

中性子インビームメスbauer分光法による 鉄化合物の原子核反応性生物の挙動の研究

Neutron In-beam Mössbauer Spectroscopic Studies on the Behaviors of Nuclear Reaction Products

利用者 久保 謙哉¹⁾、長友 傑¹⁾、小林 義男²⁾、山田 康洋³⁾、佐藤 渉⁴⁾、荏司 準⁵⁾、松江 秀明⁶⁾
Kenya KUBO, Takashi NAGATOMO, Yoshio KOBAYASHI, Yasuhiro YAMADA, Wataru SATO, Hitoshi SHOJI, Hideaki MATSUE

所属 1)国際基督教大学、2)理化学研究所、3)東京理科大学、4)金沢大学、5)首都大学東京、
6)日本原子力研究開発機構

キーワード メスbauer分光、中性子捕獲、原子核反応性生物、鉄化合物、インビーム

1. 目的

中性子ビームは試料に与える放射線効果が小さい。中性子ビーム照射によれば、試料の物理的・化学的性質を損なうことなく、中性子捕獲反応という核反応によって極端に高エネルギーに励起した原子核を含む原子の緩和過程を追うことができる。我々が開発してきた検出器 ($^{57}\text{FePPAC}$) を用いることにより、 $^{56}\text{Fe}(n, \gamma)^{57}\text{Fe}$ 反応によって生成した ^{57}Fe 化学種の中性子インビームメスbauerスペクトルを試料を破壊することなく測定することが可能となった。 ^{57}Fe メスbauerスペクトルは、鉄化合物の原子価や周囲の配位状態、磁性などの情報を与える。

本研究では、結晶型の異なる二種類の二硫化鉄 (FeS_2) を対象として、中性子インビームメスbauerスペクトルの測定を100Kと200K、室温で行い、 $^{56}\text{Fe}(n, \gamma)^{57}\text{Fe}$ 反応の生成物の種類とその温度依存性を明らかにすることを目的とした。

2. 方法

実験は日本原子力研究開発機構東海研究所の研究用原子炉JRR-3の中性子ビームホール即発 γ 線分析ポートを利用した。試料と検出器を鉄製遮蔽体の内部に設置し、低温測定では、液体窒素あるいはエタノール/ドライアイスを寒剤として使用した。

試料はpyrite型およびmarcasite型の二硫化鉄である。試料中の鉄はどちらも S_2^{2-} に囲まれた Fe(III) であり、両者は結晶形がわずかに異なる。 ^{57}Fe メスbauerは γ 線は14.4keVとエネルギーが低いため、試料による自己吸収を押さえ、不要な高エネルギー γ 線の放出量を少なくするため、できるだけ少量の試料とし、粉末を 50 mg cm^{-2} に加圧成型した試料を用いた。

中性子ビームは集光し、中性子束は $1.0 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ であった。一つのスペクトル測定には80~120時間を費した。

3. 実験結果

図2に室温でのpyriteとmarcasiteの中性子インビームメスbauerスペクトルを示す。どちらのスペクトルも、2種類のダブルレットからなるとして解析できた。赤い曲線で表されているものが試料中のもともとの鉄と同じ化学形と考えられるもの、青は原子核反応によって生成した新しい状態である。メスbauerスペクトルで区別できるものに限るとはいえ、核反応という非常に大きなエネルギーをもった原子核をもつ原子から生成する化学種がわずか二つであった。また核反応後にもとの化学形をとっている成分の割合が、pyriteのほうがmarcasiteよりかなり多いことがわかる。わずかな結晶形の違いが新成分の割合を大きく変化させていることがわかる。新生成物はそれぞれの結晶の格子間位置にはいった Fe(III) と予想しているが、現在密度汎関数法による数値計算による同定を試みているところである。

図3にpyriteの100Kでの中性子インビームメスbauerスペクトルを示す。室温とは生成物の収率が異なり、格子間位置にはいった Fe(III) の割合が多くなっている。格子間位置は、準安定位置であり、低温では格子間位置を占めている Fe(III) 化学種が、より高温では安定位置まで移動してもとの化合物と同じ状態になっていると考えられる。

4. まとめ

JRR3 PGAポートで中性子インビームメスbauer分光装置を移動することを可能とし、二硫化鉄について、メスbauerスペクトルを測定することにより、非破壊で中性子捕獲反応後の鉄の状態分析を行った。

Pyrite
cubic
 $a=0.5417 \text{ nm}$, $Z=4$
specific gravity: 5.0

Marcasite
orthorhombic
 $a=0.4436$, $b=0.5414$, $c=0.3381 \text{ nm}$, $Z=2$
specific gravity: 4.91

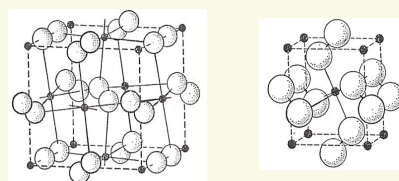


図1 測定試料

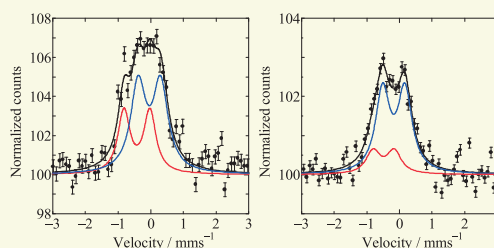


図2 pyrite(左)とmarcasite(右)の室温での中性子インビームメスbauerスペクトル。

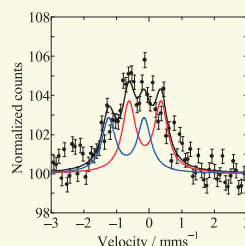


図3 pyriteの100Kでの中性子インビームメスbauerスペクトル。