

# 特 別 講 演





---

特別講演 1 吉 沢 康 和

特別講演 2 P. Gütlich

(広島大・理) ○吉沢康和

はじめにミュンヘン工業大学のタンデム・バンデグラフを用いた $^{36}\text{Cl}$ の質量分析についてお話します。これは、広島原爆の中性子スペクトルを求めるために行っている実験である。次に、最近のガンマ線スペクトロスコピーの紹介として NORD Ball と呼ばれている装置を中心にお話します。これはヨーロッパの7か国とわが国との国際共同研究のために建設したガンマ線測定装置である。

### [1] $^{36}\text{Cl}$ の加速器質量分析

#### 1. 原爆試料

広島原爆の中性子の強度を決めるため、残留放射能の測定が数多く行われている。現在ガンマ線の測定可能なものは $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$  などにかぎられている。われわれは、今まで測定されていない半減期の長い $^{36}\text{Cl}$ の加速器質量分析による実験をミュンヘン工業大学において試みた。

爆心から107 mで被爆した墓石を入手した。この墓石は高さ1.58 mで比較的大きいもので、爆心にも近く、中性子線量を測定する上で、最良のものと考えられる。この墓の位置を図1に示す。

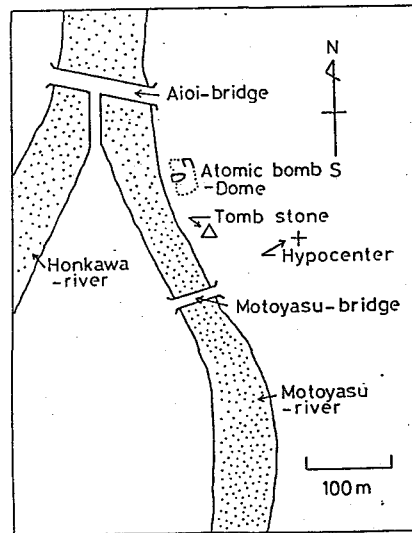


図1. 爆心附近の地図

#### 2. 化学分離

加速器質量分析のためClの化学分離を行った<sup>1)</sup>。また、 $^{152}\text{Eu}$ などのガンマ線測定の場合も化学分離を行った<sup>2)</sup>。

この墓石は花崗岩で、まず試料として3.55 cmφ x 2 cm 又は5.2 cmφ x 2 cm の円筒型石片を多数切り取り、これを粉末化した。各々5 gの粉末試料から塩素を塩化銀として沈澱回収した。5 gの試料から取り出した塩化銀は300 μgと微量であった。加速器質量分析には2 mg 以上の塩化物が必要であるので、海水塩による同位体希釈を行った。比色分析法により塩素量を測定した。

#### 3. 加速器質量分析法

ミュンヘン工業大学のMP型タンデム・バンデグラフは電圧9.8 MV で、その後に線型加速器が連結されており、 $^{36}\text{Cl}$ を153 MeV まで加速することができる。タンデムのみで8荷88 MeV に加速され、再び電子がはぎ取られて14価となり、線型加速器で加速される。その後もう一度電子をはぎ取られ、

よしざわやすかず

Clは全軌道電子を失って17価となる。これが電磁石と検出器により分析されるのでガイドビームとして使用した $^{30}\text{S}$ とは完全に分離された。この装置の見取図を図2に示す。各々の塩化銀試料は4~6回繰り返して測定され、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ は10%以内の誤差で測定された。

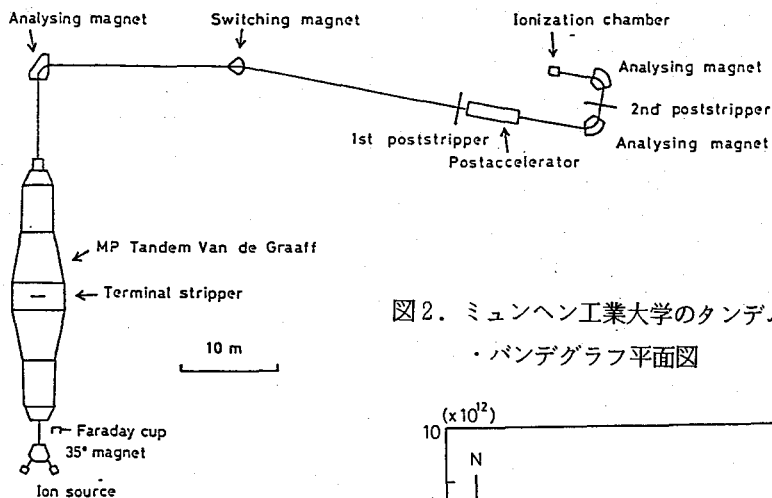


図2. ミュンヘン工業大学のタンデム・バンデグラフ平面図

#### 4. 結果

測定結果を図3に示す<sup>3)</sup>。縦軸は $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の比を取り、横軸は墓石の頂点からの距離を取った。50 cm付近は墓石の横から入射する中性子が無視できないので平坦な形となっている。参考のために $^{152}\text{Eu}/\text{Eu}$ の値をも示した。 $^{36}\text{Cl}$ と $^{152}\text{Eu}$ の間に明らかな違いが認められる。これは中性子吸収断面積のエネルギー依存性の差によるものと考えられる。

これらの実験から中性子スペクトルの評価が可能である。信頼性を高めるためには、他の放射性核種の同様の実験が必要であろう。われわれは、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{154}\text{Eu}$ のガンマ線測定を行っている。最近、 $^{41}\text{Ca}$ の加速器質量分析が可能となったので、この測定も計画している。

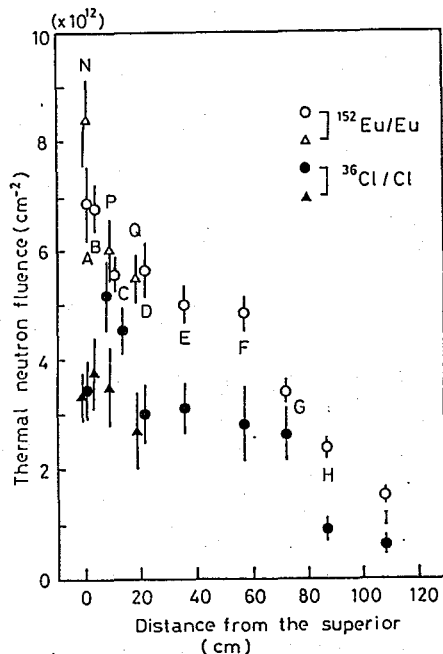


図3.  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ と $^{152}\text{Eu}/\text{Eu}$ の花崗岩中の減衰曲線

## [II] 最近のガンマ線スペクトロスコピー

### 1. 概要

ガンマ線測定の精度は次第に向上し、Ge検出器によってエネルギーは数eV (500 keV付近) まで、強度は1%以下まで可能になってきた。かつては、 $\alpha$ 線、 $\beta$ 線とくらべて一番悪かった $\gamma$ 線の精度が最もよくなり応用分野も開けてきた。しかし、これらについての詳しいことは別の機会にゆずることにし、今回は最近進歩の著しいインビーム・ガンマ線スペクトロスコピーについてお話しする。

最近、重イオン核反応におけるガンマ線測定が、新しい核分光学として発展してきた。現在、その最先端を行くNORD Ball プロジェクト<sup>4)</sup>を中心に述べ、今後の発展についても言及したい。

NORD Ball は、核反応における多くのカスケード・ガンマ線を同時に測定することを目的としたマルチ・ガンマ線測定装置である。デンマーク、スウェーデン、フィンランド、ノルウェー、日本、西ドイツ、オランダ、イタリーの8か国が国際共同研究としてデンマークのNiels Bohr 研究所に設置した。わが国からは主として筑波大学、広島大学、九州大学のグループが参加している。

Niels Bohr 研究所は、タンデム加速器実験所 (Riso) にあるFN型タンデムの後に2台の線型加速器を建設した。その実験装置としてNORD Ball があり、ほぼ100%のマシントimeがこの研究に使われている。

### 2. 装置

NORD Ball の主要部分は、20台のアンチ・コンプトン・スペクトロメータで、この検出器がフット・ボール型のフレームに固定されている。その中央に散乱槽とターゲットがある。Ge検出器からの信号は増幅器、ADCを通してコンピュータに入力される。ホスト・コンピュータはVAXで、検出器からの信号処理にモトローラのVME型コンピュータが使われている。この装置の見取図を図4に示す。

わが国は5台のアンチ・コンプトン・スペクトロメータを分担した。それらの特性を発送前に詳しくしらべたので、その一部を紹介する予定である。Ge検出器は特別注文した相対検出効率30% (直径55mm, 長さ66mm), 分解能2.1 keV (1.33 MeV) のものである。Ge検出器のまわりをアンチ・コンプトン用の6個のBGOシンチレータが取り囲んでいる<sup>5)</sup>。20個のGe検出器の同時計数を測定することができる。ターゲットとGe検出器の間にInner ballと呼ばれる球状のBaF<sub>2</sub>シンチレータが挿入される。これは全部で60個のBaF<sub>2</sub>から成り、全検出効率は約90%でガンマ線の多重度が決められる。

NORD Ball は、ガンマ線検出器としては種々の可能性を持った装置で、今後バラエティある実験が行われるだろう。その例として日本のグループは、Inner ballの内側に位置識別検出器

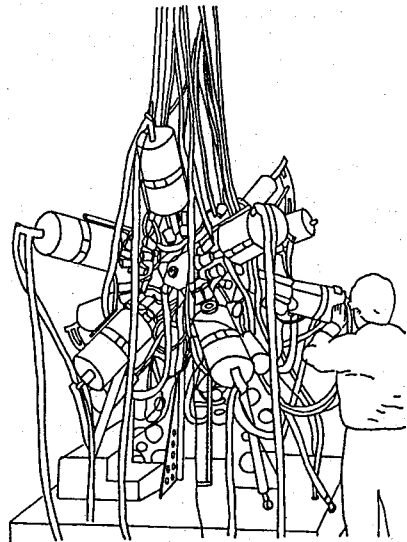


図4. NORD Ball の見取図

5個とアニュラー型検出器を入れて散乱重イオンを検出し、重イオンとガンマ線の同時計数を記録する。この装置を使ってクーロン励起の実験を行った。そのスペクトルの例を図5に示す。一方、九大を中心にSi-Ballを開発し、重イオン反応にともなう陽子（又は $\alpha$ 粒子）とガンマ線の同時計数を行う実験が進行している。その他、新たに大型Ge検出器（60～70% n型）を10台購入する計画、中性子検出器、小型 $\beta$ 線スペクトロメータなどを組み合わせる計画も進んでいる。

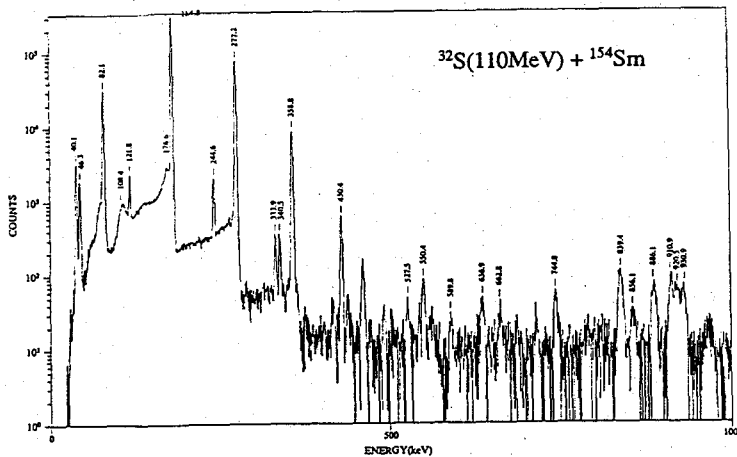


図5. NORD Ballによるクーロン励起のガンマ線スペクトル

### 3. 今後の発展

米国では、1984年Berkeleyで最初に21個のGe検出器を設置し、この種の実験を開始した。その後、ヨーロッパでこの種の研究が進んだので、それに対抗するためであろうか、米国の4研究所合同でGamma Sphere と称するGe約100個の装置を建設する計画が進行している。明年発足して、1992年に完成をめざしている。

ヨーロッパでは、新たに、英国、フランス、西ドイツ、イタリア、デンマークなどが中心になってEuro Ball の計画を進めている。これはGeを重ねた大きな検出器をいくつもあつめたもので、非常に大がかりである。

インビーム・ガンマ線の装置は、次第に高級化し、一つの研究所あるいは、一つの国では作り難いものとなってきている。この種の装置は高分解能で、非常に検出効率が高く、同時計数、角相関などにとって理想的なガンマ線検出器である。従って、今後はインビーム・スペクトロスコピーのみでなく、他の分野における利用も考えられるのではなからうか。

### 参考文献

- 1) K. Kato et al., Anal. Sci. 3 (1987) 489.
- 2) K. Kato et al., Anal. Sci. 3 (1987) 493.
- 3) K. Kato et al., J. Radiat. Res. 29 (1988) 261.
- 4) B. Herskind, Nucl. Phys. A447 (1987) 395.
- 5) M. Moszynski et al., Nucl. Instr. Meth. A280 (1989) 73.

SPIN TRANSITION IN IRON COMPLEXES INDUCED BY HEAT, PRESSURE,  
LIGHT, AND NUCLEAR DECAY

P. Gütlich

Institut für Anorganische Chemie und Analytische Chemie,  
Johannes Gutenberg-Universität, D-6500 Mainz/FRG

Spin transition (spincrossover) is known to occur primarily in first-row transition metal compounds, when the ligand field strength  $\Delta$  may become equal to or on the order of the mean spin pairing energy  $P$ . The ligand field strength can be "fine-tuned" by chemical means (intraligand substitution, replacement of ligands, anions, and crystal solvent molecules) such that the energy difference between the two spin states involved becomes comparable with thermal energy  $k_B T$ . As a consequence, both spin states are populated thermally. The spin state equilibrium is influenced strongly by temperature and applied pressure.

Many compounds, particularly of iron(II), are known to exhibit temperature dependent spin transition /1/. Examples containing nitrogen donor ligands with a  $FeN_6$  core and results from investigations of the spin transition behaviour using numerous physical techniques such as Mössbauer spectroscopy, magnetic susceptibility, X-ray diffraction, heat capacity, and optical spectroscopy will be discussed. It will be shown that the spin transition in solids takes place in a cooperative mechanism.

Irradiation of iron(II) spincrossover compounds can also lead to a quantitative spin state conversion, from low spin (LS) to high spin (HS) using green light and from HS to LS using red light. The light-induced metastable HS state has practically infinite lifetimes at  $T \leq 50$  K. This phenomenon, which we have called "Light-Induced Excited Spin State Trapping (LIESST) /2-7/ behaves like an optical switch, which can eventually be exploited in optical storage materials.



It has been found by  $^{57}\text{Fe}$  Mössbauer Emission spectroscopy on  $^{57}\text{Co}$ -doped Schiff-Base complexes that the metastable HS state of iron(II) ions are also formed after electron capture processes  $^{57}\text{Co}(\text{EC})^{57}\text{Fe}$  in crystals /8/, the relative HS population being a function of the ligand field strength and the nature of the host lattice. The lifetimes of these transient HS states ranging from ca. 5-500 ns in strong-field complexes could be measured by time-differential Mössbauer emission spectroscopy /9/. In case of  $^{57}\text{Co}$ -doped spinrossover complexes the metastable HS states of Fe(II) have much longer lifetimes.

- /1/ P. Gütlich, Structure and Bonding, Vol. 44, Springer-Verlag, Heidelberg 1981, p. 83.
- /2/ S. Decurtins, P. Gütlich, C.P. Köhler, H. Spiering, A. Hauser, Chem. Phys. Letters 105 (1984) 1
- /3/ S. Decurtins, P. Gütlich, C.P. Köhler, H. Spiering J. Chem. Soc. Chem. Commun. (1985) 430
- /4/ S. Decurtins, P. Gütlich, K.M. Hasselbach, A. Hauser, H. Spiering, Inorg. Chem. 24 (1985) 2174
- /5/ A. Hauser, Chem. Phys. Letters 124 (1986) 543
- /6/ A. Hauser, P. Gütlich, H. Spiering Inorg. Chem. 25 (1986) 4245
- /7/ P. Poganiuch, P. Gütlich, Inorg. Chem. 26 (1987) 455
- /8/ H. Sano. P. Gütlich in: Hot Atom Chemistry, Ed. Matsuura, Kondansha, Tokyo, 1984, p. 265
- /9/ R. Grimm, P. Gütlich, E. Kankeleit, R. Link J. Chem. Phys. 67(12) (1977), 5491  
R. Albrecht, M. Alflen, P. Gütlich, Zs. Kajcsos, R. Schulze, H. Spiering, F. Tuzcek, Nucl. Instr. Methods Phys. Res. A257 (1987) 209

