

ISSN 0385-2105

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 研 究 報 告

第12卷 第1号

1979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、ゴシック、立体、まぎらわしい大文字及び小文字を赤鉛筆で指定して下さい。但し、文中の文字記号及び数式は原則としてイタリックで組みますので、単位及び元素記号、数式中特に立体とすべき文字記号は必ず立体の指定をして下さい。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12巻 第1号 目次

I 原子核物理

- I-1 電子散乱による変形核 ^{238}U の巨大共鳴(II)..... 1
(核理研) 水野 義之, 寺沢 辰生, 大沢 哲, 斎藤悌二郎,
 小黑 瞬, 鳥塚 賀治
- I-2 輻射補正に対するコメント..... 14
(核理研) 大沢 哲
- I-3 中重核及び重核での (e, α) 反応(II) 25
(核理研) 広岡 恵, 浦野 隆夫, 菅原 真澄
- I-4 Measurements of Photoproton Cross Sections of ^{24}Al and ^{24}Mg
to Residual States 38
(メルボルン大*, 核理研, 教養部**)
M. N. Thompson*, 庄田 勝房, 菅原 真澄,
R. J. Ryan*, 斎藤悌二郎, 坪田 博昭**,
宮瀬 晴久**, 大橋 英雄, 浦野 隆夫,
広岡 恵, 田中 俊成

II 物性物理

- II-1 高圧力下の中性子線回折による RbBr の変態の測定..... 47
(金研, 弘前大理学部*)
神垣 知夫, 吉田 肇, 大橋 正義, 金子武次郎
佐藤幸三郎*
- II-2 Structural Study of D_xReO_3 ($0.1 < x < 0.3$) by TOF Neutron
Diffraction Method 51
(無機材研) 岡村富士夫, 磯部 光正, 川田 功, 津田 惟雄
- II-3 液体金属 (Sn) の過冷却-凝固過程での
構造変化の中性子回折による研究(II) 55
(理学部物理, 核理研*)
池田 進, 新村 信雄*, 石川 義和

II-4	パルス中性子による反強誘電体蟻酸銅四水和物の研究(Ⅲ)	58
	(名工大, 核理研*)	
	岡田 健吉, 鈴木 昱雄, 杉江 紘, 新村 信雄*	
II-5	磁気鏡による中性子偏極の研究.....	65
	(理学部物理)	
	佐々木幸男, 遠藤 康夫	
II-6	時間焦点型クリスタル・アナライザー法による熱外中性子散乱.....	72
	(核理研, 理学部物理*, 金研**)	
	渡辺 昇, 古坂 道弘*, 三沢 正勝**	
II-7	TaH _x の局在モード.....	83
	(理学部物理, 核理研*, 金研**)	
	古坂 道弘, 渡辺 昇*, 浅野 肇**	
II-8	Quasielastic Neutron Scattering of Tl ₂ Te-Tl Liquids near Immiscibility Gap	90
	(金研) 鶴司 重治, 甲斐 鎌三, 鈴木 謙爾	
II-9	Density Effect in K-shell Ionization by Ultrarelativistic Electrons II	100
	(理学部物理, サイクロ・R I センター*, 核理研**)	
	神谷 正己, 桑子 章, 杵渕 義明, 石井 慶造*	
	森田 右*, 小山田正幸**	
III 放射化学		
III-1	Chemical Effect by (γ , n) Reaction of Neptunium- (2, 2, 6, 6-tetramethyl-3, 5-heptanedione) Complex.....	107
	(金沢大理学部)	
	関根 勉, 阪上 正信	
III-2	光核反応による無担体 ¹⁸ F の製造.....	116
	(核理研, 金沢大医技短大*)	
	八木 益男, 天野 良平*	

Ⅲ-3	日本海深海底コア試料の光量子多元素放射化分析.....	120
	(理学部化学, 教養部*, 広島大総合科学部**)	
	遠藤 正美, 加藤 豊明*, 加藤 道雄**, 鈴木 信男	
IV 加速器・測定器		
IV-1	電子散乱用多線比例計数管(MWPC)(Ⅲ).....	131
	(核理研) 河村 雅夫, 小山田正幸, 中原 和夫	
IV-2	BDMの計数効率.....	135
	(山形大教養部, 核理研*)	
	種市 宏, 上野 博昭, 庄田 勝房*	
V データ処理装置・測定器稼動状況.....145		
V-1	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, 本村 智雄	

I. 原 子 核 物 理

電子散乱による変形核 ^{238}U の巨大共鳴(II)

核理研

水野義之・寺沢辰生

大沢 哲・斎藤悌二郎

小黒 瞬・鳥塚賀治

§ 1. 緒 言

^{238}U の電子散乱実験によって、変形核の巨大共鳴を調べた結果について報告する。

この実験で得られた非弾性電子スペクトルの大まかな特徴については、既に簡単な中間報告を行なった¹⁾。そこで議論された事は主に次の2点であった。

(1)GQR (Giant Quadrupole Resonance) は、核変形の影響によって、どの程度スプリットしているか。

(2)GMR (Giant Monopole Resonance) は、変形核 ^{238}U ではピークとして観測されているか。

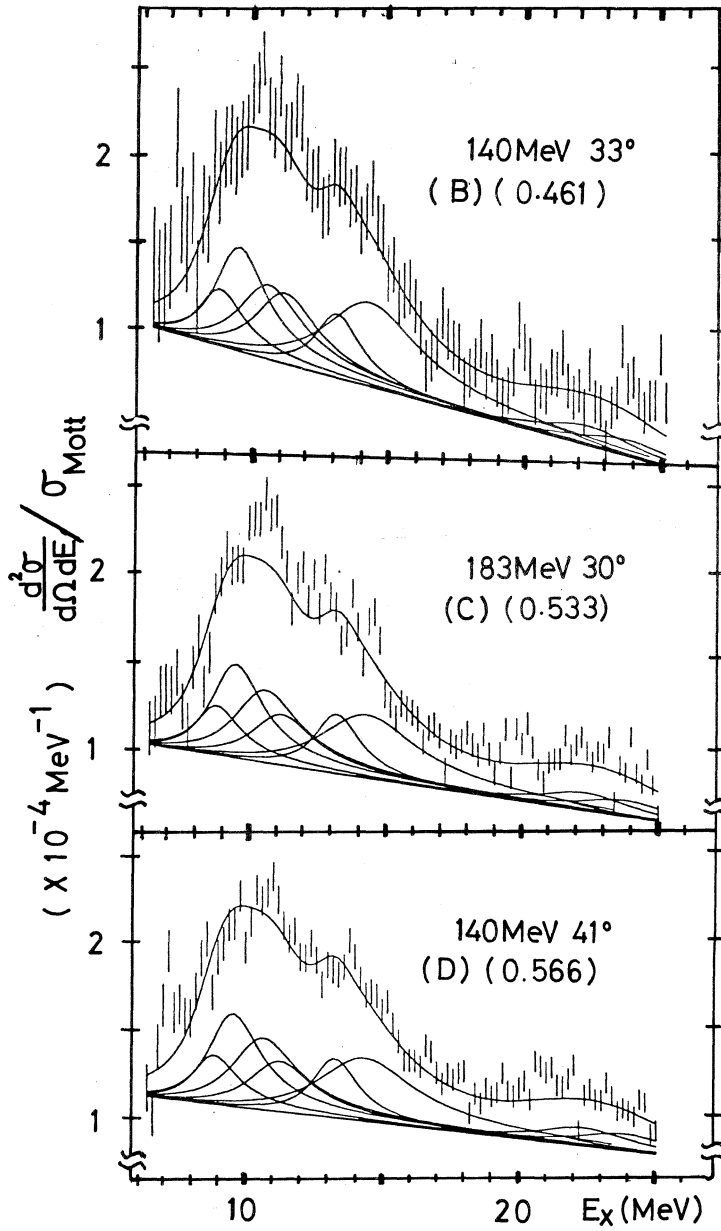
その後実験点をさらに4点追加して合計8点のスペクトルが得られた。今回の報告では、これらのスペクトルを、Suzuki の理論^{2,3)} から予想される転移強度分布 (DWBA) と比較する。その際にGQRのスプリットした各ピークとGMRのピークに対して、球形核の幅から推定される共鳴幅を仮定する事によって、全ての実験点のスペクトルの大まかな傾向は、ほぼ再現される事を示す。但しこの結果は、バックグラウンドの評価に依存するという点に問題が残る。

§ 2. 実験方法・実験結果

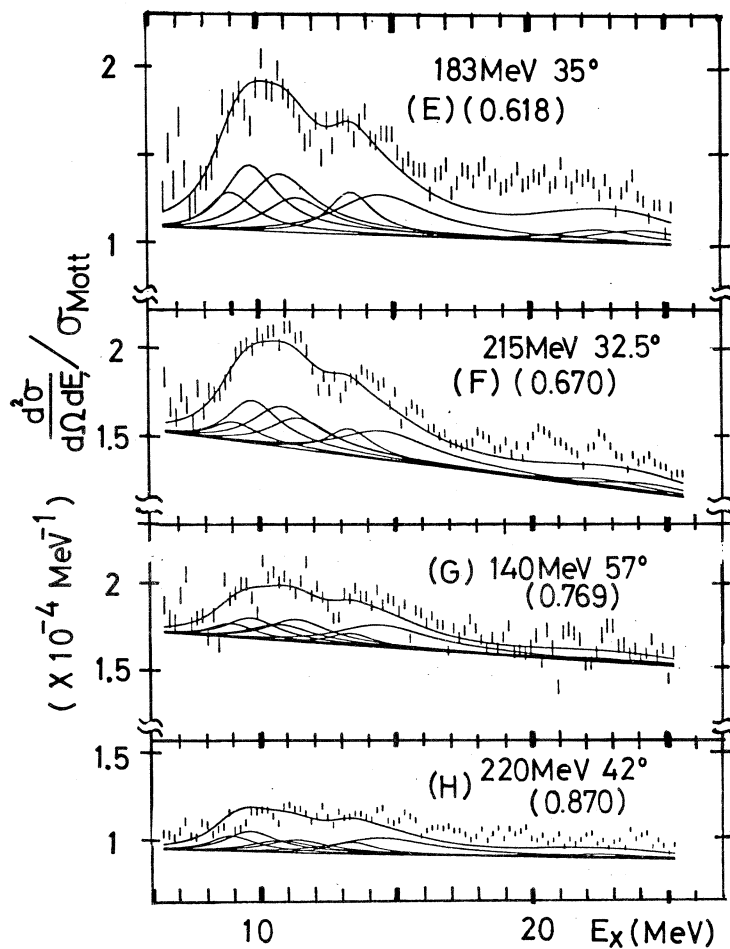
実験装置は従来の電子散乱の実験と同じであるが、前回ふれなかったこの実験方法の特殊な点について述べておく。

^{238}U は電子線照射によりある確率⁴⁾ で核分裂をおこす (200 MeV の入射電子に対して、 $\sigma_{\text{fission}} = (6.08 \pm 0.19) \times 10^{-27} \text{cm}^2$)。気体になり得る核分裂生成元素のうち各元素の核分裂収率⁵⁾ から推定して、悪条件下で空気中の最大許容濃度 (MPC) を越える可能性の考えられるアイソトープは、内部被曝を避ける為に、気体トラップを作成して取除く様に努めた。その為に ^{238}U ターゲットを小型の箱の中に封じ込めた。ビームは箱の入口と出口の窓で厚さ $10 \mu\text{m}$ のチタン・フォイルを通過する。この箱によるバックグラウンドの増加は無視できる程度であった。

今回新たに追加された実験点は、入射エネルギー、散乱角度が、140 MeV, 33°, 41°, 57°;



第1図 $^{238}\text{U} (e, e')$ の輻射補正後のスペクトル。図中の () (fm^{-1} 単位)。直線で近似したバックグラウンドの上に、9成分の巨大共から順に、I S型GQR ($K = 0^+, 1^+, 2^+$)、I V型I V型GQR ($K = 0^+, 1^+, 2^+$)である。またその総



内の数字は、 $E_x = 11 \text{ MeV}$ における有効運動量移行 (q_{eff}) を示す

鳴を予想した。図中の共鳴曲線はこれらの計算値を示す。それらは左
 GDR ($K=0^-$), I S型GMR ($K=0^+$), I V型GDR ($K=1^-$),
 和も示した。なお各共鳴にはローレンツ型共鳴曲線を仮定している。

及び 215 MeV, 32.5° の 4 点である。夫々の実験の励起エネルギー 11 MeV における有効運動量移行 (q_{eff}) は, 0.461, 0.566, 0.769, 0.670 (fm^{-1}) である。これまでの実験で得られた合計 8 点のスペクトルに, 従来の方法で輻射補正を施した結果を, 第 1 図 (B) ~ (H) に示す。(A) のスペクトルは文献 1 を参照)。第 1 表にはこれらの実験条件を示す。

第 1 表 実 験 条 件。

	入射エネルギー (MeV)	散 乱 角 (deg)	測定年月日	q_{eff} ($E_x = 11 \text{ MeV}$) (fm^{-1})
A	150	27	1977. 11. 30	0.407
B	140	33	1978. 12. 2	0.461
C	183	30	1977. 9. 3	0.533
D	140	41	1978. 12. 2	0.566
E	183	35	1977. 9. 2	0.618
F	215	32.5	1978. 12. 1	0.670
G	140	57	1978. 12. 2	0.769
H	220	42	1978. 9. 20	0.870

第 1 図のスペクトルは, 連続的なバックグラウンドが大きすぎる様に見えるが, その理由は, ビームが箱の入口と出口の窓 (前述) を通過する際にテイルが増加する為であろう。今回の輻射補正では, この効果は考慮されていない。今回の巨大共鳴スペクトルの分析では, 単純の為にこの効果によるテイルは連続的なバックグラウンドの一部をなしているとみなして, 全体の連続成分を直線で近似した。

§ 3. 実験結果の考察

球形核において, その存在が明らかにされた GDR, GQR, GMR, … の巨大共鳴は中重核以上では単一の共鳴曲線で表現される 1 本の共鳴として系統的に存在する。しかし ^{238}U の様な強く変形した原子核の巨大共鳴は, その状態の K 量子数 (全角運動量の固有軸成分) の違いによって, 励起エネルギーも転移確率 (形状因子) も異なると考えられる。変形核では巨大共鳴のような高励起状態の理解は, GDR 以外はあまり進んでいないのが現状である。

^{238}U の散乱電子スペクトル (第 1 図) において, 励起エネルギー 8 ~ 24 MeV に見られる幾つかの幅広いピークの集まりは, 球形核の例から類推すると実験的揺動以外はすべて, これらの巨大共鳴が形成された事によるものと考えられる。このうちのどれがどの様な種類の巨大共鳴かを明らかにする為には, まず光核反応でよく知られた GDR の, 電子散乱における寄与を明確にする事が必要である。

3.1 IV型GDR ($4T=1$, $K^\pi=0^-,1^-$)

光核反応の実験で観測された ^{238}U のGDRは、核変形の影響で2つにスプリットしている。その形は2つのローレンツ型共鳴曲線の和によって、非常によく再現される¹⁾。それらのパラメーターの最適値を、第2表に示す⁷⁾。流体模型によれば、葉巻型の原子核では、エネルギーの低い方のピークが $K=0$ 、高い方が $K=1$ となる⁹⁾。

第2表 光核反応の実験による ^{238}U のGDRのパラメーター⁷⁾
2つのローレンツ型共鳴曲線による最適値を示す。

$J^\pi(K^\pi)$	中心エネルギー E_0 (MeV)	σ (mb)	共鳴幅 Γ (MeV)	TRK総和則への寄与 $=\frac{\pi}{2}\sigma\Gamma$ (MeV·mb)	EWSR値に占める割合 (%)
$1^-(0^-)$	10.96 ± 0.09	301 ± 6	2.90 ± 0.14	$(1.37 \pm 0.09) \times 10^2$	121 ± 8
$1^-(1^-)$	14.04 ± 0.13	369 ± 6	4.53 ± 0.13	$(2.63 \pm 0.06) \times 10^2$	116 ± 3

これらの光核反応の結果を電子散乱に適用する為には、第2図の実線の形状因子を用いる。この形は文献2,3の方法で得られる転移電荷密度(ρ_{tr})を使って、DWBAで計算したものである。なお前回の報告における形状因子は同じ ρ_{tr} を使ってPWBAで計算したものである¹⁾。

規格化の方法は、光子点 ($q \rightarrow \frac{E_x}{\hbar c}$) で第2表の値に一致させる。

この形状因子は、GT型¹⁰⁾ ρ_{tr} を変形核に拡張して得た結果¹¹⁾と一致する。これとSJ型との違いを見る為には、第4図中には、球形核のSJ型¹²⁾ ρ_{tr} (但し、核表面をなましたもの¹³⁾。

$$\rho_{\text{tr}}^{\text{SJ}} = N \cdot \rho_0(r) \cdot j_1\left(\frac{2.08}{R_0} r\right)$$

$$\text{但 } \rho_0(r) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{r - R_0}{a}\right)}, \quad N \text{ は規格化定数。}$$

に対して核半径 R_0 を $K=0$ と 1 とで変化させて得た結果も、合わせて示した。核半径のずらせ方は現象論的にGT型での ρ_{tr} のピークのずれ方(これが核変形の主な効果である)¹⁾と一致させた。

$$R_0 \rightarrow R_{K=0^-} = 6.3 \text{ fm}, \quad R_0 \rightarrow R_{K=1^-} = 7.6 \text{ fm}$$

この方法で得られる変形核のSJ型 ρ_{tr} は $\rho_2(r)$ (変形の Y_2 成分)を含まない為には不十分であるが、もしこれを採用すれば、電子散乱におけるGDRは q (運動量移行)の増加と共にGT型より早く減少する。従ってGDRと重なった位置に予想される他のモードの巨大共鳴

はよりゆっくりと減少しなければならない。
現実の原子核は両者の中間である可能性が強い^{14, 15)}。今回の解析では、より正確に変形の効果を取り入れたGT型の方を採用した。

またGDRの励起エネルギーと幅と、共鳴の形は、光核反応と電子散乱で変化しないとする。すると、電子散乱スペクトルにおけるGDRの寄与は、一義的に決定される。これを第1図中に実線で示した。なお、以下で議論する全ての巨大共鳴の形は、GDRと同様にローレンツ型共鳴曲線を仮定する^{16, 17)}。

3.2 IS型GQR

$$(4T=0, K^\pi=0^+, 1^+, 2^+)$$

3.2.1 励起エネルギー

球形核のGQRの実験値 $\sim 61/A^{1/3}$ MeVを中心として、文献2, 3の方法で得られる比率でスプリットがおこると仮定すれば、²³⁸UのGQRに対して、次の値が得られる。

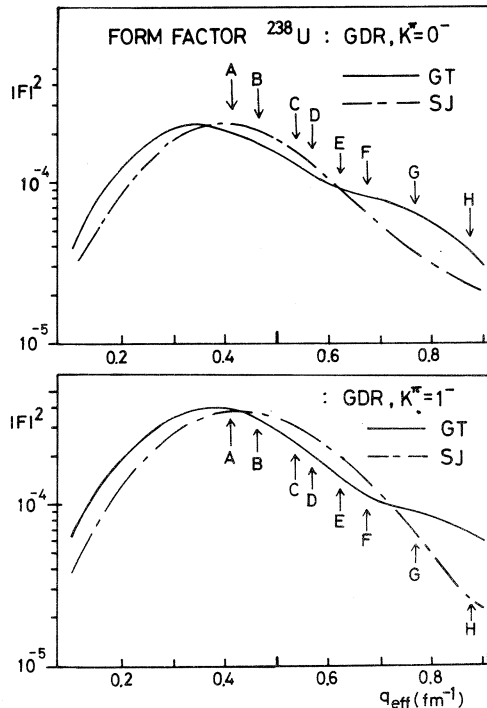
$$K^\pi=0^+, E=8.6\text{ MeV}, K^\pi=1^+$$

$$E=9.4\text{ MeV}, K^\pi=2^+, E=10.4\text{ MeV}$$

第1図のスペクトルで $E_x \doteq 8.5 \sim 10.5$

MeVの領域には予想どおりGQRと思われる寄与が存在するが、GDRの様な大きなスプリットは見られない。しかしこの領域はピークとして見ると不規則で非対称な形をしており、単一のローレンツ型共鳴曲線では再現されない。

他の実験例として、 (e, e') で見た¹⁸¹Ta(変形核)¹⁸⁾及び (α, α') 、 (p, p') で見た¹⁵⁴Sm(変形核)^{19, 20)}では、GQRピークのスプリットは、比較的小さいとされている。これらは我々の結果と矛盾しない。また最近の自己無撞着に強さを決めたQ・Q力による理論は小さいスプリットを予想しているが、その結果^{2, 3, 21)}とも矛盾しない。



第2図 ²³⁸UのGDR ($K=0^-, 1^-$)の形状因子(DWBA)。図中の実線(GT)は、Goldhaber-Teller模型を変形核に拡張した結果を示す(Suzuki模型でも同じ結果が得られる)。1点鎖線(SJ)はSteinwedel-Jensen模型を変形核に拡張(本文参照)した結果を示す。図中の矢印(A~H)は、第1図(スペクトル)の実験点における q_{eff} の値を示す。

なお、電子線照射の核分裂生成物の角分布で見た ^{238}U のGQRのスプリット²²⁾は、 $E_x \approx 8.5 \sim 12.5 \text{ MeV}$ となっており、異常に大きい。しかしこれはGDRの寄与の引残しか、又はGMRの寄与(3.3節で議論する)を同時に見ている可能性がある。実際、 ^{238}U の120 MeV α 粒子による(α , α' f)によると、GQRは核分裂チャンネルへは殆んど崩壊しないという指摘がある²³⁾。

3.2.2 共鳴幅

GDRとGQRのピークの共鳴幅は、励起エネルギーが低いほど(即ち重い核ほど)狭くなる事が知られている。GDRでは

$$\Gamma_{\text{GDR}} = \Gamma_0 \cdot \left(\frac{E}{E_0} \right)^\delta, \quad \delta = 1.6 \sim 2.4$$

によって表わされる^{24,25)}。この類推から、GQRの幅についても、同じ形を仮定し、 $\delta = 2.3$ にとり、 ^{208}Pb の実験値($E_0 = 10.7 \text{ MeV}$, $\Gamma_0 = 2.6 \text{ MeV}$)で規格化すれば、

$$\Gamma_{\text{GQR}} = 2.6 \left(\frac{E_{\text{GQR}}}{10.7} \right)^{2.3}$$

が得られる。これは $A = 56 \sim 208$ にわたってGQRの幅の実験値¹⁹⁾を約10%の精度で再現する。この経験式から、 ^{238}U のGQRのスプリットした後の各ピークの共鳴幅に対して、次の値が予想される。

$$K^\pi = 0^+, \Gamma = 1.6 \text{ MeV}, \quad K^\pi = 1^+, \Gamma = 1.9 \text{ MeV}, \quad K^\pi = 2^+, \Gamma = 2.4 \text{ MeV}.$$

3.2.3 形状因子

q 依存性は文献2, 3の $\rho_{\text{tr}}(K = 0, 1, 2)$ を使って、DWBAで計算した。大きさは $K = 0, 1, 2$ の夫々が、夫々の総和則値(但し intrinsic frameにおける値)を100%尽くすとした時の値である。この結果得られる形状因子を第3図上に示す。

3.2.4 この節の考察

以上の議論から電子散乱スペクトルにおけるGQR($K^\pi = 0^+, 1^+, 2^+$)の寄与が予想される。これを第1図中に実線で示した。このように ^{238}U のGQR領域は、 ^{208}Pb から外挿した共鳴幅をもった単一のローレンツ型ピークでは再現されず、約1 MeV間隔にスプリットした合計3本のピークの和(各々は ^{208}Pb から外挿した共鳴幅をもつ)によって、よりよく再現される。しかし、よく見るとGQRの $K = 2$ 成分($\sim 10.4 \text{ MeV}$)の付近は、系統的に過少評価になっている。更に良い一致を得る為に予想される $K^\pi = 2^+$ の共鳴幅は約2 MeV程度である。これは幅の系統性から約20%程度狭い方へずれている。元来、 $\delta = 2.3$ とし、 ^{208}Pb から外挿した

幅はかなり狭いはずである¹⁹⁾。従って変形核のGQRのスプリットした各ピークの共鳴幅は、予想以上に狭い可能性が指摘される²³⁾。他の可能性としては、GMRも2つにスプリットして、その低エネルギー部分(～10.6 MeV に予想される)を観測している事も考えられる²⁸⁾。

3.3 I S型GMR

$$(\Delta T = 0, K^\pi = 0^+)$$

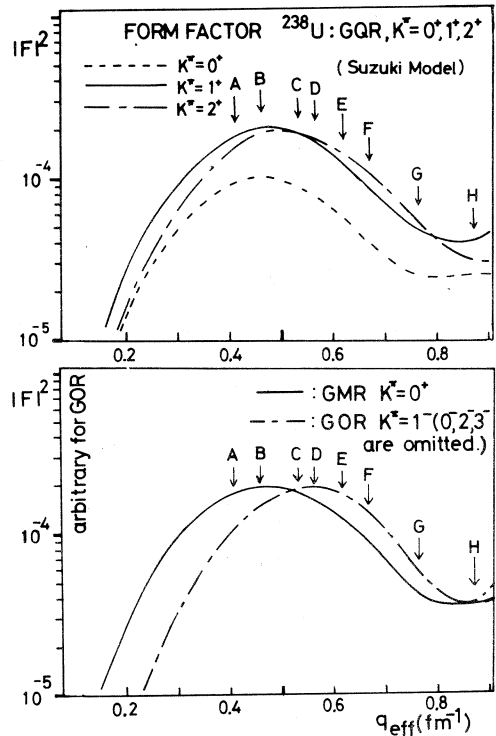
3.3.1 励起エネルギー

¹⁴⁴Sm, ²⁰⁸Pbの α 粒子前方少角散乱の実験¹⁹⁾によって、夫々のGMRが、 $E_x = 15.1 \pm 0.5$ MeV, 及び 13.7 ± 0.4 MeV に存在する事が明らかにされた。この結果とGDR, GQRからの類推により、GMRのエネルギーが $E \cong 80/A^{1/3}$ MeVの系統性をもつ事が予想されている。電子散乱実験でも同じ位置に予想されていた²⁶⁾。

この系統性を変形核にそのまま適用すると、(²³⁸Uでは～12.9 MeV), この位置はGDRのスプリットした2つのピーク(²³⁸Uでは11 MeV及び14 MeV)の谷間にあたる¹⁸⁾。第1図のスペクトルをよく見ると～13.2 MeV付近にGDR以外と思われる寄与が見られる。

理論的には変形核ではGMRが2つにスプリットする可能性も指摘されている²⁸⁾。その位置は非摂動エネルギー $2\hbar\omega_z$, $2\hbar\omega_x$ の近くである。転移強度が強いかかわらず、エネルギーがあまり下がらない(引力のとき)のは²⁷⁾、球形核のGMRと同様の理由による為であろう($2\hbar\omega$ の $1p-1h$ の 0^+ 配位が少数な為、及び2体力のmonopole成分がquadrupole成分に比べれば弱い為²⁸⁾)。

しかし今までの実験を見ると、(p, p')で見た¹⁵⁴Sm(変形核)²⁰⁾のGMRは、(p, p'),



第3図上: ²³⁸UのI S型GQR (K^π=0⁺, 1⁺, 2⁺)の形状因子(DWBA)。Suzuki 模型を用いて計算した結果。大きさはEWSRの100%に規格化してある。なおI V型GQRの形状因子もI S型GQRと同じq依存性をもつ。
下: ²³⁸UのI S型GMR (K=0⁺), IS型GOR (K=1⁻)の形状因子(DWBA)。共にSuzuki 模型から計算した結果。GMRの大きさは、EWSR 100%に規格化してある。GORの縦軸は任意単位である。

(α , α') で見た ^{144}Sm (球形核)^{19,20)}のGMRと同じ位置に見出されており、ピークのスプリットは存在しない。我々の調べている ^{238}U で、もしGMRがスプリットしているとすれば、 $\sim 13\text{ MeV}$ の両側に、約 3.5 MeV の間隔で分離する(10.6 MeV 及び 14.0 MeV)と予想される²⁸⁾。

3.3.2 共鳴幅

GMRの共鳴幅は ^{144}Sm で、 $\Gamma = 2.9 \pm 0.5\text{ MeV}$, ^{208}Pb で $\Gamma = 3.0 \pm 0.5\text{ MeV}$, $2.0 \sim 2.5\text{ MeV}$, と報告されている。

この結果から ^{238}U では $\Gamma_{\text{GMR}} \sim 2.0\text{ MeV}$ 程度と推定される。

3.3.3 形状因子

q 依存性は文献2, 3の ρ_{tr} を用いてDWBAで計算し、大きさは総和則100%に規格化した。この結果を第3図下の実線で示す。

3.3.4 この節の考察

以上の事から我々の予想するGMRの寄与を第1図に実線で書入れた。これを見ると $\sim 13\text{ MeV}$ 付近のスペクトルは多少過大評価になっている。従って、総和則値が100%を越えている可能性は小さい。

^{238}U では電子の波は大きな歪曲をうける。この影響は多重極度が小さいほど大きくて、GDRの形状因子をDWBAで計算すると、PWBAにおけるディフラクション・ミニマム¹⁾は完全に埋まってしまい、GDRの寄与は高い q においてもなかなか減少しない。(その q 依存性はCO, C2に似てくる)。その為に、GMRのピークが孤立する条件を作って観測する事が難しくなっている。しかしもし仮にGMRがスプリットするとすれば、 $\sim 13\text{ MeV}$ 付近のスペクトルの再現性はかなり悪くなる。従って本実験のスペクトルにおいて、 $E_x \sim 13.2\text{ MeV}$ 付近(GDRの $K=1$ ピークの左肩)が埋まっている事から、GMRがこの位置に存在する可能性が強い。この位置は $80/A^{1/3}\text{ MeV}$ に近く、 ^{154}Sm (変形核)のGMRの結果²⁰⁾と、系統性において矛盾しない。しかし以上の議論からだけでは、GMRが2つにスプリットする可能性も否定できない。

3.4 1V型GQR ($\Delta T = 1$, $K^\pi = 0^+, 1^+, 2^+$)

3.4.1 励起エネルギー

球形核における $\sim 130/A^{1/3}\text{ MeV}$ との類推から $20 \sim 23\text{ MeV}$ 付近に $\Delta T = 1$ のGQRが存在すると思われる。実際この付近にはかなり幅の広い盛り上がりが見られる。(F)のスペクトルが統計誤差が小さいので、これを見てピークをさがすと

$K=0^+$ $E=20.7$ MeV, $K=1^+$ $E=22.3$ MeV, $K=2^+$ $E=23.8$ MeV

付近に予想される。

3.4.2 共鳴幅

$K=0^+$ の幅を3.5 MeVと仮定し、幅の系統性を $\Gamma \propto E^2$ と仮定すれば、 $K=1^+$ $\Gamma=3.9$ MeV, $K=2^+$ $\Gamma=4.2$ MeVとなる。

IV型GQRの幅の系統性はまだ知られていないので、上の値はあまり根拠がないが、一般にspreading幅は終状態の状態密度に比例するので、^{29,30)} 励起エネルギーが高い方が幅は広いと考えてよい(結合の行列要素があまり変わらない場合)。但し²³⁸Uの様な重い核でも $E_x \sim 20$ MeV以上では、escape幅もかなり広くなる可能性がある。

3.4.3 形状因子

文献3によると、IV型GQRの形状因子の q 依存性は、IS型GQRと同じになる(球形核に於いてもそうである)。大きさは、総和則100%と仮定すれば、IS型とIV型の励起エネルギーの比に反比例して、IV型の方が、小さくなる。但し元来IS型とIV型の大きさはアイソスピン効果の第1近似として³¹⁾、 $IS : IV = \left(\frac{Z}{A}\right)^2 : \frac{NZ}{A^2}$ の比だけ異なる(総和則が使える場合)。これらの補正を行えば、IV型GQRの形状因子は、IS型の第3図上から容易に求まる。

3.4.4 この節の考察

IV型GQRについては、幅が広がりすぎていて、スプリットの議論は難しい。ここでは試みに、総和則を50%だけ満たすと仮定して予想される寄与を第1図のスペクトル中に書き入れた。全然合っている様には見えない。その原因の1つとして、上で仮定した共鳴幅が広すぎる可能性がある。しかしこのような高励起の領域で幅の狭いピークは非常に考えにくい。また実験的揺動との区別もつきにくい。従って、この実験からは意味のある結論は引き出し難い。

3.5 IS型GOR ($\Delta T=0$, $K^\pi=0^-, 1^-, 2^-, 3^-$)

²³⁸UのGOR (Giant Octupole Resonance)については、V. G. Solovievの計算³²⁾がある。それによると、 $B(E3; K)$ の強度の集中が16.5~20 MeVにかけて、4本見られる。しかし実験のスペクトルを見ると、この領域には、それらしい形跡は殆んど認められない。

文献3の方法でGOR ($K=0^-, 1^-, 2^-, 3^-$)の形状因子の計算を行ってみたが、 K に

よる q 依存性の違いは殆んど見られなかった。そこで第3図下に、 $K^\pi = 1^-$ の場合の q 依存性を示す (DWBA)。大きさの規格化は行っていない。この q 依存性から、(D)、(E) の実験点でGORの寄与が最大となる事がわかる。16~20 MeV 付近はIV型GDRとIV型GQRの谷間であるが、よく見ると(E)のスペクトルでは、その位置が埋まって平らになっている様に見える。しかし明確なピークとしては観測されない。またその大きさの評価は、バックグラウンドの評価に大きく依存する。従ってGORについては定量的な議論は困難であるが、16~20 MeV の領域に octupole 成分が多く存在する可能性はある。

§ 4. まとめ

変形核の巨大共鳴を調べる為に、標的として ^{238}U を選び、電子の前方散乱によって非弾性電子スペクトルを、 $q_{\text{eff}} = 0.407 \sim 0.870 \text{ fm}^{-1}$ に渡って8点測定した。連続的なバックグラウンドの上には幅広いピークの集まりが観測された。光核反応で11 MeVと14 MeV にスプリットして観測されるGDR ($\Delta T = 1$, $K^\pi = 0^-, 1^-$) は、GT型形状因子 (光子点で光核反応の結果に規格化) を用いて、その寄与を予想した。スペクトルには、このGDR以外の寄与が、8.5~10.5 MeV, 13.2 MeV 付近, 20~24 MeV に見られた。そこで Suzuki の巨大共鳴理論^{2,3)} で得られる変形核の転移密度を使って、IS型及びIV型GQR ($\Delta T = 0, 1$, $K^\pi = 0^+, 1^+, 2^+$), IS型GMR ($\Delta T = 0$, $K^\pi = 0^+$) の形状因子 (総和則100%に規格化) を計算し、ローレンツ型共鳴曲線を仮定して、各巨大共鳴ピークの寄与を予想し、実験のスペクトルと比較した。励起エネルギーと共鳴幅は、Suzuki の理論と実験的に知られている球形核の巨大共鳴の系統的性質とによって、推定した。その結果、すべての実験点のスペクトルは、ほぼ再現される事が示された。しかし、いくつかの不一致点も見られた。これらのスペクトルを比較検討する事によって、次の可能性が指摘された。

- (1) IS型GQRは、約1 MeVの間隔で3本にスプリットしている。 $K^\pi = 2^+$ 成分 (~10.4 MeV) の共鳴幅は ^{208}Pb の実験値を外挿した幅よりかなり狭い可能性がある。
- (2) IS型GMRは、変形核でもスプリットせず13.2 MeV 付近に単一の共鳴として存在する可能性が強い。しかし、GMRが2つにスプリットする可能性も否定し切れない。
- (3) IV型GQRのスペクトルは殆んど再現されないで、ピークのスプリットや幅を議論する事は難しい。実験的揺動との区別も明確でない。
- (4) IS型GORは、それらしい寄与が殆んど認められなかったが、16~20 MeV 付近の寄与の q 依存性から、この付近には octupole 成分が多いと予想される。

以上のように変形核の巨大共鳴スペクトルのうち特に 8.5 ~ 16 MeV 領域 (GQR, GDR, GMR) の大まかな傾向は, Suzuki の理論を利用してほぼ再現される事が示され, これによって変形核における GQR のスプリット, GMR の存在に関して, ある程度定量的な議論が可能となった。しかしこれ以上詳しい議論は, 今回の様なスペクトルの分析方法によるだけでは困難である。その理由は, 巨大共鳴ピークが元来幅広い上に, それらが重なって予想される為である。今後変形核の巨大共鳴の理解を更に深める為には, 他の変形核による実験の蓄積から実験的な系統性を明確にする事, 及び別の分析方法によってスペクトルを見直す事等が必要であると思われる。

参 考 文 献

- 1) 水野義之他 : 核理研研究報告 **11** (1978) 190 .
- 2) T. Suzuki and D. J. Rowe : Nucl. Phys. **A 289** (1977) 461 .
- 3) T. Suzuki and D. J. Rowe : Nucl. Phys. **A 292** (1977) 93 .
- 4) L. G. Moretto *et al.* : Phys. Rev. **179** (1969) 1116 .
- 5) Yu. A. Zysin *et al.* : *Fission Product Yields and Their Mass Distribution* (Consultants Bureau, 1964).
- 6) 大沢 哲 : 核理研研究報告 **12** (1979) 14 .
- 7) A. Veyssiere *et al.* : Nucl. Phys. **A 199** (1973) 45 .
- 8) B. L. Berman and S. C. Fultz : Rev. Mod. Phys. **47** (1975) 713 .
- 9) J. M. Eisenberg and W. Greiner : *Nuclear Models* (North Holland, 1970)
Vol. I, p. 306, 336 .
- 10) M. Goldhaber and E. Teller : Phys. Rev. **74** (1948) 1046 .
- 11) 中田章他 : 核理研研究報告 **6** (1973) 15 .
- 12) H. Steinwedel, J. H. D. Jensen and F. Jensen : Phys. Rev. **79** (1950) 1019 .
- 13) G. R. Satchler : Nucl. Phys. **A 195** (1972) 1 .
- 14) W. D. Myers *et al.* : Phys. Rev. **C 15** (1977) 2032 .
- 15) M. Tanaka and M. Yamada : *Proc. Kawatabi Conf. on New Giant Resonances, Sendai, 1975*, ed. H. Ui, Y. Torizuka, S. Yoshida and A. Arima, Res. Rep. Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **8** (1975) Suppl. p.153 .

- 16) J. M. Eisenberg and W. Greiner : *Nuclear Models* (North Holland, 1970)
Vol. I, p. 296.
- 17) A. Bohr and B. R. Mottelson : *Nuclear Structure* (Benjamin, 1975) Vol. II
p. 477.
- 18) H. Miura and Y. Torizuka : Phys. Rev. **C 16** (1977) 1688 .
- 19) D. H. Youngblood *et al.* : Phys. Rev. **C 13** (1976) 994 ; D. H. Youngblood
et al. : *Proc. Sendai Conf. Electro – and Photo – excitation*, 1977, ed. Y.
Kawazoe , Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. , Tohoku Univ. **10** (1977) Suppl. p.
33 .
- 20) F. E. Bertrand *et al.* : Phys. Rev. **C 18** (1978) 2788 .
- 21) T. Kishimoto *et al.* : Phys. Rev. Lett. **35** (1975) 552 .
- 22) J. D. T. Arruda Neto *et al.* : Phys. Rev. **C 18** (1978) 263 .
- 23) J. Van der Plicht *et al.* : Phys. Rev. Lett. **42** (1979) 1121 .
- 24) R. L. Bramblett *et al.* : *Proc. Int. Conf. on Photoneuclear Reactions*,
Asilomar, Calif. 1973 , ed. B. L. Berman , p. 3.
- 25) H. Arenhövel, M. Danos and W. Greiner : Phys. Rev. **157** (1967) 1109 .
- 26) Y. Torizuka : *Proc. Int. Conf. Nuclear Structure, Tokyo*, 1977, ed. T.
Marumori, J. Phys. Soc. Japan, **44** (1978) Suppl. P. 397.
- 27) G. E. Brown : *Unified Theory of Nuclear Models and Forces*
(Interscience , New York , 1967) Chap. IV, V.
- 28) D. Zawiscka, J. Speth and L. Pal : Nucl. Phys. **A 311** (1978) 445 .
- 29) M. Danos and W. Greiner : Phys. Rev. **138** (1965) B. 876 .
- 30) A. Bohr and B. R. Mottelson : *Nuclear Structure* (Benjamin, 1967) Vol. I
p. 152, 302 ; Vol. II, p. 440, 505.
- 31) E. K. Warburton and J. Weneser : *Isospin in Nuclear Physics*, ed. D. H.
Wilkinson (North Holland Pub. Co., Amsterdam, 1969) p. 195.
- 32) V. G. Soloviev : *Proc. Sendai Conf. Electro – and Photoexcitation*, 1977,
ed. Y. Kawazoe , Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. , Tohoku Univ. **10** (1977)
Suppl. p. 111.

輻射補正に対するコメント

核理研 大沢 哲

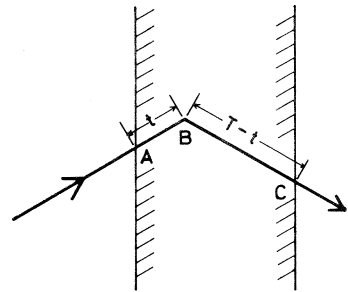
§ 1. 序 論

巨大共鳴の断面積を測定したスペクトルからもとめようとする場合に問題となるのが、弾性散乱の低エネルギー側に引く裾 (tail) である。巨大共鳴と比較して、それらの下に連続的に分布してバックグラウンドとなる弾性散乱の裾のほうが大きいいため、巨大共鳴の断面積を正確に出せるかどうかは、この裾の計算精度にかかわってくる。

従来の方法では原子番号 Z が大きくなってくると、裾の引き残しが起こるという問題が出てきた。これを改善するために輻射補正の考察を行なった。その結果、電子が散乱される前後において標の中でエネルギーを失なう効果を正しく考慮してやる必要があることが判った。従来使用してきた式¹⁾は、 Z が小さくて標的が薄い場合には良い近似式であるが、 Z が大きくなってくると近似しない厳密な式を使う必要がある。§ 2 ではこの問題について考察する。§ 3 で摂動展開の高次項について議論する。

§ 2. 外部輻射と内部輻射の関係

電子散乱実験で測定しているものは、入射電子エネルギー、散乱電子エネルギー及び散乱角である。ある電子に注目したとき、その電子が標的中でどのような散乱過程を経て散乱されてくるかはまったく不明であるが、電磁相互作用である以上、原子核の状態が判れば断面積は確率の問題として計算できるはずである。散乱電子は標的を通過中に原子核やそのまわりの電子と相互作用をする。散乱角が大きい場合、高エネルギー電子の原子核による散乱断面積は極めて小さいので、標的中で二回以上大きな角度の散乱が起こる確率はまったく無視してよい。第1図の様に、標的の中を厚さ t 進んだ所で電子が大きな角度で散乱され、残りの厚さ $T-t$ を通過して標的から出る場合について考察する。大きな角度で散乱される点を B 、電子が標的の中を通過する部分を AB (散乱前)、 BC (散乱後) と分けて考えることにする。 AB と BC の部分で入射電子は原子核や電子と微小角散乱をするが、それに伴いある確率で光子を放出する。この光子放出



第1図 電子はB点の原子核によって散乱される。

を以下では便宜上外部輻射と呼ぶことにする。外部と呼ぶのは、輻射の起こる場所が電子を散乱する原子核以外の他の原子核の場の内であるためである。

一方B点で散乱される時にも光子を放出する。これを内部輻射と呼ぶことにする。外部輻射と内部輻射によって生じるピークの据は、ピーク断面積で規格化するとそれぞれおよそ $4T / 3k \cos \theta$, $1 / k \cdot \alpha / \pi (\ln(q/me)^2 - 1)$ で与えられる(付録参照)。入射エネルギー、散乱角がそれぞれ 180 MeV, 40° で、厚さ $T = 50 \text{ mg/cm}^2$ の Sm の場合、外部輻射と内部輻射はそれぞれ $1.1 \times 10^{-2} / k$, $2.6 \times 10^{-2} / k$ である。 k は光子エネルギーである。上のような条件では外部輻射は内部輻射と同程度になっているのでこれらの間の関係を正しく取り扱う必要がある。

まず外部輻射について考える。高エネルギー電子では軟光子放出は進行方向に集中しているので、光子放出による電子の進行方向の変化は極めて微小である。ところが微小角散乱の断面積は大きいので、電子は標的中で多数回の微小角散乱を起こし、そのたびに光子放出と原子のイオン化や励起によりエネルギーを失なう。その結果電子のエネルギー損失は無視できない量となる。一方電子の進行方向の変化は平均すれば零となり、B点へ電子は直進して来ると考えてよい。入射エネルギー E_0 の電子が標的を厚さ t だけ通過した後、エネルギーを失なって $E \sim E + dE$ にある確率を二つに分けて考える。

$$I_e(E_0, E, t) = I_{\text{ER}}(E_0, E, t) + I_{\text{ION}}(E_0, E, t) \quad (1)$$

右辺の第1項は、電子が外部輻射によってエネルギーを失う場合であり、第2項は原子のイオン化や励起によってエネルギーを失う場合である。

高エネルギー電子の場合は、(1)式の第1項が第2項よりずっと大きい。第1項は輻射長を単位とした厚さに比例するが、その輻射長は Z が大きくなると小さくなる(付録参照)。したがって、原子番号 Z が大きくなると第1項が大きくなり、外部輻射の効果が無視できなくなる。

(1)式で与えられるエネルギー分布をした電子がB点の原子核によって散乱され、同時に内部輻射をする。内部輻射は、電子の運動量移行 q が大きい散乱に伴って起きるため、内部輻射には原子核の形状因子が関係する。外部輻射は運動量移行の小さい散乱に伴う光子放出であるので形状因子は1である²⁾ エネルギー E'_s の電子が、B点の原子核によって散乱された場合そのエネルギー分布は、

$$I_e(E_s, E'_s, t) \frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE} (E'_s, E'_p)_0 \quad (2)$$

で与えられる。断面積には内部輻射による据も含めて考えることにする。

電子はBCの部分を通過する間にさらにエネルギーを失う。そのメカニズムはABの部分と

同じである。B点での散乱後のエネルギーが E'_p である電子の厚さ T の標的を完全に通過すると、そのエネルギー分布は次式で与えられる。

$$I_e(E_s, E'_s, t) \frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE} (E'_s, E'_p)_0 I_e(E'_p, E_p, T-t) \quad (3)$$

エネルギー E_s で入射した電子が標的で散乱されエネルギー E_p となって出てくる場合を考える。散乱断面積を計算する場合、 t 、 E'_s 、 E'_p は種々の値を取る。これらについて積分したものが、標的を通過後の散乱断面積を与える³⁾

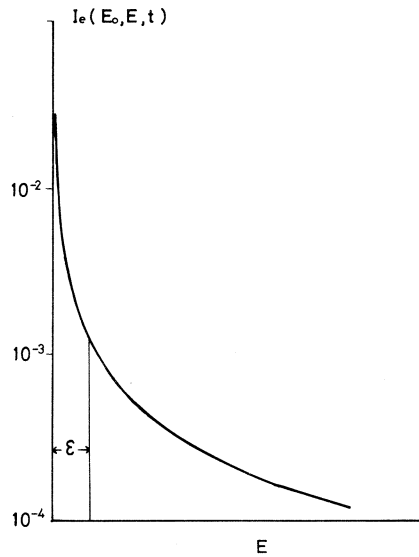
$$\begin{aligned} & \frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE} (E_s, E_p, T) \\ &= \int_0^T \frac{dt}{T} \int_{E_p}^{E_s} dE'_s \int_{E_p}^{E_s} dE'_p I_e(E_s, E'_s, t) \frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE} (E'_s, E'_p)_0 I_e(E'_p, E_p, T-t) \end{aligned} \quad (4)$$

(4)式は外部輻射について近似をしない厳密な式であるから、 Z の大きい場合にはこの式を使って計算すればよい。 I_e と内部輻射を伴った断面積 $\left(\frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE}\right)_0$ が具体的に与えられれば、散乱断面積が計算できる(付録参照)。詳しく調べられた弾性散乱の断面積を(4)の右辺に代入して積分を行えば、測定されるべき弾性散乱の据の断面積が計算できる。

(4)式は積分を含んでいるので、よく使われる式との比較や考察がやりにくい。積分を含まない形に近似することを考える。近似の妥当性は後に考察する。(1)式の主要項である第1項は、標的が薄い場合には良い近似で厚さ t に比例する。従って(4)式の t に関する部分は $t \times (T-t)$ となる。これを t について積分すると $T^2/6$ となる。これは電子が大きい角度で散乱される前後(第1図のAB, BC部)の厚さが $T/\sqrt{6}$ となっているとした場合の計算と同等である。

次に E'_s 、 E'_p の積分を簡単にするために I_e を二つに分けることにする。(第2図)

$$\begin{aligned} I_e\left(E_1, E_2, \frac{T}{\sqrt{6}}\right) &= I_e\left(E_1, E_2 > \right. \\ & \left. E_1 - \varepsilon, \frac{T}{\sqrt{6}}\right)_> + I_e\left(E_1, E_2 < E_1 - \varepsilon, \right. \\ & \left. \frac{T}{\sqrt{6}}\right)_< \end{aligned} \quad (5)$$



第2図 厚さ t だけ標的を通過した後の電子エネルギー分布。

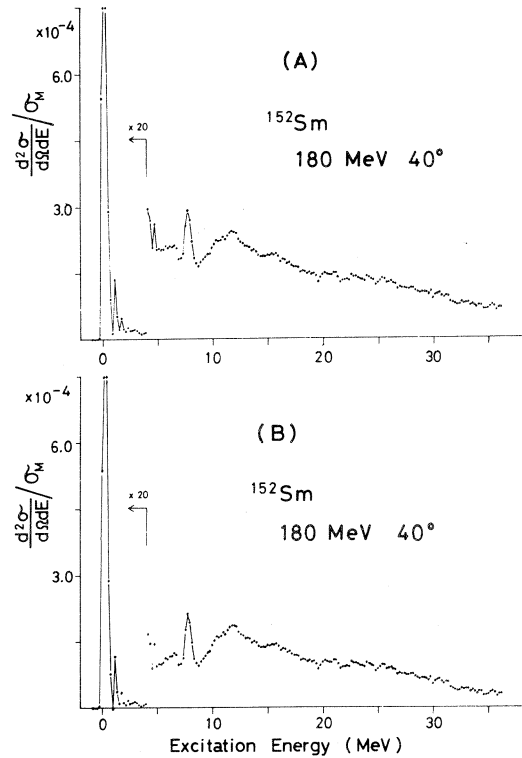
標的が薄ければ第2項は極めて小さい。(4)式に(5)式を代入して(5)式の第2項どうしの積を無視する。 ϵ が大きくない場合には、測定される散乱断面積(4)は次の様に近似される。

$$\begin{aligned}
& \frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE} (E_s, E_p, T) \\
&= \frac{d\sigma}{d\Omega} (E_s, E_s - \omega)_0 \delta(E_s - \omega) K \left(E_s, \epsilon, \frac{T}{\sqrt{6}} \right) K \left(E_p, \epsilon, \frac{T}{\sqrt{6}} \right) K_s(\epsilon) \\
&+ K \left(E_s, \epsilon, \frac{T}{\sqrt{6}} \right) \left[K \left(E_p, \epsilon, \frac{T}{\sqrt{6}} \right) P(E_s - \omega, E_s - E_p - \omega) + I_e \left(E_s - \omega, E_p, \frac{T}{\sqrt{6}} \right)_{<} \right] \\
&\times \frac{d\sigma}{d\Omega} (E_s, E_s - \omega)_0 + K \left(E_p, \epsilon, \frac{T}{\sqrt{6}} \right) \left[K \left(E_s, \epsilon, \frac{T}{\sqrt{6}} \right) P(E_s, E_s - E_p - \omega) + I_e \left(E_s, \right. \right. \\
&\left. \left. E_p + \omega, \frac{T}{\sqrt{6}} \right)_{<} \right] \frac{d\sigma}{d\Omega} (E_p + \omega, E_p)_0 \quad (6)
\end{aligned}$$

$\frac{d\sigma}{d\Omega} (E_s, E_s - \omega)_0$ は励起エネルギー ω のピークの断面積である。 δ はディラックのデルタ関数、 K 、 K_s はそれぞれ外部輻射、内部輻射に対する輻射補正係数である。 $P(E, k)$ はエネルギー E の電子が内部輻射によってエネルギー k の光子を放出する確率である。(6)式は標的の厚さを除けば、笹尾氏の式とよく似ている¹⁾。(6)式の第1項は標的を通過後に測定されるピークの断面積であり、その輻射補正係数が $K(E_s, \epsilon, \frac{T}{\sqrt{6}})K(E_p, \epsilon, \frac{T}{\sqrt{6}}) \times K_s(\epsilon)$ であることを示している。第2項から第5項は輻射による裾の断面積である。(6)式を導びく時の仮定から判るように ϵ が小さい場合は良いが、大きくなると近似が悪くなる。つまり(6)式は弾性散乱付近の裾に対してはかなり良い近似でも、エネルギー損失の大きい所に対しては近似が悪い。 ϵ が大きくなると外部輻射補正係数 K は1に近づく。従ってそこではピークの裾が外部輻射と内部輻射の裾の単純な和になっている。一方 ϵ が小さい領域では K が1よりかなり小さいため裾は両者の和より減少する。これは、ピークに近い所にある裾の部分の電子が、外部輻射、内部輻射、外部輻射と輻射を繰り返すことにより単純な両者の和より減少することを示している。ピーク付近では裾が K によって数十パーセントも減少する。この部分の裾の断面積は相当に大きいので、これが輻射によってエネルギーを失い低エネルギー側に移動するとその断面積は無視できない量となるであろう。(6)の近似式では、従来使ってきた式と同様ピーク付近の裾が減少する項はあるが、低エネルギー側で増加する項が入っていない。

(4)式とその近似式で、輻射補正がどの程度異なるか実際に計算をしてみた。第3図(A)は笹尾氏の式を使用した場合の結果である。第3図(B)は弾性散乱の裾を計算するのに(4)式を

使った場合の結果である。エネルギー損失の確率を与える輻射の式は両者で同じものを用いた(付録参照)。つまり両者の違いは、弾性散乱の裾の計算に後者では厳密な(4)式を使ったが、前者はその近似式を使ったという点にある。二つの輻射補正後のスペクトルを比較すると、(4)式を使った場合裾の引き残しが相当に改善されていることが判る。これは裾の断面積を正しく計算するには厳密な(4)式を使う必要があることを意味している。笹尾氏の式では(6)式と同様に、励起エネルギーが5 MeV以上になると、全体の裾は、内部輻射と外部輻射の裾の単純な和になっている。つまり電子は内部輻射か外部輻射のいずれか一方でしかエネルギーを失わないとしていることになる。しかし実際には両者は独立ではなく、外部輻射・内部輻射・外部輻射と連続して電子はエネルギーを失って裾となる。内部輻射と外部輻射による裾が同じ程度の大きさである場合、両者が独立であるという近似が良くないのは当然であろう。



第3図(A) 笹尾氏の式を使って輻射補正したスペクトル。
(B) 弾性散乱の裾の計算に厳密な(4)式を使って輻射補正したスペクトル。

§ 3. 輻射補正に対する摂動の高次項の影響

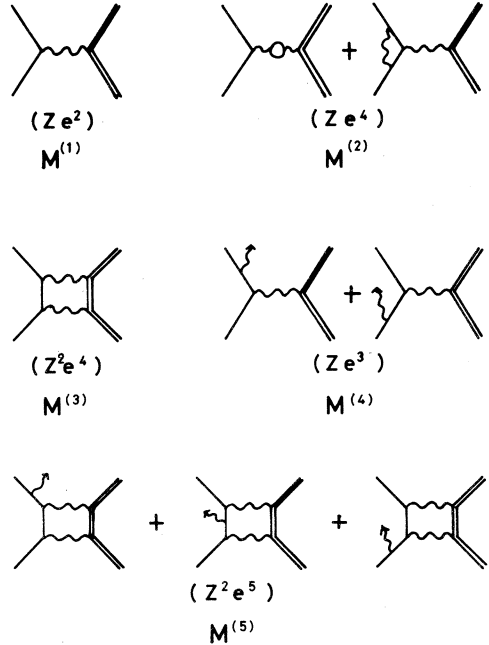
§ 2 で外部輻射とイオン化によるエネルギー損失が裾に及ぼす影響について議論した。次に内部輻射の高次項について考える。電子は原子核及び輻射場と相互作用する。相互作用の強さはそれぞれ $Z\alpha$, α である。原子番号が小さい場合、 α が小さいので摂動の低次の項だけ考えれば充分であるが、 Z が大きくなると摂動展開の収束が悪くなり高次の項がきいてくる。電子と輻射場との相互作用については1次、原子核との相互作用については2次まで考慮した場合の断面積は、 M を散乱振幅とすると次のようになる^{4,10)}。

$$\frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE} \propto |M^{(1)} + M^{(2)} + M^{(3)}|^2 + |M^{(4)} + M^{(5)}|^2 \quad (7)$$

ここで各散乱振幅は第4図に示されている
 ファインマン図形に対応する。相互作用の
 強さを表わす結合定数が括弧内に示してあ
 る。(7)式の第1項はピークの断面積であり、
 第2項がその裾の断面積を与える。我々が
 もとめたい値は第1項に対応する断面積で
 あるが、電子は質量が小さいために簡単に
 制動輻射をしてしまうので、 $M^{(4)}$ 以上の
 摂動の高次項が無視できない。測定される
 ピークが低エネルギー側に裾を引いた非対
 称な形になる最大の原因は、 $M^{(4)}$ 、 $M^{(5)}$ の
 様に散乱に伴って電子が光子を放出してエ
 ネルギーを失うためである。 $M^{(1)}$ 、 $M^{(2)}$ 、
 $M^{(4)}$ による輻射補正係数、つまり電子と輻
 射場との相互作用と原子核との相互作用に
 ついてともに一次の場合の輻射補正係数 δ_0 、

はずでに計算されている⁵⁾。電子と輻射場との相互作用の結合定数は $\alpha^{1/2}$ であるため摂動の高
 次項の収束は速い。一方電子と原子核との相互作用の結合定数は $Z\alpha$ であるため、 Z が大きい
 と摂動展開の収束が悪くなり、摂動の高次項がきいてくる。弾性散乱の形状因子を実際に計算
 して、この収束の様子を見ることにする。形状因子を次の三通りの方法で計算して比較する。
 三通りの方法とは、 $M^{(1)}$ のみを考えた場合の計算(第1次ボルン近似)と、 $M^{(1)}$ と $M^{(2)}$ の干渉
 項も入れた計算(第2次ボルン近似)^{6,7)} 及び部分波展開による計算⁸⁾ である。部分波展開に
 よる弾性散乱の形状因子の計算値は実験と非常に良く合うようになっているので、それとボル
 ン近似による計算値を比較してみれば、摂動の低次の項による計算がどの程度良く実験値、つ
 まり高次項も入っている値と合うかが判る。これによりボルン近似の収束状態が判る。

第5図は¹⁵²Smの弾性散乱の形状因子である。第5図では、断面積をモット断面積で割った
 値を形状因子と定義している。運動量移行 q が小さい所では、第2次ボルン近似の形状因子と
 部分波展開による形状因子はかなり良く一致する。しかし第1次ボルン近似で計算した形状因



第4図 輻射補正に含めた項に対応するファ
 インマン図形・括弧内は結合定数で
 ある。

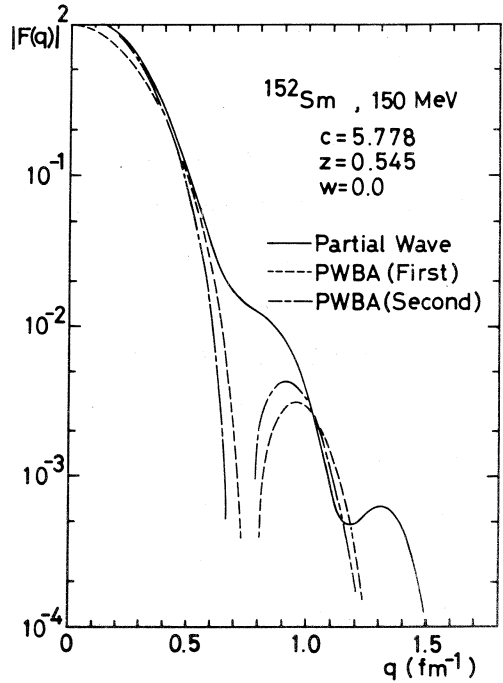
子が零になる付近では、第2次ボルン近似の形状因子（8式で $\Delta E \rightarrow \infty$ とした断面積をモット断面積で割った値）も部分波展開で計算した形状因子との一致が悪くなる。このことは $|M^{(3)}|^2$ の項も含めた計算（第3次ボルン近似）をしなければならないことを示している。

散乱に伴って電子が光子を放出し裾を引く場合には、摂動展開の収束状況はどうであろうか。 $M^{(4)}$ の電子が2個の光子を放出する場合を $M^{(6)}$ とする。 Z が大きくなってくると、 $M^{(6)}$ のような多重光子放出よりも、 $M^{(5)}$ のように電子が原子核と多数回相互作用をする効果のほうが大きくなってくる。これは $M^{(6)}$ の強さが $Z\alpha^2$ であるのに対し、

$M^{(5)}$ の強さは $Z\alpha^2 \cdot Z\alpha^{1/2}$ であるためである。以下、具体的な輻射による裾の断面積の計算では、とりあえず $M^{(4)}$ と $M^{(5)}$ に限ることとする。 $M^{(4)}$ による裾の断面積は詳しい計算がなされているが^{2,5)}、原子核と2回相互作用する $M^{(5)}$ まで入れた裾の断面積の計算はまだ無い。しかし $M^{(5)}$ まで入れた輻射補正係数の計算はすでになされている⁶⁾ ので、 $M^{(5)}$ まで入れた裾の断面積の概略は判る。ピーキング近似では、電子が散乱される前に光子を放出するか散乱後に放出するかで原子核の形状因子が異なるが、その違いを無視すれば、裾の断面積は輻射補正係数 δ (ΔE) を含んだ断面積を ΔE で微分することにより得られる。従って輻射補正係数を含んだ断面積を ΔE で微分した式は、電子が放出する光子のエネルギーが小さい場合、つまりピーク付近での裾の断面積の良い近似式を与える。 $M^{(5)}$ まで含めた第2次ボルン近似の断面積は次のような式である⁶⁾。

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_2 = \left[\frac{Ze^2}{2E} \frac{1}{\sin^2 \frac{\theta}{2}} \right]^2 F_1(q) \left[F_1(q) \cos^2 \frac{\theta}{2} (1 - \delta_1(\Delta E) + B_2 F_2(q) (1 - \delta_2 \times (\Delta E))) \right] \quad (8)$$

$$B_2 = \pi Z \alpha \beta \sin \frac{\theta}{2} \quad 1 - \sin \frac{\theta}{2}$$



第5図 ^{152}Sm の弾性散乱の断面積をモット断面積で割った値。

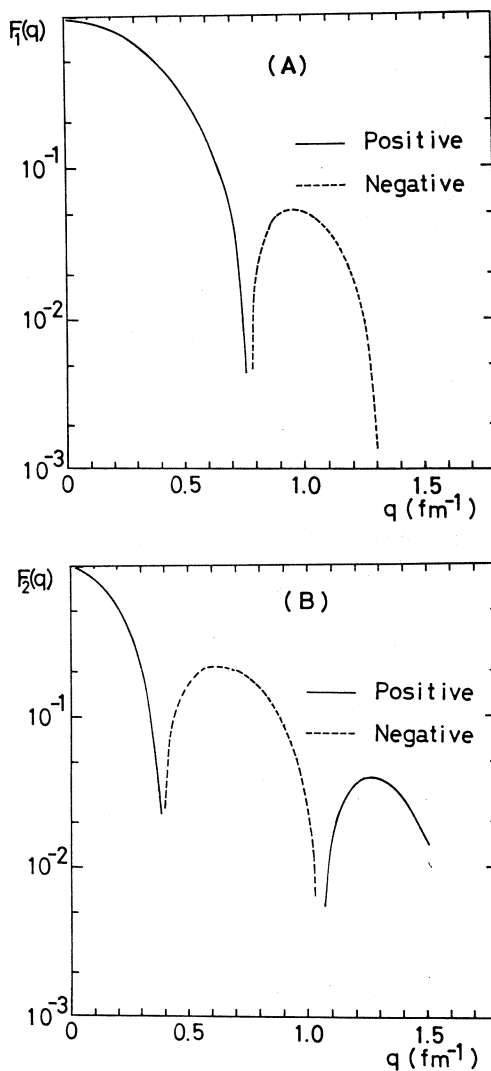
F_1 , δ_1 , F_2 , δ_2 はそれぞれ第1次及び第2次ボルン近似の形状因子と輻射補正係数である。

(8)式を ΔE で微分すると次のような裾の断面積を与える式が得られる。

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE}\right)_2^{\text{tail}} = \left[\frac{Ze^2}{2E} \frac{\cos\frac{\theta}{2}}{\sin^2\frac{\theta}{2}}\right]^2 |F_1|^2 \left[1 + \frac{B_2 F_2}{F_1 \cos^2\frac{\theta}{2}}\right] \cdot \frac{2\alpha}{\pi \Delta E} \left[\ln\left(\frac{q}{mc}\right)^2 - \frac{1}{1 - \frac{B_2 F_2}{F_1 \cos^2\frac{\theta}{2}}}\right] \quad (9)$$

$F_1(q)$, $F_2(q)$ の運動量移行 q の依存性は第6図のようになる。 $F_1(q)$, $F_2(q)$ は絶対値の二乗した値ではないから負にもなる。

第1次ボルン近似による裾の断面積を与える式に比べて、(9)式は形状因子 $|F_1(q)|^2$ に $1 + B_2 F_2 / F_1 \cos^2\frac{\theta}{2}$ が掛っているところが異なっている。この因子に $|F_1(q)|^2$ とモット断面積を掛けたものが、第2次ボルン近似の断面積であるから、結局電子と原子核が2回相互作用する効果は1光子放出の場合、第1次ボルン近似の形状因子 $F_1(q)$ を、第2次ボルン近似の形状因子 $F_2(q)$ まで含めたもので置き換えれば良いことになる。(9)式の最後の部分も第1次ボルン近似の断面積と異っているが、第6図の F_1 , F_2 を代入して計算すると $F_2=0$ とした場合と比較してその差は数パーセントと小さいので無視できる。(9)式のようにまとめることが出来たのは、1光子放出の場合第1次、第2次ボルン近似がともに $(2\alpha/\pi \Delta E) \ln(q/mc)^2$ という共通な輻射補正による裾の関数を含んでいるためである。一般に1光子放出の場合、高次ボルン近似の項も



第6図 ^{152}Sm の形状因子、実線は正の値、破線は負の値である。

(A) 第1次ボルン近似の形状因子、
(B) 第2次ボルン近似の形状因子。

同じ項を含む⁹⁾。従って本来1次ボルン近似の形状因子であるものを、実験に合う部分波展開によって計算した形状因子で置き換えることにより、電子と原子核の高次の相互作用の効果を近似的に取り込むことができる¹⁰⁾。一方軟光子の放出の場合は、輻射補正係数を対数化することにより、電子と輻射場の高次の相互作用を取り込むことが出来る。

以上の方法で高次項を取り入れることが可能なのは、エネルギーの低い軟光子放出の場合に限られる。しかし、エネルギーの高い硬光子放出の場合の高次項を含めた計算がまだなされていないので、以上の硬光子放出の具体的計算には軟光子の場合と同じ方法を適用した。

§ 4. まとめ

(4)式の近似式では外部輻射による効果が正しく入っていないため、特にピークから離れた所で輻射による裾の近似が悪くなる。原子番号 Z が大きくなると外部輻射による裾の断面積が大きくなり、近似の悪さが無視できなくなってくるため厳密な(4)式を使う必要がある。

軟光子放出の場合には、電子と輻射場及び電子と原子核との相互作用の高次項は近似的に取り入れることが出来る。しかし硬光子放出の高次項を取り入れる場合に軟光子の場合に使用した方法でそれがどの程度うまくいっているのか不明である。

付録 輻射補正に使用する式

1. 外部輻射とイオン化

外部輻射によってエネルギーを失った後の電子のエネルギー分布は

$$I_{\text{ER}} \left(E_1, E_2, \frac{T}{X_0} \right) = \frac{T/X_0}{E_1 - E_2} \left[1 - \eta \frac{E_2}{E_1} + \left(\frac{E_2}{E_1} \right)^2 \right] \exp \left[-\delta_B (E_1 - E_2) \right].$$

で与えられる。ここで

$$\eta = \frac{2}{3} - \frac{1}{9} \left[\ln (183 Z^{-1/3}) \right]^{-1},$$

$$\delta_B (\Delta E) = t \left[- \left(\frac{3}{2} - \eta \right) + (2 - \eta) \ln \frac{E_1}{\Delta E} + (2 - \eta) \frac{\Delta E}{E_0} - \frac{1}{2} \left(\frac{\Delta E}{E_1} \right)^2 \right]$$

X_0 ; 輻射長

イオン化によってエネルギーを失った後の電子のエネルギー分布

$$I_{\text{ION}} (E_1, E_2, T) = \frac{1}{\xi} \Phi (\lambda)$$

$$\xi = 0.154 \frac{Z}{A} T \quad [\text{MeV}]$$

$$\lambda = \frac{E_1 - E_2 - \varepsilon_0}{\xi}$$

$$\varepsilon_0 = \xi \left[\ln \xi - \ln \left(\frac{(1 - \beta^2) I^2}{2m_e \beta^2 c^2} \right) - \beta^2 + 0.423 \right]$$

イオン化ポテンシャル

$$I = 13.5 Z \quad [\text{eV}]$$

$$\Phi(\lambda) = \begin{cases} -0.074 + 0.1646 \lambda^{-1} + 0.1457 \lambda^{-2} & (1 < \lambda < 14) \\ \lambda^{-2} & (\lambda > 14) \end{cases}$$

外部輻射補正係数

$$K(E, \varepsilon, t) = K_{\text{ER}}(E, \varepsilon, t) + K_{\text{ION}}(E, \varepsilon, t)$$

$$K_{\text{ER}}(E, \varepsilon, t) = e^{-\delta_{\text{B}}(\varepsilon)}$$

$$K_{\text{ION}}(E, \varepsilon, t) = \begin{cases} 0.6081 - 0.007\lambda + 0.1646 \ln \lambda - 0.1457\lambda^{-1} & (1 < \lambda < 14) \\ 1 - \lambda^{-1} & (\lambda > 14) \end{cases}$$

2. 内部輻射

内部輻射によって電子がエネルギーを失う確率

$$P(E, k) = \frac{\alpha}{\pi k} \left[\left(1 + \left(\frac{E-k}{E} \right)^2 \right) \ln \left(\frac{q}{m_e} \right) - \frac{E-k}{E} \right]$$

内部輻射補正係数

$$K_s(\varepsilon) = e^{-\delta_s(\varepsilon)}$$

$$\delta_s(\varepsilon) = \frac{2\alpha}{\pi} \left\{ \left[\ln \left(\frac{E}{\varepsilon} \right) - \frac{13}{12} \right] \left[\ln \left(\frac{q}{m_e} \right)^2 - 1 \right] + \frac{17}{36} + \frac{1}{2} \left[\frac{1}{6} \pi^2 - L_2 \left(\cos^2 \frac{\theta}{2} \right) \right] \right\}$$

$$L_2(x) = - \int_0^x \frac{\ln(1-t)}{t} dt$$

参 考 文 献

- 1) M. Sasao and Y. Torizuka : Phys. Rev. **15C** (1977) 217.
- 2) W. Heitler : *The Quantum Theory of Radiation* (The Clarendon Press, Oxford 1954).
- 3) L. W. Mo and Y. S. Thai : Rev. Mod. Phys. **41** (1969) 205.
- 4) ランダウ・リフシッツ : 相対論的量子力学 ;

A. I. Akhiezer and V. B. Berestetskiĭ : *Quantum Electrodynamics*
(Interscience Publishers , 1965) .

- 5) J. Schwinger : Phys. Rev. **76** (1949) 790 ; J. W. Motz , H. Olsen and H. W. Koch : Rev. Mod. Phys. **36** (1964) 881 .
- 6) R. G. Newton : Phys. Rev. **97** (1955) 1162 ; **98** (1955) 1514 .
M. H. Mittelman : Phys. Rev. **93** (1954) 453 .
- 7) G. Bisiacchi and G. Furlan : Phys. Lett. **3** (1963) 186 .
P. Budini and G. Furlan : Il Nuovo Cimento **13** (1959) 790 .
W. A. McKinley , Jr. : Phys. Rev. **74** (1948) 1759 .
- 8) D. R. Yennie *et al.* : Phys. Rev. **95** (1954) 500 .
- 9) H. Suura : Phys. Rev. **99** (1955) 1020 .
- 10) L. C. Maximon : Rev. Mod. Phys. **41** (1969) 193 .

中重核及び重核での(e, α)反応(II)

核理研

広岡 恵・浦野隆夫・菅原真澄

前回の報告で ^{98}Mo , ^{155}Gd , ^{181}Ta , ^{196}Pt (e, α)反応における α 粒子エネルギースペクトル, 及び ^{196}Pt (e, α)反応の角分布の測定結果について述べた¹⁾。その後, 解析を更に進めたのでそれについて報告する。

§ 1. エネルギースペクトルの測定結果とその系統性

第1図に $E_e = 60\text{MeV}$, 第2図に $E_e = 40\text{MeV}$ で測定した各標的からの α 粒子スペクトルを示す。いずれも α 粒子を測定した角度は 90° である。バックグラウンドの差し引きは空の標的を照射し, 得られた計数を各標的の計数から直接差し引いて行った。又, 前回示した ^{155}Gd (e, α)反応の α 粒子スペクトルは $E_\alpha \sim 10\text{MeV}$ 以下の低エネルギー側で大きな断面積を持っているが, クーロン障壁を考えるとこの α 粒子が ^{155}Gd から放出されたものとは考えにくい。これは実験に使用したGdの標的が酸化していた為と考えられる。この酸素の寄与は標的に Ta_2O_5 を用い ^{16}O (e, α)反応の α 粒子スペクトルを測定し差し引くことにより除去した。

得られたエネルギースペクトルからその系統性を調べた。この際, ピークエネルギー, ピークの断面積, ピークの幅は実験値に合うように滑らかな線を引きそれから導出した。

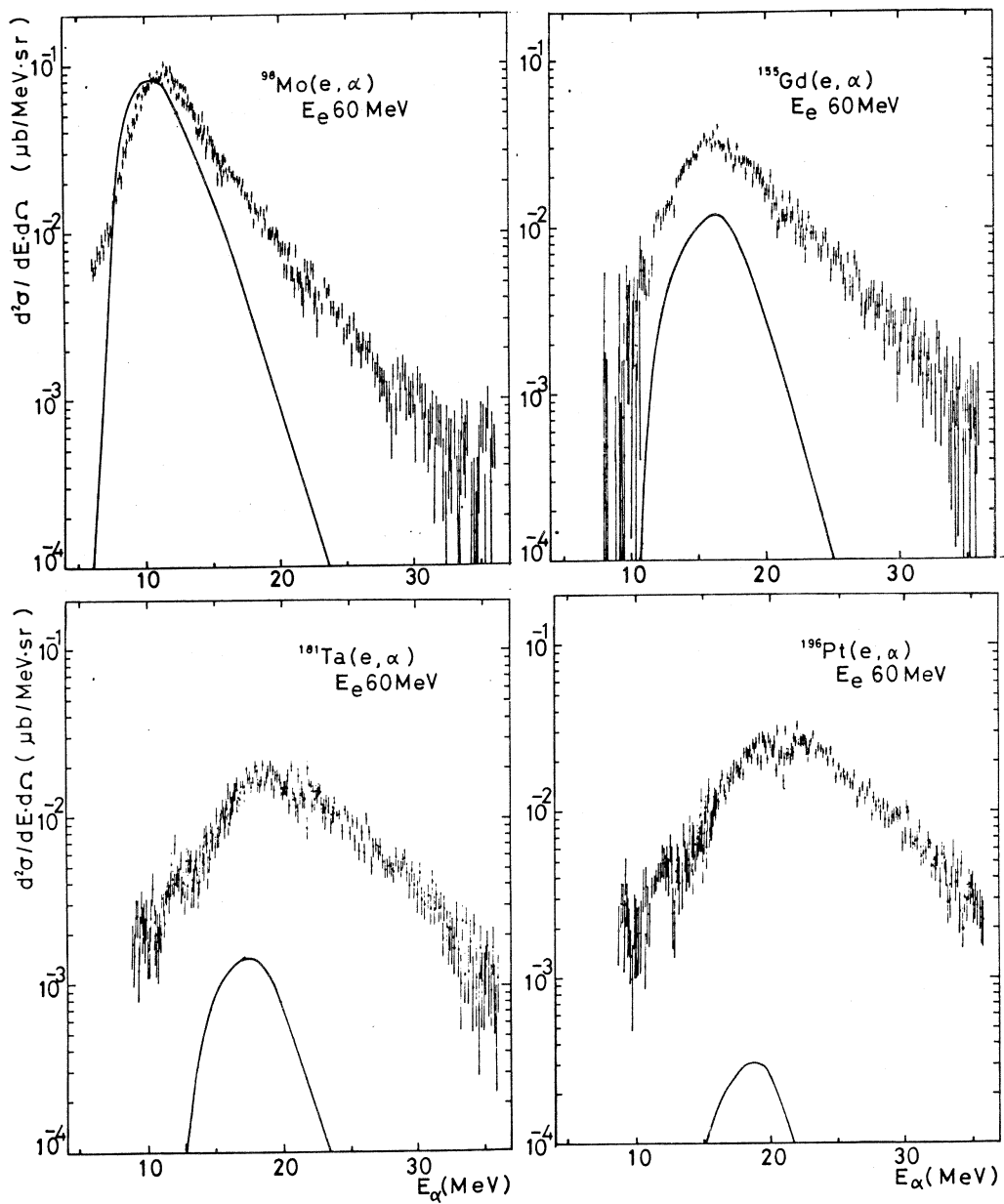
原子番号とそのピークエネルギーを第3図に示す。原子番号が大きくなるにつれピーク的位置がエネルギーの高い方へ移動してゆくことがわかる。 α 粒子が核から放出される際クーロン障壁より低いエネルギーの α 粒子の放出は押さえられる筈である。故にピークエネルギーはクーロン障壁に強く依存することが考えられる。 α 粒子の感じるポテンシャルはクーロンポテンシャルと核ポテンシャルである。クーロンポテンシャルは

$$V_{\text{coul}}(r) = \frac{e^2 Z' Z}{r}, \quad (1)$$

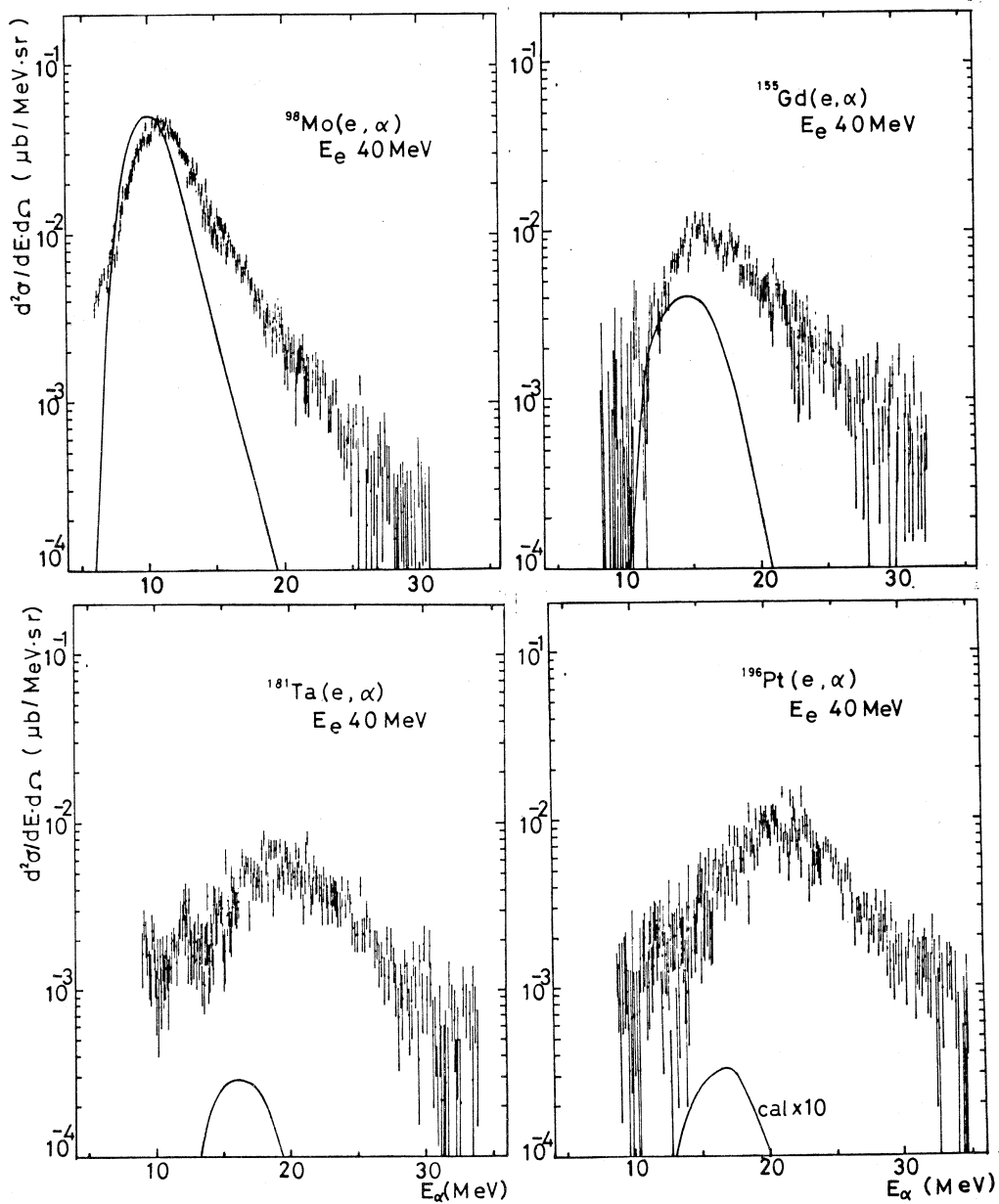
とした。核ポテンシャルとしてウッズ-サクソン型の実ポテンシャル

$$V_{\text{R}}(r) = \frac{-V}{1 + \exp\left\{\frac{(r-R)}{a}\right\}}, \quad (2)$$

を用いる。 $V_{\text{R}}(r) = V_{\text{coul}}(r) + V_{\text{R}}(r)$ の最大値 V_{max} が α 粒子に対するクーロン障壁であ



第1図 α 粒子エネルギースペクトル。電子線のエネルギーは60 MeV。実線は統計モデルによる計算結果。



第2図 α 粒子エネルギースペクトル。電子線のエネルギーは40 MeV。実線は統計モデルによる計算結果。

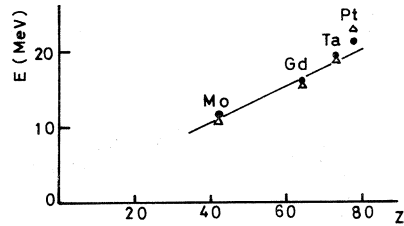
る。Mo, Gd, Ta, Pt の V_{\max} を計算しその V_{\max} を結んだ線を第3図に示す。簡単な計算ながらよい一致を示している。又重い核ではピークの位置がクーロン障壁より高くなる傾向が見られる。

ピークの位置での断面積を第4図に示す。質量数が大きくなるにつれ断面積が小さくなっていく傾向が見られるが Pt はそれより軽い Ta より断面積は大きい。

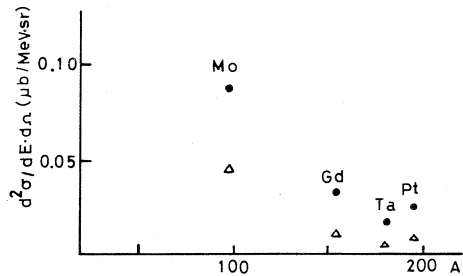
第5図にピークの半値幅を示した。質量数が大きくなるにつれピークの幅が広がっていくことがわかる。

第1図, 第2図より α 粒子のエネルギーが高い領域ではスペクトルが指数関数的に減少していることがわかる。第6図に電子線エネルギー 60 MeV で照射した場合の各標的からの α 粒子のスペクトルをまとめて一つの図に示した。高エネルギーの α 粒子の断面積は核が重くなるにつれて大きくなる。これはピークの断面積が小さくなっていくのとまったく逆の傾向である。

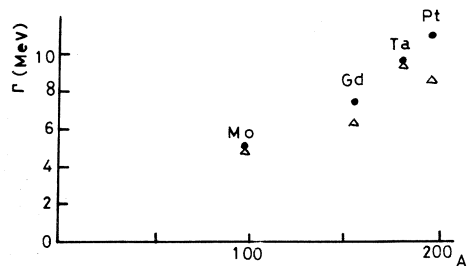
ピークの断面積において Pt が系統性から外れるのは Pt が特異な核なのか, あるいは核が重くなると系統性の質量依存性が変化するのは, この四種の核を調べただけでははっきりしたことは述べられない。他の重い核でスペクトルの系統性を調べる必要がある。



第3図 α 粒子エネルギースペクトルのピークエネルギー ($\bullet E_e = 60 \text{ MeV}$, $\triangle E_e = 40 \text{ MeV}$)。実線はクーロン障壁の計算値。



第4図 α 粒子エネルギースペクトルのピークの微分断面積 ($\bullet E_e = 60 \text{ MeV}$, $\triangle E_e = 40 \text{ MeV}$)。



第5図 α 粒子エネルギースペクトルのピークの幅 ($\bullet E_e = 60 \text{ MeV}$, $\triangle E_e = 40 \text{ MeV}$)。

§ 2. 統計理論による計算値との比較

複合核模型による (e, α) 反応スペクトルをハウザー・フェシュバッハの式を用いて計算した。

エネルギー E の単色光子を吸収して、複合核状態から放出されるエネルギー ϵ の α 粒子スペクトルは、

$$\frac{d\sigma_{\alpha}(E, \epsilon)}{d\epsilon} = \sigma_n(E) \frac{T_{\alpha}(\epsilon)}{\sum_n T_n}, \quad (3)$$

と書ける。ここで

$T_{\alpha}(\epsilon)$: エネルギー ϵ の α 粒子の透過係数

$\sum_n T_n$: 中性子放出に関するすべての透過係数の和

$\sigma_n(E)$: 中性子の放出断面積

エネルギー E_e の電子線を照射した時の α

粒子スペクトルは仮想光子スペクトル K

(E, E_e) を用いて

$$\frac{d\sigma_{\alpha}(E_e, \epsilon)}{d\epsilon} = \int \frac{d\sigma_{\alpha}(E, \epsilon)}{d\epsilon} K(E, E_e) dE, \quad (4)$$

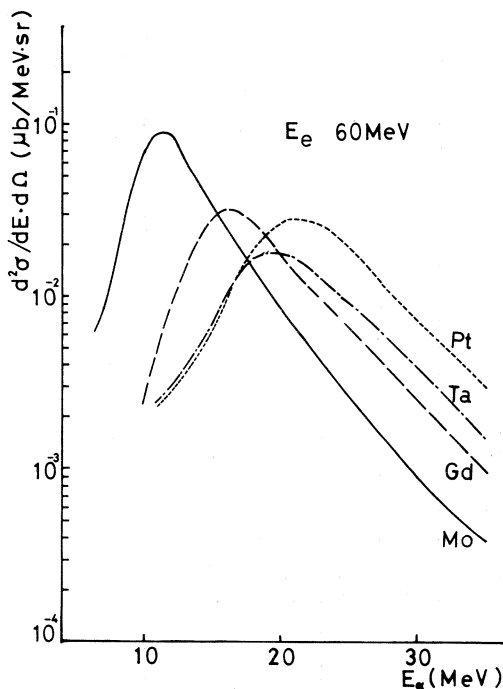
と書ける。透過係数はウッズ・サクソン型の光学ポテンシャルを用いたシュレディンガーの方程式を解いて求めた。用いた光学ポテンシャルのパラメータを第1表に示す。仮想光子スペクトルは Nascimento^ら³⁾による DWBA の近似式を用い $E \approx 1$ を仮定した。

約 10~30 MeV の光子は主に巨大共鳴を通して吸収される。一般にこのエネルギー領域の (r, n) 反応の断面積は次の様なローレンツ曲線を用いて実験値を合わせることができる。

$$\sigma_L(E) = \sum_{i=1}^2 \frac{\sigma_{mi}}{[1 + \{(E^2 - E_{mi}^2)^2 / E^2 \Gamma_i^2\}]} \quad (5)$$

$\sigma_L(E)$ の計算に用いた E_{mi} , Γ_i , σ_{mi} は単色 r 線による (r, n) 反応断面積の実験結果をローレンツ曲線に合わせた時に得られた値である。その値を第2表に示す。

光子エネルギーが約 30 MeV 以上の (r, n) 反応の放出断面積はローレンツ曲線だけでは表わすことはできない。そこで巨大共鳴以上から π 閾値までの光子吸収の機構として Levinger



第6図 α 粒子エネルギースペクトル。電子線のエネルギーは 60 MeV。実験値に合うように滑らかな線を引いた。

第2表 中性子放出断面積を表わすローレンツ曲線の
パラメータ。⁴⁾

	E_{m1} (MeV)	σ_{m1} (mb)	Γ_1 (MeV)	E_{m2} (MeV)	σ_{m2} (mb)	Γ_2 (MeV)
⁹⁸ Mo	15.8	189	5.94	—	—	—
¹⁵⁵ Gd	12.2	215	2.77	16.0	233	5.28
¹⁸¹ Ta	12.3	259	2.43	15.2	341	4.48
¹⁹⁶ Pt	13.72	512	4.99	—	—	—

により提唱された準重陽子模型を考える。入射光子の波長が核子-核子間距離と同じ位になると中性子-陽子対(準重陽子)による吸収がおり、その断面積は自由重陽子の光分解断面積に比例する⁵⁾。

$$\sigma_{qd} = L \frac{NZ}{A} \sigma_d(E) q(E), \quad (6)$$

L : Levinger のパラメータ,

$\sigma_d(E)$: 自由重陽子の光分解断面積,

$q(E)$: 減衰因子。参考文献 6 を基に次の関数形を仮定した。

$$q(E) = \exp \{ -30 / (E - E_{np}) \} \quad (E > E_{np})$$

$$= 0 \quad (E < E_{np}) . \quad (7)$$

E_{np} は、(r, np) 反応の閾値で、この閾値以下では準重陽子による光吸収断面積は零になる。

Pb の光吸収断面積の測定結果により $L = 4.6$ を用いる⁷⁾。(3)式の $\sigma_n(E)$ として $\sigma_L + \sigma_{qd}$ を用いて計算した。Pb の $\sigma_n(E)$ の計算値は Pb の光吸収断面積の実験結果をほぼ再現できた。

第1図、第2図に統計模型による計算結果を示す。電子線エネルギー 60 MeV, 40 MeV の両方とも同様の傾向を示している。⁹⁸Mo ではピークの位置、ピークの断面積とも実験値をかなり再現できるが、高エネルギー側で計算値は実験値に比べて急速に落ちてゆき、高エネルギーの α 粒子は統計模型では説明できない。核が重くなるにつれ計算値は実験値に比べ急激に小さくなっていく。¹⁸¹Ta, ¹⁹⁶Pt についてはピークの付近で計算値は実験値の約 $1/10 \sim 1/100$ しかなく、形状についても⁹⁸Mo 同様高エネルギー側で急速に落ちてしまい実験結果を再現できない。¹⁵⁵Gd でも高エネルギー側の急激な減少は他の核種と同様である。この様にどの核種においても高エネルギーの α 粒子は統計模型では説明できない。

§ 3. 前平衡励起子模型の計算値との比較

J. R. Wu と C. C. Chang の定式化⁸⁾を基に前平衡励起子模型による計算を行い、統計模型では再現できなかった高エネルギー α 粒子の再現を試みた。

前平衡励起子模型は最初 Griffin により提唱された⁹⁾。このモデルではまず入射体と標的核の相互作用により、最初の粒子-空孔対が励起される。この状態から2体の残留相互作用により、より複雑な粒子-空孔状態へ進み統計平衡状態に達する。そして平衡化途中の各粒子-空孔状態から統計的なある確率を持って粒子放出がなされると考える。

p 粒子- h 空孔状態 ((p, h) 状態) からチャンネルエネルギー ε をもつ粒子 β が単位時間当たり放出される確率は

$$\begin{aligned} W_{\beta}(p, h, E, \varepsilon) d\varepsilon &= \frac{1}{\hbar} \Gamma_{\beta}(p, h, E, \varepsilon) \\ &= \frac{2 S_{\beta} + 1}{\pi^2 \hbar^3} \mu_{\beta} \sigma_{\beta}(\varepsilon) \varepsilon d\varepsilon \frac{\omega(p - p_{\beta}, h, U)}{\omega(p, h, E)} \frac{\omega(p_{\beta}, 0, E - U)}{g_{\beta}} \\ &\quad \times R_{\beta}(p) \tau_{\beta}, \end{aligned} \quad (8)$$

である。ここで

S_{β} : 放出粒子 β のスピン,

μ_{β} : 放出粒子 β の換算質量,

$\sigma_{\beta}(E)$: 放出粒子 β の逆反応断面積, 計算の際は透過係数を用いて表わす。

p_{β} : 放出粒子の核子数,

$R_{\beta}(p)$: p 個の励起粒子からランダムに選ばれた p_{β} 個の核子が放出粒子を形成する陽子, 中性子の組合せを作る確率,

τ_{β} : 粒子 β 放出を行うに足る運動量を持つような, 組み合わせをつくる確率, 核子については $\tau_n = \tau_p = 1$,

$\omega(p, h, E)$: (p, h) 状態の状態密度,

$$\omega(p, h, E) = \frac{g(gE - A_{ph})^{p+h-1}}{p! h! (p+h-1)!}, \quad (9)$$

$$A_{ph} = \frac{1}{4} (p^2 + h^2 + p - 3h),$$

g : 単一粒子の状態密度。

(p, h) 状態から粒子を1個, 空孔を1個増やす ($\Delta p = \Delta h = +1$) 転移率 $\lambda_+(p, h, E)$, それぞれを1個ずつ減らす ($\Delta p = \Delta h = -1$) 転移率 $\lambda_-(p, h, E)$ は次の様に表せる。

$$\begin{aligned}\lambda_+ &= \frac{\Gamma_+(p, h, E)}{\hbar} \\ &= \frac{\pi}{\hbar} |M|^2 \frac{g}{(p+h+1)} (gE - C_{p+1, h+1})^2, \end{aligned} \quad (10)$$

$$\begin{aligned}\lambda_- &= \frac{\Gamma_-(p, h, E)}{\hbar} \\ &= \frac{\pi}{\hbar} |M|^2 g p h (p+h-2), \end{aligned} \quad (11)$$

$$C_{ph} = \frac{1}{2} (p^2 + h^2),$$

ここで

$|M|^2$: 平均化された遷移行列 ($=KA^{-3}E^{-1}$),

(p, h) 状態からの単位時間当りの全粒子放出確率は放出粒子についての和をとればよい。

$$\begin{aligned}A_c(p, h, E) &= \frac{\Gamma_c(p, h, E)}{\hbar}, \\ &= \sum_{\beta} \int W_{\beta}(p, h, E, \epsilon) d\epsilon, \end{aligned} \quad (12)$$

(p, h) 状態の全幅は

$$\Gamma(p, h, E) = \Gamma_+(p, h, E) + \Gamma_-(p, h, E) + \Gamma_c(p, h, E), \quad (13)$$

である。チャンネルエネルギー ϵ を持つ粒子 β の前平衡放出の確率は

$$\begin{aligned}I_{\beta}^{\text{PEQ}}(E, \epsilon) d\epsilon &= \sum_{\substack{p=p_0 \\ \Delta p=+1}}^{\bar{p}} \left[\frac{\Gamma_{\beta}(p, h, E, \epsilon) d\epsilon}{\Gamma(p, h, E)} \right] \left[\prod_{\substack{p'=p_0 \\ \Delta p=1}}^{p-1} \frac{\Gamma_+(p', h', E)}{\Gamma(p', h', E)} \right] \left[1 + \frac{\Gamma_+(p, h, E)}{\Gamma(p, h, E)} \right] \\ &\quad \times \left[\frac{\Gamma_-(p+1, h+1, E)}{\Gamma(p+1, h+1, E)} \right] \end{aligned} \quad (14)$$

となる。これより前平衡放出のフラクションは

$$F^{\text{PEQ}}(E) = \sum_{\nu} \int I_{\nu}^{\text{PEQ}}(E, \epsilon) d\epsilon, \quad (15)$$

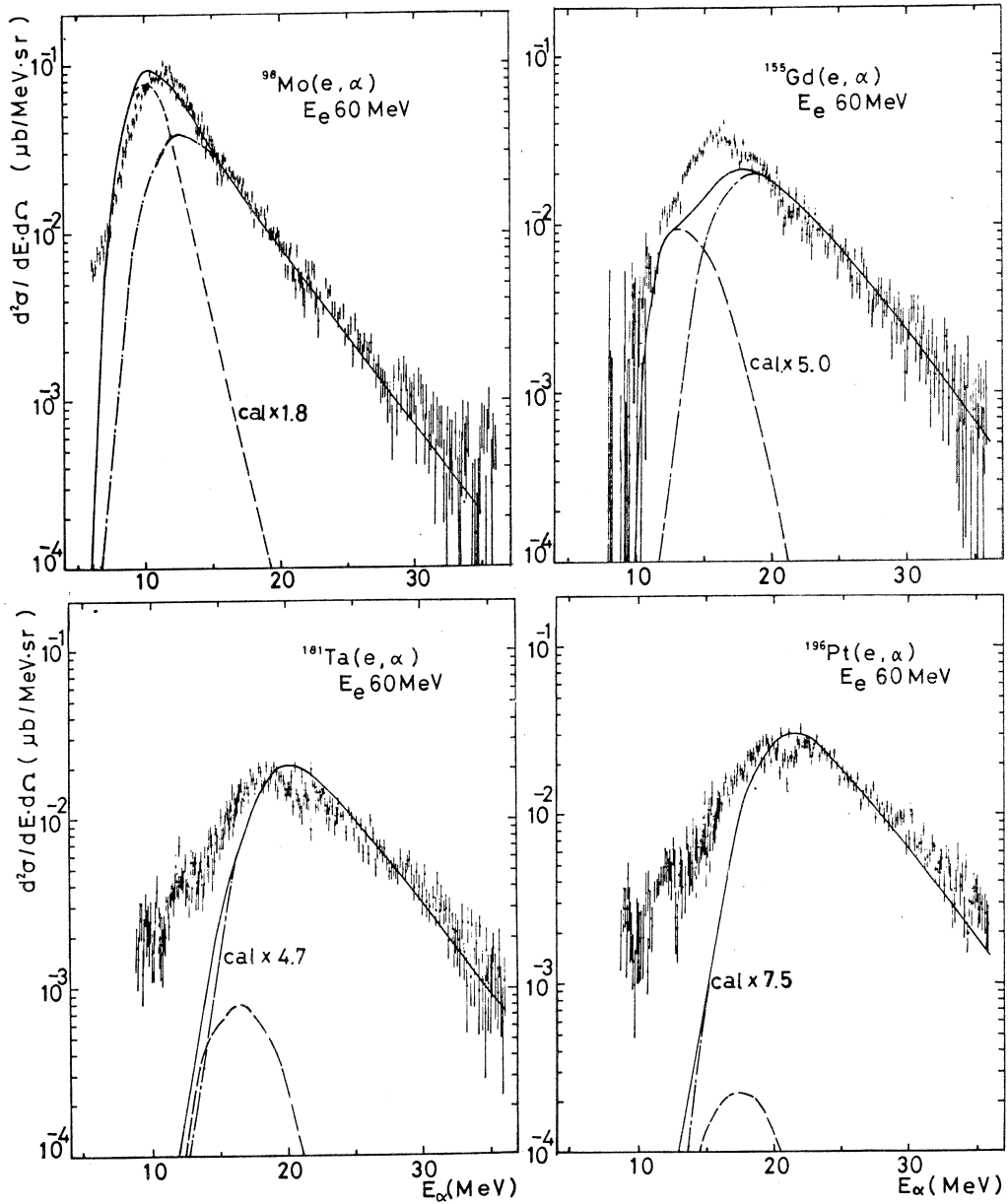
となる。

電子線エネルギー E_e の時の粒子 β の前平衡スペクトルは次のようになる。

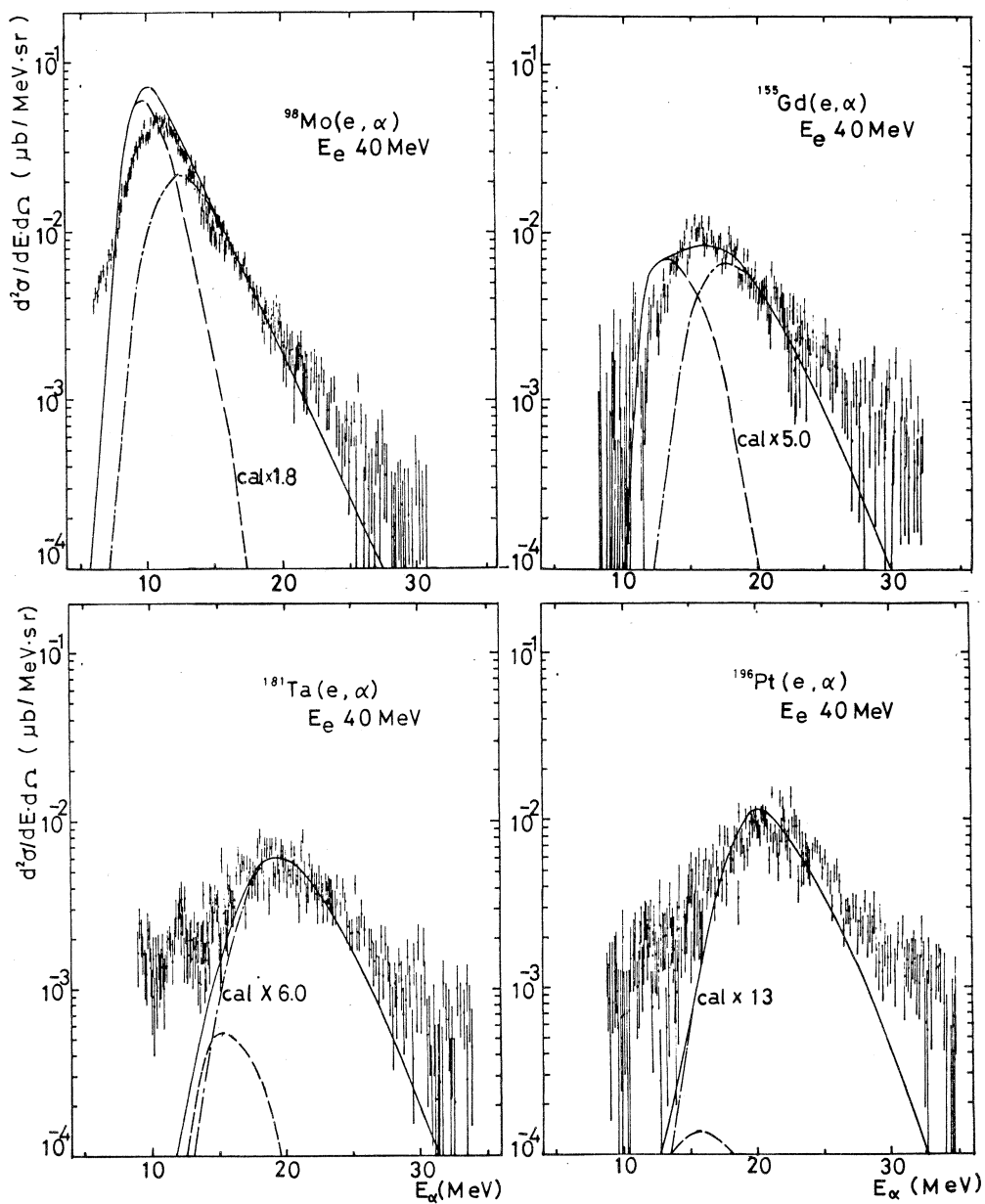
$$\frac{d\sigma^{\text{PEQ}}(E_e, \epsilon)}{d\epsilon} = \int \sigma_a(E) I_{\beta}^{\text{PEQ}}(E, \epsilon) K(E, E_e) dE. \quad (16)$$

平衡スペクトルは式(3)を用いて

$$\frac{d\sigma^{\text{EQ}}(E_e, \epsilon)}{d\epsilon} = \int \sigma_a(E) \{ 1 - F^{\text{PEQ}}(E) \} \frac{d\sigma_a(E, \epsilon)}{d\epsilon} K(E, E_e) dE, \quad (17)$$



第7図 $E_e = 60 \text{ MeV}$ での α 粒子エネルギースペクトルの実験結果と前平衡過程を含めた計算結果 (---- 前平衡, - - - 平衡, — 前平衡 + 平衡)



第8図 $E_e = 40 \text{ MeV}$ での α 粒子エネルギースペクトルの実験結果と前平衡過程を含めた計算結果 (---- 前平衡, --- 平衡, — 前平衡+平衡)

となる。

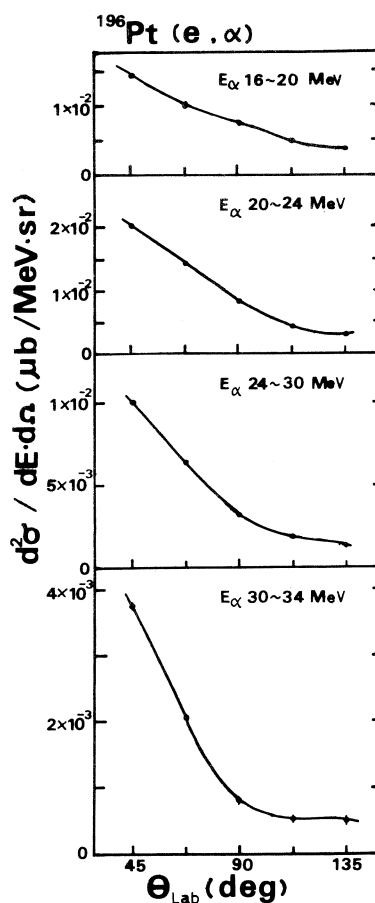
光吸収断面積 σ_a は統計模型の計算の際に用いた中性子放出断面積 σ_n を用いた。最初の粒子-空孔状態は、吸収断面積として σ_L を用いる時は1粒子-1空孔状態、 σ_{qd} を用いるときは2粒子-2空孔状態とした。粒子-空孔が増減する転移率(12), (13)に含まれている遷移行列の K の値は100を用いた。又、 α 粒子放出は4粒子-4空孔状態から始まるとし、 t , ${}^3\text{He}$ の放出は無視している。(8)式の r_p は Wu らによって行われた (p, α) 反応の解析で得られた値を用いて計算した¹⁰⁾。 ${}^{98}\text{Mo}$, ${}^{155}\text{Gd}$, ${}^{181}\text{Ta}$, ${}^{196}\text{Pt}$ の r_p の値はそれぞれ 6.7×10^{-4} , 3.8×10^{-4} , 2.5×10^{-4} , 2.4×10^{-4} である。計算結果はすべて $1/4\pi$ 倍して微分断面積と比較した。

第7図に $E_e = 60 \text{ MeV}$ の、第8図に $E_e = 40 \text{ MeV}$ の実験で得られたスペクトルと計算結果を示す。

${}^{98}\text{Mo}$ においては全体にわたってスペクトルを再現できる。 ${}^{155}\text{Gd}$, ${}^{181}\text{Ta}$, ${}^{196}\text{Pt}$ ではスペクトルの高エネルギー側の形状をうまく再現できる。どの核種においても、統計模型では再現できなかった形状がうまく再現できた。しかし、高エネルギー側の α 粒子の微分断面積が核が重くなるにつれ大きくなるという系統性についてはほとんど説明できないし、 Gd , Ta , Pt でのスペクトルの絶対値が再現できない。 $E2$ の仮想光子を用いて計算すれば大きな絶対値を得るが、励起モードを $E1$ として計算したことが絶対値を再現できなかった原因であるかどうかははっきりわからない。吸収機構については更に詳しく調べる必要がある。しかし前平衡過程を考えることによりスペクトルのほぼ全体の形、特に統計模型では再現できなかった高エネルギーの α 粒子を再現出来たと言える。

§ 4. ${}^{196}\text{Pt}(e, \alpha)$ 反応における α 粒子の角分布

${}^{196}\text{Pt}(e, \alpha)$ 反応のスペクトルは統計理論の計



第9図 $E_e = 40 \text{ MeV}$ での ${}^{196}\text{Pt}(e, \alpha)$ 反応による α 粒子の角分布。実線はルジャンドル関数の多項式に合わせたもの。

算ではほとんど再現できなかった。更に統計理論では説明できない現象を提示する。それは電子線エネルギー 40 MeV での $^{196}\text{Pt}(e, \alpha)$ 反応の角分布である。第 9 図にこれを示す。いずれの α 粒子エネルギー領域においても鋭い前方ピークを示しており、しかも α 粒子のエネルギーが高くなるにつれ、その前方ピークの程度が強くなっている。これは統計理論では説明できない。各レベル間の相関を考えない統計理論では 90° 対称になるはずである。前方ピークになるのは角分布をルジャンドル展開したときの非対称項によるものであるが、これは様々な励起モードの干渉により現われてくる。今回の実験ではどんな励起モードがどの位の割合で混じっているのかはわからないが、直接反応的であるということは言える。スペクトルと角分布の解析から重い核での (e, α) 反応により放出される α 粒子の大部分が平衡状態に達する以前に放出されたものである可能性が強い。

参 考 文 献

- 1) 広岡, 浦野, 菅原 : 核理研研究報告 **11** (1978) 201 .
- 2) C. M. Perey and F. G. Perey : Atomic Data and Nuclear Tables. **17** (1976) 1 .
- 3) I. C. Nascimento, E. Wolyneec and D. S. Only : Nucl. Phys. **A 246** (1975) 210.
- 4) B. L. Berman : Atomic Data and Nuclear Tables **15** (1975) 319 .
- 5) J. S. Levinger : Phys. Rev. **84** (1951) 43 .
- 6) J. S. Levinger : *Proc. Int. Conf. Low and Intermediate Energy Electromagnetic Interaction* **3** (1967) 411 .
- 7) A. Lepretre *et al.* : Phys. Lett. **79 B** (1978) 43 .
- 8) J. R. Wu and C. C. Chang : Phys. Rev. **C 16** (1977) 1812 .
- 9) J. J. Griffin : Phys. Rev. Lett. **17** (1966) 17 .
- 10) J. R. Wu and C. C. Chang : Phys. Rev. **17** (1978) 1540 .

Measurements of Photoproton Cross Sections of ^{27}Al and ^{24}Mg to Residual States

M. N. Thompson,* K. Shoda,† M. Sugawara,†
P. J. Ryan,* H. Tsubota,†† T. Saito,† H. Miyase,††
H. Ohashi,† T. Urano,† M. Hirooka,† T. Tanaka,†

* *School of Physics, University of Melbourne, Parkville, Vic. 3052*

† *Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, Sendai, Japan*

†† *College of General Education, Tohoku University, Sendai, Japan*

§ 1. Introduction

In some light nuclei controversy exists as to whether the low lying states of residual nuclei are as strongly populated following photodisintegration as indicated by measurements of de-excitation gamma ray spectra¹⁾. The possibility exists that the additional strength measured from the gamma ray spectra is caused by gamma ray cascades from higher excited states, which are also populated during the photonuclear reaction, down to these lower lying states. In this case spurious strength may be assigned to a photonuclear decay to a low lying state.

To clarify this question proton energy spectra from the $^{27}\text{Al}(e, e'p)^{26}\text{Mg}$ and the $^{24}\text{Mg}(e, e'p)^{23}\text{Na}$ reactions were measured at 90° using thin, isotopically pure ^{27}Al and ^{24}Mg foils as targets and the Linear Electron Accelerator at Tohoku University as the source of virtual photons. These data enable a direct measurement of the partial cross sections for the ground state and perhaps the first few excited states (at least for ^{27}Al) to be made. In addition, measurements of cross sections to specific residual states may well provide additional insight into the nature of the photonuclear reaction for these nuclei. At least for the ground state cross section the resolution of the structure should be comparable to a photoneutron cross section measurement.

§ 2. Experiment

Thin foil targets (2.27 mg/cm² of ²⁴Mg and 8.10 mg/cm² of ²⁷Al) were bombarded with the electron beam from the linear accelerator at Tohoku University. The energy resolution of the incident electrons was determined to within 1 – 1.5 % over the measured energy range. The protons which were emitted at 90° with respect to the incident beam were analysed by a broad range magnetic spectrometer of the Browne-Buechner type²⁾ with 100 solid states Si (Li) detectors arranged on the focal plane.

The correction factor for the fluctuation of the counting efficiency of the Si (Li) detector system was determined by counting protons emitted from a natural Ni target of some 80 mg/cm². A different thick Ni spectrum was measured for each magnet setting of the spectrometer system and corrections to the proton spectra to be analyzed were made using the Melbourne method of K. J. F. Allen³⁾. For ²⁴Mg, spectra were measured in steps of 0.4 MeV from 16.0 MeV to 28.0 MeV. For ²⁷Al spectra were measured in steps of 0.4 MeV from 14.8 to 27.3 MeV.

The first, second and third excited states for ²⁶Mg, the residual nucleus of the ²⁷Al (γ , p) reaction are at 1.809 , 2.938 , 3.588 MeV respectively. Hence the ²⁷Al (γ , p₀), ²⁷Al (γ , p₁), ²⁷Al (γ , p₂) and with some uncertainty the ²⁷Al (γ , p₃) cross sections were determined from the ²⁷Al proton spectra. For ²⁴Mg the first excited state is at 0.440 MeV and the second at 2.076 MeV so that it is difficult to separate ²⁴Mg (γ , p₀) and ²⁴Mg (γ , p₁) . However the thinness of the target (~ 70 keV for 10 MeV protons) possibly enables an estimation of the ground state and then the first excited state cross section for ²⁴Mg.

§ 3. Analysis and Discussion

3.1 ²⁷Al

The proton spectra from the ²⁷Al (γ , p) reaction was corrected for mean energy loss in the target (from straggling) and for nuclear recoil. The top 1.809 MeV portion of each spectrum contains only ground state protons, however the final 0.4 MeV of each of these portions is subject to large uncertainties because of

the uncertainty in the virtual photon spectrum near the tip energy and because of poor statistics from low count rates. Hence the final 0.4 MeV of each portion of the spectra was neglected and the $^{27}\text{Al}(\gamma, p_0)$ cross section was obtained by dividing the proton yields in each of these top portions by the virtual photon spectrum appropriate for each tip energy. The higher (10.1 MeV) threshold for photoalpha emission means that the $^{27}\text{Al}(\gamma, p_0)$ cross section is free of any $^{27}\text{Al}(\gamma, \alpha)$ contribution.

Using the obtained $^{27}\text{Al}(\gamma, p_0)$ cross section the $^{27}\text{Al}(\gamma, p_1)$ cross section was obtained by subtracting the contribution due to the ground state from each spectrum and then analyzing (as for the $^{27}\text{Al}(\gamma, p_0)$ analysis) the appropriate part of the spectrum corresponding to the proton energy region for protons populating the first excited state. Again the final 0.4 MeV of the portion under consideration in each spectrum was neglected.

The separation between the second and third excited states of ^{26}Mg is only 0.65 MeV and between the third and fifth excited states 0.73 MeV. Consequently the determination of the $^{27}\text{Al}(\gamma, p_2)$ and $^{27}\text{Al}(\gamma, p_3)$ cross sections was carried out by including all the protons in the region of each spectrum to be analyzed. Hence proceeding as before the $^{27}\text{Al}(\gamma, p_2)$ cross section was obtained (although with worse resolution) by correcting for the contribution from the first two partial cross sections. According to Thomson⁴⁾, the fourth excited state at 3.94 MeV is not populated so that an estimation of the $^{27}\text{Al}(\gamma, p_3)$ cross section may be made assuming that the fourth populated excited state is at 4.32 MeV. Figure 1 shows the cross sections obtained plotted to the same energy scale.

All the cross sections reveal structure. The $^{27}\text{Al}(\gamma, p_0)$ and $^{27}\text{Al}(\gamma, p_1)$ cross sections are similar to Tsubata's measurements although the absolute magnitudes are a little different. The $^{27}\text{Al}(\gamma, p_0)$ and $^{27}\text{Al}(\gamma, p_1)$ cross sections show an anticorrelation at about 20.5 MeV in agreement with Tsubata's measurements. A comparison of the integrated strengths of the partial cross sections obtained here compared to other measurements (including the de-excitation gamma ray measurements of Thomson⁴⁾) is shown in Table I.

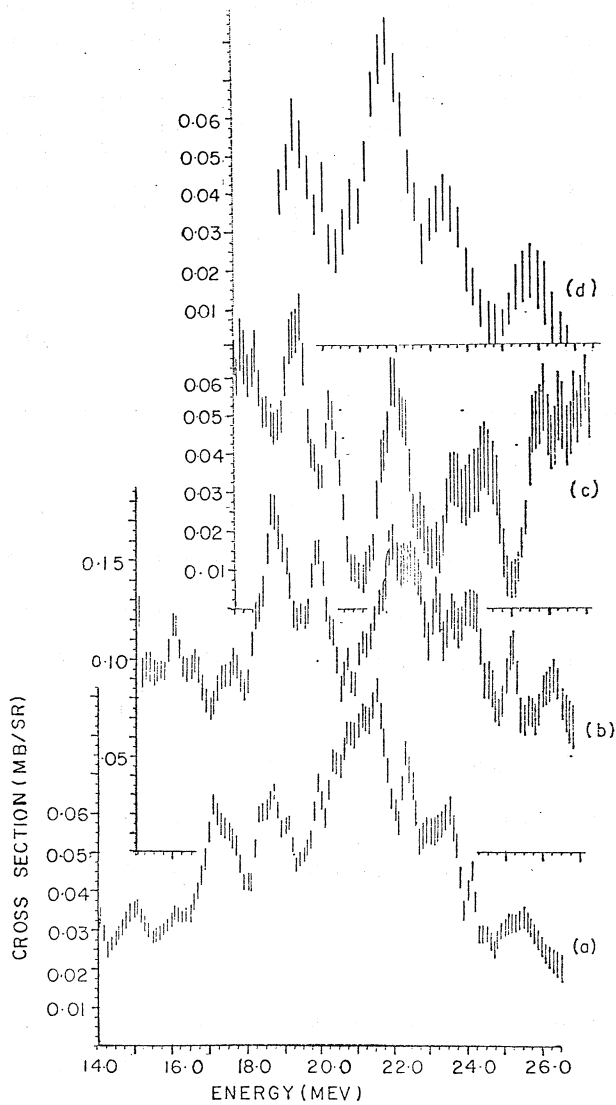


Figure 1. The partial cross sections for photo proton emission from ^{27}Al . For analysis details see text.

(a) $^{27}\text{Al}(\gamma, p_0)$, (b) $^{27}\text{Al}(\gamma, p_1)$, (c) $^{27}\text{Al}(\gamma, p_2)$, (d) $^{27}\text{Al}(\gamma, p_3)$.

Table I. Integrated cross sections for photo proton emission from ^{27}Al to low lying states in ^{26}Mg . All results are in units of $\text{MeV} \cdot \text{mb}/\text{sr}$.

	These Results	Tsubota ⁵⁾	$(\gamma, p\gamma')$ ⁴⁾
Range of Integration	14.8–27.2 MeV	16–26 MeV	Thresh – 24 MeV
$^{27}\text{Al}(\gamma, p_0)$	0.61 ± 0.03	0.45 ± 0.06	–
$^{27}\text{Al}(\gamma, p_1)$	1.25 ± 0.1	0.92 ± 0.2	2.0 ± 0.5
$^{27}\text{Al}(\gamma, p_2)$	0.5 ± 0.1	–	0.74 ± 0.15
$^{27}\text{Al}(\gamma, p_3)$	0.4 ± 0.1	–	$(0.32 \pm 1)^*$

*Uncertain assignment

The integrated strengths from the current experiment show fair agreement to the de-excitation gamma ray measurements. According to Shoda⁶⁾ the total photo-proton cross section for ^{27}Al is $110 \text{ MeV} \cdot \text{mb}$. Multiplying the derived cross section by 4π (assuming isotropy) and summing gives some $35 \pm 10 \text{ MeV} \cdot \text{mb}$ for the total strength of the photo-proton reaction for reactions leading to the ground state and the first three excited states. Hence it would appear that about 30% of the photo-proton reaction channel proceeds directly through these few low lying states in contradiction to what one might expect if the ^{27}Al nucleus were to decay in a statistical fashion.

3.2 ^{24}Mg

For the ^{24}Mg data, analysis is more complex because the first excited state occurs at only 0.44 MeV and the second at 2.076 MeV. Consequently analysis of the top 0.44 MeV of each proton spectrum is subject to large uncertainties because of the poor statistics involved. However, proceeding as for the ^{27}Al analysis a $^{24}\text{Mg}(\gamma, p_0)$ cross section may be obtained. The cross section data is binned in 0.4 MeV bins and plotted every 0.1 MeV step. The result is shown in figure 2a.

Interesting structure is revealed in the lower energy part of this cross section with two peaks at about 16.5 and 17.5 MeV. The cross section shows some correlation with $^{23}\text{Na}(p, r_0)$ measurements of Gove⁷⁾ and Bearnse *et al.*⁸⁾ Also the structure below 18.0 MeV in the $^{24}\text{Mg}(\gamma, n)$ measurement of Fultz *et al.*¹⁰⁾ shows

some correlation with this ^{24}Mg (γ, p_0) structure. This suggests that the $^{24}\text{Mg}(\gamma, p_0)$ cross section may be caused by excitation of valence nucleons below the giant resonance region followed by a direct emission process.

Again as for the ^{27}Al nucleus, the $^{24}\text{Mg}(\gamma, p_0)$ cross section. (Fig.2b) may be derived using the derived $^{24}\text{Mg}(\gamma, p_0)$ cross section. The low lying structure observed in the ground state cross section is not so prominent. However the cross section has structure between 17.5 and 21.0 MeV which shows a considerable degree of correlation to the main resonance peaks in the photoneutron cross section measurement⁹⁾. Comparison of the derived $^{24}\text{Mg}(\gamma, p_0)$ and $^{24}\text{Mg}(\gamma, p_1)$ cross sections implies that the ground state decay is principally a valence nucleon effect whereas the decay to the first excited state involved transition through the main region of the giant electric dipole resonance of ^{24}Mg .

In addition the ^{24}Mg proton spectra were analyzed by neglecting the top 0.44 MeV at each spectrum (which contains only ground state protons) as the proton yield in this region is subject to large uncertainties. The next 1.64 MeV back from the tip contains a mixture of ground state and first excited state protons and a $^{24}\text{Mg}(\gamma, p_0+p_1)$ cross section was obtained by analyzing this region of each spectrum.

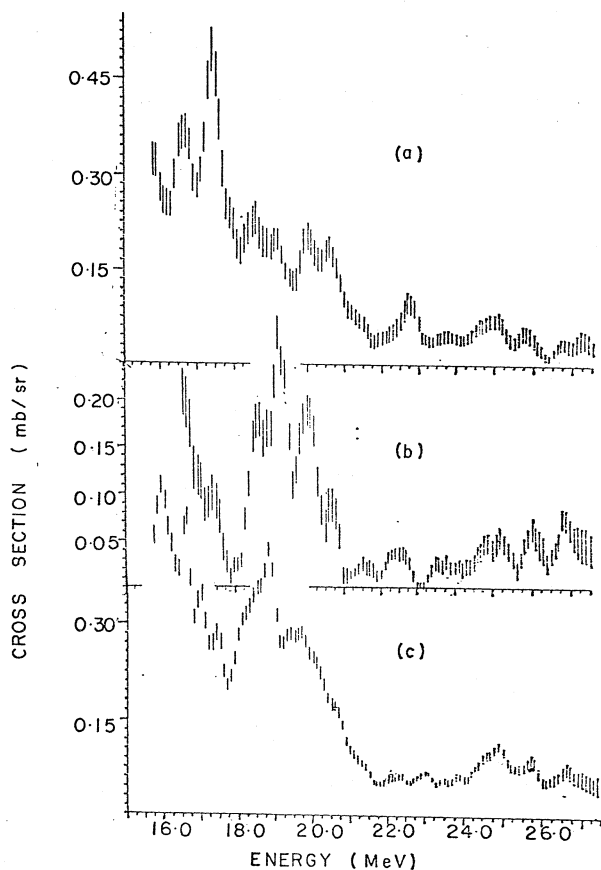


Figure 2. The partial cross for photo proton emission from ^{24}Mg .

(a) $^{24}\text{Mg}(\gamma, p_0)$, (b) $^{24}\text{Mg}(\gamma, p_1)$,
(c) $^{24}\text{Mg}(\gamma, p_0+p_1)$, see text.

Figure. 2 c shows this cross section.

The integrated cross section strengths for the $^{24}\text{Mg}(\gamma, p_0)$ and $^{24}\text{Mg}(\gamma, p_1)$ reactions using the first method of analysis are:

$$\int_{16}^{28} \text{MeV} \cdot \text{mb} / \text{sr}.$$

$^{24}\text{Mg}(\gamma, p_0)$	1.54 ± 0.18
$^{24}\text{Mg}(\gamma, p_1)$	0.76 ± 0.10

The strength of the ground state cross section reported here contradicts other workers^{7,8)} who claim that the ground state branch, as measured by the inverse $^{23}\text{Na}(p, \gamma)$ reaction, is smaller for ^{24}Mg than for other doubly even (s, d) shell nuclei. The total integrated $^{24}\text{Mg}(\gamma, p)$ cross section is $180 \text{ MeV} \cdot \text{mb}^{10)}$.

§ 4. Conclusions

For the photonuclear decay of the ^{27}Al giant resonance it is apparent from the previous discussion (at the end of the section discussing the ^{27}Al data) that the low lying states are very strongly populated. This is in agreement with de-excitation gamma ray studies⁴⁾ which consistently demonstrate strong population of the low lying residual states.

Again for ^{24}Mg the first two states are strongly populated compared with total photoproton cross section measurements. It appears that the ground state branch is far stronger than earlier measurements^{7,8)} indicated and that it is principally a valence nucleon effect as it reaches its maximum cross sectional value in the region below the giant resonance of $^{24}\text{Mg}^{9)}$. On the other hand the decay to the first excited state appears to proceed through the main E1 giant dipole state⁹⁾.

References

1. M. N. Thompson, R. J. Stewart and J. E. M. Thomson: Nucl. Phys. **A290**(1977) 14.
2. C. P. Browne and W. W. Buechner: Rev. Sci. Inst. **27**(1956)899.
3. K. J. F. Allen: Ph. D. Thesis. University of Melbourne 1974 (unpublished).

4. J. E. M. Thomson : Ph. D. Thesis. University of Melbourne 1976 (unpublished).
5. H. Tsubota, N. Kawamura, S. Oikawa and K. Shoda : J. Phys. Soc. Jpn. **37** (1974) 15.
6. K. Shoda, K. Abe, T. Ishizuka, N. Kawamura and M. Kimura : J. Phys. Soc. Jpn. **17** (1962) 735.
7. H. Gove : Nucl. Phys. **49** (1963) 279.
8. R. C. Bearze, L. Meyer-Schützmeister and R. E. Segel : Nucl. Phys. **A116** (1968) 682.
9. S. C. Fultz, R. A. Alvarez, B. L. Berman, M. A. Kelly, D. R. Lasher and T. W. Phillips : Phys. Rev. **C4** (1971) 149.
0. B. S. Dolbilkin *et al.* : Bull. Acad. Sci. USSR **30** (1966) 35 k.

II. 物 性 物 理

高圧力下の中性子線回折による RbBr の変態の測定

金研, 弘前大理学部*

神垣知夫・吉田 肇・大橋正義

金子武次郎・佐藤幸三郎*

§ 1. まえがき

前に報告した中性子線回折用高圧力発生装置¹⁾を用いて, RbBr の高圧下の変態について測定した結果を報告する。この装置は, 粉末多結晶試料に圧力を加え, 回折角 $30^\circ, 45^\circ, 60^\circ, 90^\circ$ などに設定したスリットを通して, 散乱される回折中性子線のエネルギー分析を行なうものである。この報告では, 回折線の検出の状態, 変態にともなう回折線の変化, および圧力の発生状況などについて述べる。

§ 2. 測 定

試料は RbBr の粉末で, 純度は 98%, 粒度は 100 メッシュ以上のものである。高圧力発生装置¹⁾の方式はピストン・シリンダ型で, 試料容器に肉厚 0.15 mm のテフロン製のものを用い, 圧力媒体には CS_2 を用いた。 CS_2 の純度は 98% である。加圧には最大出力 50 トン (入力油圧 700 kg/cm^2) の油圧プレスを用い, プレスのブルドン管圧力計で圧力を監視した。

中性子線の発生および測定装置は, 核理研の電子ライナックおよび附属の装置を用いた。測定データの解析には, MELCOM-70 計算機を用いた。

§ 3. 測定結果

1 気圧における RbBr の回折線の測定結果を第 1 図に示す。これは回折角 60° で, 試料は高圧容器に入れず, テフロン容器だけに入れた状態で, 測定時間は 3 時間 39 分, モニタ計数値は 4×10^6 カウントであった。図に示したように, NaCl 型の結晶構造に対応する回折線が, 数多く測定された。

高圧装置を用い, 油圧プレスに 100 kg/cm^2 の油圧を加えて測定した結果を第 2 図に示す。これも回折角は 60° で, 測定時間は 7 時間 57 分, モニタ計数は 6.7×10^6 カウントであった。第 1 図とは全く異なるチャンネル番号の位置に回折線があらわれ, これらはすべて, 図に示したよう

に CsCl 型の結晶構造に対応するものとして面指数をつけることができた。

本装置を用いて、1 気圧で測定した Si 粉末の回折線を基準として、 $2\theta = 60^\circ$ の時のチャンネル番号 N と面間隔 $d(\text{\AA})$ との関係は

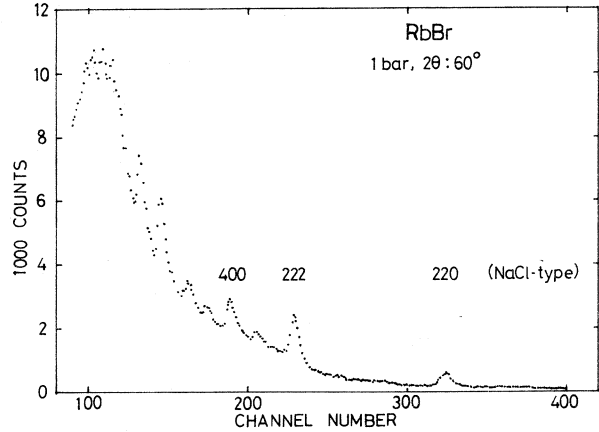
$$d = N / 95.17 \quad (1)$$

と求められた。

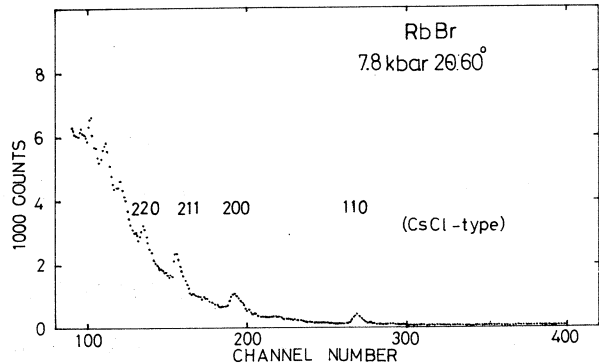
高圧力下の RbBr の測定を、油圧 25, 50, 100 および 130 kg/cm² の加圧下で行なった。これらの場合の回折線の様子を、格子面間隔と回折線の強度とについてあらわしたものが第 3 図である。油圧 25 kg/cm² と 50 kg/cm² の間を境として、明らかに回折線が NaCl 型から高圧側の CsCl 型に変化している。低圧および高圧のそれぞれの中でも、加圧による結晶の縮みに対応して、回折線が面間隔の小さい側すなわちチャンネル番号の小さい側に移動した。回折強度の圧力による

変化は僅かであった。これらの回折線から、それぞれの圧力下での単位胞の体積を算出した。その結果を第 1 表に示す。これによれば、油圧 25 kg/cm² と 50 kg/cm² の間で結晶構造が NaCl 型から CsCl 型に変態し、単位胞の体積が 315.8 Å³ から 67.72 Å³ に変化したことがわかる。また RbBr 1 分子当りの体積比は、1 気圧を基準として 0.967 から 0.826 に縮少している。

この結果を X 線回折による測定結果²⁾ と対比すると、実際に RbBr 試料に加わった圧力を較



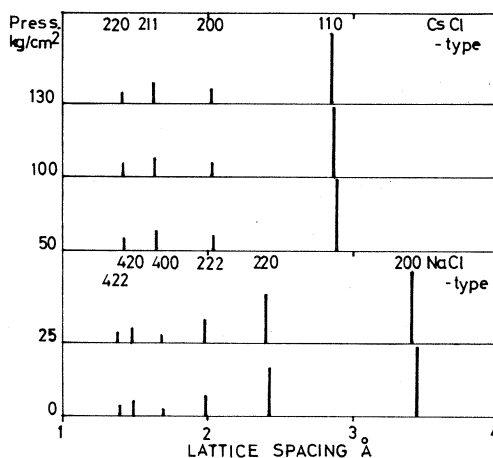
第 1 図 1 気圧の RbBr の中性子線回折、面指数は NaCl 型として示した。



第 2 図 高圧下の RbBr の中性子線回折、面指数は CsCl 型として示した。

第1表 RbBr の圧力と結晶構造。

油圧 kg/cm ²	結晶構造	格子定数 Å	体積比	圧力 kbar
0	NaCl	6.89	1.000	0.001
25	NaCl	6.81	0.967	2.3
50	CsCl	4.07	0.826	5
100	CsCl	4.05	0.813	7.8
130	CsCl	4.04	0.806	9.5

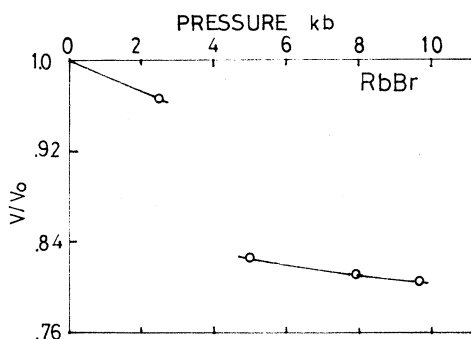


第3図 RbBrの回折線の圧力による変化。

正することができる。その結果は第1表の右端に示した。今回用いたプレス装置では、油圧 100 kg/cm² がすべて試料に加えられたとすれば、約 18.5 kbar に相当することになる。しかし上の較正結果は 7.8 kbar であって、約 42% の効率となる。これはピストンとシリンダ間の摩擦や、テフロン容器やシリンダ材の Ti Zr の合金の圧縮などに消費されて失われたものと考えられる。

1 気圧における体積を基準として、圧力と RbBr 1 分子当りの体積との関係をあらわしたものが第4図である。X線回折によれば、NaCl型からCsCl型への転移圧力は約 4.5 kbar と見積られるが、この時転移にともなって約13%の急激な体積減少が起ることがわかる。

高圧力を加えた後で 25 kg/cm² の油圧あるいは1気圧に減圧した時、再びNaCl型の回折線が測定された。しかし転移を生じる圧力値に履歴現象があるかどうかは確認できなかった。



第4図 RbBr の圧力と体積との関係。

§ 4. 考 察

本測定の精度は、回折線のシャープさによって定まる。第1図および第2図によれば、チャンネル番号100附近を除く多くの回折線について、バックグラウンドの影響を明確に分離することができる。すなわちRbBrの場合には、 5×10^6 カウントのモニタ計数程度でバックグラウンドは十分に滑らかとなり、回折線の強度も強く十分な測定を行なうことができると考えられる。

アルカリ・ハライドについて見ると、アルカリ元素の熱中性子散乱断面積はLiの0.47からRbの3.8bまで、ハロゲンはIの3.4からClの12.2bまでの値をとり、RbBrの組合せの散乱断面積はかなり大きい。しかしNaやKを含む場合でもそれほど大きな差はない。他の多くの化合物や合金などについても、1-数barnの散乱断面積をもつものは、 $5-10 \times 10^6$ カウントのモニタ計数が得られるような測定を行なえば、高圧下の圧縮率や結晶の変態をかなりの精度で測定できるものと考えられる。

本測定では、高圧力を加えた時の回折線の幅の広がりやピークの高さの減少はほとんど認められなかった。これは圧力がほぼ均一に、静水圧的に加えられたことを示すものと考えられる。

試料に加えられた圧力値を定めるには、圧縮率既知の物質を試料と混合して内部標準とし、全体を圧縮して両者の回折線をあわせて測定することが望ましい。現在NaClスケール^{1,3)}が基準として広く用いられている。今回は測定結果が複雑化することを恐れて実行しなかったが、次回からは、この方法によって直接的に圧力値を定めることを試みたい。

研究の実施にあたって、核理研の渡辺昇、新村信雄両氏のご指導を受けた。ここに感謝する。研究費の一部は文部省科学研究費から支出された。

参 考 文 献

- 1) 神垣, 吉田, 大橋, 金子, 佐藤: 核理研研究報告 **10** (1977) 215.
- 2) S. N. Vaiya and G. C. Kennedy: J. Phys. Chem. Solids **32** (1971) 951.
- 3) D. L. Decker: J. Appl. Phys. **42** (1971) 3239.

Structural Study of $D_x\text{ReO}_3$ ($0.1 < x < 0.3$) by TOF Neutron Diffraction Method

F. P. Okamura, M. Isobe, I. Kawada and N. Tsuda

*National Institute for Researches in Inorganic Materials,
Namiki 1-1, Sakura-mura, Niihari-gun, Ibaraki 300-31, Japan*

§ 1. Introduction

$H_x\text{ReO}_3$ ($x < 1$) is a representative example of oxide which shows unusually high electric conductivity ($10.5 \times 10^{-6} \Omega \cdot \text{cm}$)¹⁾ nearly comparable to that of metal Ag. The material forms through the rapid reaction of fine-grained ReO_3 with H_2O .

Basic structure of $H_x\text{ReO}_3$ has been known to be of perovskite-type. Recently, it has been reported that its x-ray powder diffraction pattern can successfully be indexed based on a pseudo-cubic orthorhombic cell with $a = 3.7700$, $b = 3.7434$ and $c = 3.7056 \text{ \AA}$.²⁾ More recently, a careful reinvestigation of the x-ray pattern³⁾ and an electron-microscopic study⁴⁾ suggested the possibility of its structural similarity to $D_x\text{WO}_3$ (space group: $\text{Im } 3$, $a = 7.562 \text{ \AA}$).⁵⁾

Present study was undertaken for the purpose of obtaining more detailed informations about its structure using deuterized specimen.

§ 2. Experimental

The specimen material was synthesized by the reaction of ReO_3 with D_2O (99.75% pure). The brownish black powder product in a sealed silica glass tube was transferred into a cylindrical vessel of aluminum foil, which was promptly mounted on a low temperature powder spectrometer and evacuated.

The diffraction data was collected by a time-of-flight (T-O-F) method at room and liquid nitrogen temperatures at Tohoku University 300 MeV Electron LINAC.

§ 3. Structural Investigation

The comparison of the profiles at the both temperatures indicated that there occurred no substantial structural change. It was also found that the diffraction pattern can be indexed based on a body-centered cubic cell with doubled cell edges ($a = 7.5 \text{ \AA}$), which is the Bravais lattice same as that of $D_x\text{WO}_3$. Accordingly, structure refinement was approximately estimated as 0.2 from the reaction rate between ReO_3 and H_2O . A FORTRAN IV program for total fitting of neutron and x-ray powder diffraction profile was written by one of the authors (M. I.) and employed for the refinement.

Since it was confirmed that the inclusion/or exclusion of the deuterium atoms gave no significant effect with respect to the contributions to the structure factors, we assumed that only the atom parameters of the oxygen atoms are responsible for the discrepancy between the observed and calculated diffraction patterns. Several cycles of the refinement changing the atom coordinates and scale factors gave better fitting.

As we mentioned before, orthorhombic symmetry has been suggested for H_xReO_3 from x-ray study. Respecting this information, the symmetry of the model was lowered to orthorhombic, and Immm , Ibam and Ibca were tested as possible

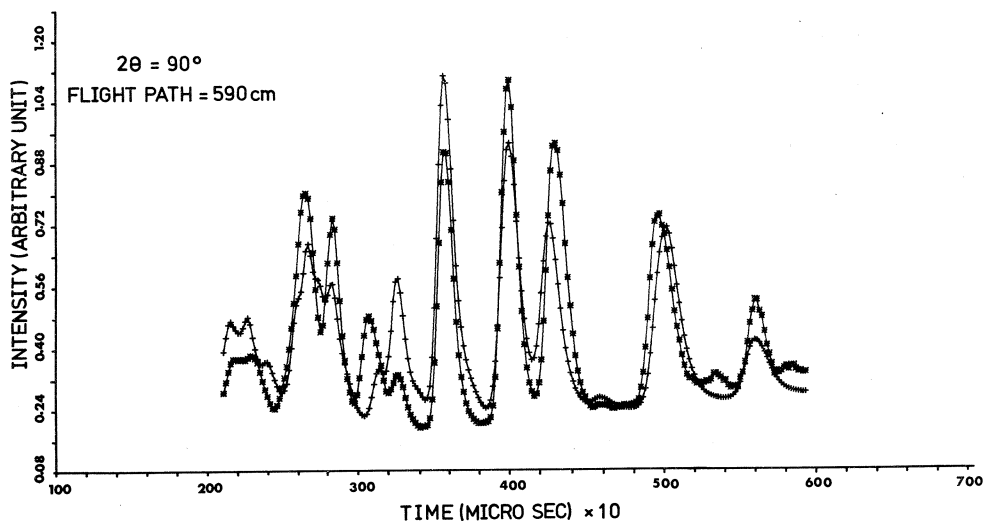


Fig. 1. Observed(*) and calculated (+) (Immm model) profiles of $D_x\text{ReO}_3$.

space groups, but the fitting did not show any large improvement (Fig. 1).

Since it became clear that any better fitting can not be reached unless further lower the symmetry, or give a certain extent of freedom to the positional parameters of the Re atom, the present refinement was terminated.

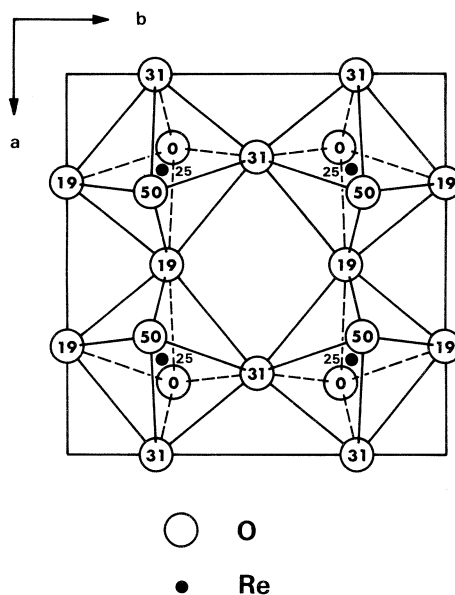
The final atom parameters and illustration of the Immm model are given in Table I and Fig. 2, respectively.

Table I. Atom parameters of $D_x\text{ReO}_3$ (Immm model)*

Atom	Wyckoff notation	x	y	z	B
Re	$8k$.25	.25	.25	.10
O 1	$8l$	0	.232	.311	.20
O 2	$8m$.284	0	.193	.20
O 3	$8n$.193	.277	0	.20

* Contribution of deuterium omitted.

Fig. 2. c-axis projection of the ReO_3 framework of $D_x\text{ReO}_3$ (Immm model). Only the lower half of the framework is shown; the upper half can be derived by mirror plane of symmetry at $z = 0.50$. Fractional z coordinates ($\times 10^2$) are shown in or besides the circles.



§ 4. Conclusion

Crystal structure of $D_x\text{ReO}_3$ is of perovskite-type with ReO_3 framework very similar to the WO_3 framework in $D_x\text{WO}_3$.

Acknowledgements

We wish to thank Dr. N. Niimura for necessary advices during our experiments at Tohoku University, and Dr. Tomiyoshi for kindly allowing us the use of his low-temperature powder spectrometer. Some useful comments by Drs. N. Kimizuka and K. Yukino of our Institute should also be appreciated.

References

- 1) T. Tanaka, T. Akahane, E. Bannai, S. Kawai, N. Tsuda and Y. Ishizawa: J. Phys. series C **9** (1976) 1235.
- 2) N. Kimizuka, T. Akahane, S. Matsumoto and K. Yukino: Inorg. Chem. **15** (1976) 3178.
- 3) K. Yukino and N. Kimizuka: private communication.
- 4) S. Horiuchi, N. Kimizuka and A. Yamamoto: Nature (London) (1979) in press.
- 5) P. J. Wiseman and P. G. Dickens: J. Solid State Chem. **6** (1973) 374.

液体金属 (Sn) の過冷却-凝固過程での構造変化の中性子回折による研究 (II)

理学部物理, 核理研*

池田 進・新村信雄*・石川義和

§ 1. 序

非平衡状態の研究は新しい分野の研究として注目され始めている。これに即応してパルス中性子を用いたTOF法中性子回折によっても、非平衡状態の研究がすでに始められている。我々は特にSnの凝固過程に注目し、前回の報告の中でも研究方式と予備実験の結果を報告した¹⁾。その中で、過冷却状態、過冷却状態から短時間後(約15 sec)の凝固過程のパターンがかなり液体状態に類似していることを示した。しかし過冷却状態から短時間後ではまだ完全な凝固が起きていないと考えられ、過冷却後の測定時間をもっと長くしなければ、凝固過程でのSnの構造変化が観測できないように思われる。今回過冷却状態後約12分間の凝固過程回折パターンの変化を報告する。

§ 2. 測定

実験装置は前回と同様のものを使い、Snの固体状態が出現するまで測定を続けた。この装置では、過冷却状態から、固化状態になるまで正確に10分間を要する。そこで過冷却状態から125 secまでをstep 1, 125 sec から250 secまでをstep 2, 250 secから500 secまでをstep 3, 500 sec から750 secをstep 4とし、各々の回折パターンを測定することにした。この測定が終ると赤外線ヒーターで加熱し、もとの液体状態に戻すというサイクルを繰り返した(第1図参照)。

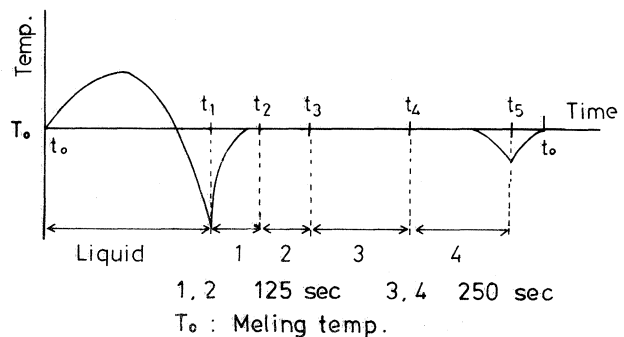
第2図に各々の状態の回折パターンを示した。

Induced Intensity $I(Q)$ は

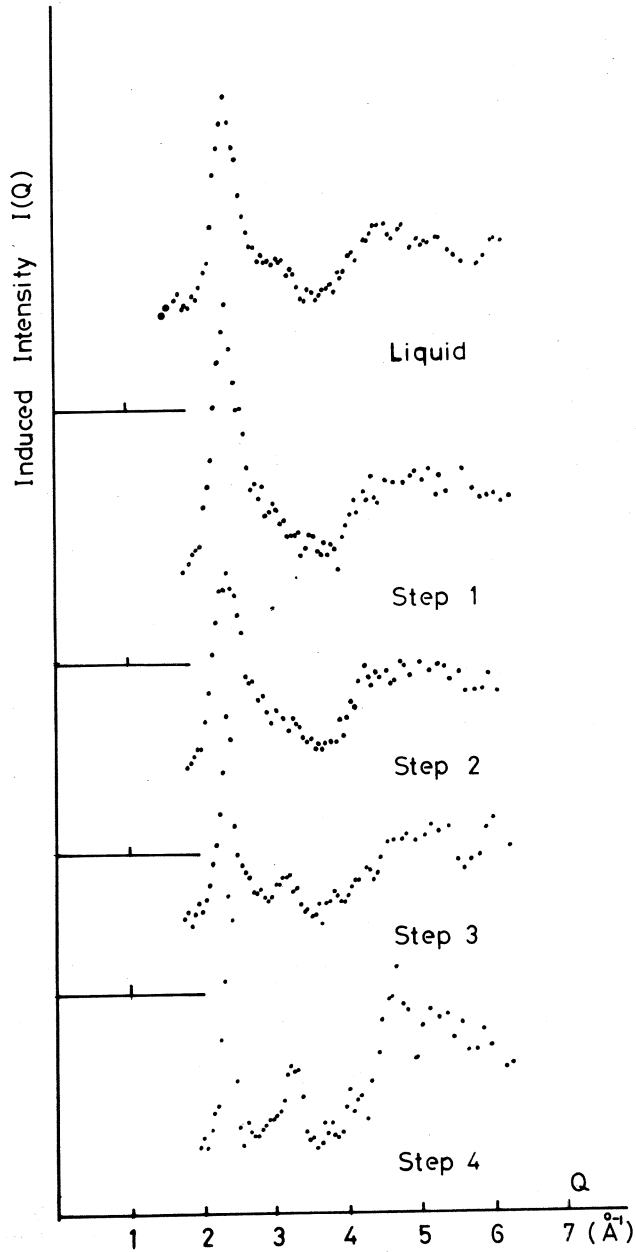
$$I(Q) = I_s(Q) / I_v(Q) \dots\dots\dots (1)$$

によって求めたものである。

ここで、 $I_s(Q)$ はSnの測定パ



第1図 測定の温度昇降サイクル。



第2図 各フレームでの回折パターン。

ターン, $I_v(Q)$ はバナジウム測定パターンである。また

$$Q = 2\pi \sin \theta / \lambda$$

$$\lambda = 0.3956 t / L * I \text{ (ch)}$$

に, $2\theta = 30^\circ$, $t = 16 \mu\text{s}$, $L = 608.5 \text{ cm}$ を代入して Q の値が求められた。

§ 3. 考 察

第2図一番上に液体状態のパターンを示した。第1ハローの横に“肩”が出現している。この“肩”は今までに、X線、中性子線で測定されたSnの液体状態のパターンのものと同じである^{2) 3)}。しかし、“肩”の位置が少し違っているようである。これは、我々が 2θ の値を正確に測定していないからであると思われる。また第1ハローの幅がstep 1からstep 4まで、だんだん狭くなってきている。注目すべき点は、液体状態のパターンの“肩”がstep 1では消失している点である。step 1では、Sn原子の空間分布が液体状態より、さらに周期性のない構造をもっているように思われる。step 4は固体状態のパターンを示し、各ハローはさらに鋭くなり、“肩”に対応する位置に鋭いピークが出現している。

今回の測定では、各パターンの全測定時間を測定しなかったために、各々のパターンの強度を比較できない。今後は各パターンの全測定時間を測定できるシステムを作り、時間焦点法測定装置を使い、検出感度をあげて凝固過程での構造変化をより詳細に研究することを計画している。

参 考 文 献

- 1) 石川義和, 池田進, 新村信雄: 核理研研究報告 **11** (1978) 223.
- 2) D. M. North, J. E. Enderby and P. A. Egelstaff: J. Phys. C **1** (1968) 1075.
- 3) S. Tomiyoshi, N. Watanabe, M. Misawa and K. Kai: Japanese J. Appl. Phys. **12** (1973) 1119.

パルス中性子による反強誘電体蟻酸 銅四水和物の研究 (Ⅲ)

名工大, 核理研*

岡田健吉・鈴木昱雄・杉江 紘・新村信雄*

§ 1. まえがき

蟻酸銅四水和物の反強誘電的相転移は, $\text{Cu}(\text{HCOO})_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ (CFTH) に対して -38°C ($-1400 \mu\text{V}$)**, $\text{Cu}(\text{HCOO})_2 \cdot 4\text{D}_2\text{O}$ (CFTD) に対して -28°C ($-1030 \mu\text{V}$) である。^{1,2)} この転移点以下で c 方向の超格子線が CFTD について Turberfield により見出され, c 面の層間の反平行分極の秩序化による転移であることが判っている。超格子線 ($30\bar{9}$) は低温相に入れば不連続的に増大して, 一次転移であることを示している。³⁾ 空間群は高温相で, $P2_1/a$, 低温相では $P2_1/n$ (c 方面向の cell doubling) とされている。さらに転移点より約 10° 下で ($30\bar{9}$) は又 5% 位増えると報告されている³⁾。これは第二の転移を示唆しているように思われる。

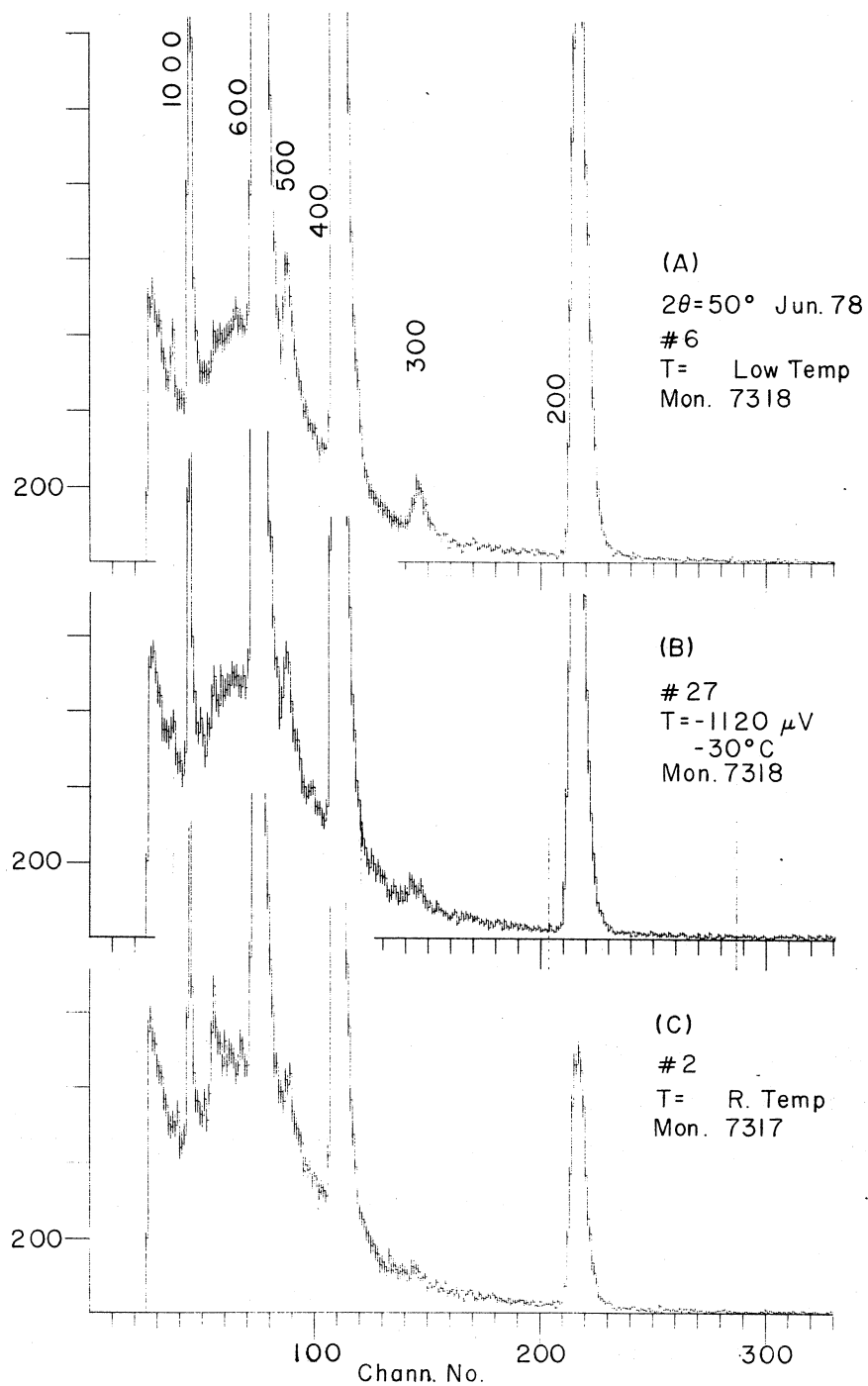
一方低温相で $P2_1/n$ の ($h0l$) に対して $h+l=2n$ に反する弱い反射が Makita ら⁴⁾ (X線), Bird⁵⁾, Niimura ら⁶⁾ (中性子) により観測された。これは中心対称を失った空間群 $P2_1$ (cell doubling) を意味し, 低温相は正確には反強誘電相でないことを示しているようである。

前回^{7,8)} にひきつづき (300), (500) 等が多重反射によるものか, 又は本来の Bragg ピークであるか, 又 ($30\bar{9}$) 等の転移点以下 10° での異常が新しい転移であるかを調べたので報告する。用いた結晶は CFTD である。

§ 2. 禁制線 (300), (500)

第1図(A)は低温相で, (300), (500) が明瞭に出ている。(B)は転移点以下 2° , (C)は室温である。(300)は -30°C と室温とでほとんど消失している。(500)はそれほどではないが, やはり弱くなっている。(600), (400), (200)の強度の変化を低温のそれに比べると第1表のようになる。この減衰に比べて(500)特に(300)の減り方は非常に大きい。したがってこれらの強度の大部分は対称中心を失った $P2_1$ によるピークが転移に

** 以下温度は銅-コンスタンタン熱電対の起電力 μV をも併記する。



第1図 禁制線 (300), (500)。

より消失するのか、又は相転移に強く関係する成分をもつ二重反射かの何れかと考えられる。

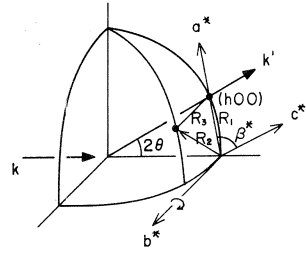
よく知られた二重反射の機構を第2図に示す。疑似 ($h00$) の反射が R_2 と R_3 による二

第1表 プラグ強度の温度変化。

	(600)	(400)	(200)
低温	1	1	1
- 30 °C	0.72	0.81	0.84
室温	0.54	0.6	0.4

重反射であれば、波長を変えてエwald球の半径 k を変化させることによりその条件の一つである $|R_1 + k| = |R_2 + k|$ を破ると強度は激減しなければならない。

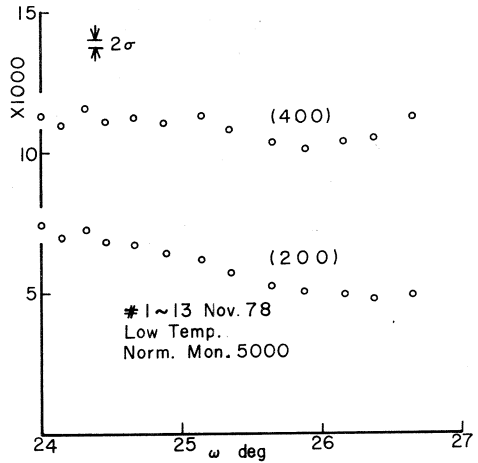
角度 ω と 2θ を同時に変えて、波長の関数として $(h00)$ 強度を測定した。第3図は (200) 、 (400) に対する積分強度で、当然あまり強い変化を示していない。これに較べて第4図、第5図の (300) および (500) の変化は大きいので、これらの反射は多重反射の可能性がある。第4図の上図は、 $R_1 = (300) = R_2 + R_3$ を満たし、 R_2 の逆格子点がエwald球よりの相対的ずれ $\Delta k/k < 1\%$ の中に ω の比較的広い範囲にわたって現れるもののすべての計算値である。各成分 R_2 、 R_3 の構造因子の大小を考慮しなければ、 $\lambda = 1/k$ の変化に対して比較的勾配の小さいもの、たとえば $(2\bar{3}2) + (1\bar{3}2)$ が二重反射をして広い λ の範囲で疑似 (300) 反射を出すであろう。 $\Delta k/k = \pm 1\%$ は $(2\bar{3}2)$ に対して R_2 のふれの角にして $\pm 0.45^\circ$ である。一方結晶のモザイクを $\pm 0.25^\circ$ とするとふれの角 $\pm 0.45^\circ$ では強度はほとんど0にならなければならない。図の $(2\bar{3}2)$ に対する $\Delta k/k = 1\%$ に対応する約 0.7° の ω の変化に対して、実測値は非常に大きい変化をしているとは言いがたい。しかし第3図の (200) 、 (400) に較べると変化は急である。



第2図 二重反射の機構。

$$R_1 (h_1 \ k_1 \ l_1) = R_2 (h_2 \ k_2 \ l_2) + R_3 (h_3 \ k_3 \ l_3),$$

$$|R_1 + k| = |R_2 + k| = |k|.$$



第3図 (200) 、 (400) の ω スキャン。

したがってこれらの(300), (500)には多くの多重反射が入っているであろうが空間群 $P2_1$ による本来の反射も入っているように思われる。

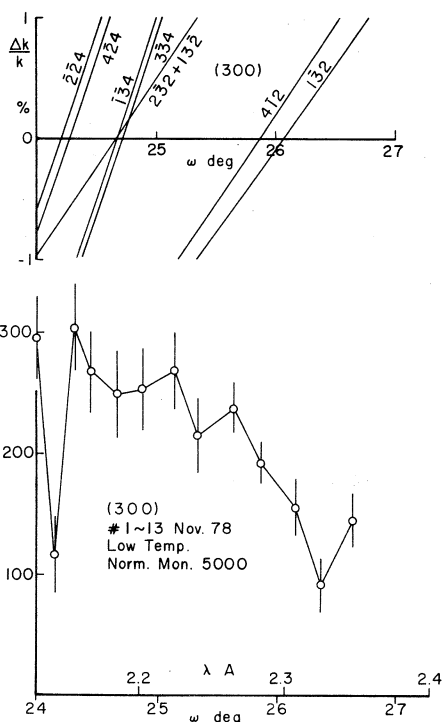
§ 3. 超格子線の温度変化

転移点 $T_c = -28^\circ\text{C}$ ($-1030 \mu\text{V}$) 以下での cell doubling による超格子線 ($30\bar{9}$), ($50\bar{15}$) を第6図に示す。転移点の直下 (B) より直上 (C) にかけてこれらの強度は急激に消滅する。これは転移が一次であることを示している。第7図はこれらの温度変化を示す。 -45°C ($-1620 \mu\text{V}$) T'_c に異常がある。これは Turberfield の -38°C ($-1400 \mu\text{V}$) の5%の強度変化に対応するものと考えられるが、温度が 7° ちがっている。第8図 ($h0l$), l : 偶数に対してもここに異常が認められる。第1図で(300)がほとんど消失している -30°C はこの T'_c と T_c の間に相当している。したがって T'_c は第二の転移でありそうである。

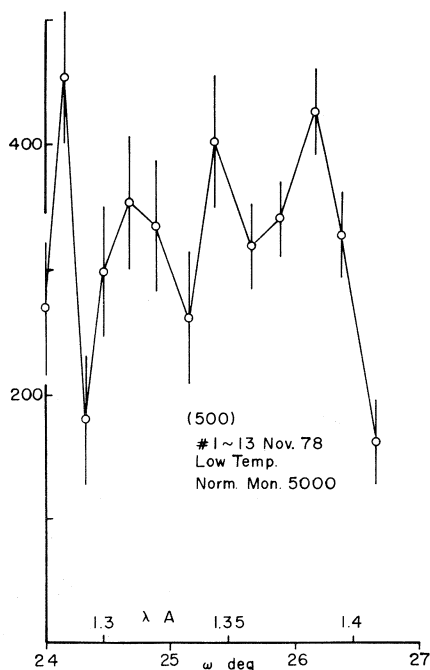
§ 4. 誘電測定とまとめ

本実験と平行して行った CFTD の誘電測定⁹⁾ について簡単に述べて比較をする。CFTH については CFTD の場合より温度が約 10° 低温にずれているだけで定性的には同じである。

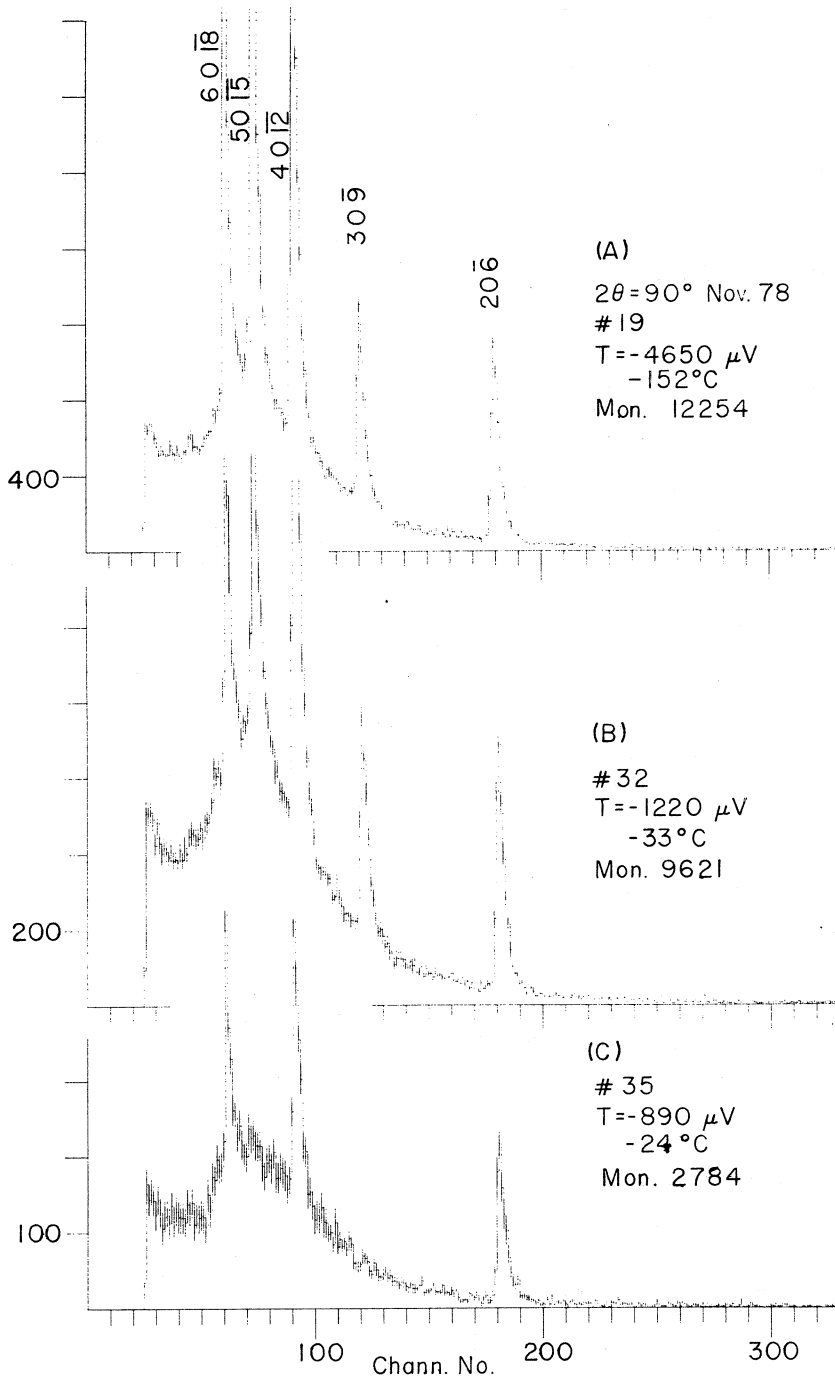
パイロ電流は $T_c = -28^\circ\text{C}$ で強い異常



第4図 禁制線(300)の ω スキャン。上図:(300)二重反射の R_2 のエワルド球からのずれ(計算値)。

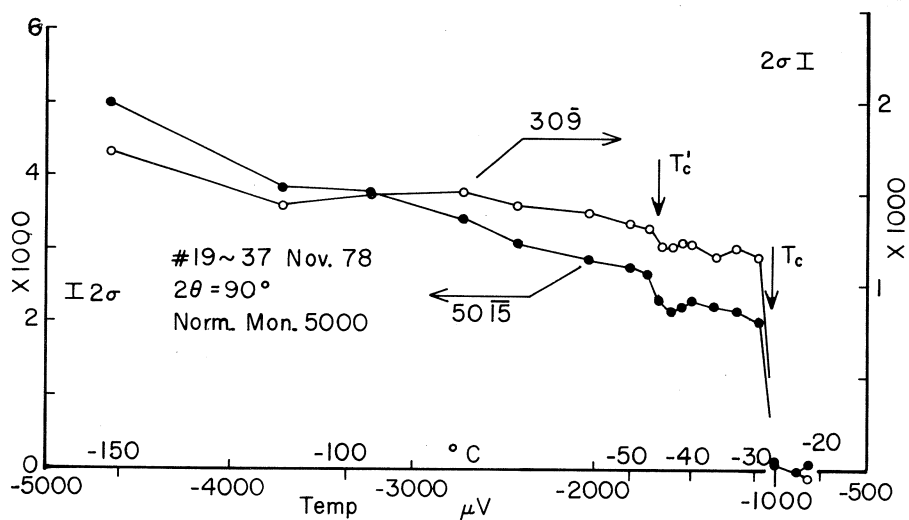


第5図 禁制線(500)の ω スキャン。

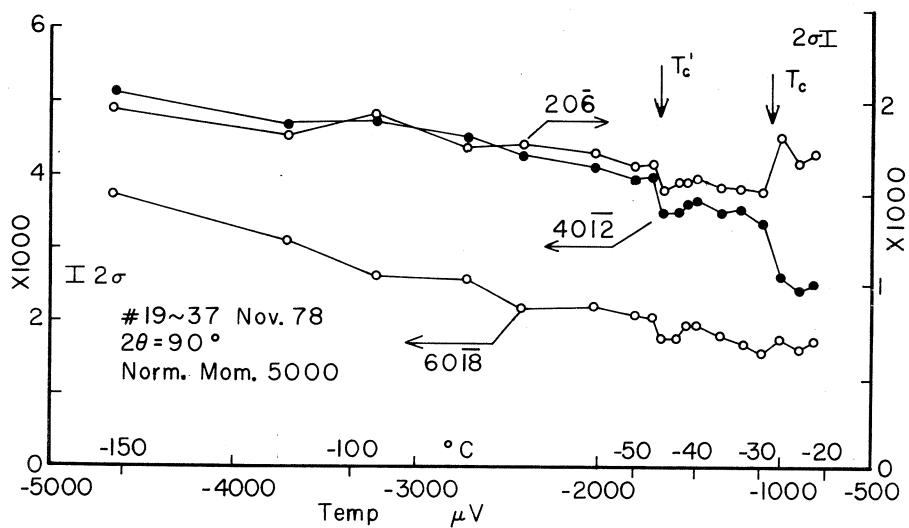


第6図 超格子線 ($30\bar{9}$), ($50\bar{15}$)。

を示すと同時に $T'_c = -38^\circ\text{C}$ でも明瞭なピークがでた。 T_c 以下では反強誘電体としての典型的な誘電的二重履歴曲線¹⁰⁾を示すが、この T'_c 以下で分極測定感度を上げることにより三



第7図 超格子線 $(30\bar{9})$, $(50\bar{15})$ の温度変化。



第8図 $(20\bar{6})$, $(40\bar{12})$, $(60\bar{18})$ の温度変化。

重曲線を得た。これは二つの副格子の分極が相殺していない、いわゆるフェリ誘電性の三重曲線¹¹⁾と思われる。この相殺しない自発分極が中心のループを作る。これは T_c' 以下で急激ではあるが連続的に増大する。

本中性子廻所による T_c' は -45°C ($-1620\ \mu\text{V}$) であるが、この誘電測定および Turberfield の $(30\bar{9})$ の異常は何れも -38°C ($-1400\ \mu\text{V}$) で、この不一致の理由は今のと

ころ不明である。フェリ誘電性の自発分極は副格子の自発分極の約 $1/1000$ である。したがって $T_c = -28^\circ\text{C}$ より $T'_c = -38^\circ\text{C}$ までは反強誘電相, T'_c 以下ではフェリ誘電相 (ほとんど反強誘電的) ということができる。このフェリ誘電相では対称中心を失っているため、それが § 2 の (300), (500) の強度の一部を占めているものと考えられる。又 (30 $\bar{9}$), (50 $\bar{1}5$) 等の T'_c での異常はこの転移における超格子秩序度の変化であろう。

新しい転移 T'_c について、中性子廻所からはまだ断定的なことは言えない。(300), (500) 又はさらに強い ($h0l$), $h+l \equiv 2n$ の T'_c 近くでの温度変化, および超格子線 (30 $\bar{9}$) 等のより精密な温度変化をさらに低温まで測定する予定である。

本研究に対しては核理研助教授 渡辺昇氏や他のスタッフの方々の大変な御助力をたまわった。心から感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) K. Okada : Phys. Rev. Lett. **15** (1965) 252.
- 2) K. Okada : Phys. Rev. **164** (1967) 683.
- 3) K. C. Turberfield : Solid State Comm. **5** (1967) 887.
- 4) Y. Makita and S. Suzuki : J. Phys. Soc. Japan **34** (1973) 278.
- 5) M. J. Bird and T. R. Lomer : Acta Cryst. **B27** (1971) 859.
- 6) N. Niimura and F. K. Larsen, unpublished.
- 7) 岡田, 鈴木, 杉江, 新村 : 核理研研究報告 **9** (1976) 110.
- 8) 岡田, 鈴木, 杉江, 新村 : 核理研研究報告 **9** (1976) 241.
- 9) I. Suzuki and K. Okada, J. Phys. Soc. Japan, to be published.
- 10) K. Okada and H. Sugie : J. Phys. Soc. Japan **25** (1968) 1128.
- 11) I. Suzuki and K. Okada : J. Phys. Soc. Japan **45** (1978) 1302.

磁気鏡による中性子偏極の研究

理学部物理

佐々木幸男・遠藤康夫

§ 1. 磁気鏡偏極子の原理

中性子スピン ($\sigma_z = \pm 1/2$) を偏極する有力な手段の一つとして、非偏極中性子を磁化された物質に入射させると、中性子の干渉性散乱半径が中性子スピンと磁化の方向とが平行か反平行かに依って異なる事実を応用する極めて簡単な方法が古くから考えられている。原理は以下に示すように既に光学でおなじみの極めて基本的なものである。必要な物理量は中性子スピンの依存する前出の干渉性散乱半径 b_{\pm} (cm), 中性子の波長 λ (cm), 及び反射体の密度 N (cm^{-3}) である。たゞし b_{\pm} は次の式に示されるように物質によって異なる。

$$b_{\pm} = b_n \pm \left(\frac{e^2 \delta}{mc^2} \right) \cdot s \cdot f(\kappa) \equiv b + p \quad \dots \dots \dots (1)$$

b_{\pm} が決まると、屈折率 n_{\pm} が次のように与えられる。

$$n_{\pm} = 1 - N / 2 \pi \cdot \lambda^2 \cdot b_{\pm} \quad \dots \dots \dots (2)$$

n_{\pm} から反射率を求めると

$$R_{\pm} = \left[\frac{\sqrt{n_{\pm}^2 - \cos^2 \varphi} - \sin \varphi}{\sqrt{n_{\pm}^2 - \cos^2 \varphi} + \sin \varphi} \right]^2 \quad \dots \dots \dots (3)$$

となる。こゝで φ は反射角を示す。 φ は非常に小さいとして、全反射条件、 $R = 1$ を満足する λ を λ_c とすれば(3)式から容易に λ_c が決められる。

$$\lambda_{\pm}^c = \sqrt{\frac{\pi}{N b_{\pm}}} \cdot \varphi \quad \dots \dots \dots (4)$$

ところで(1)式から $b_{-} \leq 0$ になる条件を加えると $\lambda_c = \infty$ となり全反射される中性子は $\sigma_z // p$ のみで偏極は 100% 達成される。

この方法の最大の欠点は反射角 φ が極端に小さく (10^{-3} rad) 単一鏡を使って必要な中性子線幅の偏極化の為には 2 m 以上の平面磁気鏡と、磁化させる為の大型磁石が要る。ところが厚さが無視できる程度に薄い磁気鏡をソラースリット状に、中性子線幅を、全反射条件を満た

すに必要な間隔で割った枚数組み込んだコリメーターを作製すればこの欠点は一挙に解消される。このような誰でも思いつく原理は、既に Rutherford 研究所で実用化に向って着々と進み、¹⁾ 我々は彼等の後を追いかける結果となったが、現在までの試行で我々も偏極子を作り、偏極中性子を生み出して TOF 実験ができる見込みが出来たので報告する。

§ 2. 磁気鏡偏極子の作製

2.1 FeCo 蒸着薄膜の作製

強磁性合金である FeCo 合金 (Co 50 ~ 75 %) をルミラー²⁾ と呼ばれるプラスチック基板に真空蒸着して鏡の材料とした。この合金は偏極に必要な条件 $b \leq k$ を満してくれるし、ルミラーは CH₂ ポリマーを含んでいる為、基板からの反射による非偏極成分をかなり防ぐことができる。³⁾ 既に磁気鏡作製の為の蒸着条件の研究は満足できる段階に到達している。⁴⁾ 従って今年度の目的は、鏡状の平滑な表面を得る為にプラスチック基板であるルミラーを張る時に生ずる歪が磁化にどの程度影響するのか、詳しい検討を加えた。蒸着条件も現在得られている最適条件を中心に第 1 表で示す程度変えてみた。蒸着膜の膜厚分布は ±10% 以内に抑える為、

第 1 表 蒸 着 条 件。

組 成	膜 厚 (Å)	蒸着速度 (Å/分)	真空度 (Torr)	温 度 (°C)
Fe ₅₀ Co ₅₀	1050	20	5×10^{-6}	45
	1050	25	1×10^{-5}	45
	1050	5	5×10^{-6}	53
Fe ₂₅ Co ₇₅	1040	12	5×10^{-6}	47
	1025	30	5×10^{-6}	53
	1090	28	5×10^{-6}	75

及び加熱時放出される熱を冷却させる為、基板のプラスチック膜を蒸着源から等距離に張られるような治具をベルジャー内にとりつけている。

2.2 偏極子の磁化特性

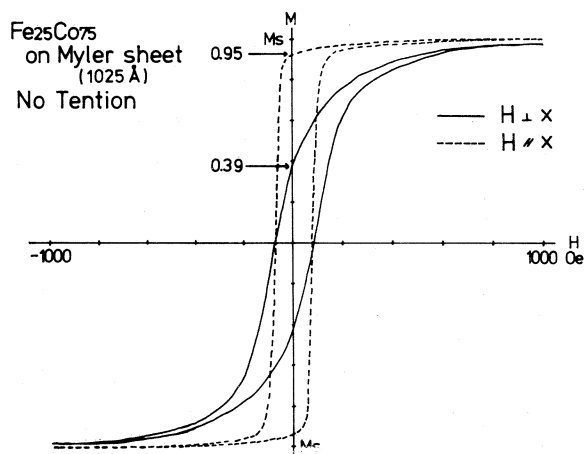
磁化測定は約 6 kOe 迄の磁化曲線を振動磁力計に依って、次の様なパラメーターに依る磁化特性を室温 (300 °K) での磁化曲線から求めた。

1. 合金の組成 ; Fe の濃度 25 %, 50 %
2. 張力 ; 偏極子の短巾方向に $\Delta l / l = 5 \times 10^{-2}$
3. 磁場 ; 入射中性子と同じ方向になるような偏極子の方向から角度をとる。 $\theta = 0, \pi/2$ 。

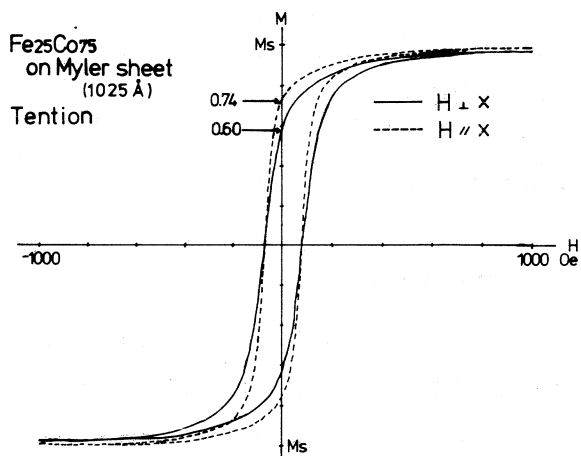
これらの結果から代表的なものとして、25%の磁化として2つの場合について次の様な結果が得られている。歪みのない場合の磁気異方性（一軸異方性）はいわゆる蒸着の際の自己陰影効果に依るものと見做して説明できる値である。又この異方性自身、磁場を中性子の飛行方向に垂直に引加するので、全く障害とはならない（第1図）。これに反して張力、すなわち歪みの

影響は非常に大きい。結晶の塊の状態で $d/l/l$ が $1/100$ の程度にも張力を加えるとほとんどの物質は壊れてしまうので比較することはできないが、磁化に及ぼす張力の影響は第2図に示すように、飽和磁化があたかも、測定磁場の範囲で減少したようになり、異方性も小さくなる。FeCo合金の磁歪の結果から想像されるものと定性的に一致する。いずれにしても偏極子としてこの薄膜を用いると磁化の減少が伴うことは重要な結論である。しかしこの減少を予め組成を決める際（ $b = p$ になる条件）考慮しておけば大きな障害とはならない。

以上の磁化測定の結果（第2表）は、600 Oe. 程度の磁場で充分偏極子として作用する磁化が得られたこと、及び磁気特性が蒸着条件、張力のかけ方等でどの程度定量的に変化するかがわかり、偏極子の性能に対する要因をここで一つ決めることが出来たと判断する。



第1図 磁気ヒステリシス曲線。張力のない場合（X：入射中性子方向）。



第2図 磁気ヒステリシス曲線。張力のある場合（X：入射中性子方向）。

第2表 磁化に及ぼす張力の影響。

					幅 方 向				長 さ 方 向					
		M_s	磁化 (Gauß)	H_c (Oe)	M_{R+}	H_{c+} (Oe)	$\frac{M_{R+}}{M_s}$ (%)	$\frac{H_{c+}}{H_c}$	$M_{R//}$	$H_{c//}$ (Oe)	$\frac{M_{R//}}{M_s}$ (%)	$\frac{H_{c//}}{H_c}$	$\frac{M_{R+}}{M_{R//}}$	$\frac{H_{c+}}{H_{c//}}$
Fe ₅₀ - Co ₅₀	A	87.8	1871	110	54.4 52.3	299 331	62.0 58.4 (0.94)	2.72 3.01 (1.11)	63.1 58.5	240 279	71.9 66.6 (0.73)	2.18 2.54 (1.17)	0.86 0.89	1.25 1.19
	B	86.3	1835	114	51.9 47.7	344 374	59.7 54.5 (0.91)	3.02 3.28 (1.09)	58.0 57.3	289 297	66.7 65.5 (0.98)	2.54 2.61 (1.03)	0.89 0.83	1.19 1.26
	C	84.5	1801	95.8	48.4 45.4	305 325	57.4 53.4 (0.93)	3.18 3.39 (1.07)	66.7 66.4	200 210	79.3 78.1 (0.98)	2.09 2.19 (1.05)	0.73 0.68	1.53 1.55
Fe ₂₅ - Co ₇₅	D	89.3	1922	67.1	38.8 51.7	257 217	43.4 56.9 (1.31)	3.83 3.23 (0.84)	80.7 67.5	110 148	90.8 75.2 (0.83)	1.64 2.21 (1.35)	0.48 0.77	2.34 1.47
	E	79.3	1727	77.7	29.7 48.4	321 238	37.6 60.4 (1.61)	4.13 3.06 (0.74)	74.2 59.8	114 163	94.3 74.7 (0.79)	1.47 2.10 (1.43)	0.40 0.81	2.82 1.46
	F	71.4	1462	77.4	26.1 42.8	267 231	36.6 59.9 (1.64)	3.45 2.98 (0.86)	67.0 57.0	109 141	94.2 79.2 (0.84)	1.41 1.82 (1.29)	0.39 0.75	2.45 1.64

M_s : 飽和磁化, M_R : 残留磁化, とともに X-Y レコーダーの読み, H_c : 抗磁力,
 $H_{c'}$: $0.8 M_s$ の磁場の値, 第一段: 張力のない場合, 第二段: 張力のある場合, 第三
 段のカッコ: (第二段/第一段), 幅方向: 入射中性子に対し垂直な方向, 長さ方向:
 入射中性子に対し平行な方向。

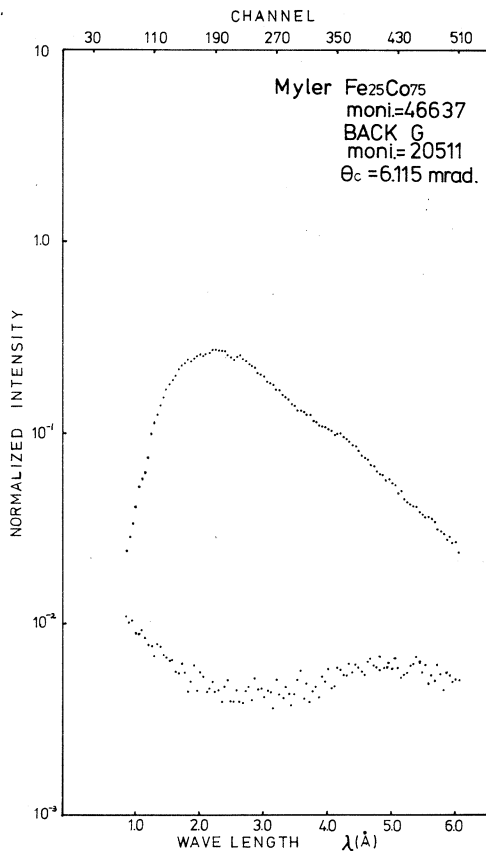
§3. 中性子反射率

中性子反射率は(4)式の λ_0 が 3.6 \AA になるように磁気鏡偏極子を入射中性子方向に対して
 6.2 mrad 角度をもたせて, 鏡面を垂直にして中性子ビームライン上に置く。この時磁場は,
 1000 Oe 引加する。又中性子束の発散角は Cd-ソナーコリメーターで 3.7 mrad に抑えられて
 いる。中性子の飛行距離は 5.315 m で, この装置では $\sim 6.05 \text{ \AA}$ の波長の中性子まで計測するこ
 とが可能である。

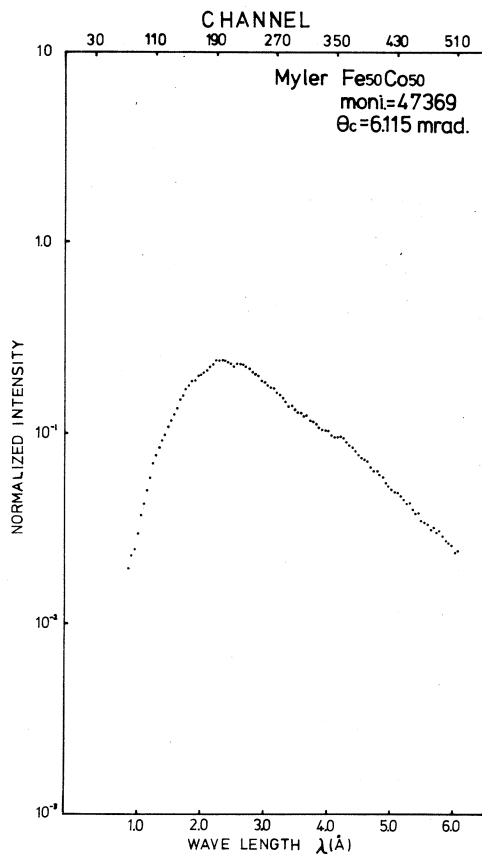
第3, 4図は反射率測定のための測定の反射率を求める前の中性子の計測数の波長に対する変化
 を示したものである。

この結果から直接偏極子としての性能を議論出来ないで次の様な簡単な解析を行なった。

1. 反射率の実験値をフロートガラス基板に蒸着した FeCo 偏極子の全く同じ反射率の測定



第3図 中性子計測数。



第4図 中性子計測数。

と比較し、又フロートガラス基板の Fe Co 膜の磁化は結晶の磁化と同じと仮定する。又フロートガラスの表面を理想表面と仮定している。

2. 反射率の実験値は上の仮定から第3, 4図に対応して第5, 6図のように求まる。
3. 臨界波長 λ_c (θ_c) とプラスチック平面度、つまり中性子のプラスチック平面での発散角をパラメーターにして、反射率を波長の関数として計算し、実験との比較を行なう。一例として第7図に予め光の測定で決めた2つのパラメーターを使った計算結果を示す。この例から、 $s = 0.75 \text{ mrad}$ 、 θ_c は 6.115 mrad という設定通りのパラメーターで実験値をかなり良く説明していることがわかった。

§ 4. 考 察

臨界波長から 25 % の磁化の値は同じ組成の結晶のものと比べると 0.93 で磁化の測定と妥当

な一致を示す。

又表面度 s の実測値がそのまゝ、反射率の大部分の減少を説明している。

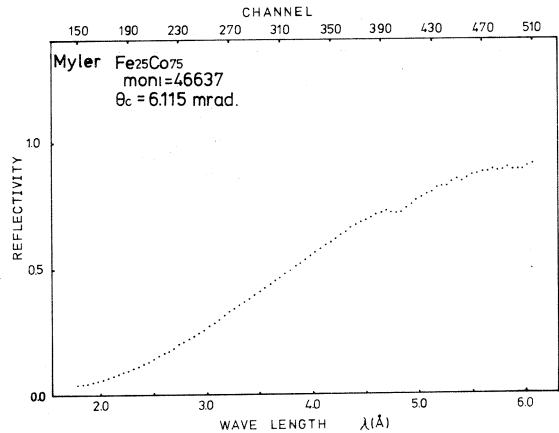
マイラー下地からの反射はこの波長の範囲内で全くない。

又 Fe Co 膜から非偏極成分の臨界波長は 25 % では 13.4 Å, となる。

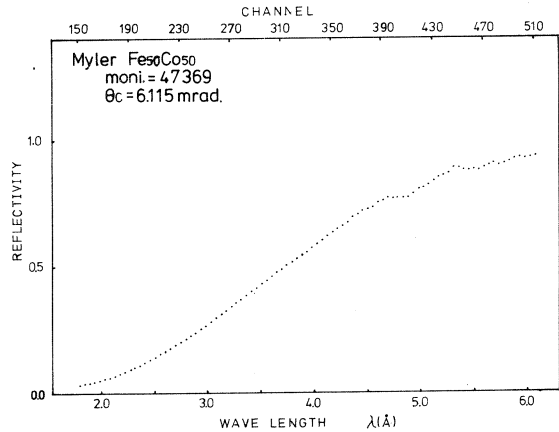
しかし表面度が理想平面から悪くなるにつれてどの程度非偏極化するかの検討中である。

同時に反射中性子が統計以上に特徴のある波長依存性を示す事についての説明や、観測される反射率が、偏極子の表面性以外の因子があるように思えること等、詳細な検討事項が新たに提出された。

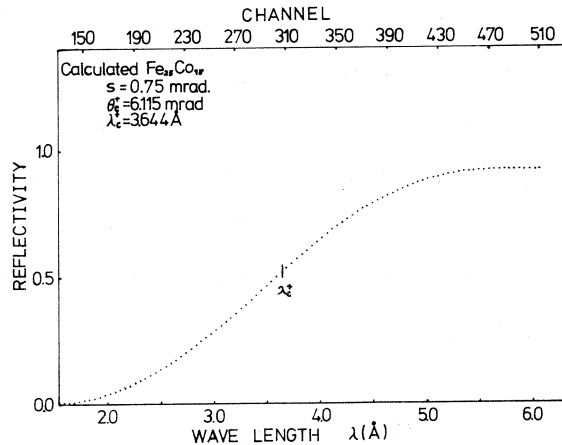
これらの結果を基にして、現在ソーラー磁気鏡の試作と、偏極中性子回折を行なう為の装置の組立を行っている。



第5図 反射率曲線。



第6図 反射率曲線。



第7図 計算機実験による反射率曲線。

参 考 文 献

- 1) J. B. Haytor, J. Penfold, W. G. Williams; J. Phys. E **11** (1978) 454.
- 2) 東レ製品, マイラーの登録商標。
- 3) FeCo層を透過した中性子がプラスチック基板で全反射される成分が偏極中性子に混入する。
- 4) 文部省科研費総合研究報告「KENSの建設とそれによる中性子散乱」昭和53年7月。

時間焦点型クリスタル・アナライザー法 による熱外中性子散乱

核理研, 理学部物理,* 金研 **
渡辺 昇・古坂道弘*・三沢正勝**

金属水素化合物中における水素原子の局在モードのようなエネルギー準位の高い振動を, 高いエネルギー分解能で詳細に調べることが目的とした中性子分光器を設計し, 核理研パルス中性子源に設置した。この分光器は時間焦点法を用いたクリスタル・アナライザー型で, エネルギー変化 $\hbar\omega = 0.1 \sim 0.6 \text{ eV}$ の領域で, 2.5 ~ 4 % のエネルギー分解能を有する。本報告は分光器の詳細を述べるとともに, これを用いて測定された TiH_2 および $\text{TaH}_{0.5}$ の局在モードスペクトルを示す。

§1. クリスタル・アナライザー法

1.1 はじめに

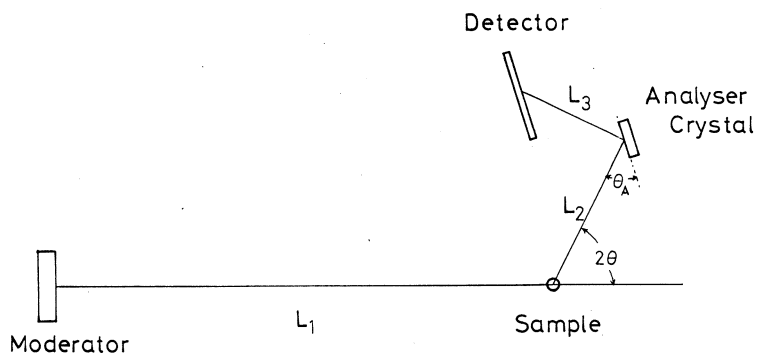
0.1 eV 以上のエネルギー変化 $\hbar\omega$ をともなう中性子非弾性散乱はパルス中性子源の最も得意とする分野で, 特に金属水素化合物の局在モードのように運動量変化 Q の依存性の弱い非干渉性非弾性散乱では, 電子ライナックを用いたあまり強くないパルス中性子源でも原子炉に比べ非常に有利である。Webb¹⁾ は電子ライナックを用いた $\hbar\omega > 0.1 \text{ eV}$ での測定方法を種々提案している。Pann 等²⁾ は実際に Be - BeO フィルター・デフェレンス法で, また Day 等³⁾ はクリスタル・アナライザー法で, 高いエネルギー分解能を実現しているが, 金属水素化合物の局在モードを詳細に検討できるまでには至っていない。本研究は $\hbar\omega = 0.1 \sim 0.6 \text{ eV}$ の領域で, さらに高い分解能の実現をめざしたもので, クリスタル・アナライザー型分光器に時間焦点法を応用することにより, 比較的容易に十分満足のゆく結果が得られたので報告する。

1.2 クリスタル・アナライザー法の原理

パルス中性子源を用いたクリスタル・アナライザー法では, 第1図の如く, 試料は白色入射中性子ビーム中に直接置かれ, 特定の波長の散乱中性子がアナライザー結晶により検出される。その波長 λ_s はアナライザー結晶の面間隔を d , ブラッグ角を θ_A とすると

$$\lambda_s = 2d \sin \theta_A \quad (1)$$

で与えられる。一方, 入射中性子の波長 λ_i は, TOF 法により求められる全飛行時間 t と, 波



第1図 クリスタル・アナライザー型中性子分光器の原理図。

長 λ_s の散乱中性子が試料・検出器間を飛行する時間より、次の如く求められる。

$$\lambda_i = \frac{h}{mL_1} \left[t - \frac{L_2 + L_3}{v_3} \right] \quad (2)$$

但しここで h はプランクの定数、 m は中性子質量、 L_1 および $L_2 + L_3$ はそれぞれ入射中性子および散乱中性子の飛行路長、 v_3 は散乱中性子の速度である。

(1), (2) 式より、散乱によるエネルギー変化 E および運動量変化 Q はそれぞれ次式の如く与えられる。

$$E = \frac{h^2}{2m} \left(\frac{1}{\lambda_i^2} - \frac{1}{\lambda_s^2} \right) \quad (3)$$

$$Q = 2\pi \left(\frac{1}{\lambda_i^2} + \frac{1}{\lambda_s^2} - \frac{2}{\lambda_i \lambda_s} \cos 2\theta \right)^{\frac{1}{2}} \quad (4)$$

但しここで 2θ は試料による中性子の散乱角である。

ここで考えているような Q 依存のあまり大きくない散乱では、測定効率を大きくするために、アナライザー系は大きな立体角で散乱中性子を検出できるようにすることが望ましいが、この場合エネルギー分解能 ΔE は一般に著しく劣化する。

1.3 エネルギー分解能

(1)~(3) 式より明らかな如く、 E は距離 L_1 および $L_2 + L_3$ 、時間 t 、および速度 v_3 、したがってブラッグ角 θ_A の関数として求められるが、これらの値にはそれぞればけが存在するため、 E は有限の分解能 ΔE を持つ。(1)~(3) 式より ΔE を求めると次のようになる⁴⁾。

$$\Delta E = m \left\{ \left(v_3^2 + \frac{L_2 + L_3}{L_1} \frac{v_i^3}{v_3} \right)^2 \cot^2 \theta_A \left[(\Delta 2\theta)^2 + \beta^2 \right] \right\}$$

$$\begin{aligned}
& + \left(\frac{v_1^2}{L_1} \right)^2 (\Delta L_1)^2 + \left(\frac{v_1^3}{v_3 L_1} \right)^2 (\Delta L_2^2 + \Delta L_3^2) \\
& + \left(\frac{v_1^3}{L_1} \right)^2 (\Delta t_p^2 + \Delta t_m^2 + \Delta t_c^2) \} \quad (5)
\end{aligned}$$

但しここで β はアナライザ結晶のモザイクのひろがり、 Δt_p 、 Δt_m はそれぞれライナックおよびモデレーターのパルス巾、 Δt_c はタイムアナライザのチャンネル幅である。この式で{ }の中の第1項前半はアナライザ結晶により検出される散乱中性子エネルギーのぼけをまた第1項後半はそれによる散乱中性子飛行時間のぼけによる E_1 のぼけを表している。第2項以降は、入射中性子飛行路長 L_1 のぼけ ΔL_1 、散乱中性子飛行路長のぼけ $(\Delta L_2^2 + \Delta L_3^2)^{\frac{1}{2}}$ および全飛行時間 t のぼけ $(\Delta t_p^2 + \Delta t_m^2 + \Delta t_c^2)^{\frac{1}{2}}$ の E_1 への寄与をそれぞれ表している。(5)式は簡単に書くと近似的には次のようになる。

$$\Delta E = (\Delta E_1^2 + \Delta E_s^2)^{\frac{1}{2}} \quad (6)$$

一方、散乱中性子の計数率 $N(E, Q)$ は次式の如く与えられる。

$$N(E, Q) = I(E_i) \Delta \Omega_i \Delta E_i \left(\frac{d^2 \sigma}{dE d\Omega} \right) \Delta E_s \Delta \Omega_s R(E_s) \eta(E_s) \quad (7)$$

ここで、 $I(E_i)$ は入射中性子のビーム強度($n/\text{sec-eV-sr.}$)、 $\Delta \Omega_i$ 、 $\Delta \Omega_s$ はそれぞれ線源が試料を見込む立体角および試料がアナライザ系を見る立体角、 ΔE_i 、 ΔE_s はそれぞれ入射および散乱中性子のエネルギー分解能、 $\overline{\left(\frac{d^2 \sigma}{dE d\Omega} \right)}$ は測定系の分解能で平均化された試料の微分断面積、 N は試料の原子の数密度、 $R(E_s)$ はアナライザ結晶の反射率、 $\eta(E_s)$ は検出器効率である。

(6)式より明らかな如く、 ΔE は ΔE_1 および ΔE_s に依存し、一方計数率は(7)式の如く、両者の積 $\Delta E_1 \Delta E_s$ に比例する。したがって分解能と計数率を最適化するには、 ΔE_1 と ΔE_s をマッチングさせる($\Delta E_1 \sim \Delta E_s$)必要がある。しかしながら(5)式に一般的な値を入れてみると明らかな如く、一般には E の大きい領域では第1項の後半が非常に大きくなり、 $\Delta E_1 \gg \Delta E_s$ となってしまう。計数率を大きくするには、かなり大きい ΔE_s および $\Delta \Omega_s$ を選ぶ必要があるがそれが ΔE_1 をあまり大きくしない方法が望まれるわけである。

§2. 時間焦点型クリスタル・アナライザ

以上のような欠点を改善するために、アナライザ系に時間焦点法⁵⁾を用いることを試みた(第2図)。時間焦点法は、パルス中性子源による中性子回折において分解能を上げ、かつ立

体角を増して測定効率を上げるよう考案された手法で、線源・試料・検出器の並べ方の条件を与えるが、これをわれわれの試料・アナライザ・検出器に応用すると、焦点条件は次のようになる。

$$\left. \begin{aligned} \tan \alpha_S &= \frac{1}{2} (1 + p) \cot \theta_A \\ \tan \alpha_D &= \frac{1}{2} \left(1 + \frac{1}{p}\right) \cot \theta_A \\ \tan \alpha_A &= \left[4 \tan \theta_A + \left(2 + p + \frac{1}{p}\right) \cot \theta_A \right] \\ &\quad / \left(\frac{1}{p} - p\right) \end{aligned} \right\} (8)$$

但しここに $p \equiv L_3 / L_2$ であり、 α_S 、 α_D 、 α_A は第2図に示す如く、それぞれの面ベクトル $\vec{\rho}$ と中性

子ビームあるいはアナライザの散乱ベクトルとのなす角である。特に $L_2 = L_3$ に選ぶと、以下に述べるように極めて都合のよい結果が得られることがわかる。まず $p = L_3 / L_2 = 1$ なる関係を(8)式に入れると

$$\left. \begin{aligned} \tan \alpha_S &= \cot \theta_A \\ \tan \alpha_D &= \cot \theta_A \\ \tan \alpha_A &\rightarrow \infty \end{aligned} \right\} (9)$$

となり、これより次の時間焦点条件を得る。

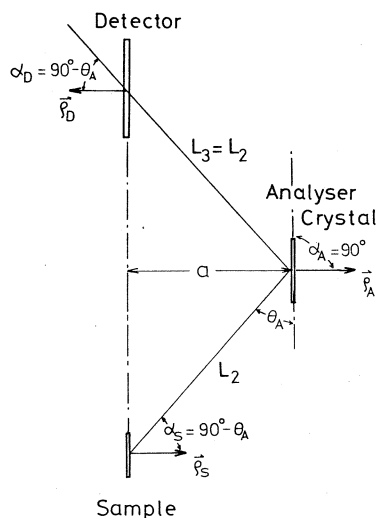
$$\left. \begin{aligned} \alpha_S = \alpha_D &= 90^\circ - \theta_A \\ \alpha_A &= 90^\circ \end{aligned} \right\} (10)$$

この条件は第2図に示す如く、試料、アナライザ結晶、検出器の3者を平行に並べ、かつアナライザの面ベクトルをアナライザの散乱ベクトルと平行にすることを意味する。 $L_2 = L_3$ であるため検出器は試料と同一平面に並び、これとアナライザとの間の距離を a とすると

$$L_2 = L_3 = \frac{a}{\sin \theta_A} \quad (11)$$

なる関係が存在する。(1)および(11)式を(2)式に入れると、 λ_i は次式の如く v_3 には依存しなくなる。

$$\lambda_i = \frac{h}{mL_1} \left(t - \frac{L_2 + L_3}{v_3} \right)$$



第2図 $L_2 = L_3$ クリスタル・アナライザの時間焦点条件。

$$\begin{aligned}
 &= \frac{h}{mL_1} \left(t - 2a \cdot \frac{m}{h} \lambda_s \right) \\
 &= \frac{h}{mL_1} \left(t - \frac{m}{h} \cdot 4ad \right)
 \end{aligned} \tag{12}$$

この λ_i を用いて ΔE を求めると次のようになる。

$$\begin{aligned}
 \Delta E = m \{ &v_3^4 \cot^2 \theta_A [(\Delta 2\theta)^2 + \beta^2] + \left(\frac{v_1^2}{L_1} \right)^2 (\Delta L_1)^2 \\
 &+ \left(\frac{4md}{h} \frac{v_1^3}{L_1} \right)^2 (\Delta a)^2 + \left(\frac{v_1^3}{L_1} \right)^2 (\Delta t_b^2 + \Delta t_m^2 + \Delta t_c^2) \}^{\frac{1}{2}}
 \end{aligned} \tag{13}$$

以上より、時間焦点型結晶・アナライザーは次のような利点を有することがわかる。

- (i) 時間焦点が実現されると、分解能 ΔE は、最も寄与の大きい(5)式第1項後半が零となるため(13)式参照)、著しく改善される。
- (ii) 試料及びモデレーターを入射ビームに対して垂直に置くため第2項の寄与を最小にできる。
- (iii) $\alpha_A = 90^\circ$ の条件は、アナライザーの面が、結晶のネットプレーンに平行であることを意味し、パイロリティック・グラファイトの使用を可能にする。これにより計数効率の高い分光器の設計が可能となる。

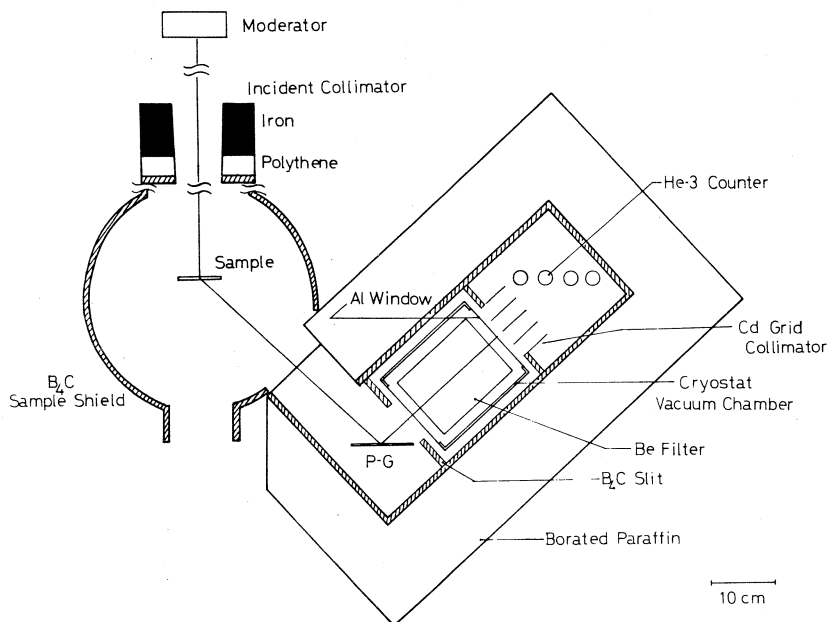
§ 3. 分光器の設計

第3図は試作された結晶・アナライザー型中性子分光器の概念図である。分光器は核理研パルス中性子源のH1実験孔出口に置かれた。 L_1 は6~10mの範囲で可変である。通常は $L_1 = 5.874$ mで用いられる。ビームの断面積は実験孔出口で $7 \text{ cm}^W \times 10 \text{ cm}^H$ にコリメートしてある。

試料は通常 $8.5 \text{ cm}^W \times 11 \text{ cm}^H$ のAl製容器に入れられ、ビームに垂直に置かれる。試料の厚さは散乱が約10%となるように選ばれる。試料まわりには、低温または高温での実験が可能となるよう、クライオスタットまたは炉が設置できるよう空間が残してある。

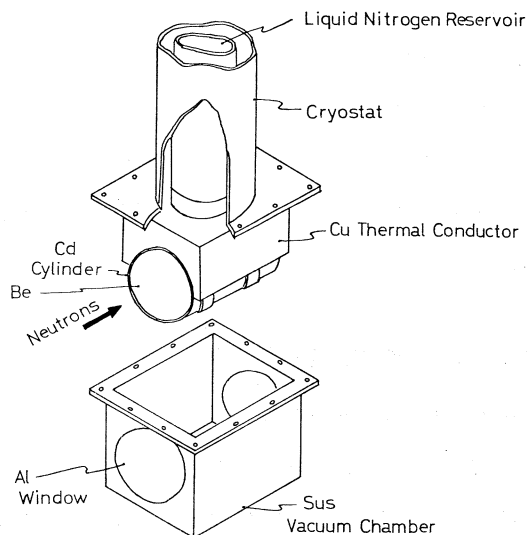
アナライザー結晶には、高い反射率が望ましいので、パイロリティック・グラファイトを選び、モザイクのひろがりとしては系のコリメーション $\Delta 2\theta$ が十分大きいので、 $\beta = 3.5^\circ$ 、厚さ5 mmのものを用いた。アナライザーの寸法は、後に述べるフィルターの大きさから、 $10 \text{ cm} \times 10 \text{ cm}$ とし、簡単なゴニオメーターの上に設置した。

(002) 反射を用い、それ以外の高次の反射は、液体窒素温度に冷却されたBeフィルター



第3図 分光器の概念図。

をアナライザ・結晶・検出器間に置いて、これを除去する方式とした。フィルターは $11\text{ cm}^{\phi} \times 15\text{ cm}^{\text{L}}$ の金属ベリリウム焼結体で、中性子ビームは円筒軸方向に通される。フィルターを冷却するため、第4図のようなクライオスタットが試作された。フィルターの円筒面は 0.5 mm 厚の Cd 板で巻かれ、Cu ブロックがその上半分を抱く構造で液体窒素溜りに結合される。ラディエーション・シールドのため、Al 製のクッキングフォイルで Be フィルターおよび Cu ブロックをラッピングしただけで、十分にフィルターを 77 K に保つことができた。この温度における Be フィルターの 4 meV 中性子に対する透過率の実測値は 83% であった。



第4図 冷 Be フィルターの概念図。

高次の反射が多重散乱によりフィルターを通し検出器に入る確率をできるだけ小さくする

ため、フィルター・検出器間に Cd 製のグリッド・コリメーターを置いた。コリメーターは長さ 5 cm で、縦横 2.5 cm に仕切られている。この種のコリメーターによる Be カット・オフ以下の中性子に対する損失は大きくないことが知られている²⁾。

アナライザーのブラッグ角 θ_A は、 $E_s + \Delta E_s$ が Be のカット・オフ・エネルギー (5 meV) より小さくなるよう選ばなければならない。計数率を稼ぐため ΔE_s をできるだけ大きく $\Delta E_s \sim 1$ meV とすると、 $E_s = 4$ meV となり、パイロリティック・グラファイトの (002) 反射に対しては、 $2d \frac{E_s}{\hbar c} = 6.71 \text{ \AA}$ であるので (1) 式より $2\theta_A = 85^\circ$ となる。

中性子検出器は、まず第 1 に分解能の点でできるだけ厚さの小さいものであることが望ましい。これは試料およびアナライザー結晶の厚さが一般に小さく、(13) 式第 3 項の Δa はほとんど検出器厚さにより決まるためである。L₁ グラス・シンチレーターを用いると、十分 Δa を小さくできるが、バック・グラウンド・カウントを小さくできない欠点があるので、通常の、He-3 比例計数管を使用することとした。管径は 1/2 インチ以下が望まれるが、当面既存の 1" ϕ \times 6" L, 10 気圧のものを用い、将来管径の小さいものと交換することとした。検出器効率は E_s において十分高く、逆に熱外中性子領域では十分低いことが SN 比を稼ぐうえで重要である。このような立場からは、He-3 封入ガス圧は 1" ϕ 管では約 2 気圧、1/2" ϕ 管では約 4 気圧であることが望ましい。実際に用いられたのは、既存の 10 気圧管であった。He-3 比例計数管は Al 製のカウンター支持枠に取付けられ、時間焦点条件を満足するように並べられた。

アナライザー結晶・Be フィルター・コリメーター・検出器系は第 3 図の如く 1 つの遮蔽箱にまとめられた。1 cm 厚の B₄C 粉末層を内側に張り、12 cm 厚のパラフィンでその外側を囲んである。

§ 4. 分光器の性能と測定例

4.1 エネルギー分解能

さて、(13) 式を用い、エネルギー分解能 $\Delta E/E$ を具体的設計条件で求めてみると、第 5 図の如くなる。図には現実と同じの $L_1 = 5.874$ m, $a = 26$ cm, $2\theta_A = 85^\circ$, $\Delta t_c = 8 \mu\text{sec}$, 1" ϕ He-3 カウンターを用いた時の値と、今後の改良の参考のため、検出器直径を 1/2" に減した時の値、さらにチャンネル幅も $\Delta t_c = 4 \mu\text{sec}$ に改善した時の値があわせて示してある。図中 ΔE_s , $((\Delta t_p)^2 + (\Delta t_m)^2)^{1/2}$, Δt_c , Δt_3 の記号の付してある曲線は、それぞれの記号に対応するばけの $\Delta E/E$ への寄与を示している。以上の計算において、電子ライナックのパルス幅は $\Delta t_p = 2 \mu\text{sec}$ とし、モデレーターによるパルス幅のひろがり Δt_m については、核

理研パルス中性子源のモデレータを4 cm厚の常温のH₂Oスラブと同じと仮定し、実測値^{6,7)}を用いて求めた。また ΔE_s については弾性散乱ピークの実測値より求めた。

(13)式の第3項は、ほとんど検出器の有限の厚さによる飛行時間のばけ Δt_3 で決まるが、これは円筒型検出器中での検出位置の分布(検出器直径, He-3封入ガス圧に依存)を計算して求められた。 $\Delta t_c = 8 \mu\text{sec}$, 1"φ検出器使用の時(現実)のエネルギー分解能は $\Delta E/E = 2.5 \sim 4\%$ で、Be-BeOフィルター・デファランス法で

実現された値7~15%²⁾に比べ格段によく、また従来のクリスタル・アナライザー法による報告値6~8.5%³⁾に比べても1/2以下である。また第5図は、将来、検出器直径を1/2"に、そしてチャンネル幅を4 μsecにすることにより、 $\Delta E/E$ の値を2~2.5%とさらに改善することが容易であることを示している。また図には示されていないが、 L_1 を約2倍にすることにより、この分光器はそのままで、 $\Delta E/E$ をさらにその半分くらいに改善することもできる。

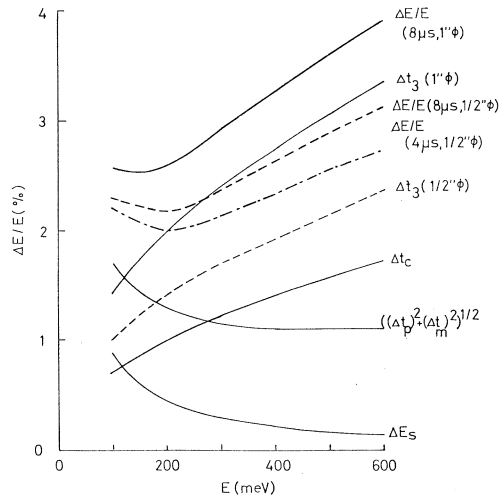
4.2 高次反射によるもれ

Beのカット・オフ・エネルギー以上で、フィルター中での多重散乱により、アナライザー結晶による高次反射の中性子が検出器に到達する割合は、できるだけ小さいことが望ましい。前節で述べたBeフィルター・グリッドコリメーター系で実測した結果、もれは $0.7 \sim 1 \times 10^{-3}$ であった。この値は文献(2)における値 $2 \sim 4 \times 10^{-3}$ よりもかなりよい。これはフィルターの高さが、われわれの場合、後者における35 cmに比べかなり小さいので(11 cm φ)、多重散乱の確率が小さくなったためと考えられる。

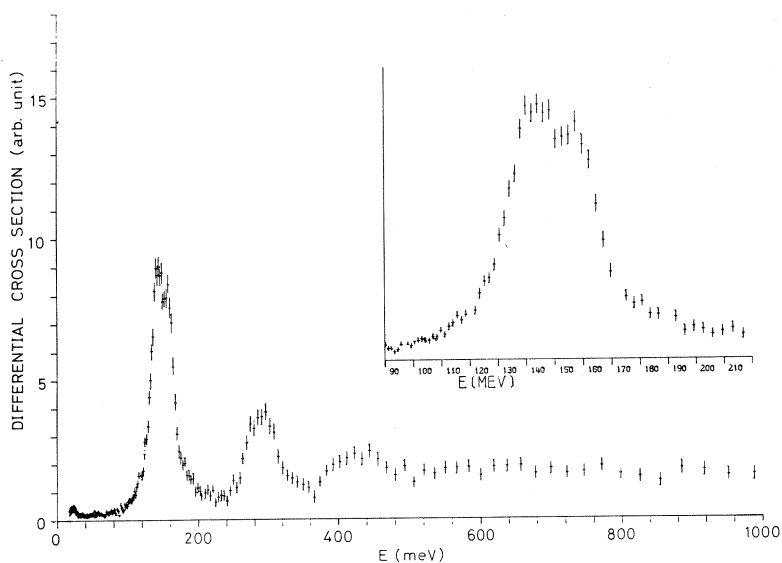
4.3 TiH₂およびTaH_{0.5}の局在モードの測定

本分光器の性能を調べるため、従来いくつかの測定データのあるTiH₂⁸⁻¹²⁾およびTaH_{0.5}¹⁴⁾の局在モードについて、室温粉末試料による測定を試みた。

第6図はTiH₂の測定結果で、微分断面の形で示してある。まず、局在モードが第3ピークまできれいに分離観測されており、 $E = 500 \sim 600 \text{ meV}$ までの測定は十分可能であることを示している。また生データのSN比も非常によく、計数効率も図に示される程度の微分断面



第5図 エネルギー分解能の計算値。



第6図 TiH₂ (室温) 局在モードのエネルギー・スペクトル
挿入図は第1ピークの拡大図。

第1表 TiH₂ 局在モードの実測値の比較。

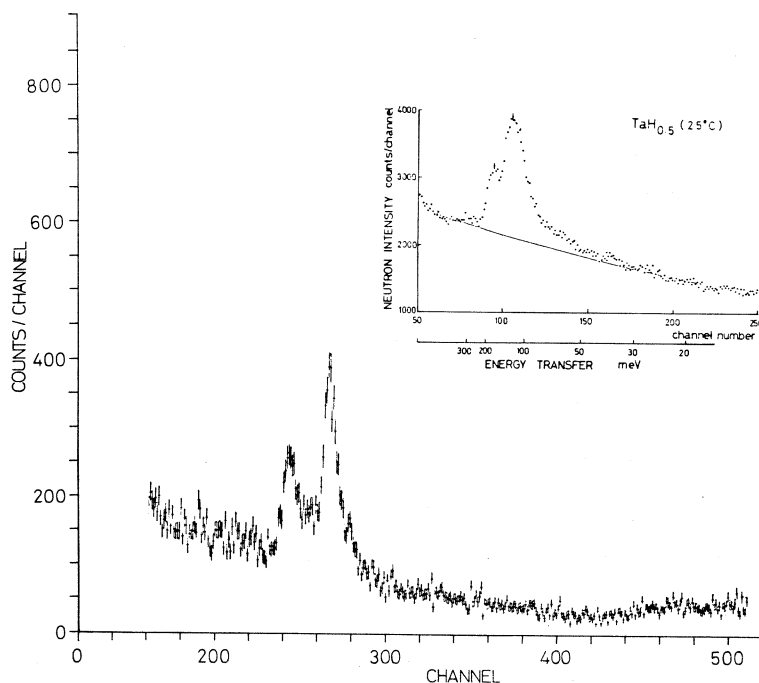
	Experimental	1st Level		2nd Level		3rd Level	
	Method	$\hbar\omega_0$	FWHM	$\hbar\omega_0$	FWHM	$\hbar\omega_0$	FWHM
Present	Time focusing crystal analyser	149±1	36±1	290±3	54±3	430±10	100±20
Purohit et al. ⁸⁾	Be-BeO filter difference ²⁾	145	40	~290			
Saunderson et al. ¹⁰⁾	Be filter	140±1.5	34				
McReynold et al. ¹¹⁾	Chopper	129±7					
Stalinski et al. ¹²⁾	Heat capacity	145					

注1. 単位は meV

2. Purohit の値は文献 8) の図より読みとったもの

積の統計を得るのに、測定時間は約1日で、十分満足できるものであった。まだデーター解析の途中ではあるが、ピークのエネルギーおよび半値巾について従来の結果と比べると、第1表の如くなる。第1ピークについては、エネルギー、半値幅ともに、かなり信頼できる Purohit

等⁸⁾やSaunderson等¹⁰⁾の結果とは一致している。第2,第3ピークについて眺めると,表から明らかな如く,エネルギーレベルは第1ピークの値のそれぞれ2倍,3倍とならず,わずかではあるがエネルギーの低い側にシフトしていることがわかる。このことは非調和性を考えるうえで重要な情報で,今後詳しく調べられる予定である。第1ピークの形については,アインシュタイン型振動を支持するガウス型とはならず,水素,水素相互作用のため変形ガウス型となることが報告されている⁸⁾。本実験の結果は第6図の挿入部に拡大して示されている如く第1ピークは明らかに2つのピークに分裂していることを注目されたい。第1ピークにこのような微細構造がみられることについては,ZrH_x系について高分解能回転結晶型中性子分光器によるCouch等¹³⁾の報告があるが,TiH₂についても,類似の現象が観測されたものと思われる。このことは本分光器のエネルギー分解能が非常によいことを示すものであるとともに,この種の実測を今後さらに進めることにより,水素・水素相互作用や金属・水素間の力について理論モデルとの比較検討が進められると考えている。



第7図 TaH_{0.5}(室温)のTOFスペクトル。挿入図は逆フィルター法による従来⁴⁾の結果

次に第7図はTaH_{0.5}についての測定結果を生データで示したもので,従来の逆フィルター法による結果⁴⁾と比較してある。TaH_x系では四面体対称性のため約120 meVと約170 meVに2つの局在モードが存在するが¹⁴⁾,これがきれいに分離されている。この分光器を用いるこ

とにより TaH_x系の局在モードが詳細に調べられるようになったが、その結果については文献15に述べる。

参 考 文 献

- 1) F.J. Webb : Harwell Report AERE -R 4263 (1965).
- 2) S. S. Pan, F. J. Webb and M. L. Yeater : Nucl. Instrum. & Methods **42** (1966) 197.
- 3) D. H. Day and R. N. Sinclair : U. K. AEA Research Group Report AERE - R 6717 (1971).
- 4) J. M. Carpenter, D. L. Price and N. J. Swanson, ed.: ANL - 78 - 88 (1978) 211.
- 5) A. Holas : Nukleonika **13** (1968) 871.
- 6) R. G. Fluharty, F. B. Simpson, G. J. Russel, J. H. Mentzel : Nucl. Sci. Engng. **35** (1969) 45.
- 7) N. Watanabe, M. Kimura and H. Takahashi : EURATOM Report EUR - 4954 e (1973) 255.
- 8) S. N. Purohit *et al.*: *Neutron Thermalization and Reactor Spectra* (IAEA Vienna, 1968) Vol. 1, p. 407.
- 9) 木村一治, 高橋文信, 渡辺昇, 小山田正幸, 山田幸男, 富吉昇一, 窪田健雄 : 核理研究報告 **2**, No. 2 (1970) 65.
- 10) D. H. Saunderson *et al.*: *Inelastic Scattering of Neutrons in Solid and Liquids* (IAEA Vienna, 1963) Vol. 2, p. 265.
- 11) A. W. McReynold *et al.*: *Inelastic Scattering of Neutrons in Solid and Liquids* (IAEA Vienna, 1961) p. 511.
- 12) B. Stalinski *et al.*: Bull. Acad. Pol. Sci. Ser. Sci. Chim **8** (1960) 243.
- 13) G. J. Couch, O. K. Harling and L. C. Clune : Phys. Rev. **B4** (1971) 2675.
- 14) R. Yamada, N. Watanabe, K. Sato, H. Asano and M. Hirabayashi : J. Phys. Soc. Japan **41** (1976) 85.
- 15) 古坂道弘, 渡辺昇, 浅野肇 : 核理研究報告 **12** (1979) 83.

TaH_x の局在モード

理学部物理, 核理研*, 金研**

古坂道弘・渡辺 昇*・浅野 肇**

熱外中性子領域 (≥ 0.1 eV) において, 中性子非弾性散乱が高分解能で得られるように設計されたクリスタル・アナライザー型分光器¹⁾を用い, TaH_x ($x=0.15, 0.50, 0.60, 0.69$) の粉末試料による金属中の水素の局在モードの測定を行い, その温度変化を測定した。その結果, 約 120 meV と約 170 meV の 2 つの局在モードによるピークが, 従来の測定に比べ非常に高い分解能で得られた。そして, 従来見られなかった, 水素の規則-不規則型相転移にともなう, 局在モードのエネルギー, 幅の変化が観測された。またその形はローレンツ型であることが確認された。

§ 1. 緒 言

金属水素化合物については, 従来からいろいろな興味で研究が行われてきた。例えば, 水素エネルギー貯蔵, 運搬の手段として²⁾, また原子炉材料, 耐熱材料における, 金属中の不純物原子の問題として関心が持たれてきた³⁾。

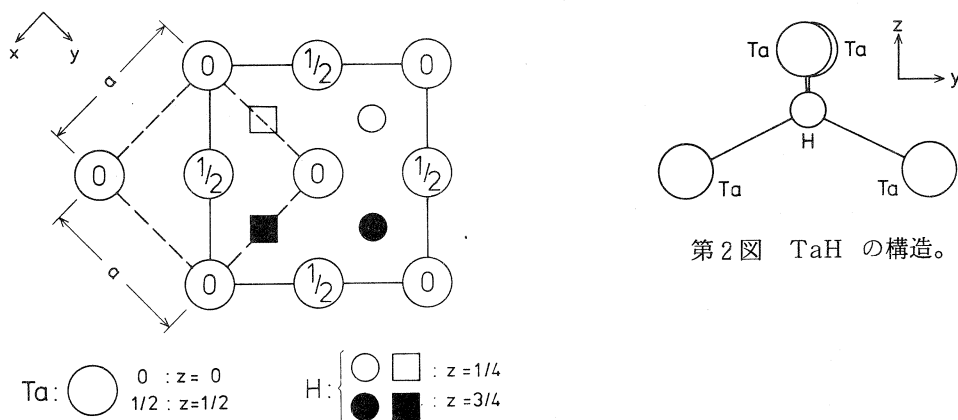
金属水素化合物のミクロな構造の研究には, 中性子散乱が最も有力で, 重水素に置換した試料を用いた中性子回折による水素原子の位置の決定^{4, 5)}や, 中性子準弾性散乱による金属中の水素原子の拡散機構の研究⁶⁻⁸⁾等が数多くなされてきた。一方金属水素化合物の格子振動の研究^{6, 9, 10)}は超伝導体の研究のうえからも多くの関心が持たれ, PdD系については分散関係の測定もある。^{6, 11)}

これらに対して, 金属中の水素の局在モードに関しては, 振動のエネルギーが非常に高く (100 ~ 200 meV), 中性子強度が弱くなる領域であり, 分解能を上げる事も困難であったために, あまり多くの研究はない。TaH_x系については従来エネルギー分解能のあまり良くない逆フィルター法による測定があるが^{12, 13)}, 水素の局在モードの振動数やピーク幅については, あまり詳細に論じることはできなかった。そこで我々は, 新たに開発した高分解能クリスタル・アナライザー型中性子分光器¹⁾を用い, 同じく TaH_x 系について, 水素の局在モードの温度, 組成による変化を測定した。この結果, 従来ほとんど測定にかからなかった局在モードの振動

数やピークの幅が、温度、組成により顕著に変化しているのが確認された。

§ 2. TaH_x の構造および状態図

TaH_xは第1図に示す様な構造をしており¹⁴⁾、水素はz方向に $1/\sqrt{2}$ だけつぶれた、いわゆる四面体位置に入り、侵入型の化合物となる。(図中点線は、Ta原子のbcc構造を示す。) 第2図は1個の水素原子を囲む4個のTa原子で構成される四面体を表わしたもので、z方向の



第1図 TaHの構造。

距離が、x、y方向のそれに比べて、 $1/\sqrt{2}$ だけ縮んだ構造をしている。

TaH_xの状態図¹⁴⁾を第3図に示す。高温側ではα相と呼ばれる不規則相で、第1図の様にfcc的にとった単位胞において、水素は各辺を1に取った単位で $(1/4, 1/4, 1/4)$ 、 $(1/4, 1/4, 3/4)$ 、 $(1/4, 3/4, 1/4)$ 、 $(1/4, 3/4, 3/4)$ 、 $(3/4, 1/4, 1/4)$ 、 $(3/4, 1/4, 3/4)$ 、 $(3/4, 3/4, 1/4)$ 、 $(3/4, 3/4, 3/4)$ の計8つの四面体位置を統計的に占める。

低温側では規則相になり、 β_1 、 β_2 、 δ 、 r 相等が識別されている。 β_1 相はTa₂Hの近傍で存在し、これより水素の少ない側では、水素は第1図の○、●の2つの位置を統計的に占め、また水素の多い側では○、●の2つの位置をすべて占め、残りの水素は□、■の2つの位置を統計的に占めることが知られている¹⁴⁾。 β_2 相は良く分っていない。 δ 相はTaHの近傍で存在し、水素は○、●、□、■の4つの位置を統計的に占める。 r 相は-60°C以下で現われる。規則相と不規則相の間には2相領域が存在する¹⁴⁾。

測定は第3図に●で示す様に規則相、不規則相の数点について行った。

§ 3. 試料, 測定

TaH_xの粉末試料は次の様にして準備した。まずTaを電子ビーム溶解した後に圧延し、板状にしたTaに水素を吸わせ、もろくなったTaを粉末状にした後に、900℃で1時間、真空中で焼鈍し、あらためて、温度、圧力を調節して、定量した気体水素をTaに吸収させた。組成は定量した水素の量とTaの質量とから決定され、過去のX線等の測定により、この様にして決められた組成は正確なものであることが知られている。

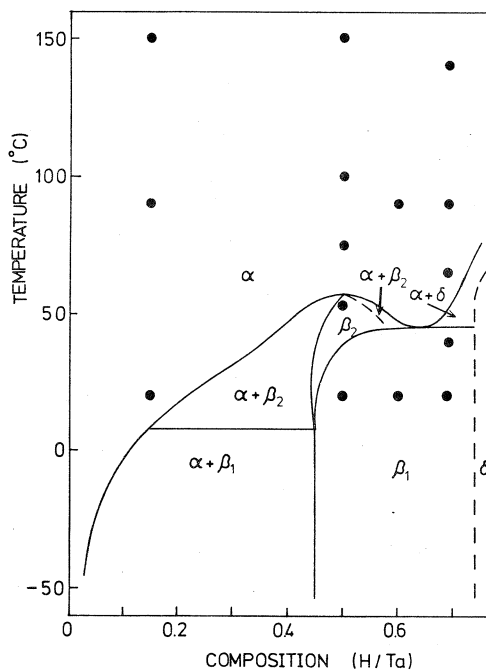
作成した試料はTaH_x (x = 0.15, 0.50, 0.60, 0.69) の4つの組成である。

試料の厚さは入射中性子の約10%が散乱される様に調整され、TaH_{0.15}では5mm厚、その他についてはすべて3mm厚とし、8.5×11cmになる様にアルミニウム製の試料容器に入れた。

測定は核理研パルス中性子源に新たに設置されたクリスタル・アナライザ型中性子分光器で行われた。測定時間は1試料、温度当たり約20時間であった。

§ 4. 補 正

実験で得られたTOFスペクトルから、以下に述べる様な補正を行い、振動数分布 $g(\bar{n}w)$ を導出した。まず試料のない状態でのバックグラウンドは空の試料容器の測定から求められ、生データから差し引かれた。次に試料による中性子の吸収補正を行った。またBeフィルターを通過するアナライザ結晶の高次の反射の寄与を求め、その補正を行った。入射中性子スペクトルは試料位置に直接検出器を置いて得られたスペクトルを検出器効率で補正することにより求められた。この測定では検出器の飽和を防ぐために、小さな焼結B₄Cスリットを検出器の直前に置いた。微分断面積は補正されたスペクトルを入射スペクトルで正規化することにより得られる。



第3図 TaHの状態図。
●は測定点を示す。

$$I(t) \propto I_0(t - t_{20}) \frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE} \quad (1)$$

$I(t)$ は観測されたTOFスペクトルである。 $I_0(t - t_{20})$ は入射スペクトルで、中性子が試料で散乱されてから、検出器に達するまでの時間 t_{20} の分だけ時間をずらしてある。

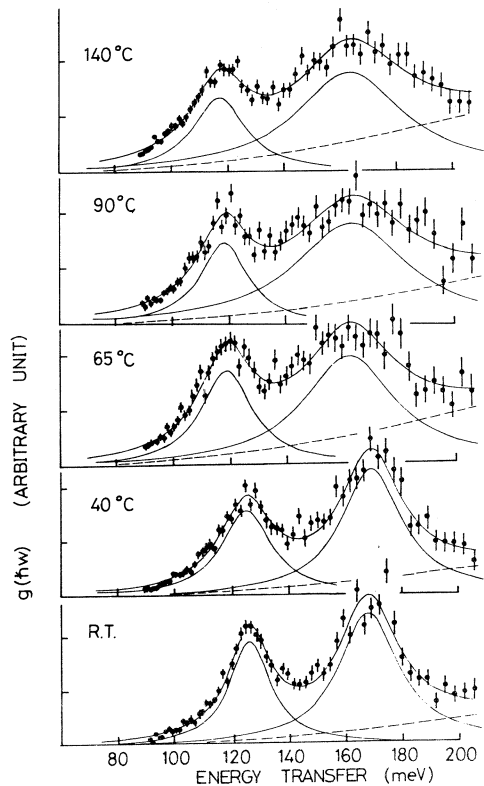
さて非干渉性非弾性散乱に対する微分断面積から近似的な振動数分布 $g(\hbar\omega)$ を文献(13)に述べられている方法で求めた。

§ 5. 結果および考察

TaH_{0.69} の試料について得られた各温度に対する $g(\hbar\omega)$ を第4図に示す。約45°C以下では β_1 と呼ばれる規則相で、約45°C~約55°Cまでは二相領域、約55°C以上では α と呼ばれる不規則相である。120 meV 付近と170 meV 付近に従来から確認されている2つの水素の局性モードのピークが、きれいに分離されて見られる。調和振動子近似のもとで、中心力モデルで考えると、これらの振動数の比が

$$\omega_{w,y} : \omega_z = \sqrt{2} : 1 \quad (2)$$

となることから、120 meV 付近のピークが z 方向の振動に、170 meV 付近のピークは x, y 方向の2つの振動モードが縮退したものに对应していると考えられている¹³⁾。この仮定に立てば2つの振動モードが縮退している170 meV 付近のピークは、120 meV のピークに対して2倍の強度を持つはずであり、今回の測定では大体この関係を満している。



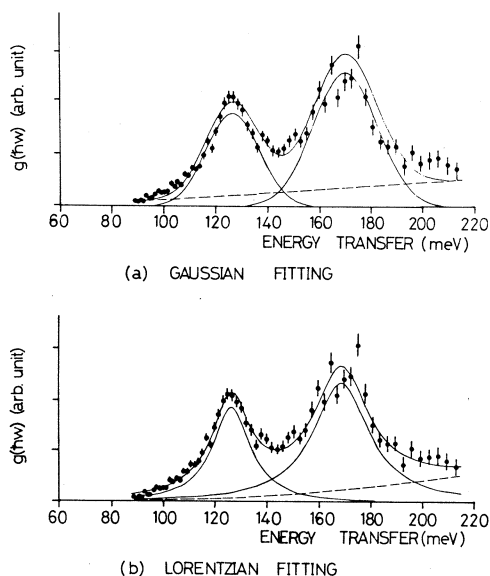
第4図 TaH_{0.69} の各温度における $g(\hbar\omega)$ 。

第5図は得られた $g(\hbar\omega)$ を2つのガウス関数あるいはローレンツ関数でフィッティングしたもので、従来の様なガウス型ではうまくフィットできず(図(a)),むしろ(b)に示す様にローレンツ型になっていることが分る(図中,右上りの破線は多重散乱による寄与の推定値である)。

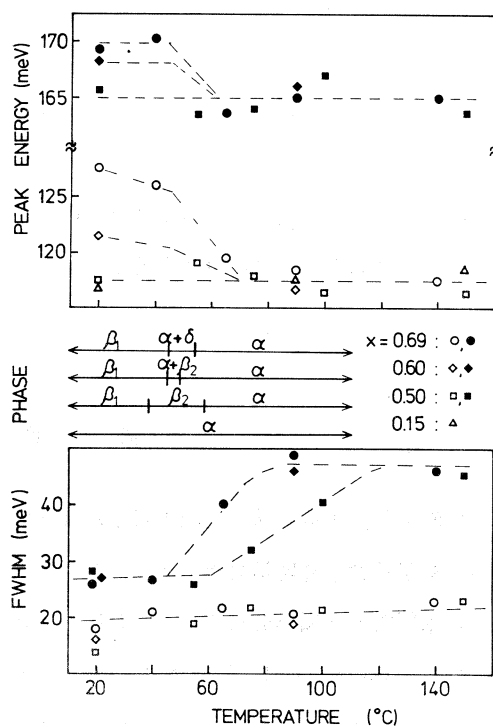
従来ガウス型でフィットできたのは、装置のエネルギー分解能が局在モードの自然幅に比べて悪かったためと判断される。本測定では装置の分解能が無視できる位に改善されているため、第5図のスペクトルは、局在モードをそのまま観測しているといえる。ローレンツ関数になるのは弱い非調和性を持っているためであり、その幅が局在モードの振動の寿命を表わしていると考えられる。また、もし局在モードの分散が無視できないとすれば、 $g(\hbar\omega)$ はローレンツ関数の様な単純な形を取らず、もっと複雑な形になると考えられるので、局在モードの分散は、その幅に比べて無視できると考えられる。しかし、170 meV 付近のピークでは、この様な仮定が厳密には成立せず、 $g(\hbar\omega)$ に微細構造が少し見えているように思われる。

第4図を見ても分かる様に、局在モードのエネルギー、幅が温度変化していることが分った。第6図にこれらをまとめて示してある。TaH_{0.15}については、試料による中性子の吸収が強いため、あまり厚くできなかったもので、統計があまりよくない。そこで比較的正確に決定できる約 120 meV のピ

第6図 TaH_x ($x=0.15, 0.5, 0.6, 0.69$) の局在モードのエネルギー、幅の温度変化。白抜き記号は 120 meV 付近の、黒塗りの記号は 170 meV 付近のピークに関するもの。点線は単に見やすくするためのもの。



第5図 TaH_{0.69}における $g(\hbar\omega)$ のフィッティング。(a)ガウス曲線によるもの、(b)ローレンツ曲線によるもの。



ーク位置だけを図に示し、その他についてはこの図からは省略した。まずピーク的位置については、120 meV 付近のピークは、 $x = 0.5$ 以下の組成ではほとんど温度変化がみられない。これに対して、それ以上の組成の試料では高温側（不規則相）ではほとんど変化せず、前者と同じ位の値をとるが、低温側（規則相）では著しい組成変化を示している。これは定性的に考えると、 $x = 0.5$ 以下の規則相では、水素は第 1 図における○、●を統計的に占めるために、Ta原子は外側へ押しやられ、水素の入っていない□、■の方へ少し移動する¹⁶⁾。これに対し、 $x = 0.5$ 以上では□、■に余剰水素が入り込むため、Ta原子はこの様な移動を行えず、結果的に Ta-H間の距離が小さくなり、局在モードのエネルギーが高くなると思われるが、定量的な議論は目下進行中である。170 meV 付近のピークに対しても同じ様な変化が見られるが、エネルギーの変化量に対して、幅が大きいこと、統計誤差が大きいこと等の原因で前者に比べ誤差が大きくなっている。

次に幅の変化を見ると、120 meV 付近のピークの幅は温度とともに、少し幅が広がる傾向にあるが、これは弱い非調和振動の一般的特徴といえる。これに対し、170 meV 付近の幅は相転移にともない急激に広がる。相転移にともなうこのような急激な変化は、電気抵抗の測定¹⁷⁾でも報告されており、これら物性との関連でも興味がある。前に述べたように、それぞれのピークは振動の方向が違っていると考えられ、このように方向によって振動の減衰の仕方に大きな違いのあることは非常に興味深い。水素-水素相互作用の方向依存性が反映されているものと思われる。水素の拡散の方向による違いにも関連している可能性がある。

帯磁率¹⁸⁾、あるいは前に述べたように電気抵抗等、他の物性との関連については今後の研究課題である。また室温以下の温度で局在モードがどのように観測されるかも関心のもたれるところで、低温での実験が目下準備されている。

参 考 文 献

- 1) 渡辺昇, 古坂道弘, 三沢正勝: 核理研研究報告 **12** (1979) 72.
- 2) 神田英蔵: 金属学会セミナー, 金属と水素 (1974) 1.
- 3) 木村宏: 金属学会セミナー, 金属と水素 (1974) 14.
- 4) H. Asano and M. Hirabayashi: Phys. Stat. Sol.(a) **15** (1973) 267.
- 5) H. Asano, Y. Ishino, R. Yamada and M. Hirabayashi: J. Solid State

- Chem. **15** (1975) 45.
- 6) J. M. Rowe: *Proc. Conf. Neutron Scattering*. (Gatlinburg, 1976) 491.
 - 7) J. J. Rush, R. C. Livingston, L. A. de Graaf, H. E. Flotow and J. M. Rowe : J. Chem. Phys. **59** (1973) 6570.
 - 8) N. Stump, W. Gissler and R. Rubin: Phys. Stat. Sol. (b) **54** (1972) 295.
 - 9) J. M. Rowe: Solid state Comm. **11** (1972) 1299.
 - 10) J. M. Rowe, J. J. Rush and H. E. Flotow: Phys. Rev. Lett. **33** (1974) 1297.
 - 11) P. Hertel: Z. Physik **268** (1974) 111.
 - 12) 山田礼司, 浅野肇, 平林真: 核理研研究報告 **5** (1972) 98.
 - 13) R. Yamada, N. Watanabe, K. Sato, H. Asano and M. Hirabayashi: J. Phys. Soc. Japan **41** (1976) 85.
 - 14) H. Asano, R. Yamada and M. Hirabayashi: Trans. JIM **18** (1977) 155.
 - 15) V. F. Turchin: *Slow Neutrons, Israel Program for Scientific Translations* (Sivan Press, Jerusalem, 1965) 150.
 - 16) H. Asano, Y. Ishikawa and M. Hirabayashi: J. Appl. Cryst. **11** (1978) 681.
 - 17) T. G. Berlincourt and P. W. Bickel: Phys. Rev. **B2** (1970) 4838.
 - 18) U. Köbler and T. Schober: J. Less Com. Metals. **60** (1978) 101.

Quasielastic Neutron Scattering of $\text{Tl}_2\text{Te}-\text{Tl}$ Liquids near Immiscibility Gap

Shigeharu UKAI, Kenzo KAI and Kenji SUZUKI

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

§ 1. Introduction

The Tl-Te liquid system is one of the most interesting binary liquids, because there is a compound Tl_2Te with semiconducting properties which is stable only in the liquid state and the miscibility gap as well as the metal-semiconductor transition appears in the range between Tl_2Te and Tl.

Currently Hoshino *et al.*¹⁾ have measured the quite precise two liquid phases separation curve in the $\text{Tl}_2\text{Te}-\text{Tl}$ phase diagram, which has the consolute point at 80.7 at % Tl and 583.3°C as shown in Fig. 1. The concentration fluctuation in the $\text{Tl}_2\text{Te}-\text{Tl}$ liquid system has been investigated so far from the thermodynamical point of view by Nakamura and Shimoji²⁾.

The aim of this work is to examine the atomic scale mechanism of the phase separation and concentration fluctuation in the $\text{Tl}_2\text{Te}-\text{Tl}$ liquid system by the measurement of the quasielastic neutron scattering cross section so as to get a good insight into the macroscopic characteristics of the $\text{Tl}_2\text{Te}-\text{Tl}$ liquid system.

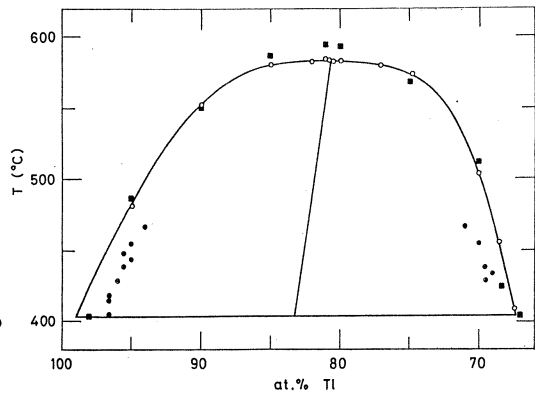


Fig. 1 Phase diagram of $\text{Tl}_2\text{Te}-\text{Tl}$ liquid system¹⁾

§ 2. Theoretical Background

The observed neutron intensity for total scattering is the sum of the coherent

and incoherent scattering terms in single and multiple scattering events. Bhatia and Thornton³⁾ has expressed the coherent total single-scattering cross section $d\sigma(Q)/d\Omega|_{\text{coh}}$ for a binary system, by introducing the number(N) and concentration (C) correlations, as follows

$$\frac{d\sigma(Q)}{d\Omega}\Big|_{\text{coh}} = \langle b \rangle^2 S_{\text{NN}}(Q) + (\Delta b)^2 S_{\text{CC}}(Q) + 2\Delta b \langle b \rangle S_{\text{NC}}(Q) , \quad (1)$$

where Q is the scattering vector ($= 4\pi \sin\theta / \lambda$, 2θ : scattering angle, λ : neutron wavelength), $\langle b \rangle = c_1 b_1 + c_2 b_2$, $\Delta b = |b_1 - b_2|$, c_i is the concentration fraction of i th atom, b_i is the coherent scattering amplitude of i -th nucleus, $S_{\text{NN}}(Q)$ is the number-number structure factor, $S_{\text{CC}}(Q)$ is the concentration-concentration structure factor and $S_{\text{NC}}(Q)$ is the number-concentration structure factor.

At the limit of $Q=0$, the eq. (1) approaches the thermodynamic expression connected directly to the fluctuations in the number and concentration of the system as follows

$$\frac{d\sigma(0)}{d\Omega}\Big|_{\text{coh}} = \langle b \rangle^2 \frac{(\Delta N)^2}{N} + \{ \langle b \rangle \delta - \Delta b \}^2 N (\Delta C)^2 , \quad (2)$$

where

$$\frac{(\Delta N)^2}{N} = \rho_0 kT \left(\chi_s - \chi_T \frac{C_p - C_v}{C_p} \right) , \quad (3)$$

$$(\Delta C)^2 = kT \left(\frac{\partial^2 G}{\partial^2 c} \right)_{\text{T.P.}}^{-1} , \quad (4)$$

$(\Delta N)^2$ and $(\Delta C)^2$ are the mean square fluctuations of the number and concentration in the system, $\delta = \rho_0 (v_1 - v_2)$, ρ_0 is the average number density of the system, v_i is the partial molar volume of i -th atom component, χ_s and χ_T are the adiabatic and isothermal compressibility, C_p and C_v are the constant pressure and volume specific heat and G is the Gibbs free energy of the system.

In the neighborhood of the consolute point for the binary liquid system such as $\text{Tl}_2\text{Te-Tl}$ liquid which is separated into two immiscible liquids far from the liquid-gas phase transition, the major contribution toward the coherent scattering cross section comes from the concentration fluctuation in the small Q region, while negligible from the number density fluctuation. With the increase of Q , however,

the inelastic scattering term due to the propagating contribution of sound waves becomes comparable to the concentration fluctuation contributing to the quasielastic scattering term. Therefore, it is necessary to discriminate between the inelastic and quasielastic scattering contribution in the coherent scattering cross section. In the present work, this discrimination was experimentally carried out by means of the time-of-flight energy analysis of the scattered neutrons and then the observed quasielastic scattering term in the cross section was approximately regarded as the total expression for the concentration fluctuation in $\text{Tl}_2\text{Te-Tl}$ liquid system.

§ 3. Experimental

The Tl-concentration of $\text{Tl}_2\text{Te-Tl}$ liquid samples used in this work and the temperature where their quasielastic neutron scattering cross sections were measured are shown in Table I. The measuring temperatures for the four samples of Te-71

Table I Tl-concentration, measuring temperature and concentration-concentration structure factor for $\text{Tl}_2\text{Te-Tl}$ liquids used in this study.

x	$T(^{\circ}\text{C})$	$[\langle b \rangle \delta - \Delta b]^2$	$S_{cc}(0)$
0.71	530	0.28	0.59
0.75	570	0.34	1.47
0.81	584	0.41	1.38
0.90	591	0.56	0.43
0.81	586	0.41	1.18
"	591	"	0.85
"	602	"	0.66
"	605	"	0.58

to 90 at % Tl liquid are immediately above the two liquid-phases separation curve¹⁾. The temperature dependence of the quasielastic scattering cross section was observed about the Te-81 at % Tl liquid which has the closest composition to the consolute point in the $\text{Tl}_2\text{Te-Tl}$ liquid system among the four samples.

After quenching into water the melt of weighted mixture of Tl (99.99%)

and Te (99.999%) contained in a conventional silica tube, the sample was sealed in vacua in the specially designed silica cylinder sample holder with 0.3 mm in wall thickness, 10 mm in inner-diameter and 100 mm in length. A pair of such sealed samples was vertically mounted at the sample position in the spectrometer. The temperature of the sample was controlled within $\pm 2^\circ\text{C}$ by the electric furnace specially designed for the heating elements not to interrupt the neutron beam in the flight paths. The sample and furnace were installed in the vacuum chamber so as to eliminate the air scattering contribution toward the observed T-O-F spectrum.

The T-O-F neutron spectrum $I(t, \theta)$ from the sample was measured by using the stationary-rotating paired crystals neutron spectrometer⁴⁾ installed on the pulsed neutron source from the Tohoku University 300 MeV electron LINAC. The three different kinds of wavelength for monochromatized incident pulsed neutrons, that is to say, $\lambda = 3.76, 1.88$ and 1.23 \AA , were used. He-3 counter bunches were located at the five scattering angles in the range from $2\theta = 3.5$ to 59° . Therefore, the Q range scanned in this work exists approximately between 0.1 and 5.0 \AA^{-1} .

As an example of typical experimental T-O-F spectra, the spectrum for Te-81

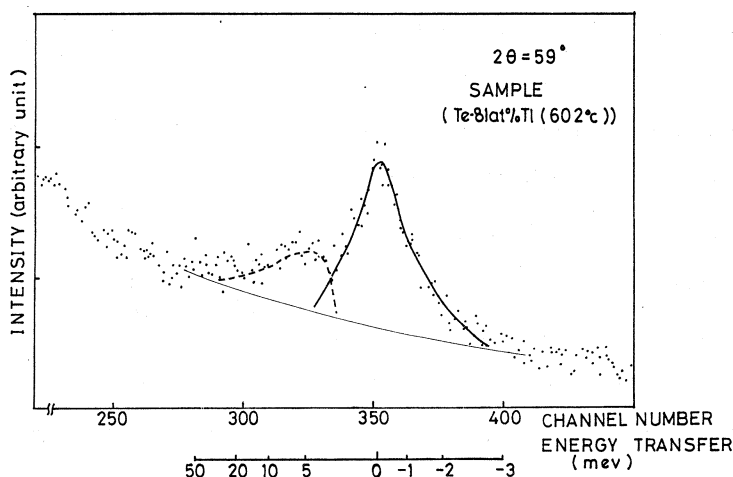


Fig. 2 T-O-F spectrum of neutrons scattered at $2\theta = 59^\circ$ from Te-81 at 1% Tl liquid at 602°C . Dashed line means inelastic scattering peak and solid line is quasielastic scattering peak.

at 1% Tl liquid observed at 602°C and $2\theta = 59^\circ$ is illustrated in Fig. 2. The dashed line in the figure means the inelastic scattering peak corresponding to the energy

gain in scattered neutrons. The quasielastic scattering cross section has been defined as the peak area under the solid line from which the dashed line inelastic scattering peak is subtracted. In order to make the peak intensity normalization, the scattering cross section for the vanadium metal bar having the same size to the $\text{Tl}_2\text{Te-Tl}$ liquid samples was measured as a standard sample. The multiple scattering and attenuation correction were applied by the conventional way as described in the previous paper⁵⁾.

§ 4. Results and Discussion

In the range of Q from 1.5 to 5.0 \AA^{-1} , the structure factors of $\text{Tl}_2\text{Te-Tl}$ liquids obtained from the quasielastic scattering cross section are well consistent with those observed by the conventional neutron diffraction method. As an example, the comparison between the $S(Q)$ of Te-81 at % Tl at 590 °C calculated from the quasielastic scattering cross section and that of Te-85 at % Tl 600 °C measured by T-O-F pulsed neutron diffraction⁶⁾ are shown in Fig. 3.

Figure 4 is the summary of the Tl-concentration dependence of the quasielastic scattering cross section in the low Q region less than 1.5 \AA^{-1} , so-called small angle scattering (SAS) intensity, at the temperature just above the phase separation curve. Figure 5 shows the temperature dependence of the quasielastic scatter-

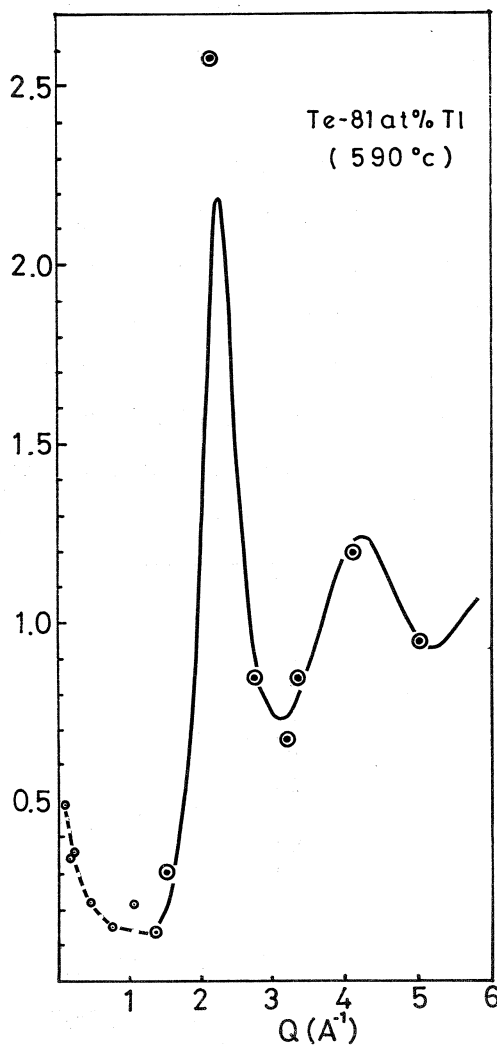


Fig. 3 Comparison between $S(Q)$ of Te-81 at % Tl at 590 °C calculated from quasielastic neutron scattering cross section (solid line) and that of Te-85 at % Tl at 600 °C measured by pulsed neutron diffraction⁶⁾ (double circle).

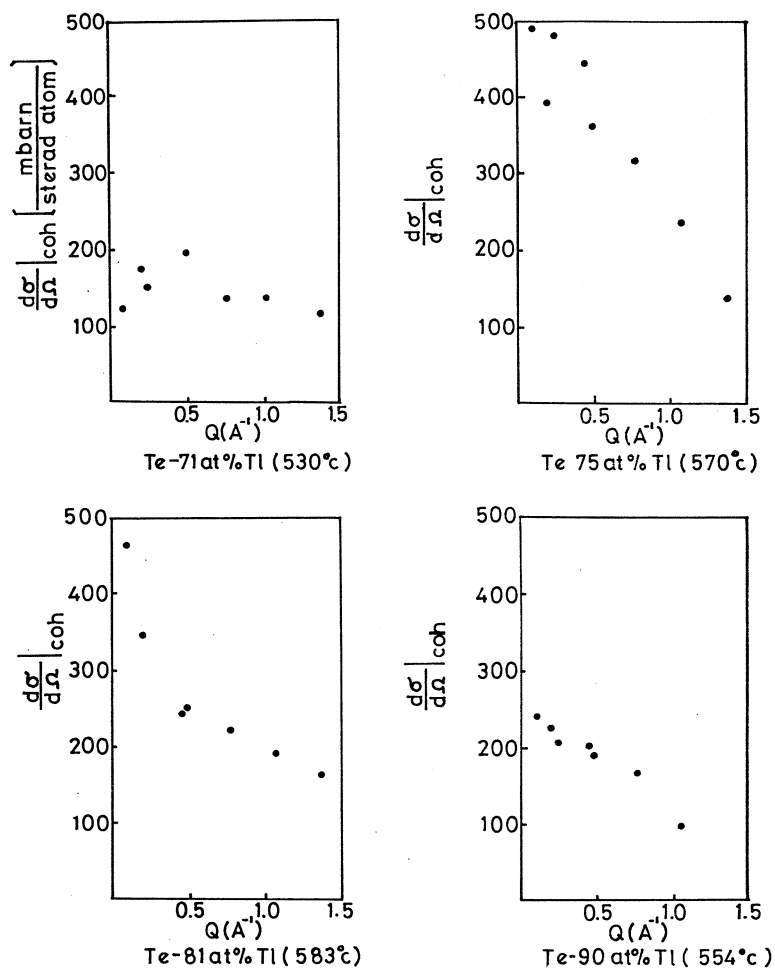


Fig. 4 Tl-concentration dependence of quasielastic neutron scattering cross section in low Q region for Tl_2Te -Tl liquids existing immediately above phase separation curve.

ing cross section in low Q region of Te-81 at% Tl liquid. From the both figures it is found that the SAS intensity from the Tl_2Te -Tl liquid system becomes maximum as approaching the consolute point.

Based on the Ornstein-Zernike theory concerning the correlation function in liquid near the liquid-gas critical point, Fisher⁷⁾ has obtained a formula approximating the scattering cross section due to the concentration fluctuation in binary liquid near the consolute point as follows

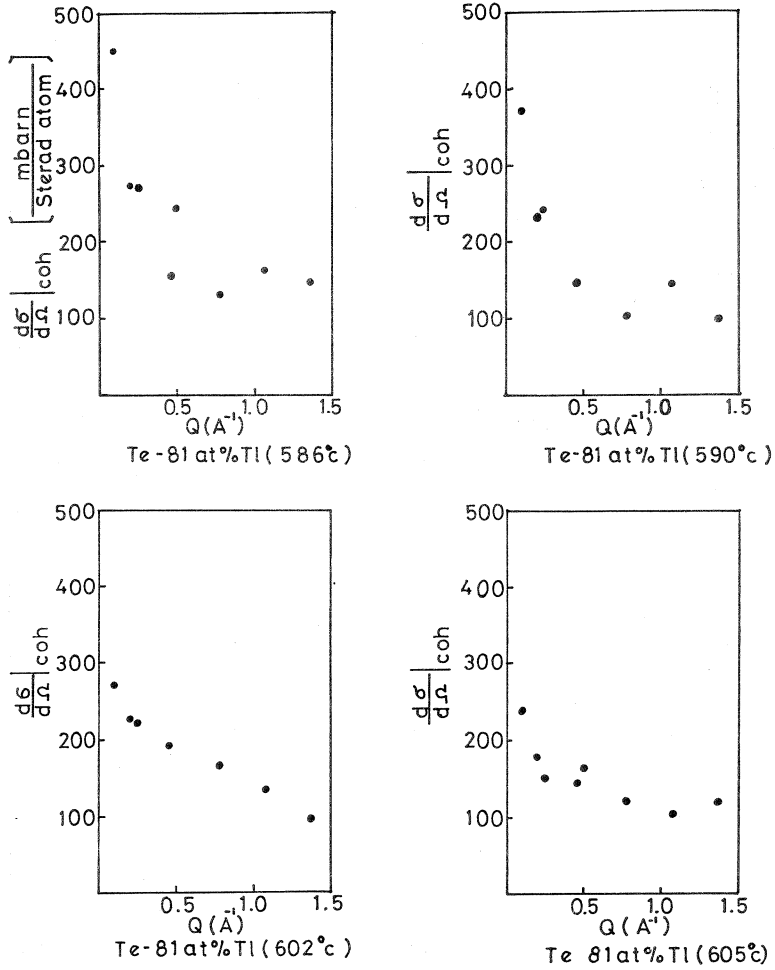


Fig. 5 Temperature dependence of quasielastic neutron scattering cross section for Te-81 at % Tl liquid.

$$\left. \frac{d\sigma(Q)}{d\Omega} \right|_{\text{coh}}^c = \left. \frac{d\sigma(0)}{d\Omega} \right|_{\text{coh}}^c / (1 + \xi^2 Q^2) \quad , \quad (5)$$

where the superscript c means the concentration fluctuation and ξ is the correlation length in the concentration fluctuation.

If the observed quasielastic scattering cross section is assumed to be totally originated from the concentration fluctuation, we can obtain the magnitudes of ξ and $d\sigma(0)/d\Omega|_{\text{coh}}^c$ in the $\text{Tl}_2\text{Te-Tl}$ liquid system by means of the Ornstein-Zernike plot between $(d\sigma(Q)/d\Omega|_{\text{coh}})^{-1}$ and Q^2 . The value of ξ is shown as a function

of the Tl-concentration in Fig. 6. The relatively sharp maximum is found near the consolute point in the $\text{Tl}_2\text{Te-Tl}$ liquid system. This concentration dependence is rather pronounced than that in Cu-Bi molten alloy system observed by Zaiss *et al.*⁸⁾ The magnitude of ξ is almost same between the both of

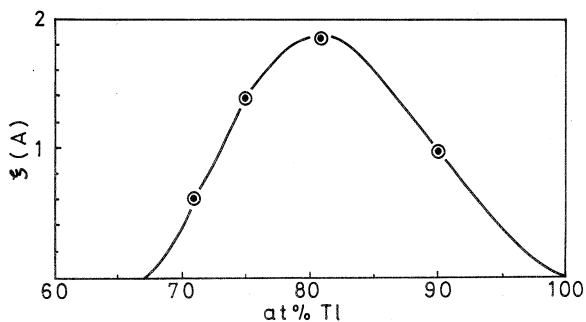


Fig. 6 ξ determined by Ornstein-Zernike plot of small angle scattering cross section for $\text{Tl}_2\text{Te-Tl}$ liquids.

$\text{Tl}_2\text{Te-Tl}$ and Cu-Bi liquid system, while the one order higher value of ξ has been reported in Li-ND_3 ⁹⁾ and K-KBr ¹⁰⁾ solution indicating the electrolyte-metal transition.

The value of $S_{cc}(0)$ was obtained using the relation

$$\left. \frac{d\sigma(0)}{d\Omega} \right|_{\text{coh}} = \{ \langle b \rangle \delta - \Delta b \}^2 S_{cc}(0) \quad , \quad (6)$$

where the value of δ was calculated from the experimental density measured by Nakamura and Shimoji¹¹⁾. The result is shown in Table I and Fig. 7. It is interesting to note that the peak of $S_{cc}(0)$ shifts toward lower Tl-concentration region from the consolute point.

Near the consolute point $S_{cc}(0)$ varies with temperature according to

$$S_{cc}(0) \sim T \epsilon^{-\tau} \quad , \quad (7)$$

where $\epsilon = (T - T_c) / T_c$, T_c is the temper-

ature at the consolute point and τ is the so-called critical exponent. The plot of $T/S_{cc}(0)$ versus $T - T_c$ results in a straight line as shown in Fig. 8. This implies that the concentration fluctuation in the $\text{Tl}_2\text{Te-Tl}$ liquid system can be described in terms of the classical law with $\tau = 1$. The similar conclusion has been given

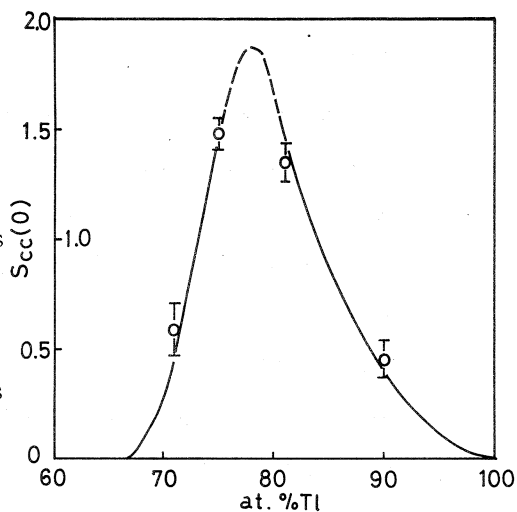


Fig. 7 $S_{cc}(0)$ versus Tl-concentration in $\text{Tl}_2\text{Te-Tl}$ liquids.

to the $\text{ND}_3 - 4.17 \text{ mol } \%$ Li solution by Chieux⁹⁾ too.

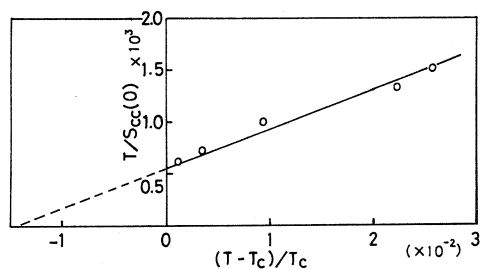


Fig. 8 Plot of $T/S_{cc}(0)$ against $T-T_c$ according to eq. (7).

Acknowledgements

The authors would like to thank Mr. T. Nihei for the skilful manufacture of thin wall silica sample holders and the member of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University for the operation of the electron LINAC.

References

- (1) H. Hoshino, K. Tamura and H. Endo: to be published.
- (2) Y. Nakamura and M. Shimoji: Trans. Farad. Soc. **67**(1971)1270.
- (3) A. B. Bhatia and D. E. Thornton: Phys. Rev. B **2**(1970)3004.
- (4) K. Kai, Y. Kamisada, K. Suzuki and N. Watanabe: Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **10**(1977)222.
- (5) K. Suzuki, M. Misawa, K. Kai and N. Watanabe: Nucl. Instr. Methods **147**(1977)519.
- (6) M. Misawa, Y. Fukushima and K. Suzuki: Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **7**(1974)327.
- (7) M. E. Fisher: J. Math. Phys. **5**(1964)944.
- (8) W. Zaiss, S. Steeb and G. S. Bauer: Phys. Chem. Liquids **6**(1976)21.
- (9) P. Chieux, J. Phys. Chem. **79**(1975)2891.
- (10) J. F. Jal, P. Chieux and J. Dupuy, Ber. Bunsen-Gesell. Phys. Chem. **80**(1976)820.
- (11) Y. Nakamura and M. Shimoji: *The Properties of Liquid Metals Proceedings of*

the 2nd International Conference, ed. S. Takeuchi (Taylor and Francis, London, 1973) p. 567.

Density Effect in K-shell Ionization by Ultrarelativistic Electrons II

M. Kamiya, A. Kuwako, Y. Kinefuchi, K. Ishi[†]
S. Morita[†] 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

In a previous report¹⁾, we showed for the first time the existence of density effect in K-shell ionizations by ultrarelativistic electrons, which had been predicted by Dangerfield²⁾ but was not observed in K-shell ionizations of Cu even at such a high energy as 900 MeV³⁾. We found that the K-shell ionization cross section of light elements does saturate, but for heavier elements the cross section does not saturate so remarkably as was expected. And the ratios of X-ray yield of Na and Cl obtained from the same NaCl target are different at two bombarding energies of 70 and 230 MeV as seen in Fig. 1.

In the previous experiment, we directly measured the increase in the ionization cross sections and this method requires high accuracy for beam current measurement, because the increase in the cross section is expected to be only 15% from 70 MeV to 230 MeV. On the other hand, simultaneous measurements of X rays from light element, where the density effect is expected, and from heavy element, where the density effect is not expected, are free from uncertainty of the beam current. In this experiment, we measured ratios of the X rays of two elements at two bombarding energies. These results are compared with the Kolbenstvedt theory including the density effect.

§ 2. Results and Discussion

Experimental details have been described in Ref. 4.

We measured X rays with a gas-flow proportional counter at electron energies of 70 MeV and 230 MeV. Targets used were combinations of two elements: (F, Al), (Mg, Mn), (Al, Mn) and (Zn, Sn). The target (F, Al) was prepared by evaporating AlF_3 onto a thin organic film in vacuum. Others were prepared by evaporating two kinds of metal. The L X rays were measured for the

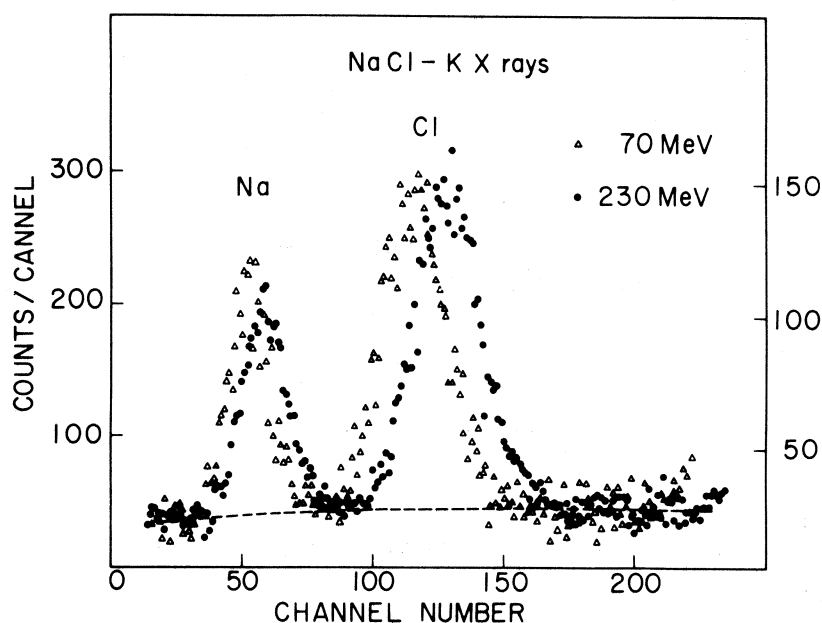


Fig. 1. K X-ray spectra of NaCl obtained at incident energies of 70 MeV (open triangles) and 230 MeV (solid circles). The right scale is for 70 MeV and the left one is for 230 MeV. The dashed line shows background.

target (Zn, Sn). X-ray counting rate was kept about 30 cps to avoid serious pileup.

As example of the spectra thus obtained is shown in Fig. 2. The ratios at 70 MeV and 230 MeV are shown in Fig. 3. The experimental errors are only statistical one except for (F, Al), where the uncertainty of background subtraction was taken into account.

The ratio of X rays here is defined by

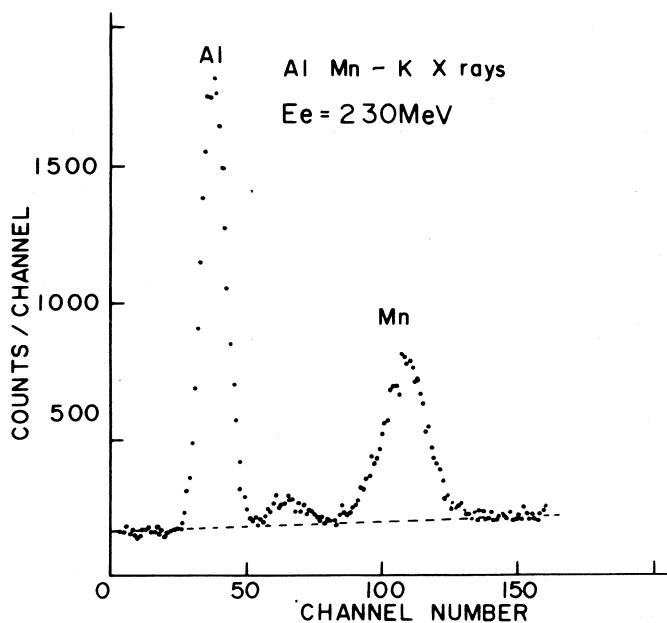


Fig. 2. K X-ray spectra of Al and Mn obtained at incident energy of 230 MeV. The dashed line shows background. The bump between peaks of Al and Mn is the peak of Mn with Ar X-ray escape.

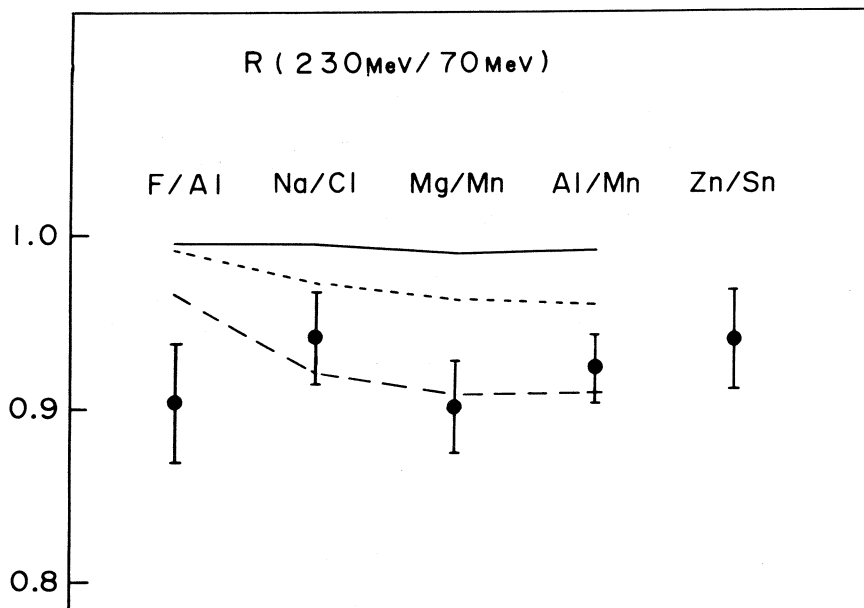


Fig. 3. The ratios of X ray yields at incident energy of 70 MeV and 230 MeV.

The solid line shows the Kolbenstvedt theory excluding the density effect. The dotted line and dashed line show the Kolbenstvedt theory including the density effect using the dielectric constant given by equations (2) and (3) respectively.

$$R \equiv \frac{Y_A(230 \text{ MeV})/Y_B(230 \text{ MeV})}{Y_A(70 \text{ MeV})/Y_B(70 \text{ MeV})} = \frac{\sigma_A(230 \text{ MeV})/\sigma_A(70 \text{ MeV})}{\sigma_B(230 \text{ MeV})/\sigma_B(70 \text{ MeV})}, \quad (1)$$

where Y and σ are X-ray yield and ionization cross section, respectively, and A and B indicate the elements. Thus R represents the difference of the rate of increase in ionization cross section for the elements of A and B.

As seen Fig. 3, R clearly differs from unity and shows that the ionization cross section for lighter element saturates. In this figure, solid line shows the Kolbenstvedt theory excluding the density effect and the dotted line shows the one including the density effect.

According to the Kolbenstvedt theory ionization occurs due to the photo-electric effect by virtual photon which is equivalent to the rapidly varying field from incident electron. In order to take the density effect into account, we use the dielectric constant to calculate the virtual photon spectrum. Assuming all electrons can be considered as free for such high frequency photons, the dielectric constant is expressed as,

$$\epsilon(\omega) = 1 - \omega_p^2 / \omega^2 \quad \text{with} \quad \omega_p^2 = 4\pi n e^2 / m, \quad (2)$$

where ω_p is called the plasma frequency and n , e and m are the total electron density, the electron charge and the electron mass, respectively. Then, the increase in the cross section is shown as a function of the plasma frequency in Fig. 4. The solid circle shows the value using plasma frequency given by equation (2). To reproduce the experimental results we take ω_p as a free parameter for AlF_3 and NaCl , each of which has only one value of ω_p . However, this procedure fails to reproduce the experimental results as seen in Fig. 5.

Here we summarize the experimental results obtained up to present. a) In the ionization energy loss the density effect has well been experimentally established. b) There was no saturation in the K-shell ionization of Cu up to 900 MeV electron bombardments. c) Our experimental results show that saturation is remarkable only for light elements.

One possibility to explain these facts is that the long wave approximation,

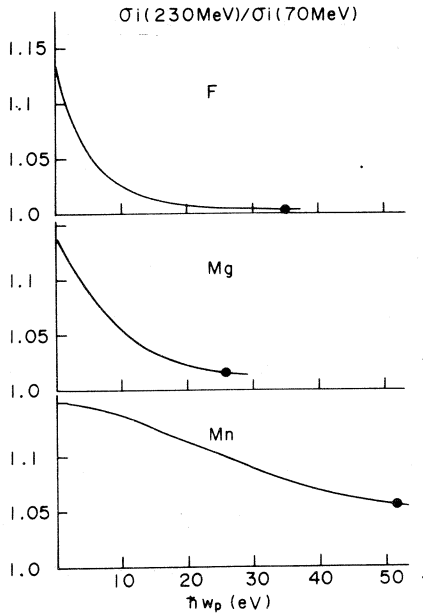


Fig. 4. The rates of increase in ionization cross sections calculated by the Kolbenstvedt theory including the density effect. Solid circles show the plasma frequency given by equation (2).

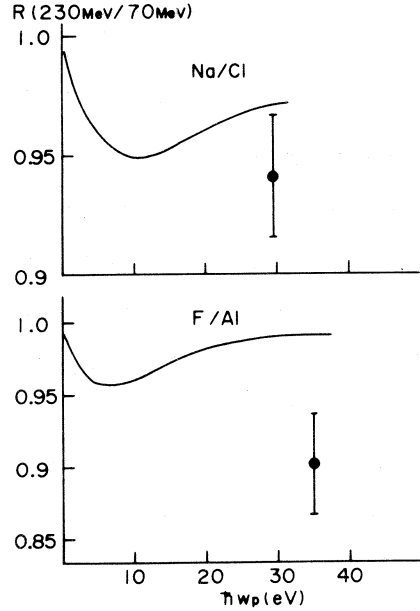


Fig. 5. The ratios of X-ray yields predicted by the theory in which ω_p is parametrized.

used in deriving eq. (2), may no longer be valid for high-frequency electromagnetic wave to obtain the dielectric constant. Actually, the wavelength of 6-keV photon is about 2 \AA and is comparable with the spacing of target atoms.

In order to take account of this fact, we tentatively assume that the dielectric constant can be expressed as

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\bar{\omega}_p^2(\omega)}{\omega^2} \quad \text{with} \quad \bar{\omega}_p^2(\omega) = \omega_p^2 / \left(1 + \left(\frac{\pi d}{\lambda} \right)^2 \right)^2, \quad (3)$$

where d and λ are the spacing of atoms and the wave length of virtual photon, respectively. In Fig. 3 the dashed line shows this calculation and explains rather well the experimental results. We also show this calculation in connection with the previous data in Fig. 6.

Thus it is suspected that the spacing of atoms is comparable with the wave length of virtual photons which can ionize K electrons and this fact must be taken

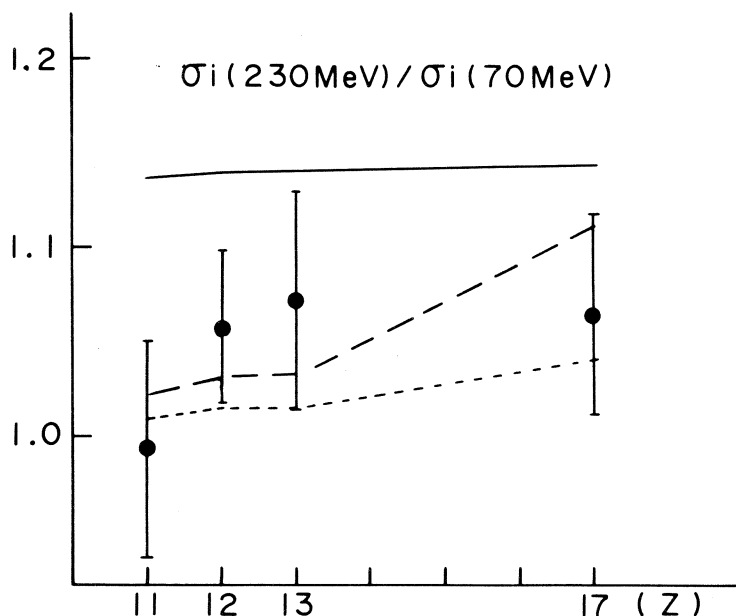


Fig. 6. The rate of increase in ionization cross sections.

into the theory. Further theoretical development is required to understand in detail the density effect. And more experiments are also desirable to develop the theory.

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 the experiment.

References

- 1) M. Kamiya, K. Ishii, Y. Kinefuchi, H. Endo, S. Morita, K. Sera and M. Oyamada: Res. Report Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **10**(1977)108.
- 2) G. R. Dangerfield: Phys. Lett. **46 A**(1973)19.
- 3) L. M. Middleman, R. L. Ford and R. Hofstadter: Phys. Rev. **A 2**(1970)1429.
- 4) K. Ishii, M. Kamiya, K. Sera, S. Morita, H. Tawara, M. Oyamada and T. C. Chu: Phys. Rev. **A 15**(1977)906.

III. 放 射 化 学

Chemical Effect by (r, n) Reaction of Neptunium— (2,2,6,6-tetramethyl-3,5-heptanedione) Complex

T. Sekine, M. Sakanoue

*Radiochemical Laboratory, Department of Chemistry,
Faculty of Science, Kanazawa University, Kanazawa 920*

The enrichment of ^{236}Np was tried to obtain ^{236}Pu tracer by hot atom effect accompanied with (r, n) reaction, followed by sublimation technique of 2, 2, 6, 6-tetramethyl-3, 5-heptanedione ($\text{H}\cdot\text{thd}$) complex. The enrichment factors were found to be 32.7 and 124.6 respectively for the irradiation of ^{237}Np -thd complex itself and that with La carrier.

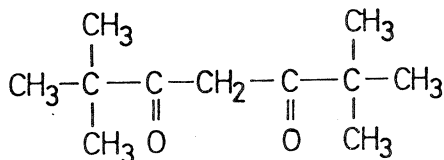
§ 1. Introduction

The hot-atom chemical study or isotope enrichment have been made in our laboratory, by using volatile organometallic complexes¹⁻⁴⁾, and their volatilities were also studied with labeled complexes^{5,6)}.

In order to study hot-atom chemical effect, it must be necessary to choose adequate method to separate the produced nuclides from the parents. Vacuum sublimation technique has several advantages as follows; (1) separation in dry environment, (2) unnecessary of any chemical treatment before sublimation, (3) rapid separation, (4) a suitable method for the separation of trace amount of nuclide.

By using organometallic complexes, sublimation can be carried out at lower temperature than by inorganic compounds of the same element. A kind of the β -diketones, 2, 2, 6, 6-tetramethyl-3, 5-heptanedione (Fig. 1) ($\text{H}\cdot\text{thd}$) has been reported to form thermally stable complexes with several metallic elements^{7,8)}.

In this report, the neptunium complex with this ligand was applied to enrich ^{236}Np ($\text{EC}\cdot\beta^-$) produced from ^{237}Np by (r, n) reaction. As the decay scheme⁹⁾ in Fig. 2 shows, ^{236}Np disintegrates to ^{236}Pu and to ^{236}U with a branching ratio



$\text{C}_{11}\text{H}_{20}\text{O}_2$ M.W. = 184.28

2,2,6,6-Tetramethyl-3,5-heptanedione
(Dipivaloylmethane)
thd or dpm

Fig. 1 Chemical structure of a β -diketone used for this study.

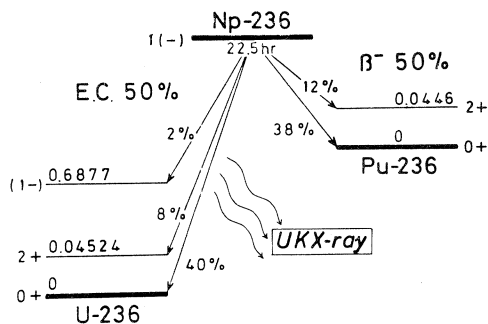


Fig. 2 Decay scheme of Np-236^{91} .

of 50 % respectively. Among these nuclides, ^{236}Pu is commonly used as chemical tracer for environmental plutonium analysis. It is effective to enrich ^{236}Np by hot atom effect for the preparation of radiochemically pure ^{236}Pu with as less decontamination procedure as possible. To enrich ^{236}Np , the complex of ^{237}Np itself and that with lanthanum carrier were compared as the target compounds in regards to the degree of enrichment of ^{236}Np and a discussion is made for the difference between them.

§ 2. Preparation of targets

Previously, neptunium β -diketone complexes were investigated by some workers. Titze et al. synthesized $\text{Np}(\text{acac})_4$ and investigated its structure¹⁰⁾. Karraker et al. tried to synthesize $\text{Np}(\text{thd})_4$, but the complex obtained by them was considered to contain several organics and $\text{Np}(\text{VI})$ complex besides $\text{Np}(\text{IV})$ complex¹¹⁾. Mishin et al. synthesized $\text{Np}(\text{thd})_4$, and the thermal behavior of that complex in argon atmosphere were studied by differential thermal analysis, thermogravimetry, and X-ray diffraction¹²⁾.

Referring to these studies, the target complexes used for our studies were prepared as follows. Without any purification, about 5 mg of commercial $^{237}\text{NpO}_2$ (The Radiochemical Centre, England) was dissolved with hot conc. perchloric acid. After excess of perchloric acid was removed by evaporating the solution

several times, the treatment with hydrogen peroxide was carried out in dil. hydrochloric acid media, and then the solution was slowly evaporated. After taking it up in 50 % ethanol, H-thd-ethanol solution was mixed together and then 2 N ammonia was added dropwise, followed by a stirring for 2 hours. Neptunium complex formed was extracted with benzene and organic layer was divided into two fractions. In the one fraction, $\text{La}(\text{thd})_3$ was added as carrier. Then, solvent was removed from both benzene solutions under reduced pressure. The complexes obtained thus were purified by sublimating them two times. To know its chemical form, the amount of neptunium in the definite weight of this complex was estimated by α -spectrometric analysis, and it was suggested to be $\text{Np}(\text{thd})_4$ from this result and also from absorption spectrum of benzene solution of this complex. Furthermore, the valency state of neptunium in the original solution used for the synthesis of Np-thd complex was examined by applying the adsorption method proposed by Y. Inoue et al.¹³⁾ And from the results shown in Table I, it was confirmed that neptunium in stock solution was mostly in a valency state of IV.

It becomes easier to handle the target compound by introducing a carrier

Table I Adsorption of neptunium on BaSO_4 in various conditions with chemical reagents shown in the left side of the table¹³⁾.

	Np-237 adsorption	Np-237 concentration	Pa-233 adsorption
Np-237 stock soln.	68.0 % 87.2	1.5×10^{-5} M "	87.3 % 84.4
FeSO_4 (2×10^{-2} M)	95.0	"	89.3
NH_4I (4×10^{-2} M)	94.4	"	84.1
H_2	50.8	1.2×10^{-5}	82.4
(platinum black)	50.6	"	87.2
→ air oxid.	90.9	"	91.7
	90.9	"	90.9
Np(V)	3.7	0.9×10^{-5}	~100
	3.1	"	~100

(errors $< \pm 5\%$)

during the synthesis and obtaining the complex in fairly large amount. As carrier, $\text{La}(\text{thd})_3$ was selected by the following reasons; Though both lanthanum and neptunium form thermally stable complexes, lanthanum combines more hardly with ligand than neptunium in the process of synthesis, lanthanum complex can be separated from neptunium complex, if necessary, by sublimatographic deposition. Furthermore, by irradiating of lanthanum with "Bremsstrahlung" of LINAC, any nuclide to interfere the measurement of ^{236}Np is not produced.

§ 3. Irradiation

"Bremsstrahlung" irradiation was carried out by electron linear accelerator of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University. Platinum plates converted electrons of 60 MeV to Bremsstrahlung. In order to avoid the decomposition of complexes during irradiation, sweep-magnet was used to remove unconverted electrons in the irradiation course and the targets were cooled with dry-ice. Irradiation time was usually about five hours.

§ 4. Experiment

Irradiated samples were sublimed at 225°C in a vacuo just after irradiation. After sublimation, each fraction (sublimate and residue) was treated with conc. nitric acid and perchloric acid, dried up and dissolved in 3 ml of 8N hydrochloric acid. Then, DIBK (diisobutyl ketone) pre-equilibrated with 8N hydrochloric acid solution was added in the equal volume with the aqueous phase to extract ^{233}Pa , which is the daughter nuclide of ^{237}Np and emits uranium KX-ray by its β -decay to ^{233}U .

The extraction of ^{233}Pa was necessary by the following reason. The measurement of ^{236}Np is effectively made by measuring the same uranium KX-ray, which is emitted by the EC decay of ^{236}Np to ^{236}U . On the other hand, it is difficult to measure ^{236}Pu and ^{236}U after irradiation, because they have fairly long half-lives, and the measurement of γ -ray accompanied with ^{236}Np decay is not effective because of the small branching ratio to high energy state of daughter nuclides (see Fig. 2).

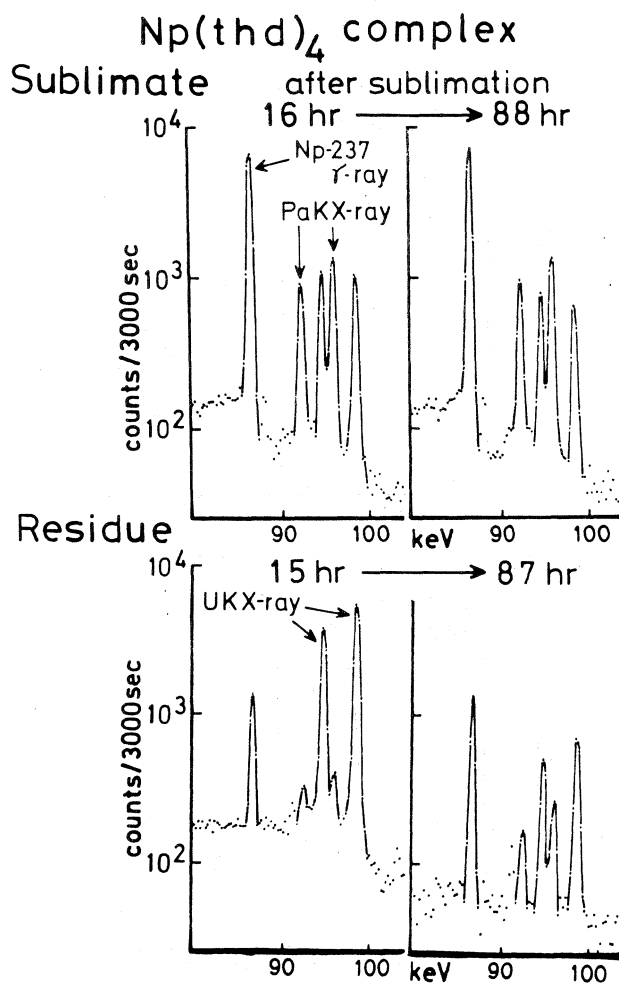


Fig. 3 Low energy photon spectra of the sublimate and the residue for $\text{Np}(\text{thd})_4$.

§ 5. Result and Discussion

Low energy photon spectra for the sublimate and the residue obtained from the irradiated $\text{Np}(\text{thd})_4$ are shown in Fig. 3. The peaks are identified to be ^{237}Np γ -ray, Pa KX-rays due to the decay of ^{237}Np , and U KX-rays due to the decay of ^{236}Np . By comparing the spectra each other, it was recognized that ^{236}Np was enriched in the residue, and the counting rate of U KX-rays peaks decreased about one ninth for about 4 days.

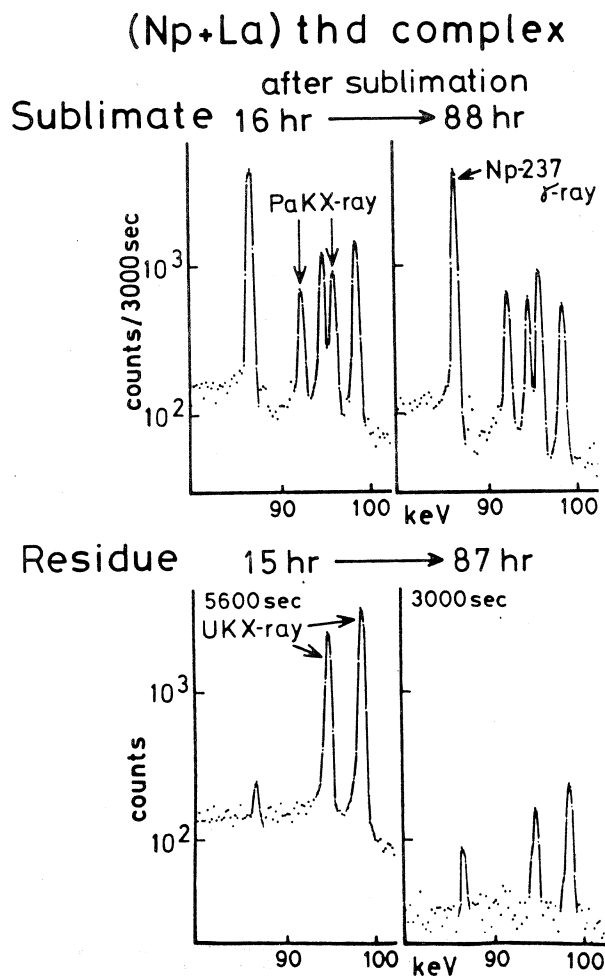


Fig. 4 Low energy photon spectra of the sublimate and the residue for Np-thd complex with La carrier.

The spectra for the sample having $\text{La}(\text{thd})_3$ as carrier are shown in Fig. 4. It was found that ^{236}Np was also enriched in the residue. But, in this case, it was characteristic feature that γ -ray peak due to ^{237}Np in the residue was very small relative to that in the sublimate.

Furthermore, ^{236}Np was identified by its half-life measurement. Since the growth of ^{233}Pa from ^{237}Np increased U KX-rays counting rate (Fig. 5), the corrected values were used to calibrate ^{236}Np for each sample. The counting rate of U KX-ray just after the sublimation were used to calculate the enrichment factor

or the radiochemical yield (defined as shown under Table II).

By comparing them, it was observed that the radiochemical yield was larger for $\text{Np}(\text{thd})_4$ irradiated alone than for the complex with La carrier. This fact suggests that the annealing of ^{236}Np may occur more likely in the case of $\text{Np}(\text{thd})_4$ itself because neptunium more easily recombines with free ligands than lanthanum. On the contrary, the enrichment factor in the case of Np-thd complex with La carrier was much larger than that in the case of $\text{Np}(\text{thd})_4$ itself. The larger value of the enrichment factor may be attributed mainly to good sublimation yield of ^{237}Np -thd complex in the $\text{La}(\text{thd})_3$ media ($^{237}\text{Np}(\text{thd})_4$; 85 %, ^{237}Np -thd complex with La carrier ; 99 %).

The decrease in sublimation yield or the increase in decomposition for the case of $\text{Np}(\text{thd})_4$ itself may be caused by the following two reasons. (1) the thermal decomposition by heating. The neptunium complex contacted to the glass wall of the sublimation tube may be heated to higher temperature. Such effect is relatively larger in the sublimation of small amount of $\text{Np}(\text{thd})_4$ itself. (2) the decomposition during irradiation (dose or dose rate effect) or that due to α -ray from ^{237}Np itself.

Such hot atom effect may be applied to prepare enriched ^{236}Np and to obtain enriched ^{236}Pu as its daughter.

Acknowledgement

The authors thank Dr. M. Yagi and Dr. K. Kondo in Laboratory of Nuclear Science of Tohoku University for the experiment and the operation of machine for bremsstrahlung irradiation, and thank Dr. S. Mitsugashira in the Research Institute for Iron, Steel and Other Metals, Tohoku University for the radioactivity measurement.

References

- 1) K. Endo, M. Sakanoue: Radiochem. Radioanal. Letters **9**(1972)255.
- 2) H. Kawazu, and M. Sakanoue: *ibid.* **16**(1974)363.
- 3) R. Amano and M. Sakanoue: *ibid.* **16**(1974)381.

- 4) R. Amano and M. Sakanoue: *ibid.* **19**(1974)197.
- 5) M. Sakanoue and R. Amano: *Proc. 4th Intern. Transplutonium Symp.* ed. W. Müller and P. Lindner (North-Holland Pub. Comp, Amsterdam, 1976) p. 123.
- 6) T. Sekine, T. Nakamura and M. Sakanoue: The 15th Annual Meeting on Radioisotopes in the Physical Sciences and Industry, Japan (1978) p.37.
- 7) E. W. Berg and J. J. Chiang Acosta : *Anal. Chim. Acta* **40**(1968)101.
- 8) E. W. Berg, Nicolas M. Herrera: *ibid.* **60**(1972)117.
- 9) C. M. Lederer and V. S. Shirley: *Table of Isotopes* 7th ed. (Wiley, New York 1978).
- 10) H. Titze and B. Allard: *Acta Chem. Scand.* **24**(1970)715.
- 11) H. A. Swain and D. G. Karraker: *Inorg. Chem.* **9**(1970)1766.
- 12) V. Ya. Mishin, E. M. Rubtsov and A. N. Darovskikh: *Radiokhimiya* **20**(1978)221.
- 13) Y. Inoue and O. Tochiyama: *J. Inorg. Nucl. Chem.* **39**(1977)1443.

光核反応による無担体 ^{18}F の製造

核理研・金沢大医技短大*

八木益男・天野良平*

The $^{20}\text{Ne}(\gamma, pn)$ and $^{20}\text{Ne}(\gamma, 2n)^{18}\text{Ne} \rightarrow ^{18}\text{F}$ reactions have proved to be useful for the preparation of carrier-free ^{18}F . The production rate was determined as a function of maximum bremsstrahlung energy up to 60 MeV. As the result, the production rate at 60 MeV was found to be $10.5 \mu\text{Ci} / \mu\text{Ah/g}$ of neon.

§ 1. 緒 言

^{18}F は半減期約 110 分という適当な半減期をもつポジトロン放射体で、しかもそれ自身化学反応性に富むため、標識化合物調製に有用なプレカーサーを作りやすいという特徴をもっている。

従来、無担体 ^{18}F はサイクロトロンによる $^{16}\text{O}(^3\text{H}, n)$, $^{16}\text{O}(\alpha, pn)$, $^{16}\text{O}(^3\text{He}, p)$, $^{20}\text{Ne}(d, \alpha)$, $^{20}\text{Ne}(^3\text{He}, \alpha p)$ 反応, あるいは原子炉中性子の LiCO_3 照射で生起する $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$, $^7\text{Li}(n, n'\alpha)^3\text{H}$, $^{16}\text{O}(^3\text{H}, n)^{18}\text{F}$ の複合核反応に利用して製造されてきた。しかしながら電子リニアックによる無担体 ^{18}F の製造はまだ十分に検討されておらず、これが実用できるか否かは明らかでない。

電子リニアックによる無担体 ^{18}F の製造は、第 1 表に示したようにネオンに制動放射線を照射することによって実施できる。表から明らかなように、この場合他生成核種はすべて短半減期のため、 ^{18}F のみを効率よく製造することができる。

本研究においては、 ^{18}F 標識放射性医薬品の調製を最終目標として、まずネオン・ガス・ターゲットに 30 ~ 60 MeV 制動放射線を照射して、主として $^{20}\text{Ne}(\gamma, pn)$ および $^{20}\text{Ne}(\gamma, 2n)^{18}\text{Ne} \rightarrow ^{18}\text{F}$ 反応で生成する無担体 ^{18}F の生成率を測定することを試みた。

§ 2. 実 験

2.1 ターゲットおよび試薬

グリースレス・ストップコックおよび同ジョイントで構成された真空ラインを用い、高純度

第1表 Photonuclear reaction on neon.

Target nuclide	(abundance)	Reaction	Product nuclide	Half-life of product	Decay mode
²⁰ Ne	(90.92 %)	γ, n	¹⁹ Ne	17.3 s	β^+
		$\gamma, 2n$	¹⁸ Ne	1.67 s	$\beta^+ (\rightarrow ^{18}\text{F})$
		$\gamma, 3n$	¹⁷ Ne	0.1 s	$\beta^+ (\rightarrow ^{17}\text{F})$
		γ, pn	¹⁸ F	109.8 m	$\beta^+ (\text{EC})$
		$\gamma, p2n$	¹⁷ F	64.5 s	β^+
		$\gamma, \alpha n$	¹⁵ O	122 s	β^+
²¹ Ne	(0.257 %)	$\gamma, 2n$	¹⁹ Ne	17.3 s	β^+
		$\gamma, 3n$	¹⁸ Ne	1.67 s	$\beta^+ (\rightarrow ^{18}\text{F})$
		γ, p	²⁰ F	11.0 s	β^-
		$\gamma, p2n$	¹⁸ F	109.8 m	$\beta^+ (\text{EC})$
²² Ne	(8.82 %)	$\gamma, 3n$	¹⁹ Ne	17.3 s	β^+
		γ, p	²¹ F	4.32 s	β^-
		γ, pn	²⁰ F	11.0 s	β^-

ネオン(純度 99.7%以上)を内径 50 mm , 長さ 100 mm の石英製アンプルに, 水銀マンメーターを用いて 600 mm Hg 封入しターゲットとした。またその他試薬類はすべて最純品を用いた。

2.2 照 射

パルス幅 3 μ 秒, パルス繰返数毎秒 300 回の 30~60 MeV 加速電子を, 0.53 輻射長の白金コンバーターを用いて制動輻射線に転換し照射した。試料アンプルは白金コンバーターから 1 cm のビーム軸上に水平におき, 全制動輻射線が試料アンプル中を通過するようにした。また白金コンバーターおよび試料アンプルは共に強制水冷した。

照射中のビーム電流値は, あらかじめファラディカップで較正したフェライトコアモニターの電流を整流し, 積算計で積算することで求めた。また各試料の照射時間はすべて 40 分間とした。

2.3 ¹⁸F の回収

照射石英アンプルから生成 ¹⁸F を回収するため以下のような予備的検討を試みた。まず直径 20 mm, 長さ 30 mm の石英アンプルに 600 mm Hg のネオンガスを封入し, 60 MeV 制動輻射

線で約1時間照射した。ついで石英ガラス中に $^{16}\text{O}(\gamma, \alpha n)^{11}\text{C}$ 反応で生成した ^{11}C を約4時間以上放置することにより壊変させ、後述の放射線測定器で十分な距離をとり、石英アンプルごと測定して ^{18}F の生成量を求めた。引続き同アンプルを液体窒素温度に冷却して開封し、0.02 N NaF 溶液 3 ml を注入して密閉し、常温にもどして20分間振とうし、アンプル器壁に附着した ^{18}F の回収をおこなった。アンプルに残存する ^{18}F は先と同様条件で測定し、結果として本法による ^{18}F 回収率80%をえた。

以上の予備的検討結果から、各照射試料アンプルは液体窒素温度に冷却して開封し、0.02 N NaF 溶液 10 ml を注入して密閉し、上記と同様操作で ^{18}F の回収をおこなった。 ^{18}F 生成量はNaF 溶液 1 ml をとって放射能測定をおこない、上記回収率の補正をして求めた。

2.4 放射能測定

放射能測定は、あらかじめ ^{22}Na 標準線源を用いて β^+ 消滅ガンマ線にたいする計数効率を求めた。80 cm³ Ge(Li)検出器と、4096 区分波高分析器を用いておこなった。

2.5 ^{18}F 生成率

^{18}F の生成率は、各試料における生成量、照射中のビーム電流積算値、ターゲット量から、 $\mu\text{Ci} / \mu\text{Ah} / \text{g of Ne}$ として求めた。

§ 3. 結果と考察

3.1 ^{18}F の回収

ガラス壁は ^{18}F で汚染され易く、それを完全に除去することは困難であることがよく知られている^{1,2)}。それ故 ^{18}F 製造においてはターゲット・チェンバーをどんな材料で作製するかが大きな問題となっている。本実験では電子ビーム-制動放射線照射のため石英アンプルを水冷して用いたが、器壁に附着した生成無担体 ^{18}F を回収できるかどうか問題であった。しかしこれは予備的検討で希 NaF 溶液で洗浄すればイオン交換により80%回収されるという結果をえた。これは Svoboda ら²⁾による検討結果と一致したため、 ^{18}F の生成量を求めるにあたっては希 NaF 溶液洗浄で ^{18}F を回収し、上記回収率の補正をおこなうことにした。

3.2 ^{18}F の核化学的純度

^{18}F 回収溶液の β^+ 消滅ガンマ線を測定してその半減期を求めたところ、文献値(109.7分)に一致した。これから生成 ^{18}F の核化学的純度は極めて高いことが証明された。

3.3 ^{18}F の生成率

$^{20}\text{Ne}(\gamma, pn)$ および $^{20}\text{Ne}(\gamma, 2n)^{18}\text{Ne} \rightarrow ^{18}\text{F}$ 反応による ^{18}F の入射最大制動放射線エ

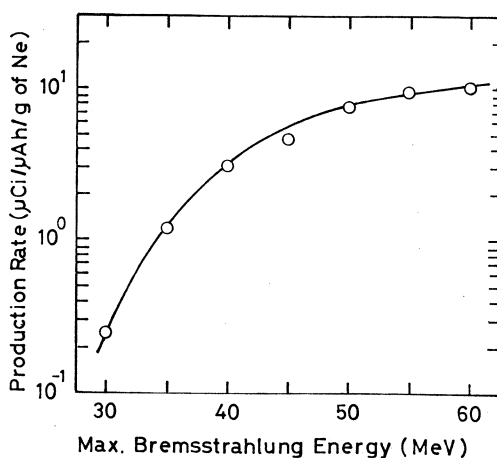
エネルギーにたいする生成率は第1図に示した。

^{18}F 生成率は 30~45 MeV 間で急激に増加し、それ以上では徐々に増加する傾向を示した。これから本電子リニアックの 60 MeV 加速での通常出力、平均電流 150 μA で照射すれば、ネオンガス、1 グラム当たり毎時約 1.5 mCi の ^{18}F を製造できることがわかる。この生成量は ^{18}F 標識化合物調製に十分利用できるものである。

3.4 本法の応用

著者の一人は、既に $^{40}\text{Ar}(\gamma, p)^{39}\text{Cl}$ 反応を利用した循環ガスターゲットによる

^{39}Cl の製造およびその標識化合物調製法について検討し報告した³⁾。全く同様にしてネオンガスを循環させ、 ^{18}F を製造すると同時にその標識化合物調製をおこなうことが可能と考えられるが、石英アンブルを用いた場合の ^{18}F の循環輸送については、器壁の汚染の問題があり、さらに検討する必要がある。ネオンガス中に少量の水素ガスを混入してやれば、ホットアトム化学効果により H^{18}F が生成すると予想でき、サイクロトロンで開発された多くの ^{18}F 標識化合物調製法を適用することが可能となろう。



第1図 The production rate of ^{18}F on neon gas target as a function of the maximum bremsstrahlung energy.

参 考 文 献

- 1) T. Nozaki, Y. Tanaka, A. Shimamura and T. Karasawa: Int. J. Appl. Radiat. Isotopes **19** (1968) 27.
- 2) B. Mudrova and K. Svoboda: Radiochem. Radioanal. Lett. **11** (1972) 177.
- 3) M. Yagi, K. Kondo and A. Yamadera: Int. J. Appl. Radiat. Isotopes. **30** (1979) 123.

日本海深海底コア試料の 光量子多元素放射化分析

理学部化学, 教養部*, 広島大総合科学部**

遠藤正美・加藤豊明*・加藤道雄**・鈴木信男

§ 1. 緒 言

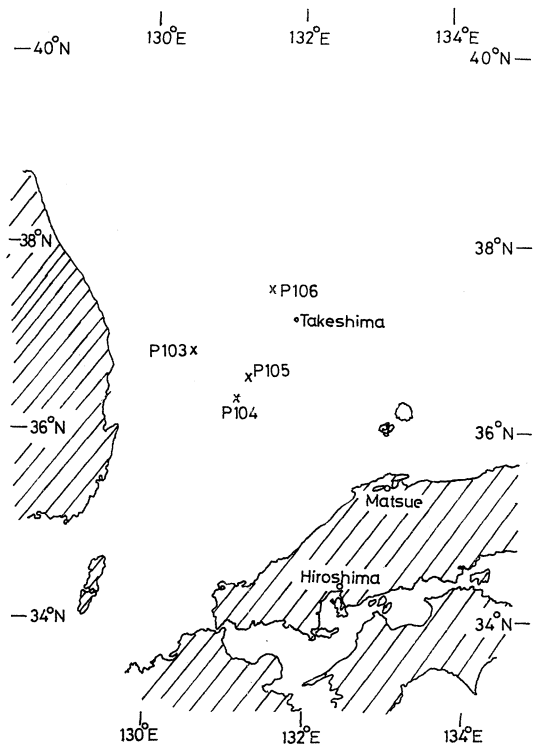
深海底コア試料中の諸元素の存在度及びその分布を知ることは、深海底における海底土の堆積環境や条件の永年変化を考察する際にきわめて重要な指針となる。

放射化分析法は、多くの元素について高感度の定量法であり、他方、エネルギー分解能の高い放射線検出器が普遍的に使用できるようになった結果、いわゆる非破壊的多元素同時分析が可能となり応用範囲は著しく拡大された。放射化に、加速器からの高エネルギー γ 線による光核反応を使う光量子放射化分析法は、独特の選択性を有するもので、既に基礎及び応用の研究が進められ、特に化学分析が困難な珪酸塩試料の分析に有効に利用できることも明らかにされている¹⁻⁶⁾。

本研究は、この光量子放射化分析法によって日本海深海底より採取したコア試料の元素組成を、主成分から微量元素にわたって求め、各コアの長さ、すなわち、堆積年代に沿っての諸元素の分布状況を調べ、結果を地球化学的に考察しようと試みたものである。

§ 2. コア試料

本研究の試料は1977年5月、白嶺丸による日本海山陰沖海域の海底地質調査の際に、4ヶ所(試料番号P 103, P 104, P 105およびP 106)で採取したコア試料である。それらの採取位



第1図 コア試料採取位置。

第1表 Deep-sea sediments analyzed.
(1977. 5. 4 - 5. 14, Hakurei Maru)

Sample no.	Position		Depth m.	Area and Topography	Samples
	Lat.	Long.			
P 103	36°55.8'N	130°33.7'E	2188	Bottom of Tsushima Basin	499 cm length, clay and ash layer
P 104	36°24.9'N	131°07.1'E	2025	ditto	545 cm length, clay with ash layers
P 105	36°37.1'N	131°16.0'E	2088	ditto	308 cm length, clay
P 106	37°35.7'N	131°33.4'E	2444	Northwest of Takeshima, Bottom of Tsushima Basin	785 cm length, clay with pumice layers

置ならびに内容は第1図および第1表に示したとおりで、いずれも水深2000m以上の海底から採取された。地形的には、北西から南東方向の断面では、P 103, P 104は単純な形の盆地にあり、P 105, P 106は、やや複雑な起伏の地形の谷間にあるとされている。日本海深海では1cmが約100年の堆積速度とされているから、それぞれのコアの最深部における年代は、P 103が約50,000年、P 104で約54,500年、P 105約30,800年、P 106で約78,500年となり、氷河時代を含み、現在の自然環境の成立に関与した気候、海水準などの変化があった時代を含むものである。なお、有孔虫化石の巻き方の変化から、氷期と現世の境界はP 103とP 104で約150cm、P 105とP 106では約100cmと推定されている。

大部分の試料は、褐色の典型的な粘土質海底土であるが、一部、白色の石灰質層（有孔虫化石を含む）や、軽石を含む層も認められた。それぞれピストンコアラで採取された後、表層より1cm間隔の切片として供試された。

§ 3. 実 験

3.1 照 射

コア試料の各切片をシリカゲル上で乾燥後、メノウ乳鉢で均一な細粉とし、再びシリカゲル上で10日間乾燥し恒量にした。その約300mgをアルミニウム箔に包装して、直径9mm、厚さ4~5mmのディスクに成型して放射化分析に供した。

比較標準試料としては組成が類似した多元素試料として、珪酸塩標準岩石J B-1を選んで

試料と同様のディスクにし、コア試料の前後に配置した。これらを、副反応の妨害補正のための純鉄箔とともに石英管に封入し、東北大学電子ライナックからの30 MeV 制動輻射で2～3時間照射した。照射試料の調製および照射に関する詳細は既報と同様である⁶⁾。

3.2 測定及び定量

照射後、半減期2時間以上の残留核からの r 線を、米国キャンベラ社製のGe(Li)検出器7229-7600-1721型と同社波高分析装置8100MCA型で r 線スペクトロメトリした。各元素の定量に適する核種とその r 線のエネルギーは第2表に示したとおりであり、約1ヶ月間にわたって測定を続けると、Ca, Fe, Mg, Mn, Na, Ti, Ba, Ce, Co, Cr, Nb, Ni, Rb, Sr, Y及びZrの計16元素の含有量を非破壊で求めることができた。

第2表 Nuclear data.

Element	Process	Product nuclide	Half-life	r -Ray used (keV)	Suitable decay time	
Ca	{	(r, p)	⁴³ K	22.4h	374,617	1 - 2d
		(r, n)	⁴⁷ Ca	4.53d	1298	10 - 15d
Fe	(r, p)	⁵⁶ Mn	2.576h	847	2 - 5h	
Mg	(r, p)	²⁴ Na	15.0h	1368	1 - 2d	
Mn	(r, n)	⁵⁴ Mn	303.0d	835	> 10d	
Na	(r, n)	²² Na	2.60y	1275	> 10d	
Ti	{	(r, p)	⁴⁶ Sc	83.9d	1121	> 10d
			⁴⁸ Sc	1.83d	983,1314	
Ba	(r, n)+(r, r)	^{135m} Ba	28.7h	268	1 - 2d	
Ce	(r, n)	¹³⁹ Ce	140 d	166	30 - 40d	
Co	(r, n)	⁵⁸ Co	71.3d	811	30 - 40d	
Cr	(r, n)	⁵¹ Cr	27.8d	319	10 - 15d	
Nb	(r, n)	^{92m} Nb	10.16d	934	10 - 15d	
Ni	(r, n)	⁵⁷ Ni	36.0h	1378	1 - 2d	
Rb	(r, n)	⁸⁴ Rb	33.0d	881	10 - 15d	
Sr	(r, n)	^{82m} Sr	2.83h	388	2 - 5h	
Y	(r, n)	⁸⁸ Y	108 d	1836	> 10d	
Zr	(r, n)	⁸⁹ Zr	78.4h	910	2 - 3d	

第2表の r 線を使う時、共存元素からの副反応の妨害については別に研究されており^{6,7)}、地球化学試料における顕著な妨害は、⁵⁶Fe(r, pn)⁵⁴Mn反応による⁵⁴Mnの生成、並びに

$^{27}\text{Al} (n, \alpha) ^{24}\text{Na}$ 反応による ^{24}Na の生成であり、それぞれマンガンおよびマグネシウムの定量反応と競合する。鉄及びアルミニウムが多量に共存する海底土では、これらの補正が必要である。前者については、試料と同時に照射した純鉄箔によって補正し、後者については、試料中のアルミニウムをオキシ錯体として抽出比色定量して補正したが、その詳細は既報のとおりである^{6,7)}。なお、このアルミニウムの定量法は同時に鉄の定量値を得ることができる⁸⁾。比色法と後記の放射化分析による定量結果とを比較したところ、両法の結果の差は平均値に対して10%以内であった。

また、カルシウムとチタンの場合には、3本ずつの r 線を用いて、それぞれ定量値を求め得たが、どの r 線を用いても結果の一致は良好で、平均値からのバラツキはカルシウムで $\pm 4\%$ 、チタンは $\pm 7\%$ 程度であった。この両元素に関する結果は、それぞれ平均値を採用した。

§ 4. 結果及び考察

本報の全試料について実際に得られた実験結果を、各元素の濃度範囲として第3表に一括して示した。表中には、比較に用いた標準岩石 JB-1 の元素組成の文献値⁹⁾も示した。

第3表 Elemental abundances.

Element	Ranges in core samples	JB-1
Fe	1.9 ~ 5.2 %	6.27 %
Ca	0.44 ~ 8.47	6.60
Mg	0.58 ~ 1.94	4.67
Na	1.9 ~ 5.2	2.08
Ti	0.27 ~ 0.47	0.803
Al ¹⁾	5.0 ~ 13.2	7.69
Mn	237 ~ 14500ppm	1160 ppm
Ba	340 ~ 1580	490
Ni	14.7 ~ 73.7	135
Co	5.1 ~ 34.7	39.1
Cr	22.8 ~ 95.5	405
Nb	5.5 ~ 66.3	20.7
Sr	85 ~ 596	435.2
Rb	85.3 ~ 186	41.2
Ce	40.1 ~ 154	67.3
Zr	104 ~ 633	153
Y	13.4 ~ 37.2	25.5

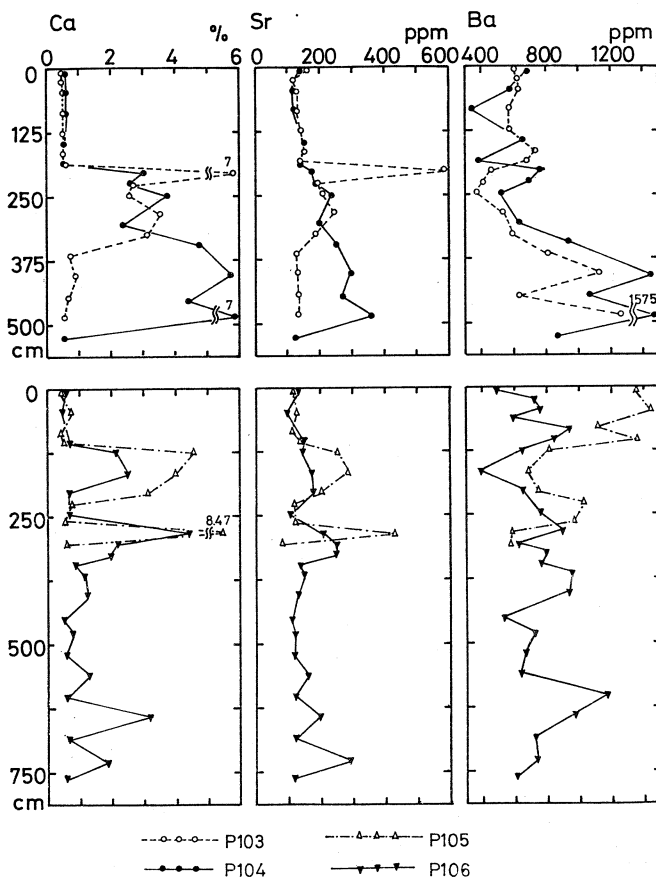
1) the aluminum values of core samples were determined spectrophotometrically.

コア試料ではCa, Mn, Ba, Co, Sr, 及び Zrなどはコアの位置や深さによって濃度変動が著しい元素であり, 一方, Na, Ti, Al などは比較的変動が少ないことがわかる。

次に, 定量結果を元素ごとにコアの深さに対してプロットし, 第2~7図に示したとおりの結果を得た。グラフの横軸は%又は, ppm で表わした存在度であり, 縦軸は表層からの深さで, 試料の区別は各図に下記したとおりである。類縁元素別に分布状況を考察すると次のようになる。

4.1 Ca, Sr, Ba (第2図)

カルシウム濃度の高い層準がそれぞれのコアで幾つか認められた。すなわち, P 103; 205~206 cm, P 104; 205~305 cm および 345~485 cm, P 105; 125~225 cm および 285~286 cm, P 106; 125~205 cm および 245~305 cm などである。これらの層は肉眼的にも石灰質層であって, 有孔虫化石が多量に産出している層準と一致した。

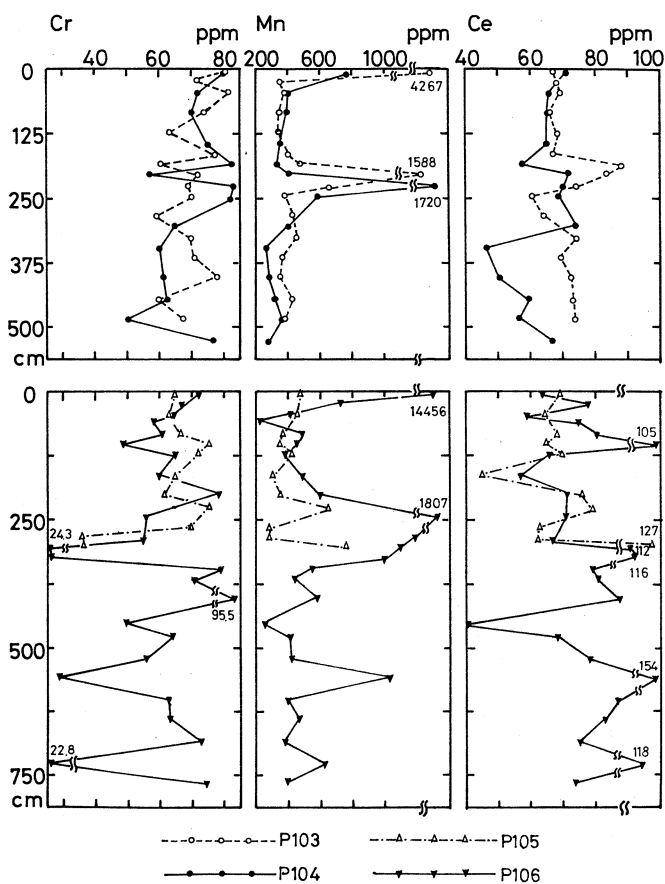


第2図 コア試料におけるCa, Sr, Baの分布。

カルシウムの多い層にはストロンチウムも濃縮されており、両者の分布パターンは類似している。すなわち、両元素の炭酸塩としての堆積条件の類似性を反映しているものと理解できる。しかし、バリウムのパターンとの一致は必ずしも良くないようである。

4.2 Cr, Mn, Ce (第3図)

マンガンは多酸化状態を示す元素であり、堆積環境を知るうえで重要な元素である。遠洋性海底の表層にはマンガンは鉄と共に濃縮されていることは既に指摘されている¹⁰⁾が、本研究の



第3図 コア試料におけるCr, Mn, Ceの分布。

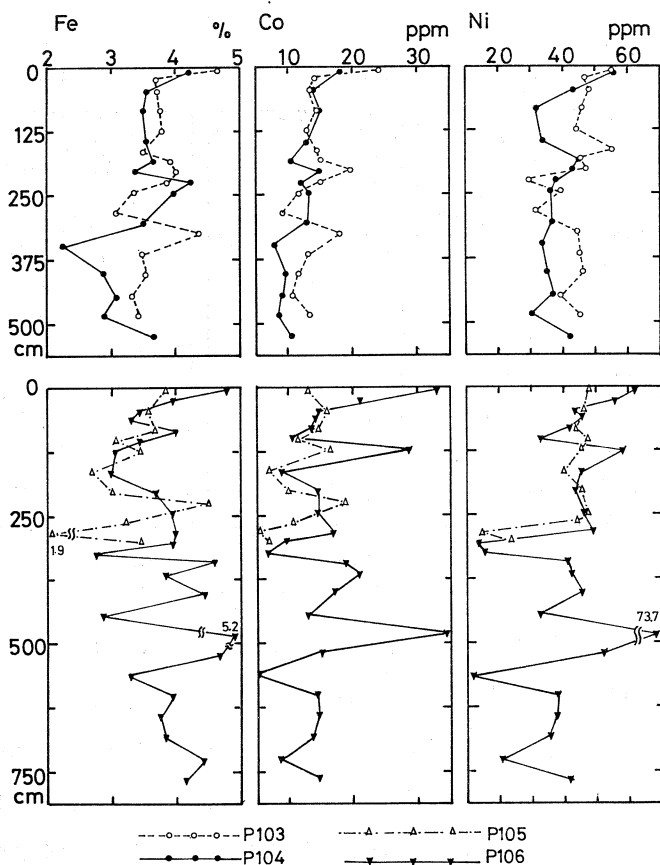
結果でも表層(～60cm)におけるマンガン濃度はP 103 ; 4267 ppmあるいはP 106 ; 14456 ppm など著しく高い。マンガン濃度の高い層はP 103 とP 104 では200cm付近に、P 106 では250cm付近にも認められた。これは、この時代に大量の陸源性物質の移動などの変動があったものと考えられる。Bonatti¹⁰⁾らは更新世期の氷河作用による深海底への大規模な堆積物の移動とマンガンの濃縮との関係を報告している。

また、表層に向けての濃度勾配については一般に、酸素供給量の少ない深層部は表層よりも還元状態にあると考えられており、下層で生じたマンガ(Ⅱ)イオンが堆積物の間隙水に溶けて上方に拡散し、上層の酸化帯に入ると再び二酸化マンガ(Ⅱ)として沈積するためと考えられる¹¹⁾。

同様のことが、他の多酸化状態を示すクロム、セリウムでも観察されるかと思われたが結果はあまり明瞭ではなかった。しかし、Fe, Co, Ni, Zr, Tiなどいくつかの元素でマンガ(Ⅱ)と同じ位置にピークを観察することができた。

4.3 Fe, Co, Ni (第4図)

全鉄濃度は表層においてやや高いとみることができる。鉄もマンガ(Ⅱ)と同じように酸化還元系の元素で、酸化的上層では酸化鉄(Ⅲ)または水酸化鉄(Ⅲ)として沈澱するので、表層の鉄濃度がやや高くなると考えられる。しかし、鉄(Ⅱ)イオンは不溶性硫化物としてある程度

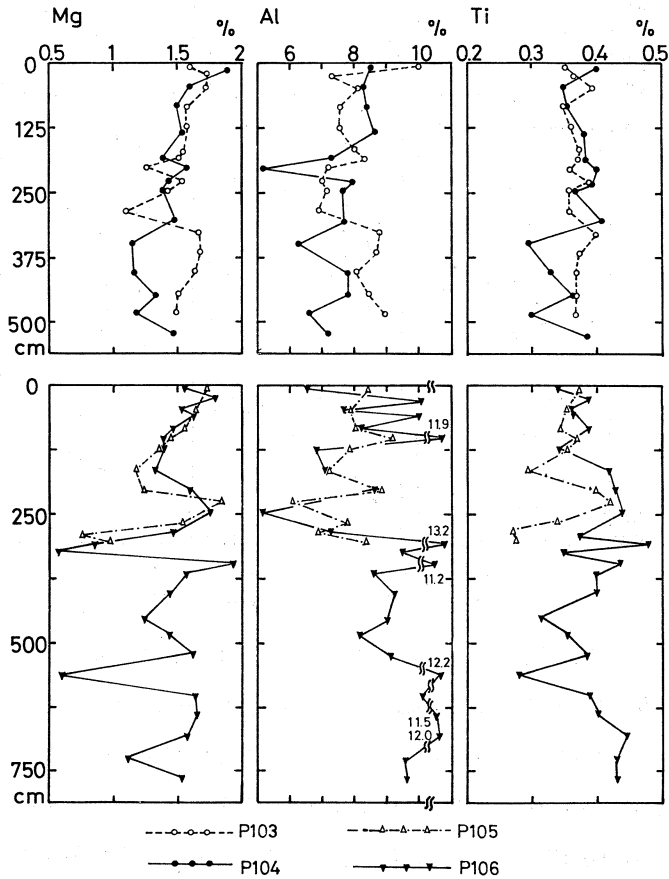


第4図 コア試料におけるFe, Co, Niの分布。

固定されてしまうので、全体の鉄の含有量は表層と下層であまり大きな差がないと考えられる。
微量親鉄元素のコバルト、ニッケルについては鉄と類似の分布パターンを示した。

4.4 Mg, Al, Ti (第5図)

コア試料の主成分に属するマグネシウム、アルミニウム、チタンの分布は、上層と下層にわたって大きな変化はなく、むしろ、濃度はほぼ一定といえる。



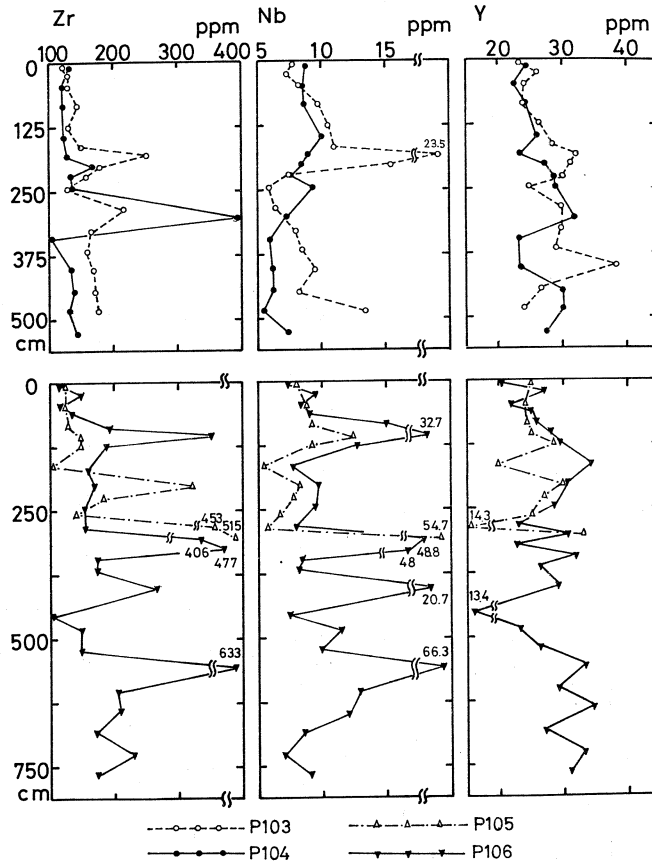
第5図 コア試料におけるMg, Al, Tiの分布。

4.5 Zr, Nb, Y (第6図)

これら微量親石元素は、カルシウムと同じ位置にピークが観察されたが、それら以外にも細かいピークがいくつかみられ複雑である。

4.6 Na, Rb (第7図)

ナトリウムは海水の附着が考えられるので、正確なコア試料濃度とは一致しないと思われるが、いずれにしても、変動は少なくルビジウムも同様である。

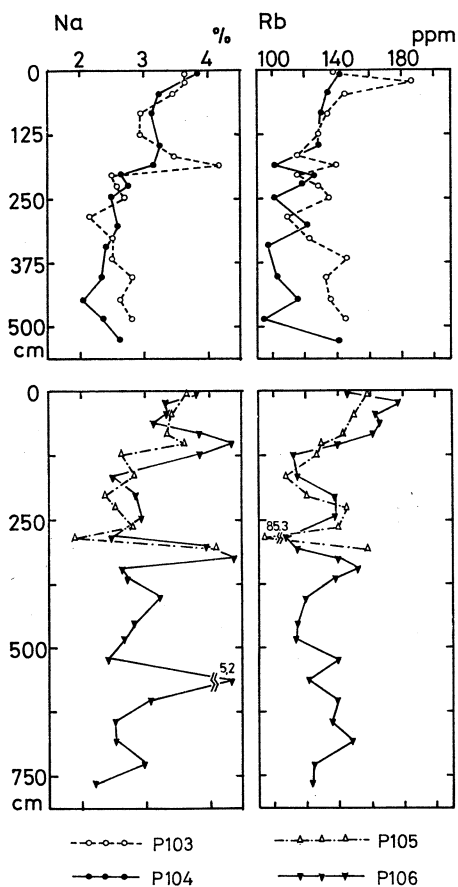


第6図 コア試料におけるZr, Nb, Yの分布。

以上、日本海深海のコア試料における、17元素の濃度分布を求め、検討したが、カルシウム、ストロンチウムなどの生物由来の元素、鉄、マンガンなどの堆積環境の変化に敏感な元素の挙動は、深海底における地球化学の考察に有益な資料となると思われる。また、本法の光量子放射化分析法は正確な非破壊的多元素同時定量法として、本報のような研究に有効に利用できると思われる。

本研究に関心を示され、内容について御助言下さった、東北大学教養部、鈴木勲子氏に感謝する。核研究共同利用にあたり、御助力を賜った東北大学原子核理学研究施設、八木益男助教授、近藤健次郎博士およびマシングループの方々に厚く御礼申し上げる。

なお、研究費の一部は文部省科学研究費補助金によった。



第7図 コア試料におけるNa, Rbの分布。

参 考 文 献

- 1) T. Kato and Y. Oka : Talanta. **19** (1972) 515.
- 2) T. Kato : J. Radioanal. Chem. **16** (1973) 307.
- 3) T. Kato, I. Morita and N. Sato : J. Radioanal. Chem. **18** (1973) 97.
- 4) N. Sato, T. Kato and N. Suzuki : Radiochim. Acta **21** (1974) 63.
- 5) T. Kato, K. Masumoto, N. Sato and N. Suzuki : J. Radioanal. Chem. **32** (1976) 51.
- 6) T. Kato, N. Sato and N. Suzuki : Bull. Chem. Soc. Jap. **50** (1977) 1930.
- 7) K. Masumoto, T. Kato and N. Suzuki : Nucl. Instr. Methods **157** (1978) 567.

- 8) 橋谷博, 本島健次 : 分析化学 **7** (1958) 478 .
- 9) A. Ando, H. Kurasawa, T. Ohmori and E. Takeda : *Geochem. J.* **8** (1974) 175 .
- 10) K. Boström and D. E. Fisher : *Boreas* **1** (1972) 275 .
- 11) E. Bonatti, D. E. Fisher, O. Joensuu and H. S. Rydell : *Geochim. Cosmochim. Acta* **35** (1971) 189 .

IV. 加 速 器 · 測 定 器

電子散乱用多線比例計数管 (MWPC) (Ⅲ)

核理研

河村雅夫・小山田正幸・中原和夫†

§ 1. 序

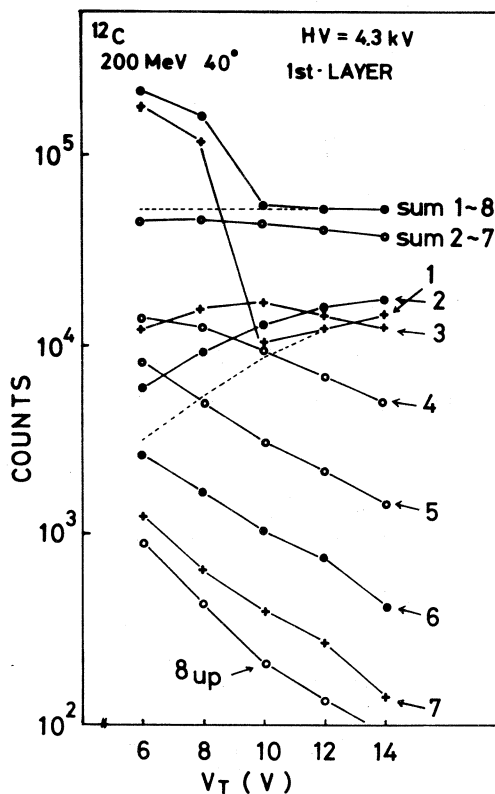
前回¹⁾に引き続き、192チャンネルMWPCのテストを行なったので報告する。今回はPCOSIIチェンバー・カードを12枚(今回は8枚)実装し、全チャンネルが有効である。また前回のテストでLDM出口のスリットによる影響が見られたので取りはずした。今回はチェレンコフ・カウンターのテストも行なった。これはLDMで正しく分析された電子のみをとらえてチェンバー・カードに速いゲートをかけ、バックグラウンドの影響を低減させようというものである²⁾。

§ 2. 測定結果

測定は、 ^{12}C 及びBeOの標的を用い、入射電子エネルギー200MeVで行なった。測定系は§1で述べた変更以外は前回と同じである。

第1図はチェンバー・カードの入力しきい値制御電圧(V_T)に対する計数をクラスター(文献1参照)の大きさごとに示し

第1図 V_T に対するクラスターごとの計数。図中の数字はクラスターの大きさを表わす。ただし8upは8以上を全て含む。sum 1~8は全てのクラスターの計数の合計。sum 2~7は大きさが2から7までの合計。点線は電気雑音がないときの推定値である。

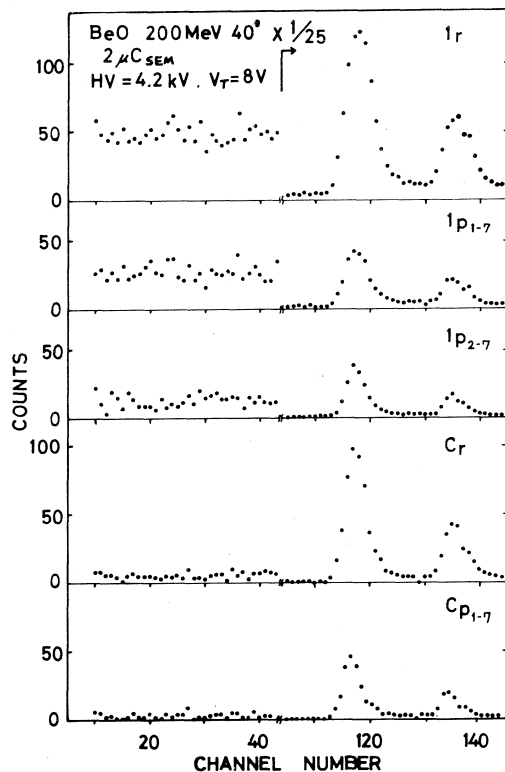


†現在 高エネルギー物理学研究所 茨城県筑波郡大穂町

である。計数は1層目の全チャンネルの合計で、標的は ^{12}C 、散乱角は 40° 、弾性散乱を含む部分を測定したものである。 V_T が8V以下では大きさ1のクラスタの計数が多くなっているがこれはクライストロン等からの電気雑音の影響と思われる。このため、大きさ1から8以上までのクラスタの計数の合計(図のsum 1~8)も V_T が8V以下で増加している。これらは雑音の影響がなければそれぞれ点線で示した様になるものと思われる。すなわち、 V_T の変化によって主となるクラスタの大きさは変化する(V_T が高い程クラスタは小さくなる)が、各クラスタの計数の合計はほとんど変化しない。実際sum 2~7では V_T が6Vから14Vまでほぼ一定である。従ってこの範囲の V_T ではほぼ100%の計数効率を得られていると思われる。以下、 V_T は8Vとする。

第2図はBeOを測定したスペクトルで ^9Be 及び ^{16}O の弾性散乱ピークの部分(図の右側, チャンネル番号105以上)と、それより電子エネルギーの高い部分すなわちバックグラウンドの部分(図の左側, チャンネル番号43以下)を示した。散乱角は 60° である。図は上から、1層目の中心出しの処理をしていない生データ(1r), 中心出しの処理をし、大きさ8以上のクラスタを除いたもの(1p₁₋₇)。さらに大きさ1のクラスタも除いたもの、(1p₂₋₇)、1層目と2層目の同時計数の生データ(Cr), 同時計数で中心出しの処理をし、大きさ8以上のクラスタを除いたもの(Cp₁₋₇)である。各図の右側(チャンネル番号105以上)は全て実際の計数を1/25にして表わしてある。

第2図 BeOを測定した結果。ピークは弾性散乱で、左の方が散乱電子エネルギーが高い。中央より右側では全て実際の計数を1/25にして示した。上から、1rは1層目の生データ、1p₁₋₇及び1p₂₋₇はそれぞれ1層目のクラスタの大きさ1から7まで、及び2から7までを中心出しの処理をしたもの、Crは二層の同時計数の生データ、Cp₁₋₇は同時計数でクラスタの大きさ1から7までを処理したものである。



第2図の($1p_{1-7}$)と($1p_{2-7}$)を比較すると、大きさ1のクラスターを除く事で、バックグラウンドの計数が減少している。

チェレンコフ・カウンターについては、速い回路特有の困難があり、前回はチェレンコフ・カウンターで速いゲートをかけるとかえって計数が増加する現象が見られ、十分なテストはできなかった。その後この現象はチェレンコフ・カウンターによるゲート信号がチェンバー・カードの入力側に回り込み、そのタイミングによっては計数してしまうために起こる事が判明した。この対策はまだ十分ではないが、一部のチャンネルでは押える事ができた。第3図に、第2図とほぼ同じ条件(標的 BeO, 散乱

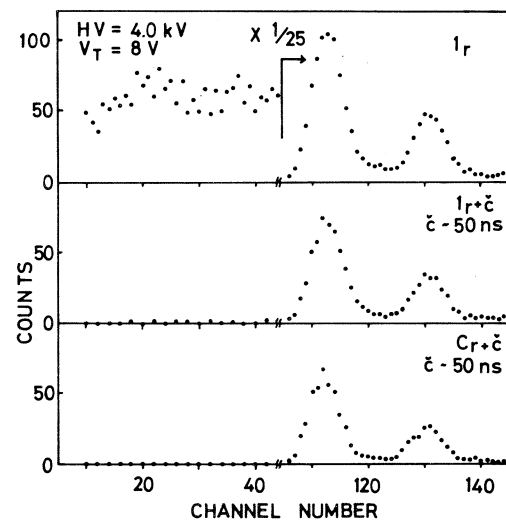
角 60° , ただし MWP C の印加高圧 4.0 kV)で測定した結果を示す。図は上から1層目の生データ($1r$), これにチェレンコフ・カウンターでゲートをかけたもの($1r+\check{c}$), 二層の同時計数にゲートをかけたもの($Cr+\check{c}$)である。第2図と同様図の右側では実際の計数を $1/25$ にして示した。チェレンコフ・カウンターのゲート巾は約50 nsecである。第3図($1r$)と第2図($1r$)を比較して前者の方がバックグラウンドが多くなっているのは、平均ビーム電流がやや多いためである(Semによる測定で、第2図では3 nA, 第3図では10 nA)。

($1r+\check{c}$)と($Cr+\check{c}$)で、図の左側では奇数チャンネルは前に述べた理由によ

り状態がよくなく、偶数チャンネルのみ示した。右側でもチェレンコフ・カウンターを併用した場合スペクトルに乱れが見られる。しかし、チェレンコフ・カウンターの効果は明らかである。

§3. ま と め

チェレンコフ・カウンターの効果は顕著である事が分かったが、全チャンネルについて入力



第3図 BeOの測定でチェレンコフ・カウンターを併用した結果。第2図と同様、中央より右側では全て実際の計数を $1/25$ にして示した。 $1r$ はチェレンコフ・カウンターを使用しないときの1層目の生データ、 $1r+\check{c}$ 及び $Cr+\check{c}$ はそれぞれチェレンコフ・カウンターでゲートをかけたときの1層目及び同時計数の生データである。

への回り込みを防ぐためにはさらに努力を要するであろう。また今回テストしたチェレンコフ・カウンターは一つの発光体で全チャンネルを被っており、ビーム強度が大きい場合、今回のような効果は得られない可能性がある。従ってMWPC自体の耐バックグラウンド性をさらに高める必要がある。そのためには現在の二層では不十分で、三層にする必要があると思われる。チェレンコフ・カウンターについても、二層にして速い同時計数を行なうか、または適当に分割する必要があるかもしれない。現在三層構造のMWPCを設計中であり、チェレンコフ・カウンターについても引き続き改良及びテストを行なっていく予定である。

参 考 文 献

- 1) 河村雅夫, 小山田正幸, 中原和夫 : 核理研研究報告 **11** (1978) 286.
- 2) 河村雅夫, 小山田正幸, 中原和夫 : 核理研研究報告 **10** (1977) 295.

BDM の 計 数 効 率

山形大教養部, 核理研*

種市 宏・上野博昭・庄田勝房*

§1. 序 論

これまで核理研において ($e, e'p$) の陽子エネルギー分布から p_0 等の断面積を求める場合、残留核の準位のエネルギー間隔から決定したステップ (一般に数百 keV) で電子エネルギーを変えて測定し、対応する陽子スペクトルを仮想光子で割算して求めた断面積をつないで広範囲の励起エネルギーにおける断面積を求めていた。しかし ${}^6\text{Li}$ や ${}^{14}\text{N}$ の ($e, e'd$) の実験では第1励起状態のエネルギーが大きく、1つの電子エネルギーで測定した d のエネルギー分布のうち (r, d_0) を求めるに使用可能な範囲は数 MeV である。このような広範囲のエネルギー分布を用いて断面積を求めるにあたっては BDM の計数効率の系統誤差の影響が大きくあらわれ、 ${}^6\text{Li}$ や ${}^{14}\text{N}$ の場合には数十%のくい違いが見られ計数効率の不正確さを示した。

我々は ${}^6\text{Li}$, ${}^7\text{Li}$ の (r, x) の実験にあたって、同じ電子エネルギー照射で発生する陽子を BDM の異なる磁場を用いてスペクトルを測定して、2つの求めたスペクトルの結果が一致するように効率を実験的に求めた。

§2. 実験及び結果

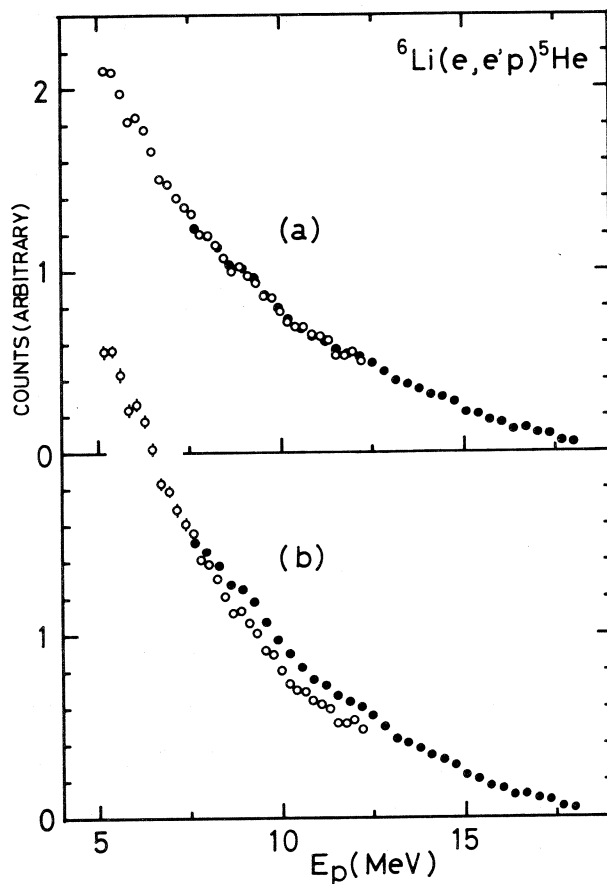
ターゲットは ${}^6\text{Li}$ (厚さ 5.67 mg/cm^2) と ${}^7\text{Li}$ (厚さ 6.80 mg/cm^2) のアイソトープを用い、30 MeV の電子線を照射し放出された陽子及びその他の粒子を BDM と SSD のシステムで測定した。ビームに対するターゲット面及び放出粒子測定のは角度はそれぞれ 30° , 90° である。BDM の磁場は NMR で測定し、中心軌道における陽子エネルギーが 10.5 MeV と 15.5 MeV の2つの磁場設定で測定した。各 SSD あたりの計数値は約 250 ~ 3000 個であった。第1図の (b) が設計時における検出効率 (SSD シフト 3) を用いて求めたスペクトルで、白丸は中心軌道エネルギー 10.5 MeV, 黒丸は 15.5 MeV での測定値である。この結果においては、2番目の SSD から 100 番目の SSD まで 3 つずつ平均した。明らかなく違いが見られる。中心軌道に相当する 76 番目の効率を基準にして、2つのスペクトルができるだけ一致するような効率を求めた。得られた効率 (修正した効率と称す) は第1表の (4) にこれまで使われていた BD

M4, シフト3に対する比を(5)に示した。第1図の(a)は修正した効率を用いて求めたスペクトルである。各点の誤差棒は丸の大きさより小さい。この効率が他の粒子に対しても適用できるかどうかを見るため、トリトンに対して試みた結果が第2図である。第2図の(a), (b)は第1図と同じくそれぞれ修正した効率, 無修正の効率に対応する。トリトンのスペクトルの各測定点に多小合わない所が見られるが, これはバックグラウンドの評価が困難であったためと思われる。第1図, 第2図の(a)の合い方から見て, 第1表の修正された効率はほぼ正しいものと考えられる。

修正した効率を適用した例を第3図に示す。これは ${}^6\text{Li}(e, e'p){}^5\text{He}$ の p_0 と p_1 の分岐比を求めるために行なった3つのエネルギーの電子照射による陽子エネルギー分布の組合せを次式のようにとったものである。

$$S_{26} - 1.32 S_{24} + 0.22 S_{22}$$

S_{26} , S_{24} , S_{22} はそれぞれ 26, 24, 22 MeV の電子線照射によるスペクトルである。修正した効率を用いたため, エネルギーの低い方がこれまでより小さくでている。第3図の実線の曲線は上記エネルギーの電子に関する仮想光子のスペクトルの組合せをとり準単色にしたもので, 上記陽



第1図 ${}^6\text{Li}(e, e'p){}^5\text{He}$ のスペクトル。
電子線のエネルギーは 30 MeV, 白丸は $E_c(\text{BDM}$ の中心軌道の陽子のエネルギー) = 10.5 MeV, 黒丸は $E_c = 15.5 \text{ MeV}$ のときの測定値で, 3個の SSD について平均したものである。縦軸は計数(規格化した)である。横軸は SSD に入射するときの陽子のエネルギーである。(a) は今回の修正した効率を用いたもので, (b) は BDM, No. 4, シフト3の効率を用いたもの。

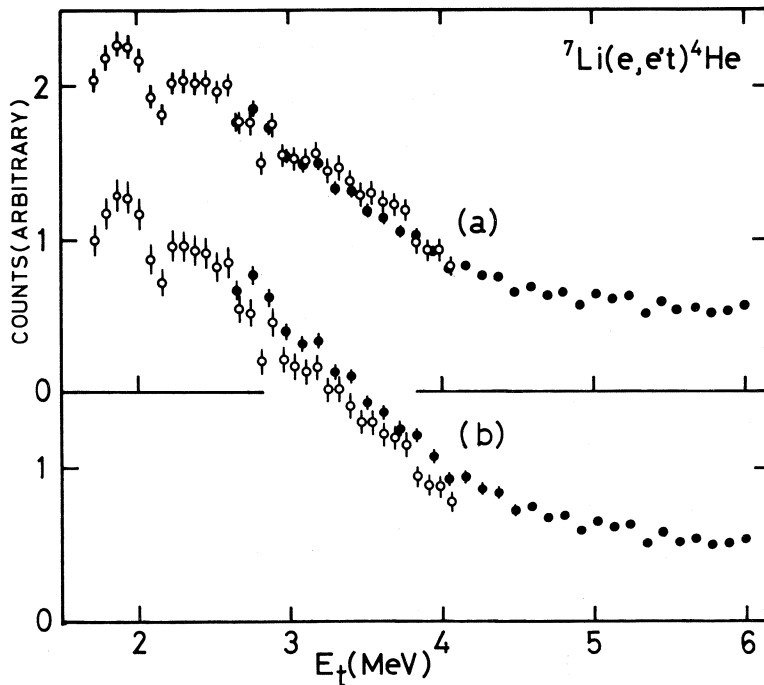
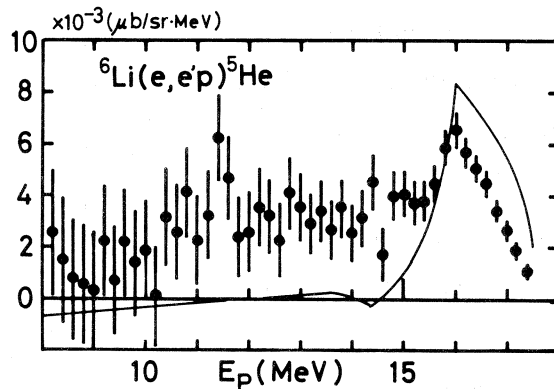


図2 図 ${}^7\text{Li}(e, e' t){}^4\text{He}$ のスペクトル。電子線のエネルギーは 30 MeV, 白丸は $E_c = 10.5$ MeV, 黒丸は $E_c = 15.5$ MeV のときの測定値で 3 個の SSD について平均したもの。縦軸は計数 (規格化した) で横軸は SSD に入射するときのトリトンのエネルギーである。(a), (b) は第 1 図の (a), (b) と同じ意味である。

第 3 図 ${}^6\text{Li}(e, e' p){}^5\text{He}$ 反応で、電子エネルギーが 26, 24, 22 MeV の場合に得られた 3 つのスペクトル (S_{26} , S_{24} , S_{22} とする) について $S_{26} - 1.32S_{24} + 0.22S_{22}$ のように差引きしたもの。この係数は仮想光子のスペクトルについても同様の差引きをして、実線の曲線のようにする。横軸は重心系での陽子のエネルギーである。



子エネルギー分布の組合せに対応する。結果には p_0 のせまいピークと p_1 の広いピークが見られる。後者は ${}^5\text{He}$ の非常に広い第 1 励起状態に対応するものである。

§3. 考 察

修正した効率はSSD番号の小さい(軌道半径が小さい)方の効率が設計値より大きい。この理由を考えるため、すべてのSSDは同じ形と大きさを持ち、BDMの焦点面上に置かれていてSSDの入射面が粒子の軌道に垂直になっていると仮定して効率を計算した。BDMの中心軌道に対応するSSDを基準にしたときの各SSDに入射する粒子のエネルギーの幅及び立体角をそれぞれ dE/dE_0 , $d\Omega/d\Omega_0$ とすると、これらの量は次式で表わされる(附録)。

$$\frac{dE}{dE_0} = \frac{(3-x^2)x}{2} \quad (1)$$

$$\frac{d\Omega}{d\Omega_0} = \frac{(2+\pi/2)}{1+x(\pi-2t-\cot(3t))} \quad (2)$$

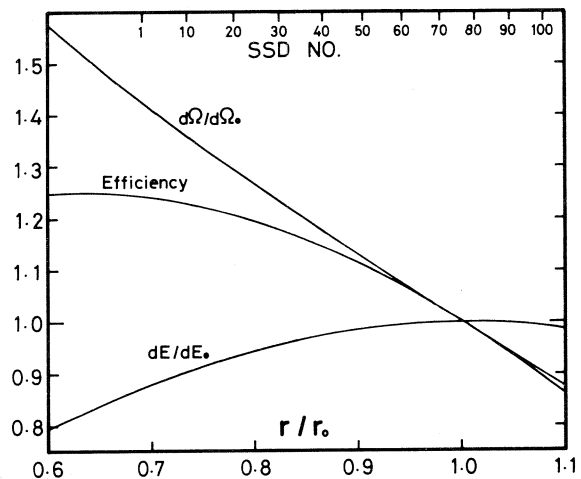
こゝに x は中心軌道の半径 r_0 に対する半径 r の比で($x=r/r_0$), $t=\tan^{-1}(x)$ 。
 dE/dE_0 と $d\Omega/d\Omega_0$ の積が効率になる。第4図は x を横軸にとって、これらの諸量をグラフに書いたものである。 x とSSD番号との関係はBDM(4)の E/E_0 (SSDに入射する粒子のエネルギー E と中心軌道に対応するSSDに入射する粒子のエネルギー E_0 の比)の表から求めて第4図の上端の横軸に示した。

又この関係を用いて第1表の(1), (2), (3)に各SSDに対するこれらの値を表にして示した。このようにして、SSDが焦点面上にあると仮定して求めた効率は、BDM(4)の効率と0.5%以内で合致している。第4図の dE/dE_0 , $d\Omega/d\Omega_0$ の x に対する変化から見て、 x とSSD番号の対応を変化させてエネルギーをずらしてみても、修正した効率を得ることはできないと考えられる。

ターゲット上の入射電子ビーム

- ・スポットの大きさが1cm位あつ

ても構造からみて $d\Omega/d\Omega_0$ を大きく変化させるとは考えられない。 dE/dE_0 も大きく変化さ



第4図 本文の(1), (2)式の dE/dE_0 , $d\Omega/d\Omega_0$ を横軸に r/r_0 (中心軌道に対する軌道半径の比)をとってグラフにしたもの。両者の積を効率として図に示した。上端にSSD番号をBDM No. 4の E/E_0 (中心軌道に対するエネルギー比) $= (r/r_0)^2$ の関係で求めて示した。

第1表 BDMの計数効率。

SSD 番号	(1) dE/dE_0	(2) dQ/dQ_0	(3) 効 率 1	(4) 修正した効率	(5) 効率の比
1	0.870	1.428	1.242	1.5048	1.2115
2	0.874	1.419	1.241	1.5064	1.2142
3	0.878	1.411	1.239	1.5077	1.2165
4	0.883	1.402	1.238	1.5085	1.2188
5	0.887	1.394	1.236	1.5089	1.2207
6	0.890	1.386	1.234	1.5090	1.2224
7	0.894	1.378	1.233	1.5086	1.2238
8	0.898	1.371	1.231	1.5079	1.2251
9	0.901	1.363	1.229	1.5068	1.2261
10	0.905	1.356	1.227	1.5053	1.2269
11	0.908	1.348	1.225	1.5035	1.2276
12	0.912	1.341	1.223	1.5014	1.2279
13	0.915	1.334	1.221	1.4989	1.2281
14	0.918	1.327	1.218	1.4961	1.2280
15	0.921	1.320	1.216	1.4929	1.2277
16	0.924	1.314	1.214	1.4895	1.2272
17	0.927	1.307	1.211	1.4857	1.2265
18	0.929	1.301	1.209	1.4817	1.2257
19	0.932	1.294	1.206	1.4773	1.2247
20	0.935	1.288	1.204	1.4727	1.2234
21	0.937	1.282	1.201	1.4678	1.2218
22	0.940	1.276	1.199	1.4626	1.2202
23	0.942	1.270	1.196	1.4572	1.2184
24	0.944	1.264	1.193	1.4515	1.2163
25	0.947	1.258	1.191	1.4456	1.2141
26	0.949	1.252	1.188	1.4394	1.2117
27	0.951	1.246	1.185	1.4331	1.2091
28	0.953	1.241	1.182	1.4265	1.2064
29	0.955	1.235	1.180	1.4197	1.2035
30	0.957	1.230	1.177	1.4127	1.2005
31	0.959	1.224	1.174	1.4055	1.1974
32	0.961	1.219	1.171	1.3981	1.1939
33	0.962	1.214	1.168	1.3905	1.1905
34	0.964	1.209	1.165	1.3828	1.1868
35	0.966	1.204	1.162	1.3749	1.1831
36	0.967	1.198	1.159	1.3668	1.1791
37	0.969	1.193	1.156	1.3586	1.1751
38	0.970	1.189	1.153	1.3503	1.1709
39	0.972	1.184	1.150	1.3419	1.1667
40	0.973	1.179	1.147	1.3333	1.1623
41	0.975	1.173	1.143	1.3246	1.1585
42	0.976	1.167	1.140	1.3158	1.1546
43	0.978	1.161	1.136	1.3068	1.1506
44	0.979	1.156	1.132	1.2978	1.1466
45	0.981	1.150	1.128	1.2887	1.1424
46	0.982	1.145	1.124	1.2796	1.1381
47	0.983	1.139	1.120	1.2703	1.1338
48	0.984	1.134	1.117	1.2610	1.1294
49	0.986	1.129	1.113	1.2517	1.1249
50	0.987	1.124	1.109	1.2422	1.1204

SSD 番号	(1) dE/dE_0	(2) $d\Omega/d\Omega_0$	(3) 効 率 1	(4) 修正した効率	(5) 効率の比
51	0.988	1.119	1.105	1.2328	1.1157
52	0.989	1.113	1.101	1.2233	1.1111
53	0.990	1.108	1.097	1.2138	1.1063
54	0.991	1.104	1.093	1.2042	1.1016
55	0.991	1.099	1.089	1.1947	1.0968
56	0.992	1.094	1.085	1.1851	1.0919
57	0.993	1.089	1.081	1.1755	1.0870
58	0.994	1.084	1.077	1.1659	1.0821
59	0.994	1.080	1.074	1.1563	1.0771
60	0.995	1.075	1.070	1.1468	1.0722
61	0.996	1.071	1.066	1.1373	1.0668
62	0.996	1.066	1.062	1.1278	1.0623
63	0.997	1.061	1.057	1.1183	1.0578
64	0.997	1.056	1.053	1.1088	1.0532
65	0.998	1.051	1.048	1.0995	1.0487
66	0.998	1.046	1.044	1.0901	1.0442
67	0.998	1.041	1.040	1.0808	1.0397
68	0.999	1.036	1.035	1.0716	1.0352
69	0.999	1.032	1.031	1.0624	1.0307
70	0.999	1.027	1.026	1.0534	1.0262
71	1.000	1.023	1.022	1.0443	1.0218
72	1.000	1.018	1.018	1.0354	1.0174
73	1.000	1.014	1.013	1.0266	1.0130
74	1.000	1.009	1.009	1.0178	1.0086
75	1.000	1.005	1.005	1.0092	1.0044
76	1.000	1.000	1.000	1.0006	1.0002
77	1.000	0.996	0.996	0.9922	0.9960
78	1.000	0.992	0.992	0.9838	0.9920
79	1.000	0.988	0.988	0.9756	0.9878
80	1.000	0.984	0.983	0.9675	0.9839
81	1.000	0.979	0.979	0.9595	0.9805
82	0.999	0.974	0.974	0.9516	0.9772
83	0.999	0.970	0.969	0.9439	0.9741
84	0.999	0.965	0.964	0.9363	0.9710
85	0.999	0.961	0.960	0.9288	0.9679
86	0.998	0.957	0.955	0.9215	0.9650
87	0.998	0.952	0.950	0.9143	0.9622
88	0.997	0.948	0.945	0.9073	0.9596
89	0.997	0.944	0.941	0.9004	0.9570
90	0.997	0.939	0.936	0.8937	0.9546
91	0.996	0.935	0.932	0.8871	0.9522
92	0.996	0.931	0.927	0.8807	0.9500
93	0.995	0.927	0.922	0.8745	0.9479
94	0.994	0.923	0.918	0.8684	0.9459
95	0.994	0.919	0.913	0.8625	0.9442
96	0.993	0.915	0.909	0.8567	0.9426
97	0.993	0.911	0.904	0.8511	0.9410
98	0.992	0.907	0.900	0.8457	0.9397
99	0.991	0.904	0.896	0.8405	0.9385
100	0.990	0.900	0.891	0.8355	0.9375

SSD 番号に対する dE/dE_0 , $d\Omega/d\Omega_0$ は(1), (2)式で計算した。式の x の値は BDM(4) のエネルギー比の平方根を求めた。第1表の(3)の効率1は第1表の(1)と(2)の積で、BDM(4)の効率とほとんど一致している。(4)列は今回求めた修正した効率である。(5)列は修正した効率を BDM(4)の効率で割算したものである。

せる理由は見当たらない。

考えられることは、BDMに入射する粒子が磁極面の半径に垂直な、いわゆるZ方向に発散するビームの場合に、磁極端の漏れ磁場による収斂作用を多少受けるものと考えられる。この収斂作用が軌道半径の小さい方に大きく働いて効率を大きくしているのではないかと思われる。

最後に、上に述べたBDMの諸パラメーターをSSD番号Nから直接近似する3次式を求めた。次式のように係数を定義する。

$$f(N) = a_0 + a_1 N + a_2 N^2 + a_3 N^3 \quad (3)$$

第2表はこれらの係数を表にしたものである。第2表の第1行、第2行は第1表の第1、第

第2表 SSDの番号Nから $a_0 + a_1 N + a_2 N^2 + a_3 N^3$ の形の3次式で諸量を求めるとき係数。

係数	a_0	a_1	a_2	a_3
1. dE/dE_0	. 86827	. 39487 E-2	-. 35714 E-4	. 85240 E-7
2. $d\Omega/d\Omega_0$	1. 42994	-. 76382 E-2	. 36839 E-4	-. 13795 E-6
3. 効率BDM(4)	1. 24289	-. 12912 E-2	-. 33150 E-4	. 10780 E-6
4. 修正比	1. 20905	. 30922 E-2	-. 13679 E-3	. 78830 E-6
5. 修正した効率	1. 50654	. 16398 E-2	-. 19268 E-3	. 10960 E-5

第1、2行は第1表の第1、2列の数値を近似したもの。第4行の修正比は今回求めた修正した効率のBDM(4)の効率に対する比で第5行は直接Nから修正した効率を求めるもの。

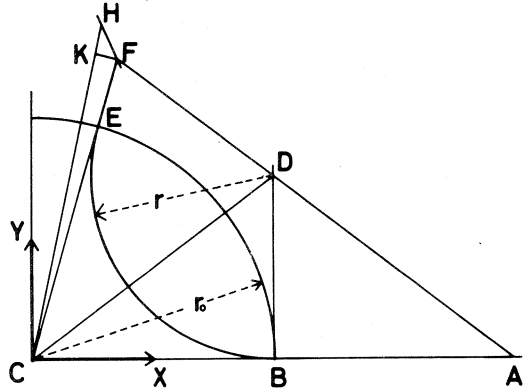
2列の dE/dE_0 、 $d\Omega/d\Omega_0$ を3次式に近似したもの。第3行の効率はBDM(4)の近似、第4行の修正比は今回求めたもので、第1表の第4列は、第2表の第3、第4行の係数を用いた近似式で計算した効率と修正比の積である。第5行の修正した効率は第1表の第4列の効率を近似したときの係数である。いずれの式も誤差は0.2%以内に大部分が入るので十分実用になる。

この実験に際して御援助をいただいた核理研の(r, p)グループ、マシングループと測定器グループの方々に感謝致します。

付 録

付1図はBDMを磁極面に垂直の方向から投影した図で、磁極はCを中心とし、半径 r_0 の円

付1図 BDMの断面図で、Cは磁極の中心で、半径 r_0 である。
 $CA = 2r_0$ のAから出た粒子はBで磁場に入り、Eで磁場を出るまでD($BD \perp CA$)を中心とする半径 r の円形軌道をえがいてまわり、焦点面FHとFで交まる。KFはSSDの入射面でKFはCFに垂直であり、 $\triangle KFH$ は直角三角形とみなせる。
 x, y 座標軸を図のようにとった。



形をさしてあり、 $CA = 2r_0$ のA点がターゲットの位置で、Aから放出された粒子はBで磁場に入りD($BD \perp CA$)を中心とする半径 r の円形の軌道をえがいてEから出て、焦点面FHにFで当たる。いまFの位置に入射面FKをもったSSDを $KF \perp CF$ になるように置く。KFは十分小さいので $\triangle KFH$ は直角三角形とみなすことができる。座標軸を図のようにとるとFの座標は、以前著者の発表した論文¹⁾の(1)式で表わされるので、 $l = CF$ 、 $x = r/r_0$ とおくと、 l は(A1)式で表わされる。

$$l = \frac{2(1+x^2)}{(3-x^2)} \tag{A1}$$

$$\text{従って } dl = \frac{16x}{(3-x^2)^2} r_0 dx \tag{A2}$$

一方、 $HF = ds$ とおくと、前掲の論文より

$$ds = \frac{4\sqrt{9+10x^2+x^4}}{(3-x^2)^2} r_0 dx \tag{A3}$$

従って、 $KF = da$ とおくと、 $da = \sqrt{ds^2 - dl^2}$ より

$$da = \frac{4}{3-x^2} r_0 dx \tag{A4}$$

一方、エネルギー E は $E_0 x^2$ (E_0 は中心軌道の粒子のエネルギー)であるので、 $dE = 2E_0 x \cdot dx$ 、これと(A4)式から

$$dE = \frac{E_0}{r_0} \frac{(3-x^2)x}{2} \cdot da \tag{A5}$$

$x = 1$ のときの dE を dE_0 とかくと,

$$\frac{dE}{dE_0} = \frac{(3 - x^2)x}{2} \quad (\text{A6})$$

これが本文の(1)式である。本文の(2)式は前掲の論文の(5)式と全く同じであるので省略する。

参 考 文 献

- 1) 種市・上野・庄田：核理研究報告 8 (1975) 207.

V. データ処理装置・測定器稼動状況

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・本村智雄

§ 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(O-50)の昭和53年度用途別利用実績を第1表に示す。

今年度は目立ったトラブルもなく順調に稼動した。O-4500はオンライン2000時間, オフライン1000時間となっているが来期よりマシンタイムが増加(1000時間/年)してオンライン時間が増える事によりオフライン利用はむずかしくなると思われる。又整備時間も必要なのでオフラインデータ処理はO-50に移行を希望をします。このように今後は計算機の利用時間が増加すると思われるので計算機室を整理して出来る丈利用しやすい状態を保ちたいと思います。利用者の皆様もデータテープの保管等に御協力下さい。又利用記録等の記入もお忘れないうようお願い致します。

尚O-4500も稼動以来満6年を過ぎたので, そろそろ代替又は一部移行等について検討を始めたいと考えています。(窪田)

§ 2. 測定器

53年度は加速器制御系の整備を中心に仕事をしてきた。

○加速器制御用の計算機MELCOM-70には加速器の主要な運転状態が読み込まれるようになっている。今後更に加速器との接続を増やす必要があり, そのために高速CAMAC制御装置を新たに導入した。

○核理研でもマイクロコンピュータが測定器, 加速器制御系で多数使われている。これらのソフトウェアの開発は, 従来プログラムを直接ROM(読み出し専用メモリ)に1バイトずつ書き込む方法しかなく大変苦勞していたが, 53年度研究補佐員 早川建氏の努力によりOKITAC-50を使った8085, 6800クロスアセンブラができた。

これにより今後増々マイクロコンピュータの応用が拡大していくものと思っている。(武藤)

第1表 昭和53年度用途別利用実績表。

(単位：時間)

機種名	OKITAC - 4500				OKITAC - 50			
用途 月	オンライン データ 集積	オンライン データ 処理	保 守 故 障	月合計	オンライン リモート バッチ	オンライン データ 処理	保 守 故 障	月合計
4	366	25	4	395	12	167	1	180
5	270	202	5	477	4	157	8	169
6	127	158	22	307	0	104	9	113
7	147	94	44	285	4	78	2	84
8	142	32	2	176	3	36	2	41
9	103	70	5	178	12	111	5	128
10	79	143	6	228	15	153	7	175
11	279	130	5	414	3	209	17	229
12	270	115	3	388	7	266	3	276
1	116	15	6	137	5	156	6	167
2	135	41	6	182	5	114	5	124
3	120	20	30	170	2	132	6	140
合 計	2154	1045	138	3337	72	1683	71	1826
月平均	179.5	87	11.5	278	6	140	6	152
%	64.6	31.3	4.1		3.9	92.2	3.9	

核理研研究報告 第12巻 第1号

1979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)
電話 0222-45-2151 (代)

印刷所 株式会社 東北プリント
仙台市立町24番24号
TEL (63) 1166 (代)

RESEARCH REPORT OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

Volume 12 Number 1 June 1979

Laboratory of Nuclear Science,
Tohoku University,
1, Kanayama, Tomizawa, Sendai 982, Japan