

ISSN 0385-2105

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 究 報 告

第14卷 第1号

1981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14巻 第1号 目次

I 原子核物理

- I-1 180° 電子散乱による ^{90}Zr の巨大共鳴…………… 1
(核理研, 静岡大教養*)
萩野 秀夫, 堀田 明男*, 寺沢 辰生, 水野 義之
斎藤 健治, 守 和彦, 小山田正幸, 鳥塚 賀治
- I-2 (γ, π^+) 反応を用いた π 中間子凝縮の前臨界現象の研究(II) …… 7
(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-3 $^{10}\text{B}(e, \pi^+)^{10}\text{Be}$ 反応(II) …… 15
(核理研, 教養部*)
山崎 正晴, 取越 正己, 佐々木 修, 坪田 博明*,
庄田 勝房
- I-4 $^{13}\text{C}(e, \pi^+)^{13}\text{B}_{g.s.}$ 反応…………… 21
(核理研, 教養部*, RPI**, MIT***)
山崎 正晴, 取越 正己, 佐々木 修, 坪田 博明*,
庄田 勝房, K. Min**, E. J. Winhold**,
A. M. Bernstein***
- I-5 ^{14}N の (e, d_0) 及び $(e + \gamma, d_0)$ 反応…………… 28
(山形大教養, 核理研*, 教養部**, 理学部物理***)
種市 宏, 上野 博昭, 加藤 静吾, 庄田 勝房*
川添 良幸**, 塚本 龍男***

II 物性物理

- II-1 T-O-F Pulsed Neutron Diffraction of Pure Vitreous TeO_2
Prepared by Rapid Melt-Quenching…………… 33
(金 研) 上野 光明, 三沢 正勝, 鈴木 謙爾

II-2	On the Nearest Neighbor Ge-O Correlation in Na ₂ O-GeO ₂ Glasses by Pulsed Neutron Total Scattering.....	38
	(金 研) 上野 光明, 三沢 正勝, 鈴木 謙爾	
II-3	Fe _{3-x} Mn _x Si 固溶体の結晶構造.....	44
	(1.8 ≤ x ≤ 3)	
	(金 研) 大橋 正義, 富吉 昇一	
II-4	パルス中性子偏極とTOF偏極中性子回折.....	50
	磁気鏡による中性子偏極の研究	
	(理学部物理)	
	佐々木幸男, 小野 一志, 遠藤 康夫	
III 放射化学		
III-1	¹¹¹ Inおよび ^{111m} Cdカスケードγ線によるサムピークの生成と 物質状態による影響.....	55
	(理学部化学)	
	吉原 賢二, 三好 達朗, 鈴木 洋子, 鍛冶 東海	
III-2	¹⁸ F標識フッ化アルキルの簡易調製法.....	62
	(核理研, 理学部化学*)	
	八木 益男, 伊澤 郡蔵*, 村野 宜史*	
III-3	生物体中のジルコニウムの光量子放射化分析.....	67
	(東京都神経科学総合研, 教養部)	
	佐藤 武雄, 加藤 豊明	
III-4	リン鉱石の非破壊多元素光量子放射化分析.....	73
	(理学部化学)	
	鈴木 信男, 半澤 和文, 榎本 和義	
III-5	中性吸着剤ならびにイオン交換樹脂に対するチオトロポロンと その金属錯体の吸着挙動.....	83
	(理学部化学)	
	山下美智子, 鈴木 信男	

III-6	Effect of Trace Amounts of Chlorine on the Photoluminescence of Zinc Selenide	92
	(工学部金属材料)	
	佐藤 史朗, 一色 実, 古川 研, 永野 貢, 荒川 高治, 井垣 謙三	
III-7	アルミニウム中でのMnの不純物拡散.....	97
	(工学部金属材料) 藤川辰一郎	
IV 加速器・測定器		
IV-1	150 MeV電子パルスビーム・ストレッチャーの電磁石磁場測定	107
	(核理研)	
	吉田 克久, 笹沼 東一, 玉江 忠明, 山田 和芳, 菅原 真澄	
IV-2	アルミニウム合金真空チェンバーの電子ビーム照射効果.....	113
	(高工研, 核理研*)	
	石丸 肇, 今野 收*	
V 加速器・データ処理装置稼動状況		
V-1	昭和55年度マシン報告.....	119
	(核理研マシングループ)	
	浦澤 茂一, 今野 收, 一戸 隆, 栗原 亮, 根本 重伸, 柴崎 義信	
V-2	データ処理装置稼動状況.....	122
	(核理研計測グループ)	
	小山田正幸, 窪田 健雄, 佐藤 正幸, 武藤 正勝, 金森 浩	

I. 原 子 核 物 理

180° 電子散乱による ^{90}Zr の巨大共鳴

核理研，静岡大教養*

荻野秀夫・堀田明男*・寺沢辰生

水野義之・斎藤健治・守 和彦

小山田正幸・鳥塚賀治

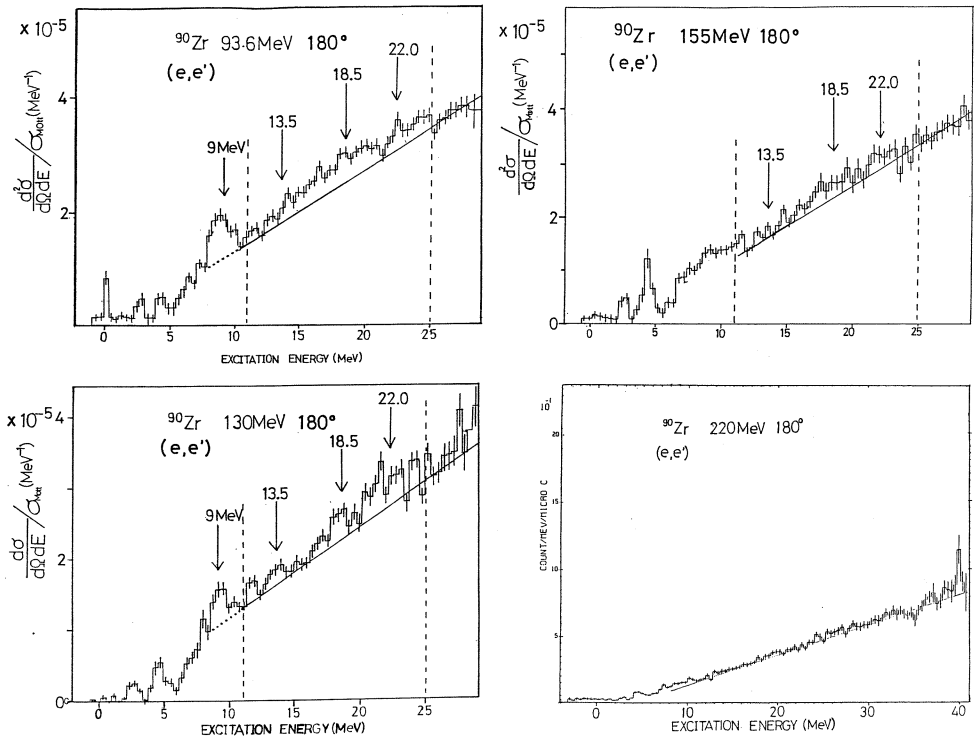
§ 1. はじめに

アイソスカラー-E1, E2, アイソベクターのE2などの巨大共鳴は、核種に依らず系統的に存在する事が知られている。これらの巨大共鳴は、巨視的には陽子集団と中性子集団が互いに同位相あるいは逆位相で相対的に振動する共鳴状態と考えられる。一方、この振動のモードにスピンの自由度を加え、スピン上向き、スピン下向きの核子集団の相対的振動として理解される様な、スピンに依存した巨大共鳴の存在に対しては、未だ確証が得られていない。今回の実験では、180°電子散乱の測定を ^{90}Zr の巨大共鳴領域について行い、スピンに依存した巨大共鳴に対する検討を行った。

§ 2. 実 験

実験には180°電子散乱装置を用いた。標的は ^{90}Zr (厚さ44.6 mg/cm²及び61.6 mg/cm² 純度97.5%)の金属板である。入射電子エネルギーは、93.6 MeV, 130 MeV, 155 MeV, 220 MeVで、有効運動量移行 q_{eff} は各々、1.01 fm⁻¹, 1.38 fm⁻¹, 1.68 fm⁻¹, 2.29 fm⁻¹に対応する。又、断面積の絶対値の規格化には、ポリエチレンターゲット中の ^1H の弾性散乱ピークを用いた。180°電子散乱実験装置及びシステムのチェックについては、文献1に詳しい説明がある。

第1図に今回得られた散乱電子スペクトルを示す。解析は、励起エネルギー9 MeVに見られるピークと、より高い励起エネルギーの領域(11 MeV~25 MeV)に分けて行なった。



第1図 ^{90}Zr の入射電子エネルギーが、それぞれ $E_0 = 93.6, 130, 155, 220$ MeV, 散乱角は 180° である。ただし $E_0 = 220$ MeV は、励起エネルギー ~ 40 MeV まで表示し、規格化は行っていない。

§ 3. 励起エネルギー 9 MeV

励起エネルギー 9 MeV 付近のピークは、散乱角 165° での電子散乱実験が Darmstadt²⁾ でも行われている。運動量移行の比較的小さいところで高分解能であるその測定では、8 MeV \sim 10 MeV に多くの 2^- レベルが観測されている。今回の 180° 電子散乱では同領域に 9 MeV を中心とする単一のピークが測定された。

その形状因子を求めるために、第1図に示した様に連続状態からの寄与を直線と見なして差し引いた。第2図に 9 MeV の形状因子を示す。

又、核理研において以前行われた散乱角 155° の実験³⁾ から求めた値も同時に示してある。ただし、 155° におけるデータでは縦成分からの寄与を Rosenbluth 法により差し引いている。実線は、Suzuki⁴⁾ によるスピン・アイソスピンモードの M2 巨大共鳴の理論曲線である。実験値に合わせるために理論値を $1/3$ 倍してある。Suzuki は、スピン依存の電磁氣的励起に対

する総和則 (EWSR) を導き、転移スピン密度を基底状態の核の密度分布 $\rho_0(r)$ で表している。

$l = 1$ では

$$\langle 0 | \rho_\sigma(\vec{F}) | \omega_\lambda^q \rangle = -\frac{4\pi}{3A} \langle 0 | \hat{F}(\lambda, 1) | \omega_\lambda^q \rangle \left(\frac{d\rho_0(r)}{d(r)} \right) i^{2-\lambda} \vec{Y}_{\lambda 1}, \quad (1)$$

$$\hat{F}(\lambda, l) = i^{l+1-\lambda} \sum_{k=1}^A \vec{\sigma}(k) r_k^l \vec{Y}_{\lambda l}(\Omega_k) \tau_3(k) \quad (2)$$

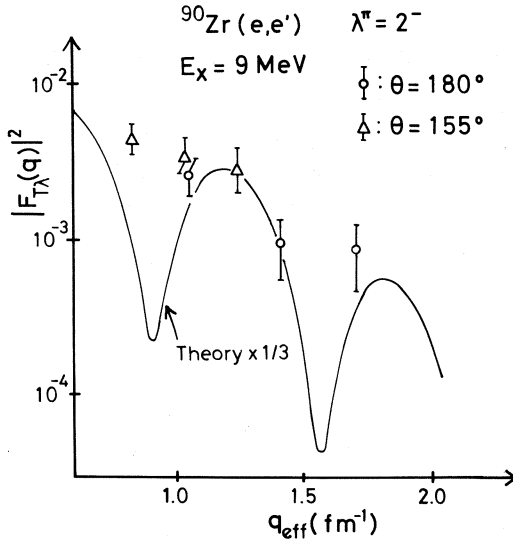
$$\text{ここで} \quad \lambda = l-1, l, l+1 \quad (3)$$

である。

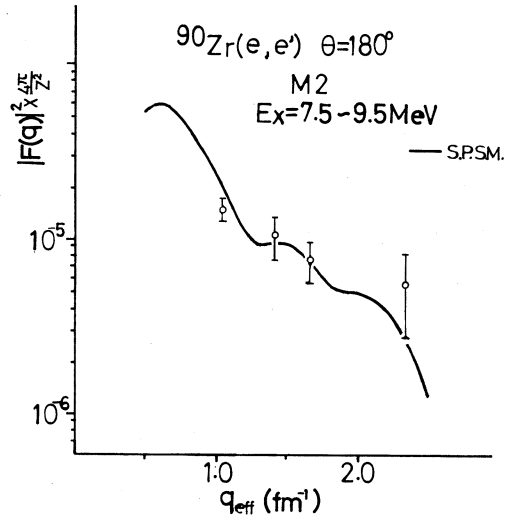
理論計算は、基底状態の電荷分布 $\rho_p(r)/Z \approx \rho_0(r)/A$ とし、(1)式を用い歪曲波ボルン近似で行った。 $\rho_p(r)$ は3パラメーターガウス分布

$$\rho_p(r) = \frac{1 + wr^2/c^2}{1 + \exp[(r^2 - c^2)/z^2]} \quad (4)$$

を用いた。パラメーター w, c, z は、 $w = 0.35, c = 4.43$ (fm), $z = 2.53$ (fm) を用いた⁵⁾



第2図 励起エネルギー 9 MeVに見られるピークの形状因子。実線は、スピン・アイソスピンモードの $l = 1, \lambda^\pi = 2^-$ (M2) の計算値。散乱角 $\theta = 155^\circ$ の実験値は、文献3による。



第3図 励起エネルギー 7.5 MeV~9.5 MeV の形状因子。実線は、この領域に予想される単一粒子模型のM2励起に対するすべての計算値を足し合せたもの。

この結果は四流体模型⁶⁾におけるスピン・アイソスピンモードの励起と同等なものであり、電子散乱の横成分形状因子 $F_{T\lambda}(q)$ は $\lambda^\pi = 1^-$ と $\lambda^\pi = 2^-$ と同じ q 依存性を示す。そのため、この

理論を用いる限り、M2 からスピンの依存する E1 の寄与を形状因子の q 依存性で分離することはできない。しかし、M2 が主な寄与であると仮定しても、第 2 図から解る様に M2 は総和則の 30% 程度であり、励起エネルギー 10 MeV 以上の領域に M2 強度の大部分 ($\approx 70\%$) が存在すると言う RPA の理論的予想⁷⁾と矛盾しない。

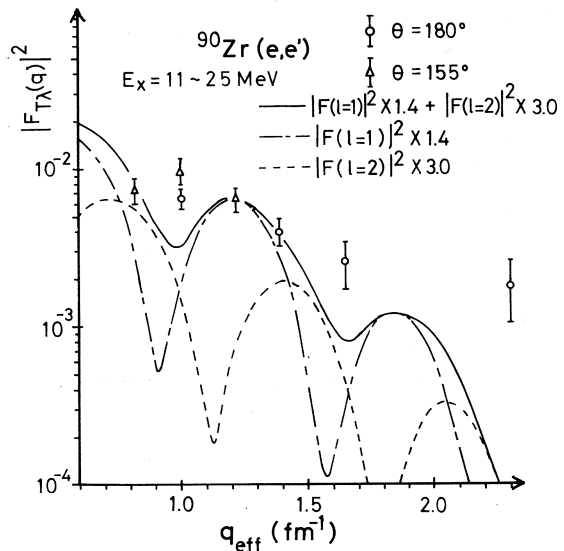
次に、調和振動子単一粒子模型による計算値との比較を第 3 図に示す。

実験的な形状因子は、第 2 図に示した方法とは異なり、次の様な解析から求めた。共鳴に関与するエネルギー範囲を 7.5 ~ 9.5 MeV とし、連続状態からの寄与をパラボラ型 $a\sqrt{E_x + b} + cE_x$ を使って差引いた。一方理論曲線は、この励起エネルギー間隔に予想される単一粒子転移における M2 成分をすべて足し合せたものである。単一粒子準位は文献 2, 8 を参照した。用いた転移は、 $(1f_{7/2}^{-1}, 1g_{9/2})$, $(1f_{5/2}^{-1}, 1g_{7/2})$, $(2p_{3/2}^{-1}, 2d_{5/2})$, $(2p_{1/2}^{-1}, 2d_{3/2})$, $(2p_{3/2}^{-1}, 1g_{7/2})$, $(2p_{3/2}^{-1}, 2d_{3/2})$ である。実験点との一致は比較的良好と言える。

§ 4. 励起エネルギー 11 MeV ~ 25 MeV

励起エネルギー 11 MeV ~ 25 MeV の領域に対する断面積の和を取った形状因子を第 4 図に示す。

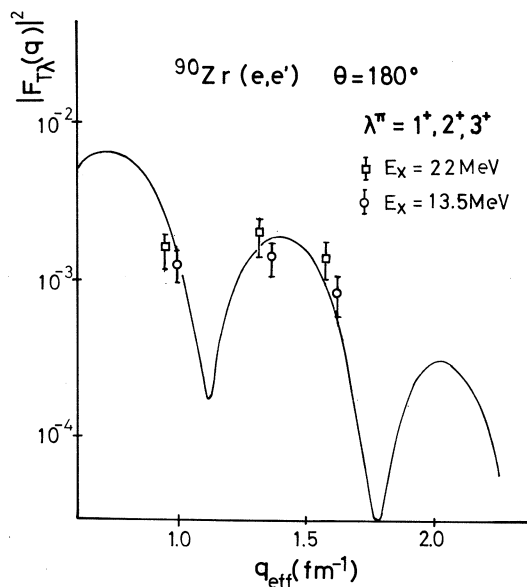
連続状態からの寄与は、第 1 図に示す様な直線で仮定した。これは主に準弾性散乱による断面積と考えられる。直線による近似は、第 1 図の入射電子エネルギー 220 MeV のデータに見られる様に十分妥当であると思われる。又、最近、核理研で行なわれた後方電子散乱における ^{90}Zr の横成分準弾性散乱の測定でも、励起エネルギーの比較的低い領域では、フェルミ気体模型から予想する様に直線的に増加する断面積が得られている。⁹⁾ 第 4 図における散乱角 155° の実験値は文献 10 に依る。



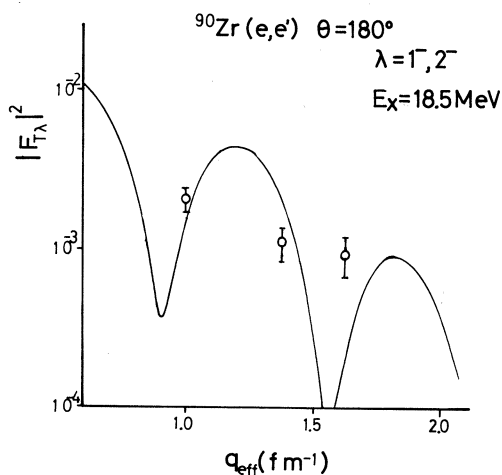
第 4 図 励起エネルギー 11 MeV ~ 25 MeV 領域の直線で仮定した連続状態の上にある断面積の和の形状因子。実線はスピン・アイソスピンモードの $l=1$ 及び $l=2$ の計算値。散乱角 $\theta = 155^\circ$ の実験値は、文献 10 による。

実線は、Suzukiによるスピン・アイソスピンモード、 $l=1$ ($\lambda^\pi=1^-$, 2^-)と、 $l=2$ ($\lambda^\pi=1^+$, 2^+ , 3^+)の寄与で、実験値を説明したものである。前述の様に 1^- と 2^- は、形状因子の q 依存性で区別する事ができない。同様に 1^+ , 2^+ , 3^+ ($l=2$)も q 依存性からは区別できない。第4図中の理論値に対する倍率は、 $l=1$ では 2^- (M2)が、 $l=2$ では 1^+ (M1)のみが存在すると仮定した場合の因子である。各多重極度がそれぞれ同等に励起されていると仮定すれば、 1^- , 2^- は各々総和則の $\sim 70\%$ 、 1^+ , 2^+ , 3^+ は各々総和則の $\sim 30\%$ 程度を尽くしていると考えられる。

この領域には第1図に見られるように、励起エネルギー13.5 MeV, 18.5 MeV, 22 MeVを中心とした共鳴ピークが存在する。そこでBreit-Wigner型の共鳴曲線を用いてピーク分離を行った。その結果、第5図に示す様に q 依存性から、励起エネルギー $E_x=13.5$ MeV, 22 MeVの共鳴にはアイソスピ



第5図 $E_x=13.5$ MeVと22 MeVのピークの形状因子。実線はスピン・アイソスピンモードの $l=2$ の計算値。



第6図 $E_x=18.5$ MeVのピークの形状因子。実線はスピン・アイソスピンモードの $l=1$ の計算値。

ン・スピンモードの $l=2$ (M1, E2, M3)の寄与があると考えられる。一方 $E_x=18.5$ MeVの共鳴には $l=1$ (E1, M2)の寄与があると考え得る。又それぞれのピークの幅はFWHMで $\Gamma \approx 2.0$ MeV ($E_x \approx 13.5$ MeV), $\Gamma \approx 2.3$ MeV ($E_x \approx 18.5$ MeV) $\Gamma \approx 2.7$ MeV ($E_x \approx 22$ MeV)である。

§ 5. ま と め

^{90}Zr の 180° 電子散乱の実験結果と主にスピンアイソスピンモードの巨大共鳴と言う集団運動的な模型との比較を行った。励起エネルギー 9 MeV のピークには、スピン・アイソスピンモードの $M2(2^-)$ の寄与が、励起エネルギー 11 MeV 以上の領域には、スピン・アイソスピンモードの $l=1(1^-, 2^-)$, $l=2(1^+, 2^+, 3^+)$ の寄与が存在する。全体として実験値は、単独の多重極による理論的予想よりも滑らかな q 依存性を示す。これは、より高い多重極度の混入の結果とも考えられるが、アイソスピン・スピンモードでは持ち込まれない電導電流の寄与が有るのかもしれない。ただしその寄与は低い q で大きいと思われる。又 9 MeV のピークに対しては、独立粒子模型との比較も行った。この場合、電導電流成分も含まれているが、一般に磁化電流成分の寄与が大きく、電導電流の寄与は $q \lesssim 1\text{ fm}^{-1}$ で問題となる程度である。

参 考 文 献

- 1) 烏塚賀治他：核理研研究報告 **10** (1977) 177.
- 2) D. Meuer and R. Frey *et al.* : Nucle. Phys. **A 349** (1980) 309.
- 3) 大沢 哲 他：核理研研究報告 **11** (1978) 183.
- 4) T. Suzuki : Phys Lett. **83 B** (1979) 147.
- 5) L. A. Fajardo *et al.* : Phys. Lett. **37 B** (1971) 363.
- 6) R. Raphael, H. Überall and C. Werntz : Phys. Rev. **152** (1966) 899.
- 7) V. Ju. Ponomarev *et al.* : Nucle. Phys. **A 323** (1979) 446.
- 8) D. Vautherin and D. M. Brink : Phys. Rev. **C 5** (1972) 626.
- 9) 水野義之：private communication.
- 10) 大沢 哲：学位論文 東北大学(1980).

(γ , π^+) 反応を用いた π 中間子凝縮の前臨界現象の研究 (II)

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. 序

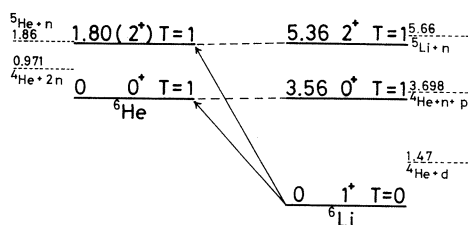
近年行なわれている有限系の核物質での π 中間子凝縮の研究によると, π 中間子凝縮の臨界密度 (ρ_c) は, 通常の原子核の密度 (ρ_0) よりもかなり高いという一般的な結論である。このように ρ_c が, ρ_0 よりもかなり高いとしても, 通常の原子核で π 中間子凝縮の前臨界現象

(critical opalescence, precursor など) が観測される可能性がある。(e, π), (γ , π) 反応に関してもこのような前臨界現象が観測されるという報告がなされている¹⁻³。このような現象を調べるのを主目的に ${}^6\text{Li}$ (e, π^+) ${}^6\text{He}$ (g. s., 1st) の実験を行なった。 ${}^6\text{He}$ の基底状態への転移は M1 転移, 第 1

励起状態への転移は M1, E2, M3 転移である (第 1 図)。実験は仮想光子理論により (γ , π^+) 反応に焼き直される。以前の号⁴) に引き続き, 今回は入射電子エネルギー E_e (測定角度)

を 180 MeV (30°, 90°, 150°), 170 MeV (30°, 60°, 90°) での実験データを加えて議論する。実験方法

及び解析方法については, 参考文献 4, 5 に詳しい。また 1974 年に行なわれた $E_e = 180$ MeV でのデータ⁶) についても再解析を行なった。



第 1 図 ${}^6\text{Li}$ (γ , π^+) ${}^6\text{He}_{\text{g.s.}; 1\text{st}}$ に関するレベルスキーム。破線は isobaric analog の関係を示す。

§ 2. 理 論

(γ , π^+) 反応の記述には一般に歪曲波インパルス近似 (DWIA) が用いられる。インパルス近似を用いると (γ , π^+) 反応の微分断面積は,

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right) = \frac{p}{k m_n^2} e^2 f^2 \frac{1}{2J_i + 1} \sum_{M_i M_f} \sum_{\lambda} | \langle J_f M_f | \mathcal{A} | J_i M_i \rangle |^2 \quad (1)$$

$$\mathcal{A} = \sum_{i=1}^A \phi_{\pi}^* (\vec{r}, \vec{p}) \vec{j}^5 \cdot \vec{\varepsilon}_{\lambda} \exp (i \vec{k} \cdot \vec{r}) \tau_i^{\pm} \quad (2)$$

となる。ここで k , p は入射光子エネルギー及び放出 π 中間子運動量, ϕ_{π} は π 中間子の波動関数, $t = \vec{j}^5 \cdot \vec{\varepsilon}_{\lambda}$ は核子からの π 中間子光発生の素過程振幅, ε_{λ} は光子の偏極ベクトル, τ_i^{\pm} はアイソスピン昇降演算子であり, $\sum_{i=1}^A$ は核子についての和を示す。素過程振幅は Chew-Goldberger-Low-Nambu (CGLN)⁷⁾, Berends⁸⁾, Blomqvist-Laget (BL)⁹⁾ らによって求められている。原子核内で発生した π 中間子は, 十分遠方に飛び出す前に原子核を構成する核子によって散乱されたり吸収されたりする。このような効果が終状態相互作用 (FSI) であり, 光学ポテンシャル (π 中間子の波動関数 ϕ_{π} の歪曲) として計算に導入される。このような光学ポテンシャルのパラメータは, 普通は実験に最適化することによって決定される。このような実験としては, π 中間子運動エネルギー $T_{\pi} \geq 50$ MeV の領域では近年蓄積されつつある原子核による π 中間子弾性散乱である。しかし $T_{\pi} < 50$ MeV の領域においてはこのような実験はほとんどない。しかし Stricker-McManus-Carr (SMC)¹⁰⁾ によると $T_{\pi} < 50$ MeV の領域ではパラメータはほぼ一定であり, 彼らは π 中間子原子の実験データより外挿してこのパラメータを得ている。原子核の波動関数に関しては, ${}^6\text{Li}$ ではエネルギー・レベルを最適化することによって得られている Cohen-Kurath の波動関数 (CK)¹¹⁾, Barker の波動関数²⁾, 電子散乱の形状因子, radiative width, 磁気双極子モーメント, 電気4重極モーメントなどに最適化することによって得られている Donnelly-Walecka の波動関数 (DW, STANHO)³⁾ Cammarata-Donnelly の波動関数 (STANWS)¹⁴⁾, Bergstrom の波動関数 (Sask A~D)¹⁵⁾ などがある。

素過程振幅を Kroll-Ruderman 項で近似できるとし ($t \propto \vec{\sigma} \cdot \vec{\varepsilon}$)¹⁶⁾, π 中間子の波動関数として平面波をとると ($\phi_{\pi} \sim \exp (i \vec{k} \cdot \vec{r})$), (1), (2)式は,

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right) = \frac{p}{k m_{\pi}^2} e^2 f^2 \frac{1}{2J_i + 1} \sum_{M_i M_f} \sum_{\lambda} | \vec{\mathcal{A}} (\vec{q}) \cdot \vec{\varepsilon}_{\lambda} |^2 \quad (3)$$

$$\vec{\mathcal{A}} (\vec{q}) = \langle J_f M_f | \sum_{i=1}^A \vec{a}_i \tau_i^+ \exp (i \vec{q} \cdot \vec{r}) | J_i M_i \rangle \quad (4)$$

となる。ここで

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right) \times \frac{k}{p} \propto \sum_{M_i M_f} \sum_{\lambda} | \vec{\mathcal{A}} (\vec{q}) \cdot \vec{\varepsilon}_{\lambda} |^2 \quad (5)$$

となり、(5)式は運動量移行 \vec{q} のみの関数となる。Kohmuraは、無限核物質系で前臨界現象を考えた計算を行なった。¹⁾ これによると(4)式は

$$\vec{\mathcal{M}}_{\text{eff}}(\vec{q}) = \vec{\mathcal{M}}(\vec{q}) / \varepsilon(q) \quad (6)$$

のように dimesic function ε を用いて修正される。従って

$$\eta^2(q) = 1 / \varepsilon^2(q) = |\vec{\mathcal{M}}_{\text{eff}}|^2 / |\vec{\mathcal{M}}|^2 \approx \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{exp}} / \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{theory}} \quad (7)$$

となる。ここで $\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{exp}}$ は実験値、 $\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{theory}}$ は前臨界現象を考えない理論値である。

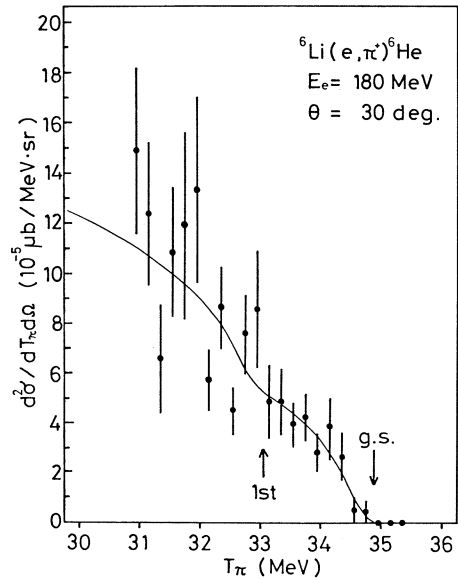
§ 3. 結果及び考察

実験で得られた (e, π^+) 反応による放出 π^+ 中間子のエネルギー・スペクトルの例を第2図に示す。矢印はそれぞれ ${}^6\text{He}$ の基底状態、第1励起状態からの π^+ 中間子放出による崩壊チャンネルが開ける位置を示す。

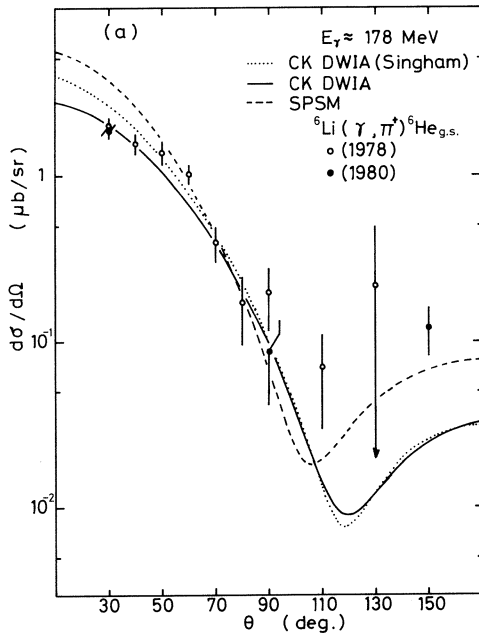
3.1 基底状態($1^+ \rightarrow 0^+$, M1)

$E_e = 180\text{MeV}$ での ${}^6\text{Li}(r, \pi^+)$
 ${}^6\text{He}_{\text{g.s.}}$ 反応の微分断面積を第3 a, b
図に示す。また(5)式のように170, 180,
195 MeV での微分断面積に k/p を掛けて q のみの関数と近似してプロットしたものを第4図に示す。理論計算は単一粒子殻
模型(SPSM)によるPWIA(Kroll-Ruderman 項のみ), Ohtsubo 計算コードによるDWIA¹⁷⁾(動径波動関数としては調和振動子)を行なった。DWIA に関

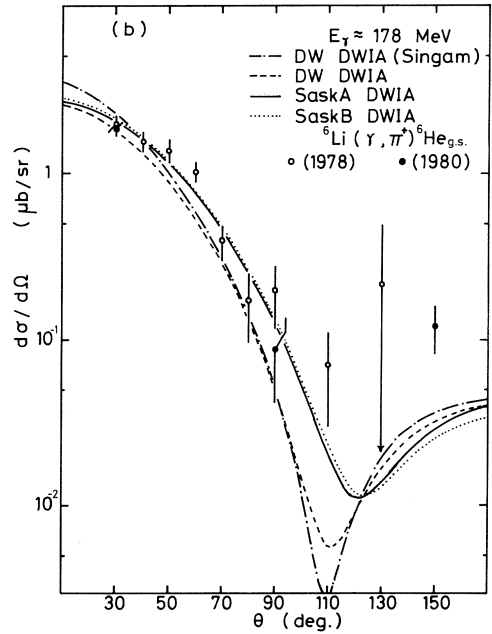
しては、波動関数としてCK, SaskA, B, DWを用い、光学ポテンシャルはSMC, オペレータとしては π 中間子運動量 p の2乗の項を除くCGLNを用いた。またSinghamらは入射



第2図 ${}^6\text{Li}(e, \pi^+){}^6\text{He}$ による π^+ エネルギー・スペクトル。実線は仮想光子スペクトルに解析で得られた (r, π^+) 反応微分断面積をかけたもの。



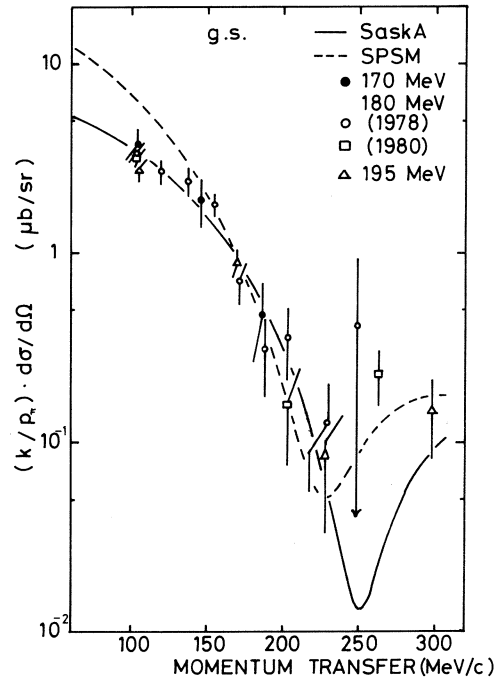
第3図(a) ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}_{g.s.}$, $E_e = 180\text{ MeV}$ の実験値及び計算値。



第3図(b) ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}_{g.s.}$, $E_e = 180\text{ MeV}$ の実験値及び計算値。

光子エネルギー 180 MeV で DWIA の計算を行なっている。¹⁸⁾ 彼らは波動関数として CK と DW, 光学ポテンシャルは SMC, オペレータは BL を用いている。これらの理論値を第 3 a, b 図及び第 4 図に示す。CK, DW, SaskA の波動関数を用い, 動径波動関数として調和振動子によるものを用いた電子散乱による磁気的形狀因子の平面波ボルン近似 (PWBA) の計算を第 5 図に示す。

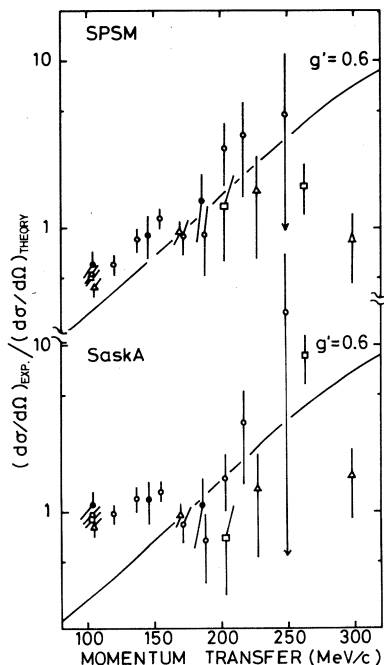
DWIA の計算は, 各波動関数共に前方 (小さい q 領域) においてはほぼ実験値を再現している。DW, Sask A, B の波動関数を用いた大きい値付近での (γ, π^+) 反応全断面積の DWIA による計算結果は,



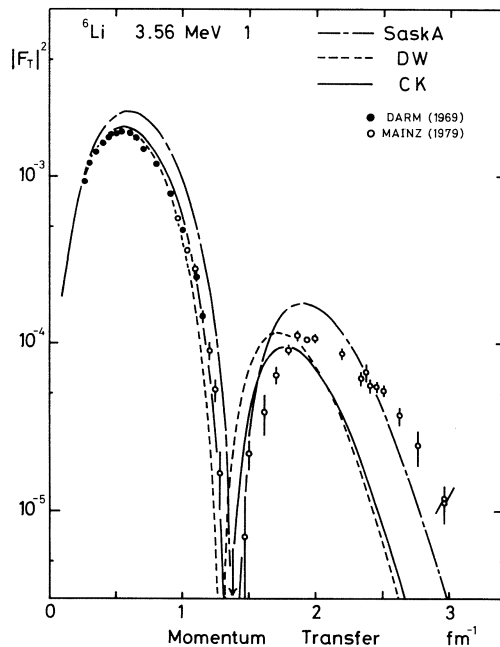
第4図 ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}_{g.s.}$ について実験値, 理論値に (k/p) を掛けてプロットしたもの。

実験値をよく再現している。また muon capture, radiative pion capture, β 崩壊等の実験値との一致もよい。^{13-15, 19}これらの反応は、小さい q で起こる反応である。このことは、我々の実験と DWIA の計算値が小さい q 領域（前方）でよく実験を再現していることに対応していると思われる。また、オペレータとして Kroll-Ruderman 項のみを用いた DWIA の計算は、CGLN を用いた計算とあまり変わりはないことがわかった。

以上のように理論計算は SPSM を除いて小さい q 領域（前方）ではよく実験値を再



第6図 ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}_{g.s.}$ に関して実験値を理論値 (SPSM, SaskA を用いた DWIA) で割ってプロットしたもの。実線は Kohmura による $g' = 0.6$ での前臨界現象を考えた計算。



第5図 電子散乱による磁氣的形状因子の実験値及び SaskA, DW, CK の波動関数を用いた PWBA の計算値。

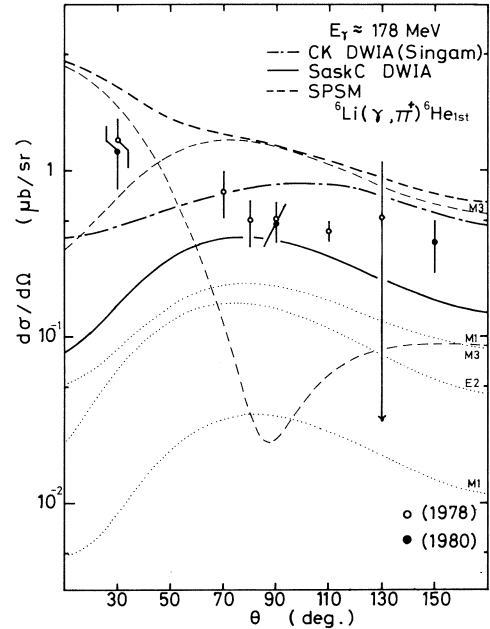
現するが、大きい q 領域（後方）では実験値よりも小さく出る。この傾向を Kohmura の前臨界現象を考えた理論と比較する。Kohmura が(7)式の $\eta^2(q)$ を $g' = 0.6$ (g' は Landau パラメータ) で計算した値と実験値を比較すると第6図のようになる。上は実験値と SPSM との比であり、下は実験値と SaskA を用いた DWIA との比である。前臨界現象を考えた理論は、実験値のだいたいの傾向を示していると思われる。しかし Kohmura が行なった計算は無限核物質系の計算であり、また同様の理論を用いて電子散乱の磁氣的形状因子をも説明できるかどうかは不明である。また芯偏極、中間子交換流、Cluster 構造などによる説明も否定できない。従って、現段階

では ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}_{\text{gs}}$ 反応における前臨界現象の有無を結論づけることは困難であると思われる。

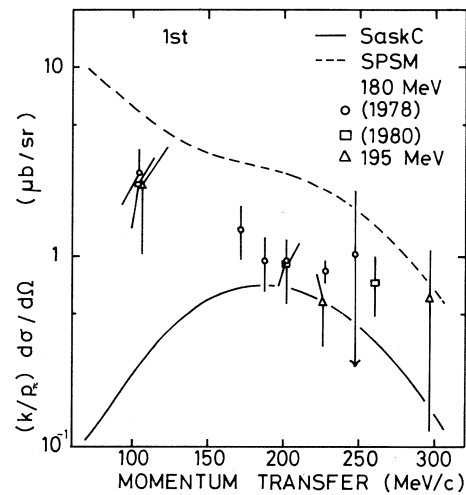
3.2 第1励起状態 ($1^+ \rightarrow 2^+$, M1, M2, M3)

$E_e = 180 \text{ MeV}$ での ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}_{1\text{st}}$ 反応の微分断面積を第7図に示す。また(5)式のように180, 195 MeVでの微分断面積に k/p を掛けて q のみの関数と近似してプロットしたものを第8図に示す。理論計算は、3.1と同様にSPSMによるDWIA及び波動関数としてSask Cを用いたDWIAを行なった。Singhamら¹⁸⁾は入射エネルギー180 MeVでのCKの波動関数を用いたDWIAの計算を行なっている。これらの理論値を第7図, 第8図に示す。またSask Cを用いた動径波動関数として調和振動子によるものを用いた電子散乱による磁氣的形状因子のPWBAの計算を第9図に示す。

SPSMは他の計算と比較してもっとも実験値を再現しているように思われるが、これは $1p_{3/2} \rightarrow 1p_{3/2}$ の転移ではE2の成分は出て来ず、またM1の成分が大きいためによるものである。DWIAの計算は実験値とは非常に異なり、実験値は理論値と比べ数倍大きい。Sask Cを用いた ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}_{1\text{st}}$ 反応の全断面積の計算では、実験値に比べ20%小さく、radiative pion captureのDWIAの計算では capture rate は約70%実験値に比



第7図 ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}_{1\text{st}}$, $E_e = 180 \text{ MeV}$ の実験値及び計算値。

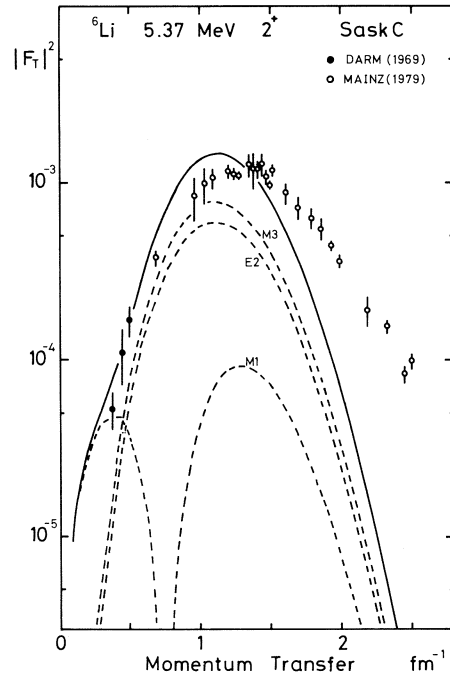


第8図 ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}_{1\text{st}}$ について実験値, 理論値に (k/p) を掛けてプロットしたものの。

べ大きな値を示し、 (r, π^+) と (π^-, r) では逆の傾向を示す。また計算による各成分の寄与は、電子散乱、 (r, π^+) 、 (π^-, r) 共におよそ $M1/E2/M3 \approx 0.1/1/1$ となり、このような傾向は電子散乱の実験値をよく再現する。しかし本実験データを再現するには $M1$ の成分を大きく入れなければならないことがわかる。このような原因としては、 ${}^4\text{He} + 2n$ 、 ${}^5\text{He} + n$ の quasi-free pion production が開けており、波動関数、実験解析の両面での問題が考えられる。実験解析においては、このような quasi-free pion production からのバックグラウンドは差し引いておらず、今後このようなバックグラウンドの理論的及び実験的評価が必要と思われる。

3.3 終状態相互作用 (FSI)

放出される π 中間子と原子核との FSI は、 π 中間子・原子核相互作用を記述する光学ポテンシャルとして DWIA の計算に導入される。このような FSI は π 中間子のエネルギーに依存するものと考えられる。我々の実験からこのような FSI の π 中間子エネルギー依存性がある程度わかると思われる。我々は $E_e = 170, 180, 195$ MeV 測定角度 30° で測定を行っている。これらの点での q はほとんど同じでおよそ 100 MeV/ c である。しかし放出 π 中間子の運動エネルギーはそれぞれおよそ $23, 33, 48$ MeVである。(5式のように微分断面積に k/p を掛けて q のみの関数としてプロットしたもの(第4図及び第8図)を見ると、3つの E_e 、測定角度 30° の実験点は誤差の範囲内でよく一致している。また E_e の違う実験値を q のみの関数としてプロットしてもスムーズにならんでいる。以上のように T_π が 50 MeV以下では、 π 中間子・原子核の FSI は T_π にあまり依存しないと思われる。我々が DWIA の計算で使用している光学ポテンシャル SMC は、 T_π が 50 MeV以下では、 T_π に依存せず π 中間子原子核のデータから外挿できるとして得ているものである。我々の実験は、この仮定と矛盾のない結果を与えていると思われる。



第9図 電子散乱による磁氣的形状因子の実験値及び Sask C の波動関数を用いた PWBA の計算値。

参 考 文 献

- 1) T. Kohmura : private communication.
- 2) J. Delorme : *Proc. Symp. Perspectives in Electro - and Photo - Nuclear Physics, 1980*, Nucl. Phys. **A 358** (1981) 73 c.
- 3) J. M. Eisenberg : Nucl. Phys. **A 355** (1981) 312.
- 4) 佐々木修他 : 核理研研究報告 **13** (1980) 45.
- 5) 佐々木修他 : 核理研研究報告 **13** (1980) 233.
- 6) 大橋英雄 : 博士論文 東北大学 (1978) ; 核理研研究報告 **11** (1978) 12.
- 7) G. F. Chew, M. L. Goldberger, F. E. Low and Y. Nambu : Phys. Rev. **106** (1957) 1345.
- 8) F. A. Berends *et al.* : Nucl. Phys. **B 4** (1967) 1 , *ibid* **B 4** (1967) 54.
- 9) I. Blomqvist and J. M. Laget : Nucl. Phys. **A 280** (1977) 405.
- 10) K. Stricker, H. McManus and J. A. Carr : Phys. Rev. C **19** (1979) 929.
- 11) S. Cohen and D. Kurath : Nucl. Phys. **73** (1965) 1.
- 12) F. C. Barker : Nucl. Phys. **83** (1966) 418.
- 13) T. W. Donnelly and J. D. Walecka : Phys. Lett. **44 B** (1973) 330 , Nucl. Phys. **A 258** (1976) 397.
- 14) J. B. Cammarata and T. W. Donnelly : Nucl. Phys. **A 267** (1976) 365.
- 15) J. C. Bergstrom *et al.* : Nucl. Phys. **A 327** (1979) 439 ; Phys. Rev. C **21** (1980) 2496 , *ibid* **22** (1980) 1809.
- 16) N. M. Kroll and N. A. Ruderman : Phys. Rev. **93** (1954) 233.
- 17) H. Ohtsubo : private communication.
- 18) M. K. Singham and F. Tabakin : private communication.
- 19) J. C. Bergstrom *et al.* : Nucl. Phys. **A 251** (1975) 401.

$^{10}\text{B} (e, \pi^+) ^{10}\text{Be}$ 反応(II)

核理研, 教養部*

山崎正晴・取越正己・佐々木修

坪田博明*・庄田勝房

仮想光子の理論を使って (e, π^+) 反応の測定結果より導出した $^{10}\text{B} (r, \pi^+) ^{10}\text{Be}$ 反応微分断面積の角分布を, 歪曲波インパルス近似による殻模型計算の結果と比較した。原子核の波動関数を適当に選べば, 残留核 ^{10}Be の基底状態への転移と第一励起状態への転移の両方とも, 理論値は実験値を再現することができる。

§ 1. はじめに

前号¹⁾において, われわれは $^{10}\text{Be} (e, \pi^+)$ 反応で放出された π^+ 中間子の角分布の測定結果と, 仮想光子の理論によりそれを (r, π^+) 反応の微分断面積へ変換した結果を報告した。[†]

今号では, 実験の結果を歪曲波インパルス近似 (DWIA) による計算の結果と比較する。今考えているエネルギー領域では, 現実的な素過程振幅と π -原子核光学ポテンシャルを用いた時, DWIA の計算結果は核構造を反映した情報即ち波動関数に敏感となる²⁾。ここでの計算に使う核の波動関数は, Cohen-Kurath の p 殻二体有効相互作用³⁾ より作られたものなので, 計算と実験の比較は, 関連した $A=10$ 系の準位がどの程度 Cohen-Kurath の描く p 殻核の平均像に近いものであるかのテストとなる。

§ 2. DWIA の計算

放出された π^+ の波動関数が, 残留核との間のクーロン相互作用と強い相互作用によって平面波から歪められるために, (r, π^+) 反応の記述には DWIA を使う必要がある。歪められ

[†] 文献 1 では, ^{10}Be の第一励起状態への転移に対する解析結果が誤まって与えられている。この報告に示されたものが正しい。

た π^+ 中間子の動径波動関数 $\phi_\pi(r)$ は, π -原子核の重心系で Klein-Gordon 方程式

$$(\nabla^2 + p_{\text{CM}}^2 - 2\bar{E}_\pi U(r) - 2\bar{E}_\pi V_C(r)) \phi_\pi(r) = 0 \quad (1)$$

を解くことによって得られる。ここに, V_C はクーロン・ポテンシャル, $(p_{\text{CM}}, iE_\pi^{\text{CM}})$ は重心系での π^+ の四元運動量, \bar{E}_π は π^+ の換算エネルギーである。強い相互作用を表わす光学ポテンシャル U は, 本質的には 1 核子による π^+ の散乱と核子対による π^+ の吸収に対応する項で表わされる。核子密度を $\rho(r)$, 陽子と中性子の密度差を $\rho'(r)$ として,

$$2\bar{E}_\pi U(r) = -4\pi [b(r) + p_2 B_0 \rho^2(r)] \\ + 4\pi \vec{p} \cdot [L(r)c(r) + \frac{1}{p_2} C_0 \rho^2(r)] \vec{p}, \quad (2)$$

ただし,

$$b(r) = p_1 [\bar{b}_0 \rho(r) - b_1 \rho'(r)], \\ c(r) = \frac{1}{p_1} [c_0 \rho(r) - c_1 \rho'(r)], \quad (3) \\ L(r) = [1 + \frac{4\pi}{3} \lambda \left(\frac{A-1}{A}\right) c(r)]^{-1}$$

である。ここに, p_1 と p_2 は π -核子系から π -原子核系への変換に伴う運動学的因子である。第(2)式のうち, $b(r)$ と $c(r)$ を含むカギ括弧はそれぞれ s 波と p 波の散乱, 吸収を表わす。また, $L(r)$ は核子間の矩距離相関の効果に起因し, Ericson-Ericson 因子と呼ばれる。第(3)式中の ρ' の項の符号を変えれば, π^- に対する光学ポテンシャルが得られる。正確を期すには第(2)式に更に重心変換に伴う補正項をいくつか入れなければならないが, その場合でも第(2)式同様パラメータ $b_0, b_1, B_0, c_0, c_1, C_0, \lambda$ が決まれば π -原子核光学ポテンシャルは決まってしまう。このパラメータの組は, π -核子散乱や π -原子核散乱などのデータを使って決められ, 既に何通りも発表されている。低エネルギー ($T_\pi = 0 - 50 \text{ MeV}$) の π 中間子に対しては, パラメータの値のエネルギー依存性は小さいことが示されている⁴⁾。そこで, ここでは π 中間子原子 ($T_\pi \approx 0$) のデータへのフィットから求められたパラメータを補正したもの⁴⁾ を使う。

光学ポテンシャルのパラメータの場合と同様に, DWIA の計算に用いる素過程 ($r + p \rightarrow \pi^+ + n$) の振幅にもいくつかのとり方がある^{5, 6, 7)}。どの素過程振幅をとるにしろ, π -核子重心系から実験室系への変換などの問題がまだいくらか残っているようである。ここでは, CGLN 振幅⁵⁾ から低エネルギー領域では効果の小さい $\vec{\sigma} \cdot \vec{p} \vec{p} \cdot \vec{\epsilon}$ 項を省略した形⁸⁾

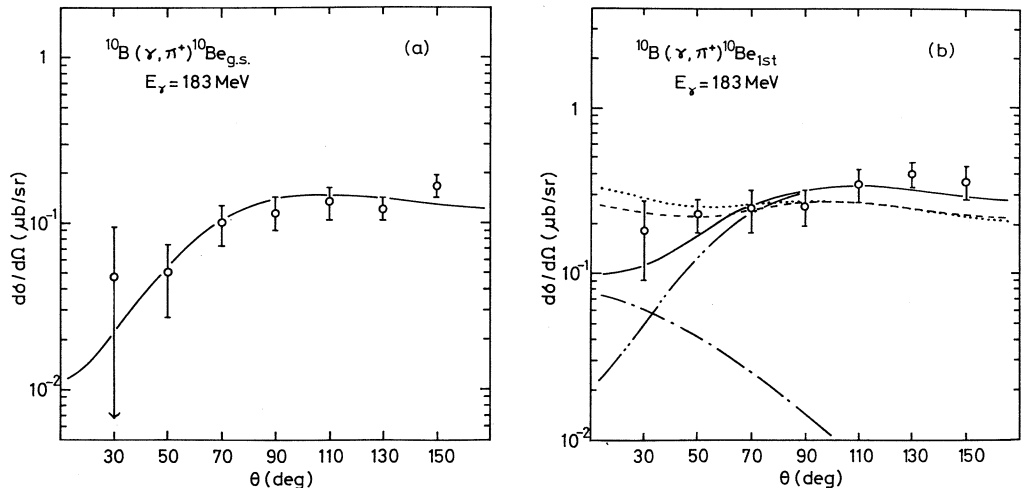
$$t_{\text{free}}(\vec{p}, \vec{k}) = 4\pi i \tau_+ [C^{(1)} \vec{\sigma} \cdot \vec{\epsilon} + i C^{(2)} \vec{p} \cdot \vec{k} \times \vec{\epsilon} + C^{(3)} \vec{\sigma} \cdot \vec{\epsilon} \vec{p} \cdot \vec{k} + C^{(4)} \vec{\sigma} \cdot \vec{k} \vec{p} \cdot \vec{\epsilon}] \quad (4)$$

を用いる。ただし、 τ_+ はアイソスピン上昇演算子、 \vec{k} と \vec{p} はそれぞれ光子と π^+ の運動量、 $\vec{\sigma}$ は核子スピン、 $\vec{\epsilon}$ は光子の偏極である。係数 $C^{(1)} - C^{(4)}$ は π -核子散乱の phase shift から導かれる⁹⁾。Roper らの phase shift¹⁰⁾ を使った時、

$$\begin{aligned} C^{(1)} &= 0.0261 + i 0.00132, \\ C^{(2)} &= 0.00743 + i 0.000472, \\ C^{(3)} &= -0.00140 - i 0.000071, \\ C^{(4)} &= 0.00937 + i 0.000245 \end{aligned} \quad (5)$$

である。

DWIA による計算のもう一つの入力は、原子核の波動関数である。質量数 10 の系については、中間結合殻模型による波動関数がいくつか発表されているが、ここでは Cohen-Kurath の二体有効相互作用 (8-16) POT, (8-16) 2BME, (6-16) 2BME から生成された 3 通りの波動関数を使う。これらの有効相互作用は、質量数 8-16 または 6-16 の範囲で、p 殻内配位だけで記述されると考えられる比較的低励起の準位の励起エネルギーに行列要素の値をフィットすることによって決められている。この有効相互作用から生成された波



第 1 図 $^{10}\text{B}(\gamma, \pi^+)^{10}\text{Be}$ 反応の微分断面積の実験値と理論値。(a) ^{10}Be の基底状態への転移 ($3^+ \rightarrow 0^+$)。 (b) ^{10}Be の第一励起状態への転移 ($3^+ \rightarrow 2^+$)。 (b) で使った波動関数は、(8-16) POT (点線)、(8-16) 2BME (破線)、(6-16) 2BME (実線)。一点鎖線と二点鎖線はそれぞれ実線の M1 成分と M3 成分。実線の E 2 成分は小さすぎて現われていない。

動関数によって、そのような準位間の転移の $B(M1)$ や $\log ft$ の実験値がよく再現されることが知られている。従って、Cohen-Kurath の波動関数を使った計算の結果と実験の結果との差は、その転移に関連した準位がどの程度よく p 殻内配位のみで記述されうるかを測る手段となると考えられる。

以上述べたような構成要素によって DWIA の計算をした結果を、実験結果と共に第 1 図に示す。振動子パラメータ b は 1.66 fm ととった。第 1 図(a)の ^{10}Be の基底状態への転移 ($3^+ \rightarrow 0^+$) は、純粋な M3 転移である。3 通りの波動関数は、ほとんど同じ結果を与える。第 1 図(b)の ^{10}Be の第一励起状態への転移 ($3^+ \rightarrow 2^+$) は、M1 から M5 までの多重極度を持ちうるが、今の場合 p 殻内配位のみを考えているので E4 と M5 は現われない。波動関数の違いによって計算結果に大きな変化が出るのは、($3^+ \rightarrow 0^+$) の転移の場合とは対照的である。

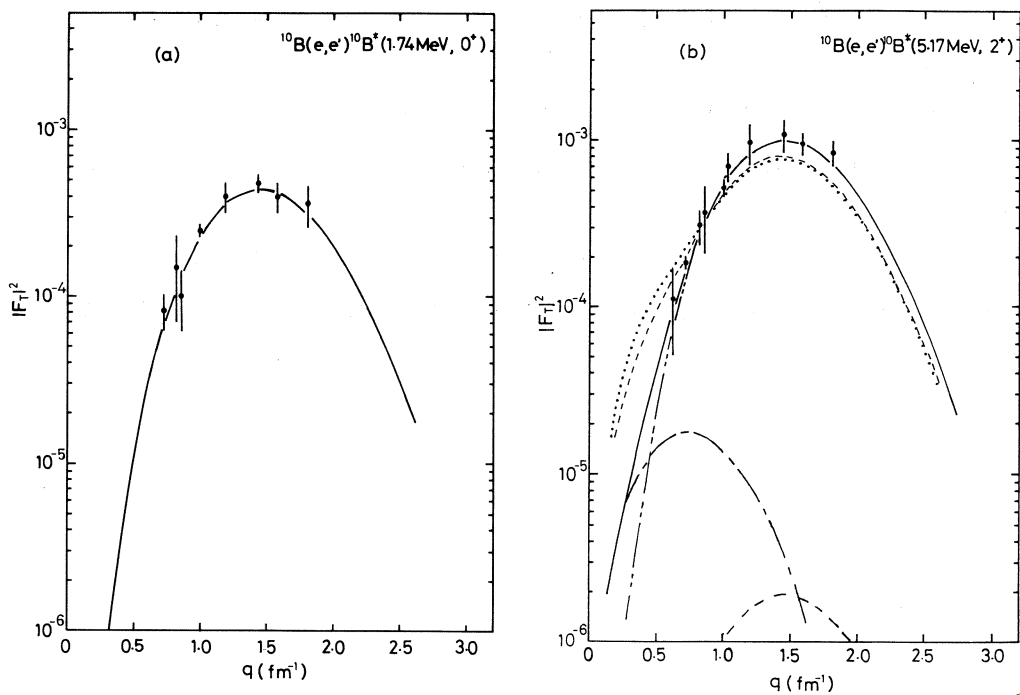
なお、この実験での運動量移行 q の範囲は、およそ $0.51 - 1.45 \text{ fm}^{-1}$ である。

§ 3. 考 察

ここで考えている (r, π^+) 反応の終状態に対応するアナログ状態を励起する (e, e') の横成分形状因子 F_T を、(r, π^+) の計算と同じ波動関数を使って計算した。その結果を第 2 図に示す。実験と理論との合い方は、(r, π^+) と (e, e') でよく似ている。

転移 ($3^+ \rightarrow 0^+$) では、Cohen-Kurath の波動関数によってよく実験値は再現されている(第 1 図, 第 2 図の(a))。一方、転移 ($3^+ \rightarrow 2^+$) では、Cohen-Kurath の波動関数のうち (6-16) 2 BME によるもの以外は、M1 成分の過大評価のために実験値は再現できない(第 1 図, 第 2 図の(b))。転移 ($3^+ \rightarrow 0^+$) は p 殻内のふつうの転移であると考えられるのに対し、転移 ($3^+ \rightarrow 2^+$) は p 殻核の軽い方に現われる何らかの現象を取り入れなければ説明されないと言うことができよう。この現象は、おそらく変形やクラスター構造に関係したものであろう。クラスターモデルなどを直接使った理論の進展が待たれる。

転移 ($3^+ \rightarrow 2^+$) の同程度の q の理論曲線を比べてみると、(r, π^+) では (e, e') よりも M1 の寄与が相対的に大きく現われていることがわかる。第(4)式から明らかなように、磁気的な転移では (r, π^+) は核のスピン自由度にのみ関係している。一方、(e, e') は伝導電流にも関係している。従って、上に述べたことは、(e, e') の M3 では伝導電流の寄与が重要となって M1 をおおい隠しているのに対し、(r, π^+) ではこの M3 の伝導電流成分の妨害を受けずに M1 の寄与を拡大して見ることができたことを示している。このことから一般に p 殻核よりも伝導電流の相対的な寄与が大きくなると言われる sd 殻核でスピン成分の



第2図 ^{10}Be のアナログ状態を励起する (e, e') の横成分形状因子。(a) 転移 ($3^+ \rightarrow 0^+$)。 (b) 転移 ($3^+ \rightarrow 2^+$)。 (b) における長い破線は実線の E2 成分。その他の曲線の意味は第1図 (b) と同じ。

寄与を調べる時、 (r, π) 反応はその有力な手段となることが期待される。これからの実験的努力がこのような方向に向けられることが予想される。

DWIA の計算コードや Cohen-Kurath の波動関数を提供していただいた大阪大学の 大坪久夫先生に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) 山崎正晴他：核理研研究報告 **13** (1980) 230.
- 2) W. C. Haxton：Phys. Lett. **92 B** (1980) 37.
- 3) S. Cohen and D. Kurath：Nucl. Phys. **73** (1965) 1.
- 4) K. Stricker, H. McManus and J. A. Carr：Phys. Rev. C **19** (1979) 929.
- 5) G. F. Chew, M. L. Goldberger, F. E. Low and Y. Nambu：Phys. Rev. **106** (1957) 1345.

- 6) F. A. Berends, A. Donnachie and D. L. Weaver : Nucl. Phys. **B 4** (1967) 1, and **B 4** (1967) 54.
- 7) I. Blomqvist and J. M. Laget : Nucl. Phys. **A 280** (1977) 405.
- 8) H. Otsubo, T. Nishiyama and M. Kawaguchi : Nucl. Phys. **A 224** (1974) 164.
- 9) S. Maleki : private communication.
- 10) L. D. Roper, R. M. Wright and B. T. Feld : Phys. Rev. **138** (1965) B 190.
- 11) E. J. Ansaldo, J. C. Bergstrom, R. Yen and H. S. Caplan : Nucl. Phys. **A 322** (1979) 237.

$^{13}\text{C}(e, \pi^+)^{13}\text{B}_{\text{g.s.}}$ 反応

核理研, 教養部*, RPI**, MIT***

山崎正晴・取越正己・佐々木修

坪田博明*・庄田勝房・K.Min**

E. J. Winhold**,

A. M. Bernstein***

われわれは, $^{13}\text{C}(e, \pi^+)^{13}\text{B}_{\text{g.s.}}$ 反応により放出された π^+ 中間子のエネルギー・スペクトルを $E_e = 195 \text{ MeV}$, $\theta = 30^\circ - 150^\circ$ (20° 毎) で測定した。得られた結果は, 仮想光子の理論によって $^{13}\text{C}(r, \pi^+)^{13}\text{B}_{\text{g.s.}}$ 反応の微分断面積へと変換し, 歪曲波インパルス近似による計算結果と比較した。伝統的な Cohen-Kurath の波動関数では, (r, π^+) とそのアナログな (e, e') の両方のデータを統一的に再現できないことが示される。

§1. はじめに

原子核における π 凝縮の先駆現象^{1,2)} や芯偏極現象³⁾ などとの関連で $^{12}\text{C}^*(E_x = 15.11 \text{ MeV}, J^\pi T = 1^+ 1)$ の横成分形状因子 F_T は近年大きな注目を集めてきた。この状態とアイソスピン多重項を形成する $^{12}\text{B}(\text{g.s.}, 1^+ 1)$ についても先駆現象による (r, π^+) 反応微分断面積の増大が見られるとする予言⁴⁾ が存在する。しかし, 既に行なわれている $^{12}\text{C}(r, \pi^+)^{12}\text{B}_{\text{g.s.}}$ 反応の実験⁵⁾ では, $^{12}\text{B}^*(E_x = 0.95 \text{ MeV}, 2^+ 1)$ の妨害のために, 上記のような現象が現われているかどうかははっきりした情報は得られていない。

一方 $^{12}\text{C}(r, \pi^+)^{12}\text{B}^*(0.95 \text{ MeV}, 2^+ 1)$ では, 微分断面積の実験値が, 伝統的な Cohen-Kurath (CK) の p 殻波動関数⁶⁾ を用いた歪曲波インパルス近似 (DWIA) の計算でよく再現される^{5,7)} ことが知られている。この波動関数の記述がよく実験値と一致するという事情は, アナログ状態 $^{12}\text{C}^*(16.11 \text{ MeV}, 2^+ 1)$ を励起する (e, e') でも同じである。

この報告に取り上げた $^{13}\text{B}(\text{g.s.}, (3/2)^-(3/2))$ は $^{13}\text{C}^*(15.11 \text{ MeV}, (3/2)^-(3/2))$ と共にアイソスピン多重項を形成する。 ^{13}C の基底状態は $J^\pi T = (1/2)^-(1/2)$ なので, このアイソスピン多重項への転移は M1 と E2 成分を含む (第1図)。質量数12の系で観測された観測されると期待されたのと類似の現象は, 質量数13の系でも現われる可能性が大きい。その意味で, $^{13}\text{C}(r, \pi^+)^{13}\text{B}_{\text{g.s.}}$ 反応の微分断面積を測定し, そのアナログな (e, e') のデー

たやCK波動関数を使った計算の結果と比較して
 みることは、興味深いことである。

この報告では、 $^{13}\text{C}(e, \pi^+)^{13}\text{B}_{\text{g.s.}}$ 反応の実験結果から (r, π^+) 反応の角分布を導出し、CKの波動関数を用いた DWIA の計算と比較する。その結果を、芯偏極現象との関連で議論する。

§2. 実験

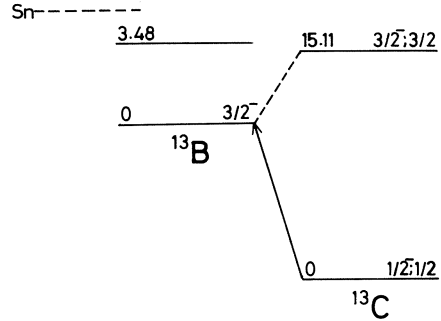
実験は核理研の電子ライナックからのビームを用いて行なわれた。標的から (e, π^+) 反応によって放出された π^+ 中間子は、二重取束磁気スペクトロメータで運動量分析された後、Si(Li)半導体検出器の三重同時計数によって検出される。測定に用いた装置と方法の詳細は、既に報告されている。⁵¹

標的は、99%以上に同位体純度が濃縮された ^{13}C の粉末を圧縮して固めたセルフサポート型の円板である。その厚さが 122 mg/cm^2 と 182 mg/cm^2 のものが用いられた。入射電子エネルギー E_e は 195 MeV 、 π^+ 中間子検出角 θ は $30^\circ - 150^\circ$ の間 20° 毎である。この時の運動量移行 q の範囲は、およそ $0.56 - 1.49\text{ fm}^{-1}$ となる。

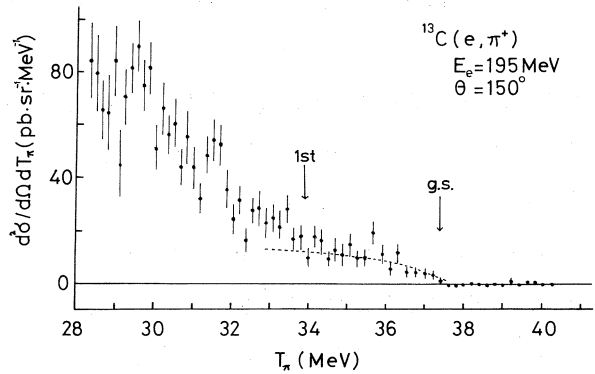
得られた (e, π^+) 反応の微分断面積の例を第2図に示す。図中の2つの矢印にはさまれた π^+ 運動エネルギーの範囲は ^{13}B の基底状態への転移にのみ関係し、対応する部分の仮想光子スペクトルが知られば (r, π^+) 反応の微分断面積が導出される。

$$\frac{(d\sigma/d\Omega)_{r\pi} \approx \int (d^2\sigma/d\Omega dT_\pi)_{e\pi} dT_\pi}{\int \Phi(E_e, E_\gamma) dE_\gamma} \quad (1)$$

ここに、 $\Phi(E_e, E_\gamma)$ は単位エネ



第1図 この実験に関連した準位。
 (e, π^+) 反応による転移を矢印で示した。



第2図 $^{13}\text{C}(e, \pi^+)$ 反応の微分断面積。2つの矢印 g.s. と 1st はそれぞれ ^{13}B の基底状態および第一励起状態への転移に対応する π^+ の持ちうる最大エネルギーを表わす。点線は本文の式によって求めた $(d\sigma/d\Omega)_{r\pi}$ と Dalitz-Yennie の仮想光子スペクトルにより逆算した $^{13}\text{C}(e, \pi^+)^{13}\text{B}_{\text{g.s.}}$ 反応の微分断面積。

ルギー当りの仮想光子数であり、 π^+ の運動エネルギー T_π と光子エネルギー E_γ との間には反応のしきいエネルギーを E_{th} として次の関係がある。

$$E_\gamma = E_{th} + T_\pi \quad (2)$$

また、上の積分は第2図の矢印にはさまれた区間に対応する T_π と E_γ の区間について行なわれる。

仮想光子スペクトルの形としては、Dalitz-Yennie の理論式⁸⁾を採用した。得られる $(d\sigma/d\Omega)_{\gamma\pi}$ の絶対値は、 π^+ 検出器系の絶対効率と仮想光子スペクトルの絶対値との積から定まるが、その積は、 ^{13}C と同時に行なった $^1\text{H}(e, \pi^+)$ の実験データを既知の $^1\text{H}(\gamma, \pi^+)$ の微分断面積へ規格化することによって求めた⁹⁾。このような規格化の方法をとることによって、たとえ仮想光子スペクトルの絶対値が Dalitz-Yennie のものと違っている¹⁰⁾としても、われわれの求めた $(d\sigma/d\Omega)_{\gamma\pi}$ はその影響をあまり受けない。データ解析の結果を第3図に示す。図中の誤差は統計的なもののみを表わしている。この他に約10%の規格化の際の誤差が存在する。

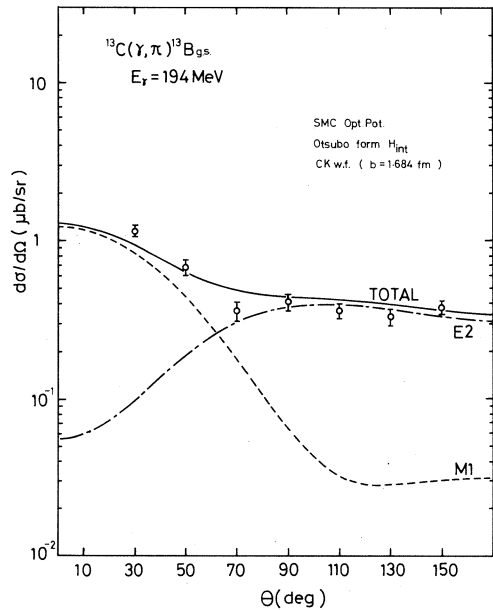
§3. 理論計算

普通 (γ, π^+) 反応の微分断面積はDWIAにより記述される。光子と π^+ 中間子の四元運動量をそれぞれ $(k, i E_\gamma)$ と $(p, i E_\pi)$ 、標的(残留)核の質量、エネルギー、スピン、スピン第3成分をそれぞれ $M_A (M_{A'})$, $E_A (E_{A'})$, $J_i (J_f)$, $M_i (M_f)$ 、光子の偏極の向きを λ とすると、

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{p}{k} \frac{M_A M_{A'}}{(k+E_A)(E_\pi+E_{A'})} \times \frac{1}{2(2J_i+1)} \sum_{\lambda M_i M_f} |T_{fi}|^2 \quad (3)$$

となる。ここに、自由核子に対する (γ, π^+)

振幅を $t_{free}(\vec{p}, \vec{k})$ 、終状態相互作用によって歪められた π^+ 中間子の波動関数を $\phi_\pi^{-1}(\vec{r})$ とし、



第3図 $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{13}\text{B}_{g.s.}$ 反応の微分断面積。実験結果と Cohen-Kurath の波動関数を用いた計算結果が比較されている。

$$T_{fi}(\vec{p}, \vec{k}) = \sum_{j=1}^A \langle f | \int d^3r \phi_{\pi}^{(+)}(\vec{r})^* \delta(\vec{r} - \vec{r}_j) t_{\text{free}}(\vec{p}, \vec{k}) e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} | i \rangle \quad (4)$$

である。理論家毎に t_{free} と $\phi_{\pi}^{(+)}$ のとり方が異なるのが現状である。一般には、今問題として
いるような比較的低いエネルギー領域では、 t_{free} においては $\vec{\sigma} \cdot \vec{\varepsilon}$ 項 ($\vec{\sigma}$, $\vec{\varepsilon}$ はそれぞれ核子
スピン, 光子偏極) が主要な役割を果たし, また $\phi_{\pi}^{(+)}$ は平面波よりあまり大きく変わっていない
ことが知られている。

この計算では、 t_{free} としては Otsubo らによって定式化された形¹¹⁾

$$t_{\text{free}}(\vec{p}, \vec{k}) = 4\pi i \tau_+ [C^{(1)} \vec{\sigma} \cdot \vec{\varepsilon} + i C^{(2)} \vec{p} \cdot \vec{k} \times \vec{\varepsilon} + C^{(3)} \vec{\sigma} \cdot \vec{\varepsilon} \vec{p} \cdot \vec{k} + C^{(4)} \vec{\sigma} \cdot \vec{k} \vec{p} \cdot \vec{\varepsilon}] \quad (5)$$

を用いた。ここに τ_+ はアイソスピン上昇演算子である。係数 $C^{(1)} - C^{(4)}$ は、 \vec{p} と \vec{k} の関数で
あり、 π -核子散乱の phase shift 解析より求められるが、ここでは Maleki により与えら
れた値¹²⁾

$$\begin{aligned} C^{(1)} &= 0.02616 + i 0.00263, \\ C^{(2)} &= 0.00474, \\ C^{(3)} &= -0.002911 + i 0.000145, \\ C^{(4)} &= 0.00319 + i 0.000330, \end{aligned} \quad (6)$$

をとる。この t_{free} は、すべての項を含む振幅¹³⁾ に比べると $\vec{\sigma} \cdot \vec{p} \vec{p} \cdot \vec{\varepsilon}$ 項が省略された形をし
ている。この項の効果は、今考えている転移とエネルギー領域では無視しようと言われている。¹⁴⁾

終状態相互作用による π^+ 中間子の波動関数の歪みは、光学ポテンシャルを使って Klein-
Gordon 方程式を解くことによって得られる。この計算で用いた光学ポテンシャルは、 π 中間
子原子のデータの解析から求められたものである。¹⁵⁾ 比較的低いエネルギーの π^+ であるため
にその波動関数の歪みはあまり大きくなく、 $\phi_{\pi}^{(+)}(\vec{r})$ を平面波に置き換えた時の計算結果
 $d\sigma/d\Omega$ の変化は、高々20%にすぎない。現実的な光学ポテンシャルが使ってあれば、その細
部の違いは計算結果にあまり大きな影響を及ぼさないとされている。⁷⁾

原子核の記述には、準位エネルギーの実験値へのフィットから求められた CK の p 殻有効相
互作用 (8-16) POT⁶⁾ による波動関数を用いた。単一粒子波動関数は調和振動子 ($b=1.68$
fm) のものである。

計算の結果を実験の結果と共に第3図に示す。

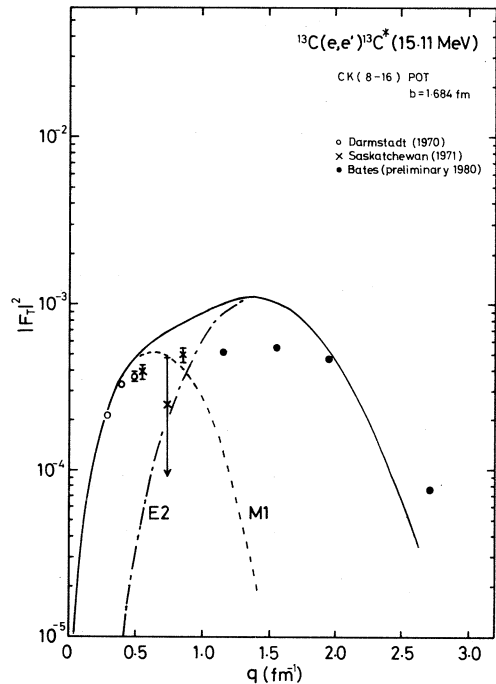
§ 4. 考 察

第3図に見られるように、実験と計算との一致は非常によい。このことから、 $^{13}\text{C}(r, \pi^+)^{13}\text{B}_{g.s.}$ 反応では芯偏極現象などが見えていないと結論されるように思われる。

第4図に $^{13}\text{B}_{g.s.}$ のアナログ状態 $^{13}\text{C}(E_x = 15.11 \text{ MeV})$ を励起する非弾性電子散乱の横成分形状因子 F_T を示す。 (r, π^+) 反応の計算を使ったものと同じCKの波動関数を使えば、実験点^{16,17,18)}よりもかなり大きな計算結果となる。最近、 F_T に対する芯偏極と交換流の効果がOtsuboらによって論じられている¹⁴⁾。それによると、芯偏極の効果によって F_T のE2成分は小さくなり、中程度以下の q では理論値の実験値との食い違いは相当改善される。

この芯偏極の効果は、 (r, π^+) にも同様に現われることが期待される。なぜなら、 (e, e') ではこの場合伝導電流の寄与はかなり小さく(特にE2ではゼロ)スピン部分が主であるので、 (e, e') と (r, π^+) は類似の演算子で記述されるからである。従って、芯偏極現象を取り入れる前の (r, π^+) の計算値が実験値と一致する(第3図)ということは、 (e, e') の結果と矛盾していることになる。

ここで得られた (r, π^+) の実験値は、Batesの $\theta = 90^\circ$ 固定スペクトロメータで得られたややエネルギーの異なる点でのデータと矛盾していない。前節で述べたDWIA計算に何か不備があったのか、あるいは上で述べたような類似性を持つ (r, π^+) と (e, e') の演算子のわずかの違いが計算結果に大きく影響しているのか、芯偏極によるE2成分の大きさの変化は ^{12}C では見られなかった現象だけに、現在進行中のより精密な理論的解析¹⁴⁾の結果が注目される。



第4図 $^{13}\text{C}(e, e')^{13}\text{C}^*(E_x = 15.11 \text{ MeV})$ の横成分形状因子。実験点は、Darmstadt(文献16)、Saskatchewan(文献17)、Bates(文献18)。Batesのデータの誤差の大きさは不明である。計算にはCohen-Kurathの波動関数が用いられている。

計算コードや波動関数の提供，理論的解釈の示唆をいただいた大阪大学の太坪久夫先生に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) J. Delorme, M. Ericson, A. Figureau and N. Giraud : Phys. Lett **89 B** (1980) 327 ;
 J. Delorme, A. Figureau and N. Giraud : Phys. Lett. **91 B** (1980) 328 ;
 J. Delorme, A. Figureau and P. Guichon : Phys. Lett. **99 B** (1981) 187.
- 2) H. Toki and W. Weise : Phys. Lett. **92 B** (1980) 265.
- 3) H. Sagawa, T. Suzuki, H. Hyuga and A. Arima : Nucl. Phys. **A 322** (1979) 361.
- 4) J. Delorme : preprint (1980).
- 5) K. Shoda, H. Ohashi and K. Nakahara : Phys. Rev. Lett. **39** (1977) 1131 ; Nucl. Phys. **A 350** (1980) 377.
- 6) S. Cohen and D. Kurath : Nucl. Phys. **73** (1965) 1.
- 7) W. C. Haxton : Phys. Lett. **92 B** (1980) 37.
- 8) R. H. Dalitz and D. R. Yennie : Phys. Rev. **105** (1957) 1598.
- 9) 山崎正晴他 : 核理研研究報告 **13** (1980) 230 ;
 佐々木修他 : 核理研研究報告 **13** (1980) 233.
- 10) P. Stoler *et al.* : Phys. Rev. C **22** (1980) 911.
- 11) H. Otsubo, T. Nishiyama and M. Kawaguchi : Nucl. Phys. **A 224** (1974) 164.
- 12) S. Maleki : private communication.
- 13) G. F. Chew, M. L. Goldberger, F. E. Low and Y. Nambu : Phys. Rev. **106** (1957) 1345.
- 14) H. Otsubo : private communication.
- 15) K. Stricker, H. McManus and J. A. Carr : Phys. Rev. C **19** (1979) 929.
- 16) G. Wittwer, H.-G. Clerc and G. A. Beer : Phys. Lett. **30 B** (1969) 634 ;

- Z. Phys. **234** (1970) 120.
- 17) C. S. Yang, E. L. Tomusiak, R. K. Gupta and H. S. Caplan : Nucl. Phys. **A 162** (1971) 71.
- 18) R. S. Hicks *et al.* : private communication.

^{14}N の (e, d_0) 及び $(e+r, d_0)$ 反応

山形大教養, 核理研*, 教養部**, 理学部物理***

種市宏・上野博昭・加藤静吾・庄田勝房*

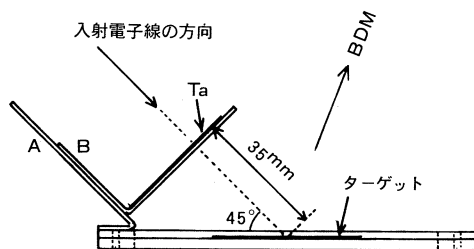
川添良幸**・塚本龍男***

§1. はじめに

$^{14}\text{N}(e, d_0)$ 反応を川添・塚本の理論で解析すると E_0 の寄与が E_2 の寄与と同程度存在するという結果¹⁾が得られた。この理論では $^{12}\text{C}+d$ のクラスターを仮定したもので、波動関数の精度もあまりよくない。 ^{14}N のような軽核で E_0 相互作用は確認されていないので、 E_0 相互作用がない実光子を用いた (r, d_0) と (e, d_0) を比較すれば実験的に E_0 の寄与が確かめられる。

§2. 実験および結果

この実験では制動放射用ラジエーターを、ターゲットの前に置いて、電子線と実光子線の混合したビームをターゲットに照射して測定したスペクトルから、電子線によって測定したスペクトルを差引いて (r, d) のスペクトルを得た。従って、 (r, d) のスペクトルを精度よく測るためには、制動放射の光子数ができるだけ多く発生するように厚いラジエーターが望ましい。また、電子ビームのエネルギーは E_0 の断面積が大きい範囲で測定できるように 23MeV にした。一方、ラジエーターが厚い場合には、ターゲット上で光子線および電子線が広がってしまう。このため第1図に示すように、ターゲット取付枠にラジエーターをビームに直角に直接取付けるようにした。今回は 161 mg/cm^2 の Ta 板をラジエーターとして用いた。この厚さで、入射電子線のエネルギーが 23MeV の場合には、制動放射の光子数が、入射電子の E_1 および E_2 仮想光子数のほぼ 2.5 倍位になる。電子線の入射角はラジエーターに垂直にし、ターゲット上の電子線および実光子線の照射範囲を

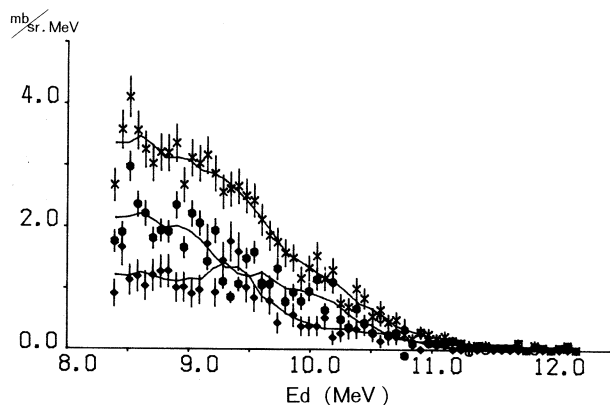


第1図 制動放射用ラジエーター (Ta)。A はラジエーター取付金具 B をスライドさせるガイドレールで、ターゲット・ホルダーに固定されている。B を A 上でスライドさせてターゲットまでの距離を変えることができる。

BDM がすべて見込み，検出される d のエネルギー・ロスを大きくしないため，ターゲットの入射電子線に対する角度は 45° を選んだ。

入射ビームに対し種々の角度において測定した $(e + r, d_0)$ のスペクトルから (e, d_0) スペクトルを差引いて (r, d_0) のスペクトルを得た。その結果の例が第2図である。第3図はこのようにして得られた ^{14}N の (r, d_0) および

(e, d_0) の角分布で，それぞれクロスおよび黒丸で表わされている。縦軸の単位は $\text{mb}/\text{sr} \cdot \text{MeV}$ で， (r, d_0) (e, d_0) とともに入射電子数に対する断面積である。実線は4次までのルジャンドル級数 $(\sum_{i=1}^4 a_i P_i)$ に最小自乗法で合わせたものである。第4図にルジャンドル級数の係数 $a_1 \sim a_4$ の a_0 に対する比が電子線および実光子線に対して示されている。

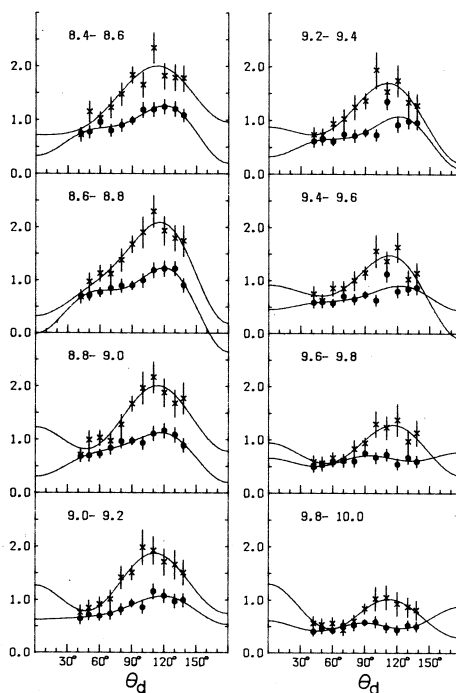


第2図 d_0 のスペクトル。× : $^{14}\text{N}(e+r, d_0)$ ，
◆ : $^{14}\text{N}(e, d_0)$ ，● : $^{14}\text{N}(r, d_0)$ 。実線はそれぞれのスペクトルを平滑化したもの。

§ 3. 解析と考察

$^{14}\text{N}(e, d_0)$ 反応の解析はすでに報告¹⁾した。今回は実光子の場合の解析を行なった。両方を合わせた最終的解析は未だ終了していないが，現段階の比較について報告する。重陽子のスピンを無視し， $^{12}\text{C}-d$ ク

第3図 $^{14}\text{N}(e, d_0)$ 及び $^{14}\text{N}(r, d_0)$ 反応の角分布。● : (e, d_0) 反応，× : (r, d_0) 反応。入射電子線のエネルギーは 23 MeV で，図中の数字は d_0 のエネルギー範囲 (MeV) を示す。 (e, d_0) に対しては縦軸は $\text{mb}/\text{MeV} \cdot \text{sr}$ であるが， (r, d_0) に対しては $161 \text{ mg}/\text{cm}^2$ の Ta から出た光子によるもので，光子数で割れば断面積になる。



ラスターの相対角運動量が0の状態を基底状態にとると、角度分布は次のようかけらる²⁾。

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = E_T \sin^2 \theta \cdot |c_1 + E_T c_2 \cos \theta|^2. \quad (1)$$

ここに E_T は光子のエネルギー、 c_1 、 c_2 は (e, d_0) の解析¹⁾ の式の c_0 、 c_1 、 c_2 に対応し、それぞれ E1、E2 相互作用の寄与を表わす。 c_1 、 c_2 は複素数で c_2 の虚数部を0にとってある。ここでは断面積は任意の単位で表わしている。実光子による角分布に(1)式が合うように最小自乗法で係数 c_1 、 c_2 を求めた。

(1)式を次のように断面積の成分で表わす。

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{d\sigma(E1)}{d\Omega} + \frac{d\sigma(E1-E2)}{d\Omega} + \frac{d\sigma(E2)}{d\Omega}.$$

ここに

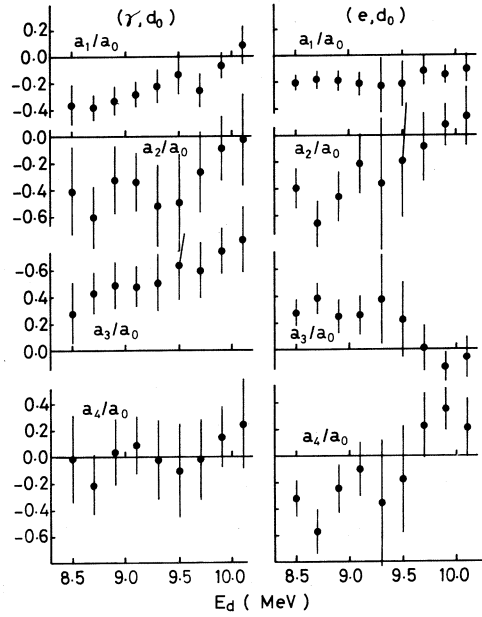
$$\frac{d\sigma(E1)}{d\Omega} = E_T \cdot |c_1|^2 \sin^2 \theta, \quad (3)$$

$$\frac{d\sigma(E1-E2)}{d\Omega} = 2 \cdot E_T^2 \cdot \text{Re}(c_1 \cdot c_2^*) \sin^2 \theta \cdot \cos \theta, \quad (4)$$

$$\frac{d\sigma(E2)}{d\Omega} = E_T^3 \cdot |c_2|^2 \cdot \sin^2 \theta \cdot \cos^2 \theta. \quad (5)$$

第5図は1例として $E_d = 8.4 \sim 8.6$ MeV の場合について式(3)~(5)を用いて解析を行なったものである。E1およびE2に対応する断面積の成分を(2)式と(4)式で計算した結果をそれぞれ1点破線および破線で表わす。実線は干渉項も入れた $d\sigma/d\Omega$ で(2)式で求めたもので実験点に合わせた曲線となっている。

このような解析を他の重陽子のエネルギー範囲の角分布に対して行なって、 c_1 および c_2 を求めたものが第1表にまとめてある。第6図でE1とE2の寄与のエネルギーに対する変化

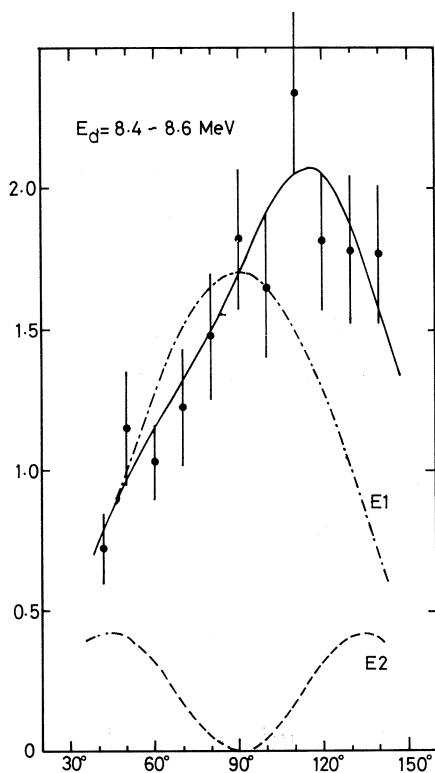


第4図 ^{14}N の (e, d_0) 反応及び (r, d_0) 反応の角分布を P_0 から P_4 までのルジャンドル関数に展開したときの係数 $a_1 \sim a_4$ を a_0 で割った比。

(2)

第1表 $^{14}\text{N}(\tau, d_0)$ 反応の角分布(1)式に合せたときの値。 c_2 の虚部が0になるよう位相をとった。

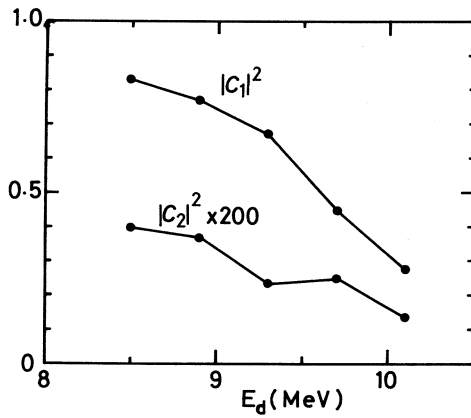
E_d (MeV)	c_1 の実部	c_2 の虚部	c_2 の実部
8.4 - 8.6	0.326	0.853	-0.0446
8.8 - 9.0	0.365	0.798	-0.0429
9.2 - 9.4	0.307	0.759	-0.0339
9.6 - 9.8	0.251	0.616	-0.0351
10.0 - 10.2	0.143	0.506	-0.0259



第5図 $^{14}\text{N}(\tau, d_0)$ 反応の解析の例。
E1 および E2 遷移の角分布をそれぞれ一点破線、波線で示す。実線は c_α ($\alpha=1, 2$) が、測定値に最もよく合うようにして求めたもの。

を見るため $|c_1|^2$ と $|c_2|^2$ を示している。縦軸の単位は任意である。 $|c_1|^2$ と $|c_2|^2$ の比を (e, d_0) で求めた場合¹⁾ と比較するとほぼ一致している。

(e, d_0) の場合には E0, E1, E2 成分すべてを含めて解析する必要があるが、(τ, d_0) の場合には E0 の寄与は考えられないので E1 と E2 だけで解析すべきである。現段階の結果によるとどちらの場合でも E1 と E2 が同じ比で寄与しているということは、(e, d_0) の場合に得られた E0 の寄与に関する結果を正当づけていると考えられる。



第6図 $|c_1|^2$ 及び $|c_2|^2$, 縦軸の単位は任意。これらの大きさは E1 および E2 の寄与を示す。両者の比は $^{14}\text{N}(e, d_0)$ 反応の場合¹⁾ とほぼ同じである。

この解析では角度の測定範囲が $42^\circ \sim 138^\circ$ であるが、E2 の効果をよく見るためにはルジャンドル展開の係数の精度をあげるため、できるだけ広い角度の範囲での実験が望ましい。また $^{12}\text{C}-d$ というクラスター・モデルも十分良いモデルといえず、重陽子のスピンを無視したことも問題が残っている。これらの点が改善されればもっと正確なことがいえるであろう。

この実験を行なうに当って、御援助をいただきました核理研の方々に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) H. Taneichi, H. Ueno, K. Shoda, Y. Kawazoe and T. Tsukamoto : Nucl. Phys. **A 350** (1980) 157.
- 2) B. F. Gibson and H. T. Wieceams : Nucl. Phys. **A163** (1971) 193.

II. 物 性 物 理

T-O-F Pulsed Neutron Diffraction of Pure Vitreous TeO₂ Prepared by Rapid Melt-Quenching

M. Ueno, M. Misawa and K. Suzuki

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

§ 1. Introduction

Tellurium dioxide (TeO₂) single crystal is well known as an interesting material having the acoustic, optical and piezoelectric characteristics. Pure vitreous TeO₂ was first obtained in 1967 using a rapid melt-quenching technique by Sarjeant and Roy¹⁾. However, we know so far only a little on the atomic scale structure of pure vitreous TeO₂, which must be a very important key to develop multicomponent TeO₂ glasses in both the fundamental and applications.

In order to make a high resolution observation of the short-range order in the atomic scale structure by diffraction technique, it is necessary to obtain the structure factor $S(Q)$ up to a very high scattering vector value $Q (= 4\pi \sin\theta / \lambda, 2\theta$; scattering angle, λ ; wavelength of neutrons), that is to say, $Q = 30-50 \text{ \AA}^{-1}$ in case of amorphous solids formed predominantly by covalent bonds²⁾.

The aim of this study is to characterize the chemical and topological short-range order in pure TeO₂ glass vitrified rapidly from the melt by high Q measurement of $S(Q)$ using an electron LINAC neutron source.

§ 2. Experimental

Pure vitreous TeO₂ sample was prepared by rapidly quenching the melt of reagent-grade TeO₂ powder (Merck Co. Ltd) through a platinum nozzle onto a spinning single roll surface in air. This preparation technique is same to the procedure to make metallic glass thin ribbons. The diameter of the platinum nozzle hole used is 0.1 mm. The pure vitreous TeO₂ sample thus prepared is found to be

transparent and slightly flexible in the form of long ribbons of about 1 mm in width and 30 μm in thickness. Vitreous TeO_2 ribbons are contained in a vanadium metal cylinder of thin wall of 0.025 mm in thickness, of which inner diameter is 7.8 mm and length is 70 mm, to measure neutron total scattering intensities.

The measurement of $S(Q)$ was made by using a new model of time-of-flight pulsed neutron total scattering spectrometer installed at the 300 MeV electron LINAC, Tohoku University³⁾. The procedures of data processing from observed T-O-F spectrum to $S(Q)$ have been fully described in a previous paper⁴⁾. In contrast to X-ray diffraction, the three partial correlations for Te-O, O-O and Te-Te pairs in vitreous TeO_2 are almost equally weighted in neutron diffraction because of the proper scattering amplitudes of Te and O nuclei.

§ 3. Results and discussion

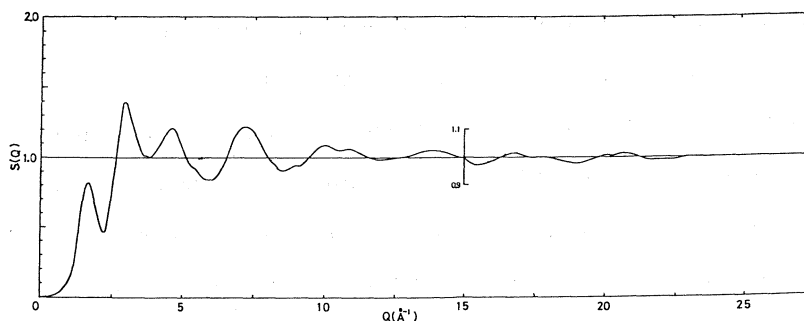


Fig. 1. Experimental structure factor of pure vitreous TeO_2 .

The experimental $S(Q)$ of pure vitreous TeO_2 obtained finally in this study is shown in Fig. 1. The oscillation in $S(Q)$ is found to persist clearly up to $Q = 23 \text{ \AA}^{-1}$. Figure 2. shows the radial distribution functions (RDF) of pure vitreous TeO_2 , which are obtained by Fourier-transforming the $S(Q)$ truncated at various Q_{max} values between 10 and 23 \AA^{-1} . The first peak appearing around $r = 2 \text{ \AA}$ in the RDF corresponds to the Te-O nearest neighbor pair correlation. With increasing Q_{max} , the first peak in the RDF becomes drastically narrower to lead to a characteristic splitting as well as the second peak does as shown Fig. 2. The most probable values of the Te-O bond length ($l_{\text{Te-O}}$) and the number of O atoms surround-

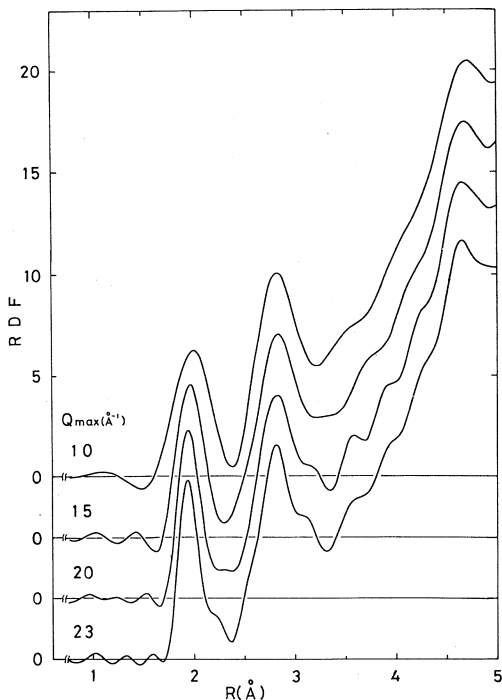


Fig. 2. Radial distribution functions of pure vitreous TeO_2 . Q_{max} is the truncation value of $S(Q) \rightarrow \text{RDF}$ Fourier transformation.

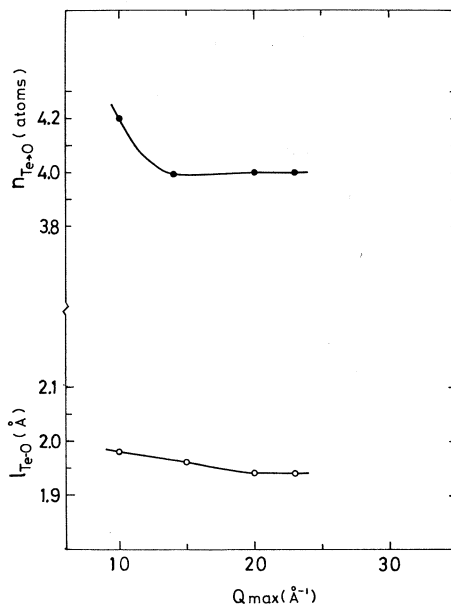


Fig. 3. Q_{max} dependences on Te-O bond length ($l_{\text{Te-O}}$) and coordination number of O atoms surrounding a Te atom ($n_{\text{Te-O}}$).

ing a Te atom ($n_{\text{Te-O}}$) can be decided from the asymptotic values for the position and area of the first peak in the RDF as a function of Q_{max} . The results are shown in Fig. 3.

In the high resolution short-range order in pure vitreous TeO_2 , the first peak in the RDF is divided into two subpeaks as shown in Fig. 4, if we fit the Gaussian curve to each subpeak. The large subpeak means that three O atoms are coordinated to a Te atom with the average bond length of 1.94 Å, while the small subpeak shows that an O atom is located at the position of 2.20 Å apart from a Te atom. This short-range structure for Te-O pairs is quite similar to that of $\beta\text{-TeO}_2$ crystal which has (3 + 1) O atoms around a Te atom.

The results obtained in this study is summarized in Table I. Our conclu-

sion is contrast to the proposal by Neov et al⁵⁾ that the short-range structure of Te-O pairs in vitreous TeO₂ can be interpreted by the structural diffusion model based on α -TeO₂ crystal structure.

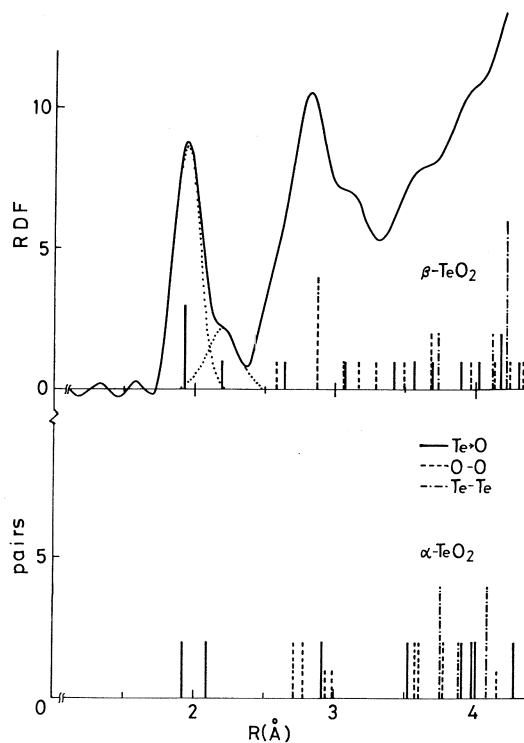


Fig. 4. Comparison between RDF of vitreous TeO₂ and crystal structures of TeO₂.

Table I. Te-O bond lengths and O atom numbers around a Te atom in pure vitreous TeO₂.

	Te-O	Te-O
l (Å)	1.94	2.20
Δl (Å)	0.093	0.098
n (atoms)	3.0	1.0

Acknowledgements

The authors would like to thank the member of Laboratory of Nuclear Science for the kind operation of the LINAC and the helpful services of the computer system.

References

- 1) P. T. Sarjeant and R. Roy : J. Amer. Chem. Soc. **50** (1967) 500.
- 2) K. Suzuki, M. Misawa, T. Fukunaga and N. Hayashi : to appear in *Proc. Conf. Metallic Glasses : Science and Technology* (30 June-4 July, 1980, Budapest, Hungary).
- 3) M. Ueno, M. Misawa and K. Suzuki : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci., Tohoku University **13** (1980) 254.
- 4) K. Suzuki, M. Misawa, K. Kai and N. Watanabe : Nucl. Instrum & Methods **147** (1977) 519.
- 5) S. Neov, V. Kozhukharov, I. Gerasimova, K. Krezhov and B. Sidzhimov : J. Phys. C : Solid State Phys. **12** (1979) 2475.

On the Nearest Neighbor Ge-O Correlation in Na₂O-GeO₂ Glasses by Pulsed Neutron Total Scattering

M. Ueno, M. Misawa and K. Suzuki

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

§ 1. Introduction

The structure of GeO₂ glass is described in terms of the continuous random network consisting of GeO₄-tetrahedron structural units¹⁾ as well as that of SiO₂ glass²⁾. When alkali metal oxides M₂O is mixed into the glasses, the SiO₄-tetrahedron unit is still kept in M₂O-SiO₂ glasses²⁾. However, there is a possible structure variation from GeO₄-tetrahedron to GeO₆-octahedron in M₂O-GeO₂ glasses with increasing M₂O-content.

This interesting problem was first pointed out in 1960 by Ivanov and Evstropiev³⁾ who measured the refractive index of Na₂O-GeO₂ glasses as a function of Na₂O-content. In 1979 Kamiya and Sakka⁴⁾ observed directly the number of O atoms coordinating to a central Ge atom and the nearest neighbor Ge-O bond length in Na₂O-GeO₂ glasses by X-ray diffraction and concluded that the maximum concentration of GeO₆-octahedron units reaches 10-35% at the composition of 20-30 mol% Na₂O in the glasses.

In order to define the exact origin of the so-called germanate anomaly in alkali germanate glasses, it is certainly necessary to make a high resolution observation of the short-range structure in the glasses. The T-O-F pulsed neutron total scattering using an electron LINAC neutron source is a quite powerful technique to obtain the highly resolved real space information in the nearest neighbor range, because the structure factor $S(Q)$ can be easily measured up to a very high scattering vector value $Q (= 4\pi \sin \theta / \lambda, 2\theta$; scattering angle, λ ; neutron wavelength) such as 30-50 Å⁻¹. In this study, a high resolution observation of the

germanate anomaly in $\text{Na}_2\text{O-GeO}_2$ glasses is tried by using the pulsed neutron total scattering and some experimental results are reported.

§ 2. Experimental

The GeO_2 glass samples used was prepared by melting GeO_2 powder with 99.99999 % purity in a platinum crucible in air. The $\text{Na}_2\text{O-GeO}_2$ glass samples prepared from the GeO_2 glass and reagent grade Na_2CO_3 have 8, 16, 21 and 29 mol % Na_2O . These glass samples were smashed into fine pieces and then contained in a vanadium metal cylinder of thin wall of 0.025 mm in thickness, of which inner diameter is 7.8 mm wide and length is 50 mm high to measure neutron total scattering intensities.

All the measurements of $S(Q)$ were carried out by using the Liquid Total Scattering Spectrometer Mark II⁵⁾ installed at the 300 MeV electron LINAC, Tohoku University. The procedures of data processing from observed T-O-F spectra are same to the full descriptions in a previous paper⁶⁾.

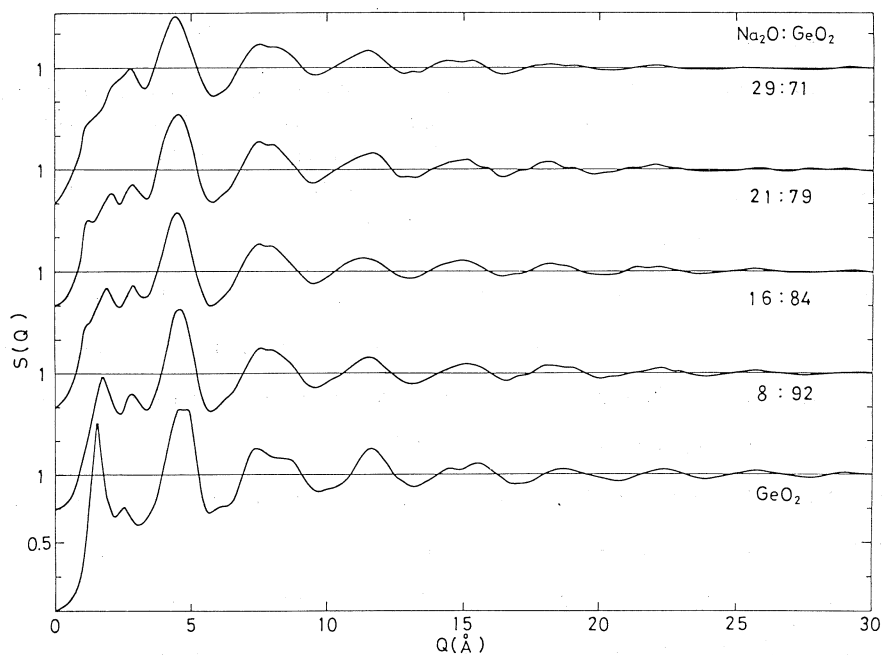


Fig.1. Experimental neutron structure factors of GeO_2 and $\text{Na}_2\text{O-GeO}_2$ glasses.

§ 3. Results and Discussion

The experimental $S(Q)$'s of GeO_2 and $\text{Na}_2\text{O-GeO}_2$ glasses obtained finally in this study are shown in Fig. 1. We can find that drastic changes in $S(Q)$'s happen in the small scattering vector range of $Q \leq 5 \text{ \AA}^{-1}$ due to the addition of Na_2O . The oscillation in $S(Q)$'s persists obviously up to $Q = 30 \text{ \AA}^{-1}$ but dampes gradually with increasing Na_2O -content.

The position and area of the first peak in RDF corresponding to the nearest neighbor pair correlation converge asymptotically at limiting true values with increasing the truncation value of Q_{max} in the $S(Q) \rightarrow \text{RDF}$ Fourier transformation. Figure 2 shows the RDF's of GeO_2 and $\text{Na}_2\text{O-}$

GeO_2 glasses which are obtained by truncating the $S(Q) \rightarrow \text{RDF}$ Fourier transformation at $Q_{\text{max}} = 30 \text{ \AA}^{-1}$. As described in the previous papers^{2,7)}, the truncation value $Q_{\text{max}} = 30 \text{ \AA}^{-1}$ is found to be a reasonable value to deduce the first peak profile approaching a true and final profile.

The first peaks in the RDF's in Fig. 2 are assigned to the nearest neighbor Ge-O correlations in the glasses. The number of O atoms surrounding a Ge atom ($n_{\text{Ge-O}}$) and the Ge-O bond length ($l_{\text{Ge-O}}$) in $\text{Na}_2\text{O-GeO}_2$ glasses calculated from the first peak profiles are shown in Figs. 3 and 4 as a function of Na_2O -content. In GeO_2 glass a Ge atom is exactly coordinated to four O atoms. When

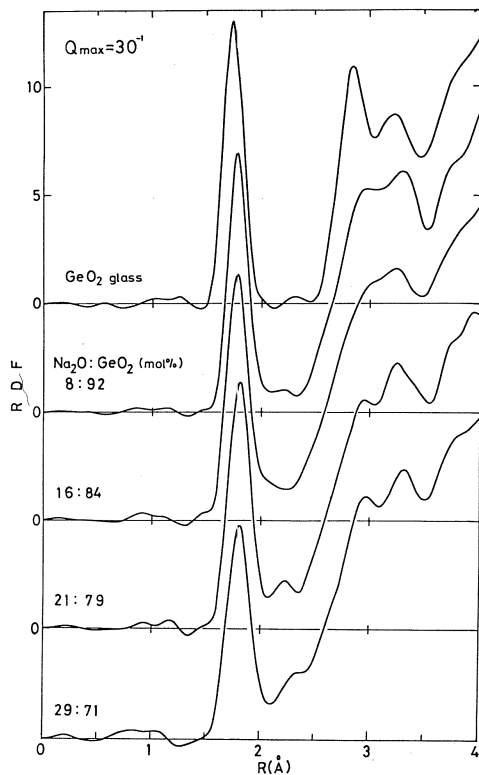


Fig. 2. Experimental radial distribution functions of GeO_2 and $\text{Na}_2\text{O-GeO}_2$ glasses where the $S(Q) \rightarrow \text{RDF}$ Fourier transformation is truncated at a high Q value of 30 \AA^{-1} .

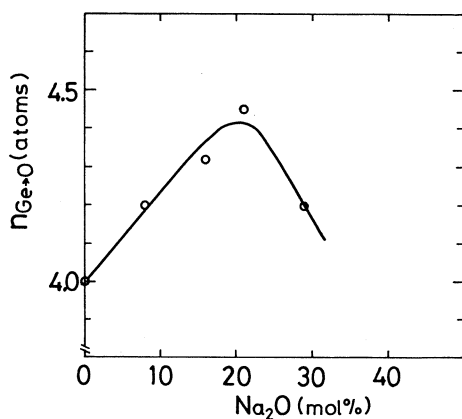


Fig. 3. Coordination number of a Ge atom to O atoms in Na₂O-GeO₂ glasses.

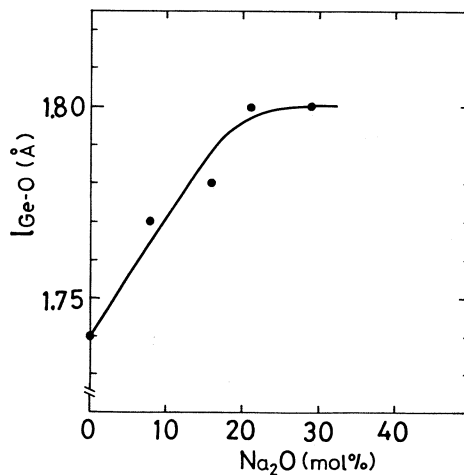


Fig. 4. Ge-O bond length as a function of Na₂O-content in Na₂O-GeO₂ glasses.

Na₂O is added into GeO₂ glass, the coordination number of a Ge atom increases and reaches the maximum at the composition of about 20 mol % Na₂O, beyond which a steep decrease in the coordination number of a Ge atom occurs. The Ge-O bond length increases linearly until the composition of about 20 mol % Na₂O and then reaches a constant value.

The numerical values of $n_{\text{Ge-O}}$ and $l_{\text{Ge-O}}$ are summarized in Table I

Table I. Ge-O bond length, number of O atoms coordinating to a Ge atom and concentration of GeO₆-octahedron structural units in Na₂O-GeO₂ glasses.

glasses	$l_{\text{Ge-O}}$ (Å)	$n_{\text{Ge-O}}$ (atoms)	N ₆ (%)
GeO ₂	1.74	4.0	0
8 Na ₂ O • 92 GeO ₂	1.77	4.2	10
16 Na ₂ O • 84 GeO ₂	1.78	4.3	16
21 Na ₂ O • 79 GeO ₂	1.80	4.5	24
29 Na ₂ O • 71 GeO ₂	1.80	4.2	10

together with the concentration of GeO_6 -octahedron units existing in $\text{Na}_2\text{O-GeO}_2$ glasses. The experimental concentration of GeO_6 -octahedron units as a function of Na_2O -content can be well reproduced up to 20 mol % Na_2O -content by the calculation under the assumption that there are no non-bridging O atoms in the glasses. In fact, Fig. 5 clearly shows that the number of Ge atoms bridging to an O atom

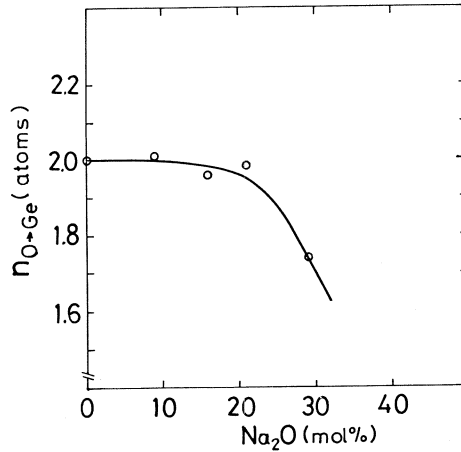


Fig. 5. Number of Ge atoms coordinating to an O atom in $\text{Na}_2\text{O-GeO}_2$ glasses.

remains two until the composition of about 20 mol % Na_2O . This result satisfactorily supports the validity of the assumption made in the above calculation. However, with increasing Na_2O -content beyond 20 mol % Na_2O , the coordination number of an O atom to Ge atoms becomes drastically less than two. This implies that there happen non-bridging O atoms in the glasses with the composition of more than 20 mol % Na_2O -content to result in breaking the continuous random network of the glasses. The apparent decrease in the concentration of GeO_6 -octahedron units beyond 20 mol % Na_2O may originate from the occurrence of the bridge-breaking mechanism.

Acknowledgements

The authors would like to thank the member of Laboratory of Nuclear Science for the kind operation of the LINAC and the helpful services of the computer system.

References

- 1) M. Ueno and K. Suzuki : to be published.
- 2) M. Misawa, D. L. Price and K. Suzuki : J. Non-Cryst. Solids **37** (1980) 85.
- 3) A. O. Ivanov and K. S. Evstropiev : Dokl. Akad. Nauk SSSR **145** (1960) 797.
- 4) K. Kamiya and S. Sakka : Phys. Chem. Glasses **20** (1979) 60.
- 5) M. Ueno, M. Misawa and K. Suzuki : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci., Tohoku University **13** (1980) 254.
- 6) K. Suzuki, M. Misawa, K. Kai and N. Watanabe : Nucl. Instrum Methods **147** (1977) 519.
- 7) M. Ueno, M. Misawa and K. Suzuki : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci., Tohoku University **14** (1981) 100.

Fe_{3-x}Mn_xSi 固溶体の結晶構造 (1.8 ≤ x ≤ 3)

金 研

大橋正義・富吉昇一

§1. 序

Gladyshevskij 等¹⁾は、X線回折により、Fe₃Si と Mn₃Si は DO₃型結晶構造の全域固溶体 Fe_{3-x}Mn_xSi をつくることをみいだした。以来、単純強磁性から角度配置を伴う強磁性への転移等多くの興味ある報告があるが²⁾、それらは $x < 1.8$ の組成領域に集中し、 $x \geq 1.8$ の領域の物性は、Mn₃Si³⁾を除き、解明されていない。Yoon と Booth²⁾は、粉末試料のX線回折を行い、 $x \geq 1.8$ では Gladyshevskij 等の結果と一致する格子定数の立方晶相の他に微量の正方晶相の混入をみだし、Sénateur と Fruchart⁴⁾の報告に基づく (Mn_{1-y}Fe_y)₅Si₂の c/a で指数付けできると報告している。一方、多結晶体の金相学的解明とX線回折を行った Lutskaya 等⁵⁾は単相であると報告している。Lutskaya 等は比熱、熱膨脹、および音速の測定を行い、 $x \cong 2.25$ まで角度配置を伴う強磁性相が延びている磁気相図を示したが、Yoon 等は、 $1.8 \leq x \leq 3.0$ の物質は 4.2 K まで自発磁化を持たず、FeMn₂Si、Fe_{0.75}Mn_{2.25}Si の帯磁率温度曲線に小さい山を認め、反強磁性相を示唆しているが、ネール温度を決めるに至っていない。今回、前報告⁶⁾に続き、単結晶の作製とその中性子回折を行い、 $1.8 \leq x < 3$ の組成領域の結晶構造の解明を試みた。

§2. 測定および結果

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。単結晶による TOF 法の弱点である消衰効果の補正を容易にするためと磁性の情報を同時に得る目的で、試料は 5.2 ~ 5.8 K に保持された。

使用した試料は $x = 2.25, 2.50, 2.75, 2.90, 2.95$ の単結晶であり、その作製は前報告⁶⁾と同様の手順によった。単結晶作製時の熔融保持温度は融点組成に対し直線的に変化すると仮定し推定される融点より約 50 ~ 100°C 上とした。

室温におけるX線回折により、格子定数は $x = 2.25, 2.50, 2.75, 2.90, 2.95$ 夫々に対し $a_0 = 5.689\text{Å}, 5.700\text{Å}, 5.710\text{Å}, 5.717\text{Å}, 5.718\text{Å}$ と求まり、第1図に△印で示すように○印のYoon

等の結果とよく一致している。格子定数の組成変化は $x \approx 2$ を境とする2本の直線で表わされる。

結晶は〔110〕を回転軸とする約 $3 \text{ mm} \times 3 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ の角柱に切りだし中性子回折の試料とした。TOF 法では逆格子面の原点を通る晶帯の単結晶中性子回折結果が同時に得られ、一つの晶帯軸上にある全ての反射図形をみることができる。したがって、磁気反射や混入した他の相による反射等のみおとしは少ないと考えられ、今回

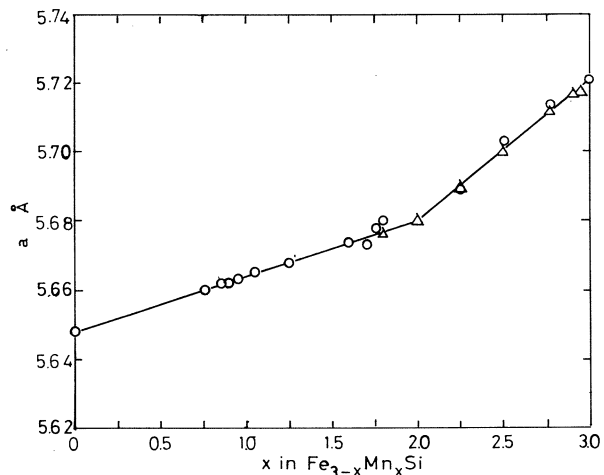
の研究目的には極めて有効である。測定した晶帯軸は $\{111\}$, $\{11\bar{1}\}$, $\{001\}$, $\{110\}$, $\{113\}$, $\{331\}$, $\{224\}$ 等である。第2図に得られた中性子回折図形の例として、 $\text{Fe}_{0.25}\text{Mn}_{2.75}\text{Si}$ の 5.7 K における $\{111\}$ 晶帯の散乱角 $2\theta = 40^\circ$ の結果を示した。これらの結果は、クライオスタットを構成しているAl等の反射の混入を除くため、結晶を約 5° 回転したオフ・ブラックのデータをバックグラウンドとして差引いた。第2図には (111) , (222) , (333) の核散乱の他に $\frac{1}{2}(111)$, $\frac{1}{2}(333)$ の指数の反射がみられるが、第2相によるその他の反射は認められない。測定した全ての結晶の晶帯軸上で第2相の反射は認められなかった。 $\frac{1}{2}(111)$, $\frac{1}{2}(333)$, $\frac{1}{2}(113)$ 等は、その強度の温度変化の測定から、磁気構造に基づく反射線であると考えられる。

単結晶の TOF 法によるブラッグ散乱の積分強度は

$$I(hkl) = Ci(\lambda) A(\lambda) \frac{\lambda^4}{\sin^2 \theta} |F_{hkl}|^2 e^{-2W} \gamma \quad (1)$$

で与えられる³⁾。ここで C は定数、 $i(\lambda)$ はカウンタ効率を含んだ波長 λ から $\lambda + d\lambda$ 区間の入射中性子線強度、 $A(\lambda)$ は吸収因子、 $\lambda^4/\sin^2 \theta$ は Lorenz 因子、 F は構造因子、 e^{-2W} は Debye-Waller 因子、そして γ は消衰因子である。

$i(\lambda)$ は同じ散乱角で V による散乱を測定して決めた。 $A(\lambda)$ は小さく考慮しなかった。温度因子のための補正は、測定温度が液体ヘリウム温度のため、少ない。消衰効果は Tomiyoshi



第1図 $\text{Fe}_{3-x}\text{Mn}_x\text{Si}$ 固溶体の格子定数の組成依存性。 \triangle : 現在の結果, \circ : YoonとBooth²⁾の結果。

等⁷⁾の取扱いに従った。

結晶構造は、基本的には、ホイッスラL2₁型とした。この構造は原点を(0, 0, 0), $(\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, \frac{1}{4})$, $(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$, $(\frac{3}{4}, \frac{3}{4}, \frac{3}{4})$ とする4個のf.c.c.部分格子A, B, C, Dより成り、D位置はSi原子が、B位置は主としてMn原子が、そして、A, C位置は残りのMn原子とFe原子が均等に占める。L2₁構造におけるFe-Mnの秩序度をzとすると、組成による夫々の位置の核散乱振幅 $b_{A,C}$, b_B , b_D は、Yoon等と同様に、

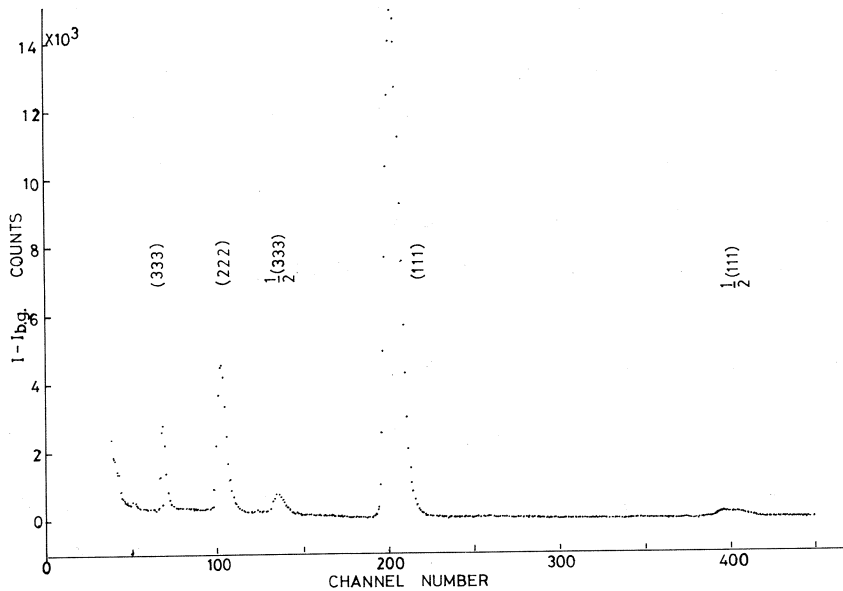
$$y = \frac{3-x}{3} z$$

$$b_{A,C} = \left(\frac{3-x}{3} + \frac{y}{2} \right) b_{Fe} + \left(\frac{x}{3} - \frac{y}{2} \right) b_{Mn}$$

$$b_B = \left(\frac{3-x}{3} - y \right) b_{Fe} + \left(\frac{x}{3} + y \right) b_{Mn}$$

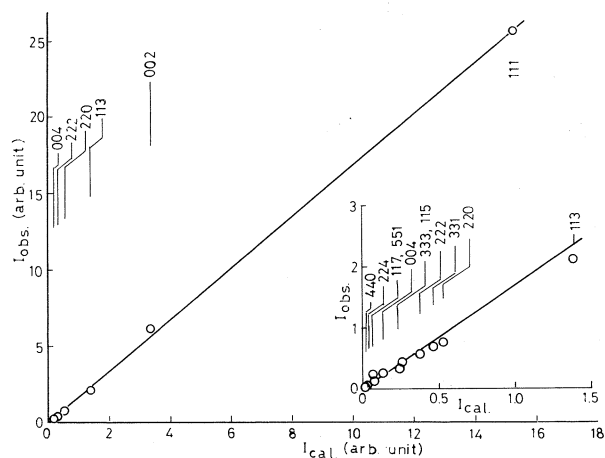
$$b_C = b_{Si} \tag{2}$$

となる。夫々の原子の核散乱振幅は $b_{Fe} = 0.951 \times 10^{-12}$ cm, $b_{Mn} = -0.37 \times 10^{-12}$ cm, $b_{Si} = 0.415 \times 10^{-12}$ cmを使用した。



第2図 Fe_{0.25}Mn_{2.75}Siの{111}晶帯の中性子回折図形。
測定温度は5.7Kで、オフ・ブラッグによるバックグラウンドを差し引いている。

Fe_{0.25}Mn_{2.75}Si について解析した結果を第3図に示す。実測値と計算値は $z=1$ の時最もよく合い、その時の信頼度因子は0.11であった。信頼度因子が少々悪いのは、散乱角を40°に固定して実験したため、観測される積分強度は3桁にわたり分布しており十分な精度に達していない反射線を含むためである。散乱角を60°, 90°等にし、高次反射線の精度を高めれば信頼度の改善は充分期待できる。他の組成の試料についての同様の測定と解析は、試料による消衰効果の補正值の違いや(0.04~0.12の範囲に入っている)信頼度の違いはあるが、 $z=1$ でよく合っている。



第3図 Fe_{0.25}Mn_{0.75}Siの結晶格子による散乱積分強度の実験値と計算値の比較。挿入図は弱い反射強度の部分拡大したものであり、図中の数字は反射面指数である。実験値は消衰効果および温度因子についての補正をした。

§3. 考 察

単結晶による中性子回折は、X線回折により求められた従来の値とよく一致する格子定数を与え、 $x \approx 2$ で折れ曲りを示す格子定数の組成依存性を示す。しかし、Yoon 等が指摘した $(Mn_{1-y}Fe_y)_5Si_2$ の c/a で指数付けできると報告している正方晶相や他の第2相の混入は認められなかった。液体ヘリウム温度での測定のため同時に観測されている $\frac{1}{2}(111)$, $\frac{1}{2}(113)$ …… 等の反射線は、反射積分強度の温度変化がブリリアン関数的変化に近く、また、その組成依存性が $x=1.75$ での反強磁性ネール温度と Mn_3Si のネール温度をなめらかに継ぐ転位温度を与えることから反強磁性磁気構造によるものと考えられる。

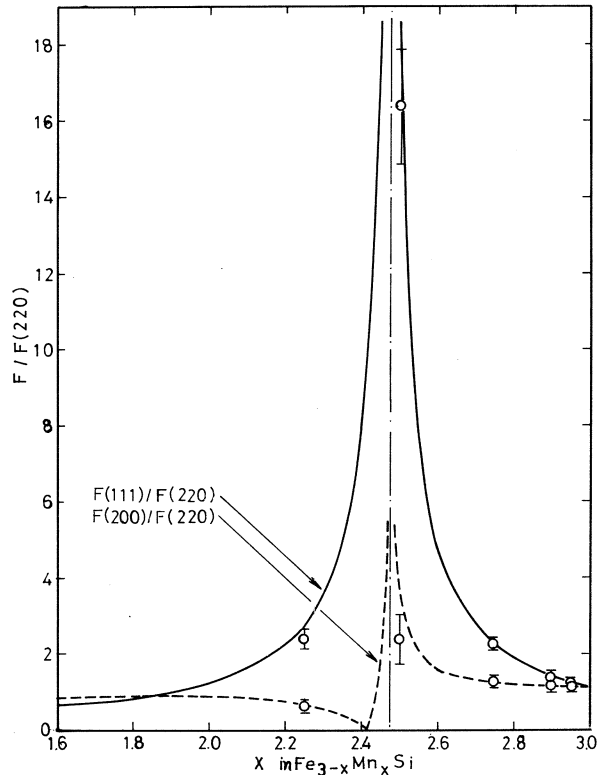
夫々の試料の反射積分強度の(1), (2)式に基づく解析は $z=1$ を与え、 $x \leq 1.75$ におけると同様に $1.8 \leq x < 3.0$ の組成範囲でも、結晶構造はホイットスラ $L2_1$ 型で記述できると考えられる。この時の構造因子 F は

$$\frac{h+k+l}{2} \text{ が偶数のとき } F = b_{Si} + b_{Mn} + b_{Fe} \quad (3-1)$$

$$\frac{h+k+l}{2} \text{が奇数のとき } F = b_{\text{Si}} + b_{\text{Mn}} - b_{\text{Fe, Mn}} \quad (3-2)$$

$$h, k, l \text{ が全て奇数のとき } F = b_{\text{Si}} - b_{\text{Mn}} \quad (3-3)$$

と簡単になる。基本格子線構造因子(3-1)で規格化した(3-2), (3-3)の超格子線構造因子 $F(200)/F(220)$ と $F(111)/F(220)$ の組成依存性は、Mnの核散乱振幅が負の値をとるため極めて顕著な変化を示し、第4図の実線と破線のようになる。夫々の試料の $F(200)/F(220)$, $F(111)/F(220)$ の観測値は、図中に○印で示すように、計算値とよく一致している。したがって、この組成範囲では $L2_1$ 型結晶構造で、D, B位置は夫々SiとMnのみにより占められており、A, C位置はFeとMnの組成比に従い均等に占められている。このことは、また、格子定数の組成依存性にみられる折れ曲りは、A, C位置に入っているFeとMnの何らかの規則化によるものでなく、Fe-Si, Mn-Siの結合性の差に原因を求めべきものの様に思われる。



第4図 基本格子反射強度で規格化した(111)型および(200)型超格子反射強度の組成依存性。実線と破線は夫々の計算曲線であり、○印は得られた実測値である。

本実験を遂行するにあたり、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) E. I. Gladyshevskij, P. I. Kripjakevic and Ju B. Kuzma : Fiz. Metal Metalloved

- 2** (1956) 454.
- 2) S. Yoon and J. G. Booth : J. Phys. F : Metal Phys. **7** (1977) 1079.
 - 3) S. Tomiyoshi and H. Watanabe : J. Phys. Soc. Japan, **39** (1975) 295.
 - 4) J. P. Sénateur and R. Fruchart : C R Acad. Sci., Paris **258** (1964) 1524.
 - 5) L. F. Lutskaya, G. I. Kalishevich and P. V. Ge'ld : Sov. Phys. Solid state **18** (1976) 1011.
 - 6) 大橋正義, 富吉昇一 : 核理研研究報告 **13** (1980) 87.
 - 7) S. Tomiyoshi, M. Yamada and H. Watanabe : Acta Cryst. **A36** (1980) 600 ; B. J. Becker and P. Coppens : Acta Cryst. **A30** (1974) 129.

パルス中性子偏極とTOF 偏極中性子回折

磁気鏡による中性子偏極の研究

理学部物理

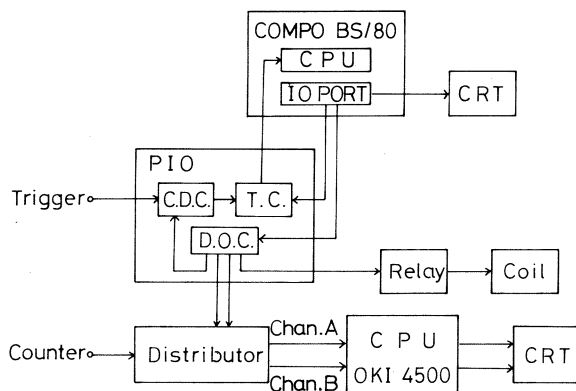
佐々木幸男・小野一志・遠藤康夫

§ 1. 序

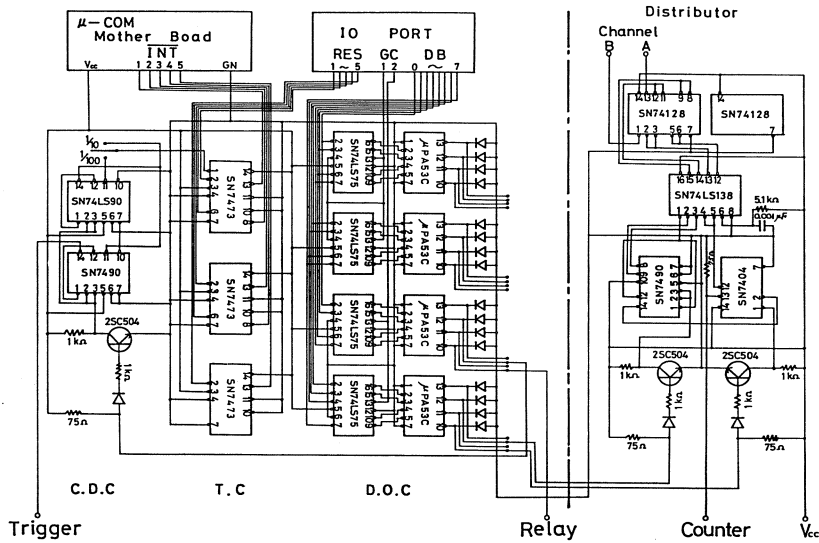
我々は、ソーラー型磁気鏡偏極子によって、白色パルス冷中性子 ($\leq 5 \text{ meV}$, $\geq 4 \text{ \AA}$) の偏極化を進めてきた。既に報告^{1,2)}したように、全反射原理を応用した磁気鏡偏極子の磁気特性の研究を始めとして、中性子反射率、スピン・フリッパーの特性の研究によってパルス中性子の偏極が充分行なえることを確認した。今回はマイクロ・コンピューターによってスピン・フリッパーの自動制御を行ない、スピン・フリッパーONとOFFの状態の回折パターンを中性子のパルス毎に制御して測定するシステムを試作したので報告する。この装置を用いたFe粉末による偏極中性子散乱の実験結果についても合わせて報告する。

§ 2. スピン・フリッパーの制御システム

前回報告²⁾したようにスピン・フリッピングは2個のヘルムホルツコイルがつくる反転磁場に対して、中性子スピンの非断熱的に転向するためにおこる。ここでは片方のコイルの磁場電流を中性子パルスに同期して反転させて中性子のスピン・フリッピングのON, OFF状態を実現している。これらの機構を制御するためにNEC社製マイクロコンピューターCOMPO BS/80を導入した。このシステムのブロックダイアグラムを第1図に、又インターフェイス



第1図 システムのブロックダイアグラム。

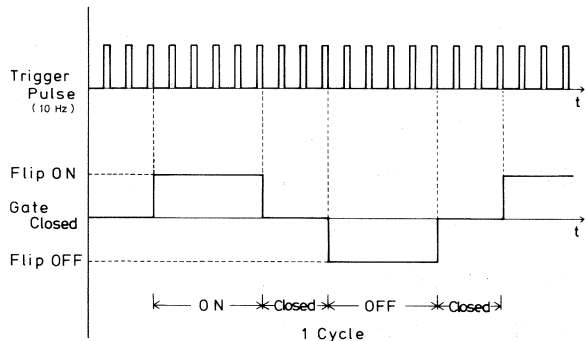


第2図 P I O及びDistributor の回路図。

(P I O)及びDistributor の回路を第2図に示す。P I O 部はマイコン本体に組み込まれ Count down 回路 (C . D . C .) , Trigger 回路 (T . C .) , Digital out 回路 (D . O . C .) から構成されている。

次にシステムの動作概念について説明する。ラインナックからの 100 Hz のトリガーパルス信号を C . D . C . に入力し、出力トリガー信号を 10 Hz 又は 1 Hz に減衰させてコンピューターに割り込みをかける。その割り込み回数が設定回数と一致した時に D . O . C はリレーを開閉させてコイルの磁場電流を反転させる。この時のカウンターからの信号は Distributor を通してシステムの状態がフリッピング ON か OFF かに従いそれぞれのチャンネルに振り分けられる。

1 サイクルはスピニング ON → 反転 → スピニング OFF → 反転の 4 つのフレームから成り、各フレームのタイミングはソフトウェアによって自由に変えることができる。システムのタイムチャートを第3図に示す。この図は、1 / 10 Count down (10 Hz) の



第3図 システムのタイムチャート。

場合を示している。Gate closed (Closed)は反転のフレームを表し、この時間カウンターからの信号は計測されない。即ち反転フレームを設けることにより磁場電流反転時の影響を防ぎ、フリッピングON及びOFF フレームで一定の磁場電流が流れるようにした。またシステムの運転状態をCRTに表示することができる。

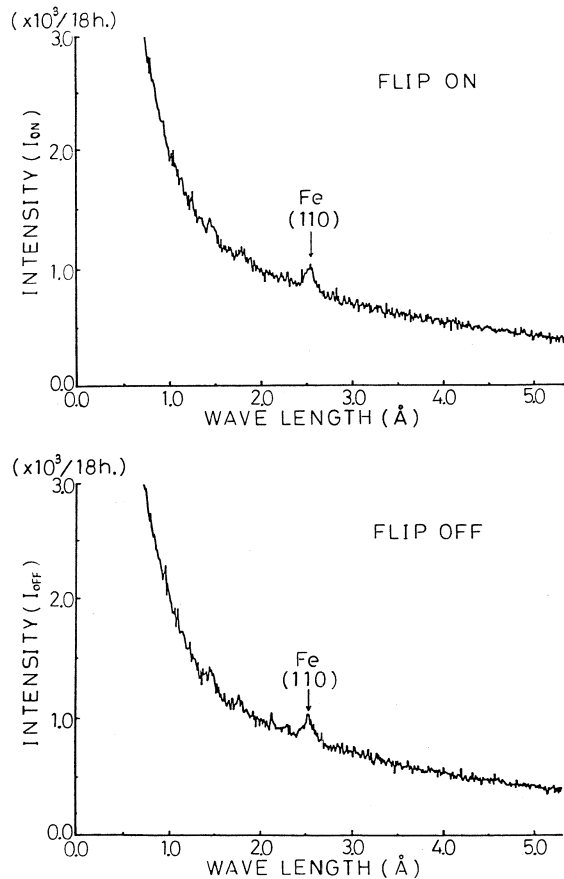
§ 3. 実験

Fe粉末の偏極中性子散乱実験を行なって本システムを試験した。Fe粉末はアルミ箔で作った直径15mm、高さ20mmの円筒容器に詰め込んだものである。装置の配置は前回報告した通りである。試料をアナライザーの位置にセットし、アナライザー用電磁石で2400 Oeの磁場を印加した。ポラライザーからの反射中性子の臨界波長は $\lambda_c^+ = 2.25 \text{ \AA}$ でFe(110)面からの散乱中性子の波長が $\lambda = 2.6 \text{ \AA}$ になるようにカウンターを $2\theta = 80^\circ$ の位置に配置した。この時のフリッピングON, OFF及び反転のタイミングはそれぞれ0.5秒及び0.3秒である。

§ 4. 結果及び考察

マイクロコンピューターによってスピン・フリップの制御とデータ集積の同期をとることに成功した。しかしFe粉末(110)のTOF回折パターンは散乱中性子強度が弱く、また高速中性子に対する遮蔽が充分でなかったためにバックグラウンドの方が高くON, OFFでの回折パターンの違いを確認するには至らなかった。第4図にTOFパターンを示す。

従来の実験で得られたFeの磁気形状因子³⁾と前回報告した $\lambda = 2.6 \text{ \AA}$ 付近での偏極子の偏極率



第4図 Fe粉末(110)のTOF回折パターン。

(81%)及びフリッパーのフリッピング効率(92%)を用いて反転比 $R = \frac{I_{\text{OFF}}}{I_{\text{ON}}}$ を逆算すると $R = 2.6$ となるはずである。

現在では高エネルギー研の冷中性子源から得られる冷中性子 ($\lambda = 4 \sim 12 \text{ \AA}$) を同様なシステムで偏極して散乱実験が行なわれている(装置名「TOP」)。現在, OPP基板からなる Proto-type のソーラー磁気鏡の偏極率が $\lambda \approx 5 \text{ \AA}$ で93%, フリッパーのフリッピング効率 $\geq 98\%$ という値が得られている。

この報告をもって, 磁気鏡偏極子の開発から始まって, 一応TOF法によるパルス偏極中性子回折実験法開発のための予備実験及び基本的なデータ集積のための実験を終了させて頂く。長い間核理研のスタッフの方々の御協力に感謝する。特に新村信雄, 窪田健雄, 山田和芳氏に謝意を表す。

参 考 文 献

- 1) 佐々木幸男, 遠藤康夫: 核理研研究報告 **12** (1979) 65.
- 2) 佐々木幸男, 遠藤康夫: 核理研研究報告 **13** (1980) 92.
- 3) C. G. Shull and Y. Yamada : *Proc. Int. Conf. Magnetism and Crystallography, Kyoto, Japan, Sept, 1961.*

III. 放 射 化 学

^{111}In および $^{111\text{m}}\text{Cd}$ カスケード γ 線による サムピークの生成と物質状態による影響

理学部化学

吉原賢二・三好達朗

鈴木洋子・鍛冶東海

Sum peak formation in ^{111}In and $^{111\text{m}}\text{Cd}$ γ -ray spectra was studied in term of various environmental factors. Biological macromolecules of bovine serum albumin (BSA) make chemical combination with $^{111}\text{In}^{3+}$ and it was proved that sum peak intensity ratio was influenced by the change of the chemical state of indium.

§ 1. 序 論

放射性核種から γ 線がカスケードに放出されるとき、 γ 線スペクトル上にサムピークが生成することがしばしば観察される。このサムピーク強度はその核種が置かれている環境によって換言すればその物理化学的あるいは化学的狀態によって変化することが知られている。¹⁻⁴⁾

本報告では著者らの以前からの一連の報告³⁻⁴⁾ にひきつづき、 ^{111}In と $^{111\text{m}}\text{Cd}$ のサムピーク強度につき研究した。

^{111}In はかなり以前から摂動角相関がみられる核種として知られている。⁵⁾ また最近では生体巨大分子中での放射性核種によって標識された原子の近傍の分子の局所的な挙動や構造の研究が注目されてきている。⁶⁻¹¹⁾

吉原らは^{152,154)} Eu を用いてガンにかかった患者の血液と正常な人の血液との間に摂動角相関パラメータに有意の差が見出されることを述べている。¹²⁾ この事は臨床的に直ちに有用であることを意味しないが、血液の成分との関連でさらに詳しく検討すれば、将来有用な方法へ発展する手がかりを与える可能性がある。

臨床的利用においてはできるだけ短時間に結果が得られることが望ましく、時間のかかる摂動角相関よりは、これと原理的に似たサムピーク法を用いた方が有利であろうと思われる。

これらのことから具体的に血液の構成要素であるアルブミンを対象とし、 ^{111}In につき、サムピーク法を用いて bovine serum albumin (BSA) と ^{111}In との結合に関する検討をおこなった。

また^{111m}Cdについては¹¹¹Inに比べて半減期が短いいため現段階ではまだ精度の高い実験には至っていない。しかし化学形の変化によるサムピーク強度の変化については傾向がつかめたので¹¹¹Inにあわせて研究結果を報告することとした。

なおBSA (bovine serum albumin) は分子量 66,200 の牛の血清アルブミンである。血清アルブミンは血液に含まれる全血清タンパクの約60%を占め、血漿中の浸透圧の維持や脂肪酸等の小分子の輸送に重要な役割を果す。水に溶けやすく、塩析されにくい。中性では球状タンパク質であり、構造は第1図に示すとおりである。高分子であるので、ゲルクロマトグラフィーによる分析法をも併用して検討することとした。

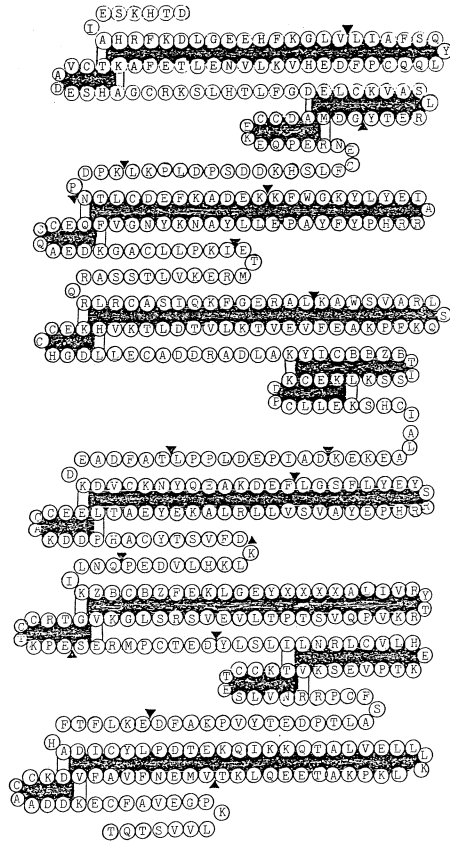
§ 2. 実験

高純度化学研究所の金属インジウム (果粒状 99.9%) および金属カドミウム (粒状 99.9%)、小宗化学薬品の塩化カドミウ

ム $CdCl_2 \cdot 2.5 H_2O$ (99%以上)、三津和化学の塩化カドミウム $CdCl_2 \cdot x H_2O$ (99%以上) を使用した。これらを東北大学原子核理学研究施設の電子直線加速器により γ 線照射した。照射時の電子エネルギーは50-60MeV で白金コンバーターにより γ 線に転換した。

照射の際の核反応は

¹¹³ In (γ , 2n)	¹¹¹ In	2.83 d
¹¹⁵ In (γ , n)	^{114m} In	49.51 d
¹¹⁵ In (γ , γ')	^{115m} In	4.49 h
¹¹¹ Cd (γ , γ')	^{111m} Cd	48.6 m



COMPOSITION

ALA A	GLN Q	LEU L	SER S
ARG R	GLU E	LYS K	THR T
ASN N	GLY G	MET M	TRP W
ASP D	HIS H	PHE F	TYR Y
CYS C	ILE I	PRO P	VAL V
ASX B	GLX Z	X X	

第1図 Structure of bovin serum albumin.

$^{112}\text{Cd} (r, n) \ ^{111\text{m}}\text{Cd} \quad 48.6 \text{ m}$

$^{113}\text{Cd} (r, 2n) \ ^{111\text{m}}\text{Cd} \quad "$

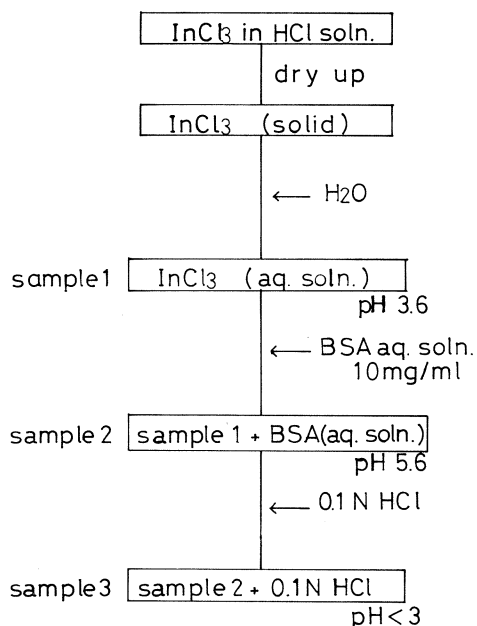
$^{116}\text{Cd} (r, n) \ ^{115}\text{Cd} \quad 53.4 \text{ m}$

$^{116}\text{Cd} (r, n) \ ^{115\text{m}}\text{Cd} \quad 44.8 \text{ d}$

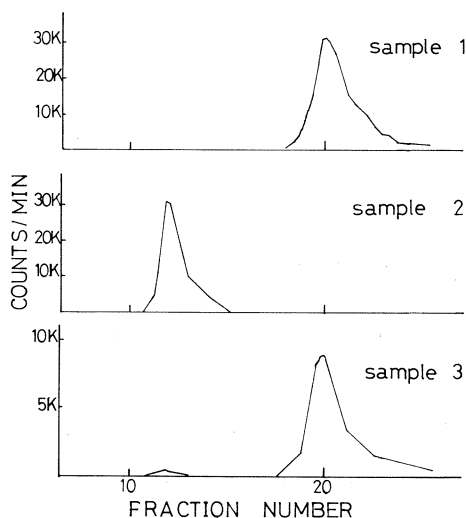
等であり、 ^{111}In の場合は $^{114\text{m}}\text{In}$ の存在が測定のさいの最終精度に影響する。 $^{115\text{m}}\text{In}$ 等は照射後の冷却によって消失する。また $^{111\text{m}}\text{Cd}$ の場合には ^{115}Cd , $^{115\text{m}}\text{Cd}$ 等が影響することになり、これらについて注意が必要である。またのちに述べるように塩化カドミウムの照射のさいには Cl の種々の核種が生成するので注意が必要である。

なお BSA はシグマ社の製品を使用した。ゲルクロマトグラフィーには Pharmacia Fine Chemicals 社の SP-Sephadex G-10 を使用した。

^{111}In に関しては化学操作を第 2 図に示した。照射したターゲットを 1 N HCl に溶解し、蒸発乾固して InCl_3 とし、以下図に示すような操作でおおのこの試料の調製をおこなった。In は pH 3.8 以上では加水分解が起るので十分これに注意した。 InCl_3 水溶液 (試料 1) に対し BSA 水溶液 (10mg/ml) を過剰に加えた混合水溶液 (試料 2) を作った。さらに試料 2 に 0.1 N HCl を加え、In-BSA の結合を切断したもの (試料 3) を作った。これらの試料はゲルクロマトグラフィーにかけ In と BSA の結合の有無を確認した。使用したカラムは直径 1.3 cm, 長さ (高さ) 40 cm であった。溶離には 0.9 % NaCl を用い流速約 1 ml/min とした。1 ml ごとに試験管に分取してその放射能



第 2 図 Chemical procedure for In^{3+} -BSA.



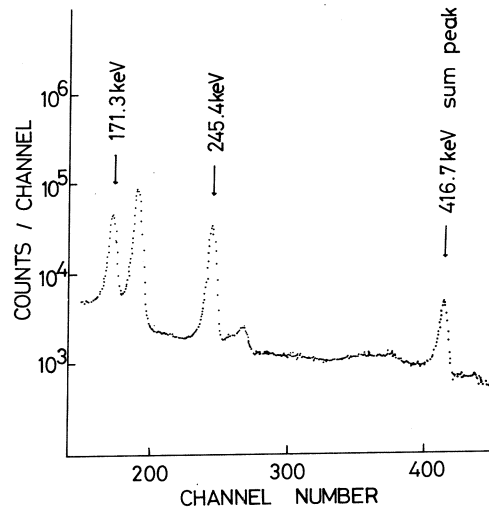
第 3 図 Elution curve of samples for measurement.

を測定した。その結果を第3図に示す。

図からわかるように試料1と3とはほとんど同じところに主ピークが現れる。試料2はBSAとInが結合していることを示すピークであり、液量少量のところで現われている。試料3にはごく少ない割合であるが未分解のIn-BSAが残っている。しかし大勢に影響はないものと思われる。

このようにInとBSAの結合は確認できるが、これらについて γ 線スペクトルをGe(Li)検出器で測定をおこなった。そのスペクトルの1例を第4図に示す。

171.3 keVの右側のピークは ^{114m}In の190 keVの γ 線によるピークである。なおこれらの測定は計数値の統計誤差を小さくするため、サムピークの計数値が数万になるまで測定した。測定時間は数分秒のオーダーである。



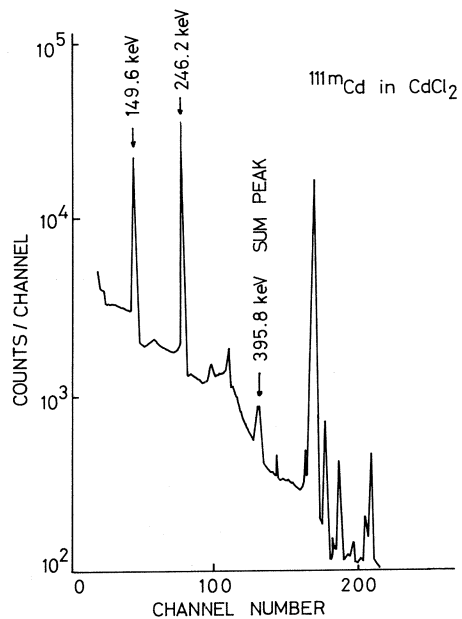
第4図 γ -Ray spectrum of $^{111}\text{In}^{3+}$

また ^{111m}Cd の γ 線スペクトルの測定例は第5図に示す。これは塩化カドミウム水溶液試料であり ^{34m}Cl 等の核種にもとづく γ 線ピークも見えている。金属カドミウムの場合にはもっと単純なスペクトルとなる。陰イオン種はCdと分離することが可能であるが、今後の検討にまちたい。

§ 3. 結果と考察

第6図には ^{111}In と ^{111m}Cd の壊変スキムを示す。

^{111}In について171.3 keVと245.4 keVのカスケードの系で得られる416.7 keVのサムピークのもの γ 線強度に対する比は第1表に示した。第2図に示す操作で得られる



第5図 γ -Ray spectrum of $^{111m}\text{CdCl}_2$.

第1表 Photopeak intensity ratio
in ^{111}In -labelled samples.

	I_{sum} / I_{171}	I_{sum} / I_{245}
1	0.04112 ± 0.00126	0.05565 ± 0.00112
Sample 2	0.04348 ± 0.00086	0.06266 ± 0.00219
3	0.04139 ± 0.00056	0.05845 ± 0.00114

試料1 ($^{111}\text{In}^{3+}$)は試料2 (^{111}In -BSA化合物)に比べ大きくなり、結合を破壊した試料3 ($^{111}\text{In}^{3+}$)になると再び小さくなるが判る。

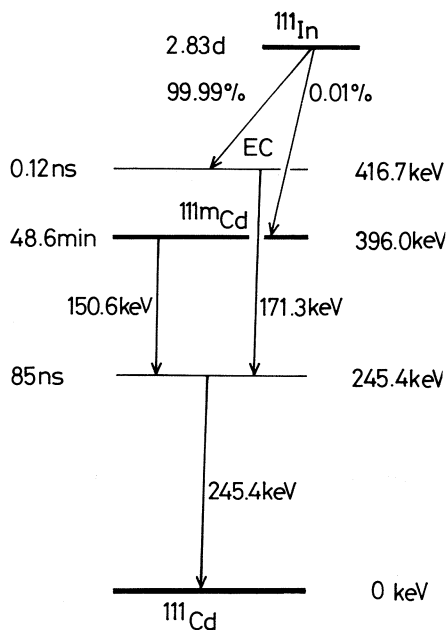
誤差は数回の独立した実験に対する標準偏差をとってある。171.3 keV, 245.4 keV いずれにしても上の傾向は同じである。

一方 InCl_3 (dry), In_2O_3 , In (金属), InCl_3 (水溶液)の摂動角相関のデータは Steffenら⁵⁾によって第7図に示されるようなものが得られている。

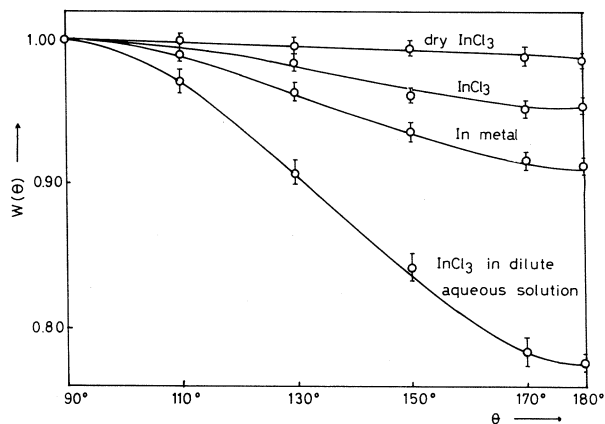
水溶液の場合が無摂動のものに近い。固体の場合には摂動のため曲線がなまっている。

第1表のデータをこれと比較してみると試料2 (^{111}In -BSA化合物-水溶液)は水溶液であるにもかかわらず、 $^{111}\text{In}^{3+}$ イオン水溶液に比べて大きな値であり、見かけ上、第7図の固体の値に近くなっていることがわかる。この理由として、 ^{111}In -BSA化合物において ^{111}In

が何らかの意味で動きを制限され、フリーな回転が阻害されていることを考える必要があるも



第6図 Decay schemes for ^{111}In and $^{111\text{m}}\text{Cd}$.



第7図 Influences of chemical and physico-chemical environments on angular correlation of cascade r -rays emitted from ^{111}In .

第2表 Photopeak intensity ratio in ^{111m}Cd -compounds.

Sample	I_{sum} / I_{245}	
	observed	calculated
CdCl_2 (aq)	0.0183 ± 0.0006	0.0130
Cd (metal)	0.0175 ± 0.0018	0.0123
CdCl_2 (solid)	0.0167 ± 0.0012	0.0120
$\text{CdCl}_2 \cdot 2.5 \text{H}_2\text{O}$ (solid)	0.0171 ± 0.0011	

のと思われる。

また ^{111m}Cd について種々の状態におけるサムピーク強度比は第2表に示すとおりである。実験値と理論値は傾向として一致していることがわかる。ここで理論値は前報³⁾の方法で求められたものである。

終りに照射にあたってお世話になった東北大学原子核理学研究施設八木益男助教授とマシン・グループの方々に感謝する。またこの研究に当りご配慮いただいた塩川孝信名誉教授に感謝する。

参 考 文 献

- 1) 例えば K. Debertin and U. Schötzig : Nucl. Instrum. & Methods **158** (1979) 471.
- 2) M. de Bruin and P. J. M. Korthoven : Radiochem. Radioanal. Lett. **21** (1975) 287.
- 3) 吉原, 鍛冶, 三好, 長井, 塩川 : 核理研研究報告 **11** (1978) 268.
- 4) K. Yoshihara, H. Kaji and T. Shiokawa : Inorg. Chim. Acta **32** (1979) L 43.
- 5) R. M. Steffen : Adv. Phys. **4** (1955) 293.
- 6) M. L. Thakur, A. W. Segal, L. Louis, M. J. Welch and J. Hopkins : J. Nucl. Med. **18** (1977) 1020.
- 7) C. J. Mathias and M. J. Welch : ibid **20** (1979) 659.
- 8) U. Scheffel, M. F. Tsan and P. A. McIntyre : ibid. **20** (1979) 524.
- 9) T. K. Leipert, J. D. Baldeschwieler and D. A. Shirley : Nature **220**

(1968) 907.

- 10) C. F. Meares , M.W. Sundberg and J.B. Baldeschwieler : Proc. Natl. Acad. Sci. **69** (1972) 3718.
- 11) K. S. R. Sastry, G. J. Halleo , M.E. Ottlinger and E.W. Westhead : Hyperfine Interactions **4** (1978) 891.
- 12) Y.C. Yeh, H. Kaji , K. Yoshihara and T. Shiokawa : Radioisotopes **26** (1977) 423.

^{18}F 標識フッ化アルキルの簡易調製法

核理研, 理学部化学*

八木益男・伊澤郡蔵*・村野宜史*

A simple and rapid synthetic method of ^{18}F -labelled alkylfluorides has been developed by using a radio-gas chromatograph connected a relatively powerful ^{18}F -source suitable for use to nucleophilic displacement reaction. The ^{18}F -source was prepared by direct fluorination of surface-oxidized silver-wool with anhydrous H^{18}F . Several ^{18}F -labelled alkylfluorides were synthesized by using the corresponding bromocompounds and according to ordinary gas chromatographic method. The synthesis and the isolation were sufficiently rapid and efficient to allow production of usable amounts of the desired compound.

§ 1. 緒言

著者らの一人は, 先に光核反応による ^{18}F 製造と ^{18}F 標識無水フッ化水素の簡易調製法について検討し, それらを報告した¹⁻³⁾。その後, ^{18}F 標識無水フッ化水素は, 表面酸化処理銀ウール上に完全に捕集され, ^{18}F 標識フッ化銀を生成することと, またさらにこれをラジオ・ガス・クロマトグラフの前置カラムとして装着すると, 他ハロゲン化アルキルにたいする求核置換反応により, ^{18}F 標識フッ化アルキルの合成と分離を通常の方法によって簡易, 迅速に実施することができることを新らたに見出した。

ここでは, その新らたに開発された ^{18}F 標識フッ化アルキルの簡易, 迅速な合成と分離法について述べる。

§ 2. 実験

2.1 試薬および ^{18}F の製造, 捕集

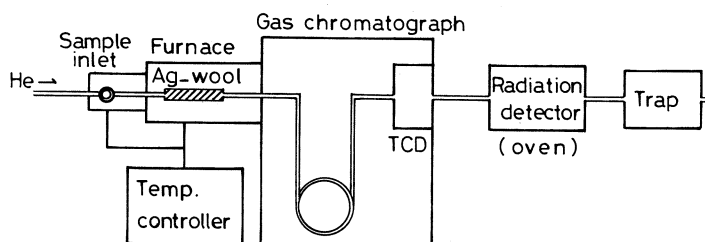
銀ウールは Merck 社製 (Art. 1506) を用い, 太さ約 3 mm, 長さ 13 cm の紐状にした。ついて白金陰極を用い 1 N 水酸化ナトリウム溶液中で, 4-5 V, 0.3-0.5 A の条件下で約 20 分

間電解酸化した。電解後は十分に水洗し、さらにアセトンで洗浄し、110℃で乾燥したあと、直径3mmのステンレス・スチール・カラムに挿入した。 ^{18}F 標識無水フッ化水素は、フッ化水素カリウム (KHF_2) 約0.1グラムを60 MeV の制動放射線 で2時間照射したあと、これを銀ウール・カラムを接続したステンレス・スチール管に入れ、ヘリウム担体ガスを流しながら、450℃で熱分解させて発生させ、ついで銀ウール・カラム上に捕集させた。

実験に用いた他の試薬は、すべて最純品を使用した。

2.2 ^{18}F 標識化合物の調製

先に開発したラジオ・ガス・クロマトグラフに⁴⁾ 前述の ^{18}F 捕集銀ウール・カラムを第1図のように接続し、それを電気炉によって200℃に加熱する。ついで通常のガス・クロマトグラフ法に従って、適当な臭化アルキルまたはヨウ化アルキルをマイクロ・シリンジを用いて1 μl 注入する。注入試薬は銀ウール・カラムを通過するとき、臭素(またはヨウ素)ーフッ素置換反応を起し、引続くガス・クロマトグラフによって、反応生成物と注入試薬に分離されて



第1図 A schematic diagram of the radio-gas chromatograph for preparation of ^{18}F -labelled organic compounds.

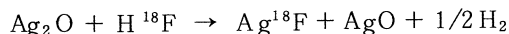
溶出されてくる。分離には60-80メッシュ Celite 545 (20% TCP) をつめた内径3mm, 長さ1.5mのカラムを用い、ヘリウム担体ガスは $20\text{ml} \cdot \text{分}^{-1}$, またカラム温度は50℃とした。反応生成物と注入試薬の分析はTCDと放射線検出器を併用しておこない、生成 ^{18}F 標識化合物は放射線検出器の出口に、液体窒素で冷却したガラス製トラップをおくことによって捕集した。

なおこの場合、放射線検出器の感度をわざと低下させるため、検出器端窓雲母は厚いものを用い多量の ^{18}F の測定ができるようにした。

§ 3. 結果と考察

3.1 銀ウール・カラムによる $H^{18}F$ の捕集

表面酸化処理銀ウール・カラムによる無水フッ化水素の捕集は、 ^{18}F 標識無水フッ化水素を一定量の照射フッ化水素カリウムから発生させ捕集することで確めた。その結果、銀ウールの表面酸化状態によるが、ほぼ2ミリ・モル程度のフッ化水素が完全に捕集できることがわかった。なおこの際、水素が同時に発生することが観測されたので、この捕集反応は次のように表わされることがわかった。



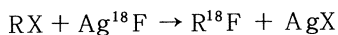
一方表面未処理銀ウールは、無水フッ化水素とほとんど反応せず、無水フッ化水素捕集反応は酸化銀特有のものであることがわかった。しかし表面酸化処理から、長時間程過した銀ウールは、フッ化水素の捕集率を著しく低下させる現象を示した。そこで表面酸化処理銀ウールは常に新鮮なもの、すなわち調製から1時間以内のものを用いることにした。

3.2 銀ウール・カラムの温度

ハロゲンフッ素置換反応をおこなう銀ウール・カラムの温度効果は、ヨウ化メチルによる ^{18}F 標識フッ化メチルの合成で検討した。得られた結果を第2図に示した。150°C以上で置換反応は急激に進行し、 ^{18}F 標識フッ化メチルは高相対収率でえられることを示した。しかし注入試薬の炭素組成が大になると、熱分解生成物を生ずる傾向があったため以後の検討はすべて200°Cでおこなうことにした。

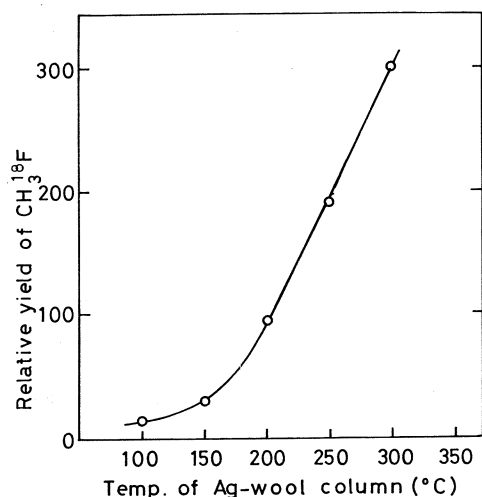
3.3 種々のハロゲン化アルキルにたいする反応性

ハロゲン化アルキルにたいする ^{18}F 標識フッ化銀との反応は次のように表わされる。



ここにRはアルキル基、XはCl, Br,

Iを表わす。塩化アルキルの場合はCl-F, 臭化アルキルの場合はBr-F, ヨウ化アルキルの場合はI-F置換として進行する。これら置換反応の反応性は、塩化プロピル, 臭化プロ



第2図 Temperature effect of the silver-wool column.

ピル, ヨウ化プロピルを用いて ^{18}F 標識フッ化プロピルの相対生成比を求めることで検討した。その結果, フッ素置換は $\text{Cl} < \text{Br} < \text{I}$ でヨウ化アルキルの場合が最も効果的であり, 塩化アルキルの場合は著しくその生成比を低下させることがわかった。

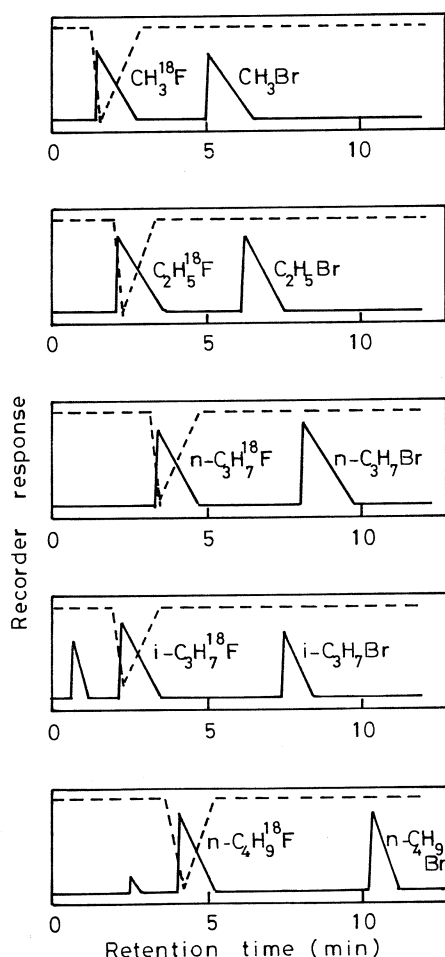
3.4 種々の臭化アルキルにたいする ^{18}F 標識化

3.3の結果から, ヨウ化アルキルを用いればフッ素置換効率が最もよいことがわかったが, 注入試薬の安定性とその入手しやすさなどから, ここでは臭化メチル, 臭化エチル, 臭化プロピル(正), 臭化プロピル(異性)および臭化ブチル(正)にたいする ^{18}F 標識化について検討することにした。えられたラジオ・クロマトグラフおよびガス・クロマトグラフは共に第3図に示した。この場合 ^{18}F 標識フッ化銀は無担体でないので, ^{18}F 標識化合物のマス・ピークとラジオ・ガスクロマトグラフのピークは一致した。これら ^{18}F 標識フッ化物の収率は50~90%であった。なお臭化プロピル(異性), 臭化ブチル(正)の場合は, 一部熱分解生成物が ^{18}F 標識化合物の前に溶出されたが, これらも効果的に分離され, かつ ^{18}F 標識化には全く無関係であったことを示した。

これら実験を通して, 用いた銀ウール・カラムは効果的なフッ素化剤として作用することが, また試薬注入から極めて短時間内に容易に ^{18}F 標識化合物を入手できることが確認された。

3.5 無担体 ^{18}F 標識化合物調製への応用

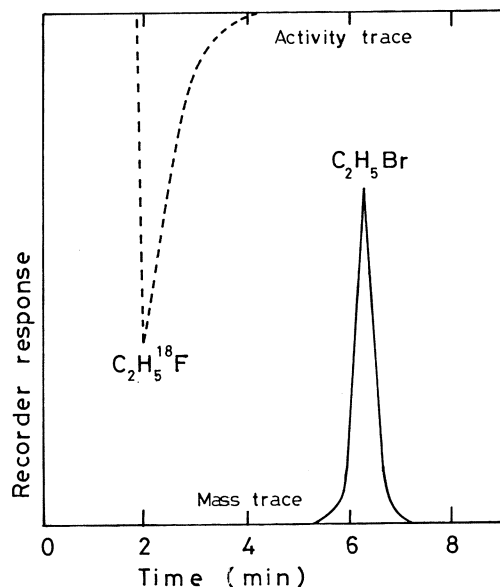
無担体 ^{18}F 標識フッ化水素を表面酸化処理銀ウール・カラム上に捕集し, それをフッ素化剤として使用すれば, 本方法によって無担体 ^{18}F 標識化合物が簡易迅速に調製できると期待される。しかし電子リニアックによる無担体



第3図 Radio-gas chromatograms of several alkyl bromides used as the reactant. (----: Activity trace, —: Mass trace).

^{18}F の製造は、収率の点で難点があることが既に指摘されている。³⁾そこで東北大学AVFサイクロトロンによりネオン-水素(20:1)混合ガス・ターゲットに重陽子を照射し、無担体 ^{18}F 標識フッ化銀ウール・カラムを調製し、フッ化アルキルの合成と分離をおこなうという試みを実施した。その検討結果の一例として、無担体 ^{18}F 標識フッ化エチル調製の場合のガス・クロマトグラフとラジオ・クロマトグラフを第4図に示した。注入試薬は臭化エチルであるが生成フッ化エチルは無担体 ^{18}F 標識化合物として生成されることを明らかに示した。

本研究遂行にあたっては、東北大学塩川孝信名誉教授および東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープ・センターの方々の御協力をいただいた。ここに感謝の意を表わします。



第4図 Preparation of carrier-free ^{18}F -labelled ethyl fluoride by using carrier-free ^{18}F -silver-wool column. The reactant is $\text{C}_2\text{H}_5\text{Br}$.

参 考 文 献

- 1) 八木, 天野: 核理研研究報告 **12** (1979) 116.
- 2) 八木, 天野: 核理研研究報告 **12** (1979) 226.
- 3) M. Yagi and R. Amano: Int. J. Appl. Radiat. Isotopes **31** (1980) 559.
- 4) K. Kondo and M. Yagi: J. Radioanal. Chem. **56** (1980) 7.

生物体中のジルコニウムの光量子放射化分析

東京都神経科学総合研，教養部*

佐藤武雄・加藤豊明*

§ 1. 緒 言

生物体中の微量元素に関しては、従来、多大の関心が持たれ、その生物圏における存在度のデータと生物学的役割に関するこれまでの研究成果はUnderwoodの著書に詳しくまとめられている。¹⁾ 生物体中に常時検出される微量元素は20~30元素であるが、このうち必須元素として認知されているのは10元素余りである。ジルコニウムは、Schroederら^{2,3)}の研究によって土壤や動植物の組織中に広く分布していることが示されているが、生体中で有意な機能を持つか否かは明らかではなく、現段階では爽雑性あるいは特異的な微量元素の一つと扱われている。ジルコニウムは岩石圏には高濃度で広く分布しており、地殻の平均存在度 165 ppm, 閃長岩 500 ppm, 頁岩 160 ppm, 砂岩 220 ppm, 深海底褐色粘土 150 ppm などと詳しく調べられているが、⁴⁾ 生物学的には従来あまり関心を持たれず、前記 Schroeder らの研究以外にはほとんど報告がみられない。彼らは種々の生物質試料を乾式灰化後、クロロアニリン酸を発色試薬とする比色定量法を適用してジルコニウムを分析した。この方法はジルコニウムに対して選択的と云はれるが、試料の灰化、分離に伴う化学操作の段階でジルコニウムの汚染や損失が考えられる。たとえば、ラット組織中のジルコニウム存在度は生試料について 3.8~16 $\mu\text{g/g}$ と報告されているが、³⁾ これは、通常のラット組織中の水分含有量を考慮して乾燥重量当りに換算すると 15~64 $\mu\text{g/g}$ に相当し、異常に高い値と思はれる。微量ジルコニウムの生体中の機能を研究するには、その正確な定量結果を与える分析法の検討が必要であらう。熱中性子による非破壊放射化分析法は化学操作に伴う目的元素の汚染、損失がない微量分析法で生物質試料の多元素同時分析に広く適用されているが、ジルコニウムについては低感度、共存核種の妨害などの理由で適用し難い。他方、非破壊光量子放射化分析による生物体試料の多元素分析に関しては、生物体標準試料を用いて、その特徴、感度、結果の信頼度などの基礎検討がなされ^{5,6)} タバコ葉⁷⁾、大気中のエアロゾルその他の環境物質^{8,9)}の多元素同時定量にも応用されている。⁹⁰Zr(r, n)⁸⁹Zr反応を利用した珪酸塩標準岩石、海底土などの地球化学試料中のジルコニウムの非破壊定量にも好結果が得られている。¹⁰⁻¹³⁾ 本研究は、この⁹⁰Zr(r, n)⁸⁹Zr反応を生物体中の微量ジルコニウムの定量に利用し、その生態学的機能を調べる目的で、必要な基礎

検討を行い若干の応用成果を得たので報告する。

§ 2. 実 験

使用したウイスター系ラットは神経研で交配繁殖させたものである。断頭放血後、臓器を摘出し、それぞれ凍結乾燥してから乳鉢で粉末にした。NBS標準試料 Orchard Leaves と Bovine Liver, および動物組織の粉末を、それぞれ約 400 mg とり、赤外線分光用錠剤成型器で 10mmφ のペレットに成型した。比較に用いた標準岩石 JB-1 は約 350 mg をアルミニウム箔で包装して 9mmφ のディスクに成型した。各ペレット試料の前後に光子束モニターとして 4~5 mg (4×4 mm) の金箔を添附し、これらを石英管に並べて入れ照射試料とした。照射は東北大学電子ライナックからの 30MeV 制動輻射 γ 線で 1~2 時間行ない、1~2 日の冷却後に 90 cm³ Ge(Li) 検出器および 1024 チャンネル波高分析装置で γ 線測定を行なった。ジルコニウムの定量は ⁸⁹Zr (半減期 79 時間) の 909 keV の γ 線ピークを用いて比較法によって求めた。

§ 3. 結果および考察

放射化分析の比較試料としては分析試料と類似の元素組成をもった標準物質を用いるのが望ましい。NBS や IAEA より種々の生物体標準試料が頒布されているが、いずれもジルコニウムの正確な存在度が求められておらず使用できない。そこで本研究では珪酸塩標準岩石 JB-1 を比較試料として用いた。JB-1 中のジルコニウム存在度に関しては安藤ら¹⁴⁾ が文献値の平均として 153 ppm を与えているが、本実験に用いた JB-1 について、ZrO₂ の一定量を含むセルローズペレットを比較試料として既報¹⁰⁾ に従ってジルコニウム存在度を求めたところ第 1 表に示したとうりの結果を得た。

平均値 152 ppm は安藤らの値と非常に

良く一致した。実際の分析にあたって

は数個の試料ペレットと JB-1 をビ

ーム軸に沿って並べて同時に放射化し

光子束の変動は試料および JB-1 の

前後に添附した金箔中の ¹⁹⁶Au (半減

期 6.18 日) の 356 keV の γ 線ピーク面

積計数率の平均値により補正した。こ

第 1 表 Zirconium content of standard rock JB-1.

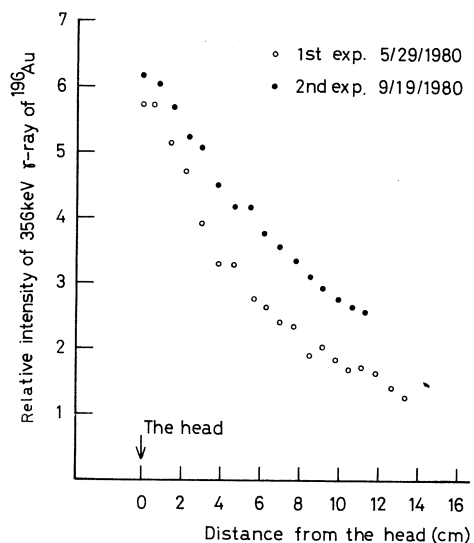
Analysis No.	Zr content ($\mu\text{g/g}$)
1	142
2	146
3	152
4	154
5	156
6	163
Mean \pm S.D.	152 \pm 7
C.V.	4.5 %

のように多数個の試料を同時に照射した場合、第1図に示すように光子束は試料の最先端と比べると最後部では1/3以下に減少している。

ジルコニウム定量値の算出に用いたJB-1の換算係数 $^{89}\text{Zr}(\text{cps}, t \rightarrow 0) / \mu\text{g Zr}/^{196}\text{Au}(\text{cps}, t \rightarrow 0)$ のくり返し実験における変動は2%以下であり10個前後の試料を同時に照射する場合でもこの補正法に従えば3個の比較試料を間隔をおいて配置すれば充分である。

NBS生物体標準試料およびラット臓器に含まれるジルコニウムの分析結果は第2表に示した。第2~4図にはJB-1および生物体試料の r 線スペクトルの

例を示した。Orchard Leavesの平均値1.7 ppmはLaulら¹⁵⁾が化学分離を伴う中性子放射化分析法で得た2.0 ppmと一致しているが、Chattopadhyayら⁶⁾が非破壊光量子放射化分析法で求めた値0.21 ppmに比較して約8倍高く、12MeV陽子放射化分析法でŽikowskýら¹⁶⁾が求めた3.8 ppmと比べれば1/2以下で低い値となっている。Bovine Liverのジルコ

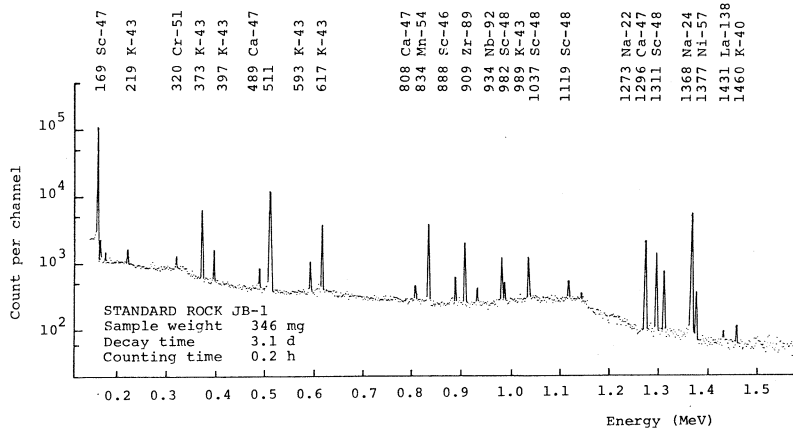


第1図 Photon-flux gradient along the stack of biological samples.

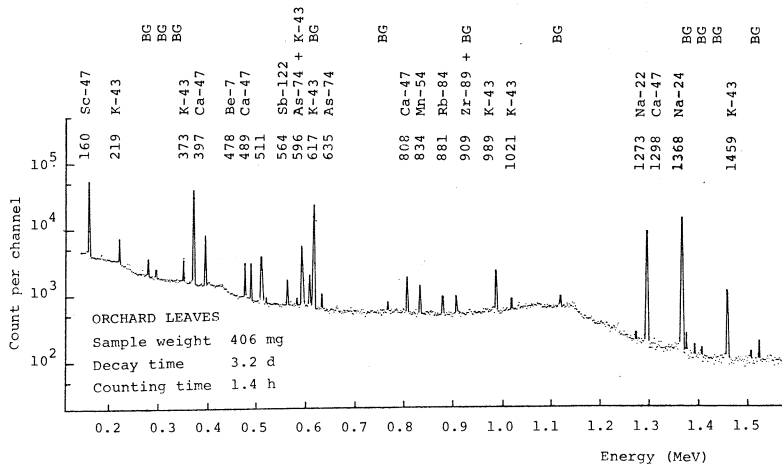
第2表 Zirconium content of biological materials.

Material	n *	Zr content ($\mu\text{g/g}$)	
		Range	Mean \pm S.D.
NBS SRM 1577 Orchard Leaves	12	0.89 - 2.55	1.70 \pm 0.44
NBS SRM 1571 Bovine Liver	6	N.D. - 0.24	0.09 \pm 0.08
Rat liver	4	N.D. - 0.09	
Rat kidney	3	N.D. - 0.10	
Rat spleen	1	N.D.	

* Number of separate determinations.

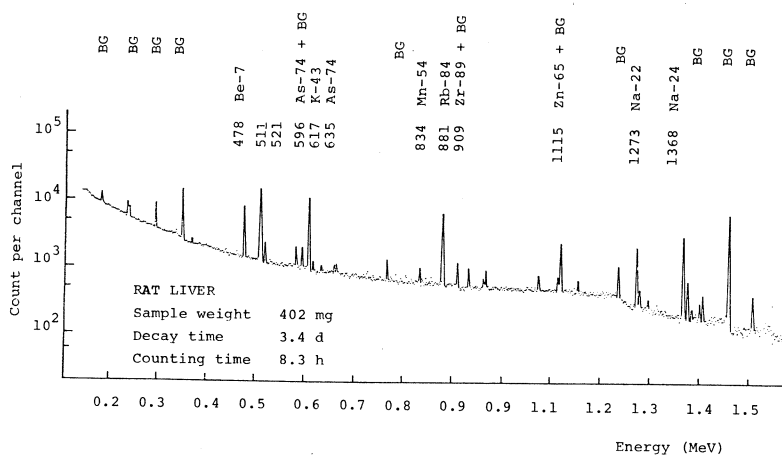


第2図 Gamma-ray spectrum taken after 2-h irradiation of JB-1. Values on each peak are energies in keV.



第3図 Gamma-ray spectrum taken after 2-h irradiation of Orchard Leaves. Values on each peak are energies in keV. BG indicates peaks occurring in natural background.

ニウム存在量としては、これまで Žikowský ら¹⁶⁾ の報告した 4 ppm という値を見るのみであるが、この値は本研究結果より20倍以上高い値になっている。ラット組織中のジルコニウム存在度は低く本実験条件における検出限界（約 0.04 ppm）程度で正確な結果は得難かった。Žikowský ら¹⁶⁾ は牛の肝臓組織中のジルコニウムも定量を試みたが検出限界（3 ppm）以下で定量できなかった。Schroeder ら^{2,3)} は、広範囲にわたる生物体試料に対して乾燥重量当り数 10 μg/g のジルコニウムが存在すると報告しているが、本実験結果を考慮するとこれらの分析



第4図 Gamma-ray spectrum taken after 2-h irradiation of rat liver. Values on each peaks are energies in keV. BG indicates peaks occurring in natural background.

結果は異常に高く分析方法の再検討が必要と考えられる。本研究の非破壊光子放射化分析法で ^{89}Zr の 909 keV γ 線によってジルコニウムを定量する場合、妨害となるピークは天然バックグランドスペクトルに含まれる ^{228}Ac の 911 keV γ 線がある。この妨害 γ 線のピーク強度は 0.033cps であり本実験条件下では 0.13 μg のジルコニウムに相当する。

また、第2～4図にもみられるように ^{24}Na , ^{43}K , ^{47}Ca などの生成は高いバックグランドを与え、 ^{89}Zr の 909 keV γ 線ピークの検出に妨害となるから、試料マトリックス組成によって検出感度は異なる。検出限界は試料 500mg をペレットとして供試する実験では Orchard Leaves では約 0.1 μg Zr であり、Bovine Liver およびラット組織では 0.04 μg Zr と高感度に検出できる。Orchard Leaves では Bovine Liver よりもマグネシウムが 10.3 倍、カルシウムが 16.9 倍量共存し、それぞれ $^{25}\text{Mg}(\gamma, p)$ ^{24}Na , $^{48}\text{Ca}(\gamma, n)$ ^{47}Ca および $^{44}\text{Ca}(\gamma, p)$ ^{43}K に起因する 1368 keV, 1298 keV および 1459 keV の γ 線によるバックグランドレベルが上昇している。必要な感度を得るため、化学分離の併用も今後検討されよう。

本研究にあたり、御援助を賜った東北大学原子核理学研究施設の八木益男助教授およびマシングループの皆様は厚く御礼申し上げます。また、御協力を賜った教養部鈴木勸子氏に謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) E. J. Underwood (ed.): *Trace elements in human and animal nutrition* (Academic Press, New York, 1977) 4 th ed.
- 2) H. A. Schroeder and J. J. Balassa : J. chron. Dis. **19** (1966) 573.
- 3) H. A. Schroeder, M. Mitchener and A. P. Nason : J. Nutrition **100** (1970) 59.
- 4) K. K. Turekian and K. H. Wedepohl : Geol. Soc. Am. Bull. **72** (1961) 175.
- 5) T. Kato, N. Sato and N. Suzuki : Anal. Chim. Acta **81** (1976) 337.
- 6) A. Chattopadhyay and R. E. Jervis : Anal. Chem. **46** (1974) 1630.
- 7) N. Sato, T. Kato and N. Suzuki : J. Radioanal. Chem. **36** (1977) 221.
- 8) T. Kato, N. Sato and N. Suzuki : Talanta **23** (1976) 517.
- 9) A. Chattopadhyay : J. Radioanal. Chem. **37** (1977) 785.
- 10) T. Kato, I. Morita and N. Sato : J. Radioanal. Chem. **18** (1973) 97.
- 11) N. Sato, T. Kato and N. Suzuki : Radiochim. Acta **21** (1974) 63.
- 12) T. Kato, N. Sato and N. Suzuki : Bull. Chem. Soc. Jap. **50** (1977) 1930.
- 13) T. Kato and M. Kato : J. Radioanal. Chem. **57** (1980) 105.
- 14) A. Ando, H. Kurasawa, T. Ohmori and E. Takeda : Geochem. J. **8** (1974) 175.
- 15) J. C. Laul and L. A. Rancetelli : J. Radioanal. Chem. **38** (1977) 461.
- 16) L. Žikowský and E. A. Schweikert : J. Radioanal. Chem. **37** (1977) 571.

リン鉱石の非破壊多元素光量子放射化分析

理学部化学

鈴木信男・半澤和文・榎本和義

§ 1. 序

現在、唯一の本格的リン資源として広く利用されているリン鉱石は、リン酸肥料の原料などとして年間1億トン以上生産されているが、その中で最も多く利用されている海洋由来の堆積源リン鉱石はフッ素炭酸アパタイトから成り、海水中から Ce, Y 及び U などの微量成分をアパタイト構造中の Ca と同形置換した形で濃縮している事が知られている¹⁾。その中でも特に U のような天然放射性元素については、リン酸肥料などの工業製品やリン回収後の廃棄物からの放射能の環境への影響やエネルギー資源としての U の工業的回収の可能性などの点で大きな関心が寄せられている。

しかし、F, Al, Si, P, Ca, Fe などの多量成分を除いた微量成分についての報告はほとんどみられない。その理由としては、通常の化学的分析法では多量に存在する P が妨害となり微量成分の正確な定量を行なうのが困難である事があげられる。また放射化分析として一般的な原子炉による中性子放射化においては天然物試料中に多量に共存する元素や核反応断面積の大きな元素により強いマトリックス放射能が生成し、コンプトン成分が高かったりすることにより微量成分の検出が困難になると考えられる。特にリン鉱石においては多量成分である P から ^{32}P が生成し、 β 線を放出するため、その制動放射によるバックグラウンドが無視できないと予想される。また U 共存試料の場合 ^{235}U の核分裂によって定量目的核種と同一の核種が生成し、特に中重元素の分析の際には妨害となるなどの問題がある。それに対し電子ライナックを利用する光量子放射化では主に (γ, n) 反応を利用するため、以上のような問題点がなく、中重元素を含めて多元素同時定量が可能である。また U の定量には $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$ 反応を利用するが、親核の存在度が 99.3% と高く、また ^{237}U は半減期、 γ 線エネルギーの点で定量に非常に適しており感度良く定量する事ができる。

本研究ではこのような利点を持つ光量子放射化分析法を海洋起源といわれているフロリダ産出のリン鉱石に適用し、非破壊多元素同時定量を行なった。またその際、比較標準試料として、

ケイ酸エチルの酸加水分解反応を利用するシリカゲル合成標準試料を調製して用いた^{2,3)}。

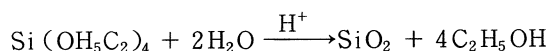
§ 2. 実 験

2.1 試 料

分析試料は米国 NBS 配布の SRM-120 b Phosphate Rock (Florida) 及び工業原料として国内で用いられているフロリダ産リン鉱石 (BPL72) である。各試料は電気オープン中 105℃ で 1 時間乾燥させたものを用いた。

2.2 比較標準試料

比較標準試料としては多元素混合溶液中でのケイ酸エチルの酸加水分解反応を利用して多元素を均一に含む粉末状のシリカゲルを生成させる方法をとった。その際の反応は次の通りである。



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。溶解に用いた酸は全て市販超特級のものであり、希釈には再蒸留水を用いた。その他の試薬は市販特級品を用いた。

あらかじめ試料と類似の元素組成となるよう各元素の標準溶液を加えて調製した多元素混合溶液に、同量のオルトケイ酸エチルを加え、かくはんしながらゲル化させる。その際生成するエチルアルコールは電気オープン中 65℃ で気化させ、その後、吸着水や酸を 180℃ 電気炉中で揮散させ粉末状のシリカゲルとした。その際、特に U の標準試料としては U の核分裂生成物からの γ 線スペクトルが複雑である事が予想されたため、U のみを含むものを別途調製した。

各元素の濃度は最初に加えた標準溶液の量及び乾燥ゲルの重量から算出した。合成標準試料の元素組成及びおおよその濃度を第 1 表に示す。また合成標準試料の均一性についてはトレーサー実験を行ない問題のない事を確かめた。

2.3 照 射

分析試料の約 500 mg 及び比較標準試料の約 300 mg を重量既知のアルミニウム箔で二重に包装し、直径 13 mm もしくは 9 mm のディスク状に加圧成形後、精秤して照射試料とした。試料はその前後を比較標準試料ではさんで石英管に封入し、照射した。

照射は東北大学核理研の電子ライナックを利用し、30 MeV 加速電子ビームを厚さ 2 mm の白金板で制動輻射に変換し、白金板後方に石英管を固定し、水冷下 2 ~ 7 時間照射した⁴⁾。

第1表 Elemental abundances of standard reference materials .

Concentration	Element
10000 ppm	Ca
3000 ppm	Mg, Na, Ti
600 ppm	Ba, Cs, Fe, Rb, Sr
100 ppm	As, Co, Cr, Mn, Ni Pb, Y, Zn, Zr
800 ppm	U

2.4 測定及び定量

照射後、アルミニウム箔中に生じた残留放射能が定量に妨害となるため、多元素定量の際には照射試料をアルミニウム箔で再包装し、またUの定量には妨害は考えられずそのまま測定試料とした。 γ 線の測定には Ortec 製 Ge(Li)半導体検出器(検出効率14.7%, 分解能2.0 keV)と Canberra 製 8100 型波高分析器及び PGT 製 Ge(Li)半導体検出器(検出効率9.7%, 分解能1.89 keV)と NAIG 製 4096 チャンネル波高分析器を用いた。測定は放射能強度に応じて測定器の不感時間が10%以内となるように検出器と試料間の距離を18cm から2mm まで適宜加減して行なった。

定量計算は試料と比較標準試料のピーク面積に壊変補正, 線量補正を施した上, 比較法で行なった。

§ 3. 結果と考察

3.1 合成標準試料の均一性の検討

あらかじめ, 本実験で使用したシリカゲル合成標準試料中での定量目的元素の均一性を調べるためトレーサー実験を行なった。実験では, 定量目的元素のうち揮散が心配される As をはじめ U, Co および Cr の 4 元素を選んだ。まず上記元素のトレーサーとして光核反応により ^{74}As , ^{237}U , ^{58}Co および ^{51}Cr を製造しトレーサー溶液とした。Cr, Co および As については合成標準試料調製時の条件にあわせるため遷移金属元素を含む多元素混合溶液にトレーサー溶液を加えて調製した。また U については ^{237}U のみを含むものを調製した。試料の一部を試料びんにとり, 半導体検出器により γ 線スペクトルを測定した。結果を第2表に示す。

第2表 Homogeneity test for Cr, Co, As and U.

Sample (a)

Weight (mg)	Specific activity (cps/g)		
	⁵¹ Cr	⁵⁸ Co	⁷⁴ As
257	29.10	53.40	12.43
300	29.60	54.19	11.99
410	29.08	53.36	11.80
Average	29.26	53.65	12.07
	± 0.29	± 0.47	± 0.32
R. S. D.	1.00 %	0.87 %	2.67 %

Sample (b)

Weight (mg)	Specific activity (cps/g)
	²³⁷ U
329	1880
463	1820
484	1842
485	1850
516	1759
527	1856
544	1850
Average	1837
	± 39
R. S. D.	2.10 %

Cr, Co, As については比放射能の相対標準偏差は数%以内におさまり, またUについても2.1%であった。これよりシリカゲル合成標準試料中に各元素が均一に保たれている事が確かめられた。

3.2 測定および定量

本実験で検出された残留核の核データを核反応とともに第3表に示す。

第3表 Nuclear Data for Photon Activation Analysis.

Element	Reaction	Half-life	γ -ray (keV)
Fe	$^{57}\text{Fe}(\gamma, p)^{56}\text{Mn}$	2.579 h	847
Sr	$^{88}\text{Sr}(\gamma, n)^{87\text{m}}\text{Sr}$	2.80 h	388
Mg	$^{25}\text{Mg}(\gamma, p)^{24}\text{Na}$	15.02 h	1369
Ca	$^{44}\text{Ca}(\gamma, p)^{43}\text{K}$	22.3 h	373, 618
Ni	$^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$	36.0 h	1378
Ti	$^{49}\text{Ti}(\gamma, p)^{48}\text{Sc}$	43.7 h	984, 1037, 1312
Zr	$^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr}$	78.4 h	909
Ca	$^{48}\text{Ca}(\gamma, n)^{47}\text{Ca}$	4.536 d	1297
U	$^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$	6.75 d	208
I	$^{127}\text{I}(\gamma, n)^{126}\text{I}$	13.0 d	389, 666
As	$^{75}\text{As}(\gamma, n)^{74}\text{As}$	17.78 d	596
Cr	$^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$	27.7 d	320
Rb	$^{85}\text{Rb}(\gamma, n)^{84}\text{Rb}$	32.9 d	882
Co	$^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{58}\text{Co}$	70.8 d	811
Ti	$^{47}\text{Ti}(\gamma, p)^{46}\text{Sc}$	83.8 d	889
Y	$^{89}\text{Y}(\gamma, n)^{88}\text{Y}$	106.6 d	898, 1836
Ce	$^{140}\text{Ce}(\gamma, n)^{139}\text{Ce}$	137.2 d	166
Zn	$^{66}\text{Zn}(\gamma, n)^{65}\text{Zn}$	244.1 d	1116
Mn	$^{55}\text{Mn}(\gamma, n)^{54}\text{Mn}$	312 d	835
Na	$^{23}\text{Na}(\gamma, n)^{22}\text{Na}$	2.602 y	1275

測定には、それぞれ核種について最も SN 比の良い時期を選んで行なうのが望ましい。Sr, Mg などの定量に利用する半減期数日までの比較的短寿命の核種では 1 半減期, Cr, Y などのように長寿命の核種で定量する場合には 2 週間程度の減衰時間が必要であった。

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 線を定量に利用したが Ca, Ti, Y などのように数本の γ 線が同程度の SN 比の場合、それぞれの γ 線により定量し

て平均値を求めた。

Mn の定量では妨害核反応により Fe から同一核種が生成するため妨害補正を行なう必要がある。本実験では加藤らの妨害反応の補正值⁵⁾を用いて妨害補正を行なった。

Co の定量には ^{58}Co の 811 keV の γ 線を利用するが, Ca からの ^{47}Ca の 808 keV の γ 線とやや重なるため ^{47}Ca の減衰を待って定量した。

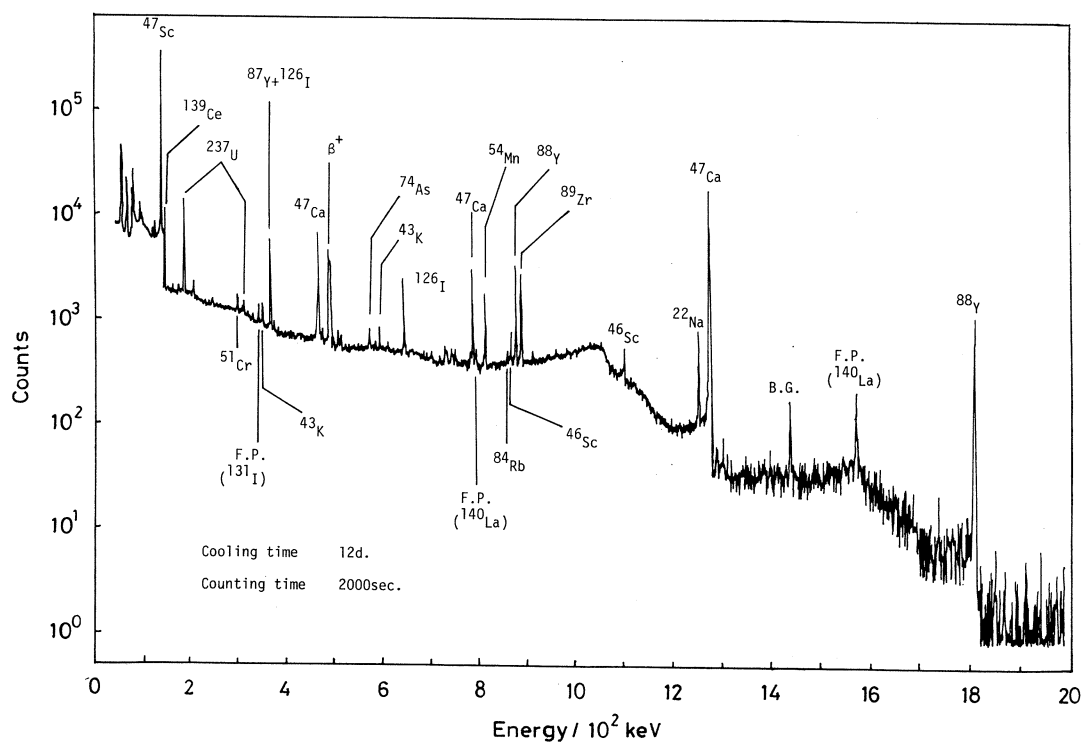
第4表 Nuclides analysed by gross fission product γ -ray spectrometry.⁶⁾

Mass chain	Nuclide	Half-life	Energy of γ -ray used (keV)
91	$^{91}\text{Sr} - ^{91\text{m}}\text{Y}$	9.5 h - 49.7 m	555.57
92	^{92}Y	3.54 h	1405.4
93	^{93}Y	10.2 h	266.9
95	$^{95}\text{Zr} - ^{95}\text{Nb}$	64.0 d - 35.0 d	724.19
97	$^{97}\text{Zr} - ^{97}\text{Nb}$	16.9 h - 72 m	657.92
99	$^{99}\text{Mo} - ^{99\text{m}}\text{Tc}$	66.02 h - 6.02 h	140.51
103	^{103}Ru	39.4 d	497.08
105	^{105}Rh	35.4 h	318.9
106	$^{106}\text{Ru} - ^{106}\text{Rh}$	367 d - 29.8 s	511.80
112	$^{112}\text{Pd} - ^{112}\text{Ag}$	21.1 h - 3.14 h	617.4
115	^{115}Cd	53.4 h	527.70
127	^{127}Sb	3.9 d	685.75
129	^{129}Sb	4.4 h	812.85
131	^{131}I	8.04 d	364.48
132	$^{132}\text{Te} - ^{132}\text{I}$	78 h - 83 m	667.69
133	$^{133}\text{I} - ^{133}\text{Xe}$	20.9 h - 5.25 d	529.87
134	^{134}I	52.6 m	847.03
135	^{135}Xe	9.10 h	249.80
135	^{135}I	6.61 h	1260.41
139	^{139}Ba	82.9 m	165.8
140	$^{140}\text{Ba} - ^{140}\text{La}$	12.79 d - 40.3 h	1596.49
141	^{141}Ce	32.5 d	145.44
142	^{142}La	93 m	641.17
143	^{143}Ce	33.0 h	293.26
147	^{147}Nd	11.0 d	531.01

Uが共存する試料において中性子放射化では ^{235}U の核分裂により定量目的核種と同一の核種が生成する事があり、特にLa, Ceなどの中重元素の定量の際に大きな問題となる。光量子放射化では ^{238}U の光核分裂が生じることが知られている。 ^{238}U の光核分裂により生成する核種を第4表に示す⁶⁾。これらの核分裂核種は全て中性子過剰核であるのに対し、光量子放射化分析で定量に利用する核種(第3表)は主に中性子過少核であるため中性子放射化の場合のように同一の核種が生成して妨害となる例はなかった。

またU自身も ^{237}U を利用して容易に定量する事ができた。

NBS リン鉱石の照射後12日の γ 線スペクトルを第1図に示す。



第1図 γ -ray spectrum of NBS Phosphate Rock activated by 30 MeV bremsstrahlung.

多量に共存するCaからの ^{47}Sc , ^{47}Ca , ^{43}K のピークを始めとして, ^{237}U , ^{74}As , ^{54}Mn , ^{88}Y , ^{89}Zr などのピークも見られる。またUの核分裂生成物である ^{140}La などからのピークも見られるが, γ 線の重なりはなく、定量の妨害にはならなかった。

3.3 定量結果

第5表 Multielement analyses of phosphate rocks by photon activation analysis.

Element	NBS-SRM 120 b			Florida (BPL 72)			
	This work		Average	NBS value	This work		Average
U , ppm	131 132	118 132	128±7	128.4±0.5	114 106	110 113	111±4
As , ppm	4.8 4.1	4.3 4.6	4.5±0.3		7.6 7.6	7.7 7.4	7.6±0.1
Ca , %	36.0 34.5	36.0 34.5	35.3±0.9	(35.31)	35.0 33.7	34.4 34.3	34.4±0.6
Co , ppm	— 2.0	2.5 2.3	2.3±0.3		2.7 3.2	2.7 3.0	2.9±0.3
Cr , ppm	64 54	61 50	57±6		63 67	58 62	62±4
Mg , ppm	2100 1860	1900 1820	1920±120	(1700)	2170 2040	2040 2030	2070±70
Mn , ppm	290 260	280 270	270	(250)			
Na , ppm	2520 2450	2480 2400	2460±50	(2600)	3710 3640	3660 3690	3680±30
Ni , ppm	6 6	14 6	8		9 18	14 10	13
Rb , ppm	— 6.6	5.8 6.4	6.3±0.4		6.6 7.4	7.0 7.4	7.1±0.4
Sr , ppm	720 727	718 715	720±5		953 1000	989 1001	985±22
Ti , ppm	974 903	939 931	937±29	(900)	878 895	906 859	885±21
Y , ppm	186 174	189 177	181±7		189 189	188 189	189±0.3
Zr , ppm	115 113	111 114	113±2		128 144	120 134	132±10
Zn , ppm	92 131	189 121	133		82 91	115 92	95

105°C電気オープン中のリン鉱石の乾燥減量を調べた結果、1時間で恒量に達し、その後7時間まで変化はなかった。減量はNBSリン鉱石で0.8%、フロリダ産リン鉱石で0.9%であった。

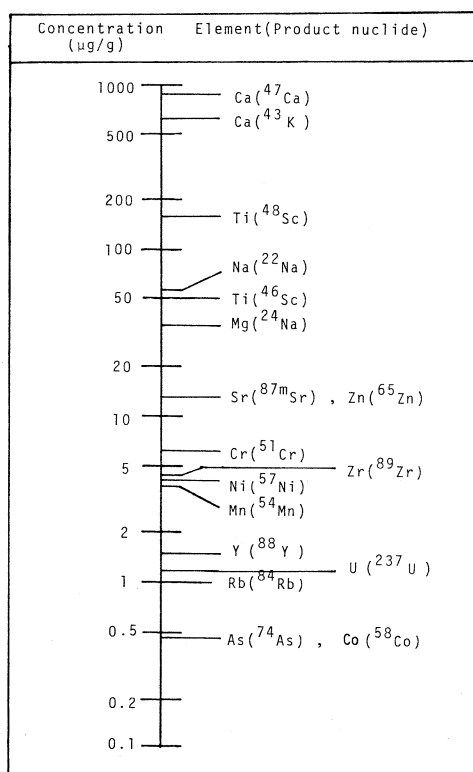
二種のリン鉱石のそれぞれ4回の定量結果を第5表に示す。NBSリン鉱石についてはNBSにより発表されているUの公定値及び他の数元素についての平均値を併記する。

本法により15元素の非破壊同時定量が可能であった。Ni、ZnはSN比が悪く、またMnは文献値による補正を行なったため、それぞれ参考値として示してある。

これらの元素を除くほとんどの元素については、相対標準偏差が約10%もしくはそれ以下におさまり、再現性の良い結果が得られた。特にUはNBSの公定値と非常に良い一致を示した。他のいくつかの元素についてもNBSの値と良く一致している。

3.4 定量感度

本法によりリン鉱石を分析する場合、各元素の検出可能な濃度を求め、第2図に示す。定義は試料約500mgを30MeV制動輻射で2.5時間照射し、定量に利用する光電ピークが最適SN比を与える時点において本実験条件で測定した場合に、 r 線全エネルギーピーク下のバックグラウンドカウントの標準偏差の3倍を与える元素の量を濃度で表わしたものである。第2図から明らかなように、リン鉱石中に多量に共存するCa、Ti及びMgは比較的高い濃度下限を有し感度が悪く、その他のAs、Co、Rbなどの微量金属については感度が良い。このように光量子放射化法はリン鉱石の多元素同時定量に非常にバランスのとれた感度を有しており、特徴的な分析手段である事がわかる。



第2図 Detectable concentration levels ($3\sqrt{BG}$) in multielement photon activation analysis of Phosphate Rock.

§ 4. 結 語

本実験では、一般の化学的分析法や中性子放射化法では困難であると思われるリン鉱石試料に対し、光量子放射化分析法を適用した結果、Uを含む15元素の非破壊同時定量が可能であった。光量子放射化法は、中性子放射化法などと異なり、U共存試料においてUの核分裂生成物の影響をうけず、リンを多量に含む試料に対しても適用可能で、感度のバランスが良く、U、Sr、Y、Zrなどが容易に定量可能で、更に自己しゃへい等の補正も不必要であるなど多くの利点を有し、リン鉱石のような特殊なマトリックス組成を有する試料の非破壊多元素分析法として偉力を発揮する事が示された。リン鉱石などの試料中の微量金属存在度についての地球化学的研究において、光量子放射化法は、本研究で示したように多くの利点を持つ非破壊法として非常に有用な手段であると考えられ、今後更に多くの試料への適用が期待される。

また、シリカゲル合成標準試料は、非常にすぐれた標準試料となる事が示された。他の比較分析法の標準としても十分利用可能であり、今後の応用が期待される。

本研究にあたり、御助力を賜りました東北大学原子核理学研究施設の八木益男助教授ならびにマシングループの皆様には厚く御礼を申し上げます。また、リン鉱石試料につきまして御配慮いただいた小田部廣男氏および日本燐酸株式会社に深謝致します。

参 考 文 献

- (1) N.B.Price and S.E.Calvert : Chem. Geol. **23** (1978) 151.
- (2) J.W.Mitchell, L.D.Blitzer, T.Y.Kometani, T.Gills and L.Clark, Jr : Radioanal. Chem. **39** (1977) 335.
- (3) A.R.Date : Analyst **103** (1978) 84.
- (4) K.Masumoto, T.Kato and N.Suzuki : Nucl. Instrum. & Meth. **157** (1978) 567.
- (5) 加藤豊明, 榎本和義, 佐藤允美, 鈴木信男 : 核理研研究報告 **8** (1975) 362.
- (6) A.Chattopadhyay, K.A.Dost, I.Krajbich and H.D.Sharma : J. Inorg. Nucl. Chem. **35** (1973) 2621.

中性吸着剤ならびにイオン交換樹脂に対する チオトロポロンとその金属錯体の吸着挙動

理学部化学 山下美智子・鈴木信男

§ 1. 序 文

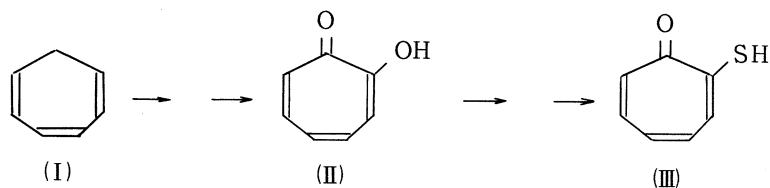
環境試料中の微量金属元素を定量する際に、放射化分析法は多くの元素に対して高感度な分析法であり、多元素同時定量が可能な有益な方法である。光量子放射化分析は、一般に環境試料中に多く存在するアルカリ・アルカリ土類元素に起因するマトリックス放射能が比較的 low、中性放射化分析で定量不可能な Ni, Pb の分析ができるなど、いくつかの特徴を有する。そこで筆者らは、さらに迅速で高感度な分析を行なうために、目的金属元素のトロポロン-5-スルホン酸錯体を陰イオン交換樹脂上に捕集濃縮することによる分離濃縮法を検討し、NBS 標準試料中の目的元素の光量子放射化分析に応用して満足しうる結果を得た¹⁾。しかし、金属錯体をイオン交換によって捕集する場合に、環境試料中に本来存在する高濃度の塩や、試料を灰化する際に系に導入される酸の陰イオンがイオン交換の妨害になることが多く、かなり厳密な実験条件が要求される。そこで、さらに新たな系として、分析試薬として用いられた例はないが重金属元素に対する選択性がより高いと思われる、チオトロポロンを錯形成剤として用い、その金属錯体を中性吸着剤やイオン交換樹脂上に吸着捕集することによる属分離法を検討したので報告する。検討した金属元素は、Ni(II), Cu(II), Zn(II), Pb(II) の4元素である。

§ 2. 実 験

2.1 試 薬 類

2.1.1 チオトロポロンの合成

チオトロポロン(以下 S-Tr と略す)(III)は、トロピリデン(I)からトロポロン(II)を経て合成し、3mmHg, 80°Cで昇華精製したものを用いた²⁾。



S-Tr について求めた融点, 酸解離定数, UV スペクトル, 元素分析の結果を第1表に示す。

第1表 Experimental values for synthesized S-Tr.

Item	Obs.	Lit. ²⁾ or Calcd.
mp.	51°C	54-55°C
pKa	5.75	5.90
UV λ_{\max}	260 nm ($\epsilon = 15,900 \text{ M}^{-1} \text{ cm}^{-1}$) 420 nm ($\epsilon = 11,100 \text{ M}^{-1} \text{ cm}^{-1}$)	
C%	61.02%	60.87%
H%	4.49%	4.34%
S%	23.04%	23.19%

2.1.2 吸着剤

吸着剤として, 強塩基性陰イオン交換樹脂であるアンバーライトCG-400 (100-200 mesh), IRA-900 (<60 mesh), および IRA-938 (<60 mesh) の3種類, 中性吸着剤であるアンバーライト XAD-2 (<60 mesh), XAD-4 (<60 mesh), および XAD-7 (<60 mesh), およびメルク社製ポリエチレン粉末 (<100 mesh) の4種類を用いた。イオン交換樹脂の前処理として, 樹脂を濃HCl で洗浄後, 水洗し, さらに2N NaOH, 2N HCl で繰り返し洗浄してCl型にそろえた後, 蒸留水で十分に洗浄した。吸着剤のうち, ポリエチレンを除いたものについては以下のようにした。すなわち, 濃HCl 洗浄後, 水洗して乾燥し, その後ソックスレー抽出器を用いてメタノール, アセトン, エーテルの順に洗浄して乾燥した。粒度をそろえたものに関しては, 市販品磁製ボールミルで粉碎した後, ステンレス製ふるいにかけて粒度をそろえた後, 再びソックスレー抽出器でエーテル洗浄して乾燥した。

2.1.3 RIトレーサー

使用した各元素のトレーサーは⁵⁷Ni, ⁶⁷Cu, ⁶⁵Zn, ²⁰³Pb, であり, ⁶⁵Znは Amersham. Radiochemical Center, England から購入し, その他は東北大学電子ライナックによる光核反応を利用して製造した。⁵⁷Ni については, NiOをターゲットにして30MeV 制動輻射で8-10時間照射し, そのまま希HCl で溶解して⁵⁸Ni(r, n)⁵⁷Ni によって生成した⁵⁷Ni を用いた。⁶⁷Cu については, Zn(99.99%)をターゲットにして30-60MeV 制動輻射で8-20時間照射し, 希HCl で溶解後, 2N HCl 溶液にしてジエチルジチオカルバミン酸-CCl₄

溶液で Cu(II), Zn(II) を抽出後, 10N HNO₃ で Cu(II) を水相に逆抽出することにより ⁶⁸Zn (r, p) ⁶⁷Cu によって生成している ⁶⁷Cu を無担体分離した。²⁰³Pb については, PbO をターゲットにして 30 MeV 制動輻射で 8-10 時間照射し, そのまま (1+1) HNO₃ で溶解して用いた。使用前に放射化学的純度を Ge(Li) 半導体検出器と, 4096 ch. PHA (NAIG) を用いて確認した。

2.1.4 S-Tr の吸着挙動

S-Tr の吸着剤に対する吸着挙動の検討はバッチ法で行なった。すなわち, 3×10^{-4} M の S-Tr 水溶液 10 ml を希 NaOH と希 HCl で pH 調整後, 0.04 g の吸着剤とともに一定時間振とうした。振とう前後の水溶液を採取して 1 N NaOH で pH > 12 にした後, 吸光度を 420 nm で測定し, S-Tr の吸着速度, 吸着容量, 分配比を求めた。吸着率 % Ads, 吸着容量 Q_A , 分配比 D は次のようにして求めた。

$$\% \text{ Ads} = \frac{(A_i - A_e)}{A_i} \times 100$$

A_i : 振とう前の溶液の比放射能 (cpm / ml)

A_e : 振とう後の溶液の比放射能 (cpm / ml)

$$Q_A (\mu \text{ mole/g}) = \frac{C_i \cdot \% \text{ Ads} \cdot V}{100 W}$$

C_i : 振とう前の吸着質の濃度 (μ mole/g)

V : 振とうした溶液の体積 (ml)

W : 振とうした吸着剤の重量 (g)

$$D (\text{ml/g}) = \frac{\% \text{ Ads} \cdot V}{(100 - \% \text{ Ads}) W}$$

吸着におよぼす共存塩の影響, pH 依存性, 粒子径別に分類した場合の吸着速度の変化については, XAD-7 を用いて検討した。

2.1.5 S-Tr 金属錯体の吸着挙動

金属錯体の吸着挙動の検討は RI トレーサーを用いてバッチ法で行なった。すなわち, 放射性金属塩水溶液と, S-Tr 水溶液を, 最終濃度が各々 3×10^{-6} - 2×10^{-5} M, 8×10^{-5} - 7×10^{-4} M になるように混合し, pH 調整後, 一定重量の吸着剤と振とうした。振とう前後の溶液の一部をとり, 放射能を井戸型 NaI (Tl) シンチレーションカウンターで測定して金属元素の吸着率, 分配比を求めた。各吸着剤への錯体の吸着速度, 吸着率におよぼす S-Tr 濃度および共存塩の影響, 有機溶媒による脱離挙動を Zn 錯体について検討した。また, Ni(II),

Cu(II), Zn(II), Pb(II) に関して pH と吸着率の関係を求めた。

§ 3. 結果と考察

3.1 S-Tr の吸着挙動

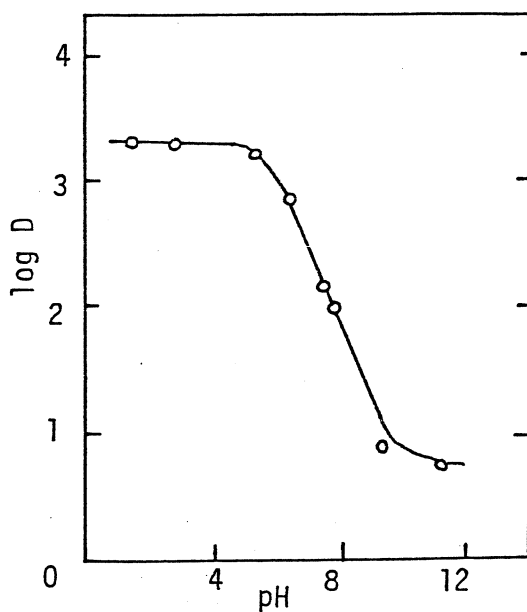
各吸着剤上への S-Tr の吸着平衡所要時間ならびに吸着容量の測定値を第 2 表に示す。

第 2 表 Adsorption behaviour of S-Tr.

Adsorbent	Adsorption Capacity μ mole/g	Shaking time for equilibrium
CG-400 (100-200 mesh)	25.34 \pm 0.28	10 min.
IRA-900 (< 60 mesh)	30.12 \pm 0.38	4 h
IRA-938 (< 60 mesh)	35.28 \pm 0.0 ₀	2.5 h
XAD-2 (< 60 mesh)	55.21	—
XAD-4 (< 60 mesh)	99.24 \pm 1.25	2 h
XAD-7 (< 60 mesh)	66.85 \pm 0.10	1 h
Polyethylene (< 100 mesh)	18.46 \pm 3.01	4 h

この結果によれば、なるべく少量の吸着剤で迅速に S-Tr を捕集する目的には XAD-4 と XAD-7 が適するといえる。そこで XAD-7 についてさらに吸着の pH 依存性を調べた。結果を第 1 図に示す。第 1 図において $\log D$ が pH 5 付近から減少している。S-Tr の pK_a が 5.75 (実験値) であることから、S-Tr の非解離型中性分子が吸着化学種だと考えられる。

吸着におよぼす共存塩の影響を第 2 図に示す。ここでは緩衝溶液のみが共存する場合と、 NaClO_4 ,

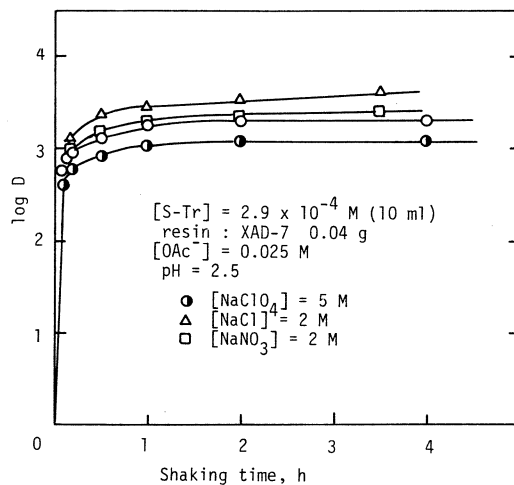


第 1 図 Relation between $\log D$ and pH for thio-tropolone. $[\text{S-Tr}] = 3.2 \times 10^{-4} \text{ M}$; $[\text{OAc}^-] = 0.025 \text{ M}$; resin: XAD-7 0.04g; shaking time: 2 h.

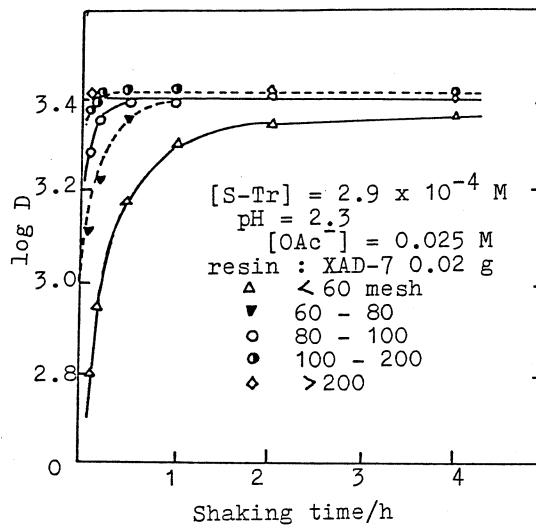
NaCl, NaNO₃ が高濃度で共存する場合のS-Tr の分配比を比較している。NaClO₄ 共存の場合には分配比がわずかに減少するが, NaCl または NaNO₃ が共存する場合には分配比はむしろ増大しており, 塩の共存は妨害にならないといえる。また, これは S-Tr がナトリウムイオンと錯生成しないことを示している。粒度の異なる XAD-7 を用いた場合の吸着速度の変化を第3図に示している。樹脂の粒子径が小さくなるほど吸着速度が増大している。また, 吸着平衡時において, 分配比の変化はほとんどないといえる。これより以後の実験において, 吸着平衡に達するのに時間を要するような金属錯体に対しては, 粒子の細かい樹脂を用いればよいことになる。

3.2 Zn-S-Tr 錯体の吸着挙動

各吸着剤に対して Zn-S-Tr 錯体がほぼ 100% 吸着するのに要した振とう時間を第3表に示す。Zn-S-Tr 錯体が迅速に吸着平衡に達しているのは CG-400, IRA-938, XAD-2, XAD-7, ポリエチレン粉末であるが, XAD-2 は吸着率が 100% に達しなかった。実際に環境試料中の微量金属元素の分析に本法を応用する場合を考えると, 塩化物イオン, 臭化物イオンなど, 比較的放射化されやすい陰イオン



第2図 Salt effects on adsorption of Zn-S-Tr onto XAD-7 (<60 mesh).



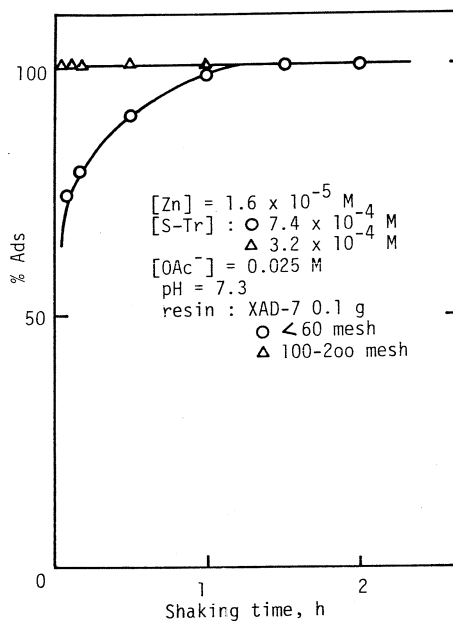
第3図 Adsorption of thiotropolone onto XAD-7 with various particle size.

がイオン交換によって捕集される可能性があるため、陰イオン交換樹脂は適さない。

第3表 Adsorption rate of Zn-S-Tr.

Adsorbent	Shaking time for equilibrium, h
CG-400 (100-200 mesh)	0.5
IRA-900 (<60 mesh)	2
IRA-938 (<60 mesh)	0.5
XAD-2 (<60 mesh)	1 (~90%)
XAD-4 (<60 mesh)	4
XAD-7 (<60 mesh)	1.5
(100-200 mesh)	1 min.
Polyethylene (<100 mesh)	0.5

ポリエチレン粉末は、比重が小さく、疎水的であるため、水溶液とともに取扱う際に水面に浮遊して定量的な扱いが難しい。以上の理由から、以後は XAD-7 を用いることにした。市販品の XAD-7 (<60 mesh) および 100-200 mesh のものへの Zn-S-Tr 錯体の吸着を比較して第4図に示す。100-200 mesh の樹脂を用いると吸着平衡は明らかに早く達成される。平衡時における分配比については、市販品 (<60 mesh) で $\log D = 4.2$ であるのに対し、100-200 mesh のものは $\log D = 4.9$ と大きな値を示した。この結果は、S-Tr の吸着が吸着剤粒度に依存しないことと対照的である。



第4図 Adsorption rate of Zn-S-Tr onto XAD-7 with different particle size.

一定濃度の溶液に対し、XAD-7 (100-200 mesh) の樹脂量を変化させた場合の Zn 錯体の吸着挙動を第4表に示す。樹脂量が 0.01 g 以下になると、吸着率は 99% から少しずつ減少

第4表 Adsorption capacity of Zn-S-Tr complex onto XAD-7.

Volume of solution(V) ml	Weight of resin(W) g	V/W ml /g	% Ads %	log D
10	0.15	67	99.7	4.34*
10	0.10	100	99.9	4.86
10	0.08	125	99.7	4.65
10	0.06	167	99.8	4.87
10	0.05	200	99.7	4.91
10	0.04	250	99.7	4.94
10	0.02	500	99.4	4.89
10	0.01	1000	98.2	4.74
10	0.005	2000	97.0	4.82
20	0.005	4000	95.6	4.94
25	0.005	5000	94.3	4.93
30	0.005	6000	95.0	5.06

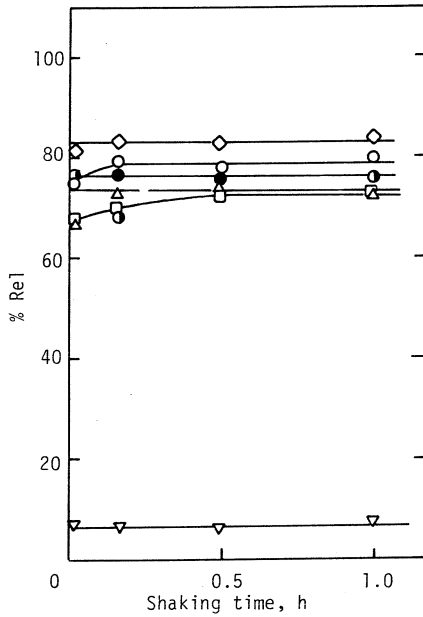
Ave. $\log D = 4.84 \pm 0.19$
(except for *)

[Zn] = 1.6×10^{-5} M ; [S-Tr] = 3.2×10^{-4} M ; pH = 7.2 ;
[OAc⁻] = 0.025 M ; resin : XAD-7 100-200 mesh ;
shaking time : 30 min.

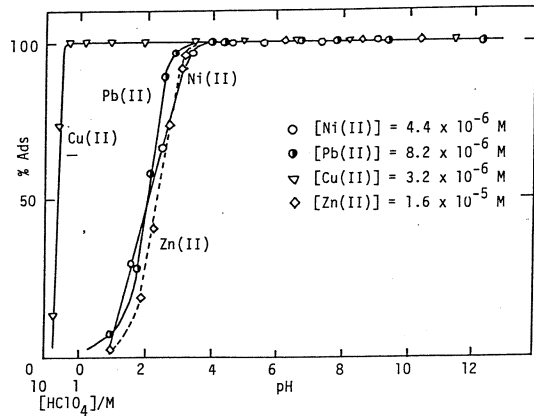
していくが、V/Wが500以下では定量的(99%以上)である。このことは、XAD-7を1g用いて第4表に示す組成の溶液を500mlまで処理できることになる。分配比に関しては、V/W=67の場合を除いて、平均値が $\log D = 4.84 \pm 0.19$ とほぼ一定値を示している。共存塩の影響を検討したが、NaClO₄が5Mまで共存しても、XAD-7に対する吸着にほとんど妨害は認められなかった。

3.3 Zn-S-Trの脱離挙動

あらかじめZn-S-Tr錯体を吸着させておいたXAD-7 (<60 mesh) 0.04gと有機溶媒10mlを振とうさせて、樹脂相からの脱離挙動を調べた結果を第5図に示す。ベンゼン、メタノール、酢酸エチル、エタノール、メチルイソブチルケトン(MIBK)、そしてエチルエーテルが樹脂上の錯体の80%程度を脱離させるが、ヘキサンは錯体を脱離させる目的には適さない。パッチ法では完全な脱離が行なわれていないが、カラム法で行なえば、錯体を完全に回収できると思われる。



第5図 Release of Zn-S-Tr from XAD-7 with organic solvents. Organic solvent : 10 ml ○ methanol, △ ethanol, ◇ benzene, ▽ hexane, ● MI BK, ● ethyl acetate, □ ethyl ether ; resin : Zn-S-Tr loaded XAD-7 (<60 mesh) 0.04 g .



第6図 Relation between pH and recovery of metal-S-Tr complexes. [S-Tr] : ◇ 3.2×10^{-4} M, ● 1.6×10^{-4} M, ○ ▽ 8.0×10^{-5} M ; [OAc⁻] = 0.025 M ; resin : XAD-7 0.1 g, ○ ▽ 100-200 mesh ; shaking time : 30 min. - 4 h .

3.4 金属錯体の吸着率の pH 依存性

Ni(II), Cu(II), Zn(II), Pb(II) - S-Tr 錯体の XAD-7 に対する吸着速度を検討した後、各金属錯体の吸着率の pH 依存性を求めた。Zn(II) について、市販の XAD-7 と 100-200 mesh のものについて pH 依存性を調べたところ、特に差異は認められなかった。各金属イオンの S-Tr 錯体の吸着状況を第6図に示す。Cu(II) が過塩素酸酸性側から捕集されるのが特徴的であり、これら4元素から Cu(II) だけを選択的に過塩素酸酸性側で分離吸着させることができることを示している。また、これら4金属元素を同時に捕集する場合には、試料溶液を pH 4 以上に調整すればよいということになる。

以上の結果から、本法は高濃度の共存塩に妨害されることなく、微量金属元素を同時に吸着剤上に捕集濃縮することができるといえる。S-Tr がナトリウムイオンと錯生成しないこと

から、重金属イオンと選択的に錯生成することが予測され、これも大きな特徴であり、実際分析に充分応用しうる。

本研究を行なうにあたり、御助力を賜った東北大学原子核理学研究施設の八木益男助教授、榎本和義助手、およびマシーングループの方々に感謝の意を表する。

参 考 文 献

- 1) M. Yamashita and N. Suzuki : J. Radicanal. Chem. **60** (1980) 73.
- 2) T. Nozoe, M. Sato and K. Matsui : Sci. Rep. Tohoku Univ.
I **37** (1953) 211.

Effect of Trace Amounts of Chlorine on the Photoluminescence of Zinc Selenide

S. Satoh, M. Isshiki, K. Furukawa,
M. Nagano, K. Arakawa and K. Igaki

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

Concentration of Cl in ZnSe crystals was estimated by γ -photon activation analysis on using $^{35}\text{Cl}(\gamma, n)^{34\text{m}}\text{Cl}$ reaction. The photoluminescence spectra for these ZnSe single crystals were measured at 4.2 K as a function of Cl concentration. The broad emission band with peak at 2.105 ± 0.005 eV was observed. This band is concluded to be due to the localized center involving Cl atom.

§ 1. Introduction

The presence of trace amounts of Cl was reported to have serious influence on the electrical and optical properties of ZnSe¹⁾. Several emission bands have been reported to be concerned with Cl atom. One of them with peak energy 2.03 eV at 77 K is considered to be due to the electron transitions in the localized center (SA-center) composed of Cl on Se site and neighboring Zn vacancy^{2,3)}, and the other one with peak energy 1.97 eV at 77 K to be due to the transitions between the Cl donor level and the Cu acceptor level (D-A pair transition)⁴⁾. Effect of Cl on photoluminescence spectra, however, is not enough elucidated, and Cl is considered to interact with other impurities or the native defects.

In order to clarify the effect of trace amounts of impurities on the photoluminescence of ZnSe, it is important to study on the high purity specimen. In this work, vapor grown high purity ZnSe single crystals were used, and concentration of Cl was determined by the γ -photon activation analysis. Effects of Cl concentration on the photoluminescence spectra are also reported.

§ 2. Sample Preparation

Undoped ZnSe single crystals were grown by the vapor growth technique using Zn reservoir in order to control Zn pressure^{6,8)}. Heavily Cl-doped crystals were vapor grown using ZnCl₂ reservoir instead of Zn reservoir. Lightly Cl-doped crystals were vapor grown from the mixture of undoped and heavily Cl-doped crystals using Zn reservoir. The growth conditions of heavily doped crystals are shown in Table I, and undoped and lightly doped crystals in Table II.

Table I. Growth condition and obtained Cl concentration of ZnSe crystals grown using the ZnCl₂ reservoir.

Sample Number	Source	T _c (°C)	T _s (°C)	T _{ZnCl₂} (°C)	Cl Concentration	
					wt ppm	cm ⁻³
CIS	B-ZnSe 100 % *	950	1,008	475	380	3.4 × 10 ¹⁹
D-1	A-ZnSe 100 % *	1,002	1,006	400	220	2.0 × 10 ¹⁹

“ A-ZnSe ” means the ZnSe crystals produced by the 6-nine Zn and 5-nine up Se, and “ B-ZnSe ” by the 6-nine Zn and 5-nine Se.

T_c : Temperature of the crystallization chamber.

T_s : Temperature of the source chamber.

T_{ZnCl₂} : Temperature of the ZnCl₂ reservoir.

* : “ per-cent ” means the mixing ratio of source materials.

Table II. Growth condition and obtained Cl concentration of ZnSe crystals grown using the Zn reservoir.

Sample Number	Source	T _c (°C)	T _s (°C)	T _{zn} (°C)	Cl Concentration	
					wt ppm	cm ⁻³
S12*	A-ZnSe 100% **	1,014	1,018	455	< 0.1	< 9.0 × 10 ¹⁵
S14*	B-ZnSe 100% **	1,009	1,012	510	0.13	1.2 × 10 ¹⁶
S15	CIS 1.3% **	997	999	440	3.5	3.1 × 10 ¹⁷
	A-ZnSe 98.7%					
S16	CIS 23.5% **	997	999	473	4.7	4.2 × 10 ¹⁷
	A-ZnSe 76.5%					
D-2	D-1 50.0% **	994	998	450	2.4	2.2 × 10 ¹⁷
	A-ZnSe 50.0%					
D-3	D-1 25.1% **	994	998	450	0.63	5.6 × 10 ¹⁶
	A-ZnSe 74.9%					

"A-ZnSe" means the ZnSe crystals produced by the 6-nine Zn and 5-nine up Se, and "B-ZnSe" by the 6-nine Zn and 5-nine Se.

T_c : Temperature of the crystallization chamber.

T_s : Temperature of the source chamber.

T_{zn} : Temperature of the Zn reservoir.

* : undoped crystals.

** : "per-cent" means the mixing ratio of source materials.

§ 3. Experimental Procedure

3.1 Analysis of Chlorine

ZnSe crystals about 0.2 g were sealed in a quartz tube in vacuum and irradiated with γ -ray of 30 MeV for 30 min by LINAC in Tohoku University. Radio isotope ^{34m}Cl was obtained through the reaction ³⁵Cl(γ , n)^{34m}Cl. The irradiated specimen was dissolved in conc. HNO₃, and by adding excess AgNO₃ and KCl, Cl was precipitated as AgCl. The radioactivity of ^{34m}Cl in the filtered precipitate was counted on using Ge(Li) detector. The efficiency of the recovery of Cl carrier was estimated through the determination of residual Ag ion by the

titration using KSCN.

3.2 Photoluminescence Measurement

After etching the cleaved single crystals, photoluminescence spectra were measured at 4.2 K using spectrometer and HTV-R 292 photomultiplier. Ultra violet light from an Xe-lamp was used for the excitation of photoluminescence⁷⁾.

§ 4. Results and Discussion

Obtained values of Cl concentration are shown in Tables I and II. In the heavily Cl-doped specimen using ZnCl_2 reservoir, Cl concentration is estimated as a few hundred ppm. In the lightly doped specimen, Cl concentration is estimated as 0.63 ~ 4.7 wt ppm. In the non-intentionally doped crystals S12 and S14, Cl concentration is estimated as <0.1 wt ppm and 0.13 wt ppm, respectively.

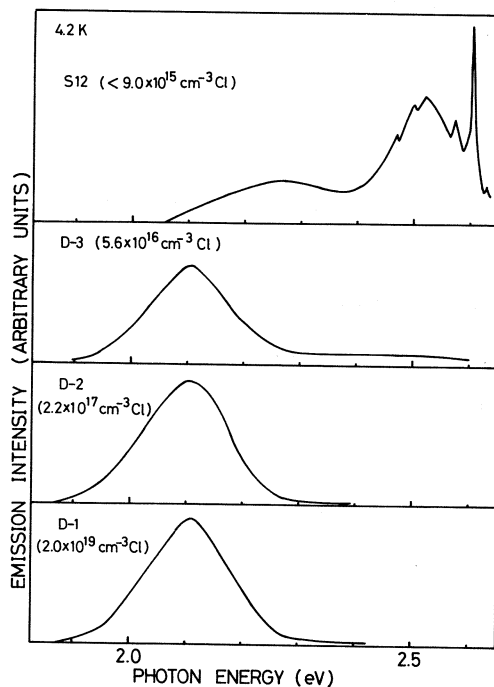


Fig. 1. Photoluminescence spectra at 4.2 K for undoped and Cl-doped ZnSe single crystals.

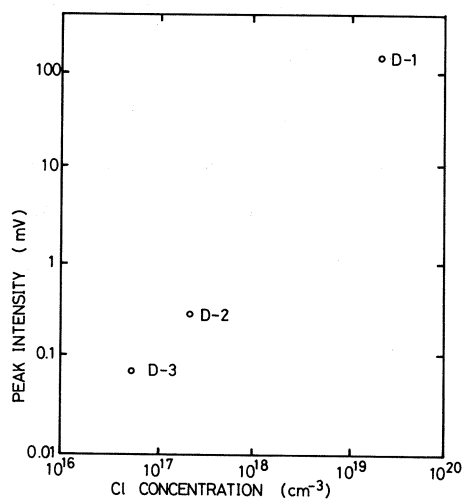


Fig. 2. Cl concentration dependence of intensity of the emission band with the peak energy 2.105 ± 0.005 eV.

Photoluminescence spectra at 4.2 K for the specimen grown using A-ZnSe source are shown in Fig. 1. The values of Cl concentration are shown in the figure. The broad emission band with peak energy 2.105 ± 0.005 eV is also observed for the Cl-doped specimen. The origin of this band has not been clarified yet. For the undoped specimen, this emission band is not observed, but unknown two other broad emission bands are observed. The peak intensity of the broad emission band with peak at 2.105 eV is shown in Fig. 2 as a function of Cl concentration. Ordinate indicates the out-put value of the photomultiplier. Intensity rapidly increases with the increase in Cl concentration. Since the peak energy of this band shifts towards higher energy with increasing temperature⁹⁾, this band is concluded to be due to the localized center involving Cl atom.

References

- 1) M. Aven and B. Segall : Phys. Rev. **130** (1963) 81.
- 2) S. Iida : J. Phys. Soc. Jpn. **25** (1968) 177.
- 3) F. J. Bryant and P. S. Manning : J. Phys. Chem. Solids **35** (1974) 97.
- 4) G. B. Stringfellow and R. H. Bube : Phys. Rev. **171** (1968) 903.
- 5) M. Itoh, Y. Nozue, T. Itoh, M. Ueta, S. Satoh and K. Igaki : J. Lumin. **18 / 19** (1979) 568.
- 6) K. Igaki and S. Satoh : Jpn. J. Appl. Phys. **18** (1979) 1965.
- 7) S. Satoh and K. Igaki : Jpn. J. Appl. Phys. **19** (1980) 1953.
- 8) T. Kiyosawa, K. Igaki and N. Ohashi : Trans. Jpn. Inst. Met. **13** (1972) 248.
- 9) S. Satoh and K. Igaki : to be published.

アルミニウム中での Mn の不純物拡散

工学部金属材料 藤川 辰一郎

Carrier-free radioactive ^{54}Mn was prepared by using the photonuclear reaction $^{56}\text{Fe}(\gamma, \text{pn})^{54}\text{Mn}$ and its diffusivities in aluminum were determined by serial-sectioning method in the temperature range 874–927 K.

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

$$D_{\text{Mn}/\text{Al}} = 5.42 \times 10^{-3} \exp(-2.12 \text{ eV} / kT) \text{ m}^2/\text{s}.$$

§ 1. はじめに

MnはAl合金の重要な合金元素の一つであるが、熱処理中のその挙動については今だに不明な点も多い。その解明にとって必要なAl中のMnの不純物拡散については、従来いくつかの研究がなされている¹⁻⁴⁾。しかし、それらの結果は互いに著しく異なっており、拡散係数の決定方法にもいくつかの問題点があり、再測定が望まれている。

本研究では、不純物拡散の研究に最適な無担体の ^{54}Mn を電子ライナックで調製し、拡散条件に注意を払って、いくつかの温度でのAl中のMnの不純物拡散係数を決定した。

§ 2. 実験方法

2.1 ^{54}Mn の調製

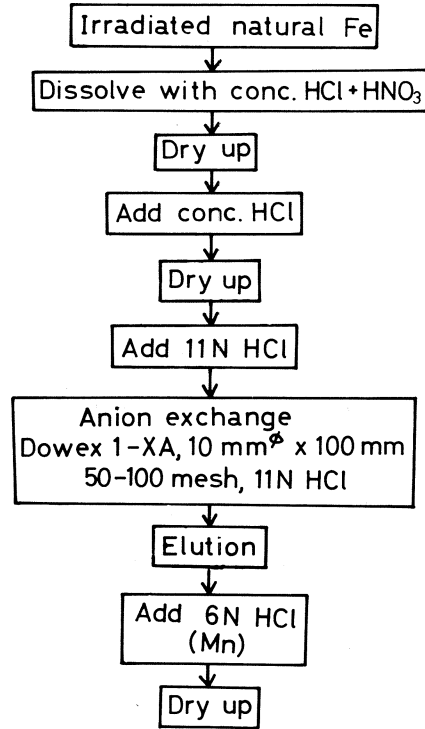
ターゲット物質としては、帯溶融精製した高純度の natural Fe metal を用いた。その小片 0.2g を石英管中に封入して、核理研 LINAC RI コース水冷プールの Pt コンバーターの直後に置いて照射した。60 MeV の制動輻射で約7時間照射した。 $^{56}\text{Fe}(\gamma, \text{pn})^{54}\text{Mn}$ 反応によって ^{54}Mn が生成する。その際、副産物として、 ^{52}Mn ($t_{1/2} = 5.6$ 日)および ^{51}Cr ($t_{1/2} = 27.8$ 日)も生成する。第1図は、無担体の ^{54}Mn の調製法の系統図を示したものである。照射したFeを王水で溶解後、陰イオン交換樹脂でFeからMnを分離溶出した。MnはFe溶液から容易に分離できることがわかった。第2図は ORTEC 社製 $80\text{cm}^3\text{Ge}(\text{Li})$ 検出器(Al

303型)およびCANBERA社製マルチチャンネルアナライザー(8100MCA型)で測定した γ -線スペクトルである。

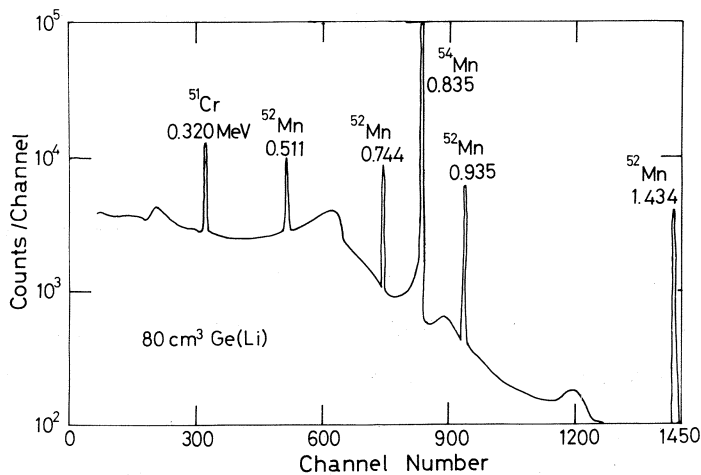
2.2 拡散方法および解析方法

2.2.2 試料の作製

試料の形状は直径13mm,高さ13mmの円柱状である。粒界拡散および転位網拡散の寄与を少なくするために,約873Kで2カ月の予備焼なましを行なった。その処理によって,試料表面に2つまたは3つの結晶粒がみえるような粗大結晶粒の試料が得られた。試料表面を耐水性研磨紙および電解研磨の順序で研磨し,平らで清浄な面にし,酸化膜の形成を抑制するために,エチルアルコール中に保持した。電解研磨は,過塩素酸とエチルアルコールとの比が1:7の電解液中で,15Vの直流電圧をかけて行なった。Al



第1図 Chemical separation procedure for ^{54}Mn .



第2図 γ -ray spectrum of the mixture ($^{54}\text{Mn} + ^{52}\text{Mn} + ^{51}\text{Cr}$).

中での遷移金属の不純物拡散の場合に、放射性トレーサーを電着法で付着すると試料表面近傍でのいわゆるトレーサーの“hold up”現象のために良好な拡散浸透曲線が得られないことが多い。したがって、本研究では、Al 中での Zr の不純物拡散の研究⁵⁾と同じく塩化物の形で⁵⁴Mn を付着した。拡散焼なまし中にその塩化物と Al との反応によって、金属 Mn が Al 中に拡散すると思われる。

2.2.2 拡散焼なましおよび拡散係数の測定

Mn を付着した試料を石英管に入れ、約 10^{-2} pa の真空にした後、He ガス（純度 99.9999 % 以上）で数回置換した後、最終的に約 30 Kpa の He ガスを入れて封入した。Al と Mn との密着性を良くする目的で、673 K で 1 時間の予備焼なましを行なった。その焼なまし後、上記と同じ条件で再封入し、874–927 K の温度範囲で拡散焼なましを行なった。なお、試料の拡散焼なましに用いた電気炉の温度は、千野製作所製 SCR 電力調整器付電流出力形方式自動温度調節計によって ± 0.5 K の精度で制御した。拡散焼なましを終了した試料では、拡散焼なまし中に表面拡散あるいは蒸発などによってトレーサーが付着面からその一部が試料側面に移動している可能性があるので、試料側面を約 0.1 mm 削りとった。切削法 (serial-sectioning method) で拡散係数を決定する場合、セクションングは、金属用に特別に設計した大型マイクロトームを用いて行ない、約 5 μ m の厚さのなめらかな表面の薄片を連続的に切り出した。その場合、薄片の回収率は 100% に近かった。削りとった層の厚さは、精密天秤を用いて、薄片の質量を測定し、さらに試料の直径を精密マイクロメーターで数回測定して、その平均をとることによって直径を決定し、それらの結果を用いて計算した。

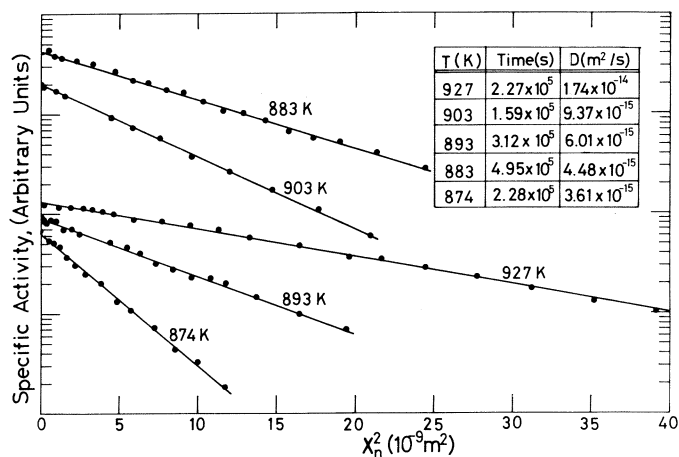
r -線の強度は井戸型 NaI (Tl) 検出器、Ge (Li) 検出器およびマルチチャンネル波高分析器によって測定した。薄片中に含まれる⁵⁴Mn の 0.835 MeV の強度を測定した。切削法での Fick の拡散の第 2 方程式の解は、次式で与えられる。

$$C = C_0 \exp(-X_n^2 / 4Dt), \quad (1)$$

ここで、 C は削りとった薄片中に含まれる放射能の濃度、 C_0 は最初の放射能の濃度、 X_n は薄片の中心から最初の面までの距離そして D は拡散係数である。

§ 3. 実験結果

第 3 図は切削法によって求めた 874–927 K の温度範囲での Al 中の⁵⁴Mn の拡散に対する拡散浸透曲線である。拡散時間を Al 中の Cu⁶⁾、Mg⁷⁾、Si⁸⁾ および Zn⁹⁾ の拡散の場合に比較して十分に長くした。しかし、その拡散距離は、上記の元素のそれに比較して、100~200



第3図 Log specific activity vs X_n^2 plots for the diffusion of ^{54}Mn in aluminum at 874, 883, 893, 903 and 927 K.

第1表 Impurity diffusion coefficient of ^{54}Mn in aluminum.

Temperature (K)	Time (s)	D (m ² /s)
927	2.27 × 10 ⁵	1.74 × 10 ⁻¹⁴
927	2.27 × 10 ⁵	1.69 × 10 ⁻¹⁴
903	1.59 × 10 ⁵	8.47 × 10 ⁻¹⁵
903	1.59 × 10 ⁵	9.37 × 10 ⁻¹⁵
893	3.12 × 10 ⁵	6.04 × 10 ⁻¹⁵
893	3.12 × 10 ⁵	6.01 × 10 ⁻¹⁵
883	4.95 × 10 ⁵	4.64 × 10 ⁻¹⁵
883	4.95 × 10 ⁵	4.48 × 10 ⁻¹⁵
874	2.28 × 10 ⁵	3.61 × 10 ⁻¹⁵

μm と短かく、Al中のMnの拡散速度が極めて遅いことがわかった。各浸透曲線は、測定点に(1)式をあてはめて、最小2乗法によって求めた。実験データは一つの直線によくのっていることがわかる。それらの直線のこう配から、拡散係数を求めた。得られた拡散係数の値を第1表に示した。第4図は、本研究で得られたAl中の ^{54}Mn の拡散係数の温度依存性を、Hoodら¹⁾による結果と比較して示している。本研究結果は高温側に限られているが、アレニウス型の温度依存性でよくあらわされることがわかる。本研究の温度範囲で、Al中の ^{54}Mn の拡散係数の温度依存性は次式で与えられる。

$$D = 5.42 \times 10^{-3} \exp$$

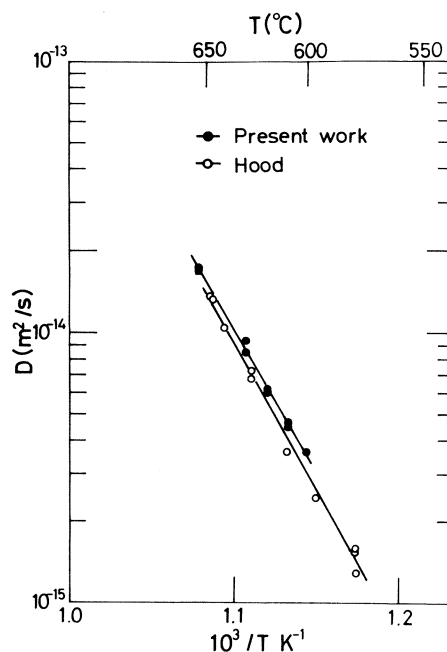
$$(-2.12 \text{ eV}/kT) \text{ m}^2/\text{s}.$$

(2)

§ 4. 考 察

ここでは、従来報告されている Al 中の Mn の拡散の研究結果の問題点を考察し、それらの結果と本研究のそれとを比較検討してみよう。第 5 図は、Al 中の Mn の不純物拡散係数として従来報告されている拡散係数の温度依存性をアレニウス型プロットで示したものである。第 2 表は、その温度依存性から求めた拡散の活性化エネルギー(Q) および振動数項(D_0) を本研究のそれと比較して示している。

第 5 図からわかるように、Lundy ら³⁾の結果は他の研究者のそれと著しく異なり、Al 中の Mn の拡散速度は Al の自己拡散のそれよりも大きいことを示している。Lundy らの研究では、極めて微弱な ^{54}Mn を含有する Al 箔と非放射性の Al 棒とから成る拡散対について、特殊な境界条件の下で拡散方程式を解き、近似的な方法で拡散係数を求めている。彼らの研究で最も問題となるのは、拡散浸透曲線の解析方法と思われる。ただ一つ示されている拡散浸透曲線(844 K, 95.5 時間)は次の 2 つの部分から成り立っている：A 領域(表面から約 30 μm までの範囲で、濃度が約 2 桁変化している)および B 領域(A 領域に隣接し、表面から約 1,400 μm までの範囲で、濃度が極めてゆるやかに減少している)。Al 中の Mn の体拡散に対応するのは、A 領域にもかかわらず、Lundy らはそれを無視し、B 領域から拡散係数を求めている。拡散速度が遅い原子を拡散させる実験で、拡散時間が短かると、一般に B 領域のようなゆるやかなこう配の拡散浸透曲線の部分がはっきりとあらわれる。この B 領域は、通常領域 III と呼ばれ、転位網、亜粒界および粒界などを介しての短回路拡散が著しく寄与している領域とされている¹⁰⁾。したがって、この領域から求めた拡散係数は真の体拡散に相当するものではない。Lundy らの研究では、拡散時間が短かく、さらにセクションング方法が粗かったために、



第 4 図 Dependence of impurity diffusion coefficients of Mn in aluminum.

A領域について十分な解析がなされず、みかけ上極めて大きな体拡散係数を報告したと思われる。Al-Mn合金の析出の多くの研究からも、Al中のMnの拡散速度が著しく小さいことが従来推察されており、Lundyらの結果と明らかに矛盾するものである。

Bergnerら²⁾は、Fickの拡散の第2方程式を相互拡散係数(\tilde{D})が濃度に依存しないと仮定して解いた次式より拡散係数を求めた。

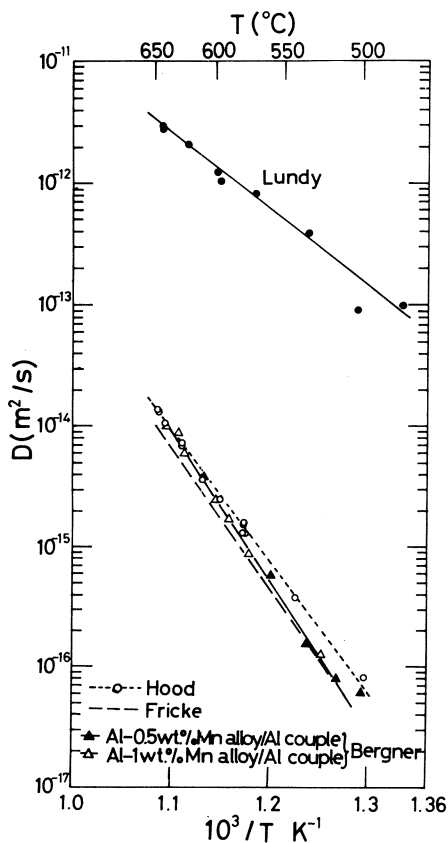
$$C = \frac{C_0}{2} \left(1 - \operatorname{erf} \frac{x}{2\sqrt{\tilde{D}t}} \right) \quad (3)$$

$$\operatorname{erf}(y) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^y \exp(-p^2) dp$$

ここで、 C は濃度、 C_0 は最初の濃度、 x は距離、そして t は時間である。彼らはAl-Mn合金/Al、Al-Zn-Mn合金/AlおよびAl-Zn-Mn合金/Al-Zn合金から成る組合せの拡散対について得られた \tilde{D} をAl中のMnの不純物拡散係数としている。しかし、 \tilde{D} は真の不純物拡散係数(D_B^*)および自己拡散係数(D_A^*)は次のように関係づけられる。

$$\tilde{D} = (C_A D_B^* + C_B D_A^*) m, \quad (4)$$

ここで、 C_A および C_B はそれぞれ、合金中の溶媒原子および溶質原子の濃度であり、 m は熱力学的因子である。(4)式から明らかなように、いくつかの条件が満足されなければ、 \tilde{D} が D_B^* に等しくならない。したがって、Bergnerが求めた拡散係数は近似的にAl中のMnの不純物拡散係数に等しいにすぎない。相互拡散によって、不純物拡散係数を決定しようとするならば、Al中のSiの拡散で用いた方法⁸⁾、すなわち希薄合金での \tilde{D} の濃度依存性を調べ、 \tilde{D} を濃度零に外そうして不純物拡散係数を求める方法を用いるべきであろう。Bergnerの原論文では、 D_0



第5図 Previously reported data on diffusivities of Mn in aluminum.

および Q の計算で 3 元合金の拡散対で得られた \tilde{D} も用いられている。これは、明らかに問題があるので、本研究では Al-Mn 合金 / Al の組合せの拡散対から得られた \tilde{D} のみを用いて D_0 および Q を計算しなおし、その値を第 2 表に示した。Ficke⁴¹ の研究方法の詳細は不明であるが、Bergner らの方法と類似している可能性があり、彼の結果も Al 中の Mn の真の不純物拡散係数に相当しないと思われる。

Hood ら¹¹ の結果は、現在最も引用されている結果であるが、しかし彼らの結果も十分に満足できるものではない。拡散時間が全温度範囲で短かく、20~40 μm のせまい拡散距離の範囲でマイクローム法でセクションングして、放射化分析によって不純物拡散係数を求めている。拡散距離が短いために、測定点が少なく、さらに拡散のいわゆる Near-surface effect の影響をも受けている可能性がある。なお、Hood らが示している D_0 および Q は計算間違いであることが判明したので、本研究では最小二乗法によって正しい D_0 および Q を求め、第 2 表に示した。

本研究では、従来の研究よりも拡散時間を十分に長くし、拡散距離を 100~200 μm とし、その範囲で数多くのセクションングを行ない拡散係数を求めた。第 3 図からわかるように、Near-surface effect の現象はみられず、良い拡散浸透曲線が得られていることがわかる。本研究で得られた Al 中の Mn の不純物拡散係数は、Hood らの値よりもわずかながら大きくなっている。 D_0 および Q の値は Lundy ら以外の研究者のいずれよりも小さくなった。本研究で用いた実験方法は、Al 中の Mn の不純物拡散の研究方法として妥当なものであることがわかった。

§ 5. 結 論

$^{56}\text{Fe}(\gamma, \text{pn})^{54}\text{Mn}$ 反応を用いて無担体の ^{54}Mn を調製し、それによって高温側の Al 中の Mn の不純物拡散係数を決定した。今後、広い温度範囲にわたって Al 中の Mn の不純物拡散係数を測定し、より信頼できる D_0 および Q を得た上で、 Q についての理論的検討が必要であろう。さらに、本研究の調製法では、 ^{54}Mn および ^{52}Mn が同時に得られるので、Al 中の Mn の拡散の同位体効果の研究が可能と思われる。そのような研究から、Al 中の遷移金属元素の拡散で未解決問題となっているその大きな D_0 および Q の原因が解明される可能性がある。

第2表 Diffusion parameters for Mn in aluminum.

Element	Method	D_0 (m^2/s)	Q (eV)	Temp. range (K)	Worker
^{54}Mn	Chloride depositing	5.42×10^{-3}	2.12	874—927	Present work
	Serial sectioning				
^{55}Mn , ^{56}Mn	Ion implantation, Serial sectioning, Activation analysis	9.02×10^{-3} # (1.04×10^{-2})	2.16 # (2.19)	730—921	Hood ¹⁾
^{54}Mn	Diffusion couple	2.2×10^{-5}	1.25	729—916	Lundy ³⁾
	Serial sectioning				
Mn	Interdiffusion EPMA	1.00×10^{-1} # (1.28×10^{-1})	2.36 # (2.37)	773—913	Bergner ²⁾
Mn	Interdiffusion EPMA	3.8×10^{-2}	2.3	773—918	Fricke ⁴⁾

These values of D_0 and Q are recalculated by the present authors.

参 考 文 献

- 1) G. M. Hood and R. J. Schultz : Phil. Mag. **23** (1971) 1479.
- 2) D. Bergner and E. Cyrener : Neue Hütte **18** (1973) 9.
- 3) T. S. Lundy and J. F. Murdock : J. Appl. Phys. **33** (1962) 1671.
- 4) W. G. Fricke, Jr : Scripta Met. **6** (1972) 1139.
- 5) T. Marumo, S. Fujikawa and K. Hirano : Trans. Japan Inst. Light Metals **23** (1973) 17.
- 6) 藤川辰一郎 : 核理研研究報告 **12** (1979) 229.
- 7) S. Fujikawa and K. Hirano : Mat. Sci. Eng. **27** (1977) 25.
- 8) S. Fujikawa, K. Hirano and Y. Fukushima : Met. Trans. **9A** (1978) 1811.
- 9) S. Fujikawa and K. Hirano : Trans. Japan Inst. Metals **17** (1976) 809.
- 10) S. Fujikawa and K. Hirano : Trans. Japan Inst. Metals **12** (1971) 434.

IV. 加 速 器 · 測 定 器

150 MeV 電子パルスビーム・ストレッチャーの 電磁石磁場測定

核理研

吉田克久・笹沼東一・玉江忠明

山田和芳・菅原真澄

§1 はじめに

現在、核理研で制作されている 150 MeV 電子パルスビームストレッチャー (SSTR) に用いられる電磁石のうち、リング部分の偏向電磁石 ($M_1 \sim M_8$) 及び入射系と取り出し系の偏向電磁石 ($M_9 \sim M_{12}$) の磁場測定を行ない測定結果がまとまったので報告する。

これまでに M_1 , M_9 についてその励磁特性, 磁場分布の一様性, 漏洩磁場などが測定されて磁極内での磁場分布の一様性及び励磁特性に関して仕様を満足していることが確かめられた¹⁾。さらに、漏洩磁場分布から各電磁石の磁極端に取り付けられるポールチップの形が決定されていた。したがって今回は、上記の決定に従って工作された全電磁石の漏洩磁場分布が予定通りになっていることを確かめることと、全電磁石の励磁特性を測定することが行なわれた。

§2. $M_1 \sim M_{12}$ の諸規格

$M_1 \sim M_{12}$ の出入口の磁極端にはポールチップが取り付けられており、その形状を変えることにより漏洩磁場分布の調整を行なう。また、磁場漏れを小さくするために厚さ 2 cm で材質が S-10C のフィールドクランプが取り付けられている。

$M_1 \sim M_8$ は偏向角 α が 45° で曲率半径 ρ が 800 mm, 磁極の間隔 g が 50 mm の H 型電磁石である。 $M_9 \sim M_{12}$ は偏向角 α が 41.25° , 曲率半径 ρ が 700 mm, 磁極間隔 g が 50 mm の H 型電磁石である。

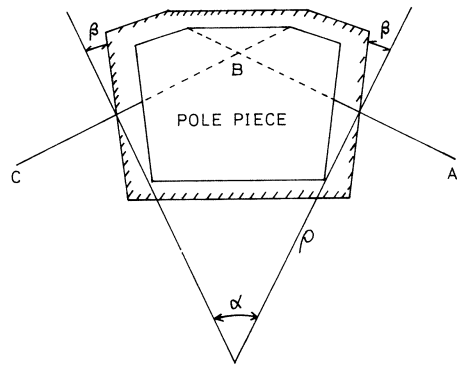
§3. 測定装置及び測定方法

励磁特性の測定には、プロトン核磁気共鳴を利用した磁場測定器を使用した。この測定器の精度は 1×10^{-5} である。測定方法は、まず電磁石を一旦 250 A で励磁した後 ($M_9 \sim M_{12}$ では 270 A) 電流値を零にもどし、そこから電流を一定間隔で増加させながら各電磁石の磁場を測

定した。励磁特性の一様性は M_1 (M_9) の磁場との比較を行なうことによって求めた。

磁場分布の測定には、ホール素子 (約 $2 \times 2 \text{ mm}^2$) を磁場測定台に取り付けて行なった。磁場測定台はホール素子を、マイクロコンピュータに制御されたパルスモーターによって自動的に平面上の任意の位置に移動させることが出来るようになっている。ホール素子の位置の読み取りは、パルスエンコーダーで行ない、その精度は $\pm 0.1 \text{ mm}$ である。測定データ (座標及びホール電圧) はマイクロコンピュータによってカセットテープに記録される。

電磁石の磁極面には第1図に点線で示すように中心軌道の方に罫書き線が引いてある。ホール電圧はこの罫書き線及びそれに平行な5~10本の直線にそって磁極中心面上で測定された。



第1図 磁極及び假定磁場分布と中心軌道の関係。斜線で囲んだ部分が假定磁場分布である。A-B及びB-Cが中心軌道の方である。

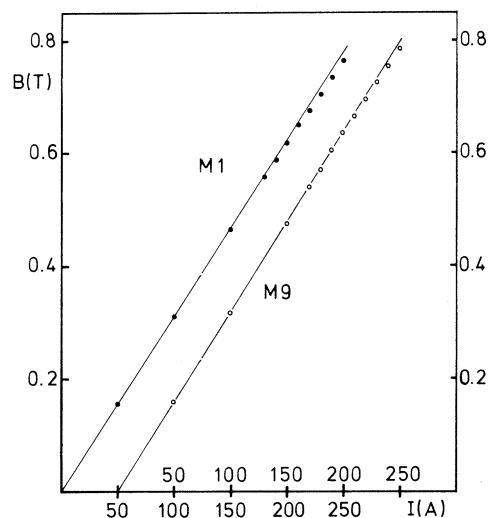
§4. 測定結果

4.1 励磁特性

$M_1 \sim M_8$ 及び $M_9 \sim M_{12}$ はそれぞれ直列に励磁されるので各電磁石の励磁特性は補正コイルによる補正範囲内でそろっていなければならない。

ビームエネルギーが 150 MeV の場合には、 $M_1 \sim M_8$ 及び $M_9 \sim M_{12}$ にそれぞれ 0.625 T と 0.714 T の磁場が励磁される必要がある。 M_1 及び M_9 の励磁特性を第2図に示す。 M_1 及び M_9 に要求される磁場を得るためには、それぞれ 200 A と 227 A の電流が必要であることがわかる。 M_1 及び M_9 の磁束密度と他の電磁石の磁束密度との比をいくつかの励磁電流について測定したものを第3に示す。 $\pm 0.2\%$ の精度で一様に励磁されている。

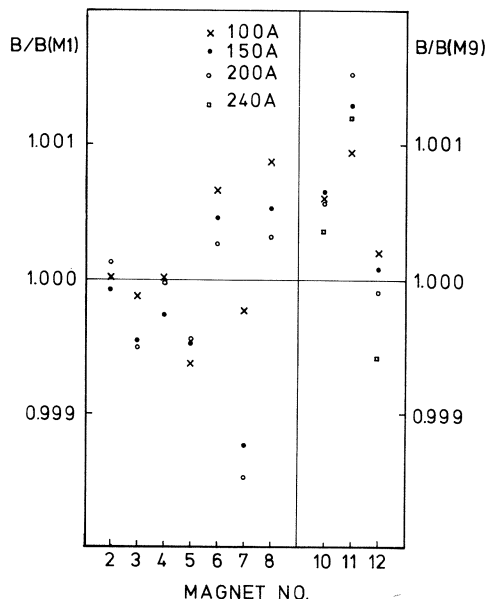
第2図 M_1 及び M_9 の励磁特性。横軸は上側の目盛りが M_9 の励磁電流で下側が M_1 の励磁電流である。



4.2 漏洩磁場分布

実際の電磁石の磁場分布は磁極内から磁極端まで一様で磁極端から外では零になるようなものではなく磁極内からゆるやかに減少しながら磁極端の外まで広がっている。軌道計算の1次近似の場合は、実際の磁場で受ける中心軌道の偏向角と等しい偏向角を与える一様磁場を仮定して、その端を実効磁場端と定義して軌道計算を行なう（この時の仮定磁場分布と中心軌道の関係は第1図を参照）。したがって実効磁場端は磁極端よりも外側にはみだしているので、各電磁石間の距離はこのことを考慮して補正しなければならない。野書き線上での磁場測定の開始点から実効磁場端までの距離 L_{eff} を第1表に示す。

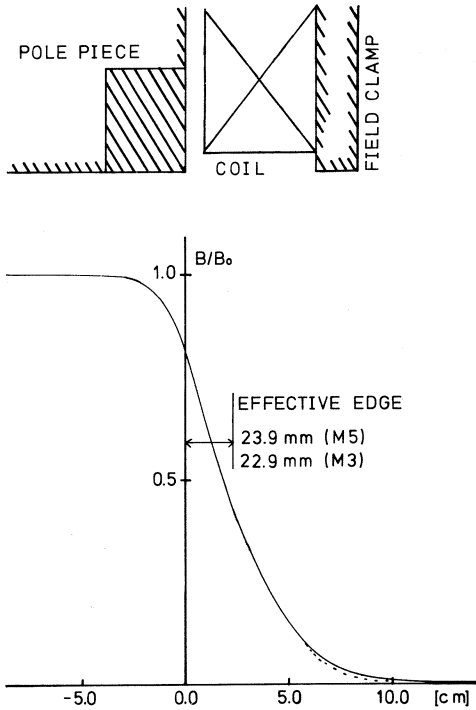
各測定時におけるこれらの開始点の M_1 及び M_{10} の場合からのずれは漏洩磁場分布の比較により補正された。この際の誤差は ± 0.3 mm 程度である。したがって測定された L_{eff} の値のばらつきは、この誤差と漏洩磁場分布の小さな差によるものと考えられる。漏洩磁場分布の差の L_{eff} への影響を M_3 と M_5 及び M_9 と M_{10} について第4図・第5図に示す。図に示されている磁極端から実効磁場端までの距離は、 M_1 及び M_{10} における測定開始点から磁極端までの距離 l を L_{eff} から差し引くことによって得た。ただし距離 l の測定誤差が今回の測定では ± 1.5 mm 程度と大きいために、これらの値は磁極端から実効磁場端までの正確な距離ではない。



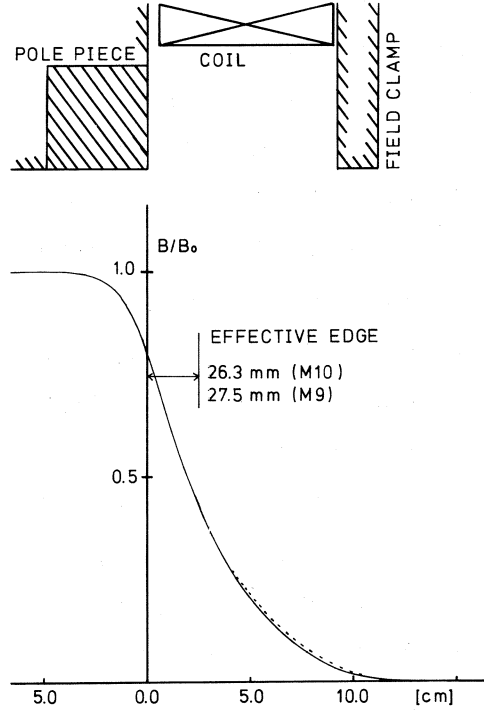
第3図 各電磁石の励磁特性のばらつき。

第1表 野書き線上の定点から実効磁場端までの距離。

Magnet No.	L_{eff} (mm)	
	Entrance	Exit
1	180.1	187.2
2	180.4	187.3
3	179.7	187.0
4	179.9	187.1
5	180.7	187.4
6	180.6	187.0
7	180.5	186.5
8	180.3	186.7
9	132.8	149.2
10	132.0	149.3
11	132.1	148.5
12	132.0	148.5



第4図 M₃及びM₁₀の漏洩磁場分布。第1図のB-A上で測定した値を示す。点線はM₃の磁場分布である。図上部に磁極端の様子を示した。



第5図 M₉及びM₁₀の漏洩磁場分布。点線はM₉の磁場分布である。ただしM₉のフィールドクランプは他のものより4mm外に付いている。

磁場端と中心軌道が直交してなくて角度 β だけ回転している場合には(第1図参照), この部分を $f = \rho / \tan \beta$ の焦点距離をもつレンズとみなして軌道計算をすることが出来るが, そのような計算では鉛直方向のレンズ作用が実際よりも強く見積られる。それに対する補正は漏洩磁場分布から計算される K_1 という量によってなされる²⁾。

$$K_1 = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{B_y(Z) [B_0 - B_y(Z)]}{g B_0} dZ \quad (1)$$

ここで,

$$\begin{cases} B_0 & : \text{電磁石の十分内側での一様磁場の値} \\ B_y(Z) & : \text{実効磁場端に直交する方向の磁場の実測値} \\ g & : \text{磁極間隔} \end{cases} \quad (2)$$

である。

K_1 は, 電磁石の詳細な形状や励磁コイルの位置などに依存している。測定された K_1 の値を第

2表に示す。

磁場端の回転角 β は中心軌道を含む平面内で中心軌道に平行な5~10本の直線に沿って実効磁場端を計算することによって求めた。この際、磁場測定台の移動が直交する2方向に行なわれていないことがわかった。この直角からのずれ角は、電磁石の入口での測定値に加算され出口での測定値から差し引かれることになるので、入口と出口の測定値の差の平均を計算してずれ角を求めることによって補正を行なった。結果を第3表に示す。磁極端に取り付けられているポールチップによって磁極端の回転角は 11.215° ($M_9 \sim M_{12}$ は 11.381°)になっているのでこれらの値はそれよりも少し大きい。 β の変化によってリングを回わるビームのベータトロン振動数が変化したが、今の場合にはベータトロン振動数補正用の四極電磁石によって補正することが可能な程度である³⁾。

§ 5. ま と め

今回測定されたものの内、励磁特性については十分満足できるものである。また、実効磁場端のはみ出しについても仕様を満たしているが、その回転角の設計値からのずれについては、今のところ原因がはっきりしていない。磁極内の磁場の不均一性及び測定時の印加電流のゆらぎなどが考えられている。

第2表 K_1 の測定値。

Magnet No.	K_1	
	Entrance	Exit
1	0.2982	0.2975
2	0.3031	0.2977
3	0.2934	0.2909
4	0.2966	0.2998
5	0.3009	0.2991
6	0.3013	0.3026
7	0.3044	0.2941
8	0.3007	0.2976
9	0.3549	0.3527
10	0.3385	0.3481
11	0.3409	0.3392
12	0.3389	0.3370

第3表 実効磁場端の回転角。

Magnet No.	β (deg)	
	Entrance	Exit
1	11.33	11.38
2	11.45	11.43
3	11.40	11.33
4	11.42	11.37
5	11.41	11.37
6	11.33	11.44
7	11.36	11.37
8	11.27	11.34
9	11.59	11.48
10	11.46	11.44
11	11.32	11.30
12	11.46	11.58

参 考 文 献

- 1) 核理研次期加速器研究報告No.5 (1980).
- 2) SLAC REPORT No.75 (1972).
- 3) 核理研次期加速器研究報告No.4 (1980).

アルミニウム合金真空チェンバー の電子ビーム照射効果

高エ研, 核理研*

石丸 肇・今野 収*

高エ研で開発された超高真空の機能を持ったアルミ合金の真空チェンバーのフランジ部分に断続的に60 MeV, 20 μ Aのビームを照射した結果, 冷却しない状態で約60分間で200°Cまで温度上昇したが真空もれは起こさなかった。同一形状の従来のステンレス鋼の真空チェンバーで同様のビーム照射に対してわずか2分の後真空もれを起こした。アルミ合金の真空チェンバーはステンレス鋼のそれに較べて熱伝導が約15倍良好なため, 局所的な加熱に対しても熱の分散のため歪みを生じにくく真空もれを起こしにくいと結論できる。

§1. 序

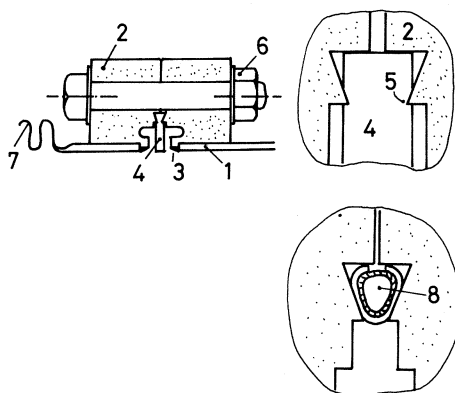
最近高エ研で全アルミ合金製の超高真空装置が開発された¹⁻⁵⁾。アルミ合金の真空システムはステンレス鋼と比較して, ①放射化しにくく[放射化のしきい値は約60 MeV以上], 放射化しても減衰が早い[主にAl(Na^{24})半減期15時間], ②熱伝導が良好[約15倍], ③加工が容易で特に複雑な形状に押し出し出来る, ④軽い[約1/3], ⑤完全非磁性, ⑥低温での特性が優れている。⑦放出ガス量が小さい[ベークなしで約 10^{-9} torr \cdot l/s \cdot cm², 150°C, 24時間ベークで約 10^{-12} torr \cdot l/s \cdot cm²]など多くの特長を持っている。実際に昭和56年度から建設の始まったTRISTAN e^+e^- 衝突型加速器の真空システムとしてアルミ合金が採用されることになっている⁶⁻⁷⁾。

一方核理研のリニアックの真空チェンバーの材料として従来のステンレス鋼が用いられているが①残留放射能によるひびく, ②トランスポート系でのビームハンドリングの際ビームダクトのフランジ部にビームを当てるとしばしば真空もれを起すという問題がある。そこでアルミチェンバーとステンレス鋼チェンバーにビーム照射を行って前述の2つの問題を解決出来るかどうか検討することとした。

§3. アルミ合金真空チェンバー

パイプなどは押出し加工に適した6063-T6を，フランジにはアルミ合金では最も耐熱性の高い且つ機械的強度もステンレス鋼とほぼ同等の2219-T87，歪みや熱伸縮の吸収には成形ペローズを用い材質は5052を用いる。

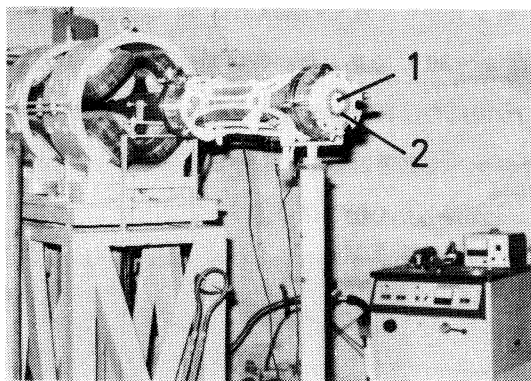
フランジ規格は市販の超高真空機器と適合させるためICFコンフラットフランジとした。フランジ表面は傷防止とアルミガスケットの接着防止のためイオンプレーティング法によるCrNコーティング処理⁸⁾がなされる。ガスケットはアルミの1050を用いる。ナイフエッジの傾斜部分にヘリコフレックス[コイルスプリング内蔵のアルミOリング]を用いるとアルミガスケットよりもさらに良好な気密特性を持つ⁹⁾。ボルト・ナット・ワッシャ¹⁰⁾はアルマイト処理がなされる。パイプとフランジはAC-TIG溶接[AC, DCSPなどの組合せ]や電子ビーム溶接による(第1図)。これらの組合せで脱脂と150°C, 24時間の加熱脱ガス処理で, ガス放出率が $Q_0 \sim 10^{-12}$ torr· $l/s \cdot cm^2$ に達する。アルミ合金のコンフラットフランジは従来のステンレス鋼のコンフラットフランジと組合せて使用することが出来る。この場合到達圧力はアルミ合金の耐熱温度で制限されるためステンレス鋼の放出ガスで制限される。



第1図 アルミ合金製真空チェンバー。
1.パイプ[6063-T6], 2.フランジ[2219-T87], 3.AC-TIG溶接, 4.ガスケット[1050], CrNコーティング, 6.ボルト, ナット, ワッシャ[2024-T4], ナット以外はアルマイト処理。7.アルミ成形ペローズ[5052], 8.ヘリコフレックス[インユネルコイルスプリング内蔵アルミOリング(1050)]。

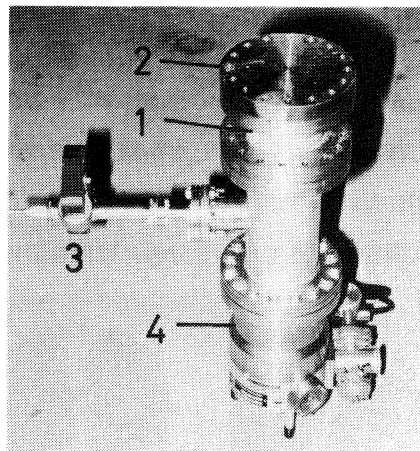
§3. 実験装置

60 MeV のトランスポートからBeの窓を通して大気中に電子ビームを取出し窓から約10cm離れたところに真空チェンバーを置いた。真空チェンバーは120 l/s のターボ分子ポンプで排気し $\sim 10^{-6}$ torrの圧力となっている(第2図)。ビームはフランジの側面に照射するようにし、ビームのスポット径は約5 mmであった。ビーム照射位置から ~ 5 cm離れたところに温度測定熱電対を取付けた。真空もれを検知するための真空ゲージも取付けた。冷却は行っていない。



第2図 実験装置。

(a)電子ビームはBe窓から大気中へ出る。①Be板ビームモニター
②ビーム強度モニター。



(b)①ステンレス鋼の単管，②ステンレス鋼フランジICF-152，
③真空ゲージ，④ターボ分子ポンプ。

§4. 実 験

ビーム照射実験は3 RUN行った。

1. RUN-1

アルミ合金コンフラットフランジにヘリコフレックスを入れてビーム照射した。60 MeV, 20 μ A のビームを照射して25°C上昇するたびに5分間ビームをOFFすることをくり返し150°Cまで約1時間を要した。この間圧力は $1.8 \sim 3.0 \times 10^{-6}$ torrの範囲で変動したが真空もれは起こさなかった。

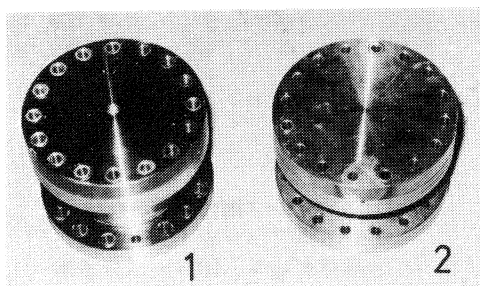
2. RUN-2

ヘリコフレックスをコンフラット用アルミガスケットに交換してビーム照射した。熱サイクルはRUN-1と同様25°C上昇するたびに5分間ビームをOFFとした。1時間後に150°Cに達したが真空もれが起こらないのでさらにビーム照射をくり返し約30分後に200°Cに達した。RUN-2の間、圧力は $4.5 \times 10^{-6} \sim 2.9 \times 10^{-7}$ torrの範囲で変化したが真空もれは起こさなかった。アルミ合金2219-T87の耐熱性の限度が200°CであるのでRUN-2は打切とした。

3. RUN-3

アルミチェンバーをステンレス鋼のチェンバーに交換してビーム照射を行った。フランジはコンフラットフランジと銅ガスケットである。ビームを照射して2分後真空ゲージのインターロックが働らいて真空もれを起こしたことが判明した。あまりにも早すぎるので、加速器室へ

入りゲージをリセットして再度行うこととした。ステンレスのフランジを見るとビームスポットに対応し表面が紫色に焼けていた。ビームスポットのすぐ近くの温度計は 80°C を示していたが手を触れた感じで側面は $40^{\circ}\sim 50^{\circ}\text{C}$ 、裏面は $\sim 30^{\circ}\text{C}$ であった。真空ゲージをリセットして再度ビームを照射したが結果はほぼ同じで3分後に再び真空もれを起こした。ゲージが振り切れたばかりでなくターボ分子ポンプのコントロールも異常信号を出し停止してしまった。ビーム照射を始めてから3分後には温度計は 170°C を記録した(第3図)。



第3図 ビーム照射後のフランジ面。
(a)①アルミ合金のコンフラットフランジ。ビーム照射しても何ら異常は認められない。②ステンレス鋼のコンフラットフランジ。



(b) 2分間のビーム照射後のステンレス鋼の表面が高温になり焼けた様子。熱電対はビームスポットに最も近いボルトと下側フランジのすきまに取付けた(矢印)。

§5. 考 察

RUN-1ではアルミ合金6063-T6の耐熱温度が約 170°C であるので通常加熱脱ガス温度を考へて 150°C に設定しているの、実験の温度上昇の上限を 150°C に設定した。熱電対の位置はビームスポット位置と離れているのでスポットの位置ではさらに高い温度と推定される。ベンチテストではヘリコフレックスとアルミ合金フランジで 200°C のデータ²⁾があり良好なシール特性を持っている。ヘリコフレックスとアルミ合金フランジの組合せの場合熱の分散が大きいため $130^{\circ}\text{C}/60$ 分の比較的ゆるい温度勾配では充分安全に気密封止が出来ると考えられる。

RUN-2での温度上昇率はRUN-1と同じではあるが、温度の上限が短時間ではあるが 200°C に達していることと、気密シール特性に於てアルミガスケット[$\sim 5\ \mu\text{m}$ のスプリングバックに対して気密を保つ]はヘリコフレックス[$\sim 50\ \mu\text{m}$ のスプリングバックに対し気密を保つ]よりも気密封止特性の点で劣っているにもかかわらず真空もれを起さなかったことは驚ろくべきことである。これまでアルミガスケットを加熱していく過程ではもれを起さず、冷却していく過程で真空もれを起すことがあった。これはシール部に傷があったり、締め付が充

分でなかった場合、気密封止特性の安全率が低いので起こる現象であるのでRUN-2でも注意して観察していたが問題は起こらなかった。

RUN-3では2~3分の極めて短時間のビーム照射で真空もれを起こしている。2度のテストでも再現する。真空もれを起こして直ちにビームをOFFしても温度計は上昇するのが認められた。ステンレス鋼は熱の分散が悪くビームスポットでは紫色の焼色から判断して800°C以上になっていると推定出来る。しかしビームスポットから離れたところでは手で触れることが出来る温度にとどまっている。RUN-1, RUN-2ではビーム照射直後でアルミチェンバーはもちろん下部のステンレスチェンバーも触れることが出来ない程の高温になっていた。ステンレス鋼フランジの結果はこれまでのビームハンドリングでビームをフランジ部分に当てると直ぐ真空もれを起こす経験と一致する。

ステンレス鋼フランジで真空もれを起こす原因は局所的な加熱によって温度分布が著るしく不均一になり熱歪みのため気密シール部分が開いてしまうと考えられる。コンフラットフランジの場合約30 μ mのスプリングバックに対して気密を保つので、局所的な加熱による温度差を100°Cとするとフランジの板厚方向の熱歪みを推定すると、

$$\Delta L = 100(^{\circ}\text{C}) \times 40(\text{mm}) \times 17 \times 10^{-6}(1/^{\circ}\text{C}) = 0.068(\text{mm})$$

となり許容歪み0.03 mmを容易に越えてしまう。100°Cの温度差は実際よりも低い値と考えられる。局所的な加熱による温度差は熱伝導が小さい程、熱容量が小さい程、大きな値となるので、ステンレス鋼の温度差が大きいことが説明出来る。

§6. 結 論

アルミ合金とステンレス鋼の真空チェンバーのビーム照射実験で、アルミ合金を用いた真空チェンバーはステンレス鋼のそれよりはるかに良好な気密特性を持つという劇的な結果となった。電子ビーム照射のような局所的加熱に対してもアルミ合金の真空フランジは熱の分散により熱歪みをわずかにとどめ真空もれを起こさない。さらに60 MeVの電子ビーム照射でステンレス鋼は強く放射化され、長期間残留するのに対しアルミ合金はほとんど放射化されない。

参 考 文 献

- 1) H. Ishimaru : J. Vac. Sci. Technol. **15** (1978) 1853.
- 2) H. Ishimaru, *et al.* : IEEE Trans. Nuclear Science **NS-26** (1979) 4000.
- 3) 石丸 他 : 真空 **22** (1979) 373.
- 4) H. Ishimaru : *3rd Symp. Acc. Sci. Technol.* , Osaka Univ. , 1980.
- 5) 土屋 他 : IHI技報 **21** 1981.
- 6) H. Ishimaru *et al.* : *8th Inter. Vac. Congr. , Cannes, France* , 1980.
- 7) H. Ishimaru *et al.* : *1981 Particle Acc. Conf. Washington , USA* 1981.
- 8) H. Ishimaru : to be submitted to *Proceedings of Institute of Plasma physics, Nagoya Univ*, 1981.
- 9) I. Sakai *et al.* : to be submitted to Journal of Vacuum TAIP, 1981.
- 10) 久保, 石丸 : 真空 (1981) に投稿予定.

V. 加速器・データ処理装置稼動状況

昭和55年度マシン報告

核理研マシングループ

浦澤茂一・今野 収・一戸 隆

栗原 亮・根本重伸・柴崎義信

概 況

電力料金の大幅な値上に伴い、マシンタイム減を行った。このため、マシンタイムの運用には十分な予猶が出来た。

実施状況

第1表に示す。

保守状況

第2表に示す。主な工事はSA-I (I系の分析スリット)と、励振系の後段の更新を行った。故障は冷凍機、I系RIチャンネルのビーム取出し窓が多かった。尚I系振分け電磁石内のダクトに真空洩れが生じ更新することになったが、現在アルミダクトを検討中である。

第1表 昭和55年度マシンタイム実施状況。

課題(申込者)	前 期		後 期		昭和55年度	
	割 当	実 施	割 当	実 施	割 当	実 施
e s (小山田)	10	10			10	10
e s (藤 平)	4	4	4	4	8	8
e s (鳥 塚)	6	6		6*2	6	6+6*2
e s (寺 沢)	8	8	4	4	12	12
e s (堀 田)	2	2	4	4	6	6
e s (本 間)			4	4	4	4
e s (斎 藤)			6	6	6	6
e s (川 添)			6	6	6	6
r π (庄 田)	16	16			16	16
r π (M I N)	10	10	10	10	20	20
r π (成)		4	4		4	4
r p (菅 原)	10	10			10	10
r p (Thompson)	8			8	8	8
r p (坪 田)		2*1				2*1
r α (宮 瀬)	4	4			4	4
r α (菅 原)			6	6	6	6
r α (玉 江)				2*2		2*2
r X (種 市)			4	4	4	4
TOF (阿 部)	3		4	7+1*1	7	7+1*1
π-MAG (庄 田)	3	2	3	3	6	5
SSD (斎 藤)	2	2			2	2
BBU (小山田)	6	3		1	6	4
MWPC (")	3	3			3	3
ビームモニタ(佐 藤)	4	2		2	4	4
AIダクト(石 丸)	1	1	1	1	2	2
ND	27	26	16	16	43	42
R I	25	19	14	20+2*2	39	39+2*2
計	152	132+2*1	90	106+1*1+10*2	242	238+3*1+10*2

*1 前年度残分

*2 次年度繰上げ実施分

第2表 保守状況。

	割 当	実 施
工 事 日	18 日	91 日
定 期 点 検	13 日	12 日
予 備 日	34 日	0 日
マシ ン 停 止 日	72 日	27 日
マシ ン テ ス ト	0 日	1 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

武藤正勝・金森 浩

§ 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55年度用途別利用実績を第1表に示す。

第1表 昭和55年度・用途別利用実績表。

（単位：時間）

機種名 月	OKITAC-4500				OKITAC-50			
	用途 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	368	2	2	372	0	119	2	121
5	327	19	11	357	0	152	4	156
6	414	9	3	426	0	154	7	161
7	168	82	5	255	2	148	4	154
8	0	203	88	291	2	83	2	87
9	141	259	23	423	4	189	4	197
10	226	30	86	342	3	201	0	204
11	224	5	3	232	2	195	1	198
12	98	0	3	101	8	166	4	178
1	192	2	3	197	20	188	4	212
2	271	1	2	274	12	133	4	149
3	94	10	3	107	9	319	1	329
合計	2,523	622	232	3,377	62	2,047	37	2,146
月平均	210.3	51.8	19.3	281.4	5.2	170.6	3	178.8
%	74.7	18.4	6.9	100.0	2.9	95.4	1.7	100.0

O-50は前年同様の利用実績となっている。O-4500ではオフライン処理と保守・故障時間が目につく。これは実験用ソフトを夏のマシン停止時に開発した為でデータ処理としては150時間程度である。保守・故障では外部メモリー増設とPIO関係の故障が各々100時間程度となっている。

昨年よりO-4500の故障増加、実験装置の改良によるデータ量の増大・高速化に対応する為にデータ集積システムの増強を検討してきましたが、55、56年の2年計画で実行する事になりました。その内容は次の通りです。

1. 新しいデータ集積装置（電子ライナックデータ処理装置）を増設して原子核関係の実験装置を接続する。
2. O-4500はPIO, IF関係を新しく製作して、ND, PHA関係の実験装置を接続する。

このようにデータ集積装置を2台にする事により保守時間、実験装置の改良開発の為の時間が確保されると共に、故障時に全ての実験が不可能になるのではなく、実験種目を変更する事により加速器のマシンタイムを有効に利用する事が出来る。これらの工事は夏のマシン停止期間を利用して行う予定で作業を進めています。順調に作業が進めば後期からは新しいシステムを使った実験が開始されます。

（窪田）

核理研研究報告 第14巻 第1号

1981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 14 Number 2 June 1981

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