

ISSN 0385-2105

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 究 報 告

第 13 卷 第 1 号

1980 年 6 月

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

刊 行 規 定

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

投 稿 規 定

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

仙台市三神峯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13巻 第1号 目次

I 原子核物理

- I-1 ^{24}Mg による 180° 非弾性電子散乱…………… 1
(核理研) 斎藤 健治, 斎藤悌二郎, 鳥塚 賀治
- I-2 電子散乱による ^{24}Mg の巨大共鳴の励起…………… 19
(核理研, サスカチュワン大*)
大沢 哲, 伊藤 広平*, 寺沢 辰生, 斎藤悌二郎,
鳥塚 賀治
- I-3 電子散乱による ^{148}Sm と ^{152}Sm の巨大共鳴の励起…………… 34
(核理研, ソビエト連邦科学アカデミー*)
大沢 哲, B. S. Dolbilkin*, 水野 義之,
小黒 瞬, 寺沢 辰生, 斎藤悌二郎, 鳥塚 賀治
- I-4 (r, π^+) 反応を用いた π 中間子凝縮の前臨界現象の研究(I)…………… 45
(核理研, 教養部*)
佐々木 修, 山崎 正晴, 取越 正己, 坪田 博明*,
庄田 勝房
- I-5 $^{10}\text{B}(r, p)$ 反応…………… 50
(山形大教養, 核理研*)
種市 宏, 上野 博昭, 加藤 静吾, 庄田 勝房*
- I-6 ^{27}Al Angular Distributions …………… 54
(メルボルン大, 核理研*, 教養部**)
M. N. Thompson, P. Ryan, 庄田 勝房*,
菅原 真澄*, 斎藤悌二郎*, 田中 俊成*, 広岡 恵*,
坪田 博明**, 宮瀬 晴久**
- I-7 $^{32}\text{S}(r, n)$ 反応の飛行時間分析…………… 63
(教養部, 理学部物理*)
阿部 健, 坪田 博明, 宮瀬 晴久, 川村 暢明*,
金沢 正明*

I - 8 ^{196}Pt (e, α)反応の研究…………… 75

(核理研) 浦野 隆夫, 広岡 恵, 菅原 真澄

II 物性物理

II - 1 $\text{Fe}_{3-x}\text{Mn}_x\text{Si}$ 固容体の磁気相図…………… 87

($\text{Fe}_{0.75}\text{Mn}_{2.25}\text{Si}$ の磁性)

(金研) 大橋 正義, 富吉 昇一

II - 2 白色中性子の偏極とスピンフリップ…………… 92

(磁気鏡による偏極中性子の研究(II))

(理学部物理)

佐々木幸男, 遠藤 康夫

II - 3 液体金属 (Sn) の過冷却-凝固過程での構造変化の
中性子回折による研究(III)…………… 95

(理学部物理, 高エ研*, 核理研**)

四戸 孝, 池田 進*, 新村 信雄**, 石川 義和

II - 4 中性子用 ^6Li ガラスシンチレータの製作……………102

(核理研, 日本光学KK*, 名大工学部**, 東大物性研***)

新村 信雄, 松本 明*, 苅谷 道郎*, 原田 仁平**,

星埜 禎男***

II - 5 中角時間焦点法を用いた全散乱実験の検討…………… 110

(核理研, 高エ研*)

山田 和芳, 渡辺 昇*

II - 6 $\text{Tb}(\text{Zn}_{1-x}\text{Cu}_x)$ 中の ^{156}Gd の超微細相互作用…………… 116

(金研, 新潟大理学部*, 理学部物理**, 工学部原子核***)

篠原 猛, 古沢 昭*, 林部 昭吾**,

山口 貞衛***

Ⅲ 放射化学

- Ⅲ-1 反跳インプランテーションによるTc およびPmの
benzoyltrifluoroacetone 錯体の合成…………… 123
(理学部化学)
吉原 賢二, 斎藤 正隆
- Ⅲ-2 ウラニルフタロシアニン系における反跳生成物…………… 130
(筑波大化学系)
荘司 準, 池田 長生, 大竹 隆夫, 沼田 哲一
- Ⅲ-3 光核反応によるポジトロン放射体無担体 ^{38}K の製造…………… 139
(核理研, 金沢大医技短大*)
八木 益男, 天野 良平*
- Ⅲ-4 $^{115\text{m}}\text{In}$ のミルキング…………… 144
(核理研, 金沢大医技短大*, 理学部化学**)
八木 益男, 天野 良平*, 伊澤 郡蔵**)
- Ⅲ-5 生物試料の光量子放射化分析用照射台の試作…………… 150
(理学部化学)
榎本 和義, 鈴木 信男
- Ⅲ-6 生物体標準試料の多元素光量子放射化分析(Ⅱ)…………… 158
(理学部化学)
鈴木 信男, 石井 鉄雄, 榎本 和義
- Ⅲ-7 Coal fly ash と Oil soot の光量子および荷電粒子放射化分析…………… 169
(理学部化学)
鈴木 信男, 小林 邦輝, 榎本 和義
- Ⅲ-8 光量子放射化分析によるガラス試料の多元素同時定量…………… 184
(科学警察研) 神田 征夫
- Ⅲ-9 光量子放射化分析法による日本海深海底堆積物の諸元素存在度の
永年変化に関する研究…………… 191
(理学部化学, 教養部*, 広島大総合科学部**))
角谷 博樹, 加藤 豊明*, 加藤 道雄**, 鈴木 信男

IV 加速器・データ処理装置稼動状況

IV-1 昭和54年度マシン報告..... 207

(核理研マシングループ)

菅原 真澄, 浦澤 茂一, 今野 収, 一戸 隆,

栗原 亮, 根本 重伸, 柴崎 義信,

IV-2 データ処理装置稼動状況..... 210

(核理研計測グループ)

小山田正幸, 窪田 健雄, 佐藤 正幸, 木村 智雄,

武藤 正勝

I. 原 子 核 物 理

^{24}Mg による 180° 非弾性電子散乱

核理研

斎藤健治・斎藤悌二郎

鳥塚賀治

§ 1. 序 論

^{24}Mg による 180° 非弾性電子散乱実験の結果を報告する。実験データは、1979年9月に2点、10月に2点測定したものである。今回の実験目的は、(1)軽い核の M2, M3, M4 共鳴の性質を調べること。(2)磁気巨大共鳴の探求、の2つにある。標的核を ^{24}Mg に選んだ理由は次の2つにある。①軽い核では、励起されるレベルのエネルギー間隔が広いのでピークが十分分離することが予想される。②磁気能率はアイソベクトル演算子と考えるとよいので、 ^{24}Mg のように自己共役核 ($T=0$) では、 $\Delta T=1$ のレベルのみに励起されると考えられる。一方非自己共役核では、 $\Delta T=1$ の他に $\Delta T=0$ のレベルにも励起される。したがって、自己共役核では、ピークの数少なく、ピーク分離が容易であると期待される。軽い核の M1 については、Kurath の M1 総和則¹⁾の理論的予測に基づいて行なわれた多くの実験があり²⁻⁴⁾、励起エネルギーの低い数本のレベルに転移強度が集中することが明らかにされている。M2 については、最近、Darmstadt で ^{28}Si , ^{90}Zr , ^{208}Pb について実験され、その転移強度の中心が $44 \text{ A}^{-\frac{1}{3}} \text{ MeV}$ にあることが明らかにされた⁵⁾。しかし、まだまだ実験データが不足している。磁気巨大共鳴については、現在、精力的に調べられているが、はっきりした結論は出ていない。

今回の実験では、 180° 非弾性電子散乱は純粋な横波成分の情報を与えるという有利な条件を生かして、M2, M3, M4 が強く励起されると期待される運動量移行 $q_{\text{eff}} = 0.85 \sim 1.6 \text{ fm}^{-1}$ の領域で測定した。解析では、励起エネルギー $10 \sim 16 \text{ MeV}$ 間にあるレベルをピーク分離し、単一粒子模型⁶⁾で計算した形状因子と実験値を比較して、各レベルのスピンのパリティをアサインした。§ 4 では、それに基づいて考察を行なう。しかし、データ点が多く最終的な結論に至るには今後のデータの蓄積が必要である。

§ 2. 180° 非弾性電子散乱及び総和則

2.1 180° 非弾性電子散乱

180° 電子散乱の散乱微分断面積は、PWBA 及び高エネルギー近似のもとで、

$$\frac{d\sigma(180^\circ)}{d\Omega} = \frac{\left(\frac{Ze^2}{2E}\right)^2}{1 + \frac{2E}{M_T c^2}} \sum_{J=1}^{\infty} [|F_J^{\text{el}}(q)|^2 + |F_J^{\text{mag}}(q)|^2] \quad (2-1)$$

と書ける⁷⁾。ここで、 Z 、 E 、 M_T は、それぞれ標的核の原子番号、入射電子エネルギー、標的核の質量を表わしている。 e 、 c は、電気素量、光速を表わす。原子核内の情報は、それぞれ電気横形状因子、磁気形状因子と呼ばれる $|F_J^{\text{el}}(q)|^2$ 、 $|F_J^{\text{mag}}(q)|^2$ に集約されている。これらは、電磁演算子 $\hat{T}_{JM}^{\text{el}}(q)$ 、 $\hat{T}_{JM}^{\text{mag}}(q)$ の換算マトリックス要素によって次のように定義される。

$$|F_J^{\text{el}}(q)|^2 = \frac{4\pi}{Z^2} | \langle J_f \| \hat{T}_J^{\text{el}}(q) \| J_i \rangle |^2, \quad (2-2)$$

$$|F_J^{\text{mag}}(q)|^2 = \frac{4\pi}{Z^2} | \langle J_f \| \hat{T}_J^{\text{mag}}(q) \| J_i \rangle |^2, \quad (2-3)$$

ここで、 J_i 、 J_f はそれぞれ原子核の始状態、終状態のスピンを表わしている。電磁演算子には、核子の伝導電流の演算子、固有磁気能率の演算子を含むので、核内核子の電流、スピンの関する情報を得ることが出来る。

さて、 ^{24}Mg のように自己共役核（基底状態の $J^\pi = 0^+$ 、 $T = 0$ ）を考えよう。式(2-1)で多重極度 J に関する和は、 $J = 1$ から始まることと、角運動量保存則

$$|J_f - J_i| \leq J \leq |J_f + J_i| \quad (2-3)$$

を考慮すると、このような核では弾性散乱 ($J_f = J_i = 0$) が禁止されることが分かる。このことは、弾性散乱のテイルに煩わされずに解析できるという利点を示している。形状因子(2-2)、(2-3)の大きさの評価のために、単一粒子模型を使って、 ^{24}Mg について計算した結果、 $J \geq 3$ では(2-2)が(2-3)より1桁以上小さいことが分った。実験でも電気横成分によって励起されるレベルは見つからなかった。

したがって、以下では、磁気成分によって励起されるレベルについて議論する。

光子点 ($q = \omega/\hbar c$) で、磁気形状因子は、磁気転換算確率 $B(MJ \uparrow)$ と次の関係式によって結びつけられる⁸⁾。

$$B(MJ \uparrow) = \frac{J \{ (2J+1) \}}{4\pi (J+1) \left(\frac{\omega}{\hbar c} \right)^{2J}} Z^2 |F_J^{\text{mag}}(\omega/\hbar c)|^2 \left(\frac{2M_P c}{\hbar} \right)^2. \quad (2-4)$$

単位：(核磁子)²・(fm⁻¹)^{2J-2}

2.2 総和則

§ 4 で最近発表された Traini の総和則⁹⁾ との比較を行なうので、その簡単な説明を行なう。光子点での磁気多重極能率 $Q_{Jm}^{(M)}$ に対する総和則は次式で与えられる。

$$m_j = \sum_n \omega_n B_n (MJ \uparrow) = \frac{1}{2} \sum_m \langle 0 | [Q_{Jm}^{(M)+}, [H_0, Q_{Jm}^{(M)}] | 0 \rangle. \quad (2-5)$$

磁気多重極能率は、アイソスカラーとアイソベクトルの2つの部分から成るが、Morpurgo の選択則により、近似的にアイソベクトルの部分のみを考えればよい。その時、 $Q_{Jm}^{(M)}$ は、

$$Q_{Jm}^{(M)} \simeq i \frac{\mu_0}{2} \left(\mu_- - \frac{1}{J+1} \right) \sum_k \tau_k^3 \vec{\sigma}_k \cdot \vec{d}_k [r_k^J Y_{Jm}(\theta_k, \varphi_k)] \quad (2-6)$$

と書ける。ここで μ_0 は核磁子、 μ_- は $\mu_- = \mu_p - \mu_n$ である。原子核のハミルトニアン H_0 として、

$$H_0 = \sum_k \frac{\vec{p}_k^2}{2M} + \sum_{j>k} v_{jk} + a \sum_k \vec{l}_k \cdot \vec{\sigma}_k. \quad (2-7)$$

さらに、2体の相互作用 v_{jk} が Skyrme 力で与えられると仮定して、(2-5)の右辺を計算すると、

$$\begin{aligned} m_j (\text{total}) &= m_j (\text{kinetic}) + m_j (\text{interaction}) + m_j (\text{spin-orbit}) \\ &= \frac{(2J+1)^2}{4\pi} \frac{\mu_0^2}{4} A \left(\mu_- - \frac{1}{J+1} \right) \left\{ \frac{J(J-1)(2J-1)}{2M} \langle r^{2J-4} \rangle \right. \\ &\quad + \frac{t_1 + t_2}{4} \frac{J(J-1)(2J-1)}{A} \int \rho^2(r) r^{2J-4} d^3r \\ &\quad \left. + a [J(J-1) \langle r^{2J-2} \rangle - \frac{4}{3} \frac{J}{A} \langle \vec{l} \cdot \vec{\sigma} \rangle \langle r^{2J-2} \rangle] \right\} \end{aligned} \quad (2-8)$$

となり、運動エネルギー、2体の相互作用、スピン軌道結合の3つの寄与に分けることができる。ここで、 t_1 、 t_2 は2体の相互作用のパラメーター、 A は標的核の質量数である。 $J=1$ (M1) の時は、スピン軌道結合からの寄与のみで、その結果は Kurath の総和則と一致する。 $J>1$ では運動エネルギーの寄与が主となる。 $J>1$ で m_j (kinetic) に対する m_j (spin-orbit) の相対的評価は、

$$\frac{m_j (\text{spin-orbit})}{m_j (\text{kinetic})} \simeq -\frac{0.6}{2J-1} + \frac{0.8}{(J-1)(2J-1)} \frac{\langle \vec{l} \cdot \vec{\sigma} \rangle}{A} \quad (2-9)$$

で与えられる。§ 4 で M1 の総和則から求めた $\langle \vec{l} \cdot \vec{\sigma} \rangle$ の値を使って M2 の場合の値を計算するが、スピン軌道結合の寄与は運動エネルギーの寄与の数%である。したがって、 $J>1$

では、その寄与を無視することが出来る。この時、総和則は

$$\begin{aligned} \sum_n \omega_n B_n (MJ\uparrow) &= \frac{(2J+1)^2}{4\pi} \mu_0^2 \left[\mu_0 - \frac{1}{J+1} \right] J(J-1)(2J-1) \\ &\times \frac{A}{8M} \langle r^{2J-4} \rangle (1 + \beta_J) \end{aligned} \quad (2-10)$$

と書ける。ここで β_J は 2 体の相互作用の寄与と運動エネルギーの寄与の比で

$$\beta_J = \frac{m_J(\text{interaction})}{m_J(\text{kinetic})} = \frac{t_1 + t_2}{4} \frac{2M}{A} \frac{\int \rho^2(\vec{r}) r^{2J-4} d^3\vec{r}}{\langle r^{2J-4} \rangle} \quad (2-11)$$

である。 β_J ($J=2, 3$) に対しては、 ^{16}O , ^{40}Ca , ^{90}Zr , ^{208}Pb について計算値があり、 ^{16}O と ^{40}Ca の値を直線フィットして ^{24}Mg の値を求めると、

$$\beta_2 = 0.68, \quad \beta_3 = 0.38$$

となる。しかし、これらの値は、Skyrme 力のモデルに依存する。

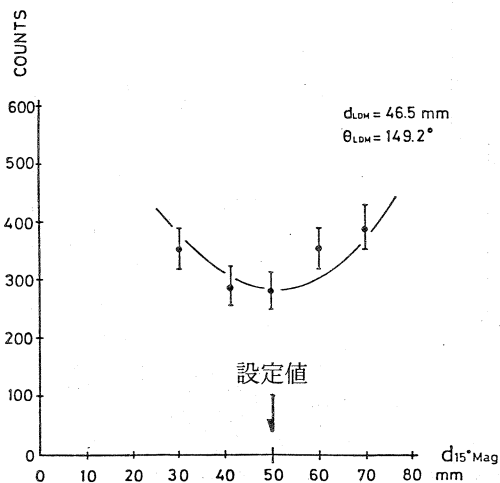
§ 3. 実験及び解析

実験は東北大学原子核理学研究施設の 300 MeV ライナック及び 180° 散乱装置を用いた。入射電子エネルギーその他の条件を第 1 表にまとめて示す。

第 1 表 実験条件。

入射エネルギー	85 MeV	120 MeV	140 MeV	160 MeV
有効運動量移行 ($E_x=10\text{MeV}$)	0.85 fm^{-1}	1.2 fm^{-1}	1.4 fm^{-1}	1.6 fm^{-1}
標 的 核	^{24}Mg	43.3 mg/cm ²	99.96 %	
	^9Be	129.3 mg/cm ²	(規格化用)	

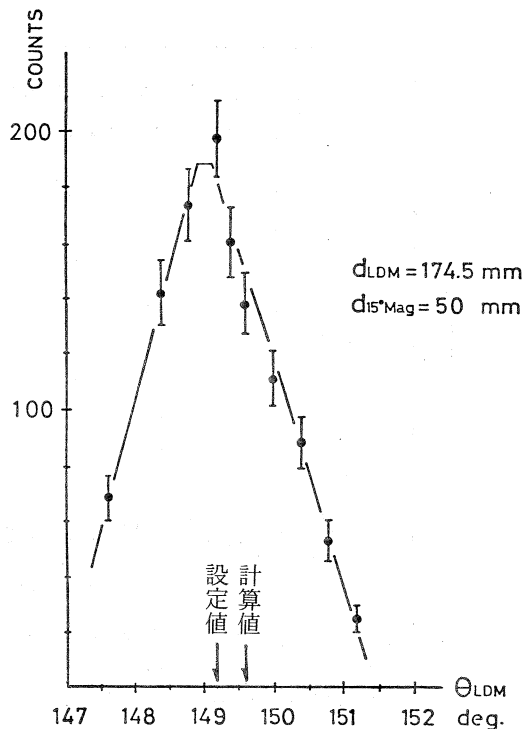
実験方法、 180° 散乱のシステムのチェックの方法については、文献(10-12)に詳しい説明があるので省略する。ここでは、標的核 ^9Be (入射エネルギー 120 MeV) の弾性散乱ピークによるパラボラ・フィット、台形フィットの結果を第 1 図と第 2 図に示すに留める。第 1 図から分かるように、カウントが最大になるような LDM の角度は、実験値と計算値で 0.4° のずれがある。今回の実験では、このずれを取り入れて LDM の角度を設定した。 15° 偏向電磁石の設定値 $d_{15^\circ \text{Mag}}$ は、 180° 散乱以外の寄与を最小にするように第 2 図から求めた値 50 mm を設定した。このようなシステムのチェックを行なった後に測定したスペクトルと 155° で同じ運



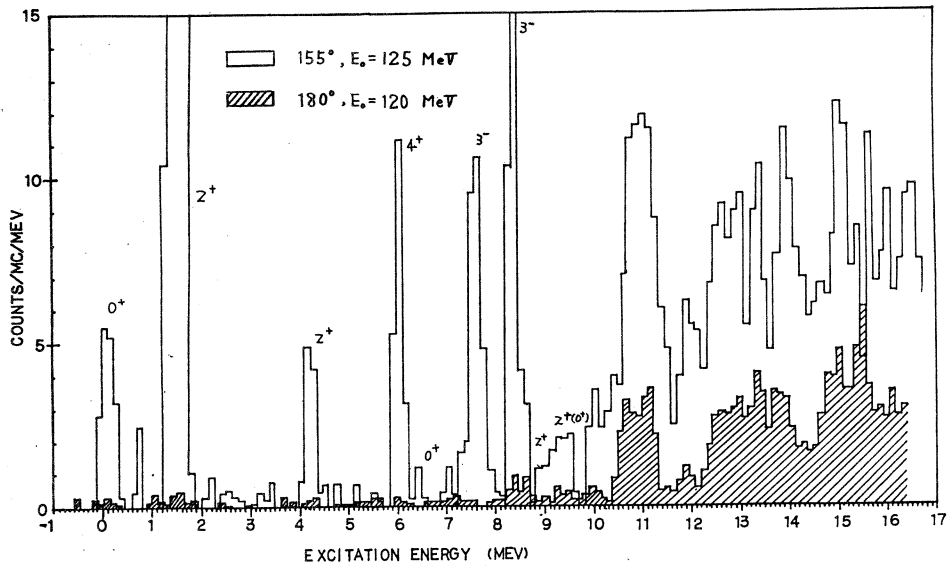
第1図 パラボラフィット。15° 偏向電磁石を前後に移動し⁹Beの弾性散乱の計数の変化を測定する。15° 偏向電磁石の移動は、散乱角の180°からのずれを意味し、180°からずれるとクーロン散乱など180°散乱以外の寄与のために計数がふえる。

動量移行になるように設定して測定したスペクトルを比較のために第3図に示す。180°散乱では、クーロン励起のレベルはすべて姿を消していることが分かる。このことは、180°散乱は純粋に横波成分の情報を与えることを実験的にも証明していると考えられる。

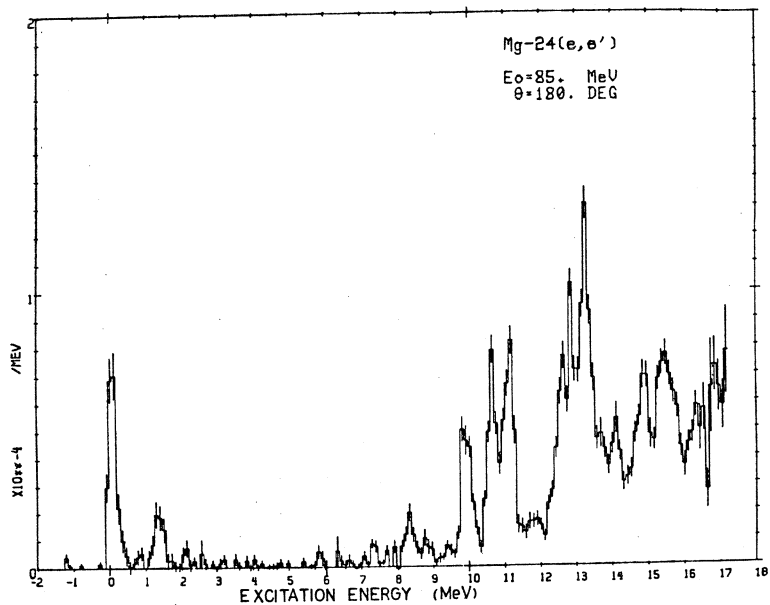
輻射補正は文献11)と同じである。第4図から第7図に²⁴Mgの180°散乱のスペクトルを示す。断面積の絶対値は⁹Be弾性散乱を測定し、それで規格化することによって得られた。各レベルの形状因子は、ピークの幅と位置を固定し、高さのみを変化させる方法で χ^2 二乗フィットによるピーク分離を行なって求めた。準弾性散乱からの寄与と考えられる連続的なバックグラウンドについては、解析する領域が狭いので直線を仮定した。直線の傾きは、 χ^2 二乗が最小になるような値を選んだ。ピーク分離の結果を第8図から第11図に示す。



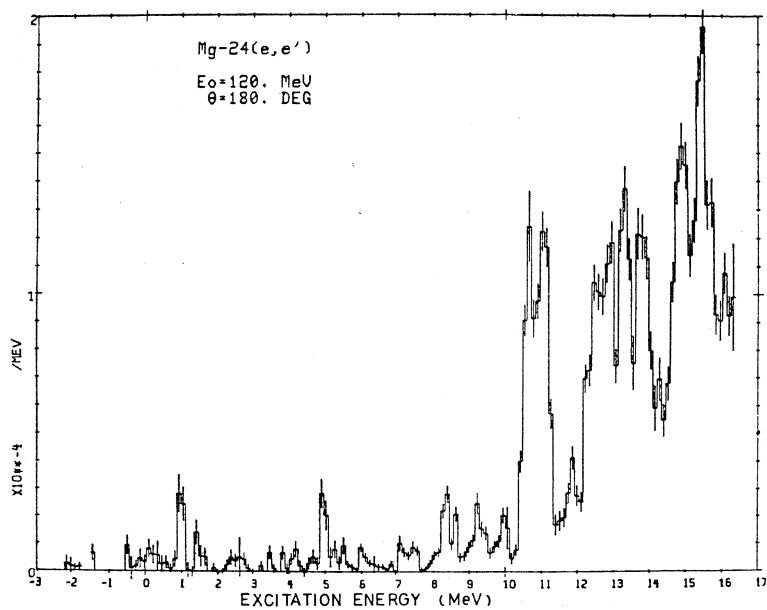
第2図 台形フィット。LDMの磁場を⁹Beの弾性散乱に合せ、計算値のまわりでLDMの設定角をいろいろ変えて、弾性散乱の計数の変化を測定する。計数が最大になる角度と計算値の間に0.4°のずれがある。今回の実験では、計算値から0.4°差し引いた角度をLDMの設定値とした。



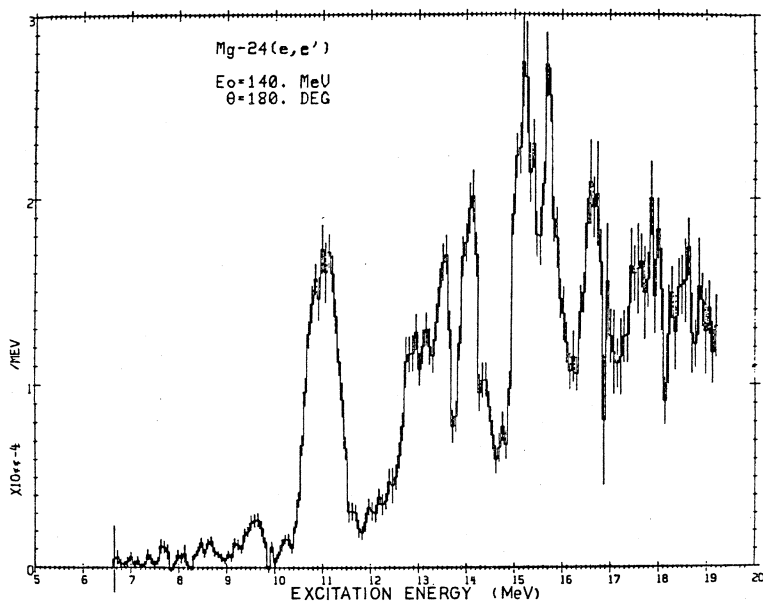
第3図 180°散乱と155°散乱のスペクトルの比較。両方とも同じ運動量移行 $q_{\text{eff}} = 1.2 \text{ fm}^{-1}$ で測定している。180°散乱では、低励起準位の強いクーロン励起のレベルがすべて姿を消していることが分かる。



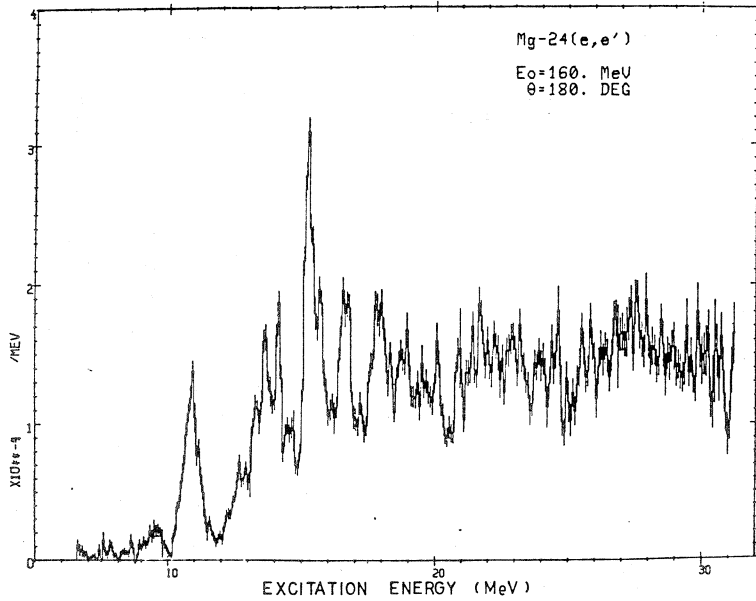
第4図 入射電子エネルギー85 MeVで励起エネルギー0~17 MeVまで測定したスペクトル。スペクトルは、 ${}^9\text{Be}$ の弾性散乱の微分断面積を使って規格化されている。このような入射エネルギーでは、まだクーロン弾性散乱の断面積が大きく、有限な立体角の中にその寄与がまじりこんでいる。そのため弾性散乱のピークが現れている。



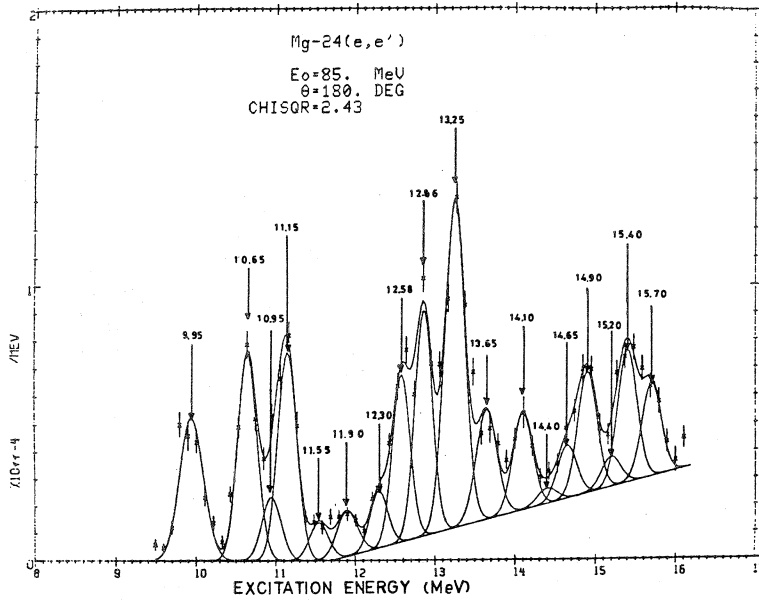
第5図 入射電子エネルギー120 MeVで励起エネルギー0~16.5 MeVまで測定したスペクトル。



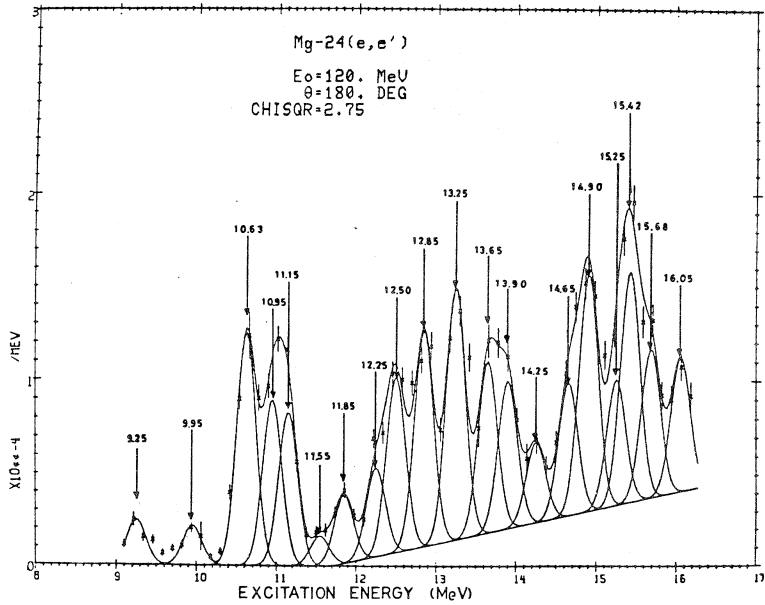
第6図 入射電子エネルギー140 MeVで励起エネルギー6.7~19 MeVまで測定したスペクトル。



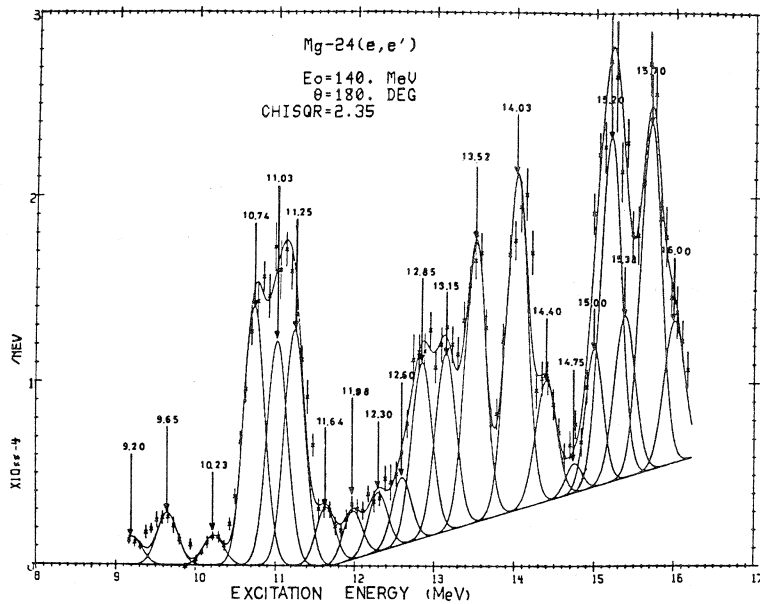
第7図 入射電子エネルギー 160 MeVで励起エネルギー 2.5~31 MeVまで測定したスペクトル。励起エネルギー 22, 27.5 MeV 附近に幅の広いバンブが見られる。



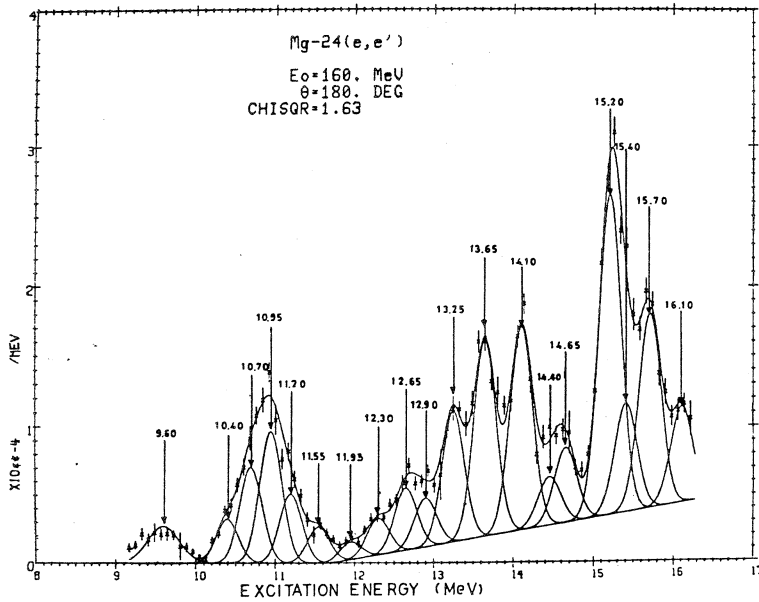
第8図 入射電子エネルギー 85 MeVのスペクトルのうち励起エネルギー 10~16 MeVを χ^2 乗フィットによってピーク分離した結果を示す。直線は準弾性散乱の寄与と思われる連続的なバックグラウンドを表わす。その立ち上りは陽子放出のしきい値11.7 MeVを仮定している。フィッティングパラメーター χ は2.43である。全体的によくフィットしていると言える。



第9図 入射電子エネルギー 120 MeV のスペクトルのうち励起エネルギー 10~16 MeV を χ 二乗フィットによってピーク分離した結果を示す。 $\chi = 2.75$ である。 全体的によくフィットしている。



第10図 入射電子エネルギー 140 MeV のスペクトルのうち励起エネルギー 10~16 MeV を χ 二乗フィットによってピーク分離した結果を示す。 $\chi = 2.35$ で、全体的によくフィットしている。



第11図 入射電子エネルギー 160 MeV のスペクトルのうち励起エネルギー 10~16 MeV を χ^2 乗フィットによってピーク分離した結果を示す。 $\chi = 1.63$ で全体によくフィットしている。

§ 4. 考 察

4.1 単一粒子模型との比較

各レベルのスピンの・パリティのアサインは単一粒子模型を用いて行なった。波動関数の動径部分は、調和振動子のもを使い、振動パラメーター b は、文献 13) と同じ値 1.82 fm を取っている。理論値の絶対値は、実験値に合うように規格化してある。実験点は、歪曲波の効果を考慮して $q_{\text{eff}}^{14)}$

$$q_{\text{eff}} = q \left(1 + \frac{3}{2} \frac{Z e^2}{R E} \right), \quad R = 1.2 A^{-1/3} \quad (4-1)$$

によってプロットしている。

模型については、変形効果を取り入れるなどして今後、精密化する必要がある。次回は Open Shell RPA との比較を行なう予定である。

4.2 M1 転移

^{24}Mg の M1 レベルは、9.94, 10.7 MeV にあることが明らかにされている^{2,3)}。今回の実

実験結果を第2表に示す。第12図に形状因子の理論と実験との比較を示す。

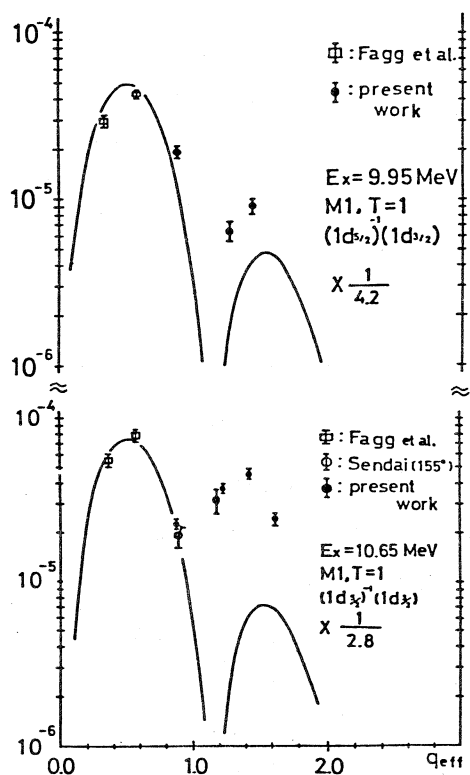
第2表 今回の実験で明らかにされたM1 レベルの性質。

Excitation energy (MeV)	J^π, T	$B(M1 \uparrow) \left(\frac{e\hbar}{2Mc} \right)$		S_1 (%)	Transition	$ F_{1, \text{mag}}^{\text{exp}} ^2 / F_{1, \text{mag}}^{\text{theo}} ^2$
			$B(M1 \uparrow) / 3 B_W$			
9.95 ± 0.10	$1^+, 1$	2.4	0.43	44	$1d_{5/2} \rightarrow 1d_{3/2}$	0.24
10.65 ± 0.11	$1^+, 1$	3.6	0.67	76	$1d_{5/2} \rightarrow 1d_{3/2}$	0.36
				Total 120		

今回の実験で、それらはどちらも $1d_{5/2} \rightarrow 1d_{3/2}$ のスピン反転型転移であることが分かる。これらの2つのレベルが総和則のすべてを尽くすことは、文献2-3)と一致する。しかし、M1の第2ピークまで、形状因子の q 依存性を調べた今回の実験から、第2ピークで異常なエンハンスが起きていることを指摘することが出来る。このような現象は ^{12}C の15.1 MeVのM1レベルでも起きている。 ^{12}C のこの現象を説明するために、 $\Delta(1236)$ 共鳴効果¹⁵⁾、パイ中間子交換電流効果¹⁶⁾、殻偏極効果¹⁷⁾などを取り入れた議論が行なわれている。 ^{12}C 以外の核でそのような現象が起きていることを指摘したのは今回の実験が初めてであり、上に述べたような議論に新たな情報を提供するであろうと思われる。

4.3 M2 転移

第3表に今回の実験によってアサインされたM2レベルをまとめる。第13図にそれらの形状因子の理論と実験値の比較を示す。



第12図 単一粒子模型によって計算されたM1 転移形状因子と実験値との比較。計算では、 $1d_{5/2} \rightarrow 1d_{3/2}$ の転移を仮定している。実験値は、第2ピークで異常に(約6倍)エンハンスしていることが分かる。 b パラメータは1.82fmを用いた。 $\times \dots$ は、理論値を実験値に規格化するための係数の大きさを表わしている。

第3表 今回の実験でアサインされたM2 レベル。

Excitation energy (MeV)	J^π, T	$B(M2\uparrow) \left(\frac{e\hbar}{2Mc}\right)^2 (\text{fm})^2$ $B(M2\uparrow) \sqrt{5} B_W$	S_2 (%) Ska	Transition	$ F_{2,\text{mag}}^{\text{exp}} ^2 / F_{2,\text{mag}}^{\text{theo}} ^2$	
11.15 ± 0.11	2 ⁻ +(2 ⁻), 1	3.3 × 10 ¹ ± 3.3	0.48	0.81	1d _{5/2} → 2p _{3/2}	0.36
		1.6 × 10 ²	2.3	3.9	1d _{5/2} → 1f _{7/2}	0.21
13.25 ± 0.13	2 ⁻ +2 ⁻ , 1	6.3 × 10 ¹ ± 9.4	0.91	1.8	1p _{1/2} → 1d _{5/2}	0.21
		1.2 ± 0.18	0.02	0.03	1p _{1/2} → 1d _{3/2}	0.25
14.40 ± 0.14	2 ⁻ , 1	1.2 × 10 ² ± 2.4 × 10 ¹	1.8	3.7	1d _{5/2} → 2p _{3/2}	0.79
			Total 10			

第4表 Fagg *et al.* 及び Johnston *et al.* によってアサインされているM2 レベル。数値は Weisskopf 単位での転移換算確率を表わしている。

E_x (MeV)	J^π	Fagg <i>et al.</i> (e, e')	Johnston <i>et al.</i> (e, e')
12.67	2 ⁻		0.34 ± 0.13
12.91	2 ⁻	0.50	
13.37	2 ⁻	0.44	0.76 ± 0.26

第4表に Fagg *et al.*¹⁸⁾ 及び Johnston *et al.*¹⁹⁾ によってアサインされたレベルを示す。今回の実験では、13.25 MeV の 1p_{1/2} → 1d_{5/2} のスピン反転型転移が、文献 18, 19) の 13.37 MeV レベルに対応すると考えられる。しかし、12.91 あるいは 12.7 MeV レベルは我々の結果では M3 になっている。

式(2-9)より、スピン軌道結合の寄与を評価すると、

$$\frac{m_2(\text{spin-orbit})}{m_2(\text{kinetic})} \simeq -\frac{0.6}{3} + \frac{0.8}{3} \cdot \frac{14.6}{24} = -0.038 \simeq -4\%$$

すなわち、スピン軌道結合は、運動エネルギーの寄与の4%程度で、転移を抑える方向に寄与することが分かる。また、式(2-10)によって総和則値との比較をすると、

$$S_2 = \frac{m_2(\text{exp})}{m_2} \simeq 0.102 \simeq 10\%$$

すなわち、10~16 MeV 間に観測されるM2 レベルは、総和則値の10%しか尽していないことが分かる。残りの部分は、16 MeV 以上の領域にあると考えられる。第14図にM2 転移強度の

分散の様子を Weisskopf 単位で示す。
最近の Darmstadt での研究⁵⁾から、²⁴Mg のM2 転移強度の中心は 15 MeV 附近に予想されるが、今回の実験では、そのような所に転移強度の中心が存在しないことを示している。

4.4 M3 転移

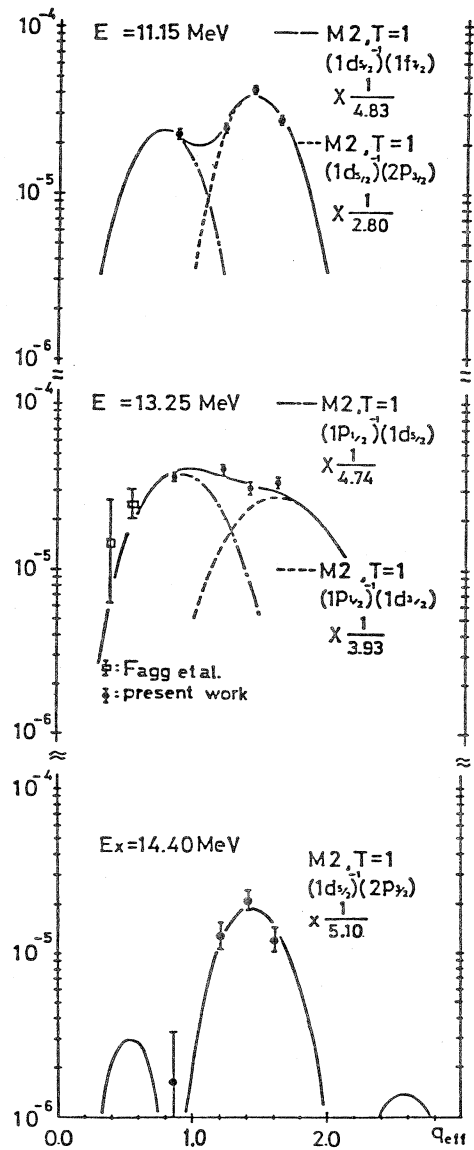
励起エネルギー 10~16 MeV 間には、第5表に示すようなエネルギー・レベルに4つのスピン反転型のM3 レベルがアサインされた。これらのレベルの形状因子の理論との比較を第15図に示す。第16図にこれらのレベルの転移強度の分散の様子を示す。13 MeV 附近に転移強度の集中が見られる。しかし、強度の総和値を総和則値と比較すると

$$S_3 = \frac{m_3(\text{exp})}{m_3} \approx 0.0177 \approx 1.8\%$$

1.8% 程度しか総和則直を尽くしておらず、残りの部分は、16 MeV 以上の領域、特に巨大共鳴領域に存在する可能性が強いと思われる。

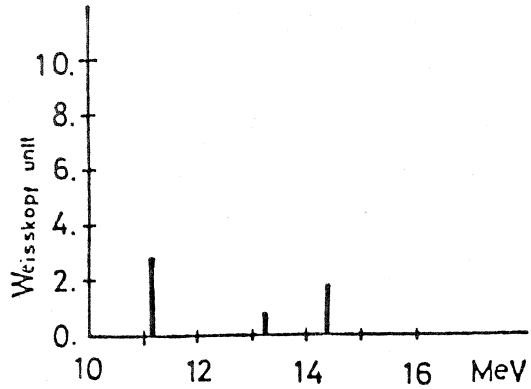
4.5 M4 転移

今回の実験では、10~16 MeV 間に第6表に示すようなエネルギー・レベルに合計6つのM4 レベルがアサインされた。第17図にそれらの形状因子の理論と実験の比較を示す。M4 転移強度の分散の様

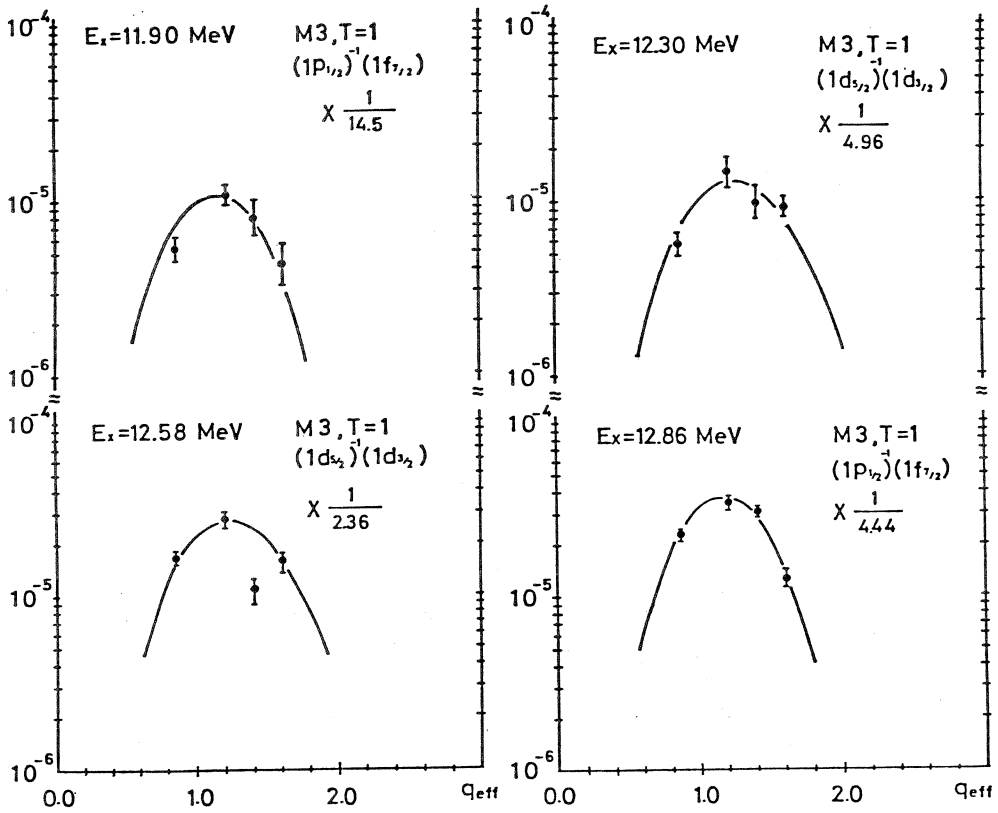


第13図 単一粒子模型によって計算されたM2 転移形状因子と実験値との比較。
 b パラメーターは1.82 fm を用いている。

子を第18図に示す。15 MeV 附近に転移強度の集中することが分かる。また、どのレベルも Weisskopf 単位の 7 ~ 24 倍の強い転移強度を持ち、集団運動の性質を持っていると言えるだろう。M4 転移で注目されるのは、 $1d_{5/2}$ から $1f_{7/2}$ 、 $1f_{5/2}$ 転移において、形状因子の理

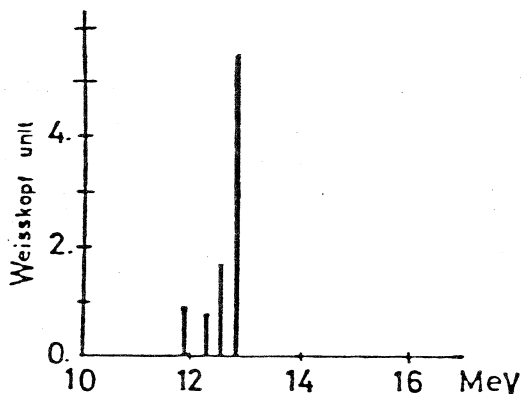


第14図 M2 転移強度の分散。



第15図 単一粒子模型によって計算されたM3 転移形状因子と実験との比較。bパラメータは、1.82 fm を用いた。

論値と実験値の比が大きく異なっていることである。スピン反転型では、その値は1程度で、スピン非反転型では0.2程度である。このことは、スピン反転型とそうでない時とでは、転移の際の核子の固有スピン g 因子が異なっていることを意味しているかも知れない。しかし、この議論は、今回の実験だけではデータが不足していること、モデルのより精密化という問題があるので、ここではこれ以上ふれないことにする。



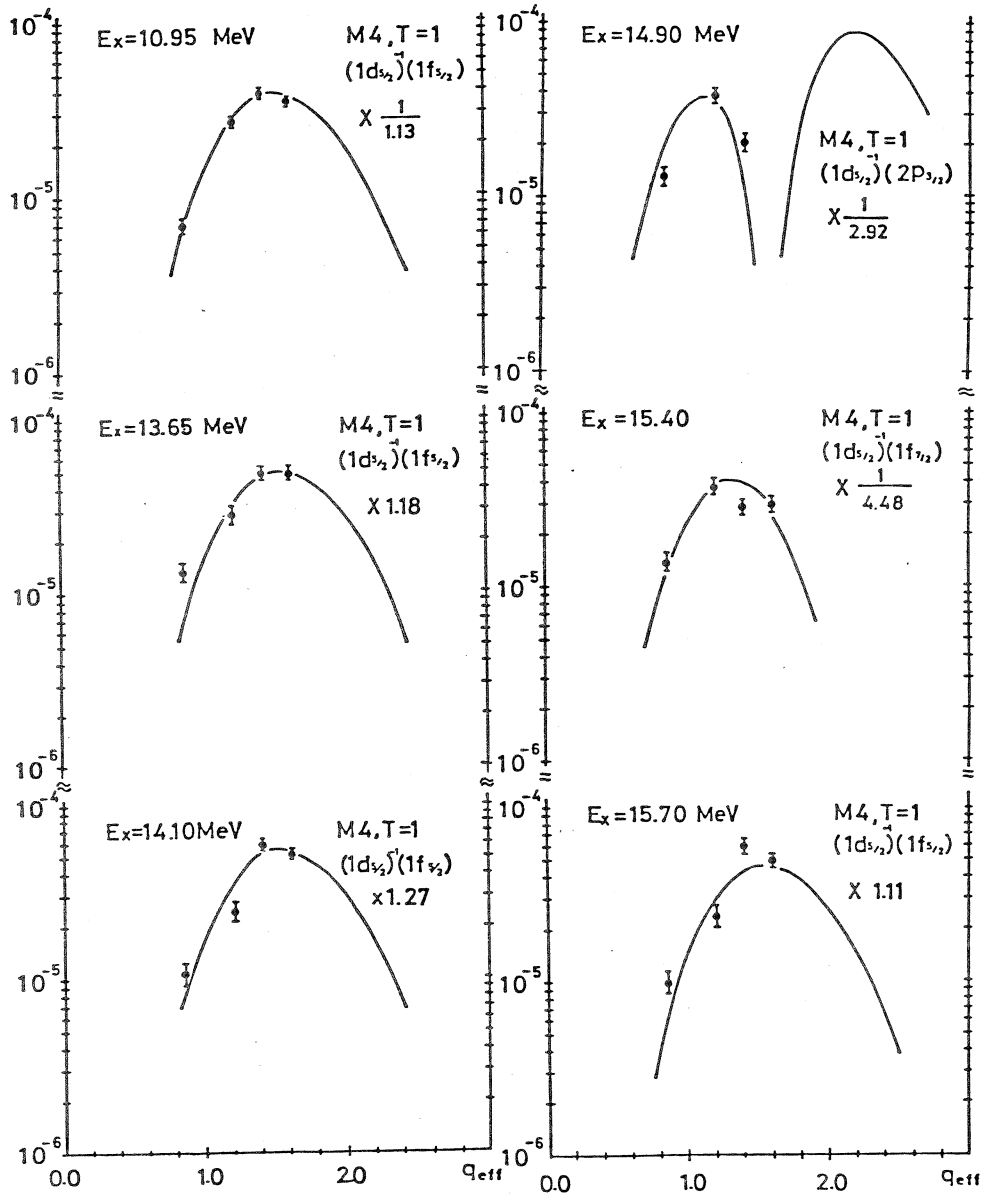
第16図 M3 転移強度の分散。

第5表 今回の実験でアサインされたM3 レベル。

Excitation energy (MeV)	J^π, T	$B(M3\uparrow) \left(\frac{e\hbar}{2Mc}\right)^2 (\text{fm})^4$ $B(M3\uparrow) / 7B_W$	$S_3(\%)$	SKa	Transition	$ F_{3,\text{mag}}^{\text{exp}} ^2 / F_{3,\text{mag}}^{\text{theo}} ^2$
11.90 ± 0.12	$3^+, 1$	$7.5 \times 10^2 \pm 1.1 \times 10^2$	0.95	0.25	$1p_{\frac{1}{2}} - 1f_{\frac{7}{2}}$	0.07
12.30 ± 0.12	$3^+, 1$	$6.4 \times 10^2 \pm 1.3 \times 10^2$	0.80	0.21	$1d_{\frac{5}{2}} - 1d_{\frac{3}{2}}$	0.20
12.58 ± 0.13	$(3^+), 1$	$1.3 \times 10^3 \pm 2.0 \times 10^2$	1.7	0.47	$1d_{\frac{5}{2}} - 1d_{\frac{3}{2}}$	0.42
12.86 ± 0.13	$3^+, 1$	$4.5 \times 10^3 \pm 6.8 \times 10^2$	5.6	0.84	$1p_{\frac{1}{2}} - 1f_{\frac{7}{2}}$	0.23
				Total 1.8		

第6表 今回の実験でアサインされたM4 レベル。

Excitation energy (MeV)	J^π, T	$B(M4\uparrow) \left(\frac{e\hbar}{2Mc}\right)^2 (\text{fm})^6$ $B(M4\uparrow) / 9B_W$	$S_4(\%)$	SKa	Transition	$ F_{4,\text{mag}}^{\text{exp}} ^2 / F_{4,\text{mag}}^{\text{theo}} ^2$
10.95 ± 0.11	$4^-, 1$	$4.9 \times 10^4 \pm 4.9 \times 10^3$	5.1		$1d_{\frac{5}{2}} - 1f_{\frac{5}{2}}$	0.85
13.65 ± 0.14	$4^-, 1$	$6.7 \times 10^4 \pm 1.3 \times 10^3$	7.4		$1d_{\frac{5}{2}} - 1f_{\frac{5}{2}}$	1.18
14.10 ± 0.14	$4^-, 1$	$7.2 \times 10^4 \pm 7.2 \times 10^3$	8.0		$1d_{\frac{5}{2}} - 1f_{\frac{5}{2}}$	1.27
14.90 ± 0.15	$4^-, 1$	$2.2 \times 10^5 \pm 6.6 \times 10^4$	24.0		$1d_{\frac{5}{2}} - 2p_{\frac{3}{2}}$	0.34
15.40 ± 0.15	$4^-, 1$	$1.7 \times 10^5 \pm 1.7 \times 10^4$	18.0		$1d_{\frac{5}{2}} - 1f_{\frac{7}{2}}$	0.23
15.70 ± 0.16	$4^-, 1$	$6.3 \times 10^4 \pm 1.3 \times 10^3$	7.0		$1d_{\frac{5}{2}} - 1f_{\frac{5}{2}}$	1.11



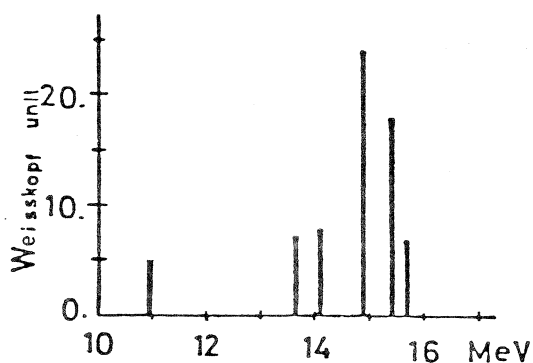
第17図 単一粒子模型によって計算されたM4 転移形状因子と実験との比較。 b パラメターは、1.82 fm を用いた。

4.6 M6 転移

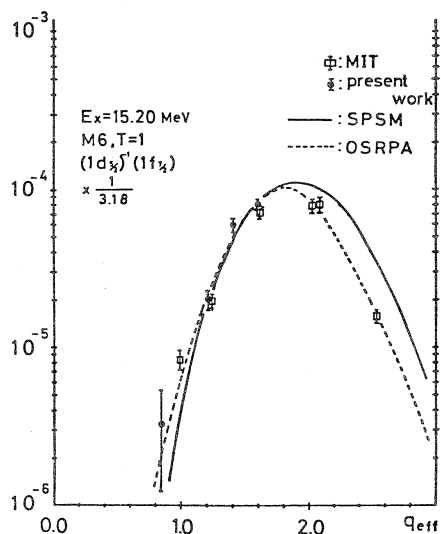
15.14 MeV に強い M6 レベルが存在することが MIT の実験¹³⁾で明らかにされている。今回の実験結果を第7表に示す。第19図にこのレベルの形状因子の理論と実験の比較を示す。第19図を見て分かるように我々の実験結果は、MIT の結果と非常によく一致している。また、これらのデータは Open Shell RPA の計算によく合うことが分かる。

4.7 磁気巨大共鳴

これまで、励起エネルギー10～16 MeV にある離散的なレベルについて議論して来た。しかし、磁気巨大共鳴領域まで測定したスペクトル第7図より分かるように、励起エネルギー22, 27.5 MeV に2つの幅の広いバンパが観測される。これらのバンパは、 q_{eff} の高い所 ($q_{\text{eff}} = 1.6 \text{ fm}^{-1}$) に現われている点から、かなり高い多重極度の磁気巨大共鳴であると期待される。これらのバンパについては早急に実験を行ない形状因子の q 依存性を調べる必要がある。



第18図 M4転移強度の分散。



第19図 単一粒子模型及び Open Shell RPA によって計算された M6 転移形状因子と実験との比較。Open Shell RPA の計算値は文献¹³⁾より引用。 b パラメーターは 1.82 fm を用いた。MIT のデータと我々のデータとはよく一致していることが分かる。

第7表 M6 レベルの性質。

Excitation energy (MeV)	J^π, T	$B(M6\uparrow)\left(\frac{e\hbar}{2Mc}\right)^2(\text{fm})^{10}$ $B(M6\uparrow)/13 B_W$	S_6 (%) SKa	Transition	$ F_{6,\text{mag}}^{\text{exp}} ^2 / F_{6,\text{mag}}^{\text{theo}} ^2$
15.20 ± 0.15	$6^-, 1$	$3.6 \times 10^4 \pm 5.4 \times 10^7$	320	$1d_{5/2} \rightarrow 1f_{7/2}$	0.31

参 考 文 献

- 1) D. Kurath : Phys. Rev. **130** (1963)1525.
- 2) H. W. Kuehne *et al.* : Phys. Rev. **163** (1967) 1278.
- 3) L. W. Fagg *et al.* : Phys. Rev. **171** (1968) 1250.
- 4) L. W. Fagg : Rev. Mod. Phys. **47** (1965) 1.
- 5) W. Knüpfner *et al.* : Phys. Lett. **77 B** (1978) 367.
- 6) T. W. Donnelly : Nucl. Phys. **A150** (1970) 393.
- 7) T. Deforest Jr. and J. D. Walecka : Adv. Phys. **15** (1966) 1.
- 8) R. S. Willy : Nucl. Phys. **40** (1963) 529.
- 9) M. Traini : Phys. Rev. Lett **41** (1978) 1535.
- 10) 鳥塚賀治他：核理研報告 **10** (1977) 177.
- 11) 川添良幸他：核理研報告 **12** (1979) 155.
- 12) 斎藤健治：修士論文。
- 13) H. Zarek *et al.* : Phys. Rev. Lett. **38** (1977) 750.
- 14) G. R. Bishop : *Nuclear Structure and Electro Magnetic Interaction* (Oliver and Boyd, 1964) p. 257.
- 15) E. Greckesch *et al.* : Phys. Lett. **72 B** (1977) 11.
- 16) M. Chemtob *et al.* : Nucl. Phys. **B17** (1970) 401.
- 17) H. Sagawa *et al.* : Nucl. Phys. **A322** (1979) 361.
- 18) L. W. Fagg *et al.* : Phys. Rev. **C1** (1970) 1137.
- 19) A. Johnston and T. E. Drake : J. Phys. A **7** (1974) 898.

電子散乱による ^{24}Mg の巨大共鳴の励起

核理研, サスカチュワン大*

大沢哲†・伊藤広平*・寺沢辰生

斎藤悌二郎・鳥塚賀治

§ 1. 序 論

中重核に於いて, アイソスカラーの四重極巨大共鳴 ($\Delta T=0$, GQR) が発見¹⁻⁴⁾ されて以来, sd 殻核に於いても GQR ($\Delta T=0$) が励起エネルギー $E_x = 63 A^{-\frac{1}{3}}$ MeV に集中して存在するかどうか注目されて来た。入射エネルギーが 150 MeV の (α , α') の実験に依り, それまで低いエネルギーのハドロン散乱の実験では見られなかった GQR が, $^{20,22}\text{Ne}$ と ^{28}Si の sd 殻核に於いて $E_x = 63 A^{-\frac{1}{3}}$ に集中している事が明らかになった⁵⁾。その後の実験により, GQR は他の sd 殻核に於いても系統的に存在する事が判った^{6,7)}。ところが, 最近の高分解能の (α , α') の測定は, sd 殻核の GQR が 1 個のピークではなくて, いくつかのピークに依って構成されている事を示している⁸⁾。

我々は, この GQR の分散の様子を明らかにし, 同時に双極子巨大共鳴 (GDR) や八重極巨大共鳴 (GOR) 等の分散の様子を調べる為に, ^{24}Mg の散乱電子スペクトルを $E_x \approx 35$ MeV まで測定した。その結果について報告する。

§ 2. 実験条件

第1表に掲げた入射電子エネルギーと散乱角で電子散乱の実験を行ない, $0.37 \sim 1.29 \text{ fm}^{-1}$ の運動量移行の領域に亘って合計10個のスペクトルを測定した。標的に使用した ^{24}Mg は, 純度 99.96% の薄い金属板である。150 MeV 30° , 40° の測定では厚さ 7.42 mg/cm^2 の標的を使い, それ以外の条件では, 厚さ 42.5 mg/cm^2 の標的を使用した。

全体としてのエネルギー分解能は, 入射エネルギーの約 0.12% である。励起エネルギーの測定精度は, ^{12}C の強く励起される $E_x = 15.1 \text{ MeV}$ と 16.1 MeV のピークを使って調べた結果, $\pm 50 \text{ keV}$ であった。入射エネルギーの 102 MeV と 125 MeV のスペクトルは, 散乱断面積の横

† 現在, 高エネルギー物理学研究所 茨城県筑波郡大穂町

第1表 実験条件。

入射エネルギー	散乱角	標的の厚さ
150 MeV	30°, 40°	7.42 mg/cm ²
200 MeV	35°, 45°, 55°, 65°, 75°, 85°	42.5 mg/cm ²
102 MeV	155°	42.5 mg/cm ²
125 MeV	155°	42.5 mg/cm ²

成分を調べる為に散乱角 $\theta = 155^\circ$ で測定した。これらの入射エネルギーは、運動量移行がそれぞれ 200 MeV 55° と 75° の場合に対応する様に選んであり、この二個のデータは、30°～85° で測定されたスペクトルから今の場合には不要な横成分を分離し差し引くのに使用した。

§ 3. 解析及び結果

測定したスペクトルに輻射補正をした後、弾性散乱の断面積を基準にして非弾性散乱の断面積を決定した。²⁴Mg の弾性散乱の断面積はフェルミ型の電荷分布 $\left\{ 1 + \exp\left(\frac{r-c}{t}\right) \right\}^{-1}$ を使って計算した⁹⁾。パラメータは $c = 2.94$ fm, $t = 2.36$ fm である^{10,11)}。次にスペクトルの縦成分と横成分の分離を行なった。 $\theta = 30^\circ \sim 85^\circ$ で測定されたスペクトルは殆んどが縦成分であり、横成分はあらゆる領域に於いて 1/10 以下である。以後分離された縦成分についてのみ考察する。

²⁴Mg のスペクトルには沢山のピークが見られるが、個々のピークは必ずしも一個の状態に対応せず、いくつかの状態の集合と考えられる。そこで小さなエネルギー幅で分割して、各エネルギーごとに多重極成分の分離を行なう必要がある。測定の分解能を最大限に生かす為に、多重極成分の分離を 300 keV のエネルギー幅で行なった。

分離の方法は次の如くである。微分断面積は、運動量移行 q_i ($i = 1 \sim 8$) を変えて 8 点測定されている。この 8 個の断面積を次の関数 $y(q_i, \omega_k)$ が最も良く再現する様に係数 a_j ($j = 1 \sim 4$) を決める¹²⁾ (第 4 図参照)。

$$y(q_i, \omega_k) = \sum_{j=1}^4 a_j |X_j(q_i, \omega_k)|^2 \quad (k = 1 \sim N)$$

$X_j(q_i, \omega_k)$ は多重極励起状態の q 依存性を表わす形状因子である。上の操作を必要な励起エネルギーまで繰り返して ($k = 1 \sim N$)、各スペクトルの多重極成分を決定する。各スペク

トルは、双極子 (C1), 四重極 (C2), 八重極 (C3) 及び 16 重極以上 $\left(\sum_{l=4}^6 Cl\right)$ の励起に分離される。 $a_j |X_j(q_j, \omega_k)|^2$ が C_j 多重極遷移の断面積である。

^{24}Mg の様に比較的軽い核の場合には、GDRは Goldhaber-Teller 模型¹³⁾ が良く合うという理論¹⁴⁾ 及び実験¹⁵⁾ が有るので、GDRの形状因子の計算にはこの模型を用い、それ以外の多重極の場合には Tassie 模型¹⁶⁾ を用いた。この形状因子を使って ^{24}Mg のスペクトルを多重極成分に分離した結果が、第1図である。C1, C2の形状因子は第2図の実線で表わされている。 c_0, t_0 は基底状態の電荷分布を表わすパラメータである¹⁰⁾。

^{24}Mg は変形しているので、その変形の効果が高励起状態の形状因子に反映される可能性がある。その効果が多重極成分の分離の結果にどの様に影響するかを調べる為に、Suzuki-Roweの遷移電荷密度¹⁷⁾ を使って C1 ($K=0, 1$) と C2 ($K=0, 1, 2$) の形状因子を計算した。 K は巨大共鳴の対称軸方向の角運動量成分である。これらの形状因子は、第2図に点線及び一点鎖線で示されている。

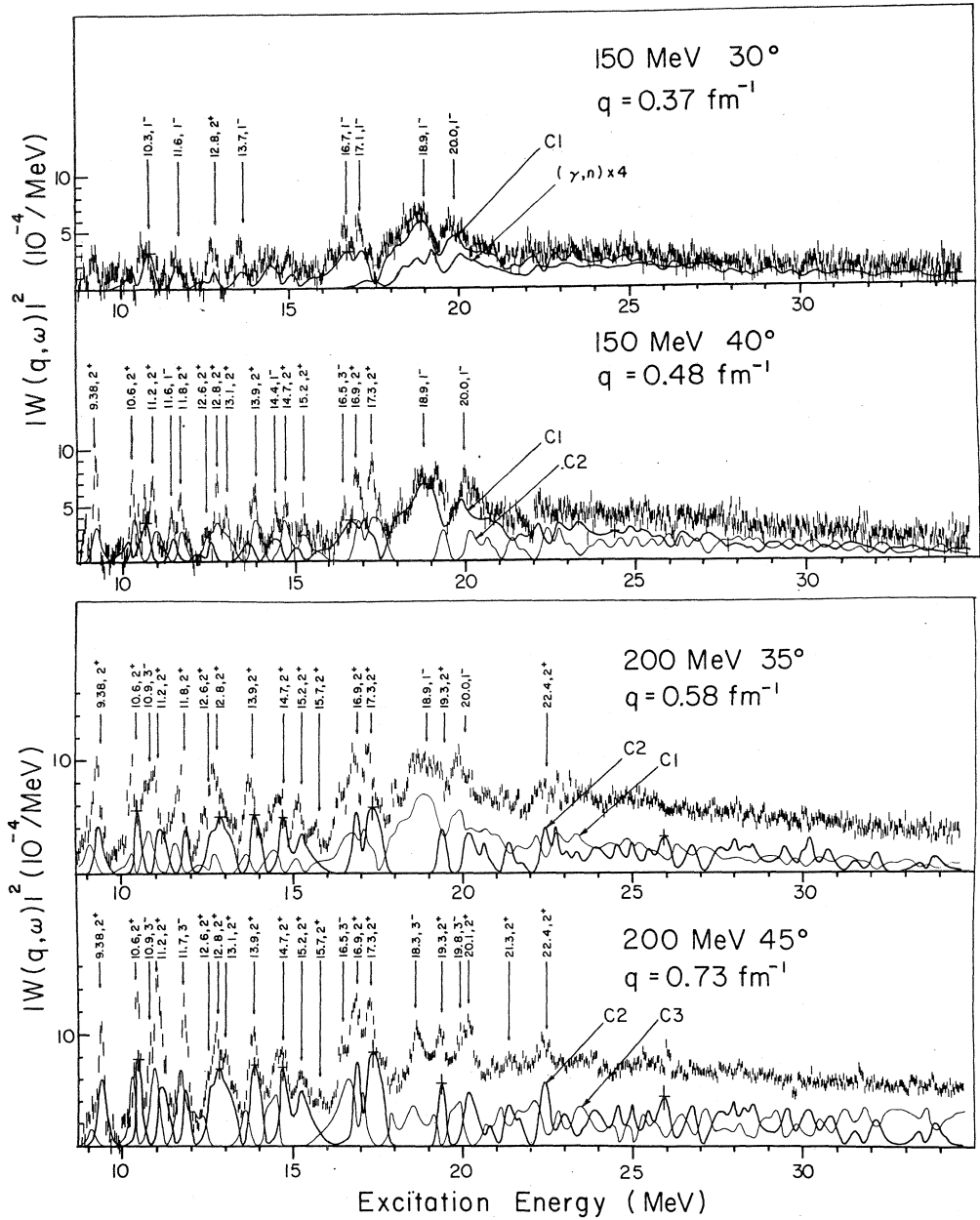
次の形状因子の組み合わせの場合について多重極成分を分離した。 K の組み合わせで表わすと $(K(C1), K(C2)) = (0, 0), (0, 2), (1, 0), (1, 2)$ の4組である。C2では $K=0$ と $K=1$ で形状因子の q 依存性があまり変わらないので、 $K=1$ は形状因子の組み合わせから除いた。第3図の影の部分が、多重極成分の分離に使う形状因子の組み合わせを種々変えた場合の変化を表わす。量子数 K が異なると形状因子の q 依存性が大きく変わるにもかかわらず、多重極成分を分離した結果を見ると、成分の大きさは変化しても形は殆んど変わらないことが判る。

第4図に顕著なピークの形状因子とその多重極成分に分離した結果を示す。

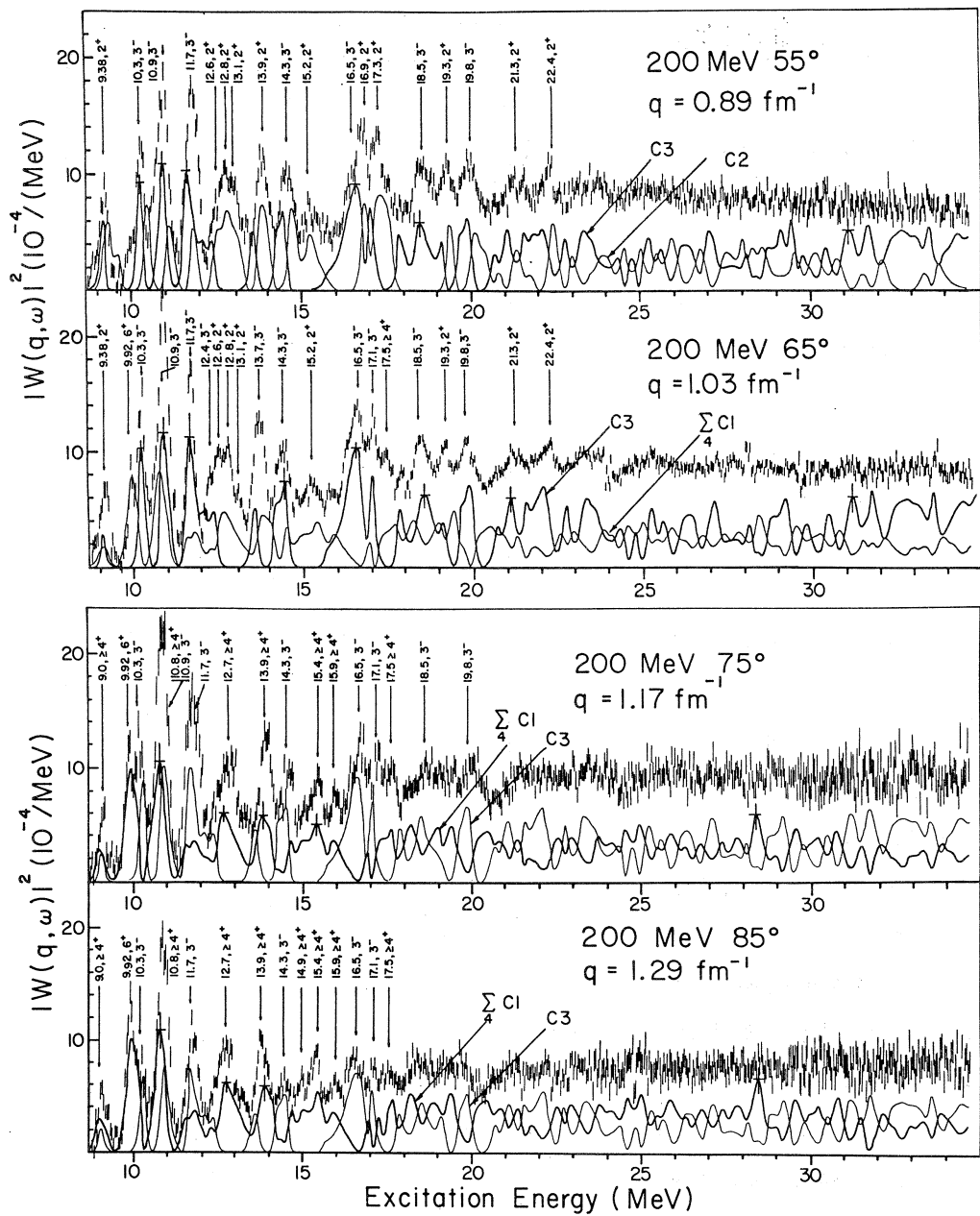
§ 4. 考 察

4.1 解析の信頼性

スペクトルを多重極成分に分離する為には、多重極共鳴の形状因子を前もって計算しておく必要がある。この計算には模型による遷移電荷密度を用いざるを得ないので、形状因子は模型に依存したものとなる。従ってスペクトルを多重極成分に分離した結果も必然的に模型に依存したものと成るが、問題は模型に依って結果がどの程度変化するかという事である。形状因子の形は第2図の様に模型によって大きく変わるが、多重極成分に分離した結果は第3図のごとく極端な変化を示さない。これは分離の結果が模型に特有なものではなく、正しい情報を与



第1図 ^{24}Mg のスペクトルと主な多重極成分。



第1図 (続き)。

えており、信頼出来るものであることを示している。

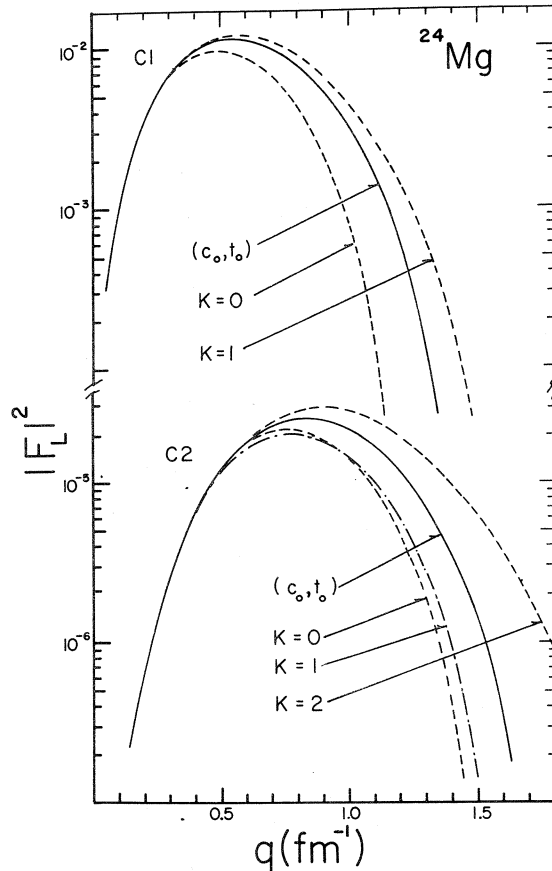
4.2 他の実験結果との比較

各多重極成分が分離されたので、各成分の各ピークに対してそれぞれ換算遷移確率 $B(CI)$ と、エネルギーの重み付き総和則 (EWSR) に占める割合が判る。これらの値をまとめたものが第2, 3, 4表である。 $B(CI)$ の誤差は $\pm 10\%$ 程度であると考えられる。

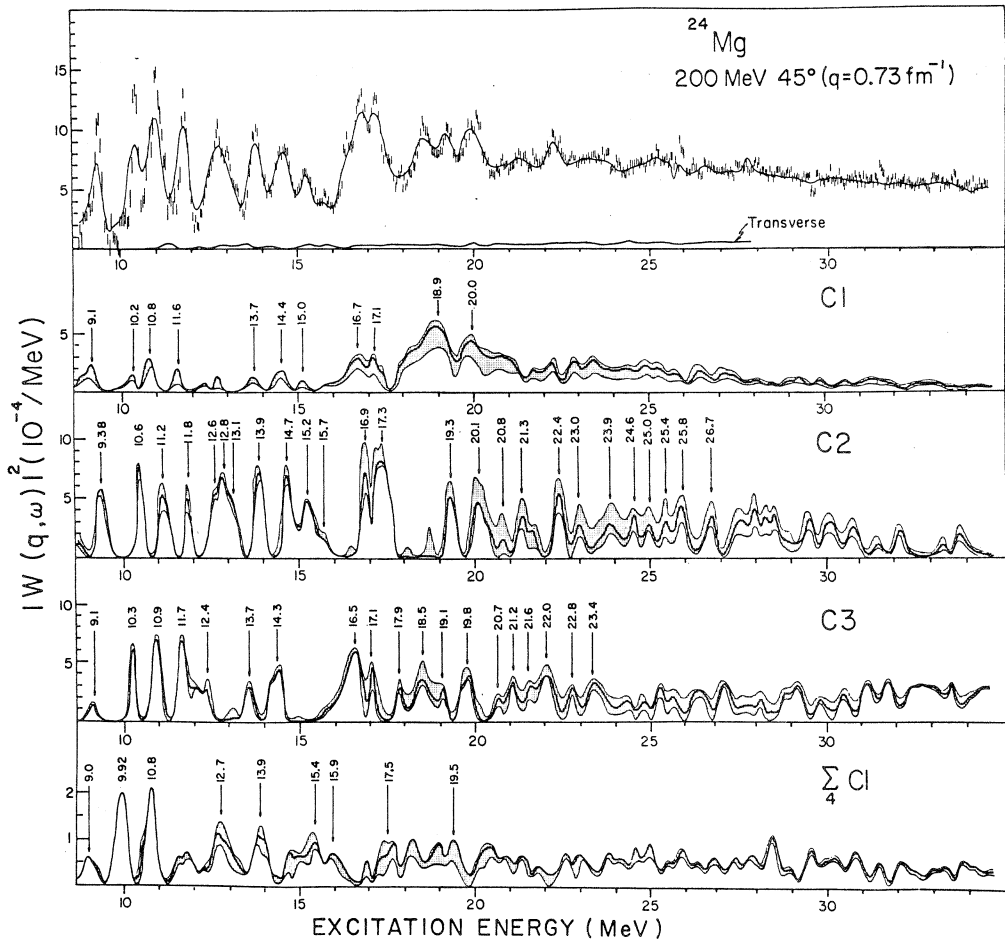
4.2.1 C1成分について

第1図は測定されたスペクトルとその主な多重極の成分を表わしている。C1成分が殆んどである $150 \text{ MeV } 30^\circ$ のスペクトルには、C1の顕著なピークが 16.7 MeV , 17.1 MeV , 18.9 MeV 及び 20.0 MeV に見られる。第2表から判る様に、C1遷移強度は、 $E_x = 34 \text{ MeV}$ まで積算すると $GDR (\Delta T = 1)$ のEWSRの85%を占める。

(r, n) のスペクトル¹⁸⁾を我々のデータと比較する為に、 (r, n) の断面積を Goldhaber-Teller 模型のC1形状因子の q 依存性を使って電子散乱の断面積に変換して、第1図に書き入れた。この形は電子散乱の結果と非常に良く似ている。しかし大きさは合わない。 (r, n) の実験結果では、 $E_x = 16.5 \sim 28.0 \text{ MeV}$ に存在するC1遷移強度はEWSRの16%であるのに対し、我々の電子散乱の測定では対応する領域にEWSRの67%のC1遷移が観測された。この値は (r, n) で測定された値の4倍である。これは他の崩壊モードが主であることを暗示し



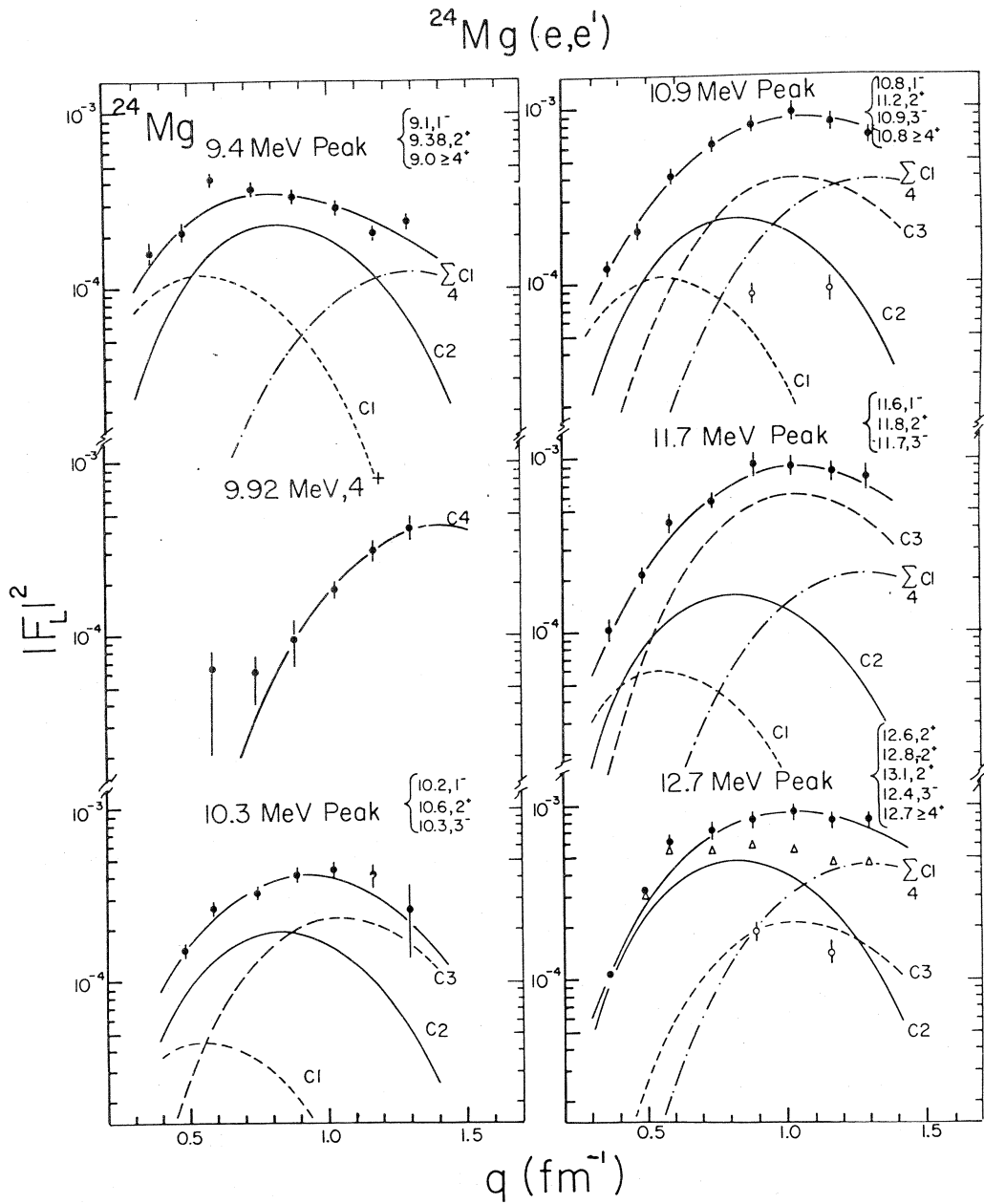
第2図 C1, C2の形状因子。Kは対称軸方向の角運動量成分である。



第3図 ^{24}Mg の 200 MeV 45° に於けるスペクトルの多重極成分。影の部分は、第2図の異なる形状因子を使った場合にどれだけ結果が変化するかを表わす。

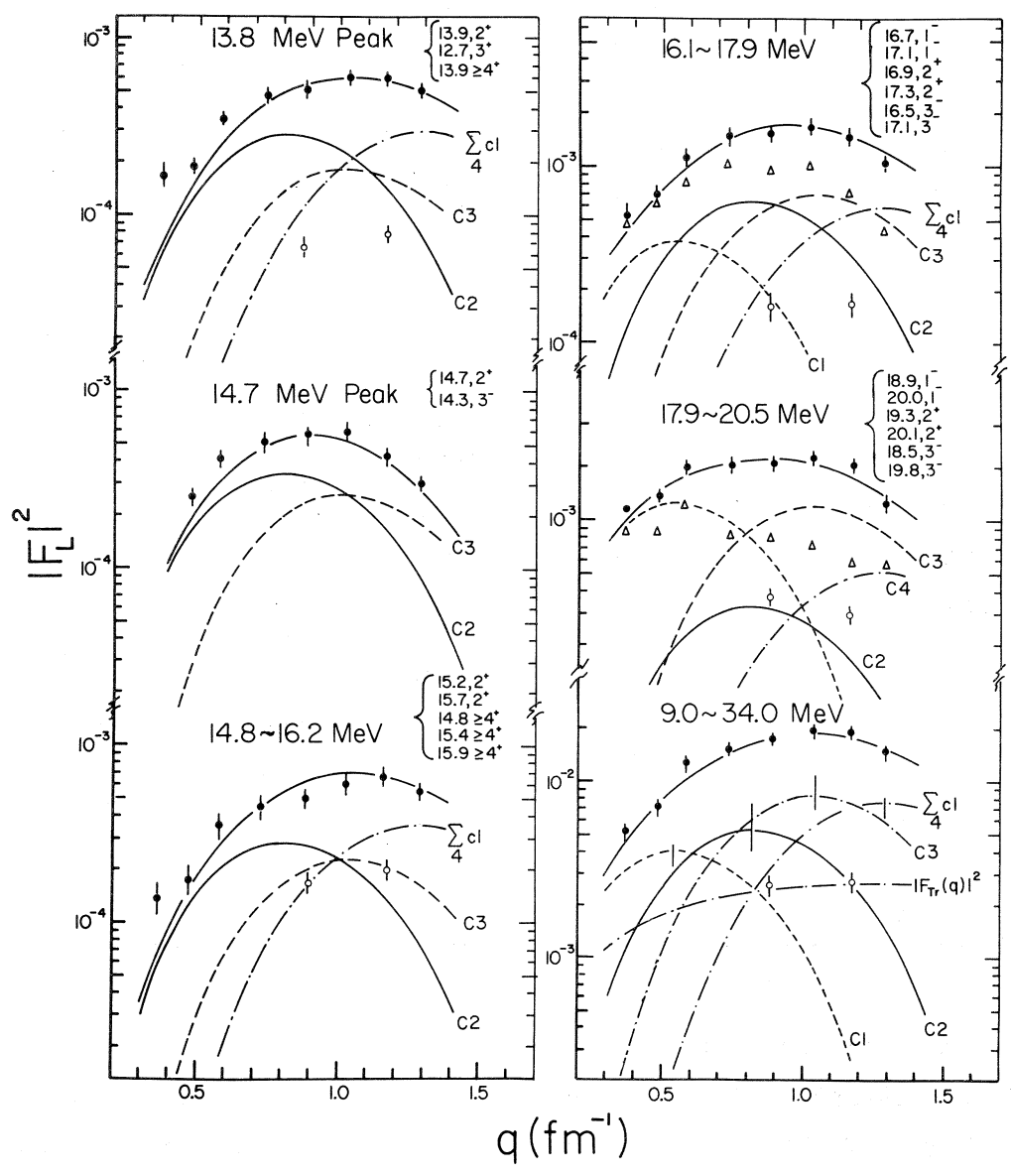
ている。Morinaga は ^{24}Mg の (r, n) と (r, p) の分岐比の相対値を統計模型から $1:3.6$ と予想した¹⁹⁾ が、この値を使うと大きさについても (e, e') と (r, n) はほぼ一致している。

又、全吸収断面積 (r, tot) ²⁰⁾ は、我々の実験の C1 成分と形も大きさも共にほぼ合っている。我々のスペクトルで $E_x = 17 \text{ MeV}$ に見られる大きなピークは、 (r, n) ではしきい値 (16.5 MeV) の関係で強く現われないが、 (r, tot) でははっきり見られる。これは陽子放出のしきい値が 11.6 MeV であるためである。



第 4.1 図 顕著なピークの形状因子とその多重極成分の分離。

$^{24}\text{Mg}(e,e')$



第 4.2 図 顕著なピークの形状因子とその多重極成分の分離。

第2表 $B(C1, \uparrow)$ と EWSR に対する遷移強度 (S_1)。

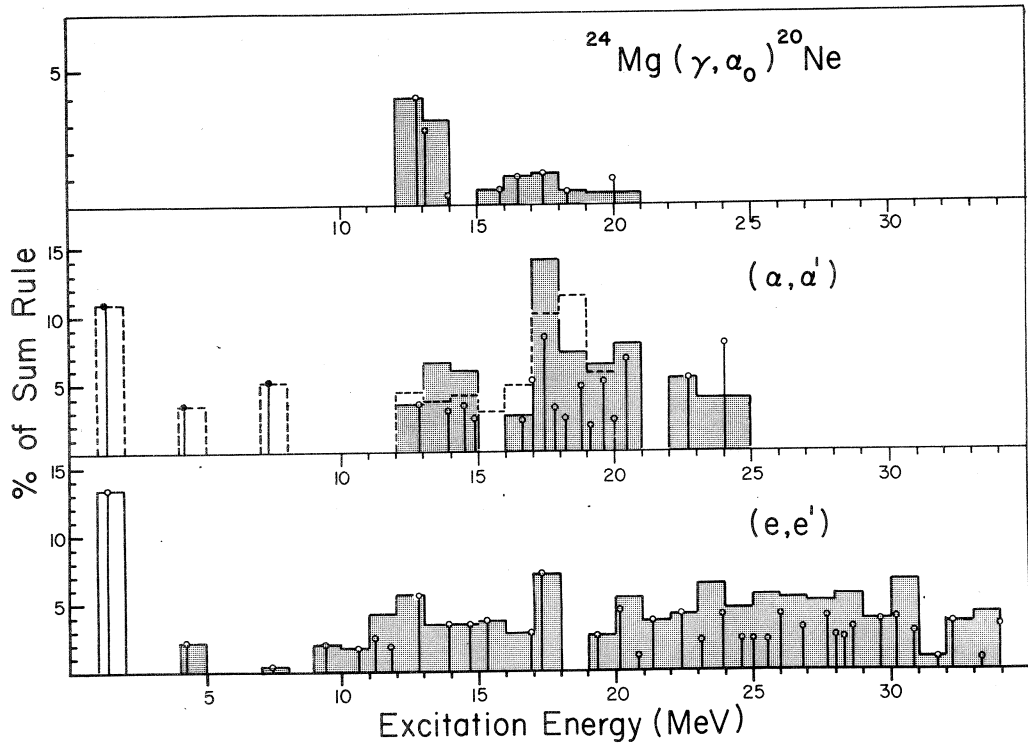
E_x (MeV)	$B(C1, \uparrow)$ ($e^2 \text{fm}^2$)	S_1 (%)	E_x (MeV)	S_1 (%)
9.1	0.11	1.1		
10.2	0.039	0.44		
10.8	0.10	1.2		
11.6	0.054	0.71		
13.7	0.043	0.67		(r, n)
14.4	0.077	1.2		
15.0	0.026	0.45	16.9	0.16
16.7	0.22	4.2	17.3	0.29
17.1	0.12	2.3	17.6	0.015
			18.3	0.84
18.9 (17.7-19.5)	0.75	15.9	18.8	1.1
20.0 (19.5-20.3)	0.33	7.5	19.2	0.79
			20.0	2.0
20.3-21.4	0.28	6.5	20.4	0.29
			20.9	1.2
21.4-25.0	0.77	20.0		
			21.5	0.41
25.0-28.0	0.39	10.5	22.4	0.27
			23.1	2.0
28.0-31.0	0.22	6.5	25.0	4.2
			27.5	3.2
31.0-34.0	0.16	5.8	16.5-28.0	16.7
9.0-34.0	3.69	84.9		

4.2.2 C2 成分について

第1図と第3図のスペクトルには、20個以上のC2のピークが見られ、 ^{24}Mg のC2のピークは中重核の場合と異なり、広いエネルギー領域に亘って分散していることが判る。これらのC2の遷移強度を(α, α')^{8,21)}と(α, r_0)²²⁾反応の結果と比較したのが第5図である。強く励起されたC2のうち、 $E_x=12.6\text{ MeV}$, 12.8 MeV , 13.1 MeV , 13.9 MeV , 16.9 MeV 及び 17.3 MeV に存在するC2の励起エネルギーは、 α 散乱の結果⁸⁾と100 keVの精度で一致しており、全体としてはかなり良く合っている。しかし詳しく比較すると不一致も見られる。例

第3表 $B(C2, \uparrow)$ と EWSR に対する遷移強度 (S_2)。 (α, α') と (α, r_0) のデータは文献8, 21 と 22 による。

E_x (MeV)	$B(C2, \uparrow)$ ($e^2 \text{ fm}^4$)	S_2 (%)	E_x (MeV)	S_2 (%)	E_x (MeV)	S_2 (%)
1.37	617	18.4				
4.23		3.3				
7.34	0.9	0.2				
9.38	9.4	1.9				
10.6	7.6	1.7				
11.2	9.7	2.4				
11.8	6.8	1.8				
			(α, α')		(α, r_0)	
12.6					12.8	4.0
12.8	20.0	5.6	12.8	3.5		
13.1			13.1	3.6	13.1	2.8
					13.9	0.4
13.9	11.3	3.4	13.9	3.0		
			14.5	3.3		
14.7	10.7	3.4	14.9	2.5		
15.2					15.8	0.6
15.7	11.0	3.7	16.6	2.3	16.5	1.1
16.9	7.5	2.7	17.0	5.3		
			17.4	8.4		
17.3	19.0	7.1	17.8	3.1	17.4	1.2
			18.2	2.5	18.2	0.5
19.3	6.3	2.6	19.1	4.8		
			19.6	5.2	20.0	1.0
20.1	10.0	4.3	20.0	2.3		
			20.4	6.8		
20.8	2.1	0.9	21.1	(2.7)		
			21.4	(2.8)		
21.3	7.8	3.6				
22.4	8.4	4.1	21.7	5.4		
			24.0	7.0		
23.0-25.0	20.6	10.1				
25.0-28.0	29.4	17.0				
28.0-31.0	28.5	18.3				
31.0-34.0	10.0	7.0				
0-34.0	977.5	123.5				



第5図 C2のEWSRに対する遷移強度の分布。(α, α')と(α, α₀)のデータは、文献8, 21と22による。

例えば、α散乱では $E_x = 16.6$ MeV と 18.2 MeV にC2が測定されているが、我々の実験の解析では、これらのピークはC2ではなくてC3であるという結果を得た。さらに、電子散乱で得られたC2の遷移強度は、α散乱で得られた強度よりも小さいことが判った(第3表参照)。その理由には、今回の電子散乱の解析ではC1, C2, C3, $\sum_{l=4}^6 C_l$ と4種類の多重極共鳴を考慮したのに対して、α散乱の実験では殆んどのピークをC2と見なしていることが考えられる。尚(γ, α₀)で遷移強度が小さいのは、分岐比が小さいためである。

4.2.3 C3の成分について

今回の測定でもうひとつの興味ある特徴は、多数のC3のピークが $E_x = 9 \sim 34$ MeV に存在していることである。これらのC3の強度は、 $E_x = 31$ MeV まで加え合わせると、EWSRを尽す値となる(第4表参照)。我々の測定結果は、C3がC2と同様に広いエネルギー領域に亘って幅の狭いピークに分散して存在していることを示している。この特徴は、C3の集中²³⁾が見られる中重核の場合とは著しく異なっている。

第4表 $B(C3, \uparrow)$ と EWSR に対する遷移強度 (S_3)。

E_x (MeV)	$B(C3, \uparrow)$	$10^3 e^2 fm^6$	S_3 (%)
7.62	3.62		12.8
8.36	3.35		14.5
9.1	0.04		0.2
10.3	0.26		1.4
10.9	0.47		2.7
11.7	0.71		4.3
12.4	0.24		1.5
13.7	0.21		1.5
14.3	0.31		2.3
16.5	0.78		6.6
17.1	0.18		1.6
17.9	0.18		1.7
18.4	0.36		3.5
19.1	0.13		1.9
19.8	0.34		3.5
20.7	0.12		1.3
21.1	0.23		2.5
21.6	0.20		2.2
22.0	0.42		4.8
22.8	0.18		2.1
23.4	0.41		4.9
23.9-25.0	0.26		3.3
25.0-28.0	1.04		9.3
28.0-31.0	0.92		14.1
31.0-34.0	1.51		25.5
0-34.0	16.4		129.0

§ 5. まとめ

^{24}Mg の散乱電子スペクトルを $q = 0.37 \sim 1.29 \text{ fm}^{-1}$ に亘って8点測定し、各スペクトルを C1, C2, C3, $\sum_{l=4}^6 C_l$ の多重極成分に分離した。分離された ^{24}Mg の C1 は, (r, n) や $(r, \text{tot})^{20}$ のスペクトルと形が良く似ており、分岐比を考慮すれば遷移強度もほぼ一致

する。

注目されたC2は、20個以上のピークに分かれて $E_x = 34$ MeV に至るまで広く分布している。強く励起されたピークのうち、 $E_x = 12.6$ MeV, 12.8 MeV, 13.1 MeV, 13.9 MeV, 16.9 MeV 及び 17.3 MeV のピークは α 散乱の結果⁸⁾と 100 keV の精度で一致している。しかし α 散乱の実験でC2とした $E_x = 16.6$ MeV と 18.2 MeV の強く励起されたピークは、我々の解析ではC3であった。

又、分離されたC3の成分は、C2と同様に広いエネルギー領域に亘って沢山のピークに分散しており、中重核に於ける様な集中は観測されなかった。

これらのC1, C2, C3の各成分は $E_x = 34$ MeV までその遷移強度を積算すると、EWSRの値を尽す。

参 考 文 献

- 1) Y. Torizuka *et al.*: *Proc. Int. Conf. Nuclear Structure Studies using Electron Scattering and Photoreaction, Sendai, 1972*, Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **10** (1972) Suppl. p171.
- 2) S. Fukuda and Y. Torizuka: *Phys. Rev. Lett.* **29** (1972) 1109.
- 3) R. Pitthan and Th. Walcher: *Phys. Lett.* **36 B** (1971) 563.
- 4) M. B. Lewis and F. E. Bertrand: *Nucl. Phys.* **A 196** (1972) 337.
- 5) K. T. Knöpfel *et al.*: *Phys. Lett.* **64 B** (1976) 263.
- 6) D. H. Youngblood *et al.*: *Phys. Rev. C* **13** (1976) 994.
- 7) J. M. Moss *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **34** (1975) 748.
- 8) F. E. Bertrand *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **40** (1978) 635.
- 9) D. R. Yennie *et al.*: *Phys. Rev.* **95** (1954) 500.
- 10) A. Nakada and Y. Torizuka: *J. Phys. Soc. Jpn.* **32** (1972) 1.
- 11) C. W. DeJager *et al.*: *Atom. Data and Nucl. Data Tables* **14** (1974) 479.
- 12) P. R. Bevington: *Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences* (McGraw - Hill, 1969).
- 13) M. Goldhaber and E. Teller: *Phys. Rev.* **74** (1948) 1046.

- 14) W. D. Myers *et al.* : Phys. Rev. C **15** (1977) 2032.
- 15) C. U. Mayer-Böriche : *Proc. Sendai Conf. Electro-and Photoexcitations, Sendai, 1977*, ed. Y. Kawazoe, Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **10** (1977) Suppl. p 53.
- 16) L. J. Tassie : Austr. J. Phys. **9** (1956) 407.
- 17) T. Suzuki and D. J. Rowe : Nucl. Phys. **A 292** (1977) 93.
- 18) S. C. Fultz *et al.* : Bull. Am. Phys. Soc. **14** (1969) 103.
- 19) H. Morinaga : Phys. Rev. **97** (1955) 1185.
- 20) B. S. Dolbilkin *et al.* : Nucl. Phys. **72** (1965) 137.
- 21) G. C. Yang *et al.* : Phys. Rev. C **13** (1976) 1376.
- 22) E. Kuhlman *et al.* : Phys. Rev. C **11** (1975) 1525.
- 23) J. M. Moss *et al.* : Phys. Rev. Lett. **37** (1976) 816.

電子散乱による ^{148}Sm と ^{152}Sm の巨大共鳴の励起

—変形核に於ける四重極巨大共鳴の分離—

核理研, ソビエト連邦科学アカデミー*

大沢哲†・B. S. Dolbilkin*・水野義之

小黑瞬・寺沢辰生・斎藤悌二郎・鳥塚賀治

§ 1. 序 論

球形の中重核に於いては、 $E_x \approx 63 A^{-\frac{1}{3}} \text{MeV}$ に非常に集中したアイソスカラーの四重極巨大共鳴 ($\Delta T = 0$, GQR) が存在することが、近年明らかになった^{1,2)}。球形核では $80 A^{-\frac{1}{3}} \text{MeV}$ に見られる双極子巨大共鳴 (GDR) は、変形核では二つに分離することが光核反応の実験で明らかにされており^{3,4)}、GQRも変形核では分離するのではないかと興味を持たれている。流体模型によれば、変形核の場合は、GQRが核の対称軸方向の角運動量成分 K によって $K = 0, 1, 2$ の3成分に分離すると予想される^{5,6,7)}。又、原子核の圧縮率の情報が得られるので特に興味深い単極子巨大共鳴 (GMR) の存在が最近の実験に依って確定しようとしているが^{8,9,10,11)}、変形核ではこのGMRも分離すると予想している理論がある¹²⁾。

球形核に於いては $\Delta T = 0$ のGQRは詳しく調べられてきたが、 $\Delta T = 1$ のGQRはあまり研究が進んでいないのが現状である。

我々は変形核の巨大共鳴、特にGQRがどの様に分離するかを調べる為に、球形核である ^{148}Sm と変形核である ^{152}Sm を標的にして電子散乱の実験を行なった。両者のスペクトルを比較して原子核の変形が巨大共鳴に及ぼす影響を調べたので、それについて報告する。

§ 2. 実験条件

GQRのピークはGDRのピークと重なって測定されるので、両者が異なったピークであることを確認する都合上、GDRが強く励起される運動量移行 q から、GQRが強く励起される q までを含んでいる運動量移行の領域 $q = 0.38 \sim 0.64 \text{ fm}^{-1}$ の領域に亘って、 ^{148}Sm と ^{152}Sm のスペクトルをそれぞれ5点測定した。入射エネルギーと散乱角は第1表の通りである。スベ

† 現在、高エネルギー物理学研究所 茨城県筑波郡大穂町

クトルの比較を容易にする為に、同じ条件で ^{148}Sm と ^{152}Sm の各スペクトルを $E_x \approx 35\text{ MeV}$ まで測定した。使用した標的は薄い金属板で、純度は ^{148}Sm が $96.40 \pm 0.10\%$ であり、 ^{152}Sm は 99.18% である。標的の厚さは第1表の通りである。

第1表 実験条件。

入射エネルギー	散乱角	q	標的の厚さ (^{148}Sm) ,	(^{152}Sm)
150 MeV	30°	0.38 fm ⁻¹	4.63 mg/cm ²	5.20 mg/cm ²
150 MeV	35°	0.45 fm ⁻¹	50.1 mg/cm ²	5.20 mg/cm ²
183 MeV	35°	0.54 fm ⁻¹	50.1 mg/cm ²	28.8 mg/cm ²
180 MeV	40°	0.60 fm ⁻¹	50.1 mg/cm ²	28.8 mg/cm ²
215 MeV	35°	0.64 fm ⁻¹	50.1 mg/cm ²	28.8 mg/cm ²

§ 3. 輻射補正

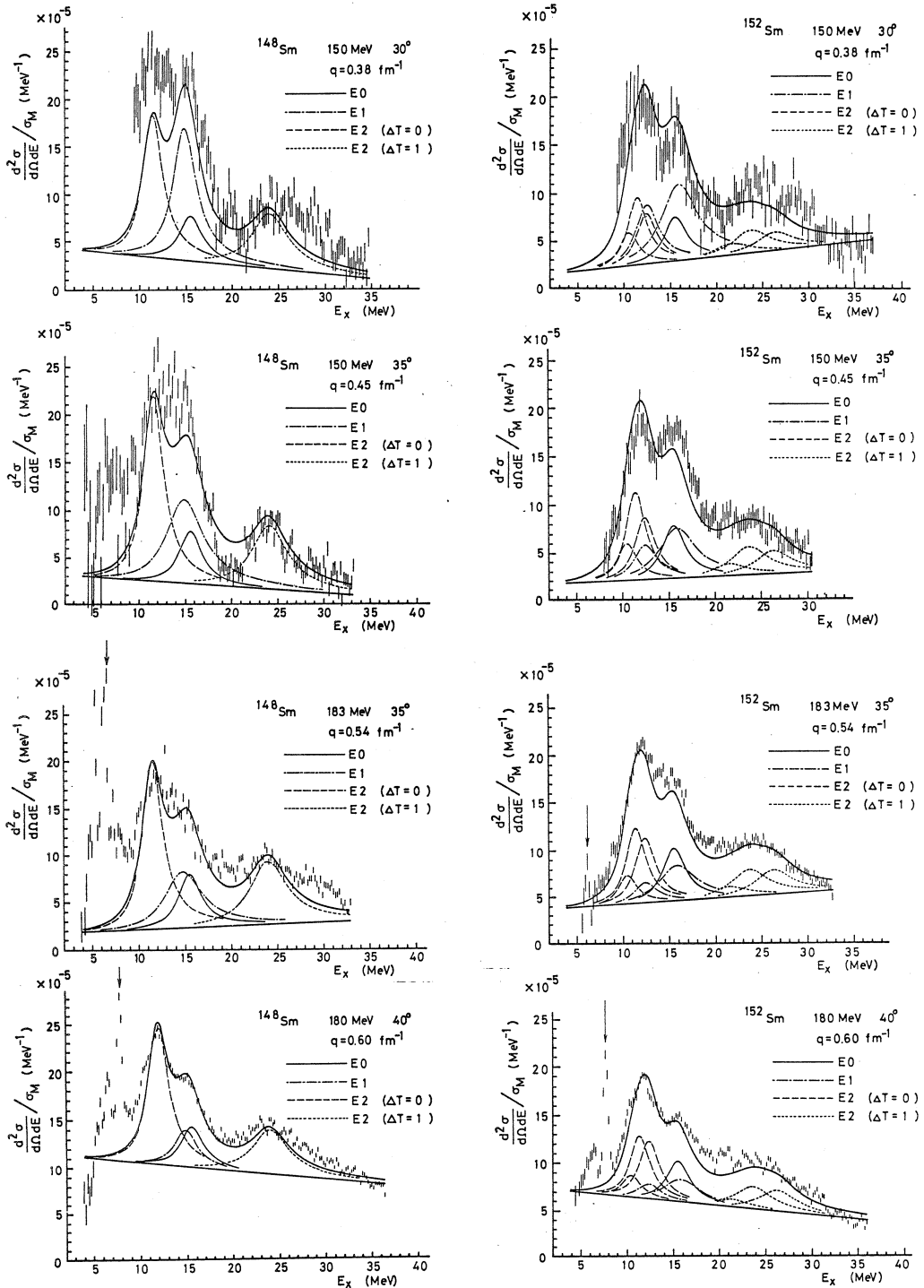
電子散乱のスペクトルでは、巨大共鳴は弾性散乱の裾 (radiation tail) の上に、幅の広いピークの集まりとして観測される。弾性散乱の裾の断面積は大きいので、その評価が正確でないと正しい巨大共鳴の断面積が得られない。裾の断面積を計算する場合に、総ての電子が標的の中心で散乱されるとする従来の近似は、原子核が重くなると精度が悪くなる¹³⁾。そこでこの点を改善して輻射補正を行なった¹⁴⁾。その結果、従来の方法では巨大共鳴領域に於いて弾性散乱の裾をやや過少評価していたが、新しい方法に依りこの領域の断面積がより正確に決められた。第1図の実験値は、この方法を使って輻射補正した後のスペクトルである。

非弾性散乱の断面積は、弾性散乱の断面積を基準に決定した。弾性散乱の断面積の計算には既に決定されているフェルミ型の電荷分布を使用した^{15, 16, 17)}。

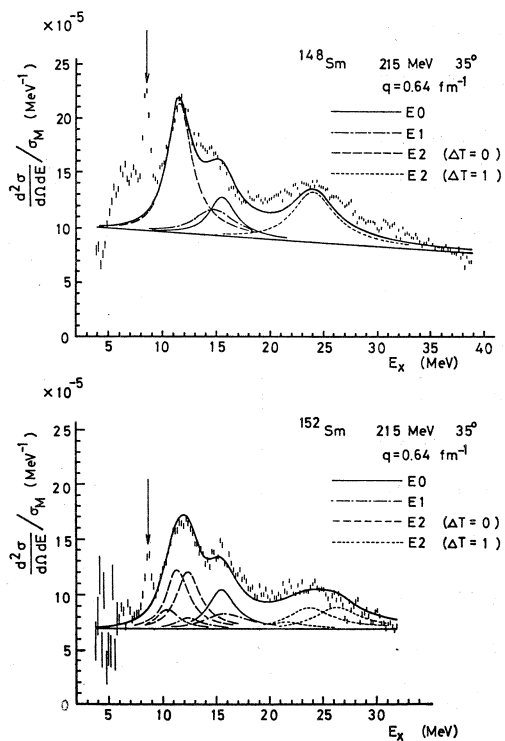
§ 4. 解 析

Suzuki 理論^{5, 6)}の予想値は巨大共鳴の実験結果と非常に良く一致することが ^{238}U の場合に示された¹⁸⁾ので、 ^{148}Sm と ^{152}Sm のデータもこの理論に基づいて議論する。

Suzuki 理論に依れば、変形核のGDRとGQRは核の対称軸方向の角運動量成分 K によって、それぞれ2個及び3個のピークに分離する。分離するエネルギーの大きさは、基底状態の変形度 (ニルソンの変形パラメータ δ で表わされる) に因って決まる。この理論の予想するピークの中心エネルギーを第4表に載せる。



第1図 ¹⁴⁸Smと¹⁵²Smのスペクトル、曲線は Suzuki 理論の予想する巨大共鳴の各成分である。形はローレンツ型を仮定した。中心エネルギーと幅については第2表と第3表を参照のこと。



第1図(続き)。

第2表 ^{148}Sm の巨大共鳴の中心エネルギーと幅。

E_x (MeV)	$E_x A^{\frac{1}{3}}$	Γ (MeV)	J^π	ΔT
14.8	78.3	5.1	1^-	1
11.5	60.8	2.8	2^+	0
15.5	82.0	3.2	0^+	0
24.0	126.9	5.0	2^+	1

Suzuki - Rowe の遷移電荷密度 (第2図) を使って EWSR の100% を尽くすとした時の断面積 (第3図) を, DWBA で計算し, 測定したスペクトルと比較する。総ての巨大共鳴にローレンツ型を仮定して, 上で与えられた遷移強度で各スペクトルが良く再現される様に中心エネルギー及び共鳴の幅を決めた。但し, GDR の場合には (r, n) の実験値⁴⁾ を使用する。その様にして決めた値を第2表と第3表に載せる。適当なバックグラウンドを仮定すれば, 測定されたスペクトルは Suzuki 理論に依ってかなり良く再現される。

§ 5. 考 察

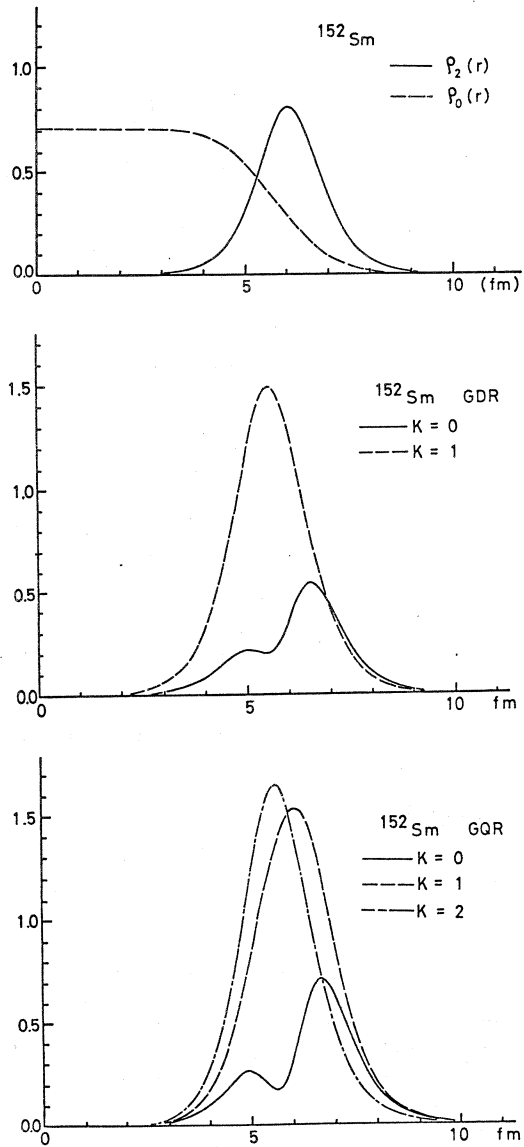
5.1 アイソベクトルの GDR について

GDR の場合には, (r, n) の実験によって遷移強度と共鳴の中心エネルギー及び共鳴の幅が既に詳しく調べられている⁴⁾ ので, これらの値を使用して測定したスペクトルとの比較をする。¹⁴⁸Sm と ¹⁵²Sm の

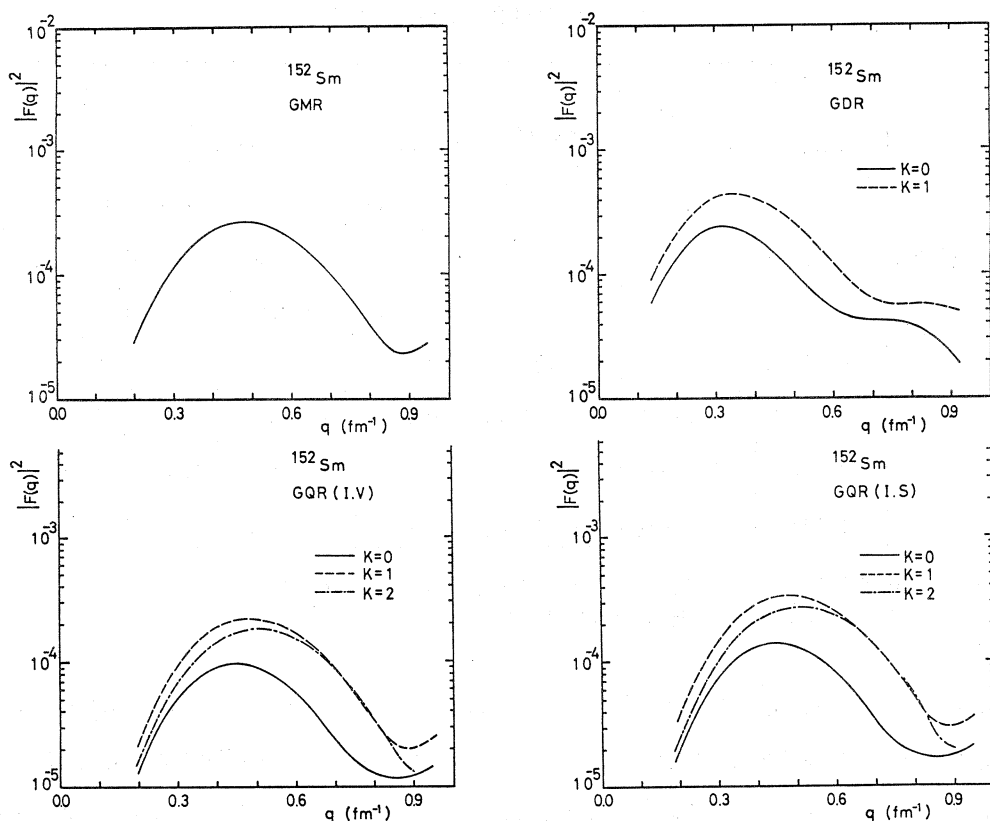
これらの実験値を, それぞれ第2表と第3表に載せる。¹⁵²Sm の基底状態の変形パラメータを使って, Suzuki 理論で計算した GDR の二個のピークの中心エネルギー (第4表) は, 第2表と第3表の実験値と非常に良く合っている。

5.2 アイソスカラーの GQR について

¹⁵²Sm と ¹⁴⁸Sm のスペクトルを比較すると, ¹⁵²Sm の GQR 領域のピークは ¹⁴⁸Sm のこの領



第2図 Suzuki 理論での遷移電荷密度



第3図 Suzuki 理論による巨大共鳴の形状因子。

第3表 ^{152}Sm の巨大共鳴の中心エネルギーと幅。

E_x (MeV)	$E_x A^{1/3}$	Γ (MeV)	J^π	ΔT	K
{ 12.4	66.4	3.2	1^-	1	0
{ 15.8	84.6	5.1	1^-	1	1
{ 10.5	56.0	2.6	2^+	0	0
{ 11.4	60.8	2.7	2^+	0	1
{ 12.4	66.2	2.8	2^+	0	2
15.5	82.7	3.2	0^+	0	0
{ 21.5	114.7	5.0	2^+	1	0
{ 23.7	126.5	5.0	2^+	1	1
{ 26.3	140.4	5.0	2^+	1	2

第4表 巨大共鳴の中心エネルギー。

	アイソ・スカラー			アイソ・ベクター							
	Suzuki	Zawischa	Present exp.	Suzuki	Zawischa	Present exp.					
GDR	/			14.8 MeV	/		14.8 MeV	¹⁴⁸ Sm			
				12.1 MeV			12.0 MeV	12.45 MeV	¹⁵² Sm		
				16.1 MeV			15.0 MeV	15.85 MeV			
GQR	10.9 MeV	/		26.4 MeV	/		24.0 MeV	¹⁴⁸ Sm			
	9.9 MeV			11.0 MeV			10.5 MeV	24.0 MeV	19.5 MeV	21.5 MeV	¹⁵² Sm
	10.4 MeV			12.0 MeV			11.4 MeV	25.2 MeV	22.5 MeV	23.7 MeV	
	11.9 MeV			13.0 MeV			12.4 MeV	28.8 MeV	25.5 MeV	26.3 MeV	

Suzuki 及び Zawischa の理論値はそれぞれ文献 4 と 6 に依る。
GDR の実験値は、文献 7 の実験値と同じとした。

域のピークよりも 2 MeV ほど幅が広がっている。又、¹⁵²Sm のこの領域の断面積はピークとして見ると不規則で非対称な形をしているため、単一のローレンツ共鳴曲線では再現されない。しかし GDR の場合のように明確な分離は見られない。これは核変形に依って分離するエネルギー（ ~ 2 MeV）よりも、 K の異なる各成分が持っている幅（ ~ 3 MeV）のほうが大きいためであると考えられる。変形核 ¹⁵²Sm の GQR は、球形核 ¹⁴⁸Sm の GQR よりも 2 MeV ほど幅が広く測定されただけで、ピークの明確な分離は観測されなかったが、Suzuki 理論で予想されるエネルギー（ ~ 2 MeV）だけ変形核 ¹⁵²Sm の GQR が K によって分離していると考えて矛盾はない。測定されたスペクトルは、Suzuki 理論の予想する断面積で良く再現される。GQR の各ピークの中心エネルギーについては、実験値に対して Suzuki 理論の予想値は、 $4T=0$ ではやや小さく $4T=1$ ではやや大きい値になっている。これは EWSR の遷移強度が一個の状態に完全に集中しているとしたため、相関が実際よりも強くなっているのが原因であると考えられる。

変形核の GQR は ¹⁸¹Ta と ¹⁵⁴Sm について、それぞれ (e, e') ^{19,20)} と (α, α') ⁸⁾、 (p, p') ⁹⁾ で測定されたが、分離のエネルギーは比較的小さくて我々の結果と矛盾しない。又、最近の理論¹²⁾では小さな分離エネルギーを予想しており、その結果とも矛盾しない。

前述の (p, p') ⁹⁾ と (α, α') ⁸⁾ では、¹⁵⁴Sm の中心エネルギーを 12.5 ± 0.4 MeV と報告し

ており、我々の測定値 11.5 MeV よりも約 1 MeV 高い。一方 (e, e') で測定された ^{142}Nd と ^{150}Nd の GQR の中心エネルギーは、それぞれ $E_x = 12.0$ MeV と 11.2 MeV である²¹⁾。この値のほうは、我々の ^{148}Sm と ^{152}Sm の測定 11.5 MeV と矛盾しない。

5.3 アイソスカラーの GMR について

α 粒子の小角散乱⁸⁾ では、 ^{144}Sm (球形核) の単極子巨大共鳴 (GMR) が $E_x = 15.0 \pm 0.5$ MeV (幅 $\Gamma = 2.9 \pm 0.5$ MeV) に在ると報告している。又、(p, p') の実験では、 ^{144}Sm と ^{154}Sm (変形核) の GMR を $E_x = 15.5 \pm 0.5$ MeV ($\Gamma = 2.9 \pm 0.5$ MeV) に見つけたと報告している。

我々のスペクトルでも、 $E_x = 15.5$ MeV に EWSR の 100% を尽くす GMR を考えないとスペクトルはととも再現出来ない。GMR をここに仮定するとスペクトルは良く説明される。

理論的には、変形核で GMR が二つに分離する可能性が指摘されている¹²⁾。その位置は非摂動エネルギー $2\hbar\omega_z$ (対称軸方向の振動モード) と $2\hbar\omega_\perp$ (対称軸に垂直な振動モード) の近くである。 ^{152}Sm の場合には、これらの値はそれぞれ 11 MeV と 18 MeV である。

我々のデータでは、 ^{152}Sm と ^{148}Sm で GMR の位置が変化していないとして矛盾しない。この状況は、 ^{144}Sm の (p, p')⁹⁾, (α , α')⁸⁾ による実験でも同様である。しかし我々のデータからは、GMR の分離を否定することは出来ない。

5.4 アイソベクトルの GQR について

^{148}Sm と ^{152}Sm のスペクトルには、共に $E_x \approx 24$ MeV 付近に非常に幅の広いピークが見られる。この部分には、EWSR を尽くすアイソベクトルの GQR のみを仮定したが、これだけでは断面積が小さくて十分に説明されない。この部分には、 $\Delta T = 1$ の GQR 以外にも他の多重極共鳴の寄与を考える必要があるであろう。

5.5 アイソスカラーの GOR について

$E_x = 20$ MeV 前後の断面積は、今まで考えてきた多重極だけでは説明しきれず、他の巨大共鳴を考える必要があることを示している。この領域での測定値と予想値の不一致は、 q が大きくなると顕著になることから、この付近に $\Delta T = 0$ の GOR が存在するものと考えられる。このことは、この領域に GOR を予想した Soloviev^{22, 23)} の計算結果と一致する。

又、 $E_x = 4 \sim 8$ MeV には矢印で示された幅の狭い水素の弾性散乱のピーク^{14, 24, 25)} 以外にも断面積が存在する。この部分も GQR や GDR だけでは説明されない。この部分の断面積は、(e, e') によって ^{197}Au ¹⁹⁾, ^{90}Zr ¹⁰⁾, ^{208}Pb ¹¹⁾ の $E_x = 4 \sim 8$ MeV に見つかっている八重極共鳴と同じ性格のものであると考えられる。最近 α 散乱の実験でも中重核に於いて、この領域

に EWSR の 16~22% を占める八重極共鳴が系統的に見つかっている²⁶⁾。

5.6 バックグラウンドについて

簡単のために直線でバックグラウンドを仮定したが、これは多重極度の大きな巨大共鳴は幅が広いので全体としては直線に近い形になるであろうという考えに基づいている。Suzuki 理論の予想値が全体としてはかなり良く測定されたスペクトルを再現しているということは、この仮定の妥当性を示していると考えられる。しかしバックグラウンドを表わす直線は、 q が大きくなるにつれ、負の方向に傾きが大きくなる傾向がある。この事は、 $E_x = 10 \sim 15$ MeV 付近に多重極度の大きな巨大共鳴が存在していることを暗示している。J. Speth は、この付近に幅の広い 4^+ の巨大共鳴を予想²⁷⁾ しており、今後これについても考慮する必要があるであろう。

参 考 文 献

- 1) Y. Torizuka : *Proc. Int. Conf. Nuclear Structure, Tokyo. 1977*, ed. T. Marumori, J. Phys. Soc. Japan **44** (1978) Suppl. p. 397.
- 2) F. E. Bertrand : *Ann. Rev. Nucl. Sci.* **26** (1976) 457.
- 3) B. L. Berman : Preprint UCRL-78482 (1976) 1.
- 4) P. Carlos et al. : *Nucl. Phys.* **A 225** (1974) 171.
- 5) T. Suzuki and D. J. Rowe : *Nucl. Phys.* **A 289** (1977) 461.
- 6) T. Suzuki and D. J. Rowe : *Nucl. Phys.* **A 292** (1977) 93.
- 7) D. Zawischa, J. Speth and L. Pal : *Nucl. Phys.* **A 311** (1978) 445.
- 8) D. H. Youngblood *et al.* : *Phys. Rev. C* **13** (1976) 994 ; D. H. Youngblood *et al.* : *Proc. Sendai Conf. Electro- and Photo excitations, 1977*, ed. Y. Kawazoe, Res. Rep. Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **10** (1977) Suppl. p. 33.
- 9) F. E. Bertrand *et al.* : *Phys. Rev. C* **18** (1978) 2788.
- 10) S. Fukuda and Y. Torizuka : *Phys. Lett* **62 B** (1976) 146.
- 11) M. Sasao and Y. Torizuka : *Phys. Rev. C* **15** (1977) 217.
- 12) D. Zawischa *et al.* : *Nucl. Phys.* **A 311** (1978) 445.
- 13) S. Ohsawa : 核理研研究報告 **12** (1979) 14.
- 14) S. Ohsawa : 博士論文 (1979).
- 15) A. Nakada *et al.* : *Phys. Rev. Lett* **38** (1977) 584.
- 16) W. Bertozzi *et al.* : *Phys. Rev. Lett.* **28** (1972) 1711.
- 17) L. S. Cordman *et al.* : *Nucl. Phys.* **A 216** (1973) 285.
- 18) Y. Mizuno *et al.* : 核理研研究報告 **12** (1979) 1.
- 19) H. Miura and Y. Torizuka : *Phys. Rev. C* **16** (1977) 1688.
- 20) R. S. Hichs *et al.* : *Nucl. Phys.* **A 278** (1977) 261.
- 21) A. Schwierczinski *et al.* : *Phys. Lett.* **55 B** (1975) 171.
- 22) V. G. Soloviev : *Proc. Sendai. Conf. Electro- and Photoexcitations, 1977*, ed. Y. Kawazoe, Res. Rep. Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **10** (1977) Suppl. p. 111.
- 23) L. A. Malov *et al.* : *Phys. Lett* **64 B** (1976) 247.

- 24) T. Janssens, R. Hofstadter, E. B. Hughes and M. R. Yearian : Phys. Rev. **142** (1966) 142.
- 25) E. B. Hughes, T. A. Griffy, M. R. Yearian and R. Hofstadtes : Phys. Rev. B **139** (1965) 458.
- 26) J. M. Moss *et al.* : Phys. Rev. Lett. **37** (1976) 816.
- 27) J. Speth : *Proc. Sendai Conf. Electro- and Photoexcitations, 1977*, ed. Y. Kawazoe, Res. Rep. Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **10** (1977) Suppl. p. 65.

(γ, π^+) 反応を用いた π 中間子凝縮の前臨界現象の研究 (1)

核理研, 教養部*

佐々木修・山崎正晴・取越正己

坪田博明*・庄田勝房

§ 1. はじめに

今までに我々が行なったしきい値付近における (γ, π^+) 反応の角度分布の実験結果を検討した結果 M1 転移 (pion like transition) においては, 実験における微分断面積と単一粒子殻模型での微分断面積との比が運動量移行 q の増加に従って増加することがわかった。これは, 他の精度をあげた計算を用いた比においても同様である。香村はこの現象を π 中間子凝縮の前臨界現象として説明している¹⁾

§ 2. 理論的背景

(γ, π) 反応におけるしきい値付近での相互作用ハミルトニアン²⁾は Kroll-Ruderman 項で近似でき³⁾, その形は $T = \mathcal{A}_1 \vec{\sigma} \cdot \vec{\epsilon}$ と表わされる。ここで $\vec{\sigma}$ は核子のスピン演算子, $\vec{\epsilon}$ は入射光子の偏極ベクトル, \mathcal{A}_1 は π 中間子の運動量に依存する係数で, T は M1 転移等のスピン反転転移を起こす。

π 中間子凝縮の効果を考えない場合, (γ, π^+) 反応の微分断面積は, インパルス近似で次のように表わされる。

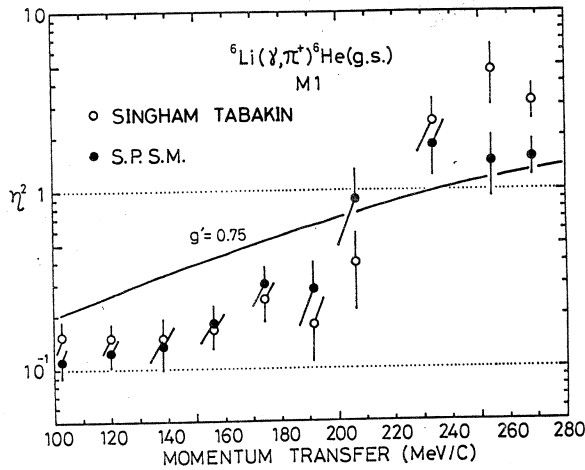
$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{(\gamma, \pi)} = \frac{p}{k m_\pi^2} e^2 f^2 \frac{1}{2J_i + 1} \sum_{M_i M_f} \sum_{\lambda} |\vec{\mathcal{M}} \cdot \vec{\epsilon}_\lambda|^2, \quad (1)$$

$$\vec{\mathcal{M}} = \langle J_f M_f | \phi_\pi^*(\vec{r}, \vec{p}) \sum_{n=1}^A \vec{J}_n^5 \tau_n^\pm \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}_n) | J_i M_i \rangle \quad (2)$$

ここで \vec{J}^5 は主要項として Kroll-Ruderman 項を含むもので, ϕ_π は π 中間子の波動関数である。上記行列要素は前臨界現象を考えた場合, 大きな核偏極をもたらす, その結果, 行列要素は修正を受け $\vec{\mathcal{M}}_{\text{eff}}$ となる。従って

$$\eta^2(q) = |\vec{\mathcal{M}}_{\text{eff}}|^2 / |\vec{\mathcal{M}}|^2 = (d\sigma/d\Omega)_{\text{eff}} / (d\sigma/d\Omega) \quad (3)$$

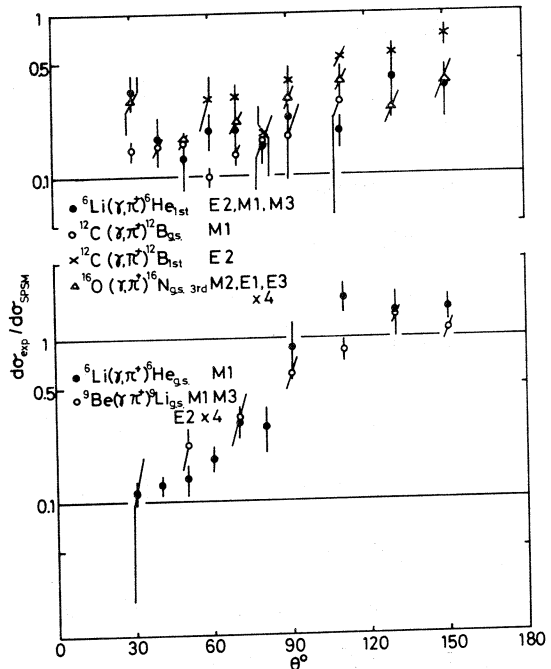
は, 実験による微分断面積と前臨界現象を考えない理論値との比によって概算される。香村は,



第1図 黒丸, 白丸はそれぞれ実験値と単一粒子殻模型, SinghamとTabakin⁴⁾による理論値との比。実線は前臨界現象を考えた香村による計算。

${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}(\text{g. s.})$ についてこの比を計算した。計算結果を以前の我々のデータとともに第1図に示す。また ${}^6\text{Li}$ 以外の核についての実験値と単一粒子殻模型での理論値の比を第2図に示す。

第1図において黒丸は微分断面積の実験値と単一粒子模型との比であり, 白丸はCohen-Kurathの波動関数を使い, π 中間子の光学ポテンシャルに終状態相互作用を取り入れ full interaction operator \vec{J}^5 を使用して計算した理論値⁴⁾(もっとも正確なモデルと考えられる)との比である。実線は前臨界現象を考えた香村によって計算された比 η^2 である。第1



第2図 今までに核理研で行なわれたしきい値付近での (γ, π^+) 反応実験による微分断面積と単一粒子殻模型を用いた理論値との比。

図からわかるようによい一致をみる。

上記結論に用いた測定において実験精度を考えると、角度分布の実験にもとづくため、バックグラウンド、幾何条件、其の他の系統的誤差も考えられるので、できるだけ角度を変化することをひかえた実験が望ましい。そこで我々は、角度を4点に固定し、入射電子エネルギーを変えることによって、角度分布測定における誤差の原因を可能な限りなくし実験を行なうことを計画した。その1つとして55年後期において195 MeVの電子線により30°, 60°, 90°, 150°の測定を行なった。今後180 MeV 30°, 90°, 150°と170 MeV 30°, 60°, 90°の実験を行なう予定である。

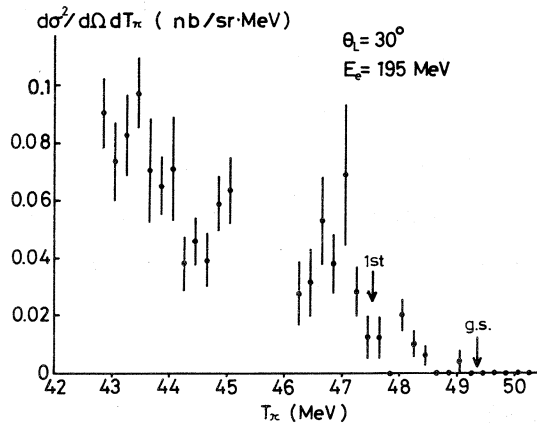
§ 3. 実験及び実験結果

${}^6\text{He}$ の基底状態は 0^+ であり、 ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}$ 反応における基底状態への転移は、M1 転移 ($1^+ \rightarrow 0^+$ pion like transition) を与える。この基底状態への転移を測定した。入射電子エネルギー195 MeVで角度30°, 60°, 90°, 150°における運動量移行 q はそれぞれ105.3, 170.8, 229.9, 301.9 MeV/c である。標的試料は131.6 mg/cm² の ${}^6\text{Li}$ (98.68%) を用いた。実験で得られた30°のエネルギースペクトルを第3図に示す。これによれば、基底状態である49.4 MeVから立ち上がりが見られ、さらに第1励起状態47.5 MeVからの立ち上がりが見られる。また、測定においてビームポジションターゲット、バックグラウンドモニター(チェレンコフカウンター)を用いることにより、バックグラウンドのほとんどない測定結果を得ることが出来た。

(e, π^\pm) 反応は仮想光子の理論を用いて(γ, π^\pm) 反応に焼き直す事が出来る。(e, π^\pm) 反応における π 中間子運動エネルギースペクトルは、

$$\frac{d^2\sigma(e, \pi)}{dT_\pi d\Omega} = \sum_{R_i} \frac{d\sigma(\gamma, \pi)}{d\Omega}(T_\pi, E_{R_i}) \cdot N(E_\gamma, E_e) \quad (4)$$

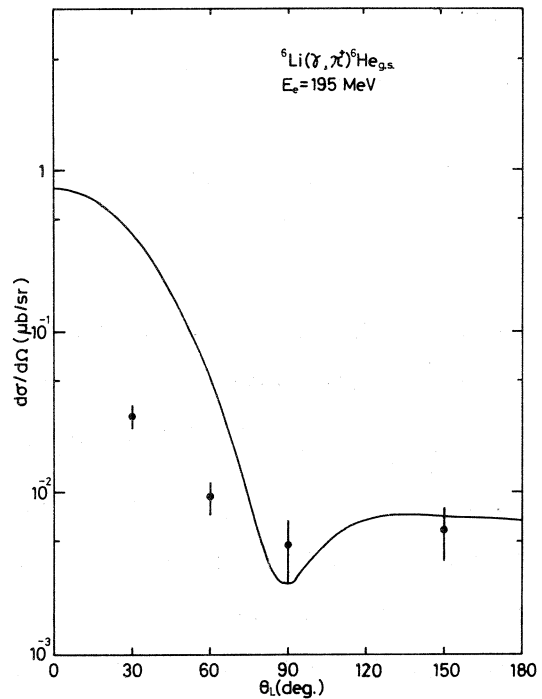
と書ける。ここで $d\sigma(\gamma, \pi)/d\Omega(T_\pi, E_{R_i})$ は、残留核を E_{R_i} に残す(γ, π^\pm) 反応の微分断面積である。 $N(E_\gamma, E_e)$ は仮想光子スペクトルである。 $d\sigma(\gamma, \pi)/d\Omega(T_\pi, E_{R_i})$ を測定エネルギー付近では一定として、基底状態の立ち上がりから第1励起状態の立ち上がりまでを台形公式を用いて計算して、(γ, π^+) 反応における微分断面積 ($d\sigma(\gamma, \pi)/d\Omega$) を求めた。結果を第4図に示す。この解析においては、標的内で発生する制動放射の実光子(γ, π^+) 反応による補正は行なっていない。しかし ${}^6\text{Li}$ は Z が小さいので補正はほとんど無視出来ると思われる⁵⁾。また誤差は統計誤差だけによるものである。



第3図 $E_e = 195 \text{ MeV}$, $\theta_\pi = 30^\circ$ における π^+ のエネルギースペクトル。矢印はそれぞれ基底状態, 第1励起状態の立ち上がり位置。

§ 4. 考 察

単一粒子殻模型での計算値を第4図に示す。この結果からわかるように実験値と計算値との比は, 30° ($q = 105.3 \text{ MeV}/c$) においては $0.087 \sim 0.063$, 60° ($q = 170.8 \text{ MeV}/c$) では $0.23 \sim 0.15$, 90° ($q = 229.9 \text{ MeV}/c$) では $2.4 \sim 0.83$, 150° ($q = 301.9 \text{ MeV}/c$) では $1.1 \sim 0.53$ となり, 入射電子エネルギー 195 MeV においても以前の 180 MeV の場合の実験⁶⁾と同様に後方に行くほど (q が増加するほど) 実験値と計算値との比が大きくなっていくことがわかる。しかし今回は 195 MeV での測定だけであり, 今後 170 MeV , 180 MeV の入



第4図 $E_e \approx 195 \text{ MeV}$ における ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}(\text{g.s.})$ の角分布の実験値及び単一粒子殻模型による理論値。

射電子エネルギーで実験を行ない運動量移行 q 依存性を調べる予定である。また, π 中間子凝縮の前臨界現象の存在の有無の結論を得るにあたっては, 前臨界現象を考えない計算においてもより精度を上げた計算結果を用いる必要がある。

参 考 文 献

- 1) T. Kohmura : private communication 1979.
- 2) G. F. Chew *et al* : Phys. Rev. **106** (1957) 1345.
- 3) H. Überall : Phys. Rev. **137** (1965) B 502.
- 4) M. K. Singham and F. Tabakin : private communication 1979.
- 5) 山崎正晴他 : 核理研研究報告 **11** (1978) 15.
- 6) 大橋英雄 : 博士学位論文 (1978).

$^{10}\text{B}(r, p)$ 反応

山形大教養, 核理研*

種市 宏・上野博昭

加藤静吾・庄田勝房*

§ 1. 序

$^{10}\text{B}(e, p)$ 反応を電子線エネルギー $E_e = 14 \sim 30 \text{ MeV}$ の範囲で実験した。 ^{10}B の巨大共鳴領域の研究は、主に (r, n) 反応¹⁾ でなされているが、測定した中性子は全中性子であり巨大共鳴領域の構造はあまりよくわかっていない。また、 (r, n) 反応と比較できる (r, p) の研究はなされていない。

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、巨大共鳴領域の陽子放出機構についての情報を得る目的で実験した。

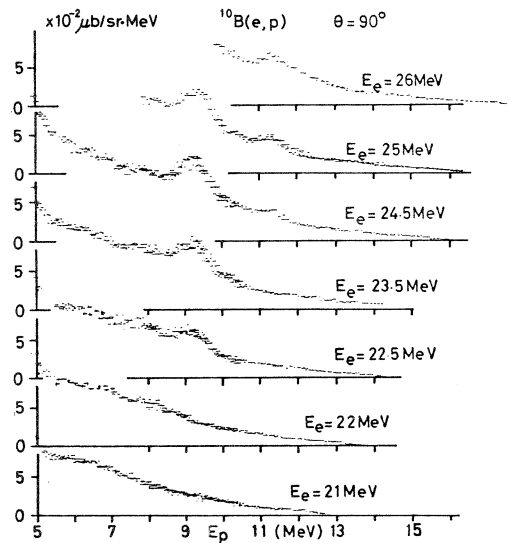
今回の報告は測定結果の報告にとどめ、議論は次回以降にする予定である。

§ 2. 実験

実験は第1実験室で、 90° にセットした広帯域磁気スペクトロメーターおよび $\text{Si}(\text{Li})$ 検出系を用いて行なった。

^{10}B の標的は 96.5% 濃縮の粉末を厚さ約 4.8 mg/cm^2 の金箔に沈澱させ、 H_2BO_3 を結合剤として固定して作った。 ^{10}B の厚さは 10.1 mg/cm^2 である。

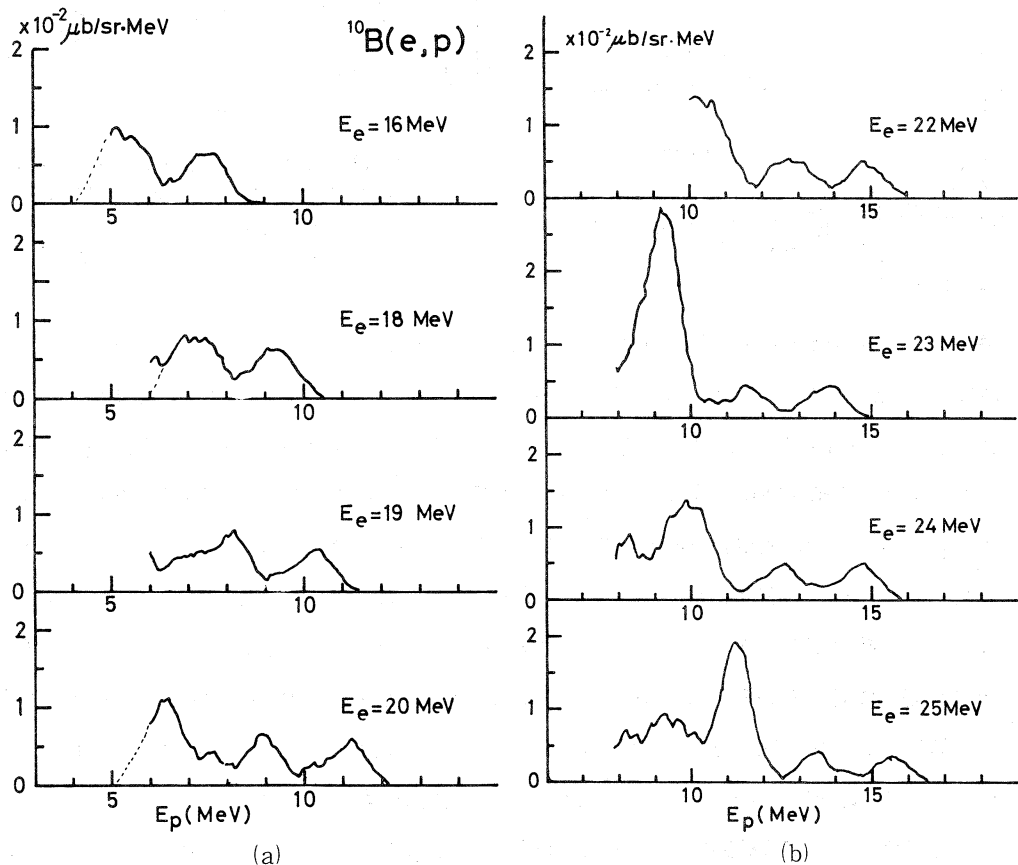
電子線エネルギーを $14 \sim 30 \text{ MeV}$ で 1 MeV 間隔、 $E_e = 21 \sim 25 \text{ MeV}$ で 0.5 MeV 間隔で変えて (e, p) 反応エネルギースペクトルを測定した。金箔からの (e, p) 反応の陽子収量は $^{10}\text{B}(e, p)$ の数%で、陽子最大エネルギーも約 1 MeV 低いので金箔の影響は無視できる程度である。



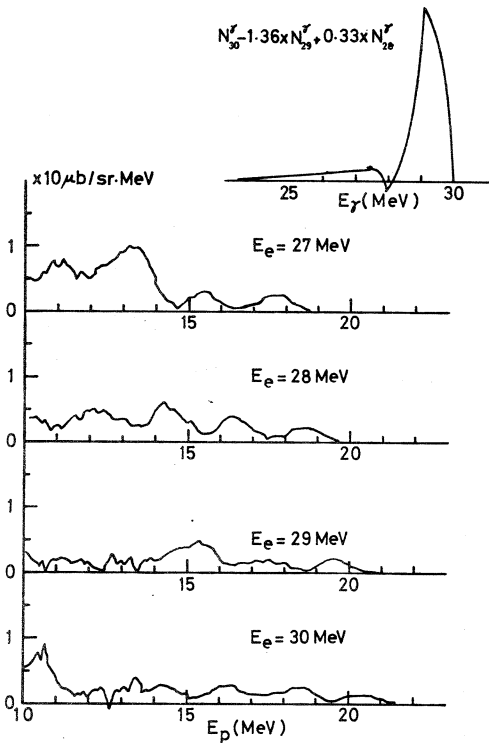
第1図 $\theta_p = 90^\circ$ における $^{10}\text{B}(e, p)$ 反応の陽子スペクトル。 $E_p = 7.7, 9.2, 11.4 \text{ MeV}$ のところにピークが見られる。

§ 3. 測定結果

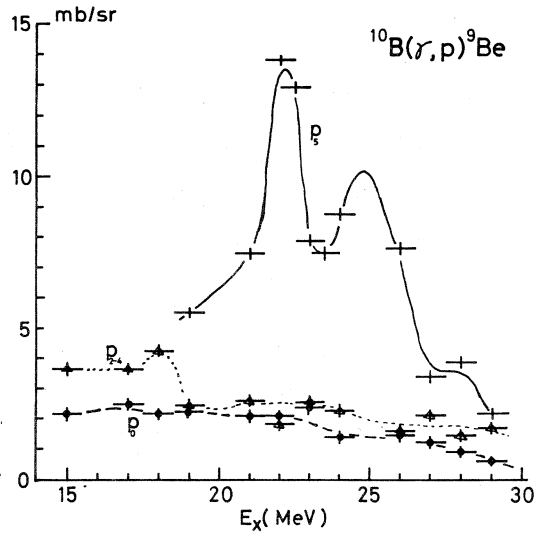
第1図に $^{10}\text{B}(e, p)$ 反応エネルギースペクトルの数例が示してある。これらのスペクトルには $E_p = 7.7, 9.2, 11.4$ MeVに3つの山が見られる。これらの山のエネルギーは、入射電子線エネルギーを変えても変わらないので、 ^{10}B のある特定の励起エネルギーから残留核 ^9Be の励起状態へ崩壊すると考えられる。その崩壊様式を調べるために、入射電子線エネルギーが1 MeVずつ異なる3つの陽子スペクトルから、ディファレンス・スペクトルを得た。その結果が第2図(a)(b)(c)に示してある。このディファレンス・スペクトルの作り方は、それぞれの入射電子線の仮想光子スペクトルを組合せて、第2図(c)の右上に示されている単色光子に近い仮想光子が得られるように各スペクトルに係数をかけてスペクトルの差引きを行なう。この時用いた



第2図 ディファレンス・スペクトル。(c)右上に示されてある準単色仮想光子で得られる陽子スペクトル。ピークはエネルギーの高い方から ^9Be の基底状態(p_0)、第2から第4励起状態の和(p_{2-4})、第5励起状態に崩壊する陽子のグループである。



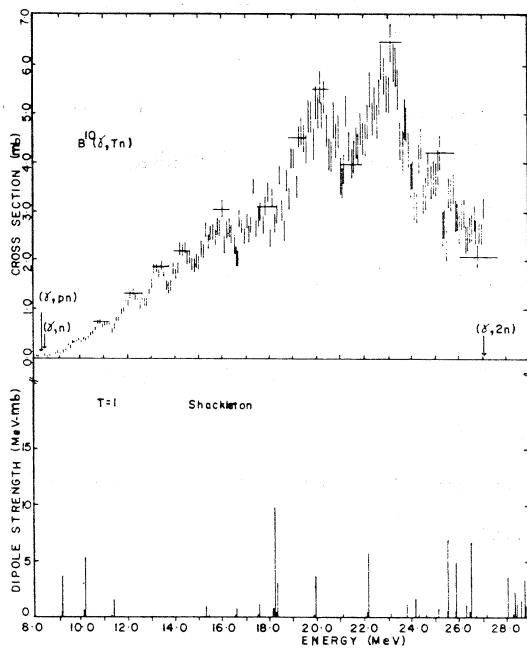
第2図(続き) (c)



第3図 第2図の各ピークから求めた断面積を¹⁰Bの励起エネルギーの関数として示したもの。
p₅の曲線には著しいピークが2つある。

陽子スペクトルはスムーズ化されている。ここで、仮想光子を導入したことにより(e, p)反応は(r, p)反応に置き換えられる。これらのディファレンス・スペクトルには小さい山が2つと、大きい山が1つの3つの山が見えており、陽子エネルギーの高い方から、⁹Beの基底状態、第2から第4励起状態までの和、第5励起状態へそれぞれ崩壊する陽子であることがわかる。これらの山の面積より断面積を求め、その準単色仮想光子エネルギーに対応する¹⁰Bの励起エネルギーとの関係をグラフに示すと第3図のようになる。p₀とp₂₋₄には殆んど構造も見られず、断面積も小さいが、p₅には2つの山があり、断面積も大きい。この2つの山は(r, n)反応¹⁾に見えている2つの山に対応するものと思われる。殻模型による(r, n)の強度の計算²⁾は1つあるが、(r, n)にも合っていないし、我々のデータにも合わない。比較して見るために、Hughes¹⁾のデータと Shackleton²⁾の計算を第4図に示す。

この実験に際して御援助いただいた核理研の(r, p)グループの方々、マシングループと測定器グループの方々に感謝致します。費用の一部は文部省科学研究費によることを記して感謝します。



第4図 Hughes and Muirhead¹⁾の $^{10}\text{B}(r, T_n)$ の
断面積と Shackleton²⁾の計算との比較

参 考 文 献

- 1) R. J. Hughes and E. G. Muirhead: Nucl. Phys. **A215** (1973) 147.
- 2) R. Shackleton: Ph. D. thesis, University of Melbourne, 1971, unpublished.

^{27}Al Angular Distributions

M. N. Thompson, P. Ryan, K. Shoda,[†] M. Sugawara,[†]
T. Saito,[†] T. Tanaka,[†] M. Hirooka,[†] H. Tsubota,^{††}
and H. Miyase^{††}

*Physics Department, University of Melbourne Parkville 3052,
Australia*

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

^{††}*College of General Education, Tohoku University Sendai,
Kawauchi 980, Japan*

§ 1. Introduction

A previous measurement¹⁾ of photoprotons from ^{27}Al showed that there was much interesting fine structure present in the ground state and first excited state cross sections. To try to obtain further insight into the reaction mechanism responsible for this structure, the angular distribution of the photoprotons was measured.

The angular distribution of a photonuclear reaction provides information on the relative strengths of the various possible reaction channels defined by the intermediate state multipolarity, the particle's relative orbital angular momentum and the channel spin of the particle channel. Possibly the structure in the cross sections can be correlated with the dominant particle-hole configurations in the giant resonance of ^{27}Al .

§ 2. Experiment

A thin foil ^{27}Al target (8.1 mg/cm²) was bombarded with the electron beam from the linear accelerator at Tohoku University. The energy resolution of the incident electrons was determined to within 1.5% over the measured energy range 16.8 to 25.6 MeV in 0.8 MeV steps. Proton spectra were measured at 7

angles - from 45° to 135° in steps of 15° , using a broad range magnetic spectrometer of the Browne-Buechner²⁾ type with 100 solid state Si(Li) detectors arranged on the focal plane.

Following proton emission from ^{27}Al the residual nucleus is ^{26}Mg . The first and second excited states of ^{26}Mg are at 1.81 MeV, 2.94 MeV respectively. Consequently the top 1.81 MeV of each proton spectrum can be used to obtain an $^{27}\text{Al}(\tau, p_0)$ cross section at each measured angle. As well, $^{27}\text{Al}(\tau, p_1)$ cross sections can be obtained by subtracting the ground state contribution from the relevant portion of each spectrum. The virtual photon conversion theory³⁾ was used to unfold the incident electron beam.

It may readily be seen that there is much interesting structure in these cross sections, displayed in Fig. 1 & 2. The reactions are clearly not isotropic nor are they symmetric about 90° so that decay by an entirely statistical process is not valid⁴⁾. The total strength of each decay found by taking the area under each

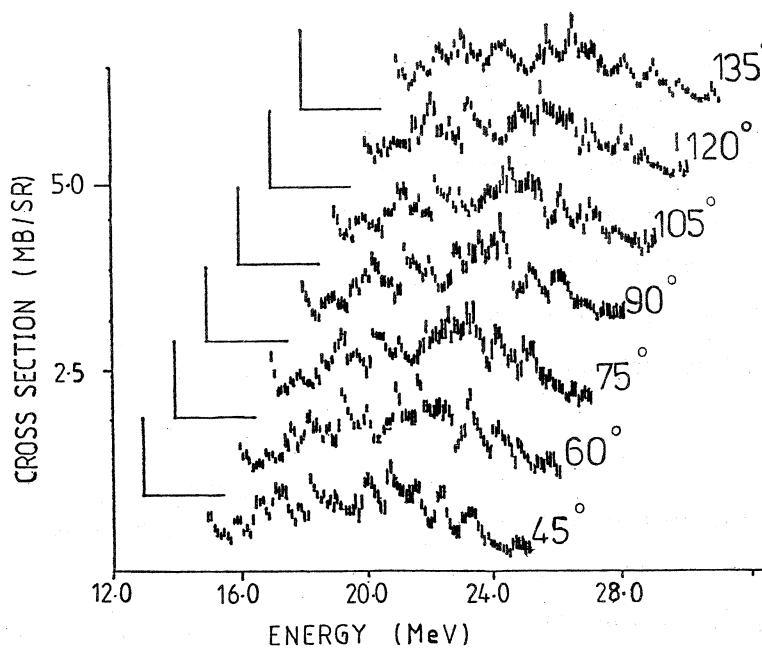


Fig. 1 The $^{27}\text{Al}(\tau, p_0)$ cross section measured at 7 angles.

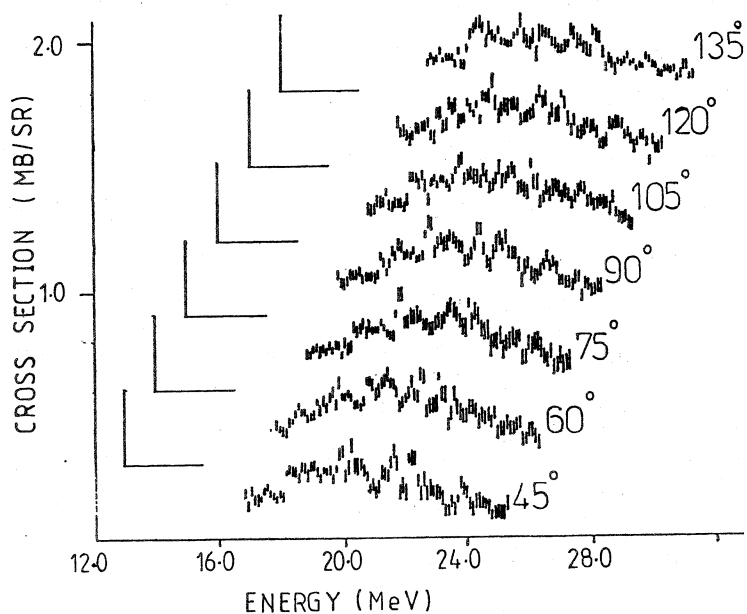


Fig. 2 The $^{27}\text{Al}(\tau, p_1)$ cross section measured at 7 angles.

differential cross section, varies with angle and peaks forward of 90° . Indeed the ratio of first excited state to ground state cross section is fairly constant as a function of angle, perhaps indicating a similarity in mechanism. These data are shown in Fig. 3.

§ 3. Analysis and Discussion

^{27}Al has a ground state spin of $\frac{5}{2}^+$. Consequently, by virtue of the multipolarity selection rules, E1 excitation can lead to interme-

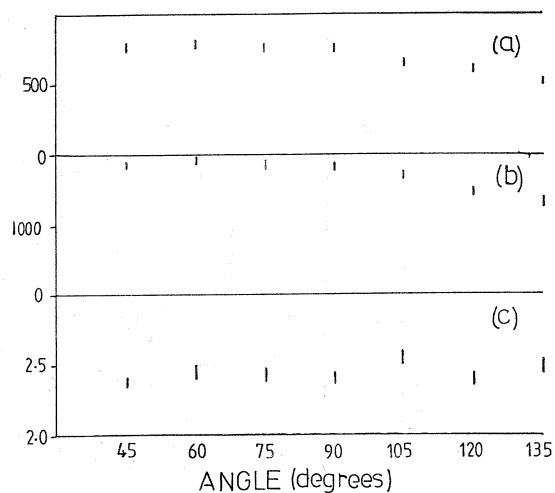


Fig. 3 (a) Total (τ, p_0) strength versus angle, (b) Total (τ, p_1) strength versus angle, (c) Ratio $(\tau, p_1)/(\tau, p_0)$ versus angle.

diates of spin $\{ \frac{3^-}{2}, \frac{5^-}{2}, \frac{7^-}{2} \}$ while E2 excitation can lead to intermediates of spin $\{ \frac{1^+}{2}, \frac{3^+}{2}, \frac{5^+}{2}, \frac{7^+}{2}, \frac{9^+}{2} \}$. It is expected that quadrupole excitation might be significant over the energy region studied because Youngblood *et al.*⁵⁾ observed an isoscalar quadrupole resonance centred at 20.1 MeV with a width of 7.6 MeV using inelastic alpha particle scattering. The M1 giant resonance is expected to be situated at $35 A^{-\frac{1}{3}}$ MeV⁶⁾. For ^{27}Al this is approximately 12 MeV, well below the region being studied. Hence the possibility of M1 excitation may be excluded.

If the photonuclear reaction is treated as a two step process through well defined intermediate giant resonance states, then the differential cross section for the reaction can be expanded in terms of Legendre polynomials:⁷⁾

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(E, \theta) = \sum_{i=0} A_i(E) P_i(\cos \theta)$$

If only E1, E2 excitation are assumed then an expansion up to fourth order is sufficient. The energy dependent coefficients $A_i(E)$ are functions of the electromagnetic multiple matrix elements which govern the transitions to the residual states. The odd coefficients arise from interference between E1 and E2 absorption while the even coefficients contain separate E1, E2 absorption terms. Because of the complexity of the decay process these A_i coefficients contain many terms. For $^{27}\text{Al}(\tau, p_0)$, for example, the A_0 coefficient is:

$$A_0 = [4p_{\frac{3}{2}}^2 + 6f_{\frac{5}{2}}^2 + 8f_{\frac{7}{2}}^2] \quad (\text{all E1 terms}) \\ + [2s_{\frac{1}{2}}^2 + 4d_{\frac{3}{2}}^2 + 6d_{\frac{5}{2}}^2 + 8g_{\frac{7}{2}}^2 + 10g_{\frac{9}{2}}^2] \quad (\text{all E2})$$

In this notation $p_{\frac{3}{2}}$, for example, is the matrix element through which the $\frac{3^-}{2}$ intermediate E1 resonance state is excited and then decays by emission of a $p_{\frac{3}{2}}$ proton.

In the channel spin formalism the ground state cross section has $S = \frac{1}{2}$ because the ^{26}Mg g. s. is 0^+ . For the reaction to the first excited state (2^+) there are two possible channel spins: $S = \frac{3}{2}, \frac{5}{2}$ and the corresponding theoretical expressions for the A_i coefficients are far more complicated⁷⁾. Thus the discussion will

be restricted to the ground state decay channel.

It should be appreciated that if the reaction proceeds only through E 1 intermediate states the differential cross section should be symmetric about 90° as there will be no A_1, A_3, A_4 , terms in the theoretical expansion, and P_0, P_2 , are even functions of $\cos \theta$.

The data were summed in 400 keV intervals and a Legendre polynomial series was fitted at each energy as shown in Fig. 4.

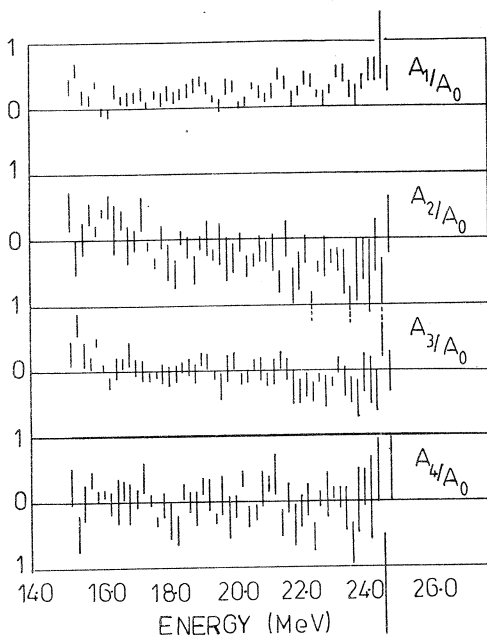


Fig. 4 A_i coefficients as a function of energy.

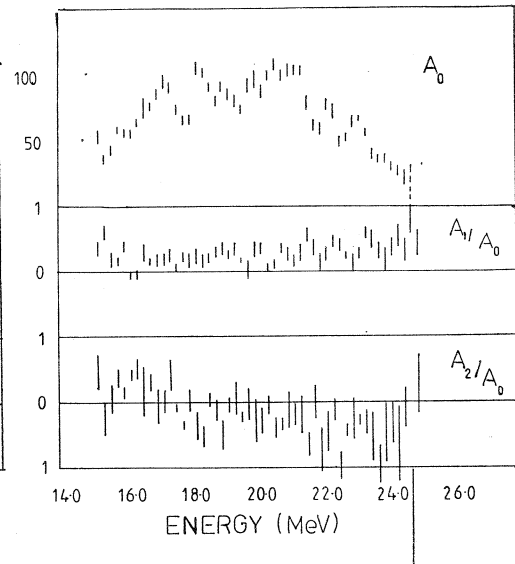


Fig. 5 A_0, A_1, A_2 coefficients as a function of energy.

The A_1, A_2 coefficients can also be compared to A_0 which represents the total cross section (Fig. 5). It can be seen that there is considerable E 1-E 2 interference right across the giant resonance region from the non-zero value of A_1 . It is interesting that A_2 changes from positive to negative above 17.6 MeV. The error weighted mean value is defined as:

$$\bar{A} = \frac{\sum_{i=1}^k A(i) / \delta A(i)^2}{\sum_{i=1}^k 1 / \delta A(i)^2}$$

with fluctuation :

$$\delta \bar{A} = \frac{1}{\sqrt{k}} \left[\sum_{i=1}^k \{ A(i) - \bar{A} \}^2 \right]^{1/2} .$$

If this value for A_1 , A_2 is calculated over 3 representative regions, the result is shown in Table I.

Table I. A_1 and A_2 coefficients.

	Energy	A_1	A_2
I	15.0 - 17.4	.054 ± .024	+ .347 ± .280
II	17.6 - 21.0	.185 ± .119	- .197 ± .178
III	21.2 - 25.0	.287 ± .212	- .384 ± .435

The dominant configuration of the ^{27}Al ground state will have 11 nucleons in the $1d_{5/2}$ subshell⁸⁾. Using the E1 selection rules a $1d_{5/2}$ nucleon can be excited into the $1f_{7/2}$, $2p_{3/2}$ or $1f_{5/2}$ subshells⁹⁾. Excitation from the 'core' 1p shell can also occur, but this will not lead to ground state population since a negative parity residual state will be formed by emission of a 1p particle.

In this scheme the relative strengths and angular distributions relevant to these excitations are displayed in Table II.

Table II. Relative strengths and angular distribution.

Single particle transition	Relative strength	Angular distribution
$1d_{5/2} \rightarrow 1f_{7/2}$	80 %	$1 - 0.35 P_2$
$1d_{5/2} \rightarrow 2p_{3/2}$	16 %	$1 - 0.10 P_2$
$1d_{5/2} \rightarrow 1f_{5/2}$	4 %	$1 + 0.45 P_2$

The E 1 matrix elements in the A_2 coefficient should be dominant since the E 2 strength is expected to be only a few percent of the E 1 strength. By inspection of the value of A_2/A_0 it may be possible to see which transitions are present.

In region I (15.0–17.4 MeV) the value of A_2/A_0 is positive and, within errors, shows good agreement to the theoretical value for the $1d_{5/2} \rightarrow 1f_{5/2}$ dipole transition (Table II). In region II (17.6–21.0) A_2/A_0 is negative and has a value intermediate between the theoretical values for $1d_{5/2} \rightarrow 2p_{3/2}$, $1d_{5/2} \rightarrow 1f_{7/2}$. In region III (21.0–25.0), the value of A_2/A_0 is negative and despite the large error may be associated with the $1d_{5/2} \rightarrow 1f_{7/2}$ transition. The A_1/A_0 coefficient shows a gradual rise as the A_2/A_0 coefficient decreases.

These results imply that in the low energy region the $^{27}\text{Al}(\tau, p_0)$ reaction is principally caused by $1d_{5/2} \rightarrow 1f_{5/2}$ excitations. Above this region the transitions $1d_{5/2} \rightarrow 1f_{7/2}$, $1d_{5/2} \rightarrow 2p_{3/2}$, which are expected to be the strongest, predominate. The peak at around 17 MeV in the $^{27}\text{Al}(\tau, p_0)$ cross section thus appears to be associated with the $1d_{5/2} \rightarrow 1f_{5/2}$ dipole transition. Above this region, $2p_{3/2}$, $1f_{7/2}$ emission dominates with the $1f_{7/2}$ fraction becoming greater with energy.

Because of the complex nature of the A_i coefficients it is not possible to obtain an exact solution for the phases and matrix elements as can be done in the case of ^{16}O for example⁹⁾. Instead to understand the trends of the A_i coefficients qualitatively it is necessary to make some assumptions:

- (i) g-wave emission is negligible. The large angular momentum barrier should strongly inhibit g-wave emission.
- (ii) direct or semi-direct processes dominate the $^{27}\text{Al}(\tau, p_0)$ reaction.
- (iii) the phase differences between the interfering matrix elements are only l-dependent. For example $\cos(p_{3/2}, d_{5/2}) = -1$. In fact all the phases should be treated as variable.

With these assumptions the A_i coefficients now simplify to

- (i) $A_0 \sim 8f_{7/2}^2 + 4p_{3/2}^2 + 6f_{5/2}^2$
- (ii) $A_1 \sim 4.2f_{7/2} \cdot d_{5/2} + 5.4p_{3/2} \cdot s_{1/2} + 5.6f_{5/2} \cdot d_{3/2} + 7.0p_{3/2} \cdot d_{5/2} - 2.6f_{5/2} \cdot d_{5/2} - 2.8p_{3/2} \cdot d_{3/2}$

$$(iii) A_2 \sim -2.9 f_{\frac{7}{2}}^2 - 0.4 p_{\frac{3}{2}}^2 + 2.7 f_{\frac{5}{2}}^2$$

$$(iv) A_3 \sim 0$$

$$(v) A_4 \sim -2 d_{\frac{5}{2}}^2$$

It can be seen that A_1 will be positive if $f_{\frac{7}{2}}$ E 1 emission and $d_{\frac{5}{2}}$ E 2 emission are the strongest matrix elements. If the proportion of $f_{\frac{7}{2}}$ increases then A_1 will increase also, as is observed. A_2 will be negative unless the $f_{\frac{5}{2}}$ matrix element is very strong. Also A_2 will decrease if the proportion of $f_{\frac{7}{2}}$ emission increases. Neglecting g-wave components it would be expected that A_3 , A_4 should be consistent with zero since they contain mainly small E 2 matrix elements.

§ 4. Conclusion

It is apparent that the decay to the low lying states following photoproton disintegration of ^{27}Al is not statistical because of the asymmetric nature of the angular distributions. The asymmetry must be interpreted as being caused by mixing between the many different possible particle-hole transitions of E 1 and E 2 multipolarity.

Although an exact solution of the different matrix elements and phases cannot be achieved because of the complexity of the theoretical angular distribution coefficients, nevertheless a qualitative explanation can be obtained by making some strong assumptions. It appears that the $1 d_{\frac{5}{2}} \rightarrow 1 f_{\frac{5}{2}}$ transition predominates in the low energy region of the reaction while at higher energies the transitions $1 d_{\frac{5}{2}} \rightarrow 2 p_{\frac{3}{2}}$, $1 f_{\frac{7}{2}}$ predominate with the fraction of $f_{\frac{7}{2}}$ emission increasing. The exact fraction of E 2 strength in the ground state cross section cannot be determined exactly from this experiment. However, it would seem most likely that it comes from 2d particle emission.

REFERENCES

- 1) M. N. Thompson *et al.* : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **12** (1979) 38.
- 2) C. P. Browne and W. W. Buechner : Rev. Sci. Instrum. **27** (1956) 899.
- 3) W. C. Barber and T. Wiedling : Nucl. Phys. **18** (1960) 575.

- 4) P. E. Hodgson: *Nuclear Reactions and Nuclear Structure*. (Clarendon Press, Oxford, 1971).
- 5) D. H. Youngblood, C. M. Rozsa, J. M. Moss, D. R. Brown and J. D. Bronson: *Phys. Rev. C* **15** (1977) 1644.
- 6) *Lecture Notes in Physics* 61. edited by S. Costa and C. Schaerf. (Springer-Verlag, 1977).
- 7) R. W. Carr and J. E. E. Baglin: *Nucl. Data Tables* **10** (1971) 143 and R. E. Maute, D. P. D'Amato, S. L. Blatt: *Atomic and Nucl. Data Tables* **13** (1974) 499.
- 8) B. H. Wildenthal and J. B. McGrory: *Phys. Rev. C* **7** (1973) 714.
- 9) T. W. Phillips and R. G. Johnson: *Phys. Rev. C* **20** (1979) 1689.
- 10) E. Hayward: *Photonuclear Reactions*, Lecture notes (School of Physics, University of Melbourne, 1969).

$^{32}\text{S}(\gamma, n)$ 反応の飛行時間分析

教養部, 理学部物理*

阿部 健・坪田博明・宮瀬晴久

川村暢明*・金沢正明*

東北リニアックの (γ, n) 反応中性子飛行時間測定設備の殆ど全部を改め, エネルギー・スペクトルがビーム強度, ビーム・エネルギー, ランニング時間, 直前のマシン・タイムの内容に依存せず, 再現性の点で満足できるようになった。ゴースト・ビームを抑制できる運転条件も判明した。ビーム休止期間におけるバックグラウンド測定と5台のTACの平行運転により, 5 kg程度の試料を最大ビーム強度で照射しても無歪測定ができ, 実験能率が著しく向上した。ここでは $^{32}\text{S}(\gamma, n)$ の結果について簡単に報告する。結果は (γ, p) や (p, γ) のデータとよく整合し, Goryachevらの理論計算とよく合致する。

§ 1. 序 文

W. Bertozziら¹⁾は, 1958年MITのリニアックの7m飛行コースで, Bi, Au, とTaの (γ, n) スペクトルを測定し, スペクトルの3~4 MeVの折れ目は, γ 線の吸収に単一粒子の励起モード²⁾が関与している徴候ではないか, とした。1962年には, F. W. K. Firkら³⁾がHarwellの20m飛行管により, $^{16}\text{O}(\gamma, n)$ の測定を行い, $E_n \sim 6, \sim 7, \sim 8$ MeV ($E_\gamma = 22.2, 23.0, 24.3$ MeV)の三大ピークを明らかにし, 飛行時間分析法(neutron time-of-flight spectroscopy)の有用性を示した。東北大学の (γ, n) グループも1963年JAERIの50m飛行管を利用して, $^{16}\text{O}, ^{19}\text{F}, ^{27}\text{Al}, ^{31}\text{P}, ^{32}\text{S}, ^{40}\text{Ca}$ の (γ, n) の測定を行い⁴⁾, さらにその経験のうえに, 1968年から1972年まで, 東北電子リニアックの125m飛行管と50m飛行管を利用して, D, O, Al, Pの (γ, n) スペクトルを測定した^{5~10)}。

我々は多数の内部資料を検討し, 飛行時間分析系の問題点を洗い直して, 結局, 1976年, 新しい測定方法を採用入れた50m飛行時間分析系の新設に着手した¹¹⁾。1977年 $^{12}\text{C}, ^{19}\text{F}(\gamma, n)$ の測定を開始した。(しかし, 1978年6月12日の大地震の際, 標的室のコンクリート・ブロック, 鉛レンガ, 水タンクなどの遮へい体が崩れ, 掃引電磁石やビーム・ダクトが移動し, NBS P-2電離箱が修理不能に破損するなどの被害が生じたため, スタート・パルス取出し用

電流トランスの更新、積分型電流トランスの製作などが必要となった。また実験幾何学条件も変更となって、地震の前後における測定系のパラメータの対応がつかなくなり、地震前のデータは活用できなくなった。）

1978年6月26日からは実験が安定軌道に乗り、今日に至った。その間1979年3月と1980年3月に学会報告を行った¹²⁾。

ここでは主にS(r, n)反応の実験結果について報告する。

§ 2. 実験方法

第1実験室中央ビーム・チャンネルを通りTOF標的室に導いた60 MeV以下の、時間幅10 ns, 最大ピーク電流0.5 A, 繰返率300 Hzの電子線を、面積 $90 \times 100 \text{ mm}^2$, 厚さ0.5 mmのPt板で制動放射線に転換する。透過電子は電磁石により下方の捨場に、または上方に掃引する。制動放射線標的に密接した0.1 mm Al板にZnSを塗付し、ITVでビーム輪郭を監視する。但しビーム・ダクト終端の窓は50 μm のTi板である。ダクト終端と制動放射線標的の間に、遮へい体内径57 mmの速い変流器2個を取付け、そのうち1個は電流波形観測とTOFのスタート信号の取出し用に供し、他は内部で積分型とし、バースト毎の電荷の測定に供する。変流器は出口に49 μH のbalunを内蔵する。出力は銅管ケーブルMX 50-6.5, 8 mと接地線アイソレータを経て、振幅弁別器、時限増幅器、緩衝増幅器等の現場回路に入力される。それらの出力はアルミ管ケーブルAF(ZE) 50-3, 200 mを経て、第1測定室計測系に伝送されるほか、50 mケーブルによりシンチレータ系(ストップ系)にも伝送される。

制動放射線標的から130 cmのところへ反応標的試料を45°の角度で置く。試料の大きさと量は、検出器校正、中性子エネルギー校正、核反应用などで大幅に異なるが、Sの場合は $271 \times 201 \times 43 \text{ mm}^3$, 4.27 kgである。中性子の50.0 m飛行路のうち、真空路は44.17 m(1979. 6. 5以降は49.17 m)であるが、飛行路にはAl 4.3 mm, 空気578 mm(1979. 6. 5以降は78 mmで、新たにPb 6 mm)の吸収体が介在する。

中性子検出器はNE 213液体シンチレータ3.1 ℓ , 8" $\phi \times 4$ " tのBA-1カプセル入りで、BK-7, 特A材の260 $\phi \times 50$ の平凹レンズを介して8" ϕ 光電子増倍管60 DVPに結合される。それはミュー・メタル・パイプと銅板コーンから成る磁気・静電遮へいと陰極共通線を有する。+3 kV, 10 mAを給電する。第2-第1ダイノード間を2 SC505でシャントする方式のブランキング系を有する。ガンマ・フラッシュ・パルスとアフター・パルスの抑制にはメッシュ外付け法¹³⁾, 磁場法¹⁴⁾, 電圧比変更法¹⁵⁾ などがあるが、最後者、しかも第2ダイノード

変調法を選定した。アフター・パルス抑制の点で問題が残るが^{13,16,17)}、検出最大中性子エネルギーを 30 MeV とし、飛行路は 50 m より小さくはしないこととし、かつビーム強度、エネルギー、試料、試料厚、Pb 吸収体の関連を、問題が生じないように調整することとした。陽極信号は C カプリングでない方式により、50 Ω の抵抗と 50 Ω のケーブルに導き、その後 AF(ZE) 50-3、250 m を経て、第 1 測定室のストップ系に入力する。信号は立上り時間約 3 ns、大きな宇宙線バックグラウンドで約 20 V / 25 Ω である。

50 m 飛行のスタート・ストップ 時限間隔は時限信号直並列変換器を通して 5 台の TAC (time-to-amplitude converter) に振分けて電圧振幅に変換したうえ、さらに再び 27 μs 間隔の直列パルスに変換する。その後 2 台の 2048 チャンネル ADC のうちの 1 つ (ADC-X) を通し、OKITAC 4500 でオン・ライン・データ収録をする。1 バースト当たり、約 4 μs 以内に分散した、5 個までのシンチレーション時限信号 (ストップ信号) を、分解時間約 60 ns (ストップ信号用 ORTEC #583 Constant Fraction Differential Discriminator で制約される。時限信号直並列変換器の不感時間は 30 ns である) で殆ど数え落しなく収録する。バースト毎のストップ信号数 (中性子数とバックグラウンド計数の和) は $n^1 \sim n^5$ 、オーバーフローの 6 台の計数器で平行に集計し、実験とデータ解析の補助資料とする。時限信号直並列変換器は中性子の着順判定器でもある。この系統は 150 μs 以内に完了する。

ビーム・バーストは 3.3 ms 間隔であるので、その前半 0.8 ms は ADC-X を働かせ、後半 2.5 ms は他の 1 台の ADC-Y を働かせる。この切替によってシンチレータから ADC に至る同一測定系を、全く同一のパラメータ・セッティングのまま時分割方式で使用できる。

毎バーストのスタート信号から、1.2 ms 遅れた 100 μs 間隔の 10 個 (1979. 12. 25 以前は 7 個) の負パルスを作り、スタート信号系に注入する。この操作により、同一測定条件で、しかも 10 倍の計数率で、ADC-Y 系を通してバックグラウンドの並行測定ができる。この操作は 1 照射時間の測定に対してその 10 倍の時間のバックグラウンド測定を行うことに相当し、放射線計測の常識に沿わないものであるが、後のデータ処理の過程で有利な点がある。

1 照射時間の ADC-Y の処理パルス数と、ADC-X の処理パルス数から前者の 10 分の 1 を差引いた計数を、独立の計数器で集計し、実験と校正に役立てる。ADC-X、ADC-Y 系とも、ディスク情報は後日オフ・ライン解析する。

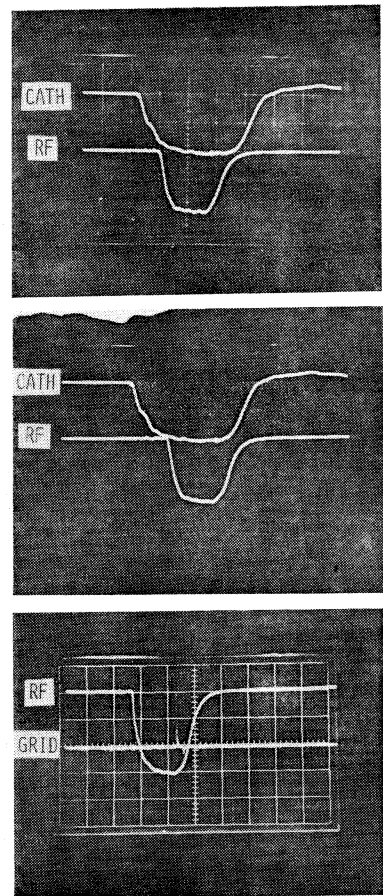
ビーム電流のバースト毎の積分値は 1024 チャンネル PHA (NS 1705) 系に入力するが、レート・メータ系にも分岐し運転室に導く。この方式ではビームの強度と、その 1 照射時間中の経過が把握できる。経過はカセット・レコーダに収録し保存できる。他方、PHA のアドレス

生成用 50 MHz ゲートド・クロック・パルスから、付加回路により一定プリセット数を減じアドレス比例数のパルスを発生し、それをプリセッタブル計数器でカウント・アップして、一定ドースで 1 照射を閉じる。照射を開始すれば、測定からデータのディスクへの格納まで自動進行する。

リニアックの運転は、測定中性子のタイミング領域内に検出水準以上の加速器暗電流パルスが生じないように、また光電子増倍管のスプーリアス・パルスの抑制に留意して、注意深く行う必要がある^{8, 16, 17)}。ビーム・エネルギー 60 MeV における前者の条件は、第 1 図の通りで、電子銃のバイアスを 300 V とし、陰極パルスと RF パルスの相対タイミングを上 2 図の限界内に制限し、かつ、格子パルスを最下図のように RF の終末端附近にセットする。エネルギーが低い場合にはバイアスを約 220 V まで浅くしても差支えない。

中性子エネルギーの較正は、7.334 MHz 水晶発振に基づく 136.35 ns ステップ可変の時限間隔校正器と、BNL¹⁸⁾ の ¹³C 共鳴エネルギーを利用して決定する。

シンチレータ系の検出効率は、 $E_{\gamma m} = 60$ MeV における重水と軽水の中性子スペクトルの差と重水素の光分解の理論値¹⁹⁾の比較から求める。 $E_{\gamma m} = 40$ MeV でも測定し、補助確認する。シンチレータの中性子検出効率の評価の理論や実験は多数報告されているが、時間分解能の良い TOF 実験ではシンチレーションのタイミング依存性が問題になるので、殆ど役立つ。独自の公式を作って併用した。中性子エネルギーの検出下限は、シンチレーションの振幅に対する制限、すなわちコンスタント・フラクシオン・ディスクリミネータのレベルと、タイミングに対する制限、すなわち TAC または ADC の変換範囲の両者から決定されるが、通常は後者の制限が決定因子となる条件で測定が行われる。したがって



第 1 図 ビーム出し条件。

加速器暗電流を抑制するには (上), (中) の 2 条件の範囲内で, (下) の条件で運転する。
2 μ s/div.。

通常測定条件のままで上記の検出効率の評価実験を行うと、振幅情報が把握されず放置されるために、応答関数が低エネルギー側で大きな誤差を含むほかに、系統的なずれの生じることがある。現在振幅検出下限が大略 0.5 MeV なので、TAC の時間範囲を 8 μ s に広げて評価実験を行う必要があるが、5 台の TAC 系の利得や待機時限合わせなどで測定パラメータが崩れるので、一連の実験の場合にはその最初期か最後に行わなければならない、未だ完全には実施していない。

標的や飛行路における中性子の吸収の補正は、BNL の値¹⁸⁾と独自の吸収実験のデータによる。制動放射線は Schiff の式²⁰⁾に従うとした。

運転の適当な条件のパラメータを見出して加速器暗電流を制御し、ゴースト・ビームを除いたこと、光電子増倍管の保護とスプーリアス・パルスの抑制を図ったこと、ビーム間隔中でのバックグラウンド測定により、照射中のバックグラウンド水準の変動やそのビーム・エネルギー依存性を明らかにし、かつその補正を行ったこと、収量とビーム強度に依存する、先着優先の原則による中性子スペクトルの歪みを除いたこと、ビーム電流の測定に十分速い、かつ積分型の変流器系を導入したこと、などにより、再現性のよい測定結果が得られるようになった。

ビーム・エネルギーは 17 MeV から 32 MeV までは、1 MeV 間隔で変え、エネルギー広がり は 5 ~ 3 % に定めた。

測定角は 90°, 中性子エネルギーの測定範囲は 0.9 MeV (但し 1979. 7. 6 以降。それ以前は ~ 2 MeV, ~ 1 MeV) から 30 MeV までである。S の自然存在比は ³²S 95.0 %, ³⁴S 4.2 %, ³³S 0.8 % である。

§ 3. 測定結果

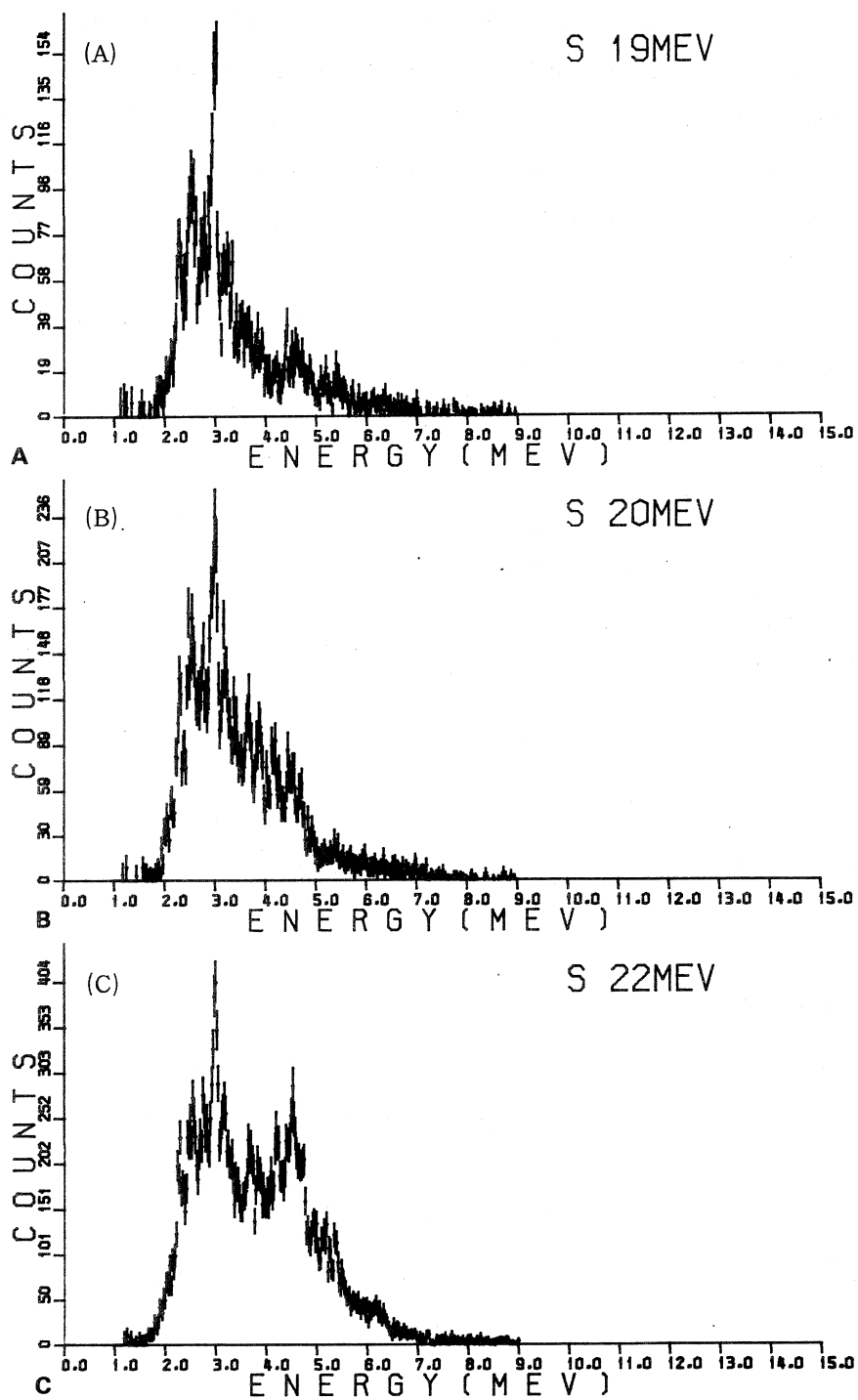
中性子検出下限エネルギーが ~ 2 MeV のスペクトルの一部を第 2 図に示した。また $E_{\gamma m} = 40$ MeV と、低エネルギー側を見るために検出下限を 0.5 MeV に下げて測定し直したもののうち 40, 32 MeV のスペクトルを第 3 図に示した。

標的の S は純度 99 % のブロックであるが、さらに自然存在比と反応しきい値は第 1 表の通りである。

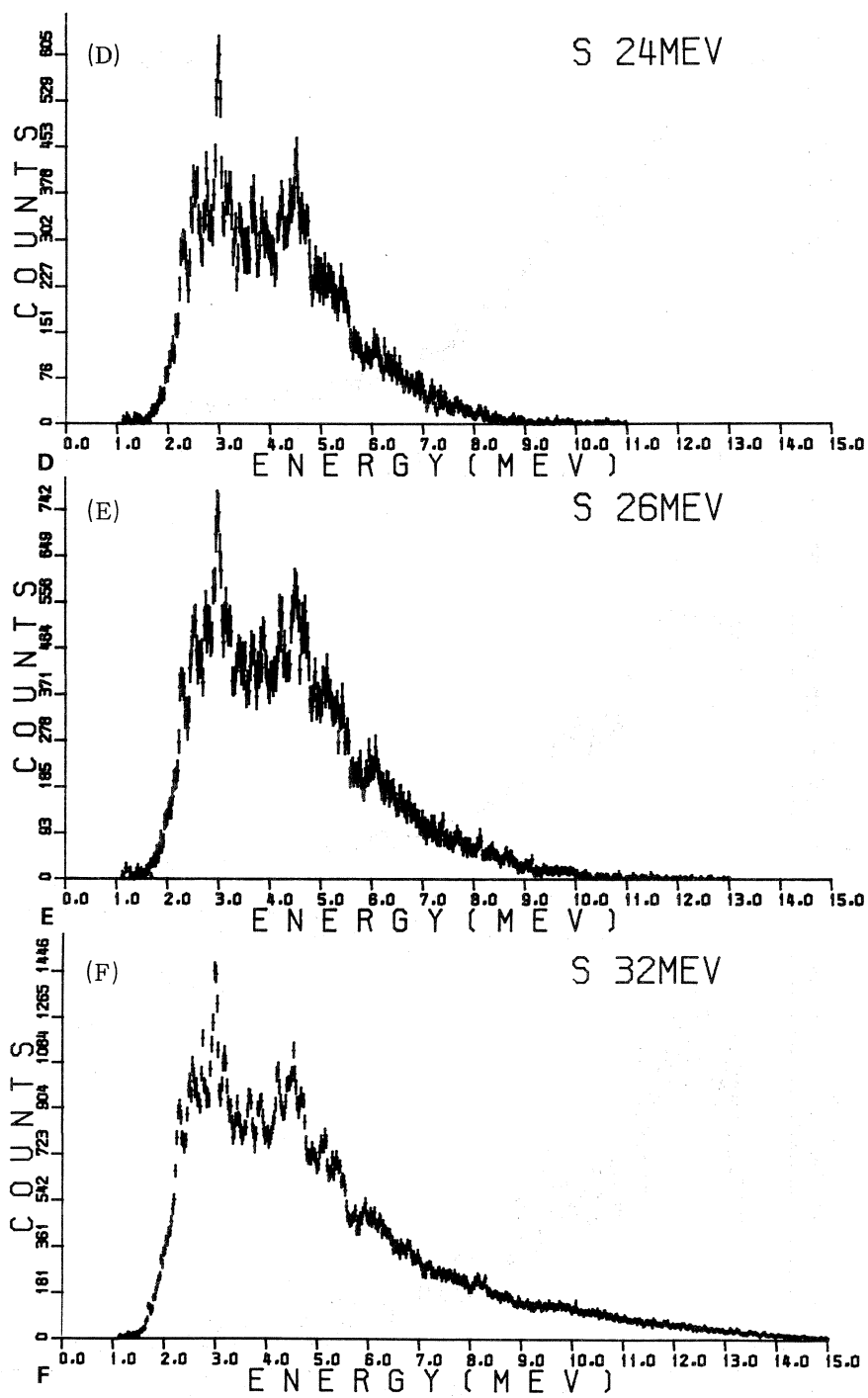
§ 4. 結果の考察

第 2, 3 図から制動放射線エネルギーと共にスペクトルが変化していく様子がわかる。

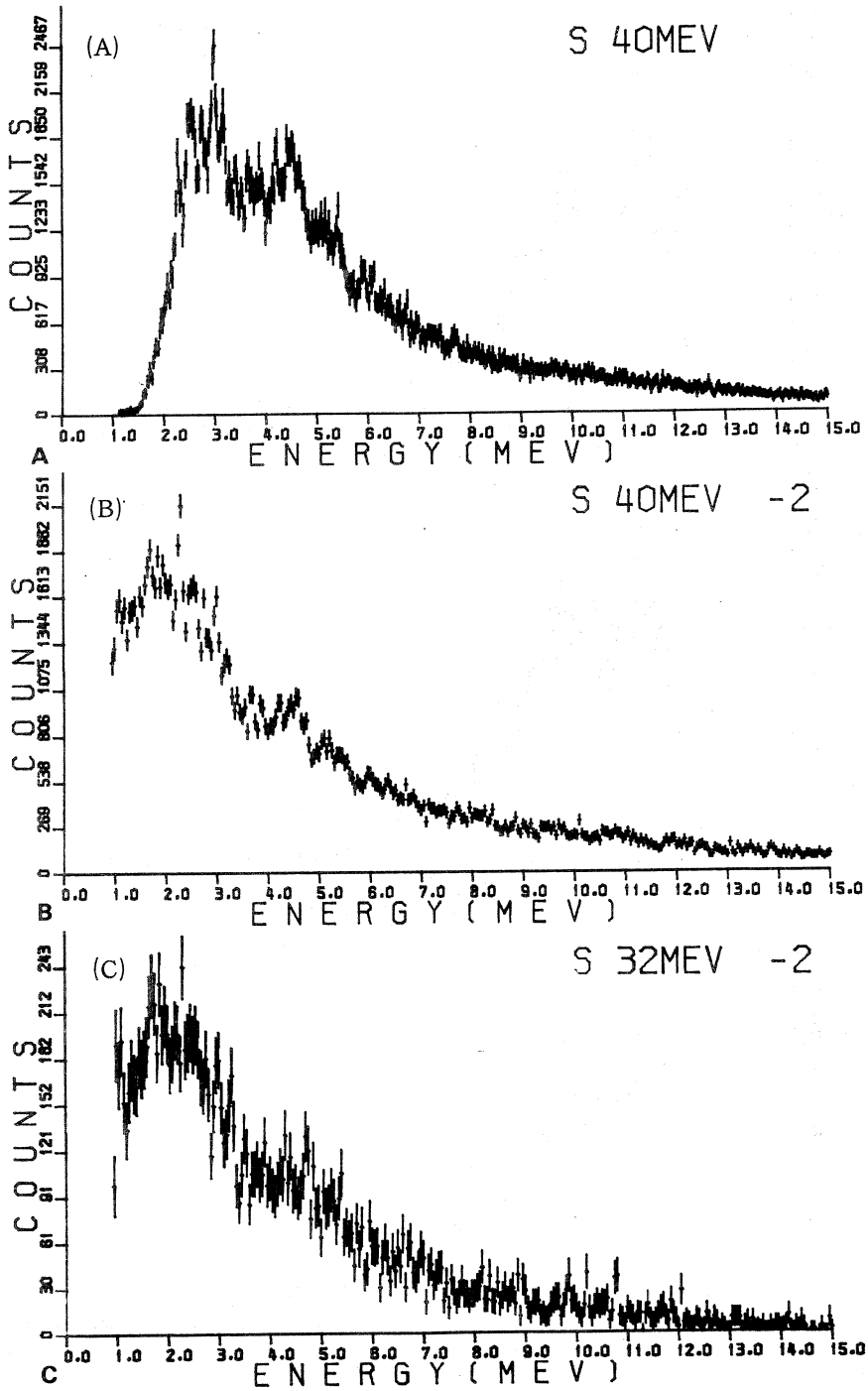
東北ベータトロンによる S (r, p) スペクトル^{21, 22)}を、比較のため第 4 図に示した。(p,



第2図 $^{32}\text{S}(\gamma, n)$ のエネルギー・スペクトル。
制動放射線の最大エネルギーは図中に示した。縦軸は任意目盛である。



第2図 (続き)

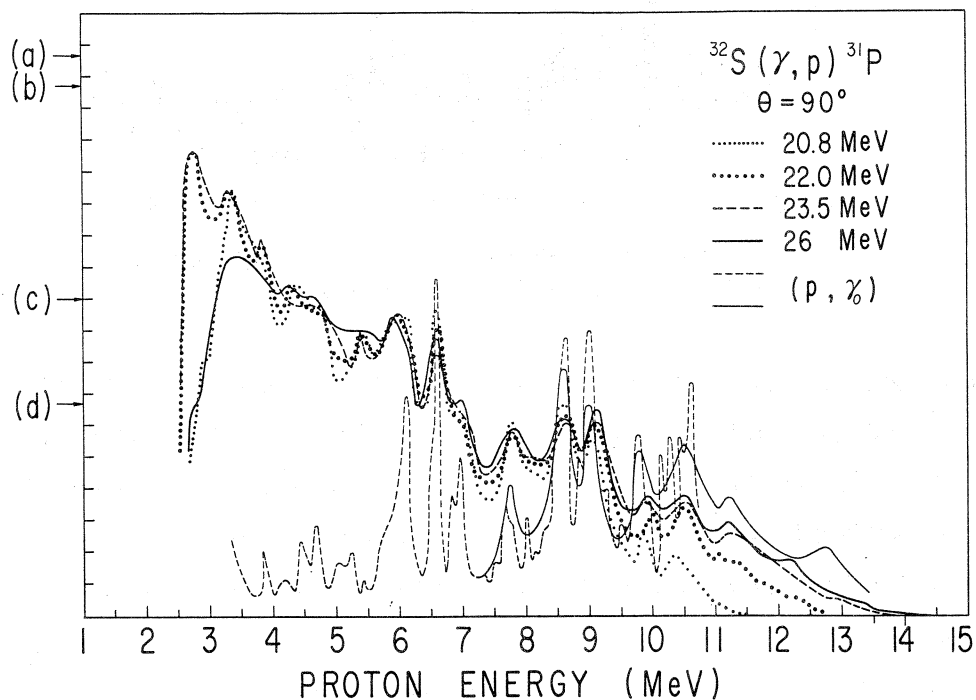


第3図 $^{32}\text{S}(r, n)$ のエネルギー・スペクトル。
 (B), (C) は検出下限を 0.5 MeV に下げて測定したスペクトル。

第1表 Sの存在比と反応しきいエネルギー。

A	存在比	反応しきいエネルギー (MeV)							
		(r, n)	(r, p)	(r, t)	(r, ^3He)	(r, α)	(r, 2n)	(r, np)	(r, 2p)
32	95.02	15.0	8.9	24.0	19.1	6.9	28.1	21.2	16.2
33	0.75	8.6	9.6	21.3	17.1	7.1	23.7	17.5	18.2
34	4.21	11.4	10.9	20.4	21.9	7.9	20.1	21.0	20.4
36	0.01	9.9	13.0	19.3	25.0	9.0	16.9	21.5	25.0

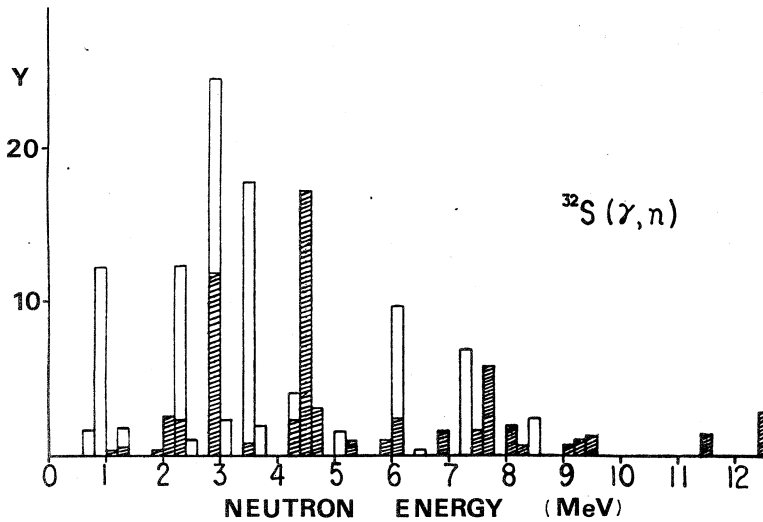
r) データ^{23,24)} を重ね書きしてある。 $^{32}\text{S}(r, n)$ と (r, p) のしきい差が 6.1 MeV なので、 (r, p) データを左へ 5.9 MeV ずらして比較してみると、両者はよく整合する。これらの (r, n) データは、エネルギー分解能の差異を考慮すれば、Firk のデータ²⁵⁾ とほぼ両立する。後者は経験則によるバックグラウンドの補正を行っている。他方、放射化法による Webb ら²⁶⁾ のデータとは、様子が大幅に異なる。Lokan ら²⁷⁾ の TOF データとも異なる。Goryachev ら²⁸⁾ のデータとも合わないが、そのエネルギー較正をやり直した最近の Varlamov



第4図 $^{32}\text{S}(r, p)^{31}\text{P}$ のエネルギー・スペクトル
東北ベータトロンによる測定結果^{21, 22)}

ら²⁹⁾のデータとはほぼ合致する。なお彼等の $E_{\gamma m} = 17.0 \sim 25.0 \text{ MeV}$ の (γ, p) スペクトルも、ほぼ東北ベータトロンによる (γ, p) のそれと合致する。またIshkhanovら³⁰⁾やWuら³³⁾のデータや、Bergèreら^{31, 32)}の単色光子による測定とも合致する。

Spicer³⁴⁾は粒子・空孔モデルに基づいて理論計算を行った²⁶⁾が、むしろ巨大共鳴の configurational splitting モデルによるGoryachevら³⁵⁾の計算が、我々のスペクトルとよく合致する。Goryachev らの計算スペクトルを第5図に示した。すでにSchiffの制動放射線スペク



第5図 Configurational Splittingモデルによる $^{32}\text{S}(\gamma, n)$ 計算スペクトル。

Schiffの制動放射線スペクトル²⁰⁾を仮定し、白棒と縞棒はそれぞれ文献35の遷移群A, Bに対応する。

トルを仮定して、測定スペクトルと比較できる形になっている。明示はされていないが、 $E_{\gamma m} = 34 \text{ MeV}$ と推定される。白棒と縞棒はそれぞれ、 $1s^4 1p^{12} (1d - 2s)^{15} (1f - 2p)^1$: $J^\pi T = 1^- 1$, $1s^4 1p^{11} (1d - 2s)^{17}$: $1^- 1$ への遷移群に対応する。第5図を第2図(F) (32 MeV)に重ねてみると、 $E_n \geq 2 \text{ MeV}$ でよく一致し、また第3図(C)と重ねてみると $E_n \geq 1 \text{ MeV}$ で一致する、すなわち全範囲にわたって両者の特徴が実によく合致することがわかる。

おわりにマシン・クルー、計測グループ、 (γ, p) , (γ, π) グループの格別の御協力と適切なアドバイスに感謝致します。

参 考 文 献

- 1) W. Bertozzi, F. R. Paolini and C. P. Sargent : Phys. Rev. **110** (1958) 790.
- 2) D. H. Wilkinson : Physica **22** (1956) 1039.
- 3) F. W. K. Firk and K. H. Lokan : Phys. Rev. Lett. **8** (1962) 321.
ただし Harwell における TOF facilities は 1952 年頃からはじまっている (F. W. K. Firk : Nucl. Instrum. & Methods **162** (1979) 539.) .
- 4) M. Mishina, E. Tanaka, K. Kageyama *et al.* : J. Phys. Soc. Jpn. **23** (1967) 919 ; K. Kageyama, M. Mishina *et al.* : Ph. D. Thesis (1964) .
- 5) 陸路, 川村, 大沢, 坪田 : 核理研研究報告 **2** (1969) 57.
- 6) 陸路, 川村, 坪田 : *ibid* **2** (1969) 47.
- 7) 陸路, 川村, 坪田 : *ibid* **3** (1970) 48.
- 8) 川村, 坪田, 斎藤他 : *ibid* **4** (1971) 48.
- 9) 川村, 坪田, 遠藤他 : *ibid* **4** (1972) 42.
- 10) 川村, 坪田, 遠藤他 : *ibid* **5** (1972) 60.
- 11) 詳細は別報。
- 12) 阿部, 坪田, 宮瀬, 川村, 金沢 : 日本物理学会年会, 第 34 回 (1979 March), 第 35 回 (1980 March) .
- 13) G. P. Lamaze, J. K. Whittaker, R. A. Shrack and O. A. Wasson : Nucl. Instrum. & Methods **123** (1975) 403.
- 14) I. V. Krinskii, I. S. Nikolaichuk *et al.* : Prib. Tekh. Eksp. (**1**) (1971) 195.
A. A. Sisin and A. L. Skrelin : *ibid.* (**4**) (1972) 181.
- 15) K. B. Keller and B. M. K. Nefkens : Rev. Sci. Instrum. **35** (1964) 1359.
- 16) A. Williams and D. Smith : Nucl. Instrum. & Methods **112** (1973) 131.
- 17) S. J. Hall : Nucl. Instrum. & Methods **164** (1979) 189.
- 18) S. F. Mughabghab and D. I. Garber : *Neutron cross sections* (Natl. Tech. Info. Service, Springfield, VA, 1973) . Vol. 1, BNL 325. 3rd.
- 19) J. S. Levinger : Phys. Rev. **97** (1955) 970.
- 20) L. I. Schiff : Phys. Rev. **83** (1951) 252.
- 21) K. Abe, N. Kawamura, M. Kanazawa and N. Mutsuro : J. Phys. Soc. Jpn. **25** (1968) 1728.

- 22) K. Abe, N. Kawamura, M. Kanazawa and N. Mutsuro: J. Phys. Soc. Jpn. **26** (1969) 203.
- 23) M. Kimura, K. Shoda, N. Mutsuro, M. Sugawara, K. Abe *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **18** (1963) 477.
- 24) G. Dearnaley, D. S. Gemmell, B. W. Hooton and G. A. Jones: Nucl. Phys. **64** (1965) 177.
- 25) F. W. K. Firk: Nucl. Phys. **52** (1964) 437.
- 26) D. V. Webb, B. M. Spicer, H. Arenhövel and W. Greiner: PICNS-67 (Tokyo) (1967) 377; D. V. Webb, B. M. Spicer and H. Arenhövel: Phys. Rev. **164** (1967) 1397; M. N. Thompson, J. M. Taylor and D. V. Webb: Phys. Lett. **14** (1965) 223.
- 27) K. H. Lokan, N. K. Sherman, R. W. Gellié *et al.*: PICNS-73 (Asilomar) (1973) 173.
- 28) B. I. Goryachev, B. S. Ishkhanov, V. G. Shevchenko and B. A. Yur'ev: Sov. J. Nucl. Phys. **7** (1968) 698.
- 29) V. V. Varlamov, B. S. Ishkhanov, I. M. Kapitonov *et al.*: Sov. J. Nucl. Phys. **28** (1978) 302.
- 30) B. S. Ishkhanov and V. G. Shevchenko: PICNS-73 (Asilomar) (1973) 511.
- 31) R. Bergère, H. Beil, P. Carlos *et al.*: PICNS-73 (Asilomar) (1973) 525.
- 32) A. Veyssièrè, H. Beil, R. Bergère *et al.*: Nucl. Phys. **A 227** (1974) 513.
- 33) C.-P. Wu, F. W. K. Firk and T. W. Phillips: Nucl. Phys. **A147** (1970) 19.
- 34) B. M. Spicer: Australian J. Phys. **18** (1965) 1.
- 35) B. I. Goryachev, L. Majling, V. G. Neudatchin and B. A. Yuryev: Nucl. Phys. **A93** (1967) 232.

$^{196}\text{Pt}(e, \alpha)$ 反応の研究

核理研

浦野隆夫・広岡 恵
菅原真澄

§ 1. 序

光核反応における α 粒子放出反応((e, α) 及び (r, α))の研究において、現在、以下のような課題があると考えられる。

- (1) 放出 α 粒子のエネルギースペクトルのうち、統計理論で説明されない部分(スペクトルの高エネルギー側、及び重い核でのスペクトル)の反応機構を解明する事。
- (2) (r, α) 反応断面積で、E 1 巨大共鳴を越えた領域での断面積の反応機構を解明する事。
- (3) 反応に関与する励起モードを明らかにする事。

これらの課題に答える手がかりを得るため、 $^{196}\text{Pt}(e, \alpha)$ 反応による α 粒子のエネルギースペクトルと角分布、及び収率曲線を測定し、 (r, α) 反応断面積を求め、前平衡過程の理論に基づく計算結果との比較を行なった。¹⁾ Ptのような原子番号の大きい核では、巨大共鳴領域からの α 粒子放出が強く抑えられ、巨大共鳴を越えた領域での (r, α) 反応を研究するのに有利であるが、その反応断面積は小さく、長時間のデータ集積を必要とする。

§ 2. 実験装置と実験の方法

実験は核理研第一実験室で行なった。運動量分散2%の電子線を標的核に照射し、放出される α 粒子は、広帯域分析電磁石で運動量分析し多線比例計数管で検出した。

ターゲットは、同位体存在比で54.89%に濃縮した ^{196}Pt の粒を圧延したものをを用いた。厚さは $4.49\text{mg}/\text{cm}^2$ である。ターゲット中の同位体存在比を第1表に示す。

電子の非弾性散乱による原子核の励起は、仮想光子の“吸収”による励起として解析した。仮想光子スペクトルとしては、歪曲波ボルン近似の計算値²⁾に合わせた近似式を用いた。E 1 仮想光子については、Nasciment o らによって提唱された近似式³⁾を用い、E 2 仮想光子については、我々が新たに求めた近似式を用いた。電子の全エネルギーを E_e 、光子のエネルギーを E_γ 、単位エネルギー幅当たりの仮想光子数を $N(E_e, E_\gamma)$ と定義すると、それぞれの近

第1表 ターゲット中の同位体存在比。

Mass number	Abundance (%)	Threshold energy of (r, α) reaction (MeV)
190	< 0.1	- 3.2
192	< 0.1	- 2.4
194	8.91 \pm 0.1	- 1.5
195	33.46 \pm 0.1	- 1.2
196	54.89 \pm 0.1	- 0.8
198	2.74 \pm 0.1	- 0.1

似式は次のように表わされる。

$$N^{E1}(E_e, E_r, Z) = N_{E1}^{PWBA}(E_e, E_r) + [1.29 \times 10^{-5} \exp(1.245 Z^{\frac{1}{3}} - 0.052 E_e)] \frac{E_f + m_e}{E_e + m_e} \quad (1)$$

ただし, Z は標的核の原子番号,

m_e は電子の静止質量,

$$E_f = E_e - E_r,$$

N_{E1}^{PWBA} は平面波ボルン近似によるスペクトルで

$$N_{E1}^{PWBA}(E_e, E_r) = \frac{\alpha}{\pi} \frac{1}{E_r} \left\{ \frac{E_e^2 + E_f^2}{E_e^2 - m_e^2} \ln \frac{E_e E_f + \sqrt{(E_e^2 - m_e^2)(E_f^2 - m_e^2)} - m_e^2}{m_e E_r} - 2\sqrt{\frac{E_f^2 - m_e^2}{E_e^2 - m_e^2}} \right\},$$

$$N^{E2}(E_e, E_r; \text{for Pt}) = N_{E2}^{PWBA}(E_e, E_r) + \frac{3.4}{E_e} \exp \left\{ -15 \left(\frac{E_r}{E_e} - 0.65 \right)^3 - 6.7 \frac{E_r}{E_e} \right\} \quad (2)$$

ただし,

$$N_{E2}^{PWBA}(E_e, E_r) = \frac{\alpha}{\pi} \frac{1}{E_r} \left\{ \frac{E_e^2 + E_f^2}{E_e^2 - m_e^2} \ln \frac{E_e E_f + \sqrt{(E_e^2 - m_e^2)(E_f^2 - m_e^2)} - m_e^2}{m_e E_r} + \frac{8}{3} \frac{E_f^2 - m_e^2}{E_r^2} \right\}. \quad (\text{参考文献 4})$$

励起モードの決定には、仮想光子スペクトルと制動輻射による実光子スペクトルとの違いを利用する。前者は、励起モードによって強さが異なるのに対し、後者は、各励起モードが同じ強さで含まれる。制動輻射は、ターゲットの直前（6.3 cmの距離）に置いた白金の薄板（83.9 mg/cm²）に電子線を照射して発生させ、これを電子線と同時にターゲットに照射した。この場合の測定結果を、電子線だけの照射による場合と比較して、制動輻射の寄与分を求めた。制動輻射による実光子スペクトルは、Schiffによって与えられた制動輻射光子発生断面積⁵⁾を用いて計算した。この断面積は、radiatorの原子番号をZとすると次のように表わされる。

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

ただし、

$$\begin{aligned} \frac{1}{M(0)} &= \left(\frac{m_e c^2 E_r}{2E_e E_f} \right)^2 + \left(\frac{Z^{\frac{1}{3}}}{C} \right)^2 , \\ b &= \frac{2E_e E_f Z^{\frac{1}{3}}}{C m_e c^2 E_r} , \quad C = \frac{183}{e^{\frac{1}{2}}} = 111 . \end{aligned}$$

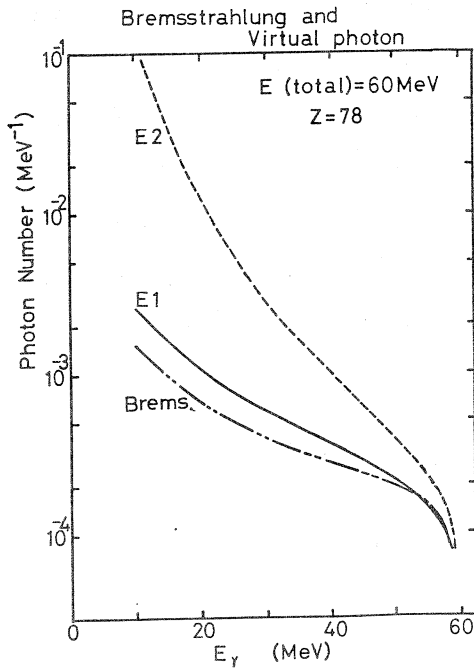
第1図に、電子線エネルギー60 MeVでの、仮想光子及び制動輻射のスペクトルの計算値を示す。

α 粒子の収率曲線から(r, α)反応断面積を求めるのには、least structure method⁶⁾を用いた。

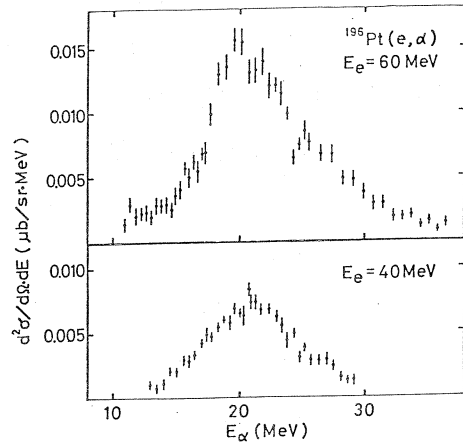
§ 3. (r, α) 反応断面積と r 線の吸収モード

第2図に、¹⁹⁶Pt(e, α)反応による α 粒子のエネルギースペクトルを示す。測定角度はビームの方向に対して90°であり、三種類の設定磁場での測定結果をつなぎ合わせたものである。測定値の統計精度を上げるため、多線比例計数管のとなり合う5本の信号線について平均をとり、図示してある。 α 粒子のエネルギーは、 α 粒子が全てターゲットの厚さの中央から出たものとして、エネルギー損失の補正を行なっている。

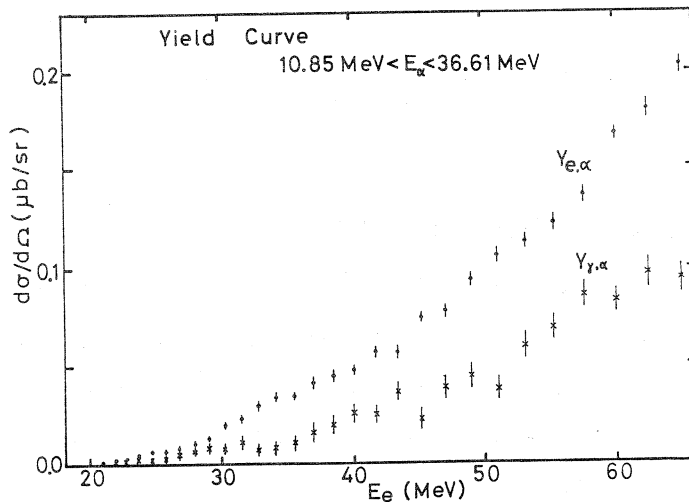
電子線エネルギー21 MeVから65 MeVまで測定した α 粒子の収率曲線は、第3図の通りである。 $Y_{e, \alpha}$ は電子線照射による収率曲線、 $Y_{r, \alpha}$ は制動輻射による収率曲線である。測定



第1図 全エネルギー60 MeVの電子による、仮想光子スペクトルと制動輻射実光子スペクトルの計算値。仮想光子(E1及びE2)は、Ptに対する歪曲波ボルン近似の計算値。制動輻射は、Ptの radiator (83.9 mg/cm²) に対する、Schiffの式による計算値。



第2図 ¹⁹⁶Pt(e, α)反応によるα粒子のエネルギースペクトル。測定の間度は、ビームの方向に対して90°。α粒子が全てターゲットの厚さの中央から出たと仮定して、エネルギー損失の補正をしてある。



第3図 ¹⁹⁶Ptからのα粒子収率曲線。Y_{e,α}は電子線照射による収率で、Y_{r,α}は制動輻射の照射による収率。α粒子のエネルギーの範囲は、10.85~36.61 MeV。測定の間度は90°。

点の間隔は、各点の電子線エネルギーの4%となるようにとった。測定した α 粒子のエネルギー範囲は、10.85~36.61 MeVである。測定は、ビームの方向に対して 90° の角度で行なった。

これらの α 粒子収率曲線から (r, α) 反応断面積を導出するに当たって、この反応に関する励起モードとして、E1モードとE2モードの二つを仮定した。

$$\sigma_{r,\alpha}^{\text{total}} = \sigma_{r,\alpha}^{\text{E1}} + \sigma_{r,\alpha}^{\text{E2}} \quad (4)$$

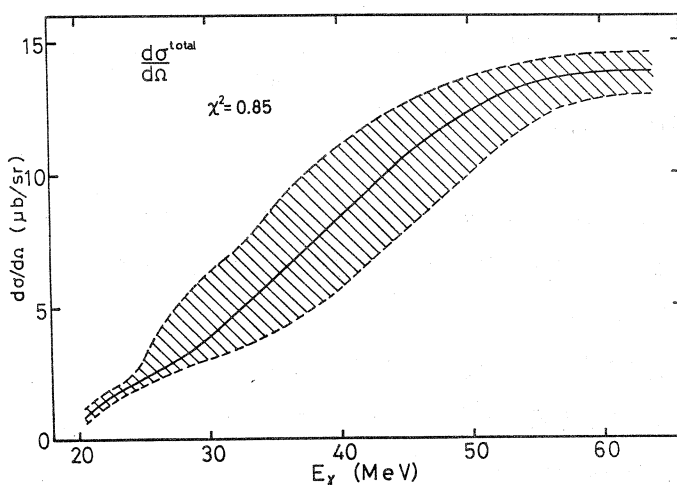
電子線照射による α 粒子の収率を $Y_{e,\alpha}$ 、制動輻射による収率を $Y_{r,\alpha}$ 、仮想光子スペクトルを $N_{\text{VP}}^{\text{E1}}$ 及び $N_{\text{VP}}^{\text{E2}}$ 、制動輻射実光子スペクトルを N_{RP} とすると、次のようになる。

$$\begin{aligned} Y_{e,\alpha}(E_e) &= \int \left\{ \sigma_{r,\alpha}^{\text{E1}}(E_r) N_{\text{VP}}^{\text{E1}}(E_e, E_r) \right. \\ &\quad \left. + \sigma_{r,\alpha}^{\text{E2}}(E_r) N_{\text{VP}}^{\text{E2}}(E_e, E_r) \right\} dE_r \\ &= \int \left\{ \sigma^{\text{total}} N_{\text{VP}}^{\text{E1}} + \sigma^{\text{E2}} (N_{\text{VP}}^{\text{E2}} - N_{\text{VP}}^{\text{E1}}) \right\} dE_r, \end{aligned} \quad (5)$$

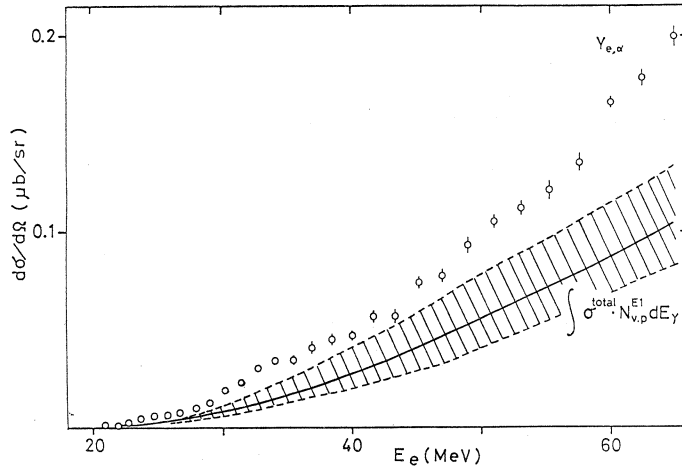
$$Y_{r,\alpha}(E_e) = \int \sigma^{\text{total}} N_{\text{RP}} dE_r \quad (6)$$

従って、(6)式より σ^{total} を求め、それを(5)式に代入すれば、 σ^{E2} を求める事ができる。

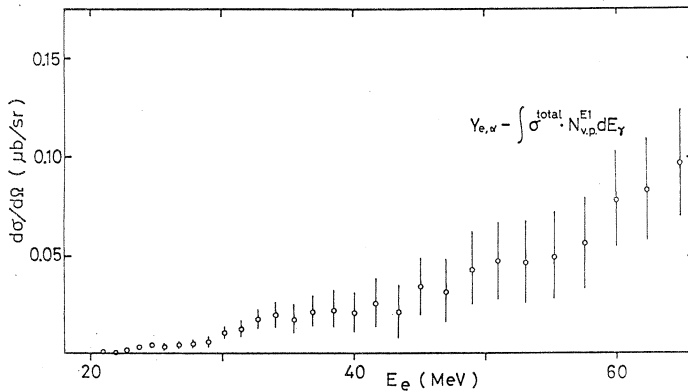
$$Y_{e,\alpha} - \int \sigma^{\text{total}} N_{\text{VP}}^{\text{E1}} dE_r = \int \sigma^{\text{E2}} (N_{\text{VP}}^{\text{E2}} - N_{\text{VP}}^{\text{E1}}) dE_r \quad (7)$$



第4図 制動輻射の照射による α 粒子収率曲線から、least structure methodで求めた (r, α) 反応断面積 (σ^{total}) 。



第5図 第4図の σ^{total} を用いて計算した $\int \sigma^{\text{total}} N_{VP}^{E1} dE_\gamma$ (実線)。
 $Y_{e,\alpha}$ (白丸)との間に差があるのは、 σ^{total} に E^2 成分がある事を意味している。

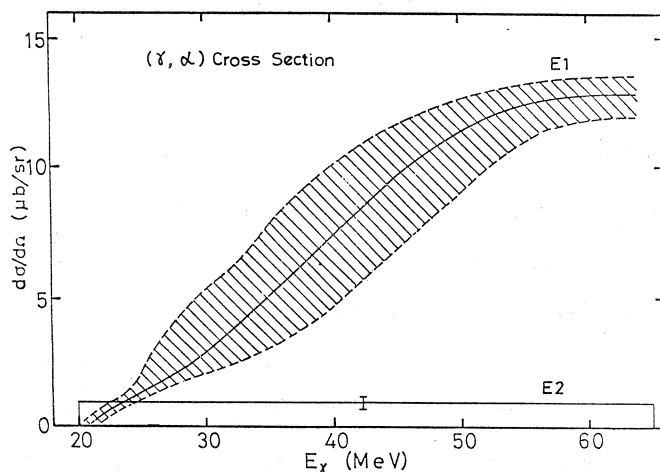


第6図 $Y_{e,\alpha} - \int \sigma^{\text{total}} N_{VP}^{E1} dE_\gamma$ 。

$Y_{e,\alpha}$ より least structure method で求めた σ^{total} は、第4図の通りである。データ点1点当たりの χ^2 は0.85である。斜線は、断面積の統計誤差及び γ 線エネルギーの誤差のうち最大のものがおおう範囲を示している。

この σ^{total} を用いて $\int \sigma^{\text{total}} N_{VP}^{E1} dE_\gamma$ を計算した結果が第5図である。 $Y_{e,\alpha}$ と比較すると、両者の間にはっきりと差が見られ、 σ^{E1} 以外に σ^{E2} の寄与がある事を示している。両者の差をとると、第6図のようになる。

(7)式により、第6図に示した曲線から、 $N_{VP}^{E2} - N_{VP}^{E1}$ のスペクトルを用いて、 σ^{E2} を求める事ができる。least structure method により σ^{E2} を求めると、データ点1点当たりの χ^2 が



第7図 σ^{E2} として20 MeVから65 MeVまでの矩形を仮定したときの、 σ^{E1} と σ^{E2} 。

1となる付近では、断面積は横一直線となり、断面積の形についての有用な情報は得られない。これは、第6図の曲線の各点の持つ誤差が大きいためである。従って、 σ^{E2} を20 MeVから65 MeVまでの矩形と仮定し、その大きさのみを議論する事とした。このようにして求めた σ^{E2} の大きさは、 $0.89 \pm 0.24 \mu\text{b}/\text{sr}$ であった。 σ^{total} から σ^{E2} を差し引いたものを σ^{E1} とし、 σ^{E2} と並べて示したのが第7図である。

得られた σ^{total} 、 σ^{E1} 、 σ^{E2} を γ 線エネルギーについて20 MeVから65 MeVまで積分すると第2表ようになる。Energy Weighted Sum Rule (EWSR)の値に占める割合も合わせて示した。

第2表 反応断面積の積分値(20 ~ 65 MeV)と、EWSR値に占める割合。

	$\int d\sigma/d\Omega dE_{\gamma} (\mu\text{b} \cdot \text{MeV}/\text{sr})$	EWSR (%)
Total	370 ± 70	
E 1	330 ± 71	0.15 ± 0.03
E 2	40 ± 11	0.12 ± 0.03

ただしこの場合は、求めた積分値を 4π 倍して比較を行なった。

第7図を見ると、得られたE 1断面積にはE 1巨大共鳴((r, n) 反応では14 MeV付近にピークがある)に対応した構造はない。実際、収率曲線は電子線エネルギー21 MeV付近でほとんど零になる。また、エネルギースペクトルに於いて、15 MeV以下にはほとんど α 粒子

は見られない。E 1 巨大共鳴からの α 粒子放出は、クーロン障壁によって全く抑えられている事がわかる。

§ 4. 前平衡過程の理論による計算

前章で得られた (r, α) 反応断面積は、どのような反応機構によるものであろうか。

第 8 図は、65 MeV の電子線で照射したとき、 ^{196}Pt から放出される α 粒子の角分布である。

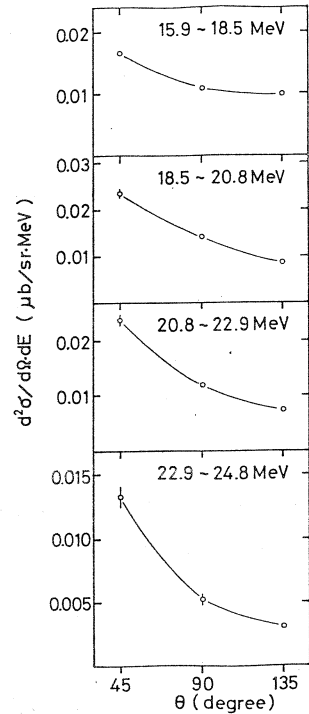
図に示した各エネルギー範囲でのスペクトルの平均値を図示した。全て前方ピークを示し、 α 粒子のエネルギーが高くなるにつれて、前方ピークの度合いが強くなる。角分布の 90° 非対称性から見て、複合核過程によるものでない事は明らかである。直接過程又は前平衡過程の可能性が考えられる。

(r, α) , (e, α) 反応に関する直接過程の理論は、未だ確立されていない。 ^{90}Zr (r, α) 反応断面積についてなされた計算結果⁷⁾ は、ポテンシャルのとり方によって大きく変化し、しかも実験値を再現していない。

一方、前平衡過程の理論は、 (n, n') , (n, p) , (p, p') , (p, n) 反応等で成功を収め、その後複合粒子 (d , t , τ , α) の関与した反応に拡張されてきている。⁸⁾ また、光核反応にも応用され始めているが、⁹⁾ まだ始まったばかりであると言える。準重陽子模型による光子の吸収と前平衡過程の理論とを組み合わせた我々の計算¹⁰⁾ は、Mo, Gd, Ta, Pt について (e, α) 反応による α 粒子のエネルギー・スペクトルの形をかなり再現した。

ここでは、前平衡過程の理論を用いて、エネルギー・スペクトルと (r, α) 反応断面積を計算し実験値と比較するが、エネルギー・スペクトルは、前章で得られた (r, α) 反応断面積を用いて計算する。

エネルギー・スペクトルは、以下のようにして計算する。励起エネルギー E の原子核からエネルギー ϵ の α 粒子が前平衡過程によって放出される全確率を $I_\alpha(E, \epsilon)$ とする。前章で得ら



第 8 図 ^{196}Pt (e, α) 反応による α 粒子の角分布。電子線エネルギーは 65 MeV。各点は、図中に示した各エネルギー範囲での、エネルギー・スペクトルの平均値。エネルギーが高くなるほど前方ピークが強くなる。

れた (r, α) 反応断面積 $\sigma^{\lambda L}(E)$ が、全て前平衡過程によるものであるとすると、電子線エネルギー E_e における (e, α) 反応での α 粒子のエネルギースペクトル $d\sigma/d\varepsilon$ は次のようになる。

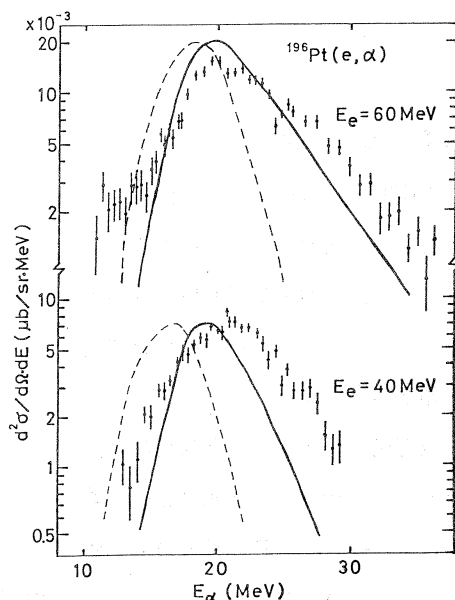
$$\frac{d\sigma(E_e, \varepsilon)}{d\varepsilon} = \int \frac{I_\alpha(E, \varepsilon)}{\int I_\alpha(E, \varepsilon) d\varepsilon} \left\{ \sum_{\lambda L} \sigma^{\lambda L}(E) N_{VP}^{\lambda L}(E_e, E) \right\} dE \quad (8)$$

ただし、 λL は E 1 又は E 2。

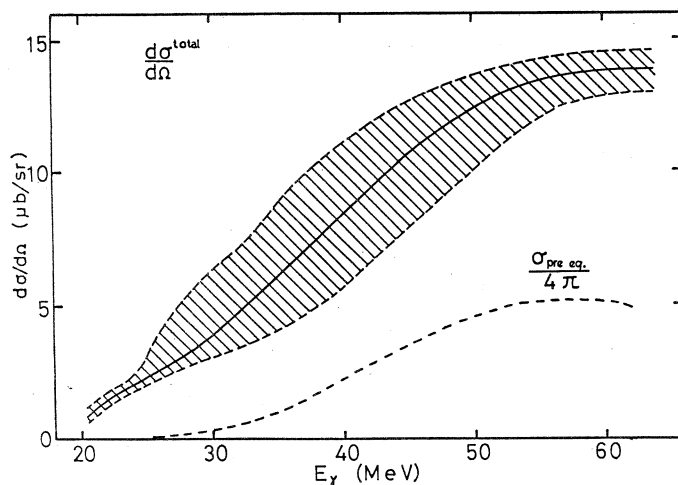
前平衡過程の理論による計算は、光核反応に前平衡過程の理論を応用した Wu and Chang の論文^{9, 11)}に従って、励起子模型を用いて行なった。粒子の放出確率は、文献 10) と同じ式を用いて計算した。この式に含まれる任意のパラメータ r_α , K については、Wu らの論文に従って $r_\alpha = 2.11 \times 10^{-4}$, $K = 100$ を用いた。計算では、中性子、陽子、 α 粒子の放出だけを考え、一つの原子核からは最大 1 個の粒子しか放出されないという仮定を行なった。逆反応断面積を求めるための透過係数の計算には、文献 10) と同じ光学ポテンシャルを用いた。粒子-空孔状態の始状態は 2 粒子-2 空孔状態とし (準重陽子による光子の吸収を想定している)、15 粒子-15 空孔状態まで計算した。

エネルギースペクトルの計算の結果を第 9 図に示す。統計理論による計算値と比較すると、実験値との一致はかなり良くなっている。しかし、計算値のピークのエネルギーはまだ実験値より低く、高エネルギー側での計算値も小さくて、特に電子線エネルギーが 40 MeV の場合に著しい。こうした違いは、スペクトルの高エネルギー側における直接過程の寄与を示唆していると言えるかもしれない。

一方、前平衡過程の理論による (r, α) 反応断面積の計算は、準重陽子による光子の吸収¹²⁾を仮定して行なった。準重陽子による光子の吸収断面積は、文献 10) と同じ式を用いた。こ



第 9 図 前平衡過程の理論によるスペクトルの計算値(実線)。破線は、統計理論による計算値を規格化したもの。黒丸は実験値。



第10図 前平衡過程の理論による (r, α) 反応断面積の計算値(破線)。準重陽子による光子の吸収を仮定している。実線は実験値。

の結果得られた (r, α) 反応断面積を、第10図に示す。計算値を 4π で割って、実験値と比較している。大きさは合わないが、 r 線エネルギーと共に断面積が増加していく傾向は、よく再現している。

§ 5. 結 論

本研究で、 Zr より重い核の (r, α) 反応断面積が、初めて得られた。

$E1$ 巨大共鳴からの α 粒子放出は、クーロン障壁によって全く抑えられ、 20 MeV 付近からゆるやかに増加する断面積だけが得られた。これは ^{90}Zr で得られた断面積⁷⁾と傾向が一致している。 r 線エネルギーについて積分すると、 $20 \sim 65\text{ MeV}$ の範囲で $370 \pm 70\ \mu\text{b} \cdot \text{MeV}/\text{sr}$ の値が得られた。

仮想光子スペクトルと制動輻射実光子スペクトルとの違いを利用して、 (r, α) 反応断面積を、 $E1$ 成分と $E2$ 成分とに分離した。 $E1$ 成分が主であるが、 $E2$ 成分の存在は歴然としている。得られた $E2$ 成分の積分値は、 $40 \pm 11\ \mu\text{b} \cdot \text{MeV}/\text{sr}$ であった。

α 粒子の角分布が、スペクトルの全体にわたって強い前方ピークを示す事から、前平衡過程又は直接過程による反応であると考えられる。励起子模型による前平衡過程の理論を用いて、エネルギースペクトル及び (r, α) 反応断面積の計算を行なった。その結果、計算値は実験値の特徴をかなり再現し、前平衡過程の理論がこの反応に対して有力なものである事を示した。

今後、多くのデータの集積と、直接過程も含めた多方面からの研究の発展が期待される。

参 考 文 献

- 1) 浦野隆夫：博士論文（東北大学，1979）。
- 2) W. W. Gargaro and D. S. Onley : Phys. Rev. **C4** (1971) 1032.
- 3) I. C. Nascimento, E. Wolyneec and D. S. Onley: Nucl. Phys. **A 246** (1975) 210.
- 4) W. C. Barber and T. Wielding: Nucl. Phys. **18** (1960) 575.
- 5) L. I. Schiff : Phys. Rev. **83** (1951) 252.
- 6) B. C. Cook: Nucl. Instrum. and Methods **24** (1963) 256.
- 7) 玉江忠明：博士論文（東北大学，1977）。
- 8) M. Blann: Ann. Rev. Nucl. Sci. **25** (1975) 123.
- 9) J. R. Wu and C. C. Chang: Phys. Rev. **C16** (1977) 1812.
- 10) 広岡，浦野，菅原 : 核理研研究報告 **12** (1979) 25.
- 11) J. R. Wu and C. C. Chang: Phys. Rev. **C17** (1978) 1540.
- 12) J. S. Levinger : *Proc. Int. Conf. Low and Intermediate Energy Electromagnetic Interactions* **3** (1967) 411.

II. 物 性 物 理

Fe_{3-x}Mn_xSi 固溶体の磁気相図

(Fe_{0.75}Mn_{2.25}Si の磁性)

金研

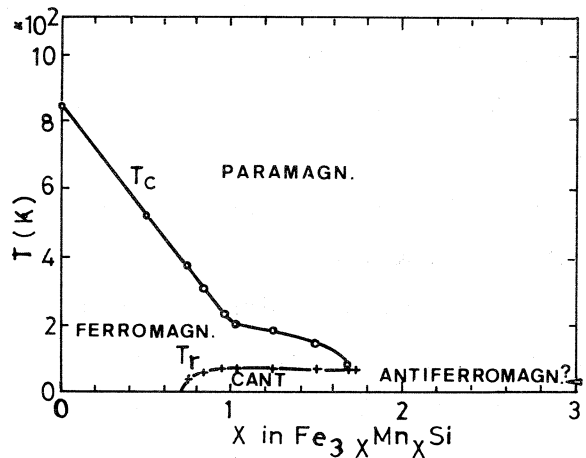
大橋正義・富吉昇一

§ 1. 序

強磁体 Fe₃Si ($T_c = 850$ K)¹⁾ と反強磁体 Mn₃Si ($T_N = 25.8$ K)²⁾ は全域固溶体 Fe_{3-x}Mn_xSi をつくる。³⁾ DO₃ 型結晶構造の Fe₃Si の Fe を Mn は選択的置換し L2₁ 型結晶構造をとるようになる。⁴⁾ この構造は原点を $(0, 0, 0)$, $(\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, \frac{1}{4})$, $(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ および $(\frac{3}{4}, \frac{3}{4}, \frac{3}{4})$ とする 4 個の f. c. c. 部分格子 A, B, C, D より成り, A, C 位置は主として Fe 原子で, B 位置は Mn で, そして, D 位置は Si 原子により占められている。格子定数は Mn の増加と共に直線的に大きくなるが, $x \cong 2.0$ を境に勾配を異にし, より大きな増大を示す。 $x \geq 2.0$ では, Mn₅Si₂ 型構造で指数付けできる微量の第 2 相が報告されている。 $x \leq 1.75$ の磁性は磁気測定, 中性子線回折⁴⁾ 等により詳しく調べられている。 $0 \leq x < 0.75$ では B 位置と A, C 位置の磁気能率を異にする単純強磁性で, 第 1 図に示すように, x の増加に伴いキュリー温度 T_c は直線的に減少する。 $0.75 \leq x < 1.75$ では, 転移温度 T_R を示すようになり, $T \leq T_R$ で磁化は減少し, $\langle 111 \rangle$ を容易軸とした $\langle 111 \rangle$ 方向の反強磁性結合を伴うようになる。

$x \geq 1.75$ の磁性は不明であるが, 少なくとも自発磁化は持たないようである。Yoon 等⁴⁾ は, Fe_{0.75}Mn_{2.25}Si で小さい帯磁率の山が認められ, 反強磁性を示唆しているが, ネール温度は決められていない。

Lutskaya 等⁵⁾ は比熱, 熱膨脹, および音速の測定を行い, $x < 1.75$ での canting phase が Mn₃Si まで延びていると報告しているが, 磁気測定は行われていない。



第 1 図 Fe_{3-x}Mn_xSi 固溶体の磁気状態図。
 T_c : キュリー温度, T_R : spin canting 温度。

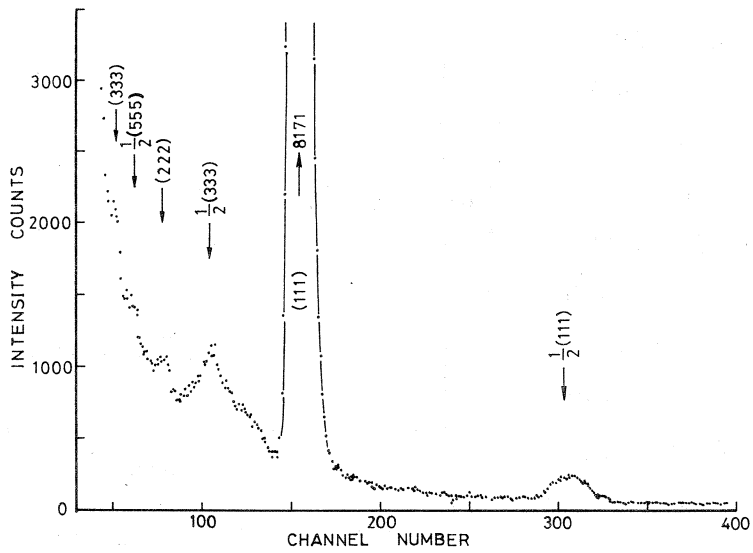
これまでの粉末や多結晶体による帯磁率の測定は、不純物相の存在のためか、ゆるやかな変化を示し、判然としない。今回、単結晶による中性子線回折を行い、 $1.75 \leq x < 3$ の磁性の解明を試みた。

§ 2. 測定および結果

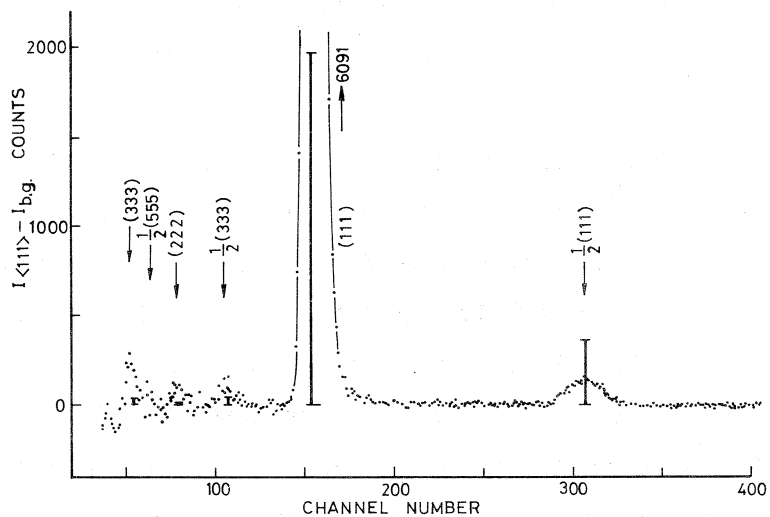
Fe (99.9%), Mn (99.9%) および Si (99.999%) を 50 メッシュ程度の粉末とし、組成比混合物を石英管に真空封入し、1100 °C に 72 時間保持した後、氷水中に急冷した。これを粉末にし、同じ熱処理を再度行い単結晶作製のための原料とした。開き角約 60° の高純度アルミナ坩堝ごと石英管に真空封入し、1270 °C に約 1 時間保持した後、10 °C/hr. で 950 °C 迄で除冷し、氷水中に急冷して約 $\phi 8 \times l 20$ の単結晶を得た。〔110〕を回転軸とする約 3 mm × 3 mm × 10 mm の角柱を切りだし中性子回折の試料とした。

中性子回折は核理研に設置されている TOF 中性子回折装置を使用して行った。本装置を使用した単結晶による実験を容易にするため、液体ヘリウム用クライオスタットを搭載でき、遠隔操作可能な大形ゴニオメータを試作した。傾き角は R_x , R_y 共に $\pm 6^\circ$ まで、 0.5° 間隔に調整でき、その精度は 0.1° 程度である。これは制御回路系を簡略化したためで、パルスモーターを含めた機械系はより高い精度の調整が可能ないようにつくられている。結晶角 θ は高低 2 速により、 $\pm 360^\circ$ 回転でき、角度 θ は 0.06° 分解能のエンコーダーにより読みとられる。この遠隔操作ゴニオにより、単結晶試料を X 線等により傾き角が $\pm 6^\circ$ 以内になるようにとりつければ、軸立てはもとより、任意の散乱角で、希望する晶帯軸のデータを全て遠隔操作で取ることが可能である。ゴニオ上面よりビーム・センタまでの距離は 10 cm である。

第 2 図は $\text{Fe}_{0.75}\text{Mn}_{2.25}\text{Si}$ の { 111 } 晶帯の液体ヘリウム温度における散乱角 30° の結果である。(111), (222), (333) 反射の核散乱の他に $\frac{1}{2}$ (111), $\frac{1}{2}$ (333), $\frac{1}{2}$ (555) の指数の反射が認められる。120 ~ 130 チャンネルにも反射線があるように見えるのはクライオスタットの Al によるもので、散乱角 30° で結晶を 5° だけ回転したオフ・ブラックのデータをバックグラウンドとして差引いたのが第 3 図である。100 チャンネル以下でデータの乱れが大きいのは反射強度に相当する統計に達していない他に原因不明のデータの飛び認められ、差引き操作で誤差が更になくなったためと思われる。第 4 図は散乱角 30° で得られた { 113 } 晶帯の同様な結果である。ここでも (113) 核反射線の他に $\frac{1}{2}$ (113), $\frac{1}{2}$ (339) 反射線が認められた。 $\text{Fe}_{0.25}\text{Mn}_{2.75}\text{Si}$ 単結晶についても、{ 111 }, { 11 $\bar{1}$ }, { 002 }, { 220 } 晶帯について同様の実験を行ったが、試料温度が高かったため、結晶格子による反射線のみで、他の



第2図 {111} 晶帯の TOF 中性子回折, 散乱角 $2\theta = 30^\circ$, 温度 $T = 5.5$ K。



第3図 バックグラウンドを差し引いた {111} 晶帯の TOF 中性子回折図, 散乱角 $2\theta = 30^\circ$, 温度 $T = 5.5$ K, 棒線はバナジウム散乱強度で規格した反射強度。

反射線は全く認められなかった。

§ 3. 考 察

$\text{Fe}_{0.75}\text{Mn}_{2.25}\text{Si}$, $\text{Fe}_{0.25}\text{Mn}_{2.75}\text{Si}$ 単結晶の結晶格子による反射線は, 格子定数として, 夫夫, 5.678 \AA , 5.710 \AA を与える。これらの値は, 温度変化を考慮すると, Yoon 等が求めた

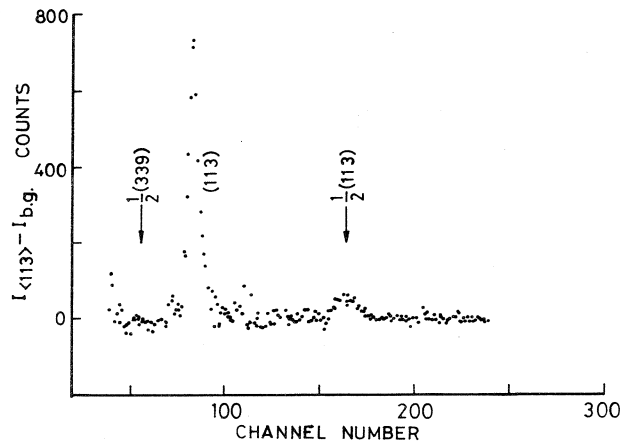
値とよく一致する。散乱角 30° で得られたバナジウム強度により規格化した反射強度は第3図中に棒線で示す如く求まる。得られた格子反射線の数はいくつか少ないが、その強度比は、 $0.75 \leq x < 1.75$ の組成化合物と同様に、B位置とD位置はそれぞれMn原子とSi原子のみがあり、A、C位置はFeとMnとにより無秩序に占められるとして、ほぼ説明できる。したが

って、A、C位置のMn原子数がFe原子数より多くなる $x \geq 2$ で、格子定数の組成依存性が大きくなるのはA、C位置で、Mn-Fe原子間になんらかの秩序状態が出来るためではないと考えられる。

他方、第3、4図には夫々の軸を2倍にした単位胞により指数付けされる $\frac{1}{2}(111)$, $\frac{1}{2}(333)$, $\frac{1}{2}(555)$, $\frac{1}{2}(113)$, $\frac{1}{2}(339)$ の反射線が認められた。これらの反射線は、磁気散乱によるものと期待される。磁気反射線の指数が全て奇数であるとすると、 $\langle 111 \rangle$ 方向に反強磁性結合した f.c.c. type 2 の磁気構造が期待される。更に、 $\frac{1}{2}(111)$, $\frac{1}{2}(333)$ …… が観測されていることから、反強磁性容易軸は (111) 面内にあると期待される。

$\text{Fe}_{3-x}\text{Mn}_x\text{Si}$ においては、 $x \geq 0.75$ からスピンの反強磁性結合が出現し、 $0.75 \leq x \leq 3$ の組成全域を通して、伝播ベクトルは $\langle 111 \rangle$ である。 $0.75 \leq x < 1.75$ では $\langle 111 \rangle$ 方向を向いていたスピンの $x = 2.25$ では (111) 面内の simple spin axis になり、更に、 Mn_3Si で multi spin axis に変わってゆくものと思われる。

本研究の実施にあたり核理研マシングループの方々に、また、遠隔操作型大型ゴニオメータの試作にあたり佐藤芳行氏および金研工場の方々に厚く感謝する。



第4図 バックグラウンドを差し引いた $\{113\}$ 晶帯のTOF中性子回折図、散乱角 $2\theta = 30^\circ$ 、温度 $T = 5.5 \text{ K}$ 。

参 考 文 献

- 1) S. Yoon and J. G. Booth: Phys. Lett. **48 A** (1974) 381.
- 2) S. Tomiyoshi and H. Watanabe: J. Phys. Soc. Japan **39** (1975) 295.
- 3) E. I. Gladyshevskij, P. I. Kripjakevic and JuB. Kuzma; Fiz. Metal Metalloved. **2** (1956) 455.
- 4) S. Yoon and J. G. Booth; J. Phys. F: Metal Phys. **7** (1977) 1079.
- 5) L. F. Lutskaya, G. I. Kalishevich and P. V. Gel'd: Sov. Phys. Solid State **18** (1976) 1011.

白色中性子の偏極とスピントリップ

(磁気鏡による偏極中性子の研究(Ⅱ))

理学部物理

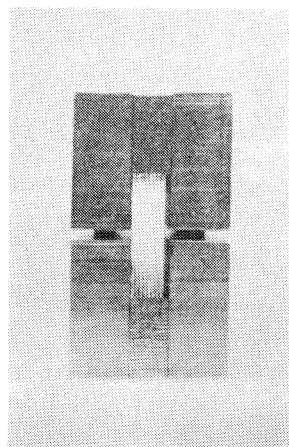
佐々木幸男・遠藤康夫

§ 1. 序

我々は冷中性子エネルギー領域 ($< 5 \text{ meV}$, $> 4 \text{ \AA}$) の白色パルス中性子の偏極化を進めているが¹⁾, 前回の磁気鏡偏極子の磁気特性, 中性子反射率等の報告²⁾ に続いて, 今回は Soller 型磁気鏡の製作及び白色中性子の偏極化の実験について現況報告を行なう。

§ 2. Soller 型磁気鏡偏極子³⁾

前回報告したように, マイラーフィルム (東レルミラー, #50) 基板に, 約 1000 \AA の厚さの $\text{Fe}_{25}\text{Co}_{75}$ 合金を真空蒸着する。これを軟鉄のフレームに, 均一な鏡面状に伸展し乍ら張りつける作業をする。このフレームは一枚が 1.0 mm の厚さをもっている。磁気鏡を張りつけたフレームを10枚重ねると, 丁度ビーム巾 10 mm 用の Soller 型偏極子が出来上る。第1図にこのようにして作製した Soller 型偏極子の写真を示す。これは Soller 磁気鏡を両側の外枠に固定し, 外枠に組み込まれたボルトをねじ込むことにより上下の外枠を押し開いて磁気鏡に張力をかけ鏡面をより完全なものとしている。更にこの写真のものは, 全長 30 cm , ビーム断面積, 横 10 mm , 縦 30 mm であり, その性能は反射率 80% , 偏極率 $90 (\sim \lambda_c)$ から 95% という結果で表わすことが出来る。³⁾



第1図 作製した Soller 型磁気鏡偏極子の正面写真。

§ 3. 白色中性子のスピン反転

中性子の偏極方向を制御することが, 偏極中性子散乱技術の第二のステップであり, 近年, 磁場中で Larmor 回転する中性子スピンの取扱い技術の進展が非常に著しいが, 我々の方法もその一つの応用である。白色中性子のスピン反転を一挙に行なう為には中性子の速度を利用した反転機構を使うことはできない。しかし中性子のスピンの量子化軸 (= 偏極方向) は, 通路にかけられた磁場の急激な変化に追従でき

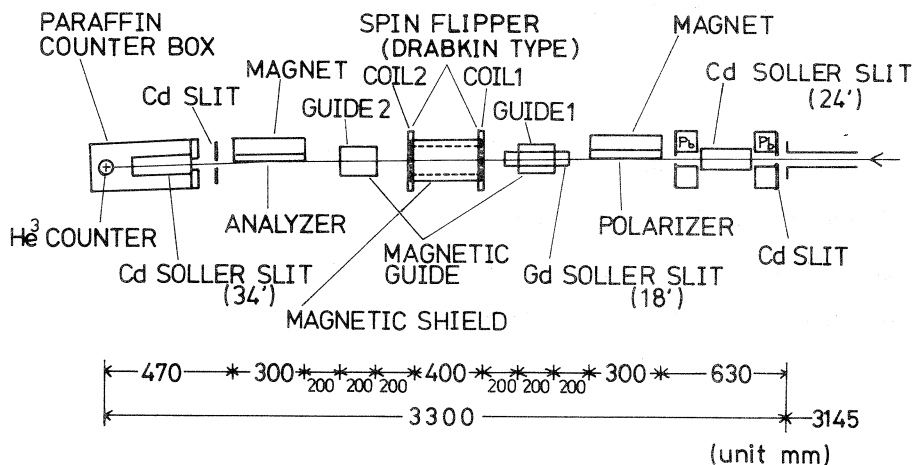
ない。この性質を利用すると、速度の違う白色中性子のスピン反転は原理的に可能となる。磁場方向の急激な変化（スイッチング）の方法は何種類か考えられるが、この装置では、パルスと同期してスイッチングのON, OFF, 即ちスピNFLIPPING ON, OFFを行なえるようにしたい為、磁場をヘルムホルツコイルで作り、磁場電流の反転に依る方法を採用した。コイルの寸法は次のようなものである。

外径	290 mm
内径	200 mm
巾	36 mm
巻数	500 回

従って1000 ATで中心部に50 O_eの磁場ができる。磁気シールドは、磁場が反転する付近の地磁気や、ポラライザーからの漏洩磁場によって、フリップパーの磁場が攪乱されるのを防ぐ為のもので、重要な役割をもつ。我々が今回用いたシールドの寸法は

長さ	380 mm
直径	180, 140 mm
厚さ	1 mm

のμメタルで二重構造の円筒で中心部の減衰効率是非常によく、第2図のような装置の配置で



FLIGHT PATH LENGTH 6445 mm
BEAM CROSS SECTION 10×10 mm²

第2図 実験装置の配置図。

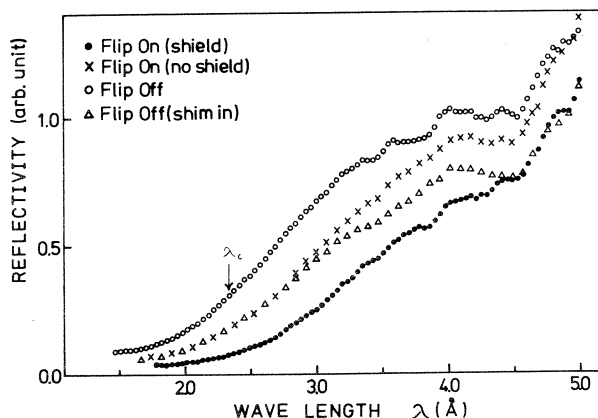
中性子の進行方向に従ってポラライザー、ガイド、スピNFLIPパー、ガイド、アナライザー、カウンターの順に図に示すような間隔で各装置を配置している。

行なった。この装置での中性子の飛行距離は6.445 mで約5.03 Åの波長の中性子まで計測できる。またビーム断面積はカウンター前のスリットで決まり $10 \times 10 \text{ mm}^2$ である。偏極化の結果は第3図に示す。

§ 4. 考 察

一連の実験結果から4.6 Å以上の長波長（臨界波長2.34 Å）側では基板の反射の影響が直接反映されている。スピン反転は磁気シールドを装備すると、定量的には推算していないが、明

白に行なわれている。スピンフリップパーの効率をテストする実験を重ねて、偏極中性子によるTOF実験を行なえる準備を進行中である。



第3図 フリップオン、オフ時の反射率曲線の比較。

- , ×-フリップオンの場合,
- : フリップパーに磁気シールドをした場合,
- ×: しない場合。
- , △-フリップオフの場合,
- : フリップオフの場合,
- △: コイル中間にシムを置きアナライザーへの入射中性子を非偏極化した場合。

参 考 文 献

- 1) Y. Endoh and Y. Ishikawa: KEK Tech. Rpt 投稿中。
- 2) 佐々木幸男, 遠藤康夫: 核理研研究報告 12 (1979) 65。
- 3) 佐々木幸男: 昭和54年度修士論文(東北大学)。

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

理学部物理, 高工研*, 核理研**

四戸 孝・池田 進*・新村信雄**

石川義和

§ 1. 序 論

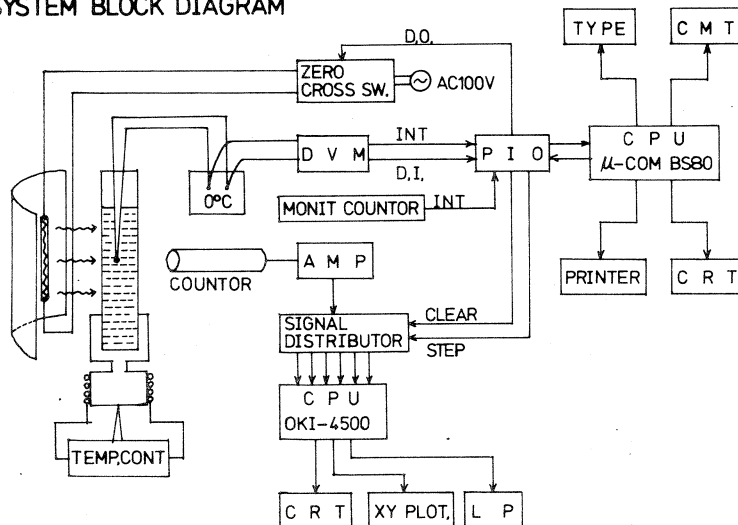
非平衡状態や遷移過程における構造変化の研究は, そのダイナミクスとも絡んで, 最近非常に注目されてきている。核理研パルス中性子源においても既に動的構造解析の実験がいくつか行なわれており¹⁻⁵⁾, TOF 法中性子回折がこのような研究に有効であることが実証されている。われわれは特に液体金属 (Sn) の過冷却-凝固過程に注目し, その動的構造解析を行なってきた^{6, 7)}。前回の報告でも, この過程を5つのフレームに分割し, それぞれのフレームで得られた構造因子 $S(Q)$ のパターンとその特徴について述べた。その中で, 過冷却状態のすぐ後のフレームでは, 第1ハローの右肩が消失しているという著しい特徴があることを示した。しかし, 前回までの測定は, 各フレームのパターンの相対強度の比較や細かい補正がなされておらず不十分なものであった。今回われわれは, マイクロコンピューターを用いた動的構造解析のシステムを製作し, これらの不十分な点を補って前回と同様の実験を行なったので, その結果を報告する。

§ 2. 測定装置

測定装置のブロックダイアグラムを第1図に示した。今回は, このシステムの制御に NEC 社製マイクロコンピューター COMPO BS/80 を導入した。このマイコンは, メモリー数 23 K バイト, 外部割込み 5 レベル, そして 2 個の μ PD8255 による I/O 部を備えており, 外部割込みのうち 2 レベルを DVM (digital volt meter) の End Pulse と, モニター信号に割り当てた。その機能は, ①試料温度測定②時間測定③赤外線ヒーターの制御④モニターの計数⑤中性子の検出信号の振り分け⑥表示の 6 つである。以下で, これらの機能を詳しく述べる。

試料温度は, アルメル-クロメル熱電対の起電力を約 0.5 秒間隔で DVM で測定し, それを D. I. (digital in) でマイコンに読み込ませた。各フレームの測定時間は, DVM の読み込み回数をカウントすることによって決定した。試料の加熱は, 赤外線ヒーターをマイコンか

SYSTEM BLOCK DIAGRAM



第1図 システム ブロック ダイアグラム。

らのD.O. (digital out)でONすることによって行なわれる。

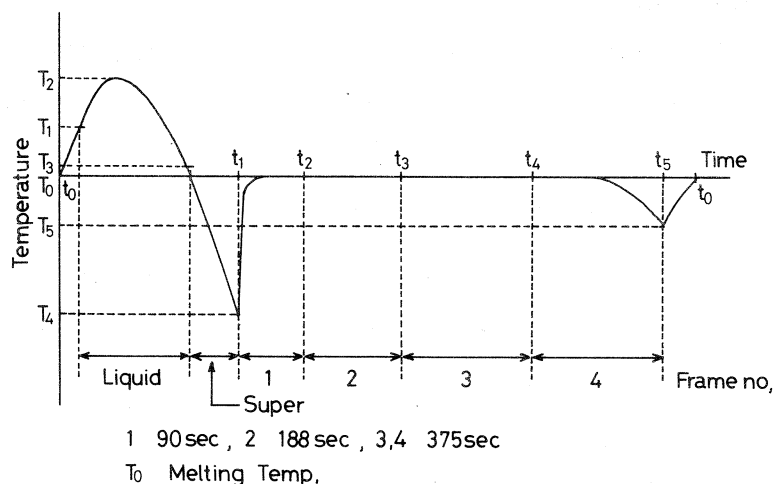
モニターからの信号は、PI O内に設けたレジスタで、その回数が1/10あるいは1/100に減らされた上でマイコンの割込み回路につながれ、割込み回数をカウントすることによって計数した。

試料から散乱された中性子は、 ^3He 検出器、前置増幅器、主増幅器を経て、signal distributorに入力される。signal distributorでは、マイコンのプログラムに従って、その時の温度・時間によって信号を振り分け、振り分けられた信号は、各フレームの時間分析器へ送られる。

1つの温度昇降サイクルが終了するたびに液体状態の継続時間および最高温度(T_2)、過冷却状態の継続時間および最低温度(T_4)、各フレームでのモニター値、そしてフレーム4での最低温度(T_5)をプリンターに出力する。CRTはシステムの運転状態を確認するためのモニターとして用いられた。

§ 3. 実 験

われわれは、マイコンによるオンライン制御によって第2図に示したような温度昇降サイクルをくり返し行なわせて各フレームでの全散乱断面積を測定した。



第2図 試料の温度昇降サイクル。

試料は金属錫 21.2 g を用い、これを薄肉厚の透明石英管（直径10 mm，厚み 0.1 mm）に入れ、保護管に入ったアルメルクロメル熱電対（0.1 mm ϕ ）を試料の中心部に位置するように固定した。試料は常に装置の下部にあるサブヒーターによって融点（231.97 $^{\circ}\text{C}$ ）より25度程度低い温度に保った。試料の温度制御には、タングステンヒラメント石英封入型赤外線ヒーターを用いており、楕円体型の反射鏡の焦点の一方にヒーターを、他方に試料を固定し、試料の温度を一樣に保つために、試料を焦点の位置から若干ずらして置いた。

温度昇降サイクルは第2図で示したように、6つのフレームに分割した。まず赤外線ランプで試料を急熱して十分に融解させ、温度 T_1 になったら赤外線ランプを消して加熱をやめる。同時にフレーム "Liquid" に中性子散乱信号を送り始め、試料の温度が T_0 （融点）を切ったらフレーム "Super" に信号の送出先を切り替える。ごくまれに過冷却にならずに液体状態からそのまま凝固することがあるが、この場合には試料の温度が T_0 を切るのは、試料全体が凝固して温度が下がり始めた時であり、フレーム "Liquid" のデータが壊されてしまう。これを防止するために、このシステムでは試料の温度が融点直上のある温度（ T_3 ）を切ってから一定時間たっても過冷却状態にならない時には、中性子散乱信号の送出を停止し、ブザーを鳴らし、メッセージを出力して知らせるようにした。過冷却状態になってからしばらくは温度

が下がっていくが、ある温度 T_4 で突如凝固が起こり、試料の温度は T_0 となる。温度が T_4 から T_0 になるのに要する時間は諸条件によって変化するが、われわれが設定した条件下では約 2 秒であった。フレーム "Super" で試料が自然冷却されている間に時々温度が揺らぐことがあり、これを誤って凝固が起こったと判定しないために、このシステムでは DVM の表示の小数点以下 2 桁目までの値が連続して 2 回上昇した時に凝固が始まったと判定している。(0.01 mV は約 0.25 度に相当する。)凝固が始まってからは経過時間でフレームを区切り、 $t_1 - t_2$, $t_2 - t_3$, $t_3 - t_4$, $t_4 - t_5$ 間の中性子散乱信号の測定結果を、それぞれフレーム 1~4 に送出する。このサイクルにおける各点の温度を第 1 表に示す。ここで T_4 の標準偏差は 3 度で

第 1 表 温度昇降サイクルでの各点の温度と継続時間。

Sn の融点 (T_0)	231.97 °C
赤外線ヒーターオフ (T_1)	245 °C
液体状態での最高温度 (T_2)	254 °C
過冷却状態での最低温度 (T_4)	218 °C
サブヒーターによる環境の温度	208 °C
フレーム "Liquid" の平均継続時間	366 sec
フレーム "Super" の平均継続時間	358 sec

あった。また、このサイクルを通じて試料内の温度差はたかだか 0.5 度であった。

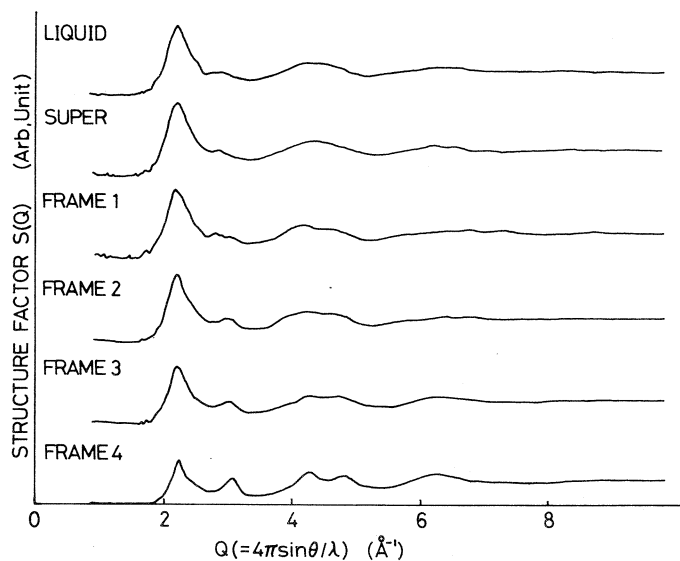
中性子散乱測定は核理研パルス中性子源に設置した全散乱分光器を用い、 $2\theta = 30^\circ$ および 60° で行なった。

§ 4. 補 正

測定された全散乱断面積のデータから構造因子 $S(Q)$ を求めるにあたって、吸収の補正、非干渉性散乱補正、多重散乱補正を行なった。吸収の補正にあたっては Paalman ら⁸⁾ の円筒形試料容器についての計算を用い、多重散乱補正は Vineyard⁹⁾ の方法に従って行なった。また減速材での中性子の遅れの補正^{10,11)} も行なった。

§ 5. 結果および考察

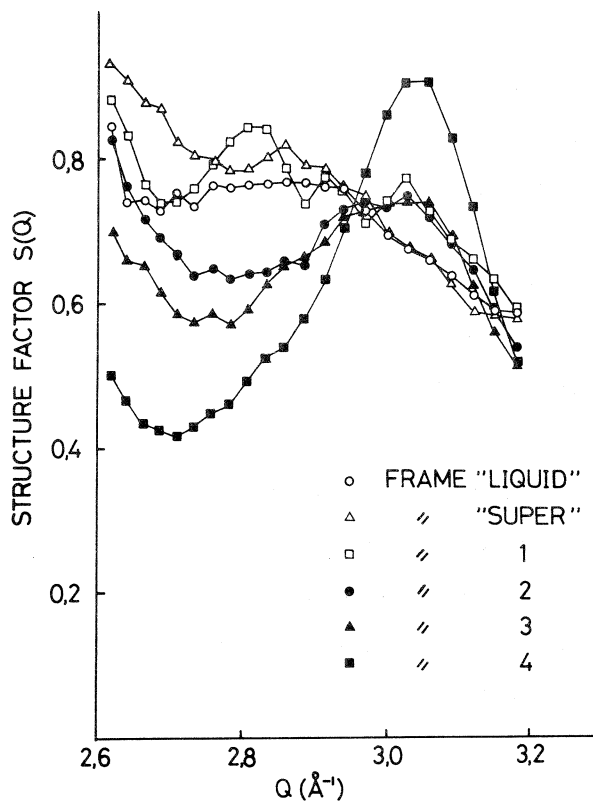
第 3 図に $2\theta = 30^\circ$ のデータに § 4 で述べた補正を行なった後得られた $S(Q)$ を示した。第 4 図は、この第 3 図の 3 \AA^{-1} 付近を拡大したものである。これらの図からわかるように第 1



第3図 各フレームでの構造因子 $S(Q)$: $2\theta = 30^\circ$, 矢印は各々第1ハロー(FH), その“肩”(S), および第2ハロー(SH)を指している。

ハローのピーク位置の変化は誤差の範囲内で認められなかったが、第1ハローの“肩”の位置はフレーム“Liquid”と“Super”が低い Q 側($Q \sim 2.86 \text{ \AA}^{-1}$), フレーム2, 3, 4が高い Q 側($Q \sim 3.04 \text{ \AA}^{-1}$)にあり、フレーム1ではその両方にまたがる広幅なパターンが得られた。この“肩”の強度変化を明らかにするために、第1ハローからの寄与および第2ハローからの寄与を差し引いた結果を第5に示す。図から明らかなように、凝固が始まったと考えられるフレーム1か

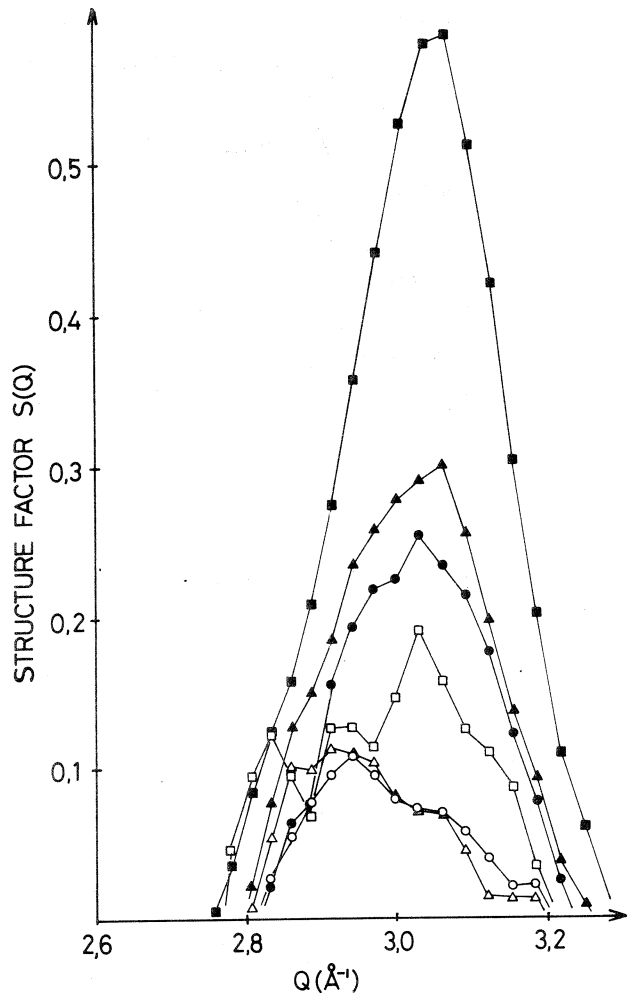
Shoulder of 1st Halo



第4図 第1ハローの“肩”。

らこの“肩”の強度が増加し始める。これは固体 Sn のある種のブラッグピークが成長してきたものと考えられる。実際、 β -Sn の結晶構造を仮定してブラッグピークの現われる位置を計算してみると、 $Q = 3.0 \text{ \AA}^{-1}$ 付近に (220) ブラッグピークが現われることが判明した。第3図でも多くのピークが明瞭に観測されたことから、フレーム4ではかなりの部分が固相になっていると考えられる。また、フレーム2およびフレーム3では固相が順次成長していくことが明瞭にわかる。一方、問題としているフレーム1では、液相のピークと固相のピークとが共存しており、フレーム1のパターンは液体状態と固体状態との重ね合せとしてほぼ説明できる。この結果は、前回の報告で述べた

過冷却状態から凝固する際、液相とも固相とも異なる状態が出現するという予測は正しくなく、Sn の過冷却-凝固過程では液相と固相が単に共存しているという単純なモデルが成り立つことを示唆している。しかし、凝固が始まって温度が T_4 から T_0 へと急激に変化する過程でどのような構造をとるかはなお残された問題である。これまでの測定では、中性子の強度が小さいためにフレーム1をこれ以上短くすることはできなかったが、時間焦点法測定装置などを採用することにより、もっと短時間ではどのような構造が実現するかを調べるのは有意義であろう。



第5図 第1ハローおよび第2ハローを差し引いた後の第1ハローの“肩”。シンボルは第4図と同じ。

参 考 文 献

- 1) N. Niimura and M. Kimura : J. Phys. Soc. Jpn. **33** (1972) 1493.
- 2) N. Niimura and M. Muto : J. Phys. Soc. Jpn. **35** (1973) 628.
- 3) N. Niimura : Phys. Lett. **A48** (1974) 377.
- 4) N. Niimura and M. Muto : Nucl. Instrum. & Methods **126** (1975) 87.
- 5) 新村信雄 : 応用物理 **48** (1979) 1101.
- 6) 石川義和, 池田進, 新村信雄 : 核理研研究報告 **11** (1978) 223.
- 7) 池田進, 新村信雄, 石川義和 : 核理研研究報告 **12** (1979) 55.
- 8) H. H. Paalman and C. J. Pings : J. Appl. Phys. **33** (1962) 2635.
- 9) G. H. Vineyard : Phys. Rev. **96** (1954) 93.
- 10) 三沢正勝 : 博士学位論文(東北大学)(1976)
- 11) N. Watanabe *et al.* : *Proc Joint Meeting on Pulsed Neutrons and Their Utilization* (EUR, 4954e, 1973) 255.

中性子用 ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレーターの製作

核理研, 日本光学K.K.*, 名大工学部**

東大物性研***

新村信雄・松本 明*・苅谷道郎*

原田仁平**・星埜禎男***

§ 1. 序

中性子回折, 散乱実験では, 専ら ${}^{10}\text{BF}_3$ ガス比例計数管や ${}^3\text{He}$ ガス比例計数管が中性子検出器として用いられている。ガス比例計数管は, 気体増幅作用を利用しており, 雑音の少ない検出器として有効な検出器である。ガス比例計数管の出力電圧波形を観測すると, 電子の陽極への急速な移動と, 陽極近傍の陽イオンが陽極付近の強い電界を通過することによる, 最初の急な立ち上がり部分と, 陽イオンが陰極表面に到達するまでのゆるやかな出力波形の上昇部分とが見られる。この上昇は計数管その他の回路定数にも依るがおおよそ $100\ \mu\text{sec}$ にも及び, このままではパイルアップが起り易いため, 数 μsec の時定数を持つクリッピング回路を設けてパルス幅を短かくしている。それでも, 数 μsec の不感時間は避けられず, 速い計数速度を要する実験, 例えば動的構造解析のように短時間に多量の計数を必要とする場合, あるいはTOF法のように, パルス中性子の計数で瞬間計数速度が重要となる場合は, 不感時間が $100\ \text{nsec}$ 程度の検出器が必要で, ガス比例計数管の限界となる。

不感時間の短い検出器として期待されるのはシンチレーションカウンターである。シンチレーションカウンターの不感時間は, 大部分, 蛍光の減衰時間で決まり, シンチレーターの種類により異なるが $10\ \text{nsec} \sim 1\ \mu\text{sec}$ でガス比例計数管の $1/10 \sim 1/100$ である。中性子用シンチレーターとしては ${}^6\text{LiF}(\text{ZnS})$ が用いられることがあるが, 中性子計数効率は大変悪く, 広く使われていない。一方 ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレーターは, 中性子の計数効率も良く, ニュークリア・エンタプライズ社より発売されていることになっているが, 入手が困難なため広く使われていない。最近日本光学K.K.で ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレータの試作を行ったところ成功したので, それを用いて ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレータの性能テストを行った。ここにその結果を報告する。

§ 2. ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレータの製作

先ず, NE-905 相当の ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレータを製作した。シンチレータの成分を第1表

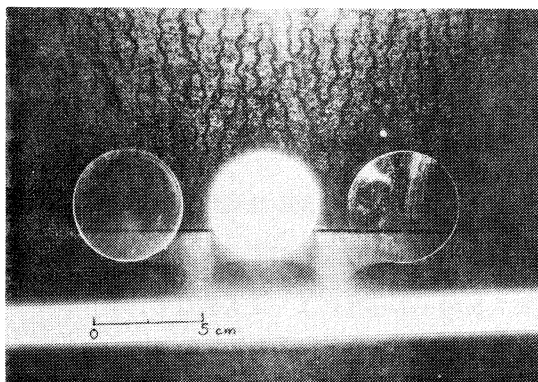
第1表 ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレーターの成分(重量%)。

Li	6.6 % (中 ${}^6\text{Li}$ は 6.3 %)	O	50.7 %
Ce	3.4 %	Al	9.8 %
Si	27.2 %	Mg	2.3 %

に示す。製作については、次のような問題があった。

- i) セリウム含有のため熔解中の発泡が激しく、微細な泡がとれにくい。
- ii) ガラスとしては不安定で、結晶混入のないガラスを得るには 300 ml の坩堝熔解が限度であろう。
- iii) 空気中では Ce^{3+} 、 Ce^{4+} が共存しており、 Ce^{4+} は丁度 Ce^{3+} の発光波長に重なって強い吸収帯が存在するので、シンチレーター中では Ce^{4+} は望ましくない。シンチレーター中の Ce を Ce^{3+} にするため還元雰囲気中での熔解が必要となる。

以上のような幾つかの問題があったが、最終的に第1図に示すように厚みが 0.6 mm, 1 mm, 2 mm の直径 2 インチの ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレーターの製作に成功した。



第1図 筆者らが製作した中性子用 ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレーター。直径 2 インチ。厚みは左から夫々 0.6 mm, 1 mm, 2 mm。両端のは両面研磨してある。

§ 3. ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレーターの中性子検出原理

熱中性子が ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレーターに入射すると、ガラス中の ${}^6\text{Li}$ と

${}^6\text{Li}(n\alpha)\text{T}$ 核反応を行い、荷電粒子の α と T (triton) を放出する。その時の反応の Q 値は 4.76 MeV である。入射熱中性子のエネルギー及び運動量は、これに比較して充分小さいので、放出された α と T のエネルギーの和が丁度 Q 値になり夫々は、 α と T の質量の逆比に分割され (α : 2.04 MeV, T : 2.72 MeV), 又放出方向は夫々逆方向となる。これら荷電粒子がガラス構成原子を電離し、それにより放出された電子が Ce^{3+} を励起して、発光の原因となる。これらの詳細は文献¹⁾を参照して欲しい。文献¹⁾からとった概念図を第2図に示す。2.04 MeV の α 粒子及び 2.72 MeV の T 粒子の飛程は夫々 7 μm , 40 μm である。(シンチレーターの比

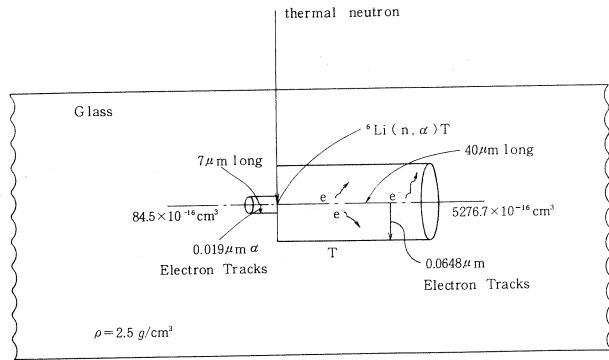
重を 2.5 g/cm^2 とする。)この飛跡にそって電離電子が生成されるが、その最大エネルギーは α によるものが約 1 keV 、T によるものが約 2 keV である。この電子のシンチレータ中での

の飛程は夫々約 $0.02 \mu\text{m}$ 、 $0.065 \mu\text{m}$ で、第 2 図に示す円筒形の内部の Ce^{3+} が励起を受ける可能性

があるということになる。この円筒形の体積比を求めると、 α については $\sim 80 \times 10^{-16} \text{ cm}^3$ 、T については $\sim 5000 \times 10^{-16} \text{ cm}^3$ と圧倒的に T の方が大きく、Ce 励起の

大部分のエネルギーは T 粒子からくることがわかる。
 Ce^{3+} の励起は $4f^n \rightarrow 4f^{n-1} 5d^1$ の遷移で $5d$ 状態からの電子の放出が発光過程である。 $5d$ 軌道はイオンの外側に存在するため、周囲の原子配列の対称性の影響を強く受けるため、種々にスプリットし、最終的には広いバンドを形成する。 3950 \AA がそのバンドの中心波長である。

シンチレーターの発光の減衰時間は中性子の高速計数を考える際に重要な因子である。しかし、減衰時間を決定する因子は複雑で、シンチレーターの種類、活性化不純物の種類、温度、更に入射粒子の種類によっても異なり、又、シンチレーターによっては何種類かの減衰時間を有するものもある。 ^6Li ガラスシンチレーターの減衰時間は $10 \sim 100 \text{ nsec}$ である。



第 2 図 ^6Li ガラスシンチレーターの中性子検出原理¹⁾。

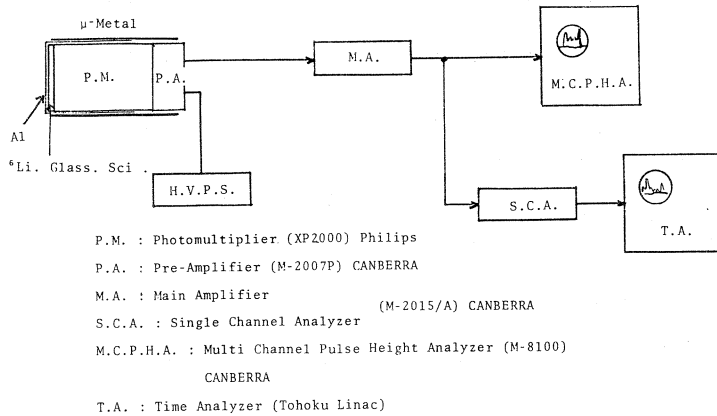
§ 4. 実験及び結果

^6Li ガラスシンチレーターの性能テストは次の 3 つの方法で行った。

4-1 Ra-Be 中性子源を用いての実験

$^{226}\text{Ra-Be}$ (2 mci) 中性子源を用い、シンチレーターの厚みの効果、及び TiO_2 白色ペイントを反射材に使用した時の効果を調べた。第 3 図に測定系統図を示す。尚 $^{226}\text{Ra-Be}$ 中性子源は γ 線を放出するので、それをある程度防ぐため、線源とシンチレータの間に 10 cm 厚の鉛ブロックを置いた。

多重波高分析装置で得られた結果の 1 例を第 4 図に、又その概念スケッチを第 5 図に示す。第 5 図中矢印で γ , neutron と示したのが γ 線によるピーク及び中性子によるピークである。この実験では次の値を測定した。



第3図 実験測定系統図。

i) 中性子ピーク位置： Ce^{3+} の励起による蛍光の効率を示す量で、蛍光効率が良いと光電増幅後の波高が大きくなりピーク位置は高いチャンネル側に出る。

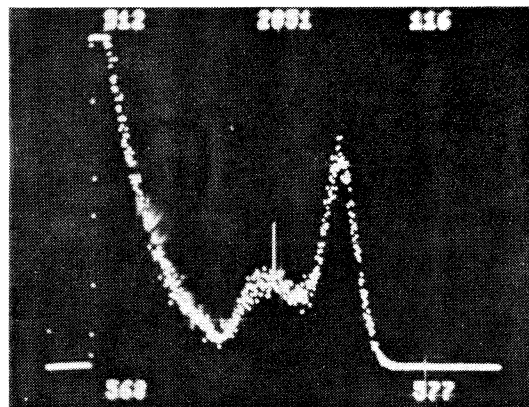
ii) 中性子ピークの積分強度：第5図の⊖の部分の面積で、中性子検出効率を示す。

iii) S/N比：第5図の⊖の部分と⊕の部分の面積比である。⊕の寄与の大部分は r 線と考えられる。

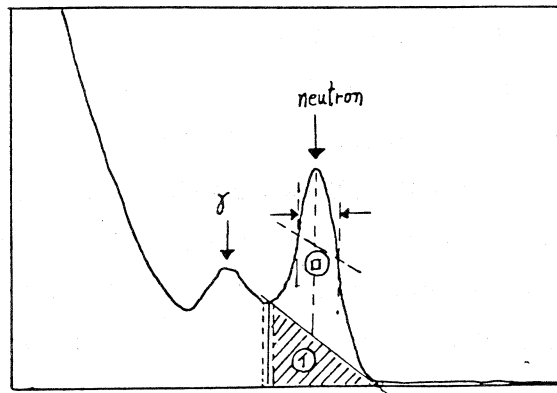
iv) 分解能：中性子ピークの幅をピーク位置で除した値をいう。分解能のよい場合は単一弁別器で r 線の寄与を減らすことが容易である。

i) ~ iv) を測定した結果を第2表に示す。

第5図 Ra - Be中性子源を用いた時の波高分布スペクトル (概念図)。



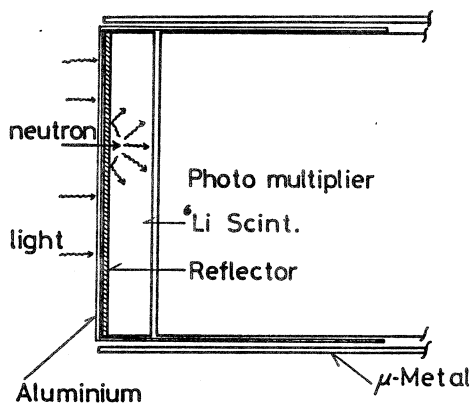
第4図 Ra - Be中性子源を用いた時の波高分布スペクトル(実測)。



第2表 ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレーターの特性の実験結果。

	Peak Position	Intensity	S/N	Resolution
WITHOUT TiO_2 PAINT	1	1	1	1
WITH TiO_2 PAINT	0.7~0.8	0.7~0.8	~1.1	~1
0.6 mm in thickness	1	1	1	1
1.0 mm in thickness	~1	~1.2	0.6~0.7	~1
2.0 mm in thickness	~1	~1.1	0.3~0.4	~1

光の反射材として TiO_2 白色ペイントを塗った場合と塗らなかった場合の結果が上2段に示してある。光の反射材は次のような目的のため使用する(第6図)。反射材は中性子は透過するが、光は遮断する。一方、シンチレーター内で中性子により発光された光のうちで後方に向かう光は反射させ、効率よく光電増倍管に入射するようにする。第2表から明らかなように TiO_2 ペイントは反射材としては余り適していない。S/N が若干改善されているが、これは TiO_2 ペイントで γ 線が減衰したためと考えられるが、蛍光効率、中性子検出効率共に減少している。



第6図 反射材の配置図。

シンチレーターの厚みの効果の結果を第2表の下3段に示してある。この実験では反射材は用いていない。勿論、光電増倍管に光が入らないように肉薄のAl円筒で光電増倍管をおおっている。蛍光効率は厚みにほとんど依らない。一方中性子検出効率は厚くなった分だけ増加することが期待されるが2mm厚みでも顕著な増加はない。実験に使用した中性子波長では殆んど中性子検出効率は1mm厚みで100%に近い値を示していると考えられる。一方S/N比は厚みが増すにつれ著しく悪くなっている。 γ 線の検出が増加していることを意味する。

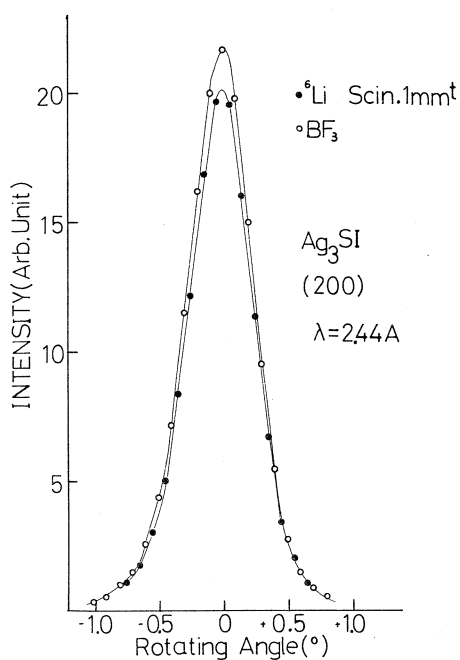
4-2 $^{10}\text{BF}_3$ ガス比例計数管との比較

Ag_3SI 単結晶の200反射のロッキングカーブを $\lambda = 2.44 \text{ \AA}$ の単色中性子を用いて BF_3 ガス比例計数管及び1 mm厚の ^6Li ガラスシンチレータ検出器で測定した。結果を第7図に示してある。 BF_3 計数管の長さ方向から中性子は入射させているので、この波長の中性子検出効率は100%である。 ^6Li ガラスシンチレータ検出器の検出効率を求める便利なチャートが用意されており²⁾、それによるとこの場合は検出効率86%となる。第7図を見ると BF_3 管と ^6Li ガラスシンチレータの差は計算通りであることが判明した。

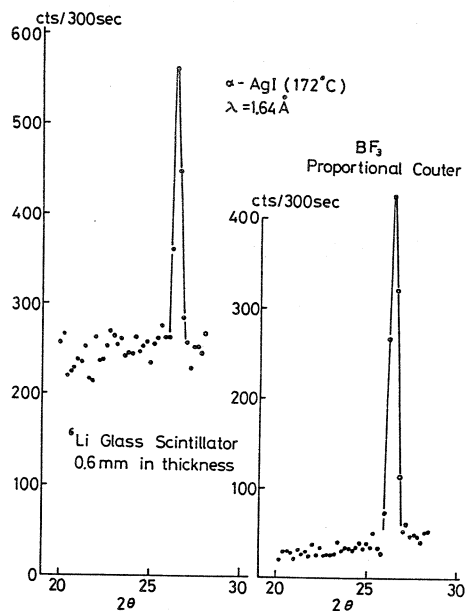
次に $\alpha\text{-AgI}$ 多結晶の回折を BF_3 管とシンチレータ検出器で測定した結果を第8図に示す。バックグラウンドが BF_3 管の約10倍になっている。シンチレータのバックグラウンドの第1原因は r 線である。特に Cd を遮蔽材に用いていると $\text{Cd}(nr)$ により r 線が発生する。シンチレータ自身の放射性物質による崩壊のノイズも考えられる。このバックグラウンドを低くするのが今後の課題の1つである。

4-3 TOF 法への応用

^6Li ガラスシンチレータ検出器の最も有効な応用分野の一つは、TOF 中性子回折法への応用である。TOF 法ではスペクトルの分解能が中性子飛行距離のゆらぎに関係するため、検出器の厚みが影響してく



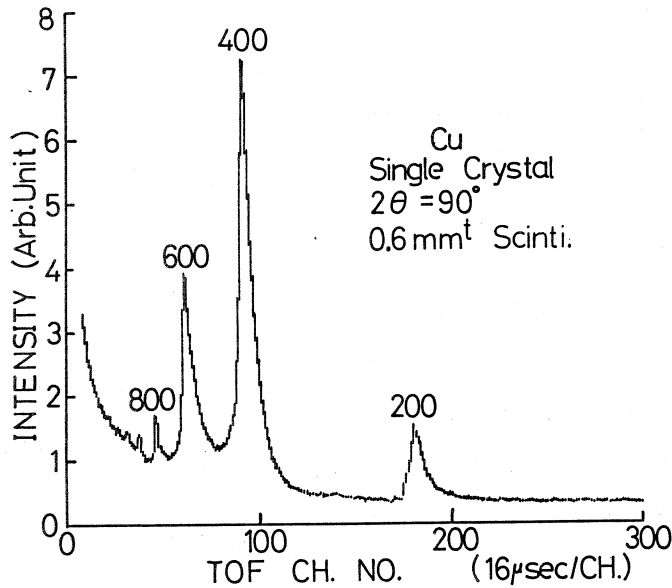
第7図 Ag_3SI 単結晶の200反射のロッキングカーブ。



第8図 $\alpha\text{-AgI}$ 多結晶の回折図。

る。ガス検出器では中性子検出効率を高めるため中性子感受距離を長くとるので、高分解能 TOF 法には使えない。 ^6Li ガラスシンチレータは 1mm 厚で充分なため中性子飛行距離の検出器厚の誤差は無視できる。又 TOF 法ではパルス中性子を用いるので瞬間計数速度が高くなり、不感時間の短いシンチレータは TOF 法の検出器として適当である。

Cu 単結晶の $[200]$ 晶帯軸の TOF スペクトルを測定した。結果を第 9 図に示す。 r 線の遮蔽が充分でないためバックグラウンドはまだ高いが、現段階では満足いく結果である。



第 9 図 Cu 単結晶の $[200]$ 晶帯軸の TOF スペクトル。

§ 5. 将来の方向

第 7 図、第 9 図の結果から明らかなように ^6Li ガラスシンチレータ中性子検出器は弾性散乱のように強度の強い反射を測定する時には充分実用に供せる。しかし約 1ct/1sec の割合でバックグラウンドが入るので、非弾性散乱の実験には改良が必要と思われる。しかし、非弾性散乱のような低計数の時はガス比例計数管の不感時間で充分であるのだから問題はないと言えないが、バックグラウンドは低いにこしたことはないので今後の課題の一つとなる。バックグラウンドへ最大の寄与は、 r 線である。 r 線除去法として次の 3 方法が考えられる。

i) 中性子と r 線ではある成分のシンチレータでは発光波形が異なる。³¹⁾ このようなシンチレータを製作し、波形弁別器により r 線を除去する。

ii) γ 線の感受率はガラスシンチレーターの厚みに強く依存するので、薄いシンチレーターを用いる。

iii) 分解能の良いシンチレーターを用い波高弁別を行う。

このうち i) が最も効果的であるため現在 i) の開発を進めている。

次にガラスシンチレータの特徴は種々の形の検出器を作り易いので、例えば広面積の検出器を作るとかして、2次元検出器への応用が考えられる。この際の最大の問題はシンチレーターから光電子増倍管への集光系である。現在、レンズ系、ライトガイド、あるいはグラスファイバー等を利用して、この問題を解決する方法を検討中である。

参 考 文 献

- 1) A. R. Spowart : Nucl. Instrum. & Methods **135** (1976) 441.
- 2) L. A. Wraight, D. H. C. Harris and P. A. Egelstaff : Nucl. Instrum. & Methods **33** (1965) 181.
- 3) C. Coceva : Nucl. Instrum. & Methods **21** (1963) 93.

中角時間焦点法を用いた全散乱実験 の検討

核理研, 高エ研*

山田和芳・渡辺 昇*

§ 1. 序 論

中性子TOF法を利用した時間焦点法(TF法)が, どの程度の小さな散乱角(2θ)まで有効かを調べる目的で, 簡単な計算機実験と分光器を用いた実験を行なった。

TF法は同じ運動量変化(Q)を受けて散乱された中性子を, 異なる 2θ で, 同時刻に観測する方法である。この方法を活用することにより, 分解能($\Delta Q/Q$)を余り落さずに検出器の立体角を大きくでき, 特に非晶体や液体の構造因子($S(Q)$)を精度よく求めることが可能となる。従来, この方法は幾何学的分解能因子($\cot\theta \cdot \delta\theta$)の小さな, すなわち高散乱角側($2\theta \geq 100^\circ$)で, 主に利用されてきた。その理由は次の2点にあると考えられる。

- (i) 2θ が小さくなるに従って, TF条件を満足する検出器の立体角が著しく減少すること。
- (ii) 2θ が小さくなると, $\cot\theta \cdot \delta\theta$ の因子による分解能の劣化が著しくなり, 従来通りのSollerスリット方式のほうが有効と考えられていたこと。

しかし一方, 静的近似の要請からは, 同じ Q の領域を観測するのに, できる限り 2θ の小さな散乱**を行なわせる必要がある。いずれにせよ中角でのTF法は実験的な検討があまりされておらず, 分解能に対する要求がそれ程きびしくない $S(Q)$ の測定に利用可能かどうかともよくわからなかった。我々は中角でのTF法を実験的に検討し, 今後この方法を利用する場合の問題点等を調べた。

§ 2. 原 理

中性子飛行時間 t は, 飛行距離を $L_1 + L_2(\theta)$ (L_1 はモデレータと試料間, $L_2(\theta)$ は試料と検出器間距離)とした場合, 次式で与えられる。

** ある程度, 定量的な議論は§3で述べるが, 通常, 小角散乱と呼ばれている程小角ではないので, 中角という言葉を用いる。

$$t = 2 \left(\frac{m}{\hbar} \right) \frac{L_1 + L_2(\theta)}{Q} \sin \theta. \quad (1)$$

ここで m は中性子質量, \hbar はプランク定数 / 2π である。 Q はブラッグ散乱の場合は

$$Q = \frac{4\pi \sin \theta}{\lambda}. \quad (2)$$

ただし λ は中性子の波長である。従って, TF条件を満足する曲線** は次式で表わされる,

$$(L_1 + L_2(\theta)) \cdot \sin \theta = \text{const.} \quad (3)$$

TF曲線上の点 $(L_2(\theta), 2\theta)$ における接線が 2θ となす角 θ_D は, (3)式の微分より

$$\cot \theta_D = \frac{1}{2} \left(1 + \frac{L_1}{L_2(\theta)} \right) \cot \theta, \quad (4)$$

で与えられる。¹⁾

§ 3. 静的近似の問題

一般に $S(Q)$ を測定する全散乱実験は, 静的近似の成立する条件下で行なう必要がある。 $S(Q)$ は理論的には, 動的構造因子 $S(Q, \omega)$ の積分として定義される。

$$S(Q) = \int_{-\infty}^{\infty} S(Q, \omega) d\omega \Big|_{Q = \text{const.}} \quad (5)$$

一方, 全散乱実験では, (5)式に対応する量として, 以下の量が散乱強度から導かれる。

$$S^{\text{exp}}(Q_0) = \int_{-\infty}^{E/\hbar} f(\omega) S(Q, \omega) d\omega \Big|_{\text{along } L(Q, \omega)}. \quad (6)$$

ここで E は入射中性子エネルギー, $\hbar\omega$ は散乱で失なわれた中性子エネルギーである。 Q_0 はブラッグ散乱の場合の運動量変化を表わす。積分路 $L(Q, \omega)$ は与えられた Q と ω に対して中性子の運動量及びエネルギー保存則, そして飛行時間一定の条件で決まる。 $f(\omega)$ は試料の吸収係数, カウンターの検出効率, 中性子バースト幅, そして中性子束強度等のエネルギー依存性を含んだ重み因子である。実験から得られる $S^{\text{exp}}(Q)$ をいかに(5)式の値に近くするかが静的近似の問題である。(6)式の $f(\omega)$ と積分の上限については, 出来る限り入射エネルギーの大きな中性子を用いればよいことがわかる。しかし $L(Q, \omega)$ が Q 一定の径路と異なっていることの影響は, $S(Q, \omega)$ 自身に依存する。

TF法では, 異なる位置に配置されたカウンターによって, 同じ Q 領域の測定を行なうため,

** この曲線上で中性子を検出すればTF条件が満足されている。

各カウンターで得られた $S^{\text{exp}}(Q)$ は(6式の積分で、異なった $f(\omega)$ と $L(Q, \omega)$ を用いた結果である。そのため、TF法では静的近似の条件がより厳しくなる可能性がある。

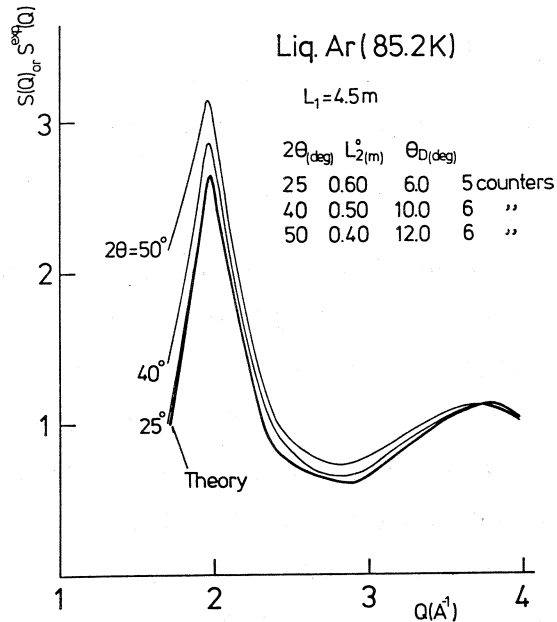
精度の高い $S(Q, \omega)$ を広い (Q, ω) 空間にわたって測定することが不可能な現状では、我々は、かなり精密に測定、あるいは計算されている $S(Q, \omega)$ の典型例について(6式の積分を実行し、これらの検討を行なうしかない。

§ 4. 計算結果

我々は、液体 Ar の $S(Q, \omega)$ の測定結果を用いて(5)及び(6)式の積分を以下のような手順で行なった。

- 4式の θ_D やカウンターの本数などを入力し、各カウンターの座標 $(L_2(\theta), 2\theta)$ を計算する。
- 各カウンターの $L(Q, \omega)$ と $f(\omega)$ の計算をする。***
- $L(Q, \omega)$ に沿って、実験値の $S(Q, \omega)$ を内挿で求める。
- (6)式の積分を実行する。
- 各カウンターの立体角の重みをつけて $S^{\text{exp}}(Q)$ を平均する。

なお、この計算では、各カウンターの分解能及び、同じ Q に対する飛行時間の違いは考慮していない。計算結果を第1図に示す。図で示した理論値は、(5)式の積分を実行したものである。入力した実験データ点が少ないので、詳細な議論は出来ないが、大きな特徴として、次のようなことがわか



第1図 液体 Ar の $S(Q, \omega)$ の積分。

*** $f(\omega)$ の吸収に関する項は無視した。

った。つまり予想された通り、 2θ が小角なもの程（つまり入射エネルギーの大きな中性子をを用いる程）、理論値との一致はよくなる。 2θ が大きくなるに従って生ずる理論値との差は、 $f(\omega)$ と $L(Q, \omega)$ の両方の影響による。 $f(\omega)$ を 1 に固定し、 $L(Q, \omega)$ による影響を調べた結果、メインピークでは、 $S^{\text{exp}}(Q)$ が理論値より小さくなっている。これは、 $L(Q, \omega)$ が Q 一定の径路からずれると、 $S(Q, \omega)$ のピークからはずれた領域を積分する割合が大きくなるためと考えられる。

この例の場合から、おおざっぱに結論すれば、ブラッグの条件(2式)を満足する中性子の波長が 1 \AA 程度あるいはそれ以下であるならば、対応する Q のところでの、 $S^{\text{exp}}(Q)$ の理論値との差はほぼ 1% 以下であるといえる。非晶体の場合には、もう少し波長が長くてもよいかも知れないが、適当な $S(Q, \omega)$ の実験値あるいは計算値を用いて上記のような検討を行なう必要がある。

§ 5. 分光器の製作

検出器としては ^3He カウンター（ $1/2'' \phi$ ，有効長 30 cm，20 気圧）を 4 本用いた。位置調整の容易さを考慮して、これらのカウンターを 4 式で近似した直線上に配置した。 2θ としては 90° ， 60° ，及び 30° 近傍を想定し、カウンターの固定板を交換することにより、共通の遮蔽箱が使えるようにした。

§ 6. 測 定

各カウンターによる飛行時間(TOF)の調整を行なうために、粉末シリコンによる、デバイシェラーパターンを測定した。4本のカウンターのうち先頭と最後尾によるパターンを独立に測定し、ブラッグピーク位置のTOFが一致するように、遮蔽箱の位置を微調整した。TOFが一致した後、4本全部のカウンターをセットして測定した。測定の数例を第2図に示す。図の 60° 系は○印以外は微調整前の結果である。

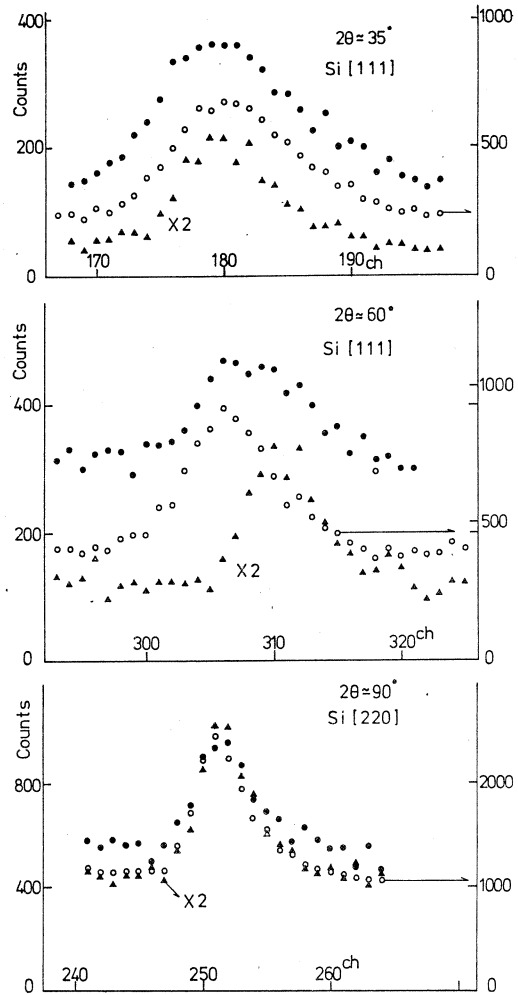
§ 7. 結果と考察

第3図に示したブラッグピーク幅(FWHM)から見積ると、 90° ， 60° ， 35° 系の分解能は、それぞれ約 2，3，6% 程度である。中性子のバースト巾を考慮すると、これらの値は、現実的な幾何学的配置を考慮したモンテカルロ計算からの予想と矛盾しない。

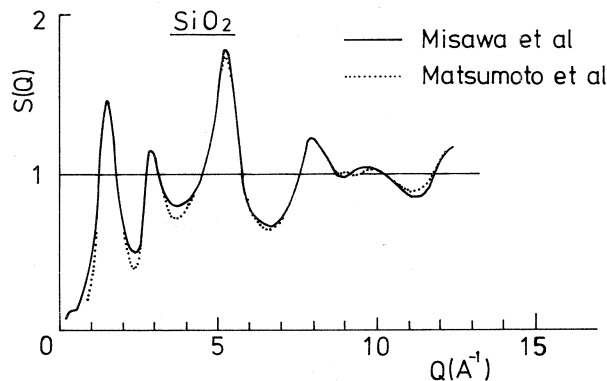
中角のTF法では、カウンター間の距離が離れてくるので、1本当りの分解能が先頭と最後尾では、かなり異なる。この影響がどのようにピークの形に表われるかも問題であったが、第

2図でもわかるように顕著な変化は見られなかった。第3図に本装置で測定された $S(Q)$ の例を示す²⁾。この場合には、 2θ が 35° 系で測定がなされた。第2ピークから $Q \sim 10 \text{ \AA}^{-1}$ までがこの分光器によるデータである。このデータは細かな補正は、まだ行っていないが、Soller スリットを用いて、より高い分解能で測定した三沢らの結果³⁾とかなりよい一致を示している。この結果、酸化物ガラスの $S(Q)$ のように、かなり鋭いピークを持つ系でも、本分光器の分解能で間に合いそうである。

この測定では、 $2\theta \sim 20^\circ$, $2\theta \sim 35^\circ$, そして $2\theta \sim 90^\circ$ の系を用いたが、 $S(Q)$ の第1ピークに、静的近似からのずれと考えられる 2θ 依存性が見られた。このことから、 $2\theta \sim 35^\circ$ では、非晶体の場合、 $Q \sim 2 \text{ \AA}^{-1}$ 程度が測定の下限と考えられる。



第2図 本分光器による粉末シリコンのブラッグピーク。●印は先頭、▲印は最後尾のカウンターによる結果で○印は4本の合計。



第3図 本分光器による SiO_2 ガラスの $S(Q)$ ²⁾と三沢らによる測定³⁾の比較。

第1表に本分光器の相対計数率を示す。先頭のカウンターの計数効率を1とした場合、最後尾を4本合計の場合の計数率を示した。先頭と最後尾のカウンターの計数率から、4本合計の場合の計数率を見積ると、実験

第1表 本分光器の各カウンターの相対計数率。
I₁は先頭, I₄は最後尾, I_Tは4本合計。

2θ	I ₁	I ₂	I _T
35°	1.0	0.28	1.9
60°	1.0	0.35	2.0
90°	1.0	0.50	2.4

値より約2割程度大きくなっている。この原因は定かでないが、一つには、カウンターの何本かが重なって後のカウンターの陰になっている可能性がある。もう一つは、4本のカウンターを一台のプリアンプに接続したため、出力パルス波高の減少が生じ、ディスクリミネーターで数え落している可能性もある。

全体での計数率は、従来の方法と比較すると、約5倍前後と推定される。たとえば第3図に示した測定について比較すると、三沢らは、約2倍の量の試料を用い、約3倍の測定時間をかけている。S/N比はほぼ同程度である。

現在のところ、TF法で最も重要な課題の一つはバックグラウンドの減少にあると考えられる。本実験では遮蔽箱の入口に、B₄C粉末をつめた板で簡単なスリットをつくったが、もっと効率のよいスリットが必要と思われる。

§7. ま と め

本研究の結果、 2θ が35°ぐらいまではTF法がかなり有効であることがわかった。実際の物質の測定が優先しているため、詳細な検討がまだ出来ていないが、今後、この種の分光器の性能を向上させることは充分可能である。その際には、ガラスシンチレータが最も有効な検出器の一つになるであろう。

参 考 文 献

- 1) J. M. Carpenter : Nucl. Instrum. & Methods **47** (1967) 179.
- 2) 松本明 : 私信.
- 3) M. Misawa, D. L. Price and K. Suzuki : J. Non-Cryst. Solids **37** (1980) 85.

Tb ($Zn_{1-x}Cu_x$)中の ^{156}Gd の超微細相互作用

金研, 新潟大理学部*, 理学部物理**

工学部原子核***

篠原 猛・古沢 昭*・林部昭吾**

山口貞衛***

前回, ^{159}Tb の ($r, 3n$) 反応で作成した ^{156}Tb の EC 崩壊を利用した $r-r$ 摂動角相関は十分の精度で物性研究に使えることを示した。今回は $Tb(Zn_{1-x}Cu_x)$ ($x=0, 0.36$) 中の ^{156}Gd の超微細相互作用を測定し, $x=0$, と $x=0.36$ の試料については磁化が大きく異なるにも拘らず, 殆ど同じ内部磁場を示す結果を得た。

§ 1. 序

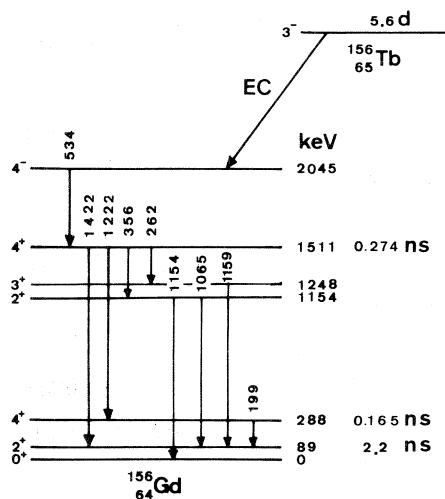
$Tb(Zn_{1-x}Cu_x)$ は CsCl 型結晶構造をもった金属間化合物で, $x=0$ で強磁性体, $x=1$ で反強磁性体となり, 途中 $0.5 < x < 0.54$ ではスピンの cant 構造が生じる。この様な特徴ある磁性の変化はフェルミ面での $4s$ バンドの存在と $s-f$ 相互作用の特徴を示していると言われている。^{1, 2)}

しかしながら, 余り多くのデータはないが最近の $3d$ 遷移金属との希土類金属間化合物についての超微細相互作用の研究からは, これら金属間化合物の磁性は定性的に, 今までよく扱われていた RKKY 相互作用ではなく, $f-d$ 相互作用による解釈が適しているように考えられる。³⁻⁵⁾ このような基本的問題の解決には, 実験的には猶多くの化合物について, 特に超微細相互作用に関するデータが必要である。

本実験では ^{156}Tb の崩壊による ^{156}Gd の時間積分法 $r-r$ 摂動角相関の実験を行い, $4s$ 電子の減少による磁性への効果を局所的な磁性原子 Gd の内部磁場の変化から知ろうとするものである。 $TbZn$ は $T_c = 206$ K の強磁性体で 77 K での磁化は 7.49 kOe で 186emu/gr ($8.0 \mu_B$), $TbZn_{0.64}Cu_{0.36}$ は 85.6 K で強磁性体となり 65 K 以下で cant 構造に転移し, 77 K, 7.49 kOe では磁化は 51emu/gr ($2.3 \mu_B$) を示す。¹⁾

§ 2. 実験方法

実験の設定は全く前回と同様であるが、⁶¹Ge 検出器については70 cm³と80 cm³の2台を用いた。今回は電場勾配の効果が角度のずれにどの位含まれているかをみるために、TbZn 中Gd についてlifeの約 $\frac{1}{2}$ 倍異なる下の準位 288 keV を中間状態とするカスケードについての測定も行った。



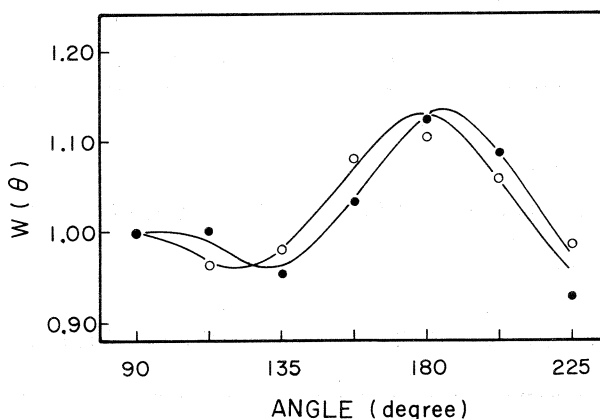
第1図 ¹⁵⁶Tb (3⁻, 5.4 d)からの EC崩壊による ¹⁵⁶Gd の準位図。

§ 3. 結果と考察

a) Tb Zn

1511 keV の準位を中間状態にするカスケードについての測定結果は前回報告したが、今回さらにその追試を行い前回と同じ結果を得たがその結果については省略する。今回電場勾配の影響をみるために288 keV を中間状態にしたカスケードについても実験を行ったので、その結果を報告する。

1222 keV をゲートにした 199 keV の角相関を77 Kで測定した結果を第2図に示す。統計がよくないが測定値を次式に従い最小二乗法により fit させた。



第2図 $4 + (M1, E2) 4 + (E2) 2$ +カスケードによる積分法 $r-r$ 振動角相関, 199 keV - 1222 keV (ゲート)。
●印 +B, ○印 -B,
実線は最小二乗法によって求めた曲線,
試料は Tb Zn。

$$W(\theta, B) = 1 + \frac{b_2}{\{1 + (2\omega_B \tau)^2\}^{\frac{1}{2}}} \cos 2(\theta - \Delta\theta_2) + \frac{b_4}{\{1 + (4\omega_B \tau)^2\}^{\frac{1}{2}}} \cos 4(\theta - \Delta\theta_2) \dots \dots \dots (1)$$

結果を次の表に示す。

第1表 1222 keV-199 keV カスケードの角相関解析結果

	$\Delta\theta_2$	b_2	b_4
H_+	0.0773 ± 0.0258	0.0580 ± 0.008	0.069 ± 0.015
H_-	-0.0388 ± 0.0208	0.060 ± 0.004	0.039 ± 0.008

単純和平均で $\overline{\Delta\theta_2} = 0.053 \pm 0.020$ rad を得る。第2表に掲げた最近の文献値⁷⁾を用いると 288 keV 準位について得た $\overline{\Delta\theta_2} = 0.053$ を $(3.14 \times 0.274) / (1.32 \times 0.165) = 3.95$ 倍すると 0.21 となり、この値は前回 1511 keV 準位について得た $\overline{\Delta\theta_2}$ の値、0.21 と一致している。それ故電場勾配の影響はこれらカスケードについての我々の測定値には現れていないと結論できる。

第2表 最近の文献値

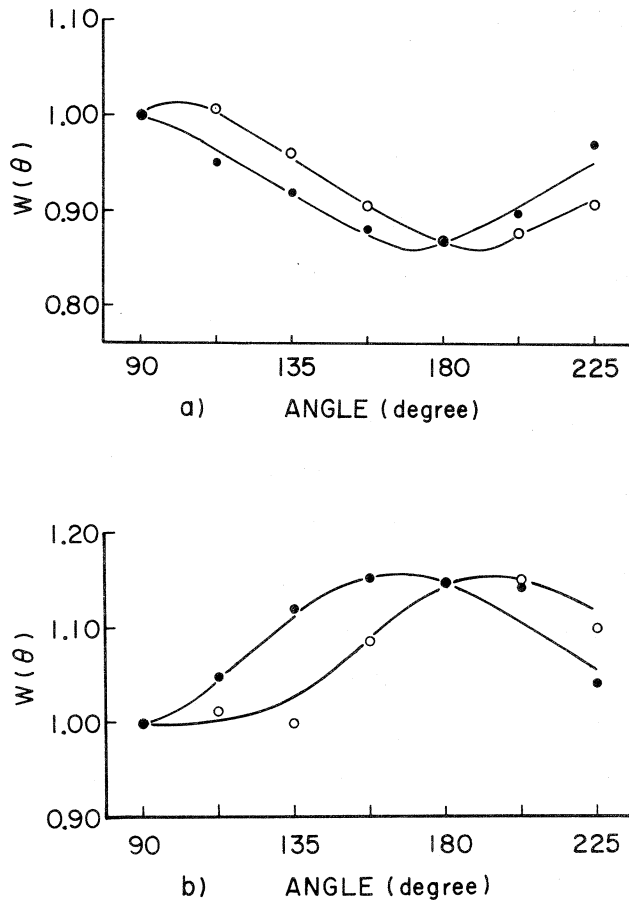
	I	μ	τ
288 keV	4	$1.32 \pm \begin{smallmatrix} 0.38 \\ 0.34 \end{smallmatrix} \mu\text{N}$	0.165 ns
1511 keV	4	$3.14 \pm 0.40 \mu\text{N}$	0.274 ns

b) Tb Zn_{0.64} Cu_{0.36}

1222 keV ゲート, 356 keV ゲートを用いた 1511 keV 準位をはさむカスケードについての測定結果を第3図に示す。

第3表 534 keV-1222 keV カスケードの角相関解析結果

	$\Delta\theta_2$	b_2	b_4
H_+	-0.1824 ± 0.0028	-0.073 ± 0.005	0.000 ± 0.007
H_-	0.199 ± 0.013	-0.076 ± 0.002	0.005 ± 0.004



第3図 $\text{Tb Zn}_{0.64} \text{Cu}_{0.36}$ についての結果。

a) $4-(E1)4+(M1, E2)4$ + カスケードによる積分法
 $r-r$ 摂動角相関,

534 keV - 1222 keV (ゲート)。

b) $4-(E1)4+(E2)2$ + カスケードによる積分法
 $r-r$ 摂動角相関,

534 keV - 356 keV (ゲート)。

●印 $+B$, ○印 $-B$,

実線は最小二乗法によって fit させた曲線。

いずれの測定からも同程度の $\overline{\Delta\theta_2}$ が得られるが、より統計のよい第3図 a) について(1)式を用いて解析すると第3表に掲げる値を得た。

$\Delta\theta = \omega_B \tau$ から、 $\tau = 0.274 \pm 0.008 \text{ ns}^{(8)}$, $g = 0.78 \pm 0.10^{(7)}$ を用いると第3表から得られる単純和平均 $\overline{\Delta\theta_2} = 0.19 \pm 0.01$ より

$$\omega_B = (0.683 \pm 0.041) \times 10^9$$

$$B_{\text{eff}} = (-1.83 \pm 0.11) \times 10^5 \text{ G}$$

が得られ外部磁場 7.17 KG を加えると

$$B_{\text{hyp}} = (-1.90 \pm 0.11) \times 10^5 \text{ G}$$

の内部磁場を得る。

この値は Tb Zn 中 Gd の $B_{\text{hyp}} = (-2.14 \pm 0.20) \times 10^5 \text{ G}$ と同じである。Tb Zn 中でも Tb Zn_{0.64} Cu_{0.36} 中でも Gd の内部磁場が変らないということは、77 K, 7.49 kOe での夫々の磁化の値 186 emu/gr (8.0 μ_B) と 51 emu/gr (2.3 μ_B) の違いを直接的には全く反映していないことになる。且つ又、伝導電子数の減少も直接的には内部磁場に影響を与えていない。しかも Tb Zn_{0.64} Cu_{0.36} のキュリー点に近い温度でこのような大きな内部磁場を示すことは、この物質の平均の磁気モーメントの温度変化とは全く異なる温度変化を Gd の内部磁場が示すことになる。Gd の磁気モーメントも内部磁場と同様に変化するかどうかは現在早急に結論できないが磁気モーメントについても異常な温度変化が期待される。

Gd 核の内部磁場の成因について考えてみる。内部磁場は次式で表わされる⁹⁾

$$B_{\text{hf}} = B_{\text{cP}} + B_{\text{oP}} + B_{\text{Tb}} \dots\dots\dots (2)$$

ここで B_{cP} は Gd の磁気モーメントによる inner core polarization で negative field を作る。 B_{oP} は Gd の磁気モーメントによる伝導電子偏極、 B_{Tb} は 2nd 以上の neighbor にある Tb の磁気モーメントによる伝導電子偏極による Gd 核位置での磁場を表わす。

Tb の磁気モーメントの変化が Gd 核に及ぼす効果は第 3 項であり、伝導電子数の変化が関係しているのは第 2 項、第 3 項である。Gd の磁気モーメントは第 1 項、第 2 項と関係していて、各項の絡みあいのため、本実験のみでは結果の解釈がむづかしい。ナイトシフト、常磁性キュリー点について比較的合理的な解釈とされている de Wijn 等の考え⁹⁾を引用すると第 2 項、第 3 項共 negative field を作る筈であるが、各項の寄与の定量化は符号を含めて現在言及できない。Tb Zn_{1-x} Cu_x 系についての更に多くの実験結果を得ることが必要である。

本実験を遂行するにあたりご援助いただいた八木、近藤の両氏、試料を提供していただいた八代氏、試料のチェックをしていただいた山内氏、加速器運転にあたっていただいたマシングループの方々に厚く感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) T. Yashiro *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **40** (1976) 63.
- 2) M. Umehara and T. Kasuya : J. Phys. Soc. Jpn, **40** (1976) 1649.
- 3) I. A. Campbell : J. Phys. F: Metal Phys. **2** (1972) L 47.
- 4) K. Tamala *et al.*: Solid State Comm. **24** (1977) 857.
- 5) K. H. J. Buschow : Rep. Prog. Phys. **40** (1977) 1179.
- 6) 篠原猛他 : 核理研研究報告 **11** (1978) 72.
- 7) S. N. Khan *et al.*: J. Phys. G: Nucl. Phys. **1** (1975) 727.
- 8) H. K. Walter and A. Weitsch : Z. Physik **211** (1968) 304.
- 9) H. W. de Wijn *et al.*: Phys. Stut Sol. **30** (1968) 759.

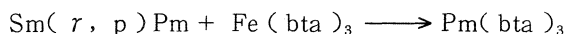
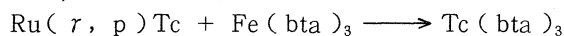
Ⅲ. 放 射 化 学

反跳インプラントーションによる Tc および Pm の benzoyltrifluoroacetone 錯体の合成

理学部化学

吉原賢二・斎藤正隆

Syntheses by recoil implantation were tried for two unknown compounds: tris (benzoyltrifluoroacetato) technetium(III) and tris (benzoyltrifluoroacetato) promethium(III). Using bremsstrahlung of an electron linear accelerator, the following reactions



were studied in the mixture of tris (benzoyltrifluoroacetato) iron (III) and ruthenium metal or samarium oxide. The products were subjected to sublimatography. The results showed formation of these compounds.

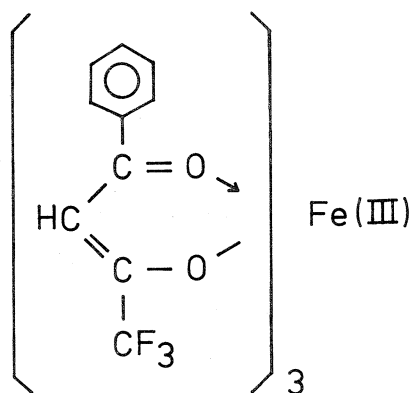
§ 1. まえがき

反跳インプラントーションによる化合物合成は1960年頃にドイツの Baumgärtner ら¹⁾ によってはじめられたが、その後は見るべき報告もなかった。著者は1974年に Baumgärtner らとともにふたたびこの方法をテクネチウム・フタロシアニンの合成に用いることを提案し²⁾、それ以来数種の化合物の合成にこの方法を用いている。たとえばプロメチウム・フタロシアニン³⁾、プロメチウム・ジピバロイルメタン錯体⁴⁾などがこの方法によって合成された新しい化合物である。

反跳インプラントーションはふつう反跳ソース粒子系とターゲット粒子系の混合系を用い、核反応によって生成した反跳エネルギーの高い粒子をターゲット中に打込み、そこで化学反応を起すことに用いられている⁵⁾。核分裂のように反跳エネルギーが100 MeVにも達する粒子を発生するものでは打込み効率がよく、(n, r)反応のように数100 eVの反跳エネルギーしか生じないものでは打込み効率が極めて悪い。20～40 MeVの重陽子を用いる(d, xn)反応

の場合は反跳エネルギーは数 10 ～数 100 keV に達し、打込み効率は 20 % 以上に及ぶこともしばしばである。60 MeV の r 線を用いる (r, xn) 反応では平均反跳エネルギーは従来の照射経験では数～数 10 keV 程度と推定され、打込み効率は数%以下にとどまるが、いろいろの系の反跳インプラントーションの化学的効果を観察することは十分可能である。

本研究では Ru (r, p) Tc 反応および Sm (r, p) Pm 反応を用い、反跳粒子を tris (benzoyltrifluoroacetato) iron (III) 錯体中に打ち込み、従来知られていない化合物である tris (benzoyltrifluoroacetato) technetium (III) および tris (benzoyltrifluoroacetato) promethium (III) の合成をこころみた。Tris (benzoyltrifluoroacetato) iron (III) の分子式は第 1 図に示す。



tris(benzoyltrifluoroacetato)-
iron(III)

第 1 図 Formula of Fe (bta)₃.

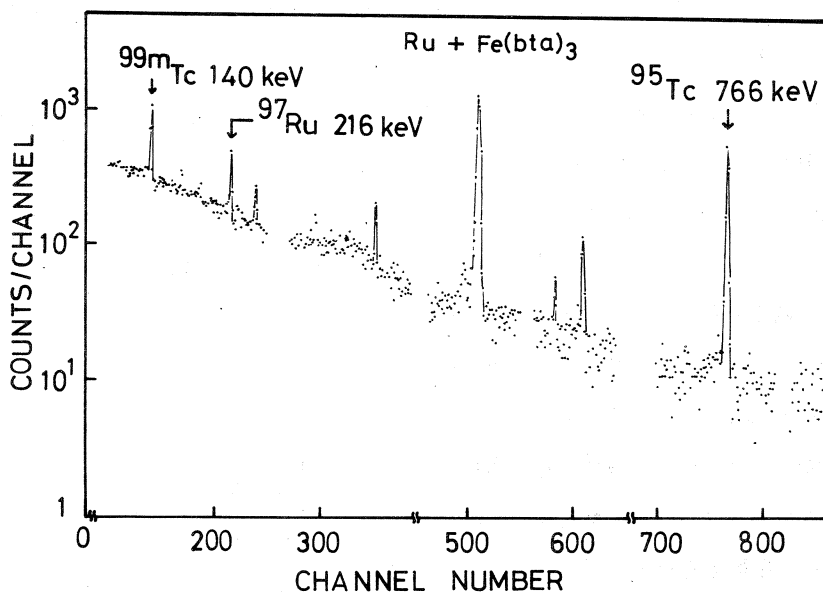
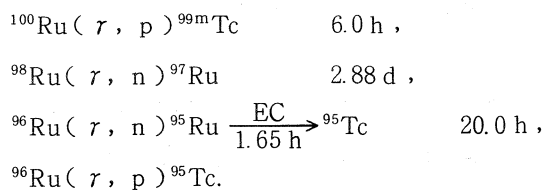
§ 2. 実 験

Tris (benzoyltrifluoroacetato) iron (III) は約 5% の Fe₂(SO₄)₃ の 5% 酢酸ナトリウム水溶液と約 3% の benzoyltrifluoroacetone (ドータイト試薬) エタノール溶液を混合して作り、再結晶して精製した。また Ru 金属および RuO₂ は和光純薬より入手したもので 99% 以上の純度のものを用いた。Sm₂O₃ は東北大学希土類元素分離室の製品で純度 99% 以上であった。

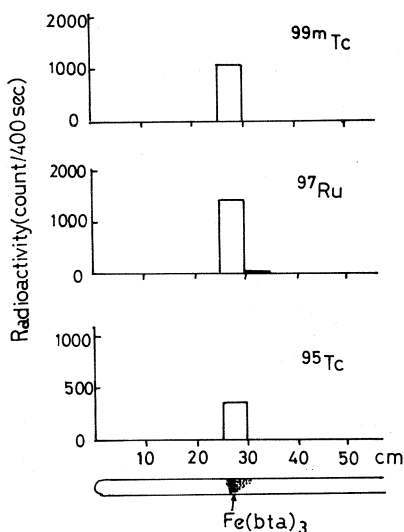
r 線照射は東北大学原子核理学研究施設の電子直線加速器によっておこなった。 r 線の最大エネルギーは 30 MeV あるいは 60 MeV で、照射の詳細は前報³⁾と同様である。照射後の化学処理は主として昇華法によった。これも前報³⁾と同様な操作である。また r 線測定は 80 cm³ Ge (Li) 検出器 4 K 波高分析器によっておこなった。

§ 3. 結果と考察

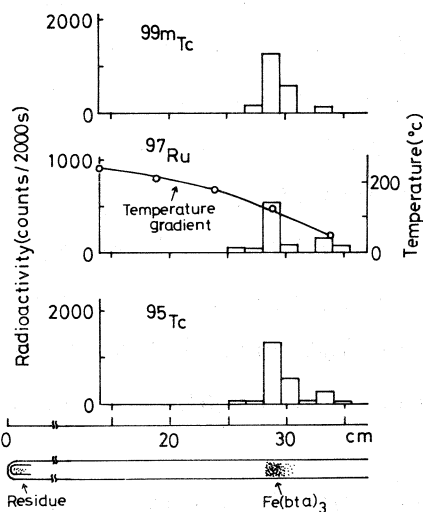
Ru 金属と tris (benzoyltrifluoroacetato) iron (III) — 以後 Fe (bta)₃ と略称する — の混合粉末に電子直線加速器からの r 線を照射し、これを真空中で 250 °C において昇華を約 7 分間おこなった。第 2 図に昇華物の質量ピークの部分の r 線スペクトルを示す。^{99m}Tc, ⁹⁷Ru, ⁹⁵Tc 等の r 線ピークの存在が認められる。これらはつぎのような核反応の結果と考えられる。



第2图 γ -Ray spectrum of the sublimate from irradiated mixture of Ru + Fe(bta)₃.



第3图 Sublimatogram for γ -irradiated mixture of Ru + Fe(bta)₃ (dry ice temperature irradiation).



第4图 Sublimatogram for γ -irradiated mixture of Ru + Fe(bta)₃ (irradiation under water cooling).

第3図に昇華クロマトグラムを示す。この図では $\text{Fe}(\text{bta})_3$ の位置に $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{97}Ru , ^{95}Tc 等の放射能のピークが重なっている。

第4図は同様な照射実験をやや長時間、室温でおこなった結果である。昇華クロマトグラム上 $\text{Fe}(\text{bta})_3$ の位置に相当するところに $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{97}Ru , ^{95}Tc 等の放射能ピークがあるほか、低温側にもう一つのピークがあることがわかる。この低温側のピークには相当する質量ピークはみとめられない。

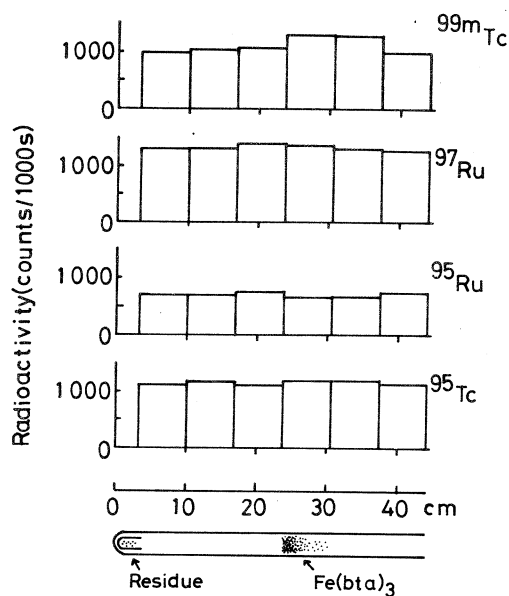
$\text{Fe}(\text{bta})_3$ と重なる放射能ピークについては、 $\text{Ru}(\text{acac})_3$ 錯体の (r , p) 反応において観察された $\text{tris}(\text{acetylacetonato})\text{technetium}(\text{III})^{6)}$ と同様に、 $\text{tris}(\text{benzoyltrifluoroacetato})\text{technetium}(\text{III})$ であると考えられる。この物質はすでにウランの中性子核分裂による反跳インプランテーションを $\text{Fe}(\text{bta})_3-\text{U}_3\text{O}_8$ 系において観察したさいにもその存在がみとめられており⁷⁾、多分間違いのないであろう。 Tc と Ru の β ジケトン錯体の昇華挙動が似ていることは前報⁶⁾ でも既に示したとおりである。

しかし第4図の低温側に現われたもう一つの放射能ピークについてはその化学種はまだ確認されていない。かなり長時間照射したためその影響で変化を受けた物質であるかも知れない。

Ru 金属と $\text{Fe}(\text{bta})_3$ の混合系を用いるかわりに RuO_2 粉末と $\text{Fe}(\text{bta})_3$ の混合系を用いて同様な実験をおこなったところ、その昇華クロマトグラムは第5図に示すような結果となり、 $\text{Tc}(\text{bta})_3$ のピークは高いバックグラウンドの上になぜかみとめられる程度であった。このバックグラウンドは RuO_2 中での Tc が昇華しやすい酸化物となってしみ出した結果と考えられる。

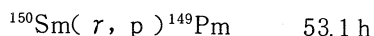
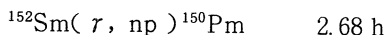
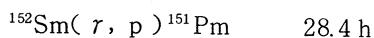
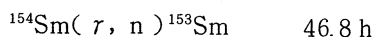
以上の実験を通じ $\text{Tc}(\text{bta})_3$ の生成はまず疑いないところであろう。

つぎにまったく同様な手法で $\text{Pm}(\text{bta})_3$ 錯体に関する実験をおこなったので以下に記す。



第5図 γ -irradiated mixture of $\text{RuO}_2 + \text{Fe}(\text{bta})_3$ の Sublimatogram

r 線照射のさいに起る核反応はつぎのよう
なものである。



ただし ^{149}Pm は ^{150}Sm の存在比が小さく、半減期も長いので生成量が少なく、以下には ^{153}Sm , ^{151}Pm , ^{150}Pm の3核種についてのみ議論することとした。

Sm_2O_3 と $\text{Fe}(\text{bta})_3$ 混合試料を r 線照射したのち、昇華クロマトグラムをとった結果は第6図に示すとおりである。 $\text{Fe}(\text{bta})_3$ の位置に ^{151}Pm , ^{150}Pm および ^{153}Sm の主な放射能ピークがみとめられるほか、低温側にも小さいピークがみとめられる。高温側のピークは $\text{Pm}(\text{bta})_3$ であろう。この物質は $\text{Fe}(\text{bta})_3 - \text{U}_3\text{O}_8$ の中性子核分裂反跳イン

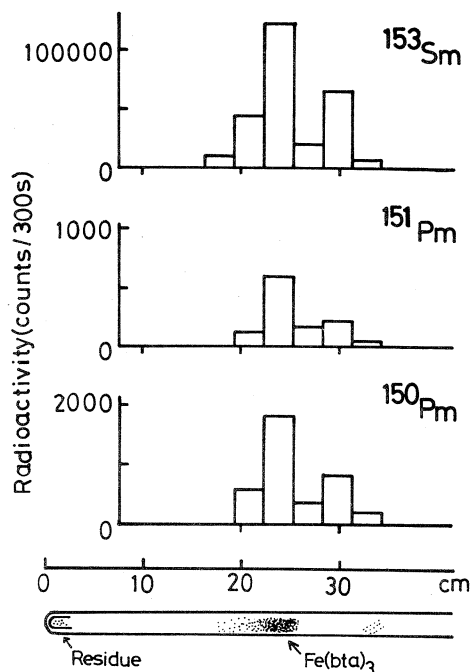
プランテーションのさいにもみとめられており⁷⁾、今回の実験でさらにその確実性が増したといえよう。ただし低温側のピークの化学種はまだ明らかでない。Tc の場合と同様、放射線の影響下に生成したものと考えの方がよいかも知れない。いずれにしても今後の検討課題である。

つぎに以上の実験における反跳インプランテーションの収率と錯体収率などについて述べる。反跳インプランテーションの収率(Y)は Pauly-Süe⁸⁾ の式によれば球状試料の場合に無限希釈の条件で

$$Y = \frac{3}{4} \frac{l}{r} \left(1 - \frac{1}{12} \frac{l^2}{r^2} \right)$$

で与えられる。ここで r は反跳ソース粒子の半径、 l は反跳飛程である。収率は反跳ソース粒子の半径 r が小さい程、また反跳飛程 l が大きい程大きくなる。

上の実験においては直接インプランテーション収率を求めたのではなく、最終的に昇華性錯体となったフラクションが求められたのであるが、これを第1表に示す。



第6図 Sublimatogram for r -irradiated mixture of $\text{Sm}_2\text{O}_3 + \text{Fe}(\text{bta})_3$ (irradiation under water cooling).

第1表 Recoil implantation of Ru, Tc, Sm and Pm in Fe (bta)₃.

RI	Mixture	Product	Sublimation yield (%)	Irradiation conditions
⁹⁷ Ru	Ru + Fe (bta) ₃	Ru (bta) ₃	0.36 ± 0.03	30 MeV
^{99m} Tc	Ru + Fe (bta) ₃	Tc (bta) ₃	1.81 ± 0.07	30 MeV
⁹⁵ Tc	Ru + Fe (bta) ₃	Tc (bta) ₃	0.69 ± 0.03	
¹⁵³ Sm	Sm ₂ O ₃ + Fe (bta) ₃	Sm (bta) ₃	2.95 ± 0.02	60 MeV
¹⁵¹ Pm	Sm ₂ O ₃ + Fe (bta) ₃	Pm (bta) ₃	1.91 ± 0.12	60 MeV
¹⁵⁰ Pm	Sm ₂ O ₃ + Fe (bta) ₃	Pm (bta) ₃	2.22 ± 0.18	

表を見ると興味のあることが見出される。¹⁵¹Pmと¹⁵⁰Pmの収率はほぼひとしく、両者に目立った同位体効果は存在しない。ところが⁹⁵Tcでは^{99m}Tcに比べて収率が著しく小さく、⁹⁷Ruの値に近くなっている。これは前にも述べたように、⁹⁵Tcが(r, p)によって生じるばかりでなく、むしろより多くの部分が、(r, n)反応にひきつづくEC壊変から生じているためであろう。同様なことはMoとフタロシアニン錯体混合系の重陽子照射によるテクネチウム・フタロシアニンの合成のさいに^{99m}Tcの異常に低い錯体収率について指摘されている²⁾。

照射にあたって八木益男助教授とマシン・グループの方々にご協力頂いたことに感謝する。

参 考 文 献

- 1) F. Baumgärtner and P. Reichold: *Chemical Effects of Nuclear Transformations* (IAEA, Vienna, 1961) Vol. 2, p. 319.
- 2) K. Yoshihara, G. K. Wolf and F. Baumgärtner: *Radiochim. Acta* **21** (1974) 96.
- 3) 吉原賢二, 佐伯孝, 奥野健二, 伊沢郡蔵, 塩川孝信: *核理研究報告* **9** (1976) 183.
- 4) M. Sakanoue, Y. Shirota, H. Shimozawa and K. Yoshihara: *Radiochim. Acta* **24** (1977) 77.
- 5) 吉原賢二: *Radioisotopes (Tokyo)* **24** (1975) 281.
- 6) K. Yoshihara, T. Omori and H. Kido: *J. Inorg. Nucl. Chem.* in press.
- 7) 吉原賢二, 奥野健二, 塩川孝信: 第22回放射化学討論会(東京) 講演予稿集 p. 104 (1978).

- 8) J. Pauly and P. Süe : J. Phys. Radium **18** (1957) 22.

ウラニルフタロシアン系における 反跳生成物

筑波大化学系

莊司 準・池田長生・大竹隆夫

沼田哲一

§ 1. 序

固相における反跳原子の挙動解明のためのシミュレーションの一つとして、インプランテーション法による生成物の研究が行われているが、この手法の内の反跳インプランテーションの例として、ターゲットにフタロシアン錯体を取りあげ、ウラン化合物との混合系を照射した結果が報告されている¹⁾ 本研究はターゲットのフタロシアン分子内にウランを中心金属としておき、主として核分裂に伴う反跳インプランテーションの結果をみたものである。

ウランを含むフタロシアン錯体には二種類のもので報告されている。すなわち

- ① ウラニルフタロシアン(以下 UO_2Pc と略記する)²⁾
- ② ビسفタロシアニナトウラン(IV)(以下 $\text{U}(\text{Pc})_2$ と略記する)³⁾

であるが、今回は合成に特殊な装置を必要としない前者を取りあげた。

§ 2. 実 験

2.1 照射試料の調製

UO_2Pc の合成には、まずBarrettの方法⁴⁾によりリチウムアミラートとフタロニトリルから、ジリチウムフタロシアンをつくり、次にFrigerioの処方²⁾に従い、硝酸ウラニルのDMF(ジメチルホルムアミドの略)付加物のDMF溶液を、上記ジリチウムフタロシアンのDMF溶液に加えて、深青色の重い沈殿として UO_2Pc を得た。乾燥したのち元素分析等による確認を行った。

2.2 照 射

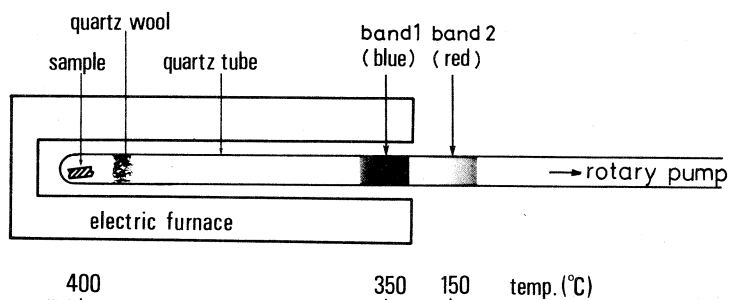
照射は東北大核理研電子リニアックによる制動 γ 線照射と立大原研TRIGA II原子炉による熱中性子照射の双方を行った。照射条件を第1表に示す。

第1表 Irradiation Conditions.

<u>γ-irradiation</u>	
Tohoku Univ. Electron LINAC	
Max. Energy of γ -ray	60 MeV
Average Current	$\sim 150 \mu\text{A}$
γ -ray Dose Rate	$\sim 1.2 \times 10^7 \text{ R/hr}$
Irradiation Time	5 \sim 6 hr
Irradiation Temp.	- 78 °C
(Platinum converter was used.)	
(Unconverted electrons were removed by the sweep magnet.)	
<u>Thermal Neutron Irradiation</u>	
Rikkyo Univ. TRIGA MARKII Reactor	
Neutron Flux	$5 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$
γ -ray Dose Rate	$\sim 1.4 \times 10^6 \text{ R/hr}$
Irradiation Time	1 hr
Irradiation Temp.	$\sim 30 \text{ °C}$

2.3 照射後の分離操作・化学処理

照射後直ちに試料を第1図に示すような減圧昇華装置に入れ、400 °Cに30分間加熱して昇華部分を分取した。昇華部分をそのまま γ 線スペクトルの測定に供するとともに、同様の別の照射試料を用いて、昇華物を冷濃硫酸(特定の担体を含まない)に溶かし氷水に注いだ後、生じた沈殿と上澄みを濾別してそれぞれ γ 線測定に供した。また昇華残渣は硝酸と過酸化水素水を



第1図 Apparatus for Sublimation.

用いて溶解し、一定容にして収率の測定に使用した。

2.4 放射能測定

r 線スペクトルの測定は全てGe(Li)半導体検出器を用いて行った。

2.5 質量分析

長期間クーリングして放射能が認められなくなった昇華物について、日立製RMU-6MG型質量分析計(イオン化は電子衝撃方式)を用いて質量スペクトルを測定した。

§ 3. 結果と考察

3.1 昇華物の特性

昇華分離操作は上記温度条件で30分間行うのを常としたが、あらかじめ加熱時間を変えて行ってみた結果、この温度条件、真空度の下では30分間で昇華し得るものは全て出つくすと判断された。

いずれの照射の場合も昇華物は第1図に示すように、数mmの間隔で2つの帯となってあらわれた。高温側から band 1, band 2 と呼ぶことにする。band 1 は青紫色(いわゆるフタロシアニン色)であり量も多かったが、band 2 は赤色で、薄く色づく程度であった。

各昇華帯位置における温度は、同一条件下で昇華管内においた水銀温度計の直読から、band 1, 2 でそれぞれ 350°C, 150°C であった。

band 1 は冷濃硫酸に溶け、この溶液を氷水に注ぐと深青色の沈殿を生じ、通常のフタロシアニン類と同様の挙動を示した。

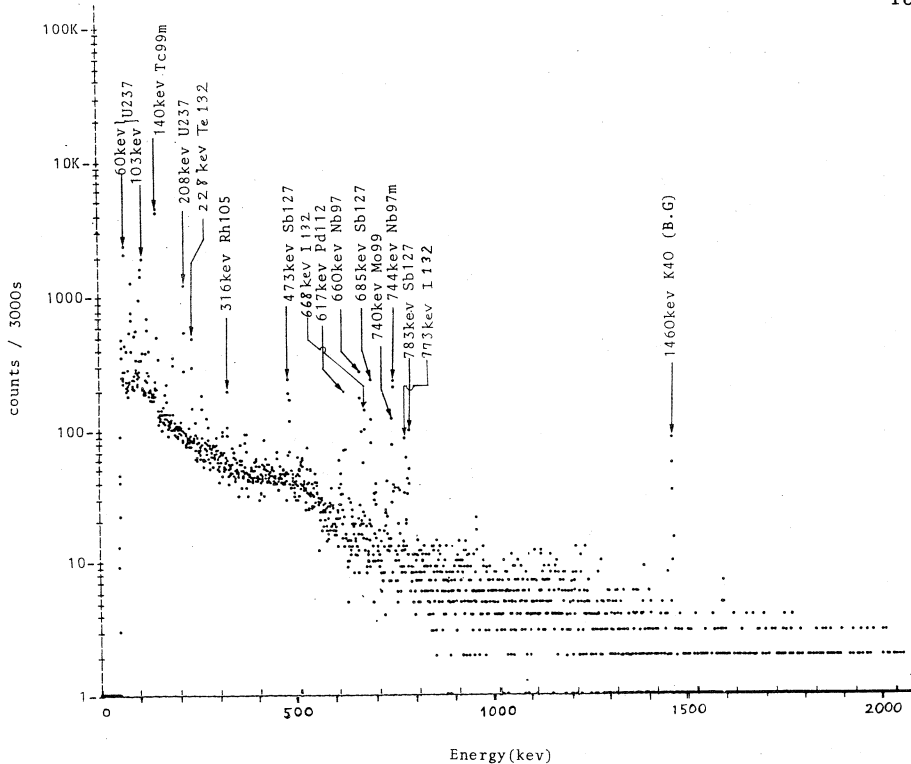
band 2 は冷濃硫酸には容易に溶けたが、これを氷水中に注いでも何も沈殿は生じなかった。また band 2 はクロロホルムに可溶で薄い赤色の溶液となった。この溶液で赤外線吸収スペクトルの測定を試みたが、試料濃度が低過ぎて試料による吸収ピークの確認はできなかった。

band 1 の質量スペクトルは非常に単純な様相を呈し、無金属フタロシアニンに相当する 514 のピークが強く現われ、それ以上の質量のものはなかった。

band 2 の質量スペクトルはイオン化の際の電子衝撃のためか、低分子の極めて錯綜したものが得られたが、一番高い分子ピークと思われるものは 460 であった。このことから band 2 はフタロシアニンの分解生成物と考えられる。

3.2 各昇華帯中の核種

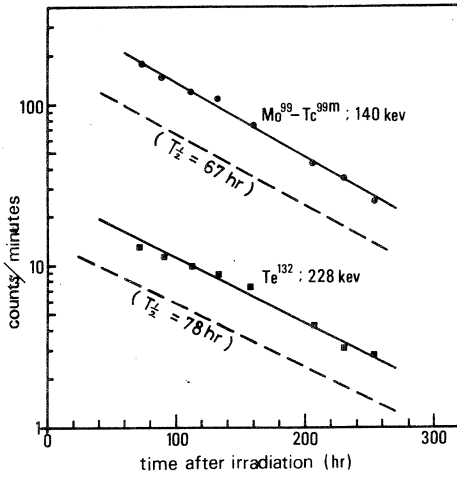
制動 r 線照射の際の band 1 の r 線スペクトルを第2図に示す。 ^{237}U が3本のピーク(60, 103, 208 keV)からはっきりと確認でき、 ^{99}Mo – $^{99\text{m}}\text{Tc}$ のピーク(140, 740 keV), ^{97}Zr –



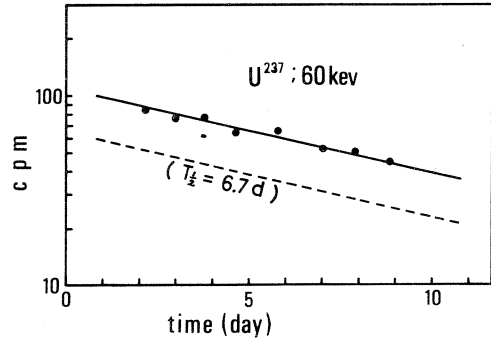
第2図 γ -spectrum of Band-1 3.0 Days after γ -irradiation.

$^{97m}\text{Nb} - ^{97}\text{Nb}$ のピーク (660, 744 keV) など顕著に見えている。 $^{95}\text{Zr} - ^{95}\text{Nb}$ によるピークも存在するのであるが、この時点ではまだ他のピークにかくれて見えない。また band 2 中に強くあらわれてくる $^{132}\text{Te} - ^{132}\text{I}$ のピーク (228, 668, 773 keV) がここでも確認された。ピークの同定をさらに確実にするために、主なピークの減衰を追ってみた。第3図には $^{99}\text{Mo} - ^{99m}\text{Tc}$ によるとと思われる 140 keV のピークと ^{132}Te によるとと思われる 228 keV のピークの時間的変化が示されているが、いずれも半減期は ^{99}Mo と ^{152}Te の文献値とよく一致した。第4図には同じく ^{237}U からのものと予想された 60 keV のピークの減衰を示す。これも半減期は文献値とよく一致した。

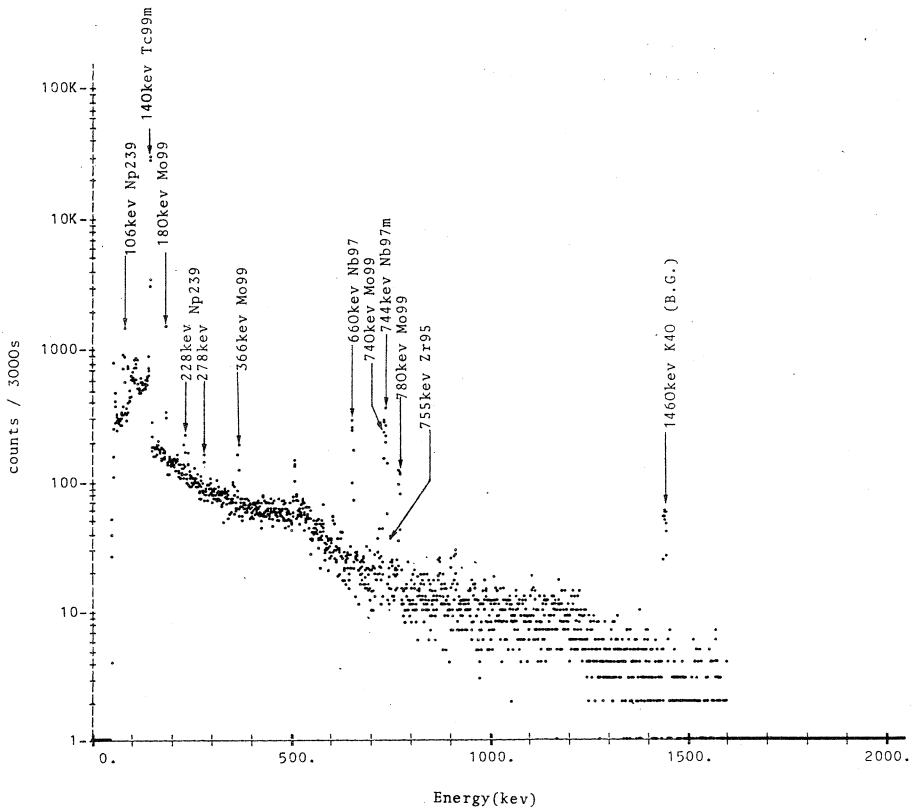
熱中性子照射の場合の band 1 の γ 線スペクトルを第5図に示す。制動 γ 線照射の場合と共通する核種も多いが、熱中性子照射の場合は ^{237}U の代りに ^{239}U からの ^{239}Np のピーク (106, 228, 278 keV) が見えている。またこのスペクトルにはすでに ^{95}Zr のピーク (755 keV) がちょっと顔を出している。照射直後に、 ^{239}U からの寄与を含む 75 keV のピークの減衰を追ったのが第6図で、半減期 4.5 時間の長寿命成分が共存したが、その寄与を差引いて再プロットしてみると、バラツキはあるが約 22 分の半減期が得られ、 ^{239}U とほぼ決定し得た。



第3图 Decay Curves of 140 and 228 keV Peaks of Band 1 after γ -irradiation.



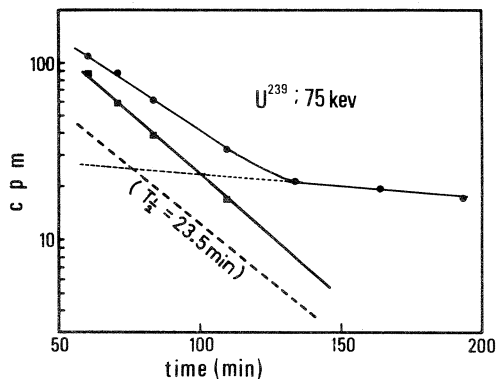
第4图 Decay Curve of 60 keV Peak of Band 1 after γ -irradiation.



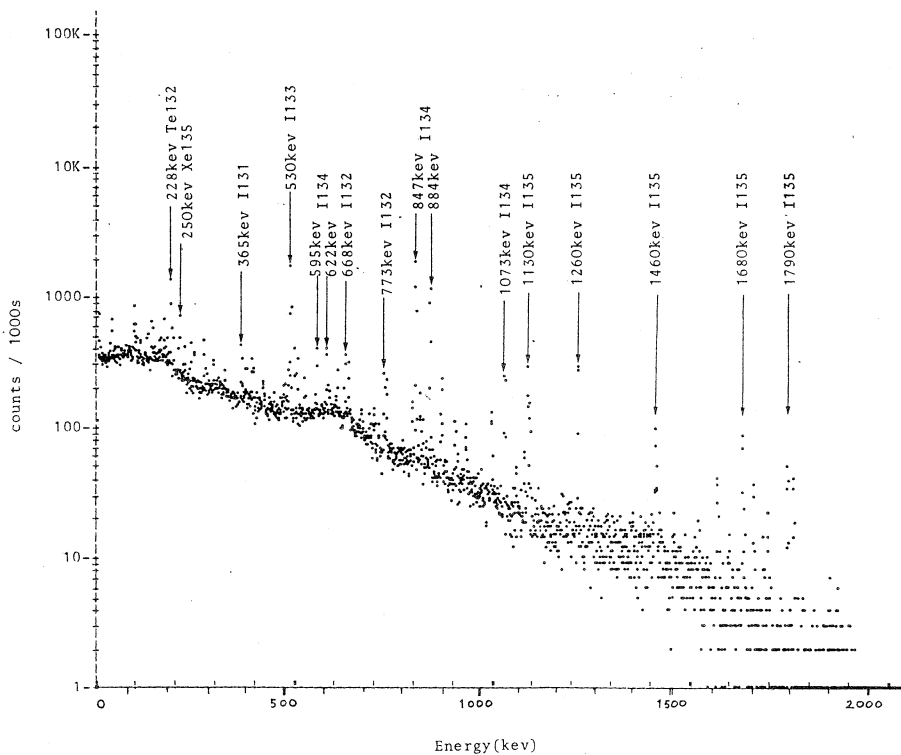
第5图 γ -spectrum of Band -1 1.2 Days after Thermal Neutron Irradiation.

第7図に熱中性子照射の場合の band 2 の γ 線スペクトルを示す。制動 γ 線照射の場合も様相はほとんど同じであった。 ^{132}Te のピーク (228 keV), ^{135}I からの ^{135}Xe のピーク (250 keV) の他は、質量数 131 から 135 までのヨウ素のピークであった。

第2表, 第3表に各照射において各 band 中に確認された核種を示す。



第6図 Decay Curve of 75 keV Peak of Band 1 after Thermal Neutron Irradiation.



第7図 γ -spectrum of Band -2 4.3 hr after Thermal Neutron Irradiation.

第2表 Nuclides in the Sublimate after γ -irradiation.

Band 1	Band 2
^{237}U (6.7 d)	^{132}Te (78 hr) - ^{132}I (2.3 hr)
^{99}Mo (67 hr) - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (6.0 hr)	^{135}I (6.7 hr) - ^{135}Xe (9.2 hr)
^{97}Zr (17 hr) - $^{97\text{m}}\text{Nb}$ (54 sec) - ^{97}Nb (74 min)	^{131}I (8.0 d)
^{95}Zr (65 d) - $^{95\text{m}}\text{Nb}$ (3.8 d) - ^{95}Nb (3.5 d)	^{133}I (2.1 hr)
^{112}Pd (20 hr)	^{134}I (5.3 min)
^{127}Sb (9.3 hr)	
^{105}Ru (4.4 hr) - ^{105}Rh (3.6 hr)	
^{132}Te (7.8 hr) - ^{132}I (2.3 hr)	

第3表 Nuclides in the Sublimate after Thermal Neutron Irradiation.

Band 1	Band 2
^{239}U (23.5 min) - ^{239}Np (2.3 d)	^{132}Te (78 hr) - ^{132}I (2.3 hr)
^{99}Mo (6.7 hr) - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (6.0 hr)	^{135}I (6.7 hr) - ^{135}Xe (9.2 hr)
^{97}Zr (1.7 hr) - $^{97\text{m}}\text{Nb}$ (5.4 sec) - ^{97}Nb (7.4 min)	^{131}I (8.0 d)
^{95}Zr (6.5 d) - $^{95\text{m}}\text{Nb}$ (3.8 d) - ^{95}Nb (3.5 d)	^{133}I (2.1 hr)
^{128}Sn (5.9 min) - $^{128\text{m}}\text{Sb}$ (1.1 min) - ^{128}Sb (8.9 hr)	^{134}I (5.3 min)
^{129}Sb (4.3 hr)	

3.3 主な核種の収率

第4表 Yields .

Irradiation	Nuclides	Band 1		Band 2 (soln.)
		ppt .	filt .	
γ -irradiation	^{237}U	0.4 (%)	0.5 (%)	0.0 (%)
	^{99}Mo	46	6.0	2.0
	^{132}Te	1.0	3.0	13
	^{97}Zr	4.0	0.0	0.0
	^{95}Zr	1.0	0.0	0.0
Thermal Neutron Irradiation	^{239}Np	0.01	0.0	0.0
	^{99}Mo	15	3.0	1.0
	^{132}Te	0.0	0.0	5.0
	^{97}Zr	4.0	0.0	0.0
	^{95}Zr	2.0	0.0	0.0

濃硫酸処理を行った band 1, 2 と溶解した残渣からの測定試料により, 主な核種についての収率を求めてみたが, その結果を第 4 表に示す。残渣と band 1 についての沈殿部分と上澄み部分, band 2 の溶液それぞれの中に見出されたその核種の存在量の和を 100 % としてある。従って昇華時に気化し散逸してしまった分はこの計算には入っていない。

3.4 総括

band 1 中に見出された核種で, フタロシアン錯体として報告のない元素は, r 線照射の場合の $^{132}\text{Te} - ^{132}\text{I}$ と, 熱中性子照射の場合の ^{239}Np である。比較のためにテルルの化合物(三酸化テルル, テルル酸ナトリウム, 亜テルル酸ナトリウムなど)を同一条件で昇華してみると, 金属テルルと思われる昇華物の幅広い band が band 2 の位置を中心に形成され, その高温側の端は band 1 の領域にも及ぶので, ^{132}Te は昇華した, フタロシアン錯体にはなっていないテルルを含む band の重なりによるのではないかと考えられる。 ^{132}Te の分配を見ると band 2 に最も多く, band 1 の上澄み, band 1 の沈殿の順であることもこれを裏付けている。 ^{239}Np は昇華部分への収率が非常に小さいが, 濃硫酸処理をしてもフタロシアン錯体部分に当たる band 1 の沈殿に移ることから, フタロシアンと何等かの結合を形成しているものと判断される。

^{237}U , ^{239}U に起因する ^{239}Np の湿式処理後の沈殿(錯体)部分への収率は低いが, この昇華条件下では UO_2Pc は昇華時に大部分(99%以上)の中心金属を残渣として残してくることが, 昇華物(band 1)の炭素, 水素, 窒素についての元素分析, 同じく昇華物中のウランのプラズマ発光分光法による定量, 昇華物の熱中性子照射による再放射化などから判明した。照射試料からの昇華物は量が非常に少く, プラズマ発光分光法による定量においてもウランは検出限界以下になってしまい, 昇華物中のウランの存在量は上限値しか求められていない。 ^{237}U , ^{239}U については(特に ^{237}U について)昇華物中への反跳効果による濃縮の可能性があるので, 目下照射していない UO_2Pc をかなり多量に用いて, 同一条件での昇華を行い, 昇華時における中心金属の残存率を正確に求め, 第 4 表における収率と合わせて濃縮係数を算定している段階である。

band 1 中に見出された核種で, これまでフタロシアン錯体とウラン化合物の混合系の反跳インプランテーションで報告されていないものは, r 線照射では ^{237}U , $^{97}\text{Zr} - ^{97}\text{Nb}$, ^{112}Pd , ^{127}Sb , $^{105}\text{Ru} - ^{105}\text{Rh}$, $^{132}\text{Te} - ^{132}\text{I}$, 熱中性子照射では $^{239}\text{U} - ^{239}\text{Np}$, $^{97}\text{Zr} - ^{97}\text{Nb}$, $^{128}\text{Sn} - ^{128}\text{Sb}$, ^{129}Sb である。 ^{237}U , $^{239}\text{U} - ^{239}\text{Np}$ はそれぞれ(r, n)反応, (n, r)反応に伴うものであるから, 分子内にウランがある本実験のような系においてのみ見出されるのも

当然であるが、他の核種についても、ウランが分子内にあることが、核分裂生成物で検出されていない短寿命親核種の飛程に関係している可能性がある。

band 1 の湿式処理後の沈殿中に高収率で見出された核種は、配位子のフタロシアニンとの間に共有性の高い結合を形成したと見ることができるが、モリブデンやジルコニウムについての結果は、化学的に合成された場合の性質とよく一致している。

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、大森魏博士、ならびに立教大学原子力研究所、松浦辰男教授、戸村健二教授に厚く感謝の意を表す。

参 考 文 献

- 1) K. Yoshihara : Radioisotopes **24** (1975) 59.
- 2) N. A. Frigerio : U. S. Patent 3, 027, 391 (Mar. 27, 1962).
- 3) F. Lux, D. Dempf and D. Graw : Angew. Chem. **80** (1968) 792.
- 4) P. A. Barrett, D. A. Frye and R. P. Linstead : J. Chem. Soc. **1938**, 1157.

光核反応によるポジトロン放射体無担体³⁸K の製造

核理研, 金沢大医技短大*

八木益男・天野良平*

The $^{40}\text{Ca}(\gamma, \text{pn})^{38}\text{K}$ and the $^{40}\text{Ca}(\gamma, 2\text{n})^{38}\text{Ca} \rightarrow ^{38}\text{K}$ reactions, which take place simultaneously in the photonuclear reactions on calcium, have proved to be useful for the preparation of carrier-free ^{38}K in a high radionuclidic purity. The production rates of ^{38}K and contaminant were determined as a function of the maximum bremsstrahlung energies between 30 and 60 MeV. As a result, the production rate of ^{38}K at an electron energy of 60 MeV was found to be $500 \mu\text{Ci} / \mu\text{A}\cdot\text{h/g}$ of Ca. On the other hand, the rapid chemical separation method of carrier-free ^{38}K was studied in detail by using ^{43}K and ^{47}Ca tracers, and it was confirmed that the chemical separation is achieved in about 70% yield within 7 min after the end of irradiation.

§ 1. 緒 言

カリウムの放射性同位体⁴²K(半減期: 12.36時)あるいは⁴³K(半減期: 22.3時)が心筋に迅速に集積されることが示される¹⁾とともに, それらの核医学への利用が活発に検討されてきたが, 壊変型式の複雑さ, 製造法における困難さ, 患者の放射線被曝の問題, 画像の質的向上の困難さ等により, 広く活用されるまでにはいたらなかった。

一方³⁸Kは7.61分という短い半減期をもち, 100% ポジトロン放射をするという特徴をもっている。この核種は主として $^{35}\text{Cl}(\alpha, \text{n})^{38}\text{K}$ および $^{40}\text{Ca}(\text{d}, \alpha)^{38}\text{K}$ 反応を利用して製造され同定されたが, その核医学の利用は, Myers²⁾あるいはLambrecht³⁾らによって近年始めて着手され, 特に後者は心筋のポジトロン トモグラフィによる研究に極めて有用であることを報告し, 核医学界の注目を集めるにいたった。彼等はその製造法として $^{40}\text{Ar}(\text{p}, 3\text{n})^{38}\text{K}$ 反応を適用し, 同時に $^{40}\text{Ar}(\text{p}, 2\text{pn})^{38}\text{Cl}$ 反応で生成する³⁸Clは陰イオン交換樹脂柱を通すことによって除去し, 照射終了2分後に純度99.9%以上の³⁸Kを入手することに成功した。

この ^{38}K を光核反応によって製造する場合は、 $^{40}\text{Ca}(\gamma, \text{pn})^{38}\text{K}$ および同時に生起する $^{40}\text{Ca}(\gamma, 2\text{n})^{38}\text{Ca} \rightarrow ^{38}\text{K}$ 反応を利用すれば、極めて効率よくそれを製造できると期待されるが、ターゲットである多量のカルシウムから、いかに早く無担体 ^{38}K を分離するかが、この製造法の成否の鍵となる。

そこで本研究では、天然組成のカルシウム金属をターゲットとして、30~60 MeV 制動輻射線照射による無担体 ^{38}K の生成収率を求めるとともに、多量に存在するカルシウムから無担体 ^{38}K を迅速に分離し、ただちに利用に供する方法を確立することを試みた。

§ 2. 実 験

2.1 ターゲットおよび試薬

^{38}K の生成収率の測定には、粒状金属カルシウム(純度99.9%以上)を直径10 mm の石英管に約0.15グラム封入し試料とした。また無担体 ^{38}K 製造用ターゲットは、上記金属カルシウム約0.5グラムをアルミニウム製気送子につめ試料とした。その他本実験に用いた試薬はすべて最純品を使用した。

2.2 照 射

^{38}K 生成収率測定試料は、パルス幅3 μ 秒、パルス繰返数毎分300回の30~60 MeV 加速電子を0.7輻射長の白金コンバーターを用いて制動輻射線に転換し照射した。試料は白金コンバーターのすぐ後方におき水冷しながら15分間照射した。一方無担体 ^{38}K 製造用試料は気送管装置を利用し、60 MeV 加速電子を上記と同様に制動輻射線に転換し、白金コンバーターの直後に気送子が位置するようにして照射した。この場合、気送子は照射中強制空冷した。

照射中の全ビーム電流は、あらかじめ Faraday cup で較正したフェライト コア モニターの電流を整流し、それを積算することで求めた。

2.3 放射能測定

生成放射能は、あらかじめ種々のガンマ線エネルギーにたいして計数効率を同定してある80 ml Ge(Li)検出器を4096 区分波高分析器に接続して測定した。陽電子測定にたいしては完全に消滅ガンマ線を発生させるよう考慮した。生成核種は、それぞれ特徴あるガンマ線スペクトルおよびそれら半減期を測ることによって同定した。

2.4 生成収率

生成収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 $\mu\text{Ci} / \mu\text{A}\cdot\text{h} / \text{g of Ca}$ として求めた。えられた生成収率にたいする誤差は10%以下であった。

2.5 無担体 ^{38}K の迅速分離・精製法

照射後ただちにカルシウムターゲットを50 ml 遠心分離管に移し、水10 ml を加えて溶解させる。この時カルシウムは激しく水と反応して溶解し、同時に水酸化カルシウムの白色沈澱を生成する。溶解終了とともにただちに遠心分離し上澄液はあらかじめ $\text{R}-\text{CO}_3^-$ 型に処理した Dowex 1×8 樹脂柱(50-100 メッシュ, 直径10 mm, 長さ13 cm) に通し, さらに飽和水酸化カルシウム溶液10 ml で洗滌する。流出液の4~12 ml を捕集し, 希塩酸少量を滴下攪拌して pH 6 に調節し, ミリポア フィルターでろ別する。

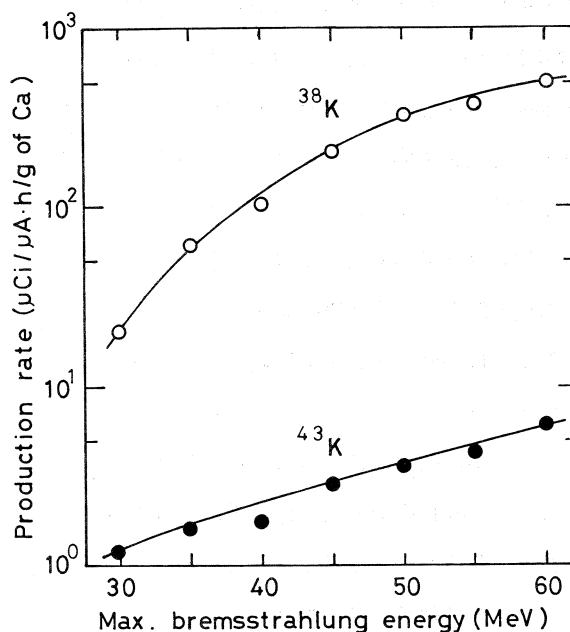
§ 3. 結果と考察

3.1 ^{38}K の生成収率

天然組成カルシウム金属を30~60 MeV 制動放射線で照射した場合, ガンマ線スペクトロメトリーで同定された放射性核種は ^{38}K および ^{43}K のみで, 他核種の生成はほとんど無視できることがわかった。 ^{43}K は主に $^{44}\text{Ca}(\gamma, p)^{43}\text{K}$ 反応によって生成されたものである。

これら両核種の入射最大制動放射線エネルギーにたいする生成収率は第1図に示した。図から明らかなように ^{38}K の生成収率は30 MeV 以上で急激に増加する傾向を, また ^{43}K のそれは徐々に増加する傾向を示した。これから本光核反応を利用して ^{38}K の製造を試みる場合, 少量の ^{43}K の汚染はさげられないが, 入射制動放射線エネルギーを高くすること, また照射時間はできるだけ短くすることで, その汚染は最小限にせねばならぬことがわかった。

本電子リニアックの60 MeV 加速での通常出力, 平均電流 150 μA で天然組成カルシウム1グラムを1時間照射した場合には, 無担体 ^{38}K は 79.1 mCi, ^{43}K は 780 μCi 生成さ



第1図 Production rates of ^{38}K and ^{43}K as a function of the maximum bremsstrahlung energy.

れ、 ^{43}K の汚染率は ^{38}K の約1%となる。一方同様条件で15分間照射した場合には、 ^{38}K は59.2 m Ci, ^{43}K は197 μ Ci 生成され、 ^{43}K の汚染率は ^{38}K の0.3%となる。したがって15分間照射の場合は、短半減期である ^{38}K の利用を考慮しても、その生成量は充分であり、 ^{43}K の汚染もかなり低下させることができることになる。

3.2 無担体 ^{38}K の迅速分離精製法

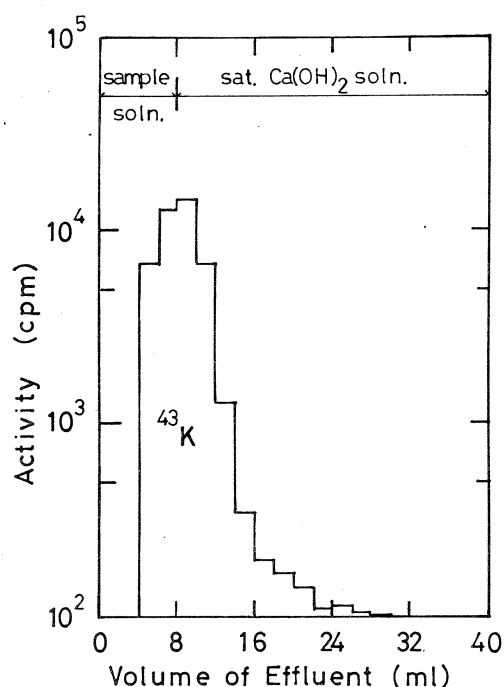
2.5でのべた ^{38}K の迅速分離精製法を詳細に検討するため、天然組成カルシウム金属0.25グラムを60 MeV 制動放射線約10時間照射し ^{47}Ca および無担体 ^{43}K トレーサーを製造した。これら両トレーサーを添加して各操作を逐次実施し、無担体 ^{38}K 分離法のチェックをおこなった。

その結果、照射ターゲットを10 ml の水に溶解した場合、65.5%のカルシウムが水酸化カルシウム沈澱として分離されることがわかった。またこの時、無担体 ^{43}K の26.6%が同沈澱とともに失われることが確かめられた。一方 $\text{R}-\text{CO}_3^{2-}$ 型 Dowex 1 \times 8 樹脂柱に毎分5 ml の流速で上記沈澱分離時の上澄液を通して得られた ^{43}K の溶離曲線は第2図に示した。多量のカルシウムは完全に樹脂柱に吸着され流出液中には全く検出されず、カルシウム-カリウムの分離は完全であることが確かめられた。また溶離曲線から ^{43}K は流出液4~12 ml を採取すれば約96%の収率で回収できることがわかった。

以上の基礎的検討により本迅速分離法によれば、全操作を通して無担体 ^{38}K は収率約70%で分離回収できることがわかった。

3.3 無担体 ^{38}K 製造の試み

約0.5グラムの天然組成カルシウム金属を気送子につめ、60 MeV - 150 μ A の制動放射線で15分間照射し、全分離精製操作を実施し、最終的にえられる無担体 ^{38}K の収量を求めた。その結果、照射終了から全所要時間7分で約10 m Ci の無担体 ^{38}K をえ、利用に供しうることが



第2図 Elution chromatogram of carrier-free ^{43}K from the Dowex 1 \times 8 ($\text{R}-\text{CO}_3^{2-}$) resin column.

確められた。

参 考 文 献

- 1) W. D. Love, R. B. Romney and G. E. Burch : *Circ. Res.* **2** (1954) 112.
- 2) W. G. Myers : *J. Nucl. Med.* **14** (1973) 359.
- 3) R. M. Lambrecht, T. Hara, B. M. Gallagher, A. P. Wolf, A. Ansari and H. Atkins : *Int. J. appl. Radiat. Isotopes* **29** (1978) 667.

^{115m}In の ミ ル キ ン グ

核理研, 金沢大医技短大*, 理学部化学**

八木益男・天野良平*・伊澤郡蔵**

A generator, based on the genetic sequence of $^{115}\text{Cd} \rightarrow ^{115m}\text{In}$, was prepared for medical and biological uses. After the production rates of ^{115}Cd by the $^{116}\text{Cd}(\gamma, n)^{115}\text{Cd}$ reaction were determined as a function of the maximum bremsstrahlung energies between 35 and 60 MeV, the parent, ^{115}Cd , was produced by irradiating about 0.15 gram of cadmium oxide with the bremsstrahlung from a 60 MeV-150 μA electron beam. Then the parent in the CdI_4^{2-} form was adsorbed on the Dowex 1 \times 8 anion exchange column, and the daughter was eluted with an isotonic saline solution adjusted to pH 1. The generator was milked over a period of 70 hours, during which time about 900 ml of eluate were allowed to flow through the column. Even after an equivalent of 60 ml \times 15 milkings, no ^{115}Cd was found in the ^{115m}In fractions.

§ 1. 緒 言

^{115m}In (半減期 4.49 時間) は核異性体転移 94.95%, ベータ壊変 5.05% の割合で壊変し, 親核種 ^{115}Cd (半減期 53.38 時間) のベータ壊変を通して生成される。この核異性体転移およびベータ壊変にともない放出される光子エネルギーは, 336 keV および 497 keV であるが, それらの放出率は 100 壊変あたりそれぞれ 45.91 光子および 0.047 光子の割合となるため¹⁾ これはほとんど単一 336 keV 光子放出核種とみなされている。この放出光子エネルギーは市販シンチレーションカメラ検出器には若干高過ぎ十分な画質がえられないくらいはあるが, これを利用すれば, その半減期は核医学的利用に極めて適している, ベータ線エネルギーとその放出分岐比が小さいため患者の被曝線量は少なくすむ, $^{115}\text{Cd} \rightarrow ^{115m}\text{In}$ 系を利用した連続ミルクング法により必要に応じて調製できるという特色を生かすことができる。

親核種 ^{115}Cd は原子炉を用いて $^{114}\text{Cd}(n, \gamma)^{115}\text{Cd}$ 反応によって製造できるが, 天然組成のカドミウムを照射する場合は, ^{113}Cd の極めて大きい中性子吸収断面積のため, かなりの困難をともない濃縮 ^{114}Cd を用いて初めてその製造が可能となる²⁾。しかしながら光核反応に

よれば天然組成のカドミウムを照射しても $^{116}\text{Cd}(\gamma, n)^{115}\text{Cd}$ 反応により、それを容易に製造することができる。

一方 $^{115}\text{Cd} \rightarrow ^{115\text{m}}\text{In}$ 系を利用したミルクング法は活発に検討されてきたが²⁻⁷⁾、その連続ミルクング法としては親核種を CdCl_4^{2-} として陰イオン交換樹脂柱に吸着させ、娘核種 $^{115\text{m}}\text{In}$ を 0.1 規定塩酸溶離液で分離する方法が開発されてきた^{2, 5)}。しかしこの場合 CdCl_4^{2-} が溶離中少しづつ解離するため $^{115\text{m}}\text{In}$ を若干汚染し多数回のミルクングが実施できないという欠点をもっている。

そこで本研究においては光核反応による ^{115}Cd の生成収率の測定と CdCl_4^{2-} より極めて安定な CdI_4^{2-} を陰イオン交換樹脂柱に吸着させ全く他の核種の汚染のない ^{115}In を連続的に多数回ミルクング出来る装置の開発を試みた。

§ 2. 実 験

2.1 ターゲットおよび試薬

$^{115\text{m}}\text{Cd}$ の生成収率測定用ターゲットは純度 99.9 % 以上の酸化カドミウム (CdO) 約 0.3 グラムを直径 10 mm の石英管に封入し照射した。また ^{115}Cd 製造用ターゲットは上記酸化カドミウム 0.15 グラムを同様封入して照射した。本実験に用いたその他試薬はすべて最純品を使用した。

2.2 照 射

^{115}Cd 生成収率測定のための照射は、パルス幅 3 μ 秒、毎秒 300 回繰返しの 35~60 MeV 電子線を 0.7 輻射長の白金コンバーターで制動輻射線に転換しておこなった。試料は白金コンバーターのすぐ後側におき、水冷下で 1 時間照射した。照射中の全ビーム電流はあらかじめ Faraday cup で校正したフェライト コア モニターの電流を整流後積算することで測定した。一方 ^{115}Cd 製造用ターゲットは 60 MeV - 150 μ A 加速電子による制動輻射線を 8 時間照射して ^{115}Cd の製造を試みた。

2.3 放射能測定

生成放射能はあらかじめ種々のガンマ線に対する計数効率を校正してある 80 cm^3 $\text{Ge}(\text{Li})$ 検出器を 4096 区分波高分析器に接続して測定した。 ^{115}Cd の生成量は 492 keV および 528 keV ガンマ線を測定することで、またミルクングによる $^{115\text{m}}\text{In}$ の溶離量は 336 keV ガンマ線を測定することで求めた。

2.4 ^{115}Cd の生成率

^{115}Cd の生成収率は、測定にたいして検出器の計数効率、ガンマ線の分岐比およびターゲット量等による補正をおこない、照射終了時の生成収率 ($\mu\text{Ci}/\mu\text{A}\cdot\text{h/g}$ of Cd) として求めた。えられた生成収率における誤差は10%以下であった。

2.5 ミルキング装置

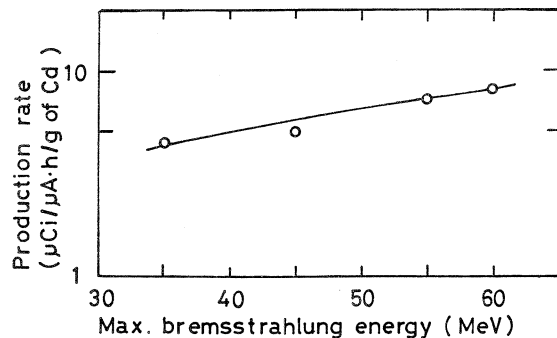
照射酸化カドミウムを濃ヨウ化水素酸 1 ml に溶かし蒸発乾固する。残渣を5%ヨウ化水素酸 3 ml に溶かし、R-C1型Dowex 1×8 (50-100メッシュ)陰イオン交換樹脂柱(直径1cm, 長さ20cm)に通し、ついでpH1に調節した生理食塩水または0.1規定塩酸溶液で洗滌する。これによって操作中一部遊離した I_2 は樹脂柱上部に、 CdI_4^{2-} はその下部に強く吸着保持され、 $^{115\text{m}}\text{In}$ のミルキング装置ができあがる。 $^{115\text{m}}\text{In}$ のミルキングはその壊変生成をまち、上記溶離液を流すことによって実施する。

§ 3. 結果および考察

3.1 ^{115}Cd の生成収率

天然組成カドミウムを照射した場合、半減期1時間以上の核種としては $^{113}\text{Ag} > ^{112}\text{Ag} > ^{115}\text{Cd} > ^{111}\text{Ag} > ^{115\text{m}}\text{Cd}$ 等がこの順序で生成されたのが、ガンマ線スペクトロメリーで観測された。これらのうち目的とする ^{115}Cd の最大制動放射線エネルギーにたいする生成収率は第1図に示した。図から明らかなように ^{115}Cd の生成収率は制動放射線エネルギーの増加とともに徐々に増加する傾向を示した。

この結果から天然組成カドミウム金属1グラムを本電子リニアックの通常出力、60 MeV - 150 μA の電子線で10時間照射すれば11.3 mCiの、また ^{115}Cd 製造用酸化カドミウム0.15グラムを同様条件で8時間照射すれば1.2 mCiの ^{115}Cd がえられることがわかった。



第1図 Production rate of ^{115}Cd as a function of the maximum bremsstrahlung energy.

3.2 $^{115\text{m}}\text{In}$ の生成

$^{115}\text{Cd} \rightarrow ^{115\text{m}}\text{In}$ 系においては約18時間後に過渡平衡に達する。娘核種 $^{115\text{m}}\text{In}$ が初め全くな

い場合、経過時間にたいするその生成率は、過渡平衡時の娘の量を1とすると第2図のように示される。図から少なくとも3.5時間以上放置して $^{115\text{m}}\text{In}$ をミルクングすれば過渡平衡時の50%以上の $^{115\text{m}}\text{In}$ を入手できることがわかる。

3.3 $^{115\text{m}}\text{In}$ のミルクング

3.3.1 CdCl_4^{2-} 吸着樹脂柱を用いたミルクング

^{115}Cd 製造用ターゲットを1規定塩酸に溶かし、 CdCl_4^{2-} として本実

験と同じ樹脂柱に吸着させた場合、0.1規定塩酸溶離液全200mlで親核種 ^{115}Cd が溶出し始めるのが観測された。それ故この方法は $^{115\text{m}}\text{In}$ の連続ミルクングには不適であることがわかった。

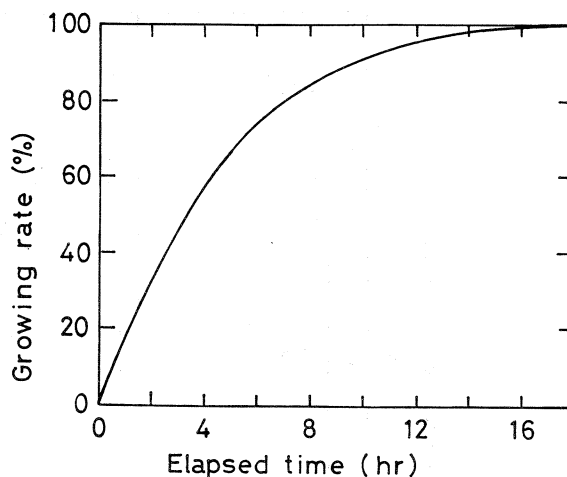
3.3.2 CdI_4^{2-} 吸着樹脂柱を用いたミルクング

インジウムはpH 3.9で水酸化物を形成するため、溶離液として生理食塩水を用いても $^{115\text{m}}\text{In}$ は全く溶出されてこない。pH 1に調節した生理食塩水を溶離液とした場合、流速毎分1mlでの $^{115\text{m}}\text{In}$ の溶出曲線を第3図に示した。この場合、各ミルクングは3~6時間おきに60mlの溶離液を用いて実施した。 $^{115\text{m}}\text{In}$ のテイリングはカドミウムターゲット量が多いため、かなり幅広い吸着バンドが形成されたためと、溶離中つぎつぎと $^{115\text{m}}\text{In}$ が形成されてきたためである。またRun 6とRun 14の溶出ピークのシフトは CdI_4^{2-} 吸着バンドが徐々に樹脂柱下方に移動したためである。しかし溶離液量900mlにおよぶRun 15においても親核種 ^{115}Cd と副生成核種 ^{113}Ag , ^{112}Ag , ^{111}Ag の溶出は全く認められなかった。例としてRun 15における分取フラクションのガンマ線スペクトルを第4図に示した。これに反して0.1規定塩酸溶離液の場合には溶離液量730mlで ^{115}Cd の溶出が認められるにいたった。

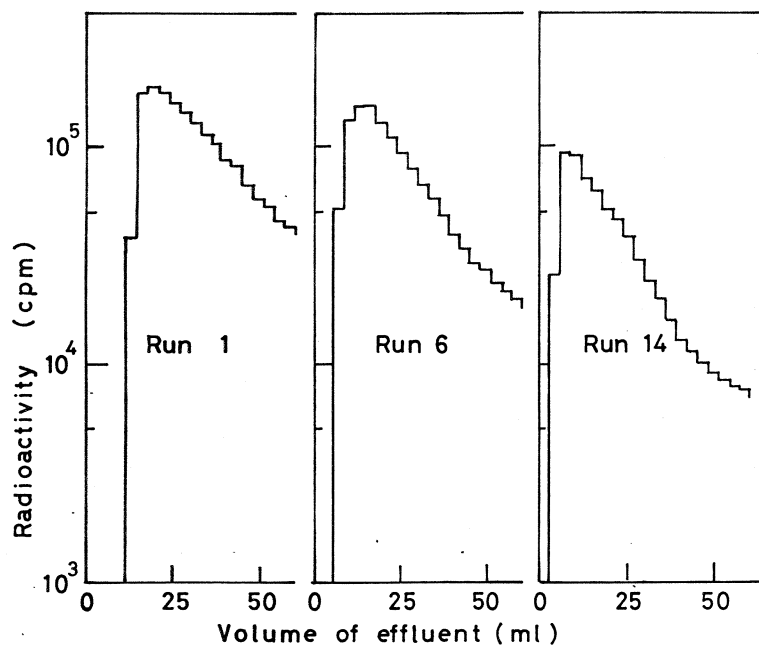
第3図から明らかなように溶離曲線のピーク附近20mlを採取すれば全生成 $^{115\text{m}}\text{In}$ の約60~70%を回収できることがわかった。

3.3.3 ヨウ素の挙動

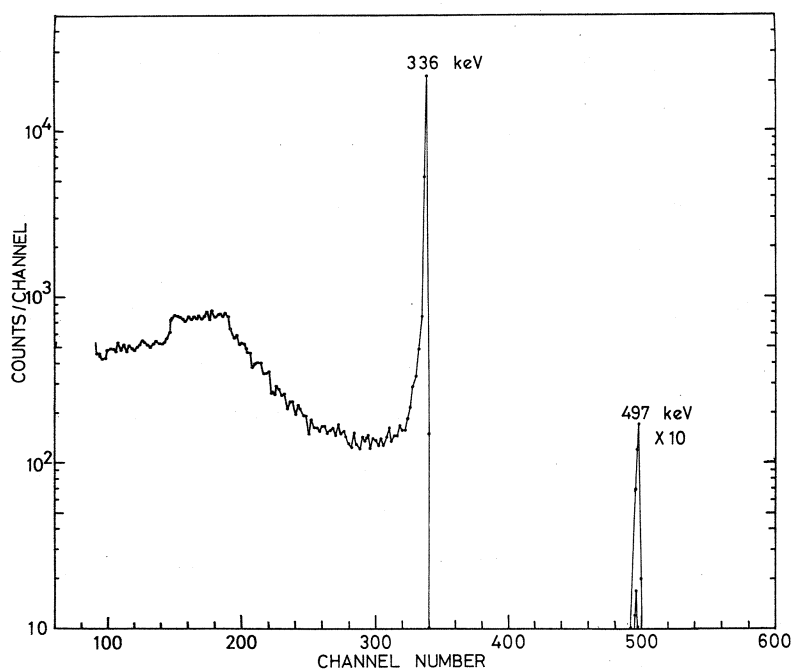
本法では CdI_4^{2-} を樹脂柱に吸着させることによって $^{115\text{m}}\text{In}$ の連続ミルクングが実施できる



第2図 Growing rate of $^{115\text{m}}\text{In}$ vs. the value in the transient equilibrium.



第3图 Elution chromatograms of carrier-free ^{115m}In from the Dowex 1×8 resin column with isotonic saline solution adjusted to pH 1.



第4图 Gamma-ray spectrum of ^{115m}In fraction eluted in Run 15.

ことを示したが、この場合添加ヨウ素の挙動ははなはだ興味もたれる。そこでヨウ化水素酸に $^{131}\text{I}^-$ をトレーサーとして加え、それを追跡することを試みた。

その結果、 ^{131}I は樹脂柱に強く吸着され、いずれの溶離液によっても ^{115}Cd の溶出が始まる以前にそれが溶出してくることは全く認められなかった。

参 考 文 献

- 1) C.M. Lederer and V.S. Shirley: *Table of Isotopes* (John Wiley & Sons Inc., New York, 1978) 7th ed.
- 2) M. Y. Mirza : *Radiochim. Acta* **14** (1970) 63.
- 3) N. P. Rudenko : *Zh. neorg. Kim.* **1** (1956) 1091.
- 4) T. B. Pierce and P. F. Peck : *J. Chromatogr.* **6** (1961) 248.
- 5) J. Torko : *Atompraxis* **12** (1966) 97.
- 6) I. Pal, J. Torko, J. Gacs, R. G. Klityina and G. Farkas : *Atomtechn. Tajek* **9** (1966) 515.
- 7) M. Y. Mirza : *Talanta* **15** (1968) 137.

生物試料の光量子放射化分析用照射台の試作

理学部化学

榎本和義・鈴木信男

§ 1. 序

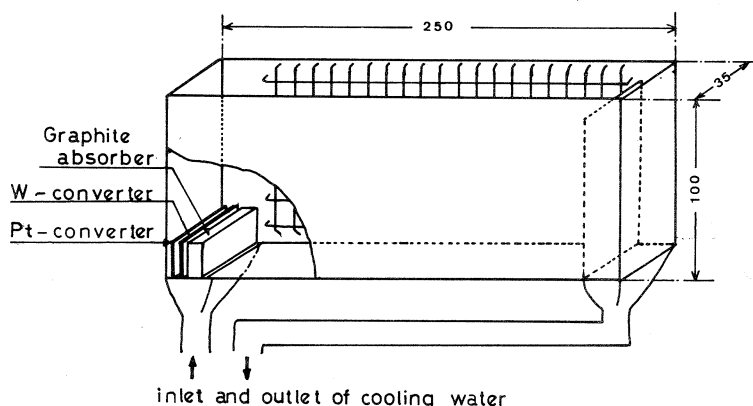
光量子放射化分析法はこれまで生物・地球化学的試料の多元素分析に利用され、すでに多くの成果をあげてきている。放射化には、高エネルギー加速電子を白金やタングステンのような原子番号が大きく高い融点をもつ金属板に照射し、発生する制動放射が利用されてきた。その際、金属板（通常コンバーターと呼ばれる）を透過する未転換電子により、試料内に大量の熱が発生するため水冷下で照射する方法がとられる。しかしながら、生物試料の放射化ではそれでも損傷・分解が生じるため照射位置をコンバーターから遠ざけるとともに照射時間を短くする必要があった。従来、未転換電子の除去には電磁石が利用されているが、試料を電磁石の後方に置くために照射線量は著しく低下し十分な感度が得られない。

そこで本研究では、コンバーターの厚みを増加させるとともにコンバーター直後に電子線除去のためにグラファイトを置くことにより、制動放射線量の高い位置で長時間の照射が可能となるようにした。試作した照射台について、放射化分析のための基礎的データが必要である。そこで、コンバーターの厚さによる制動放射線量および光中性子の空間分布の相違を調べ、また放射化分析で問題となる典型的な妨害核反応の程度についても考察を加えた。

§ 2. 実 験

2.1 照射台

試作した照射台を第1図に示した。コンバーターとしては厚さ2 mm および3 mm の金属板が使用できるようにした。また、コンバーター直後に厚さ10 mm のグラファイトブロックが挿入できるようにし、ここで主に未転換電子の除去を考えた。



第1図 Sample holder for bremsstrahlung irradiation.

2.2 照 射

照射はI系のRI用コースを利用し、電子加速エネルギーは30 MeV、電流値は約150 μ Aで行なった。コンバーターの厚さは2 mm および5 mm とし、グラファイト後方0, 3, 7, 12 および19 cm の位置とコンバーター垂直方向について制動放射線量と中性子線量を調べた。その際、モニターには金箔(60 mm \times 5 mm)を使用し1時間照射した。照射後、一辺5 mm の正方形に分割しその切片を秤量したうえで測定試料とした。制動放射線量は $^{197}\text{Au}(r, n)$ ^{196}Au 反応を利用し、また中性子線量は $^{197}\text{Au}(n, r)^{198}\text{Au}$ 反応を利用しその生成放射能によりモニターした。速中性子については $^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$ および $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ 反応を利用してモニターした。

放射化分析で妨害となる主な競合反応については高純度の酸化物または塩の一定量をアルミニウム箔で包装し、線量モニターである銅箔とともに照射し、妨害の程度を算出した。

2.3 測 定

測定は核理研第三実験室設置のCanberra製70 cm³ Ge(Li)半導体検出器および東芝製USC-1マルチチャンネルアナライザーを使用した。

§ 3. 結果および考察

3.1 コンバーターの厚さ

コンバーターには厚さ2 mmの白金板と厚さ3 mmのタングステン板を使用した。実験に使用した白金・タングステンおよびグラファイトの厚さと電子のエネルギー減衰の程度を第1表に示した。厚さは $\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$ 単位およびradiation length(電子エネルギーが入射エネルギー

第1表 Converter and Graphite thickness and energy attenuation factor.

Material	Thickness		Energy attenuation factor
	$1/\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$	$1/\text{radiation length}$	
Platinum	4.3	0.71	0.49
Tungsten	5.8	0.97	0.38
Graphite	2.3	0.052	0.95

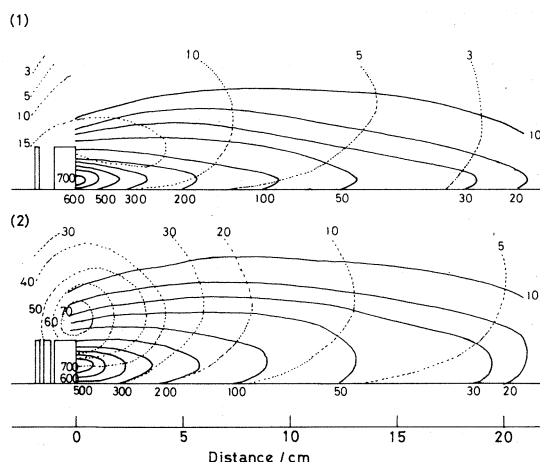
の $1/e$ になるに必要な厚みを 1 radiation length とし、電子エネルギーはその物質中で指数関数的に減少するものとした^{1,2)}で表わした。

Engelmann³⁾によれば、 (r, n) 反応を利用する放射化のための白金コンバーターの最適厚さは 30 MeV で $3 \pm 0.5 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2}$ 、45 MeV で $4.5 \pm 0.5 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2}$ と求められている。核理研において従来より利用されている白金コンバーターの厚さは $4.3 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2}$ であり、I 系加速のエネルギー領域では最適の厚さといえる。しかしながら、第1表からわかるように、電子は入射エネルギーの $1/2$ のエネルギーで透過する。これら未転換電子は試料中で大量の熱を発生させることになる。そこでさらに厚さ 3 mm のタングステン板を重ねるとエネルギーは約 $1/6$ に減衰する。このタングステン板を透過した電子の飛程は Katz と Penfold⁴⁾ の与えた式により $2.85 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2}$ と求められ、厚さ 10 mm のグラファイトではほとんどの電子が停止すると予想される。またその際、制動輻射は 10 ~ 30 MeV のエネルギー領域で 4 ~ 3%⁵⁾ 吸収されるだけである。以上のことから、生物試料のような未転換電子による損傷をうけやすい試料の照射を行なううえで本実験に使用したコンバーターおよびグラファイトの組み合わせは最適のものと考えられる。

3.2 制動輻射および熱中性子線量の空間分布

第2図にコンバーターの厚さ 2 mm (白金板のみ) および 5 mm のときの制動輻射線量と熱中性子線量の空間分布について、金箔を使って得られた結果を示した。それぞれ、 $^{197}\text{Au}(r, n)^{196}\text{Au}$ 反応で生成した ^{196}Au の 354 keV および $^{197}\text{Au}(n, r)^{198}\text{Au}$ 反応で生成した ^{198}Au の 412 keV r 線の計数率 ($\text{cps} \cdot \text{mg}^{-1}$) で表わした。

コンバーターの厚さ 2 mm および 5 mm で制動輻射線量は大きな変化はみとめられないが、熱中性子線量は 5 mm の方が大きく、とくにコンバーター近傍において著しい差がみられた。制動輻射はこれまで知られているように電子ビームの入射方向において最大強度を示している



第2図 Distribution of the intensity of bremsstrahlung and photoneutron in sample holder (converter thickness : (1) 2 mm, (2) 5 mm).

$\left[\begin{array}{l} \text{straight line : } ^{196}\text{Au activity / cps} \cdot \text{mg}^{-1} \\ \text{dotted line : } ^{198}\text{Au activity / cps} \cdot \text{mg}^{-1} \end{array} \right]$

が、熱中性子の方はビーム軸上方2～3 cmの位置で最大強度を示した。

3.2.1 制動輻射線量

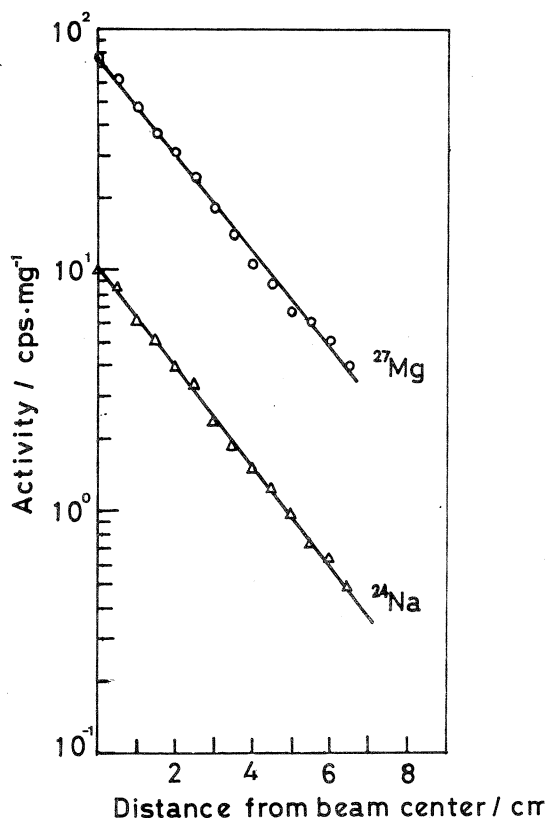
第2表にコンバーターの厚さが2 mmと5 mmの場合それぞれについて、グラファイト直後および、その後方3, 7, 12 cmでのビームのひろがりを半値幅で示した。コンバーターの厚さが厚くなるとビームの広がりは大きくなっていることがわかる。放射化分析では試料の均一照射が望ましく、試料の通常の形状として直径13 mm, 厚さ5 mmのものが多いことから考えるとビームの広がりがあった方が良く、コンバーターの厚さとしては5 mmの方が望ましいといえる。制動輻射の強度はいずれの場合においてもグラファイト後方2 cmで1/2, 10 cmで1/10になりコンバーターの厚さには依存していないように思われる。

第2表 FWHM of 30 MeV-
bremsstrahlung beam intensity / mm.

Converter thickness / mm	Distance from graphite absorber / cm			
	0	3	7	12
2	12	17	23	29
5	16	19	28	35

3.2.2 光中性子の空間分布

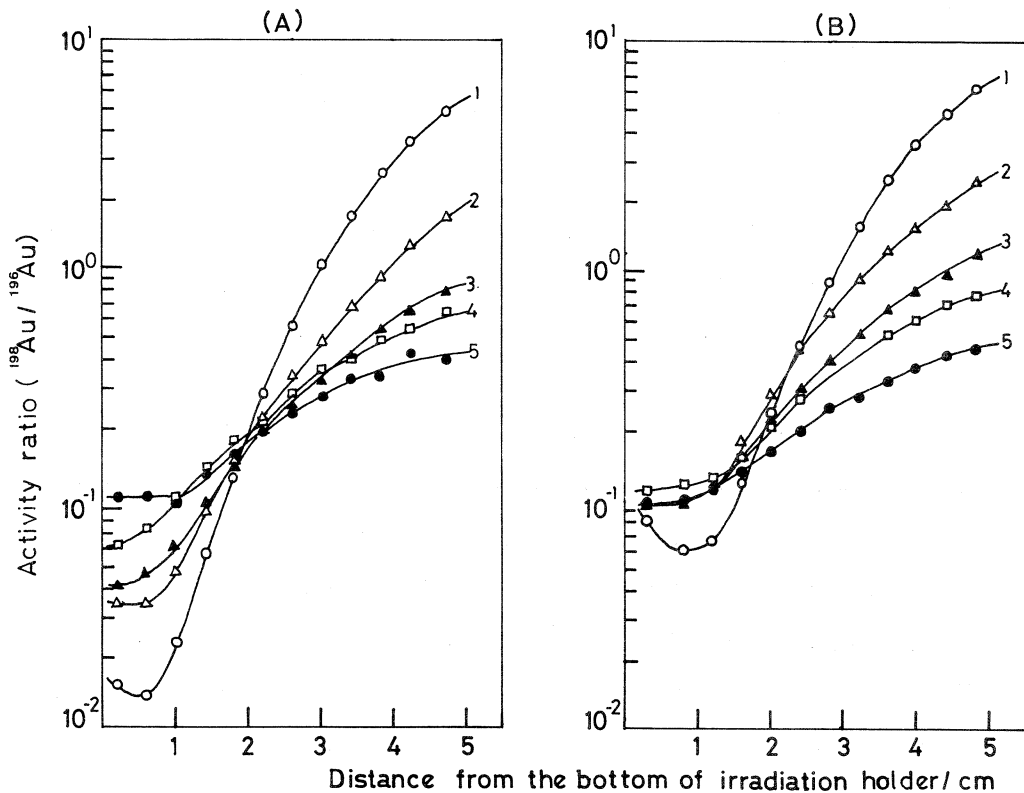
熱中性子については第2図に示したとおりであるが、制動放射線量の変化とは著しく異なっている。そこで、速中性子のグラファイト直後での垂直分布について調べた結果を第3図に示した。図は $^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$ および $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ 反応で生成した ^{27}Mg と ^{24}Na の r 線強度($\text{cps}\cdot\text{mg}^{-1}$)をプロットしたものである。(n, p)反応は $E_{\text{th}} = 1.95 \text{ MeV}$, $E_{\text{eff}} \geq 4 \text{ MeV}$, (n, α)反応は $E_{\text{th}} = 3.26 \text{ MeV}$, $E_{\text{eff}} \geq 7 \text{ MeV}$ であり、いずれも高速中性子の空間分布を知るうえで有効であると思われる。 ^{27}Mg , ^{24}Na とも全く同じ指数関数的減少を示しており、熱中性子の分布とは全く異なっている。以上のことから、コンバーター内で光核反応により発生する光中性子は垂直方向に異方性⁶⁾をもって放出され、照射台の中の冷却水により徐々に減速し熱運動化していくために、熱中性子はコンバーター上方2~3 cmのところで最大の強度を示すものと考えられる。



第3図 Vertical distribution of fast neutron behind graphite absorber.

3.2.3 中性子反応と光核反応の強度比

グラファイト後方0, 3, 7, 12 および 19 cmの位置での ^{198}Au と ^{196}Au の生成放射能の強度比を求め、ビーム軸垂直方向の変化を示したのが第4図である。放射化分析の場合、試料の大きさから考えて垂直方向15mmまでの変化が重要であるが、コンバーターの厚さが2 mmでは垂直方向15 mmまでの強度化の変化は大きく、グラファイトから遠くなるにつれて相対的に中性子反応の程度が大きくなっていることを示している。しかし、厚さ5 mmではグラファイト直後をのぞいてどの位置においても大きな変化はなかった。これらのことから、放射化分析で熱中性子反応が妨害となるような場合には、2 mmのコンバーターにくらべて5 mmの方が



第4図 Vertical variation of the activity ratio of ^{198}Au to ^{196}Au at the position of (1) 0, (2) 3, (3) 7, (4) 12, (5) 19 cm from graphite absorber. (converter thickness : (A) 2 mm, (B) 5 mm)

妨害の程度が位置により変化せず、妨害の算定は比較的容易であるといえる。しかしながら、中性子線量は 5 mm の方が強く妨害の程度は大きくなるため、今後中性子の吸収剤の利用などの工夫が必要と思われる。

3.3 妨害核反応

放射化分析では、定量目的元素の近傍元素から定量に利用する核種と同一の核種が生成し妨害となることがある。そこで、光量子放射化でしばしば問題となるいくつかの妨害反応について、その妨害の程度を重量比⁷⁾によって示したのが第3表である。重量比とは、定量目的元素から生じる放射性核種の比放射能に対し、それと同一強度の放射能を与えるため、妨害元素は何倍量存在しなければならないかを示しており、重量比が小さいほど妨害の程度は大きいことを意味している。一般的傾向として、妨害の程度は照射位置により変化しコンバーターから距離が遠くなるにつれて大きくなっている。光中性子による (n, γ) 反応が妨害となる場合、グラファイト直後での重量比が大きく、6 cm および 14 cm の位置では大きな変化はみられな

第3表 Weight ratio of interference reaction (converter thickness : 5 mm).

Interference reaction vs Main reaction	Distance from graphite absorber / cm		
	0	6	14
$^{55}\text{Mn}(n, r) ^{56}\text{Mn} / ^{57}\text{Fe}(r, p) ^{56}\text{Mn}$	0.29	0.20	0.18
$^{56}\text{Fe}(r, pn) ^{54}\text{Mn} / ^{55}\text{Mn}(r, n) ^{54}\text{Mn}$	92	71	60
$^{27}\text{Al}(n, \alpha) ^{24}\text{Na} / ^{25}\text{Mn}(r, p) ^{24}\text{Na}$	204	185	165
$^{23}\text{Na}(n, r) ^{24}\text{Na} / ^{25}\text{Mg}(r, p) ^{24}\text{Na}$	29	19	17
$^{24}\text{Mg}(r, pn) ^{22}\text{Na} / ^{23}\text{Na}(r, n) ^{22}\text{Na}$	125	—	—

った。このことは、第4図の結果と同じ傾向を示している。また、高速中性子による (n, α) 反応や、 (r, pn) 反応による妨害の程度はどちらも同じ傾向を示した。光核反応による妨害の程度が照射位置により変化するのは (r, pn) 反応が生じるエネルギー領域にくらべ、 (r, n) 反応が起こりやすい巨大共鳴領域の方が、照射試料などでより強く吸収されるために、コンバーターから遠くなるにつれて、 (r, pn) 反応の生成量が相対的に増加するものと考えられる。

§ 4. 結 論

本研究では、生物試料用の照射台を試作し制動輻射および光中性子の空間分布について考察を加えた。結論として、コンバーターの厚さを5 mmとしたほうが試料のより均一な放射化が可能であり、光中性子による妨害の照射位置による変化も小さいことがわかった。熱中性子の空間分布は本研究によりはじめてあきらかになったが、コンバーター上方2~3 cmで最も強く、制動輻射の分布とは全く異なっていることがわかった。

妨害核反応の程度は、照射位置により変化するが、中性子反応のみならず (r, pn) 反応のような光核反応の場合でも同様の傾向がみられた。このことは、制動輻射スペクトルが、試料を透過していくあいだに変化し、その吸収の程度はより低エネルギー領域において大きいということを示している。

コンバーターの厚さを5 mmとして、グラファイト後方1 cmで植物試料を1時間照射した結果、試料の形状に全く変化はみられなかった。従来の照射では、このようなコンバーターから近距離では植物試料は分解してしまったことから考えて、本研究で試作した照射台は生物試

料のような熱に弱い試料や、熱により溶解・揮発するような物質の放射化に大いに役立つことが期待される。

最後に、照射台の交換には放射線被曝を伴うため適当な冷却期間が必要であるが、現在 RI グループの共同利用も昼夜運転のため 2 グループが昼夜連続して行なうことが多く照射台の交換が行ないにくくなってきている。善処を御願ひする次第である。また、本研究は核理研共同利用費の一部を利用させていただいたことを申し添えておく。

本研究にあたり終始御世話いただいた八木益男先生・近藤健次郎先生はじめマシニンググループの方々に感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) A. Berthelot : *Radiations and Matter* (Leonard Hill, London, 1958).
- 2) M. H. MacGregor : *Nucleonics* **17** (1959) 104.
- 3) C. Engelmann : *Advances in Activation Analysis* (Academic Press, London 1972) Vol. 2, p.17.
- 4) L. Katz and A. S. Penfold : *Rev. Mod. Phys.* **24** (1952) 28.
- 5) C. M. Davison and R. D. Evance : *ibid.* **24** (1952) 79.
- 6) G. A. Price : *Phys. Rev.* **93** (1954) 1279.
- 7) K. Masumoto, T. Kato and N. Suzuki : *Nucl. Instrum. Methods* **157** (1979) 567.

生物体標準試料の多元素光量子放射化分析 (II)

理学部化学

鈴木信男・石井鉄雄・榎本和義

§ 1. 緒 言

生物科学の分野の急速な発展や、環境問題への関心の高まりとともに、生物やそれを取りまく環境中に存在する微量元素の分布・存在度を正確にかつ迅速に測定することが求められるようになってきた。それに伴い、新たに開発された分析法の精度・正確さ・感度および妨害といった基礎的問題の検討をするうえで、また、ルーチン分析での分析値のチェックや各分析機関で得られる分析値の相互比較をするうえで、様々な標準試料が必要とされるようになってきた。生物体標準試料の場合、組成が複雑でしかも変質しやすいなど問題点が多く、また組織によって構成成分が異なることも多く、標準試料としては分析対象とできるだけ組成の近い物質を用いることが望ましい。このため、米国NBS¹⁾や我が国の国立公害研究所²⁾をはじめとする多くの機関によって、これまで数多くの生物体標準試料が調製され配布されてきた。標準試料となるためには、試料中に含まれる元素の含有量が正確に知られている必要があり、現在国内外の分析機関に送付され、元素濃度の公定作業がすすめられている。

本研究では、前報³⁾にひきつづき光量子放射化分析法により、新たに配布された各種生物体標準試料のうち、NBSのトマト・松・イーストおよび国産のホシザメ・リョウブについて多元素同時定量を行なった。

その際、新たな試みとして生物体試料分析のための比較標準試料にポリアクリルアミドゲルをマトリックスとする多元素合成試料を調製して用いた。

また、通常汎用される分析法では、試料の分解など処理を伴うことが多く、操作中での元素の損失や汚染がしばしば問題となる。そこで本研究では乾式灰化時の元素の損失を調べるために、リョウブ試料について本法を適用した。

§ 2. 実 験

2.1 試 料

分析試料は下記のものを選んだ。米国NBS配布の、SRM-1573 Tomato Leaves (トマトの葉)、SRM-1575 Pine Needles (松の葉)およびSRM-1559 Brewers Yeast

(イースト菌), また国産の Shark Powder II M. manazo (サメの筋肉), NIES No. 1 Pepper Bush (リョウブの葉)。

リョウブ以外の試料はオープン中で 85~90°C 24 時間乾燥後の重量を基準にとり, リョウブはシリカゲルデシケーター中で18日間乾燥した時点での重量を基準とした。

2.2 多元素合成標準試料

生物試料類似の比較標準試料調製には, アクリルアミドの多元素混合水溶液中での共重合反応を利用し, 生成したゲルを凍結乾燥する方法をとった。

各元素の標準溶液は, 高純度の金属・酸化物または塩の一定量を溶解し調製した。溶解に用いた酸はすべて市配超特級のものであり希釈には再蒸留水を用いた。アクリルアミドは, 70°Cで昇華精製した。その他の試薬は市配特級品を用いた。調製は既報⁴⁾にしたがった。

第1表に合成標準試料の元素組成を示した。

第1表 Elemental abundances of synthetic standard.

Concentration	Element
1 %	Ca, Na
0.5 %	Mg
2,000 ppm	Fe
700 ppm	Mn
500 ppm	Br, Pb, Zn
200 ppm	Ni, Rb, Zr
100 ppm	As, Co, I, Sb, Sr

2.3 照射

上述の試料および合成標準試料はそれぞれ約1g および0.5g を正確にはかりとり, 直径13mmのペレット状に加圧成型し, 試料の前後をアクリルアミド合成標準試料ではさんで石英管に封入し, 照射に供した。成型の難しかったホシザメ粉末試料およびリョウブの灰化試料については, 市配アルミニウム箔に包装し直径13mmのペレット状にした。

東北大学電子ライナックにおいて, 30 MeV 加速電子ビームを白金板で制動輻射に変換し白金板後方 10~20 cm の位置に試料を入れた石英管を固定して約3~4時間水冷下で照射した。

2.4 測定

照射後、試料はアルミニウム箔に包んで測定した。アルミニウム箔に包んで照射した試料はアルミ箔に起因する放射性を避けるため、再包装した。

本法で定量に利用した放射性核種を、それを生成する核反応、半減期および主な γ 線のエネルギーとともに第2表に示した。 γ 線の測定はGe(Li)半導体検出器をマルチチャンネルアナライザーに接続して行なった。以下に用いた機器の組み合わせを示す。

Canberra	70cm ³ Ge(Li)検出器	— 東芝USC-1	4k-PHA
Ortec	80cm ³ Ge(Li)検出器	— Canberra	8100 4k-PHA
Canberra	90cm ³ Ge(Li)検出器	— Canberra	8100 4k-PHA
PGT	50cm ³ Ge(Li)検出器	— NAIG	4k-PHA

試料測定の際には、試料の放射能強度の変化に合わせて、検出器と試料間の距離を30mmから2mmまで変化させて測定した。試料の厚みの異なるものについては、適当な厚さのセルロースペレットで挟むなどの方法により、各試料のジオメトリーを一定に保った。

2.5 示差熱天秤による測定

リョウブ試料の乾燥、灰化の際の重量変化吸発熱反応の有無を調べるため、示差熱天秤による測定を行なった。装置は理学電機製示差熱天秤高温型を使用した。昇温速度は1.25～10 K・min⁻¹の間で変化させ、最終到達温度を100°C、450°C、800°Cおよび900°Cとして測定した。

§ 3. 結果および考察

3.1 測定および定量

測定には、それぞれの核種について最もSN比の良い時期を選んで行なう必要がある。第2表に最適減衰時間を示した。半減期数日までの比較的短寿命の核種は1半減期、長寿命の核種は10日ないしそれ以上の減衰時間が必要であった。

第2表で示した定量に利用する核種と同一の核種が他の元素から異なる反応により生成し定量の際に妨害となることがある。第3表に本研究で問題となった妨害核反応について、定量目的元素とともに示した。本研究では加藤らにより報告されている同一核種を同量生成させるに必要な妨害元素と目的元素の重量比⁵⁾を用いて補正を行なった。また、FeおよびMnの定量に際しては、Mnのみを含む試料を調製し試料と同時に照射して、Mnのみから生成する⁵⁶Mnおよび⁵⁴Mnの比放射能を測定することにより、FeとMnの相互妨害の補正を行なった。

第2表 Nuclides and gamma-rays used for determination.

Element	Process	Product nuclide	Half - life	Gamma - ray used (Kev)	Suitable decay time
As	(r, n)	^{74}As	17.9 d	596	10-15 d
Ba	(r, n)	$^{133\text{m}}\text{Ba}$	38.9 h	276	2- 3 d
Br	($r, 2n$)	^{77}Br	57 h	239,521	2- 3 d
Ca	(r, p)	^{43}K	22.4 h	374,617	1- 2 d
	(r, n)	^{47}Ca	4.53 d	1,298	5-10 d
Co	(r, n)	^{58}Co	71.3 d	811	>15 d
Fe	(r, p)	^{56}Mn	2.576 h	847	2- 5 h
I	(r, n)	^{126}I	13 d	386	10-15 d
Mg	(r, p)	^{24}Na	15 h	1,368	1- 2 d
Mn	(r, n)	^{54}Mn	303 d	835	>15 d
Na	(r, n)	^{22}Na	2.60 d	1,275	>15 d
Ni	(r, n)	^{57}Ni	36.0 h	1,378	2- 3 d
Pb	(r, n)	^{203}Pb	52.1 h	279	2- 3 d
Rb	(r, n)	^{84}Rb	33.0 d	881	10-15 d
Sr	(r, n)	$^{87\text{m}}\text{Sr}$	2.83 h	388	2- 3 h
Zn	(r, p)	^{67}Cu	59 h	185	2- 3 d
	(r, n)	^{65}Zn	245 d	1,115	>15 d
Zr	(r, n)	^{89}Zr	78.4 h	910	3- 5 d

第3表 Pertinent interference reactions in photon activation analysis of biological materials.

Element to be determined	Interfering element	Interference reaction
Fe	Mn	$^{55}\text{Mn} (n, r) ^{56}\text{Mn}$
Mn	Fe	$^{56}\text{Fe} (r, pn) ^{54}\text{Mn}$
Mg	Al	$^{27}\text{Al} (n, \alpha) ^{24}\text{Na}$
Mg	Na	$^{23}\text{Na} (n, r) ^{24}\text{Na}$
Na	Al	$^{27}\text{Al} (r, \alpha n) ^{22}\text{Na}$
Na	Mg	$^{24}\text{Mg} (r, pn) ^{22}\text{Na}$

3.2 Tomato Leaves および Pine Needles の定量

第4表に Tomato Leaves (SRM-1573) および Pine Needles (SRM-1575) について3回の分析値の平均とその標準偏差を NBS の公定値・参考値とともに示した。

第4表 Multielement analysis of standard reference materials (I).

Element	Tomato Leaves		Pine Needles	
	This work	NBS	This work	NBS
As, ppm	(0.54)	0.27±0.05		0.21±0.04
Br, ppm	(30)	21.9±0.2	(9)	(9)
Ca, %	2.95 ± 0.03	3.00±0.03	0.415 ± 0.011	0.41 ± 0.02
Fe, ppm	700 ± 30	690 ± 25	490 ± 100	200 ± 10
Mg, %	0.687 ± 0.002	(0.7)	0.118 ± 0.003	
Mn, ppm	246 ± 5	238 ± 7	658 ± 46	675 ± 15
Na, ppm	680 ± 20	459 ± 46	43 ± 2	
Ni, ppm	(1.6)		2.5 ± 0.5	(3.5)
Pb, ppm			33 ± 3	
Rb, ppm	16.4 ± 0.1		11.5 ± 0.5	11.7 ± 0.1
Sr, ppm	45.5 ± 0.7	44.9 ± 0.3	5.0 ± 0.1	4.8 ± 0.2
Zn, ppm	58 ± 5	62 ± 6	66 ± 13	
Zr, ppm	12 ± 3		1.0 ± 0.1	

3.1.1 Tomato Leaves

As, Br, Ca, Fe, Mg, Mn, Na, Ni, Rb, Sr, Zn および Zr の 11 元素が本法により定量可能であった。Ca, Fe, Mg, Mn, Na, Rb および Sr の 7 元素で相対標準偏差 5% 以内の精度の良い定量結果が得られた。Ca, Fe, Mn, Rb, Sr および Zn では公定値とも良い一致を示した。As, Br および Ni では光電ピークの SN 比が悪く計数に伴う統計誤差が大きかったため参考値として括弧付きで示した。Fe および Mn は比較試料中の Fe と Mn の濃度比をトマトのそれと類似させたことおよびこの濃度比では相互妨害の程度が比較的小さかったことのために良い定量結果を得ることができた。

3.1.2 Pine Needles

Ca, Fe, Mg, Mn, Na, Ni, Pb, Rb, Sr, Zn および Zr の 11 元素の定量が可能であ

った。Ca, Mg, Na, Rb および Sr の 5 元素で相対標準偏差 5 % 以内, また Mn, Pb および Zr で 10 % 以内の精度の良い定量結果が得られた。Fe の定量の場合, 本試料では Mn が Fe の 3 倍以上存在し, Fe の定量に利用する ^{56}Mn のうち 50 % 以上が Mn の (n, r) 反応から生成したものであると見積られ, その妨害を補正しても著しく精度が悪くなり公定値との一致も良くなかった。Pb は本法により定量できる特徴的な元素のひとつであるが本結果により数 10 ppm 存在すれば精度の良い定量が可能であることがわかった。有害汚染性元素のひとつである Pb の定量は汚染の指標として環境試料の分析において重要であり, 本法はそのような試料の分析にも十分役立つと思われる。

3.3 Shark Powder II M. manazo および Brewers Yeast (SRM-1569) の分析

第 5 表に国産の Shark Powder II M. manazo (サメの筋肉組織) および SRM-1569 Brewers Yeast (コウボ菌) について, 4 回の分析値の平均と標準偏差を示した。それぞれ, 原子吸光光度法および中性子放射化分析により得られた結果を付した。

第 5 表 Multielement analysis of standard reference materials (II).

Element	Shark Powder II		Brewers Yeast	
	This work (ppm)	AAS* (ppm)	This work (ppm)	NAA** (ppm)
As	37.4 ± 1.0	31.3		
Br	33 ± 4			0.65 ± 0.03
Ca	442 ± 4	373	2460 ± 30	
Fe			670 ± 20	707 ± 16
I	(2.1)			
Mg	1250 ± 10	1080	1890 ± 30	1780 ± 100
Mn	4.5 ± 1.8		21 ± 2	7.0 ± 0.8
Na	4120 ± 100	5060	619 ± 20	510 ± 30
Ni			5.9 ± 0.3	
Rb	5.5 ± 1.0		7.2 ± 0.4	16 ± 1
Sr			9.3 ± 0.4	
Zn	18 ± 2		57 ± 5	70 ± 2
Zr			5.0 ± 0.6	

* Atomic absorption spectrometry, A. Yasui and S. Toda (1978).

** Neutron activation analysis. C. Bergerioux and L. Žikovský (1978).

3.3.1 Shark Powder II

これは、前報³⁾にひきつづき調製されたものであり、まだ公定値が得られていない試料である。As, Br, Ca, I, Mg, Mn, Na, Rb および Zn の定量が可能であり、As, Ca, Mg および Na は相対標準偏差 5% 以内、Br, Zn および I で 15% 以内であった。本試料は、本研究中で唯一一つの動物試料であり、とくに筋肉組織であるために他の試料にくらべてかなり極だった特徴を有している。まず、Fe, Ni, Sr および Zr といった金属元素は検出できず、Mn の含有量も極端に少ない。また、Ca や Mg も比較的少なかった。これに対して非常に高濃度の As が検出された。以上の特徴は Shark Powder I (Squalus mitsukurii) の場合にもみられ³⁾、サメの魚肉中の元素組成が類似したものであることを示している。

3.3.2 Brewers Yeast

Ca, Fe, Mg など 10 元素の定量が可能であった。Ca, Fe, Mg, Na および Sr の 5 元素で相対標準偏差は 5% 以内であり、その他の Zr を除く 4 元素では 10% 以内であった。本試料は Cr のみについて公定値が与えられているだけであり、ほとんど文献値もみられない。Bergeriox, Žikovský⁶⁾による中性子放射化分析の結果との比較では、Mn および Rb の一致は良くなく、他の元素はほぼ一致していた。

3.4 NIES No.1 Pepperbush

リョウブは多年性の常緑低木で、重金属を濃縮する性質のあることが知られている⁷⁾。今回のリョウブ試料は国立公害研究所によって栃木県足尾地域の山地斜面の自主林から採取されたものであり、健康な葉だけを洗浄・乾燥した後粉砕し、粒度 80 メッシュ以下のものを十分混合して調製されたもので、国産第 1 号の環境標準試料として認められたものである。

そこで本研究では、このリョウブ試料の非破壊分析とあわせて、分析法の一般化のために不可欠な試料の乾燥条件・灰化条件をも検討した。

3.4.1 乾燥条件

シリカゲルデシケーターおよび電気オープンによる 85°C 乾燥での減量を第 6 表に示した。また、第 1 図に 85°C 乾燥での減量曲線を示した。シリカゲルデシケーターによる乾燥では乾燥開始から 18 日後でも依然としてゆるやかな重量の減少があり恒量は得られなかった。85°C 乾燥では、乾燥開始から約 20 時間後には約 10% の減量となり、ほぼ恒量となった。また 105°C 乾燥では、減量が 10% を越えてもひきつづき減量が認められ、環境試料の乾燥条件として一般的な 105~110°C 乾燥は本試料のような植物試料の乾燥には適さないといえる。他の分析機関との条件統一のため、1 l のシリカゲルデシケーター中で 10 日以上乾燥した状態を重量の基準

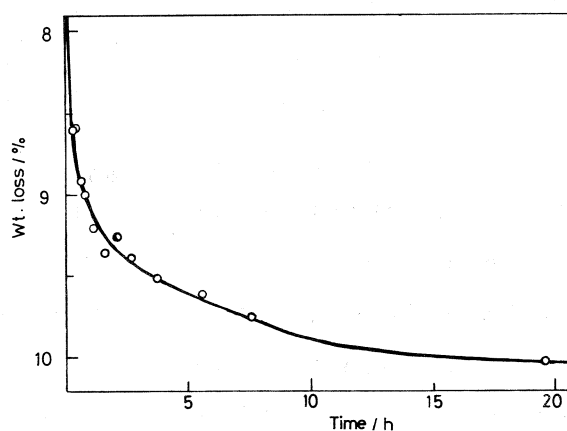
第6表 Weight losses of Pepperbush.

(1) Drying at 85°C			
Time (h)	1.1	7.5	19.5
W t. loss (%)	9.20	9.75	10.08
(2) Drying in silica gel desiccator			
Time (d)	7	15	18
W t. loss (%)	6.09	7.16	7.34

にとつたが、乾燥法としては85°C乾燥のほうが迅速で一定の減量が得やすく適しているように思われる。

3.4.2 分析結果

第7表に4回の分析結果を、その平均値および標準偏差とともに示した。11元素の同時定量が可能であった。Ni および Zr の括弧付きの分析値は最適冷却時間で定量できなかったため参考値として示した。また、Ba については2回の定量を行なっ



第1図 Weight loss of Pepperbush Powder at 85°C.

第7表 Multielement analysis of NIES No. 1 Pepperbush.

Element	This Work (ppm)				Average	Certified value
As	2.5	2.2	1.9	2.2	2.2 ± 0.2	2.3 ± 0.3
Ba	-	-	150	180	170 ± 20	165 ± 10
Ca	14400	14500	14700	14100	14400 ± 300	13800 ± 700
Mg	3830	3750	3530	3640	3690 ± 130	4080 ± 200
Mn	1920	1920	2190	2080	2030 ± 130	2030 ± 170
Na	122	124	112	97	114 ± 12	106 ± 13
Ni	(6.7)	(6.5)	9.1	8.2	8.7 ± 0.5	8.7 ± 0.6
Rb	81.0	71.9	68.7	68.5	72.5 ± 5.9	75 ± 4
Sr	36.3	36.0	36.6	35.5	36.1 ± 0.5	36 ± 4
Zn	321	348	335	315	330 ± 15	340 ± 20
Zr	0.8	(0.7)	0.5	1.0	0.8 ± 0.3	

た。最近与えられた公定値とも非常に良い一致を示している。本試料では、Tomato や Pine にくらべ Mn, Rb, Sr および Zn が非常に高濃度で存在し、Ba や Co が検出されるなど著しい特徴を示した。

3.4.3 示差熱天秤による測定

示差熱天秤は昇温速度および到達温度を変えて種々行なったが、その一例として昇温速度 $4 \text{ K} \cdot \text{min}^{-1}$ 、到達温度 850°C の場合を第 2 図に示した。T が温度、GT が重量、DTA が吸発熱（上に凸が発熱、下に凸が吸熱）

を表している。急激な重量減少が、昇温開始直後 (100°C)、10～15 分 ($200 \sim 300^\circ\text{C}$) および 60～70 分後 ($750 \sim 850^\circ\text{C}$) の 3 ケ所でみられた。最初の段階は約 10% 程度の重量減少であり、しかも強い吸熱を伴っており、水分の蒸発に対応している。

次の大幅な重量減少では同時に発熱が見られ、試料の燃焼によるものと

考えられる。750～800°C 付近で観測されるやや急激な重量の減少は吸熱過程であり、揮発性成分の揮発や化学的状態の変化等が考えられる。この吸熱は 400°C や 500°C で昇温を停止し、その温度を一定に保った場合には観察されなかった。測定開始後 80 分程度で重量は一定となり、その後は減量は認められず、吸発熱もなかった。

450°C における灰化の場合は、昇温後 2 時間で恒量に達する事がわかった。

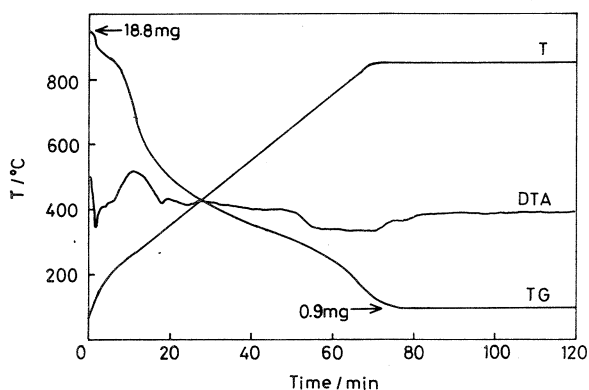
そこで、灰化温度を 450、800 および 900°C にして、電気炉中で 3 時間灰化を行ない、それぞれの灰化温度での元素の損失を調べた。

3.4.4 灰分の多元素分析

上記の灰化温度で灰化したリョウブ試料の分析値を乾燥試料中の濃度に換算し、灰化残量および非破壊分析の結果とともに第 8 表に示した。450°C および 800°C での灰化はそれぞれ 3 回行ないその平均値と標準偏差を、また 900°C では 1 回の分析結果を示した。

450°C で灰化した場合と 800 および 900°C で灰化した場合の灰分量の間には明らかな差がみとめられ、このことは示差熱天秤での測定結果を符合している。

非破壊分析の結果と各灰化温度における分析結果をくらべると、As および Zr は 450°C の



第 2 図 Thermogram of Pepperbush Powder.

灰化ですでに損失が見られる。また、ZnおよびRbでは800°C以上で明らかな損失が認められた。その他の元素では損失はないことがわかった。また、Coについても同様の実験を行ったところ、450°Cで22.4 ppm、800°Cで21.6 ppm、900°Cで23.7 ppmと損失は認められず、公定値 23 ± 3 ppmとも良い一致を示した。

第8表 Effect of ashing temperature on multielement analysis of Pepperbush.

Temp. (°C) Ash (%)	450 8.20±0.11	800 6.65±0.04	900 6.30	Room Temperature *
As, ppm	1.9 ± 0.2	1.6 ± 0.1		2.2 ± 0.2
Ba, ppm	150 ± 20	240 ± 20		160 ± 20
Ca, ppm	1420 ± 20	1430 ± 10	1470	1440 ± 30
Mg, ppm	3490 ± 170	3540 ± 120	3450	3690 ± 130
Mn, ppm	2080 ± 110	2070 ± 80	2180	2000 ± 100
Na, ppm	106 ± 3	126 ± 7		114 ± 12
Ni, ppm	8.2 ± 0.7	8.8 ± 1.2	7.8	8.0 ± 1.2
Rb, ppm	69 ± 6	59.7 ± 5.5	56.6	72.5 ± 5.9
Sr, ppm	35.5 ± 0.7	37.0 ± 0.6	35.3	36.1 ± 0.5
Zn, ppm	322 ± 18	84 ± 15		330 ± 15
Zr, ppm	(0.3)	(0.2)	(0.2)	0.8 ± 0.3

* Dried in silica gel desiccator for 18 days.

§ 4. 結 語

本研究では、生物試料類似の人工合成標準試料としてポリアクリルアミドゲルをマトリックスとする多元素比較標準試料を調製し、5種の生物体標準試料の光量子放射化分析に適用した。その結果、各試料について約10元素の同時定量が可能であることがわかった。本法が環境指標としての植物の分析、農業や食品などに関係する試料中の無機元素の分析においても役立てることが示された。

さらに本研究では、乾式灰化に伴う元素の損失を調べるために本法を適用し、本法が試料に処理を加えた場合における元素の損失や汚染などを多元素同時に調べる方法としても非常に有効であるということがわかった。

本研究にあたり、種々御世話いただきました、八木益男先生ならびに核理研マシングループ

の方々に心から感謝致します。

参 考 文 献

- 1) P. D. LaFleur : J. Radioanal. Chem. **19** (1974) 227.
- 2) K. Okamoto, Y. Yamamoto and K. Fuwa : **50** (1978) 1950.
- 3) 湯沢正幸, 榎本和義, 鈴木信男 : 核理研研究報告 **11** (1978) 242.
- 4) K. Masumoto and N. Suzuki : Radiochem. Radioanal. Lett. **42** (1980) 99.
- 5) T. Kato, K. Masumoto, N. Sato and N. Suzuki : J. Radioanal. Chem. **32** (1976) 51.
- 6) C. Bergerioux and L. Žikovský : *ibid.* **47** (1978) 173.
- 7) K. Okamoto, Y. Yamamoto and K. Fuwa : Agric. Biol. Chem. **42** (1978) 663.

Coal fly ash と Oil soot の光量子 および荷電粒子放射化分析

理学部化学

鈴木信男・小林邦輝・榎本和義

§ 1. 序 論

今日、石油や石炭といった化石燃料は、重要なエネルギー資源として大きな役割を果たしている。これら化石燃料中には、As, Br, Ca, Co, Cr, Fe, I, Na, Ni, Mg, Mn, Pb, Ti, Y および V といった数多くの微量元素が含まれており¹⁻³⁾ とくに金属成分は石油の精製過程や石炭の液化工程でも大きな影響を与えることが知られるようになり関心が寄せられるようになってきた。また、重油や石炭の燃焼の際には大量のすすや灰が生じ^{4,5)} これらに含まれる微量元素が大気汚染の原因となったり集塵器による捕集後の処理過程で問題となったりしている。とくに石炭中の灰分は数%から約10%もあり、発電所での灰分の処理は今後重要になってくると思われる。一方、重油中にはNi, V が他の金属成分にくらべて多く存在し、とくに重質油や重油灰の中に濃縮される傾向があり、資源として回収しようという試みも行なわれている。

以上のような点から、本研究では石炭の媒塵や重油のすすおよび重油について、光量子および荷電粒子放射化による非破壊多元素同時定量を行なった。光量子放射化ではTi, Ni, Zr, Y および Pb など、また陽子放射化ではFe, V および Zr などの中性子放射化では難しいとされている元素の定量が比較的容易であり、特徴ある多元素分析が可能であることが示された。

放射化や γ 線測定においては、自己遮蔽や自己吸収が問題となることがあるため、比較標準試料は分析試料に類似したマトリックス組成を有していることが望ましい。そのため、本研究では石炭の媒塵 (coal fly ash) に対してはテトラエチルシリケートの酸加水分解反応を利用したシリカ標準試料^{6,7)}を、またoil sootや重油に対してはアクリルアミドの共重合反応を利用したポリアクリルアミド標準試料⁸⁾を調製し、多元素比較標準試料として用いた。

§ 2. 実 験

2.1 試 料

燃焼生成物としては、NBS配布のcoal fly ash (SRM 1633) および国内の火力発電所

において集塵器により捕集された coal fly ash と heavy oil soot を試料に選んだ。また、重油は石油学会認定ニッケル分、バナジウム分重油標準試料について未処理のものおよび硫酸処理を施したものを試料とした。

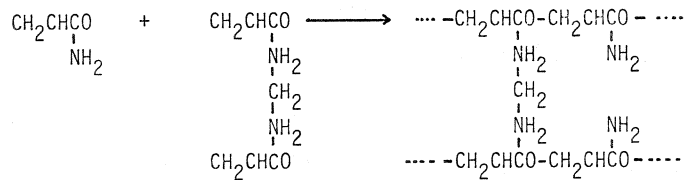
Coal fly ash および oil soot は電気オープン中で 85°C で一晚乾燥した。これらの試料はそれぞれ約 500 および 300 mg をとり、重量既知のアルミニウム箔で包み、直径 13 mm、厚さ 5 ~ 6 mm のディスク状に成型後精秤し照射試料とした。

未処理の重油試料については、あらかじめ約 1 N の硝酸で十分洗浄したうえ乾燥した重量既知のろ紙に重油を塗り重量を求めた。更に 75°C でオープン乾燥後、加圧器により直径 13 mm のディスク状に加圧成型したうえでアルミニウム箔に包装した。また、硫酸処理は次のように行なった。重量既知の重油に 1 g あたり約 1 ml の濃硫酸を加え、約 170°C の熱板上でかきまぜながら約 5 ~ 6 時間加熱後、バーナーで硫酸の白煙が生じなくなるまで加熱した。この操作により重量は最初の重量の約 42% に減少した。この硫酸灰は coal fly ash などと同様にディスク状に成型した。

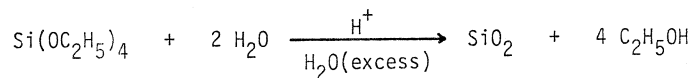
2.2 比較標準試料

多元素合成標準試料の調製には第 1 図の反応を利用した。アクリルアミドとメチレンビスアクリルアミドは過硫酸アンモニウムのような重合開始剤などの存在により水溶液中で共重合反

(1) Polyacrylamide gel



(2) Silica gel



第 1 図 Chemical reaction used for the preparation of standard reference material for multielement activation analysis.

応を起こしゲル化する。この際、水溶液中に存在する無機元素はゲルの網目の中にとりこまれるため、ゲルを凍結乾燥すれば目的元素を均一に含む粉末状のポリアクリルアミドを調製することができる。各元素の濃度は最初に加えた標準溶液の量および乾燥ゲルの重量から算出した。

また、テトラエチルシリケートは(2)で示したように酸性水溶液中で酸加水分解反応を起こし高純度のシリカゲルを生成する。同時に生成するエチルアルコールは電気オープン中で完全に気化させ、その後電気炉で180°Cで乾燥し、吸着水や酸を揮散させたうえで粉末状のシリカゲルとした。

合成標準試料の元素組成を第1表に示した。

第1表 Elemental abundances of synthetic standard reference materials.

Concentration	Element
5000 ppm	Na, Mg, Ca, Ti, Fe
1000 ppm	Mn, Zn, V
200 ppm	Sr, Rb, Br, Y
100 ppm	Cr, Co, Ni, Cu, As, Zr, Sb, I, Cs, Ba, Pb

2.3 照 射

2.2.1 光量子放射化

東北大学核理研の電子ライナックを利用し、30 MeV加速電子を厚さ2 mmの白金板で制動放射に変換し照射した。

試料および比較標準試料は交互に石英管につめ、封入した状態で水冷下4～6時間照射した。電流値は120～140 μA であった。

2.2.2 荷電粒子放射化

東北大学サイクロトロンRIセンターのAVFサイクロトロンで陽子エネルギー12 MeVで電流値はcoal fly ashでは4 μA 、oil sootでは1.5 μA で行なった。照射時間は各試料につき20分間であった。試料に照射された全電荷量はカレントインテグレーターにより測定した。

2.4 測 定

測定器はOrtec製Ge(Li)半導体検出器(効率16%, 分解能2.1 keV)とCanberra製8100型波高分析器およびPGT製Ge(Li)半導体検出器(効率16.9%, 分解能1.92 keV)とNorthan製TN 4000型波高分析器を用いた。

測定は r 線強度に応じて不感時間が10%以内になるように測定位置を調製して行なった。

§ 3. 結果と考察

3.1 光量子放射化分析

定量に用いた核反応及び残留核の性質を第2表に示した。同一核種から数本の γ 線が放出される場合には、最も感度の良い γ 線を定量に用いた。

照射後数時間でFe及びSr、数日後にはNi、Zr、Pbなど、数週間後には長寿命核種を生成するCr、Co、As、Yなどの定量が可能であった。

第2表 Nuclear data for photon activation analysis.

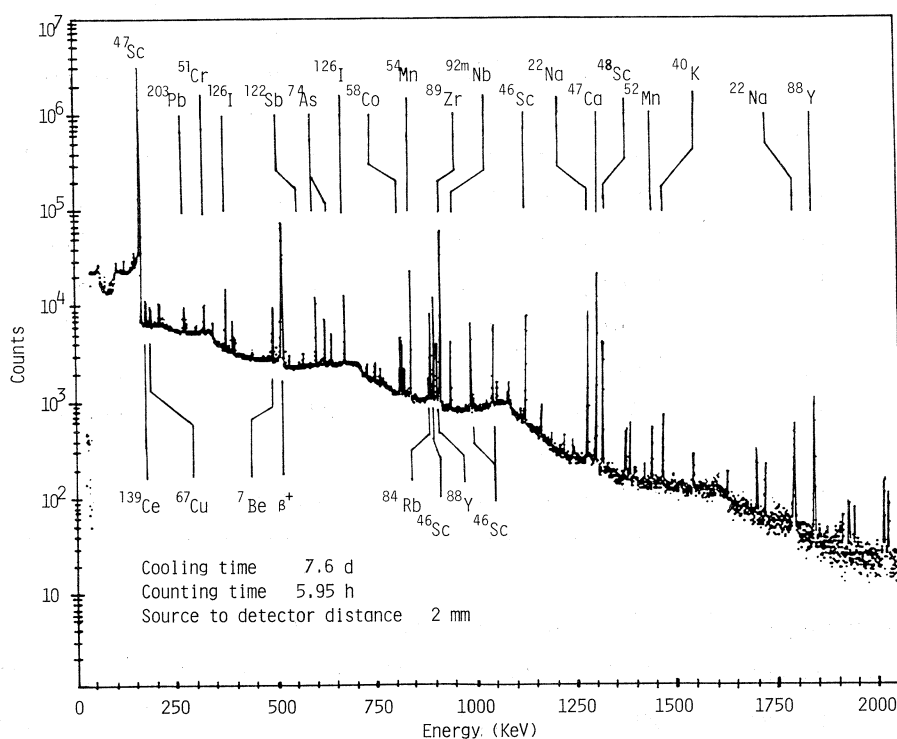
Element	Reaction	Half-life	γ -ray used (keV)
Fe	$^{57}\text{Fe}(\gamma, p)^{56}\text{Mn}$	2.576 h	847
Sr	$^{88}\text{Sr}(\gamma, n)^{87\text{m}}\text{Sr}$	2.83 h	388
Mg	$^{25}\text{Mg}(\gamma, p)^{24}\text{Na}$	15 h	1368
Ca	$^{44}\text{Ca}(\gamma, p)^{43}\text{K}$	22.4 h	374, 619
Ti	$^{49}\text{Ti}(\gamma, p)^{48}\text{Sc}$	43.92 h	983
Ni	$^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$	36 h	1377
Zn	$^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Cu}$	59 h	185
Zr	$^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr}$	78.4 h	910
Sb	$^{123}\text{Sb}(\gamma, n)^{122}\text{Sb}$	67.2 h	564
Ba	$^{136}\text{Ba}(\gamma, n)^{135\text{m}}\text{Ba}$	28.7 h	268
Pb	$^{204}\text{Pb}(\gamma, n)^{203}\text{Pb}$	52.1 h	279
Na	$^{23}\text{Na}(\gamma, n)^{22}\text{Na}$	2.6 y	1275
Cr	$^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$	27.8 d	320
Mn	$^{55}\text{Mn}(\gamma, n)^{54}\text{Mn}$	303 d	835
Co	$^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{58}\text{Co}$	71.3 d	811
As	$^{75}\text{As}(\gamma, n)^{74}\text{As}$	17.9 d	596
Rb	$^{85}\text{Rb}(\gamma, n)^{84}\text{Rb}$	33.0 d	881
Y	$^{89}\text{Y}(\gamma, n)^{88}\text{Y}$	108 d	898, 1836
I	$^{127}\text{I}(\gamma, n)^{126}\text{I}$	16.0 d	388
Cs	$^{133}\text{Cs}(\gamma, n)^{132}\text{Cs}$	6.5 d	667

Cs の定量には 667 keV の r 線を利用するが、これは ^{126}I の r 線と重なるため、 ^{126}I からの寄与を差引く必要がある。そのため純粋のヨウ化カリウムを同時照射し、 ^{126}I からの 388 keV と 667 keV の光電ピーク面積比をあらかじめ求めておき、 ^{126}I の寄与を補正した。

Fe の定量の際には、まず包装に使ったアルミ фольド中にも鉄が含まれていることがわかったため、その寄与を差引いた。更に試料中に共存する Mn から ^{56}Mn が生成するため、純鉄 фольドを同時照射して妨害反応の寄与を求め補正した。

Co の定量には ^{58}Co の 811 keV を利用するが、Ca から生成する ^{47}Ca の 808 keV の r 線と若干重なるため、グラフ的に分解してピーク面積を求めた。

次に第 2 図に国産の coal fly ash の照射後 7 日目の r 線スペクトルを示した。



第 2 図 r -ray spectrum of coal fly ash irradiated by 30 MeV bremsstrahlung.

これより長寿命核種の ^{74}As の 596 keV, ^{58}Co の 811 keV, ^{54}Mn の 835 keV, ^{84}Rb の 881 keV, ^{88}Y の 898 keV 及び ^{22}Na の 1275 keV などの定量が可能であることがわかる。

3.2 荷電粒子放射化分析

12 MeV の陽子を試料に照射して生じる主な核反応及び残留核の性質を第 3 表に示した。

第3表 Nuclear data for proton activation analysis.

Element	Reaction	Half - life	γ -ray used (keV)
S	$^{34}\text{S}(\text{p}, \text{n})^{34\text{m}}\text{Cl}$	32.0 m	145
Ca	$^{44}\text{Ca}(\text{p}, \text{n})^{44}\text{Sc}$	3.92 h	1156
Ni	$^{61}\text{Ni}(\text{p}, \text{n})^{61}\text{Cu}$	3.32 h	284
Ca	$^{44}\text{Ca}(\text{p}, \text{n})^{44\text{m}}\text{Sc}$	58.56 h	271
Zn	$^{67}\text{Zn}(\text{p}, \text{n})^{67}\text{Ga}$	78.3 h	185, 300
Sr	$^{87}\text{Sr}(\text{p}, \text{n})^{87\text{m}}\text{Y}$	14 h	381
Y	$^{89}\text{Y}(\text{p}, \text{n})^{89}\text{Zr}$	78.4 h	910
Zr	$^{90}\text{Zr}(\text{p}, \text{n})^{90}\text{Nb}$	14.6 h	141, 1130
Ti	$^{48}\text{Ti}(\text{p}, \text{n})^{48}\text{V}$	16.0 d	945, 983, 1312
V	$^{51}\text{V}(\text{p}, \text{n})^{51}\text{Cr}$	27.8 d	320
Cr	$^{52}\text{Cr}(\text{p}, \text{n})^{52}\text{Mn}$	5.7 d	744
Fe	$^{56}\text{Fe}(\text{p}, \text{n})^{56}\text{Co}$	77 d	847
Cu	$^{65}\text{Cu}(\text{p}, \text{n})^{65}\text{Zn}$	245 d	1115
As	$^{75}\text{As}(\text{p}, \text{n})^{75}\text{Se}$	120 d	264, 280
Sr	$^{88}\text{Sr}(\text{p}, \text{n})^{88}\text{Y}$	108 d	898, 1836
Zr	$^{92}\text{Zr}(\text{p}, \text{n})^{92\text{m}}\text{Nb}$	10.16 d	934
Pb	$^{206}\text{Pb}(\text{p}, \text{n})^{206}\text{Bi}$	6.24 d	803, 881

Caからは ^{44}Sc , $^{44\text{m}}\text{Sc}$, ^{48}Sc などが生成する。 ^{48}Sc ではTiからの ^{48}V が同一エネルギーの γ 線(983 keV, 1312 keV)を放出する。又1038 keVの γ 線は ^{56}Co の γ 線と重なるため、分岐率の低い175 keVを利用することになる。 ^{44}Sc は $^{44\text{m}}\text{Sc}$ からの流れ込みの寄与がある。最も利用し易い核種は $^{44\text{m}}\text{Sc}$ で、271 keV γ 線又は ^{44}Sc が壊変した後の1156 keV γ 線が利用できる。

Tiは ^{48}V の945 keV γ 線、又は ^{48}Sc が壊変するのを待って983 keV, 1312 keV γ 線で定量できる。

Znは $^{66}\text{Zn}(\text{p}, \text{n})^{66}\text{Ga}$ 反応も考えられるが、 γ 線の分岐率が小さく、1039 keV γ 線はFeからの ^{56}Co の1038 keV γ 線と重なるため適していない。本研究では $^{62}\text{Zn}(\text{p}, \text{n})^{62}\text{Ga}$

反応で生成する半減期 78.3 時間の ^{62}Ga を定量に利用した。

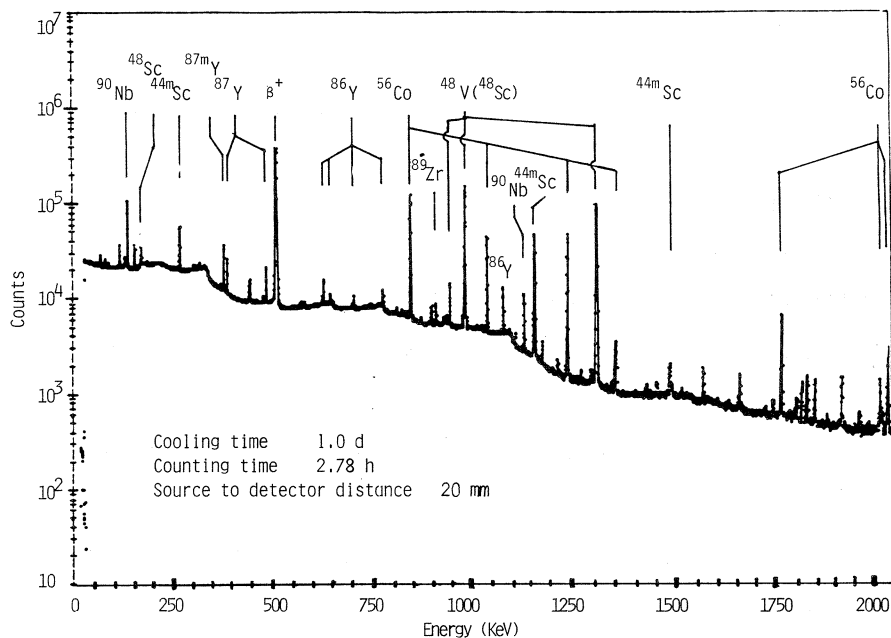
Sr は ^{86}Y の 1078 keV 又は $^{87\text{m}}\text{Y}$ の 381 keV が利用でき、 ^{87}Y では $^{87\text{m}}\text{Y}$ からの流れ込みの寄与のため定量は難しい。又 ^{88}Y は親核である ^{88}Sr の存在量が 82.56 % と大きいにもかかわらず、長寿命核種であるため感度は劣る。

Zr は ^{90}Nb からの 141 keV γ 線を定量に利用するのが最も感度が良いことがわかった。

照射後数時間では S からの $^{34\text{m}}\text{Cl}$ 、Ca からの ^{44}Sc 、Cr からの $^{52\text{m}}\text{Mn}$ 、Ni からの ^{60}Cu 、 ^{51}Cu などが検出できたが、 β^+ 壊変で生成する 511 keV 消滅 γ 線が著しく強く、いずれも定量には適していなかった。

照射後 1 日目の国産の coal fly ash の γ 線スペクトルを第 3 図に示す。

この時点では、Zr, Ca, Sr, Fe, Y などの定量が可能であった。



第 3 図 γ -ray spectrum of coal fly ash bombarded by 12-MeV proton.

Ti からの ^{48}V 、Fe からの ^{56}Co は非常に強く、又半減期も長いので、Ti、Fe を多く含むような試料では、微量成分に基く長寿命核種の光電ピークが隠され、As, Cu, Pb などの元素の定量はできなかった。

V は (p, n) 反応で生成する ^{51}Cr を利用して比較的容易に定量できた。

定量には平均断面積法^{9,10)}を採用した。

各試料中での陽子の飛程は、本学機器分析センターのC, H, N, S分析結果と他の文献値、シリカ標準試料では計算値をもとに約10種の主成分元素について阻止能¹¹⁾を求め、1 MeVごとの数値積分により飛程を算出した。

12 MeV陽子の各試料中での飛程を第4表に示す。

第4表 12 MeV proton range in target materials.

Target material	Range (mg · cm ⁻²)
Silica standard	178.0
NBS coal fly ash	223.8
Coal fly ash (Japan)	212.6
Oil soot	196.0
Heavy oil *	182.1

* H₂SO₄ ashing

3.3 定量結果

3.3.1 NBS coal fly ash

定量結果をNBSの公定値、文献値とともに第5表に示した。

二回の分析結果は加藤ら¹²⁾の行なった光量子放射化分析の結果と良く一致するとともに、NBSの公定値とも20%以内で比較的良好一致を示した。ほとんどの元素で他の文献値¹³⁻²⁰⁾の範囲に入っており、光量子放射化では18元素、陽子放射化では9元素の同時定量が可能であることがわかった。

Ti, Fe, Cr, Sr, Y及びZrは両分析法で良好一致を示しており、陽子放射化分析で採用した平均断面積法による定量計算の妥当性を裏づけているといえる。

陽子放射化ではVの定量が比較的容易であるとともに、Ti, Fe, Zrなどの感度が良く、光量子放射化と組合せることにより、約20元素の非破壊同時定量が可能となることが示された。Znについては両分析法とも公定値と一致せず、今後の検討が必要である。

第5表 Multielement analysis of NBS coal fly ash, SRM-1633.

(1) Photon activation.

Element	This work		Average	Literature value ¹³⁻²⁰⁾	T. Kato ¹²⁾	NBS value
Na, %	0.361	0.345	0.353	0.32 - 0.34	0.386	(0.307)
Mg, %	1.50	1.42	1.46	1.50 - 1.8	1.44	(1.98)
Ca, %	4.79	4.66	4.73	3.92 - 4.7	5.11	
Ti, %	0.652	0.643	0.648	0.61 - 0.74	0.77	
Fe, %	4.97	4.53	4.75	6.08 - 6.69	4.24	
Cr, ppm	180	153	167	113 - 180	142	131 ± 2
Co, ppm	43.5	43.5	43.5	35.4 - 46	42	(38)
Ni, ppm	97.5	95.6	96.6	69 - 109	96	98 ± 7
Zn, ppm	261	243	252	201 - 216		210 ± 20
As, ppm	55.1	55.0	55.1	54 - 67.6	65	61 ± 6
Rb, ppm	112	111	112	108.4 - 125	96	(112)
Sr, ppm	1270	1220	1250	1301 - 1700	1240	(1380)
Y, ppm	57.9	56.9	57.4		67	
Zr, ppm	311	292	302	301 - 500	298	
Sb, ppm	5.85	7.41	6.63	6.0 - 7.8	7.1	
Cs, ppm	4.97	4.53	4.75	0.63 - 9.4		
Ba, ppm	2270	2070	2170	2490 - 2780		
Pb, ppm	37.3	28.8	33.1			

(2) Proton activation

Element	This work		Average	Literature value ¹³⁻²⁰⁾	T. Kato ¹²⁾	NBS value
Ca, %	3.16	3.44	3.30	3.92 - 4.7	5.11	
Ti, %	0.619	0.644	0.632	0.61 - 0.74	0.77	
Fe, %	4.33	4.53	4.43	6.08 - 6.69	4.24	
V, ppm	271	217	244	208 - 240		214 ± 8
Cr, ppm	144	156	150	113 - 180	142	131 ± 2
Zn, ppm	137	147	142	201 - 216		210 ± 20
Sr, ppm	1040	1270	1160	1301 - 1700	1240	(1380)
Y, ppm	63.9	55.7	59.8		67	
Zr, ppm	234	281	258	301 - 500	298	

3.3.2 国産 coal fly ash

二回の定量結果と平均値を第6表に示した。この場合も Zn を除いて両分析法の分析値は良い一致を示している。

元素組成は NBS のものとほとんど類似しているが、アルカリ、アルカリ土類金属元素は多く、Fe, Cr などの遷移金属元素は少ないことがわかる。

これらの coal fly ash の元素組成は、アルミノケイ酸塩を主成分とする岩石の元素組成に類似している。石炭は植物起源の有機成分と粘土鉱物などの無機成分の混合物であることが顕微鏡観察から知られており、石炭の灰分は植物起源の固有灰分と石炭化作用を受ける間に混入された外来灰分からなるといわれている。Coal fly ash の分析結果は Fe, Ti が多く又 Mg より Na が多いことから植物固有の元素組成というよりも、外来の無機成分の影響を多く反映しているように思われる。

第6表 Multielement analysis of coal fly ash (Japan).

(1) Photon activation.

Element	This work		Average
Na, %	1.06	1.15	1.11
Mg, %	1.55	1.60	1.58
Ca, %	5.82	6.23	6.03
Ti, %	0.675	0.731	0.703
Fe, %	3.00	3.16	3.08
Cr, ppm	82.5	87.8	85.2
Co, ppm	37.6	42.3	40.0
Ni, ppm	56.9	55.5	56.2
Zn, ppm	169	170	170
As, ppm	29.4	30.9	30.2
Rb, ppm	62.9	69.5	66.2
Sr, ppm	1100	1120	1110
Y, ppm	45.6	49.7	47.7
Zr, ppm	285	292	289
Sb, ppm	2.79	2.89	2.84
Cs, ppm	10.3	10.6	10.5
Ba, ppm	1720	1930	1830
Pb, ppm	41.5	42.3	41.9

(2) Proton activation.

Element	This work		Average
Ca, %	4.83	4.30	4.57
Sr, %	0.108	0.116	0.112
Ti, %	0.721	0.650	0.686
V, ppm	364	248	306
Cr, ppm	ND	78.4	78.4
Fe, %	3.46	3.12	3.29
Zn, ppm	84.9	79.3	82.1
Y, ppm	45.5	50.9	48.2
Zr, ppm	286	288	287

ND : Not determined.

3.3.3 Oil soot

第7表は oil soot の分析結果である。Coal fly ash に比べてNi, V の含有量が多く, 重油起源の特徴を示しているといえる。又アルカリ, アルカリ土類金属は少なく, Cr, Co, Zn は多い。土壌起源と考えられるTi や Zr の含有量は1桁以上低い値を示している。

特に Fe は著しく高い濃度を示しており, これは重油起源とは考えられず, 燃焼過程での混入が考えられる。

第7表 Multielement analysis of oil soot.

(1) Photon activation.

Element	This work		Average
Na, %	0.450	0.438	0.444
Mg, %	0.129	0.164	0.147
Ca, %	0.364	0.455	0.410
Fe, %	7.29	6.98	7.14
Ti, ppm	362	379	371
Cr, ppm	280	276	278
Co, ppm	184	180	182
Ni, ppm	1390	1720	1560
Zn, ppm	295	370	333
As, ppm	71.7	69.5	70.4
Rb, ppm	5.92	6.21	6.07
Sr, ppm	83.5	76.2	79.9
Y, ppm	3.51	3.94	3.73
Zr, ppm	23.4	23.1	23.3
Sb, ppm	9.64	9.21	9.43
Cs, ppm	0.973	0.818	0.896
Ba, ppm	323	203	218

(2) Proton activation.

Element	This work
Ca, %	0.369
V, ppm	704
Zr, ppm	21.6

3.3.4 重油

次に石油学会認定重油標準試料中のニッケル及びバナジウムの分析結果を第8表に示した。ニッケルは光量子放射化，バナジウムは荷電粒子放射化により定量した。

第8表 Nickel and vanadium in JPI standard residual fuel oil.

Element	This work			Average	Recommended value
Ni	22.6	19.3	22.3	21.4*	25 ± 1
	23.3	22.3		22.8**	
V	71.4	73.2		72.3**	79 ± 2

* Non-treatment.

** H₂SO₄ ashing.

本重油試料は中東系原油の常圧蒸留残油でニッケル分，バナジウム分高濃度レベル標準試料として作製されたものである。²¹⁾

ニッケル分の標準値は JPI-5S-10-79 (重油中のニッケル分試験方法) の原子吸光光度法により決定され，95% の信頼限界をつけて 25 ± 1 ppm とされている。又バナジウム分の標準値は JPI-5S-11-79 (重油中のバナジウム分試験方法) の吸光光度法により，ニッケルと同様に 79 ± 2 ppm とされている。

ニッケルは処理しないものと，濃硫酸を加え加熱処理したものとの間に分析値の差は認められなかった。又ニッケル，バナジウムとも認定値と良い一致を示した。本重油試料の灰分は 200 ppm であり，ニッケル，バナジウムがその半分以上を占めていることがわかる。

§ 4. 結 論

本研究では分析試料に類似したマトリックスを有する標準試料としてポリアクリルアミド及びシリカ標準試料を調製し，試料に応じてそれぞれを活用した。

分析試料としては石炭，石油の燃焼生成物である coal fly ash 及び oil soot を選び，光量子，荷電粒子放射化分析により約20元素の非破壊多元素分析を行なった。

光量子放射化分析では Ti, Mg などの微量成分及び Zr, Y などの痕跡成分の同時定量が可能であり，これら試料の非破壊分析法として有力な手段となることが示唆された。

荷電粒子放射化分析では照射粒子に陽子を選び、加速エネルギー 12 MeV で (p, n) 反応を利用した。平均断面積法により定量した結果、光量子放射化分析とも良い一致を示すとともに特に Fe や V などは感度も良く妨害反応もないため、光量子放射化よりも適していることがわかった。荷電粒子放射化はまだ緒についたばかりであり、照射粒子、照射エネルギーの選択および定量法、妨害反応の検討などにより今後多元素分析法の一手段として活用されることが期待される。

また、重油のような液体試料の分析に光量子放射化が利用できる可能性が本研究によりはじめて示され、光量子放射化の新たな利用が期待される。

本研究にあたり、御助力を賜った東北大核理研、八木益男先生ならびにマシングループの皆様、東北大サイクロトロン R I センターの藤田稔先生・山寺亮先生ならびにマシングループの皆様に厚く御礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 諸川孝治, 小林政賢 : Petrotech, **2** (1979) 219.
- 2) H. Al-Shahristani and M. J. Al-Atya : J. Radioanal. Chem. **14** (1973) 401.
- 3) C. Block and R. Dams : *ibid.* **46** (1978) 137.
- 4) R. C. Ragaini and J. M. Ondov : *ibid.* **37** (1977) 679.
- 5) S. F. Ayanoğlu and G. Gündüz : *ibid.* **43** (1978) 155.
- 6) J. W. Mitchell, L. D. Blitzer, T. Y. Kometani, T. Gills and L. Clark, Jr. : *ibid.* **39** (1977) 335.
- 7) A. R. Date : Analyst **103** (1978) 84.
- 8) K. Masumoto and N. Suzuki : Radiochem. Radioanal. Lett. **42** (1980) 99.
- 9) E. Ricci and R. L. Hahn : Anal. Chem. **37** (1965) 742.
- 10) E. Ricci and R. L. Hahn : *ibid.* **39** (1967) 794.
- 11) H. H. Anderson and J. F. Ziegler : *Hydrogen, Stopping Power and Ranges in All Element* (Pergamon Press, London, 1977).
- 12) T. Kato, N. Sato and N. Suzuki : Talanta **23** (1976) 517.

- 13) J. M. Ondov, W. H. Zoller, I. Olmez, N. K. Aras, G. E. Gordon, L. A. Rancitelli, K. H. Abel, R. H. Filby, K. R. Shah and R. C. Ragaini : Anal. Chem. **47** (1975) 1102.
- 14) R. A. Nadkarni : Radiochem. Radioanal. Lett. **21** (1975) 161.
- 15) D. H. Klein, A. W. Andren, J. A. Carter, J. F. Emery, C. Feldman, W. Fulkerson, W. S. Lyon, J. C. Ogle, Y. Talmi, R. T. Vanhook and N. Bolton : Environ. Sci. Soc. **9** (1975) 973.
- 16) A. Chattopadhyay and R. E. Jervis : Anal. Chem. **46** (1974) 1630.
- 17) R. R. Ruch, R. A. Cahill, J. K. Frost, L. R. Camp and H. Gluskoter : Trans. Am. Nucl. Soc. **21** (1975) 107.
- 18) H. T. Millard and V. E. Swanson : *ibid.* **21** (1975) 108.
- 19) J. J. Rowe and E. Steinnes : J. Radioanal. Chem. **37** (1977) 849.
- 20) A. Chattopadhyay : *ibid.* **37** (1977) 785.
- 21) 石油学会標準試料委員会 : Petrotech **2** (1979) 71.

光量子放射化分析によるガラス試料の多元素同時定量

科学警察研究所

神田 征夫

§ 1. 緒 言

犯罪鑑識では試料相互の異同識別は重要な問題であり、試料中の各種微量元素の含有量を比較することが行われている。このための分析法としては、高感度で多元素を同時に分析することのできる放射化分析法が適切であり、主に中性子放射化法が種々の鑑識試料に応用されて多くの成果を挙げている。

試料の識別には、試料中のできるだけ多くの元素を簡単にしかも正確に定量できることが望ましいのであるが、交通事犯等で鑑識上重要な試料の1つであるガラス試料を中性子放射化した場合、ガラスの主要成分である Na_2O から ^{24}Na が多量に生成し、その強いバックグラウンド放射能の妨害のために非破壊で定量できる元素が限定されてしまう。

光核反応による放射化分析法は、多量の共存元素や核反応断面積の大きい元素に起因するバックグラウンド放射能が中性子放射化法に較べて弱い。しかも中性子放射化法ではわずかしいとされているTi, Ni, Y, Zr, Nb, Pbなどの分析が容易であるなどの特徴から、生物体試料^{1,2)}や地球化学的試料²⁻⁴⁾、環境試料^{2,5,6)}などの多元素同時分析に広く用いられている。

本研究では、光量子放射化法がバックグラウンド放射能の妨害が一般に少ないことからガラスの分析に有利であると考え、NBSのトレースアナリシス用の標準ガラスを30 MeV制動輻射で放射化し、非破壊多元素同時分析を行った。その結果、17元素を平均2.7%の精度で同時定量することができ、光量子放射化法がガラスの分析にきわめて有用であることが明らかとなった。

§ 2. 実 験

2.1 NBS標準ガラスおよび比較標準試料

NBS SRM 613 ガラス試料は、厚さ1 mm、直径13 mmの円盤状のものであるが、その表面汚染の除去のためにアルコール、希硝酸(1:10)、アルコールで順次洗浄した後、メノウ乳鉢で粉碎した。この粉末試料の0.3 gをアルミニウム箔に包み、直径10 mmのペレット状に成型したものを照射試料とした。

比較標準試料は SiO_2 (79.5%), CaO (12.7%), Na_2O (7.8%) を混合して調製した合成ガラスマトリックスに既知量の As_2O_3 , CeO_2 , Co , CsCl , MgO , Mn , Nb_2O_5 , Ni , RbCl , Sb_2O_3 , Sc_2O_3 , Ti , Y_2O_3 , ZrO_2 を加え, 十分に混合して調製した。この比較標準試料中の各元素の濃度は 200 ~ 500 ppm である。この試料の 0.3 g をアルミニウム箔に包み, 直径 10 mm のペレット状に成型したものを照射試料とした。

2.2 照射と測定

NBS 標準ガラス試料を比較標準試料でその前後をはさみ, 石英管に封入して東北大学原子核理学研究施設の電子ライナックを用いて 30 MeV の制動輻射で 2 時間照射した。照射した試料を適時冷却し, $\text{Ge}(\text{Li})$ 半導体検出器と 4096 チャンネル波高分析器とを用いて r 線スペクトルを測定した。核データ⁷⁾を参考にして r 線の光電ピークのエネルギー, 相対強度, 半減期などから核種の確認を行い, それぞれ最適ピークを用いて比較法により標準ガラス中の各元素の定量を行った。

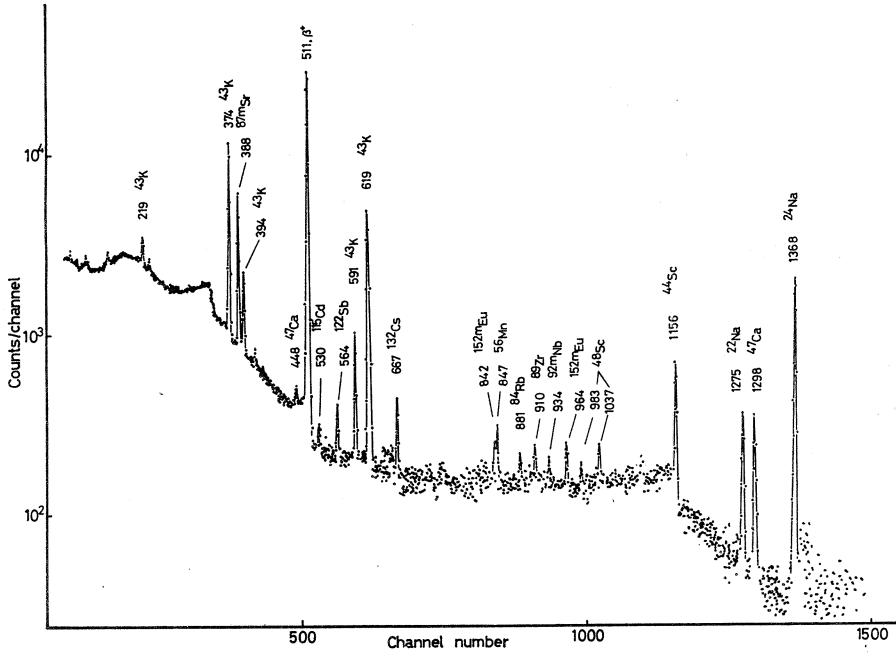
§ 3. 結果と考察

主に ^{15}O (半減期: 2.03 分) からの強い 0.511 MeV 消滅放射線と主要マトリックス元素である Si から $^{29}\text{Si}(\gamma, p)^{28}\text{Al}$ と $^{30}\text{Si}(\gamma, p)^{29}\text{Al}$ 反応で生成する ^{28}Al (2.3 分) と ^{29}Al (6.6 分) の強い放射能を 2 時間冷却して減衰させたのち, 適時 r 線スペクトルを測定した。第 1 図と第 2 図に 30 MeV 制動輻射で 2 時間照射して得られた NBS 標準ガラス試料の r 線スペクトルの 1 例を示す。

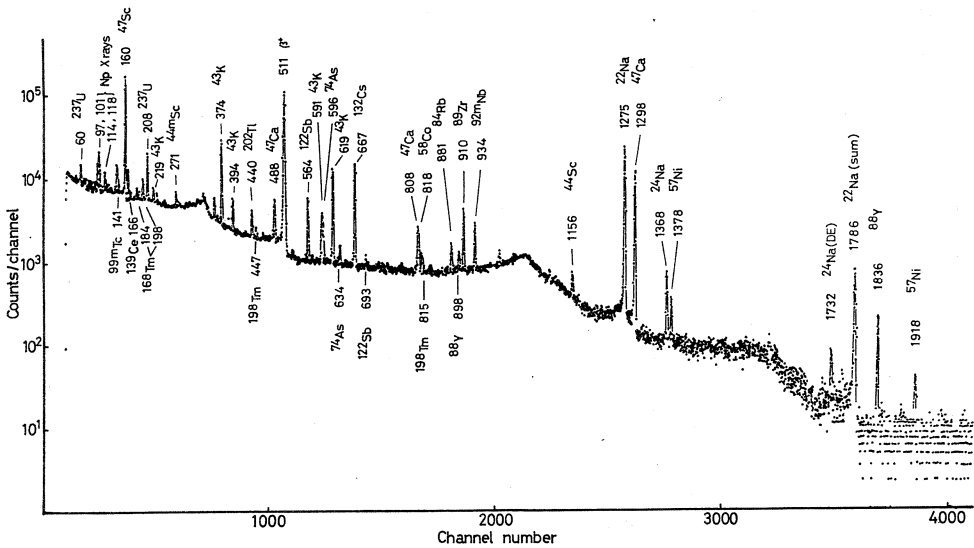
第 1 図に示した r 線スペクトルは, 照射終了後 2 時間経過した時点で得られたものであるが ^{43}K (半減期: 22.4 時間), ^{24}Na (15 時間), ^{44}Sc (4.0 時間), $^{87\text{m}}\text{Sr}$ (2.83 時間) の明瞭な光電ピークが観測された。また第 2 図に示した 5 日経過時の r 線スペクトルには 18 元素から生成された核種の光電ピークが認められた。

第 1 表に, 本研究で定量することのできた NBS 標準ガラス試料中の 17 元素について, 定量に用いた光核反応とその生成核種の r 線エネルギーおよび半減期を示す。また本実験条件下の検出限界をバックグラウンド放射能の標準偏差の 3 倍に相当する強さの光電ピークを与える元素濃度として計算し, 第 1 表に示した。

As と Co の定量ではスペクトルの重なりによる妨害が認められた。すなわち, ^{74}As の 596 keV の光電ピークは Ca からの ^{43}K の 591 keV の光電ピーク, ^{58}Co の 811 keV の光電ピークは Ca からの ^{47}Ca の 808 keV の光電ピークの重なりがみられた。 ^{74}As には 596 keV の r 線の



第1図 NBS SRM 613 ガラスの2時間経過時の γ 線スペクトル。



第2図 NBS SRM 613 ガラスの5日経過時の γ 線スペクトル。

第1表 分析に利用した光核反応と検出限界。

元 素	核 反 応	生 成 核 種	半 減 期	定量に用いた r 線 (keV)	検 出 限 界 (ppm)
As	(r, n)	^{74}As	17.9日	596	0.9
Ca	(r, p)	^{43}K	22.4時間	619	350
	(r, n)	^{47}Ca	4.53日	1298	450
Ce	(r, n)	^{139}Ce	140日	166	1.3
Co	(r, n)	^{58}Co	71.3日	811	2.3
Cs	(r, n)	^{132}Cs	6.5日	667	0.4
Mg	(r, p)	^{24}Na	15.0時間	1368	20
Mn	(r, n)	^{54}Mn	303日	835	18
Na	(r, n)	^{22}Na	2.60年	1275	110
Nb	(r, n)	^{92m}Nb	10.16日	934	2.1
Ni	(r, n)	^{57}Ni	36.0時間	1378	1.5
Rb	(r, n)	^{84}Rb	33.0日	881	1.5
Sb	(r, n)	^{122}Sb	2.80日	564	0.8
Sc	(r, n)	^{44}Sc	4.0時間	1156	0.5
Sr	(r, n)	^{87m}Sr	2.83時間	388	1.3
Ti	(r, p)	^{47}Sc	3.43日	160	10
Y	(r, n)	^{88}Y	108日	1836	0.4
Zr	(r, n)	^{89}Zr	78.4時間	910	0.9

ほかに 634 keV の r 線の光電ピークも観測されるが、放射能強度が弱くバックグラウンド対ピーク比が小さいため定量分析に用いることはできなかった。また ^{58}Co には 811 keV のほかに定量に利用できる r 線はなく、したがって定量分析にはスペクトルの重なりによる Ca からの妨害を受ける ^{74}As の 596 keV と ^{58}Co の 811 keV の r 線を用いる以外にはない。幸いなことに、これらの核種の半減期はそれぞれ ^{43}K および ^{47}Ca の半減期よりも十分に長いことから、適当な期間冷却することによって ^{43}K と ^{47}Ca の妨害を除くことができた。照射終了後 ^{74}As の場合は 9 日、 ^{58}Co の場合は 30 日間冷却することによってそれぞれ ^{43}K と ^{47}Ca からの寄与は

1%にまで減少した。

MgとTiの定量では競合反応によるマトリックスからの妨害が大きく、正確な定量は困難であった。

$^{25}\text{Mg}(\gamma, p)^{24}\text{Na}$ 反応を用いるMgの定量を妨害する競合反応としては、ターゲット系内に生じた光中性子に起因する $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ 反応があり、加藤ら²⁾は30 MeV照射でMgとAlから生成される ^{24}Na の比放射能の比は210:1であると報告している。主に光中性子の発生源が白金コンバーターであり、ターゲットホルダー内の照射位置によって中性子反応の寄与が異なる⁸⁾のであるが、今回各分析試料の位置で中性子をモニターしていないため試料の照射位置による違いを無視し、試料中のAl含有量(酸化物として公称2%)からAlの妨害の程度を計算すると、 ^{24}Na の全放射能の13.5%がAlに起因するものとなった。

チタンの定量は $^{48}\text{Ti}(\gamma, p)^{47}\text{Sc}$ 反応を用いて高感度で行うことができるが、この場合の妨害反応として $^{51}\text{V}(\gamma, \alpha)^{47}\text{Sc}$ と $^{48}\text{Ca}(\gamma, n)^{47}\text{Ca} \xrightarrow{\beta^-} ^{47}\text{Sc}$ とが知られている。

加藤ら²⁾によって報告されているこれらの妨害の程度と試料中のVとCaの含有量とから考え、この試料では酸化物として12%も含有されているCaの妨害が問題となる。このCaの妨害は ^{47}Ca と ^{47}Sc が放射平衡になるまでは時間の経過とともに急激に増加することから、できるだけ照射後早い時期に測定することが望ましい。しかし、この試料の照射後1日以内の r 線スペクトルは511 keVの消滅放射線と ^{43}K からのコンプトンバックグラウンドが強く、 ^{47}Sc の166 keVの光電ピークを観測するのは困難であった。照射後2日経過した時点ではTiの1 mgからとCaの340 mgからの ^{47}Sc 放射能が同じであることがわかった。この結果とCaの含有量とからCaの妨害の程度を見積った結果、 ^{47}Sc の全放射能のうちCaに起因するものが83%にもなることがわかった。

NBS SRM 613 ガラスの定量結果を第2表に示す。分析値はいずれも3回の測定の平均値であり、MgとTiの濃度はそれぞれAlとCaの妨害を補正した値である。第2表から明らかのようにマトリックスからの妨害の大きいTi以外の16元素については、それらの標準偏差の平均値は2.7%であり、充分満足できる精度で分析できることがわかった。またCe, Ni, Rb, Srの定量結果をNBSの公定値あるいは文献値と比較したところ、第2表から明らかのようにそれらの相対誤差は1.4~3.4%の範囲内にあり、きわめてよく一致した。

以上の結果から光量子放射化法はガラス試料の非破壊多元素同時分析にきわめて有利な分析法であることが明らかとなった。さらにガラス試料の識別にとって有用な元素といわれているRb, Sr, Zr⁹⁾の分析が中性子放射化法よりもより容易に行えることは犯罪鑑識へ応用する

第2表 NBS SRM 613 ガラスの定量結果。

元 素	実験値 (ppm)	文 献 値 (ppm)	
		N B S	Haney ⁹⁾
As	35.6 ± 0.3		
CaO(%)	12.1 ± 0.2		
Ce	40.6 ± 0.2	(39)	41.2
Co	33.3 ± 1.0	(35.5 ± 1.2)	
Cs	44.8 ± 1.2		
Mg	341 ± 16		
Mn	39.0 ± 2.6	(39.6 ± 0.8)	
Na ₂ O(%)	14.2 ± 0.2		
Nb	38.1 ± 1.0		
Ni	40.1 ± 1.1	38.8 ± 0.2	
Rb	32.0 ± 1.4	31.4 ± 0.4	31.7
Sb	39.4 ± 0.3		
Sc	38.2 ± 1.2		
Sr	77.3 ± 1.3	78.4 ± 0.2	76.3
Ti	55.2 ± 8.3	(50.1 ± 0.8)	
Y	37.9 ± 1.4		
Zr	41.8 ± 1.1		

() : 参考値

場合非常に有利であり、実用性のある分析法であると考えられる。

本研究を行うにあたり、終始御助言をいただいた鈴木信男、加藤豊明両教授に深謝いたします。また実験の際に御援助をいただいた原子核理学研究施設、八木益男助教授およびマシニンググループ、さらに理学部分析化学講座の皆様に厚くお礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) T. Kato, N. Sato and N. Suzuki : Anal. Chim. Acta **81** (1976) 337.
- 2) T. Kato, K. Masumoto, N. Sato and N. Suzuki : J. Radioanal. Chem. **32** (1976) 51.
- 3) T. Kato, I. Morita and N. Sato : J. Radioanal. Chem. **18** (1973) 97.
- 4) A. Chattopadhyay and R. E. Jarvis : Anal. Chem. **46** (1974) 1630.
- 5) T. Kato, N. Sato and N. Suzuki : Talanta **23** (1976) 517.
- 6) N. K. Aras, W. H. Zoller, G. E. Gordon and G. J. Lutz : Anal. Chem. **45** (1973) 1481.
- 7) C. M. Lederer, J. M. Hollander and I. Perlman : *Table of Isotopes* (Wiley, New York, 1967) 6th ed.
- 8) 加藤豊明, 榎本和義, 鈴木信男 : 核理研研究報告 **9** (1976) 277.
- 9) M. A. Haney : J. Forensic Sci. **22** (1977) 534.

光量子放射化分析法による日本海深海底堆積物の諸元素存在度の永年変化に関する研究

理学部化学, 教養部*, 広島大総合科学部**

角谷博樹・加藤豊明*・加藤道雄**・鈴木信男

§ 1. 緒 言

光量子放射化分析法による地球化学試料の非破壊多元素同時分析に関しては、既に、その特長、感度、妨害などの基礎、標準岩石試料による正確さ、信頼度の検討がなされており、本法が海底土のような組成が広範に異なる試料の分析に適用できることが確かめられている。¹⁻⁷⁾ 既報⁸⁾ では、日本海山陰沖海域で採取したコア試料を選び、本法によって、各コアの長さ、すなわち、堆積年代に沿っての諸元素の分布状況を調べ、若干の地球化学的考察を加えた。

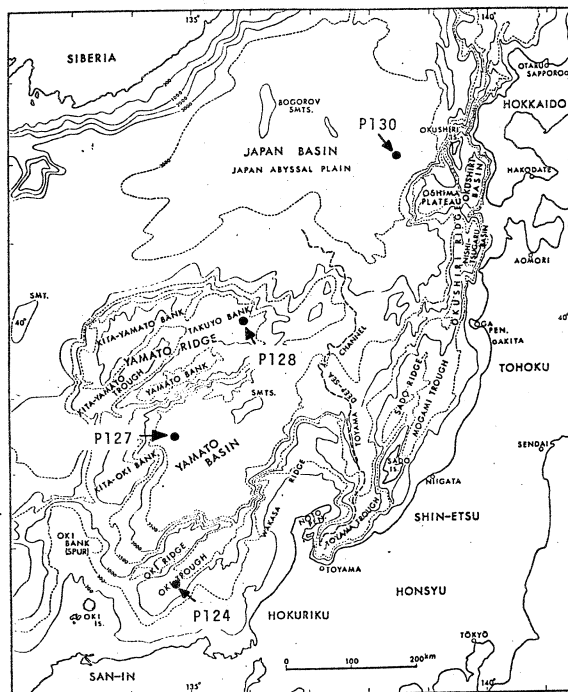
1978年4-5月に白嶺丸によって行なわれた日本海底地質調査は、南部の隠岐島附近から北部の最深部を含む日本海盆にわたる広い海域に及び、堆積環境や地理的条件が種々に異なる地点のコア試料が採取された。本調査の結果は、既に、Cruise Report⁹⁾ に公表されており、地質、古生物あるいは鉱物学的検討などが行なわれている。

本研究は、同調査の際に採取されたコア試料にみられる諸元素存在度の分析結果から、その永年変化の特徴と存在度に影響を与える一般的諸因子との関連を検討する目的で、既報⁸⁾ に引き続き光量子放射化分析法を適用し、堆積環境の異なる4地点のコア試料について、それぞれ諸元素の存在度分布を求めた。

§ 2. コア試料

本研究に使用したコア試料は、1978年4-5月の白嶺丸による日本海中央部海域の海底地質調査において、試料番号P 124, P 127, P 128およびP 130の4地点よりピストン採泥器で採取されたものである。採取位置、地形、水深、コア試料の長さおよび状態等のデータは第1図および第1表に示したとおりである。

第1図のように、日本海中央部の北半分は水深3000mを越える平坦な日本海盆からなっているのに対し、南半分は大和海嶺が位置し、その最浅部はわずか236mである。また、日本列島沖に広がる大陸棚の高まりと大和海嶺の間に、日本海盆から舌状に入りこんだ大和海盆をはじめとする大小の舟状海盆が発達して著しく複雑な地形となっている。P 128, P 130はそれ

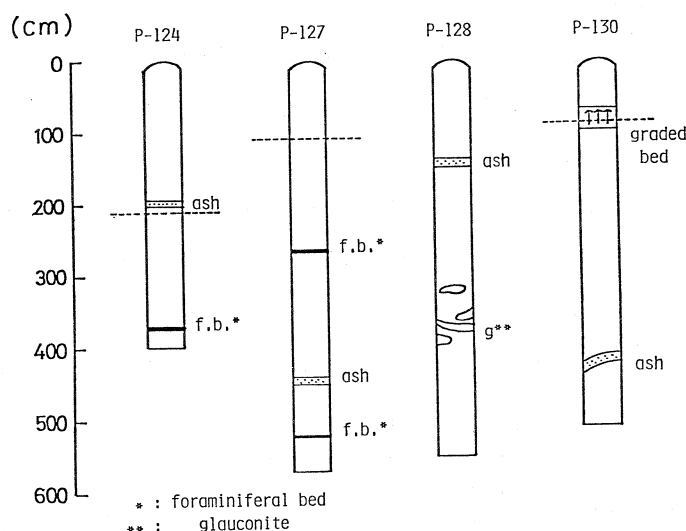


第1図 Sampling sites.

第1表 Piston core samples analyzed.

Sample No.	P-124	P-127	P-128	P-130
Area	Oki Trough	Yamato Basin	Yamato Ridge	Yamato Basin
Position, Latitude	36°47.3' N	38°31.4' N	40°01.0' N	41°59.9' N
Longitude	134°57.5' E	135°17.4' E	136°23.9' E	138°40.1' E
Depth, m	1780	3012	1835	3700
Sedimentation rate, cm/100 y	2	1	very slow	0.9
Core length, cm	397	560	551	510
Content	clay with 3 ash layers and a foraminiferal layer	clay with ash layers	clay and ash layers	clay and ash layers

ぞれ大和海嶺，日本海盆に，また，P 127，P 124はそれぞれ大和海盆，隠岐トラフに位置している。コアの断面図を第2図に掲げたが各コアはほとんど緑褐色又は褐色の粘土状物質から成り，部分的に泥砂状物質層および有孔虫化石を多量に含む層がみとめられた⁹⁾ P 130のコアは，表層から100 cm - 70 cm に級化層理がみとめられ，乱泥流により一時的に堆積したもの



第2図 Columnar sections of the cores.

と考えられた。また，P 128のコアは，300 cm - 400 cmにグロコナイトの層がみとめられ，この時代には堆積速度の非常に遅い静穏な条件下に堆積が行なわれたことを示している。堆積速度および年代は，コア中に見出される有孔虫化石の種の変化から，更新世と現世の境界を約1万年として計算したが，第1表に示したようにコアにより差異がみとめられた。

§ 3. 実験および定量値の算出

採取した柱状試料は，表層よりコアに沿って1 cm間隔に切断し，このうちから20 cm - 50 cm間隔で切片を選んでシリカゲル上で乾燥後，メノウ乳鉢で均一にすりつぶし，さらにシリカゲル上で10日間ほど乾燥し恒量となったものを使用した。各切片は約300 mgをアルミニウム箔で包装し直径9 mm，厚さ4 mmのディスクに成型した。非破壊多元素同時分析のための比較試料としては，試料と類似の元素組成の標準物質を用いるのが好都合である。本研究では珪酸塩標準岩石JB-1を用いた。JB-1の諸元素存在度については広範な分析データをまとめた安藤らの報告¹⁰⁾があり，本研究でもこれらの値を使用した。JB-1もコア試料と同様にアルミニウム箔に包装し，9 mm ϕ \times 4 mmのディスクとして試料の前後に配置した。こ

れに、後述の妨害反応の補正を目的とした純鉄箔(9 mm ϕ \times 0.1 mm)を、コア試料およびJB-1の前後に添附し、全体を石英管に封入して照射に供した。照射は東北大学電子ライナックからの30 MeV制動輻射で2-3時間行ない、照射後、半減期2時間以上の残留核からの r 線をキャンベラ社製の7229-7600-1721型Ge(Li)検出器と同社8100 MCA型波高分析装置で r 線スペクトルを測定し、得られたスペクトルデータからピーク面積比較法で各元素を定量した。すなわち、試料の両側に配置したJB-1から目的核種のピーク面積計数率の平均を求め、これを用いて試料中の目的元素含有量を算出した。なお、半減期の短い ^{56}Mn および $^{87\text{m}}\text{Sr}$ を測定した後の試料はアルミニウム箔包装を取除き、新しいアルミニウム箔で再包装したのについて以後の測定を行なった。分析元素及び利用した核種と核データは第2表にまとめて示した。既報⁸⁾と同様に、Ca, Fe, Mg, Mn, Na, Ti, Ba, Ce, Co, Cr, Ni, Nb, Rb, Sr, YおよびZrの16元素の存在度を求めた。

第2表の核反応を利用する場合、地球化学試料では、 $^{56}\text{Fe}(\gamma, p n)^{54}\text{Mn}$ による ^{54}Mn の生

第2表 Pertinent nuclear data.

Element	Process	Product nuclide	Half - life	r -ray used (keV)	Suitable decay time
Ca	(r, p)	^{43}K	22.4 h	374, 617	1 - 2 d
	(r, n)	^{47}Ca	4.53 d	1298	10 - 15 d
Fe	(r, p)	^{56}Mn	2.576 h	847	2 - 5 h
Mg	(r, p)	^{24}Na	15.0 h	1368	1 - 2 d
Mn	(r, n)	^{54}Mn	303.0 d	835	> 10 d
Na	(r, n)	^{22}Na	2.60 y	1275	> 10 d
Ti	(r, p)	^{46}Sc	83.9 d	1121	> 10 d
		^{48}Sc	1.83 d	983, 1314	> 10 d
Ba	(r, n)+(r, r')	$^{135\text{m}}\text{Ba}$	28.7 h	268	1 - 2 d
Ce	(r, n)	^{139}Ce	140 d	166	30 - 40 d
Co	(r, n)	^{58}Co	71.3 d	811	30 - 40 d
Cr	(r, n)	^{51}Cr	27.8 d	319	10 - 15 d
Nb	(r, n)	$^{92\text{m}}\text{Nb}$	10.16 d	934	10 - 15 d
Ni	(r, n)	^{57}Ni	36.0 h	1378	1 - 2 d
Rb	(r, n)	^{84}Rb	33.0 d	881	10 - 15 d
Sr	(r, n)	$^{87\text{m}}\text{Sr}$	2.83 h	388	2 - 5 h
Y	(r, n)	^{88}Y	108 d	1836	> 10 d
Zr	(r, n)	^{89}Zr	78.4 h	910	2 - 3 d

成および $^{27}\text{Al}(\text{n}, \alpha)^{24}\text{Na}$ による ^{24}Na の生成が顕著で、それぞれ、MnおよびMgの定量を妨害する。これらの副反応の妨害については、すでに研究されているが、^{6,11)}本研究についてもMnについては試料と同時に照射した純鉄箔によって補正し、Mgについては試料中のアルミニウムをオキシンによる抽出比色法¹²⁾で定量して補正した。すなわち、前者については鉄箔の $^{54}\text{Mn}/^{56}\text{Mn}$ の生成比から、試料中に生成した全 ^{54}Mn に対する $^{56}\text{Fe}(\text{r}, \text{pn})^{54}\text{Mn}$ の寄与を求めて差し引いて補正した。この寄与は本研究の試料では15-75%に相当した。また、後者については、見掛けのMg含有量 $\text{Mg}(\%)_{\text{app}}$ とAl($\%$)とから

$$\text{Mg}(\%) = \text{Mg}(\%)_{\text{app}} - \frac{1}{206} \text{Al}(\%)$$

によって $\text{Mg}(\%)$ を求めた⁶⁾。補正量は全 ^{24}Na 生成量に対して3-6%であった。

スペクトル上にピークが重なり合って妨害となる例として、 $^{93}\text{Nb}(\text{r}, \text{n})^{92\text{m}}\text{Nb}$ ($T_{1/2} = 10.16 \text{ d}$, 934 keV)を使ってニオブを定量する場合、 $^{54}\text{Fe}(\text{r}, \text{pn})^{52}\text{Mn}$ ($T_{1/2} = 5.6 \text{ d}$, 935 keV)の補正が必要となる。そのため、あらかじめ、純鉄箔について ^{52}Mn の935 keVと1434 keVのピーク強度比を求め、この比と試料中の ^{52}Mn の1434 keVのピーク面積から、 $^{92\text{m}}\text{Nb} + ^{52}\text{Mn}$ のピーク面積に対する ^{52}Mn の935 keVの寄与分を差し引いて補正を行った。 $^{92\text{m}}\text{Nb} + ^{52}\text{Mn}$ に対する ^{52}Mn の補正量は5-17%であった。

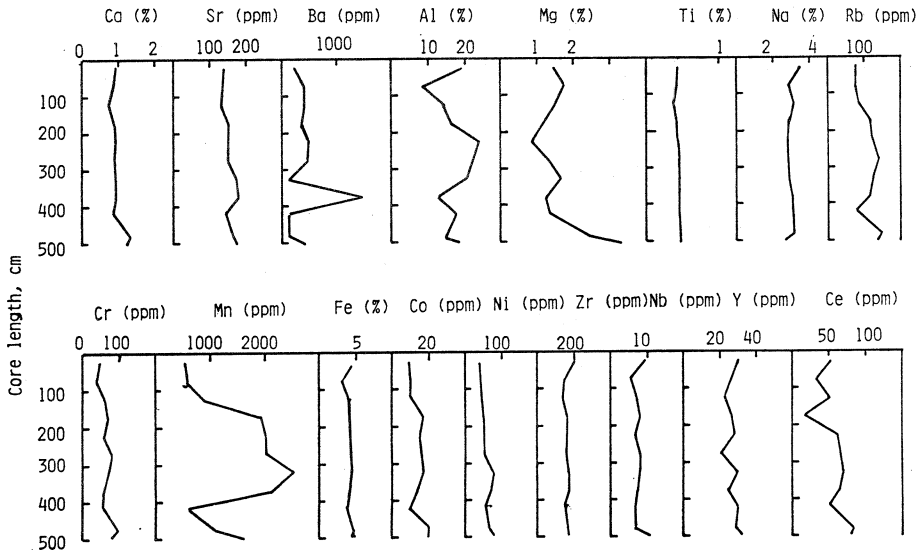
第2表のように、カルシウム、チタンについては2つの核種からの3本の γ 線を用いて、それぞれ定量し、結果はそれぞれ平均値を採用したが、平均からの誤差は $\pm 8\%$ 以内であった。なお、鉄は、アルミニウムの抽出比色定量の際に同時に定量されるが、比色法と光量子放射化分析法の両法の結果は $\pm 5\%$ 以内で一致した。結果は放射化分析法の値を採用した。なお、一部の試料については常法により、フッ化水素酸処理による重量分析でシリカ含有量についても検討した。

§ 4. 結果と考察

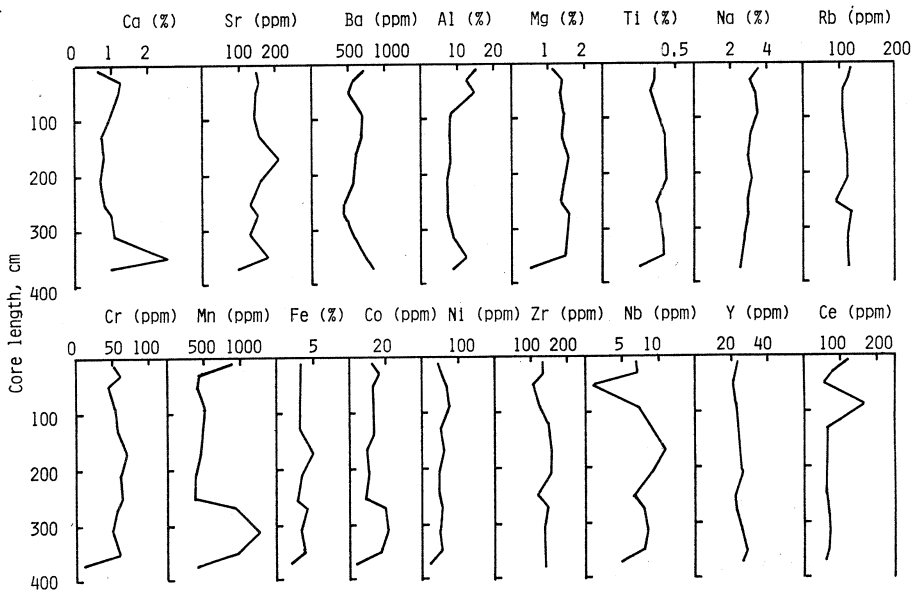
4.1 諸元素存在度分布の特徴

各元素の存在度とコアの表層からの深さとの関係を、各地点ごとに第3-6図に一括して示した。グラフの横軸は%またはppmで表わした存在度で、縦軸は表層からの深さである。又、第7図には一部の試料について化学分析して得た SiO_2 含有量を同様の関係として図示した。各コアにおける諸元素存在度分布の特徴は以下のものである。

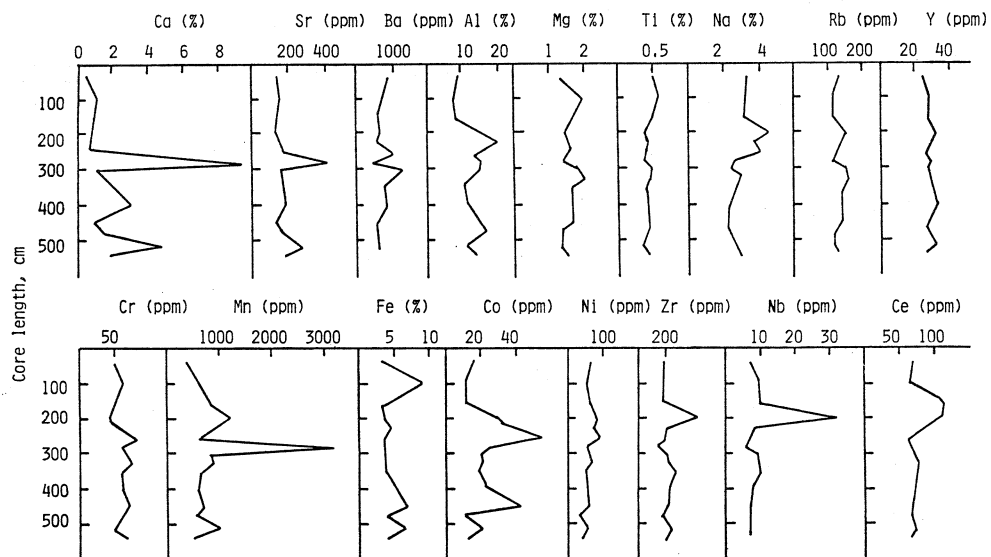
P 130 : 全体的に、諸元素存在度の分布はコアに沿って一様であるといえる。しかし、マン



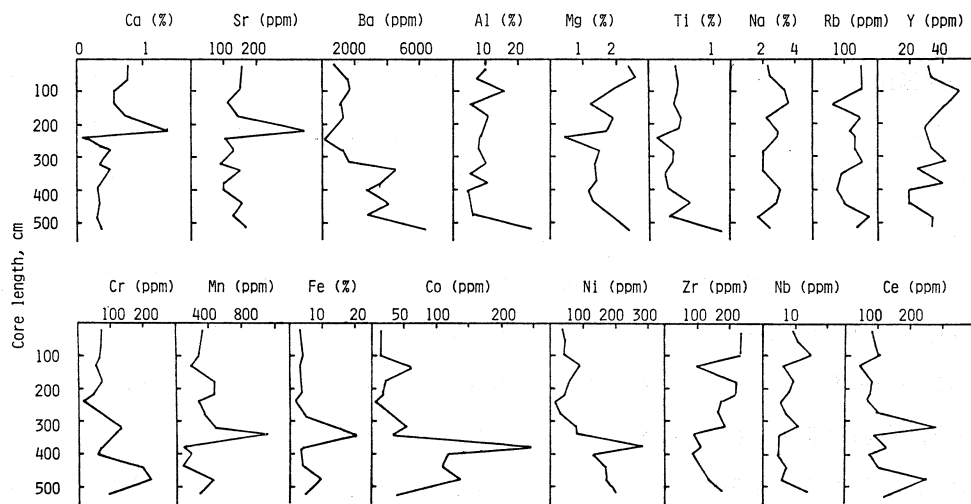
第3图 Elemental distributions along the core column (P-130).



第4图 Elemental distributions along the core column (P-124).



第5图 Elemental distributions along the core column (P-127).



第6图 Elemental distributions along the core column (P-128).

ガンについては 100 cm - 350 cm に幅広く濃縮されている。また、バリウムも 300 cm - 400 cm に濃縮がみとめられた。このコアでは、現世と更新世の境界は約 80 cm と求められており、現世における濃縮がみとめられないことからマンガン、バリウムの濃縮には氷河期における堆積環境が影響していると考えられる。氷河期においては、日本海深層水は強還元状態であったことが知られている。¹³⁻¹⁶⁾ カル

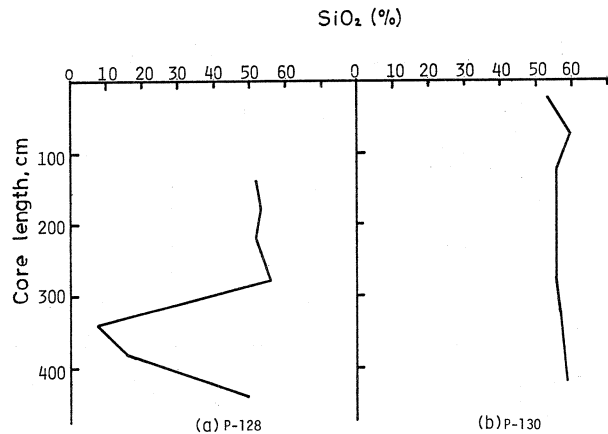
シウムの濃縮はみとめられなかったが、これは P 130 が地理的に平坦な日本海盆にあり、かつ、更新世-現世を通して、水深が炭酸カルシウム補償深度より深かったことを示唆している。

P 124 : 全体としては、P 130 と同様の分布をしている。マンガンは表層部と 250 cm - 380 cm に濃縮がみとめられる。マンガンの表層部における濃縮は、堆積物下部の還元的環境によって生じたマンガン(II)イオンが、上部の酸化的環境に拡散され MnO_2 として沈殿するため、表層に向けての濃度勾配を示したと考えられる。この現象はいわゆる postdepositional migration として既にみとめられている。¹⁷⁻¹⁸⁾

250 cm - 380 cm の濃縮は、コアの更新世と現世の境界が約 210 cm であることから、P 130 と同様に氷河期の影響によるものと考えられる。また、コバルトはわずかながらマンガンと同様の分布を示す。カルシウム、ストロンチウムは、350 cm に濃縮がみとめられたが、この層は有孔虫化石が多量に産出する層と一致していた。

P 127 : P 124 と同様に、カルシウム、ストロンチウムの分布は一致し、有孔虫層である 280 cm に濃縮がみとめられる。このことから、カルシウムの濃縮は主として生物起源であり、ストロンチウムは主成分である炭酸カルシウム格子内にカルシウムを置換していると考えられる。これらの試料は、炭酸カルシウム補償深度より深い海底から採取されたのに、このような有孔虫層が存在することは、氷河期における日本海の還元的海況および海面降下のため、より深海底にまで炭酸カルシウムが到達したものと考えられる。

マンガンは約 300 cm に濃縮がみられ、このピークも現世-更新世の境界 (110 cm) 以下で



第7図 Distributions of Si along the core column.

あった。また、ジルコニウム、ニオブの分布は一致し、約 200 cm に濃縮がみられるが他元素との明らかな関係はみとめられなかった。

P 128 : P 128 のコアは他のコアとくらべ、著しい特徴を有することが指摘できる。P 124, P 127, P 130 のコアの最深部が、約 4 - 5 万年前のものであるのに対し、P 128 のコアは約 350 cm の位置で約 700 万年前と著しく古い。このようなことから、P 128 は他の地点とは異なり、特殊な堆積条件および環境下にあったことが予想される。P 128 は他の 3 地点と比べると、諸元素存在度の変動が顕著である。マンガンは 320 cm - 380 cm に濃縮がみとめられるが、この層は第 7 図のようにシリカの量が著しく少なく強塩基性である。また、グロコナイトの産出する層とも一致する。グロコナイトの生成条件から、マンガンは堆積速度の遅い静穏な環境において濃縮されることが示唆される。またこの層にはコバルト、ニッケル、鉄なども濃縮されている。

4.2 元素存在度に影響を及ぼす因子と各コアの特徴との関係

深海洋底の堆積物にみられる諸元素存在度の分布に影響を及ぼす一般的因子として主なものを挙げれば第 3 表のようであろう。実際には、表中に含まれる物質中の微量元素の存在状態、

第 3 表 Factors affecting the elemental distribution in the deep-sea sediments.

Factor	Typical material	Element introduced
1. Transportation of terrigenous materials	Silty sandstone	Al, Mg, Ti
2. Hydrogenous origins (coppt., ion-exchange, absorption, etc.)	Fine-grained clay	Fe, Mn, Co, Ni
3. Post-depositional migration	Fine-grained clay	Mn
4. Biogenous origins	Calcareous ooze	Ca, Sr
5. Marine volcanic activities	Primitive minerals	Co, Ni

堆積速度、地理的条件などに左右されて、これらの因子の割合が種々に変化して最終的分布が決まると思われる。本実験結果にみられる分布の特徴とこれらの因子との関係を考察する。なお、海底火山活動による、コバルト、ニッケルを多量に含むオリビンのような鉱物の供給による濃縮機構については、日本海では過去 5 万年においては海底火山活動は活潑でなく、その影響は顕著でないと言われている。

P 124, P 127, P 130 の 3 地点においては、諸元素の存在度分布はほぼ均一で、地域的特徴がなくほぼ同様な陸源性物質の導入が行なわれたものと思われる。このことは、P 130 における一定したシリカ含有量（第 7 図）などからも示唆される。マンガンについては、P 127 において 200 cm, 280 cm, 320 cm, P 130 においては 100 cm - 350 cm, P 124 においては 250 cm - 370 cm に濃縮されている。各地点における更新世 - 現世の境界はそれぞれ 110 cm, 87 cm, 210 cm とされており、現世における濃縮がみとめられないことから、マンガンの濃縮には氷河期における海洋環境が影響していると思われる。

Boström, Fisher (1972)¹⁹⁾ は、太平洋における氷河期の海面降下によるマンガンの遠洋海域への濃縮について議論している。しかし、日本海においては、その特殊な海洋環境から別の機構が考えられる。現在の日本海は、溶存酸素量が深層水においても著しく多いことが知られている。この原因としては、冬期アジア大陸に発達するシベリア寒気団により、海面近くにあつて酸素を十分含んだ表層水が冷却され大規模に沈降することが考えられている。しかし、更新世の堆積物には自生黄鉄鉱（硫化鉄）が多く、現世の堆積物においては硫化鉄が減少し酸化鉄に変化しはじめることや、更新世の堆積物においてウラン含有量が著しく増加することなどから、更新世における嫌気的環境から現世における好気的環境に変わったものと考えられている。¹³⁻¹⁶⁾ ウランは酸化的環境においては $UO_2(CO_3)_4^{4-}$ として溶解するが、還元的環境では U(IV) として沈殿する。

現在の日本海は、間宮海峡（水深 12 m）、宗谷海峡（水深 55 m）によってオホーツク海と、津軽海峡（水深 140 m）によって太平洋と、そして対島海峡（水深 140 m）によって東シナ海と通じているが、氷河期における海水面降下によりほぼ完全な内海となったと考えられ、また気候の勾配もなくなり海水の垂直交換も生じなく、このような還元状態が成立したものと考えられている。¹³⁾

海水からの無機的沈殿によって生じたマンガン酸化物は、氷河期における強還元状態の深層水中にはいると還元され、 Mn^{2+} となって溶解し、上部海水中に拡散して無酸素層の上限付近に懸濁する。²⁰⁾ 間氷期、あるいは現世にはいると現在の日本海にみられるように深海底にまでも酸素が供給されるために、Mn(III) は Mn(IV) に酸化され MnO_2 として多量に堆積することになる。マンガンは 20 - 60 % が鉱物の結晶格子内に存在する形で導入されることが報告されている。²¹⁾ このため、海洋からの無機的沈殿機構によって導入されるマンガンは比較的少量であり、上記のような濃縮機構のもつ意味は大きいと考えられる。鉄は各地点において濃縮はみとめられず、ほぼ均一な分布を示した。このことは、鉄とマンガンの導入形の違い、あるいは還元状

態における化学的性質の違いによるものと考えられる。鉄はマンガンと異なり、80%以上が陸源性物質の結晶格子内に存在した形で導入されることが報告されている。²¹⁾ このため、還元状態においても溶出することなく深海底に堆積する。また、鉄の無機的沈殿物(酸化物、水酸化物)は還元的環境にはいと3価から2価に還元されるが、不溶性硫化物を作るためやはり海洋底に堆積する。このため、マンガンと異なり均一な濃度分布を示すと考えられる。ニッケルは鉄と同様、上記3地点においてはほぼ均一な存在度分布を示すが、コバルトはわずかながらマンガンの分布との類似性が見出される。ニッケル、コバルトは粘土鉱物あるいは鉄、マンガ酸化物などの無機的沈殿物に吸着した形で多量に堆積する。鉄、マンガンなどの無機的沈殿物に吸着しているニッケル、コバルトは還元的環境において溶出するが、鉄が硫化物として沈殿する際、ニッケルが選択的に取り込まれることが予想される。一方コバルトは溶解したまま海水中に残り、マンガンが沈殿する際とりこまれる。これは各イオンのイオン半径に起因すると考えられるが詳しいことはまだ不明である。またニッケル、コバルトの一部は硫化物として沈殿するかもしれない。

P 128におけるもっとも重要な特徴は、300 cm - 400 cmにかけてマンガン、鉄、コバルト、ニッケルなどが著しく濃縮されていることであろう。また、この層にグロコナイトがみとめられたことはこの濃縮についての示唆を与えるものと考えられる。グロコナイトの生成条件はかぎられており、黒雲母などの珪酸塩鉱物、有孔虫などの殻をうずめる泥質物、生物排せつ物微粒子などから数100mより浅い堆積速度の非常に遅い海底の静穏な、海水流などの影響のない環境下における海底風化で形成されると考えられている。このことから、マンガンなどの元素の濃縮された時代には、P 128は数100mより浅くほとんど無堆積の状態であったことが予想される。堆積速度が遅いということは、粒子径の小さい粘土鉱物や海水からの無機的沈殿による堆積が主であったことを意味しており、300 cm - 400 cmにかけてシリカ含有量が著しく減少していることから示唆される(第7図)。これはP 128が著しい高まり上に位置するという地理的条件に起因している。一般に粘土鉱物は、これらの元素を多量に吸着しており、²¹⁻²³⁾ また海水からの無機的沈殿物としては鉄、マンガンの酸化物、水酸化物が主であることから、上に述べたことはマンガン、鉄、コバルト、ニッケルなどの元素の濃縮を示すものと考えられる。太平洋や大西洋などにおいては沿岸地域よりも遠洋地域にこれらの元素が高濃度に存在するが、^{22,24,25)} これは上記のような理由による。一方、堆積速度が遅いということは同時に有機物堆積速度も遅いことを意味しており、数100mよりも浅い環境であったことを考え合せると、堆積物の酸化的環境は発達しており、postdepositional migrationなどの機構による濃縮も

予想される。しかし、鉄は還元的環境においても硫化物として固定される傾向があるため、堆積物の酸化的環境（上部）および還元的環境（下部）における濃度勾配は生じないことから、P 128における鉄などの元素の濃縮に対する postdepositional migration の寄与はさほど重要でないと考えられる。

以上、主としてマンガン、鉄、コバルトおよびニッケルの挙動を中心に論じてきたが、つぎに、これら以外の諸元素存在度分布について考察する。

アルミニウム、チタンおよびマグネシウムの分布は、マンガンなどとくらべると、その存在度の変動は少なく、むしろ均一に近いといえる。特にチタンはこの傾向が著しい。これらの元素は、主として陸源性物質の風化によって海洋にもたらされ、生物学的あるいは化学的沈殿によって導入される傾向は少ない。海洋底においては、粘土鉱物などの結晶格子内に存在する形で堆積していることが知られている。

バリウムの分布はカルシウム、ストロンチウムなどの分布とは一致しない。しかし、生物生産力の大きな地域においてバリウムが濃縮されているということが報告されていることから、バリウムの濃縮における生物作用は重要である。第3-6図からもわかるように、バリウムは現世には濃縮がみとめられない。またその分布はマンガンやコバルトの分布と比較的類似した傾向をもつ。このようなことから、日本海におけるバリウムの濃縮には硫酸塩としての海水からの無機的沈殿²⁶⁾が重要であると考えられる。バリウムはカルシウムやストロンチウムと比較して大きなイオン半径をもつため、ストロンチウムとは異なり、生物体の骨格部を形成する炭酸カルシウムのカルシウムを置換する傾向はなく、生物体の他の部分に取り込まれる。日本海のような深層部まで溶存酸素が多量に存在する状態においては、海水面から海底へ沈降していく過程で有機物は分解し、バリウムイオンも溶出する。しかし、氷河期にはいり、しだいに還元的環境に変化してくると、溶液中に存在したバリウムイオンは硫酸塩として多量に堆積するものと考えられる。

ジルコニウム、ニオブの分布は相互によい一致を示すが、他の元素分布との類似性はみとめられない。このことから、ジルコニウム、ニオブのような微量親石元素の挙動は独特なものであることが予想される。この両元素は電荷が高く、大きなイオン半径をもつため、火成岩中の主成分元素との関係は少なく、通常の造岩鉱物中には存在しにくい。そのためにジルコン ($ZrSiO_4$) などの独自の層を形成する。ジルコンは一般に風化に対する抵抗力が強く、あまり変質しないまま海洋底へ導入される。したがって、地殻風化などの作用によってこのような層が露出すると、一時的に海洋へ多量のジルコニウム、ニオブが導入されることになるものと

考えられる。

ナトリウム、ルビジウムは、アルミニウム、チタン、マグネシウムなどと同様に、その存在度分布は均一である。アルカリ金属元素は、おもに陽イオン交換により粘土鉱物中に取りこまれる傾向が重要である。

イットリウムはほぼ均一な存在度分布を示す。しかし、P 128においては濃縮層がいくつかみとめられた。これに対して、セリウムは各地点において濃縮がみとめられたが他元素との類似性は明らかではない。セリウムのような希土類元素は、マンガン、鉄、コバルト、ニッケルなどと同様に遠洋地域に濃縮される傾向があること、また、P 128において300 cm - 400 cmに濃縮がみとめられたことなどから、主として粘土鉱物などに吸着して海洋底に導入されると予想される。

§ 5. ま と め

(1) 30 MeV 制動輻射による光量子放射化分析法は、少なくとも16元素の正確な非破壊多元素同時定量法として地球化学的試料に適用できる。本研究では日本海深海底より採取したコア試料に適用して諸元素濃度分布の永年変化に関する基礎資料を得た。

(2) アルミニウム、マグネシウム、チタンなどに代表される、存在度分布がほぼ均一である元素は、陸源性物質の風化生成物中の結晶格子内に存在する形で、河川、風などの作用により海洋に導入される。これらの元素の濃縮に影響を与えるものは、主として、氷河作用、地すべり、乱泥流などの機構による陸源性物質の一時的導入が考えられる。

(3) マンガン、鉄、コバルト、ニッケルなどの元素の濃縮機構としては、海水からの無機的水殿、共沈、吸着、イオン交換などが重要である。これらは、静穏で遅い堆積速度を有する環境において効果的であり、一般的に、この条件をみたす遠洋性海底土、すなわち、粘土鉱物にマンガン、コバルト、ニッケル、鉄などが濃縮される。これらの機構は、日本海深海でも最も一般的な機構であろう。また氷河期における日本海の特異な環境も、これらの機構に大きな影響を与えていると考えられる。マンガン、鉄などは、postdepositional migration も考えられるが、その濃縮に対する影響は本研究の試料では明らかではなかった。

(4) カルシウム、ストロンチウムの濃縮の機構としては、生物体による濃縮が最も重要である。

本研究に御協力を賜った東北大学教養部、鈴木勸子氏に感謝する。核理研共同利用にあたり、

御助力を賜った東北大学原子核理学研究施設，八木益男助教授およびマシニンググループの方々に厚く御礼申し上げます。また JB-1 は地質調査所，安藤厚博士より恵与をうけた。附記して謝意を表する。

参 考 文 献

- 1) T. Kato and Y. Oka : *Talanta*. **19** (1972) 515.
- 2) T. Kato : *J. Radioanal. Chem.* **16** (1973) 307.
- 3) T. Kato, I. Morita and N. Sato : *J. Radioanal. Chem.* **18** (1973) 97.
- 4) N. Sato, T. Kato and N. Suzuki : *Radiochim. Acta* **21** (1974) 63.
- 5) T. Kato, K. Masumoto, N. Sato and N. Suzuki : *J. Radioanal. Chem.* **32** (1976) 51.
- 6) T. Kato, N. Sato and N. Suzuki : *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **50** (1977) 1930.
- 7) T. Kato and M. Kato : *J. Radioanal. Chem.* **57** (1980) 105.
- 8) 遠藤正美, 加藤豊明, 加藤道雄, 鈴木信男 : *核理研研究報告* **12** (1979) 120.
- 9) E. Honza, Ed, *Cruise Report No. 13* (1979). Geological Survey of Japan.
- 10) A. Ando, H. Kurasawa, T. Ohmori and E. Takeda : *Geochem. J.* **8** (1974).
- 11) K. Masumoto, T. Kato and N. Suzuki : *Nucl. Instrum. Methods* **157** (1978) 567.
- 12) 橋谷博, 本島健次 : *分析化学* **7** (1958) 478.
- 13) 氏家宏 : *自然科学と博物館* **42**. 2 (1975) 55.
- 14) 氏家宏 : *海洋科学* **10** (1977) 615.
- 15) 的場保望 : *海洋科学* **10** (1978) 269.
- 16) 小泉格 : *科学* **47** (1977) 45.
- 17) D. C. Lynn and E. Bonatti : *Mar. Geol.* **3** (1965) 457.
- 18) E. Bonatti, D. E. Fisher, O. Joensuu and H. S. Rydell : *Geochim. Cosmochim. Acta* **35** (1971) 189.
- 19) K. Boström and D. E. Fisher : *Boreas* **1** (1972) 275.
- 20) D. W. Spencer, P. G. Brewer and P. L. Sachs : *Geochim. Cosmochim. Acta*

- 36** (1972) 71.
- 21) R. Chester and R. G. Messiha-Hanna : *Geochim. Cosmochim. Acta* **34** (1970) 1121.
- 22) J. P. Riley and R. Chester : *Introduction to Marine Chemistry* (Academic Press, London, 1971). Chap. 13.
- 23) D. P. Kharkar, K. K. Turekian and K. K. Bertine : *Geochim. Cosmochim. Acta* **32** (1967) 285.
- 24) K. H. Wedepohl : *Geochim. Cosmochim. Acta* **18** (1960) 200.
- 25) K. K. Turekian : *Progress in Oceanography*, ed. M. Sears (Pergamon Press, Oxford, 1967) Vol. 4.
- 26) T. J. Chow and E. D. Goldberg : *Geochim. Cosmochim. Acta* **20** (1960) 200.

Ⅳ. 加速器・データ処理装置稼動状況

昭和54年度マシン報告

核理研マシングループ

菅原真澄・浦澤茂一・今野 収
一戸 隆・栗原 亮・根本重伸
柴崎義信

概 況

施設経費増により前年度より70日相当分(約30%)のマシントイム増を行いました。結論から言いますと、割当シフト数の98%が実施出来、予想以上の成果が上がりました。

なお、1シフトは8時30分より20時30分、あるいは20時30分より翌日の8時30分までの12時間とします。尚日中のみの場合は8時30分より20時までとします。

実施状況

第1表 昭和54年度マシントイム実施状況

保守状況

一週間の連続運転は保守については故障率が低く、好結果が得られましたが、一部実験の切換えに円滑さが欠けた様に思われます。保守状況を第2表に又運転状況を第3表に示します。

第1表 昭和54年度マシンタイム実施状況

課 題(申込者)	前 期		後 期 前		後 期 後		昭 和 54 年 度	
	割 当	実 施	割 当	実 施	割 当	実 施	割 当	実 施
es (鳥 塚)	6+1* ¹	7			6	6	12+1* ¹	13
es (小 山 田)	8	8					8	8
es (斎 藤)	6	6	6	6			12	12
es (寺 沢)	4	4			6	6	10	10
es (Zimmerman)	4	4					4	4
es (藤 平)	6+1* ¹	7	6	4		2	12+1* ¹	13
es (有 田)	8	8			6	6	14	14
es (堀 田)					6	6	6	6
es (川 添)			6	6			6	6
rp (坪 田)	6(2)* ²	8			6	4	12(2)* ²	12
rp (Thompson)	8	8					8	8
ra (菅 原)	8	8	6	6			14	14
ra (種 市)		2	2				2	2
TOF (阿 部)	6	5	5(2)* ²	8	2	1	13(2)* ²	14
rπ (庄 田)	6	6	8	8	4	4	18	18
rπ (Min)	10	10					10	10
r-spec (林 部)					2		2	0
ION (森 田)	4	4					4	4
ND	30	30	14(2)* ²	16	13	13+1* ³	57(2)* ²	59+1* ³
RI	25	25	15	15	11	11	51	51
π-MAG (庄 田)	4	3	2	3	2	2+1* ³	8	8+1* ³
MWPC (小 山 田)	6	4	2(1)* ²	5	1	1+1* ³	9(1)* ²	10+1* ³
BBU (小 山 田)	5+1* ¹	5	2	2	0	1	7+1* ¹	8
AIダクト(石 丸)		1	1	1	1		2	2
エミッタンス測定(寺沢)			1	1			1	1
ビームモニタ(武 藤)			1	1			1	1
ビームモニタ(長谷川)			1	1			1	1
計	160(2)* ² +3* ¹	163	78	83	66	63+3* ³	304(7)* ² +3* ¹	309+3* ³

*¹ 前年度残分, *² 補助配分, *³ 次年度繰上げ実施分

第2表 保守状況

	前期		後期(前)		後期(後)		昭和54年度	
	割当	実施	割当	実施	割当	実施	割当	実施
工事及予備日	46	27	20	18.5	21	23	67	68.5* ¹
定期点検	6	6	6	5	5	5	17	16
マシン停止日	6	22* ²	5	9	2	2	13	33

*¹ 第3表参照*² 夏期節電のため

第3表 昭和54年度の運転状況

項目	月													合計
	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3		
稼働時間(hr) (実験使用時間)	410	310	326	300	57	366	324	342	297	182	268	274	3,456hr	
故障修理時間 (hr)	5	6	5	7	5	5	8	95	5	6	105	11	約83hr	
定期点検日数	1	1	1	1	1	1	2	2	1	1	2	2	16日	
真空リークによる 中止日数 (修理日数含)		1	2				2	35		1	1	1	11.5日	
電源・パルサー 関係による中 止日数		1	1	1				1		1		3	8日	
工事・その他	1	4	7		8	1	6	1	5	8	4	4	49日	

データ処理装置稼動状況

核理研計測グループ

小山田正幸・窪田健雄・佐藤正幸

本村智雄・武藤正勝

§ 1. データ処理装置

オンラインデータ集積装置（O-4500），及びリモートバッチ（O-50）の昭和54年度用途別利用実績を第1表に示す。

第1表 昭和54年度・用途別利用実績表

（単位：時間）

機種名 用途 月	OKITAC-4500				OKITAC-50			
	オンライン データ 集積	オフライン データ 処理	保 守 故 障	月 合 計	オンライン リモート バッチ	オフライン データ 処理	保 守 故 障	月 合 計
4	360	3	42	405	7	119	5	131
5	289	39	57	385	5	166	0	171
6	287	35	31	353	1	149	4	154
7	252	0	90	342	0	117	8	125
8	93	67	138	298	0	140	5	145
9	342	40	43	425	1	135	0	136
10	261	3	2	266	0	305	1	306
11	230	5	1	236	4	194	4	202
12	318	1	2	321	1	221	2	224
1	205	10	31	246	4	268	2	274
2	277	4	27	308	3	174	2	179
3	288	0	47	335	1	124	3	128
合 計	3,202	207	511	3,920	27	2,112	36	2,175
月 平 均	266.8	17.3	42.6	326.7	2.3	176	3	181.3
%	81.7	5.3	13.0	100.0	1.2	97.1	1.7	100.0

この表を見て目につくのは、O-4500の保守故障時間の大幅増である。これは6～8月にかけてND用の新しいインターフェース増設した為の調整時間と、1～3月に発生したP I Oの故障によるものである。P I Oの故障は長時間データを集積した場合や、データ量の多少にも関係した為復旧に時間がかかり研究者（特にND関係）の皆様には大変御迷惑をおかけいたしました。現在調整が終り正常に稼動しております。今後の事につきましては予算等の問題もありますが何等かの手当をするように検討を進めております。

オンラインについてはマシンタイム増により約1000時間増の3200時間となり、オフライン処理は大幅減の200時間となっています。

O-50についてはオフライン処理が若干増えていますが、大きな問題もなく順調に稼動しています。

（窪 田）

核理研研究報告 第13巻 第1号

1980年6月発行

発行所 東北大学理学部附属原子核理学研究施設
仙台市三神峯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 13 Number 1 June 1980

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