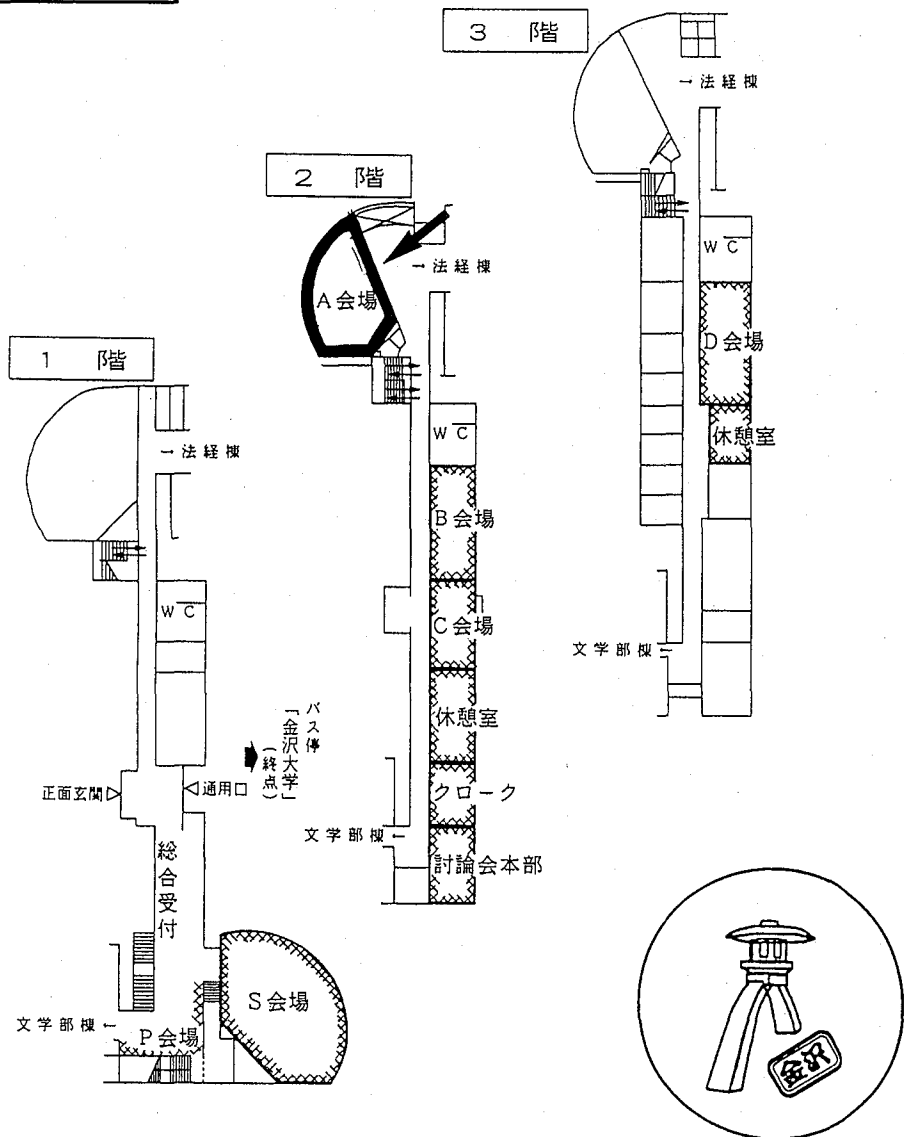


講演発表表

A会場



A 会 場

第1日 10月6日(水)

核反応 1A01~1A12

第2日 10月7日(木)

核反応 2A01~2A05

迅速分離 2A06

核壊変 2A07~2A10

中間子化学 2A11~2A12

核融合・水素同位体 2A13~2A15

第3日 10月8日(金)

錯形成・テクネチウム 3A01~3A06

放射性ヨウ素 3A07~3A08

1A01 IGISOLにおける輸送効率に関する考察

(新潟大・理、東北大・サイクロ[†]) ○工藤久昭、斉藤大輔、斉藤里栄、砂押仁[†]、篠塚勉[†]、藤岡学[†]

【緒言】 イオンガイド型同位体分離装置 (IGISOL) は、分離時間が短く、輸送効率の元素依存性があまりないことや、室温で安定に運転できることから短寿命核種の測定に有効に用いられている。演者らはこれまで IGISOL を用いて核分裂生成物の測定を行ってきたが、収率向上のための検討も行ってきた。IGISOL においては粒子照射によって生じる弱プラズマが輸送効率を低下させていることが知られている [1]。核分裂生成物は反跳エネルギーが大きく、ほぼ等方的な角度分布であるので、薄い金属箔などを用いて照射部と熱化部に分離することができ、プラズマ効果の軽減が期待できる。このような目的から、核分裂生成物測定用の IGISOL chamber を製作し、輸送効率の検討を行ったので報告する。

【実験】 本実験で用いた 3 種類の IGISOL chamber の断面図を Fig. 1 に示してある。厚さ約 $100\text{mg}/\text{cm}^2$ の ^{232}Th 箔 2 枚を標的とし、24 MeV 陽子照射によって生成する核分裂生成物の収量を測定し IGISOL の輸送効率の検討を行った。収量の測定は、実際の測定位置であるテープ捕集位置で行い、核種の同定・定量は HPGGe を用いた γ 線スペクトロメトリーによった。

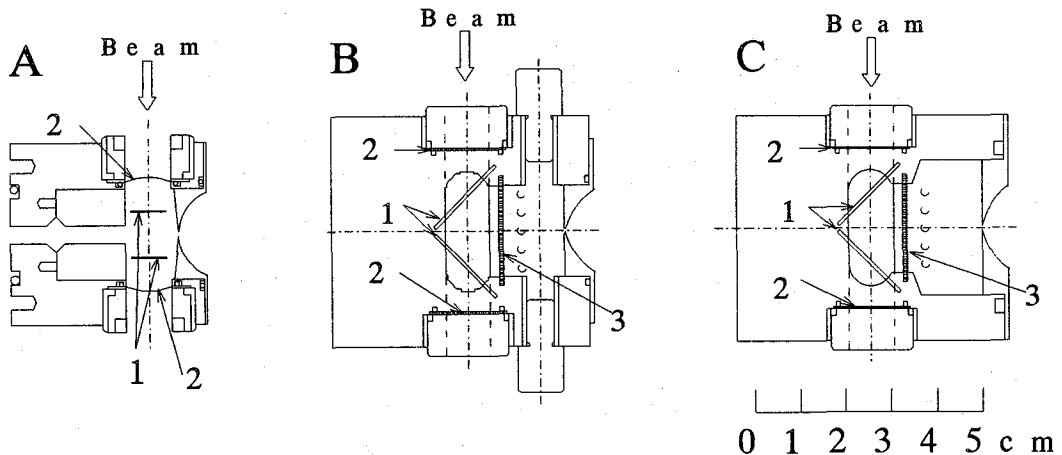


Fig. 1. Cross sectional view of the IGISOL target chamber.

1: Target, 2: $5\mu\text{m}$ havar foil, 3: $1\mu\text{m}$ Ti foil.

【結果と考察】 IGISOL においては、熱化した $1+$ イオンの中性になる時間 (再結合時間) が長く、拡散して壁に到達する時間が長ければ長いほどその効率は上昇すると考えられる。このような観点から本実験で使用した IGISOL chamber について輸送効率に及ぼす因子について検討した。まず chamber の体積の違いによる拡散の影響について検討してみる。イオンが時間 t の間に距離 r だけ拡散する割合は次式で近似的に与えられる [2]。

$$n_i/N_i = \left[(4\pi Dt)^{3/2} \exp(-r^2/4Dt) \right]^{-1}$$

ここで N_i は $t = 0$ における全イオン数であり、 $D (\approx 500/p, \text{pinmb})$ は拡散係数である。Fig. 2 にそれぞれの chamber について、イオンの拡散による分布を示してある。図において矢印で示してある排気時間までを積分することにより、イオンが chamber の壁に付着して失われる割合がわかることになる。図からもわかるようにこの割合は極めて小さい。すなわち、イオンの拡散による損失は少ないものと予想される。

つぎに電子との再結合によって中性となる場合を考えてみる。IGISOL の運転条件下では $1+$ の反跳イオンが中性となるのは $\text{R}^+ + \text{e}^- + \text{He} \rightarrow \text{R} + \text{He}$ のような三体反応がもっともらしいと考えられている [3]。この

ようなとき、陽イオンが減少する割合は次式で示される。

$$dn_i/dt = -\alpha n_e n_i n_n$$

ここで α は再結合速度定数であり、 n_e, n_i, n_n はそれぞれ電子、陽イオン、中性ヘリウム原子の密度である。これより、イオン濃度の再結合による減衰は次式で与えられる。

$$n_i = n_i(0) \exp(-\alpha n_e n_n t)$$

ここで $n_i(0)$ は $t=0$ の時のイオンの濃度である。 α, n_n, t はビーム強度に対して独立であるが、 $n_i(0)$ 及び n_e はビーム強度に比例すると考えることができる。したがって、ビーム強度に対して単位ビーム量当たりのイオン数の対数をとると直線になることが予想される。入射粒子の強度を変化させたときの ^{116}Pd の収量をFig. 3に示す。3種類のchamberではほぼ等しい傾きの直線が得られた。このような傾向は異なる元素についても同様であった。これらのことより、再結合がIGISOLにおける輸送効率に対して大きな影響を及ぼしていることが推定された。

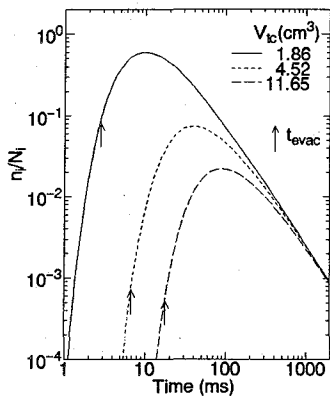


Fig. 2. Density distribution of recoil ions diffusing in the IGISOL target chamber.

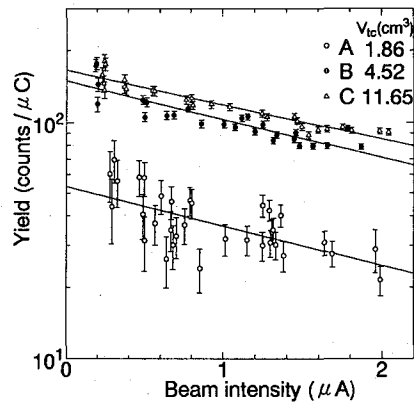


Fig. 3. Normalized yield of ^{116}Pd produced in the system of 24 MeV protons on ^{232}Th as a function of beam intensity.

参考文献

- [1] M. Yoshii *et al.* Nucl. Instr. Meth. **B26**(1987)410, K. Morita *et al.* Nucl. Instr. Meth. **B26**(1987)406.
- [2] E.W. McDaniel and E.A. Mason, "The Mobility and Diffusion of ions in Gases", John Wiley and Sons, Inc., New York (1973)
- [3] J. Ärje *et al.* Nucl. Instr. Meth. **B26**(1987)384.

EFFECTS ON TRANSPORT EFFICIENCY IN IGISOL

Hisaaki KUDO, Daisuke SAITO, Rie SAITO, Faculty of Science, Niigata University

Hitoshi SUNAOSHI, Tsutomu SHINOZUKA, Manabu FUJIOKA, Cyclotron and Radioisotope Center, Tohoku University

The transport efficiency of fission products in IGISOL was discussed from the viewpoint of diffusion and recombination. Model calculation indicates that the loss by diffusion is small. Beam intensity dependence of normalized yield shows the tendency expected from the recombination of ions and electrons.

(新潟大 理, 東北大サイクロ*)

○斎藤大輔 古越靖武 斎藤里栄 工藤久昭 橋本哲夫
藤岡学* 篠塚勉* 山内道夫* 藤田正広*

<はじめに>

我々はこれまでに、原子核分裂の機構を解明するため $^{238}\text{U} + p(24\text{MeV})$, $^{1232}\text{Th} + p(24\text{MeV})$ ²⁾の系における核分裂片の核異性体生成比を測定してきた。これより分裂直後の分裂片の持つ角運動量を推定し、二つの系で比較した結果、系による差異はそれほどなかった。

今回は新たに測定された核種を含めより多くの核種での比較、検討を行ったので報告する。

<実験>

実験は東北大学サイクロトロンRIセンターのIGISOL (イオンガイド型同位体分離装置)を用いて行い、核種の同定および定量には2台の高純度 Ge半導体検出器用いた γ 線スペクトロメトリーによった。また放射能の成長と壊変を同時に測定し、核種の半減期による確認も行った。ターゲットには ^{232}Th を用い、今回、陽子ビームのエネルギーを24MeVとした。

<結果と考察>

分裂片の収率は、親核種からの流れ込みを補正した独立収率の形で求めた。測定された核異性体生成比からの角運動量の見積りは、分裂直後の核のスピ分布が統計分布に従うものとし、脱励起によるこの分布の再分配をGROGI-II計算コードにより推定した。またここでは分布の幅J rmsを角運動量の指標としている。

これまでに $^{232}\text{Th} + p(24\text{MeV})$ の系で、質量数82~136までの7核種について核異性体生成比と、J rmsの値が求められているが、今回新たに6核種が求められた。Table.1にこの新たに求められた核種について示す。これまでに得られた核種について質量数に対してJ rmsをプロットしたものがFig.1である。

これをみると、 ^{108}Rh を除けば二つの系においてほぼ似た値を示している。質量数130の3核種についてみるとダブルマジック近くの ^{130}Sn が一番小さいJ rms示している。

(Fig.2) この傾向は質量数132についても同様であった。

二つの系のそれぞれの核種において、その励起エネルギーは、TKE(Total Kinetic Energy)を考慮した推定からUの系のほうが6~8MeV大いきことが予測される。これらのことから、分裂片の持ちうる励起エネルギーや、その相補核による角運動量への影響はあまり大きくないものと考えられる。

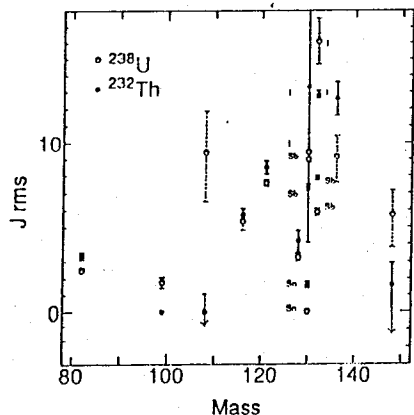


Fig.1 Deduced J_{rms} of fission products produced in 24 MeV protons on ^{232}Th

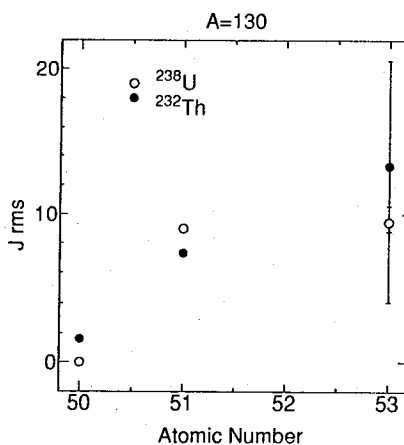


Fig.2 Deduced J_{rms} of $A=130$ as a function of atomic number

Table I Isomeric yield ratios and deduced J_{rms} of fission products in 24 MeV proton induced fission of ^{232}Th

Nuclides	Spin	^{232}Th		^{238}U	
		$\sigma_{high} / \sigma_{low}$	$J_{rms}(\hbar)$	$\sigma_{high} / \sigma_{low}$	$J_{rms}(\hbar)$
^{108}Rh	(1,5)	0.688 ± 0.30	$0.0 \pm \begin{matrix} 1.7 \\ 3.2 \end{matrix}$	3.62 ± 1.63	$6.3 \pm \begin{matrix} 1.5 \\ 2.2 \end{matrix}$
^{128}Sn	(0,7)	0.873 ± 0.26	4.2 ± 0.6	1.10 ± 0.071	3.2 ± 0.2
^{130}Sn	(0,7)	0.154 ± 0.022	1.6 ± 0.2	0.519 ± 0.023	0.0
^{130}Sb	(4,8)	0.589 ± 0.042	7.3 ± 0.2	1.58 ± 0.052	9.0 ± 0.2
^{130}I	(2,5)	13.7 ± 12.9	$13.3 \pm \begin{matrix} 7.3 \\ 9.2 \end{matrix}$	4.66 ± 1.04	$9.5 \pm \begin{matrix} 1.1 \\ 0.7 \end{matrix}$
^{148}Pr	(8,4)	0.370 ± 0.43	$1.6 \pm \begin{matrix} 1.3 \\ \infty \end{matrix}$	4.00 ± 1.78	$5.7 \pm \begin{matrix} 1.4 \\ 1.9 \end{matrix}$

<参考文献>

- 1) M.Tanikawa et al. Z.Phys.A, in print.
- 2) 斎藤ら 第36回放射化学討論会 1A08 (1992)

ISOMERIC YIELD RATIOS OF FISSION PRODUCTS IN $^{232}\text{Th}+p$ SYSTEM II

Faculty of Science, Niigata University, Daisuke SAITO, Hisaaki KUDO, Yasutake FURUKOSHI, Rie SAITO, Tetsuo HASHIMOTO, Tohoku University, Cyclotron Radioisotope Center, Manabu FUJIOKA, Tsutomu SHINOZUKA, Michio YAMAUCHI, Masahiro FUJITA

The isomeric yield ratios of fission products were measured in 24 MeV proton-induced fission of ^{232}Th . The obtained isomeric yield ratios were converted to the initial angular momenta of fission fragments by assuming a statistical spin distribution. The de-excitation process was calculated with the modified GROGI-2 code. The deduced angular momenta were compared with those obtained in the proton-induced fission of ^{238}U

(新潟大理) ○齊藤里栄・三浦聡子・工藤久昭・橋本哲夫

1.はじめに

核分裂片の角運動量は、分裂時の分裂核の角運動量を反映するため数多くの研究がなされてきた。これまで我々は、低励起エネルギー陽子誘起核分裂のほか ^{252}Cf 自発核分裂の核分裂片の角運動量を実験的に求める方法として、核異性体生成比の測定を行いその推定を行ってきた。本研究では、 ^{252}Cf 自発核分裂において生成する核種の核異性体生成比を測定することにより、核分裂時の核についての知見を得ることを目的としている。

2.実験

核種の同定・定量はGe(Li)検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーによって行なった。また今回アンチモンの同位体を目的核種として、核分裂生成物の中から均一沈殿法により分離し測定した。用いた化学分離法をFig.1に示す。また目的核種の独立収率を求めるために、これらの親核種であるSnからの流れ込みの補正をキャッチャーホイルを用いた γ 線スペクトロメトリーによって行った。それぞれの実験での照射時間、測定時間は、目的核種の半減期にあった条件で行なった。放射能強度が弱いときには同じ条件で数回繰り返し実験を行ない、得られたスペクトルを積算し統計精度を向上させた。

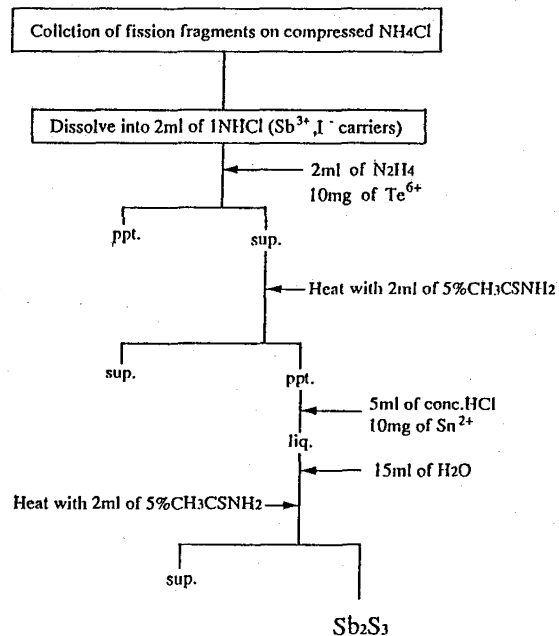


Fig.1 Separation of antimony isotopes

3.結果と考察

^{252}Cf からの分裂直後の一次分裂片は励起エネルギーが高い状態にある。ここから分裂片は中性子や γ 線を放出し脱励起することによりスピンの再分布が起こる。一次分裂片のspin分布は次式で表せられるような統計分布に従うものとして解析を行った。

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

求められた核異性対生成比は二次分裂片のものである。また実験で得られた二次分裂片の核異性体生成比を再現するような一次分裂片のspin分布のパラメータ(J_{rms})を見積るため、統計模型GROGI-IIコードを使用した。これらの結果をTable.1に示す。

Table.1 Isomeric yield ratios and deduced angular momenta of antimony isotopes

Nuclide	Spin(H,L)	$\sigma_{\text{high}} / \sigma_{\text{low}}$	Jrms(h)
^{128}Sb	(8-,5+)	0.49 ± 0.20	$7.55 \begin{matrix} +1.15 \\ -1.49 \end{matrix}$
^{130}Sb	(8-,4+)	1.05 ± 0.94	$8.72 \begin{matrix} +2.66 \\ -4.78 \end{matrix}$

求められた Jrmsの値を、熱中性子誘起核分裂の系および $^{238}\text{U}+\text{p}(24\text{MeV})$ の系での値と比較してみた。それらをFig.2で示す。この図より、 ^{252}Cf 自発核分裂の系と熱中性子誘起核分裂の系とでそれぞれのJrmsの値はほとんど同じであったが、これはJrmsが相補核に依存しないことを示唆する。

また $^{238}\text{U}+\text{p}(24\text{MeV})$ の系とでは ^{128}Sb の結果に差異がみられた。これはJrmsが陽子によって持ち込まれた励起エネルギーに依存したためではないかと考えられる。一方、 ^{130}Sb において結果にそれほど違いがみられなかったのは、一次分裂片の平均中性子数を考慮するとN=82の閉核構造の影響を受けているためではないかと思われる。

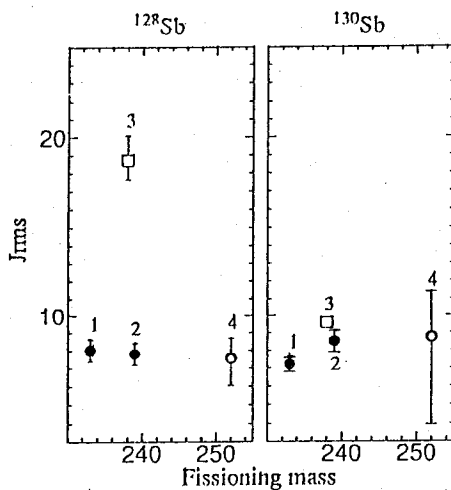


Fig.2 The deduced angular momenta of antimony isotopes. 1: $^{235}\text{U}(n,f)$, 2: $^{239}\text{Pu}(n,f)$, 3: $^{238}\text{U}+\text{p}(24\text{MeV})$, 4: present work.

<参考文献>

- 1) 小田ら 第36回放射化学討論会 1A07 (1992)
- 2) J.Robb Grover, Jacob Gilat, Phys. Rev. 157, 802 (1967)
- 3) N.Imanishi, I.Fujiwara and T.Nishi, Nucl. Phys. A263, 141 (1976)

MEASUREMENT OF ISOMERIC YIELD RATIOS OF ANTIMONY ISOTOPES IN SPONTANEOUS FISSION OF ^{252}Cf

Rie SAITO, Satoko MIURA, Hisaaki KUDO, Tetsuo HASHIMOTO

Faculty of Science, Niigata University

The isomeric yield ratios of ^{128}Sb and ^{130}Sb were measured in the spontaneous fission of ^{252}Cf . The obtained isomeric yield ratios were 0.49 ± 0.20 for ^{128}Sb and 1.05 ± 0.94 for ^{130}Sb . The initial spin distribution of fission fragments was assumed to be a statistical distribution.

The de-excitation process was calculated with the modified GROGO-II code and the obtained isomeric yield ratios were converted to the initial angular momenta of fission fragments.

1A04 ^{233}U および ^{235}U の熱中性子誘起核分裂

(阪大理・京大炉*) ○箱田照幸・宮内貴宏・矢野大作・渡辺誠也・
横山明彦・高橋成人・斎藤直・馬場宏・中込良廣*

これまでにアクチニド領域での低エネルギー核分裂において、マルチモード核分裂機構の存在が実験的かつ理論的に議論されてきた。Brosa¹⁾らにより提唱されたmulti-mode random neck-rupture modelによると、アクチニド領域の非対称核分裂には、非対称性の大きく切断時の形状が長いstandard-IIと呼ばれる主たる成分のほかに、非対称性の小さく切断時の形状が短いstandard-I成分が混在しているとされている。われわれは、 ^{233}U 及び ^{235}U の熱中性子誘起核分裂事象を二重エネルギー法で測定し、初期核分裂片質量分布及び全運動エネルギー(TKE)分布をそれぞれ求めた。これらデータをもとに非対称成分の2成分分離を行った結果については昨年の討論会で述べた²⁾。今回は、解析手法をさらに進めstandard-I, II両成分の存在について再検討を試みたのでその結果について報告する。実験についての詳細は、昨年の講演²⁾で述べたので割愛する。

TKEが核分裂の際の核分裂片の電荷 Z_1 および Z_2 のクーロン反発からの寄与によるものとし、このときの切断時の距離を実効相互作用距離(D_{eff})とすると、

$$D_{eff} = Z_1 \cdot Z_2 e^2 / TKE \quad (1)$$

という関係が成り立つ。Fig. 2に ^{235}U の重核分裂片質量領域における初期核分裂片の質量と D_{eff} の関係を示した。昨年の講演²⁾では、 D_{eff} は非対称性の大きな領域においてよい直線関係があり、これは非対称性の大きなstandard-IIの有する性質であり、この直線(Fig. 2に示した点線)よりはずれる領域は非対称性が小さく切断時の形状が短いとされるstandard-Iが混在しているためと考へて、この領域で二成分解析を行った。しかし、この直線関係は現象論的でありこれを解析のより所にするにはまだ議論の余地がある。一般に、アクチニド領域の低エネルギー核分裂では、核分裂片の運動エネルギーの平均値(KE)が軽核分裂片領域で一定の値となることがよく知られている。Fig. 1に示した ^{235}U のKEと核分裂片質量との関係からも軽核分裂片領域で一定値をとることが分かる。このKEの一定値($E_{K,L}$)と運動量保存則を用いると核分裂片質量毎のTKEは以下のように表せる。

$$TKE = E_{K,L} / \eta \quad (2)$$

ここで、 $\eta = A_H / A_F$ である。(A_F : 複合核の質量 A_H : 重核分裂片質量)

これを(1)式に代入すると以下の式が得られる。

$$D_{eff} = Z_1 \cdot Z_2 e^2 \eta / E_{K,L} \quad (3)$$

Fig. 2に(3)式より求められる D_{eff} を実線で示した。前回の解析²⁾と同様、この実線で示されている成分はstandard-IIによるものであると考へ、これよりくぼんだ質量領域にstandard-Iが混在しているとして ^{233}U 、 ^{235}U それぞれについて2成分解析を行った。その結果、 ^{233}U 、 ^{235}U ともに抽出されたstandard-I成分の割合は前回の結果²⁾より小さくなった。また、双方とも大きいところで直線からずれる領域があるが、このずれの原因については現在検討中である。

Reference

- 1) See, e.g., U. Brosa et al., Phys. Rept. 197, 167 (1990).
- 2) 宮内ら, 第36回放射化学討論会講演予稿集 (八王子, 1992年10月) p.18.

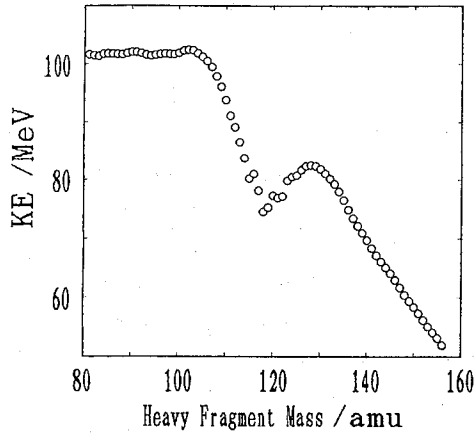


Fig.1 The average kinetic energy (KE) for the individual fragment mass of ^{235}U is plotted versus primary fragment mass. The figure reveals that KE in the light fragment mass region is kept constant over the asymmetric mode.

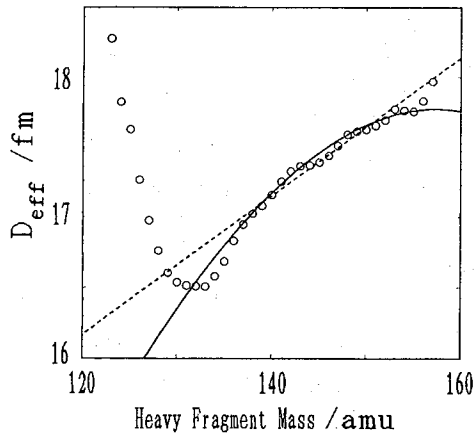


Fig.2 Effective interaction distance (D_{eff}) vs. heavy fragment mass for $^{233}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$. Each TKE distribution in the mass region of off-systematic D_{eff} was decomposed into two Gaussians. Solid line was deduced from Eq. (3). Dashed line represents the result of previous work.

THERMAL-NEUTRON-INDUCED FISSION OF ^{233}U AND ^{235}U

Teruyuki HAKODA, Takahiro MIYAUCHI, Daisaku YANO, Seiya WATANABE, Akihiko YOKOYAMA, Naruto TAKAHASHI, Tadashi SAITO, Hiroshi BABA, Faculty of Science, Osaka University

Yoshihiro NAKAGOME, Research Reactor Institute, Kyoto University

Fission of ^{233}U and ^{235}U induced by thermal neutrons was studied at the Super-Mirror Neutron Guide-Tube Facility of the Kyoto University Reactor. The complementary fission fragments were measured with a pair of silicon surface barrier detectors. It was found that asymmetrically divided fragment-mass distributions could be decomposed into two components on the basis of the total kinetic energy distribution.

(阪大理・京大炉*) ○渡辺誠也・矢野大作・箱田照幸・高宮幸一
 齋藤 直・高橋成人・横山明彦・馬場 宏
 中込良広*

核分裂において観測される様々な現象を理論的に説明する試みはこれまで数多くなされているが、軽アクチノイド核種の自発核分裂や熱中性子及び低エネルギー中性子の誘起核分裂において最近注目されている理論に、Brosaらの'multi-fission-mode random neck rupture model'がある¹⁾。このモデルによれば、saddleからscissionに至る変形過程でいくつかの核分裂障壁が存在し、その核分裂障壁が分岐点となって分裂核はいくつかの経路を通り最終的にある切断形状をとった後破断される。彼らはその各経路を'superlong', 'standard', 'supersymmetry', 'supershort'と名づけ、それぞれどの経路が優勢になるかは分裂核によるとしている。また ^{235}U の熱中性子誘起核分裂などでは、standardがさらに2つの経路に分かれていると考えられている。われわれは ^{233}U 、 ^{235}U の熱中性子誘起核分裂について、このmulti-mode fissionの検証を行ってきた。今回は ^{239}Pu の熱中性子誘起核分裂について報告する。

実験は京大炉スーパーミラー中性子導管設備を用いて行った。中性子ビーム強度は $6 \times 10^7 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ である。標的はエネルギー損失を最小限に抑えるために薄膜を用いた。薄膜は、Pu(濃縮度92%)のフッ化物とジベンゾイルメタンとの錯体を作りそれを含むニトロセルロースの薄膜を自己保持させた。標的の厚みは $1 \mu\text{gPu/cm}^2$ であった。真空槽にこの標的と一対の重イオン用シリコン表面障壁型検出器(SSD)を置いた。SSDは標的の両面から3.5cmの位置に置き、後段の回路系で核分裂片を同時検出した事象のみを取りこめるように設定した。核分裂片のパルス波高分布における軽核分裂片のピーク(N_L)と両ピーク間の谷(N_V)の比はSSDの分解能に対する良い指標であるが²⁾、本実験で得られた比は $N_L/N_V=6.70$ となり、Walterら³⁾による測定値6.67ときわめて近いことからSSD実験としては最良の実験であったといえる。SSDのエネルギー校正はSchmittらの方法を用いて行った。運動エネルギー保存則とWahlによる即発中性子放出の補正⁴⁾を利用し、反復法によって初期核分裂片質量及びその運動エネルギーを求めた。

Fig. 1 に得られた初期核分裂片質量の重核分裂片側の分布を示す。また、運動エネルギー分布及び質量分布から得られる諸平均値と分散をWagemansらの文献値⁵⁾と比較したものをまとめてTable 1 に示す。文献値とよく一致しているが、これは即発中性子の補正が妥当であったことを示し、かつ分散が小さかったことから本実験は分解能の良い実験であったといえる。次に、全運動エネルギー(TKE)は核分裂片相互の静電斥力に由来すると考え、分裂片間の実効相互作用距離(D_{eff})を $D_{eff}=Z_1 \cdot Z_2 \cdot e^2 / \text{TKE}$ から求めた。分裂片の電荷はUCDにより近似した。 ^{233}U 、 ^{235}U では、核分裂片の各質量毎の D_{eff} は非対称分裂領域で良い直線関係を示しており、この直線がstandard IIの特徴であるとしてこの直線からずれる質量領域でTKE分布を2つのガウス関数により2成分分離した。結果としてstandard I が6%という値が得られた。Schillebeeckxら⁶⁾は24.8%という結果を出しているがこの相違は解析方法の違いからくるものと考えられる。現在種々の解析方法を試みている段階である。

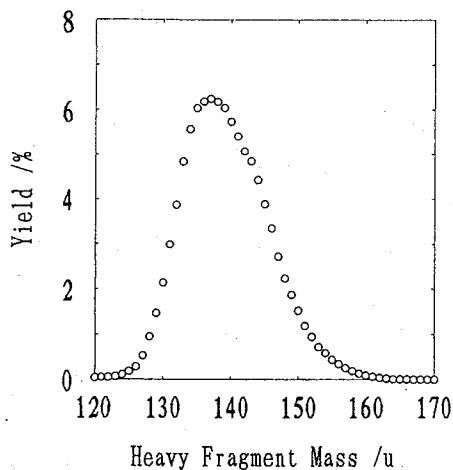


Fig.1 Heavy fragment mass distribution for $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$.

Table 1 Main characteristics of the $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$ fragment mass and energy distributions.

	Wagemans et al. ⁵⁾	This work
\bar{E}_k^* (MeV)	177.65	178.59
σ_{E_k} (MeV)	12.14	11.97
\bar{E}_L^* (MeV)	103.29	103.57
\bar{E}_H^* (MeV)	74.36	75.00
\bar{m}_L^* (u)	100.30	100.58
\bar{m}_H^* (u)	139.70	139.42
$\sigma_{m_L^*}$ (u)	6.64	6.31
Events	4.2×10^6	5.3×10^5

References

- 1) U.Brosa et al., Phys.Rept. 197, 167 (1990)
- 2) H.W.Schmitt et al., Phys.Rev. 141, 1146 (1966)
- 3) F.J.Walter et al., Phys.Rev. 133, B1500 (1964)
- 4) A.C.Wahl, At.Data Nucl. Data Tables 39, 1 (1988)
- 5) C.Wagemans et al., Phys.Rev. C30, 218 (1984)
- 6) P.Schillebeeckx et al., Nucl.Phys. A545, 623 (1992)

STUDY ON MULTI-MODE FISSION OF ^{239}Pu INDUCED BY THERMAL NEUTRONS

Seiya WATANABE, Daisaku YANO, Teruyuki HAKODA, Koichi TAKAMIYA, Tadashi SAITO, Naruto TAKAHASHI, Akihiko YOKOYAMA, Hiroshi BABA, Faculty of Science, Osaka University

Yoshihiro NAKAGOME, Research Reactor Institute, Kyoto University

Fission of ^{239}Pu induced by thermal neutrons was studied at the Super-Mirror Neutron Guide-Tube Facility in the Kyoto University Reactor. The coincident complementary fragments were measured with two silicon surface barrier detectors. The energies of the fragments were determined by Schmitt's method. The numbers of the prompt neutrons were referred to the compilation by Wahl. As a result, we obtained primary mass and its kinetic energies of the fragments.

The main characteristics of $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$ fragment mass and energy distributions are in agreement with those of the experiment by Wagemans et al. We decomposed the distributions into two components on the basis of the total kinetic energy. Further analyses are in progress to investigate the multi-mode fission mechanism.

(阪大理・東北大核理研*) ○山口貴行、春日良一、矢野大作、
高橋成人、横山明彦、馬場 宏、梶本和義*、大槻 勤*

<はじめに>

粒子による核分裂は、入射粒子の持つ角運動量やスピンのため、分裂核の励起状態の選択性が非常に低い。これに対し、光核分裂の場合、励起状態の選択性が高く、遇-遇核の場合、ほとんどが $J^{\pi}=1^{-}$ でE1吸収であるので、核分裂の断面積のエネルギー依存性がfission barrierに反映される。そこで遇-遇核である ^{238}U の光核分裂について、放射化法で質量分布を求め、考察を行った。

<実験>

実験は、東北大学原子核理学研究施設LINACの電子ビーム(60MeV, 40MeV, 30MeV)でPtコンバータを照射し、発生した制動放射線を用いた。ターゲットには、60~80mgU/cm²の酢酸ウラニルのペレット(10mmφ)を用い、そのすぐ後方に、厚さ50mmのAuのmonitor targetを置いた。照射は、短寿命核種測定用に30分、長寿命核種測定用、および化学分離用に3時間行った。照射したターゲットは、長寿命および短寿命核種測定用はおよびAu monitorは非破壊で、化学分離用は希土類を化学分離して、それぞれの試料についてγ線測定を行い、BOBコードでγ線スペクトルの解析を行い、核分裂生成物の生成断面積を求めた。

<結果および考察>

核分裂片の生成断面積は、Auのmonitor targetの $^{197}\text{Au}(\gamma, n)$ 反応による ^{196}Au の生成量からLindgrenとJonsson¹⁾の値を用いてnormalizeし、求めた。この結果のうち、bremsstrahlung end-point energyが30MeVと60MeVの質量分布をFig.1に示す。

Jacobらは、12~70MeVのbremsstrahlungによる核分裂の質量分布を求め、

- 1) 対称分割による核分裂の収率は、end-point energyに依存するが、非対称分割による核分裂のそれは、ほとんど依存しない。
- 2) 質量数 133~135 の領域にピークがある。

ことを示した²⁾が、本研究では、それと一致する結果が得られた。

質量分布から求めたpeak-to-valley ratio (P/V)をFig.2に示す。本研究ではKatzら³⁾のものより、Jacobら²⁾や、Schmitt-Sugarman⁴⁾のものと矛盾しない値が得られた。

馬場らは、アクチノイド核についてpeak-to-valley ratioと励起エネルギーから、symmetric fission barrierを求めた⁵⁾が、これを用い、peak-to-valley ratioとsymmetric fission barrierから、反応における実効励起エネルギー E_x を求めたところ、60MeVで $E_x=12.5\text{MeV}$ 、30MeVで $E_x=11.7\text{MeV}$ が得られた。

また、両翼のFWHMは、60MeV, 30MeVともに14.99となった。この値は、アクチノイド核の熱中性子誘起核分裂のそれに近いものであった。

講演では、中性子放出や電荷分布とshell effectとの相関についても検討し、これらも含めて考察を行う。

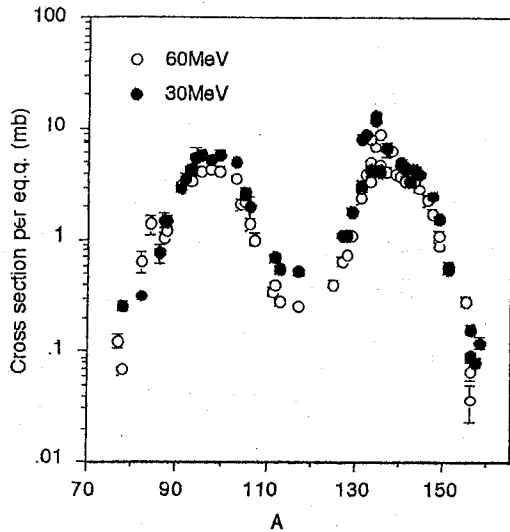


Fig.1 Mass distribution at end-point energy 60MeV and 30MeV

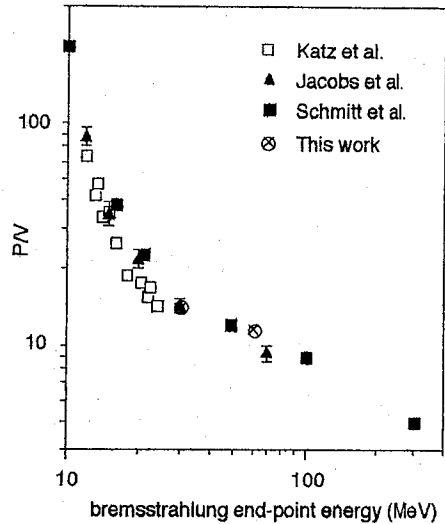


Fig.2 Summary of data on the peak-to-valley ratio

References

- 1) K. Lindgren and G. G. Jonsson, Nucl. Phys. A166 ,643 (1971).
- 2) E. Jacobs, H. Thierens, D. De Frenne, A. De Clercq, P. D'hondt, P. De Gelder, and A. J. Deruytter, Phys. Rev. C19 ,422 (1979).
- 3) L. Katz, T. M. Kavanah, A. G. W. Cameron, E. C. Bailey, and J. W. T. Spinks, Phys. Rev. 99 (1955) 98.
- 4) R. N. Schmitt and N. Sugarman, Phys. Rev. 95 , 1260 (1954).
- 5) H. Baba and S. Baba, Nucl. Phys. A175 ,199 (1971).

STUDY ON CHARACTERISTICS OF PHOTOFISSION OF ^{238}U BY RADIOCHEMICAL METHOD

Takayuki YAMAGUCHI, Ryoichi KASUGA, Daisaku YANO, Naruto TAKAHASHI, Akihiko YOKOYAMA, and Hiroshi BABA, Faculty of Science, Osaka University

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

Characteristics of the photofission of ^{238}U were studied by means of radiochemical method. Mass distributions were measured, and it was found that the mass yields for symmetric fission depended on the end-point energy and the asymmetric yields were independent. Peak-to-valley ratios were in good agreement with those of Jacobs et al. Further, we deduced the effective excitation energy in this experiment. The width of the mass distribution turned out to be close to that of the thermal neutron-induced fission of ^{235}U

1A07 励起エネルギー14 MeV近傍での $^{238}\text{U} + \text{p}$ 系の核分裂

(阪大理・原研*) ○春日良一・山口貴行・矢野大作・高橋成人・横山明彦・
馬場 宏・篠原伸夫*

[はじめに]

アクチノイド領域の自発核分裂ないし熱中性子誘起核分裂は、約20 MeVを超すエネルギーでの核分裂と様相が大きく異なっており、その諸量において後者のような整然とした系統性を示さない。これまでのところ、高励起エネルギーでの ^{238}U の陽子誘起核分裂の系統性は下限値が14 MeVであるという結果が得られている¹⁾。したがって、このエネルギー領域で核分裂のモードが変化する様子が見られることが期待される。今回、以前得られた質量分布²⁾と比較してこの様相の変化を説明することを試みた。

[実験]

実験は、原研タンデム型加速器のpビームを使用して行った。ターゲットには、 1.5 mg/cm^2 の ^{238}U を 1.5 mg/cm^2 のAl箔に電着したものを、ターゲットの前後に捕集箔として 1.5 mg/cm^2 Al箔を置いた。これらを短寿命核種用と長寿命核種用にそれぞれ約30分と約3時間の照射を行い、 γ 線測定を行った。また、電荷分布や質量分布を求める際に特に重要な元素については化学分離を行い、それぞれ γ 線測定を行った。得られた γ 線スペクトルをBOBコードを用いて解析し、核種とその生成断面積を求めた。

[結果及び考察]

電荷分散は、ガウス分布に従うことが一般に知られており、得られた実験データをガウス関数でfittingすることにより最適核電荷を求められる。ここで問題になるのがガウス分布の幅 σ である。我々はこれまでの研究で0.69と1.05という2通りの値が存在することを明らかにしている³⁾。この2つの値を用いて、最適核電荷分布を求めたが、ほとんど同じ結果が得られた。この結果をFig. 1に示した。この結果と以前得られた高い励起エネルギーでの結果とを比較すると高いエネルギーでは全質量域を通し、一直線になるのに対してこのエネルギー領域では軽翼側と重翼側とで別々の直線になるのがわかった。さらにそれぞれの σ についてこの最適核電荷から質量分布を求めると、Fig. 2に示したような結果になった。この質量分布をガウス分布にフィッティングしたところ、 χ^2 の値は0.69の方が0.38で1.05の方が1.42であった。この結果からは、 σ は0.69の方が適している。また、質量分布について以前得られたものと今回得られたものを比較すると、以前得られたものは、かなり軽翼と重翼とで様相が違う解析結果を与えたのに対して今回得られたものは、ほぼ鏡映対称の様相を呈している。これらの点についてさらに詳細な検討を行う予定である。

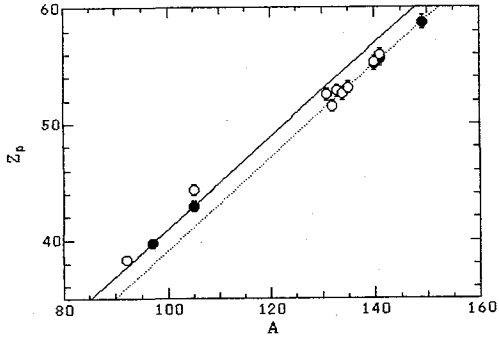


Fig.1. Most probable charges of the fission products in $^{238}\text{U}+p$ system at $E_x=17.2\text{MeV}$. (open circles are present work's data, solid circles are previous work's data.)

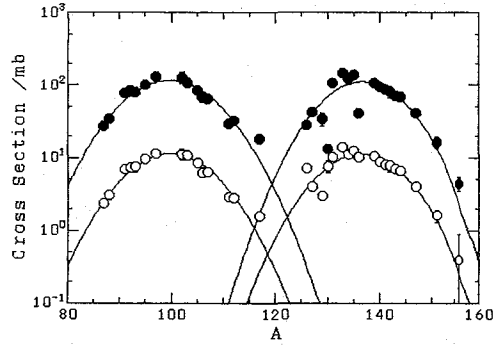


Fig.2. Mass distribution of the $^{238}\text{U}+p$ system obtained using the charge dispersion width $\sigma=0.69$ (open circles) and $\sigma=1.05$ (solid circles).

References

- 1) S. Baba, H. Umesawa and H. Baba, Nucl.Phys., A175(1971)177.
- 2) N. Nitani et al. OULNS. ANN. Rept.1991,166.
- 3) M.-C.Duh et al. Nucl.Phys., A550(1992)281.

FISSION OF THE $^{238}\text{U}+p$ SYSTEM IN THE REGION NEAR $E_x=14\text{MeV}$

Ryoichi KASUGA, Takayuki YAMAGUCHI, Daisaku YANO, Naruto TAKAHASHI,
 Akihiko YOKOYAMA, Hiroshi BABA, Faculty of Science, Osaka University
 Nobuo SHINOHARA Japan Atomic Energy Research Institute

Fission characteristics of actinide nuclei with low excitation energies (spontaneous and thermal-neutron-induced fission) are known to be different from those in the region above 20MeV. It is reported that a systematic trend observed in the proton-induced fission of ^{238}U with moderate excitation energies ceases around 14MeV. It suggests the transition in the fission mechanism is expected to occur around this energy. The purpose of this work is to measure the mass distribution in detail and compare it with previously obtained results in order to clarify this point.

1A08

アクチノイドの陽子誘起核分裂における極端な非対称質量分割(3)

原研 ○塚田和明、永目諭一郎、篠原伸夫、市川進一、間柄正明
都立大理 末木啓介、西中一朗、中原弘道
東北大核理研 大槻勤

【はじめに】分裂片の質量分布が2つ山になるTh、UおよびPuなどの低エネルギー核分裂において、山の頂点にあたる非対称核分裂領域と谷にあたる対称核分裂領域の様々な物理量の違いから核分裂モードが議論されてきた。最近、今まで議論されてきた核分裂モード以外に様々な核分裂モードの存在が予想され、実験的にも確認されつつある。しかし、これらの議論は核分裂収率が大きく実験的に得られやすい領域を中心に行われており、収率の小さな裾にあたる領域では系統的実験データがないことからほとんど触れられていない。ところが、この裾にあたる領域は一般的な非対称核分裂に比べてより非対称性が大きく、どのような核分裂モードの影響下にあるか興味深い。

この領域は分裂片の一方が希土類元素同位体にあたり、この希土類元素同位体に注目すると分裂の割合が1 : 1.4以上の非対称核分裂に関して系統的に研究することができる。そこで、本研究ではこれら希土類元素同位体の生成量を正確に測定し、他の領域と比較することで、この領域での質量分割機構、特に核分裂モードなどに関して知見を得ることを目的とした。これまでに、希土類元素領域を中心として、 $^{244}\text{Pu}+p$ 反応系での核分裂収率におよぼす入射エネルギーの影響及び $^{232}\text{Th}+p$ 反応系における核分裂片の角度分布に関する実験を行ってきた。今回、新たに $^{232}\text{Th}+p$ 反応系の入射エネルギー依存性及び $^{244}\text{Pu}+p$ 反応系の核分裂片の角度分布に関する実験を行ったので、今までの結果を加えて考察する。

【結果および考察】 ^{232}Th および $^{244}\text{Pu}+p$ の実験系において、核分裂片の質量分布とそれらの入射エネルギー依存性、及び各核分裂片の角度分布を測定した。特に、希土類元素は自動迅速イオン交換分離装置を利用して化学分離を行うことで、核分裂収率の小さく分かれた核分裂片の割合が1 : 2という極端に非対称な質量分割で生成する領域まで観測することができ、それぞれに詳細な結果を得ることができた。

分裂片の角度分布は、図1のように今までに報告されてきているような対称核分裂領域近辺の角度異方性が非対称核分裂領域よりも小さいということは確認できたが、希土類元素領域内に有意な変化は見られなかった。また、質量分布及びそれらの入射エネルギー依存性は、 $^{244}\text{Pu}+p$ の実験系では希土類元素領域において有意な変化は見られなかったが、 ^{232}Th 系では質量数150以上と質量数140~150でその傾向に違いが現われた(図2)。この傾向の違いは(p,2n)反応の寄与が大きくなるエネルギー領域で起こっていると考えられる。このことから非対称領域といわれる中にも、一般に議論されている質量分布の山にあたる領域と1 : 2というような極端な非対称質量分割で生成する領域で、核分裂チャンネルの影響の違いが存在することが予想される。

講演では、これらの実験データから、非対称核分裂領域中の傾向を対称核分裂領域との比較を加えて報告する。

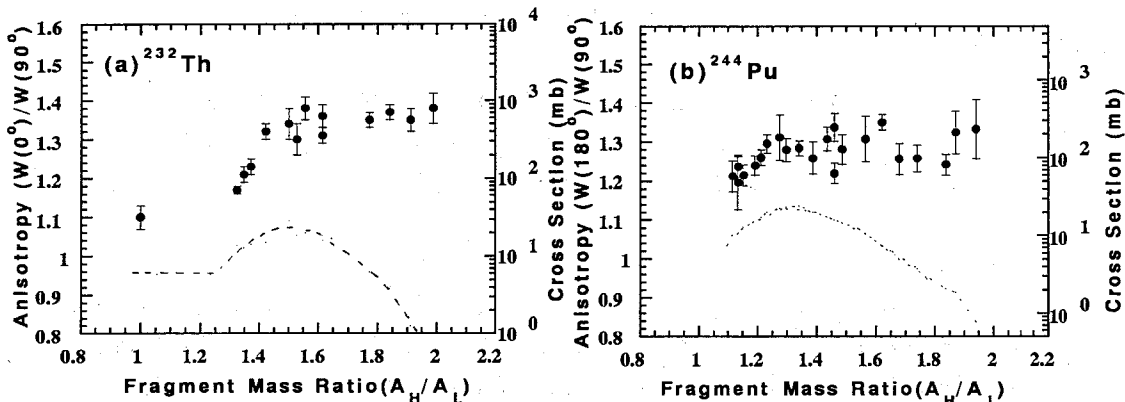


Fig.1 Dependence of angular anisotropy on fragment-mass ratio in the 15 MeV proton-induced fission of (a) ^{232}Th and (b) ^{244}Pu . The dashed lines are the mass yield curves.

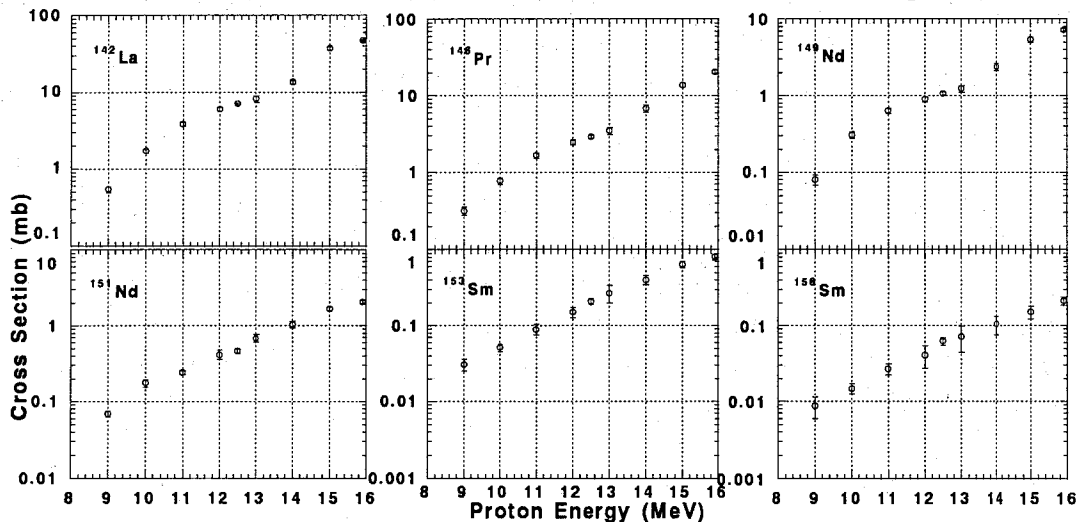


Fig.2 Excitation function of each masses products in proton-induced fission of ^{232}Th .

Reference 1) H.Kudo et al., Phys. Rev. C25 (1982) 3011.

EXTREMELY ASYMMETRIC MASS DIVISION PRODUCTS IN LOW-ENERGY PROTON-INDUCED FISSION OF ACTINIDES (3).

Kazuaki TSUKADA, Yuichiro NAGAME, Nobuo SHINOHARA, Shin-ichi ICHIKAWA, Masaaki MAGARA, Japan Atomic Energy Research Institute, Keisuke SUEKI, Ichiro NISHINAKA, Hiromichi NAKAHARA, Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, Tsutomu OTSUKI, Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University.

In the heavier wing produced on the fission systems of $^{232}\text{Th}+p$ and $^{244}\text{Pu}+p$, the fission mass yield distribution which energy rang was 10 to 16 MeV and angular distribution of the fission products with the 15 MeV proton were measured in detail. The low yields fragment of this region could be rapidly separated for other fission products with automatic rapid ion-exchange separation system. These results show the angular distribution of asymmetrically divided fission fragments apparently have the same behavior, which is obviously different from the symmetric region. In the $^{232}\text{Th}+p$ system, the incident energy dependence of the higher asymmetric region is different from the asymmetric region near the peak top. The tendency of the asymmetric mass division will be reported.

(東大理¹、都立大理²、北里大衛生³、原研⁴、東大核研⁵)○谷川勝至¹、宮本真哉²、西中一朗²、末木啓介²、中原弘道²、
小林貴之³、塚田和明⁴、野村 亨⁵

【はじめに】

荷電粒子照射によって反応系に持ち込まれる角運動量が、核分裂の機構に与える影響の系統的な研究は数少ない[1]。また、今までに行われた実験はすべてSSDを使用しており、実験結果は検出器の較正や放出中性子数の補正方法などに左右されると考えられる。本研究では様々な較正を必要としない飛行時間法(Double-TOF)により、 ^{210}Po を複合核とする反応系での角運動量の効果について調べてきた[2]。これまでの結果では、角運動量の増加と共に全運動エネルギー(TKE)分布の幅が減少する傾向が示唆された。今回は新たな反応系のデータも加え、より詳細に角運動量の影響を探ることにする。

【実験】

実験はすべて東京大学原子核研究所SFサイクロトロンで行ない、3B-1コースの汎用大型散乱槽を使用した。実験を行った4組の反応系について、諸データをTable 1に示す。角運動量の影響をより正確に見積るため、2組の反応系で励起エネルギーを揃えた。第4カラムは複合核の持つ角運動量の平均値、第5カラムは融合した核のうち、核分裂する核の持つ角運動量の平均値である。これらの値はALICE-85で計算した。最後のカラムは全核分裂断面積で、文献[3]によった。なお実験方法の詳細については昨年放射化学討論会[2]で報告している。

【結果と考察】

解析ではリストデータをイベント毎に計算し、ターゲットなどでのエネルギー損失を補正した後に分裂片の速度、質量、運動エネルギーを求めた。Fig.1に各反応系におけるTKEの平均値と角運動量($L_{fission}$)との相関を示す。図中の点線はViolaのSystematics [4]の値であるが、本研究ではすべてこの値よりも低くなっている。また他の反応系に比べて $^{206}\text{Pb} + \alpha$ (51MeV)の結果だけが小さいものの、全体として角運動量や励起エネルギーの影響は見られない。Fig.2は分裂片のTKE・質量分布の幅と $L_{fission}$ との関係をプロットしたものである。質量分布に関しては、高い励起エネルギーの方が広い分布幅となっているが角運動量との関連は明らかでない。TKE分布では励起エネルギーの影響は見られないが、角運動量の増加と共に分布幅が狭くなっていることがわかる。今までにこうした傾向は報告されていない。文献[1]などに報告されている質量分布やTKE分布の幅と比較すると、我々のデータの方が質量分布では狭く、TKE分布ではやや広がっていた。こうした違いが測定方法に起因するものかどうか、今のところ明らかではない。講演では非対称分裂の領域における考察も含めて議論したい。

[1] J.P.Unik et al., 2nd IAEA Sympo. Phys. Chem. Fission, p717 (1969)

M.G.Itkis et al., Sov. J. Nucl. Phys., 36, 483 (1982)

[2] 日本物理学会1992年秋の分科会 5aF10、第36回放射化学討論会 1A09

- [3] L.G.Moretto, 3rd IAEA Sympo. Phys. Chem. Fission, vol.1, p329 (1974)
 J.van der Plicht, et al., Phys. Rev., C28, 2022 (1983)
 [4] V.E.Viola et al., Phys. Rev., C31, 1550 (1985)

Table 1 : Some parameters which characterize the reaction systems in this work

System	E_{lab} (MeV)	E_{cn}^* (MeV)	$L_{fus}(\hbar)$	$L_{fiss}(\hbar)$	σ_{fiss} (mb)
$^{209}\text{Bi}+p$	40.0	44.8	7.1	7.5	16
$^{206}\text{Pb}+\alpha$	51.0	44.8	17.1	17.8	20
$^{206}\text{Pb}+\alpha$	63.4	56.8	20.3	21.8	63
$^{198}\text{Pt}+^{12}\text{C}$	75.0	56.8	24.3	28.0	38.7

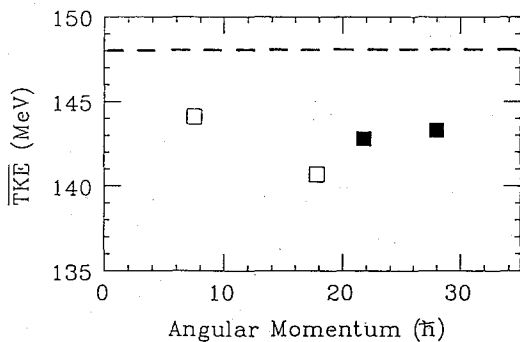


Fig.1 Mean total kinetic energy (TKE) as a function of the average angular momentum of the fissioning nucleus. (Open symbol is for $E_x=44.8\text{MeV}$, and closed one for $E_x=56.8\text{MeV}$.)

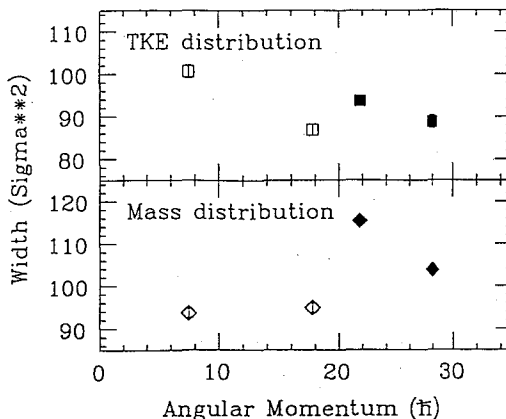


Fig.2 Width of the mass and TKE distributions as a function of the average angular momentum of the fissioning nucleus.

Influence of the Angular Momentum on the Fission Process of the Compound Nucleus ^{210}Po (2)

Masashi TANIKAWA, School of Science, Univ. of Tokyo : Shinya MIYAMOTO, Ichirou NISHINAKA, Keisuke SUEKI, Hiromichi NAKAHARA, Faculty of Science, Tokyo Metropolitan Univ. : Takayuki KOBAYASHI, School of Hygienic Science, Kitasato Univ. : Kazuaki TSUKADA, Japan Atomic Energy Research Institute : Toru NOMURA, Institute for Nuclear Study, Univ. of Tokyo

The fission of compound nucleus ^{210}Po which produced by different reactions ($^{209}\text{Bi}+p$, $^{206}\text{Pb}+\alpha$, $^{198}\text{Pt}+^{12}\text{C}$), has been studied in order to verify the effect of the angular momentum on the fission process. The measurement of the fragment mass and TKE has been done by the Double-TOF method. It was found that the width of the TKE distributions decrease with increasing the angular momentum of the fissioning nucleus.

(都立大理・原研*・東北大核理研**・東大理***) ○西中一朝、
宮本真哉、小林香奈子、末木啓介、中原弘道、塚田和明*、間柄正明*、
初川雄一*、永目論一郎*、池添博*、大槻勤**、谷川勝至***

【はじめに】

軽アクチノイド近傍の原子核での核分裂における質量分割では、非対称と対称な分割が存在する。このような質量分割が分裂核の中性子数とどのような関係が存在するかを明らかにすることを目的として、重イオン反応により生成する中性子欠損核の核分裂における質量分布を調べてきた。これまでの重イオン反応による軽アクチノイド中性子欠損核の核分裂の研究では、質量分布において殻効果に関連づけられるような非対称分裂の存在をしめす実験データは得られていない¹⁾。本研究では、これまで $^{180}+^{200}\text{Bi}$ 反応系においてクーロン障壁近傍の入射エネルギーで飛行時間(TOF)測定法による精度の良い実験を行い、非対称分裂の存在を示唆する質量分布を得た²⁾。また ^{19}F , $^{160}+^{200}\text{Bi}$ 反応系では放射化学的手法によって得られる核分裂生成物の同位体分布から、同位体の励起関数や分布の最確値の励起エネルギー変化を調べ、核分裂生成物にみられる殻効果についての考察を行ってきた²⁾。

今回は 160 , $^{180}+^{200}\text{Bi}$ 両反応系についてそれぞれの実験手法による相補するデータを得るため $^{160}+^{200}\text{Bi}$ 反応系で飛行時間測定法の実験、 $^{180}+^{200}\text{Bi}$ 反応系で放射化学的手法の実験を行った。これらの異なる手法で得られた結果を比較検討し、軽アクチノイド領域の核分裂機構についての考察を行う。

【実験】

新たな実験は日本原子力研究所タンデムヴァンデグラフ加速器で行った。反応系と入射エネルギーはTables. 1に示した。実験の詳細は参考文献^{2, 3)}を参照されたい。

【結果考察】

飛行時間法で得られた質量分布を $p+^{232}\text{Th}$ の質量分布⁴⁾とともにFig. 1に示す。それぞれの複合核は ^{225}Pa ($N=134$), ^{227}Pa ($N=136$), ^{233}Pa ($N=142$)であり、複合核の励起エネルギーはすべて約32MeVである。 160 , $^{180}+^{200}\text{Bi}$ の質量分布は幅(σ)が約14.5amuの主として対称分裂であるが非対称分裂の構造がみられる。とくに $^{180}+^{200}\text{Bi}$ の質量分布では質量数90と135近傍の肩構造が明らかである。核分裂生成物の質量数135は中性子数が82の閉殻に対応する。また三つのガウス分布によるフィティングした結果をFig. 2の細線で示した。このフィティングによる非対称分裂の成分は 225 , ^{227}Pa では約10%、 ^{233}Pa では約60%であり、同じ原子番号のPa同位体の複合核では分裂核の中性子数が136と142の間で急激に変化していることがわかる。厳密にはマルチチャンス核分裂、入射粒子の異なることによる角運動量の効果などを考慮する余地があるが、軽アクチノイド領域では、核分裂において質量分割の様相は分裂核の中性子数と強い依存性があることが分かった。

Fig. 3に放射化学的手法によってもとめた生成断面積をTOFで得た質量分布とともに示した。今後、核分裂生成物の同位体分布の解析をすすめ、これまで行ってきた核分裂過程における核電荷の分配や中性子放出の考察や、TOFで得た質量分布と比較検討を行い、軽アクチノイド領域の分裂機構について考察する予定である。

Table.1 Incident beam energies and measured fission events for TOF experiments.

Reaction	Incident beam energy Lab. sys. (MeV)	Excitation energy of compound nucleus(MeV)	Fission events
$^{16}\text{O}+^{209}\text{Bi}$	86	33	5.0×10^4
$^{16}\text{O}+^{209}\text{Bi}$	98	44	2.2×10^4
$^{18}\text{O}+^{209}\text{Bi}$	85	32	2.8×10^4

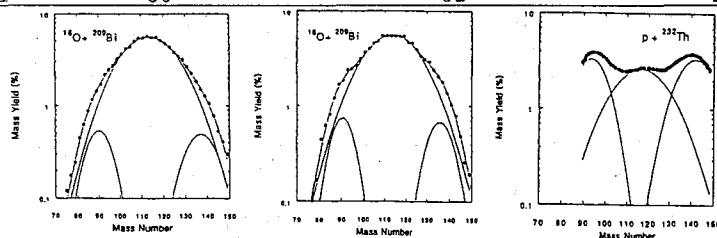


Fig.1 Mass distributions of fission fragments in the reactions $^{16}\text{O}+^{209}\text{Bi}$, $^{16}\text{O}+^{209}\text{Bi}$ and $p+^{232}\text{Th}$. Excitation energy of the compound nucleus is 32MeV in all reactions.

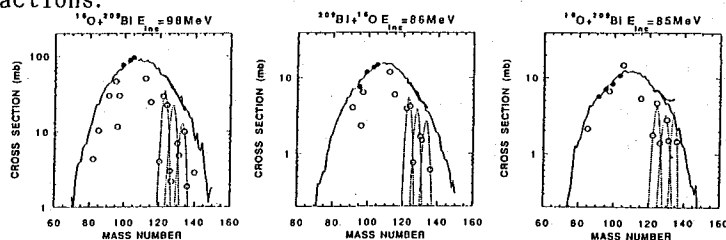


Fig.2 Cross sections measured by radiochemical technique with the data of TOF experiments. Closed circles show cumulative data, and open circles are independent or fractional cumulative one. Dashed lines indicate isotopic distributions for Sb, I, and Cs. Thin solid lines indicate mass yield curves obtained by TOF method.

【参考文献】

- 1) B. D. Wilkins et al., "Dynamics of Nuclear Fission and Related Collective Phenomena", Springer-Verlag, New York, (1981)p145
- 2) 西中他、第34回放射化学討論会、1A10(1991)、第35回放射化学討論会、1A16(1991)、第36回放射化学討論会、2A06(1992)
- 3) 西中他、第36回放射化学討論会、2A04(1992)
- 4) I. F. Croall and J. G. Cunghame, Nucl. Phys. A128(1969)402.

NUCLEAR FISSION OF NEUTRON-DEFFICIENT NUCLEI IN LIGHT ACTINIDE REGION.

Ichiro NISHINAKA, Shinya MIYAMOTO, Kanako KOBAYASHI, Keisuke SUEKI, Hiromichi NAKAHARA, Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, Kazuaki TSUKADA, Masaaki MAGARA, Yuichi HASTUKAWA, Yuichiro NAGAME, Hiroshi IKEZOE, Japan Atomic Energy Institute, Tsutomu OHTSUKI, Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, Masashi TANIKAWA, Faculty of Science, The Universty of Tokyo

The aim of this work is to observe how mass division phenomena, symmetric and asymmetric, are correlated with the neutron number of the fissioning nuclide in the region of light actinides. Fission phenomena were observed by using a TOF technique and a radiochemical one for the following light-heavy-ion induced reactions, ^{16}O , $^{18}\text{O}+^{209}\text{Bi}$, compound nucleus being $^{225}\text{Pa}(N=134)$ and $^{227}\text{Pa}(N=136)$, respectively. The observed mass distribution in each system is, as a whole, nearly symmetric with $\sigma=14.5\text{amu}$. However, there seems to be some asymmetric component in the mass distribution observed at the incident beam energies near the Coulomb barriers. From the data of isotopic distributions, we will discuss the mechanism of charge division and neutron evaporation in the fission process and how the excitation energy of the compound nucleus is divided between the complementary fragments.

(原研、東北大核理研¹、都立大理²)。永目諭一郎、池添博、塚田和明、初川雄一、間柄正明、篠原伸夫、大島真澄、大槻勤¹、佐々木玲仁¹、青木由香¹、笠木次郎太¹、西中一朗²

1. 緒言 原子番号 100 近辺の自発核分裂においては、核分裂核の中性子数に伴う質量分布の変化や、二重モード核分裂過程の検証など興味ある結果が報告されている [1]。この二重モード核分裂は、分裂片の殻効果 ($Z=50, N=82$) の影響を強く受けて、 ^{258}Fm 等の中性子過剰核領域で観測されている。一方中性子欠損核領域においては、軽アクチノイド核の低エネルギー核分裂でみられる非対称質量分割が主要な成分である。

本研究では、サブバリアーでの重イオン核反応により低励起重アクチノイドを合成し、その核分裂生成物の運動エネルギーならびに質量分布の精密測定から中性子欠損核領域での二重 (多重) モード核分裂過程の実験的検証を目的としている。今回は自発核分裂で得られている非対称質量分布が励起エネルギーとともにどのように変化するかに着目した。

2. 実験 ターゲットには、カーボンフォイル ($10\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚) に蒸着した ^{209}Bi 金属 ($100\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚) を使用した。照射は原研タンデム加速器から得られる $^{35,37}\text{Cl}$ ビームを用いて 172 - 186 MeV のエネルギー範囲で行った。核分裂生成物の運動エネルギーならびに質量数は、図 1 に示すような飛行時間同時測定法により、各々の分裂片の速度から求めた。

v_1 の測定は MCP1 - MCP2

に基づき、また v_2 の測定は MCP1 - PPAC により行った。ここで、MCP はカーボンフォイル ($30\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚) - マイクロチャンネルプレート検出器で、PPAC は x, y 2 次元位置感応型平行板アヴァランシェ検出器である。また分裂片の速度の校正は、 ^{127}I ビームと Ag, In, Sb ターゲットを用いた弾性散乱および反跳生成物の同時測定から行った。

分裂片の速度 v_1, v_2 をそれぞれ

れ重心系に変換し、 v_1^{cm}, v_2^{cm} とすると、分裂片の全運動エネルギー E_{TKE} ならびに分裂片 1 の質量数 M_1 は次のようになる。

$$E_{TKE} = \frac{1}{2} M_f v_1^{cm} v_2^{cm}, \quad (1)$$

$$M_1 = \frac{M_f}{1 + v_1^{cm}/v_2^{cm}}. \quad (2)$$

ここで M_f は核分裂核の質量数である。

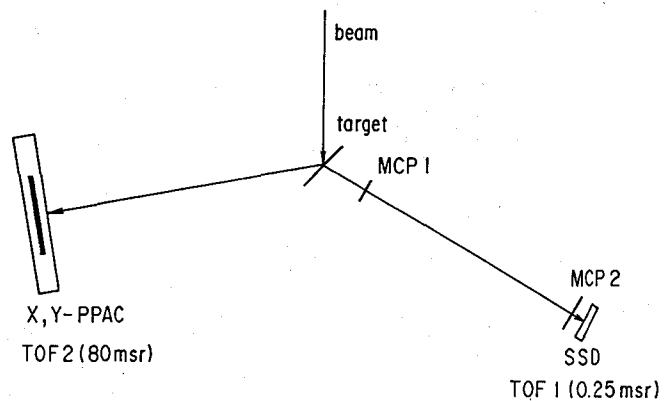


Fig. 1. Experimental setup.

3. 結果と考察 一例として $176 \text{ MeV } ^{35}\text{Cl} + ^{209}\text{Bi}$ 反応系で得られた分裂片の E_{TKE} ならびに質量分布をそれぞれ図 2, 3 に示す。ここでの分裂核（複合核）の励起エネルギー E^* は約 35 MeV である。図から明かなように、両分布ともに対称質量分割の様相を呈しているが、最適の E_{TKE} 値は Viola らの経験式 [2] のそれよりは約 5 MeV ほど小さい値を示していた。講演では、PPAC - PPAC 法による大立体角核分裂片速度同時測定法の紹介と、実験で得たこれら分布の特徴（分布幅、構造、最適値等）を励起エネルギーの関数として議論する。

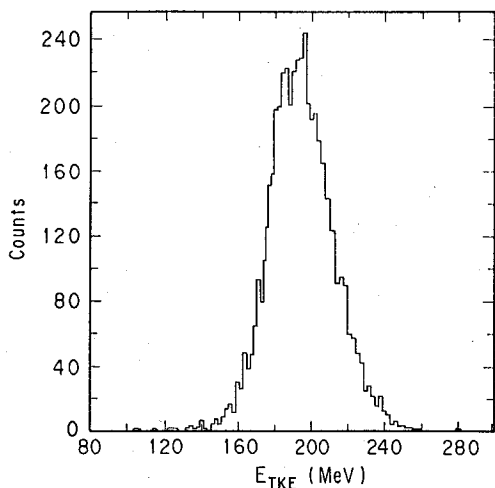


Fig. 2. Total kinetic energy distribution of fission fragments measured for the reaction induced by ^{35}Cl on ^{209}Bi at $E_{lab} = 176 \text{ MeV}$.

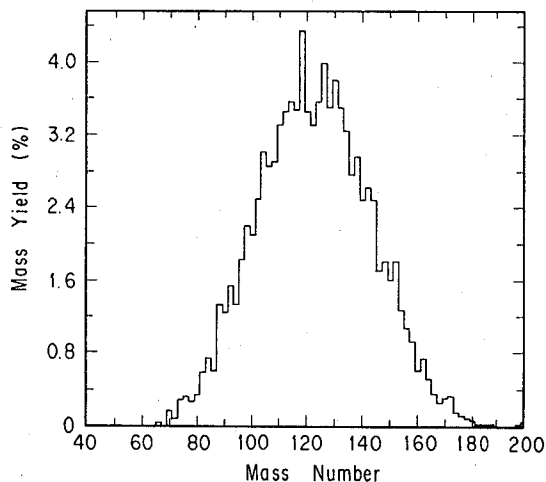


Fig. 3. Mass distribution of fission fragments measured for the reaction induced by ^{35}Cl on ^{209}Bi at $E_{lab} = 176 \text{ MeV}$.

References

- [1]. D.C. Hoffman, Nucl. Phys. **A502**, 21c (1989).
- [2]. V.E. Viola *et al.*, Phys. Rev. C **31**, 1550 (1985).

SUB-BARRIER ENERGY HEAVY ION-INDUCED FISSION IN HEAVY ACTINIDES

Yuichiro NAGAME, Hiroshi IKEZOE, Kazuaki TSUKADA, Yuichi HATSUKAWA, Masaaki MAGARA, Nobuo SHINOHARA, Masumi Oshima, *Japan Atomic Energy Research Institute*
Tutomu OHTSUKI, Reiji SASAKI, Yuka AOKI, Jirota KASAGI, *Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University*

Ichiro NISHINAKA, *Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University*

Fission fragment mass and total kinetic energy distributions have been measured with a double velocity technique for the $^{35,37}\text{Cl}$ induced reactions on ^{209}Bi at sub-barrier energy region. The gross feature of these distributions is nearly symmetric. Systematic analysis on the widths and structures of the mass and total kinetic energy distributions as a function of excitation energy will be discussed in the symposium.

1A12 中間エネルギー重イオン反応における核分裂と核破碎反応の競合

(名大理・愛知医大¹・理研²・阪大理³・東大核研⁴) ○倉知淳史・
谷口勇仁・篠原 厚・古川路明・小島貞男¹・大久保嘉高²・
安部文敏²・竹迫和浩³・横山明彦³・斎藤 直³・馬場 宏³・柴田誠⁴

【はじめに】 重イオン反応では、主として複合核形成を経る低エネルギー反応と核子間衝突による高エネルギー反応の二つの描像が知られている。我々のグループでは中間エネルギー領域におけるこれらの反応機構の遷移について調べるため、放射化学的手法を用い、中間エネルギー重イオンによる核反応の生成物の収率、反跳飛程を多くの反応系について測定している。谷口らは主に軽核における励起エネルギー、運動量移行の限界を議論した¹⁾。本研究では重核をターゲットとして軽核同様に励起エネルギー、運動量移行の限界を探り、さらに核分裂反応断面積に着目し、励起エネルギー、運動量移行と比較してその入射粒子依存性について議論する。

【実験】 10~25mg/cm²の金箔をマイラー膜、カプトン膜またはアルミニウム箔で挟んでターゲットスタックとし、理化学研究所リングサイクロトロンE3bコース落送球照射装置²⁾を用いて¹⁴N (35, 135MeV/u), ¹⁵N (70MeV/u), ⁴⁰Ar (30, 38, 59, 95MeV/u) の照射を行った。照射終了後にそれぞれの箔の γ 線を非破壊法で1~3ヶ月間測定し、生成核種の同定、定量を行った。

【結果および考察】 スタック中の個々の生成核の壊変率より生成断面積を求め、質量収率分布を得た。さらに、スタック中での生成物の分布をもとに平均飛程(FW)の算出およびTwo Step Vector Model³⁾による解析を行ない、生成物への運動量移行を求めた。核分裂生成物は質量数およそ90を中心とした質量分布を示し、ターゲット近辺の質量を持つ核破碎反応生成物と同程度の運動量移行を持つ。質量数160~185の核破碎反応生成物の収率の傾きをFig.1に示す。この傾きは核に与えられる平均励起エネルギーに対応する。傾きは入射エネルギーが約2GeVで飽和に達し、軽核での結果と一致する¹⁾。Fig.2に質量数145~155の核破碎反応生成物への運動量移行の平均値及び核分裂断面積を示す。運動量移行は入射粒子の核子あたりの運動エネルギーの増加とともに減少する。核分裂断面積も同様に減少し、その変化は運動量移行と類似する。また、励起エネルギーが飽和に達する入射エネルギー2GeV以上でも核分裂断面積は減少を続ける。

以上の結果から、核分裂断面積の変化は励起エネルギーよりも運動量移行の変化に起因することが示唆される。これは、入射エネルギーの増大とともに高いスピンを持つ核異性体の生成比が減少するという軽核の反応において得られた角運動量に関する知見¹⁾及び、大きな角運動量を持つ核が核分裂を起こしやすいことから説明できる。また、核分裂生成物がターゲット質量近辺の核破碎反応生成物と同程度の運動量移行を持つのは、高い励起エネルギー及び運動量移行が得られる中心衝突では励起核に与えられる角運動量が小さく、核分裂が起こりにくいためであると考えられる。核分裂は大きな角運動量が得られる周辺衝突によって起こり、小さい励起エネルギー及び運動量移行を持つ。講演では核分裂断面積と核運動量の関係についてより詳細な議論を加える。

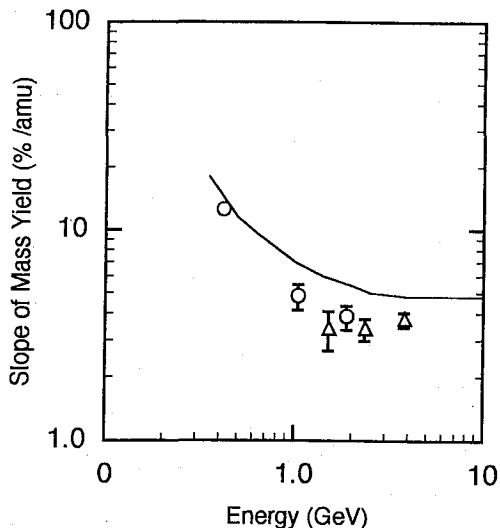


Fig. 1. Dependence of slope of mass yield in the region of spallation products on projectile energy. Symbols indicate incident particles, O: $^{14,15}\text{N}$, Δ : ^{40}Ar , solid line: data from Cumming, et al⁴⁾.

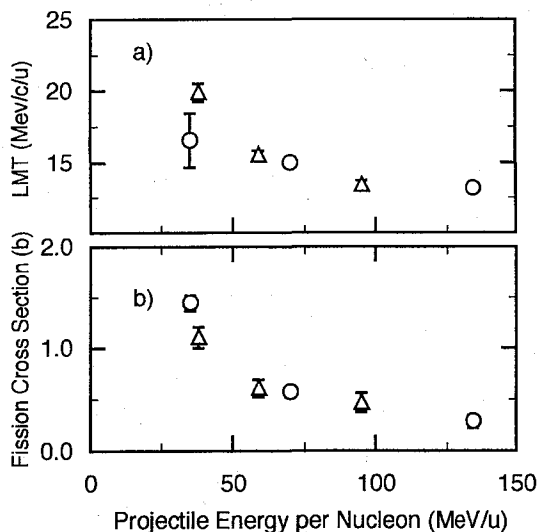


Fig. 2. a) Dependence of linear momentum transfer (LMT) to products on projectile energy, b) dependence of fission cross section on projectile energy. Symbols indicate different incident particles; O: $^{14,15}\text{N}$, Δ : ^{40}Ar .

References

- 1) E. Taniguchi, et al., *Radiochim. Acta*, in press (1993).
- 2) S. Ambe, et al., *Chem. Lett.*, 1991, 149.
- 3) L. Winsberg, *Nucl. Instrum. Methods*, **150**, 465 (1978).
- 4) J. B. Cumming, et al., *Phys. Rev. C*, **17**, 1632 (1978).

COMPETITION BETWEEN FISSION AND SPALLATION IN THE REACTIONS INDUCED BY INTERMEDIATE ENERGY HEAVY IONS

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

Sadao KOJIMA, Radioisotope Research Center, Aichi Medical University

Yoshitaka OHKUBO, Fumitoshi AMBE, The Inst. Phys. Chem. Res. (RIKEN)

Kazuhiro TAKESAKO, Tadashi SAITO, Hiroshi BABA, Faculty of Science, Osaka University

Seiichi SHIBATA, Institute for Nuclear Study, The University of Tokyo

Au targets were irradiated with intermediate energy $^{14,15}\text{N}$, ^{40}Ar ions. The formation cross sections and recoil properties were obtained by means of activation technique. Mass yields and the linear momentum transfer to reaction products were obtained. Fission cross section decreases with increasing projectile energy, and its energy dependence is similar with that of linear momentum transfer. The correlation between the magnitude of fission cross section and the angular momentum imparted to the excited nucleus will be discussed.

(阪大理) 桐生 大・○横山明彦・竹迫和浩・渡辺誠也・高橋成人・
 斎藤 直・馬場 宏
 (理研) 大久保嘉高

100MeV/u以下のエネルギー領域において重イオン反応に特徴的な反応には、多量の質量移行を伴う非平衡反応があり、一般に深部非弾性質量移行反応(DIT)などと呼ばれている。この反応の様相は、複合系を二重原子核系の生成とその崩壊として扱う近似と複合系が存在する間におこる核子の拡散過程によって古典的に記述され¹⁾、実験結果と比較されてきた。しかしその計算結果は反応時間(つまり複合系の寿命)に大きく依存しており、またその理論的推定は容易ではない。一方、Agarwal²⁾は反応生成物の角度分布の実験値から、この反応時間が入口チャネルの質量非対称度と密接な依存性があることを指摘している。本研究では、Lu+C系とV+Xe系という近い質量の複合系を持ち、かつ入口チャネルの質量非対称度の異なる二反応を用いて、DITの質量分布を測定し、その結果と文献値³⁾から、拡散モデル¹⁾に基づく反応時間を求め、その入口チャネルの質量非対称度に対する系統性を調べた。

実験の概要について次に述べる。照射は、まず理研リングサイクロトロンからの¹³⁶Xeビーム(ターゲット中心で7.1MeV/u)を用いて⁵¹V箔(8.47mg/cm²)に対して行った。また阪大核物理研究センター(RCNP)AVFサイクロトロンからの¹²Cビーム(9.2MeV/u)を用い、¹⁷⁵Lu箔(3.95mg/cm²)に照射した。生成物の同定定量はγ線スペクトロメトリを用いた。理研での実験については以前の放射化学討論会⁴⁾で報告しており、またRCNPにおける実験も同様の手法を用いているので、詳細については述べない。

実験結果の一例として¹⁷⁵Lu+¹²C系の質量分布をFig.1に示した。この系については複合核を経由したと思われる蒸発残留核(ER)とDITによる生成物が重なっている。そこでガウス分布を仮定して二つの成分を分離した。拡散モデルの考え方に従い、また複合核の角運動量依存性を無視すれば、質量分布の幅(σ_{DIT})は $\sigma_{DIT}^2 = 2D_A\tau_{ap}$ という式で、モデル計算による拡散係数(D_A)、反応時間(τ_{ap})に関係付けられる。この式を使い、本研究の実験結果および文献値より求めた反応時間を、質量非対称度に対してFig.2に示した。図から、非対称度が非常に大きい場合を除いて反応時間はほぼ一定となり、Agarwalの系統性(図中の直線)とは異なる様相を示した。後者が入射粒子類似核の角度分布から求めた真の反応時間を表わしているのに対して、前者は見かけ上大きな反応時間を与えると考えられる。この見かけの反応時間は、二核間の質量移行と質量分散という2つの事象の相乗効果を反映すると解釈される。

References

- 1) S. B. Ayik and W. Noerenberg, Z. Phys. A277 (1976) 299; S. Ayik and G. Wolschin, Z. Phys. A279 (1976) 145; G. Wolschin and W. Noerenberg, Z. Phys. A284 (1978) 209.
- 2) S. Agarwal, Z. Phys. A297 (1980) 41.

- 3) J. V. Kratz et al., Phys. Rev. **C13** (1976) 2347; J. V. Kratz et al., Phys. Rev. Lett. **33** (1979) 502; R. J. Otto et al., Phys. Rev. Lett. **36** (1976) 135; H. Kusawake et al., to be published.
- 4) 渡辺ら、第36回放射化学討論会講演予稿集 1A10 (1992).

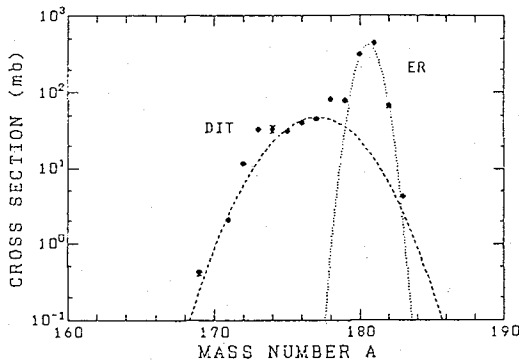


Fig. 1. Mass distribution of the $^{175}\text{Lu} + 9.2\text{MeV/u } ^{12}\text{C}$ system. The lines show the result of a fit with two Gaussians for separation of contributions of the deep inelastic reaction products (DIT) and the evaporation residues (ER).

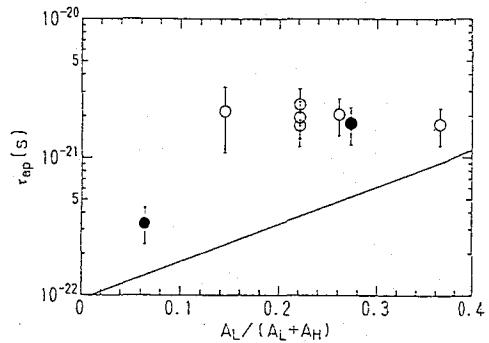


Fig. 2. Reaction time of deep inelastic process versus mass asymmetry at entrance channel. Closed and open circles represent data from the present study and those from references³⁾, respectively. Solid line is the mass asymmetry dependence deduced by Agarwal.²⁾

DEPENDENCE OF MASS TRANSFER IN THE HEAVY ION REACTION ON THE MASS ASYMMETRY AT ENTRANCE CHANNEL

Masaru KIRIU, Akihiko YOKOYAMA, Kazuhiro TAKESAKO, Seiya Watanabe, Naruto TAKAHASHI, Tadashi SAITO, Hiroshi BABA,

Faculty of Science, Osaka University

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

Deep inelastic reaction is an important process in the heavy-ion-induced reaction especially for the energy region below 100MeV/u. The features of the process are explained by the model of formation and disintegration of a dinuclear system. The results of calculation for the process is, however, very much affected by reaction time, namely, life time of the dinuclear system. We measured the mass distribution of ^{175}Lu with 9.2MeV/u ^{12}C ions and that of ^{51}V with 7.1MeV/u ^{136}Xe . The results were subjected to the analysis based on a diffusion model as the one applied to the other data with different mass asymmetries at the entrance channel and a systematics of the reaction time is deduced.

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

【はじめに】

入射粒子と原子核との反応は、入射粒子のエネルギーが数百 MeV以上になると核破碎反応が主となり多種多様な核種が生成する。また、生成核種の断面積は、数 GeV以上で入射エネルギーに依存しないことが知られている。これまで核破碎反応による残留核の生成断面積は、陽子について数百MeVから 800GeVまでのエネルギーの範囲で測定されているが、断片的なデータがほとんどで系統的に生成核種の断面積を測定したデータは少ない。重陽子についての生成断面積のデータは、非常に少ないのが現状である。

高エネルギー加速器施設ではビーム損失によって加速器構造体や周辺機器内に様々な核種の残留放射能が生成する。これらの放射化に伴い加速器保守作業等による被曝などの問題が生じている。

本研究では、高エネルギー加速器施設の重陽子加速に伴う残留放射能への影響を調べるため、高エネルギー重陽子 (2~10GeV) を銀標的に照射し、核破碎反応で生成した核種の断面積を求めた。本講演では重陽子によって生成した核種の生成断面積を他の重陽子の実験結果 [1] 及び陽子や ^{12}C , ^{16}O イオンによる実験結果 [2, 3] と比較、検討を行う。

【実験】

高エネルギー物理学研究所 (KEK) の12GeV陽子シンクロトロンから取り出された重陽子ビームを用いてAlからPbまでの17種類の金属標的を東カウンターホールの取り出しライン (EP2) 上の2カ所に分け、原子番号の小さいものを上流側にして照射を行った。標的の厚さは7~100mg/cm²である。

重陽子のエネルギーは2, 4, 7, 8, 10GeVであった。照射した重陽子数はそれぞれ0.45, 0.3, 1.2, 1.83, 1.56x 10¹⁴ (照射時間、75, 35, 11, 16, 31分) で、これはAlの放射化による $^{27}\text{Al}(\text{d}, 3\text{p}2\text{n})^{24}\text{Na}$ 反応の断面積を用いて求めた。ここでの断面積として7.3GeVの14.7±1.2mb [1], 2.33GeVの15.25±1.5mb [4]の平均値である15mbを用いた。照射中のビーム強度はSEC (二次電子チェンバー) でモニターし、その変動は僅かであった。

【結果と考察】

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

得られた断面積の入射エネルギー依存性を代表的な核種について図に示す。比較のため4, 5, 12, 300GeV陽子による結果も示す。標的核に近い核種 (^{105}Ag , ^{103}Ru) は、入射エネルギー2~10GeVにおいて断面積の変化が少く、標的核の質量数から離れた核種 (^{46}Sc , ^{56}Co) では、2GeVと4GeVの断面積とに明かな違いがある。重陽子のエネルギーが4GeV以上では断面積はほぼ一定となるが、生成核種の質量数によって断面積の一定となるエネルギーが異なることがわかる。

重陽子10GeVの結果と12GeV陽子における生成断面積との比の平均した値は約1.6であった。この比は、Ag標的核での重陽子と陽子の全反応断面積の比である1.5に近い。[5,6]

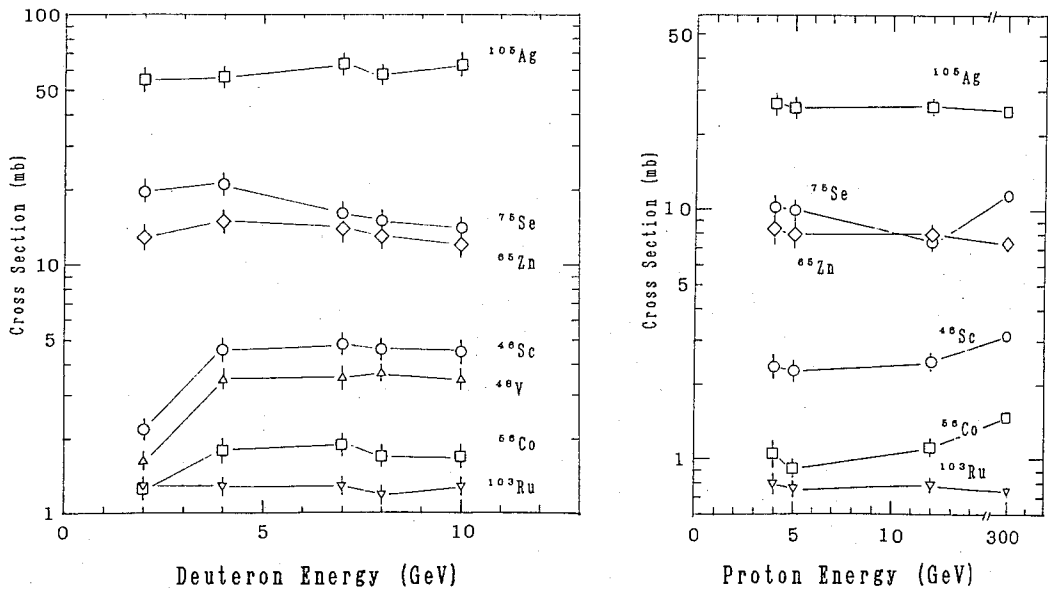


Fig. Cross sections of several isotopes produced in the reaction of GeV deuterons and protons with Ag. Data at 300GeV protons are from Ref. 2.

References

- [1] Ts. Damdinsuren et al., Sov. J. Nucl. Phys. 52, 209 (1990).
- [2] N. T. Porile, G. D. Cole and C. R. Rudy, Phys. Rev. C19, 2288 (1979).
- [3] M. Bronikowski and N. T. Porile, Phys. Rev. C44, 1661 (1991).
- [4] J. Banaigs et al., Nucl. Instrum. Methods, 95, 307 (1971).
- [5] R. Silberberg and C. H. Tsao, Phys. Rep. 191, 351 (1990)
- [6] J. Jaros et al., Phys. Rev. C18, 2273 (1978).

NUCLEAR REACTIONS OF HIGH ENERGY DEUTERONS WITH SILVER TARGET
 Masaharu NUMAJIRI, Taichi MIURA, Yuichi OKI, Takenori SUZUKI,
 Kenjiro KONDO, Kazuhiro TANAKA, Masaharu IEIRI, Hiroyuki NOUMI,
 Yutaka YAMANOI and Minoru TAKASAKI
 National Laboratory for High Energy Physics

Formation cross sections of product nuclides in the nuclear reactions of silver target with 2, 4, 7, 8, 10 GeV deuterons were measured using a γ -ray spectroscopy. The measured data were compared with the cross sections of 12 GeV protons.

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

【はじめに】 これ迄、光子および陽子による核破碎反応の質量収率曲線を比較し、その反応機構の相違について議論してきた。そして、その一環としてフラグメンテーション(質量数30位までの軽い核の放出過程)による生成核についても実験を行い、12GeV陽子照射によりAl、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Ag、Auターゲット中に生成した¹⁰Be、²⁶Alの加速器質量分析法による測定結果を報告した。¹⁾ その結果と⁷Be、²⁴Na、²²Naの文献報告値を用いて、Campi et al. が提案した式²⁾を使って解析した結果、その生成機構について興味ある知見が得られたので報告する。

【解析・考察】 図1に12GeV陽子による¹⁰Be、²⁶Alの生成断面積(σ)をターゲット質量(A)の関数として示す。Dittrich et al.³⁾によれば、このプロットにおける直線の傾きが負の場合はスポーレーションによる生成の寄与が大きく、傾きが正の場合フラグメンテーションの寄与が大きい。従って、図1における¹⁰Beの生成にはフラグメンテーション過程の寄与が大きく、²⁶Alに対しては傾きが負のところではスポーレーションの寄与が大きく、AgからAuにかけてフラグメンテーションの寄与が増えていることが定性的に判断できる。この議論を定量的なものとするために、次に示す Campi et al. の式を用いて実験データの解析を行った。

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

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

解析結果を図2に示す。図中の実線は(1)式による予想値である。図2(a)の¹⁰Beおよび²⁴Naでは実験値と予想値とは良く一致した。そこで、¹⁰Be、²⁴Naに対し全収率(σ_t)に対するフラグメンテーション収率(σ_f)の割合を(1)式を用いて求めると、¹⁰Beの場合Fe-Znターゲットでは $\sigma_f/\sigma_t = 80\text{-}85\%$ 、Agでは96%、Auでは99%となった。また、²⁴Naの場合Fe-Znターゲットでは15%、Agでは65%、Auでは93%となった。この結果から、この照射エネルギー領域では、¹⁰Beのほとんどがフラグメンテーション過程により生成し、また²⁴Naの生成はターゲット質量が増す程フラグメンテーション過程の寄与が大きくなり、Auでは大部分がフラグメンテーション過程により生成することがわかった。この結果は、図1のプロットにおける直線の傾きから推定した議論とも一致する。一方、²⁶Alでは(図2(b))、Ag、Auターゲットに関し実験値の方が(1)式からの予想値よりかなり低いことがわかった。また、⁷Be、²²Naの場合も²⁶Alと同様に実験値の方が(1)式による予想値よりも低かった。なぜ¹⁰Be、²⁴Naと²⁶Al、⁷Be、²²Naとでこのような相違が生じるのかは非常に興味深いのが、生成核に対し中性子過剰パラメータ((N-Z)/A)を新たに定義すると、このパラメータが正の場合(1)式と一致し、負または零の場合は一致しないことがわかった。討論会ではフ

ラグメンテーション過程との関連でこの相違について議論する予定である。

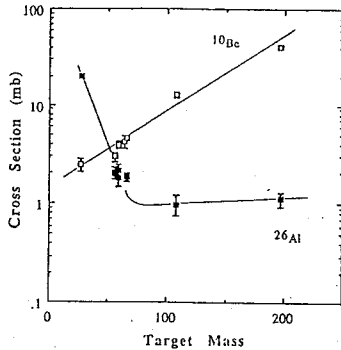


Fig. 1. Cross sections of ^{10}Be and ^{26}Al produced by 12 GeV protons as a function of target mass number.

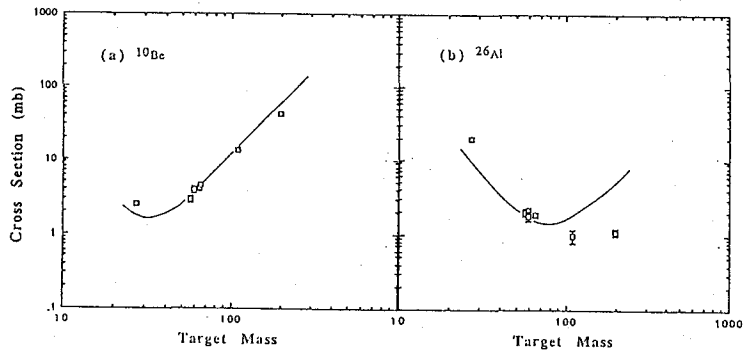


Fig. 2. Target mass dependence of cross sections for the formations of (a) ^{10}Be and (b) ^{26}Al at $E_p = 12$ GeV.

Open squares are experimental cross sections obtained in this work. The solid curves are predictions estimated by the formula of Campi et al.

【文献】 1) 柴田ら、第34回放射化学討論会(東京)1990年10月;第35回放射化学討論会(大阪)1991年11月 2) X. Campi et al., Phys. Lett. **138B**, 353 (1984) 3) B. Dittrich et al., Radiochim. Acta **50**, 11 (1990); Nucl. Instr. Meth. **B52**, 588 (1990)

DISCUSSION ON FRAGMENTATION PROCESS IN HIGH-ENERGY NUCLEAR REACTION

Seiichi SHIBATA, Mineo IMAMURA, Institute for Nuclear Study, University of Tokyo

Hisao NAGAI, College of Humanities and Sciences, Nihon University

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

Koh SAKAMOTO, Faculty of Science, Kanazawa University

Michiaki FURUKAWA, Faculty of Science, Nagoya University

Ichiro FUJIWARA, School of Economics, Otomon-gakuin University

The formation cross sections of ^{10}Be and ^{26}Al from Al, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ag and Au targets irradiated with 12 GeV protons were measured by accelerator mass spectrometry. The ^{10}Be cross sections increased with an increment in the target mass, while the ^{26}Al ones decreased from Al to Ag targets but increased somewhat from Ag to Au. The formation mechanisms of ^{10}Be and ^{26}Al including ^7Be , ^{22}Na and ^{24}Na are discussed in the comparison with the calculated values using the formula of Campi et al.

2A04

光 π^{\pm} 放出核反応の系統性—標的核質量非依存性

(金沢大理・東京大核研¹・追手門学院大経²・名古屋大理³)

○大浦泰嗣・S.R.サーカー・坂本浩・柴田誠一¹・藤原一郎²・古川路明³

140MeVを越えるエネルギーの光子が原子核に入射すると、個々の核子と相互作用しそれを励起し、 Δ アイソバーを生成する。これは直ちに π 中間子と核子に壊変する。 $(\gamma p \rightarrow \Delta^+ \rightarrow \pi^+ n, \gamma p \rightarrow \Delta^+ \rightarrow \pi^0 p, \gamma n \rightarrow \Delta^0 \rightarrow \pi^+ p, \gamma n \rightarrow \Delta^0 \rightarrow \pi^0 n)$ 。この π 中間子と核子があるまま核外へ放出される過程や核内でのカスケード—蒸発過程を経て種々の残留核が生成する。これらの残留核や放出粒子を調べることで、核内核子の情報を引き出すことが期待できる。我々のグループは、放射化学的手法を用いてこの残留核の生成収率を測定している。今回は、これまでに得た $(\gamma, \pi xn)$ 、 (γ, π^+) 反応の生成収率をまとめ、その系統性について報告する。

これまでにLiからBiまでの23元素を標的に選び、東北大核理研電子LINAC及び東大核研電子シンクロトロンで最大制動放射線エネルギー(E_0) 50-1050MeVで照射した。照射後、適宜化学分離を行い γ 線を測定し生成収率 $Y(E_0)$ を求めた。Q値以下のエネルギーでの収率を基に二次粒子反応による寄与の補正を行った¹⁾。また、PICAコード²⁾による生成収率の計算も行った。

Fig.1に中性子放出を伴わない (γ, π) 、 (γ, π^+) 反応の $E_0=800$ MeVでの収率、 $Y(800)$ を標的核の質量数(A)に対してプロットした。 (γ, π) の収率は (γ, π^+) の収率よりも全質量域にわたり5倍ほど大きい。そして、 (γ, π) 、 (γ, π^+) ともにその収率は A_1 にも、また標的核の中性子数と陽子数の比にも依存せず、その収率比は約5である。PICAによる計算結果も標的核質量非依存性を示すが、収率比は標的核の中性子数と陽子数の比に近い約1.5を示し、実験値と比べて $Y(\pi)$ は1/2、 $Y(\pi^+)$ は1.5倍となる。これは β^{\pm} 放出と同じくクーロンポテンシャルの効果で π のスペクトルは低エネルギーにずれるものの核からでるときは位相空間は大きく感じられるために確率が高くなるのかもしれないし、核内の中性子と陽子の分布の非一様性(中性子が核表面に多い)を示しているのかもしれない。そうすると、 π^+ はより深部で作られるから放出確率は低くなるであろう。

Fig.2に $E_0=800$ MeVでの中性子放出を伴う π 放出反応収率を A_1 に対してプロットした。放出中性子数(x)の等しいものと同じ記号で示し実線で近似した。この場合は、 (γ, π) 、 (γ, π^+) の時と大きく様子が異なる。放出中性子数xが同じ反応で見ると、はじめは A_1 の増加と共に収率は急増する。その増加率は放出中性子数xが多いほど大きいが、xの大きい反応は A_1 の大きい場合でしか見られない。 A_1 が150を越えると逆に収率は若干減少するが、 E_0 が低いとこの傾向はより顕著になる。各標的において内外挿値を入れて $x=0-9$ (8は除く)の収率の和をとり×印(実線と点線)で示した。 $A_1 \leq 30-40$ までは (γ, π) のみが寄与する(点線部)が中性子放出が始まると $A_1=150$ あたりまで直線的に増加し、その後ほぼ一定(実線部)となってシグモイド型となる。 $A_1=150$ までの直線の傾きは2である。これは、全 π 放出反応は体積反応に近いことを示している。PICAによる全 π 放出反応の計算値(ただし $E_0=400$ MeV)を○(実線)で示した。 $A_1 > 40$ で我々の測定値とよく一致する。最近Arends³⁾らは、標識光子により $\theta_{lab}=52^\circ$ で微分断面積を測定し、全 π 放出反応断面積、全 π^+ 放出反応断面積ともに $A_1^{0.6}$ に比例する(表面反応)と報告している。Fig.2に傾き0.6を破線で示した。これは我々が得た結果と大きく異なる。ところが我々の測定値の $x=0-2$ の和をとる(Fig.2に+印で示した)と $90 < A_1 < 200$ で非常によく一致する。Arendsらは π の検出にシンチレーションカウンターを用いており40MeVに検出のしきい値がある。そのためしきい値以下はPIKIコード(内容はPICAと似ている)の計算で補っている。一方我々の測定方法にはしきい値は存在しない。これが我々の結果と異なる原因と考えられる。 $x=3-9$ の反応において放出される π は40MeV以下の部分がか

なり大きくなることが推察される。

References

- 1) K.Sakamoto et al., Nucl.Phys.A501,693(1989); Phys.Rev.C42,1545(1990); 第29-33,35回放射化学討論会 など
- 2) T.A.Gabriel et al., ORNL-4687 (1971).
- 3) J.Arends et al., Nucl.Phys.A526, 479-494 (1991).

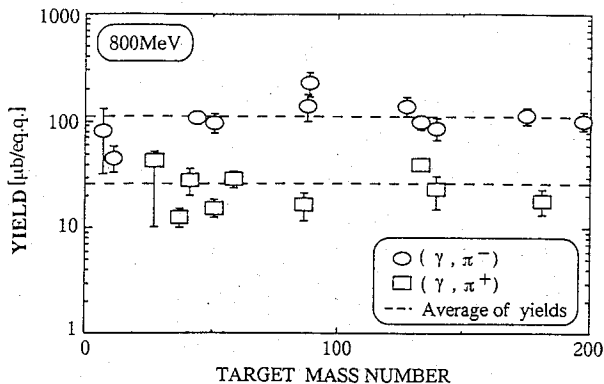


Fig. 1. (γ, π) and (γ, π^+) reaction yields at $E_0=800\text{MeV}$ as a function of the target mass number.

--- Averaged $Y(\gamma, \pi)$ and $Y(\gamma, \pi^+)$

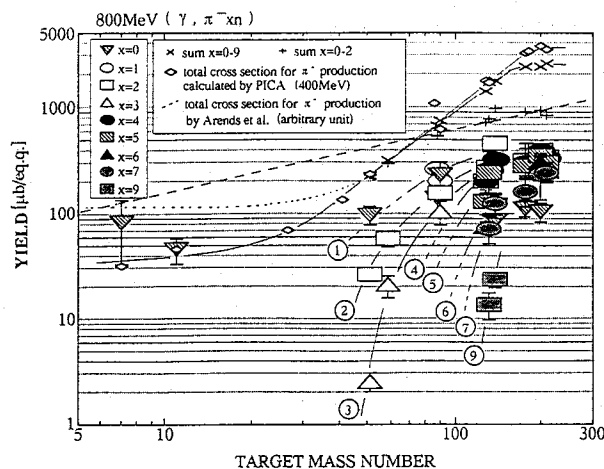


Fig. 2. $(\gamma, \pi^n x_n)$ reaction yields at $E_0=800\text{MeV}$ as a function of the target mass number. The numbers in the circles are numbers of emitted neutrons (x).

— x — x — Sum of yields from $x=0-9$
 —◇—◇— Sum of yields calculated by PICA
 —+—+— Sum of yields from $x=0-2$
 - - - - Total σ by Arends et al, normalized to
 —+—+—

THE SYSTEMATICS OF PHOTONUCLEAR REACTION - INDEPENDENCE ON TARGET MASS.

Yasuji OURA, Samir Ranjan SARKAR, Koh SAKAMOTO, Faculty of Science, Kanazawa University

Seiichi SHIBATA, Institute of Nuclear Study, University of Tokyo

Ichirou FUJIWARA, School of Economics, Otemongakuin University

Michiaki FURUKAWA, Faculty of Science, Nagoya University

The several new features of photopion reactions are reported: 1) For (γ, π) and (γ, π^+) reaction, both yields are independent of A_t with $\sigma(\gamma, \pi)/\sigma(\gamma, \pi^+) \sim 5$. 2) For $(\gamma, \pi^n x_n)$ of $x \geq 1$, the yields of the $(\gamma, \pi^n x_n)$ reactions increase with increase of A_t from 30-40 to 150, and decrease slightly at $A_t > 150$. The reactions with larger x occur in heavier targets. 3) Total $(\gamma, \pi^n x_n)$ reaction yield for $x=0$ to 9 is sigmoidal with respect to A_t , inconsistent with the recent work reported by Arends et al³⁾. 4) PICA code approximates the observations qualitatively, and requires some modifications especially for π^\pm emission mechanism.

(東大核研¹、高崎原研²、東北大サイクロTRセ³、岡山大地球内部研究セ⁴)○今村峯雄¹、柴田誠一¹、上叢義朋¹、佐藤信吾¹、田中進²中村尚司³、長尾敬介⁴

【はじめに】

高エネルギー中性子による核反応は、高エネルギー粒子が厚いターゲットに入射した時に起こる核種生成反応の主反応として重要である。しかしながら20MeV以上での中性子誘起核反応の研究は実験上の制約から非常に限られたものとなっている。我々は宇宙線による核種生成や放射線施設での漏洩放射線による放射化などの研究のため高エネルギー中性子による核種生成断面積の測定を行ってきた。核研ではSFサイクロトロンにp-Be、p-Li準単色中性子コースが設置されており、15-38MeVの中性子照射が可能である^{1,2)}。最近原研高崎研究所サイクロトロン施設のp-Li準単色中性子照射設備³⁾が利用可能になり、中性子エネルギー65MeVまでの実験が可能になった(将来は90MeVまで利用可能予定)。

高崎原研の準単色中性子照射設備の概要と最近の断面積測定実験の予備結果を報告し、東大核研での同様な反応系での実験結果と比較検討する。また最近中性子によるマグネシウム、アルミニウムからのネオン同位体の生成断面積を測定したので併せて報告する。

【実験装置および方法】

原研高崎研究所AVFサイクロトロンの単色中性子発生装置は昨年9月より利用可能になった。設備はFigに示す構成である。リチウムターゲットは水冷却されたホルダーに数枚セットされている。その厚みは陽子のエネルギー損失が2MeVになるよう、陽子のエネルギーに応じて選択する。この設備ではリチウムを通過した陽子ビームは直後のclearing magnetによって、直進する中性子ビームから分離される(ちなみに東大核研の設備ではリチウムターゲットの直後に炭素のビームストッパーを置くことによって陽子ビームをカットしている)。中性子ビームは遮蔽壁に設けられた10cm径のコリメータを通して実験室に導かれる。

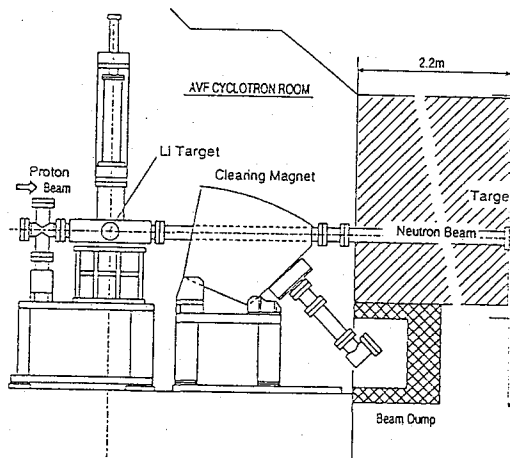


Fig. p-Li semi-monoenergetic neutron source at JAERI-Takasaki

使用時以外は遮蔽壁内のrotary shutterによって遮断される。放射化用ターゲット試料はリチウムターゲットからは4mの距離になる(東大核研では10-20cm)。このため同じ厚みのリチウムターゲットを用いた場合中性子束は東大核研の約千分の一で $n \times 10^4 \text{ n/cm}^2/\text{sec}/\mu\text{A}$ という低い値である。照射野が10cm ϕ と広いことを利用し、大きなターゲットサイズ(33x33x2mm、数g-数十g)、長時間照射により中性子束の低さを補う必要がある。これまでに中性子エネルギー(平均)、41および65 MeVでの照射実験を行な

った。試料照射後、高崎原研の測定室に設置のゲルマニウム半導体検出器（相対効率36%、なお一部の試料は東大核研で測定）で γ 線放出核種の測定を行ない、それぞれの生成量の定量を行なった。長時間照射の場合、他の中性子実験と抱き合わせで行なうことが多く、データの解析に必要となるビームのオン・オフの時間、ビーム強度の値は、一分ごとの積算電流値を読み込んで記録した。

【結果ほか】

これまでターゲットとして炭素、窒素、酸素、ナトリウム、マグネシウム、アルミニウム、シリコン、カリウム、カルシウム、クロム、鉄、ニッケル、銅に至る代表的な十数種の元素を照射した。これは宇宙線による核種生成や放射線施設での放射化を考える場合の主なターゲットをカバーしている。 γ 線放出核種の測定のほか、 γ 線を放出しない核種で重要な ^3H 、 ^{55}Fe 、 ^{63}Ni などの生成断面積も化学分離を行なって測定したいと考えている。加速器質量分析による長寿命核種の測定、ヘリウム・ネオンなどの希ガス核種の測定も計画している。

p-Li準単色中性子源は、単色を示すピーク成分のほかに残留核の励起や多粒子放出に伴う低エネルギー中性子成分が含まれている。このため核種の生成断面積の解析は非常に複雑である。それぞれの照射における中性子スペクトルが知られている必要があり、かつ低エネルギー成分に対応する断面積のデータが存在しなければならない。今回の実験では41と65 MeVの間のデータが存在しないため65 MeVでの断面積は特殊な場合を除いて計算できない。

安定な生成核種のうち希ガスはターゲット中に不純物として含まれる量が非常に少なくかなり微量の生成量でも高感度の質量分析装置（岡山大学地球内部研究センター）によって検出可能である。我々はマグネシウム、アルミニウムターゲット中に生成した 10^6 - 10^7 個の ^{21}Ne 、 ^{22}Ne の測定を行なって生成断面積を求め、15-38MeVでの励起関数を得た。

【文献】

1) 佐藤ら、第31回放射化学討論会、1A08(1988); 2) 今村ら、第32回放射化学討論会、1A15(1989); 3) S.Tanaka et al., Proc. 2nd Int. Symp. on Advanced Nuclear Energy Research-Evolution by Accelerators -, Mito, (1990)p.342

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

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

Susumu TANAKA, Takasaki Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute

Takashi NAKAMURA, Cyclotron and Radioisotope Center, Tohoku University

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

Neutron-induced cross sections have been measured on the production of long-lived radionuclides and rare gases using the p-Li and p-Be semi-monoenergetic neutron sources in INS and JAERI-Takasaki. We report on the p-Li neutron source installed recently at JAERI-Takasaki, where neutrons with energies up to 65 MeV are available at present, as well as our recent results on cross section measurements.

【はじめに】

重アクチノイド及び超アクチノイド元素は、ほとんど全て短寿命核種であり、扱える量も極めて少量である。本研究はこれらの元素の化学的性質を調べる方法の開発のため、気相における迅速化学分離法としての熱クロマトグラフ法を検討した。

アクチノイド元素及び超アクチノイド元素はランタノイド及びそれに続く元素と化学的性質が類似していると予想されるため、本研究では ^{252}Cf の自発核分裂片で生成する放射性ランタノイド核種を用いた。これまでに酸化物やハロゲン化物による分離が報告されてきたが、より選択性があり、低温で分離を行えるように、錯形成試薬として β -ジケトンであるDPMを用いた。DPMは希土類元素と錯形成を行い易く、また、形成された錯体は揮発性が有るため熱クロマトグラフ法に用いる錯形成試薬として用い、錯体としての分離の可能性を検討したので報告する。

【実験】

本研究に用いた分離装置をFig.1に示す。図において1)核分裂片生成のための ^{252}Cf 線源の入ったチャンパー部分、2)核分裂片と錯形成を行わせるためのDPMエアロゾル発生部、3)核分裂片とDPMが錯形成を行う反応部、4)キャリアーガス(N_2)供給部分、5)錯体を分離するカラム、6)カラム内に沈着しないで運ばれる錯体やDPMを補集する活性炭フィルター、7)温度制御装置により構成される。

パソコンを用い、自動温度制御によりカラムに $-4^\circ\text{C}/\text{cm}$ の逆温度勾配をかけ、キャリアーガスを流し5分間ウォーミングアップを行うことにより反応部の温度とカラムの温度勾配が一定となるようにする。その後、チャンパー内に ^{252}Cf 線源をセットした。DPM側の N_2 ガス流量はキャリアーガスとは別系統で調整した。今回は短寿命核種を対象としたので分離時間を600秒とした。分離後カラムの各位置の放射能を測定した。核種の同定・定量はGe(Li)半導体検出器による γ 線スペクトロメトリーで行った。1回の分離でカラムの一部分(10cm)を測定し、次の分離でカラムの別の部分を測定し、同じ位置のデータを積算して核種の同定を行った。なお、各分離後、カラムの内壁を希硝酸で洗い、水洗、メタノール洗浄を行い乾燥させた。カラム内に残留放射能が無いことを確認し、次の分離に用いた。

【結果と考察】

逆温度勾配をかけたカラムにキャリアーガスによって運ばれたDPM錯体は、その凝集温度の違いによりカラムの異なった場所に沈着することになる。これにより、ランタ

ニド元素間の分離が可能になる。

まず初めに、キャリアーガスの流量の変化に伴いチャンバーからの排出される核分裂生成物の排出量の検討を行った。窒素流量0.5l/min,1.0l/min,1.5l/minと変化させ、チャンバーの出口で活性炭による補集を行い、直接捕集のデータと比較を行うと、窒素流量は1.0 l/minが最も良い条件と分かった。さらに、チャンバー中における²⁵²Cf線源の位置による排出核種量の検討を行ったところ、核分裂片の飛程とほぼ等しいチャンバーの出口から約4cmの位置が適当であると分かった。エアロゾルによる核分裂生成物の輸送状況を調べるため、キャリアーガスのみの場合とDPMエアロゾルを加えた状態で、排出核種量を反応部直後の部分及びカラムの終端部で活性炭による補集を行うことにより検討した。カラム内での錯体の挙動については現在解析中であるので合わせて報告する。

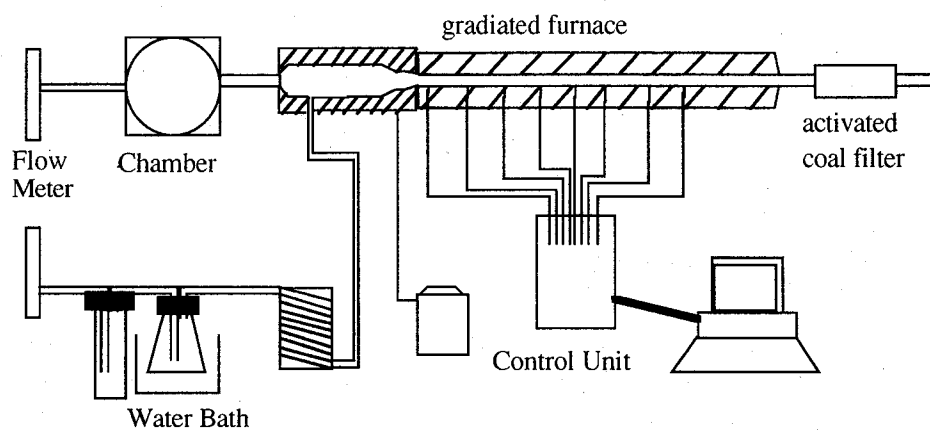


Fig.1 Scheme of installation for the synthesis and thermochromatography of volatile β -diketonates

参考文献

- 1) E.V.Fedoseev et al.,J.Radioanal.Nucl.Chem. 119,5,347-354 (1987)

STUDY OF FAST GAS PHASE CHEMICAL SEPARATION TECHNIQUE
Yasutake FURUKOSHI, Keiko TAMURA, Hisaaki KUDO, Tetsuo HASHIMOTO
Faculty of Science, Niigata University

The application of volatile β -diketonates for separation of short life nuclides were investigated by using of thermochromatography. As a volatile β -diketonate complex, dipivaloylmethanate of lanthanides, were used. The nuclides of lanthanides were produced in the spontaneous fission of ²⁵²Cf.

(原研, 名大工*) ○関根俊明, 長明彦, 小泉光生, 市川進一,
河出清*, 山本洋*, 浅井雅人*

はじめに

演者らはこれまで原研東海のタンデム加速器に接続した ISOL (オンライン同位体分離器) を用いて、La, Ce 等の中性子欠損核種について核分光学的研究を行い、原子核変形について興味ある結果を得た¹⁾。このような研究を更に不安定で、より変形した原子核について進めるために、原研高崎に建設されたイオン照射研究施設 TIARA に ISOL を設置した。TIARA-ISOL は ECR イオン源を備えた AVF サイクロトロンに接続されており、東海研 ISOL とは異なるビームが利用できる。また、核分光実験では、テープによる質量分離ビーム収集・輸送装置と γ - γ 角度相関測定装置を組み合わせることにより、 γ 遷移の多重極度を決定できるようになった。

AVF サイクロトロンで ^{36}Ar ビームが加速可能になったので、TIARA-ISOL では Mo ターゲットとの反応で生成する Pr アイソトープの研究を主に進める予定である。最初の実験として、半減期などアイソトープとしての特性が全く知られていない ^{127}Pr を探索したので報告する。

実験

原研高崎 TIARA (イオン照射研究施設) の AVF サイクロトロンでは、195 MeV の $^{36}\text{Ar}^{8+}$ イオンビームを 1.2 e μ A の強度で加速できる。このビームを真空遮断用のハーバー箔 (1.8 mg/cm²) を通過させてから厚さ 3 mg/cm² の ^{94}Mo 濃縮金属箔 (濃縮度: 93.9%) に照射した。ハーバー箔でのエネルギー損失のため、ターゲット表面でのビームエネルギーは 177 MeV と見積もられる。核反応生成物は表面電離型イオン源でイオン化し、質量分離した後、テープ上に一定時間補集して放射線検出器位置に移動させた。一連の操作はコンピューターで制御し、補集と測定は平行して行った。なお、予備的な実験から ^{127}Pr 半減期として 10 \pm 5 s を得ていたため、補集時間は 2 半減期に相当する 20 s とした。

放射線測定には、 β 線検出用のプラスチックシンチレーター、LEPS 及び γ X 検出器を用いた。LEPS と γ X 検出器の同時計数事象はリストモードで記録し、LEPS の出力はスペクトルマルチスケーリングにより 16 個の 4k チャンネルのスペクトルを得た。また、LEPS について、プラスチックシンチレーター検出器と同時計数した事象のエネルギースペクトルを測定した。データは全て光磁気デスクに記録した。

我々は、表面電離型イオン源において希土類元素は酸化物イオンを形成するが、Ba, Cs は全く酸化物イオンを形成しないことを以前報告した²⁾。今回は酸化物イオンと単体イオンの両方について実験したが、後で述べる理由により主に酸化物イオンについて測定した。

結果と考察

酸化物イオンと単体イオンについて得られた γ 線スペクトルを図 1 に示す。大部分のピークは ^{127}Ce , ^{127}La , ^{127}Ba 及び ^{127}Cs に帰属できたが、図中にエネルギー値を記した新しい γ 線と ^{127}Pr の β^+ 崩壊に伴うはずの Ce の特性 X 線を見いだした。しかし、Ce の K_{α} X 線の観測は単体イオンのスペクトルでは Ba の K_{β} X 線によって妨害されることが分かり、前述の様に測定は主に酸化物イオンについて行った。

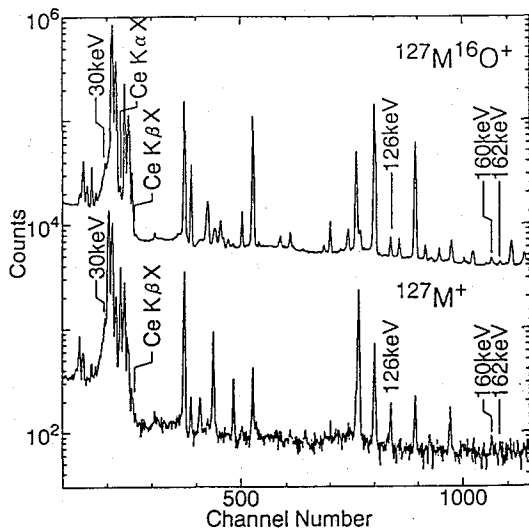


Fig.1 γ -ray spectra of the monoxide ions and the metallic ions for mass 127, produced in the bombardment of a 93.9%-enriched ^{94}Mo target with a 177-MeV ^{36}Ar beam.

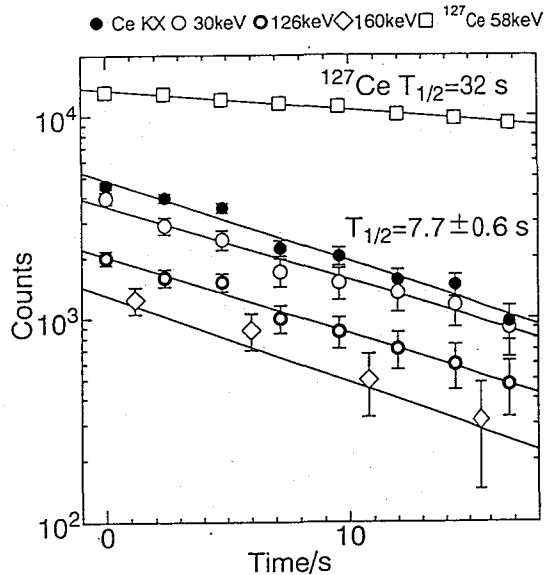


Fig.2 Decay of new γ -rays and the Ce K_{α} X-ray as well as a known ^{127}Ce γ -ray, observed in the mass 127 fraction.

図2に、新しく見いだした30, 126, 160 keVの γ 線とCeの K_{α} X線の減衰の様子を示す。また、比較のために ^{127}Ce の58 keV γ 線のそれも示す。短時間で減衰している γ 線、X線は同じ半減期で減衰していることから、これらの γ 線が ^{127}Pr または ^{127}Ce の異性体の崩壊によることが分かる。しかし、この2つのうちで ^{127}Ce の核異性体である可能性は γ 線が β^+ 線と同時計数することから排除された。

以上の結果から、30, 126, 160及び162 keVの γ 線、並びにCeの K_{α} X線、 K_{β} X線は ^{127}Pr の崩壊によるものであり、 ^{127}Pr の半減期は 7.7 ± 0.6 秒と結論された。

References

- 1) T. Morikawa *et al.*, Phys. Rev. C46, R6 (1992).
- 2) S. Ichikawa *et al.*, Nucl. Instr. Methods A274, 259 (1989).

IDENTIFICATION OF THE NEW ISOTOPE ^{127}Pr

Toshiaki SEKINE, Akihiko OSA, Mitsuo Koizumi, Shin-ichi ICHIKAWA, Kiyoshi KAWADE,* Hiroshi YAMAMOTO,* Masato ASAI,* Department of Radioisotopes, Japan Atomic Energy Institute and *School of Engineering, Nagoya University

The new isotope ^{127}Pr was produced in the reaction $^{36}\text{Ar} + ^{94}\text{Mo}$, mass-separated using the isotope separator on-line connected to an AVF cyclotron, and identified by γ -ray and X-ray spectrometry. Its half-life was found from the decay measurement of three γ -rays and the Ce K_{α} X-ray to be 7.7 ± 0.6 s.

2A08 カリホルニウム-245の壊変特性 (2)

(原研) ○初川雄一, 塚田和明, 篠原伸夫, 永目諭一郎, 間柄正明

はじめに

短寿命で生成断面積の小さな核種が多い重アクチノイド領域での核特性の理解を得ることを目的とし, 我々は ^{245}Cf の壊変特性について研究を行ってきた⁽¹⁾。

^{245}Cf は ^{238}U (^{12}C , 5n) 反応で合成しこれをイオン交換分離法により核分裂生成核種等の副生成物から分離精製を行ない測定し, これに基づいて ^{245}Cf の壊変特性について考察を行なった。

実験

天然ウランをターゲットとし, これに原研タンデム加速器からの ^{12}C を照射して ^{245}Cf を得た。照射後ターゲットを溶解し陽イオン交換及び陰イオン交換法でカリホルニウムを核分裂生成物および他のアクチノイドから分離した。分離した試料はシリコン表面障壁型検出器およびゲルマニウム半導体検出器を用いて α , 及び γ 線の測定と α - γ , γ - γ 同時計測を行なった。

結果と考察

図1に最小自乗法による ^{245}Cf の7.1MeVの α スペクトルのピーク解析の結果を示す。この複合ピークのそれぞれの半減期は ^{245}Cf の半減期46.4分と一致しておりこれらのピークの起源が ^{245}Cf であることを示している。またこの解析ではKuschら⁽²⁾によって報告された6.886MeVの α 線を見いだす事は出来なかった。次に得られた α 線の遷移について考察した。ニルソンダイアグラムや近傍の既知核種からの類推によると ^{245}Cf の基底状態のニルソンレベルは $5/2$ [622] が予想される。また近いエネルギー状態に $1/2$ [631] が存在している。まず $K=5/2$ を仮定して7.145MeVを許容遷移とし7.090MeVをその回転帯への遷移とし, その慣性能率を計算するとローテーションルコンスタントは7.86keV, $J/J_{\text{rig}}=0.49$ が得られた。この値は近傍の核種と比較すると大きく系統性からずれている。また $K=1/2$ を仮定して慣性能率を計算した。この時 α - γ 同時計測によって得られた7.090MeVの α 線とコインシデンスした50.6, 56.1keVの γ 線⁽¹⁾をそれぞれ $5/2 \rightarrow 3/2$, $5/2 \rightarrow 1/2$ への遷移として計算を行なった。その結果ローテーションルコンスタントは6.0keV, $J/J_{\text{rig}}=0.65$, $a=-0.69$ が得られた。これらの値は近傍の核種の系統性ともよく一致している。それで ^{245}Cf の許容遷移は $1/2 \rightarrow 1/2$ とするのが妥当と考えられる。7.090, 6.985MeVはそれぞれ $1/2 \rightarrow 5/2$, $1/2 \rightarrow 9/2$ とした。7.065と7.023MeVはその慣性能率から $5/2$ [622] とその回転帯 $7/2$ への遷移と考えられる。

γ - γ 同時計測から575.2, 605.3, 620.6keVの γ 線が ^{245}Cf から発せられていることが解った。本討論会では γ - γ 同時計測の実験結果についても報告する予定である。得られた ^{245}Cf の壊変様式を図2に示す。

文献

- (1) 間柄 他, 第36回放射化学討論会公演要旨集 1A02 (1992)
- (2) Kusch W. and Szegłowski Z., JINR-E6-3992 (1968)

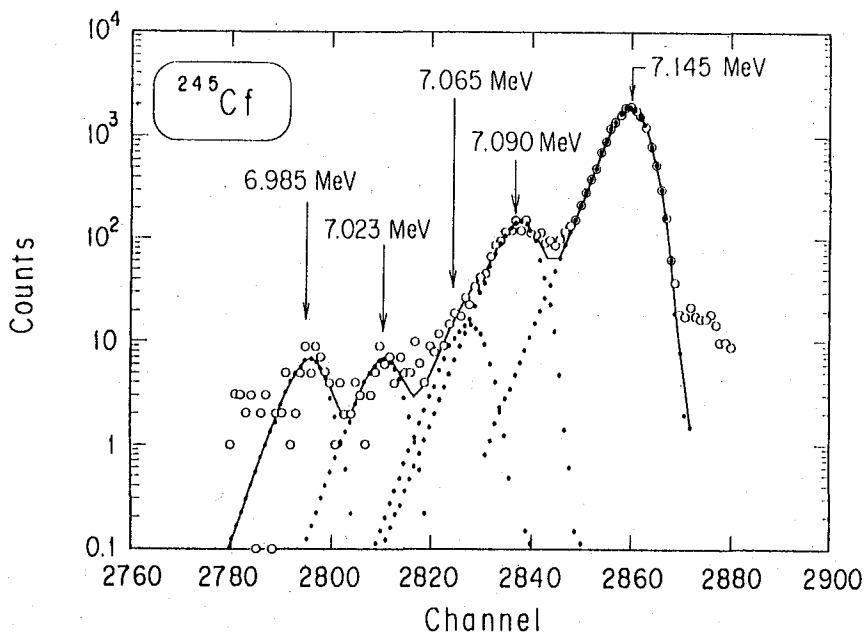


Fig. 1 A fit by the least-square fitting program to 6.9 - 7.2 MeV α -particle of ^{245}Cf .

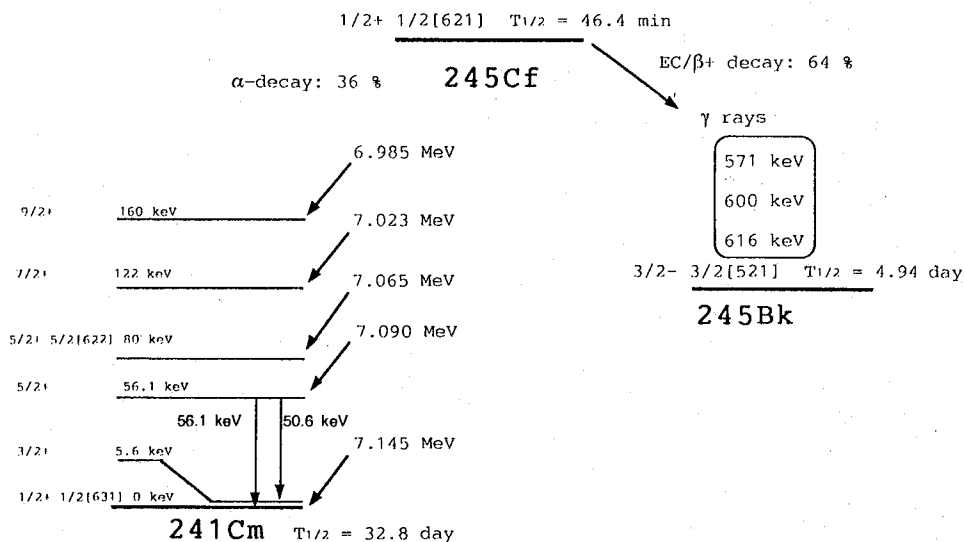


Fig.2 Proposed decay scheme of ^{245}Cf .

DECAY PROPERTY OF ^{245}Cf (2)

Yuichi HATSUKAWA, Kazuaki TSUKADA, Nobuo SHINOHARA, Yuichiro NAGAME, Masaaki MAGARA, *Japan Atomic Energy Research Institute.*

Decay property of ^{245}Cf produced by the $^{238}\text{U}(^{12}\text{C},5n)$ reaction was studied by a radiochemical method. The relative intensities of α -groups of ^{245}Cf were determined by the least-square fitting. A decay scheme is proposed for on the basis of α -, α - γ , and γ - γ coincidence spectra.

○小林貴之¹、末木啓介²、海老原充²、中原弘道²、今村峯雄³、
増田彰正⁴
(北里大衛生¹、都立大理²、東大核研³、電通大⁴)

はじめに

テクネチウムには質量数97、98、99の3つの長寿命同位体が存在する。我々はこれらのうちテクネチウム97、98の半減期測定についての信頼性と問題点を指摘し、これらの半減期の再測定を行っている¹⁾。本講演では現在までに得られているデータについて報告する。

⁹⁷Tcの半減期

⁹⁷Tcの半減期の値 $(2.6 \pm 0.4) \times 10^6$ y は 1958 年に Katcoff²⁾ によって報告された値が核データとして採用されている。この実験に関しての問題点は既に報告した¹⁾。

我々のサンプルは以前報告したように濃縮⁹⁵Mo金属を東大原子核研究所のSFサイクロトロンで、30 Mevの α 線で照射し($\alpha, 2n$)反応で⁹⁷Ruの製造を行い、これからの壊変生成核種の⁹⁷Tcを得ている。この試料を約1000日間放冷して、Si(Li)検出器でX線測定したスペクトルをFig. 1に示す。

以前は⁹⁷TcのEC壊変に際して放射されるMoのK α -X線は17.4keVに相当するチャンネルにTcのK α -X線の後方散乱ピークが17.1keVに幅広く分布するため明確に確認できなかったが^{97m}Tcが減衰し、後方散乱の影響が少なくなり、これらのX線の強度比が約1:1になった。

TcとMoのK α -X線強度比と既知の^{97m}Tcの絶対壊変率および⁹⁷Tcの原子数から、⁹⁷Tcの半減期を求めたところ、

4.0×10^6 yとなった。

⁹⁸Tcの半減期

現在、核データとして採用されている半減期はO'kelley等の1973年の私信による値である。これについての問題点はすでに報告した¹⁾。

我々の⁹⁸Tc線源は濃縮同位体⁹⁷Mo金属(⁹⁷Mo92.9%)に13MeV重陽子を12時間東大原子核研究所のSFサイクロトロンで照射して(d,n)反応で製造した。このサンプルをGe半導体検出器とSi(Li)半導体検出器を用いてX- γ の同時計数測定を行なった。データは株

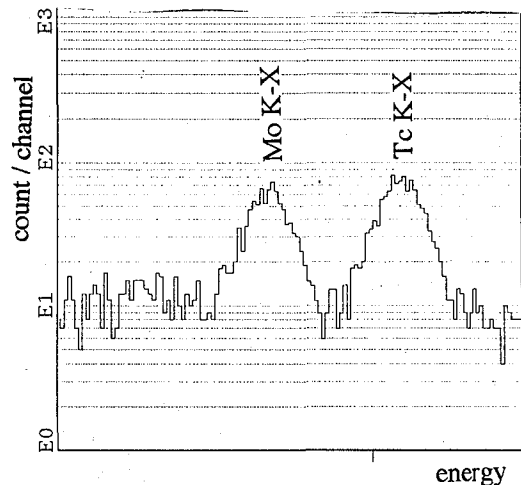


Fig.1 X-ray spectrum of ^{97m}+^{97g}Tc.

AMS-1600を使用して、リストデータを収集した。データはNEC社製PC-9801NS/T上でFortranプログラムでオフライン解析した。MoのK-X線のエネルギー範囲にゲートをかけて ^{98}Tc のEC壊変の情報を得ようとしたがEC壊変から放出されると考えているエネルギーの γ 線を同定することはできなかった。

またこの試料中の ^{98}Tc の放射能を測定し0.12Bqの値を得た。これと以前報告¹⁾した励起関数より推定した原子数から、半減期は 10^6y 程度と考えられる。

ICP-MSを用いたTcの原子数の測定

以前にも報告したが、ICP-MSを用いてTcの原子数の測定を試みている。以前の測定ではプラズマイオン源と検出器が一直線上にあるため、プラズマの光を検出器が感じバックグラウンドが高くなっていた。今回イオン源から検出器までの間に Ω レンズと呼ばれるレンズを用いる事によりプラズマ光が検出器に入りにくくする機構をもつ横川アナリテイカルシステム社製PMS-2000を用いてTcの測定を行なった。検出感度は積分時間等の設定により一概に決められないが 5×10^{10} 個の原子があれば測定可能なことがわかった。しかし、イオン源の安定性があまりよくないため内標準を用いる必要あることがわかり、現在さらに感度と安定性を良くすべき検討中である。

1)第34放射化学討論会(1990,10東京)、第35放射化学討論会(1991,11大阪)、第36放射化学討論会(1992,10東京)

2)S. Katcoff, Phys. Rev. 111,575(1958)

HALF-LIFE OF TECHNETIUM 97,98 (5)

Takayuki KOBAYASHI, School of Hygienic Sciences Kitasato Univ.

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

Mineo IMAMURA, Institute of Nuclear Study Univ. of Tokyo

Akimasa MASUDA, Univ. of Electrocommunication

Re-determination of half lives of ^{97}Tc and ^{98}Tc , both geochemically and astrophysically important isotopes, has been attempted. ^{97}Tc and ^{98}Tc isotopes were produced by $^{95}\text{Mo}(\alpha,2n)^{97}\text{Ru}$ ^{97}Tc and $^{97}\text{Mo}(d,n)^{98}\text{Tc}$ reactions. For ^{97}Tc , the number of atoms in the source was evaluated from the known amount of the parent nuclide of ^{97}Ru , and the activity was determined by the measurement of Mo K X-rays in reference to the Tc K X-rays emitted in the isomeric transition of a known amount of ^{97m}Tc . The half life of ^{97}Tc was gotten as $4.0 \times 10^6\text{y}$.

As for ^{98}Tc , the EC decay was expected from mass and decay scheme data to have emission of two γ -rays, 0.722MeV and 0.787MeV, in the cascade mode. But no clear photopeaks were observed. The number of ^{98}Tc atoms in the source still must be determined accurately, but a rough estimate showed that the half-life of ^{98}Tc was of the order of 10^6y .

2A10

地球化学的方法による ^{96}Zr の二重 β 崩壊の半減期の測定
(理研、東大理、電通大) ○高橋和也・川島敦道・増田彰正

【はじめに】 二重 β 崩壊という現象の解析は、原子核構造の研究や、ニュートリノの質量などの解明において重要なテーマである。この二重 β 崩壊をおこす核種は幾つか知られているが、その半減期が 10^{19} 年以上と非常に長いため、その壊変に伴う放射能の直接検出は非常に困難であった。この場合、半減期の決定には地球科学的スケールの時間経過を利用する、即ち親核種を含む年代の非常に古い鉱物中に蓄積された娘核種の量を測定する方法が有力である。本研究では ^{96}Zr を対象として(娘核種は ^{96}Mo)、天然のジルコン(ZrSiO_4)中に存在するMoの同位体組成の測定に基づき、二重 β 崩壊の半減期の測定を行った。ジルコンは風化にも強く、娘核種を含むMoが散逸しにくいという利点がある。さらに、地球化学的にはMoは親銅元素であるため、親石元素であるZrを主成分とする鉱物中には、その形成時にはMoはほとんど取り込まれず、 ^{96}Zr の崩壊の効果が相対的に大きく現われやすい。

【実験】 試料はCable Sands(天然産ジルコン)を用いた。試料処理においては、まず常圧下でフッ酸、過塩素酸、塩酸、硝酸を用い、不純物として混在している鉱物(硫化物など)を除いた後、高圧酸分解ボンベで 200°C で4日間加熱し、ジルコンを分解した。分解溶液について、イオン交換により、元素分離を行い、ウラン、鉛濃度測定および鉛同位体組成を行い、ジルコンの年代測定を行い、次にMo同位体組成を行った。Mo同位体測定においては、試料のMoの酸化数の調整、測定フィラメントの仕事関数の増大などに努め、通常の測定より測定感度を著しく向上させ、高精度の測定結果を得ることができた。

【結果】 Cable Sandsの年代は16.7億年と求められた。また試料中のMo同位体組成を標準値(IUPAC)からの偏差で示すと図1のようになる。天然のジルコン中にはかなりの(約100ppm)ウランが含まれているため、 ^{238}U の自発核分裂の影響が現われる。 ^{238}U の自発核分裂片のMo付近での収率は正確には求められていないので、壊変エネルギーの似通った ^{239}Pu のそれで近似することとし、図中にFission patternとして示す。Moの質量数95、97、100の標準値からの偏差は、ウランの自発核分裂で説明できる。質量数96のMoの標準値からのずれが ^{96}Zr の二重 β 崩壊に起因するものである。質量数98の標準値からのずれは推測されるウランの自発核分裂から外れているが、この原因については現在検討中である。 ^{96}Mo の標準値からのずれの量と年代、Zrの含有量などから ^{96}Zr の二重 β 崩壊の半減期は $(3.9 \pm 0.9) \times 10^{19}$ 年と求められた。同様な実験を他のジルコン(Westralian Sands)についても行い、ほぼ同様な半減期を得ることができた。本研究で初めて ^{96}Zr の二重 β 崩壊の半減期が実験的にもとめられたわけであるが、この値を他の二重 β 崩壊核種について、すでに地球化学的方法でもとめられた半減期と比較してみると以下のようなになる。

^{96}Zr to ^{96}Mo , $T_{1/2}=3.9 \times 10^{19}$ year ($Q=3.353\text{MeV}$)

^{130}Te to ^{130}Xe , $T_{1/2}=7 \times 10^{20}$ year ($Q=2.534\text{MeV}$)¹⁾

^{82}Se to ^{82}Kr , $T_{1/2}=1 \times 10^{20}$ year ($Q=3.00\text{MeV}$)¹⁾

第一次近似として（核行列要素を無視）、二重 β 崩壊の半減期（2 ν モード）はその壊変エネルギー（Q値）の10乗に反比例することが知られている。図2には上記の実験値およびその他の二重 β 崩壊核種を含めた半減期の理論値の対数をそれぞれの壊変エネルギーの対数に対してプロットしたものを示す。理論値は確かに-10の傾きの直線に概ね沿っている。一方実験値の方も理論値と絶対値は異なるもののやはり壊変エネルギーに対して傾き-10近く（回帰値は-10.4）の直線に沿っている。これは今回求められた値のみならず、これまで実験的に求められた二重 β 崩壊核種の半減期の信頼性が非常に高いことを示している。

References

- 1) O.K. Manuel, J. Phys. G17, 221 (1991)

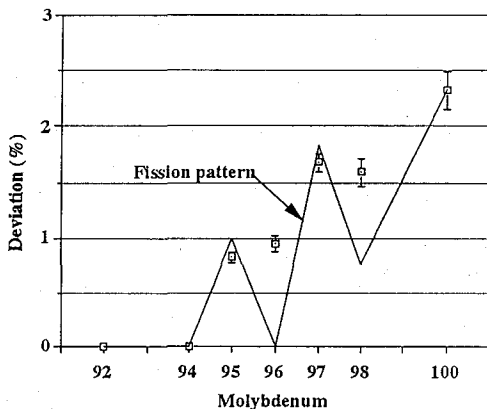


Fig. 1. Normalized relative deviations of Mo isotopes in Cable Sand's zircon

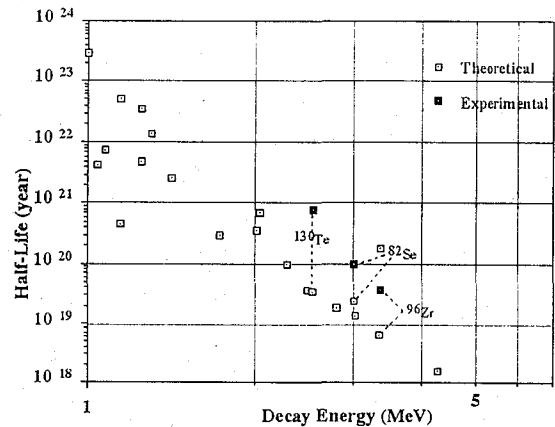


Fig. 2. Correlation between decay energy and half-life of double beta decay

GEOCHEMICAL ESTIMATION OF THE HALF-LIFE FOR THE DOUBLE BETA DECAY OF ^{96}Zr

Kazuya TAKAHASHI, Atsumichi KAWASHIMA*, Akimasa MASUDA**, The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN), *The University of Tokyo, **The University of Electro-Communications

The precise determination of the decay constant of double beta decay has put a constraint on, and is expected to verify, the mass of neutrino. We have attempted to estimate the half-life of double beta decay of ^{96}Zr from the amount of radiogenic ^{96}Mo found in zircon (ZrSiO_4). Mo isotopic compositions were measured with TIMS (thermal ionization mass spectrometry) and the positive ^{96}Mo anomaly was found in a 1.7×10^9 yr zircon (Cable Sand's Western Australia). The excess amount of ^{96}Mo yielded a half-life of $(3.9 \pm 0.9) \times 10^{19}$ yr. This value is consistent with the values geochemically determined for ^{130}Te and ^{82}Se .

2A11

C₆H₁₂, C₆H₆+CCl₄混合系における負パイ中間子転移過程

(名大理・阪大理¹・愛知医大²・信州大教³・高エネ研⁴)

○山室俊浩・篠原 厚・倉知淳史・古川路明・斎藤 直¹・横山明彦¹・
箱田照幸¹・小島貞男²・村松久和³・三浦太一⁴

【はじめに】

負中間子が水素原子に捕獲されると、核に吸収される過程の他に、他の中間子原子軌道への転移 (transfer過程) という水素特有の過程が存在していることが知られている。われわれのグループでは、パイ中間子水素原子の挙動や、負パイ中間子の転移が他の原子の捕獲機構に与える影響について実験を行っている。今回、特に分子外への転移過程 (external-transfer過程) のメカニズムを調べるために、含水素化合物 (C₆H₁₂, C₆H₆) と非含水素化合物 (CCl₄) を任意の割合で混合した試料について π X線と 2γ 線の測定を行った。この結果から、化学形の異なる水素から生成した $p\pi^-$ が transfer過程にどのような影響を及ぼすかを調べることができる。

【実験】

実験は高エネルギー物理学研究所12GeV陽子シンクロトロン $\pi\mu$ チャネルで行った。 π X線の測定はLEPSを、 2γ 線の測定は鉛ガラスチェレンコフカウンターを用いて行った。チェンバー内はHeで置換しており、低エネルギーの π X線を測定できる。サンプルはAlまたはBe製のホルダー (70×55×5 cm³, 70×55×2.5 cm³) に入れて測定した。C₆H₁₂, C₆H₆へ捕獲された π^- は炭素の π X線強度から、CCl₄へ捕獲された π^- は塩素の π X線で、また、水素へ捕獲された π^- は荷電交換反応で生成する π^0 が崩壊してでてくる70MeVの2本の γ 線を測定することで求めた。

測定条件は以下の通りである。

- * ビーム強度 $\sim 7.0 \times 10^4 \pi^-/\text{pulse}$
- * 測定時間 2~11 時間
- * 試料 C₆H₁₂:CCl₄系 8種濃度, C₆H₆:CCl₄系 12種濃度

【結果及び考察】

得られたスペクトルから、炭素、塩素の(3-2)の π X線と 2γ の強度を求め、各元素への捕獲比を得た。塩素原子の割合を $C = n_{c1}/(n_c+n_{c1})$ (n_{c1} : 塩素の原子数, n_c : 炭素の原子数) とすると、各濃度での塩素への捕獲比 W_{c1} は $W_{c1}/W_{c1(c=1)} = C/[k(1-C)+C]$ という関係式で表される。ここで、 $k = (k_c/k_{c1})$ (k_c : 炭素への捕獲率, k_{c1} : 塩素への捕獲率) である。そこで、炭素、塩素の捕獲率を求めるために、各濃度で求められた $W_{c1}/W_{c1(c=1)}$ の、 C に対する依存性 (Fig. 1) から k を求めた。この k 値から、炭素への捕獲率を求め、水素への捕獲率を単体の値で規格化した値に対してプロットした (Fig. 2)。分子内の炭素と水素への捕獲率が一定であると考え、このプロットは transfer がなければ直線関係になるはずである。実験結果は Fig. 2 でわかるように明かな曲線になっており、external-transfer の存在を示している。

今後は、簡単なモデルに基づいて transfer-rate を求め、C₆H₁₂, C₆H₆ のデータを比較し、考察する予定である。

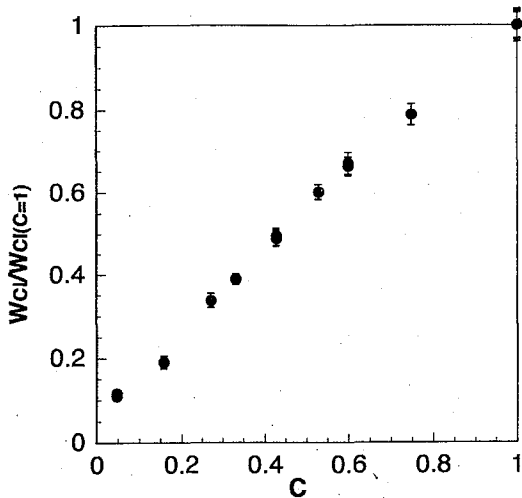


Fig. 1. Relative capture ratio of chlorine in the $C_6H_{12}+CCl_4$ mixtures to pure CCl_4 against the chlorine atom concentration (C). The values were obtained from the intensity ratios of the pionic Cl(3-2) X-rays.

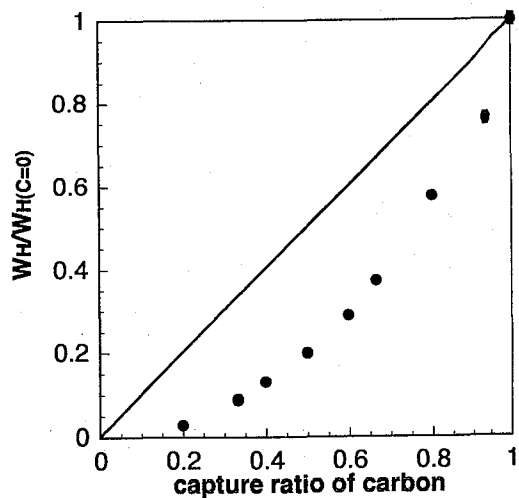


Fig. 2. Relative charge exchange probabilities to pure C_6H_{12} [$W_H/W_H(C=0)$] as a function of the capture ratio of carbon in the $C_6H_{12}+CCl_4$ mixtures. The solid line presents the expected values if there is no transfer.

TRANSFER PROCESS IN NEGATIVE PION CAPTURE BY $C_6H_{12}, C_6H_6 + CCl_4$ MIXTURES

Toshiharu MUROYAMA, Atsushi SHINOHARA, Junji KURACHI, Michiaki FURUKAWA, Faculty of Science, Nagoya University

Tadashi SAITO, Akihiko YOKOYAMA, Teruyuki HAKODA, Faculty of Science, Osaka University

Sadao KOJIMA, Aichi Medical University

Hisakazu MURAMARU, Faculty of Education, Shinsyu University

Taichi MIURA, National Laboratory for High Energy Physics

Both 2γ -rays from π^0 decay and pionic X-rays were measured in the mixtures of $C_6H_{12}+CCl_4$ and $C_6H_6+CCl_4$. Dependence of the relative charge exchange probabilities on the concentration of carbon atoms indicated the contribution of the external transfer of pionic hydrogen to a chlorine atom. The chemical effects of the transfer will be discussed from a comparison between the transfer rates for the C_6H_{12} and C_6H_6 systems.

(名大理, 阪大理¹, 高工研²) ○篠原 厚, 室山俊浩, 重兼史尚,
古川路明, 斎藤 直¹, 横山明彦¹, 渡辺誠也¹, 三浦太一²

【はじめに】 負中間子の物質への捕獲機構, 特に水素を含む場合に生成する中間子水素原子の挙動は未だ完全な理解には至っていない。パイ中間子水素原子(π^-p)は荷電交換反応($\pi^-p \rightarrow n + \pi^0$)による π^0 の壊変($\rightarrow 2\gamma$)を検出することにより高感度で測定できるため, π^-p から他の原子への π^- 転移過程を含めた捕獲過程の研究に有効である。本研究グループでは, さらに化学的状態の異なる水素への捕獲率を選択的に測定するために, 重陽子との荷電交換反応がほとんど起こらないことに基づいた, 重水素置換化合物との比較測定による新しい方法を開発し, 捕獲・転移過程の微視的・定量的理解を目指している。これまでに, 一連のアルコールと-OHをD化したアルコール($-d_1$)について, C-HのHとO-HのHを選択的に測定することに成功し, その予備的結果を報告した¹⁾。ここでは, 重水素置換化合物で問題となる $\pi^-p \rightarrow D$ の転移過程を調べるために $H_2O + D_2O$ 系の測定を行い, 文献値と異なる結果を得たので, その結果を報告する。また, 追加測定を行ったアルコール系の新たな結果も合わせて, これまで報告の少なかった凝縮系の π^- 転移過程について考察する。

【実験】 実験はKEK-PSの $\pi\mu$ チャンネルでこれまでと同様の方法¹⁾で行った。測定試料はBeもしくはAl製のホルダー($50 \times 60 \times 5 \text{mm}^3$)に入れた $H_2O + D_2O$ 系(15種濃度), R-OHとR-OD [R=アルキル基], 及び一連のアルカンで, アルコールとアルカンの測定試料についてはカールフィッシャー法により含有水分の分析を行い, 必要に応じて脱水操作も行った。測定は, He気流中, $(0.8 \sim 2.5) \times 10^4 \pi^-/\text{sec}$ のビーム強度で各試料につき4~8時間行った。CとOへの捕獲確率はパイオニックX線強度から, Hへの捕獲確率 W_H は 2γ イベントから求め, これらから原子当たりの捕獲率 R_H , R_C , 及び R_O を導出した。

【結果と考察】 Fig.1とFig.2に得られた結果の例を示した。Fig.1の $H_2O + D_2O$ 系の $W(H_2O)$ に対する相対値の D_2O 濃度(C_D)変化は $\pi^-p \rightarrow D$ の π^- 転移の存在を示している。しかし混合系で生成されるHOD分子の π^- 捕獲過程への効果は見られず, 単に現象論的モデルに基づく解析からTable 1に示すような転移過程のパラメータを得ることが出来た。我々の値は, Stanislausら²⁾の値ともWerberら³⁾の $H_2 + D_2$ 系での値とも少し異なる。後者との違いは H_2O と H_2 から生じる π^-p の状態の違いの転移過程へ反映と考えられる。

Fig.2はアルコールとアルカンの W_H のC鎖長にたいする変化を示したもので, C-HのHへの捕獲率 R_H^C は $W_H(OD)$ から, R_H^O は $W_H(OH) - W_H(OD)$ から得られる。ここで, $W_H(OD)$ は $\pi^-p \rightarrow D$ への転移の寄与を今回 $H_2O + D_2O$ 系で得られたパラメータを用いて補正した。アルコール系については前回¹⁾にも報告したように, R_H^C/R_C と R_H^O/R_O のどちらも同様な単調増加を示し, 凝縮系で主に寄与していると考えられている隣の原子へのトンネル効果による π^- 転移機構(tunneling transfer)に加え, 他の転移機構(external transfer)の存在を示す結果を得ている。現在, 追加測定したデータ及びアルカン系を加え, より詳細に解析中である。

講演では, π^-p の起源(-OH, -CH, HOH)の違いによる transfer rate の変化や, OとCへの transfer rate Λ_O と Λ_C (予備的解析では, $\Lambda_O = 4.5 \pm 0.4$ と $\Lambda_C = 1.5 \pm 0.2$ を得ている)の大きな値の差について考え, π^- 転移過程のより微視的機構を考察したい。

[References]

- 1) 篠原ら, 第36回放射化学討論会, 2P04 (1992).
- 2) S. Stanislaus, et al., Phys. Lett., A143, 239 (1990).
- 3) P. Weber, et al., Phys. Rev. A, 41, 1 (1990).

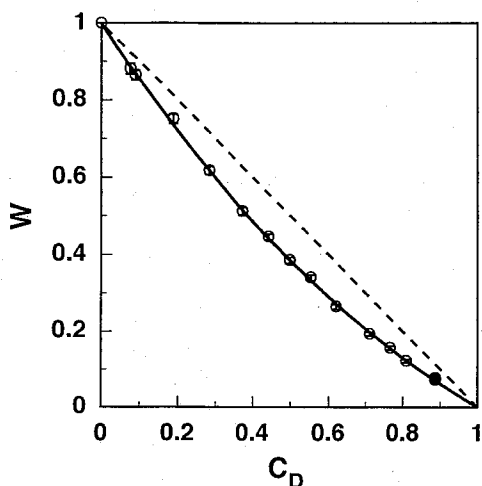


Fig. 1. Relative charge exchange probabilities (W) as a function of the D_2O concentration (C_D). The dashed line indicates the expected W if there was no transfer, and the solid curve the fit of the phenomenological model.

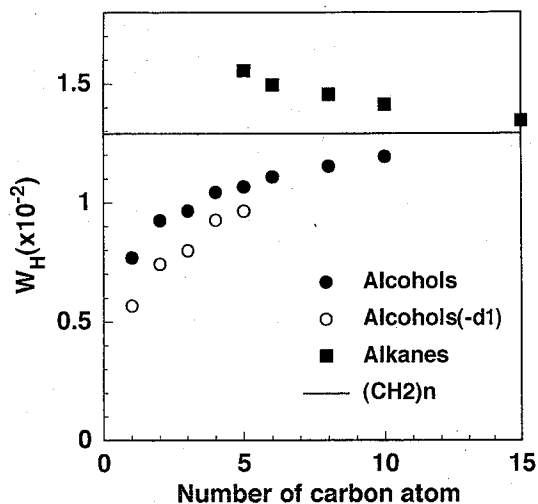


Fig. 2. Charge exchange probabilities (W_H) as a function of the number of carbon atoms in alcohols and alkanes.

Table 1. Transfer parameters obtained from a phenomenological model fit

	System	Λ	κ	$\Lambda/(\Lambda + \kappa)$
Present work	$H_2O + D_2O$	0.52 ± 0.04	0.73 ± 0.11	0.42 ± 0.04
Stanislaus et al. ²⁾	$H_2O + D_2O$	0.41 ± 0.05	0.38 ± 0.14	0.52 ± 0.10
Weber et al. ³⁾	$H_2 + D_2$	0.65 ± 0.07	1.40 ± 0.22	0.32 ± 0.03

STUDY ON TRANSFER PROCESS OF NEGATIVE PION CAPTURE IN CONDENSED PHASE USING DEUTERATED COMPOUNDS

Atsushi SHINOHARA, Toshiharu MUROYAMA, Fumihisa SHIGEKANE, Michiaki FURUKAWA,
 Faculty of Science, Nagoya University
 Tadashi SAITO, Akihiko YOKOYAMA, Seiya WATANABE,
 Faculty of Science, Osaka University
 Taichi MIURA, National Laboratory for High Energy Physics

The transfer of negative pions captured by hydrogen to heavier atoms has been studied in alcohols, alkanes, and $H_2O + D_2O$ mixtures by measuring both 2γ rays from π^0 decay and pionic X rays. For $H_2O + D_2O$ mixtures, the transfer parameters of pionic hydrogen to deuterium were obtained on the basis of a phenomenological model and compared with the previous results. Each pion-capture rate of the hydrogen of different chemical state in the molecule was determined from a comparison between the data for the ordinary alcohol and the deuterated one. The transfer mechanism in the condensed phase is discussed from the observed chemical effects of the transfer process.

2A13

0.1M-LiOD/D₂O溶液の電気分解におけるLiの挙動

(都立大理、*北里大衛生、³理研) ○宮本真哉、末木啓介、
藤井政俊、白川利昭、千葉雅美、*小林貴之、³矢野倉実、
³荒谷美智、中原弘道

§ はじめに §

前回の放射化学討論会でも報告したように、0.1M-LiOD/D₂O溶液を電解液に、Pdを陰極にして電気分解を行うと電解液中のLiがPd陰極に入り込むことが分かった。そこで今回の発表では、Pd中でのLi及びD、Hの深度分布と濃度を調べるために弾性反跳分析(ERDA)を行った。

§ 実験 §

Fig.1に電気分解に用いたセルの概略図を示す。完全密閉系のテフロンセルを作り、セルのまわりには銅管を巻き、全体をデュワービンに入れて断熱して、水を銅管に流して水流の出入口の温度差を測定して電解中に生じる過剰熱の有無を測定した。さまざまな条件による差異を調べるために電流値や電位値を変化させて電気分解を行った。その後、理化学研究所において重イオン線型加速器(RILAC)を用いて加速したAr⁶⁺ビームで、Pd陰極(10X10X3mm)をそれぞれAlコース(散乱層の概略図をFig.2に示す。)にて照射して、反跳して出てくるLi及びD、Hのエネルギーと頻度を測定することによって、Pd中でのLi及びD、Hの深度分布と濃度を調べた。SSDと試料の間にあるAl箔を取り外して、Pdによってラザフォード前方散乱(RFS)されるArを測定して反跳粒子を測定するための表面障壁型Si検出器(SSD)の立体角を調べた。

§ 結果 §

Tableに電解条件などを示す。現在までのところ、過剰熱とされるような熱は測定されていない。また、ERDAによって得られたスペクトルのうちの一つ(MRUN04)をFig.3に示す。Li、Hのピークは表面付近からの反跳によるものがそれぞれ11.2MeV、2.6MeVで、Pdの深部から出てきたもの程そのエネルギーが下がる。Pd中でのLi及びD、Hの深度分布、濃度は現在解析中である。

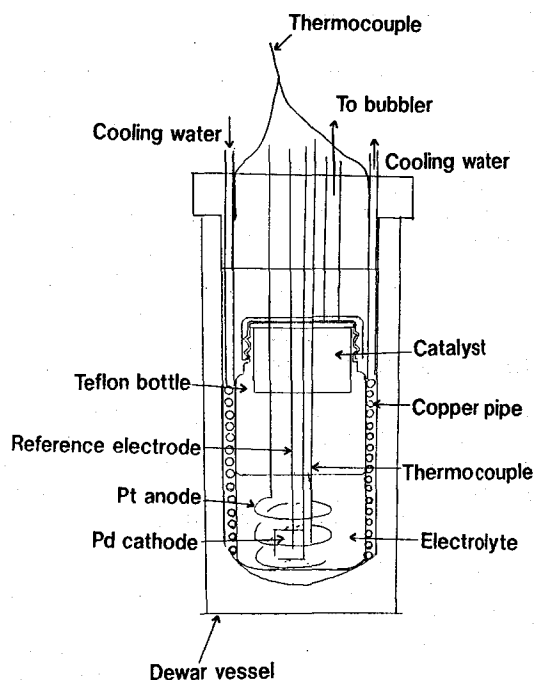


Fig.1 The cell for electrolysis.

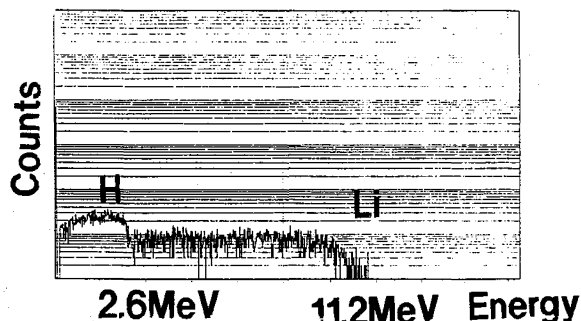
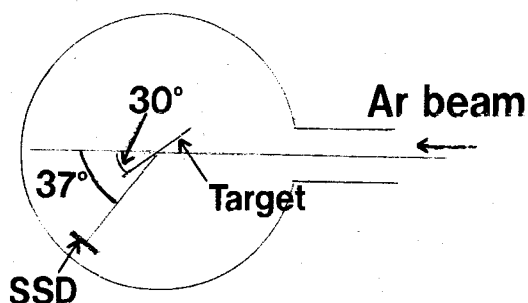


Fig.2 The setup in the chamber for ERDA.

Fig.3 Spectrum of ERDA (MRUN04)

Table The condition of electrolysis.

RUN	Time(h)	Ref. Vol.(V)	Currents(A)
MRUN01	140.3	0.8-1.31	0.011-0.014
MRUN02	64.6	> 0.8	0.010-0.040
MRUN03	214.4	0.8-1.25	0.002-0.030
MRUN04	182.8	> 2.15	0.400-1.100

§ Reference §

1. 宮本ら、第36回放射化学討論会、< 1992 > 2A15
2. Minoru YANOKURA et al., Chem. Lett., < 1989 > 2197
3. Shinya MIYAMOTO et al., Frontier of Cold Fusion (Proceedings of the Third International Conference on Cold Fusion), < 1992 > 523

Movement of Li during electrolysis of 0.1M-LiOD/D₂O solution.

Shinya MIYAMOTO, Keisuke SUEKI, Masatoshi FUJII, Toshiaki SHIRAKAWA, Masami CHIBA, *Takayuki KOBAYASHI, †Minoru YANOKURA, ‡Michi ARATANI, Hiromichi NAKAHARA Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University; *School of Hygienic Science, Kitasato University; †RIKEN

We reported last year in this meeting that when an electrolysis was performed for the 0.1M-LiOD/D₂O electrolyte solution with a Pd cathode, Li in the electrolyte deposited into the cathode. This work investigates movements of Li, D, and H during electrolysis. The depth profile and concentrations of these elements in the Pd were measured by elastic recoil detection analysis (ERDA).

(都立大理, 大妻女子大社会情報*, 東海大工**)
 ○末木啓介・藤井正俊・千葉雅美・池辺武・山岡新之介
 ・三浦洋昭・渡辺敏広・白川利昭*・内海倫明**

【はじめに】

力を加えると結晶表面に正負の電荷を生じる圧電物質の性質を利用し、その電荷によって生ずる高電場による粒子加速と核融合反応（メカノ核反応）を試みた。d-d核融合反応を確認する為に雰囲気中に重水素ガスを用いて中性子検出を行った。対照実験として雰囲気中に軽水素ガスを用いた実験を行い結果を比較する。

【実験】

パイロミルを用いてLiNbO₃単結晶を重水素及び軽水素(1気圧)中で粉砕した。粉砕容器の周囲に中性子カウンター(検出効率=3.3%)を置き、粉砕中の中性子計測を行った。実験装置を図1に示す。中性子発生率は、非常に低いことが予想される為、実験は東京大学宇宙線研究所鋸山微弱放射能研究施設の低バックグラウンドの環境の下で行った。

【結果と考察】

雰囲気中に重水素ガスと軽水素ガス(対照実験)を用いた場合、及びバックグラウンド(960時間)のそれぞれの中性子計数率を図2に示す。気相として重水素ガスを用いた場合は、軽水素ガスの場合及びバックグラウンドに比べ過剰の中性子が計測された。正規分布の上側確率を用いるとD2とBGは92.2%の確率で別の母集団である事を示している。又、H2とBGは99.9%の確率で同母集団であり、本測定では、振動装置の電氣的ノイズや粉砕容器中の放電ノイズを中性子信号として誤って検出していないことを意味している。これらの事より圧電物質粉砕過程において重水素原子核が、発生した電場で加速され核融合($d+d \rightarrow {}^3\text{He} + n$)を起こし、中性子を発生した可能性を示している。

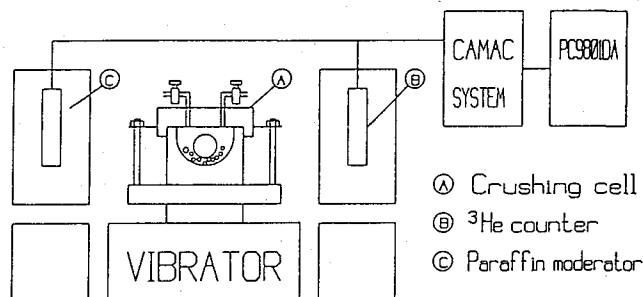


Fig.1 Schematic diagram of the apparatus

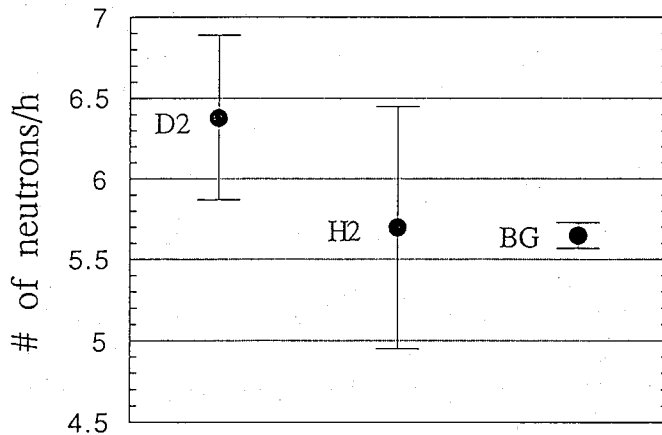


Fig.2 Counting rates/h of the neutrons for the atmosphere of deuterium, hydrogen and backgrounds.

References

- 1) T. Shirakawa et al., *Frontiers of Cold Fusion*, edited by H. Ikegami, Universal Academy Press, Inc., 1992, 469-472.
- 2) T. Shirakawa et al., *Chemistry Letters*, 897-900 (1993).

PARTICLE ACCELERATION AND NEUTRON EMISSION IN A FRACTURE PROCESS OF A PIEZOELECTRIC MATERIAL

○ Keisuke SUEKI, Masatoshi FUJII, Masami CHIBA, Takeshi IKEBE, Shinnosuke YAMAOKA, Hiroaki MIURA, Toshihiro WATANABE, Toshiaki SHIRAKAWA*, Michiaki UTSUMI**,
 Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University;
 Department of Social Information Processing, Otsuma Women's University*,
 Faculty of Engineering, Tokai University**

We studied neutron emission from a crushing process of a piezoelectric material of Lithium-Niobate (LiNbO_3) single crystal in deuterium gas atmosphere. The neutron detection efficiency was 3.3%. It was expected that deuterons were accelerated by the high electric field and made nuclear fusion reaction between deuterons (Mechano-Nuclear Reaction). We observed excess neutrons of 1 counts / h with a confidence level of 92.2% compared with the background. On the other hand we could not observe the excess to the background in hydrogen gas atmosphere.

「緒言」

水素分子と2原子水素化物(MH)間の水素同位体交換平衡にみられる異常同位体効果について、理論的に詳細に検討してきた¹⁻⁴。今回は水素分子とMH間のH-D、D-T、T-⁴H交換平衡において、水素分子中の交換にあずからない水素をDに置き換えると、同位体効果がどのように変化するか、数学的に検討してみた。また分光学的データのあるMH分子について、実際にこれらの交換平衡の定数を計算してみたところ、異常同位体効果を示すものが見いだされたので報告する。

「計算」

同位体交換反応の平衡定数Kは、換算分配関数比の比として表せるので、分子の力の定数、分子を構成している原子の質量、及び絶対温度の関数と考えられる。水素分子とMH間の上記の水素同位体交換反応について、種々な異常同位体効果を示すときの、MH分子の力の定数、Mの質量、温度の関連を、Mの質量が5-250、温度が50-2000Kという条件のもとで数値解析によって求めた。また、分光学的データの分かっているMH分子60種についてこれらの反応のKを、温度50-2000Kの範囲で、換算分配関数比を計算することにより求めた。

「結果」

同位体効果が異常を示し、H-D、D-T、T-⁴H交換反応の平衡定数、 $K_{d,hd}$ 、 $K_{d,dt}$ 、 $K_{d,t4h}$ の間に、 $K_{d,hd} = K_{d,dt}$ 、 $K_{d,hd} = K_{d,t4h}$ 、 $K_{d,dt} = K_{d,t4h}$ が成立するときの温度(Mass Independent Fractionation Temperature (MIF温度))及びクロスオーバー温度は、MH分子の力の定数が大となると高くなった。MIFが存在するためには、MH分子の力の定数が、交換にあずからない水素がHの場合よりも、大でなければならなかった。

実際に分光学的データの分かっているMHについて、これらの平衡定数を計算してみると、異常同位体効果を示すものがあった。そのうちCH(

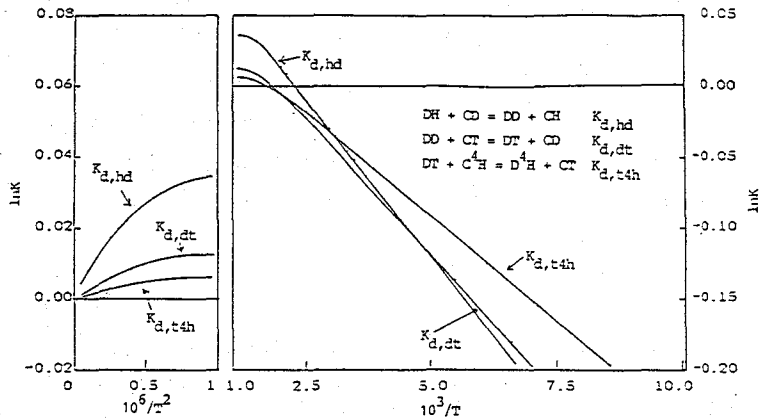


Figure 1 lnK for the sequential isotope exchange equilibria
 $D^{**}H + C^*H = D^*H + C^{**}H$ vs. $10^6/T^2$ (left), $10^3/T$ (right).
 $**H = H, D, T$ $*H = D, T, ^4H$

こたか まさひろ、 ジェイコブ ビゲライゼン

図-1), SH, HCl, HBrはMIFとクロスオーバーの両方を示し、BH, PH, AsH, SeH, PdH, SbH, TeH, HI, PtH, AuH (図-2)はクロスオーバーのみを示した。

この様な異常同位体効果は、理論的には水素だけに限らず、他の元素についても、見いだされる。

これまでに得られた結果から同位体交換平衡に

よっても、いわゆる同位体比異常が生じる場合があると考えられる。

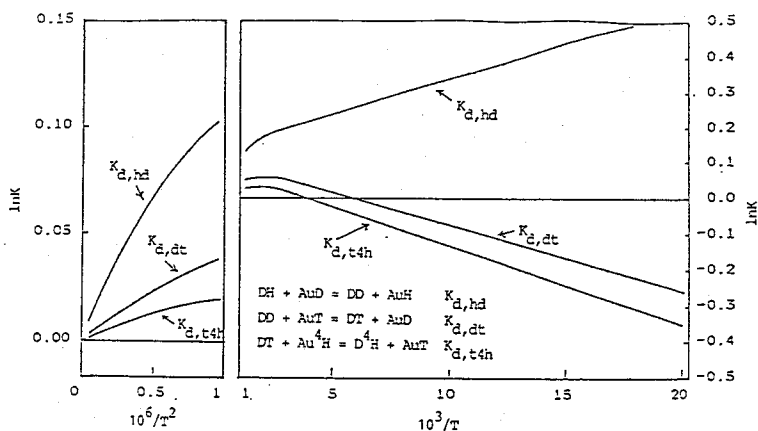


Figure 2 $\ln K$ for the sequential isotope exchange equilibria $D^{**}H + Au^{*}H = D^{*}H + Au^{**}H$ vs. $10^6/T^2$ (left), $10^3/T$ (right). $**H = H, D, T$ $*H = D, T, ^4H$

- 1) M. Kotaka, M. Okamoto, and Jacob Bigeleisen, J. Amer. Chem. Soc., 114, 6436 (1992).
- 2) 小高正敬, Radioisotopes, 41, [10] 71 (1992).
- 3) 小高正敬, Jacob Bigeleisen 日本原子力学会「1992年秋の大会」 J 59.
- 4) 小高正敬, Jacob Bigeleisen 日本原子力学会「1993年春の年会」 L 26.

Anomalous Isotope Effects in Hydrogen Isotopic Exchange Equilibria(3)

Masahiro Kotaka and Jacob Bigeleisen*

Research Laboratory for Nuclear Reactors, Tokyo Institute of Technology

*Department of Chemistry, State University of New York at Stony Brook

We have carried out a theoretical study of the anomalous isotope effects in the sequential hydrogen isotopic equilibria between dihydrogen and diatomic hydrides (MH) in the harmonic oscillator-rigid rotor approximation. The reactions have been studied for the isotopomers H, D, T, 4H .

The mass independent fractionation and cross over temperatures increase with the M-H force constant.

Four diatomic hydrides, CH (Figure 1), SH, HCl, and HBr show the mass independent fractionations with cross overs. Ten diatomic hydrides, BH, PH, AsH, SeH, PdH, SbH, TeH, HI, PtH, and AuH (Figure 2) show only cross overs.

These calculations serve as prototype models for the understanding of anomalous isotope effects in the isotope exchange reactions of polyatomic molecules, not restricted to the isotopes of hydrogen.

3A01

混合溶媒（メタノール／水）中における Fe^{3+} と F^- との間の生成定数に関する研究

（静岡大理） ○菅沼 英夫 ・ 白髭 昌洋 ・ 大森 巍

【緒言】

今までに外殻の電子配置が $s^2 p^6$ を持つ f 軌道元素の Eu^{3+} および Am^{3+} と F^- との間の生成定数をメタノール／水および DMSO／水の混合溶媒中で調べてきた。それらの結果から生成定数の変動は F^- の水から混合溶媒への移行ギブズ自由エネルギーと用いた陽イオンの第一溶媒和圏の溶媒組成と深く関わっていることがわかった。このことにより逆に陽イオンの第一溶媒和圏の溶媒組成を推定が可能であり、アルカリ金属アルカリ土類金属と同じ外殻電子配置を持つ Eu^{3+} と Am^{3+} の場合には溶媒の電子対供与性のほかに溶媒の極性（双極子モーメント）の大きさが陽イオンの選択溶媒和にかなり影響することがわかった。

今回は d 軌道電子を持ち、そのために溶媒と配位結合的相互作用が考えられ、水溶液中では配位数が 6 である Fe^{3+} を陽イオンに用いて、メタノール／水混合溶媒中での F^- との間の生成定数の変動を調べた。求めた生成定数に基づき、さらに Fe^{3+} のまわりの選択溶媒和についての情報を得ることを目的に研究を行った。

【実験】

生成定数は TTA-ベンゼンを用いる溶媒抽出法により求めた。 Fe^{3+} は電荷が高くイオン半径が小さいために溶媒を強く引きつけている。そのために抽出のための振とうを $29.8 \pm 1 \text{ K}$ の恒温槽中で 7 日間以上行った。

【結果と考察】

求めた $\ln \beta_1$ ($\beta_1 = [\text{FeF}^{2+}] / \{ [\text{Fe}^{3+}] [\text{F}^-] \}$) の値が用いた混合溶媒のバルク中のメタノールのモル分率に対して図 1 に示してある。水溶液と混合溶媒溶液中での FeF^{2+} の生成に伴うギブズ自由エネルギーの変化の差は次のように表される。

$$\begin{aligned} \Delta G_{\text{FeF}}(\text{H}_2\text{O}) - \Delta G_{\text{FeF}}(\text{mix}) &= RT \ln [\beta_1(\text{mix}) / \beta_1(\text{H}_2\text{O})] \\ &= \Delta G_{\text{tr}}(\text{F}^-) - \Delta g \end{aligned}$$

ここで $\Delta G_{\text{tr}}(\text{F}^-)$ は F^- の水と混合溶媒における溶媒和エネルギーの差（移行ギブズ自由エネルギー）である。また Δg は $\Delta g(\text{H}_2\text{O}) - \Delta g(\text{mix})$ に等しく、それぞれは $\Delta g(\text{H}_2\text{O}) = \Delta G_{\text{Fe, solv}}(\text{H}_2\text{O}) - \Delta G_{\text{FeF, solv}}(\text{H}_2\text{O})$ と $\Delta g(\text{mix}) = \Delta G_{\text{Fe, solv}}(\text{mix}) - \Delta G_{\text{FeF, solv}}(\text{mix})$ であることを意味するので、 Δg は FeF^{2+} と Fe^{3+} の混合溶媒と水溶液中の溶媒和エネルギーの差となる。ここで $\Delta g(\text{H}_2\text{O})$ および $\Delta g(\text{mix})$ の値を溶媒和した Fe^{3+} が F^- の配位によって Fe^{3+} の 1/配位数だけ脱溶媒和するときの溶媒和エネルギーに等しいとみなして取り扱うと次のように表される。

$$\Delta g = \Delta G_{\text{Fe, solv}}(\text{H}_2\text{O})/n - \Delta G_{\text{Fe, solv}}(\text{mix})/n$$

(n および n' は水と混合溶媒溶液中における Fe^{3+} の配位数)

純溶媒中の溶媒和エネルギーは Latimer の式に基づき算出できる。 Fe^{3+} の水およびメタノール中の配位数が6であるならば298 Kにおけるメタノールから水への Fe^{3+} の $\Delta g/RT$ の値は-3.40となる。この値を Fe^{3+} の第一溶媒和圏のメタノールが100%の値として、そして実験により求めた $\Delta g/RT$ との比から Fe^{3+} の第一溶媒和圏の組成を推定した。それらのまとめたものが図2に示してある。この結果はf軌道元素の場合と異なりメタノールの方がより選択的に溶媒和していることを示している。言い換えると、このことは Fe^{3+} のd軌道電子が水より大きいドナー数を持つメタノールと配位結合的相互作用をしているためであると考えられる。

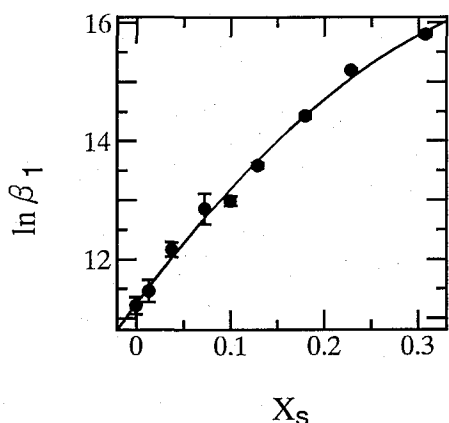


Fig.1 $\ln \beta_1$ vs. mole fraction of CH_3OH in the bulk (X_s).

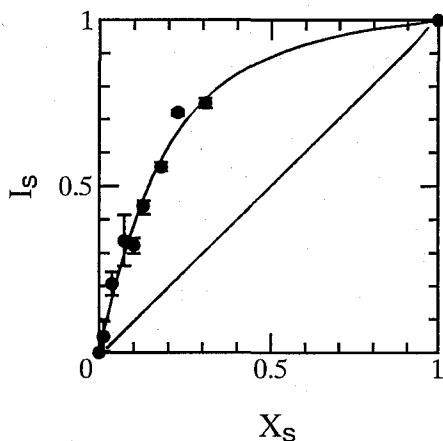


Fig.2 Mole fraction of CH_3OH in the first solvation sphere of Fe^{3+} (I_s) vs. mole fraction of CH_3OH in the bulk (X_s).

STUDIES ON THE STABILITY CONSTANTS BETWEEN Fe^{3+} AND F^- IN MIXED ($\text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O}$) SOLVENTS
Hideo SUGANUMA, Masahiro SHIRAHIGE, Takashi OMORI, Faculty of Science, Shizuoka University

The stability constants for the formation of FeF^{2+} were determined in $\text{CH}_3\text{OH}/\text{H}_2\text{O}$ solvent mixtures using the solvent extraction technique. The value (β_1) of FeF^{2+} increases with an increase in the mole fraction of CH_3OH . Based on the β_1 values, the composition in the first solvation sphere of Fe^{3+} in the mixed system was estimated. The estimated results show that CH_3OH solvates preferentially around Fe^{3+} .

(原研・静岡大理) ○橋本和幸、大森 巍

【はじめに】

過テクネチウム酸イオン (TcO_4^-) とチオ尿素 (tu) の反応により生成するテクネチウム (III) -チオ尿素錯体 ($[\text{Tc}(\text{tu})_3]^{3+}$) は、テクネチウム (III) 錯体の出発物質として用いられている。演者らは先に、溶媒抽出法によってテクネチウム (III) -チオ尿素誘導体錯体とピリミジン誘導体との反応について調べ、チオ尿素誘導体の置換基の違いにより反応速度が大きく異なることを明らかにした。今回は、テクネチウム (III) -チオ尿素誘導体錯体の錯形成反応を可視スペクトル変化を追跡することにより、速度論的に解析し、その反応機構および反応速度に対するチオ尿素誘導体の置換基の効果について検討する。

【実験】

$^{99}\text{TcO}_4^-$ は Amersham 製のものをそのまま用いた。所定濃度のチオ尿素誘導体 (チオ尿素, N-メチルチオ尿素 [Me-tu], N,N'-ジメチルチオ尿素 [Me-tu-Me], N,N'-ジエチルチオ尿素 [Et-tu-Et] およびテトラメチルチオ尿素 [Me_2tuMe_2]) の 1 M 塩酸溶液に $^{99}\text{TcO}_4^-$ 溶液を加え、赤橙色に変化する溶液の紫外可視スペクトルを測定し (Beckman DU-7500)、その時間変化を追跡した。反応容器 (=測定用石英セル) は 25°C に保った。反応溶液中のテクネチウムの濃度は液体シンチレーション計数器で放射能を測定して求めた ($1.6 \sim 2.1 \times 10^{-4}$ mol/l)。

【結果および考察】

図1に0.25Mチオ尿素を用いた場合のスペクトル変化を示す。図から少なくとも2つの反応が認められる。1つは反応初期にみられる400nm付近に幅広いピークを持つ化学種の生成反応 (No.1, 2)、もう1つが反応後期における429nmと488nmにピークを持つ $[\text{Tc}(\text{tu})_3]^{3+}$ の生成反応で、335nm, 400nmおよび570nm付近に等吸収点が認められる。まずは等吸収点を持つ反応後期について解析を行った。等吸収点を持つことからスペクトル的には2成分系であると仮定し、さらにチオ尿素の濃度がテクネ

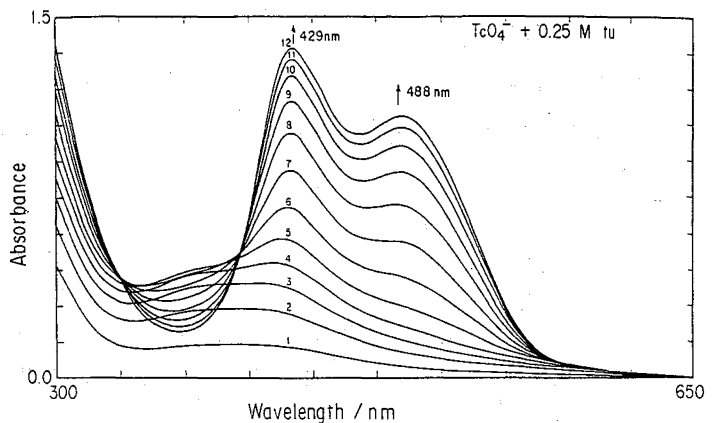


Fig.1 Electronic Spectrum change of technetium ($[\text{Tc}]_0 = 2.02 \times 10^{-4}$ M) by the reaction with thiourea ($[\text{tu}]_0 = 0.25\text{M}$) in 1M HCl.
Reaction time (min): 1-1.5, 2-3.5, 3-5.5, 4-7.5, 5-9.5, 6-11.5, 7-13.5, 8-15.5, 9-17.5, 10-19.5, 11-21.5, 12-23.5

チウムの濃度に比べて大過剰であることから擬一次反応としての解析を試みた。擬一次反応が成り立っていれば、次式で表される関係が成り立つはずである。

$$\ln \left\{ \frac{(A_{\infty} - A_{t_1})}{(A_{\infty} - A_t)} \right\} = k_{obs} (t - t_1) \quad (1)$$

ここで、 A_{∞} 、 A_{t_1} および A_t はそれぞれ反応終了時、反応時間 t_1 および反応時間 t における429nmまたは488nmの吸光度である。 t_1 は吸収スペクトルがほぼ429nmおよび488nmにピークを持つようになった時の反応時間である（等吸収点を持つようになってからしばらく後）。図2にチオ尿素の濃度を変化させた場合（0.05 ~ 0.5M）の488nmでの $\ln \left\{ \frac{(A_{\infty} - A_{t_1})}{(A_{\infty} - A_t)} \right\}$ と $(t - t_1)$ の関係を示す。いずれの場合にも直線関係が得られ、(1)式が成立していることが認められた。図2の直線の傾きから求めた見かけの反応速度定数 k_{obs} の値とチオ尿素濃度の関係を図3に示す。 k_{obs} の値はチオ尿素濃度の二次に比例することが認められた。さらに、種々のチオ尿素誘導体を用いた場合について検討し、反応機構について考察する。

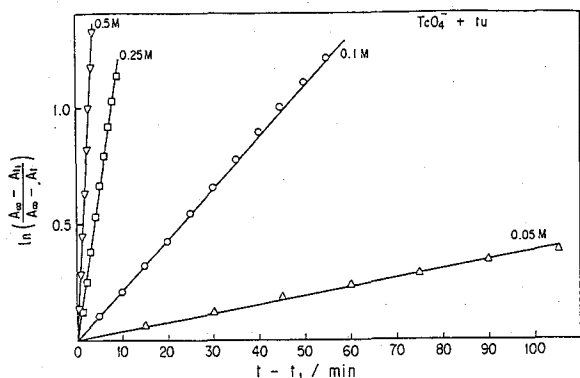


Fig.2 Pseudo-first-order rate plot for formation of $[\text{Tc}(\text{tu})_6]^{3+}$ in different thiourea concentration at 25°C

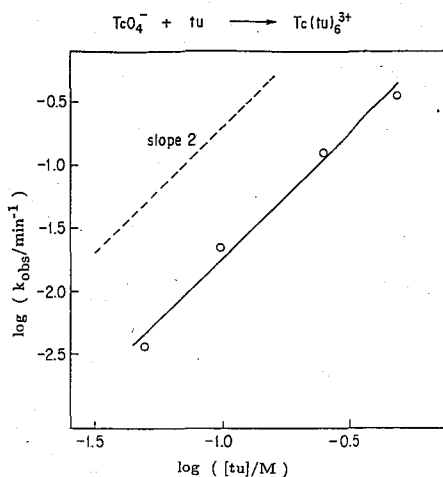


Fig.3 Effect of thiourea concentration on k_{obs}

REACTIONS OF TECHNETIUM WITH THIOUREA DERIVATIVES

Kazuyuki HASHIMOTO, Japan Atomic Energy Research Institute

Takashi OMORI, Faculty of Science, Shizuoka University

Reactions of pertechnetate ion with thiourea derivatives [tu, Me-tu, Me-tu-Me, Et-tu-Et, Me₂-tuMe₂] were investigated by spectrophotometry. Two reactions were observed through the formation of technetium thiourea derivative complexes. The apparent rate constants of these two reactions were determined by the pseudo first-order kinetic equation.

3A03

テクネチウムニトリドコアをもつ EDTA 錯体等の 合成とキャラクタリゼーション

(東北大理) ○高山 努・A.Mutalib・可児祐子
関根 勉・吉原賢二

【はじめに】

Tc≡N コアは T=O コアと比較して、加水分解に対して安定であるだけでなく、置換反応においてもその安定性が確かめられている。このことは水溶液中における配位子置換反応において有利な条件である。昨年放射化学討論会(第 36 回)においては Tc^V≡N の β-ジケトン錯体の合成等について発表した。今回は Tc^{VI}≡N コアをもつコンプレキサンとの錯体合成をめざした。出発物質として Na[TcNCl₄] を用い、EDTA(ethylenediaminetetraacetic acid) との配位子交換反応により、新たに TcN-EDTA 錯体を合成した。得られた錯体のキャラクタリゼーションを、IR スペクトル、UV スペクトル、電気泳動、元素分析等により行った。

【実験】

出発物質となる Na[TcNCl₄] は Baldas ら¹⁾の方法により、濃塩酸中、TcO₄⁻(アンモニウム溶液 2.0ml:1.3×10⁻⁴mol:4.8MBq) と NaN₃(70mg:1.1×10⁻³mmol) を還流させることで合成した。溶媒を留去後、残渣に少量の蒸留水を加え、その溶液に当量の Na₂edta·2H₂O を含む水溶液(1ml)を滴下すると直ちに赤紫色の沈殿を生じた。沈殿を濾過後、蒸留水とエタノールで洗浄した(収率 80% Tc 基準)。結晶の水溶液について UV スペクトルの測定を行った。さらに pH 7, 0.05 M のリン酸緩衝溶液中で濾紙電気泳動を行った。また、結晶については KBr ペレットによる IR スペクトルの測定を行うとともに、元素分析および比放射能の測定より、C, H, N, Tc の各元素の組成を調べた。

【結果と考察】

得られた結晶は、有機溶媒および酸には溶解しなかった。一方、蒸留水にはやや溶け、赤紫色の溶液を与える。その UV スペクトルは λ_{max}=505nm, ε=1060 M⁻¹·cm⁻¹ の吸収ピークを示した。電気泳動の結果、溶液に含まれる化学種は負イオンとして存在していることがわかり、またその電荷は TcO₄⁻ の泳動距離との比較により、低電荷であると考えられる(Fig.1)。結晶の水溶液は低 pH にすると再び赤紫色の同じ沈殿を生じた(pH < 4)。またアルカリ性(pH > 11)にすると溶液は黄色に変化し、UV での 505nm の吸収ピークは消えるが、溶液を再び酸性にしても吸収は回復しなかった。これより、この錯体がアルカリ性において不安定であることがわかった。IR スペクトル(KBr-pellet)の特徴的な吸収は、3000, 1650(C=O), 1385, 1361, 1295, 1091, 1050(Tc≡N), 930, 906, 713, 625, 600, 495 cm⁻¹であった。これより、この化合物が Tc≡N と EDTA からなるものであることが示された。元素分析の結果は Table 1 のようになった。その結果、Tc 原子 1 個に対する、C, H, N の各原子数はそれぞれ 10.02, 18.94, 3.09 個となった。このことから、Tc≡N コアと EDTA 分子が 1:1 の比で結合していることが示唆される。単核錯体であると仮定すると TcN(Hedta)·3H₂O の組成と一致する。錯体形成に関与していないカルボキシル基の酸解離が、沈殿の溶解および再沈殿に影響していると考えられる。

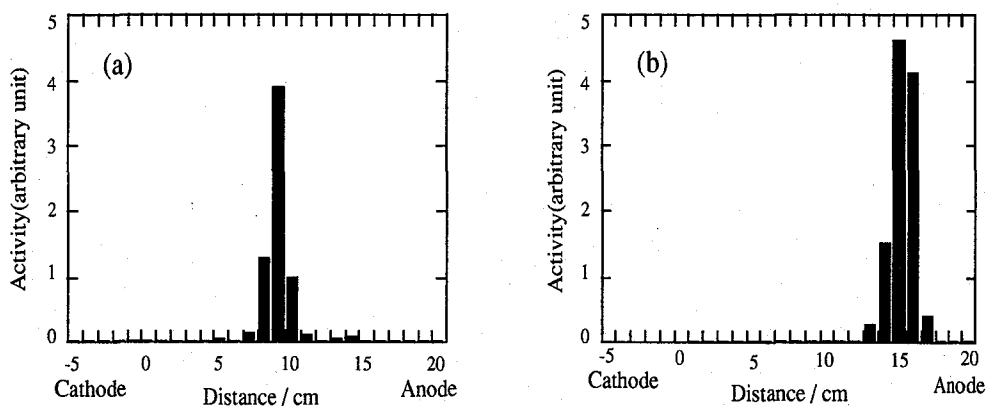


Fig.1. Electrophoretic separation in 0.05M phosphate buffer at pH7.

(a) TcN-EDTA complex (b) TcO_4^-

Table 1. Elemental analysis of $\text{TcN}(\text{Hedta}) \cdot 3\text{H}_2\text{O}$

Element	Exp. /%	Calc. /%
Tc	21.12	21.69
C	25.64	26.32
H	4.04	4.19
N	9.24	9.20

References

- 1) J. Baldas et al., J. Chem. Soc., Dalton Trans., 1798 (1981).
- 2) M. Hashimoto et al., J. Radioanal. Nucl. Chem., Lett., 153, 283 (1991).

SYNTHESIS AND CHARACTERIZATION OF NEW NITRIDOTECHNETIUM-EDTA COMPLEX

Tsutomu TAKAYAMA, Abdul MUTALIB, Yuko KANI, Tsutomu SEKINE, Kenji YOSHIHARA

Faculty of Science, Tohoku University

There are growing interests in preparation of nitrido core technetium complex compounds. A new complex with EDTA, TcN-EDTA, was synthesized starting from $^{99}\text{TcNCl}_4^-$. It was confirmed that the empirical formula of this compound is $\text{TcC}_{10}\text{H}_{19}\text{N}_3$ by elemental analysis (Table 1). The IR spectrum shows absorption bands $\text{Tc} \equiv \text{N}$ and $\text{C} = \text{O}$ corresponding to the formation of a $\text{Tc} \equiv \text{N}$ core complex with EDTA. This material shows slightly soluble in water and its optical spectrum has an absorption maximum at 505nm with $\epsilon = 1060 \text{ M}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$. The solution was analyzed by means of paper electrophoresis in 0.05M phosphate buffer of pH 7 and it shows that the product behaves as an anion in aqueous media (Fig. 1).

3A04 $\text{Fe}(\text{phen})_3^{2+}$ による過テクネチウム酸イオンの分光光度定量

(静岡大理) ○大森 巍, 渡邊絵美子, 菅沼英夫

【緒言】

テクネチウムの分光光度法による定量法に関しては、チオシアン酸塩¹, トルエン-3,4-ジチオール²などを用いる方法が報告されているが、テクネチウムの化学的性質がよく分からなかった時期における研究である。これらの方法はいずれもテクネチウム(VII)の還元過程を含んでおり、操作の簡便さおよび再現性などに問題があり、またこれらの錯体を合成、単離同定した結果とは異なっている。したがって定量法として採用されることは現在ではほとんどないといってよい。しかし⁹⁹Tcを用いてマクロ量のテクネチウムが取り扱われる現在、分光光度法による簡便なテクネチウムの定量法の開発が望まれている。

これまでトリス(1,10-フェナントロリン)鉄(II)イオンと陰イオンとのイオン対形成反応を利用して、これをニトロベンゼン相に抽出することによって、陰イオンを定量することが試みられている³。この反応を利用すれば、テクネチウムのなかで最も安定な過テクネチウム酸イオンのままで定量できる可能性がある。本研究ではテクネチウム(VII)の還元過程を含まない新しい分光光度法について検討した。

【実験】

過テクネチウム酸アンモニウムはRadiochemical Centre (Amersham) より入手した。試薬はすべて特級品をそのまま使用した。

過テクネチウム酸($<8 \times 10^{-5}$ M) を含む 5×10^{-5} M Fe(II) および 2×10^{-4} M 1,10-フェナントロリン(phen) 水溶液 5 cm^3 にニトロベンゼン 5 cm^3 を加えて、 25°C で 210 分振り混ぜた。水相の pH は 0.001 M 酢酸塩を用いて 4.4 に調整し、またイオン強度は塩化ナトリウムを用いて 0.5 に調整した。両相が平衡に達した後、有機相の 516 nm における吸光度を分光光度計で測定して、有機相に抽出されたテクネチウムの濃度を求めた。また水相から一定量とり、⁹⁹Tc の放射能を液体シンチレーションカウンタで測定し、標準溶液の放射能と比較して過テクネチウム酸イオンの分配比を求めた。

【結果および考察】

トリス(1,10-フェナントロリン)鉄(II)イオン($\text{Fe}(\text{phen})_3^{2+}$) は非常に安定であり、pH 3 以上では定量的に錯イオンが生成するが、本実験では過剰の1,10-フェナントロリンが存在し、pH 4.4 という条件で、 $\text{Fe}(\text{phen})_3^{2+}$ を生成させた。また pH 調整に用いた酢酸塩濃度は、 $\text{Fe}(\text{phen})_3^{2+}$ と酢酸塩とのイオン対のニトロベンゼン相への抽出が無視できるように、0.001 M に抑えた。

$\text{Fe}(\text{phen})_3^{2+}$ と過テクネチウム酸イオンとのイオン対が分配平衡に達する時間は10分以内と報告されている³が、本実験では3時間以上要した。これはincubator中で振り混ぜたためである。

図1に示されているように、ニトロベンゼン相に抽出された錯イオン対の吸光度と水相に最初に加えた過テクネチウム酸イオン濃度との間には直線関係があることが認められた。なお過テクネチウム酸イオンが存在しなくても、塩化物イオンとのイオン対が抽出される分の補正をしている。こ

の結果は、過テクネチウム酸イオン濃度が $\text{Fe}(\text{phen})_3^{2+}$ 濃度の2倍量を超えないかぎり、容易に過テクネチウム酸イオン濃度を分光光度法によって定量できることを示している。

イオン対抽出機構を検討するために過テクネチウム酸イオンの分配比 D を放射化学的に求めた。ここで分配比は、有機相の単位体積中のテクネチウムの放射能の水相中のそれとの比として求めた。過テクネチウム酸イオンの分配比と最初に加えた過テクネチウム酸イオン濃度との関係は、図2に示されている。過テクネチウム酸イオン濃度の増加と共に分配比が減少する傾向が見られる。

これまでイオン対抽出種は、 $[\text{Fe}(\text{phen})_3]\text{X}_2$ (X: 1価の陰イオン) のように考えられていた³。しかし本研究のように多量の塩化物イオンが存在するような条件下で過テクネチウム酸イオンの分配挙動を解析すると、 $[\text{Fe}(\text{phen})_3]\text{TcO}_4\text{Cl}$ のようなイオン対も抽出されている可能性が示唆された。この点に関してはさらに検討中である。

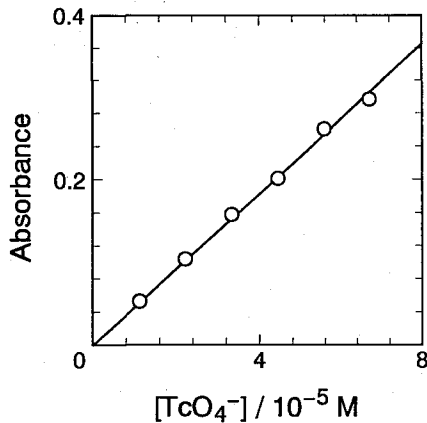


Fig.1. A relation between the absorbance in the organic phase and the initial concentration of pertechnetate

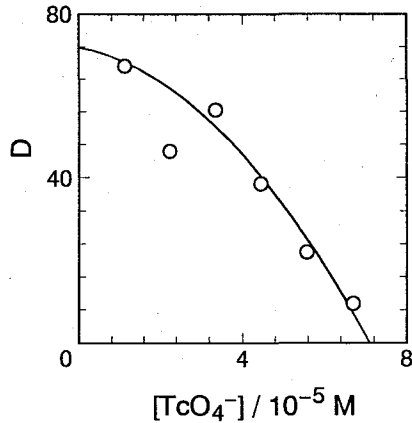


Fig.2. D vs. $[\text{TcO}_4^-]_i$

References

1. O.H.Howard, C.W.Weber, *Anal. Chem.*, **34**, 530 (1962).
2. F.J.Miller, R.F.Thomason, *Anal. Chem.*, **33**, 404 (1961).
3. 山本, 分析化学, **21**, 418 (1972).

A NEW METHOD FOR THE SPECTROPHOTOMETRIC DETERMINATION OF PERTECHNETATE WITH TRIS(1,10-PHENANTHROLINE)IRON(II)

Takashi OMORI, Emiko WATANABE and Hideo SUGANUMA, Faculty of Science, Shizuoka University

A new method for the spectrophotometric determination of technetium has been developed. The most remarkable feature is based on the simple extraction of pertechnetate with tris(1,10-phenanthroline)iron(II) into nitrobenzene. A plausible distribution mechanism of the ion-pairs will be discussed.

(静岡大理) ○大森 巍・村岡薫子・菅沼英夫

【緒言】

テトラフェニルアルソニウム塩化物 (TPAC) は、沈殿剤および溶媒抽出試薬として広く用いられている。実際過テクネチウム酸イオンの溶媒抽出分離にも用いられ、水素イオン濃度の低い溶液からクロロホルム相への抽出のされやすさは $\text{H}_2\text{SO}_4 > \text{HCl} > \text{HBr} > \text{HNO}_3$ の順序になっている¹。また抽出定数 K は、

$$K = \{[\text{RTcO}_4]_o[\text{Cl}^-]_a\} / \{[\text{TcO}_4^-]_a[\text{RCl}]_o\} \quad (1)$$

のように表される。ここで RCl は TPAC を、添字 o および a は有機相および水相を意味している。しかし TPAC の分配が複雑なこともあって、過テクネチウム酸イオンの TPAC による抽出機構を記述するパラメータは必ずしも求められていない。本研究では、先ず TPAC の分配機構を再検討し、これを基にして過テクネチウム酸イオンの TPAC による抽出機構を検討した。

【実験】

過テクネチウム酸アンモニウムは Radiochemical Centre (Amersham) より入手した。テトラフェニルアルソニウム塩化物(Dotite TPAC) および他の試薬は特級品をそのまま使用した。TPAC の分配比は、所定濃度の TPAC を含むクロロホルム溶液と水相とを 2 時間 25°C で振り混ぜて求めた。水相のイオン強度は、塩酸および塩化ナトリウムで 1.0 に調整した。平衡に達した後、両相から一定量とり、分光光度法によって TPAC の濃度を求めた。過テクネチウム酸イオンの分配比も同様の操作によって求めた。すなわち TPAC-クロロホルム溶液と 2.2×10^{-5} M 以下の過テクネチウム酸イオンを含む水溶液とを 25°C で 2 時間振り混ぜた。両相の ^{99}Tc の放射能を液体シンチレーションカウンタで測定して分配比を求めた。用いたテクネチウムの化学形は予めペーパークロマトグラフィーによって確認した。

【結果および考察】

分光光度法によって求められた TPAC の分配比 D_R の水素イオン濃度依存性が図 1 に示されている。TPAC がクロロホルム相においては単量体としてのみ存在すると仮定し、次式で表される平衡定数

$$K_1 = [\text{R}^+]_a[\text{Cl}^-]_a / [\text{RCl}]_a \quad (2)$$

$$K_2 = [\text{RClH}^+]_a / \{[\text{RCl}]_a[\text{H}^+]_a\} \quad (3)$$

を考慮に入れて TPAC の分配曲線を解析し、TPAC の分配定数 $D_{R,0}$ ($= [\text{RCl}]_o / [\text{RCl}]_a$) および K_2 を決定した。なお K_1 としては文献値² 0.079 を用いた。

$D_{R,0} = 29.5$ および $K_2 = 1.36$ (25°C)
過テクネチウム酸イオンの分配比の水素イオ

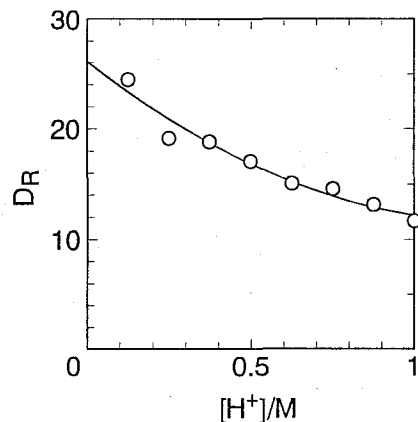


Fig. 1. A plot of D_R against $[\text{H}^+]$ at 25°C
I = 1.0 (HCl+NaCl)
 $[\text{TPAC}]_i = 1.00 \times 10^{-5}$ M

ン濃度依存性について求めた結果が図2に示されている。また水素イオン濃度が一定の条件では、過テクネチウム酸イオンの分配比はTPACの濃度に比例して増加することが認められた。過テクネチウム酸の水相での解離定数 K_a

$$K_a = \frac{[H^+]_a [TcO_4^-]_a}{[HTcO_4]_a} \quad (4)$$

を考慮すると、過テクネチウム酸イオンの分配比 D_{Tc} は次式のように導かれる。

$$D_{Tc} = K \{ [RCl]_o / [Cl^-]_a \} \{ K_a / (K_a + [H^+]_a) \} \quad (5)$$

ここで $[RCl]_o$ はTPACの分配平衡より求められるから、(5)式を変形して $D' = D_{Tc} [Cl^-]_a / [RCl]_o$ とおいて、 $1/D'$ を $[H^+]$ に対してプロットすれば、 K および K_a を求めることができる。図3に示されている $1/D'$ と $[H^+]$ との関係から

$$K = (2.99 \pm 0.19) \times 10^4 \text{ および } K_a = 10.5 \pm 4.2 \text{ (25}^\circ\text{C)}$$

と求められた。

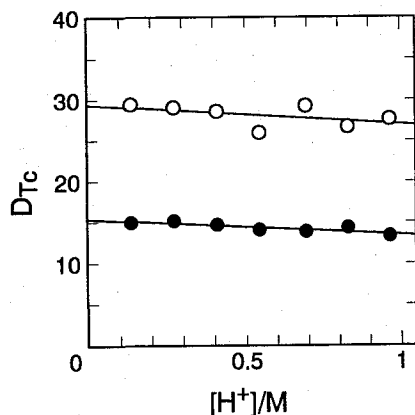


Fig. 2. Dependence of D_{Tc} on the concentration of hydrogen ion at 25°C

$I = 1.0$ (HCl+NaCl); ●: $[TPAC]_i = 5.00 \times 10^{-4}$ M; ○: $[TPAC]_i = 1.00 \times 10^{-3}$ M

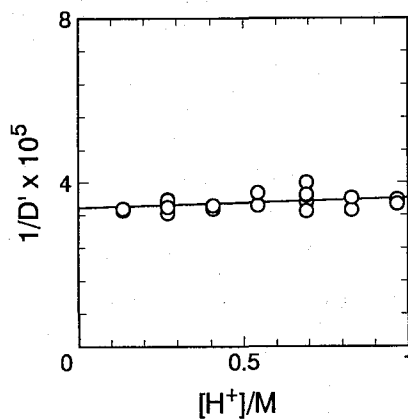


Fig. 3. $1/D'$ vs. $[H^+]$ at 25°C
 $I = 1.0$ (HCl + NaCl)

References

1. N. Souka, A. S. Ali, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **26**, 271(1975).
2. J. S. Fock, Z. Hugus, E. B. Sandell, *Anal. Chim. Acta*, **48**, 243(1969).

SOLVENT EXTRACTION MECHANISM OF PERTECHNETATE WITH TETRAPHENYLARSONIUM CHLORIDE

Takashi OMORI, Yukiko MURAOKA and Hideo SUGANUMA, Faculty of Science, Shizuoka University

A systematic study of extraction of pertechnetate with tetraphenylarsonium chloride (TPAC) in chloroform from aqueous solutions was carried out at 25°C at ionic strength 1.0. Fundamental parameters governing the distribution equilibrium of TPAC were determined. Extraction behavior of pertechnetate was established on the basis of the distribution mechanism of TPAC.

(原研) ○渡辺 智・橋本和幸・石川 勇

【はじめに】

医療診断による ^{99m}Tc の使用量は、放射性医薬品全体の中で最も多く、また年々増加傾向にある。 ^{99m}Tc は、半減期6hで核異性体転移により ^{99}Tc になる。 ^{99}Tc は、半減期が 2.1×10^5 yと比較的長いことから環境への放出は無視できない。本研究では、医療診断に用いたテクネチウムを尿から回収する効率のよい簡便な方法を開発することを考え、その基礎的実験を行った。放射性医薬品としてテクネチウムの化学形はさまざまなものがあるが、まず過テクネチウム酸イオンに着目した。塩酸-TBP、水酸化ナトリウム-メチルエチルケトン、水酸化ナトリウム-ピリジンの3種の抽出系において、尿に過テクネチウム酸イオンを加えたときのテクネチウムの溶媒抽出挙動を調べた。

【実験】

^{99m}Tc トレーサー 三酸化モリブデンを中性子照射し、5 M水酸化ナトリウムに溶解し、ピリジン-ベンゼン混合溶媒により ^{99m}Tc を抽出し、蒸発乾固の後、純水に溶解して ^{99m}Tc トレーサー溶液とした。 γ 線スペクトロメトリーによりモリブデンの混入がないことを確かめ、ペーパークロマトグラフィーによりテクネチウムの化学形を確認して使用した。

溶媒抽出 塩酸-TBP、水酸化ナトリウム-メチルエチルケトン、水酸化ナトリウム-ピリジンの3種の抽出系において塩酸および水酸化ナトリウム濃度を変化させたときのテクネチウムの分配比を調べた。尿1 mlに所定濃度の塩酸 (TBP抽出用) または水酸化ナトリウム (メチルエチルケトンおよびピリジン抽出用) 1 ml、 ^{99m}Tc トレーサー溶液50 μl を加え30分間放置後、有機相 (TBP、メチルエチルケトン、ピリジン:ベンゼン=7:3混合溶媒) 2 mlを加えて25°Cで抽出した。遠心分離の後、水相および有機相を1 mlずつ採取し、 ^{99m}Tc の γ 線をNaI(Tl)シンチレーション検出器で測定し、テクネチウムの分配比 (有機相中のテクネチウム濃度/水相中のテクネチウム濃度) を求めた。また、比較対象として尿1 mlの代わりに純水1 mlを加えたものも同時に行った。

【結果と考察】

TBP、メチルエチルケトン、ピリジン抽出系における塩酸および水酸化ナトリウム濃度とテクネチウムの分配比との関係をFig. 1からFig. 3に示す。いずれの抽出系においても、実験したすべての濃度にわたって尿を加えた場合のほうが尿を加えない場合よりも分配比が低くなることがわかった。また、いずれの抽出系においても尿を加えた場合には放置時間依存性があり、放置時間経過に伴いテクネチウムの分配比は徐々に減少することがわかった。5 M NaOH-メチルエチルケトン抽出系の例をFig. 4に示した。

これらの現象の原因を解明するため、ペーパークロマトグラフィーによりテクネチウムの化学形を調べ、尿の効果についてさらに検討を加えた。

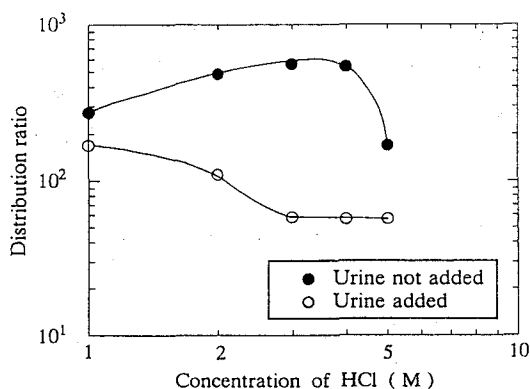


Fig. 1 Distribution ratio of technetium as a function of the concentration of HCl in HCl-TBP.

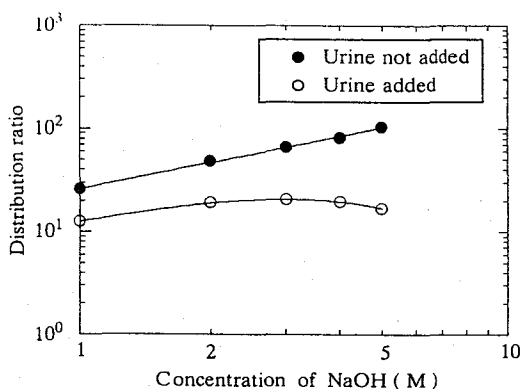


Fig. 2 Distribution ratio of technetium as a function of the concentration of NaOH in NaOH-methyl ethyl ketone.

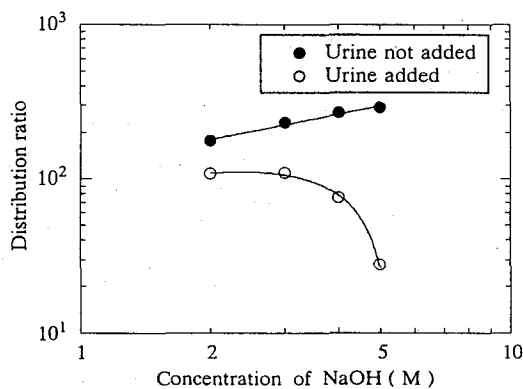


Fig. 3 Distribution ratio of technetium as a function of the concentration of NaOH in NaOH-pyridine.

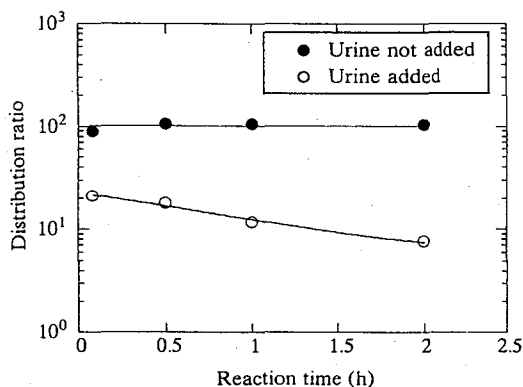


Fig. 4 Distribution ratio of technetium as a function of reaction time in 5 M NaOH-methyl ethyl ketone.

SOLVENT EXTRACTION OF TECHNETIUM IN URINE

Satoshi WATANABE, Kazuyuki HASHIMOTO, Isamu ISHIKAWA

Japan Atomic Energy Research Institute

Solvent extraction behavior of technetium in urine was investigated in HCl-TBP, NaOH-methyl ethyl ketone and NaOH-pyridine. Distribution ratio of technetium was determined as a function of HCl and NaOH concentration or reaction time. It was found that distribution ratio of technetium with urine was smaller than that without urine at each concentration of HCl and NaOH in all extraction systems, and that distribution ratio gradually decreased with a increase of reaction time.

(阪大理) ○民谷由紀子・矢野大作・高橋成人・馬場 宏

【はじめに】 ヨウ素の有機相-水相間の分配比 D は、ヨウ素濃度が約 $10^{-5}M$ 以下の領域で化学平衡より計算された値よりもかなり低くなることが知られている¹⁾。このような挙動は気相-水相間の分配においても見られ²⁾、低濃度ヨウ素の溶液中における溶存状態の特異性として興味を持たれている。

我々は ^{131}I (半減期約8日) をトレーサーとして、ヨウ素について $10^{-3}M$ からキャリアーフリーまでの幅広い濃度範囲にわたりその分配挙動を調べた。さらに、有機相に抽出されたヨウ素について、ラジオガスクロマトグラフ装置 (RGC) を用い化学種の分析を行いその化学形を調べ、抽出挙動に関する知見を得た。

【実験】 (試料) ^{131}I は日本アイソトープ協会より購入した $Na^{131}I$ (キャリアーフリー) を、 $0.2M NaOH/1mM Na_2SO_3$ 溶液に溶解、 $^{131}I^-$ 溶液としたものを使用した。また、これとは別にヨウ素キャリアー溶液として種々の濃度に調製した I^- 溶液を準備した。 $^{131}I^-$ 溶液の濃度は一定量を Ag 箔上に滴下し乾燥させた後、 Ge 半導体検出器による γ 線スペクトロメトリーにより決定した。

(溶媒抽出) (1) $^{131}I^-$ 溶液のみ (2) $^{131}I^-$ 溶液+ヨウ素キャリアー溶液の各試料に $1.4M HNO_3/0.1M H_2O_2$ 溶液を加え酸化した後、二硫化炭素への抽出を行った。遠心分離後、各相を $1cm^3$ ずつピペットで取り出し、それぞれの放射能強度を $NaI(Tl)$ シンチレーションカウンターで測定しその強度比より分配比 D を算出した。さらに抽出後の有機相についてはアルカリ溶液への逆抽出実験及び RGC 法による化学種の分析を行った。

【結果と考察】 酸化時間と分配比 D の関係について実験を行ったところ図1のような結果を得た。これより2時間以上の酸化で十分平衡に達することが分かる。以下に述べる実験結果は十分平衡に達した時のデータである。まず、ヨウ素の硝酸溶液-二硫化炭素間の分配比 D 及びアルカリ溶液への逆抽出時の分配比 D_{back} と初期ヨウ素陰イオン濃度 (酸化前のヨウ素陰イオン濃度) の関係について得られた実験結果を図2に示す。分配比 D は初期ヨウ素濃度に強く依存しており、 $10^{-5}M$ 付近を境に大きく変化することが分かる。このような挙動は先にも触れた通り、ヨウ素の既知の化学平衡からは説明できない。また逆抽出時の分配比 D_{back} は分配比 D とは全く逆の相関関係を示すことが分かった。

ヨウ素濃度の異なる2点、(a) キャリアーフリー及び (b) $^{131}I^-$ 溶液+ヨウ素キャリアー溶液 ($[I^-]_{init}=4 \times 10^{-3}M$) の各サンプルについて溶媒抽出後、その有機相の一部を採取し RGC 分析したところ図3のようなクロマトグラムが得られた。試料 (a) 及び試料 (b) のピーク位置は明らかに違い、濃度の異なるこの2点においてヨウ素は互いに異なる化学形で有機相に抽出されていることが分かる。試料 (b) で抽出されるヨウ素の化学形が I_2 であることは吸収スペクトルを得ることによって確認した。一方、試料 (a) では、溶液中に不純物として存在する有機物 R との反応生成物 IR として抽出されているのではないかと思われる。

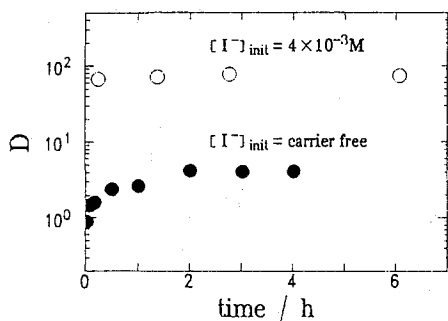


Fig. 1 Variation of the distribution ratios of iodine with time. Open and closed circles stand for the results at $4 \times 10^{-3} \text{M}$ and carrier free, respectively.

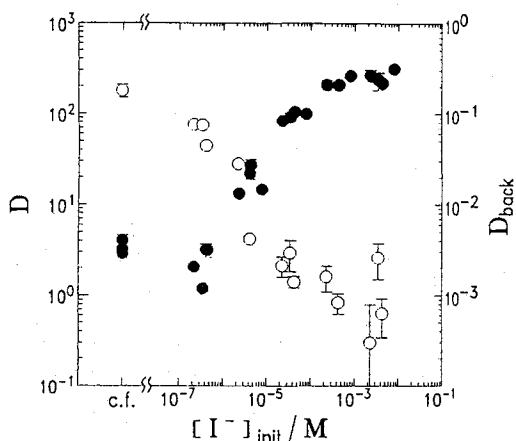


Fig. 2 Variation of the distribution ratios of iodine as a function of the total concentration of iodine. Closed and open circles stand for extraction and back-extraction experiments, respectively.

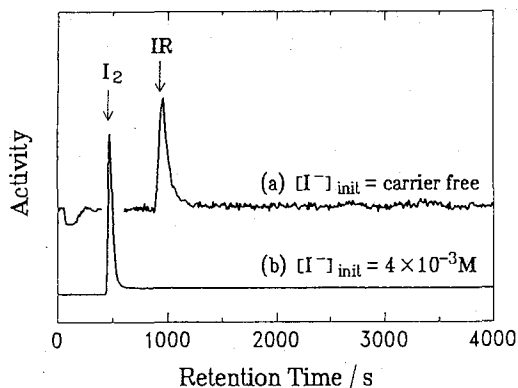


Fig. 3 Radiochromatograms obtained for (a) carrier-free iodine and (b) iodine ($[I^-]_{\text{init}} = 4 \times 10^{-3} \text{M}$).

【参考文献】

- 1) Wille, R., Good, M.: J. Am. Chem. Soc. 79, 1040 (1957).
- 2) Lieser, K. H., et al.: Radiochim. Acta 48, 193 (1989).

CHEMICAL BEHAVIOR OF RADIOIODINE (1)

Yukiko TAMIYA, Daisaku YANO, Naruto TAKAHASHI, Hiroshi BABA, Faculty of Science, Osaka University

Solvent extraction behavior of iodine between carbon disulfide and nitric acid was studied as a function of the initial concentration of iodine. Tracer techniques and radio gas chromatographic methods were used. A drastic change in the distribution ratio was found around at 10^{-5}M and this change might be attributable to the existence of two different chemical forms at low and high concentrations of iodine.

(阪大理) ○矢野大作・民谷由紀子・高橋成人・馬場 宏

前講演で述べたように、ヨウ素の有機相-水相間の分配比 D は抽出系に含まれるヨウ素濃度に強く依存するが、これは低濃度領域においてヨウ素がヨウ素分子 I_2 以外の化学種を生成するためであることが指摘された。このような挙動は以下に示すような、トレーサーとして使用した放射性ヨウ素 I^* が、キャリアーとして加えたヨウ素の濃度によって異なる反応を経るためであると考えられる。

【反応 I】 低濃度領域において放射性ヨウ素 I^* は、主として溶液中に含まれる不純物 R と反応する。



反応生成物 I^*R はヨウ素の同位体交換をほとんど起こさないことが分かっており、反応は右方向へのみの不可逆反応である。 R の濃度は放射性ヨウ素濃度に比べ十分大きいものとし k_1 に含めている。キャリアーフリー状態にある I^{*-} イオンの酸化時間と分配比 D の関係については図 1 のような結果が得られており、これに式 (1) をフィッティングさせることで $k_1 = 1.5 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ という値を得ることができる。

【反応 II】 過剰のヨウ素キャリアーが存在する場合、放射性ヨウ素 I^* はヨウ素分子 I_2 との同位体交換反応が主たる反応となる。



一般に【反応 I】と【反応 II】の両過程の共存下での I^{*-} イオン濃度の変化量は次式で表される。

$$\frac{d[I^{*-}]}{dt} = -(k_1 + k_2[I_2])[I^{*-}] \quad (3)$$

放射性ヨウ素の濃度はキャリアーとして加えたヨウ素濃度に比べ非常に小さいため、ヨウ素分子 I_2 の濃度はほとんど変化しないとみなせる。従って、

$$\frac{d[I_2]}{dt} = 0 \quad (4)$$

とおくことができ、これにより式 (1) ~ (3) を解くことができる。分配比 D は有機相・水相両相の放射能強度比、

$$D = \frac{[I^*I]_o + [I^*R]_o}{[I^*I]_{aq} + [I^*R]_{aq} + [I^{*-}]} \quad (5)$$

と観測される。添字の o , aq はそれぞれ有機相、水相を表す。 I_2 及び I^*R の分配係数を用い、式 (1) ~ (3) の解を式 (5) に代入すると、

$$D = f([I_2], \text{time}) \quad (6)$$

となり、分配比 D は溶液中のヨウ素分子 I_2 の濃度と酸化時間の関数として表わされることになる。

k_2 の値を $3 \times 10^3 \text{ M}^{-1}\text{s}^{-1}$ 、放射性ヨウ素の初期濃度を 10^{-14} M とし、式 (6) より分配比 D の計算値を求めたところ図 2 のようになり、ヨウ素の分配比 D の変化をうまく説明できることが分かった。

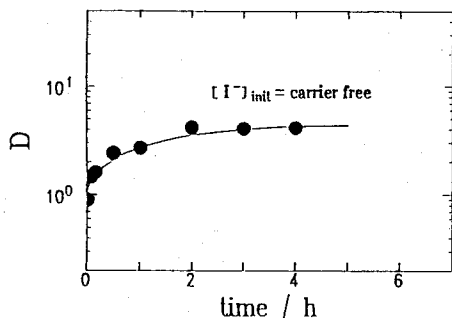


Fig. 1 Variation of the distribution ratios of radioiodine with time. The experimental points are fitted with Eq. (1) (solid line).

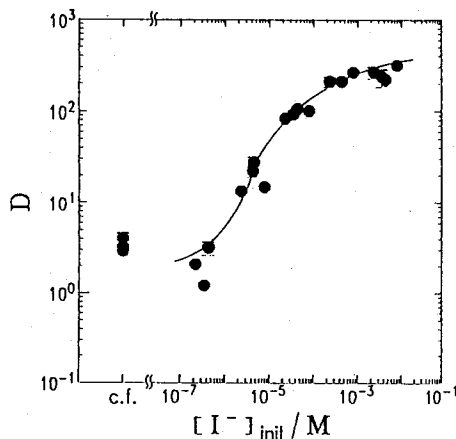


Fig. 2 Variation of the distribution ratios of iodine as a function of the total concentration of iodine in the solutions. Solid line represents the results calculated from Eq. (6).

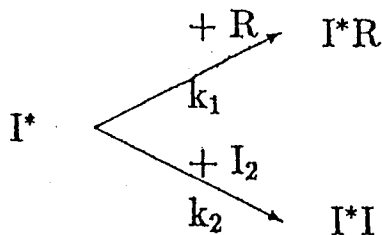


Fig. 3 The reaction scheme of radioiodine.

CHEMICAL BEHAVIOR OF RADIOIODINE (2)

Daisaku YANO, Yukiko TAMIYA, Naruto TAKAHASHI, Hiroshi BABA, Faculty of Science, Osaka University

Solvent extraction behavior of iodine between carbon disulfide and nitric acid as a function of the initial concentration of iodine was studied.

A drastic change in the distribution ratio was caused by the competition reaction of radioiodine which reacts with some chemicals to produce the unknown chemical species IR and iodine molecule I_2 .

