

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 研 究 報 告

第 21 卷 第 1 号

1988 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判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」編集委員長

核理研研究報告 第21巻 第1号 目次

I 原子核物理

- I-1 閾値近傍における $D(e, e'p)$ 同時計数実験 1

(核理研, 教養部*, 情報センター**)

川原 英明, 野村 昌弘, 生井 克正

松山日出人, 玉江 忠明, 菅原 真澄

坪田 博明*, 宮瀬 晴久*, 川添 良幸**

- I-2 Measurements of $^{16}\text{O}(\gamma, n)$ Cross Section at 60° Using Tagged Photons
with Energies up to 100 MeV. 6

(メルボルン大, 核理研*, 教養部**)

G. J. O'Keefe, R. P. Rassool, M. N. Thompson,

寺沢 辰生*, 須田 利美*, 野村 和泉*

横川 淳*, 前田 和茂**

- I-3 $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}$ 反応におけるスピン・アイソスピン反転遷移の研究 13

(核理研, 教養部*)

加賀谷 聡, 庄田 勝房, 竹下 邦和, 島田 太平

小林 毅範, 坪田 博明*

II 放射化学

- II-1 SrおよびCs体系中の光核反応生成核種の分布 23

(サイクロ・RIセンター, 東大核研*, 追手門学院大**)

中村 尚司, 山寺 亮, 福村 明史, 加瀬 健

柴田 誠一*, 藤原 一郎**

- II-2 アセチルアセトナトコバルト錯体系における配位子中の ^{13}C より生成する ^7Be の錯体収率の異常性 38

(筑波大化学系)

沼田 靖, 荘司 準, 池田 長生

- II-3 ガリウムヒ素中の微量炭素の光量子放射化分析 42

(三菱金属中研, 核理研*, 金研**)

	吉岡 明, 野村 紘一, 川上 紀, 志村 和俊 榎本 和義*, 八木 益男**	
II-4	光量子放射化法による大気エアロゾルの元素分析	49
	(岩手大人文社会)	
	佐藤 允美, 北爪 英一	
II-5	数種のイオン会合系およびキレート系における置換不活性ロジウム(III) の溶媒抽出挙動	57
	(理学部化学)	
	鈴木 信男, 高橋 宏美, 井村 久則	
II-6	高汚染水からのゼオライトによるセシウムとストロンチウムの選択的除去	64
	(選研)	
	三村 均, 山岸 功, 秋葉 健一	
II-7	ゼオライトに対するウランの吸着特	71
	(選研)	
	石原 義尚, 三村 均, 秋葉 健一	
III 加速器・測定器		
III-1	Large Solid Angle Detectors for Medium Energy Protons	79
	(核理研, 教養部*, メルボルン大**)	
	野村 和泉, 今野 収, 前田 和茂*, D. McLean**	
	須田 利美, 寺沢 辰生, M. N. Thompson**, 鳥塚 賀治, 横川 淳	
III-2	電子線による熱ルミネッセンスシートの特性の研究	85
	(弘前大理)	
	渡辺善二郎, 小関 英明	
III-3	コヒーレント放射光	94
	(核理研, 理学部物理*, 工学部応用物理**)	
	中里 俊晴, 小山田正幸, 新村 信雄, 浦沢 茂一 今野 収, 神山 崇, 鳥塚 賀治, 池沢 幹彦* 難波 孝夫*, 近藤 泰洋**	

Ⅲ-4	低圧MWPCとプラスチック・シンチレーターによる陽子検出器……………101
	(核理研, 教養部*)
	生井 克正, 川原 英明, 野村 昌弘, 松山日出人
	玉江 忠明, 宮瀬 晴久*, 菅原 真澄
Ⅲ-5	電子線照射による真空材料からのガス分圧測定法の開発……………110
	(核理研)
	今野 收
Ⅳ	加速器・データ処理装置稼働状況
Ⅳ-1	昭和62年度マシン報告……………127
	(核理研マシングループ)
	栗原 亮, 浦沢 茂一, 小山田正幸, 柴崎 義信
	高橋 重伸, 中里 俊晴, 武藤 正勝
Ⅳ-2	データ処理装置報告……………131
	(核理研計測グループ)
	大沼 忠弘, 小田島明美, 武藤 正勝
Ⅴ	論文リスト……………135

Research Report of Laboratory of Nuclear Science
Volume 21, Number 1, June 1988
Content

I Nuclear Physics

- I - 1 D(e,e'p) Coincidence Experiment in the Threshold Region 1
Hideaki Kawahara, Masahiro Nomura, Katsumasa Namai
Hideto Matsuyama, Tadaaki Tamae, Masumi Sugawara
Hiroaki Tsubota, Haruhisa Miyase and Yoshiyuki Kawazoe
- I - 2 Measurements of $^{16}\text{O}(\gamma, n)$ Cross Section at 60° Using Tagged Photons
with Energies up to 100 MeV..... 6
Graeme. J. O'Keefe, Roger. P. Rassool, Maxwell. N. Thompson, Tatsuo
Terasawa, Toshimi Suda, Izumi Nomura, Jun Yokokawa, Kazushige Maeda
- I - 3 Spin-Isospin Flip Transition in $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}$ Reaction 13
Akira Kagaya, Katsufusa Shoda, Kunikazu Takeshita
Taihei Shimada, Katsunori Kobayshi and Hiroaki Tsubota

II Radiochemistry

- II - 1 Distributon of Radionuclides Induced by Photonuclear Reactions in Natural
Sr and Cs Assemblies 23
Takashi Nakamura, Akira Yamadera, Akifumi Fukumura
Takeshi Kase, Seiichi Shibata and Ichiro Fujiwara
- II - 2 Anormaly in Complex Yields of ^7Be Formed from ^{12}C of Ligands in
Acetylacetonatocobalt Complexes 38
Yasushi Numata, Hitoshi Shoji and Nagao Ikeda
- II - 3 Photon Activation Analysis of Trace Carbon in Gallium Arsenide 42
Akira Yoshioka, Koichi Nomura, Osamu Kawakami
Kazutoshi Simura, Kazuyoshi Masumoto and Masuo Yagi
- II - 4 Elemental Analysis of Aerosols by Photon Activation 49
Nobuyoshi Sato and Eiichi Kitazume

II - 5	Solvent Extraction Behavior of Rhodim(III) in Some Ion-Association and Chelate Extraction Systems	57
	Nobuo Suzuki, Hisanori Imura and Hiromi Takahashi	
II - 6	Selective Removal of Cesium and Strontium from High Activity Level Water by Zeolites	64
	Hitoshi Mimura, Isao Yamagishi and Kenichi Akiba	
II - 7	Adsorption Property of Uranium into Zeolites	71
	Yoshinao Ishihara, Hitoshi Mimura and Kenichi Akiba	
III Accelerator and Instrumentation		
III - 1	Large Solid Angle Detectors for Medium Energy Protons	79
	Izumi Nomura, Osamu Konno, Kazushige Maeda, David. J. McLean Toshimi Suda, Tatsuo Terasawa, Maxwell. N. Thompson Yoshiharu Torizuka, Jun Yokokawa	
III - 2	Characteristics of Thermoluminescence from Sheet Induced by Electron Irradiation	85
	Hideaki Koseki and Zenjiro Watanabe	
III - 3	Coherent Synchrotron Radiation.....	94
	Toshiharu Nakazato, Masayuki Oyamada, Nobuo Niimura Sigekazu Urasawa, Osamu Konno, Takashi Kamiyama Yoshiharu Torizuka, Mikio Ikezawa, Takao Nanba and Yasuhiro Kondo	
III - 4	Proton Detector Composed of a Low-Pressure MWPC and Plastic- Scintillator.....	101
	Katsumasa Namai, Hideaki Kawahara, Masahiro Nomura Hideto Matsuyama, Tadaaki Tamae, Haruhisa Miyase and Masumi Sugawara	
III - 5	Measurement of Partial Pressure of the Out-Gas from the Materials of Vacuum Component	110
	Osamu Konno	

IV	Status Report on Accelerator and the Data Processing Systems	
IV-1	Status of the Electron Linac	127
	Accelerator Group	
	Akira Kurihara, Sigekazu Urasawa, Masayuki Oyamada, Yoshinobu Shibasaki, Sigenobu Takahashi, Toshiharu Nakazato and Masakatsu Mutoh	
IV-2	Status of the Data Processing System	131
	Instrumentation Group	
	Tadahiro Onuma, Akemi Odashima and Masakatsu Mutoh	
V	List of Publications	135

I. 原 子 核 物 理

閾値近傍における $D(e, e'p)$ 同時計数実験

核理研, 教養部*, 情報センター**

川原英明・野村昌弘・生井克正

松山日出人・玉江忠明・菅原真澄

坪田博明*・宮瀬晴久*・川添良幸**

§ 1. 序

我々は $(e, e'p)$ 反応によって重陽子の研究を行ってきた。前回の実験¹⁾は、

$$E_{np} \sim 16 \text{ MeV}, \quad q \sim 0.33 \text{ fm}^{-1}$$

の実験条件で行なわれ、縦横および横横の干渉項の分離に成功した。測定された干渉項および非干渉項の角分布は非相対論的な impulse 近似でよく説明されることがわかった。

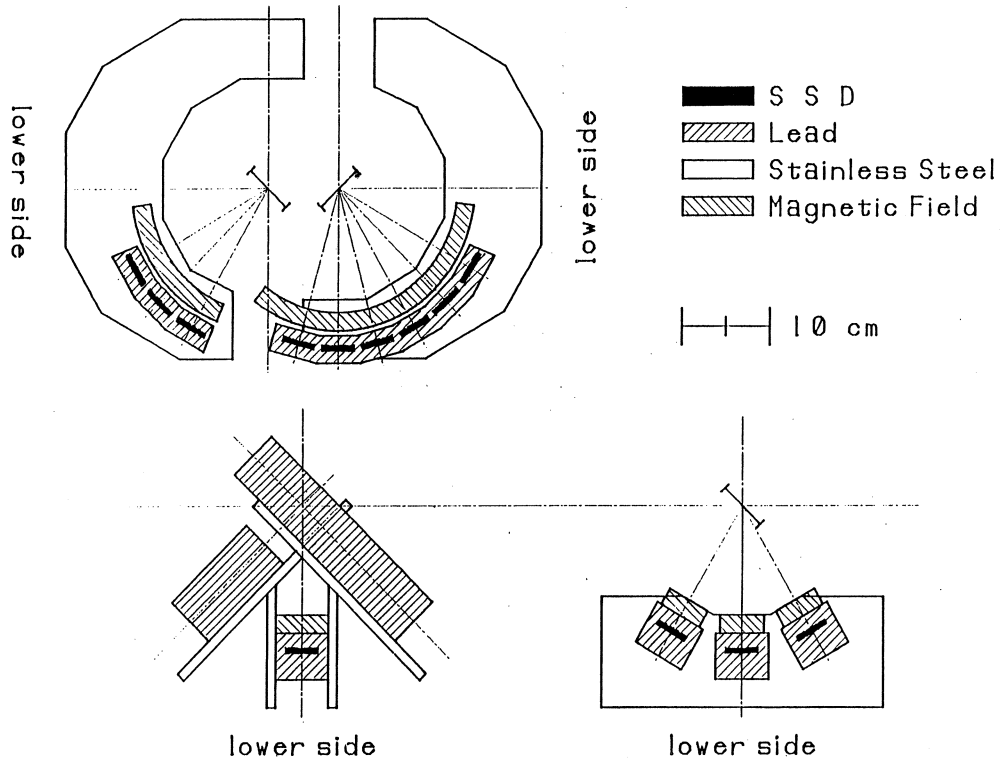
今回は閾値付近 ($E_{np} = 3 \sim 9 \text{ MeV}$) おいてより大きな移行運動量 ($q \sim 0.9 \text{ fm}^{-1}$) での実験を行なった。前回の実験では応答関数の縦および横成分はそれぞれ $C1$, $E1$ が主であったが、今回の領域での応答関数の横成分は $M1$ が主となる。また 180° 電子散乱において、移行運動量が大きくなるに従い中間子交換流 (MEC) の効果が大きくなることが示されている²⁾。

§ 2. 実験装置³⁻⁴⁾

実験は東北大核理研の 300 MeV 電子線形加速器からの電子ビームを用いて行なわれた。線形加速器からのパルス電子線はパルスビーム・ストレッチャーにより直流通された後、散乱槽内の標的に照射される。標的により散乱された電子は二重集束型磁気スペクトロメーターにより運動量分析され、その焦点面上に置かれた電子検出系により検出される。電子検出系は三層の多線比例計数管 (MWPC) と二層のプラスチック・シンチレーターから成る。他方標的核から放出された陽子は、散乱槽内に設置された表面障壁型のシリコン半導体検出器 (SiSSD 厚さ 1mm) によって検出、エネルギー分析される。収集される実験データは主に MWPC のチャンネル、SSD の波高値およびプラスチック・シンチレーターと SSD 間の時間差 (TDC) である。

今回 SSD の架台を改良したのでそれを第 1 図に示す。この架台を使えば $\phi = 45^\circ, 135^\circ$ に対して 15° 毎の θ において測定が可能である。また $\phi = 90^\circ$ に対しては 30° 毎の θ において測定が可能である。SSD は今までと同様に鉛で遮蔽されて架台に取り付けられる。さらにその前方には永久磁石 ($\sim 1 \text{ kG}$) が取り付けられ、低エネルギーの電子を除いている。この架台を使うことにより一回の測定で ϕ 依存性を測定することが可能となり、系統的な誤差を小さく押え

ることができる。また一度に数多くの角度を測定できるため、効率的な測定ができる。



第1図 陽子検出器の配置。

§ 3. 実験および解析

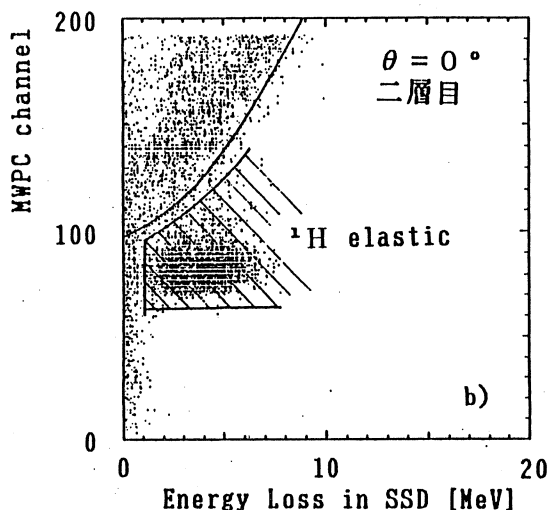
実験は入射エネルギー $k_0 = 129 \text{ MeV}$ の電子線を用い、

$$\theta_e = 90^\circ, \quad E_{np} = 3.0 \sim 9.0 \text{ MeV}, \quad q \sim 0.87 \text{ fm}^{-1}$$

の実験条件で行なった。ここで θ_e は電子の散乱角、 E_{np} は $n-p$ 系の相対エネルギー、 q は移行運動量である。標的には重水素化ポリチレン (C_2D_4)_n を用いた。重水素の同位体純度は 98% であり、その他は水素である。放出陽子は $\phi = 45^\circ, 135^\circ$ に対しそれぞれ $\theta = 0^\circ, 15^\circ, 30^\circ, 45^\circ$ の四つの角度で測定した ($\theta = 0^\circ$ に対しては 1 点のみ)。実験条件として θ の小さな前方の角度のみを選んだのは、 $n-p$ 系の相対エネルギー E_{np} が移行運動量 q に対して小さく、実験室系では前方にしか陽子が放出されないためである。

今回の実験条件では移行エネルギー ω が小さいため、標的に含まれる ^{12}C から放出される陽子はバックグラウンドとはならない。しかし移行運動量 q が比較的大きいので、入射電子との弾性

性散乱によって反跳された重陽子および陽子がバックグラウンドとなり得る。これらは移行運動量の方向にのみ現われ、そのエネルギーはそれぞれ $q^2/2M=7.7, 15.4$ MeV となる。このため SSD の前に 7.7 MeV 重陽子の飛程に対応する厚さ 260 mg/cm^2 の Al 箔を置き、弾性散乱を受けた重陽子を取り除いた。陽子に対しては SSD を 2 枚重ねて使用し、それからの波高値の違いを用いて分離をおこなった。この様子を第 2 図に示す。図は縦軸に E_{np} 、横軸に 2 枚目の SSD からの波高値をとった時の分布である。図の実線は標的から放出される陽子のエネルギーを運動学的に計算し、それから SSD 中でのエネルギー損失を求めたものである。図で中央の部分に分布しているのが弾性散乱を受けた陽子であり、その他は重陽子から放出された陽子である。



第 2 図 E_{np} (縦軸)、2 枚目の SSD の波高値 (横軸) に対する事象分布。

このようにしてバックグラウンドを取り除いた後、TDC スペクトルを用いて

真の事象のみを取り出し微分断面積を求めた。標的の厚さや散乱電子検出系の効率などは標的に含まれる ^{12}C からの弾性散乱を測定して較正した。また各陽子検出器の立体角は、 ^{241}Am の 5.48 MeV の α 粒子の個数を、前面にコリメーターを置いて立体角を規定した検出器によるものと比較して較正した。

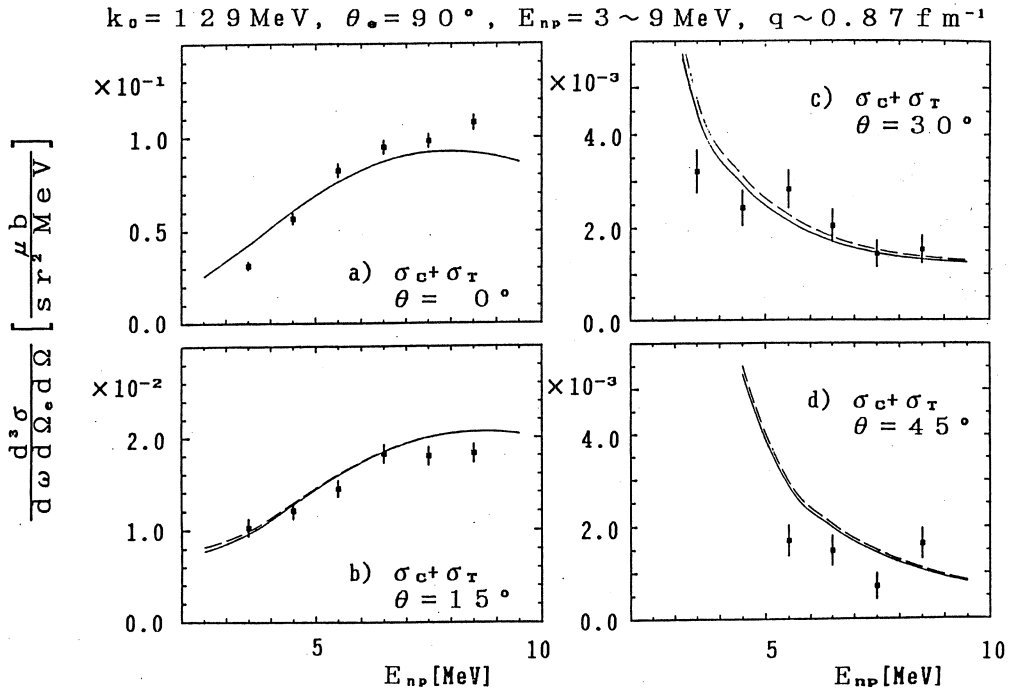
§ 4. 結果および理論計算との比較

第 3 図に実験結果を示す。今回の実験条件では E_{np} に対して微分断面積が大きく変化するので、各 θ に対しての E_{np} 依存性を示す。 $\phi=45^\circ$ と 135° の二つの測定値を用いれば縦横干渉項 σ_{CT} も求められるが、今回の実験条件ではこの干渉項 $\sigma_C + \sigma_T$ に比べて小さく有為な値は得られなかった。従って今回は非干渉項 $\sigma_C + \sigma_T$ の結果のみを示す。

図の実線は Partovi の光核反応での理論⁵⁾ を $d(e, e'p)$ 反応に拡張した計算である。この計算では核力を入れた二体系の Schrödinger 方程式を解くことにより、始状態および終状態での $n-p$ 系の波動関数の歪みを考慮している。計算時に使用した核力は Hamada-Johnston ポテンシャル⁶⁾ である。他に現在最も信頼性の高いと言われている Paris ポテンシャル⁷⁾ での

計算も行なったが、今回の実験条件ではその差はほとんど現われなかった。また電流演算子には1体の演算子を仮定し、核子の形状因子には phenomenologic dipole fit⁸⁾を用いた。破線は Fabian と Arenhövel によって与えられている π 中間子による MEC の寄与⁹⁾ を取り入れた計算である。また計算には陽子検出器の立体角の広がりも考慮されている。

微分断面積の傾向は基本的に前方ピークであるが、前方 ($\theta = 0^\circ, 15^\circ$) では E_{np} と共に大きくなり、逆に後方 ($\theta = 30^\circ, 45^\circ$) では小さくなっている。これは E_{np} が大きくなるに従って準弾性散乱的な反応に近くなり、前方ピークが激しくなっている為である。理論計算は絶対値も含めてほぼ実験値を再現している。理論計算と一致しない点もいくつかみられるが、今回の実験精度から考えて有意な差とは思われない。また今回の実験条件では MEC の寄与は小さい。



第3図 $d(e, e'p)$ 同時計数微分断面積の非干渉項成分。

§ 5. ま と め

今回は閾値付近での $d(e, e'p)$ 実験を行ない、非干渉項 $\sigma_c + \sigma_T$ の角分布と E_{np} に対する依存性を調べた。測定結果は絶対値も含めて理論計算によって再現されることが確かめられた。今回の実験条件では核力の違いによる差や MEC の非干渉項に対する寄与は小さく、それ

らの効果を見ることはできなかった。

しかし理論計算においては今回の実験条件でも横横の干渉項 σ_{TT} に対しては MEC の効果が非常に大きい。この項を測定するためにはより精密な測定が必要となる。また今回と同様なエネルギー領域での $d(r, n)$ 反応の実験においても角分布が理論値と一致しないという実験結果も報告されており¹⁰⁾、従来から言われている様な高い q , E_{np} での実験同様このような精密実験も有意義であると思われる。

参 考 文 献

- 1) 玉江忠明他：核理研研究報告 19 (1986) 1.
玉江忠明他：核理研研究報告 19 (1986) 193.
T. Tamae *et al.* : Phys. Rev. Lett. **59** (1978) 2919.
- 2) J. F. Mathiot : Nucl. Phys. **A 412** (1984) 201 and references therein.
- 3) 日野 威他：核理研研究報告 17 (1984) 228.
- 4) 川原英明他：核理研研究報告 17 (1984) 427.
- 5) F. Partovi : Ann. Phys. (N.Y.) **27** (1964) 79.
- 6) T. Hamada and I. D. Johnston : Nucl. Phys. **34** (1962) 382.
- 7) W. M. Cottingham *et al.* : Phys. Rev. **D 8** (1973) 800.
M. Lacombe *et al.* : Phys. Rev. C **21** (1980) 861.
- 8) S. Galster *et al.* : Nucl. Phys. **B 32** (1971) 221.
- 9) W. Fabian and H. Arenhovel : Nucl. Phys. **A 258** (1976) 461.
- 10) K. E. Stephenson *et al.* : Phys. Rev. C **35** (1987) 2023.

Measurement of the $^{16}\text{O}(\gamma, n)$ Cross Section at 60° Using Tagged Photons with Energies up to 100 MeV

G. J. O'Keefe, R. P. Rassool and M. N. Thompson, T. Terasawa[†], T. Suda[†], I. Nomura[†], J. Yokokawa[†] and K. Maeda

*School of Physics, University of Melbourne, Parkville 3052,
Victoria, Australia*

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

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

To further study the effects of short-range correlations in closed-shell nuclei, the $^{16}\text{O}(\gamma, n)$ cross section was measured at 63° using monochromatic photons from the Tohoku Tagging facility. Preliminary analysis shows a cross section to the ground and first excited states that is consistent with estimates that can be made from the measurement of the $^{12}\text{C}(\gamma, n)$ cross section previously made at this laboratory.

§ 1. Introduction

The main thrust of experiments using the electron tagging facility at this laboratory has been to try to resolve the importance of short-range correlations in the nucleon-nucleon interaction. In the first instance the $^{12}\text{C}(\gamma, n)$ cross section¹⁾ and $^{12}\text{C}(\gamma, n)$ cross section have been measured. The evidence so far indicates that the quasi-deuteron model³ accounts for most of the observed data. However the reaction mechanism is not well understood²⁻⁵⁾. Even quite recent data on the $^{16}\text{O}(\gamma, n)$ cross section⁶ has failed to differentiate between the various models.

The advantage of tagged monochromatic photons with energies up to 100 MeV is that they allow a much less ambiguous interpretation of neutron spectra, since the contribution due to the lower energy photons in the spectrum of bremsstrahlung that are traditionally used in such experiments is not present. The data presented here are a good

example of this, with the groups of neutrons decaying to the ground-state and the 6.18 MeV state in ^{16}O being clearly resolved.

This paper presents preliminary results of a measurement of the $^{16}\text{O}(\gamma, n)$ cross section, and it is anticipated that data on the $^{16}\text{O}(\gamma, p)$ cross section will be presented shortly.

§ 2. Experimental Details

2.1 Tagged Photon Beam

In order to perform coincidence measurements, a high duty factor photon beam is required. The cross section reported in this paper used the tagged photon facility of the Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University. A 130 MeV pulsed electron beam was injected into the stretcher, which then provided an extracted beam of 80% duty factor, and an energy spread of 0.2%. This electron beam was then directed towards the tagging spectrometer. The details of the pulsed beam stretcher (SSTR) and the tagging spectrometer have both been given previously. The tagged photon beam was collimated so as to provide a beam of 40mm diameter, 2.2 metres downstream from the radiator. The sample, a cylinder of 80mm diameter and 180 mm length, was placed to directly intercept all of the beam. Regular checks were made of the tagging efficiency, and this was found to be 0.46 and to not vary by more than 5 % during the measurement. Throughout the experiment, the detected electron rate was maintained at 5×10^6 e/s in order to ensure a relatively low accidental coincidence rate.

2.2 Neutron Detector

The neutron detection system consisted of 4 cells of the NE213 liquid scintillator arranged to provide a 48 cm square, which was placed at 63° to the beam direction at a distance of 2.4 m from the sample position. This flight path was chosen to allow the detected neutron energy to be determined by time of flight (TOF). Plastic scintillator “veto” detectors were placed to cover all faces of the detector. Signals from these were then used to discriminate against unwanted pulses due to photons, electrons and cosmic rays.

Identification of neutron induced pulses from the detector was provided by a Canberra 2160 PSD module. The four analogue outputs from each cell were summed by a linear fan-in / fan-out module (FIFO) and fed into a Pulse-shape Discrimination (PSD) module. To assist in later analysis, a coincidence register was used to identify which detector cell had fired. The thresholds of the Constant Fraction Discriminators (CFD) fed from the neutron detectors, were set to a neutron threshold of 8.0 MeV. The detector efficiency was calculated using a computer code called TOTEFF. The efficiency is very "threshold" dependent, and so regular checks on the neutron detector thresholds were made throughout the experiment.

2.3 Data Collection and Analysis

Information for each event was recorded by the on-line OKI computer. In order to minimise the data-collection system dead-time, the trigger for an event came from the valid neutron detector signal. This signal acted as a *start* for the 32 tagged-electron TDC's. The tagged electron signals were delayed so as to occur after the neutron signal. Each of these acted as a *stop* for a TDC, associated with a neutron detector cell, thereby providing a measurement of the "time-of-flight" (TOF) for the emitted neutron. As well as the TOF information, and the pulse-height information from the neutron detector, a signal from the PSD module was recorded. This was used later to distinguish neutron events from electron events. This signal is necessary since the pulse shape of electron and neutron induced outputs in the NE213, which allow the PSD to function, are energy dependent.

Conceptually, a tagged photon experiment is quite simple ; *tag the photon and detect the neutron*. Unfortunately, the associated computer codes are not so simple. In order to avoid complicated re-writes of the analysis code for every experiment, a dynamic on-line program has been written. This allows the user to define the experiment in terms of CAMAC modules and their location at *run time*. The on-line code then configures itself for the particular experiment, with no data acquisition code re-write being necessary. Another problem with event-by-event data is the huge amount of data collected. Sophisticated data compression techniques have been developed, allowing the amount of data to be compressed by as much as 70% without loss of any information.

Complementary to the on-line code, a suitable off-line analysis code has also been written. This gives a user all of the functions described above, plus extra features such as definable spectrum generation and angle definitions, as well as rejection criteria and parameters. In essence, all a user must do is to define the experiment in terms of a set of logical definitions.

The analysis for this experiment was performed in the following manner. Firstly, PSD peak positions were determined for each detector at regular intervals of 20 minutes. Software corrections were then applied to the timing, and the data cut to reject the majority of the unwanted events, predominantly from γ -rays. A TOF spectrum was then generated for each detector, at each tagged energy. The sum of these spectra is shown in Fig 1. Three distinct features of this spectrum are the onset of the hard timing gate, the

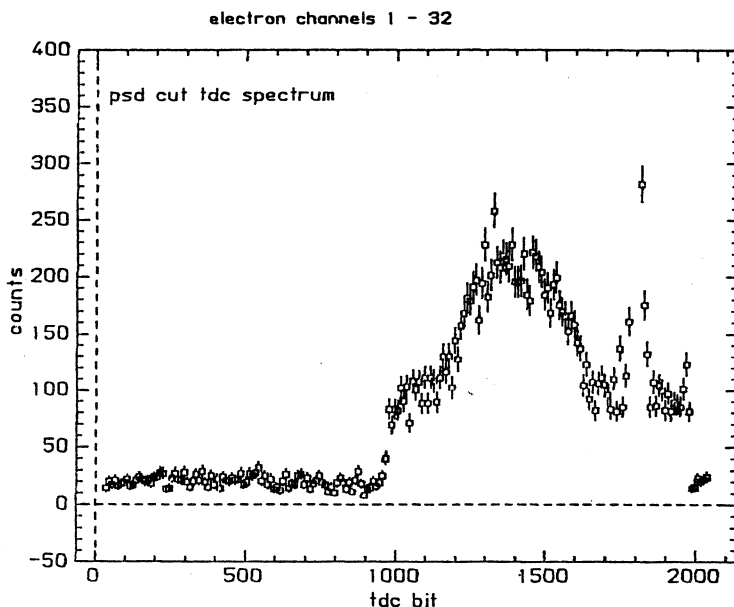


Fig. 1. The sum of all individual TOF spectra. The sharp edge indicates the end of the 103 ns hard gate. The broad peak centred around channel 1450 represents the correlated neutron events. The sharp peak at channel 1800 is due to direct γ -rays which have not been eliminated.

broad peak of correlated neutron events, and the sharp gamma peak at ~ 1800 . The timing resolution of the system is 1.8 ns and the signal to noise ratio (SNR) is 1.6 : 1, The cause of this poor SNR has been attributed to the use of the FIFO module to sum the analogue signals from each neutron detector into the one PSD module. Some distortions

to the rise/fall times of the signals were introduced, resulting in poorer separation between γ and neutron induced pulses. A revised circuit has been designed to eliminate this problem. The next step in the process is to construct the missing energy spectra for each tag channel. A typical example is shown in Fig. 2. This spectrum is indicative of

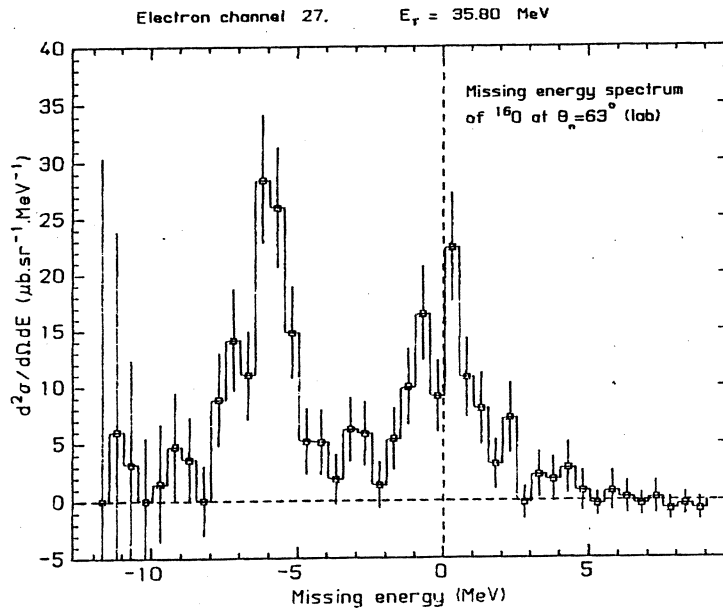


Fig. 2. Missing energy spectrum for $^{16}\text{O}(\gamma, n)^{15}\text{O}$. Both decays to the ground state and the 6.18 MeV excited state of ^{15}O are clearly resolved.

the excellent resolution of the system, the (γ, n_0) and the (γ, n_1) peaks being clearly resolved. Finally, the differential cross section for the reaction $^{16}\text{O}(\gamma, n_0)^{15}\text{O}$ was calculated by integrating the missing energy spectra in the n_0 region. This cross section is shown in Fig. 3.

§ 3. Results and Discussion

The differential cross section for the $^{16}\text{O}(\gamma, n_0)$ cross section at 63° (Fig. 3) is consistent, in the energy region of overlap, with earlier measurements by Phillips *et al*⁷ and results from Mainz carried out using a bremsstrahlung beam⁸). The absolute magnitude and general shape is also in good agreement with a previous measurement made at this laboratory using a heavy water sample⁹). As the data presented here is only preliminary, no comparisons with theoretical model predictions will be attempted. It is

hoped that the analysis of additional data taken in the latter part of 1986 will soon be finalised. As well as supplementing the current data at 63° , additional information at 40° and 80° will be available for both (γ, n) and (γ, p) reaction channels.

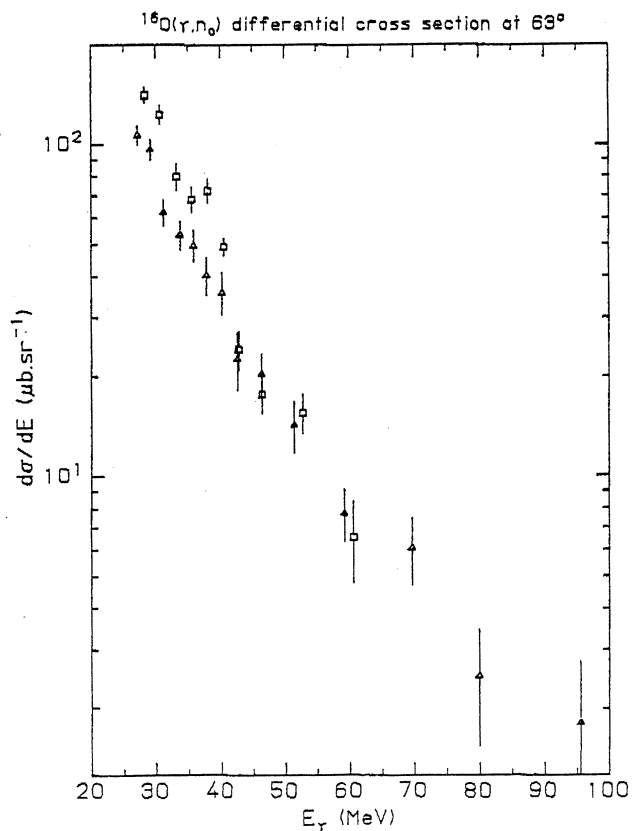


Fig. 3. The differential cross section for the reaction $^{16}\text{O}(\gamma, n_0)^{15}\text{O}$. Triangles - this experiment, squares - Suda *et al.* Error bars are statistical.

References

- 1) K. Mori : PhD Thesis, Tohoku University (1985).
- 2) P. D. Harty *et al* : Phys. Rev. C **37** (1987)13.
- 3) B. Schoch : Phys. Rev. Lett. **41**, (1978) 80.
- 4) M. Gari and H. Hebach : Phys. Rep. **72**, (1981) 1.
- 5) S. Boffi, C. Giusti and F. D. Pacati : Nucl. Phys. A **359** (1981) 91.
- 6) M. J. Leitch *et al*, Phys. Rev. C **31** (1985) 1633.
- 7) T. W. Phillips and R. G. Johnson : Phys. Rev. C **20** (1979) 1689.
- 8) H. Goringe, B. Schoch and G. Luhrs : Nucl. Phys. A **384** (1982) 414.
- 9) T. Suda : private communication.

$^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+) ^{40}\text{K}$ 反応におけるスピン・アイソスピン反転遷移の研究

核理研・教養部*

加賀谷聡・庄田勝房・竹下邦和

島田太平・小林毅範・坪田博明*

核理研(γ, π)グループは、昭和62年度のマシントイムで $^{40}\text{Ca}(e, \pi^+) ^{40}\text{K}$ 反応のエネルギー・スペクトルの測定を行なった。この課題についてのマシントイムを総て消化したので、その解析結果を報告する。

§ 1. 序 論

低エネルギー領域($T_\pi \lesssim 50 \text{ MeV}$)における(γ, π^\pm)反応は、一般に $\vec{\sigma} \cdot \vec{\epsilon} \tau_\pm$ の遷移演算子で良く記述される事が理論的に知られており、1 p殻核に関しては実験的にその妥当性が示されている。ここで、 $\vec{\sigma}$ は核子のスピン、 $\vec{\epsilon}$ は光子の偏極ベクトル、 τ_\pm は核子のアイソスピン昇降演算子である。遷移演算子の形から、この反応は核子のスピン・アイソスピン反転遷移を選択的に励起する特徴を有する事が分かる。同様の演算子を遷移演算子に含む他の核反応との類似点・相違点に関しては既に文献1で述べているので、これを参考にされたい。

本実験研究の目的は、バックグラウンドが多い為に従来実験が困難であった中重核に関して(γ, π^+)反応による核分光学を行なうことである。具体的には、本実験研究によって以下の事を明らかにする。

- 低励起状態のスピン・アイソスピン反転遷移のエネルギー分布。
- 終状態の主配位の決定と、遷移多重極度の特定。
- (e, e')・(p, n)反応等によるアナログ状態への遷移機構との相違。

S/N比を向上させる為に、 π^+ 中間子検出器系のバックアップカウンタを構成する3層のプラスチックシンチレータ間の同時計数測定とチェレンコフカウンタの反同時計数測定を行なった。これによって、 π^+ 中間子測定時の主なバックグラウンドである陽電子に対して、約 10^4 のrejection factorを実現した。

§ 2. 実験と解析

実験は、東北大学核理研の300 MeV電子線型加速器を用いて行なった。第2実験室の散乱槽

内に設置した ^{40}Ca (natural) に電子線を照射して、 π^+ 中間子を生成した。この π^+ 中間子を、二重集束型磁気スペクトロメータによって運動量分析した後、多芯比例計数管とバックアップカウンタとから成る検出器系によって検出した。実験条件を、第1表に示す。

(e, π^+) 反応のエネルギースペクトルから (γ, π^+) 反応微分断面積を求める際には、両者の間の次の関係式：

$$\int \frac{d^2\sigma(E_e, \theta_\pi, E_\pi)}{dE_\pi d\Omega_\pi} e^\pi dE_\pi = \sum_i \int \frac{d\sigma(E_\gamma, \theta_\pi, E_x^{(i)})}{d\Omega_\pi} r_\pi N_\gamma(E_e, E_\gamma) dE_\gamma$$

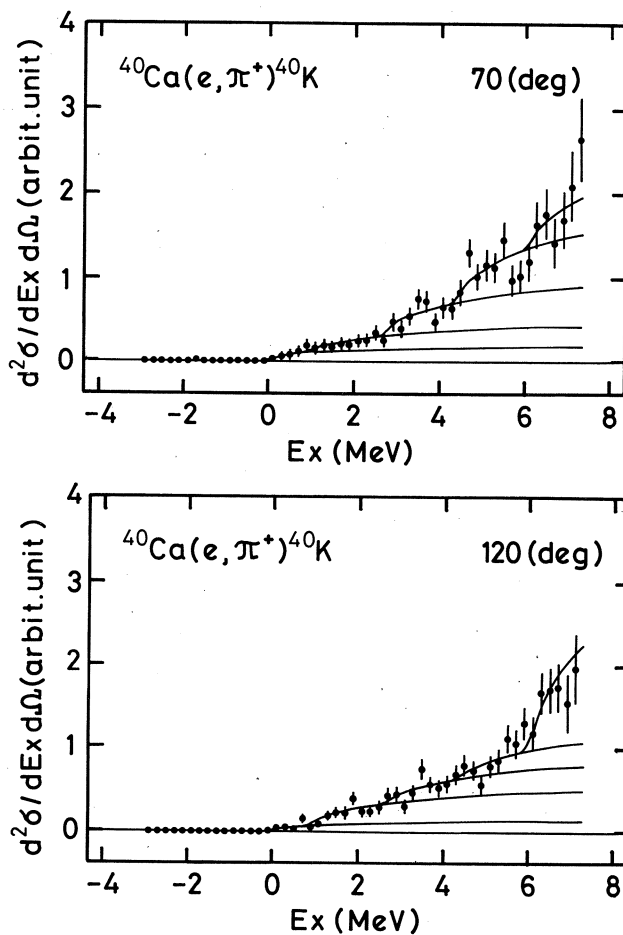
を用いた。ここで、 $N_\gamma(E_e, E_\gamma)$ は光子スペクトル、 $E_x^{(i)}$ は残留核状態 “ i ” の励起エネルギーである。仮想光子の他に、標的原子核中での制動輻射による実光子も反応に関与する。本解析では、この寄与も考慮している。

第1表 $^{40}\text{Ca}(e, \pi^+)^{40}\text{K}$ 反応の π^+ スペクトル測定時の実験条件。

入射電子エネルギー (MeV)	185				
ビーム分解能 (%)	0.18				
π^+ 中間子エネルギー (MeV)	36 ~ 43				
π^+ 中間子検出角度 (deg)	50	70	90	120	150
移行運動量 (fm^{-1})	0.7	0.9	1.1	1.3	1.5
全分解能 (MeV)	0.3	0.3	0.3	0.5	0.6
標的の厚さ (mg/cm^2)	149, 259				
残留核の励起エネルギー (MeV)	0 ~ 7				

第1図に、本実験で得られた $^{40}\text{Ca}(e, \pi^+)^{40}\text{K}$ 反応のエネルギースペクトルの例を示す。また第2図に、測定を行なった総て角度のスペクトル (50 ~ 150度) を足し合わせたスペクトルを示す。第2図中の曲線群は、(e, π^+) 反応によって強く励起されている準位数と個々の励起エネルギー及び遷移強度をパラメータとして χ^2 -fitting した際の最適化曲線群である。この解析によって、残留核 ^{40}K を基底状態 ($\pm 0.1\text{MeV}$) の他に 0.9 (± 0.1), 2.7 (± 0.1) 4.4 (± 0.2) 及び 6.1 (± 0.2) MeV に残す強い π^+ 放出チャンネルの存在が明らかになった。

励起エネルギーを上述の方法で決定した後、各角度のスペクトルを解析して、残留核を夫々の準位 ($E_x = 0, 0.9, 2.7\text{MeV}$) に残す $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}$ 反応微分断面積を求めた。この値に光子スペクトルを掛けて (e, π^+) エネルギースペクトルを計算したものが、第1図中の



第1図 $^{40}\text{Ca}(e, \pi^+)^{40}\text{K}$ 反応における π^+ エネルギースペクトル。(上) $\theta_\pi = 70^\circ$, (下) $\theta_\pi = 120^\circ$ 。



第2図 $\theta_\pi = 50 \sim 150^\circ$ の $^{40}\text{Ca}(e, \pi^+)^{40}\text{K}$ 反応のスペクトルを総て足しあわせたスペクトル。

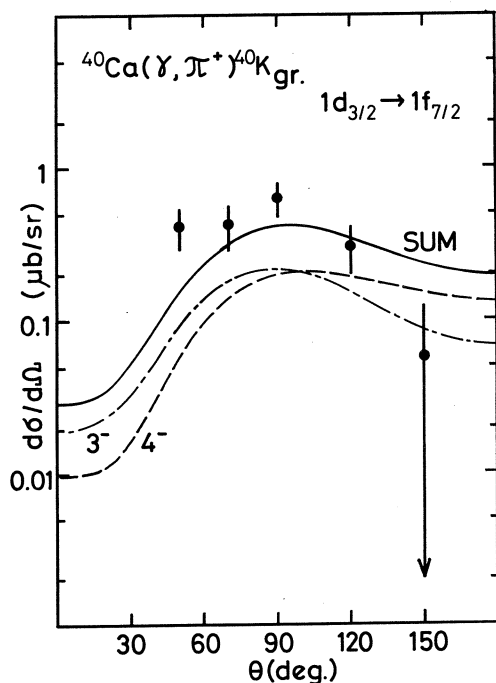
曲線群である。スペクトルの立ち上がりに関して、計算結果と実験結果との一致は良い。

§ 3. 結果と考察

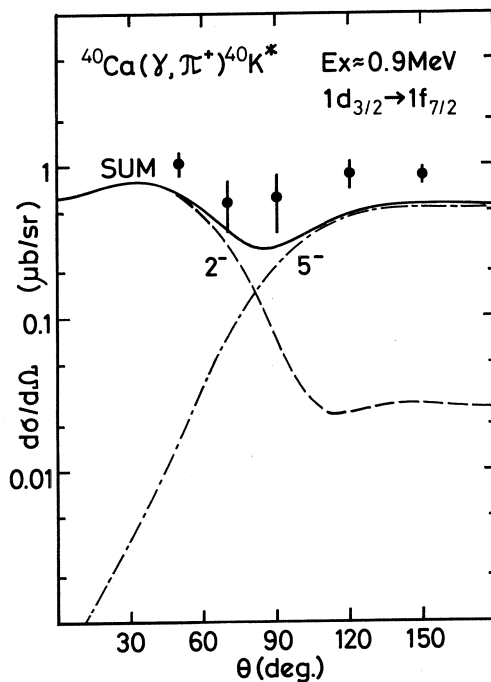
前節で述べた解析方法によって得られた $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}$ 反応微分断面の角度分布を、 $E_x(^{40}\text{K}) = 0, 0.9, 2.7 \text{ MeV}$ の場合について第3～6図及び第9～11図に示す。図中の曲線群は、歪曲波衝撃近似 (DWIA) 計算である。DWIA 計算は、CGLN 素過程振幅²⁾・MSU (1982) 光学ポテンシャル³⁾を採用したOhtsubo 等による計算コード⁴⁾によって行なった。核波動関数の動径部分は調和振動子型であり、調和振動子パラメータ b は ^{40}Ca の電荷分布から決定された値⁵⁾ $b = 2.03 \text{ fm}$ を用いた。

(1) $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}_{\text{gr}}$ 、及び $^{40}\text{K}^* (E_x = 0.9 \text{ MeV})$ 反応

第3図・第4図は、 $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}_{\text{gr}}$ 、及び $^{40}\text{K}^* (E_x = 0.9 \text{ MeV})$ 反応微分断面の角分布である。180度電子散乱^{6), 7)}・(p, n)反応⁸⁾の実験結果との比較から、前者は 4^- と 3^-



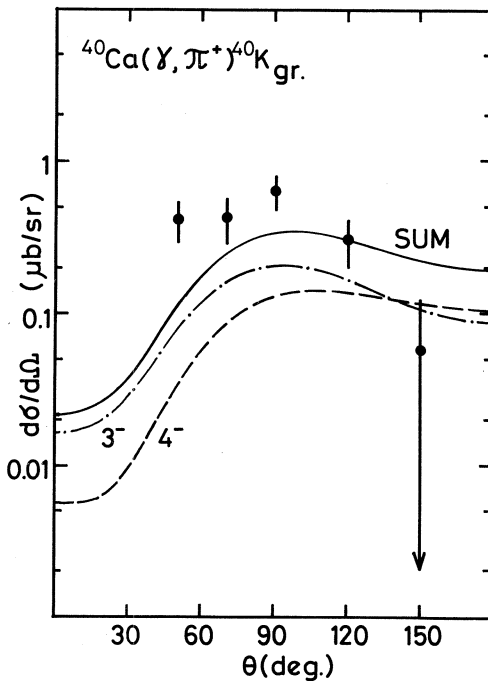
第3図 $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}_{\text{gr}}$ 反応の角分布。DWIA 計算は $1d_{3/2} \rightarrow 1f_{7/2}$ 遷移を仮定して、 $4^- \cdot 3^-$ 準位の角分布に対して夫々、電子散乱から得られた規格化因子 0.23 及び 0.15 を掛けてある。



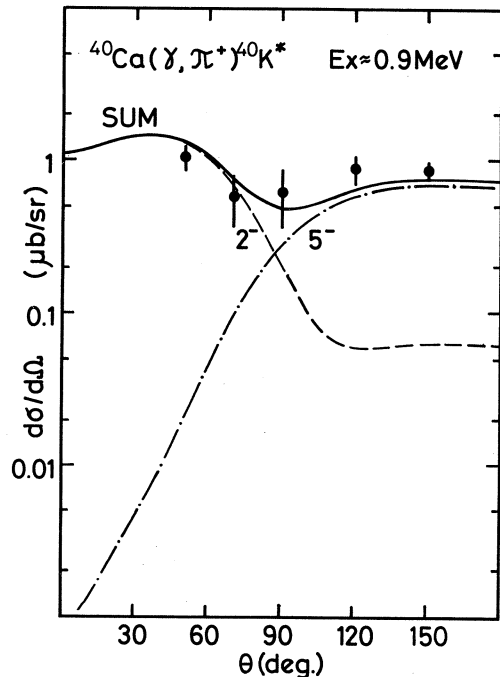
第4図 $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}^* (E_x = 0.9 \text{ MeV})$ 反応の角分布。DWIA 計算は $1d_{3/2} \rightarrow 1f_{7/2}$ 遷移を仮定して、 $2^- \cdot 5^-$ 準位の角分布に対して夫々、電子散乱から得られた規格化因子 0.13 及び 0.35 を掛けてある。

準位 ($E_x=0, 0.03 \text{ MeV}$) の寄与, 後者は 2^- と 5^- 準位 ($E_x=0.80, 0.89 \text{ MeV}$) の寄与と
考えられる。図中の曲線は, 終状態として $(1f_{7/2} 1d_{3/2}^{-1})^{J=2, 3, 4, 5}$ 配位を仮定した DWIA 計
算であり, 180度電子散乱から得られた規格化因子を用いている。この計算結果は, 角分布の
形を良く再現するが, 絶対値に関しては後者の準位への遷移の場合には過小評価している。

また第5図・第6図は, Donnelly-Walker [DW] が Tamm-Dancoff 近似 [TDA] 計算によっ
て求めた $1\hbar\omega$ 励起一粒子一空孔 [$1p1h$] 模型の核波動関数⁵⁾ を用いた DWIA 計算値と実験値
との比較である。彼等の計算によれば, 励起エネルギー 1 MeV 以下に存在する $2^- \sim 5^-$ ($T=$
 1) 準位の主配位は $(1f_{7/2} 1d_{3/2}^{-1})$ である。またこれらの $2^- \cdot 3^- \cdot 4^- \cdot 5^-$ 状態におけるこの
配位の占有率は, 夫々 $93 \cdot 95 \cdot 98 \cdot 99\%$ と求められている。この DWIA 計算値は, 基底状
態 $\cdot E_x=0.9 \text{ MeV}$ 準位の角分布に対して夫々, 第2表に示す因子を掛けて実験値に規格化してあ
る。彼等の波動関数は遷移強度を過大評価するが, 強度の移行運動量依存性を正しく再現する
事が分かる。



第5図 $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}_{\text{gr}}$ 反応の角分布。
DWIA 計算は, Donnelly-Walker の
TDA 計算による波動関数を用いており
規格化因子 $0.25 (\pm 0.05)$ を掛けてあ
る。

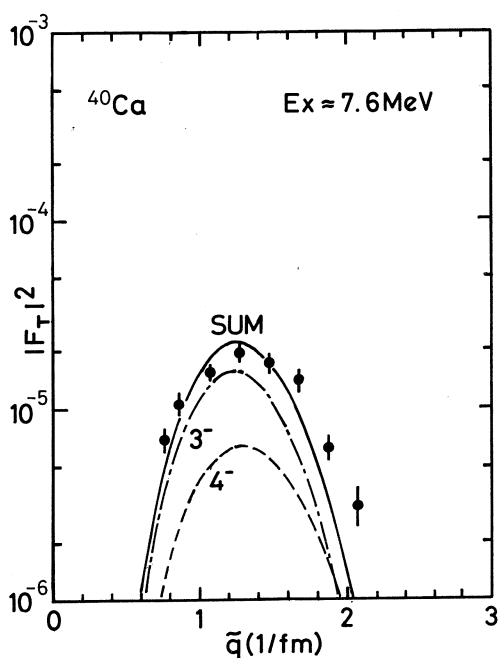


第6図 $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}^* (E_x = 0.9 \text{ MeV})$
反応の角分布。DWIA 計算は, Donnelly
-Walker の TDA 計算による波動関数を用
いており, 規格化因子 $0.46 (\pm 0.04)$ を
掛けてある。

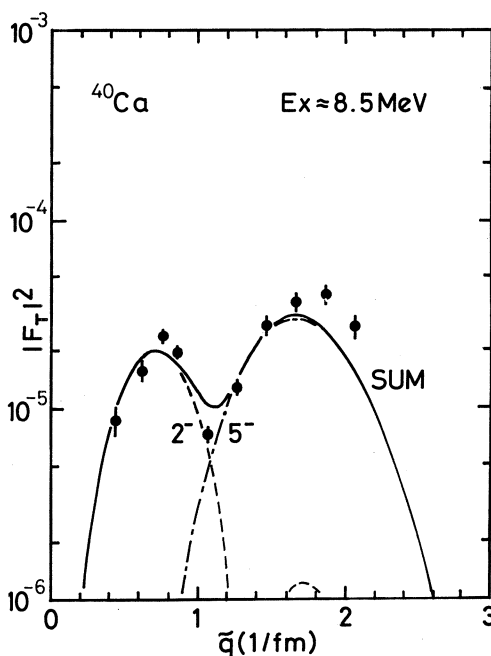
第7図・第8図は、DW波動関数を用いて上記の準位のアナログ状態の横成分形状因子を計算したものである。 $E_x = 7.6, 8.5$ MeV 準位の形状因子に対して夫々、第2表に示す因子を掛けて実験値^{6,7)}に規格化してある。

第2表 Donnelly-Walkerの波動関数を用いた場合、 $A=40$ 系の最も励起エネルギーの低い $2^- \sim 5^-$ ($T=1$)準位に関する(τ, π^+)反応微分断面積又は電子散乱横成分形状因子の実験値を再現するのに必要とする規格化因子、及びその比。

スピン・パリティ	$4^- \cdot 3^-$	$2^- \cdot 5^-$
励起エネルギー	0 MeV (^{40}K)	0.9 MeV (^{40}K)
(τ, π^+)	0.25 (± 0.05)	0.46 (± 0.04)
(e, e')	0.30 (± 0.01)	0.27 (± 0.01)
規格化因子の比	0.83 (± 0.17)	1.70 (± 0.16)



第7図 $^{40}\text{Ca} (e, e') ^{40}\text{Ca}^* [E_x = 7.6 \text{ MeV}]$ 横成分形状因子。規格化因子 $0.30 (\pm 0.01)$ を掛けてある。終状態は、 ^{40}K の $4^- \cdot 3^-$ [$E_x = 0, 0.03 \text{ MeV}$] のアナログ状態。実験値は文献6・7による。



第8図 $^{40}\text{Ca} (e, e') ^{40}\text{Ca}^* [E_x = 8.5 \text{ MeV}]$ 横成分形状因子。規格化因子 $0.27 (\pm 0.01)$ を掛けてある。終状態は、 ^{40}K の $2^- \cdot 5^-$ [$E_x = 0.80, 0.89 \text{ MeV}$] のアナログ状態。実験値は文献6・7による。

次に、これらの $4^- \cdot 3^-$ 準位及び $2^- \cdot 5^-$ 準位について、DW 波動関数を用いた場合に $(r, \pi^+) \cdot (e, e')$ 実験値の絶対値を再現するのに必要とする規格化因子の比に着目する。第 2 表に示す様に、前者の準位に関しては $0.83 (\pm 0.17)$ でありほぼ一致しているのに対して、後者の準位に関しては $1.70 (\pm 0.16)$ であり顕著な相違が存在する。これは両反応の遷移機構の違いに着目すると、次の様に解釈することができる。 (r, π^+) 反応の場合には遷移演算子の特性から核子のスピン電流とのみ相互作用するのに対して、電子散乱の場合には一般にスピン電流と携帯 (convection) 電流とが関与する。従って両反応の実験値から得られる規格化因子の不一致は、DW 波動関数が $2^- \cdot 5^-$ 準位に関して両電流の相対的強度を正しく再現していない事によると考えられる。換言すれば、理論計算ではスピン電流の寄与を過小評価している事になる。

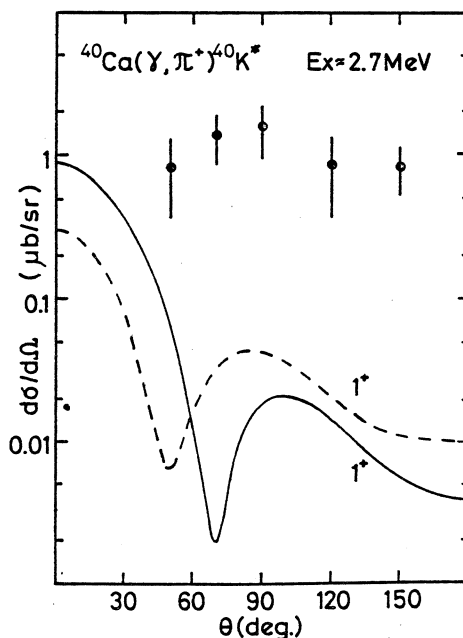
(2) $^{40}\text{Ca} (r, \pi^+) ^{40}\text{K}^* [E_x = 2.7 \text{ MeV}]$ 反応

第 9~11 図に $^{40}\text{Ca} (r, \pi^+) ^{40}\text{K}^* [E_x = 2.7 \text{ MeV}]$ 反応の角分布について、実験値と種々の遷移を仮定した DWIA 計算値との比較を示す。 ^{40}K のこの励起エネルギー領域は、 ^{40}Ca では約 10 MeV に対応する。後方角電子散乱⁹⁾ では $E_x (^{40}\text{Ca}) = 10.3 \text{ MeV}$ に、また残留核が ^{40}K と鏡映核である $^{40}\text{Ca} (p, n) ^{40}\text{Sc}$ 反応⁸⁾ では $E_x (^{40}\text{Sc}) = 2.7 \text{ MeV}$ に、 1^+ 準位の存在が知られている。本研究では、まず初めに次の 2 つの核模型を選んで、 1^+ 準位の可能性について考察した。

(i) 後方角電子散乱で得られた強い M1 換算遷移確率を説明するのに Gross 等⁹⁾ が用いた模型。

この模型では、M1 遷移は $1d_{3/2}^{-1} \rightarrow 1d_{5/2}^{-1}$ と $1f_{7/2} \rightarrow 1f_{5/2}$ の遷移が互いを強める様に干渉すると解釈されている。

(ii) (p, n) 反応の実験の解析に Chittrakarn 等⁸⁾ が用いた模型¹⁰⁾。この模型は $1d_{3/2}$ と $1f_{7/2}$ を殻模型空間として $0p0h \sim 8p8h$ 配位を考慮したものであり、 1^+

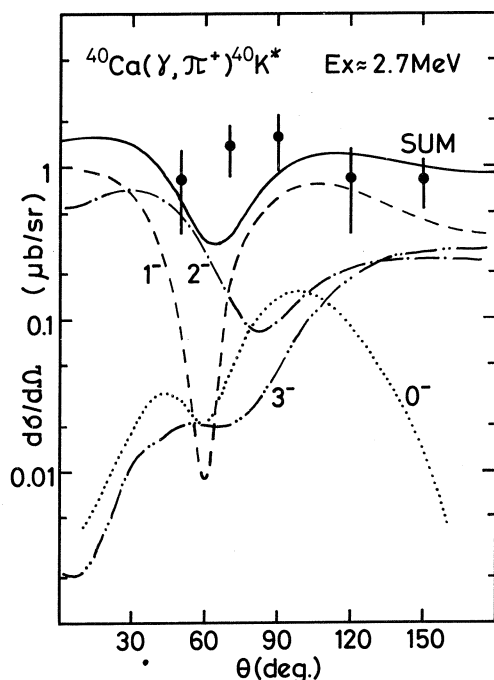


第 9 図 $^{40}\text{Ca} (r, \pi^+) ^{40}\text{K}^* [E_x = 2.7 \text{ MeV}]$ 反応の角分布と DWIA 計算による M1 遷移の角分布との比較。実線は Gross 等⁹⁾ の波動関数を用いた計算であり、破線は Sakakura 等¹⁰⁾ の波動関数を用いた計算である。

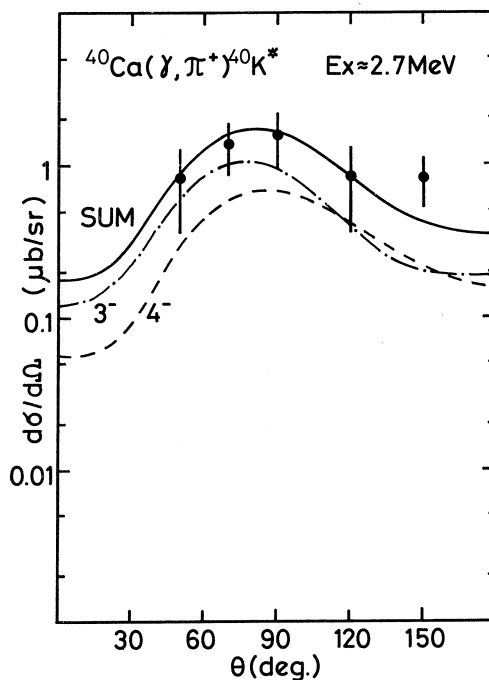
準位への遷移は $1d_{3/2} \rightarrow 1d_{3/2}$ と $1f_{7/2} \rightarrow 1f_{7/2}$ の遷移によると解釈されている。

第9図に、模型(i)・(ii)を用いたDWIA計算値と実験値との比較を示す。いずれの模型による計算値も実験値よりも一桁以上小さく、且つ、角分布の形も一致しない。従って、本実験で $E_x(^{40}\text{K}) = 2.7\text{ MeV}$ に見られる π^+ 放出チャンネルは、この 1^+ 準位以外の寄与と考えられる。

次に、Donnelly-Walker の TDA 計算を基にして、奇パリティ準位の可能性を検討した。彼等の計算によると、 $(1f_{7/2}1d_{3/2}^{-1})^{J=2,3,4,5}$ 粒子空孔バンドの次にエネルギーの低い準位は $E_x(^{40}\text{K}) = 2 \sim 3\text{ MeV}$ に存在し、 $(2p_{3/2}1d_{3/2}^{-1})^{J=0,1,2,3}$ 及び $(1f_{7/2}2s_{1/2}^{-1})^{J=3}$ が主配位である。第10図・第11図に、これらの波動関数を用いたDWIA計算結果を示す。夫々、因子 $2.25(\pm 0.49)$ 及び $0.55(\pm 0.11)$ を掛けて実験値に規格化してある。TDA計算では始状態(^{40}Ca)に基底状態相関が考慮されていないので、TDA計算による波動関数を用いて実験値を再現する為には一般に1より小さい規格化因子が必要である。この点から、終状態は $(1f_{7/2}2s_{1/2}^{-1})$ 配



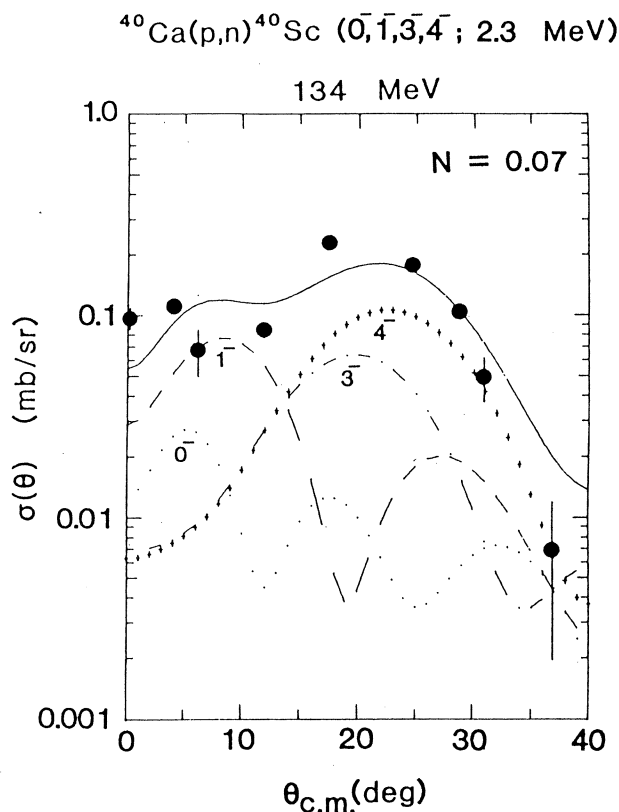
第10図 $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}^*$ ($E_x = 2.7\text{ MeV}$) 反応の角分布。DWIA計算では、Donnelly-WalkerのTDA計算の波動関数の中で $2p_{3/2}1d_{3/2}^{-1}$ 配位が主配位のものを用いており、規格化因子 $2.25(\pm 0.49)$ を掛けてある。



第11図 $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}^*$ ($E_x = 2.7\text{ MeV}$) 反応の角分布。DWIA計算では、Donnelly-WalkerのTDA計算の波動関数の中で $1f_{7/2}2s_{1/2}^{-1}$ 配位が主配位のものを用いており、規格化因子 $0.55(\pm 0.11)$ を掛けてある。

位が主要であると考えられる。角分布の形も、この配位が主要な波動関数を用いた計算値の方が実験値を良く再現している。従って $E_x(^{40}\text{K}) = 2.7 \text{ MeV}$ の準位は、 $2s_{1/2} \rightarrow 1f_{7/2}$ 遷移による $3^- \cdot 4^-$ 準位と特定する事ができる。

同様のスピン・パリティの準位は、 $(e, e') \cdot (p, n)$ 反応等によるアナログ状態への遷移にも見られる^{6), 7), 8)}。夫々の励起エネルギーは、 $E_x(^{40}\text{Ca}) = 9.5 \text{ MeV}$ 及び $E_x(^{40}\text{Sc}) = 2.3 \text{ MeV}$ である。第12図に、 $^{40}\text{Ca}(p, n)^{40}\text{Sc}^* [E_x = 2.3 \text{ MeV}]$ 反応の角分布⁸⁾を示す。この図で、理論計算は DW 波動関数を用いた DWBA 計算値である。この角分布の $15 \sim 35$ 度が、本実験における移行運動量領域と対応している。この領域では、本実験結果と同じく $3^- \cdot 4^-$ 準位が強く励起されている事が分かる。ただし、 (r, π^+) 反応では 3^- 準位の方が強く励起されているのに対して、 (p, n) 反応では 4^- 準位の方が強く励起されている。この (p, n) 反応における入射陽子エネルギーは 134 MeV であり、核子核子相互作用の中心力部分では $\sigma\tau$ モードが τ モードに比べて強い事が知られている¹¹⁾。従って、移行運動量の小さい領域では (r, π^+) 反応と同様にスピン・アインスピンスピン反転遷移が選択的に励起される。しかし、ここで考察している角分布の $15 \sim 35$ 度に対応する移行運動量領域では、Love-Franey¹¹⁾ による核子核子相互作用のエネルギー・移行運動量依存性に関する計算から、tensor 力が優位を占める事が分かる。このような反応機構の違いが遷移強度に現われていると考えられる。



第12図 $^{40}\text{Ca}(p, n)^{40}\text{Sc}^* [E_x = 2.3 \text{ MeV}]$ 反応の角分布(文献8より転載)。

§ 4. ま と め

$^{40}\text{Ca}(e, \pi^+)^{40}\text{K}$ エネルギースペクトルの測定により, $E_x(^{40}\text{K}) \lesssim 7\text{ MeV}$ 以下の低励起エネルギー領域に基底状態の他に4つの強いスピン・アイソスピン反転遷移の準位が見つかった。光子スペクトルを媒介として(r, π^+) 反応微分断面積を求めて各準位への遷移強度の移行運動量依存性を調べる事によって, 終状態の主配位を明らかにした。また各準位への遷移強度に関して, 他の核反応によるアナログ状態への遷移と比較して, 反応機構の相違について考察した。

参 考 文 献

- 1) 加賀谷聡, 他 : 核理研研究報告 **20** (1987) 274.
- 2) C. F. Chew *et al.* : Phys. Rev. **106** (1957) 1345.
- 3) J. A. Carr *et al.* : Phys. Rev. C **25** (1982) 952.
- 4) H. Ohtsubo : private communication.
- 5) T. W. Donnelly and G. E. Walker : Ann. of Phys. **60** (1970) 209.
- 6) L. W. Fagg *et al.* : Phys. Rev. C **4** (1971) 2089.
- 7) S. Oguro *et al.* : Phys. Rev. C **30** (1984) 1159.
- 8) T. Chittrakarn *et al.* : Phys. Rev. C **34** (1986) 80.
- 9) W. Gross *et al.* : Phys. Lett. **84 B** (1979) 296.
- 10) M. Sakakura *et al.* : Phys. Lett. **61 B** (1976) 335.
- 11) W. G. Love and M. A. Franey : Phys. Rev. C **24** (1981) 1073.

Ⅱ. 放 射 化 学

Sr 及び Cs 体系中の光核反応生成核種の分布

サイクロ・RI センター, 東大核研*, 追手門学院大**

中村尚司・山寺 亮・福村明史・加瀬 健

柴田誠一*・藤原一郎**

§ 1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の消滅処理については, 超ウラン元素に加えて廃棄物中で最も量の多い ^{90}Sr , ^{137}Cs の処理が重要である。そこで ^{90}Sr , ^{137}Cs の光核反応による消滅処理の基礎研究に着手した。これらについては光核反応断面積自身分っていないが, 本年度はまず手始めとして, 天然の Sr や Cs の厚いターゲットを用いて実際の照射試料を模擬し, その内部において光核反応により生成された放射性核種の分布を求めた。これは計算コードの精度の検証のための実験値として利用されるとともに, 消滅処理におけるターゲットシステムの設計において参考となるデータを提供するであろう。

§ 2. 実験方法

照射実験は, 1987年7月28日, 9月14日, 11月25日と1988年1月30日に東北大学理学部附属原子核理学研究施設の電子ライナックを用いて行われた。実験配置は第1図に示す。

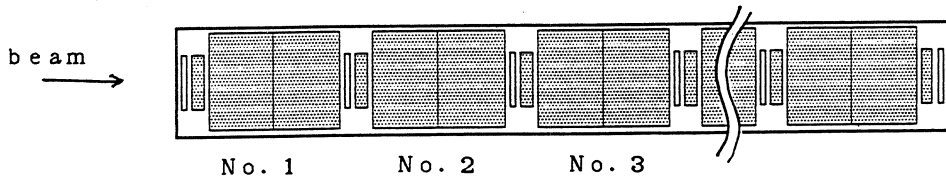
電子ライナックで30及び60 MeV に加速された電子は, 1 mm 厚の白金コンバータに入射し, 制動放射 X 線を発生する。この X 線を用いて Sr と Cs の厚いスタック状のターゲットを照射する。

白金コンバータを通過した電子は, そのすぐ後ろにおかれたマグネットによって掃引され, 照射試料には入射しない。また電子電流はビーム取出し口のすぐ後に置かれたコアモニターによって測定され, 30 MeV の時に約 $100 \mu\text{A}$, 60 MeV の時には約 $80 \mu\text{A}$ であった。しかしコアモニターから白金コンバータまでは電子が空中を 49.2 cm 走るため, その間散乱によって電子が広がるため, コアモニターで測定された電流はコンバータに入射した電子数と一致しない。ただし, コンバータで最大のビーム電流がえられるように Q マグネットコンバータ上にビームの焦点が絞られている。コンバータを通過した電子が入射ないように, ターゲットはマグネットより後方に, コンバータから 25.8 cm 離しておかれた。このためターゲットに入射する制動放射 X 線の強度は, 直接コアモニターの電流から算出することができないので, 別にターゲット

に照射したX線の量をモニタする方法が用いられた。

ターゲットスタックは次のような方法で製作した。

錠剤成型器を用いて、粉末の炭酸ストロンチウム及び炭酸セシウムを大小2つの大きさに圧縮成型した。このうち大きい方は直径18 mm，約15 mm厚で制動放射X線の減衰用として、小さい方は直径10 mm，約1 mm厚で光核反応による生成放射能の測定用としてそれぞれ作られた。平均密度は炭酸ストロンチウム試料が2.36，炭酸セシウム試料が2.94 g/cm³である。また直径10 mm，0.01 mm厚の金箔を光子線束密度を求めるモニターとして用意した。次に金箔モニター，測定用試料そして数個の減衰用試料を1セットとして第1図に示すようにガラス管に次々と重ねて詰めてゆき，長さ20 cm前後のターゲットスタックを構成した。



第1図 Structural view of the target stack of SrCO₃ and Cs₂CO₃.

§ 3. データ解析

3.1 飽和放射能の算出

飽和放射能即ち生成率（単位時間当りの放射性核種の生成数） P は，えられた r 線スペクトルのピーク面積 C_p （カウント数）から次式により求められる。

$$P = \frac{\lambda C_p}{r \epsilon_p (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_w} (1 - e^{-\lambda t_c})} \quad (1)$$

λ : 壊変定数 (s⁻¹) r : 分岐比
 t_i : 照射時間 (s) t_w : 待ち時間 (s)
 t_c : 計数時間 (s) ϵ_p : ピーク検出効率

また ⁸⁸Kr - ⁸⁸Rb や ¹⁴⁰Ba - ¹⁴⁰La など2つの生成放射性核種の間に関係がある場合，娘核種の生成率を求めるには親核種の壊変分を補正しなければならない。親核が娘核に壊変する割合を x とし，娘核のパラメータには*をつけるものとすれば，娘核の生成率 P^* は次式により与えられる。

$$P^* = \frac{\lambda^*}{1 - e^{-\lambda^* t_i}} \left[\frac{A_1^*}{\lambda^*} e^{\lambda^* t_w} + \frac{x A_1 e^{\lambda t_w}}{\lambda^* - \lambda} \{ 1 - e^{(\lambda^* - \lambda) t_w} \} \right. \\ \left. + x P \left\{ \frac{e^{-\lambda^* t_i} - e^{-\lambda t_i}}{\lambda - \lambda^*} + \frac{e^{-\lambda^* t_i} - 1}{\lambda^*} \right\} \right] \quad (2)$$

ここで A_1 及び A_1^* はそれぞれ測定開始時の親核と娘核の放射能であり、測定されたピークカウント数 C_p 、 C_p^* より

$$A_1 = \frac{\lambda C_p}{r \varepsilon_p (1 - e^{-\lambda t_c})} \quad A_1^* = \frac{\lambda^* C_p^*}{r^* \varepsilon_p^* (1 - e^{-\lambda^* t_c})} \quad (3)$$

から求められる。

3.2 光子束分布の算出

この実験の場合、体系内の光子束分布を求める必要がある。ターゲットスタック中、深さ X での ^{196}Au の飽和放射能 $A_s(X)$ は

$$A_s(X) = N_T \int_{E_{th}}^{E_0} \sigma(E) \phi(E, X) dE \quad (4)$$

で与えられる。ただし $\phi(E, X)$ は深さ X での、制動放射 X 線のエネルギースペクトル、 $\sigma(E)$ は $^{197}\text{Au}(r, n)$ 反応の断面積、 N_T は ^{197}Au の個数、 E_0 は入射電子エネルギーである。

ここで位置 X での、電子 1 個が白金コンバータに垂直に入射した際発生する制動放射 X 線のスペクトル $\phi(E, X)$ がわかれば

$$\phi(E, X) = K \psi(E, X) \quad (5)$$

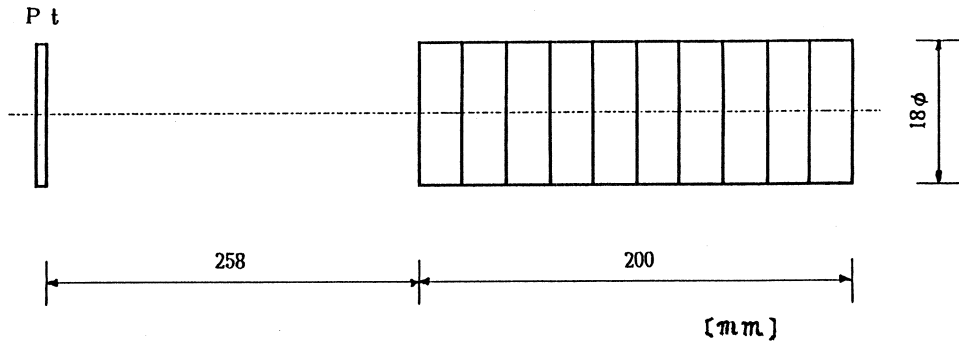
とおくことができ、これを(4)式に代入すると、

$$A_s(X) = K N \int_{E_{th}}^{E_0} \sigma(E) \psi(E, X) dE \quad (6)$$

となる。この式から単位時間当りに白金コンバータに入る電子数を表わす定数 K が求まり、(5)式を用いてその位置での $\phi(E, X)$ を決定することができる。この $\psi(E, X)$ を、電磁カスケードモンテカルロコード EGS 4¹⁾ を用いて計算し、ターゲットスタック各位置での入射光子線束密度を求めた。

この計算では、照射実験を模擬するように幾何学的条件を設定した。炭酸ストロンチウム、炭酸セシウムの密度はそれぞれ照射実験で用いた試料と同じ 2.36 、 $2.94 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ とし、第 2 図に示すような幾何学的配置を設定した。白金コンバータ並びにターゲットスタックの直径は共に 18 mm で、白金コンバータは 1 mm 厚、白金コンバータ、ターゲットスタック間の距離は

25.8 cm, ターゲットスタックの全長は 20 cm である。白金コンバータ, ターゲットスタック以外の場所は, 計算の簡単化のため真空とした。



第2図 Calculational geometry of the SrCO_3 and Cs_2CO_3 irradiation experiments.

計算では, 電子は 30 MeV または 60 MeV の運動エネルギーを持って, 白金コンバータの中心に垂直に入射する。制動放射をした後コンバータを通過する電子はマグネットで掃引される代わりに, コンバータを通り抜けた時点で追跡が終り, 照射実験と同様にターゲットスタックには入射しない。

白金コンバータで発生した制動放射 X 線は, ターゲットスタックの端面および 2 cm 間隔に設けられた断面の合せて 11 面でモニターされ, これらの位置でのスペクトルが算出されるようにした。

計算は, 高エネルギー物理学研究所の大型計算機 (HITAC M-680H) を用いて行なった。計算例として第 3 及び第 4 図に炭酸セシウムの 20 cm 厚ターゲットによって減衰された, 30 及び 60 MeV X 線のエネルギースペクトルを統計誤差と共に示す。上部の実線はコンバータ側の最上流面 ($X=0$ cm) での, 下部の実線は最下流面 ($X=20$ cm) でのスペクトルであり, 白金コンバータに電子が 1 個入射した際, モニター面を通過する光子の数として与えている。なおヒストリー数は何れのケースも 10 万とした。

図から明らかな様に何れのケースも低エネルギーや高エネルギー領域では, ターゲットスタック両端面間でのスペクトルの形に大きな違いが認められるが, 光核反応において重要な 10-20 MeV 付近ではスペクトルの形があまり変化していないという結果が得られた。

§ 4. 実験結果と考察

4.1 光核反応生成核種とその分布

Sr (存在比: ^{88}Sr 86.2%, ^{87}Sr 7.02%, ^{86}Sr 9.84%, ^{84}Sr 0.56%) と Cs (存在比: ^{133}Cs 100%) から光核反応によって生成した7種の確認放射性核種とその推定生成核反応を、諸データとともに第1表に示す。第3, 4図からも明らかな様に制動放射X線のスペクトルでは、低エネルギー領域ほど光子数は多い。このため反応のQ値が10 MeV 前後と比較的小

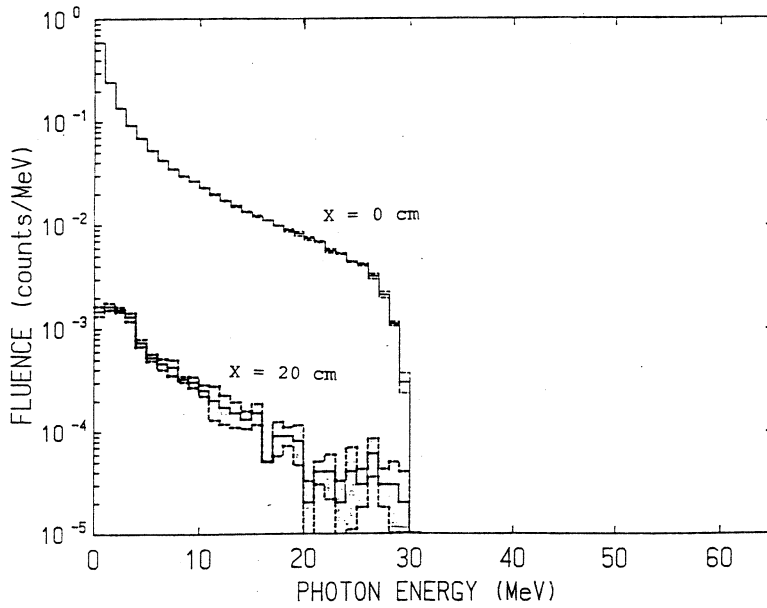
第1表 天然のSr及びCsの光核反応生成核種と推定される核反応。

核種	半減期	主な γ 線〔keV〕*	核反応	Q値〔MeV〕
$^{87\text{m}}\text{Sr}$	2.81 h	388.4 (82.3%)	$^{88}\text{Sr}(\gamma, n)$	- 11.5
$^{85\text{m}}\text{Sr}$	68.0 m	231.7 (85.0%)	$^{86}\text{Sr}(\gamma, n)$	- 11.7
			$^{87}\text{Sr}(\gamma, 2n)$	- 20.2
			$^{88}\text{Sr}(\gamma, 3n)$	- 31.3
^{85}Sr	64.8 d	513.9 (98.0%)	$^{86}\text{Sr}(\gamma, n)$	- 11.5
			$^{87}\text{Sr}(\gamma, 2n)$	- 19.9
			$^{88}\text{Sr}(\gamma, 3n)$	- 31.0
^{83}Sr	32.4 h	762.7 (30.0%)	$^{84}\text{Sr}(\gamma, n)$	- 12.0
^{86}Rb	18.7 d	1076.6 (8.76%)	$^{87}\text{Sr}(\gamma, p)$	- 9.42
			$^{88}\text{Sr}(\gamma, pn)$	- 20.5
^{84}Rb	33.0 d	881.5 (75.3%)	$^{86}\text{Sr}(\gamma, pn)$	- 20.1
			$^{87}\text{Sr}(\gamma, p2n)$	- 28.5
^{132}Cs	6.47 d	667.7 (97.5%)	$^{133}\text{Cs}(\gamma, n)$	- 8.99

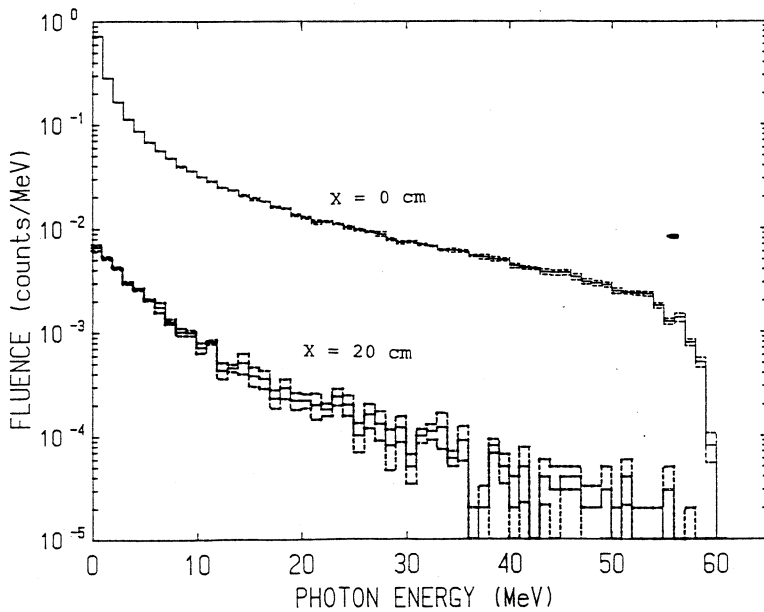
* カッコ内は γ 線放出率を示す。

さい(γ, n) (γ, p) 反応が大勢を占めているものと思われる。このうち $^{88}, ^{87}\text{Sr}(\gamma, n)$, $^{86}\text{Sr}(\gamma, p)$, $^{133}\text{Cs}(\gamma, p)$ の各反応によって生成する $^{87}, ^{86}\text{Sr}$, ^{85}Rb , ^{132}Xe は安定同位体のため、そして $^{88}\text{Sr}(\gamma, p)$ 反応によって生成する ^{87}Rb はベータ崩壊の際に γ 線を放出しないため、それぞれ γ 線スペクトル分析による光核変換の定量は不可能であった。また $^{84}\text{Sr}(\gamma, p)$ 反応によって生成する ^{83}Rb の γ 線ピークも確認されたが、親娘補正の結果その殆どが $^{84}\text{Sr}(\gamma, n)$ によって生成した ^{83}Sr の崩壊によるものと判明し有意な定量は出来なかった。しかしこれらの光核反応では、 $^{88}\text{Sr}(\gamma, p)$ 以外は安定同位体や収率の低い核種を生成するため、消滅処理という観点からすれば、それはさほど問題にならないと言える。

第5, 6図は, 30及び60 MeVの制動放射X線を炭酸ストロンチウムに照射した際に生成す



第3図 Photon spectra at the incident surface, $X=0$ cm, and at the exit surface, $X=20$ cm, calculated with the EGS-4 code ¹⁾ (30 MeV bremsstrahlung incident on Cs_2CO_3)

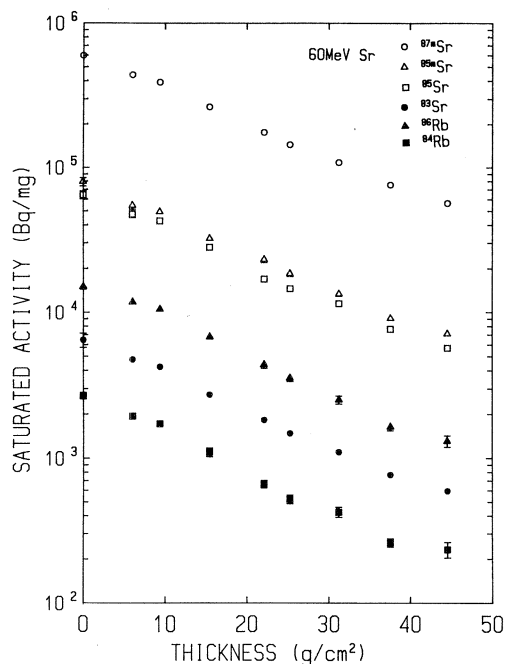


第4図 Photon spectra at the incident surface, $X=0$ cm, and at the exit surface, $X=20$ cm, calculated with the EGS-4 code ¹⁾ (60 MeV bremsstrahlung incident on Cs_2CO_3)

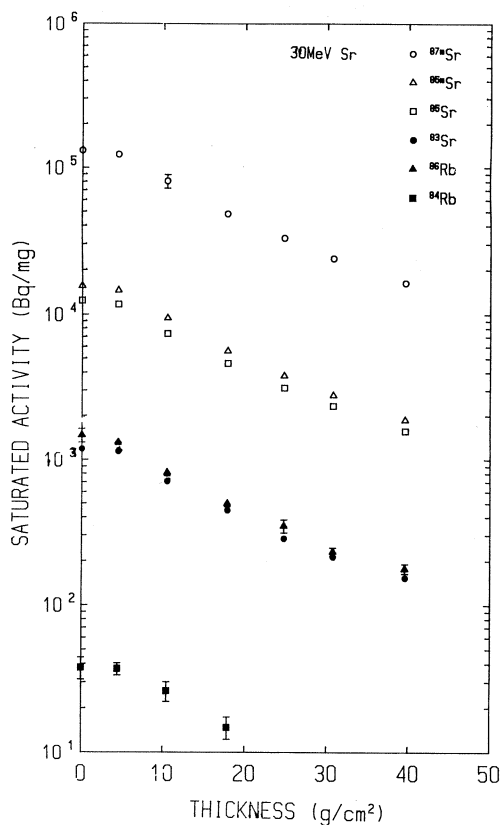
る核種の、単位質量、単位時間当りの生成量を、ビーム軸上の炭酸ストロンチウムの厚さの関数として示した実験結果である。 ^{85}Sr のデータは、 $^{85\text{m}}\text{Sr}$ との間で(2)式に示した親娘補正を施してある。一方、第7図は30及び60 MeVの制動放射X線を、炭酸セシウムに照射した際に生成した ^{132}Cs の生成量の分布を示した実験結果である。

これら一連のグラフから言える事は、

- ① 制動放射X線の最大エネルギーが変化しても各核種の生成量分布曲線の傾きは殆ど変わらない。
- ② 制動放射X線の最大エネルギーが変化し



第6図 Axial distribution of measured saturated activities of radionuclides produced in SrCO_3 bombarded by 60 MeV bremsstrahlung.



第5図 Axial distribution of measured saturated activities of radionuclides produced in SrCO_3 bombarded by 30 MeV bremsstrahlung.

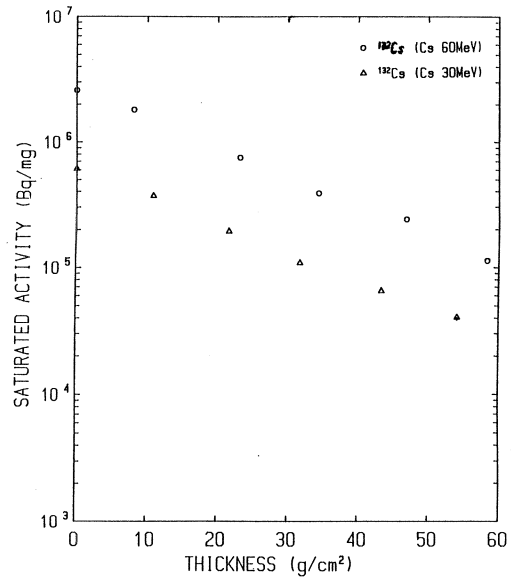
ても、炭酸セシウム中に生成した放射性セシウム(^{132}Cs)及び炭酸ストロンチウム中に生成した放射性ストロンチウム($^{87\text{m}}\text{Sr}$, $^{85\text{m}}\text{Sr}$, ^{85}Sr , ^{83}Sr)の各生成率分布曲線の間隔、即ち生成率の比は互にほぼ一定に保たれる。

これらの傾向は、各反応によって励起関数が異なり、また制動放射X線が連続なエネルギー分布を有する事を考えると、興味深い。一般に10~60 MeVのエネルギー領域では光子の質量減弱係数の変化は緩やかである。よ

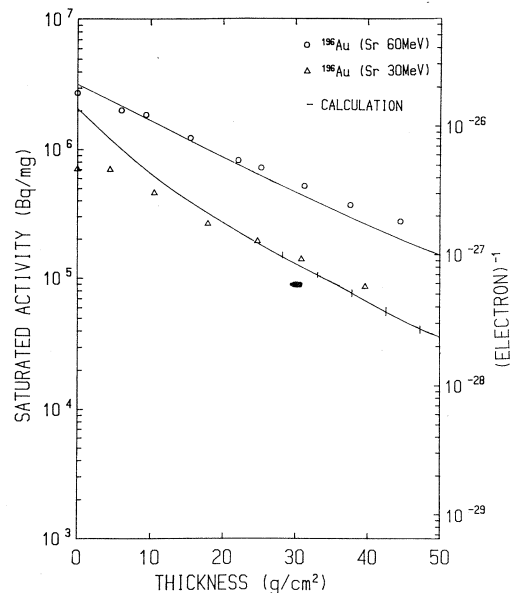
って制動放射 X 線の最大エネルギーが変化しても、ターゲットスタック中での光子の減衰の様子はあまり変化がないと考えられる。また第 3, 4 図に示したように、光核反応に重要なエネルギー領域(約 8 ~ 約 25 MeV の範囲)でのスペクトルの形は、減衰によって大きく変化することはなく比較的平らな形をしているため、このような結果が得られたものと思われる。

③ 炭酸ストロンチウム中に生成した放射性ルビジウム (^{86}Rb , ^{84}Rb) については、60 MeV に比べて 30 MeV での生成率ははるかに小さく ^{86}Rb に比べて ^{84}Rb はもっと比が小さい。これは第 1 表から明らかな様に、 ^{84}Rb を生成する核反応は、(r , pn) や (r , p2n) といった $-Q$ 値が 20 MeV 以上の高い反応しかなく、このようなエネルギー領域では第 3, 4 図に示した通り、60 MeV に比べ 30 MeV の場合は光子数がはるかに少ないからである。 ^{86}Rb の場合は ^{87}Sr (r , p) 反応 ($-Q$ 値 9.42 MeV) よりも ^{87}Sr (r , p2n) 反応 ($-Q$ 値 20.5 MeV) が主な生成反応であることによるものと思われる。

第 8, 9 図はそれぞれ炭酸ストロンチウム及び炭酸セシウム中に挟んだ単位質量あたりの金箔モニターにおける ^{196}Au の飽和放射能を、ターゲットスタックの厚さの関数として表した実験結果である。これらのグラフでも前述の①の様にも両エネルギーで



第 7 図 Axial distribution of measured saturated activities of radionuclides produced in Cs_2CO_3 bombarded by 30- and 60-MeV bremsstrahlung.

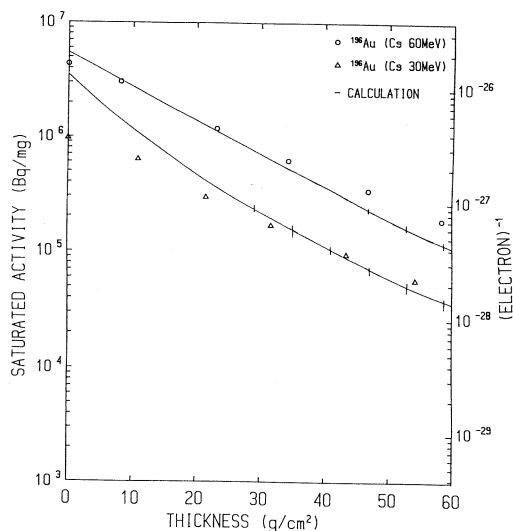


第 8 図 Comparison of measured and calculated saturated activities of ^{196}Au produced in SrCO_3 by 30- and 60-MeV bremsstrahlung.

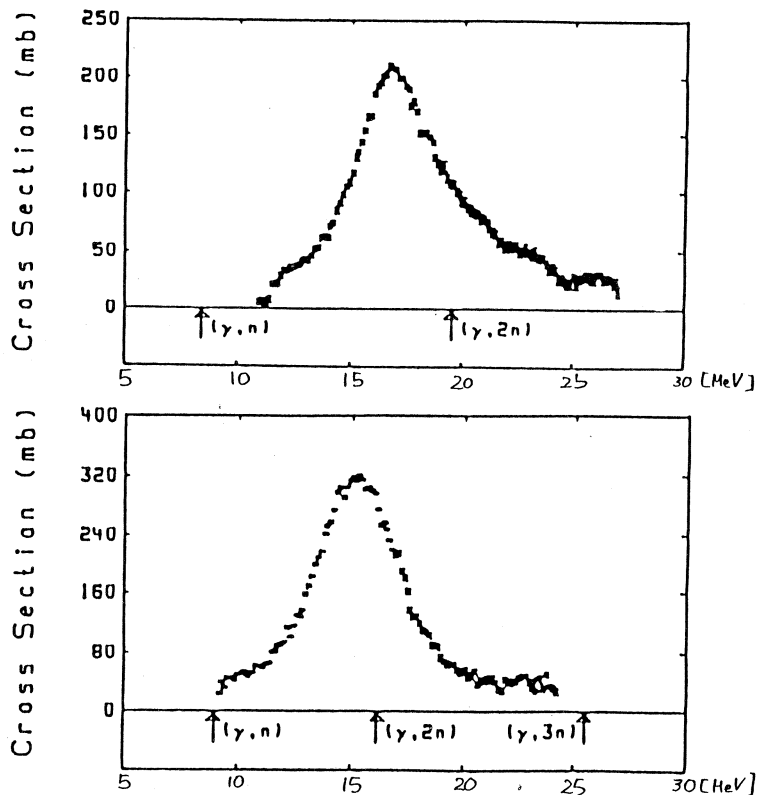
の飽和放射能分布曲線の傾きが一致している。また両エネルギー間での飽和放射能分布曲線の間隔は、それぞれ放射性ストロンチウム、 ^{132}Cs のそれにはほぼ等しい。これは (r, n) 反応の励起関数における巨大共鳴領域のエネルギー範囲が、両者の間でよく似ているためであろう。

4.2 実験値と計算値の比較

第8, 9図には、(6)式から求められた30, 60 MeV 制動放射 X線を照射した際の、炭酸ストロンチウム及び炭酸セシウム中の深さXに対する ^{196}Au の飽和放射能 $A_s(X)$ の分布も実線で示している。ただしグラフ



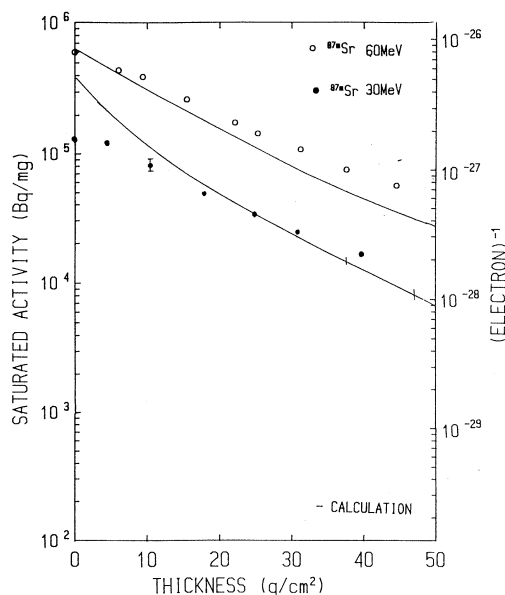
第9図 Comparison of measured and calculated saturated activities of ^{196}Au produced in Cs_2CO_3 by 30- and 60-MeV bremsstrahlung.



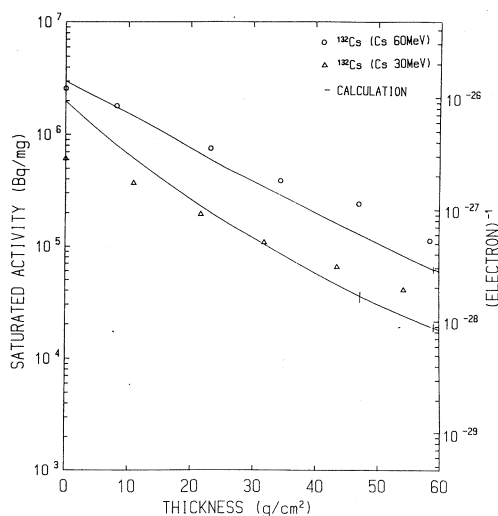
第10図 Single photoneutron cross sections of natural Sr and ^{133}Cs ².

には $As(X)/KN_T$ として与えられており、 K は単位時間当りコンバータに入射する電子数に相当する定数、 N_T は金の原子数である。従ってこの値は、電子1個が白金コンバータに入射した際、 ^{197}Au 原子核1個が ^{196}Au に変換される確率を示している。

第11, 12図には、(10)式の $\sigma(E)$ として第10図に示されるストロンチウムとセシウムの $^{nat}\text{Sr}(\gamma, n)$ 及び $^{133}\text{Cs}(\gamma, n)$ 反応の励起関数 $\sigma_{\text{Sr}}(E)$, $\sigma_{\text{Cs}}(E)$ ²⁾ を用いた計算値を示す。第11図の $^{nat}\text{Sr}(\gamma, n)$ 反応の計算値は、 (γ, n) 反応のうちで最も生成量の多い $^{88}\text{Sr}(\gamma, n)$ $^{87\text{m}}\text{Sr}$ による $^{87\text{m}}\text{Sr}$ の分布の実験値と、また第12図の $^{133}\text{Cs}(\gamma, n)$ 反応の計算値は、 $^{133}\text{Cs}(\gamma, n)$ ^{132}Cs による ^{132}Cs の分布の実験値と比較されている。



第11図 Comparison of measured and calculated saturated activities of $^{87\text{m}}\text{Sr}$ produced in SrCO_3 by 30- and 60-MeV bremsstrahlung.



第12図 Comparison of measured and calculated saturated activities of ^{132}Cs produced in Cs_2CO_3 by 30- and 60-MeV bremsstrahlung.

これらのグラフから次のことが分る。

- ① 生成放射能分布の実験値と全く同じように $\text{Au}(\gamma, n)$, $\text{Sr}(\gamma, n)$, $\text{Cs}(\gamma, n)$ 反応率の計算値も、互にその深さ分布の形がよく似ており、また30 MeVと60 MeVとの分布の間隔もほとんど同じである。この事は (γ, n) 反応の生成放射能の深さ分布はその励起関数が異なってもほとんど変化せず、8~25 MeV領域の光子数に依存していることを示していて、実験の結果を裏づけている。

② ただし、実験値 $As(X)$ と計算値 $\int \sigma(E) \psi(E, X) dE$ との傾きは大きくずれており、このずれは 60 MeV に比べて 30 MeV の方がはるかに大きい。このずれの原因は以下のように考えられる。実際の配置は第 2 図の計算に用いた幾何学的条件のように簡略化した。また計算では電子はコンバータの中心に垂直に入射するが、実際の電子線は拡がりを持ち、白金コンバータに到達する以前に真空ダクトの窓や空気での散乱も受ける。

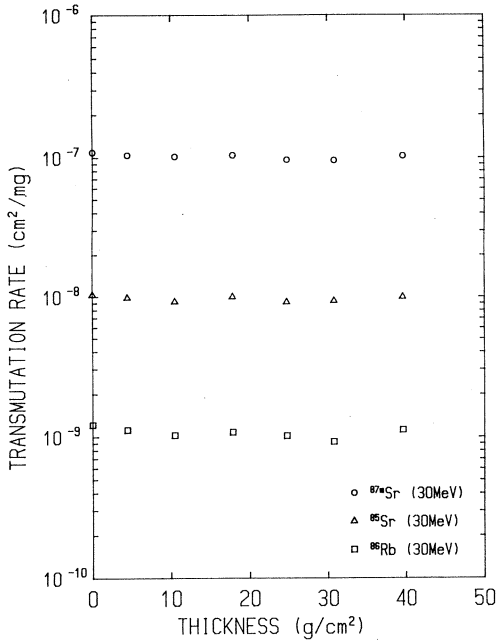
その結果、制動放射 X 線は白金コンバータのみならずコンバータを支える銅枠やダクト、電磁石のカバー等でも発生し計算上の放射線場と異なっているものと予想される。実験値の傾きのほうが計算値のそれより緩やかであるという事実は、ビーム軸に対して横方向からも X 線が入射していることを示唆する。また傾きのずれが 30 MeV の方が顕著であることは、低エネルギーの電子ほど物質との相互作用の際の散乱角が大きくビームが拡がりやすいということを反映している。さらに炭酸ストロンチウムに 30, 60 MeV の X 線を照射した際の平均電子ビーム強度はどちらもコアモニター位置で約 70 μA とほぼ等しいのだが、第 8 図に示したように、60 MeV と 30 MeV でのターゲットスタック入射点における金箔モニターの放射能の差、すなわち入射する X 線の量の差が計算値に比べ実験値の方がより大きくなっており、白金コンバータに入射した電子数が 30, 60 MeV で異なることが読みとれる。このことから電子線ビームの拡がりの影響がうかがえる。以上のように実際の電子線の拡がりや制動放射 X 線の発生源を、計算上で模擬することが非常に困難なため、このようなずれが生じたのであろう。

以上の結果、実験値 $As(X)$ と計算値 $\int \sigma(E) \psi(E, X) dE$ との傾きにはずれがあり、(6)式に示す定数 K を決め、それからコンバータに入射した電子数を求めることはできなくなった。そこでこの K を深さによって変化する $K(X)$ と考え、 ^{196}Au の放射能の測定値 $As(X)$ がえられた位置毎に $K(X)$ を求め、(5)式より光子線束密度 $\phi(E, X)$ を求めた。前述したように光核反応に重要なエネルギー領域が 8 MeV から 25 MeV であることから、その範囲で積分した全光子線束密度 $\Phi(X)$

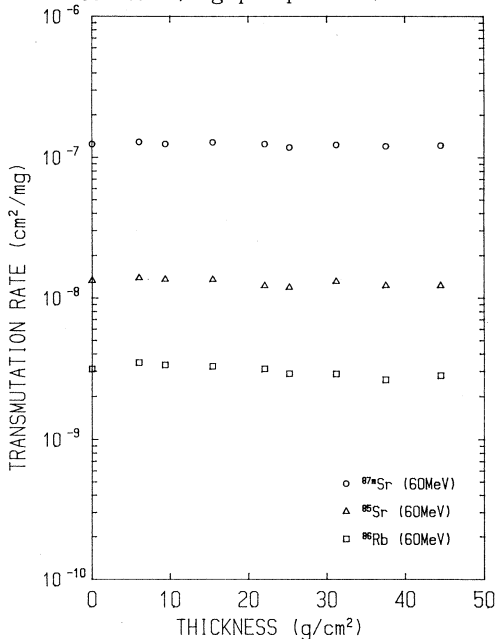
$$\Phi(X) = \int_{8\text{MeV}}^{25\text{MeV}} \phi(E, X) dE \quad (7)$$

を求めた。

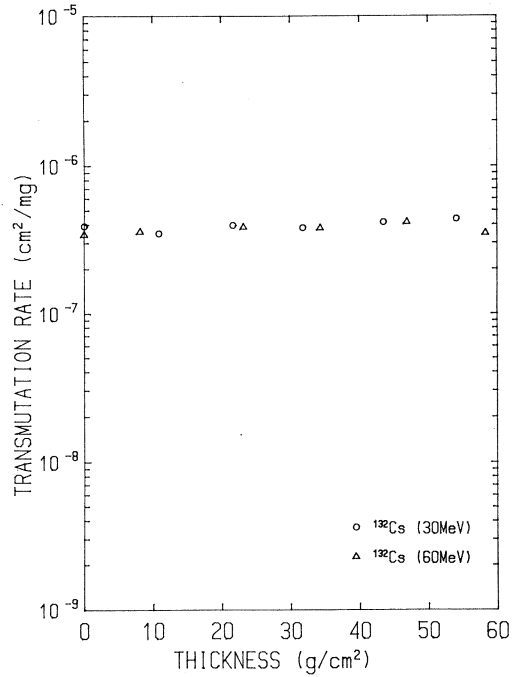
最後に $\Phi(X)$ で規格化した光核反応生成核種の生成率 $As(X)/\Phi(X)$ を求めた。第 13～15 図にその結果を深さ X の関数として示す。この値は 8 MeV ～ 25 MeV のエネルギーの全光子束 1 個/cm² が 1 mg の試料中で各核種 1 個を生成する確率として与えられており、核変換率に相当するものである。図から明らかなようにこの値は深さによらずほとんど一定の値を持つ



第13図 Transmutation rate of natural Sr by 30 MeV bremsstrahlung as a function of target depth, in units of atoms/mg per photons/cm².



第14図 Transmutation rate of natural Sr by 60 MeV bremsstrahlung as a function of target depth, in units of atoms/mg per photons/cm².



第15図 Transmutation rate of natural Cs by 30 and 60 MeV bremsstrahlung as a function of target depth, in units of atoms/mg per photons/cm².

ている。これは光核反応に重要な 8 MeV~25 MeV のエネルギーの光子スペクトルの形が、この実験に使用したような厚さの体系 (~60 g/cm²) 中ではほとんど変化していないことを意味している。第 2 表にこの核変換率をまとめた。ただしこの表で $^{88}\text{Sr}(r, n)^{87}\text{Sr}$ 反応は ^{87}Sr が安定のため検知できず、この核変換率 R は

$$R(^{87}\text{Sr}) = R(^{87\text{m}}\text{Sr}) \times \frac{R(^{85}\text{Sr})}{R(^{35\text{m}}\text{Sr})} \quad (8)$$

と近似して推定した。つまり ^{85}Sr と ^{87}Sr で基底状態と励起状態での生成率の割合は等し

第2表 天然のSr及びCsの光核反応による核変換率。

生成核種	生成反応	核変換率 R		(atom·mg ⁻¹ /(r·cm ⁻²)) 60MeV/30MeV	
		30MeV	60MeV		
^{87m} Sr	⁸⁸ Sr (r, n)	1.02 E-7	1.23 E-7	1.21	
⁸⁷ Sr		(8.31 E-8)*	(1.02 E-7)*	—	
^{87m+g} Sr		(1.85 E-7)*	(2.25 E-7)*	—	
^{85m} Sr	⁸⁶ Sr (r, n)	1.19 E-8	1.56 E-8	1.31	
⁸⁵ Sr		[⁸⁷ Sr (r, 2n) ⁸⁸ Sr (r, 3n)]	9.69 E-9	1.29 E-8	1.33
^{85m+g} Sr		2.16 E-8	2.85 E-8	—	
⁸³ Sr	⁸⁴ Sr (r, n)	9.21 E-10	1.30 E-9	1.41	
⁸⁶ Rb	⁸⁸ Sr (r, pn)	1.07 E-9	3.05 E-9	2.85	
	[⁸⁷ Sr (r, p)]				
⁸⁴ Rb	⁸⁷ Sr (r, p2n)	3.19 E-11	5.00 E-10	15.7	
	[⁸⁶ Sr (r, pn)]				
¹³² Cs	¹³³ Cs (r, n)	3.94 E-7	3.71 E-7	0.94	

[]内は副次的反応

()*: ⁸⁷Srは安定のため測定できないので、

$$R(^{87}\text{Sr}) \approx R(^{87\text{m}}\text{Sr}) \times \frac{R(^{85}\text{Sr})}{R(^{85\text{m}}\text{Sr})}$$

と近似して推定した。

いと仮定した。

この表から次のことが推論される。

① 60MeVと30MeVでのRの比はSr(r, n)反応の場合おおよそ1.2~1.4である。このことから^{85m}Sr, ⁸⁵Srの生成は⁸⁶Sr(r, n)によるものが大部分を占めること、また⁸⁶RbはこのRの比が2.85と大きいことから第1表に示す-Q値より判断して⁸⁸Sr(r, pn)が主な生成反応であり、⁸⁴Rbは比が15.7ともっと大きいので-Q値より⁸⁷Sr(r, p2n)が主な生成反応であることが推論できる。

$$\begin{aligned} \textcircled{2} \quad R(^{87\text{m}+g}\text{Sr}) : R(^{85\text{m}+g}\text{Sr}) : R(^{83}\text{Sr}) &= 100 : 11.7 : 0.50 \quad (30\text{MeV}) \\ &= 100 : 12.7 : 0.58 \quad (60\text{MeV}) \end{aligned}$$

である。これらが主に⁸⁸Sr(r, n), ⁸⁶Sr(r, n), ⁸⁴Sr(r, n)によって生成されるので、仮にこれら3つの(r, n)反応の断面積が等しいとすればこれらは⁸⁸Sr, ⁸⁶Sr, ⁸⁴Srの

存在比に等しくなるはずである。この存在比の比率を求めてみると

$$\begin{aligned} {}^{88}\text{Sr} : {}^{86}\text{Sr} : {}^{84}\text{Sr} &= 86.2 : 9.84 : 0.56 \\ &= 100 : 11.4 : 0.65 \end{aligned}$$

となる。30 MeV の場合の $R({}^{87\text{m}+\text{g}}\text{Sr})$ と $R({}^{85\text{m}+\text{g}}\text{Sr})$ の比は ${}^{88}\text{Sr}$ と ${}^{86}\text{Sr}$ の存在比にほとんど等しく、 $R({}^{83}\text{Sr})$ は ${}^{84}\text{Sr}$ の存在比よりも小さくなっている。60 MeV の場合には $R({}^{87\text{m}+\text{g}}\text{Sr})$ と $R({}^{85\text{m}+\text{g}}\text{Sr})$ の比が ${}^{88}\text{Sr}$ と ${}^{86}\text{Sr}$ の存在比より大きいのは、 ${}^{85\text{m}+\text{g}}\text{Sr}$ を生成する $(r, 2n)$ 反応の寄与が加わったためと推定される。このことから ${}^{88}\text{Sr}(r, n)$ 及び ${}^{86}\text{Sr}(r, n)$ 反応の断面積はほぼ等しく、 ${}^{84}\text{Sr}(r, n)$ 反応の断面積はそれより約20%小さくなっているものと思われる。 ${}_{38}^{88}\text{Sr}_{50}$ 、 ${}_{38}^{86}\text{Sr}_{48}$ に比べ ${}_{38}^{84}\text{Sr}_{46}$ は中性子数が少いためであろうか。

③ ${}^{\text{nat.}}\text{Cs}(r, n)$ による生成率と ${}^{\text{nat.}}\text{Sr}(r, n)$ による生成率の比は30 MeV で約2、60 MeV で約1.5 となり、第11、12図に示す計算値の比約1.75 (30 MeV, 60 MeV とともに) に大体一致している。

§ 5. 結 論

天然のCs, Sr 体系での実験によりCs, Sr の核変換に関する情報がえられた。その結果光子束当りの変換量は60 g/cm² 位の体系ではほとんど一定であり、光子束の減衰に比例して変化することが分った。ただし現在の実験コースではコンバータに入射する電子の量が不明で、しかもビームも拡がっていて計算値と合っていない。

計算コードとの比較を行って計算精度の検証をするためには電子当りの核変換量を知ることが必要であり、このためには電子を測定しなければならない。

このため63年度には核理研のライナックに新しいビームコースを作り、コンバータに入射する電子やターゲットに入射する光子束を精度よく測定できるようにして実験を進める予定である。

本研究の遂行にあたり全面的にご協力いただいた動力炉核燃料開発事業団に深く感謝致します。

照射実験の際お世話になりました東北大学理学部原子核理学研究施設の八木益男氏(現金研)、榎本和義氏並びにマシングループの方々、またCs, Sr のターゲットスタック作成にご協力

いただいた東北大学金属材料研究所複合高圧技術掛の吉井勇氏に深くお礼申し上げます。

また EGS-4 コードの計算を全面的に援助していただいた高エネルギー物理学研究所の平山英夫氏にも心から感謝いたしますとともに、実験に協力していただいた東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター放射線管理研究部の皆様にもお礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) H. Hirayama, W. R. Nelson and D. W. O. Rogers : SLAC-265 (1985).
- 2) S. S. Dietrich and B. L. Berman : *Atlas of Photoneutron Cross Sections Obtained with Monoenergetic Photons*, UCRL-94820 (1986).

アセチルアセトナトコバルト錯体系における 配位子中の ^{12}C より生成する ^7Be の錯体収率 の異常性

筑波大化学系

沼田 靖・荘司 準・池田長生

§ 1. 緒 言

錯体の固相におけるホットアトム化学では、中心金属の反跳挙動に着目する 경우가多いが、配位子から生成するホットアトムの挙動も同様に興味ある問題である。筆者達のグループでは以前より、有機系配位子をもつ金属錯体に制動放射線照射を行い、 $^{12}\text{C}(\gamma, n\alpha)^7\text{Be}$ 反応で配位子の ^{12}C から生成する ^7Be が反跳等により錯体の中心金属となる現象に着目し、種々の β -ジケトン錯体についてクロロホルムを溶媒とする湿式化学分離により、 ^7Be の錯体収率を求めてきた¹⁾ (第1表)。その結果、コバルト錯体から得られる ^7Be の錯体収率が、他の金属錯体における場合にくらべて異常に高いことが判明した。このコバルト錯体における異常性を解明するため、本研究では、異常性の最も著しいアセチルアセトナトコバルト錯体のみをとりあげ、その因につき、ビスアセチルアセトナトコバルト(II)の共存の影響と
言う観点から、実験的解析を試みた。

第1表 Radiochemical yield of ^7Be - complexes.

Sample	Yield (%)
Be (acac) ₂	11.8 ± 1.3
Al (acac) ₃	8.7 ± 0.8
Cr (acac) ₃	16.0 ± 1.4
Co (acac) ₃	68.9 ± 3.7
Co (dpm) ₃	40.3 ± 2.3
Co (dbm) ₃	36.4 ± 2.9

acac = acetylacetonato
dpm = dipivaloylmethanato
dbm = dibenzoylmethanato

§ 2. 実 験

2.1 試 料

照射に供したアセチルアセトナトコバルト錯体: $\text{Co}(\text{acac})_3$ と $\text{Co}(\text{acac})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ は、いずれも同仁化学製の市販のものを、純度を確認した上で使用した。

また ^{60}Co 標識の $^* \text{Co}(\text{acac})_3$ は、上記 $\text{Co}(\text{acac})_3$ を立教大学原子力研究所の TRIGA

MARK-II 炉で照射後、 Co^{2+} 担体入りクロロホルムに溶解し、活性アルミナカラムを通して $\text{Co}(\text{acac})_3$ のフラクションを集め、溶媒を揮発させて除き、粉末試料として得た。

2.2 照射

制動放射線照射は、東北大学原子核理学研究施設の電子ライナックで行い、白金コンバーターを使用して最大エネルギー 50 MeV の制動放射線を照射した。照射時間は 8～9 時間で、熱的効果を除くため、試料を冷室素気流下で -100°C 以下に冷却しながら照射を行った。また、未転換電子はスィープマグネットにより除去し、電子線照射による効果が起るのを防いだ。試料はそれぞれ約 100 mg ずつをアルミ泊に包み照射に供した。照射した試料は化学分離開始時まで、二次的熱アニーリングを防ぐためドライアイス中に保存した。

^{60}Co 標識の $^*\text{Co}(\text{acac})_3$ 合成のための、立教大学原子力研究所 TRIGA MARK-II 炉による照射は、F 孔中で炉温にて 2 時間行った。

2.3 化学分離

照射試料 ($\text{Co}(\text{acac})_3$ あるいは $\text{Co}(\text{acac})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) を担体を含む氷冷したジメチルホルムアミド (DMF) に溶解し、活性アルミナカラムに添加し、氷冷した DMF で溶離を行い、 $\text{Be}(\text{acac})_2$ フラクションを得た。担体としては、各 1 mM の Be^{2+} イオン、 Co^{2+} イオンと $\text{Be}(\text{acac})_2$ とを加え、さらに相手のコバルト錯体を加える場合は 2 mM の濃度とした。

得られた測定用試料は、測定器に対するジオメトリーをそろえるため、同一形の容器に同体積に希釈した。

2.4 放射能測定と収率計算

放射能測定には Ge (Li) 半導体検出器とマルチチャンネル波高分析器を用い、 γ 線スペクトロメトリーによりデータ解析を行った。

^7Be の錯体収率 Y は下記の式から求めた。

$$Y(\%) = \frac{A_f}{A_t} \times 100$$

A_f : $\text{Be}(\text{acac})_2$ 錯体部分に含まれている ^7Be の放射能

A_t : 未分離の試料溶液中に含まれている ^7Be の放射能

なお得られた値の精度は、 1σ で示したが、これは放射能の計数誤差と繰り返し実験によるばらつき双方を考慮して算出した。

§ 3. 結果と考察

$\text{Co}(\text{acac})_3$ と $\text{Co}(\text{acac})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ を制動放射線照射し、DMF に溶解した際の、得られた ^7Be の錯体収率と DMF 溶媒中に加えた担体を第 2 表に示す。この表より、湿式化学分離時

第 2 表 ^7Be - complex Yields and Carriers.

Sample	Complex Yield (%)	Carriers
$\text{Co}(\text{acac})_3$	90.2 ± 3.6	Be^{2+} , $\text{Be}(\text{acac})_2$, Co^{2+} , $\text{Co}(\text{acac})_2$
$\text{Co}(\text{acac})_3$	35.4 ± 2.5	Be^{2+} , $\text{Be}(\text{acac})_2$, Co^{2+}
$\text{Co}(\text{acac})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	94.5 ± 9.8	Be^{2+} , $\text{Be}(\text{acac})_2$, Co^{2+} , $\text{Co}(\text{acac})_3$

に溶媒の DMF 中に $\text{Co}(\text{acac})_2$ が存在する場合は、90% 以上の ^7Be の錯体収率が得られることがみてとれる。このことは $\text{Be}(\text{II})$ と $\text{Co}(\text{acac})_2$ の $\text{Co}(\text{II})$ との間の交換の可能性を示したので、以下に示すような方法でドーブ実験を試みた。

すなわち未照射の $\text{Co}(\text{acac})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 粉末に、 $^7\text{BeCl}_2$ の 0.1 M 塩酸溶液 (1.8×10^8 Bq/ μgBe) をドーブし、室温で乾燥したのち、照射試料と同様の化学分離を行って、 $\text{Be}(\text{acac})_2$ フラクション中の ^7Be の放射能を測定した。その結果 ^7Be の放射能は全て $\text{Be}(\text{acac})_2$ 部分に検出された。このことは、 $\text{Co}(\text{acac})_2$ の $\text{Co}(\text{II})$ と $^7\text{Be}(\text{II})$ との間にはいずれかの段階で交換が起ったことを示している。

この実験事実をふまえて、 $\text{Co}(\text{acac})_3$ における ^7Be 錯体収率が、他の錯体にくらべて異常に高い結果が得られた反応のメカニズムを次のように考えた。

① 照射効果で $\text{Co}(\text{acac})_3$ が一部 $\text{Co}(\text{acac})_2$ となる。

② いずれかの段階で (固相中か、湿式化学分離時か、あるいはその双方においてか)、 $\text{Co}(\text{acac})_2$ 中の $\text{Co}(\text{II})$ と $^7\text{Be}(\text{II})$ との間に交換が起り、 $^7\text{Be}(\text{acac})_2$ が生成する。

$\text{Co}(\text{acac})_3$ が放射線効果によって $\text{Co}(\text{acac})_2$ になることに関しては、メタノールに溶解した $\text{Co}(\text{acac})_3$ に ^{60}Co の r 線を照射すると $\text{Co}(\text{acac})_3$ の一部が $\text{Co}(\text{acac})_2$ に変化するという報告はなされている²¹。しかし本研究は対象が液相ではなく固相であり、照射も最大エネルギー 50 MeV の制動放射線なので、①を確認するため、合成した ^{60}Co 標識の $^*\text{Co}(\text{acac})_3$ を同様の条件で制動放射線照射し、 $\text{Co}(\text{acac})_3$ から $\text{Co}(\text{acac})_2$ が生成するかどうか確認を

行った。

^{60}Co で標識した $^{60}\text{Co}(\text{acac})_3$ を他と同様の条件で制動放射線照射し、 Co^{2+} 、 $\text{Co}(\text{acac})_2$ を担体として含む冷却した DMF に溶解し、SP-Sephadex C-25 (Na 形) のカラムを用いて $\text{Co}(\text{acac})_3$ (緑色バンドとなる) と $\text{Co}(\text{acac})_2$ (赤色バンドとなる) を完全に分離した。すると $\text{Co}(\text{acac})_2$ フラクシオン中に全体の 0.6% の ^{60}Co の放射能が検出された。このことは $\text{Co}(\text{acac})_3$ の一部が放射線効果により $\text{Co}(\text{acac})_2$ に変化したことを示している。変化した割合は、 ^{60}Co の放射化学的収率からみるとわずかなようであるが、これはマクロ量の $\text{Co}(\text{acac})_3$ が変化した割合に相当するものであるから、生成する ^7Be の量に比べれば、大過剰の $\text{Co}(\text{acac})_2$ 分子が系内に存在することになる。

以上の結果より、 $\text{Co}(\text{acac})_3$ で ^7Be の錯体収率が他の錯体に比べて高いのは、放射線効果により生成した $\text{Co}(\text{acac})_2$ が影響していると言える。

同じように $\text{Co}(\text{acac})_3$ にインプラントされた核種の錯体収率が、他の錯体の場合に比べてかけはなれた大きな値をとるものの例として、酸化ウラン (U_3O_8) と金属アセチルアセトナト錯体の混合系を熱中性子照射し、核分裂により酸化ウランから生成する ^{103}Ru がアセチルアセトナト錯体の中心金属になる割合を求めた報告がある³⁾。この報告文中では $\text{Co}(\text{acac})_3$ が他の錯体に比べて非常に大きな錯体収率を示した理由として、固相内における交換反応を示唆している。本研究の結果とこの報文の示唆しているところを重ねてみると、この報文の場合にも放射線効果によって生成した $\text{Co}(\text{acac})_2$ の介在が異常収率の因として浮び出てくる。

本研究にあたり、御援助を賜った多くの方々に厚く感謝の意を表す。特に、制動放射線照射の際に御力添えを頂いた東北大学金属材料研究所の八木益男教授、同じく理学部の榊本和義博士、核理研マシニンググループの方々、ならびに吉原賢二教授、関根勉博士、また熱中性子照射の際に御助力を頂いた立教大学原子力研究所の皆様にご心より感謝する。

参 考 文 献

- 1) 荘司 準, 丸山保子, 小川公也, 沖 雄一, 池田長生: 核理研研究報告 18 (1985) 91.
- 2) E. Kalecinska: J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles 97 (1986) 31.
- 3) H. Meinhold and P. Reichhold: Radiochim. Acta 11 (1969) 174.

ガリウムヒ素中の微量炭素の光量子放射化分析

三菱金属中研, 核理研*, 金研**

吉岡 明・野村紘一・川上 紀

志村和俊・榎本和義*・八木益男**

Determination of carbon in gallium arsenide has been investigated by photon activation analysis using the $^{13}\text{C}(\gamma, n)^{14}\text{C}$ reaction. Chemical separation of carbon as CO_2 was carried out by the combustion method in a high flow rate of oxygen stream. The CO_2 gas was then collected by passing through double traps containing NaOH solution, and finally precipitated as BaCO_3 to measure the positron annihilation gamma-rays. As a result, it could be proved that reasonable precision and accuracy are obtained in the above determinations.

§1. はじめに

高速集積回路基盤として注目されている半絶縁性ガリウムヒ素中の炭素不純物は、アクセプタ不純物として重要視されており、その微量分析法の開発が急がれている。

炭素を含むガリウムヒ素結晶の赤外吸収スペクトルには、ヒ素格子位置を置換した炭素の局在振動モードによる吸収ピークが現われ、これが炭素濃度に比例するため、ガリウムヒ素結晶中の炭素定量法として広く利用されている。しかし、この分析法は本来比較法であるため、正確な炭素濃度を求めるためには換算係数によって補正されなければならない。この換算係数としてはスパークイオン源質量分析法による炭素濃度測定を根拠とした Brozel ら¹⁾によるものがあるが、まだ若干の問題点を含み再検討される必要があるとされている。

一般の機器分析法による微量炭素の定量分析が困難である最大の理由としては、試料および分析中における炭素の汚染問題が指摘されよう。この点放射化分析法は照射前後における表面汚染も容易に除去でき、かつ試料中の炭素は放射化されて標識をつけられるので、分析操作中他から非放射性炭素がいくら汚染しても定量結果には何ら影響を与えないという特色をもつ。このような放射化分析による微量炭素分析においては、従来荷電粒子^{2,3)}および光量子放射化分析法⁴⁻¹⁰⁾が適用されてきた。ガリウムヒ素中の微量炭素定量は既に野崎ら²⁾、鹿野ら³⁾によって前者の放射化法で試みられているが、後者によるそれは試料を均一に放射化できる、妨害核反

応が極めて少ないなどの利点をもつためその適用が待たれている。

各種物質中の微量炭素定量法としては、 $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ (20.38分) 反応を利用する光量子放射化分析法が、荷電粒子反応を利用する方法より優れていることが既にRevel⁴⁾あるいはEngelmann⁵⁾によって指摘され、これは引続き前者とその共同研究者らおよびFedoroff らによって基礎的に検討されてきた⁶⁻¹⁰⁾。一方、著者らは日本工業規格酸化法¹²⁻¹⁴⁾を銅金属中の微量炭素の光量子放射化分析に適用し¹¹⁾、この分析法は操作が比較的容易で定量精度が極めて高いという特色があることを明らかにした。

本研究においては、引続き上記日本工業規格酸化法のガリウムヒ素結晶中の微量炭素光量子放射化分析への適用を基礎的に検討し、その実試料分析への応用を図ることを試みた。

§2. 実 験

2.1 試料および照射試料の調製

炭素定量用標準物質は日本鉄鋼協会製鉄鋼標準試料JSS-001-2およびJSS-003-1を用いた。これらはチップ状で供給され、炭素含有量は0.0047および0.0011%である。ガリウムヒ素試料は日本電子工業振興協会ガリウムヒ素結晶評価専門委員会から配布された試料をもちいた¹⁵⁾。これらは炭素濃度が10段階に区分されており、国内18分析機関等により赤外吸収ラウンドロビン測定が行なわれたものである。

照射用ガリウムヒ素試料は上記配布試料を7×9×2 (mm) に切断し、硫酸-過酸化水素エッチング液により表面汚染を除去し照射試料とした。一方、鉄鋼標準試料はそれぞれ約0.5gを秤量し、そのまま照射試料とした。

上記試料はいずれも前後を光量子照射線量モニターとしてのニッケル箔で挟んだ型で高純度アルミニウム箔で包み、さらに石英管に封入して照射試料とした。

2.2 照 射

調製された各試料は一ケづつ水冷式照射ホルダー¹⁶⁾の白金コンバーターの後方に固定し、電子線加速エネルギー30MeV、平均電流約100-130 μA の2mm厚白金による制動輻射で20分間づつ照射した。なおこの際、制動輻射が試料中央部に照射されるよう電子線ビームは直径約5mmに収斂させた。

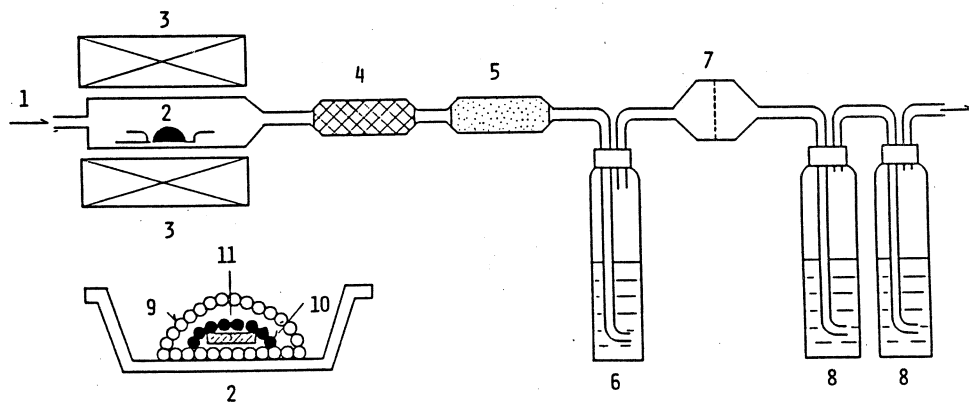
2.3 炭素の化学分離

ガリウムヒ素照射試料は、空気中の炭酸ガスによる表面汚染を除去するため王水でエッチングした。ついで第1図に示したようにアルミナポートに四三酸化鉛0.3g、照射試料、炭酸バリ

ウム150mgさらに四三酸化鉛0.5gの順に照射試料がかくれるように積み重ね、管状電気炉に入れて1350°Cの酸素気流中で5分間溶融燃焼させた。この場合、酸素流量は500ml毎分に保った。ここで用いた四三酸化鉛は助燃剤として、炭酸バリウムは試料中の微量炭素の担体として、そして炭素化学分離における化学収率測定用として用いられた。電気炉中での燃焼によって炭素はCO₂、あるいは一部COとして酸素気流中に分離されるが、COとなっているものためにはSchutze 試薬管 (I₂O₅のシリカゲル上コーティング) を通して完全にCO₂に変換させた。ついで溶融燃焼時に飛散したマトリックス元素およびその酸化物を完全に除去するため、濃硫酸トラップによるガス洗滌、さらにテフロン繊維製ろ紙による飛沫除去をおこない、発生させたCO₂は最終的には二連式塩化バリウム含有水酸化ナトリウム溶液で捕集した。ここで生成した炭酸バリウム沈殿は直ちにろ別し、放射能測定用試料とした。

2.4 放射能測定

分離ろ別された炭酸バリウム沈殿の放射能はGe (Li) あるいは pure Ge 検出器を多重波高分析器に接続した測定装置で測定した。照射終了20分後から陽電子消滅ガンマ線を5分間測定し、各測定値は照射終了後の値に補正したあと、さらに照射線量を補正し相互比較した。



第1図 炭素の化学分離装置。

- | | | |
|---------------------------------|-----------------------------------|--------|
| 1. 酸素 | 2. アルミナボート | 3. 電気炉 |
| 4. 石英ウールフィルター | 5. Schutze管 | |
| 6. 硫酸洗滌ビン | 7. テフロンろ紙 | |
| 8. BaCl ₂ 含有NaOH捕集ビン | 9. Pb ₃ O ₄ | |
| 10. BaCO ₃ | 11. GaAs 試料 | |

§ 3. 結果と考察

Revel, Fedoroff らにより光量子放射化分析で鉄試料中の微量炭素の定量法が検討され、助燃剤として四三酸化鉛を使用し良好な分析結果がえられている⁴⁶。一方、ガリウムヒ素試料については熔融燃焼の分析例がなく、また単独では完全燃焼しないため、上記助燃剤を使用した燃焼予備試験を行なった。ガリウムヒ素、四三酸化鉛および炭酸バリウムの混合粉末試料について各温度で燃焼させた後の残査の化学形態は第1表に示した。

第1表 GaAs 燃焼による化学形態変化。

温度 (°C)	500	600	800	1200 以上
GaAs		Pb ₃ As ₂ O ₈	→"	→"
		Pb ₈ As ₂ O ₁₃		
		Ga ₂ O ₃	→"	→"
		*As ₂ O ₃	→**"	→**"
Pb ₃ O ₄		*GaAs	→ND	
BaCO ₃		PbO	→"	→"
		*Pb	→**"	→ND
		*BaCO ₃	→ND	
+O ₂		*Ba ₃ As ₂ O ₈	→**"	→**"

無印；主成分 *；少量 **；微量 ND；不検出

約600°Cという比較的低温で燃焼反応がおこり、ガリウムヒ素と炭酸バリウムはほぼ同時に分解され、ヒ酸鉛、ヒ酸バリウム、酸化ガリウムとなることがわかった。このことはガリウムヒ素にたいして四三酸化鉛が良い助燃剤であること、また炭酸バリウムが炭素の担体として適当であることを示している。しかしながら実際の試料は板状であるため、粉碎するか、あるいは燃焼温度を高くする必要がある。本研究では後者を選んだが、この場合でも上記と同様な反応が起こっていることが粉末X線回折分析で確認された。

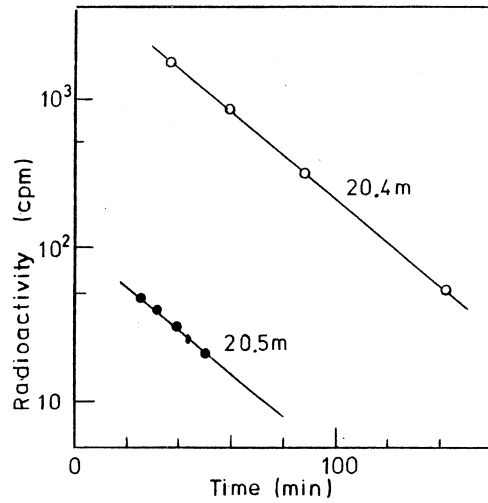
3.2 分離炭素の半減期

鉄鋼標準試料 JSS-003-1 およびガリウムヒ素試料からえられた最終生成物である炭酸バリウム放射能の半減期を測定し、その結果は第2図に示した。後者の計数率はかなり小さかったが、¹⁴Cの半減期によく一致した。これから本化学分離法においては、炭素はCO₂としてマトリックス元素等に由来する放射性核種で汚染されることなく、極めて高い純度で分離されることが実証された。

3.3 ガリウムヒ素中の炭素の定量

ガリウムヒ素中の炭素の定量は、鉄鋼標準試料 JSS-003-1 を標準物質として用い、それとの比較で定量した。得られた結果は第2表に示した。

各定量値は極めて良い再現性を示した。本法による定量下限は約 1×10^{15} atoms/cm³ であった。



第2図 分離炭素の半減期。

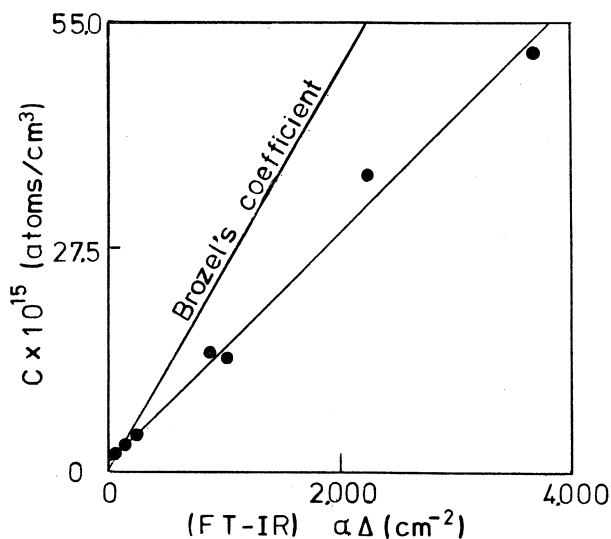
○ : JSS-003-1 試料
● : GaAs 試料

第2表 ガリウムヒ素中の炭素の放射化分析 (PAA) の結果。

試料名	平均濃度 ($\times 10^{15}$ atoms/cm ³)	平均値 ($\times 10^{15}$ atoms/cm ³)
1 N-1	1.13 ± 0.25	1.10 ± 0.25
1 N-2	1.07 ± 0.24	
3 M-1	1.77 ± 0.33	1.74 ± 0.33
3 M-2	1.46 ± 0.22	
3 N-1	1.99 ± 0.25	
5 M-2	13.4 ± 0.8	13.9 ± 0.8
5 N-1	14.3 ± 0.7	
5 N-2	14.0 ± 0.7	
7 M-1	3.41 ± 0.54	3.06 ± 0.60
7 M-2	3.14 ± 0.60	
7 N-2	2.64 ± 0.41	
15 M-1	3.54 ± 0.54	4.16 ± 0.87
15 M-2	3.92 ± 0.58	
15 N-2	5.03 ± 0.40	
21 M-1	51.1 ± 3.0	51.8 ± 4.6
21 M-2	47.9 ± 2.1	
21 M-3	51.6 ± 2.1	
21 M-4	56.4 ± 2.5	
23 M-1	7.29 ± 0.72	7.84 ± 0.72
23 M-2	8.40 ± 0.63	
25 M-1	< 1	< 1
27 M-1	37.7 ± 1.6	36.3 ± 1.6
27 M-2	34.9 ± 1.3	
29 M-1	14.6 ± 0.9	14.8 ± 0.9
29 M-2	15.0 ± 0.8	

3.4 光量子放射化分析による炭素濃度定量値と赤外吸収強度の相関

各種ガリウムヒ素試料の炭素濃度の平均値と赤外吸収ラウンドロビン測定からの赤外吸収強度平均値との相関は第3図に示した。これから Lambert-Beer の法則に従う比例関係がえられることがわかった。また Brozel らによる換算係数から得られる直線は第3図に共に示した。本法で求めた換算係数は単位赤外吸収強度 (1 cm^{-2}) 当たり $1.4 \times 10^{16} \text{ atoms/cm}^2$ であった。この値は Brozel らが報告した $2.4 \times 10^{16} \text{ atoms/cm}^2$ の $1/1.7$ であった。



第3図 光量子放射化分析による炭素濃度と赤外吸収強度の相関。

§ 4 結 び

日本工業規格の炭素分析法における酸化法と光量子放射化分析を併用することによって、ガリウムヒ素中の微量炭素を精度良く定量することができた。また赤外吸収法でのガリウムヒ素中の炭素定量における換算係数が併せえられた。本分析法はルーチンに利用するには、設備およびコストの点で問題があるが、他分析法とのクロスチェックや標準物質の検定には、極めて有効で威力を発揮するものと考えられる。

参 考 分 献

1. M. Brozel, J. Clegg, R. Newman : J. Phys. D, Appl. Phys. **11** (1978) 1311.
2. T. Nozaki, Y. Itoh, Y. Ohkubo, T. Kimura, H. Fukushima : Jpn. J. Appl. Phys. **24** (1985) L801.
3. K. Shikano, H. Yonezawa, T. Shigematsu : J. Radioanal. Nucl. Chem. **105** (1986) 1.
4. G. Revel : J. Radioanal. Chem. **3** (1969) 421.
5. Ch. Engelmann : J. Radioanal. Chem. **6** (1970) 399.

6. V. I. Rodionov, V. N. Samosyuk, B. A. Chapyzhnikov, G. Revel, M. Fedoroff :
Radiochem, Radioanal. Lett. **18** (1974) 379.
7. M. Fedoroff, C. Loos-Neskovic, G. Revel : J. Radioanal. Chem. **38** (1977) 107.
8. C. Loos-Neskovic, M. Fedoroff, V. N. Samosyuk, B. A. Chapyzhnikov : Radiochem.
Radioanal. Lett. **45** (1980) 185.
9. M. Fedoroff, C. Loos-Neskovic, G. Revel : J. Radioanal. Chem. **55** (1980) 219.
10. M. Fedoroff, C. Loos-Neskovic, J. C. Rouchaud, V. N. Samosyuk, B. A.
Chapyzhnikov : J. Radioanal. Nucl. Chem. **88** (1985) 45.
11. A. Yoshioka, K. Nomura, M. Takeya, K. Shimura, K. Masumoto, M. Yagi : J.
Radioanal. Nucl. Chem. **122** (1988) 175 : 核理研研究報告, **19** (1986) 98.
12. JIS, G-1211 (1981).
13. JIS, G-1228 (1980).
14. JIS, Z-2615 (1979).
15. 日本電子工業振興協会編, 電子材料計測評価技術の調査研究報告書 I (1987).
16. M. Yagi, K. Kondo : J. Radioanal. Chem. **36** (1977) 247.

光量子放射化法による大気エアロゾルの元素分析

岩手大 人文社会

佐藤允美・北爪英一

§ 1. はじめに

高感度な微量分析が可能な放射化法の技術が発達して、大気エアロゾルなどを含む環境公害問題の分野において、多試料、多元素の同時定量法として用いられている。放射化には熱中性子による (n, γ) 反応が利用されることが多いが、 ^{24}Na 、 ^{56}Mn などの強いマトリックス放射能が生成されるため、微量の目的元素からの γ 線の検出が困難であったり熱中性子の吸収が起こることがあるので、常に好結果を得ることは困難である。特に大気エアロゾル捕集の際、原子吸光法分析において多用されるガラス繊維フィルターは、その成分から ^{28}Al 、 ^{32}Si 、 ^{27}Mg 、 ^{24}Na などが多量に生成するので、このフィルターの使用を避けなければならないことは明らかである。他の型の核反応として電子線型加速器(LINAC)から得られる制動放射 γ 線により (γ, n) 、 (γ, p) などの反応によって放射化分析を行なうと、熱中性子法に伴う難点は避けられ、特異的な分析法となり得る¹⁻⁷⁾。米国規格標準局作製の標準物質 Fly Ash および Urban Particulate を用いて実際の分析に応用した。捕集フィルターとしてはブランク値が低く、試料採取後ペレットに加圧成型できる点からミリポアフィルターを用いることとした。盛岡市内で捕集した大気エアロゾルについて30 MeV 制動放射 γ 線による放射化分析でヒ素、鉛などの有害金属元素を非破壊的に定量した。

§ 2. 試料および実験法

試料は盛岡市内3箇所に設置したハイボリュームサンプラーによって昭和62年2月28日より3月3日(曇~晴)の期間に1200~1400 m³の空気を20×25 cmのミリポアフィルターに流速25~31 f³/minで吸引して採取した。試料1および2は市内中心部ビル8階屋上、3は市内北西部岩手大学人文社会科学部1号館(6階)屋上において得られたものである。フィルターは30×30 cm(AAWP 304)のシートから20×25cmを切り取って用いた。直径0.1 μm程度までのエアロゾルが捕集できる。採取後の試料を含むフィルターを2分し、各々を加圧成型して直径10 mm、厚さ5 mmのペレットとした。ブランクは同面積のフィルターから等しい大きさのペレットを作った。比較試料にはFly AshあるいはUrban Particulateの一定量を用いた。

試料配列：試料およびブランクの両側に比較試料を配置，石英管に並べ放射化

放射化法：東北大核理学研究施設の線型加速器，30 MeV 加速電子ビームによる制動輻射 r 線，コンバーター後方の水冷試料に照射

照射条件：約 10^6 R/min の線量率，4 時間照射

測定機器：相対効率15%または30% Ge (Li) 検出器，4096 ch 波高分析装置

測定期間：照射直後～1 カ月

定量方法： r 線エネルギーと半減期による核種同定，ピーク面積による比較法

§ 3. 結果および考察

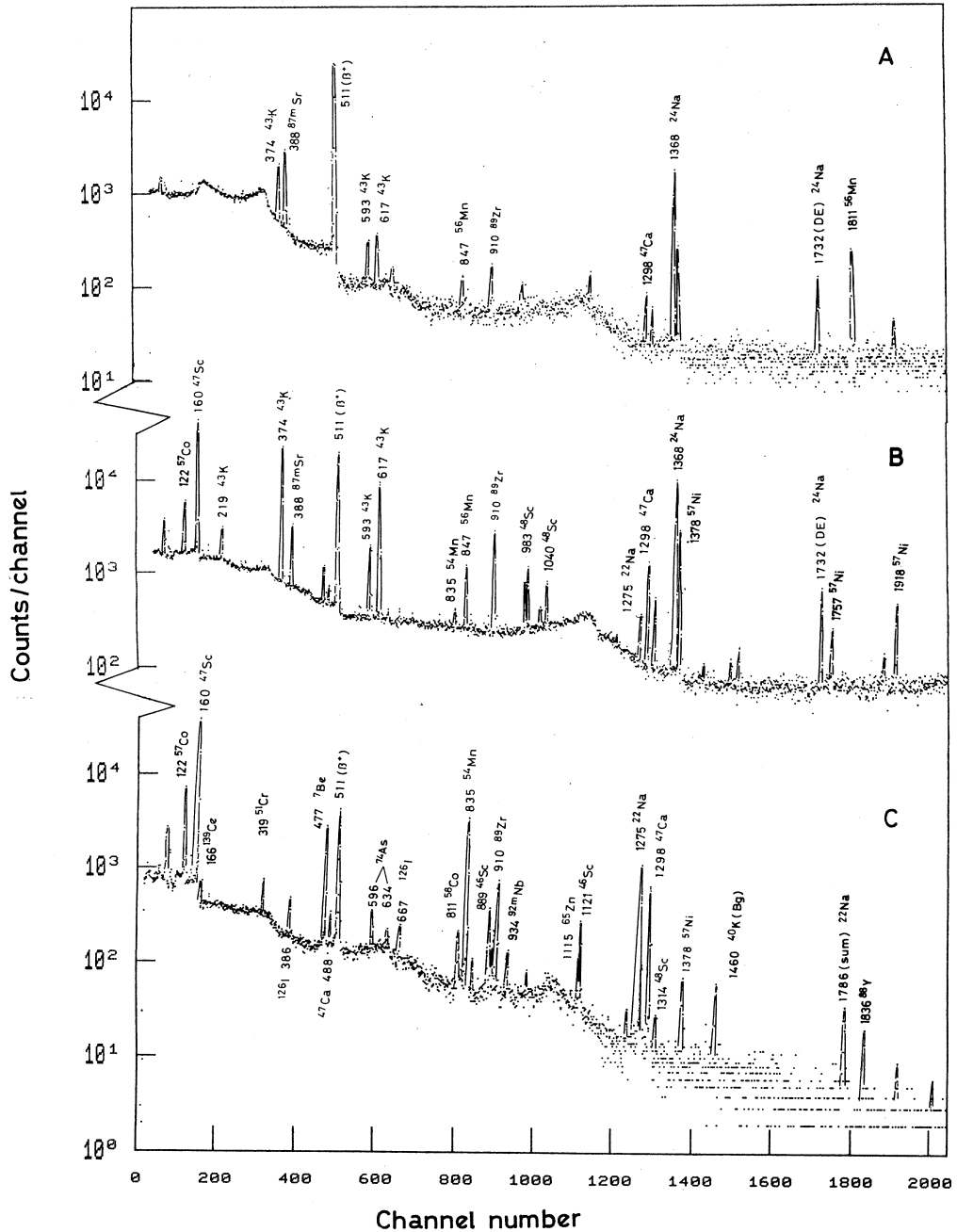
3.1 生成核種

(r, n) および (r, p) 反応が30 MeV のエネルギー領域での主なもので，定量の際感度が高い。ほかに ($r, 2n$)，(r, pn)，(r, α) の反応も起こる。大気エアロゾル試料の r 線スペクトルを第1図に示した。第1表に生成核種，光核反応および r 線エネルギーを示した。照射直後のスペクトルではフィルター材質にもとづく ^{15}O や ^{11}C の消滅放射 (β^+ による 511 keV) が強く現われる。短寿命核種が減衰すると第1表に示したほとんどのピークが現われる。Ca および Ti はそれぞれ数本の r 線ピークを生じるので，これらより定量値を算出できる。Ti の定量には ^{47}Sc を用いるが， $^{48}\text{Ca} (r, n) ^{47}\text{Ca}$ の反応によって生じる半減期 4.53 d の ^{47}Ca から β 崩壊によって ^{47}Sc が生成するので，これを考慮する必要がある。

3.2 感度および妨害

第1表に掲げた r 線光電ピークのうち，各元素の定量に最も適したピークとそれを利用した時の感度を第2表に示した。感度は目的とするピーク測定の S/N 比が最大となる冷却時間においてバックグラウンド強度の計数に伴う統計誤差の3倍 (3σ ，信頼度 > 99%) に相当するピーク強度を与える元素量と定義した。ただし，これらは大気 500 m³ 相当の浮遊粒子物質を30 MeV 制動輻射 r 線 (70 μA ビーム) で6時間放射化後，相対効率15% Ge (Li) 検出器で r 線スペクトルを測定した場合の値である。本法により，単一の試料から As, Cr, Pb, Sb などの有害元素を含む多くの元素濃度を非破壊的に求めることができる。とくに，微量 Pb の正確な非破壊定量は他の分析法では困難であって，本法の特徴といえる。

つぎに，各元素に妨害となる核反応およびその程度を検討した。環境物質のような複雑な組成の多元素試料では高分解能の半導体検出器によってもピークの重なりが避け難い場合が生じたが，この点は減衰解析によって解決できた。しかし，定量に利用する核種と同一の核種が



第1図 大気エアロゾルの γ 線スペクトル。
 A: 照射後4時間経過 500秒測定
 B: " 3日 " 1000 "
 C: " 12.5日 " 20000 "

第1表 スペクトルに現われる核種のエネルギーと反応経路。

Nuclide	Gamma-ray (keV)	Process	Nuclide	Gamma-ray (keV)	Process
⁶⁷ Cu	93.3	⁶⁸ Zn(γ, p)	⁵⁶ Mn	847	⁵⁷ Fe(γ, p)
⁵⁷ Co	122	+ ⁵⁸ Ni(γ, p)	⁸⁴ Rb	881	⁸⁵ Rb(γ, n)
		+ ⁵⁸ Ni($\gamma, n; \beta^+$)	⁴⁶ Sc	889	⁴⁷ Ti(γ, p)
⁵⁷ Ni	127	⁵⁸ Ni(γ, n)	⁸⁶ Y	898	⁸⁶ Y(γ, n)
⁵⁷ Co	136	⁵⁸ Ni(γ, p)	⁸⁰ Zr	910	⁸⁰ Zr(γ, n)
		+ ⁵⁸ Ni($\gamma, n; \beta^+$)	^{92m} Nb	934	⁹³ Nb(γ, n)
^{99m} Tc	142	¹⁰⁰ Mo($\gamma, n; \beta^-$)	⁵² Mn	934	⁵⁴ Fe(γ, pn)
⁴⁷ Sc	160	⁴⁸ Ti(γ, p)	²³² Th	970	Bg
		+ ⁴⁸ Ca($\gamma, n; \beta^-$)	(²²⁸ Ac)		
¹³⁰ Ce	166	¹⁴⁰ Ce(γ, n)	⁴⁸ Sc	983	⁴⁹ Ti(γ, p)
⁴⁸ Sc	175	⁴⁹ Ti(γ, p)	^{120m} Sb	1023	¹²¹ Sb(γ, n)
⁶⁷ Cu	185	⁶⁸ Zn(γ, p)	⁴⁸ Sc	1037	⁴⁹ Ti(γ, p)
^{120m} Sb	196	¹²¹ Sb(γ, n)	⁸⁶ Rb	1078	⁸⁷ Rb(γ, n)
⁴³ K	219	⁴⁴ Ca(γ, p)	⁶⁵ Zn	1115	⁶⁶ Zn(γ, n)
⁷⁷ Br	239	⁷⁸ Br($\gamma, 2n$)	⁴⁶ Sc	1121	⁴⁷ Ti(γ, p)
²²⁸ Th	239	Bg	¹³² Cs	1136	¹³³ Cs(γ, n)
(²¹² Pb)			⁴⁴ Sc	1156	⁴⁵ Sc(γ, n)
⁷⁵ Se	265	⁷⁶ Se(γ, n)	^{120m} Sb	1171	¹²¹ Sb(γ, n)
²⁰³ Pb	279	²⁰⁴ Pb(γ, n)	⁷⁴ As	1204	⁷⁵ As(γ, n)
²²⁶ Ra	295	Bg	²² Na	1275	²³ Na(γ, n)
(²¹⁴ Bi)			⁴⁷ Ca	1298	⁴⁸ Ca(γ, n)
⁷⁷ Br	297	⁷⁸ Br($\gamma, 2n$)	⁴⁶ Sc	1314	⁴⁹ Ti(γ, p)
⁵¹ Cr	319	⁵² Cr(γ, n)	¹³² Cs	1318	¹³³ Cs(γ, n)
^{115m} In	335	¹¹⁵ In(γ, γ')	⁸⁸ Y	1325(SE)	⁸⁹ Y(γ, n)
		+ ¹¹⁶ Cd($\gamma, n; \beta^-$)	⁶⁴ Cu	1346	⁶⁵ Cu(γ, n)
²²⁶ Ra	352	Bg	²⁴ Na	1368	²⁵ Mg(γ, p)
(²¹⁴ Bi)			⁵⁷ Ni	1378	⁵⁸ Ni(γ, n)
⁴³ K	374	⁴⁴ Ca(γ, p)	⁵² Mn	1432	⁵⁴ Fe(γ, pn)
¹²⁶ I	386	¹²⁷ I(γ, n)	⁴⁰ K	1460	Bg
^{87m} Sr	388	⁸⁸ Sr(γ, n)	^{116m} In	1505	¹¹⁵ In(n, γ)
⁴³ K	394	⁴⁴ Ca(γ, p)	⁴² K	1524	⁴³ Ca(γ, p)
²⁰² Tl	439	²⁰³ Tl(γ, n)	²²⁸ Th	1593(DE)	Bg
⁷ Be	477	¹² C($\gamma, \alpha n$)	(²⁰⁸ Tl)		
¹³² Cs	484	¹³³ Cs(γ, n)	²⁴ Na	1732(DE)	²⁵ Mg(γ, p)
⁴⁷ Ca	488	⁴⁸ Ca(γ, n)	⁵⁷ Ni	1757	⁵⁸ Ni(γ, n)
Various	511	Annihilation	²²⁶ Ra	1765	Bg
⁷⁷ Br	521	⁷⁸ Br($\gamma, 2n$)	(²¹⁴ Bi)		
¹¹⁵ Cd	530	¹¹⁶ Cd(γ, n)	²² Na	1786(sum)	²³ Na(γ, n)
⁶² Zn	548	⁶⁴ Zn($\gamma, 2n$)	⁵⁶ Mn	1810	⁵⁷ Fe(γ, p)
¹²² Sb	564	¹²³ Sb(γ, n)	⁸⁸ Y	1836	⁸⁹ Y(γ, n)
⁴³ K	591	⁴⁴ Ca(γ, p)	⁸⁴ Rb	1897	⁸⁵ Rb(γ, n)
⁷⁴ As	596	⁷⁵ As(γ, n)	⁵⁷ Ni	1918	⁵⁸ Ni(γ, n)
²²⁶ Ra	609	Bg	²²⁸ Th	2104(SE)	Bg
(²¹⁴ Bi)			(²⁰⁸ Tl)		
⁴³ K	619	⁴⁴ Ca(γ, p)	⁵⁶ Mn	2113	⁵⁷ Fe(γ, p)
⁷⁴ As	634	⁷⁵ As(γ, n)	^{34m} Cl	2130	³⁵ Cl(γ, n)
¹²⁶ I	667	¹²⁷ I(γ, n)	³⁸ K	2170	³⁹ K(γ, n)
¹³² Cs	668	¹³³ Cs(γ, n)	²²⁶ Ra	2204	Bg
¹²² Sb	693	¹²³ Sb(γ, n)	(²¹⁴ Bi)		
²²⁸ Th	727	Bg	²⁴ Na	2243(SE)	²⁵ Mg(γ, p)
(²¹² Bi)			^{34m} Cl	2280(DE)	³⁵ Cl(γ, n)
¹²⁶ I	754	¹²⁷ I(γ, n)	²⁴ Na	2754	²⁵ Mg(γ, p)
²²⁶ Ra	768	Bg	^{34m} Cl	2793(SE)	³⁵ Cl(γ, n)
(²¹⁴ Bi)			^{34m} Cl	3302	³⁵ Cl(γ, n)
⁸² Br	777	⁸¹ Br(n, γ)			
⁴⁷ Ca	808	⁴⁸ Ca(γ, n)			
⁵⁸ Co	811	⁵⁸ Co(γ, n)			
⁵⁴ Mn	835	⁵⁵ Mn(γ, n)			
⁵⁶ Co	846	⁵⁸ Ni(γ, pn)			

*Bg : Natural background.
SE : Single escape peak.
DE : Double escape peak.

第2表 定量に用いる核種と検出限界⁹⁾。

Element	Product nuclide	Half - life	Gamma - ay used (keV)	Time interval for measurement after irradiation	Practical limit of detection (ng /m ³)
As	⁷⁴ As	17.9 d	596	10 - 15 d	0.4
Ca	⁴³ K	22.4 hr	374	1 - 2 d	85
Ca	⁴³ K	22.4 hr	619	1 - 2 d	110
Ca	⁴⁷ Ca	4.53 d	1298	10 - 15 d	140
C	¹³⁹ Ce	140 d	166	30 - 40 d	0.5
Ce	⁵⁸ Co	71.3 d	811	30 - 40 d	0.6
Co	⁵¹ Cr	27.8 d	319	10 - 15 d	3.6
Fe	⁵⁶ Mn	2.576 hr	847	2 - 5 hr	85
Mn	⁵⁴ Mn	303 d	835	10 - 15 d	2.5
Pb	²⁰³ Pb	52 hr	279	1 - 2 d	12
Rb	⁸⁴ Rb	33.0 d	881	10 - 15 d	0.6
Sb	¹²² Sb	2.80 d	564	1 - 2 d	1.1
Sr	^{87m} Sr	2.83 hr	388	2 - 5 hr	0.04
Ti	⁴⁷ Sc	3.43 d	160	2 - 5 hr	5.6
Ti	⁴⁸ Sc	1.83 d	1314	1 - 2 d	72
Zn	⁶⁷ Cu	59 hr	185	2 - 3 d	20

共存元素から副反応によっても生成するから、その妨害の程度を求めて補正する必要が生ずる。主な競合副反応と妨害の程度を第3表に一括して示した。表中での Effect of interference は純粋な各元素の一定量を同時に放射化して求めたもので、等量の残留核を生ずるのに必要な元素量の比で表わしたものである。括弧内に示した値は光核反応の収率と原子番号との関係から見積もった値である。実際の妨害量は、この比と妨害元素の共存量によって定まるが、たとえば、NBS の Fly Ash についてこの量を求めると第3表のようになる。なお Fly Ash および Urban Particulate の諸元素濃度は文献値⁸⁾によった。Ce の定量値に対するKからの妨害やMn のそれに対する Fe からの妨害が著しいので、この組成の試料では正確な定量結果は得難い。

第3表 主な競合反応と妨害の程度⁹⁾。

Element to be determined	Nuclide measured	Major competing reaction	Effect of interference	Interfering contribution, % (Fly Ash)
As	⁷⁴ As	⁷⁶ Se(r, pn) ⁷⁴ As ⁷⁷ Se($r, p2n$) ⁷⁴ As	Se/As = 5.5×10^3	2.8×10^{-3}
Ba	^{135m} Ba	¹⁴⁰ Ce($r, \alpha n$) ^{135m} Ba	(Ce/Ba = 9×10^2)	(5.9×10^{-3})
Ca	⁴³ K	⁴⁵ Sc($r, 2p$) ⁴³ K	Se/Ca = 7.2×10^1	8.0×10^{-4}
Ca	⁴⁷ Ca	⁴⁹ Ti($r, 2p$) ⁴⁷ Ca	(Ti/Ca = 4×10^1)	(0.4)
Ce	¹³⁹ Ce	¹⁴¹ Pr(r, pn) ¹³⁹ Ce	(Pr/Ce = 2×10^3)	—
Cl	^{34m} Cl	³⁹ K($r, \alpha n$) ^{34m} Cl	K/Cl = 3.9×10^1	91
Co	⁵⁸ Co	⁶⁰ Ni(r, pn) ⁵⁸ Co	Ni/Co = 7.2×10^1	3.5
Cr	⁵¹ Cr	⁵⁶ Fe($r, \alpha n$) ⁵¹ Cr	Fe/Cr = 1.6×10^4	2.9
Fe	⁵⁶ Mn	⁵⁵ Mn(n, r) ⁵⁶ Mn	Mn/Fe = 2.8×10^0	0.3
I	¹²⁶ I	¹²⁸ Xe(r, pn) ¹²⁶ I		—
K	³⁸ K	⁴⁰ Ca(r, pn) ³⁸ K	Ca/K = 4.9×10^0	37
Mg	²⁴ Na	²⁷ Al($r, ^3\text{He}$) ²⁴ Na ²⁷ Al(n, α) ²⁴ Na ²³ Na(n, r) ²⁴ Na	Al/Mg = 2.1×10^2 Na/Mg = 2.3×10^2	3.3 7.9×10^{-2}
Mn	⁵⁴ Mn	⁵⁶ Fe(r, pn) ⁵⁴ Mn	Fe/Mn = 1.2×10^2	51
Na	²² Na	²⁴ Mg(r, pn) ²² Na ²⁷ Al($r, \alpha n$) ²² Na	Mg/Na = 7.7×10^1 Al/Na = 1.3×10^3	6.8 3.0
Nb	^{92m} Nb	⁹⁴ Mo(r, pn) ^{92m} Nb ⁹⁵ Mo($r, p2n$) ^{92m} Nb	Mo/Nb = 1.7×10^3	—
Ni	⁵⁷ Ni	None		
Pb	²⁰³ Pb	None		
Rb	⁸⁴ Rb	⁸⁶ Sr(r, pn) ⁸⁴ Rb	Sr/Rb = 1.1×10^4	0.1
Sb	¹²² Sb	¹²³ Te(r, p) ¹²² Sb ¹²⁴ Te(r, pn) ¹²² Sb	Te/Sb = 2.4×10^3	—
Sr	^{87m} Sr	⁸⁸ Y(r, pn) ^{87m} Sr	Y/Sr = 5.9×10^2	7.6×10^{-3}
Ti	⁴⁷ Sc	⁵¹ V(r, α) ⁴⁷ Sc ⁴⁸ Ca($r, n; \beta^-$) ⁴⁷ Sc	V/Ti = 2.4×10^1 Ca/Ti = 6.8×10^1	0.1 8.5

3.3 フィルターおよびエアロゾル物質の分析結果

非破壊分析においてフィルターは試料とともに放射化されるのでブランク値が低いことが必要である。グラスファイバー、ミリポアフィルター(セルローズアセテート)、濾紙について

放射化して調べた結果、ミリポアフィルターが最適と考えられた。ブランク値の結果を第4表に示した。同種のフィルターでもロットが異なるとブランクの値が変動するので、試料採取に用いたものと同じフィルターについてブランク値を求めて差し引いた。

第4表 ミリポアフィルターの元素濃度。

元素	keV	ng/cm ²
Ca	374	87.7
	619	85.0
Cr		5.96
Fe		12.5
Sr		0.49
Ti		1.61
Zn		3.16

第5表 大気エアロゾルの元素濃度(ng/m³)。

元素	keV	試料1	試料2	試料3
As		3.4	4.1	1.9
Ca	374	6440	5820	3740
	619	6340	5800	3420
Ce		1.6	1.2	0.8
Co		2.3	2.3	2.8
Cr		9.	12	2.4
Fe		4250	4110	2920
Mn		38	35	12
Pb		9.6	11	16
Rb		1.9	1.1	2.1
Sb		0.4	0.8	3.2
Sr		16	15	12
Ti	160	351	329	246
	984	346	341	270
Zn		30	35	45

分析結果は第4表および第5表に示したとおりである。Pbは中性子法の適用が困難な元素であるが、光量子法によれば非破壊分析が容易である。Br濃度の高いエアロゾル試料の場合には中性子法

では⁸²Brが大量に生じて微量のAsの測定を妨げるが、光量子法では妨害とはならない。同様の理由でSr、Tiの定量にも本法は有利な場合が多い。原子吸光法などのフレーム法も有効な手段で容易に実施でき、費用、分析所要時間も少なくすむが、試料の溶液化に伴う汚染や損失、マトリックス効果といった問題点もある。本法では化学分析における操作に伴う汚染の損失などの問題点は除かれており、単一の試料からAs、Cr、Pb、Sbなどの有害汚染性元素を含む諸元素の濃度を求め得るという利点がある。

本研究にあたり教養部の加藤豊明教授、また照射および測定の際には核理研の榎本和義氏ならびにマシングループの教職員、ハイボリュームサンプラーの使用に当り岩手県公害センター職員の方々にお世話になった。ここに感謝の意を表する。

参 考 文 献

- 1) C. Segebade, H.-P. Weise and G. J. Lutz : *Photon activation analysis*, ed Walter de Gruyter (1988).
- 2) T. Kato, N. Sato and N. Suzuki : *Anal. Chim. Acta* **81** (1976) 337.
- 3) N. Sato, T. Kato and N. Suzuki : *J. Radioanal. Chem.* **36** (1977) 221.
- 4) K. Masumoto and M. Yagi : *Res. Rep. of Lab. of Nucl. Sci. Tohoku Univ.* **19** (1986) 80.
- 5) T. Kato, I. Morita and N. Sato : *J. Radioanal. Chem.* **18** (1973) 97.
- 6) T. Kato, N. Sato and N. Suzuki : *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **50** (1977) 1930.
- 7) T. Kato, N. Sato and N. Suzuki : *Talanta* **3** (1976) 517.
- 8) E. S. Gladney : LA-8438-MS, Information report UC-4 (1980).
- 9) T. Kato and N. Sato : *Res. Rept. of Lab. of Nucl. Sci. Tohoku Univ.* **7** (1974) 164.

数種のイオン会合系およびキレート系における 置換不活性ロジウム(III)の溶媒抽出挙動

理学部化学

鈴木信男・高橋宏美・井村久則

§ 1. 緒 言

白金族元素は有用希少金属であり、近年その分離、精製法に関して多大の関心が寄せられている。白金族の溶媒抽出はこれまでも多くの研究が行われ、総説等にもまとめられているが^{1,2)}、これらの元素の溶液化学的な性質が複雑なため、抽出化学においても不明な点が多い。Rh(III)は配位子交換反応が極めて遅く、白金族の中でも最も抽出しにくい元素であり、室温での迅速な抽出は難しいとされている。しかしながら、当研究室において水溶液中のRh(III)の化学形によってその抽出性が著しく異なることが見いだされた³⁾。

そこで、本研究では、水溶液中のRh(III)の化学形をヘキサアクア錯体($\text{Rh}(\text{H}_2\text{O})_6^{3+}$)に整え、酸性抽出剤として、トリクロロ酢酸(HTCA)、ペンタデカフルオロオクタノ酸(HPDFO)、ジ(2-エチルヘキシル)りん酸(HDEHP)、2-テノイルトリフルオロアセトン(HTTA)を、また、中性配位子として、トリオクチルホスフィンオキッド(TOPO)を用いて、Rh(III)の室温での迅速な抽出について検討した。

§ 2. 実 験

2.1 試 薬

放射性 $\text{Rh}(\text{H}_2\text{O})_6^{3+}$ 溶液；高純度金属 Rh に、本学電子ライナックからの 50 MeV 制動放射線を照射して、 $^{103}\text{Rh}(\gamma, n)^{102\text{m}}\text{Rh}$ 、 $^{103}\text{Rh}(\gamma, 2n)^{101\text{m}}\text{Rh}$ の反応により $^{101\text{m}}, ^{102\text{m}}\text{Rh}$ を製造した。ターゲットを濃硫酸に加熱溶解後、水酸化ナトリウム水溶液で中和、生成した水酸化物沈殿を60%過塩素酸に加熱溶解し、最後に十分に強熱を行い、水で希釈して、0.2M 過塩素酸水溶液とした。紫外・可視吸収スペクトルにより、Rh(III)のヘキサアクア錯体であることを確認した⁴⁾。

HTTA；市販の試薬(同仁化学研究所(株))を真空昇華により精製した。

TOPO；市販の試薬(同仁化学研究所(株))をヘキサンに溶解し、0.5M 水酸化ナトリウムの水：メタノール1対1混合溶液で洗浄後、水で数回洗浄し、ヘキサンを溜去した。最後に、

五酸化リン上で真空乾燥した。

その他の試薬；ベンゼンは通常の方法で精製を行い，他は分析級もしくは特級試薬をそのまま用いた。水は再蒸留水を用いた。

2.2 抽出操作

a) トリクロロ酢酸系およびペンタデカフルオロオクタン酸系

遠心管に，0.10－1.0M トリクロロ酢酸塩(TCA)又は0.010－0.025Mのペンタデカフルオロオクタン酸塩(PDFO)水溶液(5ml)と，0.010－0.10MのTOPOベンゼン溶液(5ml)を取った。pHは水酸化ナトリウムにより調整した。これに，水相中での初濃度が 8.1×10^{-5} Mとなるように，放射性Rh(III)溶液を少量(約60 μ l)を加え，25°Cで1分から3時間振とうした。遠心分離後，両相から一定量取り出し，NaI(Tl)井戸型シンチレーション検出器により放射能を測定し，Rh(III)の分配比(D_M)を求めた。また，ガラス電極を用いて振とう後の水相のpHを測定した。

b) ジ(2-エチルヘキシル)りん酸系および2-テノイルトリフルオロアセトン系

0.10M HDEHP 又は0.10M HTTA と0.010M TOPO を含む有機相(5ml)と，0.1M 過塩素酸塩水溶液(5ml)をあらかじめ5分間振とうした。水相中の初濃度が 8.1×10^{-5} Mとなるように放射性Rh(III)溶液を少量加え，1分から3時間振とうし，両相の放射能を測定した。

§ 3. 結果と考察

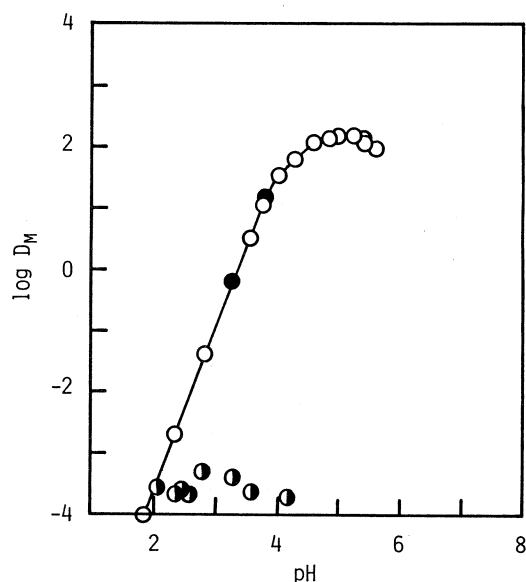
3.1 トリクロロ酢酸系

1.0M TCA－0.10M TOPO を用いて，いろいろなpHにおける室温でのRh(III)の抽出性を調べた。第1図に示すように，TOPOが存在しないとRh(III)は全く抽出されないが，0.10M TOPOの存在下ではpHの上昇とともにRh(III)の抽出は増加し，pH 4.5 から5.5では99%以上のRh(III)が抽出されている。このような抽出のpH依存性は，有機相中のTOPOによるHTCAの抽出⁵⁾と関係があり，pHの低い領域においては有機相中でTOPOとHTCAの会合が起り，Rh(III)の抽出が低下するものと考えられる。また，pH 3.3 と3.8において，抽出によって得られた有機相をRh(III)を含まない水相(Rh(III)を加えずに抽出を行い，得られたもの)と振とうし，Rh(III)の逆抽出挙動を調べた。その結果，逆抽出の分配比は正抽出のものに一致し(第1図)，30分以内に抽出平衡が成り立つという注目すべき結果が得られた。第2図に正抽出および逆抽出における振とう時間の影響を示す。正抽出では振とう1分から，また逆抽出では振とう5分から一定の分配比が得られ，このHTCA－TOPO系における

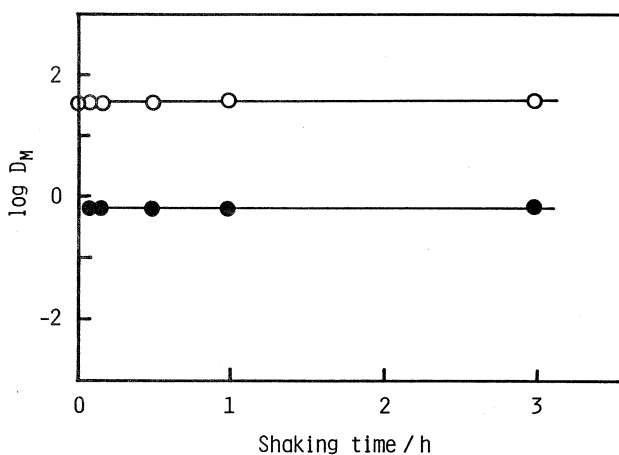
Rh(III)の抽出反応が極めて迅速であることが明らかとなった。

3.2 ペンタデカフルオロオクタン酸系

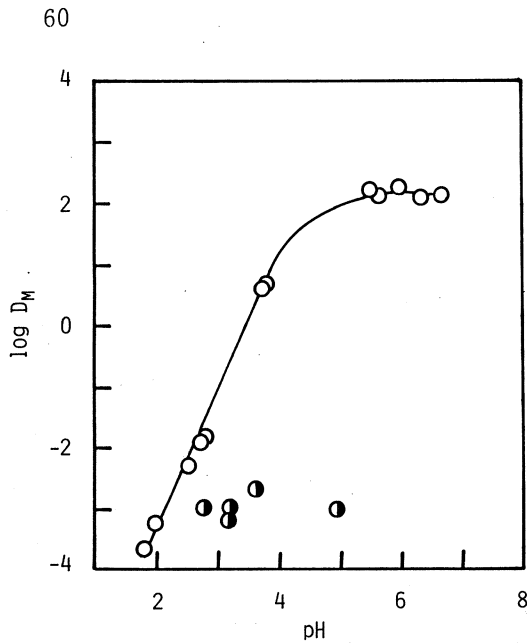
第3図に水相中のPDFO濃度を0.010Mおよび0.025M, 有機相中のTOPO濃度を0.10Mとした時のRh(III)の抽出挙動を示す。前述のHTCA-TOPO系と同様にTOPOの効果は非常に大きく, TOPOなしではRh(III)は全く抽出されないのに対し, TOPOを加えると, pH5から7で99%以上のRh(III)がベンゼン相に抽出されている。また, Rh(III)の分配比に対するpHの影響もHTCA-TOPO系に類似している。正抽出に対する振とう時間の影響を, 0.010M PDFO-0.10M TOPO系(pH 5.6-6.0)を用いて調べたところ, 振とう1分から60分までRh(III)の $\log D_M$



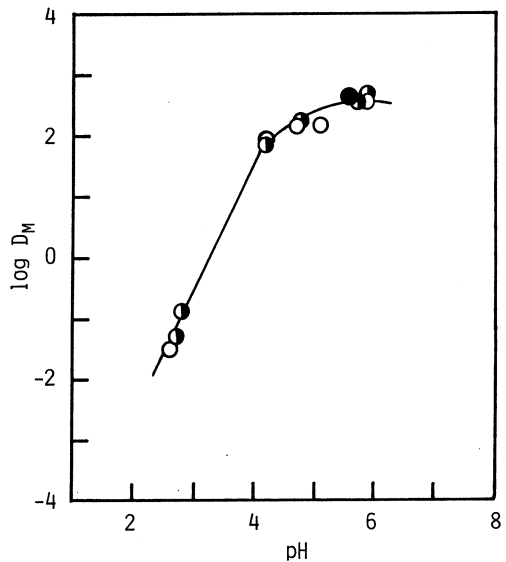
第1図 Extraction of Rh(III) in the HTCA-TOPO-benzene system.
 $8.1 \times 10^{-5} \text{M}$ Rh(III), shaking time 30 min
 ○ 1.0M TCA - 0.10M TOPO
 ○ 1.0M TCA
 ● back extraction, 1.0M TCA - 0.10M TOPO



第2図 Effect of the shaking time on the extraction and the back extraction of Rh(III) in the HTCA-TOPO-benzene system.
 $8.1 \times 10^{-5} \text{M}$ Rh(III), 1.0M TCA-0.10M TOPO,
 ○ forward extraction, pH 4.01-4.05
 ● back extraction, pH 3.27-3.28



第3図 Extraction of Rh(III) in the HPDFO
-TOPO-benzene system.
 $8.1 \times 10^{-5} \text{M}$ Rh(III), shaking time
30 min
○ 0.010M PDFO-0.10M TOPO
● 0.025M PDFO



第4図 Extraction of Rh(III) in the HDEHP
-TOPO-benzene system.
 $8.1 \times 10^{-5} \text{M}$ Rh(III), shaking time
30 min
○ 0.10M HDEHP-0.010M TOPO
● 0.10M HDEHP
● back extraction, 0.10M HDEHP

は約 2.3 で一定になり、この HPDFO-TOPO 系においても Rh(III) の抽出が非常に迅速であることがわかった。

3.3 ジ(2-エチルヘキシル)りん酸系

第4図に 0.10M HDEHP および 0.10M HDEHP - 0.010M TOPO による Rh(III) の抽出挙動を示す。前述のカルボン酸を使った二つの系とは異なり、酸性抽出剤である HDEHP 単独でも Rh(III) は容易に抽出されている。また、TOPO を加えても Rh(III) の分配比はほとんど変化せず、TOPO の効果はみられなかった。一方、0.10M HDEHP 系において Rh(III) の正抽出と逆抽出の比較を行ったところ、第4図に示すように両者の分配比は一致し、この系でも容易に抽出平衡に達することがわかった。次に、正抽出および逆抽出の振とう時間を1分から2時間まで変化させてその影響を調べた。第5図に示すように、正逆抽出ともに振とう1分から一定の分配比が得られており、この HDEHP 系でも1分以内に抽出平衡に達することがわかった。

3.4 2-テノイルトリフルオロアセトン系

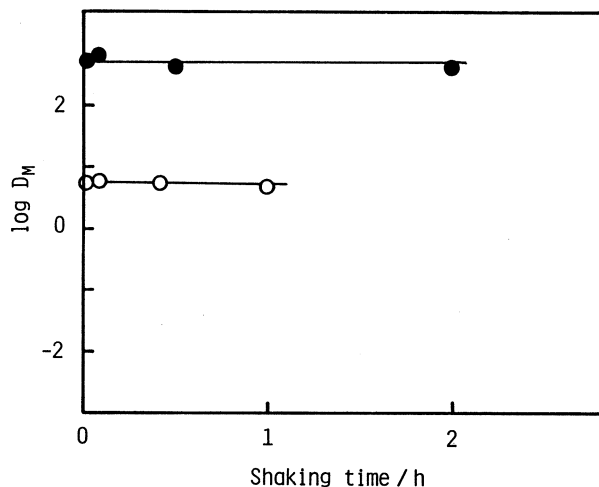
第6図に 0.10M HTTA および 0.10M HTTA - 0.010M TOPO による Rh(III) の抽出挙

動を示す。

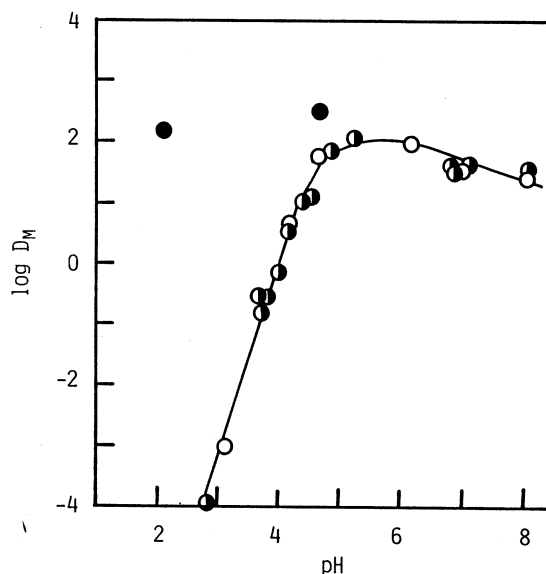
この系でも HDEHP 系と同様に、TOPO の効果は全くみられず、酸性抽出剤 HTTA 単独で Rh(III) が抽出されている。しかしながら、この系ではこれまで述べた抽出系とは異なり、正抽出と逆抽出の分配比は一致しなかった(第6図)。更に、正抽出および逆抽出の振とう時間を5分から24時間まで変化させてその影響を調べたところ、第7図に示すように、正抽出、逆抽出ともに非常に遅く、24時間の振とうによっても抽出平衡に達しないことがわかった。

3.5 抽出種の電子吸収スペクトル

Rh(III) 初濃度を $2.2 \times 10^{-3} \text{M}$ とし、1.0M TCA-0.10M TOPO (pH 4.30), 0.10M HDEHP (pH 3.38) および 0.10M HTTA (pH 4.07) を用いて抽出を行い、それぞれのベンゼン相の吸収スペクトルを試薬ブランクに対して測定した。第8図に 0.8M 過塩素酸溶液中の $\text{Rh}(\text{H}_2\text{O})_6^{3+}$ の吸収スペクトルとともに示す。HTCA-TOPO 系と HDEHP 系では、 $\text{Rh}(\text{H}_2\text{O})_6^{3+}$ 溶液のスペクトルと同様二つの吸収ピークがみられ、それぞれの波



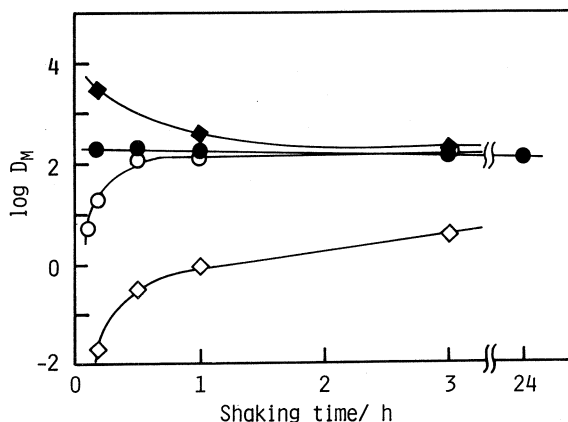
第5図 Effect of the shaking time on the extraction and the back extraction of Rh(III) in the HDEHP-benzene system.
 $8.1 \times 10^{-5} \text{M}$ Rh(III), 0.10M HDEHP
 ○ forward extraction, pH 3.50-3.57
 ● back extraction, pH 5.56-5.60



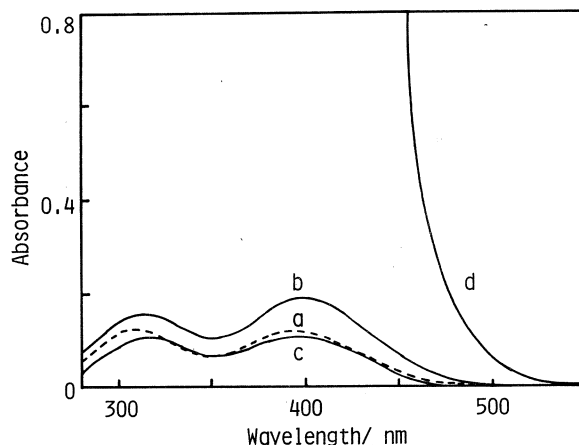
第6図 Extraction of Rh(III) in the HTTA-TOPO-benzene system.
 $8.1 \times 10^{-5} \text{M}$ Rh(III), shaking time 30 min
 ○ 0.10M HTTA-0.010M TOPO
 ● back extraction (shaking time 60 min), 0.10M HTTA

長は2-6 nm 以内で一致している。このような吸収スペクトルの類似は、Rh(III)の第1配位圏が抽出によっても大きく変化しないことを示唆している。また、HTCA-TOPO系とHDEHP系では、1分以内に抽出平衡が成り立っているが、Rh(III)は極めて置換不活性であり、第1配位圏の配位水の交換がそれほど速くおこるとは考えにくい。以上のことより、この二つの系では、Rh(III)は配位水を保持したまま抽出剤とイオン会合体を形成し、ベンゼン相に抽出されるものと考えられる。

一方、HTTA系では、抽出後のベンゼン相が濃い黄色となり、そのスペクトルはRh(H₂O)₆³⁺溶液のスペクトルとは全く異なっていた(第8図)。また、この系ではRh(III)の抽出反応が非常に遅く、更に、一旦抽出されると逆抽出もほとんどできなかったことより、TTAはRh(III)に直接配位しているものと予想される。ただし、逆抽出の際のRh(III)の分配比が、Rh(TTA)₃に対して予想される値よりもはるかに低く、このようなトリス錯体の生成は考えられない。



第7図 Effect of the shaking time on the extraction and the back extraction of Rh(III) in the HTTA-benzene system.
 8.1×10^{-5} M Rh(III), 0.10 M HTTA
 forward extraction
 ◇ pH 3.71-3.78, ○ pH 5.30-5.37
 back extraction
 ● pH 2.10-2.15, ◆ pH 4.68-4.69



第8図 Absorption spectra of the Rh(III) extracts in benzene and Rh(H₂O)₆³⁺ in the aqueous solution.
 a: 2.2×10^{-3} M Rh(H₂O)₆³⁺ in 0.8 M HClO₄
 b: Rh(III) extracted; 1.0 M HTCA-0.10 M TOPO, pH 4.30
 c: Rh(III) extracted; 0.10 M HDEHP, pH 3.38
 d: Rh(III) extracted; 0.10 M HTTA, pH 4.07

§ 4. ま と め

本研究では、HTCA、HPDFO、HDEHP、HTTA および TOPO を用い、 $\text{Rh}(\text{H}_2\text{O})_6^{3+}$ のベンゼンへの抽出について検討した。HTCA-TOPO系、HPDFO-TOPO系、HDEHP系そしてHTTA系において、pH 5 付近で99%以上のRh(III)をベンゼン相に抽出することができ、また、HTTA系以外の系では、1分以内に抽出平衡に達することがわかった。このようなRh(III)の定量的な、しかも迅速な抽出は、本研究で初めて見いだされたものであり、置換不活性金属イオンの優れた抽出系になるものと期待される。

本研究を行うにあたり、御協力を賜った東北大学理学部原子核理学研究施設の八木益男助教授、榎本和義助手ならびにマシングループの皆様に深く感謝する。

参 考 文 献

- 1) L. M. Gindin : "Solvent Extraction of Elements of The Platinum Group," in "Ion Exchange and Solvent Extraction", Eds. J. M. Marinsky, Y. Marcus (Marcel Dekker Inc., New York, 1981) vol. 8, Chap. 4, p. 311.
- 2) S. J. Al-Bazi and A. Chow : *Talanta* **31** (1984) 815.
- 3) 井村久則, 植木裕子, 鈴木信男 : 日本分析化学会第36年会講演要旨集(1987) p. 801.
- 4) Wayne C. Wolsey : *Inorg. Chem.* **2** (1963) 463.
- 5) H. Imura, T. Kiba and T. Honjo : *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **52** (1979) 2563.

高汚染水からのゼオライトによる セシウムとストロンチウムの選択的除去

選研

三村 均・山岸 功・秋葉健一

§ 1. はじめに

大量の核分裂生成物が冷却水中に溶出した高汚染水の処理は重要な課題である。例えば、1979年のTMI 2号機の原子炉事故では大量の高汚染水が生じ、その早期除染法の確立が注目されている。 ^{137}Cs と ^{90}Sr を含む高汚染水の除染法としては、蒸発濃縮法、イオン交換樹脂法およびゼオライト法が検討されているが、高放射能水の取り扱い作業性、多量のホウ酸ナトリウム・ホウ酸との分離性、耐放射線性等を考慮し、ゼオライト法の有用性が指摘されている¹⁾。TMI事故廃液の処理においては、ゼオライトを用いたSDS（水中脱塩装置）とEPICOR-IIシステムが効果的であった¹⁾。

しかし、我が国にはこのような高汚染水の処理に関する研究例はほとんどなく、除染システムはいまだ確立されていない。このような観点から、ゼオライトを利用した我が国独自の高汚染水処理処分システムを早急に確立しておくことは重要である。本研究では、このための基礎研究として、各種ゼオライトへのCsとSrの分配特性を調べ、さらに模擬高汚染水からの混合ゼオライトによるCsとSrの選択的除去について検討した。

§ 2. 実 験

2.1 ゼオライト

合成ゼオライトとして、A, X, Y (SK-40, ノートン社製) およびモルデナイト (Zeolon 900 Na, SMと略す, ノートン社製) を用いた。AおよびXゼオライトは、粒状 (Baylith T-144, W-894, バイエル社製) および粉末状 (A 4, 13 X, 東洋曹達製) のものを使用した。天然ゼオライトは、シャバサイト (IE-96, Cと略す, リンデ社), モルデナイト (宮城県川原子産, NMと略す) およびクリノプチロライト (秋田県二ツ井産, C Pと略す) を用いた。第1表には、使用したゼオライトの種類、化学組成、Si/Al比およびCsとSrの交換容量を示す。いずれもNa形にコンディショニングし、吸着水量を一定に保持したものを実験に使用した。

第1表 Chemical composition of various zeolites.

Zeolite	Type	Typical Unit Cell Content	Si/Al	$E_{Cs}^{*})$	$E_{Sr}^{**})$
A	Baylith T-144	$Na_{12}[(AlO_2)_{12}(SiO_2)_{12}]27H_2O$	1	223	552
X	Baylith W-894	$Na_{86}[(AlO_2)_{86}(SiO_2)_{106}]264H_2O$	1.23	262	419
Y	SK-40	$Na_{56}[(AlO_2)_{56}(SiO_2)_{136}]250H_2O$	2.43	185	290
Chabazite	IE-96	$Na_4[(AlO_2)_4(SiO_2)_8]13H_2O$	2	207	390
SM	Zeolon 900Na	$Na_{8.7}[(AlO_2)_{8.7}(SiO_2)_{39.3}]24H_2O$	4.52	196	218
NM	Kawarago	$Na_8[(AlO_2)_8(SiO_2)_{40}]24H_2O$	5	166	65.6
CP	Futatui	$Na_6[(AlO_2)_6(SiO_2)_{30}]24H_2O$	5	133	172

*) E_{Cs} ; Ion exchange capacity for Cs (meq/100g・zeolite)

***) E_{Sr} ; Ion exchange capacity for Sr (meq/100g・zeolite)

2.2 分配実験

Cs と Sr の分配実験は、バッチ法により以下の手順で行なった。ゼオライトを一定量精秤し、25°C に保持した Cs もしくは Sr 溶液 20ml に添加する。24時間振とう後、液相を遠心分離 (3,000rpm, 10分) し、 r 放射能および平衡 pH を測定する。 ^{137}Cs (日本アイソトープ協会より購入) および ^{85}Sr (東北大学核理研 LINAC により照射製造) をトレーサーとして用い、RI 溶液の比放射能は約 $10^{-2} \mu Ci/ml$ である。分配係数 (K_d) および吸着率 (R) は以下の式により算出した。

$$K_d = \{(C_i - C_f) / C_f\} V / m \quad (\text{ml/g}) \quad (1)$$

$$R = \{(C_i - C_f) / C_i\} 100 \quad (\%) \quad (2)$$

C_i, C_f : 液相の初期および平衡後の r 放射能 (cpm)

V : 溶液量 (ml)

m : ゼオライト重量 (g)

なお、一定時間毎に液相の一定量をサンプリングし、遠心分離後、その平衡 pH および r 放射能を測定し、吸着率の時間変化を調べて平衡到達時間を求めた。

2.3 模擬高汚染水

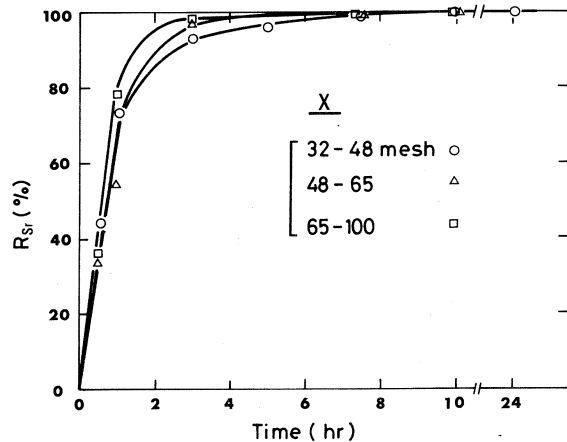
TMI 汚染水の化学組成¹⁾を参考として模擬高汚染水を調製した。ホウ酸 (H_3BO_3) およびホウ酸ナトリウム ($Na_2B_4O_7$) 溶液を混合し、 Na^+ および B 濃度を 1350ppm および 3870ppm に調整した。Cs および Sr 濃度はそれぞれ 1ppm および 0.01ppm とした。ただし、Sr の分

配を調べる場合のみ比放射能とのかねあいから Sr 濃度は 50 ppm とした。

§ 3. 結果および考察

3.1 吸着速度

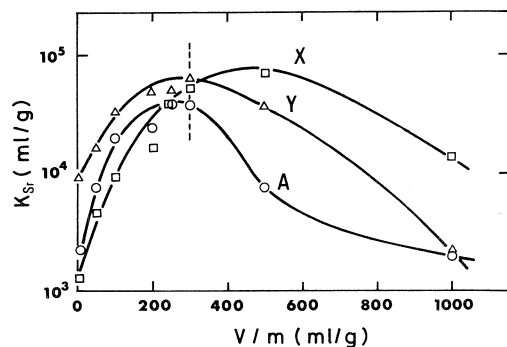
分配平衡の達成時間を知るため、各種ゼオライトへの Cs と Sr の吸着率の時間変化を調べた。第 1 図には、一例として粒度の異なる X ゼオライトに対する Sr の吸着率 (R_{Sr}) の時間変化を示す。ゼオライトへのカチオンの交換吸着は粒内拡散律速であることから、粒径の増大に伴ない Sr 吸着速度は低下する傾向がみられた²⁾。ただし、いずれの粒径のものでも 8 時間程度でみかけ上平衡に到達した。なお、A ゼオライトでは約 10 時間で平衡に達しており、孔路徑のやや大きい X に比べ吸着速度はおそい結果が得られた。一方、Cs 吸着速度は Sr よりはやく、シャバサイト、モルデナイトおよびクリノプチロライトにおいて約 5 時間で平衡に達した。



第 1 図 Effect of shaking time on adsorption ratio of Sr in X zeolite.
(V/m 300 ; pH_i 3.03~3.10 ; 50 ppm Sr ; 25°C)

3.2 液固比の影響

分配係数 (K_d) は液固比 (V/m) に大きく依存するため、予め最大の K_d 値を与える V/m を見出しおく必要がある。第 2 図には、Sr に選択性のある A, X および Y ゼオライトにおける Sr の K_d (以下 K_{Sr} と略す) と V/m との関係を示す。 K_{Sr} はいずれのゼオライトにおいても V/m 300~500



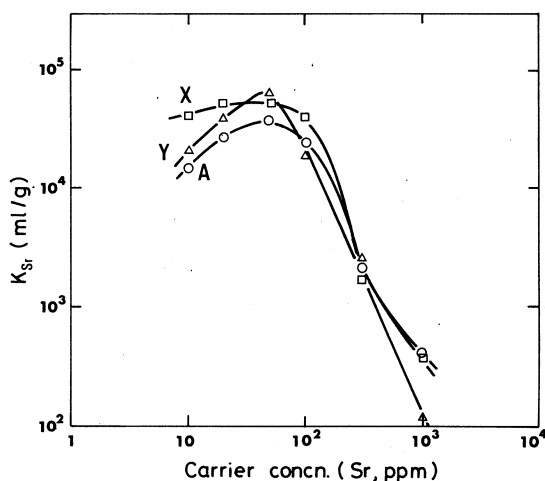
第 2 図 Effect of V/m on K_{Sr} .
(Zeolite 0.02~2g ; Solution 20 ml ; 50 ppm Sr ; pH_i 2.82~2.92 ; 25°C ; 24 h)

で極大値を示した。 V/m の小さい領域での K_{Sr} の低下する原因は、平衡pHがアルカリ領域にまで急激に上昇すること、さらにSrの平衡濃度が低下し平衡吸着量が減少したことによる。一方、 V/m の大きい領域での低下は、Srの飽和吸着量に近づくことに帰因すると考えられる。なお、Csに選択性の高いジャバサイト、モルデナイトおよびクリノプチロライトを用いて、同様にCsの K_d （以下 K_{Cs} と略す）への V/m の影響を調べたところ、 V/m 300~1000で K_{Cs} は 10^4 以上のほぼ一定値が得られた。以上のことから、以後の分配実験においては V/m を300、振とう時間を24時間に設定した。

3.3 CsおよびSr濃度の影響

V/m 300でCsとSr濃度を变化させた場合、どの程度まで高い K_d を保持しうるか、また高汚染水中のCsとSrの濃度範囲での K_d 値を推定するため、 K_d に及ぼすCsとSr濃度の影響について調べた。Sr濃度を10~1000 ppmまで変化させた場合の K_{Sr} の変化を第3図に示す。Sr 100 ppmまで K_{Sr} は 10^4

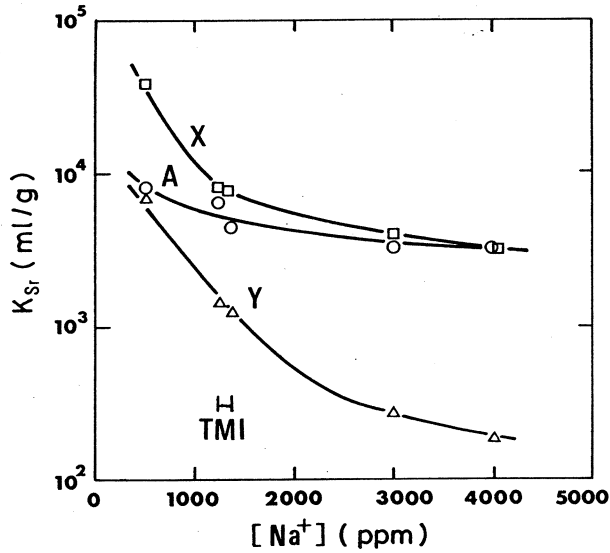
以上の高い値を示すが、それ以上では急激に低下する傾向が認められた。Srの交換容量は最も高いAゼオライトで552 meq/100gである。本実験の結果から、Sr濃度が100 ppm以下、すなわち液中のSr量が交換容量のほぼ10%以下であれば高いSr除去率が達成できる。この傾向はCsの場合も同様であるが、ゼオライト間の K_d の差はSrの場合に比べやや大きい結果が得られた。



第3図 Effect of Sr concentration on K_{Sr} .
(V/m 300 ; pH_i 2.79~2.93)

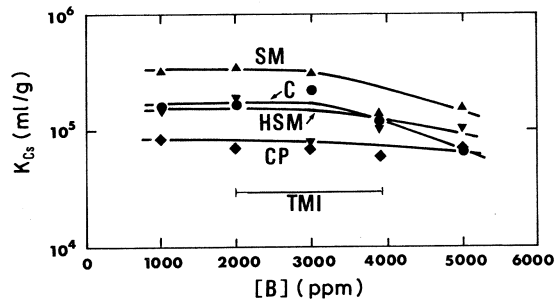
3.4 共存するNa⁺およびB濃度の影響

高汚染水中の主成分であるNa⁺およびB濃度のCsとSrの分配に及ぼす影響を調べた。TMI事故廃液中のNa⁺およびB濃度は各々1200~1350 ppmおよび2000~3870 ppmの範囲と報告されている¹⁾。本実験では濃度範囲を広めて、Na⁺およびB濃度を500 ppmから5000 ppmまで変化させて K_d を測定した。第4図は、A、XおよびYゼオライトに対する K_{Sr} に及ぼすNa⁺濃度の影響を示す。Na⁺濃度の増加に伴ない K_{Sr} の低下が認められ、特にYゼ



第4図 Effect of Na^+ concentration on K_{Sr} .
(V/m 300; 50 ppm Sr; pH_i 2.85~3.24)

オライトで急激に低下した。これはAおよびXに比べYゼオライトのSr選択性が低いことによると考えられる。なお、TMI廃液中の Na^+ 濃度領域では、AおよびXゼオライトに対して K_{Sr} は $5 \times 10^3 \sim 10^4$ であった。一方、Csの分配においては、モルデナイトとシャバサイトに比べクリノプチロライトの低下が著しかった。



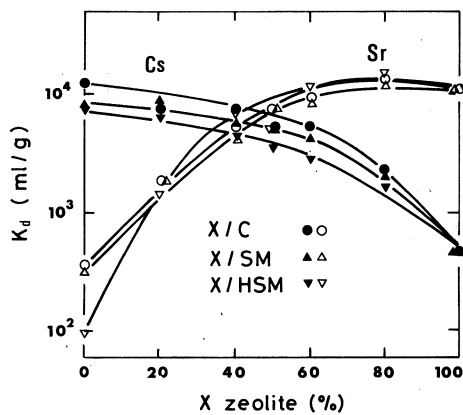
第5図 Effect of B concentration on K_{Cs} .
(V/m 300; 1 ppm Cs; pH_i 3.12~5.39;
HSM=H form of SM)

K_{Cs} に及ぼすB濃度の影響を第5図に示す。B濃度はCsの分配にはほとんど影響せず、 K_{Cs} は 10^5 程度であり極めて高い値を示した。Srの分配も同様であるが、Sr濃度が数十ppm以上では、2~3日後にはStrontium borateの白色沈殿の生成が観察され、Srの平衡濃度の低下が認められた。以上のことから、CsとSrの分配にはB濃度よりも Na^+ 濃度の影響が大きく、Csの除去にはモルデナイトおよびシャバサイト、Srの除去にはAおよびXゼオライトが有効と考えられる。

3.5 模擬高汚染水からの混合ゼオライトによるCsとSrの除去

大量の高汚染水中のCsとSrを同時に除去するためには、CsとSr各々に対して選択性の高いゼオライト混合体の使用が効果的である。本実験では、模擬高汚染水（HALWと略す）を使用し、各種ゼオライト混合体に対するCsとSrの分配を調べ、最適な混合系および混合比を決定する。本実験では、CsとSr共に同じ K_d で除去しうる混合比を最適混合比とみなし、CsとSrの分配曲線の交点から求めた。

第6図は模擬高汚染水からのX/C、X/SM、X/HSM混合ゼオライトへのCsとSrの分配を示す。Csに選択性の高いシャバサイトやモルデナイトは、単独では K_{Cs} が 10^4 程度の高い値を示すが、Xゼオライトの増加に伴ない K_{Cs} は単調に低下した。一方、Srの分配曲線はわずかに凸型であり、混合比80%付近に K_{Sr} の極大が認められた。このことは、Collins¹⁾、Komarneni³⁾および著者⁴⁾らが既に報告しているように、Sr分配に対して混合による相乗的な効果が現われたものと考えられる。各分配曲線の交点はCsとSrを共に除去しうる混合比であり、X/Cの重量比



第6図 Effect of mixing ratio on K_d in simulated HALW.
(V/m 300; Zeolite 66.7 mg, 32~48 mesh; HALW 20 ml, pH_i 7.96~7.98; 25°C; 24 h)

第2表 K_d values at optimum mixing ratio.

Mixed zeolite	Mixing ratio	K_d
A/C	59/41	5.4×10^3
A/SM	48/52	4.5×10^3
A/HSM	45/56	4.6×10^3
X/C	48/52	7.0×10^3
X/SM	46/54	5.5×10^3
X/HSM	35/65	5.1×10^3

48/52 の混合系で $K_d = 7.0 \times 10^3$ (吸着率96%) が得られた。他の混合系から同様に最適混合比を求め第2表に示す。Aに比べXゼオライトを含む混合系の方がやや高い K_d 値を示し、特に X/C 系が有効な混合系と考えられる。

§ 4. 結 論

ゼオライトへの Cs と Sr の分配平衡は、Cs で5時間、Sr で8～10時間でみかけ上平衡に達し、液固比 V/m 300～500 で K_d は最大値を有する。Cs と Sr の分配に対して、B 濃度はほとんど影響しないが、 Na^+ 濃度の増大につれ分配係数值 (K_d) は減少する。ただし、 Na^+ および B 濃度いずれも 2000 ppm 以下であれば K_d 値は 10^4 以上 (吸着率99%以上) を示した。模擬高汚染水から混合ゼオライトにより Cs と Sr を効率良く除去でき、X とシャバサイトの混合系 (重量比 48/52) で $K_d = 7.0 \times 10^3$ (ml/g) が得られ最も高い値を示した。これらの結果は、混合ゼオライトカラムにより高汚染水処理を行なう場合、カラム設計に対する基礎データとして重要と考えられる。

本研究の遂行にあたり、貴重な文献を提示して頂いた荏原工業洗浄(株)中江悠主計氏に感謝致します。なお、本研究の一部に文部省科学研究費補助金 (61780260) を使用した。

参 考 文 献

- 1) E. D. Collins et al. : IAEA TC-51814 (1984).
- 2) H. Mimura and T. Kanno : J. Nucl. Sci. Technol. **22** (1985) 284.
- 3) S. Komarneni and R. Roy : Sci. Basis Nucl. Waste Manage. II (1980) 411.
- 4) 三村 均, 木村敏也, 菅野卓治 : 核理研研究報告 **16** (1983) 110.

ゼオライトに対するウランの吸着特性

選研

石原義尚・三村均・秋葉健一

§ 1. はじめに

放射性廃棄物固化体の地層処分において、放射性核種の遅延をはかるために固化体の周囲に人工バリアとして緩衝材が配置される。緩衝材には、高い吸着能力を有する無機イオン交換体として、粘土鉱物とともにゼオライトがその候補材の一つに挙げられている¹⁾。ゼオライトに対する放射性核種の分配特性に関しては、数多く報告されているが^{2, 3)}、そのほとんどが天然産ゼオライトに対するものであり、またアクチノイド核種を対象とした報告は少ない。しかも天然産ゼオライトは共存鉱物を含み、産地によってもその吸着特性は大きく異なることが多く⁴⁾、ゼオライトの構造および溶液条件を考慮した系統的な研究が必要である。

本研究はアクチノイド核種としてウランを対象にそのゼオライトへの吸着特性を調べた。

§ 2. 実 験

2.1 ゼオライト

本研究で使用した合成および天然産ゼオライトの化学組成等の特性を第1表に示す。いずれも、Na型もしくはH型に調整し、飽和NH₄Cl溶液の入った密封容器中で吸着水量を一定に保持したものを実験に使用した。なお、Na型Aゼオライトを10⁻²M硝酸溶液で2～3日処理し一部H型にしたAゼオライト((Na, H)Aと略す)、およびNH₄Yゼオライトを350℃で24時間焼成しアンモニア熱分解法により製造したHYゼオライトも使用した。

2.2 分配実験

分配実験はバッチ法により以下の手順で行った。ゼオライト約0.17gを秤量し、²³⁷Uを含むウラン溶液50mlに添加する。ここで、液相は0.1Mギ酸緩衝液を用いて初期pHを調整し、V/m(液固比)は主に300ml/gとし、初期ウラン濃度は1×10⁻⁵Mとした。25℃で24時間振とうし、液相の一定量を遠心分離(3000rpm, 5分間)後、液相のr放射能およびpHを測定し、次式により吸着率R_Uおよび分配係数K_Uを求めた。

$$R_U = \frac{A_i - A_f}{A_i} \times 100 \quad (\%) \quad (1)$$

$$K_U = \frac{A_i - A_f}{A_f} \times \frac{V}{m} \quad (\text{ml/g}) \quad (2)$$

A_i : 初期溶液の r 放射能

A_f : 振とう後の溶液の r 放射能

V : 溶液量, 50 ml (一定)

m : 試料の重量 (g)

なお, トレーサーとして用いた ^{237}U は, 東北大学理学部原子核理学研究施設の LINAC 照射により $^{238}\text{U} (r, n)^{237}\text{U}$ 反応で製造し, TBP 抽出法により分離精製した。

第 1 表 Chemical composition of zeolites.

Zeolite	Typical unit cell contents	Si/Al	Particle size (Mesh)
Synthetic Zeolite			
A (A type zeolite)	Baylith T-144 (Bayer)	$\text{Na}_{12}[(\text{AlO}_2)_{12}(\text{SiO}_2)_{12}]27\text{H}_2\text{O}$	32 ~ 48
X (X type zeolite)	Baylith W-894 (")	$\text{Na}_{86}[(\text{AlO}_2)_{86}(\text{SiO}_2)_{106}]264\text{H}_2\text{O}$	32 ~ 48
Y (Y type zeolite)	SK-40 (Norton)	$\text{Na}_{56}[(\text{AlO}_2)_{56}(\text{SiO}_2)_{136}]250\text{H}_2\text{O}$	48 ~ 65
L (L type zeolite)	(ToSo)	$\text{K}_9[(\text{AlO}_2)_9(\text{SiO}_2)_{27}]22\text{H}_2\text{O}$	Powder
SM (Synthetic Mordenite)	Zeolon 900 Na (Norton)	$\text{Na}_8[(\text{AlO}_2)_8(\text{SiO}_2)_{40}]24\text{H}_2\text{O}$	32 ~ 48
HSM (H form of Synthetic Mordenite)	Zeolon 900 H (")	$\text{H}_8[(\text{AlO}_2)_8(\text{SiO}_2)_{40}]24\text{H}_2\text{O}$	32 ~ 48
Natural Zeolite			
NM (Natural Mordenite)	Kawarago (Miyagi Pref.)	$\text{Na}_8[(\text{AlO}_2)_8(\text{SiO}_2)_{40}]24\text{H}_2\text{O}$	32 ~ 48
CP (Clinoptilolite)	Futatsui (Akita Pref.)	$\text{Na}_5[(\text{AlO}_2)_5(\text{SiO}_2)_{30}]24\text{H}_2\text{O}$	48 ~ 65
Eri (Erionite)	Pine valley Nevada (UCC)	$\text{Na}_9[(\text{AlO}_2)_9(\text{SiO}_2)_{27}]27\text{H}_2\text{O}$	Powder
Phi (Phillipsite)	Pine valley Nevada (UCC)	$\text{Na}_{10}[(\text{AlO}_2)_{10}(\text{SiO}_2)_{22}]20\text{H}_2\text{O}$	Powder

§ 3. 結果および考察

3.1 器壁への吸着および沈降

分配係数測定的主要な誤差原因となるものに, ウランの器壁への吸着および液相サンプリングの際の遠心分離による沈降が考えられ, これらは溶液中の pH とウランの化学形に密接に関係している。本研究では, 酸性およびアルカリ性領域で器壁への吸着および遠心分離による沈降の影響を検討し, サンプリング法として遠心分離法および濾過法により得られた K_U 値と, ゼオライト (A ゼオライト) 試料自体に吸着した ^{237}U の r 放射能を直接測定して得られた K_U 値を, 第 2 表に示す。

第2表 K_U and R_U values in the acidic and alkaline regions.

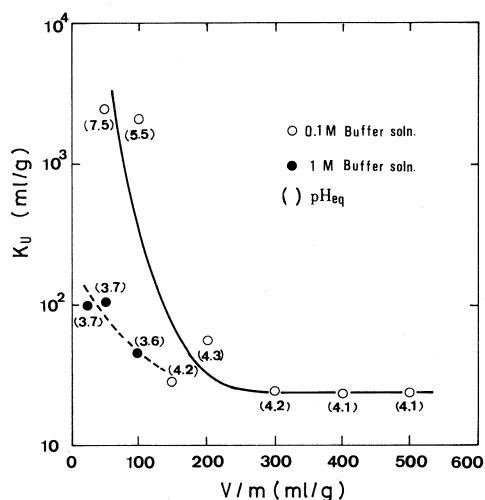
Region	Procedure	K_U (ml/g)	R_U (%)
Acidic region ($\text{pH}_{\text{eq}}=4.17$)	Centrifugation (3000 rpm, 5 min)	28.20	9.05
	" (10000 rpm, 10 min)	26.05	8.41
	Filtration (millipore filter, $0.22 \mu\text{m}$)	28.60	9.16
	Zeolite	27.39	8.94
Alkaline region ($\text{pH}_{\text{eq}}=10.81$)	Centrifugation (3000 rpm, 5 min)	45.62	13.64
	" (10000 rpm, 10 min)	38.49	11.60
	Filtration (millipore filter, $0.22 \mu\text{m}$)	44.60	13.20
	Zeolite	28.74	8.51

酸性、アルカリ性いずれの領域においても、遠心分離法と濾過法による K_U 値はほぼ一致しており、遠心分離によるウランの沈降の影響はほとんどないことが分かる。しかも $0.22 \mu\text{m}$ 以上の粒子は分配係数測定に影響を与えないことが分かった。また、ゼオライト試料の放射能測定から求めた吸着率と液相サンプリングから求めた吸着率は、酸性領域ではほぼ等しいが、アルカリ性領域では約5%ほど差が認められ、ウランの器壁への吸着によるものと考えられる。

3.2 液固比の影響と吸着速度

液固比 (V/m) は分配係数 (K_U) の算出に大きく影響することから、予め V/m が K_U に影響しない領域を見い出して、分配実験を行う必要がある。第1図には K_U に及ぼす V/m の影響を示す。本実験では、Aゼオライトを使用し、溶液量を一定にしてゼオライト量を変えて V/m を変化させた。

$V/m = 300 \sim 500$ の領域では K_U 値は約30ではほぼ一定であるが、 V/m の小さい領域では K_U 値は急激に増加した。ゼオライト量が増加すると緩衝能がおいつかず、 pH が中性領域にまで上昇し、



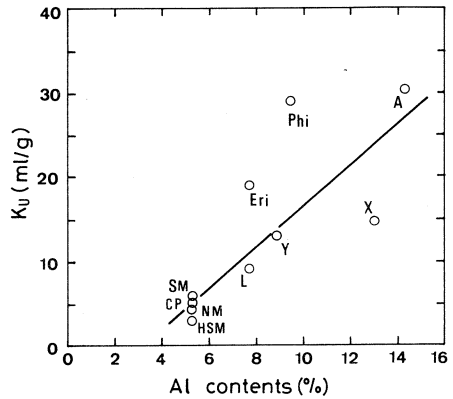
第1図 Effects of V/m on K_U .
Zeolite A, $m = 0.11 \sim 2.01 \text{ g}$, $\text{pH}_i 3.60$

UO_2^{2+} の分配とは別に、ウランのヒドロキシル錯体等の沈降または粒子および器壁への吸着が支配的となり、見かけ上 K_U 値が増加したと推定される。なお、緩衝液濃度を 1 M とした場合でも同様の傾向が認められるが、この場合にはギ酸により Aゼオライトが一部構造破壊されており、含水ケイ酸が液中に溶出するため液固比が増加していると考えられる。

各種ゼオライトへのウランの分配平衡の到達時間を知るため、ウランの吸着率の時間変化を調べた。その結果、いずれのゼオライトに対してもほぼ24時間で吸着率は一定となり、見かけ上平衡に達することが分かる。以上のことから、本研究では、 K_U が V/m に依存しない領域の $V/m = 300$ で、振とう時間を24時間として以下の実験を行った。

3.3 分配係数の比較

ゼオライトに対するウランの分配係数 (K_U) はいくつか報告があるが²⁾、実験条件が異なっており、統一的な評価は困難である。系統的な吸着に関する基礎データを得るために、本実験では、各種ゼオライトを用いて同一条件で分配実験を行った。各種ゼオライトに対する K_U 値と Al 含有量との関係を第2図に示す。Al 含有量はゼオライトの単位セル中の全原子数と Al 原子数の比である。かなりばらつきはあるものの、Al 含有量が大きいくほど K_U 値が増加する傾向が認められ、Al 含有量の最も大きい Aゼオライトで $K_U = 30.4$ (ml/g) が得られた。なお、数多くのゼオライトについて Al 含有量とイオン交換容量との間に比例関係が認められている⁵⁾。このことから、本実験の結果は、ゼオライトのラージケージまたはチャンネル内へ UO_2^{2+} がイオン交換吸着していることを示唆している。



第2図 Correlation between K_U and Al contents.

3.4 平衡 pH の影響

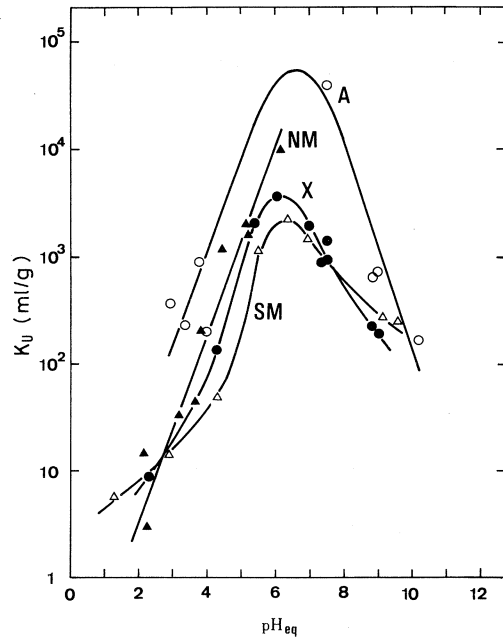
ゼオライトへのカチオンの分配は平衡 pH に大きく依存し、多価イオンほど影響が大きいことが知られている。A, X, モルデナイト (SM, NM) に対する K_U の平衡 pH による変化を第3図に示す。本実験では、緩衝液を用いず、硝酸溶液のみで pH を調整してウランの分配を調べた。いずれのゼオライトにおいても、ウランの分配に及ぼす平衡 pH の影響は大きい。低 pH 領域では UO_2^{2+} のイオン交換吸着が支配的と考えられ、pH の低下に伴い K_U は急激に低下した。一方、アルカリ性領域での K_U の低下は加水分解反応が進行したことに起因してお

り、ゼオライト孔路内への交換吸着が不可能な加水分解生成物が生じており、これらの粒子表面への吸着および沈降が支配的と考えられる。以上のことからゼオライトへの分配は見かけ上ほぼ中性付近（pH 6～7）に極大値を有する結果が得られた。なお、古屋ら⁶⁾は花崗岩に対する K_U と平衡 pH との関係を調べ、中性付近に極大を有する分配曲線を得ている。ただし、極大点での K_U 値を比較するとゼオライトの方が1～2桁高い値が得られた。

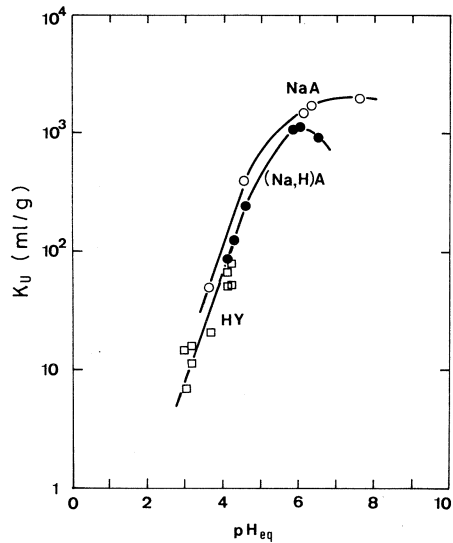
第4図は、イオン強度を一定とした場合のNa型およびH型ゼオライトに対する K_U のpH依存性を示したものである。いずれのゼオライトにおいても、平衡pHと K_U の間には傾き1の直線関係が認められた。H型無機イオン交換体においては、目的カチオンの濃度が極く希薄なとき、分配係数とpHの間に直線関係が成り立つ場合、その傾きは理想的にはカチオンの電荷に一致することが知られている^{7,8)}。本実験のpH領域（pH 3～4.5）では、 UO_2^{2+} のイオン交換吸着が支配的と考えられるが、ウラン濃度は 10^{-5} Mとかなり高濃度であるため、傾きは2より小さい値を示したものと考えられる。

3.5 吸着等温線

ウランのゼオライトに対する吸着機構は、ゼオライト構造や液中のウラン化学種と密接に関係しており、これを解明することは重要である。



第3図 Variation of K_U with equilibrium pH.
HNO₃ solution.



第4図 Variation of K_U with equilibrium pH.
0.1 M HNO₃-NaNO₃.

Aゼオライトに対する UO_2^{2+} の吸着等温線を調べ、第5図に示す。平衡濃度の増加に伴いウランの平衡吸着量は増加し、等温線の形からLangmuir型吸着と考えられる。Langmuirの等温式は

$$q_{\text{eq}} = \frac{K q_{\text{max}} (C_{\text{eq}})}{1 + K (C_{\text{eq}})} \quad (3)$$

q_{eq} : 平衡吸着量
(mg/g)

C_{eq} : 溶液中のウランの平衡濃度
(mg/l)

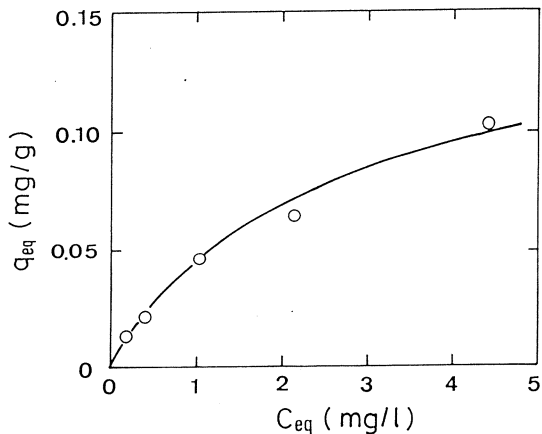
K, q_{max} : Langmuir定数

で表される。これを变形すると、

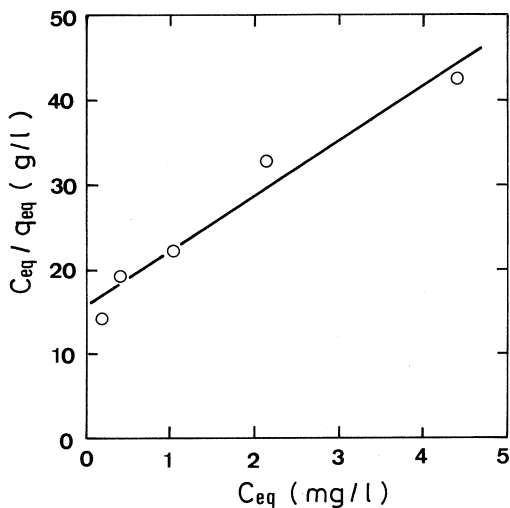
$$\frac{C_{\text{eq}}}{q_{\text{eq}}} = \frac{1}{K q_{\text{max}}} + \left(\frac{1}{q_{\text{max}}}\right) C_{\text{eq}} \quad (4)$$

となる。 C_{eq} と $(C_{\text{eq}}/q_{\text{eq}})$ を等分目盛りのグラフにプロットして直線が得られるときは、(3)式が適用できる。さらに、切片と傾きから $(1/Kq_{\text{max}})$ と $(1/q_{\text{max}})$ が求まり、 q_{max} と K が算出できる。

第6図に示すように、Aゼオライトに対する UO_2^{2+} の交換吸着のLangmuir plotにおいて直線関係が認められたことから、Aゼオライトの α ケージ内の均一な吸着サイトへ単分子的に UO_2^{2+} の吸着が進行したと考えられる。Langmuir定数 K および q_{max} (飽和吸着量)は0.414および0.15 mg/gが得られた。また、Aゼオライトの交換容量は5.5 meq/gであることから⁵⁾、単分子吸着における表面被覆率は 2.1×10^{-4} と見積られる。



第5図 Adsorption isotherm of UO_2^{2+} in zeolite A.
pH_i 3.64, pH_{eq} 4.15~4.25



第6図 Langmuir plot of UO_2^{2+} in zeolite A.

§ 4. 結 論

ゼオライトへのウランの分配は、液固比 (V/m) 300~500 でほぼ一定の分配係数値 (K_U) が得られ、約24時間で見かけ上平衡に到達する。各種ゼオライトの Al 含有量とウランの K_U 値の間にはほぼ直線関係が認められ、Si/Al 比の最も小さいAゼオライトで最も高い K_U 値を示す。ゼオライトへのウランの分配は pH に大きく依存し、ほぼ中性 (pH 6~7) で K_U 値の極大が認められた。酸性領域でのH型およびNa型ゼオライトに対する K_U と pHの間にはほぼ傾き 1 の直線関係が認められ、 UO_2^{2+} の α ケージおよびチャンネル内の交換吸着が支配的と考えられる。 UO_2^{2+} の交換吸着は Langmuir 型等温式に従い、 α ケージ内へ単分子的に吸着が進行すると考えられ、Langmuir 定数は $K = 0.414$, $q_{max} = 0.15 \text{ mg/g}$ が得られた。

本研究にあたり、御協力を頂いた東北大学理学部原子核理学研究施設の RI およびマシニンググループの皆様にご礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 石原健彦, 大橋弘士: 放射性廃棄物処分の基礎 (現代工学社) 1987.
- 2) J. H. Westsik *et al*: PNL-SA-9645 (1982).
- 3) S. Komarneni and R. Roy: Sci. Basis Nucl. Waste Manage. II (1980) 411.
- 4) 三村 均, 福森 充, 大谷登蔵, 菅野卓治: 東北大学選鉱製錬研究所彙報 35 (1979) 19.
- 5) 菅野卓治: ぶんせき 9 (1977) 560.
- 6) 古屋廣高: 地層処分研究成果報告会論文集 (動燃, 原安協) 1986.
- 7) 山崎浩道: 東北大学 博士論文 (1983).
- 8) M. Tsuji and M. Abe: Solvent Extraction and Ion exchange 2 (1984) 253.

Ⅲ. 加 速 器 ・ 測 定 器

Large Solid Angle Detectors for Medium Energy Protons

I. Nomura, O. Konno, K. Maeda[†], D. McLean^{††}, T. Suda,
T. Terasawa, M. N. Thompson^{††}, Y. Torizuka, and J. Yokokawa

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

[†]*College of General Education, Tohoku University,
Kawauchi, Sendai 980, Japan*

^{††}*School of Physics, Melbourne University, Parkville 3052,
Victoria, Australia*

A proton detector with an acceptance solid angle of approximately 1 sr has been built. It consists of $\Delta E-E$ plastic scintillator and can detect protons up to energies of 80 MeV in experiments with tagged photon beams. The design of the detector and preliminary results of its performance are described.

Recently, experimental investigation of a wide range of medium energy photonuclear physics has become possible with the availability of tagged photon beams. However, both the photonuclear cross sections and the intensity of the tagged photon beams are low, so it is necessary to use a large solid angle detector to observe the photoreaction products. The detectors described here are used in tagged photon experiments at the 150 MeV photon tagging facility at Sendai. Hence the proton energy range of interest is from 20 MeV to 80 MeV. It is required that the detector cover a wide angular distribution and have a large solid angle, of about 1 sr. The main sources of background in (γ, p) experiments are the electrons and photons produced and scattered in the reaction target. While sodium iodide scintillator has good energy resolution, its sensitivity to gamma rays requires the complete shielding of the detectors, to minimize the photon background. However, the requirement of large solid angular acceptance severely restricts the size and effectiveness of detector shielding. So the other requirements of the new detector are insensitivity to the background photons, and good discrimination of protons and electrons.

Plastic scintillator has a high charged particle detection efficiency and good timing

characteristics. Although its energy resolution (ref. 1) is a little worse than sodium iodide, its insensitivity to gamma rays makes it more suitable than sodium iodide. Additionally the fast response of the plastic scintillator allows a fast coincidence between the ΔE and E counters, so that the usage of a ΔE - E system offers a good rejection of background electrons from the foreground protons.

Figures 1 and 2 show the geometrical arrangement of the detector. One unit consists of one ΔE and three E counters.

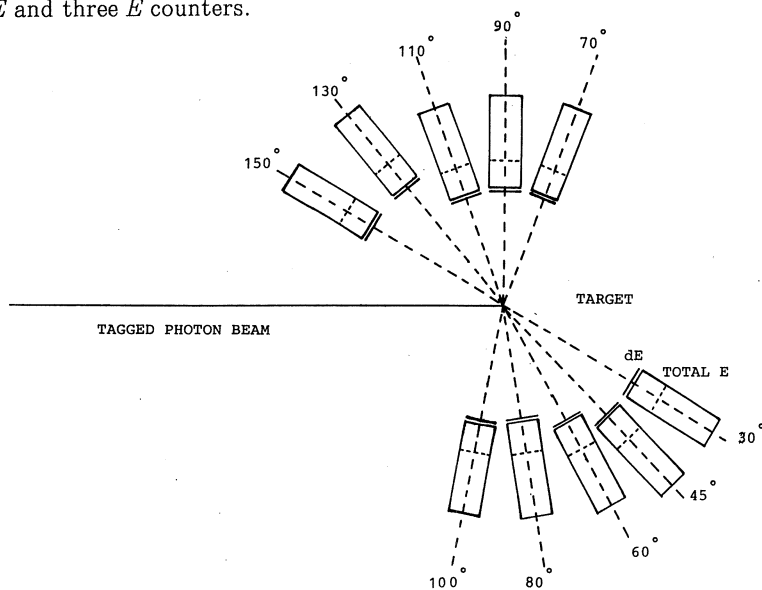


Fig. 1. Geometrical arrangement of the whole proton detectors.

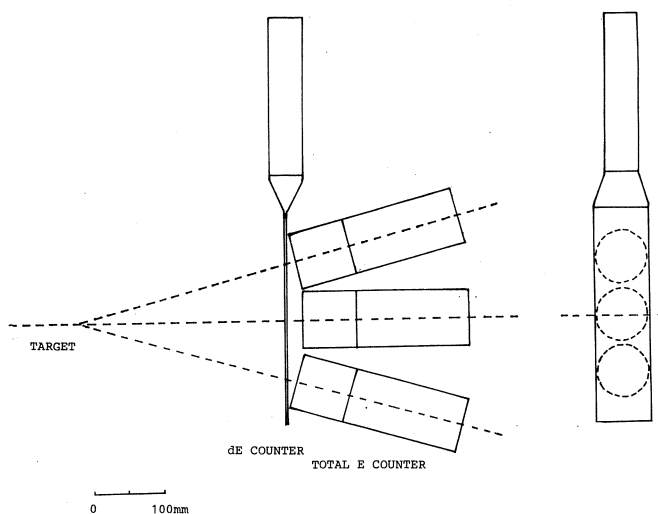


Fig. 2. Configuration of a single unit of the proton detector.

Cylindrical plastic scintillators, each $3'' \phi \times 80\text{mm}^t$, are placed horizontally as thick total E counters. These are directly coupled to $3''$ diameter photomultiplier tubes (HAMAMATSU R1911-05). The photomultiplier tubes used provide good pulse height linearity for up to 100 MeV protons, allowing accurate determination of incident proton energy. A thin scintillator strip, $80\text{mm}^w \times 300\text{mm}^l \times 2\text{mm}^t$, is placed vertically in front of the E scintillators and provides the E element. Light is detected by a $2'' \phi$ (HAMAMATSU H1611) photomultiplier coupled to the scintillator by an acrylic light guide. The photomultiplier used for the E element has a high gain and fast response. The plastic scintillators are wrapped in thin aluminium foil to collect light not internally reflected. The thickness of each E detector is sufficient to stop protons of up to about 80MeV. The lower limit on energy acceptance is determined by the thickness of the E detector and the settings of the discriminators, and is about 20 MeV.

The angular range over which the detector can be used is limited by how close individual units can be placed to the incident or outgoing photon beam, and by space restrictions. One proton detector unit, when the E counters are placed 30 cm from the nuclear target, gives a usable solid angle of 150 msr. Ten units have been built that altogether provide about 1 sr solid angular acceptance when arranged as shown in figure 1. This detector system, with a total solid angular acceptance of 1.2 sr, was used for the ${}^{67}\text{Li}(\gamma, p)$ experiment, where the angular distribution of photoprotons between 30 degrees and 150 degrees was measured.

The gain stability was checked using cosmic rays over a period of two months. During this period, the fluctuation of the gain was less than two percent.

The electronics used with the proton detector are shown in figure 3. The coincidence between E and E detectors decreases the number of background events. The separation of protons from background electrons is achieved by the standard technique of measuring both the particle energy loss in the E scintillator and total energy loss in the E counter. A two dimensional plot of E versus E can then separate the protons from the electrons. Quality of separation relies on the energy resolution of the ΔE and E detectors, which determines the width of the proton ridge. Light collection in the thin scintillator is relatively poor, since the light signals in the E elements are small and are considerably

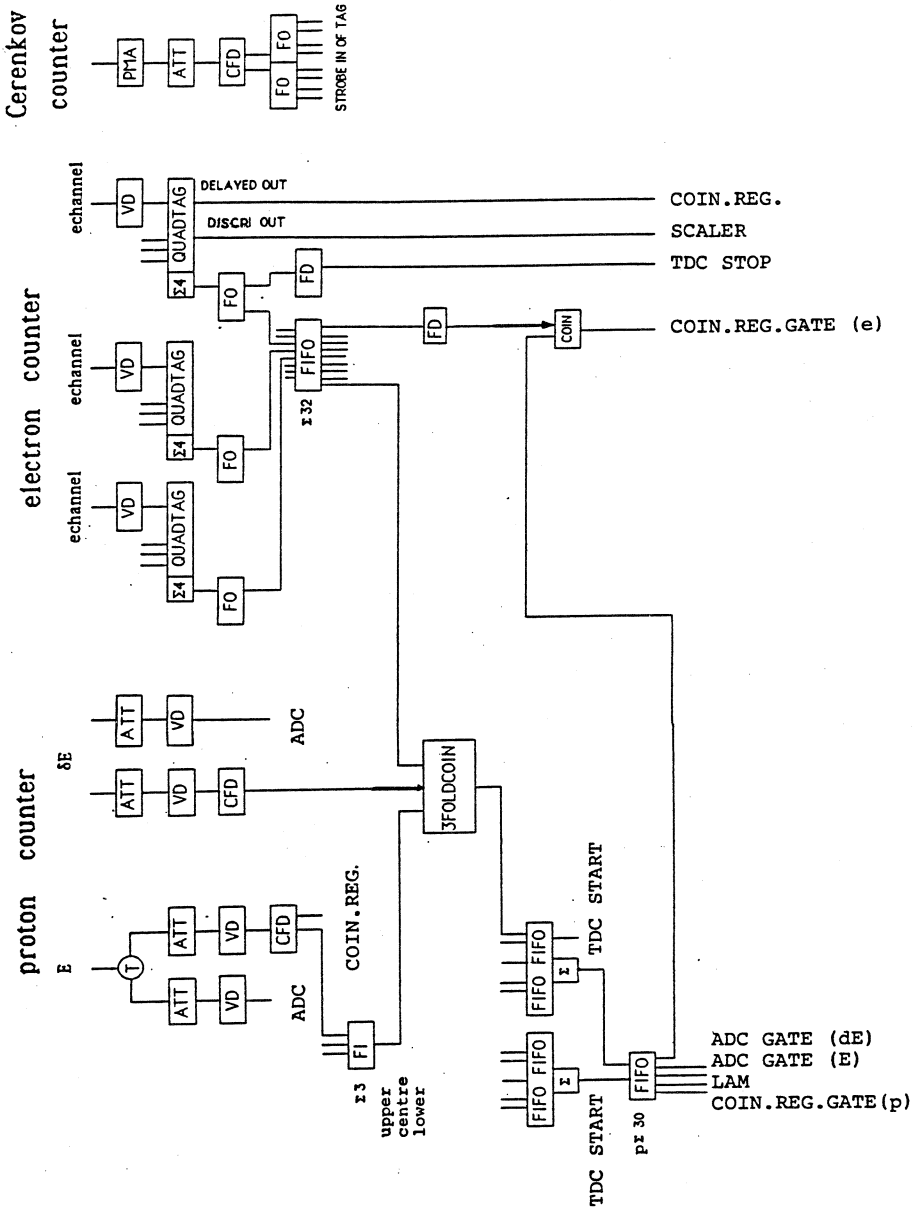


Fig. 3 Block diagram of electronics : COIN. REG., coincidence register, ADC, analog-to-digital converter, TDC, time-to-digital converter, QUADTAG, quad photon tagging, CF, constant fluctuation discriminator, FIFO, fan in fan out, COIN, 2 - fold coincidence, 3 FOLD COIN, 3 - fold coincidence. FD, fixed delay, VD, variable delay, ATT, attenuator.

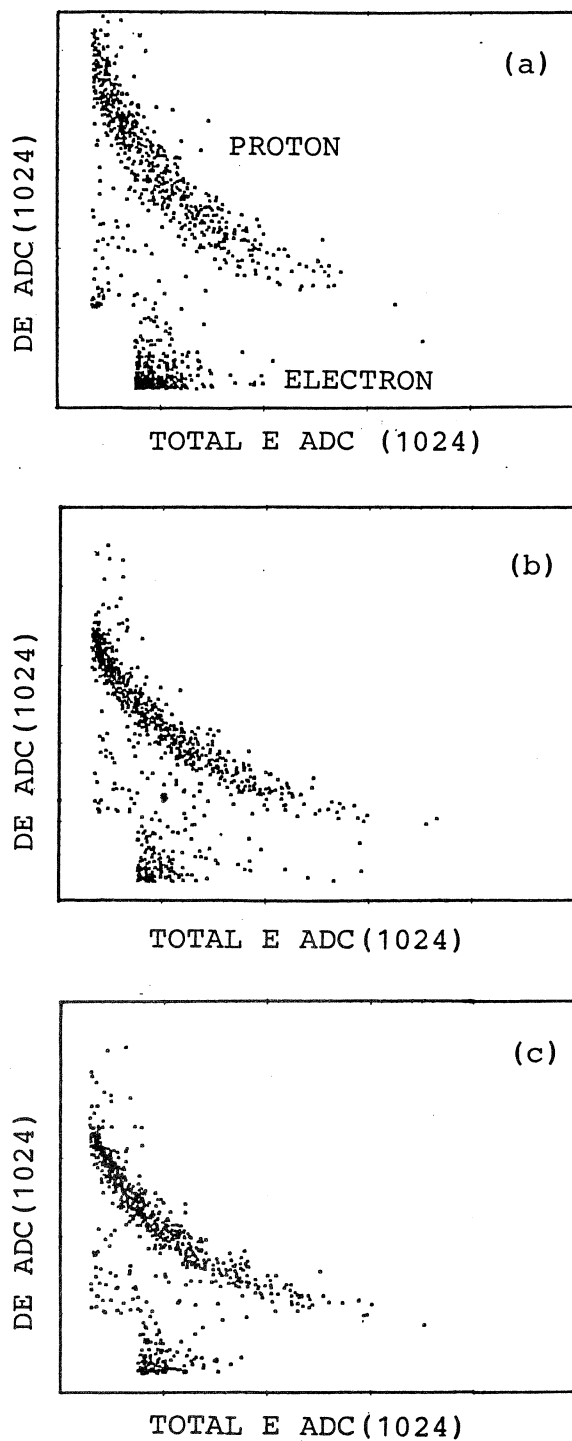


Fig. 4 $\Delta E - E$ two dimensional plot showing a good separation of protons and background electrons : (a), (b) and (c) correspond to upper, centre and lower E counters respectively.

attenuated along their path. So the E thickness, 2 mm, was chosen to be as thick as possible consistent with detection of protons down to an energy of about 20 MeV. Inelastic scattering also occurs in the scintillator and these events produce spurious features in the analyzed data. In our proton energy range this process affects, at most, about 8 % of proton events at 80 MeV (ref. 2). Figure 4 shows data from the ${}^6\text{Li}$ (γ, p) reaction. It can be seen that the separation of protons from electrons is extremely clean.

In summary, a proton detector featuring large solid angle and a usable energy range of 20–80 MeV has been constructed, and has been found to work well in tagged photon experiments.

References

- 1) C. A. Baker *et al.*: Nucl. Instr. and Meth. **71** (1969) 117.
- 2) J. F. Janni : Atomic Data and Nuclear Data Tables **27** (1982) 147.

電子線による熱ルミネッセンスシートの特性の研究

弘前大理

渡辺善二郎・小関英明

§ 1. 緒 言

現在、宇宙線の電子カスケードシャワーの測定にはX線フィルムを用いたエマルジョンチェンバーがおもに使用されているが、X線フィルムによるシャワー測定には限界があり、超高エネルギー領域ではシャワーによるX線フィルムの黒化度の飽和をおこすために正確な観測、測定が困難である。そこで、このような超高エネルギー領域での宇宙線測定において、X線フィルムにかわる感光シートとしてTL（サーモルミネッセンス）シートの研究開発が行われている^{1,2)}。

TLシートはシートに熱を加えることにより、そのシートにおける放射線の照射量に比例する蛍光を発するもので、これを利用しての放射線測定のために物性および医療関係の研究者により研究されてきた^{3,4)}。このTLシートは測定領域が広く、取り扱いおよびデータの読みだしが比較的容易なことから、従来のX線フィルムでは測定が困難であった超高エネルギー領域での核相互作用を直接測定でき、さらに大型化も比較的容易であり、また繰り返し使用も可能であるために、TLシートを用いた宇宙線測定法の研究が行われている^{5,6)}。本実験はTLシートによる放射線量測定の測定範囲および測定限界を調べるために試験的に行われたものである。

§ 2. 実 験

TLシートへの照射は、テスト実験と本実験の2回に分けて行った。

テスト実験

照射電子エネルギー：15MeV

照射量：1, 0.1, 0.01, 0.001 μC の4段階

本実験

照射電子エネルギー：15MeV

照射量：1, 0.1, 0.01, 0.001 μC の4段階

鉛のスリットおよびアブソーバー使用

TLシート：テフロンシート

BaSO₄ : テフロン (重量比 4 : 6)

Eu をドーブ

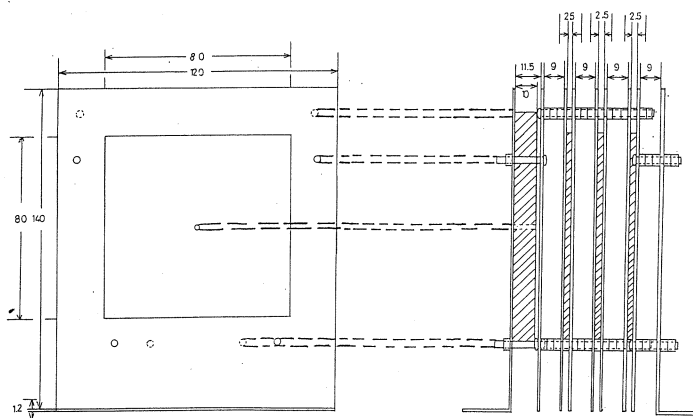
テスト実験 8 枚 (大きさ 8cm × 8cm)

本実験 24 枚 (大きさ 8cm × 8cm)

X線フィルム : 厚さ 0.187mm

大きさ 8cm × 8cm

テスト実験および本実験に使用したスタンドの図を第 1 図に示す。



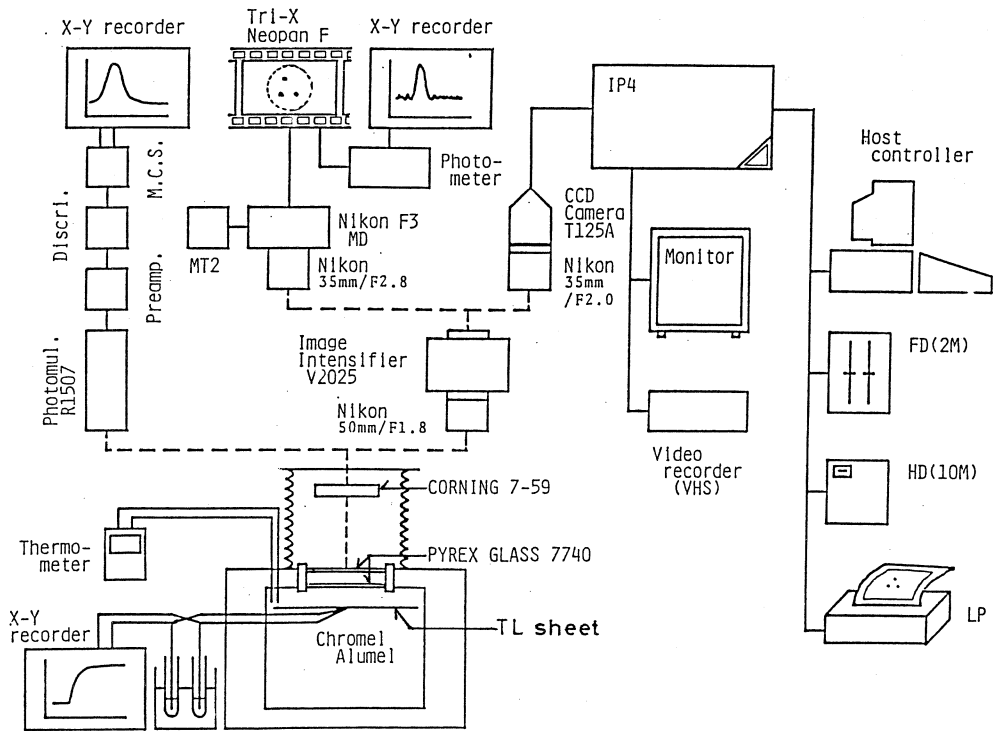
(単 位 : mm)

第 1 図 本実験でのスタンドの図。

2.1 読みだしシステム (reading system)

TL 光測定のための reading system は, (1) ヒーター系, (2) 光学系, (3) 増幅系, (4) 処理系, に分けることができる。第 2 図に system の概様を示す。

ヒーター系では TL シートを加熱して TL 光を放出させる。光学系でこの TL 光をとらえ, バンドパスフィルター (corning 7-59) を通してからカメラレンズで結像させる。TL 光は紫外線領域にそのピークを持つので紫外線領域の光を通過させるフィルターを通すことにより TL 光以外のノイズを取りのぞくことができる。レンズにより結像した画像は I. I. (image intensifier) を用いた増幅系により増幅した後, CCD カメラを使って撮影し, この撮影した画像データはイメージプロセッサ (IP-4) を用いて, 512 × 512 の画素に分割して処理系へとおくられる。

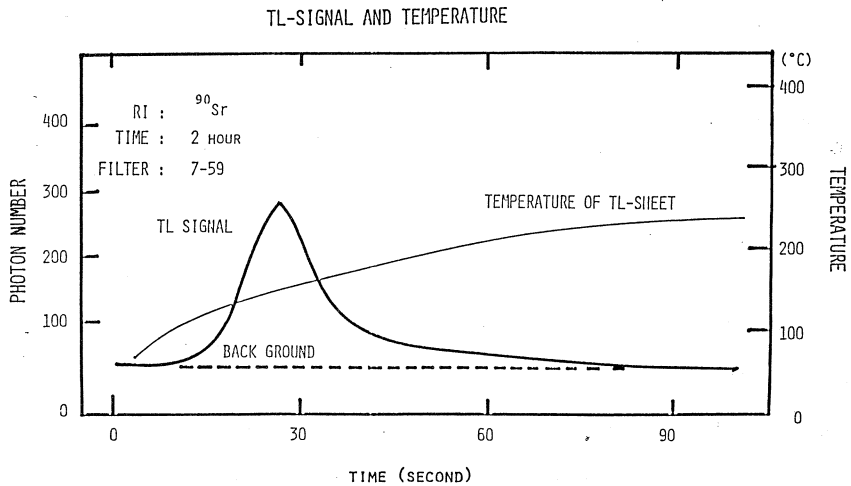


第2図 READING SYSTEMの概様図。

2.2 解析

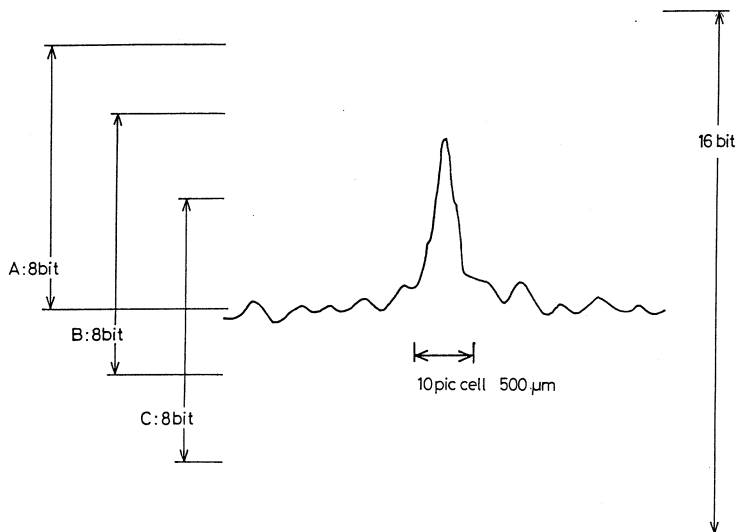
(1) TL光の読み出し

恒温槽を予め十分加熱（240℃以上）してからTLシートを挿入する。このときのシートの温度上昇曲線とBaSO₄:Euのグローカーブを第3図に示す。



第3図 恒温槽中でのTLシートの温度上昇曲線とグローカーブ。

シートからのTL光は1/30秒毎に3000回撮影加算した画像データとしてIP-4に取り込む。これはシートを挿入してから100秒にわたってのTL光を積分したデータである。第3図よりBaSO₄:Euのグローピークは約150℃であるので上記の取り込み時間で、シートの温度は十分上昇しグローピークを含むTL光を十分に捕えている。1/30秒毎に撮影加算するのはIP-4の機能による。このようにしてIP-4には512×512画素で16ビット階調の画像データが取り込まれる。1画素の大きさは、200μm×180μmである。16ビット階調のデータのうち表示および出力できるのは8ビットである。そこで第4図のようにして8ビットを選び、host computerへ転送しfloppy diskおよびhard diskに保存する。



第4図 スポットのデータの取り方。

(2) 画像のスミージング

3×3画素の領域に第5図のように重みをかけて画像をスミージングする。

これは、バックグラウンドやビデオのノイズなどによるバラツキを減らすために行う。

(3) スポットの決定

スポットのデータはスポットを中心にして、20×20および10×10画素の領域のTL光データを取り込む。10×10画素の大きさは約2000μm×2000μmに相当する。

(4) TL光量の算出

上記で決定された領域の光量を積分することにより放射線の照射によるTL光量(TL yield)とした。スポットの領域の各画素におけるTL光度 i 、全TL光量を I とすると

$$I = \sum i^{1/1.2}$$

としてTL光量 I を求める。 i を $1/1.2$ 乗しているのは supralinearity を補正するためである⁷⁾。この I が電子密度に対応する量である。

§ 3. 結 果

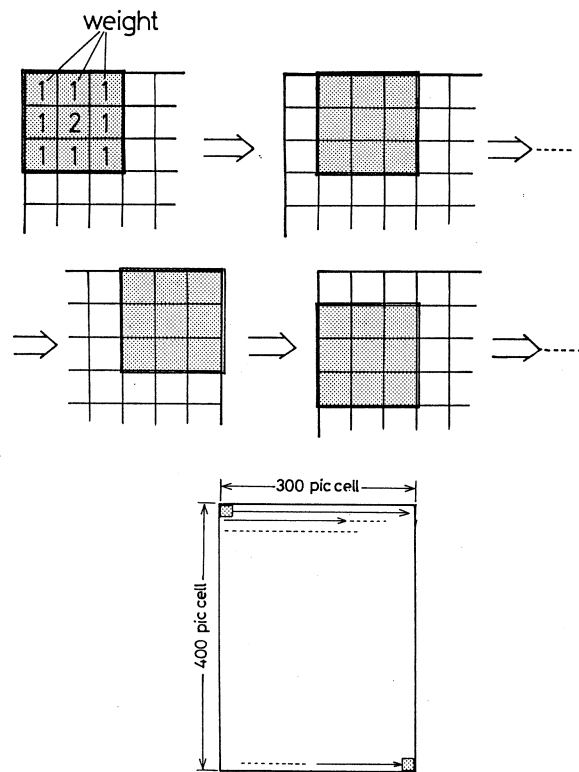
3.1 テスト実験

テスト実験では電子ビームの拡がりやビームスポットの状態の測定、電子線照射によるTL光量の測定を試みた。その結果を第6図(A), (B)に示す。

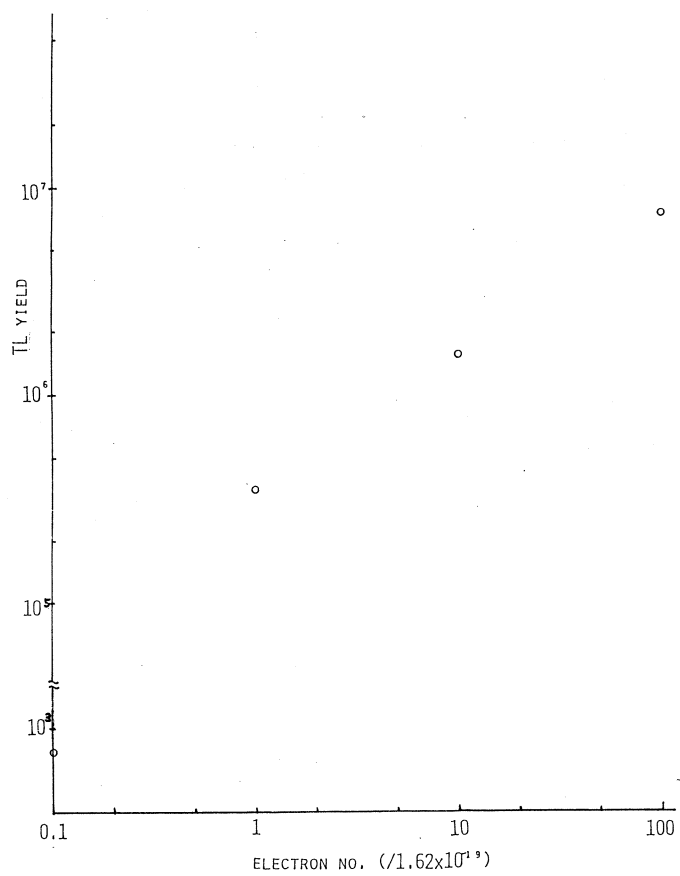
TLシートからのTL光の読み出しの際、イメージインテンシファイヤーの印加電圧を通常の15%ほどで増幅した。これはイメージインテン

シファイヤーの保護のためである。またIP-4でも飽和を起し16ビット階調ではデータを取りきれなかった。ビームの拡がりやビームスポットの状態はかなり良く知ることができた。(第6図(B)の光量の等高線の大きいゆがみは白金線による。)

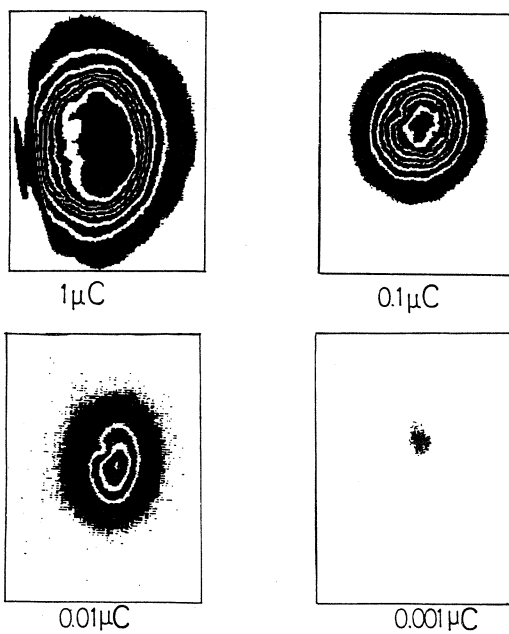
TLシートと一緒にX線フィルムも入れたが、全体にサチュレーションを起こしていて、X線フィルムによる測定はできなかった。



第5図 スムージングにおける各画素の重み。



第6図 (A) 照射量とTL光量との相関。



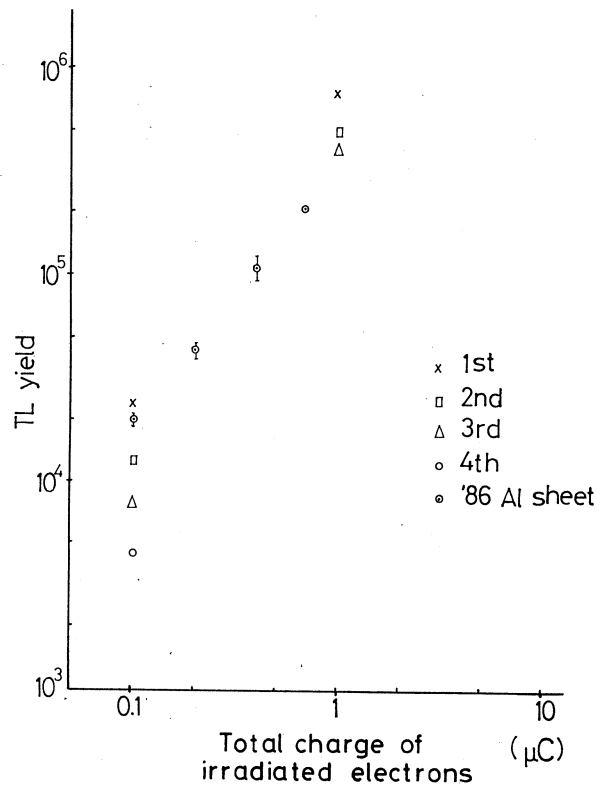
(B) 各シートの画像。

3.2 本実験

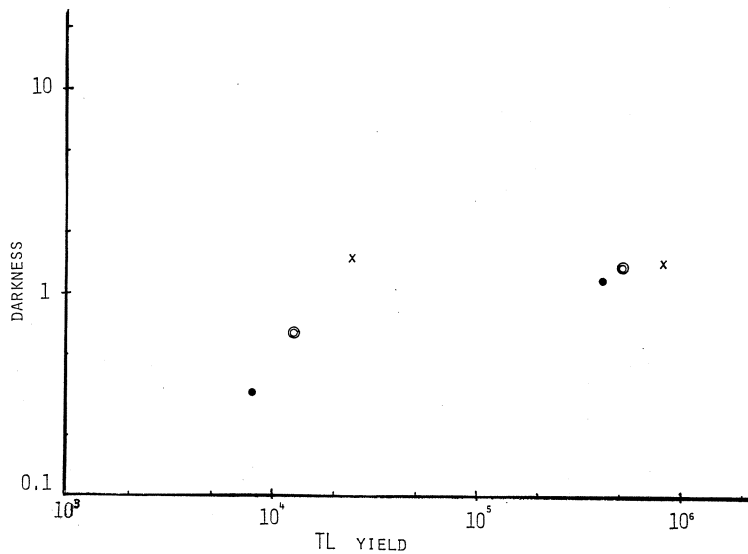
テスト実験の結果より、本実験では鉛のアブソーバースとスリットを置き、さらに4層のアブソーバースにTLシートとX線フィルムをはさんだ。この場合もイメージインテンシファイヤーの印加電圧は通常よりも低くして行った。第7図にその結果を示す。

第7図には比較のためにRIの照射による実験データも一緒にプロットしてある。この実験でのX線フィルムにおける黒化度とTL光量のグラフを第8図に示す。

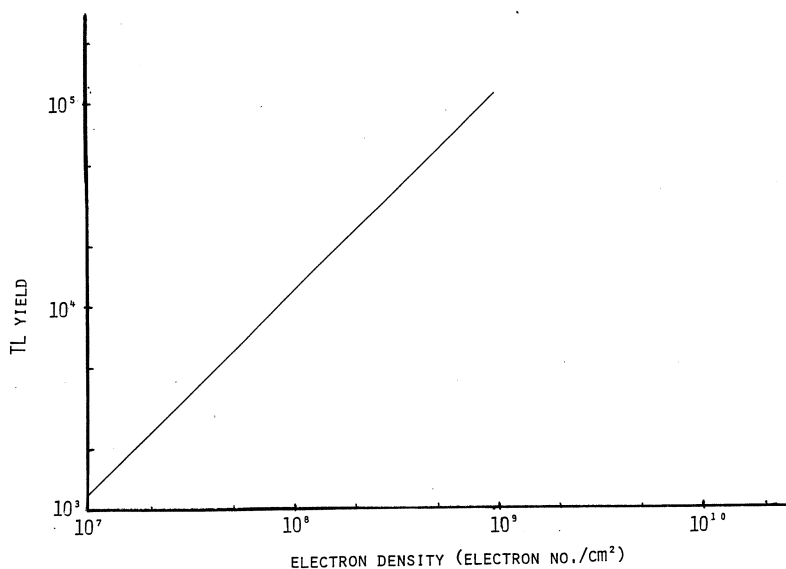
また、このようにして実験的に得られたTL光量と電子線密度との相関を第9図に示す。



第7図 TL光量と照射量の相関。



第8図 TL光量とX線フィルムのDとの相関。



第9図 TL光量と電子数密度の相関。

この図から、TL光量は 10^8 electrons/cm²までは $a = 1.2$ でsupralinearityが補正できるが、それ以上ではsupralinearityが大きく補正が困難である。この実験からTLシートでは 10^4 TeVのエネルギーの入射ガンマ線によるカスケードシャワーまでは測定可能であることがわかった。

§ 4. 結 論

この基礎実験から得られた実験結果についてまとめる。

1. TLシートは、電子ビームの照射量とその拡がりの状態等の情報を得るのに非常に有効である。
2. RIおよびライナックを使った照射実験ではテフロンシートについては $10^4 \sim 10^8$ electrons/cm²の測定ができる。(入射ガンマ線の全エネルギー： ΣE_γ で約3 TeV $\sim 10^4$ TeV)
3. 照射量が多い場合は、長時間熱処理をしてもTL光が残り、再使用には十分注意する必要がある。

最後に、この研究の実験を実施するにあたって、御指導と御援助をいただきました東北大学サイクロトロン・RIセンターの藤岡学先生に感謝の意を表します。また、実験方法、ビーム照射について、詳細かつ長時間にわたり御尽力をいただきました核理研の榎本和義氏に、心から厚く御礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 小沢国夫 : 応用物理 38 (1969) 1057.
- 2) 山本 勲, 富山 毅 *et al.* : 岡山理科大学紀要 19 A (1984) 121.
- 3) I. T. Randall and M. H. F. Wilkins : Proc. Roy. Soc. A 60 (1984) 574.
- 4) A. Kitahara : 応用物理 44 (1975) 101.
- 5) Y. Okamoto, S. Kawaguchi *et al.* : *Proc. of the 18th Int. Conf. on Cosmic Ray 18* (1983) p. 161.
- 6) Z. Watanabe *et al.* : *Proc. of the 19th Int. Conf. on Cosmic Ray 8* (1985) p. 341.
- 7) 市村雅一 : “エマルション関連” 測定器, 測定技術研究会報告 (1986) p. 1.

コヒーレント放射光

核理研, 理学部物理*, 工学部応用物理**

中里俊晴・小山田正幸・新村信雄

浦沢茂一・今野 収・神山 崇†

鳥塚賀治††・池沢幹彦*・難波孝夫*

近藤泰洋**

§1. はじめに

シンクロtron放射光(SR)は連続スペクトルを有し, その強度は光を放出する電子数に比例する非干渉(インコヒーレント)な光源である。長波長領域のSRは広がり角が大きく, 光軸上でのパワー強度は $\lambda^{-5/3}$ に比例するため, 波長 λ が長いほど強さが低下する。また, 長波長のSRを集光する際に最適な幾何条件にしても, 現存する放射光施設の強度に比して1桁程度の光強度の向上しか期待できない。

1982年, バンチ内の電子からのコヒーレントSRの可能性が天文学者¹⁾によって示された。それによると, SRの波長が電子のバンチ長に近づくと, バンチ内電子からのSRは可干渉(コヒーレント)となり, その強度はバンチ内の電子数の二乗に比例する。このコヒーレントSRによって長波長領域のSRの強さは飛躍的に増大し, 従来の放射光施設よりも6~10桁も強い光源が得られることになる。

1984年に英国のDaresburyのSRリングで観測の試みがなされたが²⁾, コヒーレント放射の決定的確認までは至らなかった。これはビームのバンチ長が約60mmと長く, コヒーレントSRのスペクトルがミリ波以上の非常に長い波長領域になってしまったためと考えられる。バンチ長が長いのは, 加速RF周波数が500MHzと低く, 更にシンクロtron振動により進行方向にバンチが広がるためである。

本研究に使用した東北大学理学部原子核理学研究施設の300MeV電子ライナックは, 短いバンチ(約2.5mm)が得られる。加速RF周波数が2856MHzと高く, シンクロtron振動のようなバンチを長くする効果がないのがこのライナックの特徴である。この加速器の電子ビームを使用すれば, 10 μ m以上の波長でコヒーレントSRが発生することが計算上期待される。

現在, 遠赤外からミリ波領域にわたって波長が連続で強力な光源は開発されていない。コヒ

† 現在 筑波大学物質工学系

†† 現在 日本大学理工学部

ーレントSRが確認され実用化されれば、各方面への波及効果も大きいものと考えられる。その中には、遠赤外分光・物性物理学・ミリ波サブミリ波による通信工学・生体細胞中の非平衡系に生ずる新型モードの研究等、広範囲の基礎的研究分野が含まれる。

尚、コヒーレント放射光は天文学におけるパルサー星からのラジオ波の放射に関する研究に端を発しており、この存在が地上で確認されれば物理学及び天文学の基礎問題として重要な情報を提供することになる。

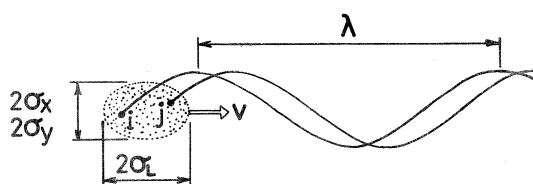
§2. コヒーレント放射光の発生

2.1 バンチ構造

加速器の中でRF加速される粒子は、第1図のようなバンチ構造をしており、有限な空間内に多数の粒子が集った状態

になっている。第1表は核理研のライナックとKEKの放射光施設(PF)の電子ビームのバンチの大きさを比較したものである。 σ_x 、 σ_y は双方ともあまり変わらないが、PFの σ_L が大きいのは加速

周波数 f_{RF} が核理研よりも低く、加速位相の広がり $\Delta\phi$ が大きいためである。PFの $\Delta\phi$ が大きいのはストレージング特有のシンクロトロン振動があるためで、ライナックにはこのようなバンチを広げる効果がないので $\Delta\phi$ が小さい。



第1図 バンチからの放射光。

バンチは、 v 方向に進みながら放射光を出す。 $2\sigma_L$ はバンチの進行方向(縦方向)の長さ、 $2\sigma_x$ 、 $2\sigma_y$ はそれと直角方向(横方向)の長さである。バンチ内の粒子 i と j から出た光の波長 λ が $2\sigma_L$ よりも十分に大きいと、その位相はそろってくる。

第1表 バンチの大きさとその中の電子数

	核理研ライナック	KEK PF
横方向の大きさ σ_x, σ_y	2 ~ 3 mm	3 ~ 5 mm
縦方向の大きさ σ_L	~ 2.5 mm	~ 60 mm
バンチ中の電子数 N	$2.2 \times 10^7 / 10 \mu A$	$1.3 \times 10^9 / 100 mA$
加速RF周波数 f_{RF}	2856 MHz	500 MHz
加速位相の広がり $\Delta\phi$	~ 5°	~ 30°
ビームエネルギー E	300 MeV	2.5 GeV

2.2 インコヒーレント放射光

磁場中で半径 r の円運動をする荷電粒子 (電荷 e , 質量 m , エネルギー E) から放出されるシンクロトロン放射光のスペクトルは Schwinger³⁾ によって与えられて,

$$P(\omega) = \frac{3^{3/2}}{4\pi} \frac{e^2}{r} r^4 \frac{\omega_0 \omega}{\omega_c^2} \int_{\omega/\omega_c}^{\infty} K_{5/3}(\eta) d\eta \quad (1)$$

$$r = E / m c^2 \quad (2)$$

$$\omega_0 = c / r \quad (3)$$

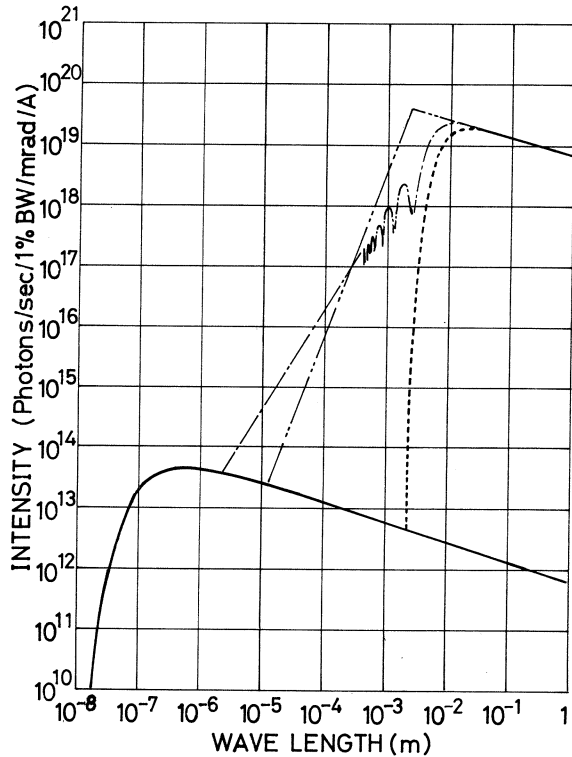
$$\omega_c = 3 \omega_0 r^3 / 2 \quad (4)$$

となる。ここで $K_{5/3}$ は第二種の変形された Bessel 関数, c は光速度である。 $P(\omega)$ は 1 ケの荷電粒子が単位角周波数 $d\omega$ に放出するパワーである。荷電粒子数が N ケの場合, 個々の粒子から放出される光子の位相はまちまち (インコヒーレント) で, 全体としての $P(\omega)$ は N 倍となる。

2.3 コヒーレント放射光

第 2 図の太い実線はインコヒーレントな放射光のスペクトルの例である。放射光の波長 λ が 1m (パンチの長さ σ_L よりも十分に長い) になってもまだ放射光は存在し, その強度は最大値の約 $1/130$ であることが, この図からわかる。このような波長領域では第 1 図に示したように異なった粒子 i, j から放出される光の位相がそろってくる。これは, 放射光の放出メカニズム上, 光が放

出される瞬間の位相はみな同じであること, 及び, 粒子の進行速度がほぼ光速度であることから保証される。 N ケの粒子から出る光の位相がすべてそろると, それを重ね合せた $P(\omega)$ は N^2



第 2 図 コヒーレント SR とインコヒーレント SR。

下方の太い実線は, これまで考えられてきた放射光 (インコヒーレント) のスペクトルで, その上の鎖線や破線はコヒーレント放射光のスペクトルを表す。破線はパンチ中の電子の分布がガウス型を, 一点鎖線は一様な分布 (パンチの中のみ, 外部はゼロ) を仮定したときのものである。二点鎖線は Michel¹⁾ によるものである。パンチの長さは $2\sigma_L = 2.5\text{mm}$ パンチ中の電子の数は 10^7 ケとして計算してある。実際のパンチからのスペクトルはガウス型と一様な分布型との中間になるものと考えられる。

倍となる。

このことは次のように考えることもできる。バンチをその長さよりも長波長の光で観測すると、その内部の個々の電子はもはや見えず、バンチがあたかも1ケの粒子であるように見えてくる。この粒子をバンチ粒子と呼ぶことにする。バンチ粒子の電荷は Ne 、 r はもとの電子のそれに等しく、曲率半径 r も変わらない。(1)式がバンチ粒子にも成り立つものとすれば、この式は $e \cdot r \cdot r$ のみからなる関数であるから、この関係を代入すると、 $e^2 \rightarrow (Ne)^2$ 、即ち $P(\omega)$ は N^2 倍となる。これは前記の結果と一致する。

次に放射光の波長がバンチ長程度、またはそれ以下の場合を考えると、原子核による電子散乱と同じ問題になる。即ち

$$P(\omega) = P_{\text{point}}(\omega) |F(\omega)|^2 \quad (5)$$

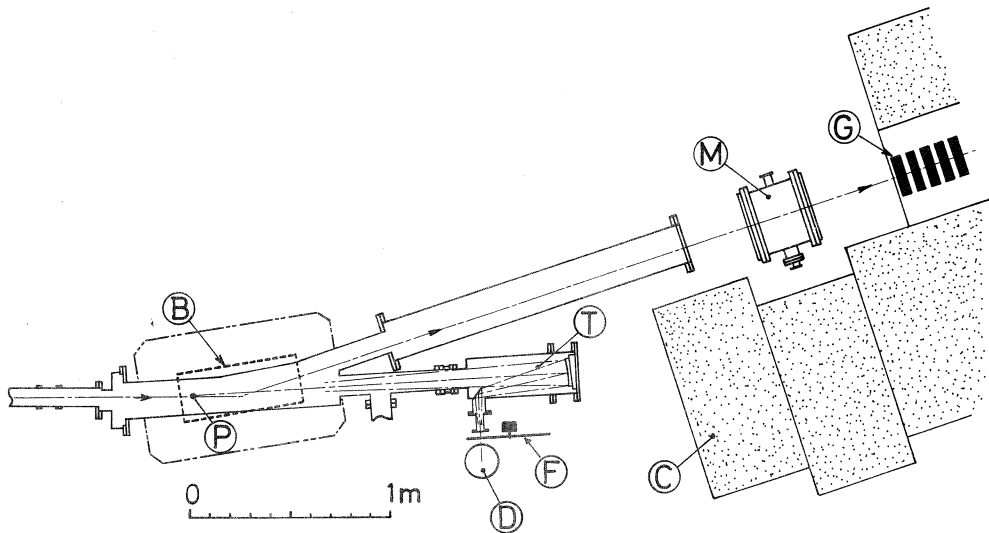
$$F(\omega) = \int \rho(r) \exp(i\omega r/c) dr \quad (6)$$

$P_{\text{point}}(\omega)$ はバンチ粒子が点電荷としたときの放射光スペクトルである。しかし実際は点電荷ではないので $F(\omega)$ はその補正項である。 $P_{\text{point}}(\omega)$ は電子散乱のMottの散乱断面積、 $F(\omega)$ は形状因子に対応する。 $\rho(r)$ はバンチ粒子内部の電荷分布である。第2図に $\rho(r)$ がガウス型と一様分布型の場合の計算結果を示す。放射光はバンチの進行方向に強い指向性があるので(6)式をバンチの進行方向の1次元として考えてこの計算を行なった。

§3. コヒーレント放射光の検証実験

核理研のライナックの電子ビームのバンチの長さは、第1表からもわかるように短い。このことは、より短い波長のコヒーレントSRが発生することを意味し、DaresburyのSRリングでの観測よりも更にはっきりとした検証ができるはずである。

第3図は核理研で行なったコヒーレントSRの実験装置の説明、第4図は測定結果である。第2表は分光に使用したバンド・パス・フィルターの種類と特性である。これからバンチ長2.5mmのとき、波長30 μm 以下の顕著なコヒーレントSRは観測されなかった。しかし、波長25 μm でのビーム電流(即ちバンチ中の電子の数 N)とSRの強度の間に、わずかではあるが二次関数的な振舞がみられた。このことから、この波長領域ではインコヒーレントSRがほとんどで、コヒーレントSRはかなり少ないことがわかる。今後はさらに長波長領域でコヒーレントSRの有無を検証する予定である。また、ビームを遠赤外線検出器のすぐ近くに棄てているため、放射線によるバックグラウンドが大きく、微小信号の測定には苛酷な条件である。今後はバックグラウンドの低減も重要な課題である。



第3図 コヒーレントSRの実験装置。

矢印のついた一点鎖線が電子ビームの軌道である。ビームエネルギー 200 MeV, 発光点での偏向電磁石の磁場は 0.274 T, 曲率半径は 2.44 m である。第2図はこの実験装置のスペクトルである。バンド・パス・フィルターは6種類(第2表)を使用した。フィルターの透過率と検出器の感度は, グローバー・ランプ(黒体輻射と考える)で校正した。ビーム電流は二次電子放出モニターによって平均電流を測定した。集光系の見込角は $2 \times 35 \text{ mrad}$ で, 波長 $30 \mu\text{m}$ の放射光の広がり ($2 \times 11.3 \text{ mrad}$) よりも大きい。

B: 偏向電磁石, C: コンクリート・ブロック, D: 遠赤外検出器 (Ge-Cu), F: バンド・パス・フィルター, G: ビーム・ダンプ, M: ビーム電流モニター, P: 発光点, T: 反射望遠鏡型集光系。

第2表 バンド・パス・フィルターの透過帯域。

フィルターの種類	透過帯域	透過率
LPF ($2 \mu\text{m}$) + パイレックス	$2.0 \sim 2.7 \mu\text{m}$	60 %
LPF ($3 \mu\text{m}$) + 石英	$3.0 \sim 4.4 \mu\text{m}$	70 %
InSb + NaF	$8.0 \sim 12.0 \mu\text{m}$	5 %
LPF ($13 \mu\text{m}$) + NaCl	$13.0 \sim 17.9 \mu\text{m}$	60 %
LPF ($20 \mu\text{m}$) + KCl	$18.9 \sim 23.8 \mu\text{m}$	53 %
LPF ($20 \mu\text{m}$) + KBr	$18.9 \sim 29.0 \mu\text{m}$	55 %

§4. 共用リングにおけるコヒーレント放射光

コヒーレント放射光が確認されたとして、共用リングにおけるその利用方法を考えよう。コヒーレント放射光を遠赤外・ミリ波領域で得るためには、ビームの縦方向（ビームの進行方向）のパンチ長を短くすることが、本質的に重要である。

ストレージリング中での縦方向パンチ長 σ_L は次式で与えられる⁴⁾。

$$\sigma_L^2 [\text{m}] = 35.1 \times \frac{\alpha \cdot L [\text{m}] \cdot E^3 [\text{GeV}]}{r [\text{m}] \cdot f_{\text{RF}} [\text{MHz}] \cdot V [\text{kV}]} \quad (7)$$

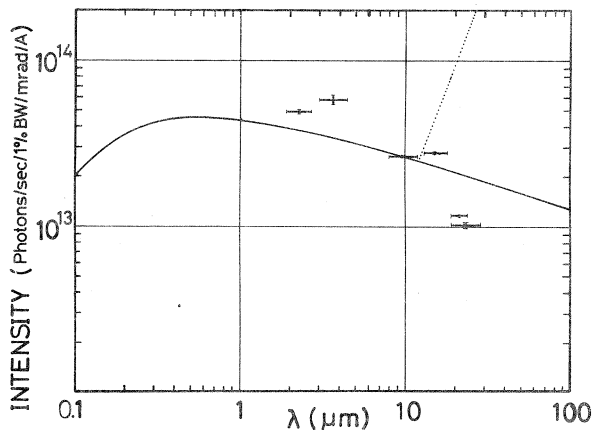
ここで、 α は delatation (又は momentum compaction) factor, L はリングの周長, E はビームのエネルギー, r はビーム軌道の曲率半径, f_{RF} は加速 R F 周波数, V は R F 電圧である。共用リングでは $\alpha = 6.86 \times 10^{-3}$, $L = 165 \text{ m}$, $r = 4 \text{ m}$ である。これらの値はリングの規模でほぼ決り、変えられないものと考えてよい。

式(7)から、もっとも効果的にパンチ長を短くするには、 E を小さくすればよいことがわかる。第3表は共用リングにおける σ_L と $E \cdot f_{\text{RF}} \cdot V$ の関係である。

第3表 共用リングにおけるパンチ長。

加速 R F 周波数 f_{RF}	加速電圧 V	σ_L		備 考
		$E = 0.5$ GeV	$E = 1.5$ GeV	
476 MHz	230 kV	3.4 mm	17.5 mm	放射光モード
2856 MHz	50 kV	2.9 mm	15.3 mm	ストレッチャーモード

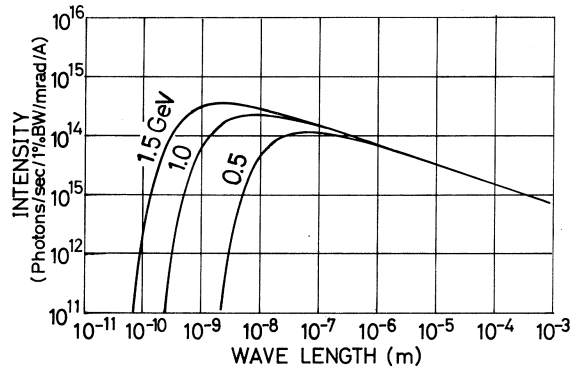
第3表のように、共用リングのストレッチャーモードでは加速電圧 V が小さいため、476 MHz と 2856 MHz とでパンチ長はあまり変わらない。2856 MHz の加速空洞はビーム穴径が小さく、その部分にビームが衝突しやすくなるため、ビームの寿命が短くなる可能性がある。ま



第4図 コヒーレントSRの測定結果
 実線はインコヒーレントSRのスペクトルの計算値、点線はMichel¹⁾による予想値である。測定データは相対値であるため、 $\lambda = 10 \mu\text{m}$ での測定点が計算値と一致するように重ねてある。波長方向の誤差棒はフィルターの透過幅を表している。

た、共用リングではビームエネルギーの下限は 0.5 GeV 程度と考える。ビームエネルギーをあまり小さくすると、電磁石電源の制御に広いダイナミックレンジが要求されたり、エネルギー振動の減衰時間が増加してビームが不安定になったりするからである。

第 5 図は、共用リングのビームエネルギーと偏向電磁石による（インコヒーレント）放射光のスペクトルとの関係である。遠赤外領域では放射光の強さはビームエネルギーによらないことがわかる。この図と第 3 表の結論とから、共用リングにおいてコヒーレント放射光を実現させるための最適な運転条件は $f_{RF} = 476$ MHz, $E_0 = 0.5$ GeV, (V は最大) であることがわかる。



第 5 図 共用リング偏向電磁石による SR スペクトル
波長が $1 \mu\text{m}$ 以上の長波長領域の SR スペクトルは、ビームの曲率半径（この図では 4 m）が一定のとき、ビームのエネルギーによらない。

この実験は核理研の緊急課題として二度にわたって行なわれ、共同利用係の寺沢辰生氏をはじめ各実験グループの御協力を得ました。ここに核理研の皆様方の御指導と御尽力に感謝申し上げます。

参 考 文 献

- 1) F. C. Michel : Phys. Rev. Lett. 48 (1982) 580.
- 2) J. Yarwood, T. Shuttleworth, J. B. Hasted and T. Nanba : Nature 312 (1984) 742.
- 3) J. Schwinger : Phys. Rev. 75 (1949) 1912.
- 4) M. Sands : SLAC-121, UC-28 (1970).

低圧MWPCとプラスチック・シンチレータによる陽子検出器

核理研, 教養部*

生井克正・川原英明・野村昌弘・松山日出人

玉江忠明・宮瀬晴久*・菅原真澄

§ 1. はじめに

現在, 核理研の(e, e' p) 同時計数実験では, 陽子検出器として表面障壁型シリコン半導体(SSD)を用いている。この検出器は, エネルギー分解能が良いので残留核の終状態を特定する実験に適しているが, 厚い検出器を得る事が難しく, 高い励起状態から放出される比較的エネルギーの大きな陽子を検出するには不向きである。SSDの場合には, 角度の分解能は個々の検出器の大きさで決まり, 現在の実験ではSSDは $\pm 3.5^\circ$ 程度の開口角を持っており, 角度の分解能を下げている。又, SSDは比較的高価なので, 一度に使用出来る検出器の個数も制限され, 角度分布を精密に測定するには困難さがつきまとう。そこで, SSDに代わる検出器として, 低圧MWPC(多芯比例計数管)とプラスチック・シンチレータからなる ΔE - E 型検出器を製作し, その特性を調べた。

MWPCでは, 荷電粒子の電離作用によって生じた電子が芯線付近の高電界中でガスを電離し, いわゆるガス増幅を起こす。これによって芯線付近に生じたイオン対のうち陽イオンが陰極に向かって移動する際に出力パルスが得られるが, 陽イオンの移動度が小さい(10^4 cm/sec以下)為にパルス幅が100 μ sec程度あり, 計数率の大きな実験や, バック・グラウンドの大きな条件下での使用は難しい。ガスの圧力を下げた時に陽イオンの移動度がガス圧に反比例して大きくなる事を利用して, 高速計数を可能にするのが低圧のMWPCで, (e, e' p) 実験での使用も報告されている¹⁾。ガス圧を下げた場合には, 電子の移動度も大きくなるので, パルスの立ち上がりで他の検出器との同時計数を行なった時の時間分解能も改善される。

プラスチック・シンチレータは荷電粒子の計測に普通に使用されている検出器で, エネルギー分解能はSSDより劣るが, 速い信号が得られる。又, 安価に厚い検出器を作る事が出来るので, 高エネルギー陽子の測定に適していると考えられる。

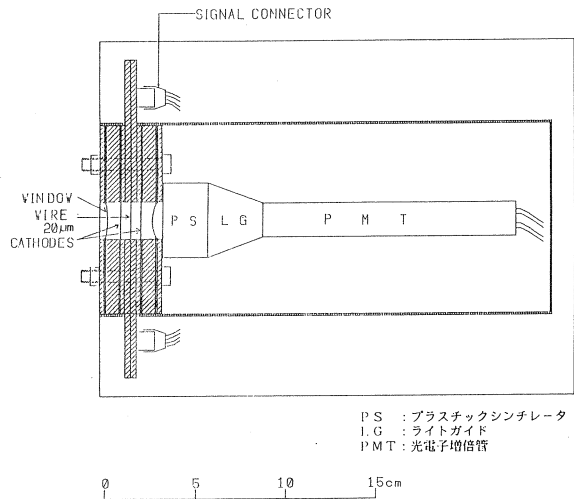
§ 2. 検出器の構成と構造

検出器は第1図のように, 低圧MWPC(ΔE 検出器)とプラスチック・シンチレータ(E 検出器)で構成されている。

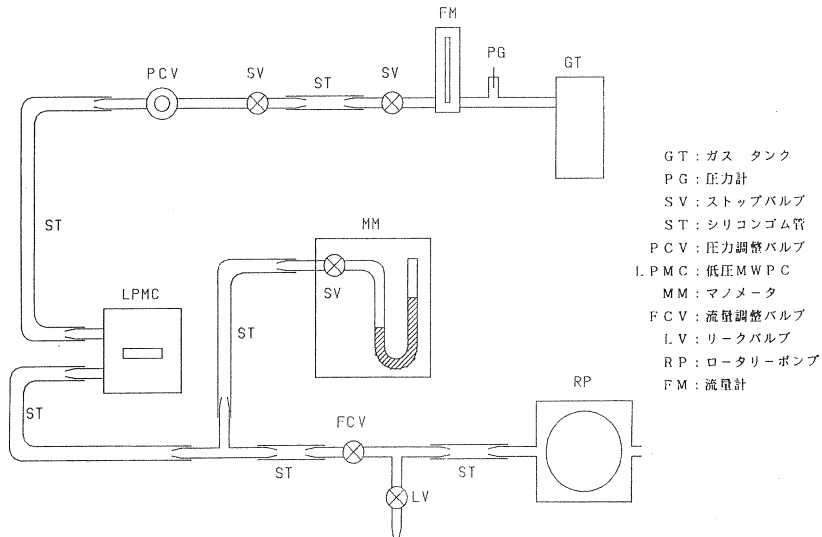
低圧MWPCの芯線は直径 $20\mu\text{m}$ の金メッキタングステン線で、 2mm 間隔に19本張ってある。信号線の両側には、電場調節用の金属線が10本ずつ存在する。芯線および電場調節用金属線の長さは 2cm である。陰極には厚さ $12\mu\text{m}$ のアルミ蒸着マイラーを使用し、陰極面と芯線の距離を 5.7mm にしてある。MWPC内を低圧にした時、大気圧は外側の厚さ $40\mu\text{m}$ のマイラーによって支えられる。MWPC内の圧力は第2図に示した流量・圧力調整器系によって調節した。圧力調節範囲は 25

$\sim 760\text{mmHg}$ 、流量調節範囲は $5\sim 40\text{cm}^3/\text{分}$ である。今回の測定では、ガスとしてPRガス(アルゴン90%、メタン10%)およびイソブタンを使用した。

プラスチック・シンチレータとしてはNE 104を用いた。NE 104は光の減衰時間が 1.9ns



第1図 低圧MWPC—プラスチック・シンチレータ陽子検出器の断面図。



第2図 ガス流量・圧力調節配管系。

secと短く、高速計数に適している。シンチレータの厚さは2.5 cm、直径は4 cmである。使用した光電子増倍管は直径3/4インチのR 1450（浜松ホトニクス製）である。

§ 3. 実験および測定結果

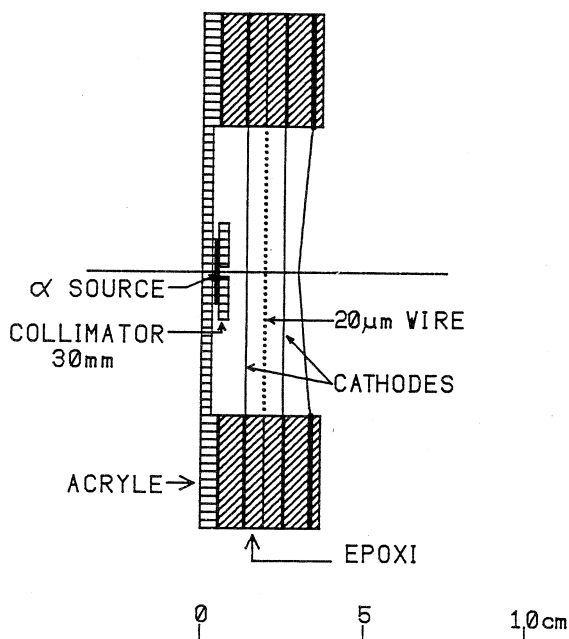
3.1 α 線源による低圧MWPCの特性測定

^{241}Am からの5.5 MeVの α 線を用いて低圧MWPCの増幅率特性を調べた。このMWPCでは外界と有感領域との間に約50 μm のマイラーが存在し、 α 粒子の透過を防げるので、 α 線源は第3図の様に、MWPC内部に設置した。

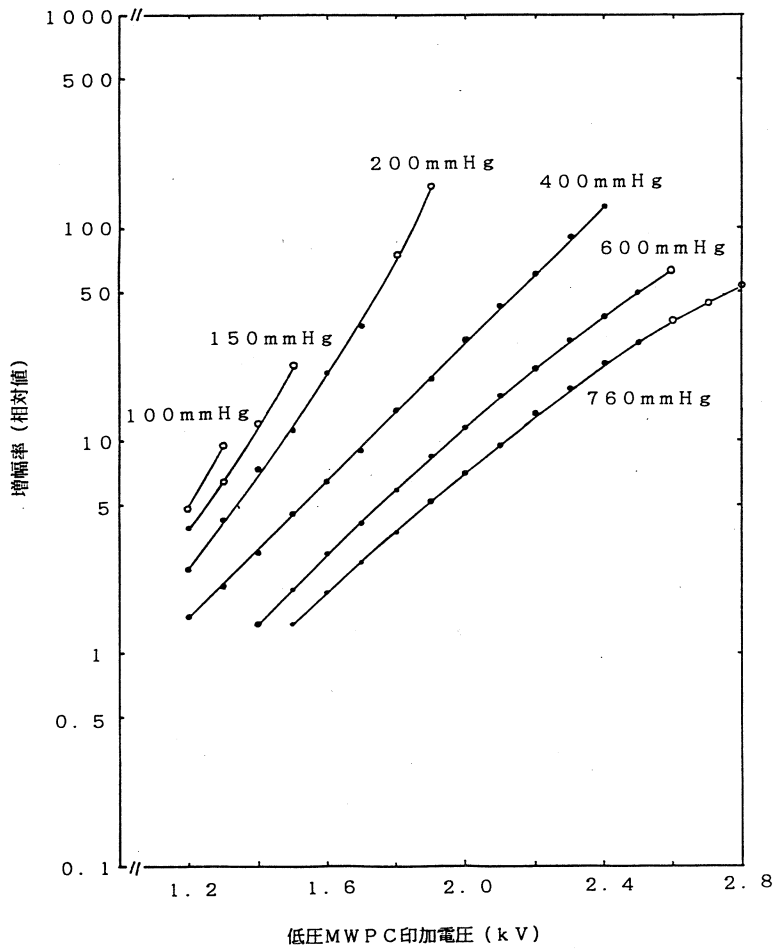
増幅率の特性は、大気圧から数十mmHgまでの数点のガス圧に対して、印加電圧を変えながら測定した。第4図にPRガスの結果を、第5図にイソブタンの結果を示す。ガスの圧力を変化させると、それに応じて有感領域内の α 粒子の損失エネルギーの値

(ΔE)も変化するので、図では

出力波高値(相対値)を ΔE で割って、増幅度(相対値)になおしてある。なお、図中の黒丸は波高分布の半値幅がピーク波高値の50%より狭い場合で、白丸は50%より広い場合を表わしている。図からも分かる様に、印加電圧の上昇に対し、増幅率はほぼ対数的に増大し、同じ印加電圧に対する増幅率はガス圧を下げるに従って、大きくなっている。これは、ガス圧が下がるに従って電子の平均自由行程が長くなり、その結果、ガス増幅に寄与する領域が広がる為である。ただし、どちらのガスの場合にも、ガス圧が下がると、放電開始電圧も下がる傾向にあるので、必ずしも、ガス圧を下げる程大きな波高値が得られるわけではない。特にPRガスの場合には200 mmHg以下では放電開始電圧が急速に低下するので、低圧MWPC用のガスとしては余り適していない。イソブタンの場合には、PRガスよりも印加電圧を上げる事が出来、

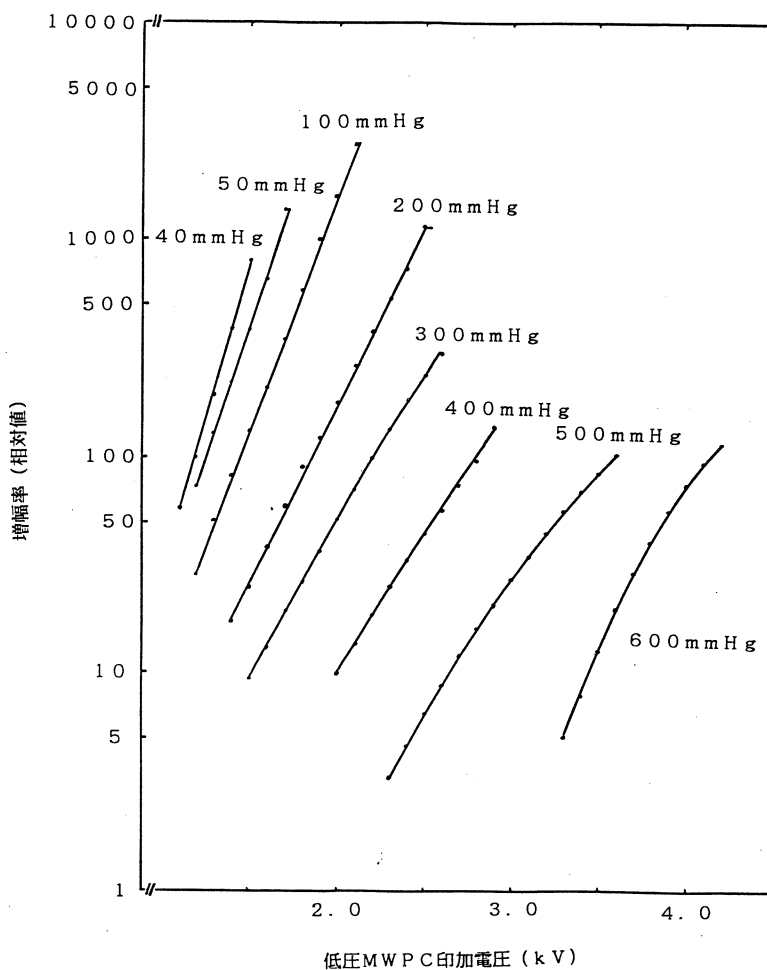


第3図 α 線源による低圧MWPCの特性測定。
 α 線源はMWPC内部に設置されている。



第4図 PRガスのガス圧力を変えた時の印加電圧—増幅率（相対値）特性。

増幅率も大きく出来る。又、数十mmHg の低圧でも使用可能であり、低圧MWPC用のガスとしてはPRガスよりもすぐれている事が分かる。



第5図 イソブタン・ガス圧力を変えた時の印加電圧-増幅率 (相対値) 特性。

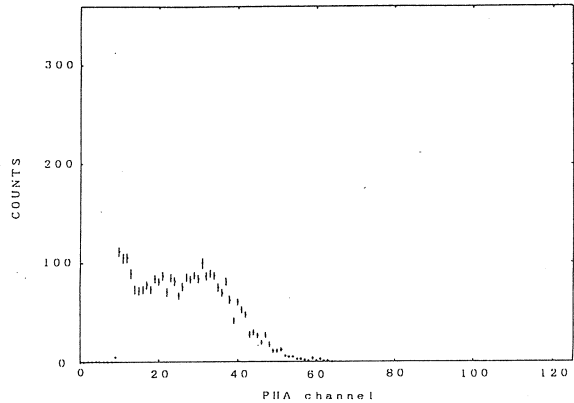
3.2 低圧MWPCおよびプラスチック・シンチレータによる陽子の測定

広帯域磁気スペクトロメータの焦点面上に低圧MWPCとプラスチック・シンチレータを設置し、運動量を特定した陽子に対する応答を調べた。第6図にMWPCの出力波高分布、第7図にプラスチック・シンチレータの出力波高分布の例を示す。入射陽子のエネルギーは10MeVである。MWPCのガスはPRガスで、圧力は760mmHg、印加電圧は-3100Vである。PHAチャンネルの15チャンネル以上の所に広く分布しているのが陽子による信号である。プラスチック・シンチレータの出力波高分布の場合にはPHAチャンネルの80チャンネル付近にあるピークが陽子によるものである。他の大部分を占めるバックグラウンドは、BDMの磁場

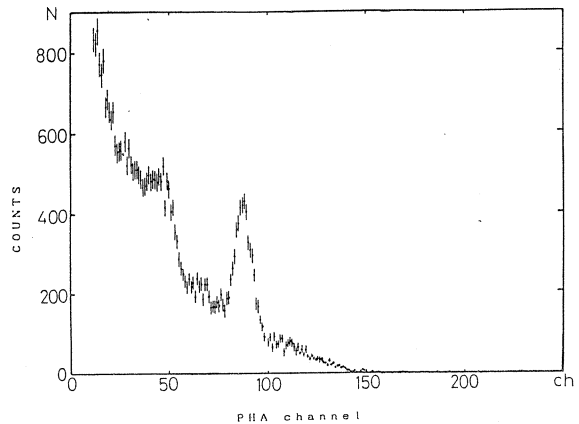
を変えても変化しないところから、 r 線によるものと考えられる。10 MeV陽子に対するプラスチック・シンチレータのエネルギー分解能は約10%（半値幅）であるが、陽子エネルギーが大きくなると向上し、30 MeV では約3%に達する事が分かった。第8図は、MWPC信号と同時計数した時のプラスチック・シンチレータの出力波高分布で、大きなバック・グラウンドが、ほぼ除かれている。

次に低圧MWPCの信号とプラスチック・シンチレータ信号との間の時間差スペクトルを測定した。この時間差スペクトルの幅は、低圧MWPCの出力パルスの時間的ゆらぎを示しており、チャンネル内での電子やイオンの移動速度が大きくなれば、スペクトルの幅は狭くなるものと予想される。この幅を狭くする事が出来れば、偶然同時

同時計数事象と真の同時計数事象との区別が容易になる。PRガスの場合の時間差スペクトルの半値幅の測定値を第9図に示した。図の横軸には低圧MWPCの印加電圧をガスの圧力で割った値（換算電場強度）をとってある。図中、黒丸の点は印加電圧が -2600 Vの点、白丸は -2450 Vの点である。実線は時間差スペクトルの半値幅が換算電場強度に反比例するとして、測定値にフィッティングしたものであり、実験値との合いは良い。現在のところ半値幅の最小値は約20 n secである。この値は、換算電場強度を上げる事で小さく出来るものと考えられるが、先に述べたように、ガス圧を下げると耐電圧が下がる傾向にあるので、PRガスの場合には10 n sec程度が限度と考えられる。

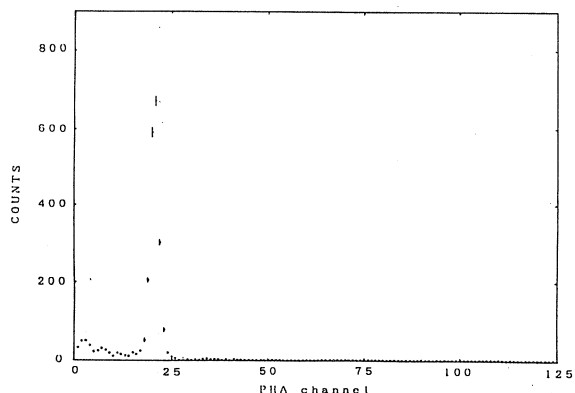


第6図 10 MeV 陽子に対するMWPCの出力波高分布。15チャンネル以上の部分に陽子が分布している。

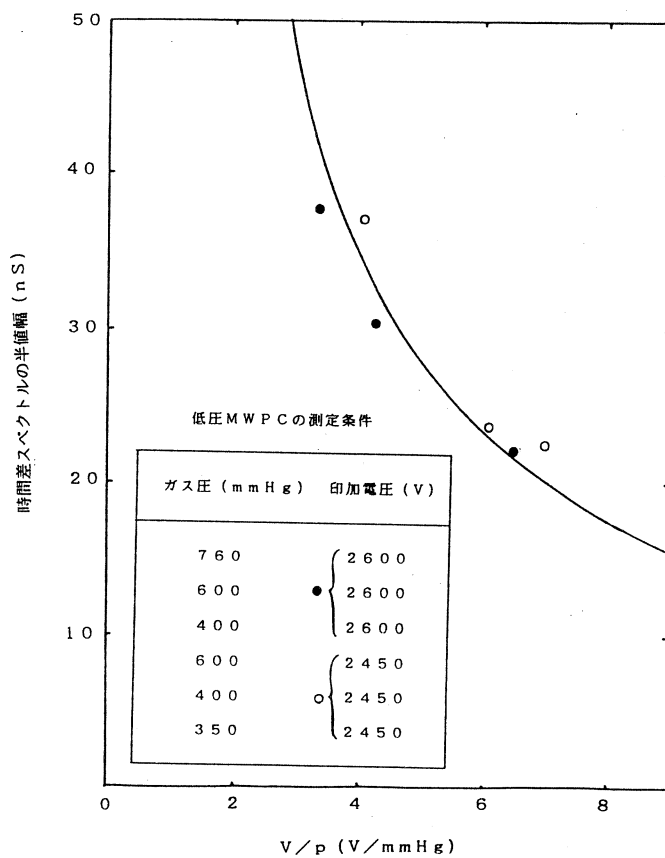


第7図 10 MeV 陽子に対するプラスチック・シンチレータの出力波高分布。80チャンネル付近にあるピークが陽子のピーク。大きなバック・グラウンドは r 線によるものと考えられる。

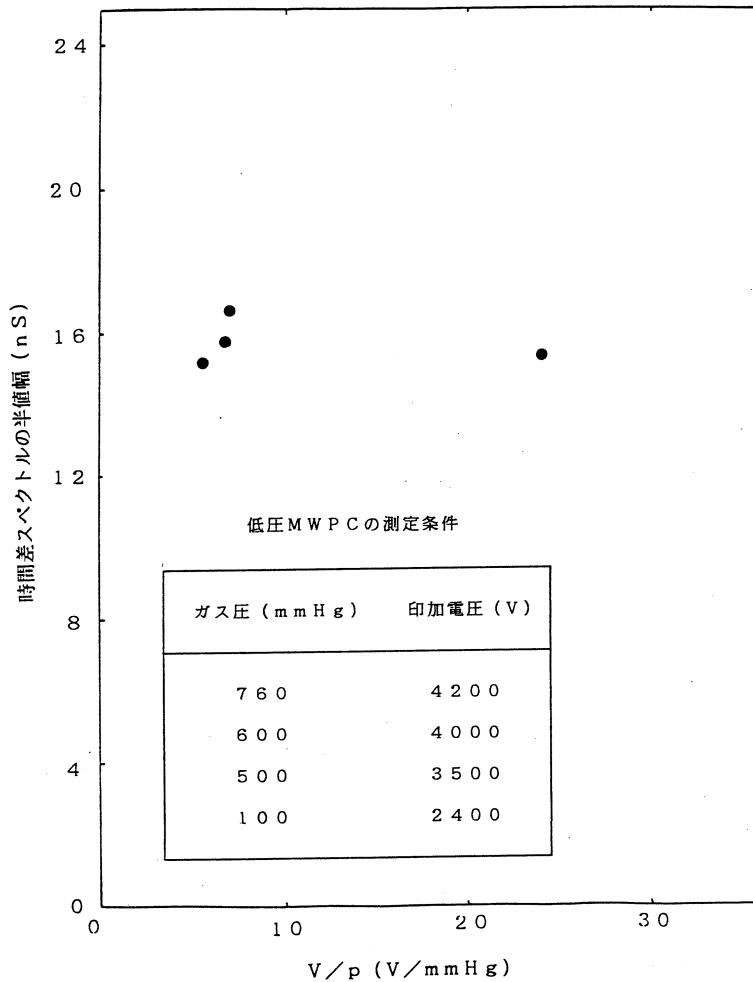
イソプタンの場合の測定条件と測定結果を第10図に示す。まだ実験点の数が少なく、はっきりした結論を出せる段階にはないが、時間差スペクトルの幅は換算電場強度の大きさによらず、約16 n sec となっている。イソプタンでは50~60 Torr の圧力で時間分解能が急激に良くなるという報告もあり²⁾ 低圧MWPCを実験に使えるよう



第8図 MWPCの信号とプラスチック・シンチレータが同時計数した時のプラスチック・シンチレータの波高分布。バックグラウンドの大部分は除かれている。



第9図 PRガスに対する換算電場強度（印加電圧をガス圧力で割った値）と時間差スペクトルの幅の関係。幅は換算電場強度に反比例している。



第10図 イソブタンに対する換算電場強度と時間差スペクトルの幅の関係。

にする為には、少なくとも10 Torr 程度まで圧力を下げて特性を測る必要がある。又、PR ガス、イソブタン以外に低圧MWPC用ガスとして適当なものがあるかどうか今後の重要な課題である。

§ 4. おわりに

今回の実験では、 α 線源と磁気スペクトロメータで運動量分析された後の陽子を用いて検出器の特性を調べたが、実際の実験は、非常に大きなバック・グラウンドの存在する条件下で行なわなければならない。そのような環境のもとでの検出器の特性の測定は次回以降の課題である。

参 考 文 献

- 1) V. F. Dmitriev et al. : Nucl. Phys. **A 464** (1987) 237.
- 2) A. Breskin : Nucl. Instr. Meth. : **196** (1982) 11.

電子線照射による真空材料からのガス分圧測定法の開発

核理研 今野 收

§ 1. 序

加速器が大型になるに従って超高真空技術は加速器科学を支える最も重要な技術となってきた。また、加速器の真空は全圧だけでなく系内の質すなわち分圧が問題となっている。電子加速器や蓄積リング等の真空系内ではしばしば散乱電子や放射光の為に真空チェンバー壁から多量のガス放出がみられ、この急激な圧力上昇が加速器性能に悪い影響を与えている。この圧力上昇は真空チェンバーを十分に加熱脱ガス処理を行った後であっても観測される。上記の真空路系内での放出ガス量は十分に加熱脱ガス処理後を考慮すると、これまで資料に示された測定値よりも大きく、かつ長時間に亘ってガス放出が観測される。このガス放出は真空壁に入射する散乱電子や放射光のエネルギーが大きく材料の表面層だけでなく材料の組成にも影響を与える為と考える。この真空壁（材料）からの放出ガス量とそのガス分圧を調べる為には、これまでの昇温試験よりも電子線や放射光による照射試験の方が加速器の真空材料を調べる上で有効であると考えられる。しかし、電子線等を照射して材料からの放出ガス量及び放出ガス分圧を測定するには種々のノイズの為に、これまでは簡単に測定する事が出来なかった。今般、この問題をマイクロコンピュータとマスフィルター型質量分析計(QMS)の組み合わせにより全圧と分圧($m/e = 1 \sim 400$ 間の任意の 10^0)を同時にしかも連続的に測定出来るようにした。

核理研では300MeV電子リニアックからの電子線を超高真空チェンバー内にセットした各種真空材料に照射し材料からの放出ガス量及びガス分圧をスルーブット法とQMSで測定した。この全圧及び分圧の測定法と試験した真空材料(純Al, Al合金材2種類, SUS304, OFHC)のガス分圧スペクトルの測定結果について述べる。

§ 2. 測定方法

2.1 供試料

供試料として純Al(99.99%), A 6063合金(2種類:加工法が異なる), SUS304, OFHCについて測定した。各試料の大きさは4cm×3cmとし、厚さをアルミニウムは3mmt, SUS304とOFHCについては1.5mmtとした。又、各試料の化学組成を第1表に示す。尚、各試料の表面処理はAl, SUS304, OFHCについては電解研磨処理を行い、A 6063合金材はAr + O₂ガスによる押し出し加工(特殊押し出し材)と普通の押し出し加工材(通常材)を使用した。

第1表 照射試料の組成。

Element	純Al (注1) (ppm)	A6063 (注1) (通常材:wt%)	A6063 (注1) (特殊材:wt%)	SUS304(注2) (wt%)	OFHC(注3) (ppm)
Mg	—	0.52	0.51	< 0.2 ppm	
Zn	Trace	0.02	Trace	0.0001	2
Cu	9	0.02	0.01		
Fe	31	0.18	0.2		5
Cr	—	0.01	Trace		
Mn	—	0.01	Trace	0.79	
Ni	10	—	—	8.27	
V	—	—	—		
Ti	—	0.01	0.01		
Zr	—	—	—		
Si	28	0.41	0.044	0.43	
Co	Trace	—	—		
Na	10	—	—		
Fe				71.82	
C				0.056	
P				0.033	1
S				0.08	4
Cr				18.03	
Pb				0.0001	<1
H ₂				1.8 ppm	0.54
Ni					4
Sn					1
Hg					<1
Bi					<1
Cd					<1
Se					1
Te					3
O ₂					5
Al	Bal	Bal	Bal	—	<1

(注) 1. Al材の分析はすべて発光分光分析法

2. SUS 304の分析

Fe : ニクロム酸カリウム滴足法

C : 焼焼赤外線吸収法

Si, Mn, P, S, Ni, Cr : 蛍光X線分析法

Pb, Zn, Mg : 原子吸光法

H, O : 不活性ガス融解熱伝導度法

3. OFHCの分析

Pb, Zn, Bi, Cd, Hg, Fe, Ni, Sn : 原子吸光法

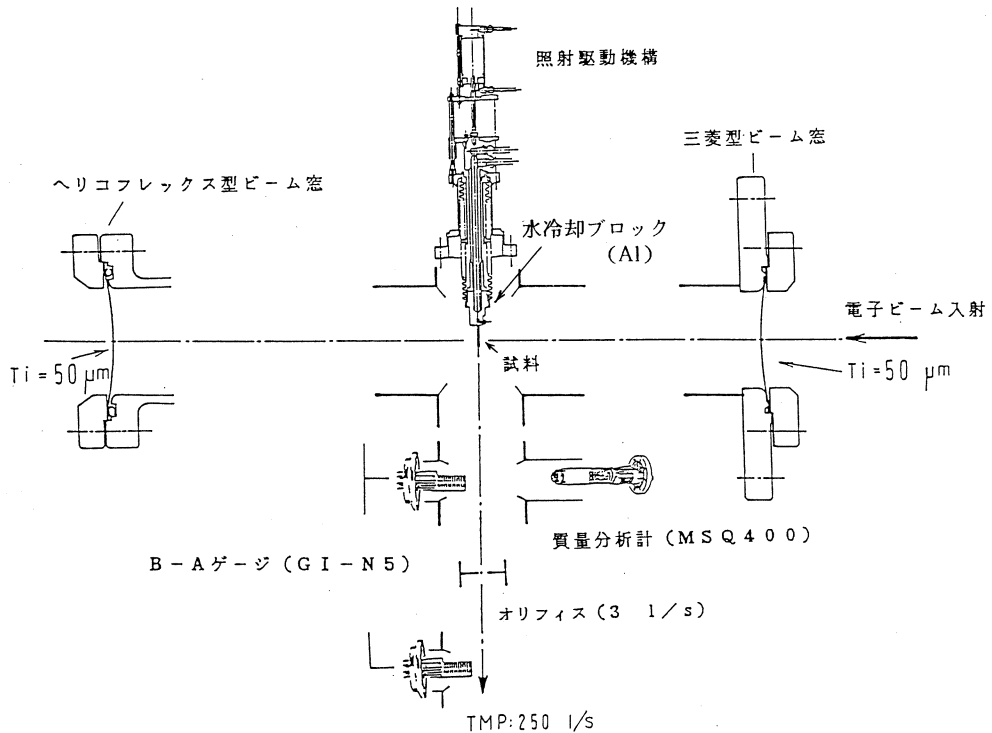
P, S, Se, Te, Al : 吸光光度法

H₂, O₂ : 不活性ガス融解熱伝導度法

又、電子線照射による各材料の組成変化を IMA により分析しその変化を調べた。

2.2 測定方法と条件

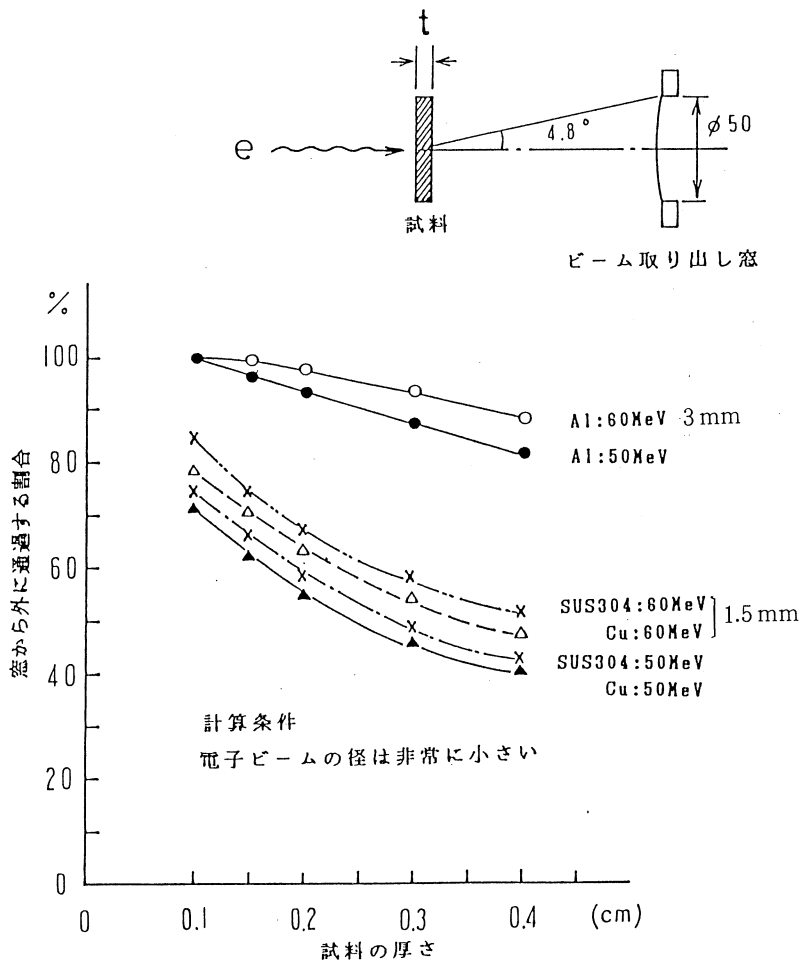
この試験を行う為に、全アルミニウム合金製の超高真空チャンバーを製作した。真空チャンバーの模式図を第1図に示す。電子加速器からの電子ビームを一度、大気中に引出してから第1図に示したアルミニウム合金製真空チャンバーに電子ビームを入射する。真空チャンバーの両側には、電子ビームがチャンバー中を通過する際のエネルギー損失ができるだけ少なく、耐熱性に優れたTi板(50 μm)を使用した。この真空チャンバーの中に試料を入れて電子ビーム(50~60 MeV, 50~100 μA)を照射する。試料は図に示すアルミニウム合金製アクチュエーターの先端に溶接された冷却ブロック(水冷:20 $^{\circ}\text{C}$ 一定)に取り付ける。真空チャンバーは試料を入れない状態で数回の加熱脱ガス処理(150 $^{\circ}\text{C}$, 20時間)を行い、真空チャンバーが室温になったら全圧と分圧を測定する。その後、試料を取り付けて $\sim 10^{-10}$ Torr 台まで真空排気する。真空チャンバーを上記の方法で測定してから電子ビームを照射する。真空チャンバー中を電子ビームが通過した時の真空圧力とビームラインに試料を挿入し照射した時の真空圧力の差から



第1図 電子線照射装置模式図。

試料の放出ガス量(率)を求める。尚、この装置による測定は下記の条件により求めた。

イ) 試料間の放出ガス量を比較する為に、輻射長を計算し各材料のエネルギー損失が同じになるように材料の厚さを決めた。試料に電子ビームを照射した時、通過した電子は後方の“電子ビーム取り出し窓($T_i = 50 \mu\text{m}$)”から大気中に出るが、その一部は試料で散乱されて拡がりダクトにあたる。電子ビームがどの程度拡がるか電子のエネルギーと材質及び厚さの関係を計算し第2図にまとめた。計算は下記に示す条件により求めた。



第2図 試料の厚さと窓から電子が出ていく割合。

電子が“ビーム取り出し窓”を通過する割合

厚さ T の試料に高エネルギー電子を照射した時に、入射した電子は多重散乱され、後方で拡

がりダクト等に当ってエネルギーを失いダクト等を発熱させる。

今回の実験は、試料に電子を照射した時に試料から放出されるガス量とそのガス分圧を超高真空計（BAゲージ）とマスフィルタ型分析計（QMS）により測定する。試料を通過した電子が散乱されてダクト等にあたり真空系内の放出ガス量が増える割合を極力抑える必要がある。そこで、入射した電子が試料を通過し“ビーム取り出し窓（50φ，Ti=50μm）”から出る割合を計算で求める。

まず、照射条件が試料の材質で変わらない様にする必要があるので、照射試料の輻射長と密度を下記の値として計算した。

	Al	Cu	C	Ni	Cr	Mo	Fe	SUS304	SUS 316L
輻射長：	24.0	12.9	42.7	12.7	14.9	9.8	13.8	13.9	13.7
密度：	2.69	8.93	2.25	8.85	7.20	10.2	7.86	7.93	7.93
輻射長：	g/cm ²								
密度：	g/cm ³								

各、材質の輻射長単位の厚さを t とすると、カスケード・シャワーの多重散乱による拡がる角度の 2 乗平均 $\langle \theta^2 \rangle$ は

$$\langle \theta^2 \rangle = \frac{1}{2} \left(\frac{E_s}{E} \right)^2 t$$

$$E_s = 21.2 \text{ MeV}$$

E : 入射電子のエネルギー

で与えられる。

試料の厚さが輻射長に比べて薄い場合には、多重散乱の式を使う事は、粗い近似となるが、ここでは上記の式により計算する。シャワーの拡がり $\langle \theta^2 \rangle$ から電子のガウス分布 $f(\theta)$ は

$$f(\theta) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-\frac{\theta^2}{2\sigma^2}}$$

但し $\sigma^2 = \langle \theta^2 \rangle$

よって $\theta_1 \leq \theta \leq \theta_2$ に拡がる電子の確率 P は

$$P = \int_{\theta_1}^{\theta_2} d\theta f(\theta)$$

計算では

$$A = \frac{\theta_1}{\sqrt{\langle \theta^2 \rangle}} \quad \left(\approx \frac{\theta_1}{\sigma} \right)$$

$$B = \frac{\theta^2}{\sqrt{\langle \theta^2 \rangle}}$$

と規格化して、電子の通過確率 P を

$$P = \int_A^B dx \cdot \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{x^2}{2}}$$

として計算した。

この計算式を使用して、“ビーム取り出し窓”から電子が出て行く割合(%)を、材質とエネルギーについてまとめ第2図に示す。尚、材料に照射するエネルギーは、照射装置を設置する場所の広さとビーム電流の強度を考慮して50~60MeVとした。

次の条件で計算した場合

照射する材料 Al, Cu, SUS 304,

エネルギー 50~60 MeV

ダクトの壁面に当らずに前方の“ビーム取り出し窓”へ通過する割合は、3mm厚さのAlで約90%、CuとSUSは1.5mmの厚さで約65~75%になる。

ロ) 試料に電子線を照射した時に材料からの放出ガス量を試料室側の圧力と排気ポンプ側の圧力差(Through-put法)から放出ガス量を測定し、ガス分圧の測定はマスフィルター型質量分析計(QMS)により測定しそのデータをマイクロコンピュータで高速処理する。

ハ) 照射電流値の測定はI系Leftコースの“ビーム取り出し窓”に取付けたコアモニターにより測定した。コアモニターは標準パルス電流を通電して較正しビーム電流を積算できる。尚、ビームの位置と大きさはBeO板によりモニターしている。

ニ) 照射による試料の温度上昇は、試料の電子ビームが当る部分から15mm離れた所にクロメル・アルメル熱電対をネジで取付けて測定した。

以上の条件で試料からのガス放出量をもとめる。

2.3 真空圧力とガス分圧の測定法

全圧はThrough-put法(流量法)により測定する。この方式での測定は、build-up法で問題になる放出されたガスの表面への再吸着やゲージの排気作用等の影響を受ける事なく、実際の真空系に近い状態で放出ガス量を測定する事が出来る。

放出ガス量(率)は試料室と排気系との間にオリフィス(3 l/s)を入れて、その両側の圧力差をB-Aゲージにより測定しThrough-put法により求めた。

照射装置は放出ガス量を低く抑えるために総べてをAl合金材で製作し、150℃で延べ30時間の脱ガスにより得られた真空系の放出ガス率は $P = 2.6 \times 10^{-13}$ Torr · l/sec · cm² である。この圧力(放出ガス量)になるとガス分圧を測定するために取付けたマスフィルター型分析計

(QMS) を作動させた時のほうがガス放出量が多く (1.8×10^{-12} Torr \cdot l/sec \cdot cm 2)、系内の圧力は上昇する。しかし、電子線照射時の系内の圧力はQMSの作動時に比べて 10^3 程度上昇するので、QMSを作動させた時の値を基にして、ダクトだけの時と試料に照射した時の圧力差から放出ガス量を求めた。尚、試料への照射中は全圧の測定だけでなく、同時に真空系内に放出されるガス分圧もQMSで測定している。

2.4 マイクロコンピュータ利用による全圧及び分圧の測定

これまでの分圧の測定方法では、連続的に同一の m/e を測定出来る範囲は10元素程度が限度であり、しかも二次元表示の為に真空系内の分圧変動を捕えるのが難しい。この程度の測定範囲では、電子線加速器や放射光リング等の真空系内で生じる散乱電子あるいは放射光による系内の急激な圧力変動の測定範囲としては余りにも少ない。計算機と質量分析計や真空計を組合せる事により、加速器真空系での変化をこれまでよりも幅広く正確に、しかも遠隔操作で捉える事が出来る。全圧と分圧の測定は、市販の真空計(GI-N5:日本真空)と質量分析計(QMS:MSQ 400:日本真空)を1台のマイクロコンピュータ(PC-9801vm2:NEC)で両方制御し、回路の一部を改造した物である。この測定系を使用する事により真空系内の急激な圧力の変動とその分圧を正確に測定する事が出来る。

1) システム構成

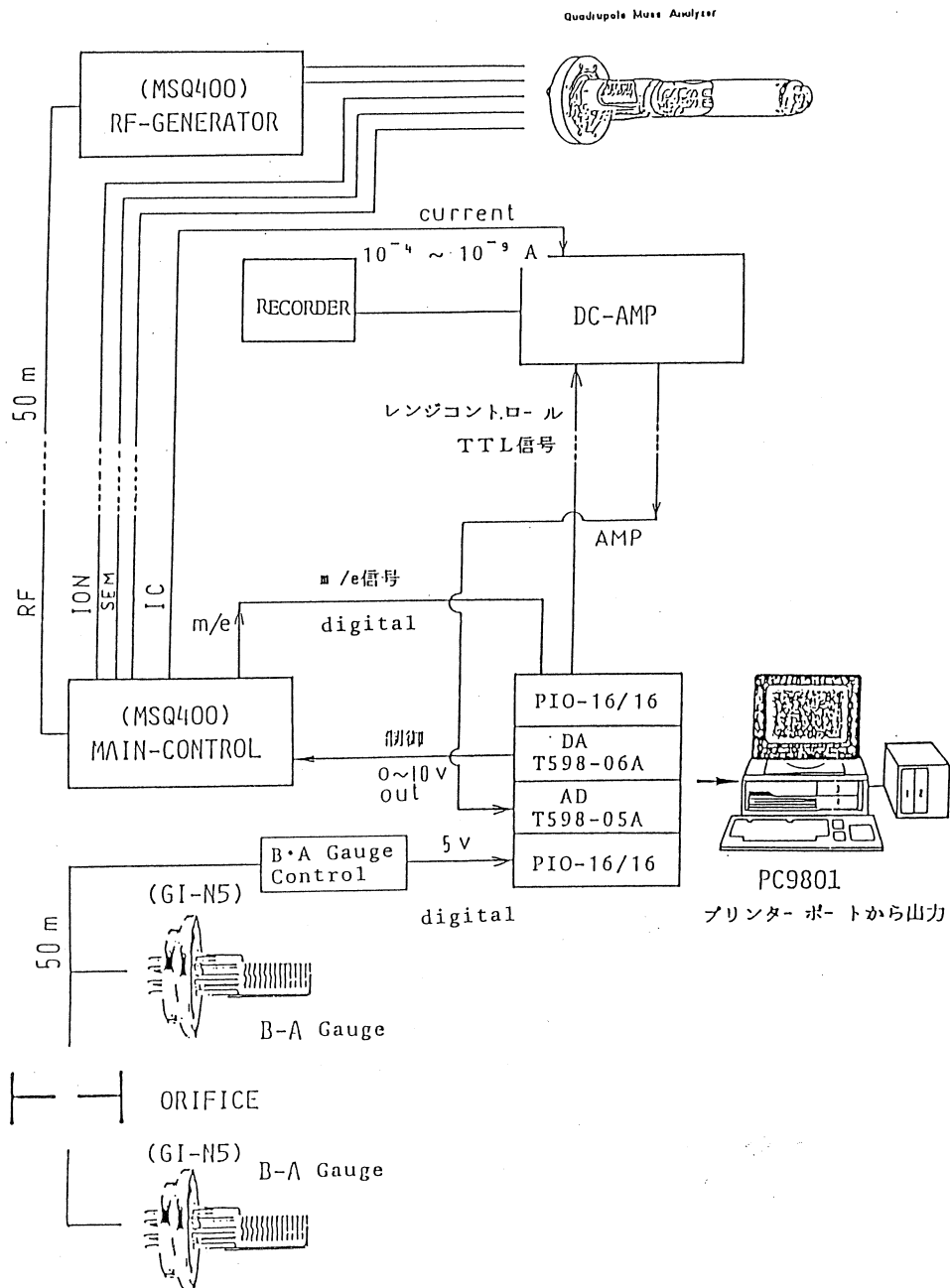
全圧と分圧の測定装置の構成図を第3図に示す。実験室の照射装置の側にQMSのRFジェネレーターと分析管及び真空計を設置し、この装置から約50m離れた場所にQMS制御回路、DC-AMP、ペンレコーダー及びマイクロコンピュータを設置して全圧と分圧を測定する。信号ケーブルに実験装置からの大振幅のコモンモードノイズが重畳する為に、絶縁アンプとシールドケーブルを使用してデータの取込みの信頼性を高めた。

2) 分圧の測定

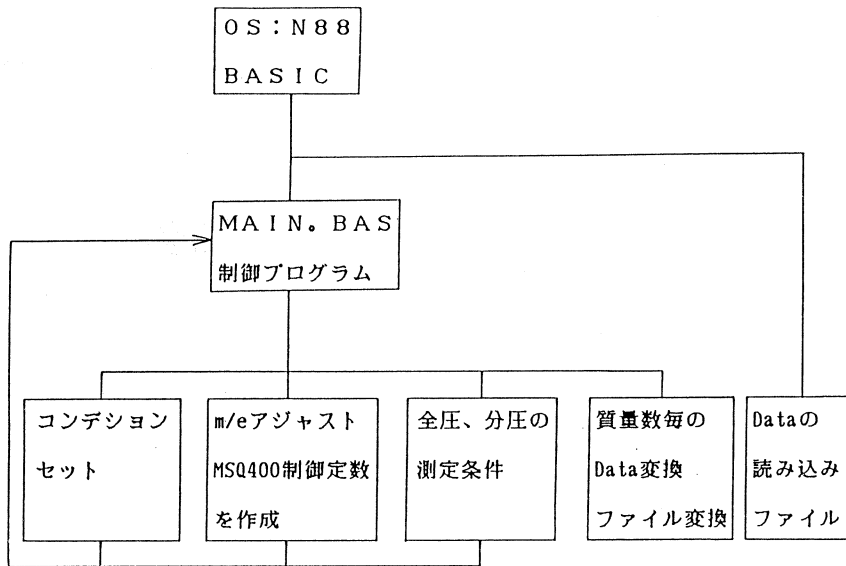
質量分析器は質量数 m/e に対応する0~10Vの外部入力信号に対して、各イオン電流の出力が得られる様になっている。マイクロコンピュータの拡張ボードにDAコンバーターとADコンバーターを組み込み、質量分析器のアナログ入出力と接続する事により、各質量に対応するイオン電流をスweepできる。ただし、イオン電流の信号はDCアンプを通してADCに入力してあり、マイクロコンピュータのデジタル出力によりDCアンプのゲインを変えられる様になっている。QMSの測定範囲は第4図に示す通りで、 $m/e=1\sim 400$ までの任意の質量数100個までの元素を約80sec間隔(取り込むデータの量によっても多少変わる)で測定している。各 m/e のピーク判定は各ピークの立ち上りを3回、立ち下がりも3回の合計6回に分けて測定す

る事により信号かノイズの判定を行う。

今回の測定では実験時間の都合から $m/e = 1 \sim 100$, 測定間隔 = 100 sec , 測定回数 = 250回



第3図 全圧及び分圧測定系の構成図。



(測定条件)

測定質量範囲	m/e=1~400 (100 以下)
測定レンジ	$10^{-4} \sim 10^{-9}$ (A)
測定時間間隔	81~32767 sec (測定条件による)
測定時間	416 min(100sec/dataの時)
真空圧力の上限	$10^{-3} \sim 10^{-10}$ Torr
放出ガス量	$10^{-3} \sim 10^{-13}$ Torr·l/s·cm ²
補正係数 (流量法C/A)	1 ~ 10^{-3}

第4図 プログラムの概要と測定条件。

以下、測定電流感度 = 10^{-6} (A) として測定した。

3) 全圧の測定

真空計からのデジタル信号 (5V) をコンピュータのPIO (PIO-16/16: CONTEC社) で取込み、放出ガス量は流量法に基づく係数を2台の真空計から得られた圧力の差圧に掛けて一度フロッピーデスクに入れて、測定終了後にCRTとプリンターに出力される。尚、2台の真

空計で得られる圧力測定値は指定された時間毎に CRT とプリンターにリアルタイムで出力される。

今回の測定では分圧の測定時間と同じ時間間隔 (100 sec) でデータを取り込んだ。

4) 測定プログラム

プログラムは N₈₈-BASIC によるメイン・プログラム (MAIN. BAS) と測定条件作成ファイル (SETING. BAS-condition set), m/e アジャスト・ファイル (MSQ400 の制御定数: ADJUST. BAS-m/e adjust), MSQ400 の各スキャン毎の Data を質量数毎の Data に変換ファイル (DATCONV. BAS-file convert), 生データファイル (FILRD. BAS-measurement) からなる。このプログラムの測定条件と構成図を第 4 図に示した。

4)-1 測定条件の設定

条件の設定はプログラムを起動時に、メニュー方式で行われ、全圧と分圧の測定に必要なパラメータを選ぶようになっている。測定は

測定レジ (10^{-n} A)

測定時間の間隔

測定時間

を与える。

次に全圧の測定に必要な圧力の上限と放出ガス量の上限を与えるとダイナミックレンジが 5 桁の範囲で測定が行われる。

以上の設定が終ってから分圧の測定条件を入力する。この項目が測定の性能に最も重要な指定である。この指定を行う前に QMS を単独で動作させて測定範囲の残留ガス・スペクトルを測定しペンレコーダーに記録する。測定したピークの m/e をマスマカーで確認する。この測定で得られた m/e 値の幾つかのピークを測定前の m/e の較正值として使用する。

まず、計算機は m/e=2 と 18 のピークを探しだす。更に、先の残留ガス測定で得られた既知のピークで、m/e=18 から最も離れたピークを指定しそのピークを計算機に探させる。この測定から得られたピークの間隔を基にして質量軸のキャリブレーション用データを取込み、実際の実験で得られた質量スペクトルの m/e の値を決める。

これらの設定後に第 4 図のフローチャートにより測定され、全圧と分圧を同時、又は単独に測定開始や停止する事ができる。

4)-2 データの表示

測定されたデータは既存の OKI-RDOS 上の三次元表示ルーチンを使用して表示した。そ

の為に、N₈₈-BASIC上のデータ形式を文字変数に変換してOKI-RDOSに転送している。

5) QMSの較正

データの取込みを正確に行う為にはQMSの較正が不可欠である。本来は真空系に基準となる希ガス試料を接続し測定系の試験を行うべきであるが、電子線照射実験が目的である為に装置にはガス導入口を取付けられない。そこで、QMS単独の分析管の洗浄と加熱脱ガスを行い更に5種類の混合ガス(N₂, He, Ar, Kr, Xe)によるマス・スペクトルの較正を行った。その結果、QMSの質量軸と感度は計算器による取込みで問題にならない事が分かった。

6) 測定結果と問題点

全圧及び分圧の測定は計算機による取込みと同時にペンレコーダーにより記録されている。これまでの結果では全圧測定結果は落さずに、すぐプリント・アウトする形式なので問題は生じていない。しかし、分圧の測定は、測定レンジを10⁻⁸(A)以上の感度で照射実験のデータを取り込むとグラウンドレベルが僅かに変動し、本来、零であるべきm/eに1~2×10⁻⁹Aの記録がでる。電子を止めた時にはこの様な事は見られないので、照射時のノイズ(或いはイオン)の影響を分析管が受ける為ではないかと思う。ペンレコーダーでの記録には応答速度とS/N比の関係で計算機程度のグラウンドレベルの変動は見られない。

§ 3. 分圧の測定結果

測定は試料をビームラインから外した状態で真空チェンバーに電子線を照射し、その時の分圧を測定(測定結果にはダクト照射と表示)する。その後、ビームを停止し系内の残留ガスを測定する。次に、試料をビームラインに挿入し各分圧(m/e=1~100)を連続的に測定した。各材料の測定スペクトルの特徴を材料毎にまとめ第5図から第9図に示す。

1) 高純度アルミニウム(99.99%) (第5図)

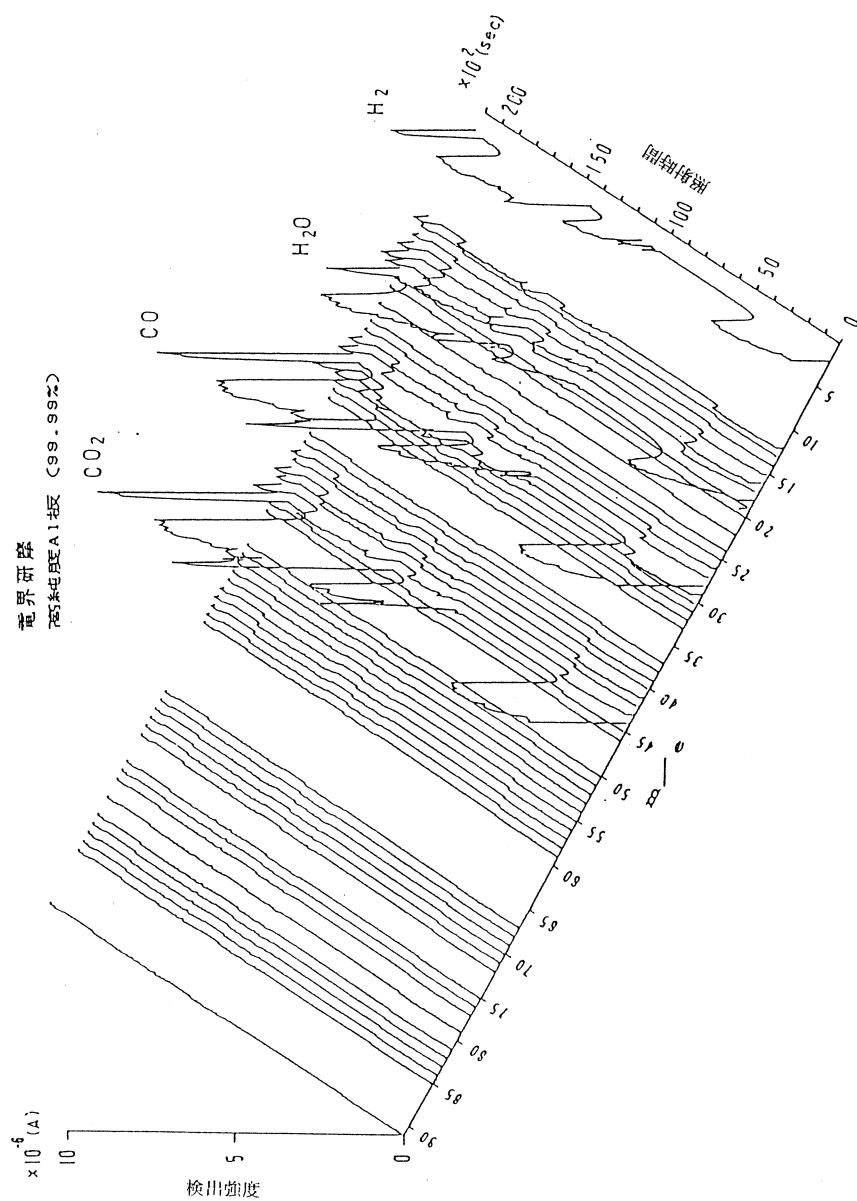
試料には50 MeV, 96 μA, ビーム径が約3 mmφ(試料の温度150℃)を照射した。高純度アルミニウムは検出されたガス分圧とそのピーク値が最も少ない。

2) A6063(通常押し出し加工材) (第6図)

試料には50 MeV, 85 μA, ビーム径が約5 mmφ(試料の温度140℃)を照射した。大気中に押し出し加工する為に、表面の酸化皮膜層が厚く加工時の圧延油や水分等の汚染の影響が観測された。

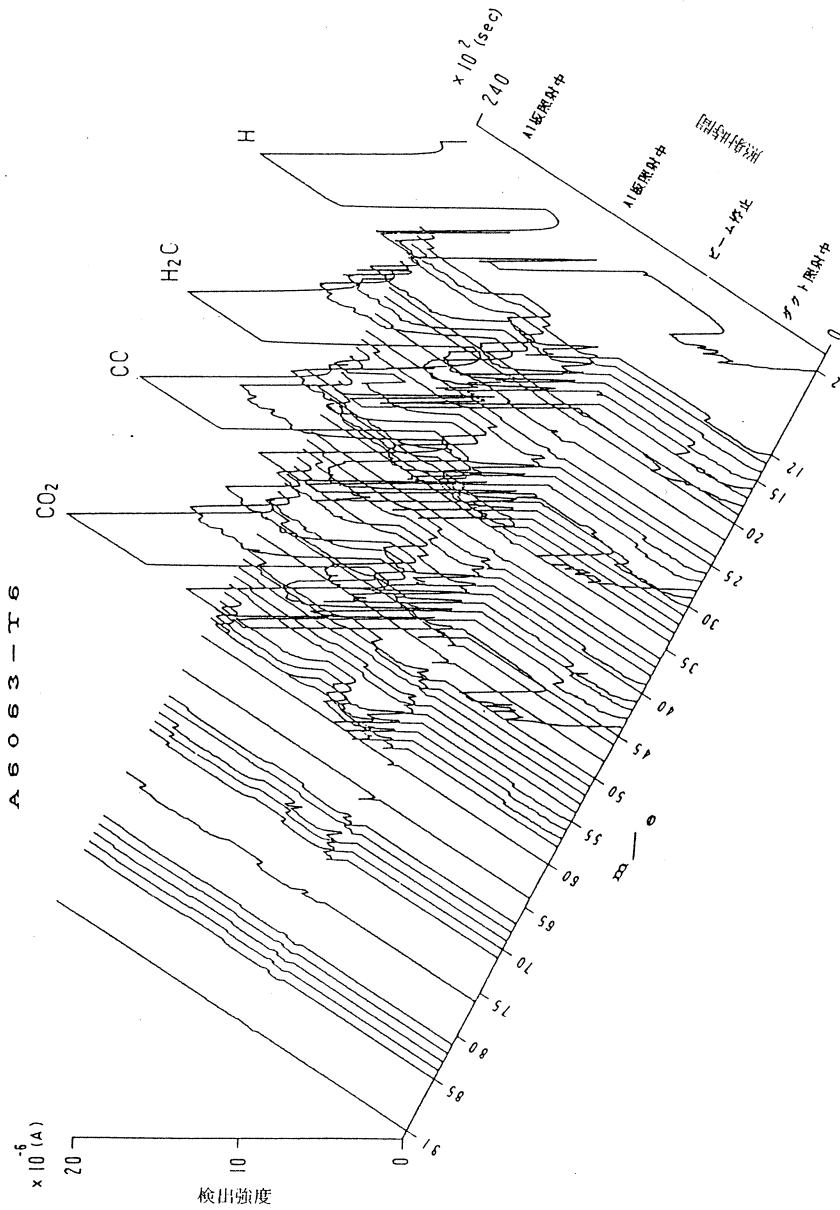
3) A6063(特殊押し出し加工材) (第7図)

試料には50 MeV, 85 μA, ビーム径が約4 mmφ(試料の温度140℃)を照射した。押し出し



第5図 高純度Al板(電界研摩)の電子線照射時の放出ガス分圧の測定結果。

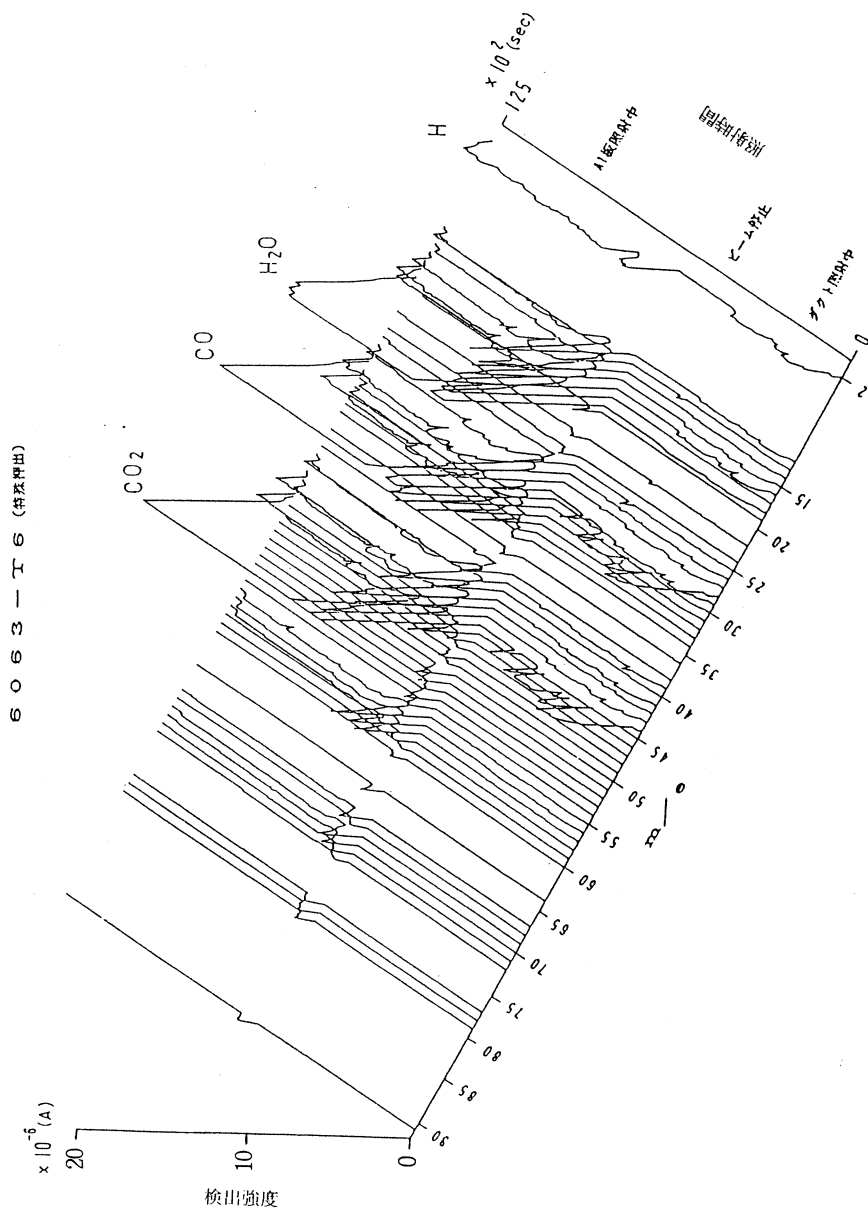
成形時にアルゴンガスと酸素の混合ガスにより押し出し加工する。この為材料の表面汚染が少なく照射直後に多量のガス放出が観測されるが、時間と共にガス量が減少する。尚、この材料は石丸(KEK)らが開発に取り組み、TRISTANに採用し大変良い結果を得ている。



第 6 図 通常押し出し加工材 (A 6063) に電子線照射した時の放出ガス分圧測定結果。

4) SUS 304 (第 8 図)

試料には、電子の散乱角と熱伝導率を考慮し、60 MeV, 50 μ A, ビーム径が約 5 mm ϕ (推定 600 $^{\circ}$ C) を照射した。測定された分圧スペクトルの特徴として m/e=56 (Fe?) 付近のピークがわずかに高く観測された。照射後の表面組成を IMA により分析した結果、照射前よりも

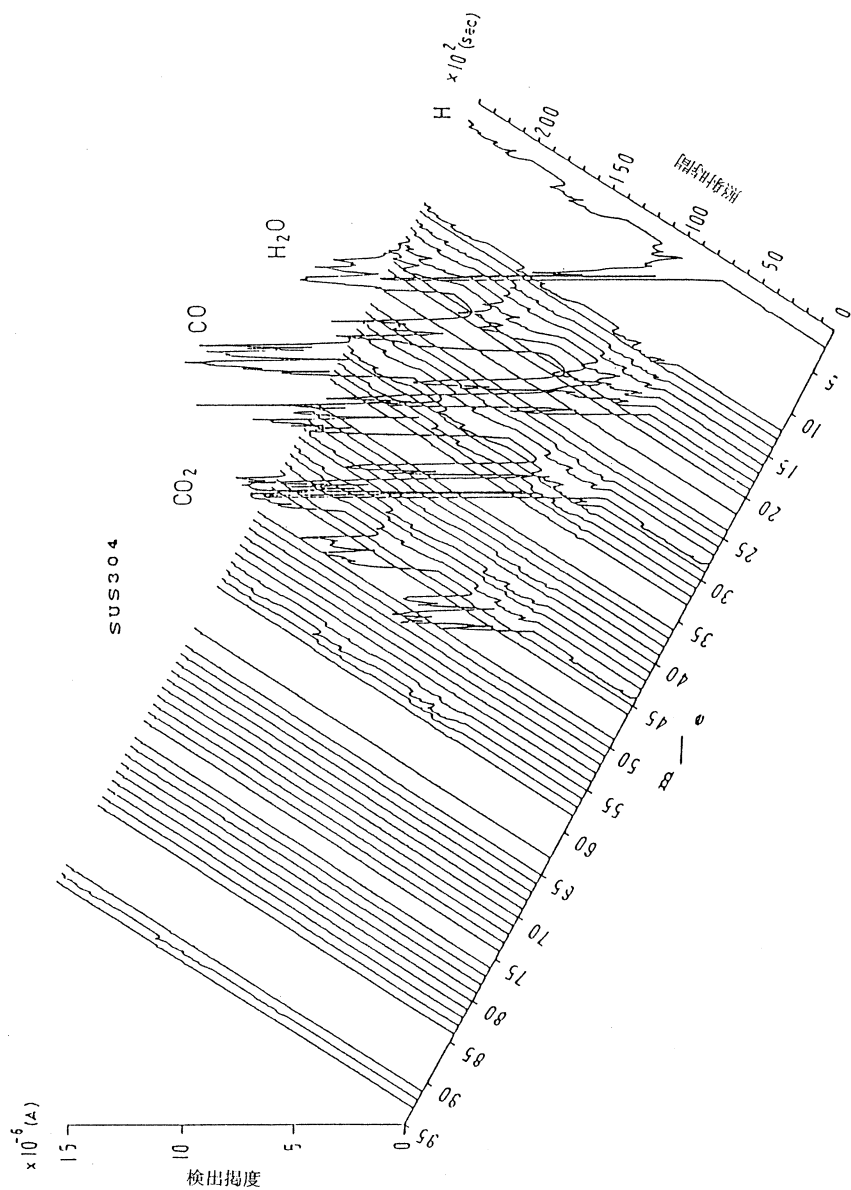


第7図 特殊押し出し材への電子線照射時の放出ガス分圧の測定結果。

Cr とFe の減少が確認された。

5) OFHC (第9図)

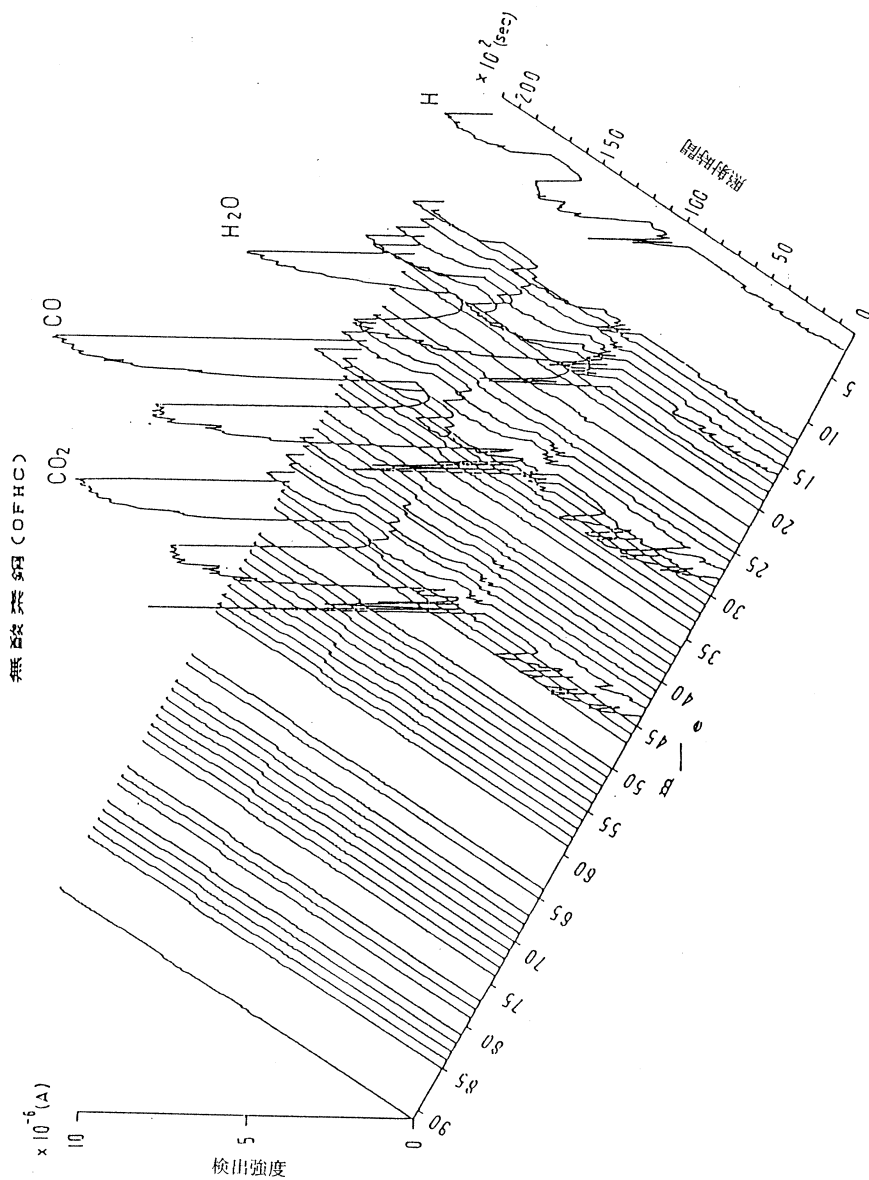
試料には60 MeV, 60 μ A, ビーム径が約5 mm ϕ (試料の温度130 $^{\circ}$ C)を照射した。材料を電解研磨して照射した結果, 表面の汚染は少なく観測されたガス分圧も少ない。



第8図 電子線照射によるSUS304の放出ガス分圧の測定結果。

§ 4. 考 察

真空中の試料に高エネルギー電子ビームを照射した時に、その系内のガス分圧を測定する事は、散乱電子の影響（分析管への飛込み）とノイズの為に簡単ではない。しかも、QMSの制御装置と分析管の距離は50 m 離す必要（放射線の影響を避ける為）があり、取り込んだデータ



第9図 電子線照射による無酸素銅の放出ガス分圧測定結果。

のノイズレベルが問題であった。測定終了後にレコーダーの記録と比較した結果では、ピーク値には問題がなくノイズレベルを取り込みソフトで修正すればよい事が分かった。又、各材料のガス分圧と全圧を同時に測定することにより、材料の真空特性をこれまでよりも正確に示す事が出来る様になった。

更に、この測定法は加速器のビーム輸送系内等で起こる散乱電子や放射光による真空圧力上昇の測定や残留ガスの測定、真空路内の異常診断等のモニターとして有効である。

§ 5. ま と め

加速器が大型化するに従って真空路の材料にアルミニウムが採用される様になってきている。これは加速器の真空路にステンレス鋼を採用した場合、局所的な熱歪み、加熱脱ガス温度、誘導放射能の強度等が問題となるからである。これらの問題に対してアルミニウムが有効であるかを検討する必要がある。アルミニウムはこれまで表面の酸化皮膜と機械的な強度の点から真空材料として不向きであるとされてきた。しかし、開発研究の結果、材料の表面を電解研磨処理或いは加工法を変える事によりステンレス鋼よりも真空特性が良い結果を得た。また、今般の測定法は材料とその表面処理状態が放出ガス量、放出ガス分圧等にどのように影響するかを調べるのに有効であると共に排気ポンプの選定に非常に役立つであろう。

加速器の真空材料として具備すべき条件は、1) 放出ガス量が少ない事 2) 局所的な熱歪みに強く加工性に優れている事、3) 生成放射能の減衰が早い事 4) 放射線腐食に強い事等が上げられる。本研究では1)の材料の真空特性試験法について述べたが次回にアルミニウムの表面処理法について述べる予定である。

本研究を進める上で指導助言をして頂いた榊本和義、玉江忠明の両博士に対して心から感謝致します。

本研究の計算器制御の開発に協力して頂いた須田利美（阪大核物理センター）、鈴木敏司の両氏に心から感謝致します。

研究装置の開発、試料の分析、試料の提供等に協力して頂いた日本真空KK、神戸製鋼KK、昭和アルミニウムKK、石川島播磨重工の各社に対して心から感謝致します。

IV. 加速器・データ処理装置稼働状況

昭和62年度マシン報告

核理研マシングループ

栗原亮・浦沢茂一・小山田正幸
柴崎義信・高橋重伸・中里俊晴
武藤正勝

概 況

ライナックは前年度に引続いて制御系とビーム・モニターの充実をはかった。

IVR駆動装置のDCサーボモータ化等により、ビームの長時間安定性は一層改善された。しかし、各種電源の更新や制御方式の変更にもなるともなるとも不具合点が発生し、実験の中断や開始時刻の遅れとなった。順次不具合点は解消するようしている。

マシン整備は定期点検日や予備日にマシン工事に準ずる内容の整備を行っている状況である。マシン点検日として、2カ月毎の工事の中間に数日間の日程を取ればと考えている。

また、材質の経年変化などで著しく劣化が進んでいる機器は、今後は実験を円滑に実施する為に計画的に更新を進める時期に来ている。

マシンタイム実施状況

今年度後期は、前年度及び今期前期の未消化分を今年度後期に全て消化できた。さらに63年度先取り分として2シフトを実施した。マシンタイムの実施状況は第1表（共同利用係調べ）を参照。

保守状況

故障に関して

昭和61年12月からのⅡ系実験の真空トラブルは、M6分析管内冷却パイプの水漏とダクト内部の汚れが原因と判明した。4月の工事では、ビーム・ダクトの交換、SEM型エネルギーモニターの取り外しとダクト内の清掃を行った。4月28日に、エージング後、ビーム・テストを行いフルビームで真空の異常はみられなかった。

クライストロン・パルサーの高電圧部分での故障が多く、対策としてチャージング・ダイオード、チャージング・チョーク、シャント・ダイオードのケース部分への強制空冷を施した。

クライストロン・パルサー(KP) #1, #2のIVR駆動装置のDCサーボモータ化以後、KP #2

の IVR 駆動装置のオーバーランが数回あり原因究明に手間取った。この IVR を10月に交換し分解したところ配線の一部分に被覆のはく離とショート痕が認められた。IVR 内部はモーターと似た構造になっており、内部で短絡が発生すると、駆動軸に強い回転力が生じる。オーバーランはこのために起ったと推定される。IVR 交換後は順調に稼働している。

クライストロン・パルサーのパルスタンク内の絶縁油に水の混入が発生した。原因は、長年クライストロンを交換しないで使用してきたため、Oリングの劣化とアノード部の微小穴による漏水である。前者の対策はOリングの交換を10月工事に行い、アノード部での漏水は、クライストロンの寿命切れと判断し2月に交換工事をした。

1月には、長年使用してきたクーリング・タワーの水漏れと冷凍機の重故障が発生した。クーリング・タワーは屋外にあり、材質(強化プラスチック)の経年変化による劣化が著しく進んでいる。冷凍機は製造後20年経過している。今回は幸運にも部品の在庫があり、短期間で部品入手、修理組立、調整ができ、マシンの停止を最小限にすることができた。しかし、今後もこのように順調に復旧する保障はない。また、更新時には実験に支障の無いように、計画的に行う必要がある。

定期工事の主な内容

3月工事

クライストロン・パルサー1, 2号機のベイポデザイン・ポンプ更新と各部の保守工事を行った。クライストロン・パルサー1号機のサイラトロン交換。加速管ステアリングコイル電源立上げ時のシーケンスソフトを改修

4月工事

ビーム・ダクトⅡ系交換工事, Ⅲ系スクリーン・モニター交換。

6月工事

クライストロン冷却装置(ベイポデザイン)分解清掃5台。2号機サイラトロントリガー回路交換(半導体化)。Ⅰ系スクリーン・モニター交換。クライストロン・パルサー1号機, 2号機のIVRコントローラをDCサーボ方式に更新。クライストロン・パルサー2号機, 5号機サイラトロン交換。

8月工事

クライストロン・パルサー清掃。ガンバイアス電源交換。加速管フォーカスコイル電源更新。BFポンプ修理。

10月工事

クライストロン・パルサー 2 号機から 5 号機までのコレクタ冷却筒の Oリング交換。クライストロン室 AC 100 V コンセント増設工事。デミネライザーのフィルター（活性炭）交換，クライストロン・パルサー 1 号機から 5 号機までの高周波位相法による PFN 調整。

11月工事

I 系スクリーンモニター ITV の架台設置。クライストロン・パルサー 1 号機ファン取り付け。クライストロン・パルサー 3 号機の高周波位相法による PFN 再調整。クライストロンパルサー・フォーカスコイル電源調整。冷水ポンプ・インターロック改修。冷凍機コンプレッサー部冷却水配管更新工事。加速管フォーカスコイル電源（A11，A12，A13）制御ソフト入替え。ターボポンプ制御系改修。

2月工事

1 月納入のクライストロンをパルサー 1 号機に取り付け。ECS 可変分割器用 3 dB カップラ 3 台交換。純水製造器再生作業。II 系ターボポンプ排気系の整備。ビームスポットのゆらぎの原因調査。

第1表 昭和62年度マシントイム実施状況

課 題	前 期		後 期		昭和62年度		備 考
	割 当	実 施	割 当	実 施	割 当	実 施	
$r\pi$ (広田)	19+1*	19	8+1*	9	27+1*	28	
$r\pi$ (成)	8.5*	8.5	4	4	4+8.5*	12.5	
$r\pi$ (山屋)	2*	2			2*	2	
Tag (寺沢)	8	8	16	16	24	24	
Tag (Thompson)	16	16	4	4	20	20	
Tag (前田)			4	4	4	4	
$e'e'n$ (斎藤)	10+8*	17	8+1*	9	18+8*	26	
$e,e'r$ (坪田)	10	0	10*	10	10	10	
$e,e'p$ (川添)	7	7			7	7	
$e,e'p$ (菅原)			4	4	4	4	
$e,e'p$ (玉江)			10	10	10	10	
r_p (宮瀬)	6	6	4	4	10	10	
r_F (Aruuda-Neto)			9	9	9	9	
ND	24	12	17+12*	27	41	39	2シフト繰越
RI・物性	23	15	22+8*	27	45	42	3シフト繰越
π mag (山屋)	2	2	2	0	4	2	2シフト繰越
$r\pi$ (庄田)			2	2	2	2	
Alダクト(今野)	1+2*	2	1*	0	1+2*	2	1シフト繰越
MWPC (菅原)	4	4	2	2	6	6	
π^0 測定器(上野)			1	1	1	1	
BaF (前田)			2	2	2	2	
SOR (小山田)			2**	2	2**	2	緊急課題 63年度先取り
合 計	130+21.5*	118.5	119+33* +2**	146	249+21.5* +2**	264.5	8シフト繰越

* 先期繰越分

** 次期先取り分

データ処理装置報告

核理研計測グループ

大沼忠弘・小田島明美・武藤正勝

稼働状況

62年度のデータ処理装置の稼働実績を第1表に示す。

オフライン専用機として主に一般計算に使っているOKITAC-50V/65は、第2表に示すように年々その使用量が増えている。今後、次期計画に関して詳細な設計作業が進められ、計算量が大幅に増えるような場合には端末器（現在は6台）、主メモリ（現在は2メガバイト）、磁気ディスク容量（現在は80メガバイト）の増設が必要になってくるものと思われる。

4月1日にOKITAC-50V/65のオペレーティング・システム（OS）のバージョンを3.20から3.21に変更した。使用方法で変更になったところはとくにない。

第1表 昭和62年度・用途別利用実績表。

（単位：時間）

機種 用途 月	OKISAC-4500				OKITAC-50/60				OKITAC-50V/65			
	データ 集積	データ 処理	保守 故障	合計	データ 集積	データ 処理	保守 故障	合計	会話数	利用 時間	CPU 時間	保守 故障
4	15	0	9	24	217	0	7	224	158	922	104	0
5	82	0	0	82	413	0	7	420	708	1439	414	0
6	0	0	0	0	643	0	0	643	219	1215	171	3
7	65	0	5	70	270	24	0	294	271	1301	132	0
8	0	0	0	0	584	0	1	585	147	684	157	0
9	0	0	35	35	486	0	3	489	249	1736	226	4
10	49	0	2	51	505	2	1	508	260	1473	210	0
11	0	0	0	0	174	0	33	207	369	1743	280	0
12	108	0	0	108	204	0	0	204	260	1447	260	6
1	135	0	2	137	271	0	0	271	486	999	260	0
2	42	0	0	42	150	0	2	152	161	660	73	0
3	94	0	0	94	680	0	0	680	132	996	198	2
合計	590	0	53	643	4597	26	54	4677	3420	14615	2485	15
月平均	49	0	4	54	383	2	5	390	285	1218	207	1

第2表 過去4年間における月平均利用時間の推移
(OKITAC-50V/65).

(単位:時間)

用途 年	会 話 数	利用時間	C P U 時 間
59	330	453	59
60	308	592	66
61	337	1119	106
62	285	1218	207

更 新 計 画

現在, オンライン・コンピュータとして原子核実験ではOKITAC-50/60, 中性子実験ではOKITAC-4500を使っているが, いずれも古い機種であるため現在の実験内容に対応できなくなってきた。そこで, 今後のオンライン・データ処理装置をどういった内容にするか, どういう手順で更新していくかについて一年前から関係者の中で検討を進めてきた。その結果, コンピュータにはDEC社のMicro-VAXを採用し, 62年度から2~3年間の計画で整備していくことでは合意が得られている。

当面目標とするデータ処理装置の構成を第1図に示す。計画ではVAX station II/GPXを2台設置し, 1台は原子核実験用, 他の1台は中性子実験用とする。コンピュータを2台にして各実験別に分けたのは次のような理由からである。(1) 原子核実験ではCAMACとコンピュータ間の距離があまり取れないという制約から, 実験室(検出器)の近くにコンピュータを置きたいという要求があるのに対して, 中性子実験の場合は今までどうり信号線が集中しているデータ集積室にコンピュータを置いた方がよく, このことから実験別に分けた方が無理のないシステムが構築できる。(2) 一方をオンラインで使用中に他方はオフライン処理機として利用でき, 実験後のデータ解析が効率よく行える。(3) 実験中にコンピュータが故障しても代替が可能で, 実験のロスタイムを少なくできる。

VAX station II/GPXの構成は次のとおりである。

- 主メモリ 5メガバイト
- 磁気ディスク 159メガバイト
- 磁気テープ 95メガバイト カートリッジ式ストリーマ

- コンソール

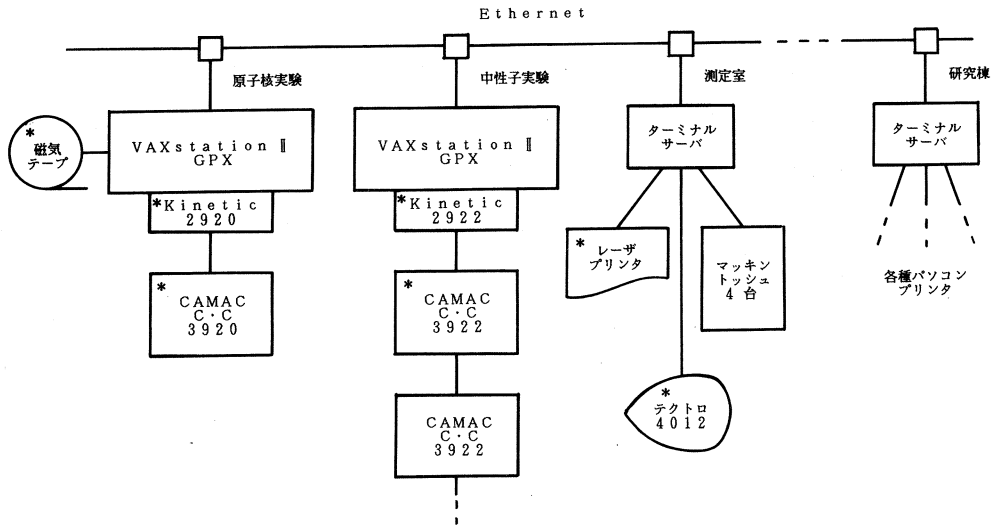
ディスプレイ 19インチ カラー 解像度 1024×864 ピクセル

施設内にEthernet（DECnet）を敷設し（既に管理棟には敷設済）、2台のコンピュータはもちろん加速器制御用コンピュータ（62年度に購入、VAX station II/GPX）も接続する。研究棟ではパソコンをEthernetに直接か又はターミナルサーバを介して接続し、どこからでも必要とするコンピュータに直接アクセスできるようにする。

CAMACとコンピュータとの接続については原子核実験では当面はキネテック社の2920・Qバスアダプタと3920・クレートコントローラを使用し、中性子実験では同時に実験する利用者が多いことから8台のクレートまでシリアルに接続できる2922・Qバスアダプタと3922・クレートコントローラを使用する。

中性子実験で現在使っているOKITAC-4500では、同時に多数の実験者が利用できるように、スペクトル表示用のXYスコープの付いたコンソールパネルを8台用意してあるが、新システムではこれに代るものとしてとりあえず4台のパソコン（マッキントッシュ）を用意する予定であり、コンソール・ディスプレイの使用も含め5～6人の実験者の同時利用が可能である。マッキントッシュには便利なソフトウェアが沢山市販されていて、とくにスペクトル表示などに使うためのグラフを描かせるソフトには優れたものがある。このことからマッキントッシュは中性子実験だけでなく原子核実験においてもいろいろなスペクトル表示に利用でき、更にオフライン処理の際にはターミナルとしても活用できる。このマッキントッシュ4台、レーザープリンタ（キャノンLBP-8）、グラフィックディスプレイ（テクトロ4012）は特定のコンピュータに直接つなぐのではなく、どのコンピュータからでも利用できるようにターミナルサーバを用いてEthernetに接続する。

第1図の*印の機器は以前からあるものや62年度予算で購入したもので、コンピュータ2台、マッキントッシュ3台（1台は62年度購入）、ターミナルサーバについては今年度の施設維持費の予算に盛り込まれるように要求中である。予算が認められた場合には原子核実験については63、64年度で、中性子実験については63年度で新システムに移行し、OKITAC-4500については63年度、OKITAC-50/60は64年度をもって保守契約を打ち切り、廃棄する予定でいる。



第1図 計画しているオンライン・データ処理装置の構成。

V. 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（1987年1月～12月）の題目を収録しました。

I 原子核物理

1. Out-of-Plane Measurement of the D ($e, e'p$) Coincidence Cross Section.
T. Tamae, H. Kawahara, A. Tanaka, K. Namai, M. Sugawara, Y. Kawazoe
H. Tsubota and H. Miyase : Phys. Rev. Lett. **59** (1987) 2919.
2. Measurements of $^{10}\text{B}(\gamma, p)$ and $^{10}\text{B}(\gamma, pn)$ Cross Sections at $E_\gamma=55-103$ MeV.
T. Suda, T. Terasawa, I. Nomura, J. Yokokawa, T. Suzuki, Y. Torizuka,
K. Maeda, J. Eden, G. O'Keefe, R. Rassool and M. N. Thompson : Abstract
Book 2, XI Int. Conf. on Particle and Nuclei, 1987, p.690.
3. The Photonuclear Cross Sections of ^{48}Ca .
G. J. O'Keefe, M. N. Thompson, Y. I. Assafiri, R. E. Pywell and K. Shoda :
Nucl. Phys. **A 469** (1987) 239.
4. The Strong M1 Transition to Low-Lying 2^+ States in the $^{14}\text{N}(\gamma, \pi^+)^{14}\text{C}^*$ Reaction.
B. N. Sung, K. Shoda, A. Kagaya, S. Toyama, M. Torikoshi and H. Tsubota :
Nucl. Phys. **A 473** (1987) 705.
5. Contribution of M1 and E0 Transitions in the $^{15}\text{N}(\gamma, \pi^-) \text{O}_{g.s.}$ in the Threshold
Region.
K. Kobayashi, K. Shoda, A. Kagaya, K. Takeshita and H. Tsubota : Abstract
Book 2, XI Int. Conf. on Particles and Nuclei, 1987, p.676.
6. M1 Transition in $^{24}\text{Mg}(\gamma, \pi^+)^{24}\text{Na}$ Reaction.
H. Tsubota, B. N. Sung, A. Kagaya and K. Takeshita : *ibid*, p.678.
7. The M1 Transition Strength in the $^{14}\text{N}(\gamma, \pi^+)^{14}\text{C}^*$ Reaction.
B. N. Sung, K. Shoda, A. Kagaya, T. Kobayashi, S. Toyama, O. Sasaki,
M. Torikoshi and H. Tsubota : *ibid*, p.686.
8. $^{89}\text{Y}(\gamma, p_0)$ Cross Section Deduced from the $^{89}\text{Y}(e, p_0)$ Reaction.
H. Miyase, H. Tsubota, Y. Kawazoe and T. Tsukamoto : Phys. Rev. **C 36**
(1987) 1792.

II 物性物理

1. Crystal Structure of Tetragonal $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{-}\delta\text{CoO}_{7-\delta}$ ($\delta = 0, 0.3$).
T. Kajitani, K. Kusada, M. Kikuchi, Y. Syono and M. Hirabayashi : Jpn. J. Appl. Phys. **26** (1987) L1727.
2. Displacement Waves in $\text{La}_2\text{CuO}_{4-\delta}$ and $\text{La}_{1-\delta}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_{4-\delta}$.
T. Kajitani, T. Onozuka, Y. Yamaguchi, M. Hirabayashi and Y. Syono : Jpn. J. Appl. Phys. **26** (1987) L1877.

III 放射化学

1. Chemical Behavior of Technetium Atoms Recoil-Implanted in Metal Acetylacetonates.
T. Sekine and K. Yoshihara : J. Nucl. Sci. Tech. **24** (1987) 47.
2. Recoil Implantation Reaction in Geometrical Isomers of Tris (Benzoylacetonato) Chromium (III).
T. Sekine and K. Yoshihara : J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett. **118** (1987) 137.
3. Instrumental Photon Activation Analysis of Environmental Materials Using The Internal Standard Method.
M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles **109** (1987) 237.
4. Instrumental Photon Activation Analysis of Soil Samples Using the Internal Standard Method Coupled with the Standard Addition Method.
K. Masumoto and M. Yagi : J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles **116** (1987) 375.
5. Selective Substoichiometry for Inorganic Arsenic (V) by Ion-Pair Extraction with Pyrogallol/Tetraphenylarsonium Chloride and Its Application in the Analysis of Seaweed.
N. Suzuki, F. Jitoh, H. Imura and Y. Kanda : Anal Chim. Acta **193** (1987) 239.

6. 長鎖8-キノリノール液体膜によるウランの濃縮.

秋葉健一, 大橋弘三郎: 分析化学 36 (1987) 707.

7. LIX63担持ポリウレタンフォームによるウランの捕集.

秋葉健一, 橋本裕之, 長谷川伸一: 選研彙報 43 (1987) 8.

8. L型ゼオライトによる放射性核種の分離.

三村 均, 秋葉健一: 選研彙報 43 (1987) 23.

9. Impurity Diffusion of Manganese in Aluminum.

S. Fujikawa and K. Hirano: Mater. Sci. Forum 13/14 (1987) 539.

10. Diffusion of Gold in Copper over a Wide Range of Temperature.

S. Fujikawa, M. Werner, H. Mehrer and A. Seeger:

Mater. Sci. Forum 15-18 (1987) 431.

編 集 委 員

齋 藤 悌二郎 (委員長) 寺 沢 辰 生
新 村 信 雄 榊 本 和 義

核 理 研 研 究 報 告 第 21 卷 第 1 号

1988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 022-245-2151 (代)

印刷所 株式会社 東北プリント
 仙台市立町 24 番 24 号
 TEL (263) 1166 (代)

RESEARCH REPORT OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

Volume 21 Number 1 June 1988

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