

RESEARCH REPORT  
OF  
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE  
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 究 報 告

VOL. 10 No. 2 Dec. 1977

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

## 刊 行 規 定

1. 「核理研研究報告」は核理研共同利用による実験報告及びそれに直接関連した研究報告等を掲載します。
2. 本誌掲載の論文に対しては原則として審査を行っておりません。  
但し、特別の事情がある場合には投稿論文の掲載を拒否し、あるいは書き直しを求める事があります。
3. 本誌の論文を欧文の論文の中に引用される際は Research Report of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University 又は Private Communication として引用する事とし、著者の承諾を得た上で引用して下さい。
4. 本誌は毎年6月と12月に発行します。

## 投 稿 規 定

1. 邦文の原稿はA4版400字詰原稿用紙を使用して下さい。用語は可能な限り文部省編さん「学術用語集」によって下さい。
2. 引用文献、記号、単位、数式、文字指定等は Journal of the Physical Society of Japan の「投稿の手引」に従って下さい。  
特に次の点について御注意下さい。  
原稿には添字、ギリシャ文字、イタリック、ゴシック、立体、まぎらわしい大文字及び小文字を赤鉛筆で指定して下さい。但し、文中の文字記号及び数式は原則としてイタリックで組みますので、単位及び元素記号、数式中特に立体とすべき文字記号は必ず立体の指定をして下さい。
3. 図及び表には1枚毎に「第1図」、「第2表」のように番号を付けて下さい。図は全て墨入れし、縮尺又は刷り上り寸法を記入して下さい。但し、1/3以下の縮尺は御遠慮下さい。
4. 図及び表の挿入個所を原稿に指定して下さい。
5. 図及び表の説明をそれぞれ別紙にまとめて原稿の末尾につけて下さい。
6. 原稿締切日は4月30日と10月31日です。原稿は下記あて提出して下さい。

仙台市富沢金山1 郵便番号 982

東北大学理学部原子核理学研究施設

「核理研研究報告」編集係

# 核理研研究報告 Vol.10 No.2 目次

## I 原子核物理

I - 1  $^{51}\text{V}$  の磁化分布からの弾性電子散乱 ..... 177

(核理研, 青山学院大\*)

鳥塚 賀治, 有田 浩三\*, 斎藤悌二郎, 中田 章,  
福田 茂樹, 三浦 英美, 榎本 収志, 大沢 哲,  
小黒 瞬, 水野 義之, 中里 俊晴

I - 2  $(e, e' \pi^+)$  反応による原子核の高い励起状態の研究(I) ..... 183

(核理研) 山崎 正晴, 大橋 英雄, 中原 和夫, 庄田 勝房

I - 3  $^9\text{Be}(e, e' \pi^+) ^9\text{Li}$  反応におけるパイ中間子の角分布 ..... 188

(ソウル大, 核理研\*)

成 百能, 大橋 英雄\*, 庄田 勝房\*, 中原 和夫\*,  
山崎 正晴\*

I - 4  $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)$  反応による核構造の研究IV ..... 193

(核理研) 大橋 英雄, 山崎 正晴, 中原 和夫, 庄田 勝房

I - 5 光核反応による  $^9\text{Be}$  励起状態の研究(I) ..... 199

(核理研, 山形大教養\*)

田中 俊成, 種市 宏\*, 上野 博昭\*, 庄田 勝房

I - 6  $^{14}\text{N}(e, e' d_0) ^{12}\text{C}$  反応の研究(II) ..... 205

(山形大教養, 核理研\*)

種市 宏, 上野 博昭, 庄田 勝房\*

## II 物性物理

II - 1 Time-of-Flight Pulsed Neutron Diffraction of Co-P Amorphous  
Alloy Made by Electrodeposition ..... 209

(金研) 鈴木 謙爾, 福永 俊晴

II - 2 中性子線回折用高圧力発生装置 ..... 215

(金研, 弘前大理学部\*)

神垣 知夫, 吉田 肇, 大橋 正義, 金子武次郎,  
佐藤幸三郎\*

II - 3	An Outline of a Stationary - Rotating Paired Crystals Neutron Spectrometer Installed at an Electron LINAC .....	222
	(金研, 核理研 <sup>*</sup> )	
	甲斐 鎌三, 神定 良昌, 鈴木 謙爾, 渡辺 昇 <sup>*</sup>	
II - 4	長波長中性子の透過率の測定による格子欠陥の研究 .....	232
	(工学部, 核理研 <sup>*</sup> )	
	山口 貞衛, 藤野 豊, 渡辺 昇 <sup>*</sup>	
III 放射化学		
III - 1	鉛のチオナリド錯体としての溶媒抽出と光量子放射化分析への適用 .....	237
	(理学部化学, 教養部 <sup>*</sup> )	
	対馬 幸一, 加藤 豊明 <sup>*</sup> , 鈴木 信男	
III - 2	イオン対共沈分離法を併用する生物体中の微量金属元素の光量子放射化分析 .....	246
	(理学部化学, 教養部 <sup>*</sup> )	
	山下美智子, 加藤豊明 <sup>*</sup> , 鈴木 信男	
III - 3	核異性体転移で生成する <sup>80</sup> Br の固相反応と気相におけるイオン-クラスタ - 内反応の類似性 .....	254
	(核理研) 八木 益男, 近藤健次郎	
III - 4	ライナック照射, 昇華分離法を用いたウラニルジピバロイルメタン錯体の研 究 .....	260
	(金沢大理学部)	
	阪上 正信, 下沢 秀夫, 関根 勉, 中村 富郎	
III - 5	Distribution Coefficients of TBP and TBPO .....	268
	(選研) 秋葉 健一, 菅野 卓治	
III - 6	<sup>111</sup> In の時間微分型摂動角相関 .....	274
	(理学部化学)	
	葉 有財, 吉原 賢二, 塩川 孝信	
III - 7	クロム酸カリウムにおける ( $\gamma$ , n) 反応に伴う化学的効果 .....	281
	(理学部化学)	
	菊地 毅光, 大森 巍, 塩川 孝信	

III - 8	脂肪族および芳香族オニウムイオンによるイオン対溶媒抽出	289
	(工学部応用化学)	
	齋藤 達弥	
IV	加速器・測定器	
IV - 1	電子散乱用多線比例計数管 (MWPC)	295
	(核理研) 河村 雅夫, 小山田正幸, 中原 和夫	
IV - 2	BEAM BLOW UP の研究(II)	303
	(核理研, 高エネルギー研*)	
	小山田正幸, 佐藤 勇*, 福田 茂樹*, 松本 浩*,	
	今野 収, 浦沢 茂一, 一戸 隆, 栗原 亮,	
	根本 重伸, 柴崎 義信, 鳥塚 賀治	
V	加速器稼働状況	
V - 1	昭和52年度前期マシン報告	311
	(核理研マシングループ)	
	浦沢 茂一, 今野 収, 一戸 隆, 栗原 亮,	
	根本 重伸, 柴崎 義信	
VI	論文リスト	313

# I. 原 子 核 物 理

I-1  $^{51}\text{V}$  の磁化分布からの弾性電子散乱

核理研, 青山学院大\*

鳥塚賀治・有田浩三\*・斎藤悌二郎

中田章・福田茂樹†・三浦英美

榎本収志・大沢哲・小黑瞬

水野義之・中里俊晴

$^{51}\text{V}$  による電子の $180^\circ$ 弾性散乱の実験を行なった。1977年2月15日から2月19日にかけて3点、7月1日から7月21日にかけて9点測定され、運動量移行  $q$  は  $0.8 \text{ fm}^{-1}$  から  $2.5 \text{ fm}^{-1}$  に亘っている。M3 形状因子が、調和振動子型波動関数を用いた単一粒子模型から予想される大きさよりも、かなり小さい結果が得られた。

§1.  $180^\circ$  弾性電子散乱

平面波ボルン近似による電子散乱微分断面積は、

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_L + \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_T \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_L &= \left( \frac{Ze^2}{2E} \right)^2 \frac{\cos^2 \theta/2 + (m_e c^2/E)^2 \sin^2 \theta/2}{\sin^4 \theta/2} \\ &\times \frac{1}{\eta} \sum_{J=0}^{\infty} |F_J^{\text{coul}}(q)|^2 \end{aligned} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_T &= \left( \frac{Ze^2}{2E} \right)^2 \frac{\cos^2 \theta/2}{\sin^4 \theta/2} \left( \frac{1}{2} + \tan^2 \frac{\theta}{2} \right) \\ &\times \frac{1}{\eta} \left\{ \sum_{J=0}^{\infty} |F_J^{\text{el}}(q)|^2 + \sum_{J=0}^{\infty} |F_J^{\text{mag}}(q)|^2 \right\} \end{aligned} \quad (3)$$

と表わされる。 $\eta = 1 + (2E/M_T c^2) \sin^2 \theta/2$  は、反跳補正因子である。

ここで  $E$  は電子の入射エネルギー、 $Z$  は標的核の原子番号、 $q$  は運動量移行、 $\theta$  は散乱角、 $M_T$  は標的核の質量、 $m_e$  は電子の質量である。 $e$ 、 $c$  はそれぞれ電気素量、光速度を表わす。

$F_J^{\text{coul}}(q)$ 、 $F_J^{\text{el}}(q)$ 、 $F_J^{\text{mag}}(q)$  は、それぞれ、電荷形状因子、電氣的横成分形状因子、磁氣的横成分形状因子で、核の始状態の角運動量を  $J_i$ 、終状態の角運動量を  $J_f$  で表わすと次の

† 現在 高エネルギー物理学研究所 茨城県筑波郡大穂町

ように定義される。

$$|F_J^{\text{coul}}(q)|^2 = \frac{4\pi}{Z^2} |\langle J_f \parallel \hat{M}_J^{\text{coul}}(q) \parallel J_i \rangle|^2 / (2J_i + 1)$$

$$|F_J^{\text{e1}}(q)|^2 = \frac{4\pi}{Z^2} |\langle J_f \parallel \hat{T}_J^{\text{e1}}(q) \parallel J_i \rangle|^2 / (2J_i + 1)$$

$$|F_J^{\text{mag}}(q)|^2 = \frac{4\pi}{Z^2} |\langle J_f \parallel \hat{T}_J^{\text{mag}}(q) \parallel J_i \rangle|^2 / (2J_i + 1)$$

ただし、

$$\hat{M}_{JM}^{\text{coul}}(q) \equiv \int d\vec{r} j_J(qr) Y_{JM}(\varrho_r) \hat{\rho}(\vec{r})$$

$$\hat{T}_{JM}^{\text{e1}}(q) \equiv \frac{1}{q} \int d\vec{r} \text{rot} [j_J(qr) \vec{Y}_{J1}^M(\varrho_r) \cdot \hat{\mathcal{J}}(\vec{r})]$$

$$\hat{T}_{JM}^{\text{mag}}(q) \equiv \int d\vec{r} j_J(qr) \vec{Y}_{J1}^M(\varrho_r) \cdot \hat{\mathcal{J}}(\vec{r})$$

ここで、 $\hat{\rho}(\vec{r})$ は電荷分布、 $\hat{\mathcal{J}}(\vec{r})$ は電流分布であり、 $\hat{\mathcal{J}}(\vec{r}) = \hat{\mathcal{J}}_c(\vec{r}) + \text{rot} \hat{\vec{\mu}}(\vec{r})$ と表わせる。第一項は伝導電流の寄与、第二項は固有磁気能率からの寄与である。

$^{51}\text{V}$ の基底状態のスピン、パリティは $\frac{7}{2}^-$ である。今、弾性散乱を問題にしているから、 $J_f = J_i = 7/2$ 。角運動量の保存から、多重極度 $J$ の取り得る範囲は $0 \leq J \leq 7$ である。パリティの保存から、 $\hat{M}_J^{\text{coul}}$ と $\hat{T}_J^{\text{e1}}$ の $J$ が奇数の行列要素、および、 $\hat{T}_J^{\text{mag}}$ の $J$ が偶数の行列要素がゼロとなる。さらに、時間反転に対する不変性から、 $\hat{T}_J^{\text{e1}}$ の残りの行列要素もゼロとなる。

(2)式と(3)式を比べると、後方の角度ほど、 $(d\sigma/d\varrho)_T$ が $(d\sigma/d\varrho)_L$ よりも強調されて観測されることがわかる。(2)式で、 $(m_e c^2/E)^2$ は、小さいので無視すると、 $\theta = 180^\circ$ で $(d\sigma/d\varrho)_L$ がゼロとなり、

$$\frac{d\sigma}{d\varrho} = \left( \frac{Ze^2}{2E} \right)^2 \frac{1}{1 + 2E/M_T c^2} \sum_{J=1,3,5,7} |F_J^{\text{mag}}(q)|^2 \quad (4)$$

となる。すなわち、微分断面積への寄与は、磁氣的横成分形状因子のみとなる。

しかし、実験では

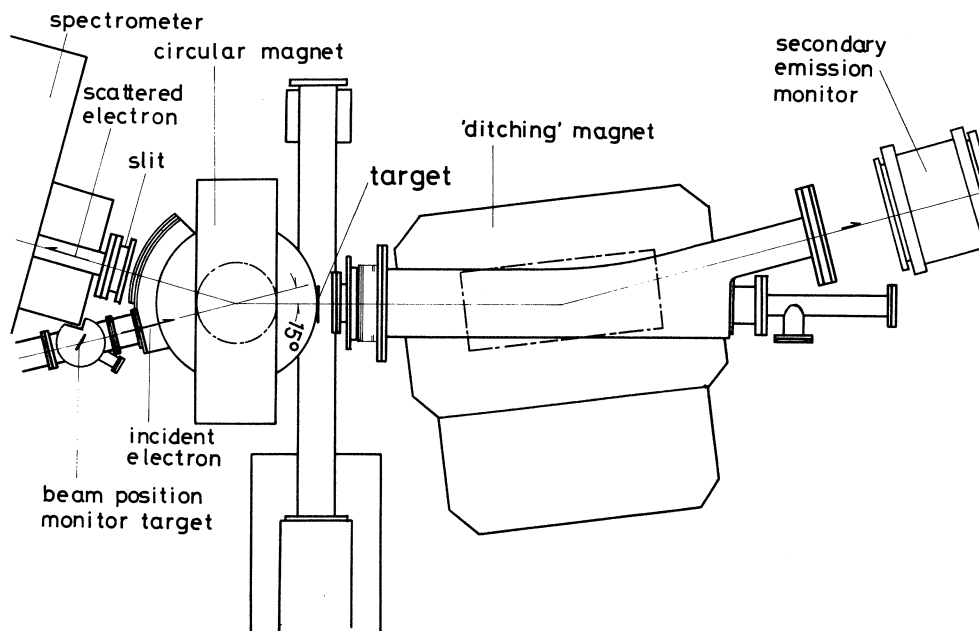
- (i) 標的中での多重散乱
- (ii) 入射電子線の、角度および位置の広がり
- (iii) 検出器が有限の立体角を持っていること

によって、電荷形状因子が、微分断面積に寄与する。しかも、運動量移行が小さなところ( $q \lesssim 1\text{fm}^{-1}$ )では電荷形状因子が大きくなる<sup>1)</sup>ので、この寄与を考慮しなければならない。

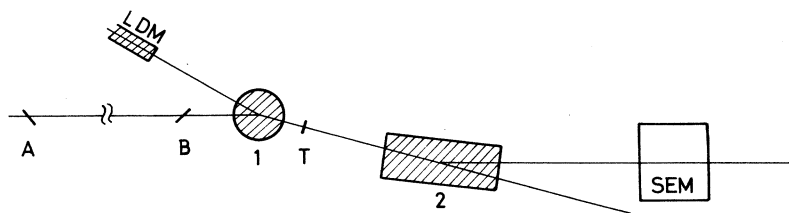


## §2. 実験装置

実験装置は、通常の実験で使用している散乱槽の部分で、そっくり  $180^\circ$  散乱用の装置で置き換えた。第1図にダクト系と、電磁石を示した。第2図にビームラインを示した。図の左方から入射してきた電子ビームは、 $15^\circ$  偏向電磁石を通り、標的に到着する。標的で  $180^\circ$  方向



第1図  $180^\circ$  散乱用のダクト系と電磁石



第2図  $180^\circ$  散乱のビームライン。左側から入射してきた電子は、A、Bのビームモニターで、方向を定められて、1の  $15^\circ$  偏向電磁石で、 $15^\circ$  曲げられて、Tの標的に到着する。標的で  $180^\circ$  方向へ散乱した電子は、再び1を通りスペクトロメータ(LDM)へ入る。Tで透過した電子は2のもうひとつの電磁石で  $15^\circ$  もどされ、SEMを通り、トンネルへ捨てられる。入射線量はSEMで測る。

に散乱された電子は、再び 15° 偏向電磁石を通りスペクトロメータに入る。したがって、スペクトロメータは通常の場合の散乱角 150° の位置に設定する。

図の A, B の所に BeO のビームモニターを出して、15° 偏向電磁石に入る電子の軌道を調整する。次に標的の位置に BeO を出して、電子が 15° 偏向するように、偏向電磁石の磁場を調整する。標的を通過したビームをそのまま捨てると、バックグラウンドの原因となるので、もうひとつの電磁石で 15° もどして、もとのビームラインと平行にして、トンネルへ逃がしている。

入射電子線量 (Dose) は、SEM でモニターしている。

### §3. 実験方法

ターゲットは、化学的に純粋な厚さ 33 mg/cm<sup>2</sup> の <sup>51</sup>V を用いた。

計数率が低いので、検出器に不良チャンネルがあることや、実験室内のバックグラウンドが問題になる。不良チャンネルについては、弾性散乱ピークと重ならないようにスペクトロメータの磁場を調整した。バックグラウンドは弾性散乱ピークよりも高いエネルギー側でその大きさを求めて、全体から差し引いた。

§1 の最後に注意したように、運動量移行の小さなところでは、電荷形状因子による微分断面積への寄与を無視できなくなる。そのために、入射エネルギーが 120 MeV 以下では、厚さ 48 mg/cm<sup>2</sup> の <sup>52</sup>Cr をいっしょに測定して、電荷形状因子による寄与を差し引いた。

<sup>51</sup>V では、 $Z\alpha \approx 1/7$  になるため、平面波ボルン近似は、良い近似でなくなる。そこで、歪曲波ボルン近似による解析が必要になるが、 $q \rightarrow q_{\text{eff}}$  と置き換えて、実験点をプロットすることによって、歪曲波の効果を考慮した。

$$q_{\text{eff}} = q \left( 1 + k \frac{Ze^2}{RE} \right) \quad (5)$$

$$R = \left( \frac{5}{3} \langle r^2 \rangle \right)^{1/2}$$

$\langle r^2 \rangle$  として (3.58 fm)<sup>2</sup> を用いた。<sup>1)</sup>  $k$  は普通 3/2 を用いるが、歪曲波ボルン近似によりよく合うように、 $E = 140$  MeV 以下で  $k = 1.284$ 、それ以上で  $k = 1.595$  を用いた。

形状因子の絶対値は、以下のようにして決定した。まず <sup>51</sup>V の  $\theta = 155^\circ$ 、 $E = 183$  MeV の実験を行ない、微分断面積を測定した (絶対値は <sup>12</sup>C で規格化した)。電荷からの寄与に関しては、文献4)の方法によって差し引いて、横成分形状因子を求めた。次に、180° 散乱での形状因子の絶対値は、 $\theta = 155^\circ$ 、 $E = 183$  MeV と同一の  $q_{\text{eff}}$  の点で、 $\theta = 155^\circ$ 、 $E = 183$  MeV

の実験値に規格化した。

#### § 4. 結 果

結果を第1表に示した。第1行目は、 $\theta = 155^\circ$ ,  $E = 183 \text{ MeV}$  の実験である。

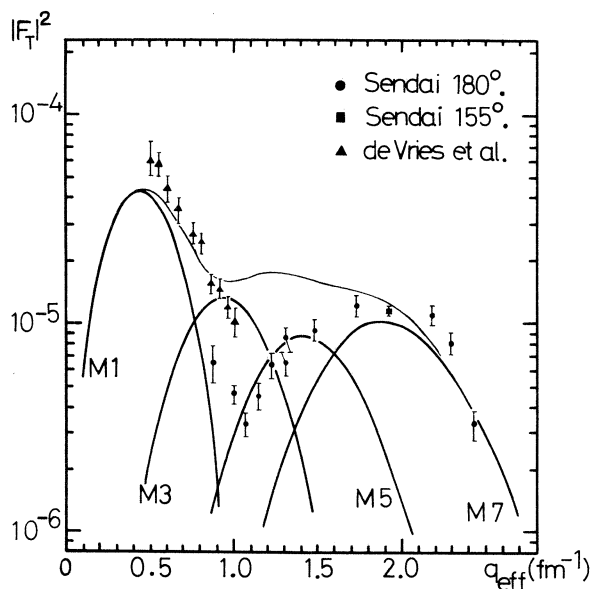
第1表 この実験で得られた磁氣的横成分形状因子。第1行は、 $E = 183 \text{ MeV}$   $\theta = 155^\circ$  での実験結果。形状因子の誤差は、統計誤差のみ。

$E$ ( MeV )	$ F_T ^2$	$q_{\text{eff}}$ ( $\text{fm}^{-1}$ )	Experimental date
183.0 ( $\theta = 155^\circ$ )	$( 1.15 \pm 0.06 ) \times 10^{-5}$	1.92	1977年1月
138.4	$( 9.32 \pm 1.06 ) \times 10^{-6}$	1.48	1977年2月
104.25	$( 4.51 \pm 0.67 ) \times 10^{-6}$	1.15	
90.0	$( 4.59 \pm 0.46 ) \times 10^{-6}$	1.00	
229.0	$( 3.30 \pm 0.53 ) \times 10^{-6}$	2.43	
215.0	$( 8.09 \pm 0.93 ) \times 10^{-6}$	2.29	1977年7月
204.8	$( 1.10 \pm 0.12 ) \times 10^{-5}$	2.18	
160.0	$( 1.23 \pm 0.14 ) \times 10^{-5}$	1.73	
120.0	$( 6.46 \pm 0.84 ) \times 10^{-6}$	1.31	
	$( 8.49 \pm 1.14 ) \times 10^{-6}$		
112.0	$( 6.33 \pm 0.91 ) \times 10^{-6}$	1.23	
97.0	$( 3.22 \pm 0.43 ) \times 10^{-6}$	1.07	
78.0	$( 6.52 \pm 1.32 ) \times 10^{-6}$	0.88	

得られた値は、アムステルダムのデータ<sup>2)</sup>とともに第3図に示した。

$q_{\text{eff}} = 1 \text{ fm}^{-1}$  の付近でアムステルダムの結果と我々の結果の間に約2倍のずれが見られる。この結果を調和振動子型波動関数を用いた  $1f_{7/2}$  の

第3図  $180^\circ$  で観測された磁氣的横成分形状因子。実線は、M1, M3, M5, M7の調和振動子型波動関数を用いた単一粒子模型による計算値(ボルン近似)。 $b$ -パラメータとして  $1.90 \text{ fm}$  を用いた。



単一粒子模型によるボルン近似の結果と比較した。 $b$ -パラメータは、1.90 fm を用いた。<sup>3)</sup> 重心運動の補正は通常の方法で行ない、陽子が有限の大きさを持つ事の補正は、 $1/(1+q^2/7.5)$  という因子を乗じることで考慮している。

M3, M5 が下がるのは、 $2p_{\frac{3}{2}}$ ,  $1f_{\frac{5}{2}}$  による寄与とも考えられるが、将来の理論的解析にまたなければならない。(小黒)

### 参 考 文 献

- 1) G. A. Peterson, K. Hosoyama, M. Nagao, A. Nakada and Y. Torizuka :  
Phys. Rev. **C7** ( 1973 ) 1028.
- 2) H. de Vries : Thesis, Univ. of Amsterdam ( 1973 ).
- 3) T. W. Donnelly and J. D. Walecka : Nucl. Phys. **A 201** ( 1973 ) 81.
- 4) 核理研研究報告 **7** ( 1974 ) 231.

## I-2 (e, e' $\pi^+$ ) 反応による原子核の 高い励起状態の研究(I)

核理研 山崎正晴・大橋英雄・中原和夫  
庄田勝房

原子核の高い励起状態を調べるために、(e, e'  $\pi^+$ ) 反応により放出される  $\pi^+$  のエネルギー・スペクトルを約 20MeV の範囲にわたって測定した。標的核は  ${}^6\text{Li}$ ,  ${}^7\text{Li}$ ,  ${}^9\text{Be}$ ,  ${}^{12}\text{C}$ ,  ${}^{27}\text{Al}$ ,  ${}^{89}\text{Y}$  である。この反応における核の転移は主にスピン・フリップ型なので、核内におけるスピンの影響に関する情報が得られる。本稿では実験の結果と解析の一部を述べる。

### §1. 実験

東北大核理研リニアックからの電子線を  ${}^6\text{Li}$ ,  ${}^7\text{Li}$ ,  ${}^9\text{Be}$ ,  ${}^{12}\text{C}$ ,  ${}^{27}\text{Al}$ ,  ${}^{89}\text{Y}$  の標的に照射し、二重収束型磁気スペクトロメータ (LDM) を用いて、(e, e'  $\pi^+$ ) 反応により放出される  $\pi^+$  の運動量を分析した。検出器系は3層の Si(Li) 半導体検出器 (SSD) により構成したカウンター・テレスコープ33組より成る。個々のテレスコープでは3個の SSD の間の同時計数をとることによりバックグラウンドの軽減がはかられている<sup>1)</sup>

反応の Q 値により、各々の標的についての入射電子エネルギー  $E_e$ ,  $\pi^+$  検出角  $\theta$  を第1表のよう

第1表 実験に用いた標的、入射電子エネルギー  $E_e$ ,  $\pi^+$  検出角  $\theta$ ,  $\pi^+$  の最大エネルギー  $T_\pi^{\max}$ , 標的の厚さ  $t$ 。

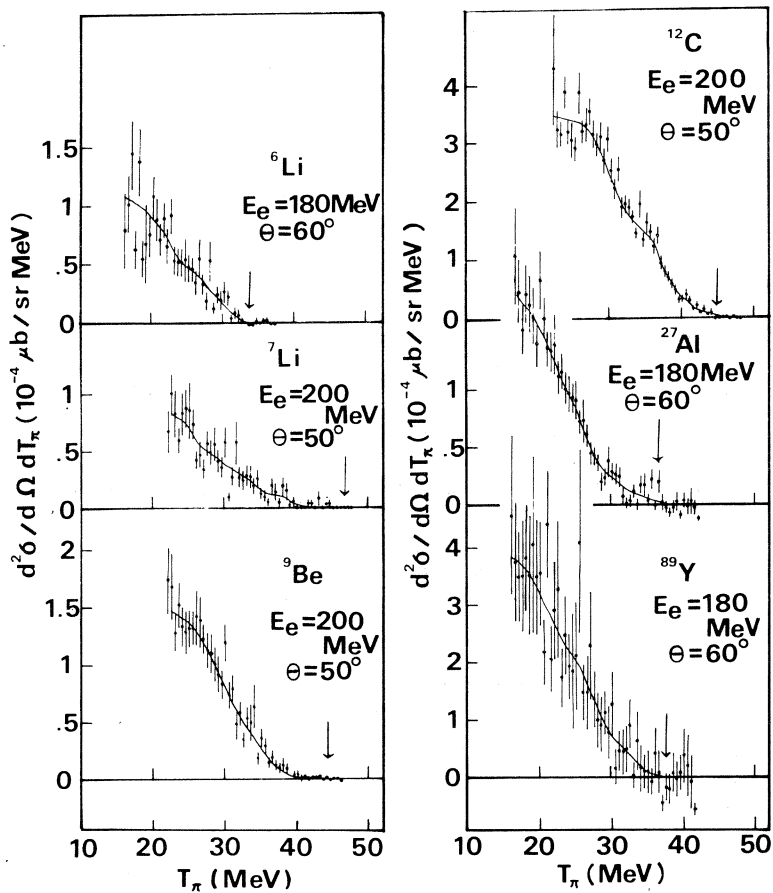
標 的	$E_e(\text{MeV})$	$\theta$	$T_\pi^{\max}(\text{MeV})$	$t(\text{mg}/\text{cm}^2)$
${}^6\text{Li}$	180	$60^\circ$	33.73	47, 72, 121
${}^7\text{Li}$	200	$50^\circ$	46.86	76, 49
${}^9\text{Be}$	200	$50^\circ$	44.40	129
${}^{12}\text{C}$	200	$50^\circ$	44.99	184
${}^{27}\text{Al}$	180	$60^\circ$	36.52	269
${}^{89}\text{Y}$	180	$60^\circ$	37.80	132

に選んだ。 $\pi^+$  の運動エネルギー  $T_\pi$  が大きすぎると、SSD 中でのエネルギー損失が小さくなるため、SSD からの信号の波高値がバックグラウンド  $e^+$  の場合と近くなって、 $\pi^+$  と  $e^+$  の

分離が困難になる<sup>1)</sup>。逆に  $T_\pi$  が小さすぎると、標的と検出器との間を飛行中に  $\pi^+ \rightarrow \mu^+ + \nu$  の崩壊により  $\pi^+$  の大部分が失われてしまう。第1表に示した  $E_e$ ,  $\theta$  はこれらの二つの制限の下に選ばれた。

第1表には使用した標的の厚さも示した。Li の標的は空気中の水を吸収して容易に LiOH となり、H からの寄与が問題になるので、実験毎に流動パラフィンを表面に塗った Li のかたまりをフロンガス中で圧延して標的を製作した。

測定した  $\pi^+$  のエネルギー・スペクトルを第1図に示す。この結果には検出器系の効率、標



第1図  $\pi^+$  のエネルギー・スペクトル  
 実線は3点平滑化したスペクトルを使って、スペクトルの折れ曲がりを見やすくするために引いた。矢印は  $\pi^+$  の最大エネルギー。

の中におけるエネルギー損失、 $\pi^+$ の飛行中での崩壊による補正が行なわれている。図中の実線は3点平滑化したスペクトルを使って、スペクトルの折れ曲がりを見やすくするために引いた。

## §2. 解 析

仮想光子理論<sup>2)</sup>によると、 $(e, e', \pi^+)$ 反応による $\pi^+$ のエネルギー・スペクトル $N(T_\pi)$ と、残留エネルギーが $E_R$ である $(r, \pi^+)$ 反応の微分断面積 $d^2\sigma/d\Omega dE_R(E_R, E_r)$ との間に

$$N(T_\pi) = \int dE_R \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_R}(E_R, E_r) \Phi(E_r, E_e) \quad (1)$$

という関係がある。ここに $\Phi(E_r, E_e)$ は入射エネルギー $E_e$ の電子にともなう仮想光子のスペクトルである。仮想光子エネルギー $E_r$ と残留核を基底状態(即ち、 $E_R = 0$ )に残す $(r, \pi^+)$ 反応の $Q$ 値との間には

$$E_r \approx -Q + E_R + T_\pi \quad (2)$$

という関係式が成り立ち、(1)式の積分はこれを満たす範囲で実行されなければならない。

今問題としている光子のエネルギー領域では、 $E_r$ の変化に対する $d^2\sigma/d\Omega dE_R(E_R, E_r)$ の変化はゆるやかである。そこで、解析では

$$d^2\sigma/d\Omega dE_R(E_R, E_r) \approx d^2\sigma/d\Omega dE_R(E_R, E_r^{\max}) \quad (3)$$

と仮定した。 $E_r^{\max}$ は仮想光子の最大エネルギーである。以下 $d^2\sigma/d\Omega dE_R(E_R, E_r^{\max})$ を単に $d^2\sigma/d\Omega dE_R(E_R)$ と表記する。この仮定により、 $\pi^+$ のスペクトルは

$$N(T_\pi) = \int_0^{E_r^{\max} - T_\pi + Q} dE_R \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_R}(E_R) \Phi(-Q + E_R + T_\pi, E_e) \quad (4)$$

と表わされる。この式は、制動放射を用いた光核反応において生成量 $Y$ を表わす式

$$Y(\hat{E}_r^{\max}) = \int_{E_r^{\text{th}}}^{\hat{E}_r^{\max}} dE_r \sigma(\hat{E}_r) \hat{\Phi}(E_r, E_e) \quad (5)$$

$\sigma$  : 光核反応の断面積

$\hat{\Phi}$  : 制動放射のスペクトル

( $\wedge$ 記号は実光子に関する物理量を表わす。以下同じ。)

$\hat{E}_r$  : 制動放射のエネルギー

$\hat{E}_\gamma^{\max}$  : 制動放射の最大エネルギー

$\hat{E}_\gamma^{\text{th}}$  : 光核反応のしきいエネルギー

と類似であって、光核反応の解析に用いられる種々の解析法を用いることができる。

今回は、予備的な解析を光子数差し引き法によって行なった。 $\pi^+$  スペクトルの  $T_\pi$  の点と  $T_\pi + \Delta T_\pi$  の点との差をとると、(4)式より

$$\begin{aligned}
 & N(T_\pi) - N(T_\pi + \Delta T_\pi) \\
 &= \int_0^{E_\gamma^{\max} - T_\pi + Q} dE_R \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_R} (E_R) \Phi(-Q + E_R + T_\pi, E_e) - \int_0^{E_\gamma^{\max} - T_\pi + Q - \Delta T_\pi} dE_R \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_R} (E_R) \\
 &\quad \times \Phi(-Q + E_R + T_\pi + \Delta T_\pi, E_e) \\
 &\approx \int_{E_\gamma^{\max} - T_\pi + Q - \Delta T_\pi}^{E_\gamma^{\max} - T_\pi + Q} dE_R \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_R} (E_R) \Phi(-Q + E_R + T_\pi, E_e) \\
 &\approx \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_R} (\bar{E}_R) \int_{E_\gamma^{\max} - T_\pi + Q - \Delta T_\pi}^{E_\gamma^{\max} - T_\pi + Q} dE_R \Phi(-Q + E_R + T_\pi, E_e) \\
 &\approx \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_R} (\bar{E}_R) \int_{E_\gamma^{\max} - \Delta T_\pi}^{E_\gamma^{\max}} dE_\gamma \Phi(E_\gamma, E_e) \tag{6}
 \end{aligned}$$

と近似できる。ただし、 $\bar{E}_R$  は仮想光子スペクトルの区間  $[E_\gamma^{\max} - \Delta T_\pi, E_\gamma^{\max}]$  での積分の重心エネルギーに(2)式によって対応づけられた残留エネルギーである。したがって、微分断面積は

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_R} (\bar{E}_R) \approx \{ N(T_\pi) - N(T_\pi + \Delta T_\pi) \} / \int_{E_\gamma^{\max} - \Delta T_\pi}^{E_\gamma^{\max}} dE_\gamma \Phi(E_\gamma, E_e) \tag{7}$$

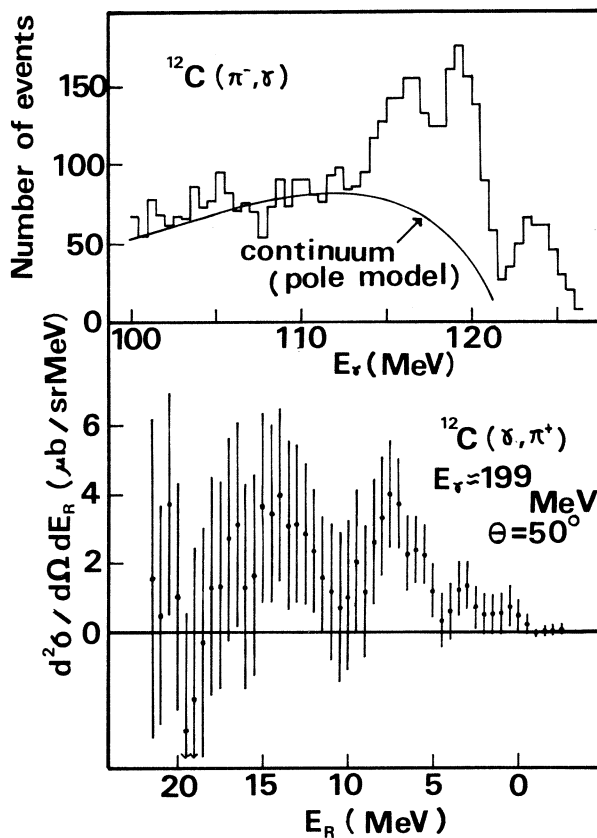
と表わされる。

この方法の長所は解析の手続きが簡単なことである。しかし、測定したスペクトルのとなりあう点の値という同程度の量の差をとる手続きを行なっているので、統計精度の良くないデータや絶対誤差の大きい  $E_R$  の高い部分の解析には不適である。今回の実験で得られたものの中



では最も統計精度の良い $^{12}\text{C}$ のデータにこの方法を用いた時の結果を第2図に示す。仮想光子スペクトルはM1のもの<sup>3)</sup>を使った。参考のために逆反応である $^{12}\text{C}(\pi^-, \gamma)$ 反応の実験結果<sup>4)</sup>も示した。スペクトルの折れ曲がりから、 $E_R \approx 13 \text{ MeV}$ の付近に共鳴の存在が予想されるが、この解析法では上記の欠点のために明瞭には見ることができない。

次回は、より詳細な解析法及びその結果について述べ、個々の核について得られた結果を考察する。



第2図 光子数差し引き法によって求めた微分断面積。上の柱状グラフは $^{12}\text{C}(\pi^-, \gamma)$ 反応の実験結果(文献4)。実線はpole模型による連続状態への転移の見積り。横軸の尺度は上と下とそろえてある。

## 参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 **8** (1975) 58.
- 2) R. H. Dalitz and D. R. Yennie : Phys. Rev. **105** (1957) 1598.
- 3) 核理研研究報告 **8** (1975) 256.
- 4) J. A. Bisterlich *et al.* : Phys. Rev. **C5** (1972) 1867.

# I-3 ${}^9\text{Be}(e, e' \pi^+) {}^9\text{Li}$ 反応における パイ中間子の角分布

ソウル大, 核理研\*

成百能・大橋英雄\*・庄田勝房\*

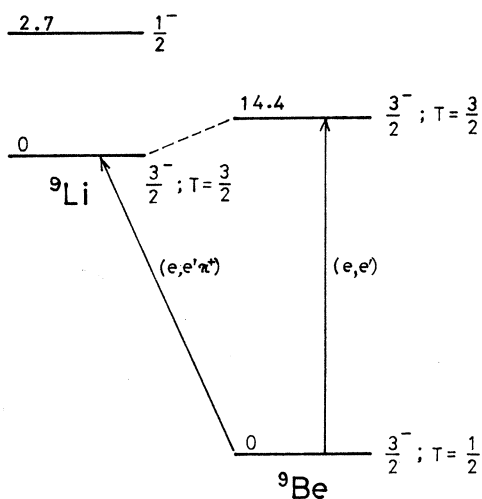
中原和夫\*・山崎正晴\*

${}^9\text{Be}(e, e' \pi^+) {}^9\text{Li}(g.s.)$  反応により放出されるパイ中間子のエネルギー・スペクトルを、入射電子エネルギー  $E_e = 200 \text{ MeV}$ , パイ中間子の放出角  $\theta_\pi = 30^\circ - 150^\circ$  で測定し、それから仮想光子理論を使って  $(r, \pi^+)$  反応断面積の角分布を求めた。

## §1. はじめに

光子による原子核からのパイ中間子発生で残留核の個々の状態を分離する実験的研究は最近始まったばかりである。この新分野の研究、特に核理研における角分布の測定実験は新たな議論の種をまきつつある<sup>1,2)</sup> Überall 等<sup>3)</sup>の理論的研究によれば、原子核の  $(r, \pi^+)$  反応微分断面積の主要成分は、残留状態のアイソバリックアナログ状態を励起する非弾性電子散乱微分断面積から求めることができる。既に報告されている<sup>12</sup>Cに関するこの種の実験と理論との比較<sup>1)</sup>で、大筋では定性的に一致しているように見えるが、なお残っているくいちがいについて、どのように考えればよいのかはこれからの大きな問題となっている。現在我々の持っている  $(r, \pi^+)$  反応角分布の実験データは<sup>12</sup>Cと<sup>16</sup>Oに関するものだけ<sup>1,2)</sup>であり、今後、同種の多数の実験データの蓄積が必要である。

我々は現有実験装置による実験のしやすさと、関連する電子散乱実験データが入手できるということから、<sup>12</sup>Cと<sup>16</sup>Oに続く実験に<sup>9</sup>Beを標的核として採用し、残留核<sup>9</sup>Liが基底状態(g.s.)の場合のみについて  $(e, e' \pi^+)$  反応断面積を測定することにした。又、以前の実験<sup>1,2)</sup>



第1図  ${}^9\text{Be}$  及び  ${}^9\text{Li}$  のこの実験に関連のある状態及び転移。

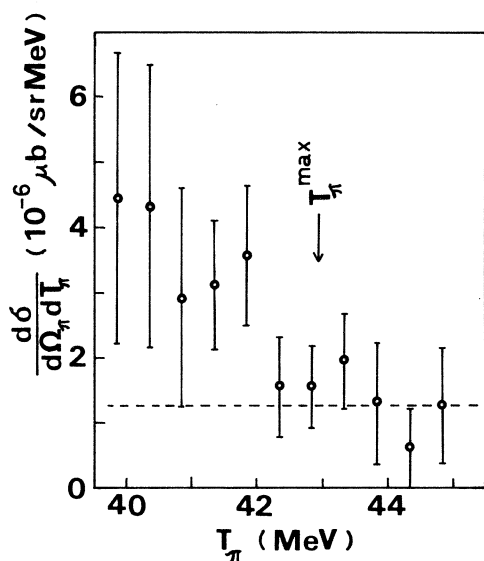
と同様に、 $\pi^+$  のスペクトルから仮想光子理論<sup>4)</sup>を使って $(r, \pi^+)$  反応断面積を引き出す。

${}^9\text{Be}$  の基底状態のスピ、ン、パリティ、アイソスピンはそれぞれ  $J^\pi = 3/2^-, T = 1/2$  で、残留核 ${}^9\text{Li}$  の基底状態は  $J^\pi = 3/2^-, T = 3/2$  であるので、これ等の状態間の $(r, \pi^+)$  反応では、原子核と光子との相互作用には M1, E2, M3 成分の寄与がある。 ${}^9\text{Li}$  の基底状態のアイソバリックアナログ状態は ${}^9\text{Be}$  の励起エネルギー  $E_x = 14.4 \text{ MeV}$  の状態である。この関係を第1図に示す。

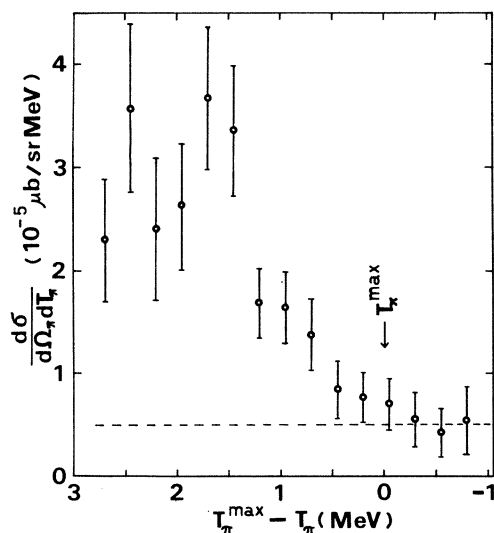
## §2. 実験及び結果

実験装置及び実験方法については既に報告されている通りである。<sup>1,2)</sup>

全エネルギー  $E_e = 200 \text{ MeV}$ , エネルギー幅  $\Delta E_e = 0.4 \text{ MeV}$  の電子を厚さ  $129 \text{ mg/cm}^2$  の ${}^9\text{Be}$  標的に入射し、放出された $\pi^+$  中間子のエネルギースペクトルを電子の入射方向からの角度  $\theta_\pi = 30^\circ - 150^\circ$  の間で  $20^\circ$  間かくに7点測定した。 $\pi^+$  中間子の運動量は二重収束型磁気スペクトロメータで分析した。標的面と電子の入射方向との間の角度は、 $\pi^+$  中間子の運動量分解能が最良になるように設定した。測定した $\pi^+$  中間子のエネルギースペクトルの一例を第2図



第2図  ${}^9\text{Be}(e, e' \pi^+){}^9\text{Li}$  反応により放出された $\pi^+$  のエネルギースペクトルの例。 $E_e = 200 \text{ MeV}$ ,  $\theta_\pi = 70^\circ$ 。矢印は $\pi^+$  の最大運動エネルギーを示す。破線はバックグラウンドの水準を示す。



第3図  ${}^9\text{Be}(e, e' \pi^+){}^9\text{Li}$  反応により放出された $\pi^+$  エネルギースペクトル。 $E_e = 200 \text{ MeV}$ ,  $\theta_\pi = 50^\circ - 150^\circ$  のスペクトルを $\pi^+$  の最大エネルギーが一致するように重ね合わせてある。破線はバックグラウンドの水準を示す。

に示す。 $\pi^+$  中間子の運動エネルギー  $T_\pi$  は、 ${}^1\text{H}(e, e' \pi^+)$  反応の実験<sup>5)</sup>により得られた  $\pi^+$  中間子の最大エネルギーと磁気スペクトロメータの磁場との関係を使って較正した。<sup>†</sup> 第2図の矢印は  $\pi^+$  中間子の最大エネルギー  $T_\pi^{\text{max}}$  の計算値を示す。破線で示されているバックグラウンドは  $T_\pi^{\text{max}}$  より高いエネルギー領域での測定値の平均から推定した。第3図は  $\theta_\pi = 50^\circ - 150^\circ$  のスペクトルを  $T_\pi^{\text{max}}$  が図の同一点になるように重ね合わせて、 $\pi^+$  中間子のスペクトルの立上りが一層明瞭に見えるようにしたものである。

次に各々の  $\theta_\pi$  について、 $\pi^+$  スペクトルを  $T_\pi^{\text{max}}$  から  $T_\pi^{\text{max}} - E_x({}^9\text{Li}$  第1励起状態) まで積分し、この区間での M1 の ( $E2$  についても同じ) 仮想光子数<sup>4)</sup> で割って  ${}^9\text{Be}(\gamma, \pi^+){}^9\text{Li}$  (g.s.) 反応の微分断面積を求めた。光子の平均エネルギーは  $E_\gamma = 198$  MeV である。その結果を第1表に示す。なお、ここでは入射電子エネルギーの幅及びスペクトロメータの運動量分解能 (0.05%) は考慮に入れていない。第1表に示す微分断面積の誤差は統計誤差のみであ

第1表  ${}^9\text{Be}(\gamma, \pi^+){}^9\text{Li}$  (g.s.) 反応微分断面積。  $E_\gamma = 198$  MeV.  
( $e, e' \pi^+$ ) 反応の実験から得た値、誤差は統計誤差のみ示す。

$\theta_\pi$ [deg]	$\frac{d\sigma}{d\Omega_\pi}$ [ $10^{-2}$ $\mu\text{b}/\text{sr}$ ]
30	4.3 $\pm$ 3.7
50	5.8 $\pm$ 1.8
70	6.3 $\pm$ 2.7
90	10.5 $\pm$ 2.7
110	13.3 $\pm$ 2.3
130	20.2 $\pm$ 3.2
150	14.0 $\pm$ 2.6

る。この他、 ${}^1\text{H}(e, e' \pi^+)$  反応の微分断面積の測定値で絶対値の較正を行う際の誤差<sup>†</sup> (統計誤差 7% +  ${}^1\text{H}$  標的の厚さの誤差) 及び Be 標的の厚さの誤差が系統的誤差として加わる。

### §3. 考 察

以下では、この実験から得られた  ${}^9\text{Be}(\gamma, \pi^+){}^9\text{Li}$  (g.s.) 反応微分断面積と電子散乱形状因子とを Überall 等<sup>3)</sup> の処方にしたがって比較する。

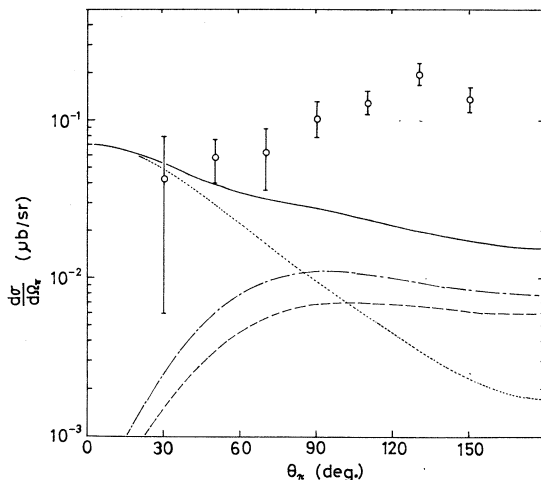
第4図に  ${}^9\text{Li}$  の基底状態のアイソバリックアナログ状態であるところの  ${}^9\text{Be}$  の  $E_x = 14.4$  MeV,  $J^\pi = 3/2^-$ ,  $T = 3/2$  状態を励起する非弾性電子散乱形状因子の実験値を横成分に

<sup>†</sup> 文献5)で報告されている  ${}^1\text{H}(e, e' \pi^+)$  反応実験の後で、さらに精度のよいデータが得られた。その結果は別に報告される。

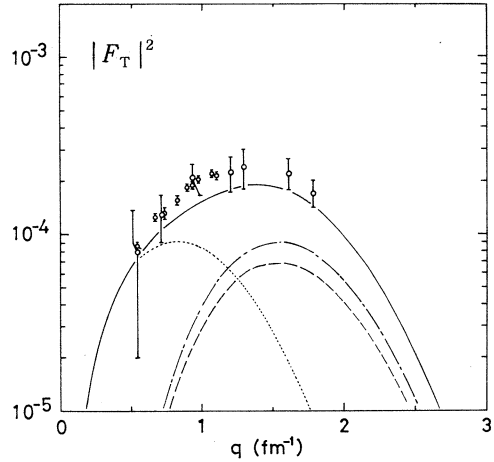
ついでのみ示す<sup>6,7)</sup>。図中の曲線は Boyarkina の中間結合殻模型の波動関数<sup>8)</sup>を用いて計算した横成分形状因子<sup>9)</sup>である。c. f. p. は文献 10 によった。調和振動子の長さのパラメータは  $b = 1.6 \text{ fm}$  とした。実験値との一致はかなりよい。形状因子の最大値附近 (運動量移行  $q \approx 1.5 \text{ fm}^{-1}$ ) で計算値は実験値より高々 20% 低いだけである。なお、この計算では伝導電流の項は無視した。

(C 2 形状因子の実験値<sup>6)</sup> から推定した  $q \approx 0.6 \text{ fm}^{-1}$  での E 2 横成分形状因子の伝導電流による成分は磁化による成分の約  $1/50$  である。)

次に、この中間結合殻模型の波動関数を用いて  ${}^9\text{Be}(r, \pi^+) {}^9\text{Li}(\text{g.s.})$  の微分断面積を文献 3, 9 にしたがって計算する。計



第 5 図  ${}^9\text{Be}(r, \pi^+) {}^9\text{Li}(\text{g.s.})$  反応の微分断面積。  $E_r = 198 \text{ MeV}$ , 丸印は  $(e, e' \pi^+)$  反応の実験から求めた値。点線は M1, 破線は E 2, 一点鎖線は M 3, 実線は M1 + E 2 + M3 で中間結合模型 (文献 8) による計算値。



第 4 図  ${}^9\text{Be}$  の  $14.4 \text{ MeV}$ ,  $J^\pi = 3/2^-$ ,  $T = 3/2$  状態の電子散乱形状因子の横成分。丸印は文献 6 および文献 7 から引用した実験値。点線は M1, 破線は E 2, 一点鎖線は M3, 実線は M1 + E 2 + M3 で中間結合模型 (文献 8) による計算値。

算値は第 5 図に示す通り実験値からかなりずれている。このずれの大きさは電子散乱形状因子の場合のずれに比べてはるかに大きい。

${}^{12}\text{C}$  や  ${}^{16}\text{O}$  の場合<sup>1,2)</sup> の  $\pi^+$  の角分布を見ると、電子散乱の実験データをもとにした M1 成分の計算値は実験値に比べて前方で大きすぎる傾向があるのに対して、後方では M1, E2 ( ${}^{12}\text{C}$ ) や M2, E3 ( ${}^{16}\text{O}$ ) が小さくなりすぎる傾向がある。 ${}^9\text{Be}$  の場合は、この傾向が一層顕著に現れたのであろうか。それとも計算に重大な欠陥があるのか、あるいは実験の解析に思わぬ落とし穴があるのか。今後解明すべき問

題は多い。

### 参 考 文 献

- 1) K. Shoda, H. Ohashi and K. Nakahara : Phys. Rev. Lett. **39** (1977) 1131.
- 2) 成百能, 他 : 核理研研究報告 **9** (1976) 230.
- 3) H. Überall, B.A. Lamers, C.W. Lucas and A. Nagl : Phys. Lett. **44B** (1973) 324;  
F. Cannata, B.A. Lamers, C.W. Lucas, A. Nagl, H. Überall and C. Werntz :  
Can. J. Phys. **52** (1974) 1405.
- 4) R. H. Dalitz and D. R. Yennie : Phys. Rev. **105** (1957) 1598.
- 5) 大橋英雄, 他 : 核理研研究報告 **10** (1977) 41.
- 6) 寺沢辰生 : 核理研研究報告 **2** (1969) No. 2, 2.
- 7) J. C. Bergstrom, I. P. Auer, M. Ahmad, F. J. Kline, J. H. Hough, H. S. Caplan  
and J. L. Groh : Phys. Rev. **C7** (1973) 2228.
- 8) A. N. Boyarkina : Izv. Akad. Nauk SSSR Ser. Fiz. **28** (1964) 337.
- 9) R. S. Willey : Nucl. Phys. **40** (1963) 529.
- 10) H. A. Jahn and H. van Wieringen : Proc. Roy. Soc. **A29** (1951) 502.

I-4  $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)$  反応による核構造の研究 IV核理研 大橋英雄・山崎正晴・中原和夫  
庄田勝房

我々は  $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{12}\text{B}$  反応については前々号まで3回にわたり報告し、 $^1\text{H}(e, e'\pi^+)$  反応を用いた反応断面積の絶対値の較正については前号<sup>2)</sup>に報告した。その後さらに実験を継続しておこない、反応の全断面積についても計算したので今回はまとめの報告をおこなう。

## §1. 絶対値の較正

第1図に  $(e, e'\pi^+)$  反応で水素から放出される  $\pi^+$  の検出角  $30^\circ$  でのエネルギー・スペクトルを示す。図中の矢印は  $\pi^+$  の最高エネルギー位置を示す。前号の第1図に比べてバックグラウンドが減少しているのは  $\pi^+$  のエネルギー分解能を多少犠牲にして標的の実効的な厚さを薄くして陽電子の創生数を減らしたためである。 $(\gamma, \pi^+)$  反応微分断面積を第2図に×印で示す。統計誤差も含めて実光子による実験値<sup>3)</sup>(○印)と非常に良い一致を示すので $^{12}\text{C}$ についても  $(e, e'\pi^+)$  反応を  $(\gamma, \pi^+)$  反応にやき直す際、仮想光子を用いたことによる補正はおこなわなかった。

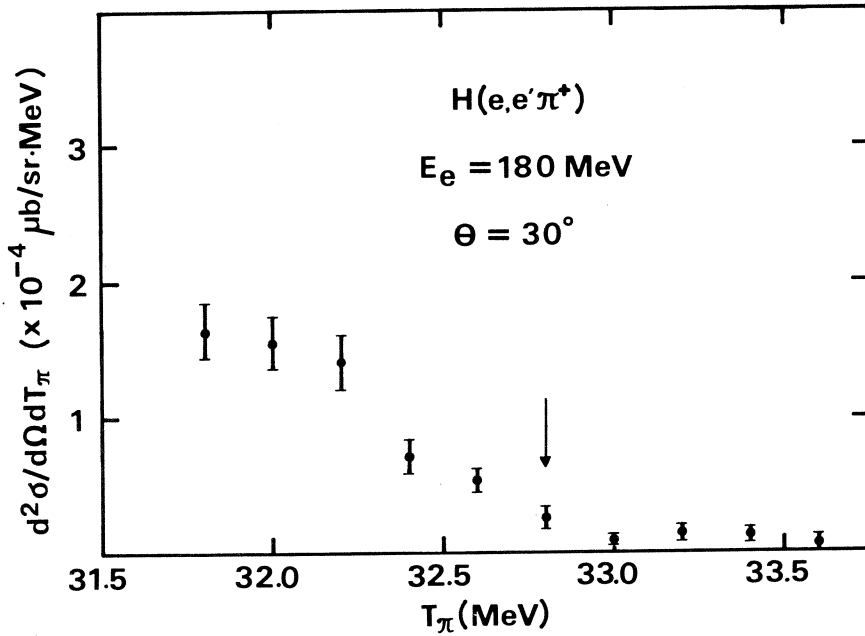
§2.  $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{12}\text{B}$  反応のまとめ

第3図に検出角  $30^\circ, 60^\circ, 90^\circ$  における  $^{12}\text{C}$  から放出される  $\pi^+$  のエネルギー・スペクトルを示す。実線は参考文献4の方法を用いた Helm 模型による理論曲線、破線は東大の古井氏による残留核と  $\pi^+$  との相互作用を考慮に入れた1粒子-1空孔殻模型を用いた理論曲線<sup>5)</sup>である。

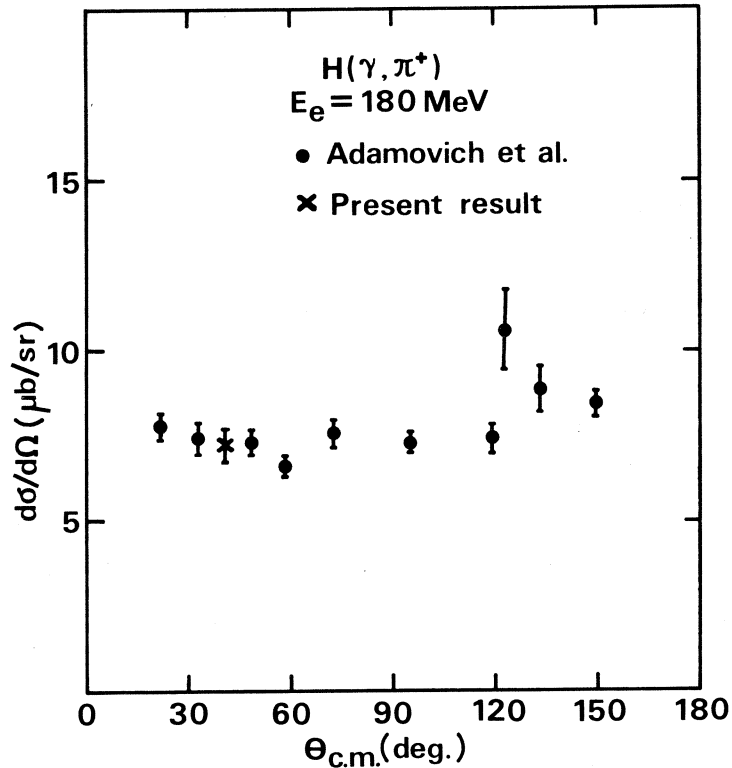
第4図に微分断面積を示す。実線・破線はそれぞれ Helm 模型および殻模型<sup>6)</sup>による理論曲線であるがどちらも  $\pi^+$  と残留核との終状態相互作用は考慮していない。

第1表に反応全断面積を示す。 $R$  は各測定点における微分断面積の実験値と理論値との比の重みつき平均であり、 $\sigma_{\text{exp}}$  は各模型から得られた  $\sigma_{\text{theor}}$  に上記の  $R$  をかけて求めた。

微分断面積は Helm 模型の方が殻模型による計算に比べ良い一致を示している。このことは例えば電子散乱・ $\mu^-$  捕獲・ $\beta^-$  崩壊<sup>6)</sup>などの過程についても同様であるが、これは Helm 模型は電子散乱の実験結果に一致する様に転移核行列要素のパラメータをえらんだためである。Helm 模型の結果と実験結果との間の小さいくい違いは  $\pi^-$  原子核のクーロン終状態相互作用

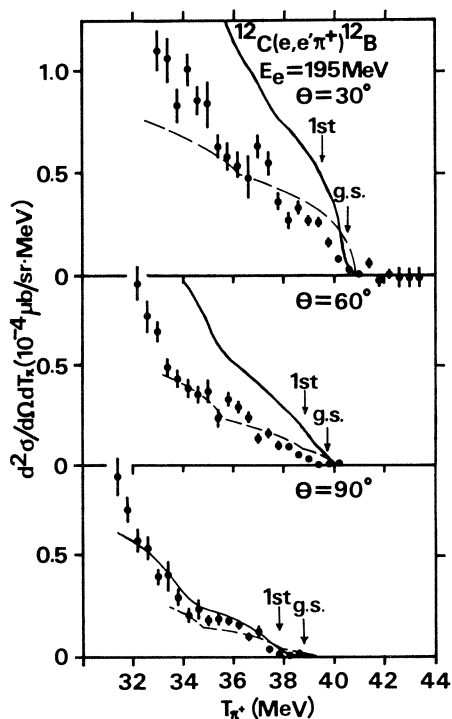


第1図  $E_e = 180 \text{ MeV}$ ,  $\theta = 30^\circ$ における $H(e, e' \pi^+)$ 反応により得られた $\pi^+$ のエネルギー・スペクトル, 矢印は水素から発生する $\pi^+$ の最高エネルギー位置。

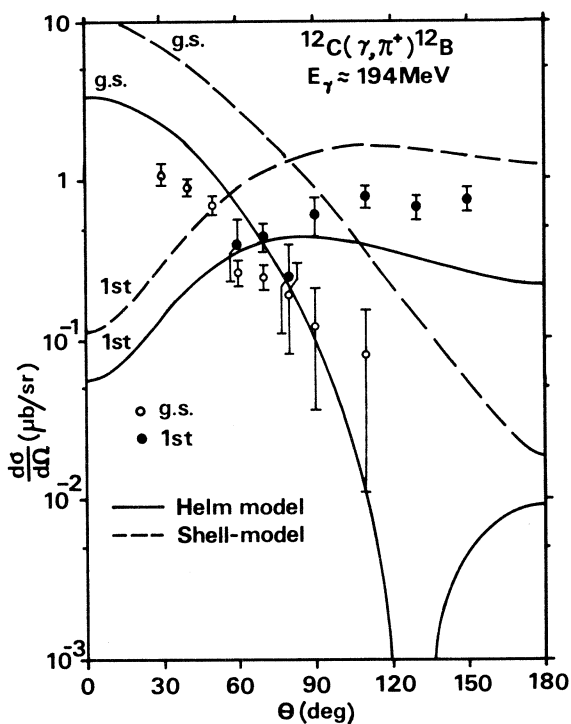


第2図  $E_e = 180 \text{ MeV}$ における $H(\gamma, \pi^+)$ 反応微分断面の重心系における角度分布, ×印が我々の測定値, ○印は参考文献3による。





第3図  $E_e = 195 \text{ MeV}$ における $^{12}\text{C}(e, e'\pi^+)^{12}\text{B}$ 反応により得られた $\pi^+$ のエネルギースペクトル, 実線はHelm模型による理論曲線, 破線は終状態相互作用を考慮に入れた殻模型<sup>4)</sup>による理論曲線。



第4図  $E_\gamma \approx 194 \text{ MeV}$ における $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{12}\text{B}$ 反応微分断面積。

第1表  $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{12}\text{B}$ 反応断面積の比較,  $R$ は $(d\sigma/d\Omega)_{\text{exp}} / (d\sigma/d\Omega)_{\text{theor}}$ の最確値,  $\sigma_{\text{exp}}$ は $\sigma_{\text{theor}}$ に $R$ をかけて求めた。

Residual state	Ground state ( $J^\pi = 1^+$ )	First excited state ( $E_R = 0.95 \text{ MeV}, J^\pi = 2^+$ )
	Helm model	
$R$	$0.56 \pm 0.03$	$1.42 \pm 0.13$
$\sigma_{\text{theor}} (\mu\text{b})$	27.04	16.55
$\sigma_{\text{exp}} (\mu\text{b})$	$15.1 \pm 0.8$	$23.5 \pm 2.3$
	Shell model	
$R$	$0.14 \pm 0.01$	$0.43 \pm 0.04$
$\sigma_{\text{theor}} (\mu\text{b})$	99.9	59.5
$\sigma_{\text{exp}} (\mu\text{b})$	$14.0 \pm 1.0$	$25.6 \pm 2.4$

を考慮した古井氏の計算がより良い一致を示すようにより完全な終状態相互作用を考慮することによって解決されるものと期待される。

( $r, \pi^+$ ) 反応微分断面積を精度良く測定することにより  $\pi^+$  と原子核との終状態相互作用に関する新しい情報が得られる。このことは ( $r, \pi^+$ ) 反応が原子核構造を知る上での有力な実験手段となり得ることを示している。

### 参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 **8** (1975) 256 ; **9** (1976) 34 ; **9** (1976) 226.
- 2) 核理研研究報告 **10** (1977) 41.
- 3) M. I. Adamovich *et al.* : *Proceedings (Turdy) of the P. N. Lebedev Physics Institute* **34** (1967) 49.
- 4) F. Cannata *et al.* : *Can. J. Phys.* **52** (1974) 1405.
- 5) S. Furui : *Prog. Theor. Phys.* **58** (1977) 864.
- 6) J. B. Seaborn, V. Devanathan and H. Überall : *Nucl. Phys.* **A219** (1974) 461.

I-5 光核反応による<sup>9</sup>Be 励起状態の研究(I)

核理研, 山形大教養\*

田中俊成・種市 宏\*・上野博昭\*

庄田勝房

## §1. 序

<sup>9</sup>Be 原子核に電子線を照射した場合放出される d, t, <sup>3</sup>He のエネルギースペクトルを測定し, ( $r, d_0 + d_1$ ), ( $r, t_0$ ), ( $r, {}^3\text{He}_0$ ) 反応微分断面積と, その角度分布を求めた。

<sup>9</sup>Be 原子核の基底状態と低励起状態は  $\alpha + \alpha + n$  という形のクラスターモデルで良く説明できることが知られているが, p, d, t, <sup>3</sup>He の分離エネルギーを越える 20 MeV 以上の高い励起状態では,  $\alpha$  クラスターが壊れてしまっているはずであるから <sup>7</sup>Li + d, <sup>6</sup>Li + t, <sup>6</sup>He + <sup>3</sup>He, ……etc. という形の波動関数であらわされる状態, あるいは複合核状態が強く励起される可能性が考えられる。

我々は<sup>9</sup>Be 原子核の高励起状態の性質を知る手がかりとして ( $r, d_0 + d_1$ ), ( $r, t_0$ ), ( $r, {}^3\text{He}_0$ ) 反応微分断面積を求め, まず ( $r, d_0 + d_1$ ), ( $r, t_0$ ) 反応微分断面積と統計理論による計算結果との比較を試みた。

## §2. 実験方法と測定結果

核理研第1実験室の広帯域分析電磁石 (BDM) の焦点面に等間隔に置かれた 100 個の Si (Li) 型 SSD を検出器として用い, 電子線を直接<sup>9</sup>Be 原子核に照射して放出される d, t, <sup>3</sup>He 各粒子のエネルギースペクトルを測定した。

電子線のエネルギーは第1表のごとく一定間隔を置いて変化させた。エネルギー分解能は1.5

第1表 d, t, <sup>3</sup>He に対する実験条件: 入射電子ビームのエネルギー  $E_e$ , エネルギー間隔, およびエネルギー分解能  $\Delta E_e$

	$E_e$ (MeV)	Step (MeV)	$\Delta E_e / E_e$ (%)
d	21.0 ~ 39.0	2.0	1.5
t	23.0 ~ 35.0	2.0	1.5
<sup>3</sup> He	27.5 ~ 38.0	1.5	1.5

%である。

ターゲットとしては  $3.06 \text{ mg/cm}^2$  と  $9.67 \text{ mg/cm}^2$  の二種類の金属 Be 箔を用いた。ターゲット面のビーム方向に対する角度は  $30^\circ$  で、第1表に示された実験の際の測定角は  $125^\circ$  である。

d と t の角度分布は  $E_e = 23 \text{ MeV}$  と  $26 \text{ MeV}$  で測定した。測定角は  $42^\circ, 55^\circ, 67^\circ, 78^\circ, 90^\circ, 102^\circ, 113^\circ, 125^\circ, 138^\circ$  である。

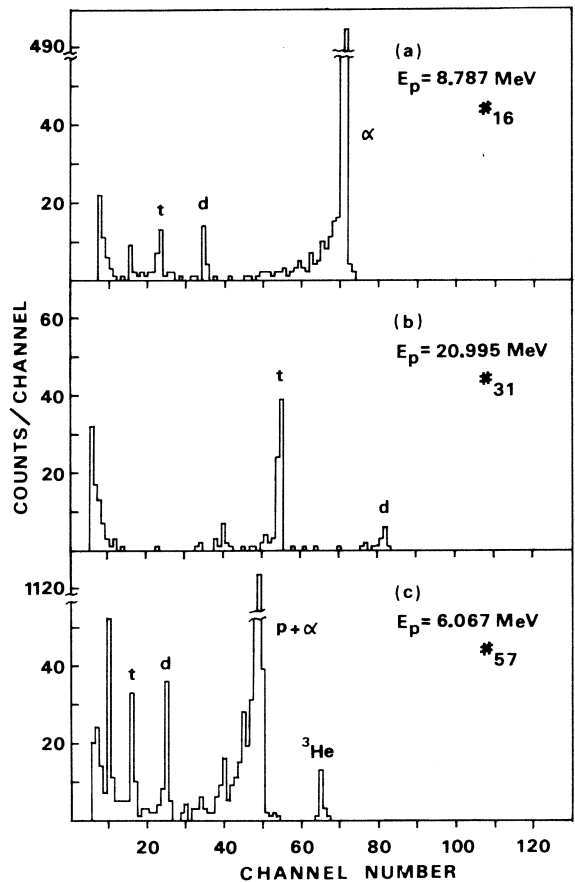
現在、BDMの粒子検出系は各 SSD から送られてくる信号の波高分布を128チャンネルで記録するしくみになっている。荷電粒子の運動エネルギー  $E$ 、運動量  $p$ 、質量  $m$ 、電荷  $Ze$ 、BDM中での軌道の曲率半径  $r$ 、BDMの磁束密度  $B$  とすると、

$$E = \frac{p^2}{2m} = \frac{(erB)^2}{2} \cdot \frac{Z^2}{m} \quad (1)$$

が成り立つから、同一磁場において同一 SSD チャンネルに入射した粒子のエネルギーは、 $Z^2/m$  のみに依存する。したがって p, d, t,  $^3\text{He}$ ,  $\alpha$  各粒子が入射したとき、それらのエネルギー比は

$$\begin{aligned} E_p : E_d : E_t : E_{^3\text{He}} : E_\alpha \\ = 1 : \frac{1}{2} : \frac{1}{3} : \frac{4}{3} : 1 \end{aligned}$$

となる。SSD は E カウンターとして用いているので波高分布も上記の比と同じ結果を示す。第1図に測定された波高分布の例を示す。(a) は  $E_p = 8.787 \text{ MeV}$  に相当するチャンネルで、d, t,  $\alpha$  を検出している。p と  $^3\text{He}$  は含まない。また  $\alpha$  粒子の計数が非常に多い。(b) は  $E_p = 20.995 \text{ MeV}$  に相当するチャンネルで、d と t を検出している。p,  $^3\text{He}$ ,  $\alpha$  は含



第1図 SSD 波高分布。

まない。(c)は  $E_p = 6.067$  MeV に相当するチャンネルで, p, d, t,  $^3\text{He}$ ,  $\alpha$ を検出している。p と  $\alpha$  は同じエネルギーなので波高が同じである。

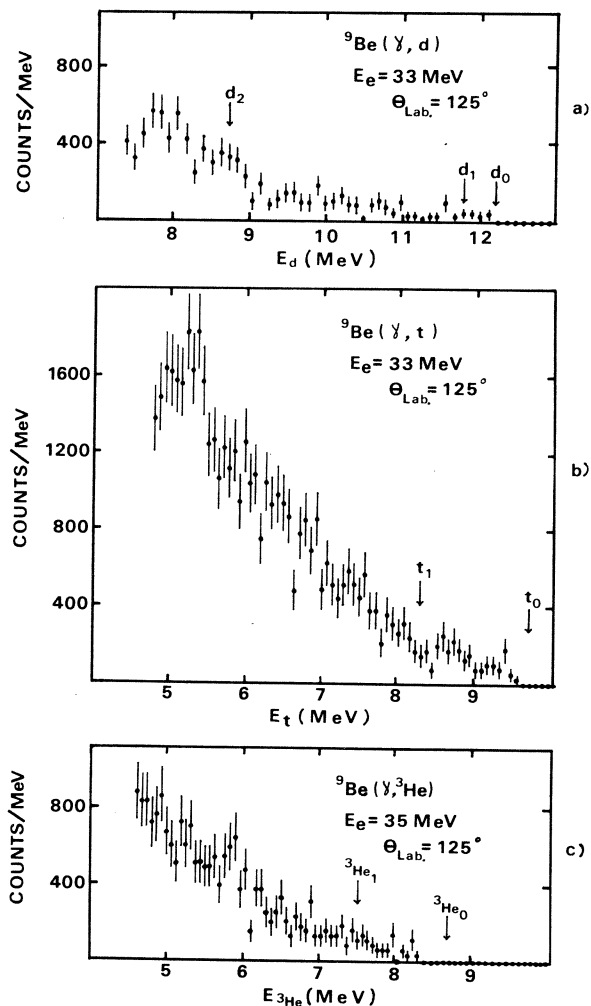
このように, d, t,  $^3\text{He}$  は互いに信号の波高が異なるから, それらの粒子の識別が容易である。各SSDチャンネルごとの粒子検出数は第1図中に示されたピーク付近の計数の和で与えられる。第1図(a)において,  $\alpha$  粒子の波高スペクトルが低波高側にすそを引くのが見えるが, d, t の計数を求めるときにこのすそによるバックグラウンドを差し引く必要がある。この実験ではバックグラウンドの差し引きは, すその部分を延長して行なった。すその部分の形およびバックグラウンドの差し引き方法に関しては別の機会に詳述する予定である。

バックグラウンド差し引きの結果得られた d, t,  $^3\text{He}$  のエネルギースペクトルの一部を第2図に示す。

この図ではターゲット中の粒子のエネルギー損失に対する補正は行っていない。矢印はそれぞれの反応粒子のエネルギースペクトルにおける先端の位置を示す。

### §3. 微分断面積の算出とその結果

$^7\text{Li}$  の第1, 第2励起状態のエネルギーはそれぞれ 0.478 MeV, 4.633 MeV である。基底状態と第1励起状態が接近しているため, 第2図(a)で明らかなように ( $r, d_0$ ) 反応によるエネルギースペクトルを ( $r, d_1$ ) 反応を含むエネルギースペクトルから分離して取り出して微



第2図 エネルギースペクトルの例。矢印はそれぞれの反応粒子スペクトルの先端を指す。

分断面積を求めるのは、計数が少ないことと電子のエネルギー分解能（1.5%）による仮想光子スペクトルのゆがみを考えると困難である。

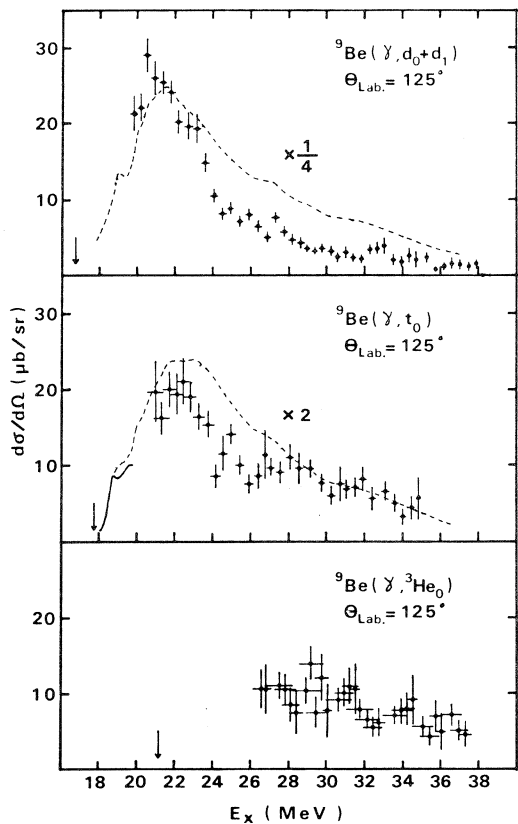
このため反応断面積（ $r, d_0+d_1$ ）を求める場合の計算は（ $r, d_0$ ）と（ $r, d_1$ ）を含むエネルギースペクトルを全て（ $r, d_0$ ）反応によると仮定して行なった。この仮定によって求めたスペクトルの先端付近に対応する励起エネルギーでの（ $r, d_0+d_1$ ）微分断面積の  $d_0, d_1$  チャンネルの割合は真の値と異なることが予想されるが、その他の部分ではほとんど変わらない。

${}^6\text{Li}, {}^6\text{He}$  の第1励起状態のエネルギーはそれぞれ 2.185 MeV, 1.80 MeV であるから第2図 (b), (c) に示すように（ $r, t_0$ ）, （ $r, {}^3\text{He}_0$ ）反応によるスペクトルのみを分離するのが容易である。

ターゲット中での粒子のエネルギー損失はターゲットの半分の厚さを通過するとき数 100 keV ないし 1 MeV 程度あるので微分断面積の計算において、エネルギー損失によって粒子のエネルギースペクトルがゆがんでいることを考慮する必要がある。<sup>2)</sup>

参考文献(2)に基づいて算出した（ $r, d_0+d_1$ ）, （ $r, t_0$ ）, （ $r, {}^3\text{He}_0$ ）反応微分断面積を第3図に示す。矢印はそれぞれの反応のしきい値を示す。（ $r, d_0+d_1$ ）反応は励起エネルギー 21 MeV 付近で断面積が最大（ $\approx 25 \mu\text{b}/\text{sr}$ ）となり、励起エネルギーが高くなるに従って急速に小さくなっている。

（ $r, t_0$ ）反応では断面積の最大は励起エネルギー 22 MeV 付近で、約  $20 \mu\text{b}/\text{sr}$  であるが（ $r, d_0+d_1$ ）反応に比べ、励起エネルギーが高くなっても断面積はゆるやかに減少している。（ $r, {}^3\text{He}_0$ ）反応の断面積は統計精度があまり良くない



第3図 反応断面積。矢印は反応のしきい値を指す。実線は M. Schaeffer<sup>ら</sup><sup>3)</sup> の  ${}^6\text{Li}(t, r_0)$  の実験結果。点線は統計理論による計算結果を示す。（ $r, d_0+d_1$ ）, （ $r, t_0$ ）の計算結果をそれぞれ 1/4 倍, 2 倍してある。誤差は統計誤差のみ。

が励起エネルギー 30 MeV 付近で約10  $\mu\text{b}/\text{sr}$  であることがわかる。

( $r, t_0$ ) 反応における実線は M. Schaeffer<sup>3)</sup> らが行なった  ${}^6\text{Li}(t, r_0)$  反応実験の結果を個別つりあいの原理を用いて ( $r, t_0$ ) 反応断面積に換算したものである。M. Schaeffer らの結果は測定角  $90^\circ$  で得られたものであるが、我々の結果とはほぼ矛盾しない値であると考ええる。

第4図に ( $r, d_0 + d_1$ ) 反応, 第5図に ( $r, t_0$ ) 反応の角度分布を示す。

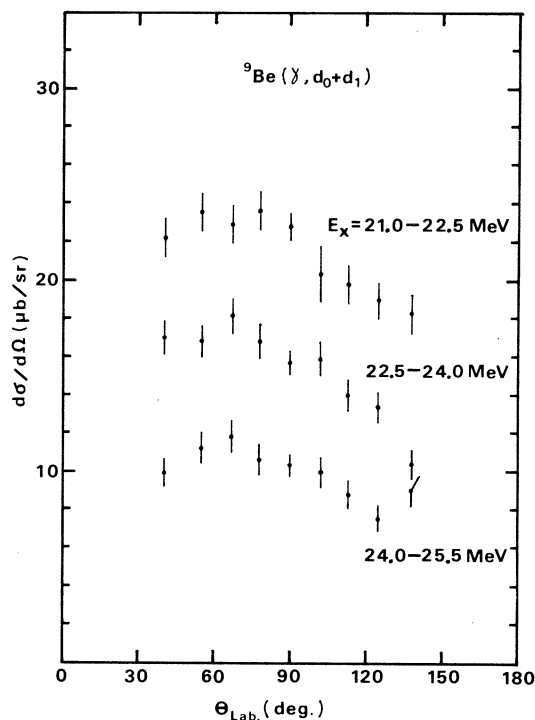
( $r, d_0 + d_1$ ) 反応角度分布は励起エネルギー 21.0~22.5, 22.5~24.0, 24.0~25.5 MeV の三つのエネルギー領域に分け、それぞれの領域における微分断面積の平均値を求めた。いずれの領域においても  $90^\circ$  に関して非対称で、前方角度で大きな値を示していることがわかる。

( $r, t_0$ ) 反応角度分布は励起エネルギー 24.0~25.5 MeV の範囲について求めたが、( $r, d_0 + d_1$ ) 反応のときは逆に後方角度でやや大きな値を示している。

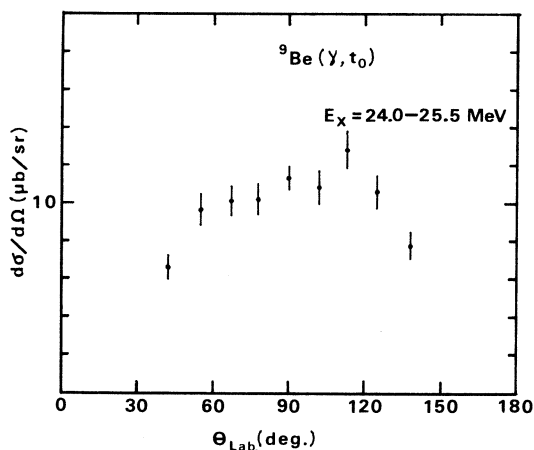
#### §4. 統計理論との比較

##### および考察

統計理論による反応断面積の計算を以下のようにして行なった。



第4図 ( $r, d_0 + d_1$ ) 角度分布。励起エネルギーを 21.0~22.5, 22.5~24.0, 24.0~25.5 MeV の三つの領域に分けて断面積の平均値を求めた。



第5図 ( $r, t_0$ ) 角度分布。励起エネルギーは 24.0~25.5 MeV。

複合核過程を通して起きる核反応の断面積は、複合核形成断面積を透過係数の比で分割することで求められる。複合核形成断面積を  $\sigma_c$ 、考えている反応チャンネルを  $a$  とすると、この反応の断面積  $\sigma_a$  は

$$\sigma_a = \sigma_c \frac{T_a}{\sum T} \quad (2)$$

$T_a$  : チャンネル  $a$  への透過係数

$\sum T$  : 全ての反応チャンネルへの透過係数の和

で与えられる。透過係数は光学ポテンシャルから計算でき、Woods - Saxon型ポテンシャル

$$U(r) = -Vf_0(r) - i [W_v f_w(r) - 4 a_w W_s \frac{d}{dr} f_w(r)] \\ + (\sigma \cdot \mathbf{l}) \left( \frac{\hbar}{m_\pi c} \right)^2 \frac{V_{so} + i W_{so}}{r} \frac{d}{dr} f_0(r) + V_c \quad (3)$$

$$f_i(r) = [1 + \exp\left(\frac{r - R_i}{a_i}\right)]^{-1} \quad (i = 0, W)$$

$$R_i = r_i A^{1/3} \quad (i = 0, W, C)$$

$$V_c = \begin{cases} \frac{ZZ' e^2}{r} & : r \geq R_c \\ \frac{ZZ' e^2}{2R_c} \left(3 - \frac{r^2}{R_c^2}\right) & : r < R_c \end{cases}$$

を用いた。ポテンシャルのパラメータを第2表に示す。p に対するパラメータはL. A. Kull<sup>4)</sup>

第2表 光学ポテンシャルのパラメータ

	p	n	d	t
$V$	46.45	52.5 - 0.625 $E^*$	118.0	145.0 (MeV)
$W_v$	0	5.4 + 0.4 $E$	0	1.91 (MeV)
$W_s$	6.34	0	6.87	0 (MeV)
$V_{so}$	7.18	10.185 - 0.171 $E$	8.50	8.93 (MeV)
$W_{so}$	0	0	0	0 (MeV)
$r_0$	1.19	1.25	1.00	0.85 (fm)
$a_0$	0.48	0.65	0.94	0.70 (fm)
$r_w$	1.19	1.25	1.98	1.40 (fm)
$a_w$	0.73	0.98	0.59	0.61 (fm)
$r_c$	1.19	-	1.30	1.40 (fm)

\*  $E$  は中性子のエネルギー (MeV)



の ${}^7\text{Li}$  原子核における値,  $d$  に対しては H. Ludecke<sup>5)</sup> の ${}^7\text{Li}$  原子核における値,  $t$  に対しては G. H. Herling<sup>6)</sup> の ${}^9\text{Be}$  原子核における値をそれぞれ用いた。また,  $n$  に対しては F. Bjorklund<sup>7)</sup> の値を用いた。

$\Sigma T$  の計算で, 残留核の励起状態が連続状態となる領域に対する計算には準位密度公式を用いて積分で置きかえた。準位密度公式にはスピン・パリティ  $I^\pi$  をもった状態に対してフェルミ気体模型を用いて表わされる次式を用いた。

$$\rho^{I^\pi}(E) = \frac{1}{48\sqrt{2}} \frac{\hbar^3 a^{1/2}}{g^{3/2}} \frac{2I+1}{(E+t-A)^2} \exp [ 2 a^{1/2} (E-A)^{1/2} ] \quad (4)$$

$E$  : 励起エネルギー

$a$  : 状態密度係数 ( $= 0.127A \text{ MeV}^{-1}$ )

$g$  : 慣性率 ( $= g_{\text{rig}} \times 0.7$ ,  $g_{\text{rig}} = \frac{2}{5} r^2 M$ ,  $r = 1.5 A^{1/3} \text{ fm}$ )

$t$  : 熱力学的温度 ( $E = at^2 - t$ )

$A$  : 対エネルギー ( $= A' - 70/A$ ,  $A' = 3.0 \text{ MeV}$ )

複合核形成断面積としては, B. Ziegler<sup>8)</sup> の ${}^9\text{Be}$  光吸収断面積の測定結果を用い, 光吸収断面積が複合核形成断面積に等しいという仮定, また角度分布が等方的であるという仮定を設けて ( $r, d_0 + d_1$ ), ( $r, t_0$ ) 反応微分断面積を計算した。第3図に結果を点線で示す。計算結果は ( $r, d_0 + d_1$ ) については  $1/4$  倍, ( $r, t_0$ ) については  $2$  倍してある。

実験結果と計算結果とでは断面積の形は良く一致しているように見えるが, 絶対値が一致しない。( $r, d_0 + d_1$ ) について考えると, ( $r, d_0 + d_1$ ) 反応が全て複合核の形成を経て起きると仮定した場合でも複合核形成断面積は光吸収断面積のうちの  $1/4$  程度でしかないことになる。そこで, 最初の仮定を修正して複合核形成断面積が光吸収断面積の  $1/4$  であるとする, ( $r, t_0$ ) 反応は, そのほとんどが複合核を形成せずに起きることになる。また, V. P. Denisov<sup>9)</sup> が行なった ${}^9\text{Be}(r, p_0)$  の実験結果と比較すると, 励起エネルギー  $22 \text{ MeV}$  付近で  $\sigma(r, d_0 + d_1) / \sigma(r, p_0) \approx 1/7$  となるのに対して, 統計理論の計算では約  $3$  となった。したがって少なくとも ( $r, p_0$ ) 反応, ( $r, t_0$ ) 反応のすべてを統計理論で説明するのは無理であると考えられる。

( $r, d_0 + d_1$ ), ( $r, t_0$ ) 反応の角度分布の測定結果が  $90^\circ$  非対称を示しているが, これは E1 励起と E2 励起, あるいは E1 励起と M1 励起の干渉があることによるのかも知れないが, これらの反応が直接過程によって起きるためであると考えられることも可能である。

これらを考えると, 今後, 直接過程による断面積の計算を行ない, 測定結果との比較を試み

ることが重要であろう。

なお、現在  $(r, p_0)$  反応微分断面積と  $(r, p_0)$ ,  $(r, t_0)$  反応角度分布の測定結果を解析中であるので、次回においてはそれらの結果も合わせて<sup>9</sup>Beの励起状態についてより詳しく議論したい。

### 参 考 文 献

- 1) 浦野隆夫他：核理研研究報告 **9** (1976) 330.
- 2) 菅原真澄他：核理研研究報告 **6** (1973) 246.
- 3) M.Schaeffer *et al.* : J.de Phys. **32** (1971) C 5b -223.
- 4) L.A.Kull : Phys. Rev. **163** (1967) 1066.
- 5) H.Ludecke *et al.* : Nucl. Phys. **A106** (1968) 676.
- 6) G.H.Herling *et al.* : Phys. Rev. **178** (1969) 1551.
- 7) F.Bjorklund *et al.* : Phys. Rev. **109** (1958) 1295.
- 8) B.Ziegler : *Proc. Intern. Conf. on Photonuclear Reactions and Applications, Asilomar* (1973) Vol. 1, p.23.
- 9) V.P.Denisov *et al.* : Sov. J. Nucl. Phys. **3** (1966) 192.

I-6  $^{14}\text{N}(e, e' d_0)^{12}\text{C}$  反応の研究 (II)

山形大教養, 核理研\*

種市 宏・上野博昭・庄田勝房\*

前回のマシンタイムに引続いて $^{14}\text{N}$  および $^{10}\text{B}$  の  $(r, d)$  反応を調べた。 $^{14}\text{N}$  については、励起エネルギーが 18 - 28 MeV の範囲で角分布を測定追加し、その結果から全断面積を決定した。また重陽子の放出角  $125^\circ$  の微分断面積を励起エネルギー 15 - 18 MeV で測定した。両断面積共に 20.5 MeV 附近にピークを持つ共鳴が認められた。

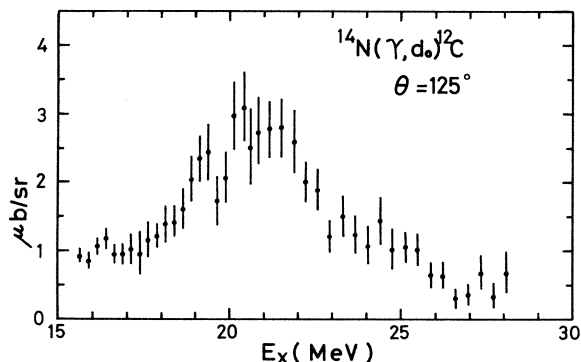
## §1. 測定結果

前回発表<sup>1)</sup>したようにターゲットには窒化硼素(BN)の薄板を用いた。厚さは  $19.4 \text{ mg/cm}^2$  である。今回は  $\approx 20.5 \text{ MeV}$  共鳴の附近をくわしく調べるため、新たに電子エネルギー 21.0, 24.0, 26.0 MeV で角分布を測定した。また前回測定の不十分であった  $\approx 20 \text{ MeV}$  以下の  $\theta_d = 125^\circ$  における  $(r, d_0)$  微分断面積を求めるため電子エネルギー 18.0, 19.0, 21.5 MeV で放出重陽子のエネルギー分布を測定した。第1図はこれまで測定したすべてのデータから求めた  $(r, d_0)$  の微分断面積である。

この結果によれば 20.5 MeV 附近に共鳴の存在が確認される。

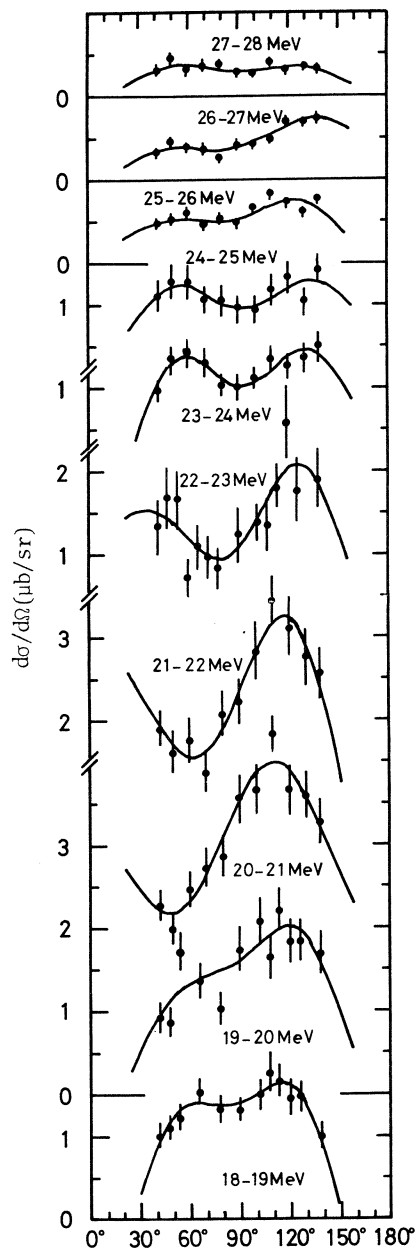
第2図は角分布で、図中のエネルギーは角分布を測定した励起エネルギーの範囲を示す。共鳴附近の角分布 (20 - 21 MeV, 21 - 22 MeV) が他のエネルギー範囲の角分布と異なっていることが認められる。図中の曲線はルジャンドル展開を  $P_4$  の

項まで行なって測定値と合わせたものである。第3図は  $4\pi A_0$  で全断面積である。第1図とはほぼ同様の形をしている。第4図は  $A_0$  に対する各係数の比で、 $|A_4/A_0|$  が共鳴の附近で小



第1図  $\theta_d = 125^\circ$  における  $^{14}\text{N}(r, d_0)^{12}\text{C}$  反応の微分断面積。

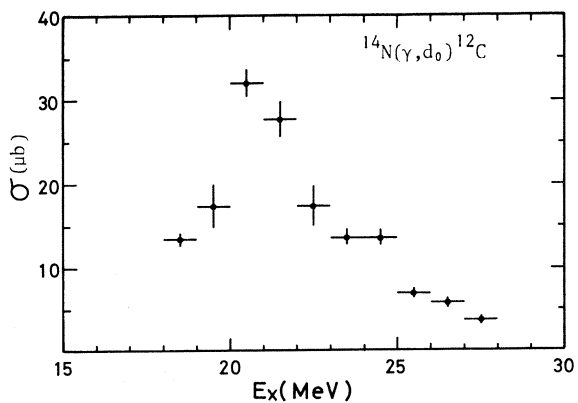
\*  $d\sigma/d\Omega = A_0P_0 + A_1P_1 + A_2P_2 + A_3P_3 + A_4P_4$



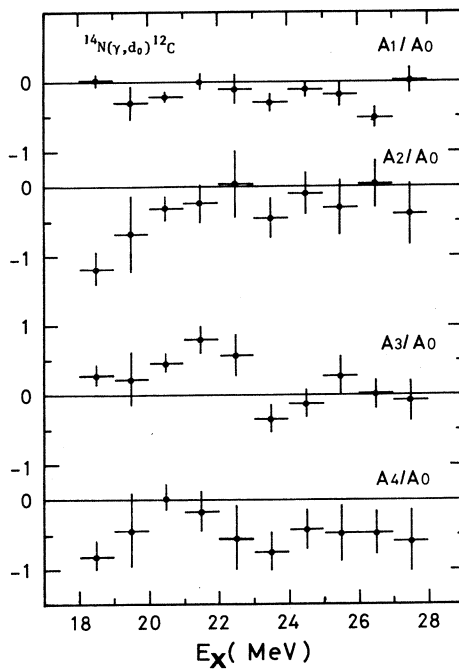
第2図  $^{14}\text{N}(\gamma, d_0)^{12}\text{C}$  反応の角分布。図中のエネルギーは角分布を測定したエネルギー範囲。曲線はルジャンドル展開

$$d\sigma/d\Omega = \sum_{l=0}^4 A_l P_l$$

を測定値に最小自乗法でフィットした結果。



第3図  $^{14}\text{N}(\gamma, d_0)^{12}\text{C}$  反応の全断面積。角分布をルジャンドル展開した結果の  $A_0$  の  $4\pi$  倍である。



第4図  $^{14}\text{N}(\gamma, d_0)^{12}\text{C}$  反応をルジャンドル展開したときの各係数の  $A_0$  に対する比。 $E_x$  が20-22 MeV の共鳴で  $|A_3/A_0|$  が大きく、 $|A_4/A_0|$  が小さくなっていることが認められる。

さくなっているが、 $|A_3/A_0|$  は逆に大きくなっている。

## §2. 考 察

$^{14}\text{N}(r, d_0)^{12}\text{C}$  反応について、 $^{14}\text{N}$  の基底状態は  $T=0$  であるから、電磁相互作用による転移に対するアイソスピン選択則により  $r$  線を吸収したあとの状態は  $T=0$  または 1 である。一方重陽子 ( $T=0$ ) を放出して  $^{12}\text{C}$  の基底状態 ( $T=0$ ) に転移できる  $^{14}\text{N}$  の状態は  $T=0$  しかない。E 1 に対しては  $T=0$  から  $T=0$  への転移は禁示されているので、E 2 転移が主であると考えられる。

角分布において、E 2 が主であれば、一般に  $|A_4/A_0|$  が他の係数比にくらべて大きくなる。しかし関係する状態にアイソスピン・インピュリティがあれば、E 1 - E 2 の干渉項による  $A_1/A_0$ ,  $A_3/A_0$  が存在する。第 1 図、第 3 図に見られるように、20.5 MeV を中心とする共鳴があるが、そのすその  $E_x > 22$  MeV で  $|A_1/A_0| \approx 0.2$ ,  $|A_2/A_0| \approx 0.3$ ,  $|A_3/A_0| \approx 0$  と小さく、 $|A_4/A_0| \approx 0.5$  と大きいので E 2 が主である。同様に  $E_x < 20$  MeV では  $|A_2/A_1| \approx 1$ ,  $|A_4/A_0| \approx 0.6$  と大きく、 $|A_1/A_0|$ ,  $|A_3/A_0|$  は共に小さい。したがってこの場合も E 2 が主であると考えられる。これに対して  $E_x$  が 20~22 MeV の共鳴領域では  $|A_3/A_0|$  が大きく  $\approx 0.7$  で、 $|A_4/A_0|$  は  $\approx 0$  である。したがってこの領域は干渉項が大きく、アイソスピン・インピュリティは、共鳴のすそに比較して大きいと考えられる。

上述の角分布が示すように、 $E_x > 22$  MeV,  $E_x < 20$  MeV では E 2 が主である。第 1 図の微分断面積はこれらの励起エネルギー範囲が共鳴のすそであることを示しているので  $E_x \approx 20.5$  MeV 附近に巨大四重極共鳴 (GQR) のあることが考えられる。

Suzuki<sup>2)</sup> の理論によるとアイソベクトル E 2 とアイソスカラー E 2 共鳴エネルギーは

$$\text{アイソベクトル E 2 GQR} : E_x = 130/A^{1/3} \quad (\text{MeV})$$

$$\text{アイソスカラー E 2 GQR} : E_x = 58/A^{1/3} \quad (\text{MeV})$$

で表わされる。これによれば $^{14}\text{N}$  の場合、それぞれ 54 MeV, 24 MeV となる。我々の GQR に関する実験値  $E_x \approx 20.5$  MeV は上記理論によるアイソベクトルに関する値とは一致しないがアイソスカラー GQR の  $E_x$  と大体一致する。正確には 3.5 MeV のずれがあるが  $A < 50$  では  $E_x$  の理論値は実験値より大きい傾向があるので、アイソスカラー E 2 の GQR として大きな矛盾はないと考えられる。

Carr 等<sup>3)</sup> 及び著者等<sup>1)</sup> の  $(r, p_0)$  の実験、Gellie 等<sup>4)</sup> の  $(r, n_0)$  の実験によると巨大双極子共鳴 (GDR,  $E_x \approx 23$  MeV) より低エネルギー部 ( $E_x \approx 20.5$  MeV) に  $1p_{3/2}$  閉殻外の

$1p_{1/2}$  核子による共鳴（ビグミィ共鳴）が存在するが、 $^{14}\text{N}(\gamma, d_0)^{12}\text{C}$  反応の共鳴エネルギーがこれと一致していることは興味深い。

今後  $^{14}\text{N}(\gamma, d_0)^{12}\text{C}$  反応を  $^{12}\text{C} + d$  クラスタとして解析するか、あるいは殻模型で、閉殻外核子が放出される際に、他の閉殻外核子をピックアップする場合の  $(\gamma, d_0)$  反応を理論的に計算して実験結果と比較検討する予定である。

この実験に際して御援助いただいた核理研の  $(\gamma, p)$  グループの方々、マシングループと測定器グループの方々に感謝致します。又東北大学工学部応用理学教室の本多助教授には理論計算で色々お世話になったことを感謝致します。

### 参 考 文 献

- 1) 種市宏, 上野博昭, 庄田勝房: 核理研研究報告 **10** (1977) 44.
- 2) T. Suzuki : Nucl. Phys. **A217** (1973) 182.
- 3) R. W. Carr, J. E. E. Baglin and E. J. Bentz, Jr. : Phys. Rev. **C6** (1972) 2032.
- 4) R. W. Gellie, K. H. Lokan, N. K. Sherman, R. G. Johnson and J. I. Lodge  
: Can. J. Phys. **50** (1972) 1689.

## II. 物 性 物 理

## II - 1 Time-of Flight Pulsed Neutron Diffraction of Co-P Amorphous Alloy Made by Electrodeposition

K. Suzuki and T. Fukunaga

*The Research Institute for Iron, Steel and Other Metals  
Tohoku University, Sendai-980, Japan*

### § 1. Introduction

Metalloid atoms play an important role to stabilize the amorphous structure of transition metals above room temperature. The amount and combination of various kinds of metalloid atoms have quite sensitive influences against not only the stability but also physical and chemical properties of transition metal-metalloid amorphous alloys.

Since the scattering factor and atomic fraction of metalloid atoms usually are small in transition metal-metalloid amorphous alloys, it is not easy to obtain structural informations concerning metalloid atoms in the alloys even by neutron diffraction as well as X-ray diffraction. However, Co-P system is one of the best targets to find the characteristic behaviour of metalloid atoms in transition metal-metalloid amorphous alloys because of larger neutron scattering factor of P compared with that of Co.

The aim of this work is to try the separate observation of nearest neighbour correlations for Co-Co, Co-P and P-P pair in a Co-P amorphous alloy on its high resolution radial distribution function.

### § 2. Experimental

Sheets of Co-P amorphous alloy were made by electrodeposi-



tion from the aqueous solution of which initial chemical composition was listed in Table I. Experimental conditions during electrodeposition such as current density, temperature, plating time, and size and material of electrodes are also shown in Table I. The atomic fraction in the electrodeposited Co-P amorphous alloy was determined by chemical analysis.

Table I. Chemical compositions of sample and electrolysis bath, and operating conditions of electrodeposition.

Composition (at.% Co)	81.75
H <sub>3</sub> PO <sub>3</sub> (g/l)	63
H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> (g/l)	50
CoCl <sub>2</sub> · 6H <sub>2</sub> O (g/l)	181
2CoCO <sub>3</sub> · 3Co(OH) <sub>2</sub> (g/l)	38
Current density (A/dm <sup>2</sup> )	10
Temperature (°C)	70 ± 3
Plating time (h)	3
Anode	Co rod 6mmφ
Cathode	Cu sheet (20 × 30 × 0.1mm)

Sheets of Co-P amorphous alloy were divided into minute flakes of about 2 mm in diameter and 0.1mm in thickness, and then contained densely in a vanadium cylindrical vessel of 7.8 mm in diameter, 50 mm in length and 0.025 mm in wall thickness. Neutron diffraction experiment was carried using a total neutron scattering spectrometer and a pulsed neutron source installed at Tohoku University Electron LINAC<sup>1)</sup>

Intensities of scattered neutrons were measured at room temperature by time-of-flight method as to the Co-P alloy with the vessel, an empty vessel, a vanadium rod having same diameter and length with the vessel and a background respectively. The observed intensity of the sample-run was corrected for background, absorption, vanadium vessel and multiple scattering. Procedures of the correction and the reduction of the structure factor from the corrected intensity are entirely same to those described in previous papers.<sup>1,2)</sup>

### § 3. Results and Discussion

The observed structure factor  $I(Q)$  of Co-18.25at.%P electrodeposited alloy is shown in Fig. 1 (thick solid line).

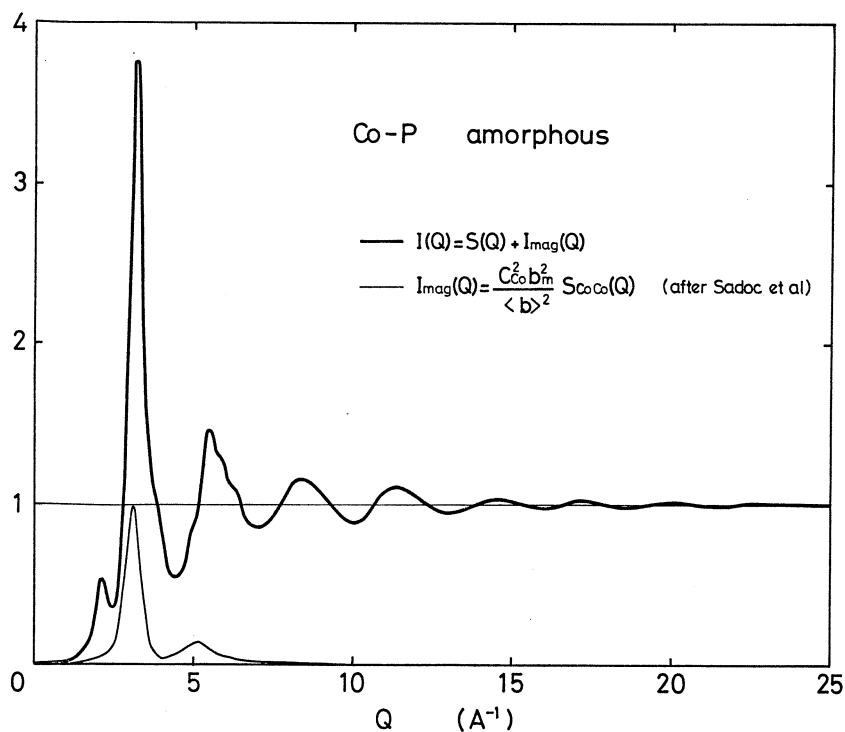


Fig. 1. Corrected intensity of Co-18.25at.%P amorphous alloy.

This  $I(Q)$  includes two contributions from nuclear scattering and magnetic scattering,

$$I(Q) = S(Q) + I_{\text{mag}}(Q), \quad (1)$$

because Co-18.25at.%P alloy is a ferromagnet at room temperature. In order to extract the structure factor  $S(Q)$  attributed only to atomic arrangements in the alloy, the magnetic term  $I_{\text{mag}}(Q)$  must be subtracted from  $I(Q)$ .

If we assume that the magnetic moment is equally distributed on Co atoms in the alloy, the magnetic term can be written as

$$I_{\text{mag}}(Q) = \frac{c_{\text{Co}}^2 b_m^2}{\langle b \rangle^2} S_{\text{CoCo}}(Q), \quad (2)$$

where  $c_{\text{Co}}$  is the atomic fraction of Co atom,  $b_m$  is the magnetic scattering amplitude and  $S_{\text{CoCo}}(Q)$  is the partial structure factor for Co-Co pair. A thin solid line in Fig. 1 is the magnetic structure factor  $I_{\text{mag}}(Q)$  which can be calculated using  $S_{\text{CoCo}}(Q)$  obtained by Sadoc and Dixmier<sup>3)</sup> and the value of the magnetic moment of Co atom  $\mu_{\text{Co}} = (0.87 \pm 0.07)$  Bohr magnetons estimated from Pan and Turnbull's work<sup>4)</sup>

The final structure factor  $S(Q)$  for the atomic arrangement in Co-18.25at.%P amorphous alloy is shown in Fig. 2. This  $S(Q)$  has a conspicuous peak around  $Q=2.2 \text{ \AA}^{-1}$  and a shoulder on the high  $Q$  side near  $Q=4 \text{ \AA}^{-1}$  as well as the oscillation in  $S(Q)$  persists up to the range of  $Q=25 \text{ \AA}^{-1}$ . Such features in  $S(Q)$  have never been found in X-ray diffraction experiment.

The radial distribution function RDF of Co-18.25at.%P amorphous alloy can be obtained as Fourier-transform of the structure factor  $S(Q)$  shown in Fig. 2,

$$4\pi r^2 \rho_0 g(r) = 4\pi r^2 \rho_0 + \frac{2}{\pi} \int_0^{Q_{\text{max}}} [S(Q) - 1] (Qr) \sin(Qr) dQ, \quad (3)$$

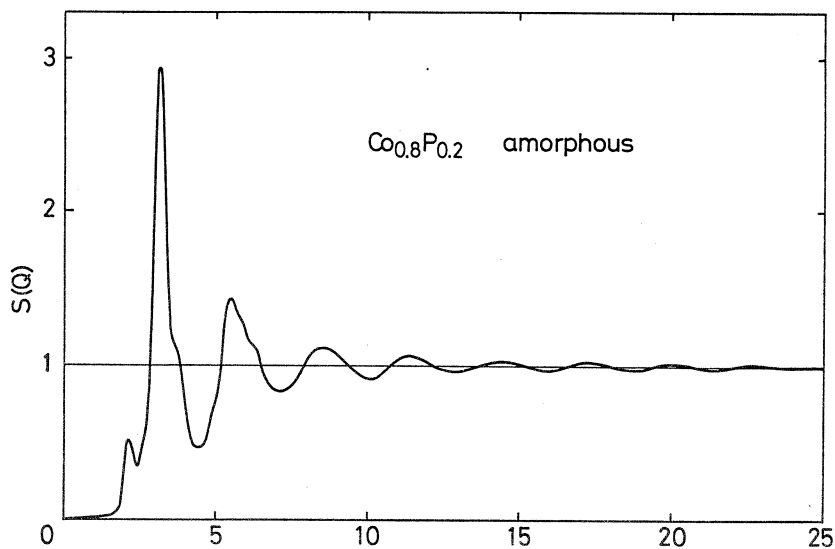


Fig. 2. Nuclear scattering structure factor of Co-18.25at.%P amorphous alloy.

where  $\rho_0$  is the average density of the alloy (8.0 g/cm<sup>3</sup>).

The truncating effect in numerical calculation of eq.(3) is

demonstrated in Fig.3. A

double-headed main peak clearly

appears when the truncating

value of  $Q_{\max}$  is extended to

more than 20  $\text{\AA}^{-1}$ . The first

peak in the double-headed

main peak corresponds to the

nearest Co-P correlation

with a distance of 2.30  $\text{\AA}$

and coordination number of

about 8 Co atoms around a P

atom. The second peak in the

main peak describes the

nearest Co-Co correlation

coordinated mutually to

about 10 Co atoms with a

distance of 2.57  $\text{\AA}$ . These

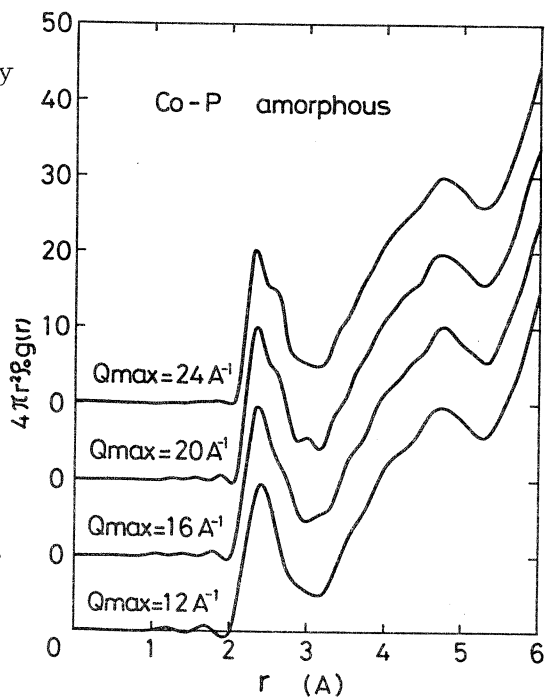


Fig. 3. Radial distribution function of Co-18.25at.%P amorphous alloy

results are quite consistent to the three partial correlations solved from a combination experiment of X-ray, polarized and unpolarized neutron diffraction by Sadoc and Dixmier<sup>3)</sup>.

It can be remarked conclusively that the Co-P and Co-Co nearest neighbouring correlations in Co-18.25at. %P amorphous alloy is resolved on the high resolution radial distribution function which is Fourier-transform of the structure factor measured over the region of momentum transfer higher than 20  $\text{\AA}^{-1}$ .

#### Acknowledgment

The authors would like to thank the members of Nuclear Science Laboratory, Tohoku University for the operation of the electron LINAC.

#### References

- 1) K. Suzuki, M. Misawa, K. Kai and N. Watanabe: Nucl. Instr. (1977) in press.
- 2) M. Misawa, K. Kai, K. Suzuki and S. Takeuchi: Res. Report Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **5** (1972)No.2, 73.
- 3) J. F. Sadoc and J. Dixmier: Materials Sci. Eng. **23** (1976) 187.
- 4) D. Pan and D. Turnbull: J. Appl. Phys. **45** (1974) 1406.

## II-2 中性子線回折用高圧力発生装置

金研, 弘前大理学部\*

神垣 知夫・吉田 肇・大橋 正義

金子武次郎・佐藤幸三郎\*

### § 1. まえがき

高圧力下で物質の X 線回折や中性子線回折を行なう目的は、原子面の間隔を求めて、原子間距離あるいは体積の圧力による変化から、圧縮率を定めること、回折線の強度から原子配置を求めて、結晶型や対称性の圧力による変化を定めることなどである。大気圧下での回折の研究は大いに進歩しており、高精度の方法や簡便迅速な方法などが数多く行なわれている。高圧力下でも、これらと全く同等の高精度で測定が行なわれなければならない。しかし高圧力を発生するには、試料を圧力の媒体で囲んで加圧する必要がある、これらを抑える高圧容器も必要である。

回折のための中性子線の入射と散乱線のとり出しは、ともにこれらの圧力媒体や容器を通して行なわれる。その中性子線に対する透過度は、必ずしも良好とは限らない。また、試料のすぐ近くにあるこれらの物質からの散乱線も同時に測定されることになり、測定結果の解析を困難にする。

高圧容器については、中性子線の通路だけ厚さを薄くして、吸収を弱める方法が良いと考えられる。多結晶試料の回折実験では、単色の線源を用いて、異なる原子面からの散乱線の回折角が異なることを利用する角度掃引法が普通に行なわれる。しかしこの方法では、散乱線をとりに出すために、広い角度範囲に応じて容器に大きな窓をあけなければならない。これは高圧力発生上の弱点となる。核理研の中性子線回折のようなエネルギー分散法 (TOF 法) によれば、窓は望みの回折角に相当する部分だけにあければ良いから、この点で有利である。

中性子線の干渉性散乱振幅は、原子の種類によって正や負の値をとる。適当な合金あるいは化合物では、干渉性散乱を零にすることもできる。これを高圧容器として試料を囲めば、容器には全く煩わされずに試料だけからの回折線を得ることができて、大そう具合が良い。

高圧力下の中性子線回折には、Ti Zr 合金製高圧セルを用い、単色線により角度掃引を行な

うもの<sup>1)</sup>と、材料試験炉を線源とし、アルミナ質高压セルを用いたTOF法によるもの<sup>2)</sup>などが報告されている。

著者たちは高压力下の物性研究にたずさわって経験を積み、X線回折については、テトラヘドラルプレスを用い、角度掃引法で測定を行なっている。核理研の中性子回折の設備を利用すれば、上述のような数々の利点をもつ測定を行なうことができ、これは大いに魅力的なことである。そこで高压力下の中性子線回折を、氷の高压相ⅦとⅧとについて行なうことを計画し、1973年以来装置の整備と測定とを行なってきた。この報告では、試作した高压力発生装置とその特性について、あらましを述べる。

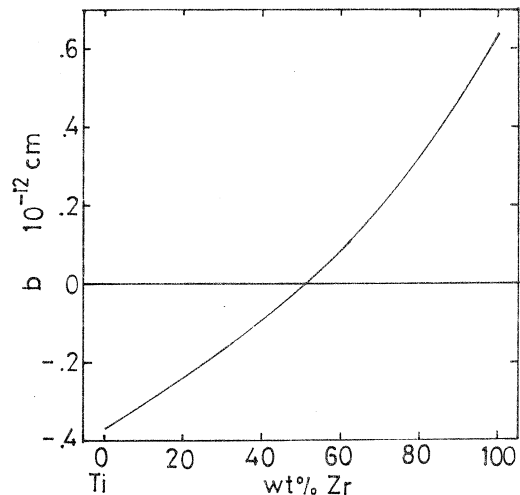
## § 2. 圧力容器

核理研の中性子源からは、はゞ $40 \times 40 \text{ mm}^2$ の大きさで線束が得られる。水平面上に回折角を設定すれば、角度分解能を高めるには、鉛直方向に長い棒状線束を使うのが有利である。この線束を十分に利用するには、試料も鉛直棒状とすることになり、これを加圧するには、鉛直軸の上下方向から圧縮する、ピストン・シリンダ型高压発生装置となる。

圧力容器の材質としては、Ti-Zr合金<sup>3)</sup>を選んだ。波長 $1.08 \text{ \AA}$ の中性子線に対して、干渉性散乱振幅はTiが $-3.3 \times 10^{-13} \text{ cm}$ 、Zrが $+6.31 \times 10^{-13} \text{ cm}$ である。したがって完全固溶体を作るTi-Zr合金の散乱振幅は、

第1図に示すような組成変化を示し約53wt% (37at.%)Zrで零となる。50wt% Zrでも $-0.4 \times 10^{-13} \text{ cm}$ と純Tiの1/10となるから、溶解に当って組成の変化をさほど気にすることはない。

99.9%程度の純度のTiおよびZrを原料とし、アーク溶解により鑄塊を作った。溶解は2段階に行ない、まず望みの組成の合金の小塊を多数作った後、それらをさらに溶解して望みの大きさの鑄塊とした。この大きさは、太さ3-4cm、長さ10-



第1図 Ti-Zr合金の熱中性子に対する干渉性散乱振幅

13 cmの丸棒状であった。これを切削油を十分にかけて、切り粉が発火しないように注意しながら切削加工し、中心軸に沿って径7-8 mmの丸孔を貫通させ、外部は研磨して仕上げた。これをシリンダーとし、上下からピストンを圧入して内部に高圧を発生するようにした。液体試料の容器には、厚さ0.2-0.3 mmのテフロン製のものを用いた。

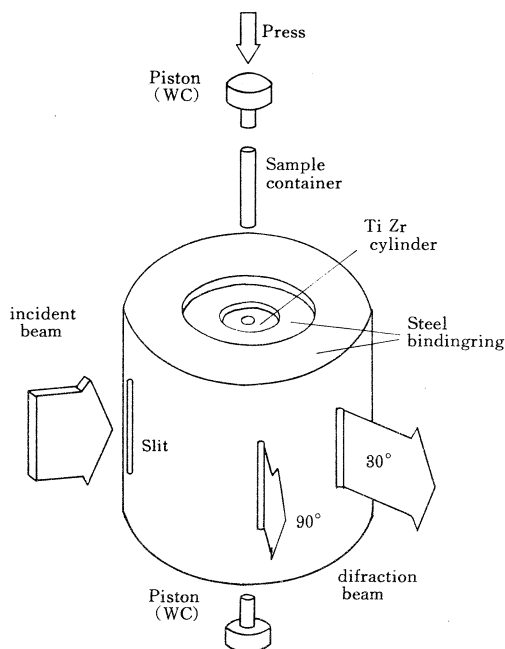
シリンダーの補強用として、鋼製のバインディングリングを二重に用いた。このありさまは第2図に示すとおりで、最外径12 cm、高さ10-12 cmである。

入射線、回折線のためのスリットは $0^\circ$ 、 $30^\circ$ 、 $60^\circ$  および $90^\circ$ の位置に設けた。

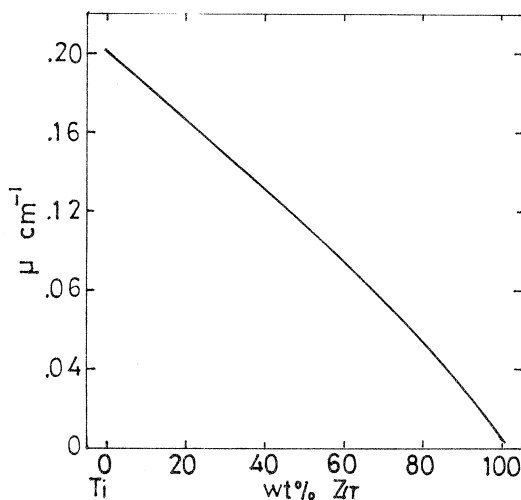
スリット幅は外側リングで5-7 mm、内側で4-5 mm、高さは外側4-5 cm、内側3.5-4 cmとした。これを50トンプレスにとりつけ、全体をデバイ装置用テーブル上に固定した。

圧力の目標値は25 kbar程度で、ピストンシリンダ型装置としては、ほぼ妥当な値と考えられる。

Ti-Zr合金の熱中性子線の吸収係数は第3図に示すとおりである。Zrの吸収係数は極めて小さいが、53wt% Zrでの値は $0.105 \text{ cm}^{-1}$ であって、多くの物質中で中位の少し下というぐらいである。



第2図 Ti-Zr合金を圧力容器とした、ピストンシリンダ型高圧発生装置



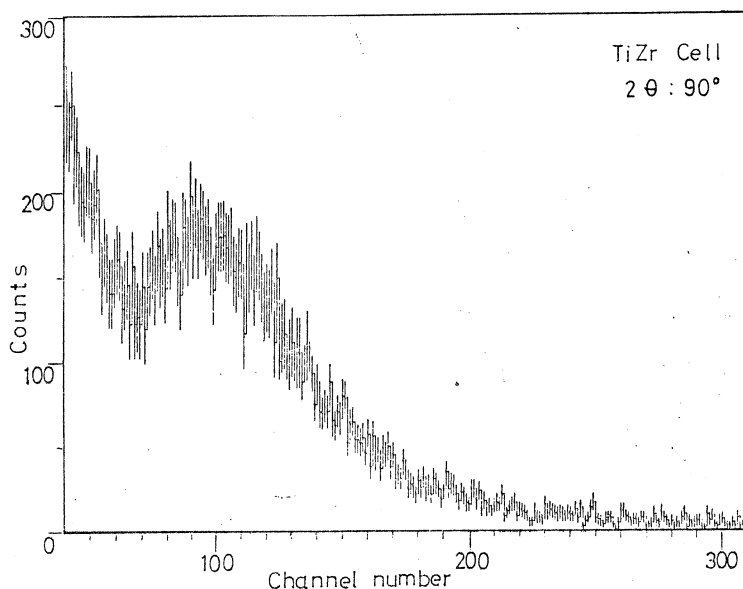
第3図 Ti-Zr合金の熱中性子に対する吸収係数

### § 3. TiZr合金高圧容器の中性子線特性

上に示したように、Ti-Zr合金の干渉性散乱は零となるが、非干渉性散乱は零とならない。



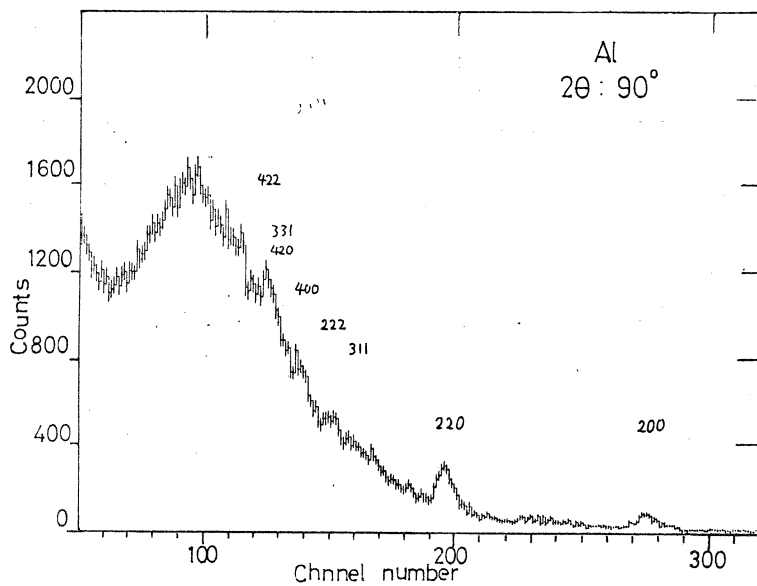
前者はTi-Zr合金の六方晶からの回折線を与えるべきもので、これが零であるから、後者だけ、すなわち入射中性子のエネルギー強度分布に相応する散乱線だけを与える。第4図に圧



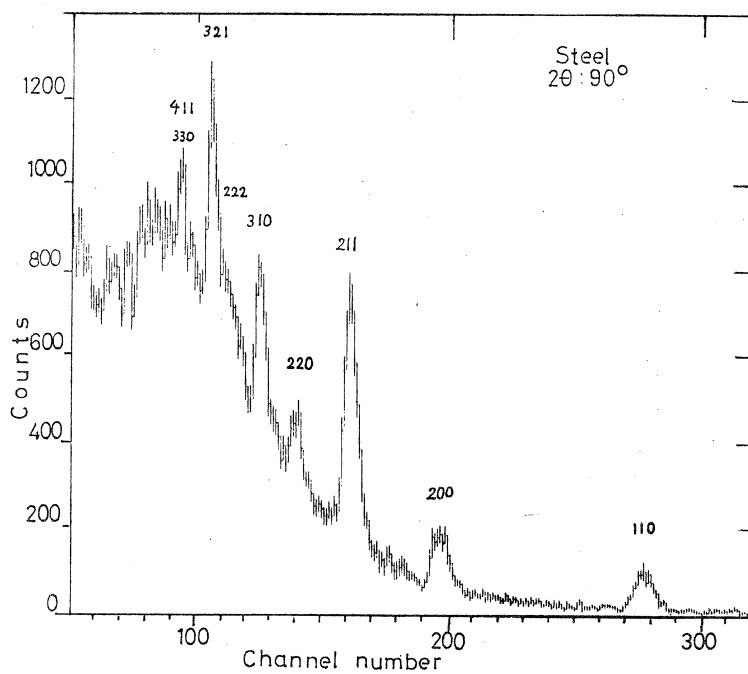
第4図 試料を除いた高圧装置からの中性子線の散乱

力容器だけからの散乱線のTOF計数値を示す。中心部は空であるが、ここに計数されたものはTi-Zr合金の非干渉性散乱に相当すると考えられる。チャンネル番号90を中心として、計数値が幅広いピークを作り、かなり大きな凹凸がある。これは(1)計数値が不足なために生じたものか、(2)線源のエネルギー分布がこのようであるのか、(3)TiとZrの配置に何かの規則性がある干渉性散乱を生じたものかなどと考えられる。同時に行なわれている他の測定の結果と比較すると、どれにも共通にあらわれていることから、(1)、(2)であって(3)の可能性はまずないと考えられる。

このような、容器だけから生じる散乱線が、試料からの散乱線と重なった時の様子を見るために、Alあるいは鋼の多結晶体の棒を中心置いて測定した結果は、第5、6図のようになった。Feの干渉性散乱振幅は $+9.51 \times 10^{-13}$  cm, Alは $+3.45 \times 10^{-13}$  cmで、Feは物質の中で大きい方、Alは中位のものである。Feの回折線の強度は十分であって、Ti-Zr容器に妨げられずに良い結果が得られている。 $2\theta$ を適当に選んで100チャンネル附近に来るようにした回折線の強度は十分で、立ち入った測定にも利用できるであろう。これにくらべて、Alの場合はあまり良好とは云えない。しかし注意深く測定、解析をすれば、十分な結果が得られるであろう。



第5図 Al多結晶棒からの中性子の回折



第6図 鋼多結晶棒からの中性子の回折

う。散乱振幅の小さい原子すなわちLi, V, Coなどを含む物質の場合には, かなり測定が困難になるものと考えられる。

#### § 4. 加圧したNaCl多結晶の中性子回折

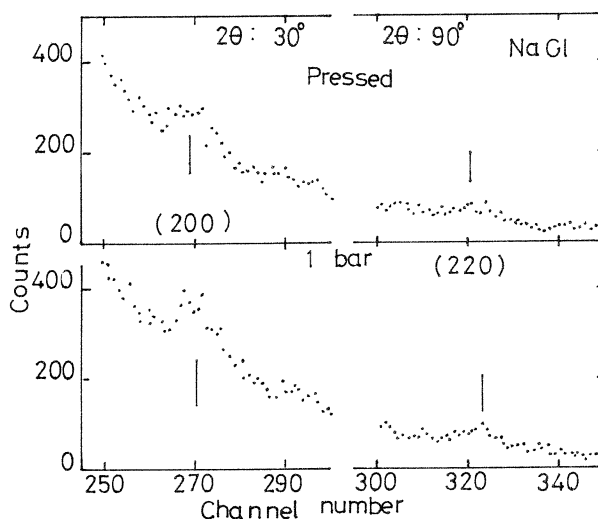
NaCl について, Decker が状態方程式を導いて格子常数と圧力の関係を算出<sup>4)</sup>しており, 高压下の回折測定で, 圧力の標準として用いられている。

高压力下でも固化しにくく, 水素原子を含まない液体である二硫化炭素CS<sub>2</sub>を圧力媒体として用い, NaCl の粉末と共にシリンダの中に入れて加圧し, 中性子線回折の測定を行なった。結果は第7図に示すとおりで,

全計数値が少ないために, 回折ピークの高さは低い。強度の強い(200), (220)について, 1気圧の状態と加圧状態との回折線のチャンネル位置のずれから, 格子常数の変化は $-\Delta a/a \approx 0.08$ , 圧力6 kbar と求められる。

この測定では, 1気圧で約5時間, モニタ計数値39,000, 高压下で約3時間, モニタ計数値28,000であった。少なくとも20時間程度の測定が行なえれば,

回折線の強度も十分となり, かなり精度の高い測定を行なうことができるものと期待される。



第7図 CS<sub>2</sub>を媒体として測定したNaCl粉末からの回折ピーク

本研究の実施にあたっては, 核理研の渡辺昇氏および新村信雄氏のご教示とご支援とをいただいた。両博士に深く感謝する。

Ti Zr合金の鋳造は, 金属材料研究所試料作成室の山田務氏が行ない, 高压力発生装置は同所工場において製作された。すぐれた技術によって本研究を支援されたことを感謝する。

## 参 考 文 献

- 1) D. F. Litvin and E. G. Ponyatovskii : Sov. Phys. Cryst. **11** ( 1966 ) 322.
- 2) R. M. Brugger, R. B. Bennion and T. G. Worlton : Phys. Lett. **24 A** ( 1967 ) 714.
- 3) A. G. Ingram, D. N. Williams and H. R. Ogden : J. Less-Comm. Metals **4**  
( 1962 ) 217.
- 4) D. L. Decker : J. Appl. Phys. **42** ( 1971 ) 3239.

## II-3 An Outline of a Stationary-Rotating Paired Crystals Neutron Spectrometer Installed at an Electron LINAC

K. Kai, Y. Kamisada, K. Suzuki and N. Watanabe<sup>†</sup>

*The Research Institute for Iron, Steel and Other Metals,  
Tohoku University, Sendai - 980, Japan*

<sup>†</sup>*Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, Sendai - 982, Japan*

### § 1. Introduction

Aimed at the study of dynamic structure of liquids, a new spectrometer for the measurement of inelastic neutron scattering was constructed using a pulsed neutron source installed at 300 MeV Tohoku University electron LINAC. A double crystals monochromator system was forced to be adopted because of the limited space of a LINAC experimental room. However, this system has an advantage concerning avoiding the strong gamma-ray flash contaminated in the initial white neutron pulse generated at the neutron source.

As described in a previous report<sup>1)</sup> in 1975, this spectrometer had been operated in a configuration of double stationary crystals monochromator during the beginning course of this research project. In this work the second stationary crystal monochromator was replaced by the rotating crystal monochromator which could not only remove the order contamination in an incident neutron beam but also make a neutron burst narrow. A short description will be given below about the instrumentation of the stationary-rotating paired crystals neutron spectrometer and preliminary measurement of a standard vanadium sample done

by this spectrometer.

## § 2. Spectrometer

A schematic diagram of the stationary-rotating paired crystals neutron spectrometer is shown in Fig. 1. Specifications of the spectrometer are same to those of the double stationary crystals neutron spectrometer described in a previous report<sup>1)</sup> except that a rotating crystal monochromator is equipped instead of the second stationary crystal monochromator.

White pulsed neutrons produced from a neutron source<sup>2)</sup> installed at 300 MeV electron LINAC are converted to monochromatic pulsed neutrons using Bragg reflection by a stationary crystal.

Then the order contamination of monochromatic pulsed neutrons is removed as well as the burst width of the pulsed neutrons is reduced by a rotating crystal monochromator. Clean and narrow incident monochromatic pulsed neutrons impinge on a sample through a Sollar slit collimator parallel to a path of the initial white pulsed neutrons. Finally neutrons scattered from the sample are detected by means of time-of-flight method using He-3 counter banks.

Operating conditions of 300 MeV electron LINAC during

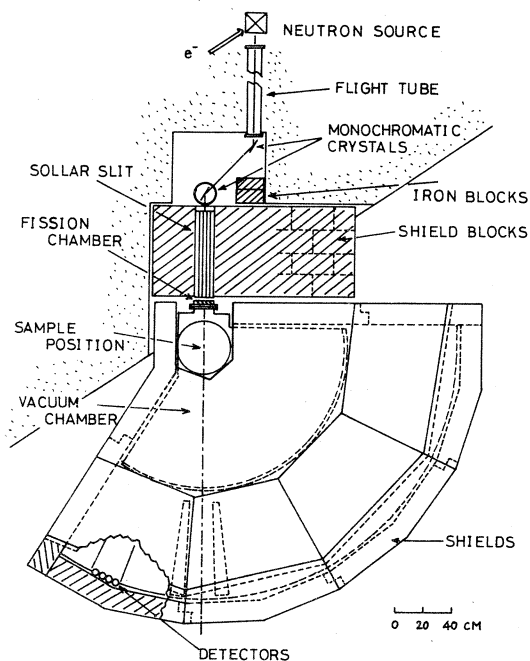


Fig. 1 Horizontal view of a stationary-rotating paired crystal spectrometer.

this work are entirely same to those in total scattering experiments.<sup>3)</sup> The stationary crystal monochromator is an assembly of four pyrolytic graphite plates ( $2'' \times 4'' \times 1/8''$ , mosaic spread:  $2.3^\circ$ ) with  $4'' \times 4''$  area and  $1/4''$  thickness, while the rotating crystal monochromator has the two pyrolytic graphite plates ( $2'' \times 4'' \times 3/16''$ , mosaic spread:  $3^\circ$ ) of which rotation is synchronized with a repetition frequency of the electron LINAC. Necessary energy of incident neutrons is chosen by the way of adjusting first a set angle of the stationary crystal and then tuning a delay of the firing time of the electron LINAC relative to the angular position of the rotating crystal.

An instrumental design of the rotating crystal monochromator is shown in Fig. 2. Two pyrolytic graphite plates are mounted together in the aluminum cylindrical rotor with 148 mm inner diameter and 3.0 mm thick wall of which rotation is driven by a three phase synchronous motor. The rotor is supported by two precision ball bearings which are placed on stainless steel shafts connected to top and bottom of the rotor. The revolution speed of the rotor is determined by the frequency of the input power supplied to the motor. The phase stability during rotating the rotor is controlled within 0.04 % for a 115 pps operation by means of negative feedback system using the control signal generated magnetically with the rate of 30

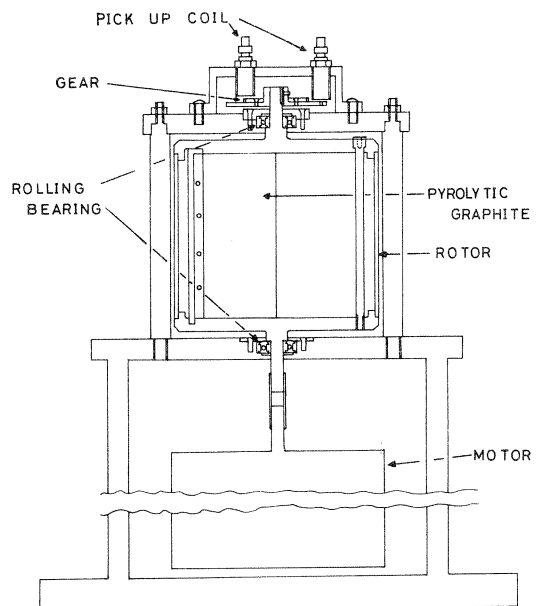


Fig. 2. Sectional view of the rotor accomodating pyrolytic graphites, 3 phase induction motor and pick-up coils.

pulses per revolution. The timing pulse to trigger the electron LINAC is obtained from the electrical signal which is induced in a magnetic coil by rotating a steel disc mounted on the top of the rotor, and then delayed by a variable delay unit such that neutrons with a wanted wavelength reach the rotating crystal at the proper instant when Bragg condition is satisfied between the angle of (001) plane of the crystal and the wavelength of the neutrons.

### § 3. Flux and Shape of Monochromatic Pulsed Neutrons

The flux of pulsed neutrons monochromatized by the single and double stationary crystals monochromator was measured as a function of neutron wavelength using two Bragg angles of  $2\theta_B = 45^\circ$  and  $90^\circ$ . In the single stationary crystal arrangement an U-235 fission chamber (area:  $75 \text{ cm}^2$ ) was placed at the position of 32 cm apart from the first crystal in the case of  $2\theta_B = 90^\circ$  and 45 cm in the case of  $2\theta_B = 45^\circ$ , respectively. On the other hand an U-235 fission chamber was always set at the position of 30 cm apart from the second stationary crystal for the both Bragg angles in the case of the double stationary crystal arrangement. Results are summarized in Table I. The flux is usually governed by the energy spectrum of original white pulsed neutrons, the solid angle subtended by the monochromator area, the counter efficiency and the crystal reflectivity, of which the most predominant and crucial factor is the first term in the present instrumental arrangement.

The flux of pulsed neutrons monochromatized by the stationary-rotating paired crystals monochromator was also measured using following experimental conditions, to say, Bragg angle:  $2\theta_B = 70^\circ$ , direction of rotating the crystal: clockwise and anti-clockwise and detector: He-3 counter with 1" diameter



Table I. Flux and full width at half maximum of peak (FWHM) of neutrons reflected by single and double stationary crystals arrangements, using an U-235 fission chamber.  $R_{\max}$  is a ratio of peak intensity  $I_{\max}$  at the distance in the text to that at the end of the entrance beam tube.  $I_{\text{int}}$  is a integrated neutron intensity per  $10^3$  monitor counts.

$2\theta_B$ ( $00l$ )	$\lambda$ (Å)	$I_{\max}$ (n/cm <sup>2</sup> )	FWHM (ch.)	$R_{\max}$ (%)	$I_{\text{int}}$ (n/cm <sup>2</sup> )
Single P. G. Crystal					
45° (002)	2.61	$8.0 \times 10^2$	14.0	40.0	$11.4 \times 10^3$
90° (004)	2.36	7.5	8.0	15.6	6.0
90° (002)	4.72	1.7	14.5	42.3	2.4
Double P. G. Crystal					
45° (002)	2.61	2.4	13.5	11.9	3.2
90° (004)	2.36	0.97	8.0	2.0	0.77
90° (002)	4.72	0.63	14.0	16.0	0.88

placed at the positions of 85, 107 and 284 cm apart from the rotating crystal. Figure 3 shows the comparison of the flux and shape of monochromatic pulsed neutrons between the double stationary crystals monochromator and the stationary-rotating paired crystals monochromator. This comparison clearly demonstrates that the use of the rotating crystal yields much narrower width of monochromatic pulsed neutrons without a great loss of the peak intensity. Observed pulse widths of monochromatic pulsed neutrons are summarized as a function of the detector position and direction of rotation in Table II, to-

gether with calculated pulse widths.

Fig. 3. Pulse shapes from the double stationary crystals (wide width) and the stationary-rotating paired crystals monochromator (narrow width); Bragg angle :  $2\theta_B = 70^\circ$ , recorded at the sample position by a He-3 detector for  $10^3$  monitor counts ( $\approx 4$  sec), slitwidth : 6 cm (horizontal)  $\times$  10 cm (vertical), direction and speed of rotating crystal : anticlockwise for 115 pps.

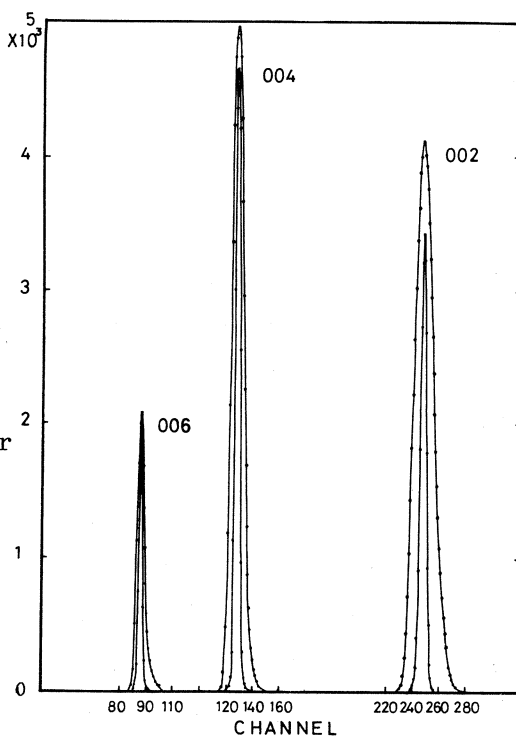


Table II. Pulse width at various distances from the rotating crystal (in units of  $16 \mu\text{sec}$ ); Bragg angle :  $2\theta_B = 70^\circ$ , slit width : 2 cm (horizontal)  $\times$  10 cm (vertical).

Plane Wavelength	Direction of rotation	Detector distances					
		0.85 m		1.07 m		2.84 m	
		Obs.	Calc.	Obs.	Calc.	Obs.	Calc.
(002)	ACW	4.6	5.3	4.8	5.5	7.8	9.1
3.76 A	CW	7.6	7.1	8.0	7.0	12	9.3
(004)	ACW	2.8	3.8	3.5	4.0	3.9	4.2
1.88 A	CW	6.0	4.7	7.0	4.7	9.0	5.5

#### § 4. Calculation of Resolution

The resolution of the rotating crystal spectrometer has so far been discussed by Brockhouse<sup>4)</sup>, Carvalho *et al.*<sup>5)</sup>, Harling<sup>6)</sup>,

Furrer<sup>7)</sup> and Meister *et al.*<sup>8)</sup> in the case of using conventional steady state nuclear reactors. However, relative contributions to the resolution in the spectrometer using electron LINAC are different from those of the reactor experiment. Brief discussions are described on the calculation of the resolution of the stationary-rotating paired crystals neutron spectrometer.

The measured time spread of incident pulsed neutron  $\Delta T_1$  is expressed in terms of the Gaussian function approximation as follows:

$$\Delta T_1 = \left[ (\Delta t_0)^2 + (\Delta t_1)^2 + (\Delta t_2)^2 + (\Delta t_3)^2 + \sum_{i=4}^n (\Delta t_n)^2 \right]^{\frac{1}{2}}, \quad (1)$$

where  $\Delta t_0$  is the pulse width at the moderator surface. This is estimated as 60 and 45  $\mu$ sec for the neutron with  $\lambda = 3.76$  A and 1.88 A in the present work.

The time spread  $\Delta t_1$  is due to collimation angular divergence of incident ( $\alpha_1$ ) and reflected ( $\alpha_2$ ) neutrons. This item is written by Furrer<sup>7)</sup> as follows:

$$\Delta t_1 = \left[ \frac{1}{2\pi\nu} \frac{\alpha_1^2 - \alpha_2^2}{\alpha_1^2 + \alpha_2^2} - \frac{L_1}{v_0} \cot \theta_B \right] \frac{(\alpha_1^2 + \alpha_2^2)^{\frac{1}{2}}}{2}, \quad (2)$$

where  $\Delta \theta_c \equiv (\alpha_1^2 + \alpha_2^2)^{\frac{1}{2}}/2$  is the average collimator angle seen by the rotating crystal,  $L_1$  is the distance between the source and sample, and  $v_0$  is the velocity of the monochromatic beam.

In the present work  $\Delta \theta_c$  is about  $1.7^\circ$ .

The time spread  $\Delta t_2$  is due to Doppler effect. Meister and Weckermann<sup>8)</sup> have written this terms as

$$\Delta t_2 = \frac{y}{v_0 \cos \theta_B} \left[ (1 \mp \cos^2 \theta_B) \pm \frac{1}{v_0} 2\pi\nu L_1 \sin \theta_B \cos \theta_B \right], \quad (3)$$

where  $y$  is the crystal size, and upper and lower signs corresponds to anti-clockwise and clockwise rotation, respectively. In the present work  $\Delta t_2$  for anti-clockwise rotation is rather shorter than that for clockwise at the sample position.

The time spread  $\Delta t_3$  is that of monochromatic pulsed neutrons caused by different divergence angle of Bragg reflection. This is written as

$$\Delta t_3 = \frac{1}{2\pi\nu} \Delta\theta_B, \quad (4)$$

where

$$\Delta\theta_B = \left[ \frac{\alpha_1^2 \eta^2 + \alpha_2^2 \eta^2 + \alpha_1^2 \alpha_2^2}{\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + 4\eta^2} \right]^{\frac{1}{2}},$$

and  $\eta$  is the mosaic spread of the rotating crystal. In the present work  $\Delta t_3$  is  $45 \mu\text{sec}$ , since  $\Delta\theta_B$  is about  $1.8^\circ$ .

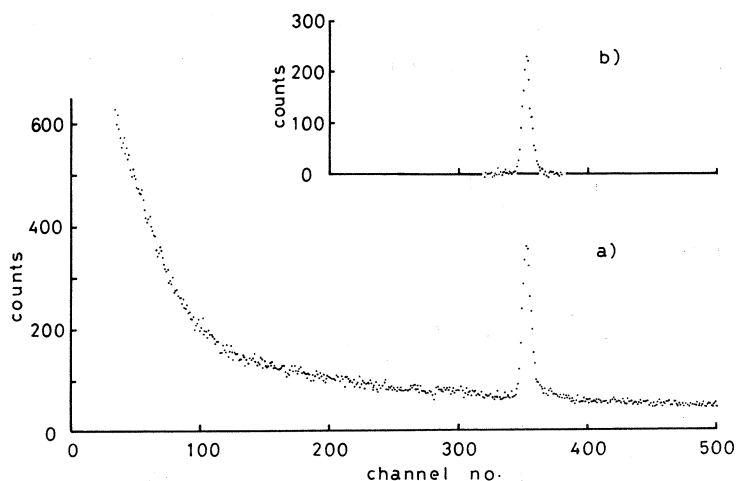
Contributions of  $\Delta t_n$  ( $n \geq 4$ ) come from neutron flight path length ambiguity, detector size, time-channel width and so on. These terms give rather small values ( $< 10 \mu\text{sec}$ ) than first four terms. Calculated resolutions of monochromatic incident pulsed neutrons are listed in Table II.

Our discussion is limited to the case of elastic scattering. The time spread of scattered neutrons  $\Delta T_2$  is expressed as follows:

$$\Delta T_2 = \left[ \{ (\Delta t_0)^2 + (\Delta t_c)^2 \} + (\Delta L_2 t_2 / L_2)^2 + \frac{1}{4} (\Delta E_1 / E_1)^2 (L_1 + L_2)^2 (t_2 / L_2)^2 \right]^{\frac{1}{2}}, \quad (5)$$

where  $\Delta t_c$  is the channel width of the time analyser,  $L_2$  is the distance between the sample and counter bank, and  $\Delta L_2$  is the ambiguity of the scattered neutron path length. The calculated value of  $\Delta T_2$  for the neutron with  $\lambda = 3.76 \text{ \AA}$  is  $112 \mu\text{sec}$  in the present bank of He-3 counters and the resultant energy resolution is estimated as  $0.76 \text{ meV}$ . Figure 4 shows a typical measurement of the peak width in the elastic scattering from a vanadium standard sample. The observed value of  $\Delta T_2$  is about  $122 \mu\text{sec}$ .

Fig. 4. Vanadium spectra recorded by the bank of four He-3 detectors at  $2\theta_B = 30^\circ$ , a) observed data with vanadium sample of 10 mm diameter for 9 h; b) vanadium spectrum with background removed, slit width:  $2\text{ cm} \times 10\text{ cm}$ .



## § 5. Conclusions

The rotating crystal monochromator as shown in Fig. 2 has been continuously operated for long periods without any serious troubles. We are sure that the rotating crystal monochromator installed at the electron LINAC is a quite simple and stable device to permit easy maintenances. However, the present situation of the instrumentation is not fully versatile in the measurement of inelastic scattering including high energy transfer. In fact the spectrometer has been wanted to be effectively operated up to the incident energy approaching to 100 meV, since the pulsed neutron source based on the electron LINAC has originally a much higher neutron flux in the high energy region compared to conventional nuclear reactors. As shown in Fig. 4(a), a shielding problem is the most defective point in the present arrangement of the spectrometer, which must be repaired as soon as possible.

### Acknowledgment

We would like to thank Messrs. T. Kubota and M. Muto, Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University for the design and maintenance of electronic units controlling the rotating crystal monochromator. We would also acknowledge members of neutron group in our laboratory for their help during the course of this project.

### References

- 1) K. Kai and K. Suzuki: Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **8** (1975) 281.
- 2) N. Watanabe, M. Kimura and H. Takahashi: *Proc. of the Joint Meeting on Pulsed Neutrons and their Utilization* (Euratom-Japan Atomic Energy Society, Ispra, 1971) p.255.
- 3) K. Suzuki, M. Misawa, K. Kai and N. Watanabe: Nucl. Instr. (1977) in press.
- 4) B. N. Brockhouse: *Inelastic scattering of neutrons in solids and liquids* (I.A.E.A., Vienna, 1961) p.113.
- 5) F. Carvalho, G. Ehret and W. Gläser: Nucl. Instr. **49** (1967) 197.
- 6) O. K. Harling: Rev. Sci. Instr. **37** (1966) 697.
- 7) A. Furrer: Acta Cryst. **A27** (1971) 461.
- 8) H. Meister and B. Weckermann: *Inelastic scattering of neutrons in solids and liquids* (I.A.E.A., Vienna, 1972) p. 713.

## II-4 長波長中性子の透過率の測定による格子欠陥の研究

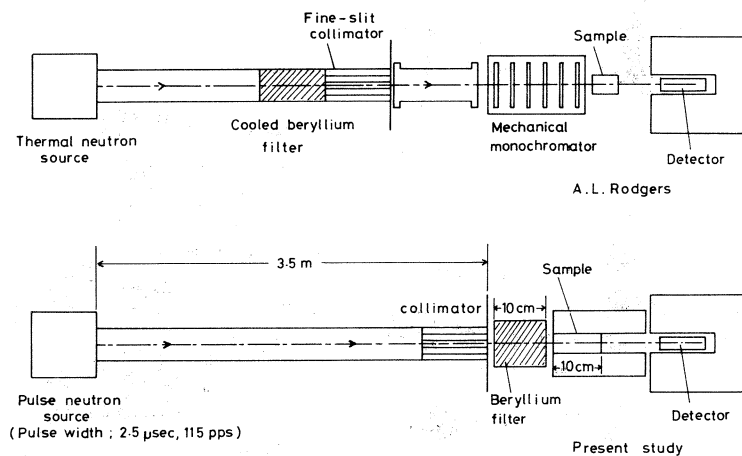
工学部, 核理研\*

山口 貞衛・藤野 豊・渡辺 昇\*

### § 1. 序

放射線照射などにより固体中に作られた格子欠陥の形, 大きさ, 数などをしらべる方法の一つにブラッグカットオフ波長 ( $\lambda_B = 2d_{\max}$ , ここで  $d_{\max}$  はブラッグ反射が可能な最大の面間隔) 以上の領域における中性子の全散乱断面積の波長依存性の測定がある。  $\lambda_B$  以上の波長領域において, 中性子の散乱は結晶内の乱れに関する。更に, 中性子においては, 全断面積のうち吸収断面積の割合が小さいものが多いので, 全断面積の測定から全散乱断面積 (欠陥による散乱断面積) の波長依存性を比較的良い精度で求めることができる。

従来の研究における長波長中性子の透過率の測定は結晶モノクロメーターを利用することがほぼ不可能なために, メカニカルモノクロメーターを用いて行なわれている。第1図(a)にその装置の概略を示す。この装置において, 中性子の波長はメカニカルモノクロメーターの回転数により決定される。これに対して, 我々は第1図(b)に示す簡単な装置を用い透過率の波長依存



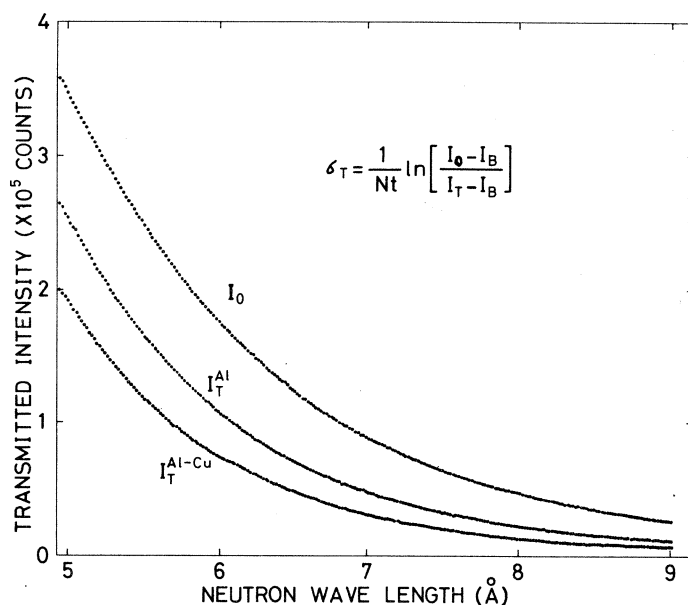
第1図 長波長中性子の透過率測定装置の基本構成図 ; (a)メカニカルモノクロメーター法, (b)飛行時間法

性を測定した。ここでは、パルス中性子を約3.5m走らせたのちに試料に当て、透過スペクトルを得る。この場合に、波長は透過中性子の飛行時間により決定される。以下に、この装置を用いて行った予備実験により得られた結果を記述する。

## § 2. 実験結果

### 2.1 Al-Cu 合金の析出

第2図に飛行時間法により得たスペクトルの例を示す。 $I_0$  は入射中性子のスペクトル(試料



第2図 飛行時間法による透過中性子スペクトル

なしの場合),  $I_T^{Al}$  は10cmの純Al試料の透過スペクトル,  $I_T^{Al-Cu}$  は4at. %Cuを含むAl合金の透過スペクトルである。本実験においては $\lambda_B$ から9Å迄の波長域で測定がなされた。この結果から、全断面積 $\sigma_T$ を下の関係を用いて決定した。

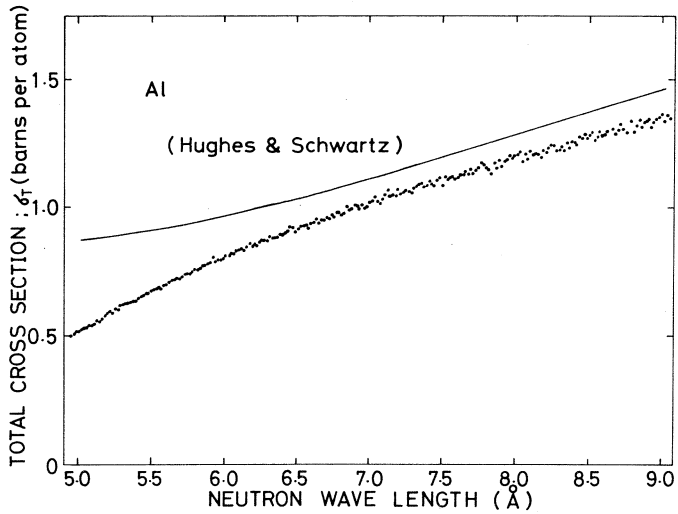
$$\sigma_T = \frac{1}{Nx} \ln \left[ \frac{I_0 - I_B}{I_T - I_B} \right]$$

この式において $N$ は試料中における単位体積当りの原子数,  $x$ は試料の長さ,  $I_B$ はバックグラウンドである。5Åから9Åに迄の長波長領域における全断面積の波長依存性を第3,4および5図に示す。第4図および第5図に示した全散乱断面積より非干渉性散乱断面積, 吸収断

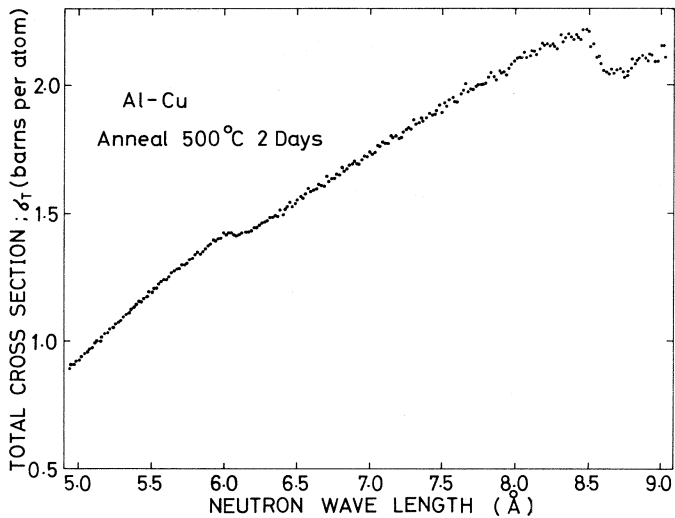


面積を差し引くと全散乱断面積が求まる。第6図にその結果を示す。500°Cにおいて焼鈍後徐冷した試料より得られた全散乱断面積の波長依存性は体積百分比で約5%のCuAl<sub>2</sub>が析出したとして計算された全散乱断面積とよく一致する。

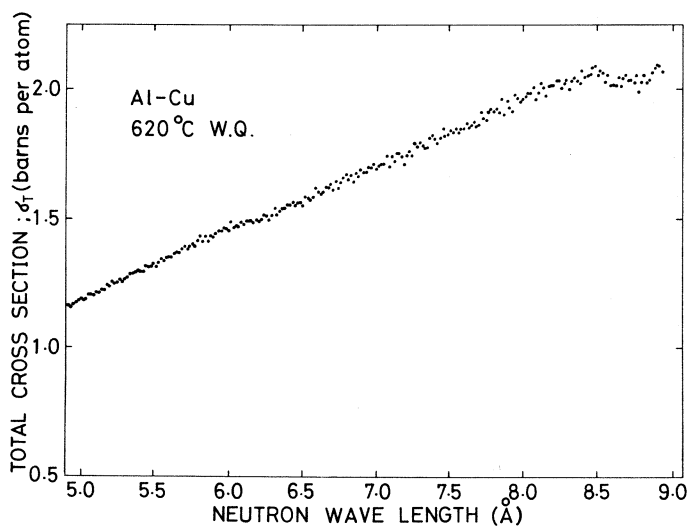
620°Cより氷水中に焼入れた試料の全散乱断面積(第6図(b)に示す)は一定でなく、異常が認められる。これはAl中のCu原子はランダムに分布せず、クラスターを形成していることを示唆するものと思われる。



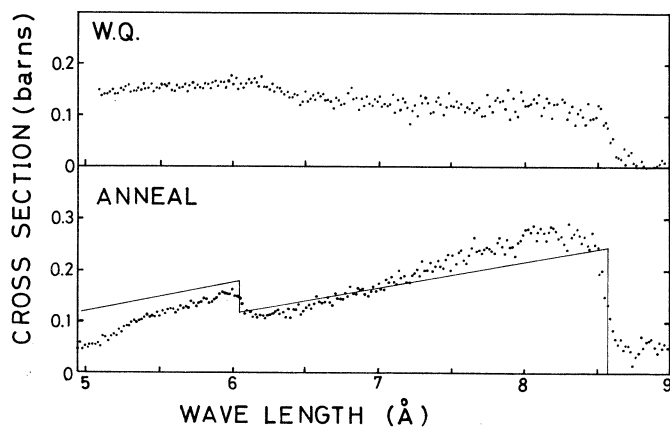
第3図 Alの全断面積の波長依存性



第4図 500°Cにおいて焼鈍後徐冷したAl-4at.% Cu合金の全断面積



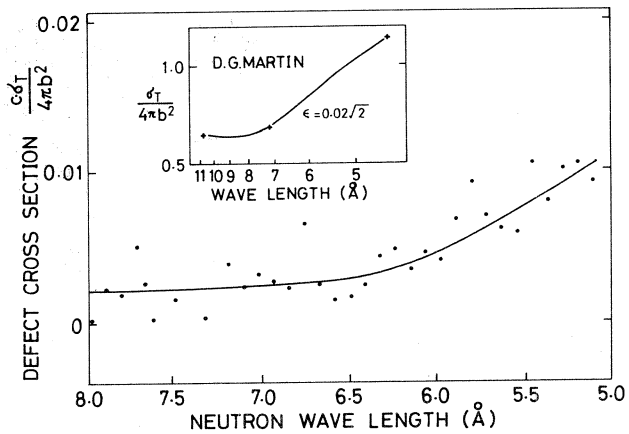
第5図 620°Cより氷水中に焼入れしたAl-4at.% Cu合金の全断面積



第6図 Al-4at.% Cu合金の全散乱断面積  
(a) 500°C焼鈍後徐冷, (b) 620°C焼入

## 2.2 Al中の焼入れ空孔の微細構造

650°Cより氷水中に焼入れしたAlの全断面積と低温において十分に焼鈍したAlの全断面積との間で差をとることにより、Al中の欠陥断面積が得られる。第7図にその結果を示す。若し空孔の回りの格子原子のずれがないならば、欠陥断面積は波長によらず一定である。これに対して、若し空孔の回りの格子原子がずれている場合には欠陥断面積に波長依存性が現われる。



第7図 焼入れしたAlの欠陥断面積

第7図(b)はMartin<sup>1)</sup>による計算曲線である。(空孔の回りの格子原子は約2.8%内側にずれているとして計算した)。第7図(a)の結果はMartinの計算と同じような傾向が認められることにより、Al中の空孔回りの原子は内側にずれるものと思われる。

### 参 考 文 献

- 1) D. G. Martin . Phil. Mag. **5** (1960) 1235.

### III. 放 射 化 学

## Ⅲ-1 鉛のチオナリド錯体としての溶媒抽出と 光量子放射化分析への適用

理学部化学, 教養部\*

対馬幸一・加藤豊明\*・鈴木信男

### § 1. 緒 言

環境物質中の鉛の定量は、従来、比色法、原子吸光法等によって行なわれ<sup>1,6)</sup>、ジチゾンやカルバミン酸誘導体を抽出試薬とする前処理分離法を併用する事が多かったが、これらの試薬は溶液中では不安定で酸化されやすい難点が指摘されている。<sup>7)</sup> 本研究では、鉛の重量分析用有機試薬として知られているチオナリド<sup>8-10)</sup>を抽出試薬として用い、鉛の抽出挙動を基礎的に検討し光量子放射化分析への適用を試みた。すなわち、<sup>203</sup>Pbをトレーサーとして用い、鉛の分配比とチオナリドの濃度、pH、抽出溶媒、共存塩類との関係を調べた結果、 $5 \times 10^{-4}$  mol/lチオナリド-MIBK溶液で抽出するとほぼ完全に抽出される事が明らかとなった。ライナックからの30 MeV制動輻射で鉛の放射化分析にチオナリド錯体としての抽出分離法を適用して鉛を分析する方法を、NBS生物体標準試料 Orchard Leaves<sup>11)</sup>を用いて検討した。

### § 2. 実 験

#### 2.1 試 薬

チオナリド ( $C_{10}H_7NHCOCH_2SH$ ) は市販品をアセトン-水混合溶液より2回再結晶して精製した。メチルイソブチルケトン (MIBK) は市販特級品を無水硫酸カリウムで脱水したのち蒸留精製した。<sup>203</sup>Pbトレーサー溶液は一定量のPbOを30~60 MeV  $\gamma$ 線为数時間照射した後、硝酸に溶解し調製した。

#### 2.2 装 置

$\gamma$ 線源は東北大学原子核理学研究施設の電子ライナックを利用した。電子加速エネルギーを30~60 MeVとし、厚さ2 mmの白金板で制動輻射に変換した。放射能測定は井戸型NaI(Tl)検出器-シングルチャンネル $\gamma$ 線計数装置と、68 cc Ge(Li)検出器-4096チャンネルPHAを用いた。

#### 2.3 方 法

鉛の分配比を求めるには、所定のpHに調節した3-5 ppmPb(II)を含む水相10 mlと、等

容積のチオナリド-MIBK溶液を1時間振とうしたのち両相を分液し両相の放射能を計測した。

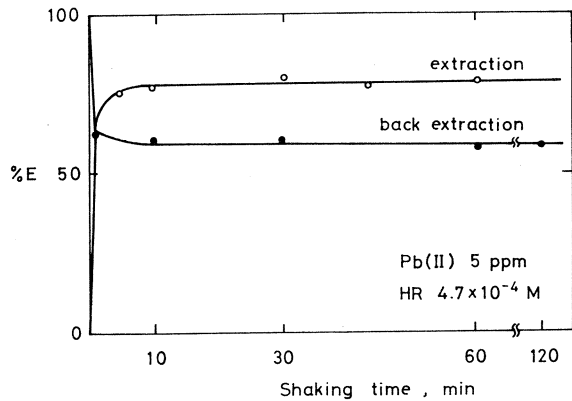
### § 3. 結果と考察

#### 3.1 鉛-チオナリド系の溶媒抽出

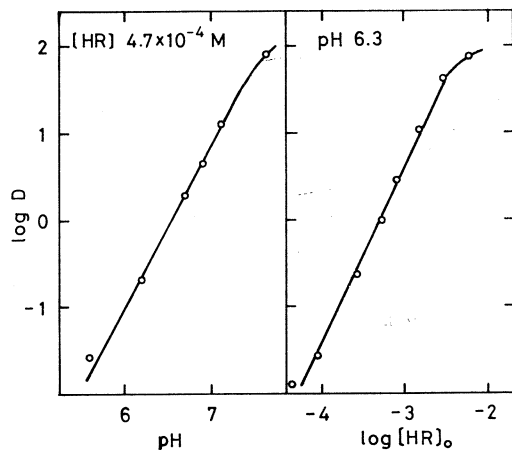
鉛の分配平衡に要する時間を調べるために抽出率と逆抽出率の振とう時間による変化を調べたところ、第1図の様に正逆両方向の抽出とも数分のうちに平衡に達し、1時間の振とうでも抽出率に変化は無かった。第2図に

は鉛の分配比と pH 並びに試薬濃度の関係を示した。log D と pH, log D と log [HR]。の間には両方とも傾き 2 の直線関係が得られ、鉛は水溶液中で 2 価イオンとして存在し、試薬との反応比は 1 対 2 である。即ち、2 価の鉛イオンと一塩基酸二座配位リガンドが反応比 1 対 2 で錯体が生じる典型的な抽出挙動を示している。チオナリドによる鉛の抽出曲線と逆抽出曲線を第 3 図に示す。試薬濃度が  $4.7 \times 10^{-4} \text{ mol/l}$  の時、鉛はチオナリド錯体として pH 6 付近から抽出され始め、pH 8 から 10 の間では完全だった。また MIBK 相に抽出された鉛は pH 5 以下の水相に容易に振り戻すことができる。

第1表には共存塩類の影響を示した。pH 9.6 の水相に種々の塩を共存させて鉛を抽出すると、酢酸、ホウ酸、シュウ酸、酒石酸、チオシアン酸塩では顕著な影響は認められず、

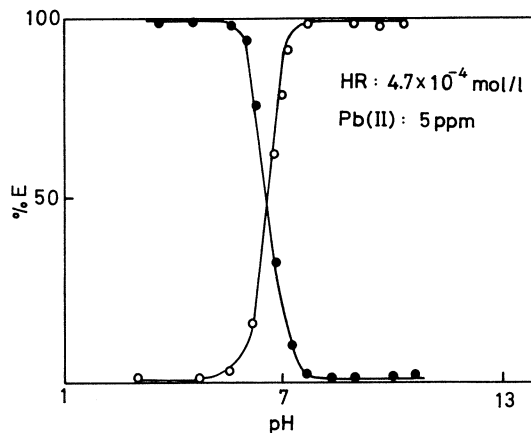


第1図 The effect of shaking time



第2図 log D vs pH & log D vs log [HR]。

クエン酸塩では若干抽出率が低下し、チオ硫酸、リン酸塩、EDTAイオンでは妨害した。また、生物体試料中の鉛の分析に本抽出法を適用する時に予想される多量の塩類の共存の例として、硝酸カルシウムの1.0 mol/lを含む水溶液から抽出したが、共存は結果に影響を与えなかった。チオナリドを溶解する有機溶媒をMIBK以外に色々変えて鉛を抽出した結果を第2表に示す。



第3図 Extraction & Back-extraction curves of Pb(II)

第1表 The effect of co-existing salts

	Concentration (mol/l)	pH	% E
NaOCOCH <sub>3</sub>	0.1	9.6	98.6
Na <sub>2</sub> B <sub>4</sub> O <sub>7</sub>	0.1	9.7	98.3
Na <sub>2</sub> C <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	0.05	9.5	98.1
Na <sub>2</sub> C <sub>4</sub> H <sub>4</sub> O <sub>6</sub>	0.1	9.5	97.8
KSCN	0.1	9.5	97.6
Na <sub>3</sub> C <sub>6</sub> H <sub>5</sub> O <sub>7</sub>	0.1	9.5	82.1
Na <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.1	9.5	13.3
Na <sub>2</sub> HPO <sub>4</sub>	0.1	9.6	7.6
	0.01	9.6	92.6
Na <sub>2</sub> EDTA	0.01	9.6	0
Ca(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	1.0	9.6	98.6

Pb(II) : 5 ppm

HR :  $5.0 \times 10^{-4}$  mol/l

第2表 The effect of organic solvents

Solvent	pH	% E
Nitrobenzene	10.2	99.4
Isoamyl acetate	10.2	99.2
Butyl acetate	10.2	98.8
n-Butanol	10.0	98.7
Chloroform	10.0	98.5
Methyl isobutyl ketone	10.1	98.2
Cyclohexanone	9.9	98.2
Diisobutyl ketone	9.9	98.2
Isoamyl alcohol	10.1	96.5
Benzene	10.2	96.0
Carbon tetrachloride	10.1	94.7
*Dibutyl ether	10.1	49.1

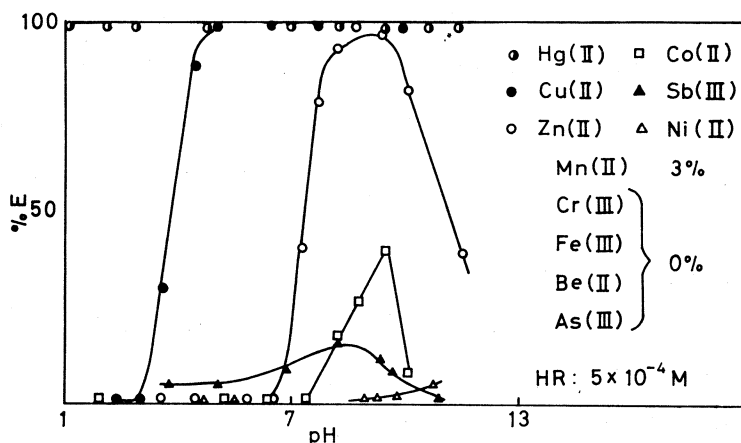
Pb(II) 5 ppm  
 HR  $5 \times 10^{-4}$  mol/l  
 \*HR  $2.5 \times 10^{-4}$  mol/l

チオナリド-有機溶媒溶液を pH 10 の水相と振って鉛を抽出したところ、一般に極性の大きな溶媒では好結果が得られ、ジブチルエーテルを除いて鉛は良く抽出され、MIBK 以外にニトロベンゼンとエステルは分配比が良い。

### 3.2 他の金属イオンの溶媒抽出

鉛の他の金属イオンの抽出挙動を pH を変化させて調べた。実験したのは Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Be, As, Sb, Hg でこれらのトレーサーを用いて検討した。トレーサーは  $^{59}\text{Fe}$ ,  $^{65}\text{Zn}$  は購入したものを使用した。他は東北大ライナックを利用して ( $r, n$ ), ( $r, pn$ ), ( $r, \alpha n$ ) などの光核反応で作成し、 $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{67}\text{Cu}$ ,  $^7\text{Be}$  はターゲットから無担体分離したものを使用した。実験は、トレーサーを含む金属イオン数 ppm を含む水相を、チオナリド-MIBK 溶液と 1 時間振とうして抽出した。鉛の最適抽出 pH 領域である 8 から 10 の間で抽出率が高いのは Hg, Cu, Zn の 3 種だけである。Hg は 9 N 硝酸溶液からも 100% 近く抽出され極めて抽出され易いが、鉛との分離は抽出後の有機相から鉛のみを逆抽出することにより容易に達成される。





第4図 Extraction curves of metals

### 3.3 NBS 標準試料 Orchard Leaves 中の鉛の放射化分析

放射化分析法は多くの元素について高感度の分析法となるが、鉛の放射化分析に適する核反応を第3表に示す。熱中性子による $(n, \gamma)$ 反応では適当な核的性質を有する残留核がなく、

第3表 Principal nuclear reactions of lead isotopes and interfering reactions in activation analysis

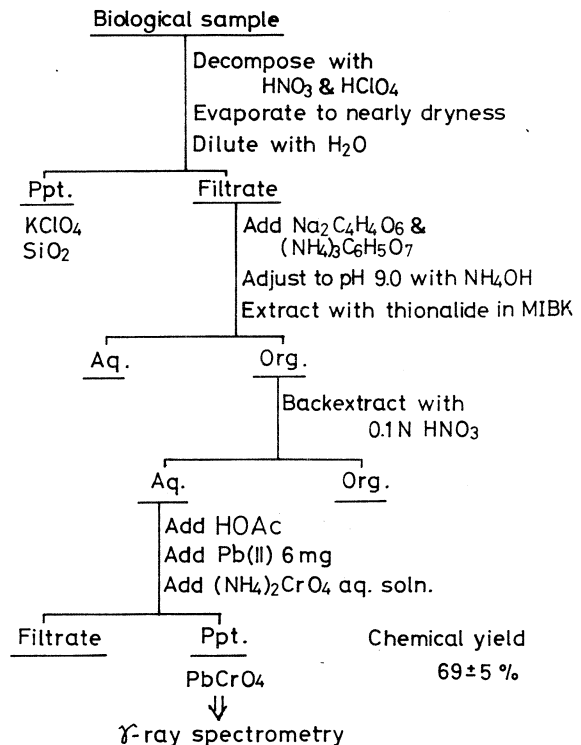
Reaction	Target abundance (%)	Half life	Principal $\gamma$ -ray (MeV)
$^{204}\text{Pb}(n, 2n) ^{203}\text{Pb}$	1.4	52.1 h	0.279
$^{204}\text{Pb}(n, n') ^{204\text{m}}\text{Pb}$	1.4	66.9 min	0.375, 0.90
$^{206}\text{Pb}(p, n) ^{206}\text{Bi}$	25.2	6.24 d	0.881
$^{206}\text{Pb}(\alpha, 2n) ^{208}\text{Po}$	25.2	5.7 h	0.993
$^{204}\text{Pb}(\gamma, n) ^{203}\text{Pb}$	1.4	52.1 h	0.279
$^{204}\text{Pb}(\gamma, \gamma') ^{204\text{m}}\text{Pb}$	1.4	66.9 min	0.375, 0.90
Interfering reaction			
$^{204}\text{Hg}(\gamma, n) ^{203}\text{Hg}$ ( $-Q = 7.5\text{MeV}$ )	6.85	46.9 d	0.279
$^{209}\text{Bi}(\gamma, p5n) ^{203}\text{Pb}$ ( $-Q = 41\text{MeV}$ )	100	52.1 h	0.279

速中性子を利用する方法<sup>12, 13)</sup>が報告されているが感度はあまり高くない。陽子、 $\alpha$ 粒子などの荷電粒子反応<sup>14)</sup>を用いると一般に発熱を伴うので生物体試料の照射は制限を受ける。鉛の光核反応<sup>15-17)</sup>に着目すると $^{204}\text{Pb}(\gamma, n) ^{203}\text{Pb}$ 、 $^{204}\text{Pb}(\gamma, \gamma') ^{204\text{m}}\text{Pb}$ 反応が起こるが、前者は

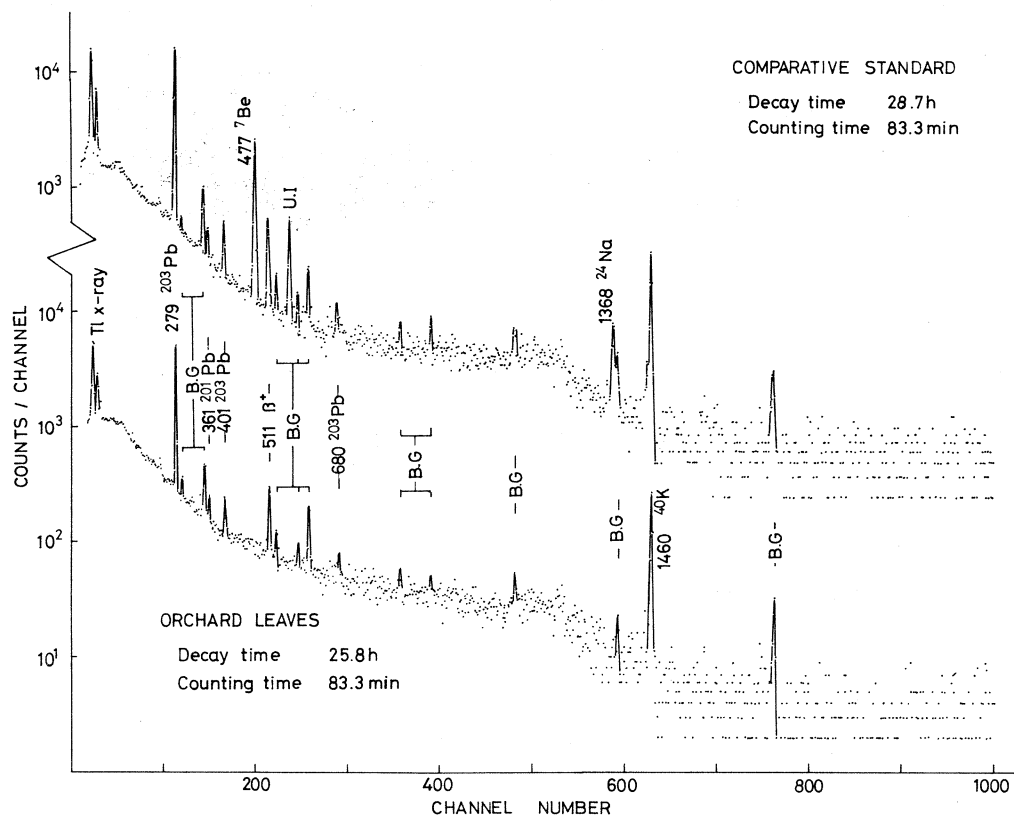
反応収率も高く生成核の半減期も長いので、分離後 $r$ 線スペクトロメトリーにより定性定量が容易であると考えられる。この際、妨害となり得る反応は、試料中に水銀が共存する場合 $^{204}\text{Hg}$  ( $r, n$ )  $^{203}\text{Hg}$  反応で生じる  $^{203}\text{Hg}$  が同じく 279 keV の  $r$  線を放出するので妨害となり、鉛と水銀の分離が必要となる。競合反応として  $^{209}\text{Bi}$  ( $r, p 5n$ )  $^{203}\text{Pb}$  反応が考えられるが、この反応のしきいエネルギーは 41 MeV でありこれ以下のエネルギーの  $r$  線で放射化した場合には妨害とならず、競合妨害反応の少ない分析法となる。

実際の生物体試料への適用の例として NBS の標準試料 Orchard Leaves の分析を行なった。乾燥試料 1 g を直径 13 mm のペレットとし、鉛 100  $\mu\text{g}$  を含むセルロースペレットを比較試料として同時に 30 MeV 制動輻射で 6 時間照射した。鉛の分離操作は第 5 図に示した。試料を硝酸、過塩素酸の混酸と加熱処理し分解後、濃縮して過剰の酸を除去し水で希釈した。過塩素酸カリウム等の不溶性物質が生じた場合にはろ別し、水溶液に酒石酸ナトリウム水溶液とクエン酸アンモニウム水溶液を加え pH 9 に調節して、チオナリド-MIBK 溶液で 3 回抽出を繰り返した。抽出液を pH 9 の水溶液で洗浄後、

0.1 N 硝酸で 2 回逆抽出し、酢酸溶液、鉛担体、クロム酸アンモニウム水溶液を加えクロム酸鉛として沈殿捕集し、これをろ別乾燥させる紙ごとアルミ箔に包んで測定試料とした。この全操作の回収率を生物体試料に  $^{203}\text{Pb}$  トレーサーを加えて求めたところ 3 回の実験の結果  $69 \pm 5\%$  という値が得られた。測定試料は、比較試料と同一のジオメトリーで、68cc Ge (Li) 検出器と 4096 チャンネル 波高分析器で  $r$  線スペクトルを測定した。その一例を第 6 図に示す。Orchard Leaves から分離した鉛フラクションには鉛に由来するピークと B.G. の他にはピークが見られ



第 5 図 Separation scheme for lead

第6図  $\gamma$ -ray spectrum

ず、共存核種からの分離は完全だった。鉛含有量は279 keVのピーク面積を比較試料のものと較べて算出できる。本法の感度は、本実験条件で279 keVのピーク面積がバックグラウンドの3 $\sigma$ に相当する鉛の量として定義すれば、それは鉛0.6 $\mu$ gに相当し、1g試料中の0.6 ppm まで

第4表 Lead abundance in NBS SRM-1571  
Orchard Leaves

Abundance (ppm)				Average (ppm)
41 $\pm$ 3	42 $\pm$ 3	45 $\pm$ 3	49 $\pm$ 4	44 $\pm$ 4
NBS certified value				45 $\pm$ 3

での鉛の定量が行なわれる。

Orchard Leaves 中の鉛の定量結果を第 4 表に示した。各分析値はトレーサー実験で求めた回収率の補正を行なったもので、誤差は回収率の標準偏差を考慮した。4 回の分析の平均値は 44 ppm で NBS の公定値と良く一致した。

本研究のチオナリド錯体としての鉛の抽出を光量子放射化分析へ適用する試みは、他核種からの分離に満足すべき結果が得られるので、今後この特徴を活かして鉛の不足当量分析法に発展させたいと考える。

本研究にあたり、御助力を賜った東北大学原子核理学研究施設、八木益男助教授、近藤健次郎博士およびマシニンググループの方々に厚く御礼申し上げます。

### 参 考 文 献

- 1) E. B. Sandell : *Colorimetric Determination of Traces of Metals*  
( Interscience, New York, 1959 ) 3rd ed., p. 555.
- 2) K. Bambach, and R. E. Burkey : *Ind. Eng. Chem. Anal. Ed.* **14** ( 1942 ) 904.
- 3) L. J. Snyder : *Anal. Chem.* **19** ( 1947 ) 684.
- 4) E. B. Buchanan, Jr., T. D. Schroeder and B. Novosel : *Anal. Chem.* **42**  
( 1970 ) 370.
- 5) C. L. Branguinho and V. J. Robinson : *J. Radioanal. Chem.* **24** ( 1975 ) 321.
- 6) R. J. Everson and H. E. Parker : *Anal. Chem.* **46** ( 1974 ) 1966.
- 7) A. K. De., S. M. Khopkar and R. A. Chalmers : *Solvent Extraction of Metals*  
( Van Nostrand Reinhold, London, 1970 ) p. 125.
- 8) Welcher : *Organic Analytical Reagents* ( D. Van Nostrand, 1959 ) 5th ed., Vol.  
IV, p. 165.
- 9) R. Berg and E. S. Fahrenkamp : *Z. Anal. Chem.* **112** ( 1938 ) 161.
- 10) R. A. Nadkarni and B. C. Haldar : *Radiochem. Radioanal. Lett.* **11** ( 1972 )  
367.
- 11) P. D. LaFleur : *J. Radioanal. Chem.* **19** ( 1974 ) 227.
- 12) R. H. Filby, K. R. Shah and A. I. Davis : *Radiochem. Radioanal. Lett.* **5**  
( 1970 ) 9.

- 13) R. O. Allen, Jr. and G. W. Reed, Jr. : J. Radioanal. Chem. **22** ( 1974 ) 63.
- 14) D. C. Riddle and E. A. Schweikert : Anal. Chem. **46** ( 1974 ) 395.
- 15) A. Chattopadhyay and R. E. Jarvis : Radiochem. Radioanal. Lett. **11** ( 1972 )  
331.
- 16) C. E. Dutilh and H. A. Das : Radiochem. Radioanal. Letters **6** ( 1971 ) 195.
- 17) G. J. Lutz : J. Radioanal. Chem. **19** ( 1974 ) 239.

## Ⅲ-2 イオン対共沈分離法を併用する生物体中の 微量金属元素の光量子放射化分析

理学部化学, 教養部\*

山下美智子・加藤豊明\*・鈴木信男

### § 1. 序 文

生物体中に常時存在する微量金属元素は数多く知られているが、それらの役割については十分に明らかにされてはいない。これを研究するに当って諸元素の相対的存在量が問題になる場合が多いと思われるため、この測定に適した方法の検討開発が必要になる。放射化分析法は多くの元素について高感度な分析法であり<sup>1)</sup>、微量多成分の同時定量法としてすぐれた特長を有している。しかし、一般に非破壊法で行なう場合は、マトリックスに起因する強い放射能の生成を伴うので、マトリックス放射能から微量の目的元素のみを選択的に分離濃縮することにより<sup>2-4)</sup>、多元素同時分析の効果を上げることができる。すでに、この目的のための方法や試薬の研究は数多くなされており、金属の水和酸化物への共沈<sup>5)</sup>、キレート化剤としての有機化合物への共晶出<sup>6,7)</sup>、キレート化剤とイオン交換樹脂を組み合わせる方法<sup>8)</sup>などが報告されている。これらのうち、キレート試薬を用いる方法は捕集後のマトリックスの元素組成、選択性、定量性などの観点から注目されるが、一般にキレートの生成に十分な pH の水溶液から直接試薬を析出させるには不利な条件であることが多いので、本研究ではキレート試薬アニオンをオニウム陽イオンとイオン対として沈殿させ、これに微量の金属キレートを共沈させて分離濃縮することを試みた。

金属としては Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn および Pb の 8 元素を選び、これらの APDC キレートをゼフィラミン-APDC イオン対に共沈させる基礎検討をトレーサー法、原子吸光法で行なった。また多元素同時定量への実際の適用の例として、NBS Orchard Leaves その他の生物体標準試料の光量子放射化分析の前処理に応用し、その効果と結果の信頼性について検討したので報告する。

### § 2. 実 験

#### 2.1 RI トレーサー

実験に用いたトレーサーは東北大学の電子ライナックを利用して光核反応で製造したものの

他に,  $^{60}\text{Co}$  および  $^{65}\text{Zn}$  は購入したものを希釈して用いた。その核的性質を第1表に示す。  
 $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{67}\text{Cu}$  はそれぞれターゲットから無担体分離して使用した。

第1表 Radioisotopes used as tracers

Element	Nuclear reaction	Half-life	Principal $\gamma$ -ray (MeV)
Cr	$^{56}\text{Fe}(\gamma, \alpha n)^{51}\text{Cr}$	27.8 d	0.320
Mn	$^{56}\text{Fe}(\gamma, pn)^{54}\text{Mn}$	303 d	0.835
Fe			
Co	$^{60}\text{Co}^*$	5.24 y	1.173, 1.332
Ni	$^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$	36.0 h	0.511, 1.37, 1.89
Cu	$^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Cu}$	59 h	0.185
Zn	$^{65}\text{Zn}^*$	245 d	0.511, 1.115
Pb	$^{204}\text{Pb}(\gamma, n)^{203}\text{Pb}$	52.1 h	0.279

\* Imported

## 2.2 イオン対形成剤その他の試薬

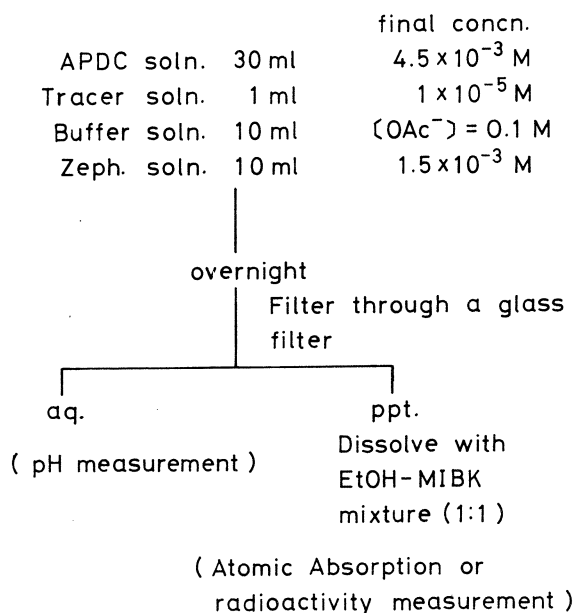
キレート試薬 APDC (Ammonium Pyrrolidine Dithiocarbamate) との対イオンを形成する試薬については, 数種のオニウム塩, 色素<sup>9, 10)</sup>などを用いてみた結果, 広い pH 領域ではほぼ定量的なイオン対沈殿を生じるゼフィラミン (Diarkyl-monomethyl-benzyl-ammonium chloride) が適当であることが明らかになった。APDC およびゼフィラミンは市販品を使用し, 他の試薬類は市販特級品を用いた。水は再蒸留して使用した。

## 2.3 基礎検討

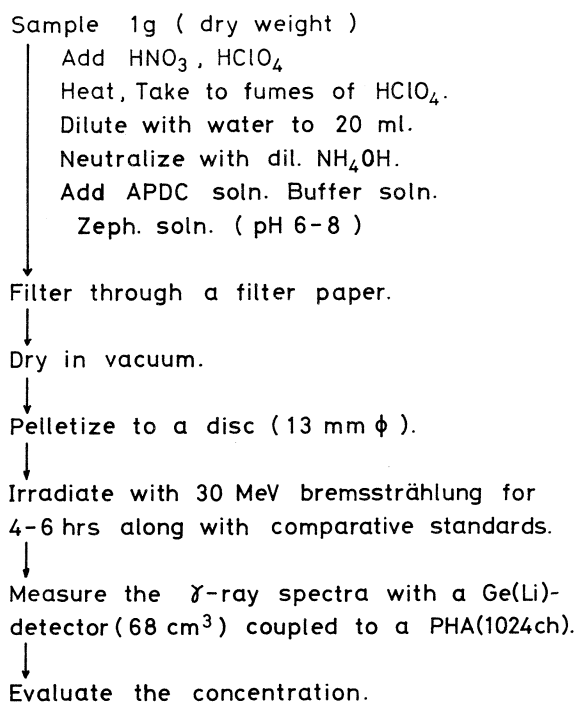
各元素のイオン対への共沈状況の検討のための基本操作は第1図の scheme に従って行なう。すなわち, 一定量の APDC, 金属の酸性溶液, 緩衝溶液, ゼフィラミン溶液の順でビーカーに加え, この混合溶液を放置する。キレート形成とイオン対生成を完了させてからガラスフィルターでろ過し, ろ液の pH を測定する。また沈殿物はエタノールと MIBK の混合溶媒に溶解して一定容積とし, 原子吸光光度法で金属イオン濃度を測定する。比較のための標準溶液は同量のイオン対と金属イオンの既知量を含むエタノール MIBK 溶液を作製して用いる。試料溶液と標準溶液の吸光度の比から共沈率を求める。トレーサー法の場合は沈殿物の溶液とろ液をそれぞれ 5 ml ずつとり, well 型 NaI シンチレーションカウンターで放射能を測定し, その比から共沈率を求める。

## 2.4 実試料の分析

生物体試料中の諸元素の同時分析法を組むと第2図のようになる。乾燥試料1gを濃硝酸と過塩素酸で湿式灰化した後、水で希釈し全容を約20mlにする。アンモニア水で中和した後にAPDC水溶液、緩衝溶液、ゼフィラミン溶液を加え全容を約50ml、pHを6~8に調節する。一定時間放置した後に、ろ紙を用いてろ過しろ紙ごと減圧乾燥する。乾燥後ろ紙で沈殿物を包んでろ紙と共に直径13mmのペレットに加圧成型する。比較のための標準試料は合成して用いた。すなわち、セルロース粉末に既知量の定量目的元素を加え均一に混和してからこの一定量を同様のペレットに加圧成型したものである。これを試料ペレットの前後に置いて石英管に封入し、30 MeV 制動放射で4~6時間照射した。照射後、68cc Ge(Li) 検出器と1024チャンネル波高分析器を用いて残留核放射能を $\gamma$ 線スペクトロメトリーする。目的とする核種のピーク面積の計数率を求め、合成試料の同ピークの面積計数率



第1図 Experimental procedure



第2図 Preconcentration scheme



の比放射能と比較して定量値を算出する。定量に利用した核反応および残留核の核的性質と合成試料中の諸元素濃度は第2表の通りである。

第2表 Analysis of synthetic standard

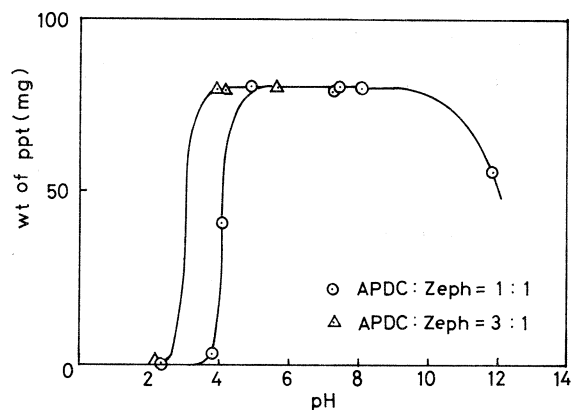
Element	Concentration in syn. std. ( $\mu\text{g/g}$ )	Nuclear reaction	$T_{1/2}$	$\gamma$ -ray used for determination (MeV)	Coprecipitation rate (%)
Cr	500	$^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$	27.8 d	0.319	$40.0 \pm 11.1$
Mn	200	$^{55}\text{Mn}(\gamma, n)^{54}\text{Mn}$	303 d	0.835	$63.7 \pm 7.7$
Fe	550	$^{57}\text{Fe}(\gamma, p)^{56}\text{Fe}$	2.576 h	0.847	$83.9 \pm 9.8$
Co	50	$^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{58}\text{Co}$	71.3 d	0.811	$100.8 \pm 8.3$
Ni	60	$^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$	36.0 h	1.378	$98.7 \pm 14.8$
Cu	200	$^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$	12.8 h	1.340	$90.3 \pm 6.4$
Zn	200	$^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Zn}$	59 h	0.185	$102.0 \pm 4.6$
Pb	60	$^{204}\text{Pb}(\gamma, n)^{203}\text{Pb}$	52.1 h	0.279	$101.9 \pm 7.4$

### § 3. 結果と考察

#### 3.1 基礎検討

##### 3.1.1 イオン対生成量と pH との関係

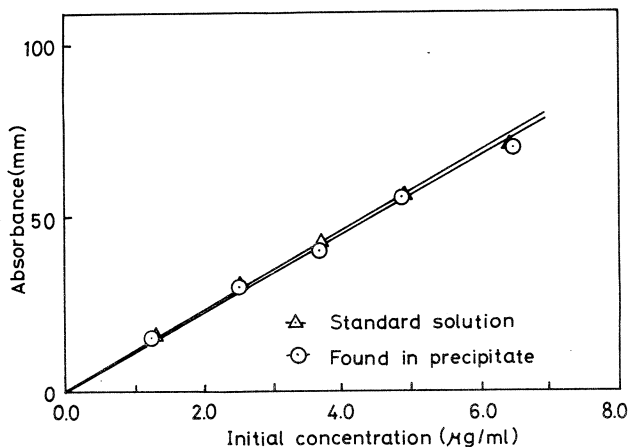
酢酸塩緩衝溶液によりアセテートイオンの濃度を 0.1 M に保って pH を変化させ、イオン対の生成量と pH との関係を重量法で調べた。結果は第3図に示したとおりである。pH が 4～9 で生成量がほぼ一定になるが、この領域では加えた APDC の全量の約 80% が沈殿したことに相当している。また沈殿物の元素分析の結果から、イオン対はカチオンとアニオンが 1 : 1 の組成のものが生成することが確認できた。



第3図 Precipitation rate of ion pair as a function of pH

### 3.1.2 金属濃度と共沈率の関係

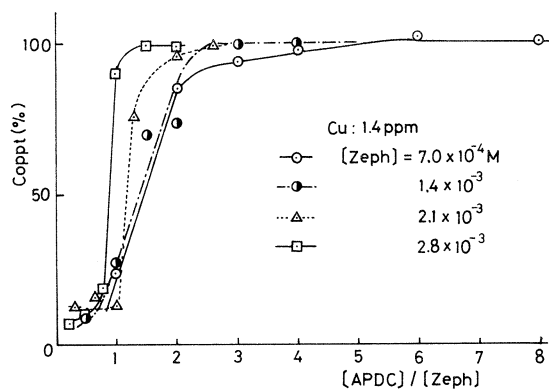
pH 7 の水溶液から Co(II) の濃度が 1 ppm ~ 10 ppm の範囲で共沈させた場合の原子吸光の測定結果を第 4 図に示す。これより、この濃度範囲ではほぼ完全に共沈していることが示されており、濃度と吸光度の比例性は良好であった。他の金属元素についても同様によい直線性が得られた。



第 4 図 Coprecipitation efficiency vs. cobalt concentration

### 3.1.3 試薬濃度比と共沈率の関係

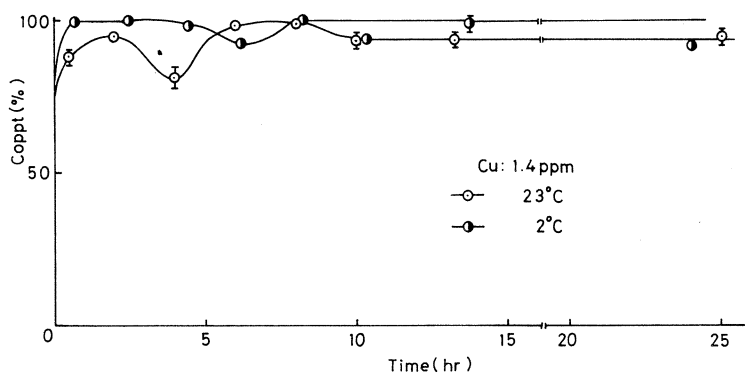
Cu に関して APDC とゼフィラミンの濃度比を変化させた場合の共沈率を求めた結果が第 5 図である。これより、ゼフィラミン濃度を一定にした場合、APDC 濃度が増加すれば共沈率も増加し、共沈曲線のたちあがり、ゼフィラミン濃度が高いほど急になることがわかる。これより試薬濃度を低くし、かつ完全な捕集を行なうために以後の基礎検討では APDC 濃度が  $4.2 \times 10^{-3}$  M、ゼフィラミン濃度が  $1.4 \times 10^{-3}$  M になるように調整した。



第 5 図 Coprecipitation efficiency vs. [APDC] / [Zeph] ratio

### 3.1.4 放置時間と温度の共沈率への影響

放置時間と温度を変えて、Cu の共沈率への影響を求めると第 6 図のようになる。温度は室温 23°C と 冷蔵庫内の温度 2°C と

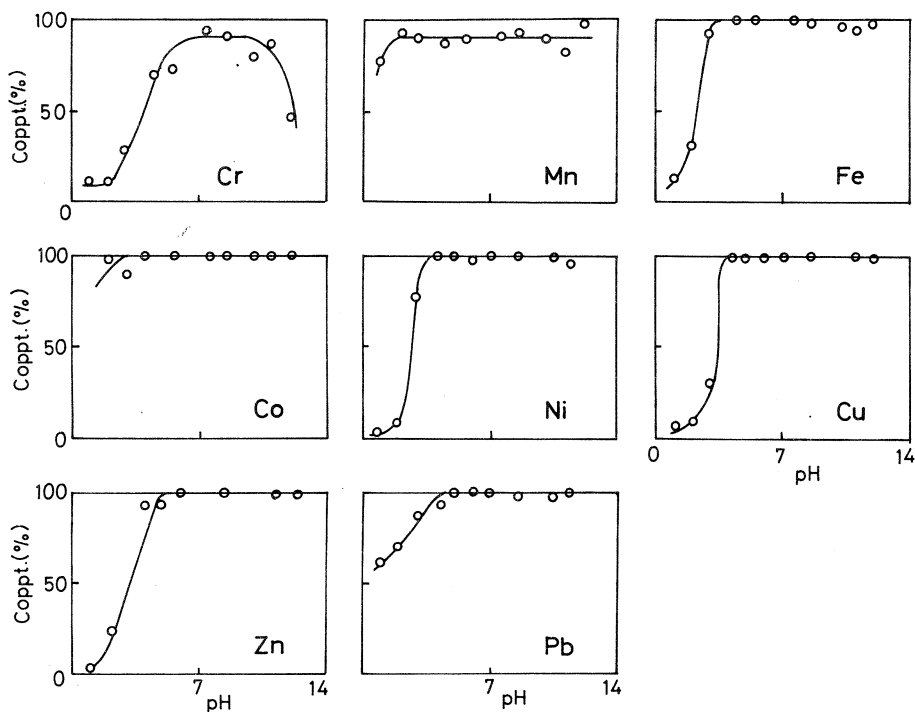


第6図 Effects of time and temperature on coprecipitation efficiency

で比較している。このような傾向は他の金属元素についても同様にみられた。これより、完全な共沈捕集は短時間で達成されるが、念のため10時間以上冷蔵庫内に放置し、沈殿物を熟成させた。

### 3.1.5 pH と共沈率の関係

以上の結果から得られた最適条件で、各金属元素についてのpHと共沈率の関係を求めた。



第7図 Coprecipitation efficiency vs. pH

その結果を第7図に示す。Cr(Ⅲ)，Mn(Ⅱ)，に関しては1回の共沈操作では定量的に捕集されないため、2回操作をくり返した。その他の金属元素に関しては、pH 4以上ではほぼ100%捕集できた。これはトレーサー法で求めたものだが、原子吸光法によって測定した場合でも同様の結果が得られた。これらの結果より実試料で多元素同時定量を試みる場合にはpH 5以上の条件で捕集することにした。

### 3.2 実試料の分析

#### 3.2.1 合成試料の分析

実試料の分析に先だち、諸元素共存時の同時分析のモデル実験として、合成試料を用いて前出の scheme に従って分析し第2表にあげた共沈率を得た。Cr, Mn, Fe 以外の元素ではほぼ100%の共沈率を示している。照射直後の試料は<sup>11</sup>Cを主とするマトリックス放射能が強い  
ため、Fe からの<sup>56</sup>Mn と、<sup>64</sup>Cu はバックグラウンドの影響を著しく受け、微量では正確な定量結果を得がたくなる。また Ni は<sup>25</sup>Mg( $\gamma, p$ )<sup>24</sup>Na 反応により生成した<sup>24</sup>Naからの1.369 MeV の $\gamma$ 線が妨害となるため誤差が大きくなるのだと思われる。

#### 3.2.2 実試料の分析

実試料の分析結果を文献値とともに第3表に示した。文献値はカッコ内のもの以外はNBSの certified value<sup>1)</sup>であり、実験値は、同様の実験を3~4回繰り返して得た結果の平均値

第3表 Elemental abundances of standard reference materials

Element	Kale (ppm)		Bovine Liver (ppm)		Orchard Leaves (ppm)	
	Literature	Found	Literature	Found	Literature	Found
Cr	0.33	3.3 ± 0.8	(0.5~3.5)	2.5 ± 1.3	(2.3)	7.0 ± 2.5
Mn	14.9	21.2 ± 1.7	10.3 ± 1.0	20.9 ± 1.4	91 ± 4	126 ± 6.6
Fe	120	107 ± 4.9	270 ± 20	205 ± 22.3	300 ± 20	346 ± 41.0
Co	0.056	0.08	(0.18)	0.4 ± 0.1	(0.2)	0.2
Ni	2.6, 11.0	0.5	(0.21)	1.0	1.3 ± 0.2	1.4 ± 0.6
Cu	5.0	5.8 ± 4.1	193 ± 10	127	12 ± 1	7.8
Zn	32	37.5 ± 3.0	130 ± 10	137 ± 4.0	25 ± 3	27 ± 1.4
Pb	3.2	3.3 ± 0.2	0.34 ± 0.08	1.3 ± 0.9	45 ± 3	42.3 ± 2.6

と平均偏差である。また、合成試料と実試料のマトリックスの違いを考慮すると問題はあがあるが、Cr, Mn, Feに関しては合成試料での結果から完全な捕集が行なわれていないと思われるため、収率補正を行なった。他の金属元素に関してはほぼ完全に捕集されていると思われるが、その存在濃度が1 ppm以上のものについては一般的に文献値とよく一致するといえる。また、平均偏差をみた場合、Fe 以外のものはほとんど5%以内になっていて、再現性も比較的良好である。

Pbの定量は、通常の原子炉の熱中性子放射化分析では実施できないので本法の特長となっている。本研究の結果は、生物体中に ppm order で存在する金属諸元素の光量子同時放射化分析に有効に利用しうる方法と思われる。すなわち、放射化に先だって多量の試料から目的とする微量諸元素のみをマトリックス放射能から分離して速やかに結果を得るなどの手段に活用できる。生物体試料以外にも、天然水などの希薄な試料の濃縮分離を目的とした前処理にも本法を適用しうると思う。

本研究にあたり、御助力を賜った東北大学原子核理学研究施設、八木益男助教授、近藤健次郎博士およびマシングループの方々に厚く御礼申し上げます。

### 参 考 文 献

- 1) R. A. Nadkarni and G. H. Morrison: Anal. Chem. **45** (1973) 1957.
- 2) J. A. Velandia and A. K. Perkins: J. Radioanal. Chem. **14** (1973) 171.
- 3) D. E. Appleby and J. Savory: Anal. Chim. Acta **62** (1972) 317.
- 4) F. Girardi and E. Sabbioni: J. Radioanal. Chem. **1** (1968) 169.
- 5) 永塚澄子, 谷崎良之: 分析機器 **14** (1976) 583.
- 6) M. Matsui: Bull. Chem. Soc. Japan **39** (1965) 1114.
- 7) H. V. Weiss and M. G. Lai: Talanta **8** (1961) 72.
- 8) J. E. Going, G. Wesenberg and G. Andrejat: Anal. Chim. Acta **81** (1976) 349.
- 9) 上野景平: Japan Analyst **20** (1971) 736.
- 10) 菅原正雄, 神原富民: 化学 **29** (1973) 61.
- 11) P. D. LaFleur: J. Radioanal. Chem. **19** (1974) 227.

### III-3 核異性体転移で生成する $^{80}\text{Br}$ の固相反応 と気相におけるイオンクラスター内反応 の類似性

核理研 八木益男・近藤健次郎

#### § 1. 緒 言

著者らは既に  $\text{CH}_4\text{-H}^{80\text{m}}\text{Br}$  および  $\text{CH}_4\text{-H}^{82\text{m}}\text{Br}$  系で観測された大きな熱イオン反応の同位体効果は  $^{80\text{m}}\text{Br}$  および  $^{82\text{m}}\text{Br}$  の壊変様式の相違に起因するものであることを明らかにした<sup>1-6)</sup>。すなわち  $^{82\text{m}}\text{Br}$  は内部転換 100% の一段核異性体転移を行うのに対し、 $^{80\text{m}}\text{Br}$  は 2 段の転移を行い、従って壊変に伴う化学的效果も次の 2 つに区分できる。

process (A) 39% ; 内部転換 + 37 keV  $\gamma$  線放出

process (B) 61% ; 内部転換 + 内部転換

process (A) の 37 keV  $\gamma$  線放出による化学的效果は無視しうる。したがって、process (A) による化学的效果は本質的に  $^{82\text{m}}\text{Br}$  の場合と同じであると考えられることから、上記同位体効果の源は、process (B) によるとすることが出来る<sup>4, 5)</sup>。

以上の考えに立って、HBr を source molecule として  $\text{CH}_4$ 、 $\text{CH}_3\text{Br}$  系における実験結果の解析から process (A) および process (B) における化学的效果の間に大きな相違が認められた。<sup>4)</sup> すなわち  $\text{CH}_4\text{-H}^{80\text{m}}\text{Br}$  系では生成物である  $\text{CH}_3\text{Br}$ 、 $\text{CH}_2\text{Br}_2$  の収率の大小関係は process (A) では  $\text{CH}_3\text{Br} < \text{CH}_2\text{Br}_2$ 、一方 process (B) では  $\text{CH}_3\text{Br} > \text{CH}_2\text{Br}_2$  であった。この関係は  $\text{CH}_3\text{Br}$  系でも同様であった<sup>10)</sup>。

著者らは種々の考察から上記実験結果を説明するためには process (B) において ion-cluster の存在を考えなければならないことを既に明らかにした<sup>8, 9)</sup>。この ion-cluster の考えはこれまで種々の無機添加物の収率分布に及ぼす効果から一部支持された<sup>7)</sup>。本実験が気相とは言え process (B) における反応が ion-cluster 内の反応、すなわち cluster 内で起る第 2 段目内部転換に伴う化学的效果は cluster size にもよるが幾分 liquid like condition で進行していることが予想される。本研究では  $\text{CH}_3\text{X}$  ( $\text{X} = \text{H}, \text{F}, \text{Cl}, \text{Br}$ ) -  $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$  系について固相実験を行い、得られる生成物間の収率の大小関係と気相における process (B) のそれとの比較から両者の間の類似性を検討することによって ion-cluster の存在の妥当性について考察した。

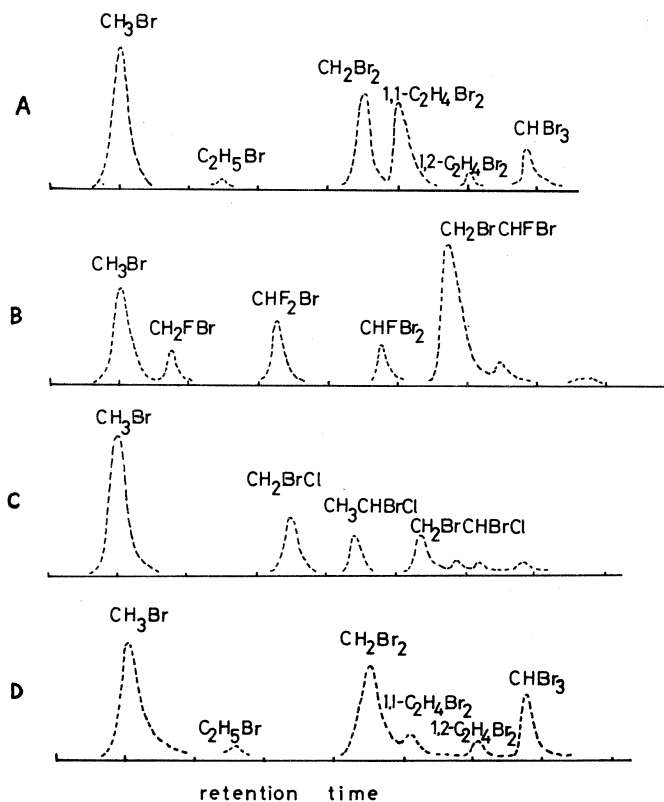
## § 2. 実験および結果

$H^{80m}Br$  は常法に従って調製した<sup>4,5)</sup>。各種ガス試料は高千穂化学 K.Kより購入した高純度のものをそのまま使用した。生成物の同定は常法に従って抽出した有機層の一部をガスクロマトグラフに導入して行った。GM 検出器の出力を 4 K P H A に入れマルチチャンネルスケーリング法で各生成物の放射能強度を求めた。分離条件は 60~80 メッシュ Celite 545 に Silicone DC-550 (20%) を coating したものを充填剤としたカラム (75cm × 7) を用い定流量昇温法で行った。CH<sub>4</sub>-HBr および CH<sub>4</sub>-HBr-HCl 系では CH<sub>4</sub> 130cmHg, HBr 65 cmHg, HCl 130 cmHg の組成のものを他の系では CH<sub>3</sub>X および HBr の組成がそれぞれ 150 cmHg, 38cmHg のものを固化-溶解を数回繰り返すことによって出来るだけ良く混るようにした。用いたガス試料の沸点および融点の間に大きな違いがあることからいずれの系においても固化の段階で分別結晶のため系そのものは不均一で、従って核異性体転移に伴う化学的効果もそのような場で進行するものと考えられる。

第 1 図に固相における CH<sub>3</sub>X-H<sup>80m</sup>Br 系で得られたラジオガスクロマトグラムを示した。(decay 補正なし) 予想されたように生成物の種類も多く、かつ C-C 結合を持つ生成物が検出された。いずれの系においても X 置換生成物である CH<sub>3</sub>Br の収率が最も大きい。第 1 表に得られた各生成物の CH<sub>2</sub>BrX に対する相対比を示した。CH<sub>3</sub>Br/CH<sub>2</sub>XBr の値は 1.2~3.4 と固相では X 置換生成物が H 置換生成物より生成しやすいことを示している。また CH<sub>3</sub>F 系では 2H 置換生成物が効率よく生成することが判明した。

## § 3. 考 察

気相における process (A) および process (B) における CH<sub>3</sub>Br/CH<sub>2</sub>XBr の値を表 2 に示した。いずれの系においてもその値は process (B) の方が大きく、process (B) においては CH<sub>3</sub>Br がより生成しやすい雰囲気にあることが分る。process (B) において <sup>80m</sup>Br の第 1 段転移 (内部転換 100%) で生成する <sup>80</sup>Br<sup>+</sup>イオンが周囲に存在する CH<sub>3</sub>X および HBr と persistent complex ion を形成しこれらが核となってさらに大きな complex ion (ion-cluster) の形成が考えられる<sup>8,9)</sup> 本実験条件および <sup>80m</sup>Br の中間励起状態の life-time (1.1 × 10<sup>-8</sup> sec) を考慮すれば CH<sub>3</sub>XBr<sup>+</sup> or HBr<sup>80</sup>Br<sup>+</sup> イオンは周囲の分子と作用しかなりの大きな ion-cluster の形成の可能性は充分ありうるものと考えられる。このような cluster 内で起き引き続く <sup>80m</sup>Br の第 2 段転移 (内部転換 100%) の化学的効果が果してどのようなものであるか不明な点が多いが、もしこのような liquid like condition で引き続く第 2 段



第1図 固相  $\text{CH}_3\text{X}$  ( $\text{X} = \text{H}, \text{F}, \text{Cl}, \text{Br}$ ) -  $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$  系における  
ラジオガスクロマトグラム  
(A)  $\text{CH}_4 - \text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$   
(B)  $\text{CH}_3\text{F} - \text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$   
(C)  $\text{CH}_3\text{Cl} - \text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$   
(D)  $\text{CH}_3\text{Br} - \text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$

転移が進行するとすればその化学的効果は多少なりとも condensed phase でのそれに類似しているものと考えられる。condensed phase (固相) における結果によれば第1表に示されるように  $\text{CH}_3\text{Br}/\text{CH}_2\text{XBr}$  の値は全ての系で1より大きく  $\text{CH}_3\text{Br}$  が生成しやすいことを示しており process (B) の場合と同様の傾向を示している。このことは process (B) における反応の場が condensed phase のそれに近いことを示すものと考えられる。しかし既に報告したように process (B) においては固相で認められたような C-C 結合を持つ化合物は全く検出されておらずこのことは process (B) が固相に近い状態であるとしても一旦生成した  $\text{C}-^{80}\text{Br}$  ラジカル (あるいは励起種) がさらに cluster 内で生成した  $\text{CH}_3$ ,  $\text{CH}_2\text{Br}$  などのラジカルと



結合する機会がないことを示しており, cluster そのものが固相の場合のように rigid でなく生成ラジカル, イオン種は容易に cluster 外へ飛び出して行くものと考えられる。換言すれば process (B) においては固相における geminate recombination に相当する生成物のみが生成することを示唆している。固相  $\text{CH}_4\text{-H}^{80\text{m}}\text{Br}$  および  $\text{CH}_4\text{-H}^{80\text{m}}\text{Br-HCl}$  系においては固相の段階でそれぞれが分別結晶し不均一な状態であると考えられる。従って  $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$  分子の周囲には高濃度の  $\text{HBr}$  が存在し  $\text{CH}_3\text{Br}/\text{CH}_2\text{Br}_2$  の値もそのような条件下で得られたものと考えられる。一方  $\text{HBr}/\text{CH}_4 = 0.1$  の条件下で process (B) の  $\text{CH}_3\text{Br}/\text{CH}_2\text{Br}_2$  の値が固相系における値に近いことは process (B) で生成する ion-cluster が主に dipole moment を持つ  $\text{HBr}$  より形成され固相で考えられたように  $\text{HBr}$  高濃度下で第2段内部転換が起るものと推察される。しかし  $\text{CH}_4$ ,  $\text{CH}_3\text{Br}$  系以外の  $\text{CH}_3\text{F}$ ,  $\text{CH}_3\text{Cl}$  系では  $\text{CH}_3\text{Br}/\text{CH}_2\text{XBr}$  の値が process (B) > process (A) と定性的ではあるが ion-cluster の存在を支持するものの表2に示すように process (B) における値は  $\text{CH}_3\text{Cl}$ ,  $\text{CH}_3\text{F}$  系に対してそれぞれ0.37, 0.59 と非常に小さく固相の場合との間に大きな相違がある。 $\text{CH}_3\text{Cl}$ ,  $\text{CH}_3\text{F}$  両者とも第2表に示したように大きな dipole moment を持っており process (B) においては  $\text{CH}_3\text{Cl}$  および  $\text{CH}_3\text{F}$  の濃度の点からも cluster の構成分子の大部分は  $\text{CH}_3\text{Cl}$  および  $\text{CH}_3\text{F}$  と考えられ,

第1表 固相  $\text{CH}_3\text{X}$  ( $\text{X} = \text{H}, \text{F}, \text{Cl}, \text{Br}$ ) -  $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$  系で得られる各生成物の  $\text{CH}_2\text{XBr}$  に対する相対収率

system	$\text{CH}_3\text{Br}$	$\text{CH}_2\text{BrCl}$	$\text{CH}_2\text{Br}_2$	$\text{CH}_3\text{CHBrCl}$	$\text{CH}_3\text{CHBr}_2$	$\text{CH}_2\text{BrCH}_2\text{Br}$	$\text{CHBr}_3$	$\text{C}_2\text{H}_5\text{Br}$
$\text{CH}_4 - \text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$	1.2	-	1	-	0.90	0.18	0.34	-
$\text{CH}_4 - \text{H}^{80\text{m}}\text{Br-HCl}$	1.6	0.96	1	0.51	0.79	-	< 0.1	-
$\text{CH}_3\text{Br} - \text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$	2.5	-	1	-	0.32	1.2	0.17	0.1
system	$\text{CH}_3\text{Br}$	$\text{CH}_2\text{BrCl}$ ( $\text{CH}_2\text{FBr}$ )	$\text{CH}_2\text{Br}_2$	$\text{CH}_3\text{CHBrCl}$ ( $\text{CHF}_2\text{Br}$ )	$\text{CH}_3\text{CClBr}_2^*$ $\text{CHFBr}_2$	$\text{CH}_2\text{BrCH}_2\text{Br}^*$ $\text{CH}_2\text{BrCHFBr}$	$\text{CHBr}_3$	$\text{C}_2\text{H}_5\text{Br}$
$\text{CH}_3\text{Cl} - \text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$	1.40	1	0.60		0.2	0.58	0.2	0.1
$\text{CH}_3\text{F} - \text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$	3.36	1	-	2.39	1	6.39		

\* これらの生成物の同定はまだ行なわれておらず, ガラスクロマトグラムの保持時間と分子量(沸点)の関係から推定したものである。

第2表 気相系 process (A) および process (B) における  
CH<sub>3</sub>Br の CH<sub>2</sub>XBr に対する収率比

(X=H, F, Cl, Br)

(H<sup>80m</sup>Br/CH<sub>3</sub>X = 0.1 ± 0.01, total pressure : 660 ± 30 mmHg)

system	process (A)	process (B)
CH <sub>4</sub> - H <sup>80m</sup> Br	0.21	1.1
CH <sub>3</sub> F - H <sup>80m</sup> Br	0.08	0.59
CH <sub>3</sub> Cl - H <sup>80m</sup> Br	0.33	0.37
CH <sub>3</sub> Br - H <sup>80m</sup> Br	1.93	2.27

使用したガス試料の dipole moment (debyes)

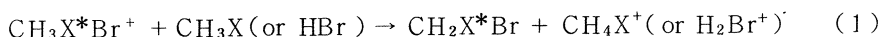
CH <sub>4</sub> : 0	CH <sub>3</sub> Br : 1.81
CH <sub>3</sub> F : 1.85	HBr : 0.82
CH <sub>3</sub> Cl : 1.87	HCl : 1.08

この点で cluster 内 Br 濃度の高い CH<sub>4</sub>, CH<sub>3</sub>Br 系の場合と比較し反応場において大きな違いがあるものと考えられる。

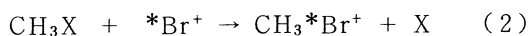
すなわち固相における実験条件と気相における process (B) の ion-cluster 内の条件との間には大きな相違があるものと考えられる。

CH<sub>3</sub>F 系において CH<sub>3</sub>F が clustering の主構成分子であることは process (B) における生成物が CH<sub>3</sub>Br, CH<sub>2</sub>FBr, CHF<sub>2</sub>Br など臭素原子 1 個を持つ生成物のみであり CHFBr<sub>2</sub>, CFBBr<sub>3</sub> あるいは CHBr<sub>3</sub> などの臭素原子が 2 個以上入った生成物が全く検出されなかったことによっても裏づけされる<sup>10)</sup>。同様のことは CH<sub>3</sub>Cl 系についても認められた<sup>10)</sup>。

既に報告したように process (A) における再結合反応は ion-molecule 反応で進行するものと考えられ<sup>4)</sup> CH<sub>2</sub>XBr の生成は H<sup>+</sup>-transfer reaction (1)



によるが, CH<sub>3</sub>Br, CH<sub>3</sub>Cl 系においてはさらに X-direct substitution reaction (2)



が発熱反応で充分起りうる反応である。

第2表において CH<sub>3</sub>Br, CH<sub>3</sub>Cl 系の process (A) による CH<sub>3</sub>Br/CH<sub>2</sub>XBr の値が, CH<sub>4</sub>, CH<sub>3</sub>F 系に比べ高いのは反応 (2) の寄与が大きいことによることも考えられる。

以上のように今回固相実験との比較から process (A) および process (B) における CH<sub>3</sub>Br/

$\text{CH}_2\text{XBr}$  の値の大きな相違 (同位体効果) は process (B) では第 2 段目内部転換は ion-cluster 内で起るとするこれまでの考え<sup>3,4)</sup>を定性的ではあるがさらに支持するものである。

しかし process (B) における反応がかならずしも全て固液相で一般に認められているような cage 内反応 (ラジカル反応) とは限らず, 一旦生成した C-Br 結合を持つイオン種などの引き続くイオン分子反応の寄与もあるものと考えられ, 今後その詳細について検討を加えたい。

### 参 考 文 献

- 1) M. Yagi and K. Kondo: Radiochem. Radioanal. Lett. **20** (1975) 299.
- 2) M. Yagi and K. Kondo: *ibid.* **5** (1970) 75.
- 3) K. Kondo and M. Yagi: Bull. Chem. Soc. Japan (in press).
- 4) K. Kondo and M. Yagi: Submitted to Bull. Chem. Soc. Japan.
- 5) 八木, 近藤: 核理研研究報告 **9** (1976) 150.
- 6) 八木, 近藤: *ibid.* **10** (1977) 120.
- 7) M. Yagi, K. Kondo: Radiochem. Radioanal. Lett. **20** (1975) 299.
- 8) 八木, 近藤: 核理研研究報告 **6** (1973) 129.
- 9) 八木, 近藤: *ibid.* **6** (1973) 299.
- 10) 八木, 近藤: 第 21 回放射化学討論会発表 (金沢) 要旨集 (1977) p. 10.

### Ⅲ-4 ライナック照射，昇華分離法を用いた ウラニルジピバロイルメタン錯体の研究

金沢大学理学部

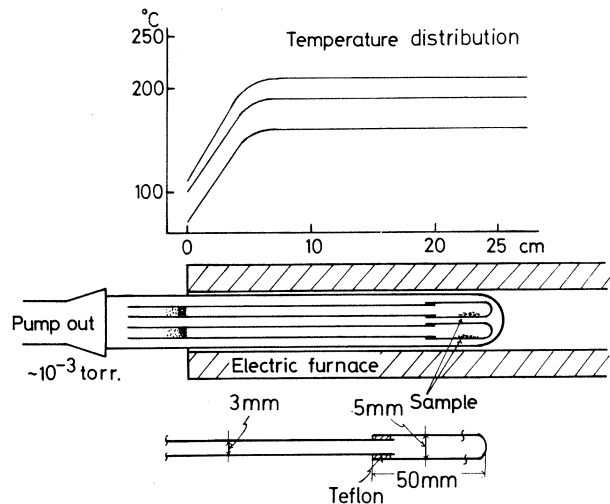
阪上 正信・下沢 秀夫  
関根 勉・中村 富郎

#### § 1. 緒 言

ウラニルジピバロイルメタン ( $\text{UO}_2(\text{dpm})_2$ ) は希土類DPM錯体等の6配位錯体やジルコニウム，トリウム，セリウム(IV)等の8配位錯体にくらべ，構造上不安定な形および酸素原子が2個配位しているためか，四塩化炭素等の溶媒にとけたのち，分解しやすく，また昇華分離においても約20%分解してしまうため，かなり取扱いにくい。一方それ故にこそ放射線分解，放射線アニーリング，熱アニーリング，昇華挙動等を調べることは，興味ある問題と思われる。そこで以下，放射線量，放射線量率，昇華管最終到達温度，1回の昇華にもちいる試料量等を変化させ，昇華収率，安定核の残渣中への残留度等を検討した。

#### § 2. 実験および結果

実験に用いた  $\text{UO}_2(\text{dpm})_2$  等の錯体は通常の化学的方法<sup>1)</sup>で合成し昇華精製したものをを用いた。以下の実験すべてに昇華法を使ったが用いた電気炉は第1図に示す。この電気炉の特長は，内部では温度分布がほぼ一定であり出口付近で炉温が急速に減少する。すなわち昇華物を一挙に沈着させ測定しやすくつくったものである。もちいた昇華管も第1図に示すが，後に述べる昇華の動的特性を調べる以外はすべてこのように，小型試験管部分に試料をひろげ，昇華管部とをテフロンシールで接合固定

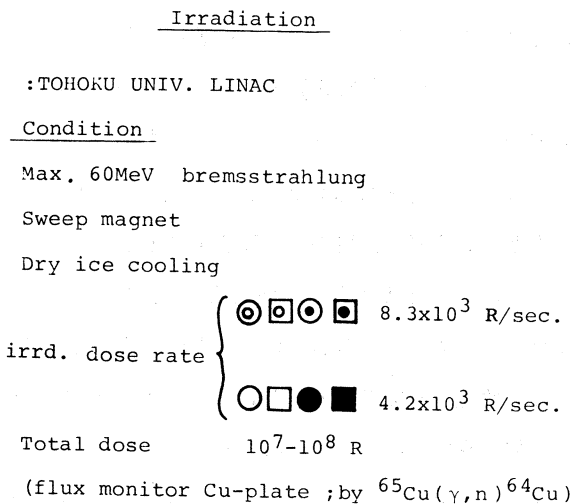


第1図 Electric furnace and sublimation tube

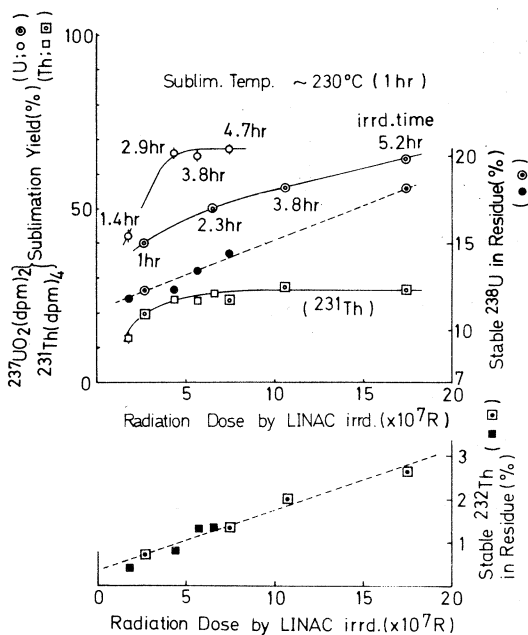
したものである。

2.1  $\gamma$ 線量,  $\gamma$ 線量率を変化させた場合の化学的効果

照射条件は、第2図に示す。照射線量は加藤らの方法<sup>2)</sup>を用い見積った。電気炉の最終到達温度を $\approx 230^\circ\text{C}$ とし昇華時間を1時間にして照射線量および照射線量率を変化させ、 $\text{UO}_2$  (dpm)<sub>2</sub> および比較のため照射したTh (dpm)<sub>4</sub> 錯体中に生じる  $^{237}\text{U}$ ,  $^{231}\text{Th}$  の昇華収率の変化を、Ge(Li) 検出器を用い、208keV, 84 keV の光電ピークを測定して求めた。また残渣中に残るターゲット核種 $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  の残留度は原子炉中中性子照射により生成する $^{239}\text{Np}$ ,  $^{233}\text{Pa}$ をそれぞれ測定する放射分析法を利用して求めた。これ



第2図 Condition of irradiation



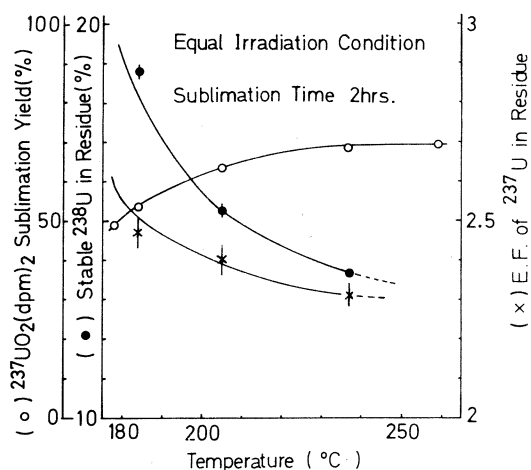
第3図 Influence of irradiated  $\gamma$  ray

らの結果はまとめて第3図に示した。それによるとターゲットとした安定核の残留度は、総線量に比例して増加し線量率には依存しないことがわかる。さらに放射線照射による分解も、 $\text{UO}_2$  (dpm)<sub>2</sub>の方がTh (dpm)<sub>4</sub>のそれにくらべ、はじめにも述べたようにかなり大きいことがわかった。他方、核反応で生成する反跳核の昇華収率についてみると、 $^{231}\text{Th}$ の場合には線量率には依存せず総線量にのみ依存し、小線量のときはやや線量により増加しやがて一定となる。一方、 $^{237}\text{U}$ については、全線量が同程度でも、照射線量率の低い場合つまり長時間の照射では、昇華収率いわゆるリテンション値が高く、また $^{237}\text{U}$ は $^{231}\text{Th}$ と異なり全線量がかなり増加しても、昇華収率は一定とならずなお増加する傾向がある。

## 2.2 昇華管の最終到達温度変化にともなう $\text{UO}_2$ (dpm)<sub>2</sub> 錯体の挙動の変化

2.1の実験では昇華管の最終到達温度を約230℃で昇華実験をおこなったのであるが、それがはたして適当であるかを以下の実験で調べた。昇華時間は、すべて約2時間とし昇華管到達温度を変化させて昇華実験をおこなった。その結果を第4図に示すが、230℃付近から高い温度で昇華収率がほぼ一定となっていくことがわかり、一方残渣中の $^{238}\text{U}$ の量は低温では大きい、この温度ではほぼ一定になりつつある。なお濃縮度も求めて同図に示したが、これは、2.5～2.3の範囲であまり変化はない。以上のことから再現性のあるデータを得るには、少なくとも230℃程度の温度に昇華管の最終

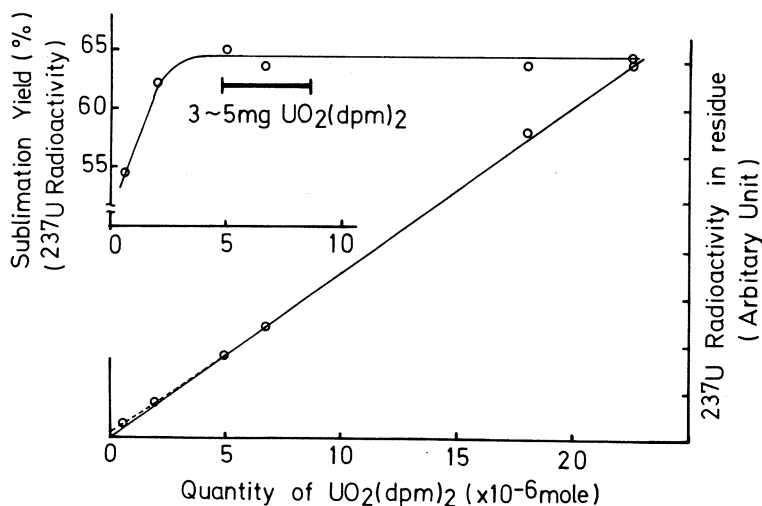
到達温度を設定することが必要と思われる、先の実験で用いた温度は適当であるといえる。なお低温での残留度が大きいのは、低温では昇華速度が小さく2時間程度の昇華では完全に昇華分離されないためでないかと思われる。昇華管の最終到達温度が種々の場合、昇華がどのように動的に行われるか、つまりそれぞれの場合の昇華速度の評価は昇華法を分離に用いるさいは重要な要素と思われるので、これについては後述のごとき検討を行った。



第4図 Influence of final temperature

### 2.3 1回の昇華にもちいる試料量の変化にともなう昇華収率の変化

上記実験では試料の  $\text{UO}_2(\text{dpm})_2$  は1回の昇華実験につき3~5 mg 使って行ったのだが、昇華収率を求める実験でこの程度の試料量が再現性確保の上で適当かどうか調べた。その結果を第5図に示すように、最終到達温度約  $230^\circ\text{C}$  1時間昇華の場合では3~5 mg の試料量がほぼ

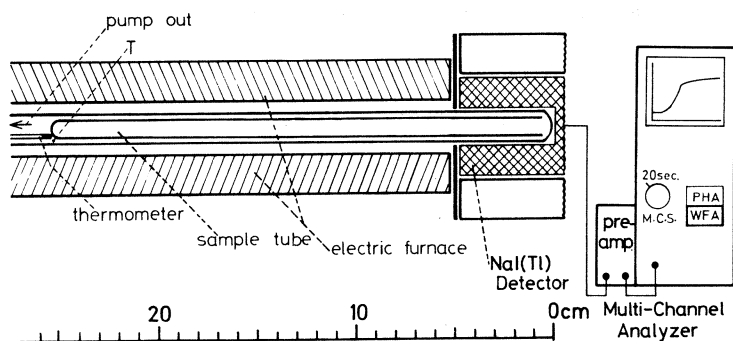


第5図 Change of sublimation yield by the change of quantity of  $\text{UO}_2(\text{dpm})_2$

一定の昇華収率の値を得るには充分と思われる。つまりあまり量が少いと残渣中にのこる  $^{237}\text{U}$ 量が相対的にややふえる傾向を示した。これはガラス管壁への吸着等のためとも思われる。

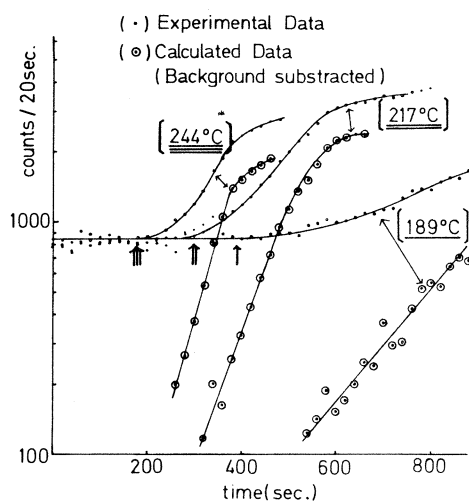
#### 2.4 昇華管到達温度の違いによる $\text{UO}_2(\text{dpm})_2$ 錯体の昇華速度の検討

さきに述べた昇華温度の問題や他の錯体と  $\text{UO}_2(\text{dpm})_2$  錯体との昇華の難易を比較するなどの上で、動的な昇華挙動の研究は興味ある問題である。当研究室で最近 Y と La の DPM 錯体について動的昇華挙動比較の基礎的実験を行ったが、 $\text{UO}_2(\text{dpm})_2$  にもこの方法を適用した。このために  $^{237}\text{U}$  でラベルされた錯体を合成して、それを昇華試料とし、 $^{237}\text{U}$  の  $\gamma$  線で昇華の動的様子を追跡した。昇華と測定装置の組合わせを第6図に示すが、電気炉はさきほどの実験と同じものを用い炉内で温度勾配をできるだけ生じさせないように注意した。炉温は図に T と示した位置で水銀温度計で測定し、外部よりこれを観察した。ラベルされた昇華性物質の昇華沈着にともなう  $\gamma$  放射能の増加を NaI(Tl) で検出し、それを 200ch PHA を 20 秒間隔の MCS モードで使用し約 1 時間追跡記録した。なお挿入した昇華管は今迄の実験に用いたものとは異なり、テフロンによる接合部分など突起物のない完全な空洞であり、昇華試料は先の実験と同様に磁製



第6図 Measuring system for radioactivities of sublimated labeled complex during continuous sublimation

またはアルミニウムのボートは使わずに直接ガラス管に開放端から入れてのち、ガラス管の途中の内壁についたものはガラスウールでぬぐいとった。実験結果の三つの実例を示す第7図は、昇華管最終到達温度を244°C、217°C、189°Cとした場合、NaI(Tl)で検出測定される $\gamma$ 放射能変化を昇華時間に関してプロットしたものである。また第8図は昇華管最終到達温度が171°Cと低い場合の実験結果を示す。以上の実験結果をもとに正味の放射能変化を正味にするため、加熱昇華をはじめる以前のバックグラウンド部分の放射能を差し引き、その値を昇華時間に関して第7図のように片対数プロットをすると、本図の三例の場合はずべてについて直線性が見られた。一方第8図の171°Cの場合には、この正味の放射能値の片対数プロットは同図中央に示すように直線性を示さず、同図下部に示すように線型プロ



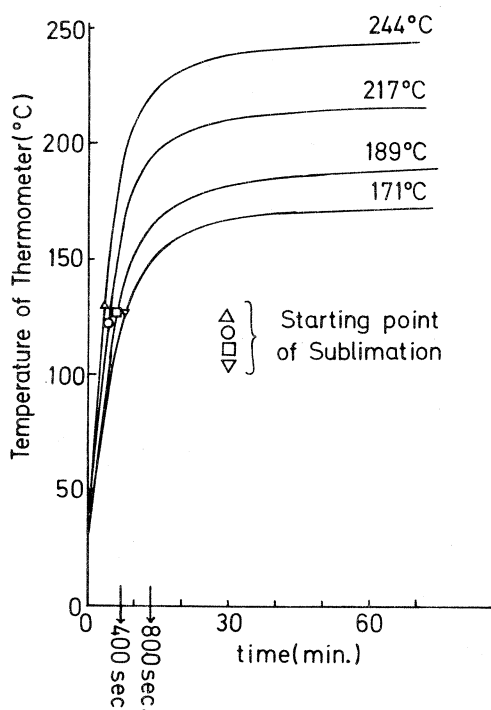
( $\cdot$ ) Experimental Data  
 ( $\circ$ ) Calculated Data  
 (Background subtracted)

[ ] final temperature of sublimation tube  
 ↑↑↑ 130°C point of thermometer temperature

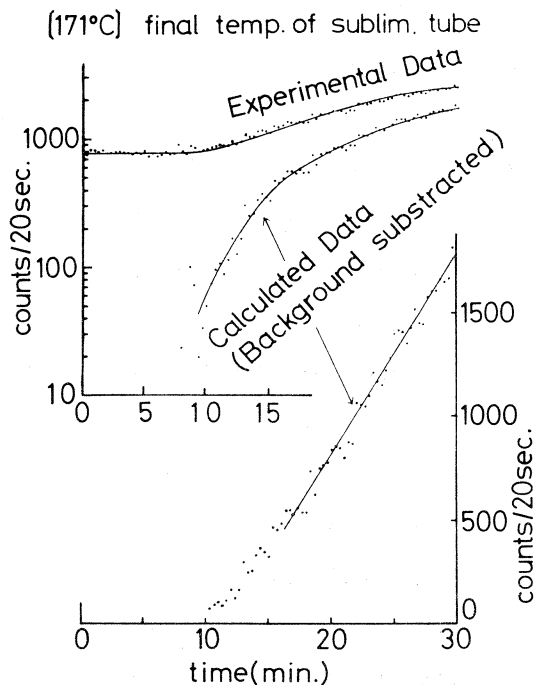
第7図 Examples of the results for continuous sublimation



ットをおこなったところほぼ直線となった。高い最終到達温度では、単位時間あたりの熱の供給量が非常に大きいため、指数関数的に昇華量が増加するものと思える。又低い温度では、熱の供給量が少なく昇華と熱の供給がほぼ平衡状態で行われるため直線的増加を示すのではないかとと思われる。またこれらいずれの実験でも、さきに説明したT点において水銀温度計で昇華管中の温度を測定したが、その示す温度と時間の関係



第9図 The increase of temperature near sublimation tube at different furnace temperature.

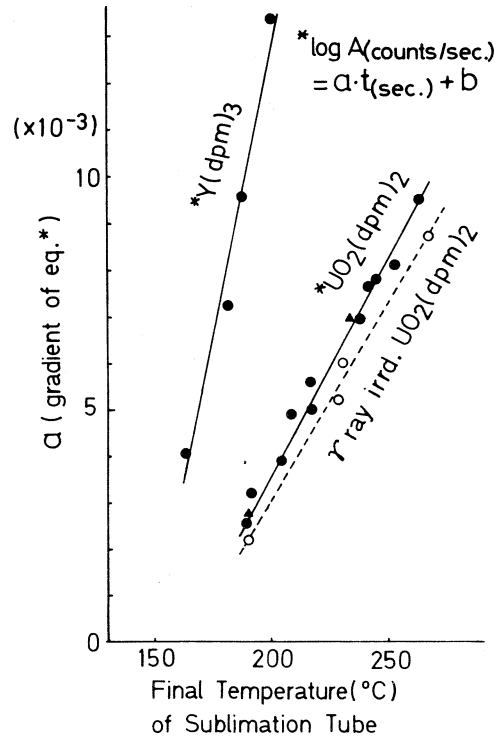


第8図 An example of the result for continuous sublimations at lower furnace temperature

を昇華最終到達温度の異なる四つの例について描いてみると第9図のようになる。さきほどから述べている最終到達温度とはこの曲線のプラトー部分の温度にはかならない。第9図の上で△○□▽で示した点は、それぞれの最終到達温度実験において、昇華開始のみられる点（第7図 ↑, ↑, ↑, 第8図約10分）の時刻に相当し、その時の温度はいずれもほぼ一定の温度 130°C 程度を示す。水銀温度計の熱容量と試料の熱容量の差異、試料はガラス管内にあるなど、この温度は厳密には試料温度を示さぬとしても、昇華開始温度が一定であることは注目すべきことであり、きわめて長時間を要するとしても 130

℃前後の温度での昇華実験は、そのさいの蒸気圧の検討とともに興味あると考える。

前述したように第8図に示した実験例など最終到達温度が180℃~260℃の間では、正味の放射能の増加の片対数プロットにより直線が得られることがわかったが、これら直線の勾配の変化に何か相関性がみられないかを検討してみた。すなわち第10図のようにそれぞれの最終到達温度の場合のこの勾配を図にプロットすると、それらの変化に直線性があることがわかった。つまり炉の最終到達温度が高いと温度上昇が大で昇華速度が大きいのは当然としても、第10図右上に示す式の  $a$  (勾配) の増加が直線的であることは興味がある。このような関係は  $Y(dpm)_3$  錯体昇華の場合も同図に示すように見られたが、両者を比較すると  $Y(dpm)_3$  錯体の方があきらかにこの直線の傾きが大きく、同じ最終到達温度の昇華実験でも  $a$  の値がより大きいことがわかる。これは、 $Y(dpm)_3$  錯体の方が  $UO_2(dpm)_2$  錯体よりも昇華しやすいことを示し、その昇華沈着温度が低温部分であることとも矛盾しない。このような勾配  $a$  の直線的な関係はさしづめ実験的に得られた結果であるが、今後その理論的解析が望まれる。一方170℃程度以下での  $UO_2(dpm)_2$  錯体の昇華挙動の詳細な検討は、その蒸気圧測定とも関連して興味があると考えられる。なお  $(r, n)$  反応等で生じた反跳核が、加熱昇華という状況においてどのような挙動をとっているかを種々の温度での実験で調べることも今後の課題である。



第10図 Analysis of experimental results for continuous sublimation at different furnace temperature.

本実験を行うにあたり御便宜と御助言を賜った核理研、八木助教授、近藤助手、ならびに東北大理学部吉原助教授その他の方々に厚く感謝の意を表します。

## 参 考 文 献

- 1) G. S. Hamond , D. C. Nonhebel and C-H. S. Wu : Inorg. Chem. **3**(1963) 73.
- 2) 加藤, 榎本, 佐藤, 鈴木 : 核理研研究報告 **8**(1975) 362.

### III - 5 Distribution Coefficients of TBP and TBPO

K. Akiba, M. Wada and T. Kanno

*Research Institute of Mineral Dressing and Metallurgy  
Tohoku University, Sendai, Japan*

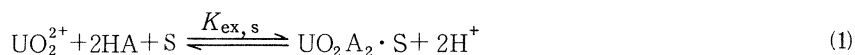
#### § 1. Introduction

Tributyl phosphate (TBP) has been widely used in solvent extraction of metal complexes, and tributyl phosphine oxide (TBPO) has received attention as an extractant with strong donor ability. These neutral ligands have been commonly employed as an additive in synergistic extraction.

The present study is concerned with the distribution of TBP and TBPO between a number of organic solvents and dilute acid solutions. The effect of solvent on the distribution coefficients was investigated in relation to the concept of solubility parameters.

#### § 2. Determination of neutral ligand

The uranyl chelate of thenoyltrifluoroacetone (TTA) forms an monoadduct complex ( $\text{UO}_2\text{A}_2 \cdot \text{S}$ ) with such neutral ligands (S) as TBP and TBPO. The equilibrium of synergistic extraction can be expressed by:



The equilibrium constants ( $K_{\text{ex},s}$ ) much depend on the kind of solvent; the greatest values were found in hexane solvent, *i. e.*  $\log K_{\text{ex}(\text{UO}_2\text{A}_2 \cdot \text{TBP})} = 3.49^{1)}$  and  $\log K_{\text{ex}(\text{UO}_2\text{A}_2 \cdot \text{TBPO})} = 6.25^{2)}$ .

This synergistic extraction into hexane solution was applied to the determination of the donor molecules.

A solution of known concentration of TBP and TBPO was equilibrated with a sodium perchlorate solution ( $\mu=0.1$ ) which pH was kept at 1 to 3. The two phases were separated by centrifugation, the aqueous phase pipetted out, an excess of uranyl ion labelled with  $^{237}\text{U}$  was added, then the aqueous solution was freshly shaken with a large excess of TTA in hexane solution. The ligand dissolving in the aqueous phase was extracted completely to the hexane phase as the 1 : 1 adduct,  $\text{UO}_2\text{A}_2\cdot\text{S}$ , and its concentration was determined by measuring the  $\gamma$ -radioactivity of  $^{237}\text{U}$ , as described previously.<sup>3)</sup>

### § 3. Distribution coefficient

The distribution ratios ( $D_s$ ) of TBP and TBPO were observed to be constant irrespective of pH in the range of 1 to 3.

The effects of ligand concentrations were examined as shown in Figs. 1 and 2 for TBP and TBPO,

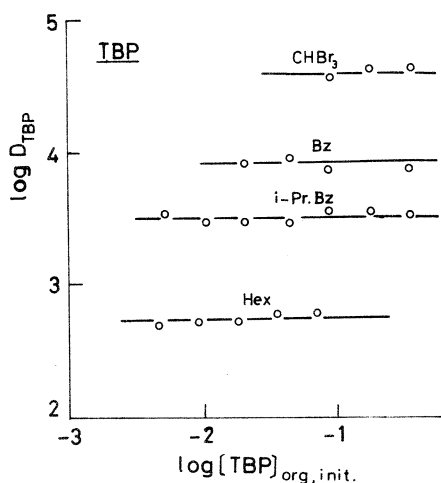


Fig. 1. Effect of TBP concentrations on distribution ratios. Aq. ph.  $\text{pH} \approx 2.3$  ( $\mu=0.1$ )

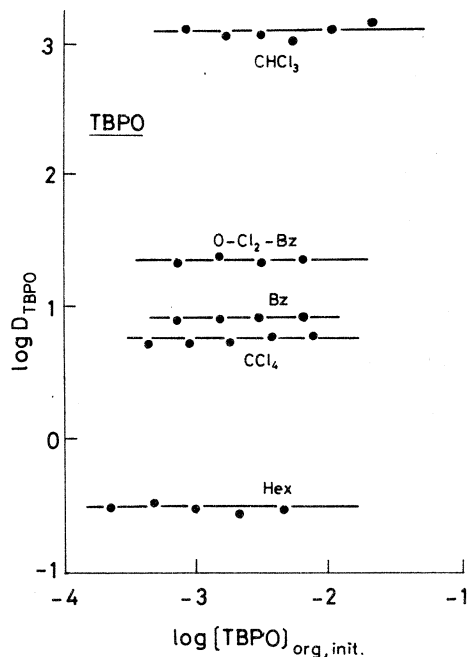


Fig. 2. Effect of TBPO concentrations on distribution ratios.

respectively; the equilibrium could be represented by constant distribution ratios independent of the initial concentrations of ligands.

No side reaction such as dimerization was observed, then it could be assumed that the distribution ratio was equal to the distribution coefficient ( $P_s$ ) of the single species.

Distribution coefficients of TBP and TBPO in the literature<sup>4-8)</sup> are listed in the third and the fifth columns of Table I for dilute acid solutions which are comparable to present experimental conditions.

Table I. Distribution coefficients of TBP and TBPO.

25° C;  $\mu=0.1(\text{H,Na})\text{ClO}_4$ ; pH=2.3

Solvent	$\delta_{\text{org}}$	$\log P_{\text{TBP}}$		$\log P_{\text{TBPO}}$	
		lit.	obsd.	lit.	obsd.
Pentane	7.05		2.74		-0.51
Hexane	7.3	2.8 <sup>4)</sup>	2.73	-0.3 <sup>5)</sup>	-0.52
Heptane	7.4	2.7 <sup>4)</sup>	2.75		-0.60
Cyclohexane	8.2	2.9 <sup>4)</sup>		-0.22 <sup>5)</sup>	
Methylene chloride	9.7		4.50		2.48
Chloroform	9.3		4.20		3.08
Carbon tetrachloride	8.6		3.70	0.70 <sup>6)</sup>	0.77
Bromoform	10.5		4.56		2.32
Benzene	9.15	3.8 <sup>4)</sup>	3.93	1.06 <sup>7)</sup>	0.92
Toluene	8.9	3.7 <sup>4)</sup>	3.84	0.69 <sup>8)</sup>	
Isopropylbenzene	8.5		3.50		0.24
Chlorobenzene	9.5		4.04		1.28
o-Dichlorobenzene	10.0		4.07		1.34

From previous studies,<sup>3,9)</sup> the change in distribution coefficients in various solvents can be expected to be better explained on the basis of the following equation,

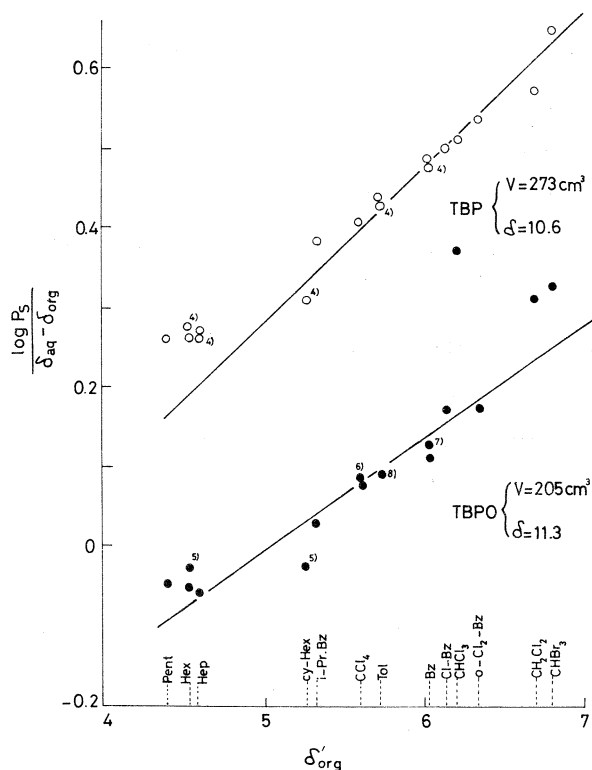
$$\frac{\log P_s}{\delta_{\text{aq}} - \delta_{\text{org}}} = \frac{V_s}{2.303 RT} (\delta_{\text{aq}} + \delta'_{\text{org}} - 2\delta_s) \quad (2)$$

$$\delta'_{\text{org}} = \delta_{\text{org}} + \frac{RT}{\delta_{\text{aq}} - \delta_{\text{org}}} \left( \frac{1}{V_{\text{org}}} - \frac{1}{V_{\text{aq}}} \right)$$

where  $V$  stands for the molar volume; and  $\delta$ , the solubility parameter.

The literature values are illustrated in Fig. 3 according to eq.(2); these plots yield the linear lines whose slopes and intercepts are determined by the molar volumes and the solubility parameters of the compounds. Two values of  $V_{\text{TBP}} = 273 \text{ cm}^3$  and  $\delta_{\text{TBP}} = 10.6$  for TBP were reported by Siekierski.<sup>10)</sup> While, as for TBPO, the molar volume and the solubility parameter were evaluated to be  $V_{\text{TBPO}}$

Fig. 3. Correlation between distribution coefficients and solubility parameters.  $\circ$ TBP,  $\bullet$ TBPO. The numbers 4-8 in Fig. 3 correspond to those of references.



= 205 cm<sup>3</sup> and  $\delta_{\text{TBPO}} = 11.3$  from the straight line in Fig. 3.

This probably makes it possible to predict the distribution coefficients of these ligands for other organic solvents; the straight lines in Fig. 3 are assumed to correspond to the estimates.

The observed values of  $\log P_{\text{TBP}}$  and  $\log P_{\text{TBPO}}$  are presented in the fourth and the sixth columns of Table I, and also plotted in Fig. 3 according to eq.(2); most of them are close to the estimated lines, and little difference appears between the values in the literature and in the present work. A large deviation in TBPO-chloroform solution may be ascribed to the solute-solvent interaction through hydrogen bonding.<sup>11)</sup>

The change in the distribution coefficients of TBP and TBPO could be interpreted with the aid of solubility parameters.

### References

- 1) K. Akiba and N. Suzuki: Bull. Chem. Soc. Japan **44** (1971) 1043.
- 2) K. Akiba: J. Inorg. Nucl. Chem. **35** (1973) 3323.
- 3) K. Akiba and T. Kanno: Res. Rep. Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **9** (1976) 272.
- 4) K. Alcock, S. S. Grimley, T. V. Healy, J. Kennedy and H. A. C. McKay: Trans. Faraday Soc. **52** (1956) 39.
- 5) IUPAC: *Equilibrium Constants of Liquid-Liquid Distribution Reactions, Part 1* (Butterworths, London, 1974).
- 6) C. E. Higgins and W. H. Baldwin: Anal. Chem. **32** (1960) 233.
- 7) J. Goffart and G. Duyckaerts: Anal. Chem. Acta **36** (1966) 499.
- 8) T. Ishimori and T. Fujino: J. At. Energy Soc. Japan **3** (1961) 276.



- 9) K. Akiba, T. Kanno and M. Wada: Res. Rep. Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **10** (1977) 131.
- 10) S. Siekierski: J. Inorg. Nucl. Chem. **24** (1962) 205.
- 11) M. Kh. Pushlenkov and E. V. Komalov: Radiokhimiya **6** (1964) 426.

### Ⅲ-6 $^{111}\text{In}$ の時間微分型撮動角相関

理学部化学

葉有財・吉原賢二・塩川孝信

Time differential perturbed angular correlation of  $^{111}\text{In}$  is investigated in  $\gamma$ -ray irradiated indium metal. An outline of the method and the results are described.

#### § 1. 序 論

時間微分型撮動角相関 (Time differential perturbed angular correlation, 以下TDPACと略称する)は時間積分型撮動角相関 (Time integral perturbed angular correlation, 以下TIPACと略称する)に比べて, より詳細な情報を得ることができる。特に固体 (多結晶) について, ホットアトム化学的な研究をするには是非ともTDPACでなくてはならない<sup>1)</sup>。液体試料についても, 緩和時間の測定がTDPAC法では一次的に精度よく求められる<sup>2)</sup>。RIプローブの結合状態の情報をつかむ上には関連のある配位子によって作られる電場勾配を求める必要があり, これはTIPAC法では求められない。このため化学的に応用したPACの研究の多くは微分法である。<sup>3-9)</sup>

しかし微分法の条件は測定系の時間分解能を, RIプローブの中間状態寿命よりはるかに短かくする必要があるので, その測定技術はかなり高度のもので, 化学者にとって扱える核種としては $^{181}\text{Hf}$  (中間寿命 10.8nsec) や $^{111}\text{In}$  (中間寿命 84 nsec) のように比較的長い中間寿命のものが用いられている。

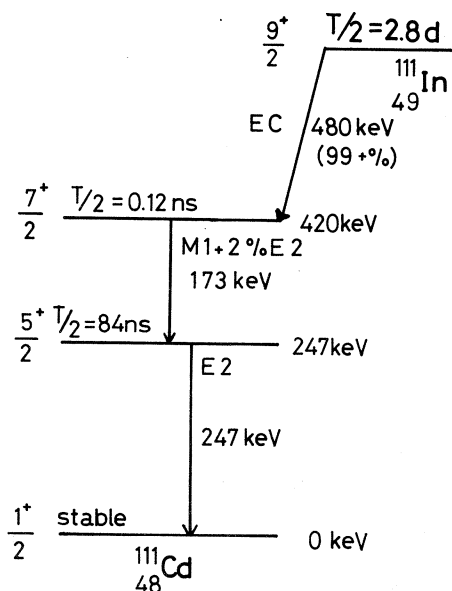
測定精度を向上するためには, ひとつは, より速いより安定したコインシデンス回路の設計, 組立と, もうひとつはコンピューターによるデータ解析が必要である。

本研究はTDPAC測定を種々のインジウム化合物についておこなうための基本的な検討として遂行されたものである。

#### § 2. 実 験

##### 2.1 実験装置

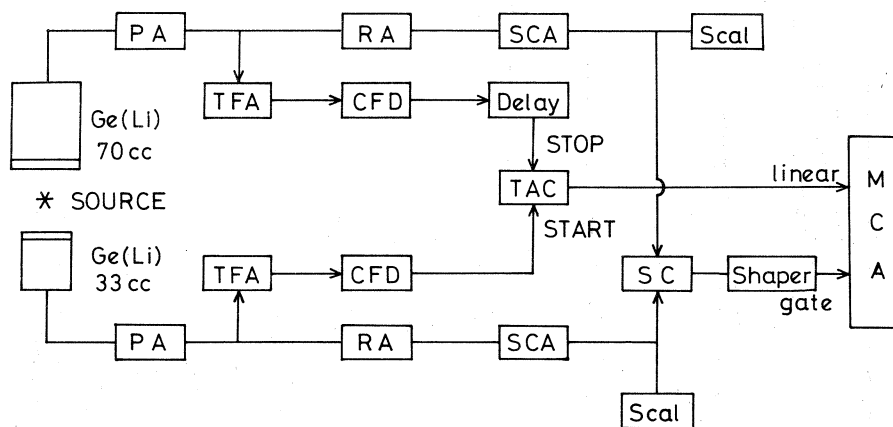
$^{111}\text{In}$  の壊変図を第1図に示す。 $^{111}\text{In}$  は電子捕獲をして $^{111}\text{Cd}$ に壊変するが, そのさい11 psec, 420keVの準位と84 nsec, 247keVの準位を経由し, 173keVと247keVの2本の $\gamma$ 線

第1図  $^{111}\text{In}$  の壊変図

を放出する。この2本の $\gamma$ 線間の角相関を測定するものである。173 keVの $\gamma$ 線は不純物としての $^{114\text{m}}\text{In}$ の190 keVの $\gamma$ 線とNaIクリスタルでは区別できないため、Ge(Li)クリスタルを用いて測定しなければならない。本実験では70cc Ge(Li)検出器および33cc Ge(Li)検出器を用いた。測定系のブロックダイアグラムは第2図に示す通りである。各部分はOrtec社製のものを用いた。原子核理学研究施設RI共同利用部門の現有装置である。

## 2.2 照射

インジウムの金属（高純度化学研究所製，99.9%，直径1 mm果粒状）を数mg 石英管に封入し，東北大学原子核理学研究施設300 MeV電子直線加速器で $\gamma$ 線照射した。 $\gamma$ 線の



第2図 時間微分型攝動角相関 (TDPAC) の実験装置ブロック・ダイアグラム

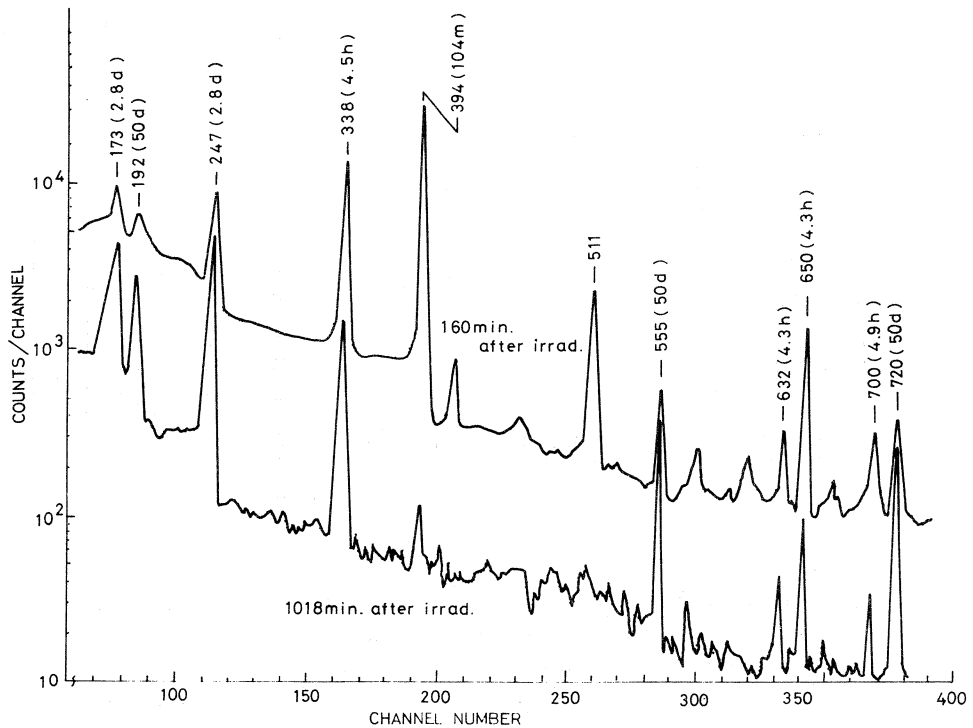
PA : Preamplifier, RA : Research amplifier,  
SCA: Single channel analyser, Scal : Scaler  
TFA: Timing filter amplifier, CFD: Constant fraction discriminator,  
Delay : Delay amplifier, TAC: Time to amplitude converter,  
MCA: Multi-channel analyser.

エネルギーは最大60MeVで、6時間照射した。第1表に反応核種と生成核種との関係を示す。

第1表 インジウムの主な核反応と生成核種半減期

核 反 応	生成核種半減期
$^{113}\text{In}(\gamma, n)^{112\text{m}}\text{In}$	20.7 m
$^{113}\text{In}(\gamma, 2n)^{111}\text{In}$	2.81 d
$^{113}\text{In}(\gamma, 3n)^{110\text{m}}\text{In}$	4.9 h
$^{115}\text{In}(\gamma, n)^{114\text{m}}\text{In}$	50 d
$^{115}\text{In}(\gamma, 3n)^{112\text{m}}\text{In}$	20.7 m
$^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In}$	54 m
$^{113}\text{In}(\gamma, \gamma')^{113\text{m}}\text{In}$	104 m
$^{115}\text{In}(\gamma, \gamma')^{115\text{m}}\text{In}$	4.5 h

所要の $^{111}\text{In}$ は $^{113}\text{In}$ の $(\gamma, 2n)$ 反応から生成され、一方、測定上の妨害となる $^{114\text{m}}\text{In}$ は $^{115}\text{In}$ の $(\gamma, n)$ 反応で生成されるから、 $\gamma$ 線エネルギーを高くして、 $(\gamma, 2n)$ 反応の断面積を大きくした方がよい。しかしあまりエネルギーを高くすると、 $(\gamma, 3n)$ 反応の確率が増してくるので好ましくないが、生成する $^{110\text{m}}\text{In}$ の半減期が4.9時間で減衰し、ピークの分



第3図  $\gamma$ 線照射した金属インジウムの $\gamma$ 線スペクトル

離に妨害はない。第3図に33 cc Ge (Li)検出器による照射後160分と1018分の照射試料の $\gamma$ 線スペクトル測定例を示す。目的とする $^{111}\text{In}$ の173 keV および247keVの $\gamma$ 線の測定は照射後しばらく他核種の減衰を待ってからおこなった方がよいことがわかる。

### § 3. 結果と考察

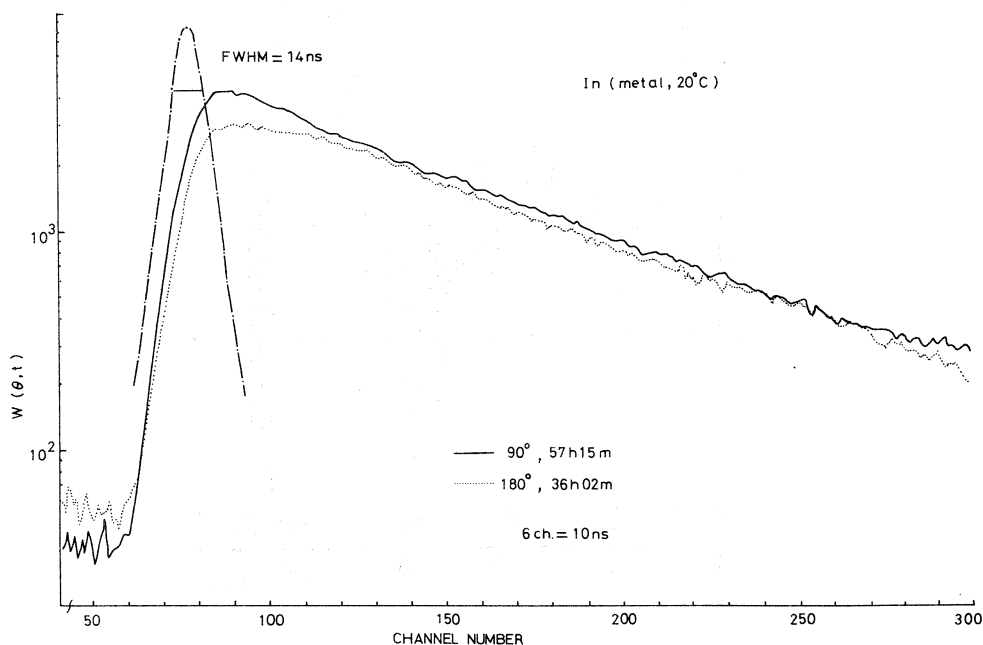
線源試料として

- (i) In金属を $\gamma$ 線照射後、無処理のもの。
- (ii) 上の試料を加熱熔融し、100°Cで1時間アニーリングしたもの。
- (iii) InCl<sub>3</sub>粉末の $\gamma$ 線照射後、無処理のもの。
- (iv) 上の試料を水に溶かしたもの。

の4種を検討したが、精度よく測定できたのは(ii)の試料であったので、それについて述べる。

エネルギー選別として、移動側の70 cc Ge (Li)で247 keVをとり、固定側の33cc Ge (Li)で173 keVをとらえた。測定時間は90°で57時間15分、180°で36時間02分かかった。規格化は247keV側の全シングル計数 $1,2914 \times 10^8$ を基準にした。

即時曲線は $^{22}\text{Na}$ を用いて測定し、半値幅は14 nsecであった。時間軸は6 ch = 10 nsecに設定し、TACのOUTは800nsec = 10Vにし、MCAのconversion gainは512chとした。



第4図  $^{111}\text{In}$ の173-247keV coincidence time spectra

第4図に173-247keVの遅延同時計数スペクトルと測定系の即時曲線を示す。実線は $90^\circ$ の結果で、点線は $180^\circ$ の結果を表わす。分解時間は14nsecであった。

これからdifferential perturbation factor  $G_2(t)$ の解析をした結果を第5図に示す。

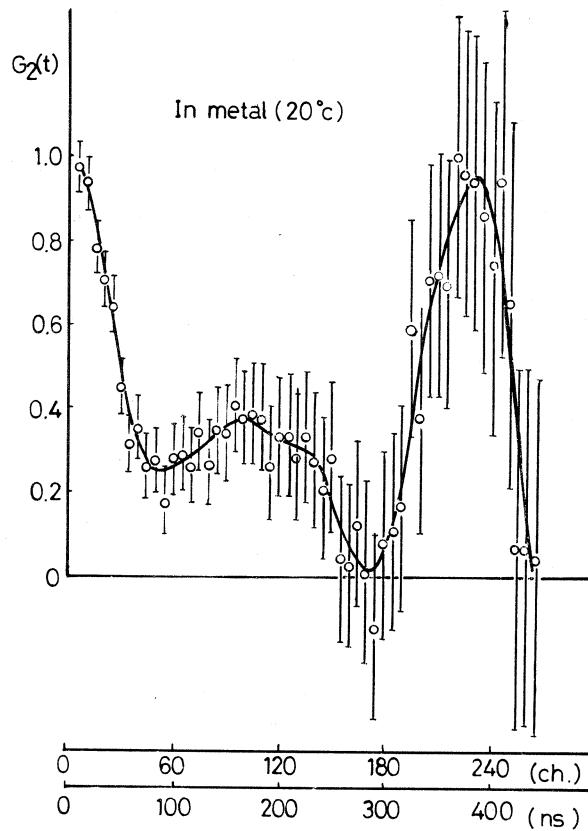
$G_2(t)$ を得るために必要な式はつぎのようにして得られる。各 $\theta$ 角で得られる遅延同時計数スペクトルは

$$C_{MCA}(\theta, t_i) = \Omega_2 \varepsilon_2 q_2 \exp(-t_i/\tau_N) W(\theta, t_i) N^\theta + C_{acc}^\theta \quad (1)$$

ここで

$$N^\theta = \Omega_1 \varepsilon_1 q_1 \lambda \int_0^t N_0 e^{-\lambda t} dt$$

$\Omega$ は立体角因子,  $\varepsilon$ は計数効率,  $q$ は分岐比,  $t_i$ は任意の時間,  $\tau_N$ は平均寿命,  $C_{acc}^\theta$ は $\theta$ における偶然同時計数, 添字2は微分系の実験, 添字1は積分系の実験を示す。



第5図 In 金属に対する $G_2(t)$ 実験値

さて角相関係数 $W$ については

$$W(180^\circ, t_i) \approx 1 + A_2 Q_2 G_2(t_i) \quad (2)$$

$$W(90^\circ, t_i) \approx 1 + \frac{1}{2} A_2 Q_2 G_2(t_i) \quad (3)$$

という関係が成立する。

(1)を書き換えて $180^\circ$ と $90^\circ$ の場合、偶然同時計数を差引いた場合に、

$$A_i = \frac{C_{MCA}(180^\circ, t_i) - C_{acc}^{180^\circ}}{\Omega_2 \varepsilon_2 q_2 N^{180^\circ}} = \exp(-t_i / \tau_N) [1 + A_2 Q_2 G_2(t)] \quad (4)$$

$$B_i = \frac{C_{MCA}(90^\circ, t_i) - C_{acc}^{180^\circ}}{\Omega_2 \varepsilon_2 q_2 N^{90^\circ}} = \exp(-t_i / \tau_N) [1 - \frac{1}{2} A_2 Q_2 G_2(t)] \quad (5)$$

という式が得られる。これから

$$A_i + 2 B_i = 3 \exp(-t_i / \tau_N) \quad (6)$$

$$\frac{A_i - B_i}{A_i + 2B_i} \approx \frac{1}{2} A_2 Q_2 G_2(t) \quad (7)$$

となり、 $180^\circ$ および $90^\circ$ の2点測定から $\tau_N$ および $G_2(t)$ が求められることがわかる。

第5図に示した解析は(7)式を用いておこなったもので、データを5点法のスムージングをしてから数値を式に入れたものである。 $t = 0$ の $G_2(t)$ の値と $t' = \frac{2\pi}{\omega}$ の $G_2(t)$ の値の差が小さく、山と谷の差がはっきりして、ピークの対称性もよい。 $\omega$ の値は $t' = 383$  nsec から計算して $16.4 \times 10^6$  rad/sec となり、文献値<sup>10)</sup>の $(16.8 \pm 0.1) \times 10^6$  rad/sec とよく一致している。 $G_2(t)$ の形は少し異なるところが見られるが本研究はより多くの実験点をとっているので問題はない。おそらく結晶構造のひずみの程度の差があるのであろう。meltを急冷した後、にアニーリングする方法では、場合によりわずかな差が生じることはあり得ることである。いずれにしても $\omega$ は大多数の割合を占めていて、この値を用い、

$$\omega = \frac{3}{20} eQ V_{zz} / \hbar \quad (8)$$

( $eQ$ は四重極能率、 $V_{zz}$ は電場勾配)

の関係から、 $Q = (0.77 \pm 0.12) \times 10^{-24}$  cm<sup>2</sup>を用いて

$$V_{zz} = 3.1 \times 10^{13}$$
 esu

が得られた。

なおまた歪の程度の問題、金属以外の試料についての問題などは将来の実験に残されたが、上の研究から、インジウムの化学種を用いたPACの化学的研究の可能性が大いにひらけたも

のといえる。

終りに本実験に当って多大の有益なご示唆を頂いた東北大学理学部林部昭吾助教授，照射に当ってお世話になった東北大学原子核理学研究施設八木益男助教授，近藤健次郎助手，ならびに研究遂行上種々のご教示をいただいた東北大学理学部鍛冶東海助手に深い感謝の意を表する。

### 参 考 文 献

- 1) A. Boussha, A. M. Netto, J. Ch. Abbé and A. Haessler : Radiochem. Radioanal. Lett. **24** ( 1976 ) 43.
- 2) A. Abragam and R. V. Pound : Phys. Rev. **92** ( 1953 ) 943.
- 3) H. Haas and D. A. Sherley : J. Chem. Phys. **58** ( 1973 ) 3339.
- 4) H. F. Wagner, M. Forker and U. Weigand : Z. Phys. **238** ( 1970 ) 69 ; J. Mellema *et al.* : Nucl. Phys. **A 117** ( 1968 ) 376 ; A. Hammesfahr *et al.* : Z. Phys. **235** ( 1972 ) 360 ; H. F. Wagner and J. Lange : Z. Phys. **238** ( 1970 ) 35 ; M. Forker, H. F. Wagner. and G. Schmidt : Nucl. Phys. **A 138** ( 1969 ) 97.
- 5) G. R. Demille *et al.* : Chem. Phys. Lett. **44** ( 1976 ) 164.
- 6) Y. Tsuchiya, S. Tamaki, A. Furusawa and H. Okazaki : 核理研研究報告 **9** ( 1976 ) 121.
- 7) L. Richer, G. Graf and J. Glass : J. Chem. Phys. **61** ( 1974 ) 396.
- 8) D. A. Shirley : J. Chem. Phys. **55** ( 1971 ) 1512.
- 9) R. Bauer, P. Limkilde and O. Glomset : Phys. Rev. Lett. **32** ( 1974 ) 340.



### III-7 クロム酸カリウムにおける ( $\gamma$ , n) 反応に伴う化学的效果

理学部化学

菊地毅光・大森 巍・塩川孝信

#### § 1. 緒 言

クロム酸カリウムを用いてのホットアトム化学の研究は、これまで非常に多くの研究がされてきており、固相におけるホットアトムの反応機構について重要な知見を提供している。<sup>1,2)</sup> しかしながら、これらの研究は ( $n$ ,  $\gamma$ ) 反応によって生じた反跳  $^{51}\text{Cr}$  原子の化学的挙動についてなされたものがほとんどであり、他の核反応についての知見は極めて少い。

Ackerhalt, Harbottle<sup>3)</sup> は、 $^{52}\text{Cr}(n, 2n)^{51}\text{Cr}$  反応について研究したが、極めて高い反跳エネルギーを得た  $^{51}\text{Cr}$  の標識化学種の分布は、 $^{50}\text{Cr}(n, \gamma)^{51}\text{Cr}$  反応の場合と比較して、大きな差は認められなかった。しかし  $^{50}\text{Cr}(n, 2n)^{49}\text{Cr}$  反応では、 $^{49}\text{Cr}$  標識化学種の分布は  $^{51}\text{Cr}$  標識化学種のそれとは異なることから、反跳エネルギーよりも、反跳核の励起解消過程の差が反跳原子の化学的挙動に影響を与えると彼等は説明している。

この提出された仮定を証明するためには、 $^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$  反応で生じた  $^{51}\text{Cr}$  の化学的挙動を明らかにする必要がある。クロム酸カリウムの ( $\gamma$ ,  $n$ ) 反応については、著者等の報告<sup>4)</sup> があるが、当時は低温照射装置がなく照射中のアニーリング効果のためリテンション値が極めて高く、定量的考察が困難であった。本研究では、スーパマグネットを使用することにより電子線を取除き、ドライアイス温度において制動放射線のみを照射することが可能となったので、改めてクロム酸カリウムの  $^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$  反応について再検討を試みた。

#### § 2. 実 験

特級クロム酸カリウムを、さらに再結晶して精製した結晶を粉末にして照射試料とした。

大気中で石英管アンプルに封入した試料(約 500mg)を、東北大学電子ライナックにおいて 60 MeV 制動放射線で 6 時間照射し、 $^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$  反応により反跳  $^{51}\text{Cr}$  を生成した。未転換の電子をスーパマグネットにより取除き、試料をドライアイス温度で照射した。また照射試料は、分析時までドライアイス中に保存した。

照射試料の熱アニーリングは、大気中オイルバス中で行なった。

$^{51}\text{Cr}$  標識化学種は、陽イオン交換樹脂法<sup>5)</sup>により、 $^{51}\text{CrO}_4^{2-}$  (R),  $^{51}\text{Cr}(\text{H}_2\text{O})_6^{3+}$  (M),  $^{51}\text{Cr}$  (III) - dimer (D)および $^{51}\text{Cr}$  (III) - polymer (P)にそれぞれ分離した。<sup>\*</sup>すなわち照射試料を $\text{Cr}(\text{H}_2\text{O})_6^{3+}$ を担体として含む過塩素酸溶液(pH 1.3)に溶解した後、陽イオン交換樹脂(Dowex 50W-X8, H型)に通す。過塩素酸(pH 1.3)のフラクションに $^{51}\text{CrO}_4^{2-}$ , 4 N過塩素酸により $^{51}\text{Cr}(\text{H}_2\text{O})_6^{3+}$ , 5 N塩酸でDを溶離し、樹脂柱に残ったフラクションをPとした。分離した各フラクションの放射能は、4 KPHAを接続した24ccGe(Li)検出器を用いて測定した。

### § 3. 実験結果

クロム酸カリウムにおいて、 $(\gamma, n)$ 反応による初期収率を、 $(n, \gamma)$ 反応および $(n, 2n)$ 反応によって得られた結果<sup>3)</sup>とともに第1表にまとめて示す。第1表には、室温で照射した結

第1表 INITIAL YIELDS IN  $\text{K}_2\text{CrO}_4$

Nuclear reaction	Yield (%)			
	R	M	D	P
$^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$	$55.7 \pm 0.9$	$9.5 \pm 0.2$	$16.7 \pm 0.9$	$18.1 \pm 1.7$
$^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}^*$	$83 \pm 1$ <sup>*2</sup>			
$^{52}\text{Cr}(n, 2n)^{51}\text{Cr}$	$53.2 \pm 0.9$	$19.2 \pm 1.0$		$27.6 \pm 1.1$
$^{50}\text{Cr}(n, \gamma)^{51}\text{Cr}$	$47.5 \pm 0.4$	$20.8 \pm 1.3$		$31.7 \pm 0.9$

\* 1 Irradiated at an ambient temperature ( $\approx 100^\circ\text{C}$ )

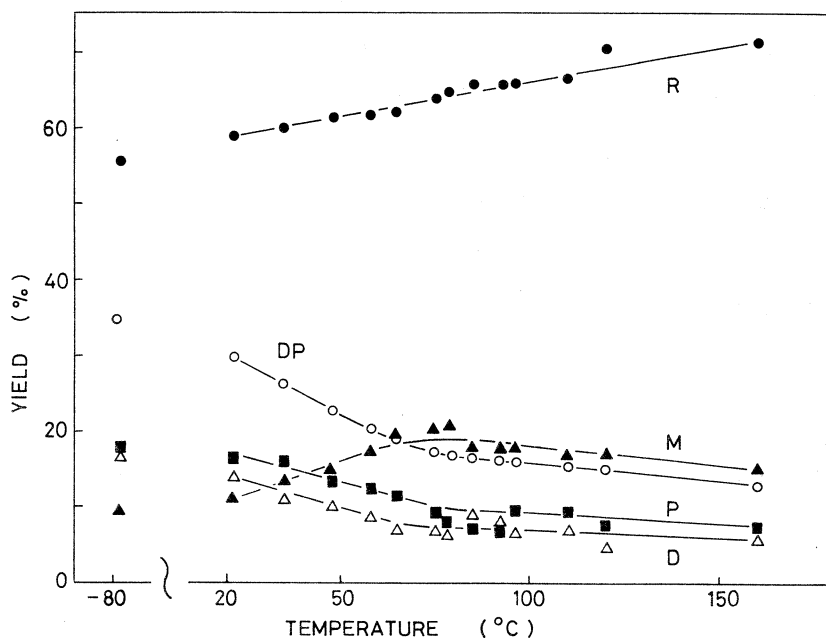
\* 2 Obtained by lead chromate precipitation method.

果<sup>4)</sup>も示されているが、照射中の制動放射線および電子線による放射線アニーリングが熱アニーリングと相乗して、リテンション値( $^{51}\text{CrO}_4^{2-}$  - 収率)が高くなっている。照射中試料をドライアイス温度に保てば、初期リテンション値の低下がみられる。結晶の状態、照射中の放射線化学的効果が等しくないので厳密な比較はできないが、 $(\gamma, n)$ ,  $(n, 2n)$ および $(n, \gamma)$ 反応によって、初期リテンション値に著しい差は認められない。 $^{51}\text{Cr}$  (III) - 収率では $(n, \gamma)$ および $(n, 2n)$ 反応と比較して $(\gamma, n)$ 反応の場合にはMの収率が低く(D+P)収率が高くなっている。

\* R, M, D, Pは試料を溶解した際に見出される化学種である。結晶中の化学種の場合には、溶解した時にR, M, DおよびPを与える化学種という意味で用いることにする。

( $\gamma, n$ ) 反応では、 $\gamma$ 線線量率は $\sim 10^7$  R/hr であるが、照射中のクロム酸カリウムの放射線分解は $< 0.5\%$ であった。したがって放射線分解に起因する $^{51}\text{Cr(III)}$ -収率の増加は考慮する必要はない。

次に反跳原子 $^{51}\text{Cr}$ が、クロム酸カリウム結晶中で熱アニーリング反応により、再び親化合物を形成する過程を検討するために、等時熱アニーリング (isochronal annealing) を試みた。第1図は、( $\gamma, n$ ) 反応による反跳 $^{51}\text{Cr}$  化学種の $22^\circ$  から $160^\circ\text{C}$ の温度範囲で100分熱アニ



第1図 Isochronal annealing of  $^{51}\text{Cr}$  produced by the ( $\gamma, n$ ) reaction in  $\text{K}_2\text{CrO}_4$  (100 min.).

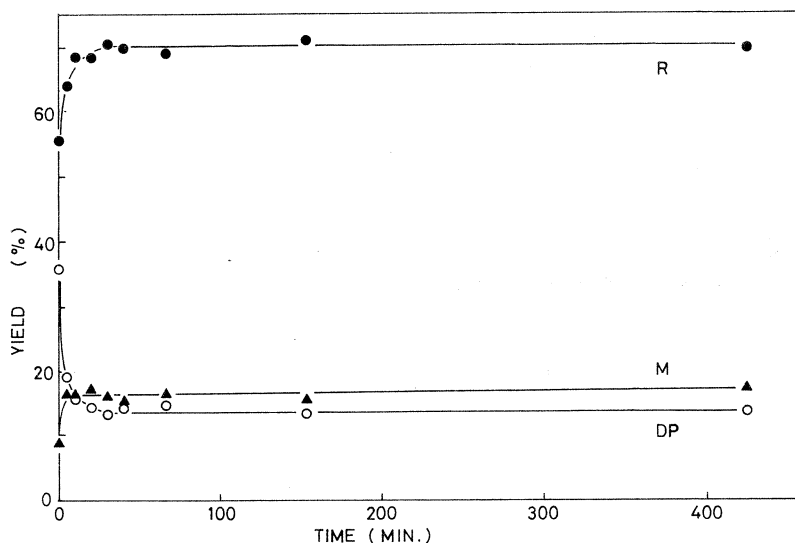
ーリングした際の各フラクシオンの収率を、アニーリング温度に対しプロットした結果を示している。

実験条件下では、リテンション値(R)は直線的に増加しているのに対して、M、DおよびPの収率は、複雑に変化している。すなわちRの増加率よりM、DおよびPの変化率の方が大きく、親化合物再形成反応と同時にDおよびPがMへ変化する反応も進行している。ここでD/P比が、実験条件下では一定値を示すことから、照射試料を溶解した水溶液において見出されるDおよびPは、結晶中ではこれらに対し同じ前駆体として存在しているものと考えられ、以後(D+P)をあわせてDPとして考察する。

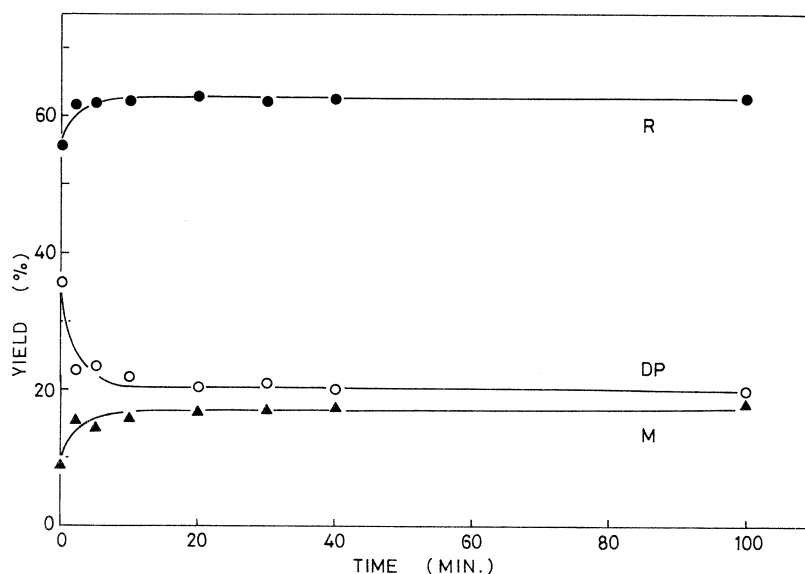
Mの増加がみられる80℃付近までは、DPの減少分に対し、M+Rの増加分が対応しておりリテンションの増加は、DPフラクションからの親再形反応に基くものと考えられる。MとDP曲線の“Cross-over”は、70℃で起っており、(n, r)反応においても同様に見出されている“Cross-over”の起る温度(35~60℃)<sup>5-7)</sup>より高温側に移行しているが、これはDP/Mの初期値比が(n, r)反応に比して(r, n)反応では高いためであろう。

Mは80℃付近で極大値に達した後、徐々に減少している。一方DPも80℃以上では、減少の割合はゆるやかになり、80℃を境としてアニーリング反応機構の変化が認められる。そこで64℃と145℃において、等温熱アニーリング(isothermal annealing)を試み、R、MおよびDPの経時変化を求めた。結果を第2図および第3図に示す。

いずれの場合にも、Rは約10分でプラトー値に達してしまい、(n, r)反応の際にみられる一度擬プラトー値に達してからゆるやかに直線的に増加する反応は、145℃で7時間熱アニーリングした場合でも認められない。一方DP→Mの反応は、64℃においては約20分で完了するが、145℃ではRの変化と同様に速やかに完了している。



第2図 Isothermal annealing of  $^{51}\text{Cr}$  produced by the (r, n) reaction in  $\text{K}_2\text{CrO}_4$  (64℃).



第3図 Isothermal annealing of  $^{51}\text{Cr}$  produced by the  $(\gamma, n)$  reaction in  $\text{K}_2\text{CrO}_4$  ( $145^\circ\text{C}$ ).

#### § 4. 考 察

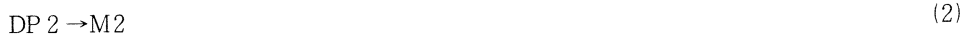
クロム酸カリウムを原子炉温度で照射した場合、初期リテンション値は熱中性子束に著しく依存する。しかし低温 ( $< -78^\circ\text{C}$ ) 照射では、熱中性子束が  $1.7 \times 10^{12} \sim 6.5 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2$  の範囲で平均値として  $R = 47.1 \pm 1.5\%$ 、 $M = 20.2 \pm 1.2\%$  および  $DP = 32.2 \pm 1.5\%$  と得られている<sup>8)</sup>。一方  $^{50}\text{Cr}(n, \gamma)^{51}\text{Cr}$  反応と比較して、極めて高い反跳エネルギーを得ることができる  $^{52}\text{Cr}(n, 2n)^{51}\text{Cr}$  および  $^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$  反応では、低温照射では初期リテンション値は、それぞれ  $53.2 \pm 0.9\%$ <sup>3)</sup> および  $55.7 \pm 0.9\%$  であり、 $(n, \gamma)$  反応の場合よりやゝ高い値が得られている。しかし  $^{50}\text{Cr}(n, 2n)^{49}\text{Cr}$  反応の場合の初期リテンション値が  $80.8\%$  であること、照射試料の結晶状態、照射条件（放射線化学的效果）が厳密に同じでないことを考慮すれば、反跳  $^{51}\text{Cr}$  原子に関しては、反跳エネルギー効果の果す役割はそれ程大きくはないと考えられる。むしろ  $(\gamma, n)$  反応によって得られた実験結果は、反跳エネルギーが反跳原子を結晶格子からはじき出すのに必要なエネルギーのしきい値<sup>9)</sup> を越えれば、初期収率は反跳エネルギーに依存しないで反跳核の励起解消過程に依存するという仮説<sup>3)</sup> を裏付けるものであろう。

Collins 等<sup>8)</sup> は、低温で熱中性子照射したクロム酸カリウム中に存在する化学種として、R、

MおよびDPであるが、アニーリング反応の結果から、M1, DP1, DP2, DP3および結晶中を拡散してくる化学種と反応してRを与える<sup>51</sup>Cr(III) (IIIと表示)に分類している。これらの化学種の関与するアニーリング反応として、20°C以下では



20°C~80°Cの範囲では、(1)の他に“Cross-over”反応を与えるものとして



があり、80°CではDP2はすべてM2に移行する。温度が120°Cを越えると、R生成反応は、アニーリング雰囲気に影響されないのに対して、M, DPの関与する反応は極めて影響され、真空中では



の反応が顕著になり、酸素存在下では



が起る。240°Cを越えるとすべての<sup>51</sup>Cr(III)化学種は、R生成反応を行なう。さらに放射線アニーリングとして、低温(-196°C)でも



が起ることが報告されている<sup>7)</sup>。

(n, r) 反応の結果と (r, n) 反応で得られた結果を比較すると

(1) 反応(1)および(2)は同時に進行する。第1図において、R, MおよびDP収率曲線を外挿すると、0°Cでそれぞれ初期収率に等しくなり、-78°C~0°Cでは熱アニーリング反応は無視できる。

(2) MおよびDP曲線が交叉した後は、MおよびDPの収率の変化は小さくなり、80°Cを越えると、M, DP共直線的にゆるやかに減少している。

(3) 各温度ともアニーリング反応は速やかに完結し、しかもR, MおよびDPはすべてプラトー値に達し、長時間加熱しても変化しない。

という点に特徴がある。

(r, n) 反応の場合には、照射中の放射線アニーリング反応を先ず考慮しなければならない。初期収率でDP収率と比較してM収率がかなり低い値であったことから、反応(5)が照射中に進行していたと考えることは妥当である。

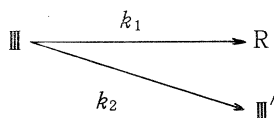
第2図をみると、DP1→RとDP2→M2の反応は、速やかに完結しているが、R生成反応の速度が少し速いように見える。しかし164℃では両者の反応速度に差はなく、(n, r)反応の場合に明らかに認められた(3)式で表わされる反応はアニーリング曲線上には現れていない。さらに第1図に示されているように、この温度領域では、Mの減少が見られることから、M1→Rのような反応がすでに進行しているとも考えられる。しかしDP2→M2の反応が0℃付近から進行している、すなわち反応(2)の活性化エネルギーが(r, n)反応の場合には低いことから、反応(3)が短時間で終了するという可能性を否定はできない。

(n, r)反応の場合に、R生成に関する等温アニーリング曲線は比較的短い時間で擬プラトー値に達し、その後ゆるやかに上昇している。このゆるやかに上昇する部分については、これまでほとんど考察されていないが、拡散律速過程



と考えられる。ここでXは、結晶内部より拡散してくる“trigger species”である。Collins等<sup>8)</sup>は、150℃以上になると、反応(6)が支配的になると考えているが、より低い温度でも反応(6)は進行すると考えた方がアニーリング反応全体をよく説明できると思われる。

(r, n)反応では、この拡散律速過程が全く見られないことから、アニーリング反応は反跳原子<sup>51</sup>Crの極めて近傍でのみ起り、Xの結晶内部からの拡散が阻止されるか、またはXが拡散する途中で他の反応活性種に捕獲されるものであろう。他方IIIについてみれば、収率が時間に無関係に一定となり、その値が温度に依存するとすれば



のような競争反応が起きているとも考えられる。ここでIII'は、他の化学種へ変化せずに単にIIIと比較してエネルギー的に安定な形または格子点への移行とし、その温度ではさらに反応に関与しないと考えるてもよいであろう。

クロム酸カリウムの(r, n)反応に伴う化学的効果は、(n, r)反応の場合と本質的な相違はなく、従来蓄積されてきた知見を裏付けることができた。しかし細部については、説明できない点も多く、さらに研究を積重ねる必要がある。

本研究にあたり御援助いただいた東北大学理学部八木益男助教授、近藤健次郎博士、核理研マシングループの方々へ厚く感謝します。

## 参 考 文 献

- 1) G. W. A. Newton : *Radiochemistry* ( 1972 ) Vol. 1, p. 1.
- 2) A. G. Maddock : *Inorg. Chem., Ser. 2, Vol. 8, Radiochemistry* ( 1975 ) p. 273.
- 3) R. Ackerhalt and G. Harbottle : *Radiochim. Acta* **17** ( 1972 ) 126.
- 4) 大森, 葉, 塩川 : 核理研報告 **2** ( 1962 ) 139.
- 5) R. Ackerhalt, C. H. Collins and K. E. Collins : *Trans. Faraday Soc.* **65** ( 1969 ) 1927.
- 6) R. Ackerhalt, C. H. Collins and K. E. Collins : *Trans. Faraday Soc.* **67** ( 1971 ) 1459.
- 7) T. Andersen and J. L. Baptista : *Trans. Faraday Soc.* **67** ( 1971 ) 1203.
- 8) C. H. Collins and K. E. Collins : 未発表総説
- 9) K. Yoshihara and H. Kudo : *J. Chem. Phys.* **52** ( 1970 ) 2950.



## Ⅲ-8 脂肪族および芳香族オニウムイオンによるイオン対溶媒抽出

工学部応用化学 齋藤達弥

### § 1. 緒言

高分子量アンモニウムイオンを用いたイオン対溶媒抽出の研究は多く行なわれている<sup>1)</sup>が、これらのイオンは水に不溶性でありしかもミセルを形成する欠点があり実用上不便な場合があった。そこで、水にかなり溶け、かつミセルを形成しにくいイオン対抽出試薬の開発を目的として脂肪族オニウムイオンおよび芳香族オニウムイオン計11種のオニウムイオンを合成し、過レンニウム酸イオンおよびホウフッ化イオンとのイオン対の抽出率を求めた。抽出率のデータからイオン対抽出のされ易さとオニウムイオンの構造との関係を推察した。

また、イオン対による溶媒抽出はキレートによる溶媒抽出に比べて選択性に貧しい欠点があるので選択的なイオン対抽出試薬の開発のための基礎的な検討を行うことを意図した。

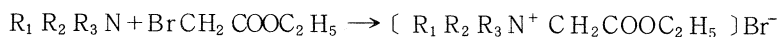
### § 2. 実験および結果

#### 2.1 トレーサー

金属レンニウムおよびホウフッ化ナトリウムを石英管に封入し、核理研 LINAC の I 系 RI コースで照射を行い  $^{187}\text{Re}(\gamma, n)$   $^{186}\text{Re}$  および  $^{19}\text{F}(\gamma, n)$   $^{18}\text{F}$  反応で生成した  $^{186}\text{Re}(t_{1/2} = 89$  時間) および  $^{18}\text{F}(t_{1/2} = 118$  分) をレンニウムおよびフッ素のトレーサーとした。

#### 2.2 抽出試験

脂肪族アミンとして3種類、芳香族アミンとして8種類の3級アミンにメンシュトキン反応<sup>2)</sup>によって酢酸エチル基を結合させてオニウムイオンを合成した。



各オニウムイオンの名称は長いので以後簡単にするため番号をつけた。

I: トリエタノールエチルアセタトアンモニウムイオン

II: トリエチルエチルアセタトアンモニウムイオン

III: トリプロピルエチルアセタトアンモニウムイオン

IV: Nエチルアセタトピリジウムイオン

V: Nエチルアセタト $\alpha$ ピコリニウムイオン

Ⅵ：Nエチルアセタトβピコリニウムイオン

Ⅶ：Nエチルアセタトγピコリニウムイオン

Ⅷ：Nエチルアセタト2,6ルチジニウムイオン

Ⅸ：Nエチルアセタト2,4,6コリジニウムイオン

X：Nエチルアセタトイソキノリニウムイオン

XI：Nエチルアセタトキノリニウムイオン

合成した試薬は0.1モル以上水に容易に溶け、かつミセルを生成しにくいものである。

### 2.3 実験操作

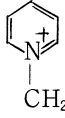
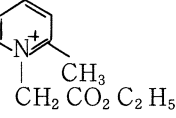
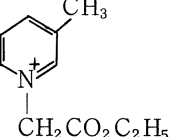
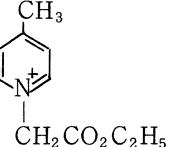
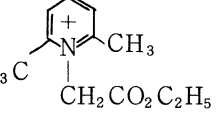
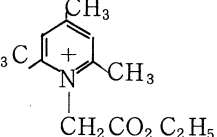
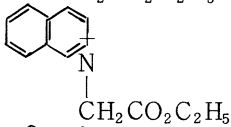
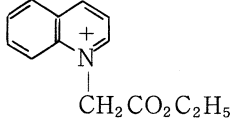
実験に用いた過レニウム酸イオンは照射後の金属レニウムを濃硝酸に溶解した後蒸留水で希釈して調整し、ホウフッ化イオンは照射後のホウフッ化ナトリウムを蒸留水で溶解、希釈して調整した。これらのトレーサー溶液を用いてメタル濃度は $8 \times 10^{-6}$ モル、オニウムイオン濃度は $4 \times 10^{-3}$ モルとし、硫酸でもってイオン強度を0.1となるようにした後に水溶液と等量の有機溶媒を加えて十分平衡に達するように30分間シェーカーで振りまぜた。抽出後の水相および有機相からそれぞれ等量分取し、ウェル型NaI(Tl)神戸工業製のシングルチャンネルスクエーラーで $^{186}\text{Re}$ および $^{18}\text{F}$ の放射能を測定し、抽出率を算出した。

### 2.4 実験結果

各オニウムイオンでもって過レニウム酸イオンおよびホウフッ化イオンを抽出したイオン対抽出率を5種類の抽出溶媒に関して行った結果を第1表に示す。抽出溶媒としてベンゼンを用いた場合にはほとんど抽出されなかったのを除いた。

第1表 The extractability data of ion pairs

Solvent		Extractability (%)									
		n-Butyl alcohol		Nitro-benzene		Methyl isobutyl Ketone		1,2-Dichloroethane		Chloroform	
Cation	Anion	ReO <sub>4</sub> <sup>-</sup>	BF <sub>4</sub> <sup>-</sup>	ReO <sub>4</sub> <sup>-</sup>	BF <sub>4</sub> <sup>-</sup>	ReO <sub>4</sub> <sup>-</sup>	BF <sub>4</sub> <sup>-</sup>	ReO <sub>4</sub> <sup>-</sup>	BF <sub>4</sub> <sup>-</sup>	ReO <sub>4</sub> <sup>-</sup>	BF <sub>4</sub> <sup>-</sup>
I	(C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> OH) <sub>3</sub> (CH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sup>N<sup>+</sup></sup>	48	8	10	5	17	2	<1	<1	<1	<1
II	(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>3</sub> (CH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sup>N<sup>+</sup></sup>	68	24	>99	87	64	26	54	25	8	5

Solvent		Extractability (%)									
		n-Butyl alcohol		Nitro-benzene		Methyl isobutyl ketone		1,2-Dichloroethane		Chloroform	
Cation	Anion	ReO <sub>4</sub> <sup>-</sup>	BF <sub>4</sub> <sup>-</sup>	ReO <sub>4</sub> <sup>-</sup>	BF <sub>4</sub> <sup>-</sup>	ReO <sub>4</sub> <sup>-</sup>	BF <sub>4</sub> <sup>-</sup>	ReO <sub>4</sub> <sup>-</sup>	BF <sub>4</sub> <sup>-</sup>	ReO <sub>4</sub> <sup>-</sup>	BF <sub>4</sub> <sup>-</sup>
III	$(C_3H_7)_3(CH_2CO_2C_2H_5)N^+$	81	48	>99	94	95	69	94	79	71	31
IV		63	18	32	20	26	15	<1	<1	<1	<1
V		64	21	84	54	33	18	4	<1	<1	<1
VI		64	24	53	28	32	20	2	<1	<1	<1
VII		64	22	47	27	31	18	<1	<1	<1	<1
VIII		65	25	94	87	57	23	47	25	9	3
IX		68	26	>99	93	78	37	75	53	36	12
X		73	31	>99	93	84	52	59	35	13	4
XI		70	27	>99	93	93	64	76	60	21	12

### § 3. 考 察

#### 3.1 脂肪族オニウムイオン相互の比較

IはIIのエチル基の水素が水酸基と置換しただけであるが抽出率は著しく低くなっている。このことは親水性の水酸基が加わることによりオニウムイオンの周囲の水和数が増加し、イオン対抽出が防げられることによると考えられる。IIIはIIのエチル基がプロピル基に変り、より疎水性が増したためにIIIの周囲の水和数が減少することにより抽出率が増加したと考えられる。すなわち、イオン対抽出は陽イオンと陰イオンの静電的な結合力が主であるために水和数の少ないイオン間のイオン対ほど強く結合していると思われ、疎水性の置換基の導入により高い抽出率が得られる。

#### 3.2 芳香族オニウムイオン相互の比較

V, VIおよびVIIはIVのピリジン骨格にメチル基が入り、より疎水性となったために抽出率はどれも高くなった。このメチル基がオルト, メタ, パラのどの位置がイオン対抽出に多く寄与するかということに関して用いたすべての溶媒に明瞭に示されているとはいえないがニトロベンゼンや1,2ジクロロエタンでのデータから大略

オルト>メタ>パラ

の順序であろう。これはオニウムイオンのピリジン環上に電子が均一に分布されているのではなく、チッ素陽イオンの性質が強く、そこへ陰イオンが近づくものと推察される。

ピリジン骨格にメチル基を1個, 2個および3個置換した場合メチル基の数が増えるほどオニウムイオンの疎水性が増し、どの溶媒を用いた場合でも抽出率は増加した。

XIのキノリン骨格とXのイソキノリン骨格ではnブチルアルコール以外の4種の有機溶媒でやXIIの方が抽出率が高くそれ故XIIの方がやや疎水性が強いことが示されている。

#### 3.3 脂肪族オニウムイオンと芳香族オニウムイオンの比較

炭素数はIIとV, VI, VIIおよびIIIとX, XIIとは同じであるがIIおよびIIIの方がどの溶媒の場合でもかなり高い抽出率を示した。親水性のチッ素陽イオンをエチル基あるいはプロピル基3個で立体的に囲んだ方がピリジン環あるいはキノリン環, イソキノリン環のように平面的に囲んだ場合よりも疎水性になる事を示し、オニウムイオンの疎水性とはチッ素陽イオンをどれだけ立体的に炭素と水素で囲んだかという事と思われる。

#### 3.4 抽出溶媒

本実験で用いた溶媒はnブチルアルコールがプロトン溶媒である以外はすべて非プロトン溶媒

である。前報<sup>3)</sup>と同様に溶媒の極性を  $E_T$  値で示すと *n*-ブチルアルコールの  $E_T$  は 50.2, ニトロベンゼンは 42, メチルイソブチルケトン は 41.3, 1,2-ジクロロエタンは 41.9, クロロホルムは 39.1, ベンゼンは 34.5 である。

I, IV のようなあまり疎水性ではないオニウムイオンにおいては  $E_T$  値が高い極性溶媒の方がより高い抽出率を示すがオニウムイオンの疎水性が増すに従って必ずしも  $E_T$  値の高さに依存しなくなってくる。この場合の極性パラメーターとしてはむしろ誘電率の適用が望ましい。本実験で用いたオニウムイオンの疎水性の範囲ではベンゼンのように低い極性の溶媒への抽出は困難で抽出率は 1% 以下であった。

### 3.5 陰イオンの $B$ 係数

過レニウム酸イオンとホウフッ化イオンは共に構造破壊性のイオンであり、いわゆる負の水和をしたイオンであるがその  $B$  係数を Engel ら<sup>4)</sup> はそれぞれ  $-0.03$  と  $-0.07$  とし、Eisenstadt ら<sup>5)</sup> は  $-1.35$  と  $-0.51$  としており異った値が得られ、しかも逆の結果が得られている。抽出率を比較してみるとすべての溶媒において過レニウム酸イオンの場合の方が高い抽出率が得られていることから Eisenstadt らの値の方が適当と考えられる。

## § 4. 結 論

- 1) 水酸基等の親水性基のない疎水性のオニウムイオンを用いると陰イオンとのイオン対抽出率は高い。
- 2) ピリジン環に均一に電子が分布しているのではなく、チッ素陽イオンの性質が強いため立体障害がおきやすい順序であるオルト, メタ, パラの順に抽出率は高い。
- 3) 炭素数が同じオニウムイオンでも脂肪族の方が芳香族の場合よりも立体的に側鎖が広がるためにより疎水性となり抽出率は高い。
- 4) オニウムイオンがあまり疎水性でない場合, 抽出溶媒の極性パラメーターとして  $E_T$  でもよいが疎水性が強まるとむしろ誘電率の方が適当となる。

以上の結果から直ちに選択的なイオン対溶媒抽出試薬は開発されないが、基礎的なデータの集積によりいずれは開発されるだろう。

## 参 考 文 献

- 1) T. Sato, H. Watanabe, S. Kotani and M. Yamamoto : Anal. Chim. Acta. **84** (1976) 397.
- 2) N. Menschutkin: Z. Physik. Chem. **6** (1890) 41.
- 3) 斎藤, 沢谷 : 核理研研究報告 **8** (1975) 163.
- 4) G. Engel and H. L. Herty : Ber. Bunsenges. Phys. Chem. **72** (1968) 808.
- 5) M. Eisenstadt and H.L.Friedman : J. Chem. Phys. **46** (1967) 2182.

## IV. 加 速 器 · 測 定 器

## IV-1 電子散乱用多線比例計数管 (MWPC)

核理研 河村雅夫・小山田正幸・中原和夫

現在、二重収斂型電磁スペクトロメーター(LDM)の粒子検出器として用いられている半導体検出器(SSD)に代わるものとして、多線比例計数管(Multiwire Proportional Chamber, MWPC)を開発中であるが、その試作品を実際にLDMに取り付けて試験を行なったので、結果を報告する。

### § 1. 序 論

MWPCは、1968年にCERNにおいてG. Charpakらによって研究されてから<sup>1,2)</sup> 一般に使用されるようになった。核理研においても、既に広帯域電磁スペクトロメーター(BDM)用MWPCが実用化されているが<sup>3)</sup> LDM用MWPCの開発は次のような目的を持っている。

#### 1) 計数効率及び運動量分解能の改善

現在のLDMの粒子検出器では、長さ10 mm、幅2 mm、厚さ1 mmのSSD 3個一組でテレスコープを構成し、これが33組、LDMの焦点面に並べられている。焦点面は入射粒子の中心軌道とは33.5°傾いており、SSDの間隔は粒子の軌道方向からみて4 mmである。これは0.1%の運動量間隔に相当するが、SSDが焦点面をすきまなくおっているわけではないので、1 mmずつシフトして4回測定を行なってすきまを埋め、0.025%の運動量間隔での測定を実現している。検出器をMWPCにすれば、このすきまがなく、シフトする必要がなくなる。SSDでは一回で測定できる運動量の範囲は3.3%であるが、MWPCでは面積を大きくする事は容易でこれを5%程度にできる。さらにSSDは1 mm厚のセラミックの板に固定されていて、合計2 mmの厚みがあり、電子はこれを通過するときに多重散乱するため軌道が曲がってしまい、正しい同時計数が得られない事がある。これは電子のエネルギーが低いとき、特に著しく、計数効率が低下する。MWPCではチェンバー内はガスのため多重散乱による軌道の曲がりはいささか小さい上、多層にした場合の層間の同時計数の取り方を工夫する事によって、計数効率の低下を防ぐ事ができる。こうして計数効率を大幅に改善する事ができ、測定時間が短縮できる。信号線1本当たりの運動量の測定幅は、信号線の間隔を1.8 mmにした場合0.025%/channelとなり、SSDの場合の0.05%/channelの半分となって、運動量分解能も改善される。



## 2) 速い同時計数によるバックグラウンドの減少

MWPCはその出力の時定数が小さければ十分良い時間分解能 ( $\approx 50 \text{ nsec}$ ) を持つ。陽イオンが完全に陰極に達するにはかなり時間がかかる ( $\approx 100 \mu\text{sec}$ ) が、電子なだれは局所的に起こるので、計数効率を悪化させる事はない。よって、時間分解能の非常に良いチェレンコフ・カウンターと同時計数を取る事により、バックグラウンドを押える事ができる。特にチェレンコフ・カウンターは中性子をカウントしないはずなので有効と思われる。最近、 $180^\circ$  電子散乱など計数率の非常に低い実験が行なわれるようになり、バックグラウンドが問題となっているので、この事は重要である。

その他のMWPCの利点としては、

- ・チャンネルごとの計数効率のばらつきが少ない。
- ・回路系を含めてもSSDより廉価である。

などがあり、欠点としては、

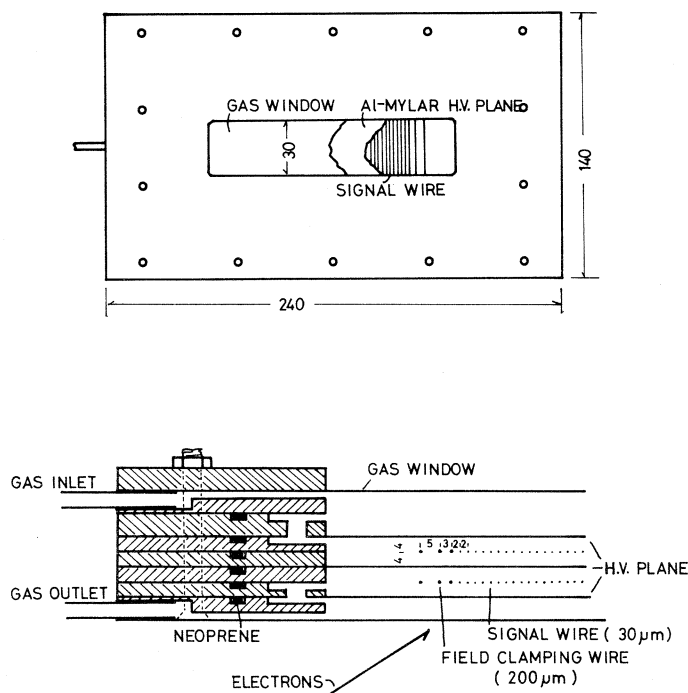
- ・ガス、高圧電源など保守部分が増す。
- ・粒子の斜め入射により複数本の信号線に信号が出るので、処理回路が必要である。又、パイルアップを起こしやすい。

などである。

## § 2. 構造及びLDMへの取付け

第1図に試作したMWPCの構造を示す。フレームには、全てガラスエポキシ板を使用した。二層構造になっているが、今回は層間の同時計数は行っていない。信号線面は、4 mmのガラスエポキシ板にプリント基板を埋め込み、そのパターンに信号線として直径 $30 \mu\text{m}$ の金メッキタングステン線を2 mm間隔で38本張ってある。その外側には電場補正用に直径 $200 \mu\text{m}$ のスズメッキ線を3本ずつ張り、これをアースしてある。信号線も外側3本は端の効果をさけるためアースし、実際に信号が取り出せるのは32本(二層で64本)となっている。陰極面は両面にアルミを蒸着したマイラーで、信号線との距離は4 mmである。ガスシール窓は $40 \mu\text{m}$ のマイラーを使った。各フレームの間のガスシールはネオプレンゴムである。ガスは各層を直列に流れるようにしたが、ガスの流れがあまり良くなく、二層間で計数率の違いがみられたので、実用化の際には並列に流れるようにする予定である。

ガスは、アルゴンにフロン13B1 ( $\text{CF}_3\text{Br}$ ) を2.5%混合したものと、イソブタンを用意し、それぞれを $14 \text{ cm}^3/\text{min}$ 、 $8 \text{ cm}^3/\text{min}$ の割合で混ぜて使用した。混合器はガラス管



第1図 MWPCの構造

図中の長さの単位はmmである。電子の入射側のガスシール窓フレームは、MWPC用変換フランジに取り付けられる。(第2図参照)

を二又につないだ簡単なものである。アルゴン、イソブタン、フロン13B1の体積比は、 $64/36.4/1.6$ となる。フロン13B1は、有感領域を制限するとともに、プラトーを長くする効果がある<sup>4)</sup>。いわゆるマジックガスと呼ばれているものと比べると、フロン13B1の割合が多い。これは、LDMでは入射角が $56.5^\circ$ と大きいので、一個の入射粒子によって信号の出る線の数を3本程度に制限する(有感領域が陰極面まで広がっていれば6~8本)ためである。BDM用MWPCで用いているPRガス(アルゴン90%、メタン10%)は今回は使わなかった。 $\beta$ 線源( $^{90}\text{Sr}$ )を使った予備実験では、PRガスの方が低い電圧(3kV程度)で放電を起こし、プラトーも短いようである。

MWPCをLDMに取付けるために、新たにMWPC用のダクトを作製し、実験の際SSD用ダクトと交換した。LDMに取付けた様子を第2図に示す。図にはチェレンコフ・カウンターとの関係も示してある。チェレンコフ発光体としてはアクリル(屈折率1.5)を用いた。厚さは19mmで、電子の通過する距離は約35mmである。光量子の数は一電子当り約800個( $\lambda =$

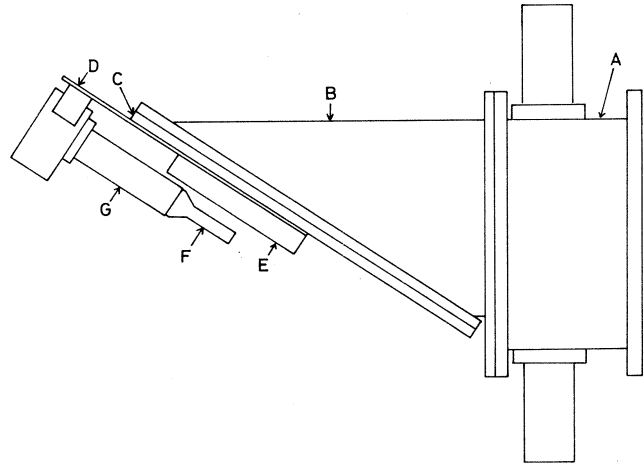
4000 ~ 6000 A ) となる。光電増幅管は 56AVP を用い、印加電圧は 1.7kV である。光電増幅管からの出力パルスは波高弁別した後、50 nsec の幅に波形整形している。

### § 3. 回路系

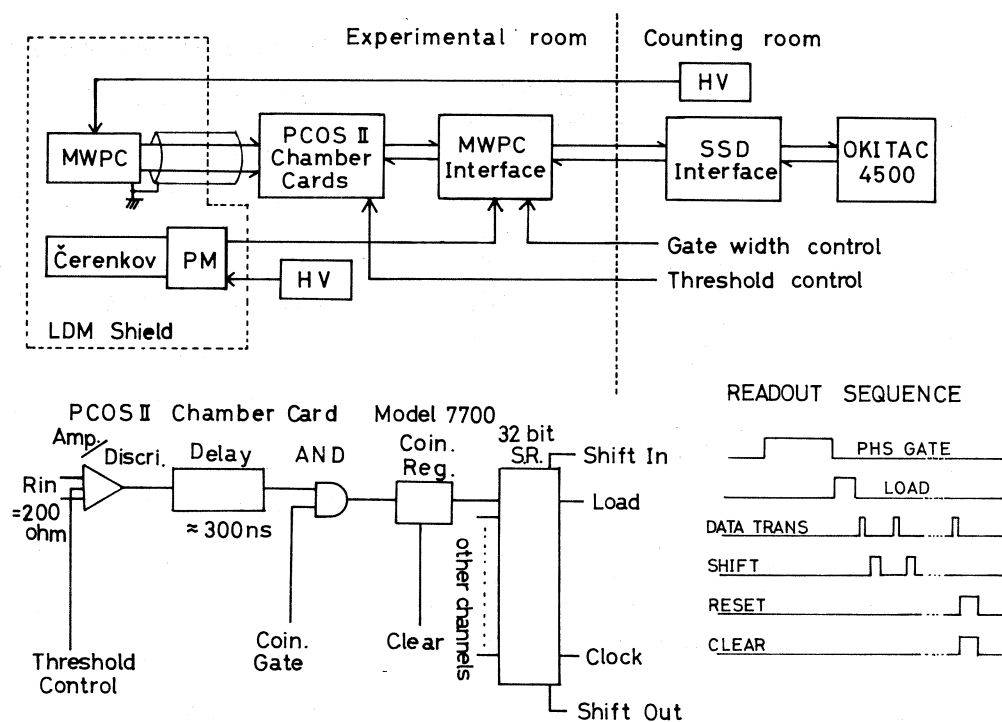
MWPC からの信号は、時定数が小さければ電流出力とみなす事ができ、10 ~ 20  $\mu$ A 程度である。これをデータ集積装置 (OKITAC - 4500 ) に送り込むため

には適当に増幅し、雑音をさけるための波高を弁別しなければならない。MWPC では、増幅器、波高弁別器は信号線の本数だけ必要なので、試作ではともかく、計画中の MWPC では相当な数になる。そのため我々は、LeCroy 社の PCOS II (Proportional Chamber Operating System) の Chamber Card (Model 7700) を採用した。これは一枚の基板に 32 チャンネル分の回路、及びデータ転送用のレジスターを組み込んだもので、同時計数用のゲートもかけられる。入力のしきい値は外部からコントロールでき、コントロール電圧  $V_T$  と入力電流しきい値とは 1 V 当り 1  $\mu$ A の関係がある。この Chamber Card からデータを取り出し、SSD 用インターフェイスを利用して計算機にデータを送るための回路は作製した。これは、チェレンコフ・カウンターからの信号を受けてゲートパルスを作り出し、Chamber Card に送る回路も含んでいる。これらのブロック図及びデータ転送のタイミングを第 3 図に示す。ゲートパルスの幅を変えたり、チェレンコフ・カウンターとの同時計数をやめたりするのは、測定室からできるようにした。チェレンコフ・カウンターとの同時計数を取らない場合は、ゲートパルスの幅は通常の SSD のシステムで使用している波高弁別器ゲート (PHS ゲート) の幅 (8  $\mu$ sec ) と同じになる。

Chamber Card は LDM のシールドの外に置いたため、MWPC の信号線との結合は約 2 m の長さのフラットリボンケーブルを用いた。これは作業性が良いためであるが、加速器の運転中



第 2 図 A は LDM 出口のスリット、B は新しく作製した MWPC 用ダクト、C は MWPC 用変換フランジである。C には 250  $\mu$ m のマイラーをアルアルダイトラピッドで張り、真空を止めている。D は電子入射側ガスシール窓フレーム、E は MWPC 本体、F はチェレンコフ発光体 (アクリル)、G は光電増幅管である。



第3図 回路系のブロック図

はかなり大きな雑音を拾う事が分かり、対策としてアルミテープを巻いてこれをアースした。これによって Chamber Card の入力で  $6\mu\text{A}$  のレベルまで雑音を押える事ができた。それでもまだ雑音レベルは高いので、実用化の際はツイストペアケーブルを使う事を考えている。

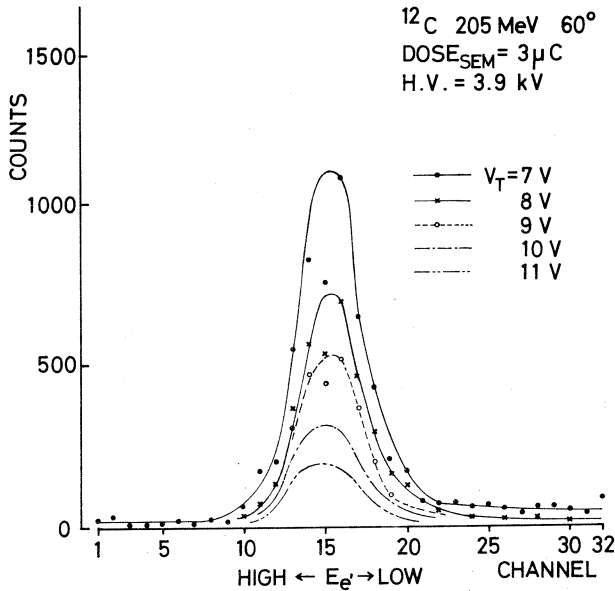
#### § 4. 測定結果

測定は次の項目について行なった。

- 1) 入力しきい値のコントロール電圧 ( $V_T$ ) に対する計数効率の変化。
- 2) 印加電圧 (H. V.) に対する計数効率の変化。
- 3) チェレンコフ・カウンターとの同時計数の効果。
- 4) 信号線による計数効率のばらつき。

1)~3) の測定は  $^{12}\text{C}$  の弾性電子散乱のピークを観測する事によって行なった。入射電子エネルギーは  $205\text{MeV}$  で、散乱角は、1) 及び 2) では  $60^\circ$ 、3) では  $90^\circ$ 、4) では  $40^\circ$  である。

1), 2) の測定結果を第4図及び第5図に示す。入射電子が MWPC の1本の信号線の有感領域を通過する距離は、最大  $2.4\text{mm}$  で、この間に約  $0.6\text{keV}$  のエネルギーを失う。できるイオン対の数は平均23個であるからゆらぎが大きく、有感領域がフロン 13B1 によって制限されてい

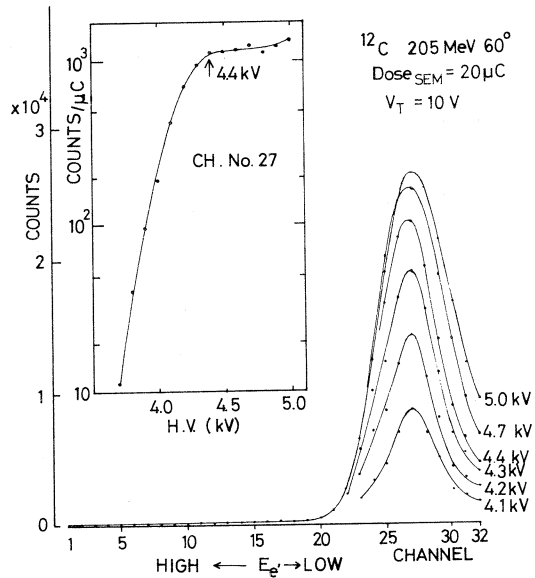


第4図  $V_T$  (しきい値のコントロール電圧) を変化させたときの測定結果  
 これは電子入射側から見て1層目 (A-1) の測定結果である。1層目は、ほぼ焦点面上にある。2層目 (A-2) のデータは割愛した。

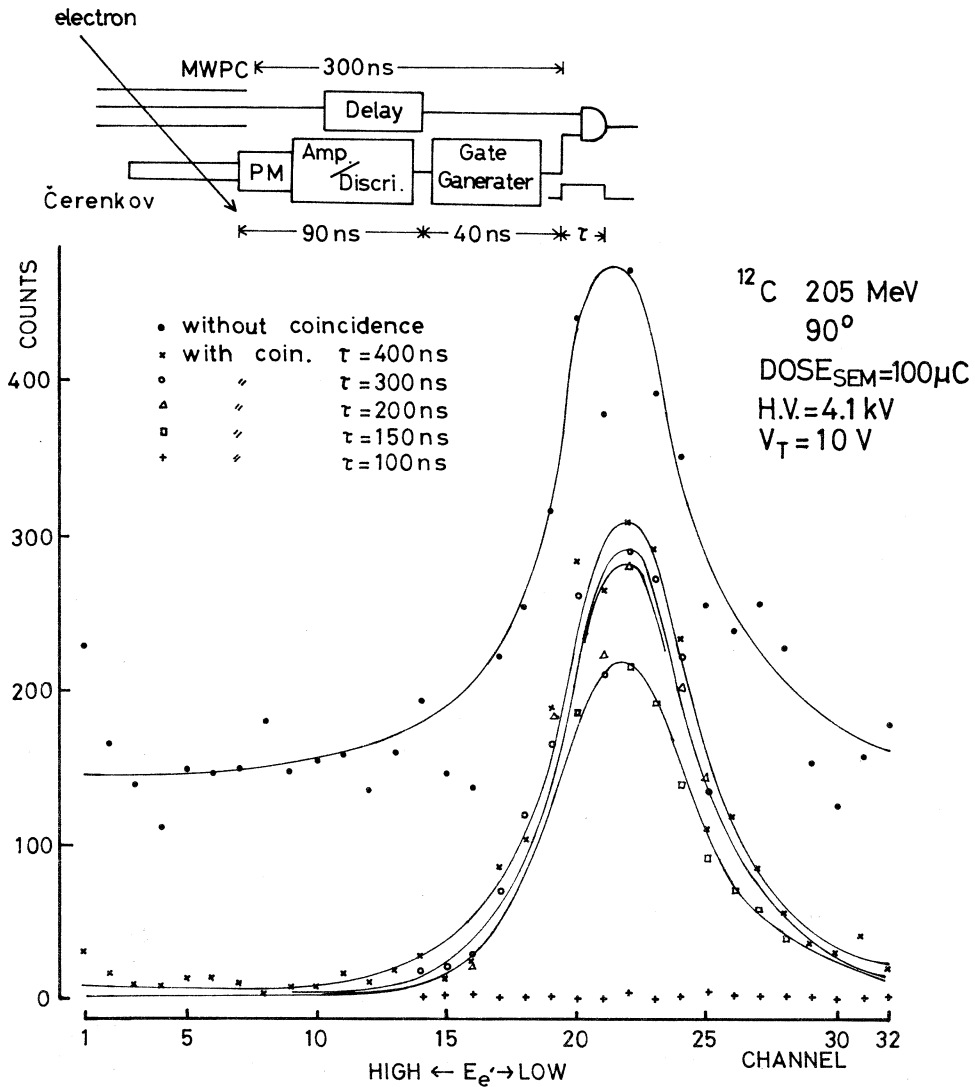
のピークのカウントの  $1/2$ ) が、これが同時計数によってほとんど落ちている事が分かる。 $\tau = 400\text{nsec}$  から  $\tau = 200\text{nsec}$  までは、信号の計数率にほとんど差はない。第6図に書いたブロック図の遅延時間は、おおよその値であるが、 $\tau = 150\text{nsec}$  と、 $\tau = 100\text{nsec}$  の間で計数率が急に变化している事と合っている。よって、チェレンコフ・カウンターの出力をさらに  $100\text{nsec}$  程遅らせれば、もっと幅の狭い同時計数も可能と思われる。なお、 $H.V. = 4.1$

る事を考え合わせると、第4図で計数効率が大きく変化しているのもうなづける。又、第5図を見ると、 $H.V. = 3.9\text{kV}$  ではまだ計数効率が悪く、プラトーは、 $H.V. = 4.4\text{kV}$  ぐらいから始まる。残念ながら、この領域での  $V_T$  に対する計数効率の変化は測定していない。

次に3) のチェレンコフ・カウンターとの同時計数の結果を第6図に示す。今回はゲートパルスの幅  $\tau$  だけを変えて、遅延時間は変えなかった。散乱角は  $90^\circ$  で、同時計数を取らない場合はかなりバックグラウンドが多い (弾性散乱



第5図 印加電圧を変化させたときの測定結果  
 左上の小図は、27チャンネルの計数を印加電圧に対してプロットしたものである。プラトーの出ている事がよく分かる。



第6図 チェレンコフカウンターとの同時計数の効果

$\tau = 200 \sim 400$  ns で計数にあまり差のない事はMWPCの出力パルスの立ち上がりが十分良い事を示している。

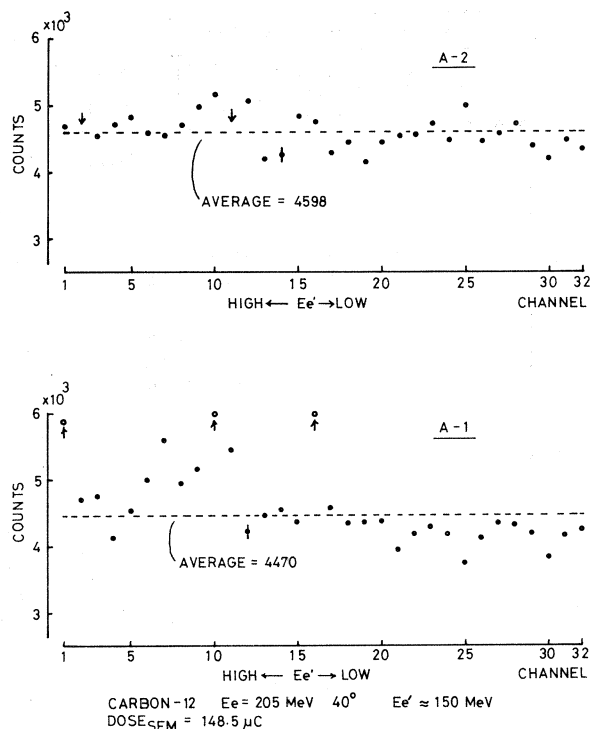
kVと低いのは、2)の測定の後でガス(イソブタン)の流量計にゴミが詰まったらしく、流量が減って一部の信号線が放電し始めたからである。

もっとバックグラウンドの多い条件としてファラデーカップを入れてみたが、バックグラウンドが極端に多い(弾性散乱ピークの16倍)ためか、同時計数の効果は見られなかった。バックグラウンドの原因は中性子と思われるが、バックグラウンド増加のメカニズムはまだよく分からない。これは今後の大きな課題である。

第7図は、LDMの磁場を下げ、 $^{12}\text{C}$ の励起エネルギーが50 MeV付近の構造の無い所でのスペクトルを観測することによって、4)の、信号線による計数効率のばらつきを測定したものである。散乱角は $40^\circ$ 、H. V. は4.8kVで、数本の信号線に放電が見られる。詳しい解析は行っていないが、統計精度以上のばらつきがあるようである。

## § 5. 結 び

LDM用MWPCはBDM用に比べて、測定する粒子のエネルギー損失が2~3桁小さいため出力パルス波高も小さく、作製が困難であったが、今回の実験ではほぼ実用化の見通しがついた。しかし、長期間安定に動作するかなどの信頼性の問題は未解決であり、今後も、試験及び改良をくりかえし行なう必要がある。



第7図 信号線による計数効率のばらつき

下は電子入射側から見て1層目(A-1)、上は2層目である。A-2の方が計数効率が良い、ばらつきも少ないのは、ガスの上流にあたるためと思われるが、確認はできていない。なおA-1ではチャンネル番号の若い方が、又A-2ではその反対側がガスの上流になる。図中の矢印は不良チャンネルで、計数が非常に少ない(下向き)か、又は非常に多い(上向き)。

## 参 考 文 献

- 1) G. Charpak *et al.*: Nucl. Instr. **62** (1968) 262.
- 2) G. Charpak: Ann. Rev. Nucl. Sci. **20** (1970) 195.
- 3) 玉江忠明 他: 核理研研究報告 **9** (1976) 321.
- 4) R. Bouclier *et al.*: Nucl. Instr. **88** (1970) 149.

## IV-2 BEAM BLOW UPの研究(II)

核理研, 高エネルギー研\*

小山田正幸・佐藤 勇\*・福田茂樹\*・松本 浩\*  
 今野 収・浦沢茂一・一戸 隆・栗原 亮  
 根本重伸・柴崎義信・鳥塚賀治

## § 1. A部加速に於けるBBUの測定

前回の報告<sup>1)</sup>に引続いてA部加速時に起こるBBUの測定を行った。I系へビームを取り出した時に大電流を入射すると時たまBBUを起こした経験からA部のみ(1m加速管8本)でBBU発振が可能であるが, その発振周波数及び加速電流値がA+B部加速の場合とどう違うかを明らかにする事が目的である。BBUの発振周波数検出方法は前回と同じ同軸管39DをI系R(RI製造)チャンネルのビーム取出し窓に垂直に取りつけた。今回の測定からLPFキット(HP-11678A)が使用出来た。夫々のカットオフ周波数を第1表に示す。BBU検出用同軸管と周波数測定空洞との間は約3mの同軸ケーブル(10D2V)を用いたが, このケーブルのロスは, 2.5dB(4GHz), 3.4dB(6GHz), 4.2dB(8GHz)である。

第1表 LPFカットオフ周波数

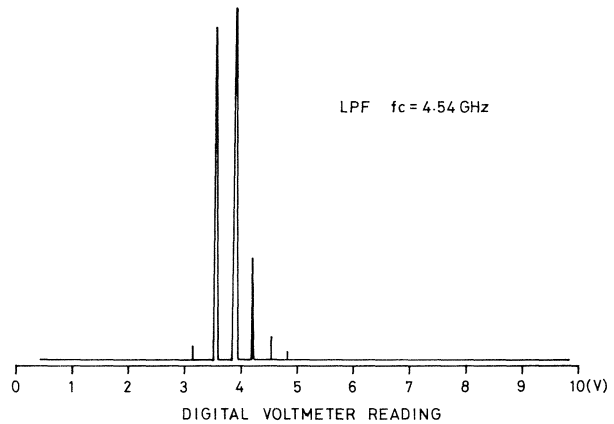
LPF	$f_c$ (公称)	$f_c$ (-3dB実測)
11688A	2.8 GHz	今回使用せず
11689A	4.4 GHz	4.54 GHz
11684A	6.8 GHz	7.1 GHz
11685A	9.5 GHz	} 較正用SGなし
11686A	13.0 GHz	

## 1.1 測定データ

LPF( $f_c = 4.54$ GHz)を用いた測定データを第1図に示す。前回の $f_c = 4.3$ GHzのLPFを用いたデータ(文献1第7図)では2本のピークが残っていたが, これとは対照的に等間隔に6本のピークが見られる。これらのピークの周波数はLPFにより4.5GHz以下である事が解



る。しかも前回の第6図(LPFなし)を注意深く見てみるとやはり今回のピークの位置に対応するところにピークが見られる。だからLPFを用いた場合2本しか見られなかったのは何らかの理由で(スキャン中にBBUが弱くなったとか)見えなかったものと考えられる。第1図の6本のピークに周波数の低い順に番号を付けて第2表にまとめた。



第1図 4.5 GHz 以下のピーク

第2表 4.5 GHz 以下の周波数成分 (A部)

ピーク番号	D.V.の値	ピークの性質	周波数 (バックラッシュによる上下限)
1	~ 3.18 V	$f_B - 2\Delta f = 6f_0 - 3f_B$	
2	3.554V	$f_B - \Delta f = 3f_0 - f_B$	4264.4 ~ 4266.0 MHz
3	3.883V	$f_B$	4301.2 ~ 4302.9 MHz
4	4.220V	$f_B + \Delta f = 3f_B - 3f_0$	4339.3 ~ 4341.2 MHz
5	~ 4.55 V	$f_B + 2\Delta f = 5f_B - 6f_0$	
6	~ 4.81 V	$f_B + 3\Delta f = 7f_B - 9f_0$	

$$f_0 = 2856.040 \text{ MHz}$$

前回の解析ではピーク3がBBUの周波数 ( $f_B$ ) で、ピーク2は加速の周波数 ( $f_0$ ) の第3次高周波と  $f_B$  とのビートである。

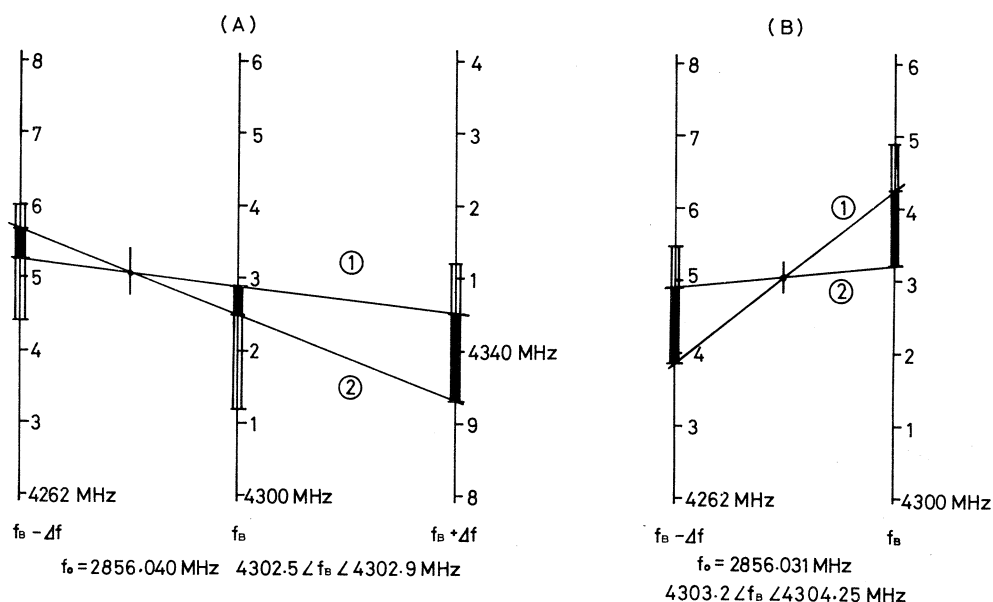
## 1.2 データの解釈

等間隔に多数のピークが出る例は他にも報告されている<sup>2)</sup>。そこではこの現象について解釈を保留しているが、我々は次の様に解釈したい。或る高い周波数  $f$  に周波数  $f_m$  で変調をかけた場合、変調波  $f_m$  に高次歪があるか又は過変調の場合は出力波に  $f \pm n f_m$  の周波数成分が現われることが知られている ( $n$  は自然数)。我々のBBUの測定ではBBUが発生したため  $f_B$  (~ 4304 MHz) の成分が発生し、加速の周波数 ( $f_0 = 2856 \text{ MHz}$ ) の第3次高調波とのビー

トにより  $f = 3f_0 - f_B \sim 4266 \text{ MHz}$  が発生した。この二つの周波数のビートすなわち  $f_B - (3f_0 - f_B) = 2f_B - 3f_0 = 4f \approx 38 \text{ MHz}$  が  $f_m$  の役割りを果たしている。

核理研のリニアックでは  $f_0$  は正確に測定可能であるから<sup>3)</sup>、上の関係式を用いることにより  $f_B$  の測定精度を格段に向上させることができる。今回はピーク 2, 3, 4 に対応するディジボルの値を測定した。空洞の目盛とディジボルの値に若干のバックラッシュが見られるので、これを含めて周波数の較正を行ったものを第 2 表に示した。

周波数の較正出来た 3 本のピークの関係第 2 図(A)に示す。夫々のピークのバックラッシュ



第 2 図 BBU 発振周波数の精密決定法

の幅は 1.5 ~ 2 MHz あるが、前に述べた関係式を用いると 3 つのピークの周波数は直線の関係になるので、夫々の周波数は図中の 2 線①、②の間に入る。すなわち黒く塗りつぶした範囲に限定される。この方法により求められた BBU の発振周波数は  $4302.5 \leq f_B \leq 4302.9 \text{ MHz}$  と精度良く決められた。同じ方法で前回報告した 2 本のピークを用いた場合に、A 部 + B 部加速の場合には第 2 図(B)に示すように、 $4303.2 \leq f_B \leq 4304.25 \text{ MHz}$  である。この結果前回の BBU と今回の BBU では発振周波数の違いが明らかになった。ここで述べた方法はクライストロンのドライバーを CW 発振で安定化すると共にマイクロ波カウンターにより常時高精度で周波数をモニター出来たために可能となった。

### 1.3 発振のメカニズム

前回の報告でA部+B部のBBU発振周波数測定解析ではBBUが2mの加速管(B部)で起っているとすればBWO理論により $\alpha = -7.5$ とすれば説明出来ることを示した。同時に1mの加速管(A部)での発振ならばその周波数は4308 MHzと高くなるのであろうと予測した。今回の実験の結果、その予測と反対に発振周波数がA部+B部の場合よりも低いという結果になって、このままではBWO理論によって今回のBBUの発振は説明出来ないことになる。しかし調査したところ、リニアック建設直後のBBU対策の一環としてHEM<sub>11</sub>モードに対して標準加速管とは分散特性の異なる加速管を製作して現用していることが解った。加速管の前半のローディングディスクの孔径は標準加速管では21.082 mmであるのに対してA3加速管では22.809 mm、A5加速管では21.946 mmであり詳しい分散特性のデータはないが他のデータから推定すると $\beta d = \pi$ のカットオフ周波数は夫々4244 MHz、4272 MHzとなる。BBUが加速管の前半で $\alpha = -7.5$ で発振するとすればその周波数は夫々約4250 MHz、4278 MHzとなり、今回の4302.7 MHzの測定値を説明出来ない。この周波数はA3、A5加速管では加速管全長にわたってのパスバンド内に入っているので加速管全長の総合分散特性のデータがない現在では、これ以上BWO理論での検討は進められない。したがって今回のデータからBBU発振がBWO理論で説明出来ないと断定出来なかった。

## § 2. B部加速に於けるBBUの再測定

前節で述べたようにA部での測定結果が意外な結果になったので、各種のLPFを入手したのでを期に、A部+B部加速の場合のBBUの再測定を行なった。測定ブロック図は前回報告と同じである。

### 2.1 測定データ

測定はLPFを用いない場合と第1表に示したLPF(4種)を用いた場合について行った。夫々の測定データの間でピークの有無について分類すると、

$$(A) \quad f \leq 4.54 \text{ GHz}$$

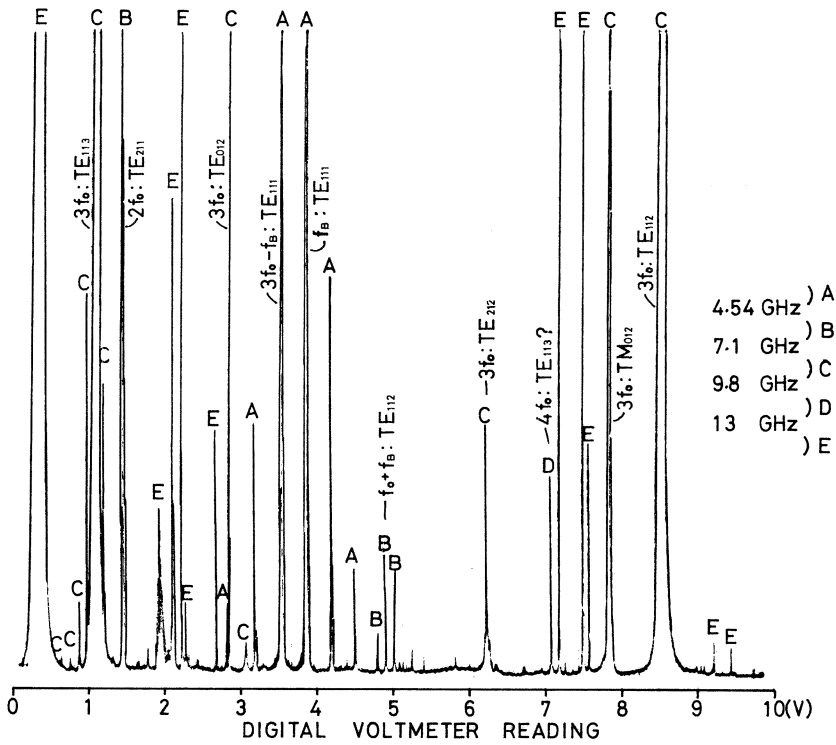
$$(B) \quad 4.54 \leq f \leq 7.1 \text{ GHz}$$

$$(C) \quad 7.1 \leq f \leq 9.8 \text{ GHz}$$

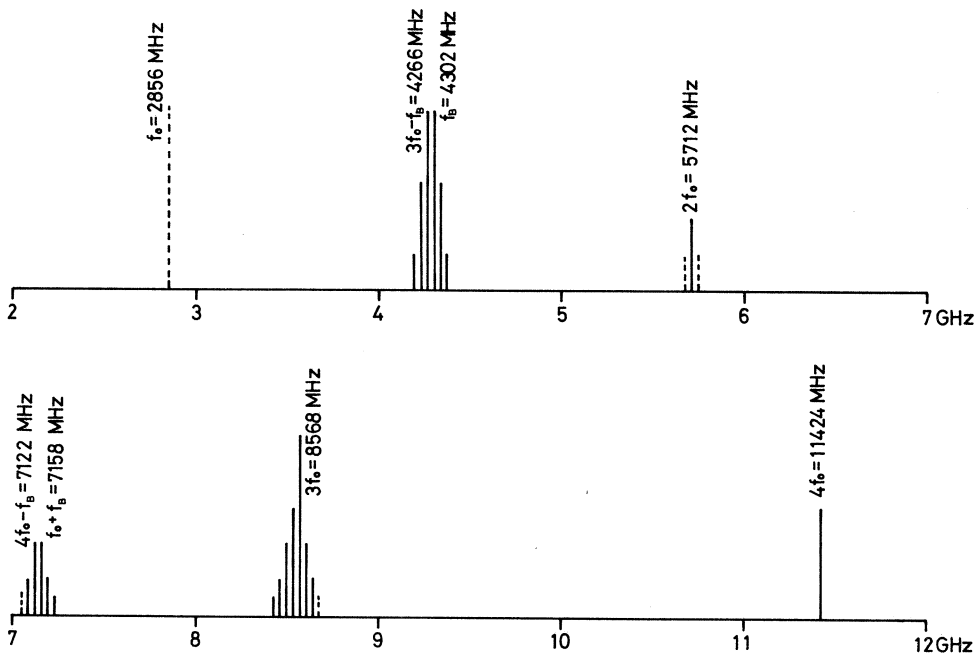
$$(D) \quad 9.8 \leq f \leq 13 \text{ GHz}$$

$$(E) \quad 13 \text{ GHz} \leq f$$

の5つのグループに分けることが出来る。これらの分類と空洞波長計の各モード曲線から夫々



第3図 空洞波長計による測定



第4図 BBU発振時の周波数スペクトル

のピークの周波数を決めたのを第3図に示した。前回報告の解析と、若干違うピークがあるので注意されたい。これらの結果に基づいて空洞波長計に到達しているマイクロ波の周波数スペクトルを構築すると第4図のようになる。これはスペクトルアナライザを用いれば容易に得られるはずのものである。

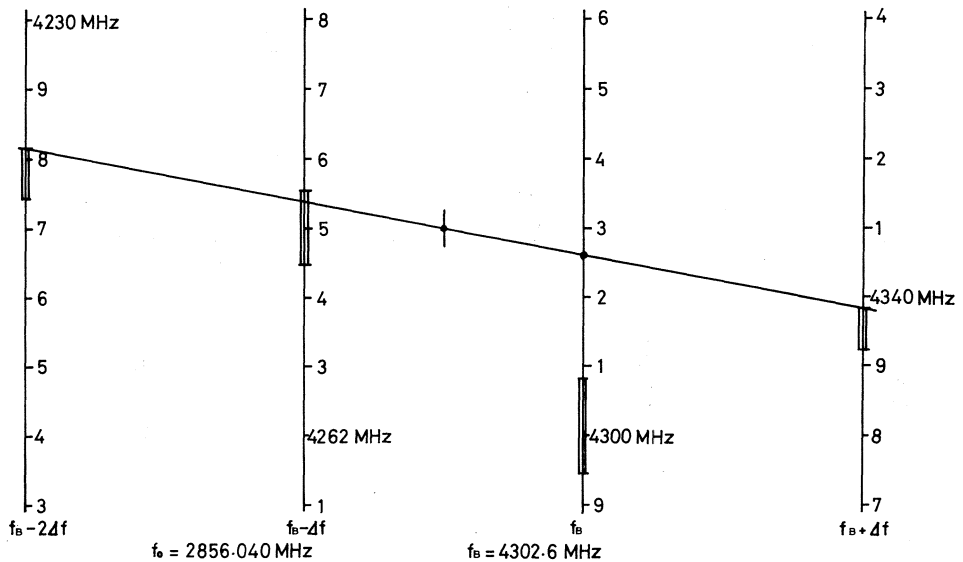
2.2 BBU 発振周波数

$f_c = 4.54 \text{ GHz}$  のLPFを用いた時に現れる顕著な4本のピークについて周波数を詳しく計ったのを第3表に示す。これらの関係を図示したのが第5図である。ピーク番号3は非常に大き

第3表 4.5 GHz 以下の周波数成分 (A部+B部)

ピーク番号	D. V. の値	ピークの性質	周波数 (バックラッシュによる上下限)
1	3.165 V	$f_B - 24f = 6f_0 - 3f_B$	4227.43 ~ 4228.17 MHz
2	3.525 V	$f_B - 4f = 3f_0 - f_B$	4264.73 ~ 4265.54 MHz
3	3.850 V	$f_B$	4299.45 ~ 4300.82 MHz ?
4	4.191 V	$f_B + 4f = 3f_B - 3f_0$	4339.29 ~ 4339.85 MHz

$f_0 = 2856.040 \text{ MHz}$



第5図 A部+B部加速のBBU発振周波数

いためか、ピークの位置測定に誤差があり第5図でもわかるように直線の関係からはずれてしまった。しかし他の3つのピークから $f_B = 4302.6 \text{ MHz}$ であることが解る。これは奇しくも、この周波数測定法がいかに有力であることを示す好例となった。この周波数は前々章で述べたA部加速のBBUの周波数とピタリ一致し、前回報告の値とは一致しない。一連の3回の実験結果を合理的に説明しようとするれば次の様な場合が考えられる。

- (A) A部+B部の2回の実験のどちらかに手落ちがあった場合。……可能性は小さいと考える。
- (B) 2回の実験でのBBUが別ものである場合。……前回のBBUはコアモニタ (CM<sub>6</sub>)の出力が60 mVで起り、今回は100 mVで起きているので、加速電流に約2倍の違いがある。今回のBBUはA部+B部加速にもかかわらずA部ですでにBBUを起しているため、A部だけのBBUの発振周波数と同じ結果を与えたものと考えられる。
- (C) その他の場合

### § 3. 考 察

今期の2回の測定はLPFを有効に利用してほとんどのピークの性質が解った事は大きな前進である。又相互変調の高次歪のスプリアスをうまく利用してBBU発振周波数の測定精度を上げる事が出来た事が特筆される。今後の問題として残された問題は

- (A) BBUがどの加速管で起こっているのか確定する必要がある。ビームローディング又はコアモニタにBBUの現象が見られない場合でも電子ビームには発振による $f_B$ がしばしば観測されるので、BBUの発生個所を特定するには加速管列の途中に $f_B$ をピックアップするプローブを挿入して調べる必要がある。
- (B) スペクトルアナライザーを活用してスペクトル解析の精度の向上とスピードアップを計る事が必要である。BBUの発振が加速電流、電子の軌道、サイズその他のパラメータにより時々刻々変化すると考えられるので、それらの関連性を知るにはスペクトルアナライザーによる迅速な解析が必要不可欠である。
- (C) 実際の加速管のHEM<sub>11</sub>モードの諸特性を精密に測定する必要がある。  
来期以降もBBUの研究を更に発展させて行く予定である。

## 参 考 文 献

- 1) 小山田正幸, 佐藤勇, 稲見慈見, 松本浩, 今野收, 浦沢茂一, 一戸隆, 栗原亮, 根本重伸, 柴崎義信, 鳥塚賀治: 核理研研究報告 **10** (1977) 159.
- 2) 戸田哲雄, 入江浩一, 根本幸昭, 上富勇, 美濃和芳文.: 三菱電機技報 **42** (1968) 355.
- 3) 今野收, 浦沢茂一, 小山田正幸: 「リニアック技術研究会報告集, 昭和 51 年 7 月」  
核理研研究報告 **9** (1976) 増刊号 8.

## V. 加 速 器 稼 働 状 況



## V-1 昭和52年度前期マシン報告

## 核理研マシングループ

浦沢茂一・今野 収・一戸 隆

栗原 亮・根本重伸・柴崎義信

## § 1. 概 況

故障の多かった ECSダクト系の一部改良を行った。この結果は良好であった。

## § 2. マシнтаイム実施状況

課 題 (責任者)	割 当	実 施	備 考
e s (鳥 塚)	12	12	
e s (小山田)	8	8	
e s (有 田)	12	12	
$\gamma \pi$ (庄 田)	9	9	
$\gamma \pi$ ( 成 )	3	3	
$\gamma p$ (Thompson)	8	8	
$\gamma \alpha$ (菅 原)	9	9	
$\gamma x$ (種 市)	7	7	
TOF (阿 部)	5	5	
(林 部)	4	4	
B B U (佐 藤)	2	2	
M W P C (中 原)	2	2	
R I グループ	21	20	未実施1日
N D グループ	24	24	
(篠 原)	2	2	
(田 卷)	1	1	
合 計	129	128	

## § 3. 保 守

	予 定	実 施	備 考
工 事 及 故 障	49	46	
定 期 点 検	5	5	
計	54	51	

4月にECS導波管系とI系分析ダクトの改修工事を行った。

6月に前記ECSダクト一部改修工事を行った。

受電電圧の変動が大きく、対策に苦慮している。東北電力との交渉と並行して、電源安定化を進めている。

# VI. 論 文 リ ス ト

## VI 論文リスト

核理研共同利用の成果を核理研研究報告以外の学術雑誌に掲載された論文（昭和51年1月～昭和51年12月）の題目を集録しました。

## I 原子核物理

1. Elastic Electron Scattering from the M7 and M9 Magnetization Density of  $^{209}\text{Bi}$ .  
J. R. Moreira, I. C. Nascimento, K. Arita, J. Friedrich, A. Enomoto, T. Terasawa and Y. Torizuka: *Phys. Rev. Lett.* **36** (1976) 566.
2. Evidence for the Giant Monopole Resonance in  $^{90}\text{Zr}$ .  
S. Fukuda and Y. Torizuka: *Phys. Lett.* **62B** (1976) 146.
3. The  $T_1$  Giant Resonance of  $^{181}\text{Ta}$ .  
A. Suzuki, K. Shoda, M. Sugawara, T. Saito, H. Miyase, S. Oikawa, J. Uegaki, M. N. Thompson, K. J. F. Allen, H. J. Askin and B. N. Sung: *Nucl. Phys.* **A257** (1976) 477.
4. El Isobaric Analogue Resonances of Strongly Deformed Nuclei in  $(e, e'p)$  Reactions.  
A. Suzuki and K. Shoda: *Nucl. Phys.* **A260** (1976) 172.
5. Spin-flip Transition Strength of  $^{12}\text{C}(\pi, \pi^+)^{12}\text{B}$   
K. Shoda, H. Ohashi and K. Nakahara: *Meson-Nuclear Physics, 1976*. ed. by P. D. Barnes *et al.* (AIP, New York, 1976) p.604

## II 物性物理

1. Localized Modes in Tantalum Hydrides Studied by Neutron Inelastic Scattering.  
R. Yamada, N. Watanabe, K. Sato, H. Asano and M. Hirabayashi: *J. Phys. Soc. Japan* **41** (1976) 85.

2. Spin Dynamics in a Heusler Alloy  $\text{Pd}_2\text{MnSn}$ .  
Y. Noda and Y. Ishikawa: J. Phys. Soc. Japan **40** (1976) 699.
3. Time-of-Flight Pulsed Neutron Diffraction of  $\text{Pd}_{0.8}\text{-Si}_{0.2}$  Amorphous Alloy Using the Electron Linac.  
K. Suzuki, T. Fukunaga, M. Misawa and T. Masumoto: Materials Sci. Eng. **23** (1976) 215.
4. Structural Study of Liquids with Strong Short-Range Correlation in the Atomic Distribution.  
K. Suzuki: Bunsen-Gesellschaft Phys. Chem. **80** (1976) 689.
5. Short-Range Structure of Amorphous and Liquid Iron and  $\text{Pd}_{0.8}\text{-Si}_{0.2}$  Alloy.  
K. Suzuki, T. Fukunaga, M. Misawa and T. Masumoto: Sci. Report RITU **A 26** (1976) 1.
6. A Comment on Short-Range Structure of Viterious  $\text{As}_2\text{Se}_3$  Observed in High Momentum Transfer Region.  
K. Suzuki, M. Misawa, Y. Fukushima, K. Igaki and S. Ito: Sci. Report RITU **A 26** (1976) 55.
7. Martensitic Transformation of Intermetallic Compound  $\text{Ti}_{50}\text{Ni}_{47}\text{Fe}_3$ .  
M. Matsumoto and T. Honma: Trans. JIM. **17** (1976) 199.

### III 放射化学

1. Multielement Photon Activation Analysis of Biological Materials.  
T. Kato, N. Sato and N. Suzuki: Anal. Chim. Acta **81** (1976) 337.
2. The Yields of Photonuclear Reactions for Multielement Photon Activation Analysis.  
T. Kato, K. Masumoto, N. Sato and N. Suzuki: J. Radioanal.

- Chem. **32** (1976) 51.
3. Non-Destructive Multielement Photon Activation Analysis of Environmental Materials.  
T. Kato, N. Sato and N. Suzuki: *Talanta* **23** (1976) 517.
  4. Processing of Radioactive Waste Solution with Zeolite, I, Thermal Transformation of Na, Cs and Sr Type Zeolite.  
T. Kanno, H. Mimura and T. Kitamura: *J. At. Energy Soc. Japan* **18** (1976) 518.
  5. Perturbed Angular Correlation of  $^{111}\text{Cd}$  in Liquid In-Bi Alloys.  
Y. Tsuchiya, S. Tamaki and A. Furusawa: *J. Phys.* **F6** (1976) 2009.

核理研研究報告 第10巻 第2号

昭和52年12月発行

発行所 東北大学理学部附属原子核理学研究施設  
仙台市富沢金山1 (郵便番号982)

印刷所 株式会社 東北プリント  
仙台市立町24番24号  
TEL (25) 6466 (代)

Research Report of Laboratory of Nuclear  
Science Tohoku University Vol. 10 No.2 Dec. 1977  
Laboratory of Nuclear Science,  
Tohoku University  
1, Kanayama, Tomizawa, Sendai, Japan