第 2 日

10 月 7 日 (金)

A 部 会

(午 前 の 部)

第 1 会 場

論文番号 A 20～A 28

A20

中性子照射によりビスマス中に生成された^{210}Poの分離法の検討

Studies on the Separation of ^{210}Po from the Neutron Irradiated Bismuth

＋日本原子力研究所
＃日本電電公社
電気通信研究所

矢島聖使＋　○工藤　清＃
Seishi Yajima,　Kiyoshi Kudô

ビスマスを原子炉で照射したときできる^{210}Poの固体気体反応や、ビスマス冷却剤中からの^{210}Poの連続除去などの研究を行うためには、^{210}Poの分離測定法を確立しておかねばならない。今回は上記目的の基礎として、ビスマス中の^{210}Poの分離測定法について最も単純なテルルによる共沈法を検討した。

α計数用の試料調整　α計数は試料溶液（HNO_3酸性）0.1 mlを測定板にとり、赤外線ランプで蒸発乾固したものを、比例計数管によつて行つた。アルミニウム、銅、ステンレス、白金、銅板に銀および金メッキをほどこしたもの、アルミニウムを濃HNO_3で処理したものなどを測定板に用いたが、ステンレス、白金以外の試料板では何れも蒸発乾固の途中で金属表面が侵され、再現性が悪く、この目的のためには使用することができなかつた。ステンレスと白金が測定板として用いられるが、白金では付着した^{210}Poが通常の化学処理で完全に除去することができず、数％の^{210}Poが残り不適当である。ステンレスが再現性もよく、安価で最も有効である。表面のよくみがかれたステンレス板を石けん水および蒸留水でよく洗浄し、試料のクリーピングをふせぐため、シリコングリスの1％ベンゼン溶液を一様に塗布したものに試料液0.1 mlを採取し、温度50℃で蒸発乾固する方法がα計数のための試料調製法として最もよい方法である。なお、テルル、ビスマスおのおの220 μg/ml、30 μg/ml程度までは^{210}Poの自己吸収は認められなかつた。

テルルによる^{210}Poの共沈　種々の条件でのテルルによる^{210}Poの共沈状況について検討した。^{210}Poおよびテルルを含むHCl溶液に$SnCl_2$を加えて、テルルを還元する。ロ別したテルルを熱濃HNO_3に溶かし、一定容として放射能測定を行つた。その結果、1N-HCl酸性では^{210}Poが98％共沈する。酸の濃度が増すと共沈率は若干減少する。ビスマス5 gが共存するときは^{210}Poの共沈率は92.5％となる。　Poの捕集には還元剤として$SnCl_2$を用いるのが最もよい。NH_2NH_2では^{210}Poの共沈率はわずか1％である。したがつて、NH_2NH_2はむしろテルルと^{210}Poの分離に有効である。SO_2では気体の発生速度が一定になりにくいため、再現性のある結果は得にくゝ、共沈率も$SnCl_2$より低下する。以上の実験結果から^{210}Poの分離測定法としてつぎの操作を確立した。

1. 試料を溶かし、6N-HCl溶液とする。　2. 十分量のテルルを加え、$SnCl_2$を用いて還元する　3. 沈殿が凝縮するまで加熱し、30分放冷する。　4. 沈殿をロ過し、充分洗浄したのち、濃HNO_3に溶かし、一定容にして、放射能測定を行う。

原子炉JRR－1で照射したビスマスについて本操作の適用を試みた。

A21

α照射したRe-ターゲットより無担体放射性Irの分離
Separation of Iridium from Rhenium irradiated by α-particles

東大核研, 東北大金研

斉藤一夫 山崎敏光, ○井上泰
Kazuo Saito Toshimitsu Yamazaki Yasushi Inoue

サイクロトロンにより加速した, 30～40MeVのα粒子でRe金属を照射し, (α, n) (α, 2n) (α, 3n) 反応などで得たIr^{197}, Ir^{188}, Ir^{189}, Ir^{190} などをβ線スペクトル測定用試料に供するためReターゲットからのIrの無担体分離を試みた。

ターゲットを硝酸に溶解させたのち同時に生成すると考えられるOsを除去するため, ほぼ蒸発乾固させたのち残渣を稀硝酸に溶解させる。Fe^{+++}担体約1mgを加えたのち, アンモニア水でpHを8～10に調節し水酸化第二鉄を沈殿させ それにIrを共沈させてReから分離する。再沈殿を行ったのち水酸化第二鉄の沈殿を0.5～1N塩酸に溶解させて得た溶液を陽イオン交換樹脂(Dowex 50W×8, H$^+$型)を通過させてFe^{+++}を樹脂上に捕捉除去するが, 水酸化第二鉄の沈殿を濃塩酸に溶解させ(6N以上), それからHexoneまたはetherを用いてFe^{+++}を抽出除去して無担体Irを得る。さらにβ線スペクトル測定用試料とするため硫酸アンモニウム溶液中からIrをNi箔陰極上に電解析出させ, 良好な測定用試料を得ることができた。

分離の各段階および電解析出に関する諸條件を詳細に検討したので, その結果について報告する。

A22

Rh ターゲットより ^{105}Ag の分離

Separation of Ag-105 from Rhodium Target

京都大学 理学部 藤永太一郎・小山睦夫・○三辻利一
Taichiro Hujinaga・Mutsuo Koyama, Toshikazu Mitsuji

1．サイクロトロンで金属ロヂウムをα衝撃し、$^{103}Rh(\alpha, 2n)^{106}Ag$ の核反応により生成した ^{105}Ag（40d）の無担体，ソルトフリー分離法を研究し，β線スペクトル測定用試料を作るとともに，無担体銀の挙動について検討した。銀の放射性同位元素の中でトレーサーとして用いることの出来るものは，^{105}Ag 以外には，^{110}Ag（270d），^{111}Ag（7.6d），^{106}Ag（8.6d）などがあるが，半減期が比較的長く，またRhから生成させれば無担体であるなどの点において，^{105}Ag は有用な核種であると考えられる。微量銀の分離法としては，テルルによる捕集法，塩化第一水銀による共沈法など既存の方法があるが，本研究においては，臭化第一タリウムへの共沈により主成分のロヂウムと分離，ついで，タリウムを酸化してその塩化物をエーテル抽出して，銀を水層に残すことにより，無担体かつ，ソルトフリーの ^{105}Ag を調製する方法を検討し好結果を得た。

2．化学操作の概要は次に示す。

試料
↓ ピロ硫酸カリウムに依り融解（磁製ルツボ）
水溶液
共沈 ↓ 水酸化カリウム
沈殿（$Rh(OH)_3 + {}^{105}Ag$）
↓ 塩酸
塩酸酸性溶液

↓ 硝酸タリウム 臭化水素酸
濾過
濾液 → 沈殿
濾液 ↓ 硝酸タリウム（$TlBr + {}^{105}Ag$）臭化水素酸
沈殿
これを右上の沈殿に加える

↓ 臭素水で酸化 3N・HClでエーテル抽出
エーテル抽出
エーテル層 → $HTlCl_4$ これを2〜3回繰り返す。水層は右上のものに合す。
水層 ^{105}Ag ↓ 蒸発濃縮
^{105}Ag

以上の操作により得た ^{105}Ag 溶液をアンモニヤ性として金箔上に電着して，核物理学的測定試料を得た。

3．以上のごとくして分離精製した無担体，ソルトフリーの ^{105}Ag を用いて無担体銀のハロゲン化タリウムへの共沈を検討した。その結果，2N以下の酸濃度で60mg以上のTlを沈殿させる時に，^{105}Ag をほぼ100%これに共沈させることが出来た。また，Tlを沈殿させる時に用いた Br^- の濃度と共沈率との関係を調べてみたが，Tlと等量のNaBrを加えると100%Tlに共沈させることが出来たが，それ以上のNaBrを加えるとAgが溶解するという結果を得た。同様，Cl^-，I^-，など一連のハロゲン化タリウムへの銀の共沈については目下検討中である。

本法によれば，共沈分離法としては，かなり選択的分離を行うことが出来，溶解積以下の微量銀の濃縮分離法として一般性を持つと考えられる。

A 23

ロジウムターゲットからの放射性パラジウムの無担体分離
Carrier-free Separation of Radioactive Palladium from Rhodium Target

東工大・日本原子力事業　○下島　光・長尾　博之
Hikaru SHIMOJIMA, Hiroyuki NAGAO

A=100 附近の原子核のレベルを決定する仕事の一部として，パラジウム-103の製造・分離を行なった。

金属状のロジウム（Rh-103）にサイクロトロンの 15 MeV プロトンを照射しパラジウム-103（半減期17日）をつくった。ロジウムターゲットは硫酸水素カリウム融解ののち，水溶液としておき，生成したパラジウム-103を無担体の状態で分離した。

パラジウムをロジウムから分離するには，

1. 酸性溶液じパラジウムをジメチルグリオキシム錯塩としてクロロホルムで抽出分離
2. ロジウム，パラジウム両者を陽イオン交換樹脂に吸着させておき，0.2N 塩酸でパラジウムのみを溶出させて分離，
3. 塩化アンモニウムを加えてパラジウムを錯陽イオンとしておき，陰イオン交換樹脂柱を通して，陰イオンとなっているロジウムから分離，

等の方法を試みた。

ルテニウムにα線を照射しパラジウム-101（半減期 8h），パラジウム-100（半減期 4d）をつくり，ターゲットから分離し，副核反応によって生成する放射性ロジウムからパラジウムを分離するのに本法を応用することができる。

A24

中性子照射酸化トリウムよりU－233の単離

Isolation of U-233 from Neutron-Irradiated Thorium Dioxide

日本原子力研究所　石森富太郎　○渡辺賢寿　木村幹

Tomitaro Ishimori, Kenju Watanabe and Kan Kimura

酸化トリウムをJRR－1で11週間照射し、約5ケ月冷却したのち、生成したU－233を、溶媒抽出法によりトリウム、およびPa－233から分離し、イオン交換樹脂法により精製した。

照射した酸化トリウムに、微量の弗化ナトリウムを含む濃塩酸を加え、還流しながら加熱して溶解した。照射トリウムの4～6N塩酸溶液から、1％トリブチフオスフインオキシドートルエン溶液で数回抽出を行えば、トリウムは水相に残り、Pa－233とU－233は有機相に移る。次にこの有機相をフツ化ナトリウムを飽和した4～6N塩酸溶液で数回洗う。フツ化ナトリウムを飽和した塩酸溶液と1％TBPOとの間の分配率は、プロトアクチニウムでは、塩酸のみからの抽出の場合に比べて、著しく小となるが、ウランにおいては、なお比較的高い値を保つ。したがつて数回洗うことによつて、Pa－233の大部分は水相に移るが、U－233は有機相に残る。U－233の逆抽出は、約4N酢酸でおこなつた。最後にU－233の酢酸溶液を、0.02Mのフツ化ナトリウムを含む0.1N塩酸溶流に変え、陽イオン交換樹脂によつて精製した。0.02Mフツ化ナトリウム－0.1N塩酸の約50mℓで樹脂を洗えば、Pa－233は殆んど除かれる。2N塩酸15mℓにより、U－233を溶離した。

得られた試料は、αスペクトロメトリーにより、エネルギーを測定し、U－233であることを確めた。

A25

焦点クロマトグラフ法の研究 VI. 天然放射体の核種分離

Studies on the focussing chromatography VI. Nuclides separation of natural radioactive substances.

広島大理　○品川睦明　大吉昭　岩垂芳男　佐藤靖彦
Mutsuaki SHINAGAWA, Akira ŌYOSHI, Yoshio IWADARE, Yasuhiko SATŌ

電極間距離22cm，電位勾配22.7～45.4 V/cm，錯解離性陽極室液0.1 M HCl，錯形成性陰極室液としては，STP，酒石酸，クエン酸，その他の有機酸のアンモニウム塩，及びEDTA（0.025～0.1 M）についてしらべた。用いた分離用試料としてはラヂウム標準溶液，ラジオ・トリウム（無担体及び鉛含有）を研究の対象とした。

ラヂウム標準溶液につきSTPを錯化剤として行ったときは，5分間にしてRa帯とPb＋Bi帯が明瞭に分れるのがX線フィルムによるオートグラフによって知られる。後者は10分後にはPb，Bi帯に分れる。このことは非活性のPb，Biを用いて発色法によって，その位置を簡単に追跡することもできた。なおこのビスマスは$^{210}_{83}$Bi（5日）の核種である筈であるから，25日後再び写真をとったところ影像が認められなかった。さらに（＋）側に焦点を結ばない雲状感光帯があり，一晝夜すると消える。これについてはラドンなどの短寿命で化学性の弱いものが一応考えられる。

クエン酸アンモニウムを用いた場合，上述と同様の現象のほか，Bi帯附近にPo帯と考えられるものを促えた。酒石酸は短時間内にRaを単離するに適する。EDTAは各核種分離の目的には不適当である。

ラヂオ・トリウム試料については，明瞭な3帯すなわちRd-Th帯，Th-B（^{212}Pb）帯，Th-X（^{224}Ra）帯と後者にともなう雲状帯とを写真によって認めた。これらの定性は非活性核種による発色帯域の追跡，ラヂウム試料におけるRa帯の位置などによった。

以上の各実験のpH条件，通電時間，共存物などの影響についてしらべたところ述べると共に，各核種の崩壊特性とオートグラフ技術との関連する様子にも触れたい。

A26

温泉水中のRaAの分離定量法
(Determination of RaA in Hot Spring Water.)

岡山大学温泉研究所　杉原　健
Takeshi Sugihara.

温泉水中のRaAの定量法は、黒田、横山によって行われた一定時間経過毎に試水を蒸発し、その壊変曲線を解析して求める方法と、石森によって3%硝酸酸性で、dithizone CCl_4溶液で抽出する方法が述べられている。黒田、横山の方法は操作や解析がやっかいであり、石森の方法では、Biが多量に存在すれば抽出されるおそれがある。また試薬として、dithizoneを使用しているので、蒸発の際、RaAのdithizone塩が揮発しやすいために、RaAが逃げるおそれがあるので、演者はPb、Biが抽出されないように、EDTAの2ナトリウム塩の溶液を添加し、試薬として、di-β-naphthylthiocarbazoneを使用して、RaA抽出後CCl_4を蒸発する際、揮発して逃げる量を出来るだけ少くした。PHを種々に変えてRaAの抽出を行った結果、PHが11より高くなると、放射能は増大するが、EDTAによるBi, Pbのおさえが不十分になる。

RnとRaAとが平衡に達した後に、種々なる塩類溶液に於て、RaAの抽出量を検討したが、NaCl 2g/l., $NaHCO_3$ 2.4g/l, Fe 24mg/l, Al 40mg/l, Ca^{2+} 400mg/l, Na_2SO_4 20g/l, Mg^{2+} 10mg/l, 程度の変化量に対しては、十分に、Rn濃度とRaA含量とが直線関係を示した。試水の量を0.25～0.5lの間ではRn含量とRaA含量との間に直線関係が成立する。

RaAの分離定量法は次の様に行った。大型分液ロートに5%のEDTAの2ナトリウム塩溶液5c.c.をとり、重炭酸ナトリウム溶液20c.c.($NaHCO_3$=1.34g)を加え、それに手早く試水250ml(RaA含量によって量を適当に変える。)をとり、濃硝酸(13.3Nで1.4c.c.)を加え、さらに、di-β-naphthylthiocarbazoneのCCl_4溶液10c.c.を加えて、30秒間はげしく振盪する。(30秒間の間に、20秒までは5秒毎に活栓をゆるめてRnを追出す。) PHは重炭酸ナトリウムが硝酸と反応して2となる様に硝酸を加える。1分間放置して分離したCCl_4相を他の分液ロートに移し、その一定量を試料皿にとって蒸発乾燥した後に、ローリッツェン検電器でRaAを測定し、測定開始時刻0に外挿してRaAの放射能強度を求める。

RaAの標定には、RnとRaAとが平衡にある試水について、RaAの強度を前述の様にして求めると同時に、Rnを E.M. 泉効計により測定して、RaAの濃度を標定した。

A27

塩化ヘキサアンミンコバルト(Ⅲ)によるウラン(Ⅵ)の定量

Determination of Uranium(VI) with Hexammin Cobalt(III) Chloride

日本原子力研究所　上野　馨　○弦巻一郎
Ueno Kaoru　Tsurumaki Ichirō

ウラン(Ⅵ)は硝酸イオンを含む中性または弱アルカリ性の炭酸アンモニウム溶液の中で塩化ヘキサアンミンコバルト(Ⅲ)と反応し次式によりオレンジ色の沈澱を作る。

$$[Co(NH_3)_6]^{3+} + NO_3^- + [UO_2(CO_3)_3]^{4-} \longrightarrow \{[Co(NH_3)_6]NO_3\}_2[UO_2(CO_3)_3]\cdot 3H_2O$$

この沈澱による重量分析法は1958年N. Jiberiv によつて報告されている。

演者らは、この反応を利用し、つぎのような方法によりウラン(Ⅵ)の定量を行つた。0.05M炭酸アンモニウム，硝酸アンモニウムの混合溶液の中でウラン(Ⅵ)の炭酸錯塩と塩化ヘキサアンミンコバルト(Ⅲ)を反応させ、$\{[Co(NH_3)_6]NO_3\}_2[UO_2(CO_3)_3]\cdot 3H_2O$ の沈澱を作る。この沈澱は1～6N塩酸に容易に溶解し、473mμ に極大吸収をもつオレンジ色の溶液になる。473mμ の吸光度を測定して比色分析により1.0～10.0mg のウラン(Ⅵ)を±2%の誤差で定量した。473mμ の吸光度は塩化ヘキサアンミンコバルト(Ⅲ)の濃度だけに比例するので検量線は標準ウラン溶液を用いずに試薬だけでできる。またこの沈澱を1N塩酸に溶解し、水酸化アンモニウムで中和して、炭酸アンモニウムの存在しているところで硫化ナトリウムを加え、硫化コバルトの沈澱を作りウランとコバルトを分離する。硫化コバルトを硝酸コバルトに変え希塩酸で抽出し、分離されたコバルトをチオシヤン酸溶液から塩化トリメチールフエニールアンモニウムを用いて発色させクロロホルム層に抽出し620mμ における吸光度を測定する。コバルトを比色定量し間接的に0.025～0.50mg のウランを±2%の誤差で定量した。最後に ^{60}Co でラベルした塩化ヘキサアンミンコバルト(Ⅲ)を用い放射分析により0.02～0.50mg のウランを±5%の誤差で定量した。

共存イオンによる妨害の程度をアルカリ土類，鉄(Ⅲ)，コバルト(Ⅱ)，銅(Ⅱ)，カドミウム(Ⅱ)，トリウム(Ⅳ)などのイオンを用いてしらべた。その結果多量のカドミウム(Ⅱ)銅がわずかにウランの定量に妨害をあたえることがわかつた。したがつてウランの定量の前にカドミウムおよび銅を分離しておく方がよい。

この定量法は比較的簡単な操作で短時間に分析ができ、他のイオンの妨害を受けることがすくない。

A28

ネプツニウムのＨＤＥＨＰ－鉱酸系における行動

Distribution of Neptunium between HDEHP and Mineral Acids

日本原子力研究所　　中村　永子

Eiko Nakamura

ＨＤＥＨＰ※抽出における４価、５価、および６価ネプツニウムの行動をしらべた。同時にウラン．トリウム．プロトアクチニウム．ジルコニウム等の抽出行動もしらべて比較検討してみた。その結果から、ネプツニウムのＨＤＥＨＰ錯塩がどのようなものであるかを推定した。

ネプツニウム・トレーサーは、ＪＲＲ－１で照射したウラン化合物から、Ｎｐ－２３９を分離精製した。

4. 5. および６価ネプツニウム・トレーサーの調製は、前報（Bull Chem. Soc. Japan 33. 702（1950））にのべた方法にしたがつて、適当な酸化還元剤を用いて行つた。

４価ネプツニウムは、塩酸溶液、５価と６価は過塩素酸溶液とＨＤＥＨＰトルエン溶液との間に分配させて、有機相、水相のネプツニウムによる放射能を、ガンマ線により測定し、Kd値をもとめた。そのKd値のacid－dependenceおよびsolvent dependenceをしらべた。

これらの実験結果を、他の元素の行動と比較し、次のようなことが分つた。６価ネプツニウムはウランとよく似ており、その錯塩は、$NpO_2A_4H_4$（ＡはＨＤＥＨＰ陰イオン）であるらしい。

４価ネプツニウムは、ジルコニウムとは似ておらず、やはりアクチニド元素に属するトリウムと類似した$NpA_2(HA_2)_2$として、抽出されるらしい。

５価ネプツニウムは、プロトアクチニウムとは全く異なつた行動を示した。

※　ビス（エチルヘキシル）水素．リン酸

第　2　日

10　月　7　日　（金）

B　部　会

第　2　会　場

論文番号　B 22～B 31

B22

活性炭による放射性希ガスの相互分離

The Separation of Radioactive Fission Rare Gases by the Use of Charcoal Chromatography

日本原子力研究所
化　学　部

中井敏夫　矢島聖使　市坡純雄　○半田宗男

Nakai Toshio, Yajima Seishi, Ichiba Sumio, Handa Muneo

原子炉、インパイルループ、燃料再処理における燃料の溶解等の際排出される廃気より放射性希ガスを分離精製するため、活性炭による放射性希ガスの相互分離について研究を行つた。キセノン、クリプトン、アルゴンの追跡子としてそれぞれキセノン－133（半減期5.2日）、クリプトン－85m（半減期4.4時間）、アルゴン－41（半減期1.8時間）を用い、担体ガスとしてはヘリウムを使用した。用いたキセノン－133、クリプトン－85m は微粉末の2酸化ウランと天然黒鉛を重量比で1対10に混合したものをJRR－1原子炉で中性子照射を行つたのち、各々の希ガスの存在比が最大となるまで、すなわちキセノン－133の場合は5日、クリプトン－85mの場合は1日冷却する。その後担体ガスであるヘリウム気流中で約800℃に加熱して、黒鉛中に捕獲されている核分裂生成物からそれぞれの希ガスを分離した。アルゴン－41は天然に存在するアルゴンガスを中性子照射し$^{40}Ar(n,\gamma)^{41}Ar$の反応で生成した。得られた各々の放射性希ガスを一定量の活性炭層に吸着させ、活性炭層へ温度、担体ガスの流速等の条件を変えて、各希ガスの活性炭層よりの溶離曲線をもとめ、希ガス相互の分離の最適条件を決定した。溶離曲線は一定時間ごとに活性炭トラップをとりかえて、活性炭層より脱着した放射希ガスを256チャネル、ガンマ線波高分析器で測定してもとめた。

その結果分離の条件としては、使用した活性炭1g、ヘリウムの流速50ml/minの場合分離時間を3時間としたときのキセノンとクリプトンの分離の最適温度は－50℃、クリプトンとアルゴンは－100℃であつた。また本実験より得られた結果は、W.E.BrowningおよびC.C.Boltaによつて得られた希ガスの活性炭層への保持時間に対する実験式の結果ともよく一致した。

以上のように活性炭により分離した放射性希ガスには不純物として水素、窒素、炭化水素等の気体が含まれているので、さらに精製過程においてこれらの気体を除去し、比放射能の高い希ガスを得ることができる。

B23

無担体 ^{113}Sn および ^{117m}Sn の製造
Productions of carrier-free ^{113}Sn and ^{117m}Sn

大阪大学理学部

福島昭三、久米三四郎、岡村日出夫、音在清輝
Fukushima Shozo, Kume Sanshiro, Okamura Hideo, Otozai Kiyoteru
吉澤康和、林智、坂本浩、辻野隆三
Yoshizawa Yasukazu, Hayashi Satoshi, Sakamoto Ko, Tsuzino Ryuzo

サイクロトロンを用いて、In+α反応で出来る ^{117m}Sn、In+d反応で出来る ^{113}Sn、Cd+α反応で出来る ^{113}Sn と ^{117m}Sn。以上三反応についてそれぞれの Sn の核反応収率(厚いターゲット)を求め更に無担体錫の製造を行い、この化学収率を求めた。又その核反応収率について三反応を比較した。衝撃：$^{115}In(\alpha,pn)^{117m}Sn$ 反応については箔積重ね法と厚いターゲット法の二方法について実験した。箔積重ね法では厚さ約25μの銀箔上に In を約10μ電鍍したものを積み重ね東大核研の63インチサイクロトロンの40Mev α粒子で衝撃し入射粒子量は積分計で讀んだ。厚いターゲット法は目的金属を圧延して150μ以上の厚さの板にし入射粒子量測定の為に約10μの銀箔を目的とする金属板の上にのせ更にエネルギーを落す必要がある場合はアルミニウム吸収板をその間に挟んだ後直径約2cmの円形スリットをあけた銅板でおさえ銀箔を通過した粒子は必ず目的金属に当るようにした。衝撃は阪大60インチサイクロトロンの22.8 Mev α粒子或は11.4Mevのd粒子で行った。各ターゲットは衝撃に際し2μアンペア以下におさえて金属インヂウム及びカドミウムの熔融から守った。核反応収率用化学分離：調査の結果衝撃後5~6日すぎ放射性核種として ^{117m}Sn 又は ^{113}Sn 或は ^{113}Sn と ^{117m}Sn が残るのみである事が分ったので、それぞれの試料に約30mgの錫担体を加え簡単な化学分離を経て2mlの溶液として $1^{3}/_{4}"\times2"$ NaI シンチレーションカウンターで測定した。但し電流測定用の銀箔についてはカドミウム担体を加えて硝酸で溶かし NH_3 アルカリ性で銀イオンを除去しカドミウムを硫化物とした後5mlの溶液として ^{109}Cd の88Kevγを測定した。その結果 $^{115}In(\alpha,pn)^{117m}Sn$ の核反応収率は入射粒子エネルギー16.8, 19.9, 21.3Mev のそれぞれについて $(3\pm4)\times10^{-4}$, $(2.23\pm1.04)\times10^{-3}$, $(4.71\pm0.5)\times10^{-2}$ μC/μAh を得、$^{115}In(d,2n)^{113}Sn$ では5.6, 7.6, 9.6 ~ 11.3Mev についてそれぞれ 0, $(6.87\pm0.69)\times10^{-3}$, $(3.87\pm0.56)\times10^{-2}$, $(1.67\pm0.16)\times10^{-1}$ μC/μAh、Cd+α反応については11.7, 14.9, 21.2Mev についてそれぞれ ^{113}Sn が 0, $(1.48\pm0.18)\times10^{-2}$, $(2.09\pm0.28)\times10^{-1}$ μC/μAh, ^{117m}Sn が $(1.67\pm0.21)\times10^{-3}$, $(2.01\pm0.25)\times10^{-3}$, 1.11 ± 0.14 μC/μAh を得た。無担体用化学分離：インヂウムターゲットは塩酸に溶解後銅担体を加えて0.5N塩酸酸性とし硫化水素を通じて錫を共沈させた後塩酸で溶かして2N溶液を作り、アンバライトに通し2N塩酸で溶離後2N硝酸で溶出させる。カドミウムターゲットは王水で溶解し鉄の担体を加え2N NH_3 アルカリ性にして錫を共沈させた後塩酸で溶かして銅担体を加えインヂウムターゲットと同じ操作をする。インヂウムターゲット中の無担体錫の収率は81%、カドミウムターゲット中のそれは94%であった。又除染係数は両者ともインヂウムは 10^6 以上カドミウムについては 10^3 以上であった。尚更にβスペクトル用高放射活性度の試料を作る為にイオン交換樹脂から溶出した液を0.3N塩酸酸性としたものについて内部電解法を用いた所約20時間後にマイラ膜に塗着した金上に80%無担体錫を電着する事を得た。以上の結果この様な入射粒子エネルギーでは、^{113}Sn のみ又は ^{117m}Sn のみを必要とする場合はそれぞれ In+d 或は In+α 反応が望ましいが、多量の ^{117m}Sn が必要な場合は ^{113}Sn も混るが Cd+α 反応が望ましい。

B24

沪紙電気泳動法による無担体硫黄-35製品の化学形の決定並びに不純物の定量について

On the Determination of Impurities in the Carrier Free Sulfur-35 and the Identification of its Chemical Form

日本原子力研究所　馬場宏 Hiroshi Baba

〔目的〕 塩素化合物の中性子照射により無担体で製造される^{35}S中に含まれる恐れのある不純物は^{32}Pと^{36}Clである。一方、硫酸の形で賣り出される製品中に他のイオン形がどの程度含まれるかという問題は、有機性硫黄化合物に関して特に重要である。以上述べた二つの理由から、沪紙電気泳動法によるS, P及びClの種々の化学形の分離を行った。

〔実験〕 装置は東洋沪紙株式会社製沪紙電気泳動器C号を用いた。これは開放型水平一次元泳動法である。沪紙は東洋沪紙No51Aを用いた。電解液にはpH 3~13の範囲におよぶ種種の電解質を用い、電解液の濃度・泳動時間及び電圧を変えて泳動を行った。

問題にすべき化学形として、硫黄については酸性溶液中で存在し得る化学形の大部分を、燐についてはPO_4^{3-}, PO_3^{3-}, $P_2O_7^{4-}$を、又塩素についてはCl^-を採り上げた。検出はNuclear Chicago社製のクロマトグラフスキャンナーによる放射能の測定と発色法とを併用した。放射能の定量はRaD-E-F標準試料との比較測定により行った。

〔結果〕 開放型であるため、泳動距離が泳動時間又は電圧と共に直線的に増加せず、しだいに飽和する傾向を示す。そのため泳動時間及び電圧の異ったデータを、泳動速度を用いて統一することができない。

泳動可能な部分が25cmしかないので、一つの泳動條件ですべてのイオンを分離することは不可能であり、着目するイオン毎に泳動條件を変えて泳動しなければならない。各イオンに対して定めた泳動條件及び泳動距離を表に示す。

イオン	泳動條件				泳動距離		最近接イオンとの間隔
	電解液		電圧	泳動時間	当該イオン	$SO_4^{=}$	
$SO_4^{=}$ + HS^-	NH_4OCOCH_3	0.1 N	500 V	1 hr	164 mm	164 mm	44 mm
$SO_3^{=}$	NH_4OCOCH_3	0.025 N	〃	〃	30	119	27
$SO_5^{=}$ + org. S	NH_4OCOCH_3	0.1 N	〃	〃	0	86	62
$S_2O_8^{=}$+$SO_5^{=}$+org.S	$(NH_4)_2CO_3$	0.1 N	〃	〃	0	89	40
$S_nO_6^{=}$	$(NH_4)_2CO_3$	0.05 N	〃	〃	126	155	12
HS^-	NH_4OCOCH_3	0.025 N	〃	〃	149	119	30
org. S	NH_4Cl	0.1 N	〃	〃	0	80	70
oxy anion of P	NH_4Cl	0.05 N	〃	〃	80	121	20
$P_2O_7^{4-}$	NH_4Cl	0.025 N	〃	〃	113	149	35
Cl^-	NH_4OH 0.05N + $(NH_4)_2CO_3$ 0.05N		〃	〃	20	164	20

以上の結果をもとにして^{35}S中の^{32}Pの定量を行い、検量曲線を求めた。

B25

生体中のセシウムの放射化分析

Neutron Activation Analysis of Cesium in Human Tissues

国立公衆衛生院　○山縣　登
群馬大学工学部　田島栄作
Noboru Yamagata, Eisaku Tajima

フオールアウトによる環境汚染、および放射性セシウムの体内最大許容量の問題と関聯して、人体組織中の非放射性セシウムの濃度を決定するために、放射化分析を試みた。

試料は人体組織灰 0.1 g とし、JRR-1 により3日間の断続照射（計15時間，中性子束は $n \times 10^{11}$ $n/cm^2/sec$）をおこない、標準試料としては Cs として約 0.5 μg を含むカリウムジピクリルアミネートを使用した。冷却期間は約1年である。

照射、冷却した試料は希塩酸に溶解し、Cs-担体 20 mg および Fe^{3+} を加えてから、水酸化ナトリウム溶液で中和して pH 8～9 としてから沪過、沪液にかきまぜながらナトリウムジピクリルアミネート溶液を加え、5°C で一夜放置後沪過する。沈殿を沪別し、冷水で洗浄、乾燥してから、これをメチルイソブチルケトンに溶解し、希塩酸で抽出，蒸発乾固してから水に溶解し，塩化白金酸を加えてセシウムを沈殿させ、秤量してから ^{134}Cs（^{133}Cs (n, γ)，半減期 2.3 年，β: 0.66 Mev）の放射能をGMカウンターで測定し、標準試料と比較した。セシウム分離操作の化学的収率は 80～85 % である。

上記の照射條件で 1 μg のセシウムは、測定効率約 10 % のGMカウンターで 116 cpm を与えたが、0.1 g の人体組織灰中のセシウムは min. 0.02 μg，通常 0.1 μg 程度であるから、場合により測定効率約 30 % の低バックグラウンドカウンターを使用して、測定誤差を 10 % 以内にとどめた。

^{134}Cs と共存する核種は1年の冷却後では、ほとんどベータ放射体のみで、セシウム分離過程における放射能の追跡，試料灰および沈殿させた $BaSO_4$ についてのアルミニウム吸収板によるエネルギー測定の結果、大部分は ^{35}S であることが判った。また、分離した ^{134}Cs の放射化学的純度については Activity が低いため、完全な検討はできないが、吸収板によるベータ線エネルギーの測定、およびリサイクリングによれば、満足すべきものであった。

15体の臓器組織別試料 202 個の分析結果は，生重量 1 g 当り 1～10 mμg の Cs を含むものが 134 個，10 mμg 以上のもの 67 個，min. 0.7 mμg，max. 337 mμg であった。これらの値は Oak Ridge National Lab. から出された放射化による人体中セシウムの分析値より、はるかに低く，I. H. Tipton 等の分光分析による結果に近いものと思われる。

分析結果の詳細および解釈については，地球化学討論会および日本放射線影響学会において発表の予定である。

B26

硫化鉛中の不純物の放射化分析

Activation Analysis of Impurities in Lead Sulfide

＋日本原子力研究所
＃日本電気株式会社
＃＃農林省農業技術研究所

矢島聖使＋ 亀本雄一郎＋ ○小野田儀弘＃ 渋谷政夫＃＃

Seishi Yajima, Yuichiro Kamemoto, Yoshihiro Onoda, Masao Shibuya

1. 硫化鉛は近年半導体材料として注目されているが微量に存在する不純物がその性質を左右することが極めて大きく、その微量不純物の定量が重要である。

演者らは中性子放射化分析により硫化鉛中の銅、ヒ素、アンチモン、マンガン、ニッケル、塩素の定量法を検討した。塩素のみは非破壊分析法で定量し、その他のものは放射化学的分離を行なつた。いずれもγ線スペクトロメトリーを適用した。硫化鉛精製段階における塩素含有量の減少を合せ検討した。

2. 硫化鉛試料約1gをポリエチレン製袋に封入し、各標準試料とならべてキャプセルに入れる。これをJRR－1中で1時間～3日間中性子照射を行なう。（銅、ヒ素、アンチモンの定量の場合は2時間、1日、3日間；マンガン、ニッケルの定量の場合は2時間；塩素の定量の場合は1時間又は2時間；いずれも中性子束約3×10^{11} n/cm²/sec で照射を行なつた）照射した試料は塩酸に溶解し、加熱して硫化水素を追い出した後、各担体（約10mg）を加えた後、鉛を塩化鉛、硫酸鉛として除去する以後数段階の分離操作を行ない、最後に銅はチオシアン酸銅とし、ヒ素、アンチモンは硫化物とし、マンガンは二酸化マンガン、ニッケルはジメチルグリオキシム塩として、それぞれを秤量し収量を求めた後γ線スペクトル及び全計数率を測定する。

塩素の定量は試料を中性子照射後いかなる化学的操作も加えることなく、γ線スペクトロメトリーを適用して行なつた。

γ線スペクトロはいずれも試料をポリエチレン製棒状ビンに移した後、1¾インチ×2インチのNaIクリスタル（井戸型）にマウントしRCL-256チャンネル波高分析器により測定した。全ての定量値はγ線スペクトルの光電ピークのエネルギーと半減期により汚染のないことを確めた後、ピークの高さを標準と比較して求めた。

3. 演者らの得た結果の一部を次表に示す。

試料番号	定量値（PPm）					
	銅	ヒ素	アンチモン	マンガン	ニッケル	塩素
PbS－1	0.4	0.3	1.4	0.1	＜200	100
PbS－2	0.4	0.2	0.2	－	＜200	11

B27

非破壊法によるイリジウムの放射化分析

Nondestructive Analysis of Iridium through Neutron Activation

＋日本原子力研究所
＃日本電気株式会社

矢島聖使＋ ○亀本雄一郎＋ 柴 是行＋ 小野田儀弘＃

Seishi Yajima, Yuichiro Kamemoto, Koreyuki Shiba, Yoshihiro Onoda

1. 白金、ロジウム、パラジウム、金などの貴金属中に含まれる微量のイリジウムを定量する放射化分析法を検討した。これらの金属中には多くの場合微量のイリジウムを含み、その放射化学的分離法は先に報告した。今回は非破壊法によりイリジウムを定量する放射化分析について報告する。

2. 上記の試料はいずれも大きな中性子放射化断面積を持ち、中性子照射により強放射性となる。したがつて短寿命核種を利用する非破壊分析法は行ない得ない。イリジウムは放射化分析により高感度で定量できる元素であり、半減期19hrの^{194}Irのほかに半減期74.4dの^{192}Irを生ずる。試料の誘導放射能はいずれも比較的短寿命であるから、中性子照射後適当な冷却期間を置くことによつて、試料の誘導放射能の減衰を待ち、γ線スペクトロメトリーによりイリジウムを定量することができる。演者の1人は日本化学会才11年会において科研サイクロトロンを用いた研究結果から、この方法の可能なることを示した。

3. 演者らの採用した方法を示すと次のようである。試料の表面を洗浄後適当量を精秤し、比較標準としてイリジウム標準溶液0.1mℓをロ紙にしみこませたものをそれぞれポリエチレン製袋に封入し、並べて同一キャプセルに入れた。気送管を利用してJRR－1原子炉中で1～2時間中性子照射する（中性子束約3×10^{11}n/cm²/sec）適当時間放置して試料の誘導放射能の減衰を待ち、試料をポリエチレン製棒状ビンに移してγ線スペクトルを測定する。測定器は1 3/4 インチ×2インチのNaIクリスタル・（井戸型）をRCL-256チャネル波高分析器につないで使用した。0.31、0.47、0.63、0.80MeVの光電ピークの高さの比を試料と標準と比較することによりγ線スペクトルに妨害のないことを確かめ、定量には最も感度のよい0.31MeVのピークを用いた。

4. 既知量のイリジウムを添加した試料について、この方法を適用した結果実験誤差内で加成性がなりたつことがわかつたので、この方法が未知試料中のイリジウムの定量に使用しうることが明らかとなつた。

実際に分析した結果をまとめて次表に示す。

試料	定量値（PPm）	試料	定量値（PPm）
白金箔1	390、320、320	パラジウム	14
白金箔2	100、95	金箔	27、30
白金線	＜8、＜12	金1	＜30、＜30
ロジウム	100、120	金2	＜30、＜30

B28

中性子放射化によるスカンジウムとジスプロシウムの同時定量

Simultaneous Determination of Scandium and Dysprosium by Neutron Activation

工業技術院東京工業試験所
Government Chemical Industrial Research Institute, Tokyo
日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

○岡田 実
Minoru Okada
亀本雄一郎，柴 是行，半田宗男
Yuichiro Kamemoto, Koreyuki Shiba and Muneo Handa

鉱石類の中の微量のスカンジウムとジスプロシウムを迅速に定量することを目的とした。

方法は中性子照射とγ線スペクトロメトリーの組合せであって，化学分離は行なわない。本実験では 4×10^{10} n/cm²/sec の中性子を試料(1.5～85 mg)に30秒間照射し，10秒の間を置いて30秒間計数を行ない，さらに30秒間冷却してから30秒間計数した。用いた計数装置は直径1½ inch 厚さ2 inch の井戸形 NaI(Tl)結晶を256 channel 波高分析器に接続したものであって，最初の30秒に128 channel を用い，第2回の計数に残りの128 channel を用い，計数終了後，ブラウン管式モニター上にγ線スペクトルを映像させ，それを写真にとった。同定はγ線エネルギーと半減期によって行ない，定量は光電ピークの高さによって行なった。定量のさいには，あらかじめ標準試料を用いて作った検量線(図1)を用いた。

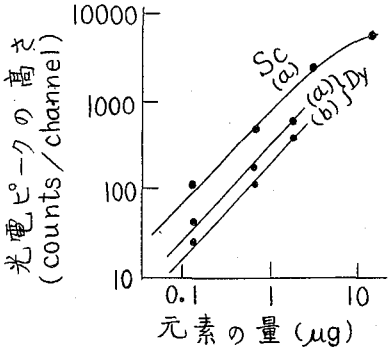


図1 検量線

(a) は第1回計数から得たもの
(b) は第2回計数から得たもの

取扱った濃度範囲はスカンジウムが 0.4～50 ppm，ジスプロシウムが 2.0～700 ppm である。γ線スペクトルの例として福島県産コロンブ石 47.5 mg から得た写真を図2に示す。(図2から Sc 24 ppm, Dy<8ppm と得られた)

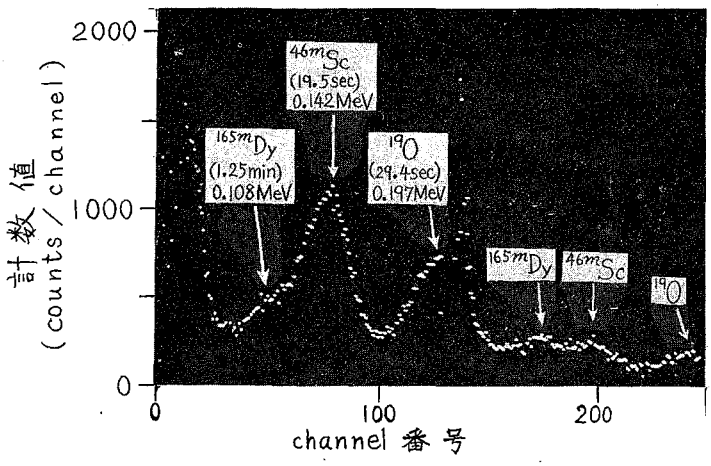


図2 γ線スペクトル写真の例

本法によって得られる分析値の変動係数をどの程度まで小さくできるかを知るために，スカンジウムおよびジスプロシウムの標準試料数個に対して前記の分析法を適用し，表1に示す変動係数を得た。

表1 変動係数の例 および 対応する光電ピークの大きさ

試料	試料個数	変動係数 (%)	ピーク高さ (counts/chan.)	ピーク面積 (counts)
3.07μg Sc	5	第1回計数 3.8	1.88×10^3	4.3×10^4
1.62μg Dy	4	第1回計数 2.1	4.6×10^2	7.4×10^3
		第2回計数 9.5	2.60×10^2	4.7×10^3

B29

アルミニウム箔中のコバルトの放射化分析
Activation Analysis of Cobalt in Aluminum Foil

東海區水産研究所　深井 麟之助　Rinnosuke Hukai

熱中性子を用いて放射化分析を行う際、中性子の線束を測定するために、試料と同時に、重量既知の適当な金属箔を照射して、これに誘起された放射能から、中性子線束を計算する方法が、通常用いられている。　演者が、生物灰分中の数種の元素について放射化分析を行った際は、短時間照射（こゝでは15分以内）に対しては金箔を用い、長時間照射（3時間以上）に対してはアルミニウム・コバルト箔を用いた。　本報告では、このアルミニウム・コバルト箔中のコバルトを、放射化分析法によって、非破壊で分析した過程および結果を述べる。

試料として1～2mgのアルミニウム・コバルト箔（厚さ，0.05mm）をとり、ポリエチレン管中に封入し、ミシガン大学付設のスウィミング・プール型原子炉（最大出力5Mw；操業出力0.1～1Mw）中で、1～2.5分間、通気管系を用いて照射した。　照射中性子線束は、各照射毎に、ポリエチレン管中に、約1mgの金箔（厚さ，0.025mm）を同封し、その誘起放射能から計算した結果、4×10^{11}～1×10^{12} n/cm²/sec. であった。

試料は、照射後30分放置し、アルミニウムの誘起放射能（^{28}Al：半減期2.3分；γ線エネルギー 1.78 Mev）を減衰させた後、直接に100チャンネルγ線波高分析器（NaIクリスタル 3″×3″）を用いて、γ線スペクトルを測定した。　コバルトの定量には^{60m}Coのピーク（半減期10.5分；γ線エネルギー 0.059 Mev）を用い、毎分の計数を10分間追跡し、圖上で外挿して原放射能を求め、予め既知量のコバルトの照射によって作製した検量線と比較して、試料のコバルト含量を計算した。　検量線を作製する場合には、各測定値は、標準照射條件、すなわち″1×10^{12} n/cm²/sec. の熱中性子線束における2分間照射″という條件に換算してプロットした。

一方、試料の熱中性子に対する自己遮散効果を吟味するために、既知量のコバルトのみと、同量のコバルトをアルミニウム箔（厚さ，0.025mm）で、両面を遮散したものとを、同時間照射して、コバルトの誘起放射能を比較したが、両者の差は2％以内で、殆んど自己遮散の影響を無視しうることを確めた。

3回の分析の結果は次表に示し、コバルト含量は0.356±0.002％であった。

No.	Material	Weight (mg)	Irrad. Time (min.)	Neutron Flux (n/cm²/sec.)	Obtained Initial Activity (c/m/peak)	Normalized Activity 2min. irrad. at 10^{12} n/cm²/sec. (c/m/peak)	Co-content μg	Co-content %
1	Al-Co foil	1.6	2.5	4.98×10^{11}	16,800	26,990	5.7	0.356
2	〃	1.9	2.0	4.99×10^{11}	16,000	32,060	6.8	0.358
3	〃	1.3	1.0	5.50×10^{11}	6,000	21,820	4.6	0.354
								Av. 0.356

B30

中性子遮蔽，中性子束変動について

Studies on the Neutron Shielding of Metals and the Flux Homogeneity in Capsule

+日本原子力研究所
++日本電気株式会社

○矢島聖使+，亀本雄一郎+，柴　是行+，小野田儀弘++

Seishi Yajima, Yuichiro Kamemoto, Koreyuki Shiba, Yoshihiro Onoda

1. 放射化分析を行なうに際して誤差の原因となる1つに中性子遮蔽と、キャプセル中の中性子束の不均一とが考えられる。

放射化分析を行なう時にはまず種々の量の試料を採取して中性子遮蔽の見られない量の試料を使用する手数をかけねばならない。演者らはいろいろな金属について中性子放射化を行ない遮蔽の起りはじめる量とその中性子吸収断面積の関係を求め、実際に放射化分析を行なう時に採取すべき試料の量を簡単に知る方法を見出すことを目的として本研究を行なつた。

2. まずキャプセル中の中性子束の差異の有無を調べた。金の標準溶液（金198.6 μg/mℓ）0.1 mℓを径2cmの口紙2枚にしみこませ、ポリエチレン製袋に封入して、キャプセルの先端，後端，中央部，中心部などに固定して、JRR-1原子炉中で中性子照射を行なつた。照射後各試料の放射能を比較して中性子束のキャプセル中の変動を調べた結果、ほとんど差異は認められなかつた。異なるキャプセルの場合は並べて中性子照射を行なつても、20～30％の差がみとめられた。

3. 中性子遮蔽について。　高純度の金属塊から、なるべく相似の形になるように、いろいろな量の金属塊を切りとり、表面を充分洗浄した後、それぞれポリエチレン製袋に封入し、同一のキャプセルに封入した。これを気送管を利用してJRR-1原子炉中に入れ、数分～2時間中性子照射を行なつた。　（中性子束約 $3\times10^{11}\sim10^{10}$ n/cm²/sec）

照射後試料を溶解し正確にうすめ、それぞれの一部をとり出しγ線計数を行なつた。（放射能値がほぼ同一程度になるように採取量を加減して、計数誤差を最小にするように務めた）試料の放射能はすべて1 3/4 インチ×2インチのNaIクリスタル（井戸型）により測定し、γ線スペクトルをRCL-256 チャネル波高分析器（クリスタルは同型）により測定し光電ピークのエネルギーを調べ半減期と合せて放射化学的に純であることを確かめた。γ線全計数率から各試料の比放射能を計算し、中性子遮蔽の起る量を求めた。

用いた試料は金，銀，銅，クロム，マグネシウム，インジウム，アンチモン，カドミウム，テルル，セレン，水銀，鉛などである。

試料が塊状である場合と粉末状態で広がつている場合とで中性子遮蔽の起りはじめる量が異なるのは当然のことであるが、塊状の場合には大略次のような関係が見出された

$$\frac{\text{中性子遮蔽の起る量}(g)\times\text{中性子吸収断面積}(b)}{\text{試料の原子量}}\fallingdotseq 20$$

この式は概略の関係式であることは明らかであるが、実際に放射化分析を行なうにあたつて試料の量をきめる場合に助けとなるものである。

B31

立教大学原子力研究所ホットラボの設計について

Design of Hot Laboratory at the Institute for Atomic Energy of Rikkyo University

立教大学原子力研究所　　○松浦辰男・高石哲男
Tatsuo MATSUURA and Tetsuo TAKAISHI

現在トリガ型原子炉を建設中の立教大学原子力研究所（所在地：神奈川県横須賀市大楠町）は原子炉附属施設としてホットセル及び放射化学実験室を原子炉建屋内に建設中であるが，その設計の概要について報告する。（設計施工担当業者は清水建設）

ホットセルは照射用としてでなく化学用としての性格を有し，すなわち，最高出力100 KW の原子炉での照射によってできるアイソトープを取扱うためのもので，最高 Co^{60} にして約60キュリー程度が取扱える計算になっている。すなわちこの壁は厚さ90cmの普通コンクリートでできているが，少量の砂鉄を混じプレパクトエ法により比重は2.3～2.4を下ることはない。ホットセルの内部の面積は2米平方で，操作はセルの床面より更に80cmだけ低くなっている操作室からマニプレータ（三菱電機製MA-P型）によりおこなわれるが，このマニプレータの操作範囲はほゞセルの床面全域をカバーする。のぞき窓は小原光学製の主に比重3.6の非褐色化ガラスよりなり，その放射線遮蔽能はコンクリート壁とほぼ等価となる様にし，窓の周囲の壁の薄くなった部分は鋳鉄製の枠によって遮蔽能を補ってある。作業室側の扉は厚さ60cmの重コンクリートからできており，この開閉は操作室側とのインターロックによって，ケーブ内部のモニター指示を見て安全とみとめた上で押釦が両側で押されてはじめて動作する。ケーブ内面は鉄板ライニングにRIR塗料を施した仕上げとし，適時除染作用がおこなえる様にしてある。原子炉で照射され生産されたRIはキャプセルのまゝ二種の気送管によってケーブ内に搬送される仕掛けになっている。ケーブを利用する実験に便な様に，内部には水栓，ガス栓，電気コンセントを有するほか，壁を貫通して曲ったパイプが十数本と，直径20cmのスリーブ及びプラグが2ケ，および放射化学実験室側には特殊構造を有する抽出しが埋込まれ，その他セル床面にはRI保管用のピットが2本堀られ，またこの上にはIビームが設置してある。内部の照明は水銀燈及び螢光燈により，のぞき窓を通じての有効照度は250ルクス程度である。内部の換気回数は毎時20回で，排気の浄化装置としては放射化学実験室のフード類からの系統と同様に，湿式のキャピラリー型空気洗滌器，乾式のグラスウールフィルター及びアブソリュートフィルターが必要に応じて施せる様になっており，モニターによって監視されている。

放射化学実験室は広さは洗滌室共で約78平米，床仕上げは塩化ビニールシートを用いて目地が生じない様にした。フードはオークリッヂ型が4台，カリフォルニヤ（要型）が1台，グローブボックスは1台備えつけることにしたが，比較的高レベルのRIを使用するフードは、γ線の下方への放射にたいする遮蔽を考慮してフードの架台をコンクリート造りとした。その他，洗滌室に隣る一隅に廃棄物一時保管のためのコンクリート造りの棚を造ったこと，測定室側に測定試料保管用のスペースを考慮したこと，作業室の気送管操作機の近傍にRI貯蔵庫を特に設計したこと等がこの部屋の設計の特記すべき点であらう。

第 2 日

10 月 7 日 (金)

A 部 会

(午 後 の 部)

第 1 会 場

論文番号 A 29～A 36

第 2 会 場

論文番号 A 37～A 47

A 29

TBPによる種々のウラニル塩の抽出機構

The Mechanism of extraction of several uranyl salts by TBP

日本原子力研究所　　○内藤奎爾　鈴木敏夫
Keiji NAITO,　Toshio SUZUKI

従来，硝酸酸性溶液からのウランの抽出は詳細に調べられているが，硝酸以外の酸溶液からのウランの抽出についてはほとんど知られていない。

筆者らは硝酸，塩酸，過塩素酸，硫酸，リン酸，酢酸などの酸溶液からのウラニル塩の抽出を試みた。

種々のウラニル塩の分配に及ぼす酸濃度の影響，塩析剤濃度の影響，TBP濃度の影響を検討し，抽出機構として一般に $UO_2^{+2}(aq.)+\frac{2}{n}X^{-n}(aq.)+mTBP(org.)\rightleftharpoons(UO_2X_{2/n})(TBP)_m(org.)$ であること，また抽出された錯化合物の組成として $UO_2(NO_3)_2(TBP)_2$，$UO_2Cl_2(TBP)_2$，および $UO_2(OAc)_2(TBP)_4$ であることを推定した。

またウラニル塩の抽出の挙動は共存する酸の抽出によって著しく影響される事がありこの効果は $HClO_4$ 酸性溶液からのウラン抽出に於ては特に著しい。これに対して酢酸，リン酸，硫酸などの酸性溶液からの抽出では，これらの酸の陰イオンとウラニルイオンとの錯体生成が抽出に対して大きく影響することが認められる。

然しながら，酸濃度の稀薄な領域ではこれらの影響は比較的小さく，抽出され易い順位として $UO_2(ClO_4)_2 > UO_2(OAc)_2 > UO_2(NO_3)_2$，$UO_2Cl_2 > UO_2SO_4$ の順序が得られる。この順位はそれぞれの陰イオンの水相中での水和の強さとほぼ逆の関係にあることが注目される。

A30

酸性におけるラジオコロイドについて（スズおよびアンチモンのラジオコロイド）

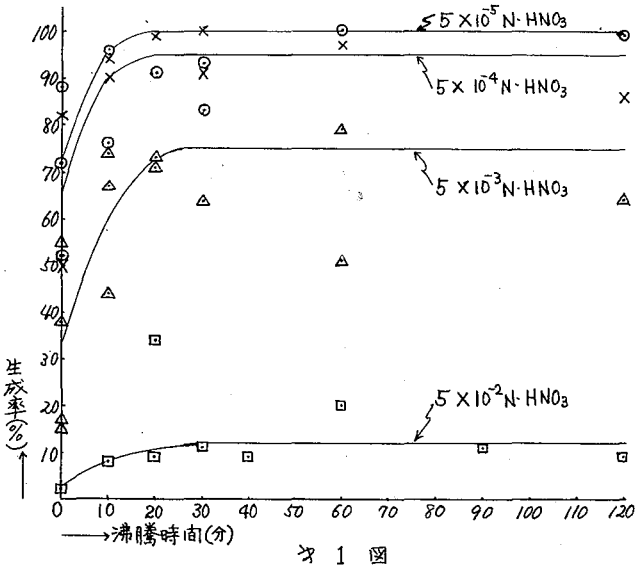
On the radiocolloids in acidic medium (Sn and Sb radiocolloids)

大阪府立堺工業高等学校
大阪大学理学部

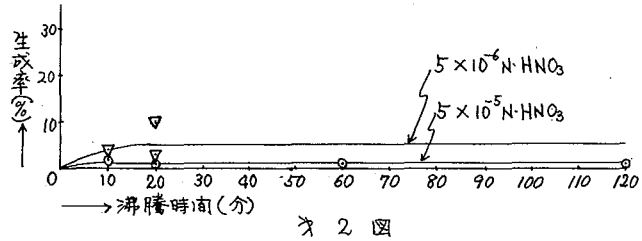
○広瀬　修，音在清輝
Osamu Hirose　Kiyoteru Otozai

種々の放射性同位体がアルカリ性のもとにおいてラジオコロイド(以後略してRC)となることについては既に知られているが酸性のもとにおけるRCについてはその報告がない。

スズが特に加水分解を受けやすいものであることに着目して酸性のもとにおいて実験を行いRCを確認できた。更にアンチモンについても生成状況の検討を行った。



第1図



第2図

無担体スズはカドミウムターゲットをα衝撃して得られたものを共沈法およびイオン交換法により精製し，一方，無担体アンチモンの方はスズターゲットをd衝撃して得られたものを水部電解法により分離したものを用いた。製品はガンマ線スペクトルの測定により放射化学的に純粋なそれぞれ^{117m}Sn, ^{113}Snおよび^{120}Sb, ^{125}Sbを確認することが出来た。

硝酸の種々の濃度について実験を行った結果を第1図および第2図に示す。無担体同位体は何れも王水で酸化して乾固したものを30 ml溶液とし100 mlビーカーで時計皿の蓋をして沸騰させた，このとき注湯により液量を常に一定に保つことに留意した，放冷後グラスフィルター(NO.4)によりRCを沪別し，これを濃塩酸により溶解させた液と，もとの沪液とについて同じジオメトリーでシンチレーション計数器で測定しRCの生成率を算出した。

図のように無担体スズでは5×10^{-5}規定において殆んど100%のRCの生成をみるが無担体アンチモンではこの5×10^{-5}規定においては1%以下のRCしかできない。沸騰0分においては不明の原因によって著しく再現性がわるいが，沸騰をすると再現性は段々よくなる。

A31

放射性アンチモンの化学的行動（その2）

The Radiochemical Behaviours of Radioactive Antimony (Part II)

静岡大学教育学部　放射化学研究施設
○神原富尚，大場裕，塩沢カヨ子
Tomihisa Kambara, Yutaka Ōba, Kayoko Shiozawa,

I）目的；さきに放射性アンチモン（$^{124}SbCl_3$ および $^{125}SbCl_3$ の塩酸溶液）が3価のものとして精製されたものが、大部分5価の状態に変化していることが確認された。（松浦・戸村；分析化学 6，205；神原；Radioisotopes, 7，112）。さらに如何なる過程を経て塩酸溶液中の3価の放射性アンチモンが5価に変化するかを追究した。すなわち，種々の濃度の塩酸溶液試料について，$^{124}Sb(III)$ が $^{124}Sb(V)$ に変化する速度を調べ，それと同時に共存させた Sb(III)（非放射性）の影響および Sb(III) の量の変化を調べて，$^{124}Sb(V)$ の生成機構を考察した。

II）実験方法，使用した放射性アンチモンは ^{124}Sb（$^{124}SbCl_3$ の塩酸溶液，比放射能 ＝ 1365 mC/g）で，この原液を塩酸により適当にうすめて実験に用いた。

微量の Sb(III) を含ませた ^{124}Sb の塩酸溶液を二酸化硫黄により還元し，その一定量をとり塩酸を加えて塩酸濃度 1M，3M，6M，12M の各試料溶液を調製した。これら試料溶液を室温において放置し，$^{124}Sb(V)$ の生成量および Sb(III) の減少量を放置日数に対して調べた。

$^{124}Sb(V)$ の分離測定法は Norman A. Bonner により提唱（J. Am. Chem. Soc., 71, 3909）された方法に準拠して行った。すなわち ^{124}Sb を含む試料溶液の一定量を 6M HCl（2M-$MgCl_2$ を含む）溶液に添加し，これをイソプロピルエーテルと攪拌して $^{124}Sb(V)$ を抽出分離した。そしてその抽出液の一定量をポリエチレン容器にとり，γ線波高分析器により計数した。一方，用いた全放射能を含む標準溶液について同様に計数し，試料中の $^{124}Sb(V)$ の百分率を求めた。なお，この場合の計数に関し，試料液体の比重の差による計数の変化が無視できなかったので補正した。非放射性の Sb(III) の量はモリブモン青生成法により比色定量した。

III）結果：上記各種塩酸濃度の試料溶液について約1ヶ月にわたって室温における $^{124}Sb(V)$ の生成速度を調べた結果，塩酸濃度が大きい程その生成速度が大であった。また何れの試料についても非放射性の Sb(III) の量は著しく減少することを認めた。また同濃度の塩酸試料溶液については，Sb(III) を余計添加したものでは $^{124}Sb(V)$ の生成速度が抑制されることを認めた。以上の事実から $^{124}Sb(V)$ の生成される過程は次の様な反応機構によると推定した。

$$^{124}Sb(III) \xrightarrow{\beta,\gamma} {}^{124}Sb(V) \qquad (1)$$

$$Sb(III) \xrightarrow{\beta,\gamma} Sb(V) \qquad (2)$$

$$^{124}Sb(III) + Sb(V) \longrightarrow {}^{124}Sb(V) + Sb(III) \qquad (3)$$

なお(3)式の反応について Bonner（上記文献）は塩酸濃度が大きい程交換反応が早く進むことを示した。同時に彼の実験から演者等の実験結果がよく説明できると考えられた。

A32

水溶液のラドン放出能の変化
Variation of Emanating Power of Solutions.

東京工業大学
理工学部分析化学教室　○岩崎岩次　平山光衛，兵頭宏通
Iwaji Iwasaki, Mitsue Hirayama, Hiromichi Hyodo

演者の一人はかつて強放射能泉の成因機構を解明する目的で含ラヂウム物質から放出されるラドンの量について研究したが、その際媒質の性質や状態によってラドンの放出能が種々変化することを明らかにした。その後さらに媒質の性質や状態による放出能を調べたところ従来あいまいであった若干の問題について新見知、ことに硫酸ナトリウムの存在がラジウム溶液のラドンの放出を妨害するという結果を得たのでここに報告する。

1　実験方法　ラジウム溶液としては適当量の池田鉱泉沈澱物を濃塩酸でとかし，不溶解分を口別後，NH_4Cl NH_4OHにて水酸化鉄と共沈させる。そのまままたは鉄を除いて塩酸3N溶液として貯蔵する。この溶液に適当量の塩を加え、最終的には全容250mℓ，1N塩酸溶液として600mℓ容量のキュリー瓶に封入し、常温1ケ月放置後放出されたラドン量を測定する。

放出されたラドンをラドン計に導入するには従来のキュリー瓶を沸騰中に浸漬後に行う方法に加えて，常温あるいは適当温度でも行ってみた。この場合塩を添加してなければ常温で行っても前者と同じ結果が得られる。すなわち沸騰水浸漬30分後は20.2 div/min，20℃では20.0 div/minを示した。ある一定温度でラドンを放出させる場合はキュリー瓶をその温度の恒温槽に約1時間保持し続け、そのまま開封してラドン計にラドンを導入するようにした。

2.　測定結果　上記のラヂウム溶液に塩化カルシウムをそれぞれ1g，5g，10g，加えたものについて測定すると、キュリー瓶開封前30分沸騰水につけたものも，20℃で1時間保持させたものについてもほぼ同じ値すなわち約20 div/minが得られる。このことは塩化カルシウムはラドンの放出能に対して少くとも10gまでは影響がなく，さらに温度にも影響されないことを示す。硫酸ナトリウムの場合であると沸騰水30分浸漬後では約20 div/minが得られ何等の影響もみられないが、20℃で測定するとNa_2SO_4 1g，5g，10gでそれぞれ大約4/5，1/4，1/20に減ずる。Na_2SO_4の量を多くすると放出量は指数的に減少する。測定温度30℃，50℃でも同様の関係がみられるが，放出量は20℃で測定した場合よりも多い。

Na_2SO_4と$CaCl_2$を同時に加えた試料についてはNa_2SO_4 1gに$CaCl_2$をそれぞれ1g，5g，10gを加えたもので何れも約20.0 div/minなる値が得られ放出は完全であった。この場合硫酸カルシウムの結晶は生成しない。Na_2SO_4はラドンの放出量を減じさせるものに対し，$CaCl_2$はNa_2SO_4のこの作用を防害するかのようである。

A33

液体シンチレーションによる軟ベータ線の測定
Liquid Scintillation Counting of Soft Beta Rays

東工大・日本原子力事業　　下島光，○谷彰
Hikaru SHIMOJIMA, Akira TANI

軟ベータ放射能の測定に最も適したものの一つは液体シンチレーション法であるが，なお検討すべき点が少くない。基礎的な性質をあきらかにし，測定の精度をあげ感度を高めるために影響のある種々の因子について調べた。

装置は光電子増倍管（Du Mont 6292），Non Overloading Amp.（Baird Atomic, Model 215），Single Channel Pulse Height Analyzer（Isotope Developement Lab, Type 672），Scaler（EKCO, Type N530D）を組合せたものを使用し，シンチレーターには p-terphenyl 又は PPO と POPOP とをトルエン溶液として用い，試料としては C-14 で標識されたトルエン，メタノール等を用いた。

測定の感度をあげるために，装置のもつバックグラウンドを減らすこと，シンチレーター内で発生した光子を効率よく光電管のフォトカソードへ達せしめること等が必要であり，これらの点に影響を及ぼすと思われる因子のうち，次の諸点に重点をおいて検討した。

1. 光電子増倍管のサーマルノイズに対する温度の影響
2. 試料瓶の材質，形態と大きさ
3. 試料のおき方（試料の位置，反射体の有無など）
4. 試料の濃度，量，性質

A34

液浸シンチレーションカウンターによるCs-137の測定

Measurement of Cs-137 Activity in Solution by Dipping Scintillation Counter

放射線医学総合研究所　○伊沢正実，坪田博行，河村正一，田野実

Natl. Inst. Radiol. Sci.　Masami Izawa, Hiroyuki Tsubota, Shoichi Kawamura and Minoru Tano.

我々はフォールアウトなどの人体への影響をしらべる一環として尿中のCs-137の調査を行っている。その場合，微量のCs-137の測定が必要である。

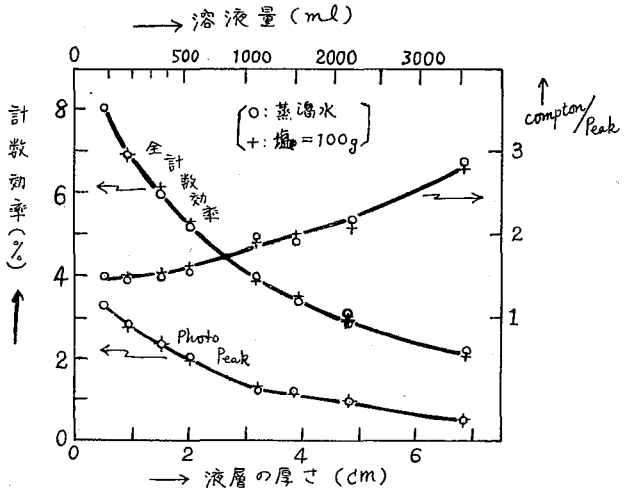
微量のCs-137の測定はCsを純粋に分離し，低バックグラウンドGMカウンターで測定することも可能であるが，分離操作がはん雑なので多数の試料の処理には不適当である。そこで測定はCs-137の娘核種Ba-137mのγ放射能によることとし，かつ，固体の試料の測定には種々の困難を伴うので，シンチレーターを液体試料中に浸漬して測定する方法をとり，そのための諸條件を検討した。その結果は尿中のCs-137の分析のみならず，微量のγ放射能の測定に利用できると考えられる。

装置は米国RIDL製シングルチャンネルパルスハイトアナライザー及び英国ハーショー製2"×2" NaI(Tl)クリスタルを主として用い，鉄または鉛でシールドした。Csのフォトピークの部分のバックグラウンドは約8cpmであった。浸漬の方法はクリスタルの周囲の液層の厚さが等しくなるようにした。フォトピークは0.66MeVを中心として0.52～0.82MeVの間をとった。コンプトンは0.12～0.52MeVの間をとり，これより低エネルギーは切った。

結果を図にまとめる。計数効率は液量によって変化し，液の比重（モリブデン酸アンモニウムの含量）にはよらない。このことは実際の測定において非常に便利である。液の量が増加するに従って全計数効率に対するコンプトンの部分の割合が増加する。しかし，計数効率をあげるために，コンプトンの部分も含めて測定することは正確な測定のためには好ましくない。

これらの結果から，1μμC/mlのCs-137を含む試料溶液1ℓを60minで5%の精度で測定できることがわかった。この試料溶液を500mlに濃縮すれば30分で5%，60分で3%の精度で測定が可能である。

尿中のCs-137は普通20～30μμC/ℓぐらい含まれている。我々は尿10ℓを処理して1つの検体としているので，その中に含まれているCs-137の量は約200～300μμCである。これを500mlの溶液とすれば60分で5%の精度で測定できることがわかった。



A35

核分裂放射性稀ガスによる結晶構造変化の研究

The Use of Radioactive Fission Product Rare Gases for the Study of the Change in Crystal Structure

日本原子力研究所化学部　矢島聖使，○市坡純雄，亀本雄一郎，柴　是行

Seishi Yajima, Sumio Ichiba, Yuichiro Kamemoto, Koreyuki Shiba

Hahn は天然に存在する放射性ラドンを使用して emanation 法を開発した。この方法ではラドンの親核種であるラジユウムまたはトリウムを試料と共沈さすか、または試料に沈着さして、試料中にラドンを合体さす。その後この方法は、沈澱の生成，結晶構造の変化，分解反応，固相間反応等の研究に応用された。しかし、この方法は化学処理により試料を調整しなくてはならないことゝ、測定器の未発達のため、発展しなかつた。核分裂の現象が発見されてから、核分裂生成物中の放射性稀ガスすなわち、クリプトンおよびキセノンを emanation 法に使用することが示唆されていた。

本研究においては、結晶構造中への核分裂放射性稀ガスの合体法およびそれらの emanation 法としての有用性を、数種の hematite 試料につきX線高温カメラを併用して検討した。

核分裂稀ガスの合体法としては、試料粉末と酸化ウラン粉末との混合物を中性子照射すると、核分裂の際の反跳エネルギーにより結晶構造中によく捕獲されることがわかつている。しかし emanation 法の場合においては、高温において試料と酸化ウランが反応し、heating curve が妨害されるので、照射後酸化ウランを除去しなければならない。二酸化ウランの微粉末（粒径～ 0.2 μ）を含むホルムバールの薄膜の細片と試料粉末とを混合したものを照射し、照射後金網により核分裂生成物と合体した試料を容易に分離することができた。

hematite 試料による実験においては、γ-hematite が α-hematite に結晶構造が変化する際加熱曲線に顕著な peak が見られた。この温度において、結晶構造が変化することはX線高温カメラを使用した振動法により確認することができた。その他、emanation法による heating curve よりX線廻折法等により検知し得ない微細な差異を知りうることがわかつた。また本法の物理化学の研究分野における有用性についても検討した。

A36

核分裂反跳により黒鉛中に捕獲されたキセノンの拡散の研究

The Behavior of Fission Products Captured in Graphite Powder by Nuclear Recoil.
Further Studies on the Diffusion of Xenon-133 in Graphite

日本原子力研究所
化学部

矢島聖使．市坡純雄．亀本雄一郎．○柴　是行

Yajima Seishi, Ichiba Sumio, Yuichiro Kamemoto, Koreyuki Shiba

従来、黒鉛中の核分裂生成物の拡散の現象はFick の式に基づき取扱われてきた。しかし著者らのこれまでの研究の結果、黒鉛中の拡散の如く簡単にArrheniusの式に従わないで複雑な挙動を示すものはFick の式をもとにして解析することが不適当であることがわかつた。したがつて本研究においては、黒鉛中に捕獲された核分裂生成物キセノン－133 の拡散を、従来とは異つた方法により考察した。黒鉛中の欠陥にエネルギーEで捕獲されている核分裂生成物の放出速度Vは次の式で表わされる。

$$V = -\frac{dn}{dt} = -\int \frac{n(x,y,t)}{a(x,y)} dx, dy\ \nu \exp\left\{-\frac{E+E_D}{kT}\right\} \qquad (1)$$

こゝに、n：xとx＋dx および y＋dy の範囲に捕獲されている核分裂生成物の数、a：黒鉛から脱出するために要する段数、ν：核分裂生成物の黒鉛中の振動数、k：Boltzmann 定数、E_D：核分裂生成物の拡散の活性化エネルギー、T：温度

いま黒鉛試料を加熱して温度T_1，時刻t_1における核分裂生成物の放出速度V_1を測定し、次に試料の温度を瞬間的に△T だけ上昇させたT_2において同様に放出速度V_2を求め両者の比をとれば

$$E_D + E = \frac{2.303\ kT_1T_2}{T_2 - T_1} \log(V_2/V_1) \qquad (2)$$

となる。(2)式より放出の活性化エネルギーを求めることができる。著者等はウランの核分裂によつて黒鉛中に捕獲されたXe－135 の放出の活性化エネルギーを天然および人工黒鉛の試料について約300～1200℃の温度範囲の間で(4)式により求めた。また各種の黒鉛試料のHeating Curve（試料を一定の温度上昇速度で加熱し一定時間に放出されるXe－133 の量を時間に対してプロットしたもの）を求めた。以上の実験結果から次のことがわかつた。①黒鉛中のXe の放出の活性化エネルギーは簡単なArrheniusの式に従うようなものでなく複雑なものである。②活性化エネルギーに関しては天然黒鉛と人工黒鉛について差異はほとんど認められなかつた。③実験を行つた温度範囲(300～1200℃)における天然黒鉛からのXe の拡散量は人工黒鉛に比べて著しく大きい。このことはHeating Curveが活性化エネルギーの分布を示しているものと考えられるがそのXe の活性化エネルギーの分布によつて説明される。すなわち、天然黒鉛では低エネルギー部分にXe が多く分布するが人工黒鉛では高エネルギー部分に多く分布する。④等温拡散曲線における"速い"拡散と"遅い"拡散も同様に活性化エネルギーの分布により説明される。

A37

ニッケルのα反応について
Reactions of Nickel with Alpha-particles

○(核研) 田中重男 Shigeo Tanaka　(核研) 古川路明 Michiaki Furukawa　(東北大理) 八木益男 Masuo Yagi　(理研大理) 井口明 Akira Iguchi
(京大工研) 岩田志郎 Shiro Iwata　(原研) 天野恭 Hiroshi Amano　(科技研) 千葉実 Minoru Chiba

次表に示したニッケルのα反応の励起函数をStacked-foil technigueを使った放射化法で8 MeVから40 MeVのエネルギー範囲にわたって測定した結果を報告する。

ターゲット核	反応
^{58}Ni	$(\alpha,p+\alpha,n)$　$(\alpha,pn+\alpha,2n)$　$(\alpha,\alpha p)$
	$(\alpha,\alpha n)$　$(\alpha,\alpha pn)$　$(\alpha,\alpha 2n)$
^{60}Ni	(α,n)　(α,pn)　$(\alpha,2n)$　$(\alpha,\alpha pn)$
	$(\alpha,p2n+\alpha,3n)^*$
^{61}Ni	$(\alpha,p)^*$
^{62}Ni	(α,n)　$(\alpha,pn)^*$　$(\alpha,\alpha p)$
^{64}Ni	(α,p)　$(\alpha,3n)^*$

*Natural isotopic abundanceのターゲットを使っているので、妨害反応と混みになるがその寄与を差引いて推定したもの。

二三の結果を示すと

(1) σ_{total} ……^{58}Niの反応については(α,2p)反応を除いてほぼ全部の主な反応の合計が測られている。($E_\alpha \lesssim 30$ MeVで)。それから推定するとShapiroのContinuum theoryによる計算の$r_0 = 1.7\times10^{-13}$ cmの値に合うように見える。又Igoのoptical model analysisによるσ_{total}とも大体合うが、Igoの計算は多少大き過ぎる感がないでもない。

(2) "knee"の観測 ……^{58}Niの(α,αn)反応の立ち上り直后(E_α = 23 MeV附近)に小さな"knee"が観測された。

(3) Ghoshal式比較 ……(イ)^{60}Niのα反応と^{63}Cuのp反応：この比較はGhoshal実験そのものであるが最近エネルギー軸がmassの値と合わないのではないかという事が問題となっている。我々はGhoshal実験のα反応のみだけをやり直したわけだが、我々の結果も含めてGhoshalに后得られているデータを比較照合したところ、Ghoshalの実験結果だけからエネルギー軸のずれを云々するのは非常に危険のように思われる。まず現在得られている実験からでは「必ずしもCompound nucleus theoryと矛盾はしない」という結論しかでない。

(ロ) ^{62}Niの反応と^{65}Cuのp反応：この比較からも(イ)と同じ結論しかでない。

(ハ)競争過程の分岐比 ……^{58}Ni, ^{60}Niに対してはプロトン放出がニュートロン放出より大きいという結果が3例実証された。^{64}Ni等については事情は逆である。これは核子の結合エネルギーと残留核のエネルギー準位密度に関係するもので、統計理論からの予想と著しくかけ離れたものではないと思はれる。

A38

La^{139} の α 反応

Reaction of La^{139} with α particles

田中重男(核研), 古川路明(核研), 岩田志郎(京大工研), 八木益男(東北大理)
Shigeo Tanaka Michiaki Furukawa Shiro Iwata Masuo Yagi
天野恕(原研), 井口明(東邦大理), 千葉実(材技研)
Hiroshi Amano Akira Iguchi Minoru Chiba

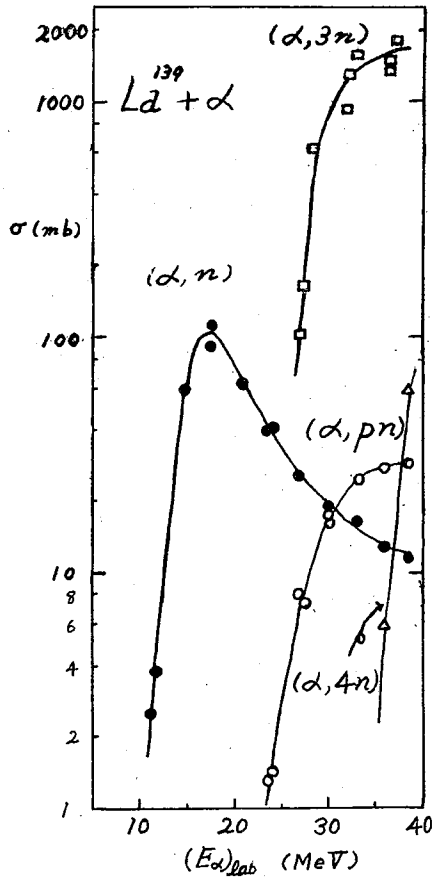
次に示す La^{139} の α 反応の励起函数を Stacked-foil method を用いた放射化法により $E_\alpha = 10 \sim 40$ MeV の範囲にわたって測定した。

La^{139} の α 反応は Ce^{142} の p 反応と複合核が同一となり 原子核反応の複合核形成理論の適用性を知るのによい実験例となる。

ターゲットとしては高純度の LaF_3 をアセトン中で 10μ アルミニウム箔または 9μ 鉄箔の上に沈降させうすい層を作り，上澄を除いた後少量のポリ酢酸ビニールを加えて固定したものを用いた。照射には東大核研 160 cm サイクロトロンで加速された α 粒子のビームを用い，入射エネルギーは 40 MeV と 32 MeV を選びあるエネルギー範囲は二度の照射で重なるようにした。照射后ターゲットは発煙硝酸で処理しアルミニウム箔と分サホウ酸を加えて加熱し LaF_3 を溶解した。蒸発乾固后残渣を 3 N 硝酸に溶解し $Ce(IO_3)_4$ による沈殿法によってセリウムと他の希土類元素を分離した。Pr^{142} は較正された GM 計数管で β 線を測定し放射能の絶対値を得た。Ce^{141} および Ce^{139} はそれぞれの放出する低いエネルギーの γ 線を井戸型の NaI 結晶を用いたシンチレーションカウンターで測定し推定した計数効率を適用して絶対値を得た。Pr^{140} については短い照射の后ターゲットをしんちゅう板にはさみ消滅放射線をたがいに線源に対して 180° に位置させた二つのシンチレーションカウンターの同時計数をとって測定した。絶対値は以前に較正した Na^{22} 標準線源によって計数効率を求め，その値を適用して得られた。

結果は右図に示す通りである。

	半減期	壊変型式
$La^{139}(\alpha, n)\ Pr^{142}$	19.2 時	β^-, γ (弱)
$(\alpha, pn)\ Ce^{141}$	32.5 日	β^-, γ 0.142 MeV
$(\alpha, 3n)\ Pr^{140}$	3.5 分	β^+, EC
$(\alpha, 4n)\ Pr^{139}$	4.5 時	EC, β^+
↓ Ce^{139}	140 日	EC, γ 0.166 MeV



A39

^{48}Ti および ^{51}V の (α, n) 反応
(α, n) Cross Sections for ^{48}Ti and ^{51}V

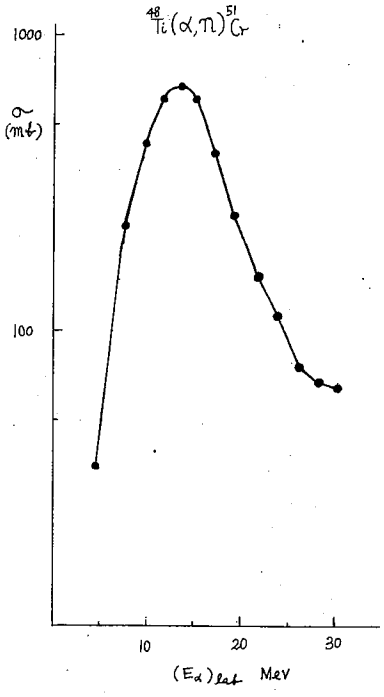
○（東邦大理） 井口 明 Akira Iguchi　（核研） 田中重男 Shigeo Tanaka

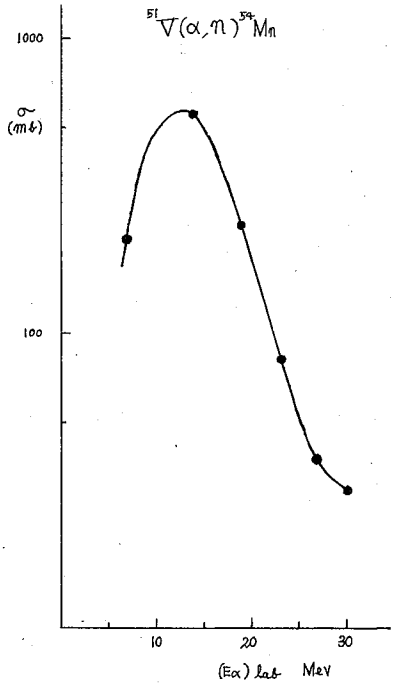
^{48}Ti, ^{51}V の (α, n) 反応の断面積を $E_\alpha = 31$ MeV まで Stached-foil technique を使った放射化法で測った結果を報告する。これらの反応は ^{51}Cr および ^{54}Mn の無担体放射性同位元素の製造に対しても考慮さるべき経路の一つであろう。入射エネルギーは 30 MeV を選んだ。

照射には核研 160 cm サイクロトロンを使用し，ビームの強さはファラデー・カップを用いて測った。チタニウム・ターゲットとしては約 1.8 mg/cm² の金属箔を用い，バナジウム・ターゲットとしてはアルミニウム箔の上に V_2O_5 を少量のクリヤー・ラッカーと共に吹きつけて作ったものを用いた。照射后短寿命放射能を崩壊させてのち，^{51}Cr の 325 KeV-γ線 および ^{54}Mn の 840 KeV-γ線を 1¾ in dia × 2 in high の井戸型 NaI シンチレーターで測定した。チタニウムターゲットについては ^{48}V やその他の妨害核種と ^{51}Cr とを分離するため，減衰を追った。放射能の絶対値はγ線の光電ピークの計数値に光電ピーク効率の実験値を乗じて求めた。325 KeV，840 KeV のγ線に対しては夫々 0.8，0.085 の効率を採用した。得られた反応断面積の結果をエネルギーの函数として図示する。

この結果を製造に便利なように thick-target yield（厚いターゲットにおける反応収率）に換算すると $^{48}Ti(\alpha, n)^{51}Cr$ に対しては 21.5 μc/μA·hr

$^{51}V(\alpha, n)^{54}Mn$ に対しては 2.54 μC/μA·hr となる。





A40

トリフェニルスチビンオキサイドのシラルドチャルマー反応

Studies on the Szilard-Chalmers' reaction of Triphenyl Stibine-Oxide

日本原子力研究所 ラジオアイソトープ研修所　　村上悠紀雄，○鈴木佳枝，長連英
多摩化学 K.K　　Yuki Murakami, Y. Suzuki, T. Cho

〔目的〕有機金属化合物のシラルドチャルマー反応に関する研究の一部としてトリフェニールスチビンオキサイドのシラルドチャルマー反応を試みた。比放射能の高い放射性アンチモンをうるための條件さらにその機構についても考察を行いたい。生成する放射性アンチモンは122m(半減期3.5m)122(半減期2.8d)124m₁(半減期1.3m)124m₂(半減期21m)124(半減期60d)である。

〔実験方法〕中性子源としてJRR-1，Ra-Be中性子源を用いた。ビニール袋に封入した試料に2時間熱中性子を照射したのち，ベンゼンにとかし，各種の液性で抽出し分離後両層を一定容にしてウェルタイプシンチレーションカウンターにて測定する。抽出方法を0.1N HCl，水，1N NH₄OHについてしらべた。さらに照射時の試料の状態による差をしらべるために0.1N CH₃COOH，水，0.1N NH₄OH性の水溶液に試料を浮遊させて照射後0.1N アンモニアアルカリ性で抽出し測定してどれがよいかみた。

比放射能を求めるためにSbの定量法は過酸化銀-ローダミンB法を用いた(昭和35年6月 分析化学討論会で発表)。すなわち有機層及び水層に含まれる有機物を完全に分解しSbは過酸化銀で酸化してローダミンBを加えてベンゼンで抽出して560mμで比色定量し，これと放射能測定より比放射能を求めた。

〔実験結果〕i)抽出時の液性：0.1N HCl，中性，1N NH₄OHについてしらべた。水層への抽出率は1N NH₄OHが一番高く70%であり，0.1N HClでは48.4%であった。またトリフェニールスチビンオキサイドはトリフェニールスチビン(昭和35年7月 日本化学会北海道大会に発表)と同様にアルカリ性のほうが抽出率がよい。

ii)照射時の状態の差：0.1N CH₃COOH，NH₄OH，水に浮遊させた試料及び粉末のまゝの状態で実験をおこないリテンション及び濃縮係数をしらべた結果を下に示す。

状態	リテンション	濃縮係数
粉末	22.9	3.5₄
水	25.7	4.6₇
0.1N NH₄OH	31.8	3.4₆
0.1N CH₃COOH	57.8	4.1₇

iii)リコイルしたSbの原子価：Sb(V)とSb(III)は6.5N～0.5N HCl酸性でイソプロピルエーテルに抽出されるがトリフェニールスチビンオキサイドにはSb(V)で入っているが照射すると約40%のSb(III)の存在が認められた。

iv)放射線安定度：トリフェニールスチビンオキサイドを固体でγ線β線を3.7×10⁶ r/hで3時間照射した結果10.2%の分解があった。

〔結論〕トリフェニールスチビンオキサイドのγ線に対する放射線安定度はトリフェニールスチビンにくらべてきわめて小さく，そのためかリテンションがめくく，よい濃縮係数がえられなかった。照射時は水に浮遊させ0.1N NH₄OH抽出法がよい。一例をあげると^{122}Sb 7.0×10⁻³ μc/γの比放射能であった。参考までにハーウェル製の^{122}Sbの飽和時の比放射能52mc/gから2時間照射として求めた値は1.1×10⁻³ μc/gである。

A41

ハロゲン酸素酸塩のホットアトム化学. — 塩素酸塩

Hot-Atom Chemistry of Oxyacids of Halogens —— Chlorate.

東大理　　齋藤信房　○富田功、佐々木徹
理研　　NOBUFUSA SAITO, ISAO TOMITA and TŌRU SASAKI

ハロゲン酸素酸塩の中性子照射を、固相、液相、樹脂相などの種々の相についておこない、その際に観察される ホットアトム効果に関する知見のうち、臭素酸塩[1]、ヨウ素酸塩[2]、についてはさきに報告した。今回は塩素酸塩に関する実験の結果を述べる。中性子捕獲によって生ずる^{38}Clがいかなる化学的挙動をとるかを固相（結晶）、樹脂相の二相について観察した。

中性子照射は従来通り理研サイクロトロン（$\sim 10^7 n/cm^2 \cdot sec$）に依ったほかJRR－1（$3 \times 10^{11} n/cm^2 \cdot sec$）を併用した。照射試料は固相照射の場合には$KClO_3$および$NaClO_3$結晶を用いた。樹脂相照射の場合には陰イオン交換樹脂Dowex 1X-8（100～200 mesh）RNO_3型を$KClO_3$水溶液で処理して$RClO_3$型とし、水洗、風乾してターゲットとした。調製から照射までの至適時間は約40時間以内である。

照射した結晶について、^{38}Clが塩素の種々の酸化状態にどのような分布を示すかを、K.J. McCallum[3]らが用いた方法に準じて調べた。その結果、得られた放射能はほとんどCl^-とClO_3^-の酸化状態に分布することが明らかとなったので、以後の実験ではこの両者の分離のみをおこなった。すなわち、Cl^-は$AgCl$として分離し、母液中のClO_3^-は硝酸酸性で$NaNO_2$によって還元し同じく$AgCl$として分離した。また、樹脂相照射の場合には、予備実験の結果カラム上でCl^-とClO_3^-との分離をおこなうことは^{38}Clが極短命であるために適当でないことが明らかとなったので、照射した樹脂のカラムに2M KNO_3を充分通して両者を同時に溶離し、溶出液を結晶の場合と同様に処理して分離した。結果を次表に示す：

（結晶の照射）

結晶	中性子源	照射時間	照射終了から溶解まで	溶解から分離まで	照射終了から測定まで	放射能強度 cpm Cl^-	ClO_3^-	RETENTION(%)
$NaClO_3$	サイクロトロン	60 min	20 min	5 min	120 min	2040	(0~5)×20	0～5
$KClO_3$	〃	60 〃	20 〃	20 〃	90 〃	3280	(0~5)×20	0～5
$NaClO_3$	〃	120 〃	43 〃	7 〃	90 〃	2930	(0~5)×20	0～5
$KClO_3$	〃	120 〃	43 〃	22 〃	110 〃	2110	(0~5)×20	0～5
$KClO_3$	JRR-1	10 〃	24 〃	溶解直後	99 〃	19300	1150	5.6±0.2
$KClO_3$	〃	10 〃	119 〃	〃	169 〃	9620	541	5.3±0.2

（樹脂相の照射）（JRR-1による）

実験番号 / フラクション	1 cpm	1 %	2 cpm	2 %
Cl^-	16300	79.0	14200	84.1
ClO_3^-	171	0.8	46	0.3
樹脂相	4160	20.2	2640	15.6
TOTAL	20631	100.0	16886	100.0

（各ハロゲン酸塩の間の比較）

ハロゲン	RETENTION（固相照射）	RETENTION（樹脂相）	樹脂相に残る溶離できぬACTIVITY(%)	研究者
Cl	5～6	<1	15～20	齋藤、富田、佐々木
Br	～20	～1	12～20	齋藤、富田、古川、
I	～70	～5	～10	齋藤、佐野、塩見

1) 齋藤、富田、古川　日本原子力学会誌 1, No. 3, 196 (1959)
2) 齋藤、佐野、塩見、日化第2回放射化学討論会講演、京都 (1958)
3) K. J. McCallum and O. G. Holmes, Can. J. Chem., 29, 691 (1951)

A42 コバルト錯塩のホットアトム化学 第4報 シス及びトランスジニトロテトラアンミン錯塩 Hot-Atom Chemistry of Cobalt Complex Salts IV cis- and trans- Dinitrotetrammine Complex Salts

東大理化 斉藤信房，○安部文敏，藤野威男，佐野博敏，富永健
N. Saito, F. Ambe, T. Fujino, H. Sano, T. Tominaga

シス及びトランスジニトロテトラアンミンコバルト(III)錯塩を熱中性子照射し，コバルト原子の(n,γ)反応によるホットアトム効果を調べた．試料(硝酸塩)はJRR-1の水平実験孔で数時間照射したのち，生成物を下記の三種類の方法によって分離し，各フラクションの^{60}Coによる放射能を測定した．またCo(II)のフラクションについて，ニトロソ-R塩法によりenrichment factorを求めたところ，あきらかにホットアトム効果がみとめられた．

分離法：(1) 試料の水溶液をR-Na形にしたDowex-50W, X-8 (100～200 mesh) 約15 ml に通し，0.3M NaCl溶液(陰イオン＋中性分子を溶離)，1M NaCl溶液(トランス錯イオン，シス錯イオン＋Co(II)を順次溶離)，3～5M NaCl溶液で順次溶離した．1M NaClのフラクションの後半は，Co(II)の担体を加えたのち，NaOH溶液でCo(II)を沈殿させて，シス錯イオンから分離した．
(2) R-NH_4形のDowex-50W, X-8 (100～200 mesh) 約15 ml に試料の水溶液を通し，0.3M NaCl溶液(陰イオン＋中性分子を溶離)，1M NH_4OH ＋ 1M マロン酸溶液(Co(II)，トランス錯イオン，シス錯イオンを順次溶離)，3～5M KCl で溶離した．
(3) 0.1M シュウ酸アンモニウム溶液を電解質として，ロ紙電気泳動法によって試料の分離を行った．

結果：各フラクションに対して，下表のような^{60}Coの放射能の分布が得られた．

	シス錯塩	トランス錯塩
陰イオン・中性分子	～6 %	3～6 %
Co(II)	～40	35～44
シス錯イオン	41～46	1～9
トランス錯イオン	4～7	45～57
2＋，3＋イオン	2～7	0～4
その他	≦1	≦0.5

A43 コバルト錯塩のホットアトム化学（第5報）トリス・ジメチルグリオキシマト錯塩およびトリス・ニトロソナフトラト錯塩

Hot-Atom Chemistry of Cobalt Complex Salts V Tris-dimethylglyoximato- and Tris-nitrosonaphtholato- Complexes.

（東大理化） 斉藤 信房 ○富永 健・佐野 博敏
N Saito, T. Tominaga, H Sano

二座配位の配位子Aを含む CoA_3 型の錯塩を中性子照射した際のコバルトのホットアトム効果はAがエチレンジアミン[1]，グリシン陰イオン[2]，アセチルアセトネート[2]，オキシネート[2]の場合については既にこれまでに報告されている。筆者らは CoA_3 型の錯塩でAにジメチルグリオキシマトイオン，1－ニトロソ－2－ナフトラトイオン又は2－ニトロソ－1－ナフトラトイオンを含むものをそれぞれ中性子照射してコバルトのホットアトム化学の研究を行った。本報の結果を既知のもの及び次報[3]に含まれるオキザラトイオンについての結果とあわせて比較してこれら CoA_3 型錯塩において Co(II) の形でターゲットから分離可能な放射性コバルトの割合が配位子Aの種類によってどのように変化するかを検討した。

試料錯塩（固体）はJRR-1原子炉の水平実験孔で約5時間中性子照射された。トリスジメチルグリオキシマト錯塩は，照射後，ロ紙電気泳動法（酢酸塩緩衝液又は1％塩化ナトリウム水溶液中），ペーパークロマトグラフィ（アンモニア・メタノール・アセトン系展開剤），溶媒抽出法（2－ニトロソ－1－ナフトールを用いベンゼンに抽出），沈殿法（0.1M NaOHで Co^{2+} を沈殿）及びイオン交換樹脂法などを用いてターゲットから Co(II) の形の放射能を分離した。生成した放射性コバルトの45～58％が 10^2 程度の濃縮係数で Co(II) として分離され，ホットアトム効果が認められた。1－ニトロソ－2－ナフトラト及び2－ニトロソ－1－ナフトラト錯塩では溶媒抽出法によって放射性コバルトの10～16％が 10^2 以上の濃縮係数で Co(II) として分離され，これらについてもホットアトム効果が認められた。

ホットアトム効果の研究されたこれらの CoA_3 型錯塩において Co(II) として分離可能な放射性コバルトの割合を比較すると配位子Aの分子量の大きいものほど Co(II) として分離可能な割合が小さくなり従って Retention が増加する傾向がみとめられるようであるが，これはホットアトムの反応の機構を推定する上で興味がある。

文　献：

1) Zuber, A., USAEC Document, NYO-6142, BNL.
2) Nath, A., Shanker, J., and Srivastava, S. B., Proc. 2nd. Intern. Conference, Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, 20, 58 (1958)
3) 斉藤，佐野，富永，コバルト錯塩のホットアトム化学（第6報），日化放射化学討論会講演（1960）

A44

コバルト錯塩のホットアトム化学. 第6報. オキザラト錯塩.

Hot-Atom Chemistry of Cobalt Complex Salts. VI. Oxalato Complex Salts.

東京大学理学部化学　斎藤信房, ○佐野博敏, 富永健.

Nobufusa SAITO, Hirotoshi SANO and Takeshi TOMINAGA.

Hoffman および Martin[1] は $K_3[Co(ox)_3]3H_2O$ を約 70 Mev の γ 線で照射し, $^{59}Co(\gamma,n)^{58m}Co, ^{58}Co$ の反応で生ずる放射性コバルトの 97 ～ 100 % がホットアトム効果により Co(II) の状態で得られることをみているが, この錯塩の $^{59}Co(n,\gamma)^{60m}Co, ^{60}Co$ 反応によるホットアトム効果の研究は今日までおこなわれていない. (γ, n) 反応と (n, γ) 反応におけるコバルト原子の反跳エネルギーは, 後者に比較して前者の方が圧倒的に大きい. したがって両反応による結果を比較することは, ホットアトム効果の研究上興味のあることと考えられる. 今回はこの目的に加えて, さらに数種のオキザラト錯塩におけるホットアトム効果を相互に比較するために実験をおこない, またその結果をクロムのオキザラト錯塩における結果[2] と比較した.

用いた試料は, $K_3[Co(ox)_3]3H_2O$, $NH_4[Co(NH_3)_2(ox)_2]H_2O$, $[Co(NH_3)_4(ox)]Cl$ および $NH_4[Co(NH_3)_2(NO_2)_2(ox)]H_2O$ の錯塩を, 原子炉 JRR-1 で約5時間中性子照射したものである. 分離操作はその第一として, 上記試料の一定量をとり水に溶かして, イオン交換樹脂法によった. $[Co(NH_3)_4(ox)]Cl$ に対しては陽イオン交換樹脂柱を用い, その他のものについては陰イオン交換樹脂柱を用いた. また第二の分離法としては, 口紙電気泳動法を用い, 発色は口紙上の錯塩を加熱分解後, αニトロソβナフトールの氷酢酸溶液を噴霧しておこなった. この発色位置と放射能ヒストグラムの対照から, ホットアトム効果があきらかにみとめられたが, さらにイオン交換樹脂法で分離した各部分について, 錯イオンを酸で分解後ニトロソR塩法によりコバルトの比色定量をおこない, Enrichment Factor をもとめた.

これらの結果として, ^{60}Co の約 70 % 以上は Co(II) の状態で見出された. ただし $NH_4[Co(NH_3)_2(NO_2)_2(ox)]H_2O$ の場合には Co(II) の部分は例外的にひくく約 30 % 程度であり, この値はオキザラト錯塩の値よりも, ニトロアンミン錯塩における値[3] に近い. さらに "Retention" の値についても $NH_4[Co(NH_3)_2(NO_2)_2(ox)]H_2O$ の場合は, 他のオキザラト錯塩の値より高く (約 40 %) ニトロアンミン錯塩の値に近い. またクロムオキザラト錯塩においてみられたように, 3価の錯陰イオンの塩を照射したものからは1価の陰イオンの部分に ^{60}Co の分布がみられるが, 逆に1価の錯陰イオンの塩を照射したものからは3価の陰イオンの部分に ^{60}Co の分布はほとんどみられないようであった.

文献

1). D. C. Hoffman and D. S. Martin, Jr., J. Phys. Chem. 56, 1097 (1952).

2). 斎藤, 佐野, 富永, 錯塩化学討論会 (仙台) 1960年9月

3). 斎藤, 富永, 佐野. 日本化学会第13年会 (東京) 1960年4月; 本討論会第4報参照.