

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 研 究 報 告

第 22 卷 第 2 号

1989 年 12 月

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

刊 行 規 定

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

投 稿 規 定

1. 邦文の原稿はA4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。

仙台市太白区三神峯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22巻 第2号 目次

I 原子核物理

- I-1 Measurement of the ${}^4\text{He}$ (γ tag, n) Cross Sections at Giant Dipole Resonance Region 145

(メルボン大, 核理研*, 教養部**)

D. McLean, A. D. Bates, 今野 収*, 前田 和茂**,
野村 和泉*, R. P. Rassool, 須田 利美**, 菅原 康弘*,
寺沢 辰生*, M. N. Thompson

II 物性物理

- II-1 Coherent Synchrotron Radiation at Submillimeter and Millimeter Wavelengths 151

(科研, 工学部応用物理*, 核理研**, 日大理工学部***)

柴田 行男, 石師 君弘, 大坂 俊明, 三代 秀昭,
高橋 俊晴, 池沢 幹彦, 近藤 泰洋*, 中里 俊晴**,
小山田正幸**, 新村 信雄**, 浦澤 茂一**,
加藤 龍好**, 鳥塚 賀治***

- II-2 X線および中性子回折による KH_2AsO_4 および KD_2AsO_4 の相転移の研究 165

(工学部応用物理, 核理研*)

山田 芳文, 川野 正一, 小野 泰弘, 山田 昌,
新村 信雄*

III 放射化学

- III-1 アセチルアセトン錯体に対する中心金属置換反応のエネルギー依存性 175

(理学部化学)

宮川 篤, 関根 勉, 吉原 賢二

- III-2 ピクリン酸とトリオクチルオスフィンオキシドによる置換不活性ロジウム(III)の溶媒抽出 181

(理学部化学)

	高橋 宏美, 井村 久則, 鈴木 信男	
Ⅲ-3	フェリエライトへのセシウムとストロンチウムの吸着特性……………	189
	(選研)	
	橋 房守, 三村 均, 秋葉 健一	
Ⅲ-4	光量子放射化分析法によるヒ素およびガリウム中の微量炭素の定量……………	195
	(三菱金属, 核理研*, 金研**)	
	吉岡 明, 川上 紀, 深谷 忠廣, 野村 紘一, 榎本 和義*, 八木 益男**	
Ⅲ-5	Study on Isotope Effect for Self-diffusion in Cu using three Radioactive Tracers ……………	204
	(工学部材料物性)	
	牛野 俊一, 藤川辰一郎, 平野 賢一	
IV 加速器・測定装置		
Ⅵ-1	電子線検出用垂直ドリフトチェンバー (VDC) ……………	215
	(核理研, 教養部*)	
	田所 孝広, 八田 英之, 谷内 努, 松山日出人, 野村 昌弘, 玉江 忠明, 菅原 真澄, 須田 利美*, 宮瀬 晴久*	
IV-2	核理研データ処理システム (ODET89) ……………	221
	(核理研, 教養部*, メルボン大**)	
	菅原 康弘, 鈴木 伸介, 竹下 邦和, 前田 和茂*, D. McLean**, 松山日出人, 武藤 正勝, 山崎 寛仁	
IV-3	新しい中性子散乱データ集積システム (I) ……………	254
	(金研, 核理研*)	
	梶谷 剛, 武藤 正勝*, 新村 信雄*	
IV-4	加速器制御系のソフトウェア……………	260
	(核理研)	
	武藤 正勝, 柴崎 義信, 大沼 忠弘	

Research Report of Laboratory of Nuclear Science
Volume 22, Number 2, December 1989
Contents

I Nuclear Physics

- I - 1 Measurement of the ${}^4\text{He}(\gamma_{\text{tag}}, n)$ Cross Sections at Giant Dipole Resonance Region 145
D. McLean, A. D. Bates, Osamu Konno, Kazushige Maeda, Izumi Nomura, R. P. Rassool, Toshimi Suda, Yasuhiro Sugawara, Tatsuo Terasawa and M. N. Thompson

II Material Science

- II - 1 Coherent Synchrotron Radiation at Submillimeter and Millimeter Wavelengths 151
Ikuo Shibata, Kimihiro Ishi, Toshiaki Ohsaka, Hideaki Mishiro, Toshiharu Takahashi, Mikihiro Ikezawa, Yasuhiro Kondo, Toshiharu Nakazato, Masayuki Oyamada, Nobuo Niimura, Shigekazu Urasawa, Ryukou Kato and Yoshiharu Torizuka
- II - 2 X-Ray and Neutron Diffraction Study of the Phase Transition on KH_2PO_4 and KD_2AsO_4 165
Yoshiumi Yamada, Shouichi Kawano, Yasuhiro Ono, Noboru Yamada and Nobuo Niimura

III Radiochemistry

- III - 1 The Energy Dependence of Substitution Reaction of Central Metal Atom of ${}^{51}\text{Cr}$ Implanted into Acetylacetonato Complexes 175
Atsushi Miyakawa, Tsutomu Sekine and Kenji Yoshihara
- III - 2 Solvent Extraction of Thodium (III) with Picric Acid and Trioctylphosphine Oxide 181
Hiromi Takahashi, Hisanori Imura and Nobuo Suzuki

III - 3	Adsorption Properties of Cs and Sr into Ferrierite	189
	Fusamori Tachibana, Hitoshi Mimura and Kenichi Akiba	
III - 4	Determination of Trace Amounts of Carbon in Gallium and Arsenic by Photon Activation Analysis.....	195
	Akira Yoshioka, Osamu Kawhkami, Tadahiro Fukaya, Kouichi Nomura, Kazuyoshi Masumoto and Masuo Yagi	
III - 5	Study on Isotope Effect for Self-diffusion in Cu using 3 Radioactive Tracers ...	204
	Syun-ichi Ushino, Shinichiro Fujikawa and Ken-ichi Hirano	
IV Accelerator and Instrumentation		
IV - 1	Vertical Drift Chhmbcr for Detecting Electrons	215
	Takahiro Tadokoro, Hideyuki Hatta, Tsutomu Taniuchi, Hideto Matsuyama, Masahiro Nomura, Tadaaki Tamae, Masumi Sugawara, Toshimi Suda and Haruhisa Miyase	
IV - 2	Data Acquisition System at KAKURIKEN.....	221
	Yasuhiro Sugawara, Shinsuke Suzuki, Kunikazu Takeshita, Kazushige Maeda, D. McLean, Hideto Matsuyama, Masakatu Mutoh and Hirohito Yamazaki	
IV - 3	Updated Data Acquisition System for Neutron Scattering Experiments (I)	254
	Tsuyoshi Kajitani, Masakatu Mutoh and Nobuo Niimura	
IV - 4	The Control Software for the Linac and the Pluse Beam Stretcher.....	260
	Masakatu Mutoh, Yoshinobu Shibasaki and Tadahiro Onuma	

I. 原 子 核 物 理

Measurement of the ${}^4\text{He}(\gamma_{\text{tag}}, n)$ Cross Sections at Giant Dipole Resonance Region

D. McLean, A. D. Bates, O. Konno[†], K. Maeda^{††}, I. Nomura[†], R. P. Rassool,
T. Suda^{††}, Y. Sugawara[†], T. Terasawa[†] and M. N. Thompson

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

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

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

The comparison of ${}^4\text{He}(\gamma, n)$ and ${}^4\text{He}(\gamma, p)$ cross sections is one of the most sensitive test of the isospin and charge symmetry nature of the four nucleon system. Since the ${}^4\text{He}$ nucleus is the simplest self-conjugate system, it has been thought that a complete study of these subjects can be made. The ${}^4\text{He}(\gamma, n)$ and ${}^4\text{He}(\gamma, p)$ reaction thresholds are at 19.8 and 20.7 MeV respectively. The Giant Dipole Resonance (GDR) region of ${}^4\text{He}$ has been studied with special interest as a these test of the nuclear force¹⁾. When the neutron-neutron and proton-proton interactions are equivalent, the cross section ratio between the photo-neutron and photo-proton reactions $R_\gamma = \sigma(\gamma, p) / \sigma(\gamma, n)$ must be around one. The Coulomb force breaks the charge symmetry of the nuclear interaction. It makes the asymmetry about 10% of the total strength which is corresponding to 180 keV in the matrixes element in the GDR region. However, in the last ten years, measurements of these reactions have shown a cross section ratio $R_\gamma = \sigma(\gamma, p) / \sigma(\gamma, n)$ of between 1.5 and 1.9 at excitation energies below 35 MeV²⁾. As photo-nuclear reactions proceed predominantly by electric dipole (E1) radiation, the large R_γ value is thought to be due to isospin mixing between the $T=0$ and $T=1$, $J^\pi=1^-$ states. The Coulomb effects can explain only 40% of the R_γ value. These results suggest the presence of a charge symmetry breaking (CSB) nuclear force in the ${}^4\text{He}$ nucleus. This subject have also been investigated with inelastic π^+/π^- scattering experiment near Δ -resonance region.³⁾ They concluded a small isospin mixing in the ${}^4\text{He}$ nucleus from the analysis of the $\sigma(\pi^+) / \sigma$

(π^-) ratio. The pion scattering experiments casted considerable doubts on the interpretation of the experimental value of R_τ in terms of isospin mixing. Recently, Bernabi *et al.*¹⁾ measured the ${}^4\text{He}(\gamma, p)$ cross sections which is much different from the previously measured values but closed to (γ, n) one. The aim of the experiment is to present an accurate measurement of the ${}^4\text{He}(\gamma, n)$ reaction cross sections around the GDR region with a tagged photon beam. It is necessary to make a independent check on the ${}^4\text{He}(\gamma, n)$ reaction cross sections to clear the uncertainties in the photoreactions.

We have done the ${}^4\text{He}(\gamma, n)$ measurement it an energy range between 20 and 100MeV with tagged photon beams at Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University. The liquid helium target consisted of a $200\ \mu\text{m}$ Mylar appendix mounted in a cryostat.⁴⁾ Time correlated back ground from the Mylar and air along the photon beam line was expected less than 7%. Four neutron detectors (NE213 liquid scintillator) were placed at 33° , 50° , 90° and 110° with 1 to 1.5m flight path. Another four detectors were placed at 65° at 3m. The resolution of the neutron energy is adequate to select (γ, n_0) events with the photon energies below 65 MeV. The experimental arrangement is shown in Fig. 1.

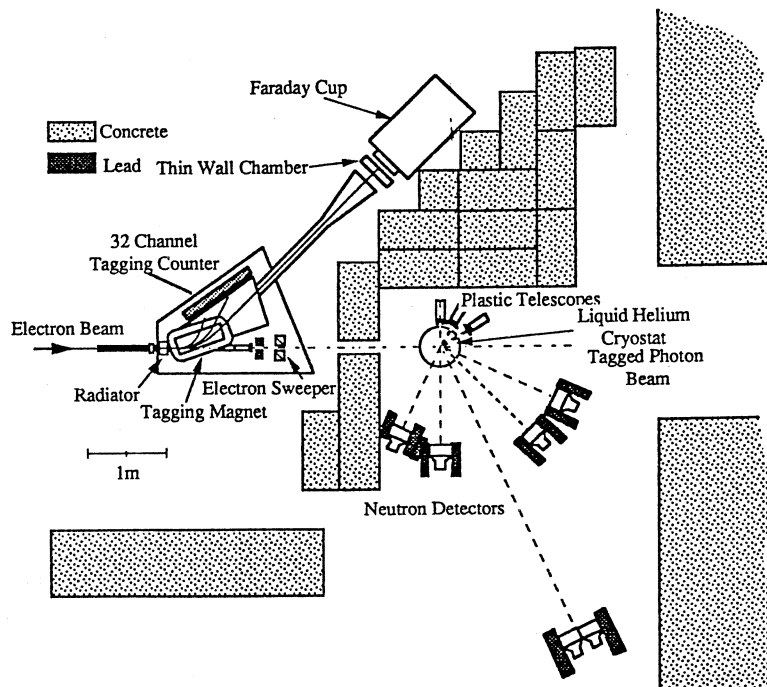


Fig. 1. Experimental arrangement of the tagged photon experiment.

Signals from the detectors were processed by standard NIM modules, and linear and timing data from potential true events read via CAMAC modules and stored on the front-end memory buffer. These data transferred to the back-end system (Micro-VAXII) with optical link system. In the back-end system, the raw data were stored on the magnetic tape and analyzed. Approximately 10% of the total beam time was spent for the measurement of the empty sample. For most of the foreground run, the 90° and 110° detector threshold were set to 2 MeV in neutron energy allowing us to detect neutrons corresponding to the lowest tagged γ energy.

The neutron detector efficiency is a function of neutron energy and detector threshold. It has been obtained with a computer code TOTEFF. The particle identification of neutrons have been done with the charge comparison technique on the signals from NE213 liquid scintillator. After the these noise reduction procedure have been done, we got the ratio of the background events (accidental γ -rays) to neutrons of typically about 200-1000 to 1. Fig. 2 shows a typical neutron foreground time-of-flight spectrum for the neutron detector placed at 90° and $E_\gamma=29\text{MeV}$ with $E_{th}=2$ MeV. A prominent peak which is correspondent to the n_0 neutrons can be seen.

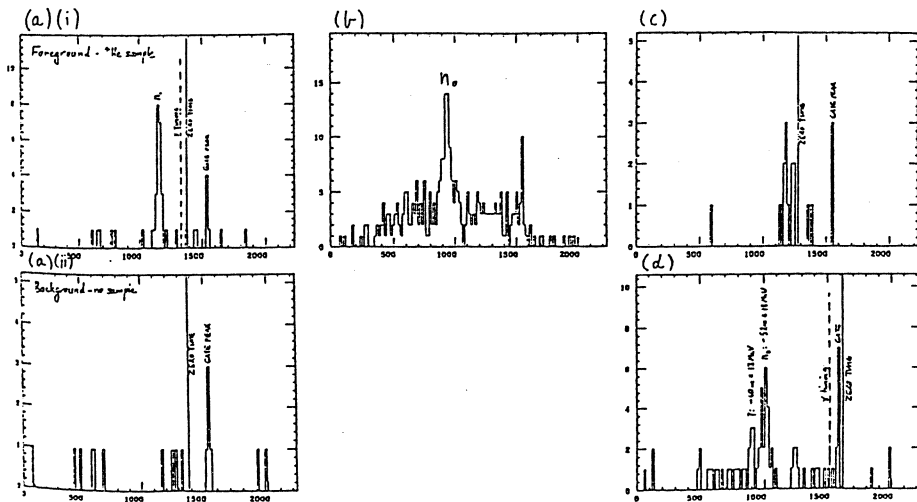


Fig. 2. A typical neutron time of flight spectrum.

Time-of-flight spectra. Time of flight decreases as the channel number increases. (a) (i) and (ii): $\theta_{lad}=90^\circ$, $E_\gamma=42$ MeV, foreground (36 hours) and background (15 hours) respectively; (b): $\theta_{lad}=90^\circ$, $E_\gamma=29\text{MeV}$; (c): $\theta_{lad}=90^\circ$, $E_\gamma=60$ MeV; (d): $\theta_{lad}=65^\circ$, $E_\gamma=42$ MeV

The firstly analyzed relative cross sections are shown in Fig. 3. They are not different from the previously compiled ${}^4\text{He}(\gamma, n)$ cross sections (shown in Fig. 4.) but these analyzed data are still preliminary. The geometrical and systematical error must be corrected for the absolute cross section. We have also measured the neutron spectra with higher energy tagged photons up to 100 MeV. They are now under the raw data analysis.

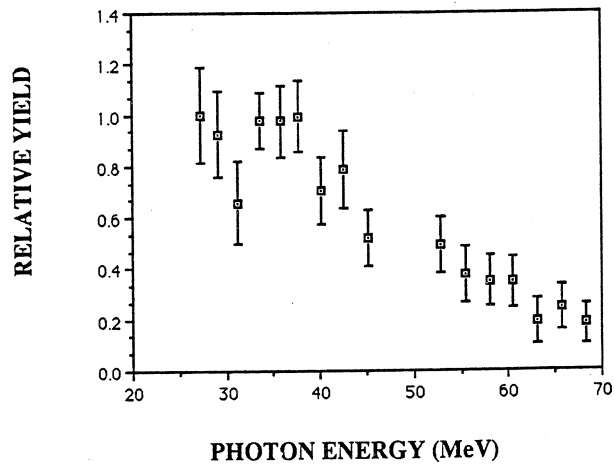


Fig. 3. Relative cross sections for ${}^4\text{He}(\gamma, n_0)$.

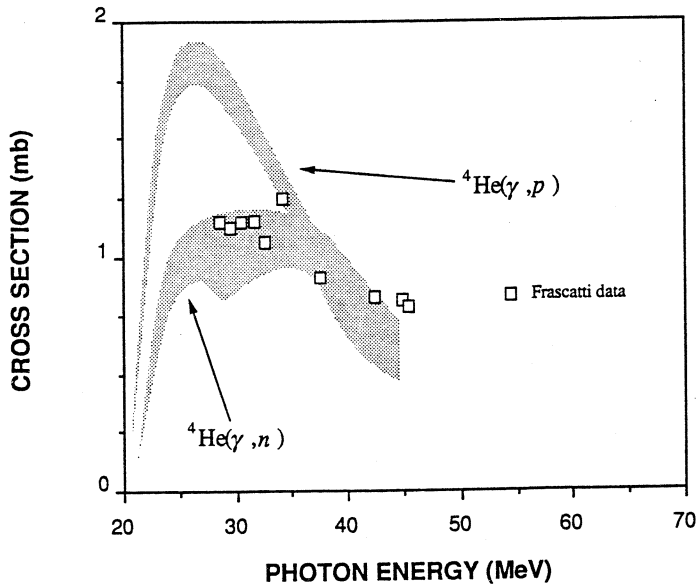


Fig. 4. Compiled cross sections for ${}^4\text{He}(\gamma, n_0)$ and ${}^4\text{He}(\gamma, p_0)$.

In summary, the ${}^4\text{He}(\gamma, n)$ reaction cross sections and angular distributions have been measured using tagged photons and a liquid helium target, for excitation energies around the GDR. The results may confirm the questions about the large discrepancy between the ${}^4\text{He}(\gamma, n)$ and ${}^4\text{He}(\gamma, p)$ cross sections.

References

- 1) R. Bernabei *et al.*: Phys. Rev. **C38** (1988) 1990.
- 2) J. R. Calarco, B. L. Berman and T. W. Donnelly: Phys. Rev. **C27** (1984) 1866.
- 3) C. L. Blilie *et al.*: Phys. Rev. Lett. **57** (1986) 543.
- 4) O. Konno *et al.*: Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **21** (1988) 326.

Ⅱ. 物 性 物 理

Coherent Synchrotron Radiation at Submillimeter and Millimeter Wavelengths

Yukio Shibata, Kimihiro Ishi, Toshiaki Ohsaka, Hideaki Mishiro,
Toshiharu Takahashi, Mikihiro Ikezawa
Yasuhiro Kondo,[†] Toshiharu Nakazato,^{††} Masayuki Oyamada,^{††} Nobuo
Niiimura,^{††} Shigekazu Urasawa,^{††} Ryukou Kato^{††} and Yoshiharu Torizuka^{††*}

*Research Institute for Scientific Measurements, Tohoku
University, Aoba-ku, Sendai 980*

[†] *Department of Applied Physics, Faculty of Engineering
Tohoku University, Aoba-ku, Sendai 980*

^{††} *Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University,
Taihaku-ku, Sendai 982*

To study the coherence effect of synchrotron radiation (SR), light emission from the Tohoku 300 MeV Linac, whose energy and bunch length of electrons were 180 MeV and a few millimeter, was observed in the submillimeter and millimeter wavelength regions by using a grating spectrometer. The absolute intensity of ordinary SR in the visible region was also measured. In comparison with ordinary SR, the absolute intensity of SR in the millimeter wavelength region was enhanced by about factor of 10^6 , which corresponded roughly to the number of electrons in one bunch. The intensity of enhanced SR showed the quadratic dependence on the beam current. The enhanced SR was strongly polarized in the electron orbital plane. The relation between the electron distribution in a bunch and the spectra of coherent SR is discussed.

§1. Introduction

Synchrotron radiation (SR) is a useful light source for spectroscopy especially at short wavelengths in VUV and X-ray regions.¹⁾ Recently, the usefulness of long wavelength SR in comparison with the conventional mercury arc lamp has also been recognized in the far-

* Present address: Atomic Energy Research Institute, Nihon University, Chiyoda-ku,
Tokyo 101

infrared region²⁻⁵); the main advantage of SR lies in its high radiance. This advantage of the far-infrared SR has been experimentally proved for ordinary (incoherent) SR in the storage ring.²⁻⁴ More intense coherent SR in the far-infrared region from a bunched electrons was discussed by Michel⁶, in analogy to the radiofrequency enhancement in the celestial pulsar.

Quantitative understanding of the coherence effect is important not only for the development of an intense light source in far-infrared spectroscopy, but also for studies in various fields such as the coherent emission of pulsar in astrophysics and the relativistic electrons in high energy physics. In usual storage rings, however, the coherent SR has not clearly observed in the far-infrared region, since the coherent SR is expected in the wavelength range comparable to or longer than the longitudinal bunch length, and the usual storage rings have the bunch length of a few centimeter or more. The first observation in the far-infrared region by Yarwood et al.² in the region $100-10\text{ cm}^{-1}$ in SRS-Daresbury suggested that such an enhancement was present. Schweizer et al.³, however, were unable to detect any enhancement for the range $1000-15\text{ cm}^{-1}$ at the BESSY ring with the bunch length of about 3 cm. More recently, Williams et al.⁸ observed no enhancement in the region $400-25\text{ cm}^{-1}$, by using the NSLS-BNL with the bunch length of 30 cm.

In the electron linear accelerator with the high RF frequency, the longitudinal bunch length is of a few millimeters. Using the Tohoku 300 MeV Linac, as was reported previously, we have first observed the coherence effect of SR⁹ in the far-infrared region; the intensity of SR was enhanced by about the factor of 10^5 , and the intensity showed quadratic dependence on the beam current. In this paper, we report further experiments to confirm and to make clear the coherence effect of SR in the submillimeter and millimeter wavelength regions. As a reference of the intensity of SR, photometry of the SR is made in the visible region, where no coherence effect is expected.

§ 2. Coherent SR and the Bunch Form Factor

According to the theory of coherent radiation^{7,8}, the intensity of SR at frequency ν by an ensemble of N electrons is expressed as follows,

$$P_{\text{coh}}(\nu) = [N + N(N-1)f(\nu)] P(\nu) = P_{\text{incoh}}(\nu) [1 + (N-1)f(\nu)], \quad (1)$$

where $P(\nu)$ is the intensity of SR by a single electron, $P_{\text{incoh}}(\nu)$ the intensity of incoherent SR by N electrons and $f(\nu)$ is a form factor which is defined by the Fourier transform of $S(\mathbf{r})$,

$$f(\nu) = \left| \int \exp(i 2 \pi \nu (\mathbf{n} \cdot \mathbf{r})/c) S(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \right|^2, \quad (2)$$

where \mathbf{n} is a unit vector directed from the electron to the observation point, and \mathbf{r} is a position vector of the electron. The quantities $(\mathbf{n} \cdot \mathbf{r})$ and $S(\mathbf{r})$ correspond to the longitudinal extension of the bunched electrons and the density distribution of an electron in the bunch, respectively. The bunch form factor varies from 0 (incoherent limit) to 1 (coherent limit). Therefore, it is expected that the intensity $P_{\text{coh}}(\nu)$ is proportional to N^2 and that an enhancement of the factor N , compared with the incoherent SR, occurs at the wavelengths comparable to or longer than the longitudinal bunch length. Hence the enhancement of the intensity of the order of 10^7 to 10^{11} are expected for coherent SR from typical storage rings.

By assuming the form of $S(\mathbf{r})$, the spectra of coherent SR can be calculated for some simple cases. Let the observation point be so far from the emitting point as to be able to ignore the phase difference between lights emitted from electrons on a plane perpendicular to the equilibrium orbit. When the density distribution of an electron in a bunch has rotational symmetry around the equilibrium orbit of the bunched electrons, the bunch form factor is given by using circular cylinder coordinates (ζ, ρ, θ) ,

$$f(\lambda) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} \int_0^{\infty} \exp(i 2 \pi \zeta/\lambda) 2 \pi \rho S(\zeta, \rho) d\rho d\zeta \right|^2, \quad (3)$$

where ζ -axis shows the direction of motion along the equilibrium orbit. The form factor is calculated for simple distributions as follows.

(a) Uniform cylindrical distribution

When we assume the following distribution,

$$S(\zeta, \rho) = \begin{cases} 1/(2 \pi \sigma_T^2 \sigma_L), & \text{for } -\sigma_L \leq \zeta \leq \sigma_L, 0 \leq \rho \leq \sigma_T \\ 0, & \end{cases} \quad (4)$$

then the form factor is given by,

$$f(\lambda) = \{\sin \alpha / \alpha\}^2, \quad (5)$$

where α is defined by,

$$\alpha = 2\pi\sigma_L / \lambda. \quad (6)$$

(b) Uniform ellipsoidal distribution

$$S(\zeta, \rho) = \begin{cases} 3/(4\pi\sigma_T^2\sigma_L), & \text{for } (\zeta/\sigma_L)^2 + (\rho/\sigma_T)^2 \leq 1 \\ 0, & \text{otherwise} \end{cases} \quad (7)$$

then,

$$f(\lambda) = 9\{\sin\alpha/\alpha - \cos\alpha\}^2/\alpha^4. \quad (8)$$

(c) Gaussian distribution

$$S(\zeta, \rho) = (1/\pi^{3/2}\sigma_T^2\sigma_L) \exp(-\zeta^2/\sigma_L^2 - \rho^2/\sigma_T^2), \quad (9)$$

then,

$$f(\lambda) = \exp(-\alpha^2/2). \quad (10)$$

The quantities $2\sigma_L$ and $2\sigma_T$ correspond to the longitudinal and transverse bunch lengths, respectively. The calculated bunch form factors are shown in Fig. 1. Relations given by eqs (5) and (8) show oscillations with decreasing amplitudes toward shorter

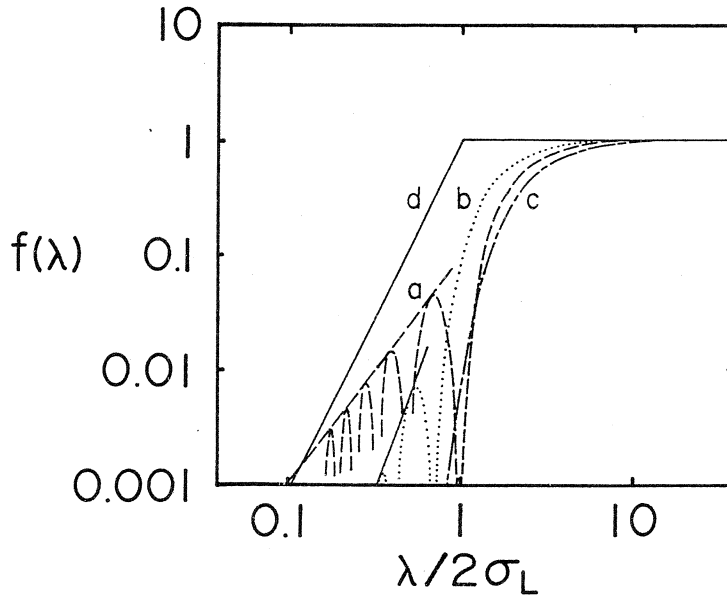


Fig. 1. Bunch form factors calculated for density distributions of an electron in a bunch; (a) uniform cylindrical distribution (dashed line); (b) uniform ellipsoidal distribution (dotted line); (c) Gaussian distribution (dot-dashed line). The envelopes of the bunch form factor for (a) and (b) are also given by straight lines. The form factor for Michel's theory is also shown by (d), the line broken at $\lambda/2\sigma_L = 1$.

wavelength, and the envelopes in the range $\lambda < \sigma_L$ are given by $f(\lambda) \sim \lambda^2 / (2\pi\sigma_L)^2$ and $f(\lambda) \sim 9\lambda^4 / (2\pi\sigma_L)^4$, respectively. The straight line in Fig.1, which is broken at $\lambda = 2\sigma_L$ and is proportional to λ^3 in the shorter wavelength range, shows the form factor predicted by Michel.⁶⁾

In general, we can approximate the form factor, as a first approximation, by a relation as $f(\lambda) \sim (\lambda / 2\pi\sigma_L)^n$ in the wavelength range shorter than the longitudinal bunch length.

When a distribution function $S(\zeta, \rho)$ is given by a product $g(\zeta)h(\rho)$, the bunch form factor reduces into that for one dimensional distribution function.

$$f(\lambda) = \left| \int \exp(i 2\pi \zeta / \lambda) g(\zeta) d\zeta \right|^2. \quad (11)$$

Hence the bunch form factors for the case (a) and (c) are equivalent to those for the rectangular and Gaussian distributions with a bunch length of $2\sigma_L$ in one dimension. In addition, the form factor for the case (b) is equal to that of uniform spherical distribution within the radius σ_L , since projections of the distribution on the ζ -axis are equivalent.

§3. Experimental

The experimental set up is shown in Fig. 2. The operational conditions of the linac were described previously⁹⁾: The accelerating RF frequency was 2856 MHz: The energy of the electron (E) was 180 MeV: The applied magnetic field to produce SR was 0.247 T. The average beam current was usually set to $1\mu\text{A}$ and could be controlled from 0 to $3\mu\text{A}$ by a beam profile defining slit. A duration of the burst, i. e., the electron bunch train, was selected to either $2\mu\text{sec}$ (long pulse) or $0.1\mu\text{sec}$ (short pulse) and its repetition was 300 pps. The related beam conditions are given in Table 1. The beam energy spread ($\Delta E/E$) was fixed to either 0.2 or 0.5%, corresponding to the longitudinal bunch lengths of 1.7 and 2.0 mm, respectively. Moreover, by installing a set of magnets (debuncher) in the beam transport system, the longitudinal bunch length was elongated to about 15 mm.

SR was collected by a round spherical mirror with the acceptance angle of 70 mrad, and was guided to a far-infrared spectrometer (HITACHI FIS-3), which covered the range $400-30\text{cm}^{-1}$ with three gratings in combination with several filters. In addition, another

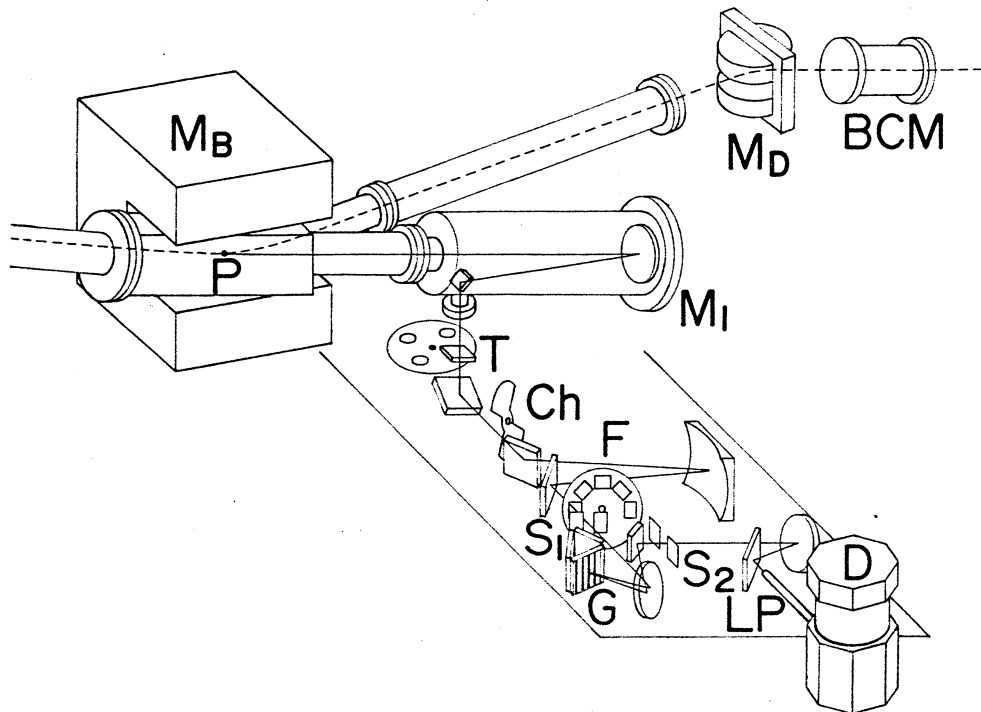


Fig. 2. Schematic layout of the measuring system. P: emitting point of SR, M_B : bending magnet, M_D : dumping magnet, BCM: beam current monitor, M_I : collecting mirror, T: turn table with shutter and polarizers, Ch: chopper, F: filter wheel, G: gratings, S_1 , S_2 : slits, LP: light pipe, D: Si bolometer. Trajectory of the electron beam is shown by a broken line.

Table 1. Experimental beam conditions.

	Short bunch		Long bunch
	Short pulse	Long pulse	Short pulse
Bunch duration (μ sec)	0.1	2.0	0.1
Electrons/bunch (10^6)	20	3.7	20
Energy spread (%)	0.2	0.2, 0.5	0.2
Bunch length (mm)	1.7	1.7, 2.0	15

two home-made gratings and two longwave-pass filters expanded the observable range to $30-15\text{ cm}^{-1}$ and $7.5-5\text{ cm}^{-1}$. Far infrared radiation was detected by a liquid-helium-cooled Si bolometer with suitable filters.

In the photometry of SR in the visible region, the same optical system was used with minor modifications: Three interference filters combined with color glass filters were installed whose peak wavelengths and half widths were 423nm/11.8nm, 521.8nm/12.3nm and 638.4nm/17.4nm; a grating was replaced by a plane mirror; a photomultiplier tube (PMT) with a magnetic shield case was placed behind the exit slit of the spectrometer.

The absolute sensitivity of the measuring system was calibrated in the visible region by a standard halogen lamp of 500W with a suitable neutral density filter and in the long wavelength region by a mercury arc lamp of 700W in the spectrometer which was supposed to be a blackbody radiation source of 4000 K.^{10,11)} Difference of the acceptance angle between the mercury arc lamp and SR was taken into account. In the long wavelength region, the main error in the absolute intensity of SR is brought about from the uncertainty of the effective temperature of the mercury arc lamp. The accuracies of the absolute intensity were estimated to be within the factor of 1.5 in the visible region and 2 in the long wavelength region. The radioactive background noise in the laboratory during the experiment was measured to be negligible.

§ 4. Results and Discussion

4. 1 Spectrum

In Fig. 3, observed intensities of SR from the electron beam with long duration of burst without the debuncher magnets (in later described as long pulse/short bunch) at the beam current of $1 \mu\text{A}$ are shown in circle "A", where the bunch lengths were 1.7 (solid line) and 2.0mm (broken line). With that of ordinary (incoherent) SR, calculated intensities of coherent SR are also shown for the Gaussian distribution (broken line) and Michel's theory (dot-dashed line), provided of the longitudinal bunch length of 2.0mm. Results of the photometry in the visible region for the long pulse/short bunch beam are also shown in the circle "B". As was expected, the intensities of SR in the visible region are in agreement with the calculated incoherent SR. On the other hand, as shown in "A", the observed intensities in far-infrared region are drastically enhanced for both bunch lengths of 1.7 and 2.0 mm; the enhancement factor is about 2×10^6 at $\lambda \sim 1.7$ mm for both bunch lengths. The factor corresponds roughly to N which is estimated to be $3.7 \times$

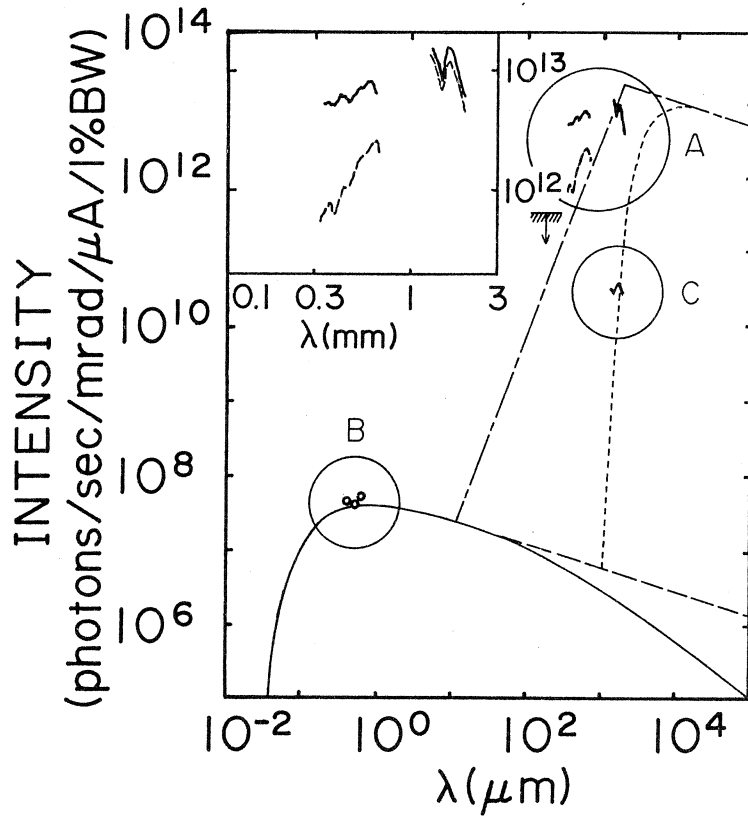


Fig. 3. Observed spectra of SR in both visible and long wavelength regions. The spectra in "A" were obtained by using the long pulse/short bunch for the bunch lengths of 1.7 (solid line) and 2.0 mm (broken line), and is expanded in the inset. Data in circle "B" are the intensities for the long pulse/short bunch with the bunch length of 1.7 mm and in "C" for short pulse/long bunch of 15 mm bunch length. The hatching shows the level of stray light during the observation of the 2.0 mm bunch, caused from the enhanced SR at the longer wavelengths. The solid curve shows calculated intensity of ordinary SR for the experimental conditions. The dashed part is without correction for the acceptance angle of 70 mrad. Calculated intensities of coherent SR are shown for the electrons of the Gaussian distribution (broken line) and for Michel's theory (dot-dashed line).

10^6 for the present experiment. In comparison with the spectrum for the bunch length of 1.7 mm, the spectrum for the 2.0 mm bunch decreases rapidly toward shorter wavelengths, while it has similar spectrum to the one for the 1.7 mm bunch in the short millimeter wavelengths. The spectrum in the range $\lambda < 330 \mu\text{m}$ were not observed correctly because of the stray light of enhanced SR at longer wavelengths.

When the longitudinal bunch length was elongated to 15 mm, the intensity of SR at millimeter wavelengths was decreased by more than two orders of magnitude as shown in "C" of Fig. 3. The beam condition of the short pulse/long bunch for "C" was different with that of the long pulse/short bunch beam for "A" and "B"; the result in "C" could be converted to the long pulse condition, according to the intensity- N relation given in § 4. 2. In the submillimeter region, the intensity of SR was too weak to be observed.

4. 2 Intensity-beam current relation

The observed dependence of SR intensity on the electron beam current is shown in Fig. 4 for both visible and long wavelength regions. The beam current was varied by controll-

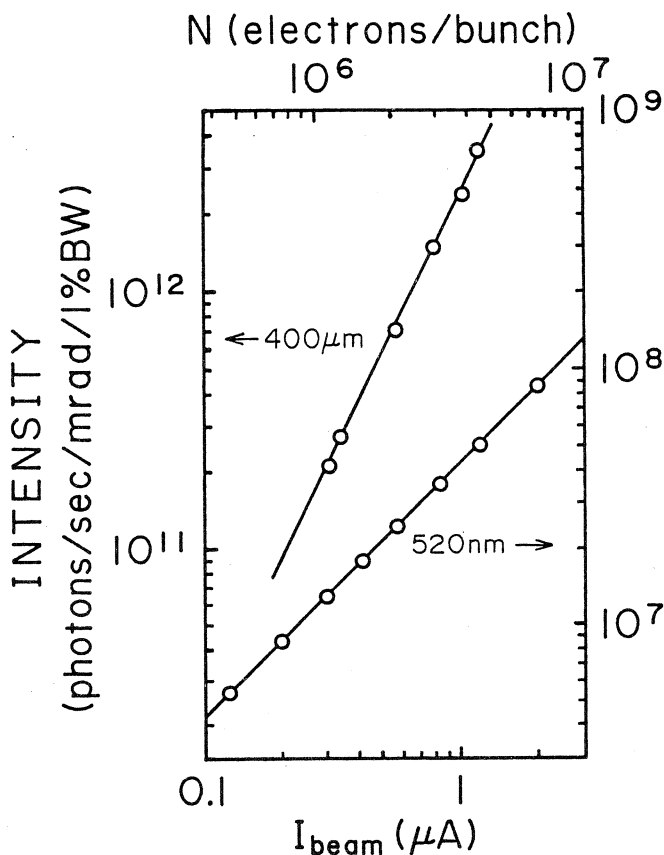


Fig. 4. Dependence of SR intensity on the beam current at $\lambda=400 \mu\text{m}$ and $\lambda=520 \text{nm}$ for the long pulse/short bunch beam. The ordinate is given on the left hand side for $\lambda=400 \mu\text{m}$ and on the right for $\lambda=520 \text{nm}$. The two lines show the linear and quadratic relations to the beam current. The beam current is converted to the average number of electrons in a bunch on the upper side.

ing N , while the number of bunch per second was kept constant. In the visible region, the intensity is proportional to the beam current. On the other hand, the SR intensity at $400 \mu\text{m}$ is proportional to the square of the electron beam, i. e. to N^2 .

4.3 Degree of polarization

Degree of polarization of the enhanced SR in the far-infrared region was measured for the range $30-15 \text{ cm}^{-1}$ and at 6.75 cm^{-1} . The results are shown in Fig. 5. The coherent SR

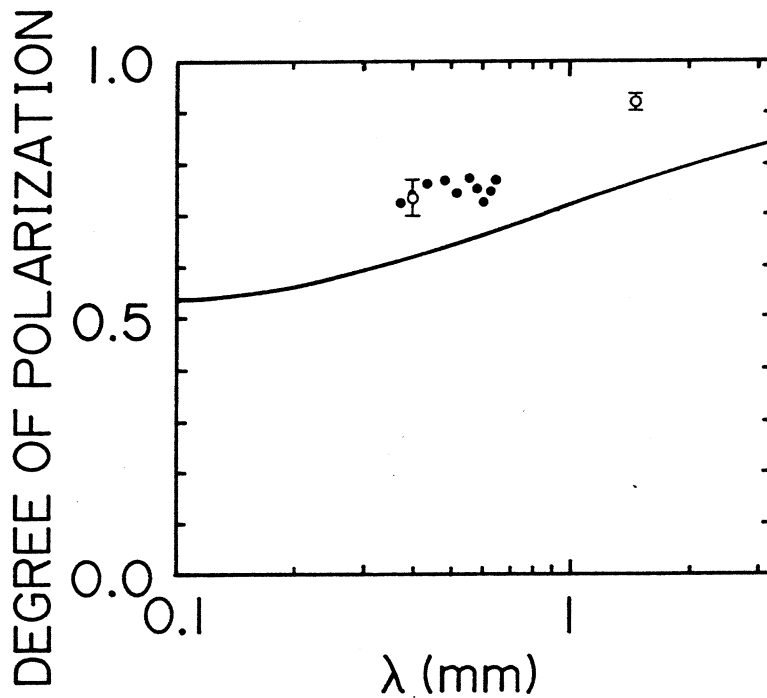


Fig. 5. Polarization of SR in long wavelength region for the long pulse/short bunch (filled circle) and short pulse/short bunch (open circle) beams. The solid curve shows the calculated one for ordinary SR with the acceptance angle of 70 mrad.

was strongly polarized in the direction of the electron orbital plane. The degree of polarization is defined as $P = (I_{\parallel} - I_{\perp}) / (I_{\parallel} + I_{\perp})$ where I_{\parallel} and I_{\perp} are the intensities of polarized light whose electric vectors are parallel and perpendicular to the orbital plane, respectively. In Fig. 5 is also shown a curve which gives calculated values of P for incoherent SR for the optical acceptance angle of 70 mrad. From the figure, the observed

P seems to have larger values than the calculation. In comparison with ordinary SR, however, it is not clear whether the enhanced SR is more polarized in the orbital plane or not, since measurements of the ordinary SR in submillimeter region also give somewhat larger values of P than the calculation due to the influence of the diffraction.²⁻⁴⁾

4.4 Bunch form factor

The spectrum of the enhanced SR depends on the bunch form factor $f(\nu)$. The form factor derived from the observed spectrum of "A" in Fig. 3 with the bunch length of 2.0 mm is shown by "A" in Fig. 6, where the results of the calculation given in § 2 are also

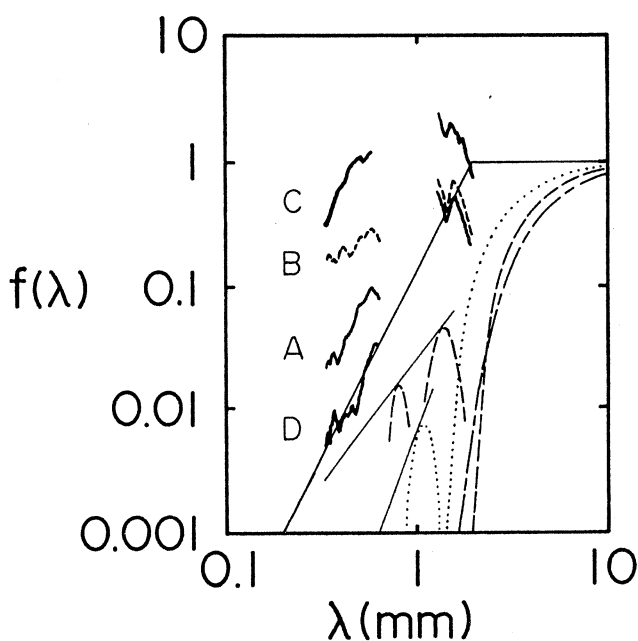


Fig. 6. Bunch form factors of the observed spectra for following experimental conditions. A: $\Delta E/E=0.5\%$, B: $\Delta E/E=0.2\%$, C: enhanced electron number (short pulse/short bunch), D: defocused electron beam. In the case of "D", the spectrum was not measured in the millimeter region. The calculation given in Fig. 1 is also given for the bunch length of 2.0 mm. The solid line broken at $\lambda = 2$ mm shows the relation predicted by Michel.

shown. The operational conditions of the linac were not so simple to manipulate the electron distribution in a bunch. However, some relations have been obtained between the beam conditions and the spectra of enhanced SR in the long wavelength region as follows:

1) As stated above, the intensity of coherent SR decreased when the bunch length was elongated to 15 mm. If we assume the spectrum is given approximately by $P(\lambda) \sim (\lambda / 2 \sigma_L)^u$, where the quantity $2 \sigma_L$ shows the longitudinal bunch length, the intensity ratio between the spectra of the bunch lengths of 2.0 and 15 mm gives the power index of $u=4$.

2) When the beam energy spread ($\Delta E/E$) was varied from 0.5% to 0.2%, the bunch form factor increased in the shorter wavelength region, while it remained unchanged in the millimeter region as shown in Fig. 6 by broken lines. The bunch length was varied from 2.0 mm to 1.7 mm corresponding to the variation of beam energy spread, which should make the spectrum shift a little toward shorter wavelength unless the bunch shape alters. Hence, the difference in the spectra seems to be caused mainly from variation of density distribution of the electron in a bunch. It is possible that narrowing the energy analysing slit scrapes away electrons into fragments of electrons with various sizes, whose Fourier components correspond to the bunch form factor in the shorter wavelength region.

3) When the duration time of the bunch train was changed from 2 μ sec to 0.1 μ sec, electron beam current decreased by a factor of about 7. It resulted in increase of N by a factor of about 3. Then, the bunch form factor was increased, as shown in Fig. 6 by "C". This result suggests that the increase of N brings about variation of the distribution function which makes the bunch form factor large. The observed form factor is larger than unity around the peak. Since the form factor has, by the definition, the upper limit of unity, it implies that (1) the uncertainty of the absolute intensity described earlier may be underestimated in the long wavelength region and/or (2) bunch train has some irregularities so that the mean of N has somewhat ambiguous factor, as suggested by the observation of the bunch duration by Kato et al.¹²⁾

4) When the electron beam was defocused by the quadrupole magnet, transverse and longitudinal sizes of the bunch were expanded by almost double. Then, the bunch form factor decreased as shown by the curve "D" in Fig. 6. If we assume the defocusing does not influence the electron distribution in a bunch, we can express the spectrum approximately as $P(\lambda) \sim (\lambda / 2 \sigma_L)^3$ in the submillimeter wavelengths. Comparison of the spectra between "A" and "D" shows that the longitudinal bunch length was elongated to

3.4 mm by the defocusing.

Even though the observed spectra of SR in the submillimeter wavelengths varied sensitively according to beam conditions of the linac, comparison of the observed bunch form factor with the calculation strongly suggests the following three points: (1) The effective bunch length estimated from the observed spectrum is much shorter than the one derived from the experimental condition of the linac; for example, effective bunch length of 0.7 mm is obtained instead of 2.0 mm by fitting the observed spectrum "A" to the uniform cylindrical distribution. (2) Density distribution function of an electron in a bunch varies sensitively according to the beam condition of the linac, as described above. (3) The density distribution of bunched electrons from the linac is not so simple as of the Gaussian. The above point (1) disagrees with the observational result of the bunch length by a streak camera,¹²⁾ and the relation between the bunch structure and the spectrum is remained to further investigations. The analysis of a well resolved spectrum of SR will give the information on the distribution of the bunched electrons.

Acknowledgements

We thank Mr. T. Tsutaya and the staff at the Laboratory of Nuclear Science for their technical support and assistance. We would also like to express our thanks to Dr. K. Ueda for lending the standard lamp, to Dr. T. Tanji for the electron meter, and to Dr. T. Nanba of Kobe University for valuable discussion.

References

- 1) E. E. Koch: "*Handbook on Synchrotron Radiation*", (North-Holland Pub. Amsterdam, 1983).
- 2) J. Yarwood, T. Shuttleworth, J. B. Hasted and T. Nanba: *Nature* **312** (1984) 742.
- 3) E. Schweizer, J. Nagel, W. Braun, E. Lippert and A. M. Bradshaw: *Nucl. Instr. and Meth.* **A239** (1985) 630.
- 4) T. Nanba, Y. Urashima, M. Ikezawa, M. Watanabe, E. Nakamura, K. Hukui and H. Inokuchi: *Int. J. Infrared and Millimeter Waves* **7** (1986) 1769.
- 5) D. Duncan and G. P. Williams: *Appl. Opt.* **22** (1983) 2914.

- 6) C. Michel: Phys. Rev. Lett. **48** (1982) 580.
- 7) J. S. Nodvick and D. S. Saxon: Phys. Rev. **96** (1954) 180.
- 8) G. P. Williams, C. J. Hirschmugl, E. M. Kneedler, P. Z. Takacs, M. Shleifer, Y. J. Chabal and F. M. Hoffmann: Phys. Rev. Lett. **62** (1989) 261.
- 9) T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, O. Konno, A. Kagaya, R. Kato, T. Kamiyama, Y. Torizuka, T. Nanba, Y. Kondo, Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka and M. Ikezawa: Phys. Rev. Lett. **63** (1989) 1245.
- 10) J. Bohdanský: Z. Phys. **149** (1957) 383.
- 11) A. J. Lichtenberg and S. Senic: J. Opt. Soc. Am. **56** (1966) 75.
- 12) R. Kato, M. Oyamada, T. Nakazato, S. Urasawa, A. Kagaya, A. Kurihara, S. Takahashi, Y. Shibasaki, I. Sato and K. Nakahara: Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **21** (1988) 346.

X線および中性子線回折による KH_2AsO_4 および KD_2AsO_4 の相転移の研究

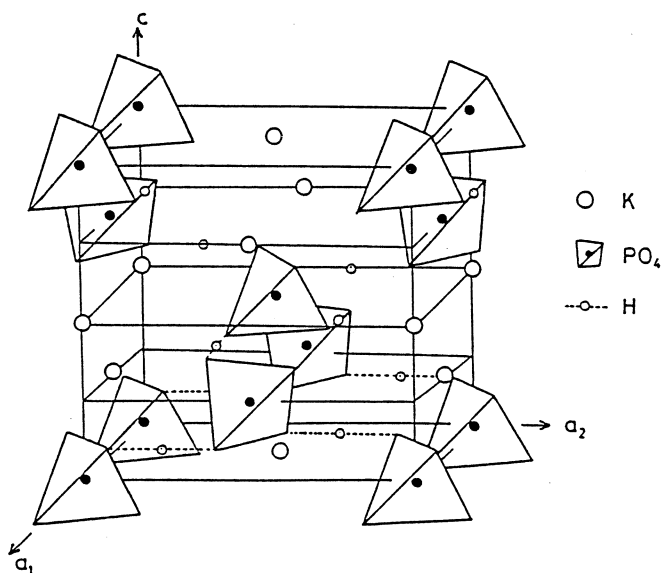
工学部応用物理, 核理研*

山田芳文・川野正一・小野泰弘・

山田 昌・新村信雄*

§1. 序

KH_2PO_4 (KDP) と同型の結晶は, 常誘電相から強誘電相へ転移するものが多い。この相転移機構は古くから研究されており, XO_4 基 (X: P, As) を結ぶ水素結合上の水素原子核 (プロトン) の重要性が指摘されてきた。¹⁾ 第1図にKDPの結晶構造を示す。この水素原子を重水素Dで置き換えた結晶は, 転移点を大きく上昇させるいわゆる同位体効果を示し, プロトンのトンネリングを考慮することにより説明された。²⁾ さらに, プロトンの集団運動 (プロトンモード) と格子振動モードとの結合モードのソフト化により, 水素結合に垂直な方向に生じる自発分極も説明された。³⁾



第1図 KDPの結晶構造。

最近になって, このようなプロトントンネリングによる変位型の相転移に対しラマン散乱な

どから XO_4 基の秩序無秩序型相転移モデルが提唱された。⁴⁾ 加えて精度の高い結晶構造データから幾何学的同位体効果の存在が明かとなり、KDP型結晶に対する相転移の再検討が必要となってきた。⁵⁾ KDP型結晶の中では KH_2AsO_4 (KDA)だけが幾何学的同位体効果を示さないとされており、⁶⁾ KDAではプロトトンネリングだけで転移点の同位体効果が生じていることになる。しかし、KDAだけが特異な相転移機構を持つことは不自然である。また、KDAを除くKDP型結晶の転移温度は水素結合距離だけで決まるように見えることから、⁷⁾ 格子系との結合についてKDAを含めて検討されるべきである。

本研究の目的は、X線結晶構造解析によりKDAおよびDKDAの結晶構造を、中性子線回折によりDKDAの結晶構造を精密に決定し、KDP型結晶の相転移機構を再検討することである。

§2. 結晶育成

KDA単結晶は市販されているKDA粉末の水溶液から徐冷法によって育成された。その際に、針状結晶にならないようにKOHを用いて母液のpHを6.2に調整した。DKDA単結晶は、KDA粉末を重水に溶かした後析出させた。重水置換率を高めるために、この過程を3回繰り返した。

重水置換率は、2,3のブラッグ反射強度の温度依存性により決定された転移点から得られ、約95%であった。

§3. X線結晶構造解析

X線回折強度測定を行った温度は、それぞれ、KDAに対して107K, 127K, 180K, 240K, 293K, DKDAに対して162K, 167K, 187K, 220K, 250K, 293Kであった。測定範囲、得られた反射数などを第1表にまとめて示す。回折データに対してローレンツ因子、偏光因子及び吸収因子の補正を施し、解析にはブロック近似最小自乗法を用いた。解析の最終段階では消衰補正も行った。その結果、全ての測定に対しR因子は3%あるいはそれ以下となり、原子パラメータの精密化は終了した。決定された原子パラメータを第2表に示す。

温度因子は原子の熱振動や統計的乱れの程度を表しているが、各原子が調和振動をしているという仮定のもとでは絶対温度に比例する。KDA, DKDAの場合はAs原子の U_{33} を除いて、温度因子 U_{ii} は絶対温度に比例している。温度因子 U_{ii} の温度依存性を第2図に示す。この結果はNelmes et al.によるKDPの解析の結果⁸⁾と同じ傾向を示している。従って、KDA,

第1表 X線回折強度の測定条件。

(a) KDA

Temperature (K)	107	127	180	240	293
Max ($\sin \theta / \lambda$)	0.705	0.705	0.705	0.705	0.906
Max 2θ (degree)	60	60	60	60	80
Reflections measured	328	328	328	328	618
Reflections Used in refinement	320	324	321	322	546
Lattice constant					
a (Å)	7.589(2)	7.592(2)	7.599(2)	7.608(2)	7.616(2)
c (Å)	7.075(4)	7.076(4)	7.097(3)	7.115(4)	7.134(4)
R_w (%)	3.33	3.51	3.13	3.23	3.33
R (%)	2.81	2.88	2.60	2.67	2.85

(2) DKDA

Temperature (K)	162	167	187	220	250	293
Max ($\sin \theta / \lambda$)	0.705	0.705	0.705	0.705	0.705	0.906
Max 2θ (degree)	60	60	60	60	60	80
Reflections measured	325	328	328	328	328	618
Reflections Used in refinement	322	324	326	325	320	551
Lattice constant						
a (Å)	7.610(1)	7.610(1)	7.613(1)	7.616(1)	7.620(1)	7.623(2)
c (Å)	7.114(3)	7.117(3)	7.125(3)	7.137(4)	7.146(3)	7.157(4)
R_w (%)	2.78	2.87	3.10	3.06	3.26	3.37
R (%)	2.36	2.41	2.61	2.58	2.85	3.25

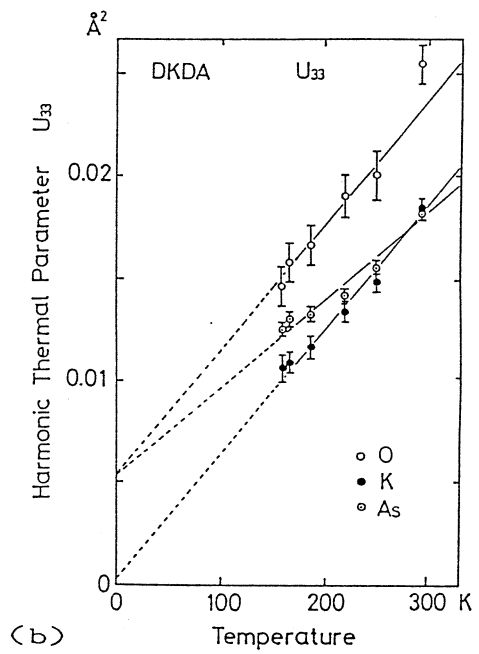
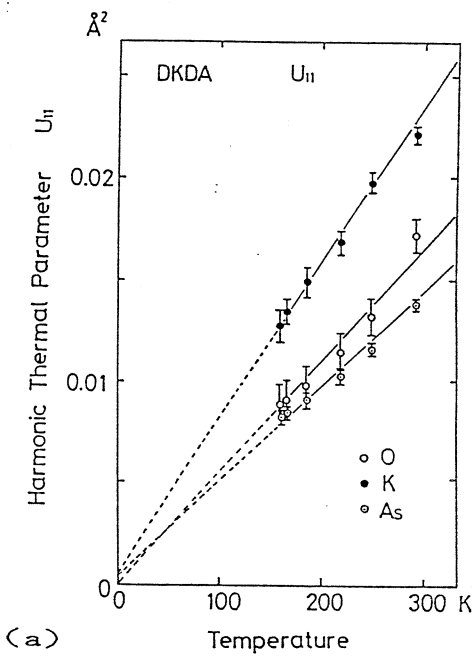
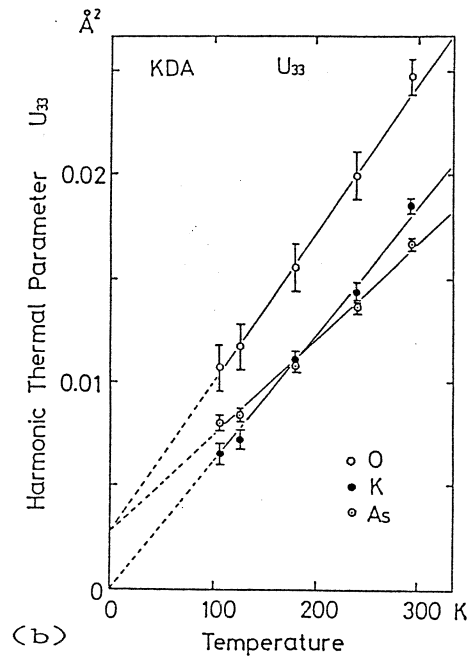
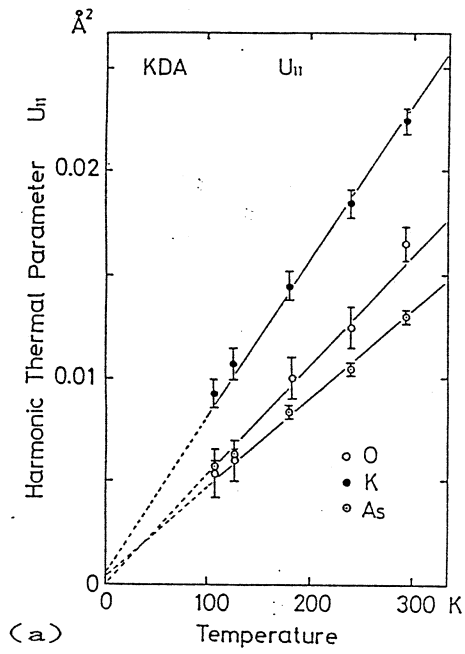
第2表 X線回折強度の解析結果。

(a) KDA

Atom	Parameter	107K	127K	180K	240K	293K
As	B ₁₁ (=B ₂₂)	0.001947(96)	0.002072(100)	0.002876(91)	0.003546(087)	0.004392(58)
	B ₃₃	0.003214(93)	0.003297(96)	0.004331(88)	0.005349(086)	0.006632(60)
K	B ₁₁ (=B ₂₂)	0.003313(212)	0.003653(225)	0.004940(213)	0.006281(190)	0.007653(154)
	B ₃₃	0.002581(186)	0.002819(195)	0.004285(185)	0.005597(170)	0.007193(133)
O	x	0.16050(34)	0.16034(35)	0.16033(32)	0.15978(33)	0.15959(25)
	y	0.08537(39)	0.08534(39)	0.08534(36)	0.08520(37)	0.08529(29)
	z	0.13643(43)	0.13627(39)	0.13624(43)	0.13615(45)	0.13579(35)
	B ₁₁	0.001935(327)	0.002083(338)	0.003432(321)	0.004232(300)	0.005567(241)
	B ₂₂	0.003158(365)	0.002957(374)	0.003665(341)	0.004636(331)	0.006227(259)
	B ₃₃	0.004222(416)	0.004619(435)	0.006082(413)	0.007761(376)	0.009595(310)
	B ₁₂	0.000455(647)	0.000683(669)	0.001142(619)	0.001588(587)	0.001757(444)
	B ₁₃	-0.002458(810)	-0.002845(844)	-0.003657(805)	-0.005247(741)	-0.006192(574)
	B ₂₃	-0.001626(777)	-0.001749(805)	-0.002187(751)	-0.003170(712)	-0.004036(577)

(2) DKDA

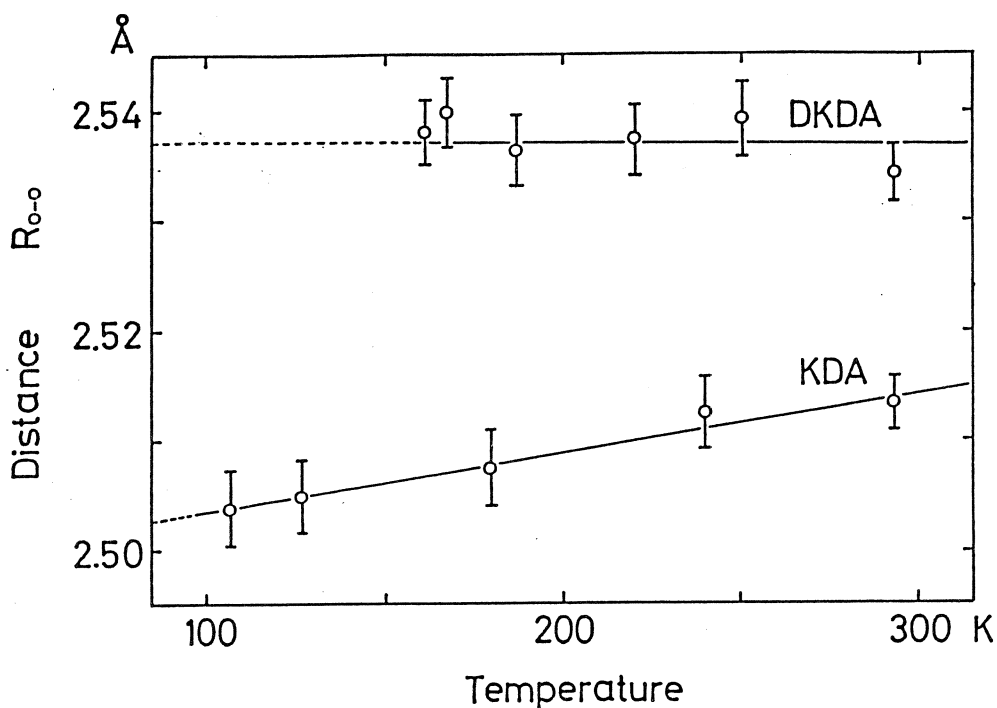
Atom	Parameter	162K	167K	187K	220K	250K	293K
As	B ₁₁ (=B ₂₂)	0.002852(80)	0.002946(83)	0.003111(88)	0.003453(89)	0.003893(95)	0.004659(56)
	B ₃₃	0.005092(80)	0.005163(84)	0.005197(88)	0.005466(88)	0.005968(95)	0.007123(58)
K	B ₁₁ (=B ₂₂)	0.004359(178)	0.004591(187)	0.005118(204)	0.005743(209)	0.006739(234)	0.007492(142)
	B ₃₃	0.004236(159)	0.004314(168)	0.004531(179)	0.005168(183)	0.005712(201)	0.007170(122)
O	x	0.16085(27)	0.16053(28)	0.16047(30)	0.16031(30)	0.16021(33)	0.16010(25)
	y	0.08347(31)	0.08331(32)	0.08371(34)	0.08374(34)	0.08369(38)	0.08406(29)
	z	0.13619(37)	0.13625(38)	0.13588(40)	0.13621(41)	0.13594(44)	0.13538(34)
	B ₁₁	0.002929(272)	0.003054(286)	0.003290(303)	0.003874(310)	0.004423(339)	0.005877(228)
	B ₂₂	0.004090(304)	0.003951(314)	0.004349(336)	0.004544(338)	0.005359(378)	0.006335(248)
	B ₃₃	0.005964(350)	0.006191(372)	0.006442(396)	0.007362(408)	0.007675(437)	0.009863(306)
	B ₁₂	0.000895(536)	0.001015(558)	0.000932(589)	0.001271(605)	0.001734(671)	0.002012(433)
	B ₁₃	-0.003096(684)	-0.003824(717)	-0.003580(759)	-0.004388(787)	-0.004249(855)	-0.005583(554)
	B ₂₃	-0.002233(660)	-0.002433(684)	-0.002814(730)	-0.002388(746)	-0.003395(810)	-0.004345(552)



第2図 KDA, DKDA の温度因子 U_{ii} の温度依存性。

DKDA においても XO_4 基の中心にある原子の平衡位置の乱れ、即ち、 XO_4 基の対称性の低下の可能性が示された。

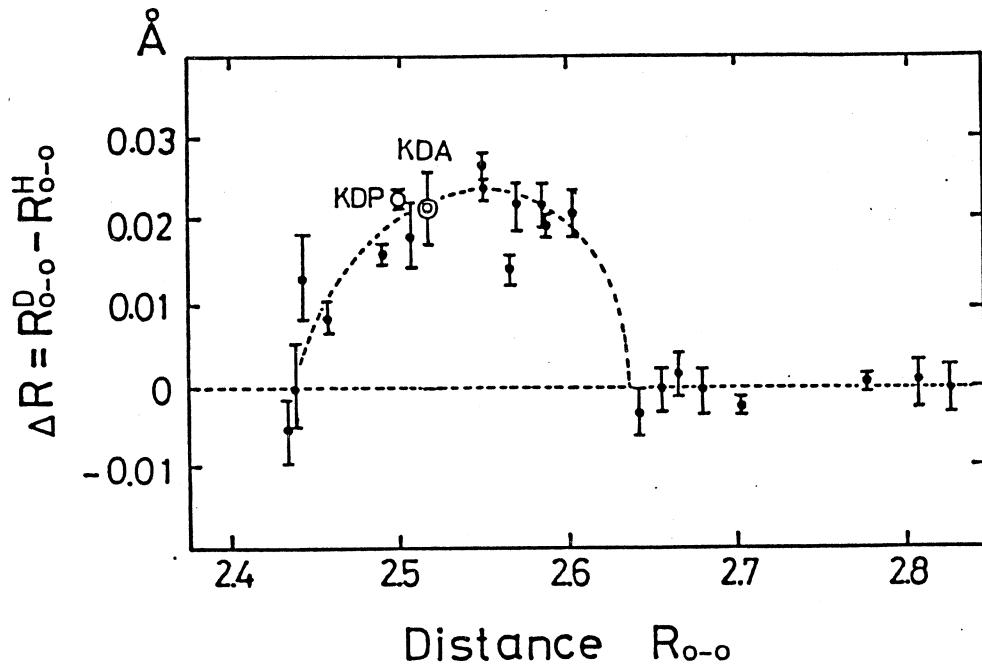
幾何学的同位体効果および水素結合距離と転移点の関係を調べるために水素結合距離を求めた。その結果を第3図に示す。これより、幾何学的同位体効果の有無を調べたところ、第4図に示すように KDA にも幾何学的同位体効果が存在し、経験則から得られた曲線によく乗っていることが明らかになった。また、水素結合距離と転移点の関係を描くと第5図のようになり KDP 型の結晶の転移点は水素結合距離だけによるものでないことが結論される。



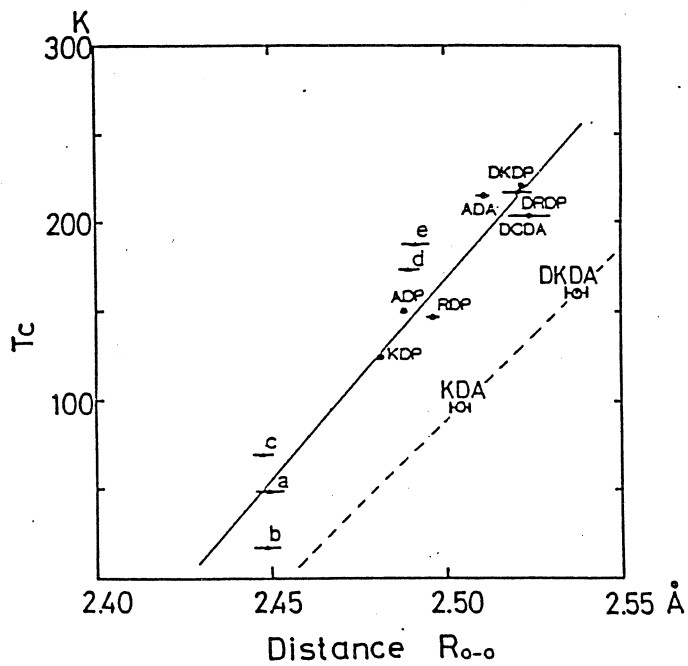
第3図 KDA, DKDA の水素結合距離 R_{O-O} の温度依存性。

§4. 中性子結晶構造解析

KDP 型の結晶の転移点は水素結合距離だけによるものでないことが X 線回折により示されたが、プロトンの存在する水素結合上の二極小ポテンシャル間の距離（プロトン間距離）と転移点との関係はまだ明らかにされていない。KDP, DKDP に限れば様々な温度圧力下における中性子回折の結果、転移点はプロトン（デュートロン）間距離によって決まることが見いだされている。⁹⁾ 従って、KDA, DKDA に関しても同様の測定を行ってプロトン（デュートロ



第4図 KDAの幾何学的同位元素効果。



第5図 KDP型結晶の転移点と水素結合距離 R_{O-O} 。

ン)の位置を決定し、KDP, DKDPと比較検討することが必要である。使用した中性子回折装置は、東北大学理学部原子核理学研究施設の PSD - TOF 中性子分光器である。KDA に対する測定は既になされているため、本研究では DKDA に対する室温での測定が行われた。結晶構造を見ると、プロトン間距離を計算するのに必要なパラメータは重水素原子の y 座標であることから ($hk0$) 面からの回折強度のみを測定した。

解析はX線の場合と同様にブロック近似最小自乗法によった。強度データに対する補正は行わず、消衰効果の大きな反射を取り除いて使用した。その個数は40個であった。全原子の温度因子を等方で近似し、酸素原子の x, y, z , デュートロンの x, y 座標は固定したので、精密化のパラメータは5個であった。最終的にR因子は8.2%となった。得られたパラメータの値を第3表に示す。

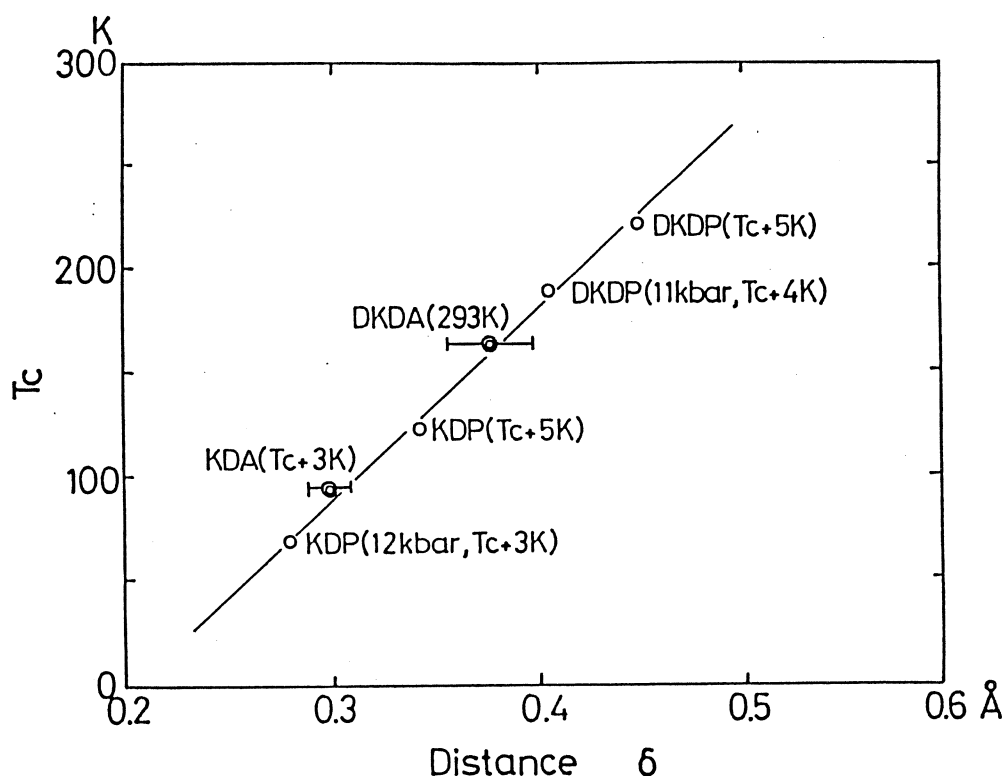
第3表 中性子回折強度の解析結果。

DKDA		
Atom	Parameter	293K
As	B	0.622 (98)
K	B	0.723 (180)
O	B	0.828 (54)
D	Y	0.22285 (162)
	B	3.557 (318)

第3表の値を使って、熱振動のライディング補正を行い、デュートロン間距離を求めると $0.381(20)\text{\AA}$ となった。このとき格子定数はX線によって決められた値を用いた。第3図に示されたように、DKDAの水素結合距離は温度に対して変化しないのでデュートロン間距離もまた変化しないものと考えられる。第5図で見たように、KDA, DKDAは他のKDP型結晶の水素結合距離と転移点の関係に一致しない。しかし、第6図に示すように、プロトン、デュートロン間距離に対する転移点で見ると同一直線上にのっている。従って、KDP型結晶の転移点はプロトン(デュートロン)間距離によって決まると結論される。

§5. まとめ

KDA, DKDAのX線結晶構造解析の結果、KDAにも他のKDP型結晶と同様に幾何学的同



第6図 KDP, DKDP, KDA, DKDA の転移点とプロトン（デュートロン）間距離。

位体効果が認められ、定量的にも経験則によく合っていることがわかった。

DKDA の中性子回折実験からは、デュートロン間距離が決定され、KDP, DKDP および KDA のプロトン（デュートロン）間距離と転移点の関係を示す直線によくのっていることが明かとなった。従って、KDP 型結晶に於て、転移点はプロトン（デュートロン）間距離によって決まると結論される。

参 考 文 献

- 1) J. C. Slater: J. Chem. Phys. **9** (1941) 16.
- 2) R. Blinc: J. Phys. Chem. Solid. **13** (1960) 204.
- 3) K. Kobayashi: J. Phys. Soc. Jpn. **24** (1968) 497.
- 4) Y. Tominaga, M. Tokunaga and I. Tatsuzaki: J. Appl. Phys. **24**, Suppl. 24-2(1985)908.
- 5) M. Ichikawa, K. Mochida and N. Yamada: Phys. Rev. B **36** (1987) 874.
- 6) 松下栄子: 固体物理 **18** (1983) 737.

- 7) M. Ichikawa, K. Mochida and N. Yamada: Phys. Rev. B **36** (1987) 874.
- 8) R. J. Nelmes, G. M. Meyer and J. E. Tibballs: J. Phys. C **15** (9182) 59.
- 9) R. J. Nelmes: J. Phys. C **21** (1988) L 881.

Ⅲ. 放 射 化 学

アセチルアセトン錯体に対する中心金属置換反応のエネルギー依存性

理学部化学

宮川 篤・関根 勉・吉原賢二

§1. 序 論

インプランテーション法は、高エネルギーの粒子を反応させることができるという点で、固相中のホットアトム反応のシミュレーションを行うことができるのではないかと考えられている。しかし、両者の反応様式が必ずしも一致するとは限らず、その相違点を明らかにするための研究が行われている。このような相違点の一つとして、インプランテーション反応においては数十keVといった非常に高いエネルギー領域での収率の変化がみられるという事実が以前から報告されていた。その研究のほとんどはイオンインプランテーション法によるもので、マクロ量イオンによる放射線効果などの問題を含んでいた。

我々は前報¹⁾において、薄膜状反跳源を用いることによって核反応反跳インプランテーション法をこのエネルギー依存性の研究に適用することができることを示した。すなわち、従来は核反応を変えることによってのみ打ち込む原子のエネルギーを変化させていたものを、反跳源を薄膜とし、その厚さを変えることでさらに細かくエネルギーを変化させることができた。

今回は、この薄膜法を用いて $^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$ 反応により反跳 ^{51}Cr 原子を $\text{Rh}(\text{acac})_3$ 中に打ち込んだ場合の中心金属置換反応のエネルギー依存性について報告し、他の ^{51}Cr を生成する核反応による結果および前報での $\text{Fe}(\text{acac})_3$ に対する結果とあわせて、置換反応に影響を及ぼす因子について考察を行う。

§2. 実 験

照射試料は、以前報告¹⁾したものと同様に調製した。すなわち、マイラーフィルム上にクロム金属を真空蒸着してクロム薄膜（反跳源）をつくった。その厚さは蒸着量を変えることによって変化させ、定量は同時に照射した標準試料と比較することで行った。反跳源を飛び出してくる ^{51}Cr の反応対象錯体（捕集体）としては $\text{Rh}(\text{acac})_3$ を選び、常法によって合成し昇華精製したものを、昇華法によってクロム薄膜上につけた。

照射は東北大学原子核理学研究施設にある電子ライナックで得られる最大エネルギー50 MeVの制動放射線を用いた。その際の電流値は約100 μA で、未転換電子は掃引磁場によって

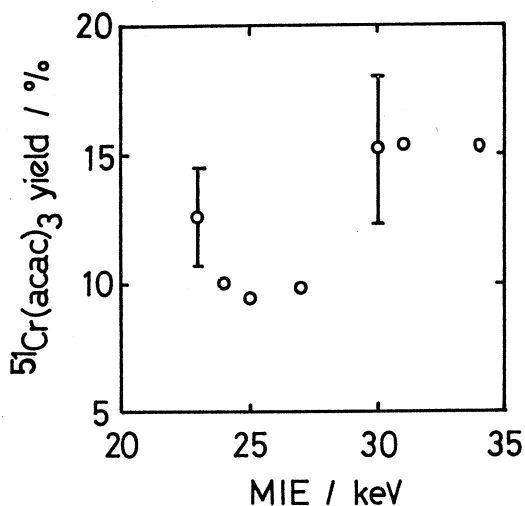
除去した。また照射中の試料の温度上昇を防ぐため液体窒素で冷却した窒素ガスを試料に吹きつけ $-100\sim-130^{\circ}\text{C}$ に保って、約7時間の照射を行った。

照射後、捕集体をベンゼンで洗い落とし、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにかけて ^{51}Cr の放射能をGe(Li)またはpure Ge半導体検出器で2000~50000秒程度の測定を行った。

§3. 結果と考察

前報¹⁾において、反跳源の厚さと捕集体中に打ち込まれる際のエネルギー（入射エネルギー）のスペクトルを報告した。そこでは (γ, n) 反応では入射エネルギーは0~137keVの広い範囲にわたって分布していることが分かった。そこで本報では、ある膜厚に対する入射エネルギースペクトルを示す指標として、スペクトル平均値（平均入射エネルギー、MIE）を用いることにする。

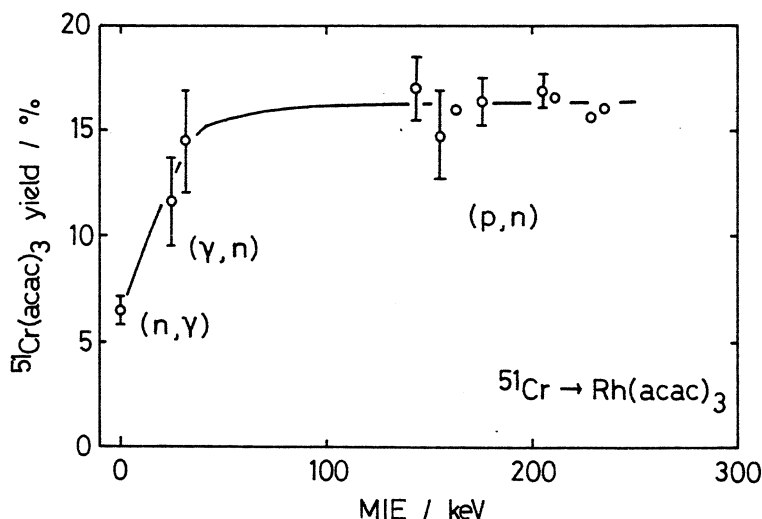
第1図に、 (γ, n) 反応でのMIEに対する $^{51}\text{Cr}(\text{acac})_3$ の収率を示す。この収率は捕集体中の ^{51}Cr の総量に対する $^{51}\text{Cr}(\text{acac})_3$ の量の比を表したものである。前報での $\text{Fe}(\text{acac})_3$ に対する中心金属置換反応とは逆に、はっきりとした収率変化がみられる。低エネルギー側と高エネルギー側の2つに領域を分けそれぞれの領域での平均を求めてみると、MIE=30keVより低い領域において $11.00 \pm 1.82\%$ 、高エネルギー側では $14.49 \pm 2.39\%$ となった。同様の取扱を $\text{Fe}(\text{acac})_3$ の場合について行なうと、低エネルギー側で約15%、高エネルギー側で約18%となっており、この場合にも置換収率は変化している。対象錯体の違いによる収率の変化については、中心金属と配位子の酸素との結合力の違いに起因することがいくつかの報告^{2,3)}において明らかにされており、この場合においてもその結合力的によって説明されるので、ここでは議論せず、入射エネルギーの変化に伴う収率変化についてのみ注目する。



第1図 $^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$ 反応による $\text{Rh}(\text{acac})_3$ に対する置換収率のMIE依存性。

(γ, n) 反応を用いて得られるMIEの範囲で置換収率の変化が認められたが、さらに広いMIE

範囲についての変化を見るため、他の核反応についての実験も同様に行ってみた。 $\text{Rh}(\text{acac})_3$ についての結果を第2図に示す。MIEが320eV程度である (n, γ) 反応においては、 $\text{Fe}(\text{acac})_3$

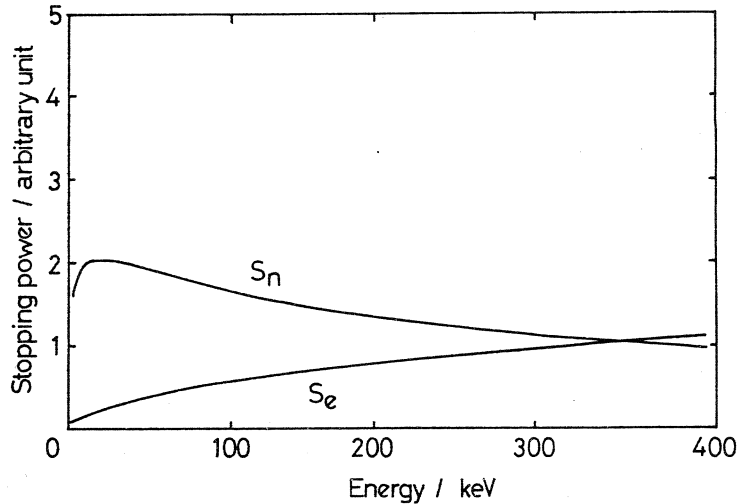


第2図 $\text{Rh}(\text{acac})_3$ に対する ^{51}Cr の中心金属置換反応。

に対して約8%, $\text{Rh}(\text{acac})_3$ に対して約6%, またMIEが150~250keVと高い領域である (p, n) 反応においては、それぞれ約20%, 約16%という結果が得られた。 (γ, n) 反応の結果と比較して、どちらの錯体についても言えることはMIEで30keVあたりまで収率が大きく増加し、その後の変化はあまり見られないことである。

このような入射エネルギーの違いによって収率が変化することは、前報でも述べていたようにいくつかの報告がなされている。その中でRösslerら²⁾は、反跳Re原子が K_2MCl_6 タイプの化合物に打ち込まれ ReCl_6^{2-} となる場合、Re原子が化合物に入射するときはより原子状態に近く、反応までに電子的励起過程を経て最終的に Re^{4+} となるが、入射エネルギーが高い場合は酸化形を多く与えるために収率増加するとしている。そこで、入射してから反応するまでの反跳原子の挙動を見るため、錯体中での反跳原子の運動エネルギー損失機構について考察を行う。

第3図は、LSS理論⁴⁾によって計算されたエネルギー損失=阻止能である。図中の S_n が核的な衝突過程による核阻止能で、 S_e は電子雲との相互作用に基づく電子阻止能である。第3図には、 $^{51}\text{Cr}-\text{Fe}(\text{acac})_3$ 系についての計算結果を示したが、 $\text{Rh}(\text{acac})_3$ についてもこの図とほとんど同じ結果が得られる。これは、錯体の質量などは配位子がその大部分を占めているため、中心金属の変化がほとんど計算結果に影響しないためである。 S_n と S_e が一致する点は約330keV



第3図 LSS理論による $\text{Fe}(\text{acac})_3$ 中の ^{51}Cr の阻止能。
 S_n :核阻止能, S_e :電子阻止能。

で、実験を行った領域はすべてこのエネルギーより低いところである。また、 S_n のピークは約23keVにあり、このあたりは置換収率が急激に増加している領域にあっている。このようなことから、入射エネルギーの変化に伴う置換収率の変化の様相には、核阻止能として計算される衝突過程が重要な役割を果たしていると考えられる。

ここで、それぞれの阻止能が表す衝突過程を考えてみると、核阻止能の方は弾性衝突的な過程であるから、周囲の原子に対して機械的に作用し、原子変位などを生成してエネルギーを失う。これにたいして、電子阻止能の方は電子雲との作用なので、失うエネルギーは電子的励起などに使われる。実験結果から前者の過程が重要であることが示されたことから、この原子変位などによってできる攪乱領域が中心金属置換反応に影響を及ぼしていると考えられる。

この攪乱領域が実際にどのように分布するかについてはコンピュータシミュレーションによって求めることができるが、このようなシミュレーションは金属やイオン性結晶などの比較的単純な系については行われているが、本実験系のような複雑な化合物については、コンピュータの能力、条件設定などの制約のため行うことができない。そこで、第1段階の近似として次のような説明を試みる。

攪乱領域において、その攪乱の程度が大きいほど置換収率が大きくなると仮定する。攪乱の程度は、せまい領域にエネルギーが集中する、すなわちエネルギー付与密度が高くなるほど大きくなると考えることができる。そこで、このエネルギー集中の様子を明らかにするため、反跳原子が静止する位置を、深さ方向だけでなく、深さ方向に対して垂直な方向に関する分布を計算する。そして、入射した初期位置から、この静止位置の分布を見込んだ立体角を計算し、その入射エネルギーに対してプロットしたものが第4図の実線である。高エネルギーが入射するにつれて立体角は小さくなって

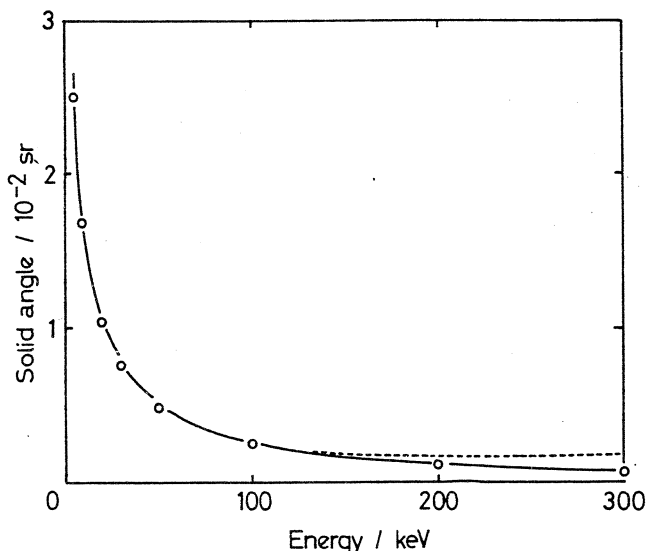
いく様子がこの図から得られる。

したがって、高エネルギーで入射した反跳原子は非常に限られた領域を通過しエネルギーを付与していく。それに対し低エネルギーで入射した原子は、立体角の大きい、広がった領域に対してエネルギーを付与するためエネルギー付与密度は小さくなり、低い置換収率を与えられられる。

しかし100keV以上の領域においては、立体角が減少しているのに比べて置換収率自体ほとんど変

化していない。これについての説明としては、数十keV程度のあたりは核阻止能が十分大きな領域であるが、100keVを超える領域では電子阻止能が無視できなくなってくるため、攪乱領域の生成という観点からの効果的な立体角とのずれが大きくなってくると考えられる。この違いの補正を行うため、100keV以上の領域に対して、計算される立体角に核阻止能と電子阻止能の比をファクターとしてかけたものが第4図中の点線で示したものである。この補正により、100keV以上の領域において立体角がほぼ一定となって置換収率の高エネルギー領域での飽和傾向が説明される。

以上のように、Rh(acac)₃に対する⁵¹Crの中心金属置換反応の入射エネルギー依存性について報告し、それを説明するモデルを提起した。このモデルを用いることで、入射エネルギーに対する置換収率の変化の様相を説明することができたが、このモデルは出発点であり、その発



第4図 Fe(acac)₃中の⁵¹Crの静止位置の占める立体角。実線：計算値，点線：補正後の立体角。

展および攪乱領域と置換反応の直接的な関係については今後の検討課題である。

照射にあたってお世話いただいた東北大学核理研 榊本和義助手とマシングループの方々に御礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 宮川篤, 関根勉, 吉原賢二: 核理研研究報告 **19** (1986) 233.
- 2) K. Rössler and L. Pross: Radiat. Eff. **48** (1980) 207.
- 3) T. Sekine and K. Yoshihara: J. Radioanal. Nucl. Chem., Lett. **105** (1986) 299.
- 4) J. Lindhard, M. Scharff and H. E. Schiøtt: Mat. Fis. Medd. Dan. Vid. Selsk. **30** (14) (1963).

ピクリン酸とトリオクチルホスフィンオキシドによる 置換不活性ロジウム(Ⅲ)の溶媒抽出

理学部化学

高橋宏美・井村久則・鈴木信男

§1. 緒 言

溶媒抽出法は、効率の高い、迅速な分離濃縮法であり、分析化学的な応用から湿式精錬などの工業的な応用まで広く用いられている。有用希少金属である白金族元素の分離に関しても、溶媒抽出法の多くの研究が行われ、総説等にもまとめられている^{1,2)}。ロジウム(Ⅲ)は配位子交換反応が非常に遅いため、溶媒抽出においては一般に抽出剤との長時間の加熱が必要であり、また、ヘキサクロロロジウム(Ⅲ)のように、イオン対として比較的抽出されやすい化学種も存在するが、抽出可能な条件では容易にアコ化されてしまうため、白金族の中でも最も抽出しにくい元素とされている。しかしながら著者らは、ヘキサアクアロジウム(Ⅲ)が、トリクロロ酢酸イオンとトリオクチルホスフィンオキシド(TOPO)によって、室温でも迅速に抽出されることを見出し、その機構を明らかにした³⁾。

本報では、トリクロロ酢酸よりも疎水的なため、高い抽出性が期待されるピクリン酸とTOPOを用いて、ヘキサアクアロジウム(Ⅲ)の室温における迅速な抽出について検討した。更に、ロジウム(Ⅲ)の抽出平衡について詳細に調べ、その平衡定数を求めた。

§2. 実 験

2.1 試 薬

放射性ヘキサアクアロジウム(Ⅲ)溶液；放射性トレーサー、^{101m}Rh及び^{102m}Rhは、高純度金属ロジウム(Aldrich, 純度99.99%)に、東北大学電子ライナックからの50MeV制動放射線を照射して、¹⁰³Rh(γ , n)^{102m}Rh, ¹⁰³Rh(γ , 2n)^{101m}Rhの反応により製造した。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、最後に十分に加熱処理を行い、水で希釈して0.2M過塩素酸溶液とした。また、紫外・可視吸収スペクトルにより、ロジウム(Ⅲ)のヘキサアクア錯体が得られたことを確認した^{4,5)}。

TOPO；市販の試薬(同仁化学研究所株)を前報³⁾と同様にして精製した。

ピクリン酸水溶液；市販の試薬（半井化学，特級）を濃度既知の水酸化ナトリウム水溶液に溶解した。これを，フタル酸水素カリウム標準溶液を用いて酸-塩基滴定により標定し，ピクリン酸イオン濃度を決定した。

その他の試薬；ベンゼン及びヘプタンは通常の方法で精製を行い，ニトロベンゼン，1,2-ジクロロエタン，クロロホルムは，使用直前に水で3-5回洗浄した。他は分析級もしくは特級試薬をそのまま用いた。水は再蒸留水を脱イオン化して用いた。

2.2 抽出操作

a) ロジウム (III) の正・逆抽出

$5.0 \times 10^{-4} - 1.0 \times 10^{-2} \text{M}$ の (H^+ , Na^+) Pic⁻及び $5.0 \times 10^{-6} - 5.0 \times 10^{-4} \text{M}$ の放射性ロジウム (III) を含む水相 (pH 1-5) と， $1.0 \times 10^{-3} - 1.0 \times 10^{-1} \text{M}$ の TOPO を含む有機相を遠心管に取り， 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て放射能を測定し，両相の放射能の比からロジウム (III) の分配比 (D_M) を求めた。水相のpHは水酸化ナトリウムを用いて調整し，振とう後直ちに平衡pHを測定した。また，抽出平衡に関する実験では，硝酸ナトリウムによりイオン強度を0.020Mに整えた。

逆抽出は，前述のようにして得られた正抽出後の有機相を，ロジウム (III) を含まない水相 (ロジウム (III) を加えずに，正抽出と同じ条件で有機相と振とうし，調製されたもの) と振とうし，同様にロジウム (III) の分配比を求めた。

b) ピクリン酸の抽出

硝酸ナトリウムと水酸化ナトリウムによりイオン強度を0.020M，pHを1-4に整えた $8.8 \times 10^{-4} - 2.3 \times 10^{-3} \text{M}$ のピクリン酸水溶液と， $1.0 \times 10^{-4} - 1.0 \times 10^{-1} \text{M}$ の TOPO を含む有機相を 25°C で5分間振とうした。遠心分離後，355.0nmにおける水相の吸光度を測定し，振とう前の吸光度との差からピクリン酸の分配比 (D_{HA}) を求めた。また，振とう後直ちに水相の平衡pHを測定した。一方，分配比の非常に低いところでは，振とう前後で水相中のピクリン酸濃度にほとんど変化がないため，上記のような方法では D_{HA} に大きな誤差を生じる。そこで，有機相に抽出されたピクリン酸を少量の水相に逆抽出して濃縮し，吸光度の測定を行った。

§3. 結果と考察

3.1 ピクリン酸-トリオクチルホスフィンオキサイド系におけるヘキサアクアロジウム (III) の抽出挙動

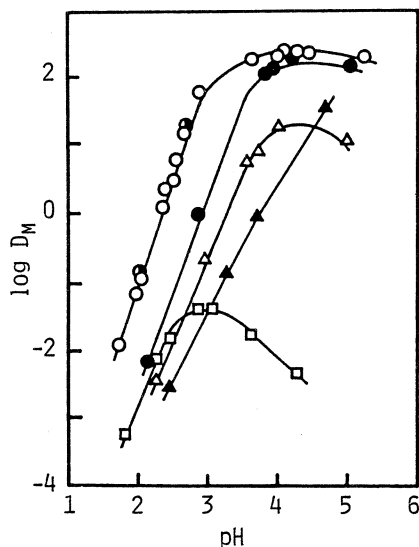
0.10MのTOPOを含む種々の有機溶媒を用いて、0.10Mピクリン酸水溶液からのヘキサアロジウム(Ⅲ)の抽出挙動を調べた。第1図に示すように、ほとんどの有機溶媒系において、pHの上昇とともにロジウム(Ⅲ)の抽出は増加している。5分間の振とうによりベンゼン系ではpH3.8から、ヘプタン系ではpH3.1から99%以上のロジウム(Ⅲ)が有機相に抽出されている。この結果を、前回報告したトリクロロ酢酸、ペンタデカフルオロオクタ酸などの含ハロゲンカルボン酸-TOPO系³⁾と比較すると、ピクリン酸系の方が、より低いpH領域からでも高い抽出が可能となっている。一方、pHの高い領域ではロジウム(Ⅲ)の抽出はpHの上昇とともに減少している。これは、そのpH領域では水相中でヘキサアロジウム(Ⅲ)が加水分解を起こし、抽出性の低い重合種を生成⁵⁾するためであると考えられる。

また、ロジウム(Ⅲ)の抽出に対する有機溶媒の効果は顕著であり、以下のような順で分配比が減少している。ヘプタン>ベンゼン>

1,2-ジクロロエタン>ニトロベンゼン>クロロホルム。このような溶媒効果は、含ハロゲンカルボン酸とTOPOによるロジウム(Ⅲ)の抽出³⁾、クロム(Ⅲ)の抽出⁶⁾においても見られる。また、類似の傾向は、 β -ジケトンとTOPOによる金属イオンの協同効果抽出においても観察されており、溶媒とTOPOとの相互作用の違いによって説明されている⁷⁾。

抽出平衡の達成は、金属イオンの水相から有機相への抽出(正抽出)と、有機相から水相への抽出(逆抽出)を比べることによって確認することができる。第1図に示すように、正・逆抽出から得られた分配比はよく一致しており、振とう5分以内に抽出平衡に達していることがわかる。

さらに、正・逆抽出の分配比の、振とう時間依存性について調べた。第2図に示すように、正・逆抽出ともに、振とう1分から180分まで一定の分配比が得られており、1分以内に抽出



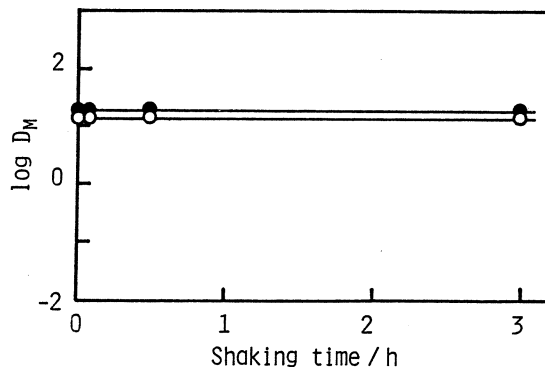
第1図 Extraction of Rh(Ⅲ) into various organic solvents.
 8.1×10^{-5} M Rh(Ⅲ); 0.10M TOPO; 0.010M picric acid; Shaking time: 5 min; ○ heptane; ● heptane, back extraction; ● benzene; □ chloroform; △ 1, 2-dichloroethane; ▲ nitrobenzene.

平衡に達するという、非常に迅速な抽出系であることが確かめられた。

3.2 ピクリン酸-トリオクチルホスフィンオキド-ヘプタン系におけるヘキサアクアロジウム(Ⅲ)の抽出平衡

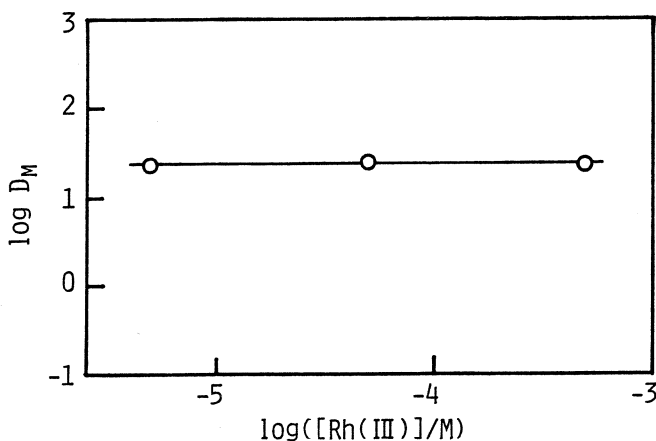
ピクリン酸とTOPOによるヘキサアクアロジウム(Ⅲ)の抽出は非常に速やかに平衡に達することがわかった。ここでは、最も高い抽出が得られたヘプタン系について抽出平衡を明らかにし、抽出定数を決定する。

まず、ロジウム(Ⅲ)の分配比に対する、ロジウム(Ⅲ)濃度依存性を調べた。水相中のロジウム(Ⅲ)初濃度を 5.0×10^{-6} – 5.0×10^{-4} Mと100倍変化させても、第3図に示すように、一定の分配比が得られている。これより、pH2.8の酸性領域では有機相中及び水相中でロジウム(Ⅲ)化学種が重合を起こしていないことがわかる。



第2図 Effect of the shaking time on the extraction of Rh(Ⅲ) in the picric acid-TOPO-heptane system.

0.10M TOPO ; 0.010M picric acid ; ○forward extraction, pH 2.63–2.67 ; ●back extraction, pH 2.70–2.72.



第3図 Effect of the initial concentration of Rh(Ⅲ) on the extraction of Rh(Ⅲ). 0.10M TOPO ; 0.010M picric acid ; Shaking time : 5 min ; pH 2.80–2.82.

従って、ピクリン酸イオンとTOPOによるロジウム（Ⅲ）の抽出平衡は、トリクロロ酢酸－TOPO系で考えた抽出反応³⁾と同様に、次のように表すことができる。



$$K_{\text{ex},M} = \frac{[\text{Rh}^{3+} \cdot m\text{Pic}^- \cdot n\text{TOPO}]_{\text{org}}}{[\text{Rh}^{3+}] [\text{Pic}^-]^m [\text{TOPO}]_{\text{org}}^n} \quad (2)$$

ここで、添え字のorgは有機相中の化学種、添え字のないものは水相中の化学種を示す。また、 $K_{\text{ex},M}$ は(1)式の平衡定数、つまりロジウム（Ⅲ）の抽出定数を示す。また、ロジウム（Ⅲ）の分配比 D_M は、水相中でのロジウム（Ⅲ）とピクリン酸イオンとの錯形成や、ロジウム（Ⅲ）の加水分解が無視でき、また、抽出種が $\text{Rh}^{3+} \cdot m\text{Pic}^- \cdot n\text{TOPO}$ のみである場合には、次のように表される。

$$D_M = \frac{[\text{Rh}^{3+} \cdot m\text{Pic}^- \cdot n\text{TOPO}]_{\text{org}}}{[\text{Rh}^{3+}]} \quad (3)$$

(2)式に(3)式を代入すると以下の式が得られる。

$$\log D_M = m \log [\text{Pic}^-] + n \log [\text{TOPO}]_{\text{org}} + \log K_{\text{ex},M} \quad (4)$$

(4)式において、ロジウム（Ⅲ）の分配比に対して水相中のピクリン酸イオンの平衡濃度、及び有機相中のTOPOの平衡濃度をプロットすれば、その傾きから m 、 n が求まり、抽出種の組成が決められることになる。ここで、もしTOPOによるピクリン酸の抽出が起こる場合には、それぞれの平衡濃度は初濃度から大きく変化することが予想される。そこで、TOPOによるピクリン酸の抽出について調べた。ピクリン酸の抽出平衡は、次のように表すことができる。



$$K_{\text{ex},\text{HA}i} = \frac{[\text{HPic} \cdot i\text{TOPO}]_{\text{org}}}{[\text{H}^+] [\text{Pic}^-] [\text{TOPO}]_{\text{org}}^i} \quad (6)$$

(6)式の $K_{\text{ex},\text{HA}i}$ は(5)式の平衡定数、つまり、ピクリン酸の抽出定数を示す。ピクリン酸は、水相中ではピクリン酸（HPic）、及びピクリン酸イオン（Pic⁻）として、また、有機相中ではピクリン酸、及びTOPOとの会合体（HPic・iTOPO）として存在すると考えられるので、ピクリン酸の分配比 D_{HA} は、次の(7)式で表される。

$$D_{\text{HA}} = \frac{[\text{HPic}]_{\text{org}} + \Sigma [\text{HPic} \cdot i\text{TOPO}]_{\text{org}}}{[\text{HPic}] + [\text{Pic}^-]} \quad (7)$$

ここで、分配比 D_{HA} を(8)式のように、TOPOなしで有機相に分配する部分 D_{HA}^0 と、TOPOと会合して有機相に分配する部分 D_{HA}' とに分けて考えることにする。

$$D_{HA}^0 = \frac{[HPic]_{org}}{[HPic] + [Pic^-]} \quad D_{HA}' = \frac{\Sigma [HPic \cdot iTOPO]_{org}}{[HPic] + [Pic^-]} \quad (8)$$

(7), (8)式より, D_{HA}' は D_{HA} と D_{HA}^0 との差として表されることになる。

$$D_{HA}' = D_{HA} - D_{HA}^0 \quad (9)$$

ここで, $i=2$ として(9)式に(6)式を代入して整理すると(10)式が得られる。

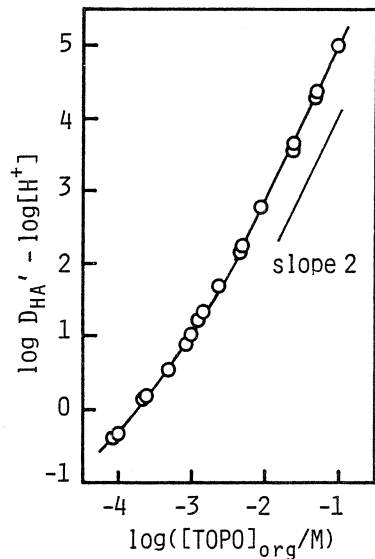
$$D_{HA}' / [H^+] = K_{ex,HA1} [TOPO]_{org} + K_{ex,HA2} [TOPO]_{org}^2 \quad (10)$$

(10)式に基づいて, $\log D_{HA}' - \log[H^+]$ 対 $\log[TOPO]_{org}$ をプロットすれば, 抽出定数 $K_{ex,HA1}$ が求められる。

TOPOと会合せずに, ピクリン酸として有機相に分配するピクリン酸の量を求めるために, まず, 水-有機溶媒間におけるピクリン酸の分配比 D_{HA}^0 を調べた。この値と, 実験で得られた D_{HA} から D_{HA}' を求めて, (10)式に基づくプロットをとった。結果を第4図に示す。TOPO濃度の増加に伴って傾きも大きくなり, TOPO濃度の高い領域では傾き2.0の直線となっている。これより, ピクリン酸とTOPOは1対1, または1対2で会合しているものと考えられる。式(10)に基づいて, 非線形最小二乗プログラムSALSを用いて計算したところ, 抽出定数として, $\log K_{ex,HA1} = 2.91$, $\log K_{ex,HA2} = 6.83$ という値が得られた。先に報告したトリクロロ酢酸-TOPO系では, 抽出種はHTCA・TOPOという1対1の会合のみであり, 抽出定数は $\log K_{ex,HA} = 4.93$ という値であった。トリクロロ酢酸のように, TOPOと1対1で会合する酸としては他に硝酸⁸⁾, チオシアン酸⁹⁾などが報告されており, TOPOと1対2で会合する酸としては, 塩酸, 硫酸, 過塩素酸¹⁰⁾等が報告されている。酸1分子に対するTOPOの会合数は, 酸の強さと関係があると思われる。

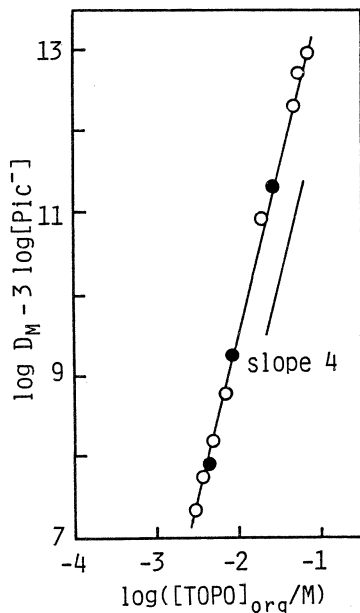
得られた抽出定数, $K_{ex,HA}$ の値を用いて, 有機相中のTOPO, 及び水相中のピクリン酸イオンの平衡濃度を, それぞれの初濃度と水相の平衡pHから計算することができる。

平衡式(4)において, 抽出種についての電気的中性の原理から, ロジウム(Ⅲ)と会合するピ

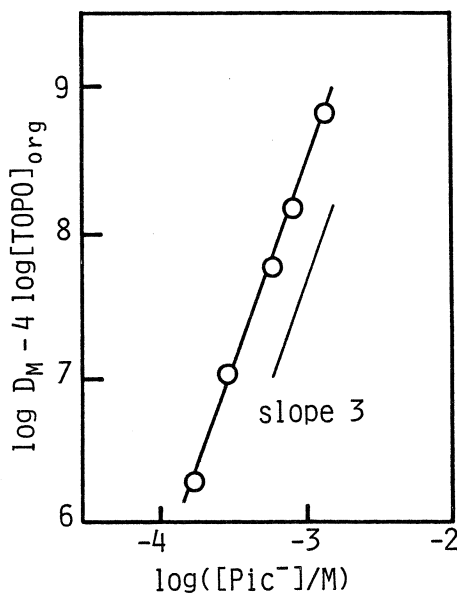


第4図 Extraction of picric acid with TOPO in heptane. $6.0 \times 10^{-6} - 3.0 \times 10^{-3} M$ picric acid; $I = 0.020 M$ (H^+ , Na^+) NO_3^- ; pH 1.9-3.1.

クリン酸の数 m を3と仮定して、 $\log D_M - 3 \log [\text{Pic}^-]$ 対TOPOの平衡濃度のプロットをとった。第5図に結果を示すが、傾き4.1の直線となっている。これより、ロジウム(Ⅲ)とTOPO



第5図 Effect of the equilibrium concentration of TOPO in the organic phase.
picric acid : 0.010M (○), 0.030M (●); I=0.020M (H⁺, Na⁺)NO₃⁻; pH2.5.



第6図 Effect of the equilibrium concentration of picrate in the aqueous phase.
0.10M TOPO; I=0.020M (H⁺, Na⁺)NO₃⁻; pH2.5.

は1対4で会合しているものと考えられる。

次に得られた結果より、(4)式においてロジウム(Ⅲ)と会合するTOPOの数 n を4と置いて $\log D_M - 4 \log [\text{TOPO}]_{\text{org}}$ 対ピクリン酸の平衡濃度のプロットをとった。第6図に示すように、傾き2.8の直線が得られ、予想されたように、ロジウム(Ⅲ)とピクリン酸が1対3で会合していることが確かめられた。また、 $m=3$, $n=4$ 以外には平衡式を満足するような合理的な m , n の組み合わせがないことも計算により確めた。

以上の結果より、ロジウム(Ⅲ)の抽出種は、 $\text{Rh}^{3+} \cdot 3 \text{Pic}^- \cdot 4 \text{TOPO}$ であることがわかった。また、抽出定数として、 $\log K_{\text{ex},M} = 17.51 \pm 0.15$ という値が得られた。ピクリン酸-TOPO-ヘプタン系におけるロジウム(Ⅲ)の抽出種の組成はトリクロロ酢酸-TOPO-ヘプタン系のものと同じであるが、このように金属(Ⅲ)とTOPOが1対4で会合するというのは、これま

で例がなく、TOPOによる新しい抽出系であるといえる。また、その抽出定数は、トリクロロ酢酸系の値 ($\log K_{ex,M} = 12.29^{9)}$) に比べて 10^6 も大きな値である。このように大きな抽出定数が得られたのは、ピクリン酸が疎水的で大きな分子であり、トリクロロ酢酸に比べて有機相に分配しやすく、このため、ロジウム(Ⅲ)の抽出の対イオンとして有利に働くものと考えられる。

§4. まとめ

本研究では、ピクリン酸とTOPOによってヘキサアクアロジウム(Ⅲ)が室温でも極めて迅速に、また定量的にヘプタンやベンゼンに抽出されることを見出した。更に、ピクリン酸、及びロジウム(Ⅲ)の両相への分配平衡をそれぞれ分けて考えることにより、抽出機構の考察を行い、抽出種の組成と抽出定数を決定することができた。本系は、ロジウム(Ⅲ)などの置換不活性金属イオンの非常に有効な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榊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 : *Ion Exchange and Solvent Extraction*, eds. J. M. Marinsky and 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) H. Takahashi, H. Imura and N. Suzuki : *Res. Rep. Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ.* **22** (1989) 43.
- 4) Wayne C. Wolsey, C. A. Reynolds and J. Kleinberg : *Inorg. Chem.* **2** (1963) 463.
- 5) I. P. Alimarin, V. I. Shlenskaya, A. A. Biryukov, O. A. Efremenko and V. P. Khvostova : *Zh. Anal. Khim.* **25** (1970) 1965.
- 6) H. Imura, T. Kiba and T. Honjo : *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **52** (1979) 2563.
- 7) K. Akiba : *J. Radioanal. Chem.* **36** (1977) 153.
- 8) M. Niitu and T. Sekine : *J. Inorg. Nucl. Chem.* **37** (1975) 1056.
- 9) M. Niitu and T. Sekine : *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **50** (1977) 1015.
- 10) M. Niitu and T. Sekine : *J. Inorg. Nucl. Chem.* **38** (1976) 1053.

フェリエライトへのセシウムとストロンチウムの吸着特性

選研

橋 房守・三村 均・秋葉健一

§ 1. 序 論

使用済み燃料の再処理工程から生じる高レベル廃液に対しては、ガラス固化による一括処理あるいは群分離処理が検討されている¹⁾。群分離処理ではセシウム-ストロンチウム群は耐放射線性の高いゼオライトなどの無機イオン交換体による吸着分離が有効と考えられている。セシウムの吸着除去にはゼオライトの一種であるモルデナイトの利用が考えられているが、セシウムとストロンチウムの分離係数のより高いゼオライトが望まれている。近年、Si含有量が高く、孔孔径の小さなフェリエライトが合成されており^{2,3)}、強いイオンふるい作用を有すると考えられる。このフェリエライトに対するイオン吸着特性はほとんど報告されていない。フェリエライトの放射性廃棄物処理への応用の可能性を探るために、セシウム及びストロンチウムの吸着特性について検討した。

§ 2. 実 験

2.1 ゼオライト

フェリエライトは SiO_4 及び AlO_4 四面体が5個環状に結合した5員環を最小単位として、2本のトンネル状の孔路(10員環(4.3×5.5Å, 有効細孔径3.9Å)と8員環(3.4×4.8Å))が3次元的に連結した構造を有している。本実験で用いたフェリエライトの化学組成を第1表に示す。実験には粉末状の試料(100μm以下)を用い、予め飽和 NH_4Cl 溶液の入った密封容器内に数日間静置することにより、吸着水量を平衡に保持した。

第1表 Chemical composition of zeolites.

Ferrierite	Typical oxide formula	Si/Al
HSZ-700KOA (F-1)	$0.26\text{Na}_2\text{O} \cdot 0.74\text{K}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 12.3\text{SiO}_2$	6.15
HSZ-710KOA (F-2)	$0.17\text{Na}_2\text{O} \cdot 0.82\text{K}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 13.9\text{SiO}_2$	6.95
HSZ-720KOA (F-3)	$0.28\text{Na}_2\text{O} \cdot 0.70\text{K}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 16.8\text{SiO}_2$	8.40

2.2 分配実験

セシウムとストロンチウムの分配実験は以下の手順により行った。吸着水量を一定に保持したゼオライト試料を0.16 g 秤量し、セシウム (10 mg/l) またはストロンチウム (1 mg/l) のRI溶液に添加し、 V/m (液固比) は300とした。トレーサーとして ^{137}Cs (Amersham より購入) 及び ^{85}Sr (東北大学理学部核理研 LINAC により照射製造) を用い、溶液の pH は HNO_3 - NaNO_3 で調整した。25°C の恒温室内で一定時間振とう後、上澄み液を一定量分取し、遠心分離 (3000 rpm, 3 分間) 後、井戸型 NaI(Tl) シンチレーションカウンターで γ 放射能を測定した。分配係数及び吸着率はそれぞれ(1)及び(2)式により算出した。

$$K_d = \frac{A_i - A_f}{A_f} \times \frac{V}{m} \quad (\text{ml/g}) \quad (1)$$

$$R = \frac{A_i - A_f}{A_i} \times 100 \quad (\%) \quad (2)$$

A_i : 初期溶液の γ 放射能

A_f : 振とう後の溶液の γ 放射能

V : 溶液体積 (ml)

m : ゼネライト試料の重量 (g)

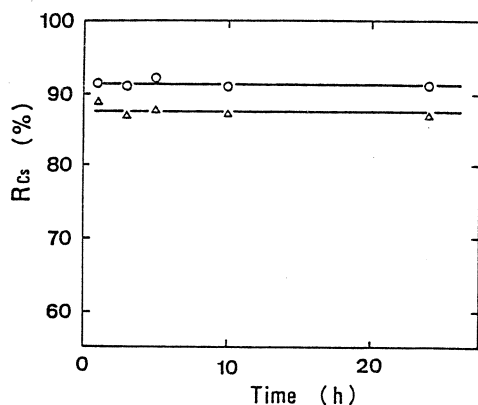
溶液中のセシウム濃度を 1-9000mg/l まで変化させ、25°C で24時間振とうし、溶液中の平衡濃度及び平衡吸着量を求め、セシウムの吸着等温線を作成した。

§3. 結果及び考察

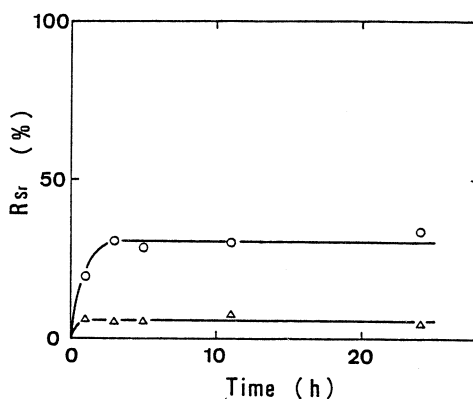
3.1 吸着速度

ゼオライトでは主に孔路内を移動するイオンの拡散 (粒子内拡散) によって吸着速度が変化することが知られている⁴⁾。バッチ法による分配実験では、予め平衡状態に達していることを確認することが必要である。フェリエライトへのセシウムの吸着率の振とう時間による変化を第1図に示す。セシウムの吸着速度はかなり速く、1時間以上の振とうで一定の吸着率を示し、ほぼ見かけ上平衡に達することがわかる。ストロンチウムの吸着率の時間変化を第2図に示す。セシウムに比べてやや吸着速度は遅いが、いずれも約3時間で平衡に達している。フェリエライトの入口の孔路径が小さいため、そのイオンふるい作用により Sr^{2+} (水和イオン直径は10 Å 程度) は水和しているいくつかの水分子を脱離して孔路中に入らなければならない。このため

ストロンチウムではセシウムより吸着速度がやや遅い結果を示したと考えられる。以上のことから、分配実験では振とう時間をセシウムとストロンチウムが充分平衡に達していると考えられる24時間に設定した。



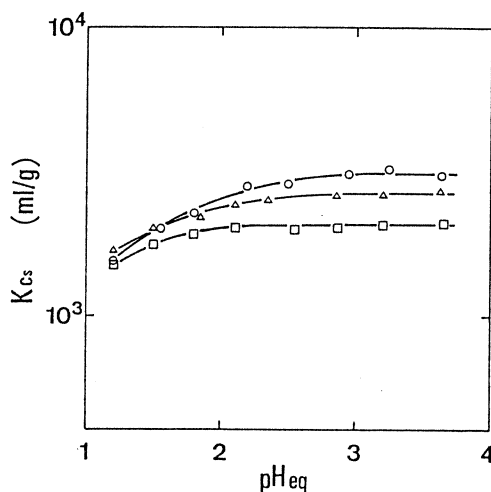
第1図 Effect of shaking time on R_{Cs} .
pH_i 2.7; ○: F-1, △: F-3.



第2図 Effect of shaking time on R_{Sr} .
pH_i 2.7; ○: F-1, △: F-3.

3.2 平衡pHの影響

ゼオライトへの吸着は、ゼオライト内のカチオンと溶液中のカチオンとのイオン交換によって起こる。溶液の水素イオンの濃度の変化は目的とするカチオンとの競合によりゼオライト相へのカチオンの分配の変化をもたらすと考えられる。第3図にフェリエライトに対するセシウムの分配係数值 (K_{Cs}) と平衡 pH の関係を示す。分配係数值は pH 2.5 以上でほぼ一定であり、 10^3 以上の高い値を示した。この値はモルデナイトとほぼ同程度である⁵⁾。pH の低下に伴い分配係数值はわずかに低



第3図 Variation of K_{Cs} with equilibrium pH.
○: F-1, △: F-2, □: F-3.

下する傾向が認められるが pH の影響は小さい。ストロンチウムの分配係数值 (K_{Sr}) と平衡

pH の関係を第 4 図に示す。分配係数值は pH 3 以上でセシウムと比較して約 1 桁低く、イオンふるい作用が大きく影響していると考えられる。一方、pH 3 以下では水素イオンとの競合のため分配係数值は急激に低下することが認められた。

3.3 セシウムとストロンチウムの分離係数

群分離処理においてセシウムとストロンチウムは無機イオン交換体を用いて分離除去される。セシウムとストロンチウムをさらに有効に利用しようとするれば、その相互分離が重要であり分離係数の高い交換体が有効となる。セシウムとストロンチウムの分離係数 ($\alpha_{Cs/Sr}$) は、同一条件下での各カチオンの分配係数の比で与えられる。

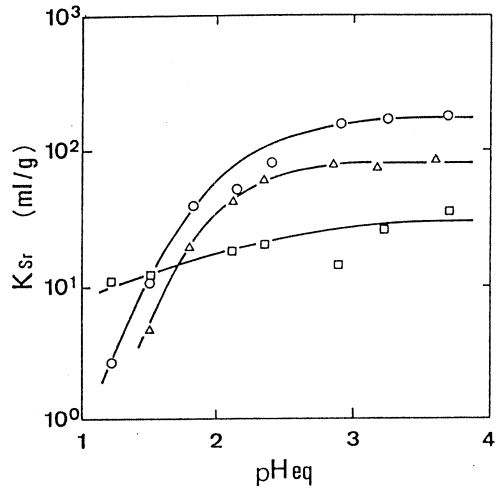
$$\alpha_{Cs/Sr} = \frac{K_{Cs}}{K_{Sr}} \quad (3)$$

第 3 図及び第 4 図からセシウムとストロンチウムの分離係数を求め、平衡 pH に対する分離係数の変化を第 5 図に示す。pH の高い領域では $\alpha = 20 \sim 60$ 程度であるが、pH の低下に従って急激に増加し pH 1.5 以下では 10^2 以上の高い値を示した。これはストロンチウムに対するイオンふるい作用と水素イオンとの競合が大きく作用したためであり、セシウムに対して選択的な吸着特性を示している。

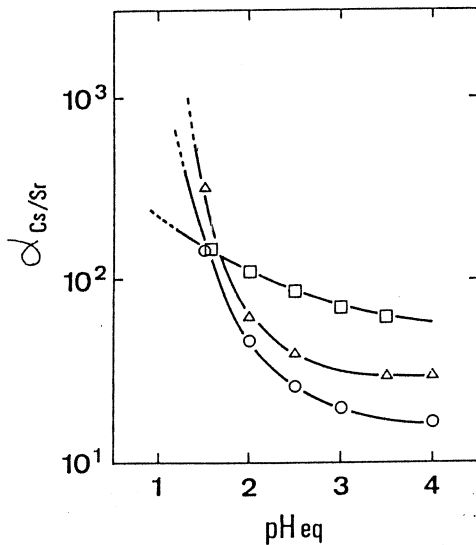
3.4 吸着機構

一般に吸着量は濃度と温度の関数であり、温度が一定ならば濃度のみの関数となる。

吸着現象は吸着等温線で記述されるので、どのような吸着機構であるかを知るためにも等温線を



第 4 図 Variation of K_{Sr} with equilibrium pH. ○: F-1, △: F-2, □: F-3.



第 5 図 Variation of separation factor ($\alpha_{Cs/Sr}$) with equilibrium pH. ○: F-1, △: F-2, □: F-3.

求めることが必要である。第6図にフェリエライト (F-1) へのセシウムの吸着等温線を示す。等温線の形から Langmuir 型で吸着が進行しているものと推定される。Langmuir 型の吸着等温式は以下のように表せる。

$$Q_{eq} = \frac{K Q_{MAX} C_{eq}}{1 + K C_{eq}} \quad (4)$$

Q_{eq} : 平衡吸着量 (mmol/g)

C_{eq} : 溶液中のセシウムの平衡濃度 (mol/l)

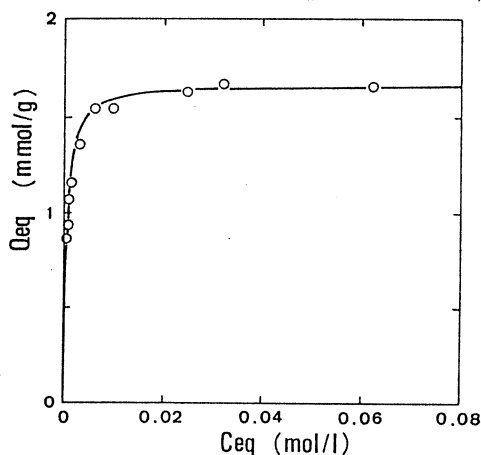
Q_{MAX} , K : Langmuir 定数

Q_{MAX} は飽和吸着量となる。(4)式を変形して次式が得られる。

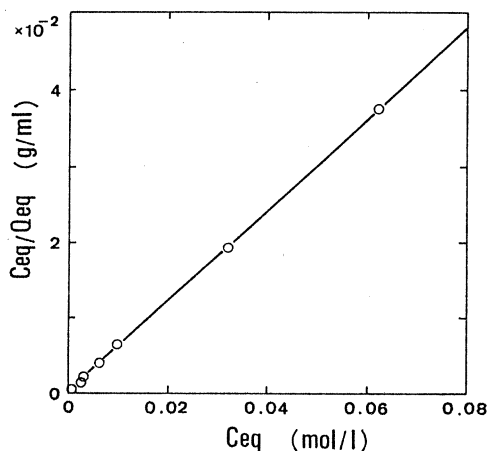
$$\frac{C_{eq}}{Q_{eq}} = \frac{1}{K Q_{MAX}} + \left(\frac{1}{Q_{MAX}} \right) C_{eq} \quad (\text{g/ml}) \quad (5)$$

C_{eq} と (C_{eq}/Q_{eq}) をプロット (Langmuir plot) して直線が得られる場合, (4)式が適用できる。

また, その直線から $(1/K Q_{MAX})$ と $(1/Q_{MAX})$ を求め, Q_{MAX} と K が算出できる。



第6図 Ion exchange isotherm of Cs for ferrierite (F-1).



第7図 Langmuir plot of Cs for ferrierite (F-1).

第7図に示すように, フェリエライトへのセシウム吸着に対する Langmuir plot には直線関係が認められた。このため Cs^+ はフェリエライト孔路内へ単分子的に吸着が進行したものと考えられる。第7図から Langmuir 定数 Q_{MAX} 1.68mmol/g 及び K 1950 が得られた。わが国で産出する天然産モルデナイトでは 1.1~1.6mmol/g, 天然産クリノプチロライトでは 0.5~1.4 mmol/g と報告されている⁵⁾。これらと比較すると, フェリエライトは天然産のモルデナイト及びクリノプチロライト以上の値を有していることがわかる。

§4. 結 論

フェリエライトへのセシウムの分配は約1時間で見かけ上平衡に達した。分配係数値は 10^3 以上の高い値を示し pH の低下による影響は小さい。ストロンチウムの分配は約3時間で見かけ上平衡に達した。ストロンチウムの分配係数値はフェリエライトのイオンふるい作用によりセシウムに比べて1桁ほど小さく、pH の低下により大きく減少した。このためセシウムとストロンチウムの分離係数は、pH 1.5以下では 10^2 以上の値をとりセシウムに高い選択性を示すことがわかった。フェリエライトへのセシウムの吸着は Langmuir 型等温式に従って進行すると考えられ、Langmuir 定数は Q_{MAX} 1.68mmol/g 及び K 1950 が得られた。

本研究に当たり、ご協力を頂いた東北大学理学部原子核理学研究施設の RI 及びマシングループの皆様には謝意を表す。また、試料を提供して頂いた東ソー(株)の関係各位に厚く感謝致します。

参 考 文 献

- 1) 天沼 倂, 阪田貞弘: 放射性廃棄物処理に関する研究開発 (産業技術出版, テクノ・プロジェクト) (1983) 380.
- 2) 富永博夫: ゼオライトの科学と応用 (講談社サイエンティフィック) (1987).
- 3) 板橋慶治, 井川一成: 東洋曹達研究報告 29 (1985) 99.
- 4) 塚田明彦: 東北大学大学院工学研究科 修士論文 (1981).
- 5) 三村 均: 東北大学 博士論文 (1984).

光量子放射化分析法によるヒ素および ガリウム中の微量炭素の定量

三菱金属, 核理研*, 金研**

吉岡 明・川上 紀・深谷忠廣

野村紘一・榎本和義*・八木益男**

Determination of trace amounts of carbon in gallium and arsenic has been examined by photon activation analysis using the $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ reaction. In the present experiments, irradiation samples were prepared by a wide variety of ways in order to search effect of the atmospheric carbon dioxide. After irradiation with 30 MeV bremsstrahlung for 20 min., chemical separation of carbon as CO_2 was performed by the combustion method in a oxygen stream using a flux and a source of carbon carrier. Then the CO_2 gas was collected by passing through double traps containing NaOH solution, and precipitated as BaCO_3 to measure the positron annihilation gamma-rays. As a result, it was demonstrated that reasonable precision and accuracy are also obtained by the above method.

§1. はじめに

高純度金属材料の物理的・化学的性質は材料中に存在する炭素不純物が微量であっても、大きく影響される。したがって、これら材料の微量炭素の影響や製造法を調査するために、微量炭素の分析法の開発が進められてきた。しかしながら、一般の機器分析法による微量炭素の定量分析は汚染問題がからみ極めて困難であるとされている。そこで、これに対して放射化分析法の適用が試みられ、放射化分析法の一つである光量子放射化分析法は、特に試料を均一に放射化でき試料形状による分析誤差が小さいこと、妨害核反応が極めて少ないことなどの利点を持つと特色づけられている。

各種物質中の微量炭素定量法としては、 $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}(t_{1/2}=20.4\text{m.})$ 反応を利用する光量子放射化分析法が基礎的に、そして活発に検討されてきた¹⁻⁷⁾。著者らは光量子放射化分析法と炭素分離法としての燃焼法とを組合わせた分析法を検討した結果、操作が比較的容易で定量精度が高いことを明らかにし、さらにその応用として鉄鋼、銅およびガリウムヒ素中の微量炭素の定量分析への適用を試みてきた^{8,9)}。

本研究ではこの分析法を、ガリウムヒ素の原料となるヒ素とガリウム中の微量炭素の定量分析へ適用することを新たに試みることにした。特に低融点金属試料の場合、照射中に雰囲気から汚染する炭素が試料内部にまで入り込み、照射後に試料表面をエッチングしても完全に汚染炭素は除去できないと予想されるので、本研究においては試料調製法を十分に検討し、実試料分析への応用を図ることを試みた。

言うまでもなく、ヒ素やガリウムのように昇華性あるいは低融点の試料の分析は極めて困難であり分析化学において大きな問題点となっており¹⁰⁾、またガリウムヒ素半導体製造のプロセス評価からも、この分析法の確立は急務とされている。

§2. 実 験

2.1 試 料

炭素定量用標準物質は日本鉄鋼協会製標準試料 JSS-033-1 を用いた。これはチップ状で供給され、炭素含有量は0.0011%である。分析試料は一級試薬ヒ素、高純度ヒ素、昇華精製ヒ素および高純度ガリウムの4種で、それぞれ約0.5gを秤取した。各物質の製造法¹¹⁾と推定純度は第1表に示した。

第1表 分析試料となる各物質の製造法と推定純度。

物 質 名	製 造 法	推定純度
一級試薬ヒ素	亜ヒ酸の炭素還元	98%
高純度ヒ素	精製塩化ヒ素(Ⅲ)の水素還元	6 N
昇華精製ヒ素	上記高純度ヒ素の昇華精製	6 N up
高純度ガリウム	繰返し結晶精製	6 N up

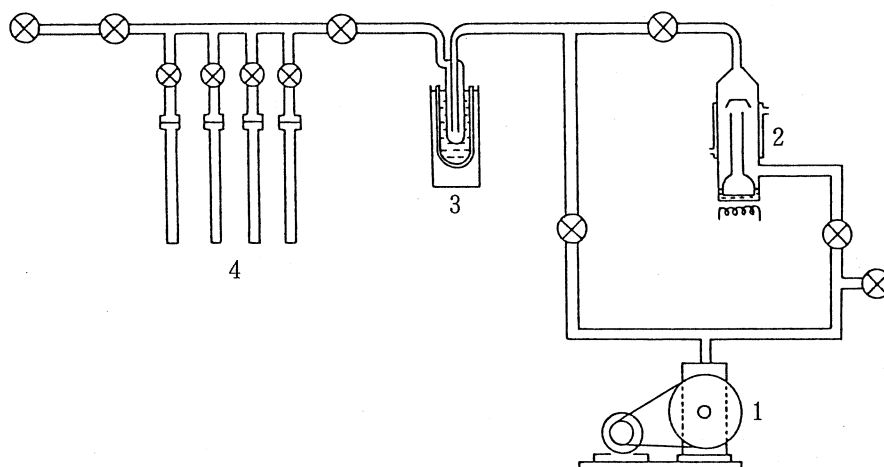
これらの物質のうち、昇華精製ヒ素と高純度ガリウムがガリウムヒ素半導体の原料として使用されている。

2.2 照射試料の調製

各試料は石英試料管に封入され、試料部位に相当する試料管の外周に光量子照射線束モニターとしてニッケル箔を巻付け、さらにそれを固定するためにアルミニウム箔で包んで照射試料とした。使用した石英試料管は予め王水で洗浄し、さらに酸素を通してながら1000℃に加熱して清浄にした。また試料管へのガリウム試料の挿入は、王水洗浄等で注意深く除染したテフロンチューブを用いて試料管の底部に流し込むことにした。試料封入時の調製法を次に示す。(以降、

A, B, CおよびDと略す。)

- A : 試料を入れた石英試料管内を二酸化炭素ガスで置換し、封入した。
 B : 試料を入れた石英試料管を水流ポンプに直結し、減圧状態（数10Torr）で封入した。
 C : 石英試料管を第1図に示した真空ラインに取付け、真空状態（ 10^{-4} Torr以下）で試料管の外からバーナーで加熱して脱気洗浄とした。ついで試料管を取外し、速やかに試料を入れて再び真空ラインに取付け、真空状態（ 10^{-4} Torr以下）で封入した。
 D : ヒ素試料の一部については、C法と同操作を行い、封入前に真空ライン中で試料管の外からバーナーで試料を加熱し試料表層を昇華除去した後、真空状態（ 10^{-4} Torr以下）で封入した。



第1図 真空装置の概略図。

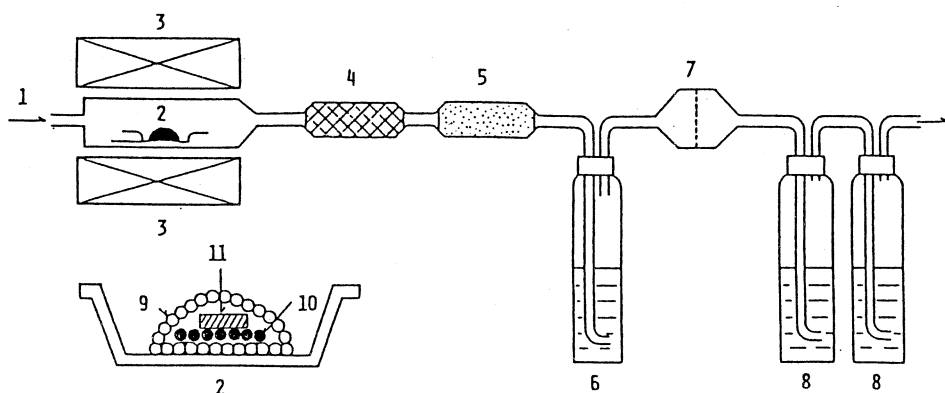
1. ロータリーポンプ 2. 油拡散ポンプ
 3. 液体窒素 4. 試料管

2.3 照 射

調製された各試料は一ケづつ水冷式照射ホルダー¹²⁾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 μ A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、未転換電子による試料の損傷や分解を防ぐため、白金コンバーターと試料の間に10mm厚のグラファイトを挿入し、電子線をできるだけ除去した¹³⁾。

2.4 炭素の化学分離

ヒ素照射試料は、表面炭素汚染を除去するため王水でエッチングした場合としない場合に分けた。ついで第2図に示したようにアルミナボート上に炭素キャリアと照射試料を、さらに必



第2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. 硫酸洗浄ビン 7. テフロンろ紙
8. BaCl₂含有NaOH補集ビン
9. 助燃剤 10. 炭素キャリア 11. 試料

要な試料については助燃剤を積み重ね、管状電気炉に入れて酸素気流中（500ml/min.）で5分間溶融燃焼させた。各試料における炭素キャリア、助燃剤および電気炉設定温度は第2表に示した。

第2表 各試料の燃焼条件。

試料	炭素キャリア	助燃剤	電気炉設定温度 (°C)
鉄鋼標準試料	鉄鋼チップ, 222mg (炭素含有率4.11%)	錫, 0.5g	1350
ヒ素試料	炭酸カルシウム, 76mg	無し	1000
ガリウム試料	炭酸バリウム, 150mg	無し	1350

ここで炭素キャリアは試料中の微量炭素の保持担体として、そして炭素化学分離における化学収率測定用に用いた。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状態は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浄、さらにテフロン繊維製ろ紙による飛沫除去を行い、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補集した。ここで生成した炭酸バリウム沈澱は直ちにろ別し、放射能測定用試料とした。

2.5 放射能測定

分離された炭酸バリウム沈澱の放射能は 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800秒間測定し、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。

§3. 結果と考察

3.1 燃焼試験

鉄鋼試料については、すでに助燃剤として錫を、炭素キャリアとして炭素高含有鉄鋼チップを使用し、燃焼法による光量子放射化分析で、良好な微量炭素の定量結果を得ている⁸⁾。しかしながらヒ素およびガリウム試料については溶融燃焼の分析例がないため、燃焼の予備試験が必要となった。ヒ素試料は1350°Cで燃焼させると亜ヒ酸の飛散が多くなるため、温度を1000°Cに設定し燃焼させた。その際、保持担体として加える炭素キャリアは約900°Cで分解する炭酸カルシウムを使用した。燃焼後の残渣は亜ヒ酸カルシウムと亜ヒ酸になることが粉末X線回折分析により確認された。このことは助燃剤なしに十分な燃焼が行えること、また炭酸カルシウムが炭素の保持担体として適当であることを示している。ガリウム試料は低い温度で燃焼させると表面に酸化被膜を生成し完全には燃焼しない。このため温度は1350°Cに上げ、炭素キャリアとしては約1300°Cで分解する炭酸バリウムを使用して燃焼試験を行った。燃焼後の残渣の粉末X線回折分析では酸化ガリウムの生成が確認された。この残渣が白色であることから、含まれるバリウムは非晶質の酸化物になっていると推定された。ガリウム試料についても適当な炭素担体と共に十分な燃焼が行えることが確認された。

3.2 分離炭素の化学収率

放射性核種¹¹Cの回収率は補集された炭酸バリウム沈澱の重量分析より求められた。第3表に各試料からの¹¹Cの平均回収率を示した。

第3表 ¹¹Cの回収率。

試料	¹¹ Cの平均回収率(%)
鉄鋼標準試料	89.6±2.3 (n=6)
ヒ素試料	90.2±2.7 (n=20)
ガリウム試料	89.2±2.5 (n=4)

本法の炭素分離法からは ^{11}C の高い回収率が得られたが回収率の標準偏差率は約3%となり、再現性に問題があることが分った。この結果より ^{11}C の放射能はその回収率によって補正することにした。

3.3 妨害反応と妨害成分

$^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ の反応の妨害反応となるのは $^{14}\text{N}(\gamma, t)^{11}\text{C}$ と $^{16}\text{O}(\gamma, \alpha n)^{11}\text{C}$ が考えられる。しかしながら Engelmann²⁾の試験結果から30MeV照射の場合、それら妨害反応から得られる ^{11}C の放射能は炭素に対し質量比で窒素は約1/50、酸素は約1/1000であることが実証されている。それ故に本研究で用いた試料ではそれら妨害反応が無視できることが分る。

各試料から得られた最終生成物である炭酸バリウム沈澱の陽電子消滅ガンマ線の減衰を測定して半減期を求めた結果、各試料ともに ^{11}C の半減期と良く一致した。このことから本化学分離法においては、炭素はマトリックス元素に由来する放射性核種で汚染されることなく、高い純度で分離されることが実証された。

3.4 ヒ素およびガリウム試料中の炭素の定量

ヒ素およびガリウム試料中の炭素の定量は鉄鋼標準試料 JSS-033-1 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4表に示した。

第4表 ヒ素およびガリウム試料中の炭素の定量結果。

試料	炭素濃度 (ppm)	試料調製法
一級試薬ヒ素	1.09	D, *
	1.00	D, *
高純度ヒ素	0.12	B, *
	0.44	C
	0.70	C
	0.51	C
	0.009	D, *
	0.006	D, *
	<0.005	D, *
	0.007	D, *
昇華精製ヒ素	85.6	A
	1.20	A, *
	0.31	B
	0.089	B, *
	0.13	C
	0.20	C
	<0.005	D, *
	<0.005	D, *
	<0.005	D, *
<0.005	D, *	
高純度ガリウム	0.039	A
	0.013	A
	<0.005	C
	<0.005	C

* : 試料を照射後、王水でエッチング。

本法の検出限界は $N = 3 \times \sigma_B$ を基礎に計算された。ここで σ_B はバックグラウンドカウント数の標準偏差、 N は検出される最小の陽電子消滅ガンマ線ピークのカウント数である。その結果、試料量に換算するとその検出限界は5 ppbであった。

第4表より炭素定量値は試料調製法に大きく影響されることが分る。同一ヒ素試料内で調製法を比較した場合、A B Cの順に定量値は著しく小さくなる。これは照射中に雰囲気から反跳炭素が捕獲されたためと考えられる。この反跳炭素を除去するため王水で平均重量率10%をエッチングしたが、完全には除去できなかった。これはヒ素の試料形状が結晶粒の集まった塊状であるために試料内部まで炭素が侵入したためと推定される。調製法Cにおいて試料管内の雰囲気中に存在する炭素は、大気中の平均炭素濃度から計算で求めると検出限界以下であり、CとDを比較した炭素定量値の差は照射以前に試料表層部に存在した炭素に相当すると考えられる。また同試料、同調製法内における定量値のバラツキの主な原因は試料表面積の差異によるものと推定される。

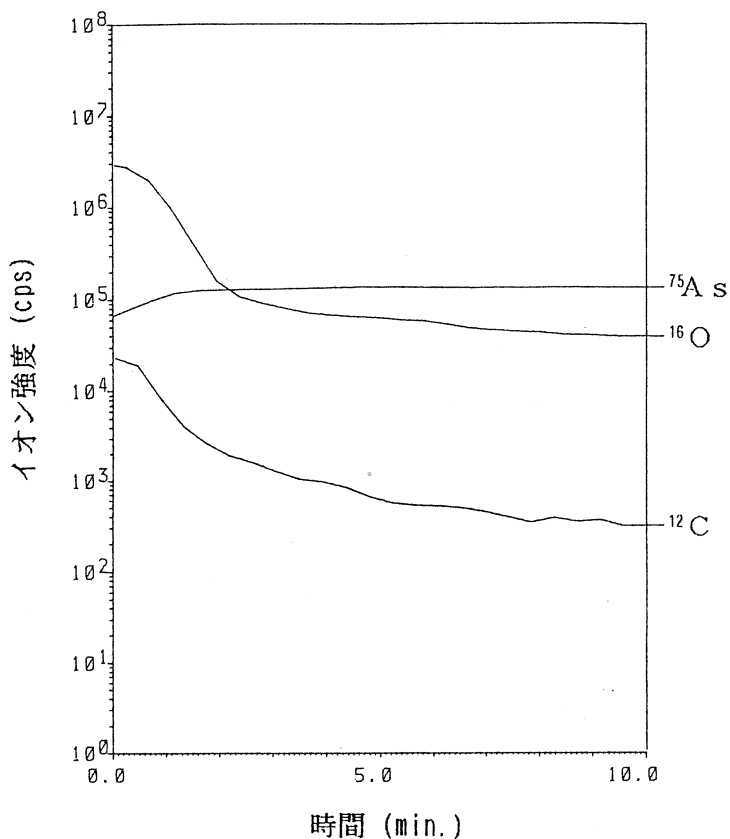
ガリウム試料について調製法Aには炭素汚染が認められたが、ヒ素試料に比べてその割合は極めて小さかった。これは試料形状がガリウムは液体、ヒ素は塊状であり、前者は照射ビーム方向で試料管内壁と試料間に間隙がないが、後者にはその間隙が存在し、雰囲気からの反跳炭素の捕獲に大きな差を生じたためと考えられる。

一級試薬ヒ素試料は炭素濃度が高く、二つの値の差は小さいという結果が得られた。この試料に炭素が比較的均一に高濃度で存在することは、その製造法からの示唆される。

ガリウムヒ素の原料となる昇華精製ヒ素と高純度ガリウム試料では、表面層を除くバルク中の炭素濃度は共に検出限界以下であった。高純度ヒ素とその昇華精製ヒ素を原料としてガリウムヒ素を製造し、FT-IR法でそれぞれのガリウムヒ素中の炭素の赤外吸収量を比較すると後者の方が炭素量が少なかった。この事実と本報の結果には相関が認められ、一層の検討が必要とされた。

一方、ヒ素試料の表層部には特に高濃度で炭素が存在すると推定されるため、SIMSによるヒ素試料表層部の深さ方向分析を試みた。その結果は第3図に示した。この図で横軸は時間であり試料表面からの深さに対応する。また縦軸はイオン強度を示す。測定値は補正されていないため各元素間での定量的な比較はできないが定性的には試料表層において炭素と酸素の存在率が高く、ヒ素は相対的に低くなっていることが認められた。

これらの結果より、金属ヒ素の表面には酸素と同様に炭素の汚染もかなりあるため、その製造やそれを原料とする次工程において、その取扱いを十分に注意することが指摘される。



第3図 SIMSによるヒ素試料の深さ方向分析。

§4. まとめ

炭素分離法としての燃焼法と光量子放射化分析を併用することによって、ヒ素およびガリウム中の微量炭素を定量することができた。特に試料を真空封入する試料調製法により雰囲気からの炭素汚染問題を解決でき、ヒ素試料中の炭素については重要な知見が得られた。この方法は低融点金属などの試料に有効であり、他の電子材料であるインジウム、アンチモン、錫などに応用できるものと期待される。

参 考 文 献

- 1) G. Revel: J. Radioanal. Chem. **3** (1969) 421.
- 2) Ch. Engelmann: J. Radioanal. Chem. **6** (1970) 399.

- 3) V. I. Rodionov, V. N. Samosyuk, B. A. Chapyzhnikov, G. Revel and M. Fedoroff:
Radiochem. Radioanal. Lett. **18** (1974) 379.
- 4) M. Fedoroff, C. Loos-Neskovic and G. Revel: J. Radioanal. Chem. **38** (1977) 107.
- 5) C. Loos-Neskovic, M. Fedoroff, V. N. Samosyuk and B. A. Chapyzhnikov: Radiochem.
Radioanal. Lett. **45** (1980) 185.
- 6) M. Fedoroff, C. Loos-Neskovic and G. Revel: J. Radioanal. Chem. **55** (1980) 219.
- 7) M. Fedoroff, C. Loos-Neskovic, J. C. Rouchaud, V. N. Samosyuk and B. A.
Chapyzhnikov: J. Radioanal. Nucl. Chem. **88** (1985) 45.
- 8) A. Yoshioka, K. Nomura, M. Takeya, K. Shimura, K. Masumoto and M. Yagi:
J. Radioanal. Nucl. Chem. **122** (1988) 175, 核理研研究報告 **19** (1986) 98.
- 9) 吉岡 明, 野村紘一, 川上 紀, 志村和俊, 榎本和義, 八木益男: 核理研研究報告 **21**
(1988) 42.
- 10) G. G. Devyatykh and Yu. A. Karpov: Talanta **34** (1987) 123.
- 11) 岸田元良: 電子材料 **7** (1968) 18.
- 12) M. Yagi and K. Kondo: J. Radioanal. Chem. **36** (1977) 247.
- 13) 榎本和義, 鈴木信男: 核理研研究報告 **13** (1980) 150.

Study on Isotope Effect on Self-Diffusion in Cu using three Radioactive Tracers

Shun-ichi Ushino, Shin-itiirô Fujikawa and Ken-ichi Hirano

*Department of Materials Science, Faculty of Engineering, Tohoku University
Aramaki-aza-Aoba, Aoba-ku, Sendai 980, Japan*

The self-diffusion coefficients in Cu over the temperature range between 980 and 1351K were determined by the serial sectioning method using radioisotope ^{67}Cu . A slight curvature was observed in the Arrhenius plot of the self-diffusion coefficient. The isotope effect factor for self-diffusion in Cu was determined over the temperature range between 1220 and 1351K, using ^{61}Cu , ^{64}Cu and ^{67}Cu . No meaningful difference between the isotope effect factors for the combination of ^{61}Cu with ^{67}Cu and that of ^{64}Cu with ^{67}Cu , but it was found that the isotope effect factor decreases in a temperature range near the melting point of Cu. These results were discussed taking into account the contribution of divacancy to the self-diffusion in Cu at higher temperatures.

§ 1. Introduction

The diffusion coefficients of two different isotopes of the same element in the same material are known to be different each other and the magnitude of this effect is usually expressed by the isotope effect factor, E , defined by

$$E = (1 - D_\alpha/D_\beta) / (1 - \sqrt{m_\beta/m_\alpha}) \quad (1)$$

where D_α and D_β are the diffusion coefficients, and m_α and m_β are the atomic masses of isotopes α and β , respectively. Theoretically, the isotope effect factor is related to the correlation factor f by^{1,2)}

$$E = f \Delta K \quad (2)$$

where ΔK is a factor called the kinetic energy factor.

The correlation factor f is a characteristic of the structure of the crystal lattice and diffusion mechanism. For self-diffusion by monovacancy mechanism in F. C. C. lattice, the correlation factor f is calculated to be $f = 0.781$ ^{3,4)} and $f = 0.458$ in the case of the

divacancy mechanism.⁵⁾

The kinetic energy factor ΔK is the fraction of the kinetic energy of a diffusing atom at the saddle point, associated with motion in the direction of the diffusional jump to the total kinetic energy of the atom. The value of ΔK depends on the atomistic mechanism of diffusion.

On the self-diffusion in Cu, many works were carried out so far,⁶⁻¹²⁾ and it was recognized that the temperature dependence of the self-diffusion coefficient deviated upwards from the Arrhenius type linear relationship near the melting point. The curvature of Arrhenius plot was attributed to the diffusion by the divacancy mechanism overlapped on diffusion by the monovacancy mechanism at higher temperature.

Rothman *et. al.*⁷⁾ determined the isotope effect factor for self-diffusion in Cu over the temperature range between 1167 and 1334K, using the radioisotope ⁶⁴Cu and ⁶⁷Cu by the half-life separation method. However, the result by Rothman *et. al.* that the isotope effect factor does not depend on temperature appears to be inconsistent with the curved Arrhenius plot of the self-diffusion coefficient of Cu. Examination of the isotope effect factor is useful to study the diffusion mechanism through evaluation of the kinetic energy factor ΔK , however experimental work on this matter was not carried out so far. In the present work, the self-diffusion coefficient in Cu was determined using radioisotope ⁶⁷Cu over the temperature range from 980 to 1351K by serial sectioning method and further the isotope effect factor was determined by using three isotopes ⁶¹Cu, ⁶⁴Cu and ⁶⁷Cu. Temperature and mass dependence of the isotope effect factors were examined to elucidate the additional contribution of the divacancy mechanism upon the monovacancy mechanism near the melting point of Cu.

§ 2. Experimental Procedure

2.1 Specimen Preparation

Single crystals were grown from 99.9999% pure Cu by the Bridgman method. Cylindrical diffusion specimens 6 mm in diameter and 11 mm long were cut from the single crystals by a precision cutter. They were chemically polished and annealed in H₂ gas at 1300K for 1.00×10^5 s to decrease dislocation density, and then etched chemically. One end

of each specimen was mechanically ground flat and polished with alumina paste, and finally electropolished.

2.2 Production of radioactive tracers

The γ - ray generated by the bremsstrahlung of 60MeV electron beam with a Pt converter, was applied to a bulk target of 99.999% pure Zn of the natural isotopical composition to produce a mixture of the radioactive tracers ^{61}Cu , ^{64}Cu and ^{67}Cu by the nuclear reactions $^{64}\text{Zn}(\gamma, p2n)^{61}\text{Cu}$, $^{66}\text{Zn}(\gamma, pn)^{64}\text{Cu}$ and $^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Cu}$. For this process, the 300MeV linear accelerator of Tohoku University was used. The Zn target was sealed in a quartz tube under a vacuum of 0.01Pa and placed on the axis of the electron beam in close contact with the Pt converter cooled by water. The procedure for the chemical separation of Cu from the target and that for nuclide identification was described elsewhere.¹³⁾

2.3 Diffusion experiment

Thin layer of mixture of the radioactive tracers ^{61}Cu , ^{64}Cu and ^{67}Cu was electroplated on the flat surface of the Cu specimens under the condition shown in Table 1. Then, each specimen was sealed in a quartz tube with 99.9999% pure He gas

Table 1 Condition of electroplating of Cu on Cu.

Ingredient	$\text{Na}_4\text{P}_2\text{O}_7$	$0.157\text{mol}/\text{dm}^3$
	Na_2HPO_4	$0.103\text{mol}/\text{dm}^3$
	Neutralized by adding H_3PO_4	
Temperature	$333\text{K} \sim 343\text{K}$	
Electrode Potential	$4.0\text{V} \sim 5.0\text{V}$	
Current Density	$0.1\text{A}/\text{cm}^2$	

to avoid oxydation during diffusion. The diffusion annealing was carried out over the temperature range between 980K and 1351K in a resistivity furnace controlled to $\pm 1\text{K}$. After the diffusion, the specimens were reduced in diameter by grinding mechanically to remove the zone affected by the surface diffusion. Then, after measuring the diameter, each specimen was sectioned by a precision microtome. Each section was weighed on a microbalance and the concentration of radioactive tracers contained in it was measured as the specific activity of the γ - ray using by Ge(Li) detector and a multichannel analyzer. The thickness of each section was determined from the weight of the section, the diameter of the specimen and the density of Cu.

§3. Results

3.1 Diffusion coefficient

For the diffusion predicted by the Fick's law, the specific activity of tracers, I , which is proportional to the concentration of tracers, c , in the specimen at the distance, x , from the original surface is expressed by

$$I \propto c = \text{const.} \times \exp(-x^2/4Dt) \quad (3)$$

where D is the diffusion coefficient and t the diffusion time. The linear relationship between $\log I$ and x^2 was observed as shown in Fig. 1 in agreement with equation (3).

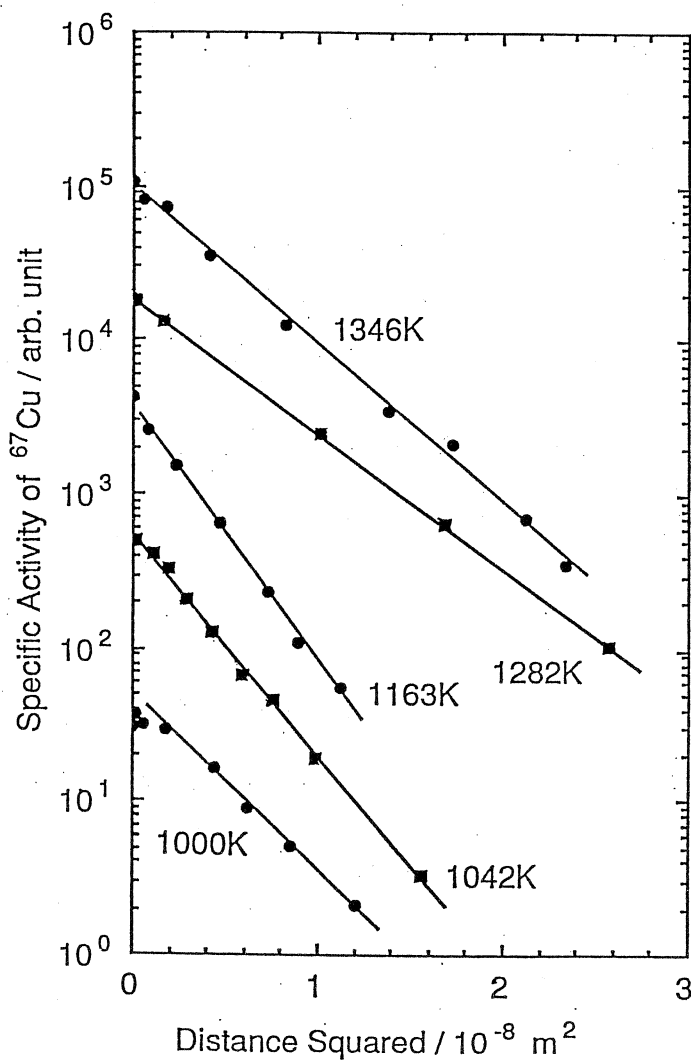


Fig. 1 Penetration profile for self-diffusion of ^{67}Cu in Cu.

The diffusion coefficients, D , determined from the penetration plot, $\log I$ vs x^2 , were listed in Table 2, and their temperature dependence is shown in Fig. 2. It is found that the Arrhenius plot of the self-diffusion coefficient in Cu is slightly curved.

Table 2 Self-diffusion coefficient and isotope effect factor in Cu.

Temp. (K)	Time (s)	Diffusion coef. (m^2s^{-1})	Isotope effect factor	
			$^{61}\text{Cu}-^{67}\text{Cu}$	$^{64}\text{Cu}-^{67}\text{Cu}$
1351	2.0×10^3	5.50×10^{-13}	0.61 ± 0.03	0.58 ± 0.03
1346	2.5×10^3	4.24×10^{-13}	0.60 ± 0.03	0.54 ± 0.07
1316	4.0×10^3	2.82×10^{-13}	0.59 ± 0.05	
1282	6.0×10^3	2.10×10^{-13}	0.61 ± 0.05	0.63 ± 0.07
1250	8.0×10^3	9.12×10^{-14}	0.74 ± 0.04	0.74 ± 0.05
1220	10.0×10^3	7.50×10^{-14}	0.71 ± 0.03	0.74 ± 0.03
1190	15.0×10^3	4.00×10^{-14}		
1163	2.5×10^4	2.58×10^{-14}		
1136	4.0×10^4	1.33×10^{-14}		
1111	7.0×10^4	9.95×10^{-15}		
1087	12.0×10^4	6.34×10^{-15}		
1064	2.0×10^5	3.06×10^{-15}		
1042	3.0×10^5	2.51×10^{-15}		
1000	8.5×10^5	1.13×10^{-15}		
980	14.0×10^5	6.32×10^{-16}		

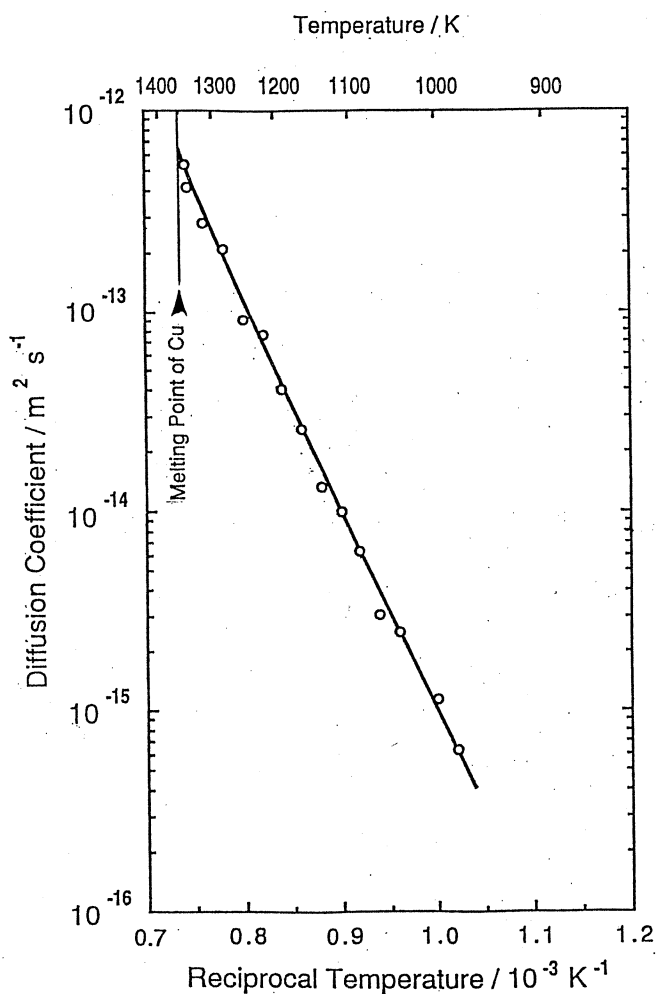


Fig. 2 Temperature dependence of self-diffusion coefficient in Cu.

3.2 Isotope effect for diffusion

From equation (3), the following equation is derived for the simultaneous diffusion of two tracers α and β

$$\log(I_\alpha/I_\beta) = \text{const.} + (1 - D_\alpha/D_\beta) \log I_\alpha \quad (4)$$

where I_α and I_β denote the specific activity of tracers α and β , respectively. Then, the value of $(1 - D_\alpha/D_\beta)$ is determined from $\log(I_\alpha/I_\beta)$ vs $\log I_\alpha$ plots. As shown in Fig. 3, all the plots of $\log(I_\alpha/I_\beta)$ vs $\log I_\alpha$ have a positive slope, which gives us a

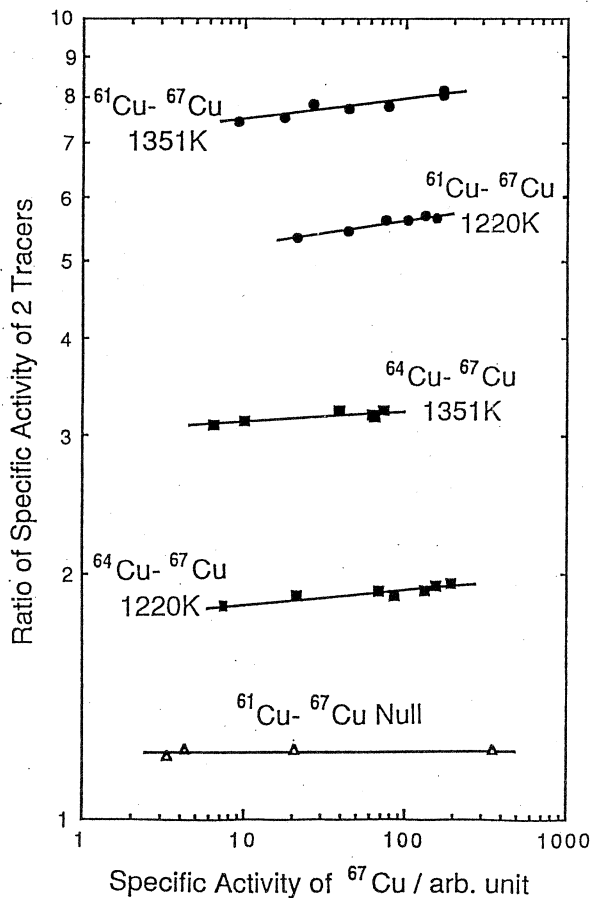


Fig. 3 $\log(I_\beta/I_\alpha)$ vs. $\log I_\alpha$ plot for self-diffusion of two isotopes in Cu.

In the preliminary measurements, the concentration of ^{67}Cu was changed with keeping constant the ratio of concentration of the ^{61}Cu to ^{67}Cu to check the reliability of the radiation detector.

The results are indicated by "Null".

positive value of the isotope effect factor E for $m_\beta < m_\alpha$ as shown in Table 2. According to equation (4), the positive value of the isotope effect factor E is reasonable. Fig. 4 shows the temperature dependence of the isotope effect factor E determined by the present work. It is found that difference between the isotope effect factor E for the combination of ^{61}Cu with ^{67}Cu and that of ^{64}Cu with ^{67}Cu is little, and of the isotope effect factor E tends to decrease with temperature.

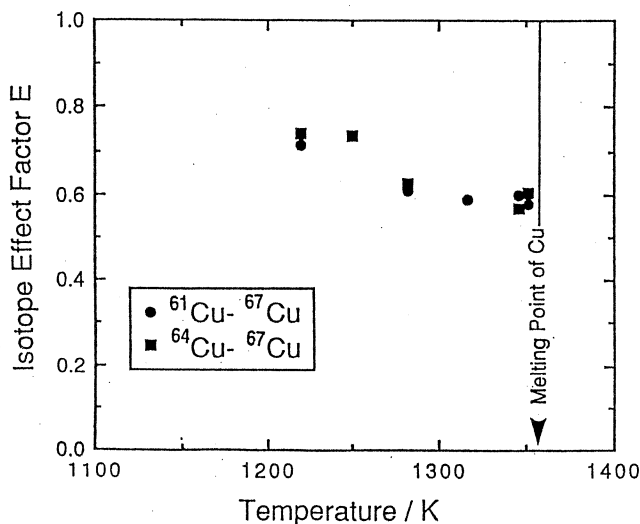


Fig. 4 Temperature dependence of isotope effect factor for self-diffusion in Cu.

§ 4. Discussion

In Fig. 4, no meaningful difference between the isotope effect factors for the combination of ^{61}Cu with ^{67}Cu and that of ^{64}Cu with ^{67}Cu is recognized. This implies that the difference of the mass of the tracer affects only jump frequency of the tracer, and the affection of the mass of the tracer upon the motions of the neighbour atoms of the tracer atom is negligible. If the motion of a given atom does not involve the motion of several neighbour atoms, the motions of the neighbour atoms of the tracer may be independent of the mass of the tracer, and then ΔK should be 1. Therefore, the negligibly small mass dependence of the isotope effect factor E implies that the ΔK is close to 1. If diffusion takes place by both the monovacancy mechanism and divacancy mechanism, the diffusion coefficient D and the isotope effect factor E can be described¹⁴⁾ by

$$D = D_{1v}^0 \exp(-Q_{1v}/k_B T) + D_{2v}^0 \exp(-Q_{2v}/k_B T) \quad (5)$$

and

$$E = f_{1v} \times \Delta K_{1v}(D_{1v}/D) + f_{2v} \times \Delta K_{2v}(D_{2v}/D) \quad (6)$$

where D_{1v}^0 and D_{2v}^0 are the frequency factors and Q_{1v} and Q_{2v} the activation energy for the

monovacancy mechanism and the divacancy mechanism, respectively, K_B the Boltzmann constant and T temperature, f_{1v} and f_{2v} the correlation factors and ΔK_{1v} and ΔK_{2v} the kinetic energy factors for the monovacancy mechanism and the divacancy mechanism, respectively, and D_{1v} and D_{2v} are the contributions of the monovacancy mechanism and divacancy mechanism to the total diffusion coefficient D , respectively. According to equation (6), the decrease in the isotope effect factor E with temperature means the increasing contribution of the divacancy mechanism with temperature because $f_{1v} < f_{2v}$. Taking the values of $\Delta K_{1v} \approx 1$, $\Delta K_{2v} \approx 1$, $f_{1v} = 0.781$ and $f_{2v} = 0.458$, the contribution of the divacancy (D_{2v}/D) is calculated by equation (6) to be nearly 0 below 1250K and 0.4 near the melting point of Cu. This means that the contribution of the divacancy increases with temperature and becomes effective above 1250K. Application of the present results to equation (5) by the least square fit leads the values $D_{1v}^0 = 1 \times 10^{-5} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$, $D_{2v}^0 = 7 \times 10^{-2} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$, $Q_{1v} = 192 \text{kJ/mol}$ and $Q_{2v} = 300 \text{kJ/mol}$. According to these values, the value of (D_{2v}/D) is estimated to be 0 below 1250K and 0.4 near the melting point, in good agreement with the values calculated by equation (6).

§5. Conclusion

It was found that the Arrhenius plot of the self-diffusion coefficient in Cu is slightly curved, the mass dependence of the isotope effect factor E for the self-diffusion in Cu is negligibly small and the isotope effect factor E for the self-diffusion in Cu decreases with temperature. The present results suggest that the contribution of the divacancy to the self-diffusion in Cu increases with temperature and the fraction of the contribution of divacancy mechanism to the total diffusion coefficient D may be about 0.4 at the melting point of Cu.

Acknowledgements

The authors would like to thank Dr. K. Masumoto for his useful suggestions for the production of the radioactive tracers and the γ - ray measurement.

References

- 1) J. G. Mullen : Phys. Rev. **121** (1961) 1649.
- 2) A. D. LeClaire : Phil. Mag. **14** (1966) 1271.
- 3) K. Compaan and Y. Haven : Trans. Faraday Soc. **52** (1956) 786.
- 4) K. Compaan and Y. Haven : Trans. Faraday Soc. **54** (1958) 1498.
- 5) G. E. Murch : J. Phys. Chem. Solids **45** (1984) 451.
- 6) M. Beyeler et Y. Adda : J. Physique **29** (1968) 345.
- 7) S. J. Rothman and N. L. Peterson : phys. stat. sol. **35** (1959) 305.
- 8) N. Q. Lam, S. J. Rothman and L. J. Nowicki : phys. stat. sol. (a) **23** (1974) K35.
- 9) K. Maier : phys. stat. sol. (a) **44** (1977) 567.
- 10) D. Brtdorff, G. Neumann and P. Reimers : Phil. Mag. A **38** (1978) 157.
- 11) K. Hoshino, Y. Iijima and K. Hirano : Acta Metall. **30** (1982) 265.
- 12) S. Fujikawa and K. Hirano : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. **15** (1982) 127.
- 13) S. Fujikawa : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. **15** (1982) 273.
- 14) H. Bakker : phys. stat. sol. **31** (1969) 271.

IV. 加 速 器 · 測 定 装 置

電子線検出用垂直ドリフトチェンバー(VDC)

核理研, 教養部*

田所孝広・八田英之・谷内 努
松山日出人・野村昌弘・王江忠明
菅原真澄・須田利美*・宮瀬晴久*

§1. 序

現在, 我々のグループでは, (e, e' p) 実験において, 陽子検出器として半導体検出器(SSD)を用いて励起関数及び放出陽子のオフプレーンにおける角度分布を測定してきた¹⁾。同様に, 陽子検出器としてプラスチックシンチレータを用いた実験の整備を進めてきた²⁾。

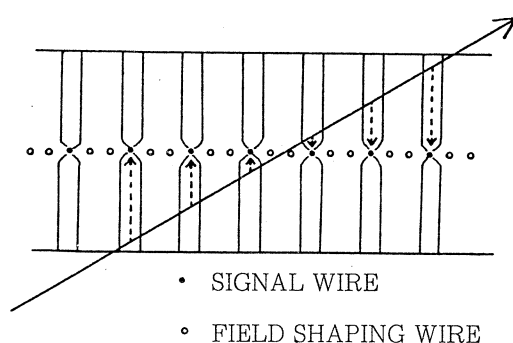
一方, 電子検出器としては多線比例計数管(MWPC)³⁾を用いてきたが, MWPCでは焦点面上における電子の入射角度を測定することができず, また位置の分解能も約2 mmなので, オフプレーンの情報を精度よく測定することができない。

そこで, 今回の実験では, MIT, Batesにおいて開発された垂直ドリフトチェンバー(VDC)⁴⁾の試作品を製作し, それを広域磁気スペクトロメータ(BDM)の焦点面上に置いてその性能を測定し, 将来における2重収束型磁気スペクトロメータ(LDM)用の検出器としての可能性を調べたので, その簡単な結果を報告する。

§2. 垂直ドリフトチェンバー(VDC)

VDCは, 通常のドリフトチェンバーの基本的性質である電子のドリフト距離とドリフト時間が一次の関係式で表わされることと, 入射電子が斜め入射のために一つのイベントで複数本のワイヤーが光ることを利用して一台で粒子の入射角度を測定するものである。

入射角度の測定原理を第1図に示す。

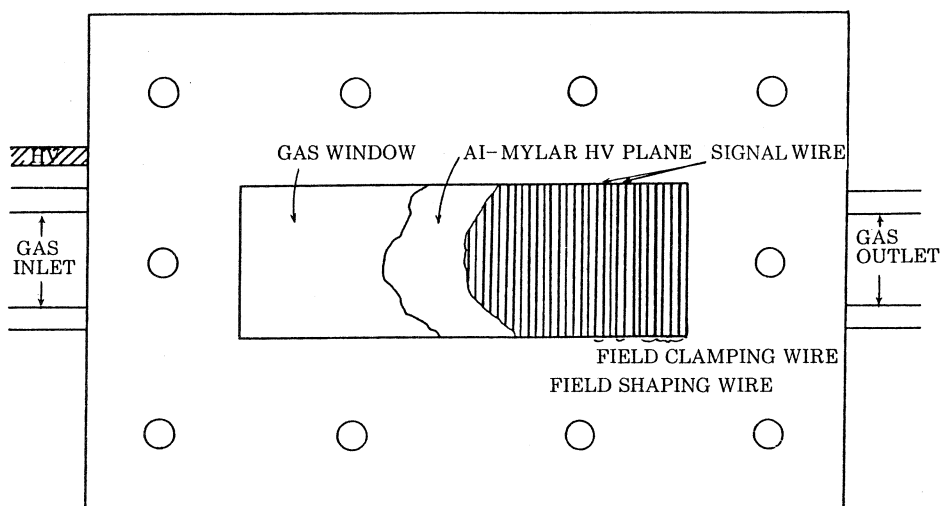


第1図 矢印は, 入射粒子によって生成された電子のドリフト方向である。3本以上のワイヤーのドリフト時間を測定することによって入射粒子の角度が決定される。

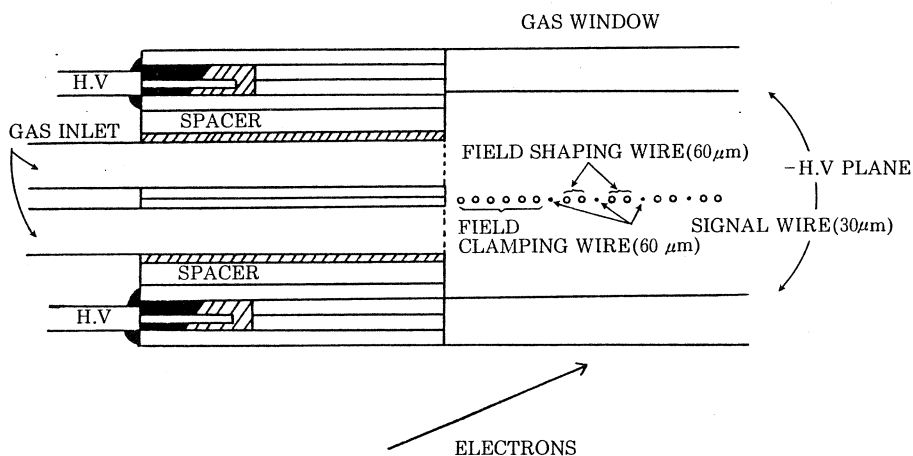
§3. 装置の構造及び BDM 上の設置

第2図に試作した VDC の構造を示す。

フレームには、全てガラスエポキシ板を使用した。ガラスエポキシ板の加工はフライス板を使って行なったが、VDCには非常に高圧(〜10 kV)をかけるので、放電防止のために加工したあと紙ヤスリで磨き、その後アルコールで拭きとり超音波洗浄をほどこした。当初は、各フレーム間のガスシールをネオプレンゴムで行なおうとしたが、ガスもれが生じたので、HV面とワイヤー面の間に厚さ1 mmのネオプレンゴムを入れた以外はアラルダイトで接着した。



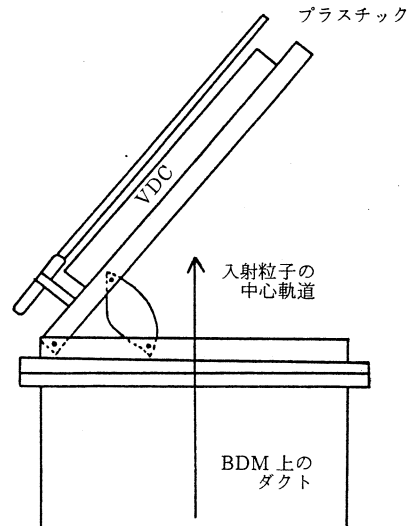
第2図 (a) VDCの構造(上から見た図)。



(b) VDCの構造(横から見た図)。

信号面は、1.6mm厚さの基板にエッチングを行ない、そのパターンに、信号線として直径 $30\mu\text{m}$ の金メッキタングステン線を6mm間隔で16本張り、信号線と信号線の間には電場補正用として直径 $60\mu\text{m}$ の金メッキタングステン線を2mm間隔で2本ずつ30本張り、両外側にも電場補正用として直径 $60\mu\text{m}$ の金メッキタングステン線を2mm間隔で6本ずつ12本張り、信号線以外はすべてアースにおとした。陰極面には片面にアルミを蒸着させたマイラーを用い、信号線との間隔は13.2mmになっている。ガス管には最初銅パイプを用いたが放電の原因となったので、内径4mmのテフロンチューブを用いた。HV線は、モジュール型のHV電源から出ている線をそのままHV面のエッチング上にじかづけし、そのまわりをシリコンでコンパウンドした。

第3図に、VDCをBDMに取り付けた様子を示す。設置架台は、VDCへの電子の入射角度が自由に変えられるように工夫した。図には、ドリフトタイムを測定するためのスタート信号に用いるプラスチックシンチレータとの関係も示している。



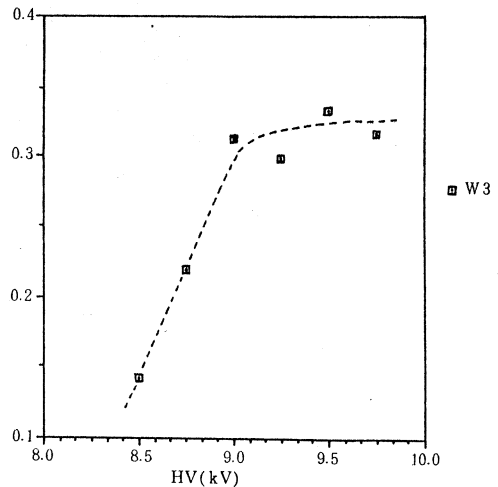
第3図 BDM上のダクトは、以前低圧MWPCの実験の際に製作したものである。

§4. 測定内容及びその結果

測定は、次の項目について行なった。

- (1) ^{90}Sr を用いて、オシロスコープによるパルスの観察
東北大学核理研ライナックからの60 MeV電子線を用いて
- (2) 印加電圧に対する計数効率の変化の測定
- (3) 各シグナルワイヤーのTDCスペクトルの測定

VDCのガスとしては、アルゴン：イソブタン=1：1（各20cc/min）を用



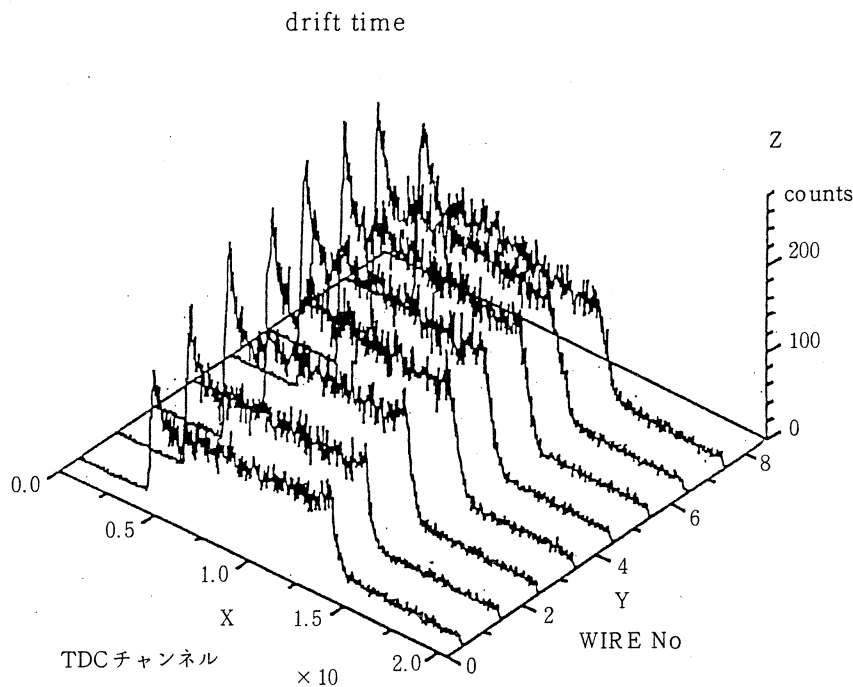
第4図 縦軸はプラスチックとワイヤーの両方光った数を、プラスチックが光った数で割った値である。

い、中心電子入射角度を 33.5° （LDMの焦点面における電子の中心入射角度）に設定し、ターゲットは ^{12}C を用い、巨大共鳴よりも上の比較的構造のない所を観測する事によって行なった。電子の散乱角は 90° である。

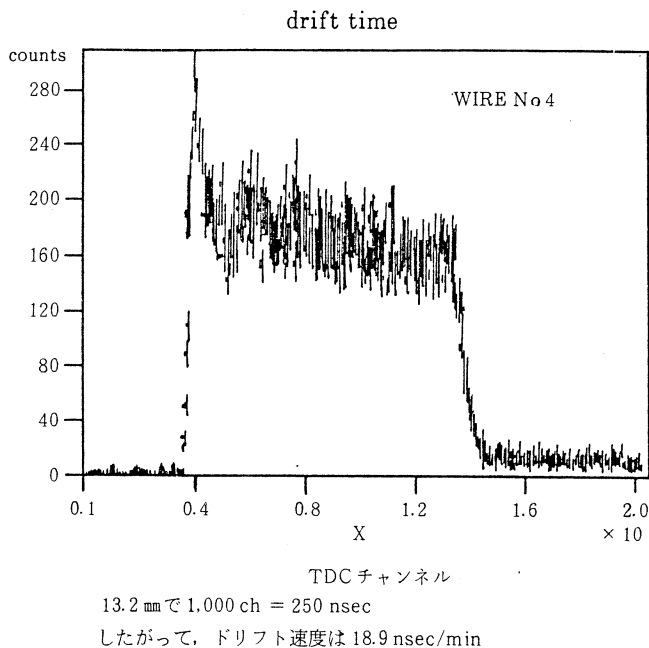
(1)の観測により、 -8.5 kV ぐらいからパルスが見えはじめ、 -10.5 kV で放電がはじまった。この結果より我々は、(2)の測定範囲として、 -8.5 kV から始め、最大でも -10.5 kV までとした。

(2)の測定結果を第4図に示す。プラトーは、 -9.0 kV ぐらいからはじまっていることがわかる。この測定結果をもとに、HVを -9.5 kV に設定して(2)の測定を行なった。

次に、(2)について各シグナルワイヤーのドリフトタイム（TDC）スペクトルを第5図に示す。TDCチャンネルのまん中の部分でカウント数が一定になっているということは、その部分においてドリフト速度が一定であることを示している。

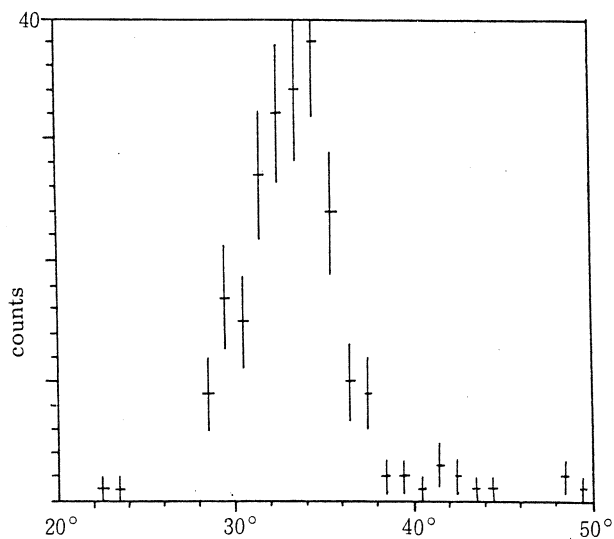


第5図 (a) VDCのTDCスペクトル（ワイヤー8本の全体図）。



第5図 (b) VDCのTDCスペクトル(ワイヤーNo.4)。

次にシグナルワイヤーが4つ以上光ったという情報から最小2乗法を用いて直線を求め、その傾きから求めた入射電子の角度分布を第6図に示す。このときドリフト速度の決定はTime-to-integral法⁵⁾を用いた。電子の中心入射角度と同じ 33.5° をピークに、半値幅で 10° の広がりを持っているが、これはBDMのスリットの幅によりビーム自体が約 10° 広がっていることからくるものと思われる。



第6図 入射電子の角度分布。

最後に、4つのシグナルワイヤーが光った情報において、最初の2つから出した入射角度から、あとの2つから出した入射角度をひいたものを示す。半値幅で約 3° であることから、我々の製作したVDCの角度分解能は、約 3° であることが言える。しかし、このグラフにおいて角度分布が広いすそ野を持っている

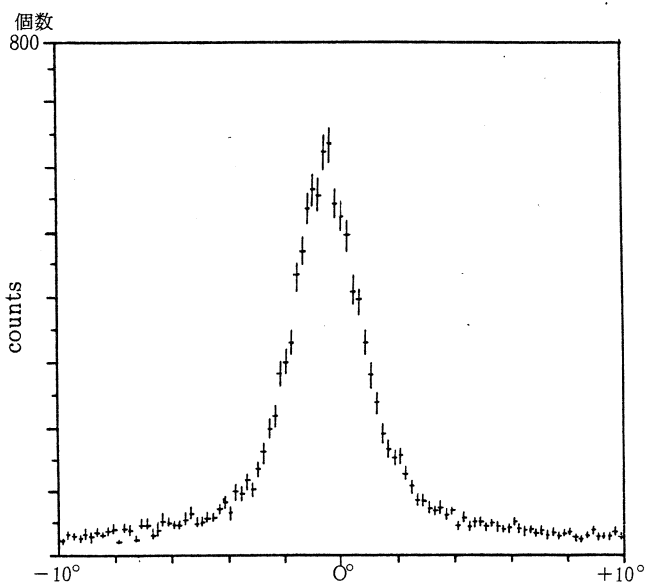
この原因は不明である。考えられる点としては、CFDのジッターやダブルヒットなどであるが、まずはシグナルワイヤーが4つ以上光ったという条件なしにすべてのイベントについて解析していく必要があると思われる。

§5. まとめ

VDCは、非常に高圧（～10 kV）をかけるために、製作上いろいろな技術的困難をともな

うが、それは今回の実験ができたということで解決されたと思う。しかし、中心入射角度 33.5° における角度分解能の広がり、原因を追求する必要がある。今後はガスの混合比やHVをパラメータとして、角度分解能を測定していきたいと思っている。

また、今回は、プリアンプとして富士通MB 43468、ディスクリとしてCFDを用いたが、実際にVDCをLDM用の検出器として用いるには、例えばLeCroy社の2735 DCチェンバーカードを用いた方がよいと思われる。



第7図 角度分解能。

参 考 文 献

- 1) T. Tamae *et al.*: Phys. Rev. Lett **28** (1987) 2919.
- 2) 松山日出人: 修士論文, 東北大学, 1988.
- 3) 河村雅夫他: 核理研研究報告 **12** (1979) 131.
- 4) W. Bertozzi *et al.*: Nucl. Instrum and Methods **141** (1977) 457.
- 5) A. Breskin *et al.*: Nucl. Instrum and Methods **119** (1974) 9.

核理研データ処理システム (ODET89)

核理研, 教養部*, メルボルン大**

菅原康弘・鈴木伸介・竹下邦和

前田和茂*・D. McLean**

松山日出人・武藤正勝・山崎寛仁

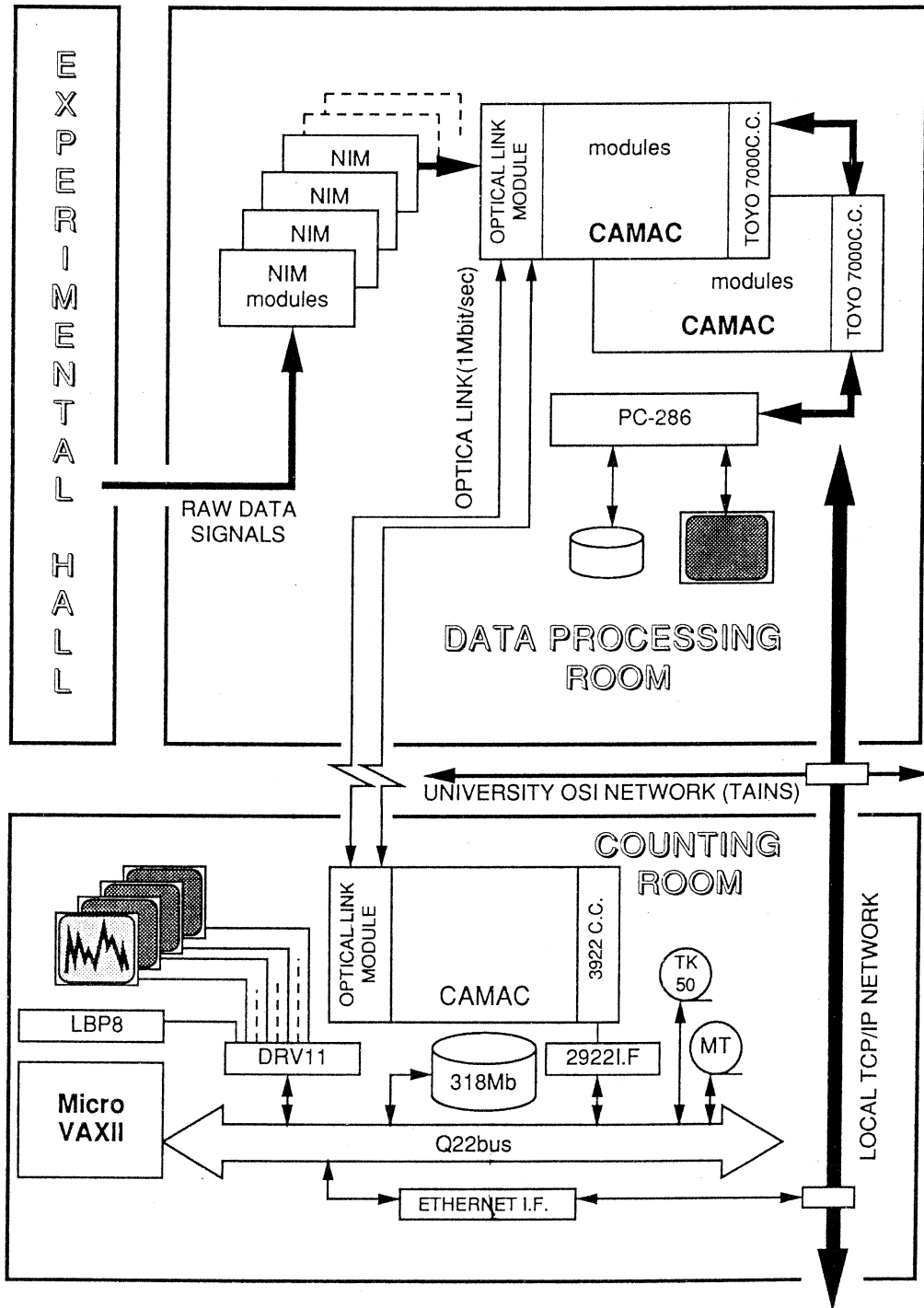
§1. はじめに

1987年に Micro VAX を核理研に導入して以来, 従来よりオンラインのデータ取込に使用していた OKI/CAMAC 系より VAX/CAMAC 系への移行作業を行なってきたが, このたび昨年度から使用が開始された標識付き光子実験用データ収集系に引続き, すべての核理研原子核実験グループが利用できるシステムに更新することが出来た。この報告ではシステムのハードウェアおよびソフトウェアの構成とその使用法, プログラム開発方法等について述べる。実験を行なう際の回路系およびプログラムの立上げや, 実験中のデータ取込の維持のためのマニュアルとして使用できると同時に, 現在核理研で開発が進んでいる幾かの新しい検出器のデータ収集を新たに付加する際の指針にも役立てていただきたいと考えている。

今回構築したデータ収集系の構成にあたっては, 原則的にハードウェアの新規購入は行なわないことにし, 必要なものは自作した。これは単に経済的な理由による。このため, 現在行なわれている核理研の原子核実験から要請されるデータ収集系として最高のものにはなっていないが, 現状では最善に近いシステムであると考えている。しかし次期加速器の完成をまたずとも, 核理研で行なわれている原子核実験において検出器数の増大が予想され, それに伴うデータ収集系の大幅な改善の必要性も近い将来予想される。このことに関しても改善すべき点が述べられており, 適切な投資により基本的には対処できると考えている。

現在の核理研データ処理系の構成を第1図に示す。基本的な構成には標識付き光子実験用システム¹⁾からの大きな変更はない。今回行なった更新の中で大きな変更点をあげると,

- オプティカルリンクの転送速度を約10倍高速化 (~1Mbit/sec) した。この結果, 現状のデータ量ではオプティカルリンクによりデータ収集速度が制限をうけることはなくなった。
- PC をクロック (10MHz→16MHz) の速いものにし, フロントエンドのプログラムを Lattice-C から MS-C に書換えることによる高速化 (約3倍) を行なった。
- VAX 側のプログラムをインターラプトモードで使用する際の改良を行ない最大500Hzで



第1図 核理研データ処理システム (ODET89) の構成。

データを読み込むことが出来るようになった。

- 標識実験以外の実験に対応出来るようにするため、LDM上の現在用いられている MWPC データの取込回路を製作した。

である。

この報告では、これら新たに更新された点を含み現状の核理研データ処理システムを、その要素毎に述べる。まず § 2 でフロントエンド処理系を、§ 3 で VAX でのデータ取込みと VAX 上でのオンラインモニターの方法について述べる。また § 4 では MWPC からのデータ取込方法について今回製作したハードウェアの内容を述べる。更に附録にオンラインの立上げ方法について記した。

§ 2. フロントエンド処理系

フロントエンド処理は以下のような構成(第2図)となっている。CAMAC モジュールのデータはパーソナル CAMAC クレートコントローラーを通して NEC'PC9801' へ送られ、バッファに書き込まれる。バッファが満杯に近くなると 512ワードを単位としてデータをオプティカルリンクモジュールを通し、バックエンドのコンピューターである Micro-VAX II へ転送する。

上記の流れにおいて C 言語で書かれたフロントエンド処理系ソフトウェアが CAMAC 上のデータの読み取り及びバックエンドへのデータの転送を制御している。ここでは、このフロントエンド処理系ソフトウェアについての述べる。

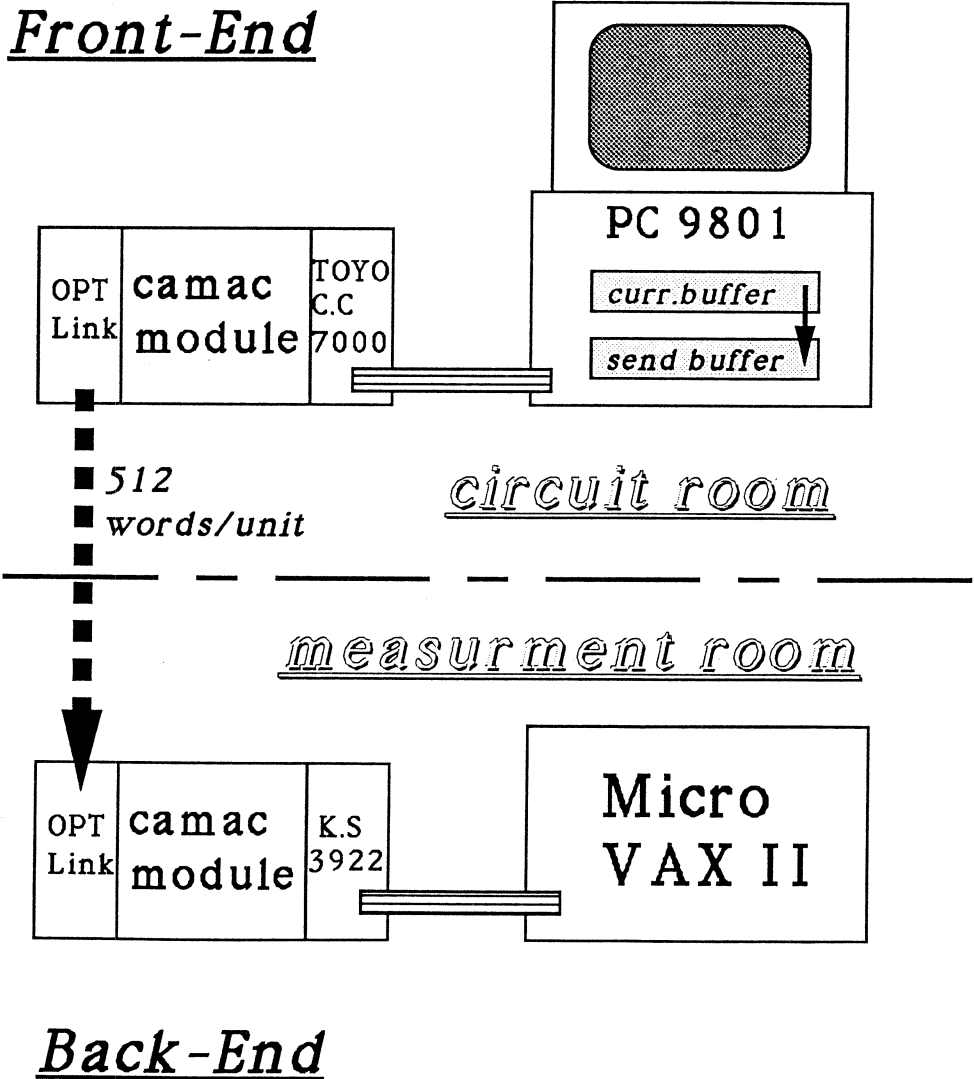
2. 1 フロントエンド処理系ソフトウェア

フロントエンド処理系ソフトウェアは以下の a) ~ g) のプログラムから成っている。

- a) tc. c
- b) tc. i
- c) cdt_init. c
- d) cdt. h
- e) tagcam. h
- f) camac. h
- g) screen. h

それぞれのプログラムの簡単な内容は以下のようになっている。

- a) tc. c メインプログラム。CAMAC-action により read-event を行い、カレントバッファに書き込む。バッファが満たされたなら SEND バッファに移した



第2図 フロントエンド処理系の構成。

後、オプティカルリンクにブロック転送し、VAX側へ送る。

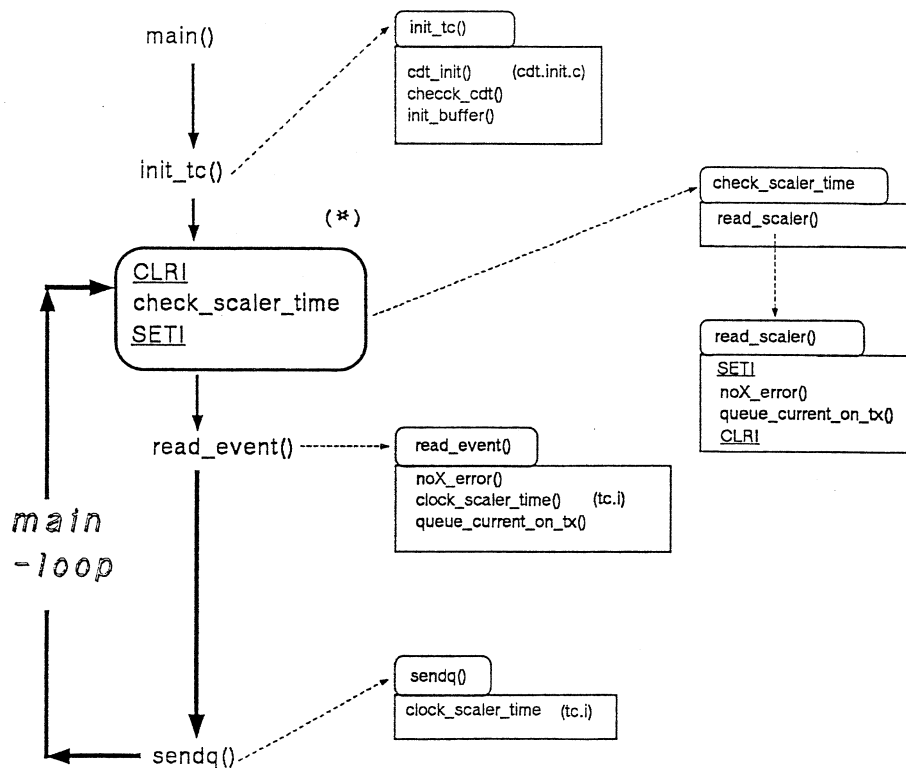
- b) tc. i time-counter function の定義。パラメータ（バッファの大きさ，カウンタの初期値等）を設定。バッファの構造を定義。
- c) cdt_init. c configuration-table。各マスクの設定。
- d) cdt. h inhibit-action (SETI, CLRI) の設定。configuration-table の構造を定義。
- e) tagcam. h CAMAC-function 及び，そこに関係した定数（未使用が多い）を定義。

- f) camac. h CAMAC サブルーチン。
 g) screen. h PC 画面の制御関数を定義。

フロントエンド処理系のソフトウェアは現在 'MS-C v5.1' で書かれている。実行形式は、メインプログラム (tc. c) にユーザーが各々の実験に合わせて変更する 'Configuration Data Table' (以下, CDT) をリンクして作成される。

2.1.1 メインルーチン

メインルーチン概要を第3図に示す。図にはメインルーチンのシーケンスを各部を構成している function (FORTRAN におけるサブルーチンにあたる) 名により示した。



第3図 フロントエンド処理系ソフトウェアの概要。

プログラムの起動に伴い `init_tc()` により各 CAMAC モジュール及びバッファ等の初期化がされる。その後は第3図に示したメインループを回ることによってデータ処理及び制御が行われる。メインループは主として

- a) check_scaler_time 内の read_scaler ()
- b) read_event ()
- c) sendq ()

と CAMAC-action に伴う SETI (set inhibit), CLRI (clear inhibit) から成り立っている。メインループ内の動作を 1) ~ 3) として以下に簡単に示す。

1) IR が立たないときは図に (*) で示した四角内のループのみを回り read_scaler() によりスケーラーのみの読み込みを行う。カレントバッファが満杯に近ければ queue_current_on_tx() によりカレントバッファからセンドバッファへデータが移される。IR が立ったならば, 2) へ。

2) read_event () に入る。read_event () 内の流れは以下 (2-1)~(2-3) の順で行われる。

(2-1) /read IR and save its value/

CDT で data type が “ type IR ” と定義されているモジュールを読む。

(2-2) /read & save CR/

CDT で data type が “ type CR ” と定義されているモジュールを読む。

(2-3) /scan the crate & read data sources/, /make the bitmap/

IR の LAMに対応したモジュールのデータ*)を読む。

これらの動作の後, カレントバッファが満杯に近ければ queue_current_on_tx () によりカレントバッファからセンドバッファへデータが移される。3) へ。

3) センドバッファにデータが書き込まれていたなら sendq () に入り, バッファの内容をオプティカルリンクへ512ワード単位でブロック転送する。センドバッファにデータが書き込まれていない時はそのまま 1) へ戻る。

*) (γ , π) 実験時は CR は MWPC データとして “ type data ” と定義しているの
で, (2-2) では読まずに (2-3) において読む

以上がメインループの概要である。なお, (γ , π) 実験時はイベントに関わらず照射線量をスケーラーにより取り込むため, ループ内の CAMAC-action に伴う SETI, CLRI は行っていない。

2. 1. 2 Configuration Data Table (CDT)

フロントエンド処理系のソフトウェアは基本的に確立されているため処理速度の向上, データ転送の形式の変更等を望まないならば, CDT の変更のみでデータの取込みが行えるものと

なっている。以下では実験に際し CDT において定義しなければならないパラメータをあげ、その説明をする。

a) nslots

使用する CAMAC モジュールの数である。この中にはオプティカルリンクモジュールとインターラプトレジスターは含めるが、クレートコントローラーの数は含めない。

b) redzone

バッファが満杯になる前にデータは転送されなければならない、その基準として設定するのが redzone である。残バッファが redzone で示されたワード数以下になるとバッファの中のデータのオプティカルリンクモジュールへの転送が開始される。この値は、

(1 イベントに使う最大のワード数 + 1)

+ (スケーラーの使用するワード数 + 3)

より大きく設定する。

前回の (γ , π) の実験を例とすると、1 イベントにつき読む CAMAC モジュールは、

CR 6 台 (1 台 1 ワード, 計 6 ワード)

ADC 1 台 (1 入力 1 ワード, 7 ch 使用により 7 ワード)

Scaler 1 台 (1 入力 2 ワード, 12ch 使用により 24 ワード)

である。よって、(13 + 1 ワード) + (24 + 3 ワード) = 41 である。

c) マスク (16進表示)

IR masks : LAM を立てるインターラプトレジスターのチャンネルの指定。

subaddress masks : IR が立ったとき読みに行くサブアドレスの指定。

d) crate definition table

1 台の CAMAC モジュールの設定を { } で囲まれた 1 個のテーブルにより定義する。書式を以下に示す。

```
{ crate_No. , stn_No. , module_type, no_lam, IR_mask, read_mode,
  SA_mask, CR_id, CR_mask, lower, upper, label }
```

の順になっている。それぞれを以下に示す。

crate_No. : クレートの番号。1 台の時は ' 0 ' (4 台まで増設可能)

stn_No. : モジュールをいれるスロットの番号

module_type : モジュールの種類。以下のものがある。

TypeIR	: インターラプトレジスター
TypeLink	: オプティカルリンクモジュール
TypeData	: ADC, TDC etc.
TypeCR	: コインシデンスレジスター
TypeScaler	: スケーラー
no_lam	: LAM を必要とするモジュールであるか否か。必要なとき 1, 必要ではないとき 0。
IR_mask	: このモジュールに関して LAM が立つインターラプトレジスターのチャンネル。上記 c) の各マスクで設定している。
read_mode	: データの読み込み, 処理に関するモード。2 方式の設定があるが OnCoin のモードは未完成につき使用不可能。 OnValue : 下に示すゲートの間にあるときのみ読む OnCoin : (未完成, 使用不可能)
SA_mask	: IR が立ったとき読みに行くサブアドレス。上記 c) の各マスクで設定している。
CR_id	: (OnCoin モードのパラメータ。常に {0} に設定。)
CR_mask	: (OnCoin モードのパラメータ。常に {0} に設定。)
upper, lower	: OnValue モード時のソフトウェアによるゲート。
label	: ラベル名。

2.2 現在までの改良点と、今後の課題

このプログラムは当初は標識付光子実験用に開発されたものであり、1989年4月の標識付光子の実験時にはフロントエンドコンピューターとしては EPSON 'PC-286V' (10MHz) に、'Lattice-C' を用いてプログラムが書かれていた。2カ月後の (γ , π) の実験時に EPSON 'PC-286VS' (16MHz) + 'MS-C v5.1' に変更したところ、プログラムの実行速度は約2倍になり、現在に至っている。

現状での問題点としては、バックエンドの処理速度との整合性が上げられる。データの通信を行うに当たり各々のコンピューター間の同期をとることが難しいため、現在はフロントエンドからのデータはバックエンドに向かって片方向通信 (フロントエンドに対しバックエンドからのレスポンスはない) になっており、バックエンドでのデータの読み込みのエラーが問題となっている。

今後予想される計数率の高い実験において、フロントエンドでのデッドタイムが問題になる場合を考慮すると、プログラムの改良による高速化を図ると同時に極力高速のコンピューターを使用することが望ましい。

§3. Micro-VAX II によるデータ取込

3.1 システムの構成

Micro-VAX II 上でオンラインプログラムを走らせるためには、目的に応じて `trx. dir`, `shr. dir`, `tmp. dir` の三つのディレクトリを設ける必要がある。

`trx. dir` は主なプログラムを収納するディレクトリである。実験中は、この中にある五つのプロセス全てを使用する。

`shr. dir` は、異なったプロセス間のデータの受渡しを担当するプログラムが含まれるディレクトリである。Vax-fortran 特有の共有領域はここに設定される。(共有領域については Vax-fortran のマニュアル及び付録を参照のこと。)

`tmp. dir` は、文字通り一時的に使用されるものなので、ディレクトリは存在しているだけでよい。

各々のディレクトリに含まれるプログラムは、第1表に記してある。

第1表 オンラインプログラムのリスト。

1. メインプロセス [. `trx`]

a. データ処理サブルーチン群

`abort. f`
`checksum. f`
`exec_command. f`
`general_init. f`
`handle_data. f`
`initialise. f`

b. 端末出力用サブルーチン群

`put_message. f`
`put_prompt. f`
`update_run_info. f`

第1表 (続き)。

- update_state_info. f
- verror. f
- c. メインルーチン
 - trx. f
- 2. データ解折用サブプロセス群 [. trx]
 - t_rx_wait. f
 - trx_tape. f
- 3. オンラインモニター用サブプロセス群 [. trx]
 - a. 基本形
 - def_online. f
 - tag. f
 - view. f
 - b. (γ, π) 実験で使用されたサブプロセス群
 - def_online. gpi
 - gtag. gpi
 - gview. gpi
 - gmwpc. gpi
- 4. インクルード文 [. trx]
 - hist. i
 - tagcam. h
 - util. i
 - user. i
 - trx. i
 - trxshr. i
- 5. シェアラブルイメージ [. shr]
 - tagshr. f
 - datashr. f
 - trxshr. f

3.2 プロセス間のデータの受渡

プロセス間でデータの受渡しを行なう共有領域は、datashr, tagshr, trxshrの三つである。

datashr trx, tag, trx_tape間のデータの受渡し。

tagshr trx, tag間のデータの受渡し。

trxshr trx, t_rx_wait間のデータの受渡し。

3.3 プロセスの役割

オンラインプログラムは、データの入出力を担当するデータプロセスと、モニターを担当するモニタープロセスから成る。データプロセスは一つのメインプロセスと二つのサブプロセスで構成され、モニタープロセスはデータ振り分け部と表示部とに分けられる。モニタープロセスについては3.6で説明する。

trx (メインプロセス)

オンラインプログラム全体の制御を行なう。主な役割は、

- 1) 読み込み, 書き込み, 解析の同期をとる。
- 2) 送られてきたデータが正しく読み込まれたかどうかのチェック。
- 3) Runの始まりや終わりの処理。

の三つである。

t_rx_wait (データの読み込み)

オプティカルリンクモジュールからMicro-VAX IIへデータの転送を行なう。データ転送はDirect Memory Access (DMA) によって行なわれる。一回のデータ転送が終わってから、次のデータを受け付けるまで、データプロセス全体を休止状態にする。

trx_tape (データの磁気テープへの書き込み)

読み込まれたデータを、磁気テープに書き込む。

第4図にデータ処理の流れを示す。

3.4 データ処理の流れ

全体の処理の流れは、以下の通りである。

- 1) Runを始めると、変数やクレートの初期化を行なった後に、データプロセス全体が、休止状態に入る。(図中の&印)
- 2) オプティカルリンクモジュールがデータを受け取ると、t_rx_waitが活動状態となりデータをMicro-VAX IIに転送する。データサイズは1ブロック512ワードである。
- 3) 転送終了後(@印) データのチェックサムを取り、trx_tapeに同期信号を送る(%印)。

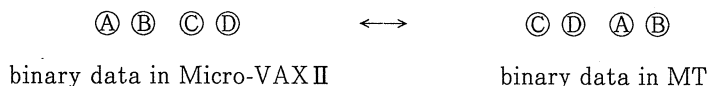
trx_tape からの同期信号（#印）を受け取るまで休止状態となる。

- 4) trx_tape でデータを磁気テープに出力する。時間の短縮のため、8ブロック（4096ワード）を一つのまとまりとして書き込む。この処理が終了すると、trx（#）と、tag（*）に同期信号を送信する。
- 5) trx が trx_tape からの同期信号（#）を受信すると、t_rx_wait に対して同期信号（&）を送信する。ここで1)の処理に戻り、次のデータを受け付けるまでデータプロセス全体が休止状態に入る。

3.5 磁気テープのデータ構造

1ブロックの大きさは8192バイトである。OKITAC等でデータを読む場合には、ワークエリアが不足する場合がある。

Micro-VAX II の磁気テープ入出力は、2バイトを一つの単位として、上位バイトと下位バイトの入れ替えが行なわれる。（第5図参照のこと）



第5図 Micro-VAX IIでの integer*2 の入出力。
（一つのマルは16進数一桁を表わす）

Micro-VAX II で入出力が行なわれる場合には、二度の入れ替えが行なわれるので特に意識する必要はないが、他の機種では問題が生じる可能性がある。

3.5.1 マーカー

データの中には、次の六種類のマーカーが存在する。

FFF0 (16進)	Run Header	これは、Run の初めに書かれている。
FFFC	Good-link Block Header	PC からミス無しでデータが送られたとき、ブロックの頭に書かれている。
FFF9	Bad-link Block Header	PC からのデータに何等かのミスがあったとき、書かれている。
FFFF	Event Header	

イベントの最初に書かれている。

FFFE Scale Header

スケーラー情報の最初に書かれている。

FFF1 End of Run Marker

Run の最後に連続して多数書かれている。

3. 5. 2 データ構造

Run の始まり

Run の頭には、Run Header の後で255ワードコメントが続き、257ワード目に Run No. が、258ワード目に Field が記されている。実際のデータの始まりは、513ワード目である。

オプティカルリンクモジュールでの1ブロックの初めには、FFFC または FFF9 の Block Header が存在する。次の1ワードは、フロントエンドから送られてきたブロックの続き番号が挿入され、その後、イベントまたはスケーラ情報が書き込まれている。

イベント情報

初めは、Event Header FFFF、以下、インタラプトレジスターのサブアドレス、コインシデンスレジスタ、ビット長、ビットマップが1ワードずつ、CAMAC データが各々1ワードずつ書き込まれる。ビットマップ、ビット長のデコードは、3. 6. 3で書かれている。

スケーラ情報

Scaler Header FFFE、以下に2ワードでデータを取り込んだ時刻、その後スケーラー情報がサブアドレスの順にロングワードで書き込まれる。

Run の終わり

一つの Run が終わった時点で、データが磁気テープに書き込む8192バイトに満たないとき、残りの空白部分に End of Run Marker が挿入される。その後には Double Tape Marker が書き込まれ、このファイルを閉じる。

第6図に実際のデータ打ち出しの例を挙げておく。

3. 6 データ取込みでのモニターの方法

モニタープロセスとしては、2つのプロセスがある。一つはバッファリングプロセスの tag、もうひとつはヒストグラムプロセスの view である。メインプロセスである trx によって取り込まれたデータは、共有領域上のメインバッファ (TBUFF) に書き込まれバッファリングプロセスである tag により読み込まれる。データは、圧縮された状態で PC 側から送られてくるため、一度テンポラリーなバッファ (EDAT) に振り分けをした後、共有領域上のヒストグラ

```

2793      -4   FFFC      : Block Header
2794      16    10      : Block Number
2795      -1   FFFF      : Event Header
2796         4     4
2797     4095   FFF
2798        -1   FFFF
2799    -4097   EFFF
2800         44    2C
2801  -32625   808F
2802         0     0
2803         8     8
2804         64    40
2805         98    62
2806         50    32
2807         50    32
2808         74    4A
2809         929   3A1
2810         522   20A
2811        -1   FFFF      : Event Header
2812         4     4
2813     4095   FFF
2814    10604   296C
2815   -4457   EE97
2816         44    2C
2817  -31857   838F
2818    16388   4004
2819         0     0
2820         62    3E
2821         56    38
2822        116    74
2823         50    32
2824         12     C
2825         50    32
2826         55    37
2827        199    C7
2828         24    18
2829         996   3E4
2830        -1   FFFF

```

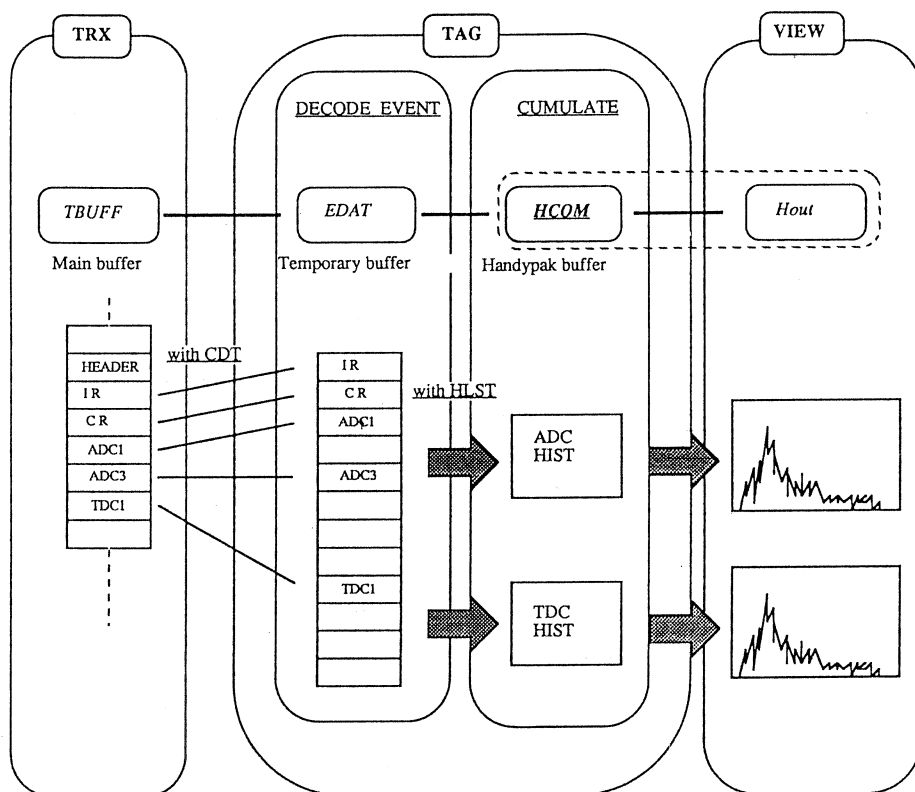
第6図 データダンプ・リストの例。

ムバッファ (HCOM) に格納する。TBUFFからのEDATへの振り分けは、コンフィグレーションテーブル (CDT) に照らし合わせて行なわれ、EDATからHCOMへの格納は、ヒストグラムディフィニションによって行なわれる。HCOMに格納されたヒストグラムは、ヒストグラムプロセス (view) によって表示される。(第7図)

ここでは、コンフィグレーションテーブルとヒストグラムディフィニション (def_online.f)、データバッファ、データハンドリングプロセスについて述べる。

基本的には、フロントエンド側のコンフィグレーションテーブルを書くだけで、データを取り込むことが出来る。モニターするためには、init_cdtとdef_histを書けばよほどのことがないかぎりヒストグラムを描くことが出来る。実験の始めには、必ずデバッグモードでのtag

BUFFERING



第7図 trx, tag, view間のデータの流れ。

を走らせて、データハンドリングが正しく行われているかを確認すること。tagのエラーメッセージが出た場合はPC側かVAX側のコンフィグレーションテーブルのミスである事が多いから、正しく書き直さなければならない。

3.6.1 コンフィグレーションテーブル

コンフィグレーションテーブルは、プログラム def_online.f 中の init_cdt というサブルーチンにより定義されている。コンフィグレーションテーブルのフォーマットはほとんどPC側と同じで、CDTという配列名でCAMACステータスを示している。下記に、構造化された配列内の変数名を示す。

cdt.stn	CAMACステーションナンバー
cdt.type	データタイプ

cdt.ir_mask	インタラプトマスク
cdt.sa_mask	CAMACサブアドレス
cdt.nsubaddrs	サブアドレス数

3. 6. 2 テンポラリーバッファ (EDAT)

フロントエンドからの圧縮されたデータは、テンポラリーバッファとしてのEDATという配列に振り分けられる。EDATのフォーマットは予め決められていて、これはフロントエンド側でのCAMACデータリードの順番と同じである。EDATには、IRの値、データタイプがtypecr、データタイプがtypedataの順に振り分けられる。(第8図)

3. 6. 3 ビットマップとビット長

圧縮されたデータは、ビットマップの書式に従って、最初にフロントエンド側で読まれたデータ配列に戻される。ビットマップの書式では、イベントのあったCAMACチャンネルにビットを立て、それを10進で表している。ビット長とは、ビットマップの長さを意味している。(第9図)

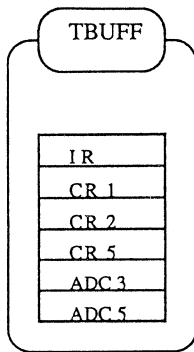
3. 6. 4 DECODE_EVENT

TBUFFからEDATへの振り分けは、tagの中のdecode_eventというサブルーチン内で行なわれる。TBUFFのデータは、ビットマップとCDTに照らし合わされ、先に述べたEDATにフォーマット通りに振り分けられる。(第10図)

3. 6. 5 DEF_HIST

ヒストグラムのコンフィグレーションテーブルは、def_online中のdef_histというサブルーチンで定義されている。これはEDATのどのデータを、どのヒストグラムに描くかを定めるものである。下記に、def_hist内で構造化された配列内の変数を示す。(第11, 12図)

hlst.active	ヒストグラムを描くかどうかを決める
hlst.htype	HANDYPAKタイプをきめる
	oned 1次元ヒストグラム
	group or slice 2次元ヒストグラム
	twod of scatt スキャッタープロット
hlst.dtype	データタイプ
hlst.ircoin	これはCDTと同じ、対応するirを示す
hlst.xsrcl	そのヒストグラムに対応するデータの、EDATの始まりの位置
hlst.xsrcu	そのヒストグラムに対応するデータの、EDATの終わりの位置



```
subroutine init_cdt
```

```
include 'hist.i'
include 'user.gpi'
integer*4 ierr
```

```
nslots = 13
cdt(0).stn = 2
cdt(0).type = typelink
cdt(0).label = 'link'
```

```
cdt(1).stn = 23
cdt(1).type = typeir
cdt(1).label = 'IR'
```

```
cdt(2).stn = 3
cdt(2).type = 1
cdt(2).ir_mask = pi
cdt(2).sa_mask = b0
cdt(2).nsubaddrs = 1
```

```
cdt(3).stn = 5
cdt(3).type = 1
cdt(3).ir_mask = pi
cdt(3).sa_mask = b0
cdt(3).nsubaddrs = 1
```

```
cdt(4).stn = 7
cdt(4).type = 1
cdt(4).ir_mask = pi
cdt(4).sa_mask = b0
cdt(4).nsubaddrs = 1
```

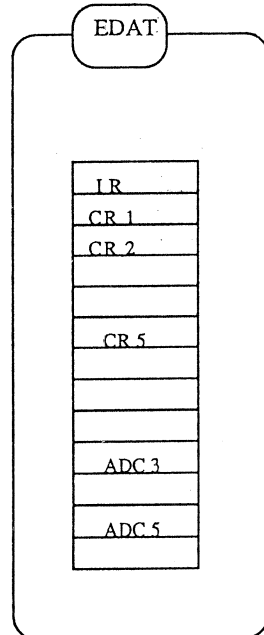
```
cdt(5).stn = 9
cdt(5).type = 1
cdt(5).ir_mask = pi
cdt(5).sa_mask = b0
cdt(5).nsubaddrs = 1
```

```
cdt(6).stn = 11
cdt(6).type = 1
cdt(6).ir_mask = pi
cdt(6).sa_mask = b0
cdt(6).nsubaddrs = 1
```

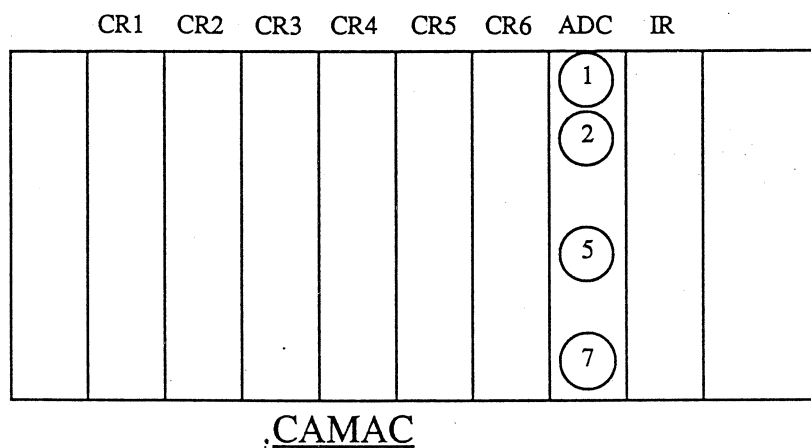
```
cdt(7).stn = 13
cdt(7).type = 1
cdt(7).ir_mask = pi
cdt(7).sa_mask = b0
cdt(7).nsubaddrs = 1
```

```
cdt(8).stn = 15
cdt(8).type = 1
cdt(8).ir_mask = pi
cdt(8).sa_mask = b0_6
cdt(8).nsubaddrs = 7
```

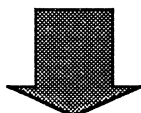
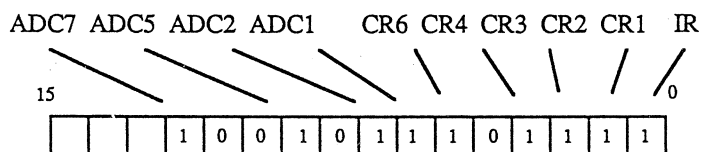
```
cdt(9).stn = 19
cdt(9).type = typescaler
cdt(9).sa_mask = b0_11
cdt(9).nsubaddrs = 12
cdt(9).label = 'scaler1'
```



第8図 コンフィグレーションテーブル。



BITLENGTH ----- LENGTH OF BITMAP
(CAMAC CHANNEL)



BITLENGTH = 13
BITMAP = 4847

第9図 ビットマップとビット長。

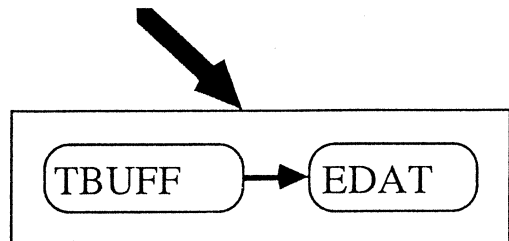
hlst.xmin	ヒストグラムの X 軸の始まり
hlst.xn	X 軸のビンの数
hlst.xbin	X 軸のビンの幅
hname	ヒストグラムの名前 (HDEF 2 と対応している)

(HDEF 2 については、HANDYPAK マニュアルを参照のこと。)

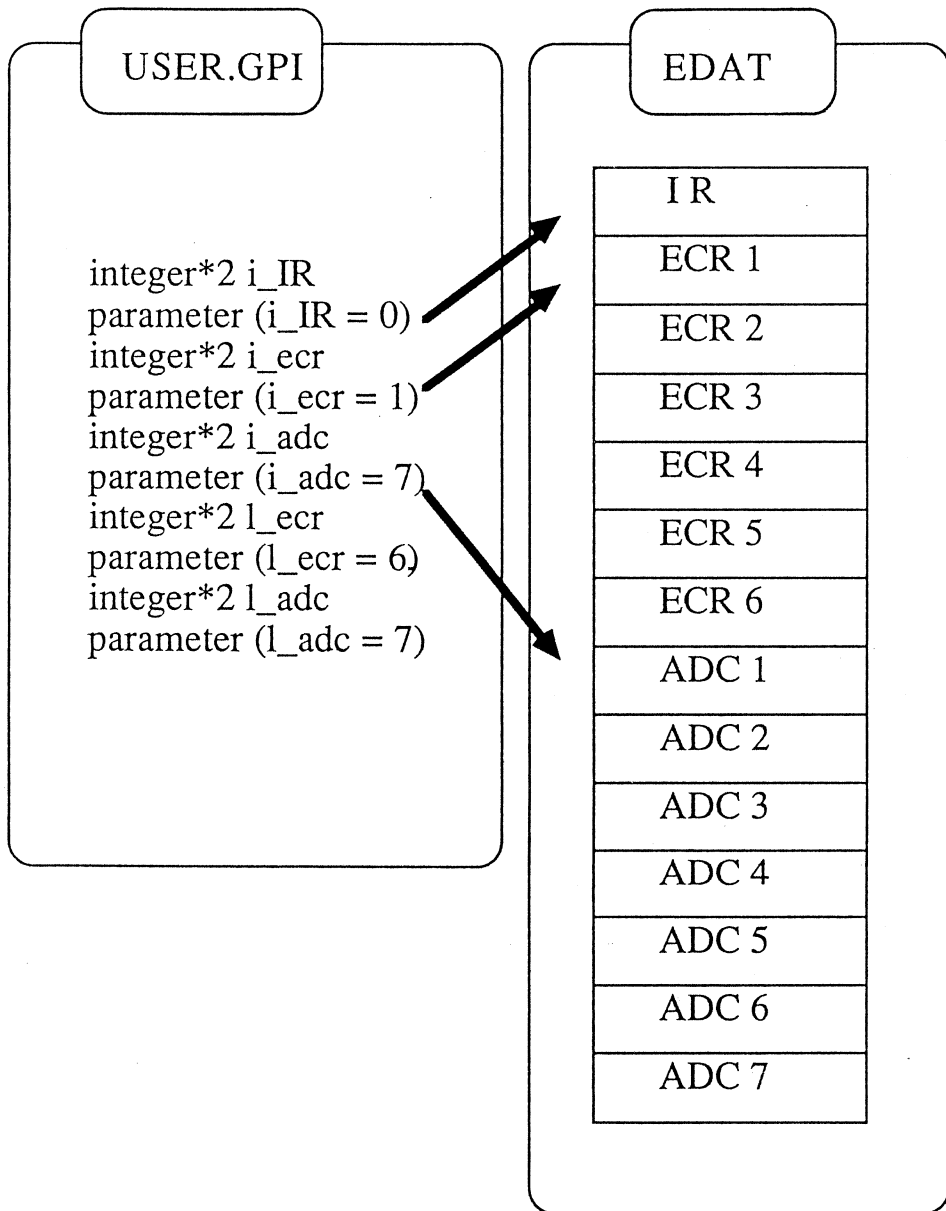
```

    logical*4 function decode_event()
! interrupt register
    ir = tbuff(mod(tevent,TBuffLen))    ! should be conditional on IR ex
isting
    tevent = tevent + 1
    e = 0
    edat(e) = ir
! coin regs
    do s = 0, nslots - 1
        if (cdt(s).type .eq. typeocr) then
            e = e + 1
            if ((cdt(s).ir_mask .and. ir) .ne. 0) then
                edat(e) = tbuff(mod(tevent,TBuffLen))
                tevent = tevent + 1
            end if
        end if
    end do
! bitmap
    bitlen = tbuff(mod(tevent,TBuffLen))
    tevent = tevent + 1
    do i = 0, ((bitlen+15)/16)-1
        bitmap(i) = tbuff(mod(tevent,TBuffLen))
        tevent = tevent + 1
    end do
    i = 0                ! bit counter
    do s = 0, nslots - 1
        if (cdt(s).type .gt. 0) then
            if ((cdt(s).ir_mask .and. ir) .ne. 0) then
                do a = 0, 15
                    if (btest( cdt(s).sa_mask, a )) then
                        e = e + 1
                        if (btest( bitmap(i/16), mod(i,16) )) then
                            edat(e) = tbuff(mod(tevent,TBuffLen))
                            tevent = tevent + 1
                        endif
                    end if
                    i = i + 1
                end do
            end if
        else
            e = e + cdt(s).nsubaddrs
        end if
    end do
    run.events = run.events + 1
    tanal = tevent
    decode_event = .true.
    return
end

```



第10図 データの EDAT への並び換え。



第11図 EDATのフォーマット。

```

subroutine def_hists

include 'hist.i'
include 'user.gpi'

integer*4 i, j, k, l

! redundant...
call hdef1('ESCL', 'R*4 ', 32, 0.5, 1., 'Electron Scalers @')

call hclr('ALL ')
call hoptn('HBINS ', .true., 0)

i = 1
hlst(i).active = .true.
if (hlst(i).active) call Hdef2('adc ', 'I*2 ', 256, 7, 0.5, 0.5, 4., 1., 'Backup Counter ADC @')
hlst(i).htype = group
hlst(i).dtype = i2
hlst(i).IRCoin = pi

hlst(i).xsrcl = i_adc
hlst(i).xsrcu = i_adc + l_adc - 1

hlst(i).xmin = 1
hlst(i).xn = 256
hlst(i).xbin = 4
hlst(i).gatefn = 0
hlst(i).group = particle_detector_group

hname(i) = 'adc'

i = i + 1
hlst(i).active = .true.
if (hlst(i).active) call hdef2('ecr ', 'I*2 ', 48, 4, 0.5, 0.5, 1., 1., 'Electron Coincidence Register @')
hlst(i).htype = group
hlst(i).dtype = i2
hlst(i).IRCoin = pi

hlst(i).xsrcl = i_ecr
hlst(i).xsrcu = i_ecr + l_ecr - 1

hlst(i).xmin = 1
hlst(i).xn = 48
hlst(i).xbin = 1
hlst(i).gatefn = 0
hlst(i).group = particle_detector_group

hname(i) = 'ecr'

call hoptn('HBINS ', .true., 0)

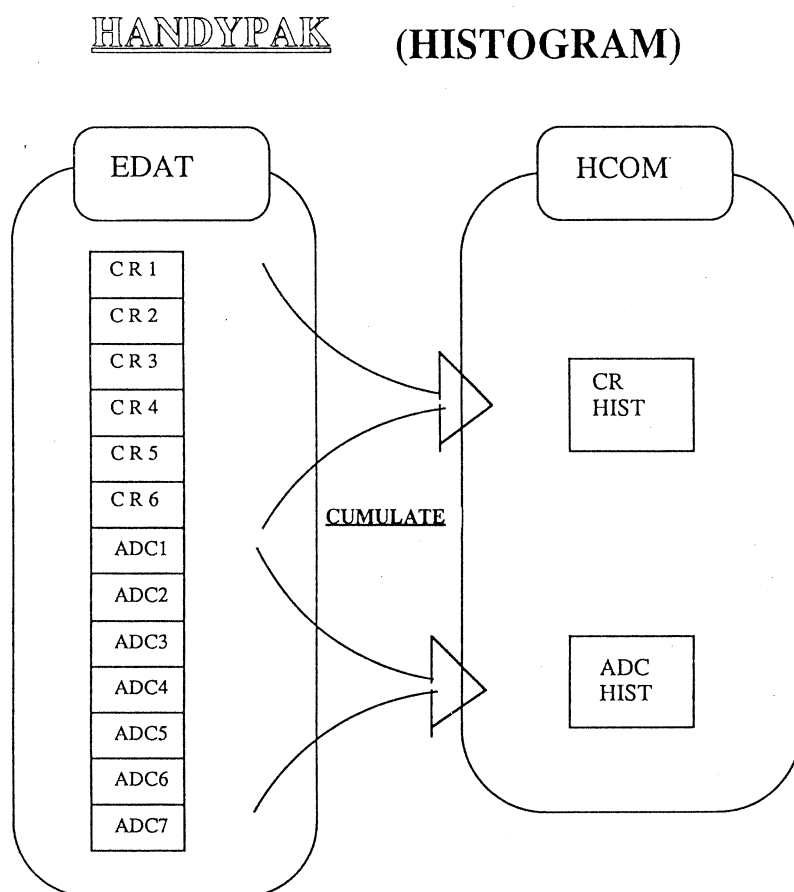
numhists = i

end

```

3. 6. 6 CUMULETE

cumulate は、EDAT を HCOM に格納するサブルーチンで、tag.f 中にある。ヒストグラム定義である HLST に従って、EDAT のデータを指定されたヒストグラムデータに変換する。データにゲートを掛けたりヒストグラムにしたりする操作はここで行なう。各実験にあった書き換えが必要である。(第13, 14図)



第13図 ヒストグラムのためのデータの流れ。

3. 6. 7 VIEW

端末への表示は、view が行なっている。view はあまり複雑なことはしておらず、共有領域上にある HCOM 中に格納されているヒストグラムを出力するだけである。(第15図) データ取り込みには直接関与しておらず、実験中はプログラムのスタート/ストップは自由に行なう

```
subroutine cumulate()
```

```
  if (hlst(i).htype .eq. oned) then
```

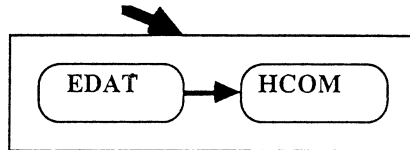
```
    do j = hlst(i).xsrcl, hlst(i).xsrcu
```

```
      if (edat(j) .ge. 0) then
        if (btest(mask,j-hlst(i).xsrcl)) then
          hlst(i).accepts = hlst(i).accepts + 1
```

```
          call hcum1( %ref(hname(i)), float(edat(j)), 1.0)
```

```
        else
          hlst(i).rejects = hlst(i).rejects + 1
        end if
      end if
```

```
    end do
```



```
  else if ((hlst(i).htype .and. (group .or. slice)) .ne. 0) then
```

```
    do j = hlst(i).xsrcl, hlst(i).xsrcu
```

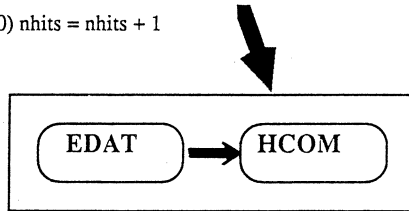
```
      if (edat(j) .gt. 0) then
        if (btest(mask,j-hlst(i).xsrcl)) then
          hlst(i).accepts = hlst(i).accepts + 1
```

```
          call hcum2( %ref(hname(i)), float(edat(j)), float(j - hlst(i).xsrcl + 1), 1.0)
```

```
          if ((hlst(i).group .and. tof_group) .ne. 0) nhits = nhits + 1
```

```
        else
          hlst(i).rejects = hlst(i).rejects + 1
        end if
      end if
```

```
    end do
```



```
  end if
  else if ((hlst(i).htype .and. (twod .or. scatt)) .ne. 0) then
```

```
    j = hlst(i).xsrcl
    k = hlst(i).ysrcl
```

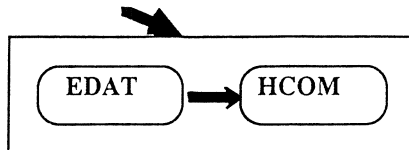
```
    if (edat(j) .gt. 0 .or. edat(k) .gt. 0) then
      if (btest(mask,hlst(i).xsrcu)) then
        hlst(i).accepts = hlst(i).accepts + 1
```

```
        call hcum2( %ref(hname(i)), float(edat(j)), float(edat(k)), 1.0)
```

```
        print *, 'hcum2 ', hname(i), j, edat(j), k, edat(k)
```

```
      else
        hlst(i).rejects = hlst(i).rejects + 1
      end if
    end if
```

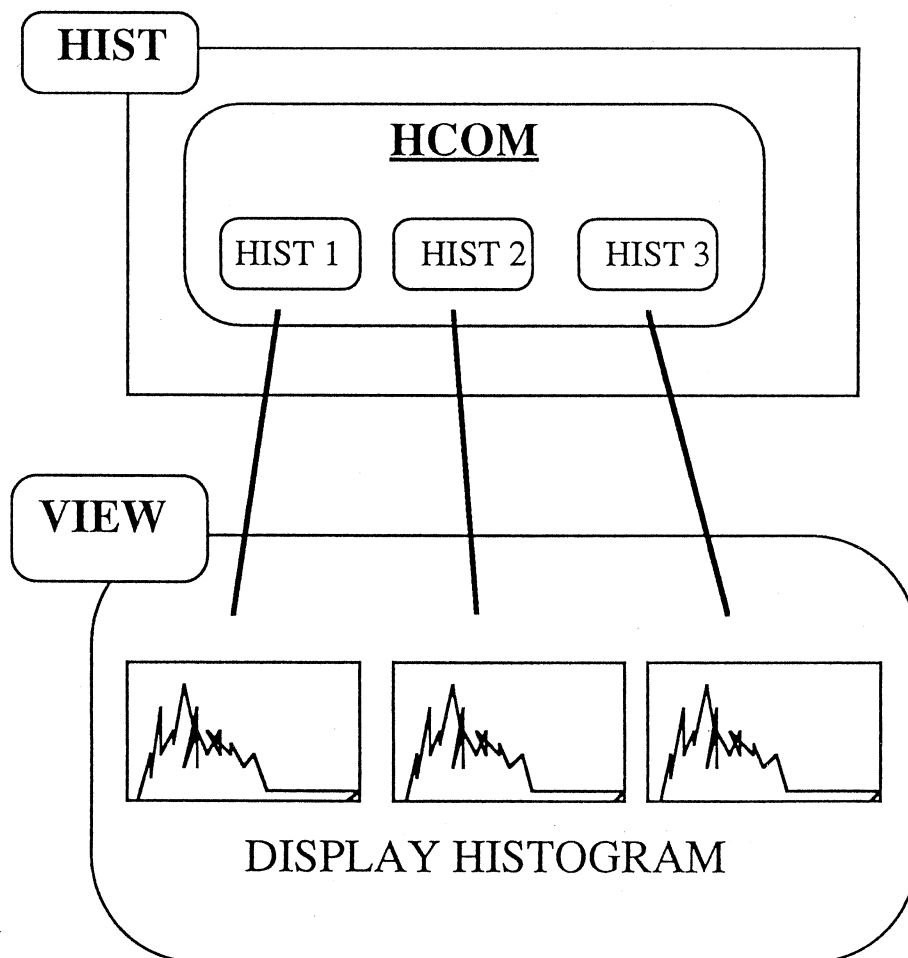
```
  else
    write(*, '(1x,a,a4,a)') 'Histogram ', hname(i), ': unknown htype'
  end if
end if
```



```
end do
if (nhits .gt. 1) run.multiple_tags = run.multiple_tags + 1
end
```

第14図 ヒストグラムデータへの変換。

ことが出来る。スケラ等の実験中の情報を見る場合は view 中の show_run_info というサブルーチンを各実験毎に書き換える必要がある。



第15図 ヒストグラムの表示。

3.7 未解決の問題点とその対策

Run の最初の数分間、あるいはごくまれには数十分たってから、データブロックの読み込みエラーが発生し、その状態から正常な状態に復帰しない場合がある。このときの特徴は、端末に出力されるエラー表示が、

”missed a block 273 to zzz”

(zzz は、その時読み込んだブロック番号)

と表示されることである。

この“273”エラーは、データ読み込みにマクロ言語を採用してからしばしば見られるようになった。暫定的な対策は、一度“halt”にしてからしばらく待ち、再び“A”キーでデータ取り込みを始めることにより正常なデータ取込みが行れる。

原因としては、オプティカルリンクモジュールと、Micro-VAX II とのタイミングずれが考えられる。根本的な対策は、常に LAM test を行なう、CAMAC 動作のタイミングを変える等、現在検討中である。

最後になったが、現在のシステムは操作性が悪く、今後の検討課題として残っている。

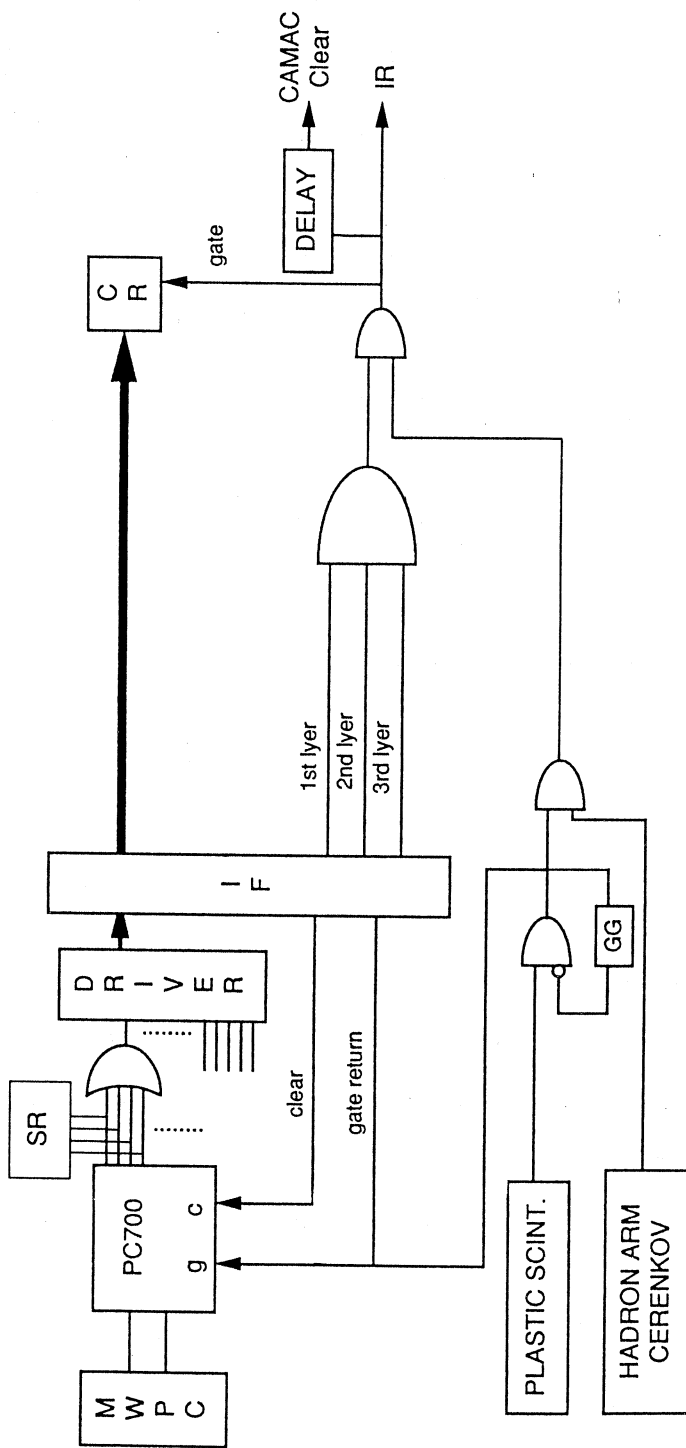
§4. MWPC インターフェイス

システムの構成の概要を第16図に示す。旧システムでは、MWPC データをシリアル転送していたため、1 イベントに付約 2 msec 必要であり、それと同時に他の高速読み出しされる CAMAC データと同期して計算機に取り込むために、十分な計数率を得られなかった。そこで MWPC データを並列転送するインターフェイスを作成し転送速度約 300nsec を達成した。

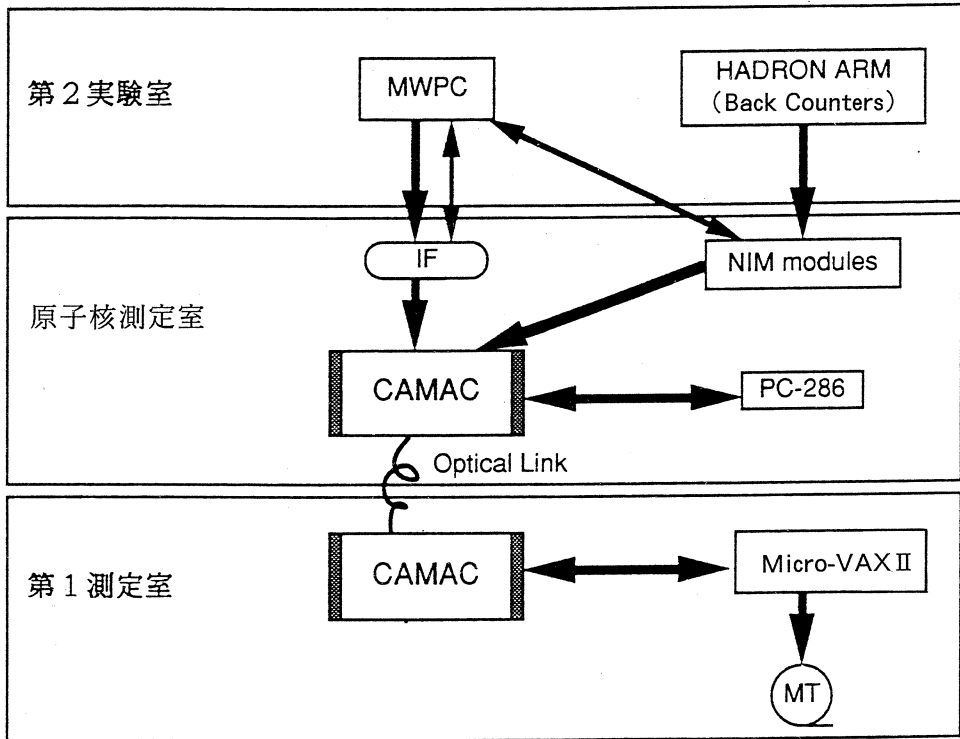
システムの構成の概要を第16図に示す。旧システムでは、MWPC データをシリアル転送していたため、1 イベントに付約 2 msec 必要であり、それと同時に他の高速読み出しされる CAMAC データと同期して計算機に取り込むために、十分な計数率を得られなかった。そこで MWPC データを並列転送するインターフェイスを作成し転送速度約 300nsec を達成した。

データ転送する際に 384 チャンネル全てを並列転送することは不可能ではないが、非現実的である。例えばメモリーモジュールを使用して word serial に転送する方法も考えられるが、今回は、1, 2, 3 層目それぞれ 4 チャンネルのデータを足し合わせ、各々 48, 24, 24 チャンネル合わせて 96 チャンネルとし、それらをすべて並列転送し、16bit コインシデンスレジスタ 6 台によって読み込む方法を採用した。4 チャンネルの和をとることによって運動量分解能は、0.11% となるが、通常の実験では、この値で十分である。

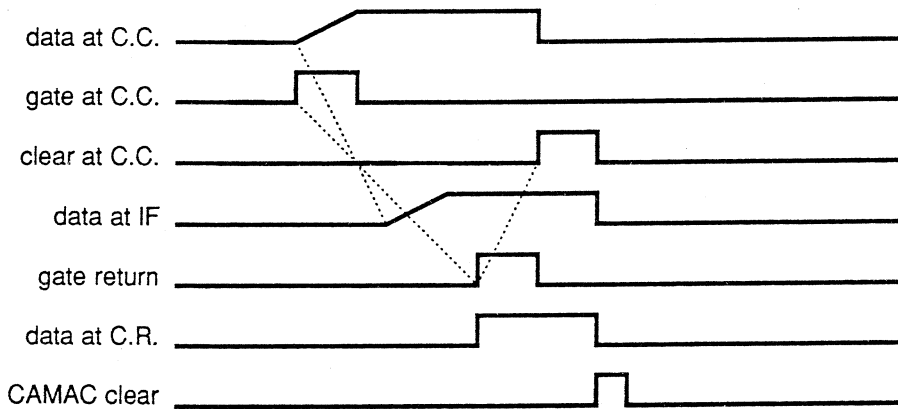
インターフェイスの概要を第17図に、タイムチャートを第18図に示す。旧システムではシフトレジスターによってビット列を直列に転送していたが、新システムでは、4 チャンネルの和をとったのちドライバーによって原子核測定室に並列に転送する。インターフェイスは、単に送られてきたデータを gate return のタイミングでラッチし、コインシデンスレジスターに転送すると共に PC700 にクリア信号を送り、又 1, 2, 3 層それぞれの和を取るだけの単純な



第16図 MWPC データ処理システム構成図。



第17図 MWPCインターフェース概要。



第18図 MWPCインターフェースタイム・チャート。

回路である。

尚、PC700がクリアされる以前に次のゲート入力がないようにしなければならない。この間の時間は約600nsecである。

又、CAMACクリア信号は全てのCAMACモジュールを読み込む時間だけインタラプト信号より遅らせなければならず、もちろんその間インタラプト信号を禁止していなければならない。連続ビームを用いた実験の場合には、ソフトウェアによる禁止も可能であるが、パルスビームを用いた実験の場合には1バースト(3.3msec)間に1イベント以上の処理能力は必要ないので各バーストの前にクリアすれば十分である。

付 録

1. ONLINEの立ち上げ方法

1) 立ち上げのための準備 (USERと言うACCOUNTを例にします)

a) 予めLOGIN.COMで宣言しておくもの。

```
$F77 : ==FORTRAN/EXTEND_SOURCE/WARN=DECL
$F77D : ==FORTRAN/CHECK=BOUNDS/DEBUG/NOOPT/-
EXTEND_SOURCE/D_LINE/WARN=DECL
$DEFINE/NOLOG SHR $DISK 2:[USER.SHR]
$DEFINE/NOLOG TMP $DISK 2:[USER.TMP]
$DEFINE/NOLOG LIB $DISK 2:[MCLEAN.LIB]
$DEFINE/NOLOG LNK $LIBRARY $DISK 2:[MCLEAN.LIB]BLURTC
$DEFINE/NOLOG LNK $LIBRARY_1 $DISK 2:[MCLEAN.LIB]BLURTF
$DEFINE/NOLOG LNK $LIBRARY_2 KOL $K3922:CAMAC
$DEFINE/NOLOG FORT $LIBRARY $DISK 2:[MCLEAN.LIB]BLURTF
$@SYS $SYSDEVICE:[KEK.UTILITY.UGS.COMMAND]UGSDEVNAM
$@SYS $SYSDEVICE:[KEK.UTILITY.UGS.COMMAND]UGSDEVOPT
$SP : ==SPAWN/NOWAIT/NOTIFY
$CAMASM : == $SYS $SYSDEVICE:[KEK.CAMAC.V 4 .CAMASM]CAMASM
```

b) 用意しておく DIRECTORY

```
[USER.TRX]    FOR ONLINE SOFT
[USER.SHR]    FOR SHAREABLE IMAGE
```

[USER.TMP] FOR TEMPOLARY DIRECTORY

2) SHAREABLEIMAGE の COMPILE

a) [.SHR] の DIRECTORY に入る。

b) TAGSHR.F & DATASHR.F & TRXSHR.F の COMPILE

\$F77 TAGSHR.F,DATASHR.F,TRXSHR.F

c) LINK

\$LINK DATASHR/SHARE

\$LINK TAGSHR/SHARE

\$LINK TRXSHR/SHARE

(このコマンドは、LSHR.COM で実行することが出来ます。)

3) TRX GROUP の COMPILE と LINK

a) TRX GROUP の COMPILE と LIBRARY の作成

\$F77/NOOPTIMIZE/OBJECT=TMP:TMP.OBJ/LIST=ALL.LIS -

ABORT.F+CHECKSUM.F+EXEC_COMMAND.F+GENERAL_INIT.F+-

HANDLE_DATA.F+INITIALISE.F+PUT_MESSAGE.F+PUT_PROMPT.F+-

UPDATE_STATE_INFO.F+VERROR.F+UPDATE_RUN_INFO.F

\$LIB/CREATE TRX TRX,TMP:TMP

\$DEL/NOCON TMP:TMP.OBJ;*

\$CAMASM TRX_READ

b) TRX の COMPILE

\$F77/NOOPTIMIZE TRX.F

c) T_RX_WAIT の COMPILE

\$F77/NOOPTIMIZE T_RX_WAIT.F

d) T_RX_WAIT の LINK

\$LINK/EXECUTEABLE=[USER.TRX]T_RX_WAIT T_RX_WAIT,TRX/LIB,-

SYS\$INPUT/OPT

\$DISK 2:[USER.SHR]DATASHR/SHAREABLE

\$DISK 2:[USER.SHR]TRXSHR/SHAREABLE

(このコマンドは、LRX.COM で実行することが出来ます。)

e) TRX の LINK

```
$ LINK/EXECUTEABLE=[USER.TRX]TRX TRX,TRX/LIB,SY$ INPUT/OPT
```

```
$ DISK 2:[USER.SHR]DATASHR/SHAREABLE
```

```
$ DISK 2:[USER.SHR]TRXSHR/SHAREABLE
```

(このコマンドは、L.COM で実行することが出来ます。)

(これらのコマンドは、MAKE.COM で実行することが出来ます。)

4) TRX_TAPE の COMPILE と LINK

```
$ F77 TRX_TAPE.F
```

```
$ LINK/EXEC=[USER.TRX]TRX_TAPE TRX_TAPE,SY$ INPUT/OPT
```

```
$ DISK 2:[USER.SHR]DATASHR/SHAREABLE
```

(このコマンドは、LTAPE.COM で実行することが出来ます。)

5) TAG.F & DEF_ONLINE.F の COMPILE と LINK

a) COMPILE

```
$ F77 TAG.F
```

```
$ F77 DEF_ONLINE.F
```

(DEBUG の時は \$ F77D TAG.F, \$ F77D DEF_ONLINE.F とする)

b) SHARABLE IMAGE & HANDYPAK との LINK

```
$ @HPX TAG,DEF_ONLINE
```

6) VIEW の COMPILE と LINK

a) COMPILE

```
$ F77 VIEW.F
```

b) SHARABLE IMAGE & HANDYPAK との LINK

```
$ @HPX VIEW
```

(HPX.COM は SHAREABLE IMAGE と HANDYPAK と C LIBRARY を
COMPILE するコマンドです。)

```
$ LINK/EXECUTEABLE=[USER.TRX] 'P 1',UGS 2,-
```

```
DUA 0:[KEK.UTILITY.HANDYPAK.LIBRARY]HANDYPAK/LIB/-
```

```
INC=DPINIT $ DATA,DUA 0:[KEK.UTILITY.UGS.LIBRARY]NUCLEUS+-
```

```
SIMPLEX+CANONLBP+TEK4010+-
```

```
UBCFONT+OBJLIB/LIB,SY$ INPUT/OPT
```

```
$ DISK 2:[USER.SHR]DATASHR/SHAREABLE
```

```
$ DISK 2:[USER.SHR]TAGSHR/SHAREABLE
```

```
SYSLIBRARY:VAXCTRL/SHAREABLE
```

7) LOGICAL名の定義

```
$ DEFINE/NOLOG DATASHR $ DISK 2:[USER.SHR]DATASHR
```

```
$ DEFINE/NOLOG TAGSHR $ DISK 2:[USER.SHR]TAGSHR
```

```
$ DEFINE/NOLOG TRXSHR $ DISK 2:[USER.SHR]TRXSHR
```

この定義は、ONLINE TERMINAL すべてで定義する必要があります。

(このコマンドは、DEFS.COM で実行することが出来ます。)

8) SHAREABLE IMAGE のインストール

```
$ INSTALL CREATE DATASHR/SHARE/OPEN/WRITE
```

```
$ INSTALL CREATE TAGSHR/SHARE/OPEN/WRITE
```

```
$ INSTALL CREATE TRXSHR/SHARE/OPEN/WRITE
```

(このコマンドは、INSTALL.COM で実行することが出来ます。)

2. ONLINE の操作

1) MT の MOUNT と DISMOUNT

```
$ INIT MSA0: MT LABEL
```

```
$ MOUNT/FOREIGN MSA 0: (MT の始まり)
```

```
$ DISMOUNT MSA 0:
```

2) SAVE するファイルの指定

```
$ TAG_DATA_OUT:==MSA 0: (MT に SAVE)
```

(このコマンドは、SAVE.COM で実行することが出来ます。)

```
$ TAG_DATA_OUT:==FILENAME (DISK に SAVE)
```

(TK50にSAVEするときには、MSA 0:の代わりにMUA 0:とする。)

3) MAIN PROCESS の起動

MAIN PROCESS の TERMINAL は PROIRITY を高くしておきます。

```
$ SET PROCESS/PROIRITY=11
```

(これは、一回設定するだけでOK)

各 RUN の始めに 3 つの PROCESS を走らせます。

(CTRL+T で現在走っている PROCESS を確認して, TRX_TAPE が動いていれば,

2 つの PROCESS を走らせるだけで十分です。)

```
$SP RUN TRX_TAPE
```

```
$SP RUN T_RX_WAIT
```

```
$RUN TRX
```

4) BUFFERING PROCESS の起動

MAIN PROCESS とは違う TERMINAL で行ないます。

```
$RUN TAG
```

5) MONITORING PROCESS の起動

MAIN PROCESS とは違う TERMINAL で行ないます。

```
$RUN VIEW
```

(VIEW>というプロンプトが出ます。?マークで VIEW COMMAND の説明をし, Lで

描くことの出来る HISTOGRAM を表示します。)

3. ONLINE の終了

1) SHAREABLE IMAGE の REMOVE

```
$INSTALL DELETE DATASHR
```

```
$INSTALL DELETE TAGSHR
```

```
$INSTALL DELETE TRXSHR
```

(このコマンドは, REMOVE.COM で実行することが出来ます。)

2) MT の DISMOUNT

```
$DISMOUNT MSA 0:
```

新しい中性子散乱データ集積システム(I)

金研, 核理研*

梶谷 剛・武藤正勝*・新村信雄*

OKI 4500コンピュータとデータ集積装置の老朽化に伴う新しいシステムへの移行作業の第一段階が終了したので新しいシステムについて紹介する。

§1. はじめに

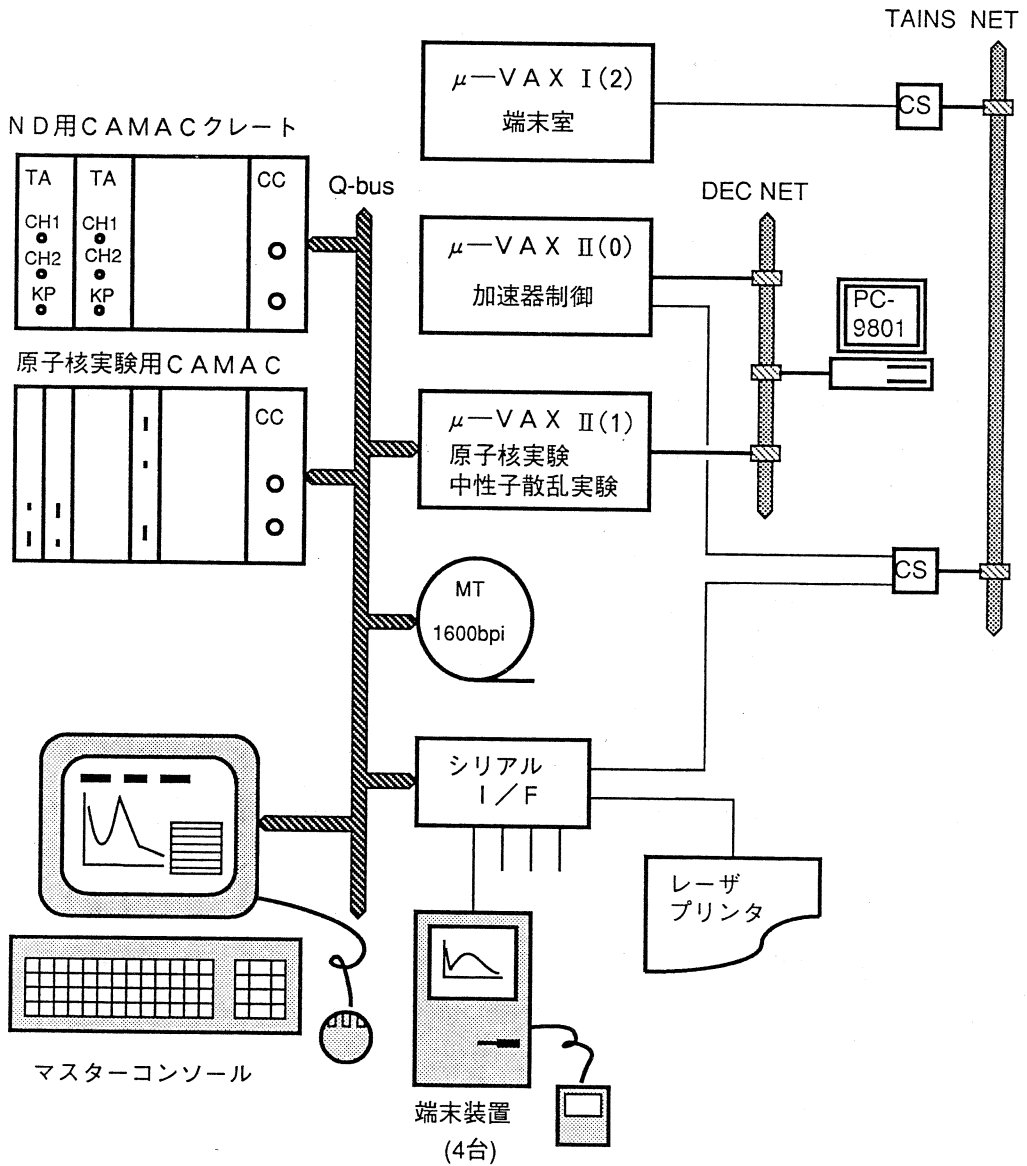
長年使用され、多くの業積を積み重ねてきた中性子散乱データ集積システムはOKI-4500型コンピュータを軸とし、57系統のTOF型中性子散乱データを同時に測定できる優れたものであり、8個のスクリーンによって各チャンネルに集積されるデータを実時間で見守ることができた。また1台の位置敏感型中性子検出器(PSD)も支配下に置き、大容量記憶装置に64チャンネルのTOF型散乱データを集積していた。

このシステムのタイムアナライザーインターフェイスは8年程前に更新されたもののコンピュータ部がOKI 4500のままであったために近年急速に老朽化が進み、測定に支障を来たすようになった。また、測定データの出力に関しても従来の紙テープ出力からパーソナルコンピュータを介してのフロッピーディスク出力を移行していたが、これも困難になってきた。一方、昨年来本施設に3台の μ -VAXが購入され、加速器制御と原子核実験のデータ集積に使用され始めていた。今回、中性子散乱グループもこの μ -VAXシステムを使用してデータ集積および解析を行うことにした。

§2. 中性子散乱データ集積システムの概要

従来は57系統だったデータの受け口を20系統程度(当面12系統)に抑えた。しかし、1系統に割り当てるTOFデータの長さを従来の512区画から4096区画まで拡張し、1区画当りのカウント値の上限を32768から 8.39×10^6 まで引き上げた。これによりデータが尻切れトンボになったり、カウント値が一部飽和するという事がなくなった。

更にインターフェイスをCAMACにしたことにより、オンライン用ソフト・ウェアをFORTRANで書けるようにした。



第1図 システムの概略図。

第1図にシステムの概略を示した。中性子散乱実験に用いる μ -VAX II(1)は原子核実験グループと共同して利用し、用いるCAMACクレートも同じQ-bus上に設定されている。

従って、片方の実験が行なわれている時には他方は実験も試験もできない。加速器には別の μ -VAX II(0)が使われていて、プログラム開発や小規模な計算等のために μ -VAX I(2)が用意されている。 μ -VAX II(0), (1)は互いにイーサネット[†]で結合されており、ファイルの転送等は容易である。加速器の運転中は μ -VAX I(2)をデータ解析に用いた方がよい。

中性子散乱データは従来通りタイムアナライザーモジュール内に集積され、 μ -VAX II(1)が必要に応じて「読み出し」、「消去」、「測定開始」および「測定停止」を行う。モジュール内に集積されるデータは必要に応じて実時間で μ -VAX II(1)のコンソールの画面^{††}上に表示できるようにした。ただし、この操作が可能なのはマスターコンソールだけである。(この制限は解消する予定である。)中性子散乱データは μ -VAX II(1)の内部のハードディスクにファイル名を付して出力される。散乱データの出力時期とファイル名は実験者の自由にまかされる。ファイルとして出力されたデータはそのまま μ -VAX II(1)に接続されたプリント装置に出力できるが、1600bpiの磁気テープにも出力でき、そのまま所外の大型コンピュータの入力装置[†]にかけることができる。また、所内のイーサネット^{††}を介してパーソナルコンピュータ、PC9801、内蔵のフロッピーディスクにMS-DOS形式のファイルとして出力することもできる。東北大学内のTAINSネットワークシステムからも同様の処理が可能になっている。

TAINSネットワークを用いることによって、本所で得た実験データを各部局のパーソナルコンピュータや大型計算機に転送できる。本所の μ -VAXシステムをTAINSネットワークを介して利用し、データの解析や作図をしてもよい。

§3. 新しい中性子散乱データ集積システムの使用法

従来8個の独立したスイッチボードで行なわれて来た各タイムアナライザーの「測定開始」、「測定停止」、「消去」、「積分」、「データ出力」、「図表出力」等は1台のDECVT 284型マスターコンソール卓で集中的に行う。

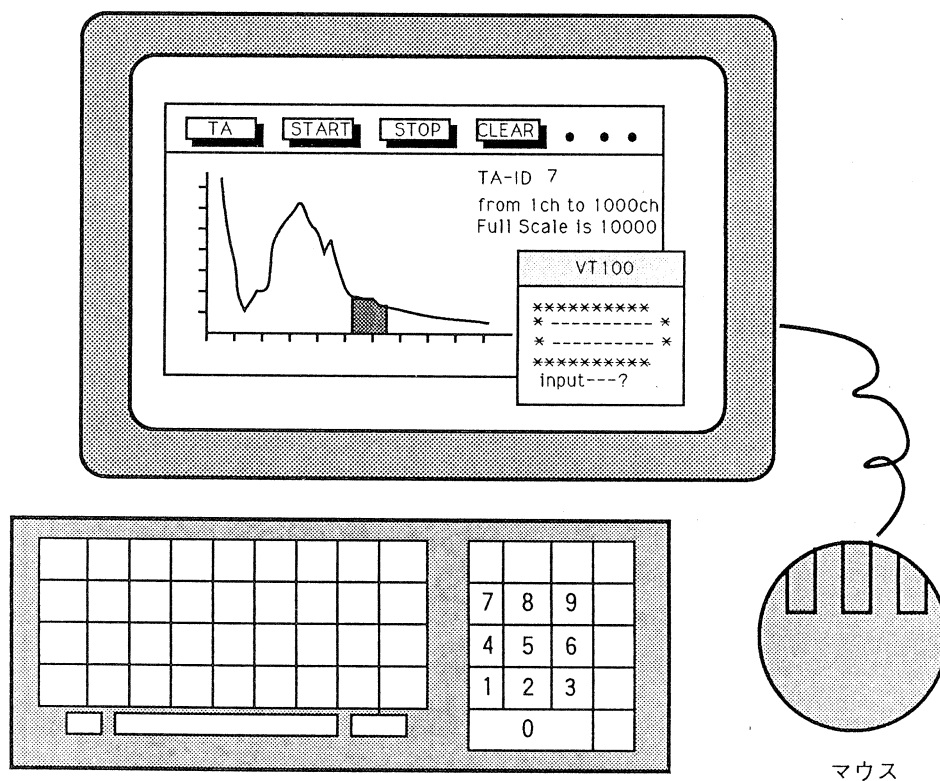
システムの起動は次の手続きで行う。

† 磁気テープの仕様は「ラベル無し」256byte固定長であり、ファイルの1行が256byteのブロック1個に対応している。コードはACOSのEBCDICコードと同じである。

†† 各部局のコミュニケーションサーバ(CS)は大概7bitコードの入出力を行うように設定されているが、本所の μ -VAXに連ぐ時には>set bitchar 8というCS用のコマンドを予め用いて8bitコードの入出力が可能の状態にしてから会話を始める必要がある。

- ① データ集積室内のCAMACクレートの電源やCAMACモジュールが正しく設定されている事（時間チャンネル幅の設定は正しいか）を確認する。
- ② マスターコンソールに log-in する。
- ③ コンソール画面の右下隅にターミナルの窓を移動する。
- ④ 「ND」というプログラムモジュールを起動する。薄緑色のグラフィック画面が上段に現れる筈である。
- ⑤ グラフィック画面を PUSH してターミナル画面が全部見えるようにする。
- ⑥ 実験当日のセットアップに応じてコンピュータの発する質問に答える。
- ⑦ 各タイムアナライザーに対して「消去」と「測定開始」を命令する。
- ⑧ グラフィック画面を POP UP して中性子散乱スペクトル全体が見えるようにする。

これらの操作で測定が開始できる。第2図にマスターコンソールに表示される画面を模式的



第2図 マスターコントロールに表示される画面。

に示した。グラフィック画面の上段に現れたスイッチをマウスを用いてクリック（左側のボタンを押す）する。するとコンピュータはいくつかの質問をするのでそれに答える。各スイッチの機能は次の通りである。

TA : 使用者が働きかけようとするタイムアナライザー（1～12）とそれに連動しているモニターカウンター（0～3）を特定する。これを先ず行なっておかないと START/STOP/CLEAR が正しく行なえない。

START : タイムアナライザーの起動

STOP : タイムアナライザーの停止

CLEAR : タイムアナライザーの中に集積されたデータの消去

MONITR : モニターカウンター（0～3）の stop + clear ないしは read + continue を行う。

GENRL : 全ての稼働中のタイムアナライザーを停止ないし再起動する。

TRANS : タイムアナライザーに集積されたデータとそれに連動しているモニター用スケーラの内容を読み出して指定されたファイルに書き出す。ファイルの第1行目に実験者がメモを書く欄を用意した。任意のタイムアナライザーのデータ等を出力できる。

GRAPH : データ集積中のタイムアナライザーから指示された領域のデータを読み出して図示する。その際に与えたX軸とY軸のスケールはコマンド **TA** と **TRANS** を実行する際にも引き継がれ、他のタイムアナライザーのデータの表示やファイルに出力する範囲を決めるパラメーターとしても用いる。このコマンドを発した後に現れる質問の最後に「YES」を入力すると特定のタイムチャンネルの範囲の散乱強度の積分値を表示し、積分した範囲を図式的に示す。これは単結晶の軸立て用に用意したサービスである。

中性子散乱強度は10秒毎に繰返して表示することもできるし1回だけ表示することもできる。前者の場合、 μ -VAX II(1) がデータを読み込む間にタイムアナライザーが停止するので測定効率が若干低下する。

これらのコマンドによって従来通りの中性子散乱実験データ収集ができる。散乱強度分布図は μ -VAX のサービスルーチンを用いてプリント出力できる。（但し1画面当り数分掛る。）

§4. 拡充計画

今回作成したシステムでは未だ位置敏感検出器へのサービスができない。このため、位置敏感検出器のデータを集積する CAMAC モジュールを製作中であり、今期には使用可能になる。現在稼働中のタイムアナライザーは元来高エネルギー研究所で使われていたものであり、核理研で用いるためには若干改良する必要がある。

現在の所、各種コマンドはマスターコンソール卓でしか入力できないが測定室内の μ -VAX の端末装置からも同様のサービスが要求できるようにプログラムの改造を行う予定である。従って、所外の端末装置からも TAINS ネットワークを通じて同じサービスを要求できるようになる。所外の実験者はテクトロニクス4015型端末装置かそのエミュレータを備えた装置を用意すれば良い。図形データを必要としなければ通常の CRT で良い。

近い将来、単結晶の回折実験のような回折計の機械的な駆動と散乱データの集積を連携させねばならないような実験も可能にしたいと考えている。この場合、現在手動で行なっている 2 軸回折計と 4 軸回折計の駆動と回転角の読み込みをパーソナルコンピュータを用いて行ない、合わせて中性子散乱データの集積を μ -VAX に指令するという形式のシステムを考えている。

§5. おわりに

OKI 4500 コンピュータの老朽化という余儀ない理由もあって、新しい中性子散乱データ集積システムへの移行が取り急いで行なわれた。東北大学内の TAINS ネットワークの拡充の時期と期せずして一致していたので予想以上に便利なシステムができつつある。

昼夜の区別なく実験データの集積と解析ができるようになった。

粉末中性子回折強度の Rietveld 法による解析プログラムも μ -VAX 上で動くようにする予定である。元のプログラムは ANL の VAX で開発されたものなので手直しは最少限で良い。

学内外の諸賢の御意見もいただいて、より便利なシステムを作り上げたいと考えている。

参 考 文 献

- 1) 「これを読めば使える TAINS の使い方」東北大学 TAINS 利用研究会編，平成元年 2 月 20 日発行。

††† 現在のシステムでも測定室内にいる他の実験者にデータとファイルへの転送を行なってもらえばそのデータを所外から見る事ができる。

加速器制御系のソフトウェア

核理研

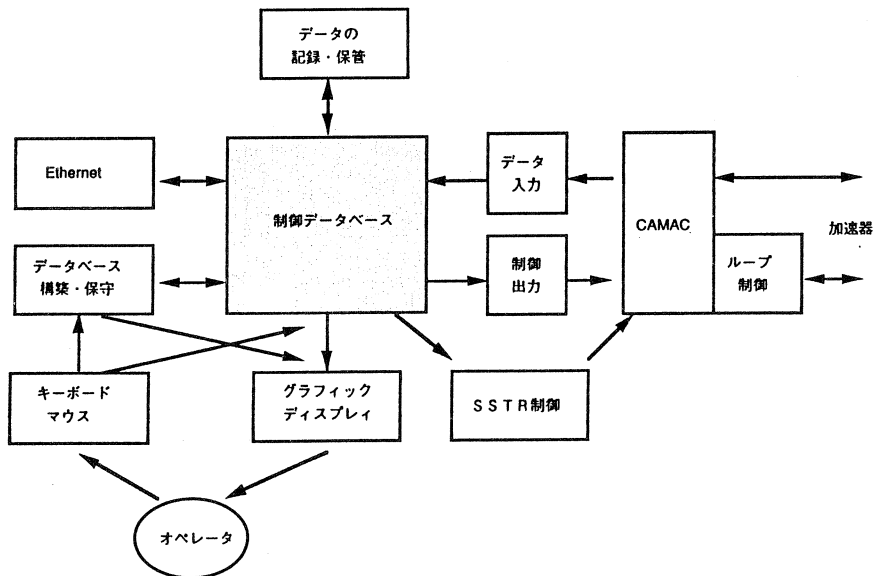
武藤正勝・柴崎義信・大沼忠弘

§1. はじめに

1987年12月にリニアック及びパルスビーム・ストレッチャ (SSTR) の制御用コンピュータとして Micro VAX II を購入し、それまで使っていた MELCOM-70 ミニコンピュータと置き換える作業を行ってきた。¹⁻³⁾ これまでの作業で、リニアックについてはクライストロン・モジュレータをはじめ、ほとんどの電源の電流や電圧、加速管へ供給するマイクロ波の位相などが、コンピュータから再現性良く制御出来るようになった。また、リアニックを運転するうえで役立つ情報を提供するためのプログラムも揃ってきている。一方、SSTR の制御については、最初の予定より多少遅れてはいるが、プログラムの製作は順調に進んでおり、間もなく出来上がる予定である。今回は制御プログラムについて報告する。

§2. プログラムの概要

プログラムのブロックダイアグラムを第1図に示す。プログラムの中心となるのが制御デー



第1図 加速器制御ソフトウェア・ブロックダイアグラム。

データベースである。これは加速器を構成しているあらゆる機器の制御情報をデータベース化したもので、機器の動作状況（正常動作中、故障など）、電流・電圧・ステータスなどのデータの読み取り手順や設定方法（CAMAC アドレス、制御ループのノード番号、マルチプレクサのチャンネル番号、DAC やパルスモータの種類など）、機器の特性（最大値、表示のための補正係数、値をゼロから最大値にする許容時間など）、現在・過去の運転データの記録などから成る。

制御プログラムはこのデータベースを中心にして、機能別にモジュール化した独立プロセスとなっている。これらのプログラム（タスク）とその主な機能を第1表に示す。この基本的なプログラムの他に Ethernet を介して加速器の動作状態をモニタしたり、加速器のオペレータに情報を提供するいくつかのプログラムも用意されている。

第1表 基本的な制御タスクと主な機能。

プログラム名	主 な 機 能
data_base	制御データベースの管理。 制御の中核として情報の収集、各タスクへのデータの分配を一元的に管理する。
camac_cont	CAMAC モジュール、制御ループ及びループにつながっている VME のハンドリング、加速器からの割り込み制御など。
disp_all	リニアックの運転パラメータの一覧をディスプレイに表示する。マウスで制御する機器を選択して数値を入力することにより機器の動作電圧や電流が設定出来る。
message	シャットダウン情報を記録する。24時間分の記録を毎日定時にプリント出力する。情報を必要とするタスクへも配送する。
record_manager	運転データをファイルとして記録する。過去のファイルからデータを取り出して加速器の立ち上げを行なう。不要になったファイルの削除、ファイルの一覧の表示。
sstr_cont	SSTR 用制御卓上の機器（ディスプレイ、タッチパネル、ボタンなど）の制御。 シーケンス処理などを行なう。
data_entry	データベースに機器に関するデータの新規登録。既に登録しているデータの変更、表示などをターミナルから行なう。
menu	VR 290 ディスプレイ上にメニューを表示して、マウスの選択によってプログラムを起動、オペレータが必要としている情報を提供する。

データベースと他の制御タスク間のデータの交換には、メール又はグローバルセクションを使ったタスク間コミュニケーションを採用している。メールを使った代表例を第2図に示す。第2図の(a)では加速管列にあるQマグネット-2の現在の電流値をデータベースに求めている。メール中で“64”はデータを要求しているタスクに割り当てた

(a) 現在の電流値を知る.

```
"64,210,L_AccQ02" → データベース
"210,12.3,0" ← データベース
```

(b) クライストロン電圧を可変する.

```
"64,400,L_Kp01_HV,20" → データベース
```

第2図 データベースと制御プログラム間のメッセージ交換例。

識別番号(タスク間で同期をとるために、起動の際各タスクに割り振られたフラグ番号に対応する)，“210”は現在値を送れとデータベースへ要求するサービス番号である。データベースは全ての機器の動作状態を把握しており、該当機器の最新の電流値が12.3(A)であるとのメールを要求したタスクに返してくれる。また、第2図(b)の例では、クライストロン1号機の直流電圧を20KVに設定せよとの指示をデータベースに送っている。制御タスクからデータベースへ送られてきたコマンドは、該当する機器を制御するために必要な情報と共にCAMACを直接制御しているタスク(camac_cont)に送られる。メール中の“400”は機器の値を設定するサービス番号である。データベースが提供しているサービスにはこの他に約60種類あり、メールに付加したサービス番号によって、各機器へのコマンド処理、タスクへの各種情報の提供などを行なっている。

§3. リニアックの運転

制御卓にVR 290グラフィックディスプレイが置かれている。今回、プログラムを作るに当たっては、リニアックの運転は旧くからある主制御卓に代えて、グラフィックディスプレイに表示された情報を見ながらマウスだけで運転出来るようにすることを目標とした。一応そのようにはなったが、残念ながら操作性については満足出来るところまではいかず、数値を入力して機器の値を設定したり、コンピュータに指示を与える場合を除けば、もっぱら主制御卓を操作して運転が行なわれている。これからも、継続して工夫を凝らしたプログラム作りを進め、最終的には目標どおり、グラフィックディスプレイとマウスだけで運転出来るようにしたいと思っている。

主制御卓上の旧くからあるダイヤルやプッシュボタンは、いまでは直接電源などにつながっ

ておらず、オペレータの操作した内容は、電源などを制御している VME 回路に読み取られ、VME 回路が電流などを変えるようになっている。そして、オペレータの操作した内容は、VME 回路から制御ループを経由して VAX に通知され、VAX 中の制御データベースの内容が更新される。つまり、オペレータが手動操作しても VAX は即座に最新の運転情報を把握している。

グラフィックディスプレイの画面最上部には、第 3 図の様なメニューバーがある。メニューバー内の項目をマウスでクリックするとメニューバーの下にドロップダウンメニューが現われ、更にその中からマウスで選ぶようになっている。これによって必要なプログラムが動きだす。プログラムによっては、ダイアログボックスが画面上に現われて、オペレータに指示を求めたり、あるいは画面上にウインドが現われて、そこに運転情報をグラフィックに表示するようになっているものもある。加速器制御の起動のときには、まずメニューバーにある「起動」から「LINAC」, 「SSTR」のいずれか、又は両方を起動する場合は「すべて」を選択する。これによって第 1 表に掲げた基本的な制御プログラムが動きだす。

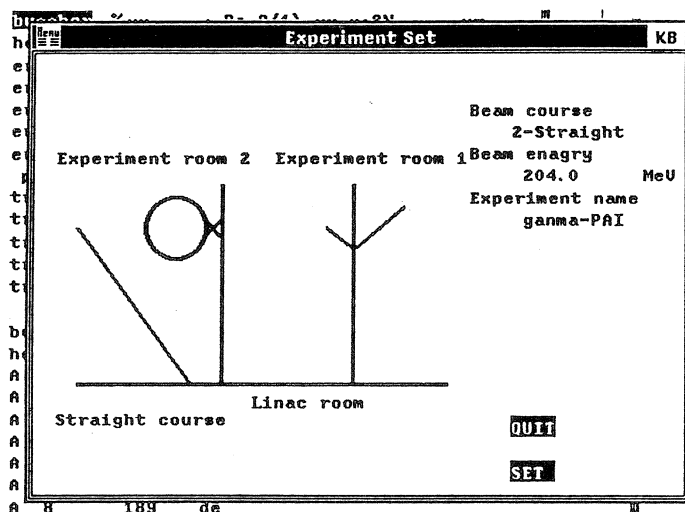
登録	記録	表示	警報	モニタ	起動	停止
運転条件	運転記録	位相	ECS	2系BPT	LINAC	LINAC
		制作日時		2系BeO1	SSTR	SSTR
					すべて	すべて

第 3 図 グラフィックディスプレイ画面最上部に表示されるメインメニューとドロップダウンメニュー。

次に現段階で用意している情報提供プログラムについて簡単に説明する。

「運転条件」 加速器の運転に先立って実験名、ビームコース、ビームエネルギーを入力する。第 4 図のウインドが現われるのでマウスで該当する箇所をクリックし、運転条件を入力する。ここで入力した内容は、入力したときの日時と共に、次に述べる運転記録をディスクに格納する際のファイルの見出しとなる。

「記録」 ここでは第 5 図のウインドが現われる。ウインド中央には既に記録されてある過去のデータの一覧が表示され、ウインド右側には現在の運転データの保存及びデータのプリント出力、過去の運転記録からデータを取り出しての加速器の立ち上げ、過去の運転記録の表示と



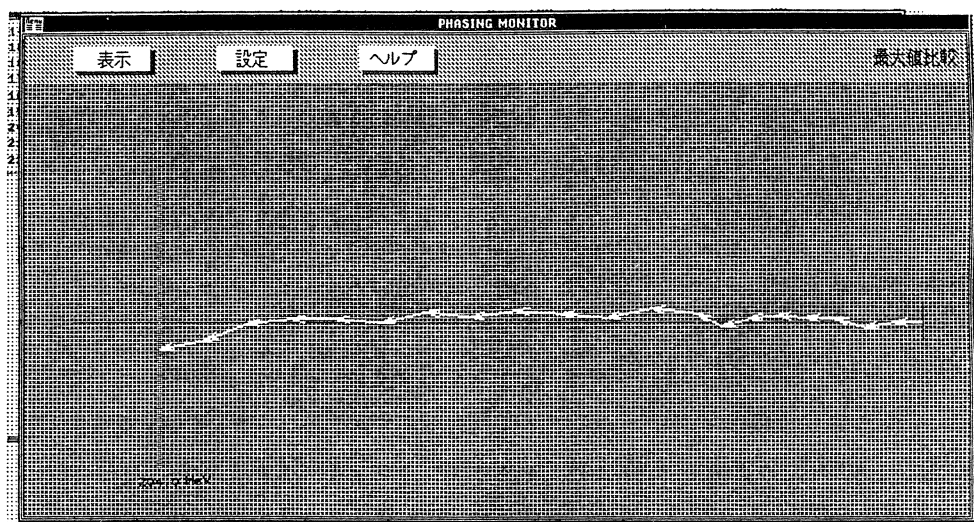
第4図 実験の種類，エネルギー，ビームコースを登録するウインド画面。

番号	日付	実験名	エネルギー	コース
31	14-NOV-1988 15:04	Left-etc	15.0MeU	1-Left
32	15-NOV-1988 13:53	gamma-PAI	200.0MeU	2-Straight
33	16-NOV-1988 10:47	gamma-PAI	204.0MeU	2-Straight
34	17-NOV-1988 11:44	gamma-PAI	180.0MeU	2-Straight
35	18-NOV-1988 10:06	gamma-PAI	180.0MeU	2-Straight
36	19-NOV-1988 13:30	Left-etc	60.0MeU	1-Left
37	22-NOV-1988 18:06	RI	30.0MeU	1-Right
38	24-NOV-1988 11:50	ND	200.0MeU	3-Straight
39	9-DEC-1988 09:07	ee'n	130.0MeU	2-SSIR
40	16-DEC-1988 18:33	RI	50.0MeU	1-Right

第5図 運転記録の登録の操作ウインド画面。

そのプリント出力などを選択するメニューが表示される。データの保存は最大100例まで記録出来るので、各実験毎の最良と思われるデータを選んで保存しておけば、次の実験のときの加速器の立ち上げ調整時間の短縮になる。過去の記録からデータを取り出して、加速器のそれぞれの値を設定するための時間は僅か10秒足らずである。

「位相」 加速ビームのエネルギーの調整は、クライストロンから加速管に供給するマイクロ波の位相調整で行なう。最大加速したときの移相器の位相量の値と現在の位相量の値から求めた



第6図 ビームのゲインベクトルを表示するウインド画面。
右が加速管A1，左がB12。

ビームのゲインベクトルを第6図のように表示する。これから位相余裕（調整しろ）がどこの加速管にあるかがわかる。表示している各加速管のベクトルの長さは、クライストロンモジュレータの直流電圧から近似的に求めたRFパワーレベル，加速管のパラメータ（長さ，減衰定数，シャントインピーダンス）をもとに計算している。但し，ビーム電流は取りあえず一定値とした。「ECS」 エネルギー圧縮装置（ECS）運転時において，ECS内を通るビームが中心軌道を外れると急速にECS系の真空を悪化させる。そこで，ビームモニタと真空計を監視し，軌道がずれたり真空が悪化したときはオペレータに警報を発生して知らせてくれる。

「2系BPT」 ビームチャンネルⅡ系のLDM散乱槽前にあるビームポジション・ターゲットは，ビームラインに出し入れをする際に指定した位置に停止させるため，モニタの位置を正確に読み取り制御する。これまでは副制御卓上の専用のコントローラを使って操作していた。

§4. SSTRの運転

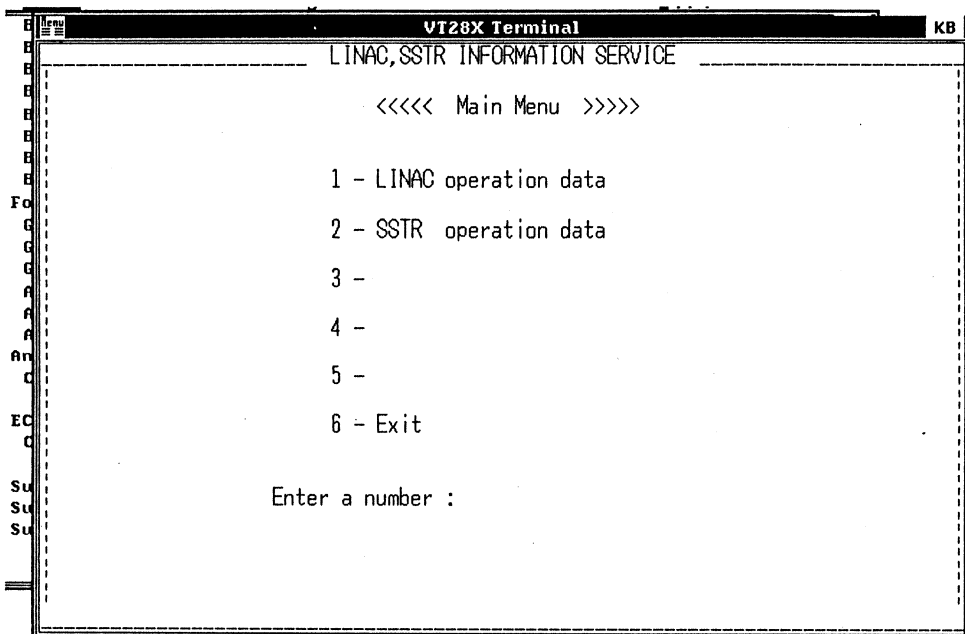
SSTR制御系のハードウェア構成はこれまでどおりである。⁴⁾各種電磁石電源，ビームモニタなどは第2実験室にあるCAMACを経由して制御している。このCAMACクレートとVAXとは制御室のCAMACクレート内にあるシリアルドライバを経由したシリアルハイウェイ（1Mbps，ビットシリアル）でつながっている。VAXから第2実験室のクレート内のモジュ-

ルをアクセスするためには、シリアルドライバに7～9ステップの命令を出さなければならない。この命令の1ステップの実行時間が約800 μ Sec（Qバスインターフェイス2922+クレートコントローラ3922の組み合わせで）とすると、シリアルラインの1命令の平均実行時間は約7mSecとなり、電圧、電流やステータスなど約100点のSSTRのデータを読み込むのに0.7秒もかかってしまい、これでは時間がかかりすぎる。そこで、シリアルドライバのハンドリングの部分のアセンブラで記述してマクロ命令化し、シリアルラインの1命令の実行時間を1mSec以下として、スピーディな処理ができるようにした。

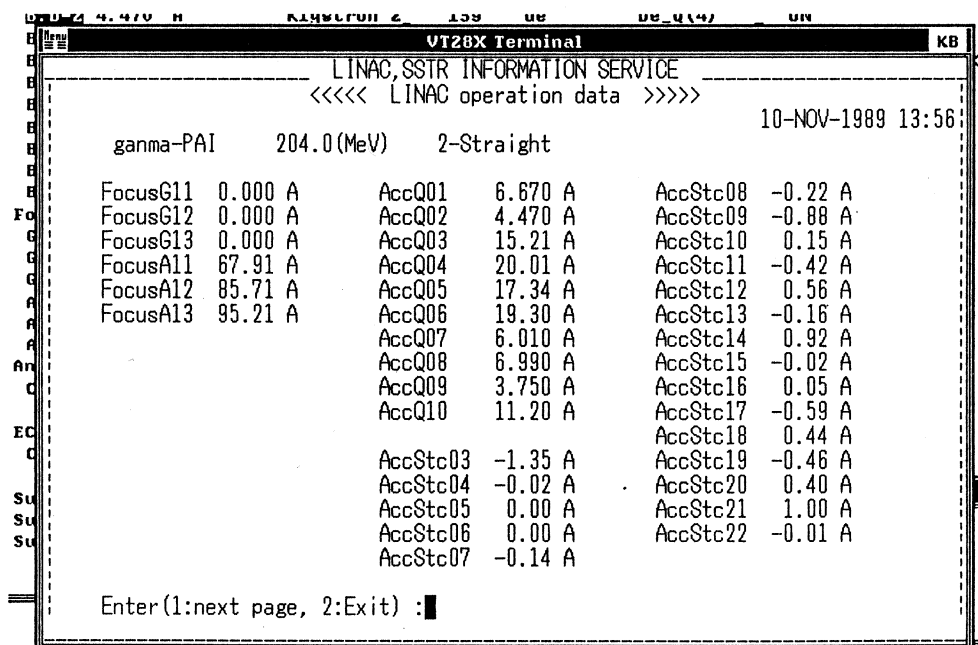
SSTRのオペレータから見て、制御方法で特に大きく変わったところはないが、リニアックの運転の場合と同じ様に、全ての運転データが過去の運転記録の中から再現性よく設定できるようにしたこと、SSTR制御卓のグラフィックディスプレイとして使っているパソコンにマウスを取付け、マウスを操作デバイスの中心としたことが主な変更箇所である。これまでの運転方法と違和感をなくすために、制御機器を選択するためのタッチパネルや電流などを可変するためのプッシュボタンはそのまま残してあるが、いずれプログラムの改良を図りながら、マウスを主体とした制御方式に移行したいと考えている。

§5. ネットワークを利用した運転情報の提供

加速器制御系のVAXとオンライン測定系のMicro VAX IIは管理棟内に張り巡らしたEthernetにつながってくる。このネットワークにはパソコンも数台つながっていて、VAXの間だけでなく、VAXとパソコンの間でも相互にファイルの交換が可能になっている。最近学内のコンピュータ・ネットワーク（TAINS）が核理研でも利用出来るようになったので、2台のMicro VAX IIと以前からあるMicro VAX Iをコミュニケーション・サーバ（CS）を経てこのネットワークに接続し、学内のどこからでもパソコンを利用してアクセスできるようにした。そして、加速器制御系のVAXからは加速器の運転情報がネットワークを通じて得られるようになっている。この情報を得るには、まずVAX（ノード名 LNSVX0）にユーザ名を“USER”でログインすると第7図(a)のようなメニュー画面が現われる。次に、例えばLINACを選択すると第7図(b)のような画面となり、運転中の加速器の状態をリアルタイムで知ることができる。いまのところ情報は数値で表示するだけだが、今後は主要なデータの変化を簡易グラフ表示するなど、いろいろな形式での運転情報の提供を考えていきたい。



(a)



(b)

第7図 ネットワークを通じパソコンで加速器の運転状況をモニタする。

(a) メニュー画面。

(b) リニアックの運転データの表示例。

§6. 最後

この2年の間、殆どの時間を制御プログラムの制作に費やしてきた。核理研のリニアックは運転を開始してから20年を越え、制御卓のメータ、ダイヤルや押しボタンのひとつひとつにその間の年輪が深く刻まれていて、これを乗り越えるマンマシン・インターフェースを作る難しさを痛感している。しかし、最近の加速器の制御システムは、コンピュータやネットワーク環境の進歩と共に大きく変化してきており、核理研に於ても、我々が考えている制御方式が受け入れられるのにそれほど時間がかからないだろうと思っている。

制御プログラムを作るに当たって、CAMACハンドラは高エネルギー研究所オンライングループで作ったものを使わせていただいた。SSTRのプログラムの製作では、特にパソコン上のグラフィックディスプレイのプログラムについては核理研・計測グループの小田島明美さんに全面的に協力していただいた。その他、核理研・マシングループの方々にも協力いただいた。以上の皆さんに感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) 武藤正勝, 柴崎義信, 大沼忠弘: 核理研研究報告 20 (1987) 393.
- 2) M. Mutoh, Y. Shibasaki and T. Oonuma: *Pro. Linac. Meeting Japan* (1988) p. 22.
- 3) T. Oonuma *et al*: *Pro. Linac. Meeting Japan* (1989) p. 316.
- 4) 武藤正勝他: 核理研研究報告 15 (1982) 164.

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22卷 第2号

1989年12月発行

発行所 東北大学理学部附属原子核理学研究施設
 仙台市太白区三神峯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
 仙台市青葉区立町24番24号
 TEL (263) 1166 (代)

RESEARCH REPORT OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

Volume 22 Number 2 December 1989

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