

# 講演発表

第1日 9月26日(月)

---

## 軽核領域の光 $\pi$ 放出核反応 (2)

(金沢大理・東大核研<sup>2</sup>・追手門大経<sup>3</sup>・名大理<sup>4</sup>)

○大浦泰嗣<sup>1</sup>・羽場宏光<sup>1</sup>・坂本浩<sup>1</sup>・柴田誠一<sup>2</sup>・藤原一郎<sup>3</sup>・古川路明<sup>4</sup>

【序】 光子は原子核と共鳴的に相互作用する。エネルギーが140MeVを越えると光子は核内核子と(3,3)共鳴し、 $\Delta$ 粒子を經由して $\pi$ 中間子を生成する。光子は核深部へ容易に侵入することができるため、原子核の内部を探る良いプローブになると考えられる。また、ハドロンによる $\pi$ 中間子生成とは異なる様相がみられると期待できる。

我々のグループは以前より、光 $\pi$ 中間子放出核反応( $\gamma, \pi xn$ ), ( $\gamma, \pi^*$ )の生成収率 ( $Y(E_0)$ )のエネルギー( $E_0$ )及び標的核質量( $A_t$ )依存性を調べてきた。そして、 $x \geq 1$ つまり中性子放出を伴う場合、 $A_t$ の増加とともに $Y(E_0)$ は急速に増加し、 $A_t > 150$ でほぼ一定となること、 $x=0$ つまり中性子放出を伴わない場合、 $A_t \geq 50$ では( $\gamma, \pi$ ), ( $\gamma, \pi^*$ )ともに $Y(E_0)$ は $A_t$ に依存せず、その比は約5であることを見いだした。 $A_t < 50$ では、まだ予備的なデータしか得られていなかったが、 $A_t \geq 50$ と異なり $A_t$ の減少と共に $Y(E_0)$ も減少するようであった。

そこで、 $A_t < 50$ の領域での様子を明らかにするため新たな標的も加え、この領域での収率測定を続けてきた。本討論会では、 $^{44}\text{Ca}(\gamma, \pi)^{44\text{m}}\text{Sc}$ ,  $^{37}\text{Cl}(\gamma, \pi^*)^{37}\text{S}$ ,  $^{27}\text{Al}(\gamma, \pi^*)^{27}\text{Mg}$ ,  $^{18}\text{O}(\gamma, \pi)^{18}\text{F}$ ,  $^{14}\text{N}(\gamma, \pi)^{14}\text{O}$ ,  $^{11}\text{B}(\gamma, \pi)^{11}\text{C}$ ,  $^7\text{Li}(\gamma, \pi)^7\text{Be}$ 反応の収率測定結果を報告する。

【実験】  $\text{CaCO}_3$ ,  $\text{NaCl}$ ,  $\text{Al metal}$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ または $\text{LiBO}_2$ ,  $\text{BN}$ ,  $\text{B metal}$ ,  $\text{LiH}$ を適当な大きさに加圧整形して制動放射線照射した。ただし、 $\text{Al}$ は金属板を、 $\text{H}_2\text{O}$ はアクリル製照射容器に満たし、 $\text{B}$ は金属粉を $\text{Al}$ 製照射容器に詰めて照射した。照射は東北大核理研電子ライナック及び東大核研電子シンクロトロンで行った。照射後、 $\text{CaCO}_3$ ,  $\text{NaCl}$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{LiBO}_2$ は目的核種を化学分離後、その他は非破壊で $\gamma$ 線スペクトロメトリーを行った。実験の詳細、データ解析法等は前報<sup>1)</sup>どおりである。

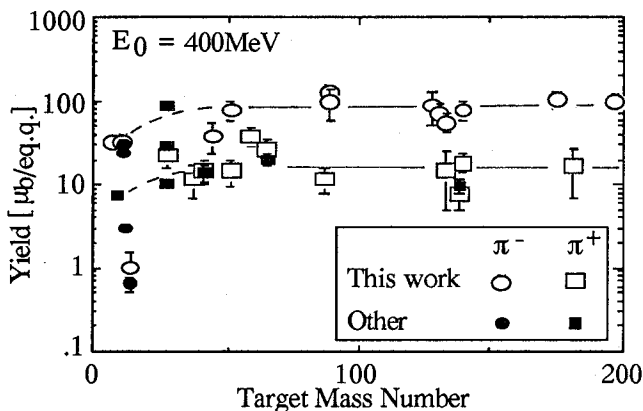
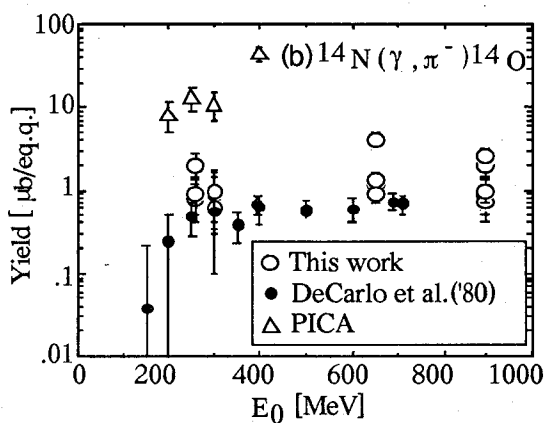
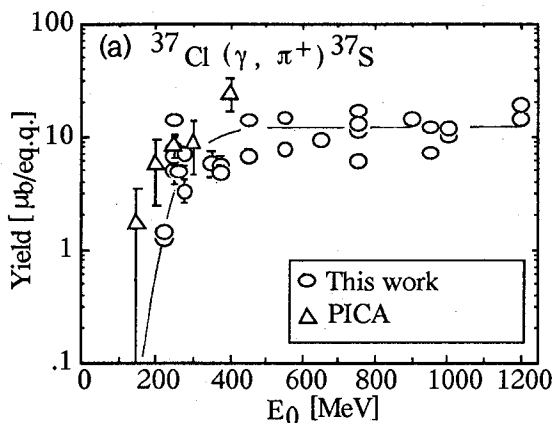
【結果と考察】 Fig.1に例として(a) $^{37}\text{Cl}(\gamma, \pi^*)^{37}\text{S}$ , (b) $^{14}\text{N}(\gamma, \pi)^{14}\text{O}$ の収率曲線((a)は二次粒子反応による寄与の補正<sup>1)</sup>を行った)を示した。得られた収率曲線はこれまでと同様で、 $Q$ 値から急激に立上り500MeV以上でほぼ一定になる。 $^{14}\text{N}(\gamma, \pi)^{14}\text{O}$ については $Q$ 値以下での測定をまだ行っていないので二次粒子反応による寄与の補正を行っていない。DeCarloら<sup>2)</sup>の測定値を●で示したが、これまでの経験上( $\gamma, \pi$ )反応における二次粒子反応の寄与は観測値に対して5-20%であるので、我々の値とDeCarloらの値はほぼ一致していると推定できる。PICAコードによる計算値を△で示した。(a)では計算値は実験値よりも大きい、ほぼ実験値を再現( $\times 2$ )している。他の反応でもほぼ再現している。しかし、(b)の場合は計算値が実験値の約15倍大きい。PICA計算の限界( $A_t > 12$ とされている<sup>3)</sup>)かもしれない。

Fig.2に $E_0=400\text{MeV}$ での( $\gamma, \pi$ )と( $\gamma, \pi^*$ )反応収率の $A_t$ 依存性を示した。他のグループにより報告されている値を●, ■で示した。( $\gamma, \pi^*$ )は( $\gamma, \pi$ )よりもばらつきが大きい(特に $^{27}\text{Al}(\gamma, \pi^*)^{27}\text{Mg}$ )が、上述したようにいずれの場合も $A_t \geq 50$ ではほぼ一定値を示している。また、収率比が標的核の中性子数と陽子数の比(1~1.5)よりも大きく、約5である<sup>4)</sup>。

$A_t$ が小さい領域での依存性はどうなっているであろうか。 $^7\text{Li}(\gamma, \pi)^7\text{Be}$ 及び $^{11}\text{B}(\gamma, \pi)^{11}\text{C}$ 反応の収率が明らかに $A_t \geq 50$ の値(約100 $\mu\text{b}/\text{eq.q.}$ )よりも小さく約1/3である。 $^7\text{Li}(\gamma, \pi)^7\text{Be}$ 反応の収率も二次粒子反応の寄与を補正していないので、更に小さいはずである。14 $< A_t < 44$ でのデータがないが、前報の予備的結果からの予想通りこの領域では( $\gamma, \pi$ )反応の収率は $A_t$ に依存するようである。ただし、Fig.1(b)で示した $^{14}\text{N}(\gamma, \pi)^{14}\text{O}$ 及びEpaneshnikovらによる $^{12}\text{C}(\gamma, \pi)^{12}\text{N}$ の収率<sup>5)</sup>が異常に低

い。 $^{14}\text{N}$ と $^{12}\text{C}$ はともに中性子と陽子の数が等しい核である。これは、収率の系統性を考察する上でなにか重要なことを示唆しているのではないかと考えられる。軽核では終状態が限られてくるための収率低下を映しているかもしれないが、これまでに報告されているいくつかの殻モデル計算でもまだ満足な結果は得られていない。

- 1) K.Sakamoto et al., Nucl. Phys. A 501, 693(1989). K.Sakamoto et al., Phys. Rev. C 42, 1545(1990). 第29,30,31,32,33,35回放射化討論会など。
- 2) V.DeCarlo et al., Phys.Rev.C 21, 1460(1980).
- 3) T.A.Gabriel and R.G.Alsmiller, Jr., Phys.Rev. 182, 1035(1969).
- 4) 大浦ほか, 第37回放射化討論会(1993). Y.Oura et al., Radiochim.Acta. in press.
- 5) V.D.Epaneshnikov et al., Sov.J.Nucl.Phys. 19, 242(1974).



(UP) Fig.1. Variation of the yields as a function of  $E_0$ .

(DOWN) Fig.2. Variation of the yields of  $(\gamma, \pi^-)$  and  $(\gamma, \pi^+)$  reactions at  $E_0 = 400\text{MeV}$  as a function of target mass number.

### SYSTEMTICS OF PHOTOPION REACTION - SPECIALLY OF LIGHT NUCLEI - (2)

Yasuji OURA, Hiromitsu HABA, Koh SAKAMOTO, Faculty of Science, Kanazawa University.

Seiichi SHIBATA, Institute of Nuclear Study, University of Tokyo.

Ichirou FUJIWARA, School of Economics, Otemongakuin University.

Michiaki FURUKAWA, Faculty of Science, Nagoya University.

Nuclide yields were measured for photopion reactions of  $^{44}\text{Ca}$ ,  $^{37}\text{Cl}$ ,  $^{27}\text{Al}$ ,  $^{18}\text{O}$ ,  $^{14}\text{N}$ ,  $^{11}\text{B}$ , and  $^7\text{Li}$  to compare photopion systematics obtained from heavier targets. It was found that photopion yields from  $(\gamma, \pi^\pm)$  reactions of lighter targets seem to be dependent of target masses ( $A$ ) in comparison with those of heavier targets, which appear independent of  $A$ . And yields of targets ( $^{14}\text{N}$ ) in which the number of neutron is equal to that of proton are very small than yields expected from a systematics. This seems to suggest a new mechanism.

## 光核反応におけるフラグメンテーション過程について

(東大核研<sup>1</sup>、金沢大理<sup>2</sup>、名大理<sup>3</sup>、追手門学院大経<sup>4</sup>、日大文理<sup>5</sup>、東大原セ<sup>6</sup>) ○柴田誠一<sup>1</sup>、今村峯雄<sup>1</sup>、坂本 浩<sup>2</sup>、沖崎昌平<sup>2</sup>、土田早苗<sup>2</sup>、古川路明<sup>3</sup>、藤原一郎<sup>4</sup>、永井尚生<sup>5</sup>、小林紘一<sup>6</sup>

【はじめに】 高エネルギー核反応生成物のうち、質量数 $\sim 30$ 迄の軽い粒子の生成(フラグメンテーション過程)については、現在もその生成機構の明確な描像が得られていない。これ迄の我々の光核破砕反応についての一連の実験結果[1,2]から、光核反応における軽い核の生成は、陽子による反応と比較してかなり低いと予測される。そこで、我々は光子と陽子による核反応におけるフラグメンテーション過程について比較検討するために、光核反応により生成した ${}^7\text{Be}$ と ${}^{10}\text{Be}$ の収率測定を、それぞれ $\gamma$ 線スペクトロメトリー、加速器質量分析法により行い、測定結果の一部は既に報告した[3]。放射化学的手法による光核反応研究に際しては単色の高エネルギー光子ビームが得られないため、連続エネルギースペクトルを持つ制動放射線を用いて実験を行わざるを得ない。そのため、陽子による反応との相違について定量的に議論するためには、得られた生成収率( $\mu\text{b/equivalent quanta}$ )の生成断面積( $\mu\text{b}$ )への変換が不可欠である。我々はLOUHI-82コード[4]を使ってこの変換(unfolding)を行った。得られた断面積の平均( $E = 700\text{MeV}-1\text{GeV}$ )を、陽子による生成断面積の解析の場合と同様に、Campi et al. の式[5]を用いて解析した。その結果、このエネルギー領域における ${}^7\text{Be}$ 、 ${}^{10}\text{Be}$ の生成に関して興味ある知見が得られたので報告する。

【解析・考察】 陽子照射によるAl-Auターゲットからの ${}^{10}\text{Be}$ 、 ${}^{26}\text{Al}$ の生成断面積の解析結果については昨年の本討論会で報告したが[6]、これらの断面積に対するフラグメンテーションとスポーレーションの寄与の割合は次に示すCampi et al. の式により定量的に議論できることがわかった。

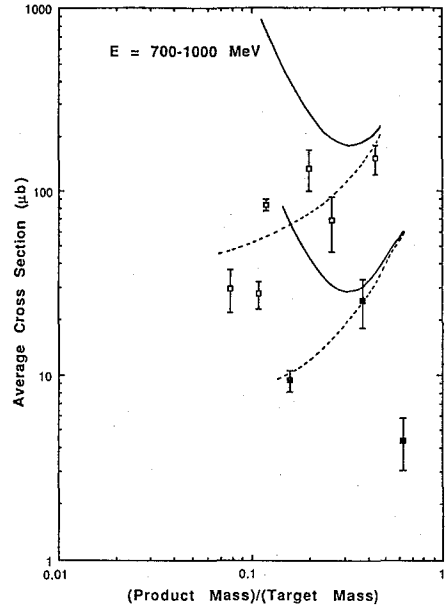
$$\sigma(X) = 0.09X^{-2.5} + 0.9\exp(3.7X) \quad [\text{mb}] \quad (1)$$

ここで、 $X$ は生成フラグメント質量( $K$ )とターゲット質量( $A$ )の比( $X = K/A$ )を表す。この式は、 $\sim 5\text{GeV}$ 陽子によりターゲット( $A > 60$ )中に生成した核の収率分布をもとに、モデルに依存しない二つのサムルールにより導かれた。(  $K > 20$  の生成核に対し式の第2項が得られ、 $K < 20$  に対して第1項が得られた。)

図1にunfoldingにより得られた $E = 700\text{MeV}-1\text{GeV}$ での平均断面積( ${}^7\text{Be}$ :□、 ${}^{10}\text{Be}$ :■)を $X$ の関数としてプロットした結果を示す。また、図中の実線は(1)式による予想値であり点線は(1)式のうち第2項(スポーレーション過程)からの寄与を表す。これらの線はいずれも実験データ(断面積)にフィットするように縦軸方向に平行移動したものである。データのばらつきは大きいものの ${}^7\text{Be}$ 、 ${}^{10}\text{Be}$ ともにスポーレーション過程からの寄与を表す点線に一致しているように思われる。従って、このエネルギー領域ではフラグメンテーション過程からの ${}^7\text{Be}$ 、 ${}^{10}\text{Be}$ 生成への寄与はほとんど無視できることがわかった。

討論会では、この結果と同じエネルギー領域での陽子による ${}^7\text{Be}$ 、 ${}^{10}\text{Be}$ 生成との比較、更に光子および陽子による核破砕反応の質量収率曲線との関連を通して議論を進める予定である。

Fig. 1. Average cross sections ( $\mu$  b) of  ${}^7\text{Be}$  (open square) and  ${}^{10}\text{Be}$  (solid square) in 700-1000 MeV as a function of ratio of product-mass to target-mass ( $X = K/A$ ). The solid line shows the total isobaric yield obtained by the Campi formula [5], and the dashed line corresponds to the yield from the second term of the formula. These lines are vertically shifted so as to fit the cross sections.



#### References

- [1] S. Shibata et al., Phys. Rev. C 35, 254 (1987).
- [2] S.R. Sarkar et al., Radiochim. Acta 55, 113 (1991).
- [3] 柴田ら、第35回放射化学討論会(大阪)1991年11月.
- [4] J.T. Routti and J.V. Sandberg, Comput. Phys. Commun. 21, 119 (1980).
- [5] X. Campi et al., Phys. Lett. 138B, 353 (1984).
- [6] 柴田ら、第37回放射化学討論会(金沢)1993年10月; S. Shibata et al., Phys. Rev. C 48, 2617 (1993).

#### FRAGMENTATION PROCESS IN PHOTONUCLEAR REACTION AT INTERMEDIATE-ENERGIES

Seichi SHIBATA, Mineo IMAMURA, Institute for Nuclear Study, University of Tokyo  
 Koh SAKAMOTO, Shohei OKIZAKI, Sanae TSUCHIDA, Faculty of Science, Kanazawa University

Michiaki FURUKAWA, Faculty of Science, Nagoya University

Ichiro FUJIWARA, School of Economics, Otemon-gakuin University

Hisao NAGAI, College of Humanities and Sciences, Nihon University

Koichi KOBAYASHI, Research Center for Nuclear Science and Technology, University of Tokyo

The yields of  ${}^7\text{Be}$  and  ${}^{10}\text{Be}$  produced by bremsstrahlung with maximum energies of 250-1050 MeV in O, Al, Cl, Co, Cu, Y, Ag and Au targets have been measured by non-destructive  $\gamma$ -ray countings and accelerator mass spectrometry (AMS), respectively. The cross sections ( $\mu$  b) obtained by unfolding the measured yields ( $\mu$  b/eq. q.) for  ${}^7\text{Be}$  and  ${}^{10}\text{Be}$  were analyzed by the Campi formula. As a result, it is found that the  ${}^7\text{Be}$  and  ${}^{10}\text{Be}$  yields from fragmentation process are almost negligible to their total yields at the studied energy region in photonuclear reaction.

## 高エネルギーヘリウムによる中重核標的の核破碎反応断面積

(高エネ研) ○沼尻正晴、三浦太一、沖 雄一、鈴木健訓、近藤健次郎  
田中万博、家入正治、野海博之、山野井 豊、高崎 稔

## 【緒言】

入射粒子と原子核との反応は、入射粒子のエネルギーが数百 MeV以上になると核破碎反応が主となり多種多様な核種が生成する。また、生成核種の断面積は、数 GeV以上で入射エネルギーに依存しないことが知られている。これまで核破碎反応による残留核の生成断面積は、陽子について数百MeVから 800GeVまでのエネルギーの範囲で測定されているが、断片的なデータがほとんどで系統的に生成核種の断面積を測定したデータは少ない。ヘリウムによる生成断面積のデータは、非常に少ないのが現状である。高エネルギー加速器施設ではビーム損失によって加速器構造体や周辺機器内に様々な核種の残留放射能が生成し、放射線管理上問題となる。今回の実験で求めた生成核種の断面積は、高エネルギー加速器施設の残留放射能評価の基礎データとなるものである。本研究では、高エネルギー物理学研究所の取り出しビームラインにおいて、8、12及び20GeVのエネルギーのヘリウムビームを銅、銀などの中重核標的に照射し、Ge検出器による $\gamma$ 線測定を行い核破碎反応で生成した核種の断面積を求めた。本講演では比較的データの多い銅及び銀標的の中に 20GeV (核子あたり5GeV) のヘリウムによって生成した核種の断面積を高エネルギーの陽子、 $^{12}\text{C}$ 、 $^{16}\text{O}$  イオンによる実験結果 [1-4] と比較、検討を行う。

## 【実験】

高エネルギー物理学研究所 (KEK) の12GeV陽子シンクロトロンから取り出されたヘリウムビームを用いてAlからSnまでの5種類の金属標的を東カウンターホールの取り出しライン (EP2) 上で、原子番号の小さいものを上流側にして照射を行った。標的は3枚ずつ重ね、一枚の厚さは銅  $44\text{mg}/\text{cm}^2$ 、銀  $53\text{mg}/\text{cm}^2$  である。

ヘリウムの入射エネルギーは20GeVであり、照射したヘリウム数は、 $6.3 \times 10^{12}$  (照射時間は20分) で、これは炭素の放射化による $^{12}\text{C}(\alpha, \alpha n)^{11}\text{C}$ 反応の断面積、 $42 \pm 4.2\text{mb}$ を用いて求めた。照射中のビーム強度は、IC (電離箱) 及び SEC (二次電子チェンバー) でモニターし、その変動は僅かであった。

## 【結果および考察】

照射した標的 (銅及び銀) からの $\gamma$ 線をGe検出器とPHAによって経過時間を変えて測定した。得られたスペクトルの $\gamma$ 線エネルギーと計数率の変化から核種を同定し、半減期、検出効率、 $\gamma$ 線放出率から生成断面積を算出した。

銅標的の中に生成した核種の質量数に対する、20GeVヘリウムと12GeV陽子照射時の断面積 [1] の比を図1に示す。生成核の質量数が20から60までは、ほぼ一定の比となり、高エネルギー領域ではヘリウム入射も陽子と同様の質量数分布となることを示している。しかし軽核 ( $^7\text{Be}$ ) と標的核の質量数に近い核の断面積の比は他に比べ大きい値となっている。銀標的の中に生成した核種の質量数に対する同様の関係を図2に示す。銀標的では、生成断面積が陽子エネルギーが数十GeVになるまで増加し、ここでは陽子エネルギーが12GeVと29GeVの断面積について図2に示した。陽子エネルギーによって多少断面積比が異なるが、

銅標的における軽核と標的核近傍での比が大きい傾向は、銀標的についてもみられる。重イオン入射における軽核の増加の傾向については、銀標的に $^{12}\text{C}$  (25.2 GeV) [3],  $^{16}\text{O}$  (233.6 GeV) [4]を入射した実験結果などにおいてもみられ、軽核の生成が中心部衝突によるものといわれている。高エネルギーヘリウム入射における軽核の生成量の増加についても同様に考えられる。

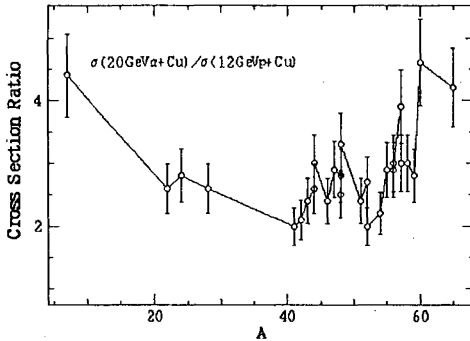


Fig. 1. Mass dependence of cross section ratio for Cu target.

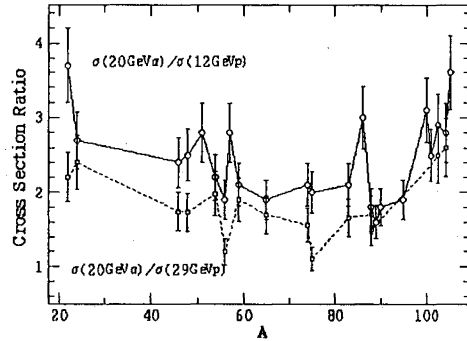


Fig. 2. Mass dependence of cross section ratio for Ag target. Data at 29 GeV protons are from ref. 2.

#### References

- [1] T. Asano et al., Phys. Rev. C28, 1718 (1983).
- [2] S. Katcoff, H. R. Fickel and A. Wyttenbach, Phys. Rev. 166, 1147 (1968).
- [3] N. T. Porile, G. D. Cole, and C. R. Rudy, Phys. Rev. C19, 2288 (1979).
- [4] M. Bronikowski and N. T. Porile, Phys. Rev. C45, 1389 (1992).

#### NUCLEAR REACTIONS OF HIGH ENERGY ALPHA PARTICLES WITH MEDIUM MASS NUCLIDES

Masaharu NUMAJIRI, Taichi MIURA, Yuichi OKI, Takenori SUZUKI,  
 Kenjiro KONDO, Kazuhiro TANAKA, Masaharu IEIRI, Hiroyuki NOUMI,  
 Yutaka YAMANOI and Minoru TAKASAKI  
 National Laboratory for High Energy Physics

Formation cross sections of product nuclides in the nuclear reactions of copper and silver targets with 20 GeV alpha particles were measured using a  $\gamma$ -ray spectroscopy. The measured data were compared with the cross sections of 12 GeV and 29 GeV protons.

(東大核研<sup>1</sup>、東北大サイクロTRセ<sup>2</sup>、原研高崎<sup>3</sup>、原研東海<sup>4</sup>)今村峯雄<sup>1</sup>、柴田徳思<sup>1</sup>、柴田誠一<sup>1</sup>、上養義朋<sup>1</sup>、大久保徹<sup>1</sup>、佐藤信吾<sup>1</sup>、中村尚司<sup>2</sup>、紺野敦子<sup>2</sup>、田中進<sup>3</sup>、田中俊一<sup>4</sup>

## 【はじめに】

中性子による放射性核種の生成(放射化)は放射線遮蔽研究や天体物理研究の基礎データとして重要である。20MeV以下での中性子誘起核反応の放射化断面積については膨大な数の測定が報告されている。しかしながら、20MeV以上での測定例については、これまで、実験上の制約から非常に限られたものとなっている。

我々は、放射線遮蔽研究や天体物理研究にとって重要な核種に関して、20MeV以上の中性子に対する生成断面積を求める目的で、10年ほど前から研究を進めてきた。15-38MeVの中性子場は、核研-東北大グループによって核研SFサイクロトロン<sup>1</sup>のRI製造コースに設置した単色中性子発生装置がある。一昨年秋から原研高崎研究所サイクロトロン施設のp-Li単色中性子照射設備が利用できるようになり(1)、40MeV以上での中性子による核反応断面積の測定が可能になった。昨年の討論会ではその装置の概要や予備的なデータについて報告したが、今回はこれまでに得られた結果について報告する。

## 【実験】

原研高崎研究所AVFサイクロトロンの単色中性子発生装置は<sup>7</sup>Li(p,n)反応で生ずる二次中性子を利用する。単色中性子発生に用いるリチウムターゲットは水冷されたホルダーに数枚セットされている。その厚みは陽子のエネルギー損失が2MeVになるよう、陽子のエネルギーに応じて選択する。リチウムを通過した陽子ビームは直後のclearing magnetによって、直進する中性子ビームから分離される。中性子ビームは遮蔽壁に設けられた10cm径のコリメータを通して実験室に導かれる。放射化用ターゲット試料はリチウムターゲットからは4mの距離になる。

実験ではBi,Cu,C,Alほかのターゲットについて1時間の短時間照射と約1日(実時間で)の長時間照射を行なった。中性子束は $2-3 \times 10^4 \text{ n/cm}^2/\text{sec}/\mu\text{A}$ で粒子束としてはかなり低い値である。照射野が10cmφと広いことを利用し、大きなターゲットサイズ(約30mm角又は円板、数g-数10g)を用い、長時間照射で中性子束の低さを補った。試料照射後、Ge半導体検出器(一部の試料は東大核研Geで測定)でγ線放出核種の測定を行ない、それぞれの生成量の定量を行なった。長時間照射の場合、他の中性子実験と抱き合わせて行なうことが多く、その補正はやや複雑になる。データ解析に必要なビームのオン・オフの時間、ビーム強度の値は、一分ごとの積算電流値を読み込み記録した。平成4年度から5年度にかけて、中性子エネルギー41.5および64.3 MeV(名目の陽子エネルギー45、60MeVに相当)での照射実験を行ない、更にこの5月に56MeV(陽子名目60MeV)での実験を行なった。

## 【結果と考察】

<sup>7</sup>Li(p,n)反応で得られる中性子のエネルギーは完全な単色ではなく、ピークエネルギーより低い領域にも連続的なエネルギーをもつ成分がある(連続成分は主としてdecay channelでの $n+{}^3\text{He}+{}^4\text{He}$ の三体decayによる)。核反応断面積として計算するにはその寄与を補正する必要



があるので、より低エネルギー領域での断面積も知る必要がある。したがって一般にはエネルギーを順次増加させて実験を行ない、実験データを求めていく必要がある。高崎原研のこれまでの実験ではエネルギー間隔が離れているため、現時点では精度の高い核反応断面積を求めることは出来ない。これまで得られた結果の中から、 $^{209}\text{Bi}(n,xn)^{210-x}\text{Bi}$ 反応その他の核反応断面積について紹介し議論したい。(  $^{209}\text{Bi}(n,xn)^{210-x}\text{Bi}$ 反応はthreshold反応を利用した中性子スペクトル測定への応用に対し興味ある反応である。)

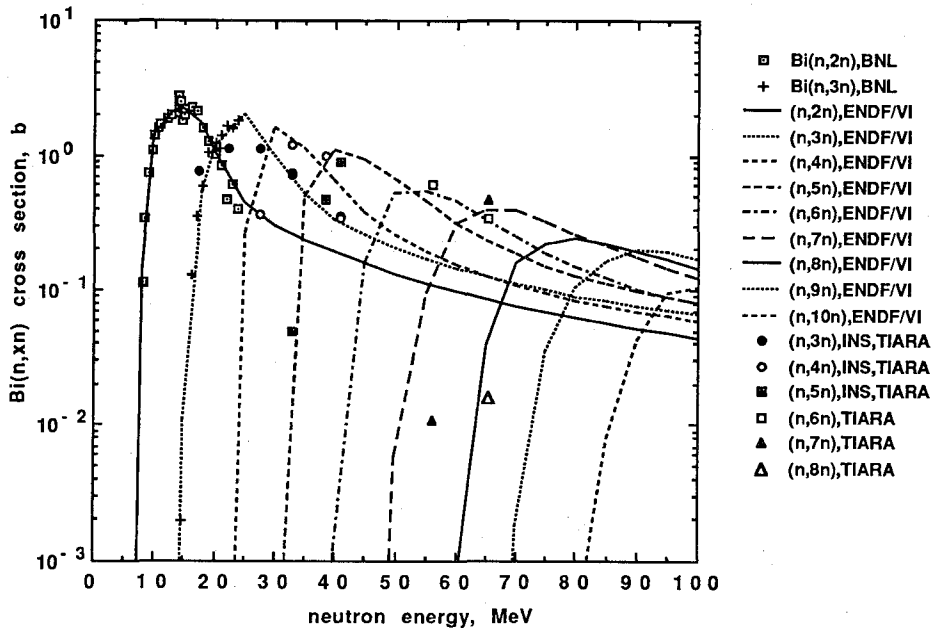


Fig. Preliminary results of the  $^{209}\text{Bi}(n,xn)^{210-x}\text{Bi}(x=3-8)$  reactions. The data below 38MeV are from ref. 2). Errors are not indicated.

#### 参考文献

- 1) Susumu Tanaka et al., Proc. 2nd Int. Symp. on Advanced Nuclear Energy Research - Evolution by Accelerators -, Mito, (1990)p.342
- 2) Y. Uwamino et al., Ann. Report 1993, INS.

#### MEASUREMENTS OF NEUTRON-INDUCED REACTION CROSS SECTIONS IN THE ENERGIES OF 15-65 MEV II

Mineo IMAMURA, Tokushi SHIBATA, Seiichi SHIBATA, Yoshitomo UWAMINO, Tohru OHKUBO, Shingo SATO, Institute for Nuclear Study, University of Tokyo

Atsuko KONNO, Takashi NAKAMURA, Cyclotron and Radioisotope Center, Tohoku University

Susumu TANAKA, Takasaki Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute

Shun-ichi TANAKA, Tokai Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute

Neutron-induced activation cross sections have been measured using the p-Li monoenergetic neutron sources at JAERI-Takasaki. We report on the recent results on cross section measurements including the  $^{209}\text{Bi}(n,xn)^{210-x}\text{Bi}(x=3-8)$  reactions and others.

高エネルギー中性子によるネオン同位体生成率の測定—地表及び天体表層での生成率との比較

(東大核研<sup>1</sup>、岡山大地球内部研究セ<sup>2</sup>)

今村峯雄<sup>1</sup>、長尾敬介<sup>2</sup>

### 【はじめに】

宇宙線によって生成される核種は宇宙科学・地球科学で年代測定などに利用される。特に最近では地表で直接生成される宇宙線生成核種が注目されるようになってきた。これらの宇宙線生成核種は天体の表面下約100g/cm<sup>2</sup>以深では70-80%が、地表ではその90%以上が中性子の寄与である。

様々な宇宙線生成核種の中で、ネオンなどの希ガスは岩石などの中の含有量が極端に少なく、核反応の影響が顕在しやすい。特に<sup>21</sup>Neはネオンの中でも0.27%と同位体存在度が非常に小さいので、安定な宇宙線生成核種の中で最もよく研究されているものの一つである。本報告では、15-35MeVの準単色中性子場を用い、Mg, Alからの<sup>21</sup>Ne, <sup>22</sup>Neおよび<sup>22</sup>Naの高エネルギー中性子による生成断面積を測定した結果と、地表や隕石・月表面などでのネオン同位体の生成率について議論する。

### 【実験】

Mg, Alの金属ターゲットを用いた。これらを、<sup>9</sup>Be(p,n)反応の二次中性子を用いる準単色中性子場で照射した(本実験で用いたものは1987-1989年に別目的で照射したもの)。中性子束は0.2-1.6x10<sup>12</sup>/cm<sup>2</sup>、試料はMgが40-100mg, Alが40-180mgである。

<sup>22</sup>NaはGe検出器を用い1275keVのγ線を測定して定量した。

ネオン同位体は岡山大学地球内部研究センターの高感度希ガス用質量分析計を用いて分析定量した。ターゲットからのネオンの抽出前に、まず、試料に吸着した大気性の揮発性ガスを試料温度200Cで排気除去する。次に約800Cに温度を上げてターゲットを融解し、ネオンガスを抽出し精製する。精製にはFig.1に示すように、Tiゲッタ(活性ガスの除去)と液体窒素温度での活性炭トラップ(ヘリウム・ネオン以外のガスの吸着)を用い、精製を2回繰り返す。最後に質量分析装置(VG5400)で分析する。質量域-20,21,22の質量スペクトルを得るが、質量-22には<sup>12</sup>C<sup>16</sup>O<sub>2</sub><sup>2+</sup>が存在する可能性があり、質量44についても測定する。一定の条件では、イオン源で生ずるCO<sub>2</sub><sup>1+</sup>/CO<sub>2</sub><sup>2+</sup>の比は一定であるとして質量22におけるCO<sub>2</sub>の寄与を補正する。ネオンの絶対量は検出効率を測定して決めるが、これには一定量の空気を分析系に導入し同様に精製、測定して決める。

### 【結果と考察】

質量スペクトルから<sup>22</sup>Ne/<sup>20</sup>Ne, <sup>21</sup>Ne/<sup>22</sup>Ne比が得られる。観測される同位体比は、核反応で生成したものとバックグラウンドのネオンとの和である。バックグラウンドはターゲットにもともと含まれるネオンとガス精製に混入するネオンである。バックグラウンドは天然組成と考えてよいので、測定値の天然組成からのズレにより核反応の寄与を計算できる。なお<sup>20</sup>Neの核反応の成分はバックグラウンドが圧倒的に多いため測定は困難である。<sup>22</sup>Neについては<sup>22</sup>Naが完全に壊変していないことの効果を、<sup>22</sup>Naのデータを用いて補正する。

ターゲットの原子数、中性子フルエンスおよびスペクトル、そして $^{21}\text{Ne}$ 、 $^{22}\text{Ne}$ 生成量からアンフォールディングによってピークエネルギーでの生成断面積を計算した。このとき低エネルギー領域の中性子の寄与を補正しなければならないが、20MeV以下の文献値のデータも含めて行なった。得られた励起関数を、文献値とともに示す。なお低エネルギー領域での独自のデータを得るため、東北大学FNL実験施設において単色中性子照射(2.0、4.5、6.5、13.0、14.3、15.8MeV)で行なった。この試料の質量分析結果が得られればもうすこし精度をよくできるものと思われる。

実験で得られたネオン生成の断面積(文献値を含め)と中性子スペクトルから地表や月表面での生成率を議論できる。例えば $^{21}\text{Ne}$ は $^{22}\text{Ne}$ に比べ低いエネルギーに大きな断面積を持つので、中性子スペクトルが低エネルギーにシフトする内部では $^{22}\text{Ne}/^{21}\text{Ne}$ 比は低下する。発表では観測データとの比較についても議論する予定である。

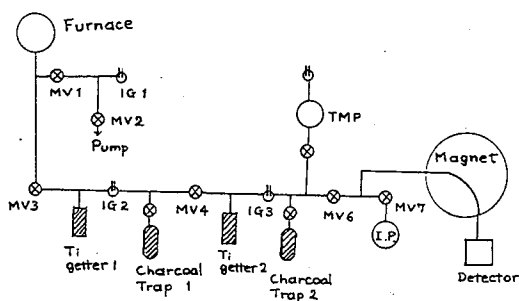


Fig.1 Extraction and purification system for mass spectrometric analyses of neon

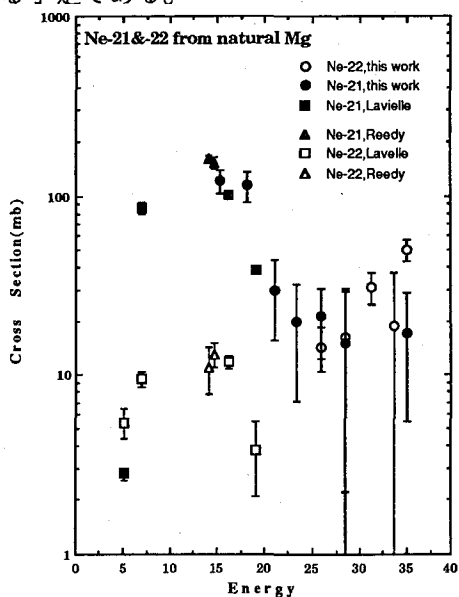


Fig.2. Production cross sections of neon isotopes from natural Mg.

### 参考文献

- 1) B. Lavielle et al., Phys. Rev. C42(1990)305.
- 2) R.C.Reedy et al., Earth Planet. Letters 44(1979)341.

## MEASUREMENTS OF PRODUCTION CROSS SECTIONS OF NEON ISOTOPES INDUCED BY HIGH-ENERGY NEUTRONS - IMPLICATIONS TO NEON PRODUCTION RATES IN THE TERRESTRIAL AND EXTRATERRESTRIAL SURFACES

Mineo IMAMURA, Institute for Nuclear Study, University of Tokyo

Keisuke NAGAO, Center for Study of the Earth's Interior, Okayama University

Production cross sections in the energy range of 15-35 MeV have been measured on the neon isotopes based on p-Be semi-monoenergetic neutron irradiations and sensitive mass spectrometric analyses. Using these data and those of lower energies from literature we estimate and discuss the production rates of these isotopes in the Earth's surface and in the extraterrestrial materials.

## ガスジェット結合型ISOLイオン源の開発

(原研、名大工\*) 浅井雅人\*、○塚田和明、市川進一、長明彦、  
飯村秀紀、篠原伸夫、永目諭一郎、西中一朗、初川雄一、  
河出清\*、山本洋\*、柴田理尋\*、山内浩司\*

【はじめに】 我々は原研タンデム施設に設置したISOLを用いてBa・La領域の陽子過剰核の崩壊に関する研究を行ってきた。現在、次の段階としてアクチノイドの核分裂を利用した中性子過剰希土類核種やアクチノイド核種の核的特性に関する研究を計画している。

中性子過剰希土類核種は、その生成に $^{252}\text{Cf}$ の自発核分裂<sup>1)</sup>や $^{235}\text{U}$ の熱中性子核分裂<sup>2)</sup>が利用され多くの新しい核種が発見されてきているが、崩壊に関する詳細な研究は少ない。我々は $^{235}\text{U}$ の熱中性子核分裂では生成困難な質量数155以上の中性子過剰核種の研究を行うために、より重いアクチノイド核種の核分裂を利用しうる、また、TRU核種の崩壊に関する研究への応用をめざしたイオン源として、ガスジェット結合型イオン源の開発を行った。

【実験装置】 ガスジェット結合型のイオン源を採用することによって、複数枚のターゲットの使用、等方的に放出される核分裂片の収集効率の向上、加速器本体のアクチノイドターゲットからの保護やターゲットへのイオン源からの放射熱の影響の除去など様々な利点が得られる。図1にこのイオン源の概略を示す。イオン源本体は京大型のイオン源を改良し、核分裂片用マルチターゲットシステムは独自に開発した。マルチターゲットシステムでは各ターゲットに対する収集効率が等しいことが求められる。現在、ターゲットは4枚(有効厚約 $12\text{mg/cm}^2$ )装着可能であり、各ターゲット位置での収集効率に大きな違いはみられない。

### 【実験及び結果】

1.  $^{252}\text{Cf}$ 核分裂線源(1.85MBq)を使用したオフライン実験でチェンバーの収集効率及びガスジェット輸送系のパラメーター決定を行った。チェンバーの形状の違い及び内部ガス圧力による収率の変化、NaClの温度とガスの流量、ガス流量とスキマー効率などの実験を行い、オンライン実験に際しての最適条件を得た。表にその条件を示す。

2.  $^{238}\text{U}$ の陽子誘起核分裂を利用してオンライン実験を行った。オンライン実験ではターゲットの形状・量及びビームの種類・量の違いにおける影響などの確認と共に質量分離後の収量の確認と新核種探索の可能性について検討した。図2にイオン源温度と代表的な核種の収率の関係を示す。このようにイオン源温度をあげることで、相対的にイオン化が難しいと予想されるEuで1%程度の収率を得ることができ、質量数160程度まで観測できた。

【今後の課題】 このような結果からガスジェット結合型イオン源が中性子過剰希土類核種の崩壊の研究に十分な性能を有することわかった。更により対象領域を広げていくためには、チェンバーの追加によるターゲットの増量、酸化物法による収率の向上、TRU核種のイオン化など検討していく必要がある。

### References

- 1) R.C.Greenwood et al., Phys. Rev. C35, 1965 (1987).
- 2) Y.Kawase et al., Nucl. Instr. Meth. B26, 341 (1987).

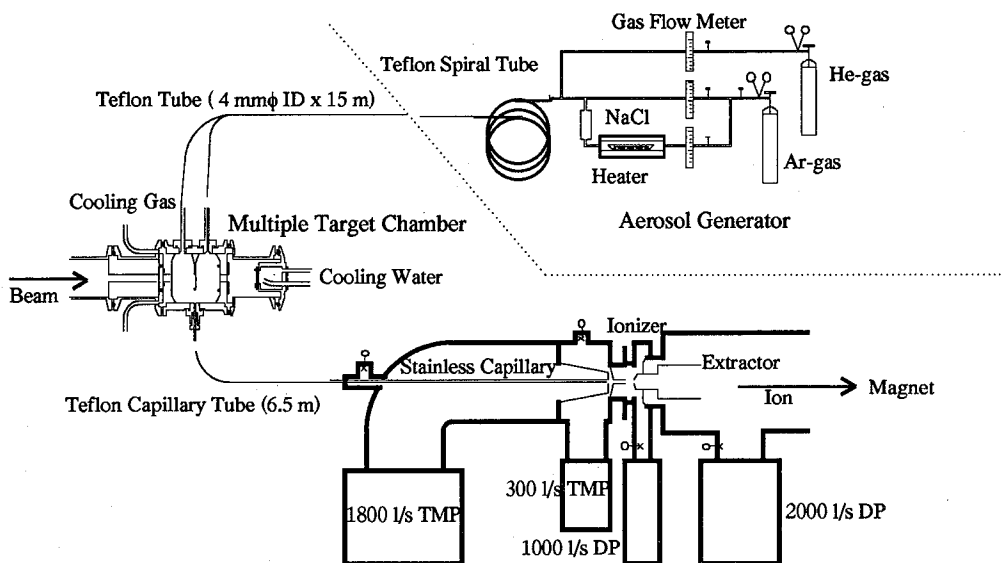


Fig. 1 Out-line of the gas-jet coupled ion-source system of JAERI-ISOL.

Table. Some typical values of the gas-jet coupled ion-source parameters for the operation with fission of actinides.

Aerosol material	NaCl
Heater temperature	680°C
Carrier gas	Ar
Gas flow rate	10 cm <sup>3</sup> /s STP
Volume of target chamber	160 cm <sup>3</sup>
Target chamber pressure	5 × 10 <sup>-4</sup> Pa
Capillary tube	1.5mmφ x 8m
1st-skimmer chamber pressure	<1 Pa
Ionization chamber pressure	<10 <sup>-4</sup> Pa
Capillary/1st-skimmer separation	5 mm
1st/2nd-skimmer separation	9 mm
Acceleration voltage	30 kV
Ion-source temperature	2450 K

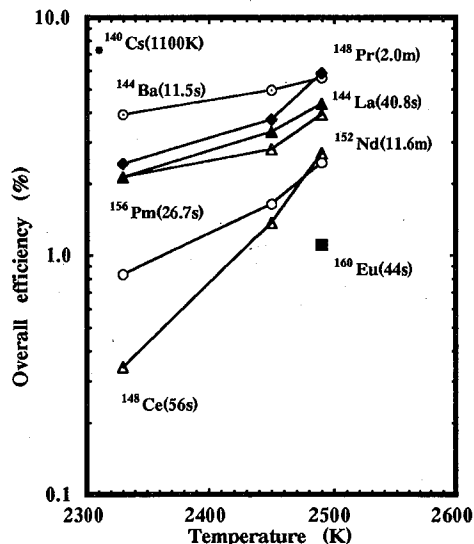


Fig.2 Overall efficiencies for Cs, Ba and lanthanide isotopes as a function of ionizer temperature.

### Development of a gas-jet coupled ion-source system for the JAERI-ISOL.

Masato ASAI\*, Kazuaki TSUKADA, Shin-ichi ICHIKAWA, Akihiko OSA, Hideki IIMURA, Nobuo SHINOHARA, Yuichiro NAGAME, Ichiro NISHINAKA, Yuichi HATSUKAWA, Kiyoshi KAWADE\*, Hiroshi YAMAMOTO\*, Michihiro SHIBATA\* and Kouji YAMAUCHI\*, Department of Radioisotopes, Japan Atomic Energy Research Institute, Department of Energy Engineering and Science, Nagoya University\*.

A gas-jet coupled ion-source system for JAERI-ISOL was developed for short-lived neutron-rich rare earth nuclei produced by charged particle induced fission of actinides. The system consisted of a multiple-target chamber, a gas-jet transport system and an ion-source. To measure the transport efficiencies and transport parameters for the gas-jet system, off-line experiments using a <sup>252</sup>Cf source were carried out. In on-line experiments, we measured the ion yields of nuclides around A=160 using the proton induced fission of <sup>238</sup>U.

$^{232}\text{Th}+p$ における核分裂片の角運動量

(新潟大 理・東北大サイクロ\*)

○斉藤大輔 斉藤里栄 安田健一郎 工藤久昭 橋本哲夫  
藤岡学\* 篠塚勉\* 藤田正広\*

## &lt;はじめに&gt;

原子核分裂において、核分裂片の持つ角運動量は核分裂機構の解明に有用な量となりうる。我々はこれまでに、 $^{232}\text{Th}+p(24\text{MeV})$ の系における核分裂片の核異性体生成比を測定することにより、これらを見積もってきた。これまで求められたいくつかの核種についての角運動量を、以前に測定された $^{238}\text{U}+p(24\text{MeV})$ の系と比較したところそれぞれの核種においてその差はほとんどなかった。

今回は、今までの $^{232}\text{Th}+p$ の系の測定を引き続き行い、新たに得られたものを含め、広範囲の質量数での核分裂片の角運動量を考察し、また、 $^{238}\text{U}+p$ の系との比較、検討を行ったので報告する。

## &lt;実験&gt;

実験は、これまで報告してきたものと同様に<sup>2),3)</sup>、東北大学サイクロトロンRIセンターのIGISOLを用い、HPGeによる $\gamma$ 線測定によって核種の同定、定量を行った。これより、核異性体の独立収率を求め、核異性体生成比を得た。

## &lt;結果と考察&gt;

核分裂片の角運動量は次のようにして見積もった。分裂直後の分裂核のスピン分布が統計分布に従うものとし、核の脱励起による再分配をGROGI-2計算コードにより計算し、得られた核異性体生成比を再現するような一次分裂片の角運動量を求めた。ここで、角運動量の指標として、分布の幅 $J_{\text{rms}}$ を用いた。

これまで、 $^{232}\text{Th}+p(24\text{MeV})$ の系で14核種についての $J_{\text{rms}}$ が求められ、今回新たに9核種について得られた。これを質量数に対してプロットしたものがFig.1である。図より、これまで報告してきたように、質量数の大きい核種の方が、大きい $J_{\text{rms}}$ を持つことがわかる。

Fig.2は、 $^{232}\text{Th}+p$ と $^{238}\text{U}+p$ の系の比較のために、横軸にUの系の $J_{\text{rms}}$ 、縦軸にThの系の $J_{\text{rms}}$ をとりプロットしたものである。これをみると、いくつかの核種を除けば、各プロット点は、この図の対角線上にのっているようにみえる。これより、誤差を考慮するならば、二つの系での角運動量の差異はなく、核種固有の性質を反映するのではないかと考えられる。しかしながら、 $^{134}\text{I}$ 、 $^{135}\text{Xe}$ においては、Thの系の方が低い値を示した。これは、中性子放出前の一次分裂片において、それぞれ $^{135}\text{I}$ 、 $^{136}\text{Xe}$ からの寄与が大きく、82のNeutronのShellの影響があるのではないかと考えられる。また、 $^{83}\text{Se}$ 、 $^{84}\text{Br}$ では、Uの系で核異性体生成比が大きく $J_{\text{rms}}$ が求められなかったのに対し、Thの系で $J_{\text{rms}}$ は比較的低い値となった。この理由については現在検討中である。

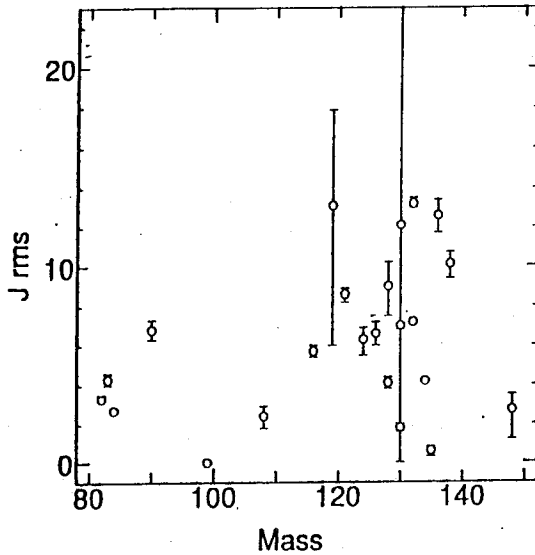


Fig.1 Deduced Jrms of fission products produced in 24 MeV protons on  $^{232}\text{Th}$

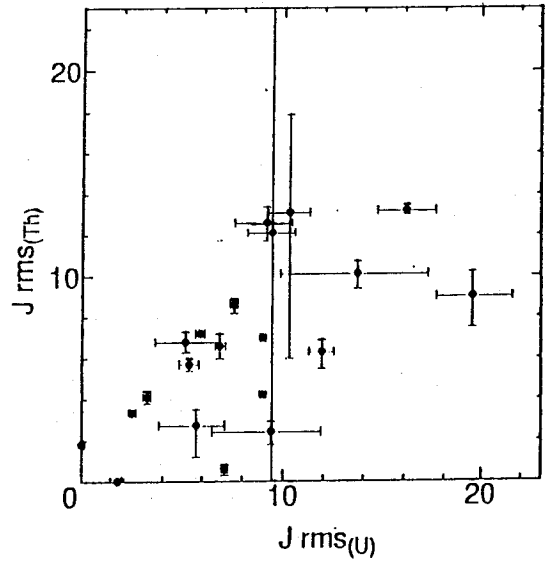


Fig.2 Correlation of Jrms between  $^{238}\text{U}$  and  $^{232}\text{Th}$  systems

#### 参考文献

- 1) M.Tanikawa et al. Z.Phys.A. 347,53-62 (1993)
- 2) 齐藤ら 第36回放射化学討論会 1A08 (1992)
- 3) 齐藤ら 第37回放射化学討論会 1A02 (1993)

#### ANGULAR MOMENTUM OF FISSION PRODUCTES IN $^{232}\text{Th}+p$ SYSTEM

Daisuke SAITO, Rie SAITO, Ken-ichirou YASUDA, Hisaaki KUDO, Tetsuo HASHIMOTO  
Faculty of Science, Niigata University,

Manabu FUJIOKA\*, Tsutomu SHINOZUKA\*, Masahiro FUJITA\*,  
Tohoku University Cyclotron Radioisotope Center \*,

Until now, we have measured the isomeric yield ratios of fission products in  $^{238}\text{U}+p$  and  $^{232}\text{Th}+p$  systems. The obtained isomeric yield ratios were converted to the initial angular momenta of fission fragments by assuming a statistical spin distribution. The de-excitation process was calculated with a modified GROGI-2 code. The deduced angular momentum was almost the same for the same nuclide in both systems.

<sup>252</sup>Cf自発核分裂における核分裂生成物の核異性体生成比の測定

(新潟大理) ○斉藤里栄・工藤久昭・橋本哲夫

## 1.はじめに

原子核分裂の機構については多岐に渡って調べられてきたがその詳細はいまだに解明されてはいない。演者らはこれまでに、原子核分裂の前後に保存される物理量の一つである角運動量から、分裂時の情報を得る試みを行ってきた。<sup>252</sup>Cfが持つスピンは0であるが、その自発核分裂により生成した分裂片はかなり大きいスピンを持つことが知られている。これは、断熱模型によると、分裂核が分裂方向に対して非対称に分裂した場合に生じると考えられている。このような核分裂生成物の角運動量を実験的には核異性体生成比を測定することから見積もることができる。本研究では<sup>252</sup>Cf自発核分裂において生成する核種の核異性体生成比を測定することにより、分裂時の核についての知見を得ることを目的としている。

## 2.実験

核分裂生成物は多くはβ壊変しγ線を放出する核種である。これより核種の同定・定量はGe検出器を用いたγ線スペクトロメトリーによって行なった。目的核種にあわせてキャッチャーホイル法および化学分離を行い測定した。またこれらの核種の独立収率を得るため親核種からの流れ込みの補正を行った。それぞれの実験での照射時間、測定時間は、目的核種の半減期にあった条件で行なった。半減期が短く放射能強度が弱いときには同じ条件で数回繰り返し実験を行ない、得られたスペクトルを積算し統計精度を向上させた。

## 3.結果と考察

<sup>252</sup>Cfからの分裂直後の核は励起エネルギーが高い状態にある。この時の分裂片のスピ分布は次式のような統計分布に従うものとして解析を行った。

$$P(J)=P_0(2J+1)\exp\{-J(J+1)/\langle J^2 \rangle\} \quad J_{rms}=\langle J^2 \rangle^{1/2}$$

ここから核分裂片は中性子やγ線を放出し脱励起することによりスピンの再分布が起こり、二次分裂片となる。実験で得られた核異性対生成比は二次分裂片のものであるので、統計模型GROGI-IIコードを使用して一次分裂片のスピ分布のパラメータ( $J_{rms}$ )を見積った。結果をTableに示す。

これまでの結果から、<sup>252</sup>Cfの自発核分裂の系とたとえば<sup>233</sup>Uの熱中性子誘起核分裂の系とでは核分裂核がかなり異なっているにも関わらず $J_{rms}$ の値の類似性が示唆された(Figure)。すなわち分裂片の $J_{rms}$ はその相補核に依存しないことが推定される。



Table. Isomeric yield ratios and deduced angular momenta

Nuclide	Spin(H,L)	$\sigma_{high} / \sigma_{low}$	Jrms (h)
$^{128}\text{Sb}$	(8-,5+)	$1.10 \pm 0.57$	$10.33 \pm 1.98$
$^{130}\text{Sb}$	(8-,4+)	$0.93 \pm 0.54$	$8.31 \pm 1.87$
$^{132}\text{I}$	(8-,4+)	$1.85 \pm 0.96$	$11.0 \pm 2.3$
$^{134}\text{I}$	(8-,4+)	$1.17 \pm 0.30$	$8.3 \pm 0.9$
$^{136}\text{I}$	(8-,4+)	$3.58 \pm 0.40$	$10.6 \pm 0.8$

系が異なると一次分裂片の励起エネルギーが異なると思われるが、励起エネルギー依存性を次式のような仮定から検討した。

$$Q = \text{TKE} + E1 + E2$$

$$E1/E2 = A1/A2$$

ここで、TKEは全運動エネルギーであり、E1、E2は分裂片1、2の励起エネルギーと質量数である。このような仮定で得られた励起エネルギーは系により差違がみられたが、上述のような類似性から、分裂片固有の内部励起の可能性が推察される。

#### <参考文献>

- 1) M.Tanikawa, H.Kudo, H.Sunaoshi, M.Wada, T.Shinozuka, M.Fujioka: Z.Phys. A 347, 53-62 (1993)
- 2) J.Robb Grover, Jacob Gilat: Phys.Rev.157,802 (1967)
- 3) N.Imanishi, I.Fujiwara and T.Nishi: Nucl.Phys.A263,141 (1976)

#### THE MEASUREMENT OF ISOMERIC YIELD RATIOS OF FISSION PRODUCTS IN SPONTANEOUS FISSION OF $^{252}\text{Cf}$

Rie SAITO, Hisaaki KUDO, Tethuo HASHIMOTO

Faculty of Science, Niigata University

The isomeric independent yields of fission products were measured in the spontaneous fission of  $^{252}\text{Cf}$ . The initial spin distribution of fission fragments were assumed to be a statistical distribution. The de-excitation process were calculated with the modified GROGO-II code and the obtained isomeric yield ratios were converted to the initial angular momenta. The deduced angular momenta were compared with those obtained in other fissioning systems.

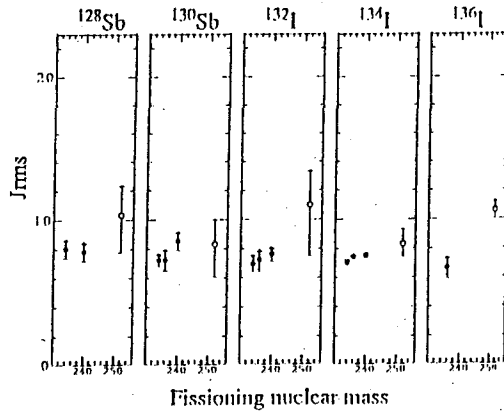


Figure. The deduced angular momentum Jrms of each nuclide plotted as a function of fissioning nuclear mass. The open circles indicate Jrms in present work. The solid circles are these for  $^{232}\text{Th}(n,f)$ ,  $^{232}\text{U}(n,f)$ ,  $^{235}\text{U}(n,f)$  and  $^{239}\text{Pu}(n,f)$ .

## Pa 中性子欠損核の核分裂

(原研、都立大理<sup>†</sup>、東大<sup>‡</sup>) ○西中一朗、塚田和明、永目諭一郎、末木啓介<sup>†</sup>、  
中原弘道<sup>†</sup>、谷川勝至<sup>‡</sup>

核分裂はアクチノイド核種の主要な崩壊特性であり、実験と理論の両面から多くの研究が成されてきた。なかでも質量分割の様式つまり分割の対称性、非対称性は核分裂の主要な特徴であり、軽アクチノイド領域近傍で分裂核の質量あるいは原子番号に大きく依存していることがわかってきた。

軽アクチノイド領域におけるこの分割様式は分裂核の核構造、特に中性子の核構造に主として起因するという予測がある。<sup>1)</sup>ところが、軽アクチノイドより原子番号の小さい領域では、実験的に核分裂を観測するためのターゲットとして安定な核種が限定されるため、中性子欠損核の核分裂現象、とくに質量分割についての研究はほとんど行われていない。

本研究では、重イオンビームを利用して  $^{209}\text{Bi}+^{16}\text{O}$ 、 $^{18}\text{O}$  反応によって中性子欠損の $^{225}\text{Pa}$ (中性子数134)、 $^{227}\text{Pa}$ (中性子数136)の複合核を生成し、質量分割の様式が分裂核の中性子数にどのように依存しているか調べてきた。<sup>2)</sup>

前回の討論会では、1) 飛行時間(TOF)法と2) 放射化学的手法を用いた実験から、質量分布と同位体分布について検討を行い、1) 質量分布の質量数90と135に肩構造を確認し、その成分が10%であること、2) 同位体分布の最確値の励起エネルギー変化から推測される中性子放出過程に、分裂片の殻効果と関連づけられる同位体依存性があることが分かった。これらのことから軽アクチノイド中性子欠損核領域においても非対称分裂が存在し、同じ励起エネルギー32 MeVの $^{233}\text{Pa}$ (中性子数142)は60%の非対称成分であることから、分割様式が中性子数136から142の間で急激に変化していることがわかった。

今回は、核分裂生成物の電荷収率について検討したので報告する。

質量収率が核分裂生成物の収率(生成量)を質量数の関数として表した分布であるのに対して(図1)、ここでいう電荷収率とは原子核の電荷つまり原子番号の関数として示した分布である。 $^{225,227}\text{Pa}$ (励起エネルギー34 MeV)系での電荷収率を図2 a)に示した。それぞれのデータは、Sb(Z=51)、I(Z=53)、Cs(Z=55)の同位体収率をSbのデータで規格化してある。 $^{225,227}\text{Pa}$ 系の電荷収率の勾配は、高い励起エネルギーでの $^{225}\text{Pa}$ の電荷収率から得られた曲線と比較して小さく、非対称部分の増大が見られる。この傾向は中性子数の大きい $^{227}\text{Pa}$ のほうがより顕著である。図2 b)に $^{227}\text{Pa}$ の電荷収率の非対称の増大部分をガウス分布として解析した結果を示す。この非対称成分の割合は約10%であり、TOFの非対称成分の割合とよく一致する。また、この電荷収率にもとづいて求めた質量分布を放射化学的手法で得られたデータとともに図1に示す。TOFの収率は規格化してある。電荷収率の解析により得られた質量分布は、質量数135近辺の肩構造や質量数の大きい側の急な傾斜を表し、TOFの質量分布とよく一致している。この電荷収率の検討からも、非対称分割の存在とその分裂核の中性子数依存性を示すことがわかった。

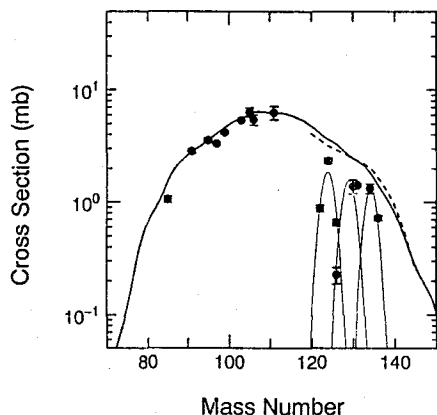


Figure 1. Mass yield curve (thick line) obtained by the TOF method in the fission of  $^{227}\text{Pa}$  at excitation energy 32 MeV. The circles represent the data from the radiochemical method and thin lines show the isotopic yield curves obtained by a Gaussian fitting of independent yields in the fission of  $^{227}\text{Pa}$  at excitation energy 34 MeV. The dashed line shows the mass yield obtained from the isotopic distributions (figure 2-b).

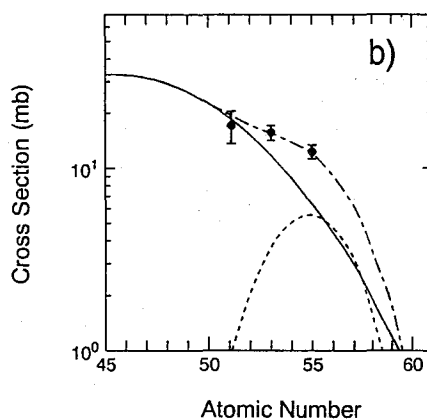
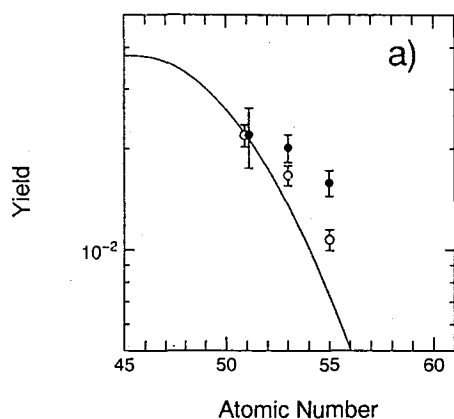


Figure 2. Charge yields in the fission of  $^{227}\text{Pa}$  (closed circles) and  $^{225}\text{Pa}$  (open circles) at excitation energy 34 MeV. Solid lines are the charge yield curve for the fission of  $^{225}\text{Pa}$  at high excitation energy. a) The data are normalized at  $Z=51$ . b) The dashed line is obtained by the two components analysis for the  $^{227}\text{Pa}$  fission.

#### References

1. P.Möller, *Nucl.Phys.*, **A192**, 529 (1972)
2. 西中他、第35回放射化学討論会1A16(1991)、第36回放射化学討論会2A04(1992)、第37回放射化学討論会1A11(1993)

#### NUCLEAR FISSION OF Pa NEUTRON-DEFFICIENT NUCLEI.

Ichiro NISHINAKA, Kazuaki TSUKADA, Yuichiro NAGAME, Japan Atomic Energy Institute, Keisuke SUEKI, Hiromichi NAKAHARA, Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, Masashi TANIKAWA, Faculty of Science, The University of Tokyo

Fission phenomena were investigated by using a TOF technique and a radiochemical one for the following light-heavy-ion induced reactions,  $^{16}\text{O}, ^{18}\text{O} + ^{209}\text{Bi}$ , compound nucleus being  $^{225}\text{Pa}(N=134)$  and  $^{227}\text{Pa}(N=136)$ , respectively. In the previous work,<sup>1)</sup> we have presented that the contribution of the asymmetric component is about 10% in the mass distribution and the isotopic dependence of neutron emission process seems to be affected by shell effects of fragments. In this report, we discuss that the enhancement of the yield at a heavy asymmetric side in the charge yield of the fission of  $^{227}\text{Pa}$  is observed comparing to that in the case of  $^{225}\text{Pa}$  fission, which is consistent with the existence of the asymmetric component in the mass distribution.

$^{209}\text{Bi}+^{19}\text{F}$ 核反応系における核分裂生成物の同位体分布と励起エネルギー変化

(都立大理・原研アイソトープ部) ○末木啓介・小林香奈子・宮本真哉・中原弘道・西中一郎・塚田和明・初川雄一・篠原信夫・永目諭一郎

[はじめに] ビスマスなどをターゲットにして重イオンで生成した融合核からの核分裂生成物は $\beta$ 安定線の周辺に生成する。このために、これらの系でそれぞれの質量について全断面積が一義的に求めることが困難であるため分裂片の質量分布を求めるのは難しい。しかし、そのかわりに独立収率を持つ生成物を多く求めることができるので、同位体分布を容易に得ることができる。そこで、入射エネルギーを変えてその励起エネルギー変化による同位体分布の変化から、それぞれの分裂片の励起エネルギーの変化及び分配を求めることが可能であると考えた。そこで、 $^{209}\text{Bi}+^{19}\text{F}$ 核反応系で対になる分裂片の組み合わせとしてセシウム ( $Z=55$ ) とルビジウム ( $Z=37$ ) を選んでその同位体分布を求めた。

[実験] 実験は日本原子力研究所タンデム加速器を用いて $^{19}\text{F}$ イオンを140 MeVと128 MeVの2種類の加速エネルギーで行った。ターゲットへの入射エネルギーはAlのデグラーターを用いて変えた。セシウムについては30分照射して捕捉用のAlを含めて照射終了後に塩酸で溶解して陰イオン交換カラムを通して塩化白金酸で沈殿捕集して $\gamma$ 線測定で求めた。

ルビジウムについては求めたい質量数の同位体が半減期が短く、また親核である同位体の半減期も短いために独立収率を求めるのに工夫が必要である。 $^{88,89,90}\text{Rb}$ については、その親核はクリプトンであることからHe/Ar-gasjet法を利用することによってクリプトンとルビジウムの分離をガスジェット上で行い、捕集後オンラインで陰イオン交換カラムにかけて他の生成物と分離する。そして、最後に塩化白金酸を用いたアルカリ金属の沈殿生成によって多くの妨害する元素と分離する。この方法についてまず検討を行った。その後エネルギー変化について検討した。

[結果] クリプトンとルビジウムの分離に関しては、ガスジェットの捕集時間を変化させることによって親核からの流れ込みの影響を調べた。捕集量については捕集時間が長くなるほど低くなる傾向が見られた。従って、 $^{88}\text{Rb}$ と $^{89}\text{Rb}$ , $^{90}\text{Rb}$ についてその相対的な断面積の比を捕集位置において分離していると仮定して計算してみた。その結果は捕集時間に関係なく一定になる結果が得られた。したがって、当初考えたように捕集位置までに分離が行われていると考えてよいことがわかった。また、放射能の収量は通常の化学分離をした時の十分の一程度であるが、これは角度分布等などを考えると妥当な収量である。

セシウムの同位体分布について、図1のような結果が得られている。この結果から同位体分布がガウス曲線で近似できると仮定してその分布を最少二乗法で求めた。その時得られた平均の質量数のついて図3に示した。

同様にルビジウムについても同位体分布を求めたが、図2に示すように相対収率しか求めていないため、質量数89で規格化した結果を示した。分布の平均の質量数については求め、この結果を図3にセシウムと一緒に示した。これら励起エネルギーに対する質

量分布の変化は、励起エネルギーの増加と共に起こる分裂核の脱励起過程（中性子放出）と脱励起する前に分裂して分裂片の励起エネルギーが増加する過程とが考えられる。これらの過程を考慮して励起エネルギー変化について議論する予定である。

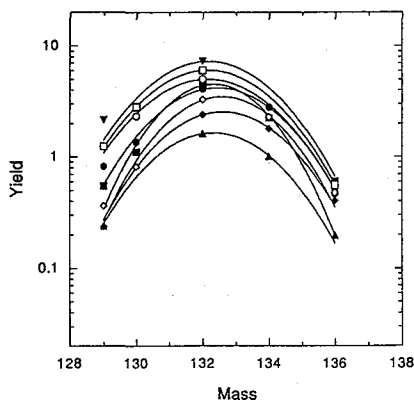


Fig. 1 The isotopic distributions of Cs in  $^{209}\text{Bi}+^{19}\text{F}$

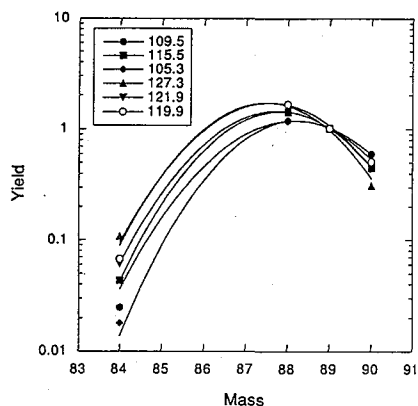


Fig. 2 The isotopic distributions of Rb in  $^{209}\text{Bi}+^{19}\text{F}$

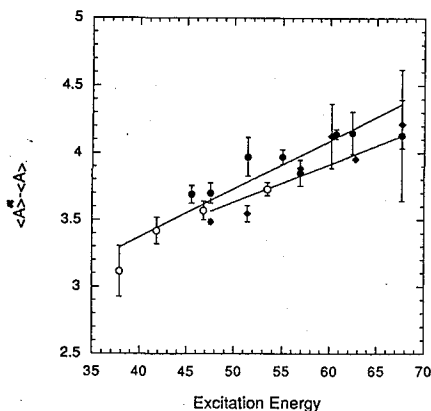


Fig. 3 The most probable mass of Cs and Rb vs. excitation energy.

○ ● Cs  
◇ Rb

## THE ISOTOPIC DISTRIBUTIONS AND THE EFFECT OF EXCITATION ENERGY OF FISSION PRODUCTS IN $^{209}\text{Bi}+^{19}\text{F}$ NUCLEAR REACTION SYSTEM

Keisuke SUEKI, Kanako Kobayashi, Shinya MIYAMOTO and Hiromichi NAKAHARA,  
*Department of Chemistry, Tokyo Metropolitan University*

Ichiro NISHINAKA, Kazuaki TSUKADA, Yuichi HATSUKAWA, Nobuo SHINOHARA and  
Yuichiro NAGAME, *Japan Atomic Energy Research Institute*

The heavy ion induced fission products were obtained isotopic distribution. We investigated isotopic distributions of pair fission products (Cs and Rb) from Uranium isotope nuclei. Rb isotopes have short half-lives, we performed to obtain Rb isotope independent yield by on-line gas phase separation using He/Ar-gasjet method.

## 重アクチノイド領域におけるサブバリアーエネルギーでの重イオン核融合-核分裂

(原研、東北大核理研<sup>1</sup>)。永目諭一郎、塚田和明、西中一朗、初川雄一、篠原伸夫、浜田真悟、池添博、大槻勤<sup>1</sup>、佐々木玲仁<sup>1</sup>、青木由香<sup>1</sup>

**1. 緒言** 原子番号 100 を越える重元素や重核を合成するには、重イオン核融合反応は極めて有効な手段である。しかし、合成された融合核（複合核）は、ほとんどが核分裂で崩壊してしまう。従って、蒸発過程の収率を高めるには、なるべく低い照射エネルギーで低励起エネルギー状態の複合核を合成する必要がある。このため、クーロン障壁近傍あるいはクーロン障壁以下（サブバリアー）での重イオン核融合過程が必要となる。最近、中重核領域で確認されているサブバリアー領域での核融合断面積増大 (enhancement of sub-barrier fusion cross section)[1] が、重核合成手段としても期待がもたれている。またこのような効果とともに、より対称性の高い反応系を用いることにより複合核の励起エネルギーを低く押さえることができる。しかしながら、重核領域では重イオン間の大きなクーロン斥力により反応系の対称性が増すとともに核融合過程の阻害が大きくなることも報告されている (dynamical hindrance for fusion)[2]。

本研究では、原子番号 100 のフェルミウムを合成する種々の反応系（表 1）を用いて、重イオン核融合反応におけるサブバリアー領域での核融合断面積増大と核融合過程への阻害効果の両者を、反応の入口チャネルとの関連から調べた。

Table 1. List of the reactions studied in the present work with relevant parameters.

Reaction	Compound Nucleus	$x_{eff}^a$	$E_{lab}$ (MeV)	$E_{CN}^*$ <sup>b</sup> (MeV)	$E_{Bass}^c$ (MeV)
$^{37}\text{Cl} + ^{209}\text{Bi}$	$^{246}\text{Fm}$	0.646	170 - 186	24.3 - 37.9	157
$^{35}\text{Cl} + ^{209}\text{Bi}$	$^{244}\text{Fm}$	0.659	176, 195	34.5, 50.7	158
$^{45}\text{Sc} + ^{197}\text{Au}$	$^{242}\text{Fm}$	0.710	211 - 235	31.6 - 51.2	183
$^{59}\text{Co} + ^{181}\text{Ta}$	$^{240}\text{Fm}$	0.882	263 - 308	19.6 - 53.9	214

<sup>a</sup> effective fissility from ref. [1]

<sup>b</sup> excitation energy of compound nucleus

<sup>c</sup> Coulomb barrier from Bass potential [3]

**2. 実験** 実験は原研タンDEM加速器施設において、表 1 に示すような入射粒子-ターゲット系の組み合わせで行った。ここで、入射粒子  $^{35,37}\text{Cl}$ 、 $^{45}\text{Sc}$  ならびに  $^{59}\text{Co}$  の照射エネルギーは  $E_{lab}$  で示してある。核融合断面積  $\sigma_{fu}$  は、蒸発過程断面積  $\sigma_{ev}$  が核分裂断面積に比べて無視できる量であるため、 $\sigma_{fu} \sim \sigma_{fiss}$  を仮定して、核分裂断面積  $\sigma_{fiss}$  を測定することにより求めた。核分裂生成物の測定は 2 台の x, y (200 mm x 120 mm) 2 次元位置感応型平行板アバランシェ検出器 (PPAC) を用いた時間差測定法に基づいて行った。

**3. 結果と考察** 図 1 に  $\sigma_{fiss}$  のエネルギー依存性を示す。実線は Bass 模型 [3] に基づく核融合断面積の計算値である。 $^{35,37}\text{Cl} + ^{209}\text{Bi}$  及び  $^{45}\text{Sc} + ^{197}\text{Au}$  系ではサブバリアー領域での断面積増大が顕著である。一方  $^{59}\text{Co} + ^{181}\text{Ta}$  系でも同様の傾向がわずかに観測されるが、特徴的なのはクーロン障壁を越えても断面積の値は小さく、核融合過程に対する阻害効果が現れていることがわかる。これは、 $x_{eff} \geq 0.7$  で、この効果が生じるという予測 [2] とよく一致している。さらに、 $\sigma_{fiss}$  の増加傾向が  $x_{eff}$  とともに変化しているのが興味深い。また  $^{16}\text{O} + ^{238}\text{U}$  のような比較的対称性の高い反

応系 ( $x_{eff} = 0.462$ ) では、大きな断面積増大や阻害効果は報告されていない [4]。

以上のことから、反応の入口チャネル ( $x_{eff}$ ) が核融合断面積の増大ならびに核融合阻害効果と密接に関連しており、クーロン障壁近傍では  $x_{eff} \sim 0.65$  で最も大きな断面積を示すことがわかった。

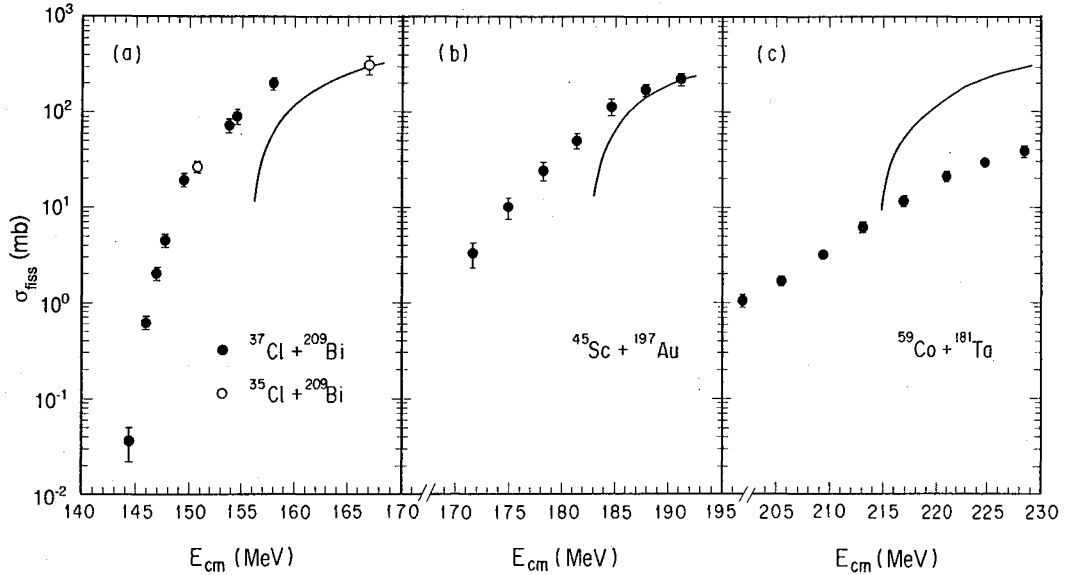


Fig.1 Fusion-fission cross sections for the systems indicated. The solid lines are calculated values with the Bass model [3].

#### References

- [1]. M. Beckerman, Phys. Rep. **129**, 145 (1985). [2]. W.J. Swiatecki, Phys. Scr. **24**, 113 (1981).  
 [3]. R. Bass, Phys. Rev. Lett **39**, 265 (1977). [4]. H. Zhang *et al.*, Phys. Rev. C **49**, 926 (1994).

SUB-BARRIER ENERGY HEAVY ION-INDUCED FUSION FISSION IN HEAVY ACTINIDES  
 Yuichiro NAGAME, Kazuaki TSUKADA, Ichiro NISHINAKA, Yuichi HATSUKAWA, Nobuo SHI-  
 NOHARA, shingo HAMADA and Hiroshi IKEZOE, *Japan Atomic Energy Research Institute*  
 Tsutomu OHTSUKI, Reiji SASAKI and Yuka AOKI, *Laboratory of Nuclear Science, Tohoku Uni-  
 versity*

Enhanced sub-barrier fusion and dynamical hindrance of fusion processes are examined by studying the production of Fm compound nuclei in complete fusion reactions with different target-projectile combinations at close to barriers and sub-barrier energies. It is found that both processes are closely correlated with mass asymmetry (effective fissility  $x_{eff}$ ) of the reaction systems and the maximum fusion cross sections around Coulomb barriers are observed in the systems of  $x_{eff} \sim 0.65$ .

複合核  $^{210}\text{Po}$  の分裂機構におよぼす角運動量の影響 (3)(東大理<sup>1</sup>、都立大理<sup>2</sup>、北里大理<sup>3</sup>、原研<sup>4</sup>、東大核研<sup>5</sup>)○谷川勝至<sup>1</sup>、末木啓介<sup>2</sup>、中原弘道<sup>2</sup>、小林貴之<sup>3</sup>、  
塚田和明<sup>4</sup>、西中一朗<sup>4</sup>、野村亨<sup>5</sup>

## 【はじめに】

これまで  $^{210}\text{Po}$  を複合核とする核分裂において、反応系の持つ角運動量の影響を飛行時間法 (TOF) を用いて調べてきた [1]。その結果、

- 核分裂片の全運動エネルギー (TKE) は反応系の角運動量によらず、変わらない
  - 核分裂片の TKE 分布の幅は、角運動量の増加につれて狭くなる
  - 対称分裂した部分よりも、非対称に分裂した所ほど TKE 分布の幅が広くなる
- などの傾向が見いだされた。こうした結果は従来の測定 [2] では報告されていない。

今回は、最近報告された TOF を用いる我々と同様な実験手法による複合核  $^{206}, ^{204}\text{Po}$  でのデータ [3] との比較から、さらに系統的な検討を行う。また今までに報告された SSD による測定と TOF との結果の違いについても考察する。

## 【実験および文献値】

我々の実験はすべて東京大学原子核研究所 SF サイクロトロンで行った。実験およびデータ処理の詳細については前々回、前回の放射化学討論会 [1] で報告した。Table に、本研究と文献 [3] における複合核 (C. N.) や励起エネルギー (Ex)、複合核の持つ平均の角運動量 ( $\bar{L}$ ) の値をまとめた。

## 【結果と考察】

前回、 $^{210}\text{Po}$  における TKE の平均値は  $\bar{L}$  によって変化しないことを報告した。こうした傾向は文献 [3] の  $^{206}, ^{204}\text{Po}$  でも同様であった。TKE 分布の幅と質量分布の幅については、Fig. 1 に本研究と文献 [3] の結果を  $\bar{L}$  に対してプロットしたものを示す。全体として、TKE 分布の幅では  $\bar{L}$  の値が  $30 \hbar$  程度までは減少傾向にあるがそれ以後は増加に転じ、質量分布の幅では  $\bar{L}$  とともに増加している。また両方の分布幅とも  $30 \hbar$  付近で様相が変化しており、特に  $^{206}, ^{204}\text{Po}$  ではわずかな  $\bar{L}$  の変化でも分布幅に影響していることが分かる。これは角運動量の増加に伴う核分裂障壁の減少割合が、複合核の中性子数によって違うことが考えられる。しかし  $^{206}, ^{204}\text{Po}$  の方が我々の  $^{210}\text{Po}$  よりも 20 MeV 以上励起エネルギーが高いため、その影響も無視できない。これら分布幅の励起エネルギー依存性については、 $\bar{L}$  に対する変化ほど直線的ではないが、両者とも正の相関が認められた。

また文献 [2] などに報告されている、SSD によって測定された質量分布や TKE 分布の幅と我々の結果とを比較すると、似たような反応系であっても我々の方が質量分布では幅が狭くなり、TKE 分布ではやや広がっていた。こうした違いが各々の測定方法に固有のものかどうか、明らかではないが、両者のデータ処理上における大きな違いとして、分裂片からの 2 次中性子の扱いがある。特に Po 近傍の核分裂では 2 次中性子を測定した報告は少なく、SSD の測定では放出された 2 次中性子数をどう見積もるかが解析結果を左右する。TOF でも分裂片の質量を決める際に 2 次中性子の放出が影響する。講演では 2 次中性子の放出が TOF の測定に与える影響についても議論する予定である。



Table Main characteristics in this work and Ref. [3]

<i>This work</i>			<i>Ref. [3]</i>		
C. N.	Ex (MeV)	$\bar{L}$ ( $\hbar$ )	C. N.	Ex (MeV)	$\bar{L}$ ( $\hbar$ )
$^{210}\text{Po}$	44.8, 56.8	7.5 ~ 28.0	$^{206}\text{Po}$	76.6 ~ 130.0	34.8 ~ 56.1
			$^{204}\text{Po}$	84.6 ~ 110.9	45.4 ~ 56.0

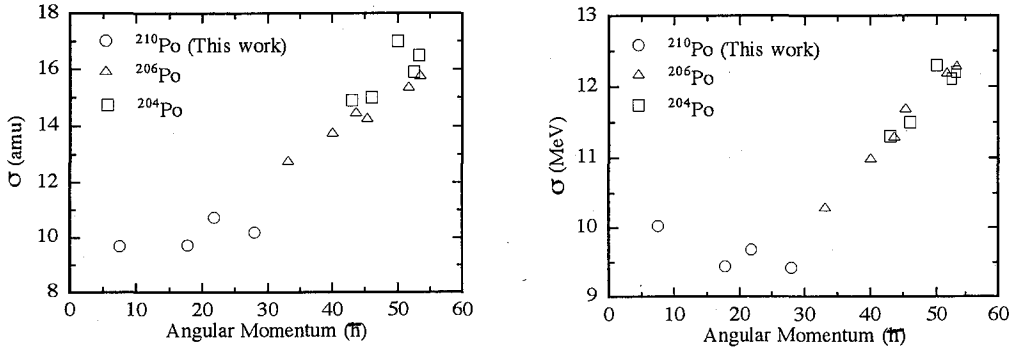


Fig. 1 Angular momentum dependence of two distribution widths. Left part is Mass-distribution, and right part is TKE-distribution.

## References

- [1] 第36回放射化学討論会 (1992 東京) 1A09、第37回放射化学討論会 (1993 金沢) 1A09
- [2] J. P. Unik, *et al.*, 2nd IAEA Sympo. Phys. Chem. Fission, p717 (1969) ;  
M. G. Itkis, *et al.*, Sov. J. Nucl. Phys., **36**, 483 (1982) ; *etc.*
- [3] G. G. Chubaryan, *et al.*, Phys. At. Nucl., **56**, 286 (1993)

## INFLUENCE OF THE ANGULAR MOMENTUM ON THE FISSION PROCESS OF THE COMPOUND NUCLEUS $^{210}\text{Po}$ (3)

Masashi TANIKAWA, *School of Science, Univ. of Tokyo*

Keisuke SUEKI, Hiromichi NAKAHARA, *Faculty of Science, Tokyo Metropolitan Univ.*

Takayuki KOBAYASHI, *Faculty of Science, Kitasato Univ.*

Kazuaki TSUKADA, Ichiro NISHINAKA, *Japan Atomic Energy Research Institute*

Toru NOMURA, *Institute for Nuclear Study, Univ. of Tokyo*

The fission of compound nucleus  $^{210}\text{Po}$  has been studied to verify the effect of the angular momentum ( $\bar{L}$ ) by TOF technique. Up to now, it was found that the mean-TKE was not dependent on the  $\bar{L}$ , and that the width of TKE-distribution decreased with increasing  $\bar{L}$ . In this symposium, it will be examined on the systematics for the influence of the angular momentum, based on the TOF data (this work and Ref. [3]). Then it will be also discussed on the difference of SSD and TOF data.

## U + Li 反応の研究によるアメリシウム同位体の生成と アメリシウム 236 の探索

(原研) ○初川雄一, 塚田和明, 篠原伸夫, 永目諭一郎, 大島真澄

### 【はじめに】

近年中性子欠損アメリシウム同位体 ( $^{232,234}\text{Am}$ ) において EC-Delayed fission の研究が行われている<sup>(1)</sup>。Delayed fission は珍しい核壊変過程の1つで  $\beta$  壊変や軌道電子捕獲 (EC) により娘核種の励起状態に壊変しその後核分裂を起こす壊変様式である。この過程は核分裂機構の研究や、多重中性子捕獲による元素合成における重元素の生成収率の点で興味深い。未知核種である  $^{236}\text{Am}$  も同様に EC-Delayed fission が期待されるので本研究では U + Li 反応を用いて  $^{236}\text{Am}$  の生成を試みた。

### 【実験】

アメリシウム同位体の生成条件を調べるために U + Li 反応の励起関数の測定を行った。ウランターゲットは  $^{238}\text{U}$  (純度 99.98 %) と  $^{235}\text{U}$  (純度 97.0 %) を用いてイソプロピルアルコール溶液によりアルミニウム箔 (厚さ 7  $\mu\text{m}$ ) 上に電着を行い作製した<sup>(2)</sup>。照射は原研タンデム加速器により加速された  $^7\text{Li}$  及び  $^6\text{Li}$  ビームにより行い、ビームエネルギーは 44 或は 46 MeV でアルミニウム箔をデグレターとして用いて入射エネルギーの調節を行った。平均のビームカレントは約 100 pA であった。

照射後、ウランターゲットはアルミニウムのキャッチャーフォイルとともに濃塩酸に溶解した後  $^{243}\text{Am}$  を化学収率をモニターするトレーサーとして加えた。イオン交換法による化学分離の手順を Fig. 1 に示した<sup>(3)</sup>。化学分離に要した時間は 1 試料当たり約 1.5 時間であった。ただし  $^{236}\text{Am}$  においてはその予想半減期が 31.2 min<sup>(4)</sup> であるため化学分離は塩酸-アルコール系による陰イオン交換法のみとして約 40 分でこれを行った。分離後、溶離した Am フラクションをタンタルフォイル上で蒸発乾固し測定用線源とし  $\gamma$  線,  $\alpha$  線を測定した。

### 【結果と考察】

Fig. 2 に  $^{238}\text{U} + ^7\text{Li}$  反応の励起関数を示す。同様に  $^{235}\text{U} + ^7\text{Li}$  及び  $^{238}\text{U} + ^6\text{Li}$  反応の励起関数を得た。 $^{238}\text{U} + ^7\text{Li}$  反応では 5n チャンネルの反応断面積は約 200  $\mu\text{b}$  であり  $^{235}\text{U} + ^7\text{Li}$  反応の 5n はその約 20 % である。さらに  $^{238}\text{U} + ^6\text{Li}$  反応の 5n も約 200  $\mu\text{b}$  であることから  $^{235}\text{U} (^6\text{Li}, 5n) ^{236}\text{Am}$  反応の反応断面積は 40  $\mu\text{b}$  と見積もられる。これはビームカレント 100 pA, ターゲット厚 1 mg/cm<sup>2</sup> の条件で  $^{236}\text{Am}$  が 6000 dps 生成することを意味しており、観測可能と考えられる。そこで  $^{235}\text{U} (^6\text{Li}, 5n)$  反応を用いて  $\gamma$  線,  $\alpha$  線測定により  $^{236}\text{Am}$  の探索を行った。結果を本討論会で報告する。

### 【参考文献】

1. H.L. Hall, et al., *Phys. Rev. Lett.*, **63**, 2548 (1989).

2. N. Shinohara and N. Kohno, Appl. Radiat. Isot., 40, 41(1989).
3. S. Usuda, J. Radioanal. Nucl. Chem., 111(2), 477(1987).
4. T. Tachibana, et al., Prog. Theor. Phys., 84, 641(1990)

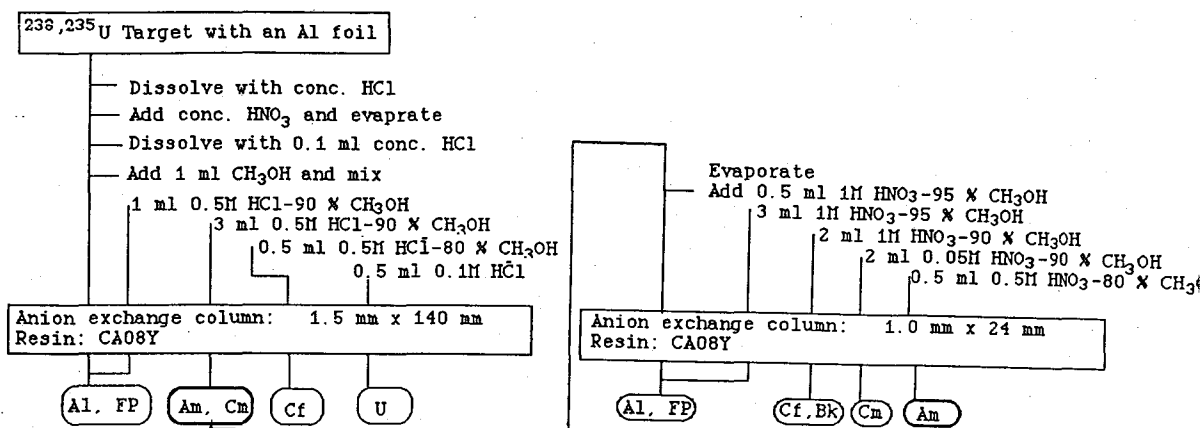


Fig. 1 Purification procedure for Am isotopes

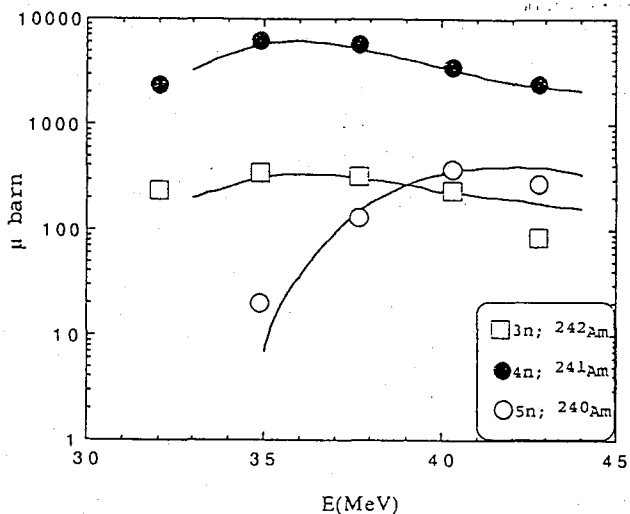


Fig.2 Excitation functions for Am isotopes produced in the bombardment of the  $^{238}\text{U}$  with  $^7\text{Li}$  ions. Solid lines show the calculated results of the Alice code. The calculations are normalized to the maximum points of experimental data.

### STUDY OF THE U+Li REACTION FOR THE SYNTHESIS OF $^{236}\text{Am}$ .

Yuichi HATSUKAWA, Kazuaki TSUKADA, Nobuo SHINOHARA, Yuichiro NAGAME and Masumi OSHIMA, Japan Atomic Energy Research Institute

The  $^{236}\text{Am}$ , unknown nucleus, is expected to be observed in EC-delayed fission activity. Production of  $^{236}\text{Am}$  was attempted by the U + Li reaction. To obtain the synthesis conditions of Am isotopes, excitation functions were measured. Based on the excitation functions of the  $^{238}\text{U} + ^7\text{Li}$ ,  $^{235}\text{U} + ^7\text{Li}$  and  $^{238}\text{U} + ^6\text{Li}$  reactions, the possibility of the production of  $^{236}\text{Am}$ , will be discussed.

Arジェットによる $^{238}\text{U}$ の陽子誘起核分裂の研究

(阪大理・原研\*・名大工\*\*) ○春日良一・高宮幸一・横山明彦・高橋成人・  
馬場 宏・塚田和明\*・初川雄一\*・篠原伸夫\*・永目諭一郎\*・浅井雅人\*\*

(はじめに)

アクチノイド領域の自発核分裂ないし熱中性子誘起核分裂は、約20 MeVを越すエネルギーでの核分裂のような整然とした系統性を示さない。 $^{238}\text{U}$ の陽子誘起核分裂においては励起エネルギー14 MeVで変化することが予測されるが<sup>1)</sup>、特に16 MeVから18 MeVの領域で核分裂のモード変化の様子が見られることが期待されてきた。<sup>2)</sup>

今回、これまでの放射化学的手法にArガスジェット輸送の手法を組合せて、短寿命核種の測定をすることで、この領域での様相をより詳細に検討を行う。

(実験)

実験は原研タンデム型加速器を用い、プロトンビームのエネルギーは13.0 MeVで、励起エネルギーは17.9 MeVとして行った。ターゲットは $1\text{ mg/cm}^2$ の $^{238}\text{U}$ を $1.5\text{ mg/cm}^2$ のAl箔に電着したものをを用いた。加速器のコースのシステム<sup>3)</sup>は、核分裂生成物をArガスで満たされたチャンバーからポンプを用いて捕集テープに吹き付け、このテープをつぎつぎにGe検出器の前に送り、 $\gamma$ 線測定を行った。数秒の半減期の核種から数十分の半減期のものまで測定するために10秒、1分そして5分照射を行い、16に時間分割した連続スペクトルを測定した。この操作を統計を稼ぐためにそれぞれ200回、60回、20回繰り返し、得られた $\gamma$ 線スペクトルをそれぞれ加えて後で補正を行った。 $\gamma$ 線スペクトル解析はBOBコード<sup>4)</sup>を用いて行い、核種とその生成断面積を求めた。

(結果および考察)

3つのデータ解析を行った結果、半減期0.94 sの $^{100}\text{Yb}$ から数時間の半減期の核種まで得られた。これらの核種を以前われわれが同じエネルギーで行った実験結果との比をとって輸送効率を求めた。この結果、輸送効率は核種に依らず約22%となることが結論され、すべての核種に対し、この値を使って正確な生成断面積に直した。

電荷分散は一般にガウス分布に従うことが知られている。これまでわれわれはこの幅のパラメーター $\sigma$ についてこのエネルギー領域において低エネルギーで得られているWahlらの0.69という値と、以前我々が重イオン実験で得た、つまり高エネルギーの特徴である1.05<sup>5)</sup>という値のどちらが適しているかを検討してきた。しかし、短寿命核種についての情報が得られていないために確度において多小の問題があった。今回の結果から同重体が3つ以上の質量数のものが増えたために $\sigma$ についてより精度良く検討することが可能になった。電荷分散について検討した結果をFig. 1に示す。ここでは、幅 $\sigma$ の値は0.69より1.05に近い値となることが分かる。このことから励起エネルギー17.9 MeVにおいて、電荷分散について高エネルギーの特徴を持っていることが示された。

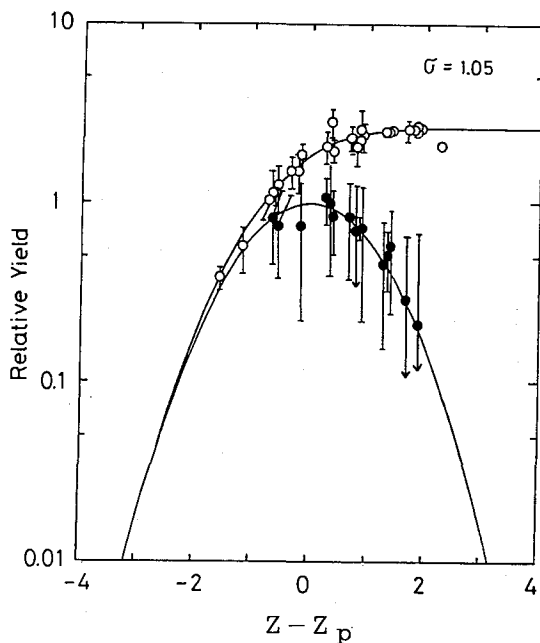


Fig.1 The charge dispersion at  $E_x=17.9\text{MeV}$ . Closed and open circles indicated independent yields and cumulative yields, respectively.

#### References

- 1) S. Baba *et al.*, Nucl. phys., **A175** (1971) 177.
- 2) R. Kasuga *et al.*, OULNS. ANN. Rept. 1993, 110.
- 3) K. Tsukada *et al.*, Radiochim. Acta **51**, 77 (1990)
- 4) H. Baba *et al.*, JAERI report no. 1227 (1972)
- 5) M. -C. Duh *et al.*, Nucl. Phys., **A550** (1992) 281

#### STUDY ON PROTON-INDUCED FISSION OF $^{238}\text{U}$ BY Ar-JET TRANSPORT SYSTEM

Ryoichi KASUGA, Koichi TAKAMIYA, Akihiko YOKOYAMA, Naruto TAKAHASHI, Hiroshi BABA, Faculty of Science, Osaka University, Kazuaki TSUKADA, Yuichi HATSUKAWA, Nobuo SHINOHARA, Yuichirou NAGAME, Japan Atomic Energy Research Institute, Masato ASAI, School of Engineering, Nagoya University

Fission characteristics of actinide nuclei with low excitation energies (spontaneous and thermal-neutron-induced fission) are known to be different from those in the above 20MeV. The transitions of a systematic trend in the proton-induced fission of  $^{238}\text{U}$  are expected to occur 14MeV. Fission fragment yields were measured for the proton-induced fission of  $^{238}\text{U}$  at 17.9-MeV excitation by combining the gas-jet transport system and ordinary radiochemical stacked-target technique with off-line Ge  $\gamma$ -ray spectrometry. It was found that the value of the width parameter  $\sigma$  of charge dispersion was 1.05 within the error, the same width of various types of energetic fission.

$^{197}\text{Au} + ^{136}\text{Xe}$  重イオン核反応における質量移行

(阪大理) ○横山明彦・竹迫和浩・矢野大作・斎藤 直・馬場 宏  
 (名大理) 谷口勇仁・倉知淳史・篠原 厚・古川路明  
 (理研) 大久保嘉高

低エネルギー重イオン反応に特徴的な反応には、多量の質量移行を伴う深部非弾性質量移行反応 (DIT) がある。この反応機構は 10MeV/u 以上のエネルギー領域において顕著となることが多いが、またこのような中間エネルギー領域では高エネルギー (100MeV/u 以上) 反応に特徴的なフラグメンテーションやマルチフラグメンテーションの様相も見ることができ。しかしこれらの競合の仕方は明らかではなく、特に金とキセノンのように共に電荷が大きいためにクーロン反発が大きい場合には、融合が阻害されて複雑な様相を示す。金とキセノンの系についてのこれまでの報告では、三体反応が大きな寄与をしていること<sup>1)</sup>、また比較的軽い入射粒子の場合に比べて、DIT が標的核類似生成物に大きな寄与をしていること<sup>2,3)</sup>などが報告されている。本研究ではこの系の生成物の微分飛程を測定し、放射化法で検出しやすい核種について運動エネルギーで生成物を分けることで、反応機構について調べる試みを行った。

実験の概要について次に述べる。照射は、 $^{197}\text{Au}$  箔 (18.81mg/cm<sup>2</sup>) をターゲットとして、理研リングサイクロトロンからの  $^{136}\text{Xe}$  ビーム (ターゲット中心で 23MeV/u) を用いて行った。ターゲットは、後方キャッチャーとして Al 箔 (25  $\mu$  m 厚) 1 枚、前方キャッチャーとして 3 枚 (長寿命核種測定の場合は上流よりカプトン高分子膜 50  $\mu$  m 厚 2 枚 + Al 25  $\mu$  m 厚 1 枚、短寿命の場合は Al 50  $\mu$  m 厚 1 枚 + Al 25  $\mu$  m 厚 2 枚) に挟んでスタックとし、理研リングサイクロトロン 3 b コースに設置された落送球照射装置<sup>4)</sup>を用いて照射した。照射後、 $\gamma$ 線スペクトロメトリーにより、各フォイルに対して生成物の同定定量を行った。その他の実験の詳細については、以前の放射化学討論会<sup>5)</sup>で報告しているので、ここでは省略する。

Fig.1 に示したのは、ターゲット箔に捕集された核種の生成断面積をその質量に対してプロットしたものである。この図より、質量分布はターゲット質量付近から質量数 30 ぐらいまでのマルチフラグメンテーションによると考えられる生成物までほぼ一様に広がっていることがわかる。また最前方の 2 枚のキャッチャーに捕集された生成物の断面積を Fig.2 に示した。この図から、飛程の長い成分は主として質量数にして 120 以下の比較的軽い生成物に対応していることがわかる。これらは反跳エネルギーの大きい核分裂生成物とマルチフラグメンテーションの生成物の混合と考えられる。

## References

1. O. Granier *et al.*, Nucl. Phys. **A481** (1988) 109.
2. A. Yokoyama *et al.*, Phys. Rev. **C46** (1992) 647.
3. W. Loveland *et al.*, Phys. Lett. **B312** (1993) 53.
4. S. Ambe *et al.*, Chem. Lett., **1991**, 149.
5. 渡辺ら、第 36 回放射化学討論会講演予稿集 **1A10** (1992).

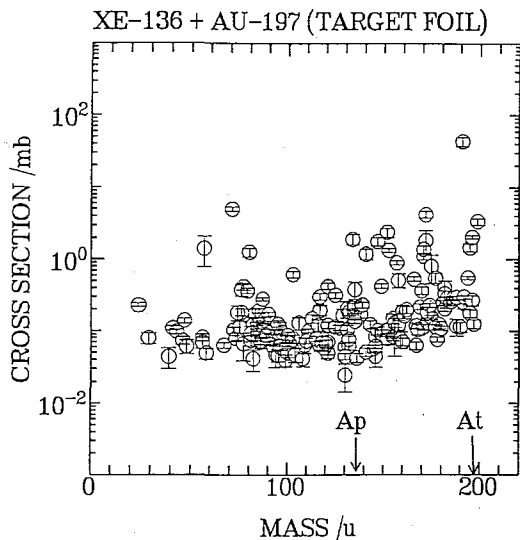


Fig.1. Formation cross sections of the products in the target foil as a function of their masses in the  $^{197}\text{Au} + ^{136}\text{Xe}$  system.

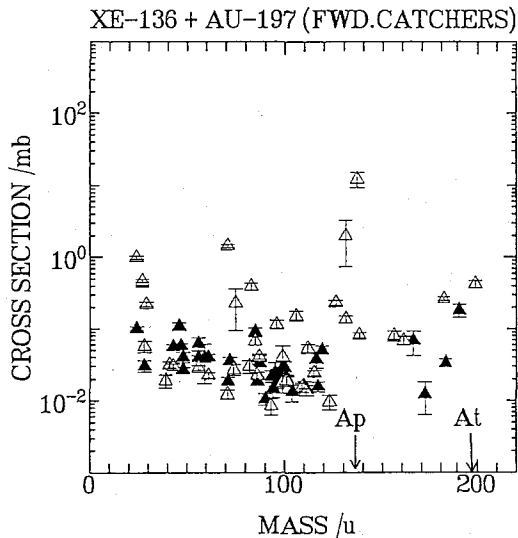


Fig.2. Formation cross sections of the products in the forward catcher foils as a function of their masses in the  $^{197}\text{Au} + ^{136}\text{Xe}$  system. Open marks represent the data for the most forward catcher, while closed marks for the second most forward catcher.

## MASS TRANSFER IN THE HEAVY ION REACTION OF $^{197}\text{Au}$ INDUCED BY $^{136}\text{Xe}$

Akihiko YOKOYAMA, Kazuhiro TAKESAKO, Daisaku YANO, Tadashi SAITO, Hiroshi BABA, Faculty of Science, Osaka University

Eugene TANIGUCHI, Junji KURACHI, Atsushi SHINOHARA, Michiaki FURUKAWA, Faculty of Science, Nagoya University

Yoshitaka OHKUBO, The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN)

Deep inelastic reaction is an important process in the heavy-ion-induced reaction especially for the energy region above  $10\text{MeV/u}$ , where the other processes such as fragmentation also have substantial cross sections. It is difficult to predict the competition of such complicated processes especially of heavy systems such as gold plus xenon. We measured the mass distribution and the differential ranges of the products from  $^{197}\text{Au}$  with  $23\text{MeV/u}$   $^{136}\text{Xe}$  ions by using a radiochemical method. The observed products are almost equally distributed in the mass range between 30 and 200 in atomic mass unit. The products with masses less than 120 amu have long ranges and consequently they are considered to be produced via fission process and multifragmentation.

中間エネルギー重イオンによる不完全融合反応の系統性

(阪大理・理研\*・名大理\*\*) 〇向 和彦・竹迫和浩・舛分宏昌・横山

明彦・斎藤 直・馬場 宏・大久保嘉高\*・篠原 厚\*\*・古川路明\*\*

[緒言] 重イオン反応では入射エネルギーの増加とともにその主な反応機構は、複合核形成から核破砕反応等の非複合核過程へと移行することが知られている。我々は、とくに完全、不完全融合反応の競合に着目し、放射化学的手法を用いて様々な系での実験を中間エネルギー領域で行ってきた。<sup>1)</sup> これらの競合と関係する系統性としてLerayのsystematics<sup>2)</sup>があるが、それによると標的核への運動量移行(LMT)を下に示すような $V_{rel}$ に対してプロットすると様々な系、入射エネルギーについて複合系の不完全融合性を説明することができ、入射粒子、標的核依存性はないとされている。

$$V_{rel} = \sqrt{\frac{2(E_{cm} - V_c)}{u}} \quad (E_{cm}: \text{重心系の入射エネルギー}, V_c: \text{クーロンエネルギー}, \\ u: \text{換算質量})$$

しかしこのsystematicsでは比較的軽い系のデータがもとになっており、我々の行った重い系については、入射粒子、標的核依存性が見られる。

(図1) これには複合系の角運動量効果が考えられる。そこで重い入射粒子を選んで( $^{136}\text{Xe}$ )生成物をLMTについて分離して測定するために今回 $^{136}\text{Xe} + ^{51}\text{V}$  2.6 MeV/u の微分飛程の実験を行った。

[実験] 実験は理研リングサイクロトロンE3bコースで行い、2.6 MeV/u  $^{136}\text{Xe}$  ビームで $^{51}\text{V}$  ターゲットを照射した。照射のセッティングを図2に示す。ビームは2つのスリットで絞られた後にターゲットに衝突し、ビームのずれをリングモニターでチェックしながら、ファラデーカップでビーム量が測定された。ターゲットの厚みは $7.91 \text{ mg/cm}^2$ でキャッチャーとして $25 \mu\text{m}$ のルミラー高分子膜を8枚用いた。キャッチャーが覆うことのできる角度は実験室系で $4.6^\circ \sim 38.0^\circ$  ( $1.31 \text{ sr}$ )である。約7時間の照射後、Ge半導体検出器による $\gamma$ 線スペクトロメトリを行った。およそ1ヶ月間測定し、BOBコードを用いてスペクトルの解析をした。

[結果と考察] 各キャッチャーについて反応生成物の収率を求め、図3に $^{48}\text{S}$ と $^{90}\text{Nb}$ の収率を捕集箔中の飛程に対してプロットした。横軸の誤差棒は厚みによる誤差を表している。ターゲットまわりの $^{48}\text{S}$ がおよそ $1.8 \text{ mg/cm}^2$ のところピークをもつものに対して核分裂の成分と思われる

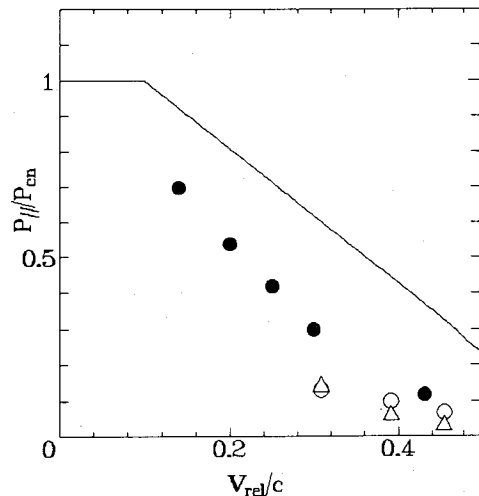


Fig. 1 Comparison of the average LMT with Leray's systematics. The symbols represent the projectile-target combinations: (●)  $^{12}\text{C} + ^{\text{nat}}\text{Cu}^{3}$ , (○)  $^{40}\text{Ar} + ^{141}\text{Pr}$ , and (△)  $^{40}\text{Ar} + ^{\text{nat}}\text{Cu}^{4}$ .



$^{90}\text{Nb}^8$ はかなりの飛程を持つことがわかる。講演では他の分布も用いて完全、不完全融合成分を分け、角運動量をもたらす効果についても検討する。

### References

- 1) 舩分ら, 第35回放射化学討論会講演予稿集 P.32-P.33
- 2) S.Leray, J.Phys. C4,275 (1986)
- 3) J.P.Whitfield and N.T.Porile, Phys Rev. C47,1636 (1993)
- 4) E.Taniguchi *et al.*, Radiochim. Acta 62,163 (1993)

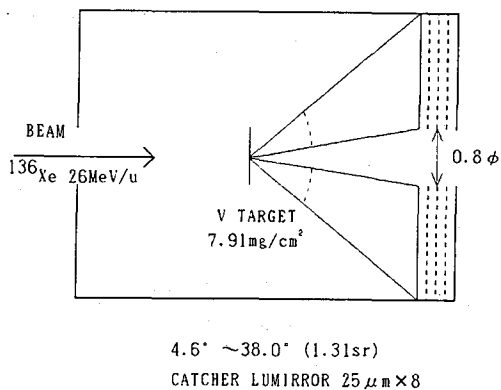


Fig.2 Experimental set up for the measurement of differential range.

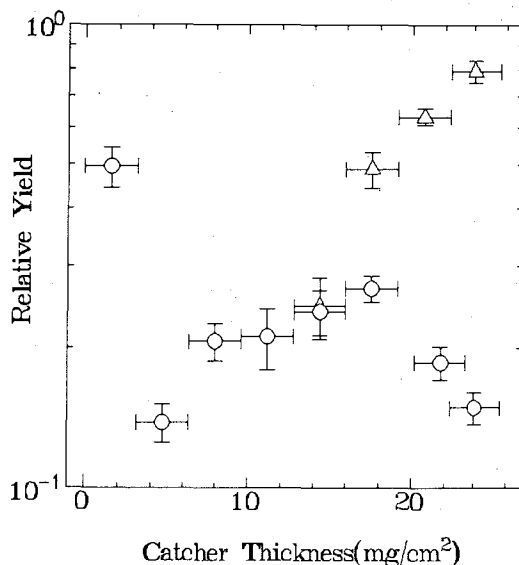


Fig.3 Differential ranges of (O)  $^{48}\text{Sc}$ , ( $\Delta$ )  $^{90}\text{Nb}^8$ .

### INCOMPLETE FUSION OF INTERMEDIATE ENERGY INDUCED BY HEAVY IONS

Kazuhiko MUKAI, Kazuhiro TAKESAKO, Hiroaki KUSAWAKE, Akihiko YOKOYAMA, Tadashi SAITO, Hiroshi BABA, Faculty of Science, Osaka University  
 Yoshitaka OHKUBO, The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN)  
 Atsushi SHINOHARA, Michiaki FURUKAWA, Faculty of Science, Nagoya University

In the reactions induced by heavy ions, incomplete fusion plays an important role in the intermediate energy. It has been reported that the LMT obeys Leray's systematics regardless of the target-projectile combinations. However, we observed a distinct deviation from the systematics in the experiment using  $^{40}\text{Ar}$  as the projectile. One of the reason of this discrepancy is considered to be due to the angular momentum effect. We carried out a differential range experiment in order to investigate competition of complete and incomplete fusions.

## 水溶液中のタンパク質にラベルした ラジオアイソトープの位置決定法

(日立基礎研, 東北大金研\*<sup>2</sup>) ○佐々木裕次, 鈴木芳生, 石橋整,  
佐藤伊佐務\*<sup>2</sup>

【緒言】RIは、現在多くの科学分野において利用されている。しかし、RIの壊変によって放出された放射線の干渉現象を利用した例はなく、その現象すら確認されていない。そこで我々は、RIからの特性X線によりロイド鏡型の干渉現象を確認し、さらにこの干渉現象を用いて、水溶液中において<sup>125</sup>Iでラベルした血清アルブミンの単分子膜内のRI原子の位置をnm精度で決定することを試みた。蛍光X線によるロイド鏡型の干渉現象は我々が確認しており<sup>1</sup>、そのタンパク質膜への適用<sup>2</sup>にも成功している。つまり、本実験により、上記“蛍光X線干渉法”における蛍光X線発生原子をRIに置き換え、入射(励起)光源なしで、かつ簡単な計測によりRIのnmオーダーの(一軸方向の)位置決定が可能となる。

【原理】観測される干渉縞は、Fig.1のS<sub>1</sub>(RI原子)とS<sub>1</sub>のミラーによる虚像S<sub>2</sub>らのコヒーレントな光源によって発生する。この干渉縞は全反射現象を利用しているので、取り出し角 $\theta_t$ (Fig.1)が単色(検出)X線の全反射臨界角 $\theta_c$ 以下の場合に現れる。この干渉縞は、RI原子とサンプル基板との距離に依存するため、Z(Fig.1)なる距離が干渉縞の計測により求められる。

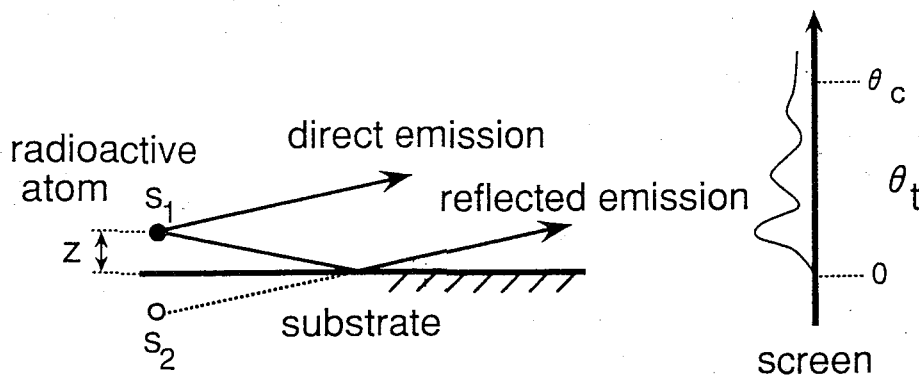


Fig. 1 Model of interference phenomena from electron-capture x-rays

【実験】原理の確認実験のモデルサンプルに<sup>51</sup>Cr (470mCi/mg) を1原子層挿入したLB膜を用いた。検出器は、2次元検出器であるイメージングプレート(IP, Fuji Film Co.)を用いた。<sup>51</sup>Crから発生する特性X線は、空気による減衰が著しいためサンプルと検出器の間をヘリウムで置換した。次ぎに応用例として<sup>125</sup>Iでラベルしたタンパク質一分子膜の評価を行った。つまりクロラミン-T法により<sup>125</sup>Iを修飾させたウシ血清アルブミン(BSA) LB膜の水溶液中での状態観察を行った。実験で用いたサンプル断面図をFig.2に示す。pHは、6.5と9.5において行った。この実験では検出器は、検出器前方にスリットをつけた半導体検出器を用いた。

【結果及び考察】原理確認実験では、ロイド鏡型の干渉現象の理論計算で予想された干渉縞とほぼ一致する干渉縞がIPにより観測することができた。また、RI原子とサンプル基板との距離もnm精度で求めることができた。<sup>125</sup>I また、タンパク質の実験では、pH=6.5及び9.5の水溶液中におけるウシ血清アルブミンにラベルした<sup>125</sup>I原子からの特性X線干渉パターンと理論計算とのフィッティングにより<sup>125</sup>I原子の分布幅はそれぞれ $\delta Z=180\text{Å}\pm 50\text{Å}$ ,  $120\text{Å}\pm 6\text{Å}$ と求めることができた。pH=6.5の場合、この分布幅( $\delta Z$ )は、楕円体のウシ

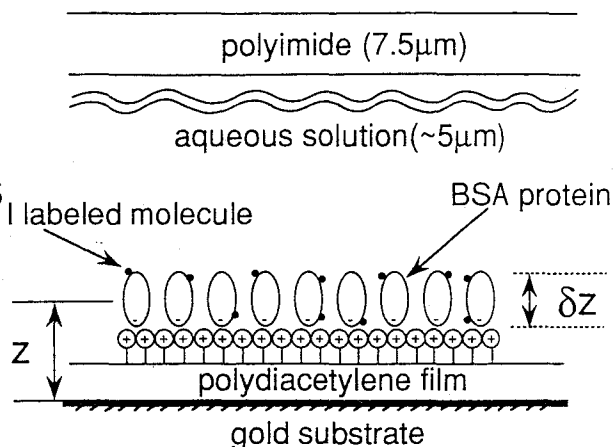


Fig. 2 Cross-section of protein sample

血清アルブミン分子の長軸値(140Å)よりもかなり大きな値である。この値は、電荷を持ったLB膜の水溶液中での縦方向の流動性(拡散)に起因していると考えられる。

以上より試料中に挿入された<sup>51</sup>Cr及び<sup>125</sup>Iの壊変により放出された単色X線によるロイド鏡型の干渉現象を用いて、<sup>51</sup>Cr及び<sup>125</sup>IとPt基板表面との距離を求めることができた。この新しい測定法(Interference pattern from radioisotopes, IPR)によって、非結晶系において、サンプル内に挿入されたRI原子の位置情報を選択的に得ることが可能となった。

【参考文献】

1. Y. C. Sasaki et al. Phys. Rev. B48, 7724(1993)
2. Y. C. Sasaki et al. Science, 263,62(1994)

**SITE DETERMINATION OF PROTEIN LABELED RADIOISOTOPE IN A SOLUTION WITH INTERFERENCE EFFECT OF ELECTRON-CAPTURE X-RAYS.**

Yuji SASAKI, Yoshio SUZUKI, Tadashi ISHIBASHI, Isamu SATOH \*

Advanced Research Laboratory, Hitachi Ltd.

\* Institute for Materials Research, Tohoku University

We have measured the interference effect of electron-capture x-rays from the radioactively labeled protein in a aqueous solution. Structural information about radioactive atoms can be given by analyzing the measured interference fringes, because the period of the interference fringes depend on the position of the radioactive atoms relative to the substrate surface.

## 昇華法による種々のRI標識エアロソルの製造と、それらの性質・応用

(北里大・ピュアレクスKK) ○野崎 正・石黒 淳・村岡久志

## [目的]

肺機能診断に用いられている $^{99m}\text{Tc}$ 標識炭素微粉末(TECHNEGAS)の製造装置により、種々のRIで標識したエアロソルが作成可能であることを確かめ、適した条件を探る。得られたエアロソル、ならびにそれを水に取り込ませた状態における各標識核種の種々な性質を調べる。さらに、これらの性質を利用した応用研究をスタートさせる。

## [方法]

TECHNEGAS 装置 Australia の Tetley 社より購入した。RIとしては、 $^{42}\text{Ar}$ - $^{42}\text{K}$ 、 $^{68}\text{Ge}$ - $^{68}\text{Ga}$ 、 $^{99}\text{Mo}$ - $^{99m}\text{Tc}$  のジェネレーターからミルクした $^{42}\text{K}$ 、 $^{68}\text{Ga}$ 、 $^{99m}\text{Tc}$  (純水と生理食塩水の両方でミルク)、 $^{18}\text{O}(p,n)^{18}\text{F}$  反応により製造した $^{18}\text{F}$ 、および原研で反挑濃縮を用いる $(n,\gamma)$ 反応で製造された $^{64}\text{Cu}$ を用いた。RI溶液(約100 $\mu\text{l}$ )をグラファイトポートに入れ、この装置にセットし、これを作動させると、アルゴン雰囲気中でポートが2500 $^{\circ}\text{C}$ までJoule加熱され、RI物質が微量の炭素とともに昇華しエアロソルを形成する。これを装置から追い出しながら、各種フィルターによる捕集とそこからの洗い出しを調べ、標識収率を求めた。 $^{99m}\text{Tc}$ については、Laser Particle Counterにより粒度分布とその時間変化を調べた。エアロソルを水と振り混ぜてRIを水中へ導入して、つぎの諸操作における各RIの挙動を調べた：遠心とマイクロポアフィルター濾過(酸、アルカリ、酸化剤処理をしてからの場合もある)、電気泳動、溶媒抽出、イオン交換。これらの結果から、各RIの状態を考察し、その性質を活用して3種の応用研究を開始した：①マスクやフィルターの性能試験(主に $^{99m}\text{Tc}$ )、②気相と水相からの微粒子由来RIの半導体ケイ素への付着( $^{68}\text{Ga}$ 、 $^{99m}\text{Tc}$ )、③陽電子放出RI標識可溶性微粒子を用いる肺機能の新しい診断法の開発。

## [結果]

Table 1 に標識収率やRIの挙動の一部を示す。 $^{99m}\text{Tc}$ エアロソルの粒度分布は、ミ

Table 1. Labelling Yield and Properties of Aerosols.

Nuclide	Yield*	Washed-out Fraction (%)		Anion Exchange Column		
		Cold Water	Aq. HCl	Adsorption	Water Elut.	HCl Elut.
F-18	20 - 25	> 99	> 99	Quantit.	Neglig.	Complete
K-40	30 - 35	> 99	> 99	None		
Cu-64	30	< 10	60 - 70	Major Part	Neglig.	Slow
Ga-68	30 - 35	< 15	> 95	Most Part	Neglig.	Efficient
Tc-99m**	30 - 45	< 15	< 15	Major Part	Very Slow	Very Slow

\* For sweeping-out with 2 l/min argon flow.

\*\* For both water-milked and

saline-milked  $^{99m}\text{Tc}$ .

ルキングが水でも生食でも、製造直後では  $0.1 \mu\text{m}$  以下に極大が存在し時間とともに凝縮がみられた。粒子濃度もあわせ考えると、生食でミルキングした場合、この測定で観測しているのは  $\text{NaCl}$  粒子で、炭素や  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  ではない。水に導入してから、電気泳動では、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  は原点にとどまり  $^{68}\text{Ga}$  は  $\text{Ga}^{3+}$  の位置へ移動した。遠心分離やマイクロポア濾過では  $^{64}\text{Cu}$  と  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  のかなりの部分が捕集されたが、 $\text{KMnO}_4\text{-H}_2\text{SO}_4$  処理により可溶化されてきた。これらの事実や、陽イオン交換、溶媒抽出の結果を総合すると、水中において各 RI は次の状態で存在するといえる： $^{18}\text{F}$ ，陰イオン； $^{42}\text{K}$ ，陽イオン； $^{64}\text{Cu}$ ，主として炭素微粒子中、一部は陽イオン； $^{68}\text{Ga}$ ，主として陽イオン、一部は微粒子の中または表面上； $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ，ほとんど全部炭素微粒子中（ $^{64}\text{Cu}$  より化学的にも安定）。

Table 2 に  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  を、エーロソルとしてから水に振り混ぜた場合と、 $\text{TcO}_4^-$  としてミルキングした直後との、MIBK 溶媒抽出時における挙動の違いを示す。一般に、水中

Table 2. Behaviour of  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  in MIBK-water shaking (%).

State of $^{99\text{m}}\text{Tc}$	Aq. phase	MIBK	Vessel wall	Interface
In aerosol-shaken water	15	37	26	22
Just milked as $\text{TcO}_4^-$	17	83	<0.5	<0.5

Aqueous phase: 2 mol/l NaOH. Quantity of the phases: both 3 ml.

Vessel: glass tube of 1.35 cm inner diameter. Shaking time: 200 sec.

に存在する炭素微粒子は、水と混合しない有機相と振り混ぜるとき、器壁に付着したり両液層の界面に集まる傾向が顕著であった。上の抽出をした後の各相から、同じ組成の相手相による抽出を繰り返した場合、抽出率は減少した。また、界面集積率は、界面の比表面積にそれ程顕著には依存しなかった。

一部を 5 kV に帯電させた半導体ケイ素小板群を絶縁体円板上に  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  エーロソルの流入口にたいし対象に並べておいて、炭素微粒子付着にたいする帯電の顕著な影響を示すラジオルミノグラフを得ることが出来た。また、水中に導入した  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  標識微粒子のケイ素上への付着は、ステアリン酸 Langmuir-Brochette 膜（通常 2 層）により明白に増加した。その他の応用研究でも、大変有意義な結果が得られている。TECHNEGAS 装置で製造した種々の標識エーロソルは、トレーサーとして自然界におけるエーロソルの挙動に関する基礎研究や、各種の応用研究におおいに有効と思われる。

#### PRODUCTION OF FINE AEROSOLS LABELLED WITH VARIOUS RADIONUCLIDES BY SUBLIMATION FROM A GRAPHITE BOAT, AND THEIR PROPERTIES AND TRACER USE

Tadashi NOZAKI, Jun ISHIGURO and \*Hisashi MURAOKA. School of Hygienic Sciences, Kitasato University; \* Purex Co. Ltd.

Fine aerosols labelled with  $^{18}\text{F}$ ,  $^{42}\text{K}$ ,  $^{64}\text{Cu}$ ,  $^{68}\text{Ga}$ , and  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  were produced by a commercial apparatus called Technegas Generator. Their properties were studied by various methods, before and after the particles were introduced in water. The aerosols have been used as radiotracers for the study of particle pollution of semiconductor silicon and for some other measurements.

## トルアミドの位置選択的トリチウム化—メチル基の立体効果—

(千葉大・薬) ○大橋國雄 菅野智徳

## 【緒言】

$\text{RhCl}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ の存在下にトリチウム水を用いて、安息香酸<sup>1)</sup>、アニリド<sup>2,3)</sup>、ベンズアミド<sup>4)</sup>などをトリチウム化すると、この水素同位体交換反応はオルト位で選択的に起こり、アニリドのアシル基のアルキルC—H結合やパラ位にあるメチル基のC—H結合では起こらないこと、またこの交換反応においてアニリドのアシル基のアルキル基による立体効果やトリフルオロメチル基によるN原子上の非共有電子対に対する極めて強い電子求引効果が認められることなどがすでに報告された。さらにp-メチル及びp-ハロゲン置換ベンズアニリドを用いて置換基の電子効果を調べた結果、このH—T交換反応は、その効果がより電子求引的に働くo-位の炭素原子上(置換基にたいしてはm-位)において起こりやすく、メチル基の電子効果は極めて小さいことなどが明らかにされた。これらの結果から、この同位体交換反応は塩化ロジウム(III)触媒にたいするアニリドの窒素原子やカルボン酸イオンの酸素原子の配位を経て進み、配位子のHTOのO—T<sup>δ-</sup>とo-位のC—H<sup>δ+</sup>の間のT-for-H交換によって起こるものと考えられている。今回はこの同位体交換反応に関する研究の一環として、o-, m-, p-トルアミドを用い、この反応に対するベンゼン環上のメチル基の立体効果について検討し知見を得たので報告する。

## 【実験】

トルアミド 1.2 mmol と  $\text{RhCl}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$  158 mg(0.6 mmol)を DMF 3ml と HTO 0.6ml の混合液に溶かし、105~107 °Cで 11 時間加熱した。反応後のトルアミドの分離・精製はすでに報告したと同様に行い<sup>5)</sup>、放射能の測定は液体シンチレーション計数法により行った。分子内のトリチウム分布は、滅成反応によりトルアミドから種々の誘導体を合成し、親化合物のトルアミドと合成した誘導体の間で比放射能を比較することによって決定した。

## 【結果と考察】

Table 1 に親化合物のトルアミドの比放射能と p-トルアミドの比放射能を100としたときの m- 及び p-トルアミドの比放射能の比、即ちトリチウムの取り込み比を示す。2種類の比放射能(182 及び 209 MBq g<sup>-1</sup>)のトリチウム水を用いたが、一方のトリチウム水の比放射能の値に基準化したトルアミドの比放射能は、run 1 と run 2 においてその平均値から±3%以内で再現された。親化合物と誘導体の間の比放射能の比較から、o-, m-, p-トルアミドのいずれの場合にも、H—T同位体交換反応はアミド基のオルト位で選択的に起こり、ベンゼン環上のメチル基では起こっていないことが確認された。反応の起こる可能性のある o-位は m-及び p-トルアミドでは2箇所、o-トルアミドでは1箇所であるが、Table 1 に示されるようにトリチウムの取り込み比はp-体>m-体>o-体の順に著しく減少している。立体効果の様子をさらに詳しく調べるために、m-トルアミドの o-位1箇所ずつのトリチウム取り込み比をみると予想された通り、H—T交換反応はC—6位におけるよりもメチル基とアミド基の間にあるC—2位において極めて起こり難く、そのC—6位においても p-トルアミドのC—6位におけるよりも起こり難くなっている。アセトアミド基をはさんでメチルとは反対側にあるC—6位のみで交換反応が起こる o-トルアミドのト

リチウム取り込み比は、p-体さらに m-体の C-6 位のそれと比べても極めて小さい。以上の結果を考え合わせると P-体と比べた m-及び o-体に見られるトリチウムの取り込み比の減少は、通常考えられる攻撃試薬の侵入を妨げるという単純な立体効果によるものではなく、メチル基の立体効果により  $-\text{CONH}_2 \rightarrow \text{RhCl}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$  の全体が反応位置の o-位 に対して p-体のときのように十分有利な配向をとることができないためと考えられる。

Table 1 Specific activities of toluamides and tritium incorporation ratios of o- and m-toluamides to p-toluamide

Compound		o-toluamide	m-toluamide	p-toluamide
Specific activity Bq mol <sup>-1</sup>	run1	7.84x10 <sup>7</sup> *	4.57x10 <sup>5</sup>	1.32x10 <sup>3</sup> *
	run2	6.59x10 <sup>7</sup>	4.34x10 <sup>5</sup>	1.14x10 <sup>3</sup>
Tritium incorporation ratio** per one position		5.9	39	100
	C-2	—	2	50
	C-6	5.9	37	50

- 1) Specific activity of HTO: 209 MBq g<sup>-1</sup> for asterisked runs and 182 MBq g<sup>-1</sup> for the other runs. 2) \*\* calculated by normalizing the specific activity of HTO to 182 MBq g<sup>-1</sup>. Average values in duplicate runs

#### References

1. K.Oohashi, Y.Soutome, J.Radioanal. Nucl. Chem., Letters, 155, 65(1991).
2. K.Oohashi, M.Udo, Radioisotopes, 41, 357(1992).
3. K.Oohashi, N.Kitayama, Y.Shinoda, ibid., 41, 547(1992).
4. K.Oohashi, T.Seki, J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters, 187, 303(1994).

#### REGIOSELECTIVE TRITIATION OF TOLUAMIDES -STERIC EFFECT OF METHYL GROUP-

Kunio OOHASHI and Tomonari SUGANO, Faculty of Pharmaceutical Sciences, Chiba University

Hydrogen isotope exchange in toluamides with HTO was studied in the presence of  $\text{RhCl}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$  in DMF. It was established by chemical degradation that the exchange reaction occurred with virtually 100% regioselectivity at the o-positions (C-2 and C-6 positions) of all the toluamides. The methyl group was not tritiated. The exchange in m-toluamide was strongly hindered at the C-2 position. The exchange at the C-6 position was more strongly hindered in o-toluamide than in m-toluamide. These findings are in accordance with the previously suggested mechanism that the exchange proceeds via an initial coordination of toluamide to rhodium(III) chloride.

熱処理による天然石英試料からの熱ルミネッセンス関連特性の変化  
(新潟大理) 橋本哲夫・○小西正芳・市野正廣

【はじめに】

純粋な石英は加熱処理により、573℃で低温型の $\alpha$ 石英から高温型の $\beta$ 石英へ構造の歪みをともなう相転移を起こし、さらに870℃でトリジマイトへと原子の再配列をともなう相転移を起こすことが知られている。しかし、天然に存在する石英は不純物を含んでおり、検知可能な転移温度の変動が観測される。また、我々の研究室ではTL発光機構が不純物と熱履歴に何らかの関わりがあることを報告してきた<sup>(1-3)</sup>。

今回、発光特性と構造の変化を追究するために石英粒子試料について、870℃の高温型石英/トリジマイトへの相転移温度の前後を含むさまざまな高温での熱処理を行ない、この際の $\alpha/\beta$ 石英相転移温度の変化を調べ、さらに水晶薄片を用いた熱処理前後でのいくつかの物性変化を追究した。

【実験】

試料として、X線などを照射後に青色熱ルミネッセンス (BTL) 発光を示すMadagascar産水晶より薄片および粉碎粒子と、赤色熱ルミネッセンス (RTL) 発光を示す典型試料として田沢湖産石英粒子を用いた。薄片は、水晶から鉋物カッターによりZカット粗薄片を切り出し、グラインダーにより面を平らにし、厚さを約1mmとした。薄片試料は極微弱光瞬間分光 (IPDA) システムにより、三次元TLスペクトル測定、TLカラー写真観察 (TLCI)、赤青二波長域同時TL測定装置によりTLグローカーブ測定、さらにTAS200差動形示差熱天秤 (株)リガク, MJ800PF2) により、昇温速度を1分間に8℃として $\alpha$ - $\beta$ 相転移温度測定を行なった。Madagascar産石英粒子の試料調製には、水晶を粉碎し、HCl、NaOH、HFにより順次エッチング処理を行った後、3種の粒径に分け、そのうち32~60 meshのものを用いた。田沢湖産石英粒子は現地より採取した湖岸砂を洗浄し、以下、Madagascar産石英粒子の調製と同様の操作を行ったものを用いた。粒子試料は異なる温度による熱処理 (800, 900, 1000, 1100, 1200℃; 100 h) を行ない、調製した試料に対してTLグローカーブ、および $\alpha/\beta$ 相転移温度測定を行なった。なお、試料は測定を行なう前にX線を照射 (300 s; ca. 13 kGy or 200 s; ca. 8.7 kGy) し、1日以上放置した。

【結果と考察】

Fig.1で示すようにMadagascar産水晶では高温型石英・トリジマイト相転移温度 (ca. 870℃) 付近の熱処理温度で一旦転移温度が降下し、次いで700℃以上での熱処理温度の増加と共に $\alpha/\beta$ 相転移温度が増加し、熱処理温度が1000℃を越えるとはほぼ一定となる結果を得た。高温型石英/トリジマイト相転移温度以下の温度域での熱処理では、不純物に関与した結晶格子間の弱い結合が解裂し転移温度の低下が生じ、一方トリジマイト相転移温度以上では、相転移の結果Al-O-Si結合が解裂し、この部位がRTLセンターになりうると予想される。本来RTL粒子試料である田沢湖産石英は、水晶に比べて不純物含量が多いことと、高温



型トリジマイト相転移以上で生成したSiO<sub>2</sub>が関与したため、RTL特性を帯びていると解釈できる。

薄片小片を用いた実験では、Fig.2で示すように熱処理前におけるBTL積算値（270~340℃）と $\alpha/\beta$ 相転移温度との相関性は、BTL強度の強いものほど、 $\alpha/\beta$ 相転移温度が高いという結果が見られた。主な不純物としてのAlの含量に依存して転移温度が低下するという報告があり、ここでの結果と合わせて考えると、Al含量の少ない純粋な石英部位ほどBTL発光が大きいということが確認された。熱処理後における $\alpha/\beta$ 相転移温度とRTL積算値、RTL/BTL比の相関性については、 $\alpha/\beta$ 相転移温度の低下にともないRTLの増加が観察された。なお、熱処理後では、大部分の薄片試料で $\alpha/\beta$ 相転移温度の低下が観察された。

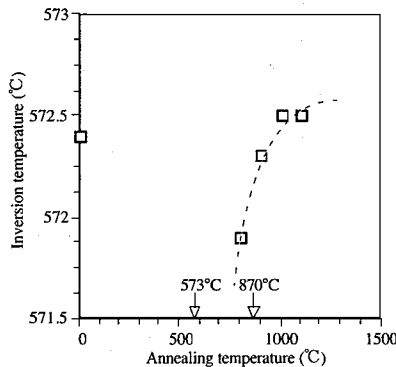


Fig.1 Madagascar産水晶粒子の熱処理温度と $\alpha/\beta$ 相転移温度  
(熱処理；各100時間)

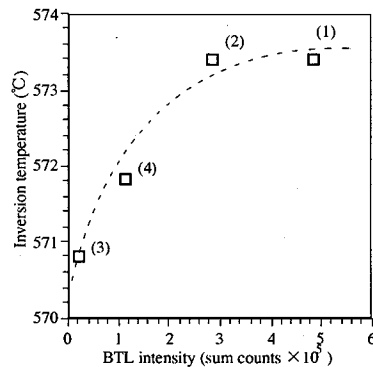


Fig.2 Madagascar産石英薄片の熱処理前の $\alpha/\beta$ 相転移温度とBTL積算値  
(熱処理；1100℃，25時間)

#### References

- 1) T. Hashimoto, S. Sakaue, and M. Ichino, *Radiat. Measur.* (in press)
- 2) T. Hashimoto, S. Notoya, T. Ojima, and M. Hoteida, *ibid.* (in press)
- 3) T. Hashimoto, S. Sakaue, T. Ojima, S. Notoya, and M. Konishi, *ibid.* (in submission)

#### CHANGES OF $\alpha/\beta$ INVERSION TEMPERATURE AND THERMOLUMINESCENCE PROPERTIES OF NATURAL QUARTZ SAMPLES AFFECTED WITH THERMAL ANNEALING TREATMENT

Tetsuo HASHIMOTO, Masayoshi KONISHI and Masahiro ICHINO, Faculty of Science, Niigata University

Quartz inverts from low( $\alpha$ )-quartz to high( $\beta$ )-quartz at 573°C, and furthermore, from  $\beta$ -quartz to tridymite at 870°C. The  $\alpha/\beta$  inversion temperature depends on aluminum impurity, whose amounts influence appreciably thermoluminescence (TL) properties. Natural quartz samples affected by thermal annealing treatment change TL properties from BTL to RTL. At higher annealing temperatures, both RTL and BTL intensities are increased, along with the increment of the  $\alpha/\beta$  inversion temperature; the lowering  $\alpha/\beta$  inversion temperature brought on the more intense RTL after annealing treatment from weak BTL on original quartz.

ボーリングコアサンプルなどから抽出した石英粒子及び  
ジルコン粒子の熱ルミネッセンス特性について

(新潟大理) 橋本哲夫・○布袋田真大・中村千恵

<はじめに>

天然石英から観察される熱ルミネッセンス (TL) には赤色 (RTL)、青色 (BTL) の2種類の発光が存在することが見いだされている。これらの発光特性を左右する原因として、不純物の影響とともに熱作用による構造変化を考えている。地層環境が異なる場合、地層の地熱が関係する熱履歴と石英粒子からのTL発光特性の変化との間に何らかの相関が見いだされる可能性が期待される。本研究では、石英粒子が地層環境を反映すると考えられるTL特性の変化から調べる。すなわち、天然蓄積TL強度、放射線に対する石英粒子のTL感度の2項目に焦点を当てて検討することを目的とし、新潟県弥彦山付近から採取したボーリング試料を用い、各地層深度に含まれる石英粒子を採取した上、TL発光の特性を観察した。また、ジルコン粒子のTLにおいては、発光特性を左右する原因として、石英粒子と同様な原因の他に、ジルコン中に不純物として含まれるU,Thの $\alpha$ 反跳作用や自発核分裂片による内部被曝の影響が考えられている。このためジルコン中の $\alpha$ 反跳原子と内部被曝による大きな放射線損傷を含むTLの生長をも検出可能とするよう、TL測定装置の高感度化を試みてきた。

<実験>

弥彦ボーリング試料のうち地下 50,130,800,1300,1600,2000,2800,3600mの計8点についての土壌試料中の石英粒子を抽出した。これらの試料についてTL強度を温度、波長に対しプロットする三次元TL測定を行いTL発光特性を調べた。そのデータを基に発光特性におけるTLグローカーブを光電子増倍管 (PMT) からなるTL測定装置により測定し、地層の深さに対するTL発光の変化を観察した。また800,1600,2800mの石英試料に対し、天然に蓄積されていたTLを消去させるために410℃まで一旦加熱後、 $\gamma$ 線を150,200,250Gyずつ照射した。これらの試料のグローカーブを測定、解析し、照射線量に対する発光強度の生長および地層の深さに対するTLの感度(一定の照射線量に対するTLの応答性)の変化を観察した。またジルコン粒子のTL発光特性を調べるため、石英試料と同様に三次元TL測定を行った。

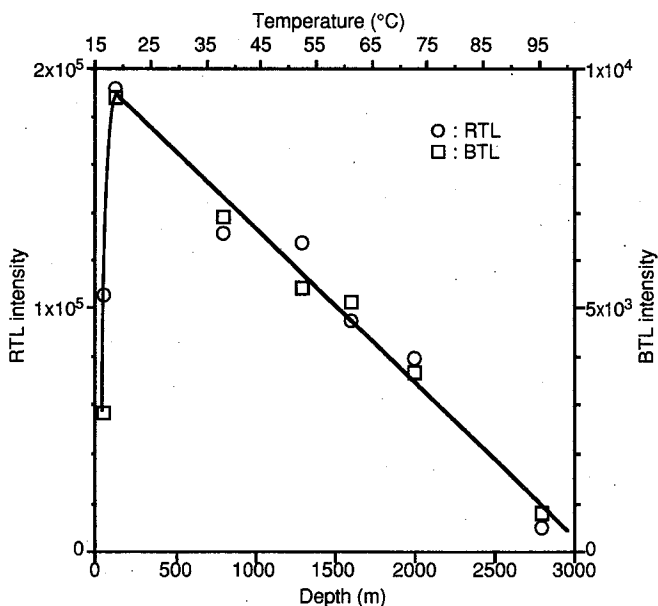


Fig.1 Changes of TL intensity against depth for quartz samples. TL was evaluated at a glow-curve temperature of 330℃.

### <結果と考察>

三次元TL測定から得られたデータから抽出された天然石英粒子はRTL、BTLの二群に大別できる典型的な波長特性を有することが明らかとなった。そこで各深度の天然石英試料からの青色、赤色領域の天然RTLとBTLグローカーブ測定を行った。Fig.1に示す結果からわかるように、RTL、BTL共に地下130mまでTL強度は生長するものの、それ以深ではTL強度は減少した。グローカーブの点からは、深くなるにつれ低温側(約250℃)よりTLが消去されていき、ついで高温側で(約330℃)のTLが減少していた。このことは蓄積されるTL強度に対し地熱の影響があったことを示している。

一方、 $\gamma$ 線照射した石英試料からの人工TLグローカーブでは、RTL、BTLとも200Gyでほぼ生長が止まり、深さに対しRTLの感度は顕著に減少したが、青色領域では感度に大きな変化はなかった。このことから、RTLではTL源となる放射線損傷に由来するルミネッセンスセンターが長期の温度の作用によって回復されていると推察され、深度と共に天然TLグローピークが減少する結果と一致している。またBTLでは地質環境に左右されない不純物に起因する部分があると解釈できた。

一方、ジルコン粒子におけるTL発光特性は、 $Dy^{3+}$ などの希土類に由来する発光が Fig.2 に示すように見いだされた。これらの結果に基づき、ジルコン粒子のTL測定に関して用いるフィルター及びPMTの選択を行い、TL測定装置の高感度化を現在行っている。

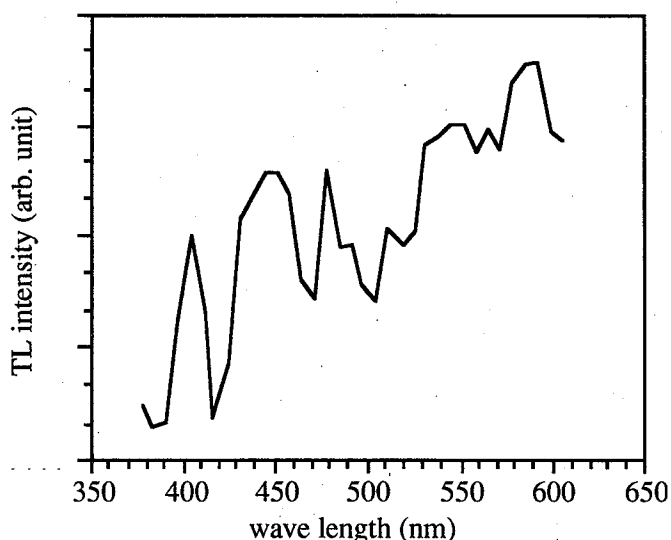


Fig.2 TL-spectrum from zircon grains. The spectrum was integrated from 50 to 370℃ using 3-D TL spectrum data.

### PROPERTIES OF THERMOLUMINESCENCE IN ZIRCON AND QUARTZ GRAINS EXTRACTED FROM GEOLOGICAL LAYERS INCLUDING BORING CORE SAMPLES

Tetsuo HASIMOTO, Masahiro HOTEIDA, Chie NAKAMURA, Faculty of Science, Niigata University

Changes of RTL (red-TL) and BTL (blue-TL) properties were observed in quartz grains extracted from boring core samples. Both natural RTL and BTL increased steeply from surface to 130m in depth, while its intensities were decreased beyond 130m in depth. RTL sensitivities in artificially irradiated quartz samples are inversely proportional to depth.

High-sensitivity TL measurement system for zircon grains extracted from zircon-sands has been developed.

第四紀関連地層の年代評価に対する熱および光励起ルミネッセンス  
適用への基礎研究

(新潟大・理) 橋本哲夫・○能登屋信・高橋英史

1. はじめに

更新世のうちでも第四紀は、旧石器に関連した原人遺跡の年代測定として重要な位置を占めており、近未来の地殻変動予想を行う上でも重要視される年代領域である。しかし、加速器質量分析器による $^{14}\text{C}$ 年代測定法は数万年までが適用上限であり、一方ジルコン粒子を用いるFission Track年代測定法やK-Ar年代測定法の一般的な適用下限は十万年台の後半である。すなわち、これらの方法が適用できる十分な試料が得られたとしても、数万年から数十万年までの年代が評価できない。熱ルミネッセンス (TL) を用いた年代測定は、ESR年代測定法と共に、この主たる年代測定法が適用困難な年代域をカバーしている。

地層中の鉱物粒子が天然放射線を受けると、その相互作用により天然放射線が鉱物粒子中に準安定状態の位置に留まる捕捉電子と正孔を鉱物中に残す。すなわち、長寿命の捕捉電子や正孔の絶対量を計測できれば、その鉱物の蓄積量を知ることができる。求めた絶対蓄積量を年間に自然界で増加する速度で割ることにより、年代評価ができることになる。蓄積捕捉電子や正孔の寿命は100万年以上の及ぶものが見いだされており、鉱物の加熱に伴うルミネッセンス量から年代評価する方法はTL年代測定法として、また捕捉電子や正孔量を電子スピン共鳴吸収 (ESR) 装置で計測する方法はESR年代測定法として、いずれも数十万年までにも及ぶ年代測定法として注目されてきている。鉱物試料としては風化に強く普遍的に存在する石英粒子や化石化した石灰石類が測定試料として利用できるため、数百年以上の試料で $^{14}\text{C}$ を含まない土器や陶器など考古学遺物の年代測定への適用も近年盛んである。

近年の測定装置や技術の進歩に伴い、これまでに見落とされてきた点もいくつか見いだされるようになった。我々の経験を踏まえ、主としてTL年代測定法についての現状を報告する。

2. TL年代測定法

熱ルミネッセンスによる年代測定は、主として付加線量法が用いられている。この方法は、既知線量の放射線を付加照射した天然石英粒子 (以下試料と略) から得られた特定波長領域のTLグローカーブを解析することにより、天然蓄積線量を評価する方法である。

天然蓄積線量 (Pd) の評価は以下のように行う。天然石英粒子からのTLには青色 (BTL) と赤色 (RTL) の二群が存在している。そこでまず、波長、温度、発光強度の三次元解析により火山噴出物起源の天然石英粒子RTL示すことを確認すると共に、測定波長を限定することによってより正確な測定値を得る。その後、高感度TLグロー

カーブ測定装置によりRTLグローカーブ測定を行い、付加線量に対して安定増加を示す温度領域（プラトー領域）について各付加線量ごとにTL強度を積算し、得られた各積算TL値から付加線量に対する積算TL値の増加を外挿する。得られた横軸との交点より天然蓄積線量を決定する。

一方、年間吸収線量（Ad）は、放射平衡状態にあるという仮定のもとで地層試料における含有天然放射性核種をγ線スペクトル測定により定量し、含有天然放射性核種由来の吸収線量を含水量や宇宙線の補正をすることにより見積る。

こうして得られた天然蓄積線量（Palaeodose: Pd）を試料の年間吸収線量（Annual dose: Ad）で割ることで年代を得る。

この方法を用いた行なう赤色TL年代測定は、これまでに宮城県北部の愛島・座散乱木・中峯・馬場壇(1)・高森(2)など旧石器関連地層について試みており、層序に適合したTL年代値を必ずしも示さない結果も得られた。

この第四紀更新世に対する年代測定を高信頼性かつ正確なものにするために、TL年代測定に關与する問題点を表1のように列挙し、それら個々について基礎的な面から検討している。

表1 TL年代測定に關与する問題点

・ 試料	； 粒子に取り込まれている長石を取り除くのは困難 再現性 線量付加によるTL強度の成長の仕方
・ 人工付加の線量率	； 天然を再現できる線量率の上限はどの位なのか
・ 人工付加の際の線質	； 適当な線質はなにか
・ プラトー域の選定	； プラトー域選定の定義化
・ 複合ピーク時の取り扱い	
・ 線量付加によるピークのシフト	； 低温域の方が付加線量に対する成長が早く寿命も短い
・ フェーディング	； 原因はなにか、取り扱いはどうすべきか
・ 近似関数	； 導入する関数の選定、直線近似が可能な付加線量
・ 年間線量率の評価	； 放射非平衡、含水量、RIの濃度、RIの均一性など

#### Reference

1. 橋本 他、考古学と自然化学、23, 35(1989)
2. 橋本 他、高森遺跡I(東北歴史資料館編)、43(1993)

#### BASIC STUDIES OF TL AND OSL DATING METHODS APPLICABLE TO QUARTERNARY LAYERS RELATED TO PRE-HISTORICAL SITES.

Tetsuo. HASHIMOTO, Shin. NOTOYA, Eiji. TAKAHASHI  
(Faculty of Science, Niigata University)

A red-thermoluminescence dating using quartz inclusion method is applied to a pyroclastic flow and tephra layers as successive strata related to an important pre-historical sites. The recent instrumental and technical improvement maybe approach to resolvesome intrinsic and substantial problems accompanied with TL-dating. In this paper, the authors have compiled these problems and some experimental approach will be discussed.

## マルチトレーサー法を用いて求めた植物の各元素の選択吸収係数

(理研、放医研\*) 安部静子、○篠永妙子、前田はるか、岩本正子、  
内田滋夫\*、保田浩志\*

## [緒言]

理研リングサイクロトロンで加速した高エネルギーの重イオンで鉄、金、銀等を照射して生成する放射性同位体(マルチトレーサー)の研究が行われてきたが<sup>1)、2)、3)</sup>、今回我々はこのマルチトレーサーを用いて植物中に取り込まれる元素の挙動を選択吸収係数を求めることにより考察した。選択吸収係数はある元素の経根吸収量を数学モデルで求める際に用いられる植物側パラメータの一つであり、元素の土壌-植物系での挙動を評価する上で重要な指標である<sup>4)</sup>。本研究では、マルチトレーサー法を用いることにより葉菜(小松菜)中のいくつかの元素の選択吸収係数を5つの栽培溶液濃度について求め、これらの間に相関性を見い出したのでその結果について報告する。

## [実験]

今回の実験は鉄および金から生成したトレーサーを用いて行った。鉄箔はリングサイクロトロンで135 MeV/nucleon の  $^{16}\text{O}$  で照射し濃塩酸に溶解した。鉄イオンは  $\text{Fe}^{2+}$  を過酸化水素水で  $\text{Fe}^{3+}$  に酸化した後陰イオン交換樹脂を用いて除去した。金箔は135 MeV/nucleon の  $^{14}\text{N}$  で照射した後王水に溶解し、3M HCl 溶液から金イオンを酢酸エチルで抽出し除去した。最終的に無担体溶液のマルチトレーサー溶液をそれぞれ得た。

水耕溶液中の共存元素濃度の違いがそれぞれの選択吸収係数に及ぼす影響を調べるため、このマルチトレーサー溶液を標準水耕栽培溶液<sup>4)</sup>を5段階に濃度を変えた液に加え、あらかじめ30日間栽培した小松菜を人工気象器(LPH-300-RDS、日本医化機械製作所)内で23℃、湿度70-80%、小松菜頭頂部で23000lxで12時間照射し、各濃度について2株ずつ24時間栽培した。生育した小松菜は葉と根に分けて室温で乾燥し、Ge半導体検出器でそれぞれの $\gamma$ 線測定を行った。溶液濃度は電気伝導度の測定を行い対応させ選択吸収係数との相関を調べた。

## [結果と考察]

選択吸収係数は下式より求めた<sup>4)</sup>。

$$W_m = S \cdot T_e \cdot C_l + W_{bef}$$

S: 選択吸収係数

$W_m$ : 元素の全吸収量

$T_e$ : 実験期間の植物からの蒸散量

$C_l$ : 元素の溶液中濃度

$W_{bef}$ : 実験開始までの元素の吸収量

この実験においては、 $W_{bef}$  は実質上0である。

鉄箔からは、Be, V, Cr, Co, Mn について得られ、金箔からは、Be, V, Mn, Cr, Co, Zn, As, Se, Rb, Sr, Ba, Ce, Eu, Re, Ir, Pt, Rh についての選択吸収係数が得られた。このうち鉄箔から生成したBe, Mn, Co について選択吸収係数と水耕溶液の電気伝導度との関係を根と葉について図1-6に示した。電気伝導度は溶液中の総イオン濃度を示す指標になる<sup>5)</sup>が、各元素の選択吸収係数が共存濃度の増加にともない指数関数的に減少しているのがわかる。これは、共存元素濃度が各元素の選択吸収係数に影響を及ぼしていることを示すものであり、経根吸収において元素間の競合があるものと考えられる。しかしながら、ばらつきが多少みられるため、より正確な係数を求めるにはさらにデータを加える必要があると考えられる。

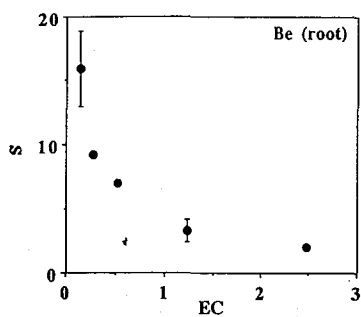


Fig. 1 Be (root)

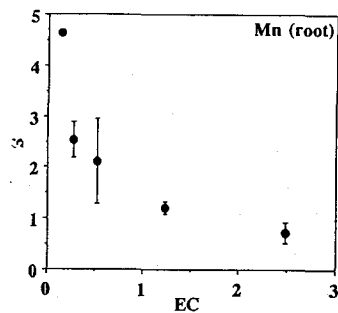


Fig. 3 Mn (root)

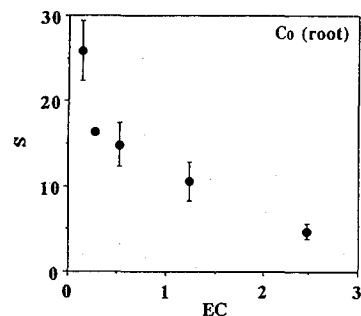


Fig. 5 Co (root)

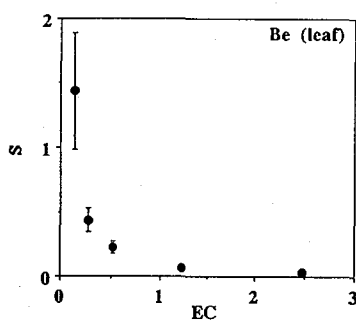


Fig. 2 Be (leaf)

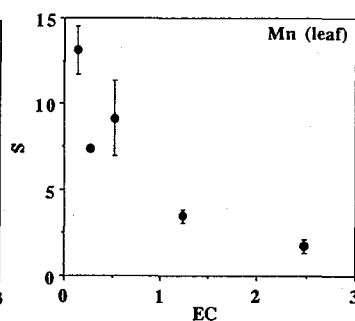


Fig. 4 Mn (leaf)

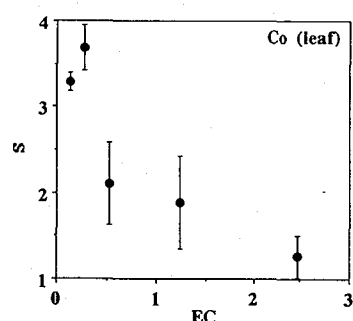


Fig. 6 Co (leaf)

Figs. 1-6 Correlation between the selective absorption coefficient and the electric conductivity

S : selective absorption coefficients (cm<sup>3</sup>/g), EC : electric conductivity (mS/cm)

#### [参考文献]

- 1) Ambe S., Chen S.Y., Ohkubo Y., Kobayashi Y., Iwamoto M., Yanokura M., and Ambe F. : Anal. Sci. Vol.7, 1991, 317-320.
- 2) Chen S.Y, Ambe S., and Ambe F. : J. Radioanal. Nucl. Chem., Lett., 186(2), 1994, 113-117.
- 3) Ambe S., Chen S.Y., Ohkubo Y., Kobayashi Y., Iwamoto M., and Ambe F.: Chem. Lett., 1992, 1059-1062.
- 4) 保田 浩志、井上 頼輝：保健物理、27, 1992, 295-303.
- 5) Yasuda H. and Uchida S. : Sci. Technol., 27, 1993, 2462-2465.

#### DETERMINATION OF SELECTIVE ABSORPTION COEFFICIENT FOR ELEMENTS IN PLANTS BY A RADIOACTIVE MULTITRACER TECHNIQUE

Shizuko Ambe, Taeko Shinonaga, Haruka Maeda, Masako Iwamoto, Shigeo Uchida, and Hiroshi Yasuda

The selective absorption coefficient for elements in plants was determined by a radioactive multitracer technique. The multitracers were produced by irradiating Fe foil with <sup>16</sup>O heavy-ion beam, and Au foil with <sup>14</sup>N by the RIKEN Ring Cyclotron. The Komatsuna was cultivated with water including multitracer and five different concentrations of ingredients. The observed elements were Be, V, Cr, Co, Mn for Fe target, and Be, V, Cr, Co, Zn, As, Se, Rb, Sr, Ba, Ce, Eu, Re, Ir, Pt, and Rh for Au target. The results showed that the selective absorption coefficients changed depending on the concentration of co-existing elements in cultivating water, and it exponentially decreased as the concentration of elements increased.

## マルチトレーサーによる各種元素の植物体内移行・分布の研究

(理研)○安部静子・大久保嘉高・小林義男・岩本正子・前田はるか・矢野倉実

## 緒言

土の中には、多かれ少なかれほとんどすべての金属元素が含まれている。ところがこれらの元素が植物に吸収され、どのように体内分布するかはほとんど知られていない。そこで、マルチトレーサーを用いて我国の重要作物である稲、大豆による金属イオンの吸収、移行、分布の研究を行なった。理研リングサイクロトロンで加速した高エネルギーの重イオンビームで金を照射すると、数多くの放射性同位元素(マルチトレーサー)が生成する。これらのマルチトレーサーを用いると同一条件下で多くの元素についての知見を得ることが出来る。マルチトレーサー法は植物など個体差の大きい系の研究に適している。

## 実験

理研リングサイクロトロンで加速したC-12, N-14, O-16 (135MeV/nucleon)で照射したAuターゲットを化学処理することにより無担体、無塩のマルチトレーサー溶液を調製した。これを乾固したのち、植物用培養液に溶解した。これを用いて稲、大豆を育生したのち、根、葉、莖、種子に分けて各部位のγ線スペクトルをGe検出器で測定し、コンピューターでγ線スペクトルの解析を行った。

## 結果および考察

発芽後水耕で2週間育成した稲の苗を、マルチトレーサー溶液を含む水耕液に植えかえて3-14日育成したのち根、莖、葉に分けてγ線スペクトルを測定した。図1にマルチトレーサー溶液で3日育成した場合の各元素の稲における分布を示す。根の部分にはSc, Mn, Fe, Co, Zn, As, Rb, Sr, Y, Zr, Te, Ba, Ce, Eu, Gd, Tb, Tm, Yb, Lu, Hf, Ir, PtのRIが投与量の5-60%見いだされた。莖には上記の元素が極めて微量見いだされた。葉の部分には少量のMn, Co, Zn, Rb, Sr, Baがみいだされた。

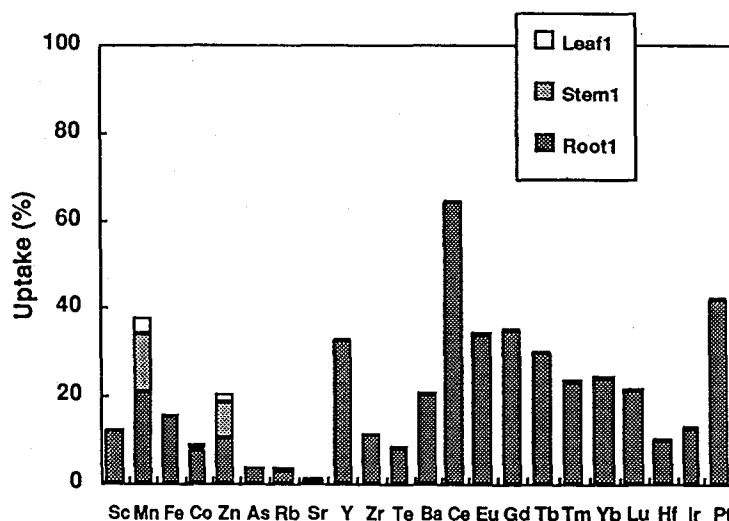


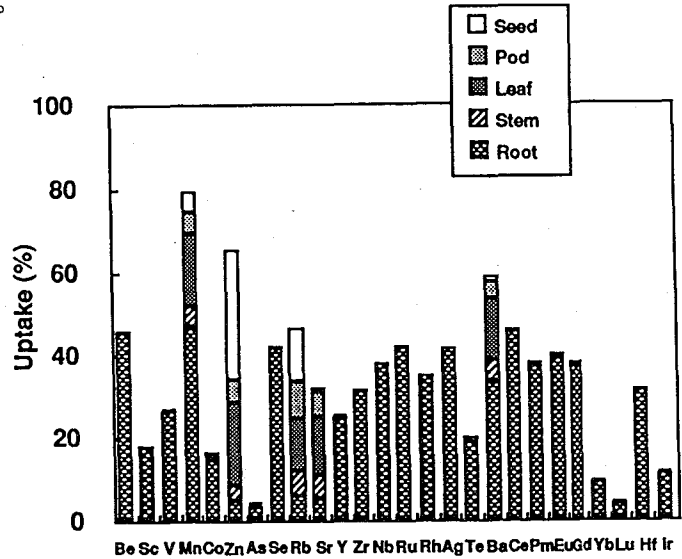
Fig. 1 The percentage distribution of metal elements among various parts of the rice plant grown in nutrient solution for 3 days.

発芽後水耕で50日育成した大豆を、マルチトレーサー溶液を含む水耕液に植えかえて



30日育成した結果を図2にしめす。可食部の種子にはMn, Znと共にRb, Sr, Baが見いだされた。図1, 2にみられるように、水耕した稲や大豆の根への稀土類元素の分布は、原子番号が大きくなるに従い減少した。

Fig. 2 The percentage distribution of metal elements among various parts of the soybean plant grown in nutrient solution for 30 days.



発芽後マルチトレーサーを含む土じょうで大豆を種子ができるまで育成した結果を図3にしめす。水耕に比べ、すべてのRIの取り込みが極めて少ないことがわかる。これはRIの土じょう水への分配が小さいためである。可食部の種子にはMn, Zn, Se, Rb, Srがみいだされた。

Mn, Znは必須元素であり、またRb, Srは、それぞれ必須元素K, Caとともに挙動していると考えられる。Seは必須元素と類似の分布を示している。これについては、今後どのような化学形態として存在しているかを追及する。

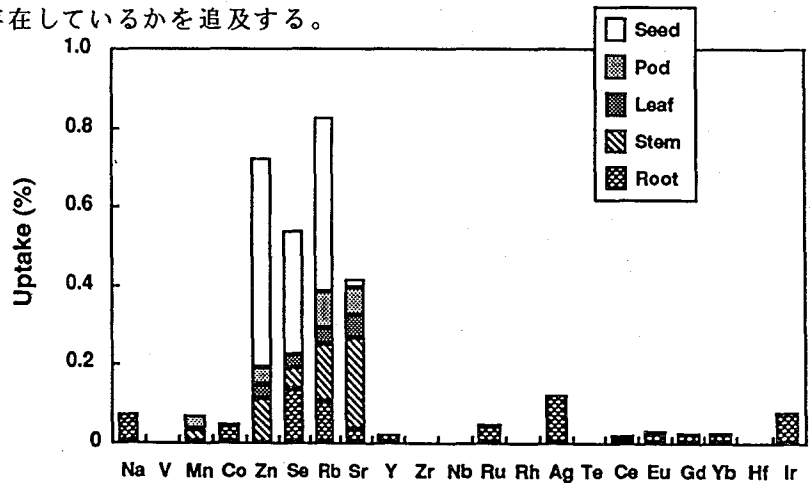


Fig. 3 The percentage distribution of metal elements among various parts of the soybean plant grown on soil for 2 months.

#### MULTITRACER STUDY ON TRANSPORT AND DISTRIBUTION OF METAL IONS IN PLANTS

Shizuko AMBE, Yoshitaka OHKUBO, Yoshio KOBAYASHI, Masako IWAMOTO, Haruka MAEDA, and Minoru YANOKURA, The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN)

Transport and distribution of metal ions in rice and soybean plants were studied using multitracers (radioisotopes of Be, Na, Sc, Mn, Fe, Co, Zn, Se, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Ag, Te, Ba, Ce, Pm, Eu, Gd, Tb, Tm, Yb, Lu, Hf, Ir, and Pt). The plants were grown in a nutrient solution and also on soil containing a multitracer.  $\gamma$ -ray spectroscopy of different parts of the plants showed that all elements were more or less taken up by roots, while appreciable transport to leaves and seeds was observed only for Mn, Zn, Se, Rb, Sr, and Ba.

マルチトレーサー法によるラット体内における各種微量元素の挙動に関する研究(1) — 各元素の取り込みと排泄

(慈恵医大・昭和薬大・理研) ○矢永誠人・蛭沼利江子・遠藤和豊・  
榎本秀一・安部静子・安部文敏

【緒言】

生体による諸元素の取り込みや排泄、およびその体内分布に関する研究において、放射性トレーサーは有用なものとして広く利用されている。しかしながら、多くの元素の挙動を追跡してそれらを比較検討するとき、個々の元素ごとに別々に実験を行う方法では、特に生体のような場合には個体差の影響が無視できない可能性がある。そこで我々は、最近開発されたマルチトレーサー法を、動物(ラット)による種々の元素の吸収および排泄に関する研究に応用した。

【実験】

理研リングサイクロトロンで加速したN-14またはO-16(135MeV/u)で照射したAuターゲットを王水に溶解した後、金を化学分離し、最終的に無担体、無塩のマルチトレーサー塩酸酸性溶液(pH3)を得た。これを6時間絶食させたウィスター系ラット(オス)に経口投与した後代謝ケージにて飼育し、投与8時間後および投与後24時間ごとに、最長6日間にわたって排泄物を採取した。各排泄物についてGe半導体検出器によりγ線測定を行った。核種の同定はγ線のエネルギーおよび半減期を考慮して行った。

【結果および考察】

本研究で用いたラットのうちの1匹についての、各元素の吸収ならびに排泄に関する結果の一部を図1および図2に示した。経口投与したマルチトレーサー溶液には、ここにあげた元素の他にY、Ce、Eu、Gd、Yb、Lu等の希土類元素が含まれていたが、これらの元素は本研究では体内に吸収された形跡は認められなかった。

図1の糞への排泄結果を見るとCoとZnに関しては、体内への吸収率はほぼ同じ程度であったと思われる。しかしながら、Coは尿としてその多くが排出されたのに対し、Znは尿中には検出されなかった。Znは腎臓で再吸収されるため、尿中へはほとんど排泄されないこと、また、その排泄は胆嚢、膵臓お

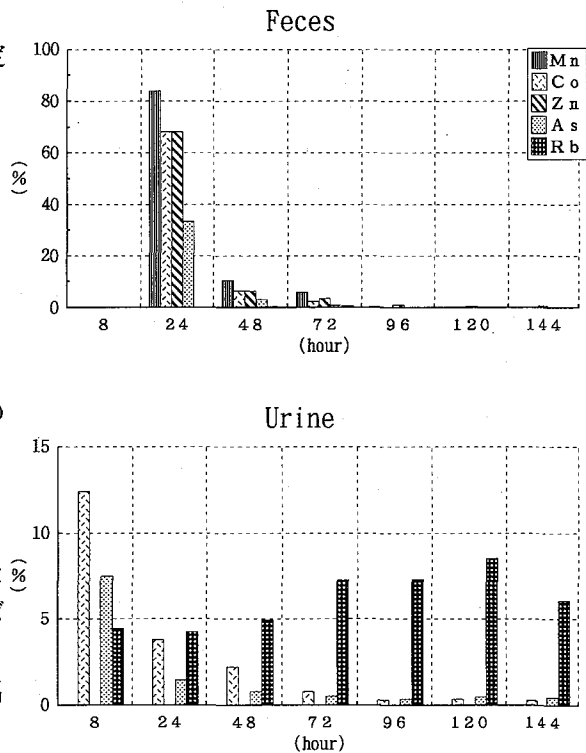


Fig.1 Elimination in feces and urine of Mn, Co, Zn, As, Rb.

よび腸から糞へ行われることが知られている。投与後3日目以降もZnが糞中に検出され続けたことは、これと一致していると考えられる。Asは吸収率が大きく、吸収されたうちの一部は初期の段階で、尿中に排出されるようであったが、その後は排出量が減り、長期間にわたって体内に蓄積する傾向が見られた。Rbはほぼ100%吸収され、6日間の追跡では、毎日ほぼ一定量が尿中に排出される傾向が見られた。

図2に見られるように、ReはRbと同様にほぼ100%が体内に吸収されたようであるが、その後の排泄はRbとは大きく異なり、80%以上が1日で尿中に排出されていた。Wも排泄速度の速い元素であった。Wは、50~90%が吸収され、吸収されたうちの80~90%は1日で尿として排泄されていた。吸収された各元素の各臓器に対する特異性等は、次の講演の中で詳しく行われるが、Reは5~10%が体毛に、また、1%未満が骨に蓄積する傾向が認められたのに対し、Wは体内に蓄積する傾向は認められなかった。その他の吸収率の高い元素としては、Srがあげられる。吸収されたSrは、尿中あるいは糞中への排出がわずかに認められたが、多くは骨に蓄積しているようであった。

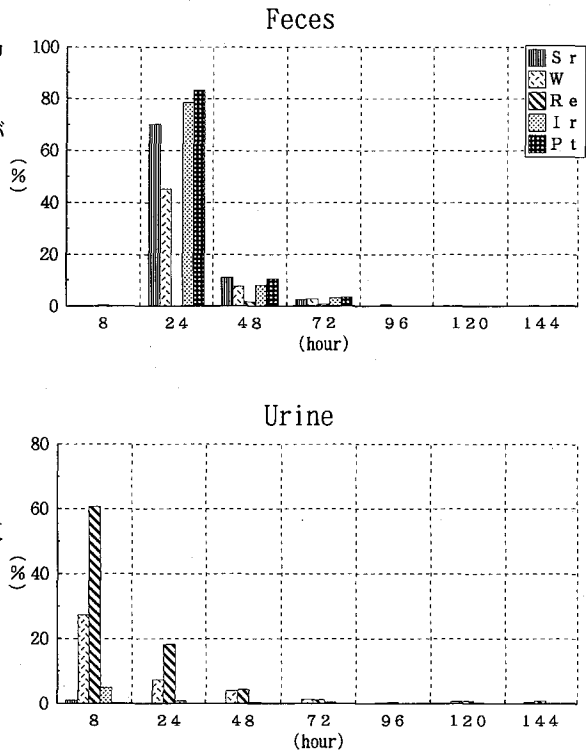


Fig.2 Elimination in feces and urine of Sr, W, Re, Ir, Pt.

## STUDY ON DISTRIBUTION OF VARIOUS TRACE ELEMENTS IN RATS USING THE MULTITRACER TECHNIQUE (1) - UPTAKE AND EXCRETION BEHAVIOUR

Makoto YANAGA, The Jikei University School of Medicine

Rieko HIRUNUMA and Kazutoyo ENDO, Showa College of Pharmaceutical Sciences

Shuichi ENOMOTO, Shizuko AMBE and Fumitoshi AMBE, The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN)

The multitracer technique was applied to an investigation of the uptake and excretion behaviour of trace elements in rats. A multitracer solution, prepared from Au targets irradiated by  $^{14}\text{N}$  or  $^{16}\text{O}$  beam from RIKEN Ring Cyclotron, was orally administered to Wistar rats. The uptake and excretion rates of various trace elements were determined under the strictly same experimental condition.

マルチトレーサー法によるラット体内における  
各種微量元素の挙動に関する研究 (2)  
各種臓器に分布した微量元素の代謝過程と蓄積性

(理研・慈恵医大\*・昭和薬大\*\*) ○榎本秀一・矢永誠人\*・蛭沼利江子\*\*・  
遠藤和豊\*\*・安部静子・安部文敏

緒言：理研リングサイクロトロンで製造されるマルチトレーサーは、化学、生化学への応用が精力的に推進されている。われわれは、マルチトレーサーの特徴を生かし、ラット体内への種々の元素の取り込みとその代謝過程、体内分布について研究した。シングルトレーサーを用いる動物実験は放射線の安全評価や核医学と関連して国内外で広く行われているが、マルチトレーサーを動物実験に適用するのはこの研究が世界で初めてである。

本報告では、前講演の排泄過程の解析を踏まえて、臓器分布を中心として、ラット体内における各種元素の様々な挙動について議論する。

実験方法：N-14またはO-16 (135MeV/nucleon) で照射したAuターゲットを化学分離し、無担体、無塩の塩酸溶液 (pH3) に調製した。7週令のウイスター系のラット (オス) に、調整した溶液を経口投与し、8時間および24時間毎の糞、尿を採取し、一定日数後解剖した。臓器は、肝臓、腎臓、全脳、脾臓、骨格筋、精巣、腸、骨、皮膚、毛髪及び血液を採取した。糞、尿及び各臓器の $\gamma$ 線スペクトルは、Ge半導体検出器で測定した。核種の同定は、エネルギー及び半減期解析により行った。

結果：本研究により定量可能となった元素は19種類であった (Mn, Co, Zn, As, Rb, Sr, Y, Ce, Eu, Gd, Tb, Er, Tm, Yb, Lu, W, Re, Ir, Pt)。ラット体内に投与したこれらの元素は速やかに体内で吸収、代謝、濃縮、排泄された。用いたラットの元素の取り込み、臓器分布は、ほとんど個体差は見られなかった。投与後6日目に解剖した1頭のラットの臓器分布のうち、Rb, Zn, Asの取り込み率を図に示す。全臓器に分布している元素は、Rb, As, Znであった。

Rbは肝臓、腎臓、脾臓、骨格筋に多く蓄積していた。Rbは化学的性質がKと類似しているが、生理学的機能もKに類似しており、様々な細胞群の中においてKと同様のふる

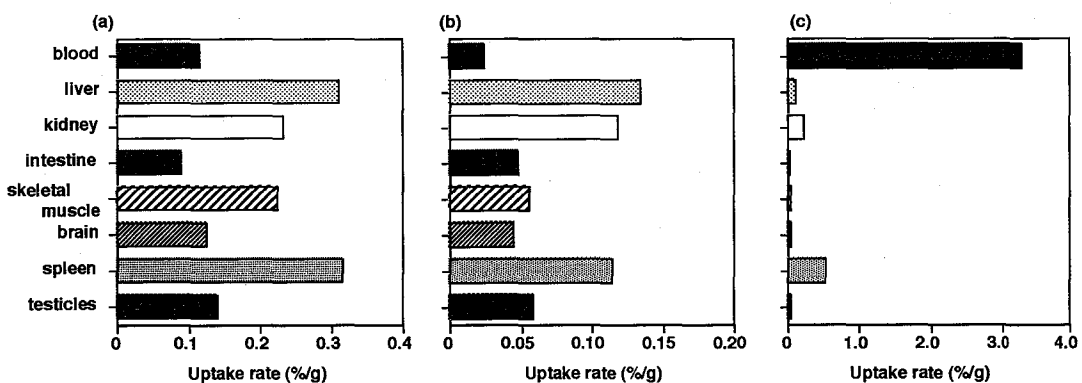


Figure 1. Distributions of rubidium (a), zinc (b) and arsenic (c) in various tissues, organs and body fluids in rat.

まいをしていると考えられる。このため、その吸収も速やかに行われ、排泄や再吸収も長期にわたって行われていた。

Znは肝臓、腎臓、脾臓に多く蓄積していた。Znの吸収は主として空腸で行われている。Znは極めて重要な生体内微量元素の一つであり、細胞骨格の形成や300以上もの酵素の活性発現に寄与している。このため、酵素の宝庫である肝臓に高い活性を示した。現在われわれは、Znの欠乏が致命的な成長阻害や様々な疾患の誘発を惹起することから、Zn欠乏状態のラットにマルチトレーサーを投与してその元素の挙動を研究している。

Asはその多くが血液中の血球成分に多く含まれていた。Asはモノアミンオキシターゼ、DNAポリメラーゼなどの多くの酵素のSH基に結合することが知られている。また、Asは強力な血液毒として知られており、結合部位は赤血球の膜蛋白質である。そのため、Asは血球成分中に不可逆的に結合しているものと考えられる。

一方、Reは吸収後、速やかにほとんどが尿中に排泄される以外に、毛髪中に高濃度に蓄積されていた。最近、ReはTcにかわる放射性医薬品として注目され、様々な研究が行われている。本研究の結果から明らかのように、急速な排泄、多くの臓器に対する低蓄積性は、診断薬や治療薬としての有用性を示唆した。

その他、腎臓ではCo, Pt, Ir, 肝臓ではCo, Mn, が検出された。また、希土類元素は経口的に全く吸収されず、投与後、速やかに糞中に排泄された。

総括：生体内で複雑な拮抗作用、相乗作用を示す微量元素の挙動、機能の研究はマルチトレーサーの特色（高能率、同一条件性、多次元性、Serendipityなど）を有効に生かす最適の対象であることは明らかになった。また、各種元素は様々な生体膜を透過することにより、選択的な吸収、濃縮が行われており、この過程は生体膜の優れた化学分離能を反映している。この生体膜の各種元素に対する極めて高い選択透過性には、膜脂質や蛋白質などが直接関与しており、これらの解析にもマルチトレーサー法が非常に有力な手段となることが示唆された。

## STUDY ON DISTRIBUTION OF VARIOUS TRACE ELEMENTS IN RATS USING THE MULTITRACER TECHNIQUE (2): METABOLISMS AND ACCUMULATIONS OF TRACE ELEMENTS IN VARIOUS TISSUES, ORGANS AND BODY FLUIDS

Shuichi ENOMOTO, Shizuko AMBE, and Fumitoshi AMBE, The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN)

Makoto YANAGA, Department of Chemistry, The Jikei University School of Medicine

Rieko HIRUNUMA, and Kazutoyo ENDO, Showa College of Pharmaceutical Sciences

The uptake and distribution of radioactive nuclides in various tissues, organs, body fluids and excretions of rats were examined by means of newly developed multitracer technique. The %/dose of 19 elements for collection were determined on the basis of  $\gamma$ -ray energy and half-lives. Among eleven organs, tissues and body fluids without excretions, high radioactivity per gram organ was found in liver and low radioactivity in brain and testicles. These results indicate that when applied to given biological system, the multitracer technique is a powerful tool to obtain information on the behavior of trace amounts of elements in various tissues, organs and body fluids.

$^{40}\text{Ar}$ ビーム照射によるマルチトレーサー核種の製造

(理研) ○岩本正子、安部静子、大久保嘉高、小林義男  
矢野倉 実、前田はるか、安部文敏

## 【はじめに】

理研リングサイクロトロンで加速した高エネルギーの重イオンビームで金属ターゲットを照射してマルチトレーサーを製造する場合、より重い重イオンをプロジェクティルとして用いることにより、生成した多くの放射性核種を、キャッチャーとして前方に重ねたAl箔に捕捉することが出来れば、異なるターゲットでも同じ分離法を用いることが出来る、つまり照射後の化学分離を簡単にしかつ統一することが出来る。この考えを定量的に実証することを目的として実験を行なった。前回の $^{84}\text{Kr}$ に次いで $^{40}\text{Ar}$ を用い、キャッチャーへの捕捉率について検討した。

## 【実験】

照射には理研リングサイクロトロンのE3-bコースに設置してある落送管式RI製造用照射装置を使用した。厚さ10~20 $\mu\text{m}$ の標的金属箔

(Cu, Ag, Au) とキャッチャーとして25 $\mu\text{m}$ のAl箔を重ねて照射用の落送球に取付け、40MeV/nucleonの $^{40}\text{Ar}$ ビームで約40分ないし1時間づつ照射した。表1に標的金属と照射条件等を示す。ビーム電流は数10enAであった。

照射後、数時間から約1ヵ月にわたり非破壊でGe検出器により $\gamma$ 線測定を行ない、得られたスペクトルを理研のコンピューターFACOM M1800により解析した。核種の同定はトレーサーとしての利用の可能性に重点をおき他核種との重なりのないものについて行なった。

## 【結果と考察】

Ag箔中に生成した放射性核種の主なものについて、反跳しキャッチャーフォイル (Al) に捕捉された割合を表2に示す。これらの核種の中にはキャッチャーにかなりの量捕捉されるものがあることがわかった。その他の金属については現在解析中であり、捕捉率の核種によるちがい、 $^{48}\text{Kr}$ ビーム照射との比較等を検討する。いくつかの核種についてはキャッチャーフォイル法がマルチトレーサーの製造に有効であることが示された。

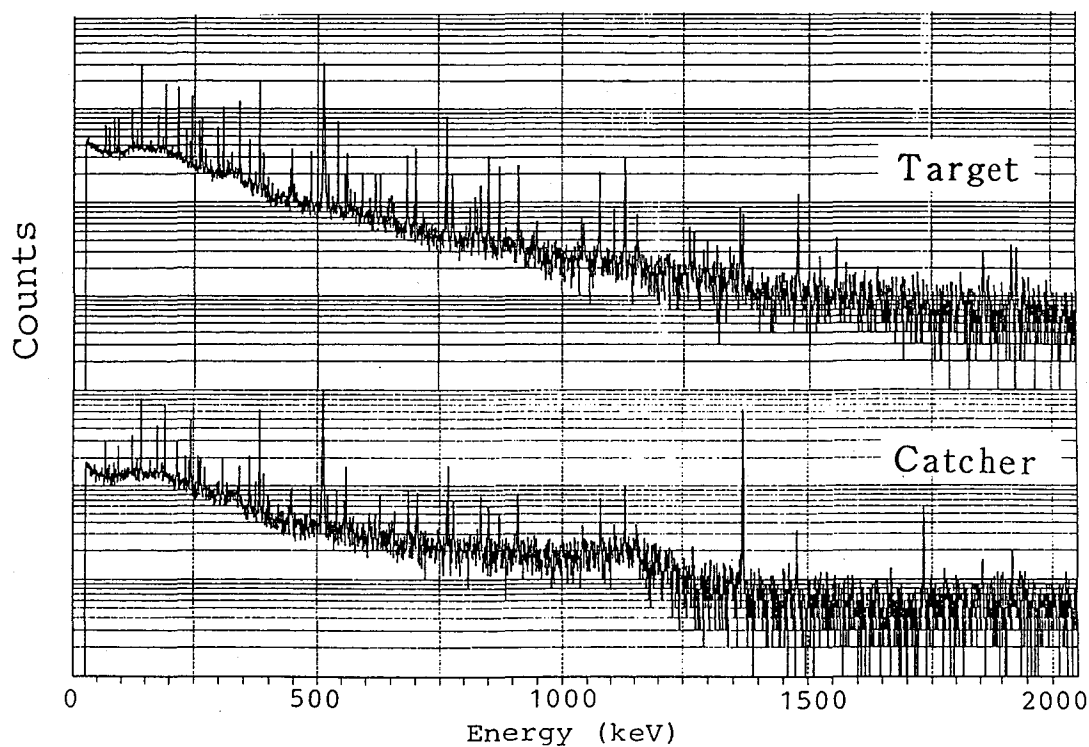
Table 1. Irradiation conditions for targets  
(Beam:  $^{40}\text{Ar}$ , 40 MeV/nucleon)

ターゲット	厚さ ( $\mu\text{m}$ )	照射時間 (hours)	総カレント (nC)
Cu	20	0.67	10104
Ag	10	0.67	14177
Au	25	1.00	41749

Table 2. Percentage of RI found in Al catcher foil for Ag target

核種	半減期	捕捉率 (%)
Na-24	14.66 h	93
As-71	2.70 d	34
As-72	1.08 d	36
Se-73	7.16 h	35
Br-77	2.38 d	30
Kr-79	1.46 d	100
Rb-81	4.58 h	29
Sr-83	1.35 d	29
Y-87m	12.94 h	25
Zr-86	16.51 h	28
Zr-89	3.27 d	31
Nb-90	14.60 h	21
Ru-97	2.88 d	12
Rh-101m	4.34 d	8

Fig 1.  $\gamma$ -ray spectra of Ag target and Al catcher irradiated with 40 MeV/nucleon Ar beam.



#### References

1) 第34回放射化学討論会 2A14 (1990)

2) 第37回放射化学討論会 2C05 (1993)

PRODUCTION OF MULTITRACER BY IRRADIATION WITH AN  $^{40}\text{Ar}$  BEAM

Masako IWAMOTO, Shizuko AMBE, Yoshitaka OHKUBO, Yoshio KOBAYASHI,

Minoru YANOKURA, Haruka MAEDA, Fumitoshi AMBE

The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN)

Cu, Ag and Au foil targets stacked with Al foil as a catcher were irradiated by  $^{40}\text{Ar}^{15+}$  (40 MeV/nucleon) ions. Radioactive nuclides produced in the targets and catchers were identified by  $\gamma$ -ray spectroscopy.

## マルチトレーサーを用いた固液吸着挙動の多元素同時解析

- 非イオン性高分子吸着体および繊維状活性炭 -

(放医研) ○柴田貞夫・渡利一夫・野田豊

(理研) 安部静子・岩本正子・前田はるか・安部文敏

## 【はじめに】

非イオン性高分子吸着体や活性炭はある種の無機錯陰イオンに対して特異な吸着挙動を示すことが知られており、放医研ではこの現象の解明と放射化学分析への応用を目的として研究を行ってきた。<sup>(1,2)</sup> 理研のリングサイクロトロンで製造されるマルチトレーサー<sup>(3)</sup>は、その特質により能率的に多数の無機イオンについての固液吸着挙動を調べることを可能にした。昨年までに金および銀箔をターゲットとして調製されたマルチトレーサー溶液を用いて、元素の非イオン性高分子吸着体および繊維状活性炭への分配係数の塩化物イオン濃度依存性について報告してきた。<sup>(4)</sup> 今回は鉄をターゲットとして調製された溶液中の比較的軽い元素および金マルチトレーサー調製時に分離されるReとOsについてのデータを得たので報告する。

## 【実験】

鉄マルチトレーサー溶液は、理研のリングサイクロトロンで照射された鉄片を濃塩酸に溶かし、鉄イオンをイソプロピルエーテルで抽出除去して調製した。マルチトレーサー溶液中の放射性核種はGe半導体検出器で測定し、MS-DOSファイルに取り込まれた $\gamma$ 線スペクトルデータを、ワークステーション上のBOBコードを用いて解析し、 $\gamma$ 線のエネルギーと半減期から核種を同定した。吸着体として用いた非イオン性高分子吸着体はAmberlite XAD-7を、メチルアルコール、塩酸、水、水酸化ナトリウム、水の順で洗い使用した。繊維状活性炭としては、Kynol ACF 1605-15を、塩酸、水、水酸化ナトリウム、水の順で洗い、60°Cで乾燥して使用した。

分配係数(Kd)は次のようにして求めた。即ち、予め塩化物イオンの濃度を調整した塩酸または塩化リチウム溶液(pH ~2)にマルチトレーサー溶液を加え、この溶液10cm<sup>3</sup>を20cm<sup>3</sup>広口ポリプロピレン瓶に取り、精秤した吸着体を加えて室温で振り混ぜた。上澄液のうち5cm<sup>3</sup>をピペットを用いて振とうに用いたものと同型の容器に移しこれをフラクションs、残った溶液と吸着体をフラクションrとし、両者の $\gamma$ 線スペクトルを測定した。ある核種に相当する $\gamma$ 線エネルギー領域のスペクトルのピーク面積をそれぞれA<sub>S</sub>、A<sub>r</sub>、吸着体の重量をwg、溶液の容量をVcm<sup>3</sup>とすると、その核種のKdは次の式で算出できる。

$$Kd = \frac{(A_r - A_s)}{2 \times A_s} \times \frac{V}{w}$$

## 【結果と考察】

イソプロピルエーテル抽出相の $\gamma$ 線スペクトルにはFe以外の元素はほとんど認められなかった。一方、鉄マルチトレーサー溶液中にはNa、Mg、K、Sc、V、Cr、MnおよびCoが検出されFeは見あたらなかった。これまでに得られた結果を含め全42元素の各種吸着体に対する分配係数の塩化物イオン濃度依存の様相をFig.1に示す。すなわち、第12、14、17、18族元素を除いた周期律表のほとんど全ての族の元素の吸着挙動が、わずか数回の実験で得



られたことになる。

これらのうちでNa、MgおよびKは実験した塩化物イオン濃度の範囲ではこれらの吸着体にはほとんど吸着しないことがわかった。また、MnおよびCoについては極小値が見られ、クロロ錯体の生成に関係している挙動を示していると思われる。ReとOsは塩化物イオン濃度が高くなるに従って分配係数が単調に減少する傾向を示し、非放射性Reで得られた結果<sup>(5)</sup>を再現した。

現在臭化物イオン濃度依存性についての実験を進めているところであり、また他のターゲットからのマルチトレーサーを開発することによって、さらに多くの元素の吸着挙動についての知見が得られると期待できる。

【参考文献】

- (1) 渡利他：日本原子力学会誌，1984，26，384
- (2) 柴田他：RADIOISOTOPES，1990，39，226
- (3) S. Ambe et al：Chem. Lett.，1991，149
- (4) 柴田他：第37回放射化学討論会，1993
- (5) 柴田他：日本化学会第61春季年会，1991

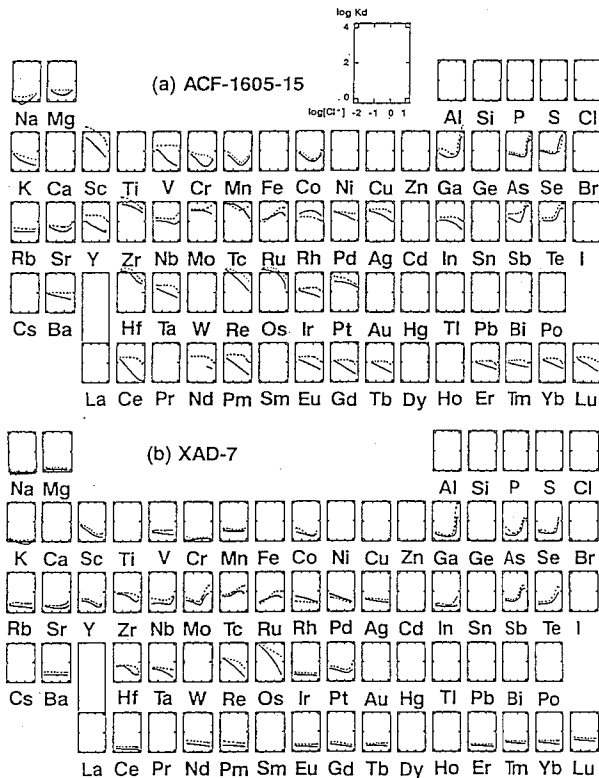


Fig.1. Effect of Cl<sup>-</sup> concentration on K<sub>d</sub> values in HCl(---) and LiCl(•••) for (a) Kynol ACF 1605-15 and (b) XAD-7

SIMULTANEOUS ANALYSIS ON SOLID-LIQUID ADSORPTION BEHAVIOR OF VARIOUS ELEMENTS USING RADIOACTIVE MULTITRACER

----- NON-IONIC MACRO-RETICULAR COPOLYMER AND ACTIVATED CARBON FIBER -----

Sadao SHIBATA\*<sup>1</sup>, Kazuo WATARI\*<sup>1</sup>, Yutaka NODA\*<sup>1</sup>, Shizuko AMBE\*<sup>2</sup>, Masako IWAMOTO\*<sup>2</sup>, Haruka MAEDA\*<sup>2</sup>, Fumitoshi AMBE\*<sup>2</sup>; \*<sup>1</sup>National Institute of Radiological Sciences, \*<sup>2</sup>The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN)

The adsorption behavior of 42 elements on a non-ionic macro-reticular copolymer and an activated carbon fiber is studied simultaneously in chloride solutions using radioactive multitracers prepared by irradiation of metal foil with a heavy ion beam.

多核種同時トレーサ法による3B族元素の生体内挙動について  
—理研マルチトレーサ利用の予備実験として—

(金沢大医技短) ○天野良平・川南順子・本庄葉子・松本香織

【緒言】

我々は理研で製造されたマルチトレーサを利用した微量元素の生体内挙動の実験を進行中である。本報告では、理研マルチトレーサの利用に先立ち、単一トレーサ法で生体内挙動のよく研究されている核医学核種を複数使ってマルチトレーサを作製し、マウスを用いた動物実験の結果を述べる。特に、1) マルチトレーサ法の特徴を単一トレーサ法と比較する。2) 核医学核種 $^{67}\text{Ga}$ 、 $^{111}\text{In}$ 、 $^{201}\text{Tl}$ をマルチトレーサとして用いることにより、3B族元素(B, Al, Ga, In, Tl)の生体内挙動の知見を得ることを目標とした。

【実験】

金沢大学付属病院核医学診療科で用いられる核医学核種、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -過テクネチウム酸ナトリウム溶液、 $^{67}\text{Ga}$ -クエン酸ガリウム溶液、 $^{111}\text{In}$ -塩化インジウム溶液、 $^{201}\text{Tl}$ -塩化タリウム溶液を、放射性トレーサとして使用した。マルチトレーサ溶液は、それぞれ50-100 $\mu\text{l}$ 溶液を、0.01M塩酸にて調整したpHが2程度の0.9%生理食塩水で混合し、最終的に10mlの動物実験用投与溶液とした。このpHにてガラス容器等へのトレーサの吸着はなかった。

動物実験にはドンリュウ系の雄ラットおよびddY系の雄マウスを使用した。次の点を検討した。

1) 4核種の血液での挙動を、電気泳動法で検討した。

2) 4核種の組織分布を、腹腔内投与後3hr, 24hr, 48hrで各3匹のマウスを解剖し、血液、脳、心筋、肺臓、肝臓、脾臓、膵臓、腎臓、骨、筋肉の各組織を摘出し、重量および放射能測定を行い、取込み率を各組織の単位重量あたりに取込まれる放射能の、投与放射能に対する百分率(%dose/g)で評価した。

3) 3B族元素のホウ素とアルミニウムには適当な放射性トレーサがないので、マクロ量のBとAlを投与することによって同族の $^{67}\text{Ga}$ 、 $^{111}\text{In}$ 、 $^{201}\text{Tl}$ の挙動の変化がどのようになるかを検討することによって、BとAlの生体内挙動の知見を得ようとした。

【結果および考察】

単一トレーサ法との比較の意味でも重要である、2)の実験の結果について述べる。Fig. 1に $^{67}\text{Ga}$ を例として、各組織における腹腔内投与後3hr, 24hr, 48hrでの、マウス9匹(各時間3匹ずつ)の取込み率(%dose/g)をプロットしたものをあげた。同一時間での各取込み率のバラツキは、マウスの個体差によると考えられる。しかし投与後48時間でのバラツキは大きくなく長時間後の分布では、ある一条件下でのマウスの使用数が本実験のn=3程度でも議論できることを示している。単一トレーサを使用してマウスや

ラットへの取込み率を求める実験では、一般にn=5が推奨されている。

微量元素の生体内挙動を論ずるような場合、複数の元素間の挙動を比較することが多い。この場合単一トレーサで得られた（たとえ実験個体数n=5を採用したとしても）値の比較では、各トレーサ実験の間での個体差の評価が重要となる。各トレーサ間の各生体内挙動の違いが余程大きいものでないと認識するのが難しい。一方、複数トレーサを使うマルチトレーサ法では、同一生体内で同時に挙動を眺めることになるので、単一トレーサ法よりトレーサ間の生体内挙動の違いがはっきりする。しかし動物実験の際は常に個体差の問題は依然残るので、最低でもn=3~4の実験が必要と考える。

$^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{67}\text{Ga}$ ,  $^{111}\text{In}$ ,  $^{201}\text{Tl}$ のFig. 1と同様な図を比較することにより、3B族元素 (Ga, In, Tl) の生体内挙動の知見を得た。

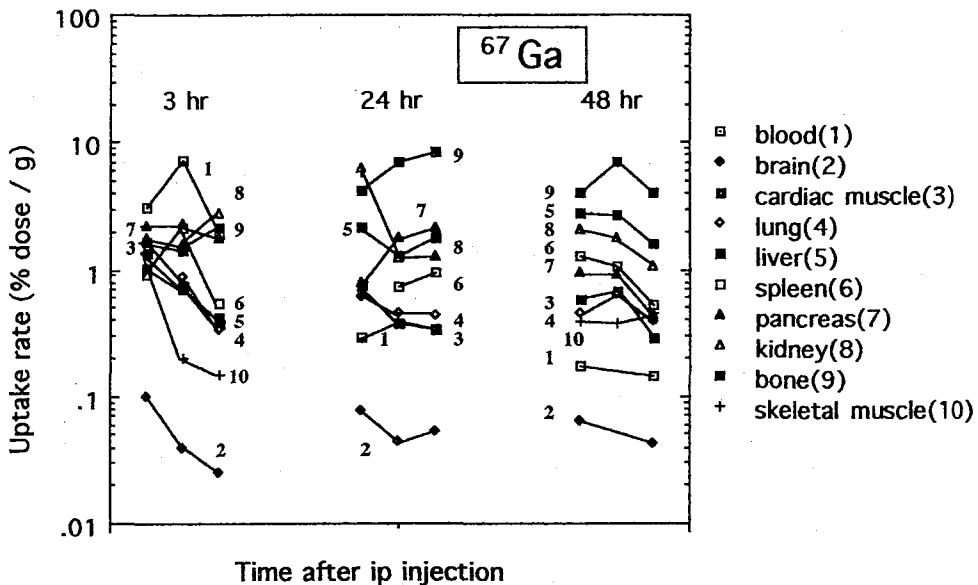


Fig. 1 Tissue uptake rate of Ga-67 for mice 3, 24, 48hr after ip injection of a multinuclide tracer solution containing Ga-67, Tc-99m, In-111 and Tl-201.

STUDY ON BIO-BEHAVIOR OF 3B-GROUP ELEMENTS BY THE USE OF MULTI-NUCLIDE TRACER TECHNIQUE - PRELIMINARY EXAMINE FOR UTILIZATION OF RIKEN MULTITRACER -

Ryohei AMANO, Jyunko KAWAMINAMI, Youko HONSHOU, Kaori MATSUMOTO;  
School of Allied Medical Professions, Kanazawa University

A multinuclide tracer containing  $^{67}\text{Ga}$ ,  $^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{111}\text{In}$  and  $^{201}\text{Tl}$  was examined to determine the tissue uptake rate of each radioisotope for mice 3, 24, 48hr after intraperitoneal injection. A multitacer method had some advantages over the conventional single tracer method. We discussed here the characteristics of this method and the bio-behavior of 3B group elements.

希土類元素のヘマタイトへの吸着挙動に対する  
フミン酸錯体生成の特異的効果 (マルチトレーサー法の応用)

(東大理<sup>1</sup>・理研<sup>2</sup>) ○尾崎卓郎<sup>1</sup>・高橋嘉夫<sup>1</sup>・葉袋佳孝<sup>1</sup>・安部静子<sup>2</sup>  
岩本正子<sup>2</sup>・前田はるか<sup>2</sup>・安部文敏<sup>2</sup>・竹松 伸<sup>2</sup>・富永 健<sup>1</sup>

### 1、緒言

土壤中の水溶性有機高分子酸であるフミン酸は、金属イオンと錯生成しその環境挙動に影響を与えることが知られている。一方、極微量の金属イオンの吸着等の環境挙動に関わる基礎研究においてマルチトレーサー法の有効性が示されている。これは、マルチトレーサー法では、同一溶液中に多種の放射性元素を適用することからそれらの元素についての環境挙動に関する知見を同一条件の下で得ることができるためである。本研究ではマルチトレーサー法によって得られた希土類元素を中心とする11種類の金属イオンの $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (ヘマタイト) への吸着挙動とそれに対するフミン酸の影響について検討した。

### 2、実験

理研サイクロトロンで重イオン照射した金ターゲットを化学分離しマルチトレーサー溶液を得た。これを0.001NHC10<sub>4</sub>溶液として以下の実験に供した。 $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (10mg) とマルチトレーサーの水溶液とを混合し、そのpHは、NaOH, HC10<sub>4</sub>で調整した。約一週間振とうして平衡に達した後、水相をミリポアフィルター (0.45 $\mu$ m) でろ過した。ろ過後の水相についてGe半導体検出器で $\gamma$ 線スペクトルを測定した。水溶液中にフミン酸を加えて同様の実験を行い、金属イオンの $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>への吸着挙動に対するフミン酸の影響を調べた。なお、ここで用いたフミン酸は栃木県産の多湿黒ぼく土より単離されたものである。

### 3、結果と考察

Ba, Rb, Pt, Y, Eu, Gd, Tb, Tm, Yb, Lu, Taについて $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>への吸着率のpH依存性を求めた。Ba, Rb, Pt, Euの吸着曲線を図1に示す。Ba, Rb, Ptなど溶液中で2価または1価の陽イオンとして存在していると考えられる元素は、フミン酸を加えても吸着挙動に変化はみられなかった。Euなどの希土類元素ではフミン酸の存在しない場合にはpH3以上ではほぼ完全に吸着した。しかし、フミン酸を加えた時にはフミン酸の吸着挙動とよく似た吸着曲線を示した。これは、3価希土類イオンではフミン酸の錯生成がヘマタイトへの吸着に大きく影響していることを示すものである。すなわち希土類元素については3価でありフミン酸中の配位子である酸素または窒素との静電的な相互作用によって錯体が高い安定度を持つこと、 $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>にフミン酸が吸着されることの2つの要因によって、希土類元素とフミン酸の吸着挙動が類似したものと考えられる。

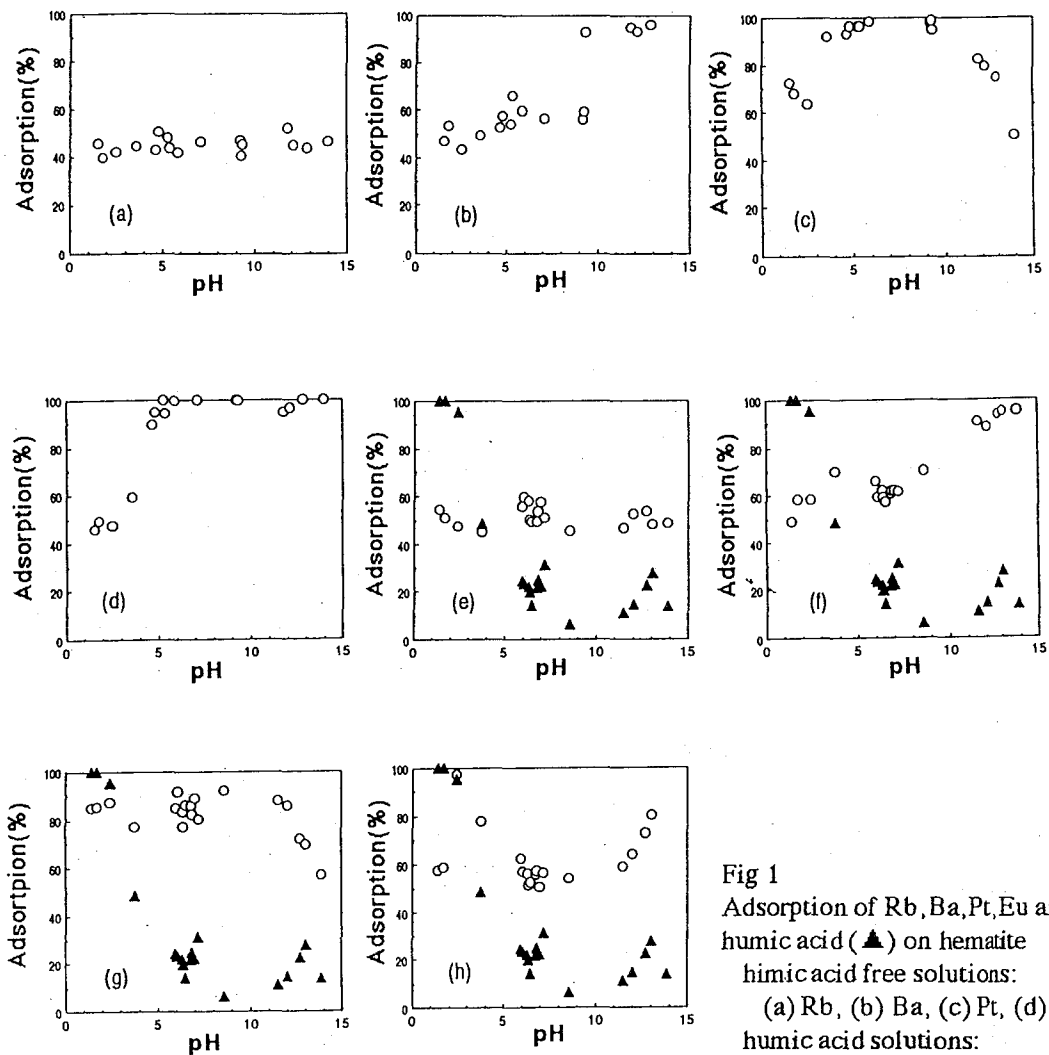


Fig 1  
 Adsorption of Rb, Ba, Pt, Eu and  
 humic acid ( $\blacktriangle$ ) on hematite  
 humic acid free solutions:  
 (a) Rb, (b) Ba, (c) Pt, (d) Eu  
 humic acid solutions:  
 (e) Rb, (f) Ba, (g) Pt, (h) Eu

#### ANOMALOUS ADSORPTION BEHAVIOR OF RARE EARTHS AFFECTED BY HUMATE-COMPLEX FORMATION

Takuo OZAKI<sup>1</sup>, Yoshio TAKAHASHI<sup>1</sup>, Yshitaka MINAI<sup>1</sup>, Shizuko AMBE<sup>2</sup>,  
 Masako IWAMOTO<sup>2</sup>, Haruka MAEDA<sup>2</sup>, Fumitoshi AMBE<sup>2</sup>, Shin TAKEMATSU<sup>2</sup>,  
 Takeshi TOMINAGA<sup>1</sup>

Faculty of Science The University of Tokyo<sup>1</sup>, The Institute of Physical and Chemical Research<sup>2</sup>

Influence of humate complexation on the adsorption of eleven elements (Ba, Rb, Pt, Y, Eu, Gd, Tb, Tm, Yb, Lu, Ta) on hematite was studied by the multitracer technique. The trivalent rare earth ions were dissolved in the humic acid solution in the pH range where the ions were adsorbed on hematite in the humic acid free solution. The pH dependence of adsorption of the rare earths were similar to the dependence of adsorption of humic acid. Adsorption curves for monovalent (Rb) and divalent (Ba and Pt) cations in the humic acid solution were identical to the curve obtained for the solution in absence of humic acid.

マルチトレーサーによる強酸性樹脂ナフィオンのイオン交換吸着とその  
分析化学への応用

(青学大理工・理研\*) ○伊藤直弥・青木尚樹・原川裕章・斎藤裕子  
木村 幹・安部静子\*・岩本正子\*・前田はるか\*・安部文敏\*

### 【はじめに】

ナフィオン樹脂は強酸性の樹脂で、フッ化炭素の骨格を持ち、官能基にスルホン酸基を0.01~5ミリグラム当量/g有するパーフロイオン交換ポリマーである。我々はこれまでに、塩酸系、過塩素酸系、フッ化水素酸系における分配比を求め各系でのイオン交換吸着の特徴を明らかにしてきた。今年度はこれらの系に加え硝酸系での分配比を求め、さらに、分析化学への実際的な利用の可能性について検討することを目的とした。

### 【実験】

マルチトレーサーは、同一の実験条件下で、異なる様々な元素の挙動を明らかにしていくのに最適である。本研究では、理化学研究所のリングサイクロトロンで製造されたマルチトレーサーを用いた。

マルチトレーサー溶液は、リングサイクロトロンで $^{14}\text{N}$ イオンビーム(135MeV/核子)を金箔に照射したのち、化学分離により調製された。

ナフィオン樹脂はDuPont社製、NAFION-501 (NR-50) を用いた。

あらかじめ予備平衡にさせたナフィオン樹脂(50~120メッシュ)2~3gを50mlポリエチレン製ビンにとり、各酸濃度の硝酸溶液を6.9ml加えた。これにマルチトレーサー溶液0.1mlを加え、振とう器を用い、25℃で約75時間振とうした。振とう後、吸引濾過して樹脂と溶液を分離し、それぞれ新しいポリエチレン製ビンに入れ、双方の $\gamma$ 線をGe半導体検出器で測定した。測定後 $\gamma$ 線スペクトルデータから、核種同定後、ピーク面積より分配比を算出した。

### 【結果と考察】

Fig. 1に、1M硝酸系において、ナフィオン樹脂と溶液の間で、イオン交換が平衡に達する時間を調べた結果を示す。分配比から、振とう時間が30時間以上でほぼ平衡に達していることがわかる。

Fig. 2に金をターゲットとしたマルチトレーサーから得られた、硝酸系における分配比のデータの一部を示す。両対数目盛りで、縦軸に分配比、横軸に酸濃度の値をプロットすると、アルカリ土類金属のBaでは約-2の傾きが、また、希土類元素であるY, Euでは約-3の傾きが得られた。したがって、これらの元素とナフィオン樹脂のスルホン酸基の部分で、その価数にしたがったイオン交換反応が行なわれていると考えられる。一方、Ptでは、上記の元素と比べると低い分配比の値となった。また、その傾向も異なっており、単純な陽イオン交換反応ではない

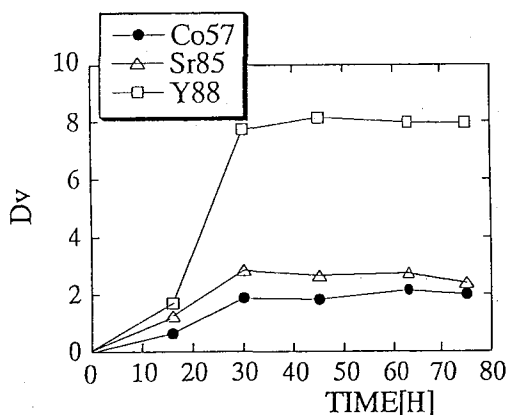


Fig.1 Relationship between distribution ratio and shaking time

と考えられる。

これらの結果と、今までに求められている各系による分配比から、ナフィオン樹脂を利用したイオン交換分離の可能性が期待でき、現在群別分離が可能であるか検討している。

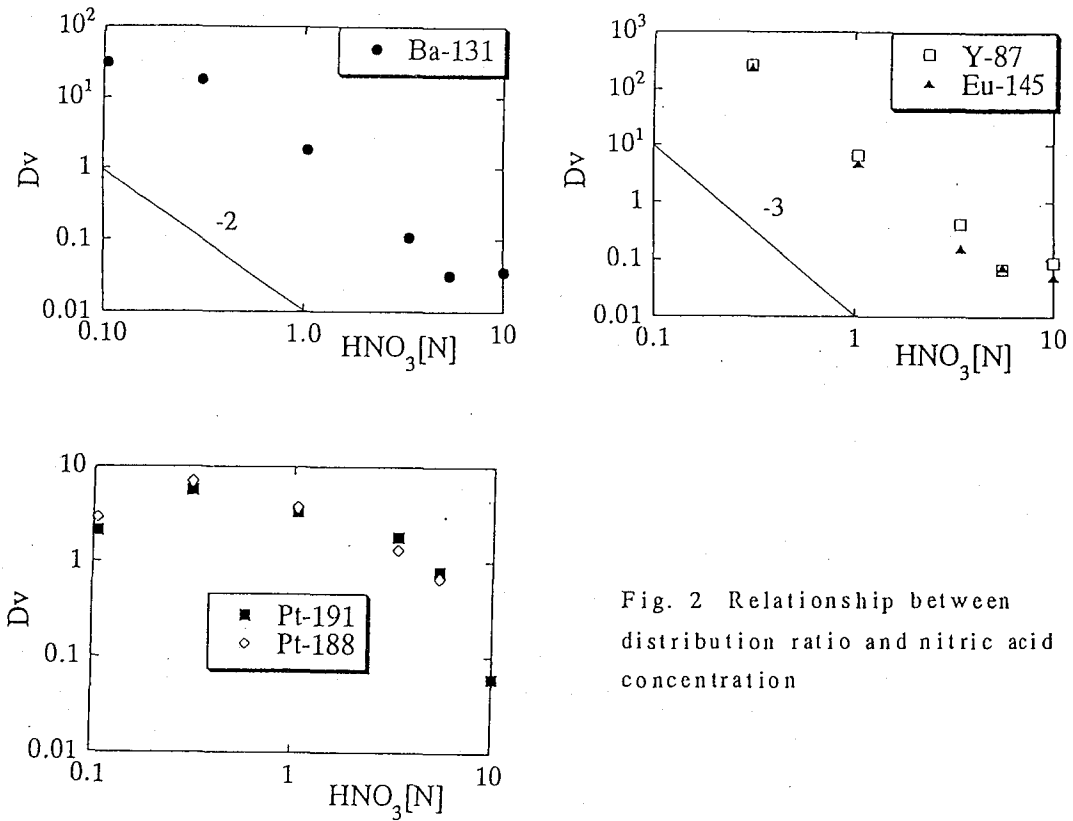


Fig. 2 Relationship between distribution ratio and nitric acid concentration

## STUDY ON THE ION EXCHANGE ADSORPTION AND APPLICATION TO ANALYTICAL CHEMISTRY ON SUPERACID RESIN NAFION USING A MULTITRACER

Naoya ITO, Naoki AOKI, Hiroaki HARAKAWA, Yuko SAITO and Kan KIMURA, Aoyama Gakuin University, College of Science and Engineering

Shizuko AMBE, Masako IWAMOTO, Haruka MAEDA and Fumitoshi AMBE, The Institute of Physical and Chemical Research

Ion exchange behavior of superacid NAFION resin was clarified in nitric acid solution using a multitracer. The tracer was prepared with Au target irradiated with  $^{14}\text{N}$  beam and purified from the target metal. Distribution ratios of alkaline earth metal, Ba, and rare earth elements, Y and Eu, decreased with slopes of the valence number on log-log plotting as nitric acid concentration increased. Data suggest possibility of application to analytical chemistry.

## トリブチルリン酸によるAm(VI)の溶媒抽出

(日立・エネ研) ○鴨志田守・深澤哲生・河村文雄

## 【はじめに】

再処理溶液からAmを分離する技術の開発を進めている。開発中のAm分離法の特徴は、AmをVI価に原子価調整して、III価の希土類元素との分離を容易化することである。アクチノイドの類似性からAm(VI)はトリブチルリン酸(TBP)で抽出分離が可能と予想できるが、大きな分配係数を得るためには高い濃度の硝酸から抽出する必要がある。従来、硝酸濃度が0.3mol/l以上ではAmを定量的にVI価に調整するのは困難とされてきたが、本研究ではこれまでに、酸化剤(ペルオキソ二硫酸アンモニウム： $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ )の添加量を増加させることにより1mol/l程度の硝酸中でもVI価に調整できることを明らかにした<sup>1)</sup>。今回は、原子価調整したAm(VI)の抽出挙動を基礎的に調べたので報告する。

## 【実験】

抽出挙動を調べたのは以下の2つの方法である。

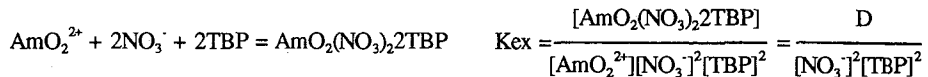
1) 0.1mol/l硝酸中でAm(VI)を調整し、硝酸濃度を0.5~3.0mol/lに調整して30~100%のTBPで溶媒抽出

2) 1.0mol/l硝酸中でAm(VI)を調整し、そのまま30~100%のTBPで溶媒抽出

実験に使用した核種は<sup>241</sup>Amである。原子価調整法は、酸化剤として $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 及び $\text{AgNO}_3$ を用いる方法で、詳細は既に報告した通りである<sup>1)</sup>。原子価調整後のAm(VI)溶液は、必要に応じて硝酸濃度を調整した後、n-dodecaneで濃度を調整したTBPと室温で2分間振とうした。分相後、Na(I)シンチレーションカウンタあるいはGe(Li)検出器による放射線測定により分配係数を求めた。なお、放射線測定により求められる分配係数は、吸光分光法(Am(VI): 996nm)で求められる分配係数と一致し、抽出後の水相にはAm(VI)の還元によるAm(V)あるいはAm(III)は認められなかった。

## 【結果と考察】

上記2)の方法で得られるAm(VI)の分配係数と、同じ系でのNd(III)の分配係数をFig.1に示した。この結果から、100%のTBPを用いた場合AmとNdの分離係数として100程度が得られ、Amと希土類元素の分離の見通しが得られた。また分配係数の硝酸濃度依存性とTBP濃度依存性を調べた実験の結果からAm(VI)の抽出反応が他のアクチノイド(VI)と同様に下式で示されることが分かった。



上記1)と2)の抽出方法で得られる抽出平衡定数 $K_{\text{ex}}$ をFig.2に示した。この結果から原子価調整条件により抽出平衡定数が異なることが分かった。同様の現象は、Np(VI)とNd(III)でも認められた。Am(VI)調整後の水相中では $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ の銀イオン及び水素イオンとの反応で分解することにより、硫酸イオンが生成し、水素イオン濃度も変化している。いずれの場合でも、Am(VI)調整が終わった時点で $\text{S}_2\text{O}_8^{2-}$ はほぼ全量が硫酸イオンに分解しているので、原子価調整条件によって溶媒抽出時の硫酸イオン濃度が大きく異なる。Am(VI)をNp(VI)で模擬して、この抽出系での分配係数と、水素イオン、硝酸イオン及び硫酸イオン濃度を硝酸、硫酸及び硫酸アンモニウムを用いて模擬した系での分配係数を比較するとよく一致した。この結果から原子価調整条件による抽出平衡定数の違いは、 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ の分解に起因する硫酸イオン濃度の影響であることが分かった。



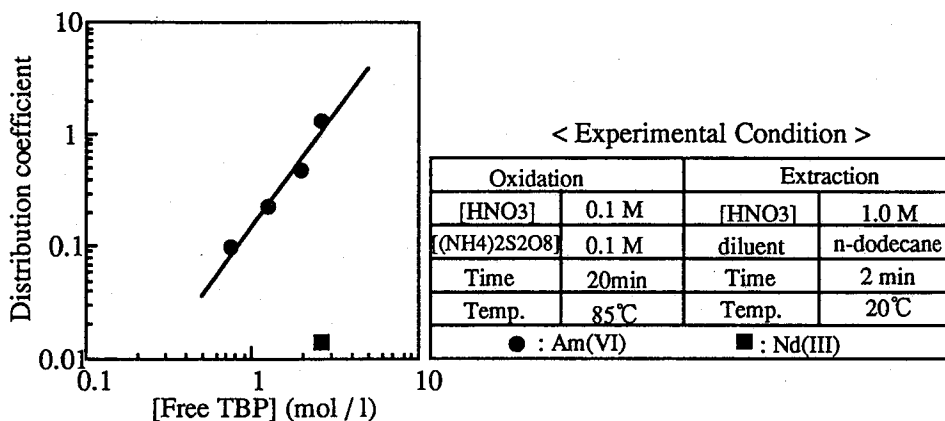


Fig.1 Distribution coefficient of Am(VI) and Nd(III)

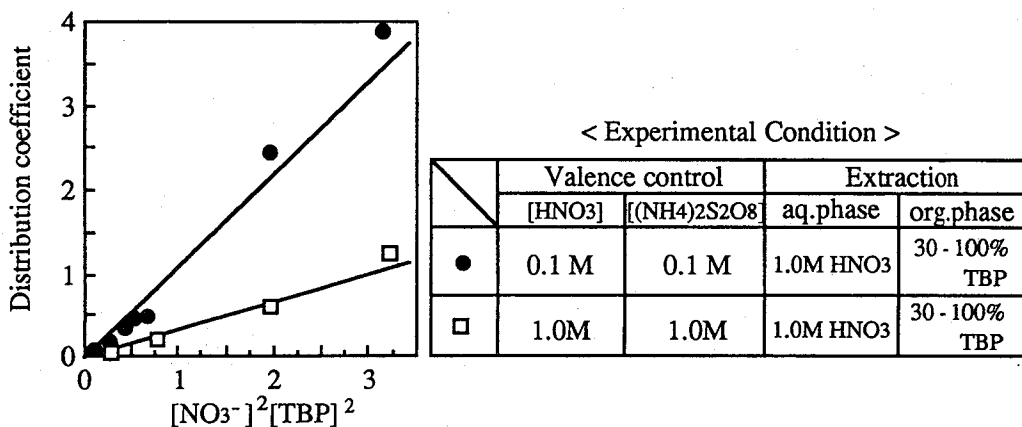


Fig.2 Valence control conditions and extraction equilibrium constant

参考文献

1) 鴨志田他：日本原子力学会「1994春の年会」要旨集 A22 (1994)

EXTRACTION OF AMERICIUM(VI) BY TRI-BUTYL PHOSPHATE

Mamoru Kamoshida, Tetsuo Fukasawa, Fumio Kawamura, Energy Research Laboratory, Hitachi, Ltd.

Separation method of americium from nitric acid solution has been developed. Solvent extraction of valence controlled americium is the essential point. Fundamental investigations on solvent extraction behavior of hexavalent americium were carried out. Am(VI) obtained by oxidation of Am(III) with peroxodisulfate ammonium and silver nitrate could be extracted by tri-butyl phosphate (TBP), and easily separated from trivalent rare-earth elements. Extraction equilibrium constant was apparently changed with oxidation conditions such as the concentrations of nitric acid and peroxodisulfate ammonium. Sulfate ion produced by decomposition reaction of peroxodisulfate with hydrogen ion was found to affect distribution equilibrium.

各種メモリー材料中のウラン及びトリウムの中性子放射化分析—  
 材料の放射化特性と $^{239}\text{Np}$ 及び $^{233}\text{Pa}$ の分離捕集法  
 (東北大金研) 三頭聰明、鈴木吉光、○渡部 信  
 (武蔵工大原研) 白石藤雄、岡田往子、鈴木章悟、平井昭司

## 1、はじめに

我々は、半導体集積回路の材料中の極微量U及びThの分析評価法として、中性子照射後の試料を湿式分解後、陰イオン交換クロマトグラフィと $\text{LaF}_3$ 共沈法によって放射化生成物の $^{239}\text{Np}$ と $^{233}\text{Pa}$ を選択的に分離捕集するRNAを開発し、 $\text{SiO}_2$ , Al, Cu, Ti, Nb, W等多くの試料に含まれる極微量のU, Thのpptレベルの分析に適用してきた。材料の放射化特性を勘案して、多くの材料に統一的適用できる分離捕集法についての検討経過を発表する。

## 2、実験法の概要

### 2、1 照射及び試料の湿式分解

中性子照射には、武蔵工大原研のMITRRと日本原子力研究所のJMTRを用い、一度に2～3個(各0.1～5g)の試料をU及びThの標準試料と共に照射し、標準比較法によってU及びThを定量した。

MITRRでは、統一的に、ポリエチレンフィルムに二重封入した試料を5時間照射した。

JMTRでは、石英管に封入した試料を水力ラビットで5～120時間照射した。JMTR照射では、照射空間が狭く照射試料中の縦方向の中性子束分布の違いが無視できないので、中性子束分布の相対値を補正するために、Alワイヤを同時に照射し。

照射後は、いずれも3～7日間の冷却期間をおいて、可能な場合には不純物分析のためのINAAを行った後に、湿式分解後放射化学的分離を行った。

### 2、2 化学的分離法

湿式分解後、溶液を9M HCl(又は8M  $\text{HNO}_3$ )とし $\text{Fe}^{2+}$ (ヒドキシルアミン共存)を添加し、陰イオン交換樹脂(Dowex 1x8 100～200 mesh)カラムに通じ $^{239}\text{Np}$ ,  $^{233}\text{Pa}$ を吸着させ、5～6カラム容量の洗浄液(9M HCl 又は8M  $\text{HNO}_3$ )を流した後、2～3カラム容量の0.1～1M HF-9M HCl(又は0.1～1M HF-9M  $\text{HNO}_3$ )の溶離液に $^{239}\text{Np}$ ,  $^{233}\text{Pa}$ を回収し、50～100mgの $\text{La}^{3+}$ を添加し $\text{LaF}_3$ に $^{239}\text{Np}$ ,  $^{233}\text{Pa}$ を捕集し $\gamma$ 線測定線源とした。

## 3、結果

Table-1に分析結果を示す。検出限界値はいずれも0.5gの試料をJMTRで120時間照射した場合の実測値である。

上記の陰イオン交換クロマトグラフィは、アルカリ金属、アルカリ土類、Al, Sc, Y, 希土類, Cr, Mn, Zn, Br, As, Sb等の除染に有効であり、 $\text{LaF}_3$ 共沈は、アルカリ金属、アルカリ土類、Ti, Fe, Co, Ni, Cu, Zr, Nb, Mo, Ta, W等の除染に有効であり、いずれも $^{239}\text{Np}$ 及び $^{233}\text{Pa}$ の回収率については完全に定量的である。Table-1に示した全ての試料中に見いだされた微量不純物元素からの生成核種( $\gamma$ -emitter)でこの分離捕集法で除去できない核種は、現在までのところ見つかっていない。しかし、この分離捕集法は、分離捕集の目的核種である $^{239}\text{Np}$ 及び $^{233}\text{Pa}$ の確実な回収を期して、イオン交換樹脂への吸着ではIV価とVI価のアクチノイド元素とPa(V)の全て及びFe, Co, Cu, U, Ti, Nb, Zr, Ta, W等の一部又は全てが吸着され、脱着においてはNb, Zr, Ta, W, Uが完全には分離できない条件を採用し、 $\text{La}^{3+}$ の添加量に関してNp(V)を除く全てのアクチノイド元素が共沈される条件を採用している。従って

Table-1 Summary of the Analytical Results

Sample	SiO <sub>2</sub>	Al	Cu*	Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> *	Ti*
主生成核種 (MAP)	<sup>32</sup> P	<sup>24</sup> Na	<sup>64</sup> Cu	<sup>93m</sup> Nb, <sup>182</sup> Ta	<sup>46, 47</sup> Sc
DF for MAP	>10 <sup>6</sup>	>10 <sup>8</sup>	10 <sup>7</sup> *	10 <sup>7</sup> *	>10 <sup>7</sup> *
Detection Limits (ppt)	U ~1 Th ~1	U ~1 Th ~1	U ~10 Th ~10	U ~5 Th ~2	U ~8 Th ~5

\* The results were not optimized.

、その適用に関して留意しなくてはならないのは、Npの酸化数の調整及びマトリック元素とそれから生成する放射性核種 (MAP) の除去である。着点溶液及び共沈前の溶液は何れもNpがIV価で安定な条件を採用しているが、NpO<sup>+</sup>からNp(IV)への確実な還元を目的に着点及び共沈の前にはFe<sup>2+</sup>とヒドロキシルアミンを添加する必要がある。

Table-1 に示した検出限界値と除染係数は、十分にVLSIの分析に応用可能なレベルにある。しかし、NbO<sub>2</sub>, Ti の検出限界には明らかに MAPの除染が十分でないことの影響が、また、Cuのそれには、照射から分離捕集・測定迄の経過時間の影響が認められる。このことは、いずれも選択した溶液条件で、陰イオン交換樹脂への親和性を持つにマトリックス元素に共通である。即ち、その原因は、Cu, Nb の場合にはカラム寸法を大きくしてもそれらの吸着により、<sup>239</sup>Np, <sup>233</sup>Pa の吸着帯の広がりが大きくなることによる除染効果の低下、また、TiではTiの吸着したカラムでのScとの除染の困難さが考えられる。この点を改良するために、LaF<sub>3</sub>共沈法の選択性をより積極的に利用することを前提に、予備的にマクロ量のTi, Nb 共存下でのLaF<sub>3</sub>沈殿への<sup>239</sup>Np, <sup>233</sup>Pa の共沈率を測定した。その結果、何れもマトリックス元素は共沈せず、硼酸を飽和した濃塩酸 (又は硝酸) での再溶解を繰り返しても<sup>239</sup>Np, <sup>233</sup>Pa の共沈は定量的であることが確認できた。この講演では、従来の分離捕集法の特質とその改良の要点を発表し、実試料分析への適用の詳細は、WSi<sub>n</sub>の分析について次の講演で発表する。

#### NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS OF URANIUM AND THORIUM CONTAINED IN COMPOSITION MATERIALS FOR THE FABRICATION OF SEMICONDUCTOR MEMORY.

#### A CONCEPTUAL PROCEDURE FOR THE SELECTIVE ISOLATION OF <sup>239</sup>Np AND <sup>233</sup>Pa .

Toshiaki MITSUGASHIRA, Yoshimitsu SUZUKI and Makoto WATANABE, Institute for Materials Research, Tohoku University

Fujio SHIRAISHI, Yukiko OKADA, Shougo SUZUKI and Shouji HIRAI, Atomic Energy Research Laboratory, Musashi Institute of Technology

It was proved that the combination of anion exchange chromatography and LaF<sub>3</sub> coprecipitation is very useful for the quantitative and selective separation of the mixture of <sup>239</sup>Np and <sup>233</sup>Pa from the neutron activated materials formed from various composition materials for modern semiconductor memory.

タングステンシリサイド中のウラン及びトリウムの  
中性子放射化分析

(武蔵工大原研) ○白石藤雄・岡田往子・鈴木章悟・平井昭司  
(東北大金研) 三頭聡明・鈴木吉光・渡部信

### 1. はじめに

タングステンシリサイド (以下 W-Si) は融点が高く、また Si との接触抵抗が Al や他の金属に比べ小さいため、近年超LSI の配線材料とし注目されている。このW-Siが超LSI に使用する際に、その中に含有される U及び Th に起因した $\alpha$ 線によって起こるメモリーの「ソフトエラー」が問題となる。

W-Siを中性子照射した場合、マトリックス元素の Wから放射能の強い $^{187}\text{W}$ (半減期 23.8時間)及び $^{185}\text{W}$ (半減期 76.2日)が大量に生成する。そのため、これらの核種をフッ化ランタン共沈、水酸化ランタン共沈及び陰イオン交換クロマトグラフィーを併用して除去して、 $^{239}\text{Np}$ 及び $^{233}\text{Pa}$ を選択的に捕集し、 $\gamma$ 線測定する放射化学中性子放射化分析法(RNAA)を検討したので報告する。

### 2. 試料及び分析法

分析試料は W/Si モル比 2.7の W-Si を用いた。

試料約100mg をJMTR (日本原子力研究所) の水力ラビット (熱中性子束:  $1 \times 10^{14} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ ) で 6時間照射を行った。照射後 5~ 7日冷却し、表面を洗浄した後、13M  $\text{HNO}_3$  3mlと24M HF 1mlで溶解し、Fig.1 の手順に従って、フッ化ランタン共沈について水酸化ランタン共沈を行い $^{187}\text{W}$  及び  $^{185}\text{W}$  を除去した。その後、

しらいしふじお、おかだゆきこ、すずきしょうご、ひらいしょうじ

みつがしらとしあき、すずきよしみつ、わたなべまこと

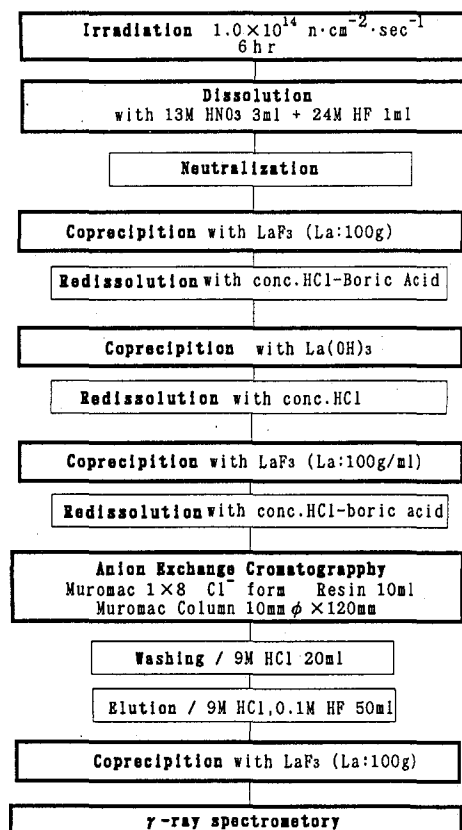


Fig. 1 Scheme of RNAA

陰イオン交換クロマトグラフィーを行い  $^{187}\text{W}$  及び  $^{185}\text{W}$  の除染の効果を高めると共にレアアースなどの不純物からの生成核種を分離した。その後、計数効率を高めるため  $^{239}\text{Np}$  及び  $^{233}\text{Pa}$  をフッ化ランタン沈殿物に共沈させメンブランフィルターで捕集し、 $\gamma$ 線測定を行った。なおフッ化ランタン共沈と陰イオン交換クロマトグラフィーの前には還元剤を加えNpの価数をIV価に調製した。

### 3. 結果と考察

Fig.1 の分離操作を行った際の分離段階ごとに Wの除染係数を Table 1 に示す。Table 1にある様に 1回の  $\text{LaF}_3$  共沈法での Wの除染係数が  $10^2 \sim 10^3$  であり、 $^{239}\text{Np}$  及び  $^{233}\text{Pa}$  の共沈率はほぼ100%であるので、フッ化ランタン共沈を繰り返すことにより Wの除染を大きくする事にした。Fig.1 に従い  $\text{La}(\text{OH})_3$  共沈法と陰イオン交換クロマトグラフィーを組み合わせることにより、最終的には  $10^{11}$  以上の高い除染係数を得ることが出来た。本法を実試料で繰り返し分析したところ Table 2に示したように U及びThとも ppb以下の定量下限値で定量出来た。なお、Table 2 中の誤差( $\pm$ ) は計数誤差である。

Table 1 Decontamination factor of W

	Each Step	Total
LaF -1	$5 \times 10^2$	$5 \times 10^2$
La(OH) -1	$6 \times 10^1$	$3 \times 10^4$
LaF -2	$2 \times 10^3$	$6 \times 10^7$
Anion-Exchange	$1 \times 10^2$	$8 \times 10^9$
LaF -3	$>1 \times 10^1$	$>1 \times 10^{11}$

Table 2 Results of RNAA

	Concentration/ppb [LLD/ppb]	
	U	Th
No.1	$0.43 \pm 0.06$ [0.2]	$0.84 \pm 0.09$ [0.7]
No.2	$0.33 \pm 0.07$ [0.2]	$0.45 \pm 0.08$ [0.3]
No.3	$0.45 \pm 0.09$ [0.2]	$0.34 \pm 0.09$ [0.2]

LLD: Lower Limit of Determination

## NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS OF URANIUM AND THORIUM IN TANGUSUTENSILICIDE

Fujio SHIRAISHI, Yukiko OKADA, Shougo SUZUKI and Shoji HIRAI, Atomic Energy Research Laboratory, Musashi Institute of Technology

Toshiaki MITSUGASHIRA, Yoshimitu SUZUKI and Makoto WATANABE, Institute for Materials Research, Tohoku University

Ultratrace amounts of uranium and thorium in tangusutensilicid were determined by RNAA designed with the combination with  $\text{LaF}_3$  coprecipitation,  $\text{La}(\text{OH})_3$  coprecipitation and anion exchange chromatography. In this separation proces, the decontamination factor of tangusuten was rather than  $10^{11}$ .

## 機器中性子放射化分析法による 高純度鉄標準物質中の微量元素の定量

(武蔵工大・原研) ○鈴木章悟・岡田往子・平井昭司

### 1. はじめに

金属材料の高純度化は製品の性能向上のため必要であり、特に、鉄鋼では不純物元素が材質に大きな影響を与えており、鉄鋼中の微量な不純物元素を測定できる分析技術の確立が強く望まれている。日本鉄鋼協会では、各種の鉄鋼標準物質を日本鉄鋼認証標準物質(JSS)の名称で製作してきている。本研究では、日本鉄鋼協会が最近製作した、不純物を20ppm程度しか含んでいない高純度鉄標準物質(JSS001-3, JSS001-4)中の微量元素を機器中性子放射化分析法(INAA)により精度よく定量する方法を検討したので報告する。

### 2. 実験

各試料とも64～890mgまでの数種類を精秤し、次いで洗浄したポリエチレン袋に二重封入し、照射用試料とした。照射は、生成核種の半減期により短時間および長時間の2種類の条件で立教大学原子炉(TRIGA-II型)で行った。短時間照射は、気送管(熱中性子束密度 $1.5 \times 10^{12} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ )で2分間行った。照射後、ポリエチレン袋を二重とも新しいものと交換し、1～3分間冷却後、同軸型Ge検出器と4096チャンネル波高分析器からなる通常の $\gamma$ 線スペクトロメトリを用いて、半減期が数分から数時間の核種に注目して4～25分間 $\gamma$ 線測定を行った。長時間照射は、中央実験管(熱中性子束密度 $3.7 \times 10^{12} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ )で6時間行った。照射後、ポリエチレン袋を二重とも新しいものと交換し、3～8日間冷却後、 $\gamma$ 線スペクトロメトリ(GAMAシステム)を用いて、半減期が数10時間から数日の核種に注目して8～40時間測定した。さらに同一試料を9日以上冷却後、再び半減期が数10日以上核種に注目して18～250時間測定した。また、長時間照射試料は同軸型Ge検出器と井戸型NaI(Tl)検出器を用いた反同時測定法による $\gamma$ 線スペクトロメトリでも $\gamma$ 線測定を行った。

得られた $\gamma$ 線スペクトルの解析は $\gamma$ 線スペクトル解析プログラム(GAMA98)<sup>1)</sup>を用いて、パソコンにより行った。定量は比較標準試料との比較法で行った。また、Mn, Crの定量ではFeの高速中性子による妨害核反応について補正を行う必要があった。

高計数率による数え落としの補正 鉄から生成される<sup>56</sup>Mnや<sup>59</sup>Feによる高計数率の状態では、 $\gamma$ 線測定を行うためパルス・パイルアップが生じ、計数値の数え落としを起こしていた。短時間照射試料の測定では実験式により $\gamma$ 線ピーク面積の減少について補正を行った。長時間照射試料の測定ではパルス・パイルアップを除去できるパルス・パイルアップ・リジェクタを付加した $\gamma$ 線スペクトロメトリを用いた。この高計数率用 $\gamma$ 線スペクトロメトリ<sup>2)</sup>では20kcps程度の高計数率まで数え落としを起こさないで正確に測定できる。

### 3. 結果

Table1にJSS001-4高純度鉄標準物質の通常の $\gamma$ 線スペクトロメトリと反同時測定 $\gamma$ 線スペクトロメトリによる56元素の分析結果を示す。表中の誤差は試料重量を変えて分析した際の繰り返し精度(標準偏差)である。Na, Al, Cl, V, Co, Zn, As, Wの8元素が定量でき、48元素の定量下限値が求められた。

Table 1 Concentration of elements in JSS001-4 high grade pure iron (ppm)

Element	Conventional $r$ -spectrometry	Anticoincidence $r$ -spectrometry	Element	Conventional $r$ -spectrometry	Anticoincidence $r$ -spectrometry
Na	0.138±0.031	0.140±0.013	Sn	<8.3	<6.7
Mg	<7.4		Sb	<0.0045	<0.0035
Al	0.080±0.023		Te	<0.48	<0.39
Si	<420		I	<0.041	
S	<200		Cs	<0.026	<0.055
Cl	1.94 ±0.11		Ba	<4.1	<8.6
K	<1.4	<1.1	La	<0.0019	<0.0026
Ca	<3.9		Ce	<0.13	<0.098
Sc	<0.0029	<0.0048	Pr	<0.052	<0.031
Ti	<1.9		Nd	<0.32	<0.25
V	0.038±0.003		Sm	<0.00064	<0.00059
Cr	<7.8	<7.8	Eu	<0.0033	<0.0095
Mn	<7.7		Gd	<0.35	<0.41
Co	0.24 ±0.02	0.23 ±0.04	Tb	<0.016	<0.017
Ni	<3.5	<2.4	Dy	<0.0029	
Cu	<0.90		Ho	<0.0050	<0.0039
Zn	5.6 ±0.9	4.7 ±0.4	Tm	<0.021	<0.016
Ga	<0.43	<1.1	Yb	<0.013	<0.011
As	0.160±0.023	0.153±0.015	Lu	<0.0027	<0.0034
Se	<0.098	<0.25	Hf	<0.026	<0.049
Br	<0.015	<0.12	Ta	<0.011	<0.036
Rb	<1.2	<0.69	W	0.23 ±0.02	0.22 ±0.04
Sr	<20	<16	Ir	<0.00051	<0.0021
Zr	<30	<20	Pt	<0.19	<0.16
Mo	<0.35	<0.27	Au	<0.00023	<0.00019
Ag	<0.13	<0.56	Hg	<0.11	<0.086
Cd	<0.37	<0.28	Th	<0.016	<0.013
In	<0.0011		U	<0.0048	<0.015

文献 1) 鈴木章悟, 平井昭司 : *Radioisotopes*, **38**, 315 (1989).

2) 鈴木章悟, 平井昭司 : 分析化学, **41**, 521 (1992).

#### DETERMINATION OF TRACE ELEMENTS IN HIGH GRADE PURE IRON REFERENCE MATERIALS BY INSTRUMENTAL NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS

Shogo SUZUKI, Yukiko OKADA and Shoji HIRAI

Atomic Energy Research Laboratory, Musashi Institute of Technology

Trace elements in high grade pure iron reference material (JSS001-3, JSS001-4) prepared by the Iron and Steel Institute of Japan were determined by instrumental neutron activation analysis (INAA). The high grade pure iron samples (ca. 64-890 mg) were irradiated for 2 min and 6 h. The irradiated samples were measured by a conventional  $r$ -ray spectrometry using a coaxial Ge detector and an anti-coincidence  $r$ -ray spectrometry using a coaxial Ge detector and a well-type NaI(Tl) detector. Concentration of 8 elements were determined by these methods.

## $k_0$ 法による中性子放射化分析のための標準物質の検定

(東北大核理研、ゲント大核科学研) ○榎本 和義・Frans DeCorte

最近、欧州各地の放射化分析施設において中性子放射化分析法の定量法として $k_0$ 法が活用されるようになってきた。 $k_0$ 法を採用するには、あらかじめ試料照射位置での中性子スペクトルを求めておくとともに、試料に照射された中性子束をモニターしなければならない。このため、モニター元素の濃度の正確さがすべての元素の定量結果に影響を及ぼすことになる。

本研究では、標準となるモニター元素の濃度を正確に検定するための方法を考案し、実際にCo、Auを含むAl合金標準試料等の分析に適用し、従来示されてきた標準試料の保証値の正確さ、均一性について考察した。

### 【実験】

試料：IRMM 528 Nuclear reference materials(1.00%Co, Al-wire)、530 (1.00%Au, Al-foil)、NIST SRM 953 (0.116%Co, wire)、RX 602D (0.1124%Au, Al-wire) および IRMM Au/Lu/Zr test alloy (1.1%Au, 1.6%Lu, Zr-foil)

照射試料の調製：Co-Al試料は高純度Fe-wireとよりあわせ、Co/Fe濃度比既知のセルロースペレット試料で挟み、照射カプセルに封入した。Au-Al試料は高純度Mo箔で挟んだうえ、Au/Mo濃度比既知のセルロースペレット試料で挟み、照射カプセルに封入した。

照射：Co試料はゲント大原子炉Thetis(250kW)の炉心部(Ch. 17, 3)、Au試料は炉周辺部(Ch. 8)において、各400分照射した。

測定および解析：Co試料は高純度Fe-wireとともに、Au試料はMo箔とともに酸溶解し、測定試料とした。比較試料はペレットのままと酸分解後に測定を行った。測定には効率19%のGe(Li)または38%のpureGe検出器を用いた。ピーク解析ソフトはゲント大のSEQALまたはSAMPO90を使用した。定量計算には以下の式を用いた。

$$w_A = (w_R)_L \times \left( \frac{w_A}{w_R} \right)_{\text{PEL}} \times \left( \frac{a_A}{a_R} \right)_L \times \left( \frac{a_R}{a_A} \right)_{\text{PEL}} \times \text{C.F.}$$

ここで、 $w$ と $a$ は定量目的元素Aまたは内標準元素Rの試料(L)および比較試料(PEL)での重量と生成放射能。ただし、比較試料の生成放射能は試料両側を挟んだ2個のペレットの生成放射能を合算することにした。C.F.は照射時の自己遮蔽、測定時のジオメトリーなどの補正係数。

### 【結果と考察】

内標準元素には生成放射能の核的性質、特に $\gamma$ 線エネルギーが定量目的核種のそれに近いものを選んだ。Co、Au、Luの定量にはそれぞれ $^{60}\text{Co}$ の1173、1332keV $\gamma$ 線と $^{59}\text{Fe}$ の1292keV $\gamma$ 線、 $^{198}\text{Au}$ の411keV $\gamma$ 線と $^{99}\text{Mo}$ の366keV $\gamma$ 線、 $^{177}\text{Lu}$ の112、208keV $\gamma$ 線と $^{99}\text{Mo}$ の140、181keV $\gamma$ 線を利用した。

定量目的元素と内標準元素の高純度金属の一定量を酸溶解し、その溶液をマイクロピペットで濾紙に一定量加え、ペレット状に加圧成型したものを比較試料とした。Luは酸化物を900℃で乾燥したものを用いた。定量計算には比較試料中の定量目的元素と内標



準元素の重量比のみを用いればよいため、濾紙中の元素濃度を求めておく必要はない。

Co-Al合金試料で用いたFe-wire(0.1mmφ)のChannel 17での熱中性子束の自己遮蔽効果による補正係数は0.997と見積られた。また、Au-Al合金試料などで用いたMo-foil(10μm厚)のエピサーマル中性子の自己遮蔽効果による補正係数は0.996と見積られた。

測定の際のジオメトリや同時計数による補正を極力小さくするため、試料は検出器から29cmの位置で測定した。ジオメトリおよび同時計数の補正値は計算により求めた。

表1および2にCo/Al、Au/Al合金標準試料の定量結果を示した。これらは比較試料をペレットのまま測定して得られた値である。それぞれの定量計算の統計誤差は0.6%と2%であり、定量結果の標準偏差は主に統計誤差に起因するものと判断された。定量結果はIRMM 530を除いて、保証値と良い一致を示した。IRMM 530では、従来値に比べ3.3%高く、現在その原因を調査中である。比較試料を酸分解して測定した結果も同様の結果が得られた。

炉内温度も同時に評価するための、新しい中性子束モニター (Au/Lu/Zr合金) がIRMMにおいて試作中であり、板状試料の濃度、均一性を同様の方法で評価した。Auについては所期の濃度、均一性が達成されたが、Luは7%の標準偏差を示し、不均一であることが分かった。

以上、本法は定量に伴う系統誤差を極めて低く抑えることができるため、標準値の検定に適した定量法となることが実証された。

#### CALIBRATION OF SEVERAL NUCLEAR REFERENCE MATERIALS FOR NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS BY $K_0$ -STANDARDIZATION METHOD

Kazuyoshi MASUMOTO, Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University and Frans DeCorte, Institute for Nuclear Science, Ghent University

In order to calibrate comparator elements in nuclear reference materials, a highly accurate quantitative procedure was proposed. Calibration can be done without the comparative standard doped an accurate amount of comparator elements. This method was applied to analyse several Co, Au and Lu references issued by IRMM, NIST and RX. It was ascertained that systematic errors caused by self-shielding effect during activation and counting geometry, coincidence effect during measurement were negligible small and the accuracy was within 1%.

表 1. Determination of Co in Co/Al Alloys (%)

	NBS SRM 953	IRMM 528
1	0.1175	0.999
2	0.1166	0.999
3	0.1162	1.014
4		1.011
Mean	0.1168	1.006
	± 0.0007	± 0.008
%RSD	0.6	0.8
Certified	0.116	1.00
	± 0.002	± 0.02

表 2. Determination of Au in Au/Al Alloys (%)

	RX 602D	IRMM 530
1	0.1118	0.1003
2	0.1090	0.1031
3	0.1169	0.1027
4	0.1153	0.1044
5	0.1120	0.1049
6	0.1104	0.1043
Mean	0.1126	0.1033
	± 0.030	± 0.0017
%RSD	2.7	1.6
Specified	0.1124	0.100
		± 0.002

## 光量子放射化による標準岩石試料中のフッ素の定量

(三菱マテリアル(株)中研・東北大核理研\*) ○桜井宏行・佐山恭正  
榎本和義\*・大槻勤\*

1. はじめに

これまでに我々は、化学分離法として蒸留-沈殿分離法あるいはパイロリシス-沈殿分離法を用いた光量子放射化分析法によるフッ素の定量法を開発し、石英、酸化テルビウムといった高純度材料中のフッ素の分析に適用して ppm レベルのフッ素を精度良く定量できることを示した。本法が、高純度材料のみならず、岩石試料や環境試料といったより広範な試料、特にフッ素の含有量が低く濃度の定まっていなかった試料の分析に適用できれば、有用なデータを提供することが可能になり、その意義は大きい。

しかし、岩石試料中のフッ素の分析に適用した場合、30MeV 制動放射による照射では、共存するナトリウムから  $^{23}\text{Na}(\gamma, \alpha n)^{18}\text{F}$  核反応により、定量値に正の誤差が生じることが分かった。

そこで、本実験では妨害核反応のしきい値以下のエネルギーで $\gamma$ 線照射を行い、種々検討を行ったところ、良好な結果が得られたので報告する。

2. 実験

**試料**：日本地質調査所配布の標準岩石 JG-1、JG-3、JA-1、JB-1、JB-2、JB-3、JP-1、JF-1、JF-2、JLs-1及び米国地質調査書配布の標準岩石 USGS PCC-1、DTS-1 を用いた。

**照射**：照射は試料 200mg を、厚さ 10 $\mu\text{m}$  の高純度アルミニウム箔で二重に包装し、直径 10mm のディスクに成型した後、照射線束モニターのニッケル箔とともに照射用石英管内に並べ封入し、水冷照射ホルダー内の白金コンバーター(厚さ2mm)後方 3~5cm の位置に固定した。電子加速エネルギー 20MeV、平均電流約 80 $\mu\text{A}$  の電子線を白金コンバーターで制動放射に変換し、90 分間照射した。

**化学分離**：照射後、試料とキャリアをフラックスで上下から覆うようにしてアルミナボートに乗せ、1000 $^{\circ}\text{C}$ の管状電気炉に挿入し、パイロリシスを行った。キャリアには NaF 又は NBS SRM91、フラックスには $\text{Na}_2\text{W}_2\text{O}_7$ を用いた。フッ素は、水蒸気飽和の酸素気流中(500 $\text{cm}^3/\text{min.}$ )で 20 分間加熱することにより HFとして分離し、希 NaOH 溶液で捕集した。捕集液中のフッ素は加温後、 $\text{HNO}_3$ 、1M La 溶液の順に添加しフッ素を  $\text{LaF}_3$  として沈殿させ、重量既知の直径 25mm のメンブランフィルター上に均一に捕集した。フィルターはポリエチレン袋に封入後、ポリエチレンシャーレ内に固定して測定用試料とした。

尚、フッ素の回収率は、放射能測定終了後、フィルターを乾燥し秤量して求めた。

**放射能測定**： $^{18}\text{F}$ からの陽電子壊変に伴う 511keV 消滅放射線の測定は Ortec 社製 Pure Ge検出器(分解能; 1.9keV, 相対効率; 30%)を NAIG製E771-Z' MCAに接続して行った。また試料の連続、繰り返し測定のために、マイクロロボットによる自動測定を利用した<sup>1)</sup>。

3. 結果と考察

妨害核反応  $^{23}\text{Na}(\gamma, \alpha n)^{18}\text{F}$  のしきい値は 20.9MeV である。このため、これまでの実験では照射エネルギーが 30MeV であったため妨害核反応の影響を受け、定量値に正の誤差を生じる結果となった。そこで今回しきい値以下の 20MeV で照射し分析を行ったところ、妨害核反応の影響を完全に抑制できることが分かった。

照射エネルギーを 30MeV から 20MeV に低下させた場合、生成放射能も約 1/2 になり、

下限は低下した。しかしながら、バックグラウンド計数の  $10\sigma$  と定めた場合の定量下限は  $0.06 \mu\text{g/g}$  となり、目的とするサブ ppm レベルのフッ素の定量には問題ないことが分かった。

本実験では NBS SRM91 Opal Glass を比較標準試料としてフッ素の実試料分析を行った。結果を Table 1 に示す。

Table 1 に明らかなように、JP-1、JF-1 を除く全ての標準岩石で参照値と良く一致し、本法が岩石中のフッ素を定量する分析法として有用であることを確認した。

Table 1 Fluorine concentration ( $\mu\text{g/g}$ ) in GSJ and USGS rock reference samples

Sample	This work	Av. $\pm$ St.Dev.	Reference value <sup>2)</sup>
JG-1	507, 488, 498	498 $\pm$ 10	496*
JG-3	330, 343, 340	338 $\pm$ 7	335
JA-1	166, 165, 160	164 $\pm$ 3	170
JB-1	394, 408, 380	394 $\pm$ 14	393*
JB-2	103, 106, 96	102 $\pm$ 5	101
JB-3	276, 287, 282	282 $\pm$ 6	295
JP-1	2.5, 2.7, 2.3	2.5 $\pm$ 0.2	10
JF-1	16, 19, 15	17 $\pm$ 2	<10
JF-2	3.9, 4.4, 4.6	4.3 $\pm$ 0.4	4
JLs-1	43, 42, 43	43 $\pm$ 1	38
PCC-1	12, 9	11	13
DTS-1	9, 9	9	12

\*:Recommended values

Reference

- 1) K.Masumoto, S.Ushino, M.Mutoh, M.Yagi, T.yoshida : Laboratory Robotics & Automation 6(1994)21.
- 2) K.Govindaraju:Geostanderds Newsletter(Special Issue)13(1989)1.

#### DETERMINATION OF FLUORINE IN ROCK REFERENCE SAMPLES BY PHOTON ACTIVATION ANALYSIS

Hiroyuki SAKURAI, Yasumasa SAYAMA, Mitsubishi Materials Co.

Kazuyoshi MASUMOTO, Tsutomu OHTSUKI, Laboratory of Nuclear Science, Faculty of Science, Tohoku University

The high-sensitive determination of fluorine in geological materials by photon activation based on the  $^{19}\text{F}(\gamma, n)^{18}\text{F}$  reaction has been proposed. In order to avoid the interference reaction,  $^{23}\text{Na}(\gamma, \alpha n)^{18}\text{F}(E_{\text{th}}=20.9 \text{ MeV})$  from Na, which is a major element in geological samples, irradiation energy was adjusted at 20MeV.

All results showed a good agreement with the reference values, and the determination limit was  $0.06 \mu\text{g/g}$ .

## 直接接合ウェハを用いたシリコン表面の極微量元素の中性子放射化分析

(NTT境界研・NATC\*)

○加藤正明・重松俊男・米沢洋樹・大録 正\*

1. はじめに

LSIの高集積化、微細化に伴い、シリコンウェハ表面の $10^{10}$  atoms/cm<sup>2</sup>以下の不純物が問題となり、その分析法の開発が進められている。中性子放射化分析法は感度、定量性の面で極微量分析法の標準化に最適な分析法の1つであり、著者らは、ウェハ表面の不純物元素定量のための中性子放射化分析法の開発を進めている。これまでに、短時間の中性子照射で高感度な定量が可能な元素に対しては、高純度で耐放射線性に優れた包装材の探索、分析試料調製時の汚染の低減等により、例えば銅では $10^9$  atoms/cm<sup>2</sup>台の定量を可能としている<sup>1)</sup>。一方、長時間の中性子照射が定量に必要な元素に対しては、高純度石英ガラス容器を使用しているが、容器の融着時および中性子照射時に起因すると考えられる汚染(例えば鉄では $10^{11} \sim 10^{12}$  atoms/cm<sup>2</sup>)があった。

そこで著者らは、これらの汚染を低減し鉄等の元素の定量下限の向上を図るため、シリコンウェハ直接接合技術<sup>2)</sup>を中性子放射化分析の試料調製法に応用することを検討してきた<sup>3, 4)</sup>。今回は、接合させたシリコンウェハを分析試料に用いた中性子放射化分析により、ウェハ表面の鉄、亜鉛等を定量したので報告する。

2. 実験2. 1 シリコンウェハの直接接合

市販のCZ-p型シリコンウェハ(100)の方位を合わせて鏡面(分析対象表面)同士を重ね合わせ、密着させた。これを石英容器に収納後、電気炉内(窒素雰囲気)で、350°Cで数時間加熱し接合させた。

2. 2 定量操作

接合したシリコンウェハを15×60mm程度に切断し、石英ガラス製試料容器に入れた。これを石英管に封入した比較標準(鉄箔他)とともに、石英ガラス容器に封入し、中性子照射用試料とした。日本原子力研究所の研究用原子炉JRR-3・水力照射設備を用い、50時間、中性子照射を行った。<sup>31</sup>Siの減衰後、シリコンウェハを硝酸/フッ化水素酸/酢酸/リン酸溶液で数10μm エッチングし、汚染を取り除いた。これに担体を添加し硝酸/フッ化水素酸溶液で溶解した。白金蒸発皿に移し替えた溶液を赤外線ランプで加熱し蒸発乾固した後、残さを硝酸に溶解し放射能計測試料とした。

放射能計測には、井戸型Ge検出器を使用した。

3. 結果と考察3. 1 定量操作の検討

熱処理後のウェハの接合強度は、ウェハの研磨、へき開に充分耐えるものであり、接合面へのエッチング液の浸入も見られなかった。またウェハの接合状態は赤外吸収スペクトルで調べた。接合させたウェハの赤外吸収スペクトルは接合前のウェハと同様、干渉の無いスペクトルが得られ、接合させたウェハは1枚のウェハと見なせる状態であることがわかった。またウェハの接合には、Si-O-Si結合が関与していることも確認された。一方、

放射性トレーサを使用し、定量操作における目的元素の収率を求めた。鉄等について99.5%以上の収率が得られた。また中性子照射後のエッチングによる接合面からの目的元素の損失、および汚染したエッチング液からのウェハの再汚染は無視でき、上記の操作でシリコンウェハ表面の極微量元素が定量できることがわかった。

### 3. 2 定量結果

代表的な定量例として、350℃で2時間加熱し接合させたシリコンウェハと、接合を行わなかったウェハを分析試料に用いて表面分析を行った結果を表に示す。前者の定量値は、後者の定量値のほぼ1/10以下となった。また、これまで $10^{11}$  atoms/cm<sup>2</sup>以下の定量が困難であった鉄については、直接接合により分析試料を調製することにより、 $1 \times 10^{10}$  atoms/cm<sup>2</sup>までの定量が可能であることもわかった。このようにシリコンウェハの直接接合を用いた試料調製法は、熱処理だけの簡便な操作でウェハの鏡面同士を接合することにより、分析対象である鏡面の清浄状

態を保護することができる。また試料容器の融着時および中性子照射に起因すると考えられる汚染を、従来のバルク分析と同様に中性子照射後のエッチングにより除去できるため、シリコンウェハ表面の極微量元素の分析に有効な分析試料調製法であることが明らかとなった。

Table Analytical results of trace elements on silicon wafer surfaces (atoms/cm<sup>2</sup>)

Element	Bonded wafer	Non-bonded wafer
Fe	$1.9 \times 10^{10}$	$6.9 \times 10^{11}$
Zn	$7.4 \times 10^9$	$1.7 \times 10^{10}$
Co	$1.5 \times 10^8$	$7.5 \times 10^8$
Cr	$5.6 \times 10^8$	$7.7 \times 10^{10}$

JRR-3・水力照射設備での長時間照射にあたり、ご助言、ご指導いただきました、日本原子力研究所研究炉利用課の大友様をはじめ研究炉利用課の方々に感謝いたします。

- 文献：1) 米沢、鹿野、重松：分析化学，42，229 (1992)。  
 2) 古川、新保：応用物理，60，790 (1991)。  
 3) 重松、ポラセク：第42回分析化学年会講演要旨集 (1993)。  
 4) 重松、米沢、加藤：第55回分析化学討論会講演要旨集 (1994)。

#### NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS OF ULTRA-TRACE ELEMENTS ON SILICON WAFER SURFACES USING SILICON WAFER DIRECT-BONDING TECHNIQUE

Masaaki KATO, Toshio SHIGEMATSU, Hiroki YONEZAWA, and Tadashi OHROKU\*

NTT Interdisciplinary Research Laboratories, NTT Advanced Technology Corp.\*

The silicon wafer direct-binding (SDB) technique was applied to the sample preparation for neutron activation analysis of ultra-clean surfaces. Using SDB technique, the contamination caused by sample preparation and neutron irradiation could be decreased to 1/10 levels, compared to our more conventional technique already used. A surface contamination of silicon wafer was  $10^9 - 10^{10}$  atoms/cm<sup>2</sup> for Fe and Zn.

## スピコートによる鉄及び亜鉛などの表面分析用標準試料の作製

(NTT境界研) ○重松俊男

## 1. はじめに

高集積化が一層進んだLSIにおいては、素子特性の劣化の要因となるシリコンウエハ表面の鉄、ニッケル、銅及び亜鉛など遷移金属元素が問題にされている。それら元素の表面密度を $10^{10}$  atoms/cm<sup>2</sup>以下に低減する必要があるとされ、清浄法の検討が進められているが、同時に表面密度を評価する分析法の開発も急がれている。いずれの分析法も定量下限に近い領域であり、確立された分析法の正確さを確認するために種々の分析法によるクロスチェックあるいは標準試料を用いた分析法のチェックが重要になる。

これまで、鉄、銅および亜鉛濃度が種々異なるトレーサ溶液を用いて、表面密度が $10^{13}$ ~ $10^{10}$  atoms/cm<sup>2</sup>領域の表面分析用標準試料の作製条件をスピコート法により検討しているが、相対標準偏差が10%以下の条件は明らかにされていない<sup>1)</sup>。ここでは、改めて相対標準偏差が10%以下の標準試料作製条件について検討を進めた。

## 2. 実験

トレーサ溶液の調製:

<sup>59</sup>Fe、<sup>64</sup>Cu及び<sup>65</sup>Znトレーサ溶液は前報<sup>1)</sup>と同様に調製した。

シリコンウエハの表面処理:

シリコンはCZ-p型単結晶で直径が125mmφの(100)面のウエハを用いた。表面酸化膜を希フッ酸洗浄により除去した後、①HCl/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O (1/1/5) 溶液中、80°Cで1時間の酸化処理あるいは②1NHNO<sub>3</sub>溶液中に浸漬を行い使用した。

トレーサ溶液のスピコーティングと放射能計測:

スピコートは600rpmで2秒回転中にトレーサ溶液を滴下し、続けて3500rpmで20秒回転させた。その後ウエハを15mm□あるいは20mm□に切断し、アロカ製低バックグラウンド2π-ガスフローカウンターで放射能を測定した。

## 3. 結果及び考察

スピコートの条件:

トレーサ溶液をスピコートしたウエハの放射能測定結果から、ウエハの周辺部は表面密度が異常に高く、表面密度の評価に当たってエッチを含まない37分画(15mm□試料)あるいは21分画(20mm□試料)の平均表面密度を用いることにした。続いて塗布するトレーサ溶液の1~5mlを滴下して平均表面密度を求めたが値に変化はなく、以後の実験では2.0mlのトレーサ溶液を使用した。

表面分析用標準試料の作製条件:

HCl/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O (1/1/5) 溶液中、80°Cで1時間の酸化処理を行ったウエハに0.1~40ppmの<sup>59</sup>Fe及び<sup>64</sup>Cuトレーサ溶液、0.01~0.4ppmの<sup>65</sup>Znトレーサ溶液をスピコートして得られたそれぞれのウエハの平均表面密度と塗布した溶液濃度の関係を図1に示す。また、1NHNO<sub>3</sub>に20時間浸漬を行ったウエハに<sup>59</sup>Feトレーサ溶液をスピコートして得られた結果(□)も合わせて示すが、両者は比較的良好に一致している。図から $10^{13}$ ~ $10^{10}$  atoms/cm<sup>2</sup>領域の範囲で任意の平均表面濃度のウエハを作製できることが分かる。

なお、HCl/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O (1/1/5) 溶液中、80°Cで1時間の酸化処理を行ったウエハの相対標準偏差は10~19%であったが、1N HNO<sub>3</sub>に20時間浸漬を行ったウエハでは6%前後であり均一な試料の作製が可能であった。また、従来、表面密度分布はいずれも中心部が平均表面密度の37~63%の値を示していたが、今回の実験では低い値は見られなかった。

以上の結果をもとに、0.1、0.4及び4ppmのCu担体溶液をスピコートし、中性子放射化分析<sup>2)</sup>で銅を定量した。得られた表面密度をトレーサー法の結果と比較すると放射化分析の結果は高目の値を示したが1.5~2.0倍の範囲であり、比較的良好に一致したといえる。

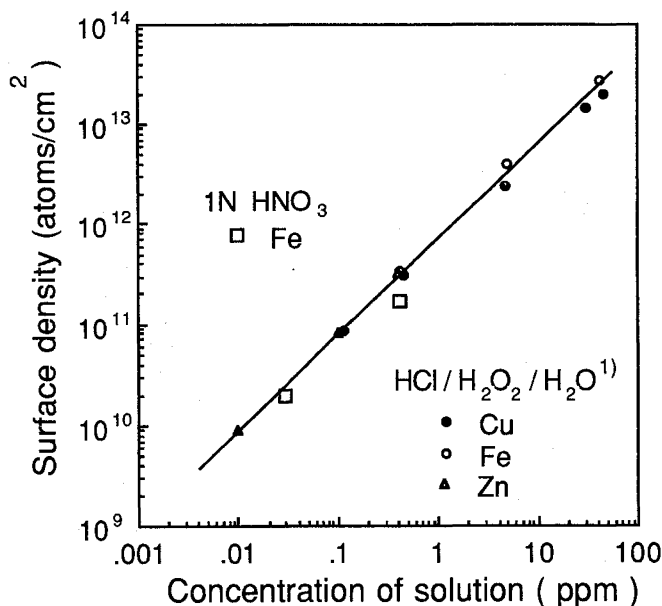


Fig.1 Dependence of surface density on concentration of solution

#### 参考文献

- 1) 米沢, 重松, 鹿野: 第36回放射化学討論会講演予稿集 p 202 (1993)
- 2) 米沢, 鹿野, 重松: 分析化学, 42, 229 (1993)

#### FABRICATION OF STANDARD SAMPLES OF IRON AND ZINC ETC. FOR SURFACE ANALYSIS BY SPIN-COATING

Toshio SHIGEMATSU

NTT Interdisciplinary Laboratories

An aliquot of <sup>59</sup>Fe, <sup>64</sup>Cu or <sup>65</sup>Zn tracer solution was dropped on rotating silicon wafer surface which was oxidized by dipping in HCl/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O solution or in 1N HNO<sub>3</sub> solution. The average surface densities for Fe, Cu and Zn were proportional to the concentration of the tracer solutions in the range of 10<sup>10</sup>atoms/cm<sup>2</sup> to 10<sup>13</sup>atoms/cm<sup>2</sup>. The relative standard deviation is about 6% for the wafer which was dipped in 1N HNO<sub>3</sub> solution for 20 hours.

## ランタノイド含有鉱石の放射化分析

(阪大工・京大原子炉<sup>\*</sup>)○北村 暁・門田良信・水谷匡利・西澤嘉寿成・山本忠史・西川佐太郎<sup>\*</sup>

## 【緒言】

岩石中の微量元素組成を調べることは、地球科学の発展のためには重要な手段である。とくに希土類元素の組成比の変動は、地球内部の物質移動に関する情報を与えるために注目を集めている。これまでは岩石などに含まれる希土類元素の定量には、熱中性子放射化分析法が用いられてきたが、近年は ICP 発光分光分析法(ICP-AES)などの他の高感度分析法によって取って代わられつつある。しかしながら ICP-AES では、定量に先だって試料を溶解することが不可欠であり、不溶性残渣に含まれる分析目的成分の定量が、不可能となる。必要とする情報に応じて分析方法を選択することが望ましいが、実行は必ずしも容易ではない。京都大学原子炉実験所では、ホット試料分析用の ICP-AES 装置が備えられており、同一試料を機器的中性子放射化分析法(INAA)および放射化学的中性子放射化分析法(RNAA)で分析し、その定量結果を比較検討することができる。さらには RNAA では、収率補正が ICP-AES によって容易に行える。本報告では、産地の異なる数種のアパタイト(主成分  $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$ ) を試料として、分析データの比較を試みた。北ベトナム産のアパタイトでは、Mn の含有量が他のアパタイトに比べて多く、その結果、INAA では Mn を照射したときに生成する  $^{56}\text{Mn}$  の放出  $\gamma$  線のコンプトン散乱が他の核種の検出を妨害し、希土類元素においても検出されない核種も多かった。しかし RNAA ではいくつかの元素が定量できた。

## 【実験】

## [ 1. ICP 発光分析 ]

WALSH<sup>1)</sup>らの方法に従って分析した。岩石試料 0.5g を濃硝酸に溶解し、蒸発乾固した。蒸発乾固後、試料を 1N 塩酸に溶解し、50ml に定容した。この試料にキャリアーとして Tm を加え、陽イオン交換樹脂カラム(樹脂 DOWEX50W-X8, 1.4cm  $\phi$   $\times$  19cm) に流した。次にこのカラムに 1.8N 塩酸を 400ml 流し、共存元素である Ca, Mn, Fe などを溶離させた。さらに 4N 塩酸 500ml を流して希土類元素を溶離し、この試料を蒸発乾固して、最終的に 4N 塩酸に溶解し、10ml に定容した。この溶液を分析試料として ICP 発光分析で希土類元素の定量を行った。

## [ 2. INAA ]

岩石試料 10mg ないし 50mg を袋で密封し、京都大学原子炉・圧気輸送管 Pn-2 ( $\phi_{th}: 2.8 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>/s) および Pn-3 ( $\phi_{th}: 2.3 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>/s) において 15 分ないし 60 分間照射した。照射した試料の  $\gamma$  線を Ge 半導体検出器で測定し、希土類元素を定量した。

## [ 3. RNAA ]

岩石試料 10mg をビンに封入し、京都大学原子炉・圧気輸送管 Pn-3 で 30 分間照射した。照射終了後、すぐに岩石試料をキャリアーを含む濃塩酸 1ml に溶解し、このうちの 0.5ml



を陽イオン交換樹脂カラム（樹脂 DOWEX50W-X8, 1.4cm φ×12cm）に導入した。その後、まず 1.8N 塩酸を 60ml 流し、共存元素である Na, Mn, Feなどを溶離した。つぎに 10% 塩化アンモニウムを 30ml 流した後、5% クエン酸アンモニウムを 20ml 流し、希土類元素を溶離した。この溶液の 5ml をとり、Ge 半導体検出器でγ線を測定し、希土類元素を定量した。また、この陽イオン交換に際しての希土類元素の回収率を各フラクション中のキャリアの含有量を ICP 発光分析で測定することにより求めた。

【結果】

Table 1 に 3 種類の分析方法による北ベトナム産アパタイト中に含まれる希土類元素の含有率（重量%）を示す。アパタイト中の希土類元素は濃塩酸および濃硝酸にそのほぼ全量が溶けることが実験的に確かめられているが、実際に定量した結果はそれぞれの分析方法で食い違っている。ここで、ICP 発光分析について、Sc は検量線を作成しなかったため、また Tm は陽イオン交換に際してキャリアーとして多量に加えたため、定量を行っていない。それぞれの分析方法について検討すると、INAA では放射能の強い<sup>56</sup>Mn などの妨害によって検出できない核種が多い。RNAA では INAA に比べて多くの核種が検出されたが、放射線測定にける液量が増えて、相対的に感度が下がる。照射試料の量を増やすか、より効率的な分離方法を用いる必要がある。ICP-AES では、希土類元素の定量感度が低く、含有量の少ない元素では検出にかからないものが多かった。

Table 1 Determination of REE in apatite (localized in Northern Vietnam) (wt%)

Element	INAA	RNAA	ICP-AES
Sc	0.00009	0.00008	
Y	ND	ND	0.013
La	0.003	0.004	0.0048
Ce	0.001	<DL	0.0028
Pr	ND	0.0008	0.00082
Nd	0.002	<DL	0.0037
Sm	0.0007	0.001	0.00038
Eu	0.0002	0.00008	0.00004
Gd	0.002	<DL	0.00041
Tb	0.0001	ND	<DL
Dy	ND	0.002	0.00061
Ho	ND	0.0002	0.00007
Er	ND	0.0009	<DL
Tm	ND	ND	
Yb	0.0003	0.002	<DL
Lu	ND	0.0001	<DL

ND: Not detected

<DL: Detected but not determined

Reference: 1) J.N.WALSH, F.BUCKLEY, J.BARKER: Chem. Geol. 33(1981)141-153

RADIOCHEMICAL NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS OF ROCKS CONTAINING RARE EARTH ELEMENTS

Akira KITAMURA, Yoshinobu KADOTA, Masatoshi MIZUTANI, Kazushige NISHIZAWA, Tadashi YAMAMOTO and Satarou NISHIKAWA, Faculty of Engineering, Osaka University, Research Reactor Institute, Kyoto University

For the simultaneous determination of multi-elements, radioanalytical activation analysis has been taken over by other high sensitive instrumental analysis, for example, inductively coupled plasma - atomic emission spectroscopy (ICP-AES) in these years. However, ICP-AES requires to dissolve samples completely. The analytical results of rare earth elements of rocks were compared

中性子誘起即発および遅延 $\gamma$ 線測定による塩素の同位体分析

(原研東海・東大原総セ) ○松江秀明・澤幡弘之・米沢仲司郎・星三千男

## 1 はじめに

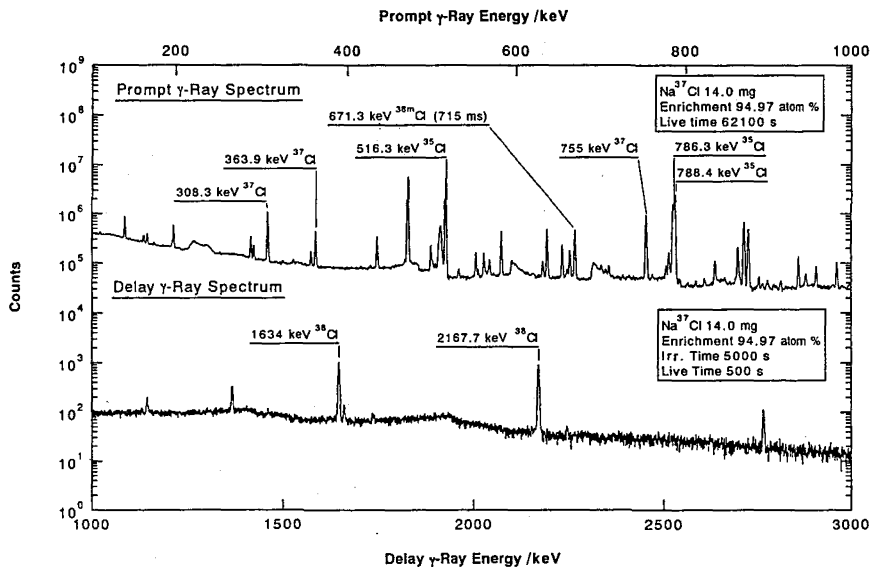
中性子による即発 $\gamma$ 線分析法 (PGA) は、中性子捕獲反応等によって生成する励起核からの脱励起 $\gamma$ 線を測定し分析するため、生成する同位体が放射性であるか否かに関わらず各元素の同位体分析が可能である。しかしながら、現状では各同位体ごとの即発 $\gamma$ 線データの整備が遅れており、実用的な同位体分析の手段として、PGA は研究段階にある。演者等は各同位体ごとの即発 $\gamma$ 線データの整備およびPGAによる同位体分析の手法確立の一環としてJRR-3M冷及び熱中性子ガイドビームを使用し、Ni, Si, Fe等の同位体分析の研究を行ってきた。本報告ではさらに塩素の同位体分析を試みた。塩素には天然存在比 77.77% の $^{35}\text{Cl}$ と 24.33% の $^{37}\text{Cl}$ の安定同位体が存在する。PGAでは塩素の両濃縮同位体を用いた実験から $^{35}\text{Cl}$ が高感度に定量でき、 $^{37}\text{Cl}$ の分析は困難であることが判明した。しかし、 $^{37}\text{Cl}$ は $^{37}\text{Cl}(n,\gamma)^{38}\text{Cl}$ 反応で生成する $^{38}\text{Cl}$ (半減期 37.16分)の測定により $^{37}\text{Cl}$ を感度良く分析できる。このように塩素同位体分析ではPGAと中性子放射化分析(NAA)は相補的な関係にあり、両法を併用することで高感度で簡便な非破壊塩素の同位体分析法の開発が可能である。

## 2 実験

JRR-3M冷及び熱中性子ガイドビームを用い、 $\text{Na}^{35}\text{Cl}$ (Enrichment 99.63 atom%)  
 $\text{Na}^{37}\text{Cl}$ (Enrichment 94.97 atom%)およびそれぞれの濃縮同位体から調製した種々の同位体比の標準試料の即発 $\gamma$ 線および遅延 $\gamma$ 線を測定した。試料は数mg～数十mgの範囲で粉末のまま

FEPフィルム  
 (厚さ12 $\mu\text{m}$ )

に密封した。即発 $\gamma$ 線はHe雰囲気中で中性子照射し、その際放出される $\gamma$ 線を、Ge-BGO検出器で検出し、12MeVまでの $\gamma$ 線をコンプトンサプレッション及びペアモードで測定した。遅

Fig.1 Prompt and Delay  $\gamma$ -Ray Spectra of  $\text{Na}^{37}\text{Cl}$ .

延 $\gamma$ 線は即発 $\gamma$ 線測定後の照射試料をGe(Li)検出器で測定した。

### 3 結果及び考察

Fig. 1 にNa<sup>37</sup>Cl の冷中性子照射による即発 $\gamma$ 線スペクトル(100~1000 keV)と遅延 $\gamma$ 線スペクトル(1000~3000 keV)を示す。即発 $\gamma$ 線スペクトルでは<sup>35</sup>Clは<sup>37</sup>Clに比べ2桁ほど感度が高い。<sup>35</sup>Clの786 keVと788 keVの複合ピーク及び<sup>37</sup>Clの755 keVのピークを用いてPGAによる分析感度を求めたところそれぞれの同位体で5.6 cps/mgおよび0.063 cps/mgであった。またNAAの分析感度(specific count rate)は1643 keVのピークにおいて11 cps/mgであった。Fig. 2 に冷中性子照射の際の標準試料の同位体比(<sup>35</sup>Cl/<sup>37</sup>Cl)とPGAによるピーク強度比((786+788)keV/755 keV)とPGAとNAAを併用した際のピーク強度比((786+788)keV/1643 keV)との相関を示す。PGAおよびPGA-NAA併用による結果とも良い直線性を示しているが、PGA-NAA併用によるものの方がより良い精度を与えている。

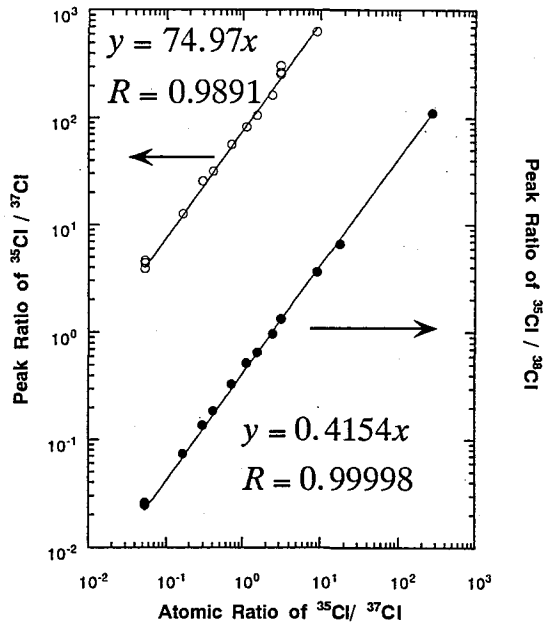


Fig. 2 Relationship between the Observed Intensity Ratio of <sup>35</sup>Cl(786,788 keV; P.G.) and <sup>38</sup>Cl(1643 keV; D.G.) or <sup>37</sup>Cl(755 keV; P.G.) and the Atomic Ratio of <sup>35</sup>Cl and <sup>37</sup>Cl  
P.G.; Prompt  $\gamma$  Ray, D.G.; Delayed  $\gamma$  Ray

## ISOTOPE ANALYSIS OF CHLORINE BY NEUTRON-INDUCED PROMPT AND DELAY $\gamma$ -RAY ANALYSIS

Hideaki MATSUE, Hiroyuki SAWAHATA\*, Chushiro YONEZAWA and Michio HOSHI  
Department of Chemistry and Fuel Reserch, Japan Atomic Energy Research Institute,  
\*Reserch Center for Nuclear Science and Technology, The University of Tokyo

Isotopic analysis of chlorine by neutron-induced prompt  $\gamma$ -ray analysis (PGA) and neutron activation analysis (NAA) have been performed with using cold and thermal neutron guide beam. The isotope of <sup>35</sup>Cl was detected by the PGA with doble peaks at 786, 788 keV(Fig. 1, upper). On the other hand, isotope of <sup>37</sup>Cl was detected by the NAA with peak at 1643 keV (<sup>38</sup>Cl 37.16 min) after the prompt  $\gamma$ -ray measurement (Fig. 1, below). The calibration curve to determine the ratio of <sup>35</sup>Cl and <sup>37</sup>Cl obtained had a satisfactory linearity as shown in Fig.2.

## 放射化学的放射化分析による鉄中のけい素の定量

(立教大原研) ○戸室裕行・戸村健児

## 〔緒言〕

鉄中のけい素はカドミウム筒もしくは窒化硼素筒に試料を入れ、原子炉速中性子による $^{29}\text{Si}(n,p)$ 反応で生成する半減期6.6分の $^{29}\text{Al}$ より放出される1,273 keV $\gamma$ 線をゲルマニウム半導体検出器で計数すれば非破壊的に定量できる。

しかし、不純物から放射性同位元素が多量に生成し、 $\gamma$ 線スペクトロメトリーを妨害する場合やけい素含有量が低い試料については非破壊分析は困難であった。従って照射前に予めけい素を濃縮するか、照射後放射化学分離操作を行なう中性子放射化分析でけい素を定量する必要がある。後者の場合、 $^{30}\text{Si}(n,\gamma)$ 反応で生成する2.62時間の $^{31}\text{Si}$ の $\beta$ 線をGM計数器で計数しなければならない。ここでは、日本鉄鋼協会のけい素定量用専用鋼標準試料について放射化学的放射化分析を適用した結果について報告する。

## 〔実験〕

照射は試料 約0.5gを立教大学原子力研究所のTRIGA II型炉の回転試料棚で1時間行なった。 $^{31}\text{Si}$ は $^{31}\text{Si}(n,p)$ 反応と $^{34}\text{S}(n,\alpha)$ 反応でも生成し妨害となるので、試料の一方をCd筒に入れ、他方をCd筒に入れずに照射を行ない、速中性子による寄与の補正を行なった。標準試料は原子吸光分析用の1,000ppm Si標準溶液の0.1mlを濾紙に滴加乾燥したものを使用した。

照射試料に原子吸光用標準試料溶液 5mlを担体として加え、王水で溶解した。シリカを脱水分離し、濾過乾燥後、GM計数管で $\beta$ 線を計測した。

放射化学収率は $^{29}\text{Si}(n,p)^{29}\text{Al}$ 反応による非破壊放射化分析により求めた。

放射化学純度をGe検出器でチェックしたところ、 $^{56}\text{Mn}$ 、 $^{122}\text{Sb}$ 、 $^{187}\text{W}$ による汚染が認められたので、予め、これらの放射線源を作製しGM管とGe検出器の計数効率の比を測定しておき、 $\gamma$ 線スペクトルのデータを用い妨害の補正をした。

減衰曲線の解析により、長寿命不純物放射能を差し引いて $^{31}\text{Si}$ の正味の $\beta$ 線の計数率を求めた。

Cd筒に入れ照射した試料、裸で照射した試料、標準試料について同様の放射化学分離操作、計数を行ない、比較法でSiの定量を行なった。

## 〔結果〕

日本鉄鋼協会(JSS)のけい素定量専用鋼 280-1 (Si含有量 0.023%)の0.5154gを1時間中性子照射して、放射化学分離した試料について照射終了後3時間の時点におけるGM管による計数率は14,500 cpmであった。これに対する $^{56}\text{Mn}$ 、 $^{187}\text{W}$ 、 $^{122}\text{Sb}$ の汚染は $\beta$ 線換算で163, 212, 179 cpmであり、これらによる妨害の影響は余り大きくなかった。

$^{56}\text{Mn}$ 、 $^{187}\text{W}$ 、 $^{122}\text{Sb}$ を補正した後の $\beta$ 線の計数について得られた壊変曲線の一例をFig.1に記す。照射終了後より30時間の長寿命核種成分をバックグラウンドとして差し引いたところ、半減期2.62時間に近い成分が得られたので、これを $^{31}\text{Si}$ の放射能とした。

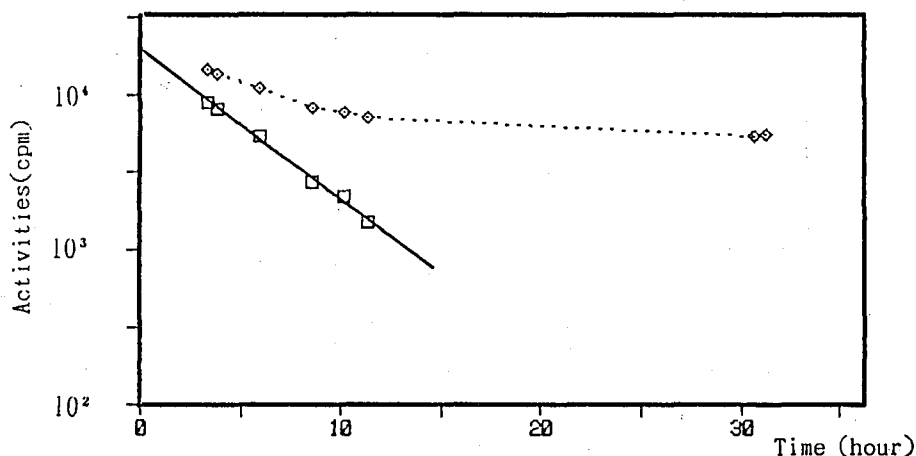


Fig.1. Decay Curve of Beta Activities after Radio-chemistry and Correction by Gamma-spectrometry for  $^{56}\text{Mn}$ ,  $^{187}\text{W}$  and  $^{122}\text{Sb}$   
 Sample: 0.5154g JSS 280-1, Irradiation: 1 hr

速中性子により生成する $^{31}\text{Si}$ を補正して鉄中のけい素含有量を求めるため、次式により計算した。

- A : 裸で照射した試料より得られた $^{31}\text{Si}$ の比放射能
- A' : Cdに包み照射した試料より得られた $^{31}\text{Si}$ の比放射能
- S : 裸のけい素標準試料より得られた $^{31}\text{Si}$ の比放射能
- S' : Cdに包んだけい素標準試料より得られた $^{31}\text{Si}$ の比放射能

$$\text{けい素含有量} = (A - A') / (S - S')$$

Aを求めるために 0.5992gと0.5970gの2つの280-1試料をCd筒で照射した。放射化学収率はそれぞれ、81.1と49.1%であり、照射終了後3時間後の1g当たりの放射能は12,530と8810 cpmであり、平均10,670 cpmをA'とした。SとS'については、放射化学収率は85.1と90.4%で、1mgSi当たりの放射能は21,170と1,070 cpmであった。

280-1の3試料を裸で1時間照射し得られた結果をTable 1.に記す。

Table 1. Results for JSS 280-1 standard steel sample

Weight (g)	Chem. Yield (%)	$^{31}\text{Si}$ Activities (cpm)	Specific Activities for 100% Recovery	Si Content (mg/g)
0.5154	88.7	10,590	23,160	0.621
0.7159	86.3	14,480	23,430	0.634
0.5592	73.8	9,930	24,070	0.667
				Av. 0.641

#### Determination of Silicon in Steel Samples by Radiochemical Neutron Activation Analysis

Hiroyuki TOMURO and Kenji TOMURA, Institute for Atomic Energy, Rikkyo University

Silicon in steel is determined by radiochemical neutron activation analysis, interference by fast neutrons is eliminated by double irradiation method in which one sample is irradiated in Cd case and another is without Cd case.

放射化分析による沼津市土手上遺跡出土黒曜石の産地推定  
 (立教大原研, 沼津市文化財セ<sup>1)</sup>, 沼津工専<sup>2)</sup>)  
 ○戸村健児, 輿水達司, 池谷信之<sup>1)</sup> 望月明彦<sup>2)</sup>

## 〔緒言〕

機器中性子放射化分析は非破壊的に多元素・同時分析が可能であり、しかも信頼性が高いため、考古学等多数試料を分析する必要がある分野の研究に有効である。黒曜石は火山噴出ガラスであり、東日本や九州等で石器として多く利用されてきた。黒曜石はマグマの急冷により生成したと考えられるので、地球化学的分化を殆ど受けず、化学組成は産地毎に均一性を保っている。従って、微量元素分析により産地推定が最も容易な考古学試料の一つである。分析法としては蛍光X線分析法と放射化分析法が最も多く利用される。

近年、我々は横浜港北ニュータウン遺跡及び山梨県下3遺跡の縄文ならびに先土器時代の黒曜石について放射化分析法で産地推定を行い、遺跡の地理的位置や時代と黒曜石の産地との関係について考察した。今回は静岡県下遺跡出土黒曜石について研究を行った。愛鷹山南麓には富士火山噴出物が厚く堆積し、その中に時代の異なる文化層が認められ、黒曜石石器も多数埋没されている。既に、蛍光X線分析で黒曜石の産地推定がなされているが、ここでは、中・長寿命核種を利用する機器中性子放射化分析を適用し、比較検討を試みた。

## 〔実験〕

黒曜石片(50mgづつ60試料)と米国地質調査所の標準岩石試料GSP-1を立教大学原子力研究所の100kW TRIGA II型炉の回転試料棚(熱中性子束: $5 \times 10^{11} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ )で6時間×2日照射した。照射終了より10日後1試料につき1,800秒づつゲルマニウム検出器と多重波高分析機を組み合わせたγ線スペクトロメータでγ線を計数し、標準試料との比較により、Sc, Fe, Rb, La, Ce, Sm, Hf, Th, Uを定量した。

Fe/Th, Sm/Thの元素濃度比を両対数グラフにプロットし、産地推定を行った(Fig. 1)

## 〔結果〕

沼津市土手上遺跡(愛鷹山南麓、東名高速道路北側)のBB V層(27,000~28,000BP)とBB III層(26,000~25,000BP)及びFB層(9,000~7,000BP)から出土した黒曜石のそれぞれ20試料を放射化分析した。代表的結果をTable 1に記す。試料番号1~20がBB V層, 21~40がBB III層, 41~60がFB層から出土した。

BB V層出土試料について蛍光X線と放射化分析の比較を行ったところ、殆どの試料について産地推定の結果が一致した。放射化分析で畑宿産と推定された試料の一部は蛍光X線分析によるSr. Fe/K値では箱根A, B群として

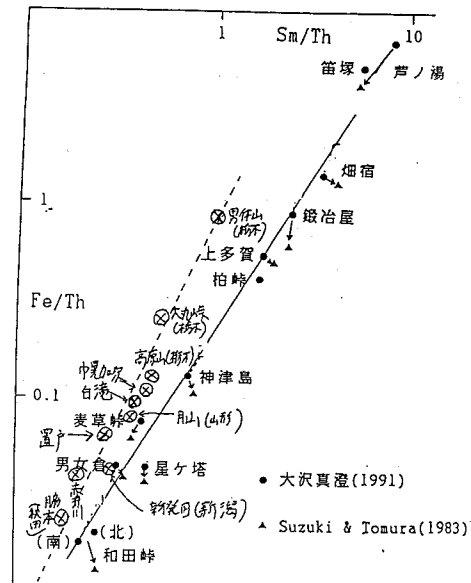


Fig. 1 Fe/Th-Sm/Th plot identifying origin of obsidians

識別された。化学組成が畑宿のもの非常に類似しているため、産地は畑宿付近と推定されるが、未だ確定されていない。Fe/Th-Sm/Th 法以外の判別法により、畑宿群がさらに細分化出来るか放射化分析のデータを再検討する必要がある。

BBⅢ層の黒曜石は放射化分析で全て畑宿産と推定された。従来の肉眼による識別結果は柏峠であり、これとは矛盾するが、この層の黒曜石の産地が畑宿か柏峠のいずれかに集中していることは注目に値しよう。これに対して、BBⅤ層は畑宿と柏峠、神津島、信州系と産地は多様であり、FB層は柏峠が殆どであるが、畑宿と信州系も混じっていた。

Table 1 Typical Results of Chemical Compositions of Archaeological Obsidians and Their Origins ( ppm excepting % for Fe )

試料番号	Sc	Fe	Rb	La	Ce	Sm	Hf	Th	U	産地 (蛍光X線)
1	13.2	2.30	19.5	7.50	17.4	5.82	3.75	1.07		畑宿 (畑宿)
2	10.3	1.91	39.7	12.0	26.7	7.30	6.39	3.38	1.26	柏峠 (柏峠)
3	9.68	1.90	34.3	10.8	24.5	6.90	5.95	2.76	0.51	柏峠 (柏峠)
4	3.06	0.63	141	14.2	38.2	5.70	3.29	9.40	2.55	霧が峰 (霧が峰)
5	2.92	0.60	136	13.1	27.2	6.43	3.13	8.96	3.04	霧が峰 (霧が峰)
6	3.20	0.70	55.5	17.5	28.9	4.22	1.94	3.88	1.52	神津島 (神津島)
8	2.18	0.87	97.3	20.7	36.5	5.06	3.46	7.43	1.65	麦草峠 (麦草峠)
12	3.63	0.75	62.9	18.4	32.1	4.73	2.34	4.69	0.93	神津島 (神津島)
14	14.5	2.11	20.8	7.66	19.7	7.77	4.13	1.24	0.29	畑宿 (箱根A)
15	15.2	2.12	23.4	8.37	20.1	6.85	4.68	1.42		畑宿 (箱根A)
18	14.4	2.00	21.4	7.43	18.5	6.00	4.30	1.25	0.37	畑宿 (箱根A)
19	14.2	2.06	3.61	6.84	20.6	6.66	4.40	1.32	0.27	畑宿 (箱根B)
20	14.0	2.23	10.3	8.13	19.4	6.50	4.53	1.48	0.08	畑宿 (箱根B)
21	14.3	2.49	15.9	7.48	18.1	7.02	3.89	0.97	0.37	畑宿
22	16.2	2.79	22.2	8.27	19.5	6.91	4.55	1.49	0.19	畑宿
24	15.1	2.43	3.23	6.93	20.5	6.48	4.49	1.20	0.15	畑宿
40	15.5	2.44	23.0	8.44	18.4	5.19	4.95	1.03	0.38	畑宿
41	8.77	1.70	49.4	12.4	28.0	8.48	6.15	3.26	0.93	柏峠
42	3.12	0.62	149	15.4	29.1	6.52	3.44	10.3	2.22	霧が峰
44	3.03	0.59	133	14.9	32.1	4.57	3.73	9.55	2.23	霧が峰
53	2.31	0.85	102	22.4	40.0	4.93	3.27	8.36	1.40	麦草峠
59	7.42	1.65	37.8	9.87	20.8	6.28	5.03	2.54	0.90	柏峠
60	9.02	1.65	45.6	11.9	24.6	5.17	6.23	2.78	0.75	柏峠

Source Identification of Archaeological Obsidian Samples Excavated from DOTBUE Relics in Numazu City by Instrumental Neutron Activation Analysis.

kenji TOMURA, Satoshi KOSHIMIZU, Nobuyuki IKEYA and Akihiko MOCHIZUKI (Institute for Atomic Energy, Rikkyo University, Cultural Properties Center of Numazu City, Numazu College of Technology)

Archaeological obsidians were analyzed by INAA for their origin identification.

## 古代ガラスの原子炉中性子即発ガンマ線分析

(慶大文、金沢大文\*<sup>1</sup>、原研東海\*<sup>2</sup>、東大原総セ\*<sup>3</sup>、東大理\*<sup>4</sup>)○富沢 威、佐々木達夫\*<sup>1</sup>、米沢仲四郎\*<sup>2</sup>、澤幡浩之\*<sup>3</sup>、  
葉袋佳孝\*<sup>4</sup>、富永 健\*<sup>4</sup>

## 1. はじめに

考古遺物は、人類の過去の歴史をひもとくうえで、基本となる資料である。ガラスの分析では、ガラスが貴重な資料であることや、形状そのものが情報としての価値をもつことから、一部の試料をも採取しない完全な非破壊分析法が望まれている。また、試料の分取が可能である場合でも、基本的には取り扱いは制約され、可能な限り微量での分析が行われるという点にその特徴がある。完全非破壊で分析できる即発ガンマ線分析は、試料の破壊が許されない考古遺物の分析では、きわめて有効な手法である。本報では、原子炉中性子即発ガンマ線分析の応用研究の一例として、古代のガラス玉の主成分、および微量元素の定量を行った。

## 2. 実験

## (1) 分析試料

主にわが国の遺跡で出土したガラス玉の分析を行った。愛野向山遺跡（弥生時代後期、静岡県袋井市）や新保田中村前遺跡（弥生時代中期～古墳時代前期、群馬県高崎市新保田中町）で出土したガラス玉や、大峯山寺本堂跡（平安時代、奈良県吉野郡天川村）で出土した経軸の飾りや容器の破片の分析を行った。ガラス玉の色は、紺色、緑色、青色、褐色、黄色、無色と多様である。大きさは、直径が3mm程度（小玉）と直径が7mm程度（中玉）の2種類である。試料重量は、およそ10～800mg程度である。

## (2) 即発ガンマ線分析

中性子ビームを試料に照射し、発生する即発ガンマ線を分析した。試料はFEPフィルム（25μm厚）に封入し、テフロン製の紐でテフロン製の試料箱に保持した。空気からの即発ガンマ線を抑えるために、試料箱をHeガスで充填しながら中性子を照射した。中性子の照射は、日本原子力研究所東海研究所のJRR-3Mの冷中性子ガイドビーム（冷中性子束： $1.1 \times 10^8 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ ）と熱中性子ガイドビーム（熱中性子束： $1.4 \times 10^7 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ ）を用いた。即発ガンマ線スペクトルの測定は、高エネルギーγ線に対して検出効率が高いGe-BGO（ $\text{Bi}_4\text{Ge}_4\text{O}_{12}$ ）検出器を用いた同時及び反同時モードと、Ge検出器を用いたシングルモードで同時計測した。γ線スペクトルの測定は、1000-50000秒間行った。

## 3. 結果と考察

即発ガンマ線分析を行った試料について、さらに中性子放射化分析で定量しその結果を比較検討した。古代のガラス玉の分析では、即発ガンマ線分析法による定量値

とみざわたけし、ささきたつお、よねざわちゅうしろう、さわはたひろゆき、  
みないよしたか、とみながたけし



と中性子放射化分析の結果は、概して良い一致を示している。

表1に、即発ガンマ線分析で求めた古代ガラス玉の定量値を示す。アルカリ成分には明白な相違が認められた。

ガラスのアルカリ原料には、Na、Kの両者があるが、一般にNa—K間には負の、Na—Cl間には正の相関がみられる。アルカリ成分の相違は、原料の供給源の違いを示すものであり、Naに富むガラスはClに富むことから原料としてNaClが、Kの供給源には植物灰が考えられる。即発ガンマ線分析は、中性子放射化分析では分析が困難なB、Si、Pなどについて高感度で分析できる特徴をもっている。Bは、製作年代や産地が異なるとその含有量に差異が認められる。

これらのことから、即発ガンマ線分析法は、考古学試料の原材料や産地の推察、並びに製造技術の変遷の歴史などを解明する際に期待できる分析法の1つであると言えるだろう。

表1 即発ガンマ線分析による定量結果

試料	1	2
遺跡名称	森下遺跡	大峯山寺跡
出土地	群馬県	奈良県
時代	古墳時代	平安時代
形状	小玉破片	破片
色調	緑色・透明	緑色・透明
組成	珪酸石灰ガラス	鉛ガラス
重量	32.2(mg)	20.5(mg)
SiO <sub>2</sub> (%)	59	41
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	6.4	0.40
Na <sub>2</sub> O	19	0.31
K <sub>2</sub> O	1.8	12
CaO	n.d.	1.1
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.65	n.d.
Cl(ppm)	4600	260

n.d.: 検出限界以下で定量できない。

#### REACTOR NEUTRON INDUCED PROMPT GAMMA-RAY ANALYSIS OF ANCIENT GLASSES

Takeshi TOMIZAWA, Faculty of Literature, Keio University

Tatsuo SASAKI, Faculty of Letters, the University of Kanazawa

Chushiro YONEZAWA, Japan Atomic Energy Research Institute

Hiroyuki SAWAHATA, Research Center for Nuclear Science and Technology, the University of Tokyo

Yoshitaka MINAI, and Takeshi TOMINAGA, School of Science, the University of Tokyo

Reactor neutron induced prompt gamma-ray analysis can be successfully applied to ancient glass beads because of its ability of rapid non-destructive simultaneous multielement analysis. The analysis of samples provides a clue to estimate provenance, raw materials, and manufacturing procedures. Based on the contents of B, Cl, Si, K, Na, Pb and Ba, ancient Japanese glass beads could be characterized.

即発 $\gamma$ 線分析による隕石試料の分析 (II)

(1都立大理・2原研・3東大原総セ)

海老原充<sup>1</sup>・○尾崎大真<sup>1</sup>・中原弘道<sup>1</sup>・米沢仲四郎<sup>2</sup>・澤幡浩之<sup>3</sup>

## [はじめに]

即発 $\gamma$ 線分析 (PGA) は溶解等による試料の破壊を伴わず、また中性子照射によって生成する誘導放射能も中性子放射化分析と比べて極めて小さいことから分析後の試料の再利用が可能であり、隕石試料などのような稀少試料の分析法としては好都合の分析法である。従来よりPGA法を隕石試料に対するルーチン分析法とすべく、検討を重ねてきた。その結果、PGAは機器中性子放射化分析 (INAA) に比べて定量可能な元素数は少ないものの多元素同時分析が可能であること、その中にはINAA法での分析が容易でない元素を数元素含みこれらの元素を比較的感度よく分析できること、等の特徴を明らかにした。この後者の特徴のうち、特にホウ素の分析に関しては昨年度のこの討論会において報告した。本研究ではホウ素と並んでPGAが得意とする水素に注目し、その定量法について検討・考察を加えた。また、ホウ素の宇宙化学的挙動を考察する上で重要視される元素であるイオウの分析にも注目した。さらに、このような結果を踏まえつつ、隕石のルーチン分析の実現をめざした。

## [実験]

実験は日本原子力研究所3号炉 (JRR-3M) に設置された中性子ビームガイドを利用して行った。本研究では特に水素の定量に関して検討を行った。標準岩石試料JB-1、JG-1を用いて次の5つの条件で前処理を施し、FEP製試料袋に封入して水素の定量をおこなった：(i)試料瓶中に密閉保存、(ii)室内に開放系で放置 (2日)、(iii)デシケータ中に放置 (2日)、(iv)50°Cで乾燥 (半日)、(v)110°Cで乾燥 (半日)。元素の定量にあたっては、水素、ホウ素、イオウについてはシュウ酸、ホウ酸、硫酸バリウムの試薬を標準試料として用い、他の元素についてはJB-1とAllende隕石標準試料 (米国スミソニアン博物館調製) を用いた。測定時期ごとの中性子束の変動はチタン箔を同一条件で測定することによりモニターし、必要により計算過程で補正を施した。

## [結果・考察]

岩石中の水素はそのほとんどが $H_2O$ 及びOH基の形で存在するものと考えられ、湿式分析で得られる $H_2O$ に対応する。この中でいわゆる $H_2O(-)$ として表される吸着水は試料の調製法 (前処理) によって変動する可能性がある。上記の5つの条件で調製した試料中の水素の定量結果を図に示す。図から明らかなように、JB-1では試料の調製条件と水素の定量値との間には相関が認められるが、JG-1では必ずしもそのような相関は認められない。文献によれば、JG-1の全水に対する吸着水の割合はJB-1に比べて小さく (13% vs. 48%)、またJG-1の全水の含有量がJB-1に比べて約1/4程度と小さいことから、JG-1においてはJB-1に比べてかなり小さい変動しか期待されない。図のJG-1の変動は恐らく水素の定量における再現性を示しているものと解釈される。

表はPGAによって得られた炭素質コンドライトの分析結果の一部である。ここに示さ

れている4元素はINAAでは通常定量できない元素である。これら4元素以外に、12元素(Na、Mg、Al、Si、K、Ca、Ti、Cr、Mn、Fe、Co、Ni)の元素の定量が可能であった。表のブランク値は試料を封入するFEPの空袋を用いて測定された $\gamma$ 線強度から求めたものであるが、分析操作に伴うものと解される。図で示したJB-1、JG-1の値はこのブランクを補正したものであるが、JG-1の分析値の変動はこのブランクの変動にも起因するものと考えられる。

これまでの結果から、PGAを隕石のルーチン分析に取り入れることは大変有効であることがわかった。これを踏まえて、今後の隕石の元素分析においては、PGA→INAA→RNAA and/or ICP-MSの流れに従って実施する計画である。

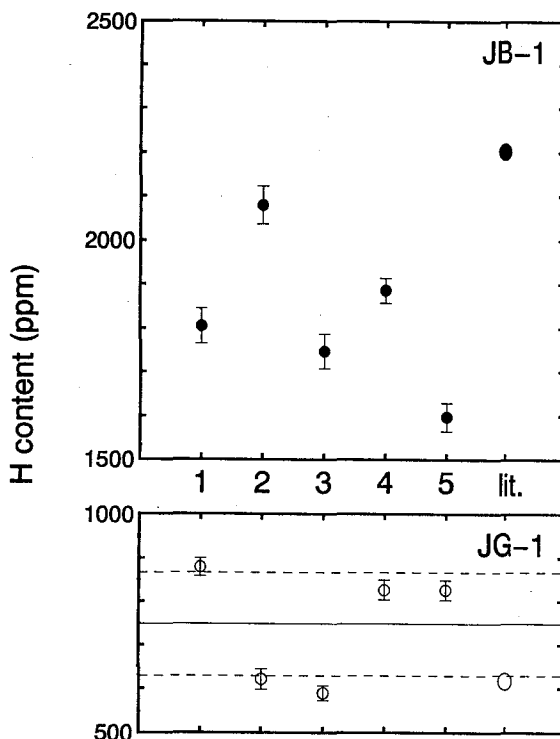


Fig. 1 Variation of H contents for geological standard rocks, JB-1 and JG-1 treated under the different conditions (1: stored in a closed vial, 2: left in the air (2 days), 3: stored in a desiccator (2 days), 4: dried at 50°C (13 h), 5: dried at 110°C (13 h)).

Table. Analytical results \* of H, B, S and Cl for carbonaceous chondrites.

sample	H(%)	B(ppm)	S(%)	Cl(ppm)
Orgueil	2.79 ± 0.04**	2.43 ± 0.04	5.08 ± 0.14	1036 ± 54
Ivuna	2.83 ± 0.04	6.78 ± 0.18	5.41 ± 0.16	1169 ± 74
Murchison	1.88 ± 0.03	6.10 ± 0.08	2.57 ± 0.08	588 ± 35
Murray	1.97 ± 0.03	44.3 ± 0.3	2.34 ± 0.08	277 ± 23
Allende	0.022 ± 0.003	1.06 ± 0.24	1.89 ± 0.05	523 ± 28
blank	41.3 μg	26.1 ng	---	3.53 μg

\* blank-corrected.

\*\* due to counting statistics (1σ)

#### PROMPT GAMMA-RAY ANALYSIS FOR METEORITIC SAMPLES (II)

Mitsuru EBIHARA<sup>1</sup>, Hiromasa OZAKI<sup>1</sup>, Hiromichi NAKAHARA<sup>1</sup>, Chusiro YONEZAWA<sup>2</sup> and Hiroyuki SAWATARI<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, <sup>2</sup>Japan Atomic Energy Research Institute, <sup>3</sup>Center of Research for Nuclear Science and Technology, University of Tokyo

Applicability of prompt gamma-ray analysis (PGA) to meteoritic samples was continuously examined. Hydrogen was reliably determined when its content exceeds the blank level of 50 μg. In addition to hydrogen, 15 other elements were determined. Thus, it was concluded that PGA could be used as a routine analytical method for meteorites.

## 環境標準試料作成のためのクスノキ葉の分析

(神奈川大理・立教大原研) ○福本健志・河村正一・戸村健児・藤原鎮男

【緒言】近年の環境問題に対する関心の高まりに伴い、さまざまな環境試料の分析が行なわれている。一般に、環境試料の組成は複雑であり、目的成分が低濃度であるため測定には種々の困難を伴う。そのため得られた分析値が妥当かどうか確認するために標準試料を用い、測定システムの評価を行なう必要がある。植物標準試料は関係方面で調製されているが、消耗品であるために新たな試料の検討を行わなければならない。そこで日本で大量入手が可能であるクスノキを選び、植物標準試料としての可能性を検討するため、機器中性子放射化分析(INAA)を行った。

【実験】各地から採取したクスノキ葉を洗浄、乾燥し、アルミナボールミルを用いて粉碎を行った。150 $\mu$ mのふるいを通じた粉末を、五酸化リンを入れたデシケーター中で、120時間乾燥し、これを試料とした。INAAに際しては、試料の約300mgを精秤し、ポリエチレン袋に二重封入して照射試料とした。照射は立教大学研究用原子炉(TRIGA-II型)で行った。短時間照射では、RSR孔(熱中性子束密度 $5.0 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ )で5分間照射、2分間冷却後300秒間 $\gamma$ 線測定し、 $^{27}\text{Mg}$ ,  $^{52}\text{V}$ を定量した。さらに5分間冷却後1000秒間測定を行い、 $^{80}\text{Br}$ ,  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{38}\text{Cl}$ ,  $^{47}\text{Ca}$ ,  $^{56}\text{Mn}$ を定量した。長時間照射ではRSR孔で24時間照射、1~2日間冷却後、2000秒間 $\gamma$ 線測定し、 $^{82}\text{Br}$ ,  $^{47}\text{Ca}$ ,  $^{42}\text{K}$ ,  $^{140}\text{La}$ ,  $^{153}\text{Sm}$ を定量した。さらに20~30日間冷却後3000秒間測定し、 $^{60}\text{Co}$ ,  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{59}\text{Fe}$ ,  $^{86}\text{Rb}$ ,  $^{46}\text{Sc}$ ,  $^{169}\text{Yb}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ を定量した。

【結果および考察】Table 1にNIST 1547 Peach Leavesの18元素の定量結果を示す。得られた定量値は相対標準偏差10%以内で求められ、保証値とよく一致した。一部元素(Cu, Sr, Ti)については、生成核種からの $\gamma$ 線が微弱で、他の核種のピークの影響を受けて定量が行えなかった。Table 2にクスノキ葉の測定結果を示す。各地から採取したクスノキ葉のCo, K, Rb, Znの定量値のばらつきは少なかった。また他の植物標準試料と比較した場合、K, Naの含有量が高く、La, Eu, Smの含有量が低い傾向が見られた。

Table 1 Result for NIST 1547 Peach Leaves by INAA

Element	n	Peach Leaves	
		This Work	Certified Value
Br, $\mu\text{g}$	4	10.9 $\pm$ 1.4	(11)
Ca, %	5	1.57 $\pm$ 0.10	1.56 $\pm$ 0.02
Cl, $\mu\text{g}$	5	363 $\pm$ 18	360 $\pm$ 19
Co, $\mu\text{g}$	4	0.07 $\pm$ 0.02	(0.07)
Cr, $\mu\text{g}$	5	1.01 $\pm$ 0.11	(1)
Eu, $\mu\text{g}$	5	0.21 $\pm$ 0.05	(0.17)
Fe, $\mu\text{g}$	5	220 $\pm$ 11	(225)
K, %	5	2.40 $\pm$ 0.08	2.43 $\pm$ 0.03
La, $\mu\text{g}$	4	8.98 $\pm$ 0.80	(9)
Mg, %	5	0.439 $\pm$ 0.026	0.432 $\pm$ 0.008
Mn, $\mu\text{g}$	4	95.8 $\pm$ 1.9	98 $\pm$ 3
Na, $\mu\text{g}$	4	28.4 $\pm$ 3.0	24 $\pm$ 2
Rb, $\mu\text{g}$	5	18.7 $\pm$ 1.1	(19)
Sc, $\mu\text{g}$	5	0.039 $\pm$ 0.001	(0.04)
Sm, $\mu\text{g}$	5	1.33 $\pm$ 0.07	(1)
V, $\mu\text{g}$	4	0.38 $\pm$ 0.06	0.37 $\pm$ 0.03
Yb, $\mu\text{g}$	4	0.21 $\pm$ 0.02	(0.2)
Zn, $\mu\text{g}$	4	15.0 $\pm$ 1.0	17.9 $\pm$ 0.4

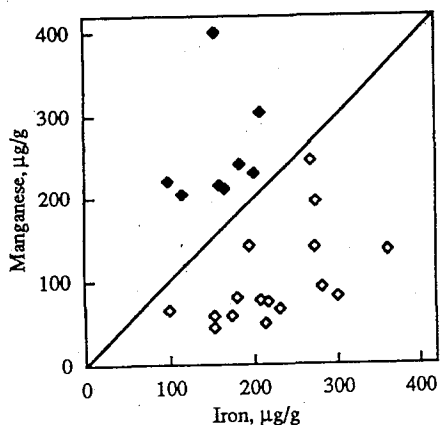


Fig.1 Relationship between Iron content and Manganese content in Camphor Leaves

Fig.1にFeとMnの元素含量の関係を示す。通常のクスノキ葉はFe > Mnの関係である(◇印)。しかし、交通量の激しい国道の側など汚染度が高い場所に生育しているクスノキ葉はMn > Feと逆転の傾向がみられた(◆印)。

この傾向が交通機関から排出される排ガスと関連性があるかは明らかではない。このような地域を除いたとしても、クスノキは太平洋岸に広く分布しており、大量入手が容易である。このため、比較的汚染の少ない場所で生育しているクスノキ葉で試料調製を行えば、植物標準試料として適用できる可能性がある。今後、さらに測定地域を拡げ、試料数を増やして検討したいと考えている。

Table 2 Result for Camphor Leaves by INAA

Element	n	Average	Min	Max	Standard Deviation
Br, µg	34	5.48	1.14	13.8	3.10
Ca, %	27	1.59	0.64	2.20	0.40
Cl, µg	25	493	91	1130	300
Co, µg	37	0.077	0.028	0.160	0.027
Cr, µg	23	0.91	0.31	2.14	0.50
Eu, µg	19	0.018	0.003	0.059	0.017
Fe, µg	35	190	95	372	73.0
K, %	25	8.30	5.45	10.0	2.11
La, µg	25	0.192	0.054	0.731	0.140
Mg, %	19	0.252	0.124	0.542	0.116
Mn, µg	22	190	48	522	127
Na, µg	30	158	31	367	109
Rb, µg	22	6.62	1.8	14.1	3.37
Sc, µg	33	0.038	0.012	0.100	0.020
Sm, µg	25	0.056	0.009	0.295	0.067
V, µg	34	0.515	0.11	1.40	0.350
Yb, µg	18	0.329	0.062	1.09	0.357
Zn, µg	26	18.5	10.5	28.5	4.27

## INAA OF CAMPHOR LEAVES CANDIDATE REFERENCE MATERIALS

Takeshi FUKUMOTO, Shoichi KAWAMURA and Shizuo FUJIWARA, Faculty of Science, Kanagawa University

Kenji TOMURA, Institute for Atomic Energy, Rikkyou University

Camphor Leaves were neutron irradiated in TRIGA MARK II ( $5.0 \times 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ) for 5 min and 24 h, and the contents of 18 elements were determined. The observed contents of the NIST Peach Leaves were in agreement with their respective certified value. In ordinary Camphor Leaves, the ratios of Fe content to Mn content tend to be greater than unity. However, in heavy traffic area this tendency was reversed.

## 中国色龍(セイロン)堆積物における ペルム紀—三疊紀(P-Tr)境界層の放射化分析 (金沢大理, 中国科学院)○宮本ユタカ, 坂本 浩, 吳 明清

【序】 地球史46億年の中で最近の5億6千万年前の顕生代(古生、中生、新生代)はその名の示すように豊富な生物化石の出現で特徴づけられるが、この間に生物種の絶滅と新種の発生という種の交替があり、中でも古生代—中生代を画するペルム紀—三疊紀の境界(P-Tr境界:2億3千万年前)は、地球規模の最大の絶滅を示す。また、中生代—新生代の境界に当たる白亜紀(K)—第三紀(T)境界(6500万年)は恐竜の大絶滅として良く知られている。この他にも多数の生物種の交替が繰り返されているが、それぞれの種が適応した環境変動、あるいは進化の極限に起因しているであろう。この源となった事件としては地球内因・外因の諸説が提唱されているが万人を納得させるまでには至っていない。Alvarezら<sup>(1)</sup>による世界各地の境界層におけるIrの濃集の発見が鍵となった隕石衝突説は衝撃的な内容で最近ではそれを裏付ける地球化学的な証拠<sup>(2)</sup>も見いだされ、一方、追認の化学的、鉱物学的証拠が各地のK-T層でも見つかっているが異論もあり、初めて本格的科学論争が始まった。

一方、P-Tr境界層では研究例は多くはないがIr異常が報告されたこともあるものの<sup>(3)</sup>、大規模な火山噴火や海面の変動などが理由ではないかとされている。そこで特にP-Tr地層の保存で良いとされている中国チベット地方から採取したP-Tr境界をはさむ石灰層試料について、機器中性子放射化分析(INAA)及びICP-MSで25元素を定量し、またX線回折で鉱物分析を行ってその変化の様子を調べた。その結果からP-Tr境界で起こった地球上の変化について、更にIrに注目した隕石衝突の可能性についても検討した。

【実験】 試料は中国科学院南京地質古生物学研究所のグループが、中国チベット地方、色龍(セイロン)地区のP-Tr境界層より採取の全30試料である。INAA照射は京大原子炉の水圧輸送管で行い、比較標準には地調発行の標準岩石JB-1とJA-1を、更に希土類元素(REE)については酸化物から調製した標準溶液を滴下・乾燥させて用いた。Al, Mg及びKはICP-MS(セイコー電子工業製 SPQ-8000)で定量した。試料はc, HNO<sub>3</sub>+c, HCl+HClO<sub>4</sub>+HF(各1ml, HFのみ2ml)の混酸と共に、テフロン製の密閉容器に入れて家庭用電子レンジ(180W)で加熱・分解(10min.)を行った。また、粉末X線

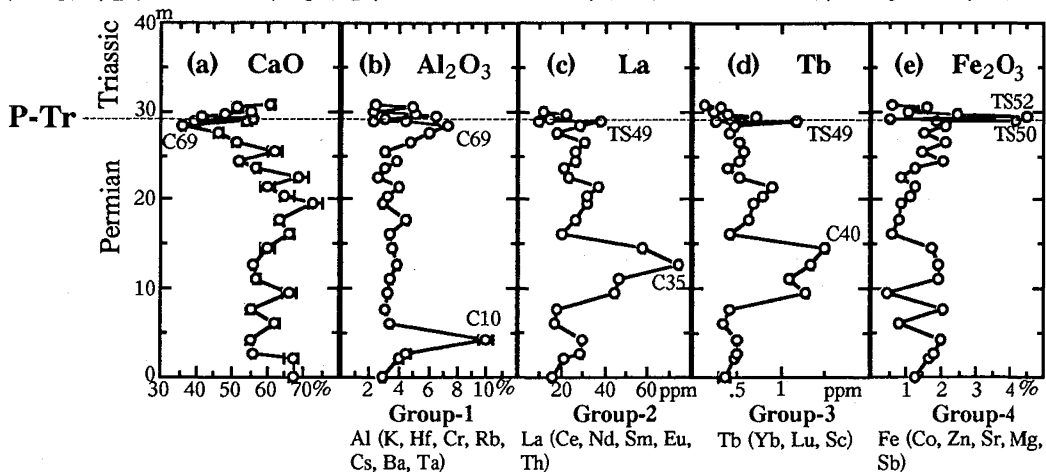


Fig. 1 Elemental abundance profiles for representative elements in Selongs, China. The relative depth was based on the deepest sample. The P-Tr boundary exists in a layer between TS49 and TS50.

回折装置(リガク製RINT1200)で各層に含まれている結晶相を同定した。

【結果と考察】 図1には代表的な元素について元素存在度の分布を示した。主成分元素の中でその大半を占めるCaは(a)で示すようにP-Tr境界付近ではその存在度が極端に下がった。それ以外の元素分布パターンから図1の(b)-(e)4つのいずれかに分類できる(括弧内)。どの元素も境界付近の層(C69, TS49, TS50)でピークを示し、更に各グループによって位置は異なるが、境界よりも約20m下の層でも示した。P-Tr境界付近の層に含まれる石灰石以外の結晶相は、グループ1の元素がピークを示す層(C69, C10)では粘土および石英、軽希土と重希土から成るグループ2, 3ではTS49は長石、C35, C40は石英、グループ4(TS50)ではドロマイト[(Ca, Mg)(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>]であった。特に、境界付近の層では含まれる鉱物の種類とその量が大きく変化した。

REEは軽希土と重希土では図1(c)と(d)からは判然としないが全体的な分布パターンに違いが見られた。図2にshale<sup>(4)</sup>で規格化したREEパターンを代表的な試料について示した。P-Tr境界に近いTS52, 50, 49, C69およびずっと下層のC40, C10はいずれも海底堆積物に特有なCeの負異常を示したがC35は示さない。また、いずれの試料もEu異常を示さない。REEピークの層の鉱物は長石が認められたがREE保持鉱物ではなからう。パターンは軽希土側に濃縮した形でその度合いはどれも同じであったが、境界層(TS49)のパターンのみが例外的にほぼ水平であった。C35及びTS49の層は、堆積するときの環境あるいは保持鉱物が他と異なっていたと考えられる。

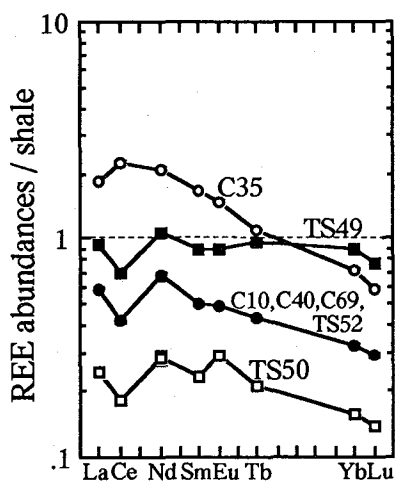


Fig.2 REE pattern of Selong sediments normalized to unweighted average of REE concentration of shales from North America, Europe and Russia<sup>(4)</sup>.

P-Tr境界より下の層においてもREEを中心に変化がみられたが、境界付近では全ての元素存在度、REEパターン、構成鉱物において特異的であった。これは、同地区で古生物(コノドント)の大部分が絶滅した層<sup>(5)</sup>ともほぼ一致する。この元素存在度などの特異性は絶滅時の環境を反映していると考えられるが、それはFeやCoなどの親鉄元素に限らないことと、これに加えて、境界付近の層の2M-HNO<sub>3</sub>不溶残さ中をINAAで分析したがIrは検出できるほど含まれていなかったことから、生物大量絶滅が隕石衝突によるものと考えにくい。従って、急激な地球上の変化(例えば、気温の上昇による氷河の融解や陸地の隆起)が起こり、それが大量絶滅につながったのではないかと考えられる。

- References: 1) L.W.Alvarez et al., Science, **208**, 1095-1108 (1980).  
 2) V.L.Sharpton et al., Science, **261**, 1564-1567 (1993).  
 3) W.T.Holser and M.Magaritz, G.C.A., **56**, 3297-3309 (1992).  
 4) M.A.Haskin and L.A.Haskin, Science, **154**, 507-509 (1966).  
 5) Y.Jianxin and L.Zishun, Xexue Tongbao, **32**, 1555-1560 (1987).

#### NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS OF PERMIAN-TRIASSIC(P-Tr) BOUNDARY LAYER IN SELONG, CHINA

Yutaka MIYAMOTO, Koh SAKAMOTO, Faculty of Science, Kanazawa University  
 Wu MINGQUING, Institute of Geochemistry Academia Sinica, China

The elemental abundances of Permian-Triassic boundary layer in China were determined by instrumental neutron activation analysis and ICP-MS. The elemental depth profiles had anomalies at P-Tr boundary, and REE pattern at the boundary normalized to shale was different from others.

The P-Tr boundary may be occurred by the changes of the terrestrial environmental conditions.

原子炉水中のFP稀ガス起源のRIを感度よく検出して炉の破損燃料検出法を開発する研究(第2報)

(立教大原研) ○松浦辰男・林 脩平・原沢 進・戸村健児

[はじめに]

われわれは、TRIGA型原子炉の一次冷却水中に窒素ガスを細かい泡として吹き込み、炉心部で生じて水中に溶け込んでいるFP起源の希ガスである $^{89}\text{Kr}$ (半減期3.18分)および $^{138}\text{Xe}$ (半減期14.1分)を効率的に追い出し、気体中に生じたそれぞれの娘核種である $^{89}\text{Rb}$ (半減期15.2分)および $^{138}\text{Cs}$ (半減期32.2分)を捕集しその放射能を感度よく検出することにより、炉の燃料の監視をルーチン的に行い、何らかの異常が発見された場合はその位置を迅速に見出す方法を開発する方法の研究に取り組んでいる。本報告ではどのような方法と条件で実施すれば最も能率的に目的が果たせるかについて、①これまでに報告したように窒素ガスを空気とともにダストサンプラーで吸引して濾紙上の放射能を測定する方法、②これを連続的に行う方法、③窒素ガスのみを洗気壺に連続的に導いてここの放射能を連続的に測定する方法、④窒素ガスの一定量をバッチ的にサンプリングして気体を水で洗い、その水中の放射能を測定する方法、などにより検討を行っているので、その結果を報告する。

[実験]

②および③に関する装置の概念図を図1および2に示す。窒素ガスの流速や吐出孔の深さの効果はこれまでの実験でわかったので、流速はすべて $0.5\text{ l/min}$ とし、吐出の位置は炉タンク内での中位の深さ(水面から約 $2.4\text{ m}$ )で実験を行った。

[結果]

これまでの実験でわかったことは次の通りである。

(1) ①の方式による実験の結果、窒素ガスの吐出孔を同じ深さで炉タンクの中心部におくよりも、タンク壁の近くのほうが放射能の検出効率が高いことがわかった。

(2) ②や③の連続的測定方式ではガス中に含まれる $^{41}\text{Ar}$ ( $1290\text{ keV}$ )がかなりの濃度で検出され、これが $^{89}\text{Rb}$ ( $1032\text{ keV}$ )の測定を妨害する。そのため $^{138}\text{Cs}$ ( $1436\text{ keV}$ )の測定が精度・感度ともに高い。

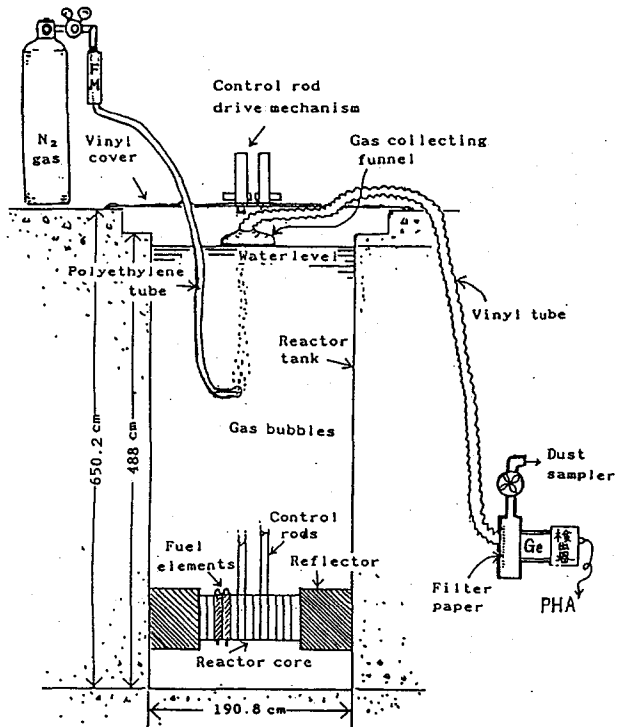


Fig. 1. Schematic setup of the continuous sampling-measuring method with the bubbling of a gas.



(3)  $^{138}\text{Cs}$  は  $^{138}\text{Xe}$  から生成するので、両者の半減期から計算して、前者の濃度の最大値はガスの採取後約45分であるはずである。これを確認するため、④の方式で窒素ガスを1ℓずつ試薬瓶に採取し、一定時間放置後水で気体を洗い、その水中の放射能を放置時間でプロットしたものが図3である。

(4) しかし、②の方式で炉水面から検出器までの空気の導管の長さを約倍にしみたが、 $^{138}\text{Cs}$  の濃度の有意の増加は認められなかった。これは、含まれる水蒸気が管の内壁に付着しここに  $^{138}\text{Cs}$  が一部吸着するためと思われる。

(5) また③の方式で気泡として導入した窒素ガスだけを採取直後に乾燥剤を通し、さらに22ℓのポリ瓶を導管中に挿入してガス採取から検出までの滞留時間を増やして洗气瓶に導き、この水中に現れる放射能を連続的に測定する方法も試みているが  $^{138}\text{Cs}$  の検出感度の増加は認められていない。

(6) 今後、最も確実に  $^{89}\text{Rb}$  と  $^{138}\text{Cs}$  の両方を高い感度で測定する方法として、④に準じた方式で、窒素ガスを炉水面で試薬瓶に採取し、これを一定の時間放置したものを水で洗い、水の放射能を測定する操作をできるだけ人力を省いて行うのがよいように思われる。

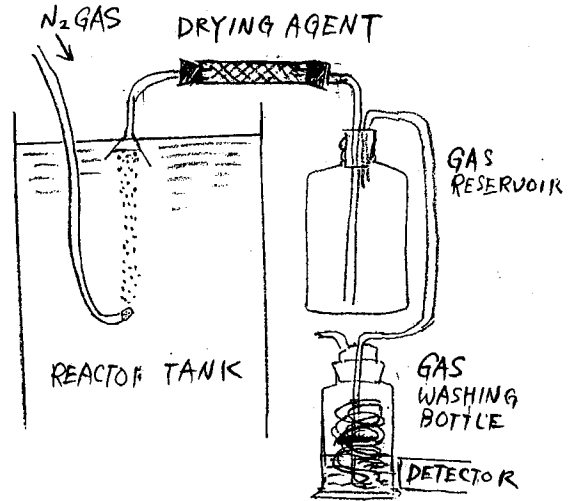


Fig. 2. Schematic setup of the new continuous method.

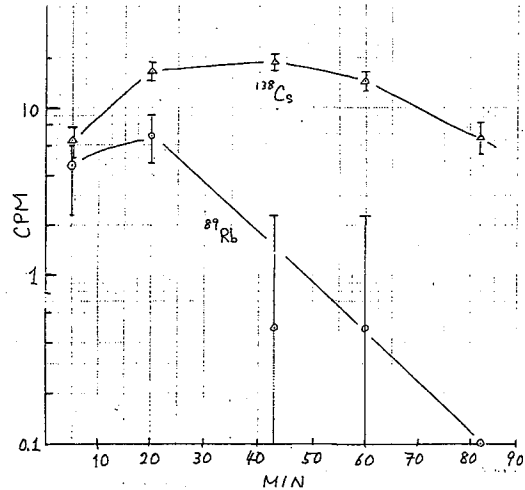


Fig. 3. Dependence of the concentration of radioactivities found in the washing water of 1ℓ of bubbling gas on the time elapsed after sampling.

STUDIES ON DEVELOPING A SENSITIVE FUEL FAILURE MONITORING DEVICE BY DETECTING THE DAUGHTER RADIONUCLIDES OF F.P.-ORIGINATING RARE GASES CONTAINED IN A COOLANT WATER  
Tatsuo MATSUURA, Shu A. HAYASHI, Susumu HARASAWA, and Kenji TOMURA, Institute for Atomic Energy, Rikkyo University

Studies are now being made for developing a routine fuel-monitoring device by sensitively measuring  $^{89}\text{Rb}$  and  $^{138}\text{Cs}$ , the daughters of FP-originating rare gases, which are effectively purged by passing nitrogen gas bubbles into a reactor coolant water. Our present conclusion is that the most effective method may be the sampling of the purging gas into bottles, washing the gas with water, and measuring the radioactivity after standing for a definite time; this procedure should preferably be done as automatically as possible.

