

ISSN 0385-2105

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 究 報 告

第 14 卷 第 2 号

1981 年 12 月

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

刊 行 規 定

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

投 稿 規 定

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

仙台市三神峯1-2-1 郵便番号 982

東北大学理学部原子核理学研究施設

「核理研研究報告」編集係

核理研研究報告 第14巻 第2号 目次

I 原子核物理

- I-1 電子散乱による ^{92}Zr の巨大共鳴125

(核理研, 理学部物理*)

藤井 芳昭, 藤平 力*, 広田 淳一*, 斎藤悌二郎

斎藤 健治, 鳥塚 賀治

- I-2 $^{13}\text{C}(e, \pi^+)^{13}\text{B}^*$ に現われる強いスピントリフリップ転移(I)131

(核理研, 教養部*, RPI**)

取越 正己, 佐々木 修, 山崎 正晴, 坪田 博明*

庄田 勝房, K. Min**, E. J. Winhold**

- I-3 ^{63}Cu , ^{65}Cu の (e, p) 及び (e, α) 反応機構の研究137

(核理研, 教養部*)

田中 俊成, 広岡 恵, 坪田 博明*, 菅原 真澄

- I-4 ^{90}Zr , $^{93}\text{Nb}(e, p)$, (e, α) 反応151

(核理研)

日野 威, 田中 俊成, 広岡 恵, 菅原 真澄

玉江 忠明

II 物性物理

- II-1 非晶質Zr-Ni合金水素化物中での水素の挙動155

(金 研)

金子 尚史, 梶谷 剛, 平林 真, 上野 光明

鈴木 謙爾

- II-2 T-O-F Pulsed Neutron Diffraction of Sodium-Metasilicate
 $\text{Na}_2\text{O} \cdot \text{SiO}_2$ Glass162

(金 研)

上野 光明, 鈴木 謙爾

III 放射化学

III-1 トリス(ピピリジン)ルテニウム(II)

塩化物系における中心金属の反跳挙動..... 169

(筑波大化学系)

池田 長生, 渡辺 裕夫, 荘司 準

III-2 安定同位体希釈放射化分析とその光量子放射化への応用..... 173

(核理研)

榎本 和義, 八木 益男

III-3 無担体³⁹Cl 標識臭化アルキルの簡易迅速調製法 181

(核理研, 理学部化学*)

八木 益男, 伊澤 郡蔵*, 村野 宜史*

IV 論文リスト..... 191

I 原 子 核 物 理

電子散乱による ^{92}Zr の巨大共鳴

核理研, 理学部物理*

藤井芳昭・藤平 力*・広田淳一*

齋藤悌二郎・斎藤健治・鳥塚賀治

§ 1. はじめに

これまで我々はLEOR (Low Energy Octupole Resonance) について系統的に調べており, 既に ^{90}Zr のLEORについては報告したが¹⁾, 今回我々はその同位体効果を見るため, $^{92}\text{Zr}(e, e')$ の実験を行なった。LEORの研究のためには巨大共鳴領域からの裾が問題となるが, これまで $^{92}\text{Zr}(e, e')$ の巨大共鳴領域の研究はほとんど報告されていない。そこで今回巨大共鳴領域についての解析を行なったので, その報告をする。LEOR領域については次回に報告する。

最近, 陽子や ^3He などを用いたハドロン散乱においては, 多くの核種において励起エネルギー $20\text{MeV} \sim 30\text{MeV}$ に幅 $5 \sim 7\text{MeV}$ のE3巨大共鳴が存在することが報告されている。²⁻⁴⁾ それらによれば, E3の励起エネルギーの質量数依存性は

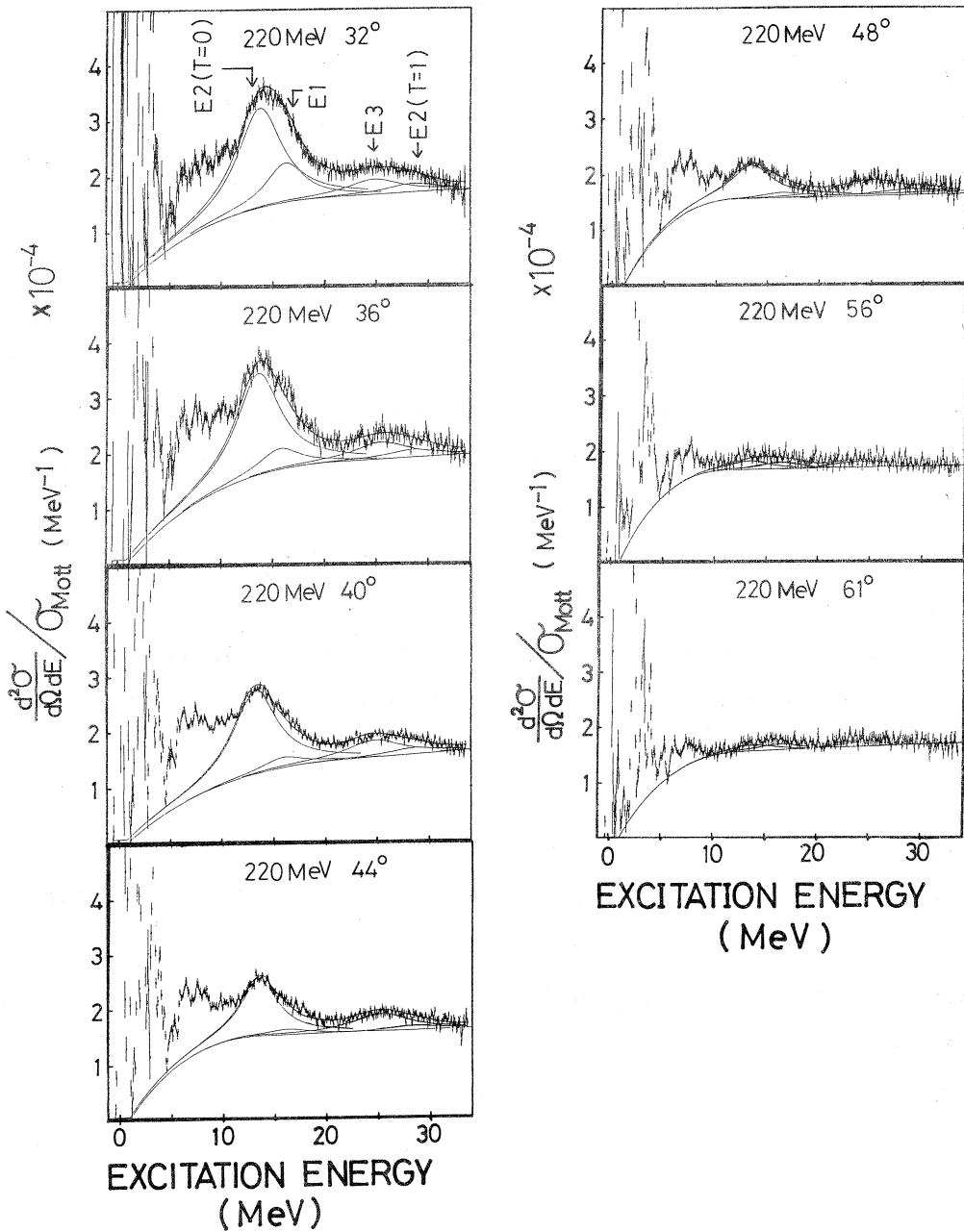
$$E_x \sim 118 A^{-\frac{1}{3}} \quad ({}^3\text{He}, {}^3\text{He}')^{2)}$$

$$\text{あるいは } E_x \sim 110 A^{-\frac{1}{3}} \quad (p, p')^{3)}$$

で与えられている。特に文献2)においては, $^{92}\text{Zr}({}^3\text{He}, {}^3\text{He}')$ において, $E_x = 26.0\text{MeV}$, $\Gamma = 7.0\text{MeV}$ のE3巨大共鳴の存在が報告されている。また, ^{90}Zr に対する電子散乱実験においては, LEORは和則の23.8%しか尽くしておらず¹⁾, その大部分が巨大共鳴領域に存在することが予想され, また, 励起エネルギー $24\text{MeV} \sim 28\text{MeV}$ にE3巨大共鳴が存在するとの報告⁵⁾もある。今回行なった ^{92}Zr の電子散乱実験においても, 励起エネルギー $22\text{MeV} \sim 30\text{MeV}$ に, 対応するピークが観測されている。この報告では, このピークがE3成分を含むかどうかを検討する。

§ 2. 実 験

実験は核理研の電子ライナックと大型電子線スペクトロメータを用いて行なった。ターゲットは純度95.13%の ^{92}Zr 箔を用いた。実験条件を第1表に示す。実験点は, E3励起が強調



第1図 ^{92}Zr (e, e'), 220 MeVにおけるスペクトル。放射損失を補正してある。
実線はピーク分離を示す。

第1表 実験条件。

No.	E_0 (MeV)	θ (Deg)	q_{eff} (fm^{-1})	E_x (MeV)	Thickness (mg/cm^2)	Exp. Date
1	220	32	0.645	0-33	49.97	81-05-22
2	220	36	0.722	0-33	49.97	81-01-26
3	220	40	0.798	0-33	49.97	81-01-26
4	220	44	0.873	0-33	49.97	81-01-26
5	220	48	0.948	0-33	49.97	81-01-26
6	220	56	1.093	0-36	49.97	81-05-14
7	220	61	1.179	0-34	49.97	81-05-14

されると期待される運動量移行範囲を含む7点である。

第1図に、今回測定された散乱電子のエネルギー・スペクトルに放射損失の補正を施したものを示した。実線は後述するピーク分離である。

§ 3. 解 析

スペクトルは、励起エネルギー12MeV~20MeVと22MeV~30MeVに、2つの幅の広い共鳴が見られる。このうち、第1の共鳴においては、光核反応の実験⁶⁾から、 $E_x = 16.27$ MeVにGDRが存在することがわかっているが、そのみではこのピークを尽くせないのもう1本のピークを仮定する。また、第2の共鳴はその幅が~10MeVと広く、ハドロン散乱²⁻⁴⁾から得られている $\Gamma = 6 \sim 7$ MeVに矛盾しないために、この共鳴が2本のピークから成ると仮定した。これらのピークの型としてBreit-Wigner型を用い、3本の未知ピークのエネルギー・幅・強度を変えてスペクトルにフィットさせるピーク分離を行ない解析した。この際、GDRに対しては光核反応⁶⁾で得られたデータ

$$E_x = 16.27 \pm 0.04 \text{ MeV}$$

$$\sigma_m = 165 \pm 0.4 \text{ mb}$$

$$\Gamma = 4.73 \pm 0.06 \text{ MeV}$$

を与えて基準とした。また、GDRの q 依存性はGoldhaber-Teller模型を用いて計算した。

連続状態からの寄与は、その形を、低エネルギー($E_x < 10 \sim 15$ MeV)では3次の多項式を用いてピークの谷を通るようにし、高いエネルギー($E_x > 10 \sim 15$ MeV)では直線を用いて

$E_x \sim 32\text{MeV}$ でスペクトルに一致するようにし、この両者をなめらかにつなぐことにより決定した。

ピーク分離の結果を第1図に実線で示した。また、この結果から求めた各ピークの強度の q 依存性を、計算から求めた E 1 ~ E 3 の q 依存性ととも第2図に示した。この計算は、E 1 には Goldhaber - Teller 模型を、E 2 · E 3 には Tassie 模型⁷⁾を用いた。また、転移電荷密度を求める際には、基底状態の電荷密度として次の3パラメタガウス分布

$$\rho(r) = \rho_0 \cdot \frac{1 + \omega \left(\frac{r^2}{c^2} \right)}{1 + \exp \left[\left(\frac{r^2 - c^2}{z^2} \right) \right]}$$

$$\omega = 0.0334, \quad c = 4.455 \text{ fm},$$

$$z = 2.550 \text{ fm}^{8)}$$

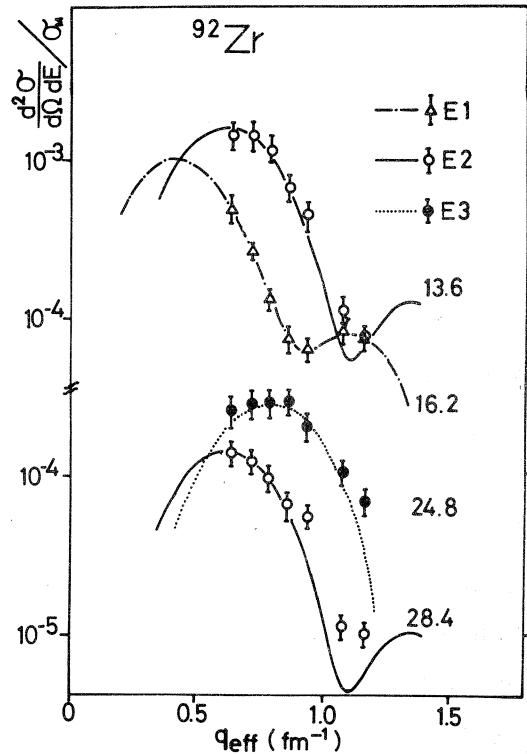
を採用した。

第2図から、第1の共鳴に仮定した1本の未知ピークは励起エネルギー 13.6 MeV の E 2 ($T=0$) 巨大共鳴で、第2の共鳴に仮定した2本のピークは励起エネルギー 24.8 MeV の E 3 ($T=1$) 巨大共鳴と 28.4 MeV の E 2 ($T=0$) 巨大共鳴で極めて良く再現されることがわかる。ここで、13.6 MeV の E 2 巨大共鳴の幅が 5 MeV で、他の多くの核種において確立されている E 2 巨大共鳴の幅よりも広い理由としては、⁹⁰Zr の場合の類推から、E 0 の寄与が含まれているためと考えられる。

これらの結果をまとめて第2表に示す。

第2表 ⁹²Zr (e, e') によって観測された巨大共鳴。

E_x (MeV)	J^π	Γ (MeV)	$B(EL)$ ($e^2 \text{fm}^{2L}$)	EWSR (%)	T
16.2 ± 0.3	1^-	4.7	18.6	90	1
13.6 ± 0.3	$2^+ (0^+)$	4.9 ± 0.3	2.39×10^3	122 ± 24	0
28.4 ± 0.3	2^+	6.0 ± 0.4	2.10×10^2	22 ± 4	1
24.8 ± 0.5	3^-	6.2 ± 0.3	3.11×10^4	40 ± 8	0

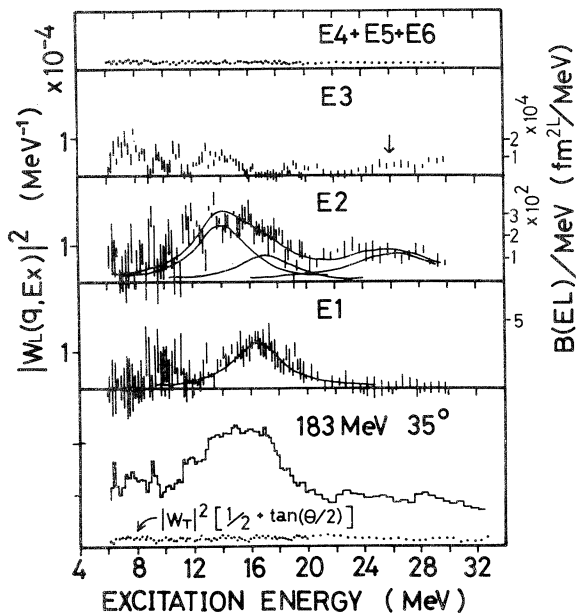


第2図 観測された巨大共鳴の形状因子と DWBA による計算値との比較。

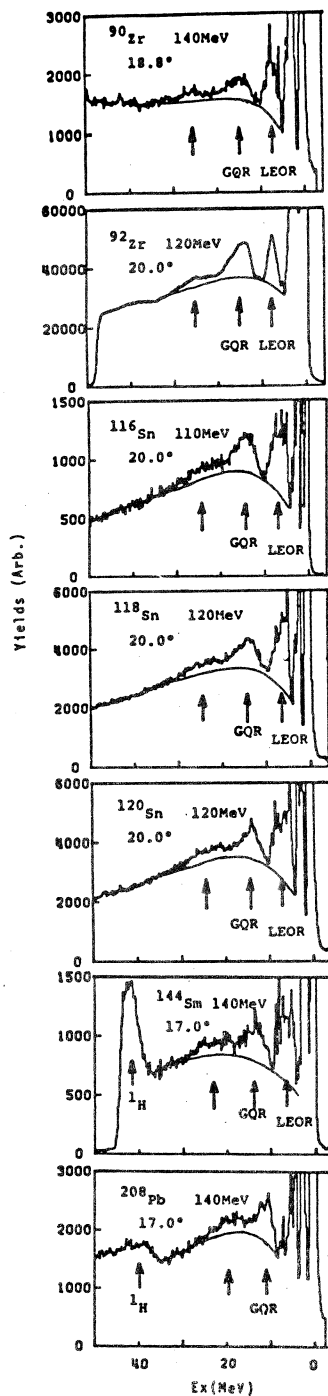
§ 4. 議 論

第3図に核理研で行なわれた⁹⁰Zr 電子散乱実験の多重極展開の結果⁵⁾を示す。励起エネルギー27MeV付近にE3のピークが見られるが、これはEWSRで54%であると報告されている⁵⁾。また、第4図にYamagata *et al.*²⁾による(³He, ³He')の実験で得られたスペクトルを示す。この実験においては、⁹⁰Zrについては $E_x = 26.5$ MeV, $\Gamma = 7.5$ MeV, EWSR 47%のE3巨大共鳴が、⁹²Zrについては $E_x = 26.0$ MeV, $\Gamma = 7.0$ MeVのE3巨大共鳴が報告されている。

今回の実験で観測された $E_x = 24.8$ MeV ($112 A^{-\frac{1}{3}}$), $\Gamma = 6.2$ MeVのE3巨大共鳴は、⁹²Zr(³He, ³He')から得られている $E_x = 26.0$ MeV, $\Gamma = 7.0$ MeVと良い一致を示しており、⁹⁰Zr(e, e')の多重極展開で得られた $E_x \sim 27$ MeVのE3ピークとも矛盾しない。また、⁹²Zr(³He, ³He')についてはEWSRが記載されてい



第3図 福田ら⁵⁾による、⁹⁰Zr(e, e')の実験で多重極展開して得られた各多重極度の成分。



第4図 Yamagata *et al.*²⁾による(³He, ³He')反応のスペクトル。矢印がGORを示している。

ないが、 $^{90}\text{Zr} (^3\text{He}, ^3\text{He}')$ についての EWSR 47% は、今回の実験で得られた値 40% と良く一致しており、 $^{90}\text{Zr} (e, e')$ の多重極展開で得られた 54% ともさほどくいちがわない。これに対して、 (p, p') 反応³⁾ においては、励起エネルギーや幅においては今回の実験とさほどかわらないものの、EWSR が約 20% とかなり小さめになっている。また、 (α, α') 反応⁴⁾ では、実験が ^{208}Pb のみで比較は難しい。今回我々が行なった実験で得られた結果は、 $(^3\text{He}, ^3\text{He}')$ ²⁾ の結果と最も良く一致するようである。

§ 5. ま と め

今回の実験の結果、励起エネルギー 24.8 MeV に E 3 巨大共鳴の存在することがわかった。従来、電子散乱で得られたスペクトルの励起エネルギー 20 MeV ~ 30 MeV に存在する共鳴はアイソベクター E 2 巨大共鳴であると考えられていたが、今回 E 3 の強調される運動量移行領域の実験を行なった結果、アイソスカラー E 3 巨大共鳴をアイソベクター E 2 巨大共鳴と分離して観測することができた。

^{90}Zr については文献 5) において詳細な研究がなされているが、 ^{92}Zr についてはこのエネルギー領域に関する研究が少ない。したがってより一層の研究が待たれるとともに、ハドロン散乱からも明らかのようにこの E 3 巨大共鳴は広い核種にわたり系統的に存在することが予想されるので、系統だった研究を進めていく必要がある。

参 考 文 献

- 1) 斎藤悌二郎・藤平力・広田淳一・斎藤健治・鳥塚賀治：核理研研究報告 **13** (1980) 213.
- 2) T. Yamagata *et al.* : *Proc. Int. Symp. Highly Excited States in Nuclear Reactions, Osaka*, 1980 (Research Center for Nuclear Physics) p. 206.
- 3) T. A. Carey *et al.* : *Phys. Rev. Lett.* **45** (1980) 239.
- 4) H. P. Morsch, M. Rogge, P. Turek and C. Mayer-Böricke : *Phys. Rev. Lett.* **45** (1980) 337.
- 5) 福田茂樹：学位論文 (1976).
- 6) B. L. Berman, J. T. Caldwell, R. R. Harvey, M. A. Kelly R. L. Bramblett and S. C. Fultz : *Phys. Rev.* **162** (1967) 1098.
- 7) L. J. Tassie : *Aust. J. Phys.* **9** (1956) 406.
- 8) L. A. Fajardo, J. R. Ficenec, W. P. Traver and I. Sick : *Phys. Lett.* **37B** (1971) 363.

$^{13}\text{C}(e, \pi^+)^{13}\text{B}^*$ に現われる強いスピントリフリップ転移(I)

核理研, 教養部*, RPI**

取越正己・佐々木 修・山崎正晴

坪田博明*・庄田勝房・K. Min**

E. J. Winhold**

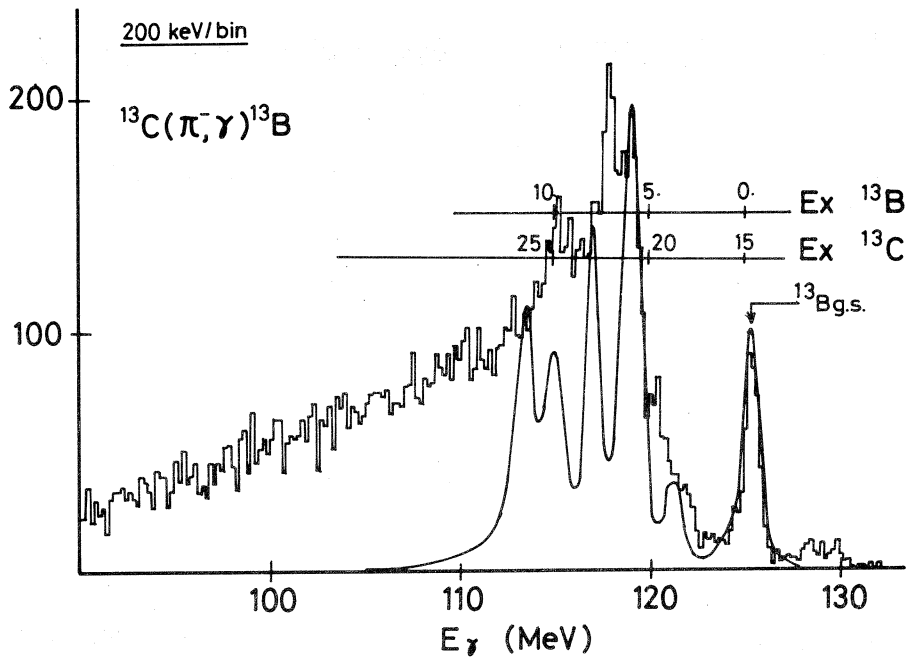
1981年1月に行なわれた予備実験 $^{13}\text{C}(e, \pi^+)^{13}\text{B}$ の実験結果を報告する。 ^{13}B の励起エネルギー6.4 MeVに強いスピントリフリップ型の転移強度が測定された。

§ 1. 序 論

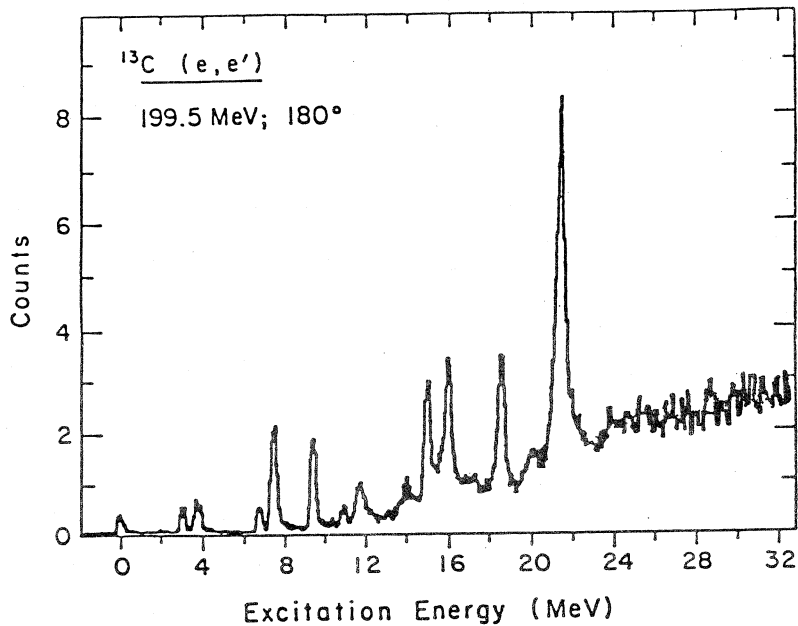
π 中間子光発生反応の特徴及びその性質については、他の文献¹⁾に詳しく説明は省略する。

$^{13}\text{C}(\pi^-, r)^{13}\text{B}$ に依れば²⁾ ^{13}B の励起エネルギー $E_x = 5 \sim 10 \text{ MeV}$ に、いくつかの強い共鳴状態が見られる(第1図参照)。これらの共鳴状態はDogotorら, H. R. Kissenerらの計算³⁾に依れば, ^{13}C のアイソベクターE1, M2転移のアナログである。 (π^-, r) 反応では核に与える運動量移行 q は約 0.7 fm^{-1} であり、より大きな q の領域ではE1, M2の様な多重極度の低い転移は見えなくなる、と考えられる。

次にMIT Batesで行なわれた ^{13}C の 180° 電子散乱の結果を引用する⁴⁾。実験では (π^-, r) で核に与えられる $q \sim 0.7 \text{ fm}^{-1}$ より大きな q の領域($1.0 \sim 2.9 \text{ fm}^{-1}$)が測定されている。その結果 ^{13}C の励起エネルギー $E_x = 7.5, 9.5, 16.1, 21.4 \text{ MeV}$ に強く励起された共鳴状態が見い出され(第2図参照), それらの形状因子を計算することにより, 上記4転移はいずれもM4的な転移であることが報告された。特に16.1 MeV, 21.4 MeVの共鳴状態は T_3 である可能性がある。 π 中間子散乱実験⁵⁾に依ると, 16.1 MeVは純粋な陽子励起と報告されている。また21.4 MeVは $T = 1/2, 3/2$ のアイソスピンミキシングと考えられている。後者の $E_x = 21.4 \text{ MeV}$ は ^{13}B の $E_x = 6.4 \text{ MeV}$ のアイソパリックアナログ状態の励起エネルギー21.5 MeVにほぼ一致している。従って $^{13}\text{C}(\pi^-, r)^{13}\text{B}^*(E_x \sim 6.4 \text{ MeV})$ で見られた共鳴状態と ^{13}C の 180° 電子散乱で見られた $^{13}\text{C}(e, e')^{13}\text{C}^*(E_x \sim 21.4 \text{ MeV})$ の共鳴状態はアイソパリックアナログな関係にあるものと思われる。以下 $^{13}\text{B}^*(E_x \sim 6.4 \text{ MeV})$ ($^{13}\text{C}^*(E_x \sim 21.4 \text{ MeV})$)の共鳴状態に就いて議論してゆく。



第1図 $^{13}\text{C}(\pi^-, \gamma)^{13}\text{B}$ のエネルギースペクトルを示す。図中の2本横線は夫々 ^{13}B の励起エネルギーと、それに対応する ^{13}C の励起エネルギーを表わす。実曲線はDogotarらの計算結果を示す。但し quasi-free process は考慮されていない。参考文献(2)から引用した。



第2図 ^{13}C の 180° 電子散乱のエネルギースペクトルを示す。参考文献(4)から引用した。

第1表 ^{13}B ($E_x = 6.4 \text{ MeV}$), ^{13}C ($E_x = 21.4 \text{ MeV}$)への転移強度の q 依存性。

	Low q	High q	Result
$^{13}\text{B}^*$ ($E_x = 6.4 \text{ MeV}$)	enhancement	—	M2 transition
$^{13}\text{C}^*$ ($E_x = 21.4 \text{ MeV}$)	—	enhancement	M4 transition

$^{13}\text{C}(\pi^-, r)^{13}\text{B}^*$ 及び ^{13}C の 180° 電子散乱の実験結果を夫々見較らべると、第1表に示す様に互いに矛盾した結論を得ている。

これら2つの実験は夫々結論した多重極に都合の良い q の領域しか見ていないと言える。従って上記2つの結論を繋ぐためには $q \sim 0.7 \sim 1 \text{ fm}^{-1}$ の領域を測定する必要がある。

又、転移は (π^-, r) , 180° 電子散乱で強く励起される事からスピNFLリップに依ると考えられ、 (r, π^+) 反応でも強く励起出来ると期待される。

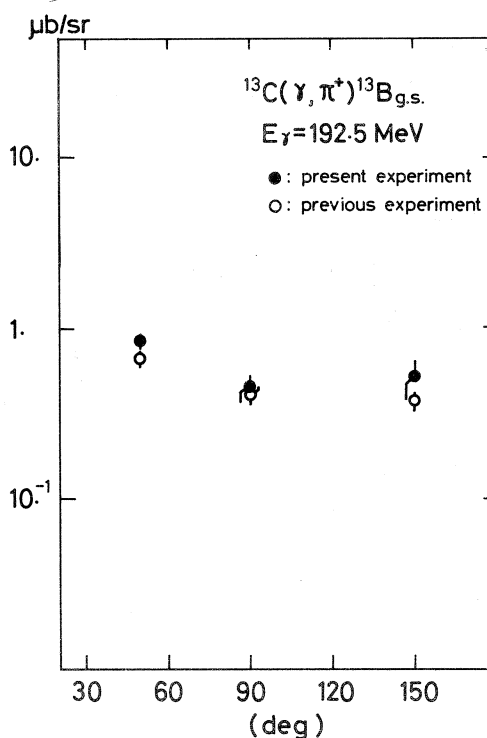
§ 2. 実験及び結果

実験は入射電子エネルギー $E_e = 195 \text{ MeV}$, 測定角度 $50^\circ, 90^\circ, 150^\circ$ の3点で行なわれた。実験方法, データ解析に就いては参考文献(6)に詳しい。データ解析に際し以下の近似がなされている。

○ 準位は ^{13}B の基底状態と、第一励起状態に対応する $E_x = 3.48 \text{ MeV}$ に1つ, 及び今問題にしている $E_x \sim 6.4 \text{ MeV}$ の1つが存在するとした。それ以外の準位からの寄与は無視し得る, としたがこの近似は (π^-, r) や, 180° 電子散乱の結果から見て適当であると考えられる。

○ $E_x \sim 6.4 \text{ MeV}$ の状態に対する反応微分断面積を求めるに際し, その面積は $E_x = 6.4 \sim 9.0 \text{ MeV}$ の範囲で計算した。

反応微分断面積を第3, 4図に示す。第3図は ^{13}B の基底状態に対する結果で, 以

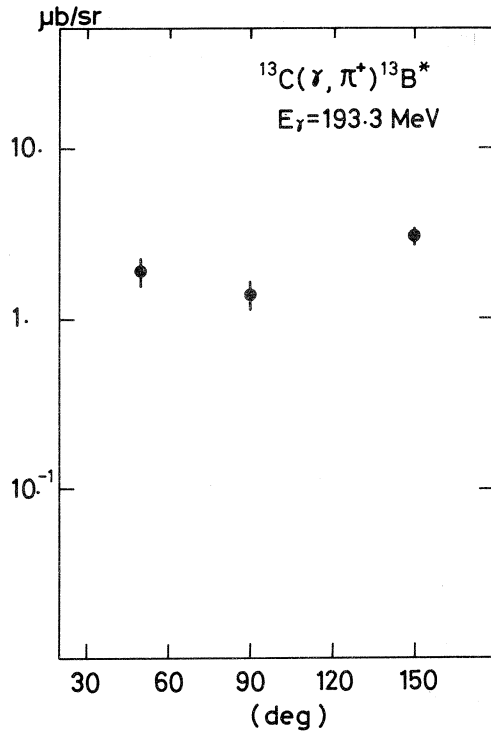


第3図 ^{13}B の基底状態に対する反応微分断面積を示す。黒丸は今回の実験結果を示し, 白丸は1980年に行なわれた実験の結果を示す。両結果は良く一致しており, 互いに実験に矛盾はない。

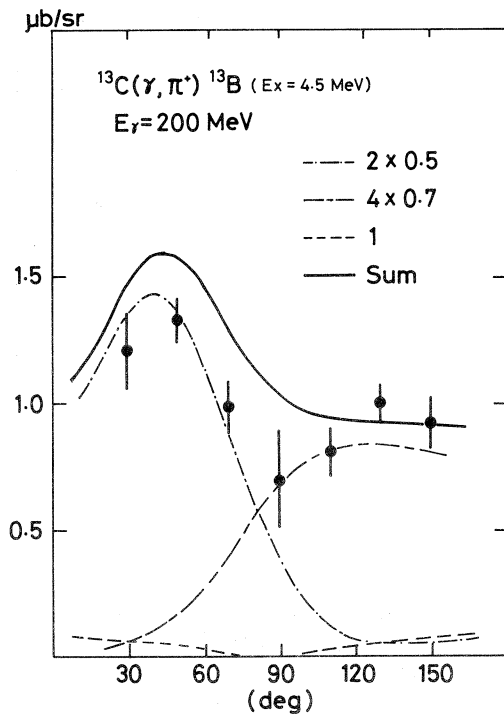
前行なわれた実験結果⁷⁾と比較し、互いに矛盾のないことを示している。第4図に問題にしている $E_x \sim 6.4$ MeV の状態に対する結果を示す。結果の角分布は全体として平坦な分布をしているが、前方、後方の断面積が 90° の値に比較して幾分大きな値を持っている。

§ 3. 議 論

実験結果の示す角分布は少なくとも単一の多重極の転移からだけでは説明出来ない。角分布の前方の形の説明には低い多重極、後方の形の説明には高い多重極が必要となる。これは序論で述べた様に低い q 側で



第4図 ^{13}B の励起エネルギー 6.4 MeV の共鳴状態に対する反応微分断面積を示す。

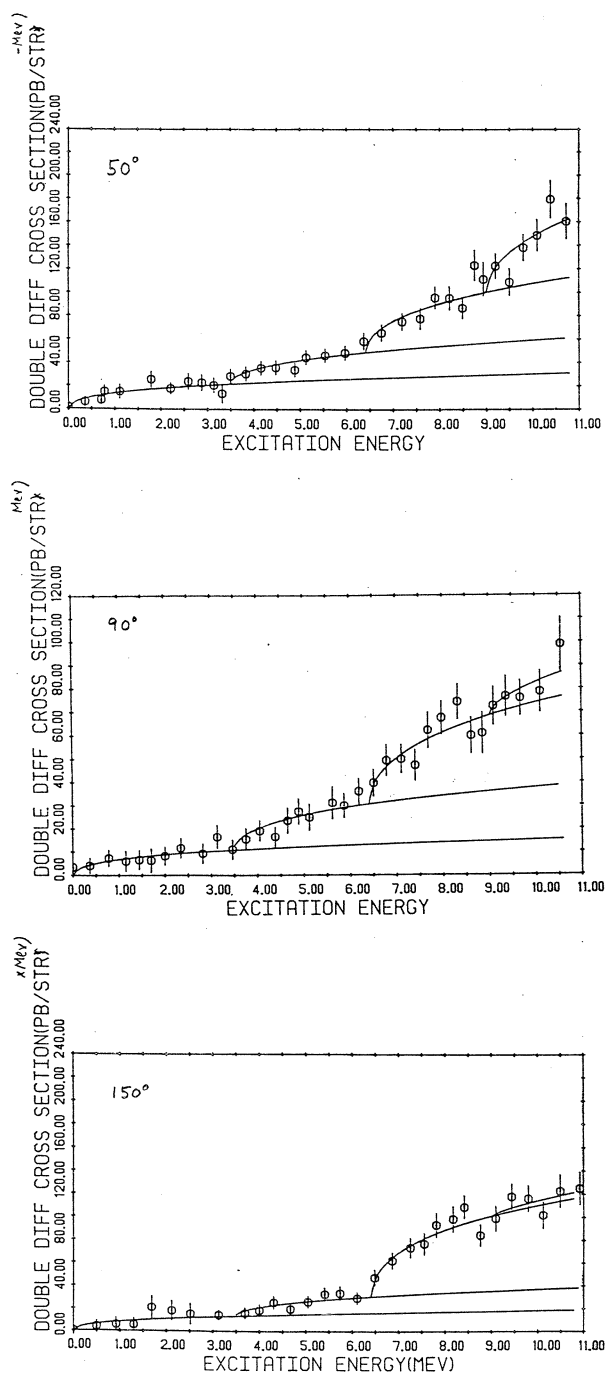


第5図 $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{12}\text{B}^*(E_x = 4.5\text{ MeV})$ 反応微分断面積を示す。図中の各曲線は Haxton による殻模型計算結果で、 2^- , 4^- の値には、電子散乱を説明するために必要であった因子がかけられている⁸⁾。

$M2$, 高い q 側で $M4$ という主張のいずれ共両立するものである。現在まだ理論解析がなく、定量的議論は出来ないが、 $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{12}\text{B}^*(E_x = 4.5\text{ MeV})$ の実験結果⁸⁾を参考にすると、角分布の定性的な議論は出来る。 $^{12}\text{B}^*(E_x = 4.5\text{ MeV})$ の状態も $^{13}\text{B}^*(E_x = 6.4\text{ MeV})$ の場合と同じ事情で、 $M2$, $M4$ の両転移が混在し、その角分布は前・後方ピークを示している。第5図にその角分布の実験値及び理論値を示す。

理論値は、電子散乱の結果を再現するために必要な因子、 2^- に対し 0.5, 4^- に対し 0.7 がかけられている。理論値は実験値をよく説明している。

第6図は、 $^{13}\text{C}(e, \pi^+)^{13}\text{B}$ のエネルギースペクトルを示すが、図中の実線は実験値に χ^2 -フィットされた仮想光子数スペクトルの形である⁹⁾。この図から明らかな様に、測定角度 50° のスペクトルには ^{13}B の励起エネルギー $E_x \sim 9$ MeV 付近から大きな立ち上がりが見られる。しかし 90° , 150° のスペクトルには顕著な立ち上がりは見られない。即ち $E_x \sim 9$ MeV 付近に共鳴状態が存在する可能性があり、それは低い q に対応する前方で強く励起され、高い q に対応する後方では弱くしか励起されない。この実験結果は、低い q の領域を見ることに相当する $^{13}\text{C}(\pi^-, \gamma)^{13}\text{B}$ では ^{13}B の励起エネルギー $E_x \sim 10$ MeV 付近に共鳴状態が見られるが、高い q の領域を見ている ^{13}C の 180° 電子散乱では、 ^{13}B の $E_x \sim 9$ MeV に対応



第6図 $^{13}\text{C}(r, \pi^+)^{13}\text{B}$ のエネルギースペクトルを示す⁹⁾。図中の曲線はスペクトルの各励起エネルギーでの立ち上がりを明確に示すためにフィットされた仮想光子数スペクトルの形である。4番目の立ち上がりの励起エネルギーは9 MeVである。

する ^{13}C の励起エネルギー $E_x \sim 24\text{MeV}$ 付近には共鳴状態は見られない、という実験結果と矛盾しない。従って ^{13}B の $E_x \sim 9\text{MeV}$ 付近に低い q の領域で強く励起され、高い q の領域で弱くしか励起されない、低い多重極の転移による共鳴状態が存在する可能性がある。

§ 4. まとめ

今回の $^{13}\text{C}(\pi^+, \pi^-)^{13}\text{B}^*(E_x \sim 6.4\text{MeV})$ 実験結果は、 $^{13}\text{C}(\pi^-, r)^{13}\text{B}^*(E_x \sim 6.4\text{MeV})$ 、 $^{13}\text{C}(e, e')^{13}\text{C}^*(E_x \sim 21.4\text{MeV})$ $\theta = 180^\circ$ の結果と矛盾せず、 $^{13}\text{B}^*$ 、 $E_x \sim 6.4\text{MeV}$ 共鳴状態はスピンフリップ型のM2、M4転移によると考えられる。

$^{13}\text{B}^*$ 、 $E_x \sim 9 \sim 10\text{MeV}$ 付近にスピンフリップ型の小さい多重極度の転移による共鳴状態が存在する可能性がある。しかしはっきりした事は今後の実験を待たなければならない。

参 考 文 献

- 1) 取越正己他：核理研研究報告 **12** (1979) 165 ;
山崎正晴他：核理研研究報告 **14** (1980) 15.
- 2) C. J. Martoff : preprint.
- 3) Dogotar *et al.* : preprint.
H. R. Kissener *et al.* : Nucl. Phys. **A 302** (1978) 523.
- 4) R. S. Hicks *et al.* : Contributed paper of Los Alamos meeting.
- 5) D. Dehnhard *et al.* : Phys. Rev. Lett. **43** (1979) 1091 ;
S. J. Seestrom - Morris *et al.* : Phys. Rev. Lett. **46** (1981) 1447.
- 6) 大橋英雄：博士論文 東北大学(1978) ;
佐々木 修他：核理研研究報告 **13** (1980) 233.
- 7) 山崎正晴他：核理研研究報告 **14** (1981) 21.
- 8) K. Min *et al.* : Phys. Rev. Lett. **44** (1980) 1384.
- 9) K. Min : private communication (1981).

^{63}Cu , ^{65}Cu の (e, p) 及び (e, α) 反応機構の研究

核理研, 教養部*

田中俊成・広岡 恵

坪田博明*・菅原真澄

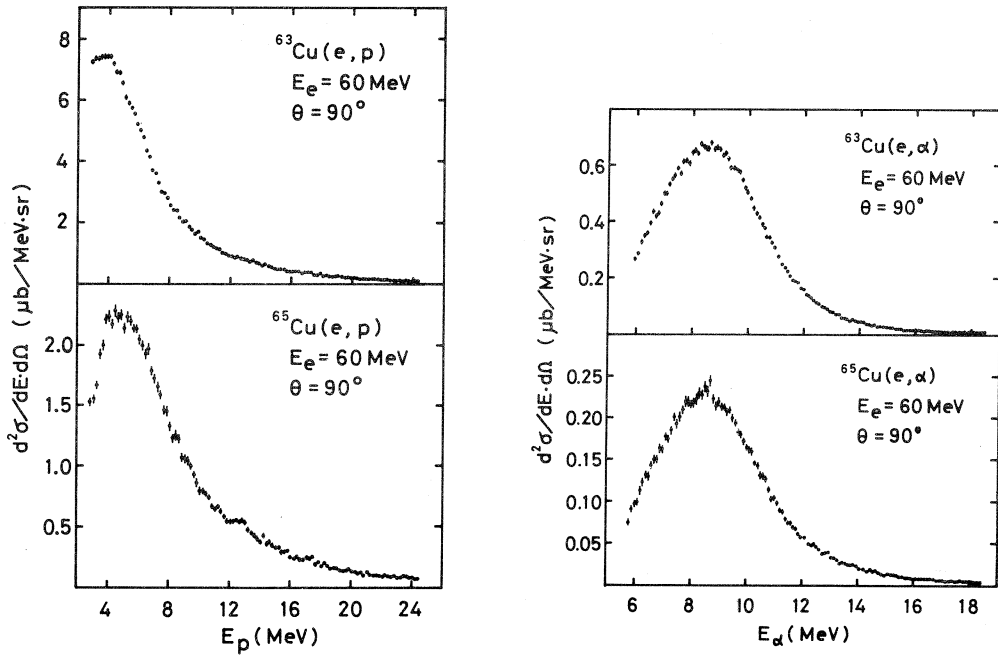
§ 1. 序

前回¹⁾, ^{63}Cu と ^{65}Cu の (e, p) 反応生成曲線から得た (r, p) 反応断面積について報告を行ない, 巨大共鳴を越えた励起エネルギー (E_r) 30 MeV 以上の領域において大きな断面積が存在することを示した。その後, 新たに製作した表面障壁型 SSD 検出器系を用いて (e, α) 反応生成曲線を求め, また (e, p) 反応生成曲線の統計精度を改善するため再度実験を行なった。これらの実験結果を統計理論, 準重陽子光吸収模型及び前平衡励起子模型と比較し, 反応断面積と反応機構について調べたので今回その結果を報告する。

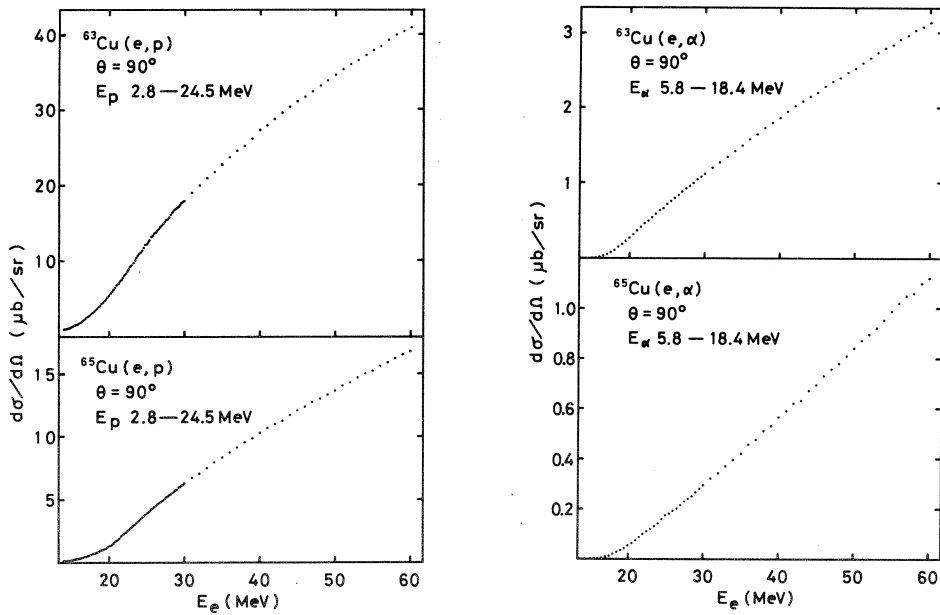
§ 2. 実験及び結果

実験では東北大核理研の電子ライナックから得られた 14 MeV から 60 MeV までの電子ビームを直接標的に照射した。前回報告した実験では放出された陽子のエネルギースペクトルを, 広帯域磁気スペクトロメータの焦点面上に並べた 100 個のリシウムドリフト型 SSD を用いて測定したが, その後の (e, p), (e, α) 反応エネルギースペクトルの測定は全て新たに製作した表面障壁型 SSD 100 個から成る検出器系をスペクトロメータに取り付けて行なった。この新しい検出器系は検出立体角の拡大によって従来の 3 倍以上の計数効率をもつ²⁾。

用いた標的は厚さ 10.1 mg/cm², 純度 98% 以上の ^{63}Cu 標的と, 厚さ 9.6 mg/cm², 純度 98% 以上の ^{65}Cu 標的で, 放出粒子は全て散乱角 90° で測定した。第 1 図に電子エネルギー (E_e) 60 MeV において得られた陽子と α 粒子のエネルギースペクトルを示す。ここで, 標的中の粒子のエネルギー損失の影響は, 全ての粒子が標的の半分の厚さを通過してスペクトロメータに入射すると近似して補正してある。エネルギー損失は, 標的の半分の厚さを通過したとき, 3 MeV の陽子で 0.4 MeV, 6 MeV の α 粒子で 2.5 MeV である。 α 粒子の場合, エネルギー損失が非常に大きいエネルギースペクトルに構造があっても見ることはできず, 大まかな形状が得られるだけであるが, 生成曲線を求めるには問題ない。得られたエネルギースペクトル



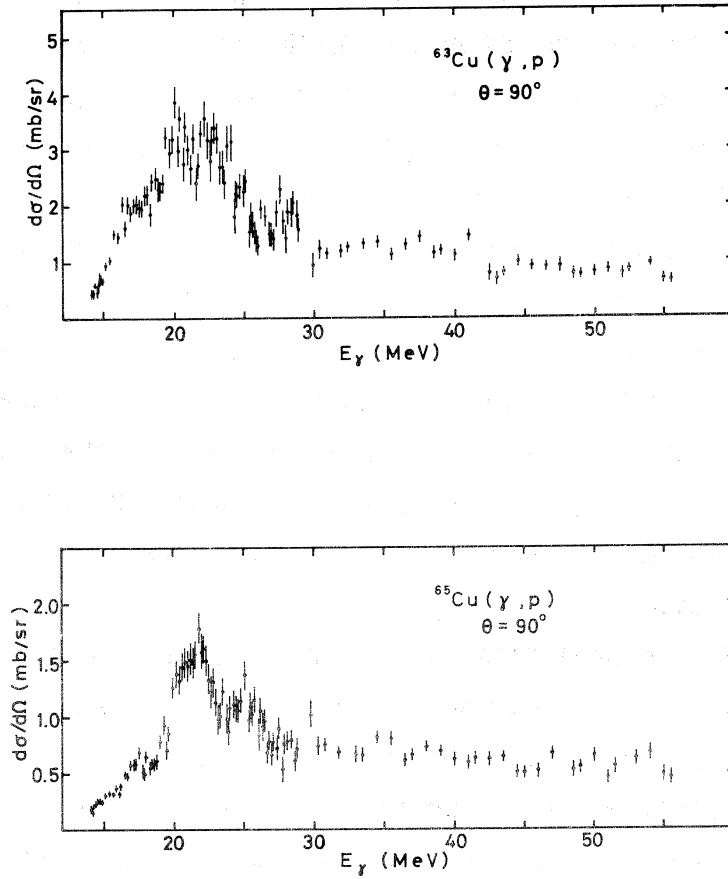
第1図 $E_e = 60\text{ MeV}$ で得られた ^{63}Cu , ^{65}Cu の (e, p) 及び (e, α) 反応エネルギースペクトル。縦棒は統計誤差である。



第2図 入射電子エネルギーを変えて得たエネルギースペクトルの積分で求めた (e, p) 及び (e, α) 反応生成曲線。統計誤差は実験点の大きさに含まれる。

のエネルギー範囲は陽子で2.8~24.5 MeV, α 粒子で5.8~18.4 MeV である。エネルギースペクトルを積分して得た生成曲線を第2図に示す。電子線照射によって得られる生成曲線は、主要な寄与であるE1 励起以外にE2 励起等による粒子放出の寄与を含み、仮想光子数がE1 仮想光子数よりも多くスペクトルの形状も異なるため、一般にはE1 仮想光子スペクトルを用いて光核反応断面積を算出すると実際の反応断面積より大きな値が得られる。このことを利用して、制動放射光を同時に照射した時の生成曲線との違いからE2 励起の寄与を算出する試みがWolyneć ら³⁾によって行なわれているが、Ni 同位核における結果を見るとE2 励起の寄与によって断面積がE1 励起を仮定した時より大きくなる割合は20%以下であることがわかる。我がCu で行なった実験ではE2 励起の寄与を知ることはできないが、Ni 同位核と同程度の寄与であれば算出される断面積の不確かさは統計誤差程度となることが期待されることから、断面積はE1 励起の寄与のみを含むと仮定しても大きな誤差はない。従って我々はE1 仮想光子スペクトルのみを用いてVBPL 法によって断面積を算出し、今後の議論もE1 励起のみを考慮することにした。

第3図に算出した散乱角 90° での微分断面積を示す。 $^{63}\text{Cu}(r, p)$, $^{63}\text{Cu}(r, \alpha)$ 及び $^{65}\text{Cu}(r, p)$ ではそれぞれ $E_T = 22 \text{ MeV}$, 20 MeV , 21.5 MeV 付近に断面積のピークが見られるが $^{65}\text{Cu}(r, \alpha)$ では明確なピークは見られない。また、ピーク付近での断面積が $^{63}\text{Cu}(r, p)$ と $^{65}\text{Cu}(r, p)$ との間で約2倍, $^{63}\text{Cu}(r, \alpha)$ と $^{65}\text{Cu}(r, \alpha)$ との間で約4倍異なる。それに対して、 $E_T > 30 \text{ MeV}$ の領域ではその違いが小さくなる傾向にあり、 $E_T = 50 \text{ MeV}$ 付近では (r, p) , (r, α) とともに ^{63}Cu と ^{65}Cu の間で約1.5倍程度の違いになっている。また、この領域で得られた断面積は $^{90}\text{Zr}(r, p)$ ⁴⁾ 及び (r, α) ^{4), 5)} の場合と非常に類似した傾向を示している。そこで我々は、巨大共鳴領域と $E_T > 30 \text{ MeV}$ の領域を別々に議論することにし、次節以降では巨大共鳴領域においては Fallieros らのアイソスピン選択則^{6), 7)} を取り入れた統計理論との比較を行ない、 $E_T > 30 \text{ MeV}$ の領域においては、準重陽子光吸収模型と前平衡励起子模型を組み合わせて行なった計算結果との比較を行なう。

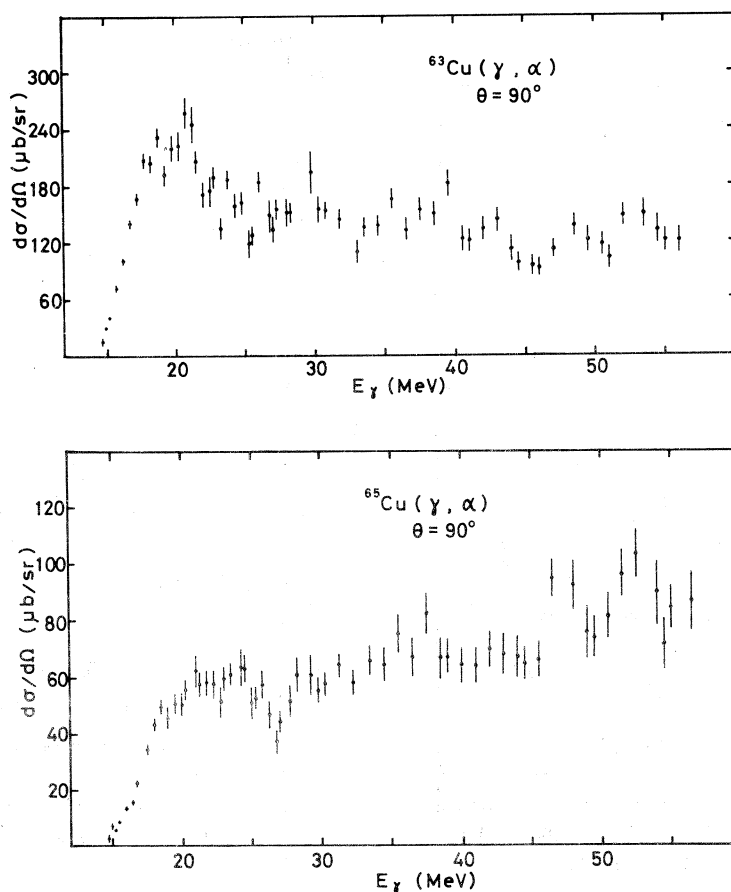


第3図 VBPL法によってE1仮想光子スペクトルを用いて (e, p) , (e, α) 反応生成曲線から求めた (r, p) 及び (r, α) 反応微分断面積。縦棒は統計誤差である。 $E_\gamma > 30$ MeVの領域でも断面積が大きく、 (r, α) 反応で特にそれが顕著に見られる。

§ 3. 議 論

3.1 巨大共鳴領域

巨大共鳴領域における (r, n) , (r, p) 及び (r, α) 反応断面積を第4図及び第5図に示す。 (r, n) 反応断面積は ^{63}Cu , ^{65}Cu ともFultzら⁸⁾が陽電子消滅光子を用いて得た結果である。ここで $^{65}\text{Cu}(r, p)$ エネルギースペクトルの角分布が巨大共鳴領域で測定されており⁹⁾, また $^{nat}\text{Cu}(e, \alpha)$ エネルギースペクトルの角分布が $E_e = 100$ MeVで測定されている¹⁰⁾ことから, これらの角分布を参考に, 我々が散乱角 90° で得た (r, p) 反応微分断面積を



第3図(続き)

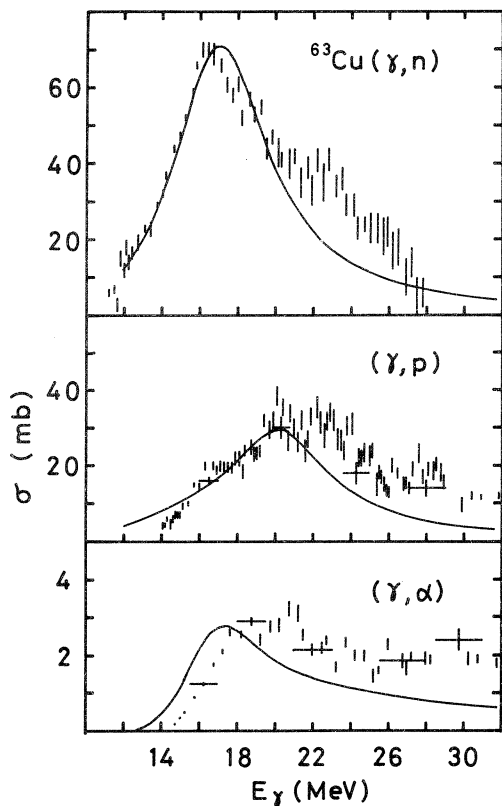
10倍, (r, α) については 4π 倍にしてある。

E1 巨大共鳴においてはアイソスピン選択則から $T_<$ と $T_>$ の巨大共鳴の強さの比, 及び共鳴エネルギーの差が Fallieros ら^{6,7)} によって次式で表わされている。

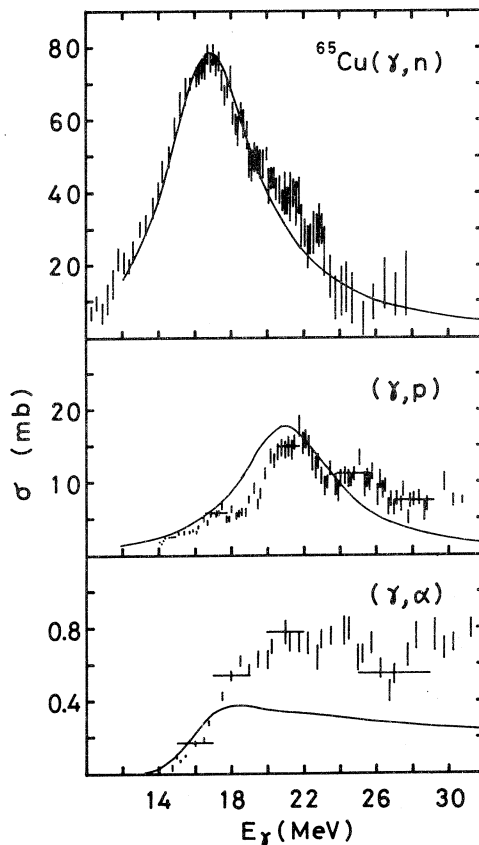
$$\frac{\int \sigma_>(E_\gamma)/E_\gamma dE_\gamma}{\int \sigma_<(E_\gamma)/E_\gamma dE_\gamma} = \frac{1}{T_0} \cdot \frac{1 - 1.5 T_0 A^{-2/3}}{1 + 1.5 A^{-2/3}} \quad (1)$$

$$E_{0>} - E_{0<} = 60 (T_0 + 1) / A \quad (2)$$

^{63}Cu と ^{65}Cu の場合, これらの値は第1表のようになる。E1 巨大共鳴が励起された後に複合核が形成され, 陽子, 中性子及び α 粒子が全て複合核状態から統計的に放出されると仮定すると, これらの放出断面積は $T_<$ 及び $T_>$ 光吸収断面積 $\sigma_<$ 及び $\sigma_>$ から以下のように表わす



第4図 ^{63}Cu の巨大共鳴領域での (γ, n) , (γ, p) 及び (γ, α) 反応断面積。 (γ, n) はFultzら⁸⁾が得た結果で, (γ, p) は10倍, (γ, α) は 4π 倍して全断面積とした。実線はアイソスピン選択則を取り入れた統計理論による計算結果である。



第5図 ^{65}Cu の巨大共鳴領域における (γ, n) , (γ, p) 及び (γ, α) 反応断面積。 (γ, n) はFultzらの結果で (γ, p) , (γ, α) はそれぞれ10倍, 4π 倍してある。実線は統計理論による計算結果。

第1表 ^{63}Cu と ^{65}Cu における $T_<$, $T_>$ 巨大共鳴断面積の比及び共鳴エネルギーの差。

	$\int \sigma_>(E_\gamma)/E_\gamma dE_\gamma / \int \sigma_<(E_\gamma)/E_\gamma dE_\gamma$	$E_{0>} - E_{0<} \text{ (MeV)}$
^{63}Cu	0.279	3.33
^{65}Cu	0.177	4.15

ことができる。

$$\sigma_{rn}(E_r) = \sigma_{<}(E_r) \cdot \frac{G_{<n}}{G_{<t}} + \sigma_{>}(E_r) \cdot \frac{G_{>n}}{G_{>t}} \quad (3)$$

$$\sigma_{rp}(E_r) = \sigma_{<}(E_r) \cdot \frac{G_{<p}}{G_{<t}} + \sigma_{>}(E_r) \cdot \frac{G_{>p}}{G_{>t}} \quad (4)$$

$$\sigma_{ra}(E_r) = \sigma_{<}(E_r) \cdot \frac{G_{<\alpha}}{G_{<t}} + \sigma_{>}(E_r) \cdot \frac{G_{>\alpha}}{G_{>t}} \quad (5)$$

ここで、 G は添字で示したように $T_{<}$ あるいは $T_{>}$ 状態からの中性子、陽子、 α 粒子あるいは全ての放出粒子(t)に対する放出幅で、これらは各粒子の透過係数と残留核の準位密度との積を残留核の励起エネルギーについて積分して得られる。ただし、放出粒子は中性子、陽子及び α 粒子だけを考えているので、

$$\begin{cases} G_{<t} = G_{<n} + G_{<p} + G_{<\alpha} \\ G_{>t} = G_{>n} + G_{>p} + G_{>\alpha} \end{cases} \quad (6)$$

である。透過係数を計算し、フェルミ気体模型による準位密度の式¹¹⁾を用い、さらにアイソスピン因子を求めると G が計算でき、 $T_{<}$ と $T_{>}$ の光吸収断面積が既知であれば (r, n) 、 (r, p) 及び (r, α) 反応断面積が求まる。我々は簡単のために光吸収断面積の形状をローレンツ曲線

$$\sigma(E_r) = \sigma_0 \frac{E^2 \Gamma^2}{(E_r^2 - E_0^2)^2 + E_r^2 \Gamma^2} \quad (7)$$

で近似し、(3)式で得られる (r, n) 反応断面積がピーク付近で実験値に一致するようにローレンツ曲線のパラメータを決定した。この際、 $T_{<}$ と $T_{>}$ の光吸収断面積の半値幅 Γ が等しいと仮定して(1)、(2)式を用いた。従って(1)式で左辺の積分の比は単に $\sigma_{0>}/\sigma_{0<}$ と書ける。このようにして、 (r, n) 反応断面積に相対的な (r, p) 及び (r, α) 反応断面積が得られた。第2表に用いたローレンツ曲線のパラメータを示す。第4図と第5図に求めた断面積を実線で示してある。⁶³Cuと⁶⁵Cuの (r, p) 、 (r, α) 反応断面積が良く再現されており、また⁶³Cuと

第2表 $T_{<}$ 、 $T_{>}$ 光吸収断面積を近似したローレンツ曲線
に対するパラメータ。

	$\sigma_{0<}(\text{mb})$	$E_{0<}(\text{MeV})$	$\Gamma_{<}(\text{MeV})$	$\sigma_{0>}(\text{mb})$	$E_{0>}(\text{MeV})$	$\Gamma_{>}(\text{MeV})$
⁶³ Cu	80	17.0	6.0	26.7	20.3	6.0
⁶⁵ Cu	80	16.8	6.0	18.0	21.0	6.0

^{65}Cu との違いも再現されている。励起エネルギーの高い領域は (γ, np) 反応等のような多重粒子放出が起こるため¹²⁾, (3)~(5)式から求めた断面積では再現できないが、アイソスピン選択則を取り入れた統計理論で (γ, p) と (γ, α) 反応が良く説明できると言える。

3.2 $E_\gamma > 30 \text{ MeV}$ の領域

巨大共鳴を越えた高励起状態からの粒子放出機構については Wu と Chang によって前平衡励起子模型に基づく議論がなされており¹³⁾, 統計理論によっては説明できない放出粒子のエネルギースペクトルにおける高エネルギー成分の存在を定性的に説明できることがいくつかの実験で確かめられている^{13, 14)}。また、この領域では準重陽子光吸収模型¹⁵⁾が光吸収断面積を良く説明することが重核で確かめられている¹⁶⁾ことから、 ^{63}Cu と ^{65}Cu においても反応断面積及びエネルギースペクトルを準重陽子光吸収模型と前平衡励起子模型との組み合わせによる計算結果と比較することが重要である。

準重陽子光吸収断面積は次式のように表わされる¹⁷⁾。

$$\sigma_{\text{qd}}(E_\gamma) = L \cdot \frac{NZ}{A} \cdot \sigma_{\text{d}}(E_\gamma) \exp\left(-\frac{D}{E_\gamma}\right) \quad (8)$$

ここで、 σ_{d} は重陽子の光崩壊断面積、 L は準重陽子定数 (Levinger パラメータ)、指数関数は D をパラメータとして現象論的に取り入れた Pauli の排他原理による σ_{d} の抑制因子である。

Wu と Chang による前平衡励起子模型では、光吸収断面積を σ_{a} とすると粒子 β に対する放出断面積 σ_{β} は次式で与えられる¹³⁾。

$$\sigma_{\beta}(E_\gamma) = \sigma_{\text{a}}(E_\gamma) \int I_{\beta}(E_\gamma, \varepsilon) d\varepsilon \quad (9)$$

I_{β} は励起エネルギー E_γ の状態から運動エネルギー ε の粒子 β が放出される確率で、その詳しい表現はここでは省略するが、 I_{β} は励起された原子核中で粒子 β が形成される確率 r_{β} に比例する。陽子や中性子では $r_{\text{p}} = r_{\text{n}} = 1$ であるが、 α 粒子の場合には原子核の質量数に依存して大きく変化し、Wu らの (p, α) 反応の系統的な研究によると Cu においては $r_{\alpha} \approx 2 \times 10^{-3}$ である¹⁸⁾。

前平衡状態では励起されている核子の数が少ないため、そこから放出される粒子は複合核状態から放出される粒子に比べて高い運動エネルギーをもつ。従って前平衡状態から放出される粒子のエネルギースペクトルは高エネルギー成分を多く含む。ところで、前平衡状態から粒子を放出した後の残留核は、 E_γ が大きい場合、さらに粒子を放出することができる

が、残留核の励起エネルギーが低くなるため、より複合核状態に近づいてから放出される確率が高くなる。そこで、標的核から1個の粒子が放出されると、2番目以降の粒子は複合核状態から放出されると近似することで反応断面積やエネルギースペクトルに対する多重粒子放出の寄与を考慮することができる。そうすると、放出粒子のエネルギースペクトルの高エネルギー成分は前平衡状態からの放出の寄与、低エネルギー成分は多重粒子放出による複合核状態からの放出の寄与と見ることができる。

上の議論から、 $E_T > 30$ MeV の領域では (e, p) あるいは (e, α) 反応エネルギースペクトルについて準重陽子光吸収模型及び前平衡励起子模型との比較を行なうことが重要であると考える。粒子 β のエネルギースペクトル $dN(e, \beta)/d\varepsilon$ は次式で表わすことができる。

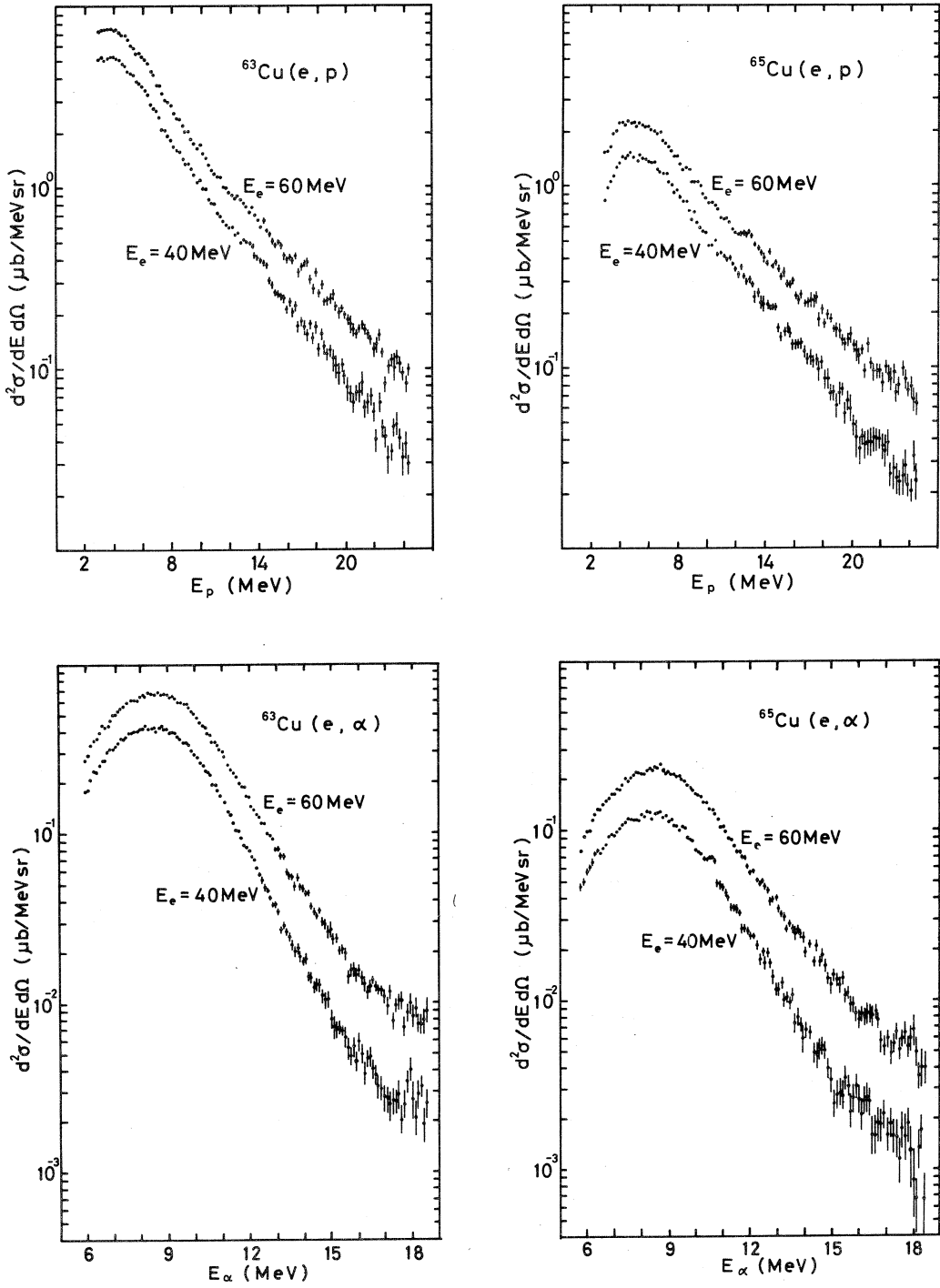
$$\frac{dN(e, \beta)}{d\varepsilon} = \int \sigma_{\text{qd}}(E_T) \cdot I_\beta(E_T, \varepsilon) \Phi(E_e, E_T) dE_T \quad (10)$$

ここで $\Phi(E_e, E_T)$ は電子エネルギー E_e の電子による仮想光子スペクトルである。実際に測定されたエネルギースペクトルは主に巨大共鳴領域から放出された粒子を含むため $E_T > 30$ MeV の領域からの寄与は明らかでない。そこで、我々は $E_T \approx 20$ MeV の領域からの寄与を除いて高励起エネルギーでの反応によるエネルギースペクトルを得るために、 $E_e = 60$ MeV でのエネルギースペクトルから $E_e = 40$ MeV でのエネルギースペクトルを差し引いた。 $E_e = 60$ MeV 及び $E_e = 40$ MeV で得られた (e, p) 及び (e, α) エネルギースペクトルを第6図に、またそれらの中で差し引いた結果を第7図に示す。ただし、単に差し引いただけでは $E_e = 60$ MeV と $E_e = 40$ MeV での仮想光子数が異なるために $E_T \approx 20$ MeV からの寄与が完全には除かれないので、 $E_T = 20$ MeV で仮想光子数が一致するよう $E_e = 40$ MeV のエネルギースペクトルに係数を乗じた。その結果得られたエネルギースペクトルは次式及び第8図で示されるような仮想光子スペクトル $\Phi'(60, 40, E_T)$ によるエネルギースペクトルと同等である。

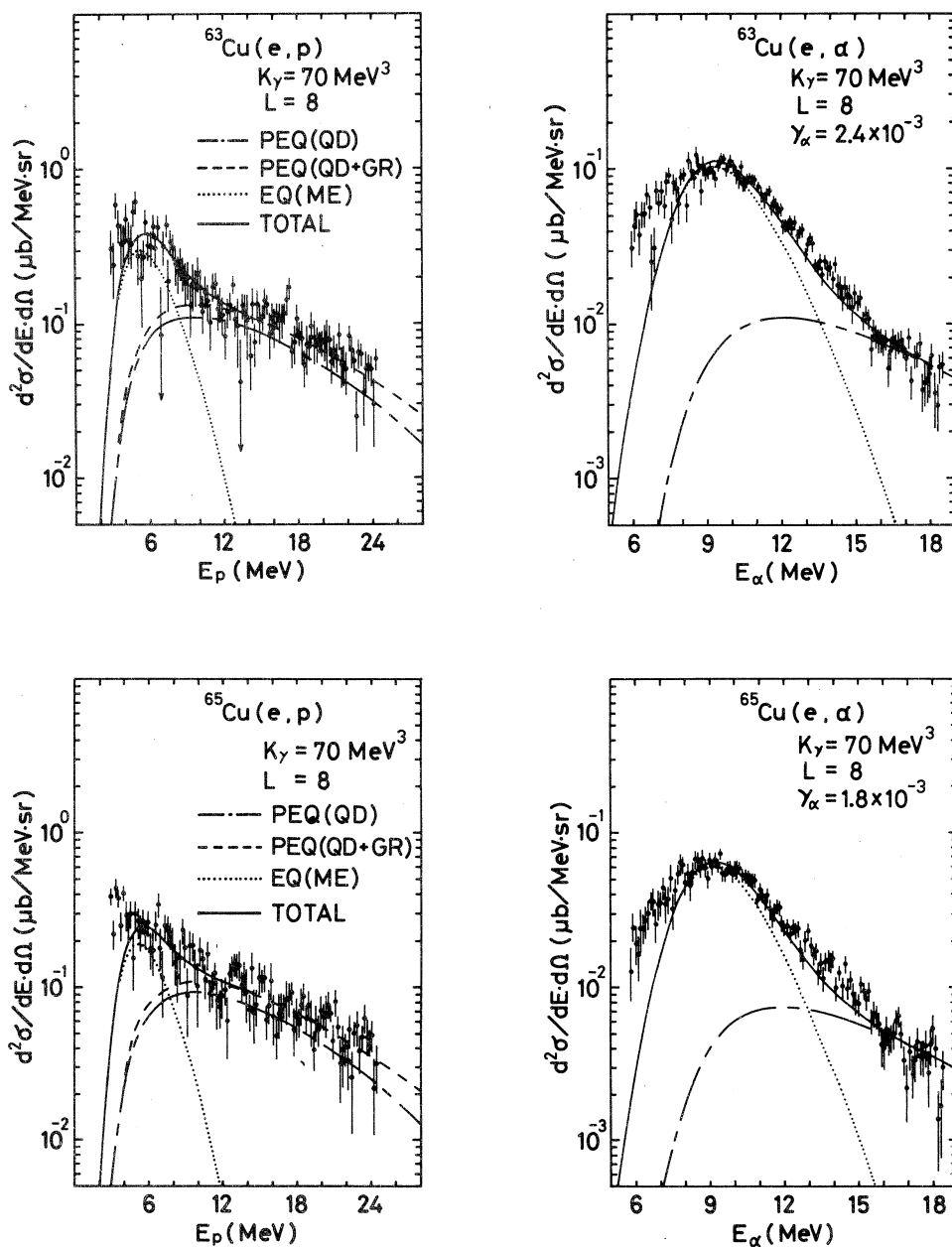
$$\Phi'(60, 40, E_T) = \Phi(60, E_T) - \frac{\Phi(60, 20)}{\Phi(40, 20)} \cdot \Phi(40, E_T) \quad (11)$$

第8図から、第7図におけるエネルギースペクトルは主に $40 \text{ MeV} \leq E_T < 60 \text{ MeV}$ の領域での反応による寄与を含むことが理解できる。第6図と第7図を比較すると、特に (e, p) 反応において高エネルギー成分が顕著に見られる。

準重陽子光吸収模型と前平衡励起子模型から、角分布が等方的であると仮定して計算したエネルギースペクトルを第7図に一点鎖線で示す。(e, p) 反応では $E_p > 12$ MeV の領域でスペクトルの形状が実験結果と良く一致するのに対し、(e, α) 反応スペクトルでは形状の一致



第6図 $E_e = 60\text{ MeV}$ 及び 40 MeV で得られた (e, p) , (e, α) 反応エネルギースペクトルの片対数プロット。



第7図 $E_e = 60 \text{ MeV}$ と 40 MeV でのエネルギースペクトルの間で差し引きを行なった結果。(e, p) 反応で特に高エネルギー成分が顕著に見られる。前平衡励起子模型で計算したエネルギースペクトルのうち準重陽子光吸収からの寄与を一点鎖線、巨大共鳴からの寄与を加えたものを破線で表わしてある。多重粒子放出の寄与を、励起エネルギー $20 \sim 30 \text{ MeV}$ からの統計的な粒子放出と近似して計算したエネルギースペクトルを点線で示し、全ての寄与を加えた結果を実線で示してある。絶対値はパラメータの操作で一致させてあるが、エネルギースペクトル全体の形状が、標的核の前平衡状態、さらに残留核の複合核状態からの粒子放出を考えることで良く再現されている。(e, α) 反応では多重粒子放出の寄与が非常に大きい。

する部分が存在しない。これは(e, α) 反応スペクトルの測定エネルギー範囲が狭かったことと多重粒子放出の寄与が大きいことによると思われる。そこで、(e, p) 反応に対しては巨大共鳴断面積の高励起エネルギー部分への寄与を第2表のローレンツ曲線を用いて取り入れ、前平衡状態から粒子を放出するとしてエネルギースペクトルを計算し準重陽子光吸収によるエネルギースペクトルとの和が $E_p > 12$ MeV の領域で実験値を再現するように(第7図の破線)、また、(e, α) 反応に対しては $E_\alpha > 16$ MeV の領域で準重陽子光吸収によるエネルギースペクトルが実験値を再現するように L , D , r_α 及び前平衡励起子モデルにおける二体残留相互作用行列要素のスケーリング因子 K_γ の値を決定した。それらの値を以下に示す。

$$L = 8$$

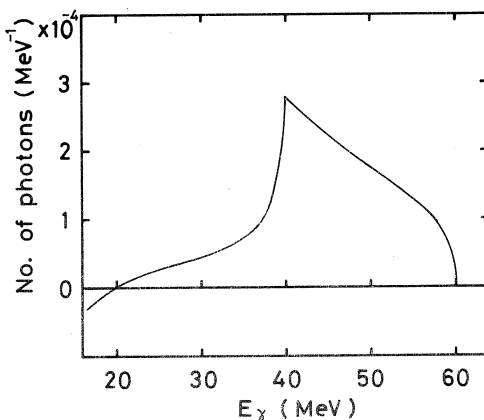
$$D = 40 \text{ MeV}$$

$$r_\alpha = 2.4 \times 10^{-3} ({}^{63}\text{Cu}); 1.8 \times 10^{-3} ({}^{65}\text{Cu})$$

$$K_\gamma = 70 \text{ MeV}^3$$

前平衡状態からの粒子放出のみを考えると(e, α) 反応スペクトルの大部分と(e, p) 反応スペクトルの $E_p < 12$ MeV の領域は説明できない。これは多重粒子放出の寄与が現われているためと考えられることから、1個以上の粒子を放出した後、複合核状態に到達してからさらに統計的に粒子を放出するとしてその粒子のエネルギースペクトルを計算すると第7図の点線のようになる。ここで複合核状態が励起エネルギー 20 MeV ~ 30 MeV の間に一様に分布していると仮定した。このエネルギースペクトルのピーク的位置は実験結果と良く一致しており、またピーク付近で実験値が再現されるように絶対値を規格化すると、前平衡状態及び複合核状態からの寄与を全て加えた結果(第7図の実線)が実験結果を良く再現することがわかる。

以上の議論から、巨大共鳴を越えた高い励起エネルギーでの光核反応は基本的には準重陽子による光子の吸収と、前平衡状態からの粒子放出で説明できる。しかし、多重粒子放出の寄与



第8図 (1)式によって与えられた、 $E_e=60$ MeV と 40 MeV での仮想光子スペクトルの差し引き後のスペクトル。 $E_\gamma=20$ MeV で光子数が0となるよう $E_e=40$ MeV のスペクトルに係数を乗じた。

を無視することはできず、特に (e, α) 反応においてその寄与が大きいため (r, α) 反応断面積の大部分は実際には $(r, X\alpha)$ 反応によるものであることがわかる。

§ 4. ま と め

^{63}Cu と ^{65}Cu の巨大共鳴領域での (r, p) 及び (r, α) 反応断面積はアイソスピン選択則を取り入れた統計理論で良く説明できることがわかった。それに対し、 $E_r > 40$ MeV の領域では (e, p) 及び (e, α) 反応エネルギースペクトルが、多重粒子放出を考慮することで準重陽子光吸収模型と前平衡励起子模型によって説明できることがわかった。 (e, α) 反応エネルギースペクトルにおいては特に多重粒子放出の寄与が大きく、導出された (r, α) 反応断面積の大部分は実際には $(r, X\alpha)$ 反応断面積と考えられる。この結果は ^{90}Zr 等、他の原子核において得られた (r, α) 反応断面積の高励起エネルギー領域に対しても同様の議論が成り立つ可能性を示唆しており、今後の系統的な研究が望まれる。

参 考 文 献

- 1) 田中, 坪田, 宮瀬, 菅原: 核理研研究報告 **12** (1979) 178.
- 2) 田中, 広岡, 日野, 斎藤, 菅原: 核理研研究報告 **13** (1980) 306.
- 3) E. Wolyneć, W. R. Dodge, R. G. Leicht and E. Hayward: Phys. Rev. C **22** (1980) 1012.
- 4) 玉江忠明: 博士論文 (1977) 東北大学.
- 5) T. Tamae, T. Urano, M. Hirooka and M. Sugawara: Phys. Rev. C **21** (1980) 1758.
- 6) S. Fallieros and B. Goulard: Nucl. Phys. **A147** (1970) 593.
- 7) R. Ö. Akyüz and S. Fallieros: Phys. Rev. Lett. **27** (1971) 1016.
- 8) S. C. Fultz, R.L. Bramblett, J. T. Caldwell and R. R. Harvey: Phys. Rev. **133** (1964) B 1149.
- 9) N. V. Linkova, R. M. Osokina, B. S. Ratner, R. S. Amirov and V. V. Akindinov: Sov. Phys. JETP **11** (1960) 566.
- 10) J. J. Murphy II, H. J. Gehrhardt and D. M. Skopik: Nucl. Phys. **A 277** (1977) 69.

- 11) E. Gadiori and L. Zetta : Phys. Rev. **167** (1968) 1016.
- 12) R. E. Sund , M. P. Barker, L. A. Kull and R. B. Walton : Phys. Rev. **176** (1968) 1366.
- 13) J. R. Wu and C. C. Chang : Phys. Rev. C **16** (1977) 1812.
- 14) A. G. Flowers et al. : Phys. Rev. Lett. **43** (1979) 323.
- 15) J. S. Levinger : Phys. Rev. **84** (1951) 43.
- 16) A. Lepretre et al. : Nucl. Phys. A **367** (1981) 237.
- 17) J. S. Levinger : *Proc. Intern. Conf. Low and intermediate energy electromagnetic interactions* (Academy of Sciences, USSR, Moscow, 1967) Vol. 3, p.411.
- 18) J. R. Wu and C. C. Chang : Phys. Rev. C **17** (1978) 1540.

^{90}Zr , ^{93}Nb (e, p), (e, α) 反応

核理研

日野 威・田中俊成・広岡 恵

菅原真澄・玉江忠明

§ 1. 序

今まで、核理研では中重核における (e, α) 反応が研究されてきた。その結果、高いエネルギー領域での (e, α) 反応は、準重陽子模型を考慮に入れた前平衡過程の理論で大体の傾向を説明できることが解った¹⁾。しかし、絶対値に注目すると、理論は実験値を充分に再現しない。 α 粒子のエネルギースペクトルの高エネルギー側の部分は、前方ピークを示すが、前平衡励起子模型からは、角度について積分された全断面積しか予言できない²⁾。この事情は、(e, p) 反応においても同じである。そこで、(e, p), (e, α) 反応のエネルギースペクトルを測定角度を変えて何点が測定した。

§ 2. 実 験

実験は広帯域磁気スペクトロメータで運動量分析された反応粒子を、その焦点面上に設置された表面障壁型 SSD で検出することによりなされた。標的には ^{90}Zr 4.95 mg/cm² 及び ^{93}Nb 5.14 mg/cm² を用いた。標的面と入射電子線となす角を 30° にして、電子線のエネルギーが 60 MeV と 40 MeV のときの (e, p), (e, α) 反応のエネルギースペクトルを、測定角度 45°, 67.5°, 90°, 112.5°, 135° の 5 点で測定した。

§ 3. 測定結果

実験で得られるエネルギースペクトルは、仮想光子が連続スペクトルであるため、巨大共鳴領域からの寄与が大きい。そのため、次式によって $E_e = 60 \text{ MeV}$ と $E_e = 40 \text{ MeV}$ でのエネルギースペクトルの差し引きを行った。

$$\frac{d^2 Y'}{d\Omega dE_p} = \frac{d^2 Y(60)}{d\Omega dE_p} - \frac{\Phi(60, 18)}{\Phi(40, 18)} \cdot \frac{d^2 Y(40)}{d\Omega dE_p} \quad (1)$$

ここで、 E_p ; 反応粒子の運動エネルギー

$$\frac{d^2 Y(60)}{d\Omega dE_p}, \frac{d^2 Y(40)}{d\Omega dE_p}; E_e = 60 \text{ MeV 及び } E_e = 40 \text{ MeV}$$

でのエネルギースペクトル

$$\Phi(60, 18), \Phi(40, 18); E_e = 60 \text{ MeV 及び } E_e = 40 \text{ MeV での}$$

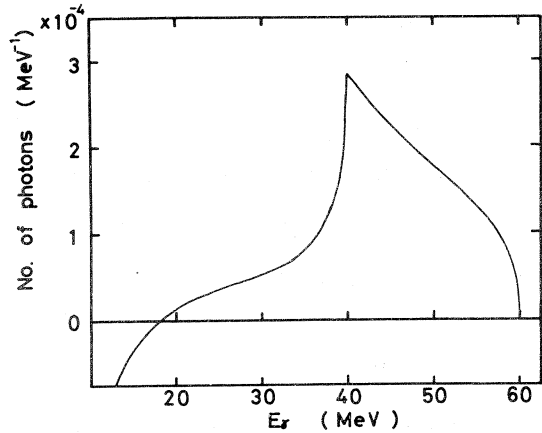
$$E_\gamma = 18 \text{ MeV における光子数}$$

である。この結果得られるエネルギースペクトルは

$$\Phi'(E_\gamma) = \Phi(60, E_\gamma) - \frac{\Phi(60, 18)}{\Phi(60, 18)} \cdot \Phi(40, E_\gamma) \quad (2)$$

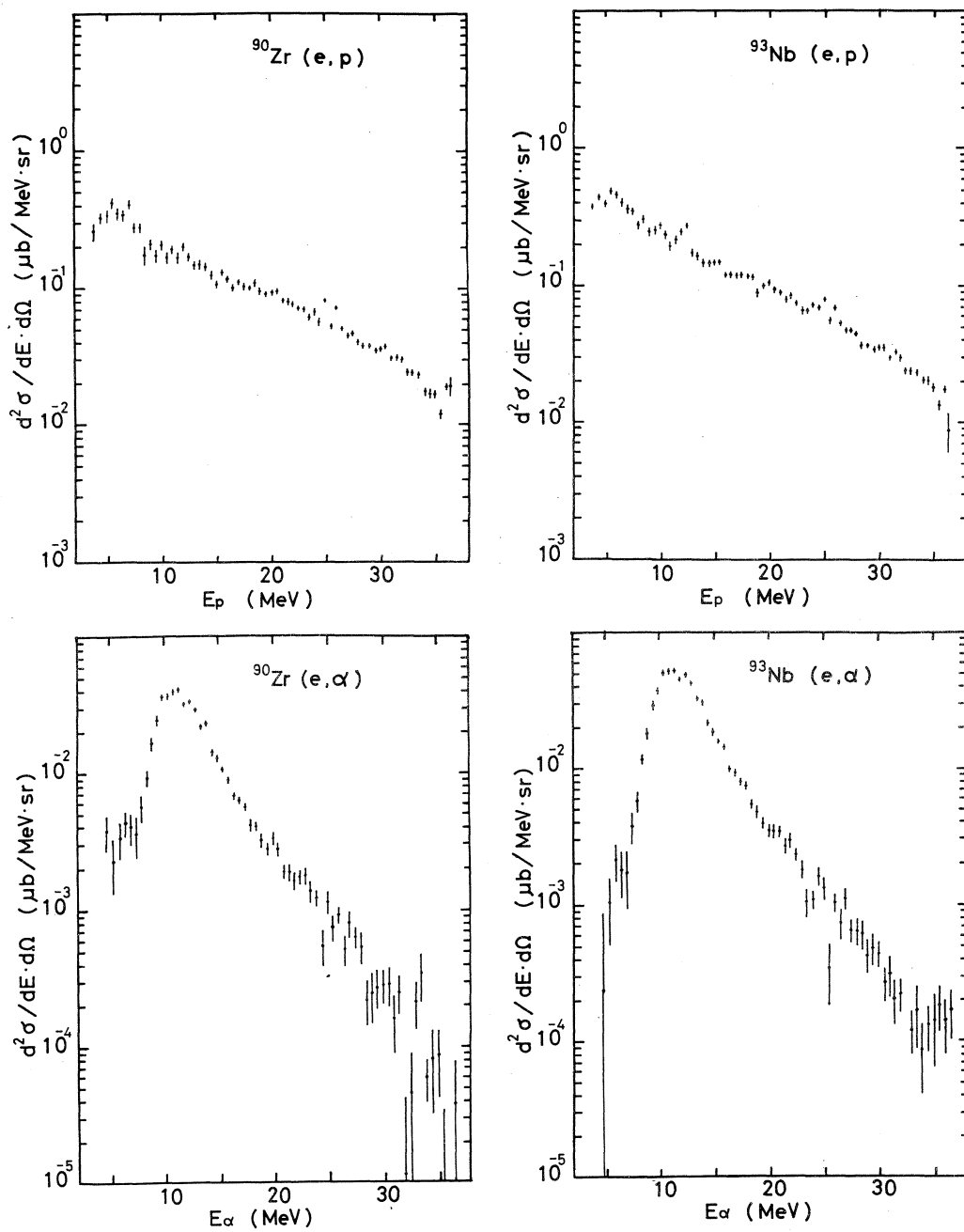
と表わされる光子スペクトル(第1図)

で得られたエネルギースペクトルに相当する。これは図からわかる様に主に $E_\gamma > 40 \text{ MeV}$ の反応が寄与することになる。こうして得られた、測定角 90° でのエネルギースペクトルを第2図に示す。注意して見るとスペクトルは、ピーク付近の低エネルギー側の部分と高エネルギー側の部分からなる。高エネルギー側の部分は前平衡過程から、低エネルギー側の部分は統計的に放出された粒子であると思われるが、くわしい議論は今後の解析を待たなければならない。陽子と α



第1図 本文(2)式から得られる仮想光子スペクトル

粒子のエネルギースペクトルを比べてみると、 α 粒子の方が陽子よりも統計的に出ていることがわかる。現在、他の測定角についても解析中なので、解析をすすめ、準重陽子模型、前平衡過程理論等と関連づけて議論する必要があると考える。



第2図 $^{90}\text{Zr}, ^{93}\text{Nb} (e, p)(e, \alpha)$ 反応エネルギースペクトルから本文(1)式にしたがって差し引きを行ったエネルギースペクトル。

参 考 文 献

- 1) 広岡恵・浦野隆夫・菅原真澄：核理研研究報告 **12** (1979) 25.
- 2) J. R. Wu and C. C. Chang : Phys. Rev. C **16** (1977) 1812.

Ⅱ 物 性 物 理

非晶質Zr-Ni合金水素化物中での水素の挙動

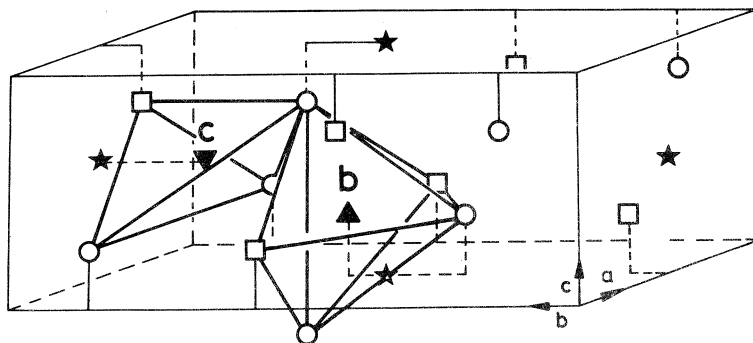
金 研

金子尚史・梶谷 剛・平林 真
上野光明・鈴木謙爾

§ 1. はじめに

水素及び重水素原子は、金属あるいは合金の結晶中で、四面体又は八面体格子間位置を占める典型的な侵入型固溶元素の一つである。この状況は、非晶質金属においても、ほぼ同様であると推測される。しかし、非晶質金属中の原子は、無秩序な幾何学的配列をしているので、単位体積あたりの四面体、八面体などの配位多面体の数は増大するけれども、これら多面体の格子間位置すべてが、水素原子の占有に好都合であるとは言えない。水素原子が占有する条件としては、多面体を構成する金属原子の種類、それら金属原子間距離で決まる空孔の大きさ、及び、水素と金属との原子間距離などが挙げられる。非晶質金属中での水素の存在状態と、挙動を明らかにすることは、非晶質金属の水素吸蔵特性を理解する上で重要であるだけでなく、非晶質金属の構造を明確にする手がかりを与える。本研究の目的は、非晶質Zr-Ni合金水素化物中での水素の動的ふるまいと存在状態、ならびに非晶質合金水素化物の構造を中性子回折及び非弾性散乱実験により明らかにすることにある。最近、Rush, Rowe 及び Maeland¹⁾ は、Cu-Ti合金水素化物の結晶及び非晶質状態での水素原子の局在モードを、中性子非弾性散乱によって調べ、中性子非弾性散乱が、非晶質合金水素化物中の水素原子の局所的環境の情報を得るのに、非常に有効な手段となることを示している。

我々がとりあげたZr-Ni合金系には、 $ZrNi_5$, Zr_7Ni_{10} , $ZrNi$, Zr_2Ni など多くの金属間化合物が存在する。これら金属間化合物の結晶構造は、すでに明らかにされている^{2, 3)}。一方、青木、洞田及び増本⁴⁾は、Ni-35%ZrからNi-75%Zrの組成範囲で、非晶質を得ることに成功している。同一組成をもつ、非晶質構造と結晶構造における水素の挙動を比較するために、 $ZrNi$ 及び Zr_2Ni 金属間化合物を選んだ。 $ZrNi$ の結晶構造は、底心斜方晶であり、空間群 $Cmcm$ に属する²⁾。この結晶に水素を導入することによって金属原子の特殊同価位置がわずかに変化するが、 $ZrNiH_3$ の組成に到るまで、この金属母格子は、ほぼ変わらない⁵⁾。第1図に、 $ZrNiH_3$ の結晶構造を示す⁶⁾。水素化物 $ZrNiH_3$ 中の水素原子は、c-site



第1図 $ZrNiH_3$ の結晶構造。□及び○は、それぞれ、Ni原子、Zr原子を示す。▲及び▼は、それぞれ、六面体格子間位置 (b-site)、四面体格子間位置 (c-site) を示す。★は、面心の位置を示す。

と呼ばれる四面体格子間位置と、b-siteと呼ばれる六面体格子間位置とを占める。c-siteは、 $ZrNiH_3$ 単格子中に8個存在し、中心の水素原子に対して3個のZr原子と、1個のNi原子が配位している。この格子間位置のもつ対称性は、 m であり、1つの水素原子の振動モードが励起される⁷⁾。b-siteは、単格子中に4個存在し、水素原子に対して、3個のZr原子と2個のNi原子が配位し、 $mm2$ の対称性を持ち、3つの独立した水素原子の振動モードが励起される⁷⁾。 Zr_2Ni の結晶構造は、体心正方晶 ($CuAl_2$ 型)であり、空間群 I_4/mcm に属する²⁾。しかし、 Zr_2Ni の水素化物中の水素原子の占有位置は、まだ明らかにされていない。

§ 2. 実験方法

純度 99.6% のスポンジジルコニウム、及び純度 99.95% のモンドニッケルを母材として用いた。モンドニッケルの表面酸化物をキリンス液 ($HNO_3 : H_2SO_4 : HCl = 3 : 7 : 1$) で除去した後、純金属片を、 $ZrNi$ 及び Zr_2Ni の組成に秤量し、高純度アルゴン雰囲気中でアーク溶解した。作製したボタン状試料 (約 100 g) を用いて、片ロール式液相急冷装置により、非晶質 $ZrNi$ 及び Zr_2Ni のリボン状試料を得た。非晶質 $ZrNiH_{1.8}$ 及び $Zr_2NiH_{4.4}$ は 50 気圧の水素圧のもとで、それぞれ、250 °C ないしは 200 °C において作製した。非晶質 $ZrNiD_{1.8}$ は、30 気圧の重水素圧のもとで作製した。 $ZrNiH_{2.8}$ 及び $Zr_2NiH_{4.6}$ 結晶試料はジューベッツ型水素化装置を用いて、200 °C にて作製した。

中性子非弾性散乱実験は、TOF 型中性子分光器 (クリスタルアナライザ⁸⁾) を用いて行っ

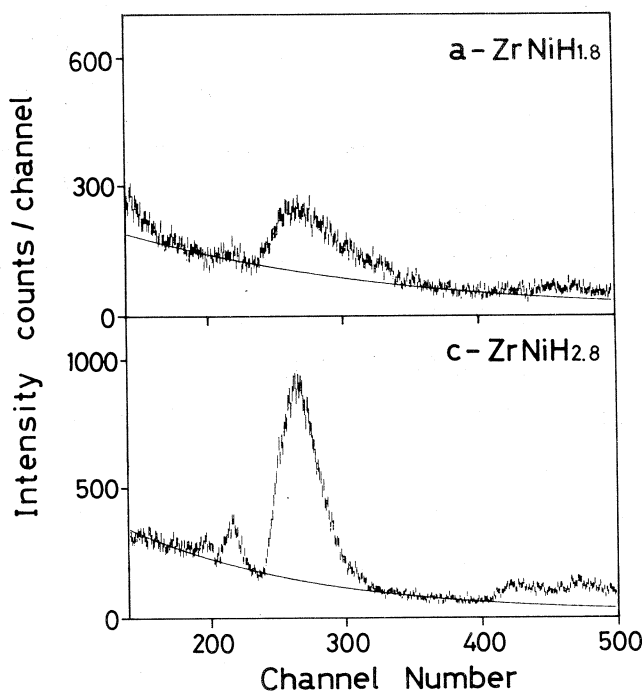
た。実験に用いた結晶 $ZrNiH_{2.8}$ 及び $Zr_2NiH_{4.6}$ 試料は、約 100 g の粉末であり、非晶質 $ZrNiH_{1.8}$ 及び $Zr_2NiH_{4.4}$ 試料は、約 30g で、リボン状のものをくだいて得た粉末である。各試料の厚さは、入射中性子の透過率が90%以上となる様に調整され、結晶水素化物は 5 mm 厚、非晶質試料は 1 mm 厚とし、 8.5×11 cm のアルミニウム製の試料容器に入れた。測定時間は、結晶水素化物試料については、1 試料当たり、約 32 時間、非晶質試料については、1 試料当たり、約 60 時間であった。

非晶質 $ZrNi$ 及び $ZrNiD_{1.8}$ の干渉強度 $S(Q)$ の測定には、TOF 型高分解能中性子回折装置⁹⁾を用いた。用いた非晶質 $ZrNi$ は、作製したリボン状の試料、約 5 g を細かく切ったものである。非晶質 $ZrNiD_{1.8}$ 試料は、 $S(Q)$ を測定した非晶質 $ZrNi$ を重水素化したものである。

§ 3. 実験結果と考察

3.1 非弾性散乱

第 2 図に、 $ZrNiH_{2.8}$ 結晶試料及び非晶質 $ZrNiH_{1.8}$ 試料について測定された非弾性散乱スペクトルを示す。両試料に対して 240 チャンネルから 320 チャンネルにかけて水素の局在モー



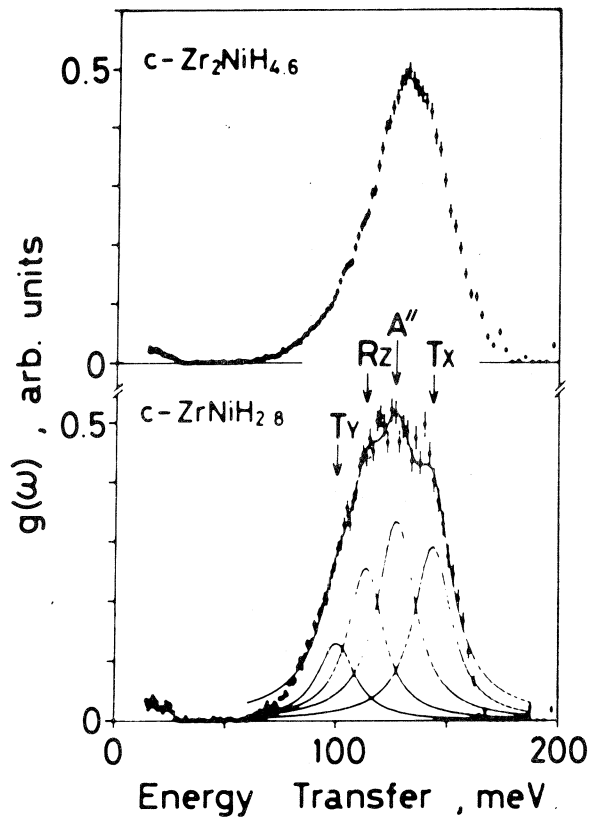
第 2 図 $ZrNiH_{2.8}$ 結晶試料及び $ZrNiH_{1.8}$ 非晶質試料に対して得られた中性子非弾性散乱スペクトル。

ドによるピークが観測されている。特に、結晶試料に対しては、局在モードの二次高調波まで観測されている。図中の実線は、指数関数で近似したバックグラウンドである。微分散乱断面積は、生データから、この指数関数で近似したバックグラウンドを差し引いたスペクトルを、入射中性子スペクトルで規格化することにより得た。次に、求めた微分散乱断面積から、逐次近似の方法¹⁰⁾によって、振動数分布 $g(\omega)$ を導出した。

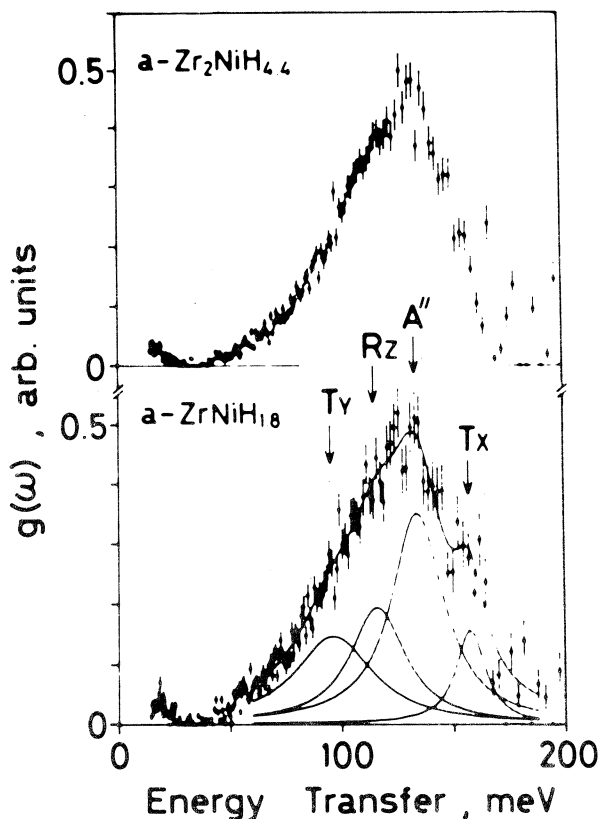
第3図に、 $ZrNiH_{2.8}$ と $Zr_2NiH_{4.6}$ 結晶試料に対して得られた振動数分布を、又、第4図には $ZrNiH_{1.8}$ と $Zr_2NiH_{4.4}$ 非晶質試料に対して得られた振動数分布を示す。 $ZrNiH_{2.8}$ 結晶試料と Zr

$NiH_{1.8}$ 非晶質試料に対して、130 meV 付近に存在するピークは、水素の局在モードによるものである。これら二つの振動数分布を比較すると、ピークの中央のエネルギーの値は、約 130 meV と不変であるのに対して、非晶質試料の振動数分布は、高低両エネルギー側に広がり、形状も、なだらかになっていることがわかる。ピークの半値巾で比較すれば、非晶質試料は、70 meV、結晶試料は 50 meV となっている。

前述の様に、結晶試料中の各水素位置については、周囲の局所的配列に関する対称性から、4つの独立した水素原子の振動モードが存在し、これらは、130 meV 付近のピークの中に重なり合っている。RANDOM SEARCH 最小二乗法¹¹⁾ を用いて、ピーク位置、半値巾、ピークの高さをパラメーターとして、4つのローレンツ関数¹²⁾ に分解した結果を、図中の細線で示してある。図中の Tx, Ty, Rz は、六面体格子間位置 (b-site) で励起される3つのモード、A'' は、四面体格子間位置 (c-site) で励起される1つのモードに対応する。非晶質 $ZrNi$



第3図 結晶水素化物 $ZrNiH_{2.8}$ 及び $Zr_2NiH_{4.6}$ に対して得られた振動数分布。



第4図 非晶質水素化物 $ZrNiH_{1.8}$ 及び $Zr_2NiH_{4.4}$ に対して得られた振動数分布。

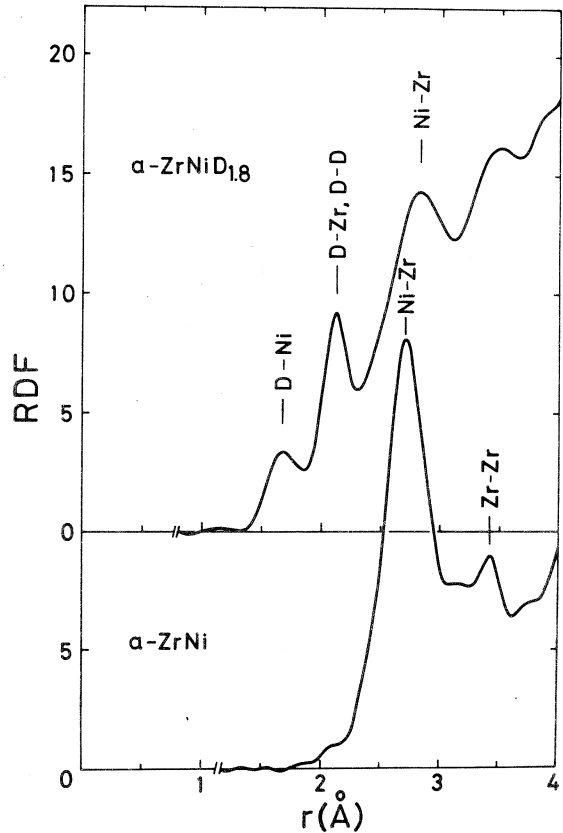
及び六面体の幾何学的形状の乱れによるものであると考えられる。又、非晶質試料における振動数分布において、 A'' で示されたピークが、強度の大部分を占めている。この事は、非晶質中で、水素原子は、結晶中における四面体格子間位置と、六面体格子間位置の存在比(2:1)よりも大きい割合で、四面格子間位置に類似した位置を占めていることを示す。

$Zr_2NiH_{4.6}$ 結晶試料については、水素原子の存在位置は明らかにされていないが、この試料について得られた振動数分布のピークの位置が ZrH_2 結晶試料について得られたピーク位置 $137\text{ meV}^{13)}$ とほぼ一致することから、 $Zr_2NiH_{4.6}$ 結晶中では、水素原子は、Zr原子の作る四面体格子間位置を占めていると思われる。非晶質 $Zr_2NiH_{4.4}$ 試料について得られた振動数分布は、非晶質 $ZrNiH_{1.8}$ のものと、非常によく似ており、非晶質中での水素原子の局所的環境が、金属原子組成によらず、あまり違いがないことを示している。

$H_{1.8}$ 試料についても同様の解析を行ない、その結果を同じく図中の細線で示した(第4図参照)。図中の T_x , T_y , R_z 及び A'' は結晶試料に対して行った割り当てと、同様の割り当てを行ったものである。非晶質試料について得られた4つのローレンツ関数のエネルギー固有値は、結晶試料のものとはほぼ同じ値でありこれは非晶質中に、結晶中に見出されるものとはほぼ同じ四面体格子間位置や六面体格子間位置が存在し、その格子間位置を水素原子が占有していることを示している。各々のローレンツ関数の半値巾が増大していることは、局在モードの寿命の短縮を表わし、非晶質中での四面体

3.2 中性子回折

第5図に、非晶質 ZrNi 及び非晶質 ZrNiD_{1.8} 試料について得られた動径分布関数を示す。非晶質重水素化物の動径分布関数には、相関距離 1.7 Å 及び 2.1 Å に明瞭な 2 つの新しいピークが観測された。これらの相関距離は、ZrNiH₃ 結晶中に見出される水素原子と、Ni 及び Zr 原子との原子間距離に、それぞれよく一致している。従って、動径分布関数中に観測された 1.7 Å 及び 2.1 Å のピークは、非晶質試料中の Ni-D 及び Zr-D の相関によるものであると考えられる。各々のピーク下の面積から、重水素原子の第一隣接金属原子配位数は、Ni 原子がほぼ 1 個、Zr 原子がほぼ 3 個の合計 4 個と推定される。このことから、大部分の重水素原子は、3 個の Zr 原子と 1 個の Ni 原子によって構成された四面体格子間位置に似た位置を占めていると考えられ、非弾性散乱実験から得られた結果とよく対応している。



第5図 非晶質 ZrNi 及び ZrNiD_{1.8} に対して得られた動径分布関数。

§ 4. 結 論

以上の中性子非弾性散乱及び回折実験により、非晶質 ZrNiH_{1.8} 中には、結晶 ZrNiH₃ 中に見出される四面体及び六面体とほぼ等しい四面体、六面体が存在し、その格子間位置を水素原子が占めていることが明らかになった。現在、非晶質 Zr₂Ni の水素化物の実験が進行中である。

最後に、非晶質試料及びその水素化物作製にあたり、東北大学金属材料研究所、増本健教授、青木清助手に多大な協力をいただきました。ここに、深く感謝致します。

参 考 文 献

- 1) J. J. Rush, J. M. Rowe and A. J. Maeland : J. Phys. F : **10** (1980) L 283.
- 2) M. E. Kirkpatrick, D. M. Bailey, and J. F. Smith : Acta Crystallogr. **15**
(1962) 252.
- 3) F. R. Eshelman and J. F. Smith : Acta Crystallogr. **B 28** (1972) 1594.
- 4) K. Aoki, R. Horata and T. Masumoto : *Collected abstracts for the
annual fall meeting of Japan Inst. Met.*, 1980, p.340.
- 5) S. W. Peterson, V. N. Sadana and W. L. Korst : J. Phys. (Paris) **25**
(1964) 451.
- 6) D. G. Westlake : J. Less-Common Metals **75** (1980) 177.
- 7) T. Kajitani, H. Kaneko and M. Hirabayashi : Sci. Rep. RITU. A (1981)
210.
- 8) 渡辺昇, 古坂道弘, 三沢正勝 : 核理研報告 **12** (1979) 72.
- 9) M. Ueno, M. Misawa and K. Suzuki : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku
University **13** (1980) 254.
- 10) R. Yamada, N. Watanabe, K. Sato, H. Asano and M. Hirabayashi :
J. Phys. Soc. Japan **41** (1976) 85.
- 11) M. Kitamura, Y. Takeda, K. Kawase and K. Sugiyama : Nucl. Instr.
and Meth. **136** (1976) 363.
- 12) 古坂道弘, 渡辺昇, 浅野肇 : 核理研報告 **12** (1979) 83.
- 13) E. L. Slaggie : J. Phys. Chem. Solids. **29** (1968) 923.

T-O-F Pulsed Neutron Diffraction of Sodium-Metasilicate $\text{Na}_2\text{O} \cdot \text{SiO}_2$ Glass

M. Ueno and K. Suzuki

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

§ 1. Introduction

The short-range structure of silicate glasses has been intensively investigated by using x-ray and neutron diffraction. The structure of sodium silicate glass is known to be described by a random network¹⁾ picture. Warren and his colleagues¹⁾ pointed out that each silicon atom is tetrahedrally surrounded by four oxygen atoms at a distance of about 1.62 Å, while each sodium ion occupying various holes in the silicon-oxygen network is surrounded by about six oxygens at a distance of 2.35 Å.

Recently Misawa et al.²⁾ has studied the short-range structure of lithium and sodium disilicate glasses by pulsed neutron total scattering. They obtained the stretching of the average length of Si-O and O-O atomic distances and the number of bridging and non-bridging oxygen atoms in the alkali disilicate glasses. On the other hand, from the measurements of infrared absorption and Raman spectra, the fractions of bridging, non-bridging and free oxygen atoms have been calculated for PbO-SiO_2 and CaO-SiO_2 glasses as a function of the modifying oxide content by Tsunawaki et al.³⁾.

The aim of this experiment is to observe the short-range structure of sodium metasilicate glass ($\text{g-Na}_2\text{O} \cdot \text{SiO}_2$) by T-O-F pulsed neutron diffraction and to compare the result with that of sodium disilicate glass²⁾.

§ 2. Experimental

The $\text{g-Na}_2\text{O} \cdot \text{SiO}_2$ sample was prepared by quenching the melt. The starting

materials employed are SiO_2 glass smashed into fine pieces and reagent grade Na_2CO_3 (Wako Pure Chemical Industries Ltd). The glass sample was 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 was 7.8 mm wide and length was 70 mm high in order to measure neutron total scattering intensities. The measurement of the structure factor $S(Q)$ was made by using a new model of T-O-F pulsed neutron total scattering spectrometer⁴⁾ installed at 300 MeV electron LINAC, Tohoku University. Details of data processing have been fully described in a previous report⁵⁾.

§ 3. Results and Discussion

The experimental $S(Q)$ of $\text{g-Na}_2\text{O} \cdot \text{SiO}_2$ measured up to 30 \AA^{-1} is shown in Fig. 1. Fig. 2 is the radial distribution function (RDF) of $\text{g-Na}_2\text{O} \cdot \text{SiO}_2$ which is

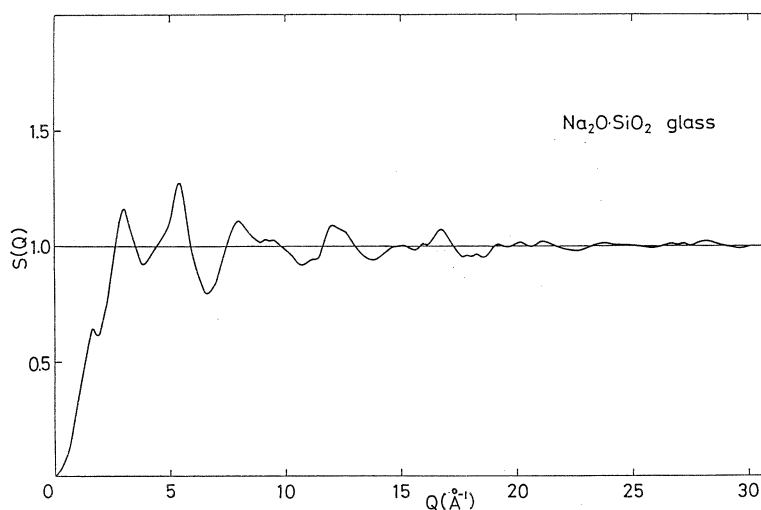


Fig. 1 Neutron total structure factor $S(Q)$ of $\text{g-Na}_2\text{O} \cdot \text{SiO}_2$.

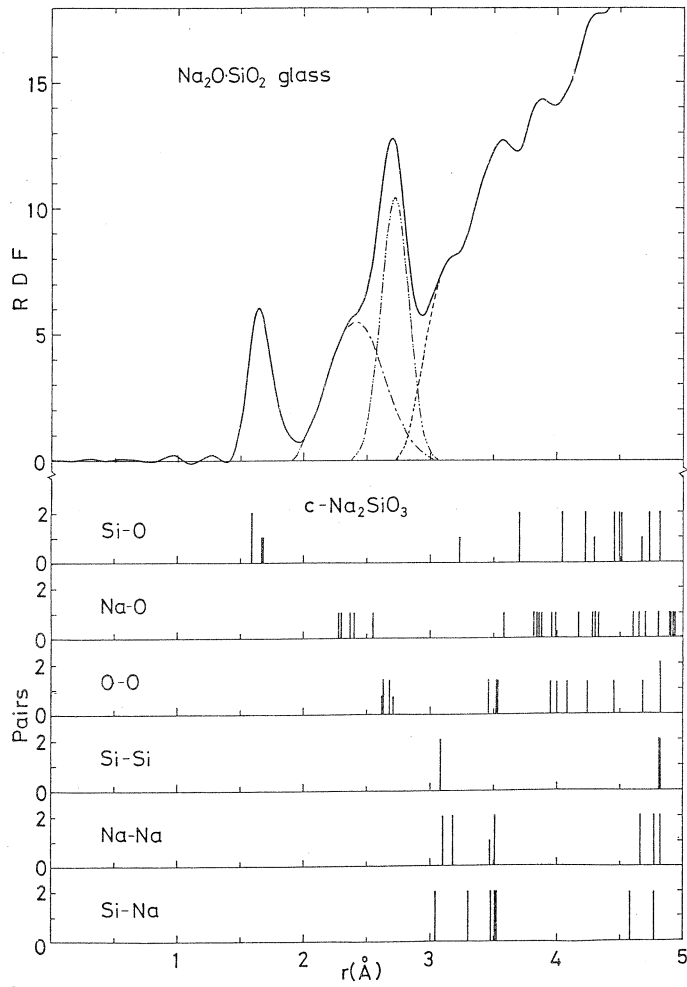


Fig. 2 Radial distribution function of $g\text{-Na}_2\text{O}\cdot\text{SiO}_2$ and coordination numbers in $c\text{-Na}_2\text{O}\cdot\text{SiO}_2$.

the Fourier-transform of the $S(Q)$ truncated at $Q_{\text{max}} = 30 \text{ \AA}^{-1}$ and the coordination numbers calculated from the crystal structure of Na_2SiO_3 compound. The second peak in the RDF is found to be divided into two subpeaks, which correspond to the Na-O and O-O correlations in $c\text{-Na}_2\text{SiO}_3$. The atomic distance and coordination number of Si-O, Na-O and O-O correlations in $g\text{-Na}_2\text{O}\cdot\text{SiO}_2$ are summarized in

Table I Atomic distances and coordination numbers
in $\text{Na}_2\text{O}\text{-SiO}_2$ and $\text{Li}_2\text{O}\text{-SiO}_2$ systems.

	Si-O		Na(Li)-O		O-O		Si-Si	
	r(Å)	n(atoms)	r(Å)	n(atoms)	r(Å)	n(atoms)	r(Å)	n(atoms)
$\text{Na}_2\text{O}\cdot\text{SiO}_2$ glass	1.64	3.9	2.41	5.0	2.71	4.0	—	—
$\text{Na}_2\text{O}\cdot\text{SiO}_2$ crystal	1.63	4.0	2.38	5.0	2.66	4.0	3.08	2.0
$\alpha\text{-Na}_2\text{O}\cdot 2\text{SiO}_2$ crystal	1.62	4.0	2.40	5.0	2.64	4.8	3.07	3.0
$\beta\text{-Na}_2\text{O}\cdot 2\text{SiO}_2$ crystal	1.63	4.0	2.44	5.5	2.66	4.8	3.05	3.0
$\text{Li}_2\text{O}\cdot\text{SiO}_2$ crystal	1.64	4.0	2.00	4.0	2.67	4.0	2.97	2.0
$\text{Li}_2\text{O}\cdot 2\text{SiO}_2$ crystal	1.63	4.0	1.94	4.0	2.68	5.2	3.06	3.0

Table I together with those of crystalline sodium and lithium silicates. The coordination number of O atoms surrounding a Na atom is 5.0, which is different from the result obtained by Warren and Biscoe¹⁾. The average lengths of Si-O and O-O atomic distances in $g\text{-Na}_2\text{O}\cdot\text{SiO}_2$ are stretched with increasing Na_2O content, as shown in Fig. 3. However, we can not conclude which of Si-O^0 (bridging) or Si-O^- (non-bridging) bond length is stretched in $g\text{-Na}_2\text{O}\cdot\text{SiO}_2$.

If the ionic charges on Na^+ , O^- (non-bridging) and O^{2-} (free oxygen) are exactly +1, -1 and -2 respectively, the electrical neutrality condition for $x\text{Na}_2\text{O}\cdot y\text{SiO}_2$ glass is given as

$$2x = (x + 2y)(N_1 + 2N_2) \quad (1)$$

where N_1 and N_2 are the fraction of O^- and O^{2-} atom. There are no O^{2-} atoms in $\text{Na}_2\text{O}\text{-SiO}_2$ glasses in the composition range $x < 0.5$. Therefore we can estimate the fractions of O^0 (bridging oxygen) and O^- atoms existing in $g\text{-Na}_2\text{O}\cdot\text{SiO}_2$ from the relation

$$\left. \begin{aligned} N_0 + N_1 &= 1 \\ 2N_0 + N_1 &= n_{\text{O-Si}} \\ 6N_0 + 3N_1 &= n_{\text{O-O}} \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

using $N_1 = 2/3$ for $g\text{-Na}_2\text{O}\cdot\text{SiO}_2$ calculated from eq. (1). The results thus calcu-

lated are $N_0 = 1/3$, $n_{O-Si} = 4/3$ ($n_{Si-O} = 4$) and $n_{O-O} = 4$ respectively. The calculated values of n_{Si-O} and n_{O-O} for $g\text{-Na}_2\text{O}\cdot\text{SiO}_2$ are in excellent agreement with the experimental values listed in Table I. Therefore it is expected that a Si atom has two non-bridging and two bridging oxygen atoms on the average in $g\text{-Na}_2\text{O}\cdot\text{SiO}_2$.

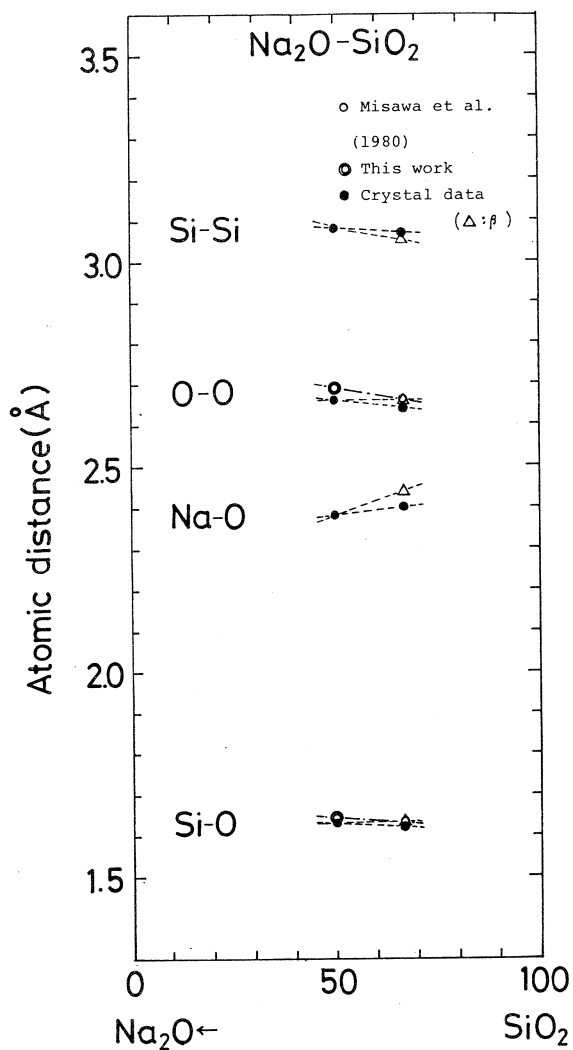


Fig. 3 Atomic distances in $\text{Na}_2\text{O}\text{-SiO}_2$ system.

Acknowledgements

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

References

- 1) B. E. Warren and A. D. Loring : J. Amer. Ceram. Soc. **18** (1935) 267 ; B. E. Warren and J. Bischoe : *ibid* **21** (1938) 259.
- 2) M. Misawa, D. L. Price and K. Suzuki : J. Non-Cryst. Solids **37** (1980) 85.
- 3) Y. Tsunawaki, N. Iwamoto, T. Hattori and A. Mitsuishi : J. Non-Cryst Solids **44** (1981) 369.
- 4) M. Ueno, M. Misawa and K. Suzuki : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci., Tohoku University **13** (1980) 254.
- 5) K. Suzuki, M. Misawa, K. Kai and N. Watanabe : Nucl. Instrum. and Methods **147** (1977) 519.

Ⅲ 放 射 化 学

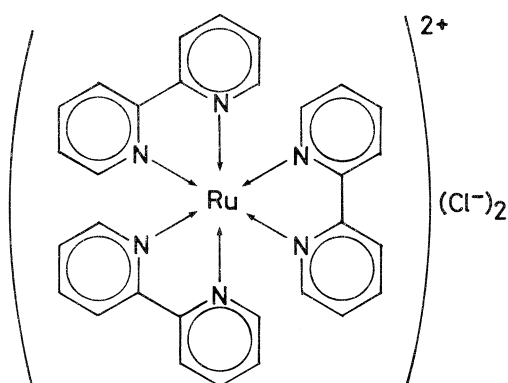
トリス(ビピリジン)ルテニウム(II) 塩化物系における中心金属の反跳挙動

筑波大化学系

池田長生・渡辺裕夫・荘司 準

§ 1. 緒 言

固相における反跳現象解明のため、これまで我々はフタロシアン錯体およびテトラフェニルポルフィン錯体系について、種々の核変換過程における中心金属の反跳挙動に注目してきた¹⁾。今回は上記錯体と同様にクロロフィル類似機能物質であり、光化学の分野で最近とりあげられることの多い²⁾ トリス(ビピリジン)ルテニウム(II)錯体を対象とし、光核反応および熱中性子捕獲反応に伴う中心金属の反跳挙動について解析を試みた。



第1図 トリス(ビピリジン)ルテニウム(II)塩化物の構造。

§ 2. 実 験

2.1 試料の調製

塩化ルテニウム(III) ($\text{RuCl}_3 \cdot x\text{H}_2\text{O}$)と2,2'-ビピリジンとをメタノール中で72時間還流し、濃縮して得られた粗製結晶をベンゼンで洗って付着している未反応物質等を除去した後、エタノール：水(1:1)混合溶媒中で再結晶した。元素分析等によりこの純度を確認のうえ、照射用試料とした。

2.2 照射

光核反応のための制動放射線照射は、東北大核理研電子リニアックにより、白金コンバーターからの最大エネルギー60 MeVの制動放射線を用いて行った。なおこの際未転換電子はスリープマグネットにより除去し、また照射中はドライアイスあるいは液体窒素で、照射後は化学

分離操作の時点までドライアイスで試料を常に冷却し、熱アニーリングの防止に努めた。

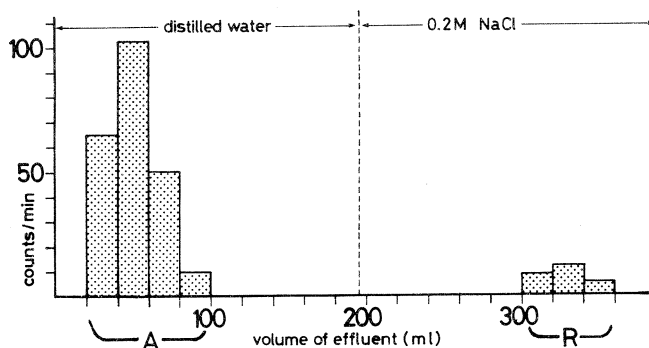
熱中性子照射は、立教大学原研のTRIGA II型原子炉RSR孔および原研JRR-2炉気送管により行い、その際も常にドライアイスで冷却した。

2.3 照射後の化学分離および放射能測定

照射後、試料を塩化ルテニウム(III)担体を含む水(Ru^{3+} 濃度: 0.3 mmol)に溶かし、これをセファデックス陽イオン交換カラムクロマトグラフィー(Na形SP-C25セファデックス使用)により分離し、各フラクションの γ 線スペクトルをGe(Li)半導体検出器および4096チャンネル波高分析器により測定して、各フラクション中の目的核種の放射化学収率を求めた。

§ 3. 結 果

化学分離による溶離曲線の1例として、光核反応の場合の ^{103}Ru についてのものを第2図に示す(他の場合も同様であった)。この図ではじめのフラクションAは、放射能は比較的強い



第2図 溶離曲線の1例(光核反応の場合の ^{103}Ru につき、497 keVピークの面積をとった値)。

が無色であったのに対して、フラクションRは着色しており、その吸収スペクトル(吸収極大452 nm)ならびに標識錯体による予備実験から、錯体部分に相当することが確認されている。また未照射の錯体に ^{103}Ru で標識した塩化ルテニウム(III)を添加し、同様の化学分離操作を行ったところ、フラクションRに相当する部分に放射能は全く認められず、溶液内での同位体変換反応は起らないことが確かめられた。

このようにして得られたドライアイス冷却下での各核反応に伴うルテニウム同位体の、フラクションRおよびA中の放射化学収率を第1表に示す。(r, n)反応と(n, r)反応を比較してみると、フラクションR, Aいずれにおいても反跳エネルギーのはるかに大きい光核反

第1表 各ルテニウム同位体のフラクシオンRおよびAにおける放射化学収率（ドライアイス冷却照射の場合）。

nuclear reaction	⁹⁷ Ru	¹⁰³ Ru	¹⁰⁵ Ru	nuclear reaction	⁹⁷ Ru	¹⁰³ Ru	¹⁰⁵ Ru
(n, r)	3.0%	4.0%	4.5%	(n, r)	47%	46%	49%
(r, n)	1.4%	1.6%		(r, n)	24%	25%	
Fraction R				Fraction A			

応の場合の方が小さな放射化学収率を示している。また(r, n)反応, (n, r)反応それぞれにおいては, ルテニウムの各同位体間で各フラクシオン中での放射化学収率には著しい差は認められなかった。

最初に流出するフラクシオンAを陰イオン交換樹脂(Dowex 1 X8 RCl形)のカラムに通したところ, その流出液には放射能は全く認められなかった。従ってこのフラクシオン中のルテニウムの化学形は陰イオン形であると考えられる。

リニアックによる制動放射線照射において, 液体窒素温度下での照射が可能となったので, 照射温度と収率の関係を観察してみたが, その結果を第2表に示す。フラクシオンRにおいては

第2表 光核反応の場合の各ルテニウム同位体の放射化学収率と温度条件。

irradiation condition	⁹⁵ Ru	⁹⁷ Ru	¹⁰³ Ru	irradiation condition	⁹⁵ Ru	⁹⁷ Ru	¹⁰³ Ru
dry ice		1.4%	1.6%	dry ice		24%	25%
liquid N ₂	0.31%	0.37%	0.40%	liquid N ₂	17%	27%	28%
Fraction R				Fraction A			

ドライアイス温度にくらべて液体窒素温度下の方が一様に小さな放射化学収率を示している。一方フラクシオンAでは, 温度条件を変えても収率に大きな差は生じなかった。また照射温度を変えても各同位体間における収率の差は小さいという傾向は同様であった。

光核反応の場合, ⁹⁵Tc(半減期 20.0 h)および^{99m}Tc(半減期 6.0 h)の生成がみられたが, フラクシオンAおよびRにおける両者についての放射化学収率は第3表に示す通りである。^{99m}Tcの生成過程としては, ¹⁰⁰Ru(r, p)^{99m}Tcのみであるのに対して, ⁹⁵Tcの場合には⁹⁶Ru(r, p)⁹⁵Tcと⁹⁶Ru(r, n)⁹⁵Ru $\xrightarrow[T_{\frac{1}{2}}=1.65\text{ h}]{\text{EC}, \beta^+}$ ⁹⁵Tcの双方の可能性があるが, ここに示した収率はいずれにせよ⁹⁵Ruが完全に壊変し尽してからの化学分離により得

られたものである。

^{95}Tc と $^{99\text{m}}\text{Tc}$ についてのフラクシ
ョンAにおける放射化学収率は、ルテニ
ウムの場合と同様に照射温度の違いによ
る差はあまり見られなかったが、ルテニ
ウムの場合にくらべてかなり大きな値を
示している。またテクネチウムの放射能
が錯体のフラクシオン(R)中に見出さ
れていることから、生成したテクネチウ

ムの一部がトリス(ビピリジン)ルテニウム(III)と同様の化学形をとっているものと判断された。

本研究にあたり、御援助を賜った東北大学理学部、八木益男助教授、吉原賢二助教授、榎本
和義助手、核理研マシングループの方々、立教大原研、松浦辰男教授、戸村健児教授に厚く感
謝の意を表す。

参 考 文 献

- 1) O. Kujirai, N. Ikeda and H. Shoji: Radiochem. Radioanal. Letters
26 (1976) 5 ;
庄司, 酒井, 池田, 大竹, 渡辺: 核理研研究報告 12 (1979) 219 など.
- 2) たとえば, 戸嶋, 金子: 化学と生物 19 (1981) 80 参照 .

第3表 テクネチウム同位体のフラクシ
オンAおよびRにおける放射化学収率
と温度条件。

fraction	irradiation condition	^{95}Tc	$^{99\text{m}}\text{Tc}$
A	dry ice	70~90%	68%
	liquid N ₂	73%	84%
R	dry ice	1~2%	~0%
	liquid N ₂	0.23%	0.55%

安定同位体希釈放射化分析とその光量子放射化への応用

核理研

榎本和義・八木益男

Newer technique based on the stable-isotope dilution method has been developed for various activation analyses. When appropriate two radioisotopes are induced by activation of an interesting element, the total amount of the element ($x \mu\text{g}$) can be determined easily by irradiating simultaneously the sample containing small amounts of an enriched isotope ($y \mu\text{g}$) in the interesting one, and then by using the following equation

$$x = y (A/A^*) [(R^*/R)(\theta_2^*/\theta_2) - (\theta_1^*/\theta_1)] / [1 - (R^*/R)]$$

where A, A^* are atomic weight of the interesting element and that of the spiked one, $\theta_{1,2}, \theta_{1,2}^*$ are abundances of two stable isotopes in the interesting element and those in the spiked one, and R, R^* are counting ratio of gamma-rays emitted by two radioisotopes produced in the natural and the spiked samples. From the equation, it is obvious that this technique does not need any standard and correction of beam intensity. Usefulness of the present technique was verified by photon activations of Ca, Zn and Ce using isotopically enriched ^{48}Ca , ^{68}Zn and ^{142}Ce .

§ 1. 緒 言

一般に放射化分析法は分析試料を標準試料と同時に放射化し、定量目的元素に起因する放射性同位体の生成比から定量する、いわゆる比較法で行なわれている。この方法では、定量目的元素の濃度が正確に求められている標準試料を必要とする。

ところで、多くの元素においては放射化により同一元素中の数種の同位体からそれぞれ異なる

る放射性同位体が生成する。そのような元素については、標準試料を用いずに、あらかじめ定量目的元素の濃縮同位体を試料に一定量スパイクしたのちに放射化し、2種の放射性同位体の生成比の変化から定量することが可能である。我々はこの方法を安定同位体希釈放射化分析法と名付けた。本法は数多くの特徴を有しており、あらゆる放射化分析に適用可能である。本研究ではその基礎検討として、光量子放射化によるセリウム、亜鉛およびカルシウムの定量への応用を試みた。

§ 2. 安定同位体希釈放射化分析の原理

本法を適用するにあたっては、数種の安定同位体が存在し、放射化により測定に適した放射性同位体が生成することが前提条件となる。

ここで、Mなる元素を定量することを考える。試料中に $x \mu\text{g}$ のMを含む場合、 M_1 および M_2 なる同位体の数は、原子量を A 、それぞれの同位体存在比を θ_1 および θ_2 とすると、 $\frac{x\theta_1}{A} \mu\text{mol}$ および $\frac{x\theta_2}{A} \mu\text{mol}$ となる。この試料に、Mの濃縮同位体 M^* (原子量 A^* 、同位体存在比 θ_1^* 、 θ_2^*) を $y \mu\text{g}$ スパイクすると、 M_1 と M_2 の数はそれぞれ

$$\left(\frac{x\theta_1}{A} + \frac{y\theta_1^*}{A^*} \right) \mu\text{mol} \quad \text{および} \quad \left(\frac{x\theta_2}{A} + \frac{y\theta_2^*}{A^*} \right) \mu\text{mol} \quad \text{となる。}$$

そこで、試料およびスパイク試料を同時に放射化した場合、 M_1 と M_2 から生成する放射性同位体の放射能 a_1 と a_2 の比 R は、

$$R = \frac{a_1}{a_2} = \frac{n_1 \cdot N_0 \cdot Y_1 \cdot F \cdot (1 - e^{-\lambda_1 t})}{n_2 \cdot N_0 \cdot Y_2 \cdot F \cdot (1 - e^{-\lambda_2 t})} \quad (1)$$

で表わされる。 n_1 と n_2 は M_1 と M_2 のモル数、 N_0 はアボガドロ数、 Y は核反応収率、 F は照射粒子の線束密度、 $(1 - e^{-\lambda t})$ は照射時間 t における飽和係数である。

ゆえに、試料およびスパイク試料での生成放射能の比を R および R^* とすると、その比 R^*/R は(1)式から

$$\frac{R^*}{R} = \frac{\frac{x\theta_1}{A} + \frac{y\theta_1^*}{A^*}}{\frac{x\theta_2}{A} + \frac{y\theta_2^*}{A^*}} \bigg/ \left(\frac{\frac{x\theta_1}{A}}{\frac{x\theta_2}{A}} \right) \quad (2)$$

が得られ、核反応収率、線束密度および飽和係数は全て消去され試料およびスパイク試料での同位体の数の比のみが残ることになる。

そこで、(2)式から未知量 x を求める式として

$$x = y \cdot \left(\frac{A}{A^*} \right) \cdot \frac{\left(\frac{R^*}{R} \right) \left(\frac{\theta_2^*}{\theta_2} \right) - \left(\frac{\theta_1^*}{\theta_1} \right)}{1 - \left(\frac{R^*}{R} \right)} \quad (3)$$

が導かれる。

原子量や同位体存在比は定数であり、スパイク量 y はわかっているから、試料およびスパイク試料での生成比 R と R^* を求めるだけで未知量 x が求められることになる。

ところで、生成放射能 a と r 線全エネルギーピーク面積 c の間には、 r 線の検出効率を f 、1崩壊あたりの r 線の放出確率を α とすると $c = a \times f \times \alpha \dots\dots(4)$ なる関係があるから R^*/R は

$$\frac{R^*}{R} = \frac{(a_1^*/a_2^*)}{(a_1/a_2)} = \frac{(c_1^*/c_1^*)}{(c_1/c_2)} \quad (5)$$

となり、比をとることにより補正係数は消去され、分析の際には単に r 線のピーク面積を求めればよいことになる。

このように本法は、2種の放射性同位体から放出される r 線のピーク面積比を求めることにより定量が可能であり、照射線量の補正が不要であるため従来の放射化分析に比べいたって簡便といえる。

本法を光量子放射化分析に適用した場合、定量可能な元素としてカルシウム、チタン、亜鉛ストロンチウム、セリウムおよびアンチモンなど数多くの元素があげられる。照射条件や測定条件などを工夫すれば、モノアイソトピックな元素や数種の元素を除いてかなりの元素の定量が可能ははずである。また本法を荷電粒子放射化や中性子放射化に応用すれば更に特色ある分析が実施できると期待される。

本研究では、基礎検討としてカルシウム、亜鉛およびセリウムの光量子放射化分析に適用しその有効性を確めた。

§ 3. 実 験

濃縮同位体 ^{142}Ce 、 ^{68}Zn および ^{48}Ca は ORNL 製造の $^{142}\text{Ce O}_2$ (83.10%)、 $^{68}\text{Zn O}$ (98.97%) および $^{48}\text{Ca CO}_3$ (78.4%) を用いた。また、各元素の標準溶液は高純度の、 Ce O_2 、 Zn (金属) および Ca CO_3 を硝酸もしくは塩酸に溶解して調製した。

それぞれの元素の定量には、それぞれの元素の標準溶液を濾紙にしみこませたものおよび標準溶液の一定量に濃縮同位体を含む溶液を一定量スパイクしその一部を濾紙にしみこませたも

のを準備し、乾燥後、それぞれ直径10mmのペレット状に加圧成型し石英管に封入した。

試料およびスパイク試料は同時に 30 MeV 制動輻射で 2～4 時間照射し、生成放射能を γ 線スペクトロメトリーすることにより定量した。

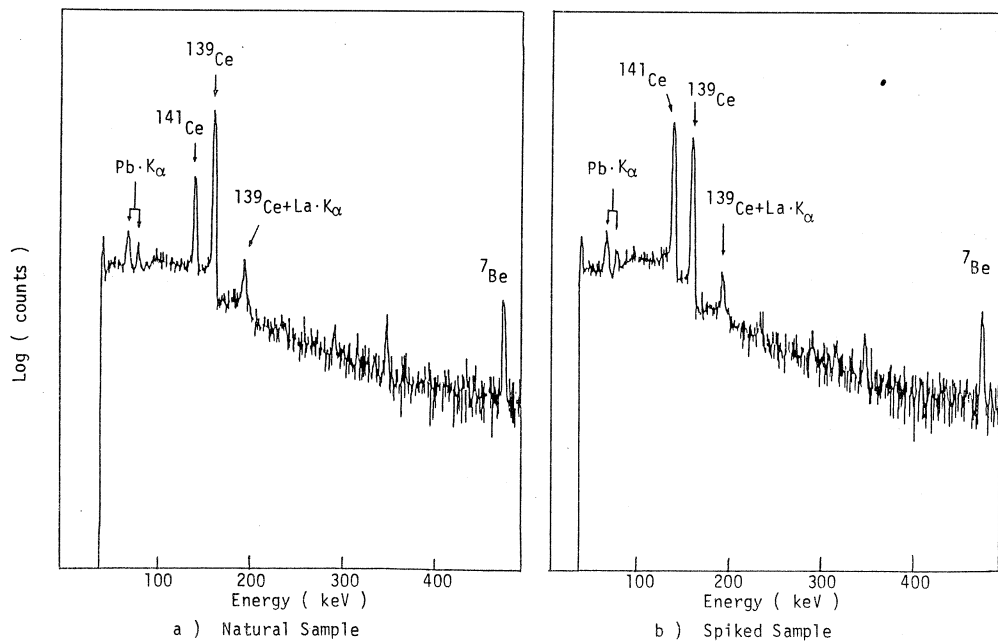
§ 4. 結果および考察

4.1 セリウムの定量

セリウムは安定同位体として質量数 136, 138, 140 および 142 のものがある。30MeV制動輻射による放射化では主に (r, n) 反応が生じる。セリウムの核データを第 1 表に示した。この中で半減期が長く感度良く検出できるものとして ^{139}Ce および ^{141}Ce がある。そこで、

第 1 表 Nuclear data for cerium.

Target	Abundance/%	Reaction	Product	$T_{1/2}$	Principal γ -ray /keV
^{136}Ce	0.190	(r, n)	^{135}Ce	17.8 h	207, 266, 300
^{138}Ce	0.254	(r, n)	^{137}Ce	9.0 h	447
			^{137m}Ce	34.4 h	254
^{140}Ce	88.5	(r, n)	^{139}Ce	137.2 d	166
^{142}Ce	11.1	(r, n)	^{141}Ce	32.5 d	145



第 1 図 γ -ray spectra of natural and spiked cerium sample activated by 30MeV bremsstrahlung.

^{142}Ce をスパイクし, ^{141}Ce と ^{139}Ce の生成比から定量することを考えた。

分析の例として, 標準溶液の濃度決定に本法を応用した。標準溶液 (258.7 $\mu\text{g Ce}$) にスパイク溶液 (212.9 $\mu\text{g}^{142}\text{Ce}$) を加えたものの一部を濾紙にしみこませたスパイク試料 2 個と標準溶液のみをしみこませた濾紙 2 個を同時に放射化した。照射後約 1 週間での r 線スペクトルを第 1 図に示した。試料(a)とスパイク試料(b)それぞれにおいて ^{141}Ce の 145 keV r 線と ^{139}Ce の 166 keV r 線および EC 壊変に伴う La-K α X 線とのサムピークがみられる。 ^7Be は濾紙の構成元素である炭素から $^{12}\text{C}(\gamma, \alpha n)^7\text{Be}$ 反応により生じたものである。両スペクトルを比較すると ^{139}Ce と ^{141}Ce の r 線の相対強度があきらかに変化していることがわかる。そこで定量には, 試料およびスパイク試料で 145 keV r 線と 166 keV r 線のピーク面積比を求めればよいことになる。結果を第 2 表に示した。 R は試料での $^{141}\text{Ce}/^{139}\text{Ce}$ を示しており, R^* はスパイク試料での値である。 R は 2 個の平均をとったが若干値にバラツキがみられた。(3) 式を用いて定量した値は 233.7 μg となり, セリウム標準溶液に含まれていると考えられる量 258.7 μg に対し約 1 割低い値を示した。この差については再度標準溶液を調製し更に検討する予定である。

第 2 表 Analytical results obtained by cerium sample.

R	R^*	R^*/R	Ce/ μg
4.1686	0.62812	0.15073	233.6
± 0.0778	0.62841	0.15080	233.7
Average			233.7
Added			258.7
% Dev.			-9.7

$$R, R^* = ^{139}\text{Ce}/^{141}\text{Ce}$$

4.2 亜鉛の定量

亜鉛についてもセリウムと同様のことを試みた。亜鉛の安定同位体には質量数 64, 66, 67, 68 および 70 のものがある。30 MeV 制動輻射による放射化では (r, n) 反応や (r, p) 反応などが生じ, ^{62}Zn , ^{63}Zn , ^{65}Zn , $^{69\text{m}}\text{Zn}$, ^{62}Cu , ^{64}Cu , ^{66}Cu および ^{67}Cu などの放射性核種が生成する。このなかで比較的半減期が長く, 測定に適した r 線を放出するものとしては, ^{62}Zn , ^{65}Zn , $^{69\text{m}}\text{Zn}$ および ^{67}Cu があげられる。これらの核データを第 3 表に示した。本実験では,

第 3 表 Nuclear data for zinc.

Target	Abundance/%	Reaction	Product	$T_{1/2}$	Principal r -ray/keV
^{64}Zn	48.6	($r, 2n$)	^{62}Zn	9.2 h	507, 548, 597
^{66}Zn	27.9	(r, n)	^{65}Zn	244.1 d	1116
^{68}Zn	18.8	(r, p)	^{67}Cu	61.9 h	93, 185
^{70}Zn	0.62	(r, n)	$^{69\text{m}}\text{Zn}$	14.0 h	439

^{68}Zn 濃縮同位体を用い、 ^{67}Cu の185 keV r 線に対する ^{62}Zn の597 keV r 線または ^{65}Zn の1116 keV r 線のピーク面積比から定量を行なうことにした。

亜鉛の標準溶液(399.2 $\mu\text{g Zn}$)に ^{68}Zn を150.0 μg スパイクしたものを、標準溶液そのままのものと同時に放射化した。試料はそれぞれ3個作製した。分析結果を第4表に示した。

^{65}Zn との比では $402 \pm 22 \mu\text{g}$ 、 ^{62}Zn との比では $395 \pm 21 \mu\text{g}$ で相対標準偏差5%程度といずれも良い再現性を示し、添加量399.2 μg に対しても非常に良く一致した。

第4表 Analytical results obtained by zinc sample.

^{65}Zn , 1116 keV				^{62}Zn , 597 keV			
R	R^*	R^*/R	$\text{Zn}/\mu\text{g}$	R	R^*	R^*/R	$\text{Zn}/\mu\text{g}$
0.02682	0.009553	0.3562	423	0.3048	0.09994	0.3279	374
± 0.00034	0.009228	0.3441	401	± 0.0087	0.10565	0.3466	407
	0.008914	0.3324	381		0.10531	0.3455	405
Average 402 \pm 22, %RSD 5.5				Average 395 \pm 21, %RSD 5.3			
Added 399.2, %Dev. + 0.7				Added 399.2, %Dev. - 1.1			

$R, R^* = ^{65}\text{Zn}/^{67}\text{Cu}$ (185 keV)

$R, R^* = ^{62}\text{Zn}/^{67}\text{Cu}$ (185 keV)

実試料の分析では ^{67}Cu と ^{65}Zn を利用するほうが、バックグラウンド放射能の影響をうけないためにより実際的であると思われる。

4.3 カルシウムの定量

カルシウムは陽子数が20とマジックナンバーであることおよび ^{40}Ca と ^{48}Ca は中性子数もマジックナンバーであることから質量数40から48まで広い質量範囲にわたって安定同位体が存在する。光量子放射化では $^{44}\text{Ca}(r, p)^{43}\text{K}$ 反応および $^{48}\text{Ca}(r, n)^{47}\text{Ca}$ 反応がカルシウムの定量に利用されている。その核データを第5表に示した。

本実験では ^{48}Ca 濃縮同位体を試料にスパイクし ^{47}Ca の1297 keV r 線に対する ^{43}K の373 keVまたは618 keV r 線のピーク面積比から定量を行なうことにした。

前と同様の方法でカルシウムの標準溶液(2280 $\mu\text{g Ca}$)に ^{48}Ca を15.24 μg スパイクした

第5表 Nuclear data for calcium.

Target	Abundance/%	Reaction	Product	$T_{1/2}$	Principal r -ray/keV
^{44}Ca	2.09	(r, p)	^{43}K	22.3 h	373, 618
^{48}Ca	0.187	(r, n)	^{47}Ca	4.536 d	1297

ものと標準溶液からそれぞれ4個の照射試料を作製し放射化した。分析結果を第6表に示した。373 keVでの定量結果は2320 μg 、618 keVでの定量結果は2238 μg でいずれも相対標準偏差が数パーセントと良い再現性を示し、標準溶液の量2280 μg に対して2%以内で一致した。

第6表 Analytical results obtained by calcium sample.

^{43}K , 373 keV				^{43}K , 618 keV			
R	R^*	R^*/R	Ca/ μg	R	R^*	R^*/R	Ca/ μg
	9.6213	0.2996	2364		4.6913	0.2923	2283
32.12	9.4446	0.2941	2302	16.05	4.5757	0.2851	2204
± 0.72	9.6304	0.2998	2367	± 0.81	4.6163	0.2876	2231
	9.2800	0.2889	2245		4.6195	0.2878	2233
Average 2320 \pm 58, %RSD 2.5 Added 2280, %Dev. + 1.8				Average 2238 \pm 33, %RSD 1.5 Added 2280, %Dev. - 1.8			

$R, R^* = ^{43}\text{K}/^{47}\text{Ca}$ (1297 keV)

^{48}Ca の濃縮係数が大きい為、(3)式で $\left(\frac{\theta_2^*}{\theta_2}\right)$ の項が $\left(\frac{R^*}{R}\right)\left(\frac{\theta_1^*}{\theta_1}\right)$ に対して無視でき、(3)式は

$$x = y \cdot \frac{\left(\frac{A}{A^*}\right)\left(\frac{\theta_1^*}{\theta_1}\right)}{\left(\frac{R}{R^*}\right) - 1} \quad (6)$$

と非常に簡単になる。本実験では(3)式により定量したが、(6)式を用いても定量値に0.2%程度しか影響を与えず、4桁目が変わるだけで実際上問題にはならないことがわかった。

これは、先の亜鉛の定量の場合にも成立し、 ^{65}Zn での定量結果が402に対し404、 ^{62}Zn での定量結果が395に対し396とわずかに増加するだけで大きな影響を与えない。

このように、濃縮度の高い濃縮同位体が利用できる場合には本法は更に簡単な計算で定量が行なえることになりより実用的である。

また、 R は照射条件とくに照射エネルギーが同じであれば同じ測定器で測定するかぎりいつでも同じ値を与えるはずであり、二本の r 線のピーク面積比は試料の形状や測定のジオメトリが多少異なってもほとんど変化しないことから、通常の放射化分析にくらべて、より簡便であるといえる。

§ 5. 結 論

セリウム・亜鉛およびカルシウムの光量子放射化分析を例に本法が定量法として利用できる

ことを示してきたが、ここで本法の特徴をまとめてみると以下のようになる。

- (1)標準試料を必要とせず、2種の放射性同位体の生成比から定量できる。
- (2)生成比は照射線量率に依存しないため、線量の補正が不要である。
- (3)試料に直接スパイクするため、自己遮蔽などマトリックスの影響が無視できる。
- (4)一般の同位体希釈法は同位体平衡が成立していることが前提条件であるが、本法は核反応を基礎にしているためスパイクの際の化学状態は問題とならず、単に混合されていればよい。
- (5)放射化分析法全般に適用でき広い応用がはかられる。とくに荷電粒子放射化分析のように照射粒子の試料内での飛程が問題となり、また照射線量の補正がやっかいなような場合には、本法を適用すれば飛程計算や照射線量の測定が不要でいたって簡便に定量が可能となり、荷電粒子放射化分析がより実用的な分析法となることが期待される。

本法の精度、正確さの向上には濃縮同位体の存在比が正確で、化学組成がはっきりしたものをを用いることが条件であり、また、2種の放射性同位体からの γ 線もしくはX線を感度よく検出できなければならない。天然物の分析では最後の条件がマトリックス放射能のためむずかしくなる場合も考えられる。その場合にはスパイク後、照射の前か後に化学分離を施すことが必要になるかもしれない。しかし、単に生成比を求めるだけであるから、完全回収や化学収率の補正などは全く不要で単純な化学分離法で解決されうる。この際には同位体交換を完全にする必要が生じる。

以上述べてきたように本法は数多くの特徴を有しており、今後の発展の可能性がある。我々は本法を光量子放射化のみならず中性子放射化や荷電粒子放射化にも適用し、今後一層広範な応用を検討する予定である。

無担体³⁹Cl標識臭化アルキルの簡易迅速調製法

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 developed for ¹⁸F-labelled alkylfluorides (refs. 1-3) was applied to preparation of similar ³⁹Cl-labelled organics. The syntheses were carried out by using nucleophilic substitution reactions with the corresponding bromo- and iodo-organics, and/or interhalogen exchange reactions with the corresponding chloro-organics.

§ 1. 緒 言

先に,¹⁸F標識無水フッ化水素は表面酸化処理銀ウール・カラム上に完全に捕集されて¹⁸F標識フッ化銀を生成し,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る¹⁸F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・迅速に実施できることを報告した¹⁻³⁾。

本方法は全く同様操作によって無担体^{34m}Cl,³⁸Clまたは³⁹Cl標識化合物の合成,分離にも利用でき,またさらに塩化アルキルにたいする^{34m}Cl,³⁸Clあるいは³⁹Clの同位体交換反応による非無担体³⁹Cl標識化合物の合成・分離にも応用できる。

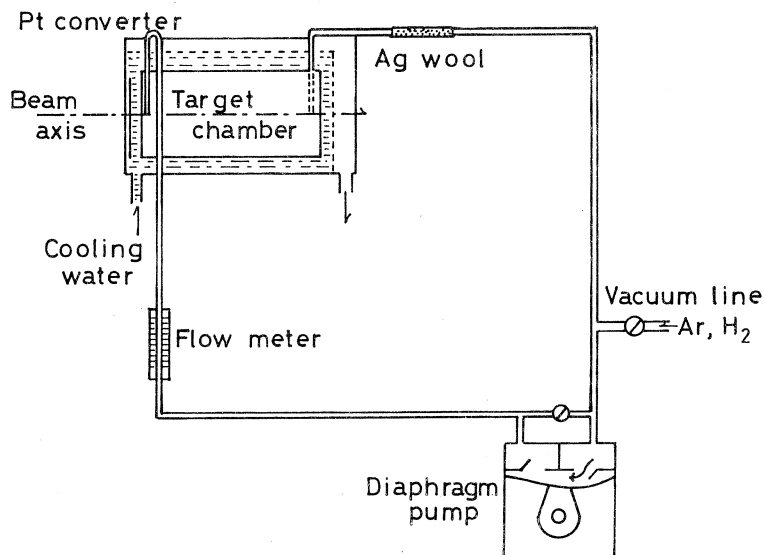
そこで本研究においては無担体³⁹Clを電子リニアックを利用して調製し,それらについての基礎的検討をおこなうことを試みた。

§ 2. 実 験

2.1 試薬およびH³⁹Clの製造と捕集

銀ウールはMerck社製(Art. 1506)を用い太さ約3mm,長さ13cmの紐状にした。ついで白金電極を用い1N NaOH溶液中で4~5V,0.3~0.5A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。

無担体 ^{39}Cl は $^{40}\text{Ar}(\gamma, p)^{39}\text{Cl}$ 反応を利用して製造した。アルゴンにたいする光核反応では同時に $^{40}\text{Ar}(\gamma, pn)^{38}\text{Cl}$ および $^{40}\text{Ar}(\gamma, 2p)^{38}\text{S}$ 反応が生起するが、入射制動輻射線の最大エネルギーを30MeVにすればこれら反応はかなり防ぐことができる⁴⁾。純アルゴン・ガスに数パーセント程度の水素を混入してガス・ターゲットとし、第1図に示したような高純度石英製ターゲット・チェンバー、ダイヤフラム・ポンプ等から構成される環流回路系



第1図 A schematic diagram of the recirculatory gas target system for preparation of carrier-free ^{39}Cl -labelled silverwool.

にそれを約1気圧導入した。ターゲット・チェンバーは水冷し、これに最大30MeVの制動輻射線を1時間照射し、生成した無担体 H^{39}Cl はチェンバー出口にセットした上記銀ウール・カラムで捕集した。

実験に用いた他の試薬はすべて最純品を使用した。

2.2 置換反応による無担体 ^{39}Cl 標識化合物の調製

既開発ラジオ・ガス・クロマトグラフに⁵⁾、前述の無担体 ^{39}Cl 捕集銀ウール・カラムを ^{18}F 標識フッ化アルキルの簡易・迅速調製法の場合と同様に接続し操作し^{1, 3)} 無担体 ^{39}Cl 標識化合物の調製をおこなった。すなわち銀ウール・カラムは電気炉によって 200°C に加熱し、通常で通常のガス・クロマトグラフ法にしたが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、 $1\mu\text{l}$ 注入する。注入試薬は銀ウール・カラムを通過するとき

Br (または I) - ^{39}Cl 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流出してくる。分離には60~80メッシュ Celite 545 (20% TCP) をつめた内径 3 mm, 長さ 1.5 m のカラムを用い、ヘリウム担体ガスは $20\text{ml}\cdot\text{分}^{-1}$, また分離カラム温度は 50°C 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 ^{39}Cl 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置くことによって捕集した。

2.3 同位体交換反応による ^{39}Cl 標識化合物の調製

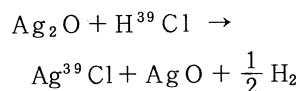
適当な塩化アルキルを注入試薬として用いると注入試薬が銀ウール・カラムを通過する際、 $\text{Cl}-^{39}\text{Cl}$ 同位体交換反応を起し、引続くガス・クロマトグラフによって注入試薬と生成 ^{39}Cl 標識化合物は同時に流出されてくる。そこで 2.2 と全く同様にして塩化アルキル $1\ \mu\text{l}$ を注入し非無担体 ^{39}Cl 標識化合物の調製をおこなった。

§ 3. 結果と考察

3.1 銀ウール・カラムによる無担体 H^{39}Cl の捕集

表面酸化処理銀ウール・カラムは無担体 H^{39}Cl の捕集にも極めて有効であることがわかった。

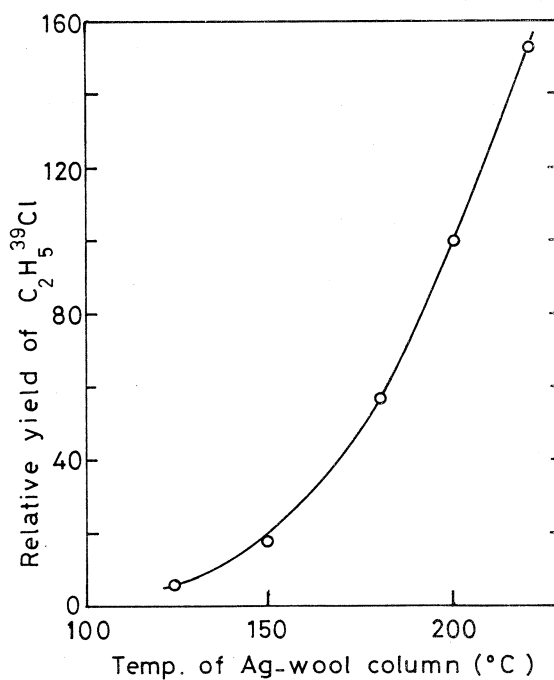
この捕集反応は ^{18}F の場合の類推から次のように表わされる。



表面酸化処理から長時間経過した銀ウール・カラムは無担体 H^{39}Cl の捕集率を著しく低下させた。そこで銀ウール・カラムは調製から1時間以内のもののみ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- ^{39}Cl 置換反応をおこなう銀ウール・カラムの最適温度は $\text{C}_2\text{H}_5\text{Br}$ を注入試薬とした無担体 $\text{C}_2\text{H}_5^{39}\text{Cl}$ の合成で検討した。



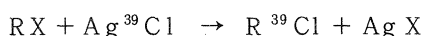
第2図 Temperature effect of the silver wool column for ^{39}Cl -labelling.

えられた結果は第2図に示した。150℃以上で置換反応は急激に進行し無担体C₂H₅³⁹Cl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℃でおこなうことにした。

一方同位体交換による³⁹Cl標識化での銀ウール、カラムの最適温度の検討もまた前述の場合とほぼ同様の傾向を示し、熱分解生成物生成の傾向も同様であった。以後、これら検討もすべて200℃でおこなうことにした。

3.3 塩、臭、ヨウ化物にたいする³⁹Cl置換反応の反応性

ハロゲン化アルキルにたいする無担体³⁹Cl標識塩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-³⁹Cl同位体交換反応、臭化アルキルの場合はBr-³⁹Cl, ヨウ化アルキルの場合はI-³⁹Cl置換反応として進行する。これら反応の反応性はn-C₃H₇Cl, n-C₃H₇Brおよびn-C₃H₇Iを用いてn-C₃H₇³⁹Clの相対生成比を求めることで検討した。えられた結果は第1表に示した。表ではn-C₃H₇Iから生成するn-C₃H₇³⁹Clの生成比を100としてそれぞれの相対生成比を示した。

第1表 Relative yields of n-C₃H₇³⁹Cl produced from n-C₃H₇X
(X = I, Br and Cl)

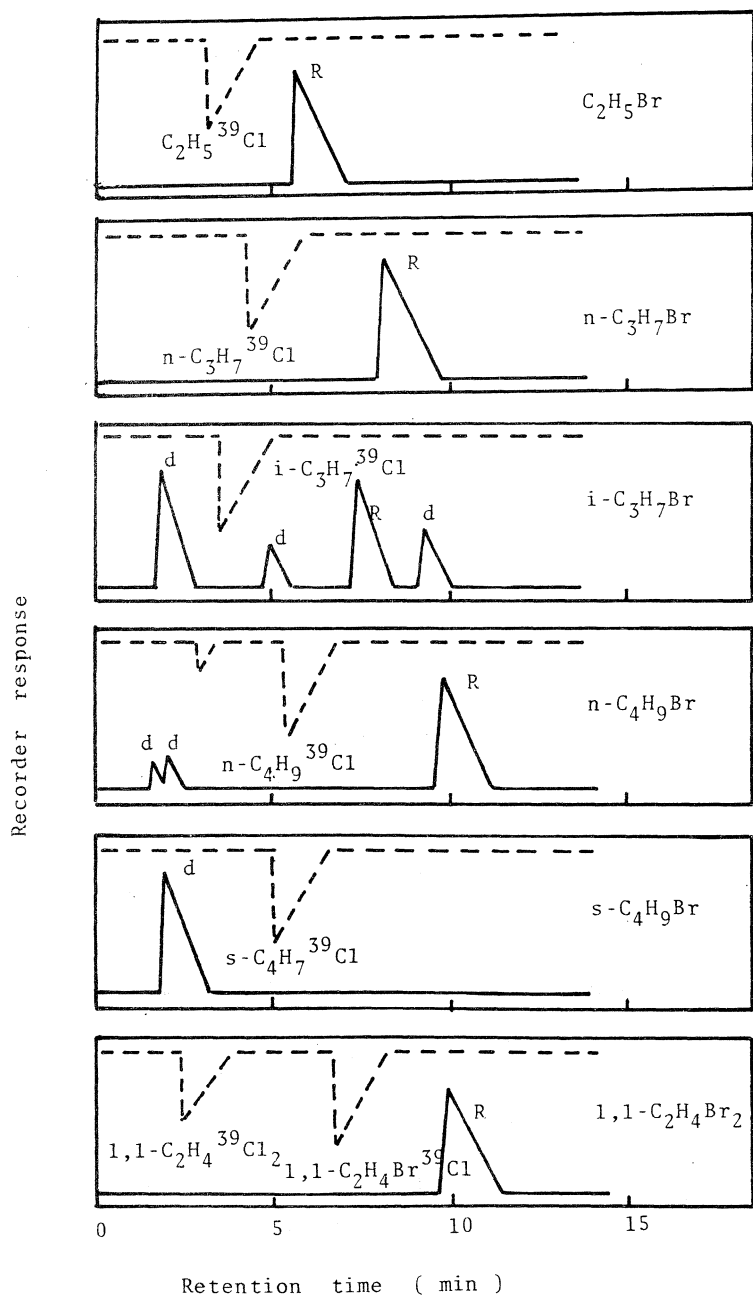
Reactant	product	Relative yield
n-C ₃ H ₇ I	n-C ₃ H ₇ ³⁹ Cl	100
n-C ₃ H ₇ Br	n-C ₃ H ₇ ³⁹ Cl	11
n-C ₃ H ₇ Cl	n-C ₃ H ₇ ³⁹ Cl	0.8

相対生成比はCl < Br < Iの順で、ヨウ化アルキルの場合が最も効果的で、塩化アルキルによる同位体交換反応による場合はその生成比が著しく低下させられることがわかった。

3.4 置換反応による種々の臭化アルキルにたいする³⁹Cl標識化

3.3の結果からヨウ化アルキルを用いれば³⁹Cl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C₂H₅Br, C₃H₇Br, C₂H₉Br, C₂H₂Br₂, C₂H₄Br₂などにたいする³⁹Cl標識化を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・クロマトグラフの一部は第3図に示した。

C₂H₅Br, n-C₃H₇Brの場合は生成無担体³⁹Cl標識化合物と注入試薬の分離は極めて良好で、ほとんど熱分解生成物の生成も認められなかった。一方i-C₃H₇Br, n-, s-, t-



第3图 Radio-gas chromatograms obtained by nucleophilic substitution reaction of several alkyl-bromides. (.....: Activity trace, ———: Mass trace, R: Reactant, d: Decomposition product)

C_4H_9Br の場合は無担体 ^{39}Cl 標識化合物の分離は良好であったが、注入試薬の熱分解がかなり進み、特に $t-C_4H_9Br$ ではその熱分解が著しく、ほとんど ^{39}Cl 標識化合物は生成するにいたらなかった。

ラジオ・クロマトグラフおよびガス・クロマトグラフを解析することにより無担体 ^{39}Cl 標識化合物の相対収率と注入試薬の熱分解率をそれぞれ求め、えられた結果は第2表に示した。

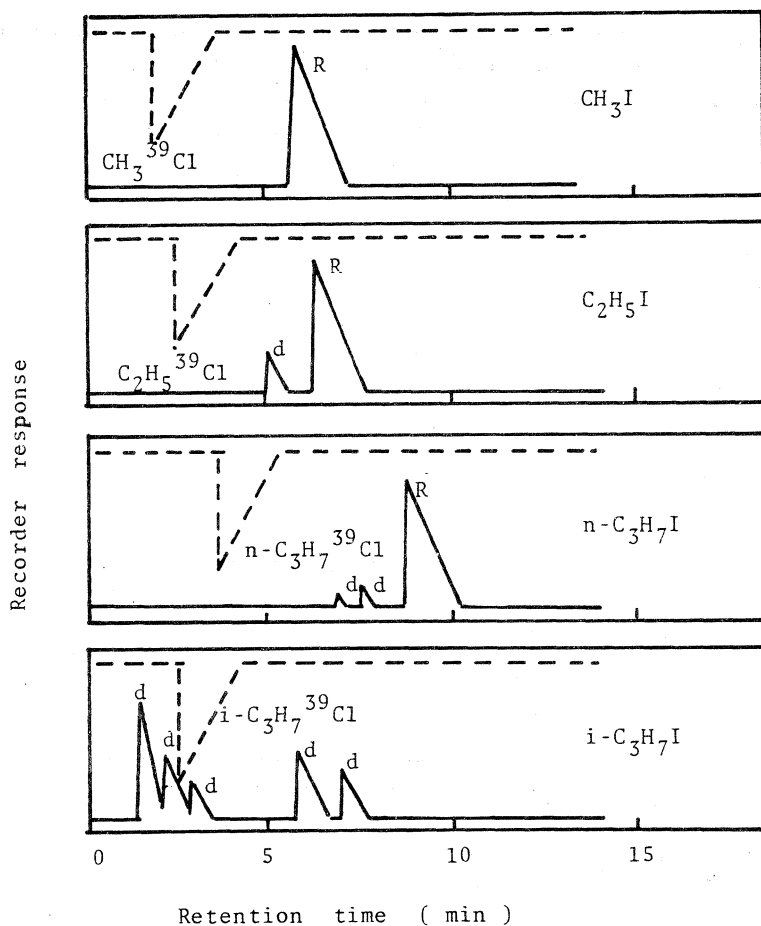
第2表 Carrier-free ^{39}Cl -labelled alkylchlorides prepared by using alkylbromides as the reactant.

Reactant	Product	Relative yield	Pyrolysis (%)
C_2H_5Br	$C_2H_5^{39}Cl$	102	1
$n-C_3H_7Br$	$n-C_3H_7^{39}Cl$	100	2
$i-C_3H_7Br$	$i-C_3H_7^{39}Cl$	402	40
$n-C_4H_9Br$	$n-C_4H_9^{39}Cl$	105	3
$i-C_4H_9Br$	$i-C_4H_9^{39}Cl$	119	48
$s-C_4H_9Br$	$s-C_4H_9^{39}Cl$	288	99
$t-C_4H_9Br$	$t-C_4H_9^{39}Cl$	25	99
CH_2Br_2	$CH_2^{39}Cl_2$ $CH_2Br^{39}Cl$		
$1,1-C_2H_4Br_2$	$1,1-C_2H_4^{39}Cl_2$ $1,1-C_2H_4Br^{39}Cl$		
$1,2-C_2H_4Br_2$	$1,2-C_2H_4^{39}Cl_2$ $1,2-C_2H_4Br^{39}Cl$		
CH_2CHCH_2Br	$CH_2CHCH_2^{39}Cl$	946	95

C_2H_5Br , $n-C_3H_7Br$, $n-C_4H_9Br$, $i-C_4H_9Br$ などの1級ハロゲン化物の相対収率はほぼ等しかったが、それら異性体である $i-C_3H_7Br$, $s-C_4H_9Br$ など2級ハロゲン化物では反応性が大となる傾向を示した。しかし3級ハロゲン化物 $t-C_4H_9Br$ になると逆にその相対収率は低下した。2個の臭素原子をもつ CH_2Br_2 , $C_2H_4Br_2$ においては1個の臭素を置換したものと2個の臭素を置換した生成物がえられ、相対収率は求めてないが、いずれも前者の収率が後者を上まわり熱分解生成物の生成も僅少であることを示した。

3.5 置換反応による種々のヨウ化アルキルにたいする ^{39}Cl 標識化

ここでは CH_3I , C_2H_5I , $n-C_3H_7I$, $i-C_3H_7I$ および $n-C_4H_9I$ にたいする ^{39}Cl 標識化について検討した。えられたラジオ・クロマトグラフおよびガス・クロマトグラフの一部は第4図に示した。 $i-C_3H_7I$ の場合を除き生成無担体 ^{39}Cl 標識化合物と注入試薬の分離は良好で、また熱分解生成物の生成も僅かであった。



第4図 Radio-gas chromatograms obtained by nucleophilic substitution reaction of several alkyl-iodides.

(..... : Activity trace, — : Mass trace, R : Reactant, d : Decomposition product)

ラジオ・クロマトグラフおよびガス・クロマトグラフを解析することにより標識化合物の相対収率および注入試薬の熱分解率をそれぞれ求め、えられた結果は第3表に示した。

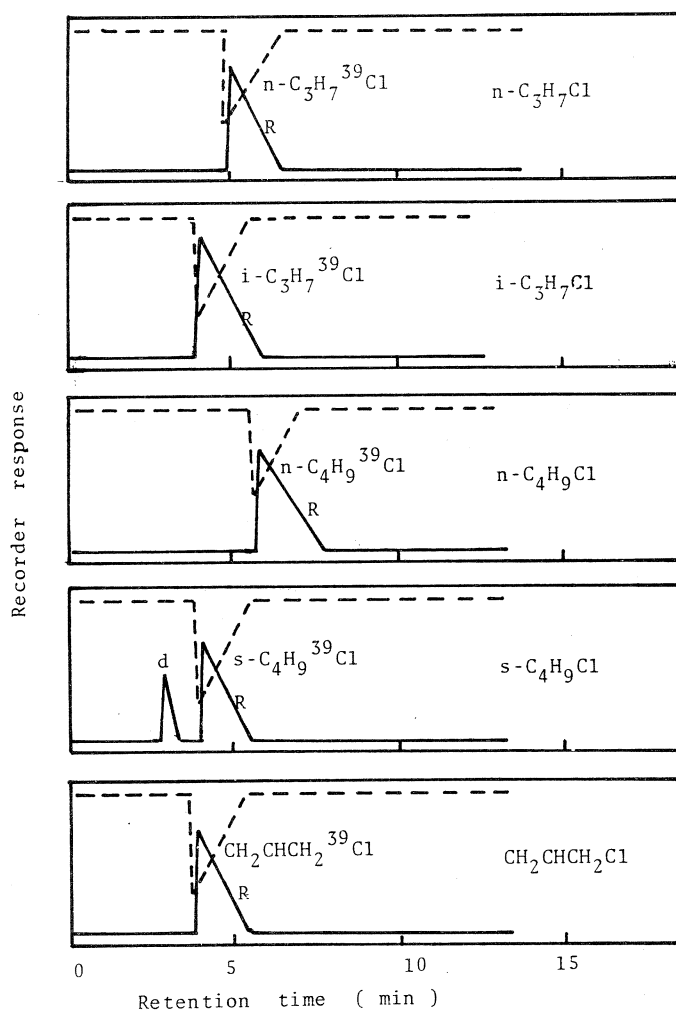
1級ハロゲン化物ではほぼ等しい相対収率がえられたが、2級ハロゲン化物の $i\text{-C}_3\text{H}_7\text{I}$ では、熱分解生成物の生成も含めて増大する傾向を示した。

3.6 同位体交換反応による種々の塩化アルキルにたいする ^{39}Cl 標識化

3.3の結果から $\text{Cl}\text{-}^{39}\text{Cl}$ 同位体交換反応による ^{39}Cl 標識化は、3.4, 3.5置換反応に比較して効率が悪いことは明らかである。しかし注入試薬の安定性とその入手しやすさは臭化物、

第3表 Carrier-free ^{39}Cl -labelled alkylchlorides prepared by using alkyl iodides as the reactant.

Reactant	Product	Relative yield	Pyrolysis (%)
CH_3I	$\text{CH}_3\text{ }^{39}\text{Cl}$	143	0
$\text{C}_2\text{H}_5\text{I}$	$\text{C}_2\text{H}_5\text{ }^{39}\text{Cl}$	103	2
$n\text{-C}_3\text{H}_7\text{I}$	$n\text{-C}_3\text{H}_7\text{ }^{39}\text{Cl}$	100	5
$i\text{-C}_3\text{H}_7\text{I}$	$i\text{-C}_3\text{H}_7\text{ }^{39}\text{Cl}$	320	90
$n\text{-C}_4\text{H}_9\text{I}$	$n\text{-C}_4\text{H}_9\text{ }^{39}\text{Cl}$	198	1



第5图 Radio-gas chromatograms obtained by interhalogen exchange reaction of several alkylchlorides.
 (..... : Activity trace, ——— : Mass trace, R : Reactant
 d : Decomposition product)

ヨウ化物よりまさっている。ここでは7種の塩化アルキルにたいする ^{39}Cl 標識化について検討した。

えられたラジオ・クロマトグラフおよびガス・クロマトグラフの一部は第5図に示した。いずれにおいても ^{39}Cl 標識生成物による放射能ピークと注入試薬によるマス・ピークは一致し、同位体交換反応が進行したことを示した。しかし一部の試薬においては熱分解生成物の生成が認められた。

ラジオ・クロマトグラフおよびガス・クロマトグラフを解析することにより ^{39}Cl 標識化合物の相対収率と注入試薬の熱分解率をそれぞれ求め、えられた結果は第4表に示した。

第4表 Noncarrier - free ^{39}Cl -labelled alkylchlorides prepared by interhalogen exchange reaction.

Reactant	Product	Relative yield	Pyrolysis (%)
n-C ₃ H ₇ Cl	n-C ₃ H ₇ ³⁹ Cl	100	0
i-C ₃ H ₇ Cl	i-C ₃ H ₇ ³⁹ Cl	1040	0
n-C ₄ H ₉ Cl	n-C ₄ H ₉ ³⁹ Cl	166	1
i-C ₄ H ₉ Cl	i-C ₄ H ₉ ³⁹ Cl		2
s-C ₄ H ₉ Cl	s-C ₄ H ₉ ³⁹ Cl	1545	6
t-C ₄ H ₉ Cl	t-C ₄ H ₉ ³⁹ Cl	96	1
CCl ₄	CCl ³⁹ Cl		
	3 unknown products		
CH ₂ CHCH ₂ Cl	CH ₂ CHCH ₂ ³⁹ Cl	3650	1

置換反応による ^{39}Cl 標識化の場合に比較して2級ハロゲン化物を注入試薬とした場合、その相対収率は著しく増大することがわかった。しかし3級ハロゲン化物ではそれは置換反応による場合と同様低下する傾向を示した。

参 考 文 献

- 1) M. Yagi, G. Izawa and Y. Murano : Radiochem. Radioanal. Lett. **49** (1981) 173.
- 2) 八木, 伊沢, 村野 : 核理研研究報告 **14** (1981) 61.
- 3) M. Yagi, G. Izawa and Y. Murano : Ann. Rept. CYRIC (1980) 180.
- 4) M. Yagi, K. Kondo and A. Yamadera : Int. J. Appl. Radiat. Isotopes **30** (1979) 123.
- 5) K. Kondo and M. Yagi : J. Radioanal. Chem. **56** (1980) 7.

Ⅳ 論 文 リ ス ト

論 文 リ ス ト

核理研共同利用の成果を核理研研究報告以外の学術雑誌に掲載された論文(昭和55年1月～12月)の題目を集録しました。

I 原子核物理

1. Magnetic Multipole Transitions in ^{24}Mg by Inelastic Electron Scattering at 180°
T. Saito, K. Saito and Y. Torizuka : *Proc. 1980 RCNP Int. Symp. Highly Excited States in Nuclear Reactions, Ohsaka, 1980*, ed. H. Ikegami and M. Muraoka, p. 257.
2. Study of Strong M2 and M4 Spin-Isospin Mode Analog States at 4.5 MeV in ^{12}B in $^{12}\text{C} (e, \pi^+)^{12}\text{B}$.
K. Shoda, H. Tsubota, H. Ohashi, M. Yamazaki, K. Min and E. J. Winhold :
ibid. p. 299.
3. Pionic Correlation Effects in $^6\text{Li} (\tau, \pi^+)^6\text{He}$ — A Precursor to Pion Condensation —
K. Shoda and T. Kohmura : ibid. p. 521.
4. Study of Strong Spin-Isospin Mode Analog States at 4.5 MeV in ^{12}B in $^{12}\text{C} (e, e'\pi^+)^{12}\text{B}$.
K. Min, E. j. Winhold, K. Shoda, H. Tsubota, H. Ohashi and M. Yamazaki
Phys. Rev. Lett. **44** (1980) 1384.
5. (e, π^+) Reactions on Nuclei leading to Discrete Residual States.
K. Shoda : *Lecture Notes 1980 INS Kikuchi Summer School on Nuclear Physics at High Energies, 1980*, ed. F. Sakata. p. 343.
6. Electroproduction of π^+ from ^{12}C leading to Low-lying Residual States in ^{12}B .
K. Shoda, H. Ohashi and K. Nakahara : *Nucl. Phys.* **A 350** (1980) 377.
7. A Study of Photoreactions in ^{48}Ti .
R. Sutton, M. N. Thompson, M. Sugawara, K. Shoda, T. Saito and
H. Tsubota : *Nucl. Phys.* **A 339** (1980) 125.

8. Study of the Decay Mode of the $T > \text{GDR}$ on ^{139}La and ^{141}Pr by the (e, p) Reactions.
J. Uegaki and K. Shoda : *Proc. 1980 RCNP Int. Symp. Highly Excited States in Nuclear Reactions, Ohsaka, 1980*, ed. H. Ikegami and M. Muraoka. p.488.
9. The $T > \text{GDR}$ and the Characteristic Decay Mode by the (e, p) Reaction on ^{139}La and ^{141}Pr .
J. Uegaki and K. Shoda : *Nucl. Phys.* **A 341** (1980) 125.
10. The $^{14}\text{N}(e, d_0)$ Reaction in the Giant Multipole Resonance Region.
H. Taneichi, H. Ueno, K. Shoda, Y. Kawazoe and T. Tsukamoto : *Nucl. Phys.* **A 350** (1980) 157.
11. Charged Particle Photoemission from ^{42}Ca .
R. Pywell, M. N. Thompson, K. Shoda, M. Sugawara, T. Saito, H. Tsubota, H. Miyase, J. Uegaki, T. Tamae, H. Ohashi and T. Urano : *Aust. J. Phys.* **33** (1980) 685.
12. Statistical and pre-equilibrium (γ, α) cross sections of ^{90}Zr and their multipolarities via the $^{90}\text{Zr}(e, \alpha)$ reaction.
T. Tamae, T. Urano, M. Hirooka and M. Sugawara : *Phys. Rev.* **C 21** (1980) 1758.

II 物性物理

1. Neutron Diffraction Studies of Atomic Structures of Amorphous Fe-Ge and Ni-Ge Alloys.
K. Yamada, Y. Endoh, Y. Ishikawa and N. Watanabe : *J. Phys. Soc. Jpn.* **48** (1980) 922.
2. Time of Flight Single Crystal Diffractometer Using a Position Sensitive Detector.
N. Niimura, T. Kubota, M. Sato, M. Arai and Y. Ishikawa : *Nucl. Instrum. & Methods.* **173** (1980) 517.
3. An Experimental Derivation of Partial Structure Functions of Amorphous

Pd₈₀Si₂₀ Alloys Using Combination of X-ray, Electron and Neutron Diffraction Experiments.

T. Fukunaga and K. Suzuki : Sci. Rep. RITU **A 28** (1980) 208.

4. Concentration Fluctuation in Tl₂Te-Tl Liquid System by Time-of-Flight Quasi-elastic Neutron Scattering Measurement.

K. Kai, S. Ukai and K. Suzuki : J. Phys. Soc. Jpn. **48** (1980) 2048.

5. The Short-Range Structure of Alkali Disilicate Glasses by Pulsed Neutron Total Scattering.

M. Misawa, D. L. Price and K. Suzuki : J. Non-Cryst. Solids. **37** (1980) 85.

6. Pair Ordering in Disordered Chain Molecules of Se_{0.25}-Te_{0.75} Liquid by Pulsed Neutron Total Scattering.

M. Misawa and K. Suzuki : J. Phys. (Paris), Colloq. **C 8** (1980) 203.

7. Structure Characterization of Amorphous Materials by Neutron Total Scattering (in Japanese).

K. Suzuki : Nippon Kessho Gakkai Shi (J. Crystallogr. Soc. Jpn.) **22** (1980) 29.

8. A Correlation between Atomic and Electronic Structure of Fe-B Amorphous Alloys.

K. Suzuki, F. Itoh, M. Misawa, M. Matsuura and T. Fukunaga : J. Phys. (Paris), Colloq. **C 8** (1980) 179.

III 放射化学

1. Isomeric Transition-activated ⁸⁰Br and ⁸²Br Reactions in the Gaseous CH₃Br-HBr System.

K. Kondo and M. Yagi : Bull. Chem. Soc. Japan **53** (1980) 304.

2. A new Window Flow Counter for Counting Radio Gas-chromatography Effluents.

K. Kondo and M. Yagi : J. Radioanal. Chem. **56** (1980) 7.

3. Production of ¹⁸F by means of Photonuclear Reactions and Preparation of

Anhydrous $H^{18}F$.

M. Yagi and R. Amano : Int. J. Appl. Radiat. Isotopes **31** (1980) 561.

4. Multielement determination in Floor Sediments of the Japan Sea by Nondestructive Photon Activation Analysis.

T. Kato and M. Kato : J. Radioanal. Chem. **57** (1980) 105.

5. Photon Activation Analysis of Trace Metals in Biological Materials via Collection of Metal Tropolone-5-Sulfonate Complexes onto Anion-Exchange Resin.

M. Yamashita and N. Suzuki : J. Radioanal. Chem. **60** (1980) 73.

6. A new Trace Element Standard Reference Materials with Polyacrylamide Gel Matrix for Radioactivation Analysis.

K. Masumoto and N. Suzuki : Radiochem. Radioanal. Lett. **42** (1980) 99.

7. Thermal Annealing Behavior of the Recoil ^{57}Co Produced by the ^{58}Ni (γ , p) ^{57}Co Reaction in Some Nickel Complexes.

T. Omori, S. -C. Wu and T. Shiokawa : Radiochim. Acta **27** (1980) 187.

8. Liquid-Liquid Partition Constants of Tri-n-octyl, Tris (2-ethylhexyl) and Triphenyl Phosphine Oxides.

K. Akiba, M. Wada and T. Kanno : J. Inorg. Nucl. Chem. **42** (1980) 261.

核理研研究報告 第14巻 第2号

1981年12月発行

発行所 東北大学理学部附属原子核理学研究施設
仙台市三神峯1-2-1 (郵便番号982)
電話 0222-45-2151 (代)

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

RESEARCH REPORT OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

Volume 14 Number 2 December 1981

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