B　会　場

研　究　発　表　要　旨

1 B 1

〜

3 B 45

IB1

高純度無担体放射性同位元素の調製（第4報）

$^{154}Sm(n,\gamma)\,^{155}Sm \xrightarrow{\beta^-} {}^{155}Eu$ 反応による ^{155}Eu の調製

日本原子力研究所　○夏目晴夫，佐藤忠

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

われわれはさきにSm(p, xn)Eu反応による^{146}Euの分離について報告し，[1),2)] $^{154}Sm(n,\gamma)\,\xrightarrow{\beta^-}\,^{155}Eu$の分離も同様にして可能である附記した。このほどこの^{155}Euの分離を行い，満足な結果がえられたので報告する。

照射，溶解　^{149}Smの高い中性子吸収断面積（5×10^4 b）による自己遮蔽と$^{152}Sm(n,\gamma)\,^{154}Sm$の無用な副生放射能（放射化断面積:150 b）をさけるため，試料として濃縮安定同位元素^{154}Sm（同位元素濃度：99.21%）を輸入して使用した。その酸化物500～580 mg をアルミハクで包み，JRR－2の中性子束10^{13} n/cm²・secで3～4サイクル（99～132hr）照射した。不要の不純物および副生する^{156}Euの崩壊後（3～6ケ月），酸化物を $NHNO_3$溶解し，残存するアルミハクを洗浄除去して，溶液を蒸発乾固する。つぎに6NHCℓ 3mℓを加えて乾固する操作を3～4回くりかえして塩化物に転換する。最後に6NHCℓ 2～3滴，水少量を加え，加熱溶解してから全容約20～30 mℓとする。

分離　Daiaion SK－1, #100－200, NH_4R型樹脂をつめた，18mmφ×15cmおよび12mmφ×31cmカラム2本を接続する。これに前記試料溶液を通して希土類元素を吸着させる。少量の水で試料を入れたビーカーおよびカラム内壁を洗滌する。溶離液は，あらかじめ用意した原液，2.5 Mαハイドロオキシイソラク酸およびそのアンモニウム塩(NH_4B, pH：6.97）溶液からHB 77.5 NH_4B 22.5の割合に混合した0.5M 溶液をつくつて用いる。溶離速度は約60mℓ/hr以下に保つ。流出液はポリエチレン管をひいてつくつた導管およびスパイラルを通して受器に導く。スパイラルに接してGM計数管をおき，対数計数率計に接続する。記録された流出液の放射能を監視しつつ，適当な間隔で流出液滴を試料皿に受け，乾固してから放射能を測定する。試料溶液の通過部分とその後に不純物の流出が認められた。後者は^{46}Scであるが前者については詳細検討中である。その後^{155}Euの流出開始までは微量の放射能しか認められない。1例では^{155}Euは上記の条件で950－1650mℓの間に流出し，ピークは1205mℓ，半値巾は10.8%であつた。

Smの回収　Euが完全に流出してからカラムを水洗し，0.5Mクエン酸（H_3Cit）40，クエン酸アンモン〔$(NH_4)_2HCit$〕60混合液でSmを溶離する。Smは最初の50mℓ程度で完全に溶離される。これをHCℓ酸性として飽和$H_2C_2O_4$を同量加えて一夜放置してえた$Sm_2(C_2O_4)_3$をロ過，洗浄，焼灼して酸化物に転換する。Smの回収率は99%以上に達する。上澄液には^{60}Co，^{65}Znと考えられる不純物が見出された。この後の操作では著しい不純物は全く認め

られなかつた。

濃　縮　　流出したEu溶液を約100mℓずつ分取し，含まれるNH_4Bと当量の0.5 NHCℓを加え，2倍にうすめてDiaion SK－1，＃100－200，8㎜φ×20㎝，NH_4R型カラムに通過させる。流出液を濃縮後，放射能を検したが微量しか認められなかつた。主なEuフクシヨンを処理した後，水洗し，0.25 M H_3Cit40：$(NH_4)_2HCit$60混合液を5mℓずつ流す。流出液を10mℓビーカーにとり，放射能を検査する。通常第2および第3番目のフラクシヨンにEuのほとんど全量が流出する。しかし添加したHCℓ量の過不足により，第1フラクシヨンに流出したり，あるいははるかに後のフラクシヨンに流出したりすることもある。何れの場合にもフラクシヨン2個，計10mℓ中にEuは集り，その他のフラクシヨン中のEu量は無視し得る。

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

結　果　　原試料中に天然のEuを含めば^{155}Eu中に^{152}，^{154}Euが含まれるが，回収した$^{154}Sm_2O_3$をくり返し使用すれば完全に除去できる。最終製品中の他の不純物は直接検出できないので種々の見地から推定しているが，これまでの検討ではその可能性は見出されていない。

参考文献

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

1B2　　(p,n)反応による^{96}Nbおよび^{96}Tcの調製

東北大 理　　塩川孝信・○八木益男・佐々木貞吉・林部昭吾

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

^{96}Nbおよび^{96}Tcの生成は^{96}Zrおよび^{96}Moの(p,n)反応をそれぞれ利用するのが最適である。しかしこれら核種の生成は、その調製目的から^{96}Nbの場合は^{90}Nb(14.7時間)および^{92}Nb(10.1日)、^{96}Tcの場合は^{95}Tc(60日)等の同時に生成する核種をできるだけ少くしなければならない。それ故特に存在比2.8%の^{96}Zrは濃縮ターゲットを利用しなければならないし、存在比16.5%の^{96}Moもまたそれを必要とする。

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

2. 照射　$^{96}ZrO_2$および$^{96}MoO_3$を内部ターゲットとして、核研サイクロトロンにより14MeV陽子で衝撃した。

3. ^{96}Nbの分離調製　$^{96}ZrO_2$は重硫酸カリウムで溶融し融解物を1N硝酸に溶解する。弱アルカリ性にして水酸化物を沈殿させ、遠心分離後之固沈殿を洗滌する。沈殿を7N塩酸に溶解し、濃縮後Dowex 1×8(R-Cl型)樹脂柱に通し、6N塩酸で洗滌することによって通過するジルコニウムを分離する。ついで4N塩酸によってニオブを溶離し、えられたフラクションを濃縮して測定試料を調製する。ジルコニウムフラクションは濃縮後水酸化物とし、800°Cで灼熱、$^{96}ZrO_2$として回収する。

4. ^{96}Moの分離調製　$^{96}MoO_3$をアンモニア水に溶解し、過酸化水素水を添加、加温して酸化し蒸発乾固する。残渣を1N塩酸に溶解しDowex 1×8(R-Cl型)樹脂柱に通す。ついで1N塩酸で洗滌しモリブデンを分離、さらに1N水酸化ナトリウム溶液を流してモリブデンを完全に溶離する。十分水洗してから4N硝酸でテクネチウムを溶離し、テクネチウムフラクションは過酸化水素水を滴下しながら蒸発乾固する。最後にアンモニア水および過酸化水素水で処理して^{96}Tcの無担体溶液をうる。モリブデンフラクションは蒸発乾固後残渣をアンモニア水に溶解し、過酸化水素水を滴下、蒸発乾固する。残渣は加熱分解することにより$^{96}MoO_3$として回収する。

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

1B3 プロトアクチニウムの化学 I
^{231}Pa の精製及び ^{233}Pa の調製

東北大金研　鈴木進　○井上泰

プロトアクチニウムはアクチニド元素としての一般的性質を備へていることはもちろんであるが，むしろ週期律表の第5族に置いたほうが似つかわしいような性質も数多く知られている。しかしプロトアクチニウムには何等実用性が見出されておらず，水溶液が加水分解を受け易いために取扱が難かしいので従来から研究の数も比較的少く，分らない点も多い。従ってプロトアクチニウムの性質を正確に理解するためには基礎的な研究を更に推進する必要がある。また，プロトアクチニウムの化学的研究はトリウム－ウランサイクルの増殖炉に関連した核燃料化学的観点からも興味ある課題と考へられる。

本研究室では以上のような理由から，水溶液，非水溶液及び固体化合物などについてのプロトアクチニウムの化学的性質を種々の方法論を駆使して研究している。本報では先ず研究用の ^{233}Pa のトレーサー調製法並びに市販 $^{231}Pa_2O_5$ の精製法についての研究結果を報告する。

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

2) ^{231}Pa の精製：原料として Pa_2O_5 の形で英国の Radiochemical Center から購入したものを使用した。純度などに関して仕様書に何等記載がないので，発光分光分析を行うと共に α 線スペクトル，γ 線スペクトルの測定により，化学的，放射化学的純度の検査を

行った。その結果化学的不純物としてNbが3%程度含まれていることが分った。希土類元素の検出は困難であったが、一応考慮に入れる必要があると考へられる。放射化学的にはα放射能で測定して不純物が数%程度含まれていることが分った。^{231}Paの娘の半減期から^{227}Ac, ^{227}Th, ^{233}Paが主として問題となる不純物と考へられる。このような純度のPa_2O_5の精製にKraus, MooreのNb, Ta, Paのイオン交換分離法を改良して適用し良好な結果を得た。分離の一例を示すと、Cl^-型のDowex 1X8 (100~200メッシュ) 20mlの陰イオン交換樹脂柱(ϕ=9mm)にPa_2O_5 35mgを含む9N-HCl溶液を流しPaを樹脂柱に吸着させる。9N-HClで樹脂柱を充分に洗浄したのち、9N HCl+0.1N HF溶液30mlでPaを溶離する。流速は0.3~0.5ml/min. 流出液を白金皿上に集め、ほぼ蒸発乾固したのち水で希釈し、アンモニア水で中和し水酸化物を沈殿させ常法に従ってPa_2O_5として秤量する。収量29.8mgで完全に化学的、放射化学的に純粋であった。

1B4 プロトアクチニウムの化学 II　TTA-ベンゼン抽出法による過塩素酸中 Pa(V) の挙動の研究

東北大金研　　鈴木進　○井上泰

Paの研究が比較的遅れている理由の1つはPaが比較的強い酸性溶液中でもが水分解を起り易く，実験が技術的に困難であることに帰することが出来る。逆に考へるとこのような複雑な溶存状態を解明することはPaの化学の進歩に著しく貢献すると考へられる。従って本研究室のPaの化学に関する研究課題の1つとして水溶液中の5価のPaの挙動の研究を取り上げ，本報では手はじめに最も基本的な系である過塩素酸系を取扱った。過去にも過塩素酸系を取扱った文献をいくつか見付けることが出来るが，用いた方法論によって，又は研究者の推論の仕方によって得られた結果はまちまちである。例へばWelchは陽イオン交換体とのイオン交換反応の研究から，0.1～3M $HClO_4$ 溶液中では PaO_2^+ イオンの存在を暗示しているがElsonは有機溶媒抽出法によって弱酸性溶液では $Pa_2(OH)_9^+$，$Pa_2O_2(OH)_5^+$ のような加水分解形，中程度の酸性度の溶液中では PaO^{3+}，$Pa(OH)_2^{3+}$，非常に酸性度の高い溶液中では Pa^{5+} のような形で存在していると推定している。結局正確な知識を得るためにはどうしても統一的な観点から種々の方法論を駆使し，正確なデーターを集積する必要があると考へられる。今回はテノイルトリフルオロアセトン(TTA)-ベンゼンによる溶媒抽出法によって検討した。

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

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

過塩素酸濃度を一定にしてTTAの活動度の対数と分配係数の対数を両軸にとると，1N以上の酸性度では勾配がほぼ4に近い直線関係を示す。酸濃度が1N以下になると二の勾配はだんだん緩やかになり，0.3N以下の酸性度では直線関係を示さなくなる。また，このように低い酸性度では溶液を調製してから抽出する迄の放置時間の長短に依って著しく分配係数が変動する。さらにいずれの酸性度の溶液においてもTTAの濃度が0.2～0.3M以上では分配係数がTTA濃度に依存しなくなる。次にTTA濃度を一定にした場合の酸性度と分配係数の関係をみると一般に酸性度が1N程度で最も分配係数が低く2Nより酸性

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

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

185　液体シンチレーションカウンターによる微量ラドンの測定について

日本原子力研究所
ラジオアイソトープ研修所　○留目祐光，久保興子，野口正安，村上悠紀雄

ラドンは従来精密ラドン計あるいはIM泉効計などではかられてきたが，長時間を要し，測定の厄介な放射性核種の一つである。これを液体シンチレーションカウンターを用いてはかる方法について提案し，日本化学会第16年会において発表した（講演番号2E07　野口，村上）。

この方法は，ラドンの油脂，有機溶媒などに比較的よくとけることを利用したもので，トルエンを用いた。トルエンにたいするラドンの溶解度は，水にくらべて30～50倍くらい大きい。したがって，水中のラドンは，トルエンとふるとき，一定の分配率にて抽出できる。したがって，トルエンに液体シンチレータを（PPO 4g＋POPOP 0.1g）/ℓ の割合でとかしたものを用いてふり，二相分離したのち，これを測定用ヴィアルにとり，液体シンチレーションカウンターにて測定する。ラドンとその娘核種の間には放射平衡が成立する。約240分で極大となり，これから1時間以内に測定することが必要とされ，Bernatの式，飯盛の式などが提案されている。しかし，本法では少くとも，一日おいて二回測定し，ラドンの崩壊曲線にのることをたしかめ，これを $t=0$ に外挿するだけでよい。

この方法によるとき，ある鉱泉の例では，19840 cpm（$t=0$）で，3.4×10^{-9} C/ℓ にあたるが，B.G の1/3まで有意な測定ができるとして，3.8×10^{-12} C/ℓ の測定は容易に行えることになる。

鉱泉分析法によれば，5.5マッヘ，すなわち，2×10^{-9} C/kg が常水との区別であるが，数百倍の低濃度まで十分にはかれることになる。岐阜県土岐地方の井戸水20ヶ所あまり測定したが，およそ4.5～0.04$\times10^{-10}$ C/ℓ の範囲であり，IM泉効計などでは正確にはかることのできない低濃度の測定が可能であった。

液体シンチレーションカウンターで一番困る問題は，クエンチングであるが，この方法を実際に適用するにあたっては大切な点であり，この点につき，水酸素の混入，エマルジョン化の問題などにつき，実験室で行った結果につきのべる。たとえば，酸素の影響は20%近くにおよんだこともあった。さらに塩類効果，分配率の問題もあるが，これらについては別にのべる予定であるが，直列的に抽出を二度行うとき，それぞれの測定値を n_1, n_2（cpm）とするとき，分配率 α との間には，$\alpha=1-n_2/n_1$ の関係が成立する。これで事実上分配率の不確定な状況における場合の測定も可能となると考えられる。

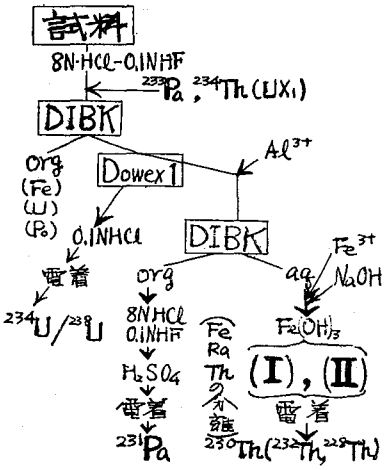
本法の特色は試料調製が容易であり，試器の汚染がなく測定が容易であり，きわめて微量のラドン，たとえば，10^{-12} C/ℓ の測定が容易に行える。上記の点を考慮しつつ，精密ラドン計の結果と本法との結果とを合せて述べる。

1B6

天然α放射性核種の逐次定量に関する研究
（C_2O_4型陰イオン交換樹脂の適用）

金沢大 理　　○阪上 正信，小村 和久

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



基礎条件の検討として以下の実験を行った。（カラム法の場合流速はすべて0.1～0.2ml/min）

[1.] UX$_1$ (C.F) を用いバッチ法でThの捕捉と$H_2C_2O_4$濃度の関係を調べ、0.02M～0.5Mの範囲で有効。またこれより2N-HCl以上ではThは完全に溶離、0.2N-HCl以下ではほとんど溶離しないこと等をみとめ、カラム法によってもこの点を確認した。

[2.] RdTh（ThXその他の娘核種の平衡量を含む）溶液を用い、Th・Ra等の分離をカラム法によりγ計数の増加減少を測定し、ThXははじめのフラクションに、ThB (Pb-212)は少しおくれて溶離することを知った。またRdThは完全に樹脂に捕捉されることを、0.2M-$H_2C_2O_4$によるThXのミルキング、2N-HClによる溶離液からの娘核種の生長等により確認。

[3.] ^{59}Feを含む鉄を用い、バッチ法により0.02～0.5M $H_2C_2O_4$溶液より完全に捕捉されること、

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

[4.] UX_1 と ^{59}Fe を含む鉄との混合物につきカラム法でその分離を実験した。UX_1 は 8N-HCl 5ml で完全に溶離。このさいカラム上端に捕捉されていた黄緑色の鉄のバンドは黄褐色に変わり多少拡がるが脱漏しない。その後鉄は稀HCl溶液で溶離できる。

以上の諸結果を利用し、DIBK分離後の水酸化鉄の沈殿をまず 0.5M $H_2C_2O_4$ 約5mlに溶解上記 C_2O_4型カラムに流し、約10mlで洗浄後、8N-HCl で Th を溶離し、これより電着線源を作製するようにした。なおこれに用いたカラムは 8N-HCl を十分流し樹脂自身を Cl型に変えた後、0.1N-HCl で Fe を完全に溶離、0.5M-$H_2C_2O_4$ を流せば C_2O_4型樹脂として再生し得る。Th の電着は Pa の方法に準じて行っているが、この操作を簡易化し、更に収率を上げるため各種の研究を行いつつある。なお Po の行動をトレーサーを用い検討中であるが、ウラニナイト等についての実験結果においてU・Th・Pa の各フラクションのαスペクトルに Po のピークが現われることはなく、その除去は完全である。化学的収率をみるため加える Th-234、Pa-233 の分離確認についてはすでに報告したので省略する。

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

	ウラノシルサイト		リンカイウラン石	
分析試料中の U量	0.173 mg		0.236 mg	
^{234}U <26-44ch>/^{238}U <5-25ch>	1.01±0.04		0.86±0.02	
	cpm	dpm	cpm	dpm
Th-230 <24-43ch>	(23.01±0.74)	175.2±5.7	(0.24$_5$±0.02$_7$)	8.91±0.99
Pa-231 <28-54ch>	(2.04±0.05)	6.0$_8$±0.1$_7$	(0.15$_3$±0.02$_5$)	0.77$_6$±0.12$_8$
B.G 1chあたり平均	(0.015)		(0.015)	

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

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

1B7　低バックグランドα-線スペクトロメーターによるSm-147, Sm-146の測定

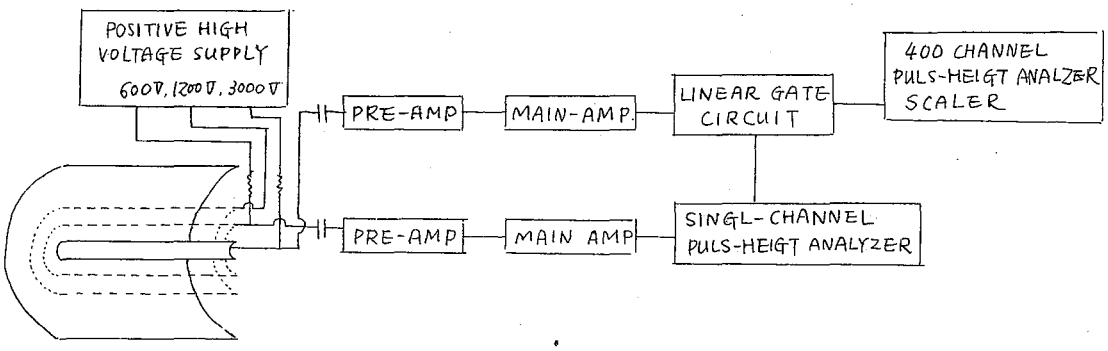
原研*　立大理**　小林義威*, 道家忠義**, 高橋秀郎**

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

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

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

(実験方法) パルス電離箱は、直径 40 cm, 長さ 100 cm の円筒型で、二重グリッド付きである。測定器の block diagram を図に示めす。back ground を低くするため、collector puls と grid puls とが coincidence したものを計数するようになっ



ている。

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

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

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

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

natural Sm_2O_3 を 22 MeV の γ 線で約 20 時間照射した。この試料は計算によると，2.6 dpm / 1g Sm_2O_3 の ^{146}Sm が生成したことになる。この照射された試料，および，natural ~~nat~~ samarium の試料の測定結果から，^{146}Sm について検討している。

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

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

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

1B8　　同位体希釈 および α線スペクトロメトリーによる ^{230}Th の定量

早大・理工研　　黒澤龍平

現在我が国の核原料物質鉱山の坑内に於ける放射性物質の摂取にもとずく危険性の大部分は，^{222}Rn の娘元素である ^{218}Po の一部の元素によるものと考えられているが，大規模な採鉱が行れるようになると所謂放射性粉塵による危険性の占める割合が増加する。放射性粉塵中の放射性元素の大部分は天然ウランでこれと比較的少量の他のウラン系列の元素が含まれている。ウラン系列の元素の中の主なα放射体の空気中での許容量（168時間/週）は，天然ウラン：2×10^{-11}，^{230}Th：8×10^{-13}，^{226}Ra：1×10^{-11}，^{210}Po：7×10^{-11} μc/cc である。この種の放射性元素は ^{238}U ～ ^{226}Ra，と ^{232}Rn ～ ^{210}Po の二群に分けて考えた方が便利であるが，両群を通じて ^{230}Th の許容量が最も低く，天然ウランの $\frac{1}{25}$ である。それは ^{230}Th が骨に沈着し実効半減期が 7.4×10^{6} 日であるのに反し，U は腎臓に沈着し実効半減期が15日位であることに起因する。両者の許容量の計算の基準は異るが，放射性粉塵の危険性を評價する場合に ^{230}Th の量を測定する必要のあることには変りがない。ウラン鉱物中の天然ウランと ^{230}Th とは必しも放射平衡にあるのではなく，平衡から大きく離れていることが多いので，ウランの量から ^{230}Th の存在量を推定することはできず，そのため簡単な方法によって粉塵中若しくはその母体となったウラン鉱石中の ^{230}Th の定量する必要がある。

^{232}Th の分析法については既にJISもあり工業的には問題ないが，^{230}Th は 8.0×10^{4} 年程度の半減期を有し極めて微量しか存在せず，従って適当な carrier を使用し且つ放射線検出器によって測定する必要がある。このため ^{232}Th を carrier とし同位体希釈法とα線スペクトロメトリーを併用して定量することを試みた。carrier として使用したトリウムの中には ^{232}Th，^{230}Th，^{228}Th 等のα線を放出するトリウムの同位体が含まれている。しかしその混合比は同一試薬から調整する限り時間が多少変化してもほゞ一定であると考えられる。従って carrier や標準試料の比放射能も一定である。一方日本で採鉱の対象となっているウラン鉱石中にはトリウム系列に属する元素が含まれていないから，(ウラン鉱中の) ^{230}Th の量は carrier の重量に比して充分小さく，分析した試料中のトリウムの重量は carrier の重量に等しい。この結果分離の収率を求めることができ(はさに)比放射能強度の変化から ^{230}Th の量を計算することもできる。又 carrier（標準試料）と試料の両α線スペクトルの ^{230}Th と ^{232}Th のピークの比を比較して ^{230}Th の量が求められる。^{230}Th のα線のエネルギーは 4.682，4.613 MeV であり，^{228}Th，^{232}Th のα線のエネルギーは夫々 5.423，5.338 MeV，3.98 MeV で ^{230}Th のα線スペクトル上の位置の決定は容易である。

粉砕した試料を王水－硫酸，若しくは弗化ソーダと重硫酸カリによって分解し，Th，Bi，Pb，Te，Ba 等を carrier として加える。硫酸により Ra を Ba と共に沈澱させ沪別した後，水酸化物とし塩酸で溶解し，蓚酸によって希土類と共に沈澱させる。この沈澱を分解し沃素酸カリによって希土等を分離し再び蓚酸塩としミ小型の沪過器で沪過した後熾灼して酸化物

となし秤量して収率を求めた。この試料を磨り水で懸濁させメンブラン沪紙で沪過し前以って接着剤を塗った試料皿に移すか，或いは細磨した試料を希釈したラッカーと混じ試料皿に移して乾燥させる。これ等をα線検出器によって測定した。

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

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

波高分析器として多重チャネルのものが望ましかったが，単一チャネルのものをチャネル巾づつずらせながらカウンターで計測した。又シンクロスコープによってパルス波形を重ねてフィルムに記録し現像後ミクロフォトメーターで走査する方法も利用した。後者の分解能は短時間露出（2分間位）で数%であった。

このような方法で求めた^{230}Thの量から核原料物質鉱山の粉塵の危険性の評價を行った。

1B9

固体試料の微弱放射能測定について

東大 物性研　　○塚江 緒子　中川 英毅　本田 雅健

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

I. β線 測定

i) G-M領域ガスフロー計数管　試料を化学的に抽出精製したもので1g以下の量迄測定出来ることを目標とした。宇宙線を通常の逆同時計数によって除去するために2種のガスフロー計数管を保護計数管として利用した。平板状の検出器に対してはアクリル樹脂製の20cm×20cm×2.5cm（PL型）の大きさのもの、一般には鉄及びアクリル樹脂製の径15cm，長さ50cmの有効部分をもつ中空円筒状のものを逆同時計数管とした。これらの外側の遮蔽材としては通常鉛10cm，内張りに電気銅1cmのものを適用した。本実験全般を通じて使用材料についてはあらかじめそれらの放射能を検討した上で採用した。例えばある遮蔽用鉄材についてはCo^{60}の影響が大きく使用に適さなかった。

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

B) 円筒型ガスフロー計数管（Sugihara-Libby型）　金蒸着マイラーを陰極とした径1.4cm×5cmの円筒状の有効部分のある計数管で試料面積25cm²程でやゝ多量の試料の計測に適している。PL型計数管と組合せると0.5±0.15 c/m程度で充分宇宙線を除去出来ないのでシリンダー型計数管内部で使用する必要がある。

c) 端窓型計数管　無酸素銅製端窓（金蒸着マイラー）ガスフロー計数管は有効窓面積7cm²で両者いづれの保護計数管によっても残留放射能は0.23±0.02 c/m程度である。効率はK^{40}に対して35%である。

これ等の数例にみられるように宇宙線に対するシールドはシリンダー型計数管で十分であり近傍のγ線等による影響も少ないと認められる。現在までに得られた自然計数の最低値

は使用した材料よりくるものが大部分でこれ以上低いものはシールドの増加その他によっては困難であると考えられる。

ii) プラスチックシンチレーター　有機シンチレーターを利用すれば任意の形状のものが容易に自作出来るが一例として径 2.5cm 厚さ 3mm の円板2枚を使用し試料をサンドイッチ状にはさんだ高ジオメトリーのβ検出器を試作した。上記PL型保護計数管によって残留計数率を1/4以下に少なくすることが出来る。特に内部転換電子の波高分析に適している。

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

II. γ線測定

γ計数によれば化学的に精製した試料のみならず原試料をそのまゝ測定に供することも出来る。β線計数管の場合と同様の遮蔽を施したあとNaI(Tl)結晶と光電子増倍管とによるγ線測定に際しては材質による自然計数がかなり大きい。1.5"φ×1.5" 結晶の場合について材質の検討をした。β線測定の結果では結晶の窓に使用する材料が最も大きな影響を与えている。石英硝子の場合に比して普通硝子は約6倍の計数値を与えた。主として K^{40} Ra 等によるものと考えられるので、この部分をアクリル樹脂に換えたものを利用した。なお結晶のAl製の容器はβ線測定によれば自然計数の3倍程の値を示し無酸素銅等で作った容器が望まれる。光電管については同様に石英窓のものがよいが、ライトパイプをつけることにより K^{40} 等の影響はかなり小さくすることが出来る。また宇宙線の影響は1.5MeV以上の領域でのみ顕著であり上記のシリンダー型保護計数管内で逆同時法が利用出来る。このようなγ線測定のみによる方法は分離された Be^{7}, Mn^{54}, Co^{57} 等のほか100g以上の隕石などを原試料とするときは更に Na^{22}, Al^{26} 等についても有用と認められた。

同時計数法が使用出来るような核種に対しては、γ-γ同時法又はβ-γ同時法がすぐれている。前者は β^{+} の測定は効率が高いので比較的容易であり Na^{22}, Al^{26}, Ti^{44} に適している。一般に自然計数を極めて少なくすることが出来るが同時に計数効率もおちるので極めて長時間の連續測定を必要とする。これ等の場合には特に計数効率の高い検出器を利用する。β-γ同時法はこの点でやゝ有利であり適用範囲が大きいと認められる。上記の実験β線用検出器と3"φ×3"のNaI(Tl)等を併用した。

1B10　　自発核分裂計数による $^{240}Pu/^{239}Pu$ の測定

原子力事業，東芝中研　　○高木仁三郎，大井昇

1．目的　プルトニウム試料中に含まれる ^{240}Pu の量の決定は、αスペクトロメトリーによっては困難で，一般には質量分析によって行なわれているが、^{240}Pu の自発核分裂の寿命($1.3\times10^{11}y$)が、^{239}Pu のそれ($5.5\times10^{15}y$)に比べて非常に短かいことから，自発核分裂片を計数して求めることもできる。この実験では，半導体放射線検出器と低雑音で長時間安定なトランジスタ化した測定系により，自発核分裂片の測定を試みた。

2．実験

イ．Pu試料，GETRで照射($nvt\sim1\times10^{20}$)した UO_2 を硝酸で溶解後，PuをTTA－キシレンにより抽出し，イオン交換樹脂により精製した。

ロ．線源の作製，Puは0.25M硝酸－0.10Mシュウ酸アンモニウム溶液から，80mA/cm² の電流密度でステンレス板上に，約3時間定電流電解電着を行なった。測定に便利なように，線源のα線の強度が 10^6 dpm程度となるようにした。

ハ．測定　12.5mmφのP-n接合型半導体放射線検出器にほぼ密接して6mmφの線源をおき，あらかじめ ^{239}Pu と ^{240}Pu のアルファの全計数を求めておき，そのままのジェオメトリーで自発核分裂片計数用の測定系につなぎ計数した。自発核分裂は，この強さの線源では0.2～0.5cpmの程度で起るから，統計誤差を10%程度でおさえる為には，数百時間の連続測定が必要で，測定系はこれに耐える安定性をもち，低バックグラウンドでなければならない。しかし，核分裂片は60～120MeVという高いエネルギーをもつから適当なディスクリミネーションにより一般のバックグラウンド，雑音等をおとすことが可能である。我々はトランジスタ化した増巾系を用い，水銀電池で駆動させ，得られたパルスをディスクリミネーターを通した後，ペン書きレコーダーで書くことが出来るよう調整した。

3．結果　この測定系で，^{210}Po により約百時間測定した結果，α粒子のパイルアップ，電気系の雑音その他によるバックグラウンドは無事出来ることがわかった。次にSfとαの比が既知である ^{252}Cf の線源を用いてチェックした結果，核分裂片は完全に計数し得ることが分った。

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

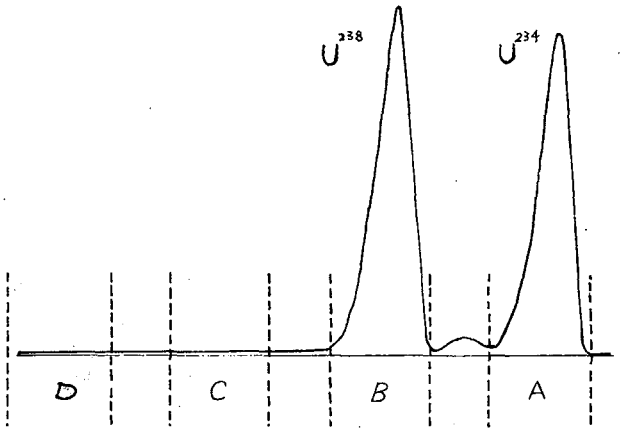
1B11

U^{234}/U^{238} 比測定および Th^{230} 定量法

岡山大・温研　梅本春次・○池田耕三

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

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



図に示されている領域 A, B, C 及び D における全計数を夫々 A, B, C 及び D とする。U^{234} による夫々の領域における計数を a, a', a'' 及び a''' とし、U^{238} による計数を 0, b, b' 及び b'' とすると、

$$A = a$$
$$B = b + a'$$
$$C = b' + a''$$
$$D = b'' + a'''$$
$$a : a' : a'' = b : b' : b''$$

となり、又

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

と假定すれば、

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

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

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

2試料について、1.0038（3回測定）、1.0004（4回測定）の結果を得、假定が実験誤差の範囲内で成立する事を知った。

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

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

という測定値を用いると、

$$\frac{A}{B-C} = \frac{160}{3n+156}\,n \qquad \left(n = \frac{a}{b}\right)$$

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

(standardについて $n=1$)

となり、nの代りにn'を用いたとすれば、$0.475 \leqq n \leqq 1.535$ の範囲内ではn'を用いても1%以内の誤差に止まる。

(1)式から

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

を得、この式によれば、如何なる範囲でも利用出来る。

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

1B12

放射線スペクトルの超分解

東芝中研　　井上多門

放射線測定器系の分解能は,ピークの半値巾を用いて定義されて居り,入射放射線のエネルギーがこの値よりも接近している場合には,このスペクトルを分解判定して,核種同定を行う事が困難である。しかし,数学的には,この様な場合でも分解が可能であり,前回の報告に於て,フーリエ変換を用いた方法が示され,具体的に Ce^{139m} 及び Nd^{149m} のγ線の混合スペクトルに應用した例が述べられた[1]。この方法の信頼性を示すために,ここでは実際に人工的に合成されたスペクトルを与えて,これを分解して見る事を行う。これにより,この方法を用いる事により分解能が実質的に10倍近く増大したのと同様な結果を得る事が出来る事が示される。

原理は,前回報告とも重複するが,全系をブラックボックスとして取扱い入力,出力の関係にのみ着目する。入力として放射線のスペクトル分布,出力として波高分析器を通じて得られる出力波高分布を考える。エネルギー(ε)を共通の変数とすれば,それぞれを $f(\varepsilon)$ 及び $g(\varepsilon)$ で表すと,この間の関係は,$\delta(\varepsilon-\varepsilon_0)$ に対する出力を $h(\varepsilon-\varepsilon_0)$ とすれば

$$g(\varepsilon)=\int f(\varepsilon')h(\varepsilon-\varepsilon')d\varepsilon' \quad \cdots (1)$$

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

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

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

となり,これより $f(\varepsilon)=\frac{1}{2\pi}\int\left(G(\omega)/H(\omega)\right)e^{i\omega\varepsilon}d\omega$ と得られる。入力分布が単色放射線の重なりである場合例えば $f(\varepsilon)=a_1\delta(\varepsilon-\varepsilon_1)+a_2\delta(\varepsilon-\varepsilon_2)$ の場合ならば,

$$F(\omega)=a_1e^{-i\omega\varepsilon_1}+a_2e^{-i\omega\varepsilon_2}, \quad \therefore\ |F(\omega)|=\{a_1^2+a_2^2+2a_1a_2\cos\omega(\varepsilon_1-\varepsilon_2)\}^{\frac{1}{2}}$$

したがって,$|F(\omega)|=|G(\omega)/H(\omega)|$ を計算すればこの函数の最大最小を求める事により,$\varepsilon_1-\varepsilon_2$, $a_1:a_2$ が求められ,誤差を大きくするフーリエ逆変換は不必要である。

実際に,単色放射線に対しての出力波高分布のピークの型を正規分布型で近似し,

$$h(\varepsilon-\varepsilon_0)=\frac{1}{\sqrt{2\pi}\,a}\exp\left(-\frac{(\varepsilon-\varepsilon_0)^2}{2a^2}\right)$$

とし,二本の接近エネルギーの放射線に対する出力波高分布を

$$g(\varepsilon)=\frac{a_1}{\sqrt{2\pi}\,a}\exp\left(-\frac{(\varepsilon-\varepsilon_1)^2}{2a^2}\right)+\frac{a_2}{\sqrt{2\pi}\,a}\exp\left(-\frac{(\varepsilon-\varepsilon_2)^2}{2a^2}\right)$$

とし,2.355a で与えられる半値巾よりも $\varepsilon_1-\varepsilon_2$ を小さく与えて,一見ピークが一つにしか見えない $g(\varepsilon)$ を合成し,得られた h, g 等のフーリエ変換を数値計算して求め,$F(\omega)=G(\omega)/H(\omega)$ を得た。

一例として,$a=5$ch.とすれば,半値巾は11.8ch.となり,これより $\varepsilon_1-\varepsilon_2$ が小いと通常の方法では分解出来ない。

ここで $\varepsilon_1 - \varepsilon_2 = 6$ ch.（半値巾の約半分）とし，$a_1/a_2 = 2$．とすると，合成して得られた $g(\varepsilon)$ は図1に示す様に一つのピークしか持たない。$g(\varepsilon)$, $h(\varepsilon)$ のフーリエ変換は，ε の整数値に対してサンプルされた値を用いて計算された。計算は Filon 公式を用いて，IBM-7090により行われた。この様にして得られた $F(\omega)$ の絶対値を図2に示す。$\omega_0 = 0.524$ rad/ch. に於る最小値 $|F(\omega_0)/F(0)| = 0.333$ より $\varepsilon_1 - \varepsilon_2 = 6.00$ ch. $a_1/a_2 = 2.00$ を得る。これで実際に，半値巾以下にエネルギーが接近していても分解判定が可能な事が示されたが，同様な場合（$a = 5$ ch.）に於て，$\varepsilon_1 - \varepsilon_2 = 1$ ch. とした場合に於ても $|F(\omega)|$ に同様な傾向を持った曲線が得られ，この場合でも30%程度の誤差で，$\varepsilon_1 - \varepsilon_2$ を決定する事が出来た。

具体的に，Zr^{95} の二本の接近γ線（$E_\gamma = 757$ KeV および 724 KeV）に適用した例を図3，4に示す。

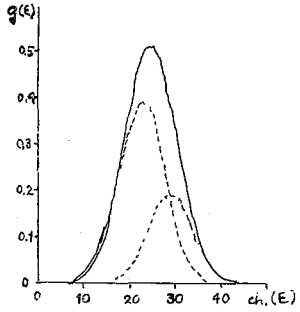


図 1.

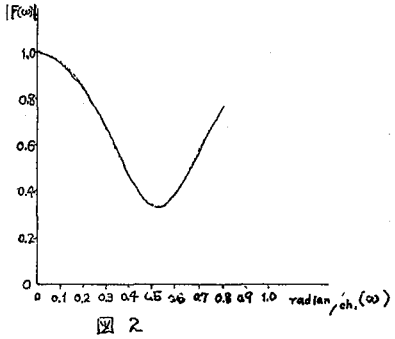


図 2

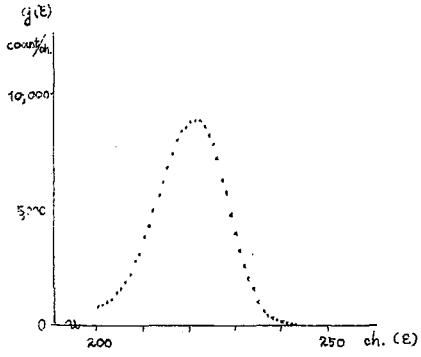


図 3.

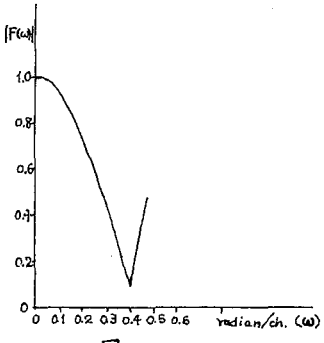


図 4.

*). 藤井 井上．武藤，Fourier 変換による γ線スペクトルの解析，第7回 放射化学討論会 2A21 (1963)

1B13　　Capture γ rays によるホウ素の定量法の検討

東芝中研　　○藤井 勲, 武藤治夫

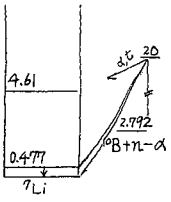
通常の放射化分析法では，試料中の問題となっている元素を放射化したのち，生成放射性核種から放出される電磁波又は粒子を検出して定性および定量分析がおこなわれる．こゝに報告する方法は上記の方法とは趣を異にし，問題になっている元素の原子核が中性子を吸収して励起状態になったとき瞬間的に放出するγ線(Capture γ rays)を利用するものである．この方法は米国のArmour Research Foundation において研究がすゝめられているが実用化には多少時日を要すると言われている．

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

〔反應〕

^{10}B(18.8%) は (n,α)反應によって ^{7}Li になる．反應断面積は4010バーンである．^{7}Li は図にしめすようなエネルギーレベルを持ち，0.477 MeV の γ線を放出して基底状態におちる．

^{7}Li のエネルギーレベル

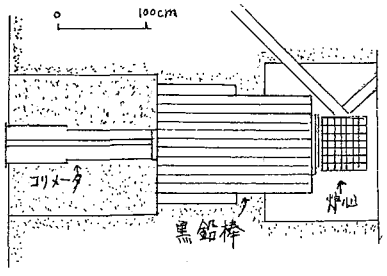


〔実験〕

1. 装置

1.1 中性子源

熱中性子源として東芝訓練用原子炉 TTR−1(最高出力100KW)を用いた．S/N を向上させるため，熱中性子ビームは出来るだけコリメートされている方がよいので図にしめすようなパラフィンのコリメータを用いた．コリメータは12mm厚のステンレス鋼板で外箱をつくり中心軸上に内径70mmの孔を残してパラフィンを流し込んだものである．実験に際しては，左図のように，予め熱中性子コラム中央にある100mm角の可動黒鉛棒を炉心まで見透せるよう引抜いて上記コリメータを挿入して実験した．これから得られる熱中性子ビームの開き角は2°20′で，中性子束強度はコリメータ出口において 25×10^{5} n/cm²/sec であった．また，コリメータ出口附近でのカドミウム比は3.5であった．この使用条件は中性子ラヂオグラフィーの実験と同じも



中性子源

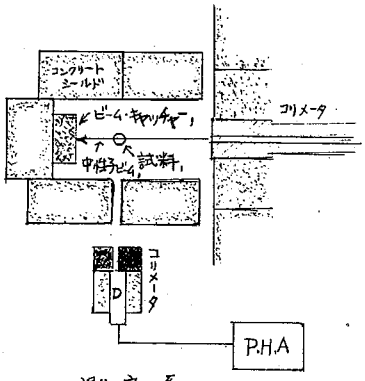
のである.

1.2 測定系

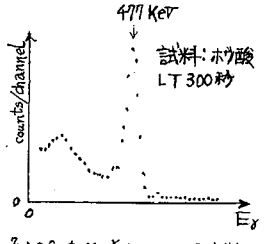
検出器：沃化ナトリウム(Tl)結晶，$1\frac{3}{4}''\times 2''$，シリンダー型.

測定器：東芝512チャネル波高分析器

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



測定系



^{7}Liの Capture γ-ray のスペクトル

2. 試料および試薬

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

1B46　計算機によるガンマ線スペクトルの解析（放射化分析への応用）

原子力事業　○谷　彰，松島安義

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

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

実験　解析法の改良結果を示す実験には、長寿命RI核種 ^{22}Na, ^{60}Co, ^{110m}Ag, ^{152}Eu を用いた。

放射化分析への応用例としては、TTR（東芝教育訓練用原子炉）を用い、Na, Mg, Al, Cl, Fe, Cu, 等を対象に選び、前回[1]と同様な方法で行った。測定には、2″×2″NaI検出器256チャネル波高分析器を用いた。

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

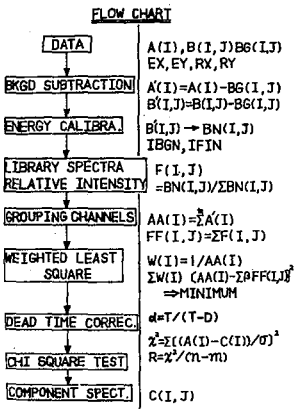
i) バックグラウンドを差引く。ii) ライブラリ・スペクトルと試料のスペクトルのエネルギーの対応をつけるとともに、測定系のゲインの変動を補正する。iii) ライブラリ・スペクトルの各チャネル当りの相対強度比をつくる。iv) 必要に応じて数チャネル毎にまとめる。v) 重みをつけて最少二乗法でとく。vi) 不感時間の補正をする。vii) χ^2テストを行って計算の信頼度を確める。viii) 成分スペクトルの量を求める。

結果　第2図に ^{22}Na, ^{60}Co, ^{110m}Ag, ^{152}Eu, でつくった試料の解析結果を示し、第3図にその3成分系のスペクトルを示す。示されたスペクトルのうち、上のものは観測値を示し、下のものは計算値を示す。縦軸は見やすくするためにずらせてある。下欄のプロットは両者のずれをあらわす。

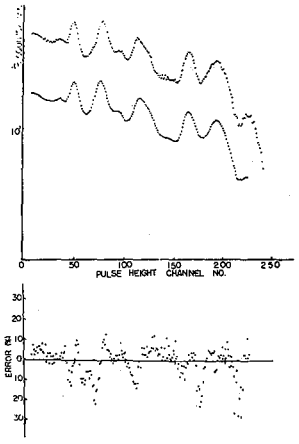
第4図に Na, Mg, Al, Cl, Fe を含む合成試料の原子炉で照射して得られたガンマ線スペクトルの解析例を示す。

尚　計算に要する時間は、1試料につき10秒程度である。

(1) 谷、松島、第7回放射化学討論会講演　3A26



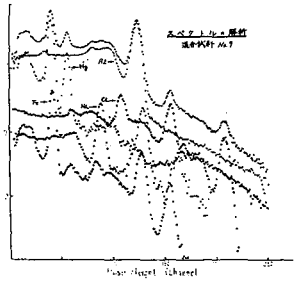
第 1 図



第 3 図

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

第 2 図



第 4 図

1B14　JRR-2重水中の放射性核種の決定

日本原子力研究所　本島健次，○坂東昭次，今橋強

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

試料の種類および形状

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

第1表

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

放射性核種の分離

灼熱残分の試料を塩酸にとかし，不溶物は少量の硫酸水素カリウムで溶融し分析試料とした。また常法に従い，分属分離分析を行った結果，第3属（水酸化物沈殿）と第4属（塩基性硫化物沈殿）に放射能が検出され，γ線スペクトルとあわせて^{51}Cr, ^{59}Fe, ^{60}Co, ^{65}Znの存在が推定された。これら核種の相互分離に陰イオン交換樹脂による方法を応用した。即ち試料を蒸発乾固し12MHClに溶解して陰イオン交換樹脂Dowex 2X-8，樹脂柱0.8φ×8cm，流速0.5 ml/minに通す。Crは吸着されない。次に4MHClでCoを溶離し，最後に水でZn, Feを溶離した。Feの分離にはイソプロピルエーテル抽出を行い，分離した各溶液を濃縮しポリエチレン棒瓶に入れウェルタイプシンチレーションカウンターおよび256チャンネル波高分析器で放射能を測定し，^{60}Co, ^{65}Zn標準試料との相対値を求めた。この結果重水中に含まれていた放射性核種は^{60}Co, ^{65}Znが大部分であり，取出し時期における経過時間を補正し，MWHあたり平均熱中性子密度VT-1：1×10^{13}，VT-9：2×10^{12} n/cm²·secから逆算して重水中に含まれている量を算出した。なおVT-9重水のコロイド状物質はほとんどのものがアルミニウムであったが茶褐色のものについては不明である。

1B15　広島，長崎に於ける原爆投下時の中性子線量の推定

○伊沢正実，河村正一
放医研　橋詰雅，丸山隆司，田中栄一

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

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

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

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

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

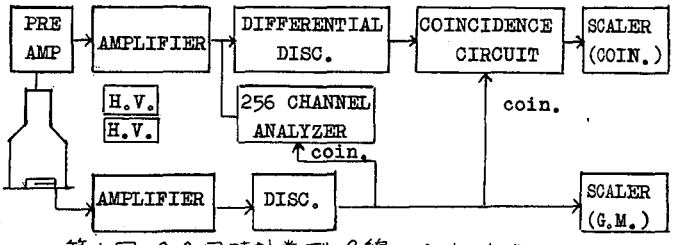
放射能の測定　電着されたCoの放射能は，著者の一人によつて開発された，β-β同時計数型β線スペクトロメーター[3]によつて測定した。この装置のブロックダイヤグラムを第1図に示す。^{60}Coの測定の際のバックグラウンドは0.1 cpm程度であり，測定効率は約13%である。1cpm程度の試料のβスペクトルを得ることができ，他核種による汚染を

有効に検出することができる。

結　果

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

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



第1図　β-β 同時計数型 β線スペクトロメーターのブロックダイヤグラム

第1表　同一地点から採取した試料の分析結果

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

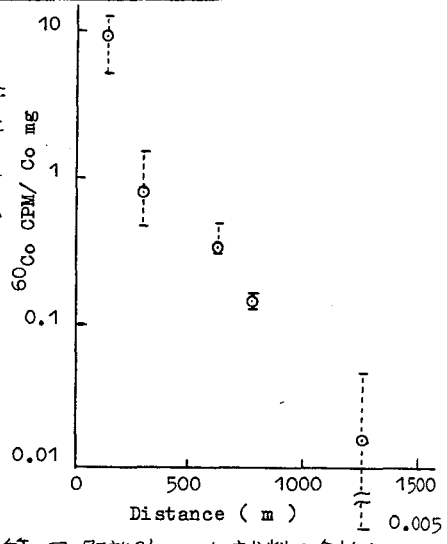
線量の推定

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

1．コンクリート表面に対する照射角度，

2．コンクリートに入射した熱中性子の寄与

などの補正を加えなければならない。このために必要なデーターをとるため，および線量－放射能関係の標準試料を得るため，コンクリート中に入れたCoをオークリッジ國立研究所のTower Shielding Facilityで照射している。



第2図　距離別にとった試料の分析結果

1．日本放射線影響学会第2回研究発表会　於京都，1960

2．日本放射線影響学会第5回研究発表会　於札幌，1963

3．Nuclear Instr. & Methods, 13, (1961)

1B16

放射化分析における炉内速中性子の影響

日本原子力研究所　　四　方　英　治

1. 目　　的

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

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

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

2. 実　　験

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

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

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

3. 結　　果

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

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

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

Table 1

Hole No.		thermal n/cm²/sec	fast n/cm²/sec
JRR-1	No. 1	1.3×10^{12}	1.5×10^{12}
	No. 2	6.4×10^{11}	7.8×10^{10}
	No. 3	3.9×10^{11}	5.5×10^{10}
JRR-2	pneumatic tube	3.6×10^{13}	9.3×10^{11}

Table 2

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

4. 結　　論

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

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

1B17

原子炉の速い中性子を利用する放射化分析 III
$^{28}Si(n,p)^{28}Al$ 反応の利用

立大 原子力研　○戸村 健児　樋口英雄

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

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

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

照射はトリガII型原子炉の回転試料棚で，熱出力 100 KW（熱中性子束密度，5×10^{11} n/cm²/秒）にて1分間行った。ガンマ線の計数には，3インチ×3インチの NaI のクリスタルを供えた，100 チャンネルのガンマ線スペクトロメーターを使用し，1.78 MeV の光電ピーク附近の7チャンネルの和をもって，^{28}Al の計数率とした。けい素の標準試料には新日本チッソ製の 99.9999 % の純度を有する金属けい素の粉末を用いた。

共存する熱中性子を除去するために，約 150 mg/cm² の Cd 板で試料を包み，金属ほう素粉末の入ったキャプセル内で照射を行った。このような照射條件下で $^{27}Al(n,\gamma)^{28}Al$ 反応によるアルミニウムからの妨害がどの程度であるかを検討するため，99.99 % アルミニウムを標準けい素と同時に照射した結果，1 g のアルミニウムは，3 g のけい素の存在に相当する正の誤差を与えることが明らかになった。従って，けい素に比し，アルミニウムの含有量が一般に無視できる鉄試料について，先ず，検討を行った。

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

以上の検討の結果，次のような分析操作が採られた。

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

べく接近させて，一つのCd板でおおい，100 KWで1分間照射する。できるだけ速やかにステンレス製の試料皿に試料を移し，2分間1.78 MeV附近の計数を測る。次に，同様な条件で標準試料についても2分間計数し，^{28}Alの壊変常数 $\lambda = 0.3094/min.$ を使い，先の試料と同時刻における計数に換算する。約20分後，試料について，2分間づつ3回計数し，^{56}Mnの壊変常数 $0.004484/min.$ を使い，それぞれの値を試料と同時刻における計数値になおし，3つの平均をとる。最初に試料について測った計数値より，この^{56}Mnによると考えられるバックグラウンドを差し引き，標準との比較により，けい素の含有量を計算する。

N.B.S.の鉄標準試料 NBS 7 (1.880% Si) を8回繰返し分析した結果は 2.03±0.14%，NBS 5 (2.44% Si) を6回分析した結果は 2.49±0.14% であった。また，けい素の含有量がさらに低い，NBS 4, 130, 133 (それぞれ，1.34, 0.237, 0.41% Si) を分析した結果は 1.46, 0.244, 0.581% Si であった。

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

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

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

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

1B18

速い中性子による核反応断面積（第4報）
TD反応より発生する速い中性子のエネルギー分布

東北大・理　塩川孝信，八木益男，鍛冶東海，佐々木貞吉

1. TD反応を利用した東芝NT-20型コックロフトウォルトン型中性子発生装置は，トリチウムターゲット裏面を厚さ0.5 cmの流水槽で冷却しているため流水槽通過による発生中性子の減速が問題となる。
またトリチウムターゲットは長時間使用した場合，加速重陽子がその表面を汚染し，引いてはDD反応による中性子を発生する可能性があり，その発生比が問題となる。
前者については流水槽の厚さ0.16 cmで約8％の減速があると報告[1]されており，後者のDD反応による発生中性子数はTD反応による発生中性子数の25％にも達することがあると報告[2]されている。
しかし，いずれの場合もその測定に関する詳細は明らかにされていない。
そこで上記の問題を検討するために東芝NT-20型中性子発生装置から発生する中性子のエネルギー分布を測定することを試みた。

2. 測定法　1″×½″スチルベン単結晶を用いDaehnickらの方法[3]にしたがって測定した。
測定法の概略は下図に示した。

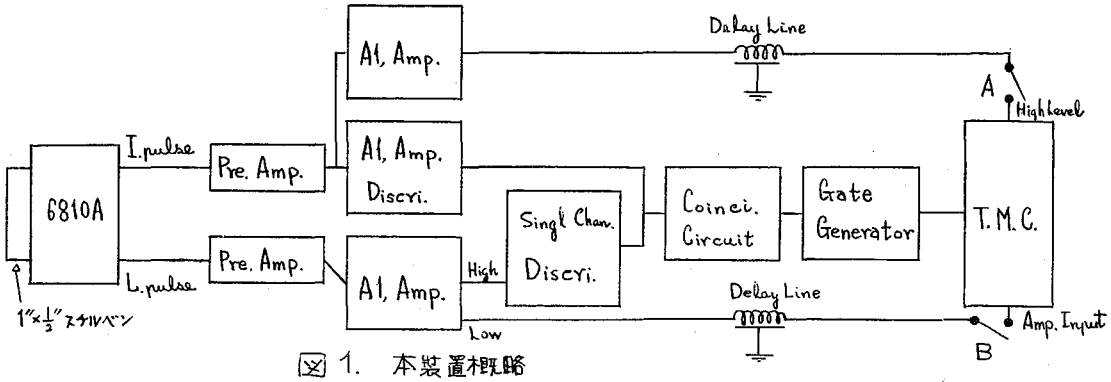


図1.　本装置概略

図のA部を閉じ，B部を開いて測定すれば図2に示されるようにガンマ線と中性子はそれぞれ分離される。
この状態でデイスクリミネイターを適当に設定してガンマ線を切り，次いでA，B部を逆に開閉すれば，中性子のみの積分スペクトルが測定される。

3. 実験　直径2.8 cm，厚さ0.13 mmの銅板，チタニウム蒸着層2.5 mg/cm²，トリチウム吸着量4キュリーのターゲットを使用し，重陽子加速エネルギーは80 KeVおよび200 KeVとした。
測定点はトリチウムターゲットの中心より距離4 cm，ビーム方向に対して，0°，45°，

90°, および135°の位置で図3.にそれを示した。
各点の測定は発生中性子束を微少にし，測定精度を上げるためにそれぞれ100分づつおこなった。

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

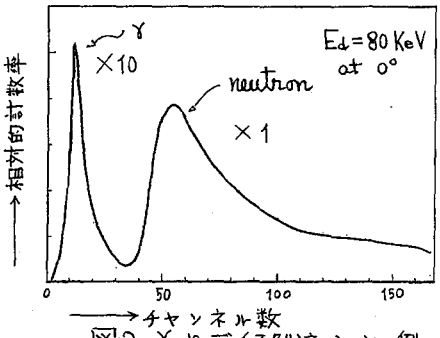


図2. γ-nディスクリミネーションの例

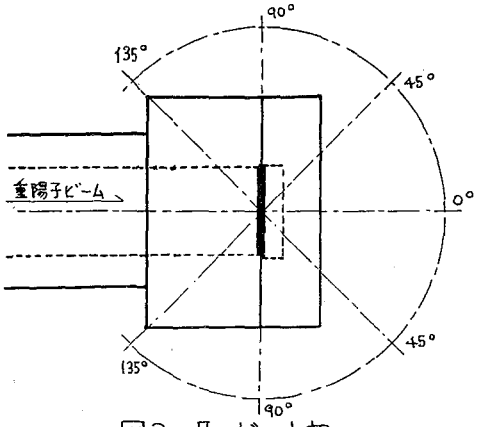


図3. ターゲット部

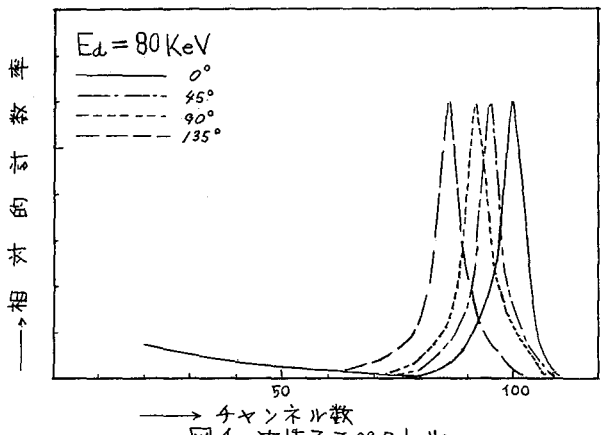


図4. 中性子スペクトル

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

1B19

速い中性子による核反応断面積（第5報）
種々の核種における(n,p)反応断面積の測定

東北大.理　　塩川孝信・八木益男・鍛冶東海・○佐々木貞吉

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

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

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

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

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

生成放射能の測定は，種々のガンマ線エネルギーに対して予め計数効率を実測した1$\frac{3}{4}$″×2″井戸型ヨウ化ナトリウムシンチレーターとT.M.C.256区分波高分析器を用いて行った。

3. 中性子線束密度は1～3×10^{6} n/cm²/sec であった。上記の方法でえられた各々の（n,p）反応の励起関数は図1a，b，cに，14.1MeV中性子による核反応断面積は表1に示した。

表　1

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

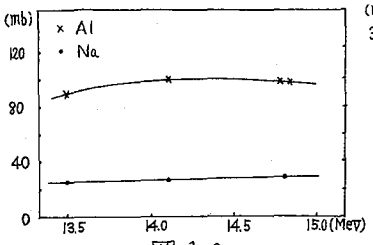


図1a

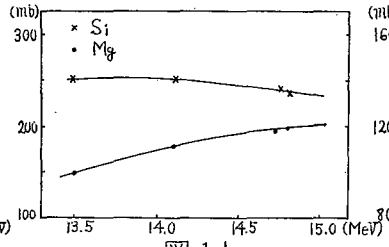


図1b

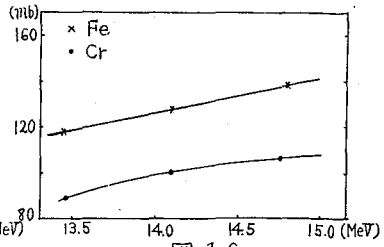


図1C

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

2B20　　放射化(JRR-1)による^{121}Sbおよび^{123}Sbの同位体分析の検討

阪大工・近大理工　品川睦明，○玉井忠治，石黒高志

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

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

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

アンチモンの安定同位体として天然に存在する核種は，^{121}Sb(57.25%)および^{123}Sb(42.75%)である。これらは中性子の照射により(n,γ)反応が起りそれぞれ^{122}Sb($T_{1/2}$=2.75日)および^{124}Sb($T_{1/2}$=60.9日)となる。

生成した放射性核種の壊変速度(A)は，$A=f\sigma n(1-e^{-\lambda t})$で表わされるので，アンチモン金属1gをJRR-1(JRR-2にても照射した)にて1時間照射すると($f=3\times10^{11}$ n/cm²/sec)，それぞれ以下の如くなる。

^{122}Sb　　$A=6.09\times10^{7}$ dps

^{124}Sb　　$A=7.53\times10^{5}$ dps

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

放射線の測定については，TMC-256チャンネル多重波高分析器(PHA)を用いてγ線の測定を行った。使用した結晶はNaI(Tl) 3"-3"のものであった。なお効率は決定されなかったが，計数効率を計算値より求め，約6%とすれば10^6カウントは8.3μCの^{122}Sbとなる。測定器のγ線エネルギーとチャンネル数との較正曲線の作成は，標準線源(^{60}Co，^{137}Cs，^{22}Na，^{54}Mn等)を用いて行った。その結果，γ線エネルギーとチャンネル数との間には直線的な関係があり，この関係を用いて，測定したγ線のエネルギーを決定した。

^{122}Sbおよび^{124}Sbそれぞれの存在量の決定法は，以下の2方法で行った。すなわち，

A) ^{124}Sbのみの標準体と，同位体比を求めようとする^{122}Sb(564KeV)および^{124}Sb(603KeV, 1690KeV)の混合体との対比による^{122}Sb，^{124}Sbそれぞれの存在量の決定。

B) ^{122}Sb，^{124}Sbの混合体について，^{122}Sbから放出するγ線エネルギーのピーク(564KeV)と^{124}Sbから

放出するγ線エネルギーのピークとの和をpHAで，各測定時間毎に求め，そのピーク面積についての壊変曲線より，^{122}Sbおよび^{124}Sbの存在量の決定。である。

A）の方法に用いた^{124}Sbの標準体としては，JRR－2（$f=4\times10^{13}\ n/cm^2/sec$）にて20分間照射したのち2ヶ月以上放置し，放射化により生成した^{122}Sbをほとんど完全に壊変させてしまったものを使用した。

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

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

で求められる。ここでa_0はピークの最大のカウント数，a_iはそのチャンネルより低いエネルギーの部分のカウント数，b_iは最大カウントのチャンネルより高いエネルギーのチャンネルのカウント数，nはそれぞれ計算に要したチャンネル数を表わす。

このCovell法により面積を求めるために必要チャンネル数(n)は^{122}Sbのγエネルギー(564KeV)と^{124}Sbのγ線エネルギー(603KeV)の混合ピークについては$n=10$，1690KeVについては，$n=15$にすれば，標準偏差が1%以下となることが判明したので以後この条件を用いた。

また照射時間はJRR－1では1時間以上にする必要はないことが判明した。

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

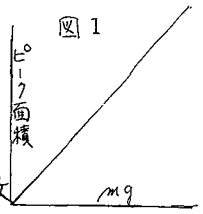


図1

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

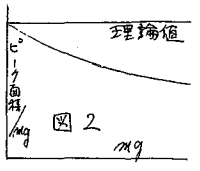


図2

また564KeV(^{122}Sb)と603KeV(^{124}Sb)のピークは，使用したpHAでは分別できないので，その混合ピークの面積値の壊変曲線を片対数グラフ用紙にプロットしてみると，^{122}Sbの理論的な壊変曲線の勾配と試料の勾配とはほゞ一致している。したがって，^{122}Sbからの564KeVと^{124}Sbからの603KeVのピークの和の面積は，主として，^{122}Sbに基づくものといえる。

なお同位体比の決定に使用した放射化断面積は，熱中性子に対するものを用いた。

2B21

14 MeV中性子による鉄鋼中のケイ素およびクロムの放射化分析

甲南大 理　　日下 譲，○辻 治雄

1。まえがき

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

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

2。実験

使用した機器の配例を図1に示す。

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

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

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

ケイ素分析においては

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

B法：まずA法によりγ線スペクトルをえたのち，つぎに波高分析器のstore modeをadd.よりsub.に切換え，照射后10分より1分間の放射能を先のγ線スペクトルより差引いてえられるγ線スペクトルより1.78 MeV光電ピーク面積を求める。

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

いて1分間の同上γ線の計数値より ^{56}Mn による寄与分を差引く。

クロム分析においては

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

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

3．結果

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

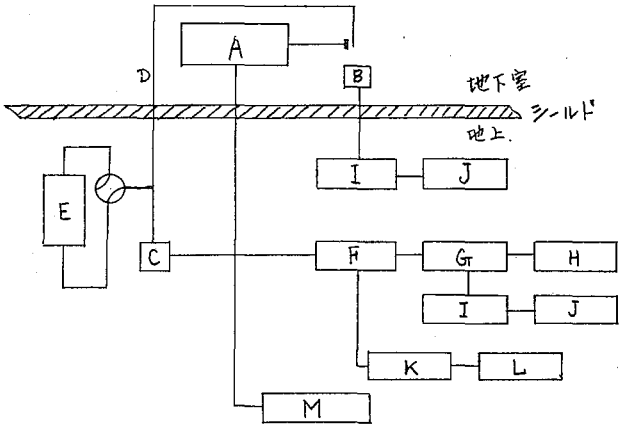
ケイ素分析例

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

クロム分析例

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

図1．放射化分析機器配列図



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

2B22

14MeV中性子放射化分析におけるγ線スペクトロメトリー

甲南大 理　○日下 譲, 辻 治雄*
東芝中研, ***東芝玉川　藤井 勲, 武藤治夫**, 三好克彦***

1。まえがき

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

2。実験

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

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

放射能測定器：井戸型NaIシンチレーター（1.75″×2.00″）附属東芝128チャネル（またはRIDL400チャネル）波高分析器によりγ線スペクトルが測定された。

3。結果

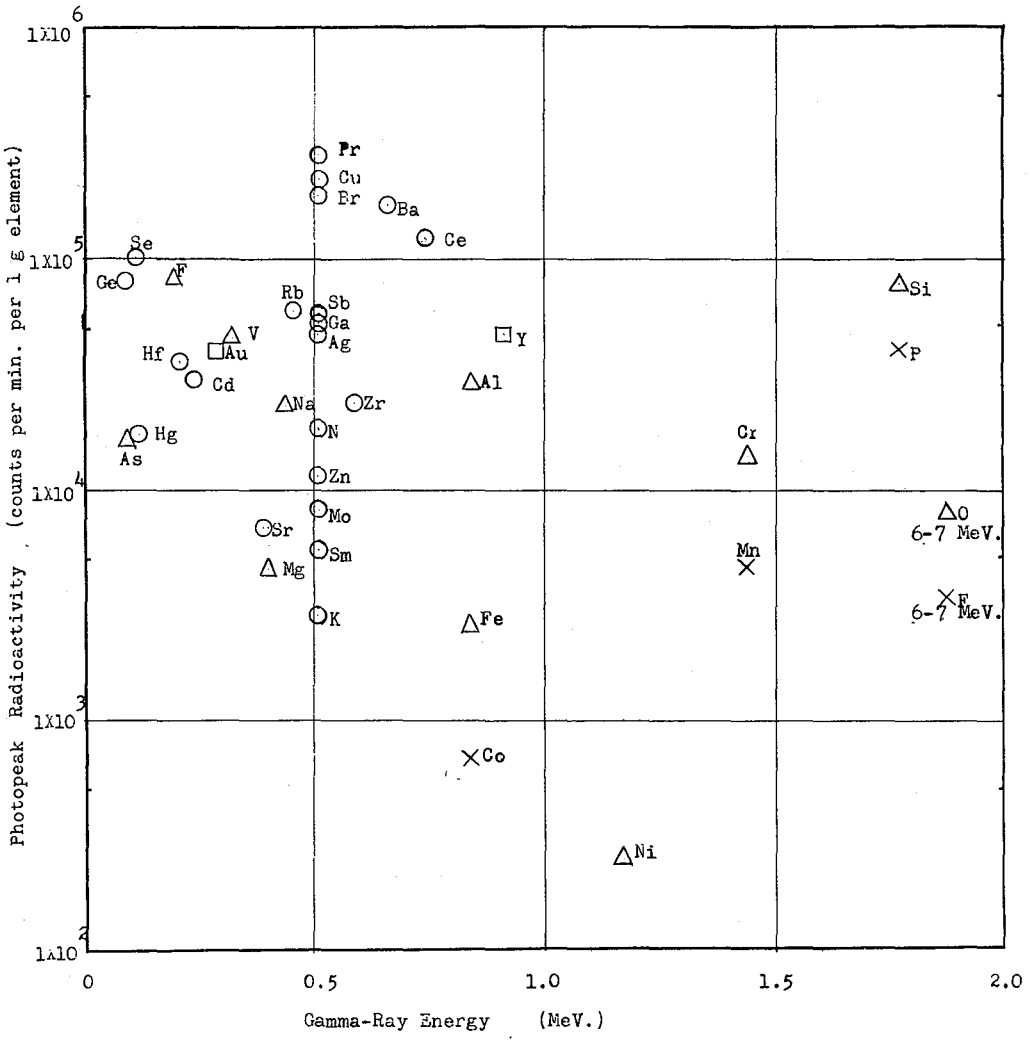
えられたすべての結果を一定の実験條件（中性子束＝1.0×10^7 n, cm^{-2}, sec^{-1}，中性子照射時間＝10.0分，放射能測定時間＝中性子照射直後より1分間，試料重量＝元素1.000g）に基準化して比較検討した。

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

またそれらの光電ピーク面積をガンマー線エネルギーに対してプロットした図を右に示す。

なおS, Cl, Ca, Ti, In, Sn, La, Gd, Dy, Ho, Er, Yb そしてTaの諸元素については，放射化分析に有効な光電ピークはえられなかった。

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



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

○ : (n,2n) reaction △ : (n,p) reaction × : (n,α) reaction

□ : (n,n) reaction

2B23　　精度、感度から見た酸素迅速放射化分析法の限界

東芝中研　　藤井　勲　○武藤治夫

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

2.3 試料母体から生成する放射性核種からの放射線のエネルギー

試料母体から生成する放射性核種からの放射線のエネルギーが高いと、それに応じてジスクリミネータ・レベルを高くしなければならないので感度は減少する。表2にはγ線検出器として1¾"×2"ウェル型NaI（Tl）を使用した場合の各ジスクリミネータ・レベルでの相対的感度（4MeVの場合を1とする）を示す。

表　2

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

2.4 試料の寸法

試料の量を多くすれば濃度で表わした感度は高くすることができるが、中性子源が点線源に近いのであまり試料を大きくしても量に比例して感度は増大しない。表3はタテ型のターゲット・アセンブリの場合の試料の長さと相対的感度の関係であるが、この場合には試料が長すぎることかえって感度は低下する。

表　3

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

2.5 検出器用X'talの寸法および形状

同じ試料母体でも妨害を除くのに必要な最低のジスクリミネータ・レベルはX'talの寸法、形状によって異なる。表4には各種X'talを使用した場合の鉄試料の母体にもとずく計数値とジスクリミネータ・レベルの関係を示す。ジスクリミネータ・レベルの点からは1¾"×2"が最も適していることになる。

表　4

ジスクリミネータレベル(MeV)	試料母体にもとずく計数値(バックグラウンドを1とした相対値)		
	2"×2"サイドホール	5"×5"ウェル	1¾"×2"ウェル
4	1246	289	125
5	163	60.3	9.5
6	24.6	9.2	0.7
7	3.5	1.1	-0.11
8	0.4	0.08	-0.05

2.6 測定系のS/N

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

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

1 精度および試料の偏析の効果

1.1 再現性に関する因子

i) 重陽子ビームのトリチウム・ターゲットへの衝突位置

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

ii) 気送管末端における試料の衝撃位置

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

表 1

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

1.2 試料の偏析の効果の減少

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

1.3 精度に関する実験

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

2 感度に関する因子

2.1 中性子束

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

2.2 試料の母体にもとずく誘導放射能

2B24

放射化分析におけるCRモニタの精度

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

1、概要

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

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

Ⅰ　中性子量の積分値を利用する

Ⅱ　化学的モニタを使う

Ⅲ　CRモニタを使う

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

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

2、CRモニタの原理

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

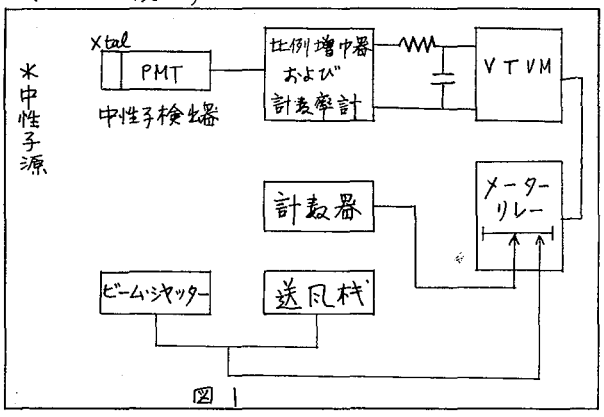


図1

3、精度に及ぼす要因

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

(1) I. Fujii, H. Muto, K. Ogawa, A. Tani : J. Atom. Energ. Soc. Japan 5, 455 (1963)
(2) 藤井勲、武藤治夫：放射化学討論会（金沢）(1962)

現性が問題となる。従ってリレー，メーターリレー，時定数，衝撃時間，計数開始時間などの要因を考えなければならない。動作テストに当っては，検出器に入る中性子がランダムなので規則パルスのみのテストでは誤まりを生ずるおそれがあるのでこの点も注意した。

4、各要因に対する試験結果

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

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

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

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

4.5、計数開始時間：気送管の要求から，衝撃終了時から計数開始迄数秒必要である。従って実は衝撃終了は計数開始の充分上のレベルにあればよいが Routine Work に使う為両者を一定に設定してある。従ってこの間の時間は壊変常数に関係した一定の時間でなければならぬ。このバラツキは1%以下で特に問題はなかった。

5、実際の分析の再現性

以上のテストはすべてHardwareであるから，これを実際の核種にあてはめて人為的に中性子出力を変化させて再現性を調べて見た。選んだ核種は^{16}Oと^{142}Naで核反応は$^{16}O(n,p)^{16}N$（$E_\gamma=6\sim7$ MeV, $T_{1/2}=7.4$ sec），$^{142}Na(n,2n)^{141m}Na$（$E_\gamma=760$ KeV, $T_{1/2}=64$ sec）である。^{16}Oについては先に発表したが，これより半減期の長いものについても充分使用可能である事が分った。図2に^{142}Naの場合の中性子出力の変化と結果を示す。（カーブはCRモニタの出力）

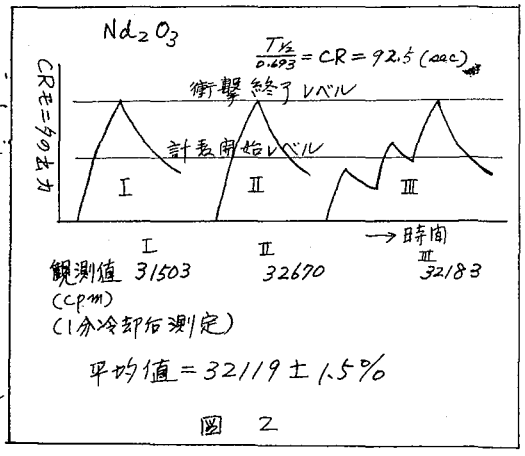


図 2

2B25

同位元素希釈定量法を併用する新放射化分析法（第2報）
——比較法による金の定量——

電通研，東北大選研　　○工藤　測，鈴木信男

緒　言

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

原　理

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

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

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

となり，M_x は放射能測定のみにより容易に求められる。

実験および結果

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

Table Reaction ratio between Au and Rhodamine B

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

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

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

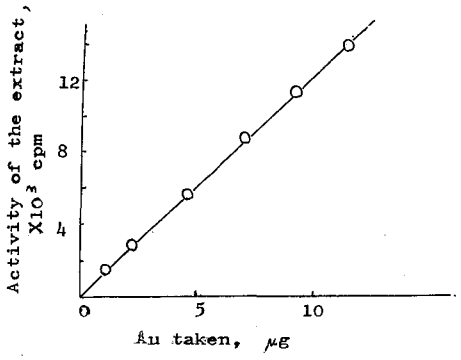


Fig. Relation between the activity and the amounts of Au taken.

acidity 0.1N HCl, volume 10 ml, org. reagent $5X10^{-2}$ %Rhodamine B-$CHCl_3$ 1 ml, shaking time 2 min., carrier content 246 μg

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

2B26

核分裂生成物の放射化学分析（第二報）
$^{235}U(n,f)$ FP 反応における ^{148m}Pm の一次収率

原研　○梅沢弘一．V. MIHAILOVA．夏目晴夫

^{148}Pm はしゃへいされた核種(shielded nuclide)のひとつであるので核分裂反応の一次独立収率を測定することが割合容易である。また ^{148m}Pm と ^{148}Pm を測定することにより核分裂片のうけとるモーメンタムに関する知見も得られよう。^{148}Pm の核分裂収率について，45 MeV のα粒子による ^{238}U の核分裂では $^{149}Pm/^{148m}Pm$ の比が 350 ± 100 という報告[1]がある。また，^{235}U の熱中性子による核分裂では質量数 148 の核分裂生成物全収率にたいする ^{148}Pm の収率の比(fractional independent yield)が 10^{-4} より小さいという結果[2]がある。本実験ではこの結果の再検討を目的として，まず $^{235}U(n,f)^{148m}Pm$ の収率を測定することを試みた。

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

ターゲットは八三酸化ウラン(U_3O_8)で，^{235}U の存在比は 0.67 % である。U_3O_8 500 mg を石英管に減圧封入し，JRR-2 の VT-4 実験孔で 132 時間照射した。中性子束は 10^{13} n/sec·cm² である。

照射後 U_3O_8 を 30－40 mg の Nd 担体をふくむ数 ml の 8 N HNO_3 に溶解する。濃塩酸を加えて蒸発乾固することを数回くりかえして HNO_3 を除く。12 N HCl 溶液にして陰イオン交換樹脂柱（ダイヤイオン SA-100，100－200 メッシュ，RCl型，8 mm φ × 20 cm）を通す。通過液は蒸発乾固してから 6 N HCl と水を加えて溶解し 0.2－0.5 N HCl 溶液にして陽イオン交換樹脂柱（ダイヤイオン SK-1，100－200 メッシュ，HR型，7 mm φ × 10 cm）に吸着させる。樹脂柱を 1 N HCl 60 ml，0.25 M クエン酸 75 ml，で洗ってから 0.25 M クエン酸アンモニウム（NH_4H_2Cit）で希土類元素を溶離する。溶離した希土類元素は溶離液中にある NH_4 と当量の HCl を加え水で2倍以上にうすめて相互分離用の陽イオン交換樹脂柱（ダイヤイオン SK-1，100－200 メッシュ，NH_4R型，10 mm φ × 30 cm）に吸着させる。相互分離の溶離液は 0.5 M の α-ヒドロキシイソ酪酸溶液と，そのアンモニウム塩溶液を 7:3 の比で混合したものである。溶出した Pm の部分は他の小さい陽イオン交換樹脂柱二本（7 mm φ × 10 cm および 5 mm φ × 10 cm）によって濃縮し，かつ有機酸塩を除き，最終的には 0.2－0.5 N HCl 溶液にして，これから測定試料をつくる。

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

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

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

文献

(1) S. M. Bailey, UCRL-8710 (1959)

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

2B27

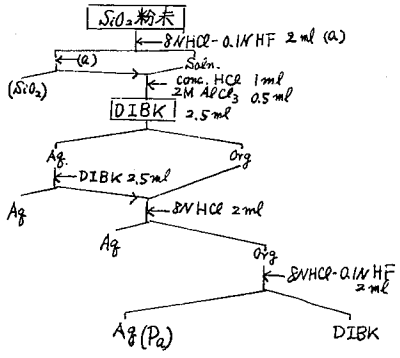
Pa-231の放射化定量に関する研究
(^{232}Pa, ^{233}Pa γスペクトルの利用)

金沢大 理　　阪上正信　高木友雄　阿部正男　大沢真澄

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

照射試料の調製：試料中のPaをあらかじめ濃縮した照射試料として,MnO_2および並ガラスの照射も行ったが,生成放射能が強すぎ,照射後の搬出に問題があったので,これらは予備実験にとどめ,主としてSiO_2粉末による吸着補集を用いて,種々量の^{231}Paをつけた照射試料を調製し,放射化分析の検討をした。このさい吸着条件としては昨年度討論会(2B14)の結果を応用した。すなわちPa, SO_4^{2-}を含む酢酸アンモニウム緩衝液(pH3.8~4.0) 5ml を,SiO_2粉末カラム(内径3mmのポリエチ管に下部より宮崎商方製SiO_2粉末20~30mesh 25mg, 50~80mesh 50mg, 50~80mesh 150mg と 150~200mesh 50mg 混合物をつぎつぎにつめた)に流速0.09~0.03ml/minで通し,さらに蒸留水5ml, アルコール5mlを通過させてのち充分乾燥させ,適当な長さに管の上下を切り栓をし,諸材料は一括してカプセルに入れ照射する。

照射と化学分離：JRR-2気送管(c.4×10^13 n/sec/cm²)にて20分照射後,SiO_2粉末を各カラムからポリエチ管(内径1cm蓋付)にうつし,図1の分離操作を行なって2mlのPa測定溶液を調製した。



〔図1〕

γ測定と定量：各試料溶液は10分間200チャンネルγスペクトロメーターにより測定する。測定は同一試料につき日をかえ4日行った。その一例を図2に示す。生成した^{232}Paの相対的量(Ci)は,γスペクトルの0.78~1.09Mevに相当するチャンネルの総カウント数からその間のBGを減じた値をあてる(この減衰が^{232}PaのT½≒31.7hになることを確認)。一方0.27~0.36Mevに相当するチャンネルの総カウント数から,その間のBGおよび共存するそれぞれの^{232}Paからのこのエネルギー範囲への寄与(^{231}Paのみを照射したものから実験的に求めた因子をCiに乗じ計算)を差し引いたカウント数と,添加した一定量の^{233}Pa 2ml溶液のγスペクトルのこの範囲の総カウント数(BGを引く)との比より,吸着および化学分離の操作における総収

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

この図より^{231}Paの放射化分析の可能性を確認し得ると共に，その感度についても照射時間をさらに長くし，熱中性子束の値の高い炉を用いれば放射化分析は，精度のよいα計測の困難となる0.n dpm の場合にも有効な手段であることがわかる。

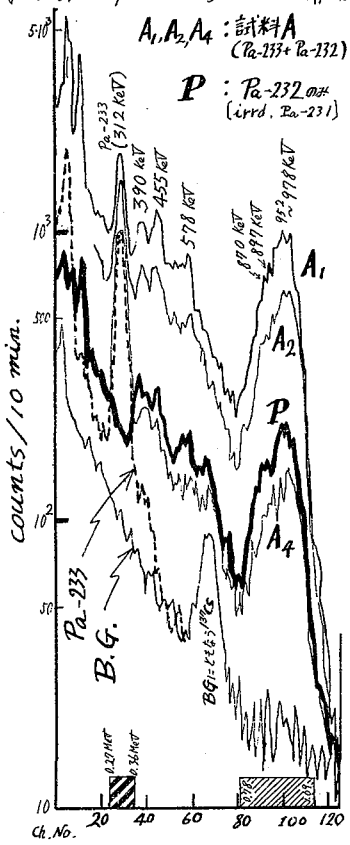


図2 γ Spectrums

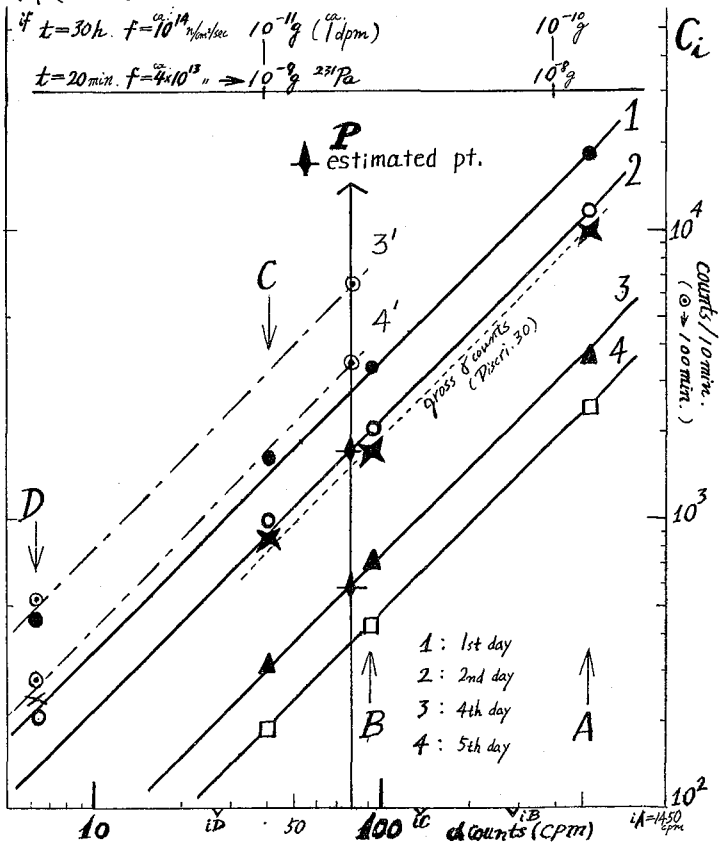


図3 ^{231}Pa(α counts)—^{232}Pa(γ counts : C_i)

2B28　　鉱物・煙灰中のインジウムの放射化分析

京大化研・近畿大原研　○合田四郎　重松恒信　西川泰治

1. Inは安定同位体^{113}In（4.23%），^{115}In（95.77%）からなり，その放射化断面積は非常に大きい。すでに鉛鉱石，亜鉛，金，岩石，鉱物中のInの放射化分析に関する報告があり，中性子束$10^{12\sim13}$ n/cm²·sec で3×10^{-4}%～10 ppm 程度の含有試料について分析されている。演者らは中性子束10^{6} n/cm²·sec（UTR-B 原子炉）でのInの放射化分析法を検討し，In含量の比較的大きい内亜鉛鉱，煙灰試料の分析に応用した。

試料中のインジウムはあらかじめ妨害物質から化学分離し，$Fe(OH)_3$ 担体に共沈させたのち原子炉中で2時間照射，^{115}In（n,γ）^{116m}In 反応によって生ずる半減期54分の^{116m}Inの放射能を測定し，定量した。

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

<u>硫化物沈殿法</u>　Cu^{2+} および第1族，第2族陽イオンを分離するために0.3 N-HCl 酸性溶液にH_2Sを通じ，その際のInの挙動をしらべた。すなわちCu^{2+} 10 mg を含む溶液に$^{114m}In^{3+}$（担体 10 μg）を加え，0.3 N-HCl酸性，全容50 mlとしたのちH_2Sを十分通ずる。生じた沈殿を東洋沪紙No.5C で沪別し，沪液の放射能を処理前の値と比較，Inの共沈率（損失）をしらべた。その結果Inの損失は2%以下であり，沪液中への回収は良好であることがわかった。しかし沪液中にはなお微量のCu^{2+}が存在する。

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

<u>陽イオン交換法</u>　エーテル抽出法と平行して陽イオン交換法によるCu^{2+}，In^{3+}の分離についても検討した。0.3 N-HCl酸性に調製した試料溶液をDowex 50 W×8（50～100 mesh H^{+}型）カラム（14 cm×1 cm φ）に流し，水洗後，0.6 N HClを溶離液とし，20 ml/13～14 min の流速で溶離する。Inは放射能測定によって，Cuはアンミン錯体の比色によって定量し，溶離曲線を求めたところ，Inは20～150 ml の間で溶出されるが，Cuはこの程度のHCl酸性では全く溶出されないことがわかった。なおInは定量的に回収でき

3。

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

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

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

2B29　　鉱油および合成油中の酸素の放射化分析

東芝中研　　○合志陽一，吉田弘美

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

装置：東芝製中性子放射化分析装置ACTIVACを用いた。検出器のシンチレーターは5"×5"NaI井戸型。試料容器は内径12.8mm長さ43mmのポリエチレン製ラビット。検量線用標準試料は、サッカローズをグラファイト粉末にまぜてプレス成型したものを用いた。得られた感度は100～400 counts/mg oxygenであった。1回の測定に要した時間は1～1.5分であった。

1) 鉱油中の酸素の分析

ディスクリミネイタレベル：本実験では4MeVに設定した。この条件では、微量に存在しても妨害をあたえる元素は、BとFだけであるが、いづれも鉱油の場合は無視できる。

マトリックス効果：黒鉛マトリックスの検量線によって鉱油中の酸素を定量すると4～7%高い値が得られ、マトリックス効果があることがわかった。油の種類によっても3%程度検量線の勾配が変化する。

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

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

2) 合成油（五塩化ジフェニル，三塩化ベンゼン）中の酸素の分析

マトリックス効果とバックグラウンドの変化は鉱油の場合と大差ない。

ディスクリミネイタレベル：通常の鉱油と異なり、合成油中にはClが主成分として50～60%存在するため、Clが速中性子によって放射化され生じた誘導放射能が妨害をあ

えることが[illegible]想される。とくに微量酸素の定量の際には大きな誤差の原因となりうるので検討した。まずディスクリミネイタレベルを変化させて、黒鉛マトリックス中の酸素による計数値と試料（約0.03%の酸素を含む）による計数値を比較したところ5MeV以下ではディスクリミネイタレベルを下げると試料による計数値は急に多くなりClによる妨害がみとめられた。そこでディスクリミネイタレベルを5.5MeVに設定し、本法が非破壊法で、迅速にくり返しができることを利用して、20回くり返してマルチチャンネルパルスハイトアナライザーに加算しディケイカーブをとったところ半減期は文献値9.4secと一致した。以上の二点より[illegible]Clを主成分に含んでいる場合は、ディスクリミネイタレベルを5.5MeVに設定すれば良いことがわかった。

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

2B30　　アルミニウム中不純物の放射化分析

日本原子力研究所　　本島健次，○坂東昭次，今橋強

金属アルミニウムは中性子吸収断面積が少く，原子炉材料として多く使用されており，照射容器としても熱中性子捕獲によって生成される^{28}Alの半減期が短く，放射線損傷が少く，機械的強度が大であることと合せて一般的金属材料としては高純度のものが得られ易く，それらの面から適当な材料といえる。しかしながら実際に製造使用されている材質についてはまちまちで照射容器として使用した場合，不純物からくる誘導放射能が高く，なかでもJRR-2試用期間において照射したものの中で照射試料よりもアルミニウム容器の方が放射能が高かったという例が数多く見受けられた。これらのことは照射済試料の取扱い上多くの問題がある。これらの観点からわれわれは金属アルミニウム中の不純物についての定量に熱中性子を用いる放射化分析を試みた。試料は現在使用されているJRR-1，2，3用容器および数種類のアルミニウム試料を選んだ。中性子照射にあたっては比較的半減期の短い核種をJRR-1の気送管（$3\times10^{11}n/cm^2\cdot sec$）で2時間，また長寿命核種をJRR-2垂直実験孔で5MW（$2\times10^{12}n/cm^2\cdot sec$）150時間の連続照射を行った。

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

長寿命核種　照射後約15日経過した試料のX線スペクトルは複雑で多くの核種が混在し，特に1.1 MeV附近では^{46}Sc，^{65}Zn，^{59}Fe，^{60}Coのエネルギーが重なり非破壊法を用いることは困難である。われわれはこれらの相互分離に塩素錯イオンを利用する陰イオン交換クロマトグラフィーを応用し，樹脂にダイヤイオンSA#100，樹脂柱1×13 cm 流速0.5 ml/min で分離を行った。12MHCl で Cr，Sc，7MHCl で Hf，4MHCl で Co，0.5MHCl で Fe，H_2O で Zn，NaOH で Sb が各々溶離される。Sc は溶離後 TBP-クロロホルム抽出によって Cr から分離を行った。溶離液を濃縮しポリエチレン栓瓶に移して56チャンネル波高分析器を用い標準試料とγ線強度を比較し不純物の量を求めた。いくつかの試料について分析した結果，誘導放射能のために使用するのが不適当なもの(A)および問題の少いと思われるもの(B)の不純物の含有の程度は表のとおりであった。

P.P.M.

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

2B47　　生体試料中の水銀の放射化分析

原子力事業　　谷　彰，○長尾博之，中山瑞穂

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

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

溶液中の水銀の分離には同位体交換法を適用した。即ち上例の溶液に対しては1gの金属水銀を加えて10分間振盪し、水銀層を分離して蒸留水で4回洗い、これを濃硝酸に溶解后希釈して3mlとする。^{197}Hg のエネルギーは78keVとかなり低く、水銀による吸収が大きいので、これを補正するため比較用の標準溶液にも同量の水銀が溶けている様にした。これらを各々ポリ棒ビンに入れ、2″× 1¾″φのウエルタイプNaIシンチレータにて測定した。又エネルギーのピークは256 Channel Pulse Height Analyzerにて分離し、収率および検出感度等はこのピーク面積より算出した。

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

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

2B31

高純度タンタル中の不純物の放射化分析

通　研　　○川島　敏，松田吉夫

1　緒　言

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

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

Nb の放射化分析に関しては，鉱石中の Nb を定量したBrownlee[7]の報告，ならびに岩石，グラファイトおよびステンレス鋼中のNb を定量したKimおよびMeinke[8]の報告があり，いずれも ^{94m}Nb を利用したものである。

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

2　実　験

装置：　多重波高分析装置（RCL，TMC，東芝）1¾ inchφ×2 inch 井戸型 NaI シンチレーター付。

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

中性子照射：　原研，JRR-1，立教原研TRIGA-IIで30分照射。

γ線スペクトロメトリー：　時刻 t から△t 時間（sec）計測したときに得られた 16.6KeV 光電ピークの強さ（高さあるいは面積）から次式によつて時刻 t における 6.6 m ^{94m}Nb の計数率 R_t を求め，数点の R_t から時刻 t = o における R_0 を求め，標準試料のそれと比較して定量した。

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

操　作

1. ^{95}Nb および Nb 担体と共に，HNO_3，HF 混酸で試料を溶解する。
2. 硫酸を加え，～6 N H_2SO_4，0.1 f～1 fHF溶液とし，MIBK 溶媒抽出によりTa を分離
3. 水相を分離し，γ線スペクトルをとる。
4. 後に，^{95}Nb の γ線スペクトルをとり収率を決定する。

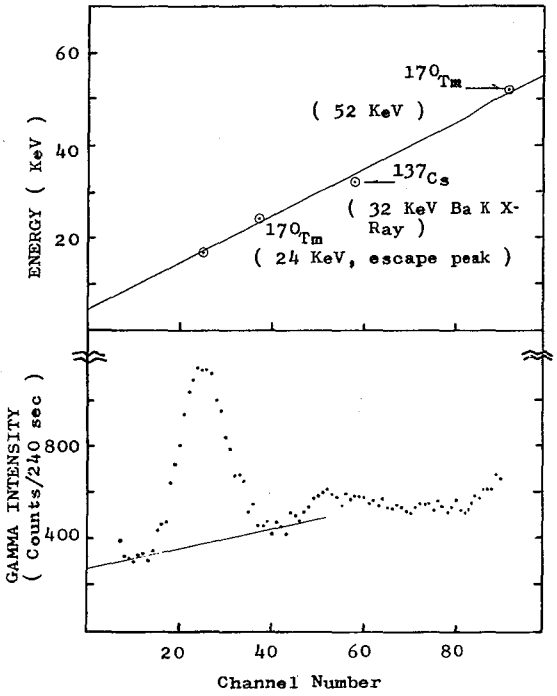


Fig.1. Gamma spectrum for the aqueous phase
Sample; Ta-VIII-3., Reactor: TRIGA-II, St. Paul Univ., Irradiation: 30 min.
Count: 13 min after the end of irradn.

3　結果　および　考察

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

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

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

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

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

b: determined by the use of photopeak height intensity.

c: determined by the use of photopeak area intensity.

REFERENCES

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

2B32

海水中の微量重金属の放射化分析

東北大・理　　岡 好良，°加藤豊明，斉藤達弥，野村紘一

海水中に存在する元素の存在量については，従来，多くの研究が行なわれており，Sverdrupらの著書"Ocean"およびその後の文献によって，少なくとも46種の元素の濃度を知ることができるが未だ濃度が明らかでない元素も多い。それらはその存在濃度が著しく微小なことと分離分析方法の検討が不充分なために信頼できる定量値が得られなかったと考えられる。

著者らは先に海水中の金の含有量を中性子放射化分析法によって求めて報告したが，(岡，加藤，佐々木，日化，85 No.10 (1964)) 本研究では，引き続いて金の定量値を得る目的で研究を進め，さらに，海水中の存在濃度が未だ明らかでない微量重金属の中からSb, Zr, HfおよびInを選んで同じく中性子放射化法によってその定量を試みた。また，トレーサーを使用して各元素の分離，汚染除去方法の検討を行なった。

試料海水は東北地方太平洋側近海の表面水9種を用い，Auの定量にはこれら海水4 mlを内径10 mmの石英管に乾固封入して照射試料とした。Sbその他の重金属の場合には海水1 lより30 mgのMnO_2によって共沈捕集したものを照射試料とした。照射はJRR-2原子炉の熱中性子束，2×10^{13} n/cm²·sec. により130時間行ない，約1週間冷却してからそれぞれの分離測定を行ない標準試料と比較定量した。

Auの分離分析法は，照射後の海水蒸発残渣にAu担体60 mgを添加し，王水，塩酸で処理した後，3 mol/l HBr溶液として酢酸エチルで抽出し，抽出液を3 mol/l HBrで3度洗浄を繰り返してから蒸発乾固し，残渣を6 mol/l HCl溶液としてハイドロキノン水溶液により金を還元，濾別，洗浄して測定試料とし残留する^{198}AuをG-Mカウンターで測定した。収率は約95%であり，^{198}Auの放射化学的純度は高いことを確かめた。また，あらかじめAuの一定量に標準海水を0～6 ml添加し乾固した試料について中性子遮蔽の影響を検討したがその影響は実験を行なった範囲では認められなかった。35°21'～41°20'N，142°31'～145°42'Eの範囲で採取した表面海水9種について，4～88 μg Au/m³という定量値を得た。

Sbその他については，あらかじめ^{124}Sb，^{95}Zr，^{181}Hfおよび^{114m}Inを用いてMnO_2による捕集率を求めたがいづれも良く捕集できることを確かめた。照射後の試料よりSbの分離は，担体添加の後，陰イオン交換，イソプロピルエーテル抽出，硫化物としての沈澱法等を組み合せて行ない^{124}Sbを測定し，ZrおよびHfは酸性リン酸塩としての沈澱；TTA抽出，$BaZrF_6$および$BaHfF_6$の沈澱，フェニルアルゾン酸塩の沈澱法によって分離，汚染除去し，H_2SO_4-Dowex 50系の陽イオン交換法に相互分離し^{95}Zrおよび^{181}Hfを測定した。Inについては，陰イオン交換，ハロゲン化水素酸溶液よりの抽出，オキシン塩としての沈澱等を組み合せ^{114m}Inを分離測定した。

数種の海水について，Sbその他の微量重金属を定量した結果について報告する。

2B33　　$^{14}N(p,\alpha)^{11}C$ 反応によるグラファイト中の窒素の放射化分析

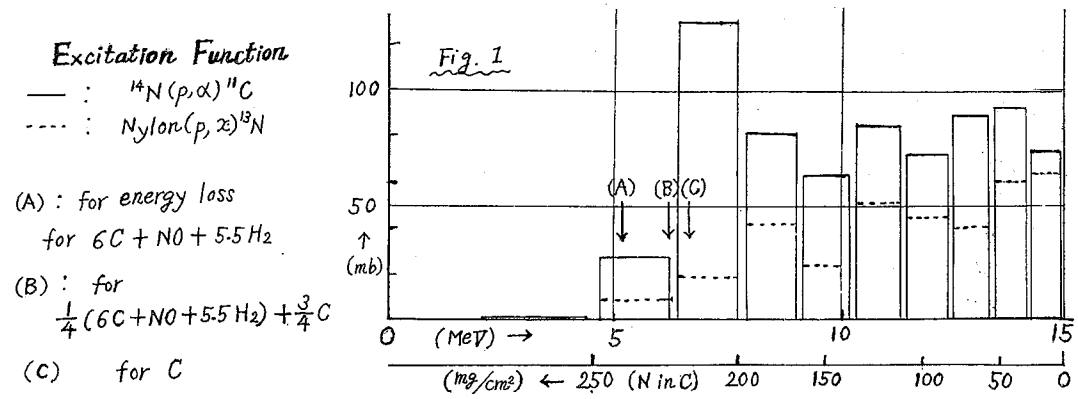
理研　　野崎　正

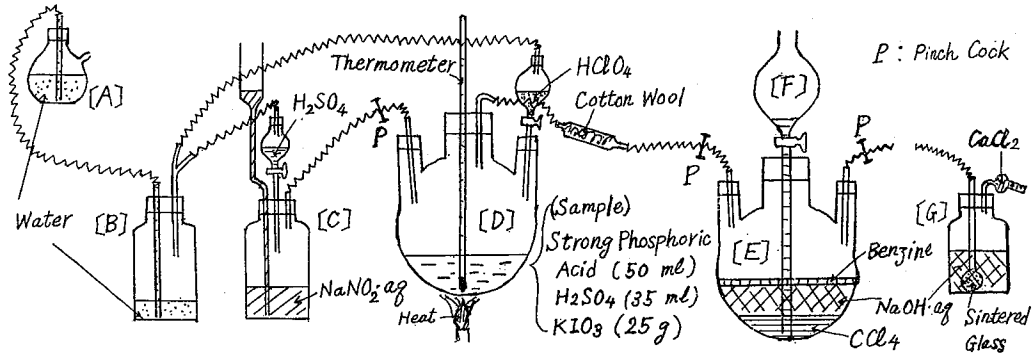
$^{14}N(p.\alpha)^{11}C$ 反応を用いて pyro-graphite 中の数十 p.p.b. の窒素の定量に成功した。今までに報告されている微量窒素の分析法は、graphite に適用できないか、または、感度が足りない。また、どんな表面でも、一度空気に触れたら、窒素を吸着していると考えねばならぬ。$^{14}N(p,\alpha)^{11}C$ を用いる放射化分析では、表面窒素の影響を除くことができ、検出限界は数 p.p.b. である。ホウ素の $^{11}B(p,n)^{11}C$[1] が唯一の妨害となる。pyro-graphite とは有機物の熱分解で生じた graphite のことで、ここで用いた試料は、ほぼ単結晶の光沢ある板である。最近、ピリジンから作つた pyro-graphite は、半導体として大変興味ある性質を持つことが見出され、これは微量の窒素に基くと考えられる。pyro-graphite を陽子照射すると、$^{13}C(p,n)^{13}N$ で ^{13}N が多量に生じ、また、不純物から長寿命核種のできる可能性もある。そこで、^{11}C を正確に測定するには化学分離が必要である。木羽氏等の開発した強リン酸中での酸化法[2] は、試料の分解に大変有効である。この場合、graphite 自身が ^{11}C の carrier となる。

励起関数の測定　約 22 mg/cm^2 のナイロン膜を薄いアルミニウム箔中に挟み、それを stack にして、核研の 15 MeV の陽子で照射した（92 秒間、総陽子流 5.0 ± 0.1 μ Coulomb）おのおのの試料を真鍮板で挟んで、annihilaltion radiation を single channel analyser を用いて測定し、^{22}Na の標準を用いて較正した。^{11}C と ^{13}N 以外の核種はほとんど生じていなかつた。ナイロン中での energy loss は、各構成元素の単体に対する値の和をとると大きくなり過ぎる。そこで、適当な値を選んで励起関数の低エネルギー部分が Blaser 等の求めたもの[3] と一致するようにするより仕方がなかつた。オ1図に結果を示す。炭素中の 1 p.p.m. の窒素を 15 MeV-1 μA の陽子で照射すると、total saturation-activity は 5.3×10^3 d.p.s. となる。

表面窒素の問題　stack 中のアルミニウム中に来た ^{11}C を測定して mean recoil range を求めたところ、14.2 MeV の陽子のときは、0.36 mg/cm^2 であつた。以前に、$^{16}O(\alpha,pn)^{18}F$ の場合は、^{18}F の mean recoil range の 5 倍だけ表面を削りとれば、表面酸素の影響が除けることを示した。そこで、今の場合は 1.8 mg/cm^2 だけ除去すればよいことになる。

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





ウムの沈澱を作つた。炭素の回収率はほゞ定量的であるが、生ずる炭酸バリウムが多量なので、その一部をとつて放射能測定を行つた。

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

とくに討論を希望する事項

(1) 化合物、とくに水素を多く含む化合物中での charged particle の energy loss

(2) 強リン酸化法の放射化分析への応用

1) Furukawa M. et al., J.phys.soc.Jap.,15 ,2168 (1960)

2) 大羽敏泰, 化学と工業, 11,730(1958)

3) Blaser J.P.et al., Helv.Phys.Acta.25,442(1952)

4) Saito K. et al., Irtern.J.appl .Rad.& Isotopes, 14,358(1963)

2B34　　カドミウム-112と35MeVまでの陽子による核反応断面積の研究

阪大理　　久米三四郎　三藤安佐枝　○岡村日出夫　音任清輝

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

非複合核過程の寄与にせよ、複合核の運動量の影響にせよ、入射粒子は異るが同じ複合核を与える反応についてGhoshal実験を行えばかなりはつきりした結論が与えられる。前回の放射化学討論会ではCd+p(Ep=15Mev)，Cd+d(Ed=20Mev)の反応について発表した。それによれば反応は複合核過程で進行し、複合核の角運動量の差も励起函数には実験誤差以上には影響を与えないことを確めた。今回はCdとFMサイクロによる35Mevの陽子との反応について調べさきに得たAg+α反応の結果と全面的な比較を行うことを目的にし実験した。

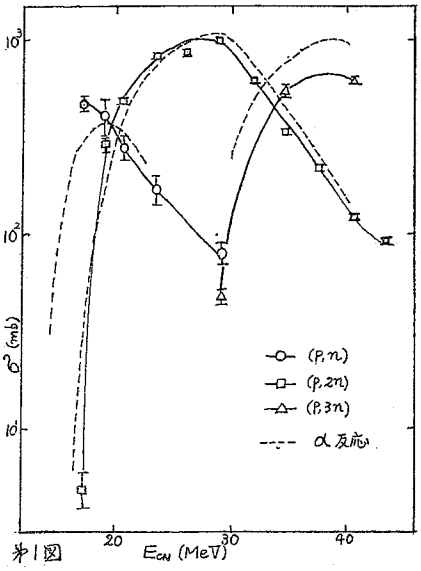
一方、核異性体生成断面積比の入射粒子による変化からも複合核の角運動量の差が調べられる。さきのAg+α、Cd+p、Cd+d、の反応で得た結果は、入射粒子による断面積比の差がn放出反応についてかなり顕著にあらわれることを示した。今回の実験では主として、3n放出反応についての断面積比を測定した。

（実験　ターゲットには、濃縮同位元素^{112}Cd(98.87%)を使用し、シアン溶液よりアルミ箔上に電着した後剥離して約3mg.cm^{-2}の箔とし、エネルギー減衰用のAl箔と積重ねた。ターゲットは原子核研究所のFMサイクロトロンからの陽子55.3±0.3Mevで衝撃した。測定は箔のまま行つた。^{112}Inについては、(14.5分)及び(20.7分)ともに消滅放射線を測定し崩壊曲線を解析して相対値とし、絶対測定は二直角同時計数法で^{22}Na標準線源を用いた。^{111}In(2.8日はカスケードγ線を利用して同時計数法を行つた。^{110}In(66分)は0.66Mevのγ線、^{110}In(4.9時間)は0.88Mevのγ線の崩壊曲線をそれぞれ解析し相対値をきめ、絶対測定はスペクトルの剥離法を行い、両者共0.66Mevのピークの値を^{137}Cs標準線源をもつて決定した。

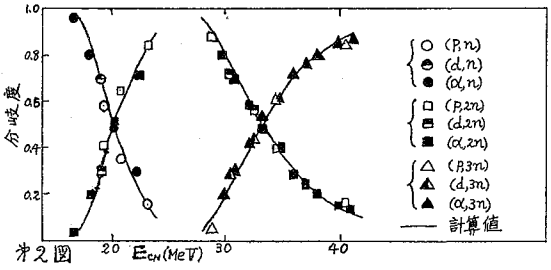
（結果と検討）　全断面積　実験で求めた断面積の和は、光学拡散模型による計算値の妥当性を物語つている。　反応の分岐度　今回の実験結果と以前我々のグループの得た結果をGhoshal実験と同様の方法で比較したのが第1図に示してある。縦軸は断面積である。入射粒子の違いによつて全反応断面積が異るために励起函数では直接比較出来ないが、第2図にはそれぞれの反応を全断面積で割つたもの（分岐度）を示した。又第2図には統計

論による計算値が曲線で示されてある。但しn−2n反応領域では$a=2\,\mathrm{MeV}^{-1}$, 2n−3n 反応領域では $a=3\,\mathrm{MeV}^{-1}$ を用いた計算値である。実験値は粒子が異つているにもかかわらず分岐度が実験の誤差内で一致しているし又小さなaの値ともよく一致している。このことから小さなaを非複合核反応の寄与とすることは出来ない。次に、小さなaを複合核の角運動量効果による γ 線の競争で説明したGroverはその例として$^{109}Ag(\alpha,n)$ ^{112}Inについて計算を行っている。この計算に用いたパラメーター $a=11\,\mathrm{Mev}^{-1}$ $I=0.2\pi I_R$を用いて計算した結果を実験値と比較したのが第3図a及びbである。横軸は閾値からのエネルギーであり縦軸はa、bそれぞれ2n反応、3n反応の分岐度である。又点線はα粒子反応の計算値であり割線は陽子反応の計算値である。いづれの場合も計算値は入射粒子の違いによつて著しく分岐度が異っている。しかるに実験の分岐度は誤差内で一致している。このことから小さいaを角運動量で説明するのは無理であることが分る。 核異性体生成断面積比 入射粒子の違いによる核異性体生成断面積比曲線の違いははつきり実験に現れており、又この違いは定性的にではあるが角運動量のsharp cut off 近似で妥当であることが説明できる。

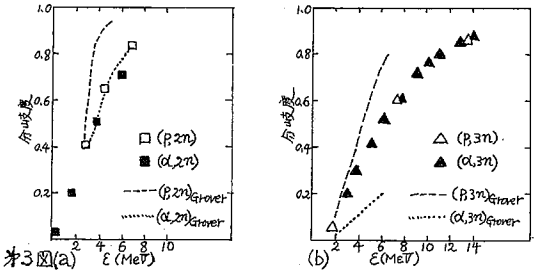
（結論） 核反応過程では粒子の違いによる角運動量の変化は核異性体生成断面積比ではつきり認められるが、分岐度に粒子の違いが顕著にあらわれず小さなaで計算値と一致する。このことから、小さなaの解決は角運動量には関係がなくて複合核反応機作の中に求められるべきであることが分る。



第1図



第2図



第3図(a) (b)

2B35

ウランのヘリウムイオンによる核分裂の収率曲線

東大核研，アーカンソー大　○坂本浩，P.K. KURODA

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

核分裂の収率曲線の微細構造を研究するためには，数個の連続した質量数における収率を正確に測定する必要がある。例えば，放射化学的に，核分裂生成物の中から，沃度を分離すれば，質量数 131，132，133，134，135 の系列の収率を一挙に測定することが可能である。しかしながら，このように連続したいくつかの質量数において，収率を測定した例は，極めて稀である。そこで，われわれは，20 MeV，30 MeV および 40 MeV のヘリウムイオンによるウランの核分裂，および次の講演で一部報告するような制動輻射X線を用いたウランの光核分裂において，I^{131} (8.05d)，I^{132} (2.30h)，I^{133} (20.8h)，I^{134} (52.5m)，および I^{135} (6.7h) の測定を行い，あわせて Mo^{99} (66h)，Ag^{111} (7.6d)，Ag^{112} (3.14h)，Ag^{113} (5.3h)，Br^{83} (2.4h)，Br^{84} (31.8m)，Sr^{89} (51d)，Sr^{90} (28y，Y^{90} 64.3h)，Ba^{140} (12.8d)，Ce^{141} (33d) 等の収率を求めて収率曲線の大体の形の照射エネルギーによる変化を求めると共に，質量数 130 ないし 136 の附近に微細構造があらわれるかどうかを調べることに着手した。

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

132 の系列の収率を求めた。Mo^{99} の収率の測定には、Wiles & Coryell のオキシン法(Phys. Rev. 96,(1954)696)を採用し、Ag^{111}, Ag^{112}, Ag^{113} は Glendenin の方法(Radiochemical Studies; The Fission Products, Paper 267, (1951))を用いた。Sr, Ba は炭酸塩法(Ce と共に)、過硝酸塩法を併用し、両者の分離にはクロム酸法を用いた。

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

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

ウランの自発核分裂の収率曲線の形と比較すると、対称性分裂の極大に相当する質量数110ないし120附近の谷が残っていることが最も顕著な違いであるが、重い方の収率曲線の極大が比較的良く一致している反面、軽い方の山は、ヘリウム-イオンによる核分裂の場合には著しく重い方にずれていることが目立つ。その"ずれ"は質量数にして4程度で、ヘリウム-イオンの質量数にほゞ一致している。このような傾向は、質量数の異なる、例えば U^{238} と Cm^{242} の自発核分裂の収率曲線の相違と、定性的にはよく一致している。

微細構造に関しては、目下、データーの整理中であるが、報告出来る見込みである。

2B36

ウランの高エネルギー光核分裂の収率曲線

東大核研、アーカンソー大　○坂本　浩，P. K. KURODA

ウランの光核分裂の収率曲線に関しては，Schmidt & Sugarman (Phys. Rev. 95 (1954) 1260), Richter & Coryell (Phys. Rev. 95 (1954) 1550) 等の研究がある。Schmidt らによれば，X線のエネルギーを，7 MeV, 10 MeV, 16 MeV, 21 MeV, 48 MeV, 100 MeV および 300 MeV に変えた場合に，peak-to-trough 比は，300 から 4 に減少する。熱中性子による U^{235} の核分裂の場合にみられる質量数 100 および 134 にあらわれる微細構造は，ウランの (U^{238})，光核分裂の場合にもあるらしいことが報告されている。しかし，彼らは，質量数 131, 132 および 133 (48 MeV の場合のみ) の収率だけを測定し，質量数 134, 135 の収率の測定を行わなかったために，はっきりしない。

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

ターゲットには，200 g の $UO_2(CH_3COO)_2 \cdot 2H_2O$ (横沢化学工業製) を，直径約 5 cm の円柱状とし，東大核研のエレクトロンシンクロトロンの 650 MeV 電子を白金ターゲット (0.05 mm) で制動輻射X線とし，これの collimated beam (直径 8 mm の Pb) を用いて照射した。ビームは照射位置で直径約 3.5 cm で，ポラロイドカメラにより確認し，大略のビーム強度は Wilson 型の thick-walled ionization chamber を用い current integrator で読んだ。平均 10^7 eq. quanta/sec であった。尚，照射は 50 分行った。

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

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

得られた収率曲線の大体の形をウランの自発核分裂の収率曲線の形と比較してみると，最も顕著な違いは，云うまでもなく，光核分裂の場合は谷が極めて浅くなっている。換言すれば，対称性核分裂の割合が著しく大きくなっている。次に，質量数 85 以下および 150 以上の収率が，光核分裂の場合には，自発核分裂の場合より著しく高くなっていて，両方の山の幅が広い。極大の位置は，重い方は質量数 140 附近に，軽い方のピークは質量数 95 附近にあり，自発核分裂の場合に似ている。しかし，質量数 133～134 附近にもう1つのピークが存在するらしいことは注目に値する。これが，所謂，微細構造に対応するものかどうか，目下，断定し難い。ただ，自発核分裂の場合にみられる質量数 132 のピークは，無いようである。peak-to-trough 比は約 6 で，300 MeV の場合より，やっと大き目になっているが，これは実験誤差によるものか，実験条件によるものか，今の所断定出来ない。なお，出来得れば，近い将来，2 GeV の X 線による光核分裂の収率曲線，並びに 600 MeV 以下におけるデーターをもとることを考慮中である。

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

$$\delta_i = \left(\frac{Xe^{i}}{Xe^{130}}\right)_{大気} - \left(\frac{Xe^{i}}{Xe^{130}}\right)_{隕石} \qquad \cdots\cdots (1)$$

ここに，i は質量数 131，132，134，136 である。δ_i の値を，i に対してプロットすれば一種の核分裂収率曲線が得られ，それが Pu^{240} の自発核分裂の収率曲線に似ている。このことから，地球大気中には，超ウラン元素の天然核分裂によって生成したゼノンの重い同位元素の過剰が存在するのではないかと考えられている。一方，上記の δ_i 曲線はウランの光核分裂の収率曲線の形にもいくらか似ている (O. K. Manuel & P. K. Kuroda, J. Geophys. Res., 69 (1964) 1413)。これは，地球あるいは太陽系生成の初期に，地球物質は強烈のガンマ線の照射を受け，ウランが光核分裂生成物を作ったのではないかとも考えられる (W. A. Fowler, J. L. Greenstein and F. Hoyle, Geophys. J. Royal Astron. Soc., 6 (1962) 148)。しかし，式(1)からの δ_i 曲線では，質量数 132 に極大がみられるのに反し，今回のわれわれの得たウランの光核分裂の収率曲線では，質量数 133 か 134 に極大が現われ，上の δ_i 曲線との一致はあまりよくない。

2B37

ウラン－235 核分裂の際の銀－112の收率

理研物研究所, M.I.T　○木村幹　C. D. Coryell

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

約500mgの天然ウラン（炭酸ウラニルアンモニウムまたは硝酸ウラニルを使用）を100秒M.I.T原子炉の気送管（8×10^{12} n/cm²/sec）で中性子照射し，照射終了後30～70秒のうちに銀を親元素であるパラジウムから分離し，のち銀の部分を精製，その放射能を測定する。ウランおよび大部分の核分裂生成物を含むパラジウム部分は10時間以上放置したのち，新たにパラジウムから生成した銀を前と同様に分離精製しその放射能を測る。数回の実験ではさらに才2，才3のミルキングをも行った。分離の方法は塩化銀の沈殿をつくる通常の方法，精製法も硫化物沈殿の段階を金属還元に変えたのみであとは常法[1]に従った。測定は速い才1の分離試料にあっては，目的の銀－112（半減期3.2時間）の微弱な放射能を比較的大量に存在する銀－115（20分）および銀－113（5.3時間）の放射能から分けて測ることが問題であった。このためにBeckman－Sharp社製のβ線用比例計数装置をもちい，照射後約4時間たってから最終の精製を行うことによって銀－115およびその壊変生成物の影響をおさえ，かつ840 mg/cm²のアルミニウム吸收板で銀－113のβ線を1/10000にまでおとして（銀－112の方は約1/10にしかおちない），減衰を追跡した。得られた測定データを計算機で解析し，またビラー解析も併用して銀－112の放射能を求め，化学收量の補正を行い，これから照射中および分離中にパラジウム－112から生成する量を差し引き，さらに最初の塩化銀沈殿に附着したパラジウム（0.2％）から生じる量も引き，直接生成した銀－112の放射能値とする。ミルキングの試料も同じ計数条件で測定し，化学收量などの補正を行う。この両者の値の比は部分鎖列收率を與える。

こうして求まった銀－112の部分鎖列收率は2.2×10^{-3}，鎖列收率を10^{-4}とすれば独立收率は2.2×10^{-7}となる。またこの質量数領域でも荷電分布曲線が定数0.94のガウス分布に従う[2]ものと仮定すればZpは44.7となる。

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

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

2B38

Pt-188, Ir-188 の DECAY

東大理
核研*
原研**
○佐藤 純, 山崎敏光*, 横山新之, 阪井英次**

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

$$Re\ (\alpha, 3n)\ ^{188}Ir \quad ; \quad Ir\ (p, 4n)\ ^{188}Pt \xrightarrow[10d]{E.C.} {}^{188}Ir$$

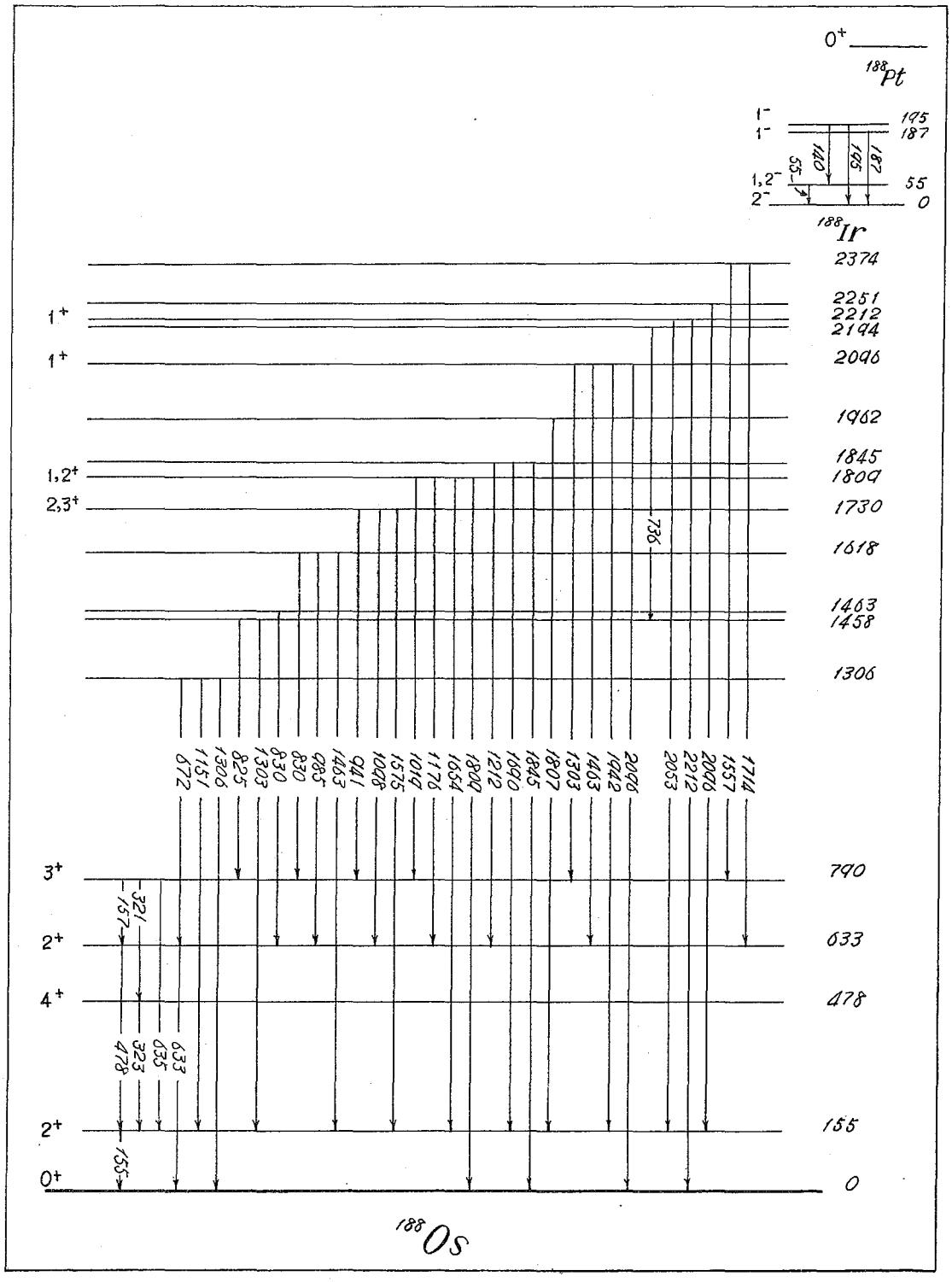
また、イリジウム-188の親核種に当る白金-188 の DECAY SCHEME は殆んど完成されているようであるが、近接した二本の主γ線の強度に就いては未だ測定されていない。筆者等はまたその強度比を測定することを試みた。

実験　線源　Re(α)；ターゲットを硝酸に溶解后生成した ^{188}Ir を水酸化鉄と共沈。エーテル抽出に依り鉄を除去し無担体のイリジウムを得る。
Ir(p)；ターゲットを塩素化し、塩酸に溶解后生成した白金を KI で還元し、DDC の錯体としてクロロフォルムに抽出し無担体の白金を得る。
β^+ 及び e^- 測定用線源は、これを過塩素酸処理后、過塩素酸アンモン浴より白金箔 (20mm × 1mm ; 5μ) 上に電着する。

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

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

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


0+
188Pt
1-
1-
1,2-
2-
195
187
55
0
140
195
187
55
188Ir
2374
2251
2212
2194
2096
1962
1845
1809
1730
1618
1463
1458
1306
1+
1+
1,2+
2,3+
736
1711
1557
2009
2212
2053
1642
1403
1303
1807
1845
1900
1212
1804
1654
1176
1010
1575
1048
1141
1493
685
830
830
1303
825
1300
1151
672
790
633
478
155
0
3+
2+
4+
2+
0+
321
157
478
323
635
633
155
188Os

2B39

Re に於ける PERTURBED ANGULAR CORRELATION の試み

東大理
核研*　　○佐藤　純，横山栢之，山崎敏光*

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

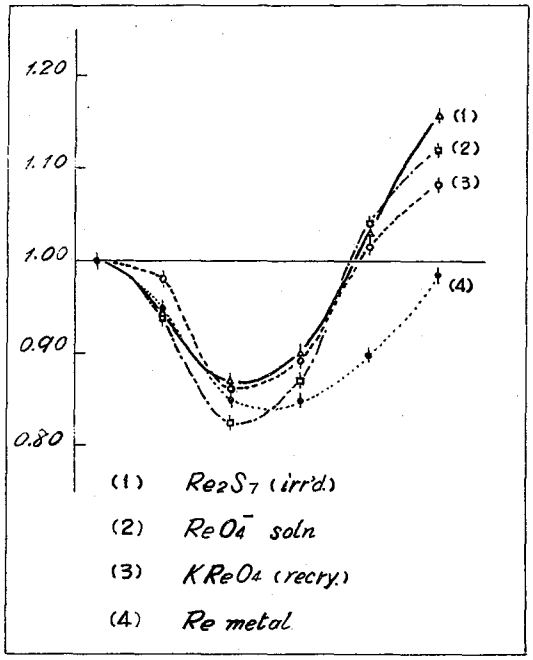
実験　ターゲットは天然同位体組成の金属レニウム及び過レニウム酸カリを用い、中性子照射は原研原子炉(JRR-1, JRR-2)と立教大学原子炉で行った。照射後、必要に応じて試料に化学操作を行い、夫々の線源の強度を揃えて角相関用の線源用容器(径3mm)に充填し、これを測定試料とした。

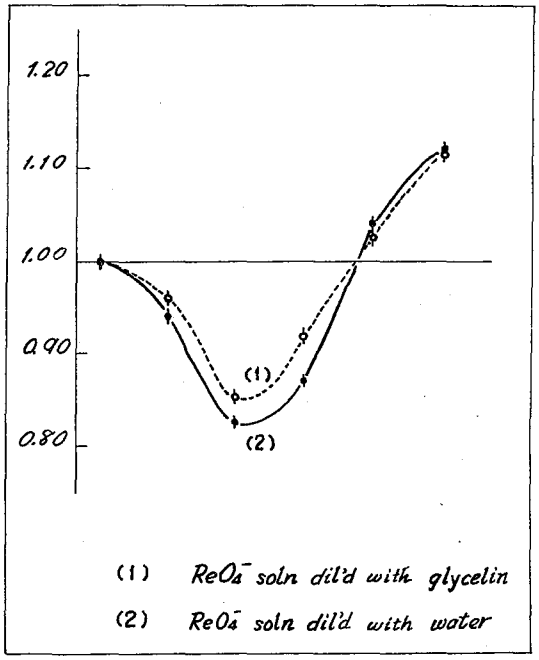
測定は、コリメートした 3"Φ×3" NaI(Tl) シンチレーション・カウンターと TMC 1024 チャネル波高分析器を用い行われた。FAST COINCIDENCE 回路の分解時間は $2\tau=40$ ns である。測定点は 90° から 180° まで等間隔に6点測定を行い、各点の一回の測定時間は2分である。夫々の線源に就いて測定回路の変動による系統的な変化の影響を避けるために、1時間毎に線源を次々と取り替えて、これを繰り返えした。

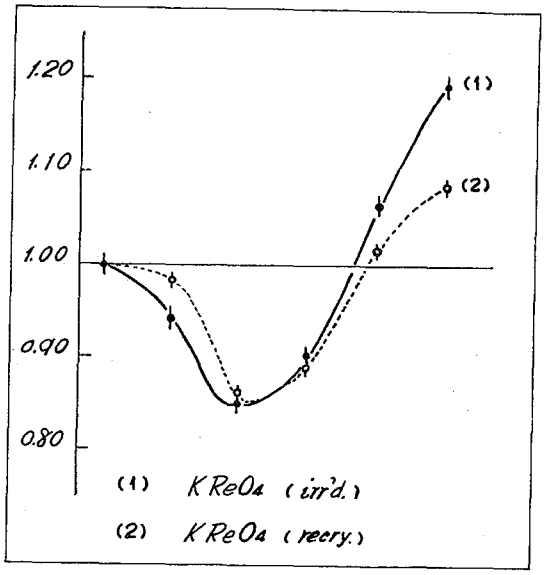
CHANCE COINCIDENCE 及び TAIL との COINCIDENCE の差引きは、東大核研の INS-1 パラメトロン電子計算機を使用して行い、夫々の線源について各点の TRUE COINCIDENCE スペクトルを得た。

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

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


1.20
1.10
1.00
0.90
0.80
(1)
(2)
(3)
(4)
(1) Re_2S_7 (irr'd.)
(2) ReO_4^- soln
(3) $KReO_4$ (recry.)
(4) Re metal


1.20
1.10
1.00
0.90
0.80
(1)
(2)
(1) ReO_4^- soln dil'd with glycelin
(2) ReO_4^- soln dil'd with water


1.20
1.10
1.00
0.90
0.80
(1)
(2)
(1) $KReO_4$ (irr'd.)
(2) $KReO_4$ (recry.)

3B40

リチウム塩溶液の原子炉照射による^{18}Fの生成

武蔵工大原研　　○丸山芳明，出羽知英，

フッ素の放射性同位体をトレーサーとして利用する場合，その半減期の短いことから使用できる核種がかぎられてくる。　^{18}Fは半減期が1.87時間で，フッ素の放射性同位体の中では最も長い半減期をもっておりトレーサー実験等に十分利用できる。ところで^{18}Fはいろいろな核反応によってできるが，かなりな量をつくることができるという点から，原子炉による$^{16}O(t,n)^{18}F$反応によるものが最も一般的である。
今日においては硝酸リチウム，水酸化リチウム，炭酸リチウムのような酸素を含んだリチウム化合物をそのまま原子炉の中性子束より照射することにより^{18}Fを生産している。

この実験においてはリチウムの水溶液を原子炉照射して^{18}Fを生産することを試みた。　照射はTRIGA－II型原子炉の気送管にておこなったが，100 KWにて熱中性子束は1.3×10^{12} n/cm²·sec，カドミ比Cd_{c_0}は5.7，速中性子束は9×10^{11} n/cm²·secであった。

まず水溶液の原子炉照射の場合の中性子束について検討した。
熱中性子束は酢酸コバルトの3%の水溶液をつくり用いた。　照射はたまご形の約1 mlの溶液の入るポリエチの容器にコバルト水溶液を入れ加熱して封じておこなった。　酢酸コバルト水溶液と同時に酢酸コバルトの粉末30 mgを照射して中性子束の比較をおこなったが，両者は誤差以内にて同じであった。
また速中性子束の測定は2%の硫酸アンモニウム水溶液をつくり用いた。　速中性子束も熱中性子と同様に固体照射の場合と比較したが，水溶液照射の値は固体照射の6%減少を示した。
次にリチウム塩溶液を照射し^{18}Fを生産した。
リチウム塩溶液は特級の水酸化リチウムを水に溶解し3%のものをつくった。　水は一度蒸留したものをさらにイオン交換樹脂をとおして精製したものを用いた。　照射は中性子束の測定に用いたものと同じポリエチの容器にリチウム塩溶液1 mlを入れ封じこみ100 KWにて30分おこなった。　この場合水溶液と同時に水酸化リチウムの粉末30 mgを照射し^{18}Fの生成量を比較したが，その結果水溶液照射の生成量のほうが，固体照射の1.2倍であった。　放射能の測定は照射2時間後，γスペクトロメーターにより0.51 Mevのγ線によりおこなった。

3B41

（n，γ）反応により製造する精製ＲＩ中の不純物
金・銀ターゲットの検討

日本原子力研究所　　○山林尚道，中村治人，天野　恕

1．　目　的

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

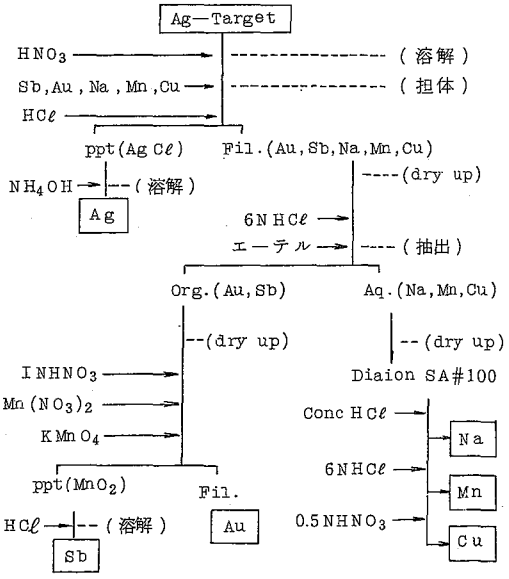
2．　実験方法

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

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

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

第1図　銀ターゲット中の短寿命不純物の分離



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

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

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

3．結　果

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

才1表　金ターゲット中の不純物の例

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

才2表　銀ターゲット中の不純物の例

	不純物		生成放射能照射後10日	
	元素名	含有量(ppm)	生成核種(半減期)	生成放射能強度比
銀板	Na	13	Na—24(15h)	2.0×10^{-7}
	Mn	≦0.002	Mn—56(2.58h)	
	Cu	0.21	Cu—64(12.8h)	1.3×10^{-9}
	Au	0.022	Au—198(2.7d)	3.6×10^{-5}
	Sb	0.28	Sb—122(2.74d)	3.1×10^{-5}
			Sb—124(60d)	7.1×10^{-5}
	Co	≦0.1	Co—60(5.2y)	$\leq 0.8\times10^{-5}$
銀線	Na	13	Na—24(15h)	2.0×10^{-7}
	Mn	0.21	Mn—54(2.58h)	
	Cu	9.2	Cu—64(12.8h)	5.5×10^{-8}
	Au	1.8	Au—198(2.7d)	3.7×10^{-3}
	Sb	5.9	Sb—122(2.74d)	6.6×10^{-3}
			Sb—124(60d)	1.5×10^{-4}
	Co	1.2	Co—60(5.2y)	8.4×10^{-5}

3B42

(n, γ)反応により製造する精製RI中の不純物
テルビウム・ホルミウムおよびイッテルビウムターゲットの検討

日本原子力研究所　○久保田益充　夏目晴夫　天野恕

1. 目的

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

2. 実験方法

(1) 照射　ターゲットとしては原子炉内での中性子照射において安定であり，しかも照射後溶解等の化学的操作の簡単な希土類元素酸化物 Tb_4O_7，Ho_2O_3，Yb_2O_3 を選んだ。これを70～80mg程度正確に秤量し石英管に封じ標準試料と同じカプセルに入れた。照射はJRR-1で2時間，あるいはJRR-2で20分ないし72時間行つた。

(2) 化学分離および測定　照射後のターゲットは濃塩酸または濃硝酸に溶解した。これを蒸発乾固し0.01規定程度の塩酸溶液10mlとした。この溶液から0.1mlを秤取し試料全体のγ線スペクトルおよびβ崩壊の測定のために使用した。残りの溶液にはHoターゲットの場合にDy，Tbの場合にGd，Ybの場合にTmを担体としてターゲットとほゞ同量程度加えた。えた溶液をイオン交換カラム(Diaion SK-1　100～200メッシ　12mmφ×45cm)に吸着させ，α-ヒドロオキシイソ酪酸とそのアンモニウム塩溶液を3：2の割合で混合してつくつた溶液で溶離した。この場合，溶離剤のpHは3.78とし，濃度を変化することにより適当な溶離条件を選んだ。流速はいずれの場合も30～40ml/cm²/hrとした。溶出液は10ml程度を一つのフラクションとして集めγ線を測定した。ピークの部分のフラクションについてはγ線スペクトルを測定した。この結果同じ不純物を含むフラクションは一つに集めて約2ml程度に濃縮した。これを標準試料と比較するγ線スペクトロメトリーによつて定量した。担体を加えた元素については主成分核種の影響が少いようなフランクションを集めてしゅう酸塩の沈殿をつくり，これを同じような化学形の標準試料と比較することによつて定量を行つた。この場合の化学的収率は沈殿を酸化物に変えて秤量して求めた。

3. 実験結果

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

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

才1表　精製放射性同位体中の不純物

照射物質	不純物 (ppm)	生成放射能 (半減期)	放射能強度比率
Tb_4O_7*		Tb-160 (73d)	1
	Gd(21)	Gd-159 (18h)	8.2×10^{-6}
	Dy(135)	Dy-165 (2.3h)	5.6×10^{-5}
	Ho(19)	Ho-166 (27h)	4.9×10^{-4}
	Er(17)	Er-169 (9.4d)	2.6×10^{-6}
		Er-171 (7.5h)	2.1×10^{-5}
Ho_2O_3**		Ho-166 (27h)	1
	Dy(41)	Dy-165 (2.3h)	6.1×10^{-6}
	Er(186)	Er-169 (9.4d)	3.3×10^{-7}
		Er-171 (7.5h)	2.2×10^{-6}
	Yb(584)	Yb-169 (32d)	1.4×10^{-5}
		Yb-175 (4.2d)	8.2×10^{-5}
		Yb-177 (1.8h)	1.0×10^{-8}

照射比率	不純物 (ppm)	生成放射能 (半減期)	放射能強度比率
Yb_2O_3*		Yb-169(32d)	1
		Yb-175(4.2d)	5.8×10
		Yb-177(1.8h)	2.5×10^{-5}
	Sc(0.36)	Sc-46(85d)	1.5×10^{-7}
	Eu(7.2)	Eu-152(9.2h)	2.5×10^{-3}
		Eu-152(13y)	1.0×10^{-5}
		Eu-154(14y)	6.6×10^{-7}
	Tb(8.6)	Tb-160(73d)	5.6×10^{-6}
	Tm(2.8)	Tm-170(129d)	1.1×10^{-5}
	Yb-177 → Lu-177		1.2×10^{-1}

* Tb，Yb については中性子照射を130時間行い24時間放置後の値

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

3B43

(n, γ)反応により製造する精製RI中の不純物
ナトリウム，カリウムおよび臭素ターゲットの検討

日本原子力研究所　　中村治人，物井澄子，○高橋智子，天野　恕

1. 目　的

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

2. 実　験

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

まず照射したターゲットを塩酸に溶解し，各属の代表的元素の担体を入れ，硫化水素法による分属をおこなつた。また陽イオン交換樹脂を用いて，Na−24, K−42中の陰イオン，Br−82中の陽イオンの不純物を調べた。分離されたものについて，γ線スペクトルおよび半減期より核種を確認し，その元素の担体を加えて再び分離した。ナトリウム中のカリウムの分離定量は，陽イオン交換樹脂Dowex−50 200メッシュのものを用い，20% MeOH−0.5NHCℓで溶離しておこなつた。カリウム中のナトリウムは分離せず不純物のNa−24による2.7MeVのγ線を標準のNa−24と比較することにより求めた。化学収率は比色法，重量法，滴定法などで求めた。

化学分離した各フラクションは濃縮して2mℓとして，そのγ線スペクトルを測定した。測定器は，3″φ×3″NaI crystalの256チャンネル波高分析器，$1\frac{3}{4}''\phi\times2''$

表1　Na−24, K−42中の放射化学的不純物

ターゲット / 不純物	Na_2CO_3 重量比 ppm	Na_2CO_3 放射能比*	K_2CO_3 重量比 ppm	K_2CO_3 放射能比*
Na(Na−24)	—	1	425	6.06×10^{-3}
K(K−42)	<700	$<5\times10^{-5}$	—	1
Cu(Cu−64)	14.4	2.42×10^{-5}	3.48	8.35×10^{-5}
Mn(Mn−56)	127	1.27×10^{-4}	11.9	1.58×10^{-4}
Cℓ(S−35)	35.1	8.13×10^{-8}	11.9	3.94×10^{-7}
Zn(Zn−65)	0.377	3.46×10^{-10}	—	—
(Zn−69m)		4.27×10^{-9}	—	—
(Zn−69)		1.23×10^{-12}	—	—
Rb(Rb−86)			45.1	1.20×10^{-5}

* 中性子束 3×10^{13} n／cm²/sec 照射時間20分
18時間後の出荷時における値

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

3．結　果

各ターゲットの放射化分析の結果は表1，2に示した。

なおBr−82のターゲットについては，放射線分解により遊離の臭素が発生する。中性子照射したターゲットをすみやかに水に溶解し，クロロホルムで抽出，臭素を定量した。表3にその結果を示した。これらの実験の結果，中性子束 3×10^{13}n/cm^2/secで20分照射し，18時間後の出荷時においては，Na−24，K−42の放射化学的純度は99%以上，その比放射能はそれぞれ79.9mc/gNa，5.59mc/gK となる。

Br−82については，臭化アンモニウムターゲットを用いると長い時間の照射にさいして多量の遊離臭素を生じる欠点はあるが臭化カリウムターゲットを用いた時には，生成したK−42を減衰させる必要があることを考えて，現段階では臭化アンモニウムターゲットを採用し，20分照射50時間後に出荷することにした。この場合の放射化学的純度は99.9%以上，比放射能は25.6mc/gBrである。

表2　Br−82中の放射化学的不純物

ターゲット／不純物	NH_4Br 重量比 ppm	NH_4Br 放射能比*	KBr 重量比 ppm	KBr 放射能比*
(Br−82m)		8.25×10^{-3}		8.25×10^{-3}
K (K−42)	——		3.29×10^{5}	1.23×10^{-2}
Na (Na−24)	4	2.50×10^{-6}	——	——
Rb (Rb−86)	——	——	18	1.01×10^{-6}
Sb (Sb−122)	3.3	3.86×10^{-6}	——	——
(Sb−124)		8.28×10^{-9}	——	——
Cℓ (S−35)	180	1.29×10^{-7}	380	2.72×10^{-6}

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

表3　遊離 Br_2 の量

照射	原子炉	ターゲット	Br_2
8.8×10^{12}n/cm^2/sec	JRR−2	NH_4Br	4.5%
130時間	垂直実験孔	KBr	0.06
3.36×10^{13}n/cm^2/sec	JRR−2	NH_4Br	0.05
20分	気送管	KBr	0.02
1.2×10^{12}n/cm^2/sec	JRR−1	NH_4Br	0.23
15時間	貫通実験孔		

3B44　$^{238}U(p,pn)^{237}U$反応による^{237}Uの精製と定量

日本原子力研究所　物井澄子

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

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

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

報告されている^{237}Uの壊変図式を第一図に示す。[2] これをもとにしてbranching ratioの小さい部分を省略して作った第二図のような近似的な壊変図式を用いると、次の式が成り立つ。

$$N_\gamma = N(P_{\gamma1}\varepsilon_{\gamma1} + P_{\gamma2}\varepsilon_{\gamma2} + P_{\gamma3}\varepsilon_{\gamma3} + P_{\gamma4}\varepsilon_{\gamma4} + P_X\varepsilon_X - P_{\gamma1}\varepsilon_{\gamma1}\varepsilon_{\gamma3} - P_{\gamma1}\varepsilon_{\gamma1}P_{\gamma4}\varepsilon_{\gamma4} - P_{\gamma2}\varepsilon_{\gamma2}P_{\gamma4}\varepsilon_{\gamma4} - P_X\varepsilon_X P_{\gamma4}\varepsilon_{\gamma4}) \quad (1)$$

$$N_\beta = N(P_{\beta0}\varepsilon_{\beta0} + P_{e2}\varepsilon_{e2} + P_{e4}\varepsilon_{e4} - P_{\beta0}\varepsilon_{\beta0}P_{e2}\varepsilon_{e2} - P_{\beta0}\varepsilon_{\beta0}P_{e4}\varepsilon_{e4} - P_{e2}\varepsilon_{e2}P_{e4}\varepsilon_{e4}) \quad (2)$$

$$\begin{aligned} N_C = N\{ & P_{\beta0}\varepsilon_{\beta0}(P_{\gamma1}\varepsilon_{\gamma1} + P_{\gamma2}\varepsilon_{\gamma2} + P_{\gamma3}\varepsilon_{\gamma3} + P_{\gamma4}\varepsilon_{\gamma4} + P_X\varepsilon_X - P_{\gamma1}\varepsilon_{\gamma1}\varepsilon_{\gamma3} - P_{\gamma1}\varepsilon_{\gamma1}P_{\gamma4}\varepsilon_{\gamma4} - P_{\gamma2}\varepsilon_{\gamma2}P_{\gamma4}\varepsilon_{\gamma4} - P_X\varepsilon_X P_{\gamma4}\varepsilon_{\gamma4}) \\ & + P_{e2}\varepsilon_{e2}(P_{\gamma4}\varepsilon_{\gamma4} + \varepsilon_X - P_{\gamma4}\varepsilon_{\gamma4}\varepsilon_X)(1 - P_{\beta0}\varepsilon_{\beta0}) \\ & + P_{e4}\varepsilon_{e4}(P_{\gamma1}\varepsilon_{\gamma1} + P_{\gamma2}\varepsilon_{\gamma2} + P_{\gamma3}\varepsilon_{\gamma3} + P_X\varepsilon_X - P_{\gamma1}\varepsilon_{\gamma1}\varepsilon_{\gamma3})(1 - P_{\beta0}\varepsilon_{\beta0})\} \end{aligned} \quad (3)$$

ここで、N_γ、N_β、N_Cはそれぞれγ、β、同時計数値である。$\gamma_{1\sim4}$、β_0、$e_{2,4}$、Xはそれぞれγ線、β線、内部転換電子、NpのKX線を表わす(第2図参照)。Pはそれらの放射線の

branching ratio、εは計数効率である。ε_{β_0}、ε_{e_1}、ε_{e_2}に文献値[3]から誘導した値を代入しε_{γ_1}〜ε_{γ_4}とε_xに、他の核種の絶対測定によって実験的に求められた値を代入して、(1)、(2)、(3)式の右辺のNの係数を計算した。この計算の結果、

$$\frac{N_\gamma \times N_\beta}{N_c} = N \times (1.03^{+0.03}_{-0}) \qquad (4)$$

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

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

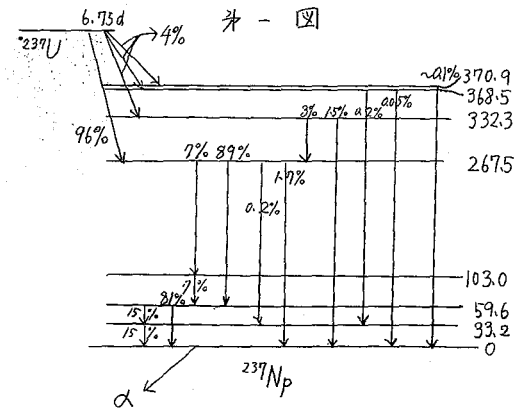
最後に4πβ-γ同時計数法の指導をして下さった名古屋大学の渡辺氏に深く感謝する。

註 1) 夏目：第7回放射化学討論会

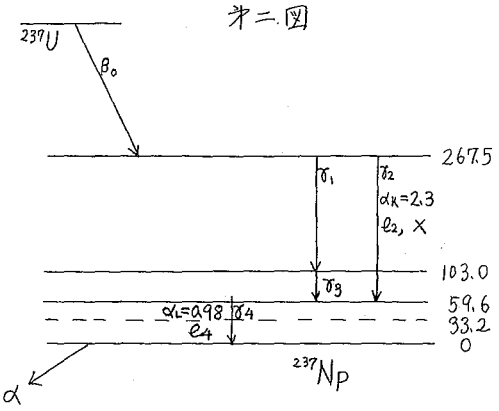
2) J. O. Rasmussen、F. L. Canavan、J. M. Hollander：Phys. Rev. 107 141 (1957)

3) J. S. Merritt、J. G. V. Taylor、W. F. Merritt、P. J. Campion、Anal. Chem. 32 310 ('60)

第一図



第二図



γ_1	164.5 KeV	7%
γ_2	207.9	27
γ_3	43.4	7
γ_4	59.6	41
X	101.0	62

β_0	248 KeV	96%
e_1	89	62
e_2	37	40

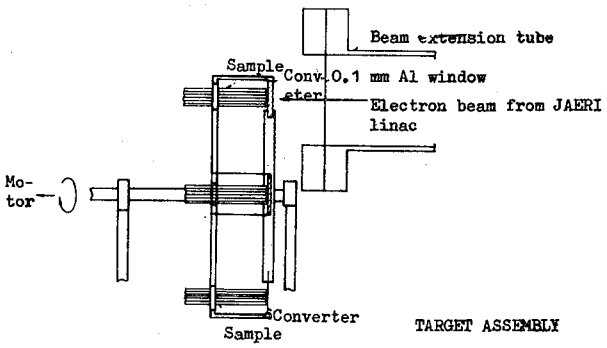
3B44　　20MeVリニアエレクトロンアクセラレータによる^{67}Cuの製造

日本原子力研究所　　柴田長夫，○田中吉左右

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

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

照射条件を検討するさいのターゲット物質としては，市販の亜鉛薄板(厚さ1mm)および亜鉛ペレット(7mmφ×2mm)を使用した。装着したターゲットアセンブリを第1図に示す。図から明らかなようにターゲット物質は回転する支持枠で固定されており，照射中はモータで回転した。このターゲットアセンブリを30分間，電子エネルギ20MeVで照射した。照射後試料を王水に溶解しCo^{++}, Cu^{++}のおのおの1mgの担体を添加し，蒸発乾固したのち塩酸溶液とし，陰イオン交換樹脂(ダイヤイオンSA100，100～200メッシュ，8mmφ×100mm)を用いて銅フラクション

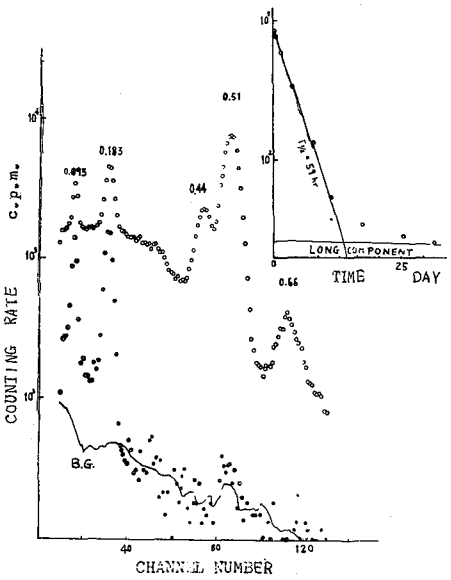


TARGET ASSEMBLY

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

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

このようにしてえられた曲線（放射化学的収量の変化に相当する）を，コンバータを使用せず試料片だけを照射したときの曲線と比較すると，顕著な相異が認められる。2mm白金コンバータを使用したとき，コンバータ直後の試料片の^{67}Cu生成量は，コンバータを使用しなかつたときとおなじジオメトリの試料片の約2倍の値をとる。いずれのばあいにも生成放射能はビーム強度の低下（試料内における減衰）に従つてなめらかな減衰を示すが，前者の減衰は後者にくらべていちじるしい。前者ではコンバータ直後から50mmへだたつた位置の試料片では^{67}Cuの生成放射能がコンバータ直後の値の1/10であるが，白金コンバータを使用しなかつたばあいには1/4という値をえた。4mmの白金コンバータを使用したばあいには2mmのばあいと比較して明らかに^{67}Cuの生成量が減少する。このような減衰曲線を^{64}Zn（γ，n）^{63}Zn反応によつてえられる^{63}Znの生成量についても検討し，この結果を^{67}Cuのそれと比較した。上述の照射条件に関して検討した結果を参照し，20gの酸化亜鉛をターゲット物質として選び，2mmの白金コンバータを使用して照射を行つた結果，20MeV—40μA—10時間の照射で^{67}Cuの収量200μcを得た。この値は（γ，n）反応を利用し，1gの亜鉛ターゲットを^{132}Csの製造[3]のさいに用いた照射条件で照射してえられた生成量と比較すると約5倍であつた。試料中のビーム強度の減衰に対応する放射化学収率の変化，ならびに製造処理法の開発を目的としたターゲット物質の精製法，大量の亜鉛中の銅の粗分離法について考察する。



γ-ray Spectra and Decay Curve of Samples

1） E. Shikata, Nippon Genshiryoku Gakkaishi, in press

2） H. Morinaga and T. Kuroyanagi, Nucl. Instruments and Methods 6,66 (1960)

3） K. Tanaka, T. Tamura and T. Kuroyanagi, Radiochimica Acta, in press