

ISSN 0385-2105

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 研 究 報 告

第12卷 第2号

1979年12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なっておりません。
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。

仙台市三神峯1-2-1 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2号 目次

I 原子核物理

I-1 ^{93}Nb の磁化分布からの弾性電子散乱 147

(核理研, 青山学院大*)

小黒 瞬, 有田 浩三*, 寺沢 辰生, 斎藤 健二郎,
水野 義之, 中里 俊晴, 斎藤 健治, 鳥塚 賀治

I-2 180° 電子散乱による ^{40}Ca の IAS の励起 151

(核理研) 寺沢 辰生, 小黒 瞬, 水野 義之, 鳥塚 賀治

I-3 ^{12}C の 180° 準弾性電子散乱

スケーリング則の破れ及び高励起状態に於る異常な構造について 155

(教養部*, 核理研)

川添 良幸, 寺沢 辰生, 小黒 瞬, 水野 義之,
鳥塚 賀治

I-4 $^{28}\text{Si}(e, \pi^+)^{28}\text{Al}$ 反応の研究 165

(核理研, 教養部*)

庄田 勝房, 坪田 博明*, 大橋 英雄, 山崎 正晴,
取越 正己, 佐々木 修

I-5 Angular Distribution Study of $T=1$, 4.5 MeV Analog Complex
in ^{12}B by $^{12}\text{C}(e, e'\pi^+)^{12}\text{B}$ 170

(核理研, レンセラー大*, 教養部**)

庄田 勝房, 坪田 博明**, 大橋 英雄, 山崎 正晴,
K. Min*, E. J. Winhold*

I-6 ^{63}Cu , $^{65}\text{Cu}(r, p)$ 反応 (I) 178

(核理研, 教養部*)

田中 俊成, 坪田 博明*, 宮瀬 晴久*, 菅原 真澄

II 物性物理

II-1 The Order-Disorder Transformation Temperatures of Nonstoichiometric
TiNi 183

(選研) 本間 敏夫, 松本 実, 守護 嘉朗, 西田 実

II-2	Neutron TOF Profile Analysis of Ti-V-S System: I	
	$Ti_{0.5}V_{0.5}S_{1.67}$	191

(無機材研, 核理研*)

川田 功, 磯部 光正, 岡村富士男, 佐伯 昌宣,
新村 信雄*

II-3	高圧力下の中性子線回折による RbBr の変態の測定 (II)	195
	(金研, 弘前大理学部*)	

神垣 知夫, 大橋 正義, 吉田 肇, 金子武次郎,
佐藤幸三郎*

II-4	T-O-F Pulsed Neutron Total Scattering of $Se_{0.25}Te_{0.75}$ Liquid	200
	(金研) 三沢 正勝, 鈴木 謙爾	

II-5	T-O-F Pulsed Neutron Total Scattering Studies of V_2O_5 - P_2O_5 and PbO- GeO_2 Glasses Prepared by Rapid-Quenching from Their Melts	207
------	--	-----

(金研) 上野 光明, 三沢 正勝, 鈴木 謙爾

II-6	PSD による位置決定における演算上の問題	212
	(理学部物理, 核理研*)	

新井 正敏, 新村 信雄*, 窪田 健雄*

III 放射化学

III-1	固相コバルトテトラフェニルポルフィン錯体系における光核反応に伴う ^{58m}Co および ^{58g}Co の反跳挙動について	219
-------	---	-----

(筑波大化学系)

荘司 準, 酒井 陽一, 池田 長生, 大竹 隆夫,
渡辺 裕夫

III-2	光核反応による無担体 ^{18}F の製造 (II)	226
	(核理研, 金沢大医技短大*)	

八木 益男, 天野 良平*

III-3	アルミニウム中での ^{67}Cu の拡散	229
	(工学部金属材料)	

藤川辰一郎

III-4	Extraction and Doping of Copper in Zinc Selenide Crystals	239
	(工学部金属材料)	
	佐藤 史朗, 井垣 謙三	
IV	加速器・測定器	
IV-1	金表面障壁型SSDの試作	245
	(核理研) 田中 俊成	
V	放射線安全管理	
V-1	東北大学原子核理学研究施設環境放射線.....	251
	(核理研 放射線障害予防小委員会)	
	新村 信雄, 渡辺 昇, 八木 益男, 菅原真澄	
VI	論文リスト.....	257

I. 原 子 核 物 理

^{93}Nb の磁化分布からの弾性電子散乱

核理研, 青山学院大*

小黒 瞬・有田浩三*・寺沢辰生

斎藤悌二郎・水野義之・中里俊晴

斎藤健治・鳥塚賀治

^{51}V による 180° 弾性電子散乱実験に引き続き, ^{93}Nb による 180° 弾性電子散乱の実験を行なった。1979年3月に3点, 9月に3点測定した。入射電子エネルギーは, 80~170 MeV である。

^{93}Nb の基底状態は, $1g_{7/2}^+$ に陽子1個, $1g_{7/2}^+$ に中性子2個ある状態と考えられるので, $1g_{7/2}^+$ 陽子による磁気多重極能率が観測されることが期待される。

実験についての詳細は, 文献1)で述べたので, 主に相違点のみを述べる。

§ 1. 180° 弾性電子散乱

全微分断面積 $d\sigma/d\Omega$ を, 縦成分(添字T)と横成分(添字L)に分けて書くと,

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

180° 電子散乱の幾何学的要請から, 縦成分の寄与は, ゼロとなり, 弾性散乱であるから, 対称性によって, 横成分は奇数次の磁氣的形状因子からの寄与だけとなる¹⁾。R, η を,

$$R = \left(\frac{Ze^2}{2E}\right)^2 \quad (2)$$

$$\eta = 1 + \frac{2E}{M_T c^2} \quad (3)$$

で定義すると, (1)式は, 磁氣的形状因子を F_T として,

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = R \cdot \frac{1}{\eta} |F_T|^2 \quad (4)$$

と表わされる。

^{93}Nb の基底状態のスピン・パリティは, $\frac{9}{2}^+$ であるから, $|F_T|^2$ へは, 磁氣的多重極形状因子 $M1, M3, M5, M7, M9$ が寄与する:

$$|F_T|^2 = \sum_{j=1,3,5,7,9} |F_j^{\text{mag}}(q)|^2 \quad (5)$$

q は、運動量移行。

実際の実験では、微分断面積の縦成分が現われる¹⁾。運動量移行 q が大きいところではこの寄与は、無視できる大きさだが、 q が小さいところ ($q \lesssim 1 \text{ fm}^{-1}$) では、電荷形状因子自体がかなり大きくなるため、無視できなくなる。

§ 2. 実 験

実験装置は文献 1) と同じである。相違点は、

- (1) 本体室中に、レーザー照準器を設置し、入射ビームラインの基準にしたこと。
- (2) 入射ビームライン上に、新たに、コアモニター線量計を挿入したこと。

である。

(1)によって、 180° 散乱装置系の組み立て、アラインメントが容易になり、実験期間中にアラインメントを確認することができるようになり、装置の信頼性が増した。

(2)によって、今まで入射線量を、標的後方の SEMでのみ、測定していたのが、前方のコアモニターと併用できるようになった。

ターゲットは厚さ 53.1 mg/cm^2 の ^{93}Nb を用いた。入射エネルギーは、80 MeV, 100 MeV, 113 MeV, 126 MeV, 150 MeV, 170 MeV の6点である。 q の低いところでは、電荷形状因子の寄与を差し引くため、入射エネルギー 113 MeV 以下で、 ^{90}Zr をいっしょに測定した。

微分断面積は、各入射エネルギーごとに、 ^9Be , ^{12}C , $E_x = 15.1 \text{ MeV}$, H (ポリエチレン, LiH) 等を用いて、規格化した。

§ 3. 結 果

結果を第 1 表に示した。

得られた値は、サックレイ²⁾, MIT³⁾ のデータとともに、第 1 図に示した。

比較のために、調和振動子型波動関数を用いた $1g_{\frac{7}{2}}$ 陽子による単一粒子模型による平面波ボルン近似で計算した形状因子をのせる。又、有田浩三氏による $g_{\frac{7}{2}} d_{\frac{5}{2}}$ の配位混合、及びコア偏極を加えたものものをせた。

第1表 ^{93}Nb の 180° 弾性電子散乱の磁氣的形状因子

E (MeV)	q_{eff} (fm^{-1})	$ F_T ^2$ ($\times 10^{-6}$)
80	0.97	2.29 ± 0.34
100	1.18	2.63 ± 0.81
113	1.31	1.80 ± 0.34
126	1.44	2.68 ± 0.19
150	1.68	2.47 ± 0.27
170	1.88	3.45 ± 0.43
140*	1.58	1.55 ± 0.20
160*	1.78	1.98 ± 0.27

q_{eff} は $q \times \left(1 + k \frac{Ze^2}{RE}\right)$ で、 $R = 5.44 \text{ fm}$ とし、 $k = 1.5$ を使用した。表中、*印は、文献4)による。

第1図

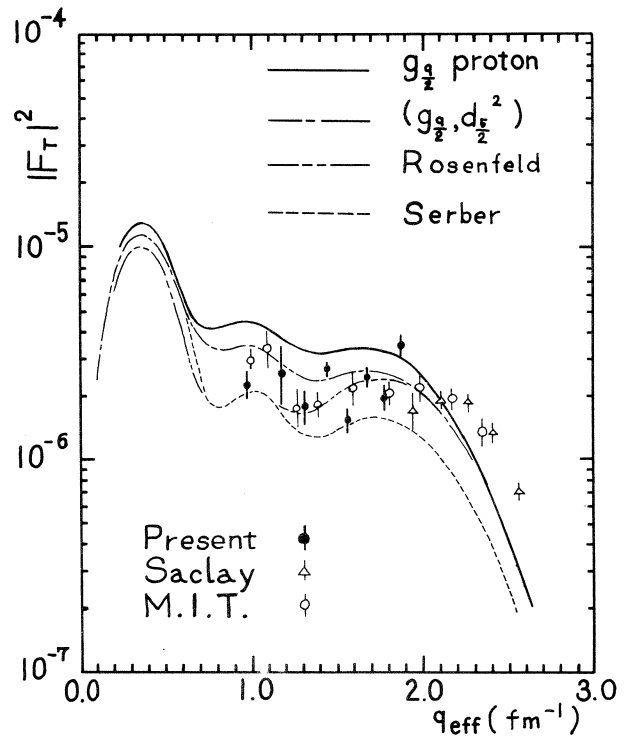
— は、 $g_{\frac{3}{2}}$ proton の単一粒子模型による平面波ボルン近似で計算した磁氣的形状因子である。調和振動子型波動関数を用い、 b -パラメータは 2.15 fm である。

--- は、配位混合を入れたもの：

$$\sum_{J_n} x_{J_n} |g_{\frac{3}{2}} d_{\frac{5}{2}}^2(J_n),$$

$$J = \frac{9}{2} >$$

さらにコア偏極（1次の摂動）を加えたもの；-----：Rosenfeld，-----：Serber. これら、最後の3つは有田氏の計算による。



参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 **10** (1977) 177.
- 2) P. K. A. de Witt Huberts, *et al.*: Phys. Lett. **60 B** (1976) 157.
- 3) R. C. York and G. A. Peterson. Phys. Rev. **C 19** (1979) 574.
- 4) 榎本収志 : 学位論文.

180°電子散乱による⁴⁰CaのIASの励起

核理研

寺沢辰生・小黒 瞬

水野義之・鳥塚賀治

§ 1. 序 論

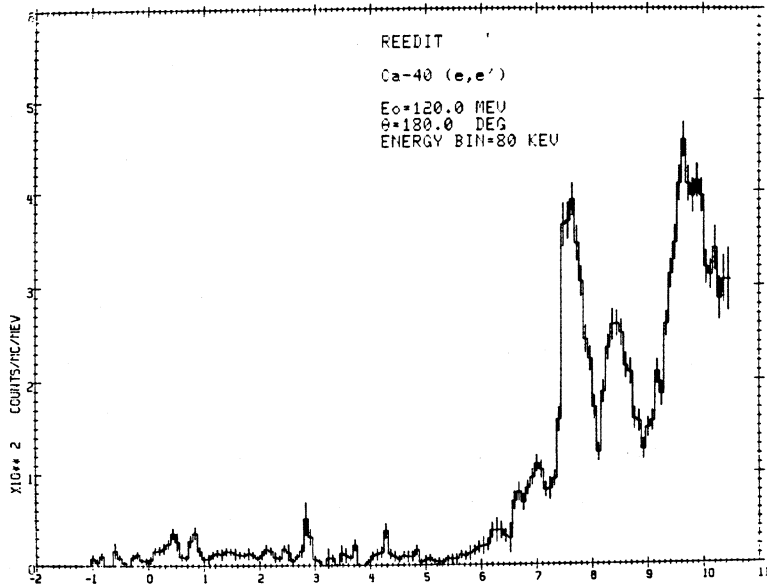
非弾性電子散乱によるアイソバリックアナログ状態 (IAS) の励起は、その他の方法に比較して数々の特徴を持っている。すなわち光核反応に比しては多重極度の高い状態を励起できる事、又よく行なわれる一核子移行反応に比較すると、電子散乱は娘核の基底状態からの励起であり、親核からの β -崩壊と関連づけられるという非常に興味深い面を持っている。一方、電子散乱は、IASからの放出陽子を観測する実験に較べると断面積がバックグラウンドに比して小さく、特に核が重くなるにしたがって形状因子は余剰中性子の数に反比例して減少すると共に通常の散乱角では弾性散乱の radiation tail が増大してくるため、観測は急激に困難になる。この困難をさけるため我々は180°電子散乱という方法を選んだ。

標的核の⁴⁰Caは、励起エネルギー7.66 MeVに $J^\pi = 4^-$ 、 $T = 1$ の状態が存在し、この状態は⁴⁰Kの基底状態のIASとされている。しかも⁴⁰Kの基底状態から⁴⁰Caの基底状態への β -崩壊は、現在までに ft 値が測定されている数少ない3rd unique forbidden 遷移の一つである。unique forbidden 遷移が電磁的遷移と直接関係づけられる遷移であることから、電子散乱で得られるIASの形状因子と β -崩壊の実験値との比較は、相異なる相互作用の間の関係を明らかにすると共に、アイソスピン混合等の核構造上の問題に対しても明確な情報が得られる可能性がある。

§ 2. 実験方法

実験は東北大学原子核理学研究施設の電子リニアックに附属する180°散乱実験装置を用いて行なった。実験装置の詳細については既に報告¹⁾があるので省略する。標的として厚さが 96.5 mg/cm^2 の⁴⁰Caの濃縮フォイルを用い、断面積の規格化は厚さ 8.1 mg/cm^2 のポリエチレン標的中の水素からの弾性散乱を測定して行なった。測定に用いた入射電子エネルギーは各々、80, 100, 120, 140, 160, 180, 200 MeVで、運動量移行、 $q = 0.77 \sim 1.98 \text{ fm}^{-1}$ の範囲で7点の形状因子を得た。第1図に得られた散乱電子スペクトルの一例を、又第2図に

は形状因子の測定結果を示した。



第1図 入射電子エネルギー 120 MeVでの散乱電子スペクトル。

§ 3. 理 論

(L-1) - unique forbidden 遷移の遷移確率は換算核行列要素,

$$\langle J_f' \parallel \tau_{\pm} \cdot r^{L-1} \cdot \vec{Y}_{L,L-1} \cdot \vec{\sigma} \parallel J_i' \rangle$$

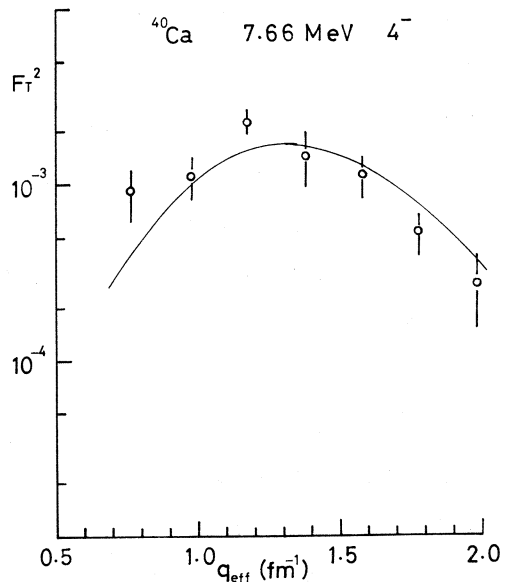
$$\tau_{\pm} = \mp \frac{1}{\sqrt{2}} (\tau_x \pm i\tau_y) \quad (1)$$

のみに比例し、これ以外の核行列要素は表われない。この核行列要素は、アイソスピンの項を除けば、磁氣的L重極遷移(ML遷移)の核行列要素の photon pointでの値,

$$\langle J_f \parallel r^{L-1} \cdot \vec{Y}_{L,L-1} \cdot \vec{\sigma} \parallel J_i \rangle \quad (2)$$

と同じである。(但し $T=1$ の遷移では軌道角運動量の部分の寄与は小さいので無視した)。(1)式は $L=1$ では

$$\langle J_f' \parallel \tau_{\pm} \cdot \sigma \parallel J_i' \rangle \equiv \int \sigma \quad (3)$$



第2図 ^{40}Ca の励起エネルギー 7.66 MeV, $J^{\pi} = 4^{-}$, $T=1$ 準位のM4形状因子。実線は、 $^{40}\text{K} \rightarrow ^{40}\text{Ca}$ の β -崩壊の実験値で規格化した、 $1d_{3/2} \rightarrow 1f_{7/2}$ の単一粒子模型によるM4形状因子。

これは良く知られた Gamow - Teller の行列要素となり, $G - T$ 遷移と $\Delta T = 1$ の $M 1$ 遷移の関係は有名である。

(1)式の行列要素と unique forbidden β -崩壊の ft 値との関係は

$$\begin{aligned} \langle G_{L-1} \rangle^2 &= \frac{(T_f T_{zf} 1 - q | T_i T_{zi})^2}{2(2T_i + 1)} \cdot \frac{|\langle J_f T_f || \sum_{j=1}^A \tau^{(j)} \cdot r_j^{L-1} \cdot [4\pi/2L-1]^{1/2} \\ &\quad \cdot \vec{Y}_{L+1,L} \cdot \vec{\sigma} || J_i T_i \rangle|^2}{(2J_i + 1)} \\ &= (\ln 2) (2\pi^3/g^2 C_A^2) \left\{ \frac{[(2L-1)!!]^2}{(2L-1)} \right\} \lambda_{ce}^{2L-2} (ft)^{-1} \quad (4) \end{aligned}$$

係数に具体的な数値を代入すれば,

$$\langle G_1 \rangle^2 = 1.81 \times 10^9 \cdot (f_1 t)^{-1} \quad [\text{fm}^2], \quad (5a)$$

$$\langle G_2 \rangle^2 = 4.04 \times 10^{15} \cdot (f_2 t)^{-1} \quad [\text{fm}^4], \quad (5b)$$

$$\langle G_3 \rangle^2 = 2.11 \times 10^{22} \cdot (f_3 t)^{-1} \quad [\text{fm}^6]. \quad (5c)$$

従って実験で得られた ft 値と(5)式から $\langle G_{L-1} \rangle^2$ の値が得られ, これと(4)式から核行列要素が求まり, 対応する ML 遷移の photon point での形状因子の値が得られる。 $^{40}\text{K} \rightarrow ^{40}\text{Ca}$ の β^- -崩壊の実験値から²⁾

$$\langle G_3 \rangle_{\text{exp}}^2 = 51.5 \pm 13 \quad \text{fm}^6 \quad (6)$$

を得た。 ^{40}Ca の $E_x = 7.66 \text{ MeV}$ 準位に対する形状因子の q -依存性には, $(1d_{3/2})^{-1}$ ($1f_{7/2}$) の調和振動子形の波動関数を仮定し, これと(6)の値から, photon point で β^- 崩壊の実験値に一致する形状因子として, 第2図に実線で示した形状因子の値が得られた。

§ 4. 実験と理論の比較・結論

第2図に於て, 電子散乱実験で得られた形状因子と, β^- 崩壊の実験値で規格化した形状因子は, 全ての q の範囲で良い一致を見せている。この事は $(L-1)$ -unique forbidden β^- 崩壊と磁氣的 L 重極遷移の間の関係が, $L = 4$ という比較的大きな L の値に対しても成立する事を示している。

第1図の散乱電子スペクトルに於て, 散乱電子の数は励起エネルギーが零の弾性散乱に相当する位置から 7 MeV 附付の IAS に達するまでの間は非常に少く殆んど零であることがわかる。IAS だけが大きなピークとして観測されることは, 180° 散乱実験が IAS の励起に関して非常に適した方法である事を示している。

参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 **10** (1977) 177.
- 2) E. K. Warburton, G. T. Garvey and I. S. Towner : Ann. Phys. **57** (1970) 174.

^{12}C の 180° 準弾性電子散乱

—スケーリング則の破れ及び

高励起状態に於ける異常な構造について—

教養部, 核理研

川添良幸・寺沢辰生・小黒 瞬

水野義之・鳥塚賀治

§ 1. 序

原子核による電子の準弾性散乱実験は、原子核のフェルミ運動量を知る手がかりとして、又深い空孔状態のエネルギーを求める実験手段として以前より数多くなされてきた¹⁾。ところが最近になって原子核に対するスケーリング則の成立^{2,3)}とその破れの話題が交換力との関係で議論されている^{4,5)}。さらに π -凝縮の起る可能性⁶⁾もスケーリング則の破れと関係がありそうである。これらの問題に対しては電子の 180° 準弾性散乱を使った実験は純粋な横波成分の情報を与えるという意味で有利である。又、 ^{12}C でベルトーとイサベル⁷⁾によって発見された巨大共鳴よりもはるかに高い励起エネルギー状態にある幅約10 MeVのいくつかの構造も横波成分に顕著に表われる。以上の考察から、我々は ^{12}C を標的とする電子の 180° 準弾性散乱実験を行なうことにした。

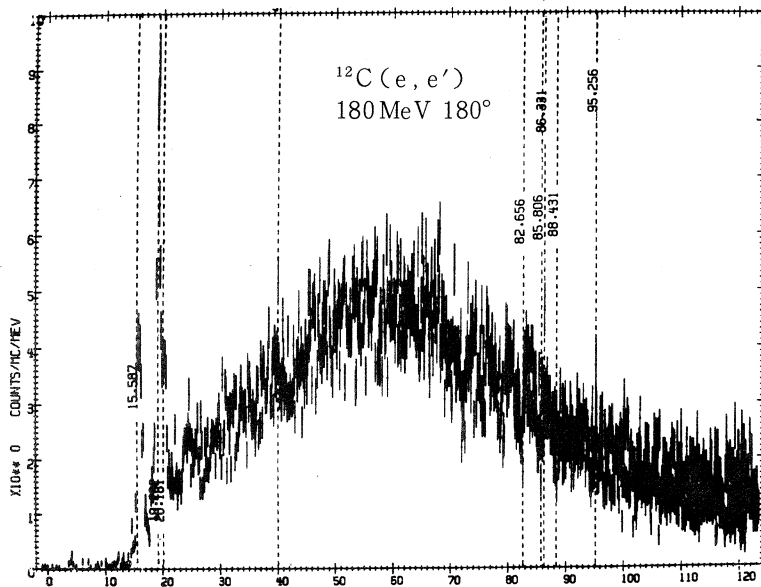
§ 2. 実験及び解析の方法

2.1 実験条件

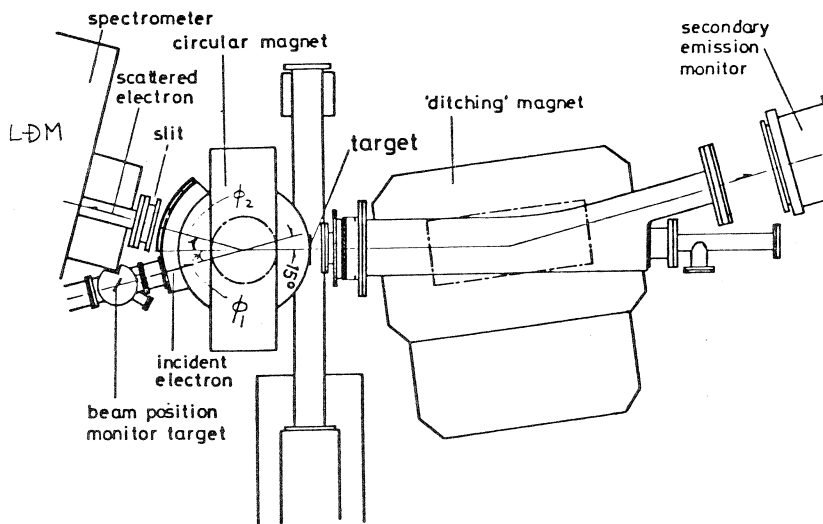
実験には東北大学原子核理学研究施設の300 MeV電子線形加速器及び 180° 散乱実験装置を用いた。入射電子エネルギー(E_e)は180, 200, 220 MeV, 標的には ^{12}C (79.9 mg/cm², 純度98.9%), 及び規格化に使用する為にH(ポリエチレン, CH₂, 32.05 mg/cm²), ^9Be (130 mg/cm², 100%)が用いられた。検出器には33チャンネルのSSDを使用した。この実験で得られた生データの一例を第1図に示す。

2.2 実験設定

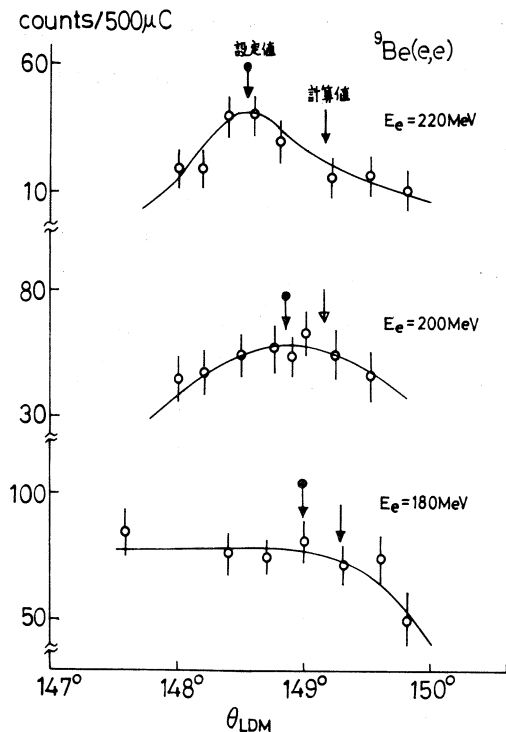
180° 方向に非弾性散乱された電子は円形電磁石(15°偏向電磁石, 第2図)によって、散乱後の運動量 p_2 に応じた角度 ϕ_2 だけ偏向された後に、スペクトロメータ(LDM)に垂直に入射し、運動量分析される。入射電子の偏向角を ϕ_1 ($=15^\circ$), 運動量を p_1 とすると、 $p_1, \phi_1,$



第1図 ^{12}C を標的とした入射電子エネルギー 180 MeV, 散乱角 180° の生データ。現在の散乱槽の窓のぎりぎりまでに対応する励起エネルギーまでのスペクトルをとっている。



第2図 180° 散乱の実験装置。 15° 偏向電磁石によって 180° 散乱されてきた電子を測定することが可能になる。



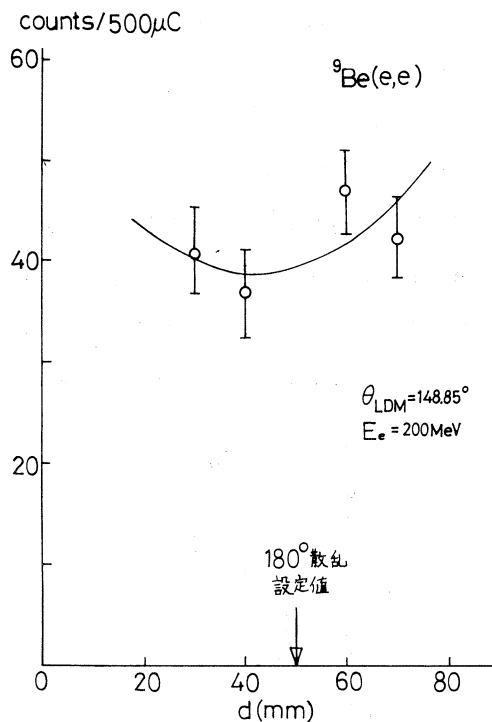
第3図 LDMの角度と磁場の関係。LDMの磁場を一定にしてその角度を変えた場合の ${}^9\text{Be}$ の弾性散乱の断面積にあたる計数値の変化を示す。計算値よりもピークの値が $0.3\sim 0.5^\circ$ 小さい方にずれているので、このずれを取り入れて実験の設定値を決めた。

p_2 , ϕ_2 の間には次の関係が成立する⁸⁾。

$$\frac{p_2}{p_1} = \frac{\tan \frac{\phi_2}{2}}{\tan \frac{\phi_1}{2}}$$

これによって、LDMの磁場設定に応じた中心軌道の p_2 と対応する ϕ_2 とが決定される。この計算値を実験的に確認する為に、LDMの磁場を一定にして散乱角を計算値の前後にふり、それぞれの点に於ける ${}^9\text{Be}$ の 180° 弾性散乱断面積にあたる計数値を比較した(第3図)。LDMの散乱角を ϕ_2 に対応する角度からずらせ過ぎると計数は減る。計数がピークになる角度は計算値から $0.3\sim 0.5^\circ$ 系統的にずれていたため、このずれを取り入れて、実験の設定角度を決定した。

また円形電磁石の位置をLDMに対して前後させる事によって、 180° 方向以外に散乱された電子の影響(荷電断面積)が最小になる様にして、 180° の散乱角を得ている(第4図)。

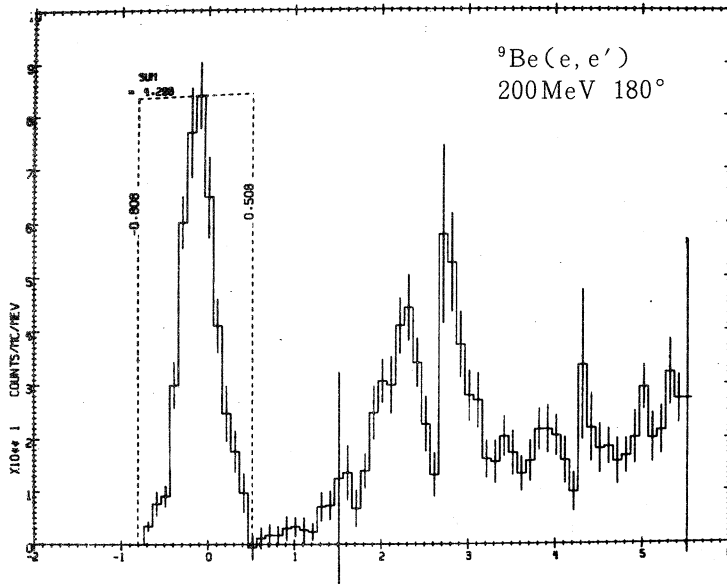


第4図 15° 偏向電磁石の前後移動と ${}^9\text{Be}$ の弾性散乱の断面積に対応する計数値の変化の関係。荷電による断面積の寄与のために 180° からずれるとカウントがふえる。これを利用して 180° 散乱の設定値を決定できる。

以上の設定で測定された ^{12}C のスペクトル(第1, 6図)において、励起エネルギー0~15 MeVの間は殆んど計数がゼロである事から、荷電断面積とバック・グラウンドの影響は無視しうると考えられる。

2.3 データ解析の方法

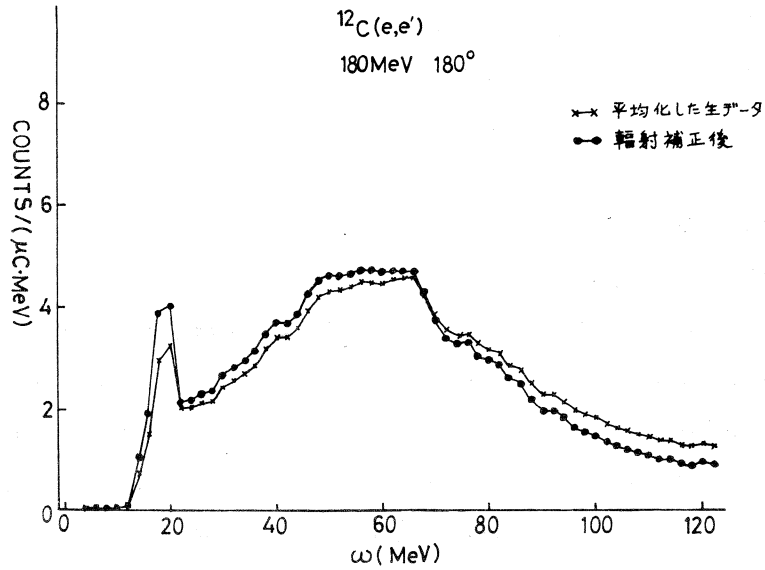
^{12}C の様な偶々核の 180° 散乱では弾性散乱が観測されないので、エネルギーの基準決定と断面積の規格化が直接には出来ない。我々は ^9Be の弾性散乱と比較する事によってその値を得ている。例として200 MeVの ^{12}C のデータの規格化に用いた ^9Be のスペクトルを第5図に示す。



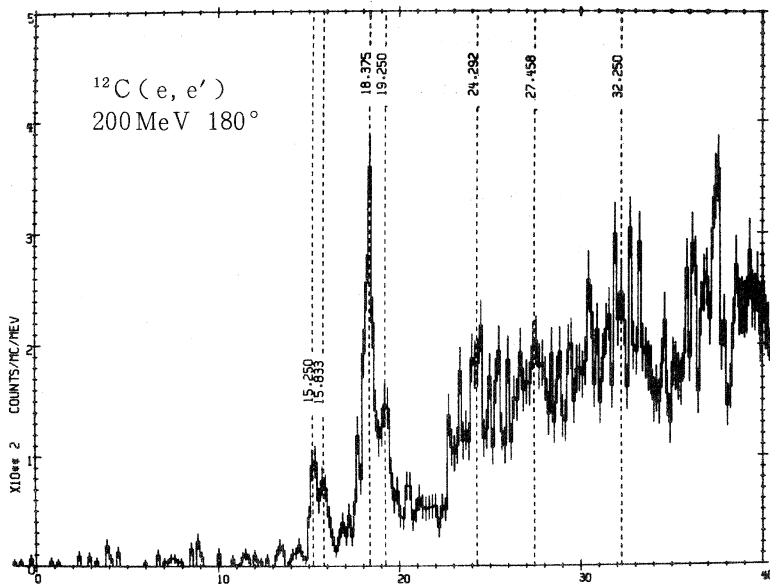
第5図 エネルギー及び絶対値の規格化に使った ^9Be の弾性散乱のピークのスペクトル。入射電子エネルギー200 MeVの場合を例として示す。

得られた生のスペクトルはどの磁場設定においても、両端が系統的に落ち込んでいるのが認められた。この原因はLDMの1回の磁場設定で測定し得る運動量の範囲(3.25%)がLDMの入り口スリットに収まり切れない(即ち $4\phi_2$ の範囲が広すぎる)為であろうと推定された。これは入射電子エネルギーの高いデータほど落ち込みが大きかった事とも一致している。この影響は33チャンネルのSSDの相対検出効率を、本実験のスペクトルを用いて計算する事によって、補正した。

また輻射補正は、通常の弾性散乱の大きなテイルは全く見られないのでこれは無視し、非弾性散乱の計数のあるピークは全て夫々のテイルをひくと考えて、unfoldingを行なった。その結果を、入射電子エネルギー200 MeVの場合について、第6図に示す。比較の為に、この方法



第6図 ^{12}C の 180° 準弾性電子散乱断面積に対して、入射電子エネルギー 180 MeV の場合に対して輻射補正の様子を示したものである。弾性散乱のテイルは原理的にはない訳で、実際非常に小さいことが測定された。輻射補正によって準弾性散乱のピークの高励起エネルギー側が少しさがり、低励起エネルギー側が少し上がることがわかる。



第7図 ^{12}C の低い励起エネルギーのスペクトル。我々の実験はほぼこの精度を保って励起エネルギー 130 MeV 付近までのスペクトルを測定している。

で輻射補正を行なう前のデータ（2 MeV 幅で生のデータを平均化したもの）も合わせて示す。

第7図には、第6図に於ける平均化を行なう前のスペクトルのうち、励起エネルギー 0~40 MeV の部分を拡大して示す。我々の実験は、ほぼこの精度を保って励起エネルギー 130 MeV 付近までのスペクトルを測定している。

§ 3. 結果の考察

3.1 スケーリング則の破れ

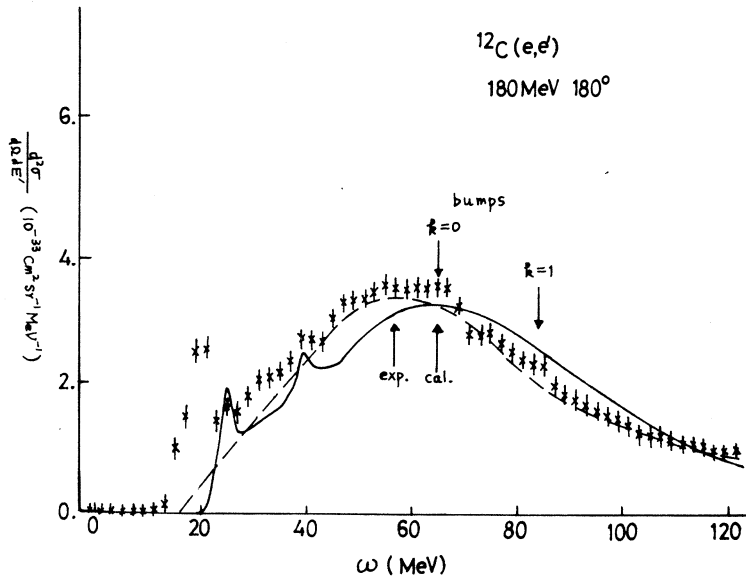
素粒子物理学で良く知られているスケーリング則は、散乱の微分断面積をただ1つの運動学的変数の関数として表わそうとするものである。原子核による電子の準弾性散乱に対するスケーリング則の成否が調べられかなりの精度で成立することがわかっている。しかし結果を詳細に再検討してみると、縦成分が主なデータと横成分が主なデータには微妙な差のあることがわかる³⁾。それは横成分が主なデータが準弾性散乱のピークより低エネルギー側（スケール変数 y の小さい側）で大きくなっていることである。ところで準弾性散乱のピークにあたる励起エネルギーは、さまざまな模型に共通に

$$\omega = \frac{q^2}{2m} + \bar{\epsilon} \quad (2)$$

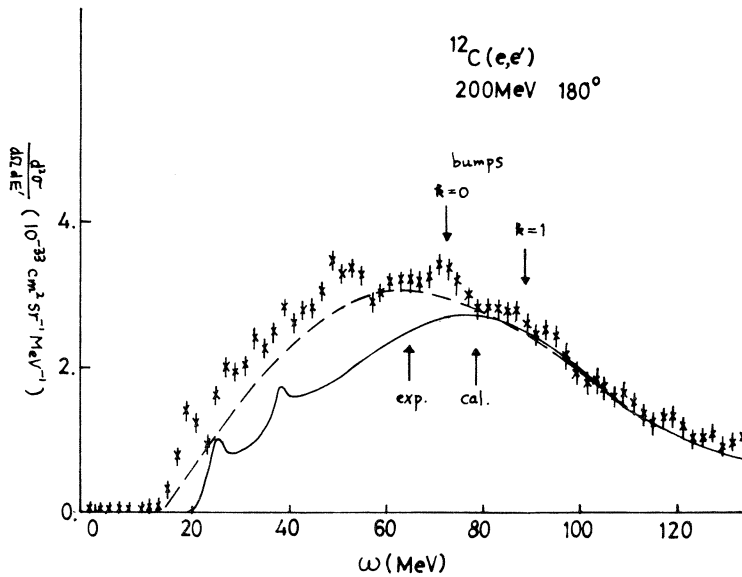
と書けることが知られている。ここで m は核子の質量である。 $\bar{\epsilon}$ に対しては平均的な核子のセパレーション・エネルギーという昔からの説^{1,2)}と、交換力の効果だ^{4,5)}という2つの説がある。いずれの説でも $\bar{\epsilon}$ はある程度の q -依存性を持つ。

我々は前方の散乱角の準弾性散乱のデータを良く再現するパラメータを使って、散乱状態の殻模型計算を行なった。但し、残留相互作用は考えに入れない。その結果、180°散乱に対しては、図8~10に示すように実験で得られた準弾性散乱のピークの位置が10~20 MeV程度理論値よりも低エネルギー側にずれていることがわかった。このずれの原因は、引力的な二体有効相互作用によるものと考えられる。前方ではほとんどきかずに、180°で大きくきいているものとして考えられるのは、ポテンシャル描像では $(\sigma \cdot \sigma)(\tau \cdot \tau)$ 型の引力テンサーがまずあげられる。これは基本的相互作用としては p 波 π -N 相互作用であり、現在さかんに研究されつつある核物質の π -凝縮をひきおこす原因となりうるものである。我々の実験条件では、準弾性散乱のピーク付近で $q = 1.5 \sim 1.8 \text{ fm}^{-1}$ なので、テンサー力のフーリエ成分で引力が最も強くなると思われる領域とちょうど一致している⁶⁾。これによって10~20 MeVという大きなずれが説明できるかも知れないが、定量的にはまだあっていない。又、 π -凝縮の前駆現象を測

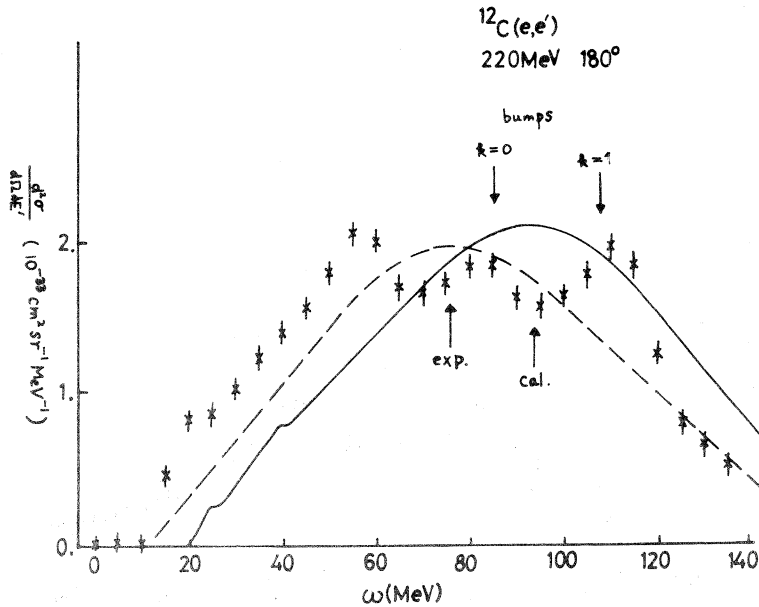
定したとも言えるかもしれない。



第8図 入射電子エネルギー180 MeVの場合の 180° 準弾性電子散乱の微分断面積を2 MeV 間隔で平均したもの。実線は散乱状態の殻模型による計算値、破線は実験値のピークの形をみやすいようにつないだもの。各々のピークを矢印で示してある。さらに§4で出てくるいくつかの構造も矢印で示した。



第9図 第8図と同じで、入射電子エネルギー200 MeVの場合。



第10図 第8図と同じで、入射電子エネルギー 220 MeV の場合。この場合はスペクトルにぬけている所がある上に、SSDの効率に問題があったので平均は広くとって5 MeVごととした。規格化にはポリエチレンの陽子を用いているが、この値も preliminary である。

3.2 高励起状態に於ける異常な構造

^{12}C の準弾性電子散乱断面積には、巨大共鳴領域よりも高い励起エネルギー領域に幅10 MeV程度の構造がいくつか見られるという実験報告がベルトーとイサベルによってなされている⁷⁾。彼らがオルセーでとったデータ、その他の64のスペクトル($0.5 < q^2 < 10 \text{ fm}^{-2}$)を調べるとこの構造は3つあって、その中心エネルギー ω_k ($k=1, 2, 3$)と q^2 の間には系統的に次の関係が成立している。

$$\omega_k = \frac{q^2}{2m} + b_k \quad (3)$$

ここで m は核子の質量、 $b_1 = 35 \text{ MeV}$ 、 $b_2 = 55 \text{ MeV}$ 、 $b_3 = 72 \text{ MeV}$ であり、幅は3つとも約10 MeVである。彼らは(3)式の形から集団運動的なモードとは考えられないし、又幅が約10 MeVと割合にせまいので深い束縛状態からの寄与とも考えられないし、後は $(e, e' p)$ の実験を待って何らかの情報を得る事しかないと結んでいる。又、彼らは実験をていねいにチェックしているので、実験のやり方によって出て来た構造ではないこと、及びTiやBiのような重い原子核では見られないものであることも述べている。ベルトー達のデータを見ると問題としている構造は横成分に顕著に表われていると思われるのに、彼らは縦成分の寄与の大きい

所に実験条件をとっている。我々は 180° 散乱を用いているので、原理的には純粋に横成分を測定していることになり、この ^{12}C に見られる構造を解析するのに有利な条件にある。我々のとった生の実験データ（第1図）にはかなりのばらつきがあるが、2通りのピークが識別された。又、図8～10に示した平均操作をしたデータには明らかにこの構造が表われている。1つのピークは(3)式で $b_1 = 35 \text{ MeV}$ に対応するものである。我々のデータには、高いエネルギー側に期待される b_2 及び b_3 に対応するものは、はっきりとは表われていない。ところが $b_0 = 20 \text{ MeV}$ にもう1つのピークが測定された。これはベルトー達が準弾性散乱のピークの位置と言っているエネルギーにあっている。さらにこのピークと巨大共鳴領域の間（ $25 \sim 50 \text{ MeV}$ ）にも、幅 10 MeV 程度のいくつかの構造が識別される。ベルトー達の発見した構造も含めて、これらの高励起状態に表われる構造は、現在のところは異常な構造と言わざるを得ない。最も単純に考えられるのは図8～10図に示した散乱状態の殻模型を使った計算結果に表われている励起エネルギー 25 MeV 及び 40 MeV の2つのすどいピークに対応するというものである。この計算上の2つのピークは陽子の $(1f_{7/2}, 1p_{3/2})$ 、及び $(1f_{7/2}, 1s_{1/2})$ という遷移によって引きおこされ、その幅は $1f_{7/2}$ の共鳴状態の幅によってきまっている。但し空孔状態には幅を考えていない模型なので、 $(e, e'p)$ の実験で知られている $1s_{1/2}$ の幅約 30 MeV ⁹⁾を考えると、幅 10 MeV 程度のピークを励起エネルギー 100 MeV あたりまでは、とても期待できない。しかし、我々の実験データは、深い空孔状態の幅が意外に狭いということを示しているのかもしれない。

§ 4. まとめ

^{12}C を標的として、 180° 準弾性電子散乱実験を行なった。 180° 散乱ではスケーリング則の破れが顕著に見られたが、これは π -凝縮の前駆現象と考えられるかもしれない。又、ベルトー達の発見した巨大共鳴よりずっと励起エネルギーの高い所にある幅 10 MeV 程度の構造は、はっきり見えないものもあるが、やはり測定された。これは深い空孔状態の幅が意外に狭いことを示しているのかも知れない。

実験の統計を上げて精度を増すこと、及び ^{12}C 以外の原子核（特に軽い核）で同様の実験をくりかえすことが望まれる。もちろん $(e, e'p)$ の実験ができるにこしたことはない。

我々は現在の散乱槽の窓をもう少し広く開けることを考えているが、これによって π -発生領域まで測定値を得ることが可能になる。

参 考 文 献

- 1) R. R. Whitney , I. Sick , J. R. Ficenec , R. D. Kephart and W. P. Trower :
Phys. Rev. C **9** (1974) 2230.
- 2) Y. Kawazoe, G. Takeda and H. Matsuzaki : Prog. Theor. Phys. **54** (1975)
1394.
- 3) P. D. Zimmerman, C. W. Williamson and Y. Kawazoe : Phys. Rev. C **19** (1979)
279.
- 4) R. Rosenfelder : Phys. Lett. **79 B** (1978) 15.
- 5) 鈴木敏男 : RCNP - P - **29** (1979) 20.
- 6) 安野愈 : 原子核研究 **23** (1979) 88.
- 7) J. Berthot and D. B. Isabelle : Lett. Nuovo Cim. **5** (1972) 155.
- 8) A. Enomoto *et al.* : *Proc. Sendai Conf.* ed. by Y. Kawazoe (1977) p173.
- 9) U. Amaldi : Suppl. Nuovo Cim. **5** (1967) 1225.

$^{28}\text{Si}(e, \pi^+)^{28}\text{Al}$ 反応の研究

核理研, 教養部*

庄田勝房・坪田博明*・大橋英雄

山崎正晴・取越正己・佐々木修

東北大学核理研電子線型加速器から得られる 180 MeV 電子線を用いて行なわれた $^{28}\text{Si}(e, \pi^+)^{28}\text{Al}$ の実験結果の報告を行う。

(e, π^\pm) 反応は仮想光子の理論を用いて (r, π^\pm) 反応に焼き直す事が出来る。(r, π^\pm) は反応の閾値付近ではその相互作用ハミルトニアン¹⁾ が Kroll - Ruderman 項だけで近似出来る, という特徴がある²⁾。その形は $T = \mathcal{F}_1 \vec{\sigma} \cdot \vec{\epsilon}$ と表わされ, $\vec{\sigma}$ は核子のスピン演算子, $\vec{\epsilon}$ は入射光子の偏極ベクトルを表わし, \mathcal{F}_1 はパイ中間子の運動量に依存する係数である。これは Gamov - Teller 型の演算子でスピントリップ型の転移を引き起こす。また, アイソスピン第三成分は初状態を T_0 とすると, 終状態は $T_0 \pm 1$ となり, このことまで含めて表わすと

$$T = \mathcal{F}_1 \vec{\sigma} \cdot \vec{\epsilon} \tau_\pm$$

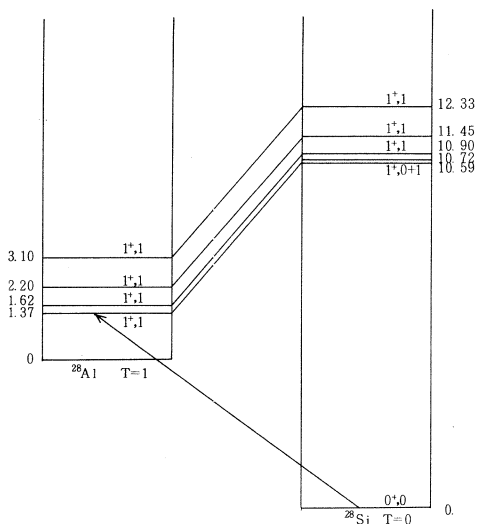
と書くことが出来る。すなわちスピン-アイソスピンモードの転移を意味している。更に atomic 1s 軌道からの μ -capture³⁾ や, π -capture 反応に就いても同様の事が言え, これらの反応は転移の s-i mode 成分の研究に関して良い手段となっている。しかし後者 2 つの capture 反応では核に与える運動量移行 q が決まっているため, resonance は決った strength でしか励起出来ない。これに対し (r, π^\pm) 反応ではパイ中間子の測定角度を変える, または入射光子のエネルギーを変える事により q を変える事が出来る。このことは或る resonance を色々な strength で励起出来る事を意味し, 従って capture 反応より沢山の情報が得られる事を示している。

§ 1. 実験及び結果

^{28}Al の 1.37 ~ 3.54 MeV に一連の 1^+ 準位が存在し (第 1 図) この IAS が ^{28}Si の 10.59 ~ 12.79 MeV に存在する。 ^{28}Si のこの一連の 1^+ 準位は M1 転移の 73% を尽す⁴⁾ という報告があり, この意味で M1 の巨大共鳴を構成していると考えられる。これらの準位は $^{28}\text{Si}(e, e')^5)$ で研究されており, 又 ^{28}Al の 1^+ 準位は $^{28}\text{Si}(t, ^3\text{He})^{28}\text{Al}^6)$, $^{28}\text{Si}(\pi^-, r)^{28}\text{Al}^7)$, ^{28}Si

(μ^- , r) $^{28}\text{Al}^{8)}$ 等で研究されている。これらの結果を表1にまとめておく。この結果から分る様に ^{28}Al では2.20 MeVの準位(これは ^{28}Si の11.45 MeVの準位に対応する)が強く現われている。 ^{28}Si の r -ray spectroscopyの実験で, ^{28}Si の11.45 MeVの準位の配位が $[1d_{5/2}^{-1} 1d_{3/2}]_{11}$ をなす, という報告⁹⁾があり, スピンフリップ型の転移をする事が分る。従って(r , π^+)反応の性質から ^{28}Si の11.45 MeVに対応する ^{28}Al の2.20 MeVの準位が強く現われると考えられる。

この考えのもとに $^{28}\text{Si}(e, \pi^+)^{28}\text{Al}$ の

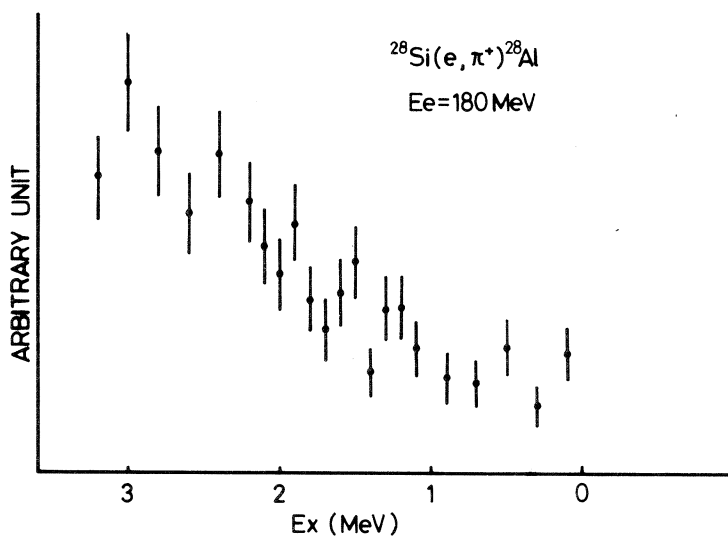


第1図 ^{28}Al の 1^+ の準位と対応する ^{28}Si のIAS.

第1表 $^{28}\text{Si}(e, e')^{5)}$, $^{28}\text{Si}(\pi^-, r)^{28}\text{Al}^{7)}$, $^{28}\text{Si}(\mu^-, r)^{28}\text{Al}^{8)}$
 $^{28}\text{Si}(t, ^3\text{He})^{28}\text{Al}^{6)}$ の実験で得られた問題の 1^+ 準位に関する分岐比及び相対強度。

$^{28}\text{Si}(e, e')$		$^{28}\text{Si}(\pi^-, r)^{28}\text{Al}$		$^{28}\text{Si}(\mu^-, r)^{28}\text{Al}$	$^{28}\text{Si}(t, ^3\text{He})^{28}\text{Al}$
$E_x(\text{MeV})$	Relative M1-strengths	$E_x(\text{MeV})$	Branching Ratio	Branching Ratio	Relative Strengths
10.594	0.09 ± 0.01	1.37	—	0.52 ± 0.15	0.19 ± 0.07
10.725	0.17 ± 0.01	1.62	0.23 ± 0.20	0.37 ± 0.20	0.39 ± 0.11
11.445	1	2.20	1	1	1
12.331	0.20 ± 0.01	3.11	0.41 ± 0.14	—	0.19 ± 0.07

実験を行った。実験は入射電子エネルギー 180 MeV で角分布を 50°; 60°; 70°; 90° 及び 110°で測定した。標的試料は 127.06 mg/cm² の natural metalを用いた。第2図に実験で得られたスペクトルを示す。これは 50°, 70°, 90°, 110°のスペクトルを夫々 ^{28}Al の基底状態に対応する点を一致させてたし合わせたものである。これによれば最初の 1^+ 準位に当たる1.37 MeV付近からスペクトルに立ち上がりが見られ, 全体として巨大共鳴的な様相を示している。



第2図 $^{28}\text{Si}(e, \pi^+)^{28}\text{Al}$ スペクトル。 $\theta = 50^\circ, 70^\circ, 90^\circ, 110^\circ$ の各スペクトルを、その先頭のエネルギーを一致させて、たし合わせたもの。

次に角分布を求めるが、今回の解析では以下に示す様な量を求めた。

(e, π^+) の実験で得られるスペクトルの形は

$$S(T_\pi) = N_\nu(E_e, E_e - (T_{\pi i} - T_\pi)) \cdot \sigma_i(T_{\pi i} - T_\pi, \theta)$$

で表わされる。此で T_π は放出パイ中間子の運動エネルギー、 $T_{\pi i}$ は残留核を i 番目の励起状態に残す様な放出パイ中間子の運動エネルギー、 $N_\nu(E_e, E)$ は仮想光子数スペクトル、 σ_i は残留核の i 番目の準位の (γ, π^+) 反応断面積。一般に準位がいくつかあるとき

$$S(T_\pi) = \sum_i N_\nu(E_e, E_e - (T_{\pi i} - T_\pi)) \cdot \sigma_i(T_{\pi i} - T_\pi, \theta)$$

T_π の狭いエネルギー範囲だけを

測定するときその間で $\sigma_i(T_\pi, \theta)$

$\sim \text{const.}$ と考えられ⁸⁾、従ってス

ペクトルには残留核の準位に対応

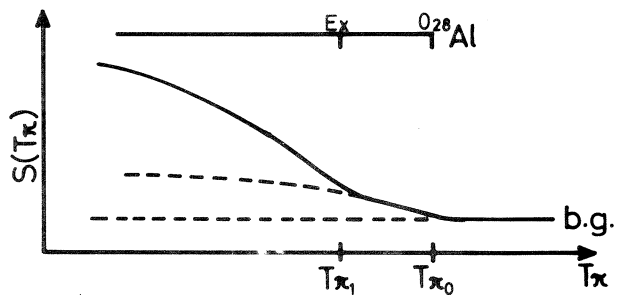
した $T_{\pi i}$ の所から $N_\nu(E_e, E)$ の

形の立ち上がりが見られる。この

様子を模式的に第3図に示す。こ

の実験では注目する準位が ^{28}Al の

励起エネルギー 1.37, 1.62, 2.20



第3図 $^{28}\text{Si}(e, \pi^+)^{28}\text{Al}$ で得られるエネルギースペクトルの模式図。

MeVに当たり、エネルギー分解能(～600 keV)の点から考えると、個々の準位の立ち上がりは見られず、全体として大きな立ち上がりとして見られるものと思われる。

従って個々の準位の $\sigma_i(T_{\pi i}, \theta)$ を求める事は困難なため、

$$Y(\theta) = \sum_{i=1,3,7,1,6,2,2,2,0} N_{\nu}(E_e, E) \sigma_i(E, \theta) dE$$

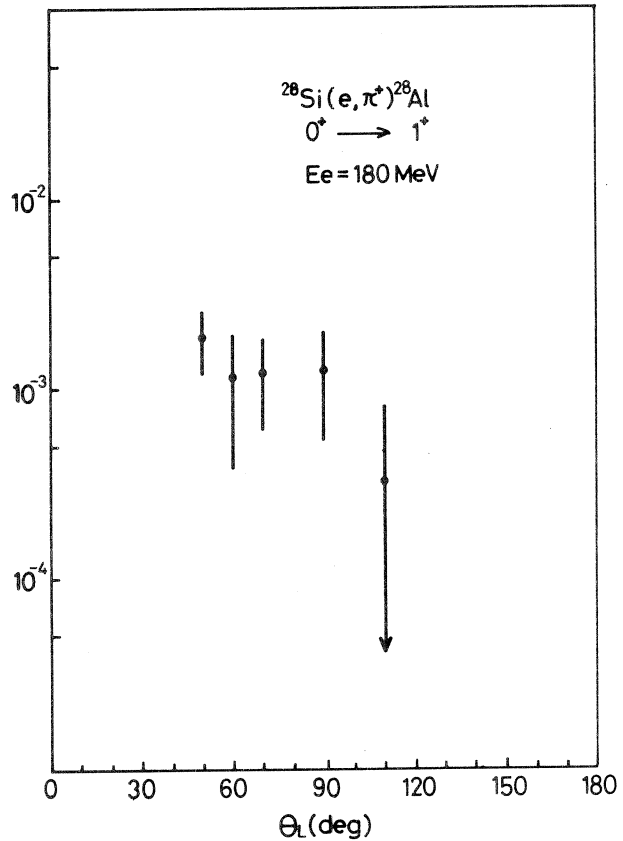
$$\int_{E_e - (T_{\pi i} - T_{\pi})}^{E_e} N_{\nu}(E_e, E) \sigma_i(E, \theta) dE$$

で表わされる 1^+ の3準位の寄与している積分量を求めた。この結果を第4図に示す。単位は $\mu\text{b}/\text{sr}$ である。

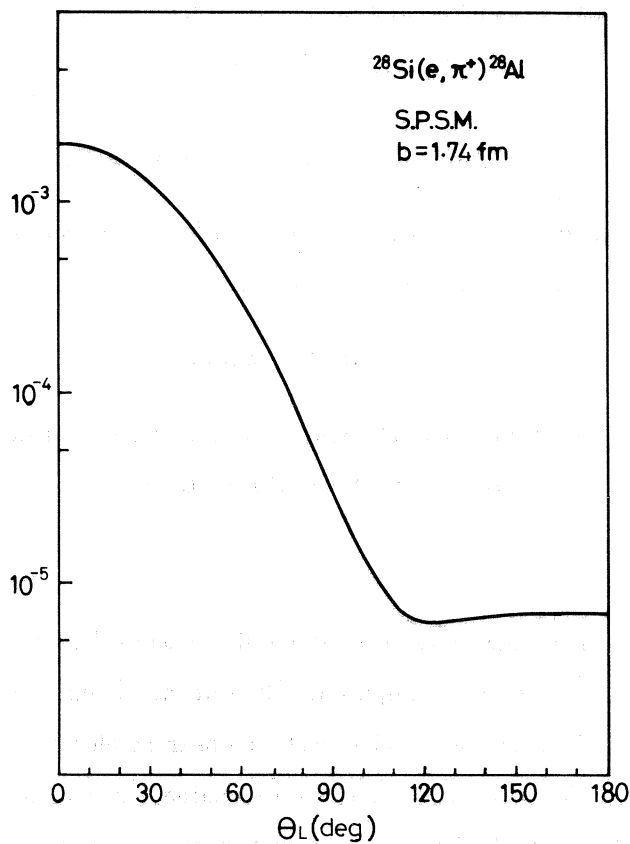
§ 2. 考 察

単一粒子殻模型による計算結果を第5図に示す。第5図から分る様にM1転移は前方ピークを示し、 110° 当りでdipを持つ分布を示す。これに対し実験結果はむしろflatな分布を示している。絶対値は実験の方がfactor 2～10程度大きい、という結果が得られた。

角分布に就いては、計算に核とパイ中間子との終状態相互作用を取り入れる事である程度説明出来ると思われる。又実験結果の方が大きな値を示している事に関しては、 ^{28}Al の1.62, 2.14 MeVに存在する 2^+ の準位からの寄与が考えられる。これら2準位は q の小さい($\pi; r$) ($\mu; r$)の実験では全く現われてはいないが、その角分布が 90° 付近でピークをもつことを考えれば¹⁰⁾、高い q まで測定した(e, π^+)実験ではその寄与が現われている可能性が考えられる。しかし、第2,4図から分る様に、実験データが統計精度不足ではっきりとした議論は出来ない。今後更にデータの拡充が必要である。



第4図 実験から得られた角分布。その角分布の内容に就いては本文に示されている。



第5図 single particle shell model による角分布の計算結果。 $1d_{5/2}$ から $1d_{3/2}$ への転移を考えた。b-パラメータは 1.74fm^5 を用いた。

参 考 文 献

- 1) G. F. Chew *et al.*: Phys. Rev. **106** (1957) 1345.
- 2) H. Überall: Phys. Rev. **137** (1965) B 502.
- 3) W. Helmut *et al.*: Phys. Rev. **C 12** (1975) 921.
- 4) L. W. Fagg *et al.*: Phys. Rev. **187** (1969) 1378.
- 5) R. Schneider *et al.*: Nucl. Phys. **A 323** (1979) 13.
- 6) E. R. Flynn *et al.*: Phys. Rev. Lett **32** (1974) 846.
- 7) J. P. Perroud: Photopion Nuclear Physics ed. Paul Stoler (1978) 69.
- 8) G. H. Miller *et al.*: Phys. Rev. **C 6** (1972) 487.
- 9) N. A. Jelley *et al.*: Phys. Lett. **40B** (1972) 200.
- 10) 大橋英雄: 博士学位論文

Angular Distribution Study of $T=1$, 4.5 MeV Analog Complex in ^{12}B by $^{12}\text{C}(e, e' \pi^+)^{12}\text{B}^\dagger$

K. Shoda, H. Tsubota, H. Ohashi, and M. Yamazaki

*Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University
Mikamine, Sendai 982, Japan*

K. Min and E. J. Winhold

*Department of Physics, Rensselaer Polytechnic Institute
Troy, New York 12181, U. S. A.*

The double differential cross sections for the reaction $^{12}\text{C}(e, e' \pi^+)^{12}\text{B}$ leading to the 4.5 MeV $T=1$, $T_z=1$ complex in ^{12}B were measured at the electron energy $E_e=200$ MeV using the Tohoku electron linear accelerator at $\theta_\pi=30^\circ, 50^\circ, 70^\circ, 90^\circ, 110^\circ, 130^\circ$ and 150° . The corresponding momentum transfer ranged from about 0.6 to 1.5 fm^{-1} . The photoproduction cross sections were obtained using virtual photon theory and an experimentally-determined real-to-virtual photon ratio.

The results are compared with theoretical calculations and also with the available data on inelastic electron scattering from the 19.5 MeV $T=1$, $T_z=0$ analog complex in ^{12}C .

§ 1. Introduction

The photoproduction of pions near threshold and its inverse process, the radiative capture of stopped pions, preferentially excite spin-flip states in a nucleus

[†] U. S. -Japan Cooperative Science Program

through the dominant Kroll-Ruderman, $\vec{\sigma} \cdot \vec{\varepsilon}$ ($\vec{\sigma}$ is the nuclear spin and $\vec{\varepsilon}$ is the photon polarization vector). Of special interest is the possibility of using these reactions to study the highly excited spin-flip states in the giant resonance region – the so-called spin-isospin modes. In contrast to the well known electric dipole giant resonance which has been extensively studied throughout the periodic table by photonuclear reactions and electron scattering, the experimental evidences for the spin-isospin modes are rather limited.

One of the few cases which has been studied, the complex of states at 19.5 MeV, in ^{12}C and their analogs in the neighboring isobars ^{12}B and ^{12}N at 4.5 MeV are shown in Fig. 1.

The 19.5 MeV complex in ^{12}C has been previously studied by Yamaguchi¹⁾ et al. and Flanz²⁾ in (e, e') and their results indicated strong M2 and M4 states. Strong excitations of their analogs at about 4.5 MeV have been observed in (π^-, r) and (r, π^\pm) experiments^{3,4)} as shown in Fig. 2. In the photon spectrum following radiative capture this shows up as a strong peak. In the electro (photo) pion production experiment, this shows up as a break or a discontinuity in the yield curve which essentially reflects the continuous nature of the virtual photon spectrum. In both experiments

however, the momentum transfer remained fixed, and therefore no information about the multipolarity of the involved transitions could be obtained.

We report here on the angular distribution of emitted pions in the electro-production $^{12}\text{C}(e, \pi^+)^{12}\text{B}$ leading to the 4.5 MeV analogs in the residual nucleus.

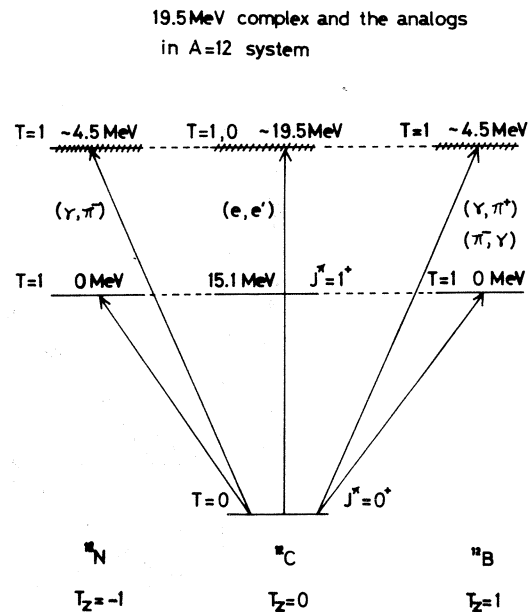


Fig. 1. Level diagram of $^{12}\text{C}(r, \pi)$.

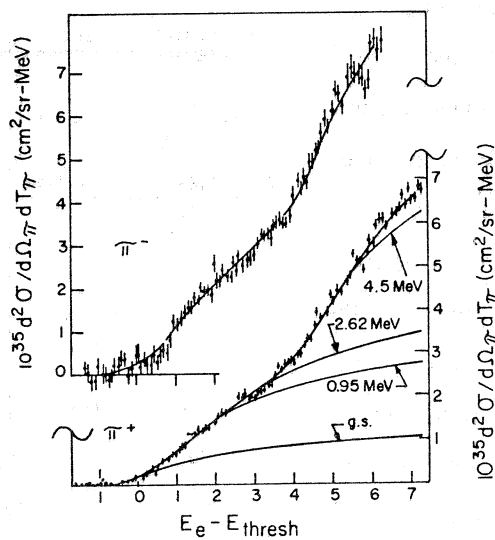
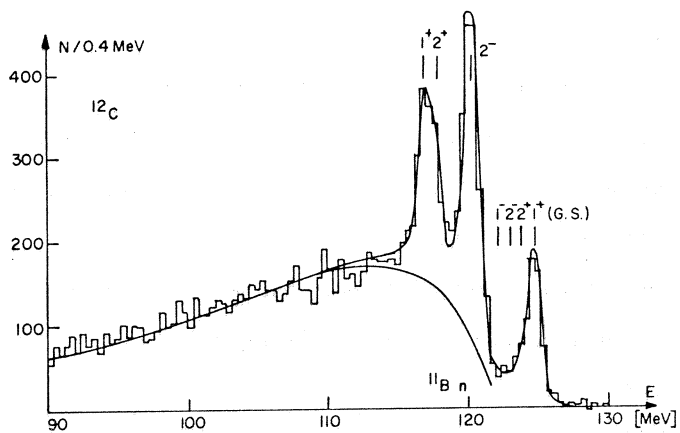


Fig. 2. Recent results on radiative capture of π^- on ^{12}C and isochromate on ^{12}C (τ , π^\pm).

I want to mention that, in contrast to electron scattering, the electro- (photo) production of charged pions has one simplifying feature in that only $T=1$ states are excited.

§ 2. Experiment

A 200 MeV electron beam from the Tohoku electron linac impinged on a graphite target of thickness 150 mg/cm^2 . Energy spectra of the emitted pions were measured at seven angles ranging from 30° to 150° at an interval of 20° using a double focussing magnetic spectrometer with a 33 channel array of detector telescopes on its focal plane. Each channel consisted of three Si(Li) solid state detectors operating in triple coincidence. System resolution ranged from 0.6 MeV at forward angles to about 1.0 MeV towards the back angles.

The energy spectra at $\theta = 50^\circ$ and 130° are shown in Fig. 3. The absolute

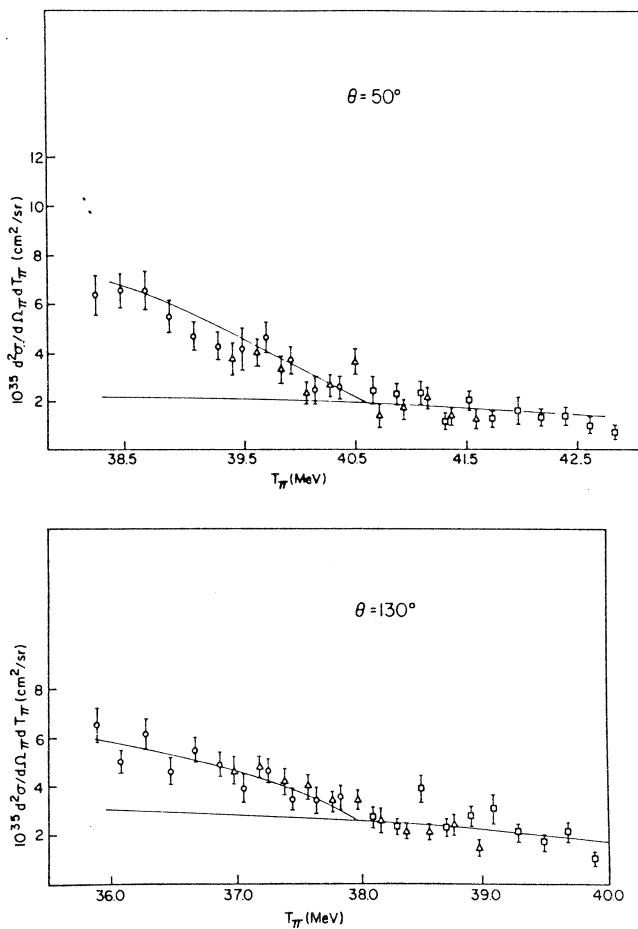


Fig. 3. Examples of π^+ energy spectrum on ^{12}C (e, π^+).

scale on the double differential cross section was obtained by an auxiliary elastic electron scattering on the ^{12}C target. In each spectrum, the lower line represents the background due to the pions populating the lower states in the residual ^{12}B nucleus. The electrproduction results were analyzed using the Dalitz-Yennie virtual photon spectrum and the real-to-virtual photon ratio which was experimentally determined in a separate experiment. The photoproduction cross sections thus obtained are shown in Fig. 4.

§ 3. Comparison with Theory

In Fig. 5, we first compare the experimental results with the calculations by Haxton⁵⁾ using the Cohen-Kurath wave functions. For the photopion amplitude, he uses only the Kroll-Ruderman term and the final state interaction is included using an optical potential where parameters are chosen to fit the pionic atom, and elastic scattering data. The theoretical cross sections are about as twice as large as the experimental values, and also predict a weaker contri-

bution of 4^- relative to the 2^- state than the experimental results indicate.

In Fig. 6 we also compare the results with the Helm-model calculations by Nagl.⁶⁾ These calculations differ from the previous in two aspects: first, the nuclear structure input to the calculations is in the form of the transition charge density which is parametrized to fit the electron scattering data from the 19.5 MeV

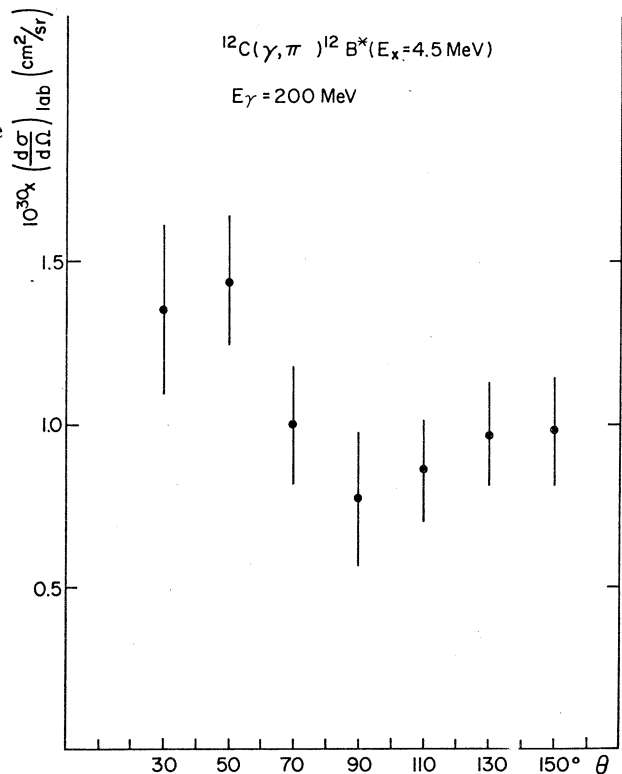


Fig. 4. Angular distribution of $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{12}\text{B}^*(E_x=4.5 \text{ MeV})$ relating to the residual states around at 4.5 MeV.

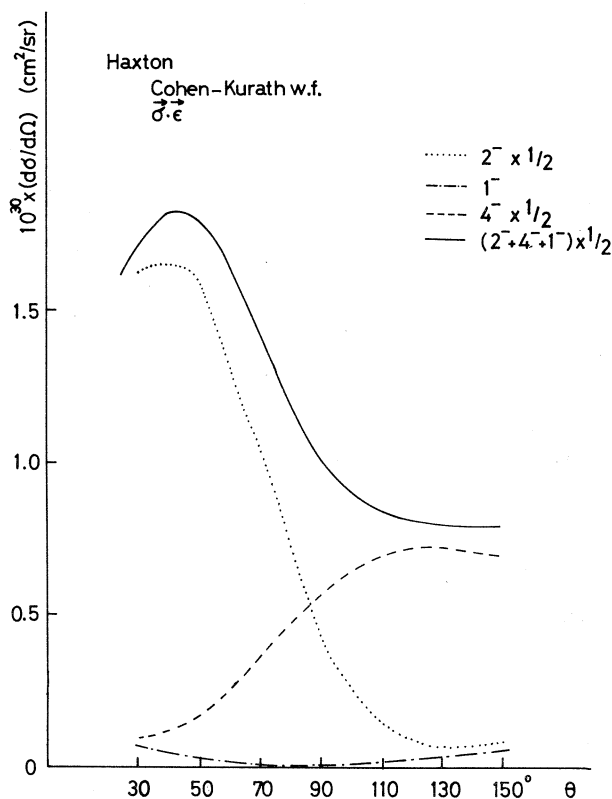


Fig. 5. Theoretical estimates of photo- π^+ angular distribution by Haxton.

complex in ^{12}C , and secondly, the full photoproduction amplitude by Berends is used. The final state interaction is included again using an optical potential to fit pion atomic and scattering data. It can be seen that the agreement is quite good and is consistent with the dominant 2^- and 4^- contributions.

§ 4. Discussion

Recent electron scattering data on ^{12}C by Flanz²⁾ et al. seem to indicate several 4^- states in the neighborhood of 19.5 MeV and Thiessen is presenting at the Vancouver conference some new π^\pm inelastic scattering results as evidence of isospin mixing among them. A $T = 12^-$ state observed by Flanz at 19.3 MeV is also interpreted as an isospin admixed state with a possible isospin mixed 2^- , $T = 0$ partner at 19.4 MeV. In our study of the analog states in ^{12}B with about 1 MeV resolution,

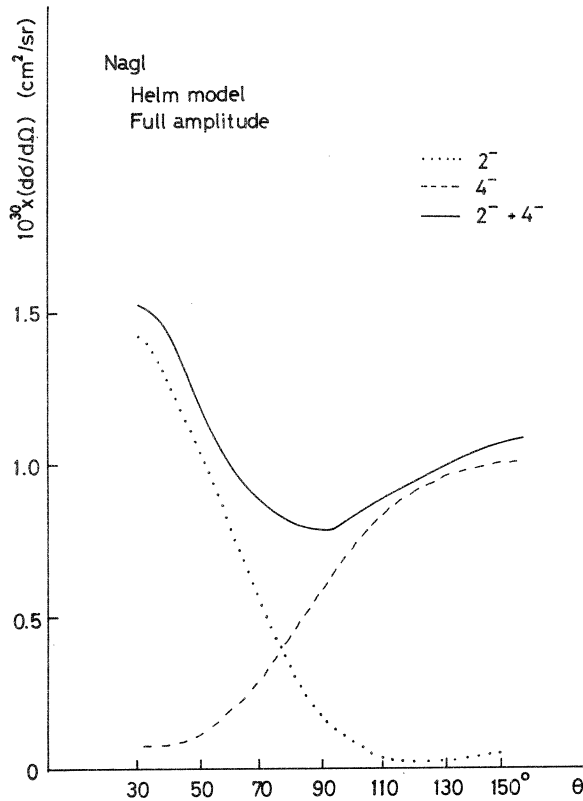


Fig. 6. Theoretical estimates of photo- π^+ angular distribution by Nagl.

we are unable to determine whether there are one or more M2 or M4 states. Their isospin character, however, is uniquely determined to be purely $T=1$. For a full understanding of the relationship between the 4.5 MeV complex in ^{12}B studied here by photopion reaction and the 19.5 MeV complex in ^{12}C studied by (e, e') and pion inelastic scattering, it is interesting to investigate whether the strengths of $T=1$ components in the admixed states in ^{12}C sum up to the pure $T=1$ strength in the analog in ^{12}B . This would serve as an additional verification on the isospin mixing among the 19.5 MeV complex in ^{12}C . It is difficult at present to speculate on the source of discrepancy between the Haxton calculations and our data. Since his optical model potential is essentially the same one which produced well the photopion data in ^{12}C leading to the lower states in ^{12}B , this is not likely to be the source. Future calculations of the electron scattering form

factor for the 19.5 MeV states in ^{12}C using the same wavefunctions will be helpful to clarify this point. Another possible source of discrepancy which should be further investigated is the use of Kroll-Ruderman term. In the case of ${}^6\text{Li}(\pi, \pi^+){}^6\text{He}$, Singham and Tabakin⁷⁾ studied the effect of using full amplitude and the sole $\vec{\sigma} \cdot \vec{\epsilon}$ term, and their results at $E_\gamma = 180$ MeV show that the differential cross sections using the full amplitude is reduced by a factor of two at the forward angles and by about 40% at the backward angles. It would be helpful to investigate similar effects for the reaction studied here.

In conclusion, the present experiment has demonstrated the usefulness of (π, π^+) reaction to study $T=1$ $T_z=1$ analog of strong spin-flip states, and the dominant presence of M2 and M4 states at 4.5 MeV in ^{12}B which is seen in this experiment is consistent with the results of (e, e') and inelastic pion scattering from ^{12}C in the region of 19.5 MeV.

References

1. A. Yamaguchi *et al.*: Phys. Rev. **C 3** (1971) 1750.
2. J. Flanz: Ph. D. Thesis, Univ. of Massachusetts.
3. J. C. Alder *et al.*: in *Photopion Nuclear Physics*, ed. P. Stoler (Plenum Press, New York, London) p. 102.
4. N. Paras *et al.*: Phys. Rev. Lett. **42** (1979) 1455.
5. W. C. Haxton: private communication.
6. A. Nagl: private communication.
7. M. K. Singham and F. Tabakin: private communication with K. Shoda.

^{63}Cu , ^{65}Cu (r, p) 反応 (I)

核理研, 教養部*

田中俊成・坪田博明*

宮瀬晴久*・菅原真澄

§ 1. 序

^{63}Cu 及び ^{65}Cu の (e, p) 反応生成曲線を, それぞれ電子線エネルギー $E_e = 13.6 \sim 60.0$ MeV, $14.0 \sim 60.0$ MeV の範囲で測定した。これらの原子核については (r, n) 反応の巨大共鳴領域の断面積が古くから研究されているが,¹⁻³⁾ (r, p) 反応はあまり研究されていない⁴⁾。

我々は巨大共鳴領域での (r, p) 反応微分断面積を詳しく調べ (r, n) 反応と比較し, さらに, 巨大共鳴領域を超えた高い励起エネルギー領域での断面積を求め, 陽子放出機構について研究することを目的として実験を行なった。

今回の報告では測定結果を報告するにとどめ, 次回以降において詳しく結果を議論することにする。

§ 2. 実 験

実験は全て第1実験室の広帯域磁気スペクトロメータ及び Si(Li) 検出系を用いて行なった。標的には ^{63}Cu 99.5%, 10 mg/cm^2 及び ^{65}Cu 99.5%, 10 mg/cm^2 を用いた。 ^{63}Cu は $E_e = 13.6 \sim 60.0$ MeV, ^{65}Cu は $E_e = 14.0 \sim 60.0$ MeV の範囲で, $E_e < 30$ MeV で 0.2 MeV , $E_e > 30$ MeV で 1.0 MeV の間隔で電子線エネルギーを変えて (e, p) 反応エネルギースペクトルを測定し生成曲線を得た。

測定角は 90° , エネルギースペクトルの測定範囲は陽子エネルギー $E_p = 2.4 \sim 24.5$ MeV である。また, 標的面と入射電子線とのなす角は 30° である。

§ 3. 測定結果

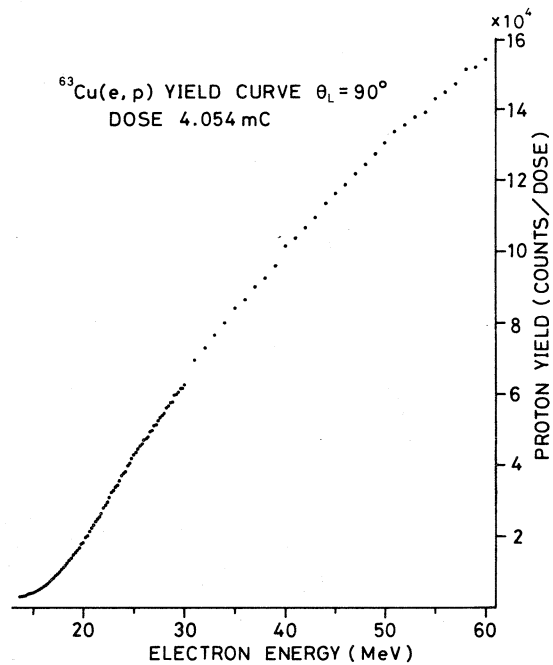
第1図及び第2図に ^{63}Cu , ^{65}Cu (e, p) 反応の生成曲線を示す。陽子エネルギースペクトルの 2.4 MeV 以下及び 24.5 MeV 以上の部分からの寄与に対する補正は行っていない。この生成曲線から光核反応断面積を導出することに関して, 多重極度により仮想光子スペクトルが異なるため単純に E_1 仮想光子スペクトルのみを用いると誤まった結果を得る可能性のあるこ

とが、(e, α) 反応において指摘されている⁵⁾が、(e, p) 反応の場合には E. Wolynećら⁵⁾の、⁶⁰Ni の結果では E1 のみで十分であることから Cu の場合でも E1 仮想光子スペクトルを用いて断面積を求めることにした。第3図及び第4図にその結果を示す。

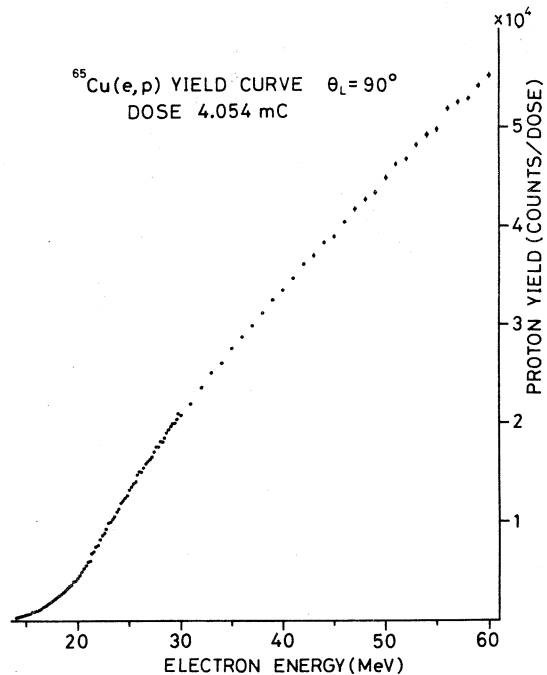
巨大共鳴のピーク断面積，エネルギー，幅の大きな値はそれぞれ第1表のようになっており，2つの結果を比較するとピークエネルギーは一致するが，断面積と幅が大きく異なる。

Fultzら¹⁾の(r, n)の結果と比較すると，ピークエネルギーがともに5 MeV程度高い。また陽子が等方的に放出されていると仮定すると⁶³Cuの場合，(r, p)のピークは(r, n)の1/2，⁶⁵Cuの場合1/4程度である。

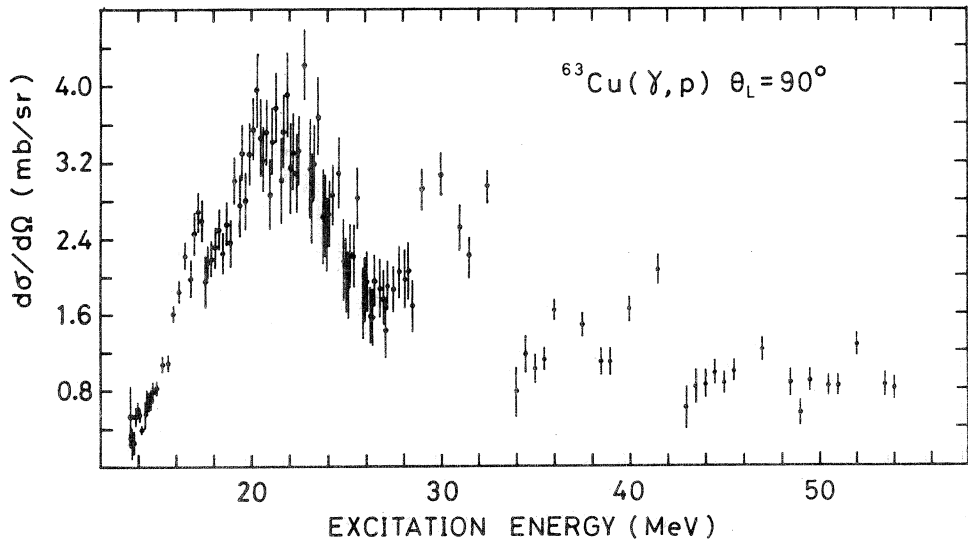
巨大共鳴ピークを越えた高い励起エネルギーでの断面積は大きく，⁶³Cuでは30 MeVと40 MeV付近にもピークが見られ，それに対し⁶⁵Cuでは30 MeV以上ではほぼ一定である。⁶⁵Cuの結果は⁹⁰Zr(r, p)の場合⁶⁾と非常に類似している。



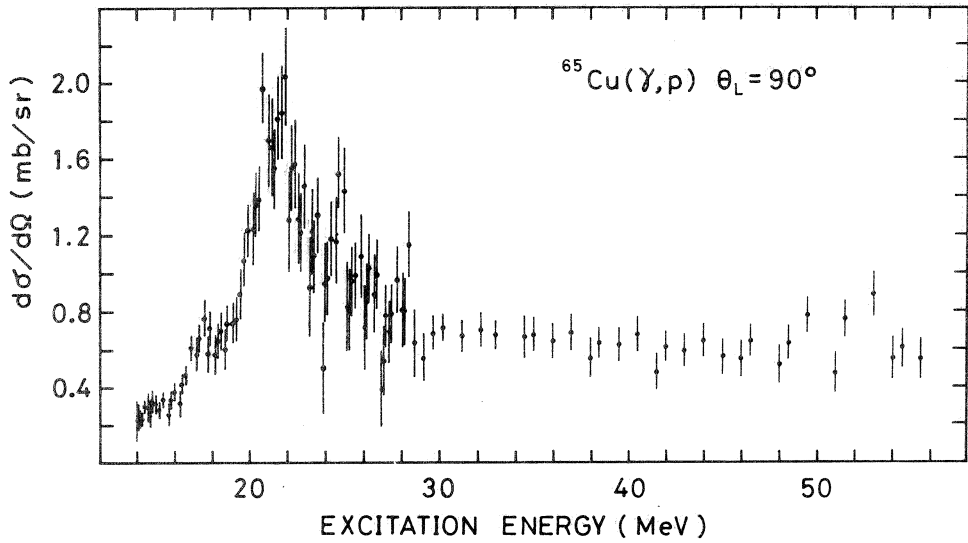
第1図 ⁶³Cu(e, p)生成曲線。統計誤差は点に含まれる。



第2図 ⁶⁵Cu(e, p)生成曲線。縦棒は統計誤差。



第3図 $^{63}\text{Cu}(\gamma, p)$ 微分断面積。縦棒は統計誤差。



第4図 $^{65}\text{Cu}(\gamma, p)$ 微分断面積。縦棒は統計誤差。

第1表 $^{63}\text{Cu}, ^{65}\text{Cu}(\gamma, p)$ 微分断面積のピーク値,
ピークエネルギー及び半値幅。

	ピーク断面積	エネルギー	半値幅
^{63}Cu	3.4 mb / sr	21.5 MeV	11 MeV
^{65}Cu	1.8 mb / sr	21.5 MeV	7 MeV

励起エネルギーが高くなると流体模型で考える原子核全体と光子との相互作用による共鳴反応は起こりにくくなり少数個の核子との相互作用による反応の断面積が相対的に大きくなると考えられる。従って高い励起エネルギーでの (r, p) 反応は直接過程, 準重陽子模型等と関連づけて議論する必要があると考える。

参 考 文 献

- 1) S.C.Fultz *et al.* : Phys. Rev. **133**(1964) B 1149.
- 2) R.E.Sund *et al.* : Phys. Rev. **176** (1968) 1366.
- 3) F.Dreyer *et al.* : Nucl. Phys. **A181** (1972) 477.
- 4) N. V. Lin'Kova *et al.* : Sov. Phys. JETP **11** (1960) 566.
- 5) E. Wolynec *et al.* : Phys. Rev. Lett. **42** (1979) 27.
- 6) 玉江, 浦野, 広岡, 菅原 : 核理研研究報告 **11** (1978) 47.

II. 物 性 物 理

The Order-Disorder Transformation Temperatures of Nonstoichiometric TiNi

Toshio HONMA, Minoru MATSUMOTO,
Yoshiro SHUGO and Minoru NISHIDA

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

§ 1. Introduction

TiNi exhibits so called "Shape memory effect" caused by the thermoelastic martensitic transformation¹⁾. Generally the atomic arrangements of the parent phase of the materials which perform the thermoelastic martensitic transformation are ordered structure state. The parent phase of TiNi is B2 (CsCl type) crystal structure²⁾. Disordered bcc crystal structure cannot be actualized by ordinary quenching method from high temperature. On the other hand the degree of order of Fe₃Pt is able to controll easily by heat treatment³⁾. So that the types of martensitic transformation accompanied by the change of the degree of order in Fe₃Pt are ordinary martensitic transformation as Fe-Ni alloy by disordered state and the thermoelastic martensitic transformation as TiNi by ordered state. In order to study the mechanism of the martensitic transformation as the co-operative phenomena of atoms, it is one of the most important problems to study the effect of the change of the degree of order on the martensitic transformation of TiNi.

The authors have studied the many physical properties and the transformation mechanism accompanied by the thermoelastic martensitic transformation of TiNi^{1,2,4)} and Ti₅₀Ni_{50-x}M_x (M: 3d transition metal element)^{5,6)}. These specimens were good ordered structure after heat treatment for long period at high temperature.

There are many reports about the phase diagram of the vicinity of TiNi at high temperature^{1,4)}. There is only a few report concerned with the stable temperature range of B2 (CsCl type) crystal structure of TiNi parent phase. Figure 1

shows the phase diagram of the vicinity of TiNi from 0 °C to 1400 °C.

The object of this study is to determine the order-disorder transformation temperatures of nonstoichiometric TiNi and to prepare TiNi specimens of disordered structure by rapid quenching.

§ 2. Specimens

Stoichiometric and nonstoichiometric TiNi specimens were prepared by electron beam method.

The $\text{Ti}_{48}\text{Ni}_{52}$ polycrystal specimens for TOF neutron diffraction were lamina (1.5 mm thick and 50 mm long). They were sealed in vacuum in silica tube of 13 mm inside diameter. These specimens with silica tube were annealed for 2 hours at 1000 °C and then cooled in furnace. They were put in the neutron beam.

Rapid quenched specimens were prepared at Masumoto laboratory of Research Institute of Iron, Steel and Other Metals, Tohoku University. The method was a rapid cooling of melts using single roller type. The speed of quenching was about 10^5 degree/sec.

§ 3. Experimental Methods

Neutron diffraction of $\text{Ti}_{48}\text{Ni}_{52}$ was performed by TOF-Debye-Scherrer method using the neutron diffraction apparatus of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University. Specimens were heated by the electric furnace from room temperature to 1000 °C. The scattering angles were $2\theta = 30^\circ$, 60° and 90° .

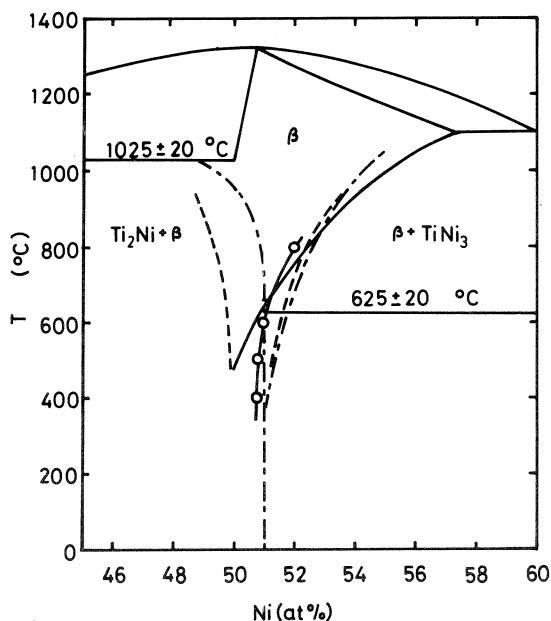


Fig.1. Phase diagram of Ti-Ni (vicinity of nonstoichiometric TiNi).

— Wasilewski *et al.*⁷⁾,
 - - - Hirano *et al.*⁸⁾,
 - · - Purdy *et al.*⁹⁾,
 —○— Honma *et al.*⁴⁾.

Neutron diffraction of rapid quenched specimens was carried out by TOG neutron diffractometer installed at JRR-3 reactor at JAERI.

The sign of the scattering amplitude of Ti and Ni were different from each other ($b_n = -(3.3 \pm 0.3) \times 10^{-13}$ cm for Ti and $b_n = +(10.25 \pm 0.09) \times 10^{-13}$ cm for Ni). The ordered lattice lines of B2 structure of TiNi were easily detectable by neutron diffraction compared to X-ray diffraction.

§ 4. Experimental Results and Discussion

Differential thermal analysis (DTA) was performed on the specimens of $\text{Ti}_{50.2}\text{Ni}_{49.8}$, $\text{Ti}_{50}\text{Ni}_{50}$, $\text{Ti}_{49.6}\text{Ni}_{50.4}$, $\text{Ti}_{49}\text{Ni}_{51}$ and $\text{Ti}_{48}\text{Ni}_{52}$ from room temperature to 1200 °C. An endothermic peak was observed at 1090 °C for every specimens. This temperature was considered as the temperature of phase transformation. The results of $\text{Ti}_{49.6}\text{Ni}_{50.4}$ and $\text{Ti}_{49}\text{Ni}_{51}$ are shown in Fig. 2. An endothermic peak of $\text{Ti}_{49.6}\text{Ni}_{50.4}$ at low temperature corresponded to inverse martensitic transformation temperature.

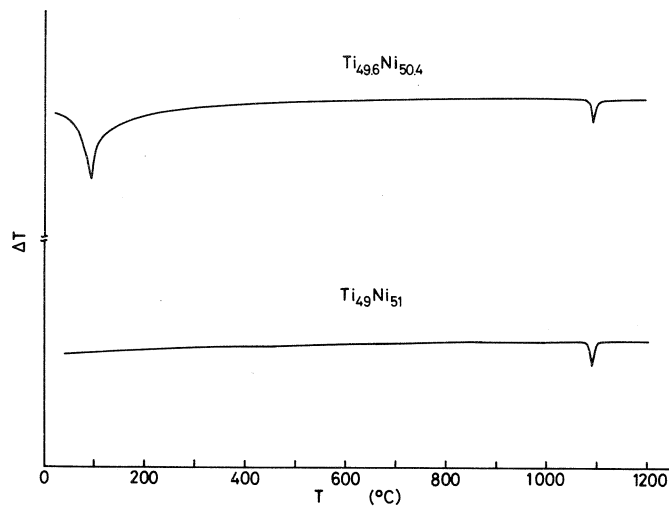


Fig. 2. Differential thermal analysis curves of $\text{Ti}_{49.6}\text{Ni}_{50.4}$ and $\text{Ti}_{49}\text{Ni}_{51}$.

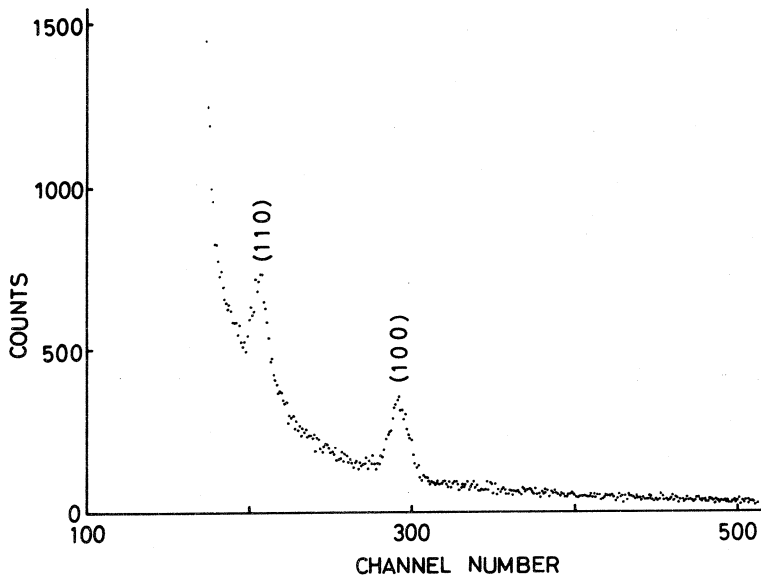


Fig. 3. Neutron diffraction pattern of $\text{Ti}_{48}\text{Ni}_{52}$.
Scattering angle $2\theta = 60^\circ$.

Figure 3 shows the neutron diffraction pattern of $\text{Ti}_{48}\text{Ni}_{52}$ on the scattering angle $2\theta = 60^\circ$. Two adjacent diffraction lines were observed in this pattern. (100) ordered lattice line was clearly separated from (110) fundamental lattice line. The degree of order, S , was determined by the diffraction intensity ratio of these two lines, $I_{(100)}/I_{(110)}$.

Figure 4 shows the temperature change of S , where T_c was considered as the temperature of phase transformation observed by DTA. A solid line in this figure shows the temperature change of the degree of order in the case of B2 calculated by the Bragg-Williams approximation. The observed degree of order which expressed as open circles tended to zero when value of T/T_c

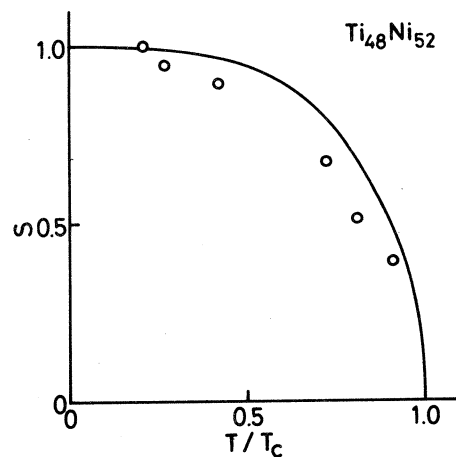


Fig. 4. The temperature dependence of the degree of order of $\text{Ti}_{48}\text{Ni}_{52}$.

approached to 1. Thus it became clear that the order-disorder transformation temperature of TiNi was T_c which was observed in DTA as the order-disorder transformation temperature.

Figure 5 shows the order-disorder transformation temperatures of nonstoichiometric TiNi observed by this experiment.

Wang *et al.*¹⁰⁾ reported that the order-disorder transformation temperature of TiNi was about 700 °C and there was 9 Å superlattice based on 3 Å CsCl type sublattice below this temperature. In this experiment 9 Å superlattice was not observed and the order-disorder transformation temperature did not exist at about 700 °C.

The degree of order of rapid quenched nonstoichiometric TiNi were examined by use of TOG diffractometer. Figure 6 and 7 show the diffraction pattern of $Ti_{50.5}Ni_{49.5}$ and $Ti_{50}Ni_{49.5}Mn_{0.5}$ at room temperature. Diffraction lines were indexed by B2 structure. The degree of order was about 1 for $Ti_{50.5}Ni_{49.5}$ and 0.8 for $Ti_{50}Ni_{49.5}Mn_{0.5}$ estimated

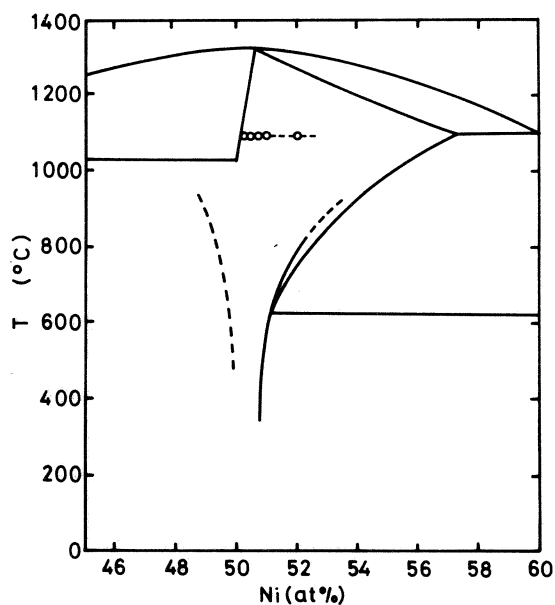


Fig. 5. Phase diagram of Ti-Ni.
---○--- : 1090 °C, the order-disorder transformation temperature.

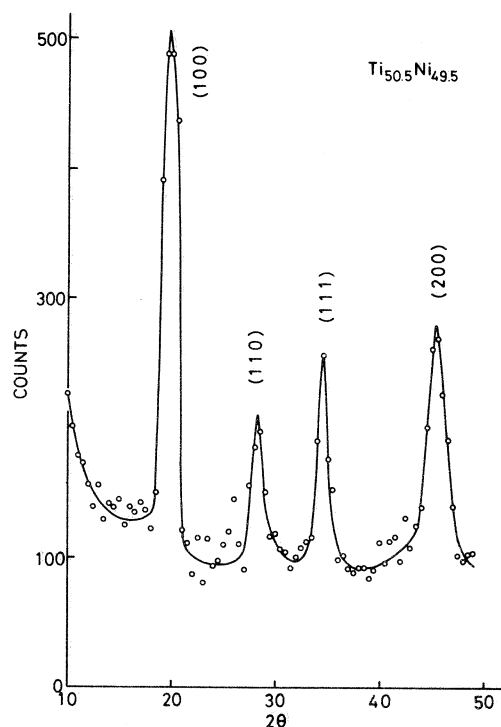


Fig. 6. Neutron diffraction pattern of $Ti_{50.5}Ni_{49.5}$ at room temperature.

by diffraction intensity ratio of fundamental lattice lines and ordered lattice lines.

The electrical resistivity vs. temperature curves of $\text{Ti}_{50.5}\text{Ni}_{49.5}$ and $\text{Ti}_{50}\text{Ni}_{49.5}\text{Mn}_{0.5}$ did not make the hysteresis loop from 100°C to -200°C on cooling and heating. Abrupt change in these curves which corresponded to M_s point did not observed as shown in Fig. 8 and 9. It is considered that M_s temperature is decreased by the effect of rapid quenching.

From these experimental results, martensitic transformation in $\text{Ti}_{50.5}\text{Ni}_{49.5}$ was prevented by rapid quenching in spite of no change of degree of order. On the other hand, in $\text{Ti}_{50}\text{Ni}_{49.5}\text{Mn}_{0.5}$, martensitic transformation and order-disorder transformation were affected by rapid quenching.

These cause is not clear at the present time.

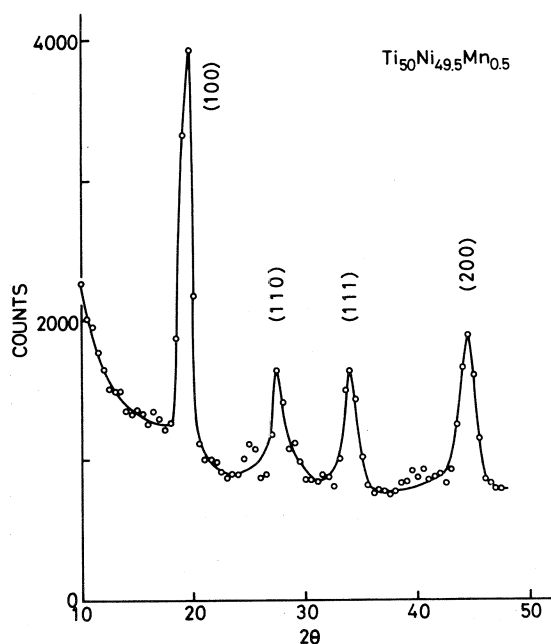


Fig. 7. Neutron Diffraction pattern of $\text{Ti}_{50}\text{Ni}_{49.5}\text{Mn}_{0.5}$ at room temperature.

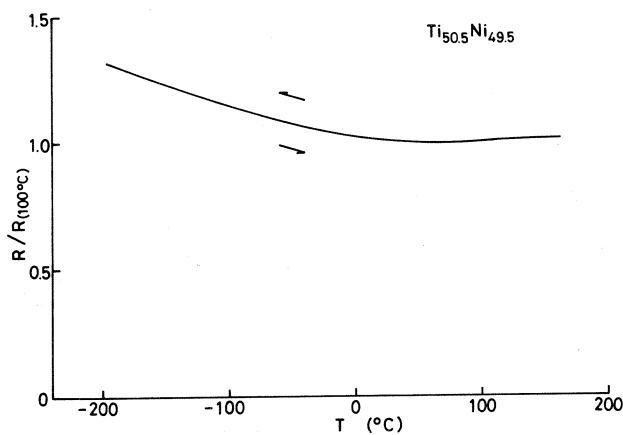


Fig. 8. Electrical resistivity vs. temperature curve of $\text{Ti}_{50.5}\text{Ni}_{49.5}$.

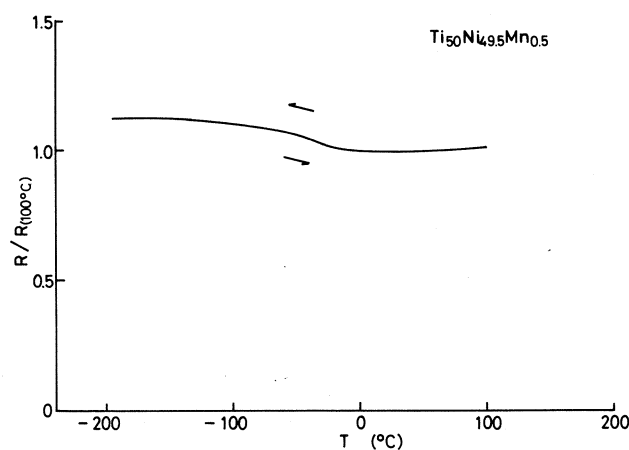


Fig. 9. Electrical resistivity vs. temperature curve of $\text{Ti}_{50}\text{Ni}_{49.5}\text{Mn}_{0.5}$

§ 5. Conclusions

1. The order-disorder transformation temperatures are 1090 °C in nonstoichiometric TiNi.
2. The degree of order is about 1 for $\text{Ti}_{50.5}\text{Ni}_{49.5}$ and about 0.8 for $\text{Ti}_{50}\text{Ni}_{49.5}\text{Mn}_{0.5}$ respectively prepared by rapid quenching.
3. M_s temperature decreases largely by the effect of rapid quenching.

Acknowledgements

Authors would like to thank Professors K. Suzuki and T. Masumoto and Dr. M. Misawa and Mr. H. Kimura of Research Institute of Iron, Steel and Other Metals, Tohoku University for their permission to use the electric furnace and rapid cooling apparatus and to Dr. N. Niimura of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University for his technical support at this laboratory.

References

- 1) T. Honma: Bulletin Japan Inst. Metals **12** (1973) 157 (in Japanese).
- 2) M. Matsumoto, Y. Shugo and T. Honma: Bulletin Res. Inst. Min. Dress. Met., Tohoku Univ. **28** (1972) 65 (in Japanese).
- 3) D. P. Dunne and C. M. Wayman: Met. Trans. **4** (1973) 137, 147.

- 4) T. Honma and H. Takei: J. Japan Inst. Metals **39** (1975) 175 (in Japanese).
- 5) M. Matsumoto and T. Honma: 1st JIM Internat. Symp. "New Aspects of Martensitic Transformation", Kobe, Suppl. Trans. JIM. **17** (1976) 199.
- 6) M. Matsumoto and T. Honma: Bulletin Res. Inst. Min. Dress. Met., Tohoku Univ. **33** (1977) 103 (in Japanese).
- 7) R. J. Wasilewski, S. R. Butler, J. E. Hanlon and D. Warden: Met. Trans. **2** (1971) 229.
- 8) K. Hirano and K. Ouchi: J. Japan Inst. Metals **32** (1968) 613 (in Japanese).
- 9) G. R. Purdy and J. G. Parr: Trans. Met. Soc. AIME **221** (1961) 636.
- 10) F. E. Wang, W. J. Buehler and S. J. Pickart: J. appl. Phys. **36** (1965) 3232.

Neutron TOF Profile Analysis of Ti-V-S System: I. $\text{Ti}_{0.5}\text{V}_{0.5}\text{S}_{1.67}$

I. Kawada, M. Isobe, F. P. Okamura and M. Saeki

*National Institute for Researches in Inorganic Materials,
Namiki 1-1, Sakura-mura, Niihari-gun, Ibaraki 305, Japan*

and

N. Niimura

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

§ 1. Introduction

TiS_x system, in which titanium atoms are substituted by vanadium atoms to some extent, is a system of interest from the stand point of phase equilibrium and chemical transport. Detailed conditions by the chemical transport reactions are reported by Saeki et al¹⁾. recently.

Ti-V-S system has a layer structure, basically of NiAs-CdI₂ type, in which metal atom vacancies exist in the every second metal atom layer.

In order to elucidate, if the ordering occurs in the metal atom sites by the substitution of Ti atoms by V atoms, neutron TOF profile analyses upon a series of samples of Ti-V-S system were undertaken.

§ 2. Experimental

Powder specimen of $\text{Ti}_{0.5}\text{V}_{0.5}\text{S}_{1.67}$ was prepared in a quartz tube at 900 °C from a mixture of TiS_x and VS_x . Of which TiS_x was synthesized from a calculated ratio of Ti metal powder and sulfur in an evacuated quartz tube at 350 °C for a few days and subsequently at 900 °C. VS_x was made by sulfurization of $\text{VOSO}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ in a H_2S atmosphere at temperatures between 600 and 1000 °C.

Neutron diffraction intensity data were collected on the H-6 Debye-Scherrer spectrometer at 300 MeV Electron LINAC of Tohoku University, with diffraction angles of $2\theta = 30^\circ$, 60° and 145° . Time of sample irradiation was about 14.4 hours.

§ 3. Analysis and Discussion

This compound is trigonal with space group $P\bar{3}m1$. Lattice constants are $a = 3.3650(3)$, $c = 5.7144(6)$ Å. Atomic parameters of structure models are given in Table I. Temperature factor for each atom was assumed to be isotropic and $B = 1.0$.

Table I. Atomic parameters of $Ti_{0.5}V_{0.5}S_{1.67}$.

Atom	weight	x	y	z
(Ti, V) _I	1.0	0.0	0.0	0.0
(Ti, V) _{II}	0.2	0.0	0.0	0.5
S	2.0	0.3333	0.6667	0.25

Observed and calculated profiles are fitted by the least squares method described by Kawada et. al²⁾., where background is estimated by a curve of quadratic function.

Profiles of ordered and disordered models are shown in Fig. 1 (a) and (b). Because this composition can be represented also as $Ti_{0.6}V_{0.6}S_{2.0}$, in the case of ordered model, (Ti, V)_I site is assumed to be (Ti_{0.6}V_{0.4}), and (Ti, V)_{II} site as V_{0.2}, while in the case of disordered one, both sites are assigned to be Ti and V statistically distributed with weight of 1.0 and 0.2 to site I and II respectively.

From the both profiles, it is difficult to decide which pattern is considerably better, but a detail of pattern suggests that the ordered one may be a preferable one.

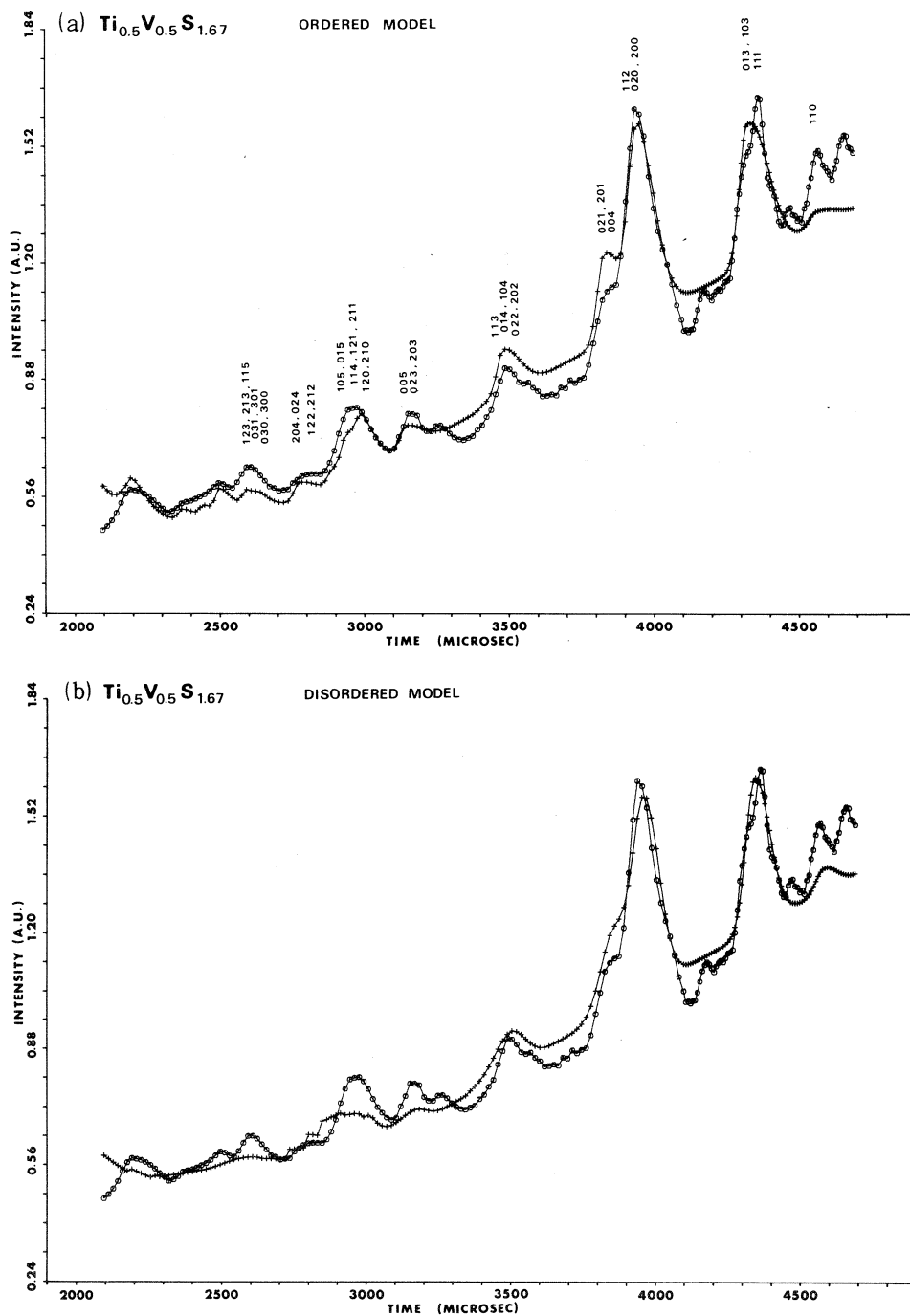


Fig. 1. Observed (o) and calculated (+) profiles of $\text{Ti}_{0.5}\text{V}_{0.5}\text{S}_{1.67}$ ($=\text{Ti}_{0.6}\text{V}_{0.6}\text{S}_{2.0}$). (a) Ordered model ($\text{Ti}_{0.6}\text{V}_{0.4}$) $\text{V}_{0.2}\text{S}_{2.0}$, (b) Disordered model $(\text{Ti}, \text{V})_{1.0}$ $(\text{Ti}, \text{V})_{0.2}\text{S}_{2.0}$.

Acknowledgements

We wish to thank Dr. N. Watanabe and other members of Nuclear Science Laboratory, Tohoku University for the useful advices and discussions during our experiments.

References

- 1) M. Saeki, M. Ishii, I. Kawada and M. Nakahira: J. Cryst. Growth **45** (1978) 25.
- 2) I. Kawada, N. Niimura, M. Isobe and H. Wada: Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **11** (1978) 226.

高圧力下の中性子線回折による RbBrの変態の測定(Ⅱ)

金研, 弘前大理学部*
神垣知夫・大橋正義
吉田 肇・金子武次郎
佐藤幸三郎*

§ 1. ま え が き

前報¹⁾において, RbBrの多結晶体について, 高圧力下の中性子線回折を行なった結果を報告した。それによれば, 低圧相のNaCl型結晶から高圧相のCsCl型結晶への転移が観測されX線回折の結果²⁾と比較して, RbBrの圧縮曲線が求められた。

本報では, NaCl多結晶体をRbBr試料と混合したものについて, 中性子線回折を行ない, NaClの圧縮曲線³⁾を基準として圧力の較正を行なった結果を報告する。

§ 2. 測 定

高圧力の発生装置は, 前報^{1, 4)}に用いたものと同様のものである。ピストンとシリンダとのなじみを良くして, 圧力発生効率を高めるようにした。

試料は, 98%純度のRbBrと98%純度のNaClとを3:1の重量比に混合し, 100メッシュ以上の細粉としたものを用いた。圧力媒体にはCS₂を用いた。

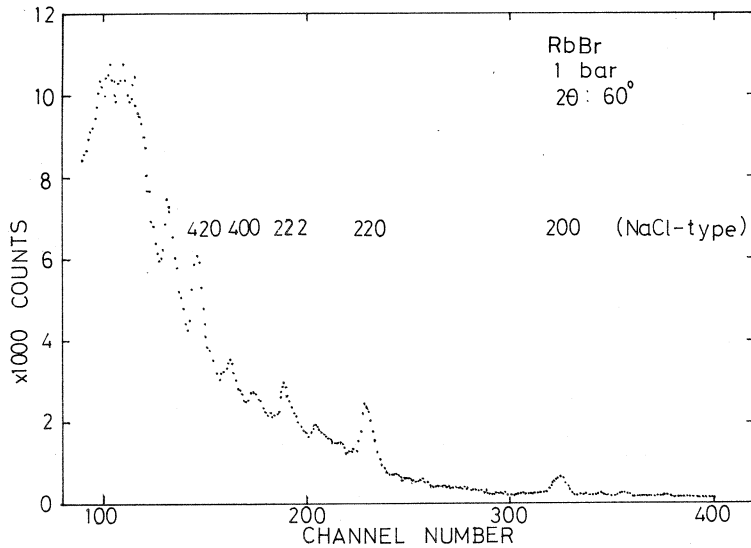
中性子線回折の測定は, 前報と同じく東北大学核理研のTOF装置を用いた。

§ 3. 測定結果

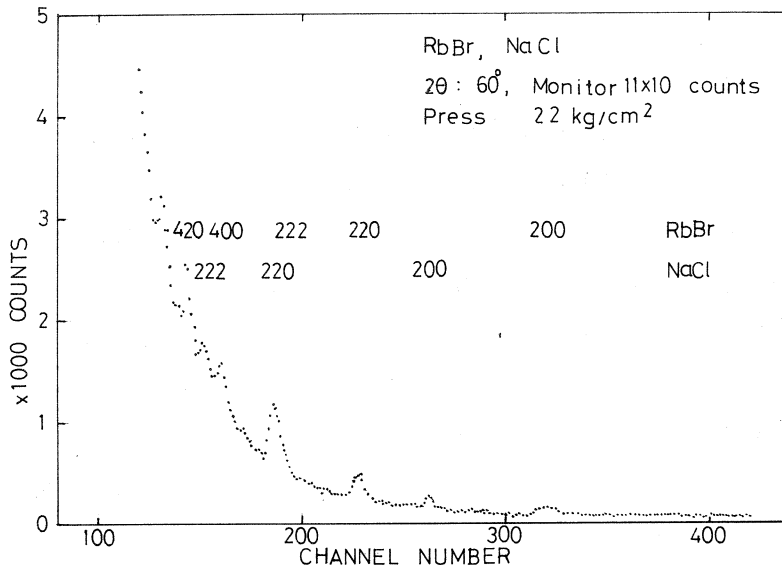
1気圧におけるRbBrの回折線の測定結果を第1図に示す。これは前報¹⁾の第1図と同じであるが, 回折線の指数の記載に誤りがあったので訂正した。

高圧装置を用い, 油圧プレスに22 kg/cm²の油圧を加えて測定した結果を第2図に示す。回折角は60°で, 測定に要した実時間は約9.6時間, モニタ計数値は約11×10⁶であった。図で回折線は, RbBrの(222)とNaClの(220)とが重なっているが, それ以外は分離しており両物質の体積は十分な精度で求めることができた。

第3図には, 油圧を高めて107 kg/cm²を加えて測定した結果を示す。測定時間は, 加速器の不調のために約26時間を要し, モニタ計数値は13×10⁶であった。この図では, RbBrの回



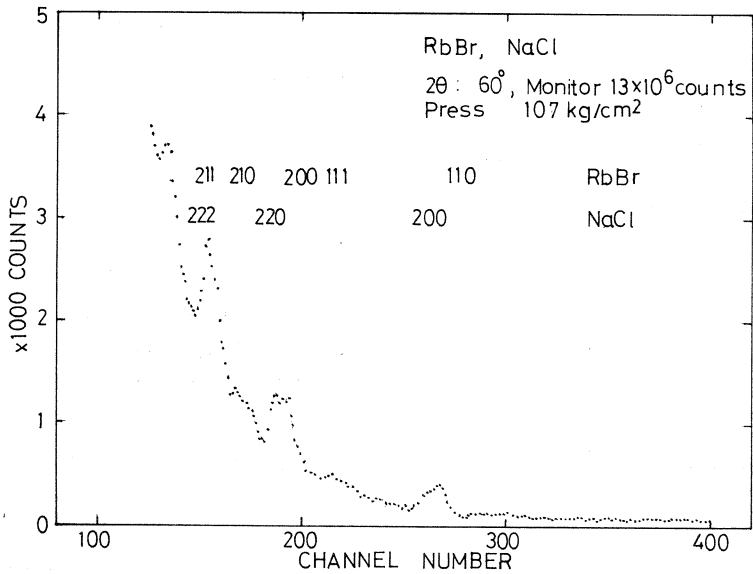
第1図 1気圧のRbBrの中性子線回折，面指数はNaCl型として示した。



第2図 高圧下のRbBrとNaClの混合物の中性子線回折（油圧22 kg/cm²）。

折線は，第2図とは全く異なっており，CsCl型として指数づけをすることができた。しかしRbBrの(111)，(210)以外の回折線はNaClの回折線と非常に近く，両者を分離して格子常数あるいは体積を求める精度は低くなる。

油圧プレスに加える圧力の値を22, 33, 40, 107, 150 および170 kg/cm²と変えて測定し



第3図 高圧下のRbBrとNaClの混合物の中性子線回折、RbBrの指数はCsCl型として示した(油圧107kg/cm²)。

第1表 NaClの格子常数変化から求めた圧力とRbBrの体積変化との関係

油 圧 kg/cm ²	NaCl $\Delta a / a_0$	圧 力 kb	RbBr 結晶構造	RbBr $\Delta V / V_0$
0	0	(1b)	NaCl	1.000
22	0.0059	4.3	NaCl	0.980
33	0.0070	5.3	NaCl	0.974
40	0.0078	5.5	CsCl	0.827
107	0.0135	10.7	CsCl	0.800
150	0.0170	13.8	CsCl	0.794
170	0.0197	16.3	CsCl	0.792

た結果を整理して第1表に示す。前報¹⁾の第1表と比較すると高圧力側での圧力発生効率が幾分高いのは、装置の調整を行なった結果と考えられる。この圧力値は、NaClの格子常数の変化の割合 $\Delta a / a_0$ からDecker³⁾に従って求めたものである。

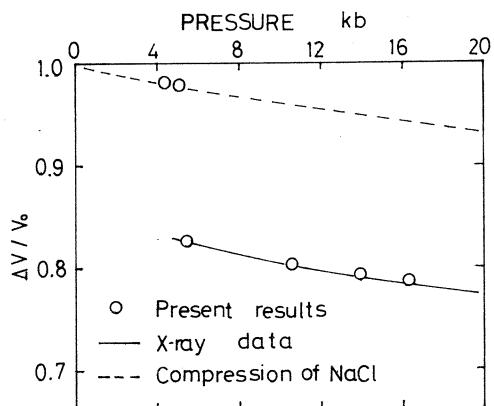
NaClとRbBrとはよく混合し、またCS₂に浸した状態にあるから、この圧力はRbBrに加えられた実際の値と考えられる。

第4図は、このようにして求めた圧力と、RbBrの体積変化の割合 $\Delta V / V_0$ との関係を○

印で示したものである。体積は圧力とともに減少し、5.4 kb 付近で -14% の急激な減少を示し、さらに圧力とともに減少するが、その率は次第に小さくなっている。図の実線は、Vaiya と Kennedy が X 線回折から求めた点²⁾ を結んだものである。

今回の測定値は、圧力の高い側で実線から外れる傾向を示しており、これには上述したように、NaCl と CsCl 型の RbBr との回折線の重なりによる精度の低下が関連していると考えられる。

第 4 図の破線は、NaCl の圧縮曲線であって、多くのアルカリハライドの圧縮曲線は、互によく似ており数値的な差も小さい²⁾。RbBr の低圧力側もこの曲線に近い値をとっている。



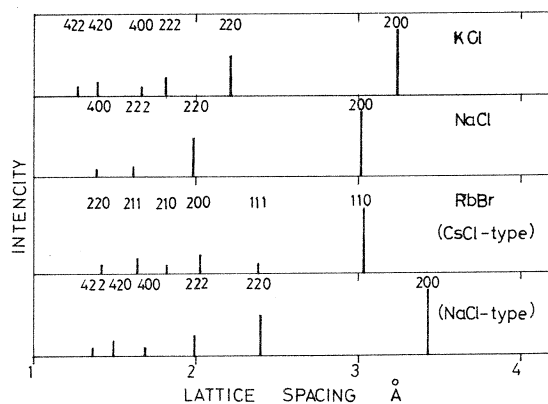
第 4 図 RbBr の圧縮曲線

§ 4. 考 察

本測定では、圧力を定める標準に NaCl を用いた。試料の RbBr と回折線が重ならない場合には、モニタ計数値 10^7 程度の測定で、試料の体積変化、結晶構造の変化と圧力の関係を十分な精度で定めることができた。しかし CsCl 型に転移した RbBr と NaCl とは回折線の位置が近く、測定精度が低下した。これらの回折線の面間隔と強度の関係を第 5 図に示す。図には KCl の回折線も併せて示した。

KCl の場合には、RbBr の NaCl 型とも CsCl 型とも回折線の重なりが少なく、良好な結果を与えるものと考えられる。ただし、KCl も 18kb 附近の圧力で、NaCl 型から CsCl 型に転移する点に注意する必要がある。

アルカリハライドの NaCl 型 \longleftrightarrow



第 5 図 RbBr, NaCl および KCl の回折線の面間隔と強度との関係。

CsCl 型転移は、圧力変化によっても、また温度変化によっても生じる一次転移である。NaCl 型の 6 配位から CsCl の 8 配位に変化し、RbBr の場合、転移点で第 4 図に示したように -14% の体積変化を生じる。また格子常数から最近接の $\text{Rb}^+ - \text{Br}^-$ のイオン間距離を求めると、この転移にともなって約 3% 伸張している。この転移の機構については問題とすべき点が多い。たとえば、転移にあたって、両相の結晶の間に、マルテンサイト変態の際に見られるような特定の方位関係があるかどうか興味ある問題^{5,6,7)}である。これを解明するには、本報告に述べたような多結晶試料を対象とする測定のほかに、単結晶試料についての高圧力下の測定を行なう必要があると考えられる。

単結晶試料に対しては、精密なゴニオメータにより結晶方位の設定を行なうと同時に、転移点近傍で圧力を微細に変化させ、あるいは履歴現象を測定する必要がある。また転移にともなう結晶面の変化を追跡するには、回折中性子線ビームに垂直な平面上、あるいは直線上で位置検出器を用いて測定する必要があると考えられる。これらはいずれも近い将来の実現がまつられるものである。

本研究の実施について、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 **12** (1979) 47.
- 2) S. N. Vajya and G. C. Kennedy: J. Phys. Chem. Solids **32** (1971) 951.
- 3) D. L. Decker: J. Appl. Phys. **42** (1971) 3239.
- 4) 神垣, 吉田, 大橋, 金子, 佐藤: 核理研研究報告 **10** (1977) 215.
- 5) M. Watanabe, M. Tokonami and N. Morimoto: Acta Cryst., **A33** (1977) 294.
- 6) K. Asaumi: Japan J. Appl. Phys. **17** (1978) 1165.
- 7) B. Okai: in press.

T-O-F Pulsed Neutron Total Scattering of $\text{Se}_{0.25}\text{Te}_{0.75}$ Liquid

M. Misawa and K. Suzuki

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

§ 1. Introduction

Selenium-Tellurium liquid undergoes a transition¹⁾ from the low conductivity state to the high conductivity state over a certain temperature range which depends on the liquid composition. The temperature dependence of the density²⁾ of Se-Te liquid shows an abnormal behavior near the transition temperature; the density decreases at first, then increases and again decreases with increasing temperature. The measurement of the magnetic susceptibility³⁾ of Se-Te liquid indicates a change in electronic structure with increasing temperature. The DTA curve⁴⁾ of $\text{Se}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$ liquid shows an endothermic reaction when heated through the transition temperature.

The purpose of this study is to examine the relationship between these abnormal behaviors and change in the atomic scale structure of $\text{Se}_{0.25}\text{Te}_{0.75}$ liquid by the measurement of the structure factor using pulsed neutron total scattering.

§ 2. Experimental

A $\text{Se}_{0.25}\text{Te}_{0.75}$ sample was made from 99.9999% purity Te and 99.999% purity Se which were melted at 650°C for 7 hours to complete alloying reaction. The sample was sealed in vacua in a thin walled silica tube with 10.0 mm in innerdiameter, 0.4 mm in wall thickness and 70 mm in length. The measurement of structure factor $S(Q)$ was carried out at two different temperatures, i. e. 414 and 541°C. As shown in Fig. 1, this liquid has the minimum density and exists in the low conductivity state at 414°C. On the other hand, at 541°C the liquid

is in the high conductivity state and the sign of thermal expansion coefficient is negative. The sample sealed in the silica tube was kept in a vacuum chamber and heated by an electric furnace specially designed so that heating elements were not located in neutron beam paths. Before starting measurement, the sample was held at the measuring temperature for about 3 hours to attain the thermodynamic equilibrium.

The measurement of $S(Q)$ was carried out using a pulsed neutron total scattering spectrometer installed at the 300 MeV electron LINAC, Tohoku University. Details of the spectrometer and the procedure of data processing from the observed T-O-F spectrum to $S(Q)$ have been fully described in previous papers^{5,6}.

§ 3. Results

The $S(Q)$ of $\text{Se}_{0.25}\text{Te}_{0.75}$ liquid measured at 414 and 541 °C were shown in Fig.2 together with $S(Q)$ of liquid selenium and tellurium just above their melting points for comparison. It is clearly seen from this figure that the height of the first peak in $S(Q)$ of this liquid increases with increasing temperature, while the height of the second peak decreases.

The total radial distribution functions (RDF), which is the Fourier transform from $S(Q)$ of this liquid at the two temperatures, were compared in Fig. 3. The difference between the two RDFs was also shown in the lower part of Fig. 3.

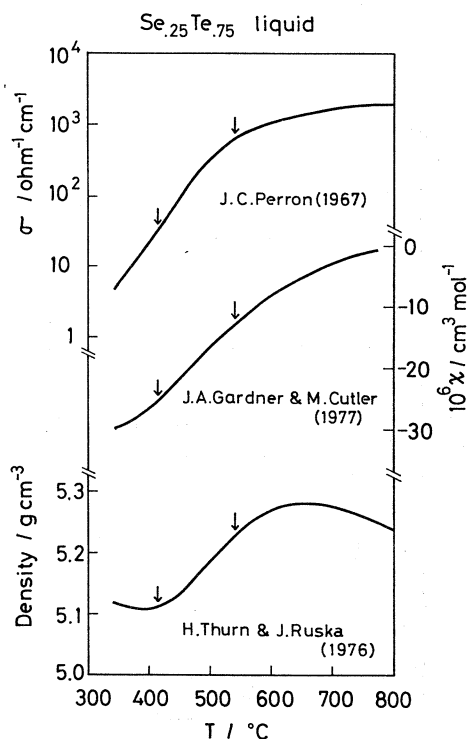


Fig. 1. Temperature dependences of conductivity σ , magnetic susceptibility χ and density of $\text{Se}_{0.25}\text{Te}_{0.75}$ liquid. Arrows show the temperatures at which $S(Q)$ was measured in this work.

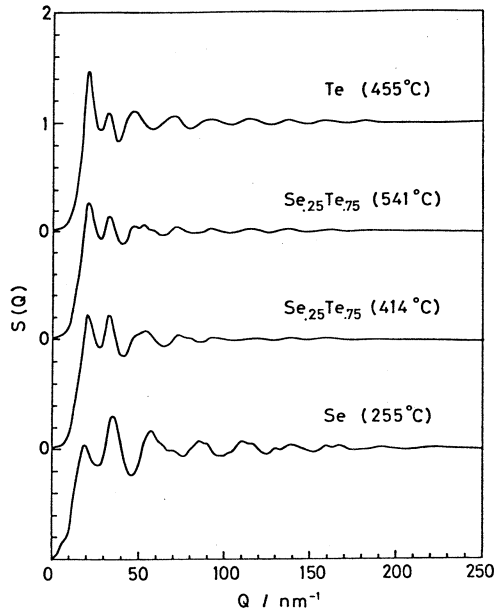


Fig. 2. Experimental structure factors $S(Q)$ of liquid Te, $\text{Se}_{0.25}\text{Te}_{0.75}$ and Se liquids.

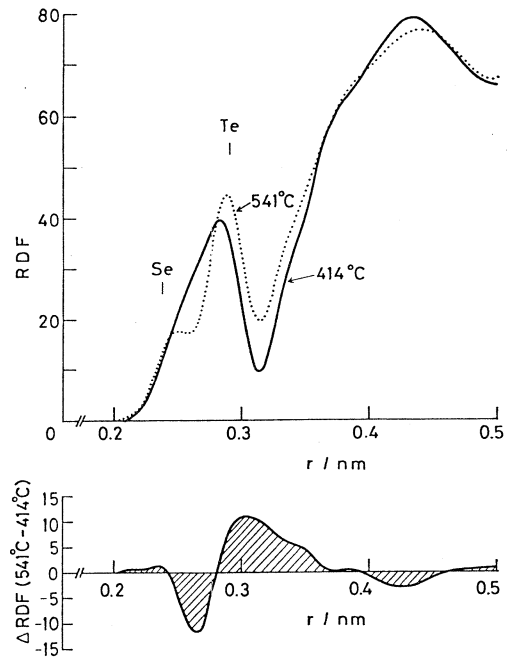


Fig. 3. Total RDFs of $\text{Se}_{0.25}\text{Te}_{0.75}$ liquid measured at 414 and 541 °C. Lower graph shows the difference between the two RDFs.

- From this figure the following results are obtained. (1) The atomic distribution around the first minimum of the RDF increases with increasing temperature. (2) The atomic distribution around $r = 0.26$ nm decreases with increasing temperature.

§ 4. Discussion

The first peak of the RDF curve is constructed from three different contributions, i. e. Se-Se, Se-Te and Te-Te pair distributions. If it is assumed that the three atomic distributions have a gaussian form and interatomic distances of Se-Se and Te-Te pairs in the liquid have the same value as their pure liquid states, i. e. $0.238^{(7)}$ and $0.292^{(8)}$ nm respectively and that of Se-Te pair is 0.265 nm

which is the average of the above two values, then the first peak of the RDF curve can be resolved into three gaussian curves by the least mean squares method. The resolved three gaussian curves are shown in Fig. 4.

The area of the first peak of the RDF curve, N , is written by

$$N = \frac{b_{\text{Se}}^2}{\langle b \rangle^2} n_{\text{SeSe}} + 2 \frac{b_{\text{Se}} b_{\text{Te}}}{\langle b \rangle^2} n_{\text{SeTe}} + \frac{b_{\text{Te}}^2}{\langle b \rangle^2} n_{\text{TeTe}} \quad (1)$$

where b_{Se} (b_{Te}) is the neutron scattering length of Se (Te) nucleus, $\langle b \rangle = C_{\text{Se}} b_{\text{Se}} + C_{\text{Te}} b_{\text{Te}}$,

C_{Se} (C_{Te}) means the atomic fraction of Se (Te) atoms and n_{SeSe} (n_{SeTe} or n_{TeTe}) is the fraction of nearest neighbor Se-Se (Se-Te or Te-Te) pair. For the

simplicity, we first consider very long chain molecules or ring molecules. In this case n_{SeSe} can vary from 0 to $2C_{\text{Se}}$, where $n_{\text{SeSe}} = 0$ means the formation of only unlike pairs, $n_{\text{SeSe}} = 2C_{\text{Se}}$ only like pairs and $n_{\text{SeSe}} = 2C_{\text{Se}}^2$ corresponds to statistical random mixing. The values of n_{SeTe} and n_{TeTe} are represented as a function of n_{SeSe} by the following equations.

$$\begin{aligned} n_{\text{SeTe}} &= 2C_{\text{Se}} - n_{\text{SeSe}}, \\ n_{\text{TeTe}} &= 2(C_{\text{Te}} - C_{\text{Se}}) + n_{\text{SeSe}}. \end{aligned} \quad (2)$$

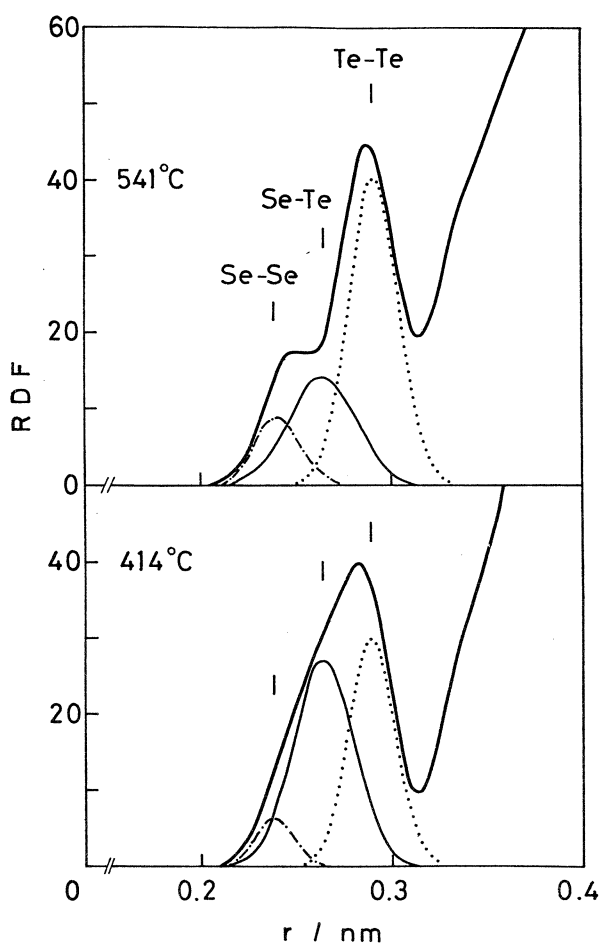


Fig. 4. Resolution of the first peak in RDF curve into three gaussian distributions. Dot-dashed, solid and dotted curves are the gaussian approximations for Se-Se, Se-Te and Te-Te pair distribution.

The summation of $(n_{\text{SeSe}} + 2n_{\text{SeTe}} + n_{\text{TeTe}})$ gives the mean coordination number which becomes two in this case. Figure 5 shows the three terms of the right hand side in eq.(1) as a function of n_{SeSe} using eq. (2).

The experimental values of the area of the gaussian curves for Se-Se, Se-Te and Te-Te pair as shown in Fig. 4 are plotted on the corresponding lines in Fig. 5 by closed circles for the liquid at 414 °C and by open circles for the liquid at 541 °C. The value of the area of Te-Te pair distribution of the liquid at 541 °C is too large to be plotted on the corresponding Te-Te (2) line. In Fig. 5 this value is tentatively plotted at

the position where the value of n_{SeSe} is a mean value of that of Se-Se and Se-Te pairs. This departure of the value of Te-Te pair distribution from the corresponding Te-Te (2) line will be discussed later.

It can be seen from this figure that the value of n_{SeSe} obtained from the abscissa of plots for Se-Se and Se-Te pairs is smaller than $2C_{\text{Se}}^2$ in case of the liquid at 414 °C and is larger than $2C_{\text{Se}}^2$ in case of the liquid at 541 °C, although these values are somewhat scattered. This means that Se and Te atoms in this

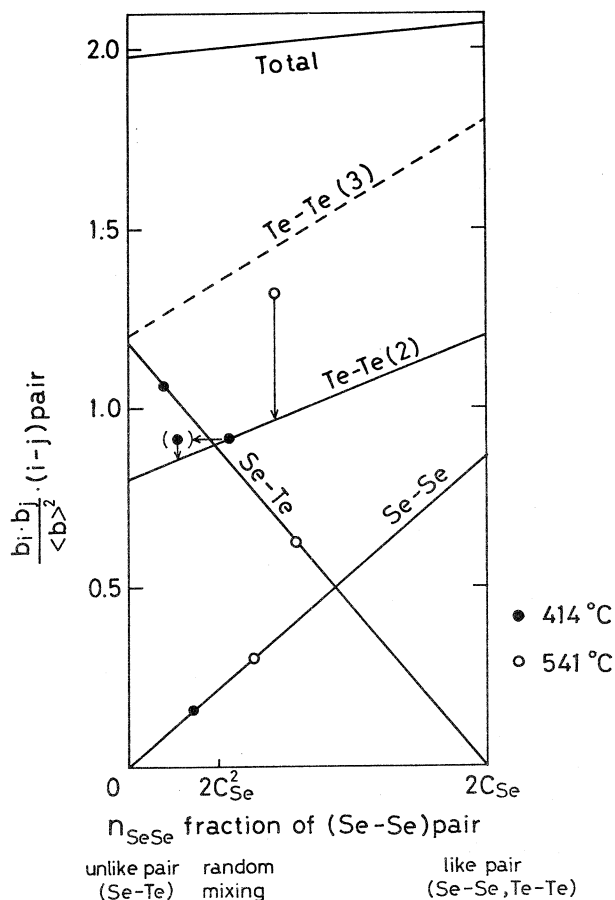


Fig. 5. Weighted partial nearest neighbors defined in eq. (1) vs. fraction of Se-Se pair n_{SeSe} . Closed and open circles are experimental values obtained at 414 and 541 °C, respectively.

liquid tend to form unlike pairs at 414 °C, while like pairs are most likely formed at 541 °C.

The coordination number of a Te atom in liquid pure tellurium has been considered to vary from 2 to 3 with increasing temperature⁹⁾. If we adopt 3 as the coordination number for Te-Te pair distribution, a new line for this pair is drawn as a function of n_{SeSe} as shown by a broken line in Fig. 5. The experimental value of the area for Te-Te pair distribution at 541 °C lies between 2- and 3-coordinated Te-Te pair lines as shown in Fig. 5. This implies that a part of Te atoms alter their bonding character from 2-coordinates to 3- or more coordinates and another part of Te atoms remain in chain molecules together with Se atoms at 541 °C. On the other hand, almost all Te atoms form chain molecules with Se atoms at 414 °C, because the experimental value of the area of Te-Te pair distribution at this temperature deviates only slightly from 2-coordinated Te-Te (2) pair line even if the experimental value is replotted on a new position where the value of n_{SeSe} is a mean value of that Se-Se and Te-Te pairs shown by a closed circle in bracketed in Fig. 5.

The increase in the coordination number of Te atoms with increasing temperature may be responsible for the increase in both the density and the conductivity of this liquid. Further discussion including the effect of shortening chain molecules is in progress.

Acknowledgement

The authors would like to thank the members of the Laboratory of Nuclear Science for the operation of the linac and Mr. T. Nihei, a member of the Research Institute for Iron, Steel and Other Metals, for the skilful manufacture of specially designed thin walled silica sample tubes. One of the authors (MM) gratefully acknowledges a partial support for this study by the 1977 RCA Grant Program.

References

- 1) J. C. Perron: *Advances in Phys.* **16** (1967) 657.

- 2) H. Thurn and J. Ruska : J. Non-Crystalline Solids **22** (1976) 331.
- 3) J. A. Gardner and M. Culter : *Amorphous and Liquid Semiconductors* ed. by W. E. Spear (Dundee, G. C. Stevenson, 1977) p. 838.
- 4) M. Fischer and H. Krebs : Glastechn. Ber. **47** (1974) 42.
- 5) K. Suzuki, M. Misawa, K. Kai and N. Watanabe : Nucl. Instr. and Meth. **147** (1977) 519.
- 6) M. Misawa, D. L. Price and K. Suzuki : J. Non-Crystalline Solids, to be published.
- 7) M. Misawa and K. Suzuki : Trans. JIM **18** (1977) 427.
- 8) M. Misawa and K. Suzuki : unpublished.
- 9) B. Cabane and J. Friedel : J. de Phys. **32** (1971) 73.

T-O-F Pulsed Neutron Total Scattering Studies of $V_2O_5-P_2O_5$ and $PbO-GeO_2$ Glasses Prepared by Rapid-Quenching from Their Melts

M. Ueno, M. Misawa and K. Suzuki

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

§ 1. Introduction

Many attentions have been currently directed to the glassy state of semiconducting, dielectric and magnetic oxides, which are expected to be new engineering materials in near future.

$V_2O_5-P_2O_5$ glasses have been extensively known to show a semiconducting property¹⁾. Since $5PbO-3GeO_2$ crystal is a famous ferroelectric material with a characteristic optical property²⁾, it is quite interesting to examine what kind of dielectric behavior appears in the glassy state of $5PbO-3GeO_2$.

The fundamental aim of this study is to obtain an understanding of the relationship between the short-range structure and various physical properties of $V_2O_5-P_2O_5$ and $PbO-GeO_2$ glasses by means of T-O-F pulsed neutron total scattering experiment.

§ 2. $V_2O_5-P_2O_5$ Glasses

Glass samples were prepared from pure reagent-grade V_2O_5 and P_2O_5 of Wakoh Pure Chemical Co. Ltd. Pure vitreous V_2O_5 was obtained by the rapid-quenching from its melt using a single roll technique which is same to the procedure to make metallic glass thin ribbons. $V_2O_5-P_2O_5$ glass samples were formed by pouring their melts into a copper mold or onto a copper plate.

These glass samples were smashed into small pieces and then contained in a vanadium cylinder of 0.025 mm in wall thickness, 7.8 mm in inner diameter

and 50 mm in length to measure neutron total scattering intensity. The structure factors $S(Q)$ of five different V_2O_5 - P_2O_5 glasses with 100, 95, 80, 56 and 43 mol % V_2O_5 were measured at room temperature using a time-of-flight (T-O-F) pulsed neutron total scattering spectrometer³⁾ installed at Tohoku University 300 MeV electron LINAC. The experimental $S(Q)$ s corrected for background, attenuation, multiple scattering and so on^{3,4)} are shown in Fig. 1.

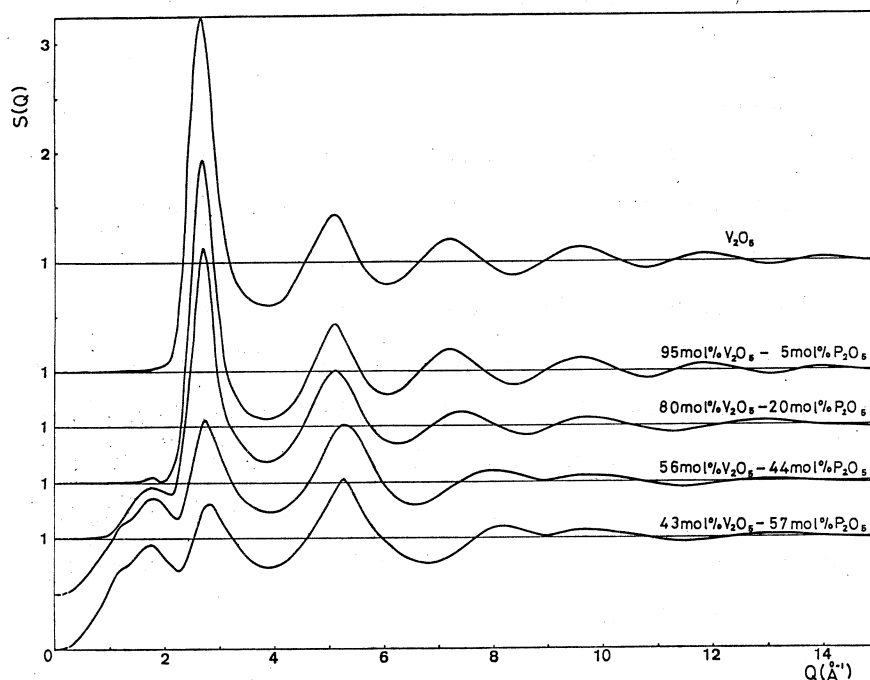


Fig. 1. Structure factors $S(Q)$ of V_2O_5 -0, 5, 20, 44 and 57 mol % P_2O_5 glasses.

The radial distribution function RDF, which are Fourier transforms of $S(Q)$ s truncated at $Q_{\max} = 30 \text{ \AA}^{-1}$, are shown in Fig. 2. The first peaks appearing around $r = 1.54 \text{ \AA}$ in RDFs of 80 mol % V_2O_5 -20 mol % P_2O_5 , 56 mol % V_2O_5 -44 mol % P_2O_5 and 43 mol % V_2O_5 -57 mol % P_2O_5 glasses correspond to the P-O correlation in these glasses. The P-O atomic distance is almost independent of P_2O_5 content. The number of O atoms coordinated to a P atom is about 4. The second peaks with strong intensity correspond to the O-O correlation in the glasses. The

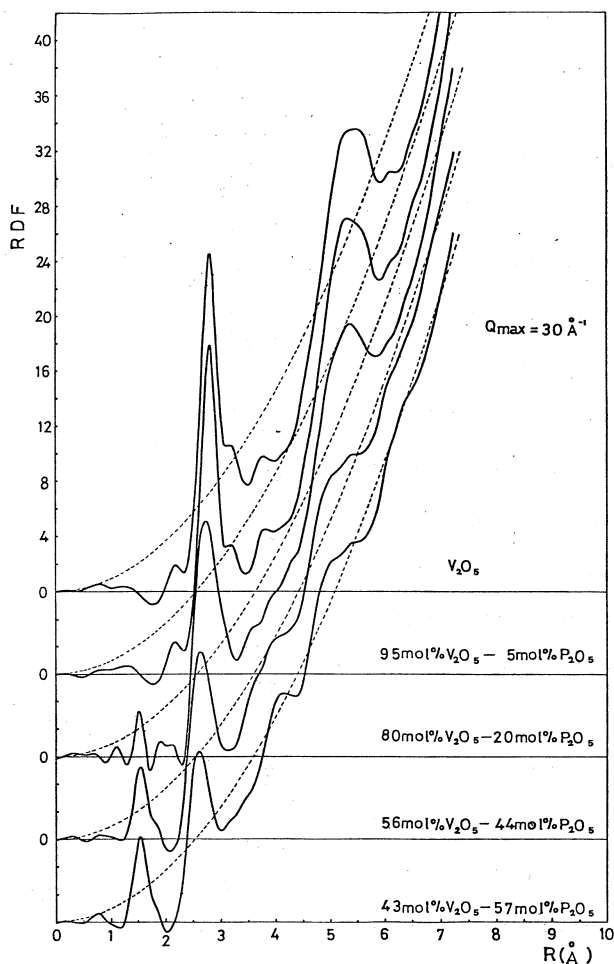


Fig. 2. Radial distribution functions RDF of V_2O_5 -0, 5, 20, 44 and 57 mol % P_2O_5 glasses.

O-O atomic distance decreases with increasing P_2O_5 content, while the number of O atoms coordinated to a O atom exists between 6 and 7 over the composition range studied in this work.

The average atomic number density (ρ_0) and O-O and P-O atomic distances in the glasses are summarized as a function of P_2O_5 content in Fig. 3. The O-O atomic distance in pure vitreous V_2O_5 is a little larger than that in the crystal state. The number of PO_4 tetrahedra with the P-O atomic distance $r = 1.54 \text{ \AA}$

may gradually increase with increasing P_2O_5 content. This effect seems to appear directly as a change in the width of the second peak in RDF.

§ 3. PbO-GeO₂ Glasses

PbO-GeO₂ glass samples were prepared from pure reagent-grade PbO and GeO₂ of Wakoh Pure Chemical Co. Ltd. 5PbO · 3GeO₂ glass sample was made by rapid-quenching from its melt using a single roll technique, while PbO · GeO₂ glass sample was vitrified by pouring its melt onto a copper plate.

The structure factors $S(Q)$ of the both glasses were measured at room temperature by T-O-F pulsed neutron total scattering. The results are shown in Fig. 4. Oscillations in $S(Q)$ s persist definitely up to $Q = 30 \text{ \AA}^{-1}$ in both glasses. Overall behaviors of $S(Q)$ s are totally similar with each other except for the peak profile over the range of $r = 4 \sim 5 \text{ \AA}^{-1}$.

The Ge-O and O-O atomic distances obtained from RDFs are 1.78 and 2.90 Å respectively. These values are almost same in the both glasses. However, the Pb-O atomic distance in 5PbO · 3GeO₂ glass is 2.31 Å, which is shorter than that (2.35 Å) in PbO · GeO₂ glass.

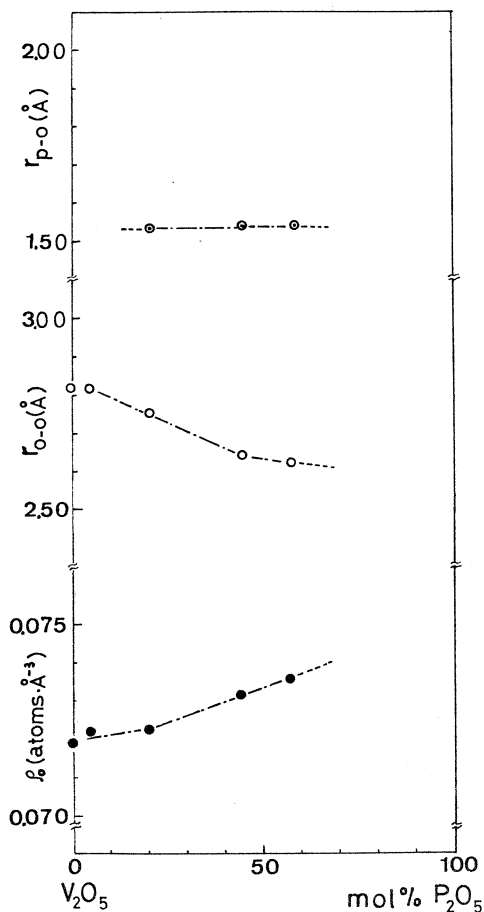


Fig. 3. Average atomic number density (ρ_0), O-O atomic distance and P-O atomic distance in V_2O_5 - P_2O_5 glasses as a function of P_2O_5 content.

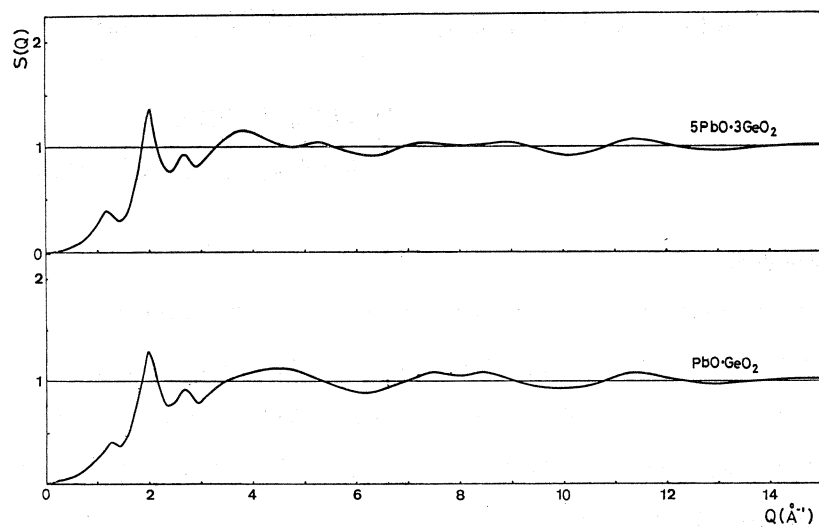


Fig. 4. Structure factors $S(Q)$ of $5\text{PbO}\cdot 3\text{GeO}_2$ and $\text{PbO}\cdot \text{GeO}_2$ glasses.

Acknowledgements

The authors would like to thank the member of Nuclear Science Laboratory for the operation of LINAC.

References

- 1) J. D. Mackenzie : in *Modern Aspects of the Vitreous State*, ed. J. D. Mackenzie (Butterworth, Washington, 1964) Vol. 3 p.126.
- 2) H. Iwasaki and K. Sugii : *Appl. Phys. Lett.* **19** (1971) 92.
- 3) K. Suzuki, M. Misawa, K. Kai and N. Watanabe : *Nucl. Instr. and Methods* **147** (1977) 519.
- 4) M. Misawa, D. L. Price and K. Suzuki : *J. Non-Crystalline Solids* (in press).

PSDによる位置決定における演算上の問題

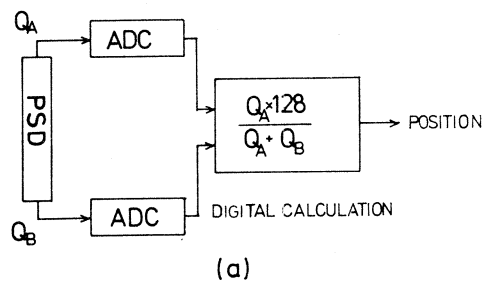
理学部物理, 核理研*

新井正敏・新村信雄*・窪田健雄*

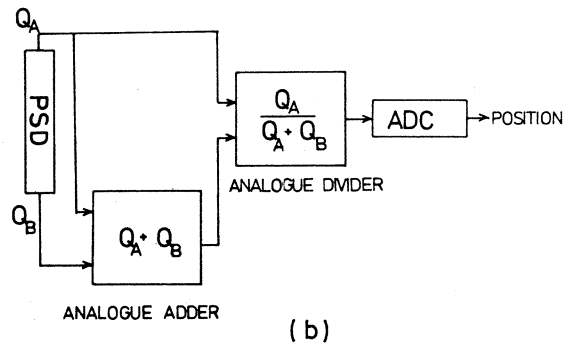
§ 1. 特異な現象

中性子用PSD (POSITION SENSITIVE DETECTOR) を使用した測定¹⁾で次のような特異な現象が出現した。同様の現象を他のグループも観測している²⁾さて、PSDを使用した系でPSDのどの位置に中性子が入射したかを定める方法は、PSDの両端子から出てくる電荷 Q_A , Q_B より $Q_A / (Q_A + Q_B)$ を計算することである。そのために2つの処理の形式があり、1つは第1図(a)のようにアナログ量 Q_A , Q_B を夫々デジタル変換し、デジタル演算によって $Q_A / (Q_A + Q_B)$ を実行する仕方である。第2の方法は第1図(b)のように $Q_A + Q_B$ 及び $Q_A / (Q_A + Q_B)$ をアナログ演算処理する仕方である。我々は

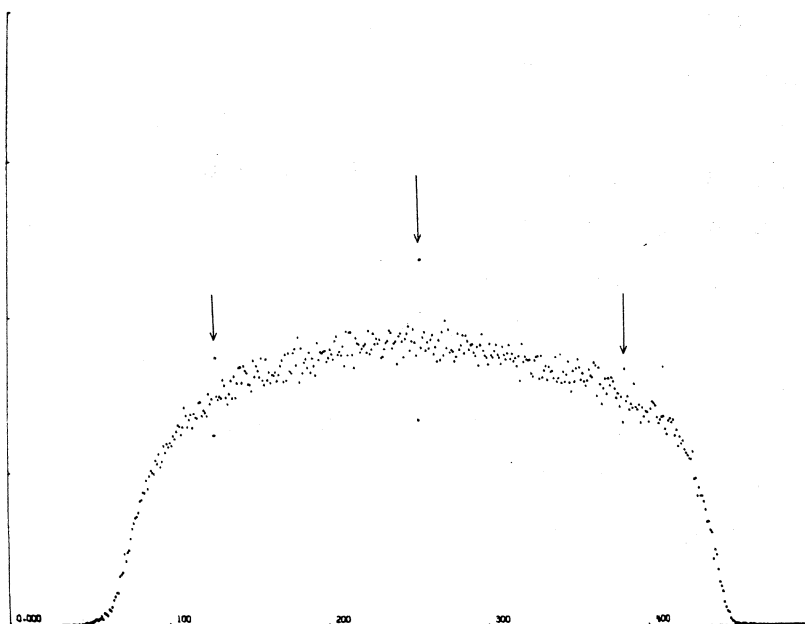
まず第1の方法を採用した。ところが第2図(a)のようにPSDを512チャンネルに分割した場合に255チャンネルと256チャンネル(全分割チャンネルの1/2に相当)及び全分割チャンネルの1/4, 1/8 ……に相当するところに特徴的な躍びが生じた。この原因は§2で述べるように Q_A , Q_B を整数として扱ったためである。もしアナログ量のまま、つまり第2の方法を採用すれば計算機シミュレーションの結果ではこのような躍びは生じなかった。ところが実際には第2の方法でも第2図(b)のように躍びが生じた。



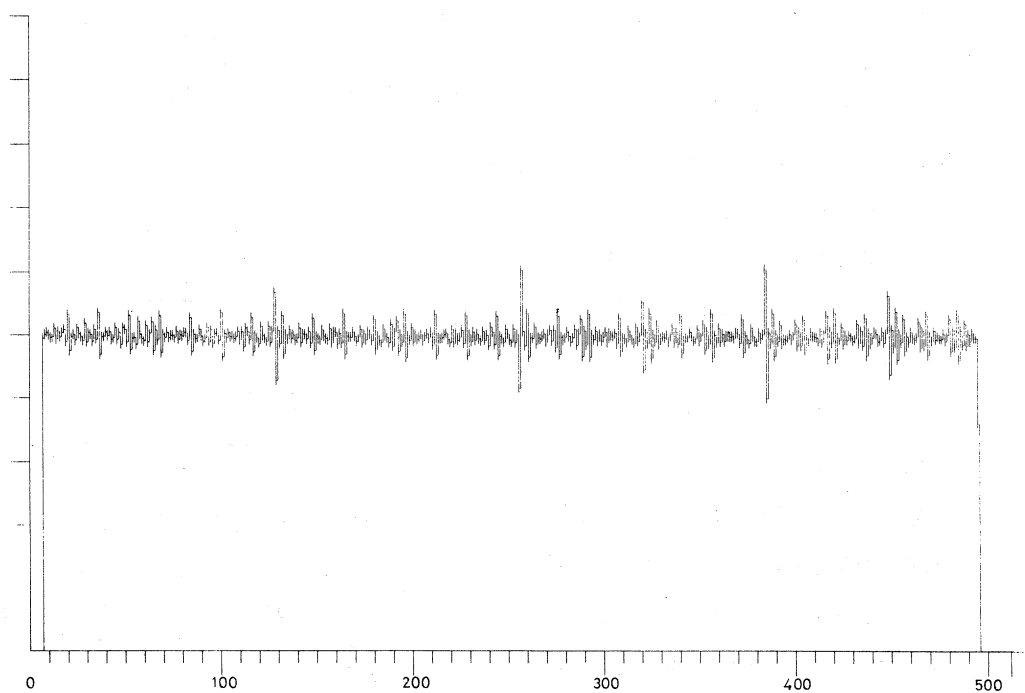
第1図(a) デジタル演算による位置決定。



第1図(b) アナログ割算器を用いる方法。



第2図(a) デジタル演算法を用いた場合の躍びの出現(実測)。
縦軸は強度を意味する。



第2図(b) アナログ割算器を用いた場合の躍びの出現(実測)。
縦軸は強度を意味する。

§ 2. 原因の解明

PSDを128分割した場合を考える。

i) 第1の方法

第1の方法では Q_A , Q_B をデジタル化した結果これらは整数となる。しかし $Q_A + Q_B$ の値は一定でなく次のようなゆらぎがある。

$$128 - \alpha \leq Q_A + Q_B \leq 128 + \alpha$$

ここで α はゆらぎの量である。さて中性子入射位置Pは次の式によって決められる。

$$P = Q_A \times 128 / (Q_A + Q_B) \tag{1}$$

Q_A の変化 ΔQ_A に対する位置の変化 ΔP は次の式で与えられる。

$$\Delta P = \Delta Q_A \times 128 / (Q_A + Q_B) \tag{2}$$

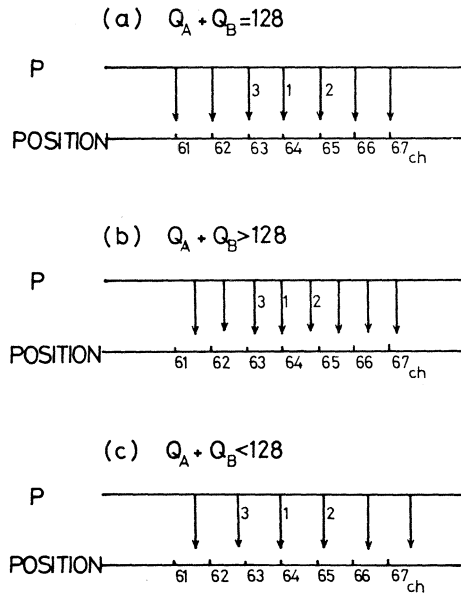
そこで $\Delta Q_A = 1$ に対する ΔP の変化を考察してみる。

イ) $Q_A + Q_B = 128$ (ゆらぎのない場合)

(2)式から $\Delta P = \Delta Q_A = 1$ となるので第3図(a)のように Q_A の1単位の変化は位置の1チャンネルの変化に1:1に対応するので問題は生じない。

ロ) $Q_A + Q_B > 128$

このとき(2)式から $\Delta P < 1$ であるから第3図(b)のように ΔP の値は位置の1チャンネルの変化より小さな変化になる。今第3図(b)の矢印1, 2, 3に相当するものは(1)式の演算で小数点以下を切捨てると夫々64, 64, 及び63チャンネルに対応してしまい, 64チャンネルとして扱われるイベントが増加する。 $120 \leq Q_A + Q_B \leq 138$, $58 \leq Q_A \leq 72$ の範囲で(1)式を計算した結果どのようなPの値(小数第3位まで)になるか示したのが第1表である。小数以下を切捨てた結果64チャンネルになるPを□で囲い, 63チャンネルになるPを○で囲い,



第3図 PSDに中性子が入射したとき(1)式で求められるPの値と結果として得られるイベントのチャンネル数の関係図。

- (a) $Q_A + Q_B = 128$ のとき,
- (b) $Q_A + Q_B > 128$ のとき,
- (c) $Q_A + Q_B < 128$ のとき。

第1表 与えられた Q_A , Q_B に対して $Q_A \times 128 / (Q_A + Q_B)$ の計算値を Q_A 対 $(Q_A + Q_B)$ についてあらわしたものの。

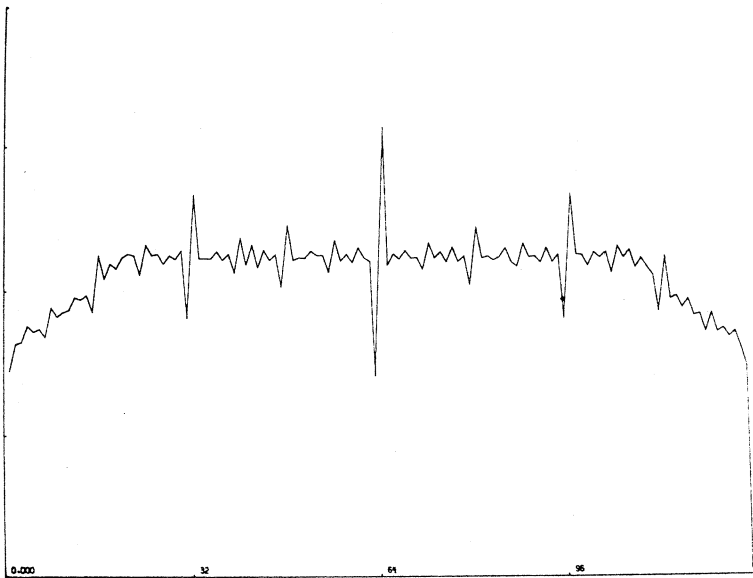
	$Q_A + Q_B \rightarrow$																			
	1 2 0	1 2 1	1 2 2	1 2 3	1 2 4	1 2 5	1 2 6	1 2 7	1 2 8	1 2 9	1 3 0	1 3 1	1 3 2	1 3 3	1 3 4	1 3 5	1 3 6	1 3 7	1 3 8	
58	61.867	61.355	60.852	60.358	59.871	59.392	58.921	58.457	58.000	57.550	57.108	56.672	56.242	55.820	55.403	54.993	54.588	54.190	53.797	53.410
59	62.933	62.433	61.902	61.398	60.903	60.416	59.936	59.465	59.000	58.543	58.092	57.649	57.212	56.782	56.358	55.941	55.529	55.124	54.725	54.330
60	64.000	63.471	62.951	62.439	61.935	61.440	60.952	60.472	60.000	59.535	59.077	58.626	58.182	57.744	57.313	56.889	56.471	56.058	55.652	55.250
61	65.067	64.529	64.000	63.480	62.968	62.464	61.968	61.480	61.000	60.527	60.062	59.603	59.152	58.707	58.269	57.837	57.412	56.993	56.580	56.170
62	66.133	65.587	65.049	64.520	64.000	63.488	62.984	62.488	62.000	61.519	61.046	60.580	60.121	59.669	59.224	58.785	58.353	57.927	57.507	57.090
63	67.200	66.645	66.098	65.561	65.032	64.512	64.000	63.496	63.000	62.512	62.031	61.557	61.091	60.632	60.179	59.733	59.294	58.861	58.435	58.010
64	68.267	67.702	67.148	66.602	66.065	65.536	65.016	64.504	64.000	63.504	63.023	62.554	62.086	61.630	61.184	60.743	60.305	59.876	59.452	59.030
65	69.333	68.760	68.197	67.642	67.097	66.560	66.032	65.512	65.000	64.496	64.015	63.541	63.068	62.600	62.142	61.690	61.245	60.805	60.370	59.940
66	70.400	69.818	69.246	68.683	68.129	67.584	67.048	66.520	66.000	65.488	70.000	69.418	68.836	68.264	67.702	67.150	66.700	66.250	65.800	65.350
67	71.467	70.876	70.295	69.724	69.161	68.608	68.063	67.528	67.000	66.481	71.467	70.876	70.295	69.724	69.161	68.608	68.063	67.528	67.000	66.481
68	72.533	71.934	71.344	70.764	70.194	69.632	69.079	68.535	68.000	67.473	72.533	71.934	71.344	70.764	70.194	69.632	69.079	68.535	68.000	67.473
69	73.600	72.992	72.393	71.805	71.226	70.656	70.095	69.543	69.000	68.465	73.600	72.992	72.393	71.805	71.226	70.656	70.095	69.543	69.000	68.465
70	74.667	74.050	73.443	72.846	72.258	71.680	71.111	70.551	70.000	69.457	74.667	74.050	73.443	72.846	72.258	71.680	71.111	70.551	70.000	69.457
71	75.733	75.107	74.492	73.886	73.290	72.704	72.127	71.559	71.000	70.450	75.733	75.107	74.492	73.886	73.290	72.704	72.127	71.559	71.000	70.450
72	76.800	76.165	75.541	74.927	74.323	73.728	73.143	72.567	72.000	71.442	76.800	76.165	75.541	74.927	74.323	73.728	73.143	72.567	72.000	71.442
58	63.015	63.511	64.000	64.481	64.955	65.422	65.882	66.336	66.783	67.228	67.673	68.118	68.563	69.008	69.453	69.898	70.343	70.788	71.233	71.678
59	64.085	64.489	64.970	65.444	65.910	66.376	66.842	67.308	67.774	68.240	68.706	69.172	69.638	70.104	70.570	71.036	71.502	71.968	72.434	72.900
60	65.169	65.466	65.939	66.406	66.872	67.338	67.804	68.270	68.736	69.202	69.668	70.134	70.600	71.066	71.532	72.000	72.466	72.932	73.398	73.864
61	66.254	66.443	66.909	67.375	67.841	68.307	68.773	69.239	69.705	70.171	70.637	71.103	71.569	72.035	72.501	72.967	73.433	73.899	74.365	74.831
62	67.339	67.420	67.879	68.338	68.797	69.256	69.715	70.174	70.633	71.092	71.551	72.010	72.469	72.928	73.387	73.846	74.305	74.764	75.223	75.682
63	68.424	68.397	68.848	69.299	69.750	70.201	70.652	71.103	71.554	72.005	72.456	72.907	73.358	73.809	74.260	74.711	75.162	75.613	76.064	76.515
64	69.509	69.374	69.818	70.263	70.708	71.153	71.598	72.043	72.488	72.933	73.378	73.823	74.268	74.713	75.158	75.603	76.048	76.493	76.938	77.383
65	70.594	70.351	70.789	71.228	71.667	72.106	72.545	72.984	73.423	73.862	74.301	74.740	75.179	75.618	76.057	76.496	76.935	77.374	77.813	78.252
66	71.679	71.328	71.767	72.206	72.645	73.084	73.523	73.962	74.401	74.840	75.279	75.718	76.157	76.596	77.035	77.474	77.913	78.352	78.791	79.230
67	72.764	72.313	72.752	73.191	73.630	74.069	74.508	74.947	75.386	75.825	76.264	76.703	77.142	77.581	78.020	78.459	78.898	79.337	79.776	80.215
68	73.849	73.298	73.737	74.176	74.615	75.054	75.493	75.932	76.371	76.810	77.249	77.688	78.127	78.566	79.005	79.444	79.883	80.322	80.761	81.200
69	74.934	74.283	74.722	75.161	75.599	76.038	76.477	76.916	77.355	77.794	78.233	78.672	79.111	79.550	80.000	80.440	80.880	81.320	81.760	82.200
70	76.019	75.268	75.707	76.146	76.585	77.024	77.463	77.902	78.341	78.780	79.219	79.658	80.097	80.536	80.975	81.414	81.853	82.292	82.731	83.170
71	77.104	76.253	76.692	77.131	77.570	78.009	78.448	78.887	79.326	79.765	80.204	80.643	81.082	81.521	81.960	82.399	82.838	83.277	83.716	84.155
72	78.189	77.238	77.677	78.116	78.555	78.994	79.433	79.872	80.311	80.750	81.189	81.628	82.067	82.506	82.945	83.384	83.823	84.262	84.701	85.140

62チャンネルになるPには○を書いている。この表から $Q_A + Q_B > 128$ では□が多くなっているのがわかる。

ハ) $Q_A + Q_B < 128$

このとき(2)式から $\Delta P > 1$ であるから第3図(c)のように ΔP の値は位置の1チャンネルの変化より大きな変化となる。今第3図(c)の矢印1, 2, 3に相当するものは(ロ)の場合と同様の仕方により夫々64, 65, 及び62チャンネルに対応してしまい63チャンネルとして扱われるイベントの数が減少する。第1表より $Q_A + Q_B < 128$ では○が少なくなっていることがわかる。

(イ), (ロ), (ハ)を総合すると64チャンネルに属するイベントが多くなり, そのチャンネルの計数が増える。一方63チャンネルに属するイベントは少なくなり, そのチャンネルの計数は減少し, その間に躍びが生ずることが説明される。(第4図(a))

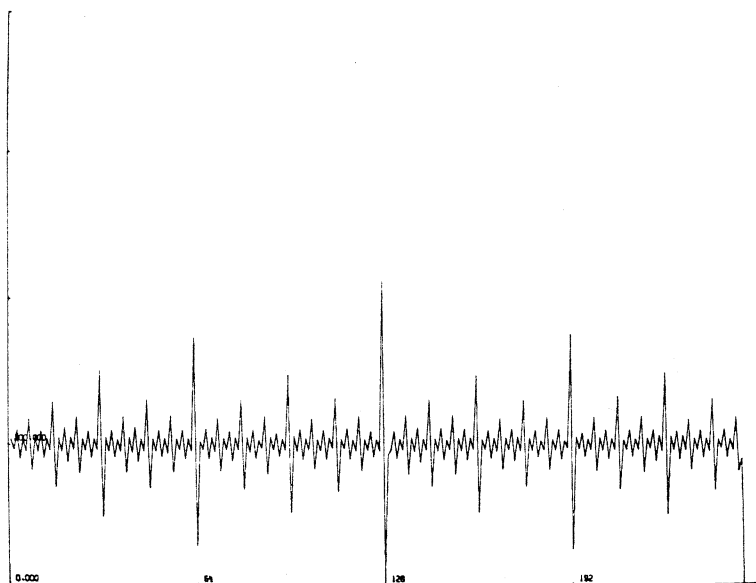


第4図(a) デジタル演算法を用いた場合の躍びの出現(計算機シミュレーション)。縦軸は強度を意味する。

ii) 第2の方法

第2の方法では $Q_A / (Q_A + Q_B)$ をアナログ演算し, その商をデジタル変換する方法であるため i) で述べた整数演算により生ずる特異な現象は起こり得ないと期待した。また計算機シミュレーションの結果もそれを指示するものであった。ところが§1で述べたような特異な現象がこの場合にも生じたのである(第2図(b))。これは次のように考えると説明がつか

くようである。アナログ量 $Q_A / (Q_A + Q_B)$ をアナログーデジタル変換器 (ADC) でデジタル量に変換する際に逐次変化法^(注1)をもちいているが、多分第2図(b)の躍びの原因はこの逐次変化法を実行する際に、ADC内部のビットの立ち方と入力アナログ量のゆらぎの間に相関があり、高ビット側ほど大きな相関があるために起るらしい。この相関の度合を適当に仮定して計算機シミュレーションを行ったところ第2図(b)を再現することができた(第4図(b))。



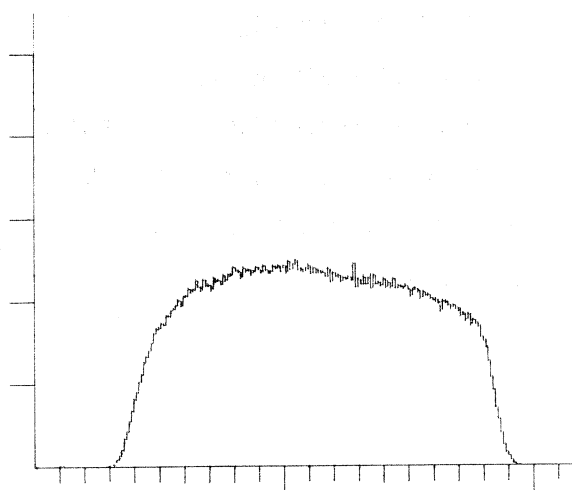
第4図(b) アナログ割算器を用いた場合の躍びの出現(計算機シミュレーション)。縦軸は強度を意味する。

(注1) 逐次変化法

入力アナログ量 (E_{in}) と変換器内部で発生した電圧、または標準量 (E_{conv}) とを比較し、内部で発生する標準量が入力アナログ量と一致したときの標準量に対応しているデジタル信号が変換結果として取出される。この変換方式のステップはまず 2^n のビットを1にし、その値をデジタルーアナログ変換器を通してアナログ量 E_{conv} にし、比較器で E_{conv} と E_{in} を比較し、 $E_{in} < E_{conv}$ ならば 2^n のビットを0にもどし、 $E_{in} > E_{conv}$ ならば 2^n のビットはそのまま、 2^{n-1} のビットを1にする。 2^n 、 2^{n-1} のビットの和を同様に E_{conv} に変換し、 E_{in} と比較する。 $E_{in} < E_{conv}$ ならば 2^{n-1} のビットを0にもどし、 $E_{in} > E_{conv}$ ならば 2^n 、 2^{n-1} のビットはそのまま 2^{n-2} のビットを1にする。この操作を 2^0 のところまで繰り返せばアナログーデジタル変換は完了したことになる。

§ 3. 問題の解決法

第1の方法で生じた躍びは整数演算の小数点以下の切捨てから生じたものであり、これを小数点以下四捨五入法で処理すると、この躍びはなくなることを期待される。計算機シミュレーションではこのような躍びは得られず成功したかのようにであったが、実際には同様の躍びが生じてしまった。これも第2の方法同様に入力のゆらぎとADCの相関によるものと思われる。次に第2の方法で



第5図 アナログ割算器の前にノイズフィルタを用いた場合。躍びはなくなった。縦軸は強度を意味する。

ADCの前段に入力のゆらぎを減少させるためノイズフィルターを置いてみたところ、この躍びはなくなった(第5図)。現時点では実際の入力のゆらぎとADCにどのような相関があるためにこのような躍びが生じているのか不明であるが、PSDの位置決定における演算上の問題は解消されたと考えている。

参 考 文 献

- 1) N. Niimura, T. Kubota, M. Sato, M. Arai and Y. Ishikawa : Nucl. Instrum & Methods : 投稿中.
- 2) R. Berliner *et al.* : Final Report for NSF Grant DMR 77 10626 , 1979.

III. 放 射 化 学

固相コバルトテトラフェニルポルフィン錯 体系における光核反応に伴う ^{58m}Co および ^{58g}Co の反跳挙動について

筑波大化学系 莊司 準・酒井陽一†・池田長生
大竹隆夫・渡辺裕夫

§ 1. 序

これまで筆者らは、固相における反跳化学研究の一環として、コバルトテトラフェニルポルフィン錯体(以下 Co TPP 錯体と略記する)をとりあげ、光核反応、熱中性子捕獲反応、核異性体転移など各種核変換過程に伴う中心コバルト原子の反跳挙動につき報告を進めてきた。¹⁻⁴⁾

光核反応については、 $^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{58m}\text{Co}$, $^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{58g}\text{Co}$, $^{58m}\text{Co} \xrightarrow{\text{IT}} ^{58g}\text{Co}$ 過程の総ての効果を含んだいわゆる“over-all”のリテンション値と、合成した、 ^{58m}Co および ^{58g}Co で標識された Co TPP 中での $^{58m}\text{Co} \xrightarrow{\text{IT}} ^{58g}\text{Co}$ 過程でのリテンション値、ならびにそれらの解釈につき報告した。¹⁻²⁾ 本報告では既報のこれらの結果をふまえつつ、固相 Co TPP 錯体での光核反応とそれに続く核変換過程の各段階(すなわち、 $^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{58m}\text{Co}$, $^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{58g}\text{Co}$, $^{58m}\text{Co} \xrightarrow{\text{IT}} ^{58g}\text{Co}$ の各過程)における中心コバルト原子の挙動を、解析によって求めた各段階でのリテンション値から考察することを試みた。

§ 2. 実 験

2.1 照射試料の調製

Co TPP は先の報告と同様、Rothemund と Menotti の方法⁵⁾ に従い、酢酸—クロロホルム系において酢酸コバルトと無金属 TPP を還流して合成し、得られた粗製物をソックスレー抽出、真空昇華でさらに精製して、結晶形をそろえたものを使用した。

2.2 照 射

光核反応のための制動 γ 線照射は東北大学理学部原子核理学研究施設の電子 LINAC によった。60 MeV に加速した電子を白金コンバーターに当て、未転換電子はスィープマグネットにより除去した。試料は照射中、および化学処理時までの保存期間中ともにドライアイスで冷却

† 現在 東京大学理学部

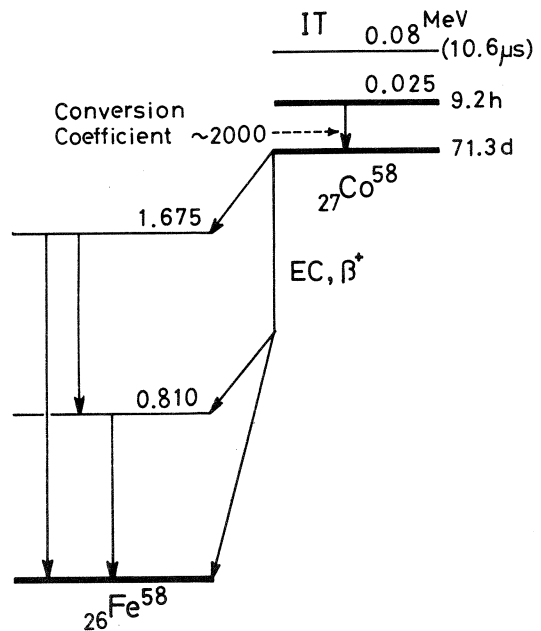
し、二次的熱アニーリングの防止に努めた。照射時間は目的とする核変換プロセスにより異なるが、2～6時間であった。

2.3 照射後の化学分離操作

照射生成物の化学分離は、どの核プロセスについても基本的には総て既報¹⁾の通りで、Co²⁺担体を含むクロロホルム—メタノール溶液中でのアルミナカラムクロマトグラフ法により、流出する錯体のフラクションを集めた。

2.4 ⁵⁹Co(γ, n) ^{58m}Co 過程

この場合には ^{58m}Co から放射能を測定しなければならないが、第1図の ⁵⁸Co の壊変図に示すように、^{58m}Co \xrightarrow{IT} ^{58g}Co の内部転換係数が約 2000 と頗る高く、且つ内部転換電子のエネルギーが 25 keV と甚だ小さいことから、計測は液体シンチレーション法以外では全く不可能であった。液体シンチレーション法を採用するに当たり、Co TPP の有機溶媒溶液の赤褐色（吸収極大：412 nm, および 529 nm ; ベンゼン溶液）がクエンチングの原因となり不適当のため、錯体の分解処理とそれに伴う有機相への抽出操作が必要となった。第2図にその際の化学処理の概略を示す。液体シンチレーション計測には Aloka 社製 LSC-601 型 測定器を使用



第1図 ⁵⁸Co の壊変図。

し、wide -³H 領域に相当するエネルギー範囲でピークがこの領域に含まれることを確認した上、半減期の追跡を行い ^{58m}Co に起因する放射能であることを確認した。抽出の際の分配率は、両相から一定量を取り、それぞれについての ^{58g}Co の γ 線ピーク面積の測定から算出し、リテンション値の補正に使用した。

2.5 ⁵⁹Co(γ, n) ^{58g}Co 過程

この過程でのリテンション値を独立に求めることは不可能であるが、比較的短時間の照射後速やかに化学分離を行って、未処理の試料溶液（トータル部分）とクロマトグラフィーにおける有機錯体フラクション（リテンション部分）の双方について、^{58g}Co の生成曲線を得て、

この解析から両部分での当初の ^{58m}Co と ^{58g}Co の原子数の比を求め、この値を用いて次式のように光核反応における ^{58m}Co の生成過程でのリテンション値 (R_m) と ^{58g}Co の生成過程でのそれ (R_g) の比を求めた。

$$\frac{\left(\frac{N_m}{N_g}\right)_R}{\left(\frac{N_m}{N_g}\right)_T} = \frac{\frac{(N_m)_R}{(N_m)_T}}{\frac{(N_g)_R}{(N_g)_T}} = \frac{R_m}{R_g}$$

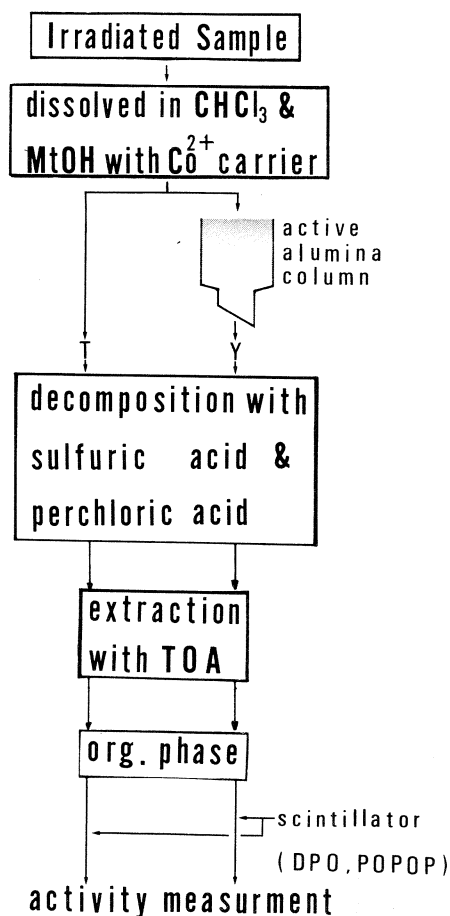
但し $\left\{ \begin{array}{l} N : \text{原子数} \\ m : ^{58m}\text{Co} \\ g : ^{58g}\text{Co} \\ R : \text{リテンション部分} \\ T : \text{トータル部分} \end{array} \right.$

あるフラクションの ^{58m}Co と ^{58g}Co の当初の原子数の比を求める際、第3図に示すように横軸を単純な時間単位でなく、下方のグラフのような時間の関数に変換すると、関係は図のように直線となり、勾配と切片よりそのフラクションにおける ^{58m}Co と ^{58g}Co の当初の原子数の比がより正確に求まる。

2.6 ^{58m}Co (IT) ^{58g}Co 過程

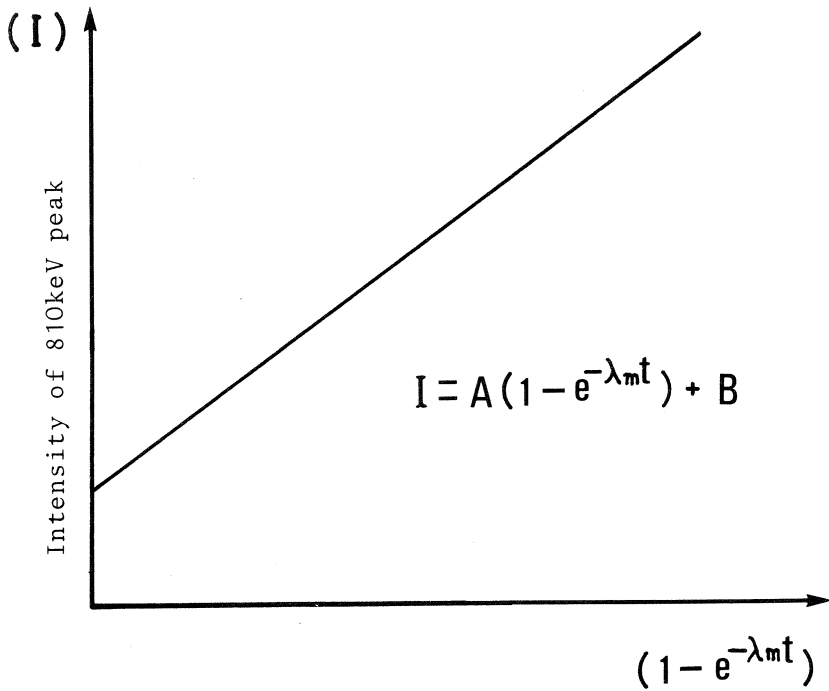
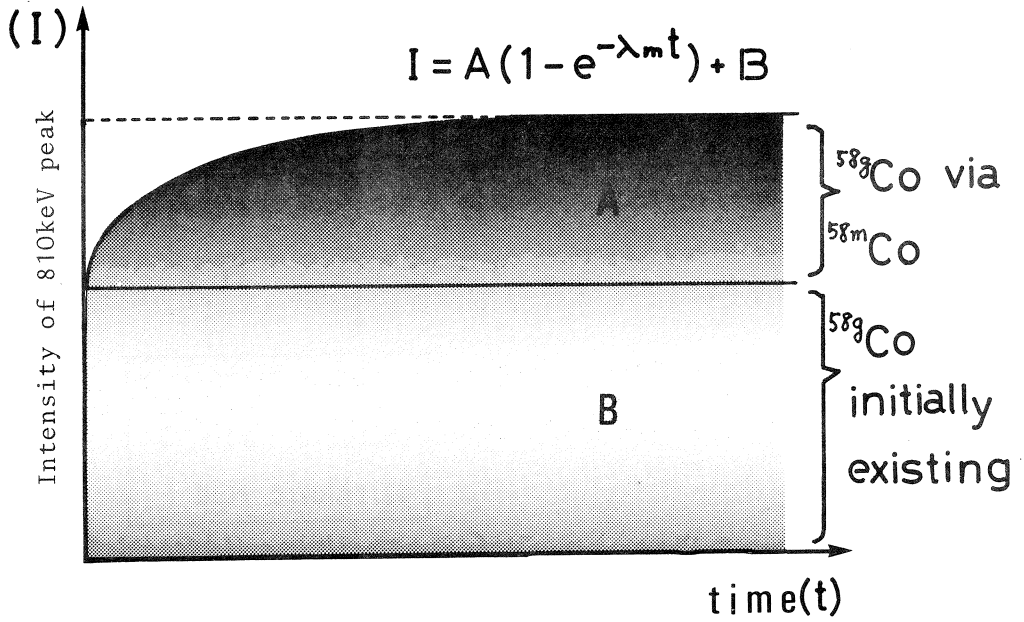
合成した標識 Co TPP 中でのこの過程のリテンション値は77%、88%とすでに報告済であるが²¹⁾、ここで取り扱うのは制動 γ 線照射した Co TPP であって、この場合の化学効果は、 ^{58m}Co が生成する光核反応過程に引き続いて起きた核異性体転移によるものを意味しており、錯体中の ^{58m}Co の近傍の状態は合成標識化合物中のそれとは必ずしも一致しない可能性を含んでいる。

制動 γ 線照射した Co TPP におけるこの核プロセスでのリテンション値 (R_{IT}) は、前述の方法で求めた ^{58m}Co の生成過程でのリテンション値 (R_m) と "over-all" のリテンション値 (R_o) との比較から求めてみることにした。 R_o の値は、照射試料を ^{58m}Co が壊変し尽すまで (実際には1週間以上) ドライアイス中に保存した後、化学分離を行って ^{58g}Co の放射能測定より



第2図 液体シンチレーション計測のための化学処理。

TOA… Tri-n-octylamine,
DPO… 2, 5-Diphenyloxazole,
POPOP… 1, 4-Bis[2-(5-phenyloxazolyl)]-benzene.



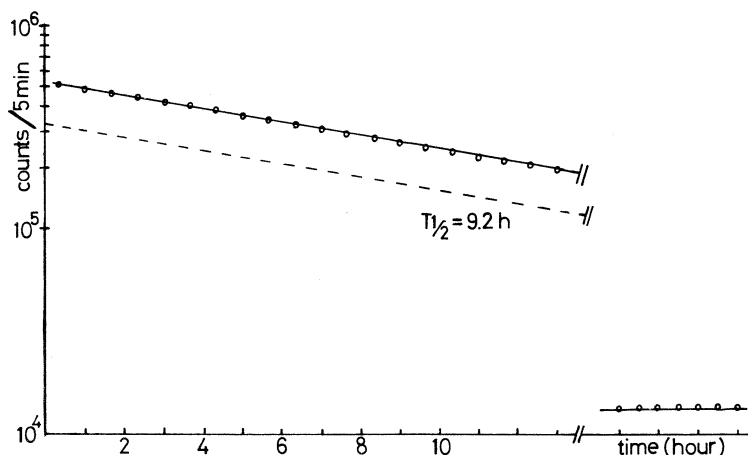
第3図 ^{58g}Co の生成曲線 (λ_m は ^{58m}Co の壊変定数)。

求めた。

§ 3. 結果と考察

3.1 $^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{58\text{m}}\text{Co}$ 過程

第4図に液体シンチレーション計測により得られた壊変曲線の一例を示す。測定結果は総てこの図のように9.2時間の半減期を示し、液体シンチレーション法で測定しているものが $^{58\text{m}}\text{Co}$ に起因する放射能であることが確認された。第1表に測定試料調製時の抽出率の補正を行った



第4図 液体シンチレーション計測による壊変曲線の一例。

後の、この過程でのリテンション値 R_m を示す。上下のグループはそれぞれ相異なるバッチの試料を用いた異なる照射時のものである。値に変動幅はあるが、平均して R_m はほぼ4%と言える。

3.2 $^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{58\text{g}}\text{Co}$ 過程

未処理試料溶液(トータル部分)と有機錯体フラクション(リテンション部分)での $^{58\text{g}}\text{Co}$ の生成の

様相を第5図に示す。リテンション部分では、得られた放射能が少ないので、大きな統計的変動が見られる。最小自乗法により統計的処理を施して直線関係を定め、各々についての切片と勾配の比の比較から

$$(R_m/R_g) = 1.0$$

第1表 R_m と R_o の値。

R_m (%)		R_o (%)
3.9	Av. 3.8	3.9
3.8		
3.8		
3.5	Av. 4.1	3.6
4.2		Av. 3.9
4.5		

と言う関係が得られた。

3.3 ^{58m}Co (IT) ^{58g}Co 過程

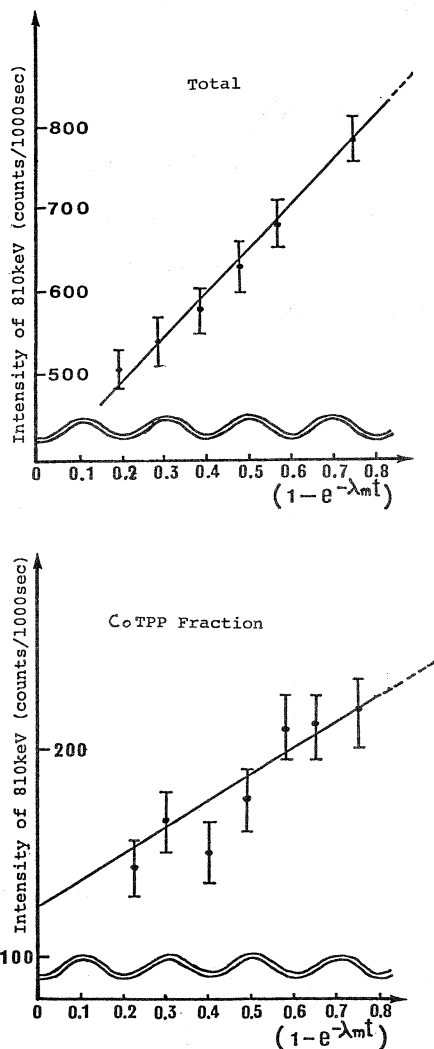
光核反応による ^{58m}Co の生成過程でのリテンション値 R_m と "over-all" のリテンション値 R_o との差は、第1表に示すように、存在しても最大限 0.5%程度と考えられる。 ^{58m}Co と ^{58g}Co の光核反応での生成断面積が等しいことは筆者らの実験結果からすでに判明しているので、²⁾ 前節の結果を考慮すれば光核反応に引き続いてのこの核異性体転移過程でのリテンション値 (R_{IT}) は75%以上と結論される。またすでに報告しているように²⁾ "over-all" のリテンション値が化学処理までの保存時間に無関係に 4.0%を示したこと、および合成した、 ^{58m}Co と ^{58g}Co で標識された CoTPP 中での ^{58m}Co IT ^{58g}Co 過程のリテンション値が77%, 88%と得られたことは今回得られた R_{IT} に関する結論を支持している。

3.4 総括

光核反応の ^{58g}Co 生成過程と ^{58m}Co 生成過程では、それぞれのエネルギー準位に至る経路の差異は結合開裂の度合いに影響を及ぼしていない。

これはいずれの過程でも壊変の際多段のカスケードを経るため、各段毎の影響が双方で平均化され、結果的に似かよったものとなるためと考えられる。

^{58m}Co (IT) ^{58g}Co 過程では内部転換係数が非常に大きいことから、生成した ^{58g}Co はオージェ後遺効果により一旦高荷電状態になることが予想されるが、合成標識化合物における同様、照射物の場合でも湿式分析の結果ではあるが、結合開裂に至る確率は小さいと結論される。また照射物におけるこの過程のリテンション値と標識化合物におけるそれとがそう異なっていないと判断し得る事実は、光核反応後結果的に錯体内に留まった ^{58m}Co の近傍の状態は、標識化合物における状態(すなわち照射前の状態)とあまり違っていないことを示唆して



第5図 ^{58g}Co の生成。

いる。この結合の切れにくい傾向は、筆者らが行った Co TPP を用いての $^{60m}\text{Co}(\text{IT}) \rightarrow ^{60g}\text{Co}$ 過程 (内部転換係数約50) の場合も同様であり (この核プロセスのリテンション値90~100%)²⁾、また Ni TPP における $^{57}\text{Ni} \xrightarrow{\beta^+, \text{EC}} ^{57}\text{Co}$ 過程の場合も約80%と言うリテンション値が得られている⁴⁾。発光メスbauer法で Co TPP 中での $^{57}\text{Co} \xrightarrow{\text{EC}} ^{57}\text{Fe}$ 過程を見た場合も、生成化学種は Fe (II) TPP のみと結論されたことは⁶⁾、このプロセスでも結合開裂に関し同様の傾向にあるものと考えられる。また類似化合物であるコバルトフタロシアニンにおいて $^{57}\text{Co} \xrightarrow{\text{EC}} ^{57}\text{Fe}$ 過程では結合は終始切れないとメスbauer法による希釈実験に基づいた Thompson の報告がある⁷⁾。一方 Lazzarini らによるコバルト (III) のエチレンジアミン系錯体等についての研究例では、 $^{58m}\text{Co} \xrightarrow{\text{IT}} ^{58g}\text{Co}$ 過程で結合開裂の度合いが大きいことが報告されている⁸⁾。従って、固相金属錯体において、中心金属に関するオージェ後遺効果が十分考えられるような核変換過程での結合開裂の起り易さは、その錯体の化学的性質に大きく左右されるが、TPP 錯体やフタロシアニン錯体では結合は切れにくい傾向にあると結論できる。

なお本報告は、 ^{58m}Co からの内部転換電子を液体シンチレーション法によって測定した最初の例である。

本研究にあたり御援助を賜った東北大学理学部、塩川孝信教授、八木益男助教授、吉原賢二助教授、近藤健次郎博士、大森巍博士、ならびに核理研マシングループの方々には厚く感謝の意を表す。

参 考 文 献

- 1) 池田, 荘司, 酒井, 中島: 核理研研究報告 **9** (1976) 177.
- 2) 池田, 荘司, 酒井, 中島: 核理研研究報告 **9** (1976) 253.
- 3) N. Ikeda, S. Nakajima, Y. Sakai and H. Shoji: Radiochem. Radioanal. Letters **28** (1977) 115.
- 4) 池田, 酒井, 荘司: 核理研研究報告 **10** (1977) 111.
- 5) P. Rothemund and A. E. Menotti: J. Am. Chem. Soc. **63** (1941) 267.
- 6) 池田, 明石, 関: Radiochem. Radioanal. Letters 印刷中.
- 7) G. L. Thompson: Radiochim. Acta **18** (1972) 57.
- 8) E. Lazzarini and A. L. F. Lazzarini: J. Inorg. Nucl. Chem. **39** (1977) 207.

光核反応による無担体 ^{18}F の製造 (II)

核理研, 金沢大医技短大*

八木益男・天野良平*

The production rates of ^{18}F by the $^{23}\text{Na}(\gamma, \alpha n)$ reaction were determined at energies between 30 and 60 MeV in order to study fundamentally the large scale production of carrier-free ^{18}F . The production rate at 60 MeV was found to be $18\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah/g}$ of Na. It indicates that ^{18}F can be produced in a yield of about 2.7 mCi/h/g of Na by irradiating a 60 MeV - 150 μA electron beam which is routine power of the linac.

§ 1. 緒 言

^{18}F は半減期約110分の低エネルギー ポジトロン放射体で, ポジトロン トモグラフィに最適の核的性質をもつと同時に, それ自身化学反応性に富むため, 有用な ^{18}F 標識有機化合物を調製しやすいという特色をもっている。

筆者らは先に光核反応による無担体 ^{18}F の製造法として, $^{20}\text{Ne}(\gamma, pn)^{18}\text{F} + ^{20}\text{Ne}(\gamma, 2n)^{18}\text{Ne} \rightarrow ^{18}\text{F}$ 反応をとりあげ, ネオンのガスターゲットに最大エネルギー 30~60 MeV 制動放射線を照射し, その生成収率曲線を求めることを試みた。¹⁾ その結果, 光核反応によっても十分利用できる量の無担体 ^{18}F を製造できることを明らかにした。

光核反応による無担体 ^{18}F は上記反応ばかりでなく, $^{23}\text{Na}(\gamma, \alpha n)^{18}\text{F}$ 反応を利用して製造することも可能である。この反応のしきい値は 20.89 MeV で, 先の $^{20}\text{Ne}(\gamma, pn)^{18}\text{F}$ (23.26 MeV) および $^{20}\text{Ne}(\gamma, 2n)^{18}\text{Ne} \rightarrow ^{18}\text{F}$ (28.50 MeV) 反応のそれらより低く, かつこの場合, ターゲットは固体を用いることができるという特色を発揮できる。

そこで本研究においては, 前報に引続き, 硫酸ナトリウムターゲットに 30~60 MeV 制動放射線を照射し, 生成無担体 ^{18}F の収率曲線を測定することを試みた。

§ 2. 実 験

2.1 ターゲット

ナトリウムターゲットは約 0.4 g の無水硫酸ナトリウムを直径 1 cm の透明石英管に封入して照射した。光核反応によって、この試薬中に生成する放射性核種のうち、 $^{16}\text{O}(\gamma, \alpha n)^{11}\text{C}$ 反応による ^{11}C (20.3 分)、 $^{16}\text{O}(\gamma, 3n)^{13}\text{O} \rightarrow ^{13}\text{N}$ 、 $^{16}\text{O}(\gamma, p2n)^{13}\text{N}$ 反応による ^{13}N (9.97 分)、 $^{23}\text{Na}(\gamma, n)^{22}\text{Na}$ 反応による ^{22}Na (2.6 年) 以外、 ^{18}F の生成率測定を妨害する核種はない。

2.2 照 射

試料は 0.7 輻射長の白金コンバーターの直後におき²⁾、パルス幅 3 μ 秒、パルス繰返数毎秒 300 回の 30~60 MeV 加速電子を照射した。白金コンバーターおよび試料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、積算計で積算して求めた。試料の照射時間はすべて 40 分間とした。

2.3 放射能測定

試料の放射能測定は ^{11}C および ^{13}N の寄与をさけるため照射終了 3 時間後に、あらかじめ ^{22}Na 標準線源を用いてポジトロン消滅ガンマ線にたいする計数効率を求めてある Ge(Li) 検出器と 4096 区分波高分析器を用いておこなった。この場合すべての線源は厚さ 2 cm のルサイトでシールドし、ポジトロンを完全に消滅させた。引き続き ^{18}F の減衰を測定して ^{22}Na の寄与を求め、それを差引くことによって ^{18}F の生成量を求めた。

2.4 ^{18}F の生成率

^{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およびターゲット量から $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah/g of Na}$ として求めた。

§ 3. 結果と考察

照射終了直後からの測定では、短半減期核種 ^{11}C および ^{13}N の汚染が認められたが、3 時間後には、それらの汚染は完全に消去できることがわかった。一方長半減期核種として僅少量の ^{22}Na の汚染が認められたが、これはその寄与を差引くことによって ^{18}F の生成量を求めることができた。

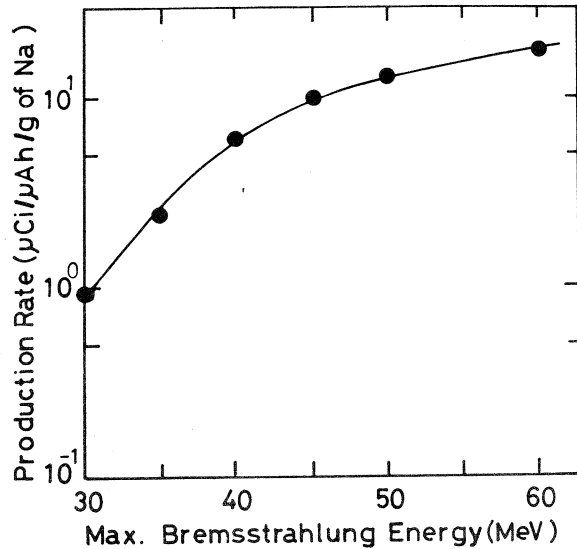
3.2 ^{18}F の生成率

$^{23}\text{Na}(\gamma, \alpha n)^{18}\text{F}$ 反応による ^{18}F の入射最大制動輻射線エネルギーにたいする生成率曲線は第 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し、先の $^{20}\text{Ne}(r, pn)^{18}\text{F} + ^{20}\text{Ne}(r, 2n)^{20}\text{Ne} \rightarrow ^{18}\text{F}$ 反応のそれと全く同様な傾向を示した。ただし本反応による場合の方が全領域にわたって高い生成率を示した。これは本反応のしきい値が、先のそれらより低く、使用白金コンバーターの厚さが厚かったことに原因したと考えられる。

この結果から本電子リニアックの通常出力、60 MeV—150 μA で照射すればナトリウム毎グラム当たり、毎時約2.7 mCi の無担体 ^{18}F を製造することができることがわかった。これは ^{18}F 標識化合物調製に十分利用できる量であり、本反応もまた ^{18}F 製造に極めて適していることを示した。

本実験では ^{18}F 生成率測定をおこなうため、電子線照射に安定な無水硫酸ナトリウムをターゲットとして用いたが、実際に ^{18}F を製造する場合には、充分精製した水酸化ナトリウム、あるいは過酸化ナトリウムをターゲットとしたほうが、生成 ^{18}F を利用する上では優れていると思われる。



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

参 考 文 献

- 1) 八木・天野：核理研研究報告 **12** (1979) 116.
- 2) Yagi and Kondo : J. Radioanal. Chem. **36** (1977) 247.

アルミニウム中での ^{67}Cu の拡散

工学部金属材料

藤川 辰一郎

Carrier-free radioactive ^{67}Cu was prepared by using the photo-nuclear reaction, $^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Cu}$ and its diffusivity in aluminum was determined by the serial-sectioning and residual-activity method in the temperature range 594–928 K.

The dependence of the diffusivities of Cu in aluminum on the temperature is given by following equation:

$$D_{\text{Cu/Al}} = 4.76 \times 10^{-5} \exp(-135 \text{ kJ/mol} / RT) \text{ m}^2/\text{s}.$$

The difference in activation energy between the impurity diffusion of Cu in aluminum and the self-diffusion of Al was estimated by the electrostatic theory and was compared with the experimental result.

§ 1. はじめに

Al中のCuの不純物拡散の研究は、従来、 $^{63}\text{Cu}(n, \gamma)$ 反応で製造した ^{64}Cu を用いて行なわれてきた。無担体でないため試料表面に付着させる量に制限があり、しかも ^{64}Cu の半減期は12.699 h¹⁾と短かく、拡散時間を十分に長く出来ないで、その放射性トレーサーによっては不純物拡散係数を、特に低温側で正確に決定することは困難であった。

本研究では、 $^{68}\text{Zn}(\gamma, p)$ 反応を用いて、半減期が62.01 h¹⁾の無担体の ^{67}Cu を調製し、それを用いていくつかの温度でのAl中のCuの不純物拡散係数を決定した。

§ 2. 実験方法

2.1 ターゲット、照射条件、化学操作および測定

ターゲット物質としては、99.999%純度の natural Zn metal (^{68}Zn の存在化, 18.56%)を用いた。その小片2gを石英管に封入して、核理研LINAC RIコース水冷プールの白金コンバーターの直後に置いて照射した。60 MeVの制動輻射で約7~20時間照射した。この

場合の照射による核反応および ^{67}Cu の製造法については、八木ら²⁾ によって詳しく研究されているが、主な核反応は $^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Cu}$, $^{66}\text{Zn}(\gamma, pn)^{64}\text{Cu}$, $^{64}\text{Zn}(\gamma, 2n)^{62}\text{Zn}$, $^{70}\text{Zn}(\gamma, n)^{69\text{m}}\text{Zn}$, $^{67}\text{Zn}(\gamma, 2n)^{65}\text{Zn}$ および $^{66}\text{Zn}(\gamma, n)^{66}\text{Zn}$ である。

第1図は、無担体の ($^{67}\text{Cu} + ^{64}\text{Cu}$) の調製法の系統図を示したものである。照射した Zn を HCl で溶解後、陰イオン交換樹脂で ($^{67}\text{Cu} + ^{64}\text{Cu}$) と Zn とを分離溶出した。溶離した溶液の γ -線スペクトルの測定は、ORTEC 33 cc Ge (Li) 検出器および東芝 4096 チャンネル波高分析器を用いて行なった。さらに、 ^{60}Co , ^{22}Na , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{57}Co および ^{203}Hg を用いてエネルギー較正を行なった。

2.2 拡散方法および解析方法

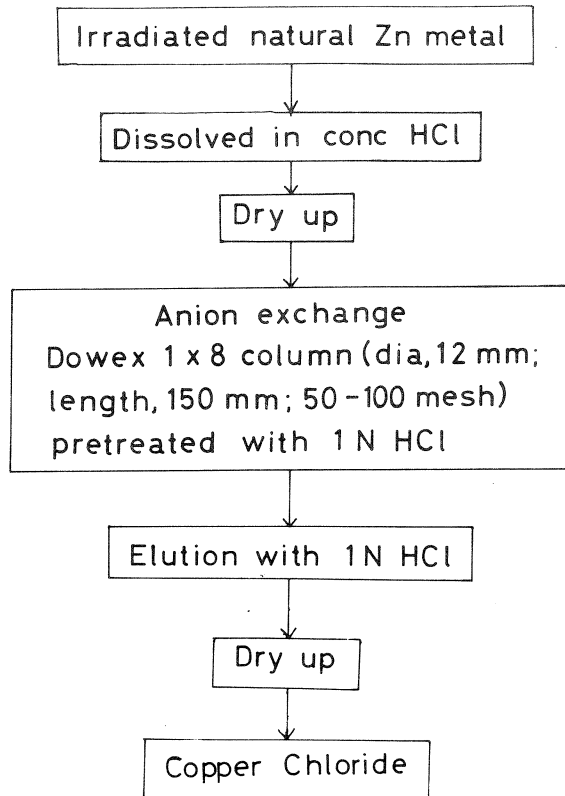
2.2.1 試料の作製

試料の形状は、直径 13 mm、高さ 13 mm の円柱状である。粒界拡散および転位網拡散の寄与を少なくする

ために、約 873°K で 2 カ月の予備焼なましを行なった。その処理によって、試料表面に 2 つまたは 3 つの結晶粒がみえるような粗大結晶粒の試料が得られた。試料表面を耐水性研磨紙および電解研磨の順序で研磨し、平らで清浄な面にし、酸化膜の形成を抑制するために、エチルアルコール中に保持した。電解研磨は、過塩素酸とエチルアルコールとの比が 1 : 7 の電解液中で、15 V の直流電圧をかけて行なった。

2.2.2 ^{67}Cu の試料表面への付着

$\text{Na}_4\text{P}_2\text{O}_7$ (120 g / dm^3) および Na_2HPO_4 (60 g / dm^3) から成る Cu メッキ液に、第1図に示した方法によって調製した ^{67}Cu の塩化物を添加し、約 333°K、5 V および 30 秒間の条件でメッキした。Al の酸化膜の形成を極力抑制するために、Al 試料がメッキ液に入ると



第1図 Chemical separation procedure for ^{67}Cu .

ただちにメッキが開始するようにした。数 nm の厚さで、密着性が良く、なめらかな Cu メッキ膜が得られた。

2.2.3 拡散焼なましおよび拡散係数の測定

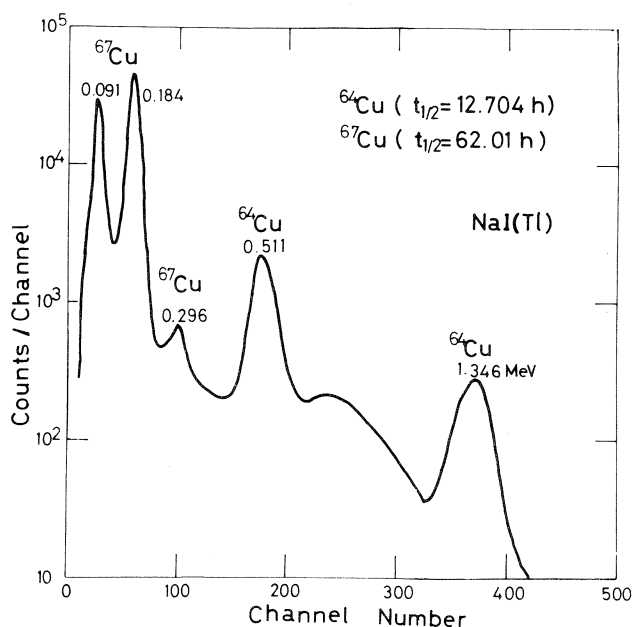
Cu を付着した試料をパイレックス管または石英管に入れ、約 10^{-2} pa の真空にした後、He ガスで数回置換した後、最終的に 20 K pa の He ガスを入れて封入した。594～928 K の温度範囲で拡散焼なましを行なった。拡散焼なましを終了した試料では、拡散焼なまし中に表面拡散あるいは蒸発などによってトレーサーが付着面からその一部が試料側面に移動している可能性があるため、試料側面を約 0.1 mm 削りとった。切削法 (serial-sectioning method) で拡散係数を決定する場合、セクションングは、金属用の大型マイクロトームを用いて行ない、約 5 μ m の厚さのなめらかな表面の薄片を連続的に切り出した。その場合、薄片の回収率は 100% に近かった。残留法 (residual-activity method) では、セクションングは耐水性研磨紙で少しずつ削り取る方法によって行なった。削りとった層の厚さは、精密天秤を用いて、薄片またはバルク試料の質量を測定し、さらに試料の直径を精密マイクロメーターで数回測定して、その平均をとることによって直径を決定し、それらの結果を用いて計算した。

r -線の強度の測定は井戸型 NaI (Tl) 検出器およびマルチチャンネル波高分析器によって行なった。第 2 図は、NaI(Tl) 検出器によって測定した r -線スペクトルであるが、薄片またはバルク試料について、 ^{67}Cu の 0.184 MeV の r -線の強度を測定した。

切削法での Fick の拡散の第 2 方程式の解は、次式で与えられる。

$$C = \text{const} \cdot \exp(-X_n^2/4Dt) \quad (1)$$

ここで、 C は削りとった薄片の比放射能、 X_n は薄片の中心から最初の面までの距離そして D は拡散係数である。



第 2 図 r -ray spectrum of the mixture ($^{67}\text{Cu} + ^{64}\text{Cu}$).

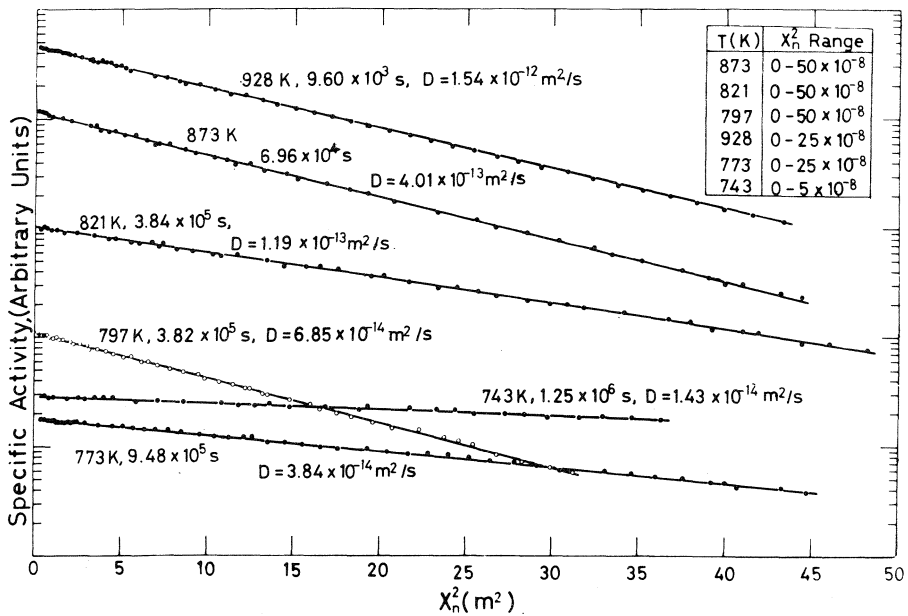
残留法での Fick の拡散の第 2 方程式の解は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} \mu I_n - \frac{dI_n}{dX_n} &= k_1 \cdot C \\ &= k_2 \cdot \exp(-X_n^2/4Dt) \end{aligned} \quad (2)$$

ここで、 μ は用いたトレーサーの放射線に対する Al の線吸収係数である。 k_1 および k_2 は定数である。 I_n は試料の最初の面から X_n だけ削り取った場合に生ずる新しい表面からの放射線の強度である。本研究の条件では、 μI_n 項は、 $(-dI_n/dX_n)$ に比較して十分に小さく、無視できるので、拡散浸透曲線は $\ln(-dI_n/dX_n)$ を X_n^2 に対してプロットすることによって得ることができる。なお、743~928 K の温度範囲での拡散係数は切削法によって、594~743 K の温度範囲での拡散係数は残留法によって決定した。

§ 3. 実験結果

第 3 図は切削法によって求めた 743~873 K の温度範囲での Al 中の ^{67}Cu の拡散に対する拡散浸透曲線の典型的な例である。拡散時間を十分に長くしたので、拡散距離は 200~700 μm になった。各浸透曲線は、40~70 個の測定点に (1) 式をあてはめて、最小 2 乗法によって求め



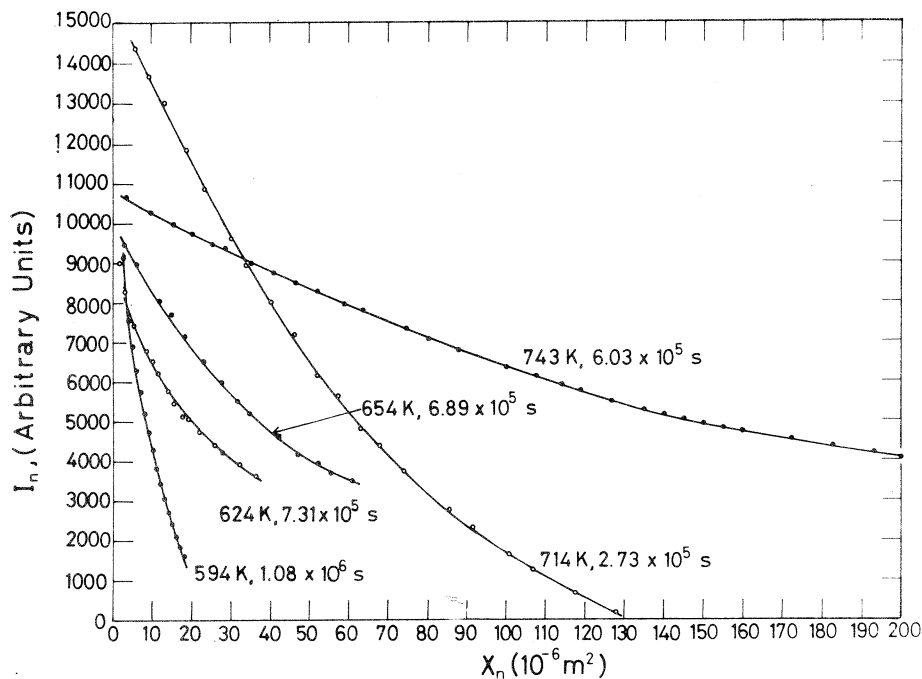
第 3 図 Log specific activity vs X_n^2 plots for the diffusion of ^{67}Cu in aluminum at 743, 773, 797, 821, 873 and 928 K.

た。実験データは一つの直線によくのっていることがわかる。それらの直線のこう配から、拡散係数を求めた。得られた拡散係数の値を第1表に示した。第4図は残留法によって求めた594~743 Kの温度範囲でのAl中の ^{67}Cu の拡散に対する X_n に対する I_n プロットである。

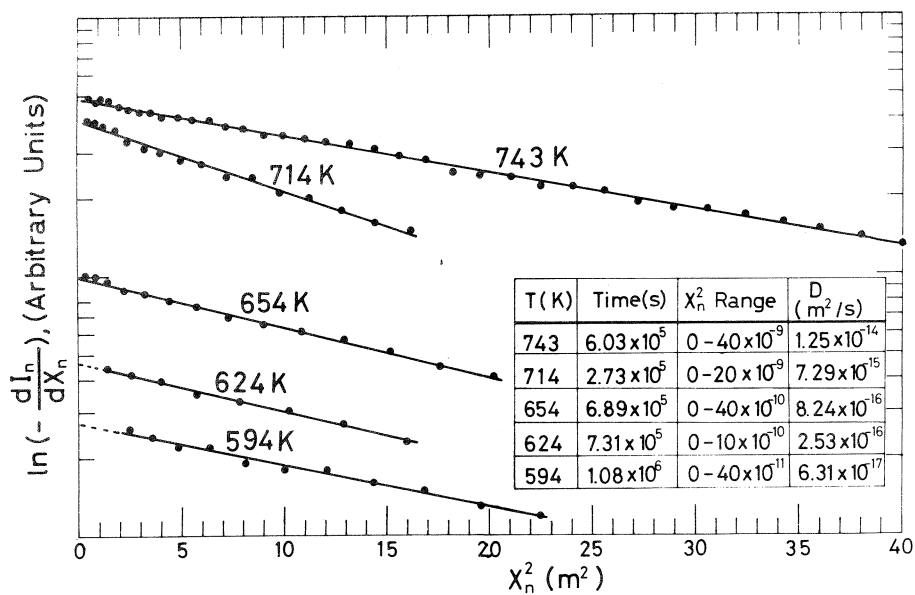
第1表 Impurity diffusion coefficient of Cu^{67} in aluminum.

Temperature (K)	Time (s)	D (m^2/s)
928	9.60×10^3	1.54×10^{-12}
928	9.60×10^3	1.39×10^{-12}
914	1.94×10^4	8.67×10^{-13}
914	1.94×10^4	8.51×10^{-13}
904	1.62×10^4	7.99×10^{-13}
904	1.62×10^4	7.29×10^{-13}
893	2.16×10^4	7.22×10^{-13}
873	6.96×10^4	4.01×10^{-13}
872	9.62×10^4	2.98×10^{-13}
843	1.59×10^5	2.02×10^{-13}
834	1.46×10^5	1.53×10^{-13}
821	3.84×10^5	1.19×10^{-13}
813	3.19×10^5	9.16×10^{-14}
803	2.47×10^5	7.49×10^{-14}
797	3.82×10^5	6.51×10^{-14}
797	3.82×10^5	6.85×10^{-14}
773	9.48×10^5	3.84×10^{-14}
743	1.25×10^6	1.43×10^{-14}
743	6.03×10^5	$1.25 \times 10^{-14*}$
714	2.73×10^5	$7.29 \times 10^{-15*}$
714	2.73×10^5	$7.11 \times 10^{-15*}$
654	6.89×10^5	$8.24 \times 10^{-16*}$
624	7.31×10^5	$2.53 \times 10^{-16*}$
594	1.08×10^6	$6.31 \times 10^{-17*}$

* determined by the residual-activity method.



第4图 I_n vs X_n plots for the diffusion of ^{67}Cu in aluminum at 594, 624, 654, 714 and 743 K.



第5图 $\text{Log}(-\frac{dI_n}{dX_n})$ vs X_n^2 plots for the diffusion of ^{67}Cu in aluminum at 594, 624, 654, 714 and 743 K.

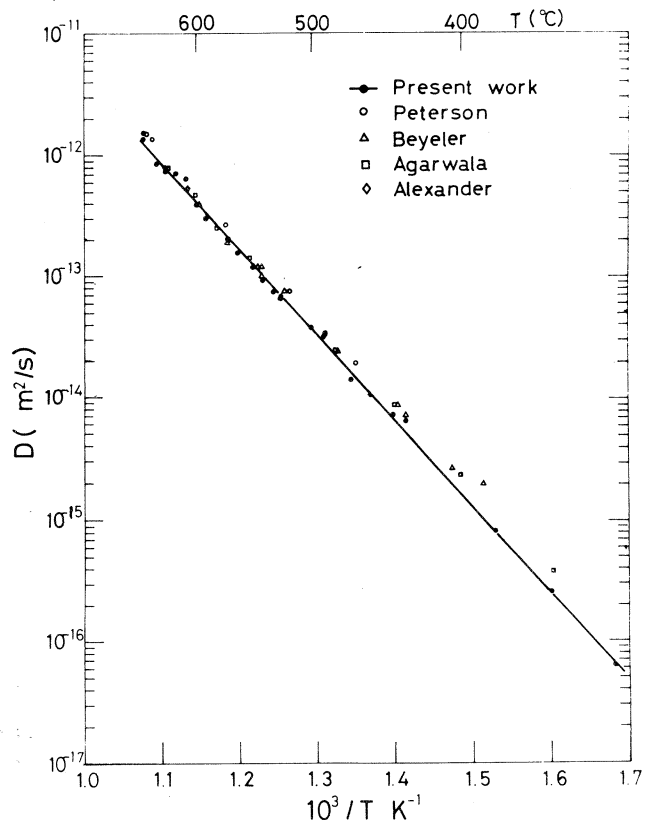
第5図は、第4図に示された曲線のこう配から、 $(-dI_n/dX_n)$ を求め、 X_n^2 に対してプロットしたものである。その実験データに(2)式をあてはめ、最小2乗法によって、拡散浸透曲線を求めた。その直線のこう配から、(2)式を用いて拡散係数を決定した。そのようにして得られた拡散係数の値を第1表に示した。残留法によって求めた743 Kでの拡散係数の値は、異なる試料を異なる時間、拡散焼なました試料について、切削法で求めた値とほぼ一致することがわかる。

第6図はAl中の ^{67}Cu の拡散係数の温度依存性を、 ^{64}Cu を用いて求められた他研究者に

よるAl中のCuの不純物拡散係数と比較して示している。高温側では、他研究者の値は、本研究のそれとほぼ一致しているが、低温側では本研究の値よりも大きくなっている。これは恐らく、拡散時間が短かすぎるために、粒界拡散および転位網拡散が寄与する、いわゆる拡散浸透曲線の領域Ⅲの影響を受けたためと思われる。本研究の温度範囲で、Al中の ^{67}Cu の拡散係数の温度依存性は次式で与えられる。

$$D = 4.76 \times 10^{-5} \exp(-135 \text{ KJ/mol} / RT) \text{ m}^2/\text{s} \quad (3)$$

第7図は、本研究で得られたAl中のCuの不純物拡散係数の温度依存性とAlの自己拡散係数^{3,4)}およびAl中の他の元素の不純物拡散係数⁵⁻⁷⁾のそれとを比較して示してある。Al中のCuの不純物拡散係数は、Al中の他の貴金属元素のそれよりもかなり小さく、Alの自己拡散係数よりもわずかながら小さいことがわかる。



第6図 Dependence of impurity diffusion coefficients of Cu in aluminum.

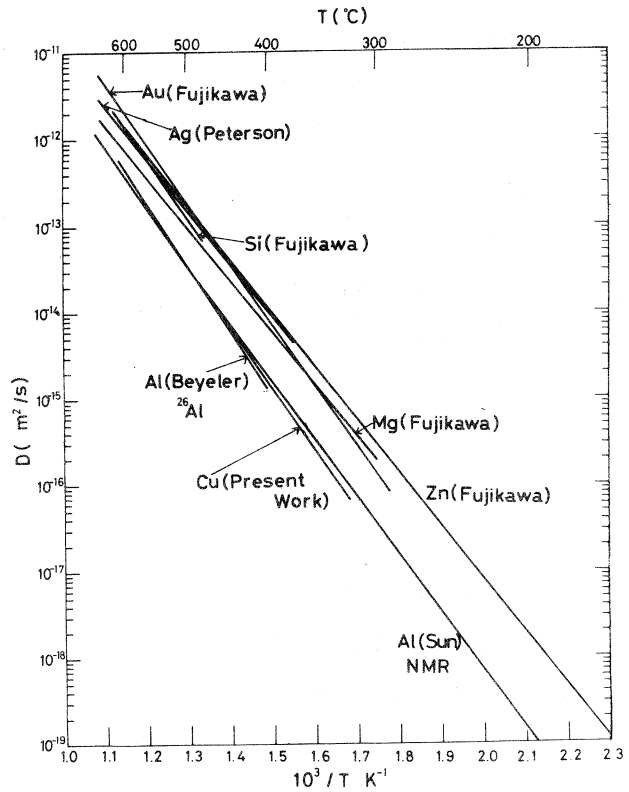
§ 4. 考 察

ここでは、残留抵抗の値から不純物のまわりの遮蔽ポテンシャルのパラメータを求める半経験的方法⁵⁻⁸⁾ および Le Claire の理論¹⁰⁾ によって、不純物拡散と自己拡散との間の活性化エネルギー (ΔQ) を Al 中の Cu の不純物拡散の場合について計算し、実験結果と比較してみる。本研究で用いた遮蔽ポテンシャルは、Friedel 型の振動ポテンシャルであり、次式で与えられる。¹¹⁾

$$V(r) = \frac{\alpha_0 e}{4 \pi k_F^2} \cdot \frac{\cos(2k_F r + \phi)}{r^3} \dots(4)$$

ここで、 k_F は溶媒原子のフェルミ準位に対する波数、 α_0 は定数そして ϕ は位相角である。第 2 表は求められた α_0 および ϕ の値を示している。第 2 表中の ΔZ_{eff} は不純物の固溶に伴なう格子ひずみを考慮した溶媒原子と溶質原子との原子価の差であり、 η_0 および η_1 は部分波の phase shift である。

第 3 表は、 ΔQ の理論値および実験値を示している。Al の自己拡散のパラメーター (D_0 お



第 7 図 Comparison of diffusivities of Al, Au, Ag, Cu, Mg, Si and Zn in aluminum.

第 2 表 Calculated values of ΔZ_{eff} , η_0 , η_1 , α and ϕ .

$\frac{1}{a} \cdot \frac{da}{dc}$	ΔZ_{eff}	$\Delta \rho_{\text{exp}}$ ($\mu\Omega \cdot c \text{ m/at}\cdot\%$)	η_0	η_1	α_0	ϕ (radians)
-0.092 ¹²⁾	-14	0.83 ¹³⁾	3.5	-0.43	2.0	-0.38

第3表 Comparison of theoretical and experimental values of ΔQ for the diffusion of Cu in aluminum (All values are given in eV).

ΔH_f	ΔH_2	ΔH_1	ΔH_3^{av}	C	ΔQ_{the}	ΔQ_{exp}
0.094	-0.38	-0.16	-0.056	-0.18 ^{a)} -0.26 ^{b)}	-0.11 ^{a)} -0.017 ^{b)}	-0.10 ^{a)} 0.079 ^{b)}

a) The value was calculated using $D_0^{self} = 2.25 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$ and $Q^{self} = 1.50 \text{ eV}$ ³⁾

b) The value was calculated using $D_0^{self} = 1.44 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ and $Q^{self} = 1.318 \text{ eV}$ ⁴⁾

よび Q)は、現在、まだ確定していないので、放射性トレーサーおよびNMR法によって求められた2つの値を用いて計算した。Beyelerらの値³⁾を用いると、 ΔQ_{the} および ΔQ_{exp} はよく一致しているが、Sunの値⁴⁾を用いて計算した結果では、両者の値は一致しない。

§ 5. 結 論

$^{68}\text{Zn}(\tau, p)^{67}\text{Cu}$ 反応を用いて無担体の ^{67}Cu を調製し、それによってAl中のCuの不純物拡散係数をいくつかの温度で決定した。今後、 ^{67}Cu を用いて、広い温度範囲にわたってAl中のCuの不純物拡散係数をより詳しく測定する必要がある。本研究の調製法では、無担体の ^{64}Cu も同時に得られる。したがって、 ^{64}Cu および ^{67}Cu を用いてAl中のCuの不純物拡散での同位体効果を研究すれば、より興味ある結果が得られるであろう。

参 考 文 献

- 1) C. M. Lederer and V. S. Shirley: *Table of Isotopes*, Seventh edition (John Wiley & Sons, Inc. New York, 1978).
- 2) M. Yagi and K. Kondo: *Int. J. Appl. Radiat. Isotopes* **29** (1978) 756.
- 3) M. Beyeler and Y. Adda: *J. Phys.* **29** (1968) 345.
- 4) C. Y. Sun: Ph. D. Thesis, University of Illinois at Urbana-Champaign, II, 1971.
- 5) S. Fujikawa, K. Hirano and Y. Fukushima: *Met. Trans.* **9A** (1978) 1811.
- 6) S. Fujikawa and K. Hirano: *Mat. Sci. Eng.* **27** (1977) 25.

- 7) K. Hirano and S. Fujikawa : J. Nucl. Mat. **69 & 70** (1978) 564.
- 8) S. Fujikawa and K. Hirano : Trans. Japan Inst. Metals **17** (1976) 809.
- 9) N. L. Peterson and S. J. Rothman : Phys. Rev. **B1** (1970) 3264.
- 10) A. D. Le Claire : Phil. Mag. **7** (1962) 141.
- 11) A. P. Blandin and J. L. Déplante : J. Phys. Solids **26** (1965) 381.
- 12) W. B. Pearson : *A Handbook of Lattice Spacings and Structure of Metals and Alloys* (Pergamon Press, New York, 1958).
- 13) F. R. Fickett : Cryogenics **11** (1971) 349.

Extraction and Doping of Copper in Zinc Selenide Crystals

Shiro SATOH and Kenzo IGAKI

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

From the study on the distribution of radioactive isotope ^{67}Cu , it was confirmed that Cu could be effectively extracted from zinc selenide crystal by heating in pure molten zinc and also could be doped to a desired degree by heating in molten zinc containing Cu.

§ 1. Introduction

Copper impurity contained in zinc selenide crystal has serious effects on the electrical and optical properties of the crystal. On doping the crystal with Cu, the electrical conductivity decreases extremely by the compensation of deep Cu acceptors^{1,2)}. The electrical conductivity is known to increase by heating in pure molten zinc at $900 \sim 1000^\circ\text{C}$ ^{3,4)}. The origin of this conductivity change has been considered to be the reduction of the concentration of Cu impurity or Zn vacancy. From the study on the distribution of radioactive isotope ^{110}Ag , Ag impurity contained in zinc selenide was confirmed to be effectively extracted by heating in pure molten zinc⁵⁾. In the present work, extraction and doping of Cu were quantitatively estimated on using radioactive isotope ^{67}Cu . The origin of the enormous change of the conductivity of zinc selenide is discussed by taking the obtained results into consideration.

§ 2. Experimental Procedure

Single crystalline specimens were grown by the vapor growth technique under the controlled zinc vapor pressure^{6,7)}. The radioactive isotope ^{67}Cu was produced

from ^{68}Zn through the reaction (γ, p) at LINAC in Tohoku University. Radioactive isotope ^{67}Cu was doped into specimens by heating in molten zinc containing ^{67}Cu at 1040°C for 21 hours.

Excess zinc and ^{67}Cu on the surface were etched out in hot 14 N NaOH before the counting of gamma ray. The specimens containing ^{67}Cu were heated in pure (6-nine) molten zinc at 1040°C for 20.5 hours, and the distribution of ^{67}Cu was examined. Concentration of ^{67}Cu in the specimens after the doping and extraction was estimated by counting gamma ray on using Ge(Li) detector.

For the measurements of electrical properties, another specimens containing non-radioactive Cu only were prepared. Details of the sample preparation and electrical conductivity and Hall-effect measurements were described previously⁷⁾.

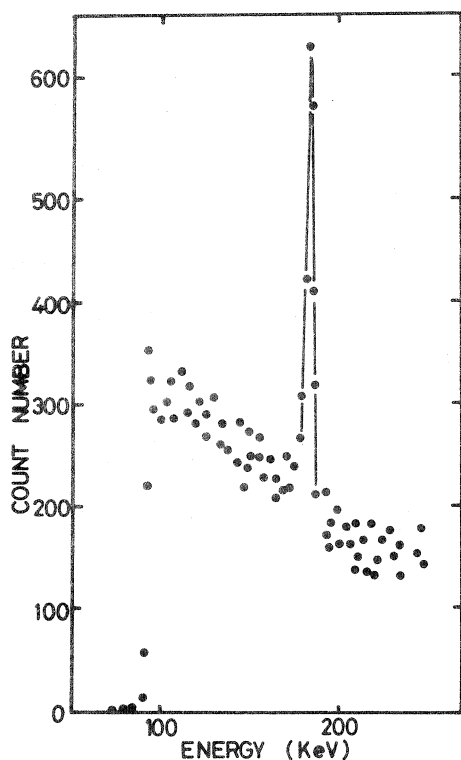


Fig. 1. Gamma ray spectra on ^{67}Cu -doped zinc selenide.

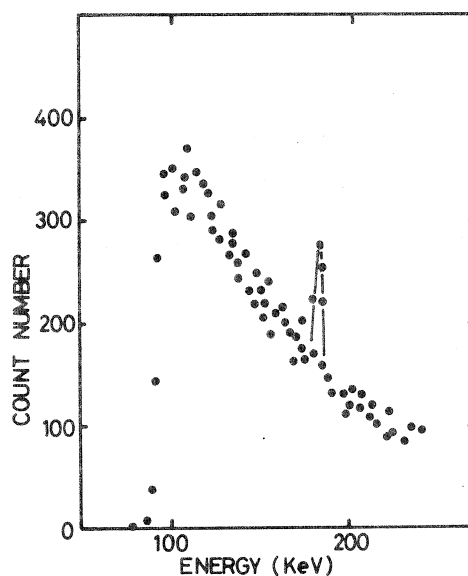


Fig. 2. Gamma ray spectra on ^{67}Cu -extracted zinc selenide.

Table I. The activities of ^{67}Cu in zinc selenide after the doping and extraction.

Specimen	$\mu\text{Ci } ^{67}\text{Cu}/\text{mg of ZnSe}$
^{67}Cu -doped ZnSe	31.5
^{67}Cu -extracted ZnSe	3.08

§ 3. Results

Figure 1 shows the gamma ray spectra at around 180 keV on ^{67}Cu -doped specimen. Figure 2 shows the gamma ray spectra at around 180 keV on ^{67}Cu -extracted specimen. The activities of ^{67}Cu after the doping and extraction are shown in Table I. The values of activities are corrected by using decay factor. The activities after the extraction become smaller nearly by one order of magnitude than that before the extraction.

The temperature dependence of the electrical conductivity of the single crystalline specimen heat-treated in 3.01 Torr zinc vapor pressure is shown in Fig. 3. The temperature dependences of the electrical conductivity and the electron concentration of the single crystalline specimen heat-treated previously in pure molten zinc and then in 1.19 Torr zinc vapor pressure are shown in Fig. 4. The electrical conductivity increased by eight order of magnitude by this heat treatment.

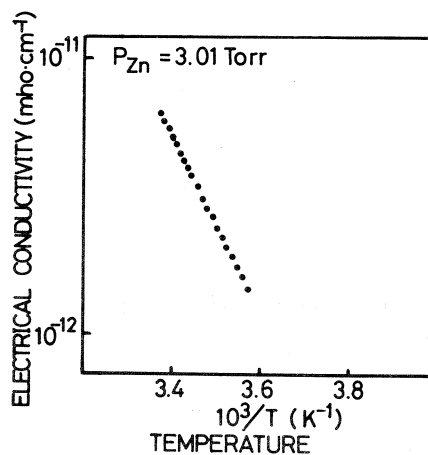


Fig. 3. Temperature dependence of electrical conductivity of zinc selenide heat-treated in 3.01 Torr zinc vapor pressure.

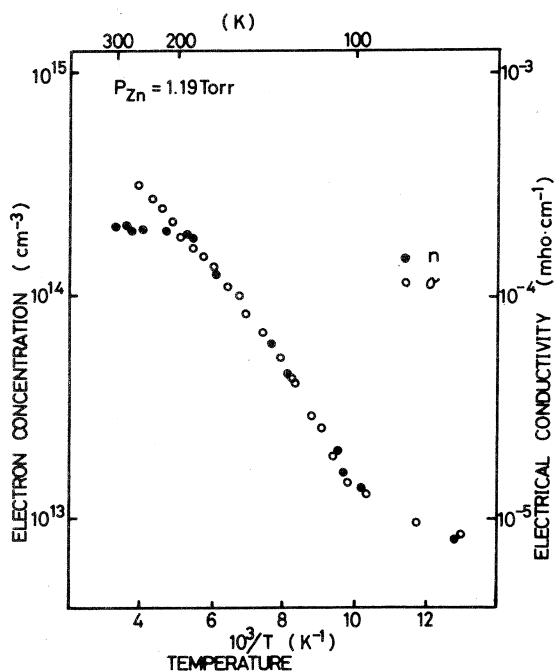


Fig. 4. Temperature dependence of electrical conductivity and electron concentration of zinc selenide heat-treated previously in pure molten zinc and then in 1.19 Torr zinc vapor pressure.

§ 4. Discussion and Conclusion

As seen from Figs. 1, 2 and Table I, it was confirmed that Cu was effectively doped by heating the crystal in molten zinc containing Cu and effectively extracted by heating the crystal in pure molten zinc.

Heating the crystals in pure molten zinc caused a large difference on the electrical conductivity, in spite of almost the same zinc vapor pressure in the final heat treatment. Therefore, the difference of the electrical conductivity is considered to be due to the difference of Cu concentration. These results are consistent with the proposed explanation⁷⁾ that the origin of high conductivity is due to the reduction of Cu concentration.

References

- 1) G. B. Stringfellow and R. H. Bube : Phys. Rev. **171** (1968) 903.
- 2) P. W. Yu and Y. S. Park : Appl. Phys. Lett. **22** (1973) 345.
- 3) M. Aven and B. Segall : Phys. Rev. **130** (1963) 81.
- 4) M. Aven : J. Appl. Phys. **42** (1971) 1204.
- 5) M. Aven and H. H. Woodbury : Appl. Phys. Lett. **1** (1962) 53.
- 6) T. Kiyosawa, K. Igaki and N. Ohashi : Trans. Jpn. Inst. Met. **13** (1972) 248.
- 7) K. Igaki and S. Satoh : Jpn. J. Appl. Phys. **18** (1979) 1965.

IV. 加 速 器 · 測 定 器

金表面障壁型 SSD の試作

核理研 田中俊成

§ 1. 試作の目的

核理研第1実験室の広帯域磁気スペクトロメータ(BDM)を用いた実験では、リシウムドリフト型SSD 100個を焦点面に並べて使用する検出系と、多線比例計数管(MWPC)を用いた検出系を実験の目的に応じて交換して使用しているが、

- ① SSDの代替品がない。
- ② 同一チャンネルのSSDに入射する陽子と α 粒子のエネルギーが等しいため、陽子が空乏層中で停止する12 MeV以下の粒子の測定の場合、陽子と α 粒子を区別するためにはSSDの前面に吸収体を置く必要がある。
- ③ 現在のSSDでは α 粒子スペクトルの測定は特別な場合を除いて困難である。
- ④ MWPCの場合、陽子スペクトルの測定は困難である。
- ⑤ MWPCは真空を保つために粒子入射窓をある程度厚くしてあるため、約5 MeV以下の α 粒子は窓で停止して測定できない。
- ⑥ 信号線面への粒子の入射角が大きいため信号波高のばらつきが大きく、さらに粒子の通過する数本の信号線で同時計数を取っているため個々の信号線の特性的違いが隣り合った数チャンネルの計数に影響する。
- ⑦ 真空を保つ窓はあまり厚くできないため破損の危険性が高い。

等の問題がある。そこで、粒子の種類によってエネルギー損失が異なることを利用して粒子識別ができ、上記の問題を解決できる検出器として、比較的容易に製作できる、空乏層の薄い金表面障壁型SSDの試作を行なうことにした。

実験における陽子あるいは α 粒子の測定エネルギー範囲が2.5～30 MeVと広範囲にわたることから、低いエネルギーの測定では陽子が貫通するよう空乏層を薄く、一方エネルギー損失の小さい高エネルギー陽子の測定ではS/N比を良くするためなるべく厚くしたい。この点で表面障壁型SSDはバイアス電圧を変えることによって空乏層の厚さを変えられ、また粒子の入射する側の不感層が非常に薄くできることから上記のような条件での使用が可能である。

§ 2. 製作方法

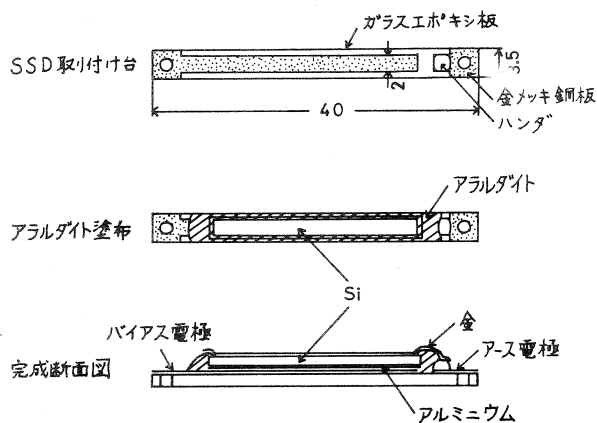
SSDの素材には比抵抗 $145 \pm 25 \Omega \text{cm}$, 直径50 mm, 厚さ500 μm の円板状のn型Siで片面がエッチング仕上げ, 片面が鏡面仕上げのものを用い, ガラス切りで必要な形に切断した。

目標は, バイアス電圧100 V程度まで印加でき, 10 Vから100 Vまでの間で空乏層の厚さが20 μm から60 μm 程度まで変えられ, 粒子入射面積が $2 \text{ mm} \times 25 \text{ mm} = 50 \text{ mm}^2$ 程度のものを製作することとした。現在使用しているSSDの面積が 20 mm^2 であるから計数率は2.5倍になり, MWPCの約0.5倍である。空乏層に比べ非常に厚い素材を用いたのは取扱いの容易さのためである。

以下で製作の手順を説明する。

- ① 素材の鏡面側を表面保護のためにピセインで覆う。
- ② ガラス切りでエッチング仕上げ面に線を引き3.2 mm \times 26 mmの短冊状に切り取る。
- ③ 切断面は一般に表面に対して垂直ではないのでアランダム# 4000を用いてガラス板上で垂直になるように研磨する。
- ④ エッチング仕上げ面をアランダム# 4000を用いて, ガラス板上で, 次にセーム皮上で鏡面に近い状態になるまで研磨する。これはSi表面に酸化膜が存在するため金属(今の場合アルミニウム)と抵抗性接触を保つようこれを除去するのが目的である。
- ⑤ ④で研磨された面にアルミニウムを蒸着する。
- ⑥ トリクロルエチレンでピセインを除去する。
- ⑦ アルミニウム蒸着面を導電性接着剤で電極に固定し, 側面と鏡面の端部をアラルダイトで覆う。この状態でアラルダイトが硬化するまで24時間程度乾燥空气中に放置する。
- ⑧ 鏡面に金を蒸着する。

SSDはガラスエポキシ製片面プリント基板の上に電極を作って取り付けた。第1図に, 用いたプリント基板の形と, SSDの完成断面図の概略を示す。金表面側は金蒸着の際に同時に電極と結合させている。



第1図 SSDの形状。上から, 取り付け台, アラルダイト塗布時, 完成断面図を示す。数字の単位はmm。

§ 3. 特性試験とその結果

第2図に製作したSSDの $V-I$ 特性の1例を示す。これはロータリーポンプで真空にした容器中での結果で、100Vまでバイアス電圧を印加した。空気中では20%程度電流が多かった。

このSSDを用いて ^{241}Am 5.486

MeVの α 線源スペクトルを測定した結果を第3図に示す。

印加バイアス電圧20V, 60V, 100Vで測定した図から分解能が2%

以下であることがわかるが、性能の良い回路系を用いた場合には1

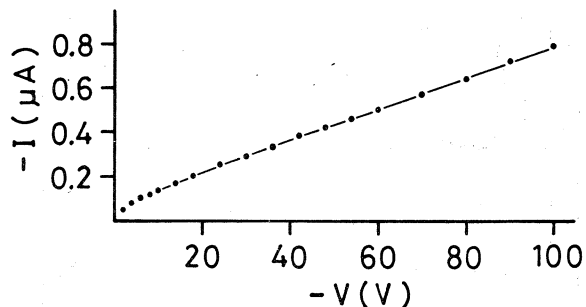
%以下であったことから、2%と

なった原因は自作した回路系の雑音にある。我々の実験では磁気スペクトロメータで運動量分析を行なっているので、この程度の分解能でも十分であるが今後回路系の改良の余地がある。

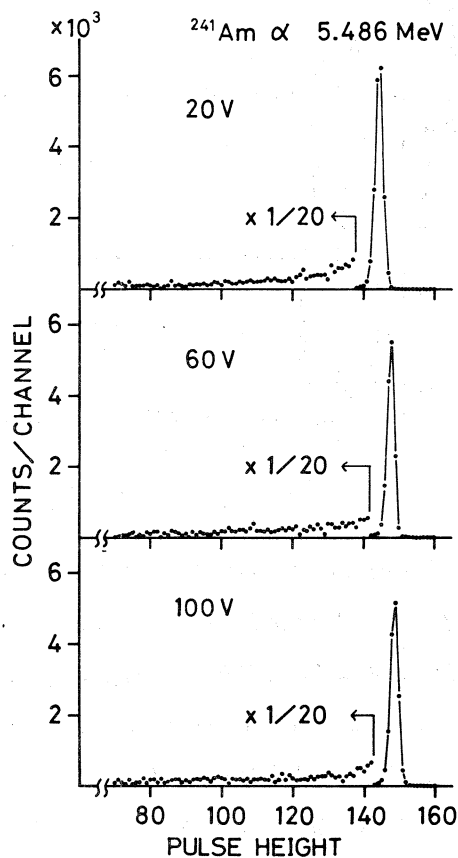
種々の粒子の入射エネルギー及びSSDの印加電圧を変えた場合の特性は核反応によって放出された粒子を測定して調べることができ、それに関しては後に述べる。

図で、印加電圧を変えるとわずかであるがピークチャンネルが変化しているが、後に述べるように空乏層の厚さは10Vでも37 μm あるので α 粒子は空乏層中で停止しており、従ってこの原因は、印加電圧とともにSSDの浮遊容量が変化し、用いた電荷有感型プリアンプのコンデンサーに集められる電荷量が増加することにあると考えられる。

種々の入射粒子のエネルギー及び印加電圧を変化させた時の特性を調べるため、現在使用し

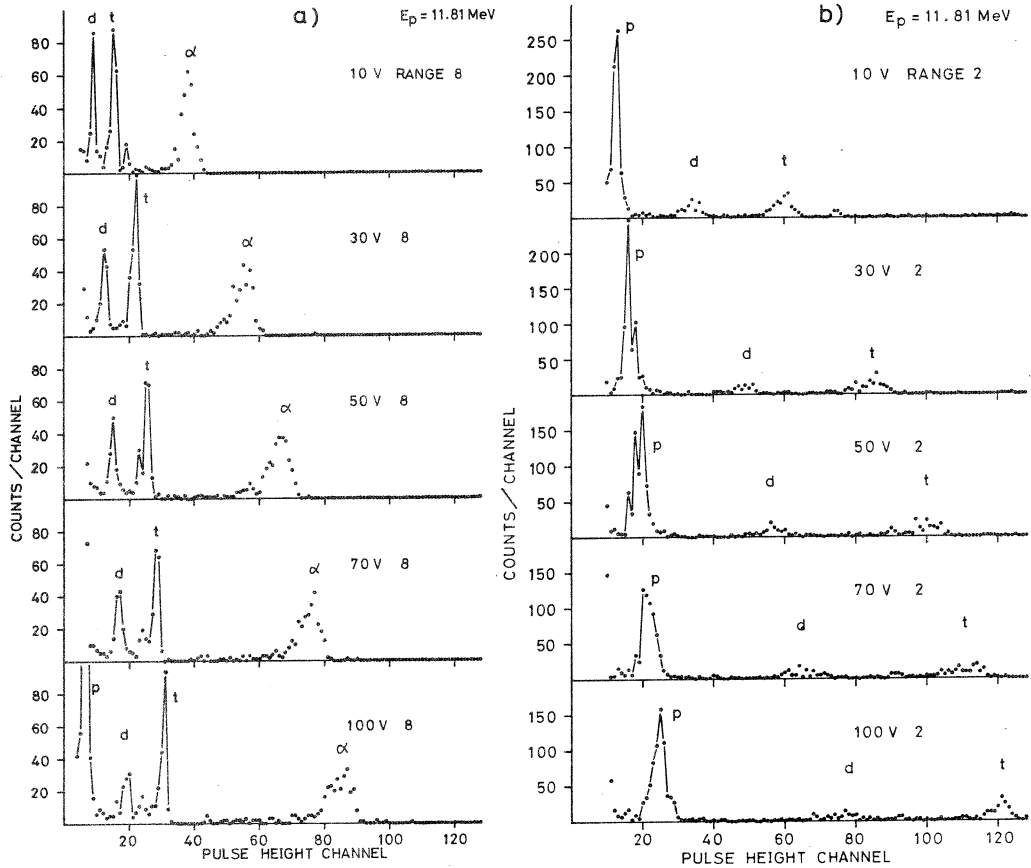


第2図 真空中で測定されたSSDの $V-I$ 特性。



第3図 ^{241}Am の5.486 MeV α 線源のスペクトル。印加電圧は上から20V, 60V, 100V。

ているSSDの1チャンネルと交換し⁹Beに電子線を照射して放出される粒子のスペクトルを測定した。SSDへの入射エネルギーは陽子に換算して2.36, 4.72, 7.09, 9.45, 11.81, 14.18 MeVで、印加電圧10, 30, 50, 70, 100 Vで測定した。



第4図 陽子エネルギー11.81 MeVでの各粒子のスペクトル。b)図は波高レンジをa)図の1/4倍にして測定したもの。

11.81 MeVの場合のスペクトルを第4図に示す。陽子はエネルギー損失が小さく α 粒子スペクトルと同時に測定することが困難であるため波高のレンジを1/4に下げて測定した(b)図)。陽子、重陽子、三重陽子、 α 粒子が全て空乏層を貫通しており、スペクトルの半値幅が広がっているがそれぞれの粒子をはっきり区別することができる。陽子は波高が非常に低いが印加電圧を高くし空乏層を厚くすることで容易に測定できる。

この他に測定した全てのエネルギーにおいても種々の粒子を互いに区別することができた。

第1表に各エネルギー、印加電圧での α 粒子のピークチャンネル値を示す。表中に示した横線から下の部分は α 粒子が空乏層を貫通している。測定した α 粒子のピークチャンネルから空乏

第1表 各エネルギー，印加電圧での α 粒子のピークチャネル値。横線から下の部分は空乏層を貫通している。

E_{α} (MeV)	Bias (V)				
	10	30	50	70	100
2.36	15	17.5	18	18.5	19
4.72	30	34.5	36	37	38
7.09	40	52	54.5	56	57
9.45	41.5	59	68.5	73.5	76
11.81	38	56	66.5	75.5	85
14.18	32.5	48	58.5	67	78

層の厚さを算出した結果，印加電圧 10 V から 100 V までの間で約 37 μm から 86 μm 程度まで変化していることがわかった。

以上の結果から BDM に用いる検出器として，製作したような金表面障壁型 SSD が非常に有望であると言える。

最後に，SSD の試作に関して東北工業大学の平館，庄司両先生の御協力を得，製作技術等について懇切に御指導頂いたことを感謝します。

V. 放 射 線 安 全 管 理

東北大学原子核理学研究施設環境放射線

核理研 放射線障害予防小委員会
新村信雄・渡辺 昇・八木益男
菅原真澄

§ 1. 序

東北大学理学部原子核理学研究施設に設置された 300 MeV 電子ライナックは昭和41年より稼動を開始し、多目的利用加速器として原子核物理、物性物理、放射化学、生物・医学関係に利用され、十分な成果をあげている。運転時間も運転経験をもとに稼動開始時期から徐々に増加してきており、昭和54年には運転時間増の施設経費が認められ、1年間に3800時間の運転となった。

このような大型施設における環境放射線の影響は重要で、遮蔽には特別の配慮がなされており、その測定にも大きな努力をはらってきた。放射線が人体に及ぼす影響の知識をもとに国際放射線防護委員会（ICRP）は、われわれが容認できると思われる放射線の線量レベル（許容線量）について、勧告が何回か行なわれており、これに基づいて我国では放射性同位元素等による放射線障害の防止に関する法令により、環境放射線の測定が義務づけられている。

当施設においても環境放射線の測定は、本電子ライナックの稼動開始以来連続的に実施されてきている。本報告は、そのうち昭和53年度及び昭和54年7月6日までの測定結果を整理したものである。

§ 2. 電子ライナック運転方式及び運転時間

昭和53年度

平均1ヶ月に1週間程度ライナックメンテナンスのための工事が行われるが、それ以外には共同利用実験としてマシン運転が実施される。そのうちの約半数は昼夜連続運転である。日曜・祭日にはマシンは停止する。1年間の延運転時間は約2800時間であった。

昭和54年度

平均1ヶ月に1週間程度のライナックメンテナンス用工事は昭和53年度と同様であるが、それ以外は原則として日曜・祭日の前日以外は昼夜連続運転とした。1年間の延運転時間は

約3800時間であった。

§ 3. 環境放射線測定方法

環境放射線測定用モニターの配置を第1図に、その概要を第1表に示す。図の中でM-1～M-4が環境モニターの設置場所である。

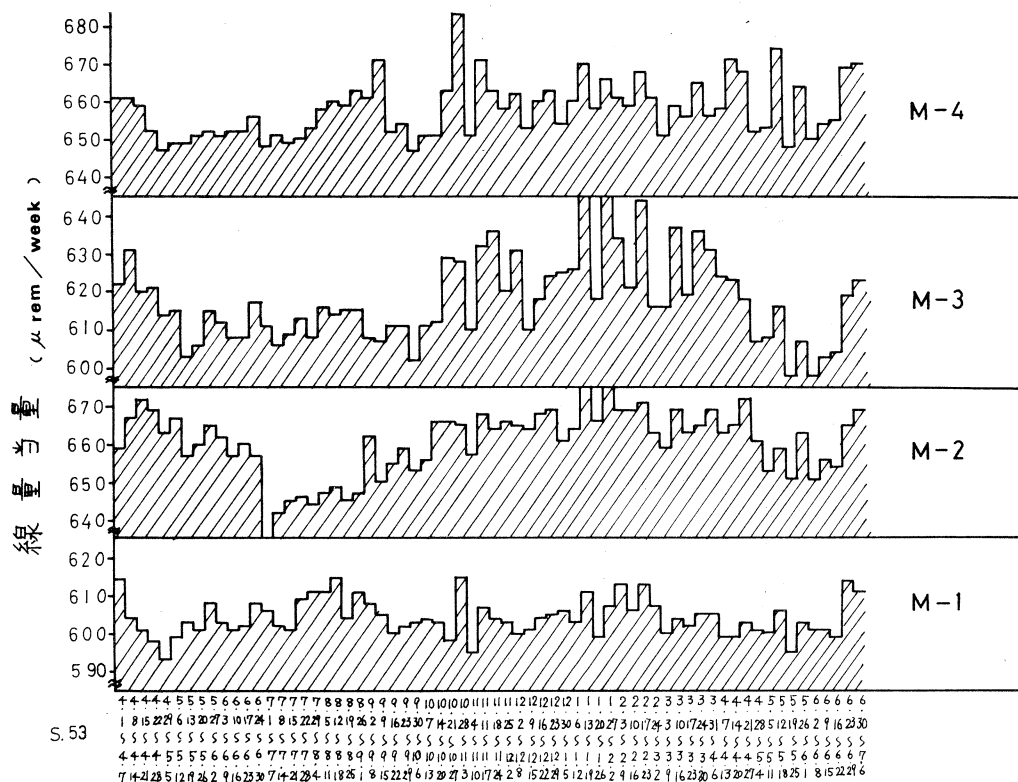
	モニターの種類	放射線発生源からの距離
M-1	GM管	～ 160 m
M-2	GM管, BF ₃	～ 190 m
M-3	GM管	～ 120 m
M-4	GM管	～ 120 m

原子核理学研究施設（富沢地区）
配置図 S 1/2400

第 1 図



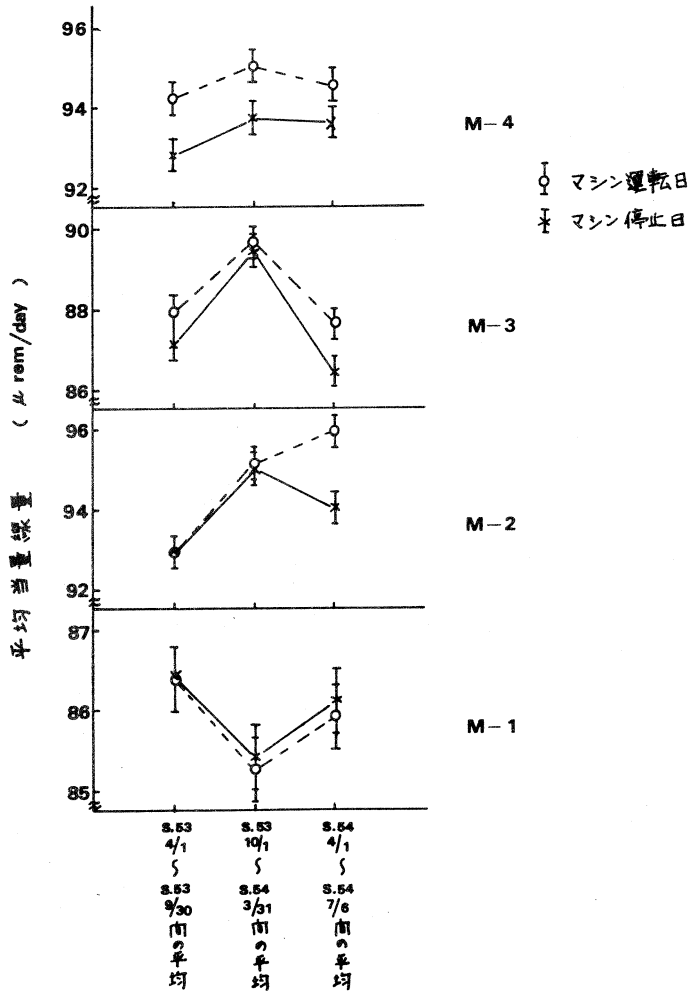
測定法は全てのモニターで共通の方式をとっており、連続自動測定を行い、測定データは管理棟内の制御室にあるプリンターに印字記録される。データは200分間の放射線計数の形で記録されるので、それを校正係数(附録1参照)を用いて線量当量($\mu\text{rem}/\text{h}$)に換算し、その日の実験種目・天候を共に記録しファイルする。



第 2 図

§ 4. 測定結果及び考察

昭和53年4月1日より昭和54年7月6日までの1週間単位の各地点での r 線による環境放射線量を $\mu\text{rem}/\text{week}$ ($\mu\text{rem}/\text{week} = 10^{-3} \text{mrem}/\text{week}$)の単位で示す。1週間毎の変動をわかり易くするため、原点をずらせてあるのに注意されたい。各地点ともゆらぎが $\pm 20 \mu\text{rem}/\text{week}$ ある。これはほぼ統計誤差の範囲である。このゆらぎの有意性を確かめる意味で、次のような整理をしてみた。昭和53年4月1日～昭和53年9月30日, 昭和53年10月1日～昭和54年3月31日, 昭和54年4月1日～昭和54年7月6日の3期間で、マシン運転日とマシン停止日の当量線量を1日当たりで平均してみた。その結果を第3図に示す。○印がマシン運



第 3 図

転日の平均で、×印がマシン停止日の平均である。マシン停止日のデータはライナックからの放射線の影響は考えられないので、その地点のバックグラウンドを測定したことになる。×と○の比較からマシン運転による放射線の影響がどの程度であるか推定できる。第3図を参照するとM-1では×と○の差が全くない。また、M-2も一点を除いて×と○に顕著な差はない。M-3、M-4では×と○の傾向が一致しており○が1~2 μrem高く計数されている。これは放射線発生源からの測定位置を考えると、M-1、M-2はM-3、M-4と比較し遠くに位置し、更にr線の異方性を考えるとM-1、M-2には加速器運転による放射線の影響は皆無に近いと考えられる。一方、M-3、M-4では放射線発生源に近いので、このように測定を

6ヶ月間の平均というように統計精度をあげると、かろうじて加速器運転の影響が観測されたものと思われる。しかし、 $1\sim 2\mu\text{rem}/\text{day}$ は1年に換算すると $1\text{mrem}/\text{year}$ 以下で、法令で定める一般人の年間許容量 $500\text{mrem}/\text{year}$ と比較すれば無論のこと天然の放射線レベル(約 $100\text{mrem}/\text{year}$)と較べても無視できるレベルである。

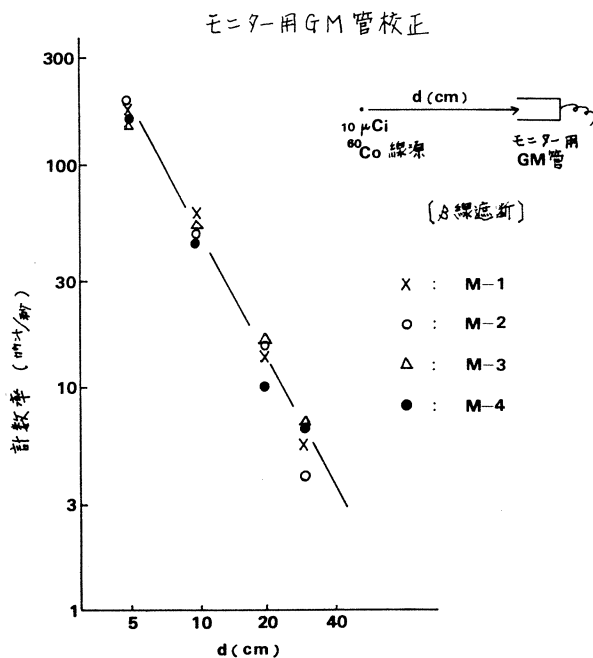
漏洩中性子線による環境放射線の影響は、測定にかからない小さいものであった。

§ 5. 結 論

300 MeV ライナック運転により発生する放射線の敷地境界(発生源から200 m離れた地点)での影響は、6ヶ月間という長い期間の測定の統計精度においても測定のバックグラウンドに含まれてしまい皆無であるか、または無視できるレベルであると結論できる。

附録：モニター用GM管校正

$10\mu\text{Ci}^{60}\text{Co}$ を用い、M-1～M-4に設置のモニター用GM管校正を行った。実験は附録1図に示すように β 線遮断したモニター用GM管と ^{60}Co の標準線源間の距離 d を変えて計数を行った。その結果が同図のグラフである。 ^{60}Co のキュリー数と線量当量 $D(\text{r}/\text{h})$ との関係は



附録 1 図

$$D(\text{r/h}) = \frac{0.55 \times [Ci] \times E[\text{MeV}]}{[d(\text{m})]^2}$$

とあらわされる。[Ci] = 10×10^{-6} , $E = (1.17 + 1.33) \text{ MeV}$, $d = 0.2 \text{ m}$ とすると、 $0.34 (\text{mr/h})$ となる。附録 1 図の測定から $d = 0.2 \text{ m}$ では 14 カウント/秒であるから、校正値は

$$\frac{0.34}{14} \approx 0.024 \text{ mr/h} / \text{カウント/秒} = 0.4 \mu\text{rem/h} / \text{cpm} \quad \text{となる。}$$

cpm は カウント/分 のことである。

Ⅵ. 論 文 リ ス ト

論 文 リ ス ト

核理研共同利用の成果を核理研研究報告以外の学術雑誌に掲載された論文(昭和53年1月～12月)の題目を集録しました。

I 原子核物理

1. New Giant Resonances.

Y. Torizuka : J. Phys. Soc. Japan, Suppl. **44** (1978) 397.

2. Photoproduction of π^+ from Nuclei Relating to Residual States.

K. Shoda, K. Nakahara, H. Ohashi, M. Yamazaki and B. N. Sung : J. Phys. Soc. Japan, Suppl. **44** (1978) 482.

3. Study of the $f_{7/2}$ Ground Isobaric Analog Resonance in the $(e, e'p)$ Reaction on ^{139}La and ^{141}Pr .

J. I. Uegaki and K. Shoda : Nucl. Phys. **A 294** (1978) 141.

4. Isospin Effects in the Giant Dipole Resonance Region of ^{51}V and ^{59}Co .

H. Tsubota, S. Oikawa, J. Uegaki and T. Tamae : Nucl. Phys. **A 303** (1978) 333.

5. Charged Particle Emission in Photoreaction on ^9Be .

K. Shoda and T. Tanaka : Nuclear Interactions (Canberra Conference Aug. 1978) ed. B. A. Robson, Lecture Notes in Physics No. 92, p. 448.

6. Photoprotons from ^{27}Al and ^{24}Mg .

P. Ryan, M. N. Thompson, K. Shoda, M. Sugawara, T. Saito and T. Urano : *ibid.* p. 450.

7. Systematics of Photonuclear Cross Section in the $1f_{7/2}$ Shell.

M. N. Thompson, R. E. Pywell, J. Weise, J. Norbury, R. Farmer, R. Sutton, R. Hicks, K. Shoda, H. Tsubota, M. Sugawara and T. Saito : *ibid.* p. 452.

8. Photodeuteron Reaction on Odd-Z Light Nuclei.

H. Taneichi, H. Ueno and K. Shoda : *ibid.* p. 456.

9. Photoalpha Reaction in ^{90}Zr .

T. Tamae, T. Urano, M. Hirooka and M. Sugawara : *ibid.* p. 460.

10. Photonuclear Reactions.

M. N. Thompson : *ibid.* p. 208.

II 物性物理

1. Ferrielectricity in Copper Formate Tetrahydrate.

I. Suzuki and K. Okada : *J. Phys. Soc. Jpn.* **47** (1979) 1023.

2. The Structure of Metal-Metal Amorphous Alloy $\text{Cu}_{0.57}\text{Zr}_{0.43}$ Determined by Neutron Diffraction.

T. Mizoguchi, T. Kudo, T. Irisawa, N. Watanabe, N. Niimura, M. Misawa and K. Suzuki : *Rapidly Quenched Metals III* ed. B. Cantor (The Metal Soc. London, 1978) p. 384.

3. Atomic Short Range Order in Cu_3Mn Studied by TOF Neutron Diffraction.

M. Hirabayashi, M. Koiwa, S. Yamaguchi and K. Kamata : *J. Phys. Soc. Japan* **45** (1978) 1591.

4. Factor of Amorphous $\text{Cu}_{0.57}\text{Zr}_{0.43}$ Alloy Determined by TOF Pulsed Neutron Diffraction.

T. Kudo, T. Mizoguchi, N. Watanabe, N. Niimura, M. Misawa and K. Suzuki : *J. Phys. Soc. Japan* **45** (1978) 1773.

5. Ring-Chain Transition in Liquid Selenium by a Disordered Chain Model.

M. Misawa and K. Suzuki : *J. Phys. Soc. Japan* **44** (1978) 1612.

6. Compositional Study on Short-Range Structure of Pd-Si and Fe-B Amorphous Alloys.

T. Fukunaga, M. Misawa, K. Fukamachi, T. Masumoto and K. Suzuki : *Rapidly Quenched Metals III* ed. B. Cantor (The Metal Society, London, 1978) p. 325.

III 放射化学

1. Reactions of Isomeric Transition-Activated ^{80}Br in the $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}-\text{CH}_4$ System.

K. Kondo and M. Yagi : *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **51** (1978) 372.

2. Isotope Effect in Thermal Ionic Reactions of Isomeric Transition-Activated ^{80}Br

and ^{82}Br in the HBr-CH_4 System.

K. Kondo and M. Yagi : Bull. Chem. Soc. Jpn. **51** (1978) 1284.

3. Preparation of Carrier-free ^{67}Cu by the $^{68}\text{Zn}(\gamma, p)$ Reaction.

M. Yagi and K. Kondo : Int. J. appl. Radiat. Isotopes **29** (1978) 757.

4. Activation Yield Curves of Photonuclear Reactions for Multielement Photon Activation Analysis.

K. Masumoto, T. Kato and N. Suzuki : Nucl. Instrum. and Methods. **157**
(1978) 567.

5. Impurity Diffusion in Aluminum.

K. Hirano and S. Fujikawa : J. Nucl. Mat. **69** & **70** (1978) 564.

核理研研究報告 第12巻 第2号

1979年12月発行

発行所 東北大学理学部附属原子核理学研究施設
仙台市三神峯 1-2-1 (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 2 December 1979

Laboratory of Nuclear Science,
Tohoku University,
1-2-1, Mikamine, Sendai 982, Japan