

RESEARCH REPORT  
OF  
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE  
TOHOKU UNIVERSITY

# 核 理 研 究 報 告

第 29 卷      第 1 号

1996 年 9 月

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

## 刊 行 規 定

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

## 投 稿 規 定

1. 邦文の原稿はA4判400字詰原稿用紙を使用して下さい。用語は可能な限り文部省編さん「学術用語集」によって下さい。
2. 引用文献、記号、単位、数式、文字指定等は Journal of the Physical Society of Japan の「投稿の手引」に従って下さい。  
特に次の点について御注意下さい。  
原稿には添字、ギリシャ文字、イタリック、ゴシック、立体、まぎらわしい大文字及び小文字を赤鉛筆で指定して下さい。但し、文中の文字記号及び数式は原則としてイタリックで組みますので、単位及び元素記号、数式中特に立体とすべき文字記号は必ず立体の指定をして下さい。英文の原稿の場合は、イタリックの方を指定して下さい。
3. 図及び表には1枚毎に「第1図」、「第2表」のように番号を付けて下さい。図は全て墨入れし、縮尺又は刷り上がり寸法を記入して下さい。但し、1/3以下の縮尺はご遠慮下さい。
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29巻 第1号 目次

## I 原子核物理

I - 1	${}^6\text{Li}(e, e' t_0)$ 反応断面積の測定	1
-------	-------------------------------------	---

(核理研, 理学研究科物理\*)

堀田 智明, 玉江 忠明, 菅原 真澄, 須田 利美\*,  
高橋 哲宗, 田所 孝広, 田中 英二, 坪田 博明\*,  
中川 格, 三浦 哲生, 宮瀬 晴久\*

I - 2	${}^6\text{Li}(e, e' p)$ 反応機構の研究	10
-------	----------------------------------	----

(核理研, 理学研究科物理\*)

堀田 智明, 玉江 忠明, 菅原 真澄, 須田 利美\*,  
高橋 哲宗, 田所 孝広, 田中 英二, 坪田 博明\*,  
中川 格, 三浦 哲生, 宮瀬 晴久\*

I - 3	${}^{12}\text{C}(e, e' p)$ 反応の移行運動量依存性の研究	21
-------	---	----

(核理研, 理学研究科物理\*)

中川 格, 玉江 忠明, 菅原 真澄, 田所 孝広  
田中 英二, 坪田 博明\*, 堀田 智明, 三浦 哲生,  
宮瀬 晴久\*, 横川 民雄

I - 4	${}^7\text{Li}(e, e' n)$ 反応の研究	31
-------	--------------------------------	----

(核理研, 理学研究科物理\*, 工学研究科中性子物理\*\*,  
山形大理学部\*\*\*, )

遠藤 卓哉, 齋藤悌二郎, 及川 正道, 木野 幸一  
中川 武美\*, 阿部 健\*\*, 上野 博昭\*\*\*

## II 放射化学

II - 1	Characteristics of the GDR Fission	39
--------	------------------------------------	----

(大阪大理学部, 金沢大理学部\*, 核理研\*\*)

高橋 成人, 横山 明彦, 馬場 宏, 山口 貴行  
矢野 大作, 齋藤 直, 二谷 訓子, 浜島 靖典\*,  
大槻 勤\*\*, 榎本 和義\*\*

- II-2 Some Specific Features of Recoil Behaviour of Central Metal Atoms in the Solid System of Water-Soluble Metalloporphyrin Ion Associates ..... 57

(筑波大化学)

荘司 準

- II-3 有機ホスホン酸含浸液体膜によるイットリウムと鉄(III)の分離 ..... 64

(素材研)

中村 重人, 伊藤 正裕, 秋葉 健一

- II-4 混合ゼオライト焼成固化体からのCsとSrの浸出挙動 ..... 72

(素材研)

三村 均, 山岸 功, 秋葉 健一

- II-5 造粒無機イオン交換体への放射性核種の吸着特性 ..... 78

(素材研, 東亜合成\*)

三村 均, 大江 隆之, 秋葉 健一, 山本 則幸\*

- II-6 ニホンジカ(Cervus nippon)の肝臓に含まれる微量元素元素の光量子放射化分析 ..... 84

(石巻専修大理工学部)

福島美智子, 玉手 英利

### III 加速器・測定装置

- III-1 導体境界によるコヒーレント放射光発生抑制と増加 ..... 89

(核理研, 科研\*)

加藤 龍好, 中里 俊晴, 小山田正幸, 浦澤 茂一

山川 達也, 吉岡 正裕, 池沢 幹彦\*, 伊師 君弘\*

金井 利喜\*, 柴田 行男\*, 高橋 俊晴\*

- III-2 ストレッチャー・ブースターへの共鳴入射の可能性の検討 ..... 102

(核理研)

雪島 正敏, 封 碧波, 井上 隆, 中里 俊晴

小山田正幸, 浦澤 茂一, 渡辺 勝美, 山川 達也

IV 放射線安全管理	111
IV-1 中性子散乱実験用遮蔽体の放射化量評価 (安全管理室) 榊本 和義, 大槻 勤, 笠木 治郎太	
V 加速器稼働状況	131
V-1 平成7年度マシン報告 (マシングループ) 栗原 亮, 浦澤 茂一, 小山田正幸, 柴崎 義信 高橋 重伸, 中里 俊晴	
VI 論文リスト	137

Research Report of Laboratory of Nuclear Science  
Volume 29, Number 1  
Contents

I Nuclear Physics

- I - 1 Measurement of the  ${}^6\text{Li}$  ( $e, e' t_0$ ) Reaction Cross Sections ..... 1  
Tomoaki Hotta, Tadaaki Tamae, Masumi Sugawara, Toshimi Suda,  
Akimune Takahashi, Takahiro Tadokoro, Eiji Tanaka, Hiroaki  
Tsubota, Itaru Nakagawa, Tetsuo Miura and Haruhisa Miyase
- I - 2 Study of the  ${}^6\text{Li}$  ( $e, e' p$ ) Reaction Mechanisms ..... 10  
Tomoaki Hotta, Tadaaki Tamae, Masumi Sugawara, Toshimi Suda,  
Akimune Takahashi, Takahiro Tadokoro, Eiji Tanaka, Hiroaki  
Tsubota, Itaru Nakagawa, Tetsuo Miura and Haruhisa Miyase
- I - 3 Study of Transfer Momentum Dependence in  ${}^{12}\text{C}$  ( $e, e' p$ ) Reaction ..... 21  
Itaru Nakagawa, Tadaaki Tamae, Masumi Sugawara, Takahiro Tadokoro,  
Eiji Tanaka, Hiroaki Tsubota, Tomoaki Hotta, Haruhisa, Miyase and  
Tamio Yokokawa
- I - 4 Study of the  ${}^7\text{Li}$  ( $e, e' n$ ) Reaction ..... 31  
Takuya Endo, Teijiro Saito, Kouichi Kino, Takemi Nakagawa, Hiroshi  
Ueno and Ken Abe

II Radiochemistry

- II - 1 Characteristics of the GDR Fission ..... 39  
Naruto Takahashi, Akihiko Yokoyama, Hiroshi Baba, Takayuki Yamaguchi,  
Daisaku Yano, Tadashi Saito, Noriko Nitani, Yasunori Hamajima,  
Tsutomu Ohtsuki and Kazuyoshi Masumoto
- II - 2 Some Specific Features of the Recoil Behaviour of Central Metal Atoms in the  
Solid System of Water-Soluble Metalloporphyrin Ion Associates ..... 57  
Hitoshi Shoji

II – 3	Separation of Yttrium and Iron (III) with Supported Liquid Membrane Containing Acidic Organophosphate.....	64
	Shigeto Nakamura, Masahiro Itoh and Kenichi Akiba	
II – 4	Leaching Behavior of Cs and Sr from Calcined Products of Mixed Zeorites .....	72
	Hitoshi Mimura, Isao Yamagishi and Kenichi Akiba	
II – 5	Adsorption Properties of Radionuclides on Granulated Inorganic Ion Exchangers .....	78
	Hitoshi Mimura, Takayuki Ohe, Kenichi Akiba and Noriyuki Yamamoto	
II – 6	Photon Activation Analysis of Trace Metals in the Livers of the Japanese Sika Deer (Cervus nippon) .....	84
	Michiko Fukushima and Hidetoshi Tamate	
 III Accelerator and Instrumentation		
III – 1	Suppression and Enhancement of Coherent Synchrotron Radiation in the Presence of Conducting Boundaries .....	89
	Ryukou Kato, Tosiharu Nakazato, Masayuki Oyamada, Shigekazu Urasawa, Tatsuya Yamakawa, Masahiro Yoshioka, Mikihiko Ikezawa, Kimihiko Ishi, Toshiki Kanai, Yukio Shibata and Toshiharu Takahashi	
III – 2	Study of the Possibility of Resonant Injection for Strecher Booster Ring .....	102
	Masatoshi Yukishima, Bibo Feng, Takashi Inoue Toshiharu Nakazato, Masayuki Oyamada, Shigekazu Urasawa, Katsumi Watanabe and Tatsuya Yamakawa	
 IV Radiation Safety		
IV – 1	The Assessment of Radioactivity Induced in the Shield Concrete for the Neutron Scattering Experiment .....	111
	Kazuyoshi Masumoto, Tsutomu Ohtsuki, Jirouta Kasagi	

V Status Report on the Accelerator ..... 131

V-1 Status of the Electron Linac

Akira Kurihara, Shigekazu Urasawa, Masayuki Oyamada,

Yoshinobu Shibasaki, Shigenobu Takahashi and Toshiharu Nakazato

VI List of Publications ..... 137



# I. 原 子 核 物 理

${}^6,7\text{Li}(e, e't_0)$  反応断面積の測定

核理研, 理学研究科物理\*

堀田智明<sup>1</sup>・玉江忠明・菅原真澄

須田利美\*・高橋哲宗・田所孝広

田中英二・坪田博明\*・中川 格

三浦哲生・宮瀬晴久\*

The cross sections for the  ${}^6\text{Li}(e, e't) {}^3\text{He}$  and the  ${}^7\text{Li}(e, e't) {}^4\text{He}$  reactions were measured at the transferred energies from 13 to 46 MeV. In contrast with the  ${}^6\text{Li}(\gamma, t)$  reaction, large forward-backward asymmetry was observed in the angular distributions. The experimental results were compared with the direct-knockout calculation.

## § 1. 序 論

原子核におけるクラスター相関は、特に軽い原子核においてその性質を決定付ける重要な要素となっている。クラスターの放出を伴う分解反応の研究は、原子核におけるクラスター構造を調べる上で重要な課題の一つであり、数多くの実験と理論的研究が行われて来た。

${}^6\text{Li} \rightarrow {}^3\text{H} + {}^3\text{He}$  および  ${}^7\text{Li} \rightarrow {}^3\text{H} + {}^4\text{He}$  の反応は、光核反応やその逆反応である放射性捕獲反応による実験が行われている。 ${}^6\text{Li}(\gamma, t) {}^3\text{He}$  実験<sup>1,2)</sup> および  ${}^3\text{He}({}^3\text{He}, \gamma)$  実験<sup>3,4)</sup> では、角度分布から反応の多重極度がほぼ E1 のみであり、 $E_\gamma < 40\text{MeV}$  では  ${}^3\text{H} + {}^3\text{He}$  クラスター模型による直接過程の計算が断面積と角度分布の実験値を良く再現することが分かった。一方で、直線偏光した  $\gamma$  線による  ${}^6\text{Li}(\vec{\gamma}, t) {}^3\text{He}$  実験では、 $E_\gamma = 55 - 70\text{MeV}$  での反応断面積の非対称度の測定から、 ${}^6\text{Li}$  の基底状態を  $\alpha + d$  とするモデルを支持する結果が得られている。しかしこのモデルに  $E_\gamma > 50\text{MeV}$  での反応断面積を再現しないという問題が残っている<sup>5,6)</sup>。

${}^7\text{Li}(\gamma, t) {}^4\text{He}$  実験<sup>2,7)</sup> では、 ${}^6\text{Li}$  とは異なり、角度分布から E1 に加え E2 や M1 多重極度の存在が示された。また、 ${}^3\text{H} + {}^4\text{He}$  クラスター模型のパラメータの選び方によって反応断面積が大きく異なり、 $E_\gamma < 40\text{MeV}$  で実験を再現するモデルはあるものの、 $E_\gamma = 50 - 90\text{MeV}$  では実験と理論計算との違いが大きくなっている<sup>5,6,8)</sup>。

本実験の目的は、Li 核のクラスター分解反応を光核反応とは異なる運動学的条件での測定し、Li 核クラスター構造と分解反応機構について新しい情報を得ることである。ここでは反

---

<sup>1</sup> 現在, 大坂大学核物理研究センター

応機構として、クラスターのノックアウト過程について検討した結果を報告する。

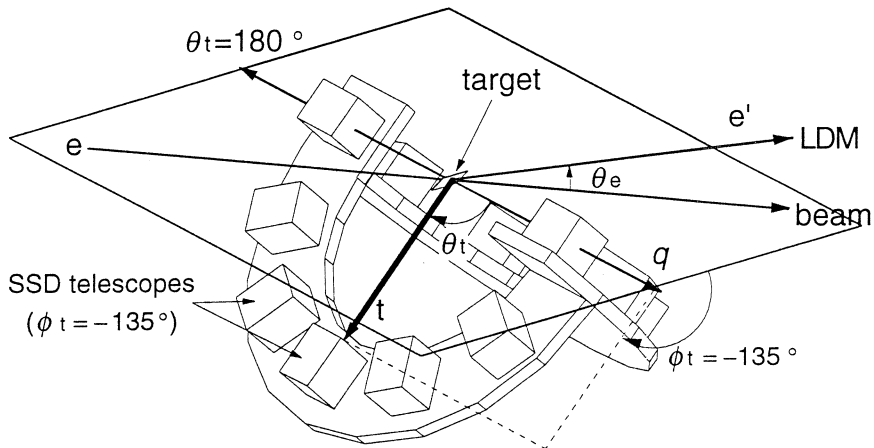
## § 2. 実験条件

実験は核理研において、入射エネルギー  $E_i = 134 \text{ MeV}$  で行った。 ${}^6\text{Li}$  については、電子散乱角  $\theta_e = 26^\circ$  で移行エネルギー  $27.2 < \omega < 46.4 \text{ MeV}$  の範囲を、 $\theta_e = 42^\circ$  で  $34.0 < \omega < 39.1 \text{ MeV}$  を測定した。 ${}^7\text{Li}$  に対しては、 $\theta_e = 26^\circ$ 、 $12.8 < \omega < 36.9 \text{ MeV}$  での測定を行った。標的には、 ${}^6\text{Li}$ 、 ${}^7\text{Li}$  とともに濃縮された金属箔を用いた。標的の厚さは電子の弾性散乱によって規格化し、反応断面積を求めた。散乱電子は磁気スペクトロメーター (LDM) で測定し、標的から放出される荷電粒子を、LDM 散乱槽の内部に配置した半導体検出器 (SSD) テレスコープによって測定した。散乱電子及び放出荷電粒子の測定角度の定義を、検出器の配置とともに第 1 図に示す。 ${}^6\text{Li}(e, e'x)$  実験では、 $\phi_x = -45^\circ$  及び  $-135^\circ$  で、 ${}^7\text{Li}(e, e'x)$  実験では  $\phi_x = -90^\circ$  で測定した。SSD テレスコープは厚さ  $50 \mu\text{m}$  の  $\Delta E$  検出器と、厚さ 1 ないし 4 mm の  $E$  検出器で構成され、 $\Delta E - E$  法による荷電粒子 ( $p, d, t, {}^3\text{He}, {}^4\text{He}$  およびバックグラウンド電子) の識別を行なった。

( $e, e'x$ ) 同時計数断面積  $\sigma_{ee'x}$  は、粒子  $x$  の放出角度  $\phi_x$  と、

$$\sigma_{ee'x}(\phi_x) = \sigma_L + \sigma_T + \sigma_{LT} \cos \phi_x + \sigma_{TT} \cos 2\phi_x \quad (1)$$

という関係にある。ここでの  $\sigma_L$ 、 $\sigma_T$ 、 $\sigma_{LT}$  は及び  $\sigma_{TT}$  はそれぞれ断面積の縦波成分、横波成分、縦波-横波干渉項及び横波-横波干渉項である。従って、 ${}^6\text{Li}(e, e'x)$  実験では、 $\phi_x$  依



第 1 図 散乱電子と放出粒子の角度の定義および  ${}^6\text{Li}(e, e't)$  実験時の検出器の配置。

存性から非干渉項 ( $\sigma_L + \sigma_T$ ) と LT 干渉項  $\sigma_{LT}$  を分離することができる。一方,  ${}^7\text{Li}$  ( $e, e'x$ ) 実験では ( $\sigma_L + \sigma_T - \sigma_{TT}$ ) を測定する。

### § 3. 実験結果

第 2 図に  ${}^6\text{Li}$  ( $e, e't$ ) 反応の missing-energy スペクトルの例を示す。 ${}^6\text{Li}$  では  $E_m = 15.8\text{MeV}$  に,  ${}^7\text{Li}$  では  $E_m = 2.5\text{MeV}$  にそれぞれ  ${}^3\text{H} + {}^3\text{He}$  への二体分解反応に対応するピークが見られる。このピークを積分して求めた

${}^6\text{Li}$  ( $e, e't_0$ ) 反応断面積を第 3 図に示す。一部の角度については, ( $e, e'{}^3\text{He}$ ) ${}^3\text{H}$  事象から反応断面積を求めた。三重陽子の放出角度  $\theta_e^{\text{cm}}$  は  ${}^3\text{H} - {}^3\text{He}$  の重心系での角度で表した。

${}^6\text{Li}$  ( $e, e'x$ ) 反応断面積は,  $\phi_x = -45^\circ, -135^\circ$  であることから, Legendre 多項式および Legendre 陪多項式を用いて,

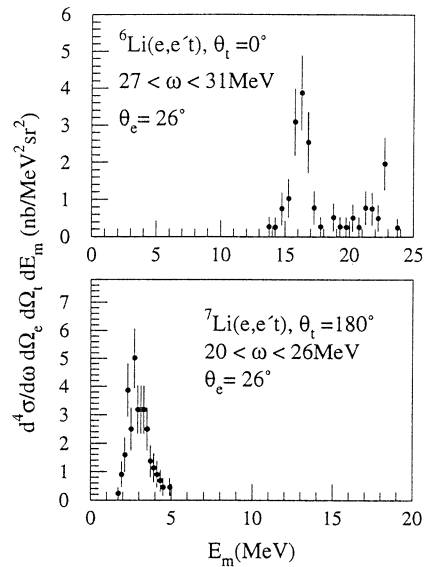
$$\sigma(\phi_x) = A_0 \left( 1 + \sum_{i=1} a_i P_i(\cos \theta_x) + \cos(\phi_x) \sum_{i=1} b_i P_i^1(\cos \theta_x) \right) \quad (2)$$

と表すことができる<sup>9)</sup>。第 3 図には(2)式による fitting の結果を同時に示す。測定点数と統計精度を考慮し fitting は  $i = 3$  までで行なった。角度分布は, 測定した ( $q, \omega$ ) 領域全体で双極子的な形であり, E1 多重極度の強い寄与を示唆している。さらに, 三重陽子が反運動量移行方向 (後方) に強く放出されている特徴が見られ, E1 とパリティの異なる多重極度の干渉を示している。実光子による ( $\gamma, t_0$ ) 反応<sup>1,2)</sup> やその逆反応<sup>4)</sup> では,  $90^\circ$  対称の角度分布から純粋に E1 のみの寄与が示されており, ( $e, e't_0$ ) 反応との違いが見られる。

次に,  ${}^7\text{Li}$  ( $e, e't_0$ ) 反応の断面積を第 4 図に示す。 $\phi_t = -90^\circ$  で測定しているのので, 断面積は,

$$\sigma(\phi_x = -90^\circ) = A_0 \left( 1 + \sum_{i=1} a_i P_i(\cos \theta_x) \right) \quad (3)$$

によって fitting した (第 4 図)。ここで  ${}^6\text{Li}$  と同様に  $i = 3$  までとし, また  $\sigma_{TT}$  項を無視した。角度分布は  ${}^6\text{Li}$  と同様に三重陽子が後方に強く放出される特徴が観測された。 ${}^6\text{Li}$  の場合と異なり,  ${}^7\text{Li}$  ( $\gamma, t_0$ ) 実験<sup>2,7)</sup> でも, 非対称な角度分布が観測されている。



第 2 図  ${}^6\text{Li}$  ( $e, e't$ ) および  ${}^7\text{Li}$  ( $e, e't$ ) 反応の missing-energy スペクトル。

#### § 4. 考 察

(e, e' t) 反応機構として、標的核の基底状態が  ${}^3\text{H} + {}^3\text{He}$  (又は,  ${}^3\text{H} + {}^4\text{He}$ ) のクラスター状態であり、そのクラスターの1つが仮想光子と相互作用して叩き出される過程を考える。このような準弾性散乱過程は、 $(\gamma, t)$  反応でよりも (e, e' t) 反応でより強く寄与するものと考えられ、 ${}^6\text{Li}$  の角度分布の違いの原因となっている可能性がある。

${}^6\text{Li}$  の基底状態の波動関数は、 ${}^3\text{H}-{}^3\text{He}$  と、 $\alpha$ -p-n 模型等による計算がなされている<sup>6,8)</sup>。ここではまず、基底  ${}^6\text{Li}$  の基底状態を  ${}^3\text{H}-{}^3\text{He}$  と考え、波動関数を、

$$\phi_{\text{gs}}({}^6\text{Li}; 1^+) = [\phi_t \phi_h \Phi_{L=0}(r_{\text{th}})]_{1^+} \quad (4)$$

とする。 $\phi_t$  及び  $\phi_h$  はそれぞれ  ${}^3\text{H}$  及び  ${}^3\text{He}$  クラスターの内部波動関数で、これらのクラスターの相対運動の波動関数  $\Phi_L$  との積で基底状態の波動関数を作る。2つのクラスター間の相対角運動量は  $L=0$  とする。 $\alpha$ -p-n 模型<sup>6)</sup> では、 ${}^6\text{Li}$  を  $\alpha$ -p-n という構成要素からなると考えて求めた波動関数に対して、 ${}^3\text{H}-{}^3\text{He}$  の相対運動の波動関数を得ている。

${}^7\text{Li}$  でも同様に、基底状態を  ${}^3\text{H} + {}^4\text{He}$  と考え、波動関数を、

$$\phi_{\text{gs}}({}^7\text{Li}; 3/2^-) = [\phi_t \phi_\alpha \Phi_{L=1}(r_{\text{ta}})]_{2/3^-} \quad (5)$$

とする。

平面波インパルス近似 (PWIA) を用いると、運動量空間での相対波動関数

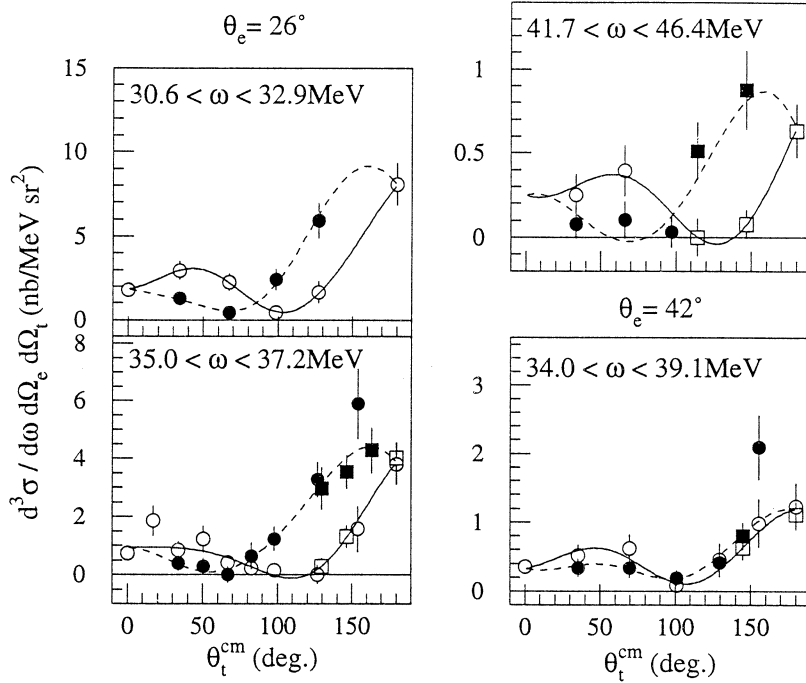
$$|\Phi(p_m)|^2 = \frac{1}{2\pi^2(\hbar c)^3} \left[ \int_0^\infty r j_L(P_m r) \Phi_L(r) dr \right]^2 \quad (6)$$

を用いて、反応断面積を

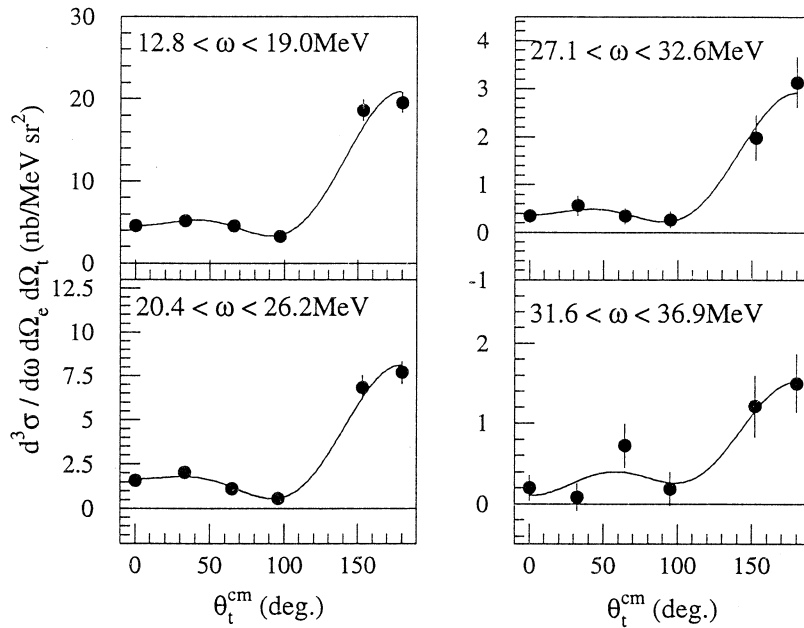
$$\sigma_{e'e'x} \equiv \frac{d^3\sigma}{d\Omega_e d\Omega_x dE_x} = K \sigma_{\text{ex}} |\Phi(p_m)|^2 \quad (7)$$

と表すことができる。ここで、 $p_m$  は missing-momentum で、 $\vec{p}_m = \vec{k}_p - \vec{q}$  と定義する。 $K$  は運動学的因子、 $\sigma_{\text{ex}}$  は off-shell での電子とクラスター  $x$  ( $x = {}^3\text{H}$ ,  ${}^3\text{He}$  および  ${}^4\text{He}$ ) の散乱断面積である。 $\sigma_{\text{ep}}$  には de Forest が (e, e' p) 反応の準弾性散乱過程に対して、 $e-p$  散乱断面積  $\sigma_{\text{ep}}$  に off-shell の効果を電流保存則に基づいて取り入れた手法<sup>10)</sup> を、 ${}^3\text{H}$  および  ${}^3,4\text{He}$  に適用して求めた。この計算には、クラスター  $x$  の弾性散乱形状因子として、実験<sup>11,12)</sup> から求められた原子核  $x$  の自由空間での弾性散乱形状因子の値を用いた。相対波動関数、 $\Phi_L$  としては、Burkova らによる計算値<sup>6)</sup> を用いて断面積の計算を行なった。

(7)式に基づいて反応断面積を計算する際に、次の2つの効果について考慮する。一つは、放出粒子がクラスター間に働くポテンシャルから受ける歪曲の効果で、もう一つは反跳の効果で



第3図  ${}^6\text{Li}(e, e't)$  反応断面積。●および○がそれぞれ、 $\phi_t = -45^\circ, -135^\circ$  に対応する。□および■で示した点は  $(e, e'{}^3\text{He})$  反応から得た断面積を表す。図中の破線及び実線はそれぞれ  $\phi_t = 45^\circ, -135^\circ$  に対応する Legendre 多項式による fitting の結果を表す。



第4図  ${}^7\text{Li}(e, e't_0)$  反応断面積。曲線は Legendre 多項式による fitting の結果を表す。

ある。歪曲の効果については、簡単のためポテンシャルの実数部の影響による放出粒子の運動量の変化のみを近似的に取り入れた。Watt<sup>13)</sup>によると、 $p'$  および  $p$  をそれぞれ核内の粒子の運動量と測定された粒子の運動量、 $M$  を粒子の質量として、

$$(p') = p^2 + 2MV$$

となる。ここでポテンシャルの深さ  $V$  には、クラスター模型の波動関数を求める際に使われたクラスター間ポテンシャルの値を用い、 ${}^6\text{Li}$  に対して 83.5 MeV、また  ${}^7\text{Li}$  に対しては 95.0 MeV とした。

反跳の効果は、例えば、 ${}^6\text{Li}(e, e't){}^3\text{He}$  反応の場合、仮想光子が  ${}^3\text{H}$  クラスターと相互作用する過程を coherent に加えることによって取り入れる。この効果は、Sené 等が、 $(\gamma, p)$  反応および  $(\gamma, n)$  反応に取り入れた手法<sup>14)</sup> により近似的に取り扱った。ここでは、(7)式の  $\sigma_{\text{ex}} |\Phi(p_m)|^2$  を以下の様に表す。

$$\begin{aligned} \sigma_{\text{et}} |\Phi(p_m)|^2 = \sigma_{\text{Mott}} \frac{q_\mu^2}{q^2 \varepsilon} \{ \varepsilon f_L + f_T + \varepsilon f_{\text{TT}} \cos 2\phi_t \\ - [2\varepsilon(1+\varepsilon)]^{1/2} f_{\text{LT}} \cos \phi_t \} \end{aligned} \quad (9)$$

$$f_L = \frac{q_\mu^2}{q^2} (G_E^{(v)}(q_\mu^2) |\Phi(p_m^{(v)})| - 2G_E^{(h)}(q_\mu^2) |\Phi(p_m^{(h)})|)^2 \quad (10)$$

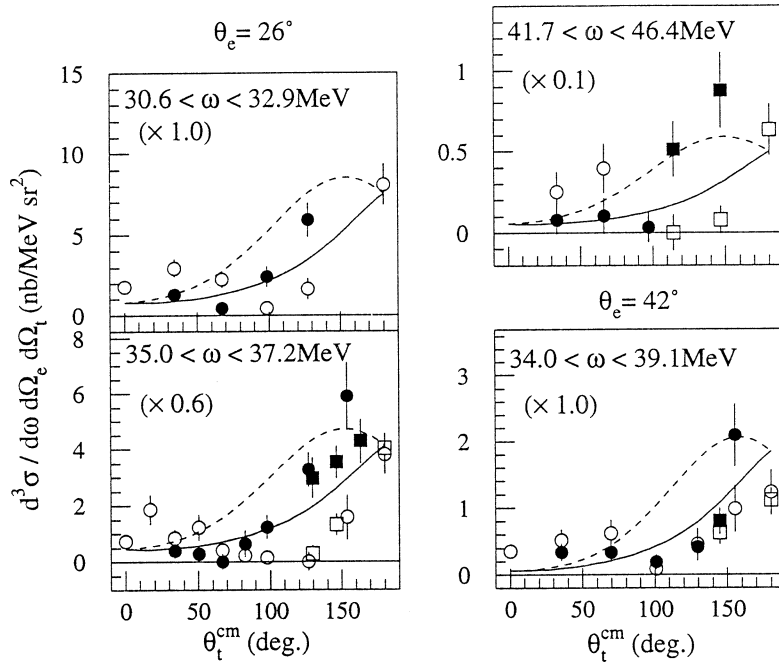
$$\begin{aligned} f_T = \frac{1}{2m_t^2} \sin^2 \theta_t (G_E^{(v)} k_t |\Phi(p_m^{(v)})| - 2\frac{m_t}{m_h} G_E^{(h)} k_h |\Phi(p_m^{(h)})|)^2 \\ + \frac{q^2}{4m_t^2} (G_M^{(v)} |\Phi(p_m^{(v)})| + G_M^{(h)} |\Phi(p_m^{(h)})|)^2 \end{aligned} \quad (11)$$

$$f_{\text{TT}} = \frac{1}{2m_t^2} \sin^2 \theta_t (G_E^{(v)} k_t |\Phi(p_m^{(v)})| - 2\frac{m_t}{m_h} G_E^{(h)} k_h |\Phi(p_m^{(h)})|)^2 \quad (12)$$

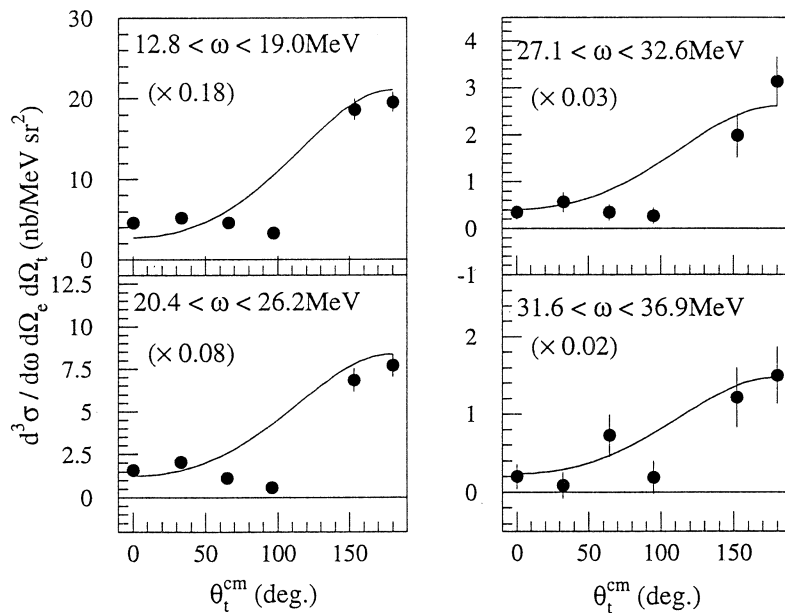
$$\begin{aligned} f_{\text{LT}} = \frac{\sqrt{q_\mu^2}}{q} \left| \frac{1}{m_t} \sin \theta_t (G_E^{(v)} k_t |\Phi(p_m^{(v)})| - 2\frac{m_t}{m_h} G_E^{(h)} k_h |\Phi(p_m^{(h)})|) \right. \\ \left. \times (G_E^{(v)}(q_\mu^2) |\Phi(p_m^{(v)})| - 2G_E^{(h)}(q_\mu^2) |\Phi(p_m^{(h)})|) \right| \end{aligned} \quad (13)$$

ここで、 $G_E^{(v)}(q_\mu^2)$ 、 $G_M^{(v)}(q_\mu^2)$  はそれぞれ粒子  $x$  の電気形状因子および磁気形状因子である。

計算から得られた反応断面積を実験値と比較して第5図および第6図に示す。それぞれの図において、計算値は実験値に合うよう断面積を規格化して示した。角分布の形状に注目すると、 ${}^6\text{Li}(e, e't){}^3\text{He}$  反応 (第5図) では、計算値が前後の非対称度を再現しているように見える。しかし、第3図の Legendre 関数による fitting と見比べると分かるように、断面積の  $\phi_t$  依存



第5図  ${}^6\text{Li}(e, e' t_0)$  反応断面積とインパルス近似の計算結果。計算結果は実験値に合うように ( ) に示した倍率を掛けて示した。点および曲線の  $\phi_t$  との対応は第3図と同じ。



第6図  ${}^7\text{Li}(e, e' t_0)$  反応断面積とインパルス近似の計算結果。計算結果は実験値に合うように ( ) に示した倍率を掛けて示した。



性に関しては再現していない。また、実験値は計算値に比べて前方と後方の二つのピークをもつ傾向を強く示している。このような不一致は、実験の反応では高い多重極度の寄与は小さいのに対し、計算では放出粒子を平面波で取り扱っていることによると考えられる。

${}^7\text{Li}(e, e't){}^4\text{He}$  反応 (第6図) についても、 ${}^6\text{Li}$  と同様に角度分布の非対称度は計算によって再現させられているが、第4図との比較からも分かるように  $\theta_{\text{cm}} = 90^\circ$  付近の角度分布の様子は実験と異なっている。

反応断面積の絶対値は、式(8)のポテンシャルの取り方によって大きく変わる。ここでの取り扱いは近似的なもので、実験と計算の断面積の違いについて深く議論することは難しい。ただし、角度分布についてはポテンシャルの取り方に対して大きな変化は見られなかった。

以上から、 ${}^6,7\text{Li}(e, e't_0)$  反応に共通して見られた、 ${}^3\text{H}$  が後方に強く放出される角度分布は、標的核  ${}^6\text{Li}$  ( ${}^7\text{Li}$ ) の中の  ${}^3\text{H}$  と  ${}^3\text{He}$  ( ${}^4\text{He}$ ) クラスタの一つを仮想光子がノックアウトする反応機構によって説明可能であることが分かった。反応断面積と多重極度に関しては、PWIAを元にした計算では詳しい議論は難しいが、今後、光核反応に対して行われた微視的なクラスター模型の計算<sup>6)</sup>等を  $(e, e't)$  反応に対しても行わない本実験と比較することにより、 ${}^6\text{Li}$ ,  ${}^7\text{Li}$ , 核の構造およびクラスター分解反応について理解が進むものと考えられる。

最後に、本実験の遂行にあたり、核理研マシングループおよび計測グループに御協力いただきました。深く感謝いたします。

## 参 考 文 献

- 1) Y. M. Shin, D. M. Skopik and J. J. Murphy : Phys. Lett. **55B** (1975) 297.
- 2) G. Junghans *et al.* : Z. Phys. **A291** (1979) 353.
- 3) A. M. Young, S. L. Blatt and R. G. Seyler : Phys. Rev. Lett. **25** (1970) 1764.
- 4) E. Ventura, J. R. Calarco, W. E. Meyehof and A. M. Young : Phys. Lett. **46B** (1973) 364.
- 5) V. V. Denyak, I. G. Evseev, V. P. Likhachev, S. A. Pashchuk, and V. M. Khvastunov : Phys. At. Nucl. **56** (1993) 14.
- 6) N. A. Burkova *et al.* : Nucl. Phys. **A586** (1995) 293.
- 7) D. M. Skopik, J. Asai, E. L. Tomusiak and J. J. Murphy II : Phys. Rev. **C20** (1979) 2025.

- 8) N. A. Burkova, M. A. Zhusupov nad R. A. Eramzhyan : Moscow INR preprint **702** (1991)
- 9) W. E. Kleppinger and J. D. Walecka : Ann. Phys. 146 (1983) 349 : Ann. Phys. **151** (1983) 497.
- 10) T. de Forest, Jr. : Nucl. Phys. **A392** (1983) 232.
- 11) F. P. Juster, *et al.* : Phys. Rev. Lett. **55** (1985) 2261.
- 12) J. S. McCarthy, I. Sick and R. R. Whitney : Phys. Rev. **C15** (1977) 1396.
- 13) A. Watt, Phys. Lett. **27B** (1968) 190.
- 14) M. R. Sené, *et al.* : Nucl. Phys. **A442** (1985) 215.

$^{6,7}\text{Li}(e, e'p)$ 反応機構の研究

核理研, 理学研究科物理\*

堀田智明<sup>1</sup>・玉江忠明・菅原真澄  
須田利美\*・高橋哲宗・田所孝広  
田中英二・坪田博明\*・中川 格  
三浦哲夫・宮瀬晴久\*

In order to study the properties of the giant dipole resonance in Li nuclei and reaction mechanism itself, the  $^{6,7}\text{Li}(e, e'p)$  reaction cross sections were measured in the giant resonance region and above. The angular distribution had a peak at the forward angle for all measured reaction channels. Experimental results were compared with the DWIA calculation, by which angular distributions and their  $(q, \omega)$  dependence were well reproduced. The GDR states, which were predicted by theories, were not strongly observed.

## § 1. 序 論

原子核の巨大共鳴状態は、多数の1粒子-1空孔状態が coherent に重なった集団運動状態である。軽い原子核では、異なる1粒子-1空孔状態間のエネルギー差が大きくなり、配位の違いによる分離を起こす等、原子核ごとに大きく異なる性質を示す。特に、最も軽いp殻原子核であるLi等では、核内の $\alpha$ クラスター構造が巨大共鳴状態の性質とその崩壊様式を特徴付けると考えられている<sup>1)</sup>。

1960年代に、巨大共鳴領域での光核反応実験からLiの $\alpha$ クラスター的な構造の存在が報告され<sup>2,3)</sup>、核内の $\alpha$ とd(殻模型的にはs殻とp殻)による光子吸収過程が励起関数上の二つのピークとして観測されていることが示唆された<sup>4,5)</sup>。しかし、後に測定された、より精度の高い光反応断面積<sup>6,7,8)</sup>では、 $E_\gamma$ の変化に対して緩やかな変化を示しており、理論で予測された<sup>4,5)</sup>構造は観測されていない。

本実験では、巨大共鳴領域以上での移行エネルギーで $^{6,7}\text{Li}(e, e'p)$ 実験を行なった。この実験では、これまでの光核反応実験に比べて高い精度で反応の終状態を特定することが可能であり、終状態を分離することによって、異なる配位の巨大共鳴状態が観測されるかどうかを調

---

<sup>1</sup>現在：大阪大学核物理研究センター

べることができる。

ここで、(e,e'p) 反応機構自体についても議論する必要がある。本実験では、移行運動量がそれほど大きくなく、運動学的条件が光核反応に近いことから反応機構も光核反応に近いことが予想される。これまでの例では、 $^{12}\text{C}(e,e'p)$  反応<sup>9)</sup>等で巨大共鳴状態の研究がなされている。一方で、準弾性散乱領域で支配的である直接過程の、巨大共鳴領域近くでの寄与については $^{12}\text{C}(e,e'p)$  反応に対して議論されている<sup>10)</sup>ものの完全には明らかにされていない。

本研究では、 $^6\text{Li}(e,e'p)$  実験から、反応機構について調べるとともに巨大共鳴状態とその崩壊様式についての情報を得ることを目的とする。

## § 2. 実験結果

本実験は一連の $^6\text{Li}(e,e'x)$  実験として、核理研において134MeV連続電子線を用いて行なった。実験条件その他については既に報告しているのでここでは省略する<sup>11)</sup>。

### 2.1 $^6\text{Li}(e,e'p)$ 反応断面積

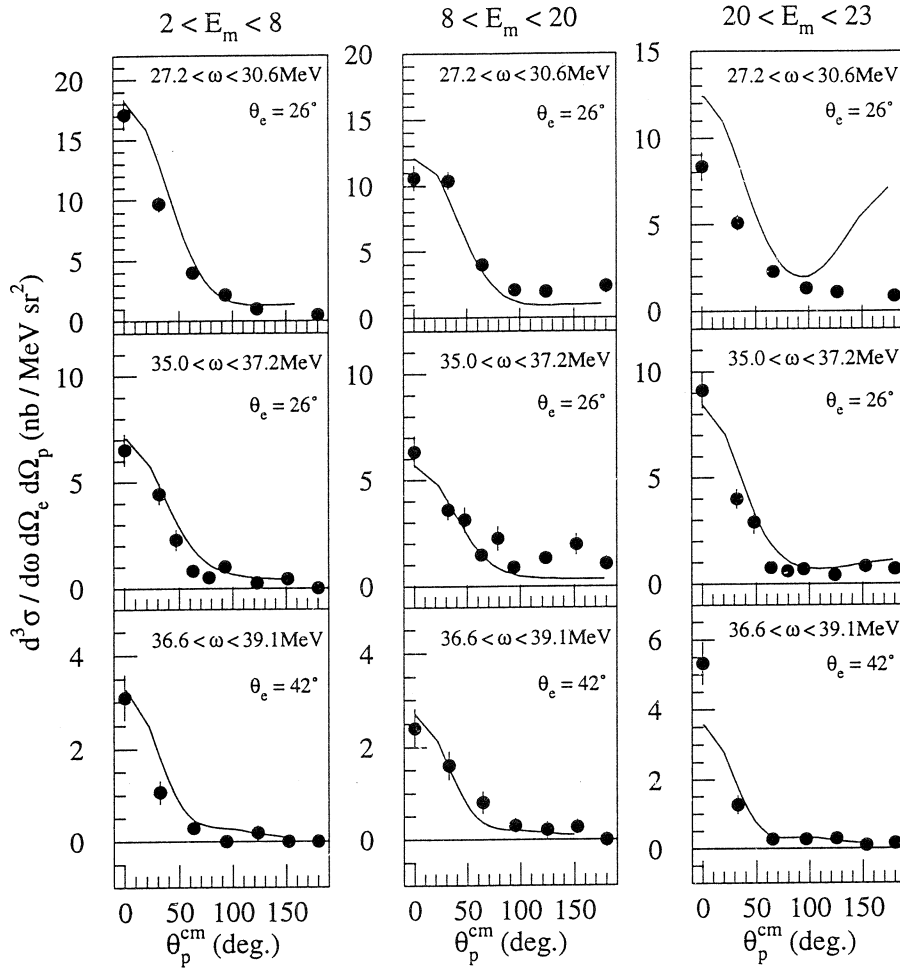
既に報告しているように<sup>11)</sup>、 $^6\text{Li}(e,e'p)$  反応の missing-energy スペクトルには(1)残留核  $^5\text{He}$  の基底状態 ( $3/2^-$ ) に対応するピーク、(2)  $\alpha + n + p$  の三体終状態の領域、(3)  $^5\text{He}$  の16.7MeV ( $3/2^+$ ) 状態に対応するピークが観測された。それぞれの終状態に対する断面積はスペクトルを、(1)  $2 < E_m \leq 8 \text{ MeV}$ , (2)  $8 < E_m \leq 20 \text{ MeV}$ , (3)  $20 < E_m \leq 23 \text{ MeV}$  の範囲で積分して求めた。

第1図および第2図にそれぞれの反応チャンネルに対する微分断面積の一例を示す。図中、陽子の放出角度  $\theta_p^{\text{cm}}$  は放出陽子と残留核の重心系で表している。放出陽子は、放出角度  $\phi_p = -45^\circ$ ,  $-135^\circ$  で測定したので、以下の様に断面積の  $\phi_p$  依存性から非干渉項 ( $\sigma_L + \sigma_T$ ), LT干渉項  $\sigma_{LT}$  の二成分に分けることが出来る。

$$\sigma_L + \sigma_T = \frac{1}{2} [\sigma(\phi_p = -45^\circ) + \sigma(-135^\circ)]$$

$$\sigma_{LT} = \frac{1}{\sqrt{2}} [\sigma(-45^\circ) - \sigma(-135^\circ)] \quad (1)$$

図中の曲線はDWIA計算の結果であり、これについては次節で説明する。 $^6\text{Li}(e,e'p)$  反応の角度分布は、本実験の測定範囲全体で、どの反応チャンネルに対しても前方(運動量移行方向)にピークをなしていることが分かる。また、 $\theta_p^{\text{cm}} = 30^\circ$  付近で断面積の  $\phi_p$  依存性が強く現れており、大きな  $\sigma_{LT}$  項の存在を示している。また、断面積の各項について角度分布は、



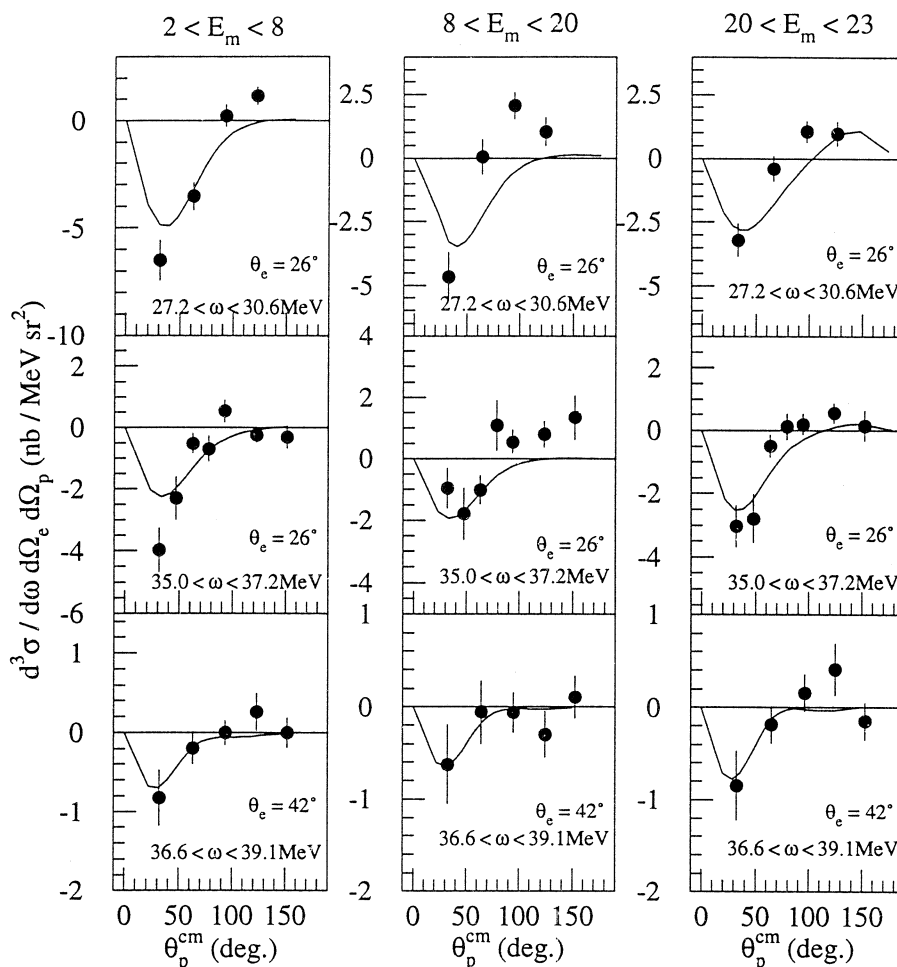
第1図  ${}^6\text{Li}(e,e'p)$  反応断面積 ( $\sigma_L + \sigma_T$ )。曲線はDWIAの計算結果で実験値に合う様に0.8倍して示した。

$$\sigma_L + \sigma_T = \sum_{i=0} A_i P_i(\cos \theta_p^{\text{cm}})$$

$$\sigma_{LT} = \sum_{i=1} B_i P_i^1(\cos \theta_p^{\text{cm}}) \quad (2)$$

と表されるので<sup>12)</sup>、測定点数および統計精度を考慮して次数の上限を決め、

$$\sigma(\phi_p) = A_0 \left( 1 + \sum_{i=1}^4 a_i P_i(\cos \theta_p^{\text{cm}}) + \cos \phi_p \sum_{i=1}^4 b_i P_i(\cos \theta_p^{\text{cm}}) \right) \quad (3)$$



第2図  ${}^6\text{Li}(e,e'p)$  反応断面積 ( $\sigma_{LT}$ )。曲線はDWIAの計算結果で ( $\sigma_L + \sigma_T$ ) 実験値に合う様に0.8倍して示した。

の様に Legendre 多項式および Legendre 陪多項式によって角度分布を fitting した結果からも、これらの角度分布に見られる特徴は ( $q$ ,  $\omega$ ) が変わっても大きく変化せず共通に見られることが分かった。

## 2.2 ${}^7\text{Li}(e,e'p)$ 反応断面積

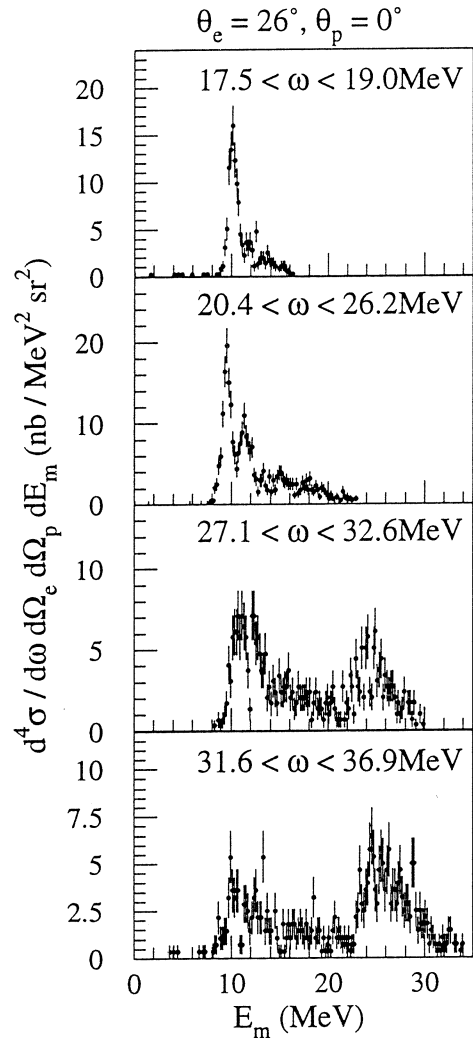
${}^7\text{Li}(e,e'p)$  反応の missing-energy スペクトルを第3図に示す。missing-energy スペクトルには、残留核の  ${}^6\text{He}$  の基底状態 ( $0^+$ ) に対応するピーク ( $E_m=9.97\text{MeV}$ ) と、 ${}^6\text{He} \rightarrow {}^4\text{He} + 2n$  しきい値よりも  $0.8\text{MeV}$  上に存在する第一励起状態に対応するピーク ( $E_m=11.77\text{MeV}$ )

が観測されている。 $E_m=23\text{MeV}$  付近までの領域に見られる連続的なスペクトルは ${}^4\text{He}+2n+p$ への分解反応に対応するものと考えられ、 $E_m > 23\text{MeV}$ の領域では、残留核 ${}^6\text{He}$ をより高い励起状態に残す反応や、 ${}^3\text{He}+{}^3\text{H}$ へ分解する反応なども寄与する可能性がある。

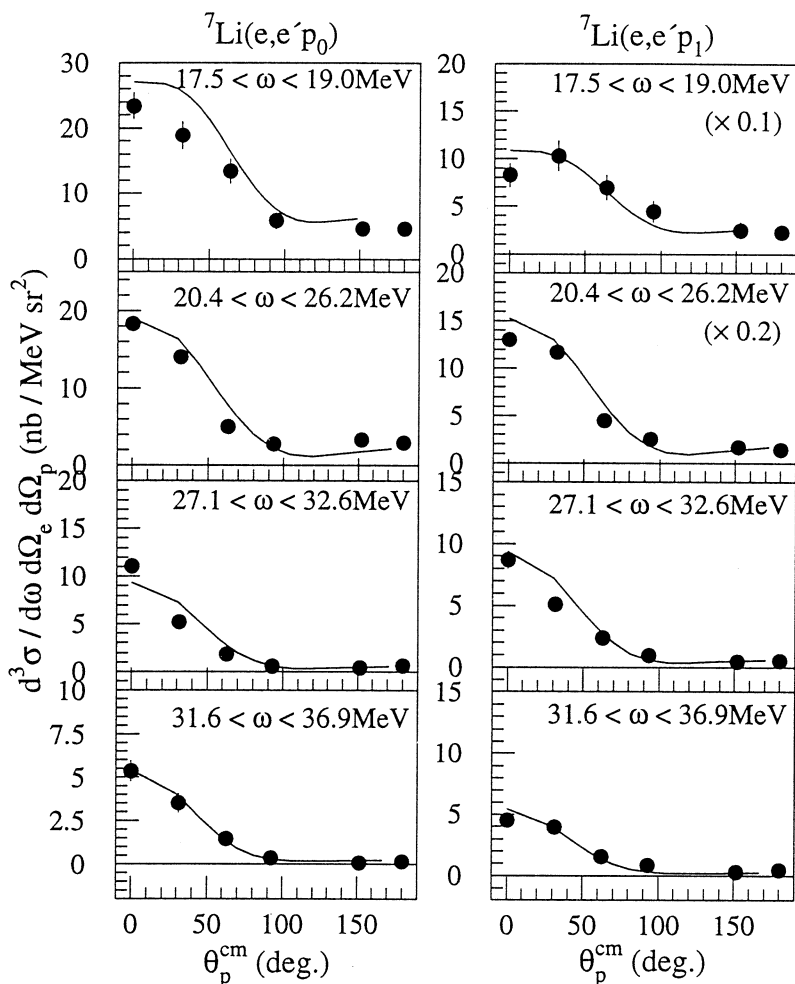
ここでは ${}^6\text{He}$ を基底状態および低い励起状態に残す反応について解析を行なった。missing-energy スペクトルに見られる2つのピークを実験の分解能を考慮して $2.5\text{MeV}$ 幅で積分し、それぞれを ${}^7\text{Li}(e,e'p_0)$ 反応および ${}^7\text{Li}(e,e'p_1)$ 反応として断面積を導出した。これらの反応の微分断面積を第4図に示す。 ${}^6\text{Li}(e,e'p)$ 反応と同様に、図中に示した曲線は、DWIA計算の結果を表す。 ${}^7\text{Li}(e,e'p)$ 反応の角度分布でも、 $(e,e'p_0)$ 反応、 $(e,e'p_1)$ 反応ともに前方ピークの傾向が観測された。

### § 3. DWIA 計算

$(e,e'p)$ 反応の角度分布がどの反応に対しても運動量移行方向にピークをなす原因の一つとして、E2巨大共鳴状態との干渉が考えられる。E1およびE2の形状因子をTassie模型によって見積り、 $\omega=36\text{MeV}$ での ${}^6\text{Li}(e,e'p)$ 反応断面積の移行運動量依存性と比較したところ、実験から得られた形状因子の変化を説明するためには、E2/E1断面積の比として、角度分布から予想されるものと矛盾する値が必要であった。一方、 $(q,\omega)$ の異なる条件での ${}^6\text{Li}(e,e'p)$ 反応断面積を電子-陽子の散乱断面積 $\sigma_{ep}$ で規格化し missing-momentum の関数として比較したところ、反応チャンネル(1)の断面積に一致が見られ、反応機構として準弾性散乱の強い寄与の可能性が示唆された。そこで、 ${}^6,7\text{Li}(e,e'p)$ 反応に対し、実際に準弾性散乱の理論計算を行ない比較する。



第3図  $\theta_p=0^\circ$ における ${}^7\text{Li}(e,e'p)$ 反応のmissing-energyスペクトル。



第4図  ${}^7\text{Li}(e,e'p_0)$  および  ${}^7\text{Li}(e,e'p_1)$  反応断面積。曲線はDWIA計算の結果で、( )で示された以外は実験値に合う様に0.25倍して示した。

準弾性散乱の理論的な取り扱いにおいて重要なのが、放出陽子と残留核の間の終状態相互作用であり、光学模型によって放出陽子の歪曲波を計算する方法をとることを考える（歪曲波インパルス近似、DWIA）。ここではBoffi等によって確立され、準弾性散乱領域での $(e,e'p)$ 反応の解析に広く用いられている計算コードDWEOPY<sup>13)</sup>を用いて計算を行った<sup>14,15)</sup>。

この計算では、始状態として1核子の束縛状態の波動関数を取り、放出陽子と残留核の系の終状態の波動関数は光学ポテンシャルを含めて解いたものを用い、これらの間の遷移行列要素から $(e,e'p)$ 反応断面積を計算する。

準弾性散乱領域での ${}^6\text{Li}(e,e'p)$ 実験は、NIKHEFにおいて高精度の測定が行われている<sup>16)</sup>。



この実験で、 ${}^6\text{Li}$  の 1 陽子束縛状態は殻模型から計算されたものでは実験に合わず、クラスター模型か 3 体計算による波動関数が実験結果を再現することが明らかにされている。しかし、今回の解析では簡単のため波動関数として調和振動子ポテンシャルの解を用い、1 s 状態と 1 p 状態を重ね合わせたもので近似した。調和振動子のパラメータには電子の  ${}^6\text{Li}$  による弾性散乱及び非弾性散乱から得られた  $b=2.03\text{fm}$  を用い<sup>17)</sup>、この重ね合わせが準弾性散乱実験の結果<sup>16)</sup> を再現するように強度を調整し、波動関数を領域(1)に対して、

$$|\phi_{(1)}(p_m)|^2 = 0.25 |\phi_{1p}|^2 + 0.3 |\phi_{1s}|^2 \quad (4)$$

領域(3)に対して、

$$|\phi_{(3)}(p_m)|^2 = 0.03 |\phi_{1p}|^2 + 0.35 |\phi_{1s}|^2 \quad (5)$$

とした。準弾性散乱実験<sup>16)</sup> では、終状態が  $\alpha + n + p$  の三体となる  $E_m$  領域についても核内陽子の運動量分布を求めており、本実験の領域(2)についても、 $E_m \leq 9.7\text{MeV}$  に対して

$$|\phi_{(2)}(p_m)|^2 = 0.13 |\phi_{1p}|^2 + 0.18 |\phi_{1s}|^2 \quad (6)$$

$E_m > 9.7\text{MeV}$  に対して

$$|\phi_{(2)}(p_m)|^2 = 0.19 |\phi_{1s}|^2 \quad (7)$$

という波動関数を用いて計算を行なった。ここで、 $E_m > 9.7\text{MeV}$  では、運動量分布を再現出来るように、調和振動子のパラメータも調整し、 $b=1.5\text{fm}$  とした。 ${}^7\text{Li}$  については、準弾性散乱  ${}^7\text{Li}$  ( $e, e' p$ ) 実験<sup>18)</sup> の解析結果から、波動関数として Woods-Saxon 型ポテンシャルの解<sup>19)</sup> を用いた。ポテンシャルのパラメータもこの実験で得られたものを用いたが、実験の精度は  ${}^6\text{Li}$  ( $e, e' p$ ) 実験<sup>16)</sup> ほど高くはない。

光学ポテンシャルは、以下の様に定義した。

$$\begin{aligned} V_{\text{opt}} = & -V_{\text{Rf}}(r, r_{\text{R}}, a_{\text{R}}) + iW_{\text{Vf}}(r, r_{\text{I}}, a_{\text{I}}) + 4ia_{\text{I}}W_{\text{S}} \frac{d}{dr} f(r, r_{\text{I}}, a_{\text{I}}) \\ & + \vec{\sigma} \cdot \vec{l} V_{\text{SO}} \left( \frac{\hbar}{m_{\pi} c} \right)^2 \frac{1}{r_{\text{SO}} A^{1/3}} \frac{d}{dr} f(r, r_{\text{SO}}, a_{\text{SO}}) + V_{\text{Coul}}(r, r_c) \end{aligned} \quad (8)$$

ここで、 $f$  は Woods-Saxon 型のポテンシャル形状を表し、

$$f(r, r_0, a_0) = \frac{1}{1 + \exp [(r - r_0 A^{1/3}) / a_0]} \quad (9)$$

であり、ポテンシャルの各項のエネルギー、原子核依存性は10～50MeV 出の1p殻核に対する陽子散乱の系統性から得られた経験的公式<sup>20)</sup>に従い、不安定核である<sup>5</sup>He及び<sup>6</sup>Heに対しても適用できると仮定して決定した。また、一部の実験条件の放出陽子のエネルギーが10MeV以下になっているところでも、同じ式を用いてパラメータを決定した。

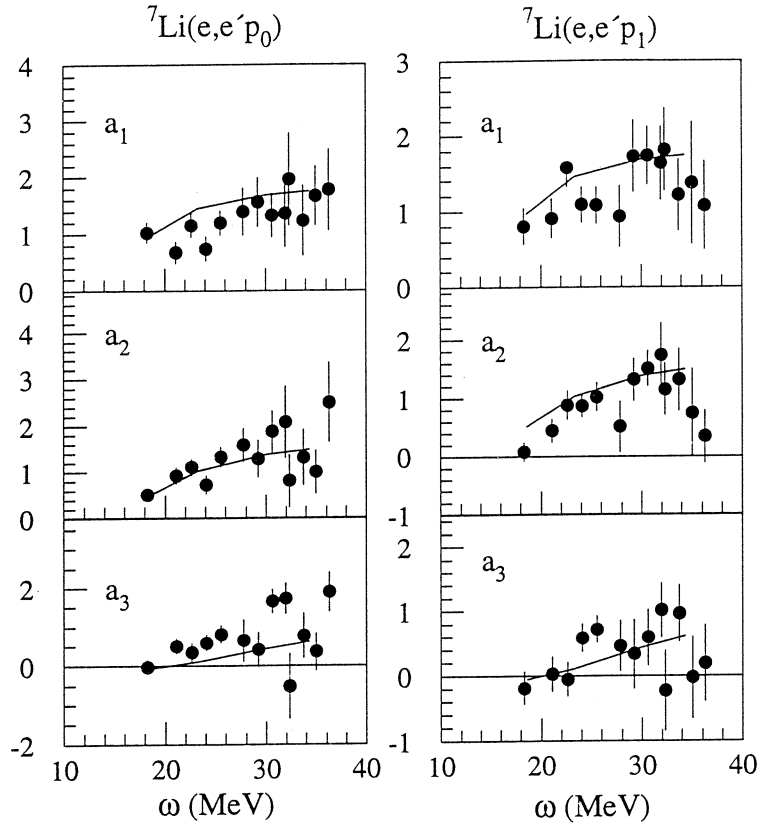
第1図および第2図で、<sup>6</sup>Li (e, e' p) 実験結果とDWIAの計算結果を比較する。DWIA計算の結果は実験値に合う様に0.8倍のファクターを掛けて示す。このようなファクターがあるものの、どの終状態に対応する反応についてもDWIAの結果が実験から得られた非干渉項( $\sigma_L + \sigma_T$ )を良く再現している様に見える。LT干渉項( $\sigma_{LT}$ )については、非干渉項ほどではないが、角分布の形状と断面積の大きさを良く再現している。

$E_m$ 領域(1)では、 $36.6 < \omega \leq 41.5$ MeVの点でDWIA計算値が実験値を上回る傾向が強くなる。またこの点では $\sigma_{LT}$ がゼロに近い実験値を示しているが、DWIA計算ではそのような傾向は再現しなかった。

$E_m$ 領域(3)では、角度分布の形状については、非干渉項の角度分布の後方の角度で、計算値が実験値よりも大きな値を示す傾向があるものの、全体としてLT干渉項とともに概ね特徴を再現している。反応断面積の絶対値については、 $\omega$ の小さいところ( $27.2 < \omega \leq 30.6$ MeV)で、実験値が計算値を下回る傾向がやや強くなっているが、この領域では陽子のエネルギーが10MeV以下となっており、光学ポテンシャルの取り扱いが不正確になっている可能性もある。

<sup>7</sup>Li (e, e' p) 反応についても第4図にDWIAの計算結果と実験の比較を示す。実験値には $\sigma_{TT}$ 項も含まれているが、DWIAの計算では $\sigma_L + \sigma_T$ の非干渉項のみとなっている。DWIA計算は、<sup>7</sup>Li (e, e' p) 反応全体で実験値を上回る結果となった。DWIAの計算値は実験に比べて大きい断面積が得られたので、角度分布を実験値と比較するため、計算値を0.25倍して図示した。(e, e' p<sub>1</sub>) 反応の $\omega$ の小さいところで、実験値に比べ計算値が大きい傾向が強まっているものの、全体としては角度分布と断面積の変化を再現している。

<sup>7</sup>Li (e, e' p) 反応の角度分布の変化の様子をDWIA計算と比較するため、角度分布をLegendre多項式を用いてfittingした。<sup>7</sup>Li (e, e' p) 反応は $\phi_p = -90^\circ$ で測定したため、 $\sigma_{LT}$ は観測されない。また、 $\sigma_{TT}$ は一般に小さいとされており、fittingの際には無視し、測定点数を考慮して*i*=3までのLegendre多項式、



第5図  ${}^7\text{Li}(e, e' p_0)$  および  ${}^7\text{Li}(e, e' p_1)$  反応の角分布係数の  $\omega$  依存性。曲線は DWIA 計算の結果を表す。

$$\sigma(\phi_p = -90^\circ) = A_0 \left( 1 + \sum_{i=1}^3 a_i P_i(\cos \theta_p^{\text{cm}}) \right) \quad (10)$$

で fitting を行なった。また、角度分布は  $i=3$  までの Legendre 多項式で良く fitting されている。

第5図に移行エネルギー  $\omega$  に対する Legendre 係数の変化について、DWIA 計算と実験との比較を行なった。DWIA 計算によって、角度分布を表す  $a_i$  係数の大きさと、その  $\omega$  依存性を良く再現していることが分かる。

#### § 4. まとめ

${}^6\text{Li}(e, e' p)$  反応を ( $\theta_e = 26^\circ$ ,  $\omega = 27.2 \sim 46.4 \text{ MeV}$ ) および ( $\theta_e = 42^\circ$ ,  $\omega = 34.0 \sim 39.1 \text{ MeV}$ ) で、 ${}^7\text{Li}(e, e' p)$  反応を ( $\theta_e = 26^\circ$ ,  $\omega = 12.8 \sim 36.9 \text{ MeV}$ ) で測定した。どの反応においても

運動量移行方向に陽子が強く放出される角度分布が観測された。この傾向は移行エネルギー及び移行運動量の変化に依らず、また解析を行なった全ての終状態で共通して見られた。この特徴は、双極子巨大共鳴の存在が確立している  $^{12}\text{C}$  や  $^{40}\text{Ca}$  等の  $(e, e' p)$  反応とは異なるものである<sup>9)</sup>。

$^6\text{Li}$   $(e, e' p)$  反応の移行運動量依存性についても、 $^6\text{Li}$  における双極子巨大共鳴の理論的予測とは反する結果を示した。一方で、反応機構として直接過程を考え、DWIA の計算を行なった実験と比較したところ、 $^6\text{Li}$  に対しては全体として、反応断面積、角度分布と、これらの  $(q, \omega)$  依存性をほぼ説明することができた。 $\alpha + n + p$  の三体分解反応に対しても反応断面積が直接過程によって説明できることが示された。この三体分解反応は、準弾性散乱実験において、missing-momentum の小さな領域ではほとんど観測されず、一方光核反応実験では、核内の陽子-中性子対による  $\gamma$  線吸収によって大きな断面積を示す反応である。一部の実験条件で、DWIA の計算で得られた反応断面積が実験値を上回る傾向が強く見られたが、この理由については今後詳しく調べる必要がある。 $^7\text{Li}$  に対しては、DWIA の計算から求めた反応断面積が、実験値の4倍程度の大きさを示したが、角度分布およびその移行エネルギーに対する変化は計算によって再現することが分かった。

これらの議論から、本研究領域における、 $^6,7\text{Li}$  反応機構としては、直接過程が主な寄与をしているものと考えられ、理論で予測されていたような双極子巨大共鳴状態の強い存在は確認されなかった。

最後に、本実験の遂行にあたり、核理研マシングループおよび計測グループに御協力いただきました。深く感謝いたします。

## 参 考 文 献

- 1) R. A. Eramzhyan, B. S. Ishkhanov, I. M. Kapitonov and V. G. Neudatchin : Phys. Rep. **136** (1986) 229.
- 2) S. Costa, S. Ferroni, V. Wataghin and R. Malvano : Phys. Lett. **4** (1963) 308.
- 3) V. P. Denisov, A. P. Komar, L. A. Kul'chitskii and E. D. Makhnovskii : Sov. J. Nucl. Phys. **5** (1967) 349.
- 4) S. Ferroni, B. Mosconi, G. Piragino and V. Wataghin : Nucl. Phys. **76** (1966) 58.
- 5) I. V. Kurdyumov, Yu. F. Smirnov, K. V. Shitikova and S. Kh. El. Samarai : Phys. Lett. **B31** (1970) 163.

- 6) J. Ahrens, H. Borchert, K. H. Czock *et al.*: Nucl. Phys. **A251** (1975) 479.
- 7) B. L. Berman and S. C. Fultz : Rev. Mod. Phys. **47** (1975) 713.
- 8) G. Junghans, K. Bangert, U. E. P. Breg *et al.*: Z. Phys. **A291** (1979) 353.
- 9) J. R. Calarco : Nucl. Phys. **A569** (1994) 363c
- 10) T. Tadokoro, T. Hotta, T. Miura, M. Sugawara *et al.*: Nucl. Phys. **A575** (1994) 333.
- 11) 堀田智明 他 : 核理研研究報告 **29** (1996), **26** (1993) 1 ; **25** (1992) 1 .
- 12) W. E. Kleppinger and J. D. Walecka : Ann. Phys. **146** (1983) 349 ; Ann. Phys. **151** (1983) 497.
- 13) S. Boffi, C. Giusti and F. D. Pacati : Nucl. Phys. **336** (1980) 416;  
S. Boffi, C. Giusti and F. D. Pacati : Nucl. Phys. **336** (1980) 437.
- 14) S. Boffi, S. Frullani, C. Giusti and F. D. Pacati : Nucl. Phys. **A319** (1979) 461.
- 15) S. Frullani and J. Mougey : Adv. Nucl. Phys. **14** (1984).
- 16) J. B. J. M. Lanen, A. M. Van den Berg, H. P. Blok *et al.*: Phys. Rev. Lett. **62** (1989) 2925;  
J. B. J. M. Lanen, R. G. Lovas and A. T. Kruppa : Phys. Rev. Lett. **63** (1989) 2793;  
J. B. J. M. Lanen, H. P. Blok, E. Jans *et al.*: Phys. Rev. Lett. **64** (1990) 2250.
- 17) T. W. Donnelly and J. D. Walecka : Phys. Lett. **B44** (1973) 330.
- 18) K. Nakamura, S. Hiramatsu, T. Kamae *et al.*: Nucl. Phys. **A296** (1978) 431.
- 19) L. R. B. Elton and A. Swift : Nucl. Phys. **A94** (1967) 52.
- 20) B. A. Watson, P. P. Singh and R. E. Segel : Phys. Rev. **182** (1969) 977.

## $^{12}\text{C}(e, e'p)$ 反応の移行運動量依存性の研究

核理研, 理学研究科物理\*

中川 格・玉江忠明・菅原真澄  
田所孝弘・田中英二・坪田博明\*  
堀田智明・三浦哲生・宮瀬晴久\*  
横川民雄

### § 1. 序 論

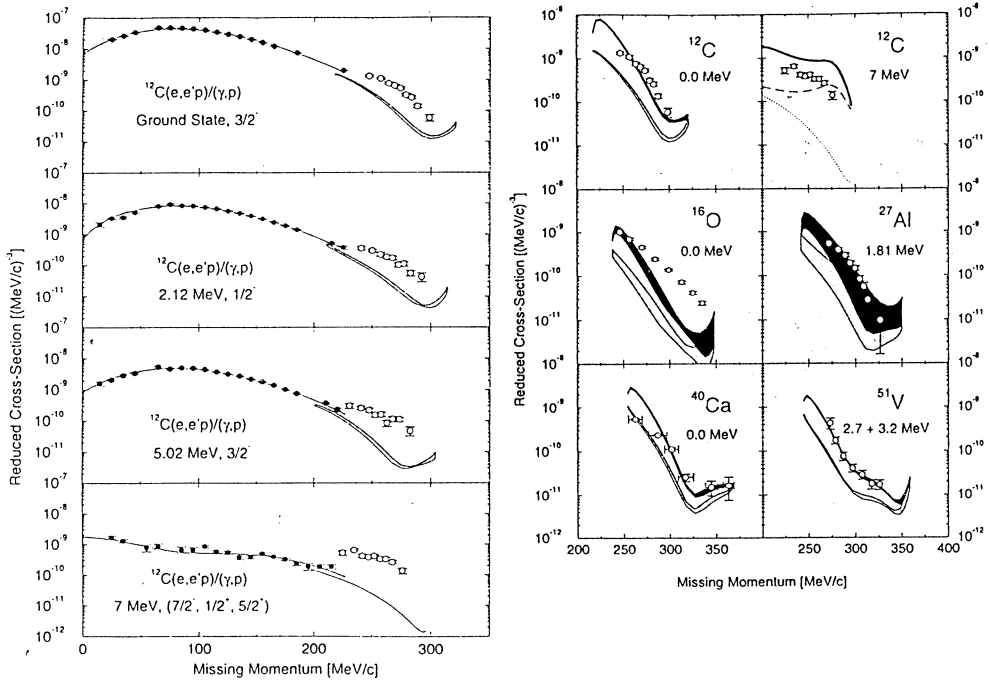
準弾性散乱領域における  $(e, e'p)$  反応は, 1個の核子が仮想光子と1回だけ相互作用して放出される Direct Knock Out (DKO) 模型の計算でよく説明されることが知られている<sup>1)</sup>。一方, 入射エネルギー  $E_\gamma = 60 \sim 100 \text{MeV}$  領域における  $(\gamma, p)$  反応の反応機構については, 中間子交換電流 (MEC) が強く寄与する準重陽子模型とこの DKO 模型との間で長い論争がある<sup>2, 3)</sup>。

Ireland と Steenhoven は  $E_\gamma = 60 \text{MeV}$  の  $^{12}\text{C}(\gamma, p)$  反応の断面積から準弾性散乱にならない核内核子の運動量分布に対応する換算断面積を導出し, DKO 模型のもとで終状態相互作用 (FSI) を考慮した歪曲波インパルス近似 (DWIA) 計算と比較し, 実験値が約6倍大きい事を示した。彼等は, この差は MEC の寄与でほぼ説明できるとし,  $E_\gamma = 60 \sim 100 \text{MeV}$  領域の  $(\gamma, p)$  反応は MEC の寄与が支配的であると結論付けた<sup>2)</sup> (第1図)。

しかしこの  $(\gamma, p)$  反応の様に, 準弾性散乱よりも放出陽子のエネルギー ( $T_p = 40 \text{MeV}$ ) や移行運動量 ( $q = 60 \text{MeV}/c$ ) の小さい領域まで, DWIA 計算が適用できるかは必ずしもはっきりしていない。本研究では, このような領域で DWIA 計算の妥当性を評価するために, 低移行エネルギー, 低移行運動量でかつ MEC の寄与の小さい  $(e, e'p)$  実験と DWIA 計算を比較した。ただし, この領域の  $(e, e'p)$  反応は巨大共鳴の寄与も考えられるので, ここではまずこの領域における  $(e, e'p)$  反応を集団運動の観点から議論をすることによって, 直接過程で議論することの妥当性を調べ, その後に DWIA との比較を行う。

### § 2. 実験と解析

本実験は, 第2実験室内に設置したパルスビームストレッチャーから得られる  $129 \text{MeV}$  連続電子線を, 散乱槽内に設置した厚さ  $18.5 \text{mg}/\text{cm}^2$  の  $^{nat}\text{C}$  標的に照射して行った。移行エネルギー  $\omega$  は  $40 \text{MeV}$  とし, 電子散乱角  $\theta_e$  は  $30^\circ, 70^\circ$  に設定した。そのときの移行運動量  $q$  はそ



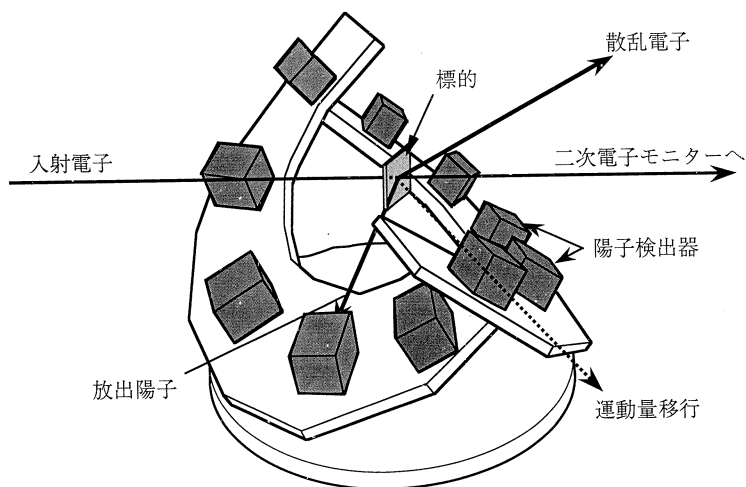
第1図 (左) 準弾性散乱と  $(\gamma, p)$  反応の換算断面積及び DWIA との比較。横軸は missing momentum で、上から  $^{12}\text{C}$  の基底状態、 $1/2^-$ 、 $3/2^-$ 、 $(7/2^-, 1/2^+, 5/2^+)$  状態へ残す反応を表す。黒丸が  $^{12}\text{C}(e, e'p)$  準弾性散乱、白丸が  $(\gamma, p)$  反応の換算断面積で、準弾性散乱が実線で表される DWIA 計算とよく一致するのに対し、 $(\gamma, p)$  反応の実験値は DWIA 計算より約6倍大きい。(右) 左図の  $(\gamma, p)$  における DWIA 計算に MEC を考慮した計算結果。黒い帯状に示された MEC を考慮した DWIA 計算の結果は、 $^{12}\text{C}$ 、 $^{27}\text{Al}$ 、 $^{40}\text{Ca}$ 、 $^{51}\text{V}$  について実験値をよく説明している。

それぞれ69, 129MeV/cである。入射電子数は散乱槽下流に設置した二次電子モニターで測定した。標的によって散乱された電子は大型磁気スペクトロメーター (LDM) で運動量分析され、LDM の焦点面に設置した垂直型ドリフトチェンバー (VDC) を通過する。散乱電子のエネルギーはこの通過位置を測定することによって決定した。

標的から放出される陽子は、散乱槽内に設置した3層ないし4層の半導体検出器からなる6組の  $\Delta E-E$  型陽子検出器で測定した。この検出器は1層目に  $50 \mu\text{m}$ 、2層目以降は  $1 \text{ mm}$ 、 $2 \text{ mm}$ 、 $4 \text{ mm}$  の表面障壁型シリコン半導体検出器 ( $4 \text{ mm}$  のものはリシウムドリフト型) で構成されている。方位角  $\phi_p$  は  $-135^\circ$ 、 $-45^\circ$  として、散乱平面外 (out-of-plane) で陽子を検出した。移行運動量方向からのなす角で定義される放出陽子の極角  $\theta_p$  については、第2図に示すように  $0 \sim 180^\circ$  の6点で検出した。

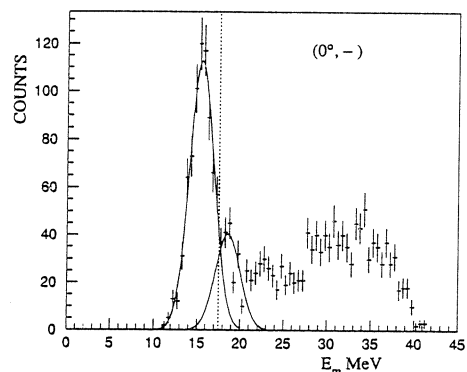
粒子識別は、荷電粒子の種類によって SSD 中でのエネルギー損失が違う事を利用して識別

する  $\Delta E-E$  法を用いて行い、陽子の事象を抽出した。SSD のエネルギー較正はこのエネルギー損失と Bethe-Bloch の式による理論計算を比較することによって行った。陽子の同時計数事象中に含まれる偶然同時計数事象の割合は、VDC 後方に設置したバックアップカウンターの出力信号をスタート信号、SSD の出力信号をストップ信号に用いた TDC スペクトルから見積もった。この割合は陽子の検出角度によって違うが、今回の検出角についての平均では約10%程度であった。



第2図 陽子検出器の配置図。

これらの測定結果から得られた Missing Energy スペクトルの典型的な例を第3図に示す。16MeV 付近のピークは残留核を基底状態 ( $3/2^-$ ) に残す反応であり、その時放出される陽子を  $p_0$  と呼ぶ。18MeV 及び21MeV 付近のピークはそれぞれ残留核を2.12MeV ( $1/2^-$ ), 5.02MeV ( $3/2^-$ ) 励起状態に残す反応に相当する。今回の解析対象となる  $p_0$  は16~26MeV の運動エネルギーをとることができ、このうちエネルギーの高い



第3図 典型的な missing energy スペクトル。同じ幅のガウス型で  $p_0$  と隣のピークをフィットしたところ、点線で表される  $p_0$  の積分範囲 ( $E_m < 17.5\text{MeV}$ ) に含まれない  $p_0$  事象とこれに及ぼす隣のピークからの影響はほぼ同じになった。

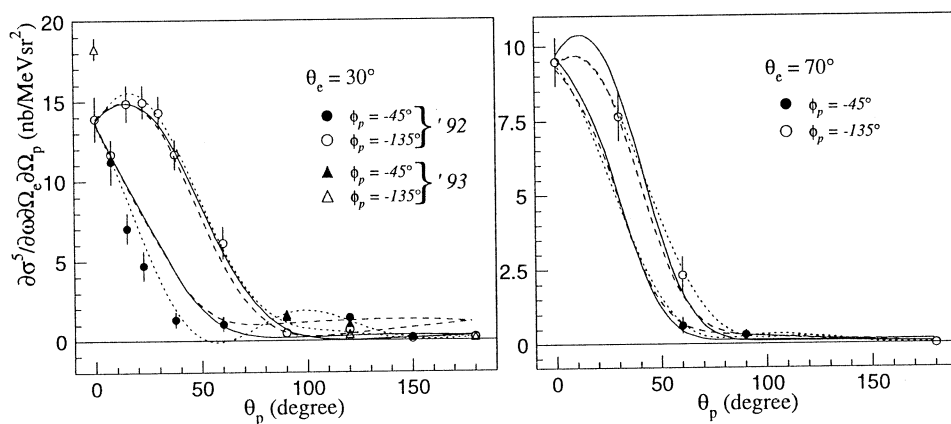


陽子は3層ないし4層のSSDを突き抜けてしまうので、 $p_0$ のピークは分解能が悪く半値幅で約3 MeVである。この分解能は基底状態と第一励起状態(1/2<sup>-</sup>)のピークを分離するのには十分とは言えないが、ここでは田所等が解析に用いたのと同じ $E_m < 17.5$  MeV (点線)を $p_0$ の積分範囲とした。ここでの系統誤差を見積もるため、2つのピークを同じ $\sigma$ のガウス型でフィットしたところ積分範囲からの $p_0$ のもれだとして、第一励起状態のピークから積分範囲に侵入する影響はほぼ同じであった。

### § 3. 議 論

#### 3.1 集団運動に対する議論

以上のようにして得られた $^{12}\text{C}(e, e'p_0)$ 微分断面積を、 $\theta_e = 30^\circ$ と同じ運動学的条件で'92年に田所等によって行われた実験結果と合わせて第4図に角度分布として示す。今回得られた断面積については、その値をまとめて第1表に示す。反応における集団運動の寄与を調べるために、この角度分布をルジャンドル関数でフィットし、得られた $A_0$ をMott断面積で割ることによって形状因子を算出したところ、 $\theta_e = 30^\circ$ と $70^\circ$ の比は $F_{70^\circ}(q, \omega) / F_{30^\circ}(q, \omega) = 18.9$ となった。一方、理論計算として原子核を集団運動として扱うGoldhaber-Teller (GT) 模型及びTassie模型<sup>5)</sup>を用いて、E1、E2の形状因子を計算した(第5図)。反応に際しE1及びE2のみが寄与していると仮定すると、 $\theta_e = 30^\circ$ と $70^\circ$ の形状因子はそれぞれの角度におけるE1、E2の形状因子の線形結合で与えられ、 $30^\circ$ と $70^\circ$ の形状因子の比は、



第4図 左が $\theta_e = 30^\circ$ 、右が $70^\circ$ の角度分布。点線はルジャンドルフィットで、実線(破線)は光学ポテンシャルのパラメータ1(2)を使用したDWIA計算の結果。DWIA計算結果は干渉項の大きさを実験値と比較するために $\theta_p = 0^\circ$ で規格化してある。

第1表  $^{12}\text{C}(e, e'p_0)$  反応断面積。1)  $\theta_e = 30^\circ$ 

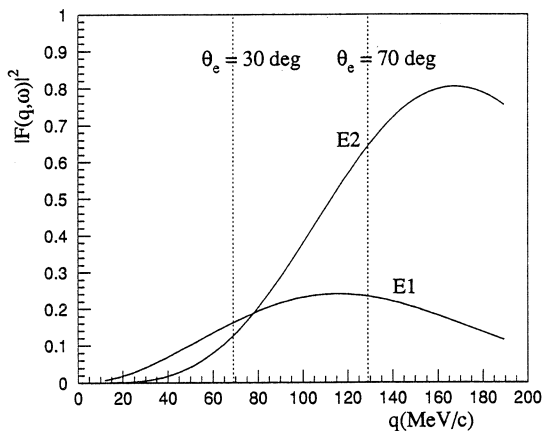
$(\theta_p, \phi_p)$	$\delta \sigma^3 / \delta \Omega_e \delta \Omega_p \delta E$ [nb/MeV sr <sup>2</sup> ]	error [nb/MeV sr <sup>2</sup> ]
(0°, -)	18.2	0.673
(90°, -45°)	1.47	0.236
(90°, -135°)	1.61	0.238
(120°, -45°)	1.05	0.210
(120°, -135°)	0.398	0.171
(180°, -)	0.152	0.0791

2)  $\theta_e = 70^\circ$ 

$(\theta_p, \phi_p)$	$\delta \sigma^3 / \delta \Omega_e \delta \Omega_p \delta E$ [nb/MeV sr <sup>2</sup> ]	error [nb/MeV sr <sup>2</sup> ]
(0°, -)	9.48	0.806
(30°, -135°)	7.65	0.831
(60°, -45°)	0.624	0.278
(60°, -135°)	2.315	0.622
(90°, -45°)	0.313	0.169
(180°, -)	0.00	0.00624

$$\frac{F_{70^\circ}(q, \omega)}{F_{30^\circ}(q, \omega)} = \frac{F_{70^\circ}^{E1}(q, \omega) + F_{70^\circ}^{E2}(q, \omega)}{F_{30^\circ}^{E1}(q, \omega) + F_{30^\circ}^{E2}(q, \omega)}$$

$$= \frac{F_{70^\circ}^{E1}(q, \omega)}{F_{30^\circ}^{E1}(q, \omega)} + \frac{F_{70^\circ}^{E2}(q, \omega)}{F_{30^\circ}^{E2}(q, \omega)} \frac{F_{70^\circ}^{E1}(q, \omega)}{F_{30^\circ}^{E1}(q, \omega)} \left/ \left\{ \frac{F_{30^\circ}^{E2}(q, \omega)}{F_{30^\circ}^{E1}(q, \omega)} + 1 \right\} \right.$$



第5図 E1, E2 形状因子の移行運動量依存性。Goldhaber-Teller モデルで E1, Tassie モデルで E2 の形状因子を計算した<sup>3)</sup>。

で与えられる。第5図から E1, E2 それぞれにおける  $\theta_e = 30^\circ$  と  $70^\circ$  の比  $(F_{70^\circ}^{E1(E2)}(q, \omega) / F_{30^\circ}^{E1(E2)}(q, \omega))$  を求め、さらに田所等が実験から求めた  $\theta_e = 30^\circ$  の E1, E2 の形状因子の比  $F_{30^\circ}^{E2}(q, \omega) / F_{30^\circ}^{E1}(q, \omega) = 0.75^4)$  を代入し上の比を求めたところ、実験から得た比の約  $1/6$  の  $1:3.1$  となり実験値から得た比を説明できない。また、田所等は  $30^\circ$  における角度分布を乱雑

位相近似 (RPA) とハートリー・フォック (HF) 近似による計算と比較して、両者がほぼ同じになり、どちらも実験値をよく再現すると報告している。以上のことから、この領域における  $^{12}\text{C}(e, e'p_0)$  反応は直接過程が強く寄与し、集団運動の寄与は小さいと考えられる。

### 3.2 直接過程の議論

仮想光子を核子 1 個が吸収し、その核子が残留核との相互作用 (FSI) をいっさい受けずに放出されるという平面波インパルス近似 (PWIA) の仮定のもとで、 $(e, e'p)$  反応の微分断面積  $\sigma_{\text{exp}}$  は、運動学因子  $K(p_m)$  と素過程の e-p 弾性散乱断面積  $\sigma_{\text{ep}}$  を用いて、

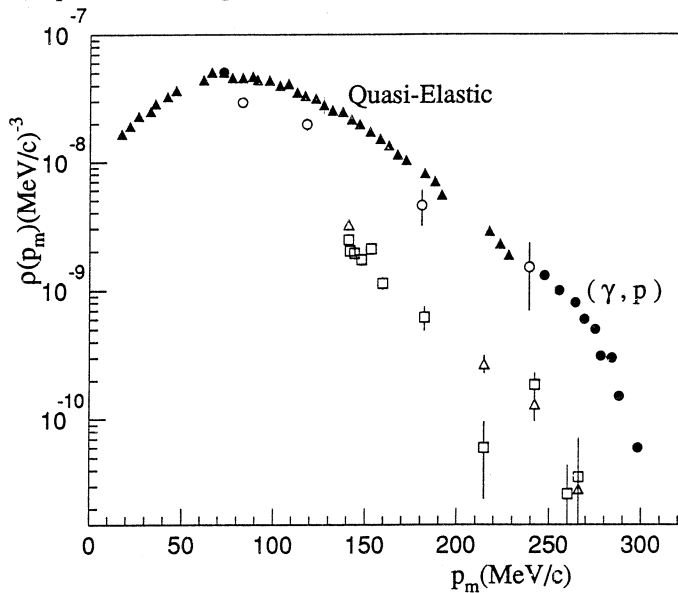
$$\sigma_{\text{exp}} = K \sigma_{\text{ep}} \rho(p_m)$$

で表される<sup>6)</sup>。ここで  $p_m$  は  $\mathbf{p}_m = \mathbf{p}' - \mathbf{q}$  で与えられる核内核子の運動量で、 $\rho(p_m)$  はその運動量をもった核子の核内での存在確率を意味する。FSI がある場合には、この核内核子の運動量分布は歪められた形で測定される。そこで、ここではこの FSI を考慮した換算断面積  $\rho(p_m)$  を

$$\rho(p_m) = \sigma_{\text{exp}}^{\text{exp}} / K \sigma_{\text{ep}}$$

と定義する。

今回得られた  $(e, e'p_0)$  微分断面積から、以上の方法で導出した換算断面積を序論で引用した準弾性散乱  $(e, e'p_0)$ 、及び  $(\gamma, p_0)$  の実験値<sup>7)</sup> と共に第 6 図に示し、その値を第 2 表に示



第 6 図 換算断面積。横軸の missing momentum が等しいところで、白丸で表される  $\theta_0 = 70^\circ$  の実験値は、白三角及び四角で表される  $30^\circ$  の実験値よりも大きい。また、これら今回得られた実験値はいずれも黒三角で表される準弾性散乱  $(e, e'p)^3$  よりも小さい。黒丸は  $(\gamma, p)$  の換算断面積<sup>3)</sup>を表す。

す。白丸が、 $70^\circ$  の実験点で、これらは白い三角及び四角で示した $30^\circ$  の実験点よりも3~10倍ほど上回っている。本実験では、電子のエネルギーや放出陽子のエネルギーは $30^\circ$  でも $70^\circ$  でも全ての $p_m$  でほぼ同じであるが、 $q$  の値によって換算断面積に大きな違いが観測された。また、今回得られた実験点はいずれも準弾性散乱の換算断面積より小さいことを観測した。

終状態相互作用を考慮した理論計算には、Steenhoven 等が準弾性散乱の計算に用いたのと同じ歪曲波インパルス近似 (DWIA) の計算コード DWEEPY<sup>8)</sup> を用いた。その際、始状態には Steenhoven 等と同様に、Woods-Saxon 型のポテンシャルを用いて波動方程式を解いた一粒子束縛状態の波動関数を使用した。

DWIA では、終状態の波動関数を光学ポテンシャルを含めて解くことによって FSI を計算する。(e, e'p) 反応における DWIA 計算では、この光学ポテンシャルのパラメータは放出される陽子と同じエネルギーの (p, p) 弾性散乱によって決められたパラメータを用いるのが一般的な方法として知られている<sup>3)</sup>。(p, p) 弾性散乱と (e, e'p) とは厳密には反応機構が違うが、この方法は準弾性散乱領域においては成果をあげている。ここでは、DWIA 計算のパラ

第2表 各SSD設置角度における放出陽子の missing momentum と換算断面積。

1)  $\theta_0 = 30^\circ ('92)$

$\theta_p$ [deg.]	$p_m$ [MeV/c]	$\rho(p_m)$ [(MeV/c) <sup>-3</sup> ]	error [(MeV/c) <sup>-3</sup> ]
0.0	141.22	$2.62 \times 10^{-9}$	$2.65 \times 10^{-10}$
7.5	142.04	$2.14 \times 10^{-9}$	$2.02 \times 10^{-10}$
15.0	144.43	$2.05 \times 10^{-9}$	$1.94 \times 10^{-10}$
22.5	148.30	$1.84 \times 10^{-9}$	$1.84 \times 10^{-10}$
30.0	153.43	$2.67 \times 10^{-9}$	$1.93 \times 10^{-10}$
37.5	159.63	$1.21 \times 10^{-9}$	$1.31 \times 10^{-10}$
60.0	182.31	$6.60 \times 10^{-10}$	$1.39 \times 10^{-10}$
90.0	214.84	$8.73 \times 10^{-11}$	$5.24 \times 10^{-11}$
120.0	242.30	$1.25 \times 10^{-10}$	$5.37 \times 10^{-11}$
150.0	260.14	$3.70 \times 10^{-11}$	$1.85 \times 10^{-11}$

2)  $\theta_0 = 30^\circ ('93)$

0.0	141.22	$1.73 \times 10^{-9}$	$6.55 \times 10^{-11}$
90.0	214.83	$1.53 \times 10^{-10}$	$2.31 \times 10^{-11}$
120.0	242.30	$6.71 \times 10^{-11}$	$1.70 \times 10^{-11}$
180.0	266.27	$2.01 \times 10^{-11}$	$7.85 \times 10^{-12}$

3)  $\theta_0 = 70^\circ ('93)$

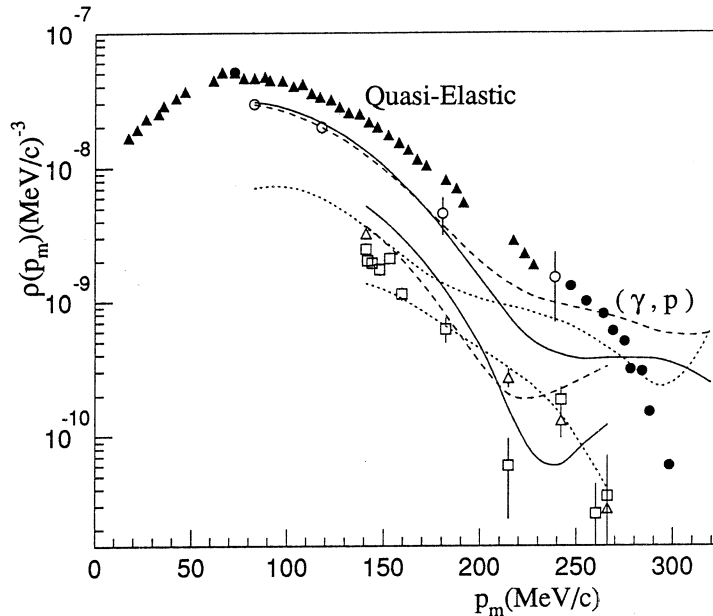
0.0	83.23	$8.52 \times 10^{-9}$	$7.25 \times 10^{-10}$
30.0	118.22	$5.75 \times 10^{-9}$	$6.24 \times 10^{-10}$
60.0	180.89	$1.19 \times 10^{-9}$	$3.91 \times 10^{-10}$
90.0	239.07	$4.36 \times 10^{-10}$	$2.35 \times 10^{-10}$
180.0	319.63	0.0	$6.39 \times 10^{-11}$

メータ依存性も同時に調べるため、エネルギーの違う (p, p) 弾性散乱から決められた三組のパラメータについて計算を行った。第3表にパラメータの値を記し、第7図に計算結果を示す。計算値はいずれも (e, e'p) 準弾性散乱から実験的に求められた分光因子1.83倍<sup>6)</sup>してある。第7図からわかるようにパラメータの選び方によって差はあるが、パラメータ1, 2の様に  $V_{ls}$  の小さいパラメータを選ぶと30° と70° 共に DWIA 計算は実験値をよく再現する。特に70° の換算断面積が30° より大きいという実験事実は、こ

第3表 使用した光学ポテンシャルのパラメータ。

パラメータ	1 <sup>9)</sup>	2 <sup>10)</sup>	3 <sup>11)</sup>
$T_p$	17.00	30.00	21.60
target	<sup>11</sup> B	<sup>11</sup> B	<sup>12</sup> C*
$V$	50.00	45.18	47.60
$r_0$	1.13	1.09	1.17
$a_0$	0.700	0.597	0.517
$W$	13.30		
$r_w$	1.13		
$a_w$	0.70		
$W_s$		3.38	5.56
$r_{ws}$		1.30	1.36
$a_{ws}$		1.01	0.70
$V_{ls}$		7.79	30.40
$r_{ls}$		0.98	1.02
$a_{ls}$		0.57	0.50

\*  $r$  は  $A^{1/3}$  依存性を考慮して補正した値。



第7図 実験値と DWIA 計算 ( $\theta_0 = 30^\circ : p_m = 141 \sim 266 \text{ MeV/c}$ ,  $\theta_0 = 70^\circ : p_m = 83 \sim 319 \text{ MeV/c}$ ) との比較。実験値は第6図と同じ。実線 (破線) で表されるパラメータ 1<sup>9)</sup> (2<sup>10)</sup>) を使用した DWIA 計算の結果は実験値とよくあっている。点線で表されるパラメータ 3<sup>11)</sup> を使用した DWIA 計算の結果は70° の絶対値を再現できない。また、これらいずれのパラメータを使用しても同じ  $p_m$  では  $\theta_0 = 70^\circ$  の計算値は30° の計算値よりも大きい。

の計算によってよく再現されている。また、図4の角度分布から分かるように DWIA 計算は干渉項の大きさもほぼ再現している。

#### § 4. ま と め

本研究では移行エネルギー40MeV, 移行運動量69, 129MeV/cにおいて行われた  $^{12}\text{C}(e, e'p_0)$  反応を解析し、理論計算との比較を行った。この運動学的条件における集団運動の寄与を調べるため、 $\theta_0 = 30^\circ$  と  $70^\circ$  の陽子の角度分布をルジャンドルフィットして得られた  $A_0$  を、それぞれの角度に対応するモット断面積で割って形状因子を算出し、両者の比を求めた。この  $30^\circ$  と  $70^\circ$  の形状因子の比を集団運動を記述するモデル計算から求めたところ、実験で求めた比の  $1/6$  となり、集団運動だけでは実験値を説明できない事がわかった。一方、直接過程の観点から議論するため DWIA 計算と比較したところ、 $V_0$  の小さい光学ポテンシャルのパラメータを選べば DWIA 計算はほぼ実験値を再現した。また、DWIA 計算は観測された  $\theta_0 = 30^\circ$  と  $70^\circ$  の  $q$  の違いによる換算断面積の違いもほぼ再現した。

DWIA 計算で実験値をほぼ説明できたことにより、本運動学的条件下での  $^{12}\text{C}(e, e'p_0)$  反応は直接過程が支配的であると考えられる。また、本運動学のような移行運動量 ( $q = 69 \sim 129$  MeV/c) や放出陽子のエネルギーの小さい領域 ( $T_p = 16 \sim 26$  MeV) においても DWIA 計算は適用でき、この領域での光学ポテンシャルによる終状態相互作用の取り扱いが妥当であることがわかった。これらの結果は、 $E_\gamma = 60 \sim 100$  MeV における  $(\gamma, p)$  反応の DKO 成分が DWIA 計算で妥当に見積もられていることを示唆し、中間子交換電流の寄与がこの反応においては支配的であるという主張を支持するものである。

本研究において重要な役割を占める DWIA 計算コード DWEEPY を提供していただいた、NIKHEF の van der Steenhoven 博士に感謝致します。また、この DWEEPY の使用に際し有用な助言を下された C. Giusti 博士のご協力に感謝致します。マシングループの方々が日頃から加速器の整備をし、実験時には良質のビームがでるよう調整していただいたおかげで、よいデータを取ることができました。SSTR の運転にあたり整備、調整など様々なところご協力いただいた今野 収博士に心よりお礼申し上げます。計測グループの方々が常に計算機の使用環境を保持していただいたおかげで、データ解析を快適におこなう事ができました。

## 参 考 文 献

- 1) D. G. Ireland and G. van der Steenhoven : Phys. Rev. **C49** (1994) 2182.
- 2) S. Boffi, C. Giusti, and F. D. Pacati : Nucl. Phys. **A359** (1981) 91.
- 3) M. Gari and H. Hebach : Phys. Rep. **72** (1981) 1.
- 4) T. Tadokoro *et al.* : Nucl. Phys. **A575** (1994) 333.
- 5) M. Sasao and Y. Torizuka : Phys. Rev. **15** (1977) 217.
- 6) M. Cavinato : Phys. Rev. **C37** (1988) 1823.
- 7) D. G. Ireland *et al.* : Nucl. Phys. **A554** (1993) 173.
- 8) S. Boffi, R. Cenni, C. Giusti and F. D. Pacati : Nucl. Phys. **A420** (1984) 38.
- 9) O. Karban *et al.* : Nucl. Phys. **A133** (1969) 255.
- 10) H. G. Pugh *et al.* : Phys. Rev. **155** (1967) 1054.
- 11) J. R. Comfort and B. C. Karp : Phys. Rev. **C21** (1980) 2162.

${}^7\text{Li}(e, e' n){}^6\text{Li}$  反応の研究

核理研, 理学研究科物理\*,  
 工学研究科中性子物理\*\*, 山形大理学部\*\*\*  
 遠藤卓哉, 齋藤梯二郎, 及川正道  
 木野幸一, 中川武美\*, 阿部 健\*\*  
 上野博昭\*\*\*

## § 1. 序

軽核領域に於ける原子核の巨大共鳴の構造は中重核以上の巨大共鳴がもつ一粒子一空孔状態の積み重ねと云う単純な描像だけでは説明できず, 軽核特有の特徴が現れるようになる。軽核の巨大共鳴の特徴は, その共鳴が必ずしも集団運動ではないという事にあり, 励起エネルギーによって異なる励起構造が見られるようになる。最も軽い p-殻核では双極子巨大共鳴はなだらかなピークを持ち, starlikeなクラスター崩壊の性質を持っている。巨大共鳴はエネルギーの低い領域ではピグミー共鳴や  $\alpha$ -t のクラスターの崩壊の領域 (5–15 MeV) に接しており, 高い領域では準  $\alpha$  粒子光吸収の領域 (25–40 MeV) と接している。この領域の間は様々な  $0s^2 1p^6 (2s-2d)$  の粒子空孔状態によって占められている。<sup>1)</sup>

本実験の対象である  ${}^7\text{Li}$  については  $\alpha$ -t 等のクラスター構造への興味などから多くの研究がなされている。巨大共鳴領域からの放出粒子を測定した例として, Denisov らの  ${}^7\text{Li}(\gamma, t){}^4\text{He}$  反応の実験では角分布を測定し, ルジャンドル係数を求め議論している。<sup>2)</sup> 角分布はほぼ  $90^\circ$  方向にピークをもつことから, その励起は E1 がメインであるが, E2 または M1 の寄与を 2% ととした計算では, 実験の角分布を再現できない。

中性子放出チャンネルに関する光核反応の実験は何例かあるが, 殆どが終状態を特定していない測定である。唯一, Ferdinande ら<sup>3)</sup> は残留核の準位を特定した実験を行った。しかし,  ${}^7\text{Li}(\gamma, n)$  の角分布を測定した実験は皆無である。

本実験の  ${}^7\text{Li}(e, e' n){}^6\text{Li}$  反応では, 散乱電子のエネルギーと放出中性子のエネルギーを決定できるので, 中性子一個の放出チャンネルでは, その残留核の準位を特定出来る。複数台の中性子検出器を用いることにより, これまでデータのなかった角分布に関して, 各励起状態に分歧する中性子の角分布が得られる。更に残留核  ${}^6\text{Li}$  のアイソスピンの異なる状態  $T=0(n_0, n_1)$ ,  $T=0(n_2)$  への遷移を分離することが出来れば, 巨大共鳴領域のアイソスピンに関する情報が得



られる可能性がある。又当研究施設で ${}^6\text{Li}(e, e'p)$  反応の研究が行われており、 $\text{Li}(e, e'p)$  と $\text{Li}(e, e'n)$  の結果を比較することは、反応機構を調べる上で興味を持たれる。以上の点を踏まえて ${}^7\text{Li}(e, e'n){}^6\text{Li}$  反応の実験を行った。

## § 2. 実 験

実験は東北大学理学部原子核研究施設の150MeVパルスビーム・ストレッチャーからの連続電子線を用いて行った。散乱電子は電子線の進行方向から $30^\circ$ に置かれた2重収束型スペクトロメータ及びその焦点面上に設置された垂直型ドリフトチェンバー (VDC) により運動量分析された。放出中性子は散乱面上でTOF距離1mにおかれた10台の検出器により測定された。標的はnatural Liを用い、これを圧延し $77\text{mg}/\text{cm}^2$ の板状にして使用した。測定は、励起エネルギー9~35MeVの領域で、運動量移行が $0.33\sim 0.44\text{fm}^{-1}$ で行われた。中性子検出器の測定角度など実験条件をまとめて第1表に示す。

第1表 中性子検出器の配置及び各設定条件。 $\theta_n$ は $q$ 方向から測った角度である。 $F_n$ は中性子検出器の幾何学的(検出有効体積)及びBi吸収材による減衰の効果による補正係数を $N_4$ を基準として表している。

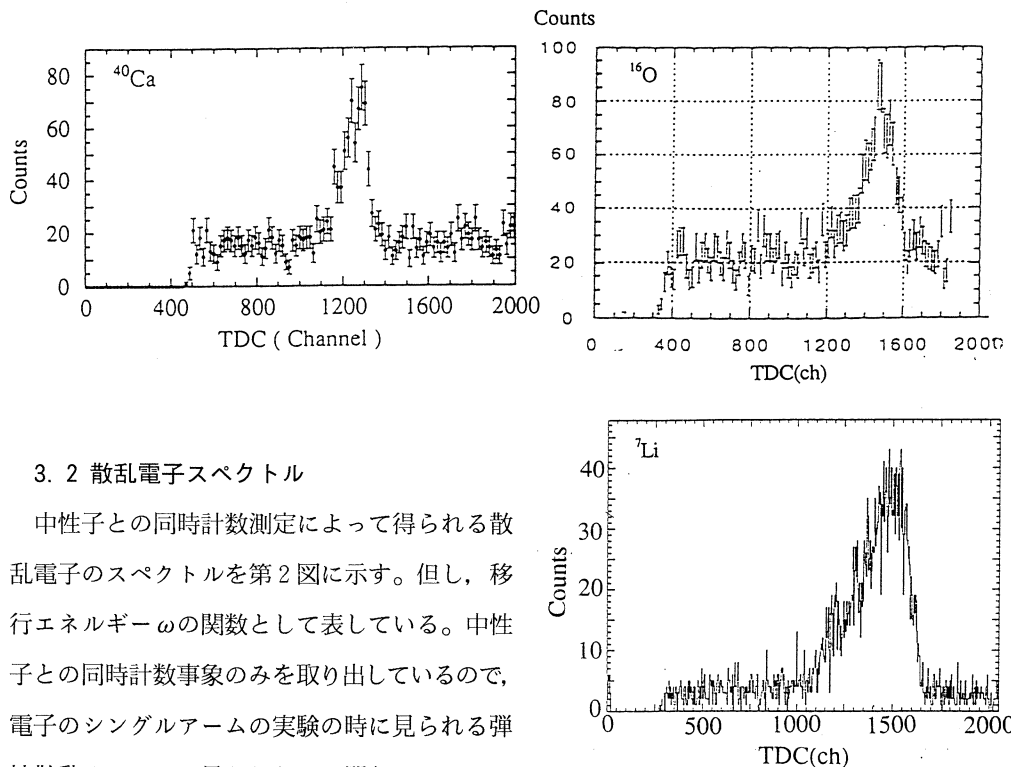
No.	$\theta_n$ (deg)	TOF (cm)	立体角 (msr)	吸収材 Bi (cm)	コリメータ $\phi$ (cm)	$F_n$
1	49.4	107.1	22.1	6.0	16,18,18,20	1.66
2	69.5	105.2	22.9	4.0	16,18,18,20	1.10
3	89.7	105.2	22.9	4.0	16,18,18,20	1.14
4	112.2	105.2	22.9	4.0	16,18,18,20	1.00
5	133.1	105.2	22.9	4.0	16,18,18,20	1.04
6	155.6	105.6	22.7	4.0	16,18,18,20	0.82
7	208.6	104.8	23.1	4.0	16,18,18,20	0.81
8	228.9	104.8	23.1	4.0	16,18,18,20	1.04
9	249.5	107.8	26.9	4.0	16,18,18,20	0.75
10	269.8	107.8	26.9	4.0	16,18,18,20	0.69

## § 3. 結 果

### 3. 1 TOF スペクトル

標的からの中性子は散乱電子の検出を時間基準としたTOF法によって計測される。中性子

事象のみを取り出した後の TOF スペクトルを過去の (e, e' n) 実験と比較して第 1 図に示す。各々スペクトルに偶然同時計数に対応する時間的に一樣な部分が見られ、同時計数事象に対応するピークがその上に乗るという構造を持っている。図にはこれ迄に行った実験,  $^{16}\text{O}(e, e' n)$ ,  $^{40}\text{Ca}(e, e' n)$  と比較して示したが、今回の実験では偶然同時計数に対する真の同時計数の事象の比 (S/N) が過去の実験に比べて非常に良いことが分かる。この理由として今回の実験の中性子検出器のしきい値が過去の実験に比べて高かったこと、及び原子番号が小さい原子核標的であった為に制動輻射等のバックグラウンドが少なかった事等が考えられる。



第 1 図 これ迄の (e, e' n) 実験で得られた中性子の TOF スペクトルと今回の  $^7\text{Li}(e, e' n)$  の TOF スペクトルとの比較。

### 3. 2 散乱電子スペクトル

中性子との同時計数測定によって得られる散乱電子のスペクトルを第 2 図に示す。但し、移行エネルギー  $\omega$  の関数として表している。中性子との同時計数事象のみを取り出しているため、電子のシングルアームの実験の時に見られる弾性散乱のテイルは見られない。即ちスペクトルは電子散乱の中性子崩壊チャンネル部分を抽出したものに相当する。比較のために  $^7\text{Li}(\gamma, n)$  のデータを示す。(  $\gamma, n$  ) のデータは 17MeV を中心としたなだらかなピークを示しているが、散乱電子スペクトルにも 17MeV 近傍に幅の広いピークが見られ、形状が類似していることが分かる。

### 3. 3 ミッシング・エネルギー・スペクトル

ミッシング・エネルギーは

$$E_m = \omega - E_n - E_R$$

で表される量で、一粒子の放出の場合、そのスペクトルは残留核 ${}^6\text{Li}$ への分岐の状態を表す。移行エネルギーの異なる幾つかの領域のミッシング・エネルギー・スペクトルを第3図に示す。

今回得られたミッシング・エネルギー・スペクトルでは移行エネルギー  $\omega = 13 \sim 16\text{MeV}$  の領域で、 $n_0$ ,  $n_1$  のピークが確認された。しかしその他の領域 ( $\omega > 16\text{MeV}$ ) では有意なピークが確認されなかった。この理由として原子核の励起エネルギーが大きくなるにつれて、そこから放出される  $n_0$ ,  $n_1$  の中性子のエネルギーも大きくなり、その結果エネルギー分解能が悪くなってピークが大きく広がってしまうという事が考えられるが、統計が不足しており、精確な議論をするには至らなかった。

今回の解析では  $n_0$ ,  $n_1$  のピークの比較的良く見える  $\omega = 13 \sim 16\text{MeV}$  の領域のみについて解析を進めることにした。又、今回の実験の目的の一つであったアイソスピンの成分に関する解析は  $n_2(T=1)$  がはっきりと見えるデータが得られなかったため断念した。

### 3.4 角分布

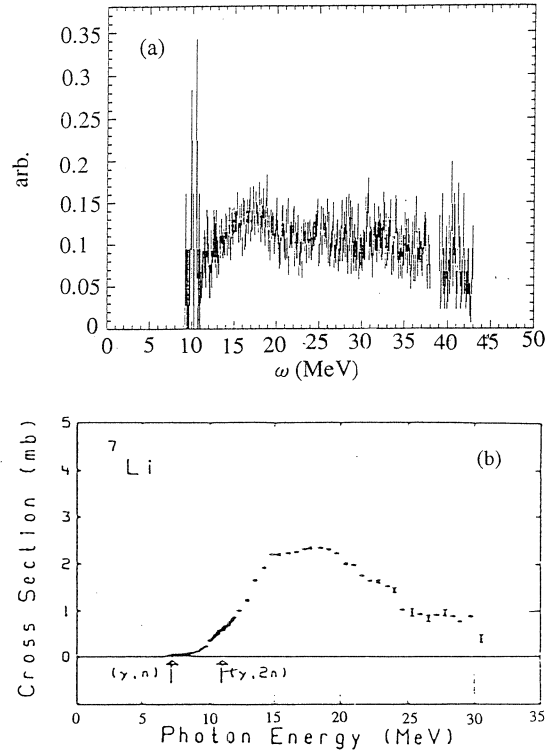
ミッシング・エネルギー・スペクトル上で  $n_0$ ,  $n_1$  のピークが観測出来たので、これを中性子エネルギーの分解能幅で切り出して角分布を導出した。さらに角分布に対してルジャンドル関数による  $\chi^2$ -fit を行った。Kleppinger と Walecka<sup>4)</sup> によれば ( $e, e'x$ ) の断面積は

$$\frac{d^3\sigma}{d\Omega d\omega d\Omega_x} = \sigma_M \frac{P_x E_x}{2} (V_L W_L + V_T W_T + V_{LT} W_{LT} \cos \Phi_x + V_{TT} W_{TT} \cos 2\Phi_x),$$

と書けるが、この断面積はルジャンドル関数で近似すると次の様になる。

$$V_L W_L + V_T W_T = A_0 [1 + b_1 P_1(X_n) + b_2 P_2(X_n) + b_3 P_3(X_n)]$$

$$V_{LT} W_{LT} = C_2 [c_1 P_1^2(X_n) + P_1^2(X_n) + c_3 P_1^3(X_n)]$$



第2図 (a)中性子と同時計数した散乱電子スペクトル, (b)  ${}^7\text{Li}(\gamma, n)$  断面積。

$$V_{TT}W_{TT}=D_2P_2^2(X_n)$$

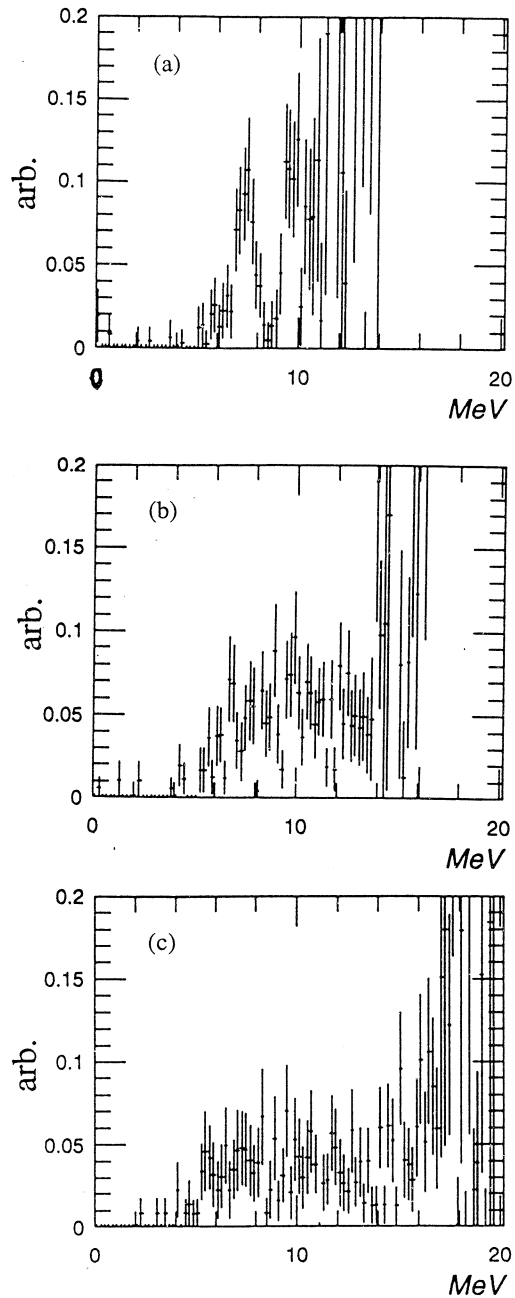
$$X_n=\cos\theta_n$$

一般に  $V_{TT}R_{TT}$  は  $V_T R_T$  に比べて小さいので、 $V_{TT}R_{TT}\cos(2\Phi_n)$  の項は解析では無視している。また  $V_{LT}R_{LT}$  は縦成分と横成分の干渉項であるが、第1項と第3項はさらに E1 と E2 または E1 と E0 の干渉を表しており、これらの係数は縦-横干渉項が主である第2項に比べ小さいとして解析では無視した。以上の仮定を行うとパラメータは  $A_0$ ,  $b_1$ ,  $b_2$ ,  $b_3$ ,  $C_2$  の5個となる。第4図に実験から得られた  $n_0$  及び  $n_1$  に対する角分布とルジャンドル関数で fit した結果を、第2表に  $\chi^2$ -fit のパラメータを示す。

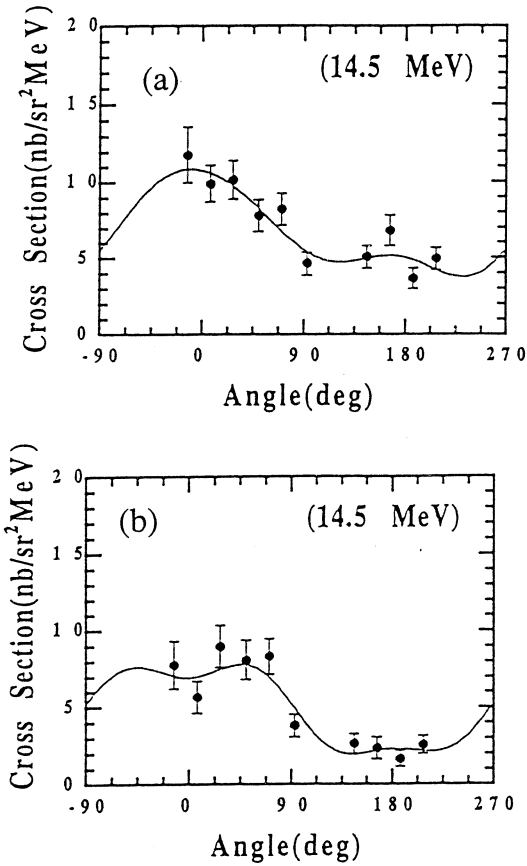
#### § 4. 考 察

${}^7\text{Li}(e, e' n_0){}^6\text{Li}$  の角分布は運動量移行方向に大きなピークをもち、反運動量方向にも小さなピークが見られる。励起が E1 のみであれば運動量移行方向と同時に反運動量移行方向に対称なピークを持つ筈であるので、実験から得られた角分布には E1 と E1 以外の多重極との干渉項が寄与している。パラメータの干渉項  $b_3$  は値が小さく誤差も大きいので必ずしも有意義な項とは言えないが、 $b_1$  はかなり大きい値になっている。これは E1 と E2 または E0 との干渉を示している。

( $e, e' n_0$ ) 断面積は、模型を仮定することにより ( $\gamma, n_0$ ) の断面積と関係づけら



第3図 ミッシング・エネルギー・スペクトル。  
(a)  $\omega = 13\sim 16\text{MeV}$ , (b)  $\omega = 16\sim 19\text{MeV}$ ,  
(c)  $\omega = 19\sim 22\text{MeV}$ .



第4図 (a)  ${}^7\text{Li}(e, e' n_0)$  反応の角分布, (b)  ${}^7\text{Li}(e, e' n_1)$  反応の角分布。実線はルジャンドル fit の結果を示す。

第2表 角分布をルジャンドル関数で fit したときのパラメータ。

パラメータ	$n_0$	$n_1$
$A_0$	$6.44 \pm 0.40$	$5.04 \pm 0.41$
$b_1$	$0.52 \pm 0.13$	$0.72 \pm 0.15$
$b_2$	$0.25 \pm 0.10$	$-0.08 \pm 0.11$
$b_3$	$-0.07 \pm 0.16$	$-0.26 \pm 0.18$
$C_2$	$-0.35 \pm 0.38$	$0.06 \pm 0.32$

れる。ここでは Kleppinger-Walecka に従って, static-limit resonance 近似を仮定すると,  $(e, e' n)$  と  $(\gamma, n)$  との角分布の係数間に次の様な関係が導かれる。

$$b_1 = 4 / [3(1 + \delta)] (q / \omega) a_1$$

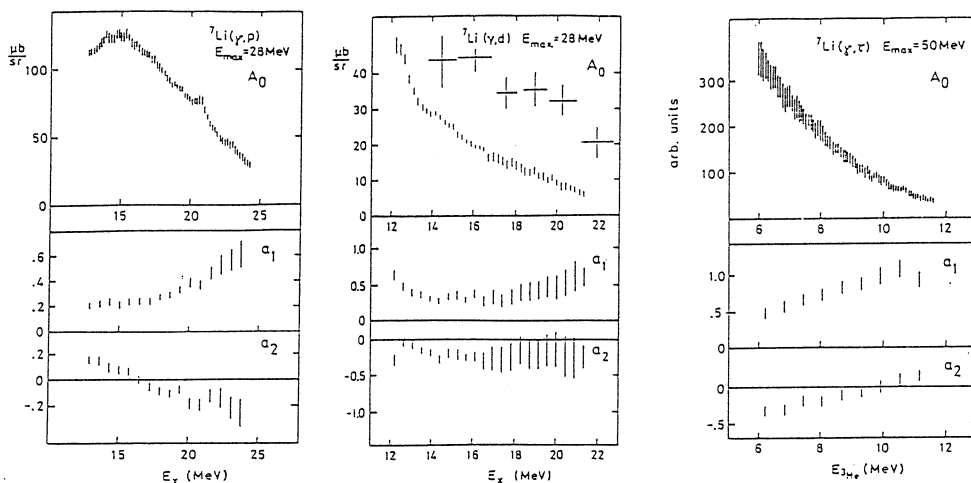
$$b_2 = -2 [1 - (1/2) \delta] / (1 + \delta) a_2$$

$$b_3 = -2 / (1 + \delta) (q / \omega) a_3$$

$$\delta = (V_T / V_L) [T_1(q) / C_1(q)]^2$$

第5図は Junghans 等は<sup>5)</sup> 制動放射を用いて  ${}^7\text{Li}(\gamma, p)$ ,  $(\gamma, d)$ ,  $(\gamma, {}^3\text{He})$  の実験で, 反応の断面積と角分布をルジャンドル関数で fit したときの  $a_1$ ,  $a_2$  パラメータを示したものである。第5図でいずれの反応でも  $a_1$  は+の値を取っており,  $b_1$  に変換しても+の値になるので今回  $(e, e' n_0)$  反応で得られた干渉項  $b_1$  は光核反応の結果と矛盾しないことを示している。 $(e, e' n_0)$  で得られたパラメータを上式を使って  $(\gamma, n_0)$  のパラメータに焼き直すと,  $b_1$ ,  $b_2$  に対応する  $a_1$ ,  $a_2$  の値として, それぞれ 0.091,  $-0.15$  が得られた。これを同じ励起エネルギーでの  $(\gamma, p)$  と比較すると  $a_1$  は 0.091 に対して,  $(\gamma, p)$  では 0.2 と両者は近い値になっている。一方  $a_2$  は  $-0.15$  に対して 0.2 と絶対値はほぼ等いが, 符号が逆になっている。

${}^7\text{Li}(e, e' n_1)$  の角分布は  $(e, e' n_0)$  の角分布と同じような傾向であるが,  $n_0$  の場合と異なるのは運動量移行方向の大きなピークの中心付近が窪んでいることであり, こ



第5図  ${}^7\text{Li}$ の  $(\gamma, p)$ ,  $(\gamma, d)$ ,  $(\gamma, {}^3\text{He})$  反応の断面積及び角分布をルジャンドル関数で fit したときの  $a_1$ ,  $a_2$  パラメータ。<sup>5)</sup>

これは E1 を示す  $b_2$  パラメータが負の 0 に近い値になると云う結果となって現れている。今回の実験条件は移行運動量  $q$  が小さい領域であるために、E1 の成分が主であると考えられるので、この結果と矛盾する。これは、ミッシング・エネルギー上での  $n_1$  の数に影響を及ぼしている可能性があり、より一層精度の高い解析が望まれる。

## §5. 結論

p 殻核による  $(e, e' n)$  反応実験を本研究施設で初めて行った。S/N 比は過去の  $(e, e' n)$  実験と比較して非常によく、バックグラウンドがターゲットに依存するという事が改めて確認された。実験では運動量移行  $q=0.33\text{fm}^{-1}$  で移行エネルギー 13~16 MeV において 1 点のみであるが  $(e, e' n_0)$  及び  $(e, e' n_1)$  反応断面積を求めた。中性子検出器は TOF 距離 106 cm で 10 台設置し散乱平面上で角分布を測定した。これは  ${}^7\text{Li}$  に関して光核反応、電子散乱を含めて初めての中性子の角分布についての測定結果である。 $(e, e' n_0)$  の角分布は非対称であり、E1 の他に E1-E2 干渉項が存在すると考えられる。

角分布をルジャンドル関数で近似して求めたパラメータを光核反応に焼き直して  $(\gamma, p)$  のパラメータと比較すると、 $a_1$  は両者は近い値になっている。一方  $a_2$  は絶対値はほぼ等いが、符号が逆になっている。

$(e, e' n_1)$  の角分布は E1 を示す  $b_2$  パラメータが負の 0 に近い値になると云う結果となって E1 の成分が主であると考えられる結果と矛盾する。これは角分布導出の際の中性子検出器の

検出効率にからむ解析上の問題が関係していると考えられる。

ミッシング・エネルギー・スペクトル上で  $T=1$  状態 (3.56MeV) への遷移の片鱗が見られるが、特定するにはバックグラウンドの引き方について更に工夫が必要である。

今回の実験では S/N 比は良かったものの全体の統計が足りず、角分布の導出や fitting に少なからず影響した。今回明確に残留核の状態を指定できたのは  $\omega$  が 13~16MeV の領域のみであったが、それより励起エネルギーの高いところのデータの様子も統計を上げることで明確になってくるものと思われる。S/N 比が良いことが分かったので、今後  ${}^7\text{Li}(e, e' n)$  の実験では、移行エネルギー領域を絞って統計を上げた実験を行いたい。

### 参 考 文 献

- 1) R.A.Eramzhyan, B.S.Ishikhnow, I.M.Kapitonov and V.G.Neudatchin: Phys. Rep. **136** (1986) 229.
- 2) V.P.Denisov and I.Ya.Chubukov: Sov.J.Nucl.Phys. **35** (1982) 6.
- 3) H.Ferdinande, N.K.Sherman, K.H.Loakan and C.K.Ross: Can.J.Phys. **55** (1977) 428.
- 4) W.E.Kleppinger and J.D.Walecka: Ann.Phys. **146** (1983) 349.
- 5) G.Junghans *et al.*: Z.Phys. **A291** (1979) 353.

## II. 放 射 化 学



## Characteristics of the GDR Fission

N. Takahashi,<sup>1</sup> A. Yokoyama,<sup>1</sup> H. Baba,<sup>1</sup> T. Yamaguchi,<sup>1</sup> D. Yano,<sup>1</sup>  
T. Saito,<sup>1</sup> N. Nitani,<sup>1</sup> Y. Hamajima,<sup>2</sup> T. Ohtsuki<sup>3</sup> and K. Masumoto<sup>3</sup>

<sup>1</sup>*Department of Chemistry and Laboratory of Nuclear Studies,  
Faculty of Science, Osaka University, Toyonaka, Osaka 560, Japan*

<sup>2</sup>*Department of Chemistry, Faculty of Science,  
Kanazawa University, Kakuma, Kanazawa, Ishikawa 920-11, Japan*

<sup>3</sup>*Laboratory of Nuclear Science, Faculty of Science,  
Tohoku University, Mikamigamine, Taihaku, Sendai 982, Japan*

Photofission of  $^{238}\text{U}$  with the bremsstrahlung of the end-point energies, 15, 30, and 60 MeV was studied radiochemically to elucidate the characteristics of the fission of  $^{238}\text{U}$  nucleus excited via the giant dipole resonance (GDR) in contrast to those in the lower energy region. Observed charge dispersion widths for 30- and 60-MeV bremsstrahlungs were broad, just as those found among various types of energetic fission, while the width for the 15-MeV case turned out to be equal to that reported for thermal neutron fission. The obtained charge and mass-yield distributions also revealed distinct differences between the above two groups; one characteristic of fission at moderate excitation and the other of low-energy fission. The average excitation energy calculated with the energy spectrum of bremsstrahlung and the fission cross section located within the GDR region, while the effective excitation energy left in the fissioning nucleus deduced by the analysis of the peak-to-valley ratio turned out to be well below the GDR energy range in the case of 15-MeV bremsstrahlung though it was still in the GDR region for the higher energy cases.

### § 1. Introduction

It is demonstrated<sup>1,2)</sup> that the actinide nuclei excited by the giant dipole resonance decay via fission in the competition with neutron emission. The characteristics of photofission of actinides in the relevant energy region have been studied from various aspects. For

instance, fragment angular distributions are measured to demonstrate a 90-degree peaking distribution for the asymmetric mass division<sup>3-5)</sup> in contrast to the ordinary  $1/\sin\theta$  distribution for the symmetric mass division. Jacobs *et al.*<sup>6, 7)</sup> have measured fragment yields radiochemically to deduce mass yield distributions, most probable charges and so on. Prompt neutron multiplicities were also determined<sup>8)</sup> from the provisional and post-neutron mass distributions by Terrell's method<sup>9)</sup>. Kahane and Wolf<sup>10)</sup> measured cumulative yields of 19 mass chains for the photofission of  $^{238}\text{U}$  with monochromatic gamma rays by means of neutron capture reactions and deduced the most probable charges for the mass chains of 92, 134, and 135. The results were compared with those for the photofission using bremsstrahlung.

Changes in the fission characteristics of such as charge, mass, and kinetic energy distributions are investigated versus excitation energy<sup>7, 11-21)</sup>. Pommé *et al.*<sup>21)</sup> claim that there is a discontinuity in the energy dependence of the total kinetic energy and the total fragment kinetic energy at the average excitation energy around 7 to 8 MeV. They also point out appearance of a similar discontinuity in the proton odd-even effect<sup>20)</sup>. However, neither observed data are necessarily recognized to reveal such discontinuities.

On the other hand, we have a good reason<sup>22)</sup> to believe that a mechanism controlling the fission of moderately excited nuclei ceases to exist around 14 MeV. The critical energy happens to coincide with the giant dipole resonance. Therefore, we like to investigate the characteristics of fission in the giant dipole resonance region in detail and compare them with those of lower-energy fission.

## § 2. Experimental

The uranium target was made of uranyl acetate shaped in a disk of 10 mm diam. and 60-90 mgU/cm<sup>2</sup> in thickness. A gold current monitor (96 or 100 mgAu/cm<sup>2</sup>) was placed behind the uranium disk. The target stack was sealed in a glass tube and fixed in a target holder placed in the beam line.

Irradiation was carried out with bremsstrahlung generated in an electron linear accelerator of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University. Electron-free  $\gamma$  rays were obtained by using a sweeping electromagnet. Three end-point energies, 15, 30, and 60 MeV,

were adopted for experiment. A long irradiation for 2 to 3 hours and a short irradiation of 30 min were undertaken in each energy to measure long-lived and short-lived fission product nuclides, respectively. In order to evaluate the contribution of fast neutron fission due to stray neutrons, a uranium blank target was placed in an off-beam position apart from the irradiation port by a few meters in the case of irradiation with 60-MeV bremsstrahlung.

The irradiated target and monitor were subjected to non-destructive  $\gamma$ -ray spectrometry using Ge detectors to identify and determine the produced activities. In separate runs, the irradiated target was dissolved with acid, from which iodine and rare earths were chemically separated before being subjected to the  $\gamma$ -ray spectrometry. Details of the chemical procedure are described elsewhere<sup>23)</sup>.

Obtained  $\gamma$ -ray spectra were analyzed with BOB code<sup>24)</sup> and the succeeding decay analysis program to determine the activity at the moment of bombardment. Nuclear data necessary to deduce the absolute activity were referred to Ref.<sup>25)</sup>. Yields of individual product nuclides were expressed in mb per equivalent quanta (eq. q.) by comparing the deduced relative yield with the corresponding yield of  $^{196}\text{Au}$  via the  $^{197}\text{Au}(\gamma, n)$  reaction, whose effective cross section data were taken from Ref.<sup>26)</sup>

### § 3. Results and Discussion

Observed independent and cumulative yields of the fission products are listed in Table 1 for 60-, 30-, and 15-MeV bremsstrahlung gamma rays. The resulting mass yield curve for the blank target is shown in Fig. 1, which is considered to give an upper limit for the contribution from the fast-neutron fission. Considering the results given in Table 1, the contribution of the fast-neutron fission is concluded to be at most 10% even for the highest energy. Though this is not trivial, it is still small enough to allow us to discuss the photofission characteristics such as charge dispersion, charge distribution and mass distribution on the basis of the observed data in Table 1.

For a mass chain in which three or more yield data are available, we can construct the charge dispersion curve. The resulting dispersion was  $\sigma = 1.05 \pm 0.10$  charge unit for 60- and 30-MeV bremsstrahlung as shown in Fig. 2, while the dispersion width was  $0.70 \pm 0.10$

charge unit for 15-MeV bremsstrahlung as given in Fig. 3. The latter is just equal to the dispersion width of thermal-neutron fission<sup>28-30)</sup>. On the contrary, the former coincides with the width found for high-energy or heavy-ion fission<sup>23)</sup>.

Now that we have determined the charge dispersion width, we can deduce the most probable charges for mass chains in which two or more isobaric yields are available. Resulting  $Z_P$  values are listed in Table 2 and depicted versus mass number  $A$  in Fig. 4. The

slopes of  $Z_P$  for heavy fragment masses are found from Fig. 4 to be identical for 30- and 60-MeV cases, whereas 15-MeV bremsstrahlung gave much steeper slope both for light and heavy fragment masses. Thus, the charge distribution again reveals a distinctive difference in the fission characteristics between the GDR and lower-energy regions.

Unfortunately, only one or two  $Z_P$  values were obtained in the light mass wing in the cases of 30- and 60-MeV bremsstrahlung. Therefore, we had to assume the same slope for light fragment masses as that for heavy fragment masses. This may be conceivable considering that we obtained the identical slope for both wings in the case of 15-MeV bremsstrahlung.

We can give a general expression for the most probable charge of a given secondary fragment mass  $A$  as

$$Z_P(A) = \frac{Z_F}{A_F} \{ A + \nu_{\text{post}}(A) + \Delta(A) \}, \quad (1)$$

where  $Z_F$  and  $A_F$  are the charge and mass of the fissioning nucleus, and  $\nu$  and  $\Delta$  represent the post-scission neutron multiplicity and charge polarization, respectively. The observed mass dependence of  $Z_P$  of 0.39 for 30- and 60-MeV bremsstrahlung is close to 92/238,

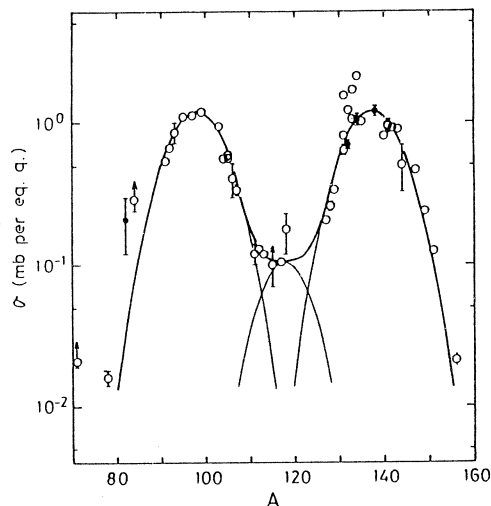


Fig. 1. Obtained mass-yield distribution of the fission of  $^{238}\text{U}$  induced by the stray neutrons. Open circles represent the total chain yields determined with cumulative yields while solid circles are those determined with independent yields.

Table 1. Determined independent and fractional cumulative yields after being corrected for the growth and decay during irradiation<sup>27)</sup> for three bremsstrahlung end-point energies.

Nuclide	Half-life	15 MeV		30 MeV		60 MeV	
		$\sigma_i$	$\sigma_c$	$\sigma_i$	$\sigma_c$	$\sigma_i$	$\sigma_c$
<sup>72</sup> Zn	46.5h				0.077±0.016		0.215±0.046
<sup>73</sup> Ga	4.87h		0.199±0.03				
<sup>77</sup> Ge <sup>g+m</sup>	11.30h				0.119±0.020		
<sup>78</sup> Ge	1.47h						0.233±0.014
<sup>82</sup> Br <sup>g+m</sup>	35.3h	0.024±0.011		0.021±0.005			
<sup>84</sup> Br <sup>g</sup>	31.8m		0.414±0.054				0.82±0.10
<sup>86</sup> Kr <sup>m</sup>	4.48h		0.338±0.029		0.60±0.08		0.64±0.06
<sup>87</sup> Kr	76.3m		0.531±0.032		1.07±0.06		1.41±0.19
<sup>88</sup> Kr	2.84h		0.83±0.07		1.14±0.05		1.35±0.13
<sup>89</sup> Rb	15.4m		1.24±0.12				
<sup>91</sup> Sr	9.52h		1.64±0.08		3.03±0.12		2.82±0.19
<sup>91</sup> Y <sup>m</sup>	49.71m		1.50±0.07				2.79±0.19
<sup>92</sup> Sr	2.71h		1.83±0.17		3.38±0.18		3.52±0.29
<sup>92</sup> Y	3.54h	0.21±0.09	1.97±0.13	0.04±0.11	3.33±0.14		5.7±0.7
<sup>93</sup> Sr	7.32m		2.01±0.44				
<sup>93</sup> Y	10.1h		2.04±0.15		3.35±0.35		4.13±0.31
<sup>94</sup> Y	18.6m		1.84±0.14				5.3±1.0
<sup>95</sup> Y	10.3m		2.84±0.34				
<sup>96</sup> Zr	64.03d		2.00±0.09		4.03±0.16		5.74±0.19
<sup>95</sup> Nb <sup>g+m</sup>	34.78d	0.028±0.005	2.03±0.09				
<sup>96</sup> Nb	23.35h	0.124±0.14		0.34±0.04		0.21±0.07	
<sup>97</sup> Zr	17.0h		2.28±0.09		4.14±0.15		5.02±0.19
<sup>97</sup> Nb <sup>g</sup>	72.1m	0.030±0.007	2.30±0.18				
<sup>98</sup> Nb <sup>B</sup>	51.3m	0.135±0.033		0.35±0.13			
<sup>99</sup> Mo	2.75d		2.19±0.16		4.14±0.21		5.67±0.37
<sup>99</sup> Tc <sup>m</sup>	6.01h	0.0131±0.0037	2.15±0.16	0.001±0.006	4.14±0.21		
<sup>101</sup> Mo	14.6m		2.14±0.18				
<sup>101</sup> Tc	14.2m		3.6±0.5				
<sup>102</sup> Mo	51.2m		2.9±0.8				
<sup>103</sup> Ru	39.25d		1.90±0.10		3.56±0.17		4.91±0.23
<sup>104</sup> Tc	18.4m		1.54±0.15		1.96±0.23		
<sup>106</sup> Ru	4.44h		1.07±0.09		2.09±0.08		2.39±0.15
<sup>106</sup> Rh <sup>g+m</sup>	35.36h		0.99±0.08		1.82±0.11		2.30±0.14
<sup>106</sup> Ru	371.6d		0.64±0.19		1.38±0.18		2.00±0.22
<sup>106</sup> Rh <sup>m</sup>	2.17h		0.84±0.15	0.104±0.019	1.48±0.18	0.38±0.05	2.19±0.23
<sup>107</sup> Rh	21.7m		0.302±0.036		0.84±0.14		
<sup>112</sup> Pd	21.05h		0.102±0.07		0.399±0.021		
<sup>112</sup> Ag	3.14h	0.128±0.070	0.231±0.069	0.069±0.049	0.488±0.053		0.665±0.038
<sup>113</sup> Ag <sup>g</sup>	5.37h				0.274±0.022		0.554±0.041
<sup>115</sup> Cd <sup>g</sup>	2.23d		0.163±0.017		0.215±0.015		0.436±0.026
<sup>117</sup> Cd <sup>g</sup>	2.49h		0.127±0.027		0.253±0.016		0.522±0.034
<sup>117</sup> Cd <sup>m</sup>	3.36h	0.0213±0.025		0.118±0.009		0.294±0.018	
<sup>123</sup> Sn <sup>m</sup>	40.08m						0.319±0.060
<sup>124</sup> Sb <sup>g+m</sup>	60.2d			0.0094±0.0008		0.0110±0.0023	
<sup>126</sup> Sn <sup>g</sup>	9.64d		0.19±0.18		0.181±0.023		0.333±0.028
<sup>126</sup> Sb	2.73y				0.400±0.023		

Table 1 (continued).

Nuclide	Half-life	15 MeV		30 MeV		60 MeV	
		$\sigma_i$	$\sigma_c$	$\sigma_i$	$\sigma_c$	$\sigma_i$	$\sigma_c$
$^{126}\text{Sb}^g$	12.4d	$0.332 \pm 0.044$		$0.0513 \pm 0.062$		$0.086 \pm 0.005$	
$^{126}\text{Sb}^m$	19.0m			$0.0419 \pm 0.0052$			
$^{127}\text{Sn}^g$	2.10h		$0.137 \pm 0.022$		$0.409 \pm 0.040$		$0.523 \pm 0.035$
$^{127}\text{Sb}$	3.85d		$0.180 \pm 0.039$		$0.590 \pm 0.025$		$0.981 \pm 0.042$
$^{128}\text{Sn}^{g+m}$	59.1m		$0.225 \pm 0.015$		$0.587 \pm 0.019$		$0.520 \pm 0.038$
$^{128}\text{Sb}^g$	9.01h		$0.010 \pm 0.007$		$0.125 \pm 0.012$		$0.233 \pm 0.014$
$^{129}\text{Sb}$	4.32h		$0.418 \pm 0.021$		$1.006 \pm 0.048$		$1.23 \pm 0.06$
$^{130}\text{Sb}^A$	40m		$0.307 \pm 0.023$		$0.656 \pm 0.049$		$1.57 \pm 0.11$
$^{130}\text{I}^{g+m}$	12.36h	$0.062 \pm 0.014$		$0.0086 \pm 0.0028$		$0.044 \pm 0.007$	
$^{131}\text{Sb}$	23.0m		$1.35 \pm 0.14$		$1.70 \pm 0.20$		$1.58 \pm 0.13$
$^{131}\text{Te}^g$	25.0m	$0.55 \pm 0.16$	$2.00 \pm 0.14$				
$^{131}\text{Te}^m$	30h	$0.029 \pm 0.020$		$0.175 \pm 0.041$		$0.633 \pm 0.027$	
$^{131}\text{I}$	8.02d		$1.33 \pm 0.06$		$2.78 \pm 0.13$		$2.89 \pm 0.15$
$^{132}\text{Te}$	3.26d		$1.820 \pm 0.041$		$3.47 \pm 0.09$		$4.56 \pm 0.11$
$^{132}\text{I}^{g+m}$	2.30h	$0.37 \pm 0.06$	$2.19 \pm 0.06$	$0.63 \pm 0.05$	$4.11 \pm 0.10$	$2.05 \pm 0.33$	$6.61 \pm 0.35$
$^{132}\text{I}^m$	1.39h			$0.103 \pm 0.045$			
$^{133}\text{Te}^g$	12.5m		$2.21 \pm 0.23$				$3.43 \pm 0.20$
$^{133}\text{Te}^m$	55.4m	$1.23 \pm 0.09$		$2.31 \pm 0.23$		$2.43 \pm 0.19$	
$^{133}\text{I}^{g+m}$	20.8h		$2.66 \pm 0.12$		$4.87 \pm 0.19$		$3.54 \pm 0.15$
$^{133}\text{Xe}^g$	5.29d		$2.21 \pm 0.22$				
$^{133}\text{Xe}^m$	2.19d	$0.109 \pm 0.037$		$0.198 \pm 0.026$			
$^{134}\text{Te}$	41.8m		$2.28 \pm 0.16$		$4.89 \pm 0.31$		$4.61 \pm 0.34$
$^{134}\text{I}^{g+m}$	52.6m	$0.41 \pm 0.16$	$2.67 \pm 0.16$	$0.43 \pm 0.33$	$4.48 \pm 0.23$	$7.29 \pm 0.36$	$11.90 \pm 0.44$
$^{134}\text{Cs}^{g+m}$	2.06y					$0.56 \pm 0.21$	
$^{135}\text{I}$	6.61h		$2.34 \pm 0.06$		$4.07 \pm 0.13$		$4.76 \pm 0.13$
$^{135}\text{Xe}^{g+m}$	9.08h	$0.008 \pm 0.009$	$2.34 \pm 0.05$		$3.96 \pm 0.12$	$1.5 \pm 0.8$	$6.3 \pm 0.8$
$^{135}\text{Cs}^m$	53m	$0.077 \pm 0.009$		$0.152 \pm 0.011$			
$^{137}\text{Cs}$	30.14y				$4.08 \pm 0.24$		$6.0 \pm 0.9$
$^{138}\text{Xe}$	14.1m		$2.44 \pm 0.27$				
$^{138}\text{Cs}^{g+m}$	32.2m		$1.94 \pm 0.37$		$4.8 \pm 0.8$		
$^{139}\text{Ba}$	1.38h		$1.96 \pm 0.18$		$3.40 \pm 0.21$		$3.45 \pm 0.29$
$^{140}\text{Ba}$	12.75d		$1.99 \pm 0.05$		$3.70 \pm 0.08$		$4.49 \pm 0.10$
$^{140}\text{La}$	40.28h	$0.023 \pm 0.003$	$2.01 \pm 0.05$	$0.009 \pm 0.004$	$3.71 \pm 0.08$	$0.43 \pm 0.07$	$4.94 \pm 0.10$
$^{141}\text{Ba}$	18.27m		$1.97 \pm 0.17$		$3.0 \pm 0.9$		$3.28 \pm 0.25$
$^{141}\text{La}$	3.92h		$1.98 \pm 0.33$		$3.99 \pm 0.44$		$3.68 \pm 0.31$
$^{141}\text{Ce}$	32.50d		$1.84 \pm 0.10$		$3.31 \pm 0.18$		$4.06 \pm 0.34$
$^{142}\text{Ba}$	10.7m		$1.73 \pm 0.19$				$1.75 \pm 0.18$
$^{142}\text{La}$	1.52h		$1.96 \pm 0.17$		$3.00 \pm 0.19$		$2.97 \pm 0.19$
$^{143}\text{Ce}$	33.0h		$1.78 \pm 0.10$		$3.33 \pm 0.16$		$4.11 \pm 0.23$
$^{143}\text{Pr}$	13.58d				$3.27 \pm 0.16$		
$^{144}\text{Ce}$	284.9d		$2.26 \pm 0.50$		$2.85 \pm 0.15$		$3.79 \pm 0.21$
$^{146}\text{Ce}$	13.52m		$0.98 \pm 0.08$				
$^{146}\text{Pr}$	24.1m		$1.35 \pm 0.27$				
$^{147}\text{Pr}$	13.6m		$1.15 \pm 0.41$				
$^{147}\text{Nd}$	10.98d		$0.96 \pm 0.11$		$1.72 \pm 0.09$		$2.44 \pm 0.13$
$^{148}\text{Pm}^g$	5.37d					$0.0116 \pm 0.0034$	
$^{148}\text{Pm}^m$	41.3d			$0.018 \pm 0.007$		$0.0278 \pm 0.036$	
$^{149}\text{Nd}$	1.73h		$0.496 \pm 0.005$		$0.89 \pm 0.07$		$1.42 \pm 0.11$

Table 1 (continued).

Nuclide	Half-life	15 MeV		30 MeV		60 MeV	
		$\sigma_I$	$\sigma_c$	$\sigma_I$	$\sigma_c$	$\sigma_I$	$\sigma_c$
$^{149}\text{Pm}$	2.21d		$0.66 \pm 0.08$		$1.00 \pm 0.12$		$1.90 \pm 0.25$
$^{150}\text{Pm}$	2.68h					$0.038 \pm 0.004$	
$^{151}\text{Nd}$	12.4m		$0.209 \pm 0.053$				$0.56 \pm 0.07$
$^{151}\text{Pm}$	28.4h		$0.280 \pm 0.022$		$0.57 \pm 0.05$		
$^{153}\text{Sm}$	46.7h		$0.225 \pm 0.017$				
$^{154}\text{Eu}^{g+m}$	8.8y			$0.30 \pm 0.12$		$0.50 \pm 0.28$	
$^{155}\text{Eu}$	4.68y				$0.27 \pm 0.26$		
$^{156}\text{Sm}$	9.4h		$0.0426 \pm 0.0037$		$0.036 \pm 0.014$		$0.138 \pm 0.013$
$^{156}\text{Eu}$	15.2d				$0.067 \pm 0.012$		$0.091 \pm 0.007$
$^{157}\text{Eu}$	15.1h		$0.042 \pm 0.013$		$0.073 \pm 0.021$		$0.075 \pm 0.007$
$^{160}\text{Tb}$	72.3d			$0.0090 \pm 0.0012$			
$^{163}\text{Tm}$	1.81h		$0.070 \pm 0.014$				
$^{167}\text{Ho}$	3.10h						$0.0043 \pm 0.0039$

which implies that  $\nu_{\text{post}}$  and  $\Delta$  should be practically independent of  $A$  since the fissioning nucleus is taken to be  $^{238}\text{U}$ . From the available excitation energy the consequence is not unreasonable considering rather weak mass dependence of fission-neutron multiplicity<sup>31-33</sup>) and the charge polarization<sup>34</sup>) in the charged-particle induced fission. As a result, we deduced  $\nu_{\text{post}} = 2.5$  and  $\Delta = 1.5$  with plus sign for light and minus sign for heavy fragments in Eq.(1).

In the case of 15-MeV bremsstrahlung, the fairly large gradient as obtained

in Fig. 4 requires mass-dependent neutron multiplicity. Furthermore, the practically identical gradient for light and heavy fragments results in a constant charge polarization with respect to the fragment mass. Assuming the fissioning nucleus being  $^{238}\text{U}$  and  $\Delta = 1.5$  as before, we obtain

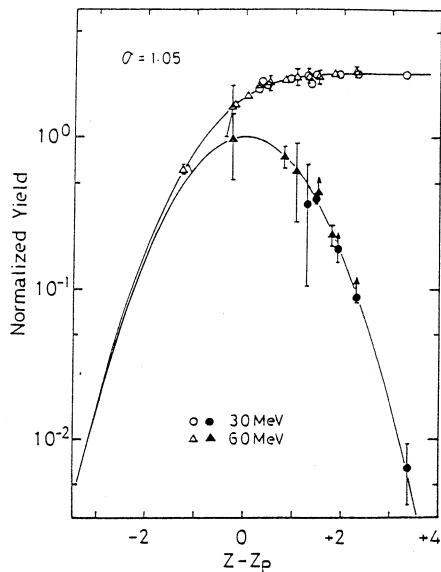


Fig. 2. Charge dispersion curve constructed for 30- and 60-MeV bremsstrahlungs. Open circles represent cumulative yields and solid circles give independent yields.

$$\nu_{\text{post}}(A) = \begin{cases} 0.18 (A-77.4) & \text{for light fragments} \\ 0.18 (A-121.3) & \text{for heavy fragments.} \end{cases} \quad (2)$$

Thus deduced neutron multiplicities turned out to be almost twice as many as those of thermal neutron fission<sup>9</sup>. This is an annoying consequence since there is not much room for changing  $\Delta$  to reduce  $\nu_{\text{post}}$ . Whether the apparently extraordinary neutron multiplicity is merely a virtual feature or a real consequence of the photofission is an open question to study further.

By means of thus obtained charge dispersion and distributions, the total chain yields were computed from the observed yields given in Table 1. The obtained total chain yields for 15-MeV bremsstrahlung are plotted in Fig. 5. The constructed mass-yield curve consists of two very steep peaks with reflection symmetry to each other, that resembles that of thermal neutron fission<sup>35</sup>) as depicted in Fig. 6. Neither of them is reproduced with a single Gaussian but two Gaussian curves are necessary to represent each wing of the distribution. The FWHM of either wing of the distribution given in Fig. 5 is 14.2 amu as a whole and the peak-to-valley ratio is  $22.3 \pm 3.5$ .

The chain yields given by Jacobs *et al.*<sup>7</sup>) are also presented in Fig. 5. Present data agree reasonably well with them except in the valley region. The mass-yield distributions given by Katz *et al.*<sup>13</sup>) also give a fine structure quite similar to the present data in the peak

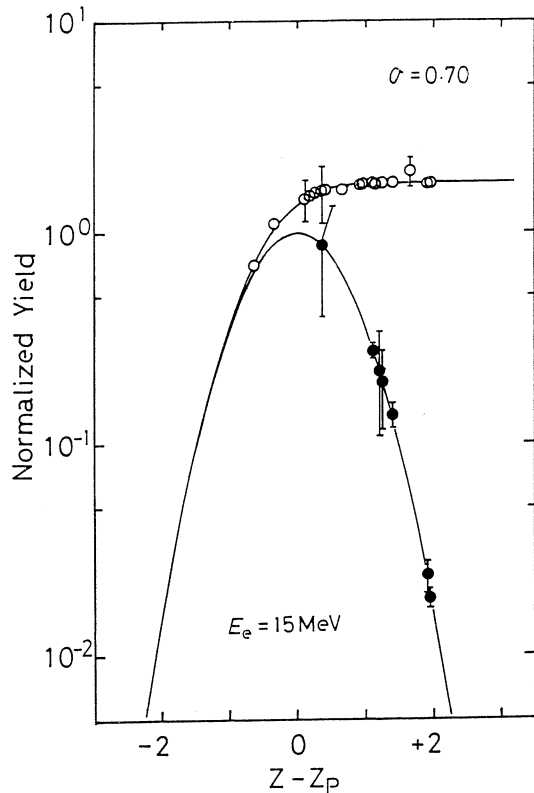


Fig. 3. Charge dispersion curve constructed for 15-MeV bremsstrahlung. Same for the marks as Fig. 2.



Table 2. Observed most probable charges. The charge dispersion width was taken to be 0.70 for 15-MeV bremsstrahlung and 1.05 for 30- and 60- MeV cases.

A	15MeV	30MeV	60MeV
92	$37.65^{+0.20}_{-0.15}$		$38.38^{+0.42}_{-0.43}$
93	$<37.25+0.95$		
95	$39.08\pm 0.05$		
96	$41.50^{+0.10}_{-0.08}$		
97	$39.08\pm 0.10$		
99	$40.88\pm 0.10$		
101	$42.40^{+0.30}_{-0.25}$		
106	$44.05\pm 0.05$	$43.10^{+1.00}_{-0.20}$	$43.60^{+0.50}_{-0.30}$
112	$46.65^{+0.20}_{-0.20}$	$45.70^{+0.20}_{-0.35}$	
125		$<51.15+0.25$	
127	$<50.05+0.35$	$<50.20+0.30$	$<50.70+0.20$
130	$<51.11+0.05$	$<49.45+0.15$	$<50.52+0.08$
131	$51.25^{+0.15}_{-0.25}$	$51.22^{+0.20}_{-0.25}$	$51.40\pm 0.20$
132	$51.90\pm 0.05$	$51.60\pm 0.05$	$52.25^{+0.10}_{-0.15}$
133	$51.90^{+0.30}_{-0.40}$		
134	$51.88^{+0.12}_{-0.22}$	$51.10^{+0.40}_{-1.60}$	$53.20\pm 0.10$
135	$<51.75+0.15$	$<52.15+0.45$	$52.97^{+0.30}_{-0.35}$
140	$55.00\pm 0.05$	$53.65^{+0.20}_{-0.15}$	$55.20\pm 0.10$
141		$<55.25+1.00$	$55.60^{+0.40}_{-0.20}$
142	$<55.77+0.40$		$56.50^{+0.35}_{-0.35}$
146	$58.15^{+0.30}_{-0.30}$		
149	$60.10^{+0.20}_{-0.20}$	$<59.35+0.65$	$60.00^{+0.45}_{-1.10}$
151	$<60.10+0.40$	$60.70^{+0.95}_{-1.70}$	

region.

The mass-yield distributions obtained for 30- and 60-MeV bremsstrahlung are depicted in Figs. 7 and 8, respectively, together with the data given by Jacobs *et al.*<sup>7)</sup> for 30 and 70 MeV. The light mass wing of either case was found well reproduced with a single Gaussian of FWHM=14.4 amu, while the heavy-mass wing revealed an enhancement of the yields in the double-magic region and the corresponding deficit in the mass region just above the double shell closure.

The enhancement observed in the mass region of 133 and 134 by Jacobs *et al.* is fairly small, however, compared to the presently obtained structure. The correction for the ingrowth from the precursor during irradiation is quite significant in this mass region<sup>27)</sup>. If this correction were not taken into consideration, the results would be much distorted. If one uses independent yields to determine the total chain yields, the choice of the correct

charge distribution becomes very crucial because they are quite sensitive to  $Z_p$ .

We have measured the yields of more than two isobaric nuclides in the relevant mass region, from which we obtained nearly the same values for the total chain yield of a given mass. Furthermore, the total chain yields determined from the independent yields are in a fairly smooth relation with those deduced from cumulative yields as is seen in Figs. 7 and 8. These results justify the charge distribution adopted in Fig. 4, and supports in turn the mass-yield distributions given in Figs.

7 and 8. It is, therefore, clear that there is again a distinct difference in the photofission characteristics between 15-MeV and 30- or 60-MeV bremsstrahlung from the viewpoint of mass distribution.

Since we are using a continuous energy spectrum, a fission characteristics  $f(E_e)$  experimentally observed for a given bremsstrahlung end-point energy  $E_e$  is derived in terms of the energy spectrum  $N(E_e, E)$  and the fission cross section  $\sigma_f(E)$  as

$$f(E_e) = \frac{\int_0^{E_e} F(E) N(E_e, E) \sigma_f(E) dE}{\int_0^{E_e} N(E_e, E) \sigma_f(E) dE}, \quad (3)$$

where  $F(E)$  denotes the magnitude of the relevant observables at  $E$ . Inserting  $F(E) = E$  into Eq. (3), we can evaluate the average excitation energy  $E_{av}$ . Calculated  $E_{av}$  values are given in the last column of Table 3, where the energy spectrum was taken from Ref. 26) and  $\sigma_f$  was obtained from Refs. 1 and 2. The average excitation energy  $E_{av}$  is found very

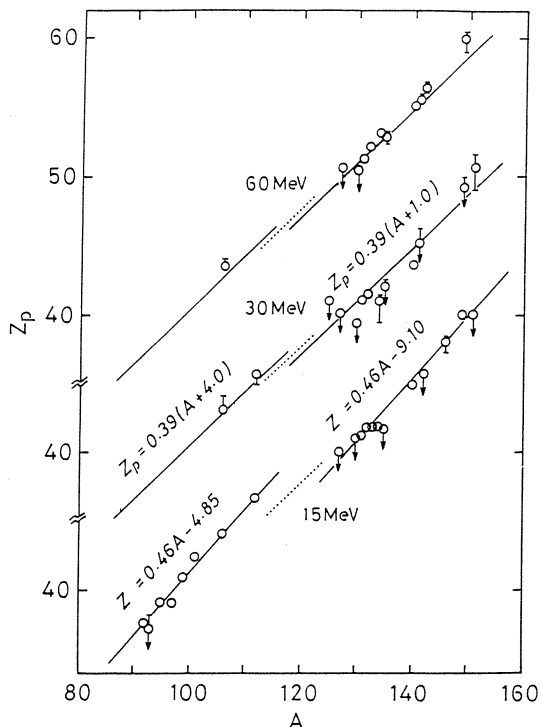


Fig. 4. Observed most probable charges (open circles) and adopted charge distributions (solid lines) for three end-point energies. Dotted lines represent the assumed charge distribution [  $Z_p = 0.39(A + 2.5)$  ] for the symmetric mode.

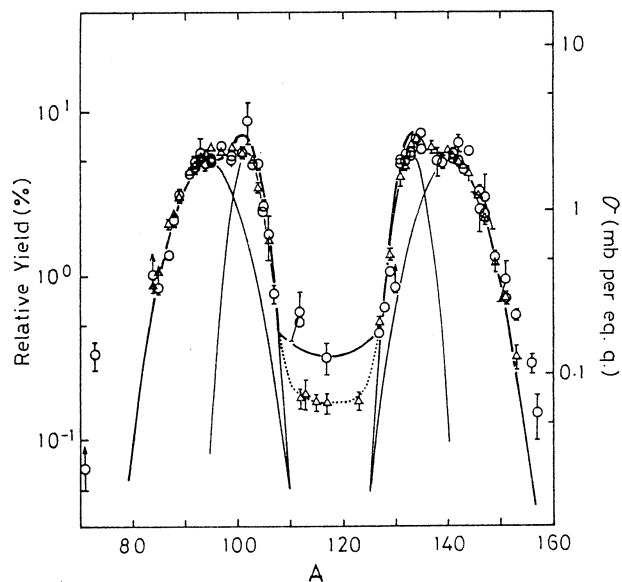


Fig. 5 . Mass-yield distribution obtained for 15-MeV bremsstrahlung which is of reflection symmetry. The light- and heavy-mass wings were deconvoluted into two Gaussian curves, respectively. Open circles give the total chain yields obtained in the present work while triangles represent those given by Jacobs *et al.*<sup>7)</sup>.

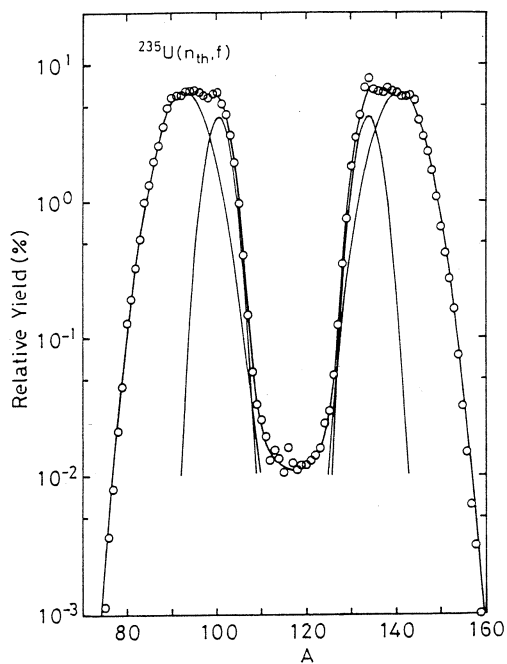


Fig. 6 . Mass-yield distribution of thermal-neutron fission of  $^{235}\text{U}$ <sup>34)</sup>, which are deconvoluted into two Gaussians similar to those obtained in Fig. 5.

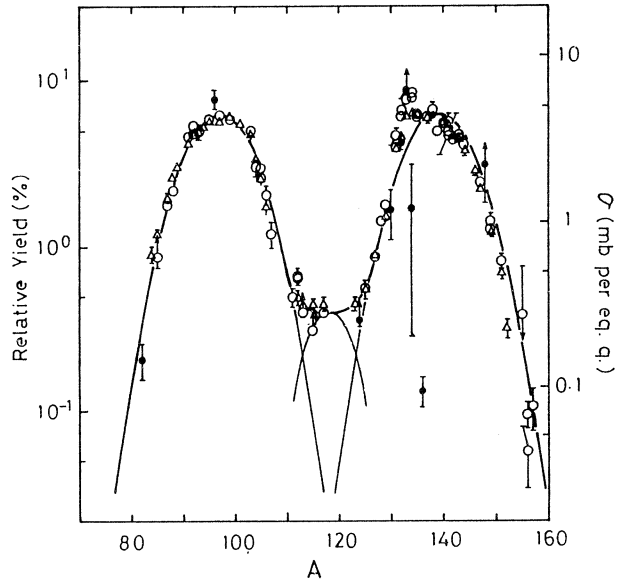


Fig. 7. Mass-yield distribution obtained for 30-MeV bremsstrahlung. The light-mass wing is well represented with a single Gaussian and the heavy-mass wing may be expressed essentially with the identical Gaussian though there are some fine structures due to the shell effect of the primary fragments. Open and closed circles give the total chain yields obtained in the present work; the former were evaluated from the cumulative yields while the latter were deduced from the independent yields. Triangles represent the total chain yields given by Jacobs *et al.*<sup>7)</sup>

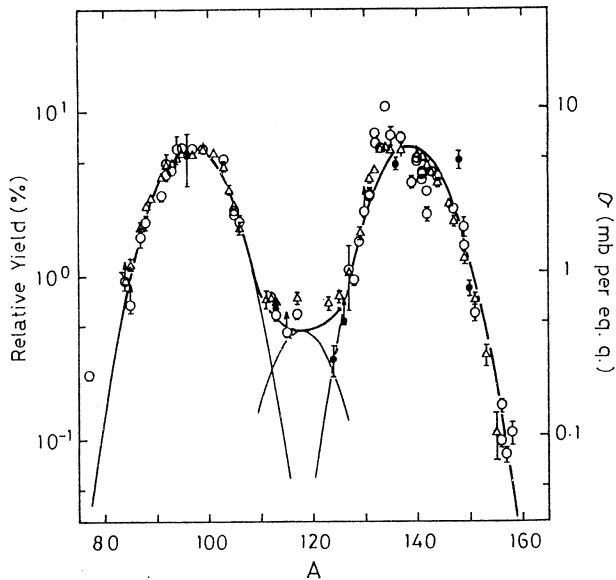


Fig. 8. Mass-yield distribution obtained for 60-MeV bremsstrahlung. Further explanations of the figure are the same as those in Fig. 7.

Table. 3. Average excitation energies  $E_{av}$  (cf. Eq. (3)), peak-to-valley ratios  $R$ , and effective excitation energies  $E_{eff}$  (cf. Eq. (5)).

$E_e$ (MeV)	$E_{av}$ (MeV)	$R$	$E_{eff}$ (MeV)
15	$11.4 \pm 1.0$	$22.3 \pm 3.5$ $35 \pm 4^a$	$12.6 \pm 0.6$ $11.6 \pm 0.3$
30	$13.1 \pm 2.0$	$15.7 \pm 0.7$	$13.7 \pm 0.2$
60	$13.7 \pm 2.0$	$10.4 \pm 0.8$	$15.5 \pm 0.5$

<sup>a</sup>)Ref. 7

close to each other for the 30- and 60-MeV cases. This is conceivable considering that we observed almost identical fission characteristics for these cases. The resulting  $E_{av}$  coincides with the high-energy peak in the double-humped GDR fission excitation function<sup>1,2)</sup>, while the value found for the 15-MeV case locates in the low-energy peak of the excitation function. This consequence does not seem to explain why the fission characteristics are so drastically different between the two energy regions.

According to the two-mode fission mechanism, the cross section ratio of asymmetric fission to symmetric fission is considered to be equal to the phase-space ratio between the two modes<sup>36)</sup>. Neglecting

trivial pre-exponential factors in the level density formulas, we obtain

$$\ln (\sigma_a / \sigma_s) = 2 \sqrt{a_f (E - B_a - \delta)} - 2 \sqrt{a_f (E - B_s - \delta)}, \quad (4)$$

where  $\sigma$  and  $B$  are the fission cross section and barrier height, respectively,  $a_f$  is the level density parameter for fission channel, and  $\delta$  gives the pairing correction. The suffixes a and s denote asymmetric and symmetric fission, respectively.

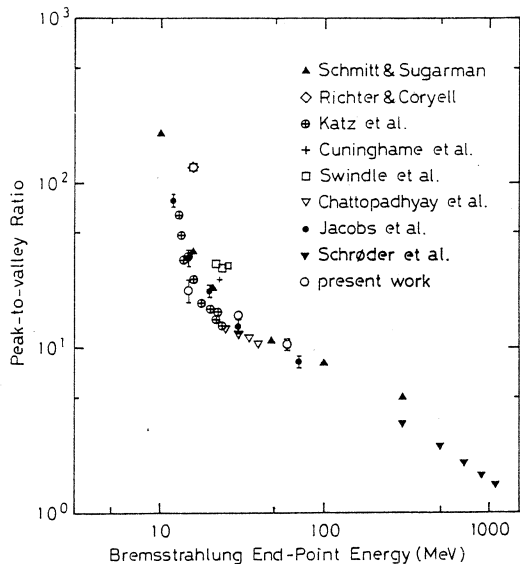


Fig. 9 . Observed peak-to-valley ratios of the  $^{238}\text{U}$  photofission.

In the fission of ordinary actinide elements, the symmetric fission cross section is not directly determined, however. Then, we must apply Eq. (4) to the peak-to-valley ratio  $R$  instead of the cross-section ratio<sup>36)</sup>. Since the width of the symmetric peak is taken to be approximately equal to that of the asymmetric peak in Fig. 5, 7, or 8, we can substitute the cross section ratio by twice the peak-to-valley ratio  $R$ . Rearranging Eq. (4), we obtain the effective excitation energy  $E_{\text{eff}}$  as

$$E_{\text{eff}} = \delta + \frac{1}{2y} \left[ \frac{(B_s - B_a)^2}{4} + (B_s + B_a) y + y^2 \right]; y = \frac{1}{8a_f} [\ln(2R)]^2. \quad (5)$$

We assumed the fissioning nucleus being  $^{238}\text{U}$ .  $B_a$  and  $B_s$  were taken to be 5.3<sup>37)</sup> and 7.0 MeV<sup>36)</sup>, respectively, while  $\delta$  and  $a_f$  were taken to be 1.4 MeV<sup>38)</sup> and 25.2 MeV<sup>-1</sup><sup>39)</sup>. The second column of Table 3 gives  $R$  while the third column presents thus deduced  $E_{\text{eff}}$  values.

Available data of  $R$  for the fission of  $^{238}\text{U}$  with bremsstrahlung are summarized for comparison in Fig. 9. The present data lie within a reasonable range from the reported  $R$  values. However, the height of the valley may

be somewhat ambiguous for the present 15-MeV data. On the other hand, the peak-to-valley ratio deduced from Ref<sup>7)</sup>. (dotted curve in Fig. 5) is considered more reliable because a number of yield data were given in the valley region. Figure 9 tells us that the present data at 15 MeV is likely lower than the true value so that the resulting  $E_{\text{eff}}$  could be an upper limit, while those at 30 and 60 MeV seem to be somewhat higher than other data. If so, they give slightly lower  $E_{\text{eff}}$  values than they should be. These speculations do not, however, affect the consequence of the succeeding discussion.

Considering that we are discussing rather complex phenomenon in a simplified way

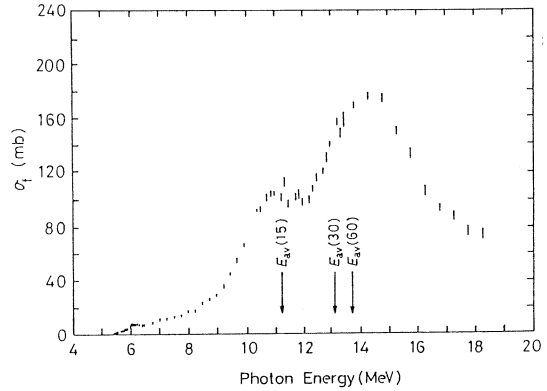


Fig. 10. GDR fission cross sections<sup>2)</sup> and the positions of the average excitation energy  $E_{av}$  for each end-point energy designated in the parentheses.

of taking the averages, we may conclude that the resulting  $E_{\text{eff}}$  is in fair agreement with the corresponding  $E_{\text{av}}$  value. It follows that the excited  $^{238}\text{U}$  nucleus via GDR directly fissions without emitting any pre-fission neutrons. This is consistent with the picture of the  $^{238}\text{U}$  GDR fission we have postulated so far.

The average excitation energy  $E_{\text{av}}$  is depicted in Fig. 10 together with the photofission cross section reported by Caldwell *et al.*<sup>2)</sup> Figure 10 indicates that the excitation takes place mainly via the higher-energy resonance of GDR in the case of 30- and 60-MeV bremsstrahlung, whereas the lower-energy resonance state is predominantly responsible for excitation of  $^{238}\text{U}$  in the case of 15-MeV bremsstrahlung. It is not, however, conceivable that the difference in the resonance states causes the drastic change of the fission characteristics between them as demonstrated in the present work. Hence, we must look for the cause of this sudden change of fission characteristics among other sources than the onset of giant dipole resonance state.

A possible source of the change we can think of is the phase transition between the normal state and superconducting state. Sano *et al.* discussed<sup>40-42)</sup> the phase transition effect on the nuclear level density and calculated the critical temperature be 0.55 MeV for  $^{236}\text{U}$ . Considering the fission barrier, the critical energy is then 12 to 13 MeV and this is just what we expect for the present observation.

#### § 4. Conclusion

Photofission of  $^{238}\text{U}$  induced by the bremsstrahlung with the end-point energies of 15, 30, and 60 MeV was studied radiochemically to elucidate the characteristics of fission of  $^{238}\text{U}$  excited via giant dipole resonance. Observed charge dispersion widths for 30- and 60-MeV bremsstrahlung were broad, just as those found among various types of energetic fission<sup>23)</sup>, while the width for the 15-MeV case turned out to be equal to that reported for thermal neutron fission<sup>28-30)</sup>. The obtained charge and mass yield distributions also revealed distinct differences between the above two groups; one characteristic of fission at moderate excitation and the other of low-energy fission.

The average excitation energy was calculated with the energy spectrum<sup>26)</sup> of bremsstrahlung and the photofission cross section<sup>1, 2)</sup> which was found to locate within the

GDR region for all the cases. On the other hand, the effective excitation energy  $E_{av}$  remaining in the nucleus at the moment of fission was evaluated by the analysis of the peak-to-valley ratio of the fragment mass distribution, which turned out to coincide with  $E_{av}$  indicating that the excited nucleus directly fissioned without emitting any pre-fission neutrons. It implies that the giant dipole resonance itself is not responsible to the sudden change of the fission characteristics. It is suggested then that a possible cause of the sudden change would be the nuclear phase transition between the normal and superconducting states.

### References

- 1) A. Veyssière, H. Beil, R. Bergère, P. Carlos, A. Leprêtre, and K. Kernbach : Nucl. Phys. **A199** (1973) 45.
- 2) J. T. Caldwell, E. J. Dowdy, B. L. Berman, R. A. Alvarez, and P. Meyer : Phys. Rev. **C21** (1980) 1215.
- 3) Th. Weber, W. Wilke, H. J. Emrich, R. D. Hell, Th. Kihm, U. Kneissl, K. T. Knöpfel, U. Seemann, F. Steiper, and H. Ströher : Nucl. Phys. **A502** (1989) 279c.
- 4) W. Wilke, U. Kneissl, Th. Weber, H. Ströher, L. S. Cardman, P. T. Debevec, S. D. Hoblit, R. T. Jones, and A. M. Nathan : Phys. Rev. **C42** (1990) 2148.
- 5) V. E. Rudnikov, G. N. Smirenkin, A. S. Soldatov, and S. Juhasz : Sov. J. Nucl. Phys. **48** (1988) 414.
- 6) H. Thierens, D. De Frenne, E. Jacobs, A. De Clercq, P. D'hondt, and A. J. Deruytter : Phys. Rev. **C14** (1976) 1058.
- 7) E. Jacobs, H. Thierens, D. De Frenne, A. De Clercq, P. D'hondt, P. De Gelder, and A. J. Deruytter : Phys. Rev. **C19** (1979) 422.
- 8) E. Jacobs, H. Thierens, A. De Clercq, D. De Frenne, P. D'hondt, and A. J. Deruytter : Phys. Rev. **C14** (1976) 1874.
- 9) J. Terrell : Phys. Rev. **127** (1962) 880 ; Paper SM-60/43, Proc. of the symposium on physics and chemistry of fission, Salzburg (1965).
- 10) S. Kahane and A. Wolf : Phys. Rev. **C32** (1985) 1944.
- 11) R. A. Schmitt and N. Sugarman : Phys. Rev. **95** (1954) 1260.
- 12) H. G. Richter and C. D. Coryell : Phys. Rev. **95** (1954) 1550.



- 13) L. Katz, T. M. Kavanagh, A. G. W. Cameron, E. C. Bailey, and J. W. T. Spinks :  
Phys. Rev. **99** (1955) 98.
- 14) J. G. Cuninghame, M. P. Edwards, G. P. Kitt, and K. H. Lokan : Nucl. Phys. **44** (1963)  
588.
- 15) B. Schröder, G. Nydahl, and B. Forkman : Nucl. Phys. **A143** (1970) 449.
- 16) A. Chattopadhyay, K. A. Dost, I. Krajbich, and H. D. Sharma : J. inorg. nucl. Chem.  
**35** (1973) 2621.
- 17) D. Swindle, R. Wright, T. Takahashi, W. H. Rivera, and J. L. Meason : Nucl. Sci. Eng.  
**52** (1973) 466.
- 18) E. Jacobs, A. De Clercq, H. Thierens, D. De Frenne, P. D'hondt, P. De Gelder, and A.  
J. Deruytter : Phys. Rev. **C20** (1979) 2249.
- 19) D. De Frenne, H. Thierens, B. Proot, E. Jacobs, P. De Gelder, and A. De Clercq : Phys.  
Rev. **C29** (1984) 1908.
- 20) S. Pommé, E. Jacobs, K. Persyn, D. De Frenne, K. Govaert, and M. L. Yoneama :  
Nucl. Phys. **A560** (1993) 689.
- 21) S. Pommé, E. Jacobs, M. Piessens, D. De Frenne, K. Persyn, K. Govaert, and M. L.  
Yoneama : Nucl. Phys. **A572** (1994) 237.
- 22) S. Baba, H. Umezawa, and H. Baba : Nucl. Phys. **A175** (1971) 177.
- 23) M.-C. Duh, H. Baba, N. Takahashi, A. Yokoyama, T. Saito, S. Baba, and K. Hata :  
Nucl. Phys. **A550** (1992) 281.
- 24) H. Baba, T. Sekine, S. Baba, and H. Okashita : Japan Atomic Energy Research Insti-  
tute report, JAERI 1227 (1973).
- 25) U. Reus and W. Westmeier : At. Data and Nucl. Data Tables **29** (1983) 193.
- 26) S. M. Seltzer and M. J. Berger : At. Data and Nucl. Data Tables **35** (1986) 345.
- 27) N. Nitani and H. Baba : to be published in Japan Atomic Energy Research Institute  
M-report.
- 28) A. C. Wahl, R. L. Ferguson, D. R. Nethaway, D. E. Troutner, and K. Wolfsberg :  
Phys. Rev. **126** (1962) 1112.
- 29) A. C. Wahl : Proc. of the symposium on physics and chemistry of fission, Salzburg,  
vol. 1 (1965) p.317.

- 30) A. C. Wahl : At. Data and Nucl. Data Tables **39** (1988) 1.
- 31) F. Cheifetz and Z. Fraenkel : Phys. Rev. Lett. **21** (1968) 36.
- 32) S. C. Burnett, R. L. Ferguson, F. Plasil, and H. W. Schmitt : Phys. Rev. Lett. **21** (1968) 1350.
- 33) H. C. Britt and S. L. Whetstone, Jr. : Phys. Rev. **133** (1964) B603.
- 34) H. Umezawa, S. Baba, and H. Baba : Nucl. Phys. **A160** (1970) 65.
- 35) E. A. C. Crouch : At. Data and Nucl. Data Tables **19** (1977) 417.
- 36) H. Baba and S. Baba : Nucl. Phys. **A175** (1971) 199.
- 37) R. Vandenbosch and G. T. Seaborg : Phys. Rev. **110** (1958) 507.
- 38) W. D. Myers and W. J. Swiatecki : Nucl. Phys. **A81** (1966) 1.
- 39) H. Baba *et al.* : to be published.
- 40) M. Sano and S. Yamasaki : Prog. Theor. Phys. (Kyoto) **29** (1963) 397.
- 41) M. Sano and M. Wakai : Prog. Theor. Phys. (Kyoto) **47** (1972) 880.
- 42) M. Sano and M. Wakai : Prog. Theor. Phys. (Kyoto) **48** (1972) 160.

# Some Specific Features of the Recoil Behaviour of Central Metal Atoms in the Solid System of Water-Soluble Metalloporphyrin Ion Associates

H. Shoji

*Department of Chemistry, University of Tsukuba,  
Tsukuba, Ibaraki 305, Japan*

The recoil process accompanying the photonuclear reaction and thermal neutron capture was investigated in the bi-component solid system of water-soluble metalloporphyrin ion associates. Very preferable substitutions were observed in some combinations of central metals, which can be explained by the use of the stability order of metalloporphyrins proposed.

## §1. Introduction

In recoil chemistry of metal complexes, complex yields including the retention have been paid much attention to by many researchers. Generally speaking, a complex yield experimentally obtained is not always from a single reaction process, and which is very often the combined result of plural elementary reaction processes. In some cases it is very effective in the analysis of reaction mechanism to adopt the bi-component system, which may lead us to the hidden predominant factor of the reaction processes. Mixed crystals of isomorphous metal complexes have been usually used as the bi-component system. It is, however, very difficult to prepare microscopically homogeneous genuine mixed crystals. To avoid such preparative difficulties in keeping the advantage of bi-component systems, the author have been dealing with water-soluble metalloporphyrin ion associates as the bi-component system instead of the mixed crystal. This kind of ion associates was newly obtained by the author's group as the precipitates from the aqueous solution, which are thought to be microscopically homogeneous from the point of the necessary mutual electric neutralization.

## § 2. Experimental

Metal free ligands (water-soluble porphyrins : tetrakis ( 4 -N-methylpyridyl) porphine [  $H_2TMPyP$  ], tetra (p-carboxyphenyl) porphine [  $H_2TCPP$  ] and tetra (p-sulfophenyl) porphine [  $H_2TPPS$  ]) were purchased, which were mainly developed as the highly sensitive reagent for the spectroscopic determination of trace amount of heavy metal ions. It was mixed with a metal salt in an appropriate solvent. The solution was refluxed for several hours and the central metal atom was introduced. The water-soluble metalloporphyrin was collected in the form of the precipitate. After the purification by reprecipitation, the aqueous solution of each component complex was prepared. The solutions of the component metal complexes were mixed in ( 1 : 1 ) mole ratio and the mixed solution was left overnight or so. Then the precipitate of the ion associate formed. It was collected by filtration and purified by reprecipitation using mixed solvent of the aqueous solution of ammonium chloride, ammonia water and ethanol. Finally it was dried under the reduced pressure. The purified ion associate sample was checked by elemental analysis, spectroscopic measurement and powder X-ray diffraction before it was subjected to the irradiation.

Two kinds of irradiation were done, one was bremsstrahlung irradiation, the other thermal neutron irradiation. The bremsstrahlung irradiation was done in the 300-MeV electron linear accelerator of Tohoku University, Sendai, Japan, where Pt-converter was used. The irradiation was carried out at lower temperature than  $-130^{\circ}C$  and unconverted electrons were removed by a sweep magnet. The thermal neutron irradiation was done in TRIGA MARK II reactor of Rikkyo University, Yokosuka, Japan. The irradiation temperature was  $-78^{\circ}C$  and thermal neutron flux was  $1.5 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ .

Irradiated samples were dissolved in an ice-cooled above-mentioned mixed solvent containing necessary carriers. An aliquot of the solution was passed through the cation and anion exchanger columns. In the effluent from the anion exchanger column, the co-existing bare metal ions were removed in the form of the precipitate of metal carbamates, after adding the carrier for the precipitation. From one irradiated sample three counting samples were prepared.

The  $\gamma$ -spectra of these samples were measured using Ge (Li) or pure germanium detector and they were analysed by the computer system.

### § 3. Results and Discussion

A part of complex yields in the system of [ M (TMPyP) ] [ M' (TCPP) ] (M, M'=Cu, Zn) is shown in Table 1, where the only result in the case of the ion associates with different central metal atoms is shown.

Table 1. Complex Yields (%).

Sample Fraction	[ Zn(TMPyP) ] [ Cu(TCPP) ]		[ Cu(TMPyP) ] [ Zn(TCPP) ]	
	M(TMPyP)	M(TCPP)	M(TMPyP)	M(TCPP)
<sup>64</sup> Cu	9 ± 1	2.8±0.6	2.8±0.4	21 ± 2
	9.1±0.2	3.6±0.2	2.4±0.2	19.7±0.5
<sup>67</sup> Cu	9.0±0.1	3.0±0.1	2.5±0.1	22.1±0.3
	—	—	—	—
<sup>62</sup> Zn	2.3±0.4	3.8±0.3	3.3±0.4	4.6±0.5
	—	—	—	—
<sup>65</sup> Zn	2.2±0.4	3.6±0.5	4 ± 1	4.0±0.7
	2.4±0.1	3.6±0.1	3.3±0.2	2.7±0.3
<sup>69</sup> Zn	1.5±0.8	3.9±0.6	4.4±0.8	2 ± 2
	6.8±0.2	3.6±0.2	3.1±0.2	6.9±0.4

Upper value : Bremsstrahlung irradiation.

Lower value : Thermal neutron irradiation.

In these cases of different central metal atoms, copper nuclides very preferentially made their complexes in the Zn-complex side, not Cu-complex side in all the cases in both irradiation, while zinc nuclides showed rather uniform dispersion in both sides. This is the fundamental feature in this combination of central metal atoms and ligands. In addition, in thermal neutron irradiation, <sup>69m</sup>Zn always showed higher retention value than <sup>65</sup>Zn because of the difference of averaged recoil energy (<sup>69m</sup>Zn : 166 eV, <sup>65</sup>Zn : 446 eV) through the contribution of primary retention part without bond rupture. It is noteworthy that the probabilities of replacement of Zn by \*Cu are similar to each other in both irradiation, which leads us to the already common concept that the recoils react with neighbouring ligands after losing their initial high kinetic energy and/or high charge and that the

Table 2. Complex Yields (%).

Sample Fraction	[ Zn(TMPyP) ]	[ Cu(TPPS) ]	[ Cu(TMPyP) ]	[ Zn(TPPS) ]
	M(TMPyP)	M(TPPS)	M(TMPyP)	M(TPPS)
<sup>64</sup> Cu	0.5±0.1	2.5±0.3	0.6±0.3	2.8±0.9
	0.5±0.1	2.2±0.1	1.1±0.1	2.8±0.9
<sup>67</sup> Cu	0.5±0.1	2.5±0.3	0.5±0.2	2.6±0.2
	—	—	—	—
<sup>62</sup> Zn	0.5±0.1	2.4±0.2	1.1±0.2	0.7±0.2
	—	—	—	—
<sup>65</sup> Zn	0.9±0.3	2.7±0.3	1.2±0.4	1.0±0.2
	0.8±0.2	2.5±0.2	1.4±0.2	1.0±0.1
<sup>69</sup> Zn	0.6±0.2	2.7±0.2	1.2±0.3	0.8±0.3
	3.3±0.3	2.3±0.1	1.8±0.2	3.4±0.4

Upper and lower values are in the same case as in Table 1.

reaction probabilities are therefore almost independent of the nuclear reaction or initial recoil energy.

The negatively charged component complex ions were changed from M(TCPP) to M(TPPS) keeping other conditions unchanged. Curiously the anomalous preferential substitution of <sup>64</sup>Cu to stable Zn central atoms disappeared as shown in Table 2. The only remaining common tendency was the influence of averaged recoil energy to the primary retention of zinc nuclides in thermal neutron irradiation.

Then the combination of central metal atoms was changed from Cu-Zn, Zn-Cu to Cu-Co, Co-Cu. So another new tendency was found as shown in Table 3. It was that recoiling cobalt always showed much higher affinity to ligand TMPyP than to TPPS. Although its reaction mechanism cannot be clearly explained in detail yet, this is also thought to be one evidence that the final fate of the recoils is determined at a later chemical reaction stage.

In order to confirm any contribution through the dynamical process such as billiard ball-like to the complex formation, Zn and Cd were chosen for the central metal, which belong

Table 3. Complex Yields (%).

Sample Fraction	[ Cu(TMPyP) ]	[ Co(TPPS) ]	[ Co(TMPyP) ]	[ Cu(TPPS) ]
	M(TMPyP)	M(TPPS)	M(TMPyP)	M(TPPS)
<sup>64</sup> Cu	0.7±0.2	1.7±0.3	~0	1.8±0.4
	1.5±0.2	1.4±0.1	0.2±0.1	1.4±0.2
<sup>57</sup> Cu	19.0±0.8	4.7±0.4	15.6±1.3	4.1±0.6
	—	—	—	—
<sup>58</sup> Co	17.6±0.2	4.7±0.2	14.7±0.7	3.3±0.1
	—	—	—	—
<sup>60</sup> Co	—	—	—	—
	12.0±0.2	3.4±0.1	10.5±0.1	4.7±0.1

Upper and lower values are in the same case as in Table 1.

Table 4. Complex Yields (%).

Sample Fraction	[ Zn(TMPyP) ]	[ Cd(TPPS) ]	[ Cd(TMPyP) ]	[ Zn(TPPS) ]
	M(TMPyP)	M(TPPS)	M(TMPyP)	M(TPPS)
<sup>67</sup> Cu	7±2	80±1.5	29±4.5	14±3
	—	—	—	—
<sup>65</sup> Zn	1.9±0.2	32±10	15±4.5	2±1
	2±1	30±12	25±6.5	5±3
<sup>69m</sup> Zn	2.5±0.7	35±9	21±4.5	5±2
	6±2	31±11	26±7	13±5
<sup>115</sup> Cd	1.0±0.8	15±3	8±3	2±1
	0.09±0.05	10.7±0.6	4±1.5	0.6±0.2

Upper and lower values are in the same case as in Table 1.

to the same family on the periodic table with large mass difference between them. Table 4 represents the complex yields experimentally obtained. It is clearly shown that all the nuclides concerned very preferentially made complexes in the Cd-complex side, not the Zn-

side.

This is the special fundamental feature of this combination of central metal atoms. X-ray data show that large cadmium ions cannot be retained within the porphyrin ring plane, which causes the remarkably large unstability of the Cd-complex. From these data it was also concluded that the chemical reaction process was predominant and that no contribution of dynamical process could be found.

As for the stability order among the metalloporphyrins, two kinds of criteria have been proposed. One is called "Stability Class", which is based on the easiness of demetallization with the treatment of the reagent with various reactivity<sup>1,2)</sup>. Another criterion is called "Stability Index", the definition of which is valence times Pauling's electronegativity divided by ionic radius<sup>3)</sup>. Although in a few positions these two criteria have shown inconsistency, in almost all the cases they appear to be consistent with each other. According to the "Stability Index", we can make stability order of metalloporphyrin complexes as in the following :

Pd> Ni> Cu> Pt> Co> Fe> Zn> Sn> Pb Hg> Mn> Mg> Cd>>Ca> Sr> Ba

In this study the underlined four complexes were concerned. Cd-complex is located at a much weaker position than the other three. Preferential substitution of a kind of metal recoils to the other kind of central metal atoms may be explained by using this stability order of the complex. However, the preferential substitution to the central metal atoms does not always takes place. It is concluded that in the water-soluble metalloporphyrin ion associate system, complex formation by recoils is dominated by plural factors, one of which has to be the stability of the component complex but some other factors do exist. For the further consideration, structural analysis of each complex ion associate using a single crystal is essential, which has not been successful yet.

The author expresses his hearty thanks to Dr.Kazuyoshi Masumoto, Dr.Tsutomu Ohtsuki and all the members of LINAC machine group of this Laboratory for their great efforts in doing this work. The author is also very grateful to Professor Tsutomu Sekine of Department of Chemistry for his very valuable and kind cooperation.



### References

- 1) J. W. Buchler : *Habilitationsschrift* (Technische Hochschule, Aachen, 1971).
- 2) J. W. Buchler, L. Puppe, K. Rohbock and H. H. Schneehagee : *Ann. N.Y. Acad. Sci.* **206** (1973) 116.
- 3) K. M. Smith : *Porphyrins and Metalloporphyrins* (Elsevier Scientific Publishing Co., 1975).

## 有機ホスホン酸含浸液体膜による イットリウムと鉄(Ⅲ)の分離

素材研

中村重人・伊藤正裕・秋葉健一

### § 1. はじめに

レアアースはトリウム、鉄をともなって産出することが多く、これらとの分離や回収が大きな課題となる。特に鉄は普遍的に分布しその存在量も多いため、それとの効率良い分離が求められる。ジ(2-エチルヘキシル)リン酸 (DEHPA) 等の酸性有機リン系抽出剤はレアアースに対し、高い抽出能や選択性を持っている<sup>1-4)</sup>。しかしながら、抽出平衡時にはレアアースとともに Fe(Ⅲ)も容易に抽出される。レアアースとの分離には Fe(Ⅲ)をあらかじめ除去する、あるいは Fe(Ⅲ)を抽出されにくい Fe(Ⅱ)へ還元する等の方法があるが、それらの特別な鉄の処理を最小限にする簡便な分離過程が望まれる。

一方、抽出速度はレアアースの方が Fe(Ⅲ)よりも速い。DEHPA によるイットリウム(Ⅲ)の抽出において Fe(Ⅲ)の抽出および逆抽出速度の遅いことを利用して短時間の抽出と逆抽出操作により Y(Ⅲ)の分離を向上させることができる<sup>5)</sup>。

液体膜輸送は、溶媒抽出法に基礎をおく金属の分離濃縮法であり、レアアースに対し種々の有機リン系抽出剤が輸送担体として用いられている<sup>6,7)</sup>。液体膜輸送においては供給相から液体膜への金属の抽出、また受容相への逆抽出の条件が重要であり、これが輸送の駆動力となる。これら静的要因とともに、各プロセスでの反応速度や拡散速度などの動的要因により、輸送速度は大きく影響をうける。レアアースと Fe(Ⅲ)の液体膜輸送を考えると、Fe(Ⅲ)は遅い抽出反応に加えて遅い逆抽出の影響が加重されて輸送が抑えられ、レアアースを優先的に輸送、分離することが可能になると考えられる。

本研究ではレアアースの中から最も重要な元素の1つである Y(Ⅲ)を選び、Fe(Ⅲ)との含浸型液体膜輸送による分離について検討した。輸送担体としては2-エチルヘキシルホスホン酸モノ-2-エチルヘキシルエステル (EHPA) を用いた。これは DEHPA と同程度の分離能を持つが、抽出力が小さいために逆抽出において高濃度の酸を使わなくても良いという利点があり、抽出-逆抽出の組み合わせである液体膜の輸送担体として有望である。

## § 2. 実 験

### 2. 1 試薬

トレーサーとして用いた $^{88}\text{Y}$  ( $t_{1/2}=105\text{d}$ ) は、東北大学理学部原子核理学研究施設の電子ライナックからの制動放射線を用いてイットリウム酸化物を照射し、 $^{89}\text{Y}(\gamma, n)^{88}\text{Y}$  反応により製造した。 $^{59}\text{Fe}$  ( $t_{1/2}=45\text{d}$ ) は DuPont/NEN Research Products 社製を使用した。

2-エチルヘキシルホスホン酸モノ-2-エチルヘキシルエステル (EHPA, HA ; 大八化学工業所製, 商品名 PC-88A) は二塩基酸不純物をアルカリ溶液で洗浄することにより除去したものをを用いた。純度は94.05%であった。

### 2. 2 液-液抽出

各トレーサーでラベルした $10^{-4}\text{M}$  Y(III) または Fe(III) を含む硫酸溶液と $0.1\text{M}$  (EHPA) $_2$  のケロシン溶液を $25^\circ\text{C}$ , 260回/分で振とう後, 両相の放射能を NaI(Tl) 井戸型シンチレーション検出器により測定して分配比  $D$  を求めた。逆抽出は,  $10^{-4}\text{M}$  Y(III) または Fe(III) を $10^{-2}\text{M}$   $\text{H}_2\text{SO}_4$  溶液からすべて抽出した有機相と新たな水相を振とうして分配比を求めた。

### 2. 3 液体膜輸送

実験装置は二重のポリエチレン製の円筒容器からなる<sup>8)</sup>。内部容器の下部に液体膜の支持体となる疎水性多孔質のポリテトラフルオロエチレン膜 (フロロポア FP-045 ; 住友電工, 膜厚  $80\ \mu\text{m}$ , 平均孔径  $0.45\ \mu\text{m}$ , 気孔率74%) を装着してある。これに $0.1\text{M}$  (EHPA) $_2$  を含むケロシン溶液をしみ込ませて含浸型液体膜 (Supported Liquid Membrane, SLM, 膜面積 $26\text{cm}^2$ ) を調製した。この内部容器に逆抽出用の水溶液 (Product)  $10\text{cm}^3$  を入れ, 各トレーサーでラベルした $10^{-4}\text{M}$  の Y(III) および Fe(III) を含む溶液 (Feed)  $100\text{cm}^3$  の入った外部容器内に浮かべる。装置全体を $25^\circ\text{C}$  の恒温槽内で水平方向に150回/分で振とうし, 一定時間毎にそれぞれの溶液から $2\text{cm}^3$  ずつ溶液を採取し,  $\gamma$  放射能を測定した。採取した溶液は放射能測定後再び容器内に戻した。

## § 3. 結果と考察

### 3. 1 Y(III) と Fe(III) の液-液抽出

液体膜輸送の溶液条件等の選択の目安とするため, Y(III) と Fe(III) の液-液抽出の速度と平衡について検討した。

擬一次の正および逆抽出速度定数をそれぞれ  $k_f$ ,  $k_b$  とすると, 水相中の金属濃度  $[M]$  の時間変化は次式により表される。

第1表 Extraction rate constants, extraction constants and separation factors.

Constant	Y(III)	Fe(III)	Separation factor
$k_f$	$5.52 \times 10^{-3}$	$4.79 \times 10^{-4}$	11.5 ( $k_{f,Y} / k_{f,Fe}$ )
$k_b$	$3.70 \times 10^{-3}$	$2.94 \times 10^{-4}$	12.6 ( $k_{b,Y} / k_{b,Fe}$ )
$K_{ex}$	4.7	420	90 ( $K_{ex,Fe} / K_{ex,Y}$ )

$$-\frac{d[M]_{aq}}{dt} = k_f[M]_{aq} - k_b[M]_{org} \quad (1)$$

これを解くことにより以下の式が得られる。

$$k_f \cdot t = \frac{[M]_{org,e}}{[M]_0} \cdot \ln \left[ \frac{[M]_0 - [M]_{aq,e}}{[M]_{aq,t} - [M]_{aq,e}} \right] \quad (2)$$

$$k_b \cdot t = \frac{[M]_{aq,e}}{[M]_0} \cdot \ln \left[ \frac{[M]_0 - [M]_{org,e}}{[M]_{org,t} - [M]_{org,e}} \right] \quad (3)$$

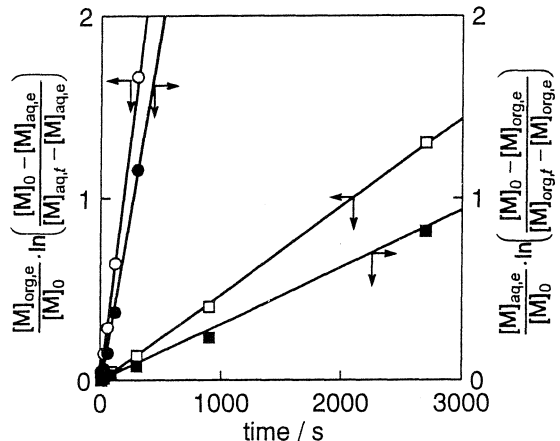
ここで  $[M]_{aq,e}$ ,  $[M]_{org,e}$  はそれぞれ抽出平衡時の水相, 有機相中の金属濃度,  $[M]_0$  は初期濃度を示す。

0.1M  $H_2SO_4$  溶液から0.1M(EHPA)<sub>2</sub>のケロシン溶液にY(III)およびFe(III)を抽出した時の時間に対する(2)式右辺の値をプロットしたものを第1図に示す。それぞれのプロットは直線となりその勾配から擬一次の正抽出速度定数が得られた。その値を第1表に示す。

$k_f$ 値はFe(III)よりもY(III)の方が10倍以上大きいことが分かる。

Y(III)およびFe(III)を0.1M(EHPA)<sub>2</sub>ケロシン溶液から1M  $H_2SO_4$ 溶液に逆抽出した時の(3)式右辺の値をプロットしたものを第1図に併せて示す。それぞれのプロットの直線の勾配から擬一次の逆抽出速度定数が得られ, その値を第1表に示す。 $k_b$ 値もFe(III)よりY(III)の方が大きい。

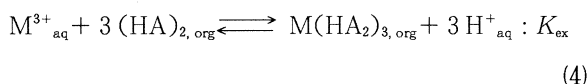
正抽出では, Y(III)では約20分以上で, Fe(III)では約10時間以上で分配



第1図 The first-order rate expression as a function of time. 0.1M (EHPA)<sub>2</sub> in kerosene.

○●: Y(III), □■: Fe(III), Open: forward extraction from 0.1M  $H_2SO_4$ , closed: backward extraction into 1M  $H_2SO_4$ .

比が一定となり、また逆抽出では、Y(III)で約30分以上で、Fe(III)では約6時間以上で一定値となった。このことから、振とう時間を、Y(III)では1時間、Fe(III)では24時間として、抽出平衡時における分配比の硫酸濃度依存性を求め、第2図に示す。プロットはY(III)では傾き-3.04、Fe(III)では-2.92となって-3に近い値となった。抽出平衡は(4)式で表される。

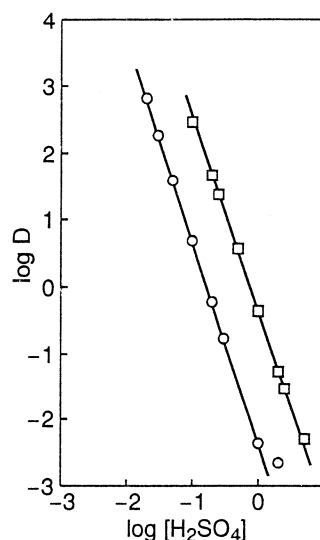


抽出定数  $K_{ex}$  を求め、第1表に併せて示す。抽出平衡時ではY(III)よりFe(III)の方が抽出は大きくなり、分離係数も大きい値を持つ。しかし、抽出平衡に達するまで長時間を要し、またFe(III)の逆抽出が速度的にも平衡上からも不利であることから、抽出速度の差を利用した分離法の方が良いと考えられる。

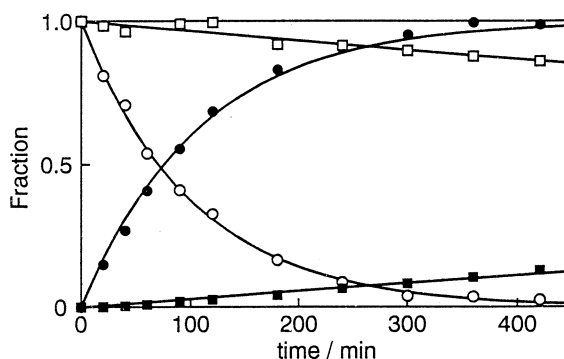
### 3.2 Y(III)とFe(III)の液体膜輸送

正抽出および逆抽出速度ともにY(III)の方がFe(III)より大きいことから、この抽出系を液体膜に適用した場合、Y(III)が優先的に輸送されると考えられる。Y(III)の抽出平衡時のデータから、0.1M (EHPA)<sub>2</sub>を含むSLMを用いて、Feed側を0.01M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>溶液からの抽出、Product側を1M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>溶液への逆抽出

とすればY(III)を効果的に輸送できると予想される。この設定した条件で液体膜輸送実験を行い、その結果を第3図に示す。横軸は振とう時間、縦軸はそれぞれの金属の全量に対するFeedおよびProduct中の割合を示す。Feed中のY(III)は時間と共に減少し、一方Product中のY(III)は時間と共に増加している。Feed中の減少とProduct中の増加はほぼ対称で、



第2図 Equilibrium distribution ratios of Y(III) and Fe(III) as a function of H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.  
0.1M (EHPA)<sub>2</sub> in kerosene.  
○ : Y(III) at 1 h ; □ : Fe(III) at 24h.

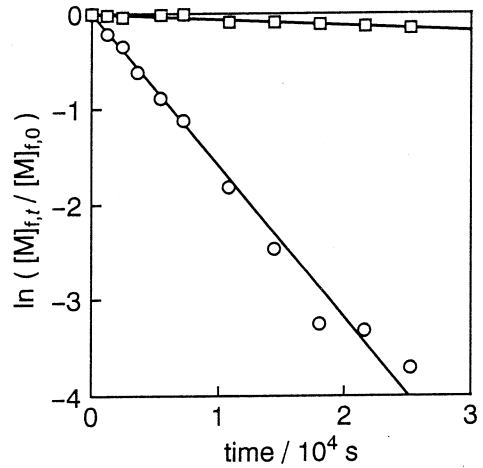


第3図 Transport of Y(III) and Fe(III) across SLM containing 0.1M (EHPA)<sub>2</sub> in kerosene.  
Membrane area : 26cm<sup>2</sup>. Feed : 0.01M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, 100cm<sup>3</sup>; product : 1 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, 10cm<sup>3</sup>. ○● : Y(III), □■ : Fe(III). Open : feed ; closed : product.

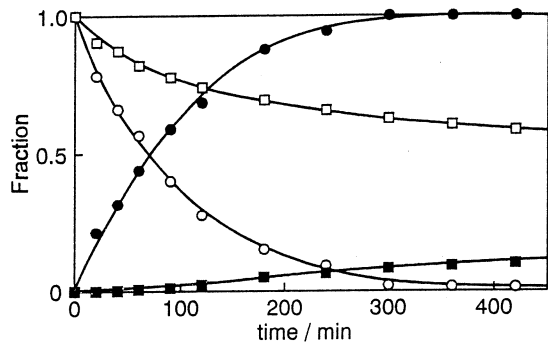
Y(III)は膜内への滞留が少ないことが分かる。Y(III)は7時間ではほぼ定量的に輸送が行われ、この際 Feed と Product の体積比が10 : 1であることから Y(III)は10倍に濃縮でき、低濃度の溶液から高濃度の溶液へ能動輸送されることが分かる。一方 Fe(III)は Feed 側でわずかに減少し、Product 側へ輸送されているが、その速度は小さい。時間  $t$  における Feed 中の金属イオンの割合の対数をと、これを時間に対してプロットすると、第4図に示すようにそれぞれ直線となる。従って(5)式が成立し、勾配から見かけの輸送速度定数  $k_{f, \text{obs}}$  が得られる。

$$\ln \left[ \frac{[M]_{f,t}}{[M]_{f,0}} \right] = k_{f, \text{obs}} \cdot t \quad (5)$$

ここで  $[M]_{f,t}$ ,  $[M]_{f,0}$  は時間  $t$  および初期の Feed 中の金属イオン濃度を表す。Y(III)については  $k_{f, \text{obs}} = 1.47 \times 10^{-4} \text{s}^{-1}$ , また Fe(III)については  $6.00 \times 10^{-6} \text{s}^{-1}$  となり、Fe(III)の輸送速度は Y(III)に比べてかなり小さいことが分かる。7時間後には Product 側の Y(III)は約99%となり、ほぼ定量的に輸送されるのに対して、Fe(III)の Product への輸送は約13%にすぎない。抽出平衡時の分配比は Fe(III)の方が Y(III)より大きいことから Fe(III)の方が多く輸送される可能性も予想されるが、Fe(III)の抽出ならびに逆抽出速度が遅いためその輸送が抑えられたと考えられる。輸送速度の比 ( $k_{f, \text{obs}}(\text{Y}) / k_{f, \text{obs}}(\text{Fe})$ ) を液体膜輸送における分離係数とすると24.5となり、正抽出速度から得られた分離係数と比べより大きい値となった。液体膜では抽出、逆抽出の二段階の過程が同時に進行し、それぞれが相互に影響を及ぼすと考えられ、正抽出速度の小さい Fe(III)の輸送が、遅い逆抽出の



第4図 The decreasing rate of Y(III) and Fe(III) in the feed solution.  $\circ$  : Y(III);  $\square$  : Fe(III).



第5図 Transport of Y(III) and Fe(III) in the nitric acid system. SLM : 0.1M (EHPA)<sub>2</sub> in kerosene; feed : 0.01M HNO<sub>3</sub>; product : 1 M HNO<sub>3</sub>.  $\circ$  ● : Y(III),  $\square$  ■ : Fe(III). Open : feed; closed : product.

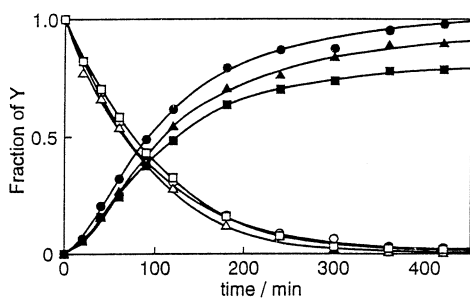
ためにより低下すると思われる。

Feed 溶液, Product 溶液に使用する酸を硫酸から硝酸に換えて液体膜輸送を行った。酸の違い以外は, 濃度等全ての条件を同一にして硫酸系と硝酸系とを比較検討した。その結果を第5図に示す。Y(III)は硫酸の場合と同様にスムーズに Feed から Product へ定量的に輸送されていることが分かる。Fe(III)の場合は Feed 中の減少は大きくなったが, Product 中に輸送された Fe(III)の割合は少なく, 膜内に多量の Fe(III)が滞留していることが分かる。硝酸系の輸送でも Y(III)は優先的に Product 側へ輸送され, Fe(III)との分離が可能であるが, 液体膜に Fe(III)が滞留する問題がある。

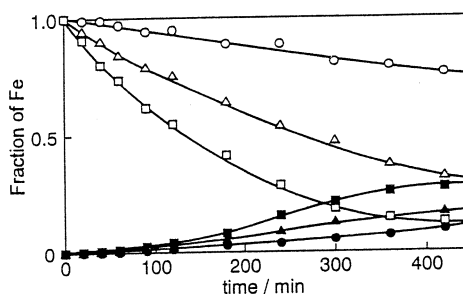
### 3.3 Feed 溶液の pH の影響

Feed の pH を変えたときの Y(III)と Fe(III)の輸送をそれぞれ第6図と第7図に示す。Feed の pH の増加により Y(III)の輸送速度はあまり変わらないが, Fe(III)は Feed 側の減少速度が大きくなった。Feed の pH の増加により, Fe(III)の抽出平衡における分配比が増加し, 抽出速度も増加するためと考えられる。また, Fe(III)では Feed と Product のプロットは非対称となって, SLM 中に Fe(III)が大量に滞留していることが分かる。これは Fe(III)の逆抽出速度が遅いので Product への移行が遅れるためと考えられ, Y(III)との分離にはよい方に働いている。

Feed の pH の増加とともに Fe(III)の回収率も増すことから, Feed 溶液の pH の値は 2~2.5 付近がよいと考えられる。



第6図 Effect of pH of the feed solution on the transport of Y(III).  
SLM : 0.1M (EHPA)<sub>2</sub> in kerosene ;  
product : 1 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> ; feed : 0.1M (H,Na)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>. ○● : pH2.51, △▲ : pH3.01, □■ : pH3.47. Open : feed ; closed : product.



第7図 Effect of pH of the feed solution on the transport of Fe(III).  
Experimental conditions are same as the preceding figure.

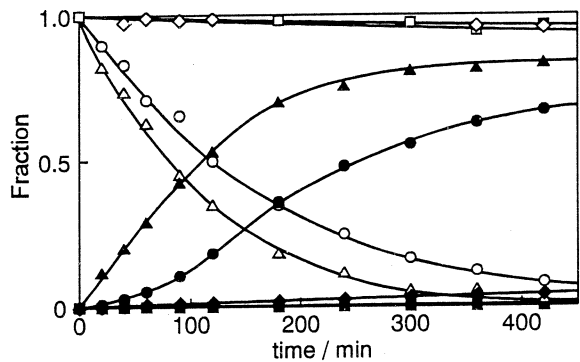
### 3.4 Product 溶液の硫酸濃度の影響

Product 溶液の硫酸濃度の違いによる Y(III) と Fe(III) の輸送を第 8 図に示す。硫酸濃度が 0.5 M と低い時、Feed 側の Y(III) の減少速度と比べ、Product 側の増加が遅れており液体膜に Y(III) が滞留している。これは Product 溶液の硫酸濃度が低いため、逆抽出が不十分であると考えられる。

Product 溶液の硫酸濃度を高くすることにより Y(III) の輸送が改善された。一方、Fe(III) の Product 側での回収率も硫酸濃度を上げるにより増加するが、その増加は小さい。

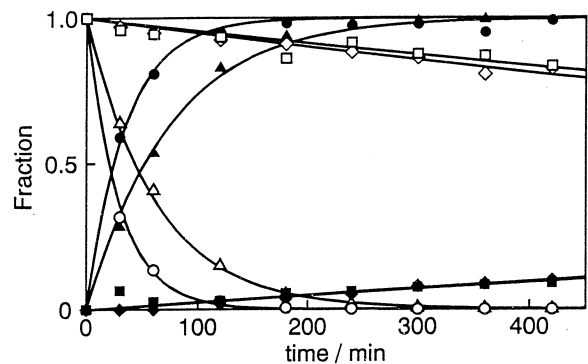
### 3.5 膜面積の影響

Y(III) の輸送速度を大きくするために、面積の大きい支持膜を用いて液体膜輸送を行った。このときは Y(III) の濃縮を考えず、Product 溶液を 100 cm<sup>3</sup> にして実験を行った。膜面積が 26 cm<sup>2</sup> および 32 cm<sup>2</sup> で行った輸送結果を第 9 図に示す。膜面積が大きくなると Fe(III) の輸送には大きな影響はないが Y(III) の輸送速度は著しく大きくなり、3 時間で定量的輸送に至っている。32 cm<sup>2</sup> での輸送速度は、Y(III) については  $k_{f,obs} = 4.58 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ 、また Fe(III) については  $7.61 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ 、分離係数は 60.2 と高い値となった。膜面積の増加は Y(III) の輸送速度を大きくして Fe(III) との分離を向上させるのに役立つ。



第 8 図 Effect of sulfuric concentration in the product solution.

SLM : 0.1M (EHPA)<sub>2</sub> in kerosene ; feed : 0.5 M (H,Na)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, pH2.51. ○● : Y(III), 0.5M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> ; △▲ : Y(III), 4 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> ; □■ : Fe(III), 0.5M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> ; ◇◆ : Fe(III), 4M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>. Open : feed ; closed : product.



第 9 図 Transport of Y(III) and Fe(III) across SLM having different area.

Feed : 0.01M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, 100cm<sup>3</sup> ; product : 1 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, 100cm<sup>3</sup>. SLM : 0.1M (EHPA)<sub>2</sub> in kerosene ; ○● : Y(III), 32cm<sup>2</sup> ; △▲ : Y(III), 26cm<sup>2</sup> ; □■ : Fe(III), 32cm<sup>2</sup> ; ◇◆ : Fe(III), 26cm<sup>2</sup>. Open : feed ; closed : product.



本研究にあたり， $^{88}\text{Y}$ の製造にご協力いただきました榎本和義博士ならびにマシングループの方々に感謝致します。

### 参 考 文 献

- 1) D. F. Peppard, G. W. Mason, J. L. Maier and W. J. Driscoll : J. Inorg. Nucl. Chem. **4** (1957) 334.
- 2) T. B. Pierce and P. F. Peck : Analyst **88** (1963) 217.
- 3) Y. Minagawa and F. Yajima : Bull. Chem. Soc. Jpn. **65** (1992) 29.
- 4) K. Akiba, K. Yamada and S. Nakamura : J. Chem. Soc. Jpn. (1993) 555.
- 5) K. Akiba and H. Hashimoto : Solvent Extr. Res. Develop. Jpn. **1** (1994) 137.
- 6) H. Matsuyama, K. Komori and T. Teramoto : J. Membrane Sci. **47** (1989) 217.
- 7) S. Nakamura, M. Takeyasu and K. Akiba : J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles **181** (1994) 281.
- 8) K. Akiba and T. Kanno : Sep. Sci. Technol. **18** (1983) 831.

# 混合ゼオライト焼成固化体からの Cs と Sr の浸出挙動

素材研

三村 均・山岸 功・秋葉健一

## § 1. はじめに

無機イオン交換体は、耐放射線性が高くイオン選択性に優れており、放射性廃液中に含まれる<sup>137</sup>Cs および<sup>90</sup>Sr等の放射性核種を、選択的に分離し固定化するための有効な吸着剤である。無機イオン交換体の一種であるゼオライトは、三次元カゴ型構造を有し、種類により<sup>137</sup>Cs や<sup>90</sup>Srに高い選択性を示すことが知られている<sup>1, 2)</sup>。このため、混合ゼオライトを用いて、これらの核種を一括して分離し、高温焼成することにより固化体中に両核種を固定化することが可能と考えられる<sup>3, 4)</sup>。

本研究では、Na<sup>+</sup>が共存する Cs および Sr の放射性溶液から、混合ゼオライトカラムを用いて Cs と Sr を分離し、これら核種を固定した混合ゼオライト焼成固化体からの Cs と Sr の浸出性について検討した。

## § 2. 実 験

### 2.1 ゼオライト試料

本実験で用いたゼオライト試料の化学組成および Cs と Sr に対するイオン交換容量を第1表に示す。Sr に高い選択性を示すゼオライトとして、A型ゼオライト (Baylith T-144, バイエル社製, 以下 A と略す) および X 型ゼオライト (Baylith W-894, バイエル社製, 以下 X と略す) を、Cs に選択性の高いものとして、シャバサイト (IE-96, リンデ社製, 以下 C と略す) およびモルデナイト (Zeolon 900Na, ノートン社製, 以下 M と略す) を使用した。各ゼオラ

第1表 ゼオライトの化学組成および Cs と Sr の交換容量

Zeolite	Type	Typical Unit Cell Content	Si/Al	$E_{Cs}^*$	$E_{Sr}^{**}$
A	Baylith T-144	$Na_{12} [(AlO_2)_{12}(SiO_2)_{12}] 27H_2O$	1	223	552
X	Baylith W-894	$Na_{86} [(AlO_2)_{86}(SiO_2)_{106}] 264H_2O$	1.23	262	419
Chabazite	IE-96	$Na_4 [(AlO_2)_4(SiO_2)_8] 13H_2O$	2	207	390
Mordenite	Zeolon 900Na	$Na_{8.7} [(AlO_2)_{8.7}(SiO_2)_{39.3}] 24H_2O$	4.52	196	218

\*  $E_{Cs}$ : Cs<sup>+</sup>のイオン交換容量 (meq/100gゼオライト)

\*\*  $E_{Sr}$ : Sr<sup>2+</sup>のイオン交換容量 (meq/100gゼオライト)

イトは、メノウ乳鉢で粉碎し32～48メッシュに分級した。水洗乾燥後、飽和塩化アンモニウム溶液の入った密封容器中に2日間以上静置したものを実験に使用した。

## 2.2 吸着実験

25℃に保持した外套付きカラム（10mm  $\phi$  × 150mmL）に、予め脱気したゼオライト混合体（1g）を充填した。フィード溶液として、 $^{137}\text{Cs}$ と $^{85}\text{Sr}$ をトレーサーとして含むRI溶液（1,000 ppm  $\text{Cs}^+$ 、1,000 ppm  $\text{Sr}^{2+}$ 、1,350 ppm  $\text{Na}^+$ ）350 cm<sup>3</sup>を、定量ポンプによりカラムに一定流速（空間速度（SV）25/h）で通液した。

$^{137}\text{Cs}$ は、日本アイソトープ協会から購入し希釈して用いた。 $^{85}\text{Sr}$ は、 $^{86}\text{Sr}$ を濃縮した $\text{SrCO}_3$ をターゲットとし、LINACの制動放射線を利用して、 $^{86}\text{Sr}(\gamma, n)^{85}\text{Sr}$ 反応により製造した。ゼオライトの混合系は、C/A、M/A、C/X、およびM/Xとし、混合比は1 : 3、1 : 1および3 : 1とした。各ゼオライト単独で用いた場合の実験も行った。

## 2.3 焼成固化体の製造

$^{137}\text{Cs}$ および $^{85}\text{Sr}$ を吸着後、カラムからゼオライトを取り出し、水洗乾燥後、グローブボックス内で粉碎した。粉末試料は、プレス圧350 kgf/cm<sup>2</sup>でディスク状に加圧成型し、成型体を管状炉でアルゴンガスを一定流速（45 cm<sup>3</sup>/min）で流しながら1,050℃で3時間焼成した。なお、不活性ガス雰囲気中で焼成したため、揮発種である $\text{Cs}_2\text{O}$ の生成が抑えられ、固化体からのCsの揮発は認められなかった<sup>5)</sup>。

## 2.4 浸出実験

焼成固化体中の $^{137}\text{Cs}$ および $^{85}\text{Sr}$ の $\gamma$ 放射能を、予めGe半導体検出器（CANBERRA Series 35 PLUS）で測定した。焼成固化体をテフロン製容器中で、蒸留水または0.1 M（=mol/dm<sup>3</sup>）HCl溶液50 cm<sup>3</sup>と25℃で接触させ浸出実験を行った。浸出液としては、HCl溶液によりpH 1～5まで変化させた実験も行った。浸出液は24時間毎に新たに交換し、遠心分離（3,000 rpm、10分）した後、上澄み液を3 cm<sup>3</sup>採取して $\gamma$ 放射能を測定した。なお、浸出液のカウント数が低い場合には10 cm<sup>3</sup>に濃縮し、遠心分離後上澄み液3 cm<sup>3</sup>の放射能を再度測定した。浸出率（%）は固化体中の初期放射能に対する浸出液中の放射能の百分率として求めた。

# § 3. 結果と考察

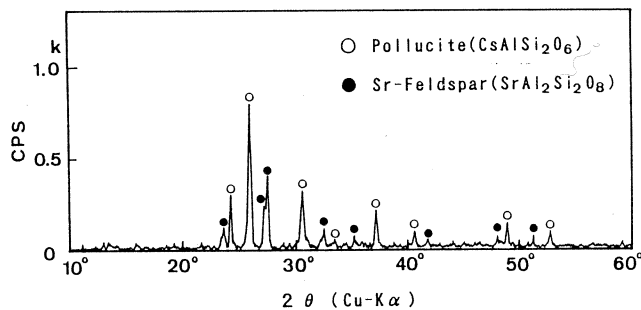
## 3.1 混合ゼオライトへのCsとSrの交換容量

カラム通液後、ゼオライトに吸着した $^{137}\text{Cs}$ および $^{85}\text{Sr}$ の $\gamma$ 放射能を測定し、各核種の交換容量を算出した。一例として、シャバサイト/A混合系における、CsとSrの交換容量と混合率

との関係を第1図に示す。Csに選択性の高いシャバサイトの混合率が増加するとCsの交換容量が増大し、Srに選択性の高いA型ゼオライトが増すとSrの交換容量が増す。このように交換容量と混合率との間にほぼ直線関係が認められた。この傾向は全ての混合系で認められた。なお、交点はA型ゼオライト混合率33 wt%に相当し、両核種を109 meq/100g・ゼオライトの交換容量で一括して分離できる混合率である。

### 3.2 焼成固化体の固定相

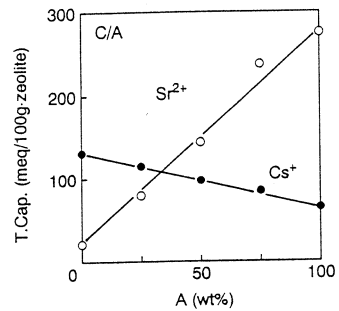
シャバサイト/X混合系で混合比を1:3とした場合の、焼成固化体の粉末X線回折像を第2図に示す。固定相としてポルサイト ( $\text{CaAlSi}_2\text{O}_6$ ) およびSr長石 ( $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ , 三斜晶系) が観察され、Csを吸着したシャバサイトが高温でポルサイトに、Srを吸着したX型ゼオライトがSr長石に相変化したものと考えられる<sup>6,7)</sup>。C/A混合系でも同様の固定相が観察された。一方、M/AおよびM/X混合系ではSr長石のみ観察され、Csの固定相は認められなかった。Csを飽和吸着したモルデナイトは  $\text{CsAlSi}_5\text{O}_{12}$  相に変換すると報告されているが<sup>8)</sup>、本研究ではCsの交換率が単独系に比べて低下しているため非晶質になると考えられる。なお、カラム通液後、混合ゼオライトからモルデナイトのみ選別し高温で焼成すると、非晶質であることを確認している。



第2図 シャバサイト/X混合ゼオライト焼成体の粉末X線回折像

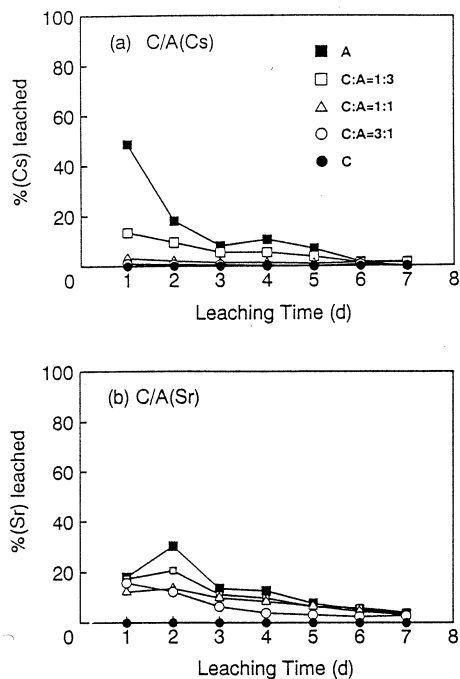
### 3.3 CsとSrの浸出性

固化体の浸出性は、その中に含まれている放射性核種の環境中への移行を評価する上で重要な因子である。本研究では、放射性核種を直接固定したゼオライト焼成固化体からのCsとSrの浸出性を、ゼオライトの混合率および浸出液の条件を変化させて調べた。



第1図 シャバサイト/A混合ゼオライトにおける交換容量と混合比率との関係

第3図 (a) および (b) は、シャバサイト/A型ゼオライトの混合比率を変えて作製した焼成固化体からのCsとSrの浸出率の経時変化を示す。CsおよびSrの浸出率は経過時間と共に低下する傾向が認められた。また、シャバサイトの混合比が増加すると浸出率は低下した。Csの浸出では、A型ゼオライト単独で作製した固化体では7日までの浸出率を積算すると97%に達しているが、シャバサイトを50 wt%添加 (C:A=1:1) することにより15%以下まで低下し、浸出性の向上が認められた。いずれの固化体でも6日以降のCs浸出率は数%以下に低下した。Srの浸出では、シャバサイト単独では浸出は認められないが、A型ゼオライト混合率の増加にともない浸出率は増加し、7日振とう後でも5%程度の浸出が認められた。

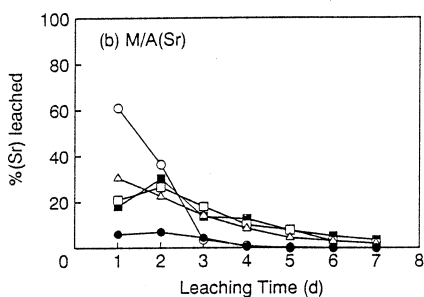
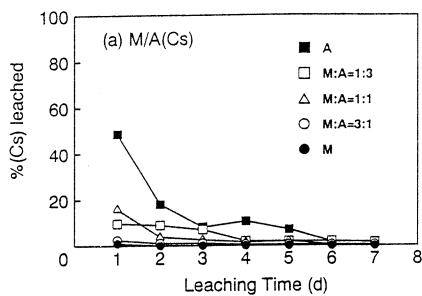


第3図 混合ゼオライト (C/A) 焼成固化体からのCsとSrの浸出性pH 1, 25°C

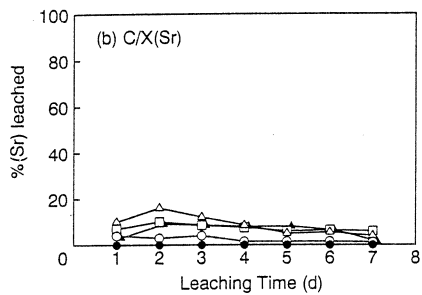
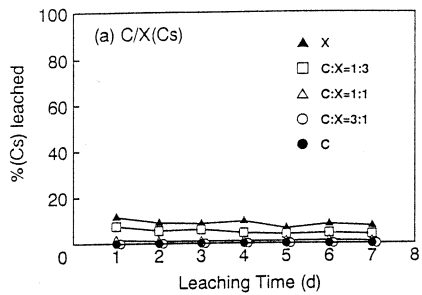
第4図 (a) および (b) は、モルデナイト/A型ゼオライト混合系での、焼成固化体からのCsとSr浸出率の経時変化を示す。浸出率は経過時間と共に低下し、モルデナイトの混合比が増加すると浸出率は低下した。Csの浸出では、モルデナイト単独および混合比3:1で作製した固化体からの浸出は、2日以降は検出限界以下であった。Srの浸出では、モルデナイト単独の場合でも4日まで浸出が認められた。シャバサイト単独では、Srの固定相としてSr長石が結晶化したのに対して、モルデナイト単独ではこの固定相が発現せず、非晶質であることが原因と考えられる。初期3日目までのSr浸出率は、C/A系に比べてやや高い値を示した。

シャバサイト/X型ゼオライト混合系での浸出率の経時変化を第5図 (a) および (b) に示す。Csの浸出では、X型ゼオライト単独および混合比1:3で作製した固化体からの浸出率は7日までの浸出率はほぼ10%であった。シャバサイトの混合比率が増加するのにもないCs浸出率は低下しており、この傾向はC/A系と同様である。Srの浸出では、A型単独に比べX型ゼオライト単独で作製した固化体からのSr浸出率は低く、総じてC/A系に比べて低い値を示した。

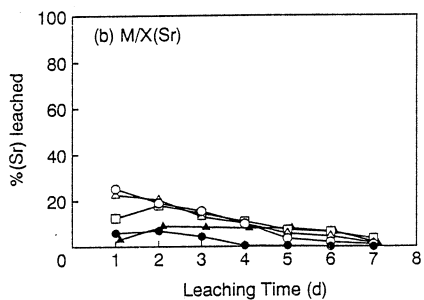
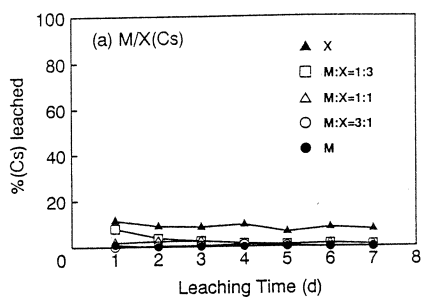
モルデナイト/X型ゼオライト混合系での浸出率の経時変化を第6図 (a) および (b) に



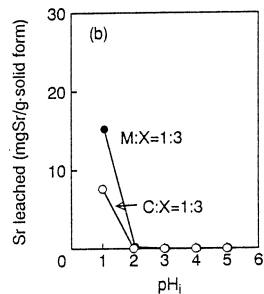
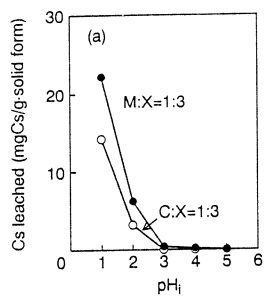
第4図 混合ゼオライト (M/A) 焼成  
固化体からの Cs と Sr の浸出性



第5図 混合ゼオライト (C/X) 焼成  
固化体からの Cs と Sr の浸出性



第6図 混合ゼオライト (M/X) 焼成  
固化体からの Cs と Sr の浸出性



第7図 混合ゼオライト焼成体からの  
Cs と Sr の浸出性と pH

示す。Csの浸出では、X型ゼオライト単独の場合を除き、モルデナイトの混合率の増加にともない浸出率は急激に低下した。Srの浸出では、初期4日までの浸出率を比較した場合、モルデナイトを混合した系ではX型単独の場合に比べて浸出性が増加する傾向がみられた。

以上をまとめると、浸出率は経過時間と共に減少し、混合ゼオライト焼成体の浸出率は、ゼオライト単独で作製した焼成固化体の浸出率のほぼ中間の値を示した。Csの浸出では、シャバサイトあるいはモルデナイト混合比の増加にともない浸出率は低下する傾向が認められた。Srの浸出では、シャバサイトおよびモルデナイト単独で焼成した固化体からの浸出性は低いが、混合した系ではA型またはX型ゼオライト単独の浸出率に近い値を示した。CsおよびSrの浸出率が共に低い混合系は、シャバサイトとX型を混合した場合であり、いずれも数%以下に浸出を抑えることが可能である。

C/XおよびM/X系の混合ゼオライト焼成体を用いて、初期pHを変えてCsとSrの浸出性を調べ、その結果を第7図(a)および(b)に示す。pHの増加にともない、浸出量は急激に低下し、Csの浸出では、pH 3以上で $3.9 \times 10^{-4}$  mgCs/g 固化体以下にまで低下し、Srの浸出では、pH 2以上では検出限界以下であった。C/X系の浸出は、M/X系に比べて1/2程度の値を示しており、良好な耐浸出性を有している。

<sup>85</sup>Srの製造に際して、ご協力いただいた東北大学核理研 榎本和義博士ならびにマシングループの方々に感謝いたします。

## 参 考 文 献

- 1) T. Kanno and H. Mimura : IAEA-TECDOC-337 (1985) 237.
- 2) IAEA Technical Report Series No. 356 (1993) 33.
- 3) H. Mimura, T. Kimura and T. Kanno : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **15** (1983) 120.
- 4) 三村 均, 山岸 功, 秋葉健一 : 日本化学会誌 **1989** (3) 621.
- 5) 三村 均, 菅野卓治 : 日本原子力学会誌 **20** (1978) 282.
- 6) H. Mimura and T. Kanno : J. Nucl. Sci. Technol. **22** (1985) 284.
- 7) 菅野卓治, 三村 均, 北村 強 : 日本原子力学会誌 **18** (1976) 518.
- 8) 三村 均, 菅野卓治 : 日本原子力学会誌 **24** (1982) 228.

## 造粒無機イオン交換体への放射性核種の吸着特性

素材研, 東亜合成\*

三村 均・大江隆之・秋葉健一

山本則幸\*

### § 1. はじめに

無機イオン交換体は、特定のイオンに対して高い選択性を有しているものが多く、耐放射線性や耐酸性に優れており、放射性廃液処理への利用が期待されている<sup>1,2)</sup>しかし、従来合成されている無機イオン交換体は微粒子状物質がほとんどであり、カラムを用いる効率的な処理プロセスへの応用には制約がある。

本研究では、合成した粉末状無機イオン交換体を造粒し、造粒交換体への各種放射性核種の吸着特性について、吸着速度および分配挙動の面から検討した。

### § 2. 実 験

#### 2.1 交換体および造粒法

造粒した無機イオン交換体は、リン酸ジルコニウム、アンチモン酸およびアンチモン酸スズの3種類である。粉末状 $\alpha$ -リン酸ジルコニウム(Na形,  $Zr(\text{NaPO}_4)_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ )<sup>3)</sup>を、ベントナイトおよびシリカゾルと混練し、粒状に成型して乾燥した。さらに、800°Cで焼成した後、塩酸でH形に変換し、ナシコン形のリン酸ジルコニウム( $\text{HZr}_2(\text{PO}_4)_3$ )造粒体(IXE-150G, 東亜合成)を得た<sup>4)</sup>。粉末状の結晶性アンチモン酸( $\text{Sb}_2\text{O}_5 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ )およびアンチモン酸スズ(アンチモン酸とスズ酸の混合体)は、シリカゾルと混練し、粒状に成型後、300°Cで焼成して造粒体を得た(IXE-300GおよびIXE-1200G, 東亜合成)。実験には12~42メッシュに篩い分けたものを用い、吸着水量を一定に保持するため、飽和 $\text{NH}_4\text{Cl}$ 溶液の入った密封容器中に予め2日以上静置したものを使用した。

#### 2.2 吸着速度

造粒体に対する放射性核種の吸着率の時間変化を、バッチ法により調べた。すなわち、所定量(0.167 g)の造粒体およびRI溶液(50 cm<sup>3</sup>)を25°Cで9日間振とうした。一定時間毎に液相をサンプリングし、遠心分離(3,000 rpm, 10分)した後、 $\gamma$ 放射能をNaI(Tl)シンチレー



ション計数装置で測定した。吸着率 ( $R$ , %) は(1)式により算出した。

$$R = \{(A_i - A_t) / A_i\} \times 100 \quad (\%) \quad (1)$$

ここで、 $A_i$ および $A_t$ は、それぞれ初期および $t$ 時間後の液相の $\gamma$ 放射能である。対象とした放射性核種は、 $^{22}\text{Na}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ および $^{241}\text{Am}$ であり、キャリア濃度は、Am ( $2.1 \times 10^{-9} \text{ M}$  (= mol/dm<sup>3</sup>)) 以外はいずれも10 ppmとした。 $^{22}\text{Na}$ の吸着では $10^{-2} \text{ M HNO}_3$ 溶液を用い、他の核種では0.1M (H, Na) NO<sub>3</sub>を用いて、初期pHを2に調整して吸着実験を行った。 $^{22}\text{Na}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$ および $^{152}\text{Eu}$ は、日本アイソトープ協会から購入したものを希釈して用いた。 $^{241}\text{Am}$ は、酸化物 (Radiochemical Centre, 英国) をHNO<sub>3</sub>-HF溶液で加熱溶解後、硝酸溶液で希釈して用いた。 $^{85}\text{Sr}$ は、 $^{86}\text{Sr}$ を濃縮したSrCO<sub>3</sub>をターゲットとして、LINACの制動放射線を利用して、 $^{86}\text{Sr}(\gamma, n)^{85}\text{Sr}$ 反応により製造した。

### 2.3 分配実験

RI溶液 (50 cm<sup>3</sup>) と造粒交換体 (0.167 g) を、液固比 ( $V/m$ ) 300で一定時間振とう後、液相を遠心分離し、上記の方法で $\gamma$ 放射能を測定し、分配係数 ( $K_a$ , cm<sup>3</sup>/g) を(2)式により算出した。

$$K_a = \{(A_i - A_f) / A_f\} \times V/m \quad (\text{cm}^3/\text{g}) \quad (2)$$

ここで、 $A_i$ および $A_f$ は、それぞれ初期および振とう後の $\gamma$ 放射能である。溶液中のキャリア濃度は10 ppmとし、初期pHは1~4の範囲で分配実験を行った。Na<sup>+</sup>の吸着では、硝酸溶液のみで初期pHを調整し、他のイオンでは0.1 M (H, Na)NO<sub>3</sub>溶液を用いた。実験は25℃の恒温室中で行い、振とう時間は5~9日間とした。

## § 3. 結果と考察

### 3.1 吸着速度

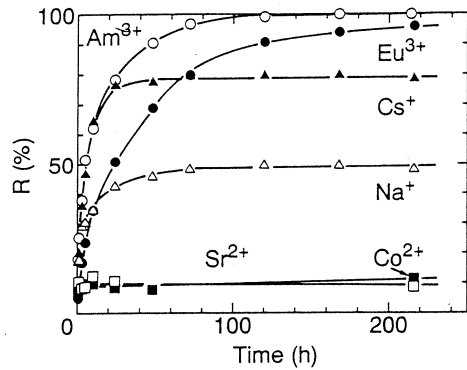
リン酸ジルコニウムに対する放射性核種の吸着率の時間変化を第1図に示す。1価カチオンの場合には、Cs<sup>+</sup>では1日以降で約80%の吸着に達しているが、Na<sup>+</sup>では50%程度であり、平衡到達には約3日間を要した。2価カチオンでは、Co<sup>2+</sup>およびSr<sup>2+</sup>の吸着率は1時間程度で平衡値に達し、いずれも10%程度の吸着率を示した。3価カチオンでは、Am<sup>3+</sup>はほぼ4日で100%の吸着率に達し、En<sup>3+</sup>は平衡到達まで約1週間を要し、吸着率は95%程度であった。吸着速度を、初期3時間での吸着率を基に比較すると、Am<sup>3+</sup> > Cs<sup>+</sup> ≫ Na<sup>+</sup> > Eu<sup>3+</sup> ≫ Sr<sup>2+</sup> ≃ Co<sup>2+</sup>の序列であった。

アンチモン酸に対する放射性核種の吸着率の時間変化を第2図に示す。Na<sup>+</sup>は吸着速度が

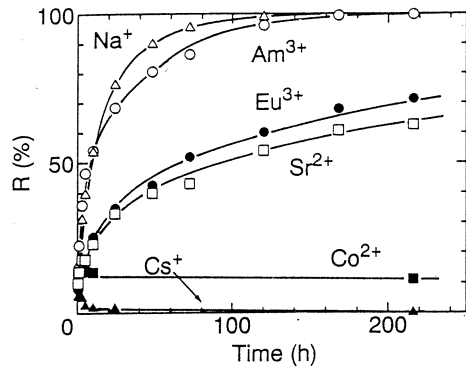
大きく、ほぼ5日で100%吸着するのに対し、 $\text{Cs}^+$  は本実験の期間内では吸着はほとんど認められなかった。 $\text{Cs}^+$  の吸着では0.1 M (H, Na)  $\text{NO}_3$  溶液を用いており、 $\text{Na}^+$  が優先的にアンチモン酸に吸着し、 $\text{Cs}^+$  の吸着が阻止されたためと考えられる。 $\text{Sr}^{2+}$  と  $\text{Co}^{2+}$  の吸着速度には大きな差が認められ、 $\text{Sr}^{2+}$  は初期1日までの吸着速度は大きく、それ以降は徐々に低下する傾向がみられるのに対して、 $\text{Co}^{2+}$  は吸着率が10%程度であり吸着性は低い。 $\text{Am}^{3+}$  は約10日で100%の吸着率を示したが、 $\text{Eu}^{3+}$  は  $\text{Sr}^{2+}$  と同程度の吸着速度を示した。初期3時間までの吸着速度の序列は、 $\text{Am}^{3+} > \text{Na}^+ \gg \text{Sr}^{2+} > \text{Eu}^{3+} \gg \text{Co}^{2+} > \text{Cs}^+$  であった。

アンチモン酸スズに対する放射性核種の吸着率の時間変化を第3図に示す。アンチモン酸に対する $\text{Na}^+$ の高い選択性により、前述のアンチモン酸の場合と同様の傾向が認められた。 $\text{Sr}^{2+}$  および  $\text{Co}^{2+}$  とともに9日間振とうしても平衡には達していない。アンチモン酸に対する $\text{Co}^{2+}$ の吸着は困難であったが、アンチモン酸スズでは1週間で約80%の吸着率を示した。3価カチオンでは、いずれも1週間程度ではほぼ平衡に達している。初期3時間での吸着速度の序列は  $\text{Am}^{3+} > \text{Na}^+ \gg \text{Eu}^{3+} > \text{Co}^{2+} > \text{Sr}^{2+} \gg \text{Cs}^+$  であった。

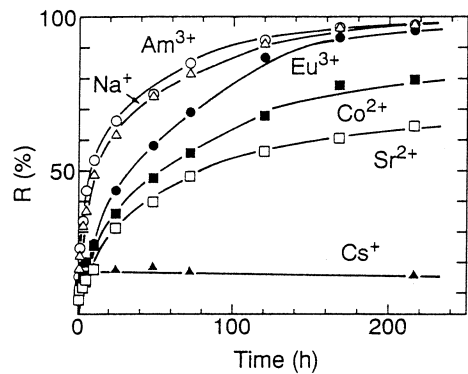
以上をまとめると、いずれの交換体に対



第1図 リン酸ジルコニウムに対する放射性核種の吸着速度。



第2図 アンチモン酸に対する放射性核種の吸着速度。



第3図 アンチモン酸スズに対する放射性核種の吸着速度。

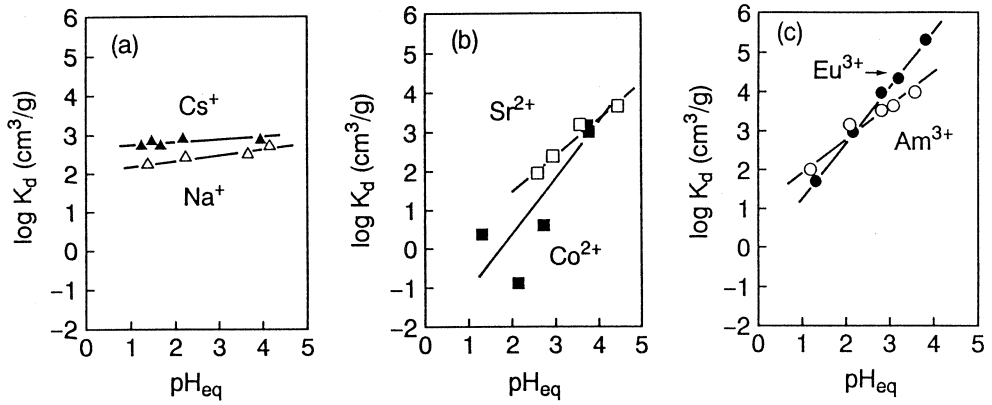
しても、 $\text{Am}^{3+}$  の吸着速度は大きく、アンチモン酸およびアンチモン酸スズに対しては、 $\text{Na}^+$  の吸着速度が大きい結果が得られた。

### 3.2 分配特性

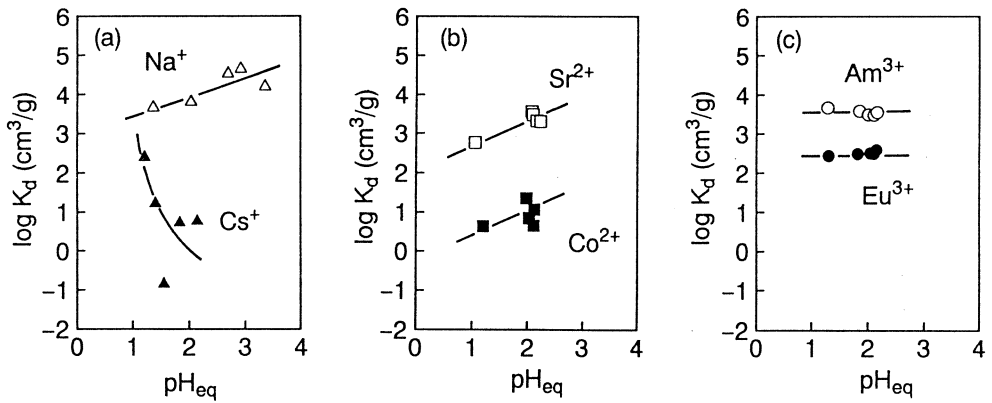
リン酸ジルコニウムに対する放射性核種の分配係数 ( $K_d$ ) と平衡 pH との関係を示す。第 4 図(a)～(c)に示す。いずれの核種でも平衡 pH と  $K_d$  の対数値との間には直線関係があり、価数の増加と共に直線の傾きも増加する傾向が認められ、イオン交換反応であることが示唆される。 $K_d$  値を平衡 pH 3 で比較した場合の序列は、 $\text{Eu}^{3+} > \text{Am}^{3+} > \text{Cs}^+ > \text{Na}^+ > \text{Sr}^{2+} > \text{Co}^{2+}$  であり、3 価カチオンが高い選択性を示した。

アンチモン酸に対する放射性核種の分配係数と平衡 pH との関係を示す。第 5 図(a)～(c)に示す。 $\text{Na}^+$  の場合を除き、いずれも初期 pH に比べて平衡 pH は低下し、平衡 pH は 1～2 の狭い範囲となった。アンチモン酸が  $\text{Na}^+$  を選択的に取り込み、液中の  $\text{H}^+$  濃度が増大したためと考えられる。1 価カチオンの分配では、 $\text{Na}^+$  の  $K_d$  値は  $10^3 \sim 10^4 \text{ cm}^3/\text{g}$  と大きく、 $\text{Na}^+$  に対し高い選択性を有することが分かる<sup>6)</sup>。 $\text{Cs}^+$  では、平衡 pH の増加にともない  $K_d$  値が急激に低下した。アンチモン酸では  $\text{Na}^+$  に比べて  $\text{Cs}^+$  の選択性が低く<sup>5)</sup>、溶液中に共存する  $\text{Na}^+$  濃度の影響を受けるためと考えられる。2 価カチオンでは、 $\text{Sr}^{2+}$  と  $\text{Co}^{2+}$  の  $K_d$  値の間には 2 桁程度の差が認められた<sup>6)</sup>。3 価カチオンでは、 $K_d$  値に対する平衡 pH の影響はほとんど認められず、 $\text{Am}^{3+}$  イオンが選択的に吸着することが分かる。平衡 pH 2 で  $K_d$  値を比較した場合の序列は、 $\text{Na}^+ > \text{Am}^{3+} > \text{Sr}^{2+} > \text{Eu}^{3+} > \text{Co}^{2+} > \text{Cs}^+$  であった。アンチモン酸スズに対する放射性核種の分配係数と平衡 pH との関係を示す。第 6 図(a)～(c)に示す。アンチモン酸の場合に比べて、各核種の  $K_d$  値には大きな差が認められず、いずれも pH 1～3 の領域で  $10^2 \sim 10^3 \text{ cm}^3/\text{g}$  の値を示した。本交換体でも  $\text{Cs}^+$  の分配は、平衡 pH の増加にともない低下する傾向が認められた。平衡 pH 2 で各核種の  $K_d$  値を比較すると、 $\text{Am}^{3+} > \text{Na}^+ > \text{Sr}^{2+} > \text{Eu}^{3+} > \text{Co}^{2+} > \text{Cs}^+$  の序列であった。

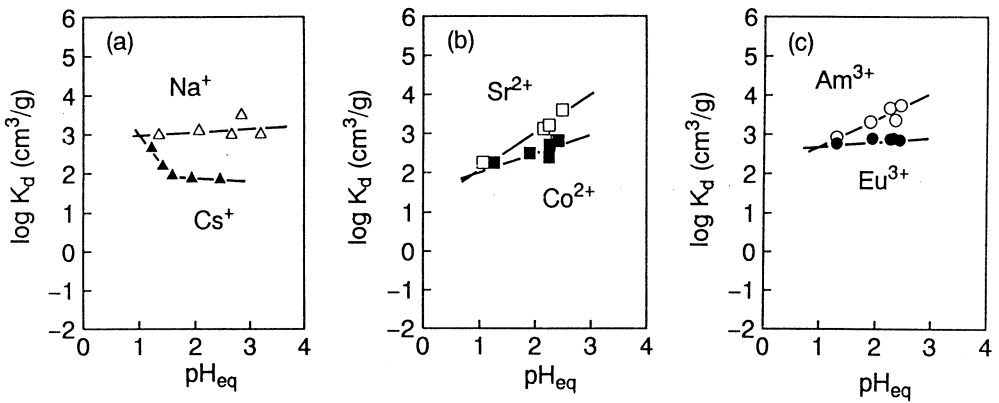
いずれの造粒交換体に対しても 3 価カチオンは高い吸着性を示した。各造粒体への  $\text{Eu}^{3+}$  および  $\text{Am}^{3+}$  の分配に及ぼす  $\text{Na}^+$  濃度の影響を調べ、その結果を第 7 図および第 8 図に示す。リン酸ジルコニウム (IXE-150G) に対する  $\text{Eu}^{3+}$  の吸着では、共存する  $\text{Na}^+$  濃度が 0.1M までは、 $K_d$  値は  $10^4 \text{ cm}^3/\text{g}$  以上の高い値を示したが、それ以上の濃度では急激に低下した。アンチモン酸 (IXE-300G) およびアンチモン酸スズ (IXE-1200G) では、 $\text{Na}^+$  濃度の増加と共に、 $K_d$  値は単調に低下する傾向が認められた。これらの交換体に対して  $\text{Na}^+$  値は高い選択性を有するため、同一の  $\text{Na}^+$  濃度で  $\text{Eu}^{3+}$  の  $K_d$  値を比べると、これらの交換体に対する  $K_d$



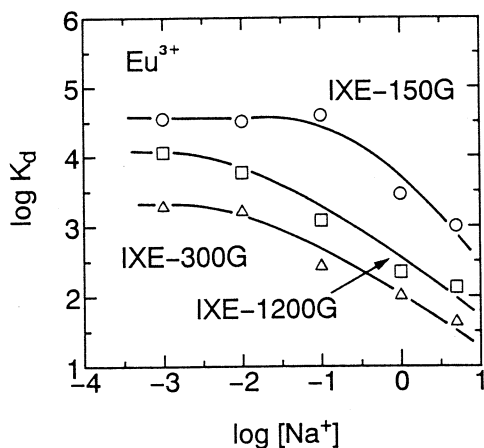
第4図 リン酸ジルコニウムに対する放射性核種の分配と平衡pHとの関係。



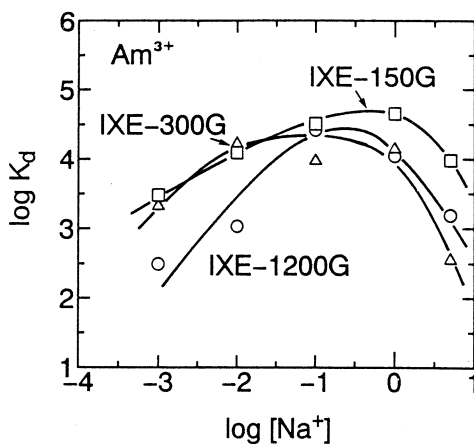
第5図 アンチモン酸に対する放射性核種の分配と平衡pHとの関係。



第6図 アンチモン酸スズに対する放射性核種の分配と平衡pHとの関係。



第 7 図 造粒交換体に対する  $\text{Eu}^{3+}$  の分配と共存する  $\text{Na}^+$  濃度との関係。



第 8 図 造粒交換体に対する  $\text{Am}^{3+}$  の分配と共存する  $\text{Na}^+$  濃度との関係。

値はリン酸ジルコニウムのそれに比べて小さいことが分かる。一方  $\text{Am}^{3+}$  の吸着では、いずれの交換体でも、 $10^{-2} \sim 1 \text{ M}$  の  $\text{Na}^+$  濃度領域で、 $\text{Am}^{3+}$  の  $K_d$  値は極大を示す傾向が認められた。リン酸ジルコニウム (IXE-150G) に対する  $\text{Am}^{3+}$  の吸着では、 $\text{Na}^+$  濃度が  $10^{-3} \sim 5 \text{ M}$  の範囲で、 $K_d$  値は  $10^3 \text{ cm}^3/\text{g}$  以上の高い値を示した<sup>3)</sup>。

照射にあたって、ご協力いただいた東北大学核理研 榊本和義博士、大槻 勤博士ならびにマシングループの方々に感謝致します。

### 参 考 文 献

- 1) 妹尾 学, 阿部光雄, 鈴木 喬: イオン交換 (講談社サンエンティフィック, 1991) p.124.
- 2) IAEA Technical Report Series, No. 356 (1993) p. 31.
- 3) H. Mimura, K. Akiba, N. Yamamoto: J. Nucl. Sci. Technol. **32** (1995) 819.
- 4) A. Clearfield, *et al.*: J. Phys. Chem. **73** (1969) 3424.
- 5) M. Abe: *Inorganic Ion Exchange Materials*, Chap. 6 (CRC Press Inc., 1982) .
- 6) M. Abe, M. Hirata, M. Tsuji: Bull. Chem. Soc. Jpn. **62** (1989) 3804.

# ニホンジカ (*Cervus nippon*) の肝臓に含まれる微量金属元素の光量子放射化分析

石巻専修大理工学部

福島美智子・玉手英利

## § 1. 序

ヒト, ラットおよび数種類の家畜動物の臓器に含まれる微量金属元素の定量値は, 放射化分析法, 原子吸光光度法やICP法などを用いて求められている<sup>1, 2)</sup>。著者らも, ブタの肝臓および脾臓中の9種類の微量金属元素を光量子放射化分析法でもとめた<sup>3)</sup>。しかし野生動物については, 生物学分野では関心が寄せられているものの, 元素の定量値はほとんど得られていない<sup>4)</sup>。そこで著者らは, 野生動物の中でも捕獲しやすいニホンジカ (*Cervus nippon*) の肝臓に含まれる微量金属元素を非破壊光量子放射化分析法で定量した。捕獲された9個体のうちの2個体については, その分析結果をすでに報告してあるので<sup>5)</sup>, 今回は残る7個体について Br, Ca, Mg, Mn, Mo, Na, Rb, Zn の8元素の分析結果を得たので報告する。

## § 2. 実 験

### 2.1 分析試料

兵庫県和田山町において捕獲された野生のニホンジカ7個体の肝臓を分析試料として用いた。試料の調製法は前報<sup>3)</sup>の通りである。

### 2.2 照射試料

分析試料と比較標準試料100~300mgを高純度アルミニウム箔に包み, 直径10mm厚さ1~3mmの照射試料にした。これらの照射試料を照射用石英管に封じこんだ。比較標準試料としてはNIST SRM-1633a Coal Fly Ash, NIST SRM-1577b Bovine Liver, NRCC TORT-1 Lobster およびBCR Na186 Pig Kidneyの4種類を用いた。

### 2.3 照射および測定

照射は, 東北大学原子核理学研究施設において電子線型加速器による30MeVの制動輻射で3~4時間行なった。照射後に新しいアルミニウム箔で包みなおしてから, 適切な冷却時間においてGe検出器(Ortec, GEM40200P, GEM-30185)およびNAIG製波高分析装置を用いて $\gamma$ 線を測定した。定量に用いた核種,  $\gamma$ 線および冷却時間を第1表に示す。

Table 1. Nuclear data for the analyzed elements.

Element	Target Nuclide (Abundance, %)	Reaction	Product Nuclide	Half Life	$\gamma$ -ray used(keV)	Cooling Time	Comparative Standard*
Br	Br-79 (50.69)	( $\gamma$ , 2n)	Br-77	2.3765D	238.97	1 day	BL
Ca	Ca-44 (2.09)	( $\gamma$ , p)	K-43	22.3H	372.9, 617.8	1 day	CFA, BL, L
Mg	Mg-25 (10)	( $\gamma$ , p)	Na-24	15.02H	1368.6	1 day	CFA, BL, L
Mn	Mn-55 (100)	( $\gamma$ , n)	Mn-54	312.2D	834.8	1 month	BL, L
Mo	Mo-100 (9.62)	( $\gamma$ , n)	Mo-99	66H	140.5	1 day	L
Na	Na-23 (100)	( $\gamma$ , n)	Na-22	2.602Y	1274.6	1 month	BL, L
Rb	Rb-85 (72.15)	( $\gamma$ , n)	Rb-84	32.9D	881.6	1 month	CFA, BL
Zn	Zn-66 (27.81)	( $\gamma$ , n)	Zn-65	244.1D	1115.5	1 month	L, PK

\* CFA : NIST SRM-1633a Coal Fly Ash

BL : NIST SRM-1577b Bovine Liver

L : NRCC TORT-1 Lobster

PK : BCR No.186 Pig Kidney

### § 3. 結果と考察

#### 3.1 分析試料

前報と同様に凍結乾燥を行なった。9個体に対して、得られた試料の乾燥重量を湿重量に対して求めると、 $25.9 \pm 3.9\%$ になった。また、照射用の試料としては、ふるい分けのちに得られた200mesh以上の粒径の粉末を用いた。

#### 3.2 定量結果

野生のニホンジカ7個体(D3~D9)の肝臓について得られた8元素の分析値(平均値±標準偏差)を相対標準偏差とともに第2表に示す。濃度は乾燥重量を基準にしている。元素別にみるとBr, Ca, Mn以外については相対標準偏差が10%以内になっており、比較的精度のよい結果が得られた。また、得られた濃度の個体差をみるために、D3~D9の分析値の平均値を標準偏差、相対標準偏差とともに示した。これより、比較的相対標準偏差の大きな元素はBr, Ca, Naの3元素であり、逆にZnの分析値はほとんど個体差が認められないといえる。しかし第2表においてNaの濃度をみると、D7についての値が他の値に比べてかなり大きい。この原因としては、捕獲した際にD7からの放血状況が他の個体とは異なっていたと考えられる。そこでD7についての値を除いて求めた平均値、標準偏差、相対標準偏差をさらに算出した。これらの結果より、Br, Ca, Mo, Naについては個体間の濃度に差があるものの、Mg,

Table 2. Concentrations of elements in livers of Japanese sika deer.

Element	Br	Ca	Mg	Mn	Mo	Na	Rb	Zn
Unit	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	%	ppm	ppm
D 3	15.3±2.3 15.0%	330±107 32.4%	492±41 8.0%	16.6±2.1 12.7%	3.0±0.1 3.3%	0.272±0.001 0.4%	22.3±1.8 8.1%	91.7±1.1 1.2%
D 4	18.1±3.8 21.0%	287±16 5.6%	506±42 8.3%	20.0±4.1 20.5%	3.1±0.0 0.0%	0.438±0.031 7.1%	27.2±1.5 5.5%	86.9±2.9 3.3%
D 5	15.6±2.6 16.7%	217±41 18.9%	580±66 11.4%	14.8±1.9 12.8%	2.4±0.3 12.5%	0.254±0.013 5.1%	31.3±1.9 6.1%	95.3±2.3 2.4%
D 6	20.1±0.3 1.5%	207±54 26.1%	512±29 5.7%	17.7±1.2 6.8%	2.5±0.1 4.0%	0.396±0.013 3.3%	27.1±3.5 12.9%	83.8±1.0 1.2%
D 7	35.9±4.0 11.1%	347±32 9.2%	687±45 6.6%	11.3±2.8 24.8%		0.705±0.057 8.1%	18.2±0.9 4.9%	
D 8	20.4±4.0 19.6%	170±38 22.4%	496±11 2.2%	16.3±0.8 4.9%	2.1±0.1 4.8%	0.279±0.010 3.6%	30.2±1.3 4.3%	86.5±1.9 2.2%
D 9	28.4±2.4 8.5%	160±46 28.8%	474±15 3.2%	17.5±1.1 6.3%	2.0±0.1 5.0%	0.351±0.025 7.1%	30.1±2.3 7.6%	80.4±2.5 3.1%
Range	15.3-35.9	160-347	474-687	11.3-20.0	2.0-3.1	0.254-0.705	18.2-31.3	80.4-95.3
Ave. ± SD*	22.0±7.5	245±76	535±75	16.3±2.7	2.5±0.5	0.385±0.157	26.6±4.8	87.4±5.4
% RSD	34.3%	30.9%	14.0%	16.7%	18.0%	40.7%	17.9%	6.1%
Ave. ± SD**	19.7±4.8	229±67	510±37	17.2±1.7	2.5±0.5	0.332±0.075	28.0±3.3	87.4±5.4
% RSD	24.4%	29.3%	7.2%	10.1%	18.0%	22.6%	11.7%	6.1%

\* Ave. ± SD for D 3-D 9

\*\* Ave. ± SD for D 3-D 9 except D 7

Mn, Rb, Znについては相対標準偏差がほぼ10%以下になり、野生のニホンジカの肝臓の平均的な濃度を得ることができたと思われる。

本研究を行なうにあたり、お世話になった東北大学核理研の榎本和義博士、大槻勤博士ならびにマシングループの方々、職員の方々に感謝致します。

### 参 考 文 献

- 1) Trace Elements in Man and Animals-TEMA 5, eds. C. F. Mills, I. Bremner & J. K. Chesters, (Commonwealth Agricultural Bureau, U. K., 1985).
- 2) T. Sato : "Activation Analysis Vol. II", (ed. Zeef B. Alfassi, CRC Press, USA, 1990)



p. 323.

- 3) M. Fukushima : J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, **195** (1995) 145.
- 4) K. Honda, H. Ichihashi and R. Tatsukawa : Arch. Environ. Contam. Toxicol. **16** (1987) 551.
- 5) M. Fukushima and H. Tamate : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **27** (1994) 262.

### Ⅲ. 加 速 器 ・ 測 定 装 置

## 導体境界によるコヒーレント放射光発生の抑止と増加

核理研, 科研\*

加藤龍好<sup>1</sup>・中里俊晴・小山田正幸

浦澤茂一・山川達也・吉岡正裕<sup>2</sup>

池沢幹彦\*・伊師君弘\*

金井利喜<sup>3\*</sup>・柴田行男\*

高橋俊晴<sup>4\*</sup>

### § 1. 序 論

シンクロトロン放射発見当初から, バンチされた電子から放射される電磁波は, そのバンチよりも長い波長領域では, コヒーレントな輻射になると予想されていた。コヒーレントな輻射強度はバンチ内電子数の自乗に比例し強大になるため, コヒーレント放射光による放射損失が当時計画されていた高エネルギー電子シンクロトロンの最大到達エネルギーを制限するのではないかと論じられていた。Schiff はコヒーレントな放射損失を見積もるとともに, 真空ダクト等の導体境界によりコヒーレント放射損失が抑止されうることを述べている<sup>1)</sup>。Schwinger は境界条件下での輻射の一般化された式を導いた。その後, Nodvick と Saxon は Schwinger の式を2枚の無限平行板の間を電子が周回するという条件の下で解き, 無限平行導体境界による抑止効果の式を導いた<sup>2)</sup>。当時はより高い到達エネルギーを得るために, シンクロトロンでのコヒーレント放射光の発生を積極的に抑止することが検討された。しかし, 実際に建設された加速器では, コヒーレントな輻射損失は発見されなかった。

1982年に, Michel はこのコヒーレント放射光が電子蓄積リングで高強度のマイクロ波として観測される可能性のあることを示唆した<sup>3)</sup>。これに対して, 放射光源として利用されている電子蓄積リングでコヒーレント放射光を見つける実験が行われた。1984年 Yarwood 等は,

<sup>1</sup> Present Address : The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University, Mihogaoka, Ibaraki, Osaka 567, Japan.

<sup>2</sup> Present Address : Mitsubishi Electric Corporation, Itami Works, Tsukaguchi-honmachi 8-chome, Amagasaki, Hyogo 661, Japan.

<sup>3</sup> Present Address : Department of Materials Science, University of Osaka Prefecture, Gakuen-cho 1-1, Sakai, Osaka 593, Japan.

<sup>4</sup> Present Address : Research Reactor Institute, Kyoto University, Kumatori, Osaka 590-04, Japan.

Daresbury の蓄積リング SRS で測定された 1 mm よりも長い波長領域での放射光強度が、標準的な光源である高圧水銀灯よりも少なくとも 1 桁以上強いことを報告した<sup>4)</sup>。彼らは、この測定結果がコヒーレント放射光スペクトルの立ち上がり部分での強度増加である可能性を指摘した。しかし、それ以降に行われた BESSY<sup>5)</sup>、NSLS<sup>6)</sup>、UVSOR<sup>7)</sup> の実験では遠赤外領域の放射光でコヒーレント性を示す結果は得られなかった。

これらの電子蓄積リングの電子ビームのバンチ長は 3 ~ 30 cm である。他方、線形加速器 (ライナック) のバンチ長は 1 ~ 6 mm であるので、より光の測定が容易な短い波長域にコヒーレント放射光が輻射されると考えられる。1989 年、東北大学の 300 MeV ライナックで、遠赤外領域で、コヒーレント放射光が世界で初めて観測された<sup>8)</sup>。続いて、他の電子ライナックでもコヒーレント放射光が観測された<sup>9, 10)</sup>。

コヒーレント放射光のスペクトルが波長 0.16 ~ 3.5 mm の範囲で測定された<sup>11, 12)</sup>。1 個の電子バンチが放射するコヒーレント放射光の理論スペクトルは、1 個の電子が放射するシンクロトロン放射光のスペクトル、バンチ内電子数の自乗、そして (バンチの形状と大きさを反映する) バンチ形状因子の積で与えられる。バンチの形状をガウス分布と仮定すれば、コヒーレント放射光はバンチの長さと同程度の波長で急激に強度をまし、そのピークよりも長波長側では (波長を  $\lambda$  とすると)  $\lambda^{-1/3}$  で減少する。しかし、実際に観測された長波長領域のスペクトルの傾きは、理論から予想される傾きよりもさらに急激であった。これを説明し得る原因の一つとして、真空ダクト等の導体境界によるコヒーレント放射光の抑止効果が考えられる。

この抑止効果を研究するために、東北大学の 300 MeV ライナックを用いて実験を行った。ライナックからの電子がコヒーレント放射光を放射する偏向電磁石のダクト内に、2 枚の金属板を互いに平行に配置した。この金属板間隔の関数として、コヒーレント放射光スペクトルと偏光度を測定した。Preliminary な実験結果はすでに報告されている<sup>13)</sup>。

本研究の目的は、(i) 導体境界の変化によりコヒーレント放射光の抑止が実際に引き起こされるか否かを実験的に検証すること、(ii) Nodvick と Saxon により導かれた抑止効果理論でそのコヒーレント放射光の強度の変化が説明できるかどうかを調べること、(iii) コヒーレント放射光スペクトルの長波長領域での傾きが抑止効果に依るものかどうかを検証すること、である。

## § 2. 抑止効果の理論

無限平行導体境界によるコヒーレント放射光の抑止効果は、Nodvick と Saxon により理論的に研究されている。第 1 図のように、 $z = \pm a/2$  に無限に大きな平行金属板が置かれてい

て、 $z = 0$  の  $x$ - $y$  平面上を半径  $R$  の円軌道上を、速度  $v = \beta c$  で電子バンチが周回していると仮定する。このとき電子バンチからコヒーレントに放射される光の強度スペクトル  $P_{coh}(\beta, \lambda, a)$  は次式で与えられる。

$$P_{coh}(\beta, \lambda, a) = N^2 P(\beta, \lambda, a) f_b(\lambda) \quad (1)$$

ここで、 $\lambda$  は波長、 $N$  はバンチ内電子数、 $f_b$  はバンチ形状因子、 $P(\beta, \lambda, a)$  は1個の電子が放射する光の強度である。実際の単位系で  $P$  は、1個の電子が円軌道上を 1 mrad だけ進むあいだに、1% のバンド幅内に放射する光子数として、以下の式で与えられる。

$$P(\beta, \lambda, a) = 4 \times 10^{-5} \pi \frac{\alpha R^2}{a \beta \lambda} \operatorname{Re} \left\{ \sum_{j=1,3,\dots}^{j < 2\beta a/\lambda} \left[ -H_n^{(1)} J_n + \frac{\beta^2}{2} \left( H_{n-1}^{(1)} J_{n-1} + H_{n+1}^{(1)} J_{n+1} \right) \right] \right\} \quad (2)$$

ここで、 $\alpha$  は微細構造定数、 $n = 2\pi R/\lambda$ 、 $J_n$  は Bessel 関数、 $H_n^{(1)}$  は第1種 Hankel 関数である。これらの関数の引数は

$$\gamma_{nj} R = \left[ (n\beta)^2 - \left( \frac{j\pi R}{a} \right)^2 \right]^{1/2} = \frac{\pi R}{a} \left[ \left( \frac{2a\beta}{\lambda} \right)^2 - j^2 \right]^{1/2} \quad (3)$$

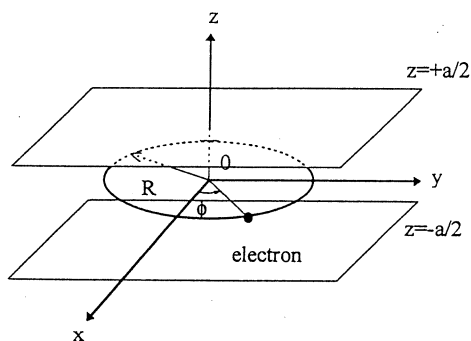
である。電子の速度を近似的に光速と仮定すると、 $P(\beta = 1, \lambda, a)$ 、以下  $P(\lambda, a)$  と記述する、は下記のように与えられる。

$$P(\lambda, a) = \frac{8 \times 10^{-5}}{3} \frac{\alpha R^2}{a \lambda} \left\{ \sum_{j=1,3,\dots}^{j < 2a/\lambda} \left( \xi_j / n \right)^4 \left[ K_{1/3}^2 \left( \xi_j^3 / 3n^2 \right) + K_{2/3}^2 \left( \xi_j^3 / 3n^2 \right) \right] \right\} \quad (4)$$

ここで、 $\xi_j = j\pi R/a$ 、 $K_{1/3}$ 、 $K_{2/3}$  は変形 Bessel 関数である。

第2図中の実線は第(4)式から得られる理論スペクトルである。抑止効果の理論は、放射光が長波長領域で強く抑止されることを予言している。

波長が金属板の間隔よりも短くなると、放射光強度は最初、境界条件がない場合に 50 MeV の電子バンチが放射する通常の放射光の強度<sup>14)</sup>、第2図中の点線、より大きくなり、さらに波長が短くなると、再びその強度に近づく。第2図



第1図 導体境界が存在する場合のコヒーレント放射光計算のための座標系。

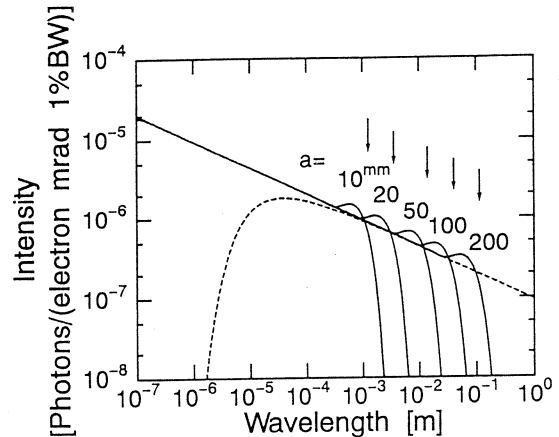
中の矢印で示される波長は次式で計算される<sup>15, 16)</sup>。

$$\lambda = 2a\sqrt{a/R} \quad (5)$$

ここで  $a$  は金属板の間隔,  $R$  は曲率半径である。この式は, ある  $a$  と  $R$  が与えられたときに, 放射光の発生が抑止される波長の下限値の概算を与える。

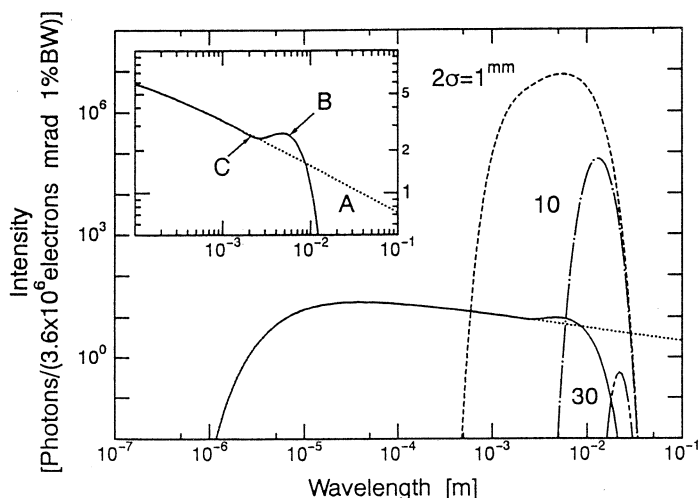
さらに短波長では, 第(4)式で計算される強度は単調に増加し, 通常の放射光スペクトルから大きくずれている。これは第(4)式を導く過程で  $\beta$  を 1 と置いたことに起因するものと考えられる。したがって, 抑止効果を考慮した正しい放射光のスペクトルは, 短波長側での通常の放射光スペクトルと, 長波長側での抑止効果のスペクトルをつなぎ合わせたものになると考えられる。

第3図の実線は,  $a = 40\text{mm}$ ,  $R = 2.44\text{m}$  の場合の抑止効果を考慮したインコヒーレント放射光のスペクトルである。コヒーレント放射光が長波長領域で抑止されるのは, インコヒーレント放射光が導体境界により抑止されることに起因する。ここで図中のAとCは導体境界により放射光強度が減少した領域, Bは強度が増加した領域である。数値積分の結果として, 領域AとCのエネルギーの和は領域Bのエネルギーに等しい。このことは1個の電子がインコヒーレントな放射光損失として失うエネルギーは境界条件によらないことを意味している。しかしコヒーレント放射光の場合には, 第(1)式に示すように, その強度はバンチ形状因子  $f_b$  に依存する。同じ境界条件下でバンチの長さが異なる ( $2\sigma = 1, 10, 30\text{mm}$ ) 電子により, 放射されるコヒーレント放射光の計算スペクトルも図3に示されている。バンチの長さが第(5)式で与えられる波長よりも長い場合には, コヒーレント放射光の全出力は大きく減じられる事になる。バンチの長さが電子ライナックでの典型的な値  $1 \sim 10\text{mm}$  で, 金属板間隔が電磁石の磁極間隔として典型的な値  $40\text{mm}$  のときには, コヒーレント放射光はバンチ長と同程度の波長領域に放射される。他方, 蓄積リングのバンチ長は  $30\text{mm}$  以上であり, 同じ境界条件下でコヒーレント放射光は強く抑止されている。これは電



第2図 Nodvick と Saxon の理論により, 無限に広い平行金属板による抑止効果を考慮したコヒーレント放射光の理論スペクトル。図中の実線は異なる金属板間隔に対する抑止効果の理論スペクトルであり, 破線は金属板が無い場合のシンクロトロン放射光の理論スペクトル。このときの電子のエネルギーは  $50\text{MeV}$ , 曲率半径は  $2.44\text{m}$  である。

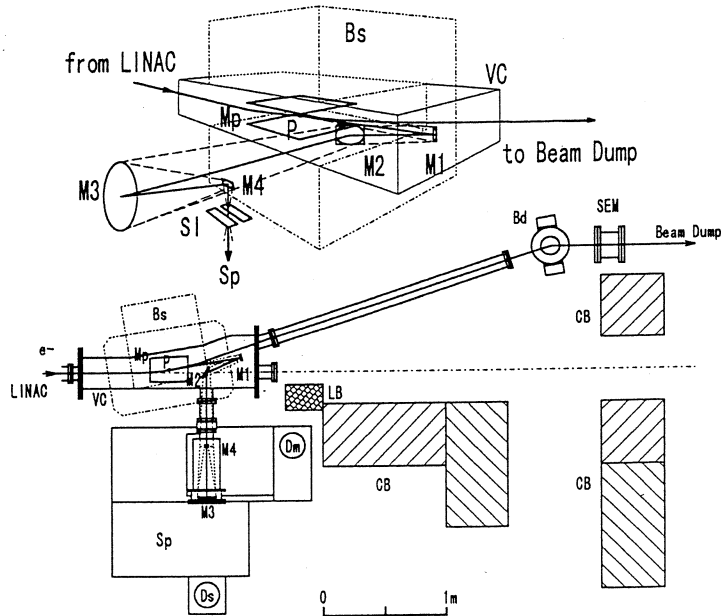
子バンチがコヒーレントな放射光損失として失うエネルギーは境界条件とバンチの長さによって大きく変化することを意味している。



第3図 無限に広い平行金属板による抑止効果を考慮したインコヒーレント放射光と、おなじ境界条件のもとで異なるバンチ長を持つ電子バンチからのコヒーレント放射光のスペクトル。実線はインコヒーレントな放射光スペクトルであり、その他はコヒーレント放射光のスペクトル。電子エネルギーは50MeV、バンチ内電子数は $3.6 \times 10^6$ 個。金属板間隔は40mm 偏光電磁石の曲率半径2.44mである。コヒーレント放射光の全エネルギーはバンチの長さによって大きく変化する。挿入図はインコヒーレントな放射光のスペクトルの一部を拡大したものである。数値計算から、領域A+Cのエネルギー=領域Bのエネルギーとなる。このことは1個の電子がインコヒーレント放射光として輻射する全エネルギーは金属板の存在の有無によらない事を示している。

### § 3. 実験装置と方法

この実験は導体境界がコヒーレント放射光の発生に与える影響を研究することを目的とし、東北大学の300MeV ライナックを用いて行なわれた。このときの実験装置の配置を第4図に示す。ライナックで50MeVまで加速された電子ビームが偏向電磁石Bsに入射される。この偏向電磁石の曲率半径は2.44mで、磁場の強さは68.6mTである。電子ビームのエネルギー幅は0.2%、ビームパルスの時間幅は $2 \mu\text{s}$ で、繰り返しは300pulses/sである。パルス当たりのバンチ数は約5700で、バンチ当たりの電子数は約 $3.6 \times 10^6$ である。バンチの長さは約1.7mmで、これは2.856GHzの加速rf周波数の位相角で $5.5^\circ$ に対応する。



第4図 実験の配置図。Bs: 放射光用偏向電磁石。Bd: ダンプ用偏向電磁石。P: 発光点。Mp: 金属板。SEM: 電流モニタ。M1, M2, M4: 平面鏡。M3: 凹面鏡。Sp: 分光器。Ds: 信号用検出器。Dm: モニター用検出器。Sl: スリット。VC: 真空容器。LB: 鉛ブロック, CB: コンクリートブロック。

偏向電磁石 Bs 内の放射光の発光点 P には 2 枚の平行アルミ板 Mp (厚さ 1 mm) がビームの軌道面に対し平行・等間隔にセットされている。その間隔は全幅 12~81mm の間で可変である。金属板の形状は台形で、その大きさはビーム軸に沿って 300mm の長さで、上流側の辺の幅が 180mm, 下流側の辺の幅が 200mm である。金属板の下流側から 50mm までは測定系の受光角を制限しないように約 100mrad の角度を付けている。発光点 P での真空ダクトの断面は、内法で幅 270mm 高さ 180mm である。

2 枚の金属板のあいだで電子ビームにより放射された光は、発光点 P に対し受光角 70mrad の球面鏡 M3 により集光され、分光器 Sp に導かれる。分光器は回折格子型分光器と偏光子型干渉計の 2 種類が用いられた。波長を固定し、金属板間隔の関数として光の強度を測定する場合には、回折格子型遠赤外分光器が用いられた。光の偏光度は、この分光器内に偏光子を取り付けて測定された。他方、偏光子型干渉計は、金属板間隔を固定し、放射光のスペクトルを測定するのに用いられた。これらにより分光された光は、液体ヘリウムで冷却されたシリコン・ボロメーター Ds により検出された。検出器 Dm は入射光量をモニタするのに用いられた。また、金属板で反射された光が迷光として測定系入るのを排除するために、集光鏡 M3 の最初の



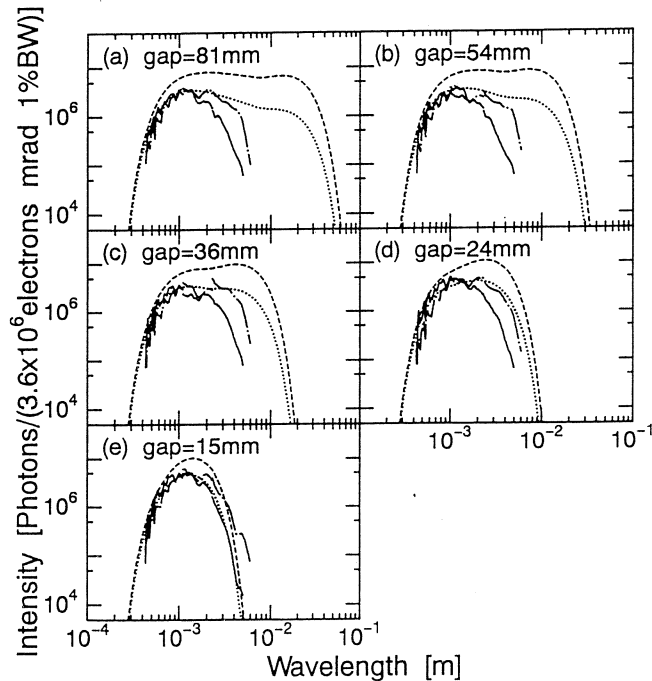
焦点にスリットSIを設けた。このスリット幅は、全幅で6 mmである。この幅は、放射光の発光点Pに高圧水銀灯を設置し、金属シールド板の間隔を81~24mmまで変化させたときに、検出器の信号が変化しないように決められた。

測定系全体の検出効率を黒体光源を用いて較正された。コヒーレント放射光の強度はビーム電流に比例するわけではないので、測定データにはビーム電流のふらつきを補正しなければならない。波長1.6, 3.0, 4.0mmのコヒーレント放射光の強度を平均ビーム電流0.5~5  $\mu$ Aで測定した。光強度のビーム電流依存性は、コヒーレント放射光の場合に期待されるビーム電流の自乗で良くフィットできた。そして、測定値のフィット関数からのずれのr. m. s. 標準偏差をコヒーレント放射光測定に伴う測定誤差とした。この誤差には、電流モニタの時間安定性と電流に対するリニアリティ、光検出器の時間安定性と光強度に対するリニアリティ、バンチ形状の時間安定性と電流に対する依存性などが含まれる。

#### § 4. 測定結果と考察

第5図は、金属板間隔を81~15mmまで変化させたときに、偏光子型干渉計を用いて測定されたコヒーレント放射光のスペクトルを示している。ここで図中の実線は迷光カットのスリットをつけて測定されたコヒーレント放射光のスペクトルであり、1点鎖線はスリットなしでのスペクトルである。スリットなしでの測定では、測定されたスペクトルには金属板での反射による迷光が含まれる。他方、スリットを用いた測定では、スリットによる長波長領域での回折効果のためにコヒーレント放射光の一部は失われることになる。長波長領域で回折の影響を排除することは困難であるため、第5図ではスリットありとスリット無しの両方の場合のスペクトルを示している。破線は第(1), (4)式を用いて計算された抑止効果を含むコヒーレント放射光の理論スペクトルである。この計算では、電子ビームのバンチ形状として、半値幅 $2\sigma$ が0.36 mmのガウス分布を仮定した。この値は測定されたコヒーレント放射光スペクトルの立ち上がり部分(短波長側の傾きの大きなところ)で傾きが一致するように決められた。ここで仮定されたバンチ幅は、以前に間接的に測定されたバンチ長1.7mmよりも短い値であった。測定されたスペクトルは受光角70mradの円錐のなかに放射された光子数から得られたものである。他方、理論スペクトルはビームの軌道面に垂直な方向で積分された光子数である。この波長領域では、インコヒーレントな放射光の垂直方向の角度分布は測定系の受光角70mradと同程度かそれ以上に広がる。ここでコヒーレント放射光の角度分布がインコヒーレントな放射光のそれと同じであると仮定することにより、実験値と直接比較できる理論スペクトル(図中の点線)

が得られる。

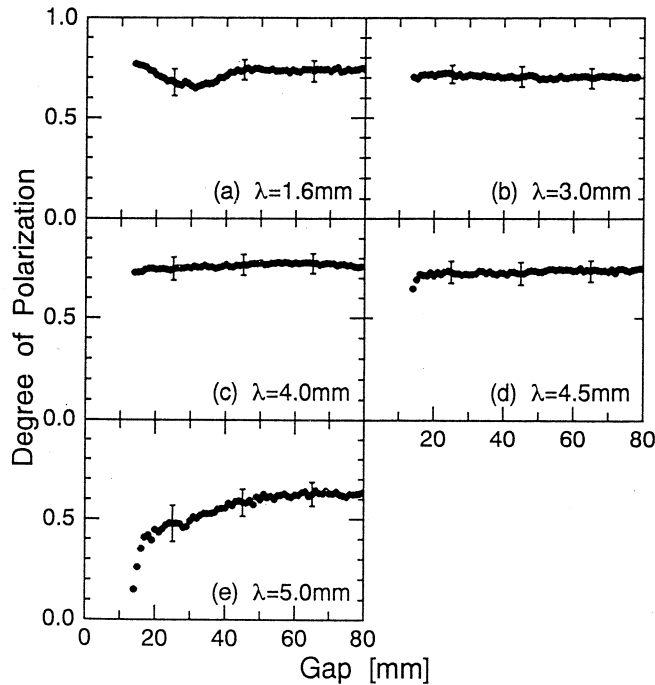


第5図 金属板間隔を81~15mmで固定したときのコヒーレント放射光のスペクトル。図中の実線と1点鎖線は軌道面に垂直な方向を制限するスリット（幅6mm）がある時と無いときの測定値。破線はコヒーレント放射光の理論計算値。点線はコヒーレント放射光の角度分布がインコヒーレント放射光のそれと同じと仮定したときに、70mradの受光角でとらえられる理論スペクトル。このときバンチ形状として半値幅 $2\sigma=0.36\text{mm}$ のガウス分布を仮定している。

第6図は、波長を1.6~5.0mmで金属板間隔の関数として、回折格子型分光器を用いて測定されたコヒーレント放射光の偏光度を示している。偏光度は金属板の間隔に依存せず、波長5mmを除いてほぼ一定である。この波長5mm場合の偏光度の減少は迷光が入ってくることによる見かけ上のもので、本質的なものではないと考えている。波長1.6~4.5mmのコヒーレント放射光の偏光度は以前により短い波長0.333~0.667mmで測定された値とほぼ一致している<sup>18)</sup>。

第5図の測定されたスペクトルはNodvickとSaxonの理論から予言される波長よりも短い波長で減少している。理論の予測に反し、放射光強度が急激に減少する波長は金属板間隔とともに変化していないように見うけられる。抑止効果以上にスペクトルを歪ませるような他の

因子が存在する可能性がある。



第6図 波長を1.6～5.0mmで固定して、金属板間隔を変化させたときのコヒーレント放射光の偏光度の変化。ここで偏光度 $P$ は、電気ベクトルが電子ビームの軌道面に対し平行に偏光した放射光強度 $I_h$ と直角に偏光した放射光強度 $I_v$ を用いて、 $P = (I_h - I_v) / (I_h + I_v)$ と定義されている。

これらの食い違いの原因のひとつとして、コヒーレント放射光の角度分布の問題が上げられる。コヒーレント放射光の角度分布がインコヒーレント放射光のそれよりも広がっている場合には、同じ様に長波長領域での強度減少を引き起こすと考えられる。この影響は波長には依存するが、金属板の間隔には依存しない。これを考慮するために因子 $g(\lambda)$ をおく、この因子には波長依存性をもつすべての因子を含める事ができる。他方、もう一つの原因としては、計算で用いたバンチ形状因子 $f_b(\lambda)$ の形状とサイズの仮定につきまとう曖昧さがある。仮定したバンチ形状の正しさは他の方法で確かめなければならない。

このバンチ形状やバンチの長さに関するあいまいさを、未知の因子と同様に排除するために、実際に測定される強度 $P_{coh}'(\beta, \lambda, a)$ を

$$P_{coh}'(\beta, \lambda, a) = N^2 P(\lambda, a) f_b(\lambda) g(\lambda) \quad (8)$$

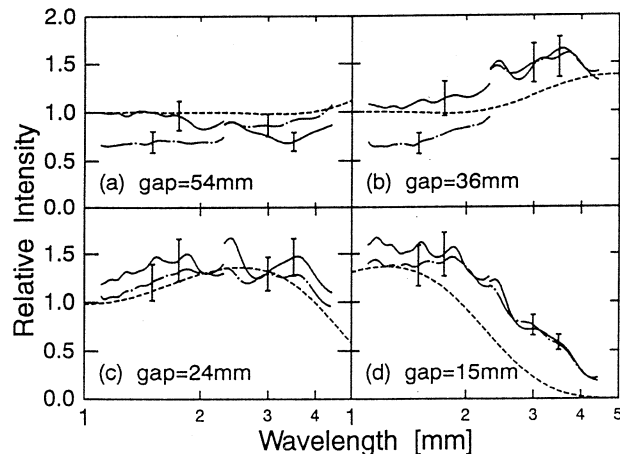
と定義し直す。このスペクトルと金属板間隔 $a_0$ の場合の基準スペクトルとの比をとることにより、

$$\frac{P_{coh}'(\beta, \lambda, a)}{P_{coh}'(\beta, \lambda, a_0)} = \frac{P(\lambda, a)}{P(\lambda, a_0)} \quad (9)$$

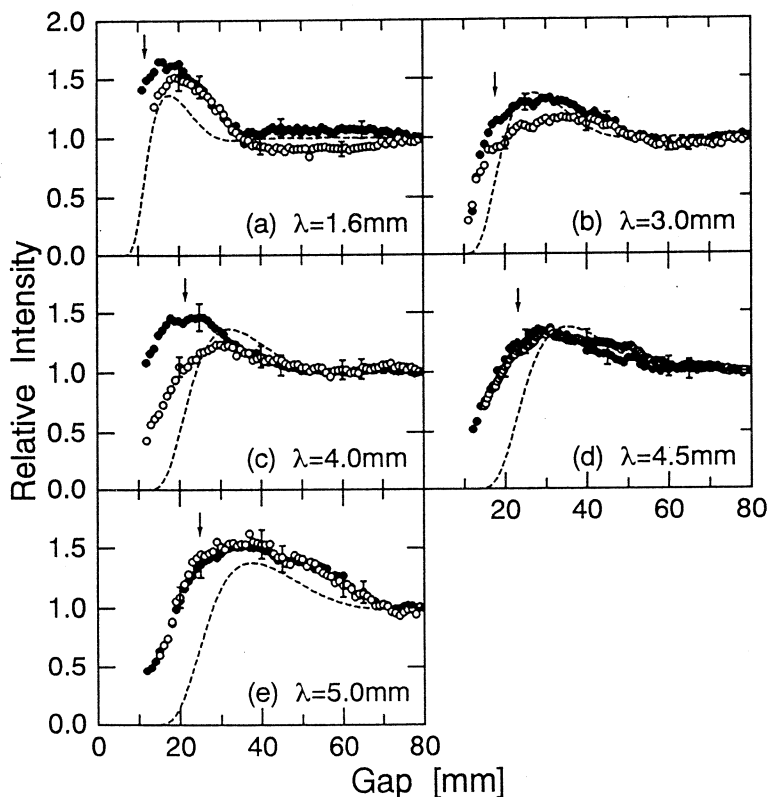
を得る。この式はバンチの形状やサイズ，その他の（金属板間隔への依存性をもたない）因子には依存しない。そのため，実験的に得られた左辺のコヒーレント放射光の強度比は，Nodvick と Saxon の理論計算から求められた右辺の比の値と直接比較することが可能となる。

第7図は偏光子型干渉計を用いて測定した金属板間隔54~15mmのときのスペクトル比と理論スペクトル比を示している。このときは $a_0=81\text{mm}$ のときのスペクトル比を基準している。図中の実線はスリット有り，1点鎖線はスリット無しでの測定値であり，破線は理論から得られたスペクトル比である。スペクトル比が1よりも大きな場合には，コヒーレント放射光の強度は金属板間隔81mmのとき（このとき金属板の影響は十分に小さいと考えられる）の強度に対して強められている。比が1よりも小さな場合には逆にコヒーレント放射光の強度が抑止されている。間隔54mmのときの計算されたスペクトル比は，波長4mmよりも短い領域では，放射光強度は抑止も増加もされていない。しかしながら，金属板間隔が狭まるにつれて，放射光強度は最初増加され，次に抑止される。測定されたスペクトル比は，スリットがある場合もない場合も，実験精度の範囲内で計算値とよい一致を示す。金属板間隔に対するスペクトル比の変化は，Nodvick と Saxon の抑止効果理論により説明することができる。

第8図は，回折格子型分光器を用いて測定された，波長1.6~5.0mmでのコヒーレント放射



第7図 金属板間隔を54~15mmで固定したときのコヒーレント放射光のスペクトル比。実線は金属板間隔81mmのときの強度を1とする相対的な放射光強度の測定値である。測定値は波長2.3mmの位置で短波長カットフィルタの切り替えを行っている。破線は理論から得られたスペクトル比である。



第8図 波長を1.6~5.0mmで固定して、金属板間隔を変化させたときのコヒーレント放射光強度の相対変化。強度は各々の波長の金属板間隔80mmのときの強度で規格化されている。黒丸と白丸はそれぞれ迷光カットのためのスリットが有る場合と無い場合の測定値。破線は理論から計算された強度変化である。矢印は第(5)式による閾値である。

光の相対強度を、金属板間隔の関数として、その計算値とともに示している。このときは $a_0 = 80\text{mm}$ のときの強度を基準している。図中の黒丸はスリット有り、白丸はスリット無しでの測定値である。図中の破線は理論から得られる相対的な強度変化を示している。仮に、導体境界によるコヒーレント放射光発生の抑止効果が存在しないとすると、相対強度は金属板間隔に依存せず、常に1になるはずである。しかし、第8図に示される測定された相対強度は、金属シールド板間隔を狭めるにつれて、一旦1よりも大きくなったのち、急激に減少し、1よりも小さくなっている。測定結果は、導体境界によりコヒーレント放射光の強度が抑止されるだけでなく、増加されることを示している。また実験結果と Nodvick と Saxon の理論により導かれた相対強度の変化とは良い一致を示している。

金属板の間隔が狭いときの測定値と理論値の若干の不一致の原因としては、第(8)式のなかで

$P(\lambda, a)$  のみが金属板の間隔に依存するとした仮定や、金属板の端を電子ビームが横切るときに放射されるコヒーレント回折輻射<sup>18)</sup>の影響などが考えられる。

## § 5. まとめと結論

導体境界が存在する場合のコヒーレント放射光の強度についての研究を行い、金属板によるコヒーレント放射光発生を抑止効果を観測した。金属板の間隔を変える事により、コヒーレント放射光の強度は抑止されるばかりではなく、増加させることも可能である。適切な金属板間隔を選ぶ事により、放射光強度は1.3~1.5倍に増加させる事ができる。また、波長1.6~4.5 mmのコヒーレント放射光の偏光度は一定であり、境界条件に依存しない。導体境界が存在する場合のコヒーレント放射光のスペクトルを Nodvick と Saxon の理論を用いて計算した。数値計算により、1個の電子が出すインコヒーレントな放射光の全エネルギーは境界条件によらないということが示された。波長と金属板間隔に対するコヒーレント放射光の相対的な強度変化は Nodvick と Saxon の理論により良く説明できる。しかし、コヒーレント放射光の波長 2 mm 以上での強度減少を Nodvick と Saxon の抑止効果理論だけで説明することはできない。強度を減少させる他の因子が存在すると考えられる。

本研究の一部は文部省科学研究費補助金（課題番号02740134, 03504001, 03640258）の援助によるものである。

著者らは、この原稿を査読し批評して下さい大阪大学の磯山悟朗教授に深く感謝申し上げます。また、理論についての有益な示唆をいただいた R. L. Warnock 博士に感謝申し上げます。さらに光学素子の製作に援助いただいた蔦谷勉氏と真空ダクトの設計製作に援助いただいた今野收博士、および実験についてご援助ご理解いただいた東北大学原子核理学研究施設のスタッフの方々に感謝申し上げます。

## 参 考 文 献

- 1) L. I. Schiff : Rev. Sci. Instr. **17** (1946) 6.
- 2) J. S. Nodvick and D. S. Saxon : Phys. Rev. **96** (1954) 180.
- 3) F. C. Michel : Phys. Rev. Lett. **48** (1982) 580.
- 4) J. Yarwood, T. Shuttleworth, J. B. Hasted and T. Nanba : Nature **312** (1984) 742.
- 5) E. Schweizer, J. Nagel, W. Braun, E. Lippert and A. M. Bradshaw : Nucl. Instr. and

- Meth. **A239** (1985) 630.
- 6) 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.
  - 7) T. Nanba, M. Ikezawa, M. Watanabe, K. Fukui and H. Inokuchi (unpublished).
  - 8) 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.
  - 9) J. Ohkuma, K. Tsumori, S. Okuda, N. Kimura, T. Yamamoto, T. Hori, S. Takamuku and S. Suemine : *Proc. of the 15th Linear Accelerator Meeting in Japan* (1990) 218.
  - 10) E. B. Blum, U. Happek and A. J. Sievers : Nucl. Instr. and Meth. **A307** (1991) 568.
  - 11) K. Ishi, Y. Shibata, T. Takahashi, H. Mishiro, T. Ohsaka, M. Ikezawa, Y. Kondo, T. Nakazato, S. Urasawa, N. Niimura, R. Kato, Y. Shibasaki, and M. Oyamada : Phys. Rev. **A43** (1991) 5597.
  - 12) Y. Shibata, T. Takahashi, K. Ishi, F. Arai, H. Mishiro, T. Ohsaka, M. Ikezawa, Y. Kondo, S. Urasawa, T. Nakazato, R. Kato, S. Niwano and M. Oyamada : Phys. Rev. **A44** (1991) R3445.
  - 13) R. Kato, T. Nakazato, M. Oyamada, S. Urasawa, T. Yamakawa, M. Yoshioka, M. Ikezawa, K. Ishi, T. Kanai, Y. Shibata and T. Takahashi : *Proc. of the 1993 IEEE Particle Accelerator Conference, Washington D. C., May 17-20* (1993) 1617.
  - 14) J. Schwinger : Phys. Rev. **75** (1949) 1912.
  - 15) A. Faltens and L. J. Laslett : Particle Accelerators **4** (1973) 152.
  - 16) R. L. Warnock and P. Morton : Particle Accelerators **25** (1990) 113.
  - 17) Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka, H. Mishiro, T. Takahashi, M. Ikezawa, Y. Kondo, T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, R. Kato and Y. Torizuka, Nucl. Instr. and Meth. **A301** (1991) 161.
  - 18) Y. Shibata, S. Hasebe, K. Ishi, T. Takahashi, T. Ohsaka, M. Ikezawa, T. Nakazato, M. Oyamada, S. Urasawa, T. Yamakawa, and Y. Kondo, Phys. Rev. **E52** (1995) 6787.

## ストレッチャーブースターへの共鳴入射の可能性の検討

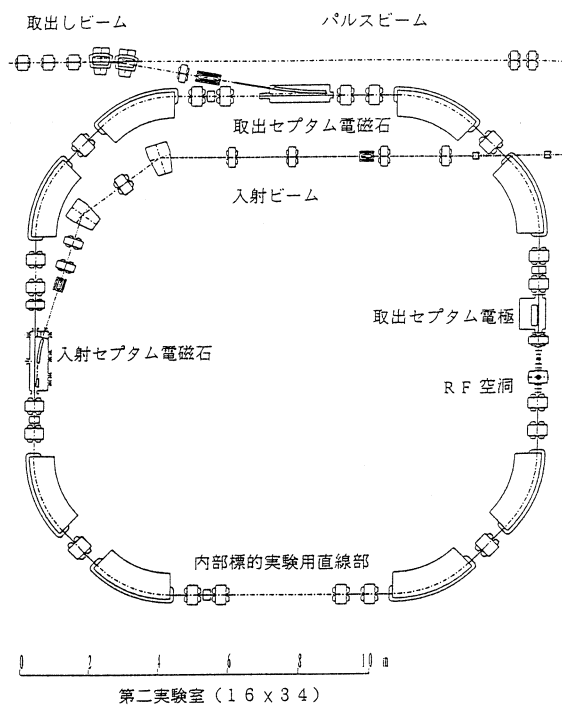
核理研

雪島正敏・封碧波・井上隆・中里俊晴

小山田正幸・浦澤茂一・渡辺勝美・山川達也

### § 1. 序

核理研では平成7年度からストレッチャーブースター(STB)の建設が開始された<sup>1)</sup>。STBの構成を第1図に示す。STBへの入射は3ターン入射方式で、3台のキッカー電磁石を使用しバンパ軌道を作り内側から入射する。3ターン入射方式ではリング3周分の長さのビームを入射することが可能である。STBの周長は49.751mとなっているので、この入射方式ではライナックのパルス幅は約 $0.5\mu\text{sec}$ で運転することになる。ライナックはパルス幅が約 $2\mu\text{sec}$ まで安定にビームを供給することが出来る。従って、この入射方式ではライナックの性能を十分に引き出しているとはいえない。又、STBのような小さいリングでは早いパルスで動くキッカー電磁石を必要とし、ノイズ等の問題がある。



第1図 STBの構成。

リングの構成は4回対称のDBA (Double Bend Achromat) で、偏向電磁石8台、四極電磁石20台からなる。入射エネルギー250MeV、最高エネルギー1.2GeV、蓄積電流100mAである。通常は3台のキッカー電磁石を用いて入射セプタム部にバンパ軌道を作って入射する。



共鳴入射方式では3ターン以上のマルチターン入射を行えるので、ライナックのパルス幅を延ばすことが出来、1回の入射過程で多くの電流を入射することが出来る。又、早いパルスで動くキッカー電磁石が不要であるのでノイズ等の心配がない。そこで、STBへのベータatron振動の共鳴現象を使った入射方式の可能性について検討を行った。ここにその結果を報告する。

## § 2. 共鳴入射

共鳴入射とは通常避けるべき共鳴現象を積極的に用いる入射方式である。共鳴現象はベータatronチューンが簡単な分数に近く、且つ、非線形な力が存在するとき起こる。共鳴時、リングを回っている粒子の運動を位相空間内で表現すると、そこには安定な領域と不安定な領域が存在する。この二つの領域を分ける境界線がセパトリックスである。安定領域はチューンを共鳴条件に近付けることにより小さくなり、共鳴条件から離すことにより大きくなる。このことを使い共鳴入射を行う。

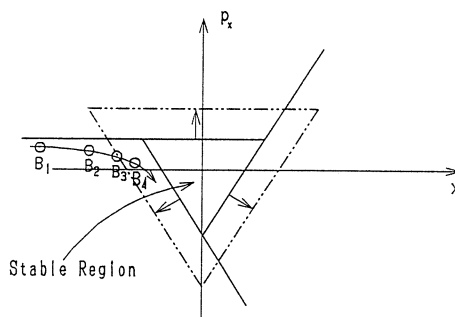
### 2.1 入射の手順と方法

共鳴入射では、入射時にリングのチューンを簡単な分数(本研究では $10/3$ )に近付け安定領域の大きさを小さくしておく。そして粒子をセパトリックス近傍に入射する。入射された粒子は第2図の $B_1, B_2, B_3, B_4$ の様にセパトリックスに沿って振幅を小さくしていく。内側まで来て振幅の小さくなったところでチューンを変え安定領域の大きさを大きくしてやれば、粒子を安定領域の中に捕えることが出来る。この様にして安定領域の中に捕えられた粒子は安定にリングを回ることになる。これが共鳴現象を用いた入射の手順である。

チューンは1台の四極電磁石の磁場を変化させることにより変えることを考えた。チューンの変化 $\Delta\nu$ と四極電磁石の磁場の強さの変化 $\Delta K$ との関係は次の式で与えられる。

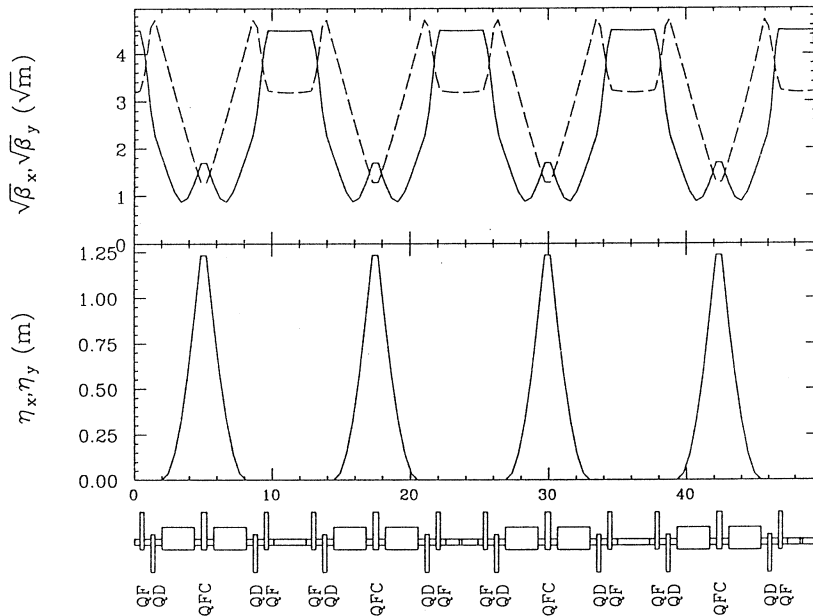
$$\Delta\nu = \frac{1}{4\pi} \Delta K \beta$$

ここで $\beta$ は四極電磁石のある位置でのベータ関数である。これよりベータの大きい所にある四極電磁石を使用すれば、変化させる磁場の強さは小さくてすむ。第3図にリング1周にわたるベータ関数 $\beta$ 、運動量分散関数 $\eta$ を示す。これより、収束

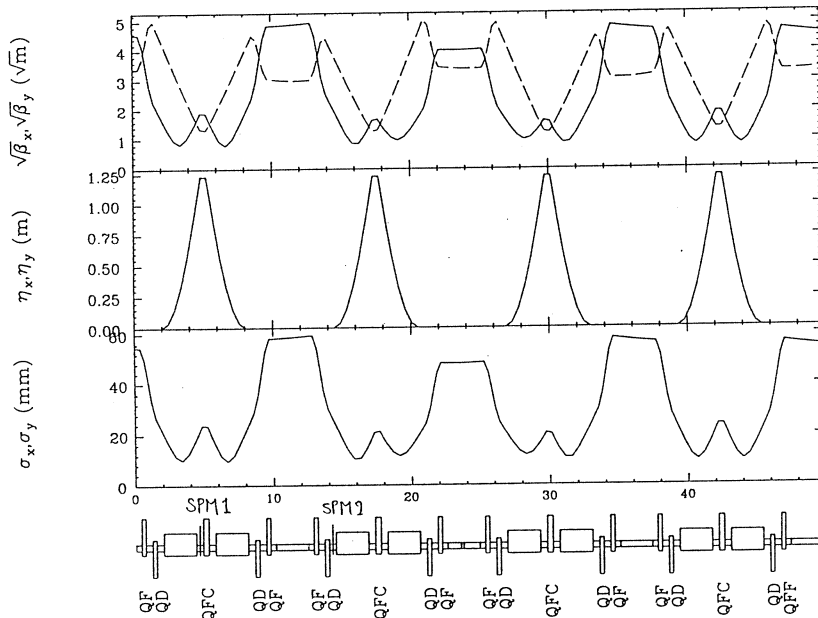


第2図 共鳴を使った入射法。

入射された粒子はセパトリックスに沿って $B_1, B_2, B_3, B_4$ と状態が変化していき、振幅が小さくなったところで安定領域(三角形の内側)を抜け粒子を捕える。



第3図 STB一周にわたるベータ関数( $\beta$ ), 運動量分散関数( $\eta$ )の様子。実線は横方向(x), 点線は縦方向(y)を表す。横軸はSTB一周にわたる位置を表し始点は入射点であり, 単位はmである。



第4図 STB一周にわたるベータ関数( $\beta$ ), 運動量分散関数 ( $\eta$ ), ビームサイズ( $\sigma$ )の様子。実線は横方向(x), 点線は縦方向(y)を表す。横軸はSTB一周にわたる位置を表し始点は入射点である。この図はリングのチューンを3.333に合わせたときのものである。チューンを変える四極電磁石は図中のQFF 1台である。SPM1でクロマティシティー補正を行い, SPM 2でその非線形効果の軽減を行う。

用の四極電磁石(QF)の方が発散用の電磁石(QD)よりもその位置でのベータ関数が大きいことがわかる。よって、チューンを変化させる為の四極電磁石は収束用の四極電磁石を使用すれば変化させる磁場が小さくてすむ。収束用の電磁石は計8台あるがここでは第4図中の四極電磁石QFFを使用することにした。ここで、第4図は横方向のチューンを3.333としたときのベータ関数、運動量分散関数である。

クロマチシティーはゼロに補正した。これは、STBの横方向のクロマチシティー  $\xi$  は-5.786と大きく、シミュレーションの結果<sup>2)</sup>、クロマチシティーを補正しないと入射粒子のエネルギー幅のためにチューンに幅が出来てしまい入射が困難になるからである。

クロマチシティーは

$$\xi = \frac{1}{4\pi} \int (2\lambda(s)\eta(s) - k(s))\beta(s)ds$$

で定義される。ここで、 $\lambda$ は六極電磁石の強さ、 $\eta$ は運動量分散関数、 $\beta$ はベータ関数、 $k$ は四極電磁石の強さを表し、 $s$ はリング上の位置を表す。この式より、クロマチシティー補正は六極電磁石を運動量分散のあるところに置けばよい。

STBには新しい要素を挿入する空間的余裕はない。しかし、将来の機器の組み替えもあり得るのでこれにはこだわらず、運動量分散のある位置、第4図中のSPM1の位置、に置いた。この位置には現在イオンポンプが取付けられることになっている。

この六極電磁石SPM1の強さは、クロマチシティーを補正するという条件から一意的に決まる。しかし、この非線形な力は望まれる値よりも強すぎるので、この非線形な力をもう一台の六極電磁石SPM2を用い弱める必要がある。ここでは、第4図中のSPM2の位置に六極電磁石を置いた。この位置には現在ビーム位置モニターが取付けられることになっている。このクロマチシティー補正で使用した2台の六極電磁石SPM1、SPM2の3次の非線形成分を非線形な力の源として用い、共鳴はストレッチャーモードでの取り出しと同じ三分の一共鳴を使用した。

## 2.2 トラッキング

入射後の粒子の運動はトラッキングと呼ばれるシミュレーションにより求めた。トラッキングとはリングのある点(入射点)での状態を一周毎に数値的に求めるものである。

トラッキングの結果を評価するときの基準は以下ようになる。

- 1)入射3周後に粒子が元の位置に戻ってきたとき、セプタム電磁石に当たらない程度にリングの中心軌道に近づいている。

2) 粒子が一度振幅を小さくしてから再び振幅が大きくなり発散するまでの時間が長い。これは、四極電磁石の磁場を変化させるにはある有限の時間を要し、この時間が長いほど磁場の時間的变化は緩やかでよく、大きな電源を必要としないからである。

非線形な力が強ければ3周後に戻って来る粒子の位置の変化は大きくなる。しかし、非線形な力が強すぎると、今度は収束してから発散するまでの時間が短くなってしまい、四極電磁石の磁場を早く変化させなくてはならなくなる。又、四極電磁石の磁場変化が遅いと、粒子を安定領域に捕える前に粒子の振幅が大きくなる。

これらのことを考慮して、四極電磁石の磁場を変える早さ、時期、六極電磁石SPM2の強さの最適値をトラッキングにより決定した。

トラッキングにはKEKで開発されたSAD(Strategic Accelerator Design)<sup>3)</sup>と呼ばれる軌道解析プログラムを使用した。トラッキングでは、輻射はなくエネルギーは一定とした。

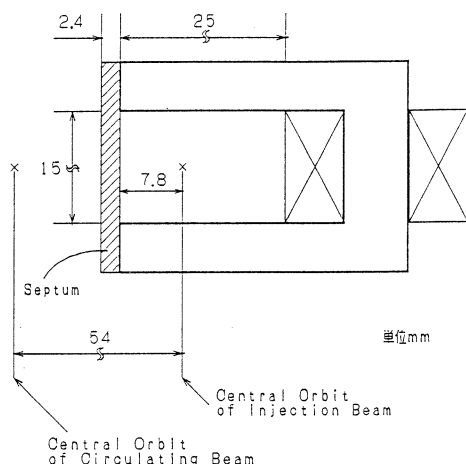
### § 3. 結果及び考察

単一エネルギー(250MeV)についてトラッキングを行い、六極電磁石SPM2の強さを決めた。入射点でのセプタム電磁石の断面は第5図の様になっている。これを見ると、3周後に戻ってきたビームは入射粒子の中心軌道から考えて約10mm内側にいけば良いが、最低限セプタムの厚さ2.4mm内側にいけば問題は無い。その様な条件を満たすリングのパラメータをトラッキングにより探した。その時の値を第1表に、入射点での位相空間内での様子を第6図に示す。第6図で直線はセパトリックスを表す。

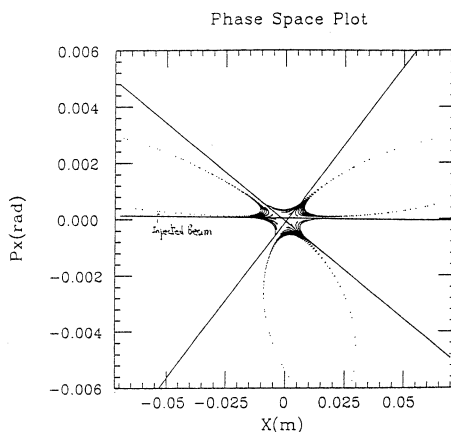
その状態で入射粒子のエネルギーに幅を持たせトラッキングを行い、クロマチシティーが補正されていることを確認したものが第7図である。ここで、エネルギー幅は±0.1%とした。この図を見ると、チューンに対する入射粒子のエネルギー依存性は完全には消されていないことがわかる。これは、クロマチシティーはチューンのエネルギーに対するの1次の依存性を表しているが、実際には2次以上の依存性もありそれが現れている。

第1表 Tracking Condition.

Betatron Tune	
$\nu_x$	3.333
$\nu_y$	1.181
Chromaticity	
$\zeta_x$	0
$\zeta_y$	10.34
Strength of Quadrupoles ( $m^{-1}$ )	
QFF	0.62458
QF	0.60371
QD	-0.66959
Strength of Sextupole ( $m^{-2}$ )	
SPM 1	26.882
SPP 2	7.9223



第5図 入射点におけるセパタムとビームの位置関係。図中の単位はmmである。



第6図 入射点に於ける位相空間内での粒子の運動。クロマティシティーを補正し、更に非線形効果の軽減により適度な非線形効果を残した場合。

次に、入射後に四極電磁石の磁場を変え入射第2表 Twiss Parameters at Injection Point.

粒子が安定領域に捕えられることを確認する。

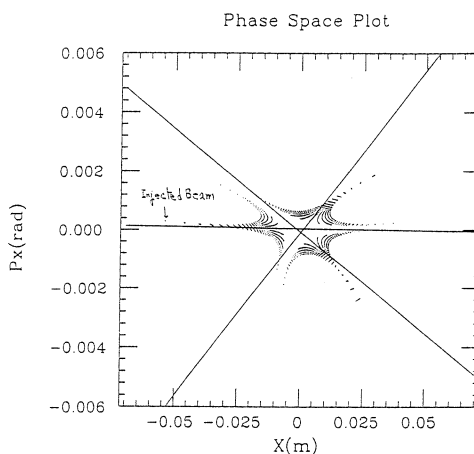
入射粒子にはある有限の広がり(エミッタンス)がある。これを考慮してトラッキングを行った。

但し、粒子間の相互作用は無視した。入射粒子のパラメータは第2表とした。ここで、入射粒子のツイスパラメータはストレッチャーモードでの入射時と同じにしてある。四極電磁石QFFの磁場を変える早さは200ターンする間に横方向のチューンが3.3に戻る様にした。

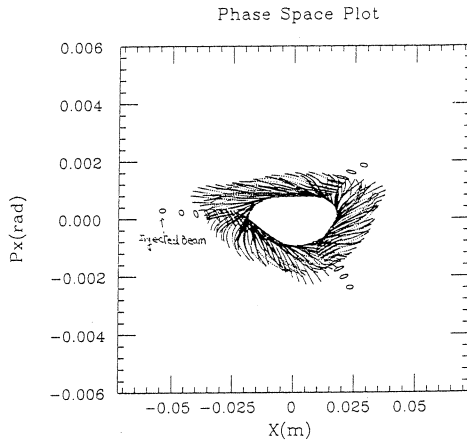
四極電磁石QFFの磁場を変えだす時期は、11ターン目から(第8図)と21ターン目から(第9図)についてトラッキングを行った。今、10ターン分の長さのビームを入射したとする。ビームの先頭が20ターンした時、ビームの最後部は10ターンしていると考えられる。この時、

四極電磁石の磁場を変え始めると、ビームの先頭は入射後21ターン目から磁場を変えられたことになり、ビームの最後部は11ターン目から磁場を変えられたことになる。このどちらの場合も入射可能であれば、先頭と最後部の間のビームも入射可能である。従って、第8図、第9図

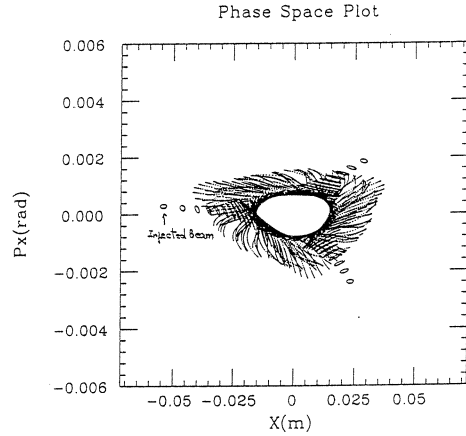
	Horizontal(X)	Vertical(Y)
$\alpha$	-0.0578	10.3
$\beta$ (m)	20.2	-0.115



第7図 入射点に於ける位相空間内での粒子の運動。射粒子のエネルギーに幅があった場合他の条件は第6図と同じ。運動量による収差は完全には消されていない。



第8図 入射点に於ける位相空間内での粒子の運動。エミッタンス  $1 \times 10^{-7} \text{ m}\cdot\text{rad}$  を持った入射粒子の場合。チューンは200ターンで3.333から3.3に変わるようにしてある。チューンを変え始める時期は11ターン目からである。



第9図 入射点に於ける位相空間内での粒子の運動。チューンを変えだす時期を21ターン目からにした場合。他の条件は第8図と同じ。

より、この共鳴入射方式では10ターン分のビームが入射可能である。

現在計画されている3ターン入射方式では、ビームの長さをリング3周分にするために、ライナックのパルス幅を約  $0.5 \mu\text{sec}$  と短くしているが、この共鳴入射方式ではライナックのパルス幅を約  $2 \mu\text{sec}$  にすることが出来、ライナックの性能を十分発揮させることが出来る。

第8図、第9図より、入射された粒子の横方向のエミッタンスは約  $8 \times 10^{-5} \text{ m}\cdot\text{rad}$  と大きい値になっている。これは、しかし、加速モードでは放射減衰という現象によってエミッタンスが減少するのでそれほど問題にならないと思われる。

#### § 4. まとめ

STBへの共鳴入射の実現可能性をシミュレーションにより検討した。安定領域の大きさを変える方法として、四極電磁石の磁場を変えることによってチューンを変えるという方法について考えた。この時、リングのクロマチシティーは0に補正した。シミュレーションの結果、共鳴入射により10ターン分のビームが入射可能であることが確認された。従って、現在計画されている3ターン入射の約3倍のビームが入射可能でることになる。リングに入射された粒子のエミッタンスは約  $8 \times 10^{-5} \text{ m}\cdot\text{rad}$  と大きい値で、ストレッチャーモードで使用するのは困難である。しかし、加速モードでは放射減衰によってエミッタンスが減少するのでそれほど問題にならないと思われる。

又、この入射方式ではキッカー電磁石を用いないので、将来計画されている放射光リングにこの入射方式を適用できれば、いつでもリングにビームを供給でき、ビーム電流ををいつもほぼ一定の値に保つことが出来ると思われる。

軌道解析プログラムSADを使用するに当たり、親切に御指導戴いた高エネルギー物理学研究所の生田勝宣助教授に深く感謝致します。

### 参 考 文 献

- 1) M.Oyamada and STB Group: Proceedings of 20th Linear Accelerator Meeting in Japan (1995) 130.
- 2) 雪島正敏 : 修士論文 東北大学 平成7年度
- 3) K.Hirata : CERN 88-04 (1988) 62.

## IV. 放 射 線 安 全 管 理



## 中性子散乱実験用遮蔽体の放射化量評価

放射線安全管理室

榎本和義・大槻 勤・笠木治郎太

The neutron scattering facility using pulsed neutrons from a tungsten target which was irradiated by the electron beam (220MeV, 5kW) has been utilized for 23 years. After being cored out the concrete shield (thickness : 2-2.5m) for five directions radiated from the target, the depth profiles of various radionuclides induced in the samples by bremsstrahlung and neutron were observed by  $\gamma$ -ray and  $\beta$ -ray counting methods. Then the radioactive area in the shield which should be stored as radioactive waste was assessed for the decommissioning of this facility. The shield wall of down stream was strongly activated along with the beam axis and the thickness of tenth value of radioactivity was  $130\text{g}/\text{cm}^2$  which did not depend on the types of nuclear reactions. The side wall has been mainly activated by thermal neutron and the thickness of tenth value was  $75\text{g}/\text{cm}^2$ . The average neutron flux at the inside wall was isotropically about  $10^7/\text{cm}^2/\text{sec}$ . The photon flux of down stream was about  $10^{10}/\text{cm}^2/\text{sec}$  and the of side wall was about  $10^7/\text{cm}^2/\text{sec}$ .

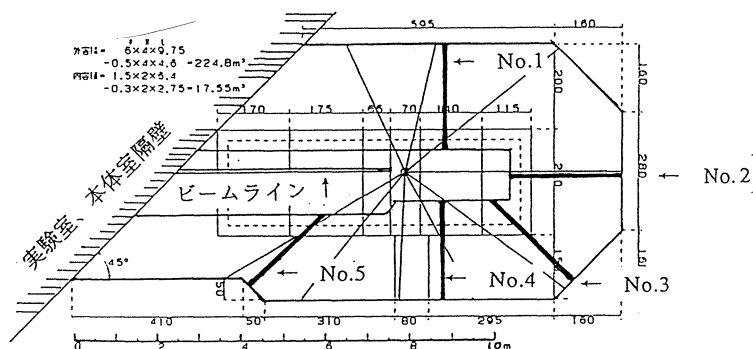
### § 1. 序

加速器によるパルス中性子散乱研究は本施設において創始され、これまで幾多の研究成果を挙げてきたことは良く知られている<sup>1)</sup>。とくに、1971年に第二実験室に本格的な中性子散乱実験用遮蔽体が設置されて以来、遮蔽体周囲に設置された各種の中性子スペクトロメータ、ゴニオメータを用いて様々な共同利用研究が行われてきた。しかし、本施設では1995、96年度に新たにストレッチャー・ブースター・リングを建設することが決定し、23年間利用されてきた中性子散乱実験設備を廃止することになった。このような加速器施設のデコミッションングの例はこれまでほとんどないことから、遮蔽体撤去のために必要と考えられる種々のデータを収集した。とくに、コンクリート遮蔽体中の残留放射能については詳細な測定を実施した。これらのデータは撤去工事や廃棄物の放射線安全管理上の方針を決定するうえで不可欠であるだけでなく、電子加速器に特有の放射線環境の評価、遮蔽体の遮蔽能力の評価、遮蔽方法、遮蔽材料に関する今後の指針を得るといった観点からも重要と考えられる。

## § 2. 中性子散乱実験設備

### 2.1 設備概要

中性子散乱実験は電子リニアックからの高エネルギー電子（加速エネルギー：220MeV，パルス幅：3  $\mu$ s，繰り返し：100pps，平均出力：5 kW）をタングステン・ターゲットに照射し，ターゲットから二次的に発生する中性子を用いて行われてきた。ターゲットは水冷されており，同時に中性子を熱運動化させる効果を果たしていた。中性子散乱実験設備ではターゲットとスペクトロメータの間にコンクリートの遮蔽体が設けられており，小型原子炉の生体遮蔽体に類似した形状をしている。第1図に遮蔽体の平面図を示したが，材料は普通コンクリート，

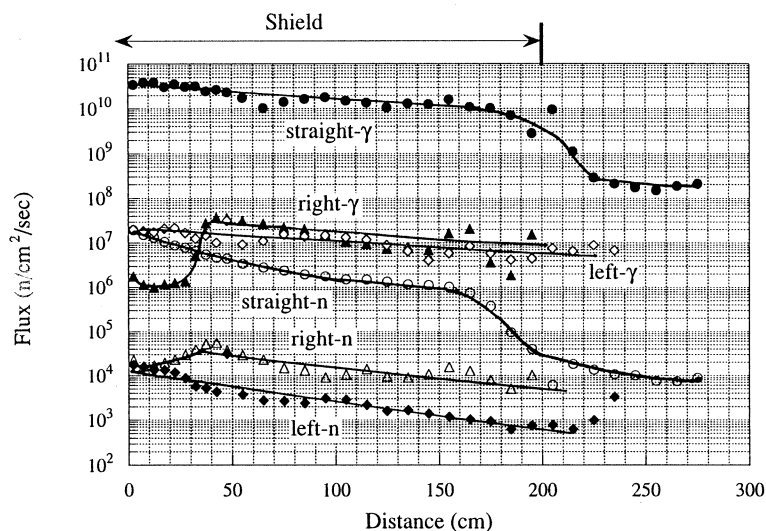


第1図 中性子散乱実験用遮蔽体の平面図。  
図中の番号はボーリング箇所を示す。

壁の厚さは2～2.5mで高さは4mである。遮蔽体には中性子ビーム引き出し用ダクト8本，ターゲット監視TV用ダクト1本，合計9本のダクトがターゲットを中心に放射状に設けられており，遮蔽体を囲むように単結晶回折装置，粉末回折装置，液体散乱装置，小角散乱装置などが配置されていた。年間のマシンタイムは平均で半期20～30シフト（1シフト＝半日）であり，理学部，工学部，金研，選研（現，素材研）などの研究者を中心に共同利用研究が行われてきた。

### 2.2 実験中の中性子および制動放射線

発生する中性子は文献<sup>2)</sup>によればターゲットを入れた水冷容器表面で平均  $3 \times 10^9 / \text{cm}^2 / \text{sec}$  程度とされてきたが，実際の照射線量を知るため，共同利用マシンタイムの際に中性子引き出し用ビームダクト内にAu線を200cmまで挿入し，Auの  $(\gamma, n)$ ， $(n, \gamma)$  反応を利用して制動放射線と中性子線の線束密度を同時に測定した。測定箇所はビーム下流 (straight)，ビーム方向に対し左76度 (left)，右37度 (right) の3箇所である。測定結果を第2図に示す。横



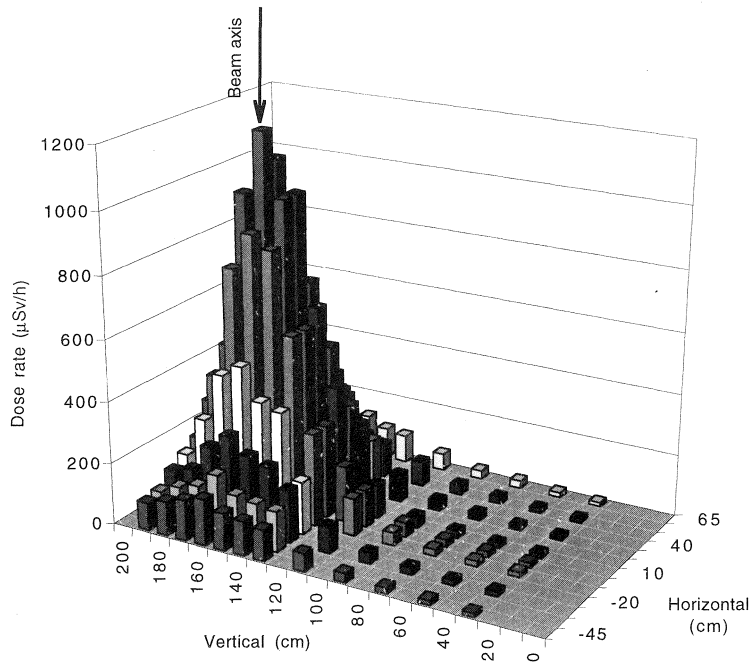
第2図 中性子ビームダクト内での制動放射線と中性子線の線束密度。

軸で200cmの位置が遮蔽体外壁にあっており、0cmは外壁から200cm入った部分にあたり、遮蔽体内壁まではstraightとleftで50cm、rightで150cmの距離がある。図から、中性子、制動放射線ともにダクト内では緩やかに減衰しながらビームダクトを通過してくる様子が分かる。その減衰の程度は制動放射線の方が中性子に比べて緩やかであった。右側のビームダクトには外壁から150cmの位置にコリメータがあったため、その下にAu線が隠れてしまい、先端50cmの部分の線束密度は見掛け上下がっている。

制動放射線はビーム下流側で $10^{10}$ 、左右で $10^7/\text{cm}^2/\text{sec}$ のオーダーであった。中性子線を全て熱中性子と仮定すると、ビーム下流側で $10^7 \sim 10^6$ 、左右で $10^4 \sim 10^3/\text{cm}^2/\text{sec}$ 程度と見積もられビーム下流側が3桁も高くなっており、熱中性子は等方的分布を示すという予想に反していた。そこで、ビーム下流側と右側面のビーム孔出口にCdカプセルに入れたものと入れないものを置き、それらの(n,  $\gamma$ )反応の生成比からそれぞれでのエピソード中性子、熱中性子束を求めた。この結果、ビーム下流側での $10^6$ のオーダーであったのは見掛け上のもので、実際にはエピソード中性子が殆どで、線束は $4 \times 10^3/\text{cm}^2/\text{sec}$ 程度とあった。このように、ビーム下流側と周辺部で中性子の線束密度はほぼ同じであるが、その中性子スペクトルは異なっていることが分かった。

### § 3. 遮蔽体内部の空間線量測定

遮蔽体内での作業環境を把握するため、遮蔽体内の壁面の表面線量を測定した。ビーム下流側にあたる正面の壁面（第3図）の放射線レベルをイオンチェンバーを用いて測定した。横軸

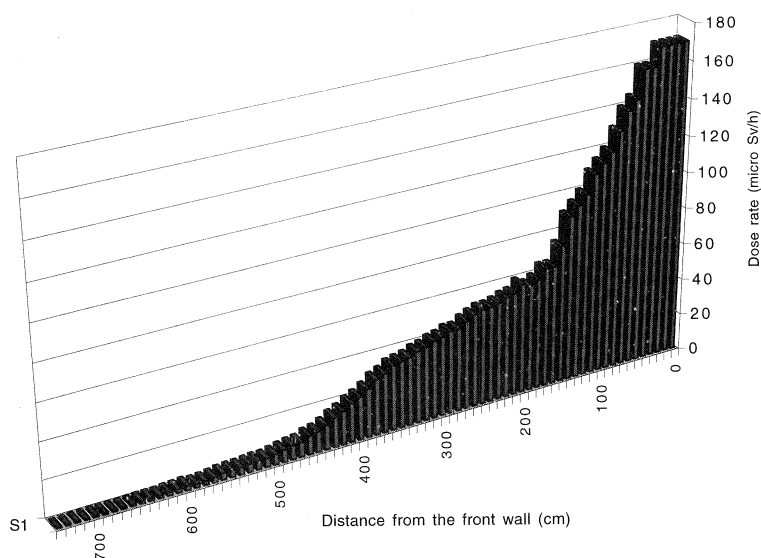


第3図 遮蔽体内ビーム下流壁面での表面線量の分布。

は床面からの高さ、縦軸は壁面の中心から左右の距離、棒グラフの高さは線量率（ $\mu\text{Sv/h}$ ）である。ビームライン上の位置が最も線量が高く、ビーム下流方向に発生した制動放射線によって局所的に著しい放射化が生じていることが分かる。このような局所的な放射化は電子加速器の特徴といえよう。その後、鉄板から試料を採取して分析を行った結果、著しい放射化領域はビーム中心から半径10cmの非常に限られた部分であり、表面線量測定の際にはビーム中心から離れた位置もビーム中心の高い放射線レベルの影響を受けて第3図のような結果となったことが分かった。

ビーム方向に対し左側壁面の線量をイオンチェンバーおよび NaI シンチレーションサーベイメータを用いて測定した。第4図はビームラインの高さでの線量率の変化を示したもので、ビーム下流側の壁面からの距離を横軸にとっている。ターゲットより前方側では線量は距離が離れるとともに急激に減少し、ターゲットより後方になるとやや緩やかに減少していることが

Surface dose rate of the inside wall of ND shield.



第4図 遮蔽体内左側壁面での表面線量のビーム下流壁面からの距離による変化。

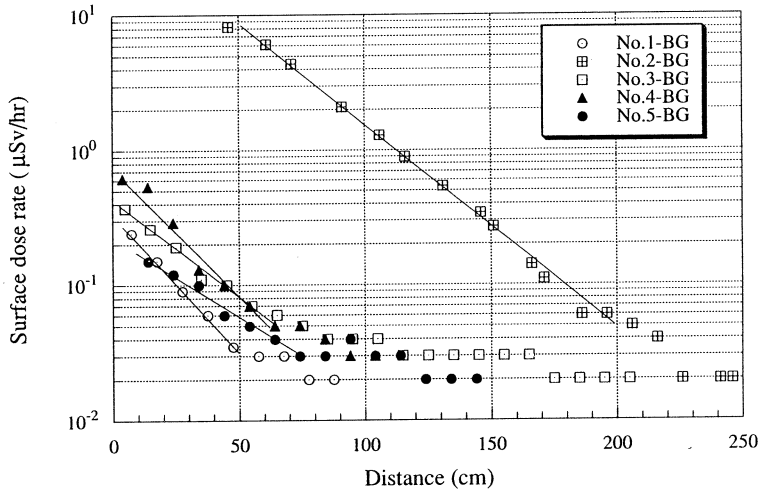
分かる。また、両側壁面で垂直方向の変化を測定したところ、ターゲットより前方側では、ビームラインの位置で最も表面線量が高く、床面に向かって急激に減少していたが、ターゲットより後方では床面からの高さによらずほぼ一定であった。また、ターゲット前方側では左右の壁面の表面線量率に殆ど差はなかった。しかし、ターゲット後方側では右側面の表面線量率は対向する左側面の約半分であった。これは、ビームダクトから左壁面までの距離は50cmであるのに対し、右壁面までは100cmと離れているためと考えられる。

## § 4. 試料採取および測定

### 4.1 試料採取と表面線量測定

遮蔽体内部の放射化の程度を調べるため床上1.6m（ビームライン）の位置を外壁側からボーリングし、直径5cmのコア状に抜き取った。採取箇所を第1図に示した。ビーム下流側のNo.2試料では内壁から45cmの部分のコンクリートが砕けてしまい、コアとして採取することができなかった。

最初にNaIシンチレーションサーベイメータでそれぞれのコア試料の表面線量を測定した。測定結果からバックグラウンド値(0.1 $\mu$ Sv/hr)を差し引いた値をプロットしたのが第5図である。横軸は内壁からの距離として表した。No.2試料では表面線量が他の試料に比べて著しく



第5図 コンクリート・コア試料の表面線量率の変化。

高く、内壁から170cmまで指数関数的に減衰していた。バックグラウンド値とほぼ等しくなるのは、No. 2 試料では内壁から170cm、その他は内壁から50cmであった。この結果から、ビーム下流側では制動放射線によって遮蔽体内部深くまで放射化している事が分かった。

#### 4.2 試料処理と放射化分析

次に、核種同定、濃度評価のための試料を採取するため、各コアから適当な間隔を置いて10数箇所を選び、1 cmの幅で切り出し、100meshの粒経になるまで粉砕した。

個々の核種が生成する因になった標的核と核反応を推定し、遮蔽体に照射された放射線（中性子線、制動放射線）の強度、照射履歴を評価するには、コンクリートにもともと含まれている元素の種類と濃度のデータが不可欠である。そこで、中性子および光量子放射化分析法により元素分析を行った。中性子放射化分析は京都大学原子炉実験所の KUR Pn-2（熱中性子： $2.8 \times 10^{13}/\text{cm}^2/\text{sec}$ ，エピサーマル中性子： $1.1 \times 10^{12}/\text{cm}^2/\text{sec}$ ）において40分間照射した。No. 1, No. 4, No. 5 各2検体の合計7個を分析した。試料量は50mgで、比較標準試料には日本地質調査所配付の JB-1a, JA-1, JA-2 を使用し、18元素の定量を行った。光量子放射化分析は本施設において実施した。比較標準試料には NIST SRM 1633a Coal fly ash を用いた。試料量は200mgで、それぞれ高純度 Al 箔に二重包装し、標準試料とともに石英管に封入した。照射エネルギー30MeV、平均電流120  $\mu\text{A}$  で3時間照射した。No. 1, No. 3, No. 4, No. 5 各6検体、No. 23 検体の合計27個を分析し、23元素を定量することができた。それぞれの方法で得られた平均値、標準偏差と最大値、最小値を第1表に示した。2種の方法で得られた結果は非常に良く

Table 1. Analytical results of concrete asmples by NAA and PAA (concentration in ppm).

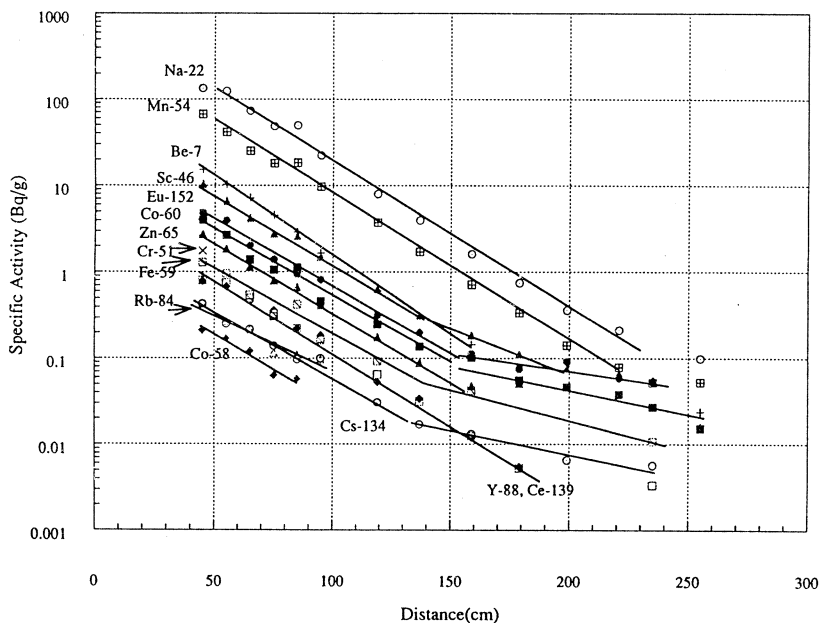
Element	NAA		PAA	
	Average	Range	Average	Range
Na	16700±1300	15400-19500	16300±1400	13600-20300
Mg			9600-2500	5900-11800
Ca	6500±8000	76000-52000	68000±9000	48000-93000
Ti			2500±400	3300-1800
Fe	31000±7000	24000-43000	30000±5000	21000-43000
Sc	12.0±2.5	9.3-15.5	13.2±2.2	9.4-18
Cr	55±17	47-88	522±22	26-110
Mn			134±23	100-183
Co	10.0±2.1	7.7-13.7	10±2.4	6.6-16.6
Ni		24-56	22.2±12.7	9.5-49.6
Zn	149±30	122-209	176±93	94-575
As			6.7±2.6	3.2-13
Rb	36±4	30-43	38.7±7.6	26-63.6
Sr			201±14	173-222
Y			17.5±1.8	14.7-21.4
Zr			85±10	62.8-103.7
Nb			4.8±0.5	4.0-5.8
Sb			0.8±0.3	0.3-1.4
Cs			1.2±0.4	0.6-2.1
Ba	471±112	327-626	478±75	353-702
La	9.4±0.9	8.2-10.8		
Ce	19.2±2.1	16.4-21.6	21.3±3.4	17.1-32.5
Sm	2.6±0.2	2.3-2.9		
Eu	0.8±0.1	0.7-1.1		
Tb		0.27-0.82		
Yb	2.1±0.4	1.8-2.3		
Lu	0.4±0.1	0.3-0.5		
Hf	2.6±0.5	2.3-3.7		
Ta		0.21-0.36		
Pb			24±20	7-110
Th	2.5±0.3	2.2-3.1		
U	0.8±0.2	0.7-1.2	1.0±0.2	0.5-1.4

一致しており、併せて32元素の濃度を決定することができた。Ca含有量は通常のセメントの値の5ないし10分の1であり、試料の元素組成はセメントよりも岩石に類似していることが分

かった。

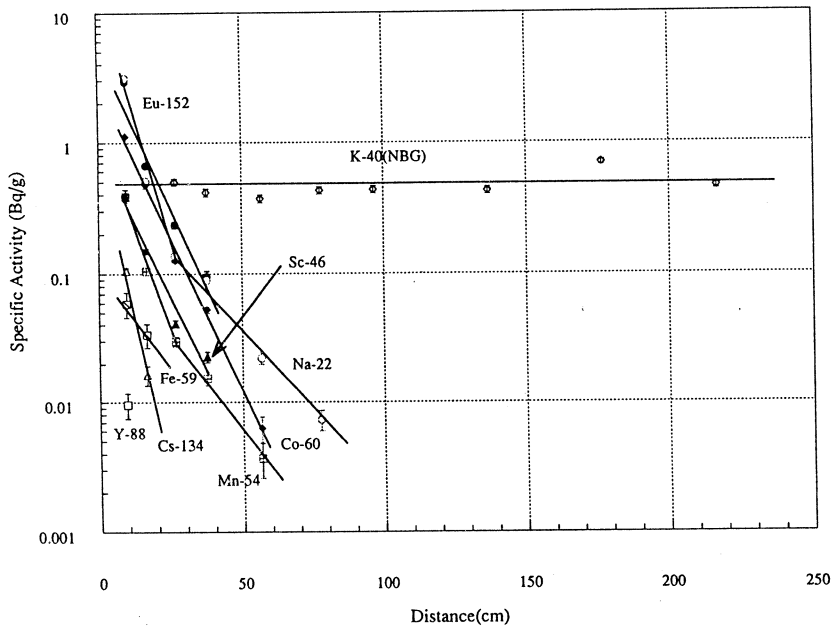
### 4.3 $\gamma$ 線測定

$\gamma$ 線測定は低バックグラウンド遮蔽体付き Ge 半導体検出器 (相対効率: 20%, 分解能: 1.9 keV) を用いて行った。5 本のコア試料からは 8~13 核種が検出された。ここでは, No. 2, No. 1 および No. 3 の核種分析の結果についてそれぞれ第 6, 7, 8 図に示した。第 5 図同様横軸は内壁からの距離として表した。No. 2 では光核反応による核種が生成しており, その比放射能の強さは  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^7\text{Be}$  の順であった。 $^{22}\text{Na}$  は主に  $^{22}\text{Na} (\gamma, n)^{22}\text{Na}$  反応で生成し,  $^{22}\text{Mg} (\gamma, pn)^{22}\text{Na}$  反応や  $^{22}\text{Al} (\gamma, \alpha n)^{22}\text{Na}$  反応からも一部生成する。 $^{54}\text{Mn}$  では  $^{56}\text{Fe} (\gamma, pn)^{54}\text{Mn}$  反応の寄与が大きく (70%),  $^{55}\text{Mn} (\gamma, n)^{54}\text{Mn}$  反応からも生成する (30%)。 $^7\text{Be}$  は C, N, O といった軽元素からだけでなく Na, Mg, Al, Si などから高エネルギー制動放射線による核破碎反応で生成したと考えられる。No. 1 や No. 3 試料では中性子捕獲反応による  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{60}\text{Co}$  および  $^{46}\text{Sc}$  の生成が顕著であった。試料中の天然放射性核種  $^{40}\text{K}$  は 0.4 Bq/g で, ほぼ一定であった。No. 2 以外の試料では内壁から 30 ないし 50 cm で殆どの核種の比放射能が  $^{40}\text{K}$  のそれを下回った。しかし, No. 2 では放射能の減少傾向はゆるやかで,  $^{40}\text{K}$  のレベルを下回るのは 200 cm を越えてからであった。

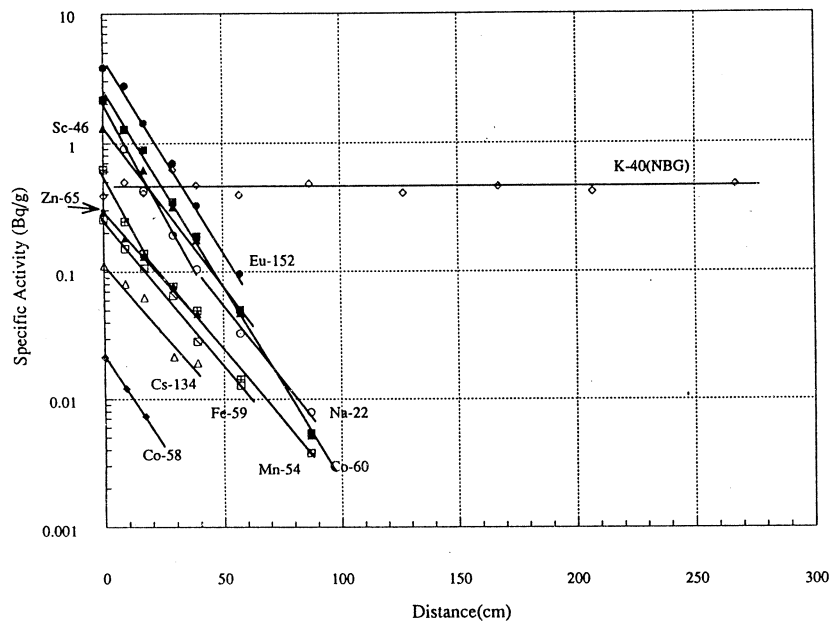


第 6 図 コンクリート試料 No. 2 中の生成核種の遮蔽体深さによる変化。

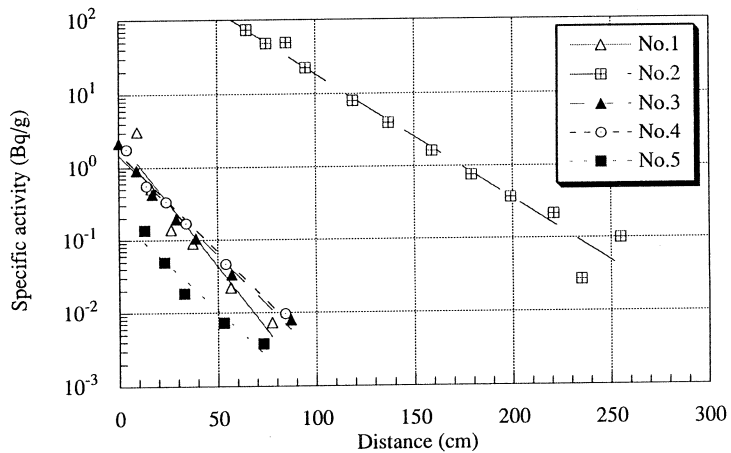




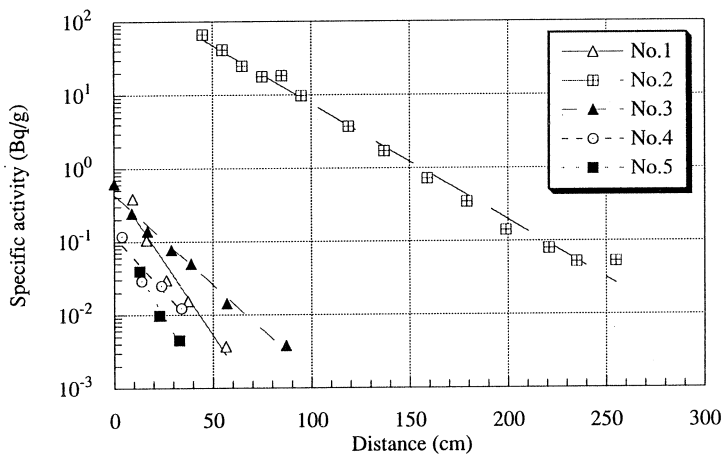
第7図 コンクリート試料No.1中の生成核種の遮蔽体深さによる変化。



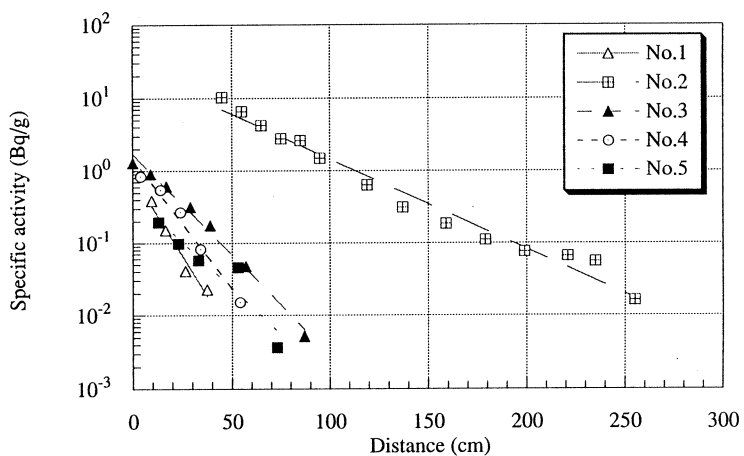
第8図 コンクリート試料No.3中の生成核種の遮蔽体深さによる変化。



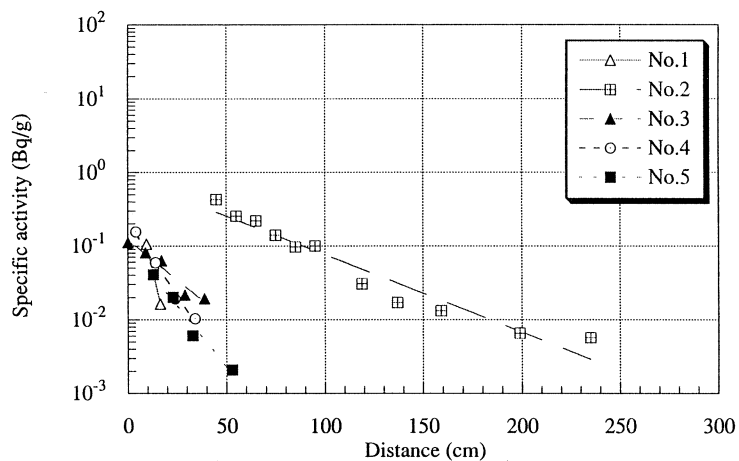
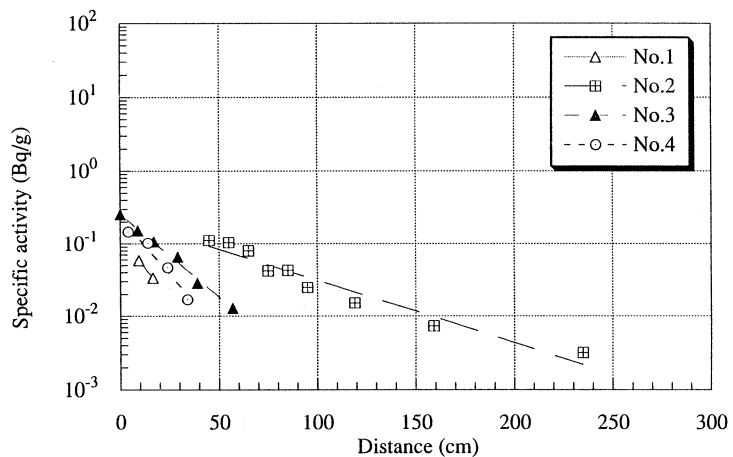
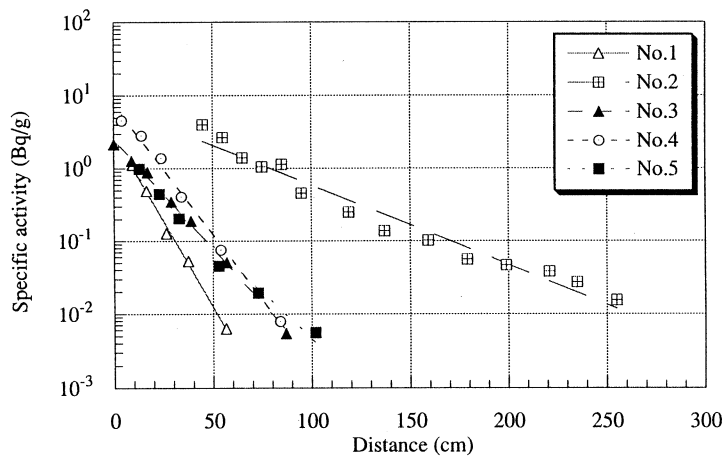
第9図 各コア試料での  $^{22}\text{Na}$  放射能の変化。

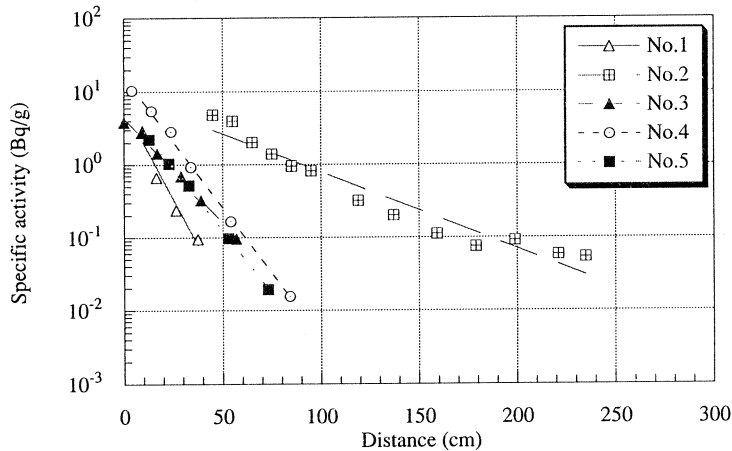


第10図 各コア試料での  $^{54}\text{Mn}$  放射能の変化。



第11図 各コア試料での  $^{46}\text{Sc}$  放射能の変化。

第12図 各コア試料での  $^{134}\text{Cs}$  放射能の変化。第13図 各コア試料での  $^{59}\text{Fe}$  放射能の変化。第14図 各コア試料での  $^{60}\text{Co}$  放射能の変化。



第15図 各コア試料での  $^{152}\text{Eu}$  放射能の変化。

次に、 $^{22}\text{Na}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{59}\text{Fe}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{46}\text{Sc}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  の 7 核種について核種毎にまとめた結果を第 9～15 図に示した。通常、中性子と制動放射線の減衰定数は異なるとされている。しかし、これらの結果を比較すると中性子反応、光核反応ともにその減衰率は変わらず、試料採取位置に依存していることが分かる。また、光核反応と中性子反応は No. 2 の試料での生成量とそれ以外の試料での生成量を内壁面まで外挿したときの差が大きいか小さいかで区別できることが分かった。すなわち、No. 2 で明らかに生成量が多い  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  は光核反応により生成したと考えられ、No. 2 とそれ以外で差が小さい  $^{59}\text{Fe}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  は中性子反応によるものであるといえる。その中間の  $^{46}\text{Sc}$  と  $^{134}\text{Cs}$  は両方の寄与を考慮する必要がある。No. 2 では  $^{46}\text{Sc}$  は制動放射線によって  $^{48}\text{Ti} (\gamma, pn)^{46}\text{Sc}$  反応と  $^{47}\text{Ti} (\gamma, p)^{46}\text{Sc}$  反応からほぼ同量生成する。これに対し、No. 2 以外では  $^{45}\text{Sc} (n, \gamma)^{46}\text{Sc}$  反応の寄与が大きい。 $^{134}\text{Cs}$  の場合も No. 2 では制動放射線によって  $^{135}\text{Ba} (\gamma, p)^{134}\text{Cs}$  反応と、一部  $^{136}\text{Ba} (\gamma, pn)^{134}\text{Cs}$  反応から生成する。これに対し、No. 2 以外では  $^{133}\text{Cs} (n, \gamma)^{134}\text{Cs}$  反応の寄与が大きいといえる。

ここで、 $^{22}\text{Na}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  は光核反応、 $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  は中性子反応で生成するとし、内壁での制動放射線と中性子線の線束密度をそれぞれ  $10^7/\text{cm}^2/\text{sec}$  と仮定し、生成放射能を求めてみた。計算結果

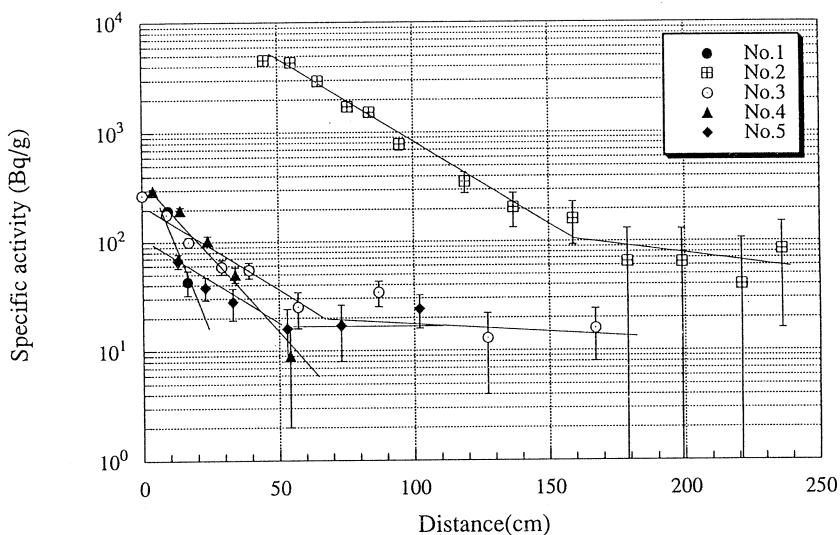
第 2 表 Comparison of residual activities (Bq/g) in the concrete sampled near the inside wall calculated values.

Nuclide	No.1	No.3	No.4	No.5	Calc.
$^{22}\text{Na}$	3.1	2.2	1.8	0.14	3.6
$^{54}\text{Mn}$	0.4	0.6	0.1	0.04	0.5
$^{46}\text{Sc}$	0.4	1.3	0.8	0.19	1
$^{60}\text{Co}$	1.1	2.2	4.6	1.0	3
$^{134}\text{Cs}$	0.11	0.11	0.15	0.04	0.1
$^{152}\text{Eu}$	2.9	3.8	10	2.2	4

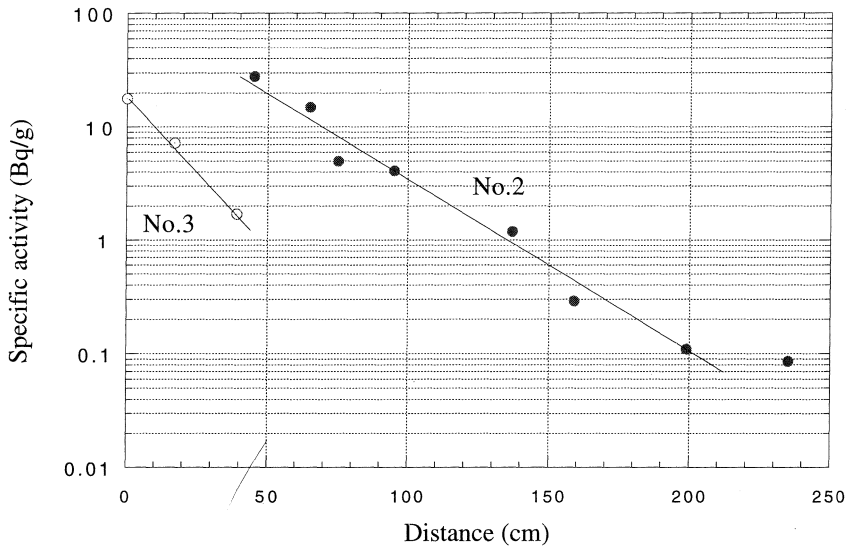
をNo.1, No.3, No.4, No.5での内壁に最も近い実測値とともに第2表に示した。計算では、年間60シフトで23年間照射されたとした。また、元素濃度は第1表の分析値の平均値を用いた。No.1, No.3, No.4では計算値とほぼ等しく、制動放射線と中性子線ともに $10^7 / \text{cm}^2 / \text{sec}$ のオーダーであったと推定される。また、ターゲット後方にあたるNo.5では制動放射線の線束密度はさらに1桁小さい事が分かる。この結果は制動放射線については第2図で示した結果と合っているが、中性子線に対しては3桁程高い結果となっている。

#### 4.4 全 $\beta$ 線測定

$\beta$ 核種は撤去工事の際の作業者の内部被曝評価の基礎データとして必要となる。そこで、No.2はGM検出器、その他の試料は $2\pi$ ガスフロー検出器で全 $\beta$ 放射能の測定を行った。試料約200mgを直径25mmの試料皿に均等に入れて測定した。検出器の検出効率測定はKClを用いて行った。GM検出器では70Bq/g、 $2\pi$ ガスフロー検出器では10Bq/gが検出下限値であった。測定結果を第16図に示したが、NaIシンチレーションサーベイメータでの表面線量の測定結果(第5図)とよく一致していた。このことから、現場での作業の際にはサーベイ結果からコンクリートの $\beta$ 放射能を換算することが可能であることがわかった。また、全 $\beta$ 放射能は $\gamma$ 核種の放射能の合計したものに比べて約1桁高い値を示した。このことは $\gamma$ 線を放出しないような核種が存在することを示唆している。例えば、 $^{45}\text{Ca}$ や $^{55}\text{Fe}$ などの存在も考えられる。



第16図 各コア試料での全 $\beta$ 放射能の変化。



第17図 コア試料No.2とNo.3でのトリチウム放射能の変化。

#### 4.5 H-3, C-14濃度測定

このような試料の放射能測定でこれまでほとんど分析されていない核種にトリチウムと $^{14}\text{C}$ がある。そこで、トリチウムと $^{14}\text{C}$ 燃焼法による分離と液体シンチレーションカウンターによる検出法を組み合わせることにした。管状電気炉中に試料、助燃剤（酸化銅）各1gを入れた試料ポートを挿入し、酸素気流下で800°Cで燃焼させた。トリチウムはドライアイス・エタノール冷却トラップで捕集し、 $^{14}\text{C}$ はモノエタノールアミンを入れたトラップで捕集した。No.2とNo.3の試料でのトリチウムの分析結果を第17図に示した。

トリチウムの生成量をコンクリート内壁まで外挿したとき、No.2とNo.3で生成放射能に著しい差がなく、中性子反応の場合の例と類似していることが分かった。当初、高エネルギー制動放射線が核破砕反応が生じトリチウムが生成されるものと推定した。もし、核破砕反応が主因であるとすれば、 $^7\text{Be}$ の生成の場合と同様No.2の方が高い値を示すはずであるが、No.3試料においても同程度のトリチウムが検出された。このことから、トリチウムは主に $^7\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$ 反応によって生成したものと考えられる。実際にサイクロトロンによる陽子放射化分析でコンクリート試料中のLiの分析を行ったところ、平均濃度は7ppmであった。コンクリート中のLi含有量を7ppmとすれば、 $10^7/\text{cm}^2/\text{sec}$ の熱中性子束で放射化されたとき24Bq/gが生成する計算となり、実測値をうまく説明できる。

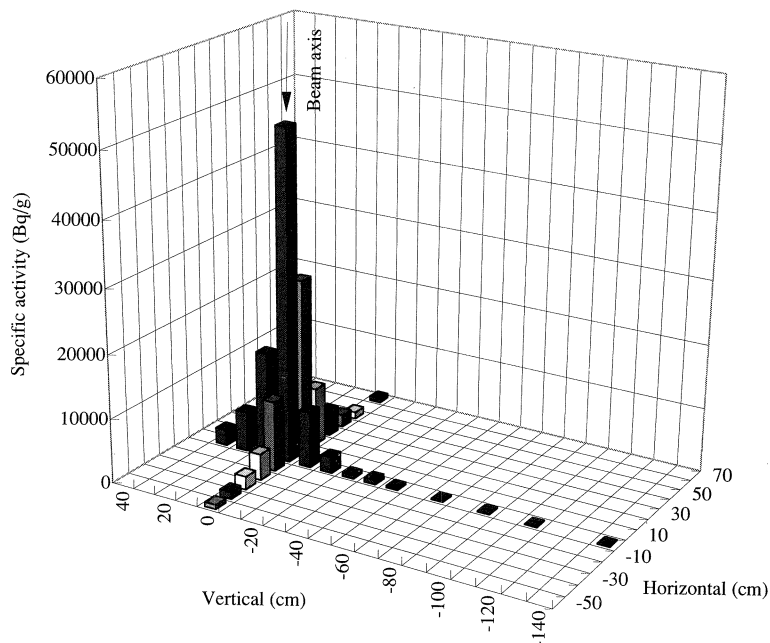
$^{14}\text{C}$ の成因として光核反応では $^{16}\text{O}(\gamma, 2p)^{14}\text{C}$ 反応が考えられ、中性子反応では $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ 、

$^{17}\text{O} (n, \alpha)^{14}\text{C}$ ,  $^{13}\text{C} (n, \gamma)^{14}\text{C}$ が考えられる。今回の分析では $^{14}\text{C}$ を検出することはできなかった。さらに、 $\text{NaOH} + \text{Na}_2\text{O}_2$ によるアルカリ融解法およびW:Sn合金、Cu粉末を加えて酸素気流下で $1000^\circ\text{C}$ での燃焼法による $^{14}\text{C}$ の分析も試みたが、検出限界値の $0.05\text{Bq/g}$ 以下であった。

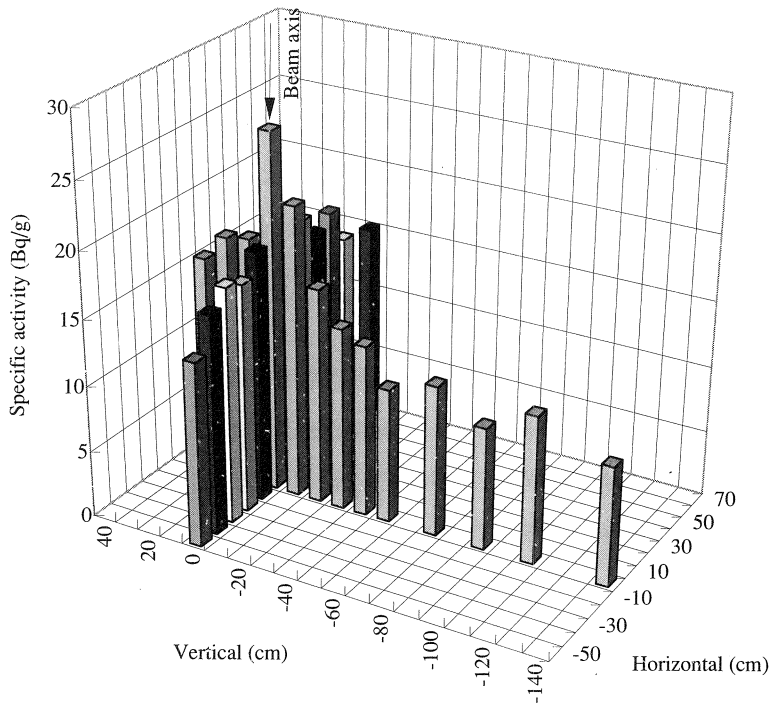
コンクリート試料中のトリチウムと $^{14}\text{C}$ の分析法の確立と、これらの核種の生成反応の確認をするため、現在原子炉(JMTR, KUR)で試料を中性子照射し、トリチウムと $^{14}\text{C}$ がどの程度生成するか調査中である。

#### 4.6 内壁鉄板の放射能測定

内壁鉄板の放射化の問題は撤去作業時の放射線被曝や撤去後の保管を考えるうえで重要である。そこで、ビーム下流側壁面の鉄板からビーム中心を通過して水平及び垂直方向に10cm毎に200~400mg程度ドリルにより採取して $\gamma$ 線測定を行った。また、側壁ではビームラインの高さで試料を採取した。鉄中の主な生成核種はビーム下流側では $^{56}\text{Fe} (\gamma, pn)^{54}\text{Mn}$ 反応からの $^{54}\text{Mn}$ 、側壁では $^{58}\text{Co} (n, \gamma)^{60}\text{Co}$ 反応による $^{60}\text{Co}$ であった。第18図には正面鉄板での $^{54}\text{Mn}$ の分布を示した。比放射能はビーム中心で $51\text{kBq/g}$ 、半径20cmではその1/10となり、極めて狭い領域に集中していることが分かった。左側壁では正面鉄板から80cmの距離まではビーム中心の比放射能の1/100から1/150程度であり、ターゲットの真横に近い225cmでは1/1000、



第18図 遮蔽体内ビーム下流壁面での $^{54}\text{Mn}$ の強度分布。



第19図 遮蔽体内ビーム下流壁面での $^{60}\text{Co}$ の強度分布。

375~500cm では1/10000, 600cm を越えるとさらに1/100000まで減少した。この傾向は制動放射線の線束密度がNo. 1, No. 3, No. 4でNo. 2の1/1000, No. 5で1/10000と予想された第2表の結果と合っている。

これに対し, $^{60}\text{Co}$ の場合は第19図に正面鉄板での分布を示したようにビーム中心で30Bq/gで、左右では1/2, 床面で1/3程度までゆるやかに減少していた。興味深いのは、左側壁では正面鉄板から20cm では11Bq/gであったのが、ターゲットに近づくにつれて増加し、225cm の位置で40Bq/g, 300cm で30Bq/gとなった。その後は375~500cm まで10Bq/g, 600cm で2 Bq/gと減少した。このことから、熱中性子は遮蔽体内側にはターゲットを中心に $4\pi$ 方向に拡がっていたこと、中性子束は距離の2乗に比例して減衰していないことが分かった。

#### 4.7 コンクリートの遮蔽能力

誘導放射能は遮蔽体深さ方向に対し指数関数的に減少しており、1/10価層はビーム下流側では制動放射線、光中性子による反応で生成した放射能とともに約60cm ( $130\text{g}/\text{cm}^2$ )であるのに対し、側壁側では約35cm ( $75\text{g}/\text{cm}^2$ )であった。このことは、ビーム下流側では高速中性子も生成しており、それがコンクリート内で次第に減速し中性子捕獲反応を生じさせるため、より



深くまで (n,  $\gamma$ ) 反応が観測されたものと考えられる。

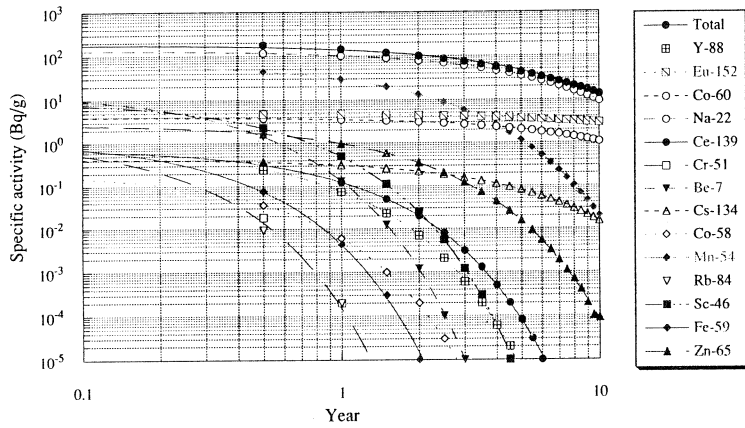
東北大学サイクロトロンアイソトープセンター<sup>3)</sup>や日本原子力研究所の電子ライナック施設で加速器室の壁を測定した結果では、壁面から5~10cm程度内部で熱中性子反応による生成放射能が大きくなるという例が報告されている。これに対し本施設ではコンクリートの深さとともに指数関数的に減少している。上記施設では加速器から発生した速中性子は減速せずに壁に入射し、コンクリート内で熱化したと考えられるのに対し、本施設では中性子発生ターゲットが水冷されており、中性子は壁に到達する前に熱化していたためであると考えられる。

## § 5. 遮蔽体の撤去

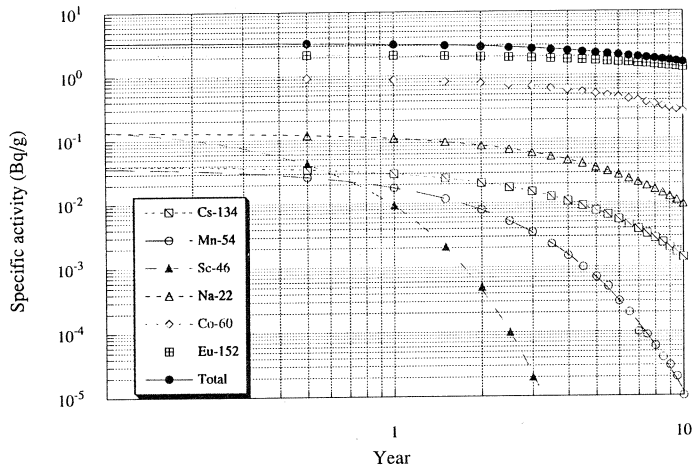
遮蔽体は内壁部が放射化されており、外周部はビーム下流側を除きほとんど放射化されていない。汚染の除去、汚染の非拡大という観点からは内壁側の放射化の著しい箇所からまず撤去することが望ましい。しかしながら、遮蔽体内部が狭いために作業性が悪く、多人数での作業が出来ず、放射化物に囲まれるために作業被曝が増加する恐れがあるという難点がある。そこで、外側の非放射化部から先に撤去し(工程1)、次に放射化部を撤去する(工程2)ことにした。この工法では非放射化部を外側に残した形で第1段階を終えることになるため、廃棄物量が増加することになる。解体にあたっては、粉塵の発生を抑えるため破砕剤による静的破砕法を採用した。また、廃棄物収納のため、全長150cmの中性子飛行トンネルの一部(35cm)を扉より区画し保管廃棄室とした。

工程1では遮蔽体上部、遮蔽体外周部の順で撤去した。ボーリンクによるコア抜き→コア試料による非放射化領域の確認→破砕剤注入→撤去→表面線量測定→搬出→遮蔽壁面のサーベイによる放射化部の線引きといった手順を放射化部に達する直前まで繰り返した。工程2では小さくなった遮蔽体を囲うグリーンハウス(チェンジングエリア、排気設備)の設置の後、解体→ドラム缶詰め→表面汚染検査→搬出→表面線量測定→保管排気施設に収納という手順で行った。

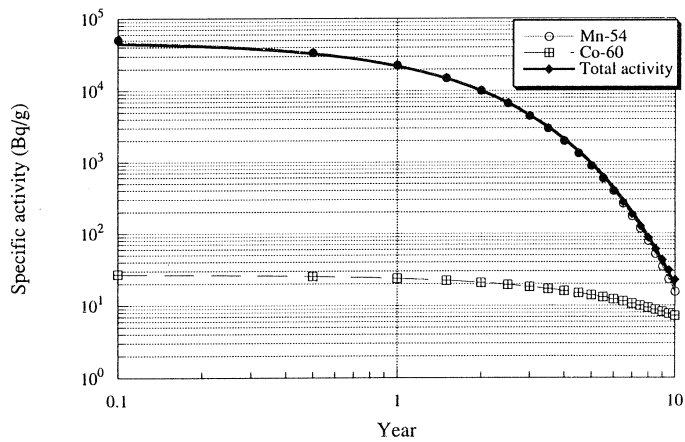
作業時の外部被曝管理はフィルムバッジとポケット線量計で行った。実人員811人、総作業時間4877man・hに対し総被曝線量は1.08man・mSvであった。内部被曝は作業場所でダストサンプラーを用いてダストを採取し、 $2\pi$ ガスフローカウンターおよびGe検出器で測定し、算出した。ダスト濃度はコンクリート破砕時に最大で $7 \times 10^{-5}$ Bq/cm<sup>3</sup>であった。代表核種を<sup>22</sup>Na(ALI= $2.2 \times 10^7$ Bq)とし、呼吸量20l/min、作業時間10h、マスク除去率0.1としたとき、内部被曝は0.16 $\mu$ Svと見積もられた。鉄板切断時は核種を<sup>54</sup>Mn(ALI= $2.9 \times 10^7$ Bq)と<sup>60</sup>Co(ALI=



第20図 ビーム下流側コンクリート放射能の保管時における減衰



第21図 遮蔽体側壁コンクリート放射能の保管時における減衰



第22図 ビーム下流側鉄板の放射能の保管時における減衰

$1.2 \times 10^6 \text{Bq}$ ) がダストに検出されたが、内部被曝は $0.7 \text{nSv}$  であり無視できるレベルであることが確かめられた。

## § 6. 廃棄物管理

現在、保管廃棄中の200lドラム缶は311本である。その内、最大の表面線量が $1 \mu\text{Sv/h}$ 未満のものが52%、 $10 \mu\text{Sv/h}$ 未満のものが37%と低レベルのもので9割を占めている。最大の表面線量が $100 \mu\text{Sv/h}$ を越えたものは、ビーム下流側のコンクリートを収納した2本だけであった。また、作業によって汚染した衣服、ビニールハウス用ビニールシート、コンクリートのボーリングの際に発生した水をセメント固化したものが合わせて10本あった。

今後10年間で放射化されたコンクリートおよび鉄材の保管廃棄した場合の、放射能の減衰の程度を求めた。ビーム下流側コンクリート、側壁コンクリート、鉄板についての計算結果をそれぞれ第20, 21, 22図に示した。遮蔽体コンクリートのビーム下流側での主要核種は $^{22}\text{Na}$ であり、10年間でその放射能は1桁減衰する。しかし、側壁では主要核種が $^{152}\text{Eu}$ であるから、10年間で約半分減衰するだけである。また、鉄板では主要核種が $^{54}\text{Mn}$ であるから10年で3桁減衰するが、その後は $^{60}\text{Co}$ が主となるためそれほど減衰しない。

## § 7. まとめ

遮蔽体の撤去は2カ月を越える大工事であった。遮蔽体内壁にはハウ素入りのコンクリートパネルまたは石膏ボードで10cm程度内張りし、ビーム下流側には40cm角、厚さ10cm程度の鉄ブロックがビームキャッチャーとして置いてあればコンクリート遮蔽体自体の放射化はかなり防ぐことができたと考えられる。また、遮蔽体全体をブロックを組み合わせて作っておけば撤去コストは殆どかからなかったものと思われる。

日本原子力研究所ではここ10年来、日本最初の動力炉であるJPDRの廃止措置のための非常に大きなプロジェクトが動いていた。これは、将来予想される商業発電用原子炉の廃止措置研究が我が国の重要課題として取り上げられているためである。これに対し、加速器施設のデコミッションングに関連した基礎データの収集はこれまであまり例がない。原子炉では熱中性子による放射化が主であるから内壁から40~50cm程度を除去することになる。しかし、本施設の電子加速器では制動放射線による放射化が200cmの深部まで生じ、同時に中性子による放射化も生じていた。このように、複雑な照射環境に構造材料はさらされることになる。これは荷電粒子加速器(サイクロトロン)の場合とも違っており、電子加速器の特徴といえる。今

回のデータが同様の施設の廃止が行われる際に役立つだけでなく、今後の建設時に生かされればと期待している。

工事前の放射線測定は泉雄一氏をはじめ日本環境調査研究所の方々、工事中の放射線測定は大和一郎氏をはじめ三菱電機の放射線管理の方々の協力によって行われた。浦澤茂一、今野收両氏には工事全般にわたって終始お世話いただいた。また、新村信雄氏には本調査結果に対して貴重な助言と励ましをいただいた。ここに謝辞を述べさせていただく。

### 参 考 文 献

- 1) 「パルス中性子散乱研究成果報告集—同施設パルス中性子源設備閉鎖にあたって」(東北大学理学部附属原子核理学研究施設, 1995)
- 2) N. Watanabe, Y. Ishikawa and K. Tsuzuki : Nucl. Instr. and Meth. **120** (1974) 293.
- 3) 木村健一, 石川敏夫, 山寺亮, 中村尚司 : Radioisotopes **41** (1992) 213.
- 4) 原田康典 : 私信 (1995).

## V. 加 速 器 稼 働 状 況

## 平成7年度マシン報告

### マシングループ

栗原 亮・浦沢茂一・小山田正幸  
柴崎義信・高橋重伸・中里俊晴

### 概 況

今期は、STBリング建設が始まり、ユーザーの強い要望と施設長の政治的判断により、建設とライナックの運転をおこなうことになった。第一実験室のRI照射を半期に限り毎月1、2回I系でおこない、ライナックの故障で実験の補償はおこなわないとの方針でのぞんだ。この照射実験に際して放射線管理のドアイインターロックは前年度に第一、第二実験室および本体室の入退出を考慮し変更済みである。従来同様、夏期の1ヶ月間の節電をおこない、電力使用量と従量料金の軽減を図った。また、冷温水発生装置の通年での運転をした。運転の結果は、ライナックの運転が少なかったので前年の電気と重油の使用量で比較できなかったが、性能では従来の冷凍機より応答時間が遅く、早い変化に追いつかない傾向がみられ、実験室・クライストロン室の湿度が従来より高い状態である。この改善は、空調システム全体の検討が要る。

マシンタイムは、前述の条件で4月から10月にかけて月1回の昼夜運転で12シフトを実施することにした。実験の窓口は、共同利用係りとせずマシングループになった。ライナック維持管理のための総合運転は、適時おこなうことにした。実験回数は、少ないが通常の実験と同様な保守と管理が必要で人員と予算もそれなりに必要である。また、運転方法は、クライストロン室温度が25℃以上で一時停止、室温25℃以下で再開と従来の方式を継続している。

ライナックの性能は、クライストロンパルサーのDe'Qingを動作させた状態で第1実験室に69MeVのエネルギーで調整ビーム電流10~20 $\mu$ Aである、第2実験室は、STBリング建設と第二電磁石室工事関連でビーム加速停止中である。

### マシンタイム実施状況

今期の実験日以外の停止期間は、本体室とクライストロン室で除湿器を稼働させ湿度対策とし、実験に影響はみられなかった。ライナック運転は、STBリング建設と並行して実施したため翌月の月初めに近い日曜・祭日の前日と翌日に実験を設定した。実験スケジュールは、放射線安全管理のインターロック点検、各系の試運転、不具合箇所の調整あるいは修理、最後に

総合運転をし実験日に備えた。実験後は、実験前に取り外した除湿器の再設置と運転をおこなった。

実験は、照射ボードの穴あき、空気圧力低下による立体回路温度制御不能、真空リークでの中止、および第一実験室ダクトでの微少リークがありターボポンプで引きながら実施した。実験中止での補償は、原則としてしない方針であったが、真空リークでの中止は、修理後の総合試運転をおこなうため、再立ち上げ、試運転のあと実験に供した。

冷温水発生装置を使用した空調は、実験停止時に実験責任者が空調機器の停止をおこなう方法を採用しており、エネルギー変更を伴わない連続実験が可能である。

第1表にマシンタイム実施状況を示す。(マシングループ調べ)

第1表 平成7年度 マシンタイム実施状況。

課 題	割 当	実 施	中 止	合 計
R I	12	10	2	12
合計	12	10	2	12
課題シフト数	12	10	2	12

## 保守状況

真空系は高圧ケーブルの絶縁不良とイオンポンプ本体のガス放出と真空度の低下があり、絶縁不良は不良ケーブルやコネクタの交換で対応している。また、加速管列のイオンポンプ本体のガス放出は、ライナック停止期間中にもあり、対策にポンプやシステムの変更改えていたが、制御電源容量とポンプの温度上昇に問題があることがわかった。そこで、電源容量を小さくし昨年と同じイオンポンプを採用した。今後は、イオンポンプ電源容量を小さくしたことと荒引き系の真空ポンプセットも長く使用しているので複数セットの更新と整備が必要である。真空度の低下は、第二電磁石室の一部のダクトとイオンポンプが更新される見込みなので、いくらか改善される。加速管列B部の真空度低下は、イオンポンプやダクトのメタルフランジからのリークでイオンポンプ更新で改善される。また、リーク箇所発見に使用するリークデテクターの更新は、できなかった。

冷却系はシーケンス回路をプログラマブル・コントローラに切り替え中であり、従来のリレー回路と混在している。加速管温度の上昇による加速管冷却系ポンプ停止シーケンス付加による支障はなかった。冷却系のBF系統は第2実験室と第2電磁石室関係のバルブを閉め、ポンプの近くで流量と圧力を調整している。純水を再生する加速管列とWG系のイオン交換樹脂の

交換をした。また、ライナックの運転がいつでもできるように実験終了後も適時試運転をおこない点検している。

パルサー関係は、クライストロンパルサー2号機とガンパルサーのDe'Qingを復帰、クライストロンパルサーは分割器と接続し、ガンパルサーは抵抗交換で復活した。クライストロンパルサーは、3号機のパルスタンクの油漏れの修理をおこなった。また、高電圧分圧器の碍子の絶縁不良が多いので、今後は分圧比を替えないで高耐電圧型に変更する。ガンパルサーは、5  $\mu$ secの半導体グリッドパルサーのノイズレベルの影響を強く受ける箇所を特定したが、恒常的な処置を施していない。

立体回路系の導波管は、膨らみや変形のHコーナー、直線導波管、透過波検出の方向性結合器の一部、および3 dB結合器を更新した。今後は、透過波検出の方向性結合器や真空導波管、および伝送損失の低減を考慮し整備する。また、導波管のガス漏れ検査に使用していた真空管式のリークディテクターが使用不能になり更新が必要である。

ライナック加速周波数のRF信号発生器を更新したが、稼働はまだである。

加速管や他の立体回路系の導波管などの基本的な部分で劣化が進んでおり、改修の対象は多い。直ちに改善したい。STBリングへのビーム入射に第二電磁石室の分析真空ダクト再配置で、今年度第二電磁石室のⅡ・Ⅲ系とECSの真空ダクトと分析スリットを含めて更新を考えていたが、Ⅲ系の真空ダクトと分析スリットが更新される。また、平成8年度にライナックのクーリングタワーの予算措置を考慮している。

積雪時のクライストロン室の水漏れ箇所は、五シーズン過ぎたが未だ修理はされていない。安全や故障を考えると、今後は運転中止した方が良いかと思う。

冷却系に限らず、クライストロン室温度上昇やマシン関係のアラームでマシンを停止し、故障の拡大を防止し、速やかに実験再開出来るようこれからも協力をお願いしたい。

ライナック運転の条件に通常と異なる希望がある場合は、早めに相談してください。また、放射線被爆の可能性のある作業は、「マシン停止後24時間以上おいてから行う」のが原則になっています。

平成7年度の主な修理・工事の内容は以下のとおりです。

工事関係

照射実験 (4/1~7/17)

冷却系

冷却系運転クーリングタワーファン二基運転, 三方弁動作適。



- パルサー関係      K P # 2 De'qing トリガジェネレーター交換。  
 ガンパルサー エミッションおよび De'qing 試運転。  
 電子銃エミッションは0.5V 以下で使用。  
 A 部加速管列ガスだし (合計18時間)。(5/29~5/30)
- 夏期停止 (7/18~9/5)
- 冷却系      第一実験室 B F 系配管地上部撤去と主配管周辺の整備。  
 三方弁故障 センサー交換。  
 クーリングタワーの水抜き, 藻発生のため清掃。冷却系停止 8 月末迄。  
 B F 系伸縮継手アルミガasket 交換。(8/21~24)  
 冷水運転 水換え 2 回実施。
- 試運転      夏季停止後の冷却系, 真空系の動作正常。  
 ガン・エミッション正常。
- 真空系      IP13, 14 修理。
- ビーム輸送系      第二実験室 II 系ビーム輸送系解体。  
 第二電磁石室 II・III 系の分析マグネットの位置測定と分析系の解体。  
 (7/13~21)
- 総合運転      ドアインターロックの定期点検。ビーム加速の総合運転。  
 電子銃エミッションは0.5V 以下で使用。
- 運転休止 (9/16~12/28)
- 冷却系      加速管列・WG デミネライザー交換。  
 冷水交換, B F・E C S の流量計の水漏れ修理。
- ビーム分析系      第二電磁石室天井工事。
- 試運転      冷却系。
- パルサー系      K P # 3 P T タンク 3 芯同軸組立。  
 K P # 3 液面フロート新方式に変更 (磁石式)。集束コイルによる  
 影響なし。  
 ガングリッドパルサーテスト。
- 真空系      加速管列 B 部イオンポンプの真空リーク修理。  
 B19R F 窓の真空側リーク。2 桁改善。  
 本体室イオンポンプの接続部をコネクタに付け替える。

ビーム輸送系	第二実験室の建造物の膨らみと変形調査 (12/7~1/1)。
年始・年末	
冷却系	クーリングタワー水抜き (凍結防止のため)。 クーリングタワー水入れ, 試運転。
運転休止 (1/8~3/31)	
パルサー系	ガングリッドパルサーテスト。(1/9~10)
真空系	真空ポンプ電源 (小型発振型) テスト。(12/22~1/12)
冷却系	第二電磁石室新Ⅱ・Ⅲ系の埋め戻し床側溝の箇所の水配管, 圧縮空気配管の撤去。

VI. 論 文 リ ス ト

## 論文リスト

核理研共同利用の成果を核理研研究報告以外の学術雑誌に掲載された論文（1995年1月～12月）の題目を収録しました。

## I 原子核物理

1. Photofission of  $^{182}\text{W}$  Following Reabsorption of Photopions.  
J. D. T. Arruda-Neto, T. Saito, M. Sugawara, T. Tamae, H. Miyase, K. Abe, O. Konno, M. Oikawa, A. Deppman, S. Simonatto, E. M. L. Macedo and B. S. Bhandar : Phys. Rev. **C51** (1995) R452.
2.  $^{12}\text{C}(\gamma, p_{0+1})^{11}\text{B}$  cross section from 44 to 98 MeV.  
K. Mori, P. D. Harty, Y. Fujii, O. Konno, K. Maeda, I. Nomura, G. J. O'Keefe, J. RycRebusch, T. Suda, T. Terasawa, M. N. Thompson and Y. Torizuka : Phys. Rev. **C51** (1995)2611.
3. An Electron-beam Transport System for Parasitic Experiments.  
T. Saito, T. Terasawa, O. Konno, S. Ito, H. Itoh, M. Oikawa, Y. Suga, M. Mutoh, T. Tamae, M. Sugawara and D. Sims : Nucl. Instr. Methods, in Phys. Res. **A362** (1995) 224.

## II 放射化学

1. Extraction Behavior of Uranyl Complexes with Benzoyl-isooctanoylmethane.  
K. Akiba, J. Horie and H. Hashimoto : Solvent Extraction Research and Development, Jpn. **2** (1995) 138.
2. Chromatographic Separation of Strontium and Cesium with Mixed Zeolite Column.  
H. Mimura, T. Kobayashi and K. Akiba : J. Nucl. Sci. Technol. **32** (1995) 60.
3. Energy Dependence of 'Molecular Rocket Reaction' in Modified Metalloence-Cyclodextrin Inclusion Compound and Comparison with Those in Other Systems.  
H. Matsue, I. Yamaguchi, T. Sekine and K. Yoshihara : Radiochim. Acta **68** (1995) 163.
4. Shock-induced Chemical Processes and 'Molecular Rocket Reaction' in Metallocenes

and Their Cyclodextrin Inclusion Compounds.

H. Matsue, I. Yamaguchi, T. Sekine and K. Yoshihara : Shock Waves 4 (1995) 267.

5. Photon Activation Analysis of Trace Metals in the Livers and Spleens of Pigs.

M. Fukushima : J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles **195** (1995) 145.

6. A Mechanism for Na Incorporation in Garnet : An Example from Garnet in Orthogneiss from the Su-Lu Terrane, Eastern China.

M. Enami, B. Cong, T. Yoshida and I. Kawabe : American Mineralogist **80** (1995) 475.

7. 新生代東北本州弧の地殻・マントル構造とマグマ起源物質の変遷

吉田武義, 大口健志, 阿部智彦 : 地質学論集 **44** (1995) 263.

8. A Dedicated NAA Method to Determine the Neutron Spectrum Monitor Elements Co, Au and Lu with High Accuracy in Alloyed Wires and Foils.

F. De Corte, K. Masumoto, A. De Wispelaere and F. Bellemans : J. Radioanal. Nucl. Chem. **192** (1995) 91.

9. Observation of Radioactive Fullerene Families Labeled with  $^{14}\text{C}$ .

T. Ohtsuki, K. Masumoto, K. Sueki, K. Kobayashi and K. Kikuchi : J. Am. Chem. Soc. **117** (1995) 12869.

### III 加速器・測定器

1. Observation of Coherent Diffraction Radiation from Bunched Electrons Passing through a Circular Aperture in the Millimeter- and Submillimeter-Wavelength Regions.

Y. Shibata, S. Hasebe, K. Ishi, T. Takahashi, T. Ohsaka, M. Ikezawa, T. Nakazato, M. Oyamada, S. Urasawa, T. Yamakawa and Y. Kondo : Phys. Rev. **E52** (1995) 6787.

編 集 委 員

斎 藤 悌二郎 (委員長)      寺 沢 辰 生  
新 村 信 雄                      榎 本 和 義

核 理 研 研 究 報 告   第29卷 第 1号

1996年 9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 022-743-3411

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 29 Number 1 September 1996

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