

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 究 報 告

第 11 卷 第 1 号

1978 年 6 月

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

刊 行 規 定

1. 「核理研究報告」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、ゴジック、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。英文の原稿の場合は、イタリックの方を指定して下さい。
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、縮尺又は刷り上が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 第11巻 第1号 目次

I 原子核物理

- I - 1 fp 殻核による電子散乱 1
(核理研, 静岡大教養部*)
早川 建, 堀田 明男,* 河村 雅夫, 中里 俊晴,
小山田正幸
- I - 2 (γ, π^+) 反応による ${}^6\text{He}$ 低励起状態の研究(I) 12
(核理研) 大橋 英雄, 山崎 正晴, 中原 和夫, 庄田 勝房
- I - 3 $(e, e' \pi^+)$ 反応による原子核の高い励起状態の研究(II) 15
(核理研) 山崎 正晴, 大橋 英雄, 中原 和夫, 庄田 勝房
- I - 4 Charged Pion Electroproduction on Light Nuclei near the
Threshold 20
(東大教養学部) 古井 貞隆
- I - 5 光核反応による ${}^9\text{Be}$ 励起状態の研究(II) 37
(核理研, 山形大教養部*)
田中 俊成, 種市 宏,* 上野 博昭,* 庄田 勝房
- I - 6 A Study of the ${}^{48}\text{Ti}(\gamma, p)$ Cross Section 43
(メルボルン大,* 核理研, 教養部**)
M. N. Thompson,* 庄田 勝房, 菅原 真澄,
J. I. Weise,* 斎藤悌二郎, 坪田 博明,**
宮瀬 晴久,** 玉江 忠明, 大橋 英雄,
浦野 隆夫, 田中 俊成, 山崎 正晴
- I - 7 中重核における (γ, α) 反応 47
(核理研) 玉江 忠明, 浦野 隆夫, 広岡 恵, 菅原 真澄

II 物性物理

- II - 1 $\text{Ti}_{48}\text{Ni}_{52}$ の高温における中性子回折 65
(選研) 松本 実, 守護 嘉朗, 本間 敏夫

II-2	Density Effect in K-shell Ionization by Ultrarelativistic Electrons	69
	(理学部物理, サイクロ・RIセンター,* 核理研**)	
	神谷 正己, 石井 慶造,* 杵渕 義昭, 遠藤 寛,	
	森田 右, 世良耕一郎,* 小山田正幸**	
II-3	TbZn中の ¹⁵⁶ Gdの Hyperfine Interaction	72
	(金研, 新潟大理学部,* 理学部物理,** 工学部原子核***)	
	篠原 猛, 古沢 昭,* 林部 昭吾,** 山口 貞衛***	
III	放射化学	
III-1	2,3の難溶性化合物による微量金属元素の捕集ならびに光量子放射化分析への応用	79
	(理学部化学, 教養部*)	
	榎本 和義, 加藤 豊明,* 鈴木 信男	
III-2	チオナリドを用いる不足当量法によるヒ素の放射化分析	88
	(科学警察研究所, 理学部化学*)	
	神田 征夫, 鈴木 信男*	
III-3	金属錯体のイオン交換吸着分離法を利用する生物体中の微量金属元素の光量子放射化分析	95
	(理学部化学) 山下美智子, 鈴木 信男	
III-4	光量子放射化とTNOA-チオシアン酸水溶液系抽出分離法による生物体標準試料中のモリブデンの定量分析.....	105
	(理学部化学, 教養部*)	
	栗林 寿, 加藤 豊明,* 鈴木 信男	
III-5	テトラキス(p-フルオロフェニル)ホウ酸ナトリウムによるルビジウムの分析法	118
	(理学部化学) 佐藤 孝好, 大森 巍, 塩川 孝信	
III-6	混合溶媒へのウラニル-TTAキレートとのTBPとの協同効果抽出	124
	(選研) 秋葉 健一, 和田 幹雄, 菅野 卓治	

Ⅲ-7	テトラブチルアンモニウムイオンによる陰イオンのイオン対抽出率と 水和数	128
	(工学部応用化学) 斎藤 達弥, 平山 和雄	
Ⅲ-8	4 π ガスフロー型耐熱GM検出器の製作	134
	(核理研) 近藤健次郎, 八木 益男	
Ⅲ-9	ポジトロン放射体 ⁶² Cuのミルキング装置	138
	(核理研) 八木 益男, 近藤健次郎	
Ⅲ-10	Solid Solubility and Residual Resistivity of Scandium in Aluminum	142
	(工学部金属材料) 藤川辰一郎, 菅谷 光雄, 武井 肇, 平野 賢一	
IV 加速器・測定器		
IV-1	BEAM BLOW-UPの研究(Ⅲ)	157
	(核理研, 高エネルギー研, [*] 東大工学部 ^{**}) 小山田正幸, 今野 収, 佐藤 勇, [*] 福田 茂樹, [*] 田川 精一, ^{**} 鷲尾 方一, ^{**} 勝村 庸介, ^{**} 上田 徹 ^{**}	
IV-2	立体回路系の改修	163
	(核理研) 今野 収, 小山田正幸	
V 加速器・データ処理装置稼動状況及び放射線安全管理		
V-1	昭和52年度後期マシン報告	167
	(核理研マシングループ) 浦澤 茂一, 今野 収, 一戸 隆, 栗原 亮, 根本 重伸, 柴崎 義信	
V-2	データ処理装置・測定器稼動状況	170
	(核理研) 窪田 健雄, 佐藤 正幸, 小山田正幸, 武藤 正勝, 梅津 雅彦	

V-3 加速器修理に伴う放射線被曝 174

(核理研) 今野 収, 浦澤 茂一, 一戸 隆, 栗原 亮,
根本 重伸, 柴崎 義信

V-4 RI関係利用者の被曝線量軽減のための対策 179

(核理研放射線小委)

近藤健次郎, 八木 益男, 渡辺 昇, 浦澤 茂一

I. 原 子 核 物 理

fp殻核による電子散乱

核理研，静岡大教養*

早川 建・堀田明男*・河村雅夫

中里俊晴・小山田正幸

我々はこれまでに $1f_{7/2}$ 中性子閉殻核を中心として，fp殻核の電子散乱による研究を行ってきた¹⁾。これまでに^{48, 50} Ti 及び⁵² Cr について報告した。今回あらたに^{54, 56} Fe の実験を行い，前のデータと合わせて，Gneuss-Greiner の集団運動模型^{2, 3)}による解析を行った。この模型では殻の準位はすべて角運動量2のフォノン，すなわち4重極振動から構成されると考える。多数のフォノンを取り入れることにより様々なタイプの核の集団運動を記述することができる。従ってfp殻領域の核のように，純粋に振動的とも純粋に回転的とも言えないスペクトルを示す核の集団運動様式を記述するのに適している。

解析は上記の模型で扱うことのできる偶パリティ準位， 2^+ 及び 4^+ 準位について行った。この結果， 2^+ 準位はこの模型により非常によく説明することができたが， 4^+ 準位は⁵⁶ Fe の第一励起準位を除いて，16重極振動まで考慮しないと説明できないことが明らかになった。

§ 1. 集団運動模型

1.1 Gneuss-Greiner 模型

今回の解析に使用した Gneuss-Greiner の模型²⁾ (generalized collective model : GCM あるいは collective potential energy surfaces : CPES) では前記のように核の状態はすべて角運動量2の表面振動のフォノンから構成されると考える。ハミルトニアンは階数2の既約テンソルの集団座標 α 及びこれに共役な運動量 π により次のように表わされる。

$$H = P_2 [\pi \times \pi]^{[0]} + C_2 L_2 + C_3 L_3 + C_4 L_2^2 + C_5 L_2 L_3 + C_6 L_3^2 + D_6 L_2^3, \quad (1)$$

$$L_2 = [\alpha \times \alpha]^{[0]}, \quad (2)$$

$$L_3 = [\alpha \times \alpha \times \alpha]^{[0]}.$$

今回の解析に当っては必要以上に複雑化するのを避けるため，運動量の非調和項はハミルトニアンに取り入れなかった。

ハミルトニアン(1)で表わされる系の固有状態及び固有関数は，五次元調和振動子ハミルトニ

アン

$$H' = P_2' [\pi \times \pi]^{[0]} + C_2' L_2 \quad (3)$$

の固有関数を基底関数系として行列表現を作り、これを対角化することにより得られる。

ハミルトニアン(1)のポテンシャルの部分は、物体固定座標系で、Bohr-Mottelson の変形パラメータ β , r により次のように書き表わすことができる。

$$V(\beta, r) = \sqrt{\frac{1}{5}} C_2 \beta^2 - \sqrt{\frac{2}{35}} C_3 \beta^3 \cos 3r + \frac{1}{5} C_4 \beta^4 \\ - \sqrt{\frac{2}{175}} C_5 \beta^5 \cos 3r + \frac{2}{35} C_6 \beta^6 \cos 3r + \frac{1}{5} \sqrt{\frac{1}{5}} D_6 \beta^6. \quad (4)$$

この系の量子化を考える。角運動量2のフォノンの生成(消滅)演算子を $\beta^+(\beta)$ とし、その成分を β_μ^+ [$(-)^{\mu} \beta_\mu$] とする。座標 α 及び運動量 π の成分を α_μ , π_μ とし、これを次のように選ぶ。

$$\alpha_\mu = \frac{1}{2} \sqrt{\hbar} \sqrt{\frac{5}{B_2' C_2'}} (\beta_\mu^+ + (-)^{\mu} \beta_{-\mu}), \\ \pi_\mu = -i \sqrt{\hbar} \sqrt{\frac{B_2' C_2'}{5}} (\beta_\mu - (-)^{\mu} \beta_{-\mu}^+), \quad (5)$$

このとき、量子化のための交換関係

$$[\alpha_\mu, \alpha_\nu] = [\pi_\mu, \pi_\nu] = 0, \quad [\alpha_\mu, \pi_\nu] = i \hbar \delta_{\mu\nu} \quad (6)$$

は β_μ^+ 及び β_μ に関するボソンの交換関係と同等である。すなわち

$$[\beta_\mu, \beta_\nu] = [\beta_\mu^+, \beta_\nu^+] = 0, \quad [\beta_\mu, \beta_\nu^+] = \delta_{\mu\nu} \quad (7)$$

である。上記の交換関係を使うことにより、調和振動子ハミルトニアン(3)は

$$H' = \hbar \sqrt{\frac{C_2'}{B_2'}} \left\{ N + \frac{5}{2} \right\}, \quad B_2' = \frac{5}{4 P_2'} \quad (8)$$

となる。ここで N はフォノンの個数演算子で、 $N = \sum_{\mu} \beta_{\mu}^+ \beta_{\mu}$ で定義される量である。

1.2 電子散乱への応用³⁾

電子散乱によって得られる情報はすべて転移電荷分布に集約される。電荷分布演算子として次の形のを仮定する。

$$\rho(\mathbf{r}) = \rho(\mathbf{r} - R(\theta, \varphi)). \quad (9)$$

ここで,

$$R(\theta, \varphi) = c(1 + \alpha_{00} + \sqrt{5}[\alpha \times Y^{[2]}(\theta, \varphi)]^{[0]}) \quad (10)$$

である。この式で α_{00} は単極子振動(monopole vibration)に関するもので、体積の保存則から現われる項である。これは α の二次以上の関数になる。

電荷分布演算子の行列要素を評価するために(9)を集団座標 α の巾で展開する。展開式は α の四次の項までで,

$$\begin{aligned} \rho^{[L]}(r) = & \sqrt{4\pi} \delta_{L0} \rho(r-c) - c(\alpha \delta_{L2} + \sqrt{4\pi} \alpha_{00} \delta_{L0}) \rho'(r-c) \\ & + \frac{c^2}{2} \left\{ \frac{5}{\sqrt{4\pi}} \begin{pmatrix} 2 & 2 & L \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} [\alpha \times \alpha]^{[L]} + 2\alpha_{00} \alpha \delta_{L2} + \sqrt{4\pi} \alpha_{00}^2 \delta_{L0} \right\} \rho''(r-c) \\ & - \frac{c^3}{3!} \left\{ \frac{5\sqrt{5}}{4\pi} \sum_l \sqrt{2l+1} \begin{pmatrix} 2 & 2 & l \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 2 & l & L \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} [(\alpha \times \alpha)^{[l]} \times \alpha]^{[L]} \right. \\ & + \frac{15}{4\pi} \alpha_{00} \begin{pmatrix} 2 & 2 & L \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} [\alpha \times \alpha]^{[L]} \left. \right\} \rho^{(3)}(r-c) \\ & + \frac{c^4}{4!} \frac{25}{(4\pi)^{3/2}} \sum_{ll'} \sqrt{(2l+1)(2l'+1)} \begin{pmatrix} 2 & 2 & l \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 2 & 2 & l' \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l & l' & L \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\ & \times [(\alpha \times \alpha)^{[l]} \times (\alpha \times \alpha)^{[l']}]^{[L]} \rho^{(4)}(r-c) \quad (11) \end{aligned}$$

となる。今回の解析では電荷分布演算子に,

$$\rho(\mathbf{r}) = \frac{\rho_0}{1 + \exp\left(\frac{r - R(\theta, \varphi)}{z}\right)} \quad (12)$$

の2-パラメータフェルミ型を用いた。

1.3 パラメータ検索

我々が解析の対象とする核の電荷分布演算子のパラメータ c 及び z の値が求まり、かつ各準位の波動関数を決めることができれば、これらの核の電子散乱により得られる物理量、すなわち形状因子を予言することができる。この電荷分布演算子のパラメータの値及び波動関数を決定するに当たって次の二段階の手続きをふんだ。

(i) 対象とする核の実験的に知られている低励起準位の準位構造を再現し、かつ基底状態から第一励起 2^+ 準位への転移強度 $B(E2/0_1^+ \rightarrow 2_1^+)$ の値を再現するようなパラメータの値を求める。ここでパラメータとはハミルトニアン(1)に現われる $C_2, C_3, C_4, C_5, D_6, P_2$ である。この際、転移強度の計算には簡単のため、一様電荷分布を使った。転移強度は(11)から,

高次の項を省略して,

$$B(E2/0_1^+ \rightarrow 2_1^+) = \left(\frac{3ZC_u^3}{4\pi}\right)^2 |\langle 2_1^+ || \alpha + \frac{10}{\sqrt{70}\pi} [\alpha \times \alpha]^{[2]} || 0_1^+ \rangle|^2 \quad (13)$$

となる。ここで C_u は一様電荷分布の半径で

$$C_u = l A^{1/3}, \quad l = 1.12 \text{ fm} \quad (14)$$

となるようにした。 l の値は今回の解析から経験的に得られたものであるが、2-パラメータフェルミ分布を仮定した場合のパラメータの値と次のような関係にある。

$$l \approx \left(\frac{4\pi}{3} A \rho_0\right)^{-1/3}, \quad \rho_0 = \frac{1}{4\pi c^3} \left(1 + \frac{\pi^2 z^2}{c^2}\right)^{-1}. \quad (15)$$

ここまでの手続きにより各準位の波動関数を決定することができる。

(ii) 弾性散乱の解析から基底状態の電荷分布が判り、 r^2 , r^4 , r^6 等の基底状態での期待値 $\langle r^2 \rangle$, $\langle r^4 \rangle$, $\langle r^6 \rangle$ 等が計算できる。これらの量は解析の際に用いた特定の電荷分布の形にはあまり依存しないことが判っている。そこで基底状態の電荷分布として、2-パラメータフェルミ型,

$$\rho(\mathbf{r}) = \frac{\rho_0}{1 + \exp\left(\frac{r-c}{z}\right)} \quad (16)$$

を仮定し、弾性散乱の解析によりパラメータ c , z の値を求めた。

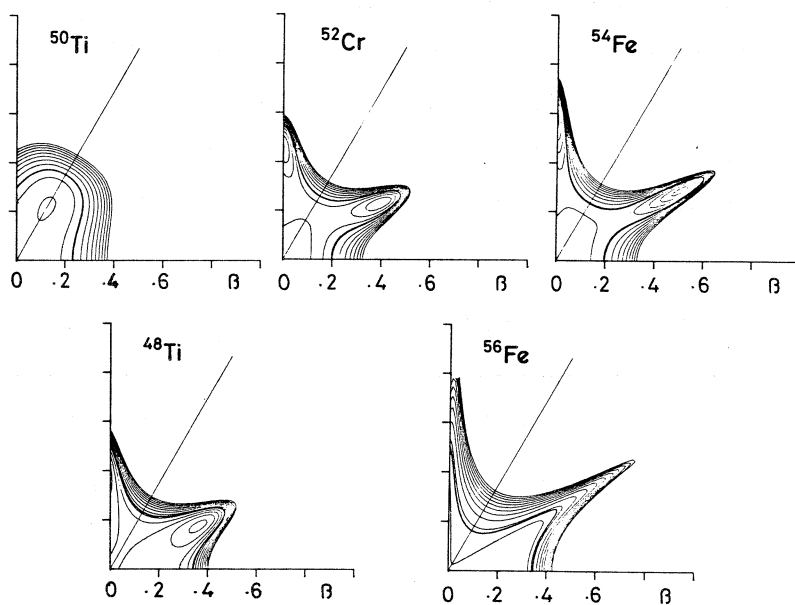
一方、(i) の手続きにより求まる基底状態の波動関数で電荷分布演算子(11)の期待値をとることにより基底状態の電荷分布が決まる。この電荷分布による $\langle r^2 \rangle$ 及び $\langle r^4 \rangle$ の値が弾性散乱の解析によって得られる同じ量と等しくなるように(12)のパラメータ c , z を求めれば、電荷分布演算子を決定することができる。

§ 2. 結果及び議論

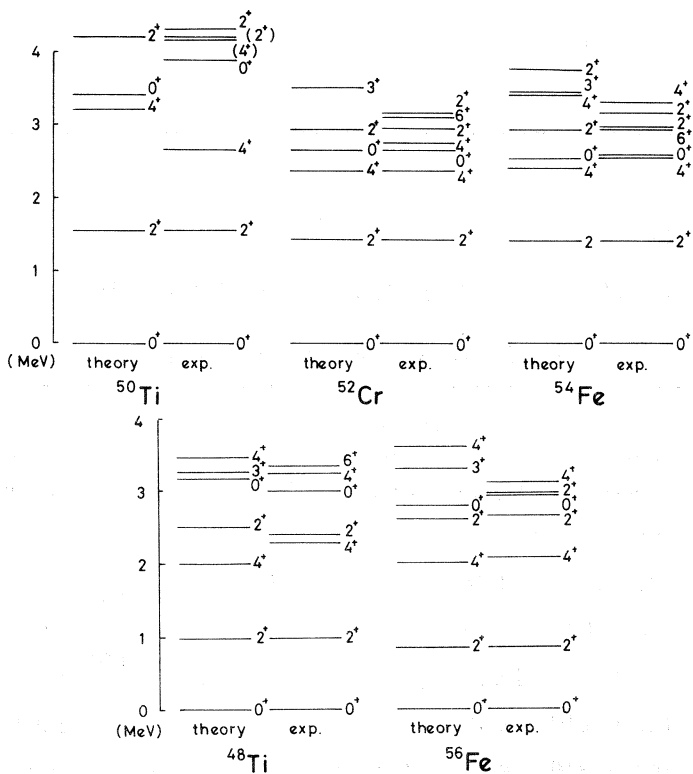
集団運動ハミルトニアン(1)のパラメータ $B_2 (= 5/4 P_2)$, $C_2 - D_6$ の値を前節で述べた方法に従って求めた。このパラメータによって決まるポテンシャル $V(\beta, r)$ をプロットしたものを第1図に、またスペクトルを第2図に示す。

2.1 弾性散乱

Gneuss-Greiner の集団運動模型から電子散乱の形状因子を計算するためには電荷分布演算



第1図 集団運動模型によるポテンシャルのマップ，太線は基底状態のエネルギーを示す。



第2図 $^{48,50}\text{Ti}$, ^{52}Cr , $^{54,56}\text{Fe}$ のスペクトルの実験値と計算値。

子を求めなければならない。このため、前節で述べた方法に従って弾性散乱の解析を行い、必要な電荷分布演算子のパラメータ c 、 z を得た。各核の基底状態の電荷分布のパラメータ及び電荷分布演算子のパラメータの値を第 1 表に示す。同じ核における各パラメータの値を比較すると、 c の値はほとんど変化しておらず、 z の値は電荷分布演算子の方がわずかに ($\approx 2\%$) 小さくなっているのが判る。これは基底状態への 2 フォノン状態、3 フォノン状態、…等の混りが核表面をぼかす効果を持っていることを意味する。

第 1 表 基底状態及び電荷分布演算子の 2-パラメータフェルミ型分布のパラメータ。

	Ground state		Charge operator	
	c (fm)	z	c (fm)	z
^{48}Ti	3.82	0.575	3.80	0.564
^{50}Ti	3.89	0.536	3.88	0.528
^{52}Cr	3.98	0.530	3.96	0.520
^{54}Fe	4.11	0.489	4.10	0.479
^{56}Fe	4.12	0.530	4.11	0.515

2.2 非弾性散乱

弾性散乱の解析により得られた電荷分布演算子を使って各準位の形状因子及び E 2 転移強度

第 2 表 E 2 転移強度の実験値と計算値。

	$B(E 2) (e^2 \text{fm}^4)$							
	$2_1^+ \rightarrow 0_1^+$		$2_2^+ \rightarrow 0_1^+$		$2_2^+ \rightarrow 2_1^+$		$4_1^+ \rightarrow 2_1^+$	
	Theory	Exp.	Theory	Exp.	Theory	Exp.	Theory	Exp.
^{48}Ti	143.8	$138 \pm 12^{(4)}$	2.84	$26. \overset{+\infty}{-} 21^{(5)}$	104.2	$36.4 \overset{+\infty}{-} 31.2^{(5)}$	229.	—
^{50}Ti	77.	$66 \pm 8^{(4)}$	7.05	—	84.8	—	140.7	$60. \overset{+14.}{-} 10^{(6)}$
^{52}Cr	118.	$119 \pm 7^{(7)}$	10.4	$\leq 0.2^{(8,9)}$	235.	$155. \overset{+31.}{-} 22^{(8,9)}$	171.	$83 \pm 17^{(10)}$
^{54}Fe	102.	$102 \pm 4^{(11)}$	6.47	—	191.1	—	136.6	$78 \pm 16^{(10)}$
^{56}Fe	213.	$194 \pm 4^{(12)}$	6.2	$3.41 \pm 1.2^{(12)}$	114.	$34.0 \pm 11^{(12)}$	402.5	$285 \pm 115^{(12)}$

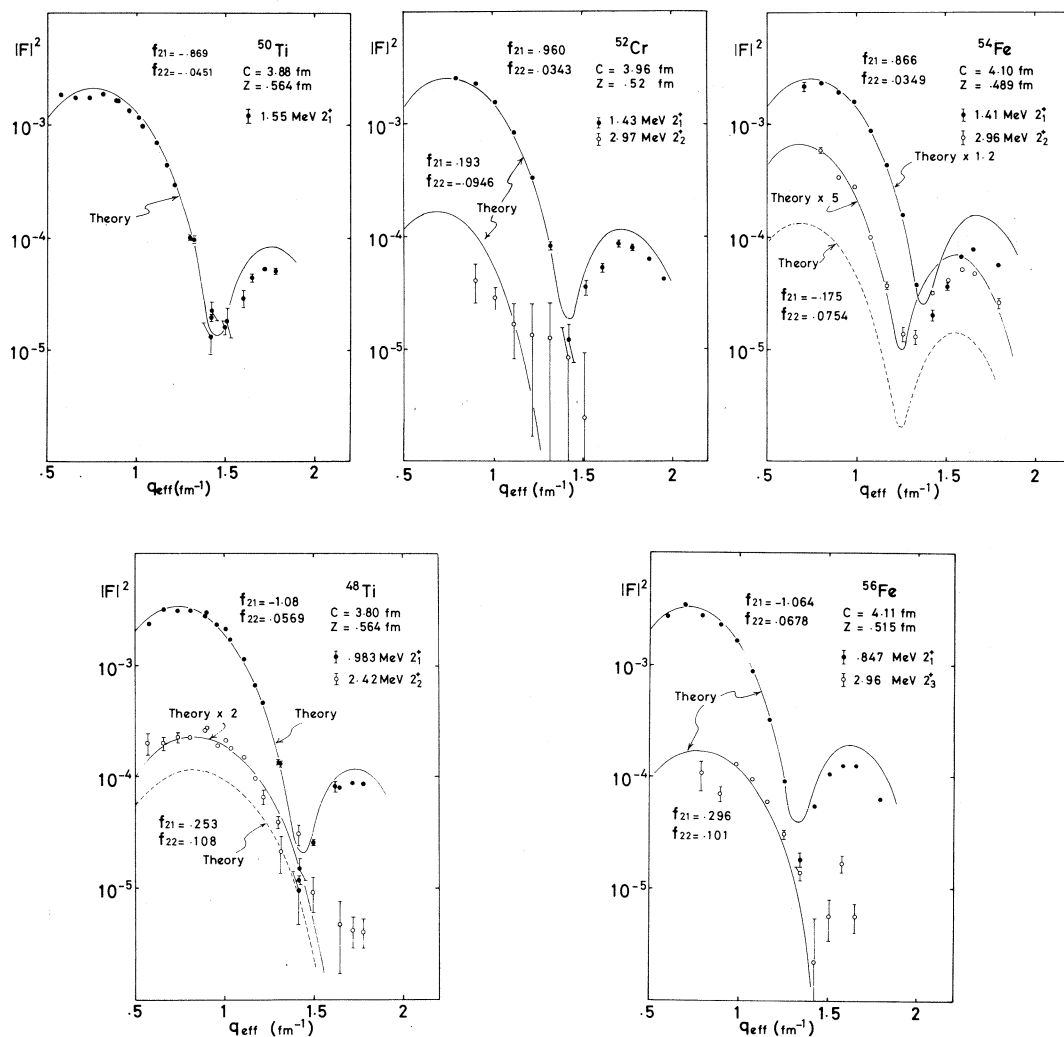
を計算した。転移強度の計算値を他の研究所の実験値⁴⁻¹²⁾とともに第2表に示す。

形状因子の実験値と計算値とを第3図及び第4図に示す。電荷分布演算子(11)の形から判る
ように、転移電荷分布は高次の項を省略すると、C 2 及びC 4 転移に対してそれぞれ、

$$\rho_{tr}^{[2]}(r) = f_{21} \rho'(r) + f_{22} \rho''(r), \quad (17)$$

$$\rho_{tr}^{[4]}(r) = f_{42} \rho''(r) + f_{43} \rho^{(3)}(r) \quad (18)$$

となる。図中に係数 f_{21} , f_{22} , f_{42} , f_{43} の値を示した。



第3図 2^+ 準位の実験値及び計算値。

2.2.1 2^+ 準位

第3図に示すように 2^+ 準位については ^{54}Fe を除くすべての核で第1極小付近まで絶対値及び運動量移行量 q 依存性とも計算値は実験値を非常によく再現した。絶対値が再現できなかった ^{54}Fe についても q 依存性はよく再現している。

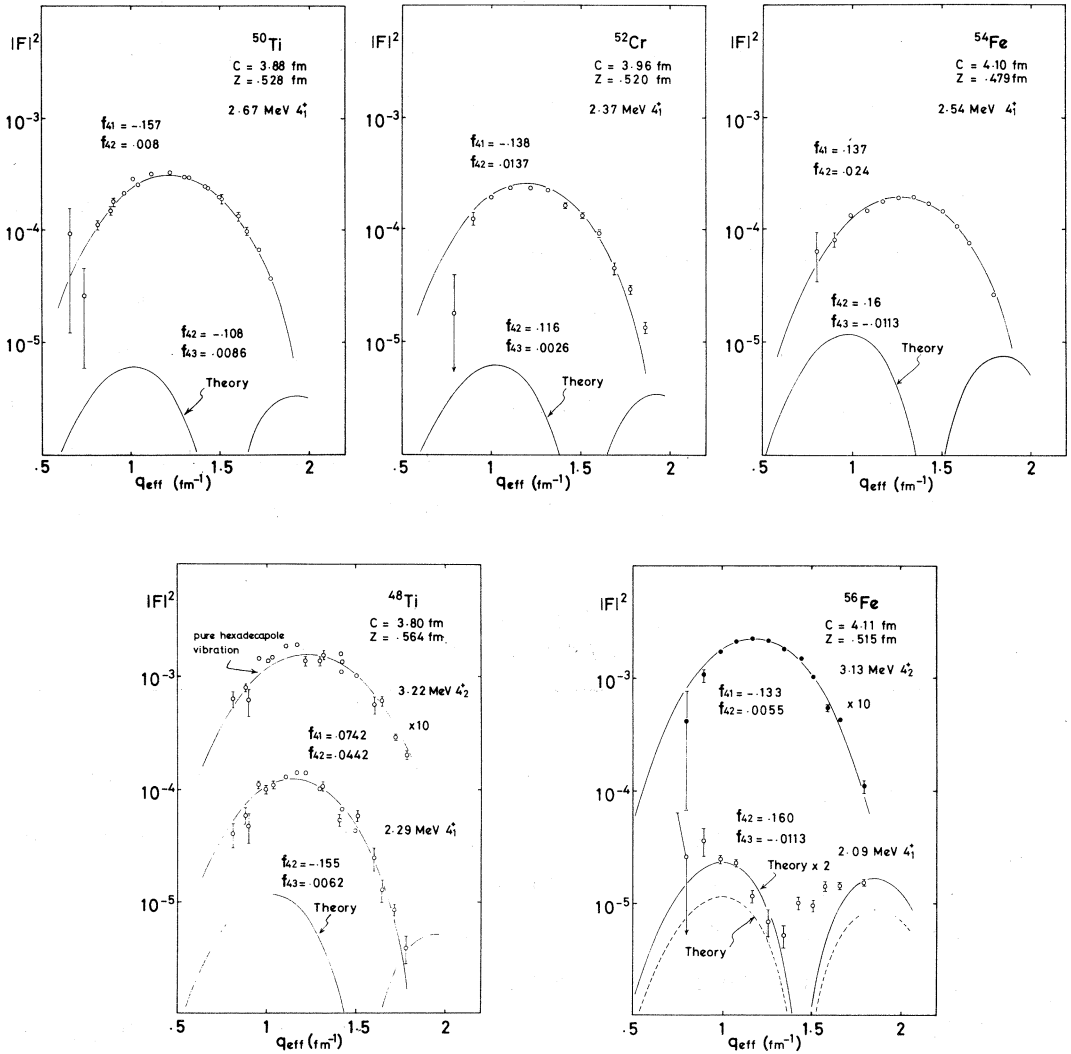
集団運動模型のハミルトニアンのパラメータ検索の際に、転移強度の計算は一様電荷分布を用いて行ったが、 2^+ 準位の形状因の絶対値までよく再現しえたことは、一様電荷分布の半径として(14)を採用したことが、少なくともこの領域の核に対しては適切であったことを意味する。

形状因子の第一極小より q の値の大きな領域で一様に計算値の方が大きくなっている。この理由として次のようなことが考えられる。すなわち q の値の大きい領域では転移電荷分布の細かい構造が見えるようになるわけだが、2-パラメータフェルミ型を基とした転移電荷分布ではそのような細かい構造を表現できない。しかし、これは単に電荷分布演算子の形を複雑にすれば解決するといった性質の問題ではない。電荷分布演算子の展開形(11)を見れば判るように、弾性散乱に対しては α のゼロ次の項から始まり、角運動量 $L=2$ の変化をともなう転移は α の一次の項から、 $L=4$ の変化をともなう転移は α の二次の項から始まる。このように、角運動量のより大きな変化をともなう転移は α のより高次の項から始まる。基底状態の電荷分布及び転移電荷分布の性質はほとんどその最低次の項によって決まってしまう。従って基底状態の電荷分布は再現しようとする非弾性散乱の q の値より高い所まで弾性散乱の形状因子を再現するようなものを使わなければならないであろう。

よく知られているように、調和振動子模型では基底状態から 2^+ 準位への転移は禁止される。しかし第3図から判るように ^{50}Ti を除いて、その形状因子を観測した。前回の報告で述べたように、 ^{50}Ti の 2^+ 準位は我々の実験の分解能では隣接する 3^+ 準位と分離することができなかった。 ^{48}Ti 及び ^{54}Fe では実験値の方が計算値より大きくなっているが、 q 依存性はよく再現している。 ^{52}Cr は実験誤差が大きいためはっきりしないが、絶対値はほぼ再現しているようである。 ^{56}Fe では 2^+ 準位はほとんど励起されず、その形状因子を得ることができなかった。しかし、 2^+ 準位を計算値の対応する準位と考えると絶対値、 q 依存性ともよく再現している。

2.2.2 4^+ 準位

これまで扱った核では ^{56}Fe を除いて 4^+ 準位が強く励起された。ところが第4図から判るように、計算値は全く実験値を再現することができない。一方、 4^+ 準位から 2^+ 準位への E2 転移強度は第2表に示すように、実験値と計算値は同程度の値である。従って、GCM で計算し



第4図 4^+ 準位の実験値及び計算値。

た最も低いエネルギー固有値を持つ 4^+ 状態を 4_1^+ 準位に同定することはこのことに関しては実験と矛盾しない。我々が観測した C 4形状因子を説明するためには4重極振動のフォノン以外の寄与を考えなければならない。 4_1^+ 準位から 2_1^+ 準位への $E2$ 転移ではこの寄与が見えていないことを考えれば、これは16重極振動からの寄与と考えるのが妥当である。4重極振動のフォノンの例に習って電荷分布演算子を作ると(11)に似た形のものができるが今は1フォノン状態だけを考えることにする(基底状態はこの振動に対して0フォノン状態である)。励起準位は 4^+ 準位だけである。この準位の励起に関する転移電荷分布は、

$$\rho_{\text{tr}}^{[4]}(r) = -c \langle 4^+ \parallel \alpha_4 \parallel 0^+ \rangle \rho'(r) \quad (19)$$

となる。ここで α_4 は4重極振に関する α に相当する演算子である。4重極振動及び16重極振動を考慮すると、C4転移に関する転移電荷分布は次の形にまとめられる。

$$\rho_{\text{tr}}^{[4]}(r) = f_{41} \rho'(r) + f_{42} \rho''(r) \quad (20)$$

より高次の項は省略した。上の式で、 f_{41} 、 f_{42} を自由なパラメータとして実験値を再現するような値を求めた。この値を第3表に示す。表から明らかなように、 4_1^+ 準位に関して、 ^{50}Ti 、 ^{52}Cr 、 ^{54}Fe では f_{42} の値は f_{41} の値に比べて小さく、電子散乱で見えているのはほとんど16重極振動の1フォノン状態だということが判る。一方、 ^{48}Ti では f_{41} と f_{42} の値が同程度の大きさになっており、図からも判るように純粋な16重極振動の形状因子とかなり異なった q 依存性を示している。しかし同じ図に示したように、 4_2^+ 準位の形状因子はほぼ純粋な16重極振動による形状因子の形をしている。これは16重極振動に由来する転移強度が2つの準位に分散しているためだと考えられる。

第3表 C4転移電荷分布の16重極振動の成分
 f_{41} と4重極振動の成分 f_{42} の実験値。

	4_1^+		4_2^+	
	f_{41}	f_{42}	f_{41}	f_{42}
^{48}Ti	-0.0742 ± 0.0022	$.0042 \pm 0.0046$	$.1117 \pm 0.0023$	$.0174 \pm 0.0043$
^{50}Ti	-0.1157 ± 0.0018	$.0080 \pm 0.0031$		
^{52}Cr	-0.1378 ± 0.0027	$.0137 \pm 0.0040$		
^{54}Fe	-0.1369 ± 0.0012	-0.0280 ± 0.0020		
^{56}Fe			-0.1331 ± 0.0014	$.0055 \pm 0.0028$

今まで電子散乱では ^{56}Fe の 4_1^+ 準位は観測されていなかったが^{13,14}、我々の実験ではこの準位の形状因子を得ることができた。この準位の形状因子はその絶対値が他の核の 4_1^+ 準位のそれと比べて小さく（頂点付近で $\approx 1/10$ ）、また q 依存性も全く異なっている。この形状因子は第3図に示したようにGCMによる計算値に類似しており、 ^{56}Fe の 4_1^+ 準位は4重極フォノンだけから構成されると考えてよい。また、この核では 4_2^+ 準位が強く励起されており、これは16重極振動的性質を持っている。

参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 **7** (1974) 297 ; 核理研研究報告 **8** (1975) 55 ; 核理研研究報告 **9** (1976) 7 ; 核理研研究報告 **10** (1977) 18.
- 2) G. Gneuss and W. Greiner : Nucl. Phys. **A 171** (1971) 449.
- 3) E. Borie, D. Drechsel and K. Lezuó : Nucl. Phys. **A 211** (1973) 393.
- 4) O. Häusser, D. Pelte, T. K. Alexander and H. C. Evans : Nucl. Phys. **A 150** (1970) 417.
- 5) C. D. Kavaloski and W. J. Kossler : Phys. Rev. **180** (1968) 971.
- 6) B. A. Brown, D. B. Fossan, A. R. Poletti and E. K. Warburton : *Proc. Intern. Conf. on Nuclear Physics*, ed. by J. de Boer and P. J. Many (North - Holland, Amsterdam, 1973) Vol. I, p. 286.
- 7) C. W. Towsley, D. Cline and R. N. Horoshko : J. Phys. Soc. Japan **34** (1973) Suppl. 439.
- 8) S. W. Sprague, R. G. Arns, B. J. Brunner, S. E. Caldwell and C. M. Rozsa : Phys. Rev. **C 4** (1971) 2074.
- 9) P. A. Assimakopoulos, T. Becker, C. Moazed and D. M. Van Patter : Nucl. Phys. **A 180** (1972) 131.
- 10) B. A. Brown, D. B. Fossan, J. M. McDonald and K. A. Snover : Phys. Rev. **C 9** (1973) 1033.
- 11) J. J. Simpson, J. A. Cookson, D. Eccleshall and M. J. L. Yates : Nucl. Phys. **62** (1965) 385.
- 12) P. M. S. Lesser, D. Cline, P. Goode and R. N. Horoshko : Nucl. Phys. **A 190** (1972) 597.
- 13) J. Bellicard and P. Barreau : Nucl. Phys. **36** (1962) 476.
- 14) J. Heisenberg, J. S. McCarthy and I. Sick : Nucl. Phys. **A 164** (1971) 353.

(γ, π^+) 反応による ${}^6\text{He}$ 低励起状態の研究(I)

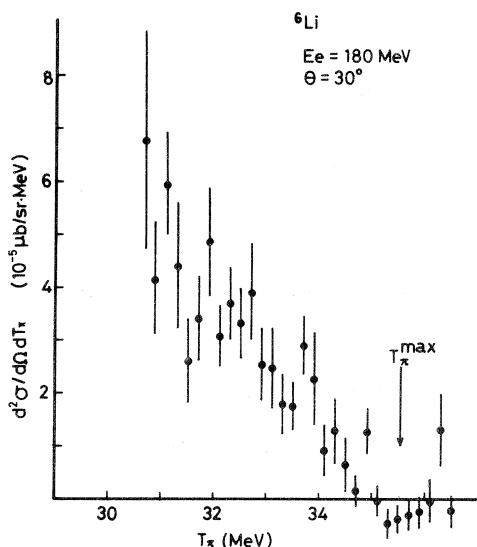
核理研 大橋英雄・山崎正晴・中原和夫
庄田勝房

今期は ${}^6\text{Li}$ を標的とした (γ, π^+) 反応の実験を行なったのでその解析の途中結果について報告する。

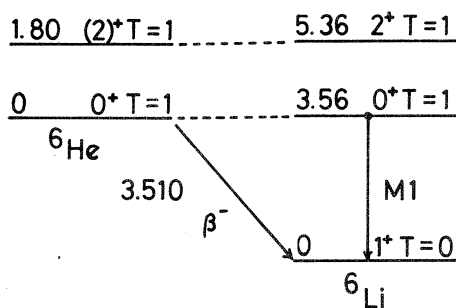
標的としては濃縮した 109 mg/cm^2 の ${}^6\text{Li}$ を用い、入射電子エネルギー $E_e = 180 \text{ MeV}$ 、ビームの運動量分解能 $\Delta p/p = 0.2\%$ 、放出された π^+ の検出角 $\theta_\pi = 30^\circ \sim 150^\circ$

(ただし $30^\circ \sim 90^\circ$ については 10° おき、 $110^\circ \sim 150^\circ$ では 20° おき) で残留核 ${}^6\text{He}$ の基底状態にフィードする π^+ の角度分布を測定した。第1図にこの反応に関係する原子核

のエネルギー準位図を、第2図に $\theta_\pi = 30^\circ$ における π^+ のエネルギー・スペクトルを示す。準



第2図 $E_e = 180 \text{ MeV}$, $\theta_\pi = 30^\circ$ における π^+ のエネルギー・スペクトル。矢印は π^+ の最大エネルギー位置。



第1図 ${}^6\text{Li}$ (γ, π^+) ${}^6\text{He}$ 反応に関与する原子核のエネルギー準位図。点線は2つの準位がアイソバリック・アナログであることを示す。

位図から知られるように ${}^6\text{He}$ の第1励起準位は 1.8 MeV なのでスペクトルの先端(矢印)から 1.8 MeV 低いエネルギー範囲までの π^+ の計数はすべて ${}^6\text{He}$ の基底状態へフィードする π^+ によるものであるから、この部分の計数を積分したものを、対応するエネルギー範囲の仮想光子数で割ることによって (γ, π^+) 反応断面積が得られる(解析方法の詳細については文献1を参照)。

こうして求めた角度分布を第3図に示す。図中の理論曲線は古井氏による²⁾ 得られた結果を ${}^{12}\text{C}$ の実験結果³⁾ と比較してみると、全断面積はほぼ等しいがその角度依存性はかなり異なっていることがわかる。

${}^6\text{Li}(\pi^+, \pi^+){}^6\text{He}(\text{g.s.})$ と ${}^{12}\text{C}(\pi^+, \pi^+){}^{12}\text{B}(\text{g.s.})$ との断面積の大きさを次の3つの方法で比較してみる。

(i) 文献4によると、我々が測定した π^+ の運動エネルギー $T_\pi = 30 \text{ MeV}$ 付近では (π^+, π^+) 反応の全断面積の比は残留相互作用のとり方によって変わってくるが

$$\sigma_{\text{Tot}}({}^6\text{Li}) / \sigma_{\text{Tot}}({}^{12}\text{C}) = 1.2 \sim 1.9$$

となる。

(ii) これらの反応は ${}^6\text{Li}$ では 3.56 MeV 、 ${}^{12}\text{C}$ では 15.11 MeV の M1 転移に対応するものであり、転移幅はそれぞれ $\Gamma_{\gamma_0}({}^6\text{Li}) \approx 8 \text{ eV}^{5)}$ 、 $\Gamma_{\gamma_0}({}^{12}\text{C}) \approx 36 \text{ eV}^{6)}$ であるから換算転移確率の比は

$$\frac{B(\text{M}1; {}^6\text{Li}(1^+ \rightarrow 0^+))}{B(\text{M}1; {}^{12}\text{C}(0^+ \rightarrow 1^+))} = 1.9$$

となる。

(iii) 電子散乱による縦成分形状因子の最大値はそれぞれ

$$|F_T|_{\text{max}}^2({}^6\text{Li}) = 2 \times 10^{-3} (q = 0.5 \text{ fm}^{-1}) \quad (\text{文献7})$$

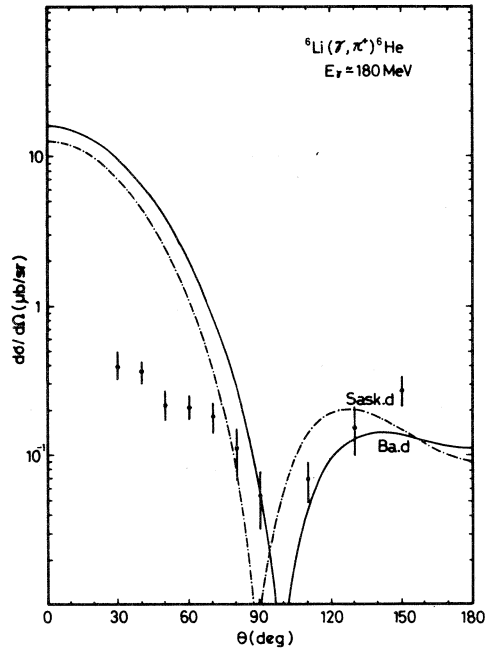
$$|F_T|_{\text{max}}^2({}^{12}\text{C}) = 3 \times 10^{-4} (q = 0.5 \text{ fm}^{-1}) \quad (\text{文献8})$$

(ここに q は運動量移行量) であるから、転移強度を比較するために陽子数の2乗をかけた量をとると

$$\{z({}^6\text{Li})\}^2 |F_T|_{\text{max}}^2({}^6\text{Li}) / \{z({}^{12}\text{C})\}^2 |F_T|_{\text{max}}^2({}^{12}\text{C}) = 1.7$$

となる。

以上いずれの場合でも ${}^6\text{Li}$ の (π^+, π^+) の微分断面積は前方では ${}^{12}\text{C}$ に比べて同程度もしくはやや大きくなると予想されるが今回の結果は逆に ${}^6\text{Li}$ の断面積の方が ${}^{12}\text{C}$ のそれよりもかなり小さいという結果を与えている。



第3図 $E_\pi \approx 180 \text{ MeV}$ における ${}^6\text{Li}(\pi^+, \pi^+){}^6\text{He}$ の反応微分断面積。

参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 **9** (1976) 226.
- 2) S. Furui : 核理研研究報告 **11** (1978)
- 3) K. Shoda, H. Ohashi and K. Nakahara : Phys. Rev. Lett. **39** (1977) 1131.
- 4) J. H. Koch and T. W. Donnelly : Nucl. Phys. **B 64** (1973) 478.
- 5) F. Ajzenberg - Selove and T. Lauritsen : Nucl. Phys. **A 227** (1974) 1.
- 6) F. Ajzenberg - Selove : Nucl. Phys. **A 248** (1975) 1.
- 7) J. C. Bergstrom, I. P. Auer and R. S. Hicks : Nucl. Phys. **A 251** (1975) 401.
- 8) A. Yamaguchi, T. Terasawa, K. Nakahara and Y. Torizuka : Phys. Rev. **C 3**
(1971) 1750.

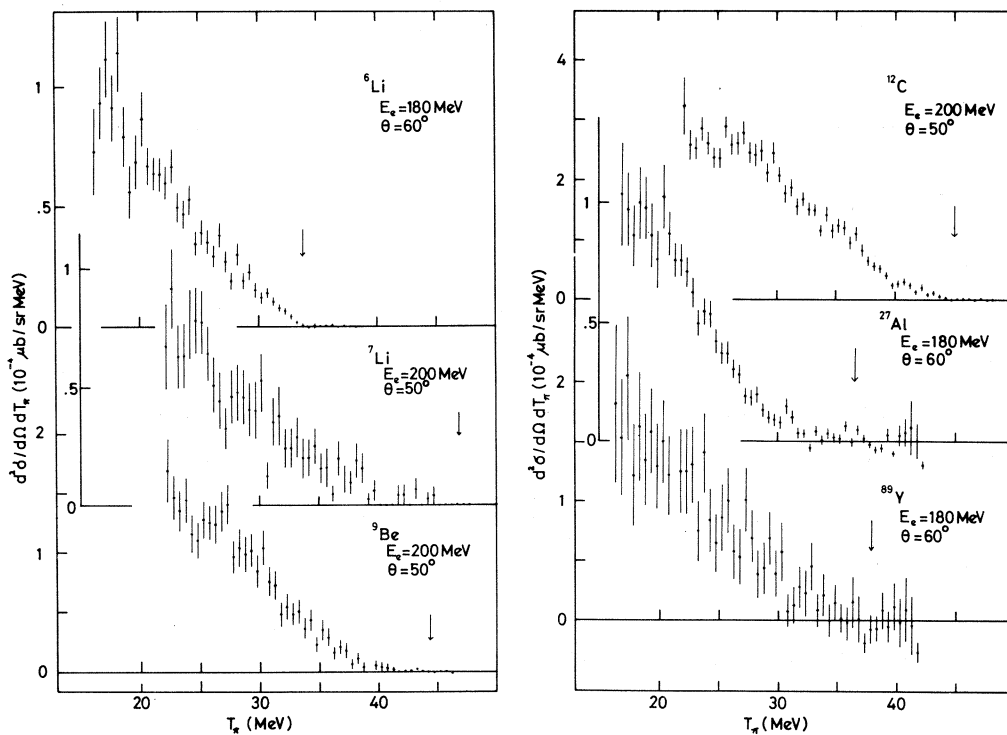
($e, e' \pi^+$) 反応による原子核の高い 励起状態の研究(II)

核理研 山崎正晴・大橋英雄・中原和夫
庄田勝房

前号¹⁾に引き続き、($e, e' \pi^+$)反応によって原子核標的より放出された π^+ 中間子のエネルギー・スペクトルを測定した実験の結果を報告する。この実験の目的は、スピン反転型の巨大共鳴が種々の原子核でどのように現われるかを調べることである。

§ 1. 実験結果

実験方法の詳細については前号¹⁾において述べた。その後得られた測定結果をも含めた π^+ 中間子のエネルギー・スペクトルを第1図に示す。



第1図 π^+ 中間子のエネルギー・スペクトル。図中の矢印は π^+ 中間子の最大エネルギー。

π^+ 中間子の生成には、仮想光子を媒介とする($e, e' \pi^+$)の過程のほかに、入射電子が標的の中で制動放射を行なうために実光子による(r, π^+)の過程も寄与している。今回は新たにこの実光子の寄与に対する補正を行なった。今考えている光子エネルギーの領域では、実光子のスペクトルの形²⁾は、先端のごく近くを除けば高速電子にともなう仮想光子のスペクトルの形³⁾によく似ている。したがって、全光子数(仮想光子数と実光子数の和)に対する実光子数の寄与は、光子のエネルギーによらずほぼ一定である。標的の厚さの $1/2$ が実光子発生に効いているとした時の各標的毎の値を第1表に示す。第1図に示したスペクトルは、測定したスペクトルから第1表に示した部分を差し引いたものである。

第1表 全光子数に占める実光子数の割合。実光子の発生には標的の厚さの $1/2$ が寄与していると仮定している。

原子核	実光子数/全光子数	原子核	実光子数/全光子数
${}^6\text{Li}$	5.8 %	${}^{12}\text{C}$	21.6 %
${}^7\text{Li}$	3.9	${}^{27}\text{Al}$	46.4
${}^9\text{Be}$	10.3	${}^{89}\text{Y}$	53.4

§ 2. 解析方法

($e, e' \pi^+$)反応を仮想光子による(r, π^+)反応とみなして(r, π^+)反応の微分断面積を求めることができる。その際、連続スペクトルをもった光子(たとえば制動放射)による光核反応の生成量曲線を解析するための種々の方法が利用できる¹⁾。今回はそのうちVariable Bin Penfold-Leiss (VBPL)法⁴⁾と呼ばれる方法を使用して解析を行なった。なお、前回採用した光子数差し引き法では、微分断面積の形を知ることではできても絶対値を正しく評価することができない*。今回のVBPL法では、絶対値のより正確な見積りが期待される。

先端エネルギー E_r^{max} の制動放射による光核反応の生成量 Y は次のように表わされる(記号

* 光子数差し引き法では無視した(文献1, (6)式の右辺第2行)の積分

$$\int_0^a dE_R S(E_R) [\phi(k, E_e) - \phi(k + \Delta T_\pi, E_e)]$$

(ただし, $a = E_r^{\text{max}} - T_\pi + Q - \Delta T_\pi$, $k = -Q + E_R + T_\pi$)は, T_π の減少とともに緩やかに単調増加する量であるので, 微分断面積 $S(E_R)$ の形の算出にはあまり影響しないが, 絶対値には大きく効き, 文献1第2図の微分断面積は過大評価となっている。

の意味は前号¹⁾参照のこと。

$$Y(\hat{E}_\gamma^{\max}) = \int dE_\gamma \sigma(\hat{E}_\gamma) \hat{\Phi}(\hat{E}_\gamma, E_e) \quad (1)$$

一方、 (γ, π^+) 反応の微分断面積 $d^2\sigma/d\Omega dE_R$ を S とおくと、 π^+ 中間子のエネルギー・スペクトル $N(T_\pi)$ は次のように表わされる。

$$N(T_\pi) = \int dE_R S(E_R, E_\gamma) \Phi(E_\gamma, E_e) \quad (2)$$

ただし、

$$E_\gamma = -Q + E_R + T_\pi \quad (3)$$

したがって、(1)式と(2)式の類似性から、VBPL法によって生成量曲線 (\hat{E}_γ^{\max}) を次々に変化させて $Y(\hat{E}_\gamma^{\max})$ を測定したの) から断面積 $\sigma(\hat{E}_\gamma)$ を求めるのと同様にして、スペクトル N から微分断面積 $S(E_R, E_\gamma)$ を求めることが可能のように見える。しかし、(1)式の σ は光子エネルギー \hat{E}_γ のみの関数であるのに対して、(2)式の S は残留エネルギー E_R と光子エネルギー E_γ との関数であり、VBPL法はそのままで(2)式へ適用できない。この点を解決する最も簡単な方法は、前号で行なったように微分断面積 S の E_γ 依存性を無視してしまうことである。ここではより正確に S の E_γ 依存性を近似する。ボルン近似によれば、微分断面積 S は、次の形に書くことができる。

$$S(E_R, E_\gamma) = \frac{p_\pi}{E_\gamma} M(E_R, q) \quad (4)$$

ここに、 p_π は π^+ 中間子の運動量、 $M(E_R, q)$ は核行列要素を含む因子、 q は運動量移行である。残留エネルギー E_R を固定して考えれば、光子エネルギー E_γ を変えた時に運動量移行 q は変わりしたがって $M(E_R, q)$ の大きさも変わるが、今考えているエネルギー領域 ($E_\gamma = 190 \pm 10$ MeV, あるいは $E_\gamma = 170 \pm 10$ MeV) では、 M の変化の大きさは因子 p_π/E_γ の変化の大きさに比べて十分に小さいと考えられる。したがって、 M の q 依存性を無視して

$$S(E_R, E_\gamma) \approx \frac{p_\pi}{E_\gamma} M(E_R) \quad (5)$$

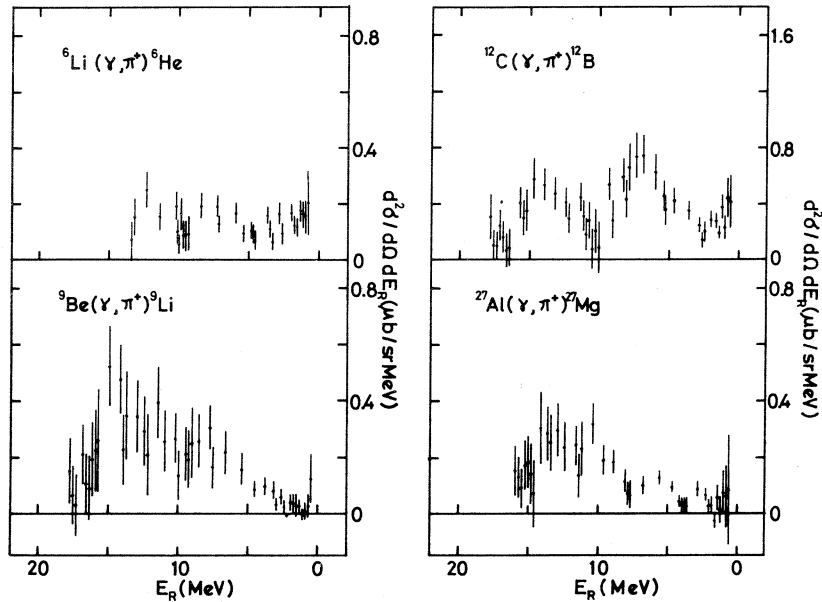
と近似する。すると、(2)式は

$$N(T_\pi)/p_\pi = \int dE_R M(E_R) \Phi(E_\gamma, E_e)/E_\gamma \quad (6)$$

となり、仮想光子スペクトル $\Phi(E_\gamma, E_e)$ を $\Phi(E_\gamma, E_e)/E_\gamma$ の形に修正することにより(1)式と同じ形となって VBPL法を適用することができる。

§ 3. 結 果

以上によって解析した結果を ${}^6\text{Li}$, ${}^9\text{Be}$, ${}^{12}\text{C}$, ${}^{27}\text{Al}$ の各標的(残留核はそれぞれ ${}^6\text{He}$, ${}^9\text{Li}$, ${}^{12}\text{B}$, ${}^{27}\text{Mg}$)について第2図に示す。残留エネルギー E_R の大きな領域に注目すると, ${}^6\text{He}$ では不明瞭だがそれ以外の核では幅の広い共鳴状の構造が見られる。特に ${}^{12}\text{B}$ では顕著な共鳴が2



第2図 (γ, π^+) 反応の微分断面積。VBPL法による解析結果。
 E_R は残留エネルギー。

つ見られるが、このうち $E_R \approx 7 \text{ MeV}$ 付近の共鳴は、従来標的核 ${}^{12}\text{C}$ における非弾性電子散乱⁵⁾によって知られていたスピン・アイソスピン・モードのE 1巨大共鳴($E_x = 22.7 \text{ MeV}$)とともにアイソスピン三重項の一部を構成する共鳴状態であると考えられる。現在までに、 ${}^6\text{Li}$, ${}^9\text{Be}$, ${}^{12}\text{C}$ に関しては (γ, π^+) 反応と同種の相互作用ハミルトニアンで記述される (π^-, r) 反応の実験⁶⁾が行なわれている。これらの実験では原子軌道から π^- 中間子の捕獲がおこるため、われわれの実験とは q が異なるが、 ${}^{12}\text{B}$ の $E_R \approx 14 \text{ MeV}$ 付近の共鳴を除けば、各原子核における光子スペクトルの構造はわれわれの得た (γ, π^+) 反応の微分断面積の構造と矛盾しない。

今回は得られた共鳴状構造の定量的解釈を試みる。

参 考 文 献

- 1) 山崎正晴他：核理研研究報告 **10** (1977) 183.
- 2) L. I. Schiff : Phys. Rev. **83** (1951) 252.
- 3) R. H. Dalitz and D. R. Yennie : Phys. Rev. **105** (1957) 1598.
- 4) E. Bramanis *et al.* : Nucl. Instr. **100** (1972) 59.
- 5) A. Yamaguchi *et al.* : Phys. Rev. **C 3** (1971) 1750.
- 6) P. Truol : *AIP Conf. Proc. No. 33, Meson Nucl. Phys. - 1976, Carnegie-Mellon Conf.*, ed. by P. D. Barnes *et al.* (AIP, New York, 1976) p. 581.
J. C. Alder *et al.* : *ibid.* p. 626.
H. W. Baer : *Proc. SIN Conf.* (1977) p. 245.

Charged Pion Electroproduction on Light Nuclei near the Threshold

Sadataka FURUI

Institute of physics, University of Tokyo,

Komaba, Meguro-Ku. Tokyo 153, Japan

Abstract : π^+ electroproductions from ^{12}C , ^{16}O , ^9Be , ^7Li and ^6Li leading to the low lying states of corresponding daughter nuclei are analyzed in the distorted wave impulse approximation. We compare the experimental data with results of various nuclear wave functions and study qualitative features of the renormalization effects of the pion-production vertices in nuclei. The angular distribution of pions produced from ^9Be shows an enhancement of longitudinal spin-isospin modes which could have the same origin as the renormalization of the induced pseudoscalar axial current vertex of nuclei.

§ 1. Introduction

In recent years, the subject of electro- and photo-production of pions from nuclei has received considerable attention both from theoretical and experimental points of view.¹⁾ Such experiments should shed light on nuclear effects such as core polarization and pion exchange effects or renormalization of pion-production vertices in nuclei.

The renormalization effects at the threshold region of the pion photoproduction have been studied by several authors especially by Rho and Ericson²⁾ In this case, the Kroll-Ruderman theorem or the soft pion theorem allows us to take the production vertex as the axial current vertex which consists of the Gamow-Teller operator and the induced pseudo-scalar operator if the possible G-parity violating induced tensor operator is ignored. Due to the nucleon-nucleon correlation, these pieces of the vertex are expected to receive renormalization effects as was pointed out by Rho and Ohta-Wakamatsu³⁾ These renormalization effects have the same origin as that of π NN vertex in nuclear matter.⁴⁾ Consequently, the study of the Gamow-Teller coupling constant g_A and the induced pseudoscalar coupling constant g_p of nuclei from β -decay, μ -capture, threshold pion photoproduction and radiative pion capture data and the study of the π NN coupling

constant g from pionic atom and elastic pion-nucleus scattering data have been performed.⁵⁾ In the case of the pion photo-production from nuclei above the threshold, the soft pion approach should be modified greatly since the produced pion undergoes a strong final-state interaction and the photo-production amplitude has an appreciable energy dependence. The origin of the renormalization effect is, however, expected to be similar.

We consider the transverse and longitudinal spin-isospin modes which contain the $\sigma_{\pm 1}$ spin flip operator and the σ_3 spin non-flip operator, respectively. The former corresponds to the excitation through the Gamow-Teller operator and the latter through the induced pseudoscalar operator at the soft pion limit. The longitudinal spin-isospin mode can generate coherent virtual pion waves, and large renormalization effects can show up due to the long range correlation. The effect is discussed by Bell and Llewellyn Smith in their analysis of pion productions from nuclei by accelerator neutrino as the "shadow effect".⁶⁾ When the pion energy is less than about 50MeV, the "shadow effect" is, in fact, an enhancement in contrast to the (33) resonance region and above, where the effect is a strong suppression. The relation between the enhancement of the induced pseudoscalar vertex and the property of pion field in nuclear matter such as pion condensation was discussed by Rho.⁷⁾

As in the case of other electromagnetic processes and weak processes of nuclei, the dependence on nuclear wave functions or the core polarization and the configuration mixing should also be taken into account. In the previous paper (hereafter referred as I) we analyzed, using the modified equivalent photon approximation, the kinetic energy spectra of pions produced from ^{12}C and ^{16}O [ref. 8]. Dividing the cross section by the number of the equivalent photons, we can obtain the angular distribution of the pion photoproduction. Note that the pion electroproduction has advantages over the radiative pion capture and the μ -capture by this possibility of detecting the momentum transfer dependence of the nuclear form factor. We can obtain information of the nuclear wave functions different from that obtained from the electron scattering, since the transition operators are different. In I, we used simple, pure shell model wave functions with normalization parameters adjusted from the electron scattering data. In this paper we use more refined shell model wave functions and calculate the angular distribution of pions produced by the equivalent photons.

The quantitative estimation of the renormalization effects in finite nuclei needs

information of the isovector spin-spin correlation functions of the nuclei. We shall postpone the quantitative estimation to a future study and try to see, in this paper, how the distorted wave impulse approximation (DWIA) can reproduce the experimental data. From the systematic comparison of the data and the DWIA results, it will become possible to extract the renormalization effect. If an analogy of the soft pion results of nuclear matter is allowed, we expect about 10 % reduction of the transverse spin-isospin modes and an enhancement of the longitudinal spin-isospin modes by even a factor of two or more.⁵⁾ We analyze the experimental results on the targets ^{12}C , ^{16}O , ^9Be , ^7Li , ^6Li and ^{27}Al given by Shoda *et al.*⁹⁻¹¹⁾

In the sect.2, using the DWIA, we obtain the angular distribution of pions produced by equivalent photons. The sect.3 deals with the experimental data and the comparison with the numerical results. Finally in sect.4 we present a summary and discussions.

§ 2. Pion production from nuclei by equivalent photons

In this section we obtain the angular distribution of the pions produced by the equivalent photons that are emitted from the electron beams. In I, we already obtained the kinetic energy spectrum of pions with the DWIA formalism. In order to obtain the angular distribution, we need only to divide the cross section by the number of the equivalent photons and to multiply a kinematical factor.

In our model, the total cross section of the pion electroproduction is related to the differential cross section of the photoproduction by

$$\sigma_{ee'\pi}(E_p) = \int dT_\pi d\Omega_\pi N'(E_p, T_\pi, \Omega_\pi) \frac{d^2\sigma_{r\pi}}{d\Omega_\pi dT_\pi}(Q_f(T_\pi, \Omega_\pi)), \quad (2.1)$$

where E_p , T_π and Ω_π are all in the laboratory system and denote the incident electron energy, the pion kinetic energy and the pion production angle, respectively; Q_f is the photon momentum that satisfies the "peak condition"⁸⁾ and $N'(E_p, T_\pi, \Omega_\pi)$ is the number of equivalent photons whose explicit form is shown in I (eq. (2.3)).

The summation Σ_{pol} was introduced there since the averaging over the polarization of the photon is taken into account in our $N'(E_p, T_\pi, \Omega_\pi)$ through the averaging over the spin of the electron, and the factor 1/2 there was to be cancelled.

Dalitz and Yennie derived the total cross section of electroproduction as,¹²⁾

$$\sigma_{ee'\pi}(E_p) = \int dQ_f N(E_p, Q_f) \int d\Omega_\pi \frac{d\sigma_{T\pi}}{d\Omega_\pi}(Q_f), \quad (2.2)$$

where the explicit form of the $N(E_p, Q_f)$ is shown in I (eq. (2.4))* . Shoda *et al.* extended this formula to the differential cross section and calculated the electroproduction cross section as the photoproduction differential cross section multiplied with the $N(E_p, Q_f)^{9-11}$. There is a discrepancy of about a factor of two between their $N(E_p, Q_f)$ and our $N'(E_p, T_\pi, \Omega_\pi)$. It is attributed to the assumption on the nuclear current $\langle J^2 \rangle \propto Q_f^2$ adopted by Dalitz and Yennie which is correct for the electroexcitation of the nucleus but not for the electroproduction.¹³⁾ Using their data of the electroproduction from H, Shoda *et al.* showed that the experimental results are consistent with the photoproduction data of Adamovich *et al.*¹⁴⁾ if the equivalent photon number $N(E_p, Q_f)$ is used. The result with our $N'(E_p, T_\pi, \Omega_\pi)$ is worse than theirs. In virtue of the small production angle, the Kroll-Ruderman term was adopted for the photoproduction amplitude. There is an ambiguity in subtraction of the background which we assumed to be $0.3 \times 10^{-4} \mu\text{b}/\text{sr} \cdot \text{MeV}$, and of the contribution of the bremsstrahlung photons produced in the target of LiH which is expected to be of the order of 10%.

If the Kroll-Ruderman term is adopted, the pion photoproduction cross section of a nucleus of spin J_i is given in the plane wave impulse approximation (PWIA) as,

$$\frac{|\mathbf{Q}|}{|\mathbf{k}|} \frac{d\sigma}{d\Omega_\pi} = \frac{\alpha}{2(2J_i + 1)} \left[\frac{\sqrt{2}g}{2M(1 + m_\pi/M_f)} \langle J_f || \Sigma'_1(\mathbf{q}) \sqrt{\frac{1}{2}} \tau_{-1} || J_i \rangle [\phi_\pi] \right]^2, \quad (2.3)$$

where $\alpha = e^2/4\pi = 1/137$, $g = 13.6$ and τ_{-1} is the spherical component of the isospin operator. The masses of the pion, nucleon and the nucleus are denoted by m_π , M and M_f , respectively, $[\phi_\pi]$ is the distortion factor of the pion and $\Sigma'_1(\mathbf{q})$ is the fourier transform of the operator

$$\Sigma'_1(\mathbf{x}) = -i \frac{1}{|\mathbf{q}|} [\nabla \times \mathbf{M}_{11}(\mathbf{x})] \cdot \boldsymbol{\sigma}.$$

As we showed in I, the model can be extended so as to use DWIA and the energy dependent photoproduction vertex.

* In the eq. (2.4) of I, Σ_{pol} should be omitted.

In the case of ^{16}O and ^{12}C , we use the Tamm-Dancoff approximation (TDA) and the random phase approximation (RPA) wave functions for the nuclear form factor. For ^{16}O , we consider the core deformation by including the two-particle two-hole (2p2h) components,

$$|0^+\rangle = a_1|0p0h\rangle + a_2|(0d_{5/2}^2)^{T=1, J=0}(0p_{1/2}^{-2})^{10}\rangle + a_3|(1s_{1/2}^2)^{10}(0p_{1/2}^{-2})^{10}\rangle. \quad (2.4)$$

With TDA, the wave function of the final nucleus is given by,

$$|J_f, T_f, m_{T_f}\rangle = \sum_{Aa} X_{Aa} |(j_A j_a^{-1}) J_f, T_f, m_{T_f}\rangle. \quad (2.5)$$

The term $[\]^2$ in eq. (2.3) is then replaced by

$$\begin{aligned} & \frac{1}{2 \cdot 2} \sum_K \sum_m \sum_{\sigma=\pm 1} \left(\frac{\sqrt{2} g}{\sqrt{4\pi} 2M (1+m_\pi/M_f)} \right)^2 \left| \sum_{Aa} (a_1 + a_2 \delta_{A d_{5/2}^2 a_{p_{1/2}}} / 6 + a_3 \delta_{A s_{1/2}^2 a_{p_{1/2}}} / \sqrt{12}) \right. \\ & \times X_{Aa} 4\pi \sum_{l\ell r} i^{l-L} e^{i(\sigma_l + \delta_l)} \int_0^\infty R_{l_A}(r) j_L(Qr) \frac{\phi_l(kr)}{kr} R_{l_a}(r) r^2 dr Y_{l-m}(-\hat{\mathbf{k}}) \\ & \times \hat{L}^2 \hat{l} \hat{r} \begin{pmatrix} L & l & \ell \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \hat{j}_a \hat{j}_A \begin{Bmatrix} l_A & 1/2 & j_A \\ r & 1 & K \\ l_a & 1/2 & j_a \end{Bmatrix} \exp(b^2 |\mathbf{Q} - \mathbf{k}|^2 / 4A) \\ & \times \hat{l}_A \hat{r} \hat{l}_a \begin{pmatrix} l_A & r & l_a \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} (-1)^{l_A - r} \sqrt{6} \begin{pmatrix} L & l & r \\ 0 & -m & -m \end{pmatrix} (-1)^{r-1-m+\sigma} \begin{pmatrix} r & 1 & K \\ -m & \sigma & m-\sigma \end{pmatrix} \\ & \times \sqrt{3} \begin{pmatrix} T_f & 1 & T_i \\ -m_{T_f} & -1 & m_{T_i} \end{pmatrix} (-1)^{T_f - m_{T_f}} \Big|^2, \quad \{ \hat{J} = \sqrt{2J+1} \}, \quad (2.6) \end{aligned}$$

where $\delta_{A' a'}^A = 1$ if $A=A'$ and $a=a'$, and 0 otherwise.^{15,16)} The phase convention for the nuclear wave function agrees with that of Gillet and VinhMau¹⁷⁾ and is different from that of Rho and Green¹⁸⁾

In the case of the other light nuclei, we use the intermediate coupling p-shell wave functions. We write the initial state as

$$|J_i, T_i, m_{T_i}\rangle = \sum_A X_A |(L_A S_A) J_i, T_i, m_{T_i}\rangle, \quad (2.7)$$

and the final state as

$$|J_f, T_f, m_{T_f}\rangle = \sum_B X_B |(L_B S_B) J_f, T_f, m_{T_f}\rangle. \quad (2.8)$$

The term $[\quad]^2$ in eq. (2.3) is then replaced by,

$$\begin{aligned}
& \frac{1}{2 \cdot 4} \sum_K \sum_m \sum_{\sigma=\pm 1} \left(\frac{\sqrt{2} g}{\sqrt{4 \pi} 2 M (1 + m_\pi / M_f)} \right)^2 \left| \sum_{AB} X_A X_B n(\text{cfp}) 4 \pi \sum_{\substack{L \tilde{L} \\ \tilde{L} \tilde{S} \tilde{T}}} i^{l-L} e^{i(q+\delta_l)} \right. \\
& \times \int_0^\infty R_1(r) j_L(Qr) \frac{\phi_l(kr)}{kr} R_1(r) r^2 dr Y_{l-m}(-\hat{\mathbf{k}}) \exp(b^2 |\mathbf{Q} - \mathbf{k}|^2 / 4 A) \\
& \times \hat{J}_i \hat{J}_f \hat{K} \left\{ \begin{array}{ccc} S_A & L_A & J_i \\ 1 & r & K \\ S_B & L_B & J_f \end{array} \right\} \hat{L}_A \hat{L}_B \left\{ \begin{array}{ccc} 1 & L_A & \tilde{L} \\ L_B & 1 & r \end{array} \right\} \hat{S}_A \hat{S}_B \left\{ \begin{array}{ccc} 1/2 & S_A & \tilde{S} \\ S_B & 1/2 & 1 \end{array} \right\} \\
& \times (-1)^{\tilde{S}+1/2+S_B+\tilde{L}+L_B+\tau} \hat{L}^2 \hat{I} \hat{r} \left(\begin{array}{ccc} L & 1 & r \\ 0 & 0 & 0 \end{array} \right) \hat{1} \hat{r} \hat{1} \left(\begin{array}{ccc} 1 & r & 1 \\ 0 & 0 & 0 \end{array} \right) (-1)^{1-r} \\
& \times \sqrt{6} \left(\begin{array}{ccc} L & l & r \\ 0 & -m & m \end{array} \right) (-1)^{1-r-m+\sigma} \left(\begin{array}{ccc} 1 & r & K \\ \sigma & -m & m-\sigma \end{array} \right) \\
& \times \hat{T}_i \hat{T}_f \left\{ \begin{array}{ccc} 1/2 & T_i & \tilde{T} \\ T_f & 1/2 & 1 \end{array} \right\} (-1)^{\tilde{T}+3/2+T_f} \sqrt{3} \left(\begin{array}{ccc} T_f & 1 & T_i \\ -m_{T_f} & -1 & m_{T_i} \end{array} \right) (-1)^{T_f-m_{T_f}} \Big|^2, \\
\end{aligned} \tag{ 2.9 }$$

where n is the number of the p-shell nucleons and $[\text{cfp}]$ is the coefficient of the fractional parentage.¹⁹⁾

The extension of eqs. (2.6) and (2.9) to use the general photoproduction amplitudes which allow the excitation of the longitudinal spin-isospin modes is the same as that of I. The distorted wave of the pion is calculated by use of an optical potential analogous to that of Thies with the parameter of the Lorentz-Lorenz effect $\xi = 1$ ⁸⁾

§ 3. Comparison with experimental data

In this section we show the numerical results of the angular distribution of pions produced from ^{12}C , ^{16}O , ^9Be , ^7Li and ^6Li by the equivalent photons. Shoda *et al.* obtained the differential cross section leading to individual low lying states by dividing the yield of pions near the tip of the kinetic energy spectrum by the number of the equivalent photons in the same region. When the productions at 0° and 180° are compared, in the present experiments, the kinetic energy of the pions varies by the amount of 3-6MeV, the exact value depending on the target. In our DWIA analysis, we fix the energy of pions and obtain the corresponding photon energy from the kinematics that satisfies the "peak condition".⁸⁾ Since the photoproduction amplitude does not change drastically by a small change in the photon energy, this approximation is sufficient for

our purpose.

In order to compare with the PWIA analysis with the Helm model wave function,^{9,10)} we also performed the PWIA analysis with the shell model wave functions. We took the pion energy at the tip of the kinetic energy spectrum, but did not perform the angular transformation from the photon-nucleon center of momentum (CM) system to the photon-nucleus CM system since the transformation was not done in the Helm model.

We describe the results separately for each nuclei in the following part of this section. The incident electron energy and the kinetic energy of the pion chosen for the DWIA analysis are shown in the parentheses.

3.1 ^{12}C ($E_p = 195 \text{ MeV}$, $T_\pi = 35 \text{ MeV}$)

We consider transitions to the 1^+ (gnd) and the 2^+ (0.94MeV) states of ^{12}B . The PWIA results with the Helm model²¹⁾ by Shoda *et al.*⁹⁾ gives the cross section for the 1^+ state by about a factor of two larger than the experimental values, but as we discussed in I, their estimate of the number of equivalent photons is off by about a factor of two. The pure shell model wave function gives the cross section of the electron scattering to the isobaric analog state by about a factor of five larger than the experiment, and so with the same philosophy as the Helm model, the cross section multiplied with a factor of 1/5 was shown in I. We expect the disagreement at large angles come from the simplicity of the nuclear wave function, and we calculate with the Gillet-VinhMau (G.V.) wave function¹⁷⁾ and Boyarkina (B) wave function.²³⁾ The former wave functions were tested in μ -capture and radiative pion capture and give the capture rates about a factor of five larger than the experimental data.²²⁾ In the PWIA analysis, we found that their TDA and RPA do not show large differences in the angular distributions and in the DWIA analysis we used the TDA. We took the oscillator parameter $b = 1.64\text{fm}$.

The DWIA result with the G.V. is shown in Fig.1. With the Boyarkina's intermediate coupling shell model wave function, the forward peak from the 1^+ state decreases and the agreement with the data is better than G.V. for which the factor 1/5 is necessary. In Fig.2 we show the sum of contributions from the 1^+ and the 2^+ states calculated in PWIA denoted by Helm and G.V.p, and that calculated in DWIA denoted by G.V.d and B.d. Different from Fig.1, the results with the G.V. are not multiplied by the factor of 1/5. The experimental values are taken from ref.9, but multiplied by a factor of 2.5 that is the ratio of Shoda *et al*'s $N(E_p, Q_f)$ and our $N'(E_p, T_\pi, \Omega_\pi)$.

Although the cross section near 90° is smaller than the data by about a factor of two, the Boyarkina wave function gives relatively good overall agreement with the data. The first peak of the transverse form factor for the isobaric analog of the 1^+ state is reproduced relatively well by this wave function.²⁰⁾ So we do not expect drastic changes from the results of the Boyarkina wave function.

As far as the vertex renormalization is concerned, the μ -capture rate of the $0^+ \rightarrow 1^+$ transition shows $g_p^{\text{eff}}/g_p = 1.2 \pm 0.5$ [ref. 24], which favours the enhancement due to the "shadow effect". The contribution of the longitudinal spin-isospin mode in our case is small, however, and we do not expect a large correction from the renormalization effect.

Shoda *et al.* discussed the excitations of higher levels.¹⁰⁾ In Fig. 9a we show the kinetic energy spectrum of pions at 50° calculated in PWIA with the G. V. wave functions. For the lowest 1^+ state, the factor of $1/5$ is multiplied. Since the level energies are taken from the model, the thresholds do not agree with the experiment, but the overall agreement is good.

3.2 ^{16}O ($E_p = 200 \text{ MeV}$, $T_\pi = 45 \text{ MeV}$)

We consider transitions to the 2^- (gnd), 0^- (0.12 MeV), 3^- (0.30 MeV) and 1^- (0.40 MeV) states of ^{16}N . Shoda *et al.*¹⁰⁾ analyzed their data with the Helm model. Devanathan *et al.*²⁵⁾ calculated the total cross section of pion photoproduction in the PWIA using the RPA wave function of G. V.¹⁷⁾ and Migdal model wave function of Rho.²⁶⁾ With the volume production model,²⁵⁾ the cross section for 200 MeV photons calculated with the RPA is about a factor of 3.3 larger than the experimental data and the cross section calculated with the Migdal model is by about a factor of 1.6 larger than the

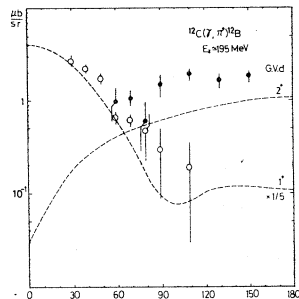


Fig. 1 The angular distribution of π^+ photoproduction from ^{12}C calculated in DWIA with the G. V. wave function. A factor of $1/5$ is multiplied.

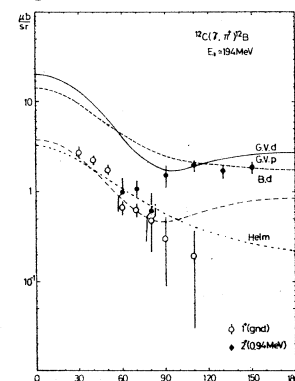


Fig. 2 The angular distribution of π^+ photoproduction from ^{12}C calculated in PWIA and in DWIA. The sum of the contributions from the 1^+ and 2^+ states are shown for the theoretical values.

data. The pure shell model wave function gives the cross section of the electron scattering to the isobaric analog state by about a factor of three larger than the data and the electroproduction cross section multiplied with a factor of 1/3 was shown in I. We improve the model by using the G. V. wave function, the Rho wave function and the Green-Rho wave function. As in the case of ^{12}C , we did not observe a large difference in the results of TDA and RPA of the G. V. by use of PWIA. We thus adopted the TDA for the DWIA analysis.

Figure 3a shows the DWIA results with the G. V. wave functions. Taking into account the fact that the wave functions yields the μ -capture rate by about a factor of two larger than the experimental data²²⁾ we multiply a factor of 1/2 here. The solid line is the sum of the contributions from the 0^- , 1^- , 2^- and 3^- states which is to be compared with the experimental data.

The Migdal model wave function of Rho suppresses the contribution of the 2^- state and reproduces the μ -capture rate, which is dominated by the 2^- and 1^- states, well. The result with this wave function is shown in Fig. 3b. We took $b=1.75$ fm for both Rho and G. V. The dip of the 0^- and the 1^- state contributions are close to each other, because the main configuration is assumed to be $1s_{1/2} 0p_{1/2}^{-1}$ for both states.

The above wave functions are restricted to $1p1h$ excitations. Walker¹⁵⁾ and Green and Rho¹⁸⁾ included $2p2h$ components in the core of ^{16}O . The result with the Green and Rho's parametrization of the combination HJB and BGK¹⁸⁾ is not so different from the result of the Rho wave function.

In Fig. 4 the sum of the contributions from the four states calculated in the PWIA denoted by Helm, G. V. p and Rho. p and that calculated in the DWIA denoted by G. V. d and

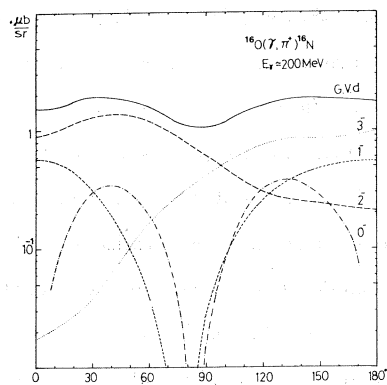


Fig. 3a The angular distribution of π^+ photoproduction from ^{16}O calculated in DWIA with the G. V. wave function. A factor of 1/2 is multiplied.

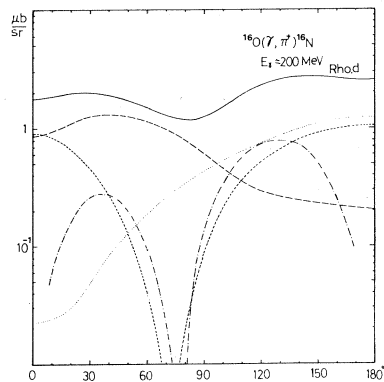


Fig. 3b The DWIA result with the Rho wave function.

Rho.d are shown. The experimental points are taken from ref. 10 multiplied with a factor of three, which is due to the difference of the number of equivalent photons and the correction from the contribution of the bremsstrahlung photons. The contribution of the 3^- state is larger than the experimental data.

The derivation of the vertex renormalization effect from the μ -capture rate is controversial.²⁸⁾ In our case, the correction from the renormalization of the longitudinal spin-isospin modes is expected to be small since the effect is small for the dominant 2^- state.

3.3 ${}^9\text{Be}$ ($E_p = 200 \text{ MeV}$, $T_\pi = 40 \text{ MeV}$)

The spin parity of the ground state of ${}^9\text{Be}$ and ${}^9\text{Li}$ are both $3/2^-$ and the spin-flip transitions between the two states contain M1, E2 and M3 components. The energy difference between the first excited state and the ground state of ${}^9\text{Li}$ is about 2.7MeV and so the contribution of the ground state can be separated from the other states without ambiguity. We calculate the cross section using the intermediate-coupling shell model wave functions of Barker (Ba)²⁹⁾ and Boyarkina.²³⁾ The former wave function reproduces the ft -value of the β -decay and the cross section of the electron scattering to the isobaric analog state well.³⁰⁾

In Fig. 5 the results of the DWIA with the Barker wave function are shown. We took $b = 1.72\text{fm}$. There is a remarkable enhancement in the M1 and M3 components of the DWIA results around $90^\circ - 120^\circ$ due to the longitudinal spin-isospin mode. The contribution is 0 at 0° and 180° .

In Fig. 6 we show the PWIA results denoted by Ba.p and B.p and the DWIA result denoted by Ba.d. A result similar to our B.p was shown by Nakahara.¹¹⁾ The experimental data are taken from ref. 11. They are multiplied by a factor of 2.5 due to the difference of the number of equivalent photons.

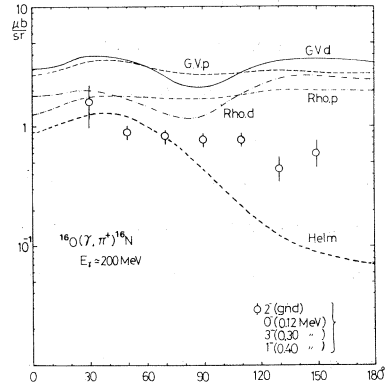


Fig. 4 The angular distribution of π^+ photoproduction from ${}^{16}\text{O}$ calculated in PWIA and DWIA. The sum of the contributions from the 2^- , 0^- , 3^- and the 1^- states is shown.

As for the renormalization effect, Ericson *et al.*³¹⁾ obtained the correction in the π NN coupling constant, $g^{ef}/g \equiv \eta = 0.9$ by applying the Goldberger-Miyazawa-Oehme sum rule³²⁾ to the pion- ${}^9\text{Be}$ scattering. It was also shown that the "shadow effect" is in fact an enhancement below about 50 MeV. Using the fact the renormalization of g and g_A are essentially the same, we expect about 10% reduction of the transverse spin-isospin mode. The experimental data shows an enhancement around 120° . The enhancement of the longitudinal spin-isospin mode due to the coherent virtual pion exchange in the nucleus is the most natural possibility to explain the enhancement. For the quantitative analysis, it is necessary to transform the coordinate system in which $\hat{z} \parallel \mathbf{Q}_f$ to the system in which $\hat{z} \parallel \mathbf{q} = \mathbf{Q}_f - \mathbf{k}$. We present a detailed discussion of this problem in a later publication.

3.4 ${}^7\text{Li}$ ($E_p = 200 \text{ MeV}$, $T_\pi = 38 \text{ MeV}$)

The spin parity of the ground state of ${}^7\text{Li}$ is $3/2^-$. The ground state of ${}^7\text{He}$ is unbound with respect to ${}^6\text{He} + n$ by $0.4 \pm 0.33 \text{ MeV}$ and the width is less than 0.2 MeV .³³⁾ We assume the state to be an exact isobaric analog parent of the first $3/2^-$ $T=3/2$ state of ${}^7\text{Li}$ which exists 11.1 MeV above the ground state. We use Barker wave function,²⁹⁾ which gives the matrix element of the Gamow-Teller transition less than 1/8 of the corresponding value of ${}^9\text{Be}$. The transition is dominated by E 2 and M 3.

Due to the accidental cancellation the DWIA result of the angular distribution

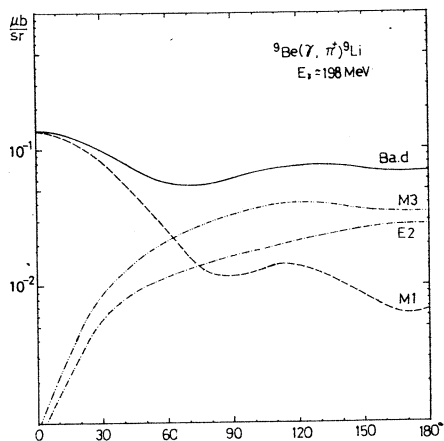


Fig. 5 The angular distribution of π^+ photoproduction from ${}^9\text{Be}$ calculated in DWIA with Barker wave function.

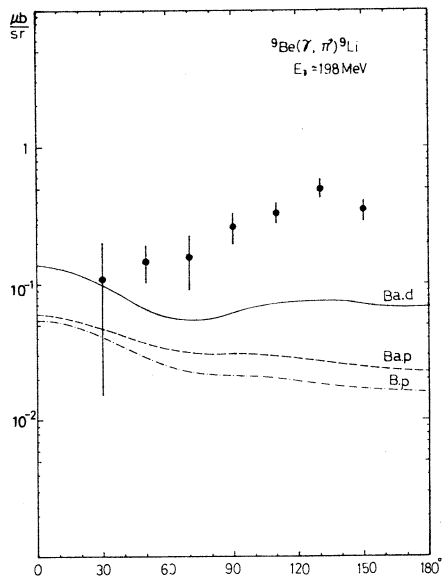


Fig. 6 The angular distribution of π^+ photoproduction from ${}^9\text{Be}$ calculated in PWIA and in DWIA.

is larger than the PWIA result by about a factor of 2.5 at angles larger than 50° and comparable at 0° . The DWIA result with $b = 1.72$ fm is shown in Fig. 7. In Fig. 9b the kinetic energy spectrum¹⁰⁾ of pions produced at 50° is shown. The solid line is the PWIA result with Barker wave functions multiplied with a factor of 2.5.

Whether the enhancement of the longitudinal spin-isospin mode occurs in this nucleus is an interesting problem.

3.5. ${}^6\text{Li}$ ($E_p = 180$ MeV, $T_\pi = 28$ MeV)

The spin parity of the ground states of ${}^6\text{Li}$ and ${}^6\text{He}$ are 1^+ and 0^+ , respectively. We calculate the cross section using the Barker wave functions²⁹⁾ (Ba), the harmonic oscillator wave functions of Donnelly and Walecka (STAN-HO)³⁴⁾ and those of Saskachewan (SASK-A, B)³⁵⁾. The Barker wave function reproduce the ft -value of the β -decay. Both the STAN-HO and the SASK-A, B reproduce the electron scattering to the isobaric analog of the 0^+ state well, but the $L = 1$ configuration in the 0^+ state is about 0% for the STAN-HO and SASK-B and about 26% for the SASK-A. The μ -capture, radiative pion capture and the threshold pion photoproduction data favour the SASK-A wave function.¹⁾

In Fig. 8 the DWIA results of Barker wave function (Ba.d) and of SASK-A (SASK.d) are compared. We took $b = 2.03$ fm, the value for the STAN-HO, for Ba.d and $b = 2.19$ fm for SASK.d.

In Fig. 9c we show the kinetic energy spectrum of pions produced at 60° and 30° .

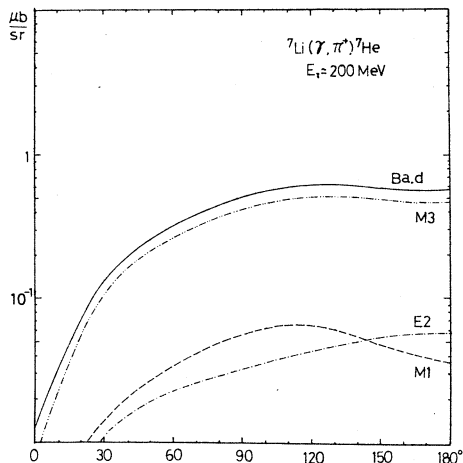


Fig. 7 The angular distribution of π^+ photoproduction from ${}^7\text{Li}$ calculated in DWIA with the Barker wave function.

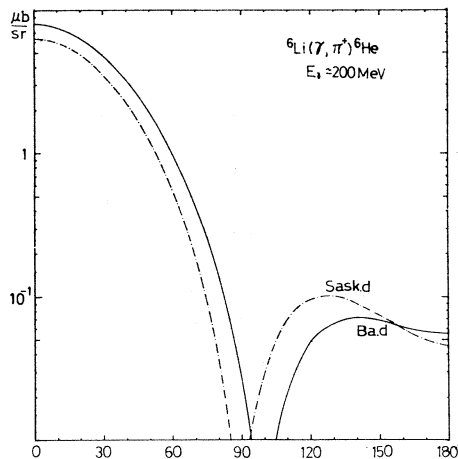


Fig. 8 The angular distribution of π^+ photoproduction from ${}^6\text{Li}$ calculated in DWIA with the Barker wave function and the SASK-A wave function.

At these angles the contribution of the longitudinal spin-isospin mode becomes comparable to that of the transverse mode. The relative magnitude of the results of Barker, SASK-A, B and STAN-HO do not agree with that of the total cross section of the threshold pion photoproduction.³⁴⁾

The experimental data of the angular distribution are as yet preliminary and it is premature to discuss the validity of the wave functions. The experimental result at 30° seems to be much smaller than the theoretical values.

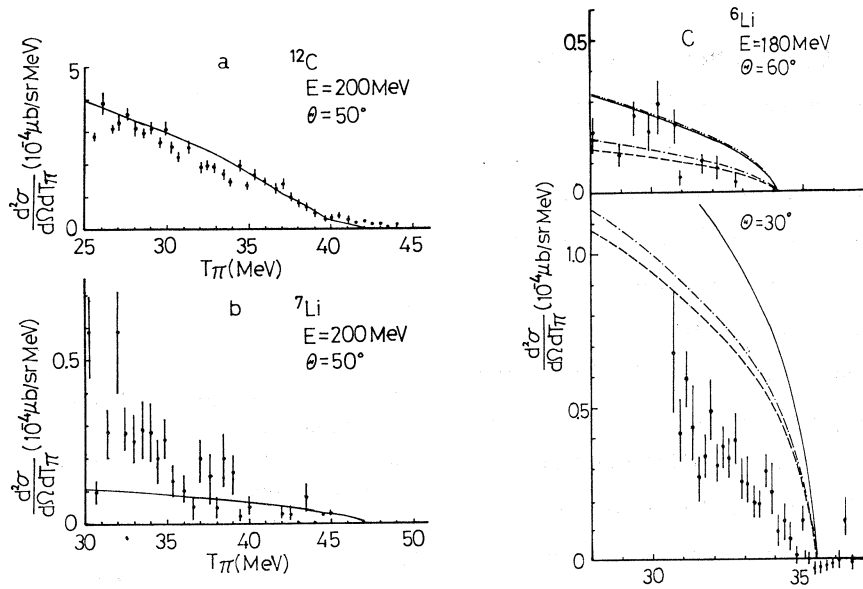


Fig. 9a The kinetic energy spectrum of pion electroproduction from ^{12}C calculated in PWIA with the G. V. wave function. The contribution of the 1^+ state is multiplied by a factor of $1/5$.

Fig. 9b The kinetic energy spectrum of π^+ electroproduction from ^7Li calculated in PWIA with the Barker wave function. A factor of 2.5 is multiplied for the theoretical values.

Fig. 9c The kinetic energy spectrum of π^+ electroproduction from ^6Li calculated in DWIA. The curves correspond to — Barker, - - - SASK-A, - · - · SASK-B and - - - - STAN-HO.

§ 4. Summary and discussion

In this paper we analyzed the angular distributions of π^- produced from $^{12}\text{C}, ^{16}\text{O}, ^9\text{Be}, ^7\text{Li}$ and ^6Li by 180-200 MeV electrons by employing the modified equivalent photon approximation. We restricted the analysis to the low lying states but the model

can be extended to higher excited states. In Fig. 10 the PWIA result with the Gillet-VinhMau wave functions are shown. In the case of ^{12}C , the contribution of the 1^+ state shown by the dotted line should be multiplied by a factor of $1/5$ in order to compare with the experiment. In the region higher than 15MeV from the ground state of the daughter nuclei, we expect large contributions from positive parity states.

In the case of low lying levels of ^{16}N , the agreement between theory and the experiment is worse than that of ^{12}B . The result did not change essentially by inclusion of the $2p\ 2h$ components in ^{16}O . The discrepancy can be due to the deficiency of the wave function of the 3^- state.

In the case of ^9Be , it is necessary to enhance the longitudinal spin-isospin mode to reproduce the experimental data. We discussed that the coherent virtual pion exchange in the nucleus can enhance the mode through the same mechanism as the renormalization of the induced pseudoscalar vertex in nuclear matter. According to Ohta-Wakamatsu³⁾ the renormalization of g_p is reduction, but the main origin of the reduction comes from the pion decay vertex in the nuclear matter as shown by Rho⁷⁾ and irrelevant for the pion photoproduction above threshold. There are a few reasons to expect the manifestation of the renormalization effect in odd nuclei. First, in the pion self energy, there is an additional contribution from NN^{-1} particle hole polarization which is absent in even nuclei at the static limit. Second, the modes which have the same spin parity as a pion are dominant at angles near 90° for some odd nuclei and the effect is not masked by other contributions. The angular distribution of pion electroproduction from ^7Li is desired for the

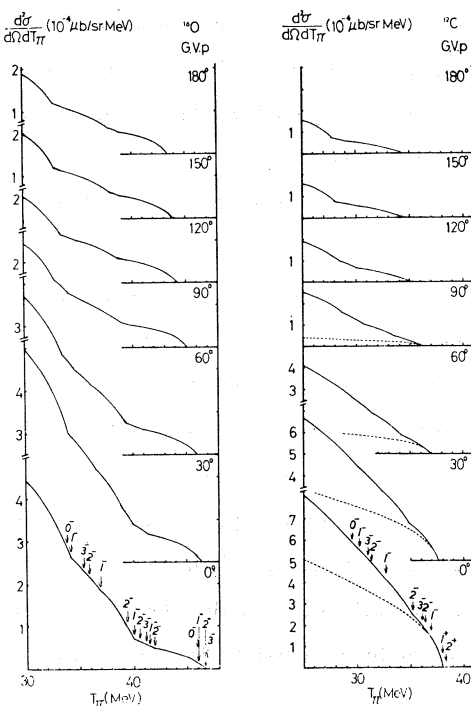


Fig. 10a The kinetic energy spectrum of pion electroproduction from ^{16}O calculated in PWIA with the G. V. wave functions.

Fig. 10b The PWIA result of ^{12}C calculated with the G. V. wave functions. The contribution of the 1^+ state is shown by the dotted line.

check of our model.

The analysis can be extended to ^{27}Al . Preliminary data do not show a forward peak and we do not expect large component of $d_{3/2}$ $d_{3/2}^{-2}$ for the low lying states of ^{27}Mg .

In the case of ^{89}Y measured by Shoda *et al.*¹⁰⁾, bremsstrahlung in the target is non-negligible and the analysis needs care. The shape of the bremsstrahlung spectrum at the tip deviates from the Bethe-Heitler formula due to the distortion of the electron wave.³⁶⁾ Similar effect can occur in the spectrum of the equivalent photons. In the case of light nuclei, however, we expect the correction to be small since the effect is important in the region $|\mathbf{p}'|/E_{p'} < \alpha Z$ where \mathbf{p}' and $E_{p'}$ are the momentum and the energy of the final electron, respectively. At this region, it is necessary to consider the shape of the wave packet of the electron, but we ignored it in the present analysis.

To summarize, the charged pion electroproduction near threshold is a powerful tool for studying the nuclear structure especially those excited by the spin-flip operator, and it compliments studies of electron scattering, radiative pion capture, β -decay and μ -capture as was typically shown in the case of ^6Li . Although the accuracy of the experimental data is as yet insufficient for the detailed study, we expect a substantial improvement in very near future.

As a future experiment, we propose a comparison of π^+ electroproduction and π^- electroproduction from the same light nuclei. Although the latter is difficult due to the background of the electrons, useful information on the structure of mirror nuclei could be extracted from the mirror transitions.

The author thanks Profs. K. Yazaki, T. Terasawa, R. Seki, A. Arima and Dr. M. Wakamatsu for stimulating discussion and suggestions. Thanks are also due to Prof. K. Shoda, K. Nakahara, H. Ohashi and M. Yamazaki for informative discussion and supplying their data before publication.

References

- 1) H. W. Baer : *Proc. SIN Conf.* (1977) p. 245.
- 2) M. Ericson and M. Rho : *Phys. Rept.* **5C** (1972) 57.
- 3) M. Rho : *Nucl. Phys.* **A 231** (1974) 493.
K. Ohta and M. Wakamatsu : *Phys. Lett.* **51B** (1974) 325.
- 4) M. Ericson, A. Figureau and C. Thévenet : *Phys. Lett.* **45B** (1973) 19.

- 5) J. Delorme *et al.* : Ann. of Phys. **102** (1976) 273.
- 6) J. S. Bell and C. H. Llewellyn Smith : Nucl. Phys. **B 24** (1970) 285.
- 7) M. Rho : *Proc. Int. School of Phys. " Ettore Majorana "* 1976, Erice, Italy (to be published).
- 8) S. Furui : Nucl. Phys. **A** (to be published).
- 9) K. Shoda, H. Ohashi and K. Nakahara : Phys. Rev. Lett. **39** (1977) 1131.
- 10) K. Shoda *et al.* : *Proc. Int. Conf. Nucl. Structure* (Tokyo, 1977) p. 482.
- 11) K. Shoda *et al.* : Research Report of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University : **10** (1977) 188. (unpublished).
- 12) R. H. Dalitz and D. R. Yennie : Phys. Rev. **105** (1957) 1598.
- 13) S. Furui : Prog. Theor. Phys. **58** (1977) 864.
- 14) M. I. Adamovich *et al.* : *Proc. of the P. N. Lebedev Physics Institute* **34** (1967) 49.
- 15) G. E. Walker : Phys. Rev. **175** (1968) 1290.
- 16) A. Bohr and B. Mottelson : *Nuclear Structure*, (Benjamin, 1969) Vol. 1, p. 313.
- 17) V. Gillet and N. VinhMau : Nucl. Phys. **54** (1964) 321.
- 18) A. M. Green and M. Rho : Nucl. Phys. **A1 30** (1969) 112.
- 19) H. A. Jahn and H. Van Wieringen : Proc. Roy. Soc. **A 209** (1951) 502.
- 20) A. Yamaguchi *et al.* : Phys. Rev. **C 3** (1971) 1750.
- 21) J. B. Seaborn, V. Devanathan and H. Überall : Nucl. Phys. **A 219** (1974) 461.
- 22) A. Fujii, M. Morita and H. Ohtsubo : Prog. Theor. Phys. Suppl. Extra Number (1968) 303.
- 23) A. N. Boyarkina : Izv. Akad. Nauk SSSR Ser. Fiz. **28** (1964) 337.
- 24) A. Possoz *et al.* : Phys. Lett. **50B** (1974) 438.
- 25) V. Devanathan *et al.* : Nucl. Phys. **B 2** (1967) 329.
- 26) M. Rho : Phys. Rev. **161** (1967) 955.
- 27) I. Blomqvist *et al.* : Phys. Rev. **C 15** (1977) 988.
- 28) L. Palfy *et al.* : Phys. Rev. Lett. **34** (1975) 212.
- 29) A. Bottino *et al.* : Phys. Rev. **C 16** (1977) 1120.
- 29) F. C. Barker : Nucl. Phys. **83** (1966) 418.
- 30) J. C. Bergstrom *et al.* : Phys. Rev. **C 7** (1973) 2228.
- 31) T. E. O. Ericson and M. Locher : Nucl. Phys. **A 148** (1970) 1.
M. Ericson and M. Krell : Nucl. Phys. **A 241** (1975) 487.
- 32) M. Goldberger, H. Miyazawa and R. Oehme : Phys. Rev. **99** (1955) 986.

- 33) F. Ajzenberg-Selove and T. Lauritsen : Nucl. Phys. **A 227** (1974) 1.
- 34) T. W. Donnelly and J. D. Walecka : Phys. Lett. **44B** (1973) 330.
J. B. Cammarata and T. W. Donnelly : Nucl. Phys. **A 267** (1976) 365.
- 35) J. C. Bergstrom *et al.* : Nucl. Phys. **A 251** (1975) 401.
- 36) R. J. Jabbur and R. H. Pratt : Phys. Rev. **129** (1962) 184.

光核反応による ${}^9\text{Be}$ 励起状態の研究(II)

核理研, 山形大教養*

田中俊成・種市 宏*

上野博昭*・庄田勝房

前回の報告では ${}^9\text{Be}(\gamma, d_0 + d_1)$, (γ, t_0) , $(\gamma, {}^3\text{He}_0)$ 反応微分断面積の測定結果について述べた。¹⁾その後, (γ, p_0) 反応微分断面積及び (γ, p_0) , $(\gamma, d_0 + d_1)$, (γ, t_0) 反応の角度分布の解析を行なったので, それらの結果と総合して ${}^9\text{Be}$ の光核反応についてまとめる。

(γ, p_0) , $(\gamma, d_0 + d_1)$, (γ, t_0) 反応については V. P. Denisov ら²⁾が測定角 90° で微分断面積を求めているのでその結果と比較し, さらに統計理論による計算結果との比較も行なった。

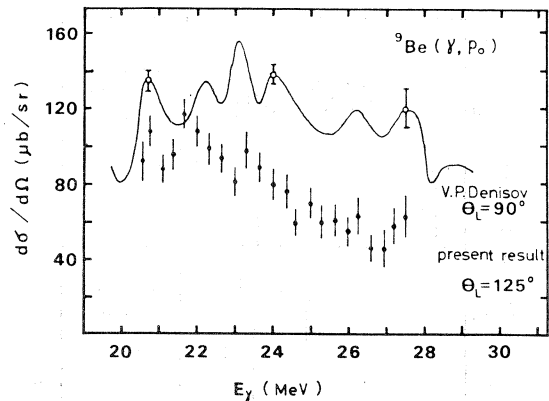
§1. 実験及び測定結果

(γ, p_0) 反応微分断面積は電子線エネルギー (E_e) を 21.5 MeV から 28 MeV まで 0.5 MeV 間隔で変えて求めた。ターゲットとして用いた金属 Be 箔は表面が酸化されて約 2% の酸素を含んでいたため, 陽子スペクトルの測定において (γ, p) 反応しきい値の低い ${}^{16}\text{O}$ から放出された陽子の計数が無視できなかつたので ${}^{16}\text{O}(\gamma, p)$ 反応による陽子スペクトルが平らであると仮定して差し引いた。

また, $(\gamma, d_0 + d_1)$, (γ, t_0) 反応について, $E_e = 21\text{MeV}$, 23MeV において統計精度を良くした測定を行なった。これらの測定は全て測定角 125° で行なつた。

第1図から第4図まで, 得られた (γ, p_0) , $(\gamma, d_0 + d_1)$, (γ, t_0) , $(\gamma, {}^3\text{He}_0)$ 反応微分断面積を示す。

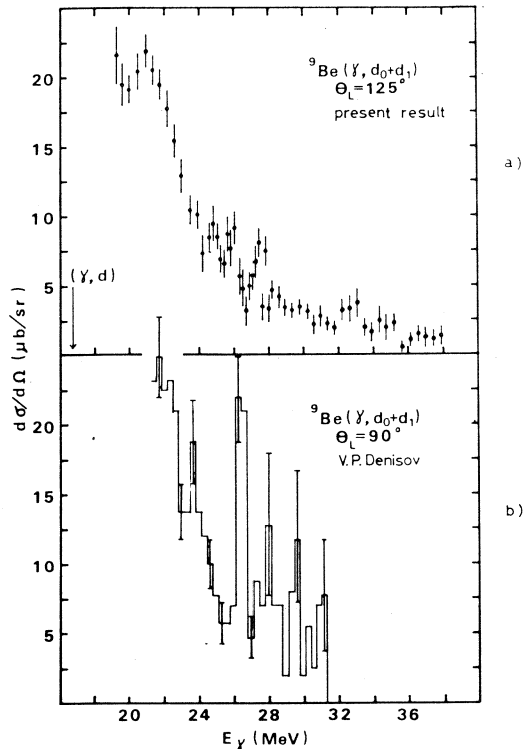
第1図において, 黒丸は我々の得た (γ, p_0) 反応微分断面積, 白丸及び実線は V. P. Denisov らが 90° で得た結果であ



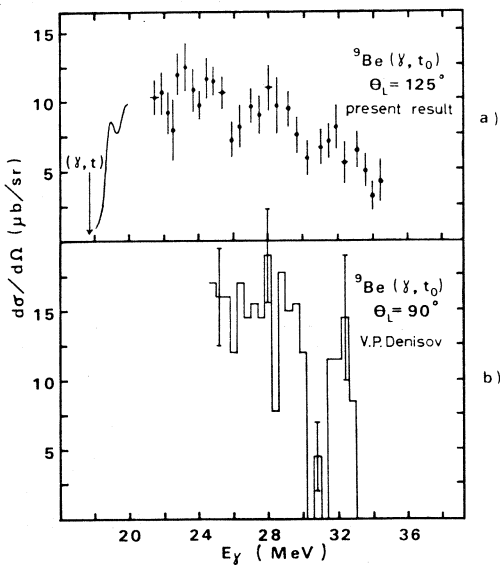
第1図 ${}^9\text{Be}(\gamma, p_0)$ 反応微分断面積。黒丸は我々が 125° で得た結果, 白丸と実線は V. P. Denisov ら²⁾が 90° で得た結果である。誤差棒は我々の結果では統計誤差のみ。

る。励起エネルギー 20.7 MeV, 23 MeV, 26.2 MeV 付近の構造は両方の結果に見られるが他の部分では構造は一致しない。また、22 MeV 付近では断面積の絶対値がほぼ一致しているが励起エネルギーが高くなるに従って不一致が大きくなり、26 MeV 付近では我々の結果がV. P. Denisov らの半分程度となっている。

第2図 a) は我々の得た (r, d_0+d_1) 反応微分断面積, b) はV. P. Denisov らの結果である。励起エネルギー21 MeV 付近で断面積が最大で、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。25 MeV, 26 MeV, 28 MeV, 33 MeV, 35 MeV 付近に構造が見られる。V. P. Denisov らの結果とは絶対値の点でほぼ一致しているが、26 MeV 付近には鋭いピ



第2図 ${}^9\text{Be}(\gamma, d_0+d_1)$ 反応微分断面積。a) は我々が 125° で得た結果。b) はV. P. Denisov らが 90° で得た結果である。矢印は反応のしきい値を指す。



第3図 ${}^9\text{Be}(\gamma, t_0)$ 反応微分断面積。a) は我々が 125° で得た結果, b) はV. P. Denisov らが 90° で得た結果である。実線はM. Schaeffer ら⁴⁾ の ${}^6\text{Li}(t, \gamma_0)$ 反応(90°)の結果を (r, t_0) 反応に換算したものである。

ークは見られない。前回の報告では21 MeV 付近での断面積が約 $25 \mu\text{b}/\text{sr}$ であったが、統計精度を良くした測定では約 $21 \mu\text{b}/\text{sr}$ であった。この不一致は α 粒子によるバックグラウンド¹⁾の評価の違いによると考えられ、後者の方がより実際の値に近いと考える。

同様の議論が (r, t_0) 反応微分断面積についても成り立ち、第3図a)に示すような結果が得られた。断面積の最大値は24 MeV

付近で約 $12 \mu\text{b}/\text{sr}$ である。前回の報告では約 $20 \mu\text{b}/\text{sr}$ であった。 (r, t_0) 反応の結果は (r, d_0+d_1) とは異なり、励起エネルギーが高くなっても断面積は緩やかに変化している。また、24 MeV、28 MeV、32 MeV 付近に幅の広い構造が見られる。第3図b)は V.P. Denisov らの 90° での結果である。我々の結果より断面積が約50%大きな値を示しているが、32 MeV 付近には同様の構造が見られる。

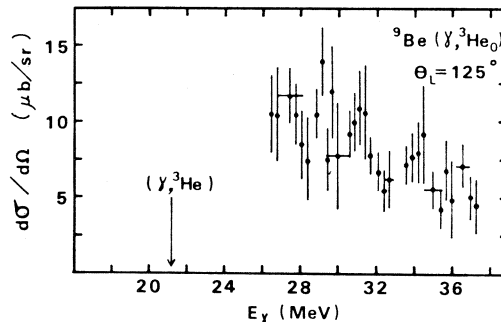
第4図は前回報告した $(r, {}^3\text{He}_0)$ 反応微分断面積である。

§2. 角度分布

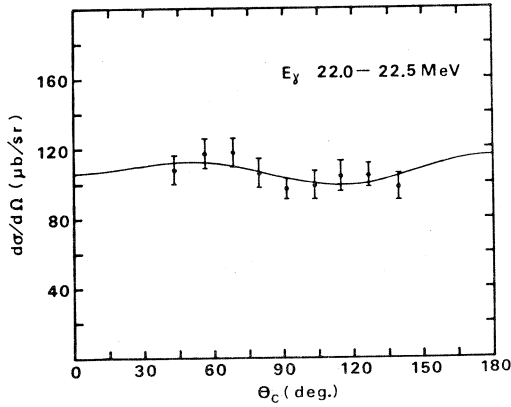
角度分布は前回報告した以外に、 (r, t_0) 反応について励起エネルギー 21.5~22.5 MeV、 (r, p_0) 反応について 22.0~22.5 MeV で求めた。第5図から第7図まで、 (r, p_0) 、 (r, d_0+d_1) 、 (r, t_0) 反応の角度分布を示す。実線は得られた角度分布を最小自乗法を用いてルジャンドル関数で展開したものである。展開には次式を用いた。

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = A_0 P_0 + A_1 P_1 + A_2 P_2 + A_3 P_3 \quad (1)$$

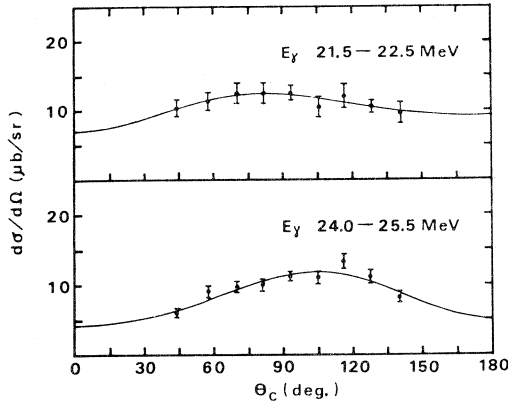
(1)式における係数 A ($\ell = 0, 1, 2, 3$) を第1表に示す。 (r, p_0) の場合は誤差の範囲でほぼ等方的であるが、 (r, d_0+d_1) 、 (r, t_0) では等方的ではなく、特に (r, d_0+d_1) について見ると 22.5~24.0 MeV では E1 と E2、E1 と M1 の干渉項である $|A_1/A_0|$ が大きく、24.0~25.5 MeV では E1 と E2 の干渉項である $|A_3/A_0|$ が大きいことがわかる。



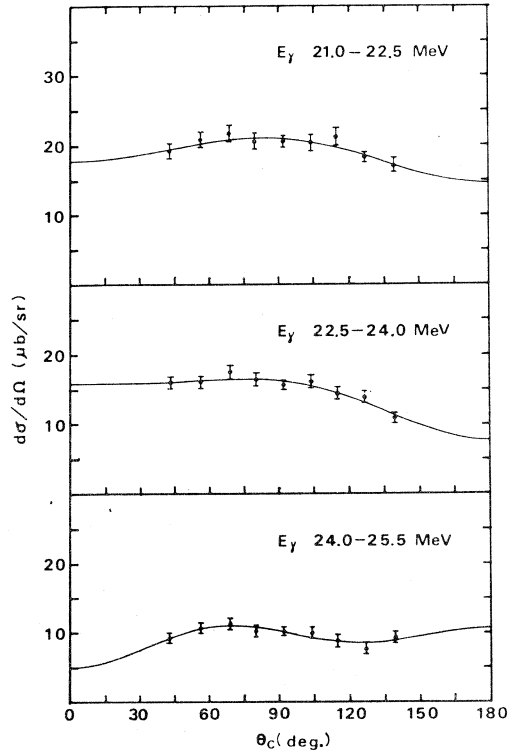
第4図 ${}^9\text{Be}(\gamma, {}^3\text{He}_0)$ 反応微分断面積。測定角は 125° 、横棒は解析のエネルギー分解能。



第5図 (r, p_0) 反応角度分布。励起エネルギー 22.0~22.5 MeV, 角度は重心系での角度。



第7図 (r, t_0) 反応角度分布。励起エネルギーは上から 21.5~22.5 MeV, 24.0~25.5 MeV。



第6図 (r, d_0+d_1) 反応角度分布。励起エネルギーは、上から 21.0~22.5 MeV, 22.5~24.0 MeV, 24.5~25.5 MeV。

第1表 ルジャンドル多項式の係数

	励起エネルギー (MeV)	A_0 ($\mu\text{b}/\text{sr}$)	A_1/A_0	A_2/A_0	A_3/A_0
(r, p_0)	22.0~22.5	106.1 ± 2.9	0.044 ± 0.085	0.048 ± 0.082	-0.091 ± 0.129
(r, d_0+d_1)	21.0~22.5	19.40 ± 0.38	0.076 ± 0.059	-0.165 ± 0.059	0.010 ± 0.096
	22.5~24.0	14.89 ± 0.31	0.212 ± 0.058	-0.201 ± 0.059	0.059 ± 0.095
	24.0~25.5	9.64 ± 0.28	-0.016 ± 0.083	-0.619 ± 0.308	-0.281 ± 0.134
(r, t_0)	21.5~22.5	10.90 ± 0.46	-0.007 ± 0.126	-0.258 ± 0.132	-0.095 ± 0.214
	24.0~25.5	9.21 ± 0.28	-0.195 ± 0.081	-0.481 ± 0.107	0.154 ± 0.142

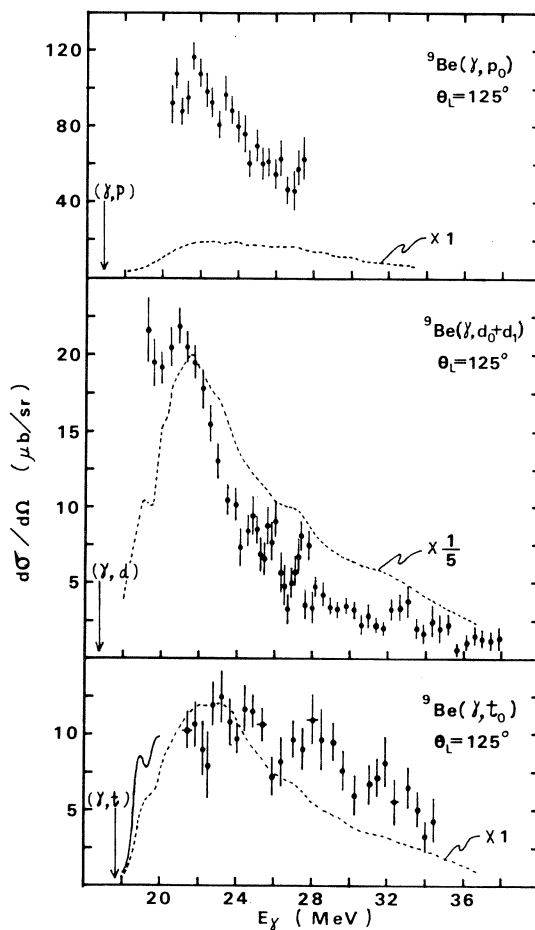
§3. 考 察

(r, p_0) 反応微分断面積は、角度分布がほぼ等方的である励起エネルギー 22MeV 付近では我々と V.P. Denisov らの絶対値が良く一致している。このことから高い励起エネルギー領域での不一致は角度分布の非等方性によるものであり、かつ角度分布が前方ピークであると考えることができる。従って、 (r, d_0+d_1) 、 (r, t_0) 反応における 90° 非対称性と同様に、 (r, p_0) 反応においても E1 と E2、あるいは E1 と M1 の干渉項の寄与が大きいことが予想される。

${}^9\text{Be}$ の光吸収断面積³⁾ から、統計理論を用いて (r, p_0) 、 (r, d_0+d_1) 、 (r, t_0) 反応断面積を求めると第8図の点線のようなになる。

計算方法は参考文献 1) に述べてあるので省略する。

(r, n) 、 (r, p_0) 、 (r, p) 反応は、アイソスピンに関して ${}^9\text{Be}$ の $T_<$ 、 $T_>$ 両方の状態で起こるのに対し、 (r, d_0+d_1) 、 (r, t_0) 反応は $T_>$ 状態では禁止される。計算ではアイソスピンを考慮していないため、これを考慮に入れた計算を行えば (r, p_0) 反応断面積は第8図の値より大きくなり、 (r, d_0+d_1) 、 (r, t_0) 反応では小さくなることが予想されるが、 $T_<$ 、 $T_>$ 状態の密度の割合を求めるのは困難である。アイソスピンを考慮することによって、 (r, p_0) 、 (r, d_0+d_1) 反応断面積の実験値と計算値との不一致は改善されるが、 (r, t_0) 反応では逆に一致しなくなる。また、統計理論では反応の角度分布が 90° 対称となるが、実験で得られた角度分布は非対称である。従って ${}^9\text{Be}$ におけるこれらの反応に対して、統計理論は良い模型とは言えない。特に、 (r, p_0) 反応の角度分布は高い励起エネルギー領域では非対称性が大きいと予想されることから、直接過程の寄与が大きいと考えることができる。



第8図 統計理論による計算値との比較。点線が計算値で、 (r, d_0+d_1) のみ $1/5$ 倍してある。

参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 **10** (1977) 197.
- 2) V.P. Denisov *et al.* : Sov. J. Nucl. Phys. **3** (1966) 192.
- 3) J. Ahrens *et al.* : *Nuclear Structure Studies Using Electron Scattering and Photoreaction, Sendai Conference* (1972) 213.
- 4) M. Schaeffer *et al.* : J. de Phys. **32** (1971) C 5b - 223.

A Study of the $^{48}\text{Ti}(\gamma, p)$ Cross Section

M. N. Thompson, K. Shoda,[†] M. Sugawara,[†] J. I. Weise, T. Saito,[†]
H. Tsubota,^{††} H. Miyase,^{††} T. Tamae,[†] H. Ohashi,[†] T. Urano,[†] T. Tanaka,[†]
and M. Yamazaki[†]

[†]*Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, Tomizawa, Sendai.*
Physics Department, University of Melbourne, Parkville 3052, Australia

^{††}*College of General Education, Tohoku University, Kawauchi, Sendai*

§ 1. Introduction

As part of a program to study isospin and deformation effects in the giant dipole resonance region of the $f_{7/2}$ even-even nuclei, the proton cross section of ^{48}Ti was measured.

Previous measurements at Tohoku of the proton cross sections for this investigation have included ^{42}Ca , ^{52}Cr (ref. 1), ^{54}Fe (ref. 2), ^{44}Ca (ref. 3) and ^{50}Ti (ref. 4), the corresponding (γ, n) cross sections for ^{44}Ca (ref. 5), ^{52}Cr (ref. 6), preliminary ^{48}Ti (ref. 7) and ^{50}Ti (ref. 8), and ^{54}Fe (ref. 9) being obtained using the 35 MeV Melbourne University Betatron.

§ 2. Experiment

The target consisted of a thin (5.02 mg/cm^2) foil enriched to 99.2% in ^{48}Ti . A background using natural titanium which consists mainly of ^{48}Ti (73.9%) was unnecessary owing to the high enrichment of the target.

The protons following electrodisintegration were analysed using a Browne-Buechner type broad range magnetic spectrometer. Spectra were taken for electron energies ranging from 14.6 MeV to 29 MeV in 200 keV intervals and by summing all protons with energies above 3.4 MeV, a yield curve for the reaction $^{48}\text{Ti}(e, e'p)$ was obtained. Five such yield curves were measured, the sum of which is shown in Figure 1.

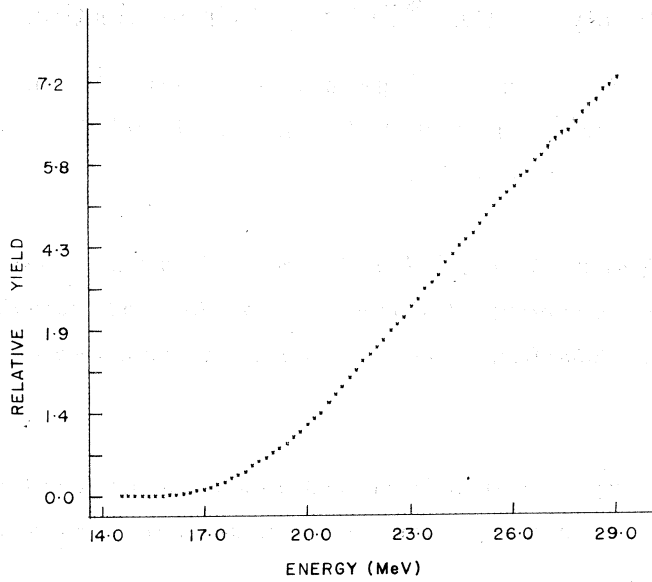


Fig. 1. Average of five yield curves.

§ 3. Analysis and Discussion

The photoproton cross section can be obtained from this yield curve via the variable bin Penfold-Liess method¹⁰⁾ using the virtual photon spectrum. The result is shown in Fig. 2.

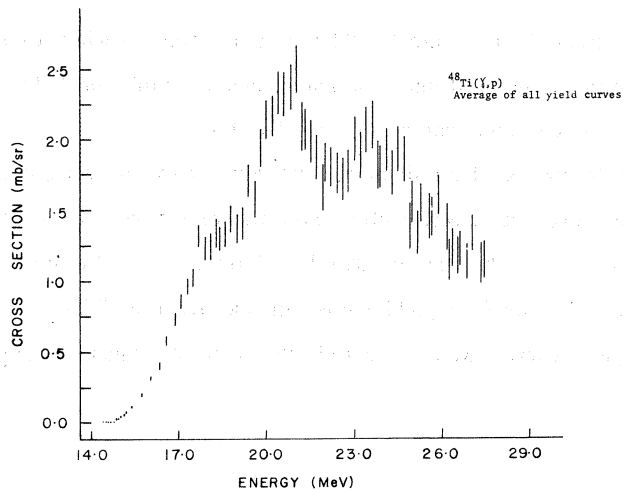


Fig. 2. $^{48}\text{Ti}(\gamma, p)$ cross section. Average of all yield curves.

The cross section is broad with a FWHM of 8 MeV. The centroid of the cross section occurs at ≈ 22 MeV. The statistics are good and two peaks, one at ≈ 21 MeV and one at ≈ 22.5 MeV, are well resolved.

According to E1 isospin selection rules the GDR state should be split into two isospin states $T_<$ and $T_>$. The $T_<$ state has the same isospin as the ground state, *i. e.* $T_0 = \frac{N-Z}{2}$ and the $T_>$ state has isospin $T_0 + 1$. Proton decay from the $T_<$ state to the ground state and low lying states of the residual nucleus is Coulomb inhibited by a substantial amount compared to the decay of the $T_>$ state to these states. Therefore, one might expect the (γ, p) cross section to reflect largely the decay of the $T_>$ state. Neutron decay from the $T_>$ state to the ground state and low lying states on the other hand is isospin forbidden. Whereas neutron decay from the $T_<$ state is allowed so one might expect the (γ, n) cross section to be representative of the decay of the $T_<$ state.

^{48}Ti has ground state isospin $T_0 = 2$ which according to Akyuz and Fallieros¹¹⁾ corresponds to a splitting of the $T_<$ and $T_>$ states by 3.75 MeV. The preliminary (γ, n) cross section of ^{48}Ti (ref. 7) is broad and flat. This may be due to a $(\gamma, 2n)$ contribution feasible at excitations in excess of 20.5 MeV. The centroid of this cross section appears to be at ≈ 19 MeV. The difference in energy between the centroids of the (γ, n) and (γ, p) cross section is ≈ 3 MeV which compares favourably with that predicted by Akyuz and Fallieros.

It should be remembered that in the (γ, n) and (γ, p) cross sections both isospin components are present. Before a more meaningful comparison is made between theory and experiment, the two isospin components must be separated out. Such a program is currently under way.

References

- 1) M. N. Thompson *et al.* : Research Report Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **8** (1975) 266.
- 2) K. Shoda *et al.* : Research Report Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **8** (1975) 71.
- 3) M. N. Thompson *et al.* : Research Report Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **9** (1976) 48.
- 4) M. N. Thompson *et al.* : Research Report Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **10** (1977) 55.
- 5) R. Farmer : M. Sc. Thesis. University of Melbourne, 1978.
- 6) J. Weise *et al.* : Aust. J. Phys. **30** (1977) 401.
- 7) R. Sutton: Melbourne University Research Report 1977.
- 8) R. Hicks : Melbourne University Research Report 1977.
- 9) J. Norbury : Melbourne University Research Report 1976.
- 10) E. Bramanis *et al.* : Nucl. Instr. **100** (1972) 59.
- 11) R. O. Akyuz and S. Fallieros : Phys. Rev. Lett., **27** (1971) 1016.

中重核における (r, α) 反応

核理研

玉江忠明[†]・浦野隆夫・広岡 恵
菅原真澄

いくつかの中重核 (^{56}Fe , ^{60}Ni , ^{64}Zn , ^{90}Zr) で巨大共鳴を越えた高いエネルギーまで (r, α) 反応断面積を測定した。又 ^{52}Cr , ^{64}Zn , ^{90}Zr については巨大共鳴領域で (r, α_0) 反応断面積を測定した。統計理論による計算から求めた (r, α) , (r, α_0) 反応断面積と実験値とを比較すると Ni 付近の核では ^{64}Zn で両者の一致が良くないが、その原因について定性的な説明を行なう。

^{90}Zr の (r, α) 反応断面積は E1 巨大共鳴領域 (18 MeV 付近) のピークの他に 30 MeV 以上に顕著な盛り上がりを示した。この 30 MeV 以上の領域での幅の広い断面積の性質を調べる為に、更に、アイソ・クロマートの測定、角度分布の測定、励起状態の電気多重極度の決定の実験などを行なった。又、統計理論や直接反応理論による (r, α) 反応断面積の計算、準重陽子模型と Pre-equilibrium exciton 模型の組み合わせによる計算などを行なって実験値と比較した。

§1. 序

今まで核理研では Ni より軽い核の (r, α_0) 反応断面積を系統的に測定してきた。 ^{26}Mg , ^{46}Ti , ^{56}Fe , ^{58}Ni , ^{60}Ni , ^{62}Ni に対しては既に報告が終っており、 $T_<$ 巨大共鳴と $T_>$ 巨大共鳴の分離^{1,2)}、E2 の割合の決定^{3,4)}、統計理論との比較³⁻⁵⁾などを行なってきた。又、逆反応の (α, r_0) 反応の研究もこの領域のいくつかの核に対して行なわれており、 (r, α_0) 反応の場合と同様の議論がなされている。Fe や Ni 付近の核では、二三の核で断面積の絶対値に多少の違いが見られると言う事を除けば、断面積のピークの位置や角度分布の 90° 対称性など、統計理論によって説明する事が出来た。断面積の絶対値の一致の様子は (r, α) 反応の閾値に依存する傾向がある様に思われるので今回は反応の閾値の比較的大きい ^{52}Cr と極端に小さい ^{64}Zn で (r, α_0) 反応断面積を測定した。

[†] 現在 高エネルギー物理学研究所 茨城県筑波郡大穂町

(r, α) 反応断面積の測定は世界的に見ても V, ^{64}Zn , ^{238}U で報告されているのみであったが⁶⁻⁸⁾(このうち V と ^{238}U は放射化法によるもので、直接 α 粒子を検出した ^{64}Zn の場合には精度が極めて悪い。) 核理研でもスペクトロメーターのインターフェースの改良後、実験が可能となり、既に ^{46}Ti の (r, α) 反応断面積の測定結果が報告されている⁹⁾。その後、 α 粒子検出用に開発していた多線比例計数管も完成し、(r, α) 反応断面積の測定が更に容易になったので ^{56}Fe , ^{60}Ni , ^{64}Zn , ^{90}Zr で巨大共鳴領域を越える高いエネルギー領域まで断面積を測定した。

巨大共鳴領域より高いエネルギー領域での光核反応の研究は、(r, n) 反応や (r, p) 反応のスペクトルに対し、主に準重陽子模型との比較から論じられている¹⁰⁻¹⁴⁾。しかしながら、それらの断面積の励起関数を測定する事は困難で、今のところほとんど行なわれていない。

重い核での (r, α) 反応では α 粒子のエネルギー・スペクトルが蒸発模型による計算値と大きな食い違いを見せる事や¹⁵⁾、高いエネルギーの α 粒子の角度分布が前方ピークを示す¹⁶⁾事などから、直接反応的な反応機構が予想されていたが、(r, α) 反応断面積の測定が行なわれていなかった為に詳細な議論には発展しなかった。

今回、 ^{90}Zr で 60 MeV 付近まで (r, α) 反応断面積を測定し、更に行なったいくつかの実験や理論計算から、30 MeV 以上の領域での (r, α) 反応の性質や反応機構を明らかにする。

§ 2. (r, α_0) 及び (r, α) 反応断面積

実験に用いた標的の厚さと純度を第 1 表に示した。(r, α) 反応断面積測定の際は薄い標的を用いたが、計数の少ない (r, α_0) 反応の場合には厚い標的を用いた。 α 粒子の検出には ^{52}Cr , ^{64}Zn の (r, α_0) 反応では広帯域磁気分析器 (BDM) の焦点面上の 100 個の半導体固体検出器 (SSD); その他の場合は多線比例計数管を用いた。

第 1 図は 40 MeV の電子線で ^{56}Fe , ^{60}Ni , ^{64}Zn , ^{90}Zr の標的を照射した時、放出される α 粒子のエネルギー・スペクトルである。 α 粒子が標的を通過する際のエネルギー損失の補正は総ての α 粒子が標的の半分の厚さの所で発生すると仮定して行なった。標的核が重くな

第 1 表 Parameters of the targets.

Target	Abundance (%)	Thickness (mg/cm ²) (r, α)	Thickness (mg/cm ²) (r, α_0)
^{52}Cr	99		4.98
^{56}Fe	91.66	1.30	2.69
^{60}Ni	99.79	1.10	5.68
^{64}Zn	99.85	0.88	5.05
^{90}Zr	97.80	5.08	5.08

り、クーロン障壁が高くなるにつれてピークの位置がエネルギーの高い方へ移動していくのが分かる。又、 ^{90}Zr のスペクトルの絶対値は Ni 付近の核に比べて十分の一程度である。

スペクトルの先端の α_0 のみの部分から (r, α_0) 反応断面積を求める方法は参考文献 4) に詳しく説明されている。但し、今回の解析に当っては、Nascimento 達によって求められた式を用いて計算した E1 仮想光子の他に、散乱槽入口の Ti の窓や標的内で発生する制動放射光子スペクトルを Schiff の式を用いて計算し、更に電子ビームのエネルギーの幅も考慮に入れた。

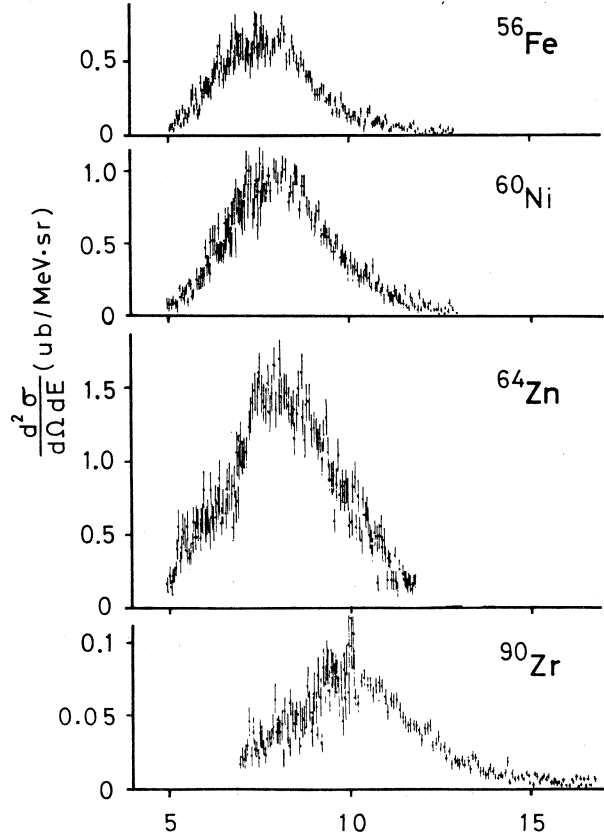
Nascimento の式は Onley 達によって計算された歪曲波ボルン近似の結果に極めて近い値を与える経験式で、

$$N_{\text{E1}}(E_e, E_\gamma, Z) = N_{\text{E1}}^{\text{PW}}(E_e, E_\gamma) + E_\gamma [1.29 \times 10^{-5} \exp(1.245 Z^{\frac{1}{3}} - 0.052 E_e)] \frac{E_2 + m_e}{E_e + m_e} \quad (1)$$

但し $E_2 = E_e - E_\gamma$ で、 m_e は電子質量である。ここで、 $N_{\text{E1}}^{\text{PW}}(E_e, E_\gamma)$ は平面波ボルン近似による E1 仮想光子スペクトル

$$N_{\text{E1}}^{\text{PW}}(E_e, E_\gamma) = \frac{\alpha}{\pi} \left\{ \frac{E_e^2 + E_2^2}{E_e^2 - m_e^2} \ln \frac{E_e E_2 + \sqrt{(E_e^2 - m_e^2)(E_2^2 - m_e^2)} - m_e^2}{m_e E_\gamma} - 2 \sqrt{\frac{E_2^2 - m_e^2}{E_e^2 - m_e^2}} \right\} \quad (2)$$

α -particle Energy Spectra $E_e = 40 \text{ MeV} \quad \theta = 90^\circ$



第1図 α 粒子エネルギースペクトル。

である^{17,18)}。αは微細構造定数。

制動放射光子発生 of 断面積を与える Schiff の式は

$$\sigma(E_e, E_r, Z) = \frac{2Z^2}{137} \left(\frac{e^2}{m_e c^2} \right)^2 \frac{1}{E_r} \left\{ \left(\frac{E_e^2 + E_2^2}{E_e^2} - \frac{2E_2}{3E_e} \right) (\ln M(0) + 1 - \frac{2}{b} \tan^{-1} b) \right. \\ \left. + \frac{E_2}{E_e} \left[\frac{2}{b^2} \ln(1+b^2) + \frac{4(2-b^2)}{3b^2} \tan^{-1} b - \frac{8}{3b^2} + \frac{2}{9} \right] \right\}. \quad (3)$$

$$\text{但し } \frac{1}{M(x)} = \left(\frac{m_e c^2 E_r}{2E_e E_2} \right)^2 + \left(\frac{Z^{\frac{1}{3}}}{C(x^2+1)} \right)^2 \quad (4)$$

$$b = \frac{2E_e E_2 Z^{\frac{1}{3}}}{C m_e c^2 E_r} \quad (5)$$

$$C = \frac{183}{e^{\frac{1}{2}}} = 111$$

である¹⁹⁾。第2図に⁵²Cr, ⁵⁶Fe, ⁶⁰Ni, ⁶⁴Zn の (r, α_0) 反応断面積を示す。⁵⁶Fe と ⁶⁰Ni は以前に測定したものであるが³⁻⁵⁾，参考の為に再掲した。⁵²Cr, ⁵⁶Fe, ⁶⁰Ni, ⁶⁴Zn での (r, α_0) 反応断面積の大きさは 80 μb/sr ~ 150 μb/sr 程度で、ピークのエネルギーは標的の質量数が大きくなるに従って低くなっている。これは以前、報告した様に、(r, α) 反応の閾値が次第に低くなる事に起因している。⁹⁰Zr の (r, α_0) 反応断面積はピークで約 40 μb/sr であり、Ni 付近の核の約半分の大きさである。

(r, α) 反応断面積は計数曲線 (yield curve) から variable bin Penfold Leiss 法によって求めた。検出した α 粒子のエネルギー範囲は ⁵⁶Fe, ⁶⁰Ni, ⁶⁴Zn に対しては $E_\alpha = 4.70 \sim 11.62$ MeV, ⁹⁰Zr に対しては $E_\alpha = 6.04 \sim 16.27$ MeV である。なお、解析の際には (r, α_0) 反応断面積の場合と同様に Nascimento の式による仮想光子と Schiff の式による制動放射光子スペクトルを用いた。第3図に、得られた (r, α) 反応断面積を黒点で示した。90°での微分断面積は Ni 付近の核では 200 μb/sr から 500 μb/sr 程度であり、⁹⁰Zr では 50 μb/sr と小さくなる。図中の実線は (r, n) 反応断面積で²⁰⁾，それらのピークのエネルギーは、それぞれ E1 共大共鳴の T_1 成分の位置に対応している。(r, α) 反応断面積は (r, n) 反応断面積とはほぼ同じエネルギーの所にピークを持つが、(r, n) 反応断面積に比べて高いエネルギー領域まで裾を引いている。特に ⁹⁰Zr では巨大共鳴領域での断面積が小さいので、この 30 MeV 以上の領域での盛り上がりが見られる。図中の白丸は (r, α_0) 反応断面積を再掲したものであるが、⁹⁰Zr の巨大共鳴領域では (r, α) 反応断面積の大部分が (r, α_0) 反応断面積で占めら

れているのが分かる。Ni 付近の核の場合には (r, α_0) 反応断面積のピークは (r, α) 反応断面積のピークより小さなエネルギー方向にずれており、 (r, α_0) 反応断面積が (r, α) 反応断面積に占める割合も ^{90}Zr の場合に比べて遥かに小さい。

§3. 統計理論 (複合核模型) による計算値との比較

統計理論に基礎を置いた Hauser-Feshbach の式を用いると偶々核の 90° 方向での (r, α_0) 反応断面積は

$$\frac{d\sigma(r, \alpha_0)}{d\Omega} = \frac{3}{8\pi} \sigma_c \frac{T(\alpha_0)}{\sum_c T_c} \quad (\theta = 90^\circ) \quad (6)$$

σ_c は複合核形成断面積、 $T(\alpha_0)$ は α_0 に対する透過係数、 $\sum_c T_c$ は総ての開いているチャンネル透過係数の総和である。今、 (r, n)

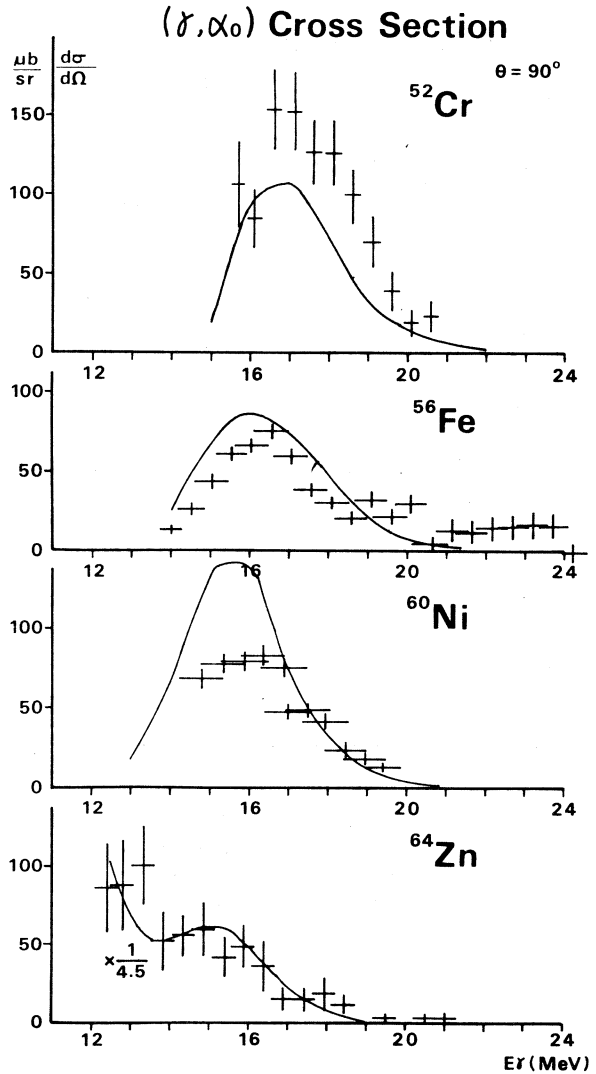
反応も複合核を経由し、

$$\sigma(r, n) = \sigma_c \frac{\sum_n' T(n)}{\sum_c T_c} \quad (7)$$

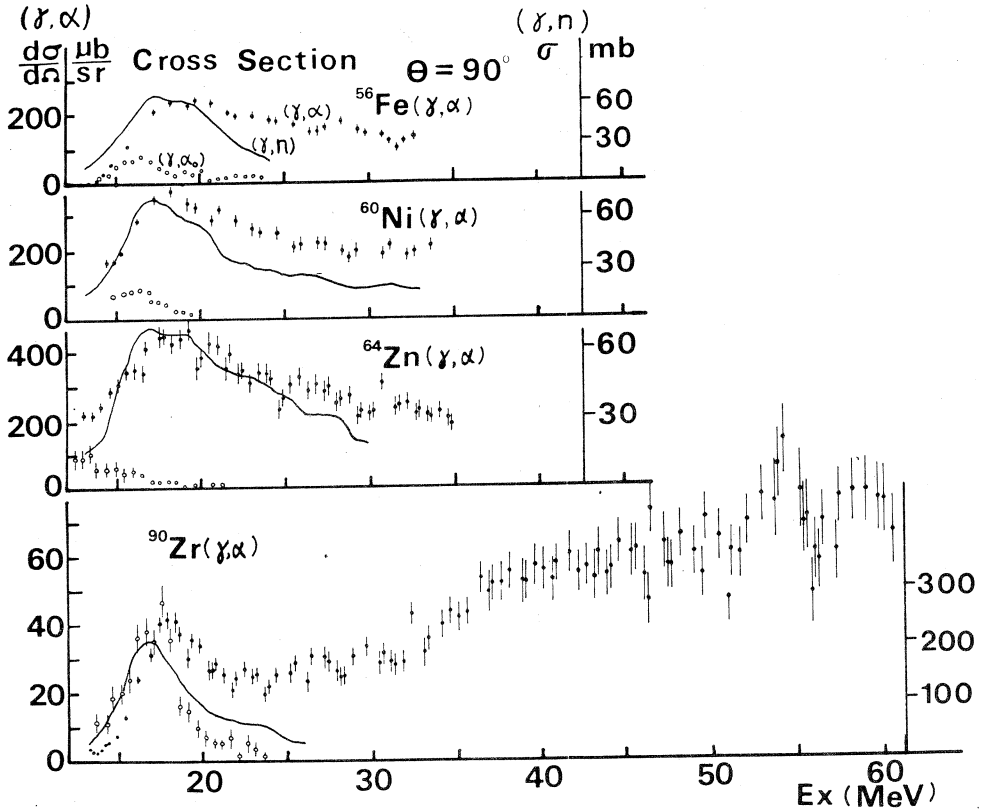
で書けるとすると、(6)と(7)から

$$\frac{d\sigma(r, \alpha_0)}{d\Omega} = \frac{3}{8\pi} \frac{T(\alpha_0)}{\sum_n' T(n)} \sigma(r, n) \quad (8)$$

が得られる。 α_0 以外の α 粒子の角度分布を等方的と仮定すれば、 90° 方向での (r, α) 反応微分断面積は



第2図 (r, α_0) 反応断面積。実線は Hauser-Feshbach の式による計算値。実験値と計算値は ^{64}Zn で大きな違いを示す。



第3図 (γ, α) 反応断面積。 (γ, n) 反応断面積 (実線) に比べて高いエネルギー領域に裾を引く。特に ^{90}Zr では顕著な盛り上がりが見られる。巨大共鳴領域での ^{90}Zr (γ, α) 反応断面積の大部分は (γ, α_0) 反応断面積 (白丸) が担っている。

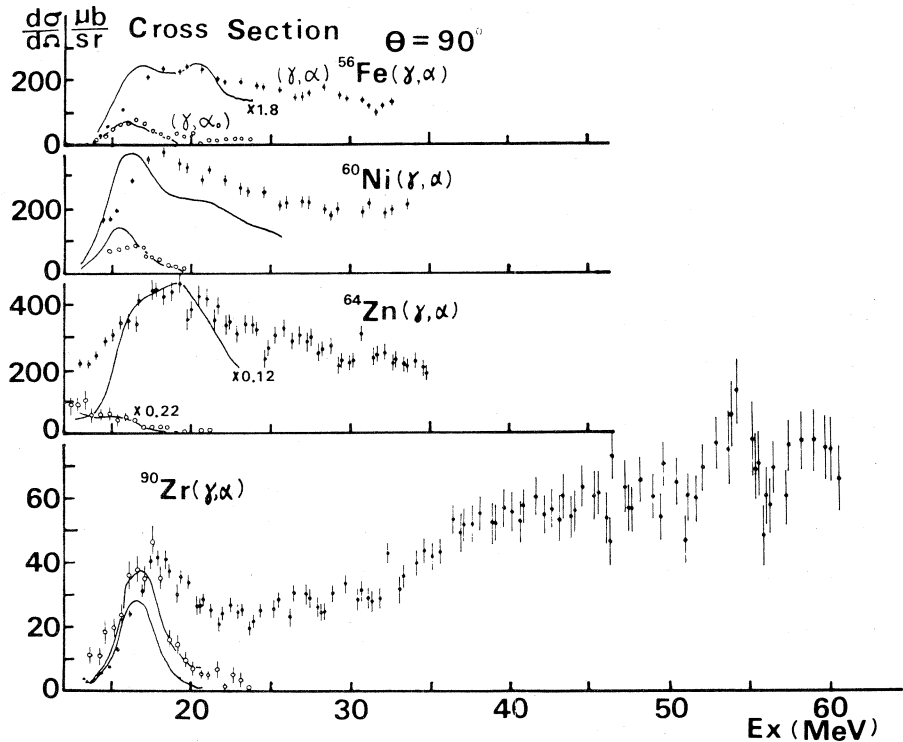
$$\frac{d\sigma(\gamma, \alpha)}{d\Omega} = \frac{\sigma(\gamma, n)}{\sum_n T(n)} \left(\frac{3}{8\pi} T(\alpha_0) + \frac{1}{4\pi} \sum_{i \neq 0} T(\alpha_i) \right) \quad (9)$$

となる。透過係数は Woods-Saxon 型の光学ポテンシャルを用いて Schrödinger 方程式を解

第2表 光学ポテンシャル。

	r_0 (fm)	a_0 (fm)	V_0 (MeV)	r_i (fm)	a_i (fm)	W_I (MeV)	V_{so} (MeV)	r_c (fm)
(n)	1.25	0.65	52.5 -0.625E	1.25	0.98	5.4 +0.4 E	10.185 -0.171E	
(α)								
^{52}Cr	1.377	0.582	200	1.377	0.582	43.28		1.4
^{56}Fe	1.20	0.75	179.80	1.747	0.572	13.50		1.30
^{60}Ni	1.350	0.588	200	1.350	0.588	44.60		1.4
^{64}Zn	1.20	0.75	188.10	1.735	0.604	14.50		1.20
^{90}Zr	1.553	0.631	34.63	1.553	0.631	17.35		1.4

いて求めた。計算に用いた光学ポテンシャルを第2表に示す。終状態のうちスピン・パリティの分かっているものについては個々に透過係数を計算し、それ以上では準位密度の式を用いた(詳しくは参考文献4)。第2図の実線は統計理論による計算結果である。実験値との一致は ^{64}Zn を除いて概ね良い。特にピークのエネルギーが (γ, α) 反応の閾値の減少と共に次第に下がるのは統計理論によって良く説明する事が出来る。しかし、 ^{64}Zn の (γ, α_0) 反応断面積では計算値が実験値の4.5倍も大きい。 (γ, α) 反応断面積についても第4図から分かる様に



第4図 (γ, α) 反応断面積についての実験値と統計理論による計算値の比較。

(γ, α_0) 反応断面積の場合と同様、 ^{64}Zn で両者は大きな食い違いを見せる。 ^{90}Zr の30 MeV以上の領域に於ける顕著な盛り上がりを統計理論で説明する事は出来ない。

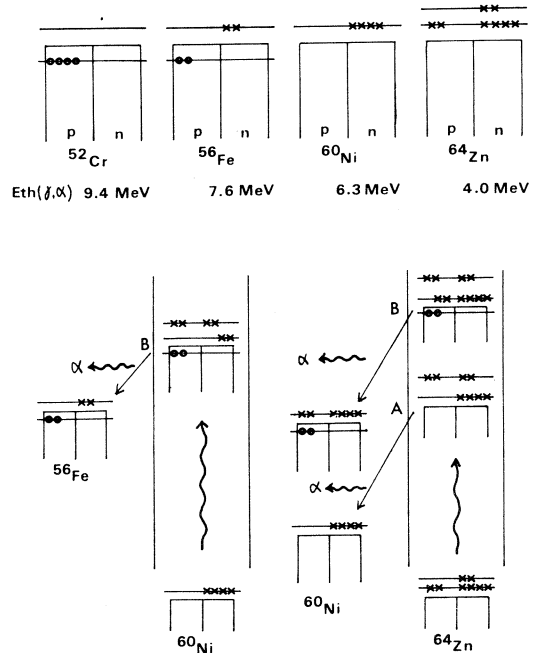
巨大共鳴領域では実験値と計算値の一致は ^{64}Zn を除いて概ね良いが、両者の比が反応の閾値と共に系統的に変化していく傾向も見られる。巨大共鳴より高いエネルギー領域では実験値の方が長い裾を引いているのが分かる。特に ^{90}Zr の高いエネルギー領域に現われる断面積の盛り上がりは統計理論では全く説明する事が出来ない。第4図の中に (γ, α_0) 反応断面積を白丸で示したが、 (γ, α_0) 反応断面積が (γ, α) 反応断面積より低いエネルギーでピークを持ち、

エネルギーが高くなるに従って急速に小さくなるのは、 (r, α_0) 反応が複合核を経由しており、エネルギーが高くなるに従って競争するチャンネルが増える事で説明出来る。

^{64}Zn では (r, α_0) , (r, α) 反応断面積共に統計理論による計算値は実験値に比べてはるかに大きい。 ^{64}Zn で計算値がこの様に大きくなるのは、 ^{64}Zn の (r, α) 反応閾値が極めて低い事に起因している。統計理論による計算値には反応の閾値が敏感に反映し、閾値が小さくなれば反応断面積は大きくなる。Ni で陽子の殻が閉じる ($Z=28$) 事により、 ^{64}Zn (r, α) 反応では芯の外側の核子だけから作られる α 粒子の放出が可能となり、 (r, α) 反応の閾値は小さくなる。又、 (r, α_0) 反応の他にも残留核を低い励起状態に残すいくつかの α 粒子放出チャンネルに対しては芯の外側の核子のみが関与し、その様な α 粒子の分離エネルギーも小さい

(第5図のA)。一方、芯内の核子から作られる α 粒子の分離エネルギーは大きく、残留核は高い励起状態に残される(第5図のB)。 ^{60}Ni の場合には芯内の陽子が常に反応に関与しており、 ^{64}Zn の場合にはこれに(A)の部分加わったものとする事が出来る。この新たに加わった部分が (r, α) 反応にどの程度の寄与をするのが問題であるが、実験結果はこの寄与が統計理論から予想されるよりはるかに小さい事を意味している。

複合核は崩壊チャンネルの各々に結びついている配位状態を同じ確率で含んでいると仮定されているが、 ^{64}Zn の様な核では平衡状態に達した後でも、(A)に関係する配位状態の作られる確率は小さい可能性がある。ここでは、芯との相互作用が小さいと言う性質が、 α 粒子の分離エネルギーを小さくすると同時に、その様な配位状態の作られる確率を小さくするのはあるまいか。一般に (r, α) 反



第5図 (上) ^{52}Cr , ^{56}Fe , ^{60}Ni , ^{64}Zn の配位状態。

(下) ^{60}Ni と ^{64}Zn での (r, α) 反応の機構の違い。 ^{60}Ni の場合は必ず芯中の核子を放出するが、 ^{64}Zn では芯の外側の核子にのみ関係する反応が可能であり、このことが (r, α) 反応の閾値の下がる原因になっている。

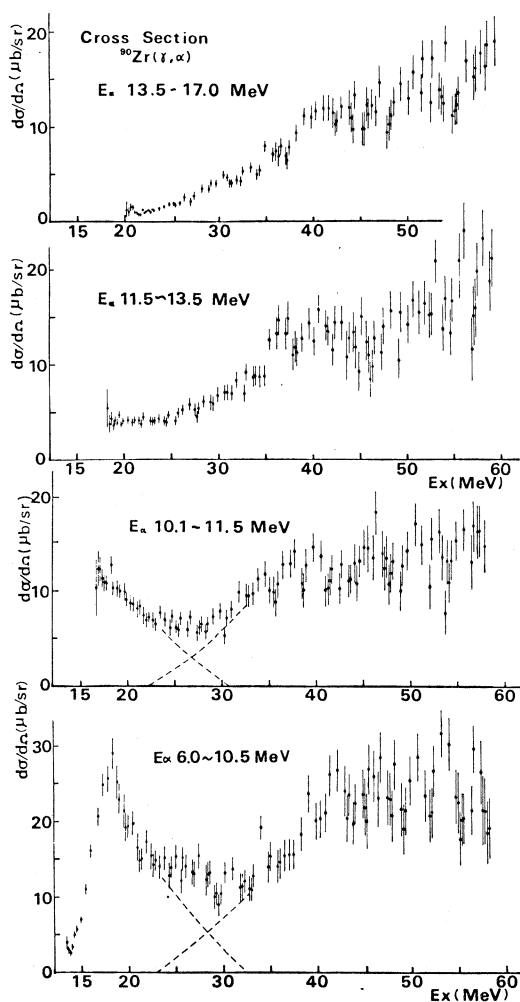
応では断面積の形状や角度分布が統計理論で良く説明出来る反面、断面積の絶対値は統計理論から予想される程、反応の閾値に影響されない傾向がある。この事は上に述べた様に、 α 粒子の分離エネルギーを決定する配位状態が、その配位の作られる確率にも影響を与えると考える事によって説明出来る可能性がある。しかしながら、この事を確かなものとする為には定量的な計算や、より広範囲での実験が必要であり、今後の課題である。

§ 4. ^{90}Zr の巨大共鳴領域より高いエネルギーでの (r, α) 反応

4.1 アイソ・クロマト

^{90}Zr の (r, α) 反応の巨大共鳴より高いエネルギー領域に観測された幅の広い断面積の性質及び反応機構を明らかにする為に、更にいくつかの実験や計算を行なった。第6図は測定する α 粒子のエネルギー範囲を4つに分け、それぞれの範囲で $^{90}\text{Zr}(r, \alpha)$ 反応断面積を求めたもの(アイソ・クロマト)である。図から分かる様に 13.5 MeV 以上の α 粒子の大部分は 30 MeV 以上の高い励起状態から放出されており、 α 粒子のエネルギーが小さくなるにつれて巨大共鳴領域から放出される α 粒子の割合は大きくなる。従って、巨大共鳴領域より高いエネルギー領域での (r, α) 反応の研究の為には 13.5 MeV 以上の α 粒子について研究するのが良く、 α 粒子のエネルギーが下がるに従って巨

第6図 $^{90}\text{Zr}(r, \alpha)$ 反応のアイソ・クロマト。13.5 MeV 以上の α 粒子は高い励起状態から放出され、 α 粒子のエネルギーが小さくなるに従って E1 巨大共鳴の寄与が大きくなる。



大共鳴の性質が入って来る筈である。

4.2 高いエネルギー領域の断面積の電気多重極度

30 MeV 以上の領域での断面積の電気多重極度を決定する為に、標的に照射する制動放射光子の数を増加させながら、放出される α 粒子の数の測定を行なった。実験は標的の直前に制動放射光子発生用の銅板を置き、電子線と r 線の両方で標的を照射した。その時の α 粒子の計数は

$$Y_{E\lambda}^{\text{total}}(E_e, d_{B.S.}) = Y_{E\lambda}^{B.S.}(E_e, d_{B.S.}) + Y_{E\lambda}^{V.P.}(E_e) \quad (10)$$

で与えられる。

$$\text{ここで } Y_{E\lambda}^{B.S.}(E_e, d_{B.S.}) = A \int \sigma_{E\lambda}^{(r,\alpha)}(E_r) N^{B.S.}(E_e, d_{B.S.}, E_r) dE_r \quad (11)$$

は制動放射光子による計数で、 $d_{B.S.}$ は制動放射光子発生用銅板の厚さ、 $N^{B.S.}(E_e, d_{B.S.}, E_r)$ は制動放射光子のスペクトル (E_e は電子エネルギー、 E_r は r 線エネルギー)、 $\sigma_{E\lambda}^{(r,\alpha)}(E_r)$ は電気多重極度 $E\lambda$ の (r, α) 反応断面積。 A は標的の厚さ等で決まる定数である。

$$\text{又, } Y_{E\lambda}^{V.P.}(E_e) = A \int \sigma_{E\lambda}^{(r,\alpha)}(E_r) N_{E\lambda}^{V.P.}(E_e, E_r) dE_r \quad (12)$$

は電気多重極度 $E\lambda$ の仮想光子による α 粒子の計数である。但し、 $N_{E\lambda}^{V.P.}(E_e, E_r)$ はエネルギー E_e の電子に対するエネルギー E_r の仮想光子スペクトルである。

$$\begin{aligned} \text{今 } P_{E\lambda}(d_{B.S.}) &\equiv \frac{Y_{E\lambda}^{\text{total}}(E_e, d_{B.S.})}{Y_{E\lambda}^{V.P.}(E_e)} \\ &= \frac{\int \sigma_{E\lambda}^{(r,\alpha)}(E_r) N^{B.S.}(E_e, d_{B.S.}, E_r) dE_r}{\int \sigma_{E\lambda}^{(r,\alpha)}(E_r) N_{E\lambda}^{V.P.}(E_e, E_r) dE_r} + 1 \end{aligned} \quad (13)$$

なる関数を考えると、第7図の様に

$$N_{E2}^{V.P.}(E_e, E_r) > N_{E1}^{V.P.}(E_e, E_r) \quad (14)$$

であるから、 $d_{B.S.}$ を増加させながら $P_{E\lambda}(d_{B.S.})$ の増加の具合を見ると

$$P_{E1}(d_{B.S.}) \text{ の傾き } > P_{E2}(d_{B.S.}) \text{ の傾き} \quad (15)$$

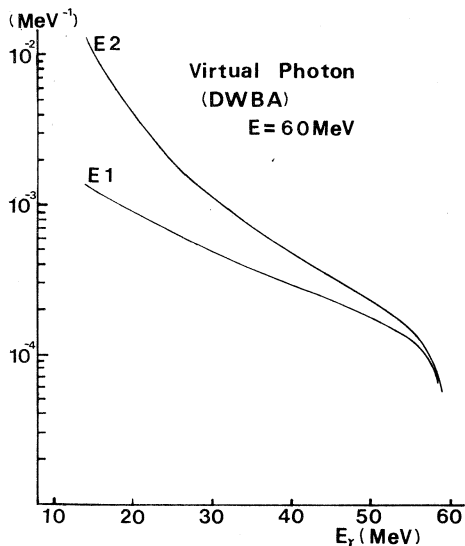
となる。従ってこの傾きを測定し、 $E1$ 及び $E2$ を仮定した時の傾きの計算値と比較する事によって反応が $E1$ 励起によるのか $E2$ 励起によるのかを判定する事が出来る。

実験は四通りの厚さの制動放射光子発生用銅板をターゲット・ホルダーに装着し、60 MeV の電子線を照射して α 粒子の計数の増加を測定した。制動放射光子スペクトルの計算には Schiff

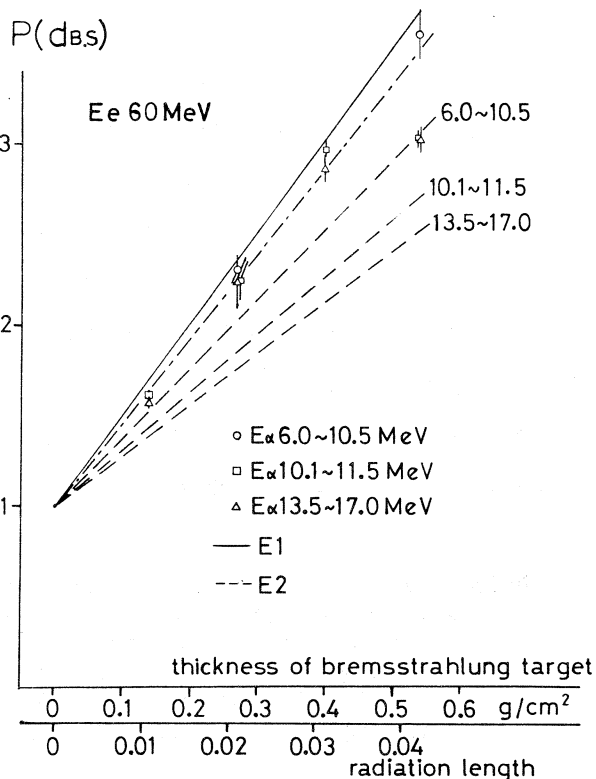
の式を用い、仮想光子スペクトルは歪曲波ボルン近似によって計算した。第8図に測定結果を示した。 α 粒子エネルギーが10.1~11.5 MeVの実験値と13.5~17.0 MeVの実験値は同時に測定したものであり、6.0~10.5 MeVの α 粒子は前の二つと別の設定磁場で測定したものである。誤差としては統計誤差と $(n_0 / \sum_i n_i) \times \sqrt{\sum_i (n_i - n_0)^2}$ の大きい方を採用した(n_i は*i* 回目の測定値, n_0 は平均値)。図中の実線はE1励起を仮定した時の計算値、破線は高いエネルギー領域でE2励起を仮定して計算したものである。但し、巨大共鳴領域の断面積に対してはE1励起を仮定した。第6図から分かる様に α 粒子のエネルギーによ

って巨大共鳴領域とそれより高いエネルギー領域での断面積の比は変化するから、それぞれ予想される傾斜も変化している。実験値と計算値を比較すると、一番厚い制動放射発生用銅板を用いた時の値を除いて、E1励起を仮定した場合の結果と良く一致する。又、三通

第8図 制動放射光子発生用銅板の厚さと α 粒子計数の関係。もし反応が全てE1励起によるなら実験点は実線上に乗る。もし、巨大共鳴領域がE1、高いエネルギー領域がE2励起であるなら実験点は破線の上に乗る。測定結果は総てE1としたものに極めて近く、E2の割合は多くて15%である。



第7図 E1仮想光子とE2仮想光子 (電子エネルギー60MeV, Z=40)。

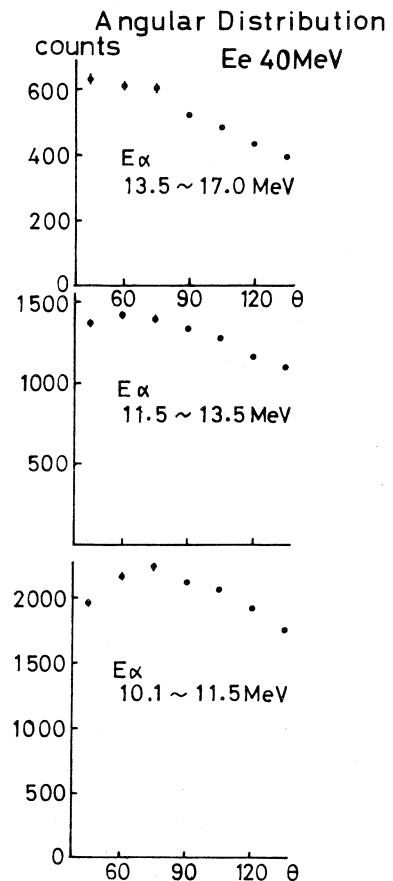


りの α 粒子エネルギーに対する実験値が非常に近いと言う事は高いエネルギー領域での(r, α)反応も E1 励起によっておこる事を強く示唆している。制動放射光子発生銅板の厚さが 536.6 mg/cm²の時、 $E_\alpha = 10.1 \sim 11.5$ MeV 及び $E_\alpha = 13.5 \sim 17.0$ MeV の計数が予想される値よりかなり下がっているが、これは銅板で電子線束が拡げられ、BDMの検出器から見える範囲の外に出てしまった為と推測される。又、銅板中での電子のエネルギー損失が原因でおこる α 粒子計数の減少は最も厚い銅板の場合でも約3%であり、問題とはならない。以上考察では励起モードとして E1 と E2 のみを仮定したが E3 や E4 の仮想光子は E2 の光子より多いから、計算値は更に実験値から離れる事になる。一点鎖線は最適合直線であり、これから E2 の割合は15%と読めるが、実験値の傾きは銅板による電子線束の拡がりの為に小さくなる傾向があるから、この値は E2 の割合の上限と考えるべきである。

4.3 角度分布

角度分布測定の実験では、40 MeV の電子線を ⁹⁰Zr に照射し、放出される α 粒子の数を45°から135°まで15°おきに測定した。三通りの α 粒子エネルギーに対する角度分布は第9図から分かる様に高いエネルギー($E_\alpha = 13.5 \sim 17.0$ MeV)では前方ピークを示し、 α 粒子のエネルギーが下がるにつれて90°対称に近づいている。13.5~17.0 MeVの α 粒子は第6図から明らか様に主として高いエネルギー領域から放出されているので、角度分布の示す前方ピークは我々が注目している高いエネルギー領域の性質を反映していると考え事が出来る。光核反応に於ける前方ピークは統計理論では説明する事は出来ず、高いエネルギー領域での(r, α)反応が直接反応的の性質を持っている事が分かる。又、低いエネルギーの α 粒子に対する角度分布が90°対称に近

第9図 ⁹⁰Zr (r, α) 反応の角度分布。13.5 MeV 以上の α 粒子の角度分布は前方ピークを示し、高いエネルギー領域から放出される α 粒子は直接反応的であることを示している。 α 粒子のエネルギーが下がるにつれて巨大共鳴領域の影響が大きくなり、角度分布は90°対称に近づく。



づくのは、巨大共鳴領域から放出される α 粒子の増加によって説明する事が出来る。§2で述べた様に、巨大共鳴領域での (r, α) 反応断面積の大部分は (r, α_0) 反応断面積によって占められている。良く知られている様に、E1励起による (r, α_0) 反応の角度分布は標的核が偶々核の時、 $\sin^2 \theta$ に比例する(第10図)から巨大共鳴の影響が大きい低いエネルギーの α 粒子は 90° 対称に近い角度分布を示す。

§5. 準重陽子模型と Pre-equilibrium exciton

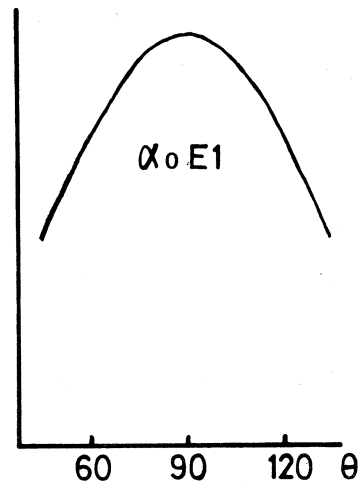
模型を用いての (r, α) 反応断面積の計算

前節で見た様に、巨大共鳴より高いエネルギー領域から放出される α 粒子の角度分布は前方ピークを示し、統計理論では説明出来ない事が分かった。そこで、一粒子模型による直接反応断面積の計算を行なった。 α 散乱等で求められているいくつかの種類の Woods - Saxon 型の光学ポテンシャルを用いて計算した (r, α) 反応断面積は、いずれの場合も30 MeV付近にピークを持ち、エネルギーが高くなるに従ってゆっくり減少し、実験値の様な幅の広い断面積とはならない事が分かった。

巨大共鳴より高いエネルギー領域での光核反応の反応機構に対しては古くから Levinger などによって準重陽子模型が提唱されている²¹⁾。この模型によれば、高いエネルギーの光核反応に対しては原子核は準重陽子と呼ばれる陽子・中性子対の集合と考える事が出来、光子は一個の準重陽子を破壊する事によって核に吸収される。Levinger はこの断面積として

$$\sigma = L \frac{NZ}{A} \sigma_a \quad (16)$$

を得た。ここで σ_a は重陽子の光破壊断面積である。 L は Levinger 定数と呼ばれる定数であり、Levinger はこの値として $L = 6.4$ 、Garvey は $L = 10.3$ を与えている¹²⁾。その他にも様々な実験から L が求められているが、 L が質量やエネルギーに依存するかどうかなど詳しい事は今の所、分かっていない。この様に準重陽子反応によって光子を吸収した核は Pre-equilibrium exciton 模型で記述される過程を通じて α 粒子を放出すると考える。つまり、原子核は準重陽子反応によって二粒子・二空孔状態に励起され、この励起状態は陽子や中性子を



第10図 標的核も残留核も共にスピンの0の場合、 (r, α) 反応がもし純粹なE1励起によるなら、角度分布は $\sin^2 \theta$ に比例する。

放出するチャンネルの他に三粒子・三空孔状態に崩壊するチャンネルも持つと考える。ここで原子核を構成する核子はある割合で α 粒子的な状態を形成しており、それは励起準位にある粒子と相互作用して α 粒子の粒子・空孔状態を作る事が出来ると仮定する。この様に、三粒子・三空孔状態以後は陽子や中性子の粒子・空孔状態の他に α 粒子の粒子・空孔状態も存在し、そのような状態を通じて α 粒子の放出が行なわれると考える。ここで述べた過程は重い核における (n, α) 反応や (p, α) 反応と同様に取り扱う事が出来て、 $(\begin{smallmatrix} n \\ p \end{smallmatrix}, \alpha)$ 反応では一粒子状態から始まり、二粒子・一空孔、三粒子・二空孔、……と崩れていくのに対し、準重陽子模型では二粒子・二空孔状態から始まり、三粒子・三空孔、四粒子・四空孔、……と崩れていくところにのみ違いがある。

この様な過程でおこる (r, α) 反応断面積は

$$\sigma(r, \alpha) = \int \sigma_r(E) \frac{m_\alpha \varepsilon \sigma_{\text{inv}}(\varepsilon) g_R}{4\pi^3 \hbar^2 M^2 g_c^5 E^3} \sum_{\substack{\bar{n} \\ n=6 \\ (4n=2)}} \left(\frac{g_R U^{(n-2)}}{g_c E} \right) (n^2 - 1) (n+1) \frac{\varphi K_{n-1}^\alpha}{\varphi K_n^\alpha + (1-\varphi) K_n^\nu} d\varepsilon \quad (17)$$

で表わされる。ここで

$\sigma_r(E)$: 光子吸収断面積

m_α : α 粒子の換算質量

ε : 放出 α 粒子の運動エネルギー

$\sigma_{\text{inv}}(\varepsilon)$: 逆反応断面積

$g_R g_c$: 残留状態及び標的核の一粒子準位密度

U : 残留核の励起エネルギー

E : 標的核の励起エネルギー

n : 励起子数

\bar{n} : 平衡状態(複合核)での励起子数

φ : α 粒子の粒子・空孔対が励起される確率

M : カスケードにおける有効二体相互作用を記述する行列要素

K_n^α, K_n^ν : α 粒子又は核子の励起の際に荷電保存させ、更に、 α 粒子に対する準位密度を $g/4$ とする為の係数

であり、

$$\begin{aligned} \sigma_{\text{inv}}(\varepsilon) &= \pi \lambda^2 \sum_{\ell} (2\ell + 1) T_{\ell}(\varepsilon) \\ &= \frac{\pi \hbar^2}{2M_\alpha \varepsilon} \sum_{\ell} (2\ell + 1) T_{\ell}(\varepsilon) \end{aligned} \quad (18)$$

ただし、 $T_{\ell}(\varepsilon)$ は運動エネルギー ε 、角運動量 ℓ の α 粒子の透過係数。又、

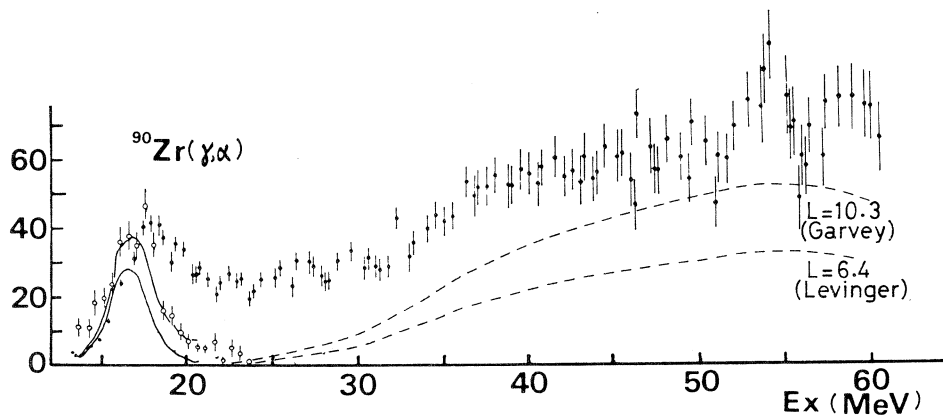
$$|M|^2 = 8A^{-3} \quad (19)$$

$$g = \frac{6}{\pi^2} \frac{A}{7.5} \quad (20)$$

の関係がある。 $\sigma_r(\epsilon)$ には準重陽子過程による光核反応断面積を使用し、Partoviによって²²⁾測定された重陽子の光破壊断面積 $\sigma_a(E)$ から(10)式によって計算した。励起子の最大値 \bar{n} は10として計算し、

$$\frac{d\sigma(r, \alpha)}{d\Omega} = \frac{1}{4\pi} \sigma(r, \alpha) \quad (21)$$

で求めた $^{90}\text{Zr}(r, \alpha)$ 反応断面積を第11図に破線で示した。図から分かる様に、絶対値には若



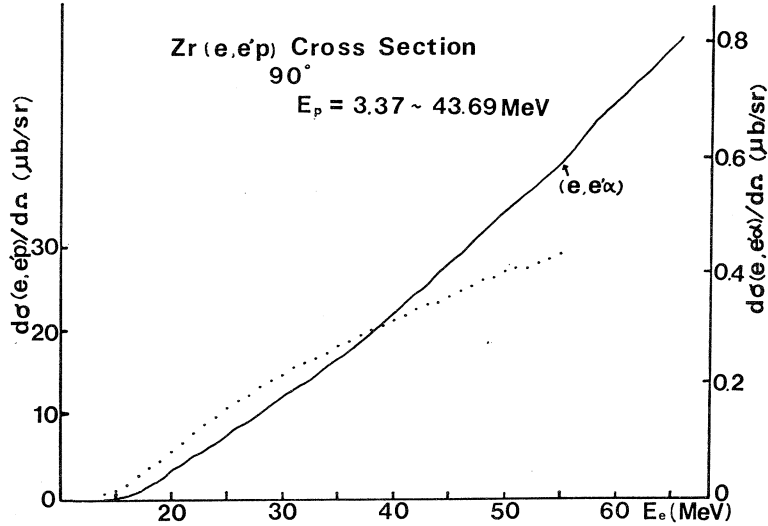
第11図 準重陽子模型と Pre-equilibrium exciton 模型の組み合わせで計算した (r, α) 反応断面積(破線)。30 MeV以上の領域の断面積の形状をかなり良く再現している。

干の違いがあるものの、形状は良く実験値を再現している。 L の値としては Levingerの値($L = 6.4$)より Garveyの値($L = 10.3$)の方が実験値との一致は良いが、この結果のみから L の値について議論するのは無理である。ここで注意すべき事は計算値が30 MeV以上の領域に幅の広い盛り上がりを示す原因は準重陽子模型にあるのではなく、Pre-equilibrium exciton 模型にあると言う事である。従って準重陽子反応以外の反応過程によって広いエネルギー範囲で光子が吸収される場合でも、その後の反応が Pre-equilibrium exciton 模型で記述出来るならば、その (r, α) 反応断面積の形状は似た形となる。例えば50 MeV付近には $3\hbar\omega$ のE1 巨大共鳴が予想されているなど、他の候補も考えられるが、今の段階ではこの論文で取り扱った準重陽子模型が最も有力な候補である。

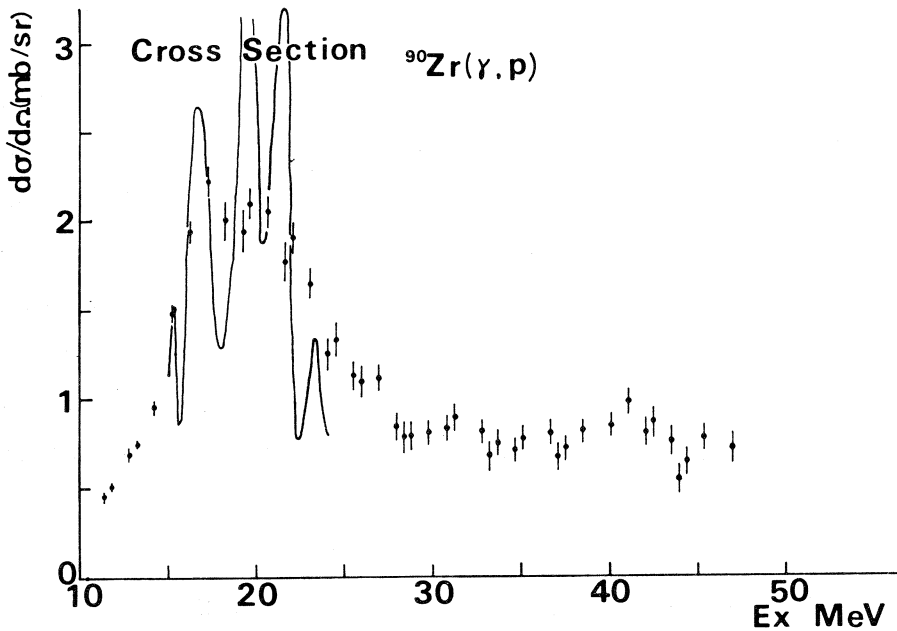
§ 6. ^{90}Zr の巨大共鳴領域より高いエネルギーでの (r, p) 反応

(r, α) 反応断面積の高いエネルギー領域で観測された幅の広い断面積が (r, p) 反応に於いても見られるかどうかを調べる為に電子エネルギーを14 MeVから55 MeVまで1 MeV間

隔で変えながら ^{90}Zr の標的 (厚さ 5.08 mg/cm^2) に照射し, 得られた計数曲線から variable bin Penfold Leiss 法によって $^{90}\text{Zr}(r, p)$ 反応断面積を求めた。測定陽子のエネルギー範囲は $3.37 \sim 43.69 \text{ MeV}$ である。第12図に $^{90}\text{Zr}(e, e', p)$ 反応断面積 (計数曲線), 第13図に



第12図 $^{90}\text{Zr}(e, e', p)$ 反応断面積。実線は $^{90}\text{Zr}(e, e', \alpha)$ 反応断面積。両者の形には, はっきりした違いが見られる。



第13図 $^{90}\text{Zr}(r, p)$ 反応断面積。(r, α) 反応の場合の様に顕著な盛り上がりにはならないが, 30 MeV 以上の領域にもかなりの断面積が分布している。実線は, 以前の Shoda 等による実験結果。

$^{90}\text{Zr}(r, p)$ 反応断面積を示した。巨大共鳴領域に於ける $^{90}\text{Zr}(r, p)$ 反応の断面積はすでに詳しく測定されているが、25 MeV 以上の領域では測定例が無かった。以前に Shoda 等によって巨大共鳴領域で測定された (r, p) 反応断面積²³⁾を比較の為に第15図に実線で示した。今回の測定は広いエネルギー領域にわたって大まかな構造を見るのが目的である為に以前のデータに比べて分解能は悪いが、平均した絶対値は、ほぼ一致している。巨大共鳴領域での (r, p) 反応断面積が (r, α) 反応断面積の70倍も大きい為にそれより高いエネルギー領域で (r, α) 反応断面積の場合の様に顕著な盛り上がりとはならないが、800 $\mu\text{b}/\text{sr}$ という値は (r, α) 反応断面積の10倍以上も大きい。 (r, α) 反応断面積が30 MeV 以上の領域に顕著な盛り上がりを示すのに対し、 (r, p) 反応断面積の場合には目立たないと言う事は第12図に示した二つの計数曲線の形の違いからも明らかで、 (r, α) 反応断面積の顕著な盛り上がり、仮想光子スペクトルや解析の不完全さなどが原因で出来た臆の盛り上がりではない事を示している。 (r, p) 反応断面積が30 MeV 以上の領域でもかなり大きな値を持っている事は興味深い事で、§5でも述べた様に、この領域での光核反応としては準重陽子模型が有力であるが、 ^{90}Zr の様な重い核で、この領域まで反応断面積を測定した例はなく、準重陽子模型の議論にも、もっぱらスペクトルが用いられて来た。今後はスペクトルなどによる議論の他にも、反応断面積そのものについて議論されなければならないだろう。§5で述べた (r, α) 反応の場合と同様、この領域での (r, p) 反応の研究も今後の重要な課題の一つである。

最後に、この実験や議論を通じ、協力していただいた庄田勝房教授を始めとする核理研 (r, p) グループの皆様、実験の際に御援助いただいたマシン・グループ、計測グループの皆様に深く感謝致します。

参 考 文 献

- 1) M. Sugawara, T. Terasawa, T. Tamae, N. Kawamura, H. Saito and H. Tsubota : Nucl. Phys. **A 248** (1975) 477.
- 2) S. Oikawa and K. Shoda : Nucl. Phys. **A 277** (1977) 301.
- 3) 玉江, 坪田, 菅原 : 核理研研究報告 **7** (1974) 293.
- 4) 菅原, 川村, 坪田, 宮瀬, 阿部 : 核理研研究報告 **6** (1973) 246.
- 5) 玉江, 坪田, 菅原 : 核理研研究報告 **8** (1975) 82.
- 6) N. A. Keller and D. B. Mc Connell : Can. J. Phys. **50** (1972) 1554.

- 7) P. Dyal and J.P. Hummel : Phys. Rev. **115** (1959) 1264.
- 8) E. Wolynec, M.N. Martines and G. Moscati : Phys. Rev. Lett. **37** (1976) 585.
- 9) 浦野, 菅原, 玉江, 庄田 : 核理研研究報告 **10** (1977) 47.
- 10) A.C. Odian, P. C. Stein, A. Wattenbrg, B. T. Feed and R. Weinstein : Phys. Rev. **102** (1956) 837.
- 11) M.Q. Parton and J. H. Smith : Phys. Rev. **110** (1958) 1143.
- 12) J. Garvey, B. H. Patrick, J. G. Rutherglen and I. L. Smith : Nucl. Phys. **70** (1965) 241.
- 13) H. G. Miller, W. Buss and J. A. Rawlins : Nucl. Phys. **A 163** (1971) 637.
- 14) S. Costa, L. Ferrero and L. Pasqualini : Nuovo Cim. Lett. **2** (1971) 665.
- 15) L. Meneghetti and S. Vitale : Nucl. Phys. **61** (1965) 316.
- 16) J. J. Murphy II, H. J. Gehrhardt and D. M. Skopik : Nucl. Phys. **A 277** (1977) 69.
- 17) R. H. Dalitz and D. R. Yennie : Phys. Rev. **105** (1957) 1598.
- 18) W. C. Barber and T. Wiedling : Nucl. Phys. **18** (1960) 575.
- 19) L. I. Schiff : Phys. Rev. **83** (1951) 252.
- 20) B. L. Berman : *Atlas of Photoneutron Cross Sections Obtained with Monoenergetic Photons* (Lawrence Livermore Laboratory, 1976).
- 21) J. S. Levinger : Phys. Rev. **84** (1951) 43.
- 22) F. Partovi : Ann. Phys. **27** (1964) 79.
- 23) K. Shoda, H. Miyase, M. Sugawara, T. Saito, S. Oikawa, A. Suzuki and J. Uegaki : Nucl. Phys. **A 239** (1975) 397.

II. 物 性 物 理

Ti₄₈Ni₅₂の高温における中性子回折

選研

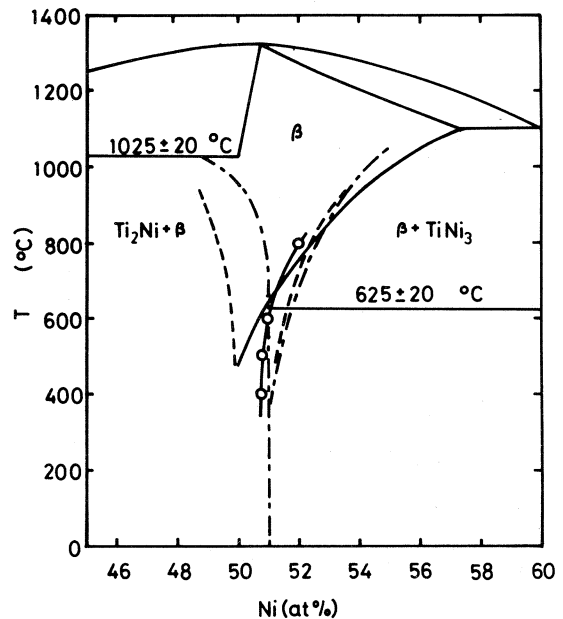
松本 実・守護嘉朗・本間敏夫

§ 1. 緒 言

熱弾性型マルテンサイト変態を起こす TiNi は「形状記憶効果」を示す物質として知られている¹⁾。一般に熱弾性型マルテンサイト変態をする物質は母相の原子配列が規則状態にある。TiNi の母相は CsCl 型結晶構造をもち、²⁾ 通常の高温からの急冷法では bcc の状態は実現しない。一方 Fe₃Pt は熱処理により規則度を容易に制御することができ、規則度の変化に伴ってマルテンサイト変態のタイプが熱弾性型マルテンサイト変態から Fe-Ni の場合に起るような通常のマルテンサイト変態にまで変化する³⁾。このように規則度の変化がマルテンサイト変態にどのように影響するかを調べることは、原子の協力現象の問題としてマルテンサイト変態の機構を研究するのに最も重要なことの1つである。

著者らはこれまで TiNi^{1,2,4)} と Ti₅₀Ni_{50-x}M_x (M: 3d 遷移金属元素)^{5,6)} の熱弾性型マルテンサイト変態に伴う諸物性の変化と変態の機構を研究してきた。そこではいづれも高温で長時間焼鈍した、よりよい規則状態の試料を用いた。

Ti-Ni 系状態図の中で、TiNi 附近の高温における状態図についてはこれまで多くの研究が報告されている^{1,4)}。この中で 625 °C における包析反応 (TiNi と TiNi₃ から形成される Ti₂Ni₃)、650 °C における共析反応 (TiNi → Ti₂Ni + TiNi₃) の存在についてはまだ明らかになっていない⁴⁾。さらに CsCl 型の TiNi 相の安定な温度範囲についても研究がほとんどなされていない。第1図には TiNi 附近の 0 ~ 1400 °C での状態図を示す。



第1図 Ti-Ni 系状態図 (50 at % Ni 附近)⁴⁾

— Wasilewski ら⁷⁾, --- 平野ら⁸⁾, ··· Purdy ら⁹⁾
—○— 本間ら⁴⁾

本研究ではこのような Ti_4Ni のマルテンサイト変態と規則度との関係および高温での状態図を明らかにする目的で、高温において中性子回折を行う。

§ 2. 試料

$\text{Ti}_{48}\text{Ni}_{52}$ の中性子回折用多結晶試料は板状（厚さ 1.5 mm，長さ 50 mm）試料を重ねて内径 13 mm の透明石英管に真空封入し，1000 °C で 2 時間焼鈍後炉冷したものを用いた。試料は透明石英管に真空封入したままの状態 で中性子ビームの中におかれた。

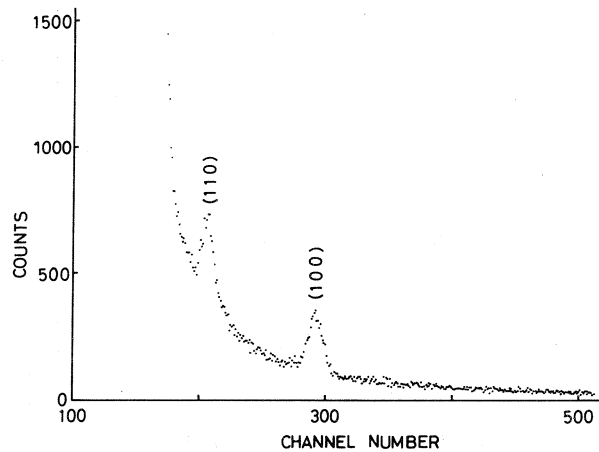
§ 3. 実験方法

中性子回折は東北大学核理研の中性子回折装置を用い，TOF - Debye - Scherrer 法により行った。試料を真空封入した透明石英管の外側にシリコニット発熱体を 2 本，さらにこの透明石英管の下部にヒーターをおき，これら発熱体からの加熱により試料の温度を室温より 832 °C まで変化させた。カウンターは散乱角 $2\theta = 30^\circ$ ， 60° および 90° におかれた。

CsCl 型の結晶構造をもつ TiNi では中性子回折においてチタンとニッケルの中性子散乱振幅 ($b_n = -(3.3 \pm 0.3) \times 10^{-13} \text{ cm}$ (Ti)， $b_n = +(10.25 \pm 0.09) \times 10^{-13} \text{ cm}$ (Ni)) が互いに逆符号のため，X 線回折の場合よりも規則格子線が基本格子線より検出しやすい。

§ 4. 実験結果および考察

第 2 図に $\text{Ti}_{48}\text{Ni}_{52}$ の散乱角 $2\theta = 60^\circ$ での中性子回折パターンを示す。隣りあう 2 つの回折線，(100) 規則格子線および (110) 基本格子線，の分離が明瞭な $2\theta = 60^\circ$ での回折パターンからそれぞれの回折強度の比， $I_{(100)} / I_{(110)}$ ，を回折線ピークの面積比として求め，これを規則度のパラメーターとした。第 3 図に $I_{(100)} / I_{(110)}$ の温度変化を示す。 $I_{(100)}$



第 2 図 $\text{Ti}_{48}\text{Ni}_{52}$ の中性子回折パターン
散乱角 $2\theta = 60^\circ$ ，202°C.

$I_{(110)}$ は高温になるに従って減少する傾向があるが、規則-不規則変態に伴うような著しい変化は認められなかった。

Wang ら¹⁰⁾ は TiNi の規則-不規則変態点は 700 °C にあり、この温度以下では 3 Å CsCl 型副格子をベースとした 9 Å の超格子が存在するとしている。著者らの中性子回折の実験では 9 Å の超格子は検出されず²⁾、今回の高温での実験においても

700 °C 附近に規則-不規則変態は見出せなかった。

このようなことから TiNi 相は少なくとも 830 °C 附近までは CsCl 型結晶構造の規則状態にある。

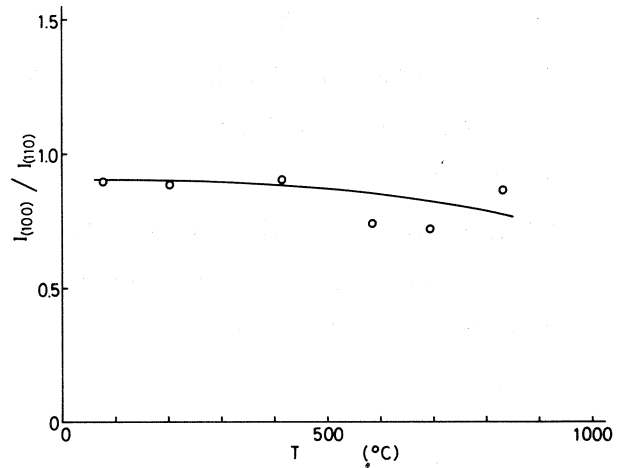
TiNi 相の高温における Ti_2Ni_3 、 Ti_2Ni および $TiNi_3$ の存在については十分確認できなかった。

TiNi 相の不規則状態は通常の高温からの急冷による方法では実現が困難であり、規則-不規則変態については未解決の問題が多い。今後は熱分析等の研究ともあわせて、1000 °C 附近までの高温における規則状態を中性子回折による数多くの規則格子線、基本格子線の観測により研究することが必要となってくる。

本研究の遂行にあたり高温での実験に御協力いただいた金研鈴木謙爾教授、三沢正勝博士ならびに中性子回折実験に協力していただいた核理研新村信雄博士に感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) 本間敏夫：日本金属学会会報 **12** (1973) 157.
- 2) 松本実, 守護嘉朗, 本間敏夫：東北大学選鉱製錬研究所彙報 **28** (1972) 65.
- 3) D.P. Dunne and C.M. Wayman：Met. Trans. **4** (1973) 137, 147.
- 4) 本間敏夫, 武井広見：日本金属学会誌 **39** (1975) 175.
- 5) M. Matsumoto and T. Honma：1st JIM Internat. Symp. "New Aspects of Martensitic Transformation", Kobe, Suppl. Trans.



第3図 Ti₄₈Ni₅₂ の $I_{(100)}/I_{(110)}$ の温度変化.

- JIM, **17** (1976) 199.
- 6) 松本実, 本間敏夫: 東北大学選鉱製錬研究所彙報 **33** (1977) 103.
 - 7) R. J. Wasilewski, S. R. Butler, J. E. Hanlon and D. Warden: Met. Trans. **2** (1971) 229.
 - 8) 平野賢一, 大内権一郎: 日本金属学会誌 **32** (1968) 613.
 - 9) G. R. Purdy and J. G. Parr: Trans. Met. Soc. AIME **221** (1961) 636.
 - 10) F. E. Wang, W. J. Buehler and S. J. Pickart: J. appl. Phys. **36** (1965) 3232.

Density Effect in K-shell Ionization by Ultrarelativistic Electrons

M. Kamiya, K. Ishii,[†] Y. Kinefuchi, H. Endo, S. Morita,
K. Sera,[†] and M. Oyamada^{††}

Department of Physics, Faculty of Science, Tohoku University

[†]*Cyclotron and Radioisotope Center, Tohoku University*

^{††}*Laboratory of Nuclear Science, Faculty of Science, Tohoku University*

§ 1. Introduction

As was described a previous report,¹⁾ in order to detect the density effect in innershell ionization, which has theoretically been expected, from accurate absolute ionization cross section measurements, some difficulties are expected from big uncertainties in absorption corrections and detection efficiencies for lower x-ray energy and it would be much effective to measure the energy dependence of cross section or relative change of the cross section with incident energy.

The impact parameter contributing mainly to innershell ionization is comparable to the atomic radius and the contribution decreases as the impact parameter becomes larger. However, the increase in the cross section in very high incident energy region comes from collisions of large impact parameter and the density effect is expected to be more easily observed in the change of the cross section than in the absolute cross section itself.

§ 2. Results and Discussion

Experimental details have already been described in the previous report except that a proportional counter was used as the x-ray detector. Here, K-shell ionization cross sections of C, Na, Mg, Al and Cl have been measured at electron energies of 70 and 230 MeV. A typical spectrum obtained is shown in Fig. 1. Targets of C, Mg and Al are self-supporting and the target of NaCl was prepared by vacuum evaporation on a Mylar foil. Except C, for which the absolute cross section was not obtained, overall experimental errors of the ionization cross sections are estimated to be 20 % and the relative errors are to be 3-6%.

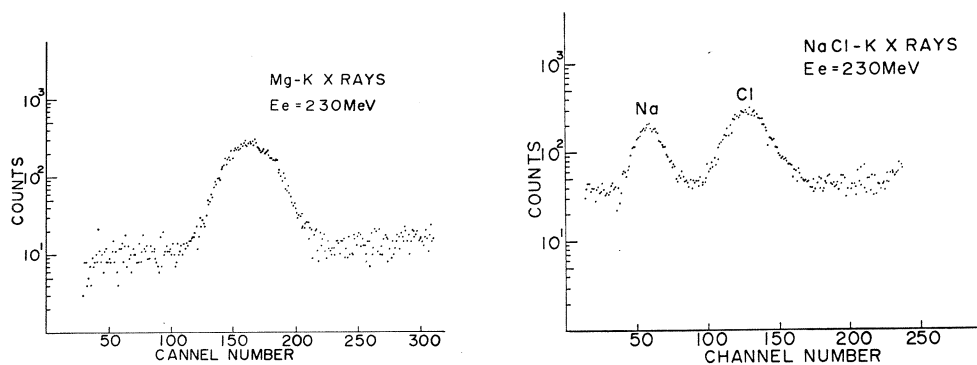


Fig. 1. (a) Mg K x-ray spectrum obtained at $E_e = 230 \text{ MeV}$.

(b) Same as in (a) except for NaCl.

In Fig. 2, the experimental cross sections are compared with predictions from the revised Kolbenstvedt theory and it is found that the experimental values for Na and Mg are 70 % of the theoretical ones and 90 % for Al and Cl. Though the theory predicts an increase of 15 % in the cross section for an increase in the electron energy from 70 to 230 MeV, all the experimental cross sections, except those for Al, show increase of only a few percent, as is shown in Fig. 3.

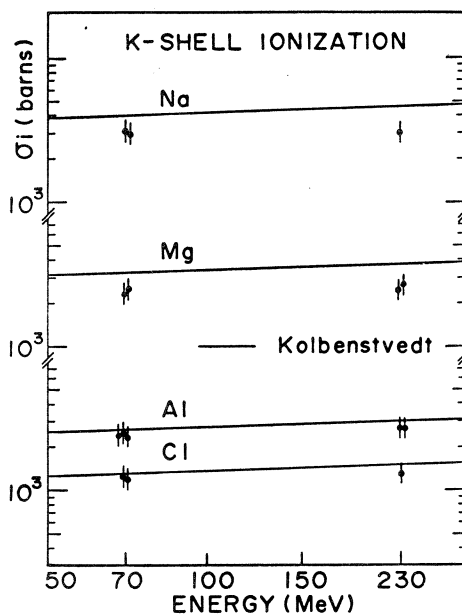


Fig. 2. K-shell ionization cross sections are compared with predictions from the revised Kolbenstvedt theory.

Fig. 4 shows the intensity ratio Na/Cl obtained with a NaCl target. Though the theory predicts almost the same value of the ratios at the two bombarding energies, the experimental value for the ratio at 230 MeV is clearly less than that at 70 MeV.

These experimental results are quite consistent with and support the contribution

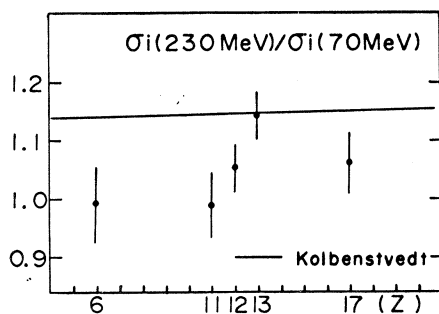


Fig. 3. Ratios of cross section at 70 and 230 MeV. Solid line is estimated from the revised Kolbenstvedt theory.

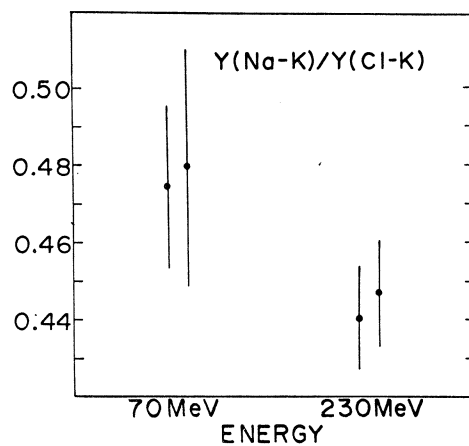


Fig. 4. Intensity ratio of Na and Cl at 70 and 230 MeV.

from the density effect. Further experimental study, however, is needed to obtain a conclusive evidence of the effect, and is now in progress.

Acknowledgement

We would like to express our sincere gratitude to the staff of Laboratory of Nuclear Science for the operation of the accelerator during the course of experiment.

Reference

- 1) M. Kamiya, S. Morita, K. Ishii, M. Oyamada, K. Sera and H. Tawara: Res. Report Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **10** (1977) 108.

TbZn中の ^{156}Gd の Hyperfine Interaction

金研, 新潟大理学部*, 理学部物理**

工学部原子核***

篠原猛・古沢昭*・林部昭吾**

山口貞衛***

$^{159}\text{Tb} (\gamma, 3n) ^{156}\text{Tb}$ 反応で作った $^{156}\text{Tb}_{91}$ の EC 崩壊を利用して TbZn 中の ^{156}Gd の Hyperfine Interaction を $r-r$ 摂動角相関によって測定した。

§ 1. 緒 言

希土類合金の hyperfine interaction の研究は余り進んでいなく、そのメカニズムについての詳細な議論はできないが、それでも最近 3d 遷移金属を含む Dy と Gd 合金について Dy や Gd の核位置での伝導電子偏極が s-f 相互作用ではなく s-d 相互作用によって支配されていることが指摘されたり、¹⁾ Eu と Tb 族、IIb 族の合金では environment effect として s-f 相互作用によるもの以外の寄与が大切であることの指摘など²⁾ hyperfine interaction の研究の重要性が認められつゝある。Gd はこれら合金中でも orbital moment の寄与がないと考えられ hyperfine interaction の研究に適しているが、これまで用いられている測定方法は夫々長所短所をもっていて十分精度を高められない状況にあると思える。

こゝでは ^{156}Tb decay による ^{156}Gd の時間積分法による摂動 $r-r$ 角相関の実験を行い、Gd 合金の hyperfine interaction の研究にこの方法が良い probe として使えることを示し TbZn 中の Gd についての測定結果を報告したい。 ^{156}Tb decay による ^{156}Gd の level scheme の概略を第 1 図に示す。

この核種は 89 keV, 288 keV, 1511 keV の各 level についてはその磁気モーメント、寿命がかなりよく調べられており、³⁻⁵⁾ かつ level の寿命が適当であるため、いくつかの level について同時にいくつかのカスケード転移による摂動 $r-r$ 角相関測定が利用できる。^{6,7)} こゝでは 534 keV - 1222 (gate) keV, 1222 keV - 534 (gate) keV, 1422 keV - 534 (gate) keV の各カスケード転移についての測定結果を報告する。

本実験で対象とする TbZn は CsCl 型結晶構造をもった強磁性体 ($T_c = 206\text{K}$) であるが、Zn を原子番号 1 だけ異なる Cu と置換した合金 TbCu では同じ結晶構造を示す反強磁性体

となり、それらの混晶系の磁性の特徴ある変化⁸⁾はs-f相互作用の特質の一端を示しているように思える。⁹⁾しかしこれまでの実験は磁気測定、中性子回折などに限られており各atomについての微視的データを必要としている。

§ 2. 実験方法

2.1 試料準備

TbZnの試料は八代氏によって作られ、その磁性が測定された単結晶の一部を約200メッシュの粉末にしたもの50 mgを用いた。

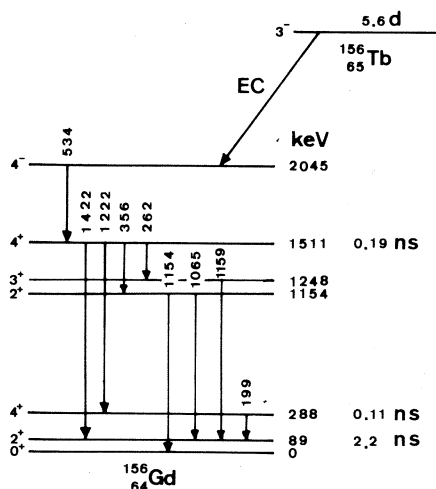
電子リニアックからの制動放射 γ 線

$E_{\gamma \max} = 60 \text{ MeV}$ で照射し $^{159}\text{Tb}(\gamma, 3n)^{156}\text{Tb}$ 反応で作った。 (γ, n) , $(\gamma, 2n)$ 反応で作られる ^{158}Tb , ^{157}Tb は夫々半減期が長く邪魔にならず又、 ^{64}Zn , ^{66}Zn , ^{67}Zn , ^{68}Zn , ^{70}Zn から作られるものも ^{62}Zn ($T_{1/2} 9.3 \text{ h}$)を除き ^{156}Tb の半減期5.4dと大きくずれていて実験の妨害にはならなかった。しかし、 ^{62}Zn および ^{156}Tb のisomer ($0^+ T_{1/2} 5.5 \text{ h}$)のdecayの影響を除くため2日間放置してから測定を開始した。

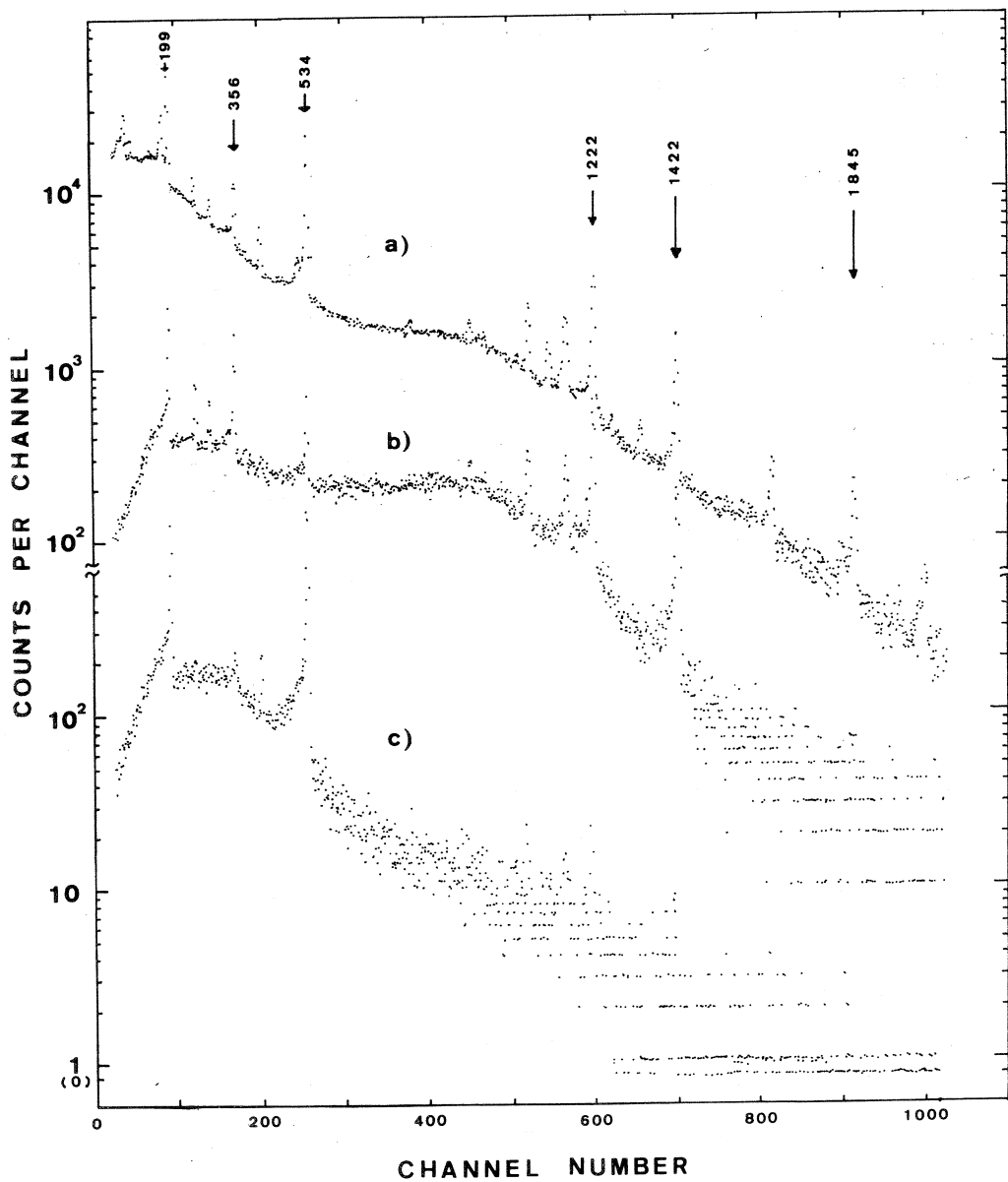
2.2 測定装置

測定装置は核理研RIの $r-r$ 角相関装置を用いた。検出器には2台のGe半導体検出器(約70cc及び約50cc)を用い、測定回路はfast部にコンスタントフラクショナルディスクリミネータ及びTACを用いたfastslow同時測定回路を使用した。各角度に於ける同時測定スペクトルは4Kchannel多重波高分析器を2分割してそれぞれ534keV gate, 1222keV gateについて同時に約1時間づつ測定した。ゴニオメーター、PHA及びMTが連動し、検出器の移動、測定、読み出しを自動的に行うようになっている。single spectrum及びcoincidence spectrumを第2図に示す。

又、照射試料のmagnetic hyperfine interactionを知るためには206K以下にする必要があり、現在の縦磁場用電磁石にあわせたガラス製の liqN_2 用Dewarを作成し、試料挿入個所に試料をsetし常時銅-コンスタンタン熱電対で温度を検出した。



第1図 ^{156}Tb (3^- , 5.4 d)からのEC崩壊による ^{156}Gd のlevel scheme.



第2図 a) ^{156}Tb のE C崩壊に伴う ^{156}Gd γ 線のsingle spectrum.
 b) ^{156}Gd γ 線のcoincidence spectrum (gate 534 keV).
 c) ^{156}Gd γ 線のcoincidence spectrum (gate 1222 keV).

測定の前に ^{62}Zn の β^+ annihilationで2つの検出器の180°方向を決定しその附近90°~225°まで22.5°おき7点測定した。

§ 3. 結果と考察

1511 keV の level について 534 keV を gate にした 1222 keV の角相関, 1222 keV を gate にした角相関の磁場 (7.17 kG) を反転した際の様子を第 3 図に示す。

測定時間は 1 角度あたり 4.11 h である。gate の数で normalize することにより崩壊の補正も行なっている。

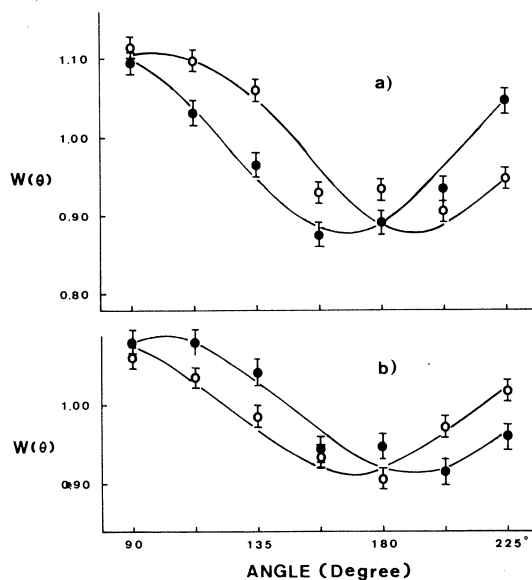
図にみられるように同一方向 (+B) の磁場に対して spin rotation によるずれ $\Delta\theta$ はそれぞれ gate エネルギーに関して大体一致しており, reasonable な結果を与えていると言える。更に逆方向 (-B) の磁場に対してそれぞれ gate について着目してみるとやはり spin rotation の影響によるずれが同程度みられる。これらの測定結果を次式に従い最小二乗法により fit させた。

$$W(\theta, B) = 1 + \frac{b_2}{\{1 + (2\omega_B\tau)^2\}^{\frac{1}{2}}} \cos 2(\theta - \Delta\theta) + \frac{b_4}{\{1 + (4\omega_B\tau)^2\}^{\frac{1}{2}}} \cos 4(\theta - \Delta\theta).$$

fit させた結果求められた $\Delta\theta$ の値を各カスケードについてまとめて第 1 表に示す。

第 1 表 各カスケード転移における $\Delta\theta$ 値。

カスケード	$\Delta\theta$ (rad)
+B 1222 keV - 534 keV (gate)	-0.21 ± 0.03
-B 1222 keV - 534 keV (gate)	0.22 ± 0.03
+B 534 keV - 1222 keV (gate)	0.21 ± 0.04
-B 534 keV - 1222 keV (gate)	-0.21 ± 0.03



第 3 図 4-(E 1, M2) 4+(M 1, E 2) 4+ Cascade による積分摂動角相関.
a) +B, b) -B.
•印 1222-534 (gate) keV,
○印 534-1222 (gate) keV.

これらの加重平均をとると結局

$$\Delta\theta = 0.21 \pm 0.02 \text{ (rad)}$$

が得られる。

1511 keV level の寿命は 0.27 ns と比較的短いので Q モーメントと電場勾配による相互作用の影響が弱いと仮定すると

$$\Delta\theta \approx \omega_B \tau$$

$$\omega_B = -\frac{B\mu}{\hbar I} = -g\mu_N \frac{B}{\hbar}, \quad B = -\frac{\hbar}{g} \frac{\omega_B}{\mu_N}$$

から $\tau = 0.278 \pm 0.008 \text{ ns}^{10)}$, $g = 0.78 \pm 0.10^{7)}$ を使うと B_{eff} が得られ、

$$B_{\text{eff}} = (-2.07 \pm 0.20) \times 100 \text{ kG}$$

外部磁場は 7.17 kG 故 $B_{\text{eff}} = B_{\text{hf}} + B_{\text{ext}}$ から

$$B_{\text{hf}} = (-2.14 \pm 0.20) \times 100 \text{ kG}$$

が得られる。これが求める hyperfine field である。次に 1422 keV - 534 keV gate についての測定結果を第 4 図に示す。

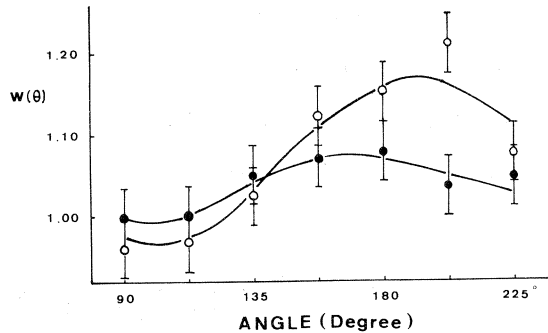
統計が悪いのでこの図から精度よく $\Delta\theta$ を求めることはできないが、 $\Delta\theta$ は観測されている。

Dy 磁気モーメントが変っているも Mössbauer 効果より得られるアイソマーシフトが大きく変っているも、Ib 族、IIb 族と Dy 合金中の Dy^{3+} の hyperfine field は金属 Dy の hyperfine field とそれ程変わらない。¹¹⁾ しかしこれまで得られた結果では Gd 金属、合金、化合物では結晶構造が

同じでも大きく変化する。¹⁾ すなわち environment effect が大きいと考えられるが Gd 核についてのみこのような大きな変化がみられる原因は未だ明らかではない。

本実験の結果も又、金属 Gd の値* $(-334 \pm 8) \text{ kG}$ と比較すると hyperfine field は $(-234 \pm 22) \text{ kG}$ と大幅に減少している。

一方 Tb 中 Gd の hyperfine field は古いデータではあるが $(-196 \pm 16) \text{ kG}$ at 77k と



第 4 図 4-(E1, M2) 4+(E2) 2+Cascade
る積分摂動角相関。
●印 +B, ○印 -B.

得られていてTbの影響は大きい。³⁾ TbZn中Gdでは2nd neighborにTbがあることによりTbの影響が緩和されていると考えられる。しかしTbZn中Gdの磁気モーメントが判っていない現状では単純にそれらの差が1st neighborのTbの寄与と言えないであろう。今後更に多くのIb族IIb族合金についての実験が必要である。

本実験を遂行するにあたり、実験全般にわたりご援助いただいた八木、近藤の両氏、試料を提供していただいた八代氏、変型Dewarの作成にあたっていただいた金研ガラス工場の二瓶、小山氏およびマシングループの方々に厚く感謝の意を表します。図のトレースを下さった黒沢君にも謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) K. Tomala *et al.*: Solid State Comm. **24**(1977) 857.
- 2) F. J. Van Steenwijk *et al.*: Physica **86-88 B**(1977) 89.
- 3) A. Weitsch and H. K. Walter: Z. Physik **216**(1968) 459.
- 4) I. Ben-Zvi *et al.*: Nucl. phys. **A 151**(1970) 401.
- 5) P. J. Wolfe and R. P. Scharenberg: Phys Rev. **160**(1967) 866.
- 6) 林部昭吾他: 核理研研究報告 **6** (1973) 70.
- 7) Saghirun-Nisa Khan *et al.*: J. Phys **G 1** (1975) 727.
- 8) T. Yashiro *et al.*: J. Phys. Soc. Japan **40** (1976) 1699.
- 9) M. Umehara and T. Kasuya: J. Phys. Soc. Japan **40** (1976) 13.
- 10) H. K. Walter and A. Weitsch: Z. Physik **211** (1968) 304.
- 11) I. Nowik *et al.*: Phys Lett. **15** (1966) 232.
- 12) E. R. Bauminger *et al.*: Phys. Rev. Lett. **34** (1975) 962.

*pure Gdのhyperfine fieldについては多くの異なる測定方法からデータが得られているが試料の状態がそれぞれ同一でなくはっきり決まっているとは言い難い。spinecho法NMRではdomain wall内の値を求めているが e^2qQ によってスペクトルが複雑になりidentificationが一義的でないし、Mössbauer効果ではスペクトルの分離がよくない。この点で最も信頼性のあるものは(Gd核についていえば) e^2qQ の効果を抑えることのできる $r-r$ 角相関のデータと考えられる。そこで (-334 ± 8) kG at $4.2\text{ K}^{7)}$ を採用した。powder sampleについてはMössbauer効果で (-325 ± 5) kG at 4.2 K が得られている。¹²⁾本実験では77Kで行っているので磁気モーメントの温度変化と同じ温度変化をすると仮定して4.2Kに外挿して (-234 ± 22) kGを得た。

III. 放 射 化 学

2・3の難溶性化合物による微量金属元素の 捕集ならびに光量子放射化分析への応用

理学部化学, 教養部*
梶本和義・加藤豊明*・鈴木信男

§ 1. 緒 言

放射化分析法は多くの元素について高感度な定量法であり, 最近では多元素を非破壊的に同時定量する方法として, その威力を発揮してきている。しかし, 天然物を本法で分析する場合多量共存元素および核反応断面積の大きい元素に起因する高いバックグラウンド放射能が生成し, 微量元素の定量が妨害されるためにそれら妨害放射能の除去がしばしば放射化分析に付随する課題となってきた。一般に問題となるバックグラウンド放射能としては, 中性子放射化ではナトリウムからの ^{24}Na , カリウムからの ^{42}K の生成が顕著な例である。光量子放射化では中性子放射化の場合ほど強い放射能が実際に生成することはないがマグネシウムから ^{24}Na , カルシウムから ^{43}K および ^{47}Ca が生成することにより数種の微量元素, とくに, 本法で特徴的な定量可能元素である鉛, ニッケルなどの定量に妨害となる。すなわち, バックグラウンド放射能としては一般に天然物中に常時多量存在するアルカリ・アルカリ土類金属元素に起因するものが多い。そこで本研究では, これら共存する妨害元素から微量の定量目的元素のみを分離し, 多元素同時定量の効果を挙げる目的で, 2, 3の難溶性化合物による第一遷移金属元素および鉛の共沈捕集法を検討し, これら化合物による簡単な属分離法の放射化分析への併用が多元素分析の迅速性ならびに感度の向上に役立つことを示した。本研究では, 無機沈殿剤としては, 水酸化鉄(Ⅲ)および水和二酸化マンガンを選んだ。これらは古くから放射化学的分離に利用されてきたが¹⁾, 遷移金属に関する多元素同時定量法としての検討は不充分である。有機沈殿剤としては, クペロン系の試薬で, 水に難溶で, 安定性の優れたN-ベンゾイルフェニルヒドロキシルアミン(BPA)²⁾を選んだ。水-エタノール混合溶液からエタノールを蒸発させ試薬を折出させるいわゆる共晶出法³⁻⁵⁾を検討した。また, 本実験で使用したトレーサーは全て光核反応を利用して製造したが, 他の核反応では得がたい ^{67}Cu の無担体分離など有用なトレーサーの製造分離についても検討した。

§ 2. 実 験

2.1 試 薬

N-ベンゾイルフェニルヒドロキシルアミン (BPA) はじめ使用した試薬はすべて市販特級品を用いた。鉄, マンガンおよびトレーサー製造に用いたターゲット物質は純度が99.99%以上の金属を用いた。鉛は純度99%以上の酸化鉛(II)を用いた。

2.2 トレーサー

トレーサーは60 MeV 制動放射により製造した。第1表に使用したトレーサーを示す。これら光核反応により生成した放射性残留核はイオン交換法, 溶媒抽出法などにより精製し放射化学的純度が高いことを確かめたうえで用いた。生成放射能は本実験の目的に十分なものであった。

第1表 60 MeV 制動放射により製造したトレーサー。

トレーサー核種	利用した核反応	ターゲット(重量)	照射時間(時間)	生成放射能
^{54}Mn	$^{56}\text{Fe}(\gamma, \text{pn})^{54}\text{Mn}$	Fe (1g)	60	15 μCi (C.F.)*
^{51}Cr	$^{56}\text{Fe}(\gamma, \alpha \text{n})^{51}\text{Cr}$	Fe (1g)	60	18 μCi (C.F.)
^{65}Zn	$^{66}\text{Zn}(\gamma, \text{n})^{65}\text{Zn}$	Zn (1g)	60	88 $\mu\text{Ci}/1\text{g}$
^{67}Cu	$^{68}\text{Zn}(\gamma, \text{p})^{67}\text{Cu}$	Zn (1g)	60	390 μCi (C.F.)
^{57}Ni	$^{58}\text{Ni}(\gamma, \text{n})^{57}\text{Ni}$	Ni (300 mg)	10	450 $\mu\text{Ci}/300\text{mg}$
^{58}Co	$^{60}\text{Ni}(\gamma, \text{pn})^{58}\text{Co}$	Ni (300 mg)	20	0.3 μCi (C.F.)
^{57}Co	$\left. \begin{array}{l} ^{58}\text{Ni}(\gamma, \text{p})^{57}\text{Co} \\ ^{58}\text{Ni}(\gamma, \text{n})^{57}\text{Ni} \xrightarrow{\beta^+} ^{57}\text{Co} \end{array} \right\}$	Ni (300 mg)	20	3.3 μCi (C.F.)
^{203}Pb	$^{204}\text{Pb}(\gamma, \text{n})^{203}\text{Pb}$	Pb (50 mg)	10	11 $\mu\text{Ci}/50\text{mg}$

* (C.F.): 無担体トレーサー

2.3 共沈殿分離

2.3.1 BPA 共晶出法

酢酸アンモニウム水溶液または酢酸ナトリウム水溶液(1.0M)を1ml, トレーサー溶液(金属含有量20 μg)を含む全容積50mlの水溶液にBPAのエタノール溶液(試薬含有量40mg)25mlを加えた。次に酢酸またはアンモニア水(酢酸ナトリウムの場合は水酸化ナトリウム水溶液)でpHを調節してから, ホットプレート上, 赤外ランプ下でエタノールを蒸発させた。蒸発を完全にするため25mlになるまで濃縮後, 一夜放置し吸引ろ過した。ろ紙および

濃縮したろ液をそれぞれポリエチレン試験管に移し、ろ紙上の沈殿はエタノールに溶解させそれぞれ等容積にしたものをNaI (TI) 井戸型シンチレーションカウンターで放射能測定した。

2.3.2 水酸化鉄(Ⅲ)による共沈捕集

2.3.1と同様に調整した水溶液に硝酸酸性Fe(Ⅲ)溶液(10 mg Fe/ml)を1 ml 加え、酢酸またはアンモニア水で所定のpHに調節してから、湯浴上(70～80℃)で約1時間加温し沈殿を熟成させた。冷却後、吸引ろ過した。試験管に移した沈殿は希硝酸で溶解しろ液を等容積にして測定試料とした。

2.3.3 水和二酸化マンガンによる共沈捕集

2.3.1と同様に調整した水溶液に塩酸酸性Mn(Ⅱ)溶液(10 mg Mn/ml)を1 ml 加えpH調節後湯浴上(70～80℃)で加温、平衡温度に達したところで過マンガン酸カリウム水溶液を必要量適下、約1時間加温熟成した。ろ過後、沈殿を試験管に移し硫酸酸性過酸化水素水で溶解して測定試料とした。

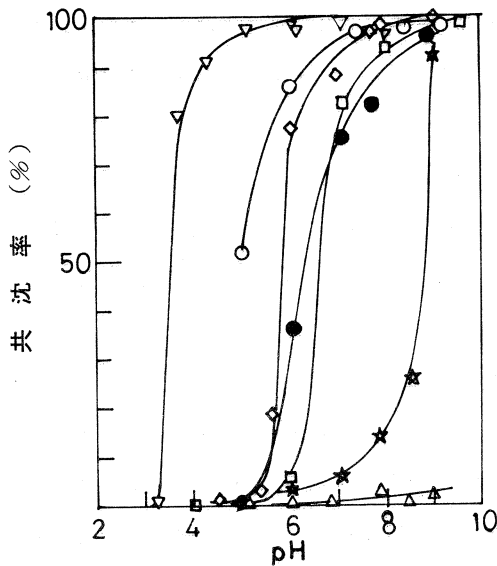
2.4 生物体標準試料の分析

米国NBSより配布のトレースアナリシス用標準試料SRM-1571 Orchard Leavesは元素含有量の公定値⁶⁾が与えられており、被検試料として適していることから、本実験では、Orchard Leavesを選んだ。元素含有量既知の合成標準試料と被検試料を同時に30 MeV制動輻射で5時間照射した。硝酸・過塩素酸で試料を湿式灰化後、最適pHに調節して2.3.1～3と同様にして共沈捕集を行なった。BPA共晶出では試薬量を60 mgとし、pHは9で捕集した。水酸化鉄(Ⅲ)、水和二酸化マンガン共沈ではpH8に調節した。生成した沈殿はろ別乾燥後、ろ紙ごとアルミニウム箔で包み1 cm × 1 cm (厚さ2 mm)の角柱に成型し測定試料とした。測定はGe(Li)検出器により行なった。

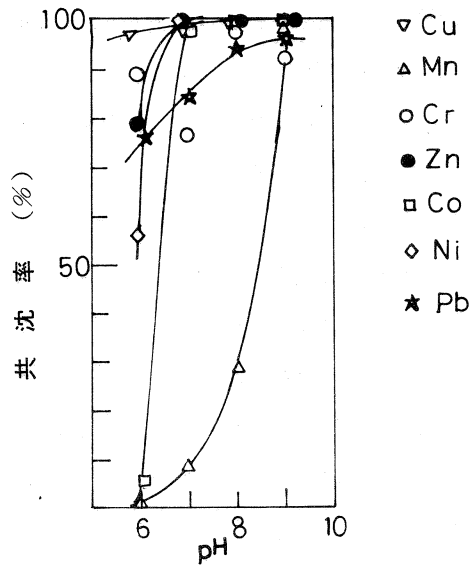
§ 3. 結果および考察

3.1 BPA共晶出法

トレーサー実験の結果得られた各元素の共沈率とpH値との関係を第1図ならびに第2図に示した。酢酸アンモニウム系の緩衝液でpHを調節した場合には、銅(Ⅱ)を除いて定量的な捕集を再現するのがむずかしく、鉛(Ⅱ)およびマンガン(Ⅱ)ではpH9までの領域で捕集が不完全であった。マクロ量の金属BPAキレートは次のようなpHで沈殿を生じることが知られている。すなわち、銅(Ⅱ)はpH 3.6～6.0²⁾、コバルト(Ⅱ)およびニッケル(Ⅱ)はpH 5.5～6.5²⁾、マンガン(Ⅱ)は6.3～7.8⁷⁾のpH範囲で定量的に沈殿する。第1図



第1図 BPA共晶出(酢酸アンモニウム系).



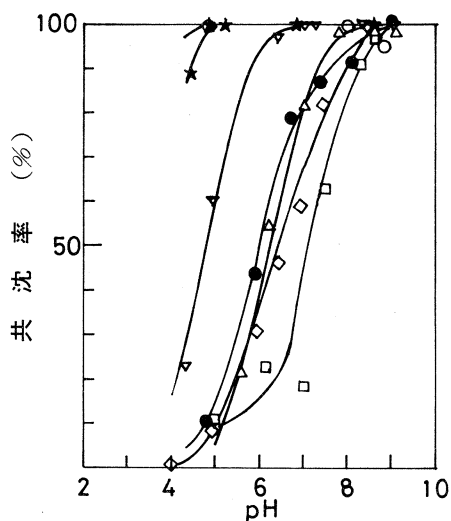
第2図 BPA共晶出(酢酸ナトリウム系).

と比較すると銅(Ⅱ)についての一致は良いが、コバルト(Ⅱ)およびニッケル(Ⅱ)についてはより高いpHで共晶出しており、さらにマンガン(Ⅱ)では不完全であるなどマクロ量の結果と必ずしも一致していない。エタノールの蒸発の際にアンモニアも同時に揮発しpHが低下するのが原因と考えられたので、酢酸ナトリウムと水酸化ナトリウム水溶液でpHを調節した。その結果を第2図に示す。第1図にくらべて全体に安定した回収結果が得られた。

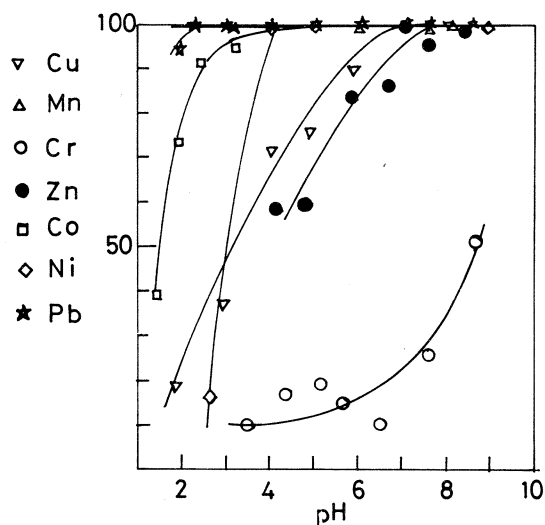
鉛(Ⅱ)はpH8から、マンガン(Ⅱ)はpH9で共晶出することがわかった。クロム(Ⅲ)ではバラツキがみられたがpH8~9では捕集された。Bag と Lahiri⁸⁾ はBPAの遷移金属錯体 $[M(BPA)_2]$ の安定度定数をpH滴定法により求め、50%ジオキサン-水系(0.1 M $NaClO_4$, $25 \pm 0.1^\circ C$)で銅(Ⅱ)、ニッケル(Ⅱ)、コバルト(Ⅱ)、亜鉛(Ⅱ)およびマンガン(Ⅱ)についてそれぞれ17.44, 10.72, 10.56, 10.58 および9.60という値を得ているが本実験の結果と比較すると共晶出が金属錯体の安全度定数に顕著に依存するといえる。本実験結果からは目的元素の捕集の最適pHは9付近となり、実試料への適用の際にはキレート生成と水酸化物生成が競合するpH領域となるため、更に完全な捕集のための工夫、検討が必要と思われる。

3.2 水酸化鉄(Ⅲ)共沈法

共沈結果を第3図に示す。目的元素の捕集はpH8~9で行なえることがわかった。これらの共沈結果は鉛(Ⅱ)を除いて各元素の水酸化物が沈殿するpH領域とはほぼ同じ傾向を示して



第3図 水酸化鉄(Ⅲ)への共沈.



第4図 水和二酸化マンガンへの共沈.

おり、トレーサー量の元素は単独では水酸化物の沈殿形成には至らなくても水酸化鉄(Ⅲ)の共存により、沈殿にとりこまれることが考えられる。水酸化鉄(Ⅲ)は低いpHで陰イオン交換性、高いpHで陽イオン交換性を示すことが知られているが、遷移金属の共沈の場合は加水分解機構による吸着が支配的だと考えられる。

3.3 水和二酸化マンガン共沈法

二酸化マンガンも無機イオン交換体として知られており、陽イオン交換性を有する。また水酸化鉄(Ⅲ)にくらべて選択的なのが特徴といえる。第4図に共沈結果を示す。クロム(Ⅲ)を除いて水酸化鉄(Ⅲ)にくらべて低いpHから共沈を生じることがわかった。沈殿生成直後の水和二酸化マンガンはクロム(Ⅲ)と



なる反応を生じクロム(VI)に変わることが知られており、その結果水和二酸化マンガンへの共沈率が減少すると考えられる。一たん乾燥粉末にした水和二酸化マンガンへの陽イオンの吸着を調べた実験⁹⁾によるとクロム(Ⅲ)は0.1M硝酸酸性溶液から完全に吸着することが知られており、水和二酸化マンガン生成時と生成後無機イオン交換体として利用した場合の吸着の挙動は異なるということができる。

3.4 実試料の分析

分析に利用した核反応および妨害例について第2表に示した。前報¹⁰⁾で示したように核反応による妨害の程度を見積もるためマンガンのみを一定量含むセルロースペレットを作製し光

第2表 分析に利用した核反応および妨害.

元素	核 反 応	残留核の半減期	主な γ 線 (keV)	妨害反応および γ 線の重なり
Cr	$^{52}\text{Cr} (\gamma, n)^{51}\text{Cr}$	27.8日	320	$^{56}\text{Fe} (\gamma, \alpha n)^{51}\text{Cr}$
Mn	$^{55}\text{Mn} (\gamma, n)^{54}\text{Mn}$	303日	835	$^{56}\text{Fe} (\gamma, p n)^{54}\text{Mn}$
Fe	$^{57}\text{Fe} (\gamma, p)^{56}\text{Mn}$	2.576時間	846	$^{55}\text{Mn} (n, \gamma)^{56}\text{Mn}$
Co	$^{59}\text{Co} (\gamma, n)^{58}\text{Co}$	71.3日	810	$^{48}\text{Ca} (\gamma, n)^{47}\text{Ca}$ (4.53日 813 keV) $^{60}\text{Ni} (\gamma, p n)^{58}\text{Co}$
Ni	$^{58}\text{Ni} (\gamma, n)^{57}\text{Ni}$	36時間	1378	$^{25}\text{Mg} (\gamma, p)^{24}\text{Na}$ (15時間 1368 keV)
Zn	$^{58}\text{Zn} (\gamma, p)^{67}\text{Cu}$	59時間	185	$^{71}\text{Ga} (\gamma, \alpha)^{67}\text{Cu}$
	$^{66}\text{Zn} (\gamma, n)^{65}\text{Zn}$	245日	1115	^{214}Bi (1120 KeV, 天然放射能)
Cu	$^{65}\text{Cu} (\gamma, n)^{64}\text{Cu}$	12.8時間	1346	$^{66}\text{Zn} (\gamma, p n)^{64}\text{Cu}$
Pb	$^{204}\text{Pb} (\gamma, n)^{203}\text{Pb}$	52.1時間	279	$^{204}\text{Hg} (\gamma, n)^{203}\text{Hg}$ (46.9日, 279 keV)

中性子をモニターした。以上のような核反応による妨害のほかにスペクトルの重なりによる妨害についても考慮した。ニッケルやコバルトの定量では、多量共存元素であるマグネシウムおよびカルシウムからそれぞれ ^{24}Na , ^{47}Ca が生成し、 γ 線光電ピークの重なりが生じるために非破壊では定量がむずかしくなる。これらの妨害についてはこれまで述べてきた共沈分離法を利用することにより除くことができると予想される。

そこで、あらかじめ30 MeV 制動放射で照射した合成試料を湿式灰化して一定容積に希釈して作製した溶液を準備した。この溶液から一定量ずつ4倍をとり、一部は蒸発乾固、他の3部はそれぞれの共沈法で目的元素の捕集を行なった。各共沈法と蒸発乾固して得られた測定試料の γ 線スペクトルの強度比から目的元素の同時捕集の効果を調べた。第3表に結果を示す。本実験結果は計数効率の低い24 cm³ Ge (Li) 検出器を用いたため計数の際の統計誤差が大きくまた蒸発乾固して作製した測定試料と共沈捕集して作製した試料とでは測定の際に若干のジオメトリーの差があり、これらの誤差を考慮すると結果の精度については問題がある。BPA共晶出では、ニッケルがやや低い以外は定量的捕集ができたと思われる。水和二酸化マンガンはクロムの捕集が不完全であった。水酸化鉄(Ⅲ)ではやはりクロムの捕集が不完全である他にニッケルがやや低い。

次に実試料としてOrchard Leavesに以上の共沈法を適用した。 γ 線スペクトルの例として非破壊の場合とBPA共晶出の場合について第5図に示す。非破壊でのスペクトルは共晶出の測定日より更に1日経過した時点でのものであるが、 ^{24}Na , ^{43}K が残存している。BPA共

第4表 Orchard Leaves の定量結果 (ppm).

元素	文献値 ^{27, 28)}	B P A 共晶出	Mn O ₂ 共沈	F e (OH) ₃ 共沈
C r	(2.3)	2.1 ± 0.9	————	————
Mn	91 ± 4	143 ± 3	121 ± 2	89 ± 2
F e	300 ± 20	200 ± 80	310 ± 70	330 ± 60
C o	(0.2)	0.2 ± 0.1	0.2 ± 0.1	0.1 ± 0.1
N i	1.3 ± 0.2	0.8 ± 0.1	1.3 ± 0.1	1.0 ± 0.1
Z n	25 ± 3	29.9 ± 1.2	26.7 ± 1.4	17.2 ± 1.2
P b	45 ± 3	37.3 ± 0.7	43.7 ± 0.8	45.3 ± 0.8

※本実験の誤差は測定に伴う統計誤差である。

晶出のスペクトルでは、⁶⁷Cu, ²⁰³Pb, ⁵⁴Mn および ⁵⁷Ni の光電ピークのSN比は非常に向上した。光量子放射化で特徴的な⁸⁹Zr の光電ピークも顕著に現われた。定量結果を第4表に示す。それぞれ1回の定量結果であるため測定にともなう統計誤差も併記した。誤差から考えてクロムおよびコバルトは本法の感度に近い値であり、照射条件、測定条件の改善により感度の向上をはかる必要があることがわかった。クロム、コバルト、ニッケル、亜鉛および鉛では良好な定量結果を得ることができたが更に再現性を検討していく必要がある。

有機沈殿剤、無機沈殿剤による共沈捕集は方法が簡便で実用性のある方法であり、非破壊では定量することができなかったニッケル、鉛、クロムおよびコバルトなど7元素（無機沈殿剤ではクロムを除く6元素）の定量値を数日以内で得ることができる。今後、元素の原子価や共存塩の影響などの基礎検討が進めば実試料への利用に十分役立つ手段となることが期待される。

本研究にあたりお世話いただい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グループの皆様には厚く御礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) A. K. Lavrukina, T. V. Malysheva and F. I. Pavlot'skaya : *Chemical Analysis of Radioactive Materials* (Ilfie Books Ltd, London 1967).
- 2) A. K. Majundar : *N-Benzoylphenylhydroxylamine and its analogues*

(Pergamon Press , Oxford 1972)

- 3) H. V. Weiss and W. H. Shipman : Anal. Chem. **34** (1962) 1010.
- 4) H. V. Weiss , M. G. Lai and A. Gillespie : Anal. Chim. Acta **25** (1961) 550.
- 5) H. V. Weiss and M. G. Lai : Talanta **8** (1961) 72.
- 6) P. D. LaFleur : J. Radioanal. Chem. **19** (1974) 227.
- 7) S. P. Bag and S. Lahiri : J. Ind. Chem. Soc. **52** (1975) 593.
- 8) S. P. Bag and S. Lahiri : J. Inorg. nucl. chem. **38** (1976) 1611.
- 9) C. Bigliocca , F. Girardi, J. Pauly , E. Sabbioni, S. Meloni and A. Provasoli : Anal. Chem. **39** (1967) 1634.
- 10) 加藤豊明, 榎本和義, 鈴木信男 : 核理研研究報告 **9** (1976) 277.

チオナリドを用いる不足当量法による ヒ素の放射化分析

科学警察研究所，理学部化学*

神田征夫・鈴木信男*

§ 1. 緒 言

水銀、カドミウムなどによる環境汚染が明らかにされて以来、有害性金属の環境汚染が大きな社会問題となっている。ヒ素もその強い毒性により関心が持たれている元素であり、生物体試料中の微量ヒ素の放射化分析法が数多く報告されている¹⁻⁹⁾。しかし、その多くが他元素との同時分析法であり、環境汚染の観点から考えるとさらに精度の高い、迅速な分析法の開発が望まれる。

著者らのひとりにより始められた不足当量法による放射化分析法^{10,11)}は、従来の破壊放射化分析法に較べ、精度および迅速性の点ですぐれた分析法であり、多くの元素に対してその応用研究がなされている¹²⁾。ヒ素についてもZemanらが¹³⁾ シリコン中の微量のヒ素をジエチルジチオカルバミン酸亜鉛を用いた不足当量法で分析している。

今回、著者らは環境物質中の微量ヒ素の迅速で精度の高い分析を目的に、ヒ素の沈殿試薬¹⁴⁾、抽出試薬¹⁵⁾として知られているチオナリド (Thioglycolic- β -aminonaphthalide) を用いてヒ素の不足当量法を検討した。また、その応用として光量子放射化分析によりサメ魚肉中のヒ素を分析し、精度の高い結果を得ることができた。

§ 2. 実 験

2.1 試 薬

チオナリド：市販品をエタノールから再結晶して用いた。

ヒ素(Ⅲ)担体溶液：特級三酸化ヒ素を少量の1 N水酸化ナトリウム溶液で溶解した後、硫酸で酸性とし、水で希釈して1.0 mg/mlの溶液を調製し、原液とした。

⁷⁴As(Ⅲ)トレーサー溶液：電子ライナックで照射した特級三酸化ヒ素を少量の1 N水酸化ナトリウム溶液で溶解し、濃塩酸で10 N塩酸溶液としてベンゼンで抽出した後、0.1 N硫酸溶液で逆抽出して調製した。

^{74}As (V) トレーサー溶液：照射した特級三酸化ヒ素を少量の 1 N 水酸化ナトリウム溶液で溶解し、過酸化水素水を加えて加熱酸化した。蒸発乾固後、0.1 N 硫酸溶液で溶解して調製した。

その他の試薬はすべて市販特級品をそのまま用いた。

2.2 光量子照射

サメ魚肉の粉末の 0.2 g をアルミニウムの箔に包んでペレットに成型した試料と、比較標準試料として同様に成型した既知量のヒ素を含むセルロースペレットとを一緒に石英管に封入し、東北大学原子核理学型究施設の電子ライナックを用いて 30 MeV の制動輻射で 4.5 時間照射した。

2.3 基礎検討のための実験操作

ヒ素のトレーサーを含む水溶液にチオナリドのエタノール溶液の 0.1 ml を加えて全量を 5.0 ml で 30 秒間振り混ぜて抽出する。有機層の 2.0 ml をポリエチレン製棒びんに移し、その放射能を井戸型 NaI (Tl) 検出器を用いて測定する。

2.4 サメ試料の分析操作

照射したサメ試料および比較標準試料を、それぞれ 500 μg のヒ素 (III) の担体の入った 100 ml のコニカルビーカーに移し、濃硫酸 7 ml と濃硝酸 10 ml を加えてホットプレート上で加熱分解する。濃硝酸を分解液が淡黄色透明になるまで適時加えた後、無水硫酸の白煙がでるまで加熱を続ける。冷却後、硫酸濃度がほぼ 5 N になるように水で希釈してヨウ化カリウム 0.2 g を加え、10 分間加熱する。冷却後、溶液を分液漏斗に移し、アスコルビン酸 0.1 g を加えてヨウ素を還元し、 $2.5 \times 10^{-2}\text{M}$ のチオナリドのエタノール溶液の 0.1 ml を加えて 30 分間放置する。生成したキレート を 1,2 -ジクロロエタン 20 ml で 30 秒間振り混ぜて抽出する。1,2 -ジクロロエタン層を別の分液漏斗に移し、1.5 mg のカドミウムを含む pH 10.3 の緩衝溶液 30 ml を加えてヒ素 (III) を逆抽出する。水層を共栓付遠沈管に移して濃硫酸 5 ml を加える。 $2.5 \times 10^{-2}\text{M}$ のチオナリドのエタノール溶液の 0.5 ml を加えて 30 秒間放置した後、キレートを 1,2 -ジクロロエタン 5.0 ml で 30 秒間振り混ぜて抽出する。遠心分離後、1,2 -ジクロロエタン層の 2.0 ml を取り、放射能を測定する。

§ 3. 結果と考察

3.1 チオナリドによるヒ素の抽出

ヒ素 - チオナリドの抽出溶媒として 6 種類の溶媒について検討した。結果を第 1 表に示すが、四塩化炭素では、界面にキレートの沈殿物が認められ、抽出率はわずかに 4% にすぎなかった。

しかし、それ以外の溶媒はいずれも80%以上の抽出率を示し、なかでも1,2-ジクロロエタンは98%と最も高い抽出率を示した。

振り混ぜ時間は30秒で十分であり、5分以上になると振り混ぜ時間の増加とともに抽出率が減少する傾向がみられた。以後の実験ではキレートの抽出のための振り混ぜ時間を30秒とした。

予備実験でキレートの生成がかなり遅いことが明らかとなったので、チオナリドを水溶液に加えてからキレートを抽出するまでの放置時間を変え、過剰のチオナリドで抽出を行った時のヒ素(Ⅲ)とヒ素(Ⅴ)の抽出曲線を第1図に示す。ヒ素(Ⅲ)は3~5N硫酸溶液およびpH 6~8の溶液から30分の放置で定量的に抽出されることが明らかとなった。

一方、ヒ素(Ⅴ)はこれらの条件下では全く抽出されなかった。また、ヒ素(Ⅲ)の抽出におよぼす酸の影響を5Nの硫酸、塩酸、硝酸について検討した結果、それぞれ98%、93%、73%であった。

った。

一方、ヒ素(Ⅴ)はこれらの条件下では全く抽出されなかった。また、ヒ素(Ⅲ)の抽出におよぼす酸の影響を5Nの硫酸、塩酸、硝酸について検討した結果、それぞれ98%、93%、73%であった。

3.2 ヒ素(Ⅲ)の不足当量抽出

3.1で得られた結果から、キレートの生成のための放置時間を30分、1,2-ジクロロエタ

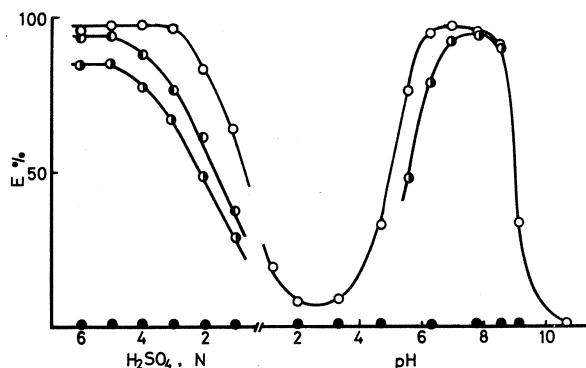
ンを抽出溶媒として5N硫酸溶液からのヒ素(Ⅲ)の不足当量抽出を検討した。

不足当量法では、存在する金属と反応するより少ない試薬を反応させ、金属と試薬との反応比がつねに一定であることが必要である。そこで、種々の量のヒ素(Ⅲ)(比放射能は一定)

第1表 Effect of organic solvents on extraction of As(Ⅲ) thionalate.

Solvent	Extraction %
CH ₂ ClCH ₂ Cl	98
CHCl ₃	94
C ₆ H ₆	90
MIBK	84
C ₆ H ₅ Cl	81
CCl ₄	4

Aq phase : 5 NH₂SO₄
Thionalide : 3.0 × 10⁻⁴ M



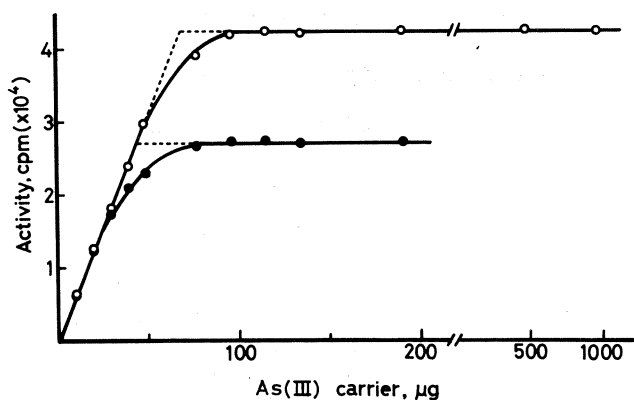
第1図 Extraction curves of As(Ⅲ) and As(Ⅴ) thionalates.

Thionalide : 3.0 × 10⁻⁴ M, Solvent : 1, 2-dichloroethane,
Standing time : As(Ⅲ) —○— 5 min., —●— 10 min., —●— 30 min. As(Ⅴ) —○— 30 min.

を含む5 N硫酸溶液にそれぞれ $3.0 \times 10^{-4} \text{M}$, $5.0 \times 10^{-4} \text{M}$ のチオナリドを加え, 1,2-ジクロロエタンで抽出して得られた有機相の放射能を測定した。結果を第2図に示す。

それぞれ, 80 μg , 100 μg 以上のヒ素(III)に対して $3.0 \times 10^{-4} \text{M}$, $5.0 \times 10^{-4} \text{M}$ のチオナリドで抽出されるヒ素(III)の量は一定であり, ヒ素(III)とチオナリドとの反応比が一定であることが明らかとなった。

反応比を第2図の曲線を内挿して求めたところ, 2.88, 2.81 であり, ヒ素(III)はチオナリドと1:3のキレートを生成しているものと考えられる。



第2図 Reproducibility of substoichiometric extraction of As(III).

Thionalide : ○ $5.0 \times 10^{-4} \text{M}$, ● $3.0 \times 10^{-4} \text{M}$.

3.3 再現性

ヒ素(III)の不足当量抽出の再現性を検討し, 第2表のような結果を得た。同一組成溶液からのヒ素(III)の抽出における5回の測定の相対標準偏差は0.9%であり, この分析法の精度

第2表 Reproducibility of the substoichiometric extraction from the test solutions of the same component.

Series of experiment	Test soln.No.	Activity of extract, cpm	
		1st extraction	2nd extraction
1	1	5824	
	2	5928	
	3	5855	
	4	5788	
	5	5857	
		5850 ± 52	
2	6	5841	5973
	7	5893	5904
	8	5924	5881

As(III) : 203 μg , Thionalide : $5.0 \times 10^{-4} \text{M}$.

が0.9%と極めてすぐれていることが明らかとなった。また、不足当量法は不足当量の試薬を用いることから、同一溶液からくり返し抽出分析できる特長があるが、2回のくり返し抽出についても第2表に示すように良い結果が得られた。

3.4 共存金属イオンの影響

ヒ素(Ⅲ)の不足当量抽出におよぼす共存金属イオンの影響を検討し、結果を第3表に示す。水銀とアンチモンの100 μg の共存がヒ素(Ⅲ)の不足当量抽出を妨害することが認められたが、それ以外の金属イオンはそれらの1 mg の共存でもほとんど妨害しなかった。

第3表 Interference of diverse ions in substoichiometric extraction of As(Ⅲ) thionalate.

Ion	Activity of extract, cpm
None	5766
Fe ³⁺	5744
Co ²⁺	5648
Ni ²⁺	5723
Cu ²⁺	5681
Zn ²⁺	5719
Cr ³⁺	5660
Pb ²⁺	5784
Hg ²⁺ *)	2587
Cd ²⁺	5725
Sb ³⁺ *)	3721

Amount of ion added: 1 mg, *) 100 μg ,
As(Ⅲ): 203 μg , Thionalide: $5.0 \times 10^{-4}\text{M}$.

3.5 実試料の分析のための基礎検討

実試料の分析では、試料を硫・硝酸で加熱分解するためヒ素は酸化されてすべてヒ素(V)となっている。ヒ素(V)はチオナリドとキレートを生成しないため不足当量抽出に先立ち、ヒ素(Ⅲ)に還元しなければならない。

還元剤としてヨウ化カリウムを用いたが、不足当量法では従来の分析法とは異なり、すべてのヒ素(V)を還元する必要がないので、その詳しい検討はとくには行わなかった。

また、ヒ素(Ⅲ)の不足当量抽出における水銀とアンチモンの妨害の除去について検討した。すなわち、ヒ素(Ⅲ)の逆抽出およびアンチモンの抽出を検討した結果、水銀が逆抽出されな

い pH 10～11 でヒ素(Ⅲ)は完全に逆抽出され、アンチモンは 5 N 硫酸溶液からはほとんど抽出されないことが明らかとなった。従って、予め 5 N 硫酸溶液からチオナリドでヒ素(Ⅲ)を抽出し、その後 pH 10～11 の溶液に逆抽出してから不足当量抽出することで、これらの金属イオンの妨害を除くことができた。しかしこの場合、チオナリドも pH 10～11 の溶液に逆抽出され、ヒ素(Ⅲ)の不足当量抽出の妨害となる。この点については、逆抽出されるチオナリドを過剰のカドミウムで、カドミウムキレートとして有機相に抽出してヒ素(Ⅲ)だけを逆抽出することができた。

3.6 サメ魚肉中のヒ素の分析

2.4 の操作に従ってサメ魚肉中のヒ素を分析し、結果を第 4 表に示す。

第 4 表 Analytical results.

Sample taken, mg	256.9	232.4	236.8
Amount of As in standard, μg	23.9	23.9	24.6
Activity obtained from sample	23183	21625	20425
Activity obtained from standard	20603	16673	15060
Amount of As found in sample, ppm	82.6	79.3	76.6

Activity is expressed in counts / 2000sec

Ge(Li)検出器により試料から抽出分離したヒ素のフラクシヨンの γ 線スペクトルを測定した結果、 ^{74}As の光電ピークと B. G. の光電ピーク以外には光電ピークが見られず、他の元素との分離は完全であることが明らかであった。3 回の分析から、ヒ素の含有量として 79.5 ± 3.0 ppm の定量値が得られ、その相対標準偏差が 3.8% と精度の高い結果が得られた。

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の八木益男助教授、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) B. Sjöstrand : Anal. Chem. **36** (1964) 814.
- 2) K. Samsahl, P. O. Wester and O. Landström : *ibid.* **40** (1968) 181.
- 3) G. H. Morrison and N. M. Potter : *ibid.* **44** (1972) 839.

- 4) E. Orvini, T. E. Gills and P. D. LaFleur : *ibid.* **46** (1974) 1294.
- 5) K. K. S. Pillay, C. C. Thomas and J. C. M. Hyche : *J. Radioanal. Chem.* **20** (1974) 597.
- 6) 神田征夫, 磯野秀夫, 狐塚寛 : *分析化学* **24** (1975) 709.
- 7) F. W. Wilshire, J. P. Lambert and F. E. Butler : *Anal. Chem.* **47** (1975) 2399.
- 8) P. Lievens, R. Cornelis and J. Hoste : *Anal. Chim. Acta* **80** (1975) 97.
- 9) S. J. Yeh, P. Y. Chen, C. N. Ke, S. T. Hsu and S. Tanaka : *ibid.* **87** (1976) 119.
- 10) N. Suzuki and K. Kudo : *ibid.* **32** (1965) 456.
- 11) 工藤冽, 鈴木信男 : *日化* **86** (1965) 1050.
- 12) K. Kudo and N. Suzuki : *J. Radioanal. Chem.* **26** (1975) 327.
- 13) A. Zeman, J. Ruzika, J. Stary and E. Kleckova : *Talanta* **11** (1964) 1143.
- 14) Welcher : *Organic Analytical Reagents* (D. Van Nostrand, 1959) 5th ed., Vol. IV. p. 164.
- 15) 中谷省三 : *分析化学* **12** (1963) 241.

金属錯体のイオン交換吸着分離法を利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

山下美智子・鈴木信男

§ 1. 序 文

生物体中の微量金属元素の存在度はその生物的役割を知る基礎資料として重要である。放射化分析法は多数の元素に関して高感度な分析法であり¹⁾ しかも多元素同時分析が可能であるため、生物体中の微量金属元素の同時定量に適した方法といえることができる。しかし、非破壊法で行う場合には一般に主成分元素に起因する強いマトリックス放射能が生成するので、目的核種からの放射能を検出するまでに時間を要したり、近接の γ 線エネルギーをもつ他核種からの妨害で定量値の誤差が大きくなることなどが難点としてあげられる。そこで放射化後のマトリックス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²⁻⁴⁾ 多元素同時分析の効果を上げることができる。この目的のための方法としては、溶媒抽出法、金属の水和酸化物への共沈⁵⁾ キレート化剤としての有機化合物への共晶出^{6,7)} イオン交換法などの応用が検討されてきている。本研究では、キレート生成の際の選択性と、イオン交換樹脂の処理能力を同時に活用し、不溶性のイオン対として、イオン交換樹脂と電荷をもつ金属キレートのイオン対を生成させて目的元素を樹脂相に分離濃縮する方法^{8,9)} の研究と放射化分析への適用を試みた。

対象金属としてはCr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn およびPb の8元素を選び、キレート試薬としてはトロポロン-5-スルホン酸を用いた。金属キレートのイオン交換樹脂に対する交換吸着の基礎検討はトレーサー法で行った。また、多元素同時定量への実際の適用の例としてはNBSの生物体標準試料Orchard Leavesの他に数種の生物体標準試料を光量子放射化後、処理を行いその分析結果の信頼性について検討した。

§ 2. 実 験

2.1 R I トレーサー

基礎検討に使用した各元素のトレーサーのうち⁵¹Cr, ⁵⁴Mn, ⁵⁸Co, ⁵⁷Co, ⁵⁷Ni, ⁶⁷Cu,

^{203}Pb は東北大学の電子ライナックによる光核反応により製造したものであるが, ^{59}Fe , ^{65}Zn は Amersham Radiochemical Center, England から購入したものを希釈して用いた。それらの照射条件ならびに核的性質を第 1 表に示す。 ^{51}Cr , ^{54}Mn , ^{58}Co , ^{57}Co , ^{67}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 60 MeV 制動輻射により製造したトレーサー。

目的元素	トレーサー核種	利用した核反応	照射時間(時間)	残留核の半減期	主な r 線(MeV)
Cr	^{51}Cr	$^{56}\text{Fe}(\gamma, \alpha n)^{51}\text{Cr}$	30	27.8 d	0.320
Mn	^{54}Mn	$^{56}\text{Fe}(\gamma, pn)^{54}\text{Mn}$	30	303 d	0.835
Fe	$^{59}\text{Fe}^*$			45 d	1.292
Co	^{58}Co	$^{60}\text{Ni}(\gamma, pn)^{58}\text{Co}$	20	71.3 d	0.511, 0.8105
	^{57}Co	$^{58}\text{Ni}(\gamma, p)^{57}\text{Co}$ $^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni} \xrightarrow{\beta^+} ^{57}\text{Co}$	20	270 d	0.1219, 0.1363
Ni	^{57}Ni	$^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$	10	36.0 h	0.511, 1.37, 1.89
Cu	^{67}Cu	$^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Cu}$	60	59 h	0.185
Zn	$^{65}\text{Zn}^*$			245 d	0.511, 1.115
Pb	^{203}Pb	$^{204}\text{Pb}(\gamma, n)^{203}\text{Pb}$	10	52.1 h	0.279

* : 購入

2.2 キレート試薬の合成

キレート試薬として用いたトロポロン-5-スルホン酸 ($k_a = 1.2 \times 10^{-5}$, $25.0 \pm 0.1^\circ\text{C}^{(10)}$) は野副・瀬戸らの方法¹¹⁾に従い, トロピリデンからトロポロンを経てトロポロン-5-スルホン酸のアンモニウム塩として合成した。トロポロンは昇華法で精製し, トロポロン-5-スルホン酸は水から再結晶した。

2.3 試薬類

試薬はすべて市販特級品を用いた。酢酸塩緩衝溶液は酢酸イオン濃度が 0.5 M になるよう調製して保存した。イオン交換樹脂は Dowex 1 X 8 (100 ~ 200 mesh) を 2 N - NaOH および 2 N - HCl で交互に前処理して最後に Cl 型にし, 40°C に 24 時間保って乾燥したものを用いた。

2.4 基礎検討

各金属キレートのイオン交換樹脂への交換吸着状況の検討は, 次のような操作に従って実験した。すなわち, トロポロンスルホン酸水溶液, RI トレーサーでラベルした金属イオンの酸

性溶液、緩衝溶液をそれぞれ最終濃度が $1.2 \times 10^{-4} \text{M}$ 、 $1.11 \times 10^{-6} \text{M}$ 、酢酸イオン濃度が 0.3M になるように遠沈管に加えた。全容は 30ml とした。所定の pH 値に調製した後にイオン交換樹脂の一定量を加えて振とう器で一定時間振とうした。その後グラスフィルターを用いて溶液を分離し、この 5ml をポリエチレン試験管にとって放射能を NaI(Tl) 井戸型シンチレーションカウンターで測定した。比較標準試料は同濃度のトロポロンスルホン酸溶液、RITレーサー溶液、緩衝溶液を混合した溶液 5ml をポリエチレン試験管にとったものを用いた。交換吸着率は次式のようにして求めた。

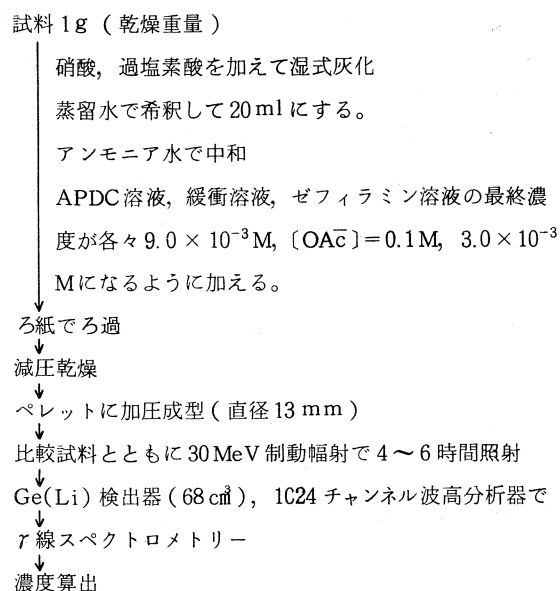
$$\text{交換吸着率 (\%)} = \frac{A_r - A_s}{A_r} \times 100$$

A_r : 比較標準試料の放射能 (cpm)

A_s : 樹脂と平衡後の溶液相の放射能 (cpm)

2.5 実試料の分析操作

生物体試料中の諸元素の同時分析法は第1図の操作に従って行った。すなわち、乾燥試料 1g を直径 13mm のペレットに加圧成型して同型のペレットとした比較標準試料と共に 30MeV 制動輻射で $3 \sim 4$ 時間照射した後、濃硝酸と過塩素酸で湿式灰化し、ほぼ蒸発乾固した。残渣を少量の蒸留水で溶解し、不溶性の SiO_2 、 KClO_4 をろ紙を用いてろ過して除いた。ろ紙を蒸留水 6ml で洗浄後、ろ液にトロポロンスルホン酸溶液を最終濃度が $3.6 \times 10^{-2} \text{M}$ になるように加え、アンモニア水で pH



第1図 実試料分析の実験操作

を $6 \sim 8$ に調整し、酢酸イオン濃度が 0.1M になるように酢酸塩緩衝溶液を加えてからイオン交換樹脂を 1.5g 加えて振とう器で 1 時間振とうした。ろ紙を用いてろ過し、樹脂相をオープン内で 40°C に保ち約 10 時間乾燥した。乾燥した樹脂をアルミニウム箔に包み、直径 15mm 、厚さ 13mm の測定試料にした。 γ 線スペクトロメトリーには $68 \text{cm}^3 \text{Ge(Li)}$ 半導体検出器と 1024 チャンネル波高分析器を用い、上記の測定試料と、同時に照射した比較標準試料を測定

した。比較標準試料は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一定量をとり、直径13mmのペレットに加圧成型したものを用いた。その成分と濃度は第2表に示したとおりである。また、実試料と比較標準試料の厚さの差異に起因するジオメトリの変化を補正するため、比較標準試料の場合には厚さ5mm、直径13mmの樹脂ペレットで前後をはさんで測定した。定量に用いた残留核の核的性質および定量の際に妨害となる r 線を第3表に示す。

第2表 比較標準試料の成分と濃度。

元素	化学形	元素濃度 ($\mu\text{g/g}$)
Cr	Cr_2O_3	500
Mn	MnO_2	200
Fe	Fe_2O_3	550
Co	Co_2O_3	50
Ni	NiO	60
Cu	CuO	200
Zn	ZnO	200
Pb	PbO	60

第3表 実試料分析に利用した核反応とその残留核ならびに妨害となる r 線。

元素	核反応	残留核の半期	定量に利用した r 線 (MeV)	妨害となる r 線
Cr	$^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$	27.8 d	0.319	
Mn	$^{55}\text{Mn}(\gamma, n)^{54}\text{Mn}$	303 d	0.835	
Fe	$^{57}\text{Fe}(\gamma, p)^{56}\text{Mn}$	2.576 h	0.847	
Co	$^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{58}\text{Co}$	71.3 d	0.811	$^{48}\text{Ca}(\gamma, n)^{47}\text{Ca}$ (4.53日, 0.810 MeV)
Ni	$^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$	36.0 h	1.378	$^{25}\text{Mg}(\gamma, p)^{24}\text{Na}$ (15.0時間, 1.368 MeV)
Cu	$^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$	12.8 h	1.340	
Zn	$^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Cu}$	59 h	0.185	
Pb	$^{204}\text{Pb}(\gamma, n)^{203}\text{Pb}$	52.1 h	0.279	

§ 3. 結果と考察

3.1 基礎検討

3.1.1 振とう時間と交換吸着率との関係

各金属キレートに関して振とう時間と交換吸着率の関係を求めるための基礎操作に従い樹脂量を0.1g、pH 7.5の条件で実験した。Ni(II)についての結果を第2図に示す。Mn(II), Fe(III), Co(II), Ni(II), Cu(II), Zn(II), Pb(II)は10分間の振とう時間で完全に交換

吸着して平衡に達したが、Cr(Ⅲ)に関しては本実験の範囲では完全に吸着捕集できる条件は得られなかった。以後の実験においては振とう時間を1時間で行った。

3.1.2 使用樹脂重量と交換吸着率との関係

Ni(Ⅱ)とPb(Ⅱ)のキレートについて使用樹脂重量と交換吸着率との関係を求めたが、Ni(Ⅱ)の結果を第3図に示した。Ni(Ⅱ)では樹脂が0.1g以上で完全な交換吸着が行われているが、Pb(Ⅱ)の場合は使用した樹脂重量の範囲ではこれに無関係に交換吸着率が90%であった。また試薬濃度を10倍にした場合には平衡時の交換吸着率は95%であった。

3.1.3 pHと交換吸着率との関係

各金属キレートについてpHと交換吸着率の関係を求めた結果が第4図である。図より明らかなように各金属イオンをトロポロン-5-スルホン酸キレートとしてほぼ完全に交換吸着させるpH領域が得られている。また、8金属元素を同時にかつ定量的に捕集濃縮するためには、水溶液のpHを $5 < \text{pH} < 7$ に調整すればよいことが明らかになった。

3.1.4 各金属キレートの交換吸着定数

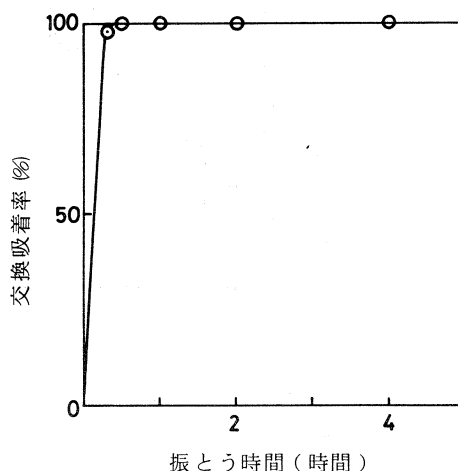
交換吸着定数(分布係数) K_D は次のように定義される¹²⁾

$$K_D = \frac{[M^{n+}](r)}{[M^{n+}](s)} = \frac{\text{吸着率}(\%)}{100 - \text{吸着率}(\%)} \times \frac{\text{液量}(\text{ml})}{\text{樹脂量}(\text{g})} \quad (1)$$

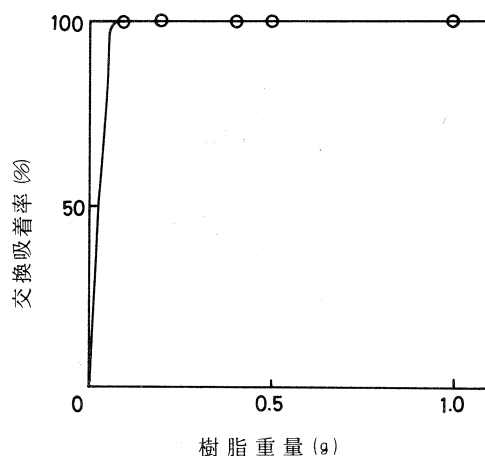
$[M^{n+}](r)$: 平衡時において樹脂に交換吸着した金属イオン濃度

$[M^{n+}](s)$: 平衡時において溶液中に残存した金属イオン濃度

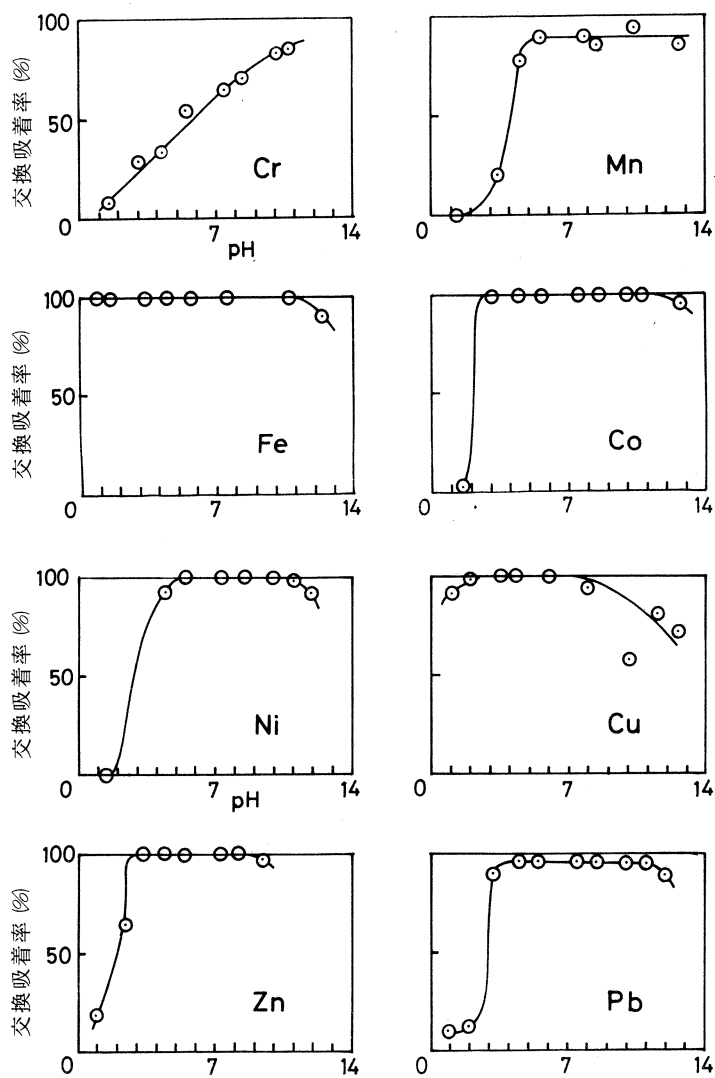
本研究では金属イオンとしてR Iトレーサーを用いているので金属イオン濃度は一定量の樹



第2図 振とう時間と交換吸着率の関係.
[Ni] = 1.7 ppm,
樹脂重量: 0.1 g.



第3図 樹脂重量と交換吸着率の関係.
[Ni] = 1.7 ppm,
振とう時間: 1時間.



第4図 pH と交換吸着率の関係.

金属イオン濃度：1～2 ppm,

トロポロン-5-スルホン酸濃度： 1.2×10^{-4} M,

振とう時間：1時間.

脂あるいは溶液の示す放射能でおきかえることができる。すなわち

$$K_D = \frac{A_i - A_e}{A_e} \times \frac{\text{液量 (ml)}}{\text{樹脂量 (g)}} \quad (2)$$

A_i : 振とう前の一定容積の溶液の放射能 (cpm)

A_e : 振とうにより平衡に達した溶液の一定容積の放射能 (cpm)

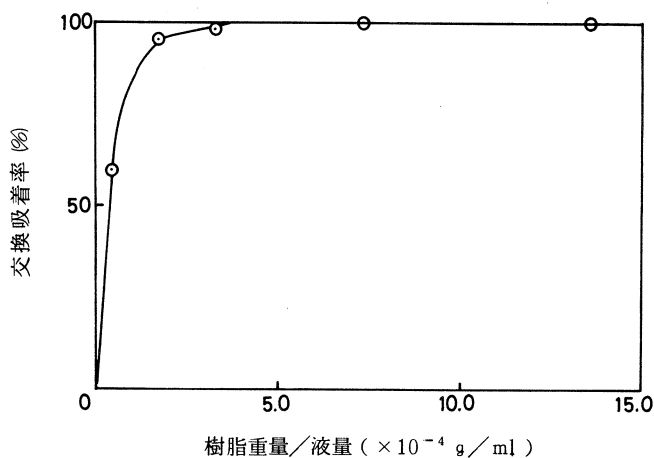
(2)式の K_D を用いて各金属キレートの交換吸着定数を求めた。溶液の金属濃度を1～2 ppmとし、液量、樹脂量を変化させて求めた場合の $\log K_D$ の平均値を第4表に示す。また、樹脂の交換

の容量を求めるためにCo(II)について樹脂量／液量 (g/ml) と交換吸着率との関係を求めた結果を第5図に示す。図より樹脂量／液量 = 5.0×10^{-4} M付近で樹脂が飽和したと思われる。これは1gの樹脂で数ppmの濃度の金属溶液を21程度処理できることに相当する。また、他の金属キレートについても同様の実験を行ったが、結果は金属の種類によらずほぼ同様であった。

第4表 各金属キレートの交換吸着定数.

元 素	$\log K_D$
Mn	4.9 ± 0.2
Fe	4.5 ± 0.3
Co	5.1 ± 0.4
Zn	4.8 ± 0.3

金属イオン濃度：1～2ppm，
トロボロン-5-スルホン酸濃度
： 1.2×10^{-4} M，
振とう時間：1時間。



第5図 樹脂重量／液量と交換吸着率の関係。

[Co] = 1.75 ppm，
トロボロン-5-スルホン酸濃度： 1.2×10^{-4} M，
振とう時間：1時間。

3.2 実試料の分析

第1図の操作に従ってBowen's Kale, NBSのSRM-1577 Bovine Liver およびSRM-1571 Orchard Leaves の3種の標準試料を分析したが本分離法による分離効果をBovine Liverの r 線スペクトルによって示したのが第6図である。図では照射後の冷却時間が約30時間なので ^{24}Na の残存が認められるが、樹脂相に捕捉される ^{24}Na は全生成量の数%までであって大部分の ^{24}Na を除くことができた。

定量結果は第5表に一括して示したとおりである。本結果を得るにあたっては照射後、測定試料調製までの間に ^{64}Cu および ^{54}Mn の大部分が減衰したため、Cu, Feについては定量値を

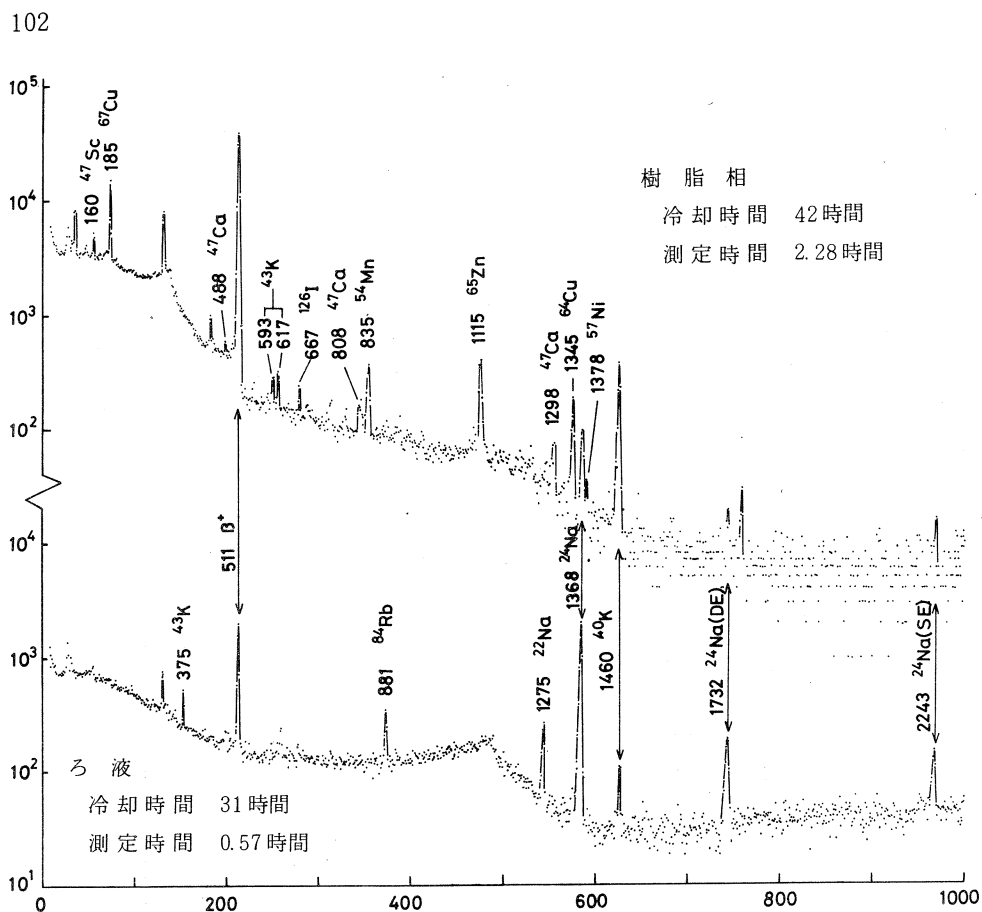


図-6 30 MeV 制動輻射で照射した Bovine Liver 試料からトロポロン-5-スルホン酸-Dowex 1 X 8 系で分離後の樹脂とろ液の γ 線スペクトル。

第5表 生物体標準試料の定量結果。

	Bowen's Kale		Bovine Liver		Orchard Leaves	
	文献値 ⁽¹³⁾ (ppm)	実験値 (ppm)	文献値 ⁽¹³⁾ (ppm)	実験値 (ppm)	文献値 ⁽¹³⁾ (ppm)	実験値 (ppm)
Cr	0.33	1.3	0.5~3.5	2.4	2.3	2.2
Mn	4.9	13.5 10.3	10.3 ± 1.0	17.8 16.1	91 ± 4	53.7 45.8
Co	0.056	0.2	0.18	0.6	0.2	0.1
Ni	(2.6, 11.0)	19.1 27.2	(0.21)	0.2 0.4	1.3 ± 0.2	0.7 0.8
Zn	32	31.6 30.0	130 ± 10	136 138	25 ± 3	23.2 25.6
Pb	3.2	2.7 2.3	0.34 ± 0.08	0.5 0.4	45 ± 3	39.7 36.1

得るに至らなかった。Znの定量には⁶⁷Cuの生成量を比較したが、基礎検討の結果からCu(II),

Zn(II) は $5 < \text{pH} < 7$ において 100% 捕捉されたため Zn から生成する ^{67}Cu が生物体標準試料においても同様の挙動を示すとみなせば、樹脂相と比較試料とで ^{67}Cu を比べることにより Zn の定量値が得られる。

定量結果に関しては、存在濃度が 1 ppm 以上のものについては Mn 以外は文献値とよく一致した。また、同種の試料に関して各二回の分析を行ったが、結果は試料の種類、元素に関わらず再現性は良いと認められる。

動物体試料である Bovine Liver と、植物体試料の Orchard Leaves ならびに Kale とではマトリックスの組成は大差があり、灰化、化学分離の効果も異なると考えられたが、本分析法によれば、いずれの試料においても目的元素を妨害となる主成分元素から分離して捕集濃縮するのに有効に利用できると思われる。また、化学分離に要する時間は 24 時間～30 時間であり、 ^{58}Co 以外の核種の放射能を γ 線スペクトロメトリーして結果を得るのに 1 週間以内で終了し、非破壊法に比べて分析所要時間が短縮されたといえる。

今後は本法を放射化分析の前処理法とするための検討を行い、実際の生物体試料や大容量の試料処理を必要とする天然水の分析に応用していきたい。

本研究にあたり、トロポロンの合成法を御指導いただきました東北大学非水溶液化学研究所の瀬戸秀一教授・杉山宏博士に深く感謝いたします。また御助力を賜った東北大学原子核理学研究施設の八木益男助教授、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. Perkons : 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) 赤岩英夫 : 分析機器 **14** (1976) 573.
- 9) H. Tanaka, M. Chikuma, A. Harada, T. Ueda and S. Yube : Talanta **23** (1976) 489.

- 10) 岡好良, 梅原美佐緒, 野副鉄男 : 日化 **83, 6** (1962) 703.
- 11) T.Nozoe, S.Seto, T.Ikemi and T.Arai : Proceedings of Japan Academy **26, 7** (1950) 38.
- 12) 実験化学講座 続2 分離と精製 丸善出版 (1967) 338.
- 13) P.D. LaFleur : J.Radioanal. Chem. **19** (1974) 227.

光量子放射化とTNOA—チオシアン酸水溶液系抽出分離法による生物体標準試料中のモリブデンの定量分析

理学部化学, 教養部*

栗林寿・加藤豊明*・鈴木信男

§ 1. 序

モリブデンは、生物体中に常時微量に存在する必須元素の1つである。化学的には多酸化状態を示し、その生物体中における挙動や役割を追求することは、興味深い問題であるが、そのためには、生物体中にppm濃度レベルで存在するモリブデンを、正確に定量する方法の確立が前提となる。

微量モリブデンの定量には、比色分析法⁵⁾、原子吸光分析法⁶⁾、中性子放射化分析法⁷⁾などが用いられてきたが、定量の前段階の分離にはチオシアン酸錯体としての抽出法が繁用され、比色法においてはこの錯体の吸収を直接利用する方法がとられてきた。すなわち、モリブデンが酸性溶液でチオシアン酸イオンと反応して生成する橙赤色錯体を、アミルアルコール⁸⁾、ブチルアセテート⁹⁾などの含酸素溶媒で抽出して測定に供試する方法であるが、この場合、錯体の吸光度を再現よく、安定に維持するための条件の選定に難があることが指摘されてきた。従来、塩化スズ(Ⅱ)やヒドロキシルアミンなどの還元剤やCu⁺(参考文献10)、Fe²⁺(参考文献3)などの他金属イオンを共存させることによって退色を緩和する方法が検討されているが、その錯体形成の機構への関与については未だ明らかでないと思われる。

本研究では、この錯体の生成条件を再検討し、吸光光度法並びに⁹⁹Moを用いるトレーサー法によって、抽出にシクロヘキサンに溶解した高分子量アミンを用いれば、従来法における含酸素溶媒よりも種々の点で優れていることを明らかにした。また、実際に生物体標準試料中のモリブデンの定量に応用し、その正確さ、汎用性などを検討した結果について述べる。なお、化学収率の決定に用いた無担体⁹⁹Moトレーサーは光核反応により製造した。

§ 2. 実 験

2.1 試 薬

2.1.1 ^{99}Mo トレーサー

Radiochemical Centre, Amershamより購入した $(\text{NH}_4)_2^{99}\text{MoO}_4$ の水溶液の一定量を、水で希釈して使用した。比放射能は、搬出時に $2.77\text{mCi}/\text{mg Mo}$ とされたもので、毎回の抽出実験には、約 $0.1\mu\text{Ci}$ に相当する量を加えた。

2.1.2 トリー n -オクチルアミン (TNOA)

和光印のものを減圧蒸留で精製し¹¹⁾ $b_{p_{2.0}} 180\sim 188^\circ\text{C}$ の留分を用いた。これを市販特級シクロヘキサンに溶解の後、 1N HCl 及び 1N NaOH と交互に振りまぜて前処理し、最後にCl型として使用した¹²⁾

2.1.3 モリブデン標準液

150mg の MoO_3 に少量の濃アンモニアを加えて水浴上で加熱しながら溶解した。ほぼ蒸発乾固させてから水で希釈し、弱塩酸性、全容 100ml の標準溶液とした。すなわち、この標準溶液は $1\text{mg Mo}/\text{ml}$ に相当する。使用にあたっては、これを適宜希釈して用いた。

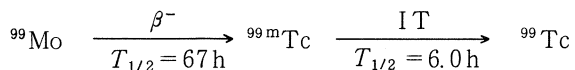
2.1.4 その他の試薬類

塩化第一銅水溶液は、 0.15g の CuCl を濃塩酸に溶かし、 10ml として 0.15mol/l Cu(I) 溶液としたものである。

他の溶媒及び試薬類は市販特級品を使用し、水溶液は使用のたびに新しく調製しなおして用いた。水は再蒸留して用いた。

2.2 基礎検討における操作法

モリブデンの分配比(D_{Mo})は ^{99}Mo を用いトレーサー法で求め、抽出種の安定性に関する検討は吸光光度法によった。すなわち、共栓付の遠心分離用沈殿管に ^{99}Mo トレーサーと所定濃度の塩酸およびチオシアン酸塩を含む水溶液(全容量 10ml)と等容積の有機溶媒溶液とを加え、一定時間振り混ぜて抽出後、両相からそれぞれ一定量をポリエチレン試験管に移しとり井戸型NaI(Tl)シンチレーションカウンターで ^{99}Tc の γ 放射能を計数した。測定は、



の放射平衡を待つために分配後数日放置してから行った。なお、23時間で放射平衡に達する。また、有機相はシクロヘキサンで希釈したTNOAの他にイソアミルアルコール-四塩化炭素(1:1)混合溶媒溶液も用いた。

吸光度の検討では、分液ロートを用い、所定条件に調製した 50 ml の水相から 10 ml の抽出溶媒溶液で 2 分間抽出した。有機相を 5 ml の 0.02 mol/l EDTA-2 Na 水溶液、4 % アスコルビン酸水溶液で洗浄した後、乾燥したろ紙を通して水滴を除き、1 cm セルに入れて吸光度を測定した。モリブデン濃度は、抽出相について 1 ppm 程度とし、対照液はそれぞれの抽出溶媒を用いた。

2.3 無担体モリブデントレーサーの製造

実試料の分析に本法を適用する際、全操作の化学収率は、無担体 ^{99}Mo を用いてその都度求めたが、このトレーサーは以下のように製造したものである。

すなわち、電子ライナックからの 60 MeV 制動輻射で金属ルテニウムを照射すると第 1 表に示すような光核反応が誘導される。このうち、 ^{99}Mo を生成する主反応は、 $^{104}\text{Ru}(\gamma, \alpha n)^{99}\text{Mo}$ で、 ^{99}Mo の生成量 D (dpm) は、次式によって求められる。

$$D(\text{dpm}) = N_0 \cdot F \cdot Y(E) \cdot (1 - e^{-\lambda t})$$

第 1 表 Photonuclear reactions on ruthenium.

Target (Abundance %)	Reaction	Product	$T_{1/2}$	Principal γ -rays (keV)		
^{96}Ru (5.5)	(r, n)	^{95}Ru	1.7 h	340	625	1090
^{98}Ru (1.9)	(r, n)	^{97}Ru	2.9 d	215		
^{99}Ru (12.7)	($r, 2n$)					
^{104}Ru (18.9)	(r, n)	^{103}Ru	39.6 d	497		
^{96}Ru (5.5)	(r, pn)	^{94}Tc	4.8 h	702	849	871
^{96}Ru (5.5)	(r, p)	^{95}Tc	20.0 h	765		
^{98}Ru (1.9)	(r, pn)	^{96}Tc	4.3 d	768	805	841
^{100}Ru (12.7)	(r, p)	^{99m}Tc	6.0 h	140		
^{101}Ru (17.0)	(r, pn)					
^{96}Ru (5.5)	($r, \alpha 2n$)	^{90}Mo	5.7 h	122	257	
^{96}Ru (5.5)	($r, 2pn$)	^{93m}Mo	6.9 h	262 685 1479		
^{98}Ru (1.9)	($r, \alpha n$)					
^{101}Ru (17.0)	($r, 2p$)	^{99}Mo	67.0 h	181 740 778		
^{102}Ru (31.6)	($r, 2pn$)					
^{104}Ru (18.9)	($r, \alpha n$)					

ただし, N_0 : ^{104}Ru のモル数, F : 線量率 ($\text{R} \cdot \text{min}^{-1}$), $Y(E)$: 反応の収率 ($\text{mole}^{-1} \cdot \text{R}^{-1}$), λ : 壊変定数, および t : 照射時間である。

いま, 0.5 g の Ru を照射した時, $Y(E): 5 \times 10^3 / \text{mole} \cdot \text{R}$ と見積ることができるので, 線量率を $1.4 \times 10^7 \text{R}/\text{min}$ とすれば, $2.8 \mu\text{Ci}$ の ^{99}Mo が無担体で得られる。これを放射化学的に純粋に分離できれば, 生成量は本研究の目的に十分である。その分離法を第 1 図のように考案した。まず, 照射後の金属ルテニウム粉末を少量の次亜塩素酸ナトリウム溶液と水浴上で 40°C に暫時保って酸化溶解した。

0.5 g のルテニウム粉末は, 次亜塩素酸ナトリウム溶液 (5×4)

ml によって, ほぼ完全に溶解する。

これに水酸化ナトリウム水溶液を加え, 4 N に調整する。この際,

緑色の RuO_4^- の一部が還元されて,

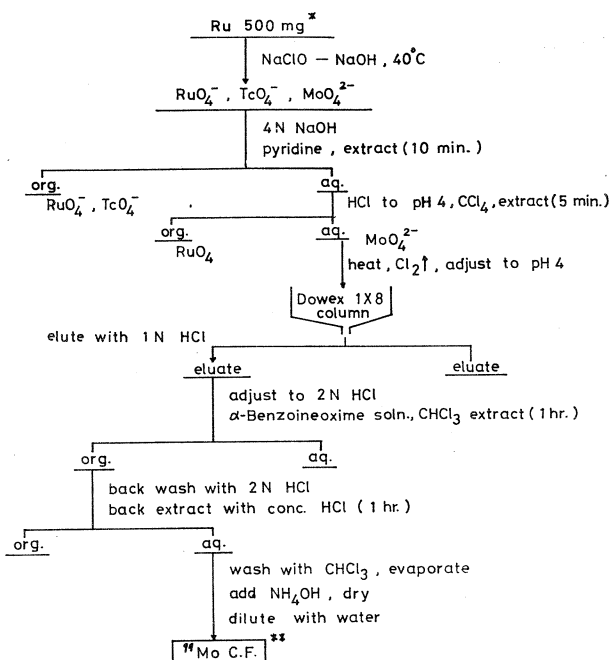
赤色の RuO_4^{2-} に変化するので,

少量の次亜塩素酸ナトリウム溶液を加えて酸化し, 直ちにあらかじめ

4 N 水酸化ナトリウム溶液で飽和したピリジンにより抽出した¹³⁾

大部分の RuO_4^- , TcO_4^- は, ピリジン相に抽出され, MoO_4^{2-} は水相に残る。水相の緑色が認められなくなるまで; ピリジン抽出を繰り返す。次に, 水相は塩酸で pH

4 付近まで中和し, トレース量のルテニウムを RuO_4 として, 四塩化炭素で抽出除去した。水相を分取し, 加熱して塩素を追出し, 冷却後再び pH 4 に調整して, あらかじめ活性化しておいた陰イオン交換樹脂 Dowex 1×8 のカラムに通し, 残存するトレース量の RuO_4^- および TcO_4^- との分離精製を行った。カラムに数 10 ml の pH 4 水溶液を流して過剰量の NaCl を流し出して洗浄した後, 1 N 塩酸で $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$ を流し出した¹⁴⁾ 溶出液は, 2 N 塩酸酸性にし, 0.25% (w/v) α -ベンゾインオキシム-エタノール溶液を加え, クロロホルムで抽出した¹⁵⁾ 有機相は, 2 N 塩酸で洗い, 濃塩酸で逆抽出して最後にクロロホルムで有機物を洗浄除去した。もし, こ



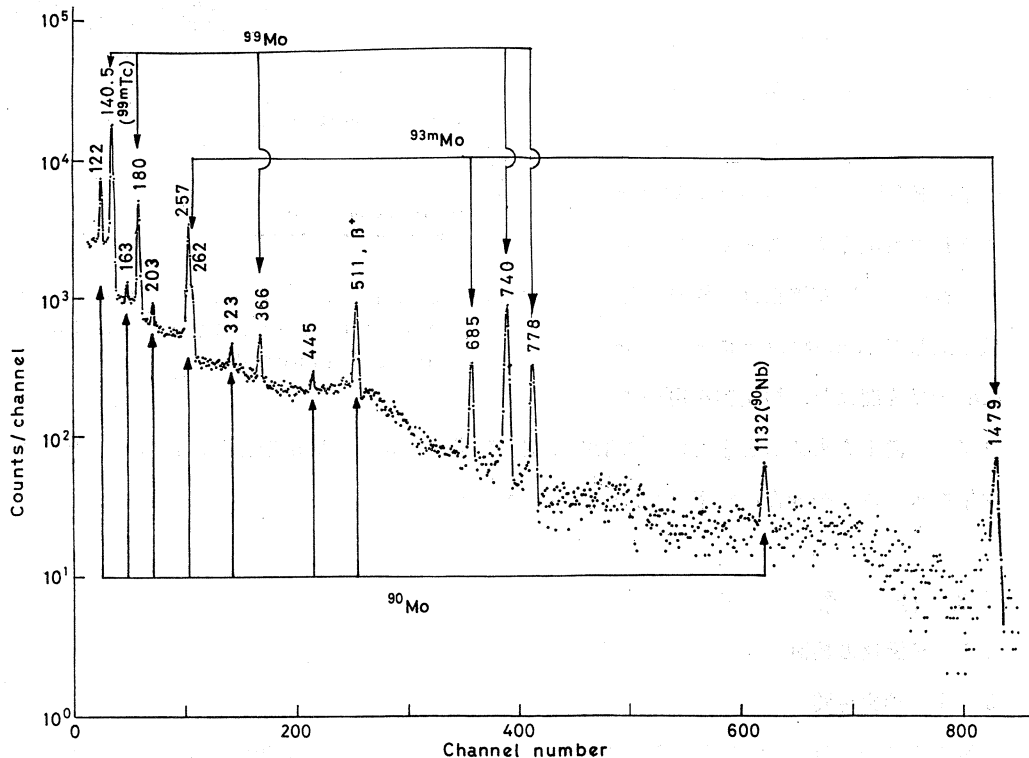
第 1 図 Scheme for carrier-free separation of ^{99}Mo from ruthenium.

* Irradiation: 60 MeV bremsstrahlung for 10 hr ($1.4 \times 10^7 \text{R}/\text{min}$).

** Production rate: $2.8 \mu\text{Ci}/500 \text{mg Ru}$ (Yield $5 \times 10^3 / \text{mole} \cdot \text{R}$).

ここに放射性ルテニウムやテクネチウムの残存が認められる場合には、 α -ベンゾインオキシムによる抽出精製操作を2回繰り返せば、除染は完全に行われる。濃塩酸溶液は、静かに蒸発してほぼ乾固させ、少量の希アンモニア水を加えて蒸発濃縮する操作を繰り返して、 $(\text{NH}_4)_2^{99}\text{MoO}_4$ の水溶液とし、これを水で希釈して用いた。

こうして得られた放射性モリブデン水溶液の γ 線スペクトルは、第2図のようになり、放射化学的に高純度と認められた。測定には、 33 cm^3 Ge(Li) 検出器及び1024チャンネル波高分析装置を用いた。



第2図 Gamma-ray spectrum of radiomolybdenum separated from ruthenium target.

2.4 実試料の分析

本法によって、実際に生物体試料中のモリブデンを分析する際のスキームは、第3図に示したようになる。ケルダールフラスコ中に試料2gおよび無担体 ^{99}Mo の一定量を加え、硝酸と硫酸による湿式灰化の後、内容物を石英皿に移して硫酸白煙とし、約1mlまで蒸発濃縮させ、水を加えて1~2%硫酸酸性溶液とする¹⁶⁾試料が植物体の場合のように、カルシウムの量が多いと、硫酸カルシウムが沈殿するので、ろ過して除く。約50mlの水溶液に0.25% α -ベンゾインオキシム-エタノール溶液10mlを加え、 α -ベンゾインオキシム錯体として一たんクロロホ

ルムで抽出して、共存塩類から分離する。水相に再び α -ベンゾインオキシム溶液を加え、クロロホルムで抽出して、前の有機相に加える。水で洗浄した後、濃塩酸で逆抽出する。クロロホルムで洗ってから、塩酸濃度を調節し、アスコルビン酸、塩化第一銅、チオシアン酸水溶液をそれぞれ最適濃度になるように加える。調製後、5%TNOA-シクロヘキサン溶液5mlで抽出し、少量のEDTA、アスコルビン酸水溶液でそれぞれ洗浄することにより、混合した鉄を除く⁸⁾。有機相は、乾燥したろ紙を通して1cm吸収セルに移す。465 nmの吸光度より、検量線を用いてモ

リブデン濃度を求めるとともに、放射能測定の結果から収率の補正を施し、試料中のモリブデン量を求める。全操作の収率は62~79%であった。

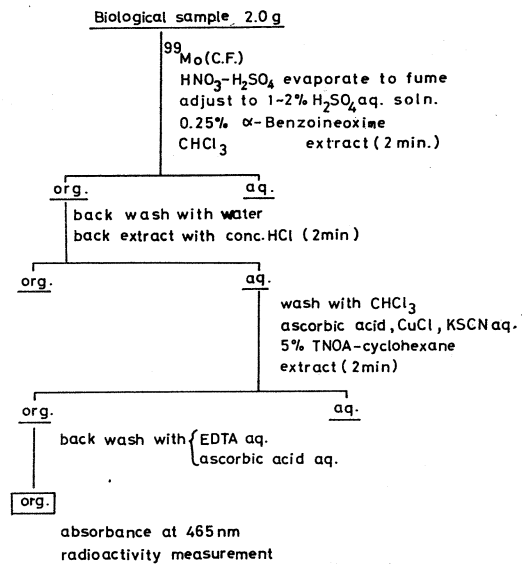
§ 3. 結 果

3.1 分配比の検討

3.1.1 抽出時間

振とう時間と D_{Mo} との関係は第4図のとおりで2分間で抽出率は99%以上を示し、より長時間の抽出によっても D_{Mo} はほぼ一定である。しかし、塩酸、チオシアン酸の低濃度領域においても、平衡を完全にするため、以後の振とう時間は1時間とした。

なお、本条件で、抽出後の有機相を振とう管にとり、抽出平衡にあるものと同一組成の水相を別に調製して加え、再び1時間振とうして分配比を求めた。この再平衡により得られた分配比は、 $D_{Mo} = 500 \sim 2000$ で、第4図の分配比に比べて大きい。すなわち、一たん抽出された錯体は有機相中で分配係数の大きい化学種に変化し逆抽出されず、正逆方向の分配比が一致しなかったと思われる。



第3図 Scheme for separation and determination of molybdenum in biological materials.

3.1.2 チオシアン酸および塩酸濃度の依存性

塩酸濃度およびチオシアン酸濃度とモリブデン抽出率の関係を、第5図および第6図に示す。従来法³⁾のイソアミルアルコール(i-AA)-四塩化炭素(1:1)混合溶媒による抽出も再検討し、5%TNOA-シクロヘキサンによる抽出の結果と比較した。図から明らかなように、TNOAによるほうが高い分配法を与え、ほぼ一定値を示す濃度領域も広く、塩酸、チオシアン酸の双方について、低濃度からも抽出は良好である。また、TNOA系は、シクロヘキサンを希釈溶媒としており、抽出後の容積変化も少なく、吸光光度定量の前段階として好都合である。

3.1.3 TNOA濃度依存性

D_{Mo} に対するTNOA濃度の依存性は、第7図のように与えられた。2.4 mol/l 塩酸性、1.5 mol/l チオシアン酸水溶液からの抽出と、チオシアン酸を含まない2.4 mol/l 塩酸性溶液からの抽出の結果は、前者では $[TNOA] \leq 0.2\%$ で、後者の場合は $0.1\% \leq [TNOA]$ で傾きが約2の直線関係となった。

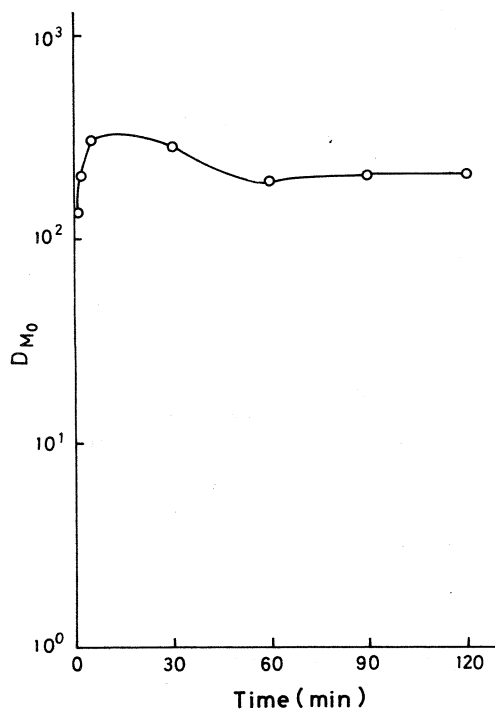
3.2 吸光光度法による検討

3.2.1 還元剤、共存イオンの影響

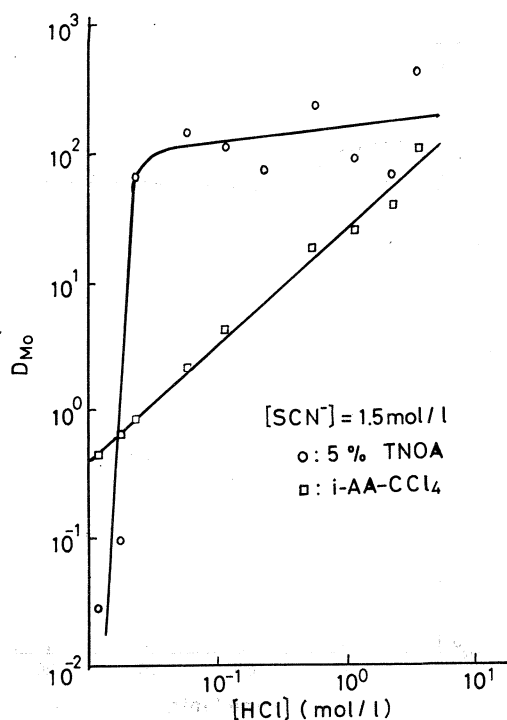
抽出後の有機相の経時変化を調べた結果は第8図のとおりである。

1.5 mol/l チオシアン酸水溶液からイソアミルアルコール(i-AA)- CCl_4 でモリブデンを抽出した場合は、吸光度はほぼ一定値を示し、アスコルビン酸や第一銅イオンの共存の有無は顕著な差を生じない。これは、チオシアン酸イオンによる還元の結果、特に他の還元剤が共存しなくとも、465 nmに吸収ピークを示す錯体が生成し、有機相に抽出される¹⁷⁾ためと考えられる。

一方、5%TNOA-シクロヘキサン溶液系の吸光度の経時変化は、0.35 mol/lの場合、還



第4図 Dependences of shaking time on D_{Mo} .

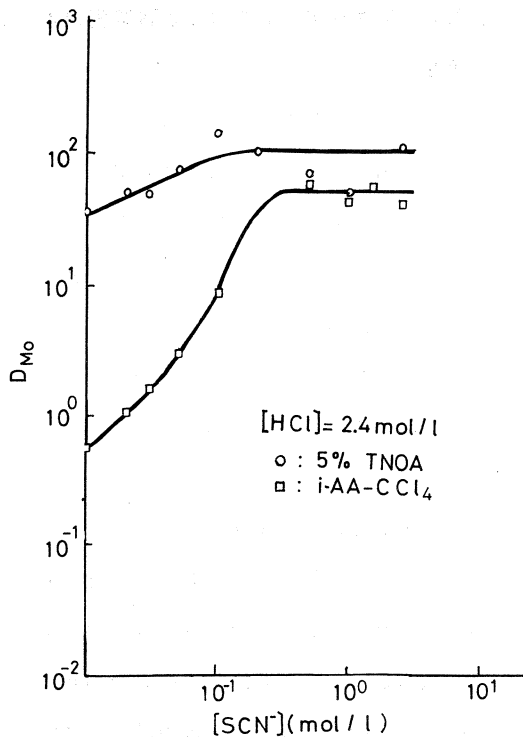


第5図 Concentration dependence of hydrochloric acid on D_{Mo} .

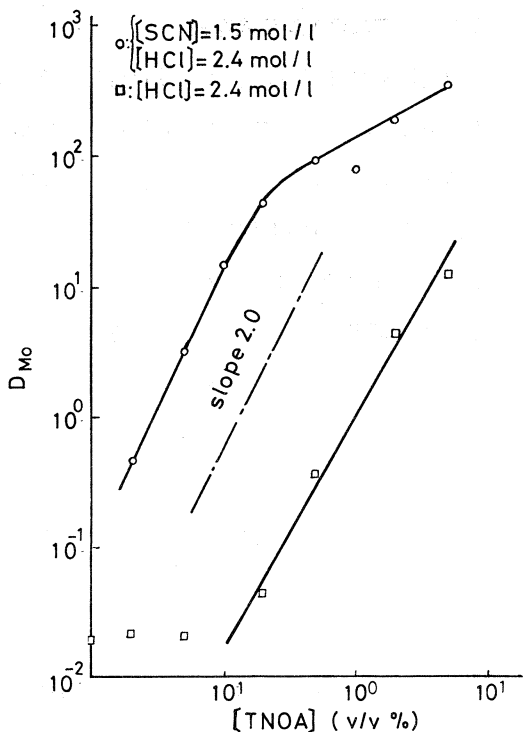
元剤および第一銅イオンを加えないと、フルカラーを得るまでには時間がかかる。吸光光度定量法においては、フルカラーを安定に、速やかに得る必要があるから、実際の分析では、アスコルビン酸、第一銅イオンの共存下に抽出して、吸光度測定を行うのがよい。なお、TNOA抽出系ではチオシアン酸塩濃度が高くなると安定な吸光度が得難くなる。

3.2.2 塩酸、チオシアン酸濃度の影響

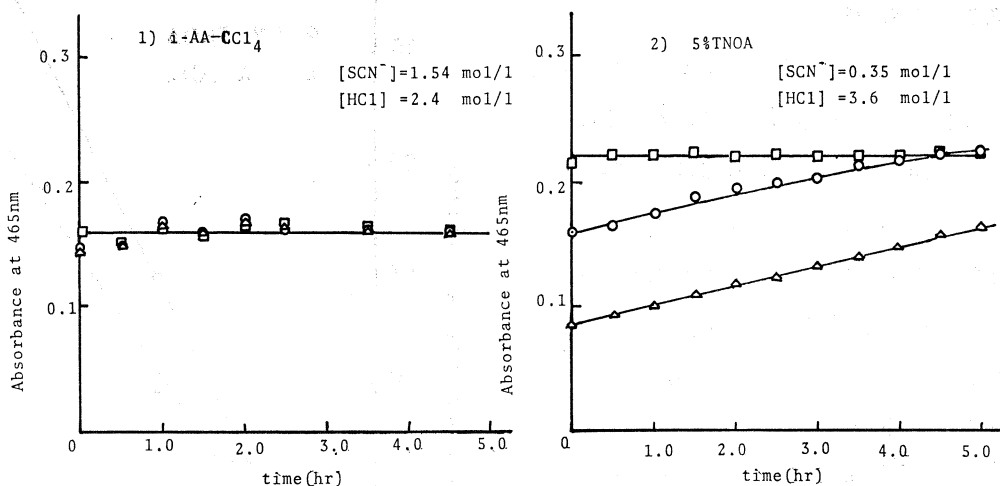
アスコルビン酸、第一銅イオンの共存下に塩酸およびチオシアン酸の濃度を種々に変化させて得られた吸光度の経時変化を表わしたものが、第9図である。いずれの場合



第6図 Concentration dependence of thiocyanate on D_{Mo} .

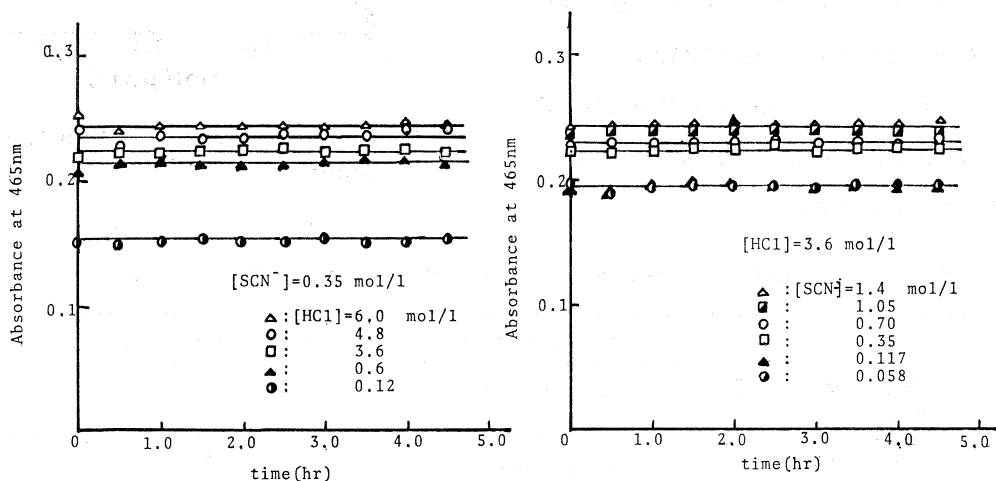


第7図 Concentration dependence of TNOA on distribution of molybdenum.



第8図 Effect of standing time on absorbance of molybdenum thiocyanate extracted from aqueous HCl-KSCN solutions.

- \square : with ascorbic acid and $CuCl$,
 \circ : with ascorbic acid,
 \triangle : no reducing agents.



第9図 Stability of colored species in 5% TNOA extracts.

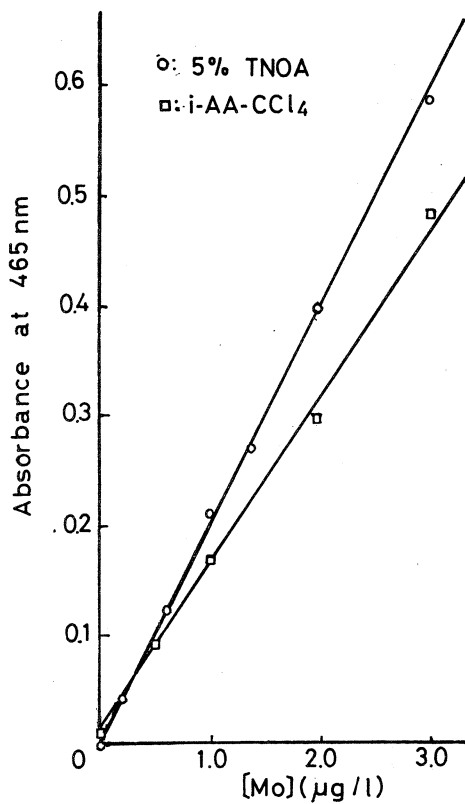
合も、安定なフルカラーが得られており、本実験の範囲では、塩酸およびチオシアン酸濃度が高いほど、吸光度は高くなった。しかし、あまり高濃度では、塩の析出や、チオシアン酸の分解が認められたので、以後の条件は 3.6 mol/l 塩酸性、 0.35 mol/l チオシアン酸水溶液とし、5%TNOA-シクロヘキサン溶液で抽出することにした。

3.3 検量線

以上の基礎検討の結果、最適条件において第10図のような検量線が得られた。比較のため $i-AA-CCl_4$ 系での検量線も同時に示したが、見かけの分子吸光係数、吸光度の安定性などにおいて、アミン系が優れている。見かけの分子吸光係数は、 $\epsilon_{TNOA} = 1.92 \times 10^4$ および $\epsilon_{i-AA} = 1.6 \times 10^4$ であった。

3.4 定量値

本法による生物体標準物質の分析結果を第2表に示した。NBSより配布の Spinach, Orchard Leaves, Bovine Liver 中のモリブデンを定量した。いずれも、3~4回の分析の結果、表示した値を得た。Orchard Leaves と Bovine Liver の値は、文献値と良い一致を示した。Spinach に含まれる Mo の分析値は、これまでに報告の例をみることができないものである。



第10図 Calibration curves for molybdenum.

第2表 Molybdenum abundances in standard biological materials.

Material	This work (ppm)	Literature (ppm)	
NBS SRM-1570 Spinach	0.57 ± 0.01	—————	
NBS SRM-1571 Orchard Leaves	0.37 ± 0.04	0.33 ± 0.07	1)
		0.23 ± 0.02	2)
		(3.2)	3)
NBS SRM-1577 Bovine Liver	3.09 ± 0.52	3.78 ± 0.36	1)
		3.19 ± 0.14	4)
		3.33	5)

1) G. Guzzi *et al.* (1976).

4) P. Lievens *et al.* (1975).

2) A. Chattopadhyay (1974).

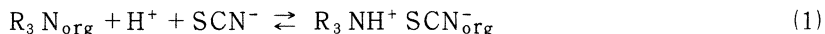
5) E. Steinnes (1975).

3) NBS information value.

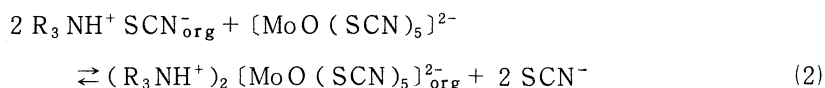
§ 4. 考 察

全操作の収率は、平均70%位であったが、 ^{99}Mo トレーサーを用いて追跡したところ、約10%は灰化の際に、約20%は α -ベンゾインオキシム抽出の際に失われていることがわかった。 α -ベンゾインオキシム抽出においてリン酸の共存が抽出の妨害になることが知られているが¹⁵⁾、Orchard Leaves はリンを0.21%含んでいるので、これが回収率を下げる原因になると考えられる。

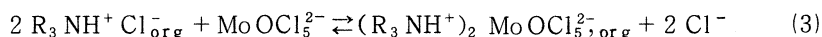
抽出種が如何なるものかを知ることは、抽出や発色の条件の選定と関連して重要である。 D_{Mo} のTNOA濃度依存性は、塩酸酸性チオシアン酸溶液からの抽出と、塩酸酸性水溶液からの抽出において、勾配2の直線関係をなす部分が与えられたことは、アミンを抽出剤とする系の抽出平衡に関して既に指摘されたように¹⁸⁻²⁰⁾次のような機構で説明される。まず、アミンが(1)式のように塩を形成する。



一方、モリブデン(VI)は、チオシアン酸イオンにより5価に還元され、oxypentathio-cyanatomolybdate(V) ion を生成し、(2)式で示されるような抽出平衡が成り立つと考えられる。



同様に塩酸系では(3)式のような抽出平衡が考えられる。



(ただし、 $\text{R} = \text{C}_8\text{H}_{17}$ である。)

TNOA濃度が1%を越すと直線から外れて分配比が低下するのは、アミン-チオシアン酸塩の重合が原因と考えられる。従って、アミン濃度をこれ以上高くしても、分配比の増加は期待できない。高分子量アミンあるいはその塩が有機溶媒中で多量化することは既に報告されており、それが顕著に起こる濃度はアミンおよび溶媒の種類によっても異なるが、およそ0.1 mol/l (TNOA ≒ 4%) に相当する。

文献によれば、発色種は $\text{Fe}[\text{MoO}(\text{SCN})_5]$ や $\text{Cu}_2[\text{MoO}(\text{SCN})_5]$ などと考えられており、このため他の金属イオンの共存が必要とされていた^{3, 21)}しかし、抽出種は上述の如きものであると考えられるから、本抽出系における銅イオンは水溶液中の $[\text{MoO}(\text{SCN})_5]^{2-}$ の生成促進や安定化、有機相への抽出率の増大などに寄与したと考えるのが妥当である。

本研究の結果、従来のチオシアン酸法に抽出試薬としてシクロヘキササンに溶解したTNOA

用いれば、モリブデンの分配比の増加、吸光度の安定性、分子吸光係数などの点で有利である。

光核反応を利用した無担体 ^{99}Mo トレーサーの製造の報告はなく、その分離法と共に、本研究により明らかにされたものである。

生物体実試料のモリブデン存在度は一般に sub ppm レベルであって、正確で再現性の良い定量結果を得るのは難しいので、本法は有効な方法として利用できると考える。

本研究にあたり御援助を賜った東北大核理研の八木益男助教授および近藤健次郎博士、ならびにマシングループの皆様は厚く御礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) E. B. Sandell : Colorimetric Determination of Traces of Metals 3rd. ed. (Interscience New York 1959) p. 640.
- 2) W. T. Elwell and D. F. Wood : Analytical Chemistry of Molybdenum and Tungsten (Pergamon Press 1970).
- 3) C. M. Johnson and T. H. Arkley. Anal. Chem. **26** (1954) 572.
- 4) F. N. Word : *ibid.* **23** (1951) 788.
- 5) K. Sugawara, M. Tanaka and S. Okabe : Bull. Chem. Soc. Japan **32** (1958) 221.
- 6) W. Salvin, 下村滋他訳 : 原子吸光分析 (広川書店 1970).
- 7) E. Steinnes : Anal. Chim. Acta **57** (1971) 249.
- 8) E. G. Lillie and L. P. Greenland : *ibid.* **69** (1974) 313.
- 9) L. C. Hurd and H. O. Allen : Ind. Eng. Chem. Anal. Ed. (1935) 396.
- 10) C. E. Crouthamel and C. E. Johnson : Anal. Chem. **26** (1954) 1284.
- 11) E. T. Borrows *et al.* : J. Chem. Soc. (1947) 197.
- 12) 岡好良, 加藤豊明 : 日化 **84** (1963) 249.
- 13) T. Kiba, A. Miura and Y. Sugioka : Bull. Chem. Soc. Japan **36** (1963) 663.
- 14) E. H. Huffman, R. L. Oswald and L. A. Williams : J. Inorg. Nucl. Chem. **3** (1956) 49.
- 15) P. Y. Peng and E. B. Sandell : Anal. Chim. Acta **29** (1963) 325.
- 16) G. B. Jones : *ibid.* **10** (1954) 584.
- 17) 後藤秀弘, 柿田八千代, 並木美智子 : 日化 **82** (1961) 580.

- 18) A. M. Wilson and O. K. McFarland : Anal. Chem. **36** (1964) 2488.
- 19) G. J. DeJong and U. A. Th. Brinkman : J. Radioanal. Chem. **35** (1977) 223.
- 20) G. J. DeJong, U. A. Th. Brinkman and W. Th. Kok : *ibid.* **35** (1977) 245.
- 21) A. T. Dick and J. B. Bingley : Nature **158** (1946) 516.

テトラキス (p-フルオロフェニル) ホウ酸 ナトリウムによるルビジウムの分析法

理学部化学

佐藤孝好・大森巍・塩川孝信

§ 1. 緒 言

核分裂生成物の中でも、長半減期の ^{137}Cs は環境放射能のモニターとして非常に重要である。これまでも低濃度 ^{137}Cs の定量法について多くの研究がなされてきた。テトラフェニルホウ酸ナトリウム (Na-TPB) を用いて、 ^{137}Cs -TPBを沈澱させる方法¹⁾は、かなりの成果をあげたが、天然放射性元素 (^{40}K , ^{87}Rb など) の汚染があるために問題となっている。

Moore等²⁾がNa-TPBの類似試薬として開発したテトラキス (p-フルオロフェニル) ホウ酸ナトリウム (Na-TFPB) は、セシウムイオンを選択的に沈澱させる性質を持っている。実際にNa-TFPBを用いて、環境試料中の ^{137}Cs の定量も試みられている³⁾。

本研究では、Na-TFPBの純度および安定性について研究した結果⁴⁾をもとに、提案されている ^{137}Cs の分析法³⁾を改良することを目的とした。その際特に問題になるカリウムおよびルビジウムそれぞれの放射性同位体を製造し、それらをトレーサーとしてNa-TFPBによる分離条件を検討した。

§ 2. 実 験

2.1 試 薬

多摩化学工業製Na-TFPBを、Moore等の方法²⁾に従って、エーテル-キシレンより再結晶したが、油状物質が結晶表面に付着するために、活性炭を用いて不純物を吸着除去する方法を開発した。得られた白色結晶について、

分析値 C 64.19%, H 4.41%, $\text{NaB}(\text{C}_6\text{H}_4\text{F})_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ として、

計算値 C 64.02%, H 4.48%

結晶を110°Cで1時間加熱したものについて、

分析値 C 69.35%, 69.48%, H 4.05%, 4.05%, $\text{NaB}(\text{C}_6\text{H}_4\text{F})_4$ として

計算値 C 69.59%, H 3.89%

十分精製したNa-TFPB水溶液は、6ヶ月以上放置しても白濁は認められなかったが、実験

にはその直前に新たに調製して用いた。

その他の試薬は、すべて特級品を用いた。

2.2 ルビジウムおよびカリウムのトレーサー調製

東北大学核理研電子ライナックにより 60 MeV 制動放射線を、RbCl および $\text{Ca}(\text{OH})_2$ に照射し、 $^{82\text{m}}\text{Rb}$ 、 ^{84}Rb および ^{86}Rb を、それぞれ $^{85}\text{Rb}(\gamma, 3n)^{82\text{m}}\text{Rb}$ 、 $^{85}\text{Rb}(\gamma, n)^{84}\text{Rb}$ および $^{87}\text{Rb}(\gamma, n)^{86}\text{Rb}$ 反応により、また ^{43}K については $^{44}\text{Ca}(\gamma, p)^{43}\text{K}$ 反応により製造した。 ^{43}K は照射後陽イオン交換樹脂法によりカルシウムから無担体状態で分離して用いた⁵⁾。

2.3 沈殿分離操作

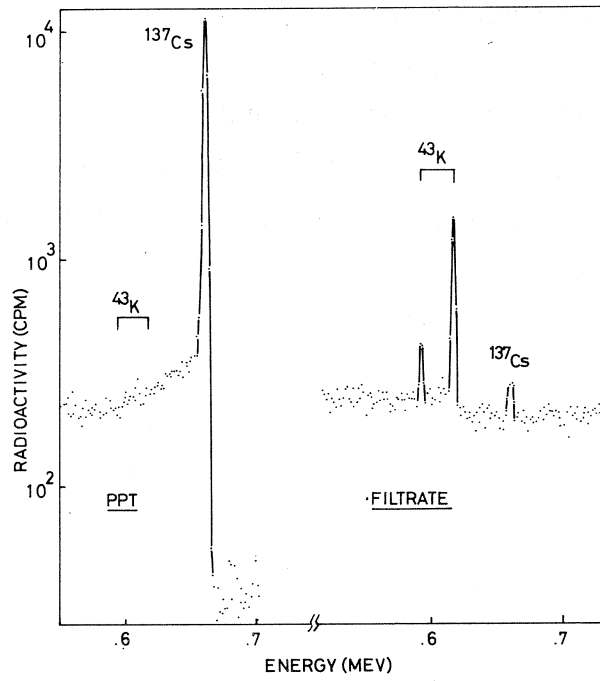
酢酸-酢酸ナトリウム緩衝溶液に所定濃度のアルカリ金属塩溶液を加え、これに Na-TFPB 水溶液を加え全量 28 ml にして Rb(Cs)-TFPB の沈澱を生成させた。この混合物を、1) 55 °C で 30 分間沈澱を熟成させた後、1 時間水冷し沈澱をろ過、または 2) 沈澱をすぐに水冷して 1 時間後にろ過した。いずれの場合も、0 °C の水で数回沈澱を洗浄し、ろ液を 50 ml のメスフラスコに受けた。沈澱は、アセトンに溶解し、50 ml のメスフラスコに溶液を受けた。それぞれの溶液より 5 ml ずつポリエチレン試験管にとり、その放射能を Ge(Li) 検出器または井戸型 NaI(Tl) を接続した 1 k PHA を用いて測定し、沈澱収率を求めた。

2.4 溶媒抽出法

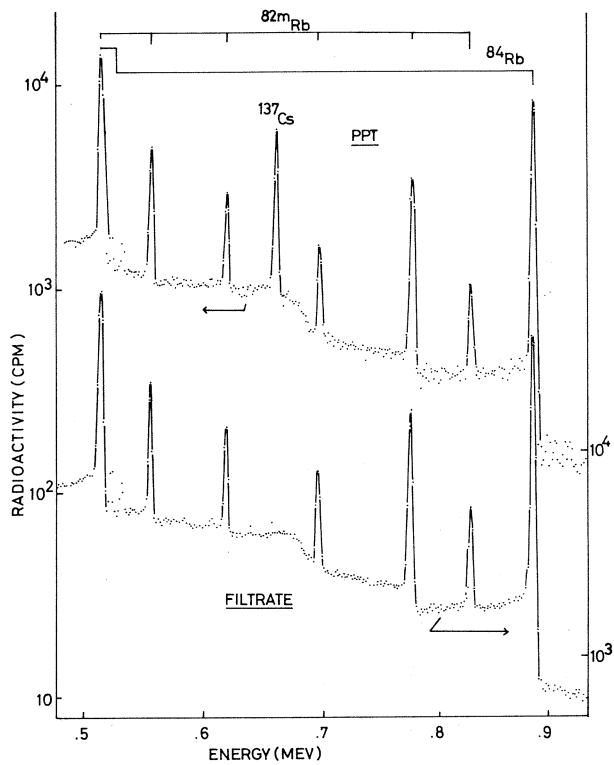
酢酸-酢酸ナトリウム緩衝溶液に、アルカリ金属イオンおよび Na-TFPB を加え全量を 5 ml にし、これに有機溶媒 5 ml を加えて抽出管で 1 分間振りまぜた後、遠心分離した。各層の放射能を測定して、抽出率を求めた。

§ 3. 実験および考察

^{137}Cs -TFPB の放射能分析と、重量法により求めた沈澱収率が一致することから、以後沈澱収率は放射能分析により求めた。用いた Na-TFPB の純度は、セシウムイオンと Na-TFPB の濃度比を変化させて Cs-TFPB の沈澱収率を求めた結果より 99% 以上と得られた。 ^{137}Cs -TFPB の沈澱収率は、pH 2~7 の領域で水冷下で操作すれば 98.9% であり、ルビジウムイオンがセシウムイオンと同濃度存在していても、共存金属イオン濃度に対し Na-TFPB が過剰に存在する限り ^{137}Cs -TFPB 沈澱収率は影響を受けない⁴⁾。この場合セシウム以外のアルカリ金属イオンの沈澱挙動を検討するために、カリウム、ルビジウムについてそれぞれ放射性同位体を用いて沈澱収率を求めた。第 1 図に示されているように、 ^{43}K の光電ピークは沈澱フラクションには検出されない。pH 6.4 $[\text{Cs}^+] = 5.36 \times 10^{-3} \text{ M}$ 、 $[\text{Na-TFPB}] = 8.49 \times 10^{-3} \text{ M}$ 、 ^{43}K



第 1 图 Gamma-ray spectra of ppt and filtrate fractions in the Cs-K TFPB system.



第 2 图 Gamma-ray spectra of ppt and filtrate fractions in the Cs-Rb TFPB system.

については無担体の条件で ^{137}Cs -TFPB沈澱収率は99.3%であるのに対し、 ^{43}K -TFPB沈澱収率は0.3%であった。一方ルビジウムについては、第2図に見られるように、沈澱のフラクションにもルビジウムの放射能が検出される。そこでRb-TFPB沈澱収率に影響を与える要因を検討した。

沈澱生成に対するpHの影響を第1表にまとめた。水素イオン濃度が高くなるにつれてNa-TFPBが分解し、Rb-TFPBの沈澱収率は減少する。沈澱熟成温度が高いとこの傾向は増進する。しかしpH4以上では、Rb-TFPBの沈澱収率は一定である。55°Cで沈澱を熟成した場合、収率はやや低くなるが、溶解度積を計算すれば 1.6×10^{-5} と一定値を示している。氷冷下で分離操作をする限り沈澱生成条件に依存せずに、Rb-TFPBはその溶解度積に従って沈澱することがわかる。

第1表 Effect of pH on the Rb-TFPB precipitation yield.

$[\text{Rb}^+]$, M	$[\text{Na-TFPB}]$, M	pH	Procedure	Yield(%)	Solubility Product
7.06×10^{-3}	11.2×10^{-3}	1.4	0°C, 1 hr	53.9	2.41×10^{-5}
		2.7		65.5	1.60×10^{-5}
		4.6		67.6	1.47×10^{-5}
		6.7		67.9	1.45×10^{-5}
		12.3		66.2	1.56×10^{-5}
5.87×10^{-3}	11.2×10^{-3}	2.7	55°C, 30m/0°C, 1hr	37.0	3.34×10^{-5}
		3.1		46.6	2.65×10^{-5}
		4.4		60.1	1.79×10^{-5}
		5.2		63.4	1.61×10^{-5}
		6.7		60.5	1.77×10^{-5}

第2表 Effect of Cs ion on the Rb-TFPB precipitation yield.

$[\text{Cs}^+]$, M	$[\text{Rb}^+]$, M	$[\text{Na-TFPB}]$, M	Yield(%)	Solubility Product
4.29×10^{-3}	1.16×10^{-3}	12.8×10^{-3}	31.8	6.44×10^{-6}
	2.63×10^{-3}		41.4	1.14×10^{-5}
	4.11×10^{-3}		43.4	1.56×10^{-5}
	5.58×10^{-3}		51.7	1.52×10^{-5}
	7.06×10^{-3}		53.0	1.58×10^{-5}

セシウムイオンが共存する場合のRb-TFPB沈澱収率を pH 4.6 において求めた結果が、第2表に示されている。ルビジウムイオン濃度が高い場合には、Rb-TFPBの沈澱収率は、溶解度積によって与えられるが、低くなるにつれてRb-TFPBのCs-TFPBの沈澱に共沈する傾向があるようである。

Cs-TPBはニトロベンゼンに抽出されるそとが知られている⁶⁾。またCs-TFPBもニトロベンゼンに99%の抽出率で抽出される⁴⁾。しかしニトロベンゼンと水相の分離が困難であるために、ニトロベンゼンをクロロホルムで希釈した場合のRb-TFPBの抽出率をpH 5.4で求めた。第3表のように、ニトロベンゼンが40%以上含まれていれば、Rb-TFPBの抽出率は一定値(89.2%)を示す。

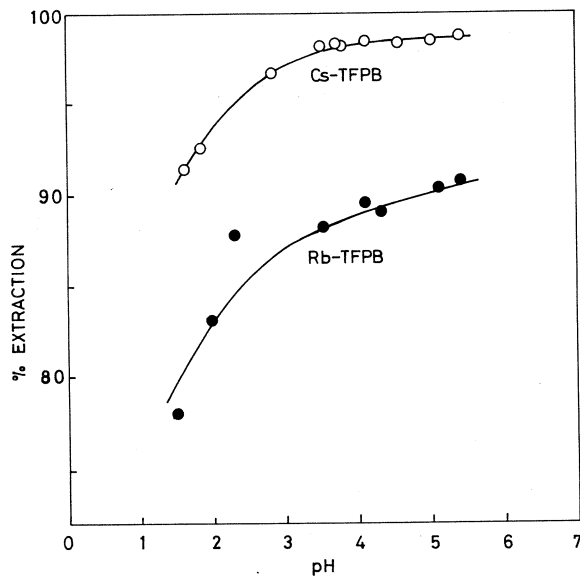
Cs-TFPBおよびRb-TFPBのニトロベンゼンへの抽出挙動をpHを変化させて求めた結果を第3図に示す。Cs-TFPBについては、ニトロベンゼン：クロロホルムの体積比を3：2と

第3表 Extraction of Rb with Na-TFPB.

$C_6H_5NO_2 : CHCl_3$	pH	% Extraction
0 : 5	5.4	1.0
1 : 4	5.4	78.5
2 : 3	5.4	88.6
3 : 2	5.4	89.7
4 : 1	5.4	87.9
5 : 0	5.4	90.6

した時の抽出率である。いずれの場合も、pHが低くなるにつれて抽出率の低下が認められる。しかしRb-TFPBの抽出率がpH 2ですでに80%を越えており、セシウムとルビジウムの分離は適当でないと考えられる。

以上の結果から、セシウムとカリウムの分離はNa-TFPBを用いれば効果的に行なわれることがわかった。しかしルビジウムは、Rb-TFPBの溶解度積に従って沈澱収率を与える。Na-TFPBを環境試料中の¹³⁷Csの分析に用いる場合には、沈澱生成条件、沈澱の再溶解、再沈澱条件についてさらに検討する必要がある。



第3図 Solvent extraction behavior of Cs (Rb)-TFPB into nitrobenzene.
 Aq. phase, acetate buffer,
 Org. phase, Rb: nitrobenzene,
 Cs: nitrobenzene - CHCl_3 (3:2).

本研究を行なうにあたり御協力いただいた東北大学理学部核理研八木益男助教授，近藤健次郎博士，マシングループの方々に厚く感謝します。費用の一部は文部省科学研究費によることを記して感謝します。

参 考 文 献

- 1) H. Okashita and H. Natsume : J. Nucl. Sci. Tech. **9**(1972)241.
- 2) C. E. Moore, F. P. Cassaretto, H. Posvic and J. J. McLafferty: Anal. Chim. Acta **35** (1965) 1.
- 3) C. M. Tsai, G. Izawa, T. Omori and T. Shiokawa: Radiochem. Radioanal. Lett. **20** (1975) 167.
- 4) 佐藤, 大森, 塩川: 未発表
- 5) C. M. Tsai, G. Izawa and T. Shiokawa: Radiochem. Radioanal. Lett. **13**(1973)179.
- 6) J. Krtil, M. Fojtik and M. Kyrs: Coll. Czech. Chem. Comm. **27** (1962)2069.

混合溶媒へのウラニル—TTAキレート のTBPとの協同効果抽出

選 研

秋葉健一・和田幹雄・菅野卓治

§ 1. 緒 言

ウラニル—テノイルトリフルオロアセトン (TTA) キレートの溶媒抽出に際して、リン酸トリブチル (TBP) などの中性配位子が共存すると付加錯体を生成し、協同効果により抽出が著しく促進される。この平衡は媒質の影響を強く受け、ヘキサンなどのパラフィン系溶媒で協同効果が大きく、クロロホルムなどでは小さい¹⁾。

混合溶媒を用いれば平衡定数の異なる溶媒を任意に設定できると考えられ、いくつかの混合溶媒中へのウラニル錯体の協同効果抽出について調べた。

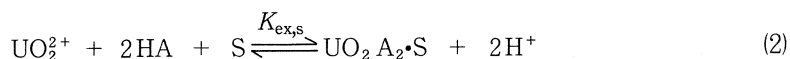
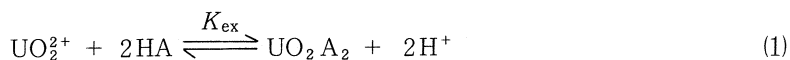
§ 2. 抽出種

ウランの分配比 (D) は ²³⁷U の γ -放射能測定より求めた。

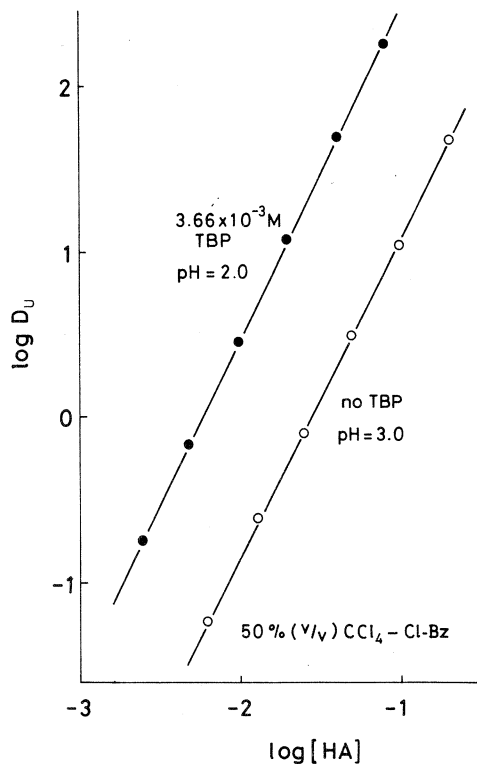
混合溶媒へのウラニル錯体の分配比の TTA (HA) 濃度依存性は第1図に示すように、TTAのみでも TBP (S) が共存する場合でも、ともに勾配2の直線となる。また、pH に対する log D の変化は勾配-2の直線となることを確かめた。

一方、TBP 濃度依存性は第2図に示すように勾配1の直線となり、1:1付加体のみ生成するとみなせる。

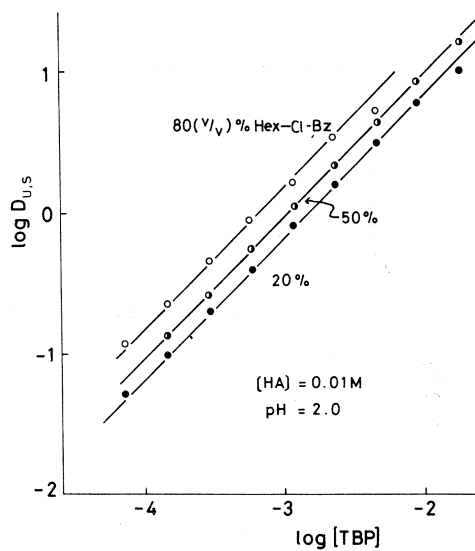
これらのことから、TTA 単独および TBP 共存下の抽出平衡はそれぞれ(1)および(2)式で表わされる。



すなわち、混合溶媒を用いても抽出種は単一溶媒系と同じく、TTA では UO_2A_2 および TBP 共存下では $\text{UO}_2\text{A}_2 \cdot \text{S}$ であり、混合溶媒の成分および組成の影響は受けないことが確認された。



第1図 Effect of TTA concentration on distribution ratios of uranyl complexes.



第2図 Effect of TBP concentrations.

§ 3. 協同効果抽出定数

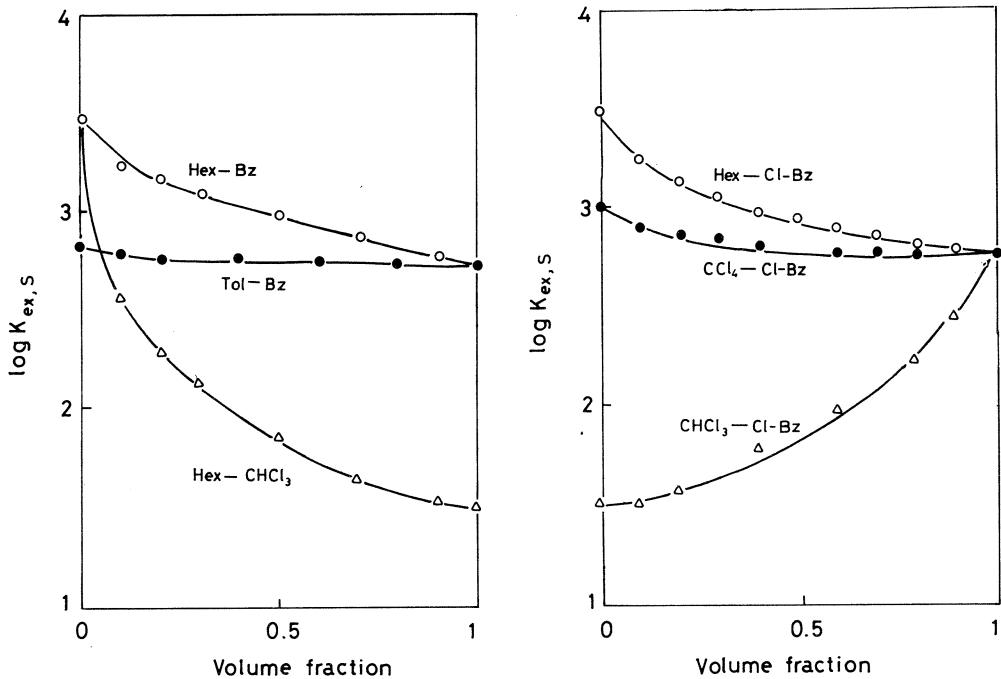
協同効果による抽出定数は第1表にみられるように、単一溶媒では溶解度パラメーター (δ_{org}) の小さい溶媒で大きい傾向がある。

第1表 Synergic extraction constants of $UO_2(TTA)_2 \cdot TBP$.

Solvent	δ_{org}	$\log K_{ex,s}^{*)}$
Hexane	7.3	3.49
Carbon tetrachloride	8.6	3.02
Benzene	9.15	2.68
Toluene	8.9	2.85
Chloroform	9.3	1.53
Chlorobenzene	9.5	2.75

*) Evaluated from values of $\log K_s$ ¹⁾ and $\log K_{ex}$ ²⁾; $K_{ex,s} = K_{ex} \times K_s$.

種々の混合溶媒の組成（容積分率）をかえて抽出定数を求め第3図に示す。これらの結果は



第3図 Synergic extraction constants in mixed solvent systems.

次のように要約できる。1) 抽出定数は容積分率との比例性はなく単一溶媒を結ぶ直線から負のずれを示す。2) 溶解度パラメーターが近いトルエンとベンゼンの混合系での変化は少ない。3) 溶解度パラメーターの差の大きい溶媒の組合せでは負のずれも大きい。4) クロロホルムを含む系では特に変化が大きく、TBPとクロロホルムとの特異な相互作用によるものと考えられる。

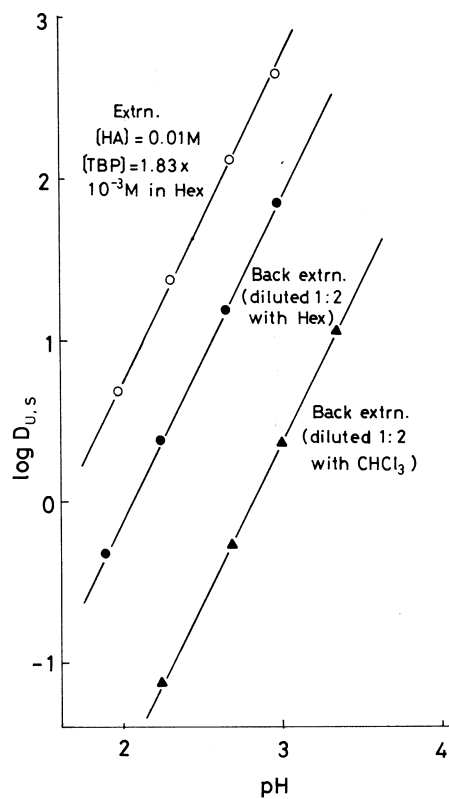
§ 4. 正逆抽出

協同効果は配位座に余裕のある多くのキレートに共通におこることから、i) 抽出率は増大しても選択性の向上にはならない、ii) 逆抽出が困難になるなどの例が知られている。

第4図にはヘキサン溶液への抽出、および有機相をヘキサンあるいはクロロホルムで2倍容に希釈後、逆抽出した例を示す。

希釈による試薬濃度の低下の効果のみならず、希釈溶媒の種類とくにクロロホルムで希釈すると分配比が大きく低下することがわかる。この現象は高次の付加錯体を生成する場合にはより強くあらわれることから、逆抽出過程を利用して、組成の異なる付加錯体の分離効率の向上

が計れると考えられ、現在検討中である。



第4図 Extraction and back extraction of $\text{UO}_2(\text{TTA})_2 \cdot \text{TBP}$.

参 考 文 献

- 1) K. Akiba and N. Suzuki : Bull. Chem. Soc. Japan **44**(1971)1043.
- 2) K. Akiba, N. Suzuki, H. Asano and T. Kanno : J. Radioanal. Chem. **7**(1971)203.

テトラブチルアンモニウムイオンによる 陰イオンのイオン対抽出率と水和数

工学部応用化学 斎藤達弥・平山和雄[†]

§ 1. 緒 言

イオン対溶媒抽出は水溶液中で水和した陰イオンと陽イオンが接し、イオン対の状態では有機溶媒に移行することであり、イオン対の生成においてイオンの水和が重要な因子と考えられる。すなわち抽出溶媒中の水和数の減少は水和殻の縮小であり、静電的な陰イオンと陽イオンの接近がより可能となることから抽出率は増加すると推察される。本研究ではテトラブチルアンモニウムイオンを用いて種々のハロゲン化物イオン、シアン酸イオン、カルボン酸イオンをニトロベンゼンおよび1,2ジクロロエタンに抽出しその抽出率をトレーサーを用いて求め、またその水和数はカールフィッシャー法により求めた。溶液中のイオンの水和数を求める方法としては他にNMR法¹⁾やIR法^{2,3)}等もあるが測定法により異った水和数が得られている。しかしカールフィッシャー法は有機溶媒中の水分子を滴定により求める方法で、抽出されたイオン対に伴う実際の水分子数を直接求められるため本研究に適していると考えられる。

§ 2. 実 験

2.1 試 薬

陰イオンとしては塩化物イオン、臭化物イオン、ヨウ化物イオン、シアン化物イオン、シアン酸イオン、チオシアン酸イオン、酢酸イオン、プロピオン酸イオン、イソ酪酸イオン、ヘキサン酸イオン、安息香酸イオン、オクタン酸イオン、ペラルゴン酸イオン、デカン酸イオンおよびラウリル酸イオンでありそのカリウム塩を用いた。抽出試薬としての陽イオンはテトラブチルアンモニウムイオンであり、その水酸化物水溶液を用いた。抽出溶媒としては主としてニトロベンゼンと1,2ジクロロエタンを用いたが他にクロロベンゼン、ブロモベンゼン、クロロホルムおよびベンゼンも用いた。

[†] 現在 日本大学工学部

2.2 トレーサー

種々の陰イオンのカリウム塩を石英管に封入し、核理研LINACのI系RIコースで照射を行い(r, n)反応で生成した ^{11}C ($t_{1/2} = 20.3$ 分), $^{34\text{m}}\text{Cl}$ ($t_{1/2} = 32.0$ 分), $^{80\text{m}}\text{Br}$ ($t_{1/2} = 4.38$ 時間)および ^{126}I ($t_{1/2} = 13$ 日)をトレーサーとした。

2.3 実験操作

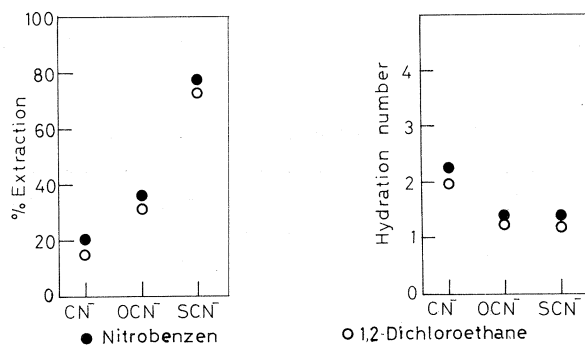
照射後のカリウム塩を0.04M水溶液とし同量の0.1M水酸化テトラブチルアンモニウム水溶液と同量のニトロベンゼンあるいは1,2ジクロロエタンを加えて30分間振りまぜ、イオン対を抽出した。抽出後の水相と有機相を同量分取し、短寿命成分の減衰後、ウェル型NaI(Tl)-神戸工業製シルグルチャンネルPHAで放射能測定を行ない、抽出率を求めた。イオン対を抽出した有機相をすべての放射能が減衰後カールフィッシャー滴定を行ない、水分子を定量した。この際イオン対に伴なう水分子以外の水分子が振りまぜにより有機溶媒に溶け込むので有機溶媒中の飽和の水分子をブランクとして差し引いて水和水の数を求めた。

§ 3 結果および考察

3.1 シアン酸イオン類の抽出率と水和数

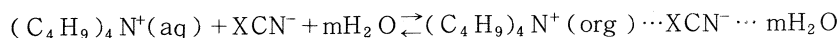
抽出剤として用いたテトラブチルアンモニウムイオン等の大きなテトラアルキルアンモニウムイオンはストークス半径と結晶イオン半径がほぼ等しく⁴⁾,ほとんど水和していないとみなされている⁵⁾。それ故求められたイオン対の水和数は陰イオンの水和数とみなした。

シアン化物イオン, シアン酸イオンおよびチオシアン酸イオンの水溶液にテトラブチルアンモニウムイオンの水溶液を加えてイオン対を形成させ、ニトロベンゼンおよび1,2ジクロロエタンに抽出した抽出率とその水和数を第1図に示す。抽出率は $\text{CN}^- < \text{OCN}^- < \text{SCN}^-$ の順で高



第1図 Extraction and hydration of XCN^- into organic solvent.

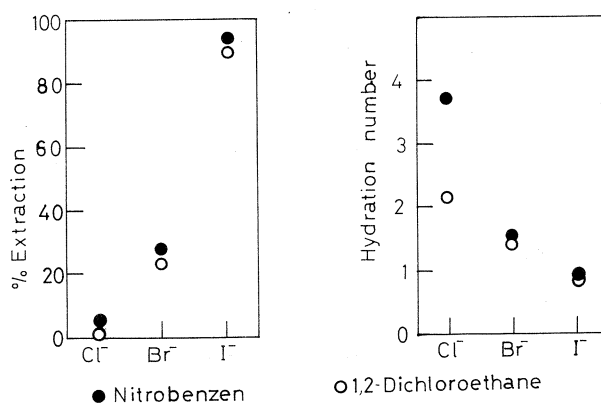
くなるが水和数は逆の順序になっている。イオン対抽出に伴う水分子の抽出は次式の様にあらわされる。



$(C_4H_9)_4N^+$ と XCN^- との結合は陽イオンと陰イオンの静電的な結合であるが、 XCN^- と H_2O との結合は水素結合的なものと推定される。

3.2 ハロゲン化物イオンの抽出率と水和数

第2図に塩化物イオン、臭化物イオンおよびヨウ化物イオンのニトロベンゼンと1,2ジクロロエタンへの抽出率とその水和数を示す。



第2図 Extraction and hydration of X^- into organic solvent.

水和数の少ない方が抽出率がよく、水和した陰イオンがイオン対を形成しにくいことを示しており、塩化物イオンの場合は溶媒介入イオン対の性質を示しているものと思われ、遊離イオンに近い性質を持っている。一方、ヨウ化物イオンの場合は接触イオン対の性質が強いものと思われる。第1表にこれらハロゲン化物イオンのイオン半径、粘性のB係数⁶⁾およびKenjo⁷⁾

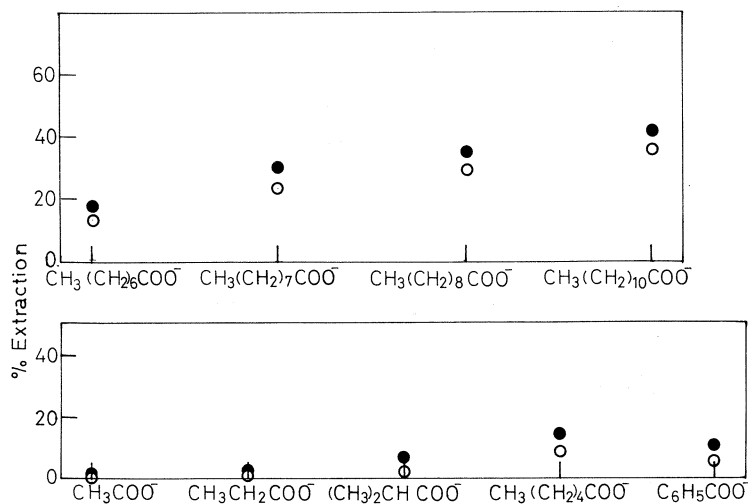
第1表 Ionic radii, B coefficients and hydration numbers of halide ions.

Ion	Radius (nm)	B^\pm (25 °C)	Hydration number
Cl ⁻	0.181	- 0.007	3.3
Br ⁻	0.196	- 0.044	1.8
I ⁻	0.220	- 0.074	1.0

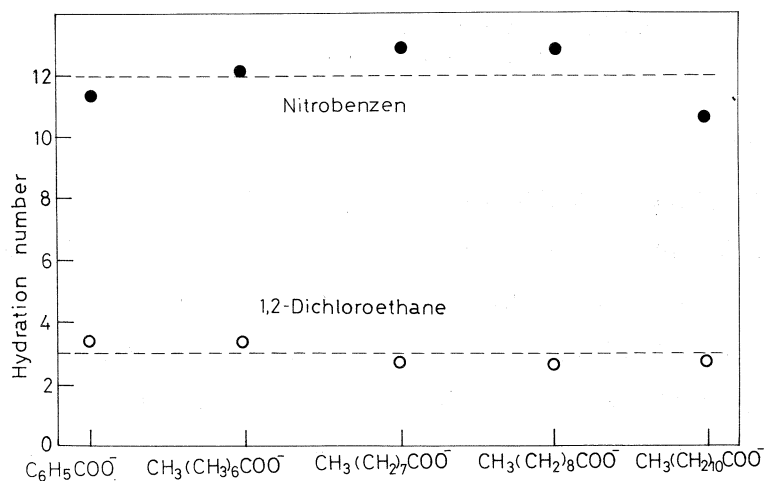
が求めたニトロベンゼン中での水和数を示す。イオン半径が大きくなるに従ってB係数が負になり、構造破壊性が大となって疎水性にもとづく構造形成性が大きいテトラブチルアンモニウムイオンとはイオン対を形成しやすくなる。Kenjo が求めた水和数とはほぼよい一致を示していると思われる。

3.3 カルボン酸イオンの抽出率と水和数

9種類の脂肪族カルボン酸イオンと1種類の芳香族カルボン酸イオンのイオン対のニトロベンゼンと1,2ジクロロエタンへの抽出率と水和数を第3図、第4図に示す。アルキル基あるいは



第3図 Extraction of RCOO⁻ into organic solvent.



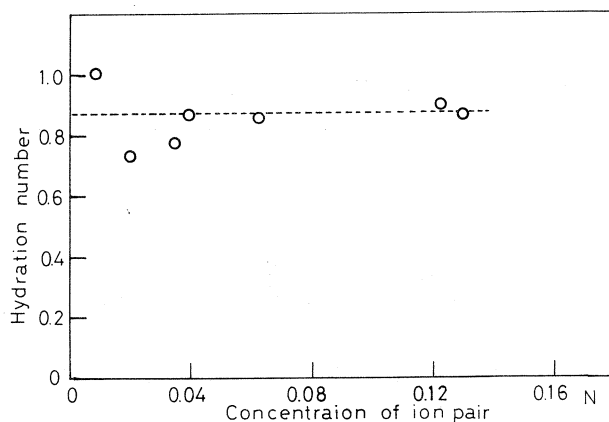
第4図 Hydration number of RCOO⁻ · N⁺(C₄H₉)₄.

はアリル基の炭素数が増えるに従って抽出率は増加するがニトロベンゼンの場合でも1,2ジクロロエタンの場合でも水和数はほとんど一定である。これはアルキル基やアリル基には水和せず、カルボニル基の場合²⁾と同様にカルボキシル基の酸素に対して水分子が水素結合して水和しているものと考えられる。すなわち親水性基であるカルボキシル基に対しては水和はするが疎水性基であるアルキル基あるいはアリル基に対しては水和しないものと考えられる。

3.4 イオン対濃度の影響

陰イオンの濃度を0.04 Mとしたために抽出率が低ければイオン対の濃度が低くなり、陰イオンによりイオン対の濃度に差ができる。

イオン濃度により水和数が異なるかどうかを調べるためにテトラブチルアンモニウムイオンの濃度を变化させ、ヨウ化物イオンとのイオン対を1,2ジクロロエタンに抽出した結果を第5図に示す。多少のバラつきはあるがほぼ一定の水和数を示すと思われる。



第5図 Hydration number of $(n-C_4H_9)_4N^+ \cdot I^-$ with 1,2-dichloroethane.

3.5 抽出溶媒

第1図～第3図において抽出溶媒がニトロベンゼンと1,2ジクロロエタンとでは同じ陰イオンでも異なった水和数を示している。これは用いた溶媒によってどの範囲までの水和殻が抽出可能であるかを示しているものと思われ、イオンと水分子との相互作用の強弱に従って抽出される水和数が決まる。この点は液体X線回折法による水和構造で動径分布曲線から第1水和殻、第2水和殻ときまる場合と異なり、陰イオンに水素結合している水分子の数があまりはっきりきまらない。第2表にテトラブチルアンモニウムイオンとヨウ化物イオンのイオン対を溶媒を変えて抽出した時の水和数を示す。この水和数は水素結合の様な弱い結合でついている水分子

第2表 Hydration numbers of $(C_4H_9)_4N^+ \cdot I^-$

Solvent	Hydration number
Nitrobenzene	0.89
1,2 Dichloroethane	0.86
Chlorobenzene	0.63
Bromobenzene	0.74
Chloroform	0.43
Benzene	0.34

数を求めているため、抽出溶媒の極性が小さくなるに従って水和数が小さくなっている。

参 考 文 献

- 1) R. W. Creekmore and C. N. Reilly : J. Phys. Chem. **73** (1969) 1563.
- 2) S. C. Mohr, W. D. Wilk and G. M. Barrow: J. Am. Chem. Soc. **87** (1965) 3048.
- 3) R. Jasinski and S. Carroll : Anal. Chem. **40** (1968) 1908.
- 4) R. A. Robinson and R. H. Stokes : Electrolyte Solutions. (Butterworths, London 1959)
p 125
- 5) T. Kenjo and R. M. Diamond : J. Phys. Chem. **76** (1972) 2454.
- 6) G. Engel and H. G. Herz: Ber. Bunsenges. Physik. Chem. **72** (1968) 808.
- 7) T. Kenjo and R. M. Diamond : J. Inorg. Nucl. Chem. **36** (1974) 183.

4 π ガスフロー型耐熱GM検出器の製作

核理研 近藤健次郎・八木益男

§ 1. 序 論

気、液および固相における有機化合物において核変換にともなって生成する各種トレーサー量の放射性生成物の分析は一般にガスクロマトグラフからの流出ガスを放射線検出器に導びき連続測定することによって行なわれる。この際ガス中の放射性核種が放出する放射線の種類あるいは検出効率などを考慮し実験に適当な検出器が用いられる。一般にはGM管、NaI(Tl)シンチレーションおよびプロポーションナル検出器などを用いる方法がとられる。

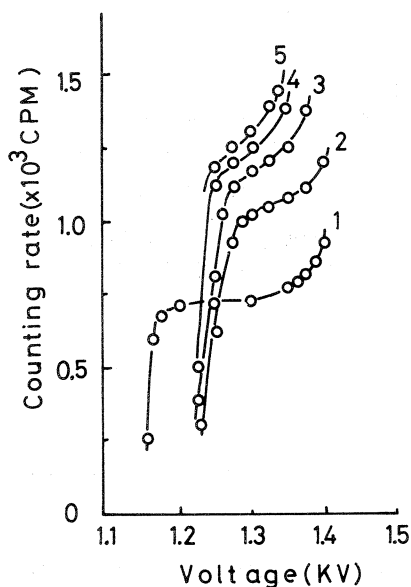
これまで著者らは気相 CH_3X ($\text{X}=\text{H}, \text{F}, \text{Cl}, \text{Br}$) - $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$ (or $\text{H}^{82\text{m}}\text{Br}$) 系において $^{80\text{m}}\text{Br}$ および $^{82\text{m}}\text{Br}$ の核異性体転移で生成する各種放射性生成物の分析を2個の端窓型GM管を用いた4 π 型GM検出器をガスクロマトグラフに連結して行ない、 ^{80}Br および ^{82}Br の崩壊で放射される β^- 線(一部 γ 線を含む)を効率よく検出することに成功した。しかし上記系において生成する生成物の沸点は多岐にわたり、検出器を100 $^\circ\text{C}$ 以下で使用した場合、一部高沸点化合物はGM管窓部に凝縮しテーリングの原因となり、それぞれの生成物の真の放射能強度を求めることは不可能であった。したがって通常高沸点化合物を含む放射性ガス分析はガスクロマトグラムでそれぞれの放射性生成物に相当する部分を一旦ガスクロマトグラフ出口で捕集しその放射能を測定することによって行なった。しかしこの場合しばしば捕集および捕集管からの放射性生成物の洗浄などの操作で大きな実験誤差が生じるとともに操作が煩雑であるなどの欠点があった。このようなことからとくに高沸点放射性生成物で含まれる放射性核種が本研究のように β^- 線放射体でありまたこの β 線を測定した方が計数効率が良い場合は高温領域でも安定に作動する耐熱型GM検出器の開発がのぞまれていた。

今回は以上の観点からとくに気相 $\text{C}_6\text{H}_5\text{X}$ ($\text{X}=\text{H}, \text{F}, \text{Cl}, \text{Br}$) 系において核壊変の結果生成する各種 ^{80}Br 標識有機化合物を分析する上で必要な耐熱型GM管の開発製作を試みた。

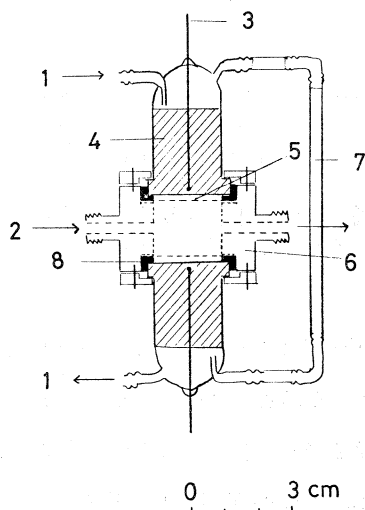
本報では製作した耐熱型ガスフローGM管の諸特性について述べるとともに実際の分析結果についても言及する。

§ 2. 構造と製作および特性

まず第1図に従来使用してきたガス封入型端窓GM管 (Aloka GM-2003) の印加電圧に対する温度特性を示す。室温で使用した場合およそ1,000~1,200 Vの間にプラトーがあるが高温になるにつれプラトー幅が狭くなる。100℃以上では一定計数領域は見られず、このような温度領域では実際上定量的な放射性ガスの放射能強度を測定することはできない。また温度特性として興味ある点は温度が高くなるにつれ計数効率が高くなり同時に計数開始電圧も高電圧側にシフトすることである。これはGM管内の気体分子運動が激しくなることに起因するものと考えられる。このようなガス封じ込み型GM管を高温で使用した場合は、電圧、温度のわずかな変動が放電の原因となるためGM管自体の寿命を短くするとともに単に放射ガス成分の定性分析にのみにしか使用できない。著者らはこれにかわるものとして熱遮蔽型2"×2" (TI) 検出器の製作も試みたが⁸⁰Brからの β^- および γ 線に対する検出効率が極めて悪く実際の実験には使用できなかった。そこで上記GM管の場合高温時における劣化の大きな原因が封入ガスの変質に起因するものと考え、GM管充填ガスをガスフロー形式にし、ガス流速を調節することにより高温時における放射線の定量的測定の可能性を検討した。



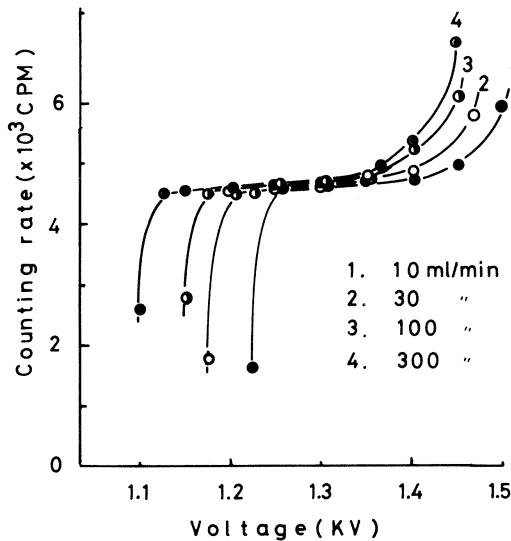
第1図 ガス封入型GM管 (Aloka, GM-2003)の温度特性.
1, 20℃ 2, 60℃ 3, 100℃
4, 150℃ 5, 200℃.



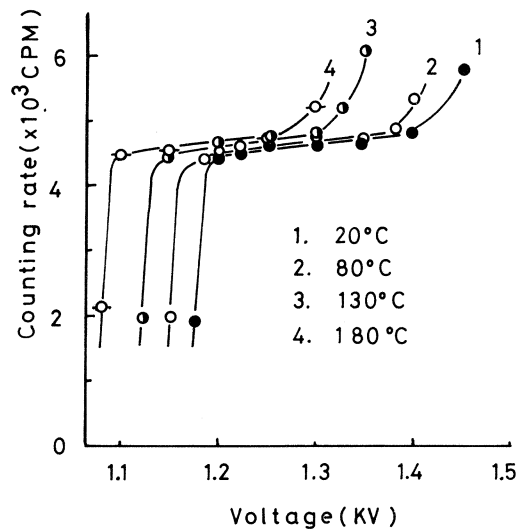
第2図 4πガスフロー型耐熱GM検出器.

1. Qガス入口および出口 2. ガスクロマトグラフからの流出ガスの入口および出口 3. 陽極線Mo (0.1mmφ)
4. GM管 (コパーレーバイレックス) 斜線部: コパー
5. 雲母板 (~5 mg/cm²) 6. ステンレスホルダー
7. テフロン管 8. テフロンパッキング

第2図に製作した4 π ガスフロー型耐熱GM管の構造を示す。GM管のホルダーはステンレスで雲母板(～5 mg/cm²)は直接アラルダイトでホルダーに接着し、さらにテフロンパッキングを用いて放射性ガスが外にリークしないようにした。GM管は市販コバルトパイレックス管を加工したもので陰極にはコバルトをそのまま用い、一方陽極にはMo線(0.1 mm ϕ)を用いた。8 mm ϕ のL字型パイレックスガラス管およびテフロン管でガス流路をつくり市販Qガス(He: 98%, イソブタン, 2%)を流した。このように製作したGM管の温度特性およびQガス流速の影響を第3, 4図に示す。室温でQガス流速10～300 ml/minの範囲における計数効率と印



第3図 印加電圧と計数効率の関係に対するQガス流速の影響。



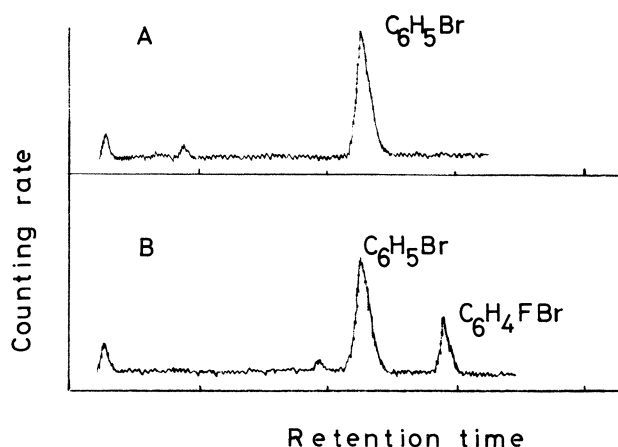
第4図 印加電圧と計数効率の関係に対する温度効果。

加電圧の関係(第3図)から、いずれの流速でもおよそ200Vのプラトーがあり、また計数効率も流速変化に殆んど影響されないことが分る。

しかし流速が大きくなるにつれ計数開始電圧が低電圧側にシフトし300 ml/minでの計数開始電圧は10 ml/minでのそれよりおよそ100V低い。

一方各温度における計数効率と印加電圧との関係(第4図)から高温領域ではプラトーが幾分狭くなるものの180°Cにおいておよそ150Vのプラトーを持つ優れた特性を示している。またガス封じ込み型GM管の場合と異なり計数効率に対する温度変化は殆んど無視しうる程度であった。さらに高温になるにつれ計数開始電圧も低くなり室温と180°Cの場合ではおよそ100Vのひらきがあった。

このように製作したガスフロー型GM管は従来のGM管と異なりすぐれた温度およびガス流速特性をもち、高温で長時間連続測定においても安定動作し放射線の定量測定が可能であることが判明した。実際にこのガスフロー型耐熱GM検出器を用い気相 C_6H_5Br および $C_6H_5F-H^{80m}Br$ 系において ^{80m}Br の核異性体転移で生成する各種放射性生成物の定量的な放射性測定を試みた。検出器部を $180^\circ C$ の電気炉に入れ分析した際のラジオガスクロマトグラムを第5図に示す。図から明らかなように各生成物に相当する放射能ピークには従来のGM管でしばしばみられたテーリングは全く認められずこれら放射性生成物の分析が良好であることを示した。



第5図 4 π ガスフロー型GM検出器を用いたラジオガスクロマトグラム.
A: 気相 $C_6H_5Br-H^{80m}Br$ ($HBr / C_6H_5Br = 0.1$) B: 気相
 $C_6H_5F-H^{80m}Br$ ($HBr / C_6H_5F = 0.1$) 分離条件: シリコーン
オイルDC 550 (Celite 545, 80~100mesh)カラム長さ: 2 m
キャリアーガス: He.

§ 3. ま と め

今回製作したガスフロー型GM管はすぐれた温度特性を持ち $180^\circ C$ 近辺の高温においてもきわめて安定に動作し放射線の定量的測定が可能である。本装置は特にガスクロマトグラフなどに連結し放射性有機あるいは無機高沸点化合物の連続分析に最も適しているものと考えられる。

本ガスフロー型耐熱GM検出器を製作するにあたりGM管部ガラス細工をしていただいた理学部硝子工場安住氏に感謝します。

ポジトロン放射体 ^{62}Cu のミルク装置

核理研

八木益男・近藤健次郎

A generator for producing several 100 μCi quantities of carrier-free, radiochemically pure ^{62}Cu was prepared for medical uses. The parent, ^{62}Zn , was produced by the $^{64}\text{Zn}(\gamma, 2n)$ reaction, and adsorbed on an anion exchange column (Dowex 1 \times 8). The carrier-free daughter, ^{62}Cu , was then eluted with 1N HCl. The eluate was neutralized immediately to PH=4.5-5.0 by adding small volumes of sodium carbonate solution.

§ 1. 序 論

臨床医学, 生化学分野ではポジトロン消滅光子同時計数法による測定描画が極めて優れていることから, 短半減期ポジトロン放射体同位体の供給を強く要望している。短半減期の場合, できうればそれは必要に応じてその場その場で供給されることが望ましいが, 長半減期の親核種-短半減期の娘核種という関係にある放射性同位体壊変系列を利用するとそれが可能となる。すなわち親核種から壊変生成した娘核種を必要に応じて分離し利用するわけで親核種を牝牛, 娘核種をミルクということもある。

本研究では ^{62}Zn (半減期: 9.3時間) - ^{62}Cu (半減期: 9.7分) の壊変系列を利用したポジトロン放射体 ^{62}Cu のミルク装置の開発について検討したので, それについて報告する。

親核種 ^{62}Zn はサイクロトロンを利用して, 主として $^{60}\text{Ni}(\alpha, 2n)$, $^{60}\text{Ni}(^3\text{He}, n)$ あるいは $^{63}\text{Cu}(p, 2n)$ 反応により効率よく製造することができるが, 電子リニアックによる $^{64}\text{Zn}(\gamma, 2n)$ でもそれをかなり効率よく製造することができる。サイクロトロンを利用した上記核反応によれば, ^{62}Zn は無担体でえられるという利点があるが, 電子リニアックによる場合はターゲットと同位体となるため無担体では得られない。しかし電子リニアックでも 0.7 放射長の白金コンバーターと 60 MeV - 150 μA の電子ビームをもちいて照射した場合, 毎時亜鉛 1 g 当り 1.65 mCi の ^{62}Zn を製造することができ¹⁾ 十分本ミルク装置の親核種製造法として利用できる。

§ 2. 実 験

2.1 ^{62}Zn の調製

^{62}Zn は $^{64}\text{Zn}(\gamma, 2n)$ 反応によって製造した。約 0.1 g の亜鉛金属箔を 60 MeV - 150 μA の電子ビームで 5 時間照射した。

2.2 放射能測定

イオン交換樹脂法によって分離された核種の同定とミルクングにおける放射能測定は、Ge (Li) 検出器および 4096 区分波高分析器をもちいておこなった。試料は溶液のまま不感時間が 10% 以下になるよう検出器から適当な距離をとって測った。

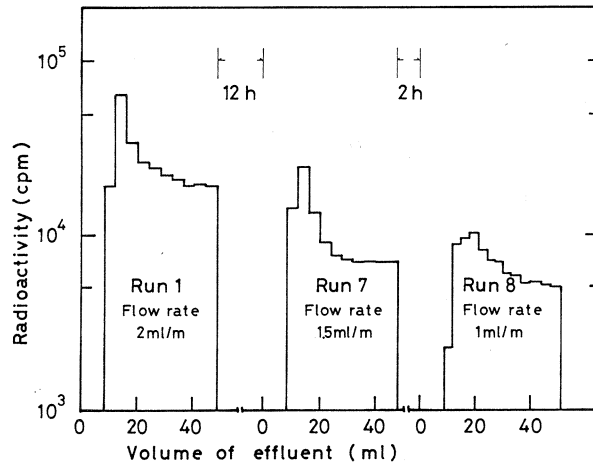
2.3 ^{62}Cu ミルクング装置の調製

照射ターゲットは照射後直ちに 3 N 塩酸の少量に溶解し、蒸発乾固したのち 1 N 塩酸 2 ml 溶液にした。ついであらかじめ 1 N 塩酸で十分洗浄してある Dowex 1 \times 8 (R-CI 型) 陰イオン交換樹脂柱 (直径 1.3 cm, 長さ 20 cm, 50 ~ 100 メッシュ) にそれを 0.5 ml 毎分の流速で通し、さらに 40 ml の 1 N 塩酸で洗浄した。この操作により $\text{Zn}(\gamma, p\alpha n)$ 反応で生成した放射性銅は樹脂柱に吸着されることなく流出し、 $\text{Zn}(\gamma, xn)$ 反応で生成した放射性亜鉛は樹脂柱上層部に強く吸着し、両者は完全に分離される。ついで樹脂層上部に細かなサランシートを敷き、細断した石英綿で約 5 mm 位の層を作り、溶離液がなくなった場合樹脂柱に空気が入りこむのを防いだ。最後に医用 ^{62}Cu のミルクングを開始するため殺菌した 1 N 塩酸 50 ml で樹脂柱を十分に洗浄した。以上の全操作は照射後約 4 時間内におこなうことができた。

§ 3. 結果および考察

樹脂柱を最初約 40 ml の 1 N 塩酸で洗浄して得た各溶離液のガンマ線スペクトルを測定し、 $\text{Zn}(\gamma, p\alpha n)$ および $\text{Zn}(\gamma, xn)$ 反応で生成した放射性銅と亜鉛は完全に分離されたことを確認した。

最終的に調製準備された ^{62}Cu ミルクング装置は約 1 ~ 1.5 時間放置して、十分な量の ^{62}Cu を蓄積したあと 1 N 塩酸約 50 ml ずつを流速 2, 1.5 および 1 ml 毎分とかえて、その溶出分離をテストした。得られた溶出図は、第 1 図, Run 1 に流速 2 ml 毎分, Run 8 に 1.5 ml 毎分, Run 9 に 1 ml 毎分の場合をそれぞれ示した。これから無担体 ^{62}Cu の溶出は溶離液の流速によって著しく影響され、流速が小さい場合その溶出ピークは後方にずれるとともに広がる傾向を示すことがわかった。またいづれの流速の場合も約 30 ml 以後の溶出液中の放射能は次々に ^{62}Cu が壊



第1図 ^{62}Cu の溶離図

変生成されてくるためほぼ平衡状態となった。流速が小さい場合 ^{62}Cu の溶出ピークが後方にずれたのは ^{62}Cu が溶出するのに時間を要し、その間に ^{62}Cu 自身が壊変し減少したためである。それ故 ^{62}Cu のミルクিংは流速を大にした方が有利であり、流速 2 ml 毎分の場合は 10~20 ml 間に大部分の ^{62}Cu が溶出されてくるから、この場合は他の小さい流速の場合より高放射能溶液を短時間に入手できることを示す。

このように溶出分離された ^{62}Cu の放射化学的純度は放射能の減衰を 10 半減期間測定することによって確めた。その結果他の放射性核種は全く混入していないことが確認された。ただし通算 600 ml (12 回) の 1 N 塩酸をミルクングに使用した場合、 $\text{Zn}(r, xn)$ 反応による生成核が僅か混入してくることが認められた。この汚染は通算 700 ml (14 回) を溶出した場合、 ^{62}Cu 放射能の約 0.1 % に達した。

このような汚染が生じたあと、引続き本ミルクング装置を利用したい場合は、いったん樹脂柱に吸着されている放射性亜鉛を 0.005 N 塩酸約 70 ml で溶出させ、それを蒸発乾固し、残渣を 1 N 塩酸 2 ml に溶かし、ふたたび 1 N 塩酸で十分洗浄した元の樹脂柱に通せば、 ^{62}Cu のミルクング装置として再製できる。

^{62}Cu の大部分を含む約 10~20 ml 間の溶出液は炭酸ナトリウム溶液または重炭酸ナトリウムを加えることによって中和し PH 5 前後にすると同時に、銅と錯塩またはキレートを作りやすい試薬を適宜添加することによって任意の供試液に調製可能である。この操作は 2~3 分ででき ^{62}Cu の減衰はさして問題にならない。医用としてもちいる場合は、さらにミリポアフィルターで炉別してやればよい。

以上のように本装置をもちいれば、いつでもどこでも任意に無担体⁶²Cuを調製でき、希望する錯塩またはキレート化合物としてそれを使用することが可能となる。ここではZn($r, 2n$)反応による⁶²Znを親核種としてもちいたが、前述したサイクロトロンによる核反応では無担体⁶²Znが調製できるから、樹脂柱はもっと小型にしてもよいし、また通算溶離液はもっと多量に使用することも可能となる。

参 考 文 献

- 1) M. Yagi and K. Kondo : Int. J. appl. Radiat. Isotopes, (in press).

Solid Solubility and Residual Resistivity of Scandium in Aluminum*

Shinichiro Fujikawa, Mitsuo Sugaya,** Hajime Takei***
and Kenichi Hirano

*Department of Materials Science, Faculty of Engineering,
Tohoku University, Sendai 980, Japan*

The solid solubility and the residual resistivity of Sc in Al were determined by means of the measurement of electrical resistivity at 77 K of Al-Sc alloys air-cooled after annealing at various temperatures for the sufficient time to complete the precipitation of the equilibrium phase (ScAl_3). Moreover, the solidus line of Al-rich side was determined using a thermal analysis. The solid solubilities of Sc in Al were determined to be 0.186 at. % at 913 K, 0.160 at. % at 893 K, 0.134 at. % at 873 K, 0.117 at. % at 863 K, 0.104 at. % at 853 K, 0.086 at. % at 833 K, 0.068 at. % at 813 K, 0.058 at. % at 793 K, 0.045 at. % at 773 K and 0.033 at. % at 743 K. From the temperature dependence of the solid solubility the excess entropy of mixing (Δs) and the heat of mixing (Δh) associated with solid solution of Sc in Al were calculated to be 6.0 R and 59 kJ mol⁻¹, respectively. The compound ScAl_3 reacts eutectically with Al to form an Al-rich solid solution. The eutectic temperature is found to be (823 ± 1) K. The maximum solid solubility of Sc in Al was estimated using the values of Δs and Δh to be 0.21 at. % at the eutectic temperature. The resistivity increment caused by Sc atoms in solution is linearly proportional to the concentration of Sc. The residual resistivity for Sc in Al is found to be (3.4 ± 0.1) × 10⁻⁸ Ω·m/at. %.

* Submitted to the 54th Conference of the Japan Institute of Light Metals, in Sendai, on May 31- June 1, 1978. To be published in J. Less-Common Metals.

** Present address: the Patent Agency, Tokyo 100, Japan.

*** Present address: Hitachi Powder Metallurgy Co., Ltd. Tokyo 100, Japan.

§ 1. Introduction

It is well known that a small amount of transition metals exerts a pronounced influence on the structure and the properties of Al and Al alloys. The information about the Al-rich side of the phase diagram of Al-transition metal system is useful to understand behavior of the transition metals in Al and Al alloys. Moreover, the residual resistivities of the transition metals in Al are useful to investigate the electronic structure of the Al-rich solid solution. The reliable data of the solid solubility and the residual resistivity of Sc in Al have not been reported. In addition, there is a controversy on whether the Al-rich side of Al-Sc system is a eutectic or peritectic type.¹⁾

In the present work, the solid solubility and the residual resistivity of Sc in Al were investigated by means of the measurement of electrical resistivity at 77 K. Moreover, the solidus line of the Al-rich side of the system was determined using a thermal analysis.

§ 2. Experimental

2.1 Zone-refining of aluminum

In the present work, the 99.999 wt % Al ingots supplied from Sumitomo Chemical Co., Ltd. were zone-refined to avoid the influence of impurity atoms on the solid solubility and the residual resistivity of Sc in Al. The starting material was rolled and cut to a square rod of $1 \times 1 \text{ cm}^2$ in cross section and of 25 cm in length. After the machining, the surface of the rod was polished chemically in a 3:1 mixture of H_3PO_4 and H_3NO_3 at 363 K. The rod was set in a high purity graphite boat and placed in a quartz tube. It was melted with induction heating in vacuum better than 10^{-1} Pa. The conditions for the zone-refining are as follows: the zone speed; 13 cm/h, the zone length; 2 cm and the number of passing; 10. The surface of the rod was polished chemically in the solution at 363 K every one passing. The tail of the zone-refined Al of 5 cm in length was taken off every five times of passing and the remainder was used for the preparation of specimens.

2.2 Preparation of Al-Sc alloys

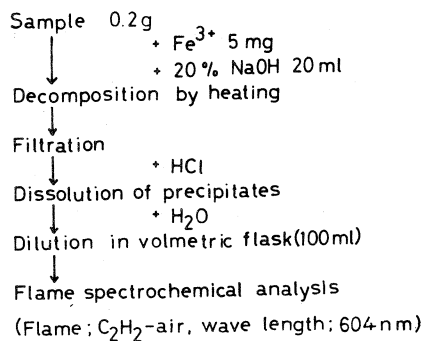
The Al-Sc master alloys containing 1.81 and 6.85 at. % Sc were prepared by melting the high purity Al in a high purity graphite crucible and then adding 99.9

wt% Sc wrapped by the high purity Al foil in the atmosphere of pure argon gas. The melt was thoroughly stirred before pouring and cast into a preheated iron mould. The Al-Sc alloys of desired composition were prepared by dilution of the master alloys with the high purity Al using the equipment of the zone-refining. Then the whole part of the specimen of 6 cm in length was kept melting for the sufficient time to homogenize Sc distribution. The solidification of Al-Sc alloys was rapidly carried out. Then zone-leveling was not performed, because the distribution coefficient of Sc in Al is nearly equal to 1. The ingots of Al-Sc alloys were homogenized at 873 K for 10 days and formed into wires of 0.6 mm in diameter by cold-swaging and drawing.

2.3 Analyses of composition

The concentration of Sc in the Al-Sc alloys was determined using mainly a flame spectrochemical analysis and for comparison a photon activation analysis. Fig. 1 shows the analysis method and the analysis precision of the flame spectrochemical analysis used in the present work.

(1) Analysis method



(2) Analysis precision

Reproducibility (n=5) using standard solution
 Arithmetic mean(\bar{x})=4.89 mg Sc
 Range(R) = 0.15
 Standard deviation($\hat{\sigma}=R/d_2$)=0.065
 Relative standard deviation($=\hat{\sigma}/\bar{x}$)=1.32%

Fig. 1. Analysis method of Sc concentration in Al-Sc alloy and analysis precision by means of flame spectrochemical analysis

The photon activation analysis was carried out by bremsstrahlung irradiations using an electron linear accelerator of Tohoku University. The specimens of Al and the Al-Sc alloys were small plates of $4 \times 8 \times 0.2$ mm³. A small amount of 99.9 wt% Sc was used as the comparative standard. In order to monitor the bremsstrahlung flux, accurately weighted plates of Au, 0.1 mm thick, were placed on the front and the back of each specimen and irradiated together with the specimens. Each specimen was wrapped in an Al foil. The ¹⁹⁶Au activities produced by the ¹⁹⁷Au(γ, n)¹⁹⁶Au process

were used for comparison. A mean specific activity was used to determine the dose rate of bremsstrahlung to which the specimen was exposed. The specimens and the Au monitors were encapsulated into a quartz tube and this unit was placed in a water-cooled specimen holder on the bremsstrahlung beam axis behind the photon-producing converter. The average beam current was measured at the converter using a current monitor. The irradiation conditions are as follows: the electron energy = 30 MeV, the gamma-rays dose rate = about 1.3×10^3 c/kg at the sample position, and the time of irradiation = 2 hours. The gamma-rays spectra were measured 6 days after the irradiation, using a Li-drifted Ge detector with a sensitive volume of 24 cm³ and 1024-channel pulse-height analyser.

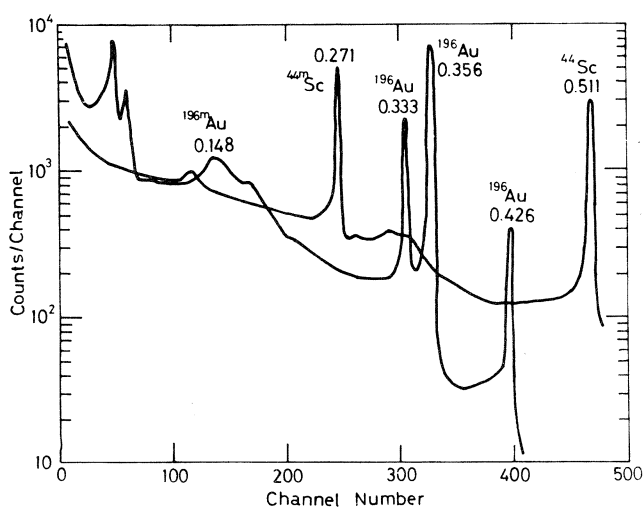


Fig. 2. Gamma-rays spectra of Al-Sc alloy and Au monitor irradiated by bremsstrahlung.

Figure 2 shows typical gamma-rays spectra of the irradiated Al-Sc alloy and Au monitor. Values on each peak are energies in MeV. Characterization of gamma-rays was obtained from a knowledge of the gamma-rays spectra of standard source (^{57}Co , ^{54}Mn , ^{22}Na , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{88}Y and ^{203}Hg) and nuclear data²⁾. The concentration of Sc in Al-Sc alloys was calculated using 0.271 MeV peak of $^{44\text{m}}\text{Sc}$ produced by (γ , n) reaction.

The results were shown in Table I indicating that the values by the flame spectrochemical analysis are in good agreement with those by the activation analysis. The values by the flame spectrochemical analysis were used in determining the residual resistivity and the solidus temperature.

Table I Chemical composition of specimens

Specimen No.	Flame spectrochemical analysis (at. %)	Photon activation analysis (at. %)
1	0.014	0.02
2	0.016	—
3	0.023	—
4	0.036	—
5	0.037	—
6	0.038	0.04
7	0.066	—
8	0.068	—
9	0.079	—
10	0.088	—
11	0.113	—
12	0.134	0.14
13	0.160	—
14	0.186	—
15	0.198	—
16	1.81	1.9
17	6.85	6.0

2.4 Electrical resistivity measurement and thermal treatment

Electrical resistivity was measured with the wire of 0.6 mm in diameter and 60 cm in length. The specimen for the electrical resistivity measurement was mounted on a quartz supporter.

In determining the solid solubility of Sc in Al, much care was expended upon the thermal treatment from the following aspects.

(1) The precipitation of equilibrium phase (ScAl_3) must be completed at various temperatures without supersaturated solute atoms, because generally, the diffusion of transition metals in Al is slower than self-diffusion of Al.

(2) The concentration of quench-in vacancies must be reduced as possible, because the solid solubility of Sc in Al was supposed to be small and the contribution of quench-in vacancies to electrical resistivity can not be neglected.

In the present work, the thermal treatment was continuously carried out using the method shown in Fig. 3.

Each specimen was used repeatedly to obtain data at various temperatures, *i. e.* specimens were replaced in a horizontal electric furnace after each measurement was carried out. After annealing at various temperatures for sufficient times to complete the precipitation of the ScAl_3 phase, the specimen was

air-cooled. Following immersion in acetone kept at 273 K, the specimen was

immediately put into liquid nitrogen. The time between the air-cooling and putting into a liquid nitrogen bath was about 20 seconds. This cooling process may be slow enough to prevent the production of quenched-in vacancies, but fast enough to obtain the supersaturated solid solution. The specimens were annealed at the following temperatures: 923 K (3 hours), 913 K (4 hours), 903 K (5 hours), 893 K (10 hours), 863 K (15 hours), 853 K (20 hours), 833 K (25 hours), 813 K (39 hours), 793 K (45 hours), 773 K (65 hours) and 743 K (72 hours). The high purity Al was annealed for 10 minutes at each temperature as follows and air-cooled: 903, 873, 823, 773, 723 and 673 K. The measurement of electrical resistivity was carried out at the liquid nitrogen temperature using the precision potentiometer. The correction of the liquid nitrogen temperature was made with a dummy specimen. The specimen itself was used as current leads.

The high purity Al of 0.6 mm in diameter were spot-welded to the specimen as a potential leads. The distance between the potential leads on the specimen is about 30 cm. After the measurement, the diameter of the specimen and the distance between the potential leads were measured and so the specific electrical resistivity was calculated.

2.5 Thermal analysis

The chromel-alumel thermocouple wrapped with the wire of Al-Sc alloy was put into a protective tube. The thermocouple was connected with an X-Y recorder.

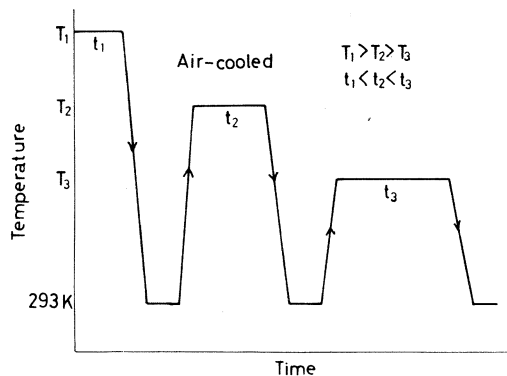


Fig. 3. Schematic diagram of heat treatment used in the present work.

An electric furnace was made ascending or descending in the speed of ± 1.5 K using a regulator with programming function. The solvus temperature was determined from the temperature of the exothermic and endothermic plateau which appeared in the straight line of thermoelectric power versus time owing to the fusion or solidification. The thermoelectric power of thermocouple was checked using the values of the freezing point, and the melting point of the 99.999 wt % Al.

§ 3. Results

Figure 4 shows the resistivities for the high purity Al and the Al-Sc alloys as a function of annealing temperature. The resistivity of the high purity Al is constant over all annealing temperature, indicating that quench-in vacancies were not introduced by air-cooling. The resistivity curves of the Al-Sc alloys consist of the increasing and the constant parts. The increasing part of the curve is caused by the enlargement of the solid solubility with a rise in temperature. The whole Sc atoms are in solution above a certain temperature and the resistivity remains when the specimen is subjected to further annealing at higher temperatures.

Figure 5 shows the resistivity as a function of the concentration of Sc at various temperatures. In the present work, the break in the curve was regarded as solid solubility. The solid solubilities determined in such a way were shown in Table II.

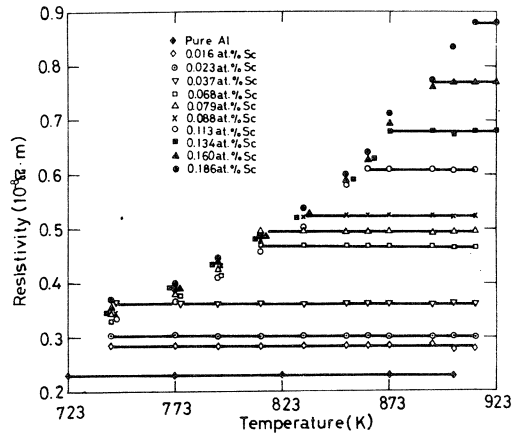


Fig. 4. Resistivity of Al-Sc alloy plotted as a function of annealing temperature for various Sc concentration.

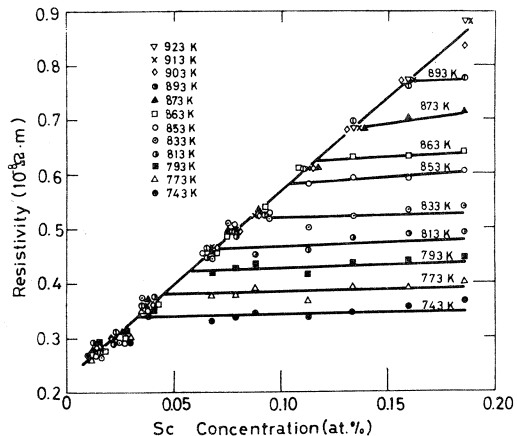


Fig. 5. Resistivity of Al-Sc alloy plotted as a function of Sc concentration for various annealing temperature.

Table II. Solid solubility of Sc in Al.

Temperature (K)	Sc concentration (at.%)
913	0.186
893	0.160
873	0.134
863	0.117
853	0.104
833	0.086
813	0.068
793	0.058
773	0.045
743	0.033

Generally, for the sufficient dilute solid solution the variation of the solid solubility with temperature is given by

$$C = e^{\Delta s/R} \cdot e^{-\Delta h/RT} \dots\dots\dots (1)$$

where C is the solid solubility in atomic fraction, Δs is the excess entropy of mixing, R is gas constant, Δh is the heat of mixing and T is temperature (K).

Figure 6 shows the logarithm of the solid solubility Sc in Al as a function of reciprocal of temperature.

The result is satisfactorily expressed by eq. (1). Therefore, applying the result shown in Fig. 6 to eq. (1), the values of Δs and Δh are calculated and shown in Table III, along with those³⁾ of other 3d transition metals.

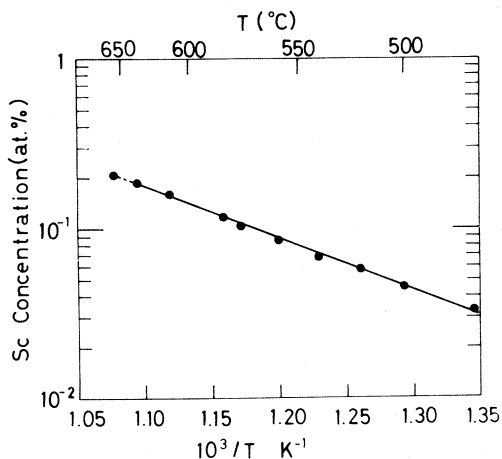


Fig. 6. Temperature dependence of solid solubility of Sc in Al.

Table III. Maximum solid solubility (C_{\max}), excess entropy of mixing (Δs) and heat of mixing (Δh) for 3d transition metals in Al.

Element	C_{\max} (at.%)	$\Delta s / R$	Δh (kJ mol ⁻¹)
Sc	0.21	6.0	59
Ti	0.57	2.6	60
V	0.32	—	—
Cr	0.44	0.46	47
Mn	0.9	3.8	67
Fe	0.025	2.3	82
Co	0.009	—	—
Ni	0.018	7.6	125
Cu	2.5	1.8	39

The results of the solubility line and the solidus line are summarized in the phase diagram of Fig. 7, in comparison with the result by Mondolfo.¹⁾ Figure 7 shows that the compound ScAl_3 reacts eutectically with Al to form an Al-rich solid solution. The concentration dependence of the solidus temperature is very small. The eutectic temperature is estimated to be equal to $(823 \pm 1) \text{ K}$, in good agreement with that by Mondolfo.¹⁾ The maximum solid solubility of Sc in Al was calculated

using the values of Δs and Δh to be 0.21 at.% at the eutectic temperature, and shown in Fig. 6 and Fig. 7.

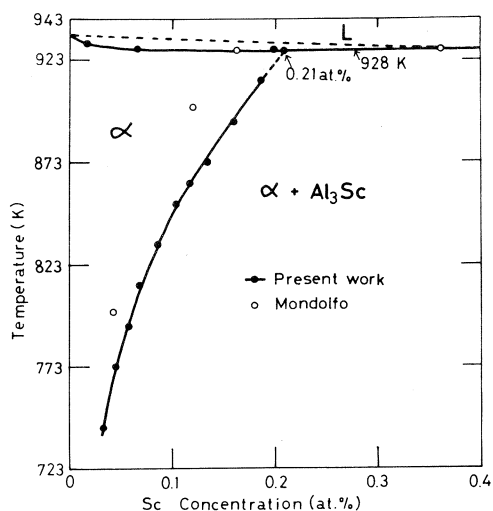


Fig. 7. Al-rich side of the equilibrium phase diagram of Al-Sc system determined by the present work, in comparison with that by Mondolfo.

Figure 8 shows the concentration dependence of the difference between the resistivities of the constant parts for the Al-Sc alloy and the high purity Al in Fig. 4, along with the data of Očko⁴⁾. From the result the residual resistivity per atomic percent of Sc in Al is found to be $(3.4 \pm 0.1) \cdot 10^{-8} \Omega \cdot \text{m} / \text{at.} \%$.

§ 4. Discussion

4.1 Method of determination

for solid solubility of Sc in Al

Figure 4 shows that resistivity hardly depend on the concentration of Sc beyond the solid solubility, indicating that the contribution of the ScAl_3 phase can be ignored in the resistivity of the Al-Sc alloys. Figure 8 shows that the resistivity increment is linearly proportional to the concentration of Sc. In determining solid solubility by means of the measurement of electrical resistivity, the contribution of equilibrium phase can be ignored and the resistivity increment must be linear proportional to solute concentration. These conditions are satisfied in the present work. Moreover, the thermal treatment of the Al-Sc alloy was carried out to attain to the equilibrium state at each annealing temperature.

Therefore, the solid solubilities determined in the present work may be authentic. The conclusion was also supported by the fact that the solid solubilities of Sc in Al can be represented by one Arrhenius type equation over the whole temperature range.

There are few of the results that are reliable among the already reported solid solubilities of the 3d transition metals in Al, because the purity of specimens, and the methods of measurement and thermal treatment are not appropriate. In addition, very little data are available for the solubilities of the 4d and 5d transition metals in Al. Therefore, the solid solubilities of Sc in Al determined in the

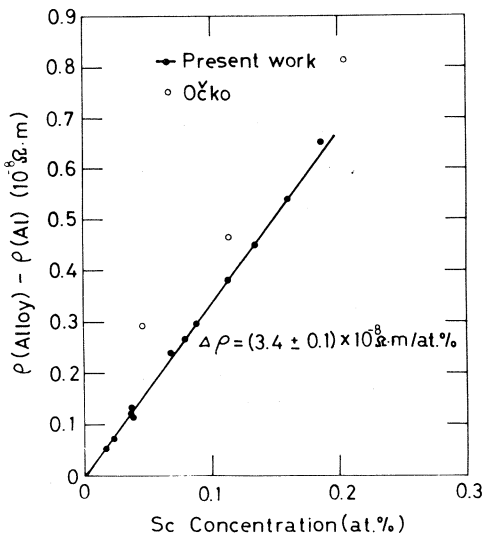


Fig. 8. Resistivity increment of Al-Sc alloy as a function of Sc concentration in solid solution.

present work are useful to investigate behavior of the transition metals in Al.

4.2 Excess thermodynamic quantities (Δs and Δh)

Table III shows that the values of Δs and Δh for the Al-Sc solid solution are similar to those for the Al-Ti and Al-Mn solid solution, and the very slightly soluble elements have the large values of Δs and Δh . The main factors responsible for the heat of mixing are the strain energy (W) caused by the difference in atomic radii of the solute and solvent atoms, and the valence effect. As the atomic radii of Al and Sc atoms are 1.43 and 1.62 Å, respectively, W may considerably contribute to Δh . It seems that the entropy of vibration and the entropy originating in the temperature dependence of W contribute to Δs .

4.3 Eutectic temperature of Al-rich side in the phase diagram of Al-Sc system

Since the solidus temperature shows the slight concentration dependence and the solidus temperature of the Al-0.198 at.% Sc alloy is 928 K, it may be concluded that the eutectic temperature is 928 K, in good agreement with that by Mondolfo¹⁾

4.4 Residual resistivity of Sc in Al

Our value of the residual resistivity of Sc in Al agrees well with the experimental value of $(3.5 \pm 0.5) \cdot 10^{-8} \Omega \cdot \text{m}/\text{at.}\%$ by Očko⁴⁾ and the theoretical value of $4 \cdot 10^{-8} \Omega \cdot \text{m}/\text{at.}\%$ by Mrosan⁵⁾ but disagree with the experimental value of $5 \cdot 10^{-8} \Omega \cdot \text{m}/\text{at.}\%$ by Fickett.⁶⁾

The experimental values of the residual resistivities of 3d transition metals in Al by the present work and other workers^{4,6-9)} are arranged in order of increasing atomic number in Fig. 9, which shows a large broad peak around Cr. The peak is believed to be caused by resonance scattering of the conduction electrons of Al when the position of the virtual bound state connected with the impurity is very near to the Fermi energy of Al. Here we will estimate the residual resistivity of 3d transition metals in Al. The residual resistivity¹⁰⁾ is expressed in terms of the phase of the partial waves as follows,

$$\Delta\rho = \frac{4\pi\hbar c}{e^2 K_F Z_A} \sum_{l=0}^{\infty} (l+1) \sin^2(\eta_l - \eta_{l+1}), \quad \dots\dots\dots (2)$$

where h is the Planck constant, c is concentration in atomic fraction, K_F is the Fermi wave number for the solvent, Z_A is the valence of the solvent and η_l is the phase shift corresponding to the l th partial wave evaluated at the Fermi surface.

The value of η_l is required to satisfy the Friedel sum rule

$$Z = \frac{2}{\pi} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) \eta_l, \dots\dots\dots (3)$$

where Z is the screen charge. In the calculation of $\Delta\rho$, we ignored η_l

except η_2 , because η_2 is dominant because of the narrow band of d electrons. It is assumed that the screening of Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co and Ni are 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8 and 9, respectively.^{9,11)}

Using eqs. (2) and (3), the values of $\Delta\rho$ for 3d transition metals in Al were calculated and shown in Fig. 9, in comparison with the experimental values and theoretical value⁵⁾ calculated with a muffin-tin impurity model. The theoretical results obtained in the present work give a satisfactory qualitative interpretation on the characteristic maximum.

§ 5. Conclusions

(1) The Al-Sc alloys were prepared from 99.9 wt% Sc and the high purity zone-refined Al. The solubility line of Sc in Al was determined using the measurement of electrical resistivity, paying attention to the conditions of measurement and thermal treatment. The solid solubilities of Sc in Al were determined as follows: 0.186 at % at 913 K; 0.160 at % at 893 K; 0.134 at % at 873 K; 0.117 at % at 863 K; 0.104 at % at 853 K; 0.086 at % at 833 K; 0.068 at % at 813 K; 0.058 at % at 793 K; 0.045 at % at 773 K and 0.033 at % at 743 K.

(2) The excess entropy of mixing and the heat of mixing for Al-Sc solid solution were determined from the temperature dependence of the solid solubilities of Sc in Al to be $6.0 R$ and 59 kJ mol^{-1} respectively.

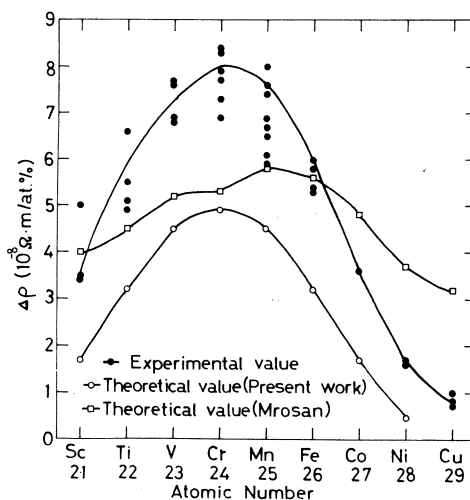


Fig. 9. Residual resistivity of 3d transition metal in Al plotted against atomic number.

(3) In the Al-rich side of Al-Sc system, Al reacts eutectically with Al and the eutectic temperature is (928 ± 1) K. The maximum solid solubility of Sc in Al was determined to be 0.21 at.% at 928 K.

(4) The residual resistivity of Sc in Al per atomic percent was calculated from the concentration dependence of the resistivity increment at 77 K of Al-Sc alloys to be $(3.4 \pm 0.1) \cdot 10^{-8} \Omega \cdot \text{m}/\text{at.}\%$. The residual resistivities of the 3d transition metals in Al were discussed with the phase shift analysis.

Acknowledgements

The authors were much indebted to Dr. K. Kemmochi and Mr. T. Oshima, Tohoku University for valuable discussion on the thermal analysis and the electrical resistivity measurement. The authors express their appreciation to members of the linac machine and radioisotope groups at the Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, for the facilities of the irradiation and the measurement. This work was supported partly the Research and Development Division of Sumitomo Electrical Industry Co., Ltd., and the Light Metals Educational Foundation.

References

- 1) L. F. Mondolfo: *Aluminum Alloys Structure and Properties* (Butter Worths, London-Boston, 1976) p.366.
- 2) C.M. Lederer, J. M. Hollander and I. Parlman: *Table of Isotopes* (Wiley, New York, 1976) 6th ed.
- 3) S. Fujikawa and K. Hirano: *J. Japan Inst. Metals* **38** (1974) 929.
- 4) M. Očko, E. Babic, R. Krsmik, E. Girt and B. Leontić: *J. Phys. F: Metal Phys.* **6** (1976) 703.
- 5) E. Mrosan, G. Lehman and H. Woittenek: *Phys. Status Solidi (b)* **64** (1974) 131.
- 6) F. R. Fickett: *Cryogenics* **11** (1971) 349.
- 7) F. J. Kedves, L. Gergely, M. Hordós and E. Kovács-Csetény: *Phys. Status Solidi (a)* **13** (1972) 685.
- 8) L. F. Mondolfo: *Aluminum Alloys Structure and Properties* (Butter Worths, London-Boston, 1976) p. 96.
- 9) G. Boato, M. Bugo and C. Rizzuto: *Nuovo Cimento.* **45** (1966) 226.

- 10) See C. P. Flynn: *Point Defects and Diffusion* (Clarendon Press, Oxford, 1972)
p.729.
- 11) J. M. Brettell and A. J. Heeger : Phys. Rev. **153** (1976) 319.

IV. 加 速 器 · 測 定 器

BEAM BLOW-UP の研究 (Ⅲ)

核理研, 高エネルギー研*, 東大工学部**

小山田正幸・今野収・佐藤勇*

福田茂樹*・田川精一**・鷺尾方一**

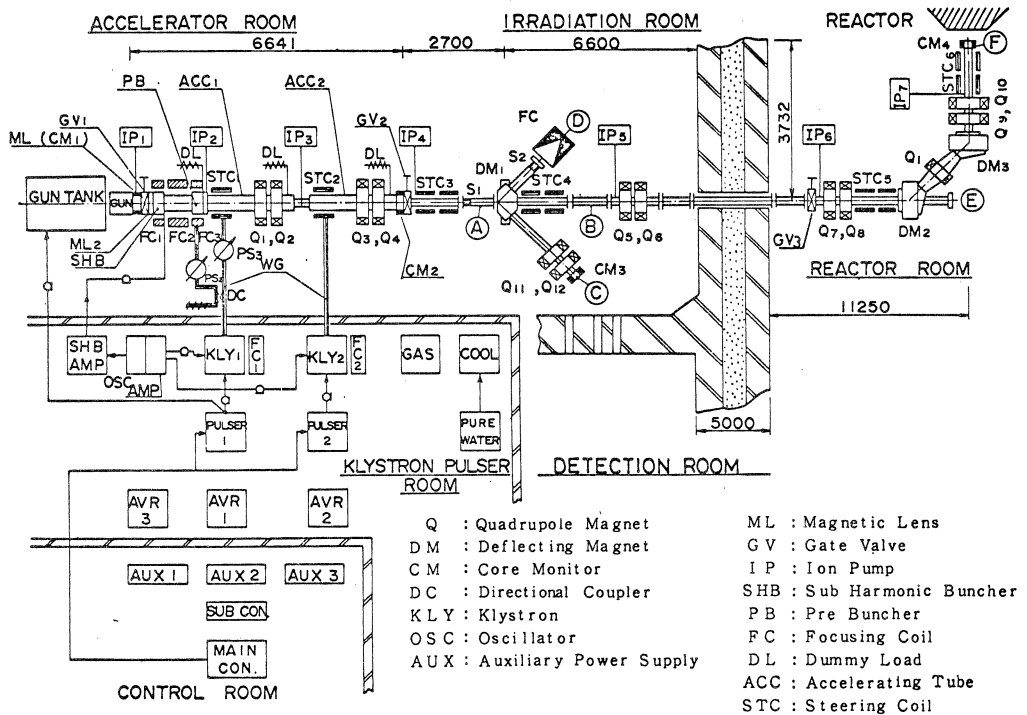
勝村庸介**・上田徹**

§ 1. はじめに

昭和51年7月に東北大学川渡共同セミナーで開かれた第2回リニアック技術研究会¹⁾をきっかけに核理研と高エ研で協力して大電流電子リニアックに於ける Beam Blow-up の研究を核理研の300 MeV 電子リニアックを研究対象として行ってきた。2-6) 今回は東大工学部附属原子力工学研究施設(東大原研)の参加の下に, 東大原研に建設された35 MeV の電子リニアック(東大リニアック)⁷⁾のBBUの測定を行ったので報告する。

§ 2. 東大リニアックの概要

東大原研では昭和46年4月高速中性子源炉「弥生」が完成, 臨界に達した。この原子炉の特



第1図 東大リニアック機器構成図

徴は各種のパルス運転により広範な原子炉物理、工学および安全性の基礎研究が出来ることである。東大リニアックの完成によって両装置の連動により原子炉の極短パルス運転が可能となり研究範囲が飛躍的に広がった。電子リニアックのもう一つの目的は、単独運転により超短パルス（ナノ秒）および極超短パルス（ピコ秒）の電子ビームを得るための特殊な設計を行い、極限的な短時間に起る現象の直接測定による研究を行うことである。第1図にリニアックの機器構成を示した。リニアックの仕様の一部を挙げると、最大エネルギーは 35 MeV 以上、定格ビーム電流は定常モード運転で 200 mA 以上（25 MeV で）である。リニアックの設計、建設は三菱電機が担当した。

§ 3. 東大リニアックにおける BBU

前記の定格電流の加速を行うため加速管の構造は $2\pi/3$ モードを採用し、更に BBU を避けるために HEM_{11} モードのマイクロ波の伝播を妨げる孔をローディング・ディスク 1 枚当り 2 個あけ、その方向を隣り同志のディスクで直交するように配置してある。^{8, 9)}

参考文献 8, 9 によれば 90 cm 長の加速管での BBU 発生電流の閾値は 600 mA であり、しかも BBU を発生している電子ビーム中には HEM_{11} モードに相当する 4 GHz 附近の周波数成分を含まず、5~6 GHz の成分を検出した事が報告されている。東大リニアックではパルス幅 4.5 μ 秒で加速電流値を定格電流を越えて徐々に上げていくと約 280 mA から電流パルスの後縁が欠け始め、典型的な BBU のパルス波形が観測された。東大リニアックの BBU の発振周波数を測定することは BBU の発生機構を解明する上で貴重な手がかりを得られることが期待される。¹⁰⁾

§ 4. BBU 発振周波数の測定

BBU の発振周波数の測定は核理研 300 MeV リニアックの場合とほぼ同様な方法で行った。ピーク電流値は 2 本目の加速管出口直後のコアモニタ CM_2 で行なった。周波数検出用の 39 D 同軸管はその後にセットした。リニアックの繰返し周波数は 7 pps でパルス幅は 4.4 μ 秒である。加速の周波数は 285.6 MHz で BBU の周波数測定時は加速電流値 300 mA で行なった。

（BBU 発生のための電流閾値は 280 mA であることを確認）

カットオフ周波数 $f_c = 4.6$ GHz のローパスフィルター（LPF）を用いて得られた周波数を第 1 表に示す。

第1表 $f_c = 4.6 \text{ GHz}$ のLPFを用いた時に検出した周波数

ピーク名	D.V.M.の読み(V)	周波数 (TE_{111}) (MHz)	強	さ
f_A	6.11	4586	強	い
f'_A	5.81	4548	非常に弱い	
f'_B	~ 0.88	4020	"	
f_B	~ 0.30	3982	強	い

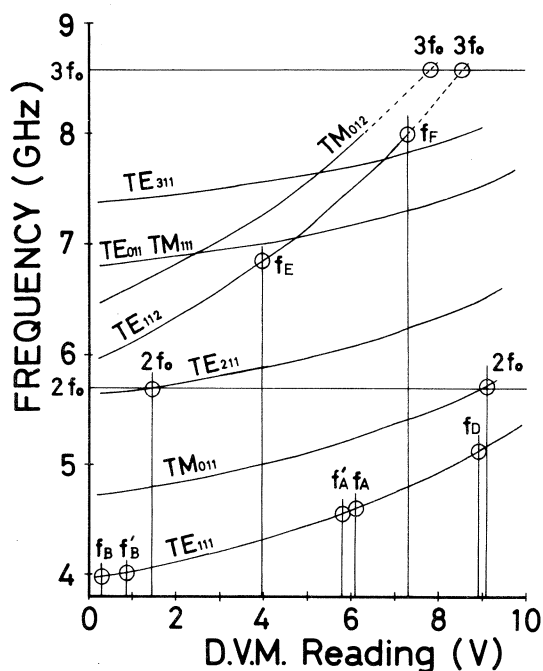
表の中で周波数は周波数計の空洞の TE_{111} モードの共振曲線でユニークに決定された。

ちなみに $f_A + f'_A$, $f_B + f'_B$ を計算すると共に 8573 MHz となり核理研の場合と同様に加速の周波数 $f_0 = 2856 \text{ MHz}$ の3倍である。これにより (f_A, f'_A) , (f_B, f'_B) の2組のペアの内夫々どちらかが本質的な周波数で、他方は $3f_0$ とのビートであることが解る。第2図に周波数計空洞の各種モードの共振曲線と観測した周波数のピークを示す。

次にLPFのカットオフ周波数を $f_c = 7.1 \text{ GHz}$ とすると新たに f_0 の高調波以外のピークが2本見出される。それらのピークを f_D , f_E と名づけ第2図に示した。第2表にはこれらのピークのD.V.M.の読みとこれに相当する周波数を共振モード別に示した。

7.1 GHz 以下の周波数としては f_{BBU} と f_0 とのビート $2f_{BBU} - f_0$ が現れるはずである。 $f_{BBU} = f_A$ とすれば $2f_A - f_0 = 6316 \text{ MHz}$ であり第2表

には見つからない。逆に $f_{BBU} = f_B$ とおくと $2f_B - f_0 = 5108 \text{ MHz}$ となり f_D がこれに相



第2図 空洞波長計の共振曲線とBBU発振時に検出された周波数との関係

第2表 $f_c = 7.1 \text{ GHz}$ のLPFを用いた時に検出した周波数

ピーク名	D.V.M.の読み(V)	TE_{111}	TM_{011}	TE_{211}	TE_{112}	TE_{011} (MHz)
f_D	~ 8.93	5115	5700	6495	-	-
f_E	~ 3.96	-	5000	5885	6840	7010

当する。これによりBBUの発振周波数は $f_{\text{BBU}} = f_{\text{B}} = 3982 \text{ MHz}$ であり、 f_{D} の周波数は $f_{\text{D}} = 2f_{\text{B}} - f_0$ であることが判明する。更に $f_{\text{B}} + f_0$ を計算すると6838 MHzとなり $f_{\text{E}} = f_{\text{B}} + f_0$ であることが判る。

又 $2f_{\text{B}} = 7964 \text{ MHz}$ を見るべく $f_{\text{C}} = 9.5 \text{ GHz}$ のLPFを用いるとD.V.M.の読みが7.3 Vに $3f_0$ でない新たなピーク f_{F} が見え、これは $2f_{\text{B}} = 7964 \text{ MHz}$ と TE_{112} モードの交点に相当する。以上により9.5 GHz以下の周波数で f_0 の高調波でないものは f'_{A} 、 f'_{B} 以外は全て f_{B} に起因することが解る。これをまとめたのが第3表である。

第3表 BBUに伴って検出された周波数

ピーク名	D.V.M.の読み(V)	周波数(MHz)	空洞の共振モード	性質
f_{B}	0.30	3982	TE_{111}	BBU発振周波数
f_{A}	6.11	4586	TE_{111}	$3f_0 - f_{\text{B}}$
f_{D}	8.93	5108	TE_{111}	$2f_{\text{B}} - f_0$
f_{E}	3.96	6838	TE_{112}	$f_{\text{B}} + f_0$
f_{F}	7.3	7964	TE_{112}	$2f_{\text{B}}$
f'_{B}	0.88	4020	TE_{111}	(BBU発振周波数?)
f'_{A}	5.81	4548	TE_{111}	($3f_0 - f'_{\text{B}}$)

§ 5. 考 察

東大リニアックの加速管は文献9, 10に述べてあるような HEM_{11} モードのサプレッサー孔付のものであり、この加速管の HEM_{11} モードの分散特性は3ディスクのテスト空洞についての測定ではパスバンドは4340~4490 MHzである。一方今回の測定結果によれば $f_{\text{BBU}} = 3982 \text{ MHz}$ とすれば9.5 GHz以下の周波数成分は合理的に説明出来る。BBUは加速管のマクロ波のパスバンド内で起ることを前提にすると上記の2点はお互いに矛盾する。この矛盾を解消するには次の2点の再検討が必要である。

- BBUの発振周波数及びビート周波数の構成が§4の解析結果以外に可能かどうか。
- サプレッサー孔付の加速管の HEM_{11} モードの分散特性が3ディスクのテスト空洞とは違って3982 MHzをパスバンド内に持っていないかどうか。特に1本目の加速管は前方にバンチャが付いており($\beta_{\omega} = 0.886 \times 3 \text{ 空洞} + \beta_{\omega} = 0.942 \times 3 \text{ 空洞}$)¹¹⁾、パスバンドが変る可能性がある。

f'_{A} 、 f'_{B} の発生についての説明は $f'_{\text{A}} (4548 \text{ MHz}) \approx 4f_{\text{B}} - 4f_0 (4504 \text{ MHz})$ 、 f'_{B}

(4020 MHz) $\approx 7f_0 - 4f_B$ (4064 MHz) とするのは今回の測定精度からも無理なこじつけと考えられ、むしろ f_B とほぼ同じ機構で他のモードのBBUが発生していると考えるのが素直である。

その可能性としては

- HEM_{11} モードには方向性があり、縦と横では発振周波数及び強度が違うものが現れたのか。
- 文献12に述べてあるように加速管の中で電子とマイクロ波の相互作用する長さが異なることによるものか、
- 文献2で述べたように phase slip parameter α が正 ($\alpha = 2.65$) と負 ($\alpha = -7.5$) に対応したBBUなのか、
- 2本の加速管で別々のBBU発振を起しているためか
等が考えられる。

東大リニアックのBBUを更に深く理解するためには実際の加速管の HEM_{11} モードの分散特性を測定することが最も大きな鍵となるであろう。

参 考 文 献

- 1) リニアック技術研究会報告集, 核理研研究報告 **9** (1976) 増刊号。
- 2) 小山田正幸, 佐藤勇, 稲垣慈見, 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: 核理研研究報告 **10** (1977) 159.
- 3) 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: 核理研研究報告 **10** (1977) 303.
- 4) 小山田正幸, 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, 佐藤勇, 稲垣慈見, 松本浩, 福田茂樹: *Proc 1977 Linear Accelerator Meeting in Japan (in Japanese)* KEK-77-28 (March 1978) 39.
- 5) 福田茂樹, 佐藤勇, 松本浩, 稲垣慈見, 小山田正幸, 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: *ibid.* 43.
- 6) M. Oyamada, O. Konno, S. Urasawa, T. Ichinohe, A. Kurihara, S. Nemoto, Y. Shibasaki, Y. Torizuka, I. Sato, S. Fukuda, H. Matsumoto and S. Inagaki: *Proc. 2nd Symposium on Accelerator Science and Technology* (1978) 129.
- 7) 電子ライナック装置建設報告, (昭和52年10月) 東京大学工学部附属原子力工学研究施設。

- 8) 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.
- 9) 戸田哲雄, 入江浩一, 根本幸昭, 上富勇, 美濃和芳文: 電子通信学会電子装置研究会資料 ED 67-38 (1967-12)。
- 10) M. Oyamada, O. Konno, I. Sato, S. Fukuda, S. Tagawa, M. Washo, Y. Katsumura and T. Ueda: *Proc. 2nd Symposium on Accelerator Science and Technology* (1978) 133.
- 11) 小野寺俊男: 私信。
- 12) R. H. Helm *et al.*: *Linear Accelerator* ed. Lapostolle (North-Holland, 1970) p. 182.

立体回路系の改修

核理研

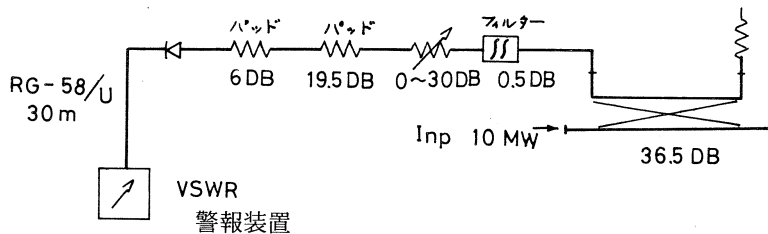
今野収・小山田正幸

今回の改修は10年間稼動してきたリニアックの立体回路系の補修が目的で、次の3点にある。

- 1) 導波管がSF₆ガス(2.8 kg/cm³)で脹らみ、マイクロ波特性が悪くなった物の交換。
- 2) 加速管等における反射電力の正確な測定ができる様に検出器を増設した。
- 3) 大電力移相器を内部での放電を少なくする構造に改良した。

以上のうち反射電力検出器と大電力移相器について簡単に説明する。

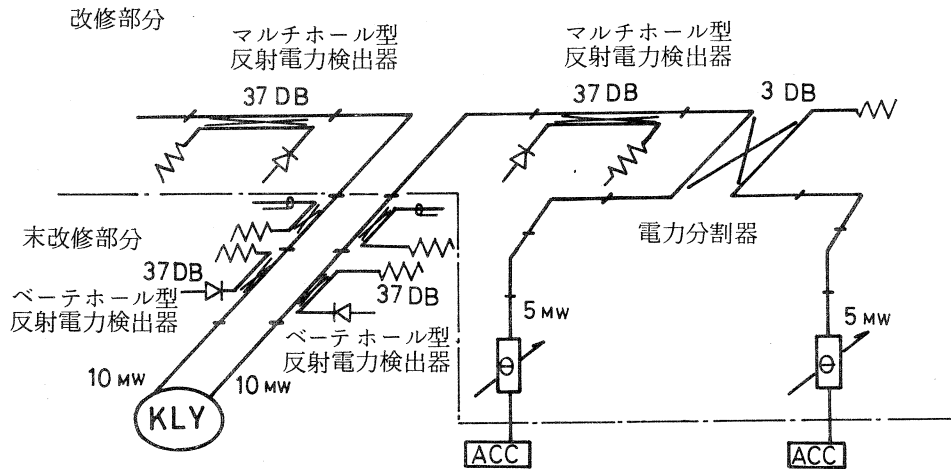
- (イ) 反射電力検出器はクライストロンが20 MW (RF電力は出力端で2分割) オペレーション時に、VSWRが1.5以上になった場合にクライストロンの出力窓を保護するための検出器である。従来、ベータホール型の検出器を使用していたが、この型では方向性が20 dBしかとれないため正確な反射電力を調べる事ができなかった。今回この検出器の他に方向性の良いマルチホール型の検出器を増設した。この検出器では方向性が約37 dB以上取れる。この反射電力検出器は途中のパッドを取り外せば従来の2極検波管RCA 6173と比較できる様に結合度を37 dBにしてある。又制御室にVSWRが1.5になると警報が出る様になっている。構成は第1図の通りである。



第1図 VSWR 警報装置構成図。

- (ロ) 大電力移相器はショートプランジャー(マイクロ波の反射板)の下部へマイクロ波電力が漏れるためにSF₆ガスをシールしているOリングが焼けてしまい、ショートプランジャーのシャフトが動かなくなる。又ショートプランジャーが上下する時に導波管との間隙が変り放電を生じる。このためにSF₆ガスが分解されてしまう事故が数多く発生した。これらの

対策として、ショートプランジャの下部へのマイクロ波電力の漏れを少なくするため、チョークをこれまでよりも一段多い3段の物に変えた。(移相器20台の内5台)。チョークを3段にした事によりチョークを通して漏れる電力は5 MW オペレーション時に約63 mWにおさえる事ができる。又今回移相器の他にE及びHバンドと3 dB電力分割器も交換したので、クライストロンの出力端から加速管(ACC)までの総合特性を、2台の移相器の移相量を変えながらVSWRを測定してみた。その結果VSWRはmax. 1.2~min. 1.05(第2図)



第2図 立体回路構成図.

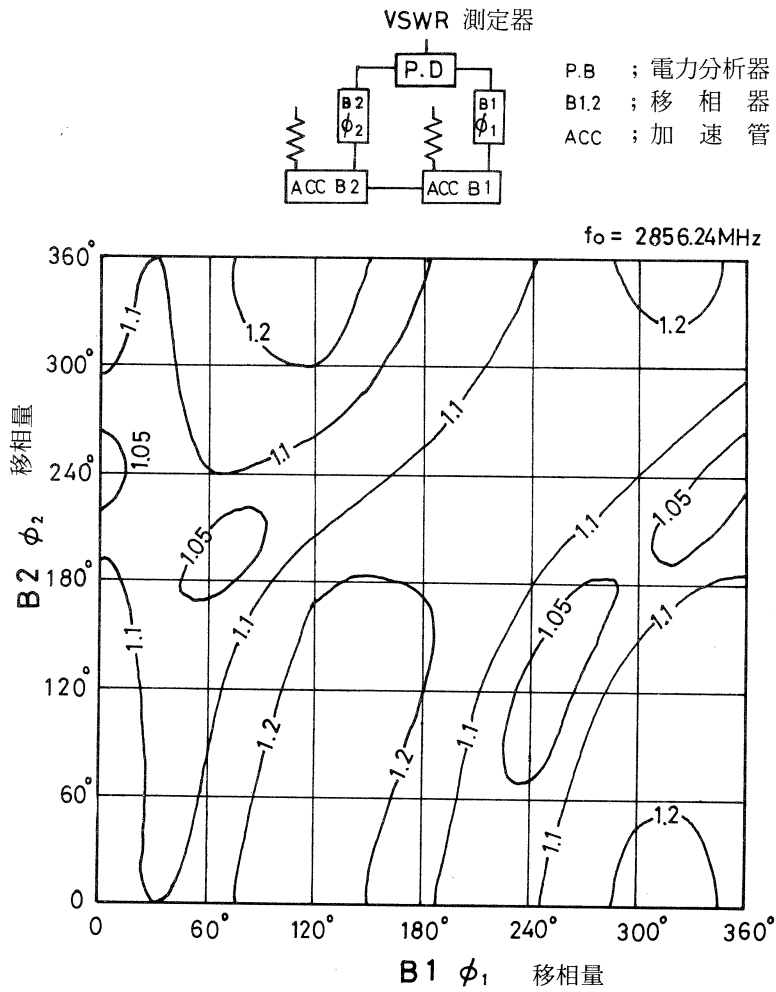
であった。その測定結果は第3図に示す。この総合特性を検討してみると、各 부품のVSWRは仕様より低く

大電力移相器 = 1.15 以下

反射電力測定器 = 1.05 以下

E, Hバンド = 1.05 以下

であるが、全体としてはVSWRが1.2と高くなっている。これは総合的な発注でなく部品ごとの発注であったため、全体のスイッチが行われなかった事と、大電力移相器の3 dBの結合穴、又はプランジャ(2本)の平行性のどちらかに問題が有るのではないかと思う。これらについては今後検討の余地がある(第3図)。



第3図 クライストロン側から測定した等定在波比曲線.

V. 加速器・データ処理装置稼動状況
及び放射線安全管理

昭和52年度後期マシン報告

核理研マシングループ

浦澤茂一・今野 収・一戸 隆
栗原 亮・根本重伸・柴崎義信

○ 概 況

II, III系ビームダクトの一部更新を3月に実施した。

ECS系を利用するグループの未実施が、ECS系の故障及び実験装置の破損(地震による)で8日あった。

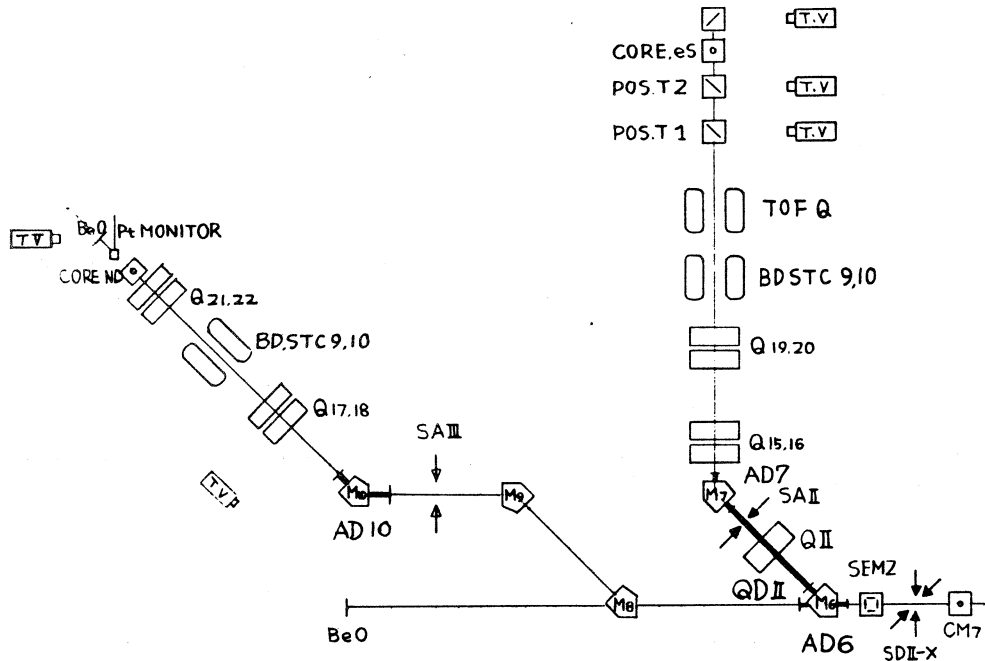
○ マシнтаイム実施状況

課題(責任者)	割 当	実 施	備 考
es (鳥 塚)	1 1	1 1	
es (有 田)	8	0	「概況」参照
es (小 山 田)	6	6	
$r\pi$ (庄 田)	6	6	
$r\alpha$ (菅 原)	5	5	
$r x$ (種 市)	3	3	
$r d$ (本 間)	2	2	
$r p$ (斎 藤)	5	5	
TOF (阿 部)	3	3	
ION (森 田)	5	5	
βr (林 部)	2	2	} 便乗照射あり
物性 (田 巻)	1	1	
物性 (篠 原)	1	1	
RI	1 4	1 6	前期未実施(2日)
ND	1 7	1 7	
MWPC (中 原)	3	4	前期未実施(1日)
BBU (佐 藤)	2	2	

○ 保守及び改造

今期行った主な工事を次にあげる。

(1) II, III系ビームダクトの一部更新(第1図)



第1図 II & III系 Beam Transport System & Monitor.

AD 6, 7, 10, QD II及びSA IIを更新した。これに伴って、冷却水配管も更新、修理を行った。

(2) 立体回路系の改修工事

これに関しては、IV-2「立体回路系の改修」(今野・小山田)に詳細が報告されている。

(3) クライストロンパルサPFN用短絡環の交換及び調整

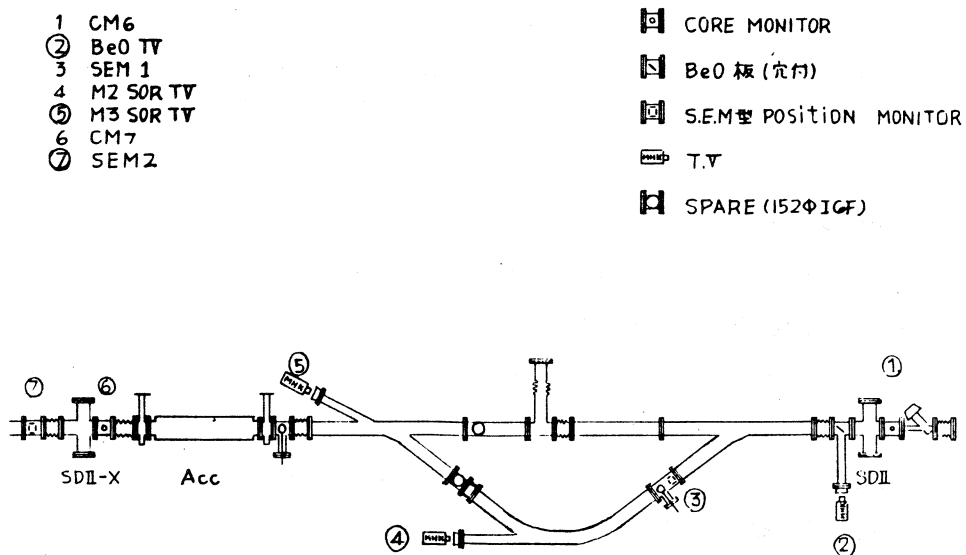
(4) ECS系ビームモニタの整備(第2図)

新設はSD IIの後にビーム直視装置で、これは中心に4 mm 〆の穴を明けたベリリア板とITVから成る。但しビーム調整時以外はベリリア板はビーム軸からずらしておく。

ビーム直視装置の位置にあったビーム位置観測用SEMはSD II Xの後に移設した。

M_{ECS} 3 によるシンクロトロン軌道放射光観測用ITVに放射線シールドを行い常時観測を

可能にした。



第2図 ECS Monitor System.

- (5) ECS電磁石の磁場測定のためNMR装置を新設
- (6) 消磁電源の制御回路を更新
- (7) 速動弁の操作回路の更新
- (8) 純水製造装置の更新

今後の予定

- (1) 入射系 検討中
- (2) クライストロンパルサ1台更新
3号機を予定
- (3) パルサ用 de Q'ing 回路の試験
- (4) 真空排気系に分子軸流ポンプ2台増設
- (5) 新2m加速管の製作(1本)
- (6) ECS系を含む運転手引きを作製

データ処理装置・測定器稼動状況

核理研 窪田健雄・佐藤正幸・小山田正幸
武藤正勝・梅津雅彦

1 データ処理装置

オンラインデータ集積装置（O-4500）、及びリモートバッチシステム（O-50）の昭和52年度用途別利用実績を第1表に示す。

。 O-4500 関係で目につくのは利用時間が年間2,800時間と前年に比して1,400時間の大幅な減少となった。これは加速器の工事によりオンライン関係が約100時間、O-50の稼動によりオンライン関係が約1,000時間、インターフェースの改造等が終了した事により保守関係で約200時間減少した為である。今後は年間合計で2,500～3,000時間程度になるものと思われる。又、今まで接続していたグラフィックディスプレイ（G. D）はオンライン使用時を除いてはO-50の方に接続して利用する事にしました。

。 O-50は4月にリモートバッチ用ソフトのディバックが終了して5月より本格的に運用を開始しました。利用実績を見るとリモートバッチに270時間、オフラインに2,100時間と大きく差が出ているが、これは有料と無料の差か又はO-50が予想外に（？）処理能力があるのかは判断出来ない。又このシステムには今年度にメモリー、タイプライタ、グラフィックディスプレイ、を増設し、さらにタイプライターを通してアナログ的データをFORTRANレベルで入力出来る機能も附加しました。各種計算等に御利用下さい。

。 TSSについては50ボーを3月に廃止して新たに300ボーのミニプリンターを設置しました。スピードも6倍になりましたのでリモートバッチと併せて御利用下さい。

。 昭和42年に設置以来、オンラインデータ処理装置として、オンライン、オフラインに利用してきたT-3400は52年の8月に運用を停止しました。この11年間の利用実績を第2表にまとめて見ました。資料のない所もあり合計欄では一部合わない所もありますが全体的な事には十分と思います。オンラインを48年で移行した等で単純に月平均は出来ませんが、各欄毎に各々の期間で月平均を算出しますと、オンライン、150時間、オフライン200時間、保守等に40時間となります。合計的にはオンラインのあるなしにより大きく違いますが、通算で約300時間となります。これらの数字をどう見るかはそれぞれあると思いますが、10年間平均

で月 300 時間の稼働は決して少ない数字ではないと思います。

(窪田)

第 1 表 昭和 52 年度用途別利用実績表

(単位; 時間)

機種名 用途 月	OKITAC-4500				OKITAC-50			
	オンライン データ集積	オフライン データ処理	保守, 故障	月合計	オンライン リモート バッチ	オフライン データ処理	保守, 故障	月合計
4	126	72	37	235	172	87	0	259
5	239	79	17	335	20	158	8	186
6	197	76	13	286	17	142	9	168
7	210	107	21	338	4	188	2	194
8	149	103	12	264	8	276	9	293
9	143	108	8	259	3	161	13	177
10	221	113	5	339	1	310	8	319
11	151	80	5	236	8	246	2	256
12	210	10	7	227	19	165	3	187
1	137	2	6	145	1	140	10	151
2	162	26	8	196	9	65	9	83
3	0	7	6	13	10	156	23	189
合計	1,945	783	145	2,873	272	2,094	96	2,462
月平均	162	65	12	239	23	174	8	205
%	67.70	27.25	5.05		11.05	85.05	3.80	

第2表 オンラインデータ処理装置年度別、用途別利用実績表

(単位; 時間)

年度 \ 用途	オンラインデータ処理	オフラインデータ処理	故障, 保守	合計
4 2	600	不明	不明	1,700注1)
4 3	1,700	〃	〃	3,300注1)
4 4	1,578	2,020	647	4,245
4 5	1,774	2,481	698	4,953
4 6	1,980	2,618	380	4,978
4 7	1,779	2,347	376	4,502
4 8	285	3,454	272	4,011
4 9	0	2,172	200	2,372
5 0	0	2,894	357	3,251
5 1	0	2,039	142	2,181
合計	9,696	20,025	3,448	35,493

注1) 昭和42, 43年度は詳細資料がない為既略値である。又, オンライン時間は加速器の運転記録より算出してある。

2 測定器

52年度は前年に引き続き、加速器制御系のオンライン化を中心に作業を行ってきた。

。 加速器制御用コンピュータシステム (M-70) は、昨年度コアメモリを24kW増やした。これにより、リアルタイム処理として加速器の制御、データ収集をしながらバッチ処理としてプログラムの開発が可能となり、同時に増設したドットプリンタの使用と併せかなり効率的な運用が出来る様になった。加速器の運転状態はCAMAC系を介してM-70に読み込まれて、加速器運転時のデータ収集とECS系のビームポジションのモニタなどを行っている。

CAMAC系は、加速器との接続が増えるに伴いモジュールも増え、クレート・電源を1台増設した。これによりM-70とCAMAC系との接続は、従来使用してきた核理研製クレート・コントローラから標準的なコントローラ (A1タイプ) に変える予定で作業を進めている。

。 放射線モニタシステムにガスモニタを新設した。これは本体室, 第1, 第2, 第3各実験

室の空気を切換バルブを通してガスサンプラに引き込み、それに含まれている放射化されたガスの成分、強さなどを測定するものである。3月末に据付工事を行い現在テスト運転中である。今年度はシステム全体の操作と警報関係の整備を予定している。

。計測グループの一員として活躍されていた技能補佐員佐藤新悦君は都合により2月15日付で退職されました。在職中の御苦勞に対して感謝いたします。

加速器修理に伴う放射線被曝

核理研 今野 収・浦澤茂一・一戸 隆
栗原 亮・根本重伸・柴崎義信

10年以上も稼動してきた加速器を保守するには数多くの問題を含んでいる。その中でもマシン関係者の放射線被曝は重大な問題である。昨年1年間の修理に伴う被曝の実態を簡単にまとめたのでその内容について説明する。

§ 1. 放射線被曝を伴う主なる作業

- (イ) ビームダクト系修理・改修工事 (イは除く)
- (ロ) ビームダクト系及び導波管系の水冷管の修理
- (ハ) ビームモニター, スリット等の故障修理
- (ニ) 真空ポンプ, バルブ等の交替作業
- (ホ) 加速管の調整又は交換作業
- (ヘ) 電子銃, RF 窓の交換及び定期点検, その他

上記の項目ごとの各月のマシン停止日数を第1表にまとめた。これらの故障の内, 昨年特に多

第1表 各月の項目別に分類したマシン停止日数(真空関係)。

作業	52年月											
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
イ		4 (2)	5 (3)	3	4 (2)	4 (2)			3 (2)		5 (2)	2 (1)
ロ				9								1
ハ			1 (1)					3	5 (3)	4 (2)	6 (3)	4 (2)
ニ				1								
ホ	3 (1)											
ヘ					2 (1)				2			

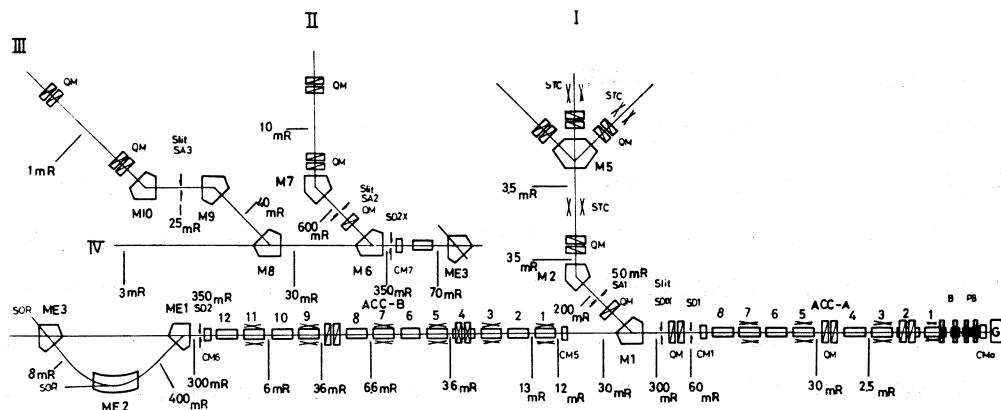
(注1) ()内の数字は故障発生に伴う実験中止回数である。
マシン停止日数に含まれている。

(注2) 上記の数字には増締めによって修理された故障(数時間程度)は含まれていない。

かった3項目について次の§2～§4で説明する。

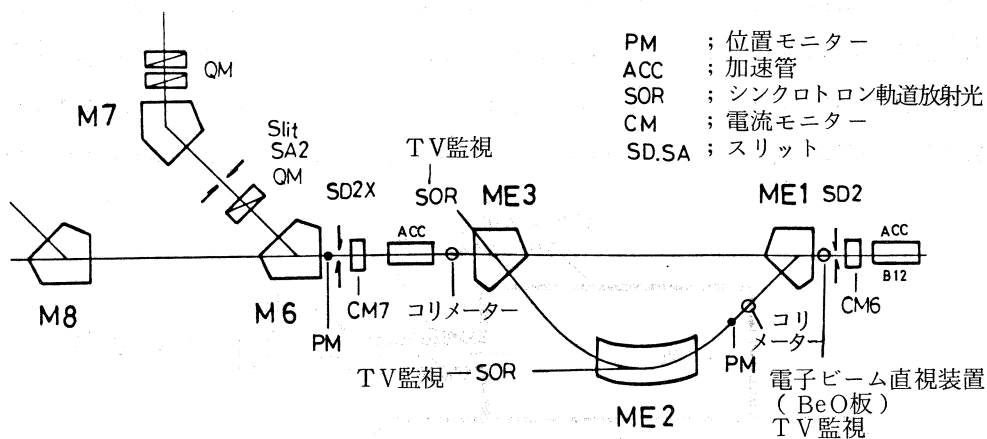
§2. ビームダクト系の真空トラブル

昨年1年間にダクト系で発生した真空リーク故障は、I系のRI実験時に5回、II系のECS使用時に8回発生した。I系での真空リークは第1図のQDI(M1～M2間)のダク



第1図 ビームトランスポート系残存放射線量(表面)。

トとADI(M1の分析ダクト)のつながりの所に多く発生した。この対策として我々はADIを出てすぐの所に2ヶ所あったフランジの内、リークが多かった1ヶ所のフランジを、溶接すると同時にダクトの水冷を強化した。又M5前のフランジとRI実験のビーム取り出し窓(Ti



第2図 エネルギー圧縮装置(ECS)ビームモニターシステム。

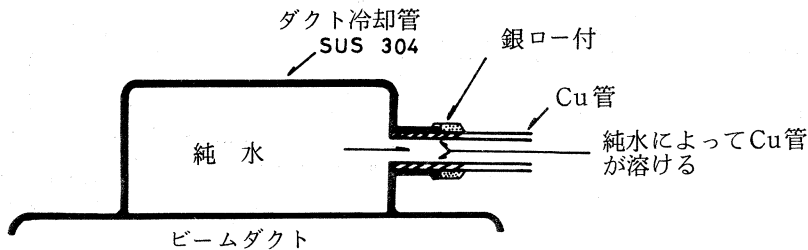
板 50 μ 、内径 50 ϕ)でのリークを防ぐために水冷の絞りダクトを製作し取り付けした。これにより I 系での真空トラブルを減らす事ができた。次に II 系の ECS 系(第 2 図)では ME 1 の入口フランジと ME 1 ~ ME 2 の間のフランジに真空リークが発生する。これらの対策としては今年(53年)3月の工事で、ME 1 の前に BeO 板によるビーム直視装置を入れると同時にフランジを水冷する様に改良した。これにより昨年多かった真空トラブルを大幅に減少する事ができた。

§ 3. 電流モニター (CM) の故障

II 系のビーム性能を改善するために、スリット SD 2 と M 6 間の約 7.7 m 間にエネルギー圧縮装置 (ECS) を付加した。この改造の前はスリット SD 2 X の後約 1 m の所に電流モニター CM 7 があった。所が上記の ECS を入れたためにスリットと CM 7 の間は約 30 cm 位となり、スリットによって散乱された電子によって CM 7 のコアが熱せられる。このためにモニターできなくなる故障が昨年後半ごろに 5 回発生した。この電流モニターがなければ II 系、III 系の実験ができなくなる。この対策としては、スリットと CM 7 の位置を前後逆にスリットの後に SEM 型の位置モニターを配置した。この配置によって電流モニターの故障は一応解決された様である(53年3月工事)。

§ 4. 水冷管のトラブル

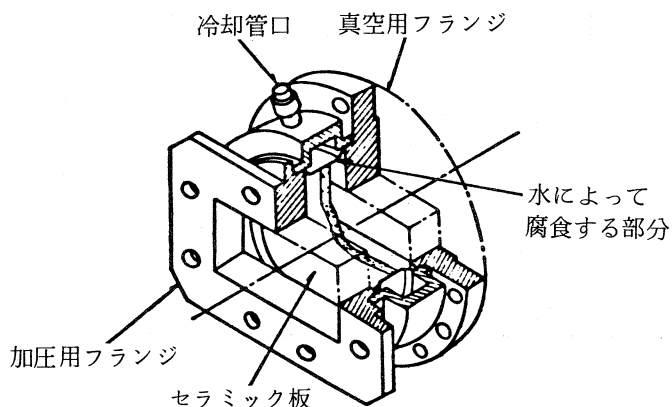
加速管全体に必要な冷却水は非放射化という点からすべて純水が使用されている。この水によるトラブルは昨年は多かった。トラブルを発生する個所はステンレスダクトと銅の水冷管の銀ろう部分である(第 3 図)。これは異種金属の極部電池作用によるのかもしれないが、銀ろうに関係した銅管が溶ける。又、管の溶ける速度は純水の純度 ($50 \times 10^4 \text{ M}\Omega/\text{cm}^2$) と関係が有る様である。外観は強固に見える銅管も外圧を加えると簡単に外れる。この対策としては、銀ろう



第 3 図 ビームダクト冷却管断面図。

う付け部分をできるだけなくし、フレアによるジョイント方式に変えつつある。又、水によるトラブルはマイクロ波部品にも発生する。これは大電力クライストロンの出力窓を保護するために、立体回路系は SF₆ ガス (2.8 kg/cm²) で加圧された部分と、超高真空部分とに別け

られている。その真空シールに使用されているのが RF 窓 (第 4 図) である。この窓は誘電体損失による発熱からセラミックを守るために外側が水冷されている。この部分の金属が腐食し水漏れを生じる。もし腐食による真空リーク (又は極めて少量の水漏) を発見する



第 4 図 導波管気密窓の略図.

のが遅れると加速管に水が入ってしまう (52 年 5 月に 1 度事故) 。この対策としては早めに交換すると同時に真空度の変化に注意している。又、空冷の RF 窓も有るが価格が水冷に比べて約 10 倍と高いために交換することができないでいる。

§ 5. 結 論

以上述べたようにそれぞれの事故に対しては、そのつど対策をたてながら保守してきた。しかし第 1 図に示すように加速器本体の表面残存放射線量は高くなっており、その作業時間にも限度がある。昨年 1 年間のマシン関係者の被曝線量を第 2 表に示し、過去 5 年間の被曝の経緯を第 3 表に示す。これらの事から今後のマシン保守に当っては注意深く行なわなければならない。

第2表 加速器修理に伴う被曝線量(個人別)

氏名	月別												(mrem)
	52年 1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	
A			100	200	90	200		40	230	180	120		1,160
B	50	380	180	120	60	90			80	70	70	160	1,260
C	40		160	150		40		100	120	320	170		1,100
D	20		20						30				70
E	50		10						40	30	20		150
F	60		20	40						20			140
	220	380	490	510	150	330	0	140	500	620	380	160	3,880

第3表 5年間の個人別被曝線量

(mrem)

氏名	年度				
	47	48	49	50	51
A	550	1,910	640	820	1,130
B	230	840	190	520	1,930
C	700	930	580	930	1,660
D	200	210	550	460	210
E			240	470	780
F			150	400	330

R I 関係利用者の被曝線量軽減のための対策

核理研放射線小委 近藤健次郎・八木益男
渡辺 昇・浦澤茂一

§ 1. 緒 言

これまで施設内における放射線作業にともなう個人被曝線量の軽減のため種々の対策が講じられてきた。特に前回報告した R I の改良型照射装置¹⁾によって R I 関係利用者の被曝線量は大幅に軽減された。

しかし従来施設利用者(実験者)の被曝については各実験者の責任にまかされており、一部実験者においては依然被曝線量がかなりの量に達している。特に R I グループの一部利用者は実験の都合上照射試料を素早く R I 棟に運び化学分離あるいは放射能測定を行う必要から、あるいは照射試料の形(試料が封入されている石英管の形)が従来の試料運搬用鉛コンテナのそれと著しく異なるなどの理由から、照射後照射試料をむき出しのまま R I 棟へ運搬していた。R I 関係の他の利用者の被曝線量と上記利用者のそれと比較すると、とくにβ線による被曝が多いことが判明した。したがって上記利用者の実験にともなう被曝線量のうち照射試料運搬時におけるものがかなりの割合を占めるものと推察された。

今回はこれら利用者の被曝線量軽減のため簡便型鉛コンテナを製作するとともに照射試料むき出しのままの運搬を厳禁する対策を講じた。本報告ではこのような対策工夫が実際に利用者の被曝線量軽減にどの程度有効であったか対策前、後の実験者の被曝線量を比較することにより明らかにする。また、これを端緒に放射線作業従事者の不必要な被曝を出来るだけ少なくするよう利用者の注意を喚起したい。

§ 2. 調査および結果

R I 関係利用者のうち該当者5名について対策前および後の1回の照射試料運搬にともなう被曝線量を第1表に示した。また今回照射試料の運搬用簡便型鉛コンテナ(厚さ20 mmの鉛, 外形 85×150×40)を製作した。表から明らかなように改善前および後では1回あたりの被曝線量が大幅に減少していることが判明した。とくにβ線による被曝は無視しうる程度であった。なお表中の値のうち対象者A, B, Cについては昭和51~52年度の試料運搬および

第1表 対策前後の照射試料運搬1回あたりの被曝線量

氏名	改善前	改善後
A	r : 22 mrem β : 36 mRad	r : 12 mrem β : 0
B	r : 16 mrem β : 28 mRad	r : 10 mrem β : 0
C	r : 19 mrem β : 15 mRad	r : 10 mrem β : 0
D	r : 30 mrem β : 0	r : 10 mrem β : 0
E	r : 17 mrem β : 0	r : 0 β : 0

実験による総被曝量を試料取出しのため第1実験室へ立入った回数で割ったもの(平均)である。またD, Fについては2回の立入りの平均である。被曝線量はポケットチェンバーおよびフィルムバッヂによる個人被曝記録簿からまた第1実験室立入り回数などは「加速器運転日誌」をもとに算出した。なお上記値は2mm厚さのPtコンバーターを内蔵するステンレス製ボート型照射装置に30~60 MeVの電子ビームを平均電流120~200 μ Aで数時間照射後およそ10分間の冷却期間をおき試料を取出した際の平均値である。

上記のような照射条件で照射終了後ボート型照射装置からおおよそ50cmの通常取出し位置における r 線、 β 線の強度は120 mrem/h, および600 mRad/hで、これは冷却水、空気、およびステンレス照射装置から生成する短半減期核種(^{15}O :半減期2分 β^+ , ^{53}Fe :半減期8.5分 β^+ , r , ^{13}N :半減期10分 β^+)によるものである。しかし実際に試料取出しのため20秒間(安全側に見積って)照射装置近くに滞在するとした場合の被曝線量は $r \sim 0$, β 線数mRadであり取出しのみについての被曝は極めて少ない。このことは他の実験者の被曝調査からも裏づけられている。したがってこのようなことから表中の対策前の β 線被曝はその全てが照射試料運搬時によるものと考えられる。また対策前のかんりの r 線被曝が照射試料運搬によるものと考えられる。A~Eの利用者は主として炭素原子の含有量の多い試料を照射しており、おそらく $^{12}\text{C}(r, n)^{11}\text{C}$ 反応で生成する ^{11}C (半減期:20分 β^+)による被曝が大

部分と考えられ、表中で簡易型鉛コンテナを使用してから β 線被曝が無視しうる程度となったことを良く説明できる。

§ 3. 結 論

これまでこのように施設においては放射線被曝線量軽減のための対策前後のデータをもとに実際にその対策がどの程度有効であったか、十分な比較検討は行なわれていなかった。

今回の例からちょっとした工夫により被曝線量を大幅に減少できた。当該実験者はこれまで1実験で数回試料の運搬をしており実際の被曝量軽減の割合はかなりの量に達する。今後放射線作業による被曝の原因を1つ1つ抽出し不必要な被曝を出来るだけ避けるよう利用者の注意を喚起したい。

参 考 文 献

- 1) 山寺, 塩川, 近藤, 八木, 浦沢, 渡辺: 核理研研究報告 **9** (1976) 213.

核理研研究報告 第11巻 第1号

1978年6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

Volume 11 Number 1 June 1978

Laboratory of Nuclear Science,
Tohoku University,
1, Kanayama, Tomizawa, Sendai 982, Japan