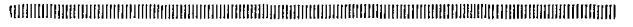


# A 会 場





## Ge(Li)および電算機を使用した放射化分析

1A1

東芝中研 藤井 勲, 井上多門, 武藤治夫, 小野寺浩一  
NAIG 総合研 谷 彰

中性子発生装置から得られる速中性子を利用した酸素の放射化分析については数多くの研究が行なわれ、各種の物質中の酸素の非破壊、迅速定量が可能となった。

そこで、この研究においては、酸素以外の各種の元素について、速中性子放射化分析法による非破壊、迅速定量の可能性の検討を行なった。この場合の主な問題点は、1回の実験により得られるデータの量が非常に多いこと、および通常の $\gamma$ 線検出器の分解能が低いことの2点であった。これらの問題点は電算機によるデータ処理および高分解能のGe(Li)検出器の採用により、事実上解決された。

### 実験

使用した中性子発生装置は、最高200kVにより加速した重陽子をトリチウムターゲットに衝突させ、14MeV中性子を発生させるもので、中性子出力は最高 $5 \times 10^{10}$  n/secである。試料は400秒間中性子衝撃を行ない、10秒間冷却後、Ge(Li)検出器(22cc)と800チャンネル波高分析器を用いて500秒間 $\gamma$ 線スペクトルを測定した。各種の元素に対して、放射化分析法の適用の可能性を調べるため、純粋な元素または化合物を $12\phi \times 10$  mmの大きさにポリエチレン製ラビットケースに封入して試料とした。試料の中性子衝撃中の中性子出力の変動を知るため、T-D反応の際に放出される $\alpha$ 粒子をシリコン表面障壁形検出器で測定し、そのパルスを200チャンネル波高分析機のマルチスケーラーモードにより、1チャンネル当たり2秒間ずつ記録した。実験に使用した中性子出力は、試料の生成放射能の大小に応じて、 $10^9 \sim 10^{10}$  n/secの間を適宜採用した。中性子発生装置のターゲット領域とGe(Li)検出器との間を試料を移送するため気送管を使用した。試料移送用送風機の始動および停止、中性子発生装置のビームシャッターの開閉、マルチチャンネル波高分析機の測定開始などを所定の順序に従って制御するため、タイマーおよびリレーを用いた制御回路を使用した。

### データ処理

800チャンネルの $\gamma$ 線スペクトルにつき、スペクトルの平滑化、バックグラウンドの除去およびピークの検出を行ない、200チャンネルの中性子出力変動のデータから、各核反応に対応した壊変定数を用いて規格化係数を求め、さらに各ピークの面積を対応する規格化係数で割って、規格化されたピーク面積を求めた。これらの計算は演者らの一人が開発したプログラムを使用し、電算機(GE-635)により行なった。

### 結果

各試料の $\gamma$ 線スペクトルから、標準的な条件に規格化された各ピーク的面積を求めた。規格化の標準的な条件としては、中性子出力 $5 \times 10^{10}$  n/sec、衝撃時間400秒、冷却時間10秒、測定時間500秒を採用した。規格化されたピーク面積10カウントを検出下限と考え、このビ

ーク面積を与えるべき各元素の重量を求めた。得られた結果を検出下限によって三つのグループに分けると次のようになった。検出下限  $10\mu\text{g}$  以下の元素は Cu, Ga, Rb, Ag, Sb, Ba, Ce, Pr, 検出下限  $10\sim 100\mu\text{g}$  の元素は N, F, Na, Al, Si, P, K, Sc, V, Cr, Mn, Zn, As, Se, Br, Sr, Y, Zr, Mo, Re, Cd, Sn, Nd, Hf, また検出下限  $100\sim 1,000\mu\text{g}$  の元素は Mg, Cl, Fe, Co, Ni, Nb, In, I, Cs, Eu, Gd, Au であった。Ce, Pr, Nd, Eu 以外の希土類元素および Li, B, C, S, Ca, Bi の諸元素は放射化分析に利用し得るような顕著な光電ピークを示さなかった。なお、ここにあげてない元素は、生成放射性核種の同定が終了していない元素および不活性ガス元素のように試料の作製が困難なため、放射化を試みてない元素である。

#### 考察

Ge(Li) 検出器の使用と電算機によるデータ処理により、44 元素の速中性子放射化分析法の検出下限を求めた。ここに得られた検出下限は理想的条件における検出下限で、実際の試料の場合は、その組成によっては、この検出下限から大分かけはなれたものになることも、当然考えられる。速中性子により生成される放射性核種には  $\beta^+$  放射体が多いが、 $\beta^+$  のみを放出する核種は消滅  $r$  線のエネルギーが等しいため、相互に区別することはできない。このような場合は壊変曲線の解析が必要である。実験に使用した Ge(Li) 検出系では、全計数率が約 5,000 cps を越えると、ピーク面積と放射能強度との直線関係がくずれ始めた。これは、全計数率が増大すると、観測されるピークがかなり幅広くなり、またピーク以外のバックグラウンドの部分も形状が変わってくるためか、または、Ge(Li) 用増幅器またはマルチチャンネル波高分析機の分解時間のためと思われる。この実験においては、電算機はオフラインで使用したが、迅速分析法の特長を充分に発揮させるためには、オンラインにしてデータ処理に要する時間を短かくする必要がある。

東芝中研 井上多門

複雑な $\gamma$ 線スペクトルを処理して未知のピークのエネルギーおよび強度を自動的に決定する電子計算機による方法を開発した。この方法はGe(Li)検出器から得られるアウトプットデータに対して用いられ、良好な結果を得ることができた。応用例の一つである熱中性子捕獲 $\gamma$ 線スペクトルは4096チャンネル波高分析器の出力において200~400本のピークを含むものであるが、IBM-7094計算機を用いた場合2分程度の計算時間で処理することができた。

解析の第一段階はスペクトル $f(E)$ をエネルギー-周波数の空間にフーリエ変換することである。すなわち

$$F(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} f(E) \exp(-i\omega E) dE$$

ここで $\omega$ はradian/unit energyの単位で表わされることになるが、波高分析器の出力として表わされるスペクトル $f(E)$ では実際的にはradian/channelとなる。F( $\omega$ )の分布はスペクトルの情報を含む成分S( $\omega$ )とノイズの成分N( $\omega$ )との二つの成分の和として表わされる。ノイズの成分はノイズがチャンネルごとに独立な変化の結果として起るものであるので、比較的高い $\omega$ の領域にまで広がっているのに対し、スペクトルのピークは一般に数チャンネルにわたるものであるので、比較的小きな $\omega$ の成分だけしか含まない。したがって $\omega$ の高い成分を切断すれば(後に示す例では $\omega > 2$  rad/channel)その後とのエネルギーの空間に逆変換することにより、もとのスペクトルの平滑化されたものが得られる。

次にバックグラウンドは上に述べた方法で平滑化されたスペクトルから極小値を結ぶことによって決められる。この場合多重項を形成する場合を除くために極小値間を結ぶ線分の勾配に対して制限を設けてある。このようにして決められたバックグラウンドは平滑化されたスペクトルから除去されてスペクトルのピークを含む函数 $g(E)$ を得ることができ、理想的な場合には $g(E)$ は

$$g(E) = \int_{-\infty}^{\infty} j(E') h(E-E') dE'$$

として表わされる。ここで $j(E)$ は入射 $\gamma$ 線の分布(エネルギーについての $\delta$ 函数の和)であり、また $h(E)$ は検出器の応答函数である。これをフーリエ変換すれば

$$G(\omega) = J(\omega) \cdot H(\omega)$$

の関係を得る。H( $\omega$ )は実験的に知ることができ、から

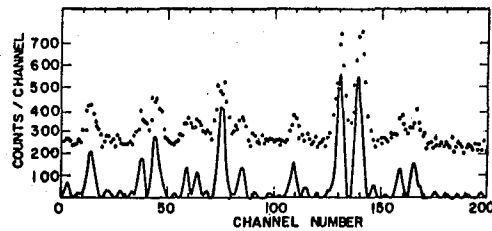
$$j(E) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} [G(\omega)/H(\omega)] \exp(i\omega E) d\omega$$

となり原理的には $j(E)$ が知られることになる。しかしながら実際にはG( $\omega$ )はある

程度のノイズを含み、 $H(\omega)$  は実験誤差を含み、またある程度の情報は平滑化により失われるので厳密にこの操作を行なうことはできないが、ここで示したステップを行なえばかなりの分解能の増大をもたらすことが可能である。この方法による分解能の増大はデータの統計的変動に大きく依存するが、数千カウント/チャンネル程度の計数率があれば3倍程度向上させることができる。我々の熱中性子捕獲線スペクトルの代表的な場合ではこの値は1/3程度である。図にそのようなスペクトルの一部が点で示されており、実線でこの方法による処理の結果が示されている。

計算コードは以上述べた原理にもとづいて作られ、ピーク位置とその面積を決定する。ピークのエネルギーは既知の校正線から決定される。その他必要なすべての補正を行ない最終のアウトプットはピークエネルギー、ピーク位置、ピーク面積(計数値)ピーク巾(FWHM)等を含むものとなる。

同様な計算コードは14 MeV速中性子放射化分析のデータの処理にも用いているがGE-635計算機を用いて800チャンネルスペクトルの処理を一試料あたり8秒程度で行なうことが可能となった。



図

参考文献

T. Inouye and N. C. Rasmussen : *Trans. of the A N S.* 10, 38 (1967)  
 T. Inouye et al : *Trans. of the A N S.* 11, 415 (1968)

Ge(Li) 半導体検出器を利用した岩石中のスト  
ロンチウム、バリウムの放射化分析

(立大原研) 樋口英雄, 夕村健児, (東大理)  
宮橋宏, 小沼直樹, 浜口博

岩石中のストロンチウム、バリウムを迅速でしかも正確に定量するために簡単な化学操作とリチウムドリフト型ゲルマニウム半導体検出器の併用を検討した。本研究で用いた放射性核種は $^{86}\text{Sr}$  (9.86%),  $^{138}\text{Ba}$  (71.66%) より (2.8) 反応で生じた半減期 2.83 時間の $^{87\text{m}}\text{Sr}$  ならびに 82.9 分の $^{139}\text{Ba}$  である。

〔照射〕 硫酸塩岩石試料約 0.5gn を 228.9 $\mu\text{gSr}$  と 148.4 $\mu\text{gBa}$  とを濾紙に浸み込ませ、乾燥して作った標準試料と同一キャプセルに入れ、立教大学原子炉の F-24 照射孔 (熱中性子束:  $1.5 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ ) で約 1 時間照射した。

〔化学操作〕 照射試料を 30 分冷却し、22.9 mg Sr, 14.8 mg Ba 担体の入ったニッケルルツボに移し、過酸化ソーダ溶解を行う。水と少量の塩酸でメルトを溶かした後、アンモニア水を加え、生じた水酸化物沈殿を除去し、上澄液より、Ba, Sr を炭酸塩として沈澱させる。炭酸塩沈澱に 10ml の発煙硝酸を加え、氷で 10 分間冷却し硝酸塩として Sr, Ba を沈澱させる。この沈澱を 10ml の水に溶解し、アンモニア水ならびに 10%  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  を加え再び Sr, Ba を炭酸塩として沈澱させ、水で 2 回洗浄した後ポリエチレン製棒ヒンに移じガンマ線測定を行う。標準試料は濃塩酸に溶かした後、試料と同様の化学処理を行った。

〔ガンマ線スペクトロメトリー〕 使用した Ge(Li) 半導体検出器は、立大原子力研究所製で、その有効体積は 9.6 cc である。液体窒素で冷しながら 1080V のバイアス電圧の下で測定を行った。増中器として ORTEC/18A ならびに 410 型を、波高分析器は RCL の 400 チャンネルを用いた。 $^{57}\text{Co}$  の 122 keV ピークの分解能は約 3 keV であった。分析に用いた光電ピークは $^{87\text{m}}\text{Sr}$  の 388 keV ならびに $^{139}\text{Ba}$  の 166 keV である。

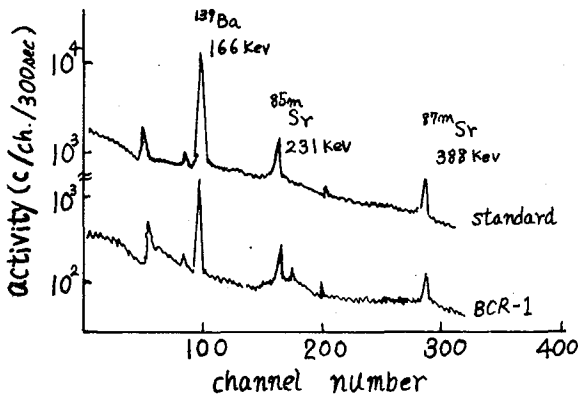
〔収率測定〕 化学分離して得られた (Sr+Ba)  $\text{CO}_3$  試料中の $^{87\text{m}}\text{Sr}$ ,  $^{139}\text{Ba}$  が完全に壊変した後 RSR-1 照射孔 (熱中性子束:  $5 \times 10^{10} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ ) で 5 分間試料を再放射化し、上記の光電ピークによって Sr と Ba の回収率を非破壊放射化法にて求めた。Sr と Ba の化学収率は通常約 70% であったが、それらの収率の間には差は見られた。

〔結果〕 図は玄武岩試料 BCR-1 ならびに標準試料から本操作により分離された Sr, Ba 混合物のガンマ線スペクトルで、照射終了後約 2 時間のものである。本図より明らかのように、岩石試料と標準試料のガンマ線スペクトルは全く一致している。しかも、 $^{87\text{m}}\text{Sr}$  の 388 keV,  $^{139}\text{Ba}$  の 166 keV の二本のピークが特に顕著に現われている。この二つのピークの半減期を求めたところ、それぞれ 2.83 時間ならびに 83 分に完全に

一致した。

化学収率を測定するときの再放射化法ではmg量のストロンチウムバリウムを中性子照射するため中性子の自己しゃへい効果の影響を受ける危険が大きい。そこでSrについては1.2~24mg, Baについては0.8~13mgの範囲についての検討を行ったところ、かかる効果は何ら認められなかった。

国際標準岩石試料G-1, W-1, G-2, GSP-1, AGV-1,ならびにBCR-1を本法で分析した結果をTable Iに示す。



γ-ray Spectra from the Sample BCR-1 and the Reference Standard

Table I) Concentration of Sr and Ba in Several Geochemical Standard Rocks

Sample	Sr(ppm)	Ba(ppm)
G-1	246 ± 4, 254 ± 11	1005 ± 20, 1050 ± 33
W-1	193 ± 3, 195 ± 6	161 ± 3, 178 ± 4
G-2	442 ± 14, 446 ± 14	1640 ± 40, 1610 ± 41
GSP-1	220 ± 7, 242 ± 14	1102 ± 22, 1168 ± 20
AGV-1	617 ± 22, 597 ± 38	1040 ± 22, 1128 ± 44
BCR-1	332 ± 15, 325 ± 10	623 ± 16, 626 ± 13

Table II) Comparison of Sr and Ba Concentrations in Several Geochemical Standard Rocks.

Sample	Sr(ppm)	Ba(ppm)	Reference
G-1	250	1220	Fleischer
	—	1039	Schnetzler et al.
	256 ± 4	1015 ± 17	This work
W-1	180	180	Fleischer
	—	158	Schnetzler et al.
	175	145	Nicholls et al.
	—	<200	Gordon et al.
	193 ± 3	167 ± 3	This work
G-2	340 ~ 500	1400 ~ 2000	Flanagan
	—	1300 ± 70	Gordon et al.
	445 ± 10	1627 ± 29	This work
GSP-1	220 ~ 300	1000 ~ 1600	Flanagan
	—	1110 ± 10	Gordon et al.
	224 ± 7	1137 ± 11	This work
AGV-1	610 ~ 900	1200 ~ 1800	Flanagan
	—	1180 ± 100	Gordon et al.
	612 ± 19	1060 ± 20	This work
BCR-1	300 ~ 410	460 ~ 880	Flanagan
	—	650 ± 30	Gordon et al.
	327 ± 9	625 ± 10	This work

〔考察〕 本法によって各種標準岩石試料について得られた結果の平均値をFleischerによる推奨値, Flanaganの蛍光分析, Schnetzler等の同位体希釈, Nicholls等の質量分析法, Gordon等のGe(Li)検出器による非破壊放射化法の結果と比較したところ、よい一致が見られた。(Table 2) Gordon等の非破壊法ではW-1中のBaは定量できません。その定量限界は200ppm Baであるのに対し、本法では約5ppmまで検出できる。Gordon等が全く定量できなかったSrについても本法では定量でき、その検出限界は約10ppmである。しかし超塩基性岩中のSr, Baについては本法でも定量は困難であった。



# 14 MeV 中性子による 左ロシリコン中酸素の放射化分析

東芝中研 藤井 勲, 武藤 治夫,

金属中の酸素定量法には、真空融解法、不活性ガス融解法、放射化法などがあるが左ロシリコン中の酸素の定量の際には前二者、あるいは hot extraction 法では一般に低い値を与えるといわれている。これは一酸化酸素の形で試料から抽出された酸素がケイ素の蒸気で再びトラップされるか、あるいは還元が十分に行われないうためであると見られる。一方放射化法では化学的抽出を要しないので上記のような問題は無いがケイ素の速中性子による誘導放射能が甚だ大きいために測定系に問題を生じ実際よりも高い値を与えるおそれがある。この報告では放射化法の問題点について検討した結果をのべる。

予備的検討の段階での左ロシリコン中酸素の各方法による分析値は次の通りである。

試料	VF法-1	VF法-2	VF法-3	VF法-4	AV法-1	AV法-2	放射化法
A	0.001%	0.001	0.009	0.054	0.029	0.078	0.27
B	0.001	0.001	0.006	0.052	0.020	0.072	0.15
C	0.001	0.001	0.014	0.066	0.021	0.030	0.48

このように、上記の方法が正しい値を与えているのか全くわからず、これについては、hot extraction 法の結果は低目に、放射化法では高目になっていることが裏付けされているように見える。

放射化法の問題点としては次のことが検討された。

- (1) 光電子増倍管における光電流の限界。(2) アンプ系の分解時間。(3) 検出器の分解時間。(4) 中性子出力の上限。(1)については、光電流が平均電流として数  $\mu A$  を超すと正常の範囲から逸脱することがわかった。我々の実験条件では、 $1 \times 10^{10} n/s$  のとき数回の放射化でケイ素の場合 30~50  $\mu A$  に達することがみとめられた。(2)については、従来の数  $\mu sec$  のアンプを  $2 msec$  のアンプ (EG&G社) を採用した。(3)については、従来の NaI ( $\tau = 250 msec$ ) の代わりに CsF ( $\tau = 5 msec$ ) を用いた。この結晶の分解能 (エネルギー) は NaI に比べてよく厚みが分解時間の点ではすぐれている。(4)については、これを  $10^9 n/s$  とすれば NaI でもよいが  $1 \times 10^{10} n/s$  のときは CsF でなくては定量不可能であった。

結局、放射化法としては、よりよい条件として (1)  $< 1 \times 10^{10} n/s$  (2) CsF  $1 \frac{3}{4} \times 2$  インチ型 (3) EG&G社 アンプ系 ( $\tau = 2 msec$ ) (4) ケイ素 ( $12 mm^{\phi} \times 10 mm^{\square}$ ) を  $1 \times 10^{10} n/s$  で放射化し (数回) 計数値が増大しないような Discriminator level の採用、などを採用することにした。一方、hot extraction の側では抽出を完全にするため、試料の粒度を  $\sim 200 \mu m$  にそろえることにした。これらの方法で同一試料について分析結果をまとめると次表のようになる。

試料	Ar法	放射化法	
		CsF	Ge(Li)
D	0.44%	0.37	0.35
E	0.91	0.88	0.84
F	0.21	0.22	0.20
G	0.30	$0.340 \pm 0.027$	—
H	0.032	$0.051 \pm 0.005$	—
I	0.25	$0.250 \pm 0.015$	—
J	0.39	$0.443 \pm 0.035$	—
K	0.16	$0.186 \pm 0.016$	—

これらの結果は十分一致するものとは言えないが、元の予備的検討の結果と比較すれば、かなりの一致を認めたと考えらる。

14 MeV中性子放射化法による窒素，酸素  
の連続定量

名古屋大学工学部工業分析オー  
石井大道，神野清勝

われわれは、酸素の14 MeV中性子放射化分析法の精度上昇について、金を内部標準とする方法を、そして窒素の14 MeV中性子放射化分析法の精度上昇については、アルミニウムを内部標準とする方法をすでに発表した。

まず、酸素の定量方法は次のようなものである。

化合物中の酸素は、14 MeV中性子に照射されると、 $^{16}\text{O}(\pi, p)^{16}\text{N}$ 反応をおこして、 $^{16}\text{N}$ となり、この半減期が7.3秒であり、 $\gamma$ 線エネルギーは、6.13 MeV, 7.12 MeVである。ところが、14 MeV中性子は、小型加速器を用いて生じさせているために、中性子束の変動が激しい。そのために適当な内部標準が必要である。

$\gamma$ 線スペクトルを利用した放射化分析においての内部標準は、放射化した後に、その内部標準からの生成核種の $\gamma$ 線エネルギーが、試料からの生成核種のエネルギーと異なっているということが必要である。そのほか、特に両方の生成核種の半減期が等しいことが望ましい。

今、 $^{16}\text{N}$ の半減期7.3秒に等しく、 $\gamma$ 線エネルギーの異なる核種として、 $^{197\text{m}}\text{Au}$ がある。 $^{197}\text{Au}(\pi, \pi')^{197\text{m}}\text{Au}$ 反応で生じて、 $\gamma$ 線エネルギーは、0.279 MeVである。

金を内部標準とする方法は、一定時間金と試料とを同時照射し、得られた $\gamma$ 線スペクトルから、金の放射能と酸素からの放射能を計算し、その比が酸素量に比例していることを利用して酸素を定量するものである。

一方、化合物中の窒素は、14 MeV中性子で、 $^{14}\text{N}(\pi, 2n)^{13}\text{N}$ 反応をおこして $^{13}\text{N}$ となり、この半減期は10分、 $\beta^+$ 崩壊なので、0.51 MeVに消滅 $\gamma$ 線を生ずる。この $^{13}\text{N}$ の半減期10分にほぼ等しく、 $\gamma$ 線エネルギーの異なるものとして、 $^{27}\text{Mg}$ が考えられたが、得られる放射能の感度から、 $^{27}\text{Mg}$ が内部標準として選ばれた。

$^{27}\text{Mg}$ は、 $^{27}\text{Al}(\pi, p)^{27}\text{Mg}$ 反応で生じ、半減期9.5分、 $\gamma$ 線エネルギーは、0.84 MeV, 1.01 MeVである。

アルミニウムを内部標準とする方法は、 $^{13}\text{N}$ の0.51 MeVと、 $^{27}\text{Mg}$ の0.84 MeVの $\gamma$ 線ピークの放射能を $\gamma$ 線スペクトルから求めて、その比が窒素量に比例することを利用して窒素の定量を行うものである。この二つを組合せて連続定量を行う。

#### 【実験】

試料として、酸素，窒素を同時に含んでいるものをとり、これをラビットケースに採取した。そして、まず金を入れたふたをかぶせて、14 MeV中性子に30秒照射し、3秒冷却、0.4分 (live time) 計数した。これが酸素の分析である。

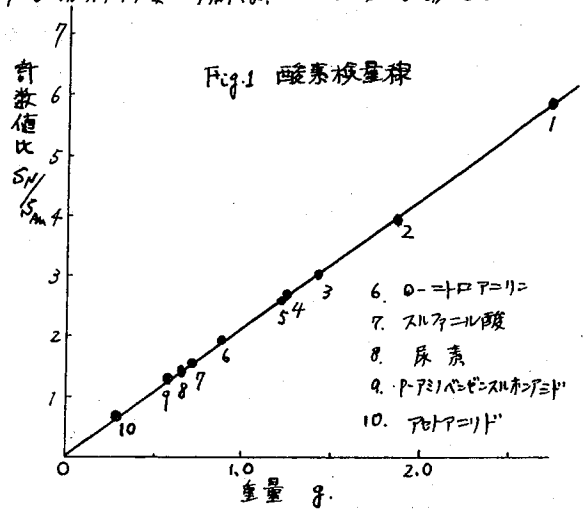
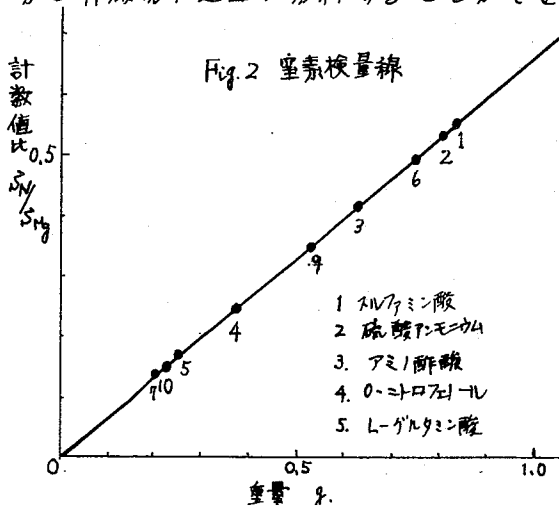
ついで、金のふたをとりはずして、アルミニウム板をいれたふたをかぶせて、窒素の計数後1分たつてから、10分照射し、1分冷却、4分 (live time) 計数した。これが窒素の分析である。

酸素については、得られたγ線スペクトルから、 $^{197m}\text{Au}$ として、 $0.279\text{ MeV}$ ,  $^{16}\text{N}$ として、 $1004$ チャンネル以上 ( $2004$ チャンネルで計数) の積算計数値を求めて、 $^{197m}\text{Au}$ のそれを  $S_{Au}$ ,  $^{16}\text{N}$ のそれを  $S_N$ とした。そして、化合物中の酸素量 (g.) に対して  $S_N/S_{Au}$  をプロットしたところ、原点を通るより直線がえられた。これが、Fig. 1 である。この直線によって定量化した結果、相対誤差  $4.5\%$  以内で理論値とよく一致した。

窒素については、γ線スペクトルの  $^{13}\text{N}$ として、 $0.51\text{ MeV}$ ,  $^{20}\text{Mg}$ として、 $0.84\text{ MeV}$  のピークの積算計数値を求めて、それぞれ、 $S_N, S_{Mg}$ とした。酸素の場合と同様に、窒素量 (g.) に対して、 $S_N/S_{Mg}$  をプロットしたところ Fig. 2 の直線となった。これから定量化した結果、相対誤差  $3.3\%$  以内でよく一致した。また、それぞれ、酸素、窒素の検量線は、連続的ではなく別々に分析した時に得られた検量線と一致した。

以上の実験で、問題となるのは、酸素分析の際  $^{13}\text{N}$  がどれほど生成するかということである。これは実験結果からみて誤差のほんの内で無視できる程度であった。

このように、二つの内部標準法を連続的に行うことにより、化合物中の酸素、窒素を非破壊、迅速に分析することができた。分析所要時間は、 $20$ 分である。



14 MeV 中性子放射化法による亜鉛フェライトの  
モル比の測定

1 A 6

金属材料技術研究所

千葉 実

二元系の複合化合物のモル比を非破壊で測定する目的で14 MeV 中性子放射化法を用いた。

既に二元系の複合化合物の一つとしてバリウムフェライト中の酸化鉄と酸化バリウムのモル比を14 MeV 中性子放射化法で測定した(第5回理工学における同位元素利用研究発表会)が、このバリウムフェライトの場合には鉄から生成する $^{56}\text{Mn}$ と、バリウムから生成する $^{137m}\text{Ba}$ の計数値の間の相互干渉は測定条件を選ぶことによつて無視することができ、単にそれぞれの計数値を求め、その比を計算することによつてバリウムフェライト中の酸化鉄(III)と酸化バリウムのモル比を容易に求めることができた。

亜鉛フェライトの場合には単に酸化鉄と酸化亜鉛から生成する放射性核種の計数値の比から酸化鉄と酸化亜鉛のモル比を求めることはできなかったが、相互干渉の補正をすることによつて直線性の良い検量線を得ることができた。

試料は黒鉛末と混合し、直径12 mm、高さ10 mmの円筒状に成型し、ポリエチレン製のラビットケースに収め、14 MeV 中性子発生装置(東芝 NT-200 型)で照射した。生成した放射性核種の測定にはマルチチャンネルPHA(TMC-404)及びシングルチャンネルPHA(アパックス, AEC規格型)を用い、検出器は5インチ×5インチ ウェル型 NaI(TL)シンチレーション検出器と、消滅γ線の同時計数には3インチ×3インチ円筒型 NaI(TL)シンチレーション検出器2個を対向させて用いた。

鉄は $^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$ 反応によつて生成する $^{56}\text{Mn}$ の0.845 MeVのγ線の計数値(A)と、亜鉛は $^{64}\text{Zn}(n,p)^{64}\text{Cu}$ 反応によつて生成する $^{64}\text{Cu}$ と、 $^{64}\text{Zn}(n,2n)^{63}\text{Zn}$ 反応によつて生成する $^{63}\text{Zn}$ のβ<sup>+</sup>線の消滅γ線の同時計数値(B)を測定した。

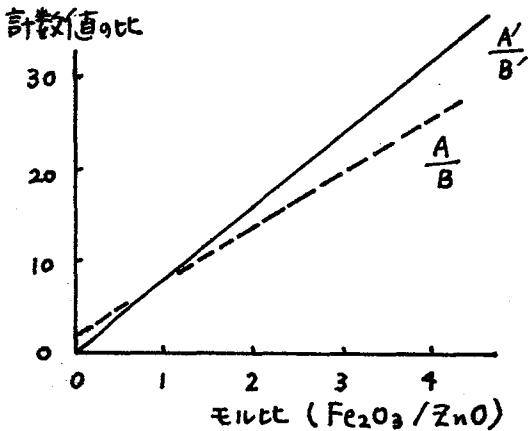
鉄から $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}$ 反応で生成する $^{53}\text{Fe}$ はβ<sup>+</sup>線放射体であるので亜鉛のβ<sup>+</sup>線の消滅γ線の同時計数値に寄与する。又、亜鉛より生成する $^{64}\text{Cu}$ 及び $^{63}\text{Zn}$ はそのβ<sup>+</sup>線の消滅γ線のサムピーク及び高エネルギーのγ線の散乱放射線が $^{56}\text{Mn}$ の0.845 MeVのγ線の計数値に寄与する。夫々の寄与の係数を純酸化鉄(III)、及び純酸化亜鉛から作った標準試料について標準試料と同じ操作を行つて求め、その係数から補正を行ひ、夫々の寄与を除去した計数値 A' 及び B' を求めた。寄与の係数を  $f_1$ ,  $f_2$  とすると測定した計数値 A, B との間には次の関係が得られる。即ち、

$$A' = \frac{A - f_2 B}{1 - f_1 f_2}$$

$$B' = \frac{B - f_1 A}{1 - f_1 f_2}$$

従って補正した計数値の比  $A'/B'$  は次の式で示される。

$$\frac{A'}{B'} = \frac{A - f_2 \cdot B}{B - f_1 \cdot A}$$



寄与を補正した検量線は直線性及び勾配が改善されるので広い範囲に亘って使用する事が出来る。

検量線の勾配は次の標式から計算で求める事が出来、その値は実験値とは約系数2で一致した。

但し添字1は酸化鉄(III)及び $^{56}\text{Fe}(n, p)$  $^{56}\text{Mn}$ に属する数値に相当し、添字2は酸化亜鉛に属し、 $i$ は夫々 $^{64}\text{Zn}(n, p)$  $^{64}\text{Cu}$ 及び $^{64}\text{Ni}$ に属する。

$$K_{\text{theor.}} = \frac{X_1 A b_1 \sigma_1 B v_1 \epsilon_1 (1 - \exp(-\lambda_1 t)) \int_{\tau_{11}}^{\tau_{12}} \exp(-\lambda_1 \tau) d\tau}{X_2 A b_2 \epsilon_2 \sum_i \left\{ B v_{2i} \sigma_{2i} (1 - \exp(-\lambda_{2i} t)) \int_{\tau_{21}}^{\tau_{22}} \exp(-\lambda_{2i} \tau) d\tau \right\}}$$

$^{64}\text{Zn}(n, 2n)$  $^{63}\text{Zn}$ に相当する。

# 天然水中の希土類元素の放射能分析

東京研の永塚澄子 鈴木洪治

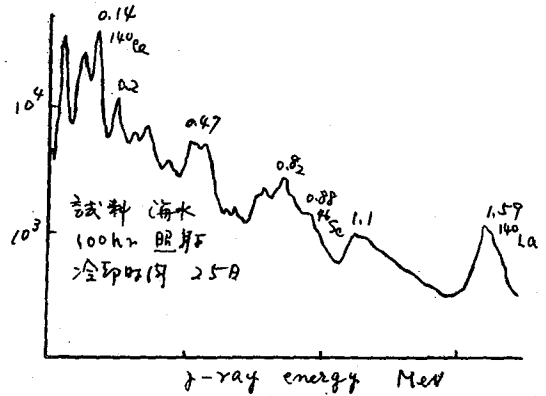
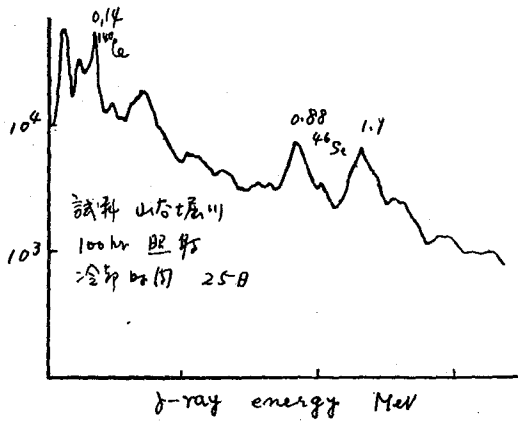
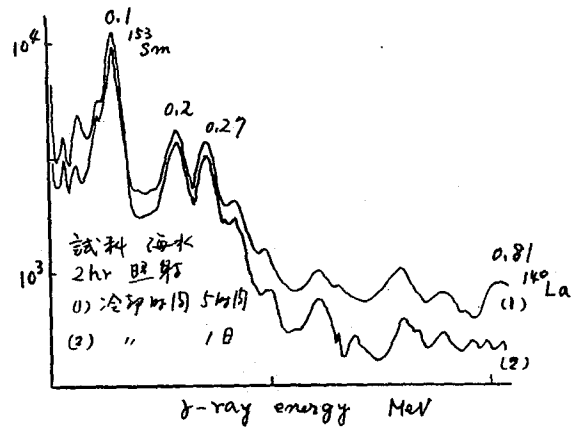
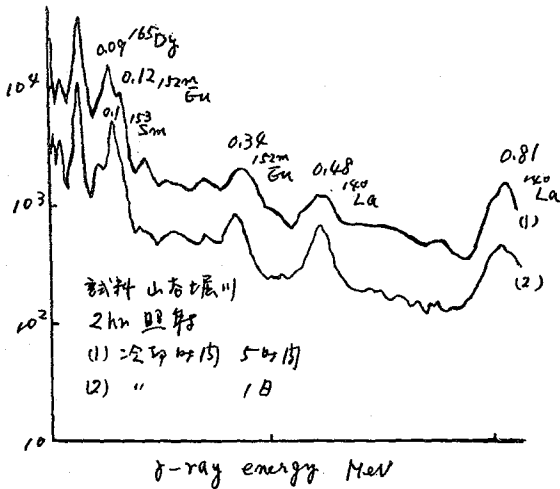
アークバブルトリー法を利用した河川の流況調査には従来から臭素化合物(主として  $\text{NH}_4\text{Br}$ ) が利用されてきたが、感潮河川では干満の影響により海水が流入するため河川水中の臭素濃度が断片的に大きな変動を示すので、このような河川では臭素化合物をアークバブルトリー法とすることは適当ではない。そこで新たにトリー法として水圏における存在量が少く、かつ放射能化しやすい元素として希土類元素に着目し、これら元素の河川水および海水中の存在量を知りトリー法として最適な希土類元素を求めたために実験を行った。

試水として東京都内の感潮河川の一つである山谷堀川および東京湾内の海水、また感潮河川と比較するために房総川上流の日永川からそれぞれ採取した。予め浮遊物を沈降させた試水からそれぞれ採取し水に鉄イオン  $10\text{mg}$  (純  $99.999\%$  と使用) を添加し  $\text{pH} > 2$  にヤ水を加えて水的化鉄を沈殿させた水を沈降し乾燥後、長時間照射の場合にはアルミニウム箔に包み、短時間照射の場合にはポリエチレン袋に封入して照射試料とした。中性子照射は武蔵工業大東研のトリチウム型原子炉(熱中性子束  $4 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$ ) で短寿命核種については2時間、長寿命核種については100時間の連続照射を行った。

2時間の照射試料については照射直後、長時間照射試料については1週間冷却後、試料にランタンの塩体を加えて水に塩的に溶解し常法によりアンモニヤ水で水的化合物を沈殿させた後遠心分離後水を塩酸に溶解しフッ化ランタンを沈殿させた後遠心分離後沈殿をホウ酸飽和溶液に溶解し再びアンモニヤで水的化するランタンの塩酸を塩的に溶解し水を測定試料とした。測定には  $5/2$  4チャンネルカウンタ  $3 \times 3 \text{ in NaI}$  を使用した。

感潮河川、海水試料から得られた半減期と  $\beta$  の一例を下記に示した。2時間の照射試料については河川水と海水と比較すると河川水試料からは  $0.09 \text{ MeV}$  に  $^{165}\text{Dy}$ ,  $0.12 \text{ MeV}$ ,  $0.34 \text{ MeV}$  に  $^{152}\text{mEu}$ ,  $0.48 \text{ MeV}$ ,  $0.81 \text{ MeV}$  に  $^{140}\text{La}$  の光電ピークが認められた。一方海水試料では  $0.1 \text{ MeV}$  に  $^{153}\text{Sm}$ ,  $0.48$ ,  $0.81 \text{ MeV}$  に  $^{140}\text{La}$  の光電ピークが認められた。一方海水試料では1週間冷却後の試料については  $25\text{日}$  冷却後の試料からは  $0.14 \text{ MeV}$  に  $^{160}\text{Ce}$ ,  $0.48$ ,  $1.1 \text{ MeV}$  に  $^{86}\text{Se}$  の光電ピークが認められた。これらの試料からはジスプロシウム, ユーロピウム, サマリウム, セリウム, ランタノイミド, スコンジウムの定量を行った。ランタノイミド, セリウム, サマリウム, スコンジウムについては河川水、海水ともに同程度の含有量を示し、ジスプロシウム, ユーロピウムは海水が

ら検出できなかった。これらの結果から希土類元素中の最も放射量の少ないジスプロシウム、ユーロピウムなどはアウタバマルチシーサーとして利用しうる可能性の高い元素であると思はれる。





## 降下ばいじん、浮遊じんあい中バナジウムの放射化分析

1 A 9

原研 本島健次, 坂東昭次, 今橋 強

最近公害問題の一つとして大気汚染の調査が大きく取り上げられ、種々の研究が進められているが、われわれは放射化分析による大気汚染測定法に関する研究の一環として今回、降下ばいじん、浮遊じんあい中のバナジウムの放射化分析法の検討を行なった結果について報告する。

バナジウムの中性子放射化分析は短寿命核種  $^{52}\text{V}$  (半減期: 3.76分,  $\gamma$ 線エネルギー: 1.4 MeV) の非破壊分析法が多く用いられているが、アルミニウム、ナトリウムなど多量に含まれる試料では、これらのコンプトンスpekトルによって妨害され定量することができなくなる。このため試料を中性子照射後バナジウムを2-メケルオキシ錯体としてクロロホルムで抽出分離し、抽出液を用いて光度法により化学収率を求めるとともに、 $\gamma$ 線スペクトロメトリーを行なった。

**バナジウムの抽出分離** バナジウムの2-メケルオキシ錯体は第1図に示すように pH 3.8 ~ 5.0 で定量的にクロロホルムに抽出される。また  $385\text{ m}\mu$  に極大吸収があり、Beer の法則は少なくとも  $70\text{ }\mu\text{g}$  まで成立する。アルミニウム、ナトリウムは2-メケルオキシ錯体をつくらず、またマンガ、ニッケルは pH 4.0 では抽出されず、バナジウムの分離が可能である。

**降下ばいじん試料:** 千葉市、市原市においてデポジットゲージにより月間の試料採取を行ない、この灰分について分析を行なった。

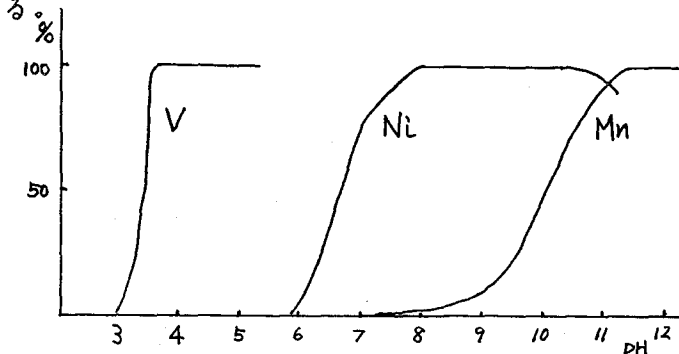
**浮遊じんあい試料:** 千葉市、市原市において大容量ダストサンプラー装置により、シリポアフィルター SC ( $8\text{ }\mu$ ,  $90\text{ mm}$  径) を用いて2時間 ( $20\text{ m}^3/\text{hr}$ ) 集じんし、これを試料とした。

### 分析操作

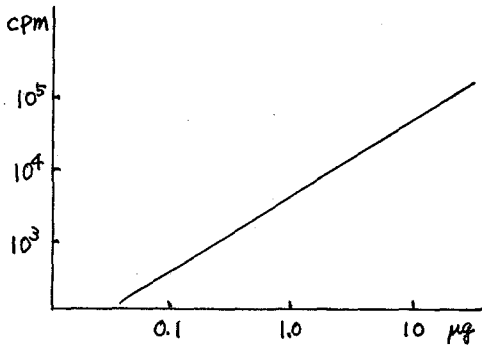
試料 (降下ばいじん試料は約  $10\text{ mg}$ , 浮遊じんあい試料はフィルターの  $4\text{ cm}^2$ ) を葉包紙に包み、ポリエチレン袋に封入して JRR-1 気送管 ( $3 \times 10^{11}\text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ ) を用いて2分間の照射を行なった。照射後直ちに試料は、あらかじめ  $40\text{ }\mu\text{g}$  のバナジウム担体を含む  $2\text{ g}$  の水酸化ナトリウムを融解しておく—ニッケルルツボに移し、1分間溶融分解する。ルツボを冷水で冷し、融成物を水にとがしてビーカーに移す。硫酸(1+1)  $2\text{ ml}$  を加えアルカリ性を弱めたのち、沈殿を吸引濾過する。濾液に硫酸(1+1)  $2\text{ ml}$  を加え酸性とし、 $0.1\text{ N}$  過マンガン酸カリウム  $2$  滴、 $2\%$  2-メケルオキシ  $3\text{ ml}$ 、 $5\%$  水オ尿素  $7\text{ ml}$  を加えたのち、 $30\%$  水酸化ナトリウム  $2\text{ ml}$ 、 $2\text{ M}$  酢酸ナトリウム  $1\text{ ml}$  を加えて pH を 4 に調節する。溶液を分液漏斗に移し、水を加えて  $100\text{ ml}$  とし、正確に  $10\text{ ml}$  のクロロホルムを加えて1分間はげしく振りまぜバナジウム錯体を抽出する。有機層は無水硫酸ナトリウム  $1\text{ g}$  を入れた栓付三角フラスコに移し脱水する。クロロホルム溶液の  $5\text{ ml}$  をポリエチレン試料瓶にとり、マルチチャンネル波高分析器 ( $3 \times 3''$  NaI 検出器) を用い  $^{52}\text{V}$  の  $1.4\text{ MeV}$  の  $\gamma$ 線ピークを計数する。放射能の減衰を測定

し、金のモニターによる中性子密度の補正ならびに385 mμにおける吸光度より求めた化学収率の補正を行なって検量線からバナジウム量を定量する。検量線はメタバナジン酸アンモニウムの適当量を同濾紙に吸着、乾燥させたものを用いて作成した。

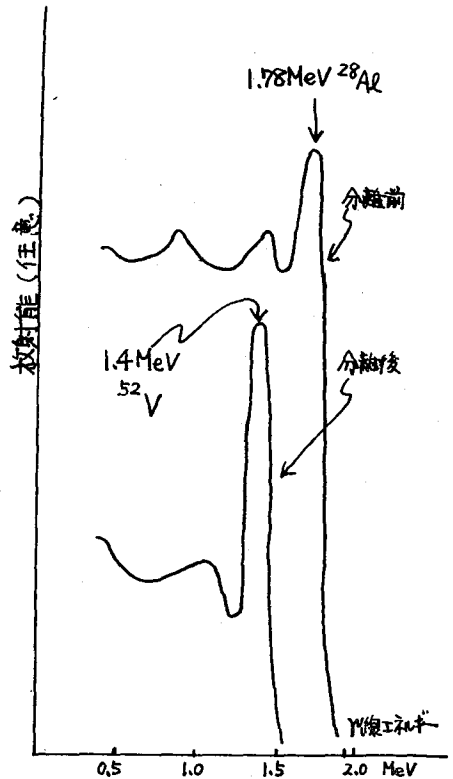
代表的試料のγ線スペクトルをホ2図に、また<sup>52</sup>Vの検量線をホ3図に示す。この方法において照射後測定までに要する時間は約10分であり、化学収率は平均95%であった。降下ばいじん、浮遊じんあい試料についての分析結果はホ1表の如くである。



ホ1図 2-メチルオキシン錯体の抽出率とPHの関係



ホ3図 <sup>52</sup>Vの検量線



ホ2図 降下ばいじん試料のγ線スペクトル

ホ1表 バナジウムの定量結果

降下ばいじん		浮遊じんあい	
試料名および採取地点	V含量 μg/mg	試料名および採取地点	V含量 μg/mg
42-7-1 千葉県 市街地	0.47	1-21-A 千葉県 市内	0.14
〃 4 〃 工場地	0.44	2-21-A 〃 郊外	0.04
〃 7 市原市 市街地	0.29	3-21-A 市原市 市内	0.83
〃 13 〃 郊外	0.18	1-24-A 千葉県 市内	0.23
43-2-1 千葉県 市街地	0.24	2-24-A 〃 郊外	0.17
〃 4 〃 工場地	0.19	3-24-A 市原市 市内	0.47
〃 7 市原市 市街地	0.76		
〃 13 〃 郊外	0.12		

## 土壤および植物中の臭素の存在

1 A 1 0

九大農学部 山田芳雄, 久芳良則

既往の文献によれば、岩石圏、水圏および生物圏中における臭素の存在量は二三の例外を除いて約10 ppmである。土壤および植物中における臭素の分析例は少ないが、地球化学的にも、また農薬残留にもとづく汚染の立場からも臭素の定量は重要であると思う。最近X-ray蛍光分析および放射化分析が臭素の定量に應用出来るようになったので、これらの方法を用いて土壤および植物中における臭素の定量を行った。ここではそのうち放射化分析法について述べる。

装置. Reactor and Irradiation. KUR Kyoto University Reactor (Swimming-pool type 1MW) :  $5 \times 10^{12}$  n. cm<sup>-2</sup>. sec<sup>-1</sup>, Gamma spectrometer. TMC 400-channel analyser and Hitachi RAH-403 400-channel analyser, with 3.5 x 2.5 cm sodium iodide crystal.

方法. 試料の調製 土壤、土壤から分離した腐植、各種植物体、タバコ等の粉末試料およびSiO<sub>2</sub>および濾紙に一定量の塩素および臭素を吸収させた標準試料を上記原子炉で30分~1時間中性子照射を行った。なお別に試料中に含有が予想されるK, Na, Mn, LaについてもSiO<sub>2</sub>粉末に混合し、その一部をとって同時に中性子照射を行った。化学分離 照射後担体としてNaCl 100 mgを添加し、蒸溜用フラスコに入れ、硫酸溶液で分解蒸溜を行った。溜出液は冷却中の5N NaOHに吸収させた。溶液を硝酸で微酸性にした後、硝酸銀を加えて、臭化銀を塩化銀とともに共沈させた。沈殿を遠心し、水で繰り返し洗浄後、沈殿物を予め秤量済みの測定皿に移し、赤外線ランプで乾燥し、放射能測定試料とした。収率は塩化銀の重量から求めた。放射能測定 非破壊法の場合、冷却時間5時間後では<sup>24</sup>Naの1.38 MeVの影響が顕著で<sup>82</sup>Br測定は不可能なので、150時間後<sup>24</sup>Naの減衰をまつて、試料と標準試料の0.55 MeVと0.78 MeVの計数値から臭素を定量した。化学分離法の場合、照射後2時間以内に<sup>38</sup>Clにもとづく2.15 MeVの放射能を、また充分冷却後<sup>82</sup>Brにもとづく0.55 MeVの放射能を計測した。放射化学的純度は当該ピークの減衰とガンマスペクトラムから確かめた。塩素および臭素の含量は試料と標準試料の放射能強度から求めた。

結果および考察. 臭素含量100 ppm以下の場合は<sup>140</sup>Laの妨害のため、試料によっては非破壊分析による定量は困難であり、化学分離法による定量の必要性があつた。放射化分析の結果とX線蛍光分析の結果は非常によく一致した。

放射化分析の結果次のことが確かめられた。

- (1). 植物は臭素イオンを非常によく吸収する。
- (2). 腐植頂火山灰土壌中の臭素含量は普通の土壌にくらべて著しく多い。

- (3). これら土壤中の臭素含量は土壤中の炭素つまり腐植含量と正の相関がある。  
しかし、塩素含量とは一定の関係はない。
- (4) 腐植中には臭素の含量が著しく多い。臭素は腐植中に集積しているものと考えられる。
- (5) 臭素の腐植中への集積は地球化学的にも重要な意味をもっている。塩素の臭素に対する比は岩石では10~50, 海水では300, 河川水では1400があると云われるが、若し河川水の塩素および臭素の起源を岩石および海水によるものとすれば、河川水中のCl/Br比はもっと小さくて然るべきである。河川水中のCl/Br比が斯様に大きいのは一つには腐植中へのBrの集積が原因と考えられる。
- (6) 臭素を含む殺線虫剤を使用しただけ以外の通常の作物中の臭素含量は低い。
- (7) 各地で栽培されたタバコ葉中の臭素含量は低いのに、市販紙巻タバコ中には異常に高い臭素含量が見出された。この原因は収穫後の濃蒸剤(メチルプロマイド)使用によるものと思われる。

Table 1.

Bromine, chlorine  
and carbon contents  
in each horizons of  
Kawaminami soil.

Horizons cm	Carbon	Bromine		Chlorine
	Tyurin method %	X-ray fluorescence analysis ppm	Activation analysis ppm	Activation analysis ppm
0 - 15	5.60	269	261	123
15 - 35	2.14	127	132	339
35 - 65	17.4	848	852	468
65 - 90	1.59	106	113	368
90 -	4.24	325	333	402

Table 2. Bromine  
contents in plants.

carrot	170	tobacco (1) Fukuoka	25
radish	20	" (2) Miyazaki	8
egg plant	10	" (3) Kokubu	10
onion	29	" (4) Osumi	16

Table 3. Bromine  
contents in cigarette\*

Rothman	465	Hi-lite (L)	171
Winston	88	Shinsei	165
Yamato	334	Peace	275
Fuji	220	Hope	174

\* obtained in market on Sept. 9, '67

放射化分析によるタバコ葉中の銅ヒ素水銀の  
定量(Ⅲ) 放射性銅ヒ素水銀の抽出分離

IA11

武蔵工大原研  
丸山芳明・小宮和英 万里禪男

目的 生体試料中の微量元素の放射化分析においては普通中性子照射した試料を酸で分解し、目的元素を化学分離後放射能の測定をおこなっている。しかしながら生体試料の分解には時間がかかり、そのため生成放射性元素が短半減期のキヨウ、分析試料が沢山あるときは分析が困難となる。そこでこの実験においては中性子照射した試料中の放射性元素を直接水、塩酸等の溶液で試料から短時間で抽出することを検討した。

実験 a) 試料と照射：照射試料としてはデシケーター中で乾燥したタバコの葉約1子をポリエチレンの袋に封入して用いた。また水を含んだ試料と乾燥したものを照射した場合を比較するためにはタバコの葉を水4mlに浸し、ポリエチレンの袋に封入したのもを用いた。照射はトリガII型原子炉にて熱中性子束 $4.4 \times 10^{11} \text{ } ^1_0\text{ n/cm}^2\text{sec}$ で1日5時間づつ10時間おこなった。b) 放射性銅、ヒ素、水銀の抽出：照射した試料を100mlのビーカーにうつし、これに抽出液として約15℃または約100℃の水、1N塩酸、濃塩酸、0.1N水酸化ナトリウム、1N塩化アンモニウム、0.8%ブチルアルコール、1N酢酸等のリゾルを20ml加え、2分間振とうした。この溶液を4号ガラスフィルターでろ過し、さらに同じ抽出液6mlをフィルターに加えフィルター中の不溶性タバコ葉を洗淨した。また担体として銅、ヒ素、水銀各々40mgを加えた溶液による抽出もおこなった。c) 化学分離：抽出した溶液中の放射性銅、ヒ素、水銀は担体を加え蒸留法をまじえた方法により分離した。不溶性タバコ葉中の放射性銅、ヒ素、水銀の分離は担体を加え濃硝酸と濃硫酸の混酸で有機物を分解後上述と同様に分離した。d) 放射能測定：銅は半減期12.8時間の $^{64}\text{Cu}$ の0.51 Mevの $\beta$ 線を、ヒ素は半減期26.5時間の $^{75}\text{As}$ の0.56 Mevの $\beta$ 線を、水銀は半減期65時間の $^{203}\text{Hg}$ の4.077 Mevの $\beta$ 線を日立製400チャンネル波高分析器により測定した。

結果 実験結果をTable 1, Table 2に示す。Table 1から明らかになるように水による抽出の場合温度を上げることにより、また担体を加えた水で抽出することにより抽出率は良くなることがわかった。1N塩酸による抽出の場合も同様な結果がみられる。約100℃の濃塩酸による抽出では銅95.8%、ヒ素86.2%、水銀93.9%と高い抽出率が得られ、担体を加えて抽出することにより抽出率はさらに増加して43。1N塩化アンモニウム、0.1N水酸化ナトリウム、0.8%ブチルアルコール、1N酢酸等による抽出は水による抽出率とほとんど変さず。0.1N水酸化ナトリウムによる抽出においては水銀がかなり抽出されている。また照射試料に水を含ませた場合はTable 2から明らかになるように水による抽出ではヒ素、水銀にいくらか効果がみられたが、銅は乾燥試料の水による抽出率よりも悪い結果が得られた。約100℃の1N塩酸、濃塩酸による抽出では銅、ヒ素、水銀の抽出率は乾燥試料のそれとほとんど同じである。

以上の結果より中性子照射したタバコ葉中の  $^{65}\text{Cu}$ ,  $^{76}\text{As}$ ,  $^{197}\text{Hg}$  を約 100°C の濃塩酸で抽出することにより銅, ヒ素, 水銀の定量的な分析が可能であると思われる。

1) 第8回日本アイソトープ会議報文集 P.150 (1967)

Table 1. Recovery of Radionuclides Extracted from Dry Tobacco Leaves

Percentage recovery	Nuclide		
	$^{65}\text{Cu}$	$^{76}\text{As}$	$^{197}\text{Hg}$
Extn. in 15°C water carrier not added	27.9	30.2	6.0
Extn. in 100°C water carrier not added	49.5	62.4	16.3
Extn. in 100°C water carrier added	73.6	74.0	68.8
Extn. in 15°C 1N HCl carrier not added	76.2	57.2	15.1
Extn. in 100°C 1N HCl carrier not added	88.2	72.7	63.9
Extn. in 100°C 1N HCl carrier added	92.7	86.4	85.8
Extn. in 100°C conc. HCl carrier not added	95.8	86.2	93.9
Extn. in 100°C conc. HCl carrier added	96.5	89.4	96.5
Extn. in 100°C 1N $\text{NH}_4\text{Cl}$ carrier not added	60.4	67.5	17.8
Extn. in 100°C 0.1N NaOH carrier not added	56.9	62.0	57.1
Extn. in 100°C 8% butyl-alcohol carrier not added	70.4	62.7	17.7
Extn. in 100°C 1N acetic acid carrier not added	72.8	69.3	16.0

Table 2. Recovery of Radionuclides Extracted from Wet Tobacco Leaves

Percentage recovery	Nuclide		
	$^{65}\text{Cu}$	$^{76}\text{As}$	$^{197}\text{Hg}$
Extn. in 15°C water carrier not added	17.5	63.6	13.0
Extn. in 100°C water carrier not added	16.5	72.0	17.2
Extn. in 100°C 1N HCl carrier not added	89.1	79.8	66.8
Extn. in 100°C conc. HCl carrier not added	93.7	87.5	93.4

## 塩素の放射化分析における標準物質の検討

1 A 1 2

京都大学原  
子炉実験所

岩田志郎(京大原子炉)  
林 正寿(三井石油総研)

塩素の放射化分析については多くの報告があるが、標準物質についての詳しい報告はみられない。塩素化合物は一般に熱、放射線等により揮発もしくは分解し易く不安定なものが多い。また、塩素は熱中性子の吸収断面積が大きく、Self-shieldingの起る可能性も考えられる。そのような観点から塩素の放射化分析における標準物質として何を選ぶべきか、またその前処理方法等について検討した。

標準物質としては、(1)塩化アンモニウム、塩化カリウムの結晶、塩化アンモニウムの水溶液をろ紙に添加したもの( $f-NH_4Cl$ )等の無機塩素化合物、(2)P-プロロアセトニトリド(P-CAA)、 $\gamma$ -ベンゼンヘキサクロライド( $\gamma-BHC$ )の結晶およびこれらのメタノール溶液をろ紙に添加したもの( $f-P-CAA$ )、( $f-\gamma-BHC$ )、 $n$ -ブチルクロライド( $n-BC$ )、 $n$ -ラウリルクロライド( $n-LC$ )をろ紙に添加したもの等の有機塩素化合物、(3)ポリ塩化ビニル(PVC)、ポリ塩化ビニル酢酸ビニルコポリマー(PVAc)、塩素化ポリエチレン(PEC)等の高分子塩素化合物を選んで検討した。

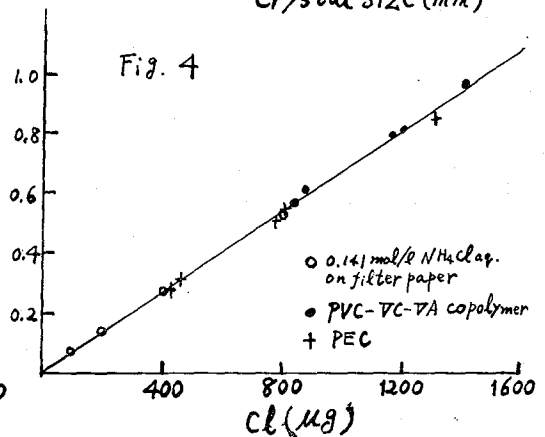
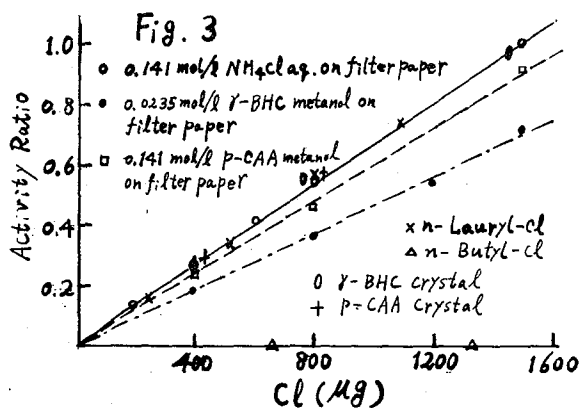
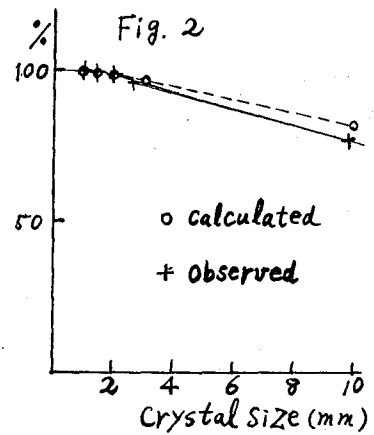
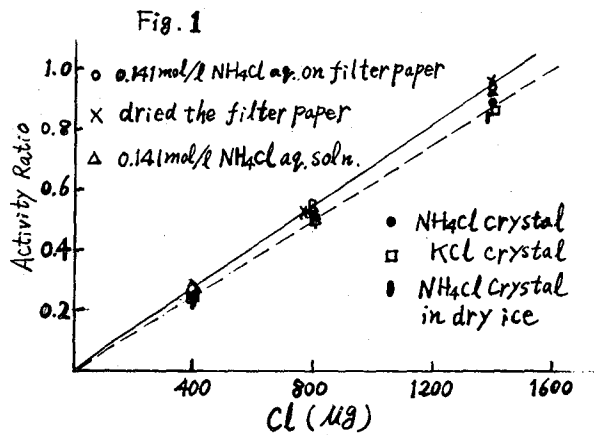
(1)無機塩素化合物の検討: まず、通常行なわれている塩化アンモニウム水溶液のろ紙添加法について検討した。すなわち、(i) $f-NH_4Cl$  溶液の濃度を0.141~0.705 mol/lの範囲で変化させたもの、(ii)0.141 mol/lの塩化アンモニウム溶液を石英管に封じたもの、(iii)0.141 mol/lの $f-NH_4Cl$  試料を充分乾燥させたもの、これら(i)~(iii)の試料をKURの圧気輸送管で20分照射し、各試料について $^{38}Cl$ の $\gamma$ スペクトルを測定した。その結果をFig. 1に示す。Fig. 1より各試料間ではほとんど差は認められず、塩化アンモニウム水溶液のろ紙添加法はかなり安定な方法と言える。次に2.8 mm<sup>3</sup>の塩化アンモニウムの立方結晶を室温およびドライアイス温度で20分間照射し、純水に溶解して適量採取して $^{38}Cl$ の放射能を測定した結果をFig. 1に併記する。Fig. 1より塩化アンモニウム結晶では照射雰囲気温度によらず約5~10%低い値を示している。したがってこの放射能の減少が照射時の発熱により塩素が揮散するものでないことが確かめられた。この原因を確かめるために、塩化アンモニウムの1 mm, 1.5 mm, 2.8 mm, 9.8 mmの各立方結晶を調製し、20分間照射し $^{38}Cl$ の比放射能を測定し、1 mmの結晶を基準に放射能比を示したものがFig. 2の測定値である。この結果から結晶の大きさが増大するにしたがって放射能比は減少し、9.8 mmの結晶では約20%も減少することがわかる。この原因は33.6バーンという大きな中性子吸収断面積をもつ塩素のSelf-shieldingによるものと思われるが、この点を確かめるためにR.G. Nisler<sup>1)</sup>の用いたコード法<sup>2)</sup>により計算し、測定値と比較した。Fig. 2からわかるように0~3 mmでは測定値と計算値が極めてよい一致を示した。したがってFig. 1の塩化アンモニウムの放射能の減少は主として塩素のSelf-shielding Effectであることが確かめられた。よって塩化アンモニウム、塩化カリウム等の結晶は標準試料としては適

当てないと言える。

(2) 有機塩素化合物の検討: Fig. 3は各種の有機塩素化合物のろ紙添加物または結晶を室温で20分間照射したものであるが p-CAA および  $\gamma$ -BHC 以外は塩化アンモニウムろ紙添加物に比べて放射能がかなり低い。特にn-ブチルクロライドは照射により完全に揮発することが認められた。また p-CAA,  $\gamma$ -BHC は塩素含有率が高く、微量分析の標準物質としては好都合とは言えない。

(3) 高分子塩素化合物: Fig. 4は各種の高分子塩素化合物を室温で20分間照射し、 $^{36}\text{Cl}$ の放射能を測定したものであるが、0.141 mol/l の塩化アンモニウム水溶液のろ紙添加物と一致した。特に塩素化ポリエチレンの塩素含有率は6.4%で Self-Shielding の心配もなく、微量分析の Standard として最も適宜なものであるといえる。

- 1) R. G. Nisler, *Nucleonics* Vol 18. I. 86 (1960)
- 2) P. A. M. Dirac, "Approximate Rate of Neutron Multiplication for a Solid of Arbitrary Shape and Uniform Density". *Declassified British Report MS-D-5, Part I, 1943.*





即発ガンマ線測定法による塩素の分析  
(Am+Be 中性子源の適用)

IA13

甲南大 理 日下 讓, 辻 治雄, 丸山和郎

目的: 中性子捕獲反応にともなう即発ガンマ線を利用する元素の分析法は、迅速非破壊分析法の一つとして推奨されるが、その応用例は少なく、しかも中性子源に原子炉を用いるかぎり実用分析に供することは困難と思われる。ゆえに、中性子源に原子炉を用いるかぎり実用分析に供すべく、中性子源として同位体中性子源を用い、即発ガンマ線測定法によるホウ素の定量を行なった<sup>1)</sup>が、今回は塩素の分析に即発ガンマ線測定法を適用することを試みた。すなわち、塩素の即発ガンマ線のうち他エネルギーガンマ線(0.518, 0.792, 1.168 MeV)を測定し、それらの光電ピーク面積より塩素を分析しようとした。また中性子減速材としてのパラフィンとグラファイトの比較、中性子源よりのガンマ線の遮蔽、検出器への中性子の遮蔽、試料の量などについても検討した。

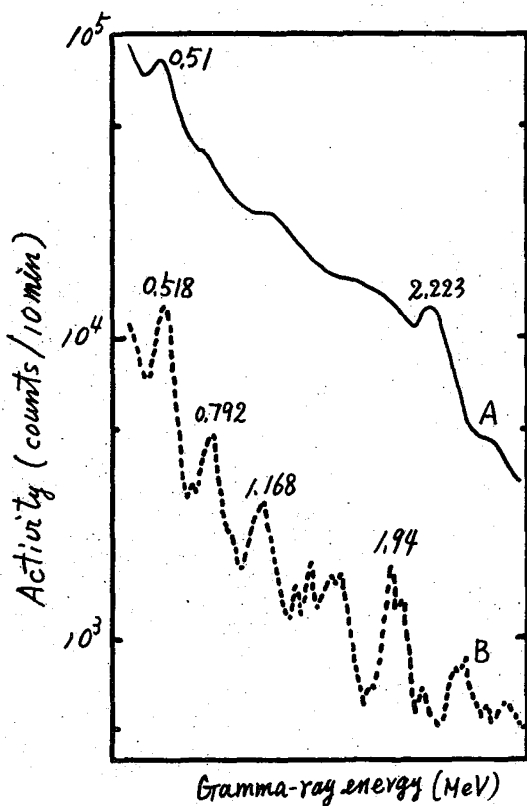
実験: 中性子源には<sup>241</sup>Am+Be中性子源(300 mCi,  $9.1 \times 10^5$  n/sec)を、中性子減速材にはパラフィンを、線源よりのガンマ線の遮蔽には鉛を、そして検出器への中性子の遮蔽にはフッ化リチウムを用いた。これらの幾何学的配置は前報<sup>1)</sup>にほぼ同じである。検出器には14"×2" NaIシンチレーターを用い、即発ガンマ線スペクトルの測定にはTMC 100チャンネル波高分析器を、光電ピーク面積の測定には100チャンネル波高分析器に内蔵されたシングルチャンネル波高分析器を用いた。粉末試料としてはポリ塩化ビニル粉末-ポリエチレン粉末系を、液体試料としては四塩化炭素-エタノール系を用い、種々の塩素濃度の標準試料列を作った。試料はポリエチレン製容器に一杯になるように詰め(容器内容: 100mm×100mm×10mm, 容量100ml), 重量(粉末試料: 40~60g, 液体試料90~130g)をはかって照射試料とした。

塩素の即発ガンマ線スペクトルは、試料を照射位置に置いて一定時間全ガンマ線スペクトルを100チャンネル波高分析器で測定したのち、直ちに試料をブランク試料(ポリエチレン粉末またはエタノールを容器に詰めしたもの)と置きかえ、上記と同一時間測定器のoperation modeをsubとして測定し、先に測定した全ガンマ線スペクトルよりバックグラウンドガンマ線スペクトルを消去して測定した。光電ピーク面積は、測定しようとする光電ピークをシングルチャンネル波高分析器のウィンドウ内におさめ、スペクトル測定の場合と同じように先ず全計数値を測定し、次いでバックグラウンドを測定してその差より求めた。

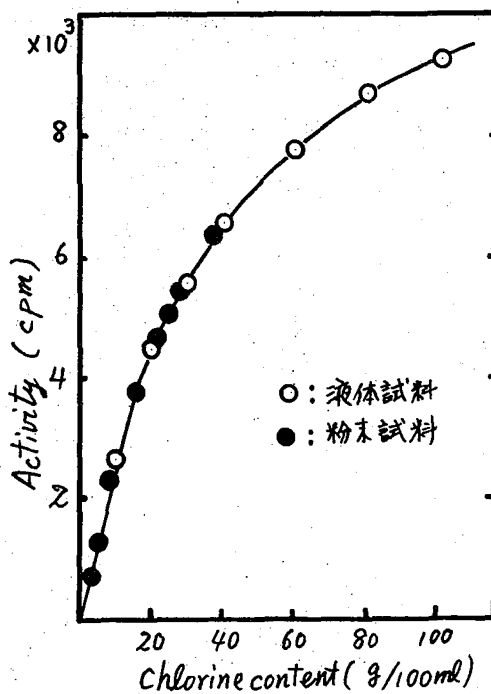
結果: ポリ塩化ビニル試料についてえられた塩素の即発ガンマ線スペクトルを第1図に示した。全ガンマ線を測定してえられたスペクトルには、減速材のパラフィン中の水素の即発ガンマ線を主とするバックグラウンドが強くあつたため、塩素の即発ガンマ線の光電ピークはほとんどみとめられなかつた。しかし、このスペクトルよりバックグラウンドを消去してえられたスペクトルは明らかに塩素の即発ガンマ線スペクトルのみを示し、0.518, 0.792 および1.168 MeVなどに明確な光電ピークがえられ、Greenwoodらの原子炉による測定結果<sup>2)</sup>とも一致した。

検量線の一例として、0.518および0.792 MeV. 光電ピークを合せて測定してえられた検量線を第2図に示した。粉末試料および液体試料、いずれの場合にも差異のない測定値がえられた。この検量線においては、塩素含有量が比較的濃度では直線性を示すが、塩素含有量の増加と共に中性子の自己吸収および即発ガンマ線の自己遮蔽効果が顕著になる。

本法を適用することにより、塩素含有量が5~40 g/100 ml 程度の試料を極めて短時間(数分以内)で非破壊分析できると考えられ、十分実用分析に供することも可能であろう。



第1図 塩素の即発ガンマ線スペクトル。  
(試料=ポリ塩化ビニル粉末 54.90g)  
A: 全ガンマ線スペクトル。  
B: Aよりバックグラウンドを差引いてえられた  
塩素の即発ガンマ線スペクトル



第2図 塩素の検量線。

(測定光電ピーク= 0.518 MeV と 0.792 MeV.)

- 1) 日下讓, 辻治雄, 柴川政彦, 日化誌, 88, 1006 (1967).
- 2) R.C. Greenwood & J.H. Reed, U.S.AEC Rept. IITRI. 1193-53 (Vols 1 and 2) (1965).

## 中性子吸収法による<sup>10</sup>Bの同位体分析

1 A 1 4

熊大工 竹永睦生 四宮知郎 大吉昭  
谷崎正世 松永裕え 吉永崑正

核反応を利用して同位体組成を測定する方法としては<sup>6</sup>Li(n,α)t, <sup>16</sup>O(t,n)<sup>18</sup>F反応による<sup>18</sup>Fを測定する方法, <sup>18</sup>O(t,α)<sup>17</sup>N反応による遅発中性子測定法, <sup>6</sup>Li(n,α)tによるトリチウムの測定, 更にLi-Mn系の<sup>6</sup>Liの濃度変化に対応する<sup>56</sup>Mnの測定法等がある。

ホウ素同位体には, <sup>10</sup>B(18.45~18.98%), <sup>11</sup>B(81.02~81.55%)が共存し, <sup>10</sup>B(n,α)<sup>7m</sup>Li反応の放射化断面積(4017バ-ン)に比して他の核反応, <sup>10</sup>B(n,p)<sup>10</sup>Be(<0.2バ-ン), <sup>11</sup>B(n,γ)<sup>12</sup>B(0.005バ-ン)は無視しうるものとすれば, ホウ素による中性子吸収は<sup>10</sup>B(n,α)<sup>7m</sup>Li反応のみによると考えられ, <sup>10</sup>B濃度変化に伴う中性子通過量の変化をターゲット(Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)の誘導放射能により測定すれば, <sup>10</sup>B濃度の測定が可能であると考えられる。

本研究は種々の濃度のホウ酸水溶液を通過した熱中性子による核反応<sup>164</sup>Dy(n,γ)<sup>165m</sup>Dy → <sup>165</sup>Dyの放射能を測定し, <sup>10</sup>B濃度との相関々係からビーム状中性子の吸収を利用した水溶液系における<sup>10</sup>Bの同位体分析の可能性を検討した。

### 実 験

#### 1 試料

種々の濃度のホウ酸水溶液70mlを高さ80cm外径45cmのポリスチロール棒瓶に入れ, その液柱の高さは5.5±0.0cmであった。用いたホウ酸濃度は<sup>10</sup>B濃度で0.02~0.68 mg/mlであった。ターゲットのDy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は約0.9gを精秤後, ポリエチシールを行ない, スチロール瓶の外底部に密着して中性子照射を行なった。

#### 2 照射装置と照射条件

中性子照射にはコッククロフトウォルトン型中性子発生装置を用いた。図1に試料とターゲットの照射配置を示す。(1)はホウ酸水溶液, (2)中性子線束測定のカム板, (3)Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>ターゲット, (4)回転台, (5)中性子源である。同時に5~6個の異なる濃度のホウ酸水溶液を同じ条件下で照射するために, 回転台を50 r.p.m.で回転して照射した。照射時間はすべて30分とした。

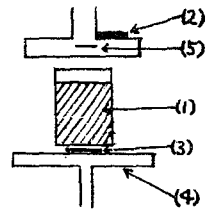


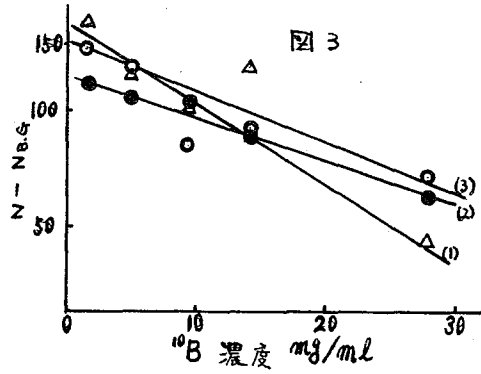
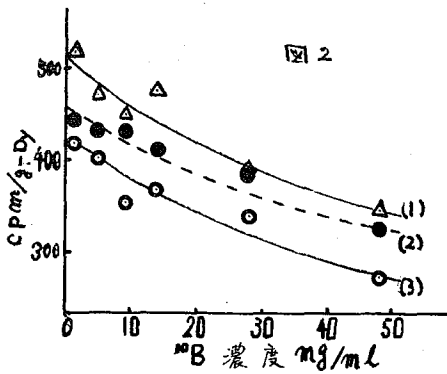
図 1

#### 3 測定

<sup>164</sup>Dy(n,γ)<sup>165m</sup>Dy  $\xrightarrow{I.T.}$  <sup>165</sup>Dyのγ線(T<sub>1/2</sub>=2.32 hr. E<sub>γ</sub>=0.074-1.0 MeV)を2"×1 1/2" well Type シンチレーションカウンターで, 又中性子束測定のために<sup>63</sup>Cu(n,2n)<sup>62</sup>Cu反応によるβ線をG-Mカウンターで測定し, 壊変曲線の照射直後における外挿値をもって誘導放射能とした。

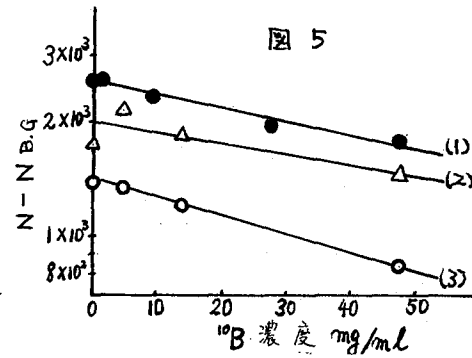
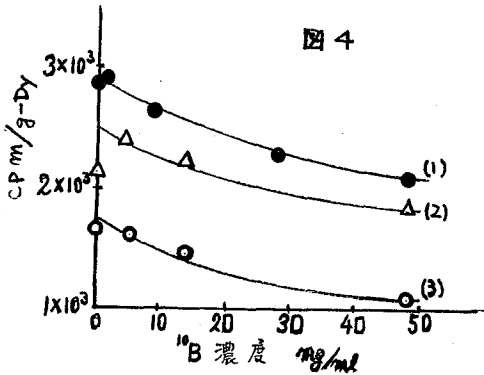
### 結 果

ホウ酸水溶液中の<sup>10</sup>B濃度に対するDyの比放射能の変化を図2に示す。その結果, 中性子束により異なる曲線を得た。この曲線は<sup>10</sup>B濃度とDyの比放射能とが指数関数的関係にある事を示している。ここでホウ酸水溶液を通過せずに直接Dyを放射化する



Flux  $\mu\text{sec. cm}^2$   
 (1)  $9.22 \times 10^6$   
 (2)  $7.66 \times 10^6$   
 (3)  $8.25 \times 10^6$

中性子に対する考慮から、一連の実験で用いた $^{10}\text{B}$ の最大濃度(0.68 mg/ml)では $^{10}\text{B}$ による中性子の吸収が最大であるとして、この時のDyの比放射能値をバックグラウンドとした。種々の濃度のホウ酸水溶液に対応するDyの比放射能値とバックグラウンドの差を $^{10}\text{B}$ 濃度に対し2片対数目盛でプロットし、図3の直線(1),(2),(3)を得、その勾配kを最小二乗法により求め、表1-Aに示した。



Flux  $\mu\text{sec. cm}^2$   
 (1)  $7.14 \times 10^7$   
 (2)  $5.12 \times 10^7$   
 (3)  $4.72 \times 10^7$

バックグラウンドを低下させるために、回転台上に厚マ7.5 mmのバラフィン板と厚マ2 mmのCa板を置き、その上に試料、Dyターゲットを重ねて配置した。

さらにバックグラウンドを正確に定めるために1個の $^{10}\text{B}$ 濃度0.68 mg/mlの試料とDyターゲットの間に厚マ1 mm又は2 mmのCa板を置き、中性子照射を行なった。

この照射の結果を図4に示す。上下面をCa板で遮蔽したDyの比放射能をバックグラウンドとして、図3と同様の処理で図5を得た。図5は前実験より、はるまじの少ない直線が得られ、それぞれの勾配もよく一致する結果を得た。以上の2種の実験結果、図3及び図5に示した直線の勾配kとその時のバックグラウンド及び中性子束との間に、表1-A, Bに示したような関係が見られた。

以上の結果から照射回数により、得られる検量線が異なるが、濃度既知及び未知の試料を同時に照射すれば $^{10}\text{B}$ の分析が可能であると考えられる。

表1-A

$k$	138.7	75.1	62.0	53.7	56.3	113.8	92.7
Flux $\times 10^6 \mu\text{sec. cm}^2$	4.23	5.81	7.49	7.66	8.28	8.44	9.22
B.G.	122	119	384	325	273	376	376

B

$k$	22.5	16.7	14.1
Flux $\times 10^7 \mu\text{sec. cm}^2$	4.72	5.12	7.14
B.G.	261	325	375

## 放射化分析によるニッケル同位体比の測定

1 A 1 5

立大理：石森達一郎，島田神太郎，浦野忠一，  
奥野久輝，東大物性研：本田雅健

ニッケル安定同位体は質量数 58, 60, 61, 62, 64 であり， $^{58}\text{Ni}$  と  $^{64}\text{Ni}$  に着目すると同位体濃縮が大きくあらわれうる元素である。ニッケル(II)のシアノ錯イオンとアンミン錯イオンの同位体交換平衡をクロマトグラフ法によってくりかえして， $^{58}\text{Ni}$  が濃縮したものが容易にえられるようになり，濃縮の程度を知ることが必要となったので，放射化分析による測定を検討した。 $^{58}\text{Ni}$  と  $^{64}\text{Ni}$  について， $^{58}\text{Ni}$  ( $n, p$ )  $^{58}\text{Co}$  および  $^{64}\text{Ni}$  ( $n, \gamma$ )  $^{65}\text{Ni}$  反応により生成する  $^{58}\text{Co}$  および  $^{65}\text{Ni}$  の計数率をもとめ， $^{58}\text{Ni}$  と  $^{64}\text{Ni}$  の比の標準試料に対する割合 ( $R$ ) を求める方法をえらんだ： $R = \rho(\text{未知試料}) / \rho(\text{標準試料})$ ，

$$\text{ここで，} \rho = (^{58}\text{Co 計数率}) / (^{65}\text{Ni 計数率}).$$

### 方法と結果.

使用した塩化ニッケルは特級試薬を塩酸溶液中の陰イオン交換法により精製した。照射試料は  $\sim 5 \text{ mg Ni(II)}$  を含むジメチルグリオキシム塩を濾過棒を用いて円板状にしたもので，ポリスチレン・トルエン溶液を滴下，乾燥して補強した。ジメチルグリオキシム塩円板は定量濾紙上にのせ，ポリエチレンシートで覆った。標準試料としては精製した試薬の塩化ニッケルを用い，未知試料としては，シアノ錯イオン—アンミン錯イオン同位体交換法により  $^{58}\text{Ni}$  を濃縮したものを利用した。未知試料の一部は質量分析計により同位体比を測定した。

照射は，立大原子炉回転試料棚 ( $\sim 5 \times 10^{11} \text{ n}_{\text{th}} / \text{cm}^2 / \text{sec}$ ,  $\sim 5 \times 10^{10} \text{ n}_{\text{f}} / \text{cm}^2 / \text{sec}$ ) において，2～6時間，翌日1～2時間おこなった。10個程度の試料を重ねて，試料面を垂直にして照射した。 $\gamma$ 線計数は，照射後2～7時間後に $^{65}\text{Ni}$  についておこなひ，5～30日後に $^{58}\text{Co}$  についておこなった。主としてNaI(Tl)検出器を用いたが，一部はGe(Li)検出器により $^{65}\text{Ni}$  の計数をおこなった。

ニッケルジメチルグリオキシムの沈殿生成は特異性が高く，他の金属の混入が少なく， $^{65}\text{Ni}$   $\gamma$ 線計数時に見出される放射化された核種は主として $^{58}\text{Co}$  と $^{24}\text{Na}$  であった。 $^{24}\text{Na}$  の1.37 MeV ピークは $^{65}\text{Ni}$  の1.48 MeV ピークと重なるので， $^{65}\text{Ni}$  の $\gamma$ 線計数は1.11 MeV ピークを用いた。 $^{58}\text{Co}$  の $\gamma$ 線計数は0.81 MeV ピークを用いた。ピーク面積はCovell法により求め， $^{65}\text{Ni}$  に対しては半減期2.56時間を用いて測定時のちがいを補正した。

結果の一部を次頁の表に示す。 $\rho$  (平均) および  $R$  には標準偏差を付した。同一条件でおこなった測定の標準偏差は小さいが，質量分析計による値との差は標準偏差より大きい。 $R$  の値が1.1以上の $^{58}\text{Ni}$  濃縮試料の測定には適用されると考えられる。

$^{65}\text{Ni}$  の $\gamma$ 線計数を有効体積6ccのGe(Li)検出器によっておこなった例では， $^{24}\text{Na}$  の1.37 MeV ピークと $^{65}\text{Ni}$  の1.48 MeV ピークは完全に分離され， $\gamma$ 線計数は，1.11 MeV, 1.48 MeV ピークの両れもが用いることができる。また，全エネルギー

---

○ No.19 試料 6個と標準試料2個 (照射2時間, 翌日2時間)

No.19  $\bar{r} = 0.694, 0.704, 0.703, 0.680, 0.731, 0.731$   
 $\bar{r}(\text{平均}) = 0.707 \pm 0.019$   
標準  $\bar{r} = 0.586, 0.608$   $\bar{r}(\text{平均}) = 0.597 \pm 0.011$   
 $R = 1.19 \pm 0.04 (R_m = 1.26)$

○ No.20 試料 7個と標準試料2個 (照射6時間, 翌日2時間)

No.20  $\bar{r} = 4.53, 4.59, 4.50, 4.60, 4.45, 4.58, 4.59$   
 $\bar{r}(\text{平均}) = 4.55 \pm 0.05$   
標準  $\bar{r} = 3.56, 3.56$   $\bar{r}(\text{平均}) = 3.56 \pm 0.00$   
 $R = 1.28 \pm 0.02 (R_m = 1.28)$

○ No.21 試料 4個と標準試料4個 (照射2時間, 翌日2時間)

No.21  $\bar{r} = 1.357, 1.376, 1.386, 1.348$   
 $\bar{r}(\text{平均}) = 1.367 \pm 0.015$   
標準  $\bar{r} = 1.088, 1.167, 1.094, 1.104$   
 $\bar{r}(\text{平均}) = 1.113 \pm 0.031$   
 $R = 1.23 \pm 0.04 (R_m = 1.30)$

$\bar{r} = ({}^{58}\text{Co} \text{ 計数率}) / ({}^{65}\text{Ni} \text{ 計数率})$ ;  $R = \bar{r}(\text{未知試料}) / \bar{r}(\text{標準試料})$ ;  
 $R_m$  は質量分析計による測定から求めた  $[{}^{58}\text{Ni} / {}^{64}\text{Ni}(\text{未知試料})] / [{}^{58}\text{Ni} / {}^{64}\text{Ni}(\text{標準})]$   
で, 標準偏差率  $\sim 3\%$  である

---

ピークに対してコンプトンプラトーが低く, ピークの基線が容易にきまるので, ピーク面積を求めやすい。3対の未知 (No.21) 試料 - 標準試料を2時間, 翌日2時間照射した例では, 1.11 MeV ピークに 8,500 カウント / 500秒程度の計数率がえられた (照射後 2~3時間後)。えられた  $R$  の値は 1.32, 1.29, 1.30 ( $R_m = 1.30$ ) である。Ge(Li) 検出器の使用は, 計数効率低下するが,  $R$  について正確さのよい結果を与えるものと思われる。

$^{53}\text{Mn}$  の中性子放射化による検出について

1A16

東大物性研, 九大理\* ○今村幸雄, 松田英毅\*  
堀江絹子, 本田雅健

$^{53}\text{Mn}$  は質量数が  $^{54}\text{Fe}$  に近い長半減期の核種なので宇宙化学的問題の研究上重要な核種であり, その高感度の検出法は極めて有用である. Millard がこの  $^{53}\text{Mn}$  の中性子捕獲断面積が非常に大きいことを示して以来, 我々は中性子放射化法により  $^{53}\text{Mn}$  を精度よく検出定量する条件を吟味し, この方法を用いてイン石等の天然の試料の  $^{53}\text{Mn}$  の検出やサイクロトロンで proton 照射して生成した  $^{53}\text{Mn}$  の定量を試みてきた. すでに第10回放射化学討論会において, 実験の方法, 照射条件の選定などについて吟味し, 反応断面積を求めてその結果を報告した. 今回は, あらたに調製した  $^{53}\text{Mn}$  標準を用いて得た  $^{53}\text{Mn}$  の  $(n, \gamma)$  反応断面積の結果, および放射化法による  $^{53}\text{Mn}$  の検出の応用例について, 2, 3 報告する.

実験は, 照射前に Fe を十分に除いて Mn を単離するという以外は通常の放射化分析と変わりはないが,  $^{54}\text{Fe}(n, p)$ ,  $^{55}\text{Mn}(n, 2n)$  による妨害反応の寄与を修正しなければならないのでやや複雑である.

中性子捕獲断面積 (下表)

$^{53}\text{Mn}$  標準を3種用意した. これらは鉄イン石 Odessa から抽出したものでこのうち a, c の2つは直接 X 線測定によって  $^{53}\text{Mn}$  の量を決定した. b は a と共に JRR2 垂直実験孔 (VT) で放射化し, その生成放射能を比較して標準化したものである. これらの標準を用いて種々の条件の下で反応断面積を求め表に示した. 反応断面積  $\sigma(n, \gamma)$  の代わり

表.  $^{53}\text{Mn}$  標準 と Activation Factor

$^{53}\text{Mn}$ 標準 (鉄イン石 g)	Mn	X 線 測定			$^{53}\text{Mn}$ の中性子放射化	
		計数率 c/min.	計数効率 %	$^{53}\text{Mn}$ dpm/ $\mu\text{g Mn}$	照射場所	Activation Factor*
a. (Odessa H-913 170 g)	68 $\mu\text{g}$	1.105 $\pm$ 0.075	.12	0.136 $\pm$ 0.012	JRR2 VT	344 $\pm$ 51
					JRR2 VT	400 $\pm$ 44
b. (Odessa H-913 160 g)	111 $\mu\text{g}$	—	—	0.080 $\pm$ 0.009	JRR2 RI トリ トリガ(立教)	372 $\pm$ 56
					トリガ(立教) Ca が $\leq$ 23	350 $\pm$ 48
					JRR2 RI トリ	338 $\pm$ 42
					JRR2 VT	312 $\pm$ 45
c. (Odessa H-912 190 g)	17 mg	0.204 $\pm$ 0.027	5.5	0.22 $\pm$ 0.029 $\times 10^{-3}$	JRR2 RI トリ	(252 $\pm$ 38)
					トリガ(立教)	380 $\pm$ 120
					av.	360 $\pm$ 50**

\*  $^{54}\text{Mn}$  dpm/ $^{53}\text{Mn}$  dpm per  $10^{18}$  n/cm<sup>2</sup>

\*\*  $\sigma(n, \gamma) = 150 \pm 20$  Barn for  $(T_{1/2})_{\text{Mn-53}} = 2.10^6$  y.

に便宜上  $\text{Activation Factor} = \sigma(n, \gamma) \times 10^{18} \times \lambda_{\text{Mn-53}} / \lambda_{\text{Mn-53}}$  を用いて表わしてある。種々の照射条件に対するこの値の再現性は比較的よい。又立教大研で Cd-カバーをして  $^{53}\text{Mn}$  を中性子照射した結果ほとんど放射化されなかった。このことは epithermal 領域に  $^{53}\text{Mn}$  の中性子捕獲断面積の大きな共鳴ピークのないことを示しており、照射条件によって断面積が本質的に変動しないことを裏付けている。なお中性子束の測定には  $^{58}\text{Fe}(n, \gamma)^{59}\text{Fe}$ ,  $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$  反応を利用して行った。

### 放射化法の応用例

<鉄イン石中の  $^{53}\text{Mn}$  の定量> 種々の鉄イン石について  $^{53}\text{Mn}$  含量を求め、直接  $\times$  線測定して求めた文献値とかなりよく一致した結果を得ている。ここでは一例として Grandt について  $^{53}\text{Mn}$  含量の試料の深さによる分布を求め、他の核破砕反応生成物の分布と比較した例を紹介する。こうした問題では測定値の相対誤差が  $\pm 5\%$  以下におさえられることが望ましく、照射条件や収率に関して細かい注意が必要である。

<石質イン石中の  $^{53}\text{Mn}$  の定量> 石質イン石はすでに試料に多くの Mn がふくまれているので妨害反応  $^{55}\text{Mn}(n, 2n)^{54}\text{Mn}$  をできるだけ避けるために fast neutron の少い JRR2 RI トレインで照射した。我々は Bruderheim というイン石を分別溶解して、各フラクションにおける Mn-53 の量が Fe の量と平行していることを確かめた。

<730 MeV でプロトン照射した鉄ターゲット中の  $^{53}\text{Mn}$ >

放射化法を用いれば  $^{54}\text{Mn}$  が  $^{53}\text{Mn}$  の  $10^4$  倍放射能が強くても  $^{53}\text{Mn}$  を検出できる。1959年 Berkeley の  $184''$  サイクロトロンで、730 MeV プロトンで照射した Fe ターゲットは照射直後  $4 \cdot 10^5$  dpm/g Fe の  $^{54}\text{Mn}$  を含んでいた。1966年、そのうちの 20 mg から Mn を抽出し、放射化して  $^{53}\text{Mn}$  を定量した結果  $0.056 \pm 0.017$  dpm/0.02g Fe の  $^{53}\text{Mn}$  を検出した。このことからこの核破砕反応の断面積に関して次の結果を得た。 $\sigma(^{53}\text{Mn})/\sigma(^{54}\text{Mn}) = 0.9 \pm 0.3$ ,  $\sigma(^{53}\text{Mn}) = 27 \pm 9$  mb  $\therefore \sigma(^{54}\text{Mn}) = 30$  mb

### $^{53}\text{Mn}$ の製造

$^{53}\text{Mn}$  の source を人工的に得るために最も有利な反応は  $^{50}\text{Cr}(\alpha, np)$  であると考えられる。 $\alpha$  beam のエネルギーを 16 MeV 以下におさえればターゲットに天然クロムを用いても  $^{50}\text{Cr}(\alpha, pn)^{54}\text{Mn}$  による  $^{54}\text{Mn}$  の副生をほとんどおさえることができると予想される。 $^{52}\text{Cr}(d, n)$  などの反応による  $^{53}\text{Mn}$  の製造はたとえターゲットに濃縮同位体を用いても  $^{54}\text{Mn}$  の  $^{53}\text{Mn}$  に対する放射能比を、1000 以下におさえすることは困難である。我々は既に理研のサイクロトロンで、Cu 板上に電着した Cr 金属を 15 MeV の  $\alpha$  beam で照射し、ターゲットを化学処理して Mn を抽出し推定 15 dpm の  $^{53}\text{Mn}$  を得たはずである。残念ながら  $^{54}\text{Mn}$  がかなり副生し照射直後に換算して 2600 dpm 存在していた。 $^{53}\text{Mn}$  は放射化法によって検出する予定である。又近く、 $\alpha$  粒子のエネルギーを 14 MeV におとして照射し、 $^{54}\text{Mn}$  の少い  $^{53}\text{Mn}$  標準を得る計画である。



電電公社電通研

○ 工 藤 列， 菱 沼 登

目的：半導体の電気的特性はこれに含まれる微量の不純物によつて著しく影響される。最近高純度ひ化ガリウムが半導体材料として注目されているが，その中に含まれる不純物については分析が困難であるという理由から，殆んど知られていない。演者らは高性能のひ化ガリウム半導体をうる研究の一環として，その不純物の定量を同位元素希釈定量法を併用する放射化分析法により試みたので報告する。まず，従来の報告などより，ひ化ガリウム中に存在すると推定される不純物中，同法により定量可能と思われる，マンガン，亜鉛，カドミウム，銅の4元素について検討を試みた。

実験：マンガンの分離法の検討 ひ化ガリウムの放射化分析においてはその誘導放射能が大であるため，分離法が問題になる。A. Zemanら<sup>1)</sup>はマンガンの定量に過マンガン酸イオンの塩化テトラフェニルアルソニウムによる“substoichiometry”を提案している。しかし，ひ化ガリウムの場合には<sup>76</sup>As, <sup>72</sup>Gaの汚染が著しく，同法のみでは定量が不可能である。そこで，通常分離法との組合せにより行なうこととし，分離法についてトレーサー法により検討した。蒸留法およびエーテル抽出法によるひ化ガリウムの除去，ジチゾンによる銅，亜鉛との分離，TTAおよびNa-DDCによるマンガンの抽出，マンガン過剰時での塩化テトラフェニルアルソニウムによる抽出の一定性などについて検討した。その結果，分離操作として表1に示すような方法を確立した。亜鉛，カドミウムの分離法 同位元素希釈定量法を併用する放射化分析法による亜鉛，カドミウム，銅の定量法については既に検討しているが<sup>2)-4)</sup>，これらの経験に基づき，表2に示すような分離操作を作り，これにより定量を行なつた。なお，銅の定量は表1に示すようにマンガンの定量の際に同時に行なうことができる。

ひ化ガリウム中の不純物の放射化分析 ひ化ガリウムの分析試料を標準試料と共に原子炉で中性子照射したのち，表1または表2の操作により定量した。マンガンの定量はJRR-1（中性子束 $3 \times 10^{11}$  n/cm<sup>2</sup>/sec）で2-5時間またはJRR-2（中性子束 $3 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>/sec）で2分間，亜鉛，カドミウムはJRR-2で200時間照射した試料で行なつた。

結果：4元素の定量結果は表3のとおりである。各元素の含有量は極めて低く0.01~0.001ppmのオーダーであつた。なお，分析に供したひ化ガリウムは担体濃度 $1.8 \times 10^{16}$ 原子/cc，比抵抗 $6.2 \times 10^{-2}$  Ωcm，易動度 $5700$  cm<sup>2</sup>/V/secの特性を有するものであつた。

文献

- 1) A. Zeman, J. Prasilova, J. Ruzicka, Talanta 13 457 (1966)
- 2) K. Kudo, Radioisotopes 16 199 (1967)
- 3) K. Kudo, K. Yamamoto, S. Kuriyama, ibid 16 514 (1967)
- 4) K. Kudo, H. Araki, M. Fujimoto, Y. Sato, ibid 16 549 (1967)

表1 マンガン、銅の分析操作

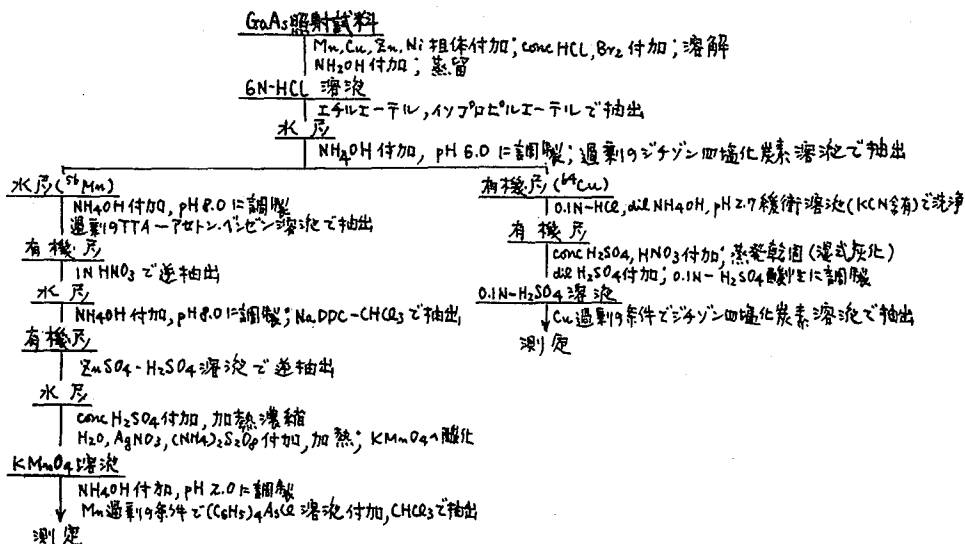


表2 亜鉛、カドミウムの分析操作

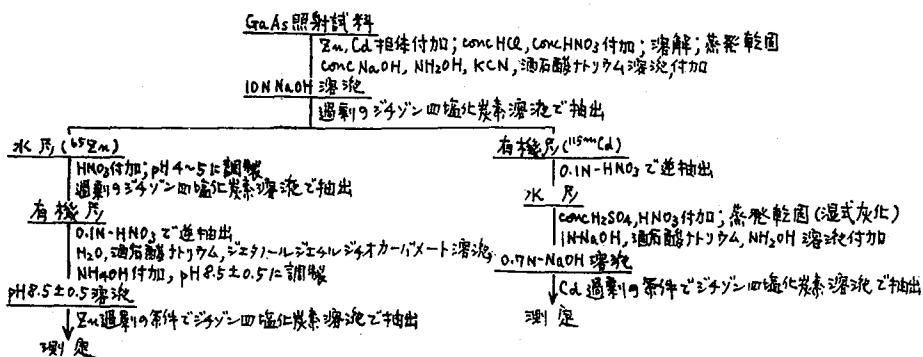


表3 定量結果

定量元素	試料の重量 (g)	標準試料の重量 (μg)	標準試料の放射能 (cpm)	分析試料の抽出放射能 (cpm)	検出量 (μg)	不純物の含有量 (ppm)
Mn	0.24612	0.068	424.8	5.4	0.0086	0.004
	0.24335		388.0	6.0	0.0091	0.004
Cu	0.6039	1.92	937.0	9.5	0.020	0.033
	0.5928	0.922	1089.9	15.6	0.013	0.022
	0.4602	0.922	1242.5	13.1	0.010	0.022
Zn	0.32400	0.175	110.2	1.1	0.00175	0.005
	0.53526	0.175	31.6	0.6	0.00332	0.006
	0.52354	0.175	31.6	0.6	0.00332	0.006
Cd	0.32400	0.406	31.5	0.7	0.00902	0.029
	0.30886	0.406	31.5	1.0	0.0129	0.042

# 放射化分析による<sup>129</sup>Iの測定

1 A 18

東京大学 物性研究所 本田雅健<sup>○</sup> 堀江絹子

石質いん石中の宇宙線生成核種<sup>129</sup>Iの検出の可能性については Kohmanらによつて Baの核破砕反応<sup>129</sup>Te(n, γ), <sup>130</sup>Te(n, np), (n, 2n), U, Thの核分裂の各過程についての計算がなされており測定も試みられている。<sup>129</sup>Iの半減期は $1.7 \times 10^7$ 年と他の宇宙線生成核種<sup>10</sup>Mn, <sup>135</sup>Cs, <sup>26</sup>Al, <sup>7</sup>Be等と比して長半減期でありいん石中の<sup>129</sup>Iの量は宇宙線の歴史を知る手段として有用である。又大気中のXeの同位体存在比で問題となっている<sup>129</sup>Xeの量が Te, Baの同位体比存在率に較べて異常に高くなっているのは<sup>129</sup>I  $\beta \rightarrow$  <sup>129</sup>Xeの影響とも考えられているがその直接的な証拠としても<sup>129</sup>Iの検出は重要である。石質いん石中の<sup>129</sup>I検出の予備実験として本実験を行つた。

<sup>129</sup>Iは半減期が長くβは150KeVでβ線測定による核種の同定は困難であるが熱中性子を用いた<sup>129</sup>I(n, γ) <sup>130</sup>I反応で生ずる<sup>130</sup>Iの測定がテルル鉱中の<sup>129</sup>Iの検出に用いられている。測定装置としてはβ-γ同時計数又はγ-γ同時計数を使用している。我々は4πβ-γ測定により<sup>129</sup>Iを検出した。

**試料** <sup>129</sup>Iは一般に<sup>130</sup>Te(n, γ) <sup>130</sup>Te  $\rightarrow$  <sup>129</sup>Iの過程で製造されているがこの際<sup>129</sup>Te(n, γ) <sup>129</sup>Te  $\rightarrow$  <sup>129</sup>Iも微量に存在する。<sup>129</sup>Iが殆んど検出されない程古くなった<sup>131</sup>I溶液中の<sup>129</sup>Iを使用した。他に<sup>129</sup>I(n, γ) <sup>130</sup>Iの影響を調べるため試薬のKI溶液を使用した。試料は石英管に入れ乾燥後密封した。

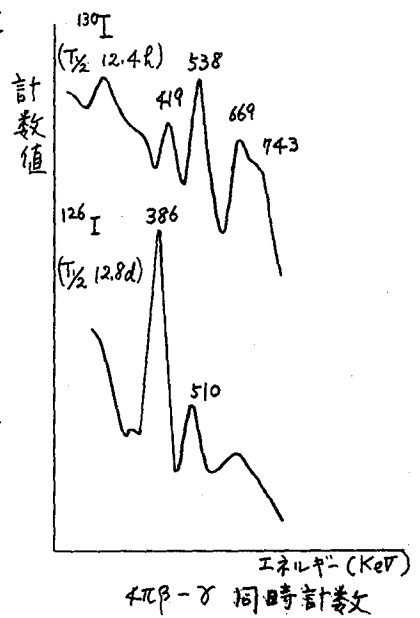
**照射** JRR-2 気送管 ( $8 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup> sec) で20分間照射し取出後6~7時間後に化学分離を行つた。

**化学分離** 照射試料は担体としてKI溶液1ml (9.16mg I/ml) 及び<sup>133</sup>Baの除去のため約1mgのBaを加えた溶液にとかし1:20 HNO<sub>3</sub> 3~4mlに0.1M NaNO<sub>2</sub>少量を加えて生ずるI<sub>2</sub>を3~4ml CCl<sub>4</sub>に抽出する。水層を除き抽出液に1:20 HNO<sub>3</sub> 3~4mlを加えてよくかきまぜながら0.36M NaHSO<sub>3</sub> 溶液をCCl<sub>4</sub>層のI<sub>2</sub>が脱色するまで数滴落としIを水層に逐抽出する。1回の抽出では不純物が十分除去されていないため2回行つた後水層中のIにAgNO<sub>3</sub> 溶液を加えてAgIの沈澱を作しミリオン紙で吸引し過し赤外線ランプでゆとり乾燥し秤量して収率を求めた。この操作で<sup>42</sup>K, <sup>82</sup>Brは十分除かれた。

**測定** 1) 試料中の<sup>129</sup>Iの量は低レベルβ計数装置(B.G. 0.08 ± 0.01 cpm)を用いて<sup>14</sup>C標準試料により絶対測定を行つた。測定前に試料中の不純物を除くため上記の方法で精製した。2) <sup>130</sup>Iは4πβ-γ測定装置を使用して測定した。4πβ検出器はアクリル樹脂製の25mmφ × 7mm厚のガスフローGM計数管2コよりなる陰極は導電材料の銀ペイントを塗布陽極は2milのタンクステン線である。試料は無酸素銅製の1mm厚の棒の両側に片面全蓋着マイラーをばうたもりにマウントすれば陰極も兼ねている。γ線検出器としては1.5"φ NaI(Tl) 結晶を用いたがこれは低レベル放射能測定用として容器をステンレス、窓を石英としたものである。測定は鉛10cm厚のシールド中で行

かつた。3)  $^{127}\text{I}$  ( $n, \gamma$ )  $^{128}\text{I}$  (25min) 及び  $^{127}\text{I}$  ( $n, 2n$ )  $^{126}\text{I}$  (12.8d) の妨害が考えられるが  $^{128}\text{I}$  は短時間であるからその減衰を待つて測定する。 $^{126}\text{I}$  による  $\beta$ - $\gamma$  同時計数のスペクトルを  $^{130}\text{I}$  のスペクトルと比較したものが右の図である。538 KeV のピークを取れば  $^{126}\text{I}$  による影響は無視出来る。  $\beta$  線測定のみでは短半減期の不純物を追跡したりするが  $4\pi$   $\beta$ - $\gamma$  同時計数を行ない、その半減期を測定すれば誤まりはない。4) 測定の結果  $5 \times 10^{-7}$  dpm 程度までの  $^{129}\text{I}$  の検出は可能である。

現在  $4\pi$   $\beta$  計数管の逆同時計数をファットにするこゝと  $\gamma$  線検出器を  $3''$  中の NaI(Tl) 結晶に改造中で更に感度を向上出来る。現在この実験に利用可能な気送管照射は 20 min であるがこの時間が延長されるか又は大きい中性子束の原子炉の利用が望まれる。



14 MeV 中性子束およびアクチニド諸核種核  
分裂断面積の核分裂片飛跡による研究

2 A 19

(金沢大・理) ○中西 孝・生田泰朗・阪上正信

**目的** 核分裂片飛跡法による中性子束の測定で、他の方法では不可能な非常に微細な中性子束密度の空間分布も容易に知りうる。また核分裂断面積既知の核種と同時照射し、対比することにより、核分裂断面積未知の核種のそれと飛跡法で簡単に求めることができる。今回は14 MeV 中性子発生装置周辺の中性子束密度の空間分布の測定も、蒸着天然ウラン-白雲母飛跡検出器、ならびに天然ウラン入りガラス、トリウム入りガラスを用いて検討するとともに、14 MeV 中性子に対する核分裂断面積のデータの少ない若干のアクチニド核種を照射してその断面積を求めた。

**方法と結果** (1) 14 MeV 中性子発生装置周辺の中性子束密度の評価

天然ウランを銅板に蒸着したものを約 5.5 cm x 4 cm の大きさに切断し、二重格子付電離箱〜多重波高分析器でα-スペクトロメトリーを行ない、単位面積あたりの蒸着ウラン量を求め、14 MeV 中性子発生装置(東芝 NAT-200-2形)のターゲットキャップ表面における中性子束密度とその分布の測定用ターゲットとした。ウランが均一に蒸着されているかどうかは、蒸着板の数部分から数 mm 四方の小片をいくつか切りとり、それぞれについてウラン原子の密度を測定し、もとの大きな蒸着板での測定値と比較するとともに、白雲母を蒸着面に密着し中性子照射による核分裂片飛跡分布のようすからも検討した。この結果ウランが均一に蒸着されており、そのウラン原子密度は  $3.35 \times 10^{17}$  原子/cm<sup>2</sup> であることが確認された。この蒸着ウランターゲットのウラン層の厚さは核分裂片の飛程以下である。熱希塩酸で洗浄しそれ自身の表面汚染を除去した、蒸着板と同

Fig. 1

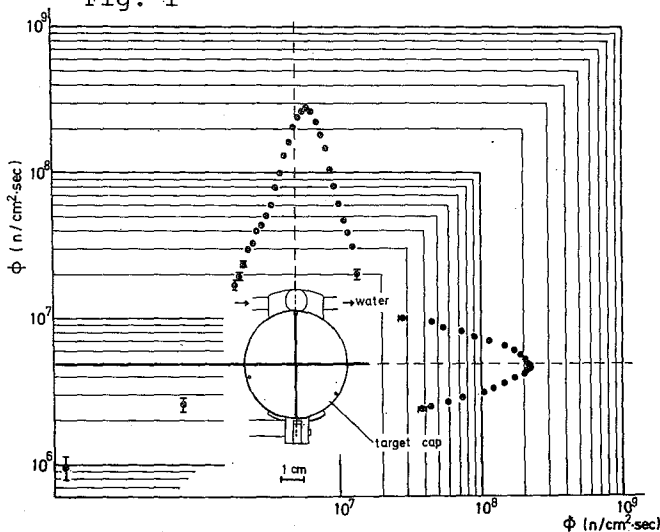
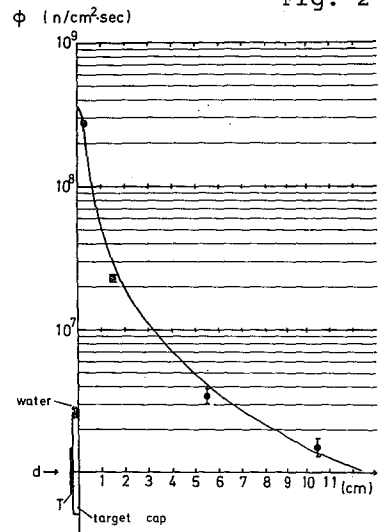


Fig. 2



じ大きさの白雲母を蒸着面に密着し、中性子発生装置のターゲットキャップ表面にヒリつけ固定する。これと同時に数mm四オのウラン蒸着板に白雲母を密着したものをウラン入りガラス、トリウム入りガラス（東芝製）などを、ターゲットキャップに対し種々の位置に固定し中性子照射をする。照射時間は20~200分である。中性子照射後白雲母は24℃の46% HFで30分間、ガラスは80℃の30% NaOHで5分間腐食する。表面腐食後、充分水洗、乾燥して顕微鏡下で腐食された飛跡を観察、写真撮影し、写真上で飛跡計数により飛跡密度を求める。ターゲットキャップ表面にあてた白雲母は顕微鏡ステージの目盛に合わせて1~2mmづつ移動させてターゲットキャップ表面上の各点に対応させながら飛跡密度( $\rho_c \text{ cm}^{-2}$ )を精査し、ターゲット原子密度( $N \text{ atom. cm}^{-2}$ )、照射時間( $t \text{ sec}$ )、核分裂断面積( $\sigma_F \text{ cm}^2$ )から $\phi = \rho_c / N \sigma_F t$ の式により、中性子束密度( $\phi \text{ cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ )を計算する。結果の一部をFig. 1に示す。Fig. 2にターゲットキャップ面に対し垂直方向の中性子束密度分布のようすを示す。一オ、ガラスはウラン入りガラスウラン含量7.44%、トリウム入りガラストリウム含量26.8%で、14 MeV中性子に対してはほぼ同じ感度を有し、蒸着ウラン~白雲母の約12倍の感度である。このガラスを用い、中性子発生装置周囲や原子炉周辺の、長期間における積算漏えい中性子線量の測定を行なっている。

(2) 14 MeV中性子に対する核分裂断面積の測定

14 MeV中性子に対する核分裂断面積のデータの少ない $^{227}\text{Ac}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{231}\text{Pa}$ ,  $^{232}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ をステンレス板に電着し、各核種についてそれぞれ原子密度を $\alpha$ -スペクトロメトリーにより求め、白雲母を密着し、核分裂断面積既知の $^{238}\text{U}$ (前の実験に用いた蒸着ウランターゲット使用)~白雲母で両面をサンドウィッチ状にはさみ中性子照射する。蒸着ウランによる飛跡数から、向にはさんだ14 MeV中性子に対する核分裂断面積未知の核種のターゲット面における積算中性子線量を $\phi t = \rho_c / N \sigma_F$ の式で求め、この値を未知試料に対する $\sigma_F = \rho_c / N \phi t$ なる式に代入して、上記各核種について、それぞれ14 MeV中性子に対する核分裂断面積を求める。このさい、14 MeV中性子に対する $^{238}\text{U}$ の $\sigma_F$ を1.13バーンとして計算した。結果の一部をTable 1に示すが、 $^{232}\text{Th}$ と $^{237}\text{Np}$ については核分裂片飛跡法で求めた値が、最近他の研究者によって出されているので参考までに引用する。本研究の結果には10数%の誤差が伴っているが、い的一致を示すものと考えらる。さらに上記核種について $T(d, n)^4\text{He}$ 反応による14 MeVの中性子以外に $D(d, n)^3\text{He}$ による2.5 MeV中性子や京大炉の水圧輸送管、傾斜照射孔、圧気輸送管、黒鉛設備などにおける照射実験の結果得られた種々の中性子エネルギー分布での平均核分裂断面積の値も求めて比較検討した。

Table 1

	Fissionable Material	$\sigma_F(E_n=14 \text{ MeV})$ (barn)	Reference
	U-238	1.13	
this work	Th-232	0.39	0.38*
	Pa-231	1.84	
	U-232	$2.5 \times 10^4$	
	Np-237	2.39	2.31**

\* P.F. Rago & N. Goldstein, Health Phys., 13, 654 (1967).

\*\* P.F. Rago & N. Goldstein, Health Phys., 13, 595 (1968).

$Mo^{92}(p, \gamma)$  反応の異性体断面積

(大阪大学理学部)

吉沢康和, 福島昭三, 竹花洋一, 河本治巳

スピン状態の異なる異性体の生成する励起関数を測定し、これを統計論的モデルによって説明しようとする試みは既に数多い。特に, *Vandenbosch*, *Hülzenga* らの手法による解析は,  $(p, \alpha n)$  反応や  $(\alpha, \alpha n)$  反応において可成り成功している。この方法によれば、異性体断面積を支配する要素は次のようなものである。i) 複合核におけるスピン分布。ここでは透過係数  $T_c(\epsilon)$  が問題となる。ii) 複合核よりの  $n$  蒸発において、 $n$  が持ち去るエネルギーと角運動量。これは  $n$  の  $T_c(\epsilon)$  と共に残留核のスピンを含む準位密度が問題である。iii) 最終残留核の  $\gamma$  線放出。ここでは  $\gamma$  転位の多重度とエネルギーによる転位確率の変化、および ii) と同じく行先の状態の密度が問題となる。実際の計算においてはこれらの要素を表すいくつかのパラメータの値を適当に調節して実測値を説明しようとするのが普通であるが、反応過程が複雑になればなる程、いわゆる "Adjustable parameter" の数が多くなって不定の要素が増し、たとえ一つのパラメータ・セットを用いた計算によって実測値が説明出来たとし、そのことだけでその用いたモデルの妥当性を確認することはむづかしい。反応の各過程に対する知識が十分でない現段階では、できる限り単純な反応系を対象として可変パラメータの数を一つでも少なくすることが望ましい。この意味において、 $(p, \gamma)$  や  $(\alpha, \gamma)$  反応は上記 ii) の段階を含まないだけ不定の要素が少く好ましい。しかし、今までにこの種の反応について異性体生成の励起関数が報告された例は見当たらない。

さて、放射化法によって  $(p, \gamma)$  反応の異性体断面積が測定されるためには、i) 取扱いに便利なターゲット物質が得られること。ii) 目的とする生成核が他の反応によって生成する可能性がないこと。iii) 生成核の寿命が測定に便利であること。iv) 生成核からの放射線の測定が他の核の放射線によって妨害されないこと。v) 解析に必要な壊変データが生成核のスピンパリティまで確実なことが必要である。相当広範囲な調査の結果は、そのような好条件を備えた反応系は非常に少ないことを示している。

$Mo^{92}(p, \gamma) Tc^{93, 93m}$  の系は、その  $\gamma$  線による測定が副反応によって生成する  $Tc^*$  の妨害を受けやすい難点はあるが、ほゞ上記の条件を満足する数少ない例の一つである。本実験では、 $E_p = 5 \sim 12$  MeV の範囲においてこれらの反応の断面積を測定した。ターゲットには  $Mo^{92}$  の S. I. を用いた (98.27%) が  $Mo^{94}$  の混在が 0.46% あり、これからの  $(p, 2n)$  反応が起り出すと、

$Tc^{93,93m}$ が生成するのでこの反応のキイエネルギー、1.3 MeV以上の領域では目的とする(p,γ)反応の測定は不可能である。なお、この $Mo^{92}+p$ の複合核から $n$ の蒸発が起つて、(p,γ)反応と競争し始めるのは $E_p \sim 7.3$  MeV附近と考えられる。もし、 $n$ の蒸発が $Tc^{93*}$ におけるスピン分布に大きな変化をもたらすものならば、(p,γ)反応の $m/g$ 比は $E_p \sim 7.3$  MeV附近において急激な変化を示すであろう。このことが実際に表われるかどうかも特に興味のある点である。

[実験と結果]  $Mo^{92}$ は $MoO_3$ の微粉とした後、アセトン懸濁液から3~5 mg/cm<sup>2</sup>の一枚な厚士の層としてAlの箔上に電着させ、ターゲットとした。これを2~3枚のスタックとし、東大核研、FFサイクロトロンからのpをビームアナライザーを通した後、照射した。照射後、 $MoO_3$ もAl箔より

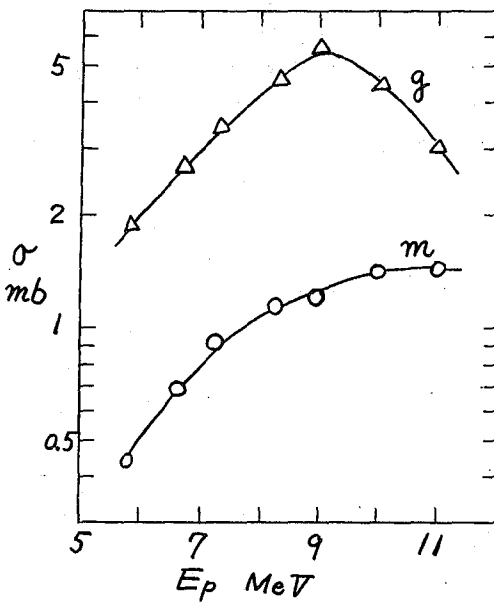


Fig. 1. Isomeric cross-sections  
 $\Delta$   $Mo^{92}(p, \gamma) Tc^{93g}(9/2+)$   
 $\circ$   $Mo^{92}(p, \gamma) Tc^{93m}(1/2-)$

かき落すだけで化学分離は行わず、3'x3' NaIシンチレータと200チャンネル波高分析器によるγ線測定を行った。主要な妨害γ線は $Tc^{93*}$ からのものなのでここでは化学分離は意味がない。 $Tc^{93m}$ (43 min)の定量には0.390 MeVのIT線を、 $Tc^{93g}$ (2.8 h)の定量には1.35-1.48 MeVのγ線を用いた。0.39 MeV線の正確な定量は、他のγ線からの妨害により容易でないが、いわゆる"Peeling-off"を念に繰返す。 $Tc^{93m}$ については通常の減衰曲線を、 $Tc^{93g}$ については生長-減衰曲線を解析し、また照射中のそれぞれの生長-減衰の関係も考慮して求めた励起関数をFig. 1に示す。

この結果から直ちに言えることは、統計論で期待される断面積の値より可なり大きいことである。

一方、前述のVandenbosch-Huizengaの方法

に多少の改良を加えた計算法により $m/g$ 比がどこまで説明出来るか検討を加えている。実験値では、 $E_p > 9$  MeVで $m(1/2-)$ が余り変化しないのに $g(9/2+)$ の生成が急減しているが、このことが $n$ の蒸発とどう関連しているか特に興味を持たれる。



ベータトロンのγ線による  
 $^{115}\text{In}(\gamma, n)^{114}\text{In}$  反応について

東教大理 池田長生, 木村幹, 〇針ヶ谷俊治

## 目的

γ線の照射線量, 線量率の測定方法には, 電離箱を用いる方法, 化学変化を利用する方法など各種あるが, これらは, いづれも焦点状の位置の線量率測定には適さないし, 測定限界があるなどの欠点がある。金属の放射化法による線量率測定ではこのような欠点が補え, また化学的線量計に比べて操作がいちじるしく簡単である。インジウム<sup>115</sup>の放射化による線量率測定法については, すでに, 池田, 吉原らが $^{115}\text{In}(\gamma, n)^{114}\text{In}$ 反応による $^{60}\text{Co}$ の線量率測定について報告している。本報告では, 制動放射線の線量率測定も $^{115}\text{In}(\gamma, n)^{114}\text{In}$ 反応により行うことを検討した。 $^{115}\text{In}(\gamma, n)^{114}\text{In}$ 反応については, 24 Mevまでの放射化曲線, 励起関数が報告されている。線量率測定の検討には, さらに高いエネルギーについてまで放射化曲線を知る必要があり, 本報告では27 Mevまでの放射化曲線を得た。また近似的な励起関数を求めて, すでに報告されたものと比較してみた。励起関数を得る際に必要な, γ線の強度-角度分布の補正は Schiff の報告した値を用いて行った。

## 方法

γ線源としては東教大のベータトロン (最大エネルギー, 30 Mev) を用い, 白金のコンバーターにより電子をγ線に変えた。基準とした線量は 11 Cm 立方のルサイトブロッフの中に入れたガイクトリオン線量計で, またモニターの線量はポケット線量計を用いて測定した。 $^{114}\text{In}$ の放射能は G. M. カウンターで測定した。インジウムターゲットは, 直径 2.2 Cm, 厚さ 0.29 mm の円板状の箔を用いた。コンバーターから 25.8 Cm の位置で, 12 分間照射したのち,  $^{114}\text{In}$ の壊変曲線から外挿法により照射終了時の放射能を求めた。

## 結果

γ線の最大エネルギー, 照射終了時の放射能, ガイクトリオン線量計による測定結果を表-1 に示す。表-1 の測定結果より, 線量率  $^{100}\text{R}/\text{min}$  でインジウム 1 g あたりには生成する計数率を計算し, それを図-1 に示す。表-1 の測定値に必要な補正をほどこして, 補正された放射化曲線を得る。この補正にあたっては壊変率と計数率との関係が以下の式に従うと仮定した。また, 計数効率などの測定には短半減期の  $^{114}\text{In}$  のかわりに, これにβ線のエネルギーの近い  $^{90}\text{Y}$  を用いた。

$$R = a^* \cdot c \int_0^d e^{-\mu x} dx + a^* \cdot c \cdot A \int_0^d e^{-\mu(d-x)} e^{-\mu x} dx + a^* \cdot c \cdot B \cdot e^{-\mu d} \int_0^d e^{-\mu x} dx + a^* \cdot c \cdot B \cdot A \cdot e^{-\mu d} \int_0^d e^{-\mu(d-x)} e^{-\mu x} dx$$

$$= \frac{a^* \cdot c \cdot (1 + B e^{-\mu d})}{\mu} \cdot (1 - e^{-\mu d}) + \frac{a^* \cdot c \cdot A (1 + B e^{-\mu d}) \cdot e^{-\mu d}}{(\mu' - \mu)} \cdot (e^{d(\mu' - \mu)} - 1)$$

ただし, R --- 実測計数率    c --- 計数効率     $a^* = \frac{R^*}{d}$      $R^*$  --- 真の壊変率  
d --- インジウム箔の厚さ    B --- 支持台による後方散乱率

$\mu$ --- $^{90}\text{Y}$ 放射能のインジウム箔による吸収係数 A--- $^{90}\text{Y}$ 放射能のインジウム箔  
 単位厚さあたりの後方散乱率  $\mu$ --- $^{90}\text{Y}$ 放射能のインジウム箔による後方散乱係  
 数。

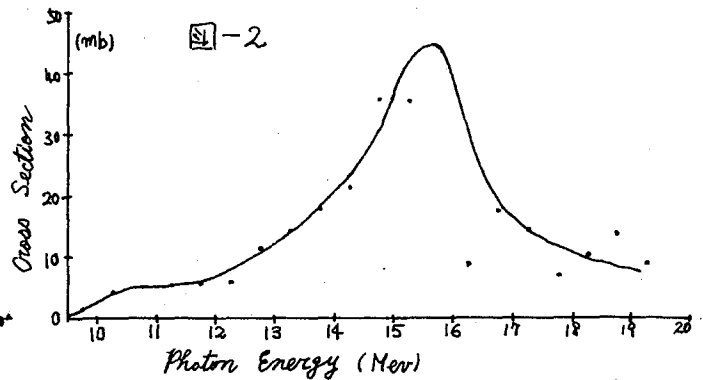
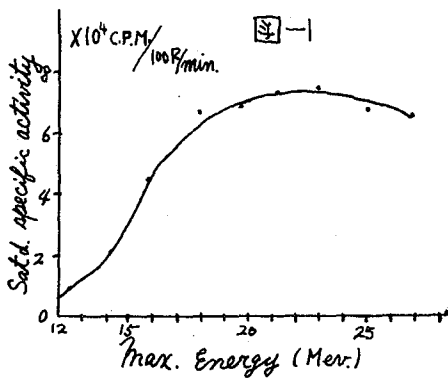
補正された放射化曲線を, Katz, Cameronが提唱した Photon-Difference 法によつて解  
 析し, 放射化断面積を計算した。その結果を表-2 と図-2 に示す。

表-1 放射能と線量

$\gamma$ 線の最大エネルギー (MeV)	照射終了時の 放射能 (C.P.M)	線量 (R)
12.4 ± 0.4	1296	15.0
14.2 ± 0.4	2796	14.0
15.8 ± 0.4	3900	9.4
17.9 ± 0.4	8160	12.8
19.7 ± 0.4	9120	14.1
21.3 ± 0.5	5520	8.1
23.0 ± 0.5	6960	9.9
25.1 ± 0.6	8280	13.3
26.9 ± 0.5	8220	13.7

表-2 放射化断面積

エネルギー (MeV)	放射化断面積 (mb)	エネルギー (MeV)	放射化断面積 (mb)
9.75	1.45	14.75	35.6
10.25	4.16	15.25	35.4
10.75	5.06	15.75	44.1
11.25	5.33	16.25	8.80
11.75	5.65	16.75	17.3
12.25	5.97	17.25	14.3
12.75	11.3	17.75	6.91
13.25	14.2	18.25	10.2
13.75	17.9	18.75	13.8
14.25	21.4	19.25	8.76



### 考察

インジウムの放射化による制動放射線の線量率測定は, コンバーターから1Mの所  
 で線量率が15R/min程度なら, 本報告における条件で放射化すれば, 最大エネルギーが  
 19MeVから26MeVの範囲で±0.5MeVのエネルギー変動があつても±10%以内の誤差で行える。  
 さらに高い線量率の場合には, もっと小さな誤差内で測定が可能である。

$^{96}\text{Ru}$ ,  $^{102}\text{Ru}$  と  $^{104}\text{Ru}$  に対する  $(d, p)$  反応の励起関数

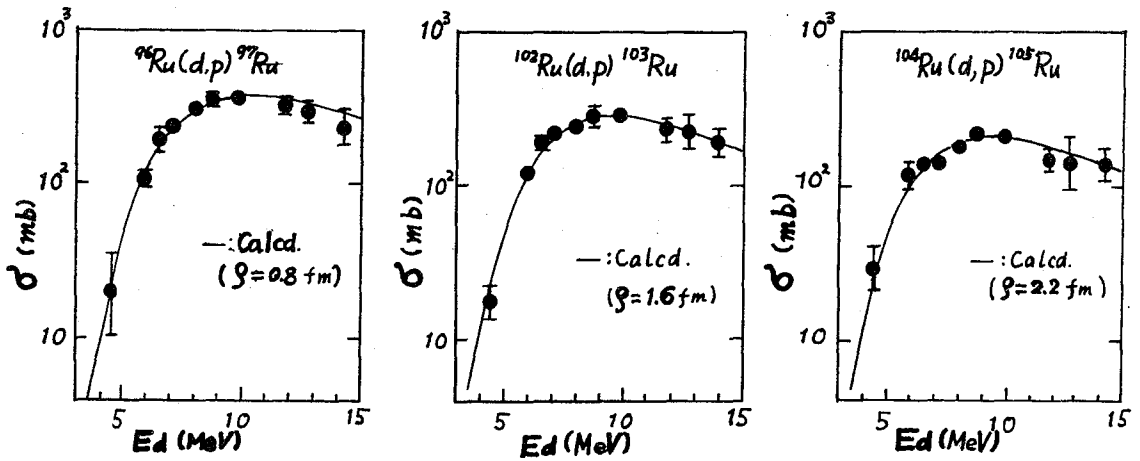
大塚 理 ○三 藤安 佐枝, 小村 和久  
三 頭 聡明, 音左 清輝

目的 さきに音左らは、 $^{142}\text{Ce}^{1)}$ ,  $^{70}\text{Ge}$ ,  $^{96}\text{Zr}$  と  $^{100}\text{Te}^{2)}$  の重陽子反応  $(d, P)$ ,  $(d, n)$ ,  $(d, 2n)$  などの励起関数を測定し、Peaslee 理論<sup>3)</sup>を改良してストリッピング過程と複合核過程の両方を考慮した解析法によって全反応を統一的に説明した。この中で  $^{70}\text{Ge}$  の実験値は他の3つの核に共通なパラメータを用いた計算値に一致せず、全吸収パラメータ  $\rho$  およびスティッキングアプロバビリティ  $S_p$  を小さくして実験値を再現した。この研究では、 $^{70}\text{Ge}$  の  $\rho$  が共通の値より小さくなる原因を実験的に追求することを目的とした。4つのターゲット核を比較すると、 $^{70}\text{Ge}$  は原子番号が小さく、また、 $\beta$ 安定線より中性子過疎側にあるという2つの特色をもっている。 $^{70}\text{Ge}$  の小さい  $\rho$  がこのどちらの特色に起因するかを見ようとした。 $(d, p)$  反応は  $\text{Ge}$  以上の領域ではほとんど純粋にストリッピング過程が寄与し、蒸発過程に関係するパラメータの影響をうけることが少なく、断面積は  $\rho$  の値によって比較的純粋に影響をうける。以上を考慮して、原子番号が十分大きく、中性子数が互に著しく異なる同位元素について  $(d, P)$  反応が測定出来る  $^{96}\text{Ru}$ ,  $^{102}\text{Ru}$  と  $^{104}\text{Ru}$  をターゲット核に選び、それぞれの  $(d, p)$  反応の断面積を求めた。

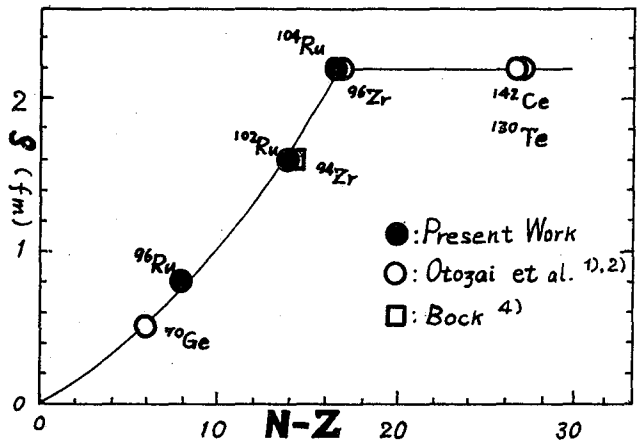
実験 ターゲットは純度 99.9% の天然組成の  $\text{Ru}$  を  $\sim 3 \text{ mg/cm}^2$  の厚みに銅箔上に電着させて作った。これを  $\text{Al}$  箔と組み合わせてスタフにし、大阪大学 (12.1 および 11.2 MeV) および京都大学 (4.6 MeV) のサイクロトロンで照射した。重陽子のエネルギーとその広がりアルミニウム吸収法で測定した。照射後のターゲットを塩素が入りの熱  $6N\text{-NaOH}$  を用いて溶解した。 $\text{Ru}$  と  $\text{Rh}$  との分離は、共に担体を含む状態で、硫酸酸性溶液から  $\text{RuO}_4$  と四塩化炭素によって抽出した。 $\text{Ru}$  および  $\text{Rh}$  はそれぞれ硫酸物として沈澱させ、測定線源とした。生成放射能の測定は  $7.6 \text{ cm} \times 7.6 \text{ cm}$   $\text{NaI}$  を用いて表に示した方法で行った。

放射能測定の要領				
反応	生成物の半減期	測定放射線	計数効率の決定	測定 $\text{RI}$ の崩壊図式の文献
$^{96}\text{Ru}(d, p)^{97}\text{Ru}$	2.855d <sup>5)</sup>	$^{97}\text{Ru}$ の 0.216MeV- $\gamma$	定立体角	Cretzu, et al. <sup>8)</sup>
$^{102}\text{Ru}(d, p)^{103}\text{Ru}$	39.5d <sup>6)</sup>	$^{103}\text{Ru}$ の 0.498MeV- $\gamma$	$^{22}\text{Na}$ 標準との比較	Mukerji, et al. <sup>9)</sup>
$^{104}\text{Ru}(d, p)^{105}\text{Ru}$	4.43hr <sup>7)</sup>	$^{105}\text{Rh}(35.88\text{hr})^{7)}$ の 0.306, 0.319MeV- $\gamma$	定立体角	Pierson <sup>10)</sup>

結果と検討 オー3図に、得られた実験値を、励起関数として示した。同じ図中に、各々の反応を音左らの方法<sup>1)</sup>で解析した結果を実線で示した。これらの計算には、 $V_0 = 1.6 \text{ fm}$ ,  $S_n = S_p = 1.0$ ,  $a = 5 \text{ MeV}^{-1}$  の値を用い、 $\rho$  の値は 2.2 から  $0.5 \text{ fm}$  の間を  $\pm 0.1 \text{ fm}$  の精度で実験値に適合させた。計算値はいずれも実験値をよく再現している。



$^{104}\text{Ru}$ のみが  $\rho = 2.2\text{fm}$  で  $^{142}\text{Ce}$ ,  $^{96}\text{Zr}$ ,  $^{100}\text{Te}$  と共通の値である。 $^{96}\text{Ru}$ ,  $^{102}\text{Ru}$  と  $^{104}\text{Ru}$  を比べるとターゲット核の中性子数が大きくなるにつれて  $\rho$  の値が大きくなっている。得られた  $\rho$  の値をターゲット核のアイソトピック数 ( $N-Z$ ) に対してプロットし、4 図に示した。図には比較のために、各柱らが解析した  $^{142}\text{Ce}$ <sup>1)</sup>,  $^{70}\text{Ge}$ <sup>2)</sup>,  $^{96}\text{Zr}$  と  $^{130}\text{Te}$ <sup>2)</sup> の最適  $\rho$  および Bock<sup>4)</sup> が測定した  $^{94}\text{Zr}(d,p)^{95}\text{Zr}$  の励起関数を著者らが同じ方法で解析して得た  $\rho$  の値も書き加えてある。図から明らかなる様に、 $\rho$  の値はアイソトピック数が 16 までは単調に増加し、16 以上では  $2.2\text{fm}$  の一定値をとっている。この様に  $\rho$  の値に対してアイソトピック数の臨界値が存在することは興味深い。また、当初の目的である  $^{70}\text{Ge}$  について考えると、ターゲット核の小さい原子番号と中性子過剰との両方の特色がアイソトピック数を小さくし、従って小さい  $\rho$  の値を要求したといえる。



- 1) K. Otozai, S. Kume, M. Koyama, T. Mitsuji, T. Nishi and I. Fujiwara, Nuclear Physics 81 (1966) 322
- 2) K. Otozai, S. Kume, H. Okamura, A. Mito, T. Nishi and I. Fujiwara, Nuclear Physics A107 (1968) 427
- 3) D. C. Peaslee, Phys. Rev. 74 (1948) 1001
- 4) R. Bock, Z. Phys. 164 (1961) 546
- 5) K. Komura, A. Mito and K. Otozai (to be published)
- 6) K. F. Flynn, L. E. Glendenin and E. P. Steinberg, Nucl. Sci. Eng. 22 (1965) 416
- 7) H. W. Brandhorst, Jr. and J. W. Cobble, Phys. Rev. 125 (1962) 1323
- 8) Von T. Cretzu, K. Hohmath, G. Winter and J. Schintlmeister, Ann. Phys. 17 (1966) 1
- 9) A. Mikerji, D. N. McNelis and J. W. Kane, Jr., Nuclear Physics 67 (1965) 466
- 10) W. R. Pierson, Phys. Rev. 140 (1965) 1516

# $^{76}\text{Ge}$ 重陽子反応の励起関数

2 A 2 3

京大工研

西 朋太, 藤原一郎, 中原弘道  
今西信嗣, 岡本弘信

1. 目的 さきに著者および音在等は $^{142}\text{Ce}$ ,  $^{130}\text{Te}$ ,  $^{96}\text{Zr}$ ,  $^{70}\text{Ge}$ ,  $^{64}\text{Zn}$ の一連の重陽子反応の励起関数をもとめ、その実験値をストリップング過程と複合核過程の両方を考慮した解析法に依って説明し、ターゲット核の原子番号をかなり広い範囲にわたって変えても、この解析法がよく実験値を再現し得ることを明かにした。更にその解析法でのパラメーターの組については $^{142}\text{Ce}$ ,  $^{130}\text{Te}$ ,  $^{96}\text{Zr}$ は一連の共通のパラメーターに依ってその励起関数が再現され、 $^{70}\text{Ge}$ ,  $^{64}\text{Zn}$ はそれとは別のパラメーターに依って励起関数が再現される結果になった。これらのターゲット核で $^{142}\text{Ce}$ ,  $^{130}\text{Te}$ ,  $^{96}\text{Zr}$ はいづれも原子核の安定線より中性子過剰の核種であり、 $^{70}\text{Ge}$ ,  $^{64}\text{Zn}$ は中性子不足の核種であることが注目された。そこで同一原子番号で安定線の両側で上に述べた様な関係がどの様になっているかを知る目的ですでに実験が行はれてゐる中性子不足の核 $^{70}\text{Ge}$ に対して中性子過剰の核 $^{76}\text{Ge}$ をターゲットに撰んで重陽子反応の励起関数をもとめ、上述の解析法で励起関数を再現してどの様なパラメーターの組が得られるかをしらべた。

2. 生成放射性核種 生成放射性核種をその半減期及び測定に用いたγ線のエネルギー及びその分岐比とともに表に示す。

表

反応	生成放射性核種	半減期	測定に用いたγ線エネルギー	分岐比
d, p	$^{77m}\text{Ge}$	56 sec	0.159, 0.215 MeV	IT 20%, 22%
	$^{77g}\text{Ge}$	11.3 hr	0.215, 0.265 MeV	
d, n	$^{77}\text{As}$	38.8 hr	0.240 MeV	2.2%
d, 2n	$^{76}\text{As}$	26.4 hr	0.559, 0.657 MeV	51.3%
d, d	$^{74}\text{Ga}$	7.9 min	0.600, 2.35 MeV	98%, 49%
d, dn	$^{73}\text{Ga}$	4.8 hr	0.296 MeV	87%

3. ターゲットと照射 ターゲットは濃縮同位元素 $^{76}\text{Ge}$  (93.55%) を酸化物でアセトン懸濁液からアルミニウム箔上に沈降させた。また別に $^{77m}\text{Ge}$ の励起関数をもとめるためのターゲットとして、上記の $^{76}\text{Ge}$ 酸化物を水素気流中で $770^\circ\text{C}$ で還元し $^{76}\text{Ge}$ 金属の粉末とし、アセトン懸濁液からタンタル箔上に沈降させたものを使用した。照射は京都大学化学研究所原子核研究施設のサイクロトロン(105 cm)のRIコースでスタック法を用いて行った。入射重陽子エネルギーとその日々の変動は $14.6 \pm 0.1$  MeVであった。

4. 化学分離 照射後酸化物ターゲットは濃希化水素酸0.5 ml に溶解した。金属ターゲットは0.5 ml の希化水素酸に3滴の30%過酸化水素水を加えたものに溶解した。キャリアーとしてAs, Ga を約10 mg づつ加え液を2 M硫酸酸性としてククロン

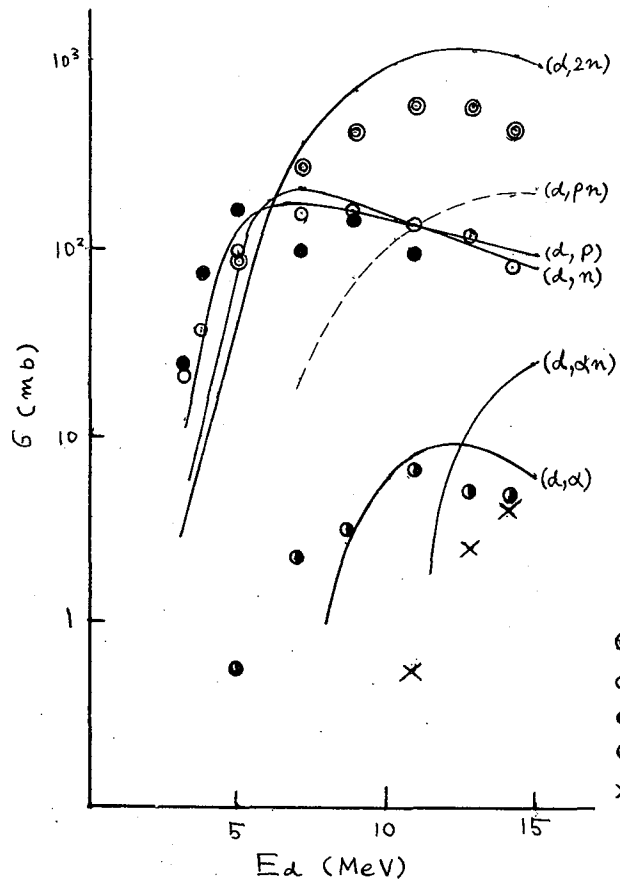
(アルコール溶液)を加えてGaを沈澱として分離し、ガリウムクプレートに濃アンモニア水に溶解して塩化ホニ鉄を加えて水酸化鉄によるスキヤベンジを行い、微酢酸酸性でオキシンを加えてガリウムオキシネートの沈澱としてマウントした。ガリウムクプレートを分離した母液を5M硫酸酸性として、少量のNaIを加えて砒素を3価に還元し、硫化物として砒素を沈澱分離した。この際ゲルマニウムは充分の弗素イオンが共存するために硫化物となって沈澱することはない。As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>の沈澱は王水に再溶解し蒸発乾固して汚染しているゲルマニウムを除き、再び5Mの硫酸酸性液から硫化物として沈澱させてマウントした。最初に砒素を分離した母液に再び砒素のキヤリヤーを加えて硫化水素を通じ母液を2回くり返して、砒素の放射能を除き、ホウ酸を加えて硫化水素を通じ硫化ゲルマニウムを沈澱させてマウントした。

5. 放射能測定 生成核種の定量は3"×3" NaI(Tl)と400チヤネルPHAを用いてオー表に掲げたγ線を測定し、その崩壊をプログラムCLS Qと計算機KDC-IIを用いて解析することによって行った。<sup>77m</sup>Geは照射後化学分離を行わず直ちにγ線の測定を行った。GaはEDTA滴定、As, Geは比色法により化学収率を測定した。

5. 実験結果 オー図に各反応の励起関数を示す。図中の実線ははじめに述べた音圧等の方法で計算した結果で  $\delta_0 = 1.6 \text{ fm}$ ,  $a = 3 \text{ MeV}^{-1}$ ,  $\rho = 2.2 \text{ fm}$ ,  $\xi_n = \xi_p = 1.0$  のパラメータをとった場合を示した。

6. 結果の考察 <sup>70</sup>Geの場合パラメータは  $\rho = 0.5 \text{ fm}$ ,  $\xi_n = 1.0$ ,  $\xi_p = 0.5$  で実験との最も良い一致が得られたのに対して<sup>76</sup>Geでは他の中性子過剰核種の解析に用いた一組のパラメータすなわち  $\rho = 2.2 \text{ fm}$ ,  $\xi_n = \xi_p = 1.0$  を用いて (d, p) 反応はかゝり良い一致が見られた。(d, n), (d, 2n), (d, α) 反応は近い値が再現されていると考えられるが、計算値の方が多少実験値を上廻る様である。(d, αn) 反応では計算値がかゝり実験値を上廻る。最も一致の良いパラメータの組については目下検討中である。

- (d, 2n)
- (d, p)
- (d, n)
- (d, α)
- × (d, αn)



$^{63}\text{Cu}$  及  $^{65}\text{Cu}$  の重陽子反応における励起曲線

阪大理

岡村日出夫

玉川伸也

1 目的  $^{63}\text{Cu}$ ,  $^{65}\text{Cu}$  の  $(d,p)$ ,  $(d,zn)$  反応の励起関数は、3 の人によって求められている。(第1図参照)

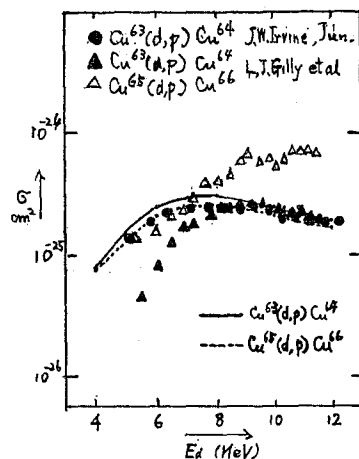
$^{63}\text{Cu}(d,p)^{64}\text{Cu}$  } Gilly, Irvine  
 $\searrow (d,zn)^{63}\text{Zn}$   
 $^{65}\text{Cu}(d,p)^{66}\text{Cu}$  } Gilly  
 $\searrow (d,zn)^{65}\text{Zn}$  } Wolke, Irvine

これらの励起関数のうち  $^{65}\text{Cu}(d,p)$  を除く他の3反応についてはそれぞれ2者の間での一致もかなりよく、又音倉らの提出した改良型 Peaslee 法による計算値ともかなりよく一致している。

一方  $^{65}\text{Cu}(d,p)$  反応については特に高エネルギー部での計算値との不一致がはなはだしい。

Gilly et al によれば  $\sigma[^{65}\text{Cu}(d,p)]$  は  $\sigma[^{63}\text{Cu}(d,p)]$  の3~4倍であり、このように異常に大きな断面積を与える  $^{65}\text{Cu}(d,p)^{66}\text{Cu}$  反応はストリッピング過程だけでは説明困難だとしている。

$^{63}\text{Cu}$ ,  $^{65}\text{Cu}$  は共に odd Z - odd N 核であり、非常によく似た核種であると考えられるにもかかわらず、 $^{65}\text{Cu}(d,p)$  反応の断面積だけが異常に大きいのは、かなり重大な問題である。この異常性が核種によるものか、実験の不備によるものかを確かめる目的で実験をやりなおした。あわせて他の3反応の励起関数も求めた。



第 1 図

2 実験及結果

(ターゲット) natural Cu foil (8~9 mg/cm<sup>2</sup>)

(照射) 大阪大学サイクロトロンによる。

Ed = 11.24 ± 0.1 MeV (Al箔の吸収法による)

(生成核種と測定法) 次表 (化学分離なし)

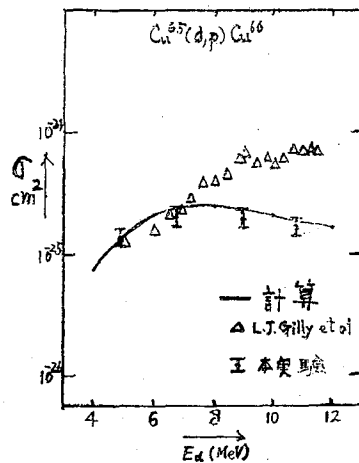
反 応	半減期	測定放射線	測 定 法
$^{65}\text{Cu}(d,p)^{66}\text{Cu}$	5.2 m	1.04 MeV $\gamma$ -ray $\beta$ -ray	relative: $7.6 \times 7.6$ NaI absolute: $\beta$ - $\gamma$ Coincidence $3.8 \times 0.5$ anthracene - $7.6 \times 7.6$ NaI
$^{65}\text{Cu}(d,zn)^{65}\text{Zn}$	245 d	1.114 MeV $\gamma$ -ray	定立体角法 $7.6 \times 7.6$ NaI
$^{63}\text{Cu}(d,p)^{64}\text{Cu}$ $\searrow (d,zn)^{63}\text{Zn}$	12.8 h 3 8 m	消滅 511 KeV $\gamma$ -ray	$7.6 \times 7.6$ NaI $\times 2$ , $\gamma$ - $\gamma$ Coincidence standard $^{22}\text{Na}$ と比較

### 3 考察

$^{65}\text{Cu}(d,p)^{66}\text{Cu}$  (第2図) 絶対測定は decay scheme の不精確さ (1.04 MeV  $\gamma$ -ray の branching ratio が 9% 又は 5% としか与えられていない) をさけるため  $\beta$ - $\gamma$  Coincidence 法によったが branching ratio が小さいため Coincidence count が少なく誤差が大きい。

Gilly は GM-counter によって  $\beta$ -ray を測定しているのであるが、本実験でも別に  $\beta$ -ray による測定値と、 $\gamma$ -ray による測定値の比を求めてみた。

$E_d$	$\sim 5 \text{ MeV}$	$\sim 8 \text{ MeV}$	$\sim 10 \text{ MeV}$
$\beta/\gamma$	$1.00 (\pm 4.4\%)$	$0.99 (\pm 4.5\%)$	$1.03 (\pm 3.1\%)$



第 2 図

これは  $\beta$ -ray による測定でも励起関数の形は  $\gamma$ -ray による測定のものとはほとんど変わらないことを示している。

結論としてこの反応について Gilly が指摘したような異常に大きな断面積は得られていない。実験誤差の範囲内で計算値と一致している。

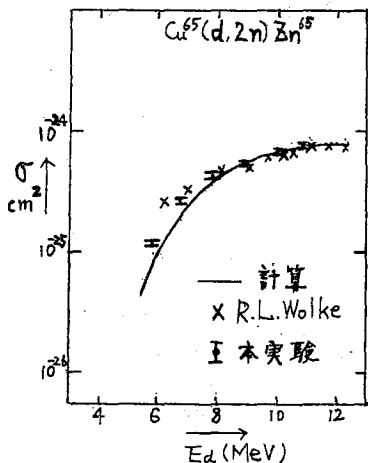
$^{65}\text{Cu}(d,zn)^{65}\text{Zn}$  (第3図) Wolke の実験値、及び計算値とよく一致している。

$^{63}\text{Cu}(d,p)^{64}\text{Cu}$  (第4図) Irvine の実験値、及び計算値と一応一致しているので問題はなし。

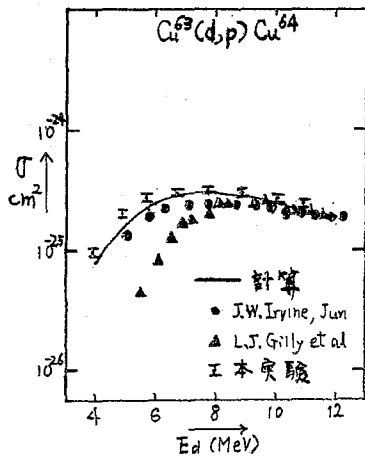
$^{63}\text{Cu}(d,zn)^{63}\text{Zn}$  (第5図) Irvine, Gilly の実験値、及び計算値とよく一致している。

以上によって  $^{63}\text{Cu}$ ,  $^{65}\text{Cu}$  の核種による異常性は認められなると言える。

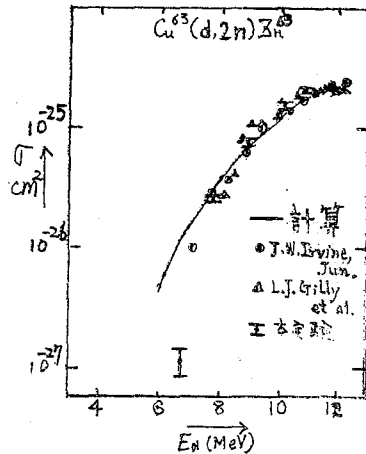
加えて何人かの人によって確かめられてきた音左の改良型 Peaslee 法の有効性について、 $^{63}\text{Cu}$ ,  $^{65}\text{Cu}$  の場合にも有効であることが確かめられた。



第 3 図



第 4 図



第 5 図



$^{52}\text{Fe}$  の製造を主目的とするクロムの  $^3\text{He}$  および  $\alpha$  反応生成物とその励起函数

野崎 正 (理研) 秋葉文正 (弘前大)  
油井多丸 (原研) 武田常夫 (都立大) 村上悠紀雄 (原研)

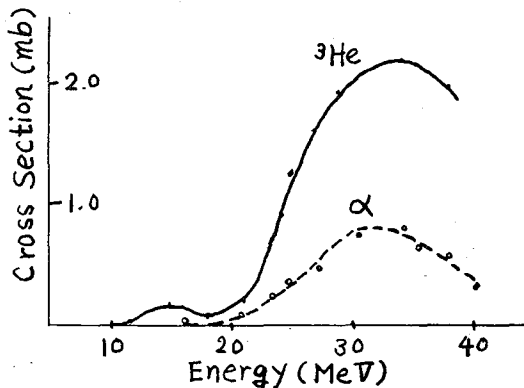
【目的】  $^{52}\text{Fe}$  ( $\beta^+$ ,  $T_{1/2} = 8.2 \text{ 日}$ ) は医学的に極めて有用な RI として近年注目されているが、その製造はクロムの  $^3\text{He}$  又は  $\alpha$  照射によらなければならない。そこで、天然クロムを  $^3\text{He}$  及び  $\alpha$  で照射した時の  $^{52}\text{Fe}$  の製造に適した照射条件を見出す。

【方法】 ターゲットは電着法によってクロムの薄板を作製した。作製法の詳細は日化才 21 年会 (1968 年 4 月, 吹田市) で発表した。ターゲット板 ( $20 \sim 40 \text{ mg/cm}^2$ ) を重ねて、理研のサイクロトロンで  $^3\text{He}$  および  $\alpha$  (共に最高  $44 \text{ MeV}$ ,  $1 \mu\text{A}$  以下) で照射した。(積分線量  $1 \sim 4 \text{ m Coulomb}$ )。

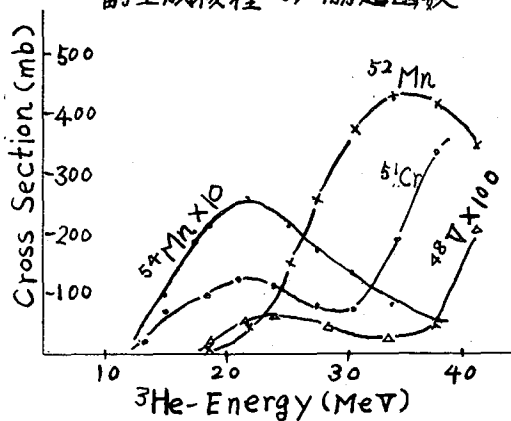
生成した  $^{52}\text{Fe}$  を溶媒抽出法によって純粋に分離した。(分離法の詳細は日化才 21 年会で報告。) この  $^{52}\text{Fe}$  および他の放射性生成物の測定には  $3 \times 3 \text{ cm. NaI(Tl)}$  結晶と多チャンネル波高分析器を用いた。その  $\gamma$ -線スペクトルの時間的変化から  $^{52}\text{Fe}$  が放射化学的に純粋であることを確認し、また種々の副生成核種を確認定量した。測定器の計数効率の決定には  $^{22}\text{Na}$  標準線源と文献値とを併用した。

【結果】 才 1 図に  $^{52}\text{Fe}$  の生成の励起函数を示す。才 2 図に  $^3\text{He}$  照射の場合の副生成核種の励起函数を示す。入射粒子のエネルギーが等しい場合には、 $^3\text{He}$  の方が  $\alpha$  よりも飛程が大であることを考慮すると、 $^3\text{He}$  照射による  $^{52}\text{Fe}$  の生成量は  $\alpha$  照射による場合の約 4 倍である。理研のサイクロトロンでは  $^3\text{He}$  の最高エネルギーは  $48 \text{ MeV}$ ,  $\alpha$  では  $44 \text{ MeV}$  であり、両者の線束は  $40 \text{ MeV}$  以下のエネルギーに対しては、ほぼ同じにけ得られる。

才 1 図 クロムの  $^3\text{He}$  および  $\alpha$  反応による  $^{52}\text{Fe}$  生成の励起函数



才 2 図 クロムの  $^3\text{He}$  反応による副生成核種の励起函数



天然クロムからの  $^{52}\text{Fe}$  の生成は  $^3\text{He}$  では  $^{52}\text{Cr} (^3\text{He}, 3n) ^{52}\text{Fe}$  が主であり、 $\alpha$  照射の場合は  $^{50}\text{Cr} (\alpha, 2n) ^{52}\text{Fe}$  が主であることは、反応の Q 値および励起函数の形から明

らかである。そこで、 $^{50}\text{Cr}$ の濃縮ターゲットを $\alpha$ 照射すれば、天然クロムの $^3\text{He}$ 照射の場合の約5倍の $^{52}\text{Fe}$ が得られる筈である。しかし、濃縮 $^{50}\text{Cr}$ は極めて高価であり、大きな線束で照射する場合はかなりの量のターゲット物質が必要となる。更に、電着法によるターゲットの作製によっても高収率でクロムを析出させることが困難であり、また、一度照射したターゲット物質を回収によってくり返し使用していると $^{51}\text{Cr}$ の放射能が累積してくる。以上の諸事項を考慮すると、ルーチンに製造使用する場合に $\alpha$ 照射を用いる方が有利と思われるが、時々製造する場合には $^3\text{He}$ 照射を用いた方が有利であると結論された。40 MeV, 30  $\mu\text{A}$ の $^3\text{He}$ で天然クロムターゲットを照射することは可能であるが、この場合0.5 mCi/hの $^{52}\text{Fe}$ が生成する。尚、一回の人体実験には約0.2 mCiが必要である。

最も多量に生成する副生成核種は何れの照射の場合も $^{52}\text{Mn}$ であり、その生成の励起函数は $^{52}\text{Fe}$ のものによく似ている。その他 $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{56}\text{Mn}$ も生ずるが、生成量は少なく、また化学分離でMnは容易に除かれる。 $^{51}\text{Cr}$ は $\alpha$ 照射の方が多く生成する。 $^{48}\text{V}$ は何れの場合も少量しか生じない。

$^{54}\text{Fe}$ の測定は特に行なっていないが、 $^{52}\text{Cr}(\alpha, n)^{54}\text{Fe}$ によっても生ずる筈であり、一方 $^3\text{He}$ 照射では $^{53}\text{Cr}(^3\text{He}, n)^{54}\text{Fe}$ ,  $^{54}\text{Cr}(^3\text{He}, 2n)^{54}\text{Fe}$ によっても生ずる筈である。そこで、 $^{54}\text{Fe}$ の混入を考慮する必要がある場合には $^3\text{He}$ 照射の方が有利である。

30~60 MeV 制動輻射γ線による多粒子放出  
反応の研究

東北大理 岡 好良・野村 絢一

目的：これまで主として 20 MeV 制動輻射γ線のエネルギー領域で起こる  $(\gamma, n)$ ,  $(\gamma, 2n)$ ,  $(\gamma, p)$ ,  $(\gamma, \alpha)$  その他の光核反応生成収率を求め、生成する核種の放射化学分析への利用についで検討し報告してきた。さらに最大エネルギーが 30~60 MeV のγ線で誘起される  $(\gamma, xn)_{x=1,2,\dots}$  反応の生成収率を主体として報告したが(日化オ21年会), このエネルギー領域では荷電粒子放出反応もかなり高い収率で起こることが予想される。そこで東北大学の大型電子線型加速器を用いて最大エネルギーを 30~60 MeV の範囲で変化させ、残留核法により生成核種を確認し、それらの生成収率を求めた。そして、これらの生成核種から核反応の研究と放射化学分析に用いる際の基礎データとすることを目的とした。

実験：照射試料は銅, 亜鉛, カリウム, ゲルマニウム, ヒ素, インジウム, 水銀, タリウムおよび鉛の 10 種を選び、それぞれ高純度の単体あるいは酸化物の一定量を硬質ガラス管に封入し、白金コンバーター後方のターゲットホルダー内に装着して照射した。最大エネルギーは 30, 45, 48, 60 および 65 MeV として 30 分~3 時間照射した。γ線量をモニターするには銅箔を各試料に添付し、 $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$  反応で生成する  $^{64}\text{Cu}$  ( $T_{1/2} = 12.8$  日) の 0.511 MeV ( $\beta^+$ ) の生成量を比較した。照射後の試料は担体を加えた化学分離、汚染除去をしておいてγ線スペクトルを測定した。この測定は東芝製 800cPHA-3 $\phi$ x3" NaI(Tl) およびは  $1\frac{3}{4}'' \times 2''$  NaI(Tl) 井戸型クリスタルで行なった。

結果：本照射条件で確認された荷電粒子放出反応の生成核種は表 1 のとおりである。

これらのうち、1 例として、亜鉛ターゲットより生成した各核種についてγ線スペクトルを図示した。得られたγ線スペクトルより光電ピーク強度を照射終了時に換算し、クリスタル内部の全効率、全光電ビ

表 1. 最大エネルギーが 30~65 MeV 制動輻射γ線で確認された荷電粒子放出反応生成核種

元素	反応生成核種			
	$(\gamma, pxn)$	$(\gamma, 2pxn)$	$(\gamma, 3pxn)$	$(\gamma, 4pxn)$
Cu		$^{57}\text{Co}$ , $^{58}\text{Co}$ , $^{61}\text{Co}$	$^{59}\text{Fe}$	
Zn	$^{64}\text{Cu}$ , $^{66}\text{Cu}$ , $^{67}\text{Cu}$	$^{57}\text{Ni}$ , $^{65}\text{Ni}$ , $^{66}\text{Ni}$	$^{57}\text{Co}$ , $^{58}\text{Co}$ , $^{61}\text{Co}$	
Ga	$^{65}\text{Zn}$ , $^{69m}\text{Zn}$	$^{64}\text{Cu}$ , $^{67}\text{Cu}$	$^{65}\text{Ni}$	
Ge	$^{66}\text{Ga}$ , $^{68}\text{Ga}$ , $^{72}\text{Ga}$ , $^{73}\text{Ga}$	$^{65}\text{Zn}$ , $^{69m}\text{Zn}$ , $^{72}\text{Zn}$	$^{64}\text{Cu}$ , $^{67}\text{Cu}$	
As		$^{72}\text{Ga}$ , $^{73}\text{Ga}$	$^{69m}\text{Zn}$	
In		$^{110m}\text{Ag}$ , $^{111}\text{Ag}$		$^{67}\text{Cu}$
Hg	$^{196}\text{Au}$ , $^{198}\text{Au}$ , $^{199}\text{Au}$			
Tl	$^{203}\text{Hg}$	$^{198}\text{Au}$ , $^{199}\text{Au}$		
Pb		$^{203}\text{Hg}$		

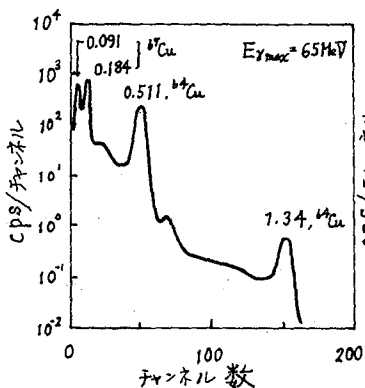


図1 亜鉛ターゲットより分離した銅フラクションのγ線スペクトル

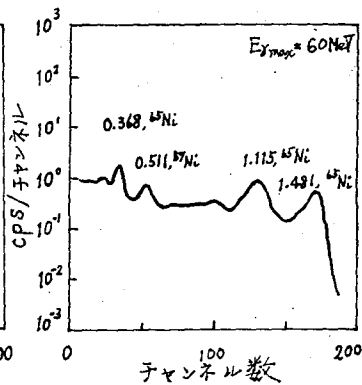


図2 亜鉛ターゲットより分離したニッケルフラクションのγ線スペクトル

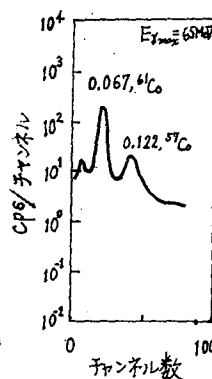
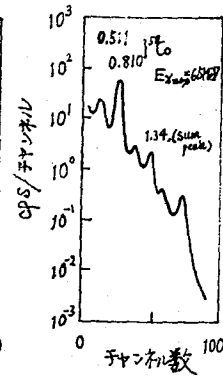


図3 亜鉛ターゲットより分離したコバルトフラクションのγ線スペクトル



ークの相対効率, Geometryおよび壊変関式により壊変数を算出し, 飽和生成量に換算した後, ターゲット核 1moleあたりの収率を算出した。このとき種々の反応経路が考えられるが, 小さいエネルギー一番小さな反応と主反応と考えた。さらに,  $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$  反応を基準とし,  $\mu\text{Ci } ^{64}\text{Cu}/\text{mole}$  (飽和生成量)との比をとり相対収率とした。得られた結果の一部を図4に示した。

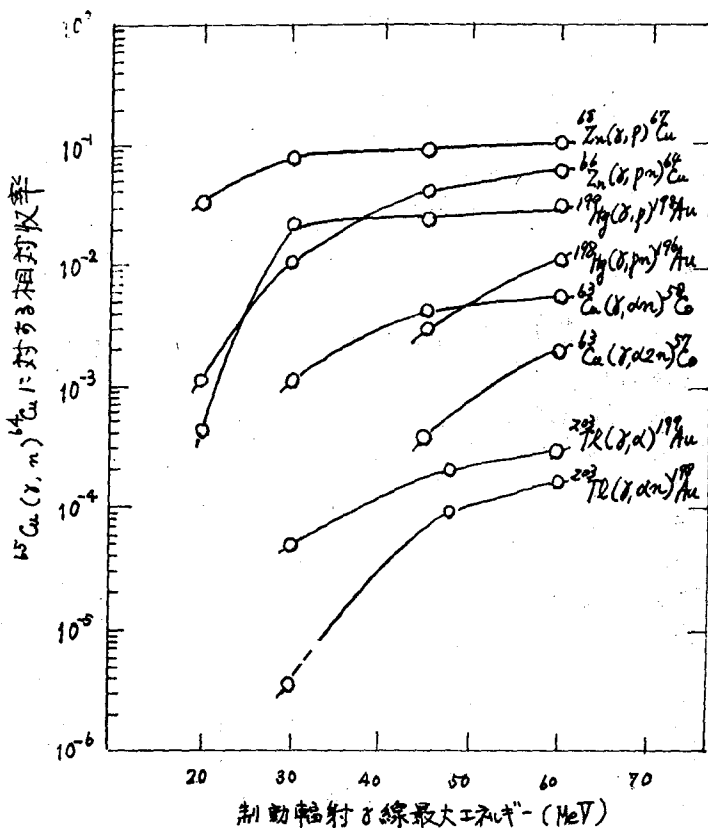


図4 相対収率と最大エネルギーとの関係

高エネルギー制動輻射γ線による多粒子放出反応の研究  
 $^{22}\text{Na}$  および  $^{24}\text{Na}$  の収率

2 A 27

東北大理 岡好良 齋藤達弥

緒言：高エネルギー核反応による  $^{22}\text{Na}$  および  $^{24}\text{Na}$  の生成反応については従来は荷電粒子特に陽子あるいはα粒子を照射粒子とした研究がみられる。しかし高エネルギーのγ線照射による  $^{24}\text{Na}$  の生成反応の研究例がほとんどみられるのみで、 $^{22}\text{Na}$  に関してはその例がない。 $^{22}\text{Na}$  および  $^{24}\text{Na}$  はγ線スペクトロメトリを行なうに際し都合のよい核種なのでこれらの核種を生成する核反応収率を求め、光核反応における多粒子放出反応の基礎的研究を行なった。

実験：照射試料は原子番号11のナトリウムから17の塩素までの計7元素である。

その化学形としてはマグネシウム、アルミニウム、ケイ素、リンおよびイオウは単体を用いナトリウムは炭酸塩、塩素はリチウム塩を用いた。リンおよびイオウは一組品を用いたが他はすべて特級品を用いた。照射に際しては内径4mmの石英管あるいはガラス管に封入し日本原子力研究所および東北大学理学部に設置された電子線型加速器でえらわれる電子ビームを白金コンバーターでγ線に変換し試料を照射した。

照射エネルギーは20, 30, 45および約60 MeVで行なった。照射時間は多くの場合1時間とし、照射後の試料は3"φ×3" NaエクリスタルとTMC400チャンネルPHAおよび東芝のチャンネルPHAを用いてγ線スペクトルとその径時変化を追跡し、光電子のエネルギーと半減期とから光核反応残留核を確認すると共にその生成量を求めた。γ線量のモニターとして各試料に添付した金箔の残留核である $^{196}\text{Au}$ でもってγ線量を校正した。

表1.  $^{22}\text{Na}$  を生成する核反応の収率

標的核種(存在比)	$E_{\gamma, \text{max}}$ (MeV)	核反応 (しきい値, MeV)	収率 ( $\text{mole}^{-1} \text{R}^{-1}$ )
$^{23}\text{Na}$ (100%)	20	$^{23}\text{Na}(\gamma, n)^{22}\text{Na}$ (12.41)	$5.7 \times 10^4$
$^{23}\text{Na}$ (100)	30	$^{23}\text{Na}(\gamma, n)^{22}\text{Na}$ (12.41)	$5.0 \times 10^5$
$^{24}\text{Mg}$ (98.80)	30	$^{24}\text{Mg}(\gamma, p n)^{22}\text{Na}$ (24.09)	$1.9 \times 10^3$
$^{27}\text{Al}$ (100)	30	$^{27}\text{Al}(\gamma, d n)^{22}\text{Na}$ (22.50)	$2.8 \times 10^2$
$^{23}\text{Na}$ (100)	45	$^{23}\text{Na}(\gamma, n)^{22}\text{Na}$ (12.41)	$5.5 \times 10^5$
$^{24}\text{Mg}$ (98.80)	45	$^{24}\text{Mg}(\gamma, p n)^{22}\text{Na}$ (24.09)	$7.8 \times 10^4$
$^{27}\text{Al}$ (100)	45	$^{27}\text{Al}(\gamma, d n)^{22}\text{Na}$ (22.50)	$5.1 \times 10^3$
$^{23}\text{Na}$ (100)	60	$^{23}\text{Na}(\gamma, n)^{22}\text{Na}$ (12.41)	$8.6 \times 10^5$
$^{24}\text{Mg}$ (98.80)	60	$^{24}\text{Mg}(\gamma, p n)^{22}\text{Na}$ (24.09)	$8.2 \times 10^4$
$^{27}\text{Al}$ (100)	60	$^{27}\text{Al}(\gamma, d n)^{22}\text{Na}$ (22.50)	$3.7 \times 10^4$
$^{28}\text{Si}$ (95.0)	60	$^{28}\text{Si}(\gamma, d p n)^{22}\text{Na}$ (34.08)	$2.2 \times 10^4$
$^{31}\text{P}$ (100)	60	$^{31}\text{P}(\gamma, 2d n)^{22}\text{Na}$ (32.16)	$3.5 \times 10^2$

結果および考察：制動放射線の最大エネルギーが20, 30, 45および60 MeV における<sup>24</sup>Naを生成する反応収率を求め表1に示した。その結果収率は照射エネルギーが増加するに従って増加する傾向を示し、ターゲット元素の原子番号が増加するに従って減少する。

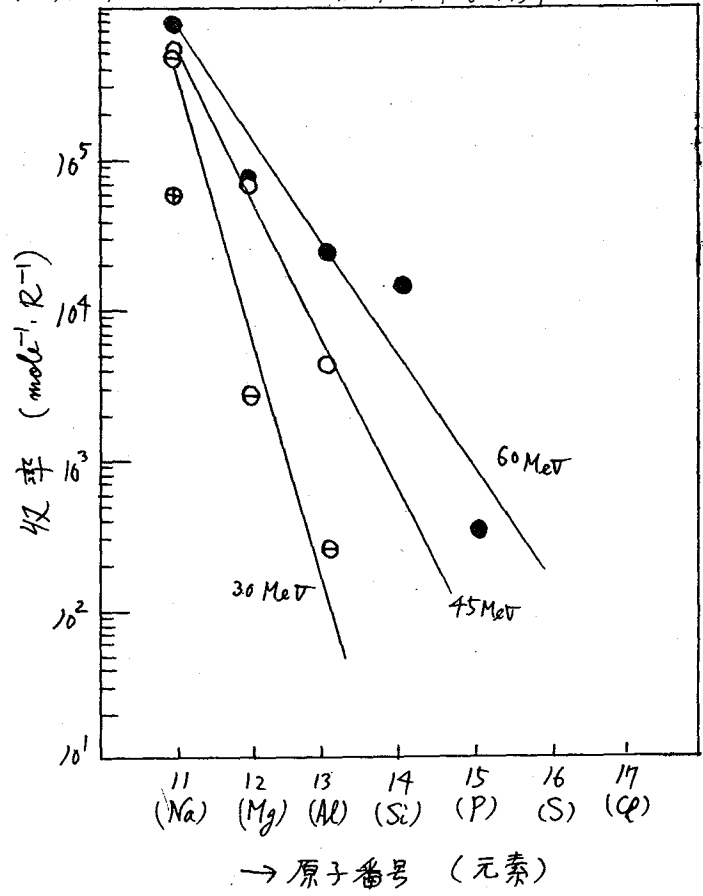
このことはいきい値から予測されることと一致する。縦軸は収率、横軸は原子番号をとると各照射エネルギーにおいてほぼ指数関数的に収率が減少することがみられる。しかも照射エネルギーの増加に伴って傾きがゆるやかになる。

Kartelning\*らは400 MeVの陽子で各種のターゲットを照射し、その断面積が指数関数的に減少することを示している。

照射粒子およびそのエネルギーが異なるがターゲットおよび生成核種が同一であるので反応機構が同じくcascade-evaporation機構であると思われるが現在検討中である。

<sup>24</sup>Naの場合も同様に線スペクトロメトリにより核反応の残留核を確認した。

最大エネルギーが20, 30, 45および60 MeVでそれぞれターゲットを照射したが、特に45 MeVの場合にはマグネシウム、アルミニウム、ケイ素、リン等のターゲットの他にイオウあるいは塩素からも<sup>24</sup>Naの生成を確認し、それぞれ収率を求め、<sup>24</sup>Naの場合と同様に扱った。



制動放射線の最大エネルギー  
 { ⊕ 20 MeV                      ○ 45 MeV  
 { ⊖ 30 MeV                      ● 60 MeV

図1. 収率と原子番号との関係

\* R. G. Kartelning et al. J. Inorg. Nucl. Chem. 29 2863 ('67)

いくつかのGHOSHAL実験からの  
状態密度パラメータ $\alpha$

2A28

大阪大学 理学部

飯沢克幸 久米三四郎

原子核の状態密度パラメータ $\alpha$ に関して次の現象論的事実が、これまでの実験から指摘されてきた。即ち、放出粒子スペクトル実験及び中性子共鳴吸収実験から求められる状態密度パラメータ $\alpha$ の値はほぼ $A/10$  ( $A$ は質量数)であるのに反し、励起関数実験から求められる $\alpha$ の値は、 $A$ によらずほぼ一定で小さい。

この励起関数実験からの状態密度パラメータの異常性に対し、これまで、直接過程の寄与、あるいは、複合核過程であることは認めた上で、その角運動量の効果によって説明しようとする、二つの立場からの説明が試みられてきた。これらの主張のいずれをとるにせよ、入射粒子の異なる同一の複合核系に対する実験(GHOSHAL実験)からはみかけ上異なる $\alpha$ が得られるはずである。

本実験では、これらの主張の是非を明らかにし、 $\alpha$ の異常性を研究するために、表に示めた、広い質量数領域にわたり、ターゲットスピンの差大小とりませた、6つの複合核系に対するGHOSHAL実験を包括的に行った。

表 実験反応系

ターゲット核(スピン)	入射粒子	複合核	生成核(半減期)	
			$n$ -放出反応	$2n$ -放出反応
$^{118}\text{Sn}(0)$	$P$	$^{119}\text{Sb}$	$^{118g}\text{Sb}(3.5\text{m})$	$^{117}\text{Sb}(2.8\text{h})$
$^{115}\text{In}(9/2)$	$\alpha$		$^{118m}\text{Sb}(5.1\text{h})$	
$^{142}\text{Ce}(0)$	$P$	$^{143}\text{Pr}$	$^{142}\text{Pr}(19.3\text{h})$	$^{141}\text{Pr}$ (安定)
$^{139}\text{La}(7/2)$	$\alpha$			
$^{144}\text{Nd}(0)$	$P$	$^{145}\text{Pm}$	$^{144}\text{Pm}(349\text{d})$	$^{143}\text{Pm}(267\text{d})$
$^{141}\text{Pr}(5/2)$	$\alpha$			
$^{178}\text{Hf}(0)$	$P$	$^{179}\text{Ta}$	$^{178g}\text{Ta}(2.2\text{h})$	$^{177}\text{Ta}(56.56\text{h})$
$^{175}\text{Lu}(7/2)$	$\alpha$		$^{178m}\text{Ta}(9.25\text{m})$	
$^{206}\text{Pb}(0)$	$P$	$^{207}\text{Bi}$	$^{206}\text{Bi}(6.3\text{d})$	$^{205}\text{Bi}(15.3\text{d})$
$^{203}\text{Tl}(1/2)$	$\alpha$			
$^{209}\text{Bi}(9/2)$	$P$	$^{210}\text{Po}$	$^{209}\text{Po}(103\text{y})$	$^{208}\text{Po}(3\text{y})$
$^{206}\text{Pb}(0)$	$\alpha$			

照射は、核研FFサイクロトロンを用い、スタック法により行った。入射ビームは、 $P$ 、 $\alpha$ 共0.5%の分解能のアナライズドビームを用いた。入射エネルギーの中央値は、 $\text{Al}$ 吸収法によって測定したが、アナライズドマグネットの磁場からの値とよく一致した。生成放射能の測定に際しては、 $P$ 、 $\alpha$ 両反応における測定条件を等しくした。

各複合核系での、P,  $\alpha$ 両反応における2n-放出の分岐度 ( $B_{2n}$ )の実験値を比較した結果を以下にのべる。

$^{119}\text{Sb}$ 系;  $B_{2n}(P) \sim B_{2n}(\alpha)$  但し、 $\alpha$ の実験値が少なく任意性が残っているので、目下、追加実験を行っている。  
 $^{143}\text{Pr}$ 系;  $B_{2n}(P) = B_{2n}(\alpha)$  但し、 $G_{2n}$ は $^{145}\text{Pm}$ 系の $G_n + G_{2n}$ を用いて算出したものを用いた。  
 $^{145}\text{Pm}$ 系;  $B_{2n}(P) > B_{2n}(\alpha)$ 。  
 $^{179}\text{Ta}$ 系;  $B_{2n}(P) < B_{2n}(\alpha)$ 。  
 $^{207}\text{Bi}$ 系;  $B_{2n}(P) < B_{2n}(\alpha)$ 。  
 $^{210}\text{Po}$ 系; 未測定。

以上のように、一致、不一致の両方の場合が認められる。

実験値に統計論による計算値を適合させると、角運動量を考慮しない計算では、状態密度パラメータ  $a$  は  $6 \sim 10 (\text{MeV})^{-1}$  となり、 $A/10$  より常に小さい結果が得られた。以上の結果の例として、複合核系 $^{143}\text{Pr}$ 系、 $^{145}\text{Pm}$ 系の結果を、図に示す。現在、これらの結果を確認するため、誤差の検討及びくりかえし実験を進めている。

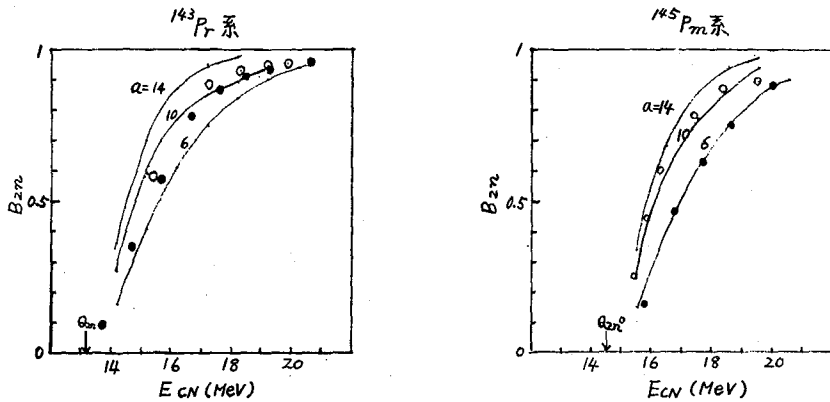


図  $B_{2n}$ : 2n放出の分岐度,  $E_{cn}$ : 複合核の励起エネルギー, o: P反応の実験値, ●:  $\alpha$ 反応の実験値, —: 理論値 但し用いた状態密度  $W(E)$  は 励起エネルギー  $E$ , 対エネルギー  $\delta$  とすると  $W(E) \propto (E-\delta)^{-2} \exp\{2\sqrt{a(E-\delta)}\}$



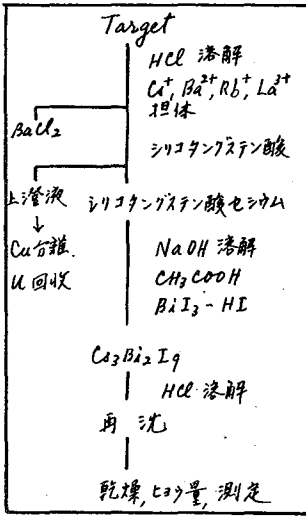
ウラン-233の陽子による核分裂における核電荷分布について

(東京教育大、McGill大)

○ 富田 功 L. Yaffe

[目的] U-238の陽子による核分裂については、セシウム領域の核種に対する励起関数および核電荷分布曲線がGeVからMeVに至る広い範囲にわたってG. FriedlanderらおよびL. Yaffeらによって求められ興味ある知見が得られている。またTh-232についてもL. Yaffeらによって研究されているが、ターゲット核種のどのような核的性質が核分裂生成物の収率、分布に影響するかはなお十分に解明されていない。この実験ではU-233をターゲットとして陽子(20~85 MeV)衝撃し、放射化学的方法でセシウムフラクションを分離し、Ca-129からCa-138に至る核種の励起関数(独立収率)を求め、次にこれに基づいて、この質量数領域での質量分布がフラットであるという仮定の下に、各衝撃エネルギーに対して核電荷分布曲線を作成して、U-238、Th-232などの結果と比較検討することを目的とする。

[方法] ターゲットは化学形U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>のU-233で1回の照射に酸化物として5mg程度を用いた。この際モーターとしてCuOを用い、U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>と均一に混合してAL管に入れ、圧延してターゲットとした。照射にはシンクロサイクロトロンで加速した陽子を用い照射時間は5~15分とした。照射後の化学分離の概要は左に示す通りである。なお、モーターの反応<sup>65</sup>Cu(p, pn)<sup>64</sup>Cuで生成するCu-64を測定するための銅を陰イオン交換分離し、その収量をキレート滴定による。



放射能測定には核種に応じて4πβカウンター、比例計数管、γ線スペクトロメーター、β<sup>+</sup>コインシデンスカウンターなどを用い、壊変曲線の解析はCLS Q計算機プログラムにまつた。使用したカウンターの計数効率、測定した放射線の分岐比、β線の自己吸収、X線の管光収率などに対する補正をして絶対効率を決定し、これから各核種のこのエネルギー領域における励起関数を求めた。また前述のよう仮定の下に各衝撃エネルギーに対応して核電荷分布曲線を作成した。この場合、縦軸には生成断面積、横軸には各核種のN/Z(中性子数と陽子数の比)をとった。なお、<sup>138</sup>Xeの蓄積収率を得たので核電荷分布曲線の中性子過剰側の形を定めるのに用いた。

[結果] (励起関数) 得られた励起関数のうちCa-129, 130, 131については、この陽子エネルギー領域では励起エネルギーと共に単調増加する。Ca-132, 134(m+g)、136では励起関数に極大値が現れる。しかしこれらの極大値をよこすための陽子エネルギーの大きさは、U-238ターゲットの場合の対応する値と比較して低く、しかも各核種間でのエネルギー差は小さいことが解った(Fig. 1)。またCa-138の生成断面積(独立収率)は親核種(<sup>138</sup>Xe)の奇子で補正するための2回の照射実験を行ったCa-138の独立収率を計算で求めたため誤差が大きいが、Ca-136の生成断面積に較べて

かなり低く、U-238、Th-232の場合とは非常に異なっている。

(核電荷分布) 励起関数に基づいて得られた核電荷分布曲線の一例を Fig. 2 に示す。

U-238、Th-232 ケースの場合と較べて、分布曲線の半値中には大きな差異は認められず、曲線が極大値を示す際の核電荷 ( $Z_p$ ) は、安定核の領域にかなり近づいていることが知られた (Fig. 3)。また陽子エネルギーが高くなると  $Z_p$  は  $Z_A$  (ある質量数  $A$  において最大の結合エネルギーに対応する核電荷) に近づく。さらに、陽子エネルギーの増加につれて分布曲線が中核にくつよみが見られるが、これは励起エネルギーの増大につれて核反応の生成核からの中性子蒸発が進行することを示すと考えられる。実験結果を総合的にみると、標的核自身の  $N/Z$  の値が核分裂生成物の  $N/Z$  値に大きな影響を及ぼしていると考えられる。この基礎の上には、未だデータの乏しい U-235 や Pu-239 などの核分裂における核電荷分布について或程度の予想も可能であろう。また陽子エネルギー 50 MeV 以下で複合核生成のみを仮定して FCD、UCD に基づいて  $Z_p$  の値を概算してみると、実験値はこの2つの仮説に基づいた値の中間に入る。  $E_p > 70$  MeV では直接過程で U-233 のみが生成するといふ荒い仮定をすると、UCD から予想された値と実験値とが接近する。

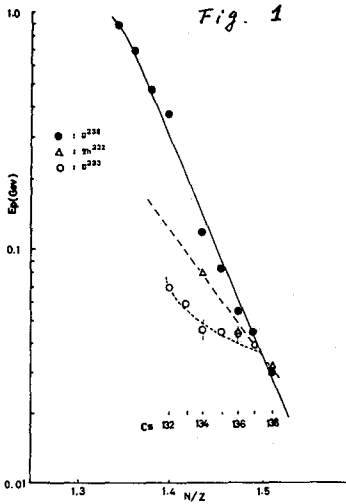


Fig. 1

G. Friedlander et al. *phys. Rev.*, **129**, 1809 (1963).

J. H. Davies and L. Yeffe, *Can. J. Phys.* **41**, 762 (1963).

P. P. Benjamin, PhD Thesis, McGill University (1965).

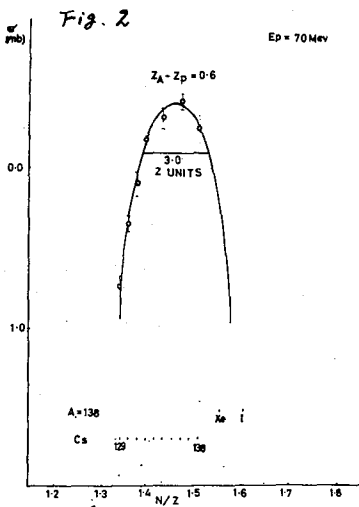


Fig. 2

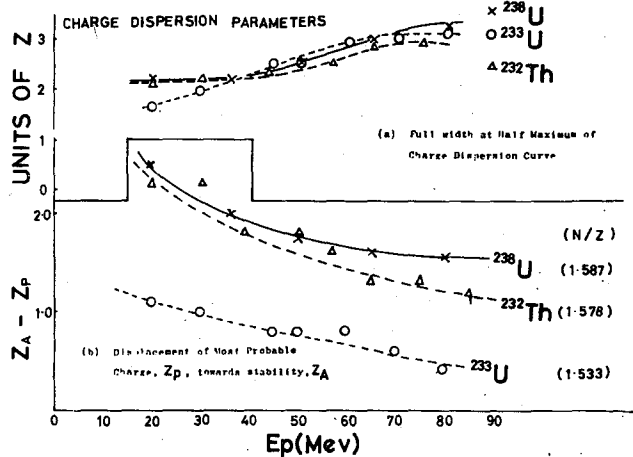


Fig. 3

(上) 核電荷分布曲線の半値中の変化

(下)  $Z_p$  の安定ラインへの変化

## 原研 馬場 宏

前報において、一つの粒子に対する準位密度として Nilsson ダイアグラムをもとにして組み立てた階級関数を用いて核準位密度式を求めた。その結果、中性子共鳴吸収のデータから求められる準位間隔は、この式によって極めてよく再現されることが見られた。換言すれば、核準位密度定数  $a$  の質量数に対する依存性は極めて満足すべき再現性を示した。またモデルの正否を判定する決定的な手段として、同重核の核準位密度定数  $a$  を比較したところ、極めて満足すべき結果を得た。

しかるに、核準位密度定数の励起エネルギー依存性をしらべよる目的で核反応のさいに放出される粒子の生成断面積のデータから求めた  $a$  を計算値と比較した結果は、約半数例において比較的良い一致が得られたが、残りの半数例に関しては定性的に一致が得られなかった。その不一致の原因の一つとして、実測された  $a$  の値がかなり大きな誤差を伴っていることが挙げられる。実測された  $a$  の不確かさは粒子放出反応のばあいだけに限らず、中性子共鳴吸収のデータから求められた  $a$  についてもいえることが見出された。

そこで本報ではまず中性子共鳴吸収のデータから求められた  $a$  の値をコンパイルすると共に、BNL-325, 2nd edition, Supplement No 2 に集録された 200 keV 以下の共鳴ピークから準位間隔  $D_0$  を求め、この  $D_0$  から次の関係式を用いて  $a$  を求めた。すなわち

$$D_0^{-1} = \begin{cases} \frac{1}{2} [ \rho(B_n - \Delta, I + \frac{1}{2}) + \rho(B_n - \Delta, I - \frac{1}{2}) ] & \text{for } I \neq 0 \\ \frac{1}{2} \rho(B_n - \Delta, \frac{1}{2}) & \text{for } I = 0 \end{cases}$$

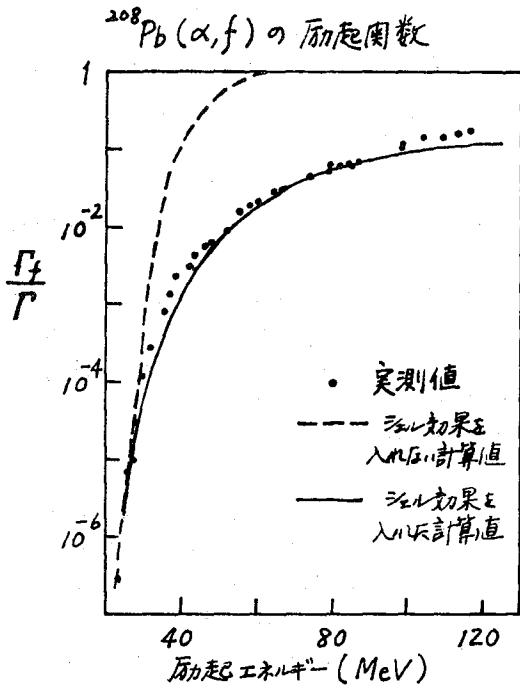
ただし、 $\rho(E, J)$  はエネルギー  $E$  においてスピン  $J$  をもつ準位の密度、 $B_n$  は中性子の結合エネルギー、 $\Delta$  はペアリング効果に対する補正項であり、また  $I$  はターゲット核のスピンである。(ごく軽い核では  $S$  波以外の中性子に対する共鳴吸収のピークが観測されているので、そのばあいは上の式は少し違った形になる。) 右辺に  $\frac{1}{2}$  なる因子がはかっているのは、どちらか一方の偶奇性をもつ準位だけが現われることによる。かくして求めた約 180 個の  $a$  の値を計算値と比較した。

核準位密度定数  $a$  の励起エネルギー依存性を見るためには、なるべく広いエネルギー範囲にわたって観測された量と比較することが望ましい。しかも、反応機構が出来るだけば、よりしていることが必要である。そのような要請を充つ測定量として、核分裂の励起関数をとりあげる。よく知られているように、核分裂中と中性子放出中の比  $\Gamma_f/\Gamma_n$  は次式で与えられる。

$$\frac{\Gamma_f}{\Gamma_n} = K_0 \frac{a}{a_f} \frac{[\sqrt{a_f(E-E_f)} - 1]}{4A^{2/3}(E-B_n')} \exp \left[ 2\sqrt{a_f(E-E_f)} - 2\sqrt{a(E-B_n')} \right]$$

ここで  $K_0 = (h^2/gm r_0^2)$  は定数であり、 $\delta$  はスピン重率因子でこのばあいは 2、

$m$  は中性子質量、 $r_0$  は核半径パラメーターであり、 $A$  は複合核の質量数、 $a_f$  は核分裂に下いる準位密度定数であって既出の  $a$  と一致するとは限らない。また  $E_f$  および  $B_f$  はそれぞれペアリング効果に対する補正項を入れた実効的核分裂障壁および中性子結合エネルギーである。



実際の計算例として左図に  $^{208}\text{Pb}(\alpha, f)$  の励起関数と、先学模型計算から求めた複合核形成に下いる励起関数とから求めた  $f_f/\sigma$  を示し、これに対してシェル効果を入れたばあいと、入れなかったばあいの核準位密度式を用いて計算した  $f_f/\sigma$  を比較のために実線と破線で図示してある。シェル効果を導入したばあいの計算値と実測値とが一致は極めて顕著なものがある。しかも従来の解析法においては、核分裂準位密度定数  $a_f$  および核分裂障壁  $E_f$  と共に任意定数として扱われた中性子放出に関係する準位密度定数  $a$  が、中性子共鳴吸収データから求めた  $a$  に結び付けられたことは大きな意義をもつ。

共鳴レベルの重なりが起るエネルギー領域での核反応断面積にみられるフラクチュエーションは統計理論にもとづいて解析される。その結果によると、不規則に現われるフラクチュエーションのピークの間の

平均値をとると、その値は複合核の全準位中  $\Gamma$  の約2倍になることが示される。この全準位中  $\Gamma$  は、準位密度と透過率 (Transmission coefficient) とを媒介としてスピン  $J$ 、パリティ  $\pi$  をもつ複合核の準位中  $\Gamma_J^\pi$  に結びつけることが出来、 $\Gamma_J^\pi$  はさらに残留核の準位密度と透過率の関数として表わすことができる<sup>2)</sup>。したがって全準位中  $\Gamma$  から核準位密度定数  $a$  (または spin cut-off parameter  $\sigma$ ) を求めることができる。この方法で求めた  $a$  は中性子共鳴吸収データから求めた値に比してより高いエネルギー領域で見ているわけであり、 $a$  のエネルギー依存性をしらべる手段となる。本報ではこのエネルギー依存性の観点に立って計算値と実測値を比較する。

- 1) A. Khodai-Joopari, UCRL-16489, Thesis, 1966
- 2) E. Gadioli & I. Iori, Nuovo Cimento, 51B, 101 (1967)

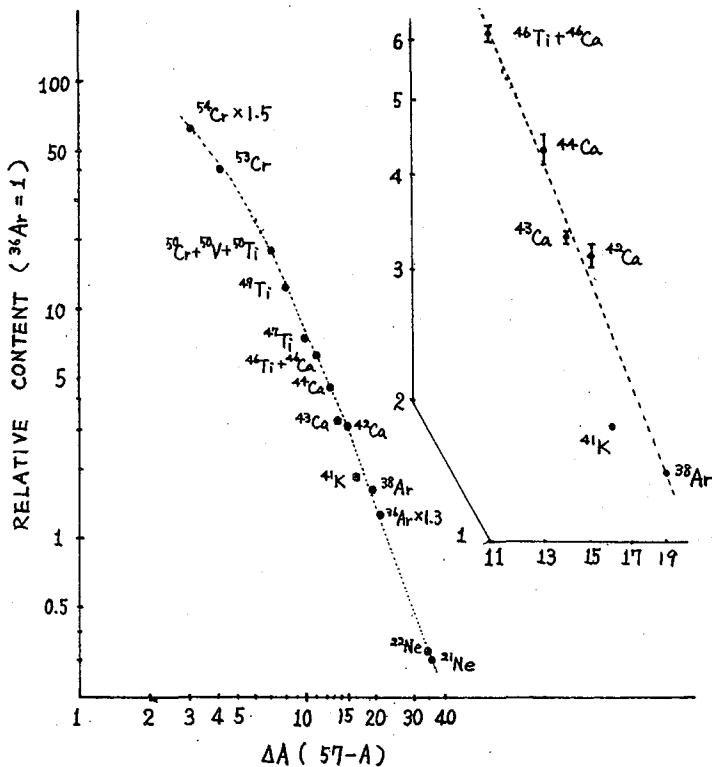
鉄の核破砕反応における安定核種生成率の  
微細構造

2A32

東大物性研 ○島 正子, 今村孝雄, 本田雅健

核破砕反応は、粒子の照射エネルギーが約200 MeV以上で起り、ターゲット核より小さい質量数の種々の核種を生成するが、その生成率は照射粒子のエネルギーが高いために核構造に関係せず決定されるものと考えられてきた。近年高エネルギー粒子加速器を用いて、核破砕反応の実験がかなり盛んに行なわれるようになってきているが、粒子束が不十分なために生成率の測定は微量放射能の測定にたよることになり実験誤差が大きく(通常20%)微細構造を論ずることは困難であった。(特定の元素については最近 on-line-massspectrometer を用いてかなり精度よく生成率を求めることができるようになり、微細構造についても論じ始められている。)我々は核化学的な目的の他に宇宙線の永年変化、イン石の厂史を知る、などの種々の目的のために、鉄質イン石中に宇宙線による核破砕反応で生成した核種の測定を行つてきている。

特に、 $^{40}\text{K}$ のような長半減期核種および質量数54の $^{54}\text{Cr}$ から質量数42の $^{42}\text{Ca}$ にいたる



図, 生成率の質量分布 (試料; 鉄イン石 "Grant")

一連の安定核種を、実験室における汚染を極力押えて抽出し、質量分析法により測定して精度を出来るだけあける努力を続けてきた。これら実験の詳細については、既に報告済みであるのでここでは省略する。(日本化学会, 第21年会(大阪))。

鉄イン石から得られる結果は、宇宙線のエネルギーが連続スペクトルであることから、種々のエネルギーでの照射の結果の積算の生成率を表わしているという欠点はあるが、長半減期以外の放射性核種はほとんど崩壊しきつているので、安定核種を定量するだけで生成率の質量分布を求めることができる。そしてイン石のデータから生成率(Q)の質量分布に関する次のような経験式が得られている。

表. CaおよびTiの同位体の相対生成率  
Ca; A = 43における生成率 = 100

A	42	43	44
鉄イン石	95 ± 5	100	130 ± 8
Smooth Curve*	85	100	120

Ti; A = 49における生成率 = 100, A = 46は<sup>46</sup>Tiと<sup>46</sup>Caの和

A	46	47	48	49
鉄イン石	49 ± 2	61 ± 1	—	100
Smooth Curve*	46	58	77	100

\*  $k_2 = 2.45$ , として計算

$$Q(A) = k(\Delta A)^{-k_2} \quad ; \quad \Delta A = A_{\text{target}} - A_{\text{product}}, \quad k: \text{constant}, \quad k_2: \text{constant} \\ \text{for } \Delta A > 5$$

すなわち  $\log Q$  を  $\log \Delta A$  に対してプロットすると直線関係が得られる。

我々が得た結果を他の研究室で求めた希ガスのデータおよび<sup>41</sup>Kのデータと共に図に示した。この図では  $\Delta A$  は  $(A_{\text{target}} + 1) - A_{\text{product}}$  がより適当であると考えたので  $\Delta A = 57 - A$  を用いた。<sup>41</sup>Kは明らかに低く、カルシウムでは42と44が43に比べ高い。なお<sup>41</sup>Kの値はドイツのVoshageらの求めた<sup>40</sup>K/<sup>41</sup>Kの値から間接的に求めたものであり絶対値としての精度はやや落ちるが<sup>41</sup>Kの生成率が相対的に低いということは確かなようである。一方CaやTiのように安定同位体の数が3ヶ以上ある場合には同位体比のみを測定することにより核破砕反応生成比を求めることができ、その誤差はかなり小さくすることができる。表にCaおよびTiの相対生成率を示した。Tiでは生成率の質量分布に大きな不規則性はないようであるがCaでは42, 44の偶-偶核の生成率が偶-奇核の43に比べSmooth curveで予想されるより10 ± 5%程度高い。このような<sup>41</sup>Kなどの不規則性は生成率がcumulativeであるので直接その核の安定性に結びつけて考えることはできないけれども、同重体核それぞれの安定性を考えて生成率を考察することは意義のあることであろう。

生成率に影響を及ぼすのは、ノック・オン課程のあとの残留核の蒸発課程における対効果 (pairing effect) および殻効果であると考えられる。対効果に関しては従来は反応断面積にほとんど影響しないという考えが一般的であったが最近フランスのBernasらはTa, Mo等を10.5 GeVで照射し on-line-mass spectrometer を用いて生じたNa同位体の independent yield を測定し22, 24, 26などの奇-奇核の生成率のSmooth curveと比較して、偶-奇核の生成が多いことを報じている。(Phys. Rev. Letters 30 740 '68)。<sup>41</sup>Kの生成率の特に低いのは上の2つの効果が作用しているものと思われる。

照射エネルギーが高い核破砕反応においてこのような微細構造があらわれることから、核破砕反応機構、および核の安定性について、1つの示唆を5.えるものと考えられる。

## 宇宙線ミュー中間子のコバルトによる捕獲反応

2 A 3 3

東大核研      〇高木 仁三郎, 田中 重男

宇宙線中の $\mu$ 中間子が物質中でエネルギーを失い停止すると、原子核のまわりをまわゆる軌道に入る。このうちの一部は最終的には原子核に捕獲され、放射性核種を生成せしめる。その放射能は著しく微弱であるが、ある種のもの、低バックグラウンド測定技術により検出することが可能であると予想される。もしこれらが検出できれば、 $\mu$ 中間子の特性から考へて、宇宙線、地球物理、地球化学の研究の一手段として用いることができよう。われわれはこの目的で、砕岩中に宇宙線 $\mu$ 中間子による生成する $^{22}\text{Ar}$ の検出を試みてきたが、未だその検出に成功していない。またこれまでに、宇宙線 $\mu$ 中間子による誘導放射能をはきりと確認定量した報告はない。

そこで、この実験では、宇宙線 $\mu$ 中間子による誘導放射能の強度を実験的に知る目的で、地表付近に一定期間放置した多量のコバルト試薬から、 $^{59}\text{Fe}$  (半減期45d,  $\beta^-$ ) を分離定量することを試みた。 $^{59}\text{Fe}$ はコバルトより $^{59}\text{Co}$  ( $\mu^-$ ,  $\pi^-$ )  $^{59}\text{Fe}$  および、 $^{59}\text{Co}$  (n, p)  $^{59}\text{Fe}$  により生成するが、前者に比べて後者の寄与は小さいと考へられる。

### [実験]

海面位の地上(千葉県習志野市、地磁気緯度 $\lambda=25.5^\circ$ )、およびこれに2m.w.e.の土被りを施した場所にコバルト試薬を保存した。コバルト試薬としては、 $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  約27kgを水約80ℓに溶解して用い、あらかじめ鉄の担体を加えて鉄分を除去してから上述の位置に保存した。いずれの場合も約5ヶ月後に溶液に鉄の担体を加え、アンモニヤにて鉄の沈殿を生ぜしめ、これを陰イオン交換、 $\text{BaSO}_4$  スキャベンジ等により分離精製して、最終的には $\text{Fe}_2\text{O}_3$ として測定に供した。この化学収率は70-80%であった。

$^{59}\text{Fe}$ は1.1 MeV (57%), 1.3 MeV (43%) の $\gamma$ 線を出すので、 $\gamma$ 線スペクトロメトリーにより $^{59}\text{Fe}$ の検出定量を行った。期待される放射能が極めて微弱なため、ジオメトリーを増すために、対置した2個の3"×3"のNaI(Tl)結晶で試料をはさむようにして測定し、この2個の結晶からの信号を加え合わせで波高分析をした。測定はすべて鉛山微弱放射能測定孔内の低レベル測定装置を用いてなされ、試料およびバックグラウンドの測定を1000-2000分間隔で交互に切替えて行った。バックグラウンド用の試料としては99.999%の電解銅より精製した酸化銅を用いた。計数効率の較正は試料と同形同大のKCl試料、 $^{22}\text{Na}$ 標準線源等を用いてなされた。

### [結果と考察]

$^{59}\text{Fe}$ の1.1 MeV, 1.3 MeVの $\gamma$ 線を検出することに成功した。これらが、TR-系列U-系列の天然長寿命核種によるものでないことは得られたスペクトルからも明らかであるが、約5ヶ月後に再測定を行って、それらピークの減衰を確認した。測定の結果をオシ表に示す。

表1 実験結果

標的物質	コバルト重量	保存場所・条件	測定時間	$^{59}\text{Fe}$ 測定値 (0.900-1.200 min)	飽和放射能値
$\text{CoCl}_2$ 14.9kg 100L水溶液中	6.78 kg	海面位 土被りなし	14550分	cpm $0.126 \pm 0.050$	dpm/kg Co $0.45 \pm 0.17$
$\text{CoCl}_2$ 15.1kg 80L水溶液中	6.81	海面位 土被りあり	13483	$0.109 \pm 0.052$	$0.40 \pm 0.18$

$^{59}\text{Fe}$ の生成に寄与する $\mu$ 中間子と中性子のうち、中性子成分は2m.w.e.の層により約1/4に減衰するが、 $\mu$ 中間子はこの程度の厚みでは減衰を示さない。表1の結果から明らかである如く、 $^{59}\text{Fe}$ の生成量は土の層の有無によって変化を受けないから、その生成は主として $\mu$ 中間子によるものであることがわかる。

表2には実験結果から得られる $^{59}\text{Fe}$ の生成率と理論的を計算値とが比較してある。この実験値は、表1の飽和放射能値を、すべて $\mu$ 中間子によるものと考へて、最も一般的な場合、すなわち、地中におかれた純粋なコバルト試料に対する値に換算したものである。この換算は地中と溶液中の $\mu$ 中間子の飛程の違い、溶液の構成原子相互間の $\mu$ 中間子の捕獲の割合などを考慮して行われた。

実験結果は誤差の範囲で、ほぼ推定値と一致すると考へられる。予想通り中性子の寄与は小さい。海面位における $\mu$ 中間子の相互作用の値として、2つの実験値を平均して $0.34 \pm 0.10$  dpm  $^{59}\text{Fe}$  / kg Co と考へるのが妥当と思われれる。この値からして、海面位の $\mu$ 中間子による誘導放射能が、じゅうぶん検出可能であることがわかった。 $\mu$ 中間子は地表で宇宙線中性子成分と同程度に核反応を起し、ある種の核種の生成には前者の方が大きな寄与を有する。これまで主として中性子成分によって生成されると考へられていた $^{32}\text{P}$ ,  $^{39}\text{Cl}$  などについても $\mu$ 中間子成分の寄与が大きいと考へられるのでこの点も議論する。

表2  $^{59}\text{Fe}$ の生成率 (dpm  $^{59}\text{Fe}$  / kg Pure Co in Earth)

場所	実測値 (平均値)		計算値	
			( $\mu$ - $\gamma$ )	(n $\beta$ )
地表	$0.35 \pm 0.14$	$\langle 0.34 \pm 0.10 \rangle$	$0.16 \pm 0.08$	$< 0.04$
地下 2mwe	$0.33 \pm 0.15$			$< 0.01$



# γ線スペクトロメトリーによる物質定量法

石河寛昭, 三輪園考  
日本原子力研究所

本研究はγ線スペクトルの Full energy peak のエネルギー依存性に着目して混合γ線源の定量分析を簡易化したものである。我々が研究した方法によると従来行なわれてきた混合γ線スペクトルの解析法よりも少ない誤差で、しかも迅速に定量分析を行なうことが可能である。

γ線スペクトロメトリーによる定量分析はγ線スペクトルの Full energy peak とγ線強度との間の比例性を前提として行なわれている。このさい、γ線の emission rate  $D_\gamma$  と full energy peak A との関係は次の如く示される： $D_\gamma = A/E \cdot P \dots\dots (1)$  ここで、 $E$  は計数効率、 $P$  は photofraction である。なお計数効率および photofraction はエネルギーの関数で多くの研究者によって既に求められている。従って単一γ線源に対しては full energy peak を算出することによって容易に定量を行なうことができるが、混合γ線源の定量分析を行なうには、目的成分のγ線スペクトルには他のγ線スペクトルが重畳しており、グラフ上の peeling 法によって他成分スペクトルを全て差引かなければならない。この peeling の回数が多いほど誤差が大きくなり、かつ迅速性を欠く。なお peeling 法を行なうに代りては標準スペクトルのカタログを用意しなければならない。

ここで我々は波高分析器のデジタル量の性質に基づいて解析を行なった結果 Covell も指摘しているように、混合γ線中の或る目的成分の Full energy peak の部分的面積は他成分の量が変化しても一定とみなすことができることを確認した。従ってこの性質を進展させて混合γ線源中の成分を peeling 法を行なうことなく直接定量しうる可能性を見出した。

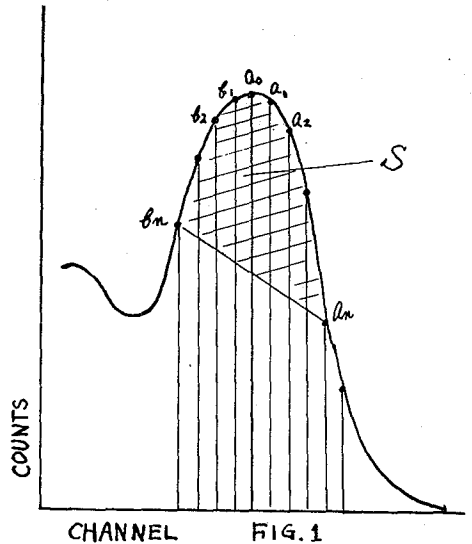
デジタル量の性質による Full energy peak の部分的面積を FIG. 1 に示すように定める。すなわち、最大計数値を中心にして左右  $n$  チャンネルの間隔で切った上部の面積  $S$  は次式で与えられる：

$$S = a_0 + \sum_{i=1}^n a_i + \sum_{i=1}^n b_i - \frac{2n+1}{2} (a_n + b_n) \dots\dots (2)$$

Full energy peak の形状はγ線エネルギーによって変化するので  $S$  は  $n$  と  $E$  の関数となる： $S = S(n, E) \dots\dots (3)$   
 $S$  と  $A$  との関係は  $E$  と  $n$  で定まる係数  $\alpha(n, E)$  を用いると  $S = \alpha(n, E) \cdot A \dots\dots (4)$  となる。したがって (3) および (4) 式から次式が得られる：

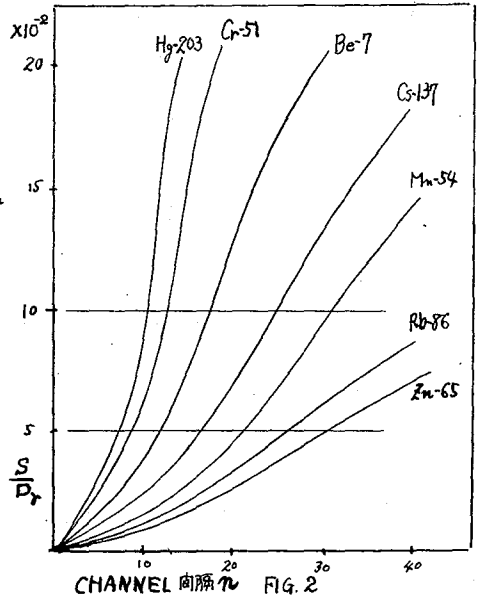
$$S/D_\gamma = \alpha(n, E) \cdot E(E) \cdot P(E) \dots\dots (5)$$

左辺はγ線の emission rate に対する部分面積の比である。この比は一定のエネルギーに対しては  $n$  だけの関数となる。いま (5) 式でエネルギーのい



かんにかかわらず  $S/D_r$  の値が一定となるように  
 すると,  $\alpha(n, E) \cdot E(E) \cdot P(E) = k$  (const.).....(6).  
 これから明らかに  $n$  と  $E$  との間に関数関係が存在  
 する:  $n = n(E)$ .....(7). (6)式が定まれば混合  
 γ線源中の成分について peeling 法を行わず, ある  
 $n$  の値より  $S$  を算出し,  $S/D_r = k$  から γ線の emission  
 rate  $D_r$  を求めることができる。

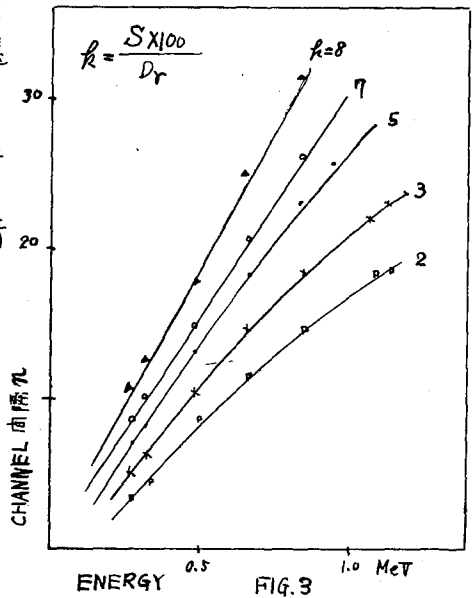
(6)式の関係を求めるために 0.28 MeV から 1.12  
 MeV の間の emission rate 既知の γ線源 7 種 (Hg-203,  
 Cr-51, Be-7, Cs-137, Mn-54, Rb-86, Zn-65) について  
 スペクトルを求め,  $S/D_r$  を算出し,  $n$  に対してプロ  
 ットした結果を FIG. 2 に示す。さらにこの関係から  
 $S/D_r = k$  のいくつかの値に対して一定となるよう  
 なそれぞれのエネルギーについての  $n$  の値を求め  
 エネルギー  $E$  に対してプロットした結果を FIG. 3  
 に示す。



このようにして求めた  $n$  と  $E$  の関係図を用いる  
 と測定条件(シンテレータおよび測定位置等)が変らな  
 ければ直接目的成分の γ線エネルギーから  $n$  を選  
 び emission rate  $D_r$  を求めることができる。なお,  
 測定条件が異なる場合には, emission rate 既知のも  
 のとの比較により同様にして未知試料の定量を行  
 うことができる。

本法による混合γ線の定量分析法は解析上の精  
 度および迅速性の点において従来のものに比べて  
 優れた方法であると考えられる。

なお本実験においては測定装置として  $3 \times 3 \times 3 \phi$   
 の NaI(Tl) 結晶に接続した東芝製, 800 channel  
 波高分析器を使用した。また, 測定位置は線源-  
 検出器の距離 0 cm である。



## 核分裂生成物の絶対測定法

3 A 3 5

(原研) 〇天野勉, 夏目晴夫, 梅沢弘一, 馬場宏,  
鈴木敏夫, 馬場澄子, 石川勇

核分裂生成物の生成量は、壊変系列に関する情報、電荷分布に関する情報などとなる。核分裂反応の解析をおこなう上で必要とされる、重要な情報の一つであり、化学分離した各元素のうちの特定のアイソトープの放射能の絶対測定値からみちぎきだされる。この絶対測定値が正確であるほど、生成量の値は正確となり、核分裂反応の解析を容易とするが、一般にこれら核分裂生成物の絶対測定は、つぎに述べる理由から簡単には行えない。1) 核分裂生成物中の特定の核種は、大部分が一連の壊変系列の一員であるために、測定に際しては、娘核種あるいは孫核種の影響を考慮することが必要である。2) 化学分離した特定元素フラクション中には、いくつかのアイソトープを同時に含んでいるために適当な測定法で、おのおのの核種を分離して測定する必要がある。3) 核種によってはかなり長寿命の *meta stable state* を有しているので、それに対する補正を必要とする。4) 核分裂生成物のある種の核種は崩壊にさいして大量の内部転換電子を放つので、これに対する補正を必要とする。などである。本報告では、 $^{238}\text{U}$  の陽子核分裂反応の研究において実施した、 $^{86}\text{Rb}$ ほか18核種に対する絶対測定法について報告する。

絶対測定を実施した核種は、 $^{72}\text{Zn}$ ,  $^{86}\text{Rb}$ ,  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{91}\text{Y}$ ,  $^{99}\text{Mo}$ ,  $^{129}\text{Te}$ ,  $^{132}\text{Te}$ ,  $^{136}\text{Cs}$ ,  $^{140}\text{Ba}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{143}\text{Pr}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{147}\text{Nd}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{149}\text{Pm}$ ,  $^{153}\text{Sm}$ ,  $^{157}\text{Eu}$  および  $^{161}\text{Tb}$  の18核種であった。以下に採用した絶対測定法の概略と、適用核種について述べる。

### 1) $4\pi\beta$ 計数法:

前記18核種のうちで $^{72}\text{Zn}$ をのぞくすべての核種について実施した。測定試料の調製法、測定器などについては、従来もちいられている方式とかわりはない。娘核種を生成する核種の測定は、放射平衡に達したのちにおこない、他のアイソトープが共存する試料については、半減期を追跡して、壊変曲線を求めてから個々の成分に解析する方法をとった。 $4\pi\beta$ 計数法でもっとも問題となる試料支持膜にもとく吸収、散乱に対する補正は、 $^{86}\text{Rb}$ ,  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{91}\text{Y}$ ,  $^{143}\text{Pr}$ ,  $^{147}\text{Pm}$  および  $^{149}\text{Pm}$  については、従来一般におこなわれている方式によったが、それ以外の核種については、大量に放出される内部転換電子の影響を考慮して、あらたに開発した補正方式を適用した。 $^{99}\text{Mo}$ については $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の内部転換係数が不確かであったので、壊変-生成曲線を求めてから解析する方法を採用した。

### 2) $4\pi\beta$ - $\gamma$ 同時計数法

$\beta$ 線のみを放出する核種、放射平衡にある娘核種が共存する試料または他のアイソトープが共存している試料は $4\pi\beta$ 計数法以外は適用できないが、 $^{86}\text{Rb}$ ,  $^{153}\text{Sm}$ ,  $^{161}\text{Tb}$  については、 $4\pi\beta$ - $\gamma$ 同時計数法を併用して、絶対測定もおこなった。この場合にも内部転換電子の寄与についての考慮を必要とした。 $^{72}\text{Zn}$ については、娘核種の $^{72}\text{Ga}$ と放射平衡に達したのちから $^{72}\text{Ga}$ を分離し、 $^{72}\text{Ga}$ について $4\pi\beta$ - $\gamma$ 同時計数法で絶対測

定もおこなう方式によった。

### 3) $\beta$ - $\gamma$ 同時計数法

$\beta$ - $\gamma$ 同時計数法は  $4\pi\beta$ - $\gamma$ 同時計数法にくらべて試料調製法が簡単であるので、いくつかの核種について、この方法による絶対測定をこころみた。しかしながら  $^{86}\text{Rb}$  においては、直接に基底準位におちる  $\beta$ 線の割合が大きすぎて、満足すべき結果を与えなかった。また壊変形式の非常に複雑な核種にあつては、 $\beta$ 線に対するチャンネル設定と、 $\gamma$ 線に対するチャンネル設定も適当にとることが困難なため、 $4\pi\beta$  計数値と正確に一致する結果は得られなかった。 $^{153}\text{Sm}$  と  $^{161}\text{Tb}$  については、これら核種の壊変形式は複雑であるが、適当な測定条件の設定が可能であつたため良好な絶対測定値を求めることができた。

上記三種の測定法を併用して絶対測定を実施した核種は  $^{86}\text{Rb}$ ,  $^{153}\text{Sm}$ ,  $^{161}\text{Tb}$  の三種であつたが表に見るごとく、満足すべき一致を示している。表中の  $4\pi\beta$  計数法によつて求めた数値はあらたに開発した、内部転換電子に対する補正方式で処理した値であるが、他の方法とよゝ一致を見せており、内部転換電子に対する補正の必要性を示している。

※ 「多量の内部転換電子を出す核種の絶対測定」：オ29回応用物理学会學術講演会(福岡)昭和43年10月, (原研) 石川 勇, 馬場 宏, 馬場澄子, 梅沢弘一, 鈴木敏夫, 夏目晴夫。

Table. Comparison of Absolute Counting Measurement Results with Different Method (in dpm/mg)

Nuclide	$4\pi\beta$ Method	$4\pi\beta$ - $\gamma$ Method	$\beta$ - $\gamma$ Method
$^{86}\text{Rb}$	$7.76 \times 10^3$	$7.8 \times 10^3$	—
$^{153}\text{Sm}$	$2.98 \times 10^3$ ( $3.14 \times 10^3$ )*	$2.94 \times 10^3$	$2.96 \times 10^3$
$^{161}\text{Tb}$	$3.25 \times 10^3$ ( $3.91 \times 10^3$ )*	$3.25 \times 10^3$	$3.40 \times 10^3$

\* The effects of conversion electron were not corrected.

## 簡易低レベルGM計数管の作製

東大理  
東大物性研

柳田昭平 馬淵久夫 浜口博  
堀江翔子

近年微弱放射能測定技術の進歩により、1時間に数カウント程度の放射能の測定が可能になってきている。この程度のベータ放射能を持つ固体試料の測定には小型のガスフロー型ベータ線カウンターが用いられる。カウンターの構成材料としては不純物を含まない非常にきれいなものが要求されるが、好ましい材料は経験的にわかっている。この報告では、我々の研究室で試作した、宇宙線誘導放射線核種の測定を目的とするガスフロー型ベータ線カウンターの構成とその特性について述べる。

## 1. カウンターの構成と特性

カウンターは端窓型のセンターカウンター、アンチコインシデンスをとるための薄い直方体状のガードカウンターの二つの部分からなる。二つとも $Q$ ガスを用いたフロー型であり、ガイガー領域で働かせた。

1-1 センターカウンター: アクリル樹脂板から外径50mmの円板を切り取り、その中に直径30mm、深さ10mmの穴を明け、検出部とした。検出部の有効体積は約 $7.1\text{cm}^3$ である。検出部の内面には銀粉を塗布して陰極とした。重さ $7.49\sim 7.50\text{mg/cm}$ のタングステン線を検出部中央に一本張って陽極とした。タングステン線は検出部の壁に埋め込んだ5mm幅のテフロン棒2本で固定した。カウンターの窓には片面蒸着フマイラー膜を使った。この膜は肉厚1mm、内径36mm、外径50mm、リング状の無酸素銅でよさえるようにした。プラトーは1115Vから1220Vまでの105Vであり、プラトーの傾きは $5\%/100\text{V}$ である。

1-2 ガードカウンター: センターカウンターからのシグナルとアンチコインシデンスをとって宇宙線からのバックグラウンドを減らすためにセンターカウンターの上面に壺箱型のガードカウンターを置いた。材料はアクリル樹脂であり、寸法はいずれも内側で縦横共に300mm、高さ30mmである。内面には銀粉を塗布して陰極とし、側面には30mmの間隔で穴を明け、 $7.49\sim 7.50\text{mg/cm}$ のタングステン線を通して陽極とした。ガードカウンターの下面、即ちセンターカウンターと接触する面には、深さ6mmの溝を掘ってセンターカウンターを一部埋め込み、センターカウンターの有効部分からガードカウンターとの互角立体角を大きくし、アンチコインシデンスの効果を大きくして宇宙線のバックグラウンドを下げるようにした。ガードカウンターにはセンターカウンターから出た $Q$ ガスを流すように接続した。プラトーは1345Vから1425Vまでの80Vでありプラトーの傾きはほとんどゼロに等しかった。

1-3 試料皿及び試料皿のすべり台: 試料皿はカウンターの窓に最も接近して存在する構成材であるので、その中に含まれる放射能が可能な限り少ない物質が望ましい。また後方散乱を利用して計数効率をできるだけ高めるためには原子番号の大きい物質が望ましい。この二点を考慮して、ここでは無酸素銅を選び、外径29.3mm、内径25.4mm、深さ3.8mmの皿を作った。この皿の中には外径25mm、深さ3.6mmのごく薄い尿素樹脂

でできる皿を置き、その中に試料を入れるようにした。試料の出し入れを簡単にするため、試料皿をすべらせる台を作った。

1-4 ガードカウンターの支持台：ガードカウンターはその中心がセンターカウンターの中心と一致するように、センターカウンターの上面に置くのであるが、前述したように、ガードカウンターの下面にはセンターカウンターを一部埋め込むように溝が掘ってあるので、センターカウンターだけでガードカウンターを支持しようとすると、ガードカウンター自身の重量が薄い溝の部分にかかってしまう。これを防ぐため、試料の出し入れの際に装置全体が動いてしまうのを防ぐために、ガードカウンター支持台を作った。試料皿のすべり台はこの台に固定した。この台とガードカウンターとの間の空間には遮蔽材として目的でアクリル樹脂板を敷き詰め、なお残った空間にはガードカウンターから出る $\alpha$ ガスを流して周囲の雰囲気と隔離しセンターカウンターが直接に大気と接触するのを防ぐようにした。

## 2. 遮蔽材

カウンターのすぐ外側は肉厚10mmの無酸素銅板でおおった。更にその外側には鉛のブロックを置いた。鉛の厚さは上面が15cm、側面と下面は共に10cmとした。

## 3. バックグラウンド

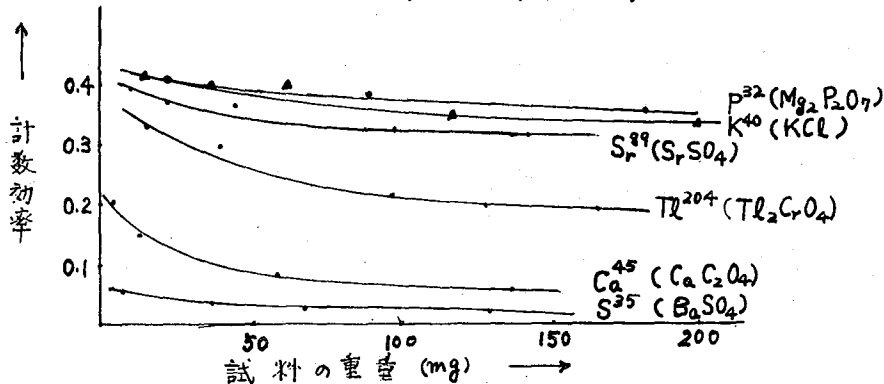
表 1

計数値	測定時間 min	c p m	備考
1331	5369	$0.248 \pm 0.007$	支持台の中に $\alpha$ ガスを流す
1052	4275	$0.246 \pm 0.008$	"
1021	4660	$0.262 \pm 0.007$	支持台の中に $\alpha$ ガスを流さない

## 4. 計数効率

NOTの $\beta$ 線放射核種を用いて $\beta$ 線の計数効率のエネルギー依存性、試料重量への依存性を調べた。結果を図1に示す。

図 1 括弧内は試料の化学形



# $^{46}\text{K}$ の核化学的研究

東北大・理 塩川孝信, 堀山一典, 八木益男,  
 〇銀治東海, 伊沢郡蔵, 中田幸

目的  $^{46}\text{K}$  は 1966 年に Parson & Gordon<sup>1)</sup> により  $^{48}\text{Ca}(d,\alpha)^{46}\text{K}$  反応から発見された新核種である。第 1 図に Parson & Gordon により報告された壊変図と (P, P') 反応から報告されている  $^{46}\text{Ca}$  の準位を示す。これから判るように不明確な点を残し精度の高い測定が必要とされる。それゆえ、この核種の壊変の特性および壊変生成物である  $^{46}\text{Ca}$  を核化学的に研究した。

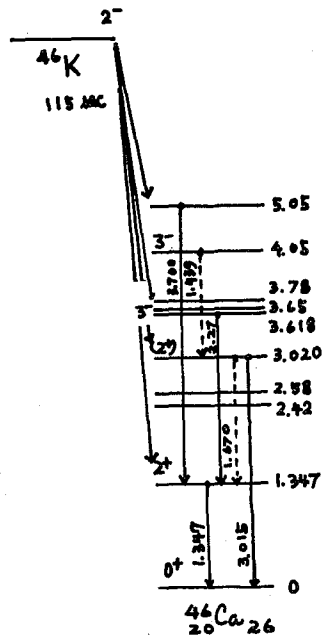
実験 78.4% に濃縮された  $^{48}\text{Ca}$  を用い、10 mg の  $\text{CaO}$  を最高 45 MeV の Bremsstrahlung で 1 時間 2 分照射して、 $^{48}\text{Ca}(\gamma, pn)$  反応で  $^{46}\text{K}$  を製造した。照射後ただちに試料を 1 N HCl 2 ml に溶解し、担体として 0.1 N KCl を 1 ml 加え、5%  $\text{PtCl}_2$  3 ml を加え、更に冷エタノール 10 ml を加えて沈殿を作り 5°C の口紙を使用して吸引口渡し、冷エタノールで洗浄し測定に供した。

ガンマ線の測定は検出器として ORTEC 製の 36 cc の  $\text{Ge}(\text{Li})$  (4.0 KeV at 1.33 MeV) を用い、ORTEC 製の model 410 の Linear Amplifier をとおして TMC 製 1024 区分波高分析器に接続しておこなった。波高分析器に得られたデータは紙テープに 110 レナアウトの計算機 TOSBAC 3400 を用いてスペクトルのプロットおよびデータの解析をおこなった。

一方、 $^{46}\text{Ca}$  の第 1 励起準位のエネルギーは、1.347 MeV であることが知られているので、このガンマ線について multiscaling 法で  $^{46}\text{K}$  の半減期を測定した。

結果 第 1 表に濃縮ターゲットを使用した際の核反応生成物を表にまとめて示した。第 2 図に得られたスペクトルを示した。

A は 2 分照射し約 2 分後のスペクトルで B は 19 分後のスペクトルである。 $^{46}\text{K}$  の半減期に關しては数回おこなった結果は何れも、Parson & Gordon の報告する  $115 \pm 4$  sec より短かく約 90 sec であった。



第 1 図

核種	%	$\gamma, P$	$\gamma, Pn$	$\gamma, P2n$	$\gamma, P3n$
$^{40}\text{Ca}$	20.9	$^{39}\text{K}$ stable	$^{38}\text{K} \beta^+$ 7.7m. $\gamma$ : 2.17	$^{37}\text{K} \beta^+$ 1.25, $\gamma$ : 2.8	$^{36}\text{K}$ very short?
$^{42}\text{Ca}$	0.15	$^{41}\text{K}$ stable	$^{40}\text{K} \beta^+$ $10^9$ y.	$^{39}\text{K}$ stable	$^{38}\text{K} \beta^+$ 15.7m. $\gamma$ : 2.16
$^{43}\text{Ca}$	0.03	$^{42}\text{K} \beta^-$ 12h. $\gamma$ : 1.5 $\mu$	$^{41}\text{K}$ stable	$^{40}\text{K} \beta^+$ $10^9$ y.	$^{39}\text{K}$ stable
$^{44}\text{Ca}$	0.49	$^{43}\text{K} \beta^-$ 22h. $\gamma$ : 0.61, 0.37	$^{42}\text{K} \beta^-$ 12h. $\gamma$ : 1.5 $\mu$	$^{41}\text{K}$ stable	$^{40}\text{K} \beta^+$ $10^9$ y.
$^{46}\text{Ca}$	0.02	$^{45}\text{K} \beta^-$ 16m. $\gamma$ : 0.17, 1.7, 1.33	$^{44}\text{K} \beta^-$ 22m. $\gamma$ : 1.16, 2.17, 2.35	$^{43}\text{K} \beta^-$ 22h. $\gamma$ : 0.16, 0.32	$^{42}\text{K} \beta^-$ 12h. $\gamma$ : 1.5, $\mu$
$^{48}\text{Ca}$	78.4	$^{47}\text{K} \beta^-$ 175. $\gamma$ : 2.0, 2.6	$^{46}\text{K} \beta^-$ 115.5. ?	$^{45}\text{K} \beta^-$ 16m. $\gamma$ : 0.17, 1.7, 1.23	$^{44}\text{K} \beta^-$ 22m. $\gamma$ : 1.16, 2.17, 2.35

第 1 表

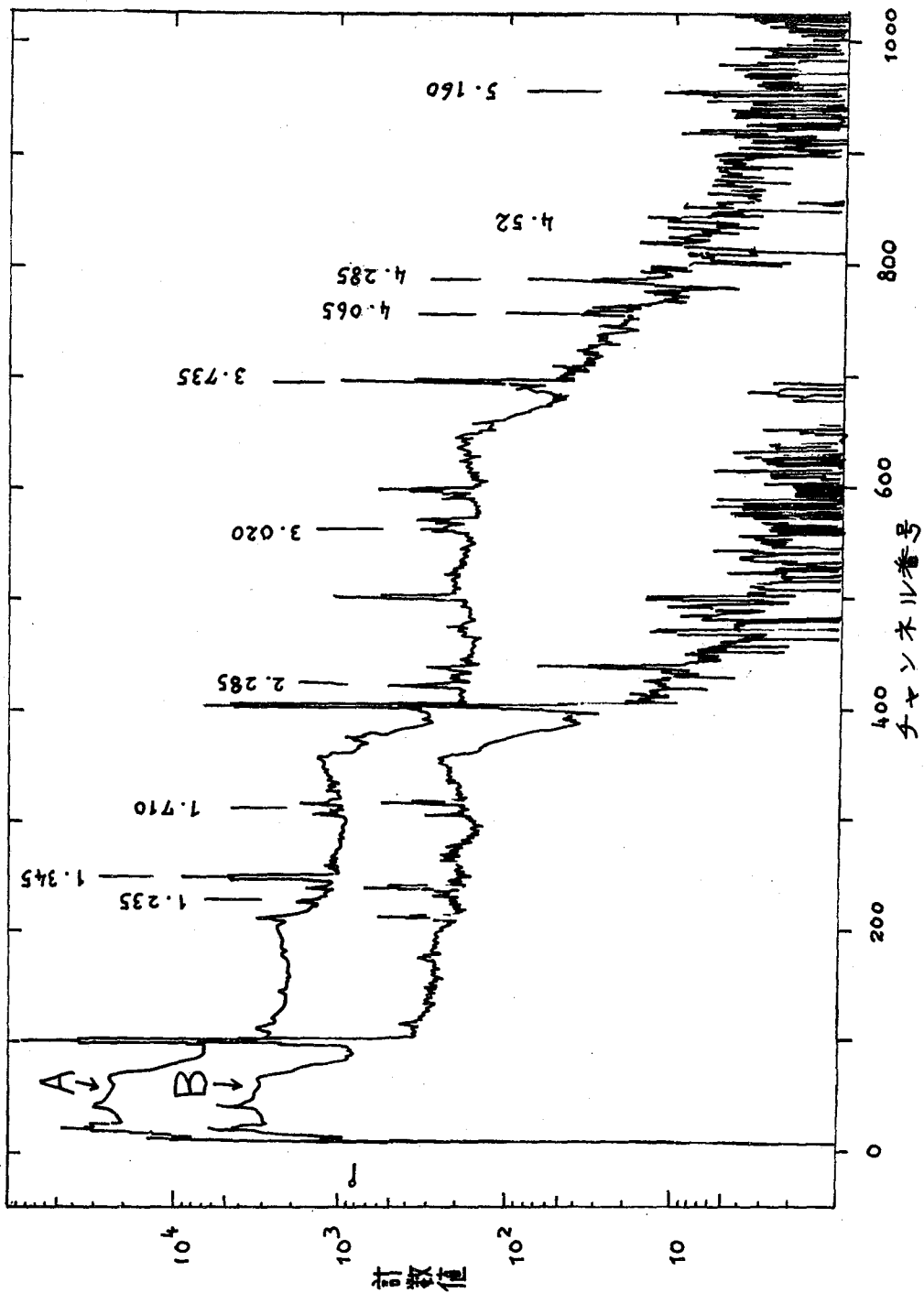


図 2

1) B. Parsa and G.E. Gordon, *Phys. Letters* **23**, 269 (1966)



質量数95の fission chain を利用した核分裂  
時期の推定法

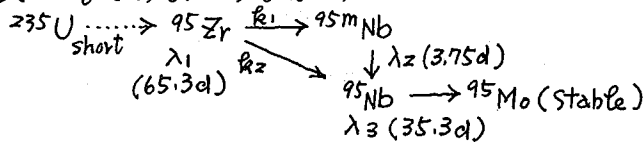
東芝中央研究所 藤井 勲, 小野寺浩一

1. 緒言

与えられた核分裂生成物, あるいは放射性降下物が何時 fission したものを推定する方法について報告する. この報告する方法は, 核分裂生成物中の fission chain ( $A=95$ ) の  $^{95}\text{Zr}$ - $^{95}\text{Nb}$  の放射能強度比から核分裂の時刻と測定時刻の間の時間を求めるものである. 方法の検討には, 天然ウランに熱中性子を照射した試料を用いて行ったが, 1967年12月の中国実験の際の放射性降下物を用いてこの方法による核爆発時期の推定を行ない満足な結果を得た

2. 方法の概要

核分裂生成物中の fission chain ( $A=95$ ) に着目し核分裂後のある時期に  $^{95}\text{Zr}$  とその娘核種  $^{95}\text{Nb}$  の壊変率の比を求めると, この値は両者が放射平衡に達するまでは, その間の時間によって定まる等である. すなわち,



において,  $^{95}\text{Zr}$  と  $^{95}\text{Nb}$  の壊変率の比を  $R$  とすると,

$$R = \lambda_1 N_1 / \lambda_3 N_3 \dots\dots\dots (1)$$

但し

$$N_1 = N_{1,0} \cdot e^{-\lambda_1 t}, \quad N_3 = \lambda_1 N_{1,0} \left\{ \frac{1}{\lambda_3 - \lambda_1} (R_2 + \frac{R_1 \cdot \lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1}) \cdot e^{-\lambda_1 t} - \frac{R_1 \cdot \lambda_2}{(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_1 - \lambda_2)} e^{-\lambda_2 t} - \frac{1}{\lambda_3 - \lambda_1} (R_2 + \frac{R_1 \cdot \lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_3}) \cdot e^{-\lambda_3 t} \right\}$$

ここに,  $\lambda_1, \lambda_2$  および  $\lambda_3$  はそれぞれ  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{95m}\text{Nb}$  および  $^{95}\text{Nb}$  の壊変定数,  $N_{1,0}$  は核分裂時に生成された試料中の  $^{95}\text{Zr}$  の原子数,  $N_1, N_2$  および  $N_3$  はそれぞれ時刻  $t$  における  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{95m}\text{Nb}$ , および  $^{95}\text{Nb}$  の原子数,  $R_1$  および  $R_2$  は  $^{95}\text{Zr}$  からそれぞれ  $^{95m}\text{Nb}$ , および  $^{95}\text{Nb}$  に壊変するときの分岐比である. (1)式に核データを与え  $R$  と  $t$  の関係を求めておけば, 与えられた核分裂生成物の  $\gamma$ 線スペクトルから  $R$  を求めて, 表から  $t$  をうることができる.

実際には, 高分解能の Ge(Li)  $\gamma$ 線検出器を用いても  $^{95}\text{Zr}$  と  $^{95}\text{Nb}$  の  $\gamma$ 線 (757, 765 KeV) の1部が重複すること,  $^{95}\text{Zr}$  の  $\gamma$ 線の分岐比などを考慮して

$$R' = R_{2,1} \cdot \lambda_1 \cdot N_1 / (R_{2,2} \cdot \lambda_1 \cdot N_1 + \lambda_3 N_3) \dots\dots\dots (2)$$

但し,  $R_{2,1}$  は  $^{95}\text{Zr} \rightarrow 724 \text{ KeV}$ ,  $R_{2,2}$  は  $^{95}\text{Zr} \rightarrow 757 \text{ KeV}$  に至る分岐比である. (2)式によって  $R'$  と  $t$  との関係を表に示した. (電算機 GE-625 を使用)

3. 実験

実験1. 試料: 天然ウラン( $UO_2 \sim 100\text{mg}$ ), TTR-1で10分間熱中性子照射( $10^{11}\text{n/cm}^2\text{/sec}$ )  
 測定系: Ge(Li)  $\gamma$ 線検出器(Coaxial type, 22 ml) ORTEC Model 8102-20,  
 プリアンプ $^{\circ}$  ORTEC 118A, メインアンプ $^{\circ}$  ORTEC 440, バイアスア  
 ンプ $^{\circ}$  ORTEC 408, 800 CH P.H.A 東芝 EDS-34801.

核分裂後 24日目から 120日目までの同 11 回測定.

実験2. 試料: 放射性降下物(信州大 帯刀教授提供, 長野市で採取されたもの)  
 測定系: 1に同じ.

4. 実験結果  
 5. 考察

Fig 1 にしめる.

- (1). この目的に用いる fission chain は次の条件を持っていなければならない。  
 a. 親核種は Primary fission product であるが, 又はそれ以下のものでもそれ以  
 前の核種の半減期が短いこと。  
 b. 地球化学的変化を受け難い元素であること。  
 c. 親および娘核種からの  $\gamma$ 線のエネルギーが接近していること。  
 d. 核分裂の収率の大きい chain であること。

(2)  $^{235}\text{U}$  の核分裂生成物によって作られた検量線の当否を確かめるため, 信頼しうる  
 核データを用いた計算値との一致の度合いをみた。Fig 1 にそれらをしめしてあり  
 が, 2 に述べた  $R_{2,1}, R_{2,2}$  をそれぞれ 49%, 49%,<sup>(1)</sup> とすると実験値と計算値は  
 一致しない。これを 44%, 54% とするとよく一致する。43%, 55% という報告<sup>(2)</sup>  
 もあるが, この値を採用すると  
 わずかに一致しなくもなる。この  
 報告ではそれぞれの半減期とし  
 て,  $T_1 = 65.3\text{d}$ ,  $T_2 = 3.75\text{d}$ ,  $T_3 =$   
 $35.3\text{d}$ ,<sup>(3)</sup> を採用した。

(3) Fig 1 から明らか存様に, 30日  
 以前の時点には正確な値が与ら  
 れない。この点を  $Zr, Nb$  が同  
 一の挙動をする化学分離が必要  
 とする。

(4) 本法の適用に当っては,  $^{95}\text{Zr}$   
 の  $\gamma$ 線 722 KeV と,  $^{95}\text{Zr}$  の 757 KeV  
 および  $^{95}\text{Nb}$  の 765 KeV の  $\gamma$ 線が明  
 らかに分離できる検出器を用い  
 なければならない。従来の NaI  
 (TL) 検出器では不適當である。

(1) Strominger: Rev Mod Phys 30 No.2. (58)  
 (2) L. G. Mann et al: Nucle Phys 30 676 ('62)  
 (3) K. F. Flynn et al: Nucle Sci Eng 22 416 ('65)

