を測定し, 之られた結果に対して若干の核化学的考察を試みた。

2. T(d, π) ^4He 反応を利用した東芝NT-20型, コックロフトワルトン型中性子発生装置を用い, その重陽子加速エネルギーは150~200 KeVとした。

照射試料は妨害核反応の少ない化学形で, かつ高純度物質をえらび, その0.5~1 gをポリエチレンカプセルに詰め, 重陽子ビーム方向に対して, $0^\circ, 45^\circ, 90^\circ$ および 135° で三重水素ターゲットの中心より4cmの位置で照射を行った。

中性子モニターリングはプラスチックシンチレーターを利用し, 照射中の中性子線束密度は±5%以内に維持した。また試料照射位置における中性子線束密度は $^{63}\text{Cu}(\pi, 2n)^{62}\text{Cu}$ (9.73分)または $^{19}\text{F}(\pi, 2n)^{18}\text{F}$ (110分)反応を利用し, その消滅ガンマ線を測定することによって求めた。その際標準とした $^{63}\text{Cu}(\pi, 2n)^{62}\text{Cu}$ 反応の励起関数は下記の文献^{*}を参照した。

生成放射能の測定は, 種々のガンマ線エネルギーに対して予め計数効率を実測した $1\frac{3}{4}'' \times 2\frac{1}{2}''$ 井戸型ヨウ化ナトリウムシンチレーターとT.M.C.256区分波高分析器を用いて行つた。

3. 中性子線束密度は $1 \sim 3 \times 10^6$ n/cm²secであつた。上記の方法でえられた各々の(π, p)反応の励起関数は図1 a, b, cに, 14.1 MeV中性子による核反応断面積は表1に示した。

表 1

核種	^{23}Na	^{24}Mg	^{27}Al	^{28}Si	^{52}Cr	^{56}Fe
$\sigma_{\text{exp}}(\pi, p)$ (mb)	25.2	177	98.0	252	101	129

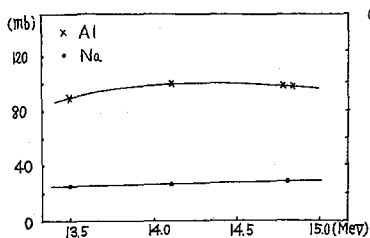


図 1 a

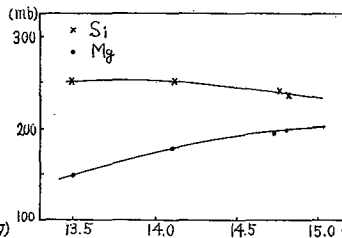


図 1 b

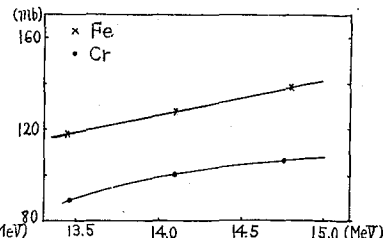


図 1 c

* R.N.Glover and Weigold, Nuclear Physics, 29, 309(1962)

阪大工・近大理工 品川睦明, 玉井忠治, 石黒高志

原子核反応により生成する放射性核種の半減期, 放射線の種類およびそのエネルギーはその核種について特有なものである。またその放射能強度は放射性核種の量に比例する。一方放射性核種の量は放射化に用いられた試料核種の量に比例する。したがって放射化により生成した核種から放出される放射線を測定することにより核種分析が可能となる。

放射化に必要な粒子としては照射試料に対し透過性および反応性の高い中性子を用いた。

本研究は中性子による放射化分析の手段でアンチモンの同位体比を測定することを目的とし, この目的に関し照射に必要な試料の量, その化学形, 照射時間, 自己吸収およびγ線のエネルギーと面積の求め方等の基礎的因子の検討を行った。なお本法で試料としてアンチモンを選んだのは, 同位体分析に通常使用される質量分析法においては, イオン化に要する仕事関数が高く, 安定したイオン流が作りにくいので同位体比測定が比較的困難なためである。

アンチモンの安定同位体として天然に存在する核種は, ^{122}Sb (57.25%) および ^{124}Sb (42.75%) である。これらは中性子の照射により (n, γ) 反応が起るとそれぞれ ^{122}Sb ($T_{1/2}=2.75$ 日) および ^{124}Sb ($T_{1/2}=60.9$ 日) となる。

生成した放射性核種の壊変速度 (A) は, $A = f \cdot n \cdot (-e^{-\lambda t})$ と表わされる¹⁾ こと, アンチモン金属 $1g$ を JRR-1 (JRR-2 にても照射した) にて 1 時間照射すると ($f=3 \times 10^{11}$ $n/cm^2/sec$), それぞれ以下の如くなる。

$$^{122}\text{Sb} \quad A = 6.09 \times 10^7 \text{ dps}$$

$$^{124}\text{Sb} \quad A = 7.53 \times 10^5 \text{ dps}$$

照射試料としては, Sb 金属, SbF_3 , SbCl_3 , SbI_3 , Sb_2O_3 , Sb_2S_3 , 吐酒石等を用い, その採取重量は数 mg から数十 mg であった。

放射線の測定については, TMC-256 チャンネル多重波高分析器 (PHA) を用いて, γ線の測定を行った。使用した結晶は NaI(Tl) 3"-3" のものであった。なお効率も決定されなかったが, 計数効率を計算値より求め, 約 6% とすれば 10^6 カウントは 8.3 μC の ^{122}Sb となる。測定器のγ線エネルギーとチャンネル数との校正曲線の作成は, 標準線源 (^{60}Co , ^{137}Cs , ^{22}Na , ^{24}Am 等) を用いて行った。その結果, γ線エネルギーとチャンネル数との間には直線的な関係があり, この関係を用いて, 測定したγ線のエネルギーを決定した。

^{122}Sb および ^{124}Sb それぞれの存在量の決定法は, 以下の二方法で行った。すなわち,

A) ^{122}Sb のみの標準体と, 同位体比を求めようとする ^{122}Sb (567 keV) および ^{124}Sb (603 keV, 1690 keV) の混合体との対比による ^{122}Sb , ^{124}Sb それぞれの存在量の決定。

B) ^{122}Sb , ^{124}Sb の混合体について, ^{122}Sb から放出するγ線エネルギーのピーク (567 keV) と ^{124}Sb から

放出するγ線エネルギーのピークとの紐さPHAで、各測定時間毎に求め、そのピーク面積についての壊変曲線より、 ^{125}Sb および ^{137}Sb の存在量の決定。である。

A)の方法に用いた ^{125}Sb の標準体としては、JRR-2 ($\phi = 4 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$)にて20分間照射したのち2ヶ月以上放置し、放射化により生成した ^{125}Sb をほとんど完全に壊変させてしまったものを使用した。

なおγ線エネルギーのピーク面積の求め方はCovellの方法により求めた。すなわちγ線エネルギーのピーク面積は

$$A = A_0 + \sum_{i=1}^n a_i + \sum_{i=1}^n b_i - (n+1/2)(a_n + b_n)$$

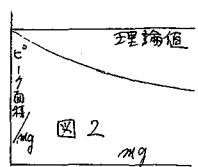
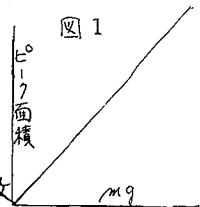
で求められる。ここで A_0 はピークの最大のカウント数、 a_i はどのチャンネルより低いエネルギーの部分のカウント数、 b_i は最大カウントのチャンネルより高いエネルギーのチャンネルのカウント数、 n はどれどれ計算に要したチャンネル数を表わす。

このCovell法により面積を求めるために必要チャンネル数(n)は ^{125}Sb のγエネルギー(564KeV)と ^{137}Sb のγ線エネルギー(603KeV)の混合ピークについては $n=10$ 、1690KeVについては、 $n=15$ にすれば、標準偏差が1%以下となることが判明したので以後この条件を用いた。

また照射時間はJRR-1では1時間以上にする必要はないことが判明した。

なお照射の化学形は、なるべく簡単なもの、酸化物または金属がよいことがわかった。

さらにγ線エネルギーの面積と試料の重量との間には図1のように直線的な対応関係があるが、このような関係にあっても、図2に示すように単位重量の面積を比較してみると理論値より低い。これは ^{125}Sb の自己吸収により、中性子束を部分的に低下させることに基づいたものと思われる。したがって、同位体比を求めるためにはできるだけ少量の試料を用いることが必要である。



また564KeV(^{125}Sb)と603KeV(^{137}Sb)のピークは、使用したPHAでは分別できないので、その混合ピークの面積値の壊変曲線を片対数グラフ用紙にプロットしてみると、 ^{125}Sb の理論的な壊変曲線の勾配と試料の勾配とはほぼ一致している。したがって、 ^{125}Sb からの564KeVと ^{137}Sb からの603KeVのピーク面積は、主として、 ^{125}Sb に基づくものといえる。

なお同位体比の決定に使用した放射化断面積は、熱中性子に対するものを用いた。

甲南大理 日下 讓, 〇辻 治雄

1. まえがき

T-d 反応により 14 MeV 中性子を発生する中性子発生装置は最近著しく改良が進み、諸種の放射能測定器と組み合せて非破壊放射化分析装置として利用できるようになり、迅速な機岩分析法の一つとして発展してきた。

14 MeV 中性子の照射により、ケイ素は $^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$ [$T_{1/2} = 2.3$ 分, $\gamma = 1.78$ MeV], そしてクロムは $^{52}\text{Cr}(n, p)^{52}\text{V}$ [$T_{1/2} = 3.8$ 分, $\gamma = 1.44$ MeV] 反応を生じ、ともに放射化分析による分析感度も比較的高い。本法は諸種の鉄鋼試料につき、ケイ素およびクロムの非破壊放射化分析を試みた研究結果について報告する。

2. 実験

使用した機岩の配例を図 1 に示す。

中性子源：東芝中性子発生装置 (150~200 kV, 100~200 μA , 4C thin target) により中性子を発生させた。ターゲット裏方にセツトした試料照射位置の中心 (ターゲット面より 1.5 cm) における中性子束は $3 \sim 1 \times 10^6 \text{ n, cm}^2, \text{sec}^{-1}$ であつた。なお照射中の中性子束は加速電圧またはイオン抽出電圧などの調節によりできるだけ一定に保つた。中性子照射時間はケイ素分析では 5.0 分、そしてクロム分析では 10.0 分とした。

試料：諸種の鉄鋼切削片の一定量 (7~10 g) を分析試料とした。標準試料には純鉄粉 (99.99 pure) に純ケイ素粉 (99.99 pure) またはクロム粉 (99% up pure) を適当量混合したものの一定量 (5 g または 9 g) を用いた。いづれの場合もポリエチレン製ラビット内に一定容積 (13 mm ϕ \times 20 mm h) になるようにつめた。照射にあつてのラビットの送り込み、および測定にあつての取り出しは同一気送系を通して行った。なお照射位置より NaI シンテレーターの井戸内へのラビット移動時間は 3 秒であつた。

放射能測定法：検出器には井戸型 NaI シンテレーター (1.75" ϕ \times 2.00 h) を用いた。測定器にはシングルまたは 400 チャネル波高分析器を用いたが、比較検討した諸法を次に示す。

ケイ素分析においては

A 法：400 チャネル波高分析器のうち 100 チャネルを用いて、照射直後より 1 分間測定してえられる γ 線スペクトルより 1.78 MeV 光電ピーク面積を求める。

B 法：まず A 法により γ 線スペクトルをとったのち、つぎに波高分析器の store mode を add. より sub. に切換え、照射直後より 1 分間の放射能を先の γ 線スペクトルより差引いてえられる γ 線スペクトルより 1.78 MeV 光電ピーク面積を求める。

C 法：シングルチャネル波高分析器を用い、1.64 MeV 以上の高エネルギー γ 線の減衰を追随し、減衰曲線より ^{28}Al の照射直後の計数率を求める。また照射後 1 分を

いて1分間の同上γ線の計数値より⁵⁶Mnによる寄与分を差引く。

クロム分析においては

A法およびB法：1.44 MeV光電ピーク面積を求める以外は、ケイ素分析のA法およびB法に同じ。

C法：回転試料台（78回転/分）上に2gの分析試料および2gの標準試料入りラビットを並べて同時に中性子照射し、照射后それぞれのγ線スペクトルの1.44 MeV光電ピーク面積に減衰時間補正する。

3. 結果

分析結果の事例を次表に示す。なお化学分析法はJIS規格による。表中の数字は%。

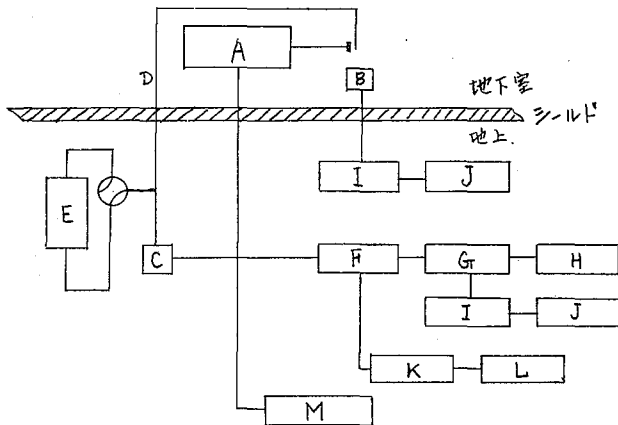
ケイ素分析例

試料	A法	B法	C法	化学分析
特殊鋼	1.30	0.89		1.09
特殊鋼	0.34	0.40		0.35
不銹鋼	0.16	0.40		0.31
不銹鋼	0.20	0.43		0.43
フェロボロン	3.22	3.15	3.11	3.63
フェロバナジウム	5.02	5.24	4.99	5.12
フェロマンガ	1.60	1.74	3.04	2.01

クロム分析例

試料	A法	C法	化学分析
不銹鋼	26.3	24.7	24.84
不銹鋼	18.1		17.34
不銹鋼	14.1		13.40
特殊鋼	5.25	5.05	5.40
特殊鋼	4.05	4.38	4.10

図1. 放射化学分析機器配列図



- A: 中性子発生装置
- B: 中性子モニター
- C: 井戸型 NaI シンテレーター
- D: 気送管
- E: 真空掃除機
- F: 比例増幅器
- G: シングルチャネル線高分析器
- H: スケーラー
- I: 計数率計
- J: レコーダー
- K: RIDL 400 チャネル線高分析器
- L: プリンター
- M: 中性子発生装置制御台

* 甲南大 理 〇日下 讓*, 辻 治雄*

** 東芝中研, *** 東芝玉川 藤井 勲**, 武藤 治文**, 三好 克彦***

1. まえがき

14 MeV 中性子による放射化分析法の適用範囲を明らかにするには、中性子照射法および放射能測定法を一定に選らび、そのときにえられる放射能の種類およびそれらの比放射能強度をできるだけ多数の元素につき実験的に比較検討することが重要になる。本研究においては、迅速な非破壊分析に用いる諸元素の γ 線スペクトルならびにそれらの分析感度を明らかにしようとする。

2. 実験

中性子源：東芝中性子発生装置 (NT-20) により、重陽子流 ($\sim 100 \mu\text{A}$, 150~200 KV) をトリチウムターゲット (4C, thin target) に照射し、14 MeV 中性子を発生させた。試料の照射中は装置の加速電圧またはイオン抽出電圧などの調節により、中性子発生量をできるだけ一定に保った。なお試料照射位置の中性子束の絶対値は Cu の放射化法により測定され、またその相対値はターゲット下方の一定位置におかれた中性子モニター (プラスチックシンチレーター使用、計数率計付属) により、連続測定された。

照射試料：一定量の元素粉末 (ときには酸化物、炭酸塩などを用いた) をポリエチレン製ラビット内に一定容積 (内径 = 1.3 cm, 長さ = 2.0 cm) に詰め、少量試料の充填剤には分光分析用純炭素末を用いた。このラビットを気送管を通して、ターゲット裏面に定められた照射位置に送り、中性子照射する。照射終了後は同じ気送管を通して、放射能測定系に取り出された。(取り出し時間 = 3 秒)

放射能測定器：井戸型 NaI シンチレーター (1.75" x 2.00") 附属東芝 128 チャンネル (または RIDL 400 チャンネル) 液高分析器により γ 線スペクトルが測定された。

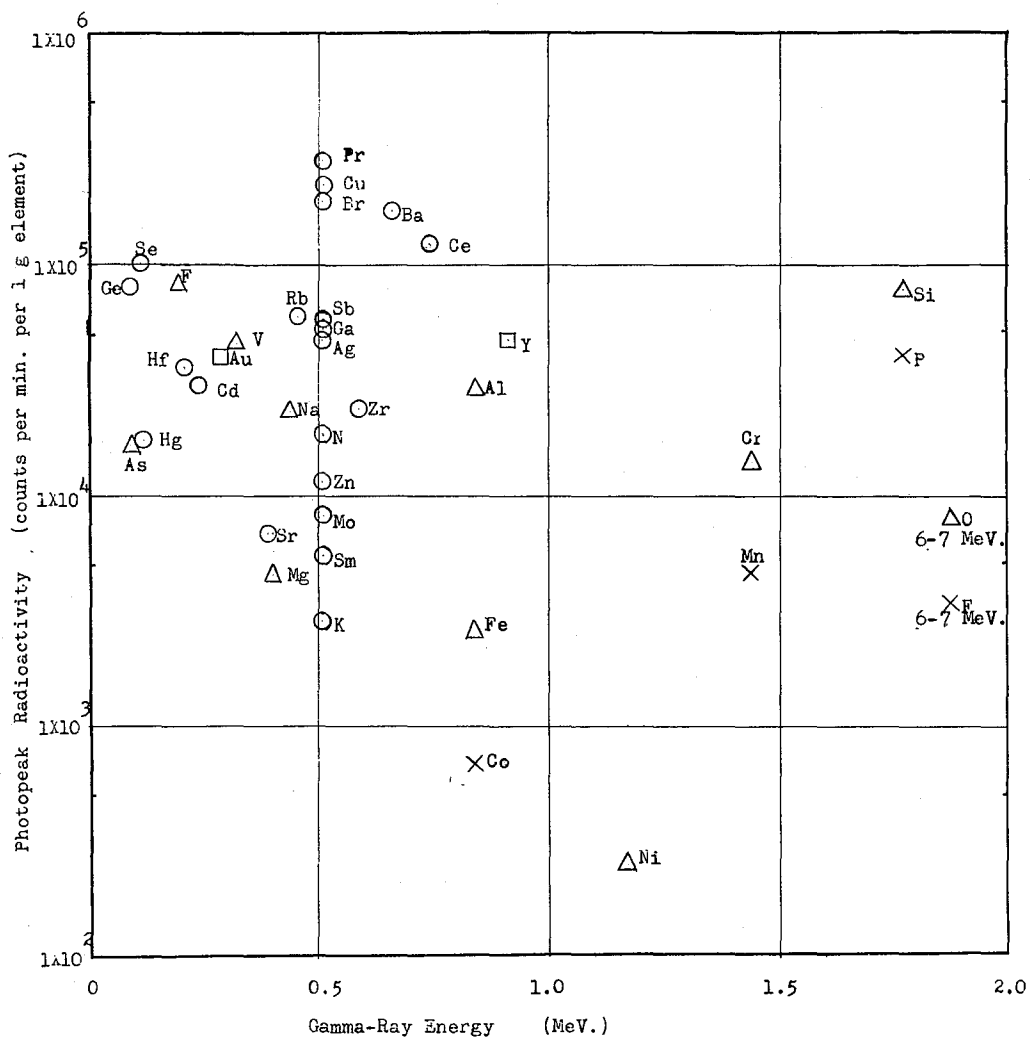
3. 結果

えられたすべての結果を一定の実験条件 (中性子束 = $1.0 \times 10^7 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$, 中性子照射時間 = 10.0 分, 放射能測定時間 = 中性子照射直後より 1 分間, 試料重量 = 元素 1.000 g) に基準化して比較検討した。

えられた光電ピークの大さき、すなわち本法による分析感度の順序に元素を配列すれば、Pr, Cu, Br, Ba, Ce, Se, F, Si, Ge, Rb, Sb, Ga, Ag, Y, P, V, Au, Hf, Cd, Al, Na, Zr, N, Hg, As, Cr, Zn, O, Mo, Sr, Sm, Mn, Mg, Fe, K, Fe, Co として Ni となった。

またこれらの光電ピーク面積をガンマ線エネルギーに対してプロットした図を右に示す。なお S, Cl, Ca, Ti, In, Sn, La, Gd, Dy, Ho, Er, Yb として Ta の諸元素については、放射化分析に有効な光電ピークはえられなかった。

本研究により14 MeV中性子による放射化分析の適用範囲ならびに諸元素の相対的分析感度などが大よそ明確になった。



Sensitivity of Gamma-Ray Spectrometry in 14 MeV. Neutron Activation Analysis

- : (n,2n) reaction △ : (n,p) reaction × : (n,α) reaction
 □ : (n,n) reaction

東芝中研

藤井 勲、武藤 治夫

中性子束がある値を越えて大きくなると試料母体の誘導放射能により測定系の入力側でパイル・アップ現象が起り、計数器に表示される計数値は少ない場合でも測定系が正常な動作をしないおそれがある。現在使用している測定系(シングル・チャンネル)の分解時間は2μsであるからCu試料(試料母体の誘導放射能:約300万cpm)については既に限界に近いと云えよう。マルチ・チャンネル波高分析器は分解時間が長いので中性子束は更に低くても限界に達すると思われた。

2.3 試料母体から生成する放射性核種からの放射線のエネルギー

試料母体から生成する放射性核種からの放射線のエネルギーが高いと、それに応じてジスクリミネータ・レベルを高くしなければならぬので感度は減少する。表2にはγ検出器として1/4"×2"ワエル型NaI(Tl)を使用した場合の各ジスクリミネータ・レベルでの相対的感度(4MeVの場合を1とする)を示す。

表 2

ジスクリミネータ・レベル(MeV)	感度(相対値)
4	1.00
5	0.74
6	0.52
7	0.24
8	0.08

2.4 試料の寸法

試料の量を多くすれば濃度で表わした感度は高くすることができ、中性子源が鉛線源に近いのであまり試料を大きくしてもそれと比例して感度は増大しない。表3はターゲット・アヒングリの場合の試料の長さで相対的感度の関係であるが、この場合には試料が長すぎるとかえって感度は低下する。

表 3

試料の長さ(mm)	感度(相対値)
5	0.75
10	1.00
15	1.01
35	0.69

2.5 検出器用Xtalの寸法および形状

同じ試料母体でも妨害を除くのに必要な最低のジスクリミネータ・レベルはXtalの寸法、形状によって異なる。表4には各種Xtalを使用した場合の試料の母体にもとづく計数値とジスクリミネータ・レベルの関係を示す。ジスクリミネータ・レベルの点からは1/4"×2"が最も適していることになる。

表 4

ジスクリミネータ・レベル(MeV)	試料母体比試計数値(バックグラウンドを1とした相対値)		
	2"×2"ナドホル	5"×5"ワエル	1/4"×2"ワエル
4	1246	289	125
5	163	6.03	9.5
6	24.6	9.2	0.7
7	3.5	1.1	-0.11
8	0.4	0.08	-0.05

2.6 測定系のS/N

測定系のバック・グラウンドを低下させるため10MeV以上にジスクリミネートした。これによりバック・グラウンドを約5~10分の1に低下させることができた。

14MeV中性子による酸素の非破壊迅速放射化学分析法の感度、再現性および試料の偏析の効果などにっき検討を加えた。

1 精度および試料の偏析の効果

1.1 再現性に関する因子

i) 重陽子ビームのトリチウム・ターゲットへの衝突位置

重陽子ビームのトリチウム・ターゲットへの衝突位置が変化すると再現性に影響すると思われたので、その効果を調べたが、ビームの衝突位置が約10mm変化しても再現性にあまり影響しないことがわかった。

ii) 搬送管末端における試料の衝撃位置

試料の衝撃位置は再現性に大きく影響すると思われたので、衝撃位置のずれの影響を調べた。その結果を表1に示す。試料をラビットに入れる場合にラビット中で試料が移動しないように固定することが重要であることがわかった。中性子束の時間的変動に對する自動規格化および衝撃、計数開始時刻の再現性などに関し、てはCRモニタの動特性の解析として2B-24に報告される。

表 1

衝撃位置のずれ(mm)	計数值(相対値)
0	1.00
2	0.77
4	0.68
6	0.55
8	0.50
10	0.38

1.2 試料の偏析の効果の減少

試料中の酸素の偏析の効果を減少させるため重陽子ビーム偏向装置を試作した。重陽子ビーム偏向装置は中性子発生装置の延長管の周囲に偏向コイルを設け、重陽子ビームとトリチウム・ターゲットの有効面全体にわたって走査させ、中性子発生装置を面線源に近づけるものである。

1.3 精度に関する実験

装置の精度に関する実験として、試料にっき再現性のテストを行った。10回のくり返しの標準偏差は2.45%であり、この時の計数値の統計変動は2.24%であるから装置の再現性は非常に良好ということができよう。

2 感度に関する因子

2.1 中性子束

放射化に利用できた中性子束を増大させるためには試料とトリチウム・ターゲットをできるだけ接近させたことが必要である。本装置の場合、試料とトリチウム・ターゲットの最短距離は4mmである。しかし中性子束は次に述べるようにある値を越えて大きくすることはできない。

2.2 試料の母体にもとづく誘導放射能

*東芝玉川, **東芝中研 O三好克彦*, 藤原利夫*, 藤井勲**, 武藤治夫**

1. 概要

14MeV中性子を利用した放射化分析は、中性子発生装置が簡単に入手出来る様になって来たので、近來急速に発達して来た。特に¹⁶O(n,p)¹⁶N反応を利用した酸窒の定量は、その非破壊迅速性から効用の大きいものである。演者らは14MeV中性子放射化分析を工業界で使用出来る様にする為、装置の自動化を計って来たが⁽¹⁾、この中でCRモニタのはたす役割は特に重要である。

一般に放射化分析では生成核種の量を何等かの方法で規格化しなければならぬが、これには3つの方法がある。即ち

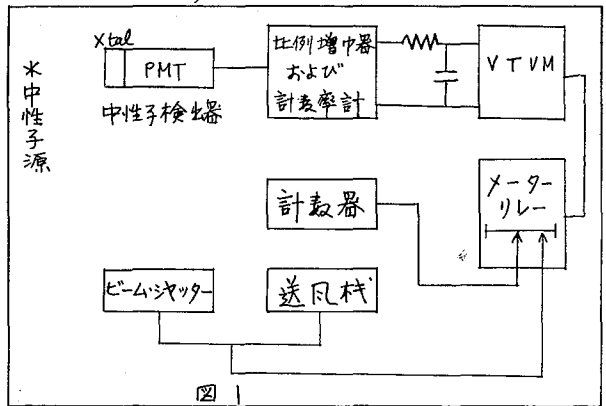
- I 中性子量の積分値を利用する
- II 化学的モニタを使う
- III CRモニタを使う

などの方法である。この内Iは中性子束の時間的変動が無視出来る場合にのみ有効である。従って工業用としては実現が必ずかしい。IIはモニタ試料として被測定試料と同一のものを使う限りらしいが、測定系統を余分に設置する必要がある。IIIはこれを電気回路で革新的に置換えたもので詳細は既に発表してある⁽²⁾。

14MeV中性子放射化分析の精度に及ぼす要因を考えるに当たり、ここではCRモニタに着目して検討を行い、満足すべき結果を得たので報告する。

2. CRモニタの原理

図1にCRモニタの部分のみを取出して示してある。中性子検出器に感じた中性子量に比例した出力を計表率計から得てこれをCRの直列回路に与え、 $CR = \frac{1}{C}$ としておけばCの端子電圧は中性子出力の变化の如何にかかわらず入る壊変率数を持った核種の生成量に比例すると考える事が出来る。そこで常に一定のCの端子電圧で計数を開始すれば、中性子出力の変動に無関係に規格化された値が得られる事となる。従って装置のすべての動作をCRモニタで制御すれば自動化が計れる訳である。



3. 精度に及ぼす要因

CRモニタが全装置を制御するのであるから、CRモニタの各部の動作のおくれ及び再

(1) I. Fujii, H. Muto, K. Ogawa, A. Tani: J. Atom. Energ. Soc. Japan 5, 455 (1963)

(2) 藤井勲, 武藤治夫: 放射化学討論会(金沢) (1962)

現物が問題となる。従ってリレー、メーターリレー、時定数、衝撃時間、計数開始時間などの要因を考えなければならぬ。動作テストに基いては、検出器に入る中性子がランダムなので規則パルスのみテストでは誤まりを金取るおそれがあるのでこの点も注意した。

4. 各要因に対する試験結果

4.1. リレーの接点動作：装置の動作電圧にはすべて商用周波数を使っているので、リレーの動作を調べる際には、少くとも1/100秒迄の時間間隔を測定する必要があるので、微小時間測定器を試作して使用した。この結果動作のおくれは0.01秒以下である事が分った。

4.2. メーターリレーの接点動作：一定のパルスを入れた場合、各設定値の理論的時間とのずれは数%以内であった。再現性も特に問題ではなかった。

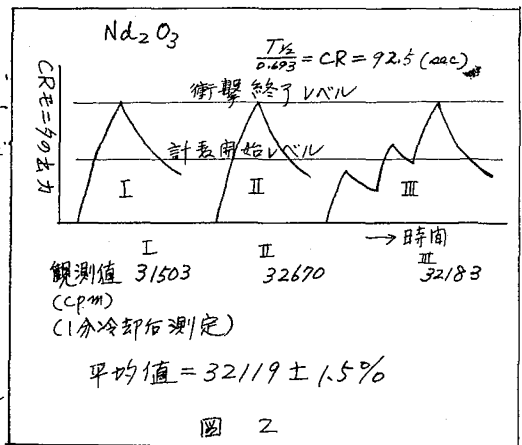
4.3. CR回路の時定数：時定数は核種の生成量に比例するので特に重要である。生成の場合と減衰の場合とが一致していなければならぬが、その他にも連続的に一定の時定数をカーブの各点で要求される。これは中性子出力の変動がどのレベルで起っても充分応答する必要があるからで、この点も充分満足出来る結果が得られた。

4.4. 衝撃時間：一定の中性子出力があった場合、ある設定値に対して常に一定の衝撃時間である事が要求される。この点に關し、規則パルスとランダムパルスについて行い1%以内のバラツキである事を確かめた。なおランダムパルスはCs-137を用いた。

4.5. 計数開始時間：気送系の要求から、衝撃終了時から計数開始迄必要である。従ってこの点は衝撃終了は計数開始の充分上のレベルにあればよいが Routine Workに使う為両者を一定に設定してある。従ってこの間の時間は壊変率に關係した一定の時間ではなればならぬ。このバラツキは1%以下で特に問題ではなかった。

5. 実際の分析の再現性

以上のテストはすべて Hardware であるから、これを実際の核種にあてはめて人手的に中性子出力を変化させて再現性を調べた。選んだ核種は ^{16}O と ^{142}Nd で核反応は $^{16}O(n,p)^{16}N$ ($E_p=6\sim7MeV, T_{1/2}=7.4sec$), $^{142}Nd(n,2n)^{141m}Nd$ ($E_p=760KeV, T_{1/2}=64sec$)である。 ^{16}O については先に発表したが、これより半減期の長いものについても充分使用可能である事が分った。図2に ^{142}Nd の場合の中性子出力の変化と結果を示す。(カーブはCRモニターの出力)



電通研, 東北大選研

○ 工藤 洵, 鈴木 信男

緒 言

同位元素希釈定量法〔鈴木, 日化 80 370, 373 (1959)〕を放射化分析に併用するならば分離操作が簡便化でき, 中性子遮蔽, 収率補正について考慮する必要がなく, 従来法と異なつた新しい放射化分析法となる。この新放射化分析法には直接法, 担体量変化法および通常の放射化分析のように標準試料と比較する比較法の三方法が考えられる。第1報では担体量変化法によるスズ, 亜鉛中の銀, 銅の定量について報告したが(日化第17年会講演), 今回は比較法により, 銅試料中の微量の金の定量を試みたので報告する(比較法については最近 J. Ruzicka らが検討している。Talanta 10 287, 685, 905, 981 (1963))。

原 理

未知試料 M_x , 標準試料 M_s を共に放射化し(生じた放射能はそれぞれ A, A_s), M_x, M_s よりきわめて大きい一定量の担体 M を両者に加え, M より少い一定量の m を分離する。そのときの放射能を a, a_s とすると

$$\frac{A_s}{M_s + M} = \frac{A_s}{M} = \frac{a_s}{m}, \quad \frac{A}{M_x + M} = \frac{A}{M} = \frac{a}{m}$$

$$\therefore M_x = \frac{a}{a_s} M_s$$

となり, M_x は放射能測定のみにより容易に求められる。

実験および結果

ローダミン B による金の溶媒抽出 初めにトレーサーを用い過剰のローダミン B による金の抽出について検討した。塩酸の濃度, 溶媒の種類の影響について検討したが, 溶媒にクロロホルムを用いた場合が最もよく, 例えば水相 0.1~5 N-塩酸 5 ml, ^{198}Au 10 μg 含有, 有機相 0.05% ローダミン B-クロロホルム 5 ml ぶりませ時間 1 分の条件での金の抽出率は 97-99% であつた。なお, 銅, 亜鉛など数種の元素についても検討したが, 例れも抽出されなかつた。

Table Reaction ratio between Au and Rhodamine B

Au taken μg	activity of the extract cpm
30	49200
50	51805
100	54228
200	53130
300	55874
500	54320

acidity 0.3N-HCl, volume 10 ml,
org. reagent $5 \times 10^{-3}\%$ Rhodamine B- CHCl_3 1 ml,
shaking time 2 min.

少い反応量の試薬による金の抽出 金が過剰に存在するときのローダミンBによる金の抽出について検討した。種々の量の金を含む溶液について少い反応量のローダミンクロロホルム溶液の一定量を加え、抽出を試みたところ、金の濃度 $100\sim 500\mu\text{g}$ 程度においては抽出率が一定となり、一定の比率で反応していることが確かめられた。実験結果の一例を示すと表のとおりである。抽出時間の影響、少い反応量の試薬による金の抽出にたいする再現性、同一水相での反復実験にたいする再現性についても検討したが、結果は何れも満足すべきものであつた。さらに、大量の担体 (M) を付加したときの本来含まれている試料 (M_s) の変化にたいする放射能 (a_s) の比例性についても検討したが、結果は図のとおりであり、比例性のあることが確かめられた。

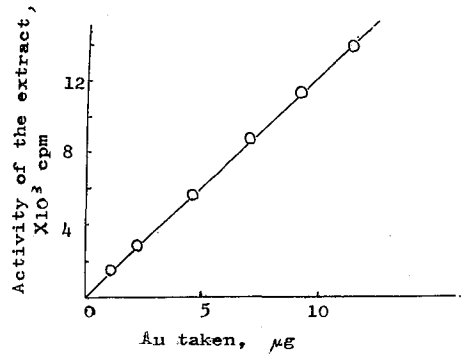


Fig. Relation between the activity and the amounts of Au taken.

acidity 0.3N HCl , volume 10 ml,
 org. reagent $5 \times 10^{-2}\%$ Rhodamine B- CHCl_3
 1 ml, shaking time 2 min., carrier
 content 246 μg

銅試料中の金の定量 以上の諸検討から本法による金の定量の可能なことが確かめられたので実例として銅中の金の分析を試みた。試料および金の標準試料を中性子照射した後、両者に大過剰の金の担体を加え、王水または硝酸で試料を溶解、塩酸を加えて蒸発乾固し、所定の塩酸酸性溶液とする。この溶液について本法を適用し、金の定量を試みたところ、満足すべき結果がえられた。たとえば市販電解銅中の金の含有量は $2.9\sim 3.4$ ppm であつた。

原研

O 梅沢弘一, V. MIHALOVA, 夏目晴天

^{149}Pm はしゃへいされた核種 (shielded nuclide) のひとつであるので核分裂反応の一次独立収率を測定することは割合容易である。また ^{148}mPm と ^{148}Pm を測定することにより核分裂片のうけとるモードに關する知見も得られよう。 ^{148}Pm の核分裂収率⁽¹⁾ について、45 MeV の α 粒子による ^{235}U の核分裂では $^{149}\text{Pm}/^{148}\text{mPm}$ の比が 350 ± 100 という報告がある。また、 ^{235}U の熱中性子による核分裂では質量数 148 の核分裂生成物全収率にたいする ^{148}Pm の収率の比 (fractional independent yield) が 10^{-4} より小さいという結果⁽²⁾ がある。本実験ではこの結果の再検討を目的として、また ^{235}U (n, f) ^{148}mPm の収率を測定することを試みた。

原子炉で中性子照射されたウランの核分裂生成物中に生成する ^{148}Pm の生成過程としては次の二種が考えられる。すなわち、核分裂反応による直接生成、および核分裂生成物と中性子との二次的な核反応による生成である。後者では ^{147}Pm (n, γ) ^{148}Pm によるものが大部分⁽³⁾ あって、 ^{149}Pm (n, 2n) ^{148}Pm の寄与は非常に小さいと考へらる。

ターゲットは八三酸化ウラン (U_3O_8) で、 ^{235}U の存在比は 0.67% である。 U_3O_8 500 mg を石英管に減圧封入し、JRR-2 の VT-4 実験孔で 132 時間照射した。中性子束は 10^{13} n/sec. cm^{-2} である。

照射後 U_3O_8 を 30-40 mg の Nd 担体をふくむ数 ml. の 8N HNO_3 に溶解する。濃塩酸を加えて蒸発乾固することを数回くりかえして HNO_3 を除く。12N HCl 溶液にして陰イオン交換樹脂柱 (ダイヤイオン SA-100, 100-200 ヶツシユ, RCl 型, 8mm ϕ \times 20 cm) を通す。通過液は蒸発乾固してから 6N HCl と水を加えて溶解し 0.2-0.5N HCl 溶液にして陽イオン交換樹脂柱 (ダイヤイオン SK-1, 100-200 ヶツシユ, HR 型, 7mm ϕ \times 10 cm) に吸着させる。樹脂柱を 1N HCl 60 ml., 0.25 M クエン酸 75 ml. で洗う。それから 0.25 M クエン酸アンモニウム ($\text{NH}_4\text{H}_2\text{Cit}$) で希土類元素を溶離する。溶離した希土類元素は溶離液中にある NH_4 と当量の HCl を加えて水で 2 倍以上にうすめて相互分離用の陽イオン交換樹脂柱 (ダイヤイオン SK-1, 100-200 ヶツシユ, NH_4R 型, 10mm ϕ \times 30 cm) に吸着させる。相互分離の溶離液は 0.5 M の α -ヒドロキシプロピオン酸溶液と、そのアンモニウム塩溶液を 7:3 の比で混合したものである。溶出した Pm の部分は他の小さい陽イオン交換樹脂柱 = 本 (7mm ϕ \times 10 cm および 5mm ϕ \times 10 cm) によって濃縮し、かつ有機酸塩を除き、最終的には 0.2-0.5 N HCl 溶液にして、これから測定試料をつくる。

測定は γ 線スプクトロメトリーと 4 π β 計数による。4 π 用試料は試料溶液 1-10 mg をマイラ膜上にはかりシリニリカゲルの乾燥器中で乾燥させる。 γ 測定用試料は試料溶液 200-500 mg を内径 6mm のポリエチレンビンにはかりシリ、Nd 0.5 mg を加え、 NH_4OH を滴下して水酸化物沈殿をつくり、遠心分離により沈殿をビンの底に集めたものである。

照射終了後数十日以上冷却すれば、生成したPmの核種のうち ^{148}Pm (5日), ^{149}Pm (54時間), ^{150}Pm (2.7時間) ^{151}Pm (27.5時間) はほとんど減衰してしまい, ^{147}Pm (2.6年) と ^{148m}Pm (40日) とが残る。 ^{147}Pm は $\beta_{\text{max.}} = 225 \text{ keV}$ の β 線放射のみであるので 4π β 計数で測定した。 ^{148m}Pm は ^{147}Pm にくらべてきわめて僅かにしか存在しないが、 γ 線放射体であるので適当な厚さのAl吸収板で大量に共存する ^{147}Pm の β 線をまぎり、ウエル型のNaIシンチレータ(5" ϕ \times 4")により測定した。

現在までの実験結果からは ^{148m}Pm の fractional independent yield として 4.9×10^{-5} という数値が得られたが、更に検討を加える。

文献

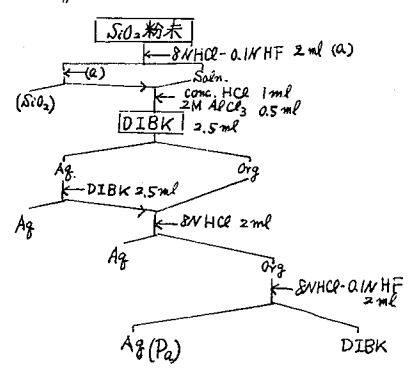
- (1) S. M. Bailey, UCRL-8710 (1959)
- (2) A. C. Wahl, 他, Phys. Rev. 126, 1112 (1962)

天然試料中の²³¹Paの定量は、この核種のα線測定によっているが(1B6参照)、それには線源調製に複雑な操作を要し、また自己吸収や線源ごとのジオメトリーの差に起因する誤差を伴うおそれがある。²³¹Paの(n,γ)の反応により生成する²³²Paを利用する放射化分析法の研究は現在までなく、²³²Paのγスペクトル図も成書に見られない。われわれはNaI(Tl)結晶によるこの核種のスペクトルを求めるとともに、これを利用した²³¹Paの定量法とその感度についての基礎的検討を試みた。なお化学収率補正のため²³³Pa一定量をトレーサーとして添加するので、この共存において実験する。

照射試料の調製: 試料中のPaをあらかじめ濃縮した照射試料として、MnO₂および並ガラスの照射を行ったが、生成放射能が強すぎ、照射後の搬出に問題があったので、これらは予備実験にとどめ、主としてSiO₂粉末による吸着捕集を用いて種々量の²³¹Paをつけた照射試料を調製し、放射化分析の検討をした。この場合吸着条件としては昨年度討論会(2B14)の結果を応用した。すなわちPa, SO₄²⁻を含む酢酸アンモニウム緩衝液(pH3.8~4.0)5mlを、SiO₂粉末カラム(内径3mmのポリエチレン管下部より宮崎商店製SiO₂粉末20~30mesh 25mg, 50~80mesh 50mg, 80~100mesh 150mgと150~200mesh 50mg混合物を7mmφのたけ流速0.09~0.03ml/minで通し、さらに蒸留水5ml, アルコール5mlを通過させてのち充分乾燥させ適当な長さの管の上下を切り捨て、諸材料を一括してカプセルに入れ照射する。

照射と化学分離: JRR-2気送管(C.4x10¹⁹n/sec/cm²)にて20分照射後、SiO₂粉末を各カラムからポリエチレン管(内径1cm蓋付)にうつし、図1の分離操作を行って2mlのPa測定溶液を調製した。

γ測定と定量: 各試料溶液は10分間2004チャンネルγスペクトロメーターにより測定する。測定は同一試料につき日をかえ4日行った。その一例を図2に示す。生成した²³²Paの相対的強度(Ci)はγスペクトルの0.78~1.09MeVに相当する4チャンネルの総カウント数からその間のBGを減じた値をあてる(この減衰が²³²PaのT_{1/2}≒31.7日に伴うことを確認)。一方0.27~0.36MeVに相当する4チャンネルの総カウント数から、その間のBGおよび共存するそれぞれの²³²Paからのこのエネルギー範囲への寄与(²³¹Paのみを照射したもつから実験的に求めた因子をCiに乘じ計算)を差し引いたカウント数と、添加した一定量の²³³Pa 2ml溶液のγスペクトルのこの範囲の総カウント数(BGを引く)との比より、吸着および化学分離の操作における総収



(図1)

率 (Y_i) を求める。吸着に用いた各原料中の ^{231}Pa の量に Y_i を乗じたものを横軸にとり、縦軸に C_i の各測定値をとって、両対数グラフ上に示すと図3を得る。なお ^{231}Pa 最少量の試料 (D) についても、測定時間を長く、スペクトルを中せまく (KeV/ch を大)、測定すれば精度が向上することを鎖線で示す。またマルチチャンネル高分析器を用いず、 ^{232}Pa のみのカウントを Discrit level の選定により測定し、収率 (Y_i) の計算に必要な ^{233}Pa のカウントは ^{232}Pa が充分減衰消滅してから測定により求める方法についても検討した。時間的に問題があるがこの方法も図上 (X印) で示す如く有効であることがわかった。

この図より ^{231}Pa の放射化分析の可能性を確認し得ると共に、その感度についても照射時間をさらに長くし、熱中性子束の値の高い炉を用いれば放射化分析は、精度のよい計測の面倒となる 0.1 dpm の場合にも有効な手段であることがわかる。

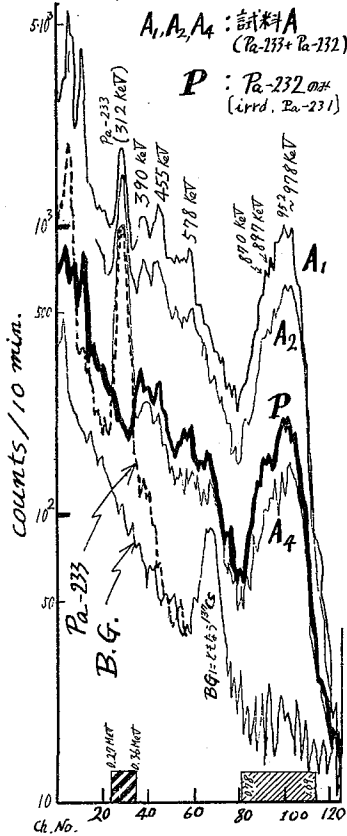


図2 γ Spectra

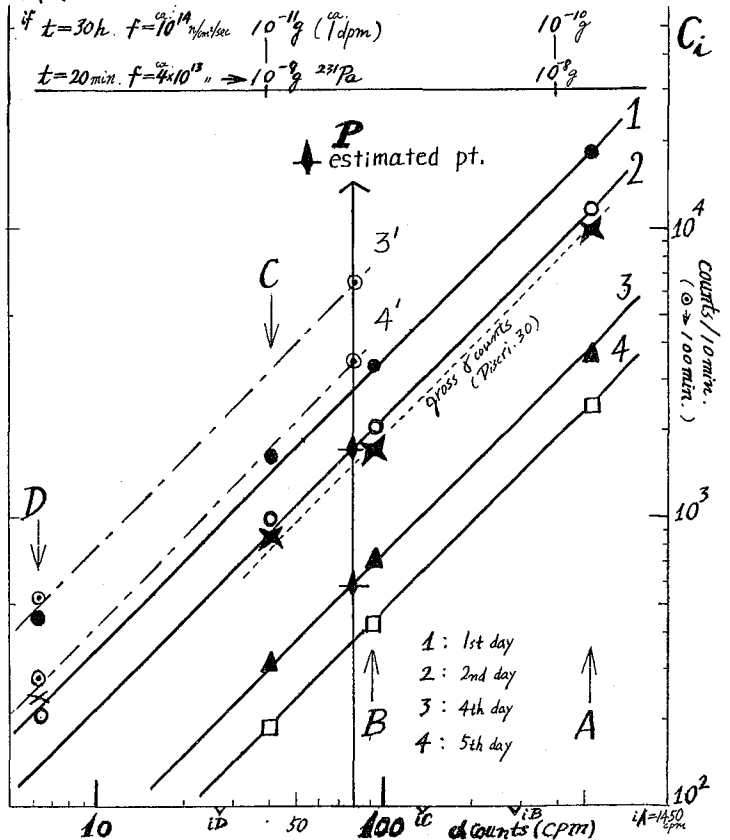


図3 ^{231}Pa (α counts) — ^{232}Pa (γ counts: C_i)

京大化研・近畿大原研 ○合田四郎 重松恒信 西川泰治

1. Inは安定同位体¹¹³In (4.23%), ¹¹⁵In (95.77%)からなり, その放射化断面積は非常に大きい。すでに鉛鉱石, 亜鉛, 金, 岩石, 鉛物中のInの放射化分析に関する報告があり, 中性子束 $10^{12}\sim 10^{13}$ n/cm²sec で 3×10^{-4} % ~ 10 ppm程度の含有試料について分析されている。演者らは中性子束 10^6 n/cm²sec (UTR-B原子炉)でのInの放射化分析法を検討し, In含量の比較的大きい閃亜鉛鉱, 煙灰試料の分析に応用した。

試料中のインジウムはあらかじめ妨害物質から化学分離し, Fe(OH)₃担体に共沈させたのち原子炉中で2時間照射, ¹¹⁵In(n, γ)^{116m}In反応によつて生ずる半減期54分の^{116m}Inの放射能を測定し, 定量した。

2. 試料中の主な共存元素はCu, Zn, Cd, Na, K, Ca, Ga, Siなどで, このうちInの定量を妨害する元素として, Cu, Na, Kが考えられる。これら妨害元素特にCuからInを分離する方法として酸性溶液よりの硫化物沈殿法, In-しゅう化物のエーテル抽出法, 陽イオン交換法を適用することとし, 放射性同位体^{114m}Inをトレーサーとして, それぞれの方法について検討した。

硫化物沈殿法 Cu²⁺および第1族, 第2族陽イオンを分離するため0.3 N-HCl酸性溶液にH₂Sを通じ, その際のInの挙動をしらべた。すなわちCu²⁺ 10 mgを含む溶液に^{114m}In³⁺ (担体 10 μg)を加え, 0.3 N-HCl酸性, 全容50 mlとしたのちH₂Sを十分通ずる。生じた沈殿を東洋濾紙No. 5Cで分別し, 濾液の放射能を処理前の値と比較, Inの共沈率(損失)をしらべた。その結果Inの損失は2%以下であり, 濾液中への回収は良好であることがわかつた。しかし濾液中にはなお微量のCu²⁺が存在する。

しゅう化物-エーテル抽出法 酸性溶液より硫化物を沈殿させたのちなお残存する微量のCu²⁺, およびNa⁺, K⁺よりIn³⁺を分離するためHBr-エーテルによるInの溶媒抽出について検討した。Cu²⁺ 10 mg, ^{114m}In³⁺を含む6 N-HBr溶液20 mlをエーテルエーテル30 ml×3で抽出する。エーテル層を風乾, 濃硫酸1~2 mlに溶解, 純水で全容20 mlとする。その一定量を採り, 放射能を測定, 抽出前と比較して回収率を求めた。Inの抽出回収率は87%程度であり, 一方妨害元素の混入は無視できる。

陽イオン交換法 エーテル抽出法と平行して陽イオン交換法によるCu²⁺, In³⁺の分離についても検討した。0.3 N-HCl酸性に調整した試料溶液をDowex 50 W×8 (50~100 mesh H⁺型)カラム(14 cm×1 cmφ)に流し, 水洗後, 0.6 N HClを溶離液とし, 20 ml/13~14 minの流速で溶離する。Inは放射能測定によつて, Cuはアンミン錯体の比色によつて定量し, 溶離曲線を求めたところ, Inは20~150 mlの間で溶出されるが, Cuはこの程度のHCl酸性では全く溶出されないことがわかつた。なおInは定量的に回収でき

る。

以上の検討結果より、 Im の回収率のよいイオン交換法、あるいは H_2S による沈殿法とイオン交換法の併用によって Im の分離を行うのがよいと考え、次のような操作法を定めた。

すなわち、試料の一定量を石英ビーカーにとり、王水20 ml を加え溶解する。蒸発乾燥後 HCl に溶解、0.3 N- HCl 酸性として H_2S を通じる。沈殿を濾別、濾液に王水を加え蒸発乾燥、0.3 N- HCl 酸性としたのちイオン交換法を適用する。溶離した Im フラクションを合し、 Fe^{3+} 100 mg を担体として加え NH_4OH で $\text{Fe}(\text{OH})_3$ を沈殿、 Im^+ を共沈させる(共沈率99%以上)。沈殿は濾過、乾燥したのち白金ルツボで 600°C 2~3時間灼熱する。 Fe_2O_3 試料を硫酸紙袋(1.5×1.5 cm)につめ、UTR-B原子炉で2時間中性子照射する。30分冷却したのち生成放射能をGM管または3"×3"井戸型シンチレーションカウンターで5分間測定し、標準試料と比較、定量する。

3. 以上の操作により内亜鉛鉱試料3ヶ、煙灰試料8ヶの分析をおこなった。その結果特に煙灰中には 10^{-4} ~0.1%と比較的多量の Im が含有されていることが明らかとなった。本法によって 10^{-4} %以上の Im の定量が可能である。

東芝中研

合志 陽一, 吉田 弘美

油を使用していると、いわゆる劣化がおこるが、これは複雑な現象であり、一つの尺度で簡単に測定することは困難である。しかしその中でも酸化による劣化は、いさくみとめられ、その度合を判定することは、重要な意味があるとされている。一方、今まで行われていた酸素の分析法は、微量の酸素を分析するには、誤差が多くて、油の劣化の度合の判定には使えなかった。われわれは、14 MeV中性子を用いた $^{16}\text{O}(\text{n,p})^{16}\text{N}$ 反応による放射化分析を、油中の微量酸素の定量に応用し、充分より精度で定量できること、油中の酸素量が油の性質と密接に関係していることを知り、ここに報告する。

装置：東芝製中性子放射化分析装置ACTIVACを用いた。検出器のシンチレータは5×5 NaI井戸型。試料容器は、内径12.8mm長さ43mmのポリエチレン製ラビット。検量線用標準試料は、サッカロースモグラファイト粉末に~~まぜ~~てプレス成型したものをを用いた。得られた感度は100~400 counts/mg-oxygenであった。

1回の測定に要する時間は1~1.5分であった。

1) 鉱油中の酸素の分析

ディスプレイレベル：本実験では4 MeVに設定した。この条件では、微量に存在しても妨害を及ぼす元素は、BとFだけであるが、いづれも鉱油の場合は無視できた。

マトリックス効果：黒鉛マトリックス検量線において、油中の酸素を定量すると4~7%高い値が得られ、マトリックス効果があることがわかった。油の種類によっても、軽度検量線の勾配が変化する。

バックグラウンドの変化：バックグラウンドの大部分は、ラビット材質中の酸素によるものである。このバックグラウンドがラビット中に試料が入ると、入っていないとき~~に~~に比べて約8%低くなることがわかった。

マトリックス効果とバックグラウンドの変化を補正して、各種の鉱油、とくに変圧器用絶縁油を分析した結果、0.50~0.05%の酸素を相対標準偏差2.4%で定量できたことがわかった。また、変圧器油の場合劣化による電氣的性質の変化(誘電正接、電気抵抗率)と酸素含有量の向にはかなり良い相関関係があったことがわかった。

2) 合成油(五塩化ジフェニル, 三塩化ベンゼン)中の酸素の分析

マトリックス効果とバックグラウンドの変化は鉱油の場合と大差ない。

ディスプレイレベル：通常の鉱油と異なり、合成油中にはClが主成分として50~60%存在するため、Clが速中性子によって放射化され生じた誘導放射能が妨害を及ぼす。

えりことが認められる。とくに微量酸毒の定量の際には大きな誤差の原因となりうるので検討した。まずディスクリミナイタレベルを変化させて、黒鉛マトリックス中の酸毒による計数値と試料(約0.03%の酸毒を含む)による計数値を比較したところ5MeV以下ではディスクリミナイタレベルを下げると試料による計数値は急に多くなり、 α による妨害がみとめられた。そこでディスクリミナイタレベルを5.5MeVに設定し、本法が非破壊法で、迅速にくり返しができることを利用して、20回くり返してマルチチャンネルバルストアナライザーに加算しディケイカーブをと、右とこを半減期の文献値の $t_{1/2}$ と一致した。以上の二点より α を主成分に含んでおける場合は、ディスクリミナイタレベルを5.5MeVに設定すればよいことがわかった。

以上の検討にもとづき、合成油中の酸毒を分析した結果、合成油は酸化に対する安定性がきわめてよいことがわかった。

日本原子力研究所

本島 健次, 坂東昭次, 今橋 強

金属アルミニウムは中性子吸収断面積が小さく、原子炉材料として多く使用されており、照射容器としても熱中性子捕獲によって生成される ^{26}Al の半減期が短く、放射線損傷が少なく、機械的強度が大であることと合わせて一般的金属材料としては高純度のものが得られ易く、それらの面から適当な材料といえる。しかしながら実際に製造使用されている材質についてははらまらで照射容器として使用した場合、不純物からくる誘導放射能が高く、なかでもJRR-2試用期間において照射したものの中で照射試料よりもアルミニウム容器の方が放射能が高かったという例が数多く見受けられた。これらのことは照射済試料の取扱い上多くの問題がある。これらの観点からわれわれは金属アルミニウム中の不純物についての定量に熱中性子を用いる放射化分析を試みた。試料は現在使用されているJRR-1, 2, 3用容器および数種類のアルミニウム試料を選んだ。中性子照射にあたり、比較的半減期の短い核種をJRR-1の気送管($3 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$)で2時間、また長寿命核種をJRR-2垂直実験孔でSMW($2 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$) / 50時間の連続照射を行った。

短寿命核種 照射後30分放置した試料の放射能核種はγ線スペクトルの解析結果、 ^{64}Cu , ^{56}Mn , ^{72}Ga , ^{24}Na などが同定され非破壊法と陰イオン交換分離法との両方より標準試料との相対比からそれらの存在量を求めた。非破壊法の場合、 ^{72}Ga はγ線エネルギーが ^{56}Mn と相似しており、同時に求めることは不可能で、半減期の差異から ^{56}Mn の減衰後測定することによって求めることが出来る。ナトリウムについては $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ の副反応からの妨害があり、試料をカドミウム板で包み速中性子からの補正を行った。

長寿命核種 照射後約15日経過した試料のγ線スペクトルは複雑で多くの核種が混在し、特に1.1 MeV付近では ^{46}Sc , ^{65}Zn , ^{57}Fe , ^{60}Co のエネルギーが重なり非破壊法を用いることは困難である。われわれはこれらの相互分離に塩素錯イオンを利用する陰イオン交換クロマトグラフィーを用い、樹脂にダイマイオンSA#100, 樹脂柱 $1 \times 13 \text{ cm}$ 流速 0.5 ml/min で分離を行った。12M HClでCr, Sc, 7M HClでHf, 4M HClでCo, 0.5M HClでFe, H_2O でZn, NaOH/Sbが各々溶離される。Scは溶離後TBP-クロロホルム抽出によりCrから分離を行った。溶離液を濃縮しポリエチレン棒状に移して56チャンネル波高分析器を用い標準試料とγ線強度と比較し不純物の量を求めた。いくつかの試料について分析した結果、誘導放射能のために使用するものが不適当なもの(A)および問題の少ないと思われるもの(B)の不純物の含有の程度は表のとおりであった。

P.P.M.

試料	Cu	Mn	Ga	Na	Cr	Sc	Hf	Co	Fe	Zn	Sb
A	1000	300	70	20	30	0.1~0.5	0.5~1.5	0.5~1.0	3000	200	4~6
B	10	20~30	50~70	20	2~5	0.1~0.5	0.5~1.5	0.1	1000	30	0.5~1.0

原子力事業

谷 彰, ○長尾博之, 中山 瑞穂

近年、水銀を含む農薬の広範な使用により食品や生体中の水銀の微量定量法が問題となつている。又産業現場で水銀を取扱う作業者からの生体試料中の水銀の定量も重要な問題である。一般に放射化分析によつて水銀の定量を行う場合、半減期 46.9 日の ^{203}Hg が最も多く使われているが、原子炉の出力が比較的小さい場合には、半減期 65 時間の ^{197}Hg に注目した方が有利と思われる。我々は ^{197}Hg に着目した放射化分析を行う事により、微量水銀の定量法の検討を行なつたので報告します。

実験 各種生体の乾燥試料および試薬特級の金属水銀をポリエチレンのカプセルに封じ、原子炉 TTR-1 にて $100\text{kw} \times 4\text{hr}$ の照射を行なつた。金属水銀の方は濃硝酸に溶解し、希釈して $10\ \mu\text{g}/\text{ml}$ の放射性水銀標準溶液を調製する。生体試料は濃硫酸および 20% 過酸化水素水にて分解した。(例えばラットの肝臓の場合、乾燥試料 100 mg に対し還流冷却器をつけた 25 ml 用梨形フラスコ中で濃硫酸 3 ml を加えて 30 分間加熱し、次に 20% 過酸化水素水を液の色が透明となるまで滴々加え 30 分間加熱した。これらの量や時間は試料の量や分解の難易に応じて加減すればよい。)

溶液中の水銀の分離には同位体交換法を適用した。即ち上例の溶液に対しては 1 g の金属水銀を加えて 10 分間振盪し、水銀層を分離して蒸留水で 4 回洗い、これを濃硝酸に溶解後希釈して 3 ml とする。 ^{197}Hg のエネルギーは $78\ \text{keV}$ とかなり低く、水銀による吸収が大きいので、これを補正するため比較用の標準溶液にも同量の水銀が溶けている様にした。これらを各々ポリ棒ビンに入れ、 $2^\circ \times 1\ \text{cm}$ のウエルタイプ NaI シンチレータにて測定した。又 エネルギーのピークは 256 Channel Pulse Height Analyzer にて分離し、収率および検出感度等はこのピーク面積より算出した。

結果および検討 生体試料を分解する際、水銀の loss が問題とされている。放射性水銀を用いてこの点を検討した結果、還流冷却器をつけて分解を行えば、水銀の loss は無視出来る事が解つた。又分解溶液を金属水銀で振る場合水銀の量および振盪時間によつて揮出率は変化した。更に生体試料中には多量の Na, K 等が存在し、強く放射化されるので水銀層に混入すれば、測定の際に困難な問題が生じて来るわけであるが、これらの混入は全然みられなかつた。従つてこの分離法は迅速且つ有力な方法である。上例の如く 1 g の水銀にて 10 分間振盪した場合には化学収率は 90% であつた。

中性子照射条件が $100\ \text{kw} \times 4\ \text{hr}$ で測定を 60 分行つた場合には ^{197}Hg による水銀の検出限界は、 $0.08\ \mu\text{g}$ であつた。照射時間および測定時間を長くすれば更に限界を広げる事が出来る。

通 研

○ 川 島 敏 , 松 田 吉 夫

1 緒 言

最近、高純度タンタルが各種の材料として広く用いられるにつれてその不純物が問題となりつつある。タンタルの不純物の分析法としては、すでにいくつかの化学的方法¹⁻⁴⁾や発光分光分析法^{5,6)}が報告されているが、いずれも高純度タンタルの分析法としては分析感度が低く、不十分なものである。

そこで、非破壊および化学分離法による放射化分析法を検討し、高純度タンタル中の不純物、Nb, Na, Mn および W の定量法を確立したが、ここでは Nb の定量法について検討した結果を報告する。

Nb の放射化分析に関しては、鉍石中の Nb を定量した Brownlee⁷⁾ の報告、ならびに岩石、グライフアイトおよびステンレス鋼中の Nb を定量した Kim および Meinke⁸⁾ の報告があり、いずれも ^{94m}Nb を利用したものである。

ここで報告する Nb の定量法も同じく ^{94m}Nb を用いる方法によつたものである。

2 実 験

装置：多重波高分析装置 (RCL, TMC, 東芝)

1. ¼ inch φ × 2 inch 井戸型 NaI シンチレータ付。

試薬：⁹⁵Nb トレーサ-溶液, Nb 担体溶液, Nb 標準溶液, 高純度タンタル。^{*}

中性子照射：原研, JRR-1, 立教原研 TRIGA-II で 30 分照射。

γ線スペクトロメトリ：時刻 t から Δt 時間 (sec) 計測したときに得られた 16.6 KeV 光電ピークの強さ (高さあるいは面積) から次式によつて時刻 t における 6.6 m^{94m}Nb の計数率 R_t を求め、数点の R_t から時刻 t = 0 における R₀ を求め、標準試料のそれと比較して定量した。

$$R_t = A \cdot 0.693 / t_{1/2} \left[1 - \exp(-0.693 \Delta t / t_{1/2}) \right]$$

操 作

1. ⁹⁵Nb および Nb 担体と共に, HNO₃, HF 混酸で試料を溶解する。
2. 硫酸を加え, ~6 N H₂SO₄, 0.1 f ~ 1 f HF 溶液とし, MIBK 溶媒抽出により Ta を分離
3. 水相を分離し, γ線スペクトルをとる。
4. 後に, ⁹⁵Nb の γ線スペクトルをとり収率を決定する。

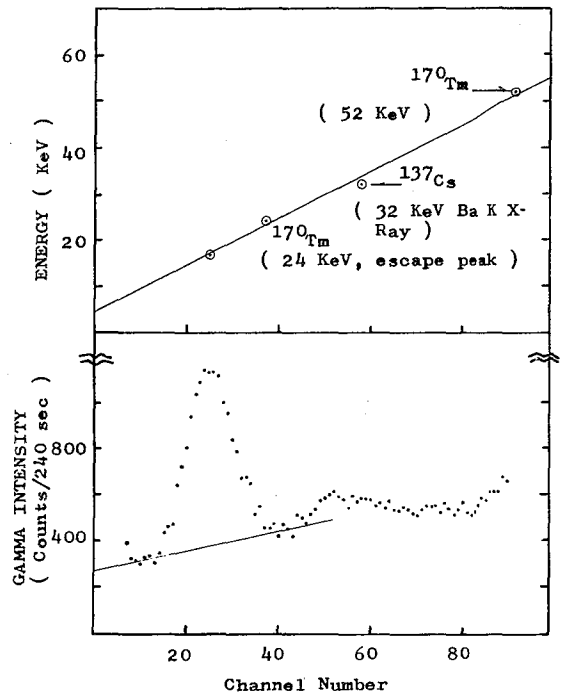


Fig.1. Gamma spectrum for the aqueous phase
Sample; Ta-VIII-3, Reactor: TRIGA-II, St.
Paul Univ., Irradiation: 30 min.
Count: 13 min after the end of irradiation.

3 結果 および 考察

中性子照射したタンタル試料から分離したNbを含む水相について得られた γ 線スペクトルをFig. 1. に示した。エネルギーの決定ならびに半減期の測定から、そのスペクトルの光電ピークが、 $6.6\text{ m }^{94\text{m}}\text{Nb}$ によるものであることを確かめた。そこで、各試料について、 16.6 KeV 光電ピークの強さを測定し、 ^{95}Nb トレーサーによつて定めた化学収率を用い、Nb量を決定した。その実験結果をTable 1. にかゝげた。

Table 1 から明らかによりに、こゝに示した放射化分析法によれば、高純度タンタル中の数ppmのNbを容易に定量することができる。

Table 1. Determination of niobium in the high purity tantalum metals by radioactivation analysis.

Sample	Wt. of sample (mg)	Radiochemical yield (%) ^a	Nb found (ppm) ^b	
* Nihon Soda K.K., NH-1211	Ta-I-1	226.9	82	2.7
	-2	215.7	81	2.2
	-3	238.8	80	2.6
	-4	155.8	85	2.8
NH-3031	Ta-II-1	230.7	80.3	1.82
NM-3012	Ta-III-1	243.7	79.7	2.40
Hermann C. Starck, Germany HS-3210 CL	Ta-IV-1	237.0	60.6	84.8
	-2	202.0	78.8	6.08
	-3	209.7	74.6	8.18
	-4	200.0	58.7	5.30
	-5	186.0	64.6	8.18
HS-3210 CU	Ta-V-1	258.2	82.6	7.08
Kawecki Chem. Co., U.S.A. HPKL-893C HPK-887C	Ta-VI-1	241.5	83.8	2.56
	Ta-VII-1	240.0	78.7	2.68
Johnson Matthey, England. J.M. 616	Ta-VIII-1	227.6	26.0	16.6
	-3	196.3	55.7	28.3 ^c

a: Radiochemical yield was determined by comparing the activity of 0.76 MeV niobium-95 photopeak due to the sample with that of standard.

b: determined by the use of photopeak height intensity.

c: determined by the use of photopeak area intensity.

REFERENCES

- 1) P. Greenberg, Anal. Chem., 29, 896, 1957
- 2) K.S. Bergstresser, Ibid., 31, 1812, 1959
- 3) A.R. Gahler et al., Ibid., 33, 1937, 1961
- 4) E.M. Penner and W.R. Inman, Talanta, 9, 1027, 1962
- 5) D.I. Ryabchikov et al., Trudy Komiss. Anal. Khim. Akad. Nauk. SSSR, 12, 82, 1960
- 6) N. Oda and M. Idohara, J. Japan Inst. Metals, 25, 52, 1961
- 7) J.L. Brownlee, U.S. AEC Rept. TID-6311, 1960
- 8) C.K. Kim and W.W. Meinke, Anal. Chem., 35, 2135, 1963

東北大学

岡 好良, 加藤 豊明, 齊藤 達弥, 野村 敏一

海水中に存在する元素の存在量については、従来、多くの研究が行なわれており、Sverdrupらの著書“Ocean”およびその後の文献によつて、少なくとも46種の元素の濃度も知られてきたが未だ濃度が明らかでない元素も多い。それらはその存在濃度が著しく微小なことに分離分析法の検討が不充分なために信頼すべき定量値が得られなかつたことと考へらる。

著者らは先に海水中の金の含有量と中性子放射化分析法によつて求めて報告したが、(岡, 加藤, 佐々木, 日化, 85 No.10 (1964)) 本研究では、引き続き金の定量値を得る目的の研究と進め、さらに、海水中の存在濃度が未だ明らかでない微量重金属の中からSb, Zr, HfおよびInと遜いで同じく中性子放射化法によつてその定量を試みた。また、トレーサーとして使用して各元素の分離、汚染除去方法の検討を行なつた。

試料海水は東北地方太平洋側近海の表面水9種を用い、Auの定量にはこれら海水4mlを内径10mmの石英管に乾固封入して照射試料とした。Sbその他の重金属の場合には海水1mlより30mgのMnO₂によつて共沈捕捉したものを照射試料とした。照射はJRR-2原子炉の熱中性子束、 2×10^{13} n/cm².sec. により130時間行ない、約1週間冷却してからそれぞれ分離測定と行ない標準試料と比較定量した。

Auの分離分析法は、照射後の海水蒸発残渣にAu担体60mgを添加し、王水、塩酸で処理した後、3mol/l HBr 溶液として酢酸エチルで抽出し、抽出液を3mol/l HBr で3度洗浄を繰り返してから蒸発乾固し、残渣を6mol/l HCl 溶液としてハイドロキノン水溶液により金を還元、濾別、洗浄して測定試料とし残留する¹⁹⁸AuとG-Mカウンタで測定した。収率は約95%であり、¹⁹⁸Auの放射化学的純度は高いことと確かめた。また、あらゆるAuの定量に標準海水を0~6ml添加し乾固した試料について中性子遮蔽の影響を検討したがその影響は実験を行なつた乾固範囲で認められなかつた。35°21'~41°20'N, 142°31'~145°42'Eの範囲で採取した表面海水9種について、4~88 μg Au/m³ という定量値を得た。

Sbその他のについては、あらゆる¹²⁴Sb, ⁹⁵Zr, ¹⁸¹Hfおよび^{114m}Inを用いてMnO₂による捕集率とポテンシャルがいかにもよく捕集できることと確かめた。照射後の試料よりSbの分離は、担体添加の後、陰イオン交換、イソプロピルエーテル抽出、硫化物としての沈澱法等を組み合せで行ない¹²⁴Sbを測定し、ZrおよびHfは酸性リン酸塩としての沈澱; TTA抽出, BaZrF₆およびBaHF₆の沈澱、フェニルアルゴン酸塩の沈澱法によつて分離、汚染除去し、H₂SO₄-Dowex 50系の陽イオン交換法に相互分離し⁹⁵Zrおよび¹⁸¹Hfを測定した。Inについては、陰イオン交換、ハロゲン化水素酸溶液よりの抽出、オキシニルとしての沈澱等と組み合せ^{114m}Inを分離測定した。

数種の海水について、Sbその他の微量重金属を定量した結果について報告する。

理 研 野 崎 正

$^{14}\text{N}(p,\alpha)^{11}\text{C}$ 反応を用いて pyro-graphite 中の数十 p.p.b. の窒素の定量に成功した。今までに報告されている微量窒素の分析法は、graphite に適用できないか、または、感度が足りない。また、どんな表面でも、一度空気に触れたら、窒素を吸着していると考えねばならぬ。 $^{14}\text{N}(p,\alpha)^{11}\text{C}$ を用いる放射化分析では、表面窒素の影響を除くことができ、検出限界は数 p.p.b. である。ホウ素の $^{11}\text{B}(p,n)^{11}\text{C}$ が唯一の妨害となる。Pyro-graphite とは有機物の熱分解で生じた graphite のことで、ここで用いた試料は、ほぼ単結晶の光沢ある板である。最近、ビリジンから作った pyro-graphite は、半導体として大変興味ある性質を持つことが見出され、これは微量の窒素に基づくと考えられる。pyro-graphite を陽子照射すると、 $^{13}\text{C}(p,n)^{13}\text{N}$ で ^{13}N が多量に生じ、また、不純物から長寿命核種のできる可能性もある。そこで、 ^{11}C を正確に測定するには化学分離が必要である。木羽氏等の開発した強リン酸中での酸化法²⁾は、試料の分解に大変有効である。この場合、graphite 自身が ^{11}C の carrier となる。

励起関数の測定 約 2.2 mg/cm^2 のナイロン膜を薄いアルミニウム箔中に挟み、それを stack にして、核研の 15 MeV の陽子で照射した (9.2 秒間、総陽子流 $5.0 \pm 0.1 \mu\text{Coulomb}$) のおの試料を真鍮板で挟んで、annihilation radiation を single channel analyser を用いて測定し、 ^{22}Na の標準を用いて校正した。 ^{11}C と ^{13}N 以外の核種はほとんど生じていなかった。ナイロン中での energy loss は、各構成元素の単体に対する値の和をとると大きくなり過ぎる。そこで、適当な値を選んで励起関数の低エネルギー部分が Blaser 等の求めたもの³⁾と一致するようにするより仕方がなかった。才 1 図に結果を示す。炭素中の 1 p.p.m. の窒素を 15 MeV- $1 \mu\text{A}$ の陽子で照射すると、total saturation-activity は 5.3×10^3 d.p.s. となる。

表面窒素の問題 stack 中のアルミニウムを ^{11}C を測定して mean recoil range を求めたところ、1.42 MeV の陽子のときは、 0.36 mg/cm^2 であつた。以前に、 $^{16}\text{O}(\alpha, pn)^{18}\text{F}$ の場合は、 ^{18}F の mean recoil range の 5 倍だけ表面を削りとなれば、表面窒素の影響を除けることを示した。そこで、今の場合は 1.8 mg/cm^2 だけ除去すればよいことになる。

化学操作 Graphite 板 ($30 \times 10 \times 2 \text{ mm}$) を照射 (15 MeV, $5 \mu\text{A}$, 10 分) し、表面部を除いてから、微細粉とした。化学分離の装置を才 2 図に示す。A と B は適当な圧を加えるため、C は亜硝酸ガスの発生器、D は酸化フラスコ、E は吸収フラスコ、F はさらに精製を要する場合に用いる予備フラスコである。D と E には図中に記した物質を加え、加熱し、一方、D と E 中の空気を亜硝酸ガスで置換した。この置換は発生する二酸化炭素の E 中での吸収を効率よくし、また、亜硝酸ガスは ^{13}N の hold-back carrier となる。E 中のアルカリ溶液は、はじめ石油ベンジンで覆っておくとよい。E 中の四塩化炭素は二酸化炭素の逃げないことを保証し、また、内部の圧を適当に保つ。D が $160 \sim 170^\circ\text{C}$ になつたら、試料粉末を加える。二酸化炭素が発生してきたら E を振りまぜる (このとき E 中の有機相は一液相になる)。A の加熱を続け、 240°C になつても反応が弱ってきたら、過塩素酸 (65% 数 mL) を注意深く滴下する。これは反応の純結を 進し、また、生じた単体ヨウ素を酸化することによつて反応の完結の確認を容易にする。反応が完結したら、亜硝酸ガスを流して、D 中に残っている全ての二酸化炭素を F へ導いた。水酸化ナトリウム溶液に hydrazine hydrate を加えてから、炭酸バリ

Excitation Function

- : $^{14}\text{N}(p,\alpha)^{11}\text{C}$
- - - : Nylon(p, α) ^{13}N

- (A) : for energy loss
for $6\text{C} + \text{N} + 5.5\text{H}_2$
- (B) : for
 $\frac{1}{4}(6\text{C} + \text{N} + 5.5\text{H}_2) + \frac{3}{4}\text{C}$
- (C) for C

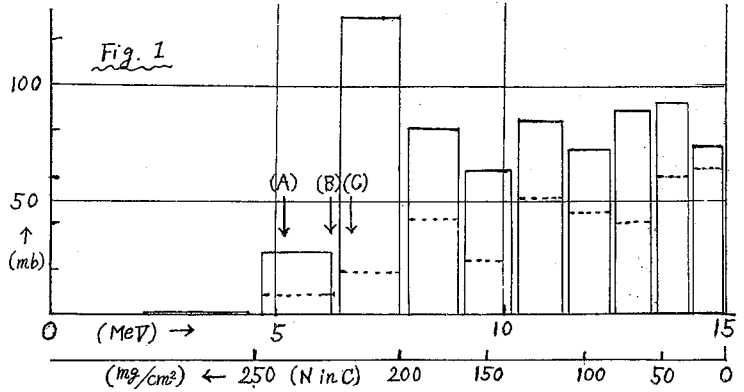
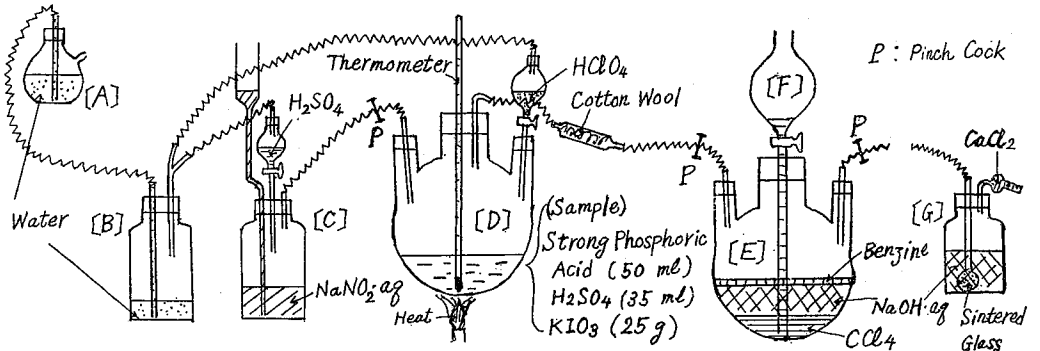


Fig. 2
Chemical Process
Device for the



ラムの沈澱を作った。炭素の回収率はほぼ定量的であるが、生ずる炭素バリウムが多量なので、その一部をとって放射能測定を行った。

結果 照射後の操作は40~50分ですみ、崩壊曲線もγ線スペクトルも満足なものであつた。ピリジンから作った pyro-graphite は 1 p.p.m. から数 p.p.m. の窒素を含み、プロパンからのものは数百 p.p.m. 以下であつた。

とくに討論を希望する事項

- (1) 化合物、とくに水素を多く含む化合物中での charged particle の energy loss
- (2) 強リン酸化法の放射化分析への応用

- 1) Furukawa M. et al., J.phys.soc.Jap., 15, 2168 (1960)
- 2) 羽敏泰, 化学と工業, 11, 730 (1958)
- 3) Blaser J.P. et al., Helv.Phys.Acta. 25, 442 (1952)
- 4) Saito K. et al., Intern.J.appl.Rad.& Isotopes, 14, 358 (1963)

阪大埋

久米三四郎 三藤安佐枝 岡村日出夫 音任清輝

さきにわれわれのグループは、 $Ag+\alpha$ 反応の励起函数を放射化学的方法によつて測定し核反応の統計論の計算と比較した。その結果 Fermi gas model にもとづいたエネルギー単位密度式 $C \exp\left\{-2\left\{a(E-d)\right\}^{1/2}\right\}$ 中のパラメーター a の値を $2 \sim 3 \text{ MeV}^{-1}$ にとることによつて実験を説明することができた。唯、この a の値が Fermi gas model から予期され、又放出粒子のエネルギースペクトルから得られる $A/10$ 程度の値に比して小さいことが問題として残っている。以前には a が $A/10$ 程度でないことを論証なしで非複合核過程の寄与であるとして片付けていた。最近複合核過程を前提とし、複合核の角運動量の影響を考慮して計算すれば、 $A/10$ 程度の a の値で実験結果が説明できるという提案を Grover がしている。

非複合核過程の寄与にせよ、複合核の運動量の影響にせよ、入射粒子は異なるが同じ複合核を与える反応について Ghoshal 実験を行えばかなりはつきりした結論が与えられる。前回の放射化学討論会では $Cd+p(E_p=15 \text{ MeV})$ 、 $Cd+d(E_d=20 \text{ MeV})$ の反応について発表した。それによれば反応は複合核過程で進行し、複合核の角運動量の差も励起函数には実験誤差以上には影響を与えないことを確めた。今回は Cd と F M サイクロによる 3.5 MeV の陽子との反応について調べさきに得た $Ag+\alpha$ 反応の結果と全面的な比較を行うことを目的にし実験した。

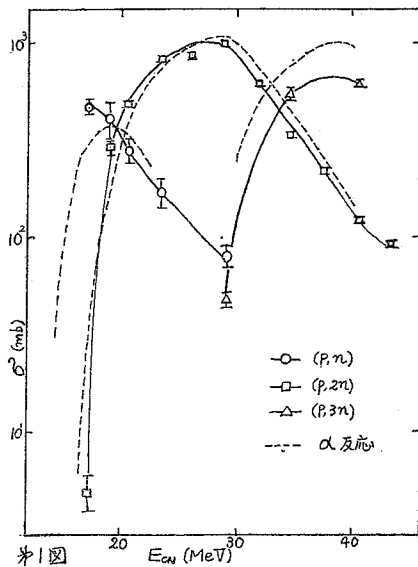
一方、核異性体生成断面積比の入射粒子による変化からも複合核の角運動量の差が調べられる。さきの $Ag+\alpha$ 、 $Cd+p$ 、 $Cd+d$ の反応で得た結果は、入射粒子による断面積比の差が n 放出反応についてかなり顕著にあらわれることを示した。今回の実験では主として、 $3n$ 放出反応についての断面積比を測定した。

(実験) ターゲットには、凝縮同位元素 $^{112}\text{Cd}(98.87\%)$ を使用し、シアン溶液よりアルミニウム箔上に電着した後剥離して約 3 mg. cm^{-2} の箔とし、エネルギー減衰用の Al 箔と積重ねた。ターゲットは原子核研究所の F M サイクロトロンからの陽子 $55.3 \pm 0.3 \text{ MeV}$ で衝撃した。測定は箔のまま行つた。 ^{112}In については、(14.5分)及び(20.7分)ともに消滅放射線を測定し崩壊曲線を解析して相対値とし、絶対測定は二直角同時計数法で ^{22}Na 標準線源を用いた。 $^{111}\text{In}(2.8 \text{ 日})$ はカスケード γ 線を利用して同時計数法を行つた。 $^{110}\text{In}(66 \text{ 分})$ は 0.66 MeV の γ 線、 $^{110}\text{In}(4.9 \text{ 時間})$ は 0.38 MeV の γ 線の崩壊曲線をそれぞれ解析し相対値をきめ、絶対測定はスペクトルの割離法を行い、両者共 0.66 MeV のピークの値を ^{137}Cs 標準線源をもつて決定した。

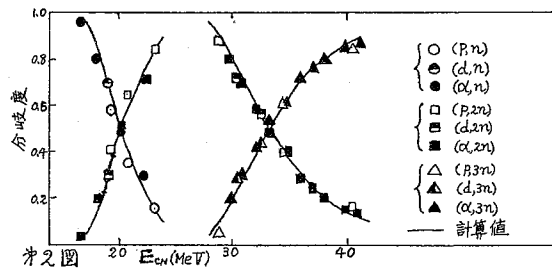
(結果と検討) 全断面積 実験で求めた断面積の和は、光学拡散模型による計算値の妥当性を物語っている。反応の分岐度 今回の実験結果と以前我々のグループの得た結果を Ghoshal 実験と同様の方法で比較したのが第1図に示してある。縦軸は断面積である。入射粒子の違いによつて全反応断面積が異なるために励起函数では直接比較出来ないが、第2図にはそれぞれの反応を全断面積で割つたもの(分岐度)を示した。又第2図には統計

論による計算値が曲線で示されてある。但し $n-2n$ 反応領域では $a=3\text{MeV}^{-1}$, $2n-3n$ 反応領域では $a=3\text{MeV}^{-1}$ を用いた計算値である。実験値は粒子が異つていながらもかかわらず分岐度が実験の誤差内で一致しているし又小さな a の値ともよく一致している。このことから小さな a を非複合核反応の寄与とすることは出来ない。次に、小さな a を複合核の角運動量効果による γ 線の競争で説明した Grover はその例として $^{109}\text{Ag}(\alpha, n)$ ^{112}In について計算を行っている。この計算に用いたパラメーター $a=11\text{MeV}^{-1}$, $I=0.21$ を用いて計算した結果を実験値と比較したのが第3図 a 及び b である。横軸は閾値からのエネルギーであり縦軸は a 、 b それぞれ $2n$ 反応、 $3n$ 反応の分岐度である。又点線は α 粒子反応の計算値であり割線は陽子反応の計算値である。いずれの場合も計算値は入射粒子の違いによつて著しく分岐度が異つていゝ。しかるに実験の分岐度は誤差内で一致している。このことから小さい a を角運動量で説明するのは無理であることが分る。核異性体生成断面積比 入射粒子の違いによる核異性体生成断面積比曲線の違いははつきり実験に現れており、又この違いは定性的にはあるが角運動量の sharp cut off 近以て妥当であることが説明できる。

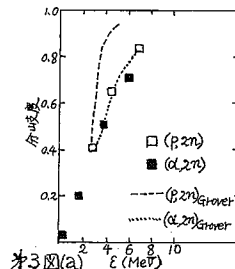
(結論) 核反応過程では粒子の違いによる角運動量の変化は核異性体生成断面積比ではつきり認められるが、分岐度に粒子の違いが顕著にあらわれれば小さな a で計算値と一致する。このことから、小さな a の解決は角運動量には関係がなくて複合核反応機作の中に求められるべきであることが分る。



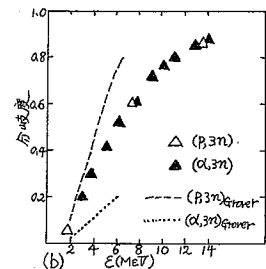
第1図



第2図



第3図(a)



(b)

東大核研, アカソウ大 ○坂本浩, P.K. KURODA

ウラン, トリウムなどの他の元素の, 中性子, 陽子, 重陽子, ヘリウムイオン, あるいは光子などによる核分裂の収率曲線に関しては, 過去において数多くの報告がみられ, 収率曲線やこれらの形態のエネルギーによる変化についてはよく知られている。またウランの自発核分裂, あるいは熱中性子による核分裂においては, 質量数 130 から 136 の領域に, いわゆる微細構造があり, それが, 中性子数 82 の closed shell 構造に関係があることが知られている。しかし, 理論的に, 定量的な予見が出来ない所まではいっていないようである。

核分裂の収率曲線の微細構造を研究するために, 数回の連続した質量数における収率を正確に測定する必要がある。例えば, 放射化学的に, 核分裂生成物の中から, 次々を分離すれば, 質量数 131, 132, 133, 134, 135 の系列の収率を一挙に測定することは可能である。しかしながら, このように連続したいくつかの質量数において, 収率を測定した例は, 殆ど乏しい。そこで, われわれは, 20 MeV, 30 MeV および 40 MeV のヘリウムイオンによるウランの核分裂, および次の講演の一部報告するような制動放射 X 線を用いたウランの光核分裂において, I^{131} (8.05d), I^{132} (2.30h), I^{133} (29.8h), I^{134} (52.5m), および I^{135} (6.7h) の測定を行い, 合わせて Mo^{99} (66h), Ag^{111} (7.6d), Ag^{112} (3.14h), Ag^{113} (5.3h), Br^{83} (2.4h), Br^{84} (31.8m), Sr^{89} (51d), Sr^{90} (28y), Y^{90} (64.3h), Ba^{140} (12.8d), Ce^{141} (33d) 等の収率を求めて収率曲線の大体の形や照射エネルギーによる変化を求めると共に, 質量数 130 ないし 136 の附近に微細構造があるかどうかを調べると同時に着手した。

30 MeV および 40 MeV のヘリウムイオンによる核分裂の場合には, U_3O_8 の 50 mg を約 1cm^2 に拡げ, タンタルの 10μ の "はく" に包んでターゲットとし, 東大核研のサイクロトロン "内部ターゲット" の位置で, ビーム強度 $10\sim 15\mu\text{A}$ で, 10分あるいは 50分照射した。20 MeV の場合は, 前二者に比し, (α, f) 反応の断面積は急激に減少する ($\sim 10^{-10}$ barn $\rightarrow \sim 100$ ミリ barn) ので, U_3O_8 試料を増したか, 核分裂生成物の量は極めて少なくなり, 高い精度は望めなかった。なお, 20 MeV の場合, ターゲットの前面に 56.2mg/cm^2 のアルミ板を巻か, 30 MeV から 20 MeV に, エネルギーを落して用いた。照射試料は, 照射後直ちに, 稀硝酸に溶解し, 水で稀規定量とした後, 上記核分裂生成物の分離精製を行った。分離精製の方法は, 大部分は Nuclear Science Series, Radiochemistry Monographs に記載の常法に従った。すなわち, 通常は Glendenin & Mataloff の CCl_4 を用いる溶媒抽出法により, また同一試料からウランの分離も同時に行った。ウランの分離は数日毎に繰返して行い, 半減期 77h の Te^{132} から I^{132} (2.30h) を分離し, 質量数

132 の系列の収率を求めた。Mo⁹⁹ の収率の測定には、Wiles & Coryell のオキシニ法 (Phys. Rev. 96, (1954) 696) を採用し、Ag¹¹¹, Ag¹¹², Ag¹¹³ は Glendenin の方法 (Radiochemical Studies; The Fission Products, Paper 267, (1951)) を用いた。Sr, Ba は 炭酸塩法 (Ce 法に、溶媒抽出法を併用し、両者の分離にはフクロム酸法を用いた。

それぞれを分離した試料は、化学収率を測定した後、神戸工業 GM プロローブ PC 50 型 計数管 (端窓型, 雲母窓厚 mg/cm²) および SA-250 ステラーを用いて、崩壊曲線を求め、その解析結果を基にして、核分裂収率を算出した。

得られた収率曲線の大体の形は、Vandenbosch と (R. Vandenbosch, T.D. Thomas, S.E. Vandenbosch, R.A. Glass and G.T. Seaborg, Phys. Rev. 111 (1958) 1358) および Unik と (J.P. Unik and J.R. Huizenga, Phys. Rev. 134 (1964) B90) の結果に一致している。30 MeV における peak-to-trough 比は、約 3 で、ヘリウムイオンのエネルギーが増加するに従い、放射性分裂の割合が増加し、40 MeV 以上では、収率曲線の谷はほとんど消滅する傾向にある。質量の重い方の極大は質量数 140 にあり、軽い方の山の極大は質量数 100 よりやや大きい所に存在する。

ウランの自発核分裂の収率曲線の形と比較すると、放射性分裂の極大に相当する質量数 110 ないし 120 附近の谷が残ったことか最も顕著な違いであるが、重い方の収率曲線の極大は比較的良く一致している反面、軽い方の山は、ヘリウムイオンによる核分裂の場合には著しく重い方にずれていることが目立つ。その“ずれ”は質量数にして 4 程度で、ヘリウムイオンの質量数には一致している。このような傾向は、質量数の異なる、例えば U²³⁸ と Cm²⁴² の自発核分裂の収率曲線の相違も、定性的にはよく一致している。

微細構造に関しては、目下、データの整理中であるが、報告出来な見込みである。

東大核研.ア-カ-大 坂本 浩, P. K. KURODA

ウランの光核分裂の収率曲線に関しては, Schmidt & Sugarman (Phys. Rev. 95 (1954) 260), Richter & Coryell (Phys. Rev. 95 (1954) 1550) 等の研究がある。Schmidt によれば, X線のエネルギーを, 7 MeV, 10 MeV, 16 MeV, 21 MeV, 48 MeV, 100 MeV および 300 MeV に変えた場合には, peak-to-trough 比は, 300 から 4 に減少する。熱中性子による U^{235} の核分裂の場合にみられる質量数 100 および 134 にあつた微細構造は, ウランの (U^{238}), 光核分裂の場合にもあつたらしめ報告されている。しかし, 従前は, 質量数 131, 132 および 133 (48 MeV の場合のみ) の収率だけを測定し, 質量数 134, 135 の収率の測定を行わなかったために, はずりしつゝ。

我々は, 東大核研の 1 BeV エレクトロン・シンクロトロンにより, 300 MeV より高い領域から組織的に光核分裂の収率曲線を求めることを計画した。この研究にあたり, 質量数 131, 132, 133, 134 および 135 の収率を測定することを主目的とし, 上述の微細構造の有無を, 明確にしようとした。今回は, 650 MeV の場合について報告する。

ターゲットには, 200g の $UO_2(CH_3COO)_2 \cdot 2H_2O$ (横沢化学工業製) を, 直径約 5cm の円柱状とし, 東大核研の電子シンクロトロンで 650 MeV 電子を白金ターゲットで (0.05 mm) 利線放射 X 線とし, この collimated beam を用いて照射した。ビームは照射位置で直径約 3.5 cm で, ホラロイドカメラにより確認し, 大略のビーム強度は Willson 型の thick-walled ionization chamber を用い current integrator で読んだ。平均 $10^7 \text{ eq. quanta/sec}$ であつた。尚, 照射は 50 分行った。

照射ターゲットは, 直ちに稀硝酸に溶解し, 水で稀釈し, 全容を 1ℓ とした。この原液から一定量 (100 ~ 200 ml) をとり, 次のような同位元素の収率を測定した: Br^{83} , Sr^{89} , Mo^{99} , Ag^{111} , I^{131} , I^{132} , I^{133} , I^{134} , I^{135} および Ba^{140} 。化学操作は, ヘリウムイオンによる核分裂の場合と同様の方法を用いたが, ターゲット物質が大量であるため, 適当に修正して行った。尚, ターゲット附近に発生する中性子の影響をみるため, 50g の硫酸ウランを, 約 1m 離れた所に置き, 生成したよう素を同じ方法で分離測定し, 中性子による核分裂の影響を無視出来ることを確認した。また, 本実験のように大量のウランを用いた場合, 放射能の僅かの核分裂生成物しか得られず (650 MeV の U^{238} の光核分裂の全断面積は equivalent quanta あり, 150 mb 程度) 場合は, 自核分裂の影響を考慮しなくてはならないが, 今回の実験では無視出来る。放射能測定その他は, ヘリウムイオンの場合と同じ。

これまでに得られた実験結果の一部は次の通りである。 Br^{83} : $1.2 \pm 0.1\%$, Sr^{89} : $2.8 \pm 0.6\%$, Mo^{99} : $6.6 \pm 0.7\%$, Ag^{111} : $1.2 \pm 0.1\%$, I^{131} : $1.6 \pm 0.2\%$, I^{132} : $2.5 \pm 0.5\%$, I^{133} : $3.7 \pm 0.4\%$, I^{134} : $6.0 \pm 1.2\%$, Ba^{140} : $7.1 \pm 1.4\%$ 。

得られた収率曲線の大体の形をウランの自覚核分裂の収率曲線の形と比較してみると、最も顕著な違いは、云うまでもなく、光核分裂の場合には谷が極めて浅くなっている。換言すれば、対称性核分裂の割合が著しく大きくなっている。次に、質量数 85 以下および、150 以上の収率が、光核分裂の場合には、自覚核分裂の場合より著しく高くなっている。両方の山の幅が広い。極大の位置は、重い方は質量数 140 附近に、軽い方のピークは質量数 95 附近にあり、自覚核分裂の場合に似ている。しかし、質量数 133~134 附近にもう一つのピークが存在するらしきことは注目してやる。これは、所謂、微細構造に対応するものかどうかが、目下、断定は難しい。たゞ、自覚核分裂の場合にみられる質量数 132 のピークは、無いようである。peak-to-trough 比は約 6 で、300 MeV の場合より、やや大き目になっているが、これは実験誤差によるものか、実験条件によるものか、今の所断定出来ない。なお、出来得れば、近い将来、2/BeV の X 線による光核分裂の収率曲線、並いに 600 MeV 以下におけるデータをもとにすることを考慮中である。

ウランの光核分裂の研究は宇宙化学的見地から興味深い問題である。最近、Kurata (Nature 187 (1960) 36) は、大気中と隕石中のゼノンの同位体存在比を次のように表示して、大気中には、自覚核分裂で出来たゼノンの重い同位体の過剰があることを指摘した。

$$\delta_i = \left(\frac{X_{e^i}}{X_{e^{130}}} \right)_{\text{大気}} - \left(\frac{X_{e^i}}{X_{e^{130}}} \right)_{\text{隕石}} \quad \text{--- (1)}$$

→ 10, i は質量数 131, 132, 134, 136 である。δ_i の値を、 i に対してプロットすれば一種の核分裂収率曲線が得られ、それが P₂₃₈ の自覚核分裂の収率曲線に似ている。このことから、地球大気中には、超ウラン元素の天然核分裂によって生成したゼノンの重い同位元素の過剰が存在するのではないかと考えられている。一方、上記の δ_i 曲線はウランの光核分裂の収率曲線の形にも似てくることが似ている (O. K. Manuel & P. K. Kuroda, J. Geophys. Res., 69 (1964) 1413)。これは、地球あるいは太陽系生成の初期に、地球物質は強度のガンマ線の照射を受け、ウランが光核分裂生成物を作ったのではないかとも考えられる (W. A. Fowler, J. L. Greenstein and F. Hoyle, Geophys. J. Royal Astron. Soc., 2 (1962) 149)。しかし、式 (1) からの δ_i 曲線では、質量数 132 に極大がみられるのに反し、今回のわくわくわく線はウランの光核分裂の収率曲線では、質量数 133 か 134 に極大が現われ、上の δ_i 曲線との一致はあまりよくない。

原子力研究所, M.I.T

○木村 幹

C. D. Coryell

ウラン-235の熱中性子による核分裂では、質量数110~125附近の分裂生成物の収率は低く、その荷電分布についてはデータがほとんどない。この実験では銀-112の独立収率を求め、その値から質量数112の鎖列でもっとも生成の確率の高い原子番号の数 Z_p を推定する。

約500mgの天然ウラン(炭酸ウランニアンモニウムまたは硝酸ウランニアンモニウム)を100秒M.I.T原子炉の気送管(8×10^{12} n/cm²/sec)で中性子照射し、照射終了後30~70秒のうちに銀を親元素であるパラジウムから分離し、その銀の部分に精製し、その放射能を測定する。ウランおよび大部分の核分裂生成物を含むパラジウム部分は10時間以上放置したのち、新たにパラジウムから生成した銀と前と同様に分離精製しその放射能を測る。数回の実験ではさらにオス、オスのミルキングも行なった。分離の方法は塩化銀の沈殿をつくる通常の方法、精製法も硫化物沈殿の段階を金属還元に変えたのみでは常法に従った。測定は速いオスの分離試料にあつては、目的の銀-112(半減期3.2時間)の微弱な放射能を比較的大量に存在する銀-115(20分)および銀-113(5.3時間)の放射能から合せて測ることが問題であつた。このためにBeckman-Sharp社製のβ線用比例計数装置をもちい、照射後約4時間たってから最終の精製を行うことによつて銀-115およびその壊変生成物の影響をおさへ、かつ 840 mg/cm²のアルミニウム吸収板で銀-113のβ線を $1/10000$ にまでおとして(銀-112の方は約 $1/10$ にしかおちない)、減衰を追跡した。得られた測定データを計算機で解析し、またβ-崩壊も併用して銀-112の放射能を求め、化学収量の補正を行い、これから照射中および分離中にパラジウム-112から生成する量を差し引き、さらに最初の塩化銀沈殿に附着したパラジウム(0.2%)から生じる量も引き、直接生成した銀-112の放射能値とする。ミルキングの試料も同じ計数条件で測定し、化学収量などの補正を行う。この両者の値の比は部分鎖列収率を與える。

こうして求めた銀-112の部分鎖列収率は 2.2×10^{-3} 、鎖列収率を 10^4 とすれば独立収率は 2.2×10^{-7} となる。またこの質量数領域でも荷電分布曲線が定数0.94のガウス分布に従うものと仮定すれば Z_p は44.7となる。

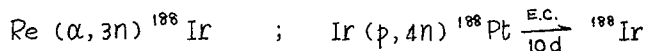
1) C. D. Coryell, N. Sugarman 編 "Radiochemical Studies; The Fission Products" など

2) A. C. Wahl et al. Phys. Rev. 126, 1112 (1962)

東理
核研*
原研**

。佐藤 純, 山崎敏光, 横山 祐之, 阪井英次**

目的 所謂回転領域と振動領域との中間に位置を占めるオスミウム同位体の一つオスミウム-188 の LEVEL SCHEME を組立てることを目的として下に記すような核分光学の実験を行った。レニウム-188 の崩壊に依って現われる LEVEL に關しては既に研究があるが、イリジウム-188 の崩壊に依って生ずる LEVEL に就いては未だ不明な点が多く、筆者等は次の原子核反応を用いてイリジウム-188 或いは白金-188 を作りこの測定の際源として実験を行った。



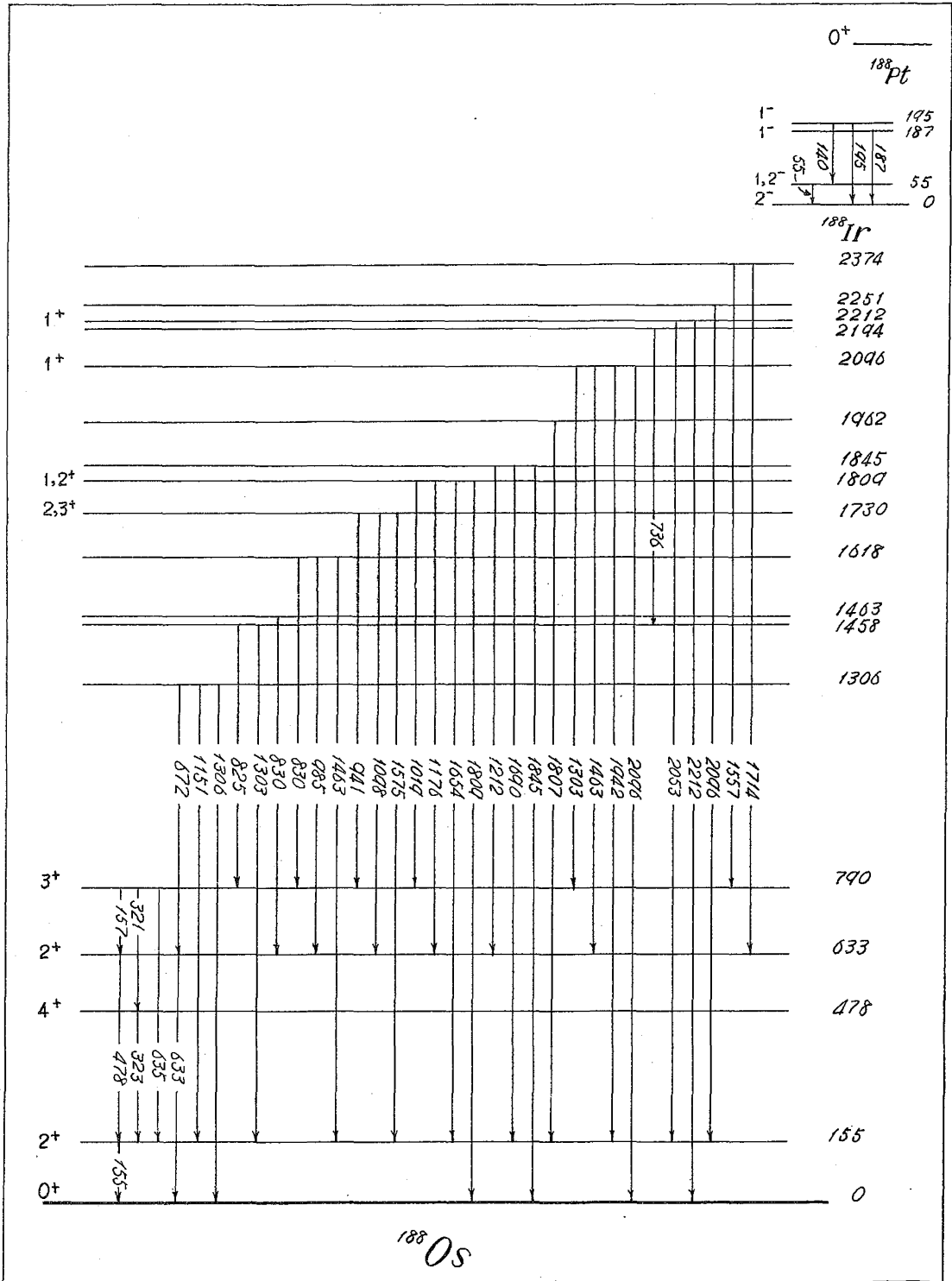
また、イリジウム-188 の親核種に当る白金-188 の DECAY SCHEME は殆んど完成されてゐるようであるが、近接した二本の主要線の強度に就いては未だ測定されていない。筆者等はまたこの強度比を測定するのを試みた。

実験 線源 $\text{Re}(\alpha)$; ターゲットを硝酸に溶解して生成した ${}^{189}\text{Ir}$ を水酸化鉄と共沈。エーテル抽出に依り鉄を除去し無担体のイリジウムを得る。
 $\text{Ir}(p)$; ターゲットを塩素化し塩酸に溶解して生成した白金を KI で還元し、DDC の錯体としてクロロホルムに抽出し無担体の白金を得る。
 β^+ 及 α^- 測定用線源は、これを通塩素酸処理後、過塩素酸アンモン液より白金箔 (20mm x 1mm; 5 μ) 上に電着する。

測定 セクター型二重吸収ベータ線スペクトロメーター, NaI(Tl) シンチレーションスペクトロメーター及びシリコンセミコンダクター検出器を用いて次の測定を行った。

1. γ SINGLE
2. γ - γ COINCIDENCE
3. γ - γ - γ TRIPLE COINCIDENCE
4. γ - γ 角相関
5. 内部転換電子
6. e^- - γ COINCIDENCE
7. β^+
8. 外部転換電子 (CONVERTER: U_3O_8 , Au-foil)

結果 TRANSITION のエネルギーは内部転換電子線の測定より得られた値を用い、LEVEL SEQUENCY は COINCIDENCE 関係から定められたものを礎にして次頁に掲げた LEVEL SCHEME を組立てた。TRANSITION MULTIPOLARITY を K/L 比、L-転換比 及 α^- 内部転換係数から推定し、これから二三の LEVEL の SPIN, PARITY を推定することが出来た。また、白金の二本の γ 線の強度比は、約 1:1 と測定された。



東大理
核研*

。佐藤 純, 横山 祐之, 山崎 敏光*

目的 既に知られているように核外場の影響が γ - γ 角相関に現われることがある。筆者等は化学形を変えぬことによつてどの程度この影響が現われ、またそれがどの程度迄測定可能なものかを知ることとを目的としてこの実験を行った。とりあげた原子核は、レニウム-188 である。とりあげたレニウムの化学形及びその状態は、① Re_2S_7 ② 照射した KReO_4 ③ 再結晶した KReO_4 ④ ReO_4^- 水溶液 ⑤ ④にグリセリンを加えて粘度を大きくした水溶液 ⑥ 金属レニウム粉末 である。

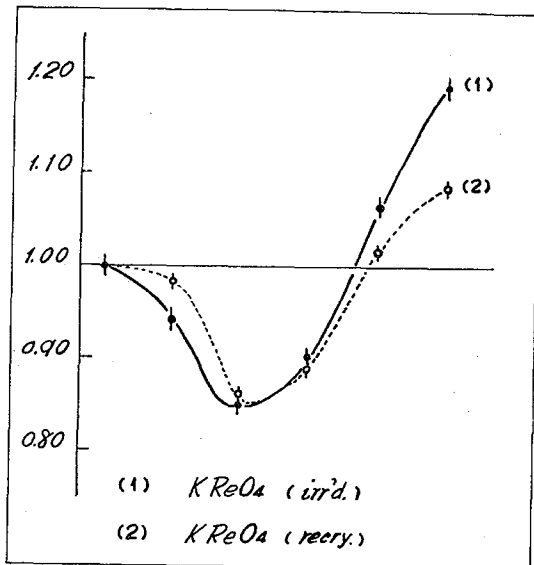
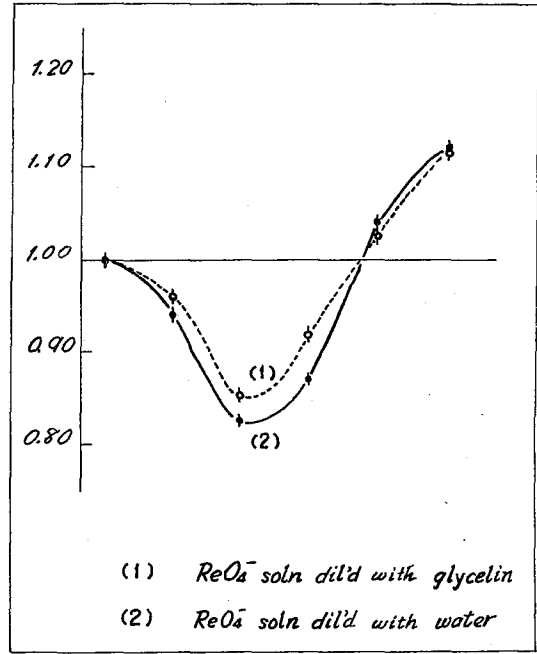
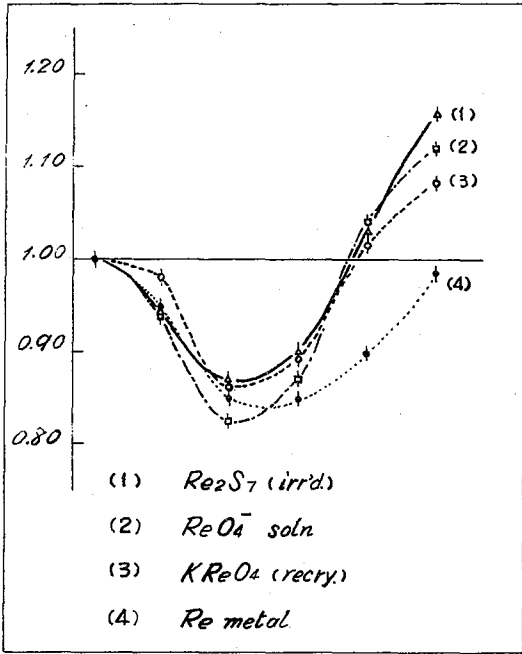
実験 ターゲットは天然同位体組成の金属レニウム及び過レニウム酸カリを用い、中性子照射は原子炉 (JRR-1, JRR-2) と立教大学原子炉で行った。照射後、必要に応じて試料に化学操作を行い、夫々の線源の強度を揃えて角相関用の線源用容器 (径 3mm) に充填し、これを測定試料とした。

測定は、3リメートル径 $3\Phi \times 3$ " NaI(Tl) シンチレーション・カウンタと TMC 1024 チャンネル波高分析器を用い行われた。FAST COINCIDENCE 回路の分解時間は $2\tau = 40 \text{ ns}$ である。測定角は 90° から 180° まで等間隔に 6 点測定を行い、各点の一回の測定時間は 2 分である。夫々の線源に就いて測定回路の変動による系統的な変化の影響を避けるため、1 時間毎に線源を次々と取り替えて、これを繰り返した。

CHANCE COINCIDENCE 及び α TAIL との COINCIDENCE の差引きは、東大核研の INS-1 パラメロン電子計算機を使用して行い、夫々の線源について各点の TRUE COINCIDENCE スペクトルを得た。

結果 CHANCE COINCIDENCE 及び α TAIL との COINCIDENCE の差引きの影響を大きく受ける低エネルギー部を除き、統計を上げた意味から COINCIDENCE COUNT を全部加之合せたものに就いての ANISOTROPY を次頁に図示してある。図中の誤差は統計誤差だけをとつてある。図に現われる傾向に依ると、溶液の粘度は強く影響よりも化合物に依る差の方が若干大きく現われ、中性子照射の影響も現われているかのように思われる。

金属レニウムのパターンが他の線源と著しく異った様相を示しているようではあるが、この点に就いては実験上の誤差に依るものであるか、金属レニウム特有のものであるかいまだ不明である。



武蔵工大原研

○丸山芳明, 出穂和英,

フッ素の放射性同位体をトレーサーとして利用する場合、その半減期の短さによって使用できる核種がきざられてくる。 ^{18}F は半減期が1.87時間で、フッ素の放射性同位体の中では最も長い半減期をもっておりトレーサー実験等に十分利用できる。ところで ^{18}F はいささかな核反応によってできるが、かなりの量ををつくることができるという点から、原子炉による $^{16}\text{O}(t, n)^{18}\text{F}$ 反応によるものが最も一般的である。

今日においては硝酸リチウム、水酸化リチウム、炭酸リチウムのような酸素を含んだリチウム化合物をそのまま原子炉の中性子束より照射することはより ^{18}F を生成している。

この実験においてリチウムの水溶液を原子炉照射して ^{18}F を生成することを試みた。照射はTRIQA-II型原子炉の気送管にておこなったが、100 KWにて熱中性子束は $1.3 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2\text{-sec}$ 、カドミ比 Cd_0 は5.7、速中性子束は $9 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2\text{-sec}$ であった。

まず水溶液の原子炉照射の場合の中性子束について検討した。

熱中性子束は酢酸コバルトの3%の水溶液をつくり用いた。照射はたまたまの約1 mlの溶液の入るポリエチレンの容器にコバルト水溶液を入水加熱して封じておこなった。酢酸コバルト水溶液と同時に酢酸コバルトの粉末30 mgを照射して中性子束の比較をおこなったが、両者は誤差以内にて同じであった。

また速中性子束の測定は2%の硫酸アモニウム水溶液をつくり用いた。速中性子束も熱中性子と同様に固体照射の場合と比較したが、水溶液照射の値は固体照射の6%減を示した。

次にリチウム塩溶液を照射し ^{18}F を生成した。

リチウム塩溶液は特製の水酸化リチウムを水に溶解し3%のものをつくった。水は一度蒸留したものをマスキオン交換樹脂をとおして精製したものを用いた。照射は中性子束の測定に用いたものと同じポリエチレンの容器にリチウム塩溶液1 mlを入れ封じおき100 KWにて30分おこなった。この場合水溶液と同時に水酸化リチウムの粉末30 mgを照射し ^{18}F の生成量を比較したが、その結果水溶液照射の生成量は、固体照射の1.2倍であった。照射能の測定は照射2時間後、γスペクトロメータにより0.5 MeVのγ線によりおこなった。

日本原子力研究所

○山林尚道, 中村治人, 天野 恕

1. 目的

Au-198, Ag-110m を (n, γ) 反応を利用して製造する場合, ターゲットとしては不純物が少なく, 炉内照射中分解しがたい化学形であり, しかも入手し易い物質であることがのぞましい。Au-198 については金線 (φ = 1 mm) をターゲットとして使用し, 市販の金線 4 種につき検討し, Ag-110 m については市販の銀線 (φ = 1 mm) と銀板 (厚さ 1 mm) について検討をおこなった。これらのターゲットをもちいた場合, 各ターゲットに含まれる不純物の検出定量をこころみ, この結果を中心として, これら核種の放射化学的純度を知り, あわせてこれら核種の製造上の技術的問題点を検討した。

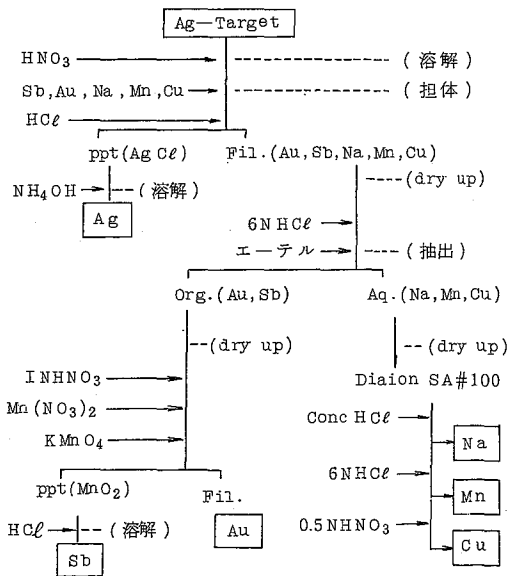
2. 実験方法

(1) 照射, 金, 銀ターゲットの照射は J R R - 1 による 15 時間および J R R - 2 による 130 時間, 390 時間照射を垂直実験孔を利用しておこなった。短半減期の不純物の検出には J R R - 2 の気送管による 20 分照射を併用した。

(2) 化学分離, 化学分離の方法はターゲット中の不純物から生成する短寿命不純物核種を対象とする場合と長寿命不純物核種を対象とする場合で多少相異なる。Au-198 は 2.70 日の半減期であり, Au-198 より短半減期の不純物については多量に混入しない限り問題とならないが, 反面長半減期の不純物は本来の使用目的からも, また人体に使用する場合に大きな問題となってくる。したがって長半減期不純物については特にくわしく検討した。

Au-198 中の短寿命不純物核種を対象として金ターゲット約 5 mg を J R R - 2 気送管で 20 分照射後王水に溶解し, Mn, Cu, La, In の担体 5 mg を加え 2.5 M HBr 溶液としイソプロピルエーテルで Au, In を抽出し, 他の大部分の白金族および Mn, Cu, La より分離した。この抽出液を 6 N HCl 溶液としエチルエーテルで Au を抽出し In と分離したが, その結果発光分光分析で検出された Cu, Mn はこの操作では検出されなかつた。銀ターゲットについて同様に照射した約 100 mg のターゲットを硝酸で溶解し, 各属の担体を加え属別の陽イオンの定性分析をおこなった結果

オ 1 図 銀ターゲット中の短寿命不純物の分離



Au-198, Sb-122, 124, Na-24, Mn-56, Cu-64 を検出した。そこで再度照射したターゲットについてオ 1 図に示す操作で分離した。

長寿命不純物核種を対象として金ターゲットを J.R.R-2 で 130,390 時間照射をおこない、Au-198 が完全に崩壊するまで放置して、Au-198 が崩壊後のターゲットの γ 線スペクトルを測定した結果 Ag-110m, Ir-192, Sb-124 のピークを認めた。そこでターゲットを王水に溶解し Ag の担体 5 mg を加えて Ag-110m を塩化銀の沈殿として分離し、ろ液を 6NHCl 溶液とし、エチルエーテルで Sb-124 を抽出し、Ir-192 と分離した。Ag ターゲットについては同様に照射したターゲットを硝酸で溶解し、各属の担体を加え銀を塩化銀として沈殿させ、残りの属の γ 線スペクトルを測定したところ銀線のみ Co-60 を検出した。各フラクションの化学的収率は Sb, Mn は比色法 In, La, Cu は EDTA 滴定, Na は炎光々度法, Ag は重量法で求めた。

(3) 放射能測定, 放射能測定は化学分離した各フラクションについて NaI(Tl) (外 $2'' \times 1\frac{3}{4}''$, 内 $1\frac{1}{2}'' \times \frac{3}{4}'' \phi$) 井戸型の結晶をもちい γ 線スペクトルの測定と β 線測定による半減期の追跡をおこなった。定量は γ 線スペクトルのピーク部分を積算する方法をとり、試料と同時にあるいは別に照射した標準試料のピーク部分の積算値との比を求めておこなった。中性子束の測定には 20 分照射には金バクをそれ以上の長期照射には Co をもちいて求めた。

3. 結果

金・銀ターゲット中に含まれる不純物の放射化分析の結果をオ 1 表, オ 2 表に示す。J.R.R-2 で一週間照射し製造を行うとすると Au-198 は照射後 135 時間で 14c/gr Ag-110m は照射後 10 日で 2.8mc/gr の比放射能となり、それぞれの時間において放射化学的純度は 99% 以上 (たゞし Au-198 の場合は Au-199 を除く) となる。

オ 1 表 金ターゲット中の不純物の例

不純物		生成放射能照射後135時間	
元素名	含有量 (ppm)	生成核種 (半減期)	生成放射能強度比
Ag	42	Ag-110 (270 d)	1.1×10^{-7}
Ir	23	Ir-192 (74.4 d)	2.5×10^{-5}
		Ir-194 (19 h)	7.9×10^{-8}
Sb	1.0	Sb-122 (2.74 d)	6.7×10^{-8}
		Sb-124 (60 d)	5.7×10^{-9}

オ 2 表 銀ターゲット中の不純物の例

	不純物		生成放射能照射後10日	
	元素名	含有量 (ppm)	生成核種 (半減期)	生成放射能強度比
銀	Na	13	Na-24 (15 h)	2.0×10^{-7}
	Mn	≤ 0.002	Mn-56 (2.58 h)	
	Cu	0.21	Cu-64 (12.8 h)	1.3×10^{-9}
	Au	0.022	Au-198 (2.7 d)	3.6×10^{-5}
	Sb	0.28	Sb-122 (2.74 d)	3.1×10^{-5}
板	Co	≤ 0.1	Sb-124 (60 d)	7.1×10^{-5}
			Co-60 (5.2 y)	$\leq 0.8 \times 10^{-5}$
銀	Na	13	Na-24 (15 h)	2.0×10^{-7}
	Mn	0.21	Mn-54 (2.58 h)	
	Cu	9.2	Cu-64 (12.8 h)	5.5×10^{-8}
	Au	1.8	Au-198 (2.7 d)	3.7×10^{-3}
	Sb	5.9	Sb-122 (2.74 d)	6.6×10^{-3}
線	Co	1.2	Sb-124 (60 d)	1.5×10^{-4}
			Co-60 (5.2 y)	8.4×10^{-5}

1. 目 的

放射性同位体を用いるときにはその中に含まれている不純物が定量されていることが望ましい。特に希土類元素をターゲットとして用いる場合には試料の精製過程から考えて、他の希土類元素を含むであろうしその量も比較的多いことが予想される。ここでは現在入手しうる最高純度の希土類元素をターゲットとして用い、(n, γ) 反応によつて Tb-160, Yb-169 を製造する際のこれらの問題について検討した。この場合、試料中の不純物の定量のためには、その使用目的からいっても、また検出感度からいっても放射化分析法が最も良い方法と考えられる。不純物核種が目的の核種にくらべて核的特性からみて、放射能測定の際直接検知しにくい場合は、その検出には相互分離を行わなければならない。演者らはイオン交換法により分離するとき、不純物元素が目的元素のテーリングによつて定量的に分離できなくなることをさけるため、分離を行う前に主元素のものより一つだけ小さい原子番号のものを担体としてあらかじめ加える等の操作を行い、不純物がどの程度定量できるかを検討し、あわせてターゲットとして用いる試料の純度を検討した。

2. 実験方法

- (1) 照射 ターゲットとしては原子炉内での中性子照射において安定であり、しかも照射後溶解等の化学的操作の簡単な希土類元素酸化物 Tb₄O₇, Ho₂O₃, Yb₂O₃ を選んだ。これを 70~80 mg 程度正確に秤量し石英管に封じ標準試料と同じカプセルに入れた。照射は JRR-1 で 2 時間、あるいは JRR-2 で 20 分ないし 72 時間行つた。
- (2) 化学分離および測定 照射後のターゲットは濃塩酸または濃硝酸に溶解した。これを蒸発乾固し 0.01 規定程度の塩酸溶液 10 ml とした。この溶液から 0.1 ml を秤取し試料全体の γ 線スペクトルおよび β 崩壊の測定のために使用した。残りの溶液には Ho ターゲットの場合に Dy, Tb の場合に Gd, Yb の場合に Tm を担体としてターゲットとほぼ同量程度加えた。えた溶液をイオン交換カラム (Diaion SK-1 100~200 メッシュ 12mm ϕ \times 45cm) に吸着させ、 α -ヒドロキシイソ酪酸とそのアンモニウム塩溶液を 3:2 の割合で混合してつくつた溶液で溶離した。この場合、溶離剤の pH は 3.78 とし、濃度を変化することにより適当な溶離条件を選んだ。流速はいずれの場合も 30~40 ml/cm²/hr とした。溶出液は 10 ml 程度を一つのフラクションとして集め γ 線を測定した。ピークの部分のフラクションについては γ 線スペクトルを測定した。この結果同じ不純物を含むフラクションは一つに集めて約 2 ml 程度に濃縮した。これを標準試料と比較する γ 線スペクトロメトリーによつて定量した。担体を加えた元素については主成分核種の影響が少いようなフラクションを集めてしゅう酸塩の沈殿をつくり、これを同じような化学形の標準試料と比較することによつて定量を行つた。この場合の化学的収率は沈殿を酸化物に変えて秤量して求めた。

3. 実験結果

以上のような方法によつて主元素のものより一つだけ小さい原子番号のものが数 ppm 含まれている場合においても、その検出定量は比較的簡単であつた。かつイオン交換法による不純物の検定は 24 時間以内に行うことが出来た。

Johuson Matthey 社製の高純度希土類元素酸化物中の不純物の定量結果とこれから製造した精製放射性同位体の純度は才 1 表のようである。表中 99.9% 以上の Yb-169 の製造のためには 2 ヶ月以上他の放射性核種を崩壊させる必要がある。しかしながらこの場合においても Eu-152 による不純物が妨害し 99.9% 以上の製品は製造できなかつた。

才 1 表 精製放射性同位体中の不純物

照射物質	不純物 (ppm)	生成放射能 (半減期)	放射能強度比率	照射比率	不純物 (ppm)	生成放射能 (半減期)	放射能強度比率
Tb ₄ O ₇ *		Tb-160 (73d)	1	Yb ₂ O ₃ *		Yb-169 (32 d)	1
	Gd(21)	Gd-159 (18h)	8.2×10^{-6}			Yb-175 (4.2 d)	5.8×10^{-5}
	Dy(135)	Dy-165 (2.3h)	5.6×10^{-5}			Yb-177 (1.8 h)	2.5×10^{-5}
	Ho(19)	Ho-166 (27h)	4.9×10^{-4}		Sc(0.36)	Sc-46 (85 d)	1.5×10^{-7}
	Er(17)	Er-169 (9.4d)	2.6×10^{-6}		Eu(7.2)	Eu-152 (9.2h)	2.5×10^{-5}
		Er-171 (7.5h)	2.1×10^{-5}			Eu-152 (13y)	1.0×10^{-5}
Ho ₂ O ₃ **		Ho-166 (27h)	1		Eu-154 (14y)	6.6×10^{-7}	
	Dy(41)	Dy-165 (2.3h)	6.1×10^{-6}	Tb(8.6)	Tb-160 (73 d)	5.6×10^{-6}	
	Er(186)	Er-169 (9.4 d)	3.3×10^{-7}	Tm(2.8)	Tm-170 (129d)	1.1×10^{-5}	
		Er-171 (7.5h)	2.2×10^{-6}		Yb-177 → Lu-177	1.2×10^{-1}	
	Yb(584)	Yb-169 (32d)	1.4×10^{-5}				
		Yb-175 (4.2d)	8.2×10^{-5}				
Yb-177 (1.8h)		1.0×10^{-8}					

* Tb, Yb については中性子照射を 130 時間行い 24 時間放置後の値

** Ho についての放射能強度比率は中性子照射を 20 分行い 24 時間放置後の値

日本原子力研究所

中村治人, 物井澄子, ○高橋智子, 天野 恕

1. 目的

(n, γ) 反応でラジオアイソトープを製造する場合には, つねにターゲット中の不純物から副成する放射化学的不純物のできるだけ少ないターゲットを使わなければならない。そこで放射化分析をおこない, 不純物の少ないターゲットを選ぶとともに, 製造したラジオアイソトープ中の放射化学的不純物を詳しく調べるために本実験をおこなった。(n, γ) 反応を利用して Na-24, K-42 を製造する場合のターゲットとして, 高純度のものが容易に入手でき, 化学的に安定でしかも副成する放射化学的不純物の少ない炭酸塩を選んだ。また Br-82 の製造のためには, 中性子照射にたいして安定な臭化カリウムと多少不安定ではあるが K-42 を副成しない臭化アンモニウムを選び, 両者の比較検討をおこなった。

2. 実験

特級の炭酸ナトリウム, 炭酸カリウム, 臭化アンモニウム, 臭化カリウムを JRR-2 の気送管で 20 分照射し, 半減期が数日以下の不純物を検討した。垂直実験孔で 130 時間照射し主核種が消滅した後残る不純物を調べた。

まず照射したターゲットを塩酸に溶解し, 各属の代表的元素の担体を入れ, 硫化水素法による分属をおこなった。また陽イオン交換樹脂を用いて, Na-24, K-42 中の陰イオン, Br-82 中の陽イオンの不純物を調べた。分離されたものについて, γ 線スペクトルおよび半減期より核種を確認し, その元素の担体を加えて再び分離した。ナトリウム中のカリウムの分離定量は, 陽イオン交換樹脂 Dowex-50 200 メツシュのものを用い,

表 1 Na-24, K-42 中の放射化学的不純物

20% MeOH-0.5NH₄Cl で溶離しておこなった。カリウム中のナトリウムは分離せず不純物の

Na-24 による 2.7MeV の γ 線を標準の Na-24 と比較することにより求めた。化学収率は比色法, 重量法, 滴定法などで求めた。

化学分離した各フラクションは濃縮して 2ml として, その γ 線スペクトルを測定した。測定器は, 3"φ×3" NaI crystal の 256 チャンネル波高分析器, 1 ³/₄"φ×2"

ターゲット 不純物	Na ₂ CO ₃		K ₂ CO ₃	
	重量比 ppm	放射能比*	重量比 ppm	放射能比*
Na (Na-24)	—	1	425	6.06×10 ⁻³
K (K-42)	< 700	< 5×10 ⁻⁵	—	1
Cu (Cu-64)	14.4	2.42×10 ⁻⁵	3.48	8.35×10 ⁻⁵
Mn (Mn-56)	127	1.27×10 ⁻⁴	11.9	1.58×10 ⁻⁴
Cl (S-35)	35.1	8.13×10 ⁻⁸	11.9	3.94×10 ⁻⁷
Zn (Zn-65)	0.377	3.46×10 ⁻¹⁰	—	—
(Zn-69m)		4.27×10 ⁻⁹	—	—
(Zn-69)		1.23×10 ⁻¹²	—	—
Rb (Rb-86)			45.1	1.20×10 ⁻⁵

* 中性子束 3×10¹³ n/cm²/sec 照射時間 20 分
18 時間後の出荷時における値

NaI crystal 井戸型の20チャンネル波高分析器，シングルチャンネル波高分析器を用いた。確認された元素について試料と同時あるいは別に標準試料を照射し，そのγ線スペクトルのピークの面積を比較することにより定量した。

3. 結果

各ターゲットの放射化分析の結果は表1，2に示した。

なお Br-82 のターゲットについて

表2 Br-82 中の放射化学的不純物

は，放射線分解により遊離の臭素が発生する。中性子照射したターゲットをすみやかに水に溶解し，クロロホルムで抽出，臭素を定量した。表3にその結果を示した。これらの実験の結果，中性子束 $3 \times 10^{13} \text{n/cm}^2/\text{sec}$ で20分照射し，18時間後の出荷時においては，Na-24, K-42 の放射化学的純度は99%以上，その比放射能はそれぞれ 79.9mc/gNa ， 5.59mc/gK となる。

ターゲット 不純物	NH ₄ Br		KBr	
	重量比 ppm	放射能比*	重量比 ppm	放射能比*
(Br-82m)	—	8.25×10^{-3}	—	8.25×10^{-3}
K (K-42)	—	—	3.29×10^5	1.23×10^{-2}
Na (Na-24)	4	2.50×10^{-6}	—	—
Rb (Rb-86)	—	—	18	1.01×10^{-6}
Sb (Sb-122)	3.3	3.86×10^{-6}	—	—
(Sb-124)	—	8.28×10^{-9}	—	—
Ce (S-35)	180	1.29×10^{-7}	380	2.72×10^{-6}

* 中性子束 $3 \times 10^{13} \text{n/cm}^2/\text{sec}$ 照射時間 20 分
50 時間後の出荷時における値
Br-82 の放射能を1とする

Br-82 については，臭化アンモニウムターゲットを用いると長い時間の照射にさいして多量の遊離臭素を生じる欠点はあるが臭化カリウムターゲットを用いた時には，生成した K-42 を減衰させる必要があることを考えて，現段階では臭化アンモニウムターゲットを採用し，20分照射50時間後に出荷することにした。

表3 遊離 Br₂ の量

照射	原子炉	ターゲット	Br ₂
$8.8 \times 10^{12} \text{n/cm}^2/\text{sec}$ 130時間	JRR-2	NH ₄ Br	4.5%
	垂直実験孔	KBr	0.06
$3.36 \times 10^{13} \text{n/cm}^2/\text{sec}$ 20分	JRR-2	NH ₄ Br	0.05
	気送管	KBr	0.02
$1.2 \times 10^{12} \text{n/cm}^2/\text{sec}$ 15時間	JRR-1	NH ₄ Br	0.23
	貫通実験孔		

この場合の放射化学的純度は99.9%以上，比放射能は 25.6mc/gBr である。

日本原子力研究所

物井 澄子

加速陽子で ^{238}U を照射した時起る核分裂反応と非核分裂反応の競争を研究するために、非核分裂反応の一つである $^{238}\text{U}(p, pn)^{237}\text{U}$ 反応の励起函数を求めることを試みている。ここでは、この目的のために、 U を核分裂生成物から分離精製する適当な方法を検討した。また、 ^{237}U は壊変図式が複雑であり、照担体で製造する適当な方法のない核種であるが、その放射能の絶対測定法を詳しく検討した。

陽子照射した U_3O_8 を陽イオン交換法により分離を行い、1N しょう酸で溶離される部分に流出する U を試料とした。¹⁾ この溶液は Np 、 Sb などの不純物を含んでいる。これらを除くために、この溶液をさつば内で蒸発乾固し、ついでしょう酸を加熱分解し、 U_3O_8 を 4N 塩酸に溶かして陰イオン交換樹脂に吸着させ、引き続き 4N 塩酸で不純物を流し出した後、0.5 N 塩酸で U を溶離した。化学収率はしょう酸を分解した時残留する U_3O_8 の重量を測定して求めた。

絶対測定には東大核研サイクロトロン of 55 MeV のプロトンビームで、 U_3O_8 を inner target として照射し、上記の方法で精製した U を塩酸に溶かして塩化ウラニル水溶液とし、その一部を採って作った試料を用いた。その ^{237}U の比放射能は $\mu\text{C}/\text{mg}\text{U}$ の order である。このような比放射能の低い試料の絶対測定法としては $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法が最も適当と考えて、用いた。試料中に ^{237}U と共存する ^{238}U の α 線の計数値を求めるために、照射しない ^{238}U を同様の方法で測定した結果、 ^{237}U の β 計数値にたいして 0.2% 以下であった。次に 4π 計数値のうち ^{238}U と ^{237}Np から出る α 線による計数値を除くために、 4π 比例計数管のプロット-特性曲線をとって、印加電圧 2400 V で α 線を計数し、これを 3700 V での計数値 (β 線と α 線の両方が計数されている) から差し引いた。測定結果から上記の塩化ウラニル水溶液 1 mg あたりの ^{237}U の崩壊数 N を次のようにして求めた。

報告されている ^{237}U の壊変図式をオ-図に示す。²⁾ これをもとにして branching ratio の小さい部分を省略して作ったオ二図のような近似的な壊変図式を用いると、次の式が成り立つ。

$$N_{\gamma} = N(P_{01}E_{01} + P_{02}E_{02} + P_{03}E_{03} + P_{04}E_{04} + P_{0X}E_{0X} - P_{01}E_{01}P_{02}E_{02} - P_{01}E_{01}P_{03}E_{03} - P_{01}E_{01}P_{04}E_{04} - P_{01}E_{01}P_{0X}E_{0X} - P_{02}E_{02}P_{03}E_{03} - P_{02}E_{02}P_{04}E_{04} - P_{02}E_{02}P_{0X}E_{0X} - P_{03}E_{03}P_{04}E_{04} - P_{03}E_{03}P_{0X}E_{0X} - P_{04}E_{04}P_{0X}E_{0X}) \quad (1)$$

$$N_{\beta} = N(P_{00}E_{00} + P_{02}E_{02} + P_{04}E_{04} - P_{00}E_{00}P_{02}E_{02} - P_{00}E_{00}P_{04}E_{04} - P_{02}E_{02}P_{04}E_{04}) \quad (2)$$

$$N_{\text{C}} = N\{P_{00}E_{00}(P_{01}E_{01} + P_{02}E_{02} + P_{03}E_{03} + P_{04}E_{04} + P_{0X}E_{0X} - P_{01}E_{01}E_{03} - P_{01}E_{01}P_{04}E_{04} - P_{02}E_{02}P_{03}E_{03} - P_{02}E_{02}P_{04}E_{04} - P_{02}E_{02}P_{0X}E_{0X} - P_{03}E_{03}P_{04}E_{04} - P_{03}E_{03}P_{0X}E_{0X} - P_{04}E_{04}P_{0X}E_{0X}) + P_{02}E_{02}(P_{03}E_{03} + E_{0X} - P_{03}E_{03}E_{0X})(1 - P_{00}E_{00}) + P_{04}E_{04}(P_{01}E_{01} + P_{02}E_{02} + P_{03}E_{03} + P_{0X}E_{0X} - P_{01}E_{01}E_{03})(1 - P_{00}E_{00})\} \quad (3)$$

ここで、 N_{γ} 、 N_{β} 、 N_{C} はそれぞれ β 、同時計数値である。 E_{01-4} 、 E_{0X} 、 E_{00} 、 $E_{02,4}$ 、 X はそれぞれ α 線、 β 線、内部転換電子、 Np の KX 線を表わす (オ二図参照)。 P はそれらの放射線の

branching ratio, ε は計数効率である。 ε_{β_0} , ε_{e_1} , ε_{e_2} に文献値³⁾ から誘導した値を代入し $\varepsilon_{\alpha_1} \sim \varepsilon_{\alpha_4}$ と ε_X に、他の核種の絶対測定によって実験的に求められた値を代入して、(1)、(2)、(3)式の右辺の N の係数を計算した。この計算の結果、

$$\frac{N_{\alpha} \times N_{\beta}}{N_c} = N \times (1.03 \pm 0.03) \quad (4)$$

となった。右辺の誤差は壊変図式の不確かさを考慮して出したものである。 N_{α} , N_{β} , N_c の実測値と(4)式を用いて N を求めた。

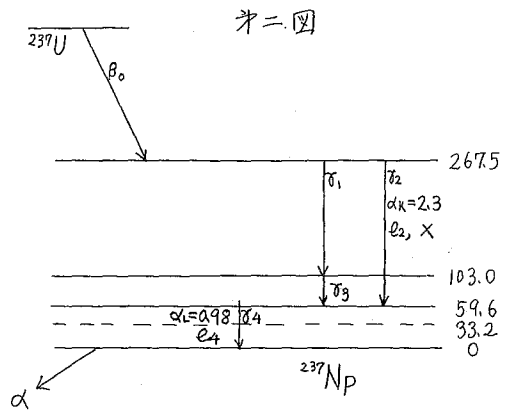
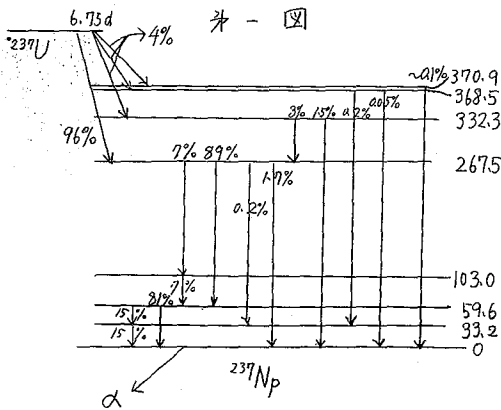
以上のようにして比放射能を求めた塩化ウラニル水溶液との相対測定によって、励起函数測定用試料中の ^{237}U を定量した。相対測定は 3×3 インチ NaI クリスタルと 256 チャンネル波高分析器を用いて γ 線スペクトルを測定し、208 KeV の γ 線によるフォトピークの面積を比較して行った。各試料は塩化ウラニルの水溶液 (U の濃度は 50 mg/ml 以下) であるが、 U の濃度が 150 mg/ml までは 208 KeV γ 線は U による吸収の差が 1% 以下であることをあらかじめ確かめた。

最後に $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法の指導をして下さった名古屋大学の渡辺氏に深く感謝する。

註1) 夏目：オ7回放射化学討論会

2) J. O. Rasmussen, F. L. Canavan, J. H. Hollander: Phys. Rev. 107 141 (1957)

3) J. S. Merritt, J. G. V. Taylor, W. F. Merritt, P. J. Campion, Anal. Chem. 32 310 (1960)



β_1	164.5 KeV	7%	β_0	248 KeV	96%
β_2	207.9	27	e_1	89	62
β_3	43.4	7	e_2	37	40
β_4	59.6	41			
X	101.0	62			

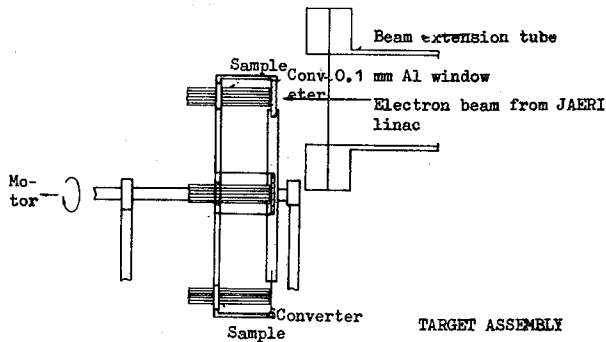
日本原子力研究所

柴田長夫, ○田中吉左右

^{67}Cu は銅のラジオアイソトープのうちもつとも長寿命のものである。 ^{67}Cu は原子炉の速中性子により, $^{67}\text{Zn}(n, p)^{67}\text{Cu}$ 反応を利用して製造する方法が検討されており, すでに四方¹⁾がこの製造法に関する基礎的な検討を行ってきた。しかし ^{67}Zn は天然の同位体存在比が小さく(4.11%), しかも製品中に大量の ^{64}Cu が混入することを避けられなかつた。

演者の一人はさきかリニアエレクトロンアクセラレータを利用して(γ, n) 反応によるラジオアイソトープの製造を試みしたが, そのさい厚さ2mmの白金コンバータを使用したときに発生する制動放射線の空間分布について検討を行つた。その実験結果によれば, (γ, n) 反応を利用してもつとも比放射能の高い製品がえられる有効ビームのデimeンションは, コンバータ直後の約7mm ϕ ×25mmの範囲にあり, その全容積は約1ccであつた。しかし(γ, p) 反応あるいは(γ, α) 反応などのようにターゲット物質の元素と異なるラジオアイソトープがえられるばあひには, ビーム強度が最強のデimeンションでのみ照射するよりも, 有効ビーム範囲に十分厚いターゲット物質を装着することによつて生成量の増加が期待される。一方さきか用いた白金コンバータの厚みは, 森永²⁾が25MeVのベータトロン²⁾のインターナルターゲットアセンブリによつて, ^{180}Ta の最高収率をえた値を参照して製作されたものである。われわれは20MeVリニアエレクトロンアクセラレータにおいて, コンバータ厚みが $^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Cu}$ 反応による ^{67}Cu の生成量におよぼす影響を検討し, さらに大量のターゲットを使用したときの ^{67}Cu 生成量の実測を行ない, これらの結果をもととしてえらんだ照射条件について報告する。

照射条件を検討するさいのターゲット物質としては, 市販の亜鉛薄板(厚さ1mm)および亜鉛ベ

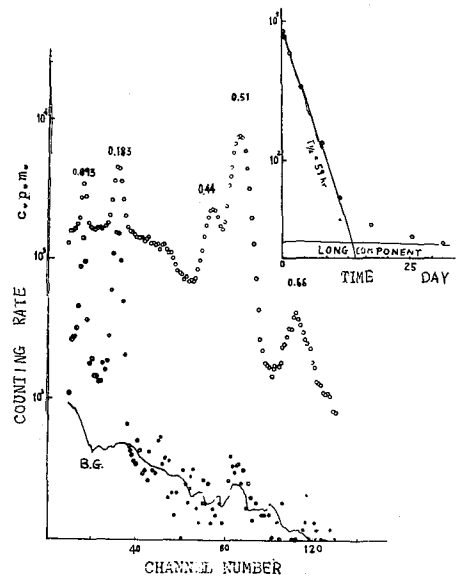


ット(7mm ϕ ×2mm)を使用した。装着したターゲットアセンブリをオ1図に示す。図から明らかなようにターゲット物質は回転する支持棒で固定されており, 照射中はモータで回転した。このターゲットアセンブリを30分間, 電子エネルギー20MeVで照射した。照射後試料を王水に溶解し Co^{++} , Cu^{++} のおのおの1mgの担体を添加し, 蒸発乾固したのち塩酸溶液とし, 陰イオン交換樹脂(ダイヤイオン SA100, 100~200メツシュ, 8mm ϕ ×100mm)を用いて銅フラクション

を分離した。溶離液として 4 M および 2.5 M 塩酸溶液，2 M 硝酸溶液を使用した。2.5 M 塩酸溶離液としてえられた銅フラクションは全量を集め，濃縮後定容として放射能の測定を行った。放射能の測定は GM 計数器および 7.5cmφ×7.5cm NaI クリスタルによる 256 チャンネルパルスハイトアナライザを用いた。

オ 2 図には照射後 6 時間を経た試料のガンマ線スペクトル，分離後の銅フラクションのガンマ線スペクトル，およびそれらの放射能の崩壊曲線を示した。照射のさいビームの軸方向に垂直な部分のディメンションはオリザリッド感光紙によつて検知したが，さらに照射したスタックは，コンバータ直後の試料面の強度を測定し，最大強度の中心点の試料片をえらび，ビームの軸方向に 5 mm 間隔の切片に切斷し，おのおのの切片中の ^{67}Cu 生成放射能を求めた。

このようにしてえられた曲線（放射化学的収量の変化に相当する）を，コンバータを使用せず試料片だけを照射したときの曲線と比較すると，顕著な相異が認められる。2mm 白金コンバータを使用したとき，コンバータ直後の試料片の ^{67}Cu 生成量は，コンバータを使用しなかつたときとおなじジオメトリの試料片の約 2 倍の値をとる。いづれのばあいにも生成放射能はビーム強度の低下（試料内における減衰）に従つてなめらかな減衰を示すが，前者の減衰は後者にくらべていちじるしい。前者ではコンバータ直後から 50mm へだたつた位置の試料片では ^{67}Cu の生成放射能がコンバータ直後の値の 1/10 であるが，白金コンバータを使用しなかつたばあいには 1/4 という値をえた。4 mm の白金コンバータを使用したばあいには 2mm のばあいと比較して明らかに ^{67}Cu の生成量が減少する。このような減衰曲線を $^{64}\text{Zn}(\gamma, n)$ ^{63}Zn 反応によつてえられる ^{63}Zn の生成量についても検討し，この結果を ^{67}Cu のそれと比較した。上述の照射条件に関して検討した結果を参照し，20g の酸化亜鉛をターゲット物質として選び，2mm の白金コンバータを使用して照射を行った結果，20MeV-40 μA -10 時間の照射で ^{67}Cu の収量 300 μc を得た。この値は (γ, n) 反応を利用し，1g の亜鉛ターゲットを ^{132}Cs の製造³⁾のさいに用いた照射条件で照射してえられた生成量と比較すると約 5 倍であつた。試料中のビーム強度の減衰に対応する放射化学収率の変化，ならびに製造処理法の開発を目的としたターゲット物質の精製法，大量の亜鉛中の銅の粗分離法について考察する。



γ-ray Spectra and Decay Curve of Samples

- 1) E. Shikata, Nippon Genshiryoku Gakkaishi, in press
- 2) H. Morinaga and T. Kuroyanagi, Nucl. Instruments and Methods 6,66 (1960)
- 3) K. Tanaka, T. Tamura and T. Kuroyanagi, Radiochimica Acta, in press