

# 特別講演



## 微弱放射能定量法の最近の進歩

放射医研 田中栄一

1. 緒言 微弱放射能測定 of 技術は  $^{14}\text{C}$  による年代測定, 微量 RIT レーザー研究, 環境放射能汚染の研究, 保健物理におけるモニタリング, 長寿命 RI の研究, 宇宙線の研究等の要請から発達し, さらに近年  $^{14}\text{C}$  以外の天然放射物質を利用した年代測定法の開発から地球化学, 地質学, 海洋学, 宇宙工学にとっても不可欠の研究手段となりつつある。微弱放射能測定法の解説書としては Watt and Ramsden の名著 "High sensitivity counting techniques" (1) があり, 1962 年頃までの文献が集大成されている。年代測定およびそれに関連の多い気体計数法, 液体シンチレーション法については IAEA のシンポジウムの報告書 (2) がある。そこでここでは一般的な目的に用いられる固体 (または液体) 試料用の微弱放射能測定 of 最近の動向と問題点を紹介しよう。

2. Figure of Merit 微弱放射能測定では, 与えられた測定精度  $\sigma$  を得るために必要な測定時間  $T$  は次式で与えられる。

$$\frac{1}{T} = \sigma^2 \times \left[ \frac{S^2}{(\sqrt{S+B} + \sqrt{B})^2} \right] \quad \text{----- (1)}$$

ここに  $S$  は未知試料の計数率,  $B$  は自然計数率である。(1) 式の [ ] は微量測定における測定器の "良さ" を表わし, Figure of merit といわれる。  $S \ll B$  ならば (1) 式は

$$\frac{1}{T} = \sigma^2 \frac{S^2}{4B} \quad \text{----- (2)}$$

となり, Figure of merit は  $S^2/B$  に比例する。しかし  $B$  が充分小さく  $S \gg B$  が成立するときは (1) 式は

$$\frac{1}{T} = \sigma^2 S \quad \text{----- (3)}$$

となるため,  $S$  を大きくすることに努力をほらねばならない。

スペクトル分析が行われる場合には, 積算すべきウィンドウ幅は他の条件のゆるす限り上記の Figure of merit が最高になるように設定する必要がある。この最適ウィンドウを求めるには簡単な図形的才法 (3) がある。理論的に最適なデーター処理方法は, 高分布に適當な重み関数  $W(E)$  を乗じて処理する方法で,  $S \ll B$  のときの最適重み関数は  $W(E) = S(E)/B(E)$  で与えられる。ここに

S(E) および B(E) はそれぞれ試料および自然計数の波高分布である。

3. α線の計測 α線の gross counting には比例計数管の他、ZnS(Ag)シンチレーターが有効で、透明粘着テープに ZnS(Ag)粉末を塗布したものを試料毎に用意するのが便利である。自然計数は /cm<sup>2</sup> あたり 0.02 cph 位が得られる。エネルギー分析を行なうには、格子付パルス電離箱がよく用いられ、とくに2重格子付パルス電離箱<sup>(4)</sup>では自己吸収による分解能の劣化を防ぎ、自然計数もさらに低下できる。最近、小型の線源にたいしては Si 半導体検出器が広く用いられ上記におき代りつゝある。Si 検出器は使用が簡便で高分解能が得られる特長があり、有効面積は 10 cm<sup>2</sup> 程度まで、自然計数は /cm<sup>2</sup> あたり 0.05 cph 程度、分解能は 10~20 keV が得られる。Si 半導体は真空中で用いる場合 recoil による検出器表面の汚染が問題になることがある。

此放射能の小さい試料については大面積を必要とするので、グリッド付<sup>(5)</sup>またはグリッドなし<sup>(6)</sup>の円筒形パルス電離箱が用いられ、それぞれ ~50 keV, ~100 keV の分解能がえられる。

4. β線の計測 逆同時型 GM 計数管では、測定用計数管に薄型のものを用いて有効単位面積あたりの自然計数を小さくし、また遮蔽用計数管には多線式陽極をもつ平板状ガスフローカウンターを用いて全体を小型化したものが多い。遮蔽用計数管にプラスチックシンチレーターを用いたものもある。薄いプラスチックシンチレーターを測定用に用いたものは、μ中間子の吸収エネルギー以上の波高値にディスクリミネーターをセットすることにより逆同時遮蔽を用いなくてもある程度の低バックグラウンドを得ることができる。<sup>(7)</sup> しかし同時に高エネルギーβ線にたいする効率が低下する。

測定用計数管に薄型 Si 半導体検出器を用いた例もあり、2つの表面障壁型 Si 検出器を向い合せて 4π 型とし、GM 計数管と逆同時計数をとることによって有効面積 2 cm<sup>2</sup>, <sup>40</sup>K にたいする検出効率 50%, 自然計数 2 cph が得られたという報告もある。<sup>(8)</sup>

β線は連続スペクトルを有することから、β線のエネルギー分析はα、γ線程有効ではない。しかし、化学分離を併用することによってβ線測定 of 感度はγ線測定よりもはるかに微量の放射能が測定できること、純β放射体はこの他に方法がないこと、化学分離に伴う汚染の検出や化学分離操作の完全性をチェックすることによりデータの信頼性を得ること等に重要な意味を有する。

一般にエネルギー測定を行うためにシンチレーター(または半導体検出器)を厚くすると、自然計数が増加するのが問題であるが、同時計数型ベータースペクトロメーター<sup>(9)(10)</sup>(ピコベーター)によってこの問題が解決され、微量β線

試料のエネルギー分析が可能となった。これはプラスチックシンチレーターの下面に透過型GM計数管をうめこみ、GM計数管と同時計数したシンチレーションパルスを波高分析するもので、宇宙線中の $\mu$ 中間子は波高分析によって除去される。直径2.8mmのGM計数管を用いて自然計数は0.2~0.3 cpm (0.035~2.5 MeV) が得られる。シンチレーションカウンターからの信号は対数パルス増幅器で増幅され、波高分布はエネルギーの対数の関数として表示される。この対数表示の利点は、(1)全エネルギー範囲(0.035~2.5 MeV)が一回の測定で測定される、(2)一種類の $\beta$ 線変位の分布はエネルギーに無関係にほぼ一定の形を示す、(3)自然計数の分布がほぼ平坦である、(4)最大エネルギーは分布の高エネルギー側の直線外挿点として決定できる、等である。上記の最大エネルギーの決定は試料の後方散乱、自己吸収の有無には殆んど影響されないが、低エネルギー核種にたいする窓および空気層の吸収は補正する必要がある。分布の半値幅はエネルギーのゆるい関数であるが、とくに禁止転移の分布の半値幅は許容転移のそれよりも大きい傾向がある。

$\beta$ 線エネルギー推定に吸収法を用いる方法が提案されている<sup>(11)</sup>。これは2個あるいはそれ以上の平板型GM計数管(試料側からA, B, C, ...)を重ねて用い、それらの間に適当な吸収板を挿入し、Aの計数、A-Bの同時計数、A-B-Cの同時計数等をとると、これらの計数値の比からエネルギーが推定できるもので、1種の $\beta$ 線変位のみが含まれている場合には有効である。

半導体検出器を用いる試みもあり、プラスチックシンチレーターと同様な動作をするが、とくにエネルギー分解能が良好なため内部転換電子の測定にはウィンドウをせまくして自然計数率を低下できる。しかし、この利点を生かすには試料の自己吸収が無視できなければならないので高比放射能試料に限られる。

5.  $\gamma$ 線の計測  $\gamma$ 線の場合は必ずエネルギー分析が行われ、検出器にはほとんどの場合検出効率の高いNaI(Tl)結晶が用いられ、この自然計数の減衰に最大の努力がはらわれている。<sup>40</sup>K含有量の少ない(1 ppm以下)のNaI(Tl)を使用すると共に光電子増倍管のガラス中の<sup>40</sup>Kの影響を除くためNaI(Pure)結晶をライトパイプに用いたり、石英窓の光電子増倍管を使用する。逆同時計数法は $\beta$ 線計測の場合程有効ではない。それはNaI(Tl)を通過した $\mu$ 中間子のパルスの大部分は非常に大きい振幅を有するため、波高分析器の有効範囲から容易にはみだすからである。しかし $\mu$ 中間子から遮蔽物中で二次的に作られた二次成分に感ずるため逆同時計数法はなお有効であり、種々の試みが行われている。主NaI(Tl)をGM計数管<sup>(12)(13)</sup>やプラスチックシンチレーター<sup>(14)</sup>で包み、これらの間に鉛遮蔽(二次成分のラジエーター)をおいたもの、円筒型の大形NaI(Tl)を用いたもの<sup>(15)(16)</sup>等がある。プラスチックシンチレーターやNaI(Tl)を逆

同時用を用いる他の利長はコンプトン連続スペクトルを減少させて、photo-fractionを増大することである。

NaI(Tl)の自然計数におよぼす宇宙線の影響のメカニズムはまだ未知の真が多いが<sup>(1)</sup>大型装置を用いての地下の実験<sup>(15)</sup>その他<sup>(17)</sup>から次第に解明されつつある。

$\alpha$ - $\beta$ 放出体または陽電子放出体については2つのNaI(Tl)検出器の同時計数をとる方法<sup>(18)(19)</sup>やサムコインシデンス法で検出感度が向上できる。2つの検出器の出力を2次元PHAで解析する方法<sup>(15)</sup>も有効である。また $\beta$ - $\gamma$ 放出体で $\beta$ 線測定が可能な高比放射能試料が得られる際には $\beta$ - $\gamma$ 、 $\beta$ - $\gamma$ - $\alpha$ 等の同時計数が更に有効である。試料をマウントした小型の4 $\pi$  $\beta$ -計数管を井戸型NaIの穴に挿入して<sup>60</sup>Coにたいし検出効率4%、自然計数0.005 cpmが得られている。<sup>(20)</sup>

Ge(Li)半導体検出器の最近の進歩により微量測定への利用が考えられているが、まだこの方面の徹底的研究は少ないようである。一般にGe(Li)はエネルギー分解能が高いためphoto peak領域での自然計数はかなり小さくできるが、一方小型で検出効率が低いため良好なFigure of meritを得ることは困難である。しかし多数のRIの混在する試料の分析には非常に有利である。この場合高エネルギー $\gamma$ 線のコンプトン分布が検出限界を決定する。<sup>(21)</sup>そこでプラスチックシンチレータ-またはNaI(Tl)で逆同時をとり“アンチコンプトンスペクトロメータ-”を形成させる方法がとられる。Ge(Li)検出器とNaI(Tl)を組み合わせて同時または逆同時計数をとる、これら全体をさらにプラスチックシンチレータ-で逆同時遮蔽した装置で生体試料中の0.06 pCi/gの<sup>137</sup>Coが容易に検出できる。<sup>(22)</sup>今後さらに大型のGe(Li)検出器が利用されるようになれば将来非常に有望と考えられる。

電子捕獲を行なう核種等の測定に数~十数keVのX線の測定が必要なことがある。試料が小型である場合には逆同時計数管を内蔵する4 $\pi$ 比例計数管<sup>(23)</sup>が有効で、できれば加圧して検出効率を上げるのが好ましい。外部線源用の検出器としても逆同時計数管を内蔵した比例計数管が用いられ、この際、波形弁別法を用いてX線パルスをおの他の信号から弁別する方法がある。<sup>(24)</sup>NaI(Tl)の前面に薄いCoI(Tl)をはりつけて1本の光電子増倍管に結合し、これらの信号を波形弁別法で分離してCoI(Tl)の信号にたいしてNaI(Tl)の信号を逆同時用として用いた例もある。また小型線源にたいしては半導体検出器を用いる試みもある。

6. 結語 全般的に半導体検出器の微弱放射能計測への利用はまだ十分でなく、大型高性能の検出器の実用化と共に将来の有用性が期待される。我が国の現状をみると、医学、保健物理用の全身計数装置を除き $\gamma$ 線用の大型高性能の装置

が少ないことも注目される。また、 $\gamma$ 線遮蔽に必要な鉄材が最近  $^{60}\text{Co}$  等の汚染の可能性が高いことから、無汚染の鉄材の確保も考慮すべき問題であろう。

### 参考文献

- 1) D.E. Watt and D. Ramsden; High Sensitivity Counting Techniques, Pergamon Press, (1964).  
邦訳：田中 坂本 高木 英訳，「微弱放射能測定技術」，コロナ社 (1968)。
- 2) Radioactive Dating and Methods of Low-Level Counting (Proc. Symp.) IAEA (1967).
- 3) E. Tanaka; Optimum window setting in a spectrometer for low-level activity counting, Int. J. Appl. Rad. Isot. 16 (1965) 405.
- 4) I. Ogawa and M. Tsukuda; The double-grid ionization chamber, Nucl. Instr. Meth. 13 (1961) 169.
- 5) R.V. Osborne and C.R. Hill; High resolution alpha particle spectroscopy at very low specific activities, Nucl. Instr. Meth. 29 (1964) 101.
- 6) C.R. Hill; A method of alpha particle spectroscopy for materials of very low specific activity, Nucl. Instr. meth. 12 (1961) 299.
- 7) Z. Jaworowski; A low-background beta scintillation counting method, Nukleonika, 8 (1963) 681.
- 8) S.J. Johnsen;  $4\pi$  low-level beta counter using two Si-Au detectors, Radioactive Dating and Methods of Low-Level Counting (Proc. Symp.) IAEA (1967) 721.
- 9) E. Tanaka; A low background beta-ray spectrometer using a coincidence method with a Geiger counter, Nucl. Instr. Meth. 13 (1961) 43.
- 10) E. Tanaka, S. Itoh, T. Maruyama, S. Kawamura and T. Hiramoto; Low-level beta-spectroscopy of solid samples by means of a coincidence-type scintillation spectrometer combined with a logarithmic amplifier, Int. J. Appl. Rad. Isot. 18 (1967) 161.
- 11) D. Lal, G. Rajagopalan and Rama; Sensitive and descript  $\beta$  and  $\beta$ - $\gamma$  counting assemblies, Radioactive Dating and Methods of Low-Level Counting (Proc. Symp.) IAEA (1967) 615.
- 12) C. Sonntag; Extremely low-level scintillation spectrometer, *ibid.* 675.
- 13) A. Stenberg and I.U. Olsson; A low level gamma-counting apparatus, Nucl. Instr. Meth. 61 (1968) 125.
- 14) S. Tanaka, K. Sakamoto and J. Takagi; An extremely low-level gamma-ray spectrometer, Nucl. Instr. Meth. 56 (1967) 319.
- 15) N.A. Wogman, R.W. Perkins and J.H. Kaye; An all sodium iodine anticoincidence shielded multidimensional gamma-ray spectrometer for low-activity samples, Nucl. Instr. Meth. 74 (1969) 197.
- 16) N. A. Wogman; An all sodium iodine anticoincidence shielded total absorption spectrometer for low-level radionuclide analysis, Nucl. Instr. Meth. 83 (1970) 277.

- 17) E. Tanaka, S. Itoh, T. Hiramoto and T.A. Iinuma; Cosmic-ray contribution to the background of NaI scintillation spectrometers, *Jap. J. Appl. Phys.* 4 (1965) 785.
- 18) T.R. Overton; A coincident gamma-ray spectrometer and its application to measurements of low level radioactivity, *Phys. Med. Biol.* 11 (1966) 47.
- 19) W. Roedel; On low-level-counting of positron emitters, *Nucl. Instr. Meth.* 83 (1970) 88.
- 20) N. Bhandari; A selective and versatile low level beta-, X-, and gamma-ray detector assembly, *Nucl. Instr. Meth.* 67 (1969) 251.
- 21) J.A. Cooper; Factors determining the ultimate detection sensitivity of Ge(Li) gamma-ray spectrometers, *Nucl. Instr. Meth.* 82 (1970) 273.
- 22) P.L. Phelps; Gamma-ray spectrometers for the assay of complex mixtures of low concentration of radionuclides in environmental and biological materials, *IEEE Trans.* NS-15, No.1 (1968) 376.
- 23) M. Wahlen and H. Oeschger; High-efficient  $4\pi$ -proportional low level counter for X-ray sources, *Nucl. Instr. Meth.* 66 (1968) 193.
- 24) 富谷: フォルテウム肺負荷測定 の現状と問題点, *日本原子力学会誌* 12 (1970) 322.

(お茶の水大理) 佐野博敏

メスbauer分光化学への応用については、すでに多くの紹介があるので、はじめに簡単にそのおもな情報源をまとめておこう。

1. 異性体シフト (I. S.)

核がエネルギー準位により定まった有限の大きさを持ち、核外電子密度にそのエネルギー準位依存する結果生ずるもので、次式で示される。

$$I. S. = \frac{4\pi}{5} Ze^2 R^2 \frac{\Delta R}{R} \{ |\psi(0)|_a^2 - |\psi(0)|_s^2 \}$$

ここで、Zは原子番号、Rは有効核電荷半径、 $\Delta R$ は基底状態から励起状態に移ったときの有効核電荷半径の増加、 $|\psi(0)|_a^2$  および  $|\psi(0)|_s^2$  はそれぞれ線源および吸収体の核の位置における核外電子密度である。

2. 四極子分裂 (Q. S.)

核が基底状態または励起状態で電氣的四極子能率 ( $Q \neq 0$ ) をもてば、核外電子や外圍イオンにより核の位置に生ずる電場勾配qと相互作用し、エネルギー準位は軸対称の場合を例にとるとつぎのようにシフトする。

$$E = \frac{e^2 q Q}{4I(2I-1)} \{ 3m^2 - I(I+1) \}$$

したがって、このシフトしたエネルギー準位間のメスbauer- $\gamma$ 転移がメスbauerスペクトル上に分裂したピークとしてあらわれる。

3. 磁氣的分裂 (M. S.)

核磁気能率 $\mu$ と核の位置における磁場との相互作用により、核のエネルギー準位のシフトがおこり、これは次式で示される。

$$E = m\mu H/I$$



メスハウアースペクトルにはこれらの準位間の $\gamma$ 転移があらわれる。

4. スペクトル線幅 ( $\Gamma_{\text{exp}}$ )

メスハウアースペクトルの形は近似的にロレンツ曲線となるが、その半値幅はつぎの式で示される。

$$\Gamma_{\text{exp}} = 2\Gamma + 0.27\Gamma n\sigma f_a \quad (\text{ただし, } 0 \leq n\sigma f_a \leq 5)$$

ここで $\Gamma$ は励起準位の自然幅、 $n$ は吸収体のメスハウアースペクトル核種の数、 $\sigma$ は共鳴断面積で、 $f_a$ は吸収体の無反跳分率である。

5. スペクトル強度 ( $\mathcal{E}$ )

$f_g$ を線源の無反跳分率として、吸収率をスペクトルの強度 ( $\mathcal{E}$ ) とすると、

$$\mathcal{E} = f_g \left\{ 1 - \exp(-n\sigma f_a/2) J_0(n\sigma f_a/2) \right\}$$

の関係がある。 $J_0$ はゼロ次のベッセル関数である。

以上のようなスペクトル上の特徴はつぎのように核および核外の（とくに化学的）性質と結びついている。

	(核の性質)	×	(化学的性質)	
ピーク位置	I. S.	$\Delta R$	$ \psi(0) ^2$	} 分子内化学結合 <sup>1</sup>
	Q. S.	Q	q	
	M. S.	$\mu$	H	
ピーク形状	$\Gamma_{\text{exp}}$	$\sigma, \tau$	f	} 分子間化学結合 <sup>2</sup>
	$\mathcal{E}$	$\sigma$	f	

このようにして得られる情報をおもに放射化学的見地から、各分野について分類するとつぎのようになるであろう。<sup>3</sup>

1. 核化学 - - - - -  $\tau, \mu, Q, \Delta R, \alpha$
2. 放射線化学 - - - - - { 固相における放射線分解  
メスハウアースペクトルイオンの Implantation
3. 放射化学的技術 - - - - - { 溶媒抽出  
超微量元素の化学的状態  
固液平衡

- |                        |   |                      |
|------------------------|---|----------------------|
| 4. ホットアトム化学 - - - - -  | { | 核過程の化学的効果<br>反跳原子の失速 |
| 5. 同位体化学 - - - - -     | { | 同位体交換<br>同位体分析       |
| 6. 重放射性元素の化学 - - - - - | { | 固体化合物の酸化状態<br>固体の状態  |

上記の分類の対象となった研究は、かならずしも放射化学の立場でおこなわれたものではないが、化学全般に応用されたメスバウアー分光学的研究の成果について放射化学的な見地から興味のあるものもふくまれる。放射化学の分野においては、しばしば超微量もしくは超低濃度の化学種の挙動についての知識が重要となってくるが、メスバウアー分光学においては、吸収体を試料とする場合には濃縮メスバウアー同位体を用いても約0.1/mg程度の試料を必要とするので、高感度の分光学的方法とはいえない。

しかしながら、試料を線源として用いる場合には0.1/mC程度以下でもスペクトルを審測することができ、超高感度の分光学的方法ということができる。ただし、線源を試料とする場合には、核嬗変にともなう化学的効果（いわゆるホットアトム効果）の存在が考えられ、結果の解釈に注意を要することになる。

メスバウアー分光学は、ホットアトム化学の研究上、非破壊でしかも初期状態を審測するのにユニークな方法を提供するばかりでなく、上記のごとく超高感度の特色を利用する際の基礎的知見を準備するためにも、ホットアトム化学の研究が重要となってくる。以上のような観点から、ここでは上に述べた放射化学的な面から興味のあるいくつかの研究例を紹介するとともに、ややくわしくホットアトム化学へのメスバウアー分光学的応用について述べよう。

核に関係するパラメーターは、それ自身原子核内での核子のポテンシャル模型の検討や核の変形に関する知見などを与えるだけでなく、化学的性質の研究の際の重要な因子となる。たとえば、Sn-119の $\Delta R$ の符号については、ながい間議論がつづいたが、近年になってやっと $\Delta R > 0$ であることが結論された。<sup>4</sup> 電子状態の理論的計算の改良により、これらの値はさらに改善されつつある。<sup>5</sup>

化学反応の推移をメスバウアー分光学的に追跡することは、シュウ酸第二鉄の放射線分解についてはじめて適用され、<sup>6</sup> その後この方向の研究はひろく発展しつつある。<sup>7</sup> 水溶液あるいは有機溶媒相、またはイオン交換樹脂相における元素の存在

状態の研究は、放射化学においても関係の深いところであるが、たとえばスズの水溶液に種種のハロゲンイオンを加えると、その濃度とともにスズの異性体シフトの変化がみとめられ、溶液内における錯形成の進行を知ることができた。<sup>8</sup> そのほかイオン交換樹脂上の  $\text{Fe}^{2+}$ ,  $\text{Fe}^{3+}$ , 鉄シアン錯イオンなどについての研究や,<sup>9</sup> 有機相に抽出された鉄チオシアン錯体の研究などが報告されている。<sup>10</sup> また、微粒子の動力学的研究や固相表面の吸着状態の研究などもおこなわれている。<sup>11</sup>

ホットアトム化学への応用は、Co-57でラベルされた酸化コバルトを線源とした場合、Fe および Fe に相当するピークのあらわれる現象が、オージエ・アフター効果（ホットアトム効果）として報告されたことにはじまる。<sup>12</sup> しかし、その後のくわしい検討によって、この現象はわずかな結晶内の格子欠陥が  $\text{Fe}^{3+}$ （異常酸化状態）を安定化するためであると解明され、オージエ・アフター効果は否定されている。<sup>13</sup> このような点には十分注意しなければならないが、一方においてその後蓄積された多くの線源化合物についてのデータは、やはりホットアトム効果の存在を示していると考えざるを得ない。これらの線源実験では、異常酸化状態の存在、および壊変の影響による無反跳分率の減少（局部的加熱あるいは格子の崩壊）の見出されることが多いが、それらの解釈については、内部圧力の効果、<sup>14</sup> 高エネルギー下での交換、<sup>15</sup> あるいは放射線化学的效果などが提案されている。<sup>16</sup> ホットアトム効果の無視できる場合、もしくはそれが予想できる場合には、新化学種や短寿命化学種の研究や、<sup>17</sup> 重い放射性元素の化学状態の研究、<sup>18</sup> あるいは非メスbauer元素化合物の研究などに、<sup>19</sup> メスbauer分光法の応用範囲が拡大されうることが示されており、今後の研究が期待される。

- (1) O. Kistner, W. Sunyar, Phys. Rev. Letters 4, 412(1960); S. DeBenedetti, G. Lang, R. Ingalls, Phys. Rev. Letters 6, 60(1961).
- (2) H. A. Stöckler, H. Sano, Nucl. Instr. Methods 44, 103(1966); Phys. Letters 25A, 550(1967); Phys. Rev. 165, 406(1968); Chem. Phys. Letters 2, 448(1968); H. A. Stöckler, H. Sano, R. H. Herber, J. Chem. Phys. 47, 1567(1967); etc.
- (3) J. P. Adloff, Internat. Symp. on "Chem. Effects of Nucl. Transf.", Cambridge(U.K.), July 1969.
- (4) J. P. Bocquet, Y. Y. Chu, O. C. Kistner, M. L. Perlman, G. T. Emery, Phys. Rev. Letters, 17, 809(1966).

- (5) E. Simanek, A. Y. C. Wong, Phys. Rev. 166, 348(1968); G. T. Emery, M. L. Perlman, Phys. Rev. B 1, 3885(1970).
- (6) N. Saito, H. Sano, T. Tominaga, F. Ambe, Bull. Chem. Soc. Japan 38, 681(1965).
- (7) G. M. Bancroft, K. G. Dharmawardena, A. G. Maddock, J. Chem. Soc. (A) 1969, 2914, etc; P. Gütlich, S. Odar, B. W. Fitzsimmons, N. E. Erickson, Radiochim. Acta 10, 147(1967).
- (8) S. L. Ruby, P. K. Tseng, H. S. Cheng, N. C. Li, Chem. Phys. Letters 2, 39(1968).
- (9) J. L. Mackey, R. L. Collins, J. Inorg. Nucl. Chem. 29, 655(1967).
- (10) A. G. Maddock, L. O. Medeiros, G. Bancroft, Chem. Comm. 1967, 1067.
- (11) P. A. Flinn, S. L. Ruby, W. L. Kehl, Science 143, 1434(1964); S. W. Marshall, R. M. Wilenzick, Phys. Rev. Letters, 16, 219(1966); S. L. Kordynk, V. I. Liscichenko, O. L. Orlov, N. N. Polovina, A. N. Smoilovskii, Sov. Phys. JETP 25, 400(1967); T. Tachibana, T. Ohya, T. Yoshioka, J. Koezuka, H. Ikoma, Bull. Chem. Soc. Japan, 42, 2180(1969); M. C. Hobson, Jr., A. D. J. Cambell, J. Catalysis 8, 2941(1967).
- (12) G. K. Wertheim, Phys. Rev. 124, 764(1961).
- (13) H. N. Ok, J. G. Mullen, Phys. Rev. 168, 550(1968); Phys. Rev. Letters 21, 823(1968); W. Triftshäuser, P. P. Craig, Phys. Rev. 162, 274(1967); D. Shröer, Triftshäuser, Phys. Rev. Letters 20, 1242(1968).
- (14) Y. Hazony, R. H. Herber, J. Inorg. Nucl. Chem. 31, 321(1969).
- (15) A. Nath, M. P. Klein, W. Kündig, D. Lichtenstein, 5th Mössbauer Methodology Symposium, New York, Feb. 1969.
- (16) H. Sano, M. Kanno, Chem. Comm. 1969, 601.
- (17) G. J. Perlow, M. R. Perlow, J. Chem. Phys. 41, 1157(1964); 48, 955 (1968); G. J. Perlow, H. Yoshida, J. Chem. Phys. 49, 1474(1968).
- (18) J. A. Stone, W. L. Pillinger, Symp. Farad. Soc. 1, 77(1967).
- (19) H. Sano, M. Aratani, H. A. Stöckler, Phys. Letters 26A, 559(1968).