

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 究 報 告

VOL. 3 No. 2 Dec. 1970

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

核理研研究報告 Vol. 3 No. 2 目次

I	原子核物理部門	
I-1	電子散乱による原子核の研究	1
	(核理研) 鳥塚賀治, 木村一治, 小島融三, 小山田正幸 中原和夫, 寺沢辰生, 伊藤広平, 山口 晃 中田 章, 光延信二, 長尾真美子, 細山謙二	
I-2	(γ, p) 反応による中重及び重核の研究	25
	(核理研) 庄田勝房, 菅原真澄, 斎藤悌二郎, 宮瀬晴久 鈴木厚人, 及川四郎	
I-3	$(e, e'\alpha)$ 反応	34
	(教養部物理*, 理学部物理) 阿部 健*, 川村暢明, 坪田博明*	
I-4	Gamma Rays Following the Decay of ^{112}In and Population of the 1225-keV 0^+ State in ^{112}Cd	38
	(工学部原子核) 梶山一典, 古田島久哉, 板垣新治郎, 武田 靖	
I-5	^{204}Pb の E4 Cross-Over 遷移の測定	48
	(工学部原子核) 梶山一典, 古田島久哉, 板垣新治郎, 岩崎 信 中屋重正, 武田 靖, 松野秀男, 若林利男 山本 徹, 村山重雄	
I-6	$^{140}_{59}\text{Pr}_{81}$ の崩壊による $^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ の単位	53
	(理学部物理) 林部昭吾, 遠藤順政, 宮田孝元 志賀寿夫, 山家 優, 石松敏之	
II	物性物理部門	
II-1	低温モデレーターの最適化	61
	(核理研, 工学部原子核*, 教養部**, 金研***) 渡辺 昇, 木村一治, 小山田正幸, 窪田健雄 高橋文信*, 山田幸男**, 富吉昇一***	
II-2	TiH_2 および YH_2 の中性子非弾性散乱	65
	(核理研, 工学部原子核*, 教養部**, 金研***) 木村一治, 高橋文信*, 渡辺 昇, 小山田正幸 山田幸男**, 富吉昇一***, 窪田健雄	
II-3	液体金属の T-O-F 法による中性子回折	73
	(核理研, 金研*, 教養部**, 工学部原子核***) 富吉昇一*, 渡辺 昇, 木村一治, 小山田正幸 山田幸男**, 高橋文信***, 佐藤健太郎*	
II-4	マグネリ相 V_4O_7 の中性子回折	80
	(理学部物理, 教養部*) 寺崎 治, 山田幸男*, 渡辺伝次郎	

II-5	VD _{0.77} の中性子回折	82
	(金研, 核理研*, 工学部原子核**, 教養部***)	
	浅野 肇, 佐藤健太郎**, 平林 真, 木村一治*	
	渡辺 昇*, 山田幸男***, 高橋文信**, 富吉昇一	
II-6	中性子分光法によるアイソタクチック・ポリプロピレンの分子運動の研究	85
	(非水研, 核理研*, 工学部原子核**, 教養部***)	
	安川民男, 木村一治*, 渡辺 昇*, 小山田正幸*	
	山田幸男***, 高橋文信**	
II-7	パルス電子線によるイオン結晶の光学的研究(6)	90
	(理学部物理) 上田正康, 平井正光, 近藤泰洋, 吉成武久	
II-8	50 Mev Electron Irradiation of Silicon and Germanium Studied by Cobalt-57 Moessbauer Probe	96
	(工学部, 金研*, 選研**)	
	松井啓治, 小野寺秀也*, 大川 淳**	
III 放射線化学部門		
III-1	残留核法による光核反応の研究	103
	(理学部化学) 斎藤達弥, 野村紘一, 加藤豊明	
III-2	Chemical Effects Associated with EC and β^+ -Decay of ⁵⁷ Ni(II) Complexes in Aqueous Solutions	123
	(理学部化学) 大森 巍, 呉 紹起, 鶴巻邦輔, 塩川孝信	
III-3	気相系におけるCH ₃ Br-Br ^{80m} BrおよびCH ₃ Br-H ^{80m} Brの核異性体転移にもなる化学的効果	132
	(核理研, 理学部化学*)	
	八木益男, 近藤健次郎, 小林孝彰*, 塩川孝信*	
III-4	光量子放射化分析法の研究	139
	(理学部化学) 蔡 恵 沢, 原田 光	
III-5	ウラニル-TTAキレートの中性配位子との付加錯体生成	145
	(選研) 秋葉健一	
III-6	放射化法によるグラフト反応の解析(その2)	148
	(非水研) 佐々木康順, 高橋 太, 安川民男	
IV 加速器, データ処理装置稼動状況		
IV-1	加速器稼動状況	151
	(核理研) マシングループ	
IV-2	データ処理装置稼動状況	152
	(核理研) 小山田正幸, 窪田健雄, 上野智康	

I 原子核物理部門

I-1 電子散乱による原子核の研究

核理研 鳥塚賀治・木村一治・小島融三
 小山田正幸・中原和夫・寺沢辰生
 伊藤広平・山口 晃・中田 章
 光延信二・長尾真美子・細山謙二

今期に於いて長い間続けられてきた ^{12}C の巨大共鳴領域の実験とその解析が終了した。電子散乱は光反応と比較して核に移行する運動量移行(q)を変えられる長所から光で見えなかった新しい励起モードが見られる可能性がある。そこで注目されたのがStanfordの ^{12}C の 180° 散乱の結果で、始めてスピンの反転する巨大共鳴の $E1$ の状態が観測された。 q の高い励起ではこの単位の断面積はGoldhaber-Teller型の巨大共鳴より大きくなることを理論は予言するが、実験の q -依存性はその通りになっていない。我々の ^{12}C の実験結果はスピン・アイソスピンモードが巨大共鳴のエネルギー領域に分散していること、更に純粋なモードとしてではなくアイソスピンモードと混合していることを示している。

我々は ^{12}C の巨大共鳴の解析には新しい方法を考案した。それにより複雑な巨大共鳴のスペクトラムを著しく単純化することに成功した。その結果理論的に予想される $1^- 2^- 3^- 4^-$, $1^+ 2^+ 3^+$ 等の新しい励起モードが実際の ^{12}C に於いて存在していることを確かめた。これは軽い原子核に於いては殻構造が高い励起単位に於いても重要な役割をすることを語っている。

魔法数からずれた原子核は球対称から変形しておりそれに特有なエネルギー準位構造や転移確率の強さの規則性が実際に観測されている。電子散乱による励起はその第一ボルン近似が極めてよい近似であるということから核の変形部分を直接みることが出来る。この種の研究は ^{12}C の $E2$, $E4$ 転移を Y_2 , Y_4 変形に結びつけることに始まったが今回は ^{20}Ne , ^{24}Mg , ^{28}Si の sd 殻核についてその結果が述べてある。

 ^{12}C の巨大共鳴の励起

^{12}C の $E1$ 巨大共鳴は光核反応^{1) 2)}で見られるように、大きく見ると23MeVと25.5MeVに2つのピークが存在する。 $1p-1h$ 模型³⁾では23.1MeVに $(d \frac{5}{2}, p \frac{3}{2}^{-1})$ 主配位の状態、24.9MeVに $(d \frac{3}{2}, p \frac{3}{2}^{-1})$ 主配位の状態を予言している。また一般化されたGoldhaber-Teller模型⁴⁾によればisospin modeは22.5MeVに、spin-isospin modeは25.5MeVに存在することを予言している。しかしこれらの理論で25MeV

付近に予言する $(d \frac{3}{2}, p \frac{3}{2}^{-1})$, あるいは spin-isospin mode では光核反応で見られる 25.5-MeV ピークのかなりのおおきさについては説明できない。実際 $(d \frac{5}{2}, p \frac{3}{2}^{-1})$ は 23-MeV ピークに対応しているが $(d \frac{3}{2}, p \frac{3}{2}^{-1})$ による光核反応での $E1$ の強さはその約 $\frac{1}{40}$ である。また 25.5-MeV ピークの (p, r_0) による角分布は 23-MeV ピークの角分布とほとんど同じであることから光核反応で見られる 25.5-MeV ピークは 23-MeV ピークと同様の配位 $(d \frac{5}{2}, p \frac{3}{2}^{-1})$ をもつと見られる。ここで問題となるのは理論から予言される spin-isospin mode すなわち $(d \frac{3}{2}, p \frac{3}{2}^{-1})$ の存在である。 $(d \frac{3}{2}, p \frac{3}{2}^{-1})$ 配位の電子散乱の横形状因子は運動量移行 q の増加にともない増大するが $q = 0.5 - 1.5 F^{-1}$ では $(d \frac{5}{2}, p \frac{3}{2}^{-1})$ 配位の形状因子より大きくなる。従って、理論で予言されるように $(d \frac{3}{2}, p \frac{3}{2}^{-1})$ 状態が 25 MeV 付近に存在するなら q の増加にともない主ピークは 23 MeV から 25 MeV に移行することになる。しかし電子散乱による実験結果はそのような逆転の起らないことを示している。⁵⁾ この結果は $(d \frac{3}{2}, p \frac{3}{2}^{-1})$ 状態が 23 MeV 付近にも存在するとして定性的に説明されるが、それを明確にした実験事実はなかった。

今回新しく縦形状因子と横形状因子を励起エネルギーの関数として分離するデータ処理を行った。励起エネルギーは 15-40 MeV で運動量移行は $0.75 - 1.56 F^{-1}$ に対して得られた形状因子のスペクトルから我々は 18.1-(1⁻), 18.6-(3⁻), 19.6-(4⁻), 20.0-(2⁺), 21.6-(3⁻), 22.0-(1⁻), 22.7-(1⁻), 23.8-MeV(1⁻) 準位の存在を見出した。特に 22.7-MeV 1⁻, $T=1$ 準位は従来理論で 25 MeV 付近に存在するといわれた spin-isospin mode と確信される。⁶⁾

第1次 Born 近似で電子散乱断面積を次のように表わす。

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon_2} = \frac{Z^2 e^4 \cos^2 \frac{\theta}{2}}{4\varepsilon_1^2 \sin^4 \frac{\theta}{2}} |F(q)|^2 \delta(E_2 + \varepsilon_2 - E_1 - \varepsilon_1) \quad (1)$$

ここで、 $\varepsilon_{1,2}$ 及び $E_{1,2}$ はそれぞれ電子及び核の全エネルギーを表わし、1, 2 は初めの状態、終りの状態を示す。 $F(q)$ は形状因子を表わし、新しく $W(q, \omega)$ を次のように定義する。

$$|W(q, \omega)|^2 = \frac{1}{\Delta\varepsilon_2} \int_{\Delta\varepsilon_2} |F(q)|^2 \delta(E_2 + \varepsilon_2 - E_1 - \varepsilon_1) d\varepsilon_2 \quad (2)$$

ここで ω は ε_2 と $\varepsilon_2 + \Delta\varepsilon_2$ の中心での励起エネルギーで ω と ε_2 は次の関係がある。

$$\begin{aligned} \varepsilon_2 &= \frac{\varepsilon_1 - \omega - \omega^2/M_T}{1 + 2\varepsilon_1 \sin^2 \frac{1}{2}\theta / M_T} \\ &\simeq \frac{\varepsilon_1 - \omega}{1 + 2\varepsilon_1 \sin^2 \frac{1}{2}\theta / M_T} \end{aligned} \quad (3)$$

ここで M_T は標的核の質量である。(3)式を用いれば(2)式の形状因子 $W(q, \omega)$ は

$$|W(q, \omega)|^2 = \frac{|F(q)|^2}{\Delta\omega}$$

となる。従って第1次Born近似で $|W(q, \omega)|^2$ 及び通常の形状因子 $|F(q)|^2$ は

$$|W(q, \omega)|^2 = \frac{q_\mu^4}{q^4} |W_L(q, \omega)|^2 + \left(\frac{q_\mu^2}{2q^2} + \tan^2 \frac{1}{2} \theta \right) |W_T(q, \omega)|^2 \quad (4)$$

$$|F(q)|^2 = \int_\omega |W(q, \omega)|^2 d\omega \quad (5)$$

と書ける。 $W_L(q, \omega)$ は縦形状因子で核の電荷による散乱, $W_T(q, \omega)$ は横形状因子で核の電流及び磁気モーメントによる散乱を与える。

実験は入射エネルギー $\varepsilon_1 = 250 \text{ MeV}$ に固定し, 散乱断面積に対し主に縦形状因子が寄与する前方散乱の散乱角 $\theta = 35^\circ, 40^\circ, 50^\circ, 60^\circ, 80^\circ$ で行なった。このとき運動量移行は励起エネルギー $\omega = 25 \text{ MeV}$ でそれぞれ $q = 0.75, 0.84, 1.04, 1.22, 1.56 \text{ F}^{-1}$ である。次に横形状因子が主に寄与するように散乱角 $\theta = 135^\circ$ の後方に固定し, 前方散乱と q の等しくなる入射エネルギー $\varepsilon = 88.8, 100, 120, 140.5, 177.6 \text{ MeV}$ で実験を行なった。これらのスペクトルについて輻射補正を行った後, スペクトルの測定点 ($\Delta\varepsilon = 30 \sim 60 \text{ KeV}$) は各点が $\Delta\omega = 200 \text{ KeV}$ の幅になるように分解能を落して分けられた。この結果, q は同一で散乱角の異なる二つのスペクトルにおいて弾性散乱の半値幅は初めの約 400 KeV から 650 KeV と大きくなり, ほとんど同じ分解能を有するスペクトルを得た。この散乱角が異なり同一の q をもつ二つのスペクトルは同一の励起エネルギー ω に対して(4)に従って, 形状因子の縦成分と横成分に分離された。その結果を図1と2に示す。図1には縦形状因子 $|W_L(q, \omega)|^2$, 図2には横形状因子 $|W_T(q, \omega)|^2$ を示す。これらのスペクトルは初めのスペクトルよりも幅広い分解能であるが, いくつかの微細構造を示している。これは一つの単位の形状因子がほとんど縦成分であるか, あるいは横成分であるか, またはその両成分を同じ大きさで有するののかの特徴をもつことによる。図1においては $15.4, 16.1, 18.6, 20.0, 21.6, 22.0, 23.8, 25.5 \text{ MeV}$ にかなり大きなピークがあり, また図2には $15.1, 16.1, 16.6, 18.1, 19.3, 19.6, 20.6, 22.7, 25.5 \text{ MeV}$ にピークが見られる。

$T = 1$ の $16.1-(2^+), 16.6-(2^-), 19-(2^-, 4^-), 20.6\text{-MeV}(3^+)$ については先きに報告されているので⁷⁾ ここでは省略する。また $19.6-(4^-), 21.6\text{-MeV}(3^-)$ についても Ref. 6) に詳しいので省略する。

図1及び2のスペクトルによって今回新しく見出された $18.1-, 18.6-, 20.0-, 22.0-, 22.7-, 23.8\text{-MeV}$ ピークについて形状因子を求めた。巨大共鳴の主領域を除く $18.1-, 18.6-$

20.0-MeV 単位の形状因子については弾性散乱と同じ形(半値幅 650 KeV)になるように background を差し引いて求めた。また, 22.0-, 22.7-, 23.8-MeV ピークは (r, n) 反応⁸⁾で見い出された三つのピークに対応しており, 図 1 で見られるように, 22.0-及び 23.8-MeV ピークは同じ q 依存性を示すことから同じ配位をもつと考えられ (r, n) のデータでの 22.0 及び 23.8 MeV ピークの半値幅 (700 KeV) と我々のスペクトルの分解能 (650 KeV) を考慮し, さらに図 1 における低い q でのスペクトルを再現するように 22.0 及び 23.8 MeV に半値巾 1.5 MeV のガウス分布型となるように background を直線で差し引いて形状因子を求めた。同様に 22.7 MeV ピークの形状因子は 1.2 MeV の半値幅をもつように background が差し引かれて求められた。

求められた形状因子の絶対値は単純な $1p-1h$ 模型では説明できないが, 16.6-MeV 2^- , $T=1$ の横形状因子の特徴的な q 依存性が $(2s \frac{1}{2}, p \frac{3}{2}^{-1})$ 配位によって, すなわち, 主に一つの配位によって説明されるように高励起状態の準位は単一粒子励起の様相を程し $j-j$ 結合の shell 構造の特質をよく示していると考えられる。従って求められた形状因子は $1p-1h$ 模型³⁾, 中間結合模型⁹⁾と比較されて spin, parity が決められた。

図 3 に 18.1-MeV 単位の横形状因子を

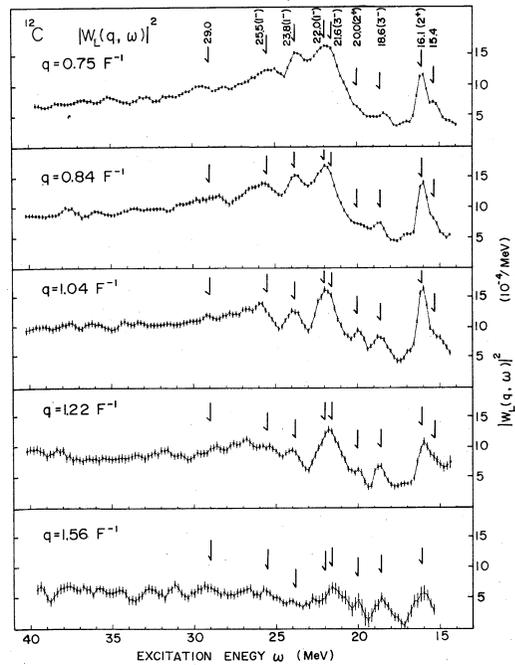


図 1

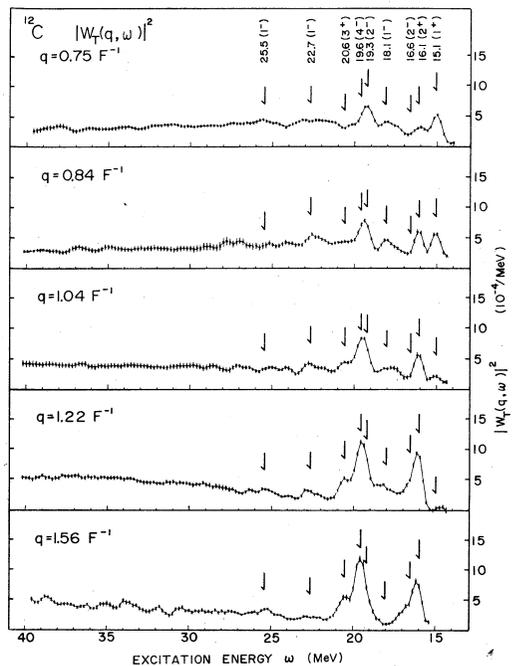


図 2

示す。18.1 MeVはGoldemberg & Barber¹⁰⁾によって最初に報告され、彼等は128°と152°での測定から横形状因子を見積っており、そのデータを図3に△で示す。Donnelly³⁾は彼等のデータとSick et al.¹¹⁾の135°の縦形状因子を含むデータから18.1-MeV準位を $1^-, T=1$ と決めている。我々のデータ解析によって図1と2から見られるようにこの q 領域では18.1 MeVはほとんど純粋な横形状因子を示し q の増加につれて急に横形状因子のピークは小さくなる。これは主配位($2s \frac{1}{2}, p \frac{3}{2}^{-1}$)の $1^-, T=1$ の状態によく説明される。○は我々のデータを示す。●はSick et al.による。

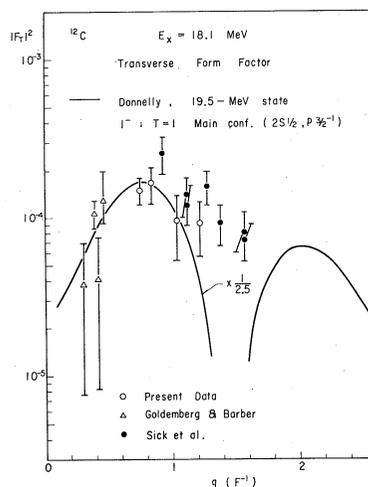


図 3

18.6-MeV $3^-, T=1$ 準位は最初Feldman et al.¹²⁾によって報告され、Donnelly et al.¹¹⁾等によって、この準位の形状因子はほとんど縦成分であるといわれており、我々のデータも図1と2から明らかなように縦成分が主である。このことは($d \frac{3}{2}, p \frac{3}{2}^{-1}$)配位が少いことを示している。図4には18.6-MeV $3^-, T=1$ 準位の縦形状因子を示す。■はBeer et al.¹³⁾, ●はSick et al.¹¹⁾, ▼はBishop¹⁴⁾, ○は我々のデータを示す。実線はDonnellyによる19.24-MeV $3^-, T=1$ 状態の主配位($d \frac{5}{2}, p \frac{3}{2}^{-1}$)の理論値に $\frac{1}{2}$ 倍された形状因子を示す。

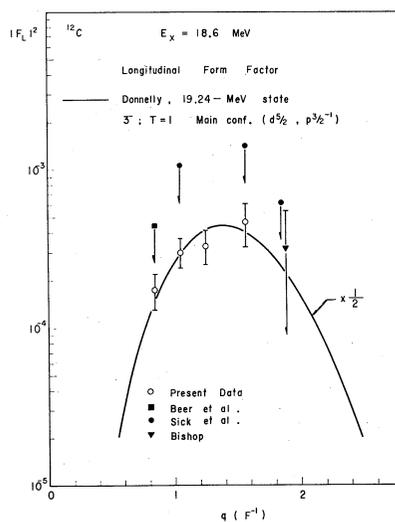


図 4

図1における20.0-MeVピークの縦形状因子を図5に示す。その q 依存性から E_2 と E_3 が考えられる。主配位($d \frac{5}{2}, p \frac{3}{2}^{-1}$)の $3^-, T=1$ 準位は18.6 MeVに対応されている。また($d \frac{3}{2}, p \frac{3}{2}^{-1}$)主配位の $3^-, T=1$ 状態は横形状因子が縦形状因子とほとんど同じ大きさを示し、 $q=1.56 F^{-1}$ では E_3 が強く現われるのに反し図2の横形状因子には20.0 MeVにそのような大きなピークはない。ただ25.5 MeV付近に存在するだけで、これが($d \frac{3}{2}, p \frac{3}{2}^{-1}$)配位に対応すると考えられる。従って $2^+, T=1$ 状態と考えられる。Boyarkina⁹⁾は中間結合模型によって23.7と23.9 MeVに第2と第3の $2^+, T=1$ 状態を

予言しており、実線で示された 23.9-MeV 2^+ , $T=1$ の縦形状因子が実験値をよく再現している。一点鎖線で示されたように 23.7 MeV の縦形状因子では実験値の $\frac{1}{100}$ である。点線及び破線は 23.7 及び 23.9 MeV の横形状因子を示す。

図 1 の 22.0, 23.8, 25.5 MeV と図 2 の 22.7, 25.5 MeV のピークが ^{12}C の巨大共鳴を形成していると考えられる。 $1p-1h$ ではこの励起エネルギー領域に主配位 $(d_{\frac{5}{2}}, p_{\frac{3}{2}}^{-1})$ と $(d_{\frac{3}{2}}, p_{\frac{3}{2}}^{-1})$ の二つの 1^- , $T=1$ 準位を予言している。前者の配位は isospin mode に相当し、縦形状因子の方が強く現われるのに反し、後者は spin-isospin mode に相当して横形状因子が強く現われる。従って isospin mode に相当する状態は 22.0, 23.0, 25.5 MeV に分散しており、spin-isospin mode の状態は 22.7, 25.5 MeV に分散していると考えられる。22.0 と 23.8 MeV の和を図 6 に示す。● は 22.0-, × は 23.8-MeV 準位の縦形状因子で ○ はそれらの和を与える。□ は Bezić et al.¹⁾ の photoabsorption から求めた。実線は Kamimura et al.¹⁵⁾ の 21.2 MeV, 破線は Donnelly³⁾ による 23.1 MeV 1^- , $T=1$ で主配位 $(d_{\frac{5}{2}}, p_{\frac{3}{2}}^{-1})$ の縦形状因子を示す。それぞれ理論値の $\frac{1}{2}$, $\frac{1}{3}$ 倍さ

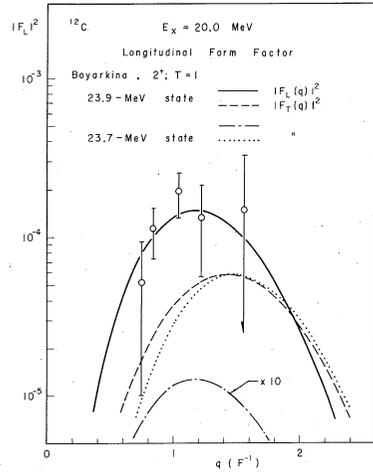


図 5

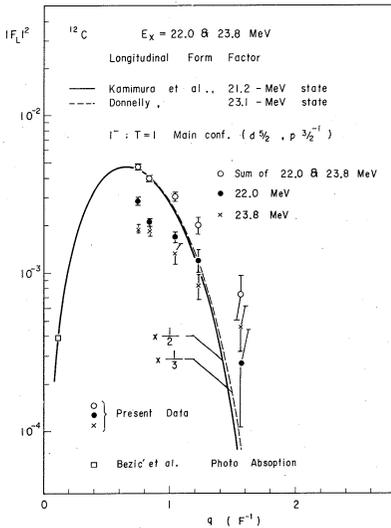


図 6

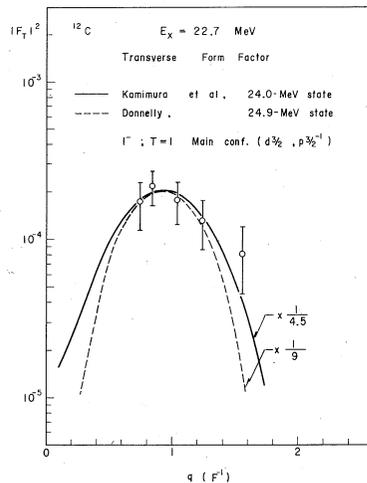


図 7

れている。

図7には227-MeV準位の横形状因子を示す。この準位の q 依存性からは 1^- か 2^- か明らかではないが、 (r, n) 反応^{2) 8)}でかなり大きなピークとして見い出されていることから考え 1^- , $T=1$ 状態と考えられる。実線はKamimura et al.¹⁵⁾による240-MeV, 破線はDonnelly³⁾の249-MeV 1^- , $T=1$ 状態で主配位 $(d\frac{3}{2}, p\frac{3}{2}^{-1})$ である。ここで理論値はそれぞれ $\frac{1}{4.5}$, $\frac{1}{9}$ 倍されている。

Kamimura et al.¹⁵⁾の波動関数は4.43 MeV (2^+)状態に基づく励起巨大共鳴と基底状態に基づく巨大共鳴との結合を考慮したもので彼等の240-MeV状態の波動関数には $(d\frac{5}{2}, p\frac{3}{2}^{-1})$ 配位がDonnelly³⁾によるもの比べてかなり混っており、光核反応⁸⁾と我々のデータ(図7)はその性向を示している。また図6における高い q での220と238 MeVの和の実験値の振舞がKamimura et al及びDonnellyの理論値の振舞いと異っているのは $(d\frac{5}{2}, p\frac{3}{2}^{-1})$ 配位にほとんど集中しているため、実際にはこれらの状態に他の配位がかなり多く混っているものと思われる。

単純な $1p-1h$ 模型から予言される四つの 1^- , $T=1$ 状態をKamimura et al.の模型は分散させ、光核反応での実験の説明にはよく成功しているが、図1に見られるように220-, 238-, 255-MeVピークがほとんど同じ大きさを形成している電子散乱の結果についてはその説明に失敗している。彼等の模型では21.2 MeVの縦形状因子に強さが集中している。

我々の実験及び他の実験で見い出された準位の励起エネルギー, spin, parityについて奇parityに対してはDonnelly³⁾の $1p-1h$ 模型と比較したものをtable Iに, また偶parityに対してはBoyarkina⁹⁾の中間結合模型と比較したものをtable IIに示す。

Table I The theoretical and observed energy levels (MeV) for $J^\pi=1^-, 2^-, 3^-,$ and $4^-, T=1$ in ^{12}C

J^π	Donnelly ^{a)}	Main configuration	Present work
1^-	19.52	$(2s_{12}, 1p_{32}^{-1})$	18.1
	23.09	$(1d_{52}, 1p_{32}^{-1})$	22.0, 23.8, 25.5
	24.89	$(1d_{32}, 1p_{32}^{-1})$	22.7, 25.5
	35.55	$(1p_{12}, 1s_{12}^{-1})$	
2^-	18.80	$(2s_{13}, 1p_{32}^{-1})$	16.6
	20.60	$(1d_{52}, 1p_{32}^{-1})$	19.3
	23.83	$(1d_{32}, 1p_{32}^{-1})$	
3^-	19.24	$(1d_{52}, 1p_{32}^{-1})$	18.6
	25.09	$(1d_{32}, 1p_{32}^{-1})$	25.5
4^-	20.17	$(1d_{52}, 1p_{32}^{-1})$	19.6

a) Ref. 3

Table II The observed and theoretical energy levels (MeV) for $J^\pi=1^+$, 2^+ , and 3^+ , $T=1$ in ^{12}C

J^π	Present work	Boyarkina ^a
1 ⁺	15.1	15.5
		21.2
2 ⁺	16.1	16.6
		23.7
		23.9
		28.5
3 ⁺	20.6	21.0
		24.5

a) Ref. 9

文 献

- 1) N. Bezić, D. Brajinić, D. Jamnik, and G. Kernel, Nucl. Phys., **A128**, 426(1969).
- 2) B. C. Cook, J. E. E. Balgún, J. N. Bradford, and J. E. Griffin, Phys. Rev., **143**, 724(1966).
- 3) T. W. Donnelly, Phys. Rev. C **1**, 833(1970).
- 4) H. Uberall, Nuovo Cimento **41B**, 25(1966).
- 5) G. Ricco, H. S. Caplan, R. M. Hutcheon, and R. Malvano, Nucl. Phys., **A114**, 685(1968).
- 6) Y. Torizuka et al., Phys. Rev. Lett., **25**, 874(1970).
- 7) 東北大学「核理研究報告」 Vol. 1, No. 1, 5(1968); Vol. 2, No. 1, 11(1969); Vol. 3, No. 1, 6(1969).
- 8) G. Baciú, D. Catana, C. Deberth, C. Iliescu, and B. Cirstoiu, Zeit. Phys., **227**, 336(1969).
- 9) A. N. Boyarkina, Izv. Akad. Nauk. SSSR, Ser. Fiz., **28**, 337(1964). [Bull. Acad. Sci. USSR. Phys. Ser., **28**]
- 10) J. Goldemberg and W. C. Barber, Phys. Rev., **134**, B963(1964).
- 11) T. W. Donnelly, J. D. Walecka, I. Sick, and E. B. Hughes, Phys. Rev. Lett., **21**, 1196(1968).

- 12) W. Feldman, M. Suffert, and S. SHanna, Bull. Amer. Phys. Soc. **13**, 882(1968).
- 13) G. A. Beer, T. E. Drake, R. M. Hucheson, V. W. Stobie, and H. S. Caplan, Nuovo Cimento **53B**, 7(1968).
- 14) G. R. Bishop, Phys. Rev. Lett., **19**, 659(1967).
- 15) M. Kamimura, K. IKeda, and A. Arima, Nucl Phys., **A95**, 129(1967).

Ne²⁰の電子散乱

§1 実 験

前回に引続き 250MeV 100°, 120MeV 35°, 150MeV 35° が行なわれた。その他ターゲットがガスタargetであるために起る不確定さを調べる実験が2つ行なわれた。その1つは容器による散乱電子の影響で、これは空の容器を用いて 250MeV 35° で行なわれた。結果は、容器による散乱電子は検出器にわずかしき検出されずその影響は無視出来る事が判明した。他の一つは 33コある検出器群の相互間の efficiency に対する物である。通常は C¹² 又は BeO の板状ターゲットを用い励起エネルギー 40~50MeV の連続領域を用い、磁場を動かして測定し、そのスペクトラムが直線であると仮定して決められる。ガスタargetであるため通常の場合より検出器の幾可学的なばらつきが大きく効いてくるため、C₂H₄ のガスタargetを用いて efficiency を決める実験を行なった。その結果 efficiency の不確定さを 3% と見込みこれを systematic error として統計誤差に単純に加えて解析する事にした。6+ は 8.79 MeV にあるが 8.71 MeV と 8.88 MeV に 1- 単位が 2 本あり、我々は 250MeV 40°, 60°, 85° で 3 つの単位を一緒にして形状因子を求めたがその形は 3- 的であった。T_Z = 0 核で ΔT = 0 の 1- の形状因子が 3- 的になる事から 1- が 6+ のピークあたりでも大きいと思われる。q の高い所を調べれば良いけれども我々の実験では統計が十分に上げられないためこれ以上高い角度の測定は 6+ に対しては行なわれなかった。6+ のピークは 250MeV で 85°, q = 1.8 fm⁻¹ 付近であるが 85° の値から 6+ のピークでの形状因子の値は 2 × 10⁻⁴ 以下であると推定された。

§2 基底状態及び 165MeV 準位

今回は平面波ボルン近似を用いて解析したが、Coulomb 場による電子波のゆがみを取り入れて、弾性散乱に対しては phase shift 計算、1.63MeV 準位に対しては DWBA 計算を用いて

解析した。phase shift計算はYennie et al.¹⁾らの方法を用い寺沢及び小山田によりコード化されたTOELISを用いた。DWBAのコードはGriffy et al.²⁾によるDUELSを用いた。

〔1〕 基底状態の電荷分布として現象論的なFermi Type

$$\rho(r) = \rho_0 [1 + \exp(4.4(r - C_0)/t_0)]^{-1} \quad (1)$$

と調和振動子の波動函数を用い、shell modelから得られる電荷分布³⁾に対してprotonのfinite size補正及び重心の補正を文献4)によって行なって求めたH. O. Type

$$\begin{aligned} \rho(r) = \rho_0 \{ & 1 + 2 \frac{b^2}{b_m^2} x^2 + \frac{b^4 \alpha}{b_m^4 3} (x^2 - \frac{3}{2})^2 + \frac{2(Z-8-\alpha) b^4}{15 b_m^4} x^4 \\ & + Z (\frac{1}{2} - \frac{b^2}{b_m^2} + \frac{1}{2} \frac{b^4}{b_m^4}) - (1 - 5 \frac{b^2}{b_m^2} + 4 \frac{b^4}{b_m^4}) \\ & + \frac{2}{3} (Z-8) (1 - \frac{b^2}{b_m^2}) \frac{b^2}{b_m^2} x^2 \} e^{-x} \end{aligned} \quad (2)$$

ここで, $x = \frac{r^2}{b_m^2}$, $b_m^2 = \frac{A-1}{A} b^2 + a_p^2$

$a_p^2 = 0.43 (fm^2)$, α : 2S shellの影響を表すパラメーター

の2つの型の電荷分布を用い χ^2 検定によりそれぞれの最良のパラメーターを求めた。結果を(図-1)及び(図-2)に示す。 χ^2 検定を行なう時250MeVのデータのみを用い、systematic error 3%を見込みstastical errorにそれを加えて解析した。(図-2)でH. O. Typeの χ^2_{min} の方がFermi Typeの場合より小さい事はH. O. Typeの方が良い事を示している。この事情を表したのが(図-3)である。(2)の電荷分布で実験を良く再現出来る事がNe²⁰で偶然起きたのか他の(2s, 1d)核でも同様なのかは(2s, 1d)で閉じたshell modelとの関連で面白いと思われる。(2)を用いて求めた調和振動子の長さの因子bは配位の取り方の悪さ、波動函数の悪さ等の効果が α とb

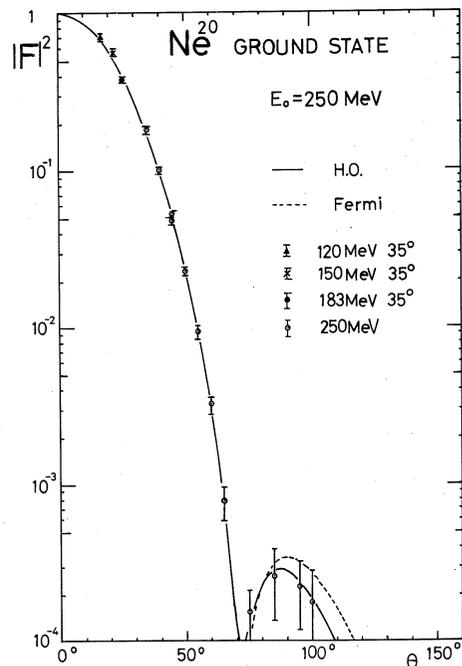


図 - 1

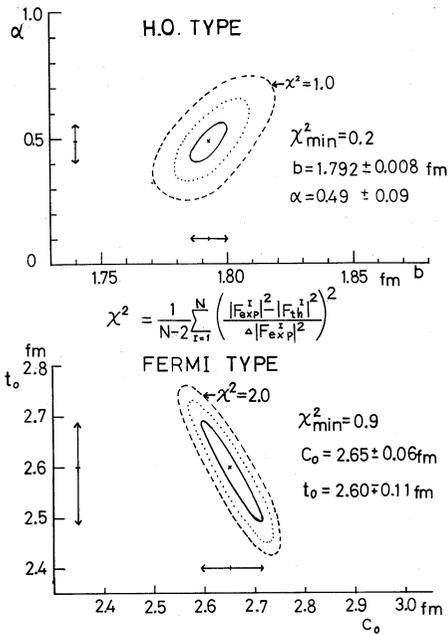


図 - 2

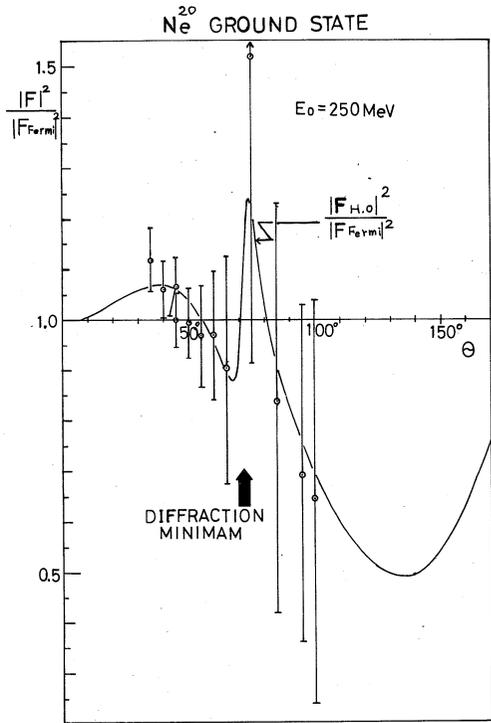


図 - 3

の両方にばらまかれて入っているため α と組になって始めて意味がある。しかし $\langle r^2 \rangle_{ch}$ が α には依存しない ($2s$ と $1d$ では $N = 2n + l$ が同じである) 事から電子散乱で $\langle r^2 \rangle_{ch}$ が Model に大きく依存しないならば (2) を用いて得られる b は良い値を与えるだろう。今の場合 (1) と (2) で $\langle r^2 \rangle_{ch}$ はそれぞれ $3.00 fm$ 及び $2.91 fm$ で多少異なる。 O^{10}, Mg^{24}, Si^{28} 等の b から予想される値は $1.78 \sim 1.79 fm$ ぐらいで実験と良く一致している。

〔II〕 1.63 MeV 準位の DWBA による解析

転移電荷として Tassie 模型⁵⁾による。

$$\rho_{tr} \propto r^{\lambda-1} \frac{d\rho(r)}{dr} \tag{3}$$

を用い。 $\rho(r)$ として

$$\rho(r) = \frac{\rho}{1 + \exp(4.4(r-c)/t)} \tag{4}$$

を用いた。

Tassie 模型は非圧縮、非回転の完全流体の表面振動に対する模型であり、回転運動に対しても良い型を与えるという理由は無いが、これを現象論的の模型と見て c, t を 2 つのパラメーター

として電子散乱の形状因子を再現出来るかを見た。弾性散乱の場合と同様に χ^2 テストにより Best fit のパラメーター c, t を求めた。それを (図-4) に示す。解析に用いたデータは 250 MeV のものだけで, systematic error は 3% を見込んである。低いエネルギーの実験は effective momentum transfer を通して変換してある。結果は非常に良く実験を再現している。

§ 3 Hartree-Fock の波動関数を用いた基底回転帯の形状因子

Ne²⁰ を始め sd 核で変形した剛体の回転単位と似た単位構造が見つかり, その電磁的転移の性質等も剛体モデルからある程度理解されている。そこで 2 体の核力からその変形を導き出し, 剛体モデルを用いて電子散乱の形状因子を計算してみるの面白いと思われる。

我々は Kelson⁶⁾ によって行なわれた。O¹⁶ の corer は丸いままにしておき $2s, 1d$ shell だけを混ぜた Hartree-Fock の波動関数を用いて内部状態を作った。実際の波動関数は Ripka の Advances in Nuclear Physics volume 1⁷⁾ より引用した。これから得られる内部電荷分布は

$$\begin{aligned} \rho(r) &= \int \chi_0 \rho(r) \chi_0 d\mathbf{r}_1 \dots d\mathbf{r}_A \\ &= \rho_0(r) Y_{00} + \rho_2(r) Y_{20} + \rho_4(r) Y_{40} \end{aligned} \quad (5)$$

$$\rho_0(r) = \frac{1}{\sqrt{4\pi Z}} \{ 2R_{10}^2 + 6R_{11}^2 + 2(A_1^2 + A_2^2)R_{12}^2 + 2\beta^2 R_{20}^2 \} \quad (6)$$

$$\rho_2(r) = \frac{2}{\sqrt{4\pi Z}} \{ 2A_1\beta R_{12}R_{20} + (\frac{2\sqrt{5}}{7}A_1^2 + \frac{\sqrt{5}}{7}A_2^2)R_{12}^2 \} \quad (7)$$

$$\rho_4(r) = \frac{2}{\sqrt{4\pi Z}} R_{12}^2 (\frac{6}{7}A_1^2 - \frac{4}{7}A_2^2) \quad (8)$$

(5), (6), (7) 式で A_1, A_2, β は ($2S, 1d$) を混ぜた波動関数の内一番低いものを $\psi_{1,2}$ として

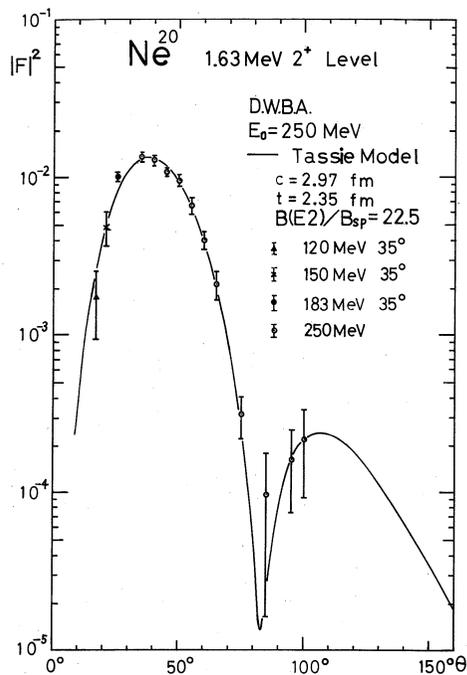


図 - 4

$$\psi_{1/2} = \alpha(1d_{5/2})_{1/2} + \beta(2S_{1/2})_{1/2} + \gamma(1d_{3/2})_{1/2}$$

$$A_1 = (\sqrt{\frac{3}{5}}\alpha - \sqrt{\frac{2}{5}}\gamma)$$

$$A_2 = (\sqrt{\frac{2}{5}}\alpha - \sqrt{\frac{3}{5}}\gamma)$$

で与えられる。

$$\text{ここで} \quad 4\pi \int \rho(\vec{r}) d\vec{r} = 1$$

に規格化してある。

軸対称な剛体模型を用いると電子散乱の形状因子は

$$|F(C\lambda, q)|^2 = 4\pi \left| \int j_\lambda(qr) Y_{\lambda 0}(\hat{r}) \rho(\vec{r}) d\vec{r} \right|^2 \quad (9)$$

で与えられる。(5)(6)(7)(8)(9)によりすぐ判る事は電子散乱で 6^+ が励起されない事と 4^+ に dip が出ない事である。この2つは $(2s, 1d)$ まで考えた shell model に共通して言える事であり、高い shell の効果を最も良く表すと思われる。我々の実験ではいずれもはっきりした事は言えない。(6)式において $2\beta^2$ は前回の報告³⁾及び(2)式における α と同等である。

(図-5)に(9)による弾性散乱の計算値と実験との比較を示す。点線はBorn近似での最良の値である。(図-6)に $1.63\text{MeV } 2^+$ 準位に対する計算値及び実験値を示す。理論値は最初

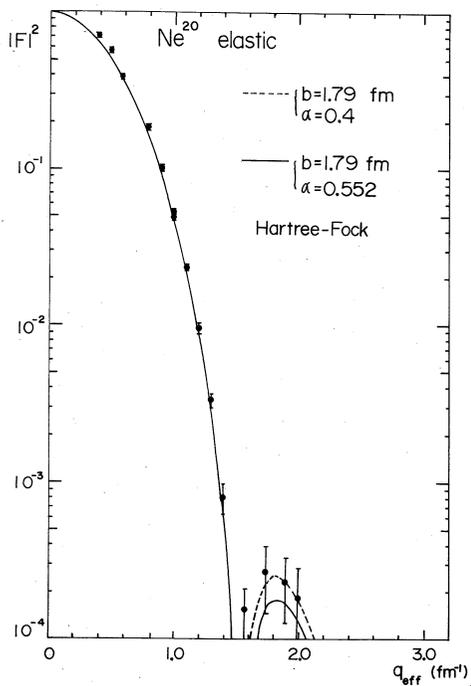


図 - 5

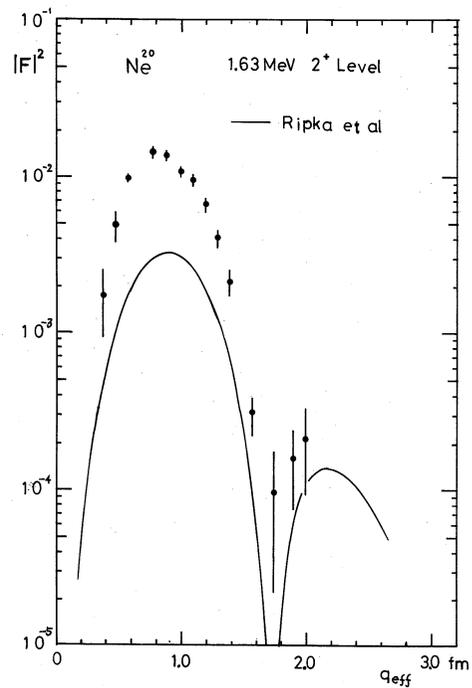


図 - 6

の山で実験値の約 $1/4$ で再現は良くない。これは Ripka⁷⁾ が指的している様 ($2s-1d$) に 2つ proton が入った場合に取得する最大の intrinsic quadrupole moment は $Q_0 = 19 fm^2$ であり我々の実験で得た $B(E2, 0^+ \rightarrow 2^+)$ を次の関係

$$B(E2: I_i \rightarrow I_f) = \left(\frac{5e^2}{16\pi} \right) (I_i 2KO | I_f K)^2 Q_0^2$$

を用いて Q_0 に直すと $60 fm^2$ となる事からある程度予想される事である。(図-7) に 4.25 MeV 4^+ 準位に対する計算値及び実験値を示す。

大きさは約 $1/7$ で形もピークの位置も合わない。

(7)式で判る様に 4^+ 形状因子は $1d$ の動径方向の波動関数の型だけによりきまり、この事は電子散乱の演算子が一粒子演算子であるから ($2s, 1d$) までの空間で考える限りにおいて様々な模型に共通して言える事であり、高さだけが模型に依存する。この事から ($2s, 1d$) までの shell model では電子散乱の形状因子を説明するのに不十分であると言える (一粒子ポテンシャルを調和振動子から finite well にしても $1d$ shell の波動関数は大きくは変わらないと思われる)。又型を合わせるだけなら $1d$ shell の振動子パラメータ b を $2.2 fm$ ぐらいにするとピークの高さはほとんど変えられないが型は合わせる事が出来る。これも高い配位を取り入れる一つの手段である。

これらの事情は C^{12} の $44.3 MeV 2^+$ 及び $14.08 MeV 4^+$ の場合⁸⁾ にも言えた事で $1p$ shell までだけ考えたのでは $0^+ \rightarrow 4^+$ は出てこないし、 $0^+ \rightarrow 2^+$ も $1p$ 内だけで考えたのでは実験を再現出来なかった事に相等する。弾性散乱に対しては $b = 1.64 fm$ とすると ($1s$)⁴ ($1p$)⁸ の配位を仮定して実験をよく再現出来た事は注目に値する。逆に弾性散乱の形状因子が配位にあまり敏感でないのかもしれない。

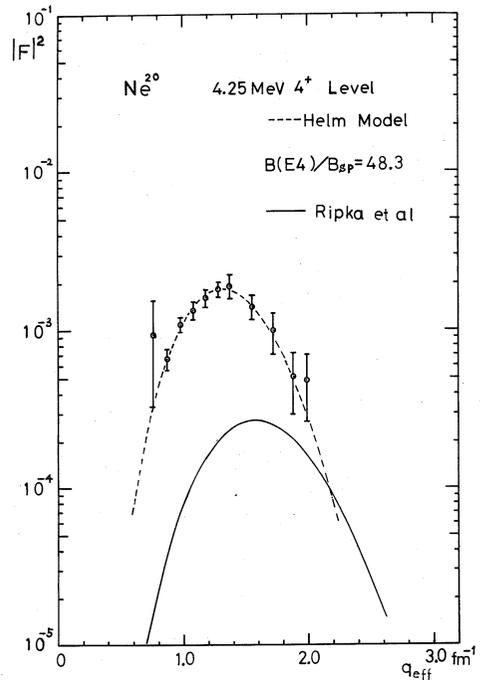


図 - 7

文 献

- 1) D. R. Yennie, D. G. Ravenhall, and R. N. Wilson, Phys. Rev., **95**, 500(1954).
- 2) D. S. Onley, T. A. Griffy and J. T. Reynolds, Phys. Rev., **129**, 1689(1963).
- 3) 核理研研究報告 Vol. 3 No. 1 (Oct. 1970) 11.
- 4) L. J. Tassie and F. C. Barker, Phys. Rev., **111**, 940(1958).
- 5) L. J. Tassie, Australian, J. Phys., **9**, 407(1956).
- 6) I. Kelson, Phys. Rev., **132**, 2189(1963).
- 7) Advances in Nuclear Physics vol. 1 p. 183.
- 8) 核理研研究報告 vol. 2 No. 1 (June. 1969) 1.

 ^{24}Mg , ^{28}Si の基底回転帯準位の電子散乱実験及び Nilsson Model での解析

(中 田)

§1 序

^{24}Mg , ^{28}Si は典型的な回転スペクトラムを示す。それら回転帯準位からの電子散乱断面積を核のポテンシャルに Y_{40} 変型を入れた Nilsson Model で解析した。核理研報告¹⁾にそれらの準位の Tassie Model 及び Helm Model での解析が示されている。

§2 理 論

核の potential に x , y , z 方向に異なる強さを持つ Harmonic Well を考える。²⁾

その時の total Hamiltonian は

$$H = H_0 + C \vec{l} \cdot \vec{s} + D \vec{l}^2 \quad (1)$$

$$H_0 = -\frac{\hbar^2}{2M} \Delta' + \frac{M}{2} (\omega_x^2 x'^2 + \omega_y^2 y'^2 + \omega_z^2 z'^2) \quad (2)$$

一般には ω_x , ω_y , ω_z は異なるが

$$\omega_x^2 = \omega_0^2 (1 + \frac{2}{3} \delta_2) = \omega_y^2 \quad (3)$$

$$\omega_z^2 = \omega_0^2 (1 - \frac{4}{3} \delta_2) \quad (4)$$

なる場合を考える。

核の体積は変型に対して不変であるとして

$$\omega_x \cdot \omega_y \cdot \omega_z \propto (\text{体積})^{-1/2} \quad (5)$$

(3), (4), (5)より

$$\begin{aligned} \omega_0(\delta_2) &= \overset{0}{\omega}_0 \left(1 - \frac{4}{3} \delta_2^2 - \frac{16}{27} \delta_2^3\right)^{-1/6} \\ &= \overset{0}{\omega}_0 \cdot \varepsilon \end{aligned} \quad (6)$$

変数変換をして

$$x = \sqrt{\frac{M\omega_0}{\hbar}} x' \quad \text{etc.} \quad (7)$$

$$H_0 = \overset{0}{H}_0 + H_{\delta_2} \quad (8)$$

$$\overset{0}{H}_0 = \hbar\omega_0 \frac{1}{2} [-A + r^2] \quad (9)$$

$$H_{\delta_2} = -\delta_2 \hbar\omega_0 \frac{4}{3} \sqrt{\frac{\pi}{5}} r^2 Y_{20} \quad (10)$$

(9)は3次元のHarmonic-Well Hamiltonianであるから解析的に解ける。

$$\overset{0}{H}_0 |N \ell A \Sigma\rangle = (N + \frac{3}{2}) \hbar\omega_0 |N \ell A \Sigma\rangle \quad (11)$$

$|N \ell A \Sigma\rangle$ を space-representation で示すと

$$\begin{aligned} \langle \vec{r} | N \ell A \Sigma \rangle &= (-)^n \left\{ \frac{2 \Gamma(n + \ell + 3/2)}{n! [\Gamma(\ell + 3/2)]^2} \right\}^{1/2} r^\ell e^{-\frac{1}{2} r^2} F(-n, \ell + \frac{3}{2}, r^2) \\ &\quad \times Y_{\ell A}(\theta, \varphi) f_\Sigma \end{aligned} \quad (12)$$

$$N = 2n + \ell \quad (13)$$

ここで f_Σ は spin-part.

(8)を Y_{40} 変型まで含む様に拡張すると

$$H_0 = -\frac{1}{2} \hbar\omega_0 A + V \quad (14)$$

$$V = \frac{1}{2} \hbar\omega_0 [\alpha^2 \varepsilon (1 - \frac{4}{3} \delta_2 \sqrt{\frac{4\pi}{5}} Y_{20}) r^2 + \delta_4 \frac{r^4}{R_0^2} Y_{40}] \quad (15)$$

$$R_0 = 1.2 A^{-1/3} Fm \quad (16)$$

α は Y_{40} を入れた為の補正項である。(15) を r について解くと

$$r = \frac{\sqrt{\frac{2V}{\hbar\omega_0}}}{\alpha \varepsilon} (1 - \delta_2 \frac{4}{3} \sqrt{\frac{4\pi}{5}} Y_{20})^{-1/2} \cdot (1 - \frac{1}{2} \frac{\delta_4}{R_0^2} \cdot \frac{2V}{\hbar\omega_0} Y_{40}) \quad (17)$$

$\alpha \sim 1$ 及び δ_2^3 以上, δ_4^2 以上を無視して

$$Y_{20} \cdot Y_{20} = \frac{1}{\sqrt{4\pi}} Y_{00} + \frac{1}{7} \sqrt{\frac{5}{\pi}} Y_{20} + \frac{3}{7} \sqrt{\frac{1}{\pi}} Y_{40}$$

である事を考慮すると

$$r = \frac{R_0}{\alpha} \left[1 - \frac{4}{45} \delta_2^2 + \left(\frac{2}{3} \delta_2 + \frac{4}{21} \delta_2^2 \right) \sqrt{\frac{4\pi}{5}} Y_{20} + \left(\frac{12}{35} \delta_2^2 \sqrt{\frac{4\pi}{9}} - \frac{1}{2} \delta_4 \right) Y_{40} \right] \quad (18)$$

ここで $R_0 = \sqrt{\frac{2V}{\hbar\omega_0}}$ 。体積一定の条件

$$\int r^3(\theta) d\Omega = \int R_0^3 d\Omega$$

より α^2 を求めると

$$\alpha^2 = 1 - \frac{16}{105} \frac{1}{\sqrt{\pi}} \delta_2^2 \delta_4 + \frac{1}{8\pi} \delta_4^2 \quad (19)$$

r を Y_{l0} で展開すると

$$r = r_0 (1 + \beta_2 Y_{20} + \beta_4 Y_{40} + \dots) \quad (20)$$

(20) を (18) と比較すると

$$\beta_2 = \left(\frac{2}{3} \delta_2 + \frac{4}{21} \delta_2^2 \right) \sqrt{\frac{4\pi}{5}} \quad (21)$$

$$\beta_4 = \frac{12}{35} \delta_2^2 \sqrt{\frac{4\pi}{9}} - \frac{1}{2} \delta_4 \quad (22)$$

β_2, β_4 は核の変形の一つの目安と考えられる。次に spin-part の式を変形する。

$$\kappa = -\frac{1}{2} \frac{C}{\hbar\omega_0} \quad (23)$$

$$\mu = \frac{2B}{C} \quad (24)$$

ここでは κ, μ の値について

$$\kappa = 0.05$$

$$\mu = 0, \quad N = 0, 1, 2$$

$$\mu = 0.35, \quad N = 3$$

$$\mu = 0.45, \quad N = 4, 5, 6$$

$$\mu = 0.40, \quad N = 7$$

を用いた。

以上の変数で Hamiltonian を表わすと

$$H - H_0 = \kappa \hbar \omega_0 \left[\eta_0 U_1 - 2 \vec{I} \cdot \vec{s} - \mu \vec{I}^2 + \frac{\varepsilon(\alpha^2 - 1)}{\kappa} \frac{r^2}{2} + \frac{\delta_4}{\kappa \varepsilon R_0^2} U_4 \right] \quad (25)$$

$$U_1 = -\frac{4}{3} \sqrt{\frac{\pi}{5}} r^2 Y_{20}(\theta, \varphi) \quad (26)$$

$$U_4 = \frac{1}{2} r^4 Y_{40}(\theta, \varphi) \quad (27)$$

$$\eta_0 = \frac{\alpha^2 \varepsilon \delta_2}{\kappa} \quad (28)$$

η_0 は $\delta_4 = 0$ の時 Nilsson²⁾ の η と同じになる。

(12) を base の波動関数として (25) を解けば 1 核子の energy と波動関数が求まる。その際に一般的に云って

$$0 \neq \langle N' l' | r^2 | N l \rangle, \quad |N' - N| = 0, 2$$

$$0 \neq \langle N' l' | r^4 | N l \rangle, \quad |N' - N| = 0, 2, 4$$

である。Nilsson²⁾ の論文では主量子数 N は良い量子数であると近似している。

$$\langle N' l' | r^2 | N l \rangle \propto \delta_{N'N}$$

ここでは主量子数 N の "混ざり" を最大 6 まで考えに入れる。すなわち 1 粒子波動関数中に含まれる最大の N を N_{\max} , 最小の N を N_{\min} とすると

$$\Delta N = N_{\max} - N_{\min} = 6$$

と云う事である。

1 粒子 energy を第 1 図に示す。縦軸は energy (単位は $\hbar \omega_0$), 横軸は変型変数 δ_2 を示す。 $\delta_4 = 0$ としてある。実線は $\Delta N = 6$ の場合, 破線は $\Delta N = 0$ の場合 (本来の Nilsson Model)。

§ 4 強結合限界形状因子

偶-偶核の波動関数は

$$|IM\rangle = \sqrt{\frac{2I+1}{8\pi^2}} D_{MO}^I(\alpha, \beta, \gamma) \chi(x') \quad (29)$$

で表わせる。この $|IM\rangle$ は $E_I = I(I+1)/2\mathcal{I}$ なる回転スペクトラムを示す。

電子の Coulomb 散乱に関する operator は

$$\hat{M}_{\mu\lambda}^{\text{coul}}(q) = \int j_\lambda(qr) Y_{\lambda\mu}(\Omega_r) \rho_N(\mathbf{r}) d\vec{r} \quad (30)$$

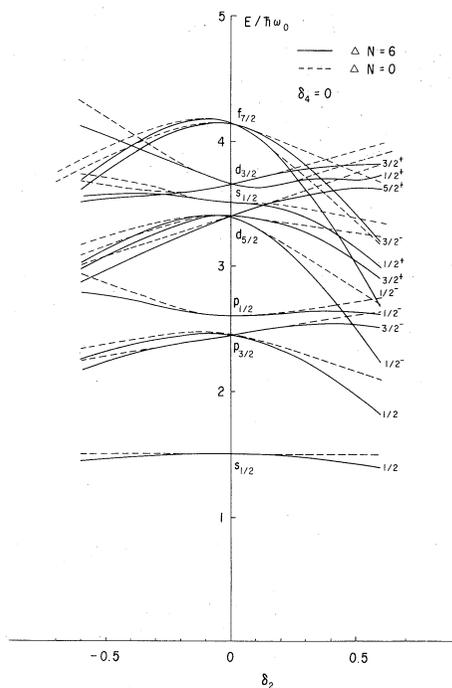
$\rho_N(\mathbf{r})$ は核の charge operator で、ここでは

$$\rho_N(\vec{r}) = \sum_i^A e_i \delta(\vec{r} - \vec{r}_i) \quad (31)$$

を仮定する。

核の内部波動関数 $\chi(x')$ は 1 粒子波動関数を $\chi_i(x')$ として

$$\chi(x') = \frac{1}{\sqrt{A!}} \begin{vmatrix} \chi_1(x'_1), \chi_2(x'_1) \cdots \chi_A(x'_1) \\ \chi_1(x'_2), \cdots, \chi_A(x'_2) \\ \vdots \\ \chi_1(x'_A), \cdots, \chi_A(x'_A) \end{vmatrix} \quad (32)$$



で表わせる。

$\chi_i(x'_j)$ に対しては先に求めた Nilsson Model での 1 粒子波動関数を用いる。1 粒子波動関数の選び方は 1 図の 1 粒子 energy の小さい順に核子を詰めて行く。

$$\chi_i(x'_j) = \sum_{N \ell A \Sigma} a_i(N, \ell, A, \Sigma) |N \ell A \Sigma\rangle_j \quad (33)$$

(30) 式の $Y_{\lambda\mu}(\Omega_r)$ は核に固定された系の $Y_{\lambda\mu}(\Omega_{r'})$ に変換しなければならない。

$$Y_{\lambda\mu}(\Omega_r) = \sum_{\mu'} D_{\mu\mu'}^\lambda(\alpha, \beta, \gamma) Y_{\lambda\mu'}(\Omega_{r'}) \quad (34)$$

$\hat{M}_{\lambda\mu}^{\text{coul}}(q)$ の換算行列要素を求めると

$$\langle I \| \hat{M}_\lambda^{\text{coul}} \| I=0 \rangle = \delta_{\lambda I} \sum_i e_i \int \chi_i^*(x') j_\lambda(qr') Y_{\lambda 0}(\Omega_{r'}) \chi_i(x) d\vec{r} \quad (35)$$

電子の Coulomb 散乱に対する形状因子は

$$\begin{aligned} |F_{\text{coul}}|^2 &= \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right) / \sigma_M \\ &= \frac{4\pi}{Z^2 e^2} | \langle I \| \tilde{M}_I^{\text{coul}}(q) \| I=0 \rangle |^2 \\ &= \frac{4\pi}{Z^2 e^2} \left| \sum_i e_i \int \chi_i^*(x') j_\lambda(qr) Y_{\lambda 0}(\Omega_{r'}) \chi_i(x') d\vec{r}' \right|^2 \end{aligned} \quad (36)$$

[参] band の異なる単位に転位する時は

$$\begin{aligned} \langle I(K) \| \hat{M}_\lambda^{\text{coul}} \| I=0(K=0) \rangle &= \delta_{\lambda I} \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{1+\delta_{\kappa 0}}} e \\ &\times \int \chi_{\Omega_{p'}}(x') j_\lambda(qr') Y_{\lambda K}(\Omega_{r'}) \chi_{\Omega_p}(x') d\vec{r}' \end{aligned} \quad (37)$$

ここで K は band 量子数。

$p \neq p'$ (散乱の前後で 1 ケの粒子の状態が異なる)

$$\Omega_{p'} = K + \Omega_p \quad (38)$$

Ω は 1 粒子の全角運動量の Z -成分を示す。

§ 5 全結合 energy

(1) 式は

$$H_i = T_i + \sum_{\substack{j \\ (j>i)}} V_{ij} \quad (39)$$

で表わさせる。次に全結合 Energy \mathcal{U} は

$$\mathcal{U} = \sum_i T_i + \frac{1}{2} \sum_{\substack{i,j \\ (i \neq j)}} V_{ij} \quad (40)$$

(39)(40)より

$$\mathcal{U} = \frac{1}{2} \sum_i (H_i + T_i) \quad (41)$$

(9)式で $T = -\frac{\hbar\omega_0}{2} A$ であるから

$$T_i = H_{0i} - \frac{\hbar\omega_0}{2} r_i^2 \quad (42)$$

(25)式を解く事によって

$$H_i |Q, p\rangle = E_i |Q, p\rangle \quad (43)$$

ここで Q は1粒子の全角運動量のZ-成分, p は parity を示す。

$$|Q, p\rangle = \sum_{N\ell A\Sigma} a(N, \ell, A, \Sigma) |N, \ell, A, \Sigma\rangle \quad (44)$$

(11)式を考慮して $\langle T_i \rangle$ を求めると

$$\begin{aligned} \langle T_i \rangle &= \langle Q, p | T_i | Q, p \rangle \\ &= \hbar\omega_0 \sum_{\substack{N\ell A\Sigma \\ N'\ell'A'\Sigma'}} a(N\ell A\Sigma) a(N'\ell'A'\Sigma') \left\{ (N + \frac{3}{2}) \delta_{NN'} \delta_{\ell\ell'} \delta_{AA'} \delta_{\Sigma\Sigma'} \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{2} \langle N\ell A\Sigma | r_i^2 | N'\ell'A'\Sigma' \rangle \right\} \end{aligned} \quad (45)$$

(45)右辺第二項は解析的に求める事が出来る。

以上より全結合 energy $\langle \mathcal{U} \rangle$ は

$$\langle \mathcal{U} \rangle = \frac{1}{2} \sum_i \{ E_i + \langle T_i \rangle \} \quad (46)$$

で与えられる。

第2図に $\delta_4 = 0$ として $\langle \mathcal{U} \rangle$ の δ_2 に対する変化を示す。 ^{24}Mg に対して $\Delta N = 6$, ^{28}Si に対しては $\Delta N = 0, 2, 4, 6$ の場合の計算を示す。 ^{28}Si は変形核と考えられているが $\Delta N = 0, 2$ では変形した点での Energy 的安定は示されない。しかし $\Delta N = 4, 6$ とすると変形点に安定点が示されて来る。以後の計算では $\Delta N = 6$ として計算を行なった。 ^{24}Mg の場合も同様である。

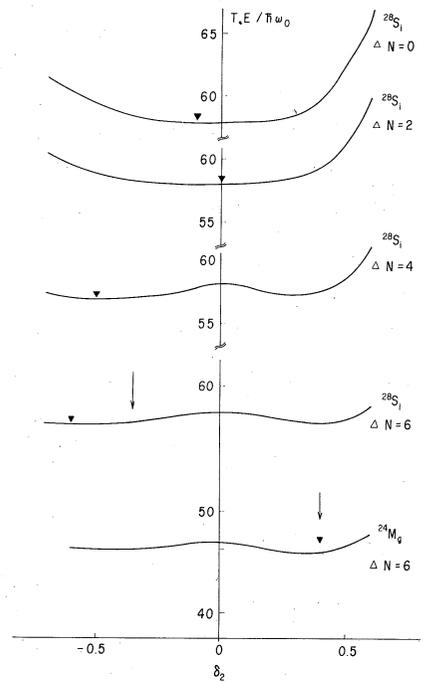
図中 ▼ は Energy の最少点を ↓ は電子散乱の形状因子を良く再現する様な δ_2 の値を示す。

§ 6 結 果

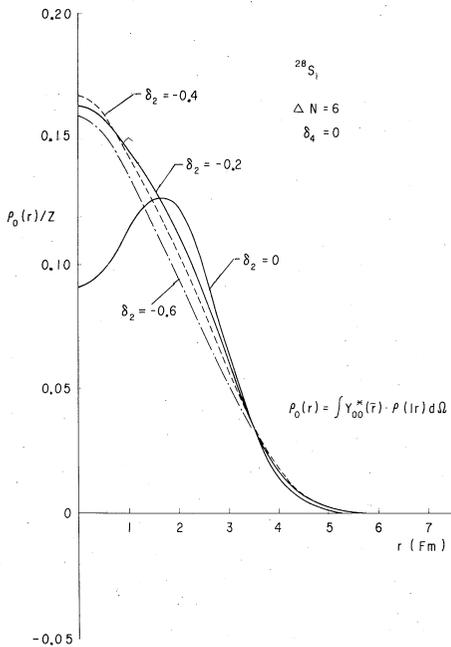
第 3 図に弾性散乱に関する電荷分布 $\rho_0(r)$ を示す。 $\delta_4 = 0$ に固定して、 $\delta_2 = 0, -0.2, -0.4$ の場合を示す。この図より分る事は Y_{20} 変形を入れると $r \sim 0$ 附近の密度が高くなる。その原因は $1d_{5/2}$ と $2S_{1/2}$ の energy 間隔が小さいため変形を入れると $2S_{1/2}$ の成分が $1d_{5/2}$ に強く混入する為である。

$r \sim 0$ 附近の密度が高くなる影響は弾性散乱形状因子の形 (4 図, 7 図) で、第 2 のピークが低くなること云う形で現われる。

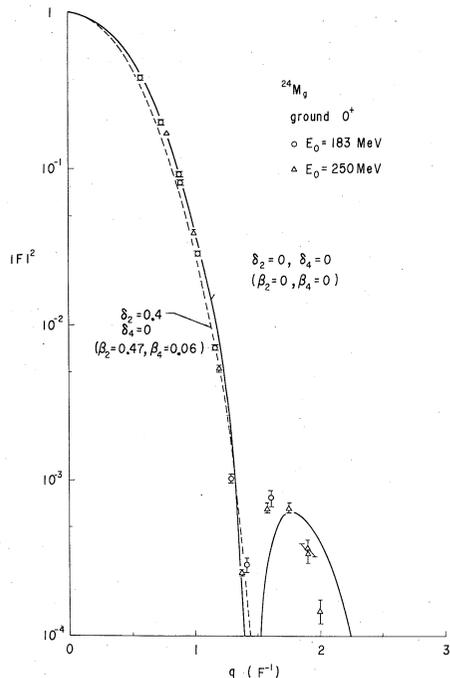
第 4 図に ^{24}Mg の基底 0^+ からの弾性散乱形状因子を示す。実線は $\delta_2 = \delta_4 = 0$ で実験に良く合うが、



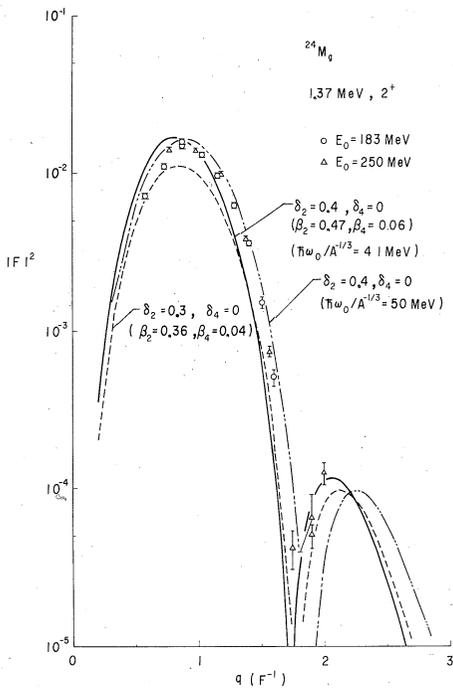
第 2 図



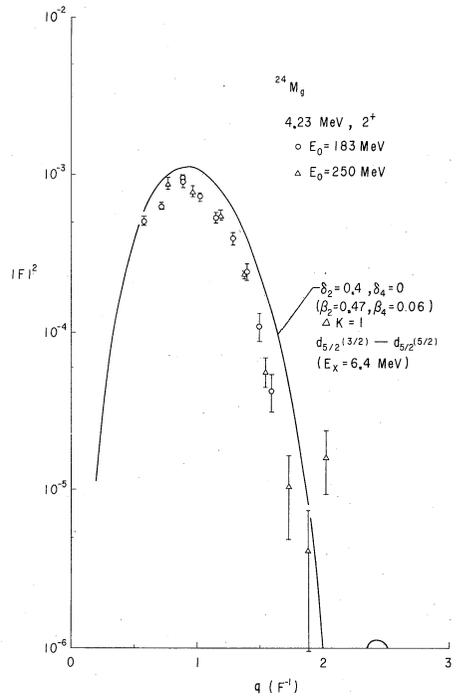
第 3 図



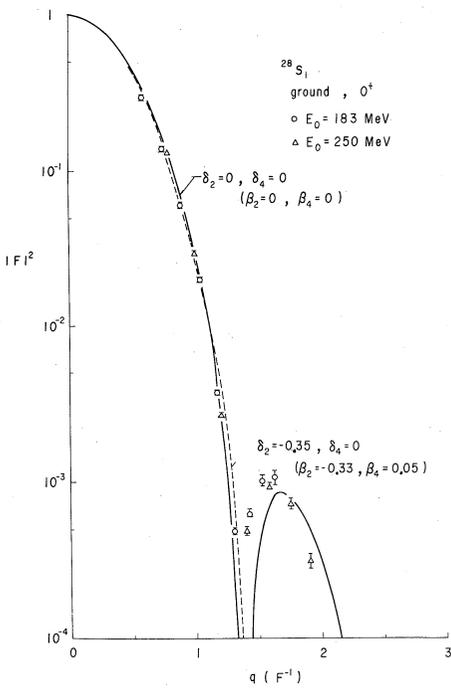
第 4 図



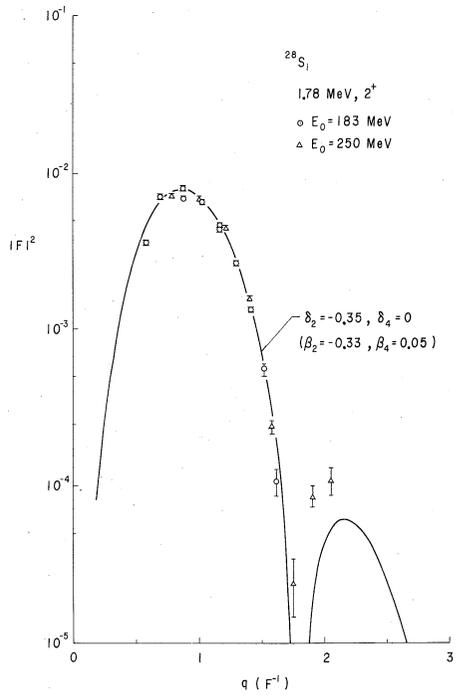
第 5 图



第 6 图



第 7 图



第 8 图

$E2$ - 転移の形状因子を良く再現するパラメータ $\delta_2 = 0.4$, $\delta_4 = 0$ としては第2のピークは再現出来なくなる(この事は前記参照)。

第5図に ^{24}Mg , 1.37 MeV, 2^+ からの非弾性散乱の場合を示す。総ての計算には $\hbar\omega_0 = 41 \cdot A^{-1/3}$ なる関係を用いたが実験点に良く合わせるために5図には $\hbar\omega_0 / A^{-1/3} = 50 \text{ MeV}$ とした場合を2点鎖線で示す。

第6図に ^{24}Mg , 4.23 MeV の 2^+ の図を示す。この附近には 4.12 MeV, 4^+ の準位があるが電子散乱では励起出来ない様である。 $E4$ があつたとしても形状因子で 5×10^{-6} 以下である。図中実線は1粒子が $d_{5/2} (3/2)$ から $d_{5/2} (5/2)$ に転移したとしてのband間転移の計算値を示す。 $E(d_{5/2} (5/2)) - E(d_{5/2} (3/2)) = 6.4 \text{ MeV}$ である。

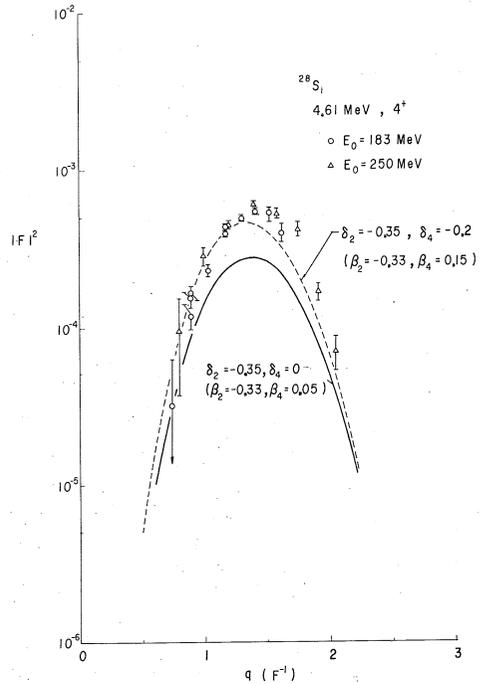
第7図に ^{28}Si の基底 0^+ の場合を示す。 ^{24}Mg の場合と同様変形を入れると第2ピークが小さくなる。

第8図に ^{28}Si , 1.78 MeV 2^+ の場合を示す。計算値は実験点を良く再現している。

第9図に ^{28}Si , 4.61 MeV 4^+ の場合を示す。実線は $\delta_4 = 0$ の場合であるが, $\delta_4 = 0$ としても $E4$ の形状因子をかなり良く再現出来るが, より良く再現する為には $\delta_4 = -0.2$ としなければならない。

文 献

- 1) 核理研報告 Vol. 3 No. 1 (1970) 20.
- 2) S. G. Nilsson, Dan. Mat. Fys. Medd., 291(1955) nr. 16.
- 3) K. Harada, Phy. Lett., 10, (1964) 80.



第 9 図

I-2 (γ, p) 反応による中重及び重核の研究

核理研 庄田勝房・菅原真澄・斎藤悌二郎
宮瀬晴久・鈴木厚人・及川四郎

今期は主に $^{208}\text{Pb}(e, e'p)$ の実験を行った。その他に、新たに Nd の isotope について実験を始めたのでそれ等の結果について報告する。

§1 $\text{Pb}^{208}(\gamma, p)$ 反応

I 実験及び解析法

$^{208}\text{Pb}(\gamma, p)^{207}\text{Tl}$ 反応により ^{208}Pb の high excitation の状態 ($E_x = 2.0 \sim 3.0$ MeV) を調べた。実際の実験は電子ビームを target に照射して、核を励起する、所謂 virtual photon process を用いた。電子照射によって target が融解するのをさけるため target の前に Ta foil をおき照射ビームの面積をひろげた。Ta foil は real photon (bremsstrahlung) 発生 of radiator の役もなし之によって proton yield は増大する。解析に当っては two photon を考慮した。Broad range spectrometer を用いて得られた $\theta = 90^\circ$ に於ける proton spectrum の一例を Fig. 1-1 に示してある。この実験で使用された磁場に対応する測定された proton のエネルギー範囲は 7.5 ~ 19.0 MeV である。Spectrum の proton count の和から proton yield を estimate して所謂 yield curve (Fig. 1-2) を得た。即ち照射 energy E_e に於ける yield $\mathcal{Y}(E_e, \theta)$ は次の様に示される。

$$\mathcal{Y}(E_e, \theta) = \int_0^{E_e - E_{th}} \mathcal{Y}(E_e, \theta, E_p) dE_p \quad (1)$$

ここで $\mathcal{Y}(E_e, \theta, E_p)$ は proton spectrum を示す。

Fig. 1-2 の yield curve には急激な立ち上がりが見られるが、之に対応する excitation energy に於て強い γ 線の吸収があると考えられる。yield $\mathcal{Y}(E_e, \theta)$ は photon spectrum $B(E_e, k)$ 及び differential photoproton cross section $\sigma(k, \theta)$ と次のような関係で結ばれる。

$$\mathcal{Y}(E_e, \theta) = \int_{E_{th}}^{E_e} \sigma(k, \theta) B(E_e, k) dk \quad (2)$$

$B(E_e, k)dk$ は"energy E_e "の electronが1個targetに入射した時, energy範囲($k \sim k + dk$)に於て 反応にあづかる photon 数である。前に 述べた様に, radiatorからの bremsstrahlungによるreal photonも存在する事を考慮して, $B(E_e, k)$ は次のように表わされる。

$$B(E_e, k) = V_{ph}(E_e, k) + N_n \times R_{ph}(E_e, k) \quad (3)$$

ここで V_{ph} はvirtual photon spectrum¹⁾でtargetを通過する 高速電子によるelectro magnetic fieldを種々のenergyを持つ photonsとして考えることによって定

義されるものである。 R_{ph} は radiatorによって発生する bremsstrahlungで real photon spectrum²⁾を示す。 $R_{ph}(E_e, k)$ はenergy E_e のelectronが入射した場合に, energy k の photonが放出される cross sectionである。

今 $E_e \gg m_0c^2$ であるので real photonは鋭い前

方peakを作っているので, 全部がtargetに入射して反応に寄与していると考えられる。 N_n はビーム方向単位面積中のradiator atomの数であり次のように表わされる。

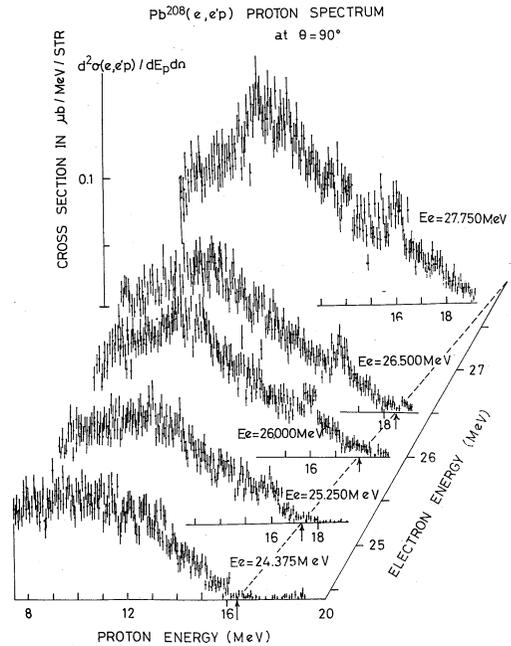


Fig. 1-1

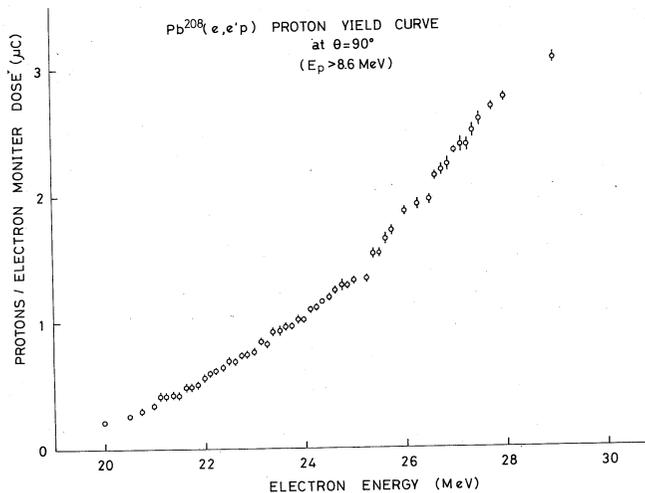


Fig. 1-2

$$N_n = \frac{Tra}{Ara} \times N_0 \times \frac{1}{10^3} \quad (4)$$

N_0 アボガドロ数

Tra Radiatorの厚さ (mg/cm²)

Ara Radiatorのatomic weight

$\sigma(k, \theta)$ は yield curve から (2) 式を用いて求める事が出来る。この解析に当っては、Least Structure Method³⁾を用いた。この方法の大略は次のようなものである。

(2) 式は数学的には第1種 Volterra 積分方程式と呼ばれており、原理的には積分方程式の解法で解けるが、実際には測定点は discrete にしか与えられないので積分方程式を近似して連立方程式を解かねばならない。実験での discrete な E_i に対して (2) は次のように表わせる。

$$\psi(E_i, \theta) = \sum_{j=1}^i \int_{\Delta k_j} \sigma(k, \theta) \cdot B(E_i, k) dk \quad (5)$$

$$\approx \sum_{j=1}^i B(E_i, k_j) \int_{\Delta k_j} \sigma(k, \theta) dk$$

$$\approx \sum_{j=1}^i B(E_i, k_j) \cdot \Delta k_j \cdot \frac{1}{\Delta k_j} \int_{\Delta k_j} \sigma(k, \theta) dk$$

ここで $\Delta k_j = E_j - E_{j-1}$ であり又 $k_j = (E_j + E_{j-1})/2$ である。行列で表わせればこれは次のようにかかれる。

$$\bar{Y} = N \bar{\sigma} \quad (6)$$

但し

$$\bar{Y} = \{ Y(i) \} = \{ \psi(E_i, \theta) \}$$

$$N = \{ N(i, j) \} = \{ B(E_i, k_j) \cdot \Delta k_j \}$$

$$\bar{\sigma} = \{ \sigma(j) \} = \left\{ \frac{1}{\Delta k_j} \int_{\Delta k_j} \sigma(k, \theta) dk \right\}$$

N は photon matrix とよばれ、正方行列になっている。連立一次方程式 (6) を $\bar{\sigma}$ について直接解くと、yield curve に含まれる error によって大きな影響を受け、 $\bar{\sigma}$ の解には high excitation parts に大きな振動が生ずるのが普通である。この振動をなくし、実験精度の範囲内で物理的に妥当な解を得る方法の一つとして Least Structure Method は考えられた。 $Y(i)$ は実験的に決定されるので、

$$Y(i) = \bar{Y}(i) + \Delta Y(i) \quad (7)$$

と示される様に真の値 ($\bar{Y}(i)$) と実験値 ($Y(i)$) の間には差 (偶差) $\Delta Y(i)$ があるはずで

ある。真の cross section を $\bar{\sigma}(j)$ とすると、(5) で用いられた近似の範囲内で

$$\bar{Y}(i) = \sum_{j=1}^i N(i, j) \bar{\sigma}(j) \quad (8)$$

が成立する。(8) からわかるように(6)を直接解いた解は必ずしも正しい解とは言えない。このように $N\bar{\sigma}$ が実験値 $Y(i)$ にほぼ等しいような解 $\bar{\sigma}$ は、すべて同等な信頼性を持っていると言える。統計学で知られているように、実験値 $Y(i)$ が各々正規分布 $N(\bar{Y}(i), \sqrt{Y(i)})$ に従う独立な標本変量である場合、次の量 X_n は自由度 n の χ^2 分布に従う。

$$X_n = \sum_{i=1}^n \frac{(\bar{Y}(i) - Y(i))^2}{(\sqrt{Y(i)})^2} \quad (9)$$

χ^2 分布の性質から、 X_n の平均は n 、分散は $2n$ である。 $\bar{Y}(i)$ を $N\bar{\sigma}$ でおきかえた次の量 \bar{X}_n を考える。

$$\bar{X}_n = \sum_{i=1}^n \frac{(\sum N(i, j) \sigma(j) - Y(i))^2}{(\sqrt{Y(i)})^2} \quad (10)$$

(10) に於て \bar{X}_n は $\sigma(j)$ の函数と考えられ、又 X_n と密接な関係を持っている。 $\{\sigma(j)\}$ は $\bar{X}_n \leq n$ である時は妥当な解と考えられ、そのような解は前に述べたように無数にある。これらの中から最も structureless な解を1つ選ぶために、Structure Function $S(\bar{\sigma})$ を用いる。最も structureless な解を選ぶ事は、実験精度から考えられる最も確かな様子(最小限度言える事)が表現される様な解を求める事である。 $S(\bar{\sigma})$ は次のように表わされ、 $S(\bar{\sigma}) = 0$ は $\sigma(i) = \text{const}$ となる解(完全に Structureless な解)をもつ。

$$S(\bar{\sigma}) = \sum_{j=1}^{n-1} (\sigma(j+1) - \sigma(j))^2 \quad (11)$$

これ迄述べた条件を満足する解 $\bar{\sigma}$ は、「 $\bar{X}_n(\bar{\sigma}) = n$ という制限のもとで $S(\bar{\sigma})$ を最小にする」という変分問題を解く事によって得られる。Lagrange の未定乗数を λ として

$$\lambda \delta S(\bar{\sigma}) + \delta \bar{X}_n(\bar{\sigma}) = 0 \quad (12)$$

これを $\bar{\sigma}$ に関して変分を取ると $\bar{\sigma}$ に対する連立方程式を得る。行列の形でこれは次のように書ける。

$$M \cdot \bar{\sigma} = \bar{Y} \\ (M = N + \lambda W^{-1} \cdot (N^T)^{-1} \cdot S) \quad (13)$$

ここで W , S は次のように表わされる

$$W = \begin{pmatrix} \left(\frac{1}{\nabla Y(1)}\right)^2 & & & & 0 \\ & \left(\frac{1}{\nabla Y(2)}\right)^2 & & & \\ & & \dots & & \\ & & & \left(\frac{1}{\nabla Y(n)}\right)^2 & \\ 0 & & & & \end{pmatrix}$$

$$S = \begin{pmatrix} 1 & -1 & \dots & \dots & 0 \\ -1 & 2 & -1 & & \dots \\ 0 & -1 & 2 & -1 & 0 \\ \dots & & & -1 & 2 & -1 \\ 0 & \dots & \dots & \dots & -1 & 1 \end{pmatrix}$$

実際の操作は parameter としての λ を変えて, $|\bar{X}_n - n| \leq \sqrt{n}$ まで繰り返す。 $\bar{\sigma}$ に対する誤差は, \bar{Y} に対する誤差 $\nabla \bar{Y}$ により

$$\nabla \sigma(j) = \sqrt{\sum_{\alpha=1}^n (M^{-1}(j, \alpha) \nabla Y(\alpha))^2} \quad (14)$$

又 photon energy の誤差を表わす Resolution Function R は

$$R = M^{-1} \cdot N \quad (15)$$

と表わされる。この様な Least Structure Method を用いて実験データを解析した。その結果の photoproton cross section が Fig. 1-3 に示してある。

II 理論との比較

^{208}Tl の ground state 附近の states を double magic core ^{208}Pb の neutron-

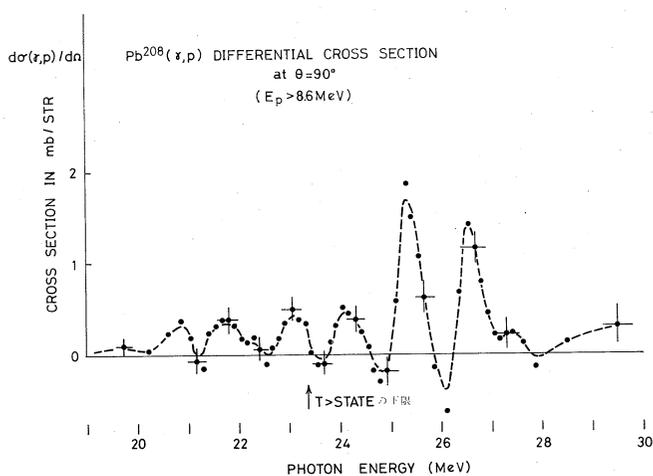


Fig. 1-3

particle + proton - hole の states として表わし、その Analogue State として ^{208}Pb の photo excitation states の high energy parts (20~30 MeV) を説明する理論が Heidelberg group によって提出された。⁴⁾ その結果と我々の実験結果との比較を Fig. 1-4, 及び Table 1 に示した。 ^{208}Pb の photo excitation

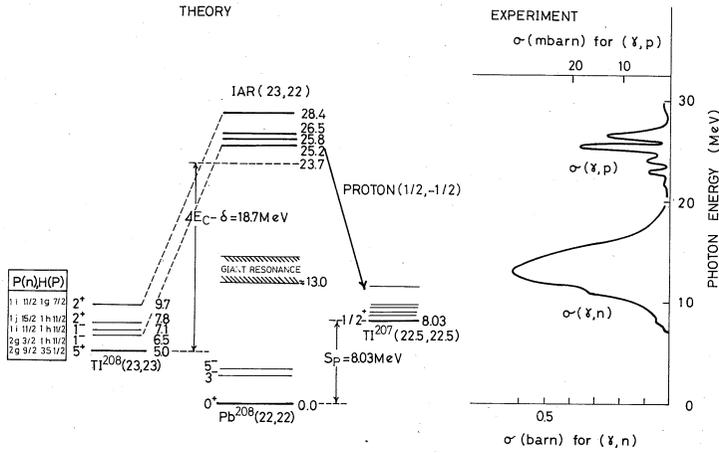


Fig. 1-4

Table 1

	Resonance Energy (MeV)	$\int_{\text{peak}} \sigma_{\text{TOT}}(\gamma, P) dE$ (mb · MeV)	Γr_0 (eV) [$\frac{\sum \Gamma_p}{\Gamma} = 0.75 \pm 0.1$]	$2(T+1)\Gamma r_0 / T_W$	
				E_1	E_2
Experiment	23.06 ± 0.25	2.0 ± 0.6	123 ± 50	0.19	14.3
	24.06 ± 0.25	2.0 ± 0.6	134 ± 53	0.18	12.6
	25.31 ± 0.15	7.0 ± 0.7	520 ± 74	0.61	37.9
	26.56 ± 0.15	6.0 ± 0.8	491 ± 82	0.50	28.1
Theory	25.2 (E1)		370 ± 170 120		
	25.8 (E1)		70 ± 30 20		
	26.5 (E2)		80		
	28.4 (E2)		60		

state に analogous な ^{208}Tl の 1^- , 2^+ states は実験では assign されていないので shell model による計算結果が用いられている。magic number 50 から 184 までの $j-j$ coupling shell model state を考慮すると、 $T >$ state を作り得る

Pb²⁰⁸ core に対する One particle-One hole dipole state の可能生は Fig. 1-4 における二つの state ($2g_{9/2} - 1h_{11/2}^-$, $1i_{11/2} - 1h_{11/2}^-$) だけである。Table 1 に示されている様に、理論で得られた Analogue State と実験で得られた resonance state を 1対1 に対応させる事は実験の精度から見ても困難である。しかし理論、実験共に最大の Radiative Width を示している 253 MeV に於る resonance は ²⁰⁸Tl の ($g_{9/2} - h_{11/2}^-$) state に対応する analogue state と考えられる。又 dipole state の isobaric splitting による $T >$ coherent state を $\sigma(\gamma, p)$ に対応させ、 $T <$ coherent state を $\sigma(\gamma, n)$ に対応させて考える事が出来るので、実験値と Fallieros et al の理論値との比較が可能である。⁵⁾ Target nucleus の ground state isospin を T とし、 $T >$ state の energy を E_{T+1} , $T <$ state の energy を E_T とすると

$$E_{T+1} - E_T \approx U_\beta \frac{T+1}{T} \quad (16)$$

ここで U_β は symmetry energy と呼ばれ、同じ shell model state β にある neutron, proton に働く nuclear interaction の違いである。

$$U_\beta = (\phi_\beta, [U_n(r) - U_p(r)], \phi_\beta) \quad (17)$$

U_β は state β に強くは depend しない。²⁰⁸Pb の場合には energy splitting ≈ 11 MeV を得る。これと対比する $\sigma(\gamma, p)$ と $\sigma(\gamma, n)$ の energy splitting は ≈ 12 MeV である。

又 $T >$ state, $T <$ state の ground-state radiative width の比は

$$\frac{\Gamma_{T+1}}{\Gamma_T} = \frac{1}{T} \left(\frac{E_{T+1}}{E_T} \right)^3 \quad (18)$$

のように表わされ、Pb²⁰⁸ の場合約 0.3 である。sum rule による $\sigma(\gamma, p)$, $\sigma(\gamma, n)$ の ground state radiative width から得られる、対応する値は約 0.02 である。 $T <$ coherent state (ここでは (γ, n) 反応の giant dipole state と同じと考えている) には isospin splitting のない configuration があり、又 $\sigma(\gamma, p)$ に対する coulomb barrier や放出粒子の orbital angular momentum 等がはっきりしないので、定量的比較は今後の問題である。(及川)

参考文献

- 1) R. H. Dalitz, D. R. Yennie; Phys. Rev., 105, 1598(1957)
- 2) L. I. Schiff; Phys. Rev., 83, 252(1951)
- 3) B. C. Cook; Nucl. Instrum. Methods., 24, 256(1963)
- 4) C. B. Dover, J. Hüfner; Phys. Letter., 32B, No. 4, 253
- 5) S. Fallieros, B. Goulard, R. H. Venter; Phys. Letter., 19, No. 5, 398

§2 $^{142}\text{Nd}(e, e'p)$ 反応

これ迄 ^{138}Ba , ^{140}Ce , ^{142}Nd , ^{144}Sm の $N=82$ の核について, (e, e', p) 反応に於ける photoproton の spectrum を測定し, その反応に見られる IAS の Z -dependence を調べてきた。IAS の energy や partial radiative width, 1^- state の systematics に関しては, TUEL-12 に詳しく述べているので参照されたい。今回は photon の $E1$ 吸収と IAS との関係を探る目的で入射電子エネルギーを 150 keV の間隔で変え各 run 毎に spectrum から proton 数の総和を出し yield curve を求めた。1例として ^{142}Nd について 90° 方向で測定した結果を図に示す。

$N=82$ 核に関しては, ~ 10 MeV に sharp

な proton group と ~ 13 MeV に interference type の broad な proton group が見られるが, ^{142}Nd もその例外でなく, group の energy は excitation energy で言うと, $E_x = 17.7$ 及び 20.3 MeV である。図に示した yield curve では, 19.1 MeV 及び 20.3 MeV に明瞭に break が見られるが, ~ 17.7 MeV の break は前者に比べてあまりはっきりしていない。以上のことから, ^{142}Nd については energy の高い方の IAS は total の $E1$ absorption がかなり大きい, 低い方の IAS はそれ程大きくなく, 更に二つの IAS の中間位に ($E_x = 19.1$ MeV) spectrum では対応する peak が見当たらないが, かなり

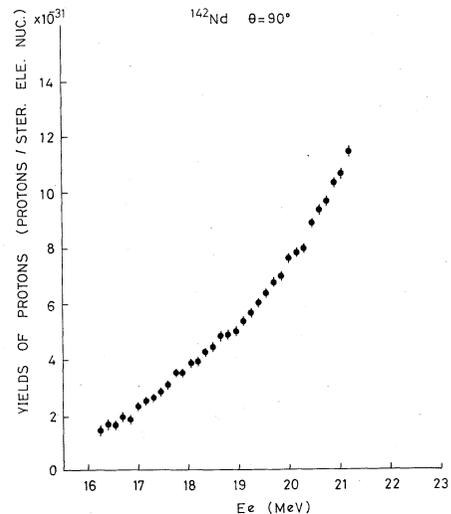


Fig. 2-1

強い 1^- state の存在することがわかる。Nd はこの附近の核で、安定した isotope が多いので、IAS の N -dependence を調べる目的で even 核について yield curve の測定を始めた。実験はまだ終わっておらず来期も引続き行い予定なので、次回に詳しい報告をするつもりである。

(齊 藤)

文 献

TUEL-12

Isobaric Analogue States in the Energy Distributions of Photoprotons on ^{138}Ba , ^{140}Ce , ^{142}Nd and ^{144}Sn by K. Shoda, T. Saito, M. Sugawara, H. Miyase, S. Oikawa and A. Suzuki.

I-3 ($e, e'\alpha$) 反応

教養部物理*・理学部物理

阿部 健*・川村暢明・坪田博明*

一個の検出器で粒子型弁別を行ない、エネルギーも測定するという方法は、たとえば(γ, α)と(γ, p)を全く同一の光子スペクトル(形とエネルギー)、同一幾何学条件、同一放射線量で測定しうるほか、エネルギーが一義的に決定される、エネルギー較正曲線が共通となるという点で、他にないすぐれた特長を有する。この特長は両反応を相互比較する場合には決定的に有利となる。前回にひきつづいて単一固体検出器による α 計測の実験を行なった。今回から系を一新し、($e, e'\alpha$)とした。しかし未だバックグラウンド・レベルが甚だ高く、単一検出器計測の特長を発揮させることができなかつた。この方法は今後も続けるが、しかし次回からは、固体検出器のオン・ライン $dE/dX-E$ テレスコープ系を主とした α 計測に切替えるべきことが結論された。

1 軽い核において α 粒子の四体相関が基本的に重要であることは今日では明らかである。極めて軽い核においては α 粒子はユニットとして厳然として存在し、それらの相対運動はかなり良い運動形態として現われる。また殻模型で比較的よく理解される p 殻や sd 殻の核においても、Morinaga による $4n$ 核の励起状態における α -chain stateの示唆と、 ^{16}O の $^{+0}$ 励起状態のBohr-Mottelsonの解釈にみられるように、励起状態において α 粒子がユニットとして振舞いうることも明らかである。Kuderyarov et al.の電子散乱の実験でも、これらのことは裏付けられた。 α 粒子は α 放出のしきい値付近からユニットとしての意味を持ちはじめ、"分子的構造"を示すとも言われている。 α 粒子模型がよい近似の場合には、dipole vibrationは α 粒子の中だけに閉込められて、giant resonanceは ^4He の場合に近づくであろう。 $4n$ からはずれた核で α yieldがどうなるのか。とくに(γ, p), (γ, n)との相対的關係はどうなるのか。変形核のgiant resonanceの形(splitting)と α 模型近似の良さの關係。スペクトルの蒸発理論からのずれ。荷電スピンの選択則の破れ。微細構造とanalogue-state transition³⁾。問題は多くあるが未だ実験ははなはだ少く、しかも少数の報告も計測精度がよくない。それは一つには強いバックグラウンド計数の下における α スペクトルの速い弁別測定技術が、スペクトルの微細構造を問題にしるところまで進んでいなかったためであろう。方法は未だ確立していないと言わざるを得ない。⁴⁻⁵⁾したがって、 α 計測のためには先ずこの技術の開発が先決問題となる。この壁は厚い。我々は先ずベータトロンを

用いて解決の端緒を把え、次いでリニャックを用いてこれを追求して来た。^{6~7)} 単一の厚い固体検出器による α 計測は、全く同一のビーム条件、計数条件において p 計測もなしうるので、原理的には最良の方法の一つである。この方法はしかし、検出器の側面から入射する粒子や、 (n, α) のように検出器内部で生じる粒子に対しては弁別能もなく、また排斥能力もない。したがってこの方法の特長を發揮させるには、先ず以って廻り込みバックグラウンドをどの程度まで減少させるかが大きな問題となる。すなわち遮蔽問題の解決が鍵となる。このことは実験を振返ってみれば明らかである。⁷⁾ BDM後方のトンネル内で実験を行なうと非常にきれいなデータが得られる。しかしビームが非常に発散した場所での実験となるため、yieldが不足し、少いマシン・タイムには適さない。BDM直後のyieldの大きい場所では、遮蔽を完全に施しうるスペースが得られず、バックグラウンドが高く、良い結果が得られない。第一実験室の現状では制動放射線を利用する限りこのジレンマは解決できないので、今回から (e, e', α) 実験に切替えた。pure γ channelの開設を望む。

2 計測回路系については既に詳しく述べたので省略する。^{6~7)} ただし $\sim 200\text{m}$ のケーブルで拾う雑音を除去するための回路的対策や電源のAC lineからの分離や前置増幅器の一層の高速化などを新たに行なった。これらの効果については次回に記す。

最も大きな変更は散乱槽関係である。第一日目に用いた散乱槽系を図1に示す。上板面積 $100 \times 100 \text{ cm}^2$ 、高さ $110 \sim 90 \text{ cm}$ の架台に、上板面積 $160 \times 100 \text{ cm}^2$ 、底面積 $135 \times 100 \text{ cm}^2$ 、高さ 30 cm の水槽に載せ、前面に $80 \times 70 \text{ cm}^2$ 、厚さ 30 cm の孔あき水槽を配置し、さらに残る4面の対策として $100 \times 100 \times 80 \text{ cm}^3$ 、肉厚 $27.3 \sim 23 \text{ cm}$ のカマクラ状水槽を載せた。前面水槽とこの水槽の間隙 20 cm はパラフィンと重パラフィンで埋めた。中性子減速材(水)は薄い所で 23 cm 、厚い所で 30 cm であった。ほら穴の寸法は約 $54 \times 53 \times 92 \text{ cm}^3$ で、この中に $40 \times 30 \times 50 \text{ cm}^3$ 、ギャップ 3 cm の掃引磁石と約100個の鉛レンガをつめた。総重量は約3トンであった。散乱箱は $10 \text{ cm } \phi$ 、長さ 18 cm のダクトで後方に $23.4 \text{ cm } \phi$ のフランジを有する。約 $10 \times 10 \text{ cm}^2$ の標的を 45° に貼りつける。この標的を $18.2 \text{ mm } \phi$ 、長さ 800 mm のパイプの先端にとりつけた空乏層 2 mm の固体検出器で覗く。立体角は $\sim 1.5 \times 10^{-4}$ である。なおBDMの後端から標的まで約 60 cm であった。このような配置で遮蔽実験を行ない満足すべき結果を得た。ただし $E_0 = 25 \text{ MeV}$ では、ビーム発散の大きさが $\geq 10 \text{ cm } \phi$ となり、散乱槽が加熱され、標的からの寄与が極めて小さくなる。第2日目にはこの点を全面的に解決した新しい散乱槽を用意した。 $32 \times 25 \times 15 \text{ cm}^3$ の箱型で、 $17 \text{ cm } \phi$ の後方開口を有する。検出立体角は $\sim 3 \times 10^{-4}$ に増加させた。詳細は他の機会に譲る。ほら穴の寸法を $54 \times 53 \times 72 \text{ cm}^3$ につめ、掃引磁石を小型のものに取替えた。このような条件で改めて遮蔽実験を行なった

ところ、 8.3 mg/cm^2 (半値, 45°) 標的有りとなし (blank) の比がピークで 3 : 1, 総計数比で 10 : 1 となった ($E_e = 40 \text{ MeV}$, $I_e = \text{max}$)。S/N 比が 10 : 1 では実験できないので、遮蔽の再検討を行なった。第 3 日目は良い遮蔽条件を再現すべく種々試みた。 $E_e = 30 \text{ MeV}$ のとき、最良収束ビーム径が $22 \text{ mm } \phi$, 周辺のぼけを含めても $30 \text{ mm } \phi$ 以下となしうるということがわかった。また 1 run (1hr) 程度ならセロハン標的 (45° 半値, 2.2 mg/cm^2) が十分使用しうるということがわかった。BDM 側に鉛とパラフィンのはみ出し (wing) をつけると S/N 比が若干改良されることがわかったが、S/N 比を 100 : 1 程度まで減少させることはできなかった。セロハンを標的とした場合のスペクトルを図 2 に示す。S/N 比が悪く 9.5 MeV 附近のピークも判然としない。遮蔽はほぼ第 1 日目の状態を再現しており、オッシロによる slow neutron の観測や割算信号などから、掃引磁石がほとんど効かないのが原因であることがわかった。 $\sim 4000 \text{ Gauss}$ の磁石が間合わず $\sim 1000 \text{ Gauss}$ のものを流用し、しかも検出器から離れた散乱槽近傍に配置したために、標的方向から発し、軸のずれたまわり込みバックグラウンドの寄与が大きくなってしまった。またビーム off 状態で観測される grass 状バックグラウンドも多く、これの軽いパイルアップのために割算を間違えることもわかった。BDM 直後の場所はスペースもなく、立地条件がよくないことを思い知らされた。厚い標的では散乱後のビームが非常に広がり、

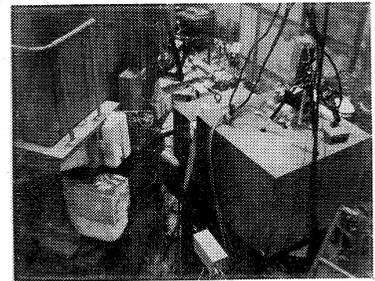
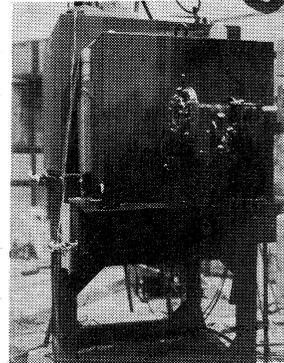
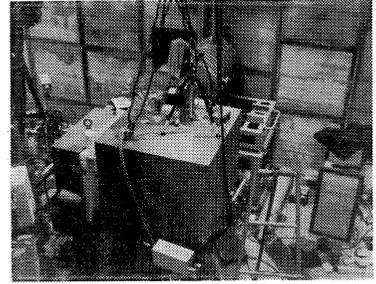


図 1

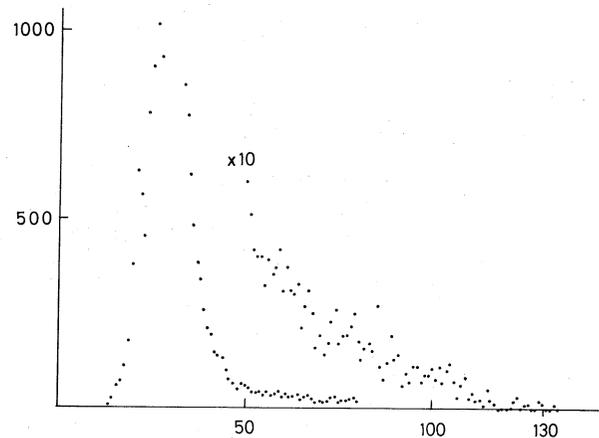


図 2

10cm ϕ のダクト壁を叩くこともわかった。中央チャンネルでの実験はBDMがあって最良地点に散乱箱が設置できないので無理である。

3 単一固体検出器による弁別計測はすぐれた特長を有するが、真正面から入射する粒子以外に対しては無能である。現状では第一実験室のバックグラウンド・レベルが高く、この方法は適当ではないが、次回からはLチャンネルが開放され、立地条件が格段に改善される見込みなので、再実験を行なう予定である。pure γ channelの開設が最も望ましい。一次回からは固体検出器による dE/dX -Eテレスコープを使用する実験を併行して進める予定で、準備中である。

4 dE/dX 検出器はSSR社製で全厚10 μm 、分解能80 KeVである。E検出器は掘場製の120 μm で、当初時間分解能100n secとする。テレスコープではまわり込みバックグラウンドは完全に排除される。ただし陽子は測定できない。

マシンタイムが1日済むごとに大改造を施したので、バイアス系の絶縁を忘れてたり、真空がもれたり、ハブニングが相次いだ。このため、マシンタイムを入替えて頂いたり、もれ探しをして頂いたり、マシン・スタッフの方々をはじめ、各方面に多大の迷惑をおかけしました。ここに改めてお詫びと感謝の意を述べさせていただきます。

文 献

- 1) K. Takada ; Buturi 25(1970)205.
- 2) K. Okamoto ; JAERI 1020(1961)203.
- 3) G. Kraft, R. Kosiek, R. Mundhenke and J. Winter ; Nucl. Phys. A118(1968)25.
- 4) N. A. Keller, J. K. P. Lee and D. B. McConnell ; Canadian J. Phys. 47(1969)611.
- 5) N. A. Keller and D. B. McConnell ; Nucl. Instr. Meth. 81(1970)305.
- 6) K. Abe, N. Kawamura and N. Mutsuro ; Nucl. Instr. Meth. 63(1968)105.
- 7) K. Abe, N. Kawamura and H. Tsubota ; Research Rep. Labo. Nucl. Sci. Tohoku Univ. 1(1)(1968)~3(1)(1970).

I-4 Gamma Rays Following the Decay of ^{112}In and Population of the 1225-KeV 0^+ State in ^{112}Cd

工学部原子核 梶山 一典・古田島久哉
板垣新治郎・武田 靖

Abstract: The gamma rays following the decay of 14-min ^{112}In have been studied with a 24-cc Ge(Li) detector. The energy values and relative intensities of the gamma rays are; 606.4 ± 0.5 keV (23.4%), 618.2 ± 0.4 keV (100.0%), 1252.6 ± 0.9 keV (5.6%), 1278.0 ± 1.4 keV (0.2%), 1306.3 ± 1.7 keV (0.1%) and 1488.9 ± 1.3 keV (1.2%). The excited levels of ^{112}Cd at 618.2 keV, 1224.6 keV, 1306.3 keV, 1488.9 keV, 1870.8 keV and 2502.6 keV are considered to be 2^+ , 0^+ , 2^+ , 2^+ , 0^+ and 2^+ , respectively. The population of the 1224.6-keV 0^+ state by beta feeding is qualitatively discussed.

1 Introduction

It is a fact that the excited states of even-even cadmium isotopes are well understood on the basis of nuclear surface vibration. Following this line, it is of interest to locate 0^+ , 2^+ and 4^+ states at about twice the energy of the first excited 2^+ state. The excited levels of ^{112}Cd have been investigated by many authors from the Coulomb excitation¹⁾, from the (d, p) ²⁾, (d, d') ³⁾, (p, p') ⁴⁾ reactions and from the decays of ^{112}In ⁵⁾ and ^{112}Ag ^{6),7)}. These results are summarized in Figure 5. The 0^+ state at approximately 1225 keV established from the (d, p) , (p, p') reactions and from the decay of ^{112}Ag has not been identified from the beta decay of ^{112}In . Since this

* K. Sugiyama, K. Kotajima, S. Itagaki and Y. Takeda
Department of Nuclear Engineering
Tohoku University, Sendai, Japan

1225 keV level is located at about twice the energy of the first 2^+ state, this 0^+ state should be a member of the two-phonon triplet. If this is the case, the 1225 keV 0^+ state in ^{112}Cd should be populated by the allowed beta decay from the 1^+ ground state to the 0^+ excited state in even-even vibrational nuclei could also be expected in this case. Thus, in the present work, the gamma rays following the decay of 14-min ^{112}In has been investigated, and the weak beta branching from the 1^+ ground state of ^{112}In to the 1225 keV 0^+ state of ^{112}Cd has been searched.

2 Experimental Procedures

In order to produce 14-min ^{112}In by the $(r, 3n)$ reaction on ^{115}In (95.8% natural abundance), a sample of about 500mg highly purified (99.99%) indium metal was irradiated for 15 minutes with the 35-MeV bremsstrahlung from the electron linear accelerator of Tohoku University. The suspected radioactivities produced by this irradiation are summarized in Table I.

As seen in the table, the yield of ^{112}In could be maximized by choosing a proper time for irradiation and a suitable energy of bremsstrahlung. During the irradiation, the indium sample has also been placed in a 4-mm thick Cadmium cylinder to minimize the 54-min ^{116}In activities, since the neutron capture cross section of ^{115}In is fairly large. Thus, after the irradiation, the sample was quickly mounted in front of the Ge(Li) detector without any chemical treatment for separating ^{112}In . To prevent beta particles from the sample, a 2-cm thick Lucite absorber has been placed between the sample and detector.

Table 1

Radioactivities induced on an indium target by the irradiation with the 35-MeV bremsstrahlung for 15 minutes.

Type of Reactions	Reaction Q-values	Radioactive Products	Half-Lives	Gamma Ray Energies
n, γ	6.80 MeV	^{116}In	m: 54.0 m g: 14.1 s	417, 1097, 1293, ... (1293) keV
γ, n	-9.02	^{114}In	m: 50.0 d g: 72.0 s	192, 558, 724 (1299)
$\gamma, 2n$	-16.34	^{113}In	m: 99.8 m g: Stable	393
$\gamma, 3n$	-25.74	^{112}In	m: 20.7 m g: 14.4 m	156 Present Work
$\gamma, 4n$	-33.45	^{111}In	2.81d	173, 247
γ, p	-6.82	^{114}Cd	Stable	
γ, pn	-15.87	^{113}Cd	m: 13.6 y g: $> 10^{15}$ y	(270)
$\gamma, p2n$	-22.35	^{112}Cd	Stable	

Possible reaction mode on In by irradiation of the 35-MeV bremsstrahlung. As seen in the table, ^{112}In by the $(\gamma, 3n)$ reaction could be produced by the 15-minutes irradiation. The 35-MeV bremsstrahlung has enough energy to cause $^{115}\text{In}(\gamma, 3n)^{112}\text{In}$ reaction.

The gamma ray spectrometer consists of a ORTEC 24-cc Ge(Li) detector, a ORTEC 118A low-noise pulse amplifier and a TMC 1024-channel pulse height analyzer. The energy resolution of this system is 3.0 keV FWHM for the 1332-keV gamma ray of ^{60}Co . The energy calibration was performed with the gamma rays from the ^{88}Y , ^{60}Co , ^{22}Na , ^{65}Zn , ^{54}Mn , ^{137}Cs , ^{133}Ba , ^{203}Hg and ^{57}Co sources.

3 Experimental Results

After the 15-min irradiation, the gamma rays from the sample have been measured for several hours. Typical gamma ray spectra, thus obtained, are shown in Figures 1 and 2. The decay of each gamma ray in the spectra was followed to identify the parent nuclei. Such decay curves are shown in Figure 3.

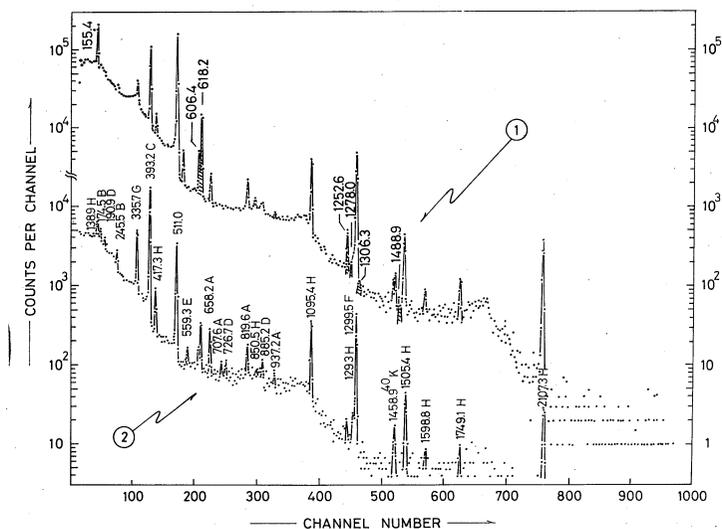


Fig.1. Gamma-ray spectra obtained using the 24-cc Ge(Li) detector after the 15-min irradiation with the 35-MeV bremsstrahlung. Spectra marked by letters 1 and 2 have been measured at about 5 minutes and 2 hours after the irradiation, respectively. Each peak has been labelled by a number and an alphabetic letter meaning of its energy value in keV unit and the assignment. Letters A, B, C, D, E, F, G and H indicate the assignment to ^{110}Cd , ^{111}Cd , ^{113}In , $^{110\text{m}}\text{In}$, ^{114}In , ^{114}Sn , $^{115\text{m}}\text{In}$ and ^{116}Sn , respectively.

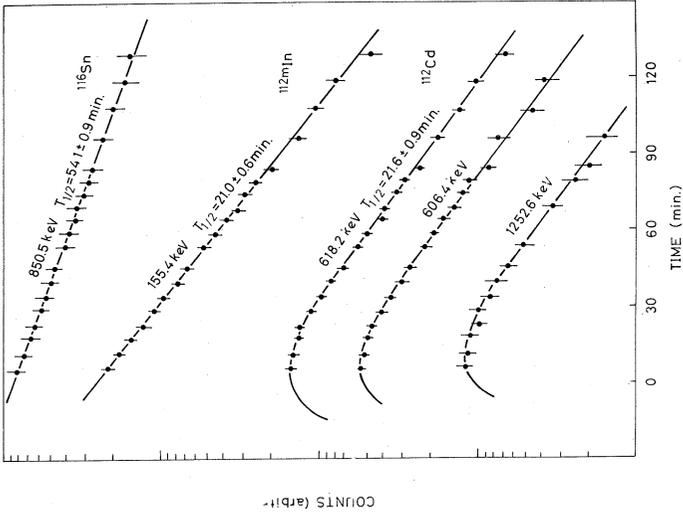


Fig.3. Decay curves of the 155.4-keV, 850.5-keV, 606.4-keV, 618.2-keV and 1252.6-keV gamma-rays. The 155.4-keV gamma-ray with a half life of 21.0 minutes corresponds to the decay of the 4^+ isomeric state to the 0^+ ground state in ^{112}In . The 606.4-keV, 618.2-keV and 1252.6-keV gamma rays found to build up with a half life of approximately 21.0 minutes first and, then, decay with a half life of 14.0 minutes.

The 850.5-keV gamma ray reported by J.Z. Ruan et al.5) was found to decay with a half life of 54.1 minutes, and thus, considered to be due to the decay of the 54.0-m ^{116}Sn .

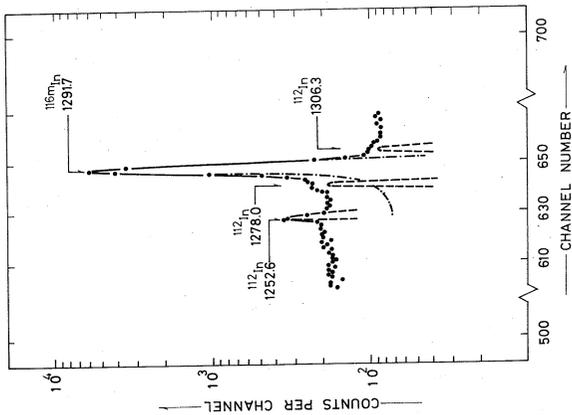


Fig.2. Expanded regions of the single spectrum showing energy range.

Table 2
Gamma-ray transition energies and relative intensities
in ^{112}Cd observed in the decay of ^{112}In

E_γ (keV)	I_γ (%)	E_γ (keV)	I_γ (%)
606.4 ± 0.5	23.4	1278.0 ± 1.4	0.2
618.2 ± 0.4	100.0	1306.3 ± 1.7	0.1
1252.6 ± 0.9	5.6	1488.9 ± 1.3	1.2

Energy values in keV unit and relative intensities in % of gamma rays following the decay of ^{112}In .

Thus, the relative intensities of the gamma rays following the decay of ^{112}In have been obtained and are summarized in Table 2 together with their energy values. Taking into account the result of the gamma ray measurement, the level scheme of ^{112}Cd has been composed as in Figure 4.

The gamma rays from the second and third 2^+ states to the first 2^+ state (indicated with the dashed lines in the Figure⁴) have not been observed in the present measurement. The limit of these transition intensities has been estimated to be

$$\frac{I_{r=688} (2_2^+ - 2_1^+)}{I_{r=618} (2_1^+ - 0^+)} \quad \text{and} \quad \frac{I_{r=871} (2_3^+ - 2_1^+)}{I_{r=618} (2_1^+ - 0^+)} < 0.01\%$$

The corrections for the internal conversion coefficients have not been made since the coefficients should be fairly small less than 1 % for the present case.

The beta decay branching as shown in Figure 4 has been estimated from the measured intensity of the 511-keV gamma ray and graphically obtained K/β ratio.⁸⁾ From the reference,⁹⁾ the 20-min 4^+ isomeric state has been known at 155 keV above the 1^+ ground state of ^{112}In . Therefore, a weak beta branching

from the 4^+ isomeric state to the 4^+ two-phonon state might also be expected. However, the 20-min 796-keV gamma ray corresponding to the $4^+ - 2^+$ transition in ^{112}Cd has not been seen in the gamma ray spectra (see Figure 1).

Table 3

Log ft values for allowed transition from $^{112}\text{In}(1^+)$

Energy of gamma ray (keV)	Relative intensity	level energy (keV)	level Spin, Parity	Percent level feeding	log ft value
		ground	0^+	72	4.4
618.2 ± 0.4	100.0	618.2 ± 0.4	2^+	2.2	5.7
606.4 ± 0.5	23.4	1224.6 ± 0.9	0^+	0.7	5.7
1306.3 ± 0.7	0.1	1306.3 ± 0.7	2^+	0.01	> 7.0
1488.8 ± 0.8	1.2	1488.8 ± 0.8	2^+	0.11	6.4
1252.6 ± 0.7	5.6	1870.8 ± 0.9	0^+	0.18	5.6
1278.0 ± 0.7	0.2	2502.6 ± 1.6	(2^+)	0.006	> 6.3

Summary of the β transitions deduced from the decay scheme. This lower limit was derived from the upper error limit on the feeding.

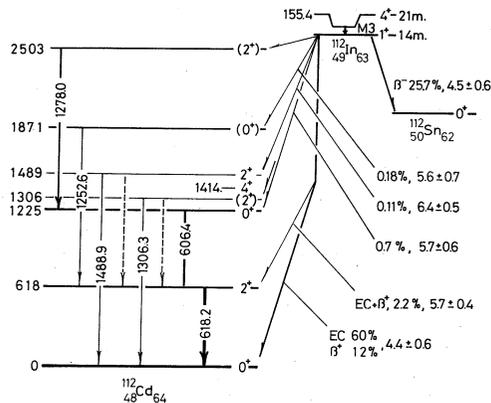


Fig.4. Proposed decay scheme in the present work. All observed gamma rays are fitted in the decay scheme. The gamma rays indicated by dashed lines have not been observed in the present measurement.

3.1. 0^+ Ground State

As indicated in Table 3, the $\log ft$ value for the beta decay from the 1^+ ground state of ^{112}In to the 0^+ ground state of ^{112}Cd has been estimated to be 4.4 ± 0.6 which seems to be consistent with the value expected for the allowed transition of this type.

3.2 618.2-keV First 2^+ State

The obtained $\log ft$ value for the beta transition from the 1^+ ground state to the 618.2-keV first 2^+ state is 5.7 ± 0.4 which also indicates that the beta transition should be the allowed type. As seen in Table 3, the intensity of the 618.2-keV gamma ray is fairly strong compared to the other gamma ray intensities. This also agrees with the results of the previous work.⁵⁾

3.3. 1224.6-keV and 1870.8-keV 0^+ States

These 1224.6 keV and 1870.8 keV states de-excite by emission of 606.4 keV and 1252.6 keV gamma rays to the first 2^+ state, respectively. No gamma ray corresponding to the cross-over transitions from these states to the 0^+ ground state has been detected in the gamma ray spectra. The $\log ft$ values for the beta transitions to these states are 5.7 ± 0.6 and 5.6 ± 0.7 . From these evidences and low spin of ^{112}In , the spin of 0^+ could be assigned to these levels. Furthermore, these assignments agree with the results of reaction experiments and the decay study of ^{112}Ag (see Figure 5).

3.4. 1306.3 keV, 1488.9 keV and 2502.6 keV 2^+ States

The 1306.3 keV, 1488.9 keV and 2502.6 keV levels have been proposed taking into account the results of the reaction

experiment²⁻⁴⁾, however, the gamma rays for the transitions from these levels to the first 2^+ state have not been observed in the present measurement.

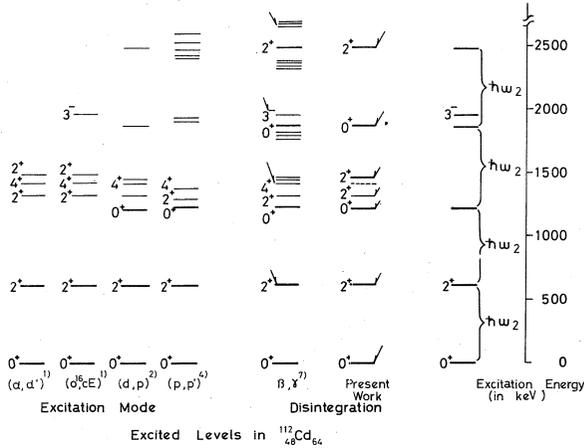


Fig.5. The excited levels of ^{112}Cd have been investigated by many authors. These results are summarized in this figure. The 0^+ state at approximately 1225-keV established from the (d, p) , (p, p') reaction and from the decay of ^{112}Ag has been identified from the beta decay of ^{112}In based upon measurements from the present work. Data are referred from References 1), 2), 4), 7) and the present work.

4 Discussions

In a study of hindrance phenomena in allowed betatransitions from odd-odd nuclei ($60 \leq A \leq 140$) with 1^+ ground states, Sakai¹⁰⁾ reported that the transitions to the first 2^+ and the second 2^+ excited states, respectively, are successively hindered, but decay to the first excited 0^+ state proceeds at rates essentially equal to that of the ground state. Therefore the $\log ft$ values of the allowed transitions from the 1^+ ground state of ^{112}In are the primary quantities of interest in the present work. The obtained $\log ft$ values for the beta transitions from the 1^+

ground state of ^{112}In to the O^+ ground state, first 2^+ state and excited O^+ state of ^{112}Cd are 4.4, 5.7 and 5.7, respectively. The beta transition from the 1^+ state to the first 2^+ state, thus, seems to be fairly hindered. However, the transition from the 1^+ state to the O^+ excited state also seems to be hindered. This might suggest that the excited O^+ states in medium-weight even-even nuclei are somewhat more quasiparticle in nature as well.

Acknowledgements

The authors are deeply grateful to Dr. M. Yagi, Dr. K. Kondo and the Crews of the Electron Linear Accelerator for trouble-free operations.

References

- 1) F.K. McGowan, R.L. Robinson, P.H. Stelson and J.L.C. Ford; Nucl. Phys. **66**, 97 (1965).
W.T. Milner, F.K. McGowan, P.H. Stelson, R.L. Robinson and R.O. Sayer; Nucl. Phys. **A129**, 687 (1969).
- 2) P.P. Barnes, J.R. Comfort and C.K. Bockelman; Phys. Rev. **155**, 1319 (1967).
- 3) Y.S. Kim and B.L. Cohen; Phys. Rev. **142**, 788 (1966).
- 4) M. Koike; Nucl. Phys. **A98**, 209 (1967).
- 5) J. Ruan, Y. Yoshizawa and Y. Koh; J. Phys. Soc. (Japan) **176**, 6 (1962).
- 6) C.M. Lederer, J.M. Hollander and I. Perlman; Table of Isotopes (John Wiley & Sons, Inc., New York 1968)
- 7) E.W.A. Lingeman, J. Konijn and L.G.R. Mathot; Nucl. Phys. **A122**, 557 (1968).
- 8) P.F. Zweifel; Phys. Rev. **107**, 329 (1957).
- 9) E. Bleuler et al.; Phys. Rev. **90**, 464 (1953).
- 10) M. Sakai; Nucl. Phys. **33**, 96 (1962).

I-5 ^{204}Pb の $E4$ Cross-Over 遷移の測定

工学部原子核

梶山一典・古田島久弥・板垣新次郎

岩崎 信・中屋重正・武田 靖

松野秀男・若林利男・山本 徹

村山重雄

I 序 論

多くの偶-偶核は、基底状態の上に、 2^+ 状態と 4^+ 状態とが等間隔に現われるが、この事実は核の集団運動としての表面運動に起因するものとして良く説明されている。この様な 4^+ 状態は、通常 $4^+ \rightarrow 2^+$ 遷移と $2^+ \rightarrow 0^+$ 遷移とに相当する2つのカスケードなガンマ線か、あるいは又内部変換電子を放出して、基底状態へと崩壊する。一般に電氣的 $2L$ 重極遷移の遷移確率は、遷移のエネルギーの $(2L+1)$ 乗と、核半径の $2L$ 乗に比例しているので、 $4^+ \rightarrow 0^+$ のクロスオーバー遷移である $E4$ 遷移の遷移確率は、 $4^+ \rightarrow 2^+$ 及び $2^+ \rightarrow 0^+$ の $E2$ 遷移の遷移確率に比べて非常に小さいと考えられる。さらに、これらの $E2$ 遷移が核の集団運動による準位間の遷移であるために、その遷移確率は単一粒子模型¹⁾による計算値より $10^1 \sim 10^3$ 倍強められている。この様に一般的には $E4$ クロスオーバー遷移を直接測定することは、非常に強い $E2$ 遷移があるために殆んど不可能である。しかし、何らかの理由によって、この $E2$ 遷移が抑制されている場合には、この $E4$ 遷移を測定することが、可能になって来る。

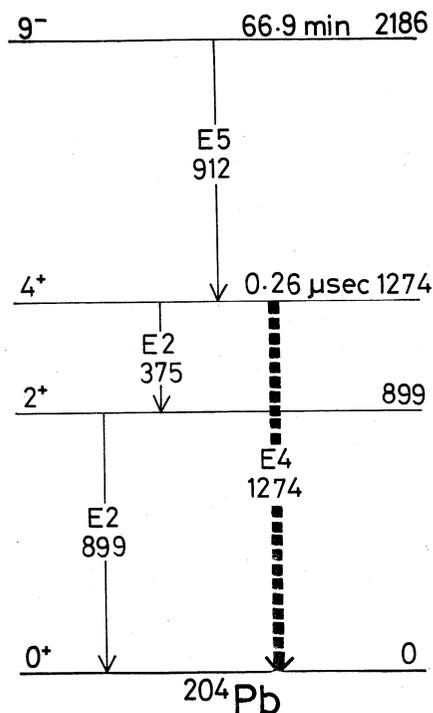
^{204}Pb の励起状態は、半減期11.2hourの $^{204}\text{Bi}^{2)}$ と、669minの $^{204\text{m}}\text{Pb}^{3)}$ の崩壊から多くの人達によりよく調べられている。第1図を見ると、2つのカスケードな $E2$ 遷移のエネルギーの比は、核の表面振動から期待される比1からかなりずれている事がわかる。さらに注意すべき点は、1274keVの 4^+ 状態の半減期は、M. Salomon達⁴⁾が遅延同期計数法によって測定した所によると、 $0.258 \pm 0.012 \mu\text{sec}$ であるという事である。この値は、核半径のパラメータ r_0 を1.4fmとした時の単一粒子模型から計算した値より約500倍も長くなっている。この様に ^{204}Pb は、 $4^+ \rightarrow 2^+ \rightarrow 0^+$ という単位構造を持った核の中で、ちょうど上に述べた様な場合にあてはまる。この1274keVの $E4$ クロスオーバー遷移の測定は以前高橋達⁵⁾が1962年にNaI(Tl)シンチレーションスペクトロメーターを用いて行っており、 $E4$ クロスオーバー遷移の抑制因子の上限値として、5という値を報告している。私達は、 ^{204}Pb のこの 4^+ 状態の性質⁶⁾をさらに詳しく調べるために、この $E4$ クロスオーバー遷移の遷移確率を実験的に測定す

る事を試みた。

II 実 験

第1図より明らかな様に、半減期66.9minの ^{204m}Pb の崩壊にともなって375keVのE2, 899keVのE2, 912keVのE5のガンマ線が観測されると期待される。これらの強いガンマ線の他に、もし1274keVの所に半減期67minで崩壊するピークがみつければ、それが正に、今問題にしている遷移に相当するものである。一方、375keVと899keVのガンマ線は、E4クロスオーバー遷移のエネルギーとちょうど同じエネルギーのサムピークを作るので、厚さ22.8mmの鉛の吸収体を用いて、その中でのガンマ線の吸収率のエネルギー依存性を利用し、サムピークの強さを相対的に弱くして測定を行なった。

^{204}Pb のアイソマーは、存在比が25.2%の ^{206}Pb の($\gamma, 2n$)反応によって生成した。ターゲットとして120mgの鉛のメタルを30MeVの制動輻射で60分間照射した。制動輻射のエネルギーを30MeVとしたのは、エネルギーが高くなると半減期3.6hourの ^{202m}Pb が($\gamma, 4n$)反応によって作られ、これがまた測定邪魔になるからである。照射終了後、測定のために試料を約0.2mmの厚さに押しつぶし、検出器から8cm離れた所で測定した。測定は鉛の吸収体を入れた場合と入れない場合とを交互に行ない、鉛の吸収体を入れない場合には、試料からの電子を吸収させるために、20mmの厚さのルーサイトの吸収体をおいた。ガンマ線の検出装置として、42ccのオルテック社製のゲルマニウム検出器と、120-2B型低雑音増幅器及び800チャンネルの波高分析器を使用した。検出装置のエネルギー分解能は、 ^{60}Co の1332keVのガンマ線に対して2.8keV(FWHM)であった。



第1図 ^{204}Pb の66.9minのアイソマー状態の崩壊様式。点線は今回測定したE4 Cross-over遷移を表わす。

III 結 果

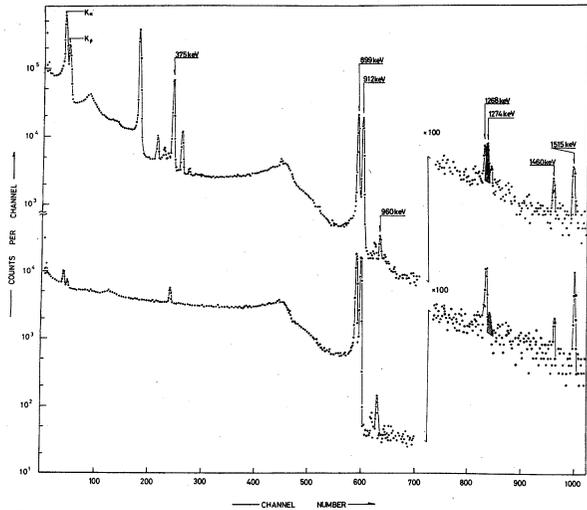
第3図は、半減期66.9minの ^{204}Pb の崩壊に伴うガンマ線のスペクトルである。上下それぞれのスペクトルは、鉛の吸収体を用いないときと、用いた時のスペクトルである。前に述べた様に、375keVの E_2 、899keVの E_2 、912keVの E_5 遷移に相当する3本の強いピークが見られる(図1参照)。1268keVと1515keVとの2本のピークは、不純物によるものと考えられる。960keVのピークは、半減期3.6hourの ^{202}Pb の崩壊によるものであり、 ^{202}Pb は存在比1.48%の ^{204}Pb の(γ , 2n)反応によって生成されたと考えられる。

今、 ^{204}Pb の1274keVの 4^+ 状態が、375keVの E_2 と1274keVの E_4 のガンマ線を1秒間に N_{E_2} と N_{E_4} 個の割合で放出して崩壊すると考えると、375keVと899keV及び1274keVのピークの強さ S は、次の様に与えられる。

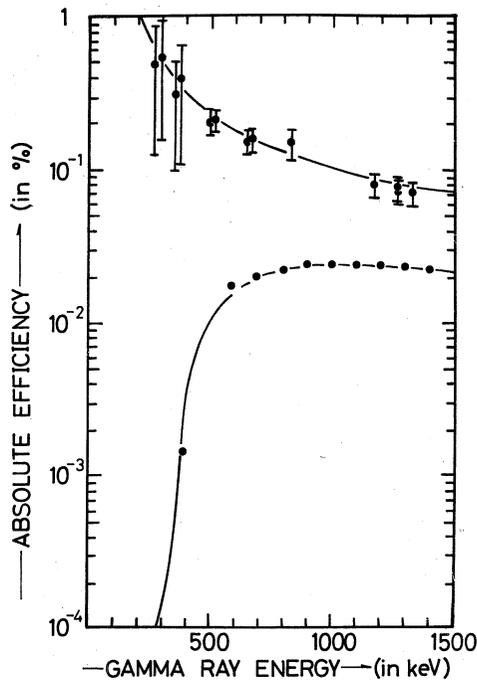
$$S_{375} = N_{E_2} \phi_{375} \quad (1)$$

$$S_{899} = N_{E_2} \phi_{899} \quad (2)$$

$$S_{1274} = N_{E_4} \phi_{1274} + \frac{S_{375} S_{899}}{N_{E_2}} \quad (3)$$



第2図 ^{204m}Pb の66.9minの崩壊に伴うガンマ線のスペクトル。上は22.8mmの厚さの鉛の吸収体を入れない時のもので、下は入れた時のものを示す。



第3図 実験的に求めた色々のエネルギーのガンマ線に対する42ccゲルマニウム検出器の絶対検出効率(ϕ)。下は、22.8mmの厚さの鉛の吸収体を入れた時のもので、上は入れていない時のものを示す。

ここで、出てくる ϕ は検出器の検出効率を表わすものである。(3)式の第2項は375 keVと899 keVとのカスケード遷移によるサムピークに相当する項である。ゲルマニウム検出器の検出効率は、 ^{60}Co 、 ^{22}Na 、 ^{54}Mn 、 ^{137}Cs 、 ^{133}Ba 等の強度標準線源を用いて実験的に決定した値を用いた。 $E2$ の単位時間当りの崩壊数 N_{E2} は、測定されたピークの強さ S_{375} と S_{899} とを用い、(1)式及び(2)式とにより求められる。すると次に(3)式の第2項が用いられ、最後に $E4$ クロスオーバー遷移に対する N_{E4} が、測定された1274 keVのピークの強さ S_{1274} を用いて決められる。この様にして求められた崩壊数の比 N_{E4}/N_{E2} は、

$$\frac{N_{E4}}{N_{E2}} = (1.18 \pm 0.89) \times 10^{-3} \quad (4)$$

である。

核半径のパラメータ r_0 を14 fmとしたMoszkowskiの単一粒子模型の計算によると、375 keVの $E2$ 遷移確率は

$$T_{Sp}(E2) = 1.22 \times 10^9 \text{ sec}^{-1} \quad (5)$$

となる。又、 $E2$ 遷移確率の実験と上の計算値との比は

$$\frac{T_{\text{exp}}(E2)}{T_{Sp}(E2)} = \frac{2.04 \times 10^{-3}}{(2.04 \pm 0.09) \times 10^{-3}} \quad (6)$$

になる。同じ様な比を、1274 keVの $E4$ 遷移の確率に対して求めると

$$\frac{T_{\text{exp}}(E4)}{T_{Sp}(E4)} = 5.6 \pm 4.0 \quad (7)$$

となる。この様に、 ^{204}Pb においては、実験的に求められた 4^+ 状態から 0^+ の基底状態への $E4$ 遷移確率は、上に述べた単一粒子模型より計算されるものに比べて約6倍大きくなっている事がわかった。しかし、単一粒子模型による遷移確率の計算値は、核半径のパラメータのとり方により依存しており、今 r_0 を1.2 fmとすると(7)式の値は19.2となる。

Kisslinger達⁷⁾は、2186 keVの 9^- 状態からの912 keVの $E5$ 遷移確率の解析から 4^+ の第2励起状態は準粒子状態だと考えている。 ^{204}Pb の場合、この準粒子状態間の遷移と考えると、抑制因子の大きさは、たかだか0.5位にしかならず、したがってあまり顕著な比較は期待できないが、定性的には今回の実験の結果は、この考え方を説明しているとは思われない。

今回は不純物のピークが邪魔をしたり、統計が不足していて実験精度が良くないので、今後これらの点を改善することにより精度の高い実験値を求め、 4^+ 状態の定量的議論を行ないたいと

考えている。

謝 辞

この実験を行なうに際し、種々御世話いただいた東北大学理学部原子核理学研究施設の八木益男助教授、近藤健治郎助手及び電子リニアック運転員の方々に心から感謝致します。

参 考 文 献

- 1) S.A.Moszkowski in Alpha-, beta-and gamma-ray spectroscopy, K. Siegbahn ed. (North-Holland Publ. Co., Amsterdam, 1968)
- 2) C.M.Lederer, J.M.Hollander and I.Perlman, Table of Isotopes (John Wiley and Sons, Inc., New York, 1968)
- 3) C.M.Lederer, J.M.Hollander and I.Perlman, Table of Isotopes (John Wiley and Sons, Inc., New York, 1968)
- 4) M.Salomon, L.Bostrom, T.Lindqvist, E.Matthias and Martha Perez, Nuclear Physics **46** (1963)337
- 5) K.Takahashi and K.Kotajima, J. Phys. Soc. Japan **17** (1962)1815
- 6) S.Suekane and Y.Yamaguchi, Progr. Theor. Phys. **17** (1957)449
T.Tamura and T.Udagawa, TUEP-62-01
- 7) L.S.Kisslinger and R.A.Sorensen, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk **32** No. 7 (1960)

I-6 $^{140}_{59}\text{Pr}_{81}$ の崩壊による $^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ の準位

理学部物理

林部昭吾・遠藤順政・宮田孝元

志賀寿夫・山家 優・石松敏之

$^{140}_{60}\text{Nd}_{80}$ (3.3 days) \rightarrow $^{140}_{59}\text{Pr}_{81}$ (34 min) \rightarrow $^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ の chain decay より $^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ の準位構造を調べた。 $^{140}_{60}\text{Nd}_{80}$ の activity は enrichment 97.55% の $^{142}_{60}\text{Nd}_{82}$ の Nd_2O_3 を $E_{\gamma\text{max}} = 55\text{MeV}$ の γ 線で照射し, ($\gamma, 2n$) 反応によって生成した。測定は γ 線について行い, Ge(Li) による γ 線の singles spectrum, Ge(Li) - NaI(Tl) による γ - γ coincidence spectrum を測定した。 $^{140}_{59}\text{Pr}_{81}$ の崩壊による $^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ の準位として, 1.596 MeV, 2^+ ; 1.896 MeV, 0^+ ; 2.350 MeV, 2^+ ; 2.521 MeV, ($1^+, 2^+$); 3.016 MeV, (0^+); 3.110 MeV ($1^+, 2^+$) が得られた。

§1 緒 言

$^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ は中性子数 $N = 82$ の magic number の核であって, 核構造上興味のある核である。その励起状態については, これまで, $^{140}_{57}\text{La}_{83}$ の β^- 崩壊, $^{140}_{59}\text{Pr}_{81}$ の β^+ 崩壊, 荷電粒子の非弾性散乱及び光核反応により調べられて来た。¹⁾

Dzheleпов 他²⁾ は ^{140}La の崩壊より, 1.9 MeV に 0^+ 準位を発見し, その後, この 1.902 MeV 準位に関しては, Hisatake 他³⁾ による ^{140}Pr の崩壊よりの詳細な実験のほか, Christensen 他⁴⁾ による ($p, p'e$) 及び ($d, d'e$) の測定がなされた。Hansen 他⁵⁾ は ($\alpha, \alpha'\gamma$) の測定より 2.47 MeV に octupole 3^- の準位があるとする tentative な assign をなした。Krehbiel⁶⁾ は ($\gamma, 2n\gamma'$), (γ, γ') 及び ($\gamma, p\gamma'$) の実験で $\approx 2.1\text{MeV}$ に $6.5\ \mu\text{sec}$ の準位を報告した。最近 Baer 他⁷⁾ は, ^{140}La 3^- の崩壊に伴う γ 線を Ge(Li) 検出器で測定し, 数多くの新しい γ 線を報告している。しかしながら, ^{140}Pr の崩壊に関しては, 1.596 MeV, 2^+ 及び 1.903 MeV, 0^+ 準位以外の励起準位については, 良く知られてはいなかった。このため ^{140}Pr の崩壊による ^{140}Ce の準位構造を, より明らかにするべく, この実験を行った。

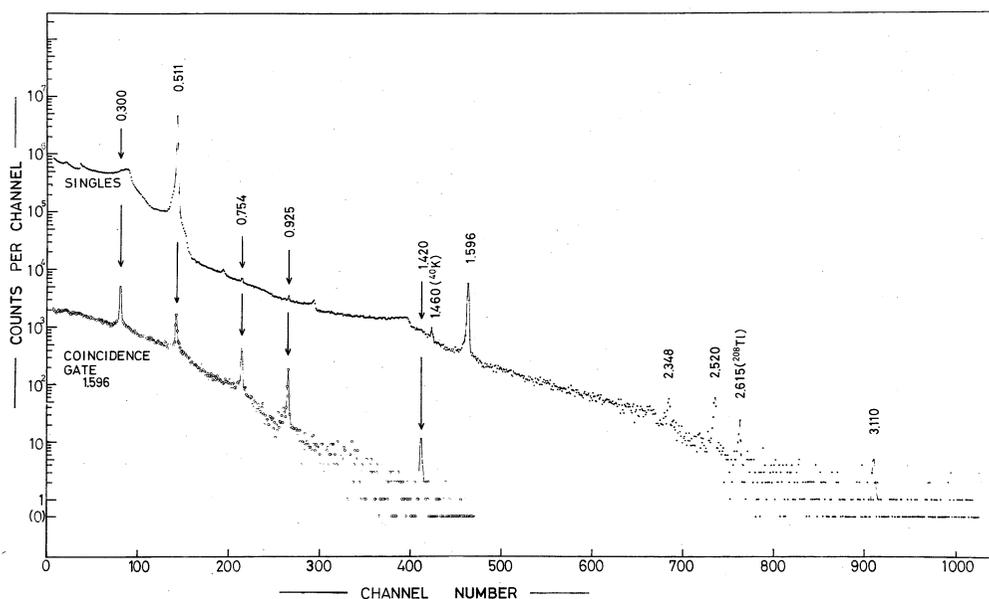
我々は $^{140}_{59}\text{Pr}_{81}$ の崩壊による $^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ の準位を調べるため $^{142}\text{Nd}(\gamma, 2n)^{140}\text{Nd}$ 反応で ^{140}Nd を作り, その $^{140}\text{Nd} \rightarrow ^{140}\text{Pr} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$ の崩壊を用いた。測定は Ge(Li) 及び Ge(Li) - NaI(Tl) により, γ 線の singles spectrum 及び γ - γ coincidence

spectrumの測定を行った。

§2 実験および結果

$^{140}_{59}\text{Pr}_{81}$ の崩壊による $^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ の準位を調べるに当って、 ^{140}Pr が3.4minの短半減期核であることから、 $^{140}_{60}\text{Nd}_{80}$ (3.3days) \rightarrow $^{140}_{59}\text{Pr}_{81}$ (3.4min) \rightarrow $^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ のchain decayを用いた。 ^{140}Nd の線源は次のようにして作った。 ^{142}Nd のenrichmentが97.55%の Nd_2O_3 の粉末50mgを、electron linacからの $E_{r\text{max}} = 55\text{MeV}$ のbremsstrahlungで2~4 hours照射し、 $^{142}\text{Nd}(\gamma, 2n)^{140}\text{Nd}$ 反応で作った。生成された ^{140}Nd のactivityをアクリル樹脂の容器中に入れ密封し、 γ 線源とした。 β^+ を完全に消滅させるため、 γ 線源を厚さ1.5cmのアクリル樹脂で覆った。

ORTEC製24cc Ge(Li)検出器、118A-410増幅器系、及びTMC 1024 channel PHAを用いて測定した ^{140}Nd の崩壊に伴う γ 線のスペクトルを第1図に示す。Singles



第1図 $^{140}\text{Nd} \rightarrow ^{140}\text{Pr} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$ 崩壊に伴う γ 線のスペクトル。Singles spectrumを上部に、1.596 MeV γ 線gateのcoincidence spectrumを下部に示す。Gate側に使用した検出器は3" ϕ \times 3" NaI(Tl)である。

spectrumを上部に、1.596 MeV γ 線gateのcoincidence spectrumを下部に示してある。gate側に使用した検出器は3" ϕ \times 3" NaI(Tl)である。測定は照射後2日~4日の2日間に行った。Coincidence回路系の分解時間は $2\tau = 100\text{ nsec}$ で使用した。

Accidental coincidenceの補正は行っていない。線源及び2つの検出器のgeometry

は次のようである。線源に対して2つの検出器は互に 90° 方向に位置し、線源との距離はGe(Li)が3 cm, NaI(Tl)が10 cmである。

Singles spectrumから、0.511 MeV消滅 γ 線及び1.596 MeV γ 線その他、2.348 MeV, 2.520 MeV及び3.110 MeVの γ 線が、それらの半減期より $^{140}\text{Nd} \rightarrow ^{140}\text{Pr} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$ の崩壊に属する γ 線であることが明らかとなった。一方coincidence spectrumより0.300 MeV γ 線及び0.511 MeV消滅 γ 線その他、0.754 MeV, 0.925 MeV及び1.420 MeVの γ 線が1.596 MeV γ 線と良くcoincidenceし、1.596 MeV遷移とcascade関係にあることが分る。coincidence spectrumに於ける γ 線強度比を参照して求めた γ 線強度比は、第1表のようである。

Mattauch他⁸⁾による $^{140}_{60}\text{Nd}_{80} \rightarrow ^{140}_{59}\text{Pr}_{81}$ の $Q_{EC} \approx 0.3$ MeVの計算値を採用すれば、 β^+ の消滅 γ 線同様、 $E_\gamma > 0.3$ MeVの γ 線は $^{140}_{59}\text{Pr}_{81} \rightarrow ^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ の崩壊に伴う γ 線となる。又、0.300 MeVの γ 線も1.596 MeV γ 線とcoincidenceすることより、第1表の γ 線は総て $^{140}_{59}\text{Pr}_{81} \rightarrow ^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ の崩壊に伴う $^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ の準位間の遷移に属するものとなる。 β^+ の数としては、測定された消滅 γ 線の数の $1/2$ とする。

測定された γ 線のエネルギー、相対強度、coincidenceの関係をもとに、Hisatake他³⁾による1.896 MeV E_0 遷移の強度比、及び $^{140}\text{Pr} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$ の $Q_{EC} = 3.34$ MeVを用い、 β^+ に対するK殻電子捕獲及びL殻電子捕獲の比を理論^{1,9)}より求め、各準位への β 崩壊の分岐比を求めた。 ^{140}Pr の半減期としては $3.39 \text{ min}^{1)}$ を用いlog ft値を求めた。崩壊形式、分岐比、log ft値等を第2図に示す。 γ 線及び E_0 遷移の強度は、1.596 MeV γ 線を100とした相対強度で表わし、遷移エネルギーの後の括弧内に示してある。

第1表 $^{140}_{60}\text{Nd}_{80} \rightarrow ^{140}_{59}\text{Pr}_{81} \rightarrow ^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ の崩壊に伴う γ 線のエネルギー及び相対強度

Energy (MeV)	Relative intensity
0.300	25.6
0.511	26200.
0.754	5.5
0.925	3.3
1.420	0.6
1.596	100.
2.348	0.9
2.520	1.4
3.110	0.1

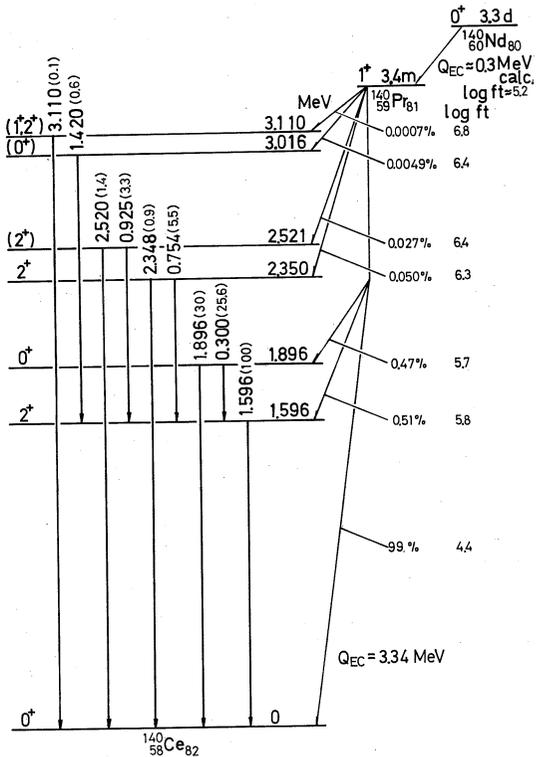
§3 考 察

$^{140}_{59}\text{Pr}_{81}$ から $^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ の基底状態への $\log ft$ 値は 44 の値が得られ、第 1 励起準位、第 2 励起準位への $\log ft$ 値は、それぞれ 5.8, 5.7 の値が得られた。第 1 及び第 2 励起準位への $\log ft$ 値は、Hisatake 他³⁾ による値よりそれぞれ 0.2 小さい。これら 0^+ , 2^+ , 0^+ 準位への $\log ft$ 値は allowed transition を示し、 $^{140}_{59}\text{Pr}_{81}$ の基底状態 1^+ を確定させるものである。何故ならば、 0^+ 又は 2^+ であるとすると、交互に 2nd forbidden の β transition になってしまうからであり、一パリティでは、上記の遷移がいずれも 1st forbidden 以上の forbidden transition にならなければならない、これは $\log ft$ 値と合わなくなる。

$^{142}_{61}\text{Pm}_{81}$ ¹⁰⁾ の基底状態同様 $\{ (d\ 5/2)_p (d\ 3/2)_n^{-1} \} 1^+$ と考えられる。基底状態間の β transition は $(d\ 5/2)_p \rightarrow (d\ 3/2)_n$ の遷移であって、 $\log ft = 4.4$ は $^{142}_{60}\text{Pm}_{81} \rightarrow ^{142}_{60}\text{Nd}_{82}$ の場合の同様遷移 $\log ft = 4.3$ ¹⁰⁾ と良く一致する。しかしながら、第 1 励起準位、第 2 励起準位への $\log ft$ 値は $^{142}\text{Pm} \rightarrow ^{142}\text{Nd}$ の場合がそれぞれ、4.7, 4.9 であるのに対して、 $^{140}\text{Pr} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$ の場合は、5.8, 5.7 であって、その値はほぼ 1 大きく、一致は良くない。

2.350 MeV 準位は、2.348 MeV γ 遷移が存在し、1.596 MeV γ 線 gate の coincidence spectrum で、0.754 MeV γ 線が強く coincidence していることから、その存在が確かめられる。この準位からは、基底状態 0^+ 及び 1.596 MeV 1st 2^+ 準位への γ 遷移が観測されることと、 ^{140}Pr 1^+ からこの準位への β 崩壊の $\log ft = 6.3$ の値から、この準位は 2nd 2^+ 準位 (2^+) と考えられる。この準位から ground 0^+ 及び 1st 2^+ へ遷移する γ 線の強度比は、 $I(2^+ \rightarrow 2^+) / I(2^+ \rightarrow 0^+) = 6.1$ である。この準位は Baer 他⁷⁾ による

$^{140}_{57}\text{La}_{83}$ 3^- からの崩壊に於いて検出された 2.3484 MeV 2^+ 準位と同一と考えられる。たゞし



第2図 $^{140}_{60}\text{Nd}_{80} \rightarrow ^{140}_{59}\text{Pr}_{81} \rightarrow ^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ の崩壊形式

γ 線の分岐比は我々の6.1の値に対してBaer他⁷⁾は4.7である。

2.521 MeV準位。2.350 MeV準位と同様に、2.521 MeV γ 遷移が存在することと、1.596 MeV γ 線 gate の coincidence spectrum で 0.925 MeV γ 線が強く coincidence していることからこの準位の存在が確められる。この準位からは基底状態 0^+ 及び 1.596 MeV $1st\ 2^+$ 準位への γ 遷移が観測された。 $^{140}\text{Pr}\ 1^+$ からの β 崩壊の $\log ft$ 値が 6.4 であることから (1^+) 又は (2^+) と考えられるが γ 遷移の様子より (2^+) の方がより確からしく考えられる。3rd 2^+ 準位 ($2^{+''}$) とすると、 $I(2^{+''} \rightarrow 2^+) / I(2^{+''} \rightarrow 0^+) = 2.4$ である。

3.016 MeV準位。1.596 MeV γ 線 gate の coincidence spectrum で 1.420 MeV γ 線が coincidence していることから、3.016 MeV準位が考えられる。 $^{140}\text{Pr}\ 1^+$ からの β 崩壊の $\log ft = 6.4$ であることから $(0^+, 1^+, 2^+)$ と考えられるが、基底状態 0^+ への 3.016 MeV γ 遷移が観測されないことから (0^+) と考えられる。 $^{140}_{57}\text{La}_{83}\ 3^-$ からの崩壊ではこの準位は検出されていない。本実験で初めて検出された準位である。この準位は $^{144}\text{Nd}(p, t)\ ^{142}\text{Nd}$ 反応に於いて、 $L=0$ の角度分布を持って非常に強く現われ、 $^{10\ 11)}\ ^{142}_{61}\text{Pm}_{81}$ の β 崩壊に於いても我々によって検出された¹²⁾ $^{142}_{60}\text{Nd}_{82}$ の 2.896 MeV 0^+ の vibrational state に対応する $^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ の 0^+ 準位ではないかと考えられる。 $^{142}_{61}\text{Pm}_{81}\ 1^+$ から $^{142}_{60}\text{Nd}_{82}$ のこの vibrational state への $\log ft = 6.0$ と比較する時、 $^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ の場合の $\log ft = 6.4$ は幾分大きな値ではあるが、高い励起準位であって β 崩壊の分岐の少ないため統計が悪くなることを考えれば、両者の値は割合似た値と言っても良いのではないかと考えられる。両者ともに基底状態 0^+ への β 崩壊の $\log ft$ より、ほぼ 2 大きな $\log ft$ 値を示している。 $^{142}_{60}\text{Nd}_{82}$ のこの準位から、基底状態及び 2.218 MeV 0^+ 準位への $E0$ 内部変換電子は実験誤差の範囲内で検出されなかったので、 $^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ のこの準位についても $E0$ 遷移を無視してデータの解析をした。

3.110 MeV準位。本実験の γ 線の singles spectrum に 3.110 MeV γ 線が検出され、その半減期が $^{140}\text{Nd} \rightarrow ^{140}\text{Pr} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$ の半減期と一致することと、この chain decay のそれぞれの Q_{EC} の値を考慮することより ^{140}Ce に 3.110 MeV準位が存在するものとした。 ^{140}Pr よりの β 崩壊の $\log ft$ は 6.8の値が得られた。この準位から崩壊する γ 線としては、基底状態 0^+ への γ 線のみが検出された。これらの事より、この準位は (1^+) 又は (2^+) と考えられる。 $^{142}_{60}\text{Nd}_{82}$ の 2.841 MeV準位¹²⁾に対応する準位であるのかも知れない。 $^{140}\text{La}\ 3^-$ の崩壊に見られた 3.1183 MeV準位⁷⁾と同一準位と考えられる。

$^{140}_{57}\text{La}_{83}\ 3^-$ の β^- 崩壊⁷⁾で検出されている $J \geq 3$ の準位及び $\Pi = -$ の準位は本実験に於いては検出されない。この事は $^{140}_{59}\text{Pr}_{81}$ が 1^+ であることと矛盾がない。Baer他⁷⁾により ^{140}La の崩壊で検出され $J^\Pi = (1^+, 2^+)$ と報告された 2.5475 MeV 及び 2.8997 MeVの準位は統

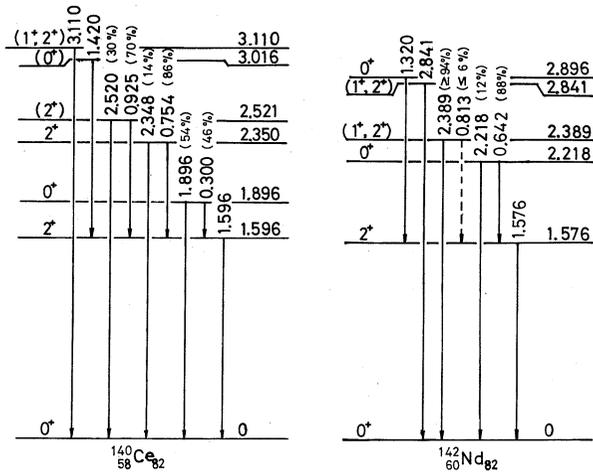
計誤差の範囲内で、検出されなかった。

$^{140}_{60}\text{Nd}_{80} \rightarrow ^{140}_{59}\text{Pr}_{81}$ の Q_{EC} として計算値である $Q_{EC} \approx 0.3 \text{ MeV}^8$) をとり、 $E_T > 0.3 \text{ MeV}$ の γ 線は $^{140}_{59}\text{Pr}_{81} \rightarrow ^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ の崩壊に属するものとして解析を行ったのであるが、その値の検査を兼ねて、 $Q_{EC} \approx 0.3 \text{ MeV}$ を用いて $^{140}_{60}\text{Nd}_{80} 0^+ \rightarrow ^{140}_{59}\text{Pr}_{81} 1^+$ の $\log ft$ を求めると $\log ft \approx 5.2$ となる。この値は $^{142}_{62}\text{Sm}_{80} 0^+ \rightarrow ^{142}_{61}\text{Pm}_{81} 1^+$ の $\log ft = 5.3$ と良く一致する。 $^{140}_{60}\text{Nd}_{80} \rightarrow ^{140}_{59}\text{Pr}_{81}$ の $Q_{EC} \approx 0.3 \text{ MeV}$ は確からしい値と考えられる。

第3図に、ともに $J^\pi = 1^+$ を持つ親の核 ^{142}Pm , ^{140}Pr からの崩壊で現われる $^{142}_{60}\text{Nd}_{82}$, $^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ の準位を並べて示す。遷移エネルギーに続く括弧内の数値は、その単位からの遷移の分岐比を%で示したものである。両者の準位を比較した場合、 ^{142}Nd の 2.389 MeV 単位はエネルギー的には 2^+ 単位の可能性を持っている

が、その遷移の分岐比では ^{140}Ce の 2.350 MeV 2nd 2^+ 単位、2.521 MeV (3rd 2^+)

単位とは異なっている。基底状態とこれらの準位との間の $B(E2)$ 及びこれらの準位から 1st 2^+ 単位への多重極混合比を測定することによって、これらの準位の性格は、より明らかになることと考えられるが、 ^{140}Ce に於いては、 ^{142}Nd に較べ、1st 2^+ 単位を経由する cascade 遷移が、cross-over 遷移で直接基底状態へ遷移するのに較べ、相対的には強くなっている。 ^{140}Ce に於ける 2nd 2^+ 又は、3rd 2^+ の準位より、1st 2^+ 単位への遷移を $M1$ と仮定し、ground 0^+ への遷移を $E2$ として、single particle 遷移として求められる分岐比と、実験値とを較べると、同程度の値となる。



第3図 ともに $J^\pi = 1^+$ の ^{142}Pm , ^{140}Pr からの崩壊で現われる $^{142}_{60}\text{Nd}_{82}$, $^{140}_{58}\text{Ce}_{82}$ の準位と、それらの準位からの遷移の分岐比。

文 献

1) C.M. Leder, J.M. Hollander and I. Perlman: Table of Isotopes (John Wiley and Sons, Inc., New York, 1968).

- 2) B. S. Dzheleпов, Yu. V. Kholnov and V. P. Prikhodtseva :
Nuclear Phys. **9**(1958)665.
- 3) K. Hisatake, Y. Yoshida, K. Etoh and T. Murata : Nuclear Phys.
56(1964)625.
- 4) P. R. Christensen and Fu-Ckia Yang : Nuclear Phys. **72**(1965)
657.
- 5) O. Hansen and O. Nathan : Nuclear Phys. **42**(1963)197.
- 6) H. Krehbiel : Phys. Letters **13**(1964)65.
- 7) H. W. Baer, J. J. Reidy and M. L. Wiedenbeck : Nuclear Phys.
A113(1968)33.
- 8) J. H. E. Mattauв, W. Thiele and A. H. Wapstra : Nuclear Phys.
67(1965)1.
- 9) E. J. Konopinski and M. E. Rose : in Alpha-, Beta- and Gamma-ray
Spectroscopy ed. K. Siegbahn (North-Holland Publishing
Co., Amsterdam, 1965) Chap. XXIII.
- 10) K. Yagi, Y. Aoki, J. Kawa and K. Sato : Phys. Letters **29B**
(1969)647.
- 11) J. B. Ball, R. L. Auble, J. Rapaport and C. B. Fulmer : Phys.
Letters **30B**(1969)533.
- 12) 林部昭吾, 遠藤順政, 宮田孝元, 田沢寿, 志賀寿夫, 石松敏之 : 核理研究報告 Vol. 3
No. 1(1970)60.

II 物性物理部門

II-1 低温モデレーターの最適化

核理研・工学部*・教養部**・金研***

渡辺 昇・木村一治・小山田正典

窪田健雄・高橋文信*・山田幸男**

富吉昇一***

概 要

液体窒素温度のポリエチレンのパルス中生子特性が測定された。カドミウム板により仕切られた非均質ポイズン型モデレーターは常温の場合すぐれた特性を示したが、低温の場合、特に低エネルギー領域でさらにすぐれた特性が得られた。

§1 緒 言

常温のモデレーターの基本的なパルス特性と最適パラメーターについてすでに報告した。¹⁾その結果、モデレーター最適化への努力は十分報いられることがわかったので、さらに低温モデレーターについて検討をはじめている。低温モデレーターの研究は開始したばかりで十分なデータは得ていないが、二、三の結論を得たので中間報告する次第である。

§2 実験方法

実験装置は前回述べられた通りである。モデレーターは前回同様 10cm × 10cm の横方向のひろがりを持ち、厚さは可変パラメーターである。モデレーターは簡易型クライオスタットに納められ液体窒素で冷却される。モデレーターは中性子ビームとり出し面以外 0.5mm 厚カドミウム板で包まれ、液体窒素に直接接している。液体窒素からの熱外中性子の散乱の影響を避けるため、カドミウム被覆の外側に 3~4mm の液体窒素層を残して厚さ 10mm の B₄C で遮蔽してある。この遮蔽を介してモデレーター上部に約 2 リットルの液体窒素が溜められている。電子ビーム照射により液体窒素が活性化し爆発事故等をまねくことを極度に警戒し、電子ビームは二次電子以外液体窒素に当たらないようターゲットとクライオスタットの配置が考慮された。ターゲットとモデレーターの間は万一に備え、厚さ 10mm の鉄板のついたてで隔離しリニアック窓を保護している。そのためモデレーターに供給される一次中性子の強度は最適条件からは遠いが、パルス特性の比較測定の上では計数率が低下すること以外問題はない。液体窒素の消耗は定常状態で

は 1.5 l/hr 程度であった。

§3 実験結果

図1～4に代表的なパラメーターの場合について、種々のエネルギーにおけるパルス波形を示す。図1～2から明らかなように45 meV以上では液体窒素温度への冷却によりパルス巾に大きな改善が見られる。20 meVは液体窒素温度ではまだ熱中性子領域であるため、冷却によるパルス巾の改善は小さいが、パルス波高には当然のことながら常温の場合に比べ約2倍の増加が得られている(図3)。

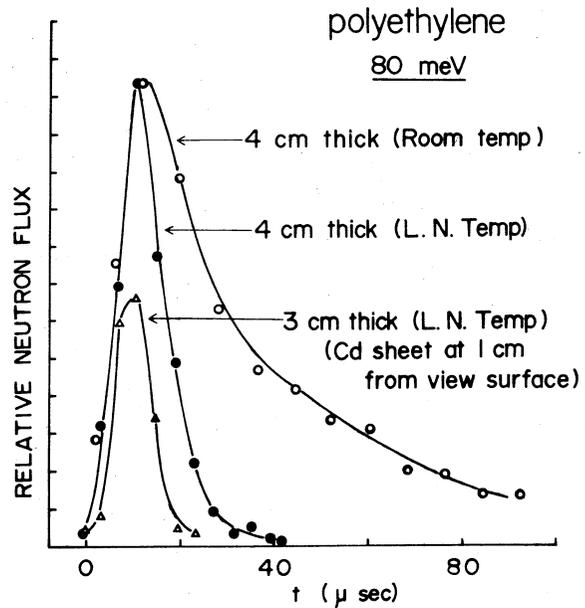


図1

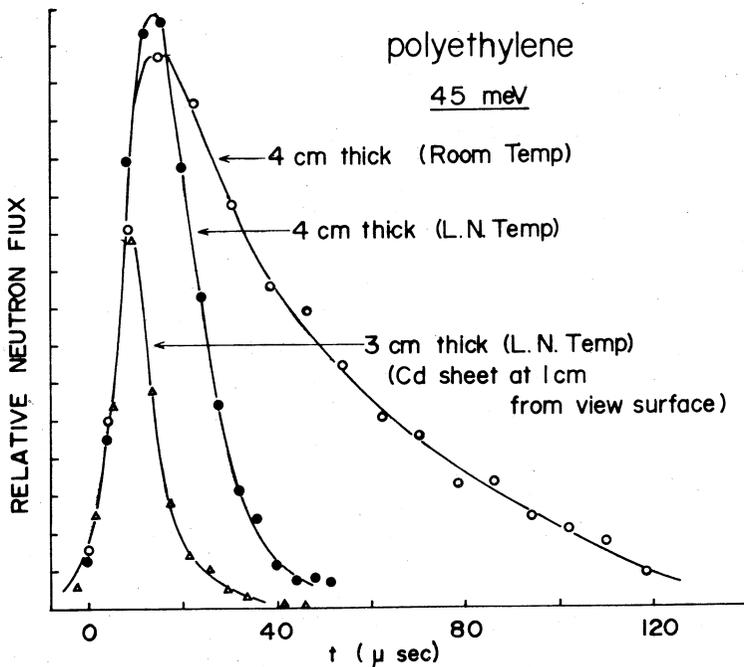


図2

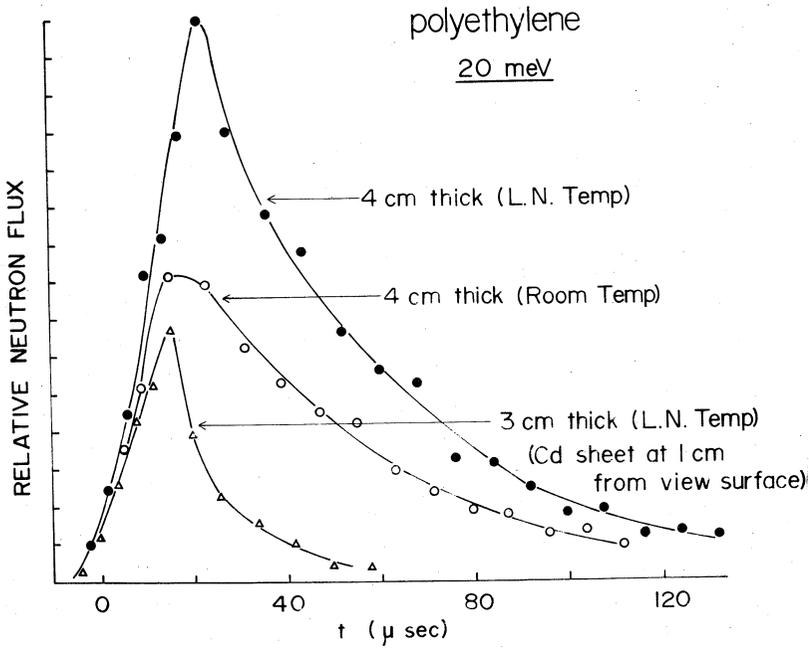


図 3

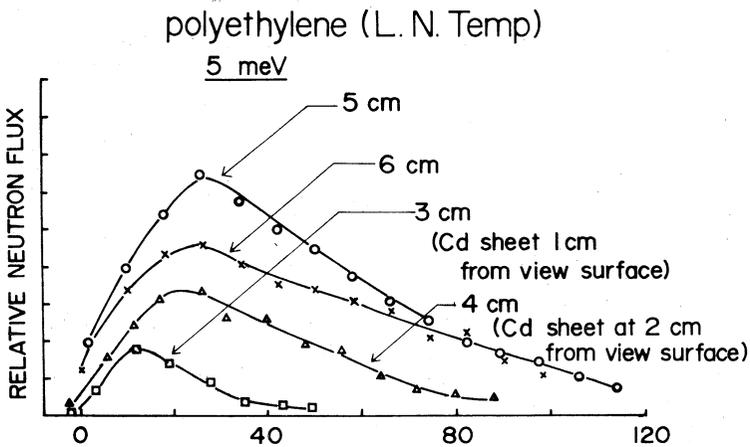


図 4

次に低温モデレーターにおける非均質ポイズンの効果であるが図 1 から明らかなように 80 meV 以上ではパルス巾の改善が小さく、パルス波高の減少を考慮すると特に魅力はない。しかしながら低エネルギー領域では図 2 から明らかな如く減速中性子領域でもパルス巾の改善には眼を見張るものがある。図 3 は熱中性子領域であるため単なる低温モデレーターとさらに非均質ポイズンしたものととの関係は、常温モデレーターの時の関係と同様になる。しかし冷却と非均質ポ

イゾンの併用は、非均質ポイズンでパルス巾を改善し、冷却によりパルス波高の減少分をとりもどすと言う考え方で、図3の常温モデレーターと非均質ポイズン冷却モデレーターの関係は、このやり方のメリットを立証したものである。

モデレーターが液体ヘリウム温度まで冷却できるようになれば例えば図3は当然減速中性子領域となるが、70°Kで図2にみられたような非均質ポイズンの優位性は必ず保存されるはずである。

ついでに今回は冷中性子として5meVのパルス波形を図4に示しておく。計数の統計精度はあまりよくない。特に常温の場合、パルス波高が小さく誤差が大きいののでここには示さないが、パルス波高はカドミ板入り3cm厚の場合よりさらに小さかった。パルス波高の最大は5cm厚で得られる。

常温モデレーターと比べた低温モデレーターのFigure of Meritは一連の実験が終了後まとめて報告する。

§4 検 討

非均質ポイズン低温モデレーターは最適モデレーター開発への一方向であることが本実験により明らかとなった。今後非均質ポイズン固体アンモニアがテストされる予定である。液体ヘリウム温度での固体メタン等の特性測定が望まれる。なお低温モデレーター実用化のためには多くの工学的問題もあるが冷却条件からもプレムスターゲットと中性子ターゲットの分離が望ましい。

文 献

- 1) 核理研研究報告 Vol. 3, No.1, 85 (1970).

II-2 TiH_2 および YH_2 の中性子非弾性散乱

核理研・工学部原子核*・教養部**・金研***
木村 一治・高橋文信*・渡辺 昇
小山田正幸・山田幸男***・富吉昇一***
窪田 健雄

前回報告したとおり⁵⁾ チョッパーモノクロメータについて、ある程度の改良がなされたので、方法論の検討を兼ねて、 TiH_2 、 YH_2 の中性子非弾性散乱の測定を行なった。

電子リニアックを用いた中性子非弾性散乱は、一般に高いenergy levelの測定に適しているが、本実験では、充分な実験設備でなかった関係上、比較的測定の容易な CaF_2 型metallic hydride、 TiH_2 および YH_2 のoptical levelについて測定を行なった。 TiH_2 については、角度分布の測定はまだなされておらず、 YH_2 についての報告は、非常に少ない。合わせて BeO 逆フィルタ法による測定結果も報告する。

§1 緒 言

CaF_2 型metallic hydrideにおける水素原子の振動の研究は、 ZrH_2 について多くなされており、理論的にはcentral force modelを用いてSlaggie等が、実験的にはPurohit等¹⁾が、報告している。 TiH_2 についても、Purohit等¹⁾が報告しているが、角度分布の測定は行われていない。metallic hydrideのphonon spectrumはoptical modeとacoustic modeによく分離している。また、一般的にmetal atomの質量が大きくなると、optical levelが低くなり、そのlevel widthが狭くなることから、 ZrH_2 、 TiH_2 などのデータから予想されるので、Zrとほぼ同質量のYを用い、 YH_2 と TiH_2 の差異が見られるか否かについても検討してみた。

§2 試 料

実験に用いた TiH_2 、 YH_2 はmesh 100の粉末状で、水素原子の組成比については表1に示す通りX線回折法による格子定数、およびガス分析法による重量比から TiH_2 、 YH_2 であることを確認した。但し、ガス分析法では YH_2 は高温でも水素を保持しているため、若干低い組成比を与えている。

表 1

X Ray Diffraction		Hydrogen Concentration
TiH _x	a=4448Å [111]~[511], [333]	X = 2.0
YH _x	a=5208Å [111]~[622]	X = 2.0
Gas Analysis		
TiH _x	41.1 wt%	X = 2.04
YH _x	1.89 wt%	X = 1.70

TiH₂, YH₂は0.1mm厚のAl製ホルダーに1mm厚に充填され、微分断面積の比較測定に用いたVは1cm厚に充填された。サンプルホルダーは入射ビームに対して約45°に置かれそれぞれの試料のtransmissionは表2に示す。TiH₂のtransmissionは計算値と実測値

表2 Transmission ($E_0 = 185 \text{ meV}$)

Sample	Thickness	Calculation with BNL	Experimental
TiH ₂	0.287 g/cm ²	77%	70.1 ± 2.5%
YH ₂	0.488 g/cm ²	77%	78.6 ± 1.7%
V	3.342 g/cm ²	67%	68.2 ± 2.5%

が違っているが、サンプルホルダーの不完全さと確認されたので最終的な実効厚みは0.3922 g/cm²を採用した。

§3 測 定

3.1 チョッパーモノクロメータ法

チョッパーモノクロメータの装置の概略は、すでに報告した通りである。⁵⁾ チョッパーパースト幅は $50 \mu\text{sec} \pm 2 \mu\text{sec}$ に制御されている。散乱角は 33° , 54° , 80° および 101° の4つが用いられ、down scattered neutronのスペクトルは2.4mのscattered flight pathにより測定される。またincident neutron flight path上、sample後方に6.2m間隔におかれた2個のBF₂ counterはneutronのtransmission測定を兼ねてincident neutronのenergy checkに使用された。測定はTiH₂, YH₂, Vおよびempty holderについて行われ、Vとの比較により、TiH₂, YH₂の微分断面積が求められた。測定時間は各runそれぞれ約8時間である。

3.2 BeO逆フィルタ法

BeO逆フィルタ法の装置構造, 配置図についてはすでに報告した。⁶⁾ incident flight path 8.92m scattered flight pathは0.38m, 散乱角は90°である。測定はTiH₂, YH₂について, それぞれ10時間, 20時間行ない, このデータは微分断面積は求めず optical levelの測定にとどめた。

§4 測定結果

チョッパー法によるTiH₂, YH₂の $d^2\sigma/d\Omega dE$ の値をそれぞれ図1および図2に示す。このデータはmultiple-scatteringの補正は行わず, beam attenuationのみの補正にとどめた。図3は $d\sigma_{inel}/d\Omega dE$ の実験値と計算値の比較を示したものである。実線で示したのが計算値であり, これは, 測定で得られた optical levelと level widthより $\rho(\beta)$ を求め, Gaussian approximationにより計算された。 $d\sigma_{inel}/d\Omega$ は図4および図5に示す。図中実線はharmonic oscillator近似による計算値を示したものである。図6は弾性散乱断面積のmomentum transferに対する依存性を示したものである。図中, 実線および点線は, optical levelをharmonic oscillatorと近似した時の計算値である。TiH₂の場合は $\hbar\omega_0 = 0.148\text{eV}$ の計算値と非常によい一致を示しているが, YH₂の場合の一致はあまりよくない。

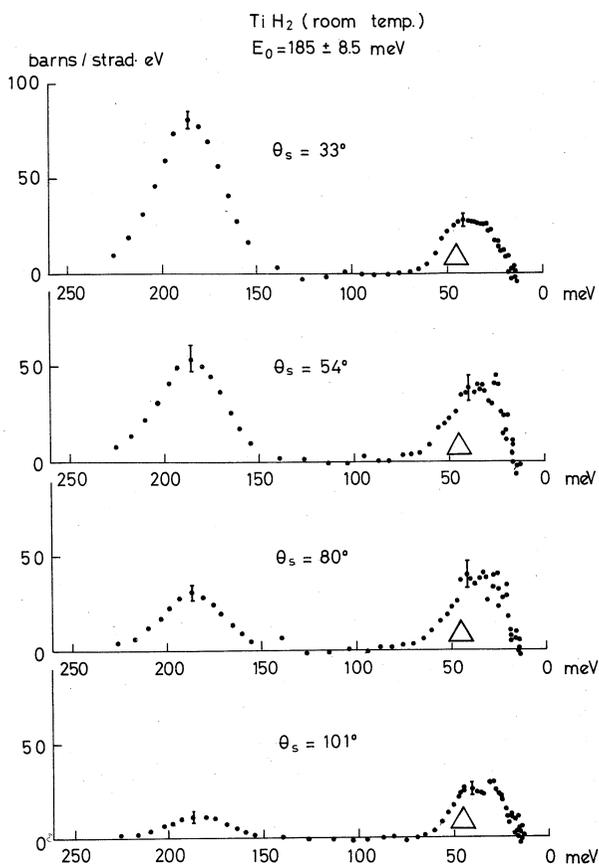
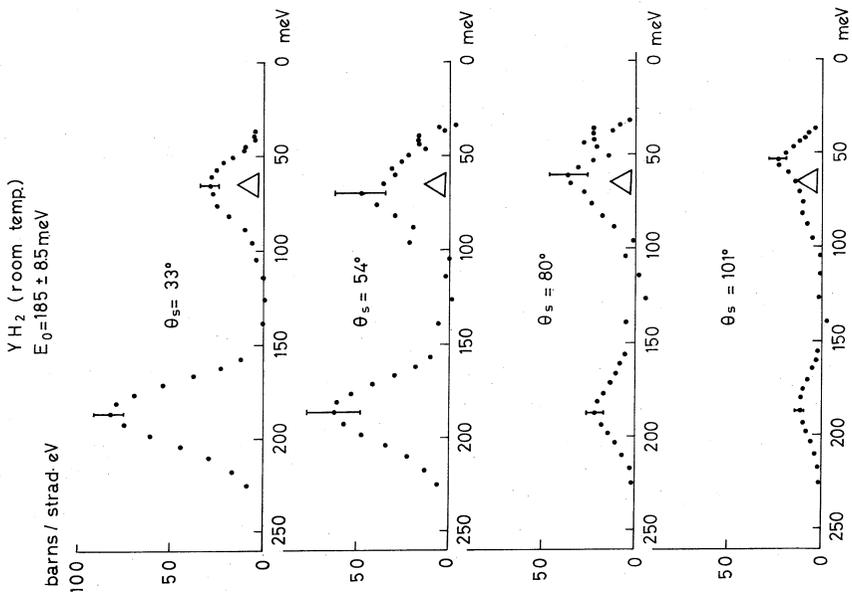
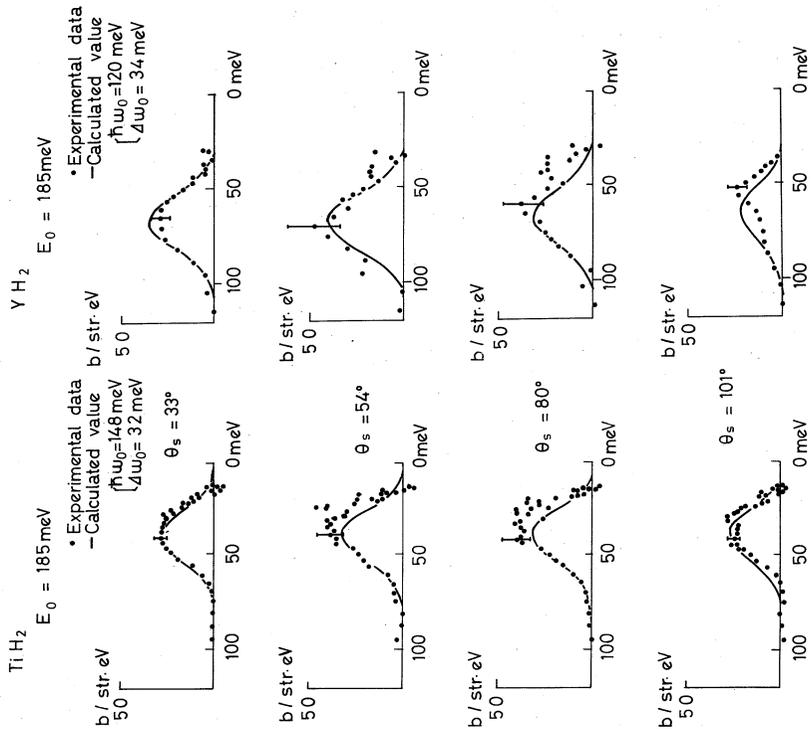


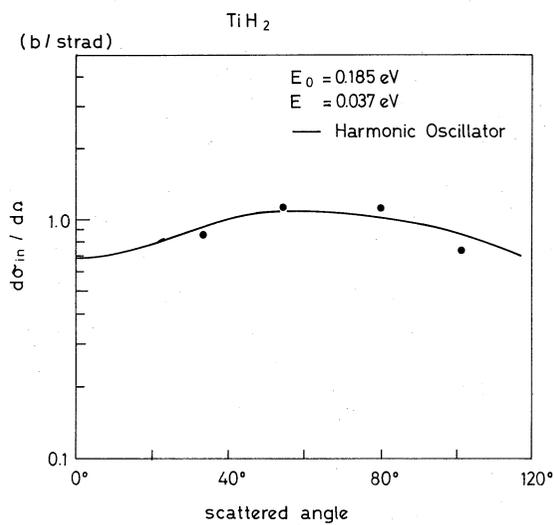
図1



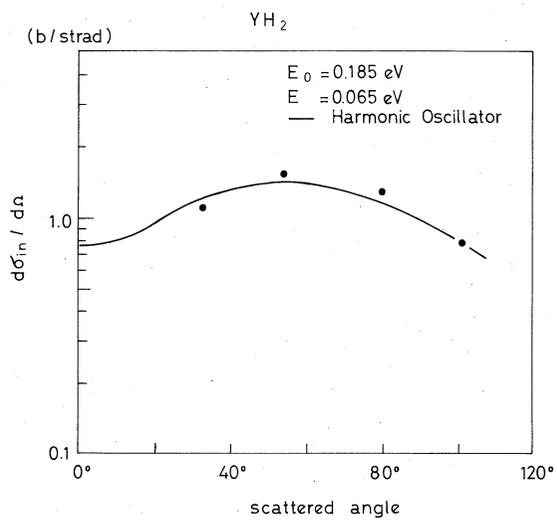
☒ 2



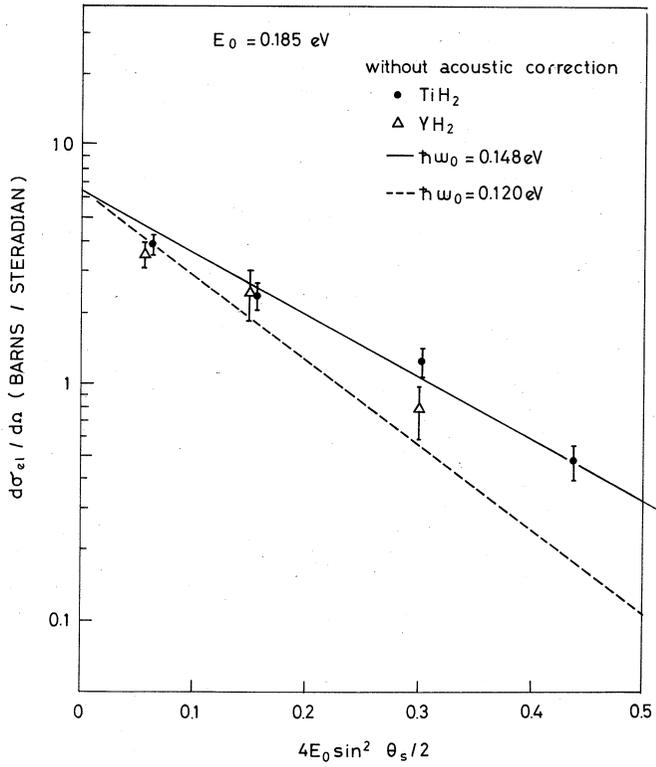
☒ 3



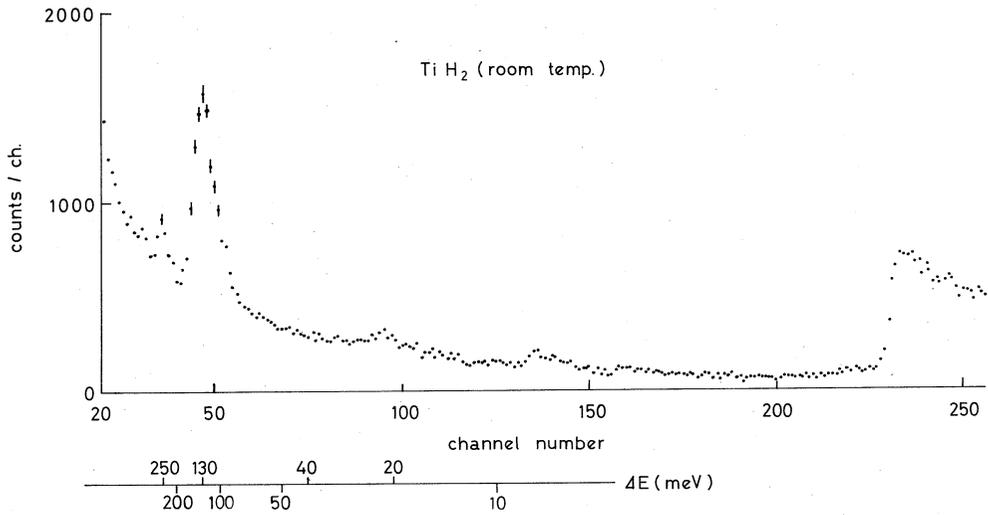
⊠ 4



⊠ 5



⊗ 6



⊗ 7

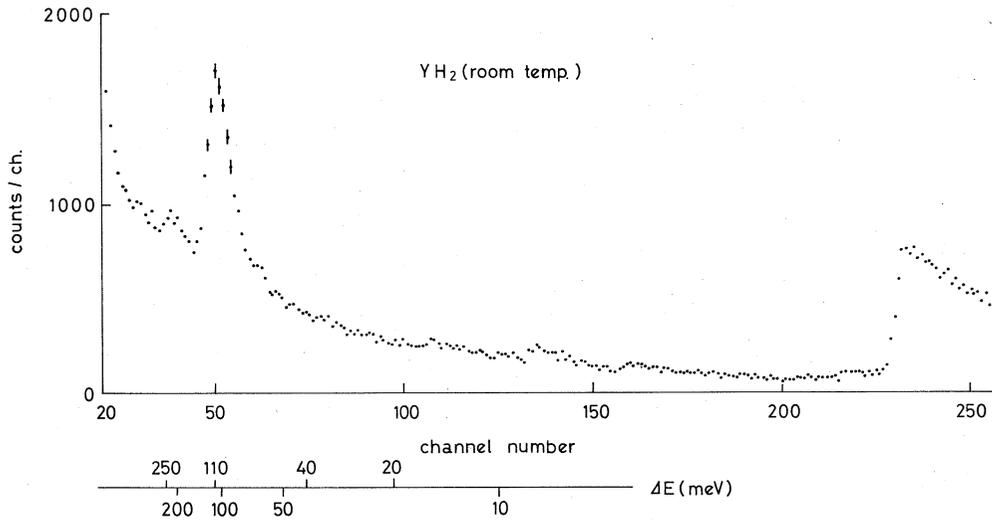


図 8

逆フィルタ法によるTiH₂, YH₂のスペクトルを図7, 図8に示す。ここでは, optical levelにmulti-phonon processが明瞭に観測されており, さらにTiH₂では $\Delta E \sim 21 \text{ meV}$ にacoustic modeにより盛り上がりが見られる。この値は, Saunderson等の結果とよく一致している。

チョッパー法, 逆フィルタ法によって得られたoptical level, level widthは文献値と比較して表3に示す。2つの方法によって得られた値はそのまま比較することはできな

表 3

TiH ₂			
	EXperimental Method	Energy Level	Level Width
Present work	Chopper	148 ± 8.5 meV	32 meV
	BeO Filter	130 meV	40 meV
Purohit, et al. ¹⁾	Filter difference	145 meV	40 meV
Saunderson, et al. ²⁾	Be Filter	140 ± 1.5 meV	34 meV
McReynald, et al. ³⁾	Chopper	129 ± 7 meV	
Stalinski, et al. ⁴⁾	Heat capacity	145 meV	
YH ₂			
	Experimental Method	Energy Level	Level Width
Present work	Chopper	120 ± 8.5 meV	34 meV
	BeO Filter	110 meV	36 meV
McReynald, et al. ³⁾	Chopper method	122 ± 7 meV	

いが少なくとも, TiH_2 , YH_2 の level の相違は明らかである。

§ 5 検 討

a) optical level は一般的に metal の質量が大きくなるにつれて低くなることが確認された。本実験のエネルギー分解能はあまりよくないが, それにも拘らず level width については, 必ずしも小さくならず, この事は単に水素間の相関が metal の質量のみには依存しないことを示すように思われる。

b) BeO 逆フィルタ法では, TiH_2 , YH_2 いづれにおいても multi-phonon process が第 4 level まで観測され, 各 phonon level は第 1 level のほぼ整数倍となっており振動 level の観測に対してかなり有効である。しかし, 単一フィルタアナライザーの特殊な resolution function のために, チョッパー法と比較して低目の level を与えることになるので, 補正のし方に検討の余地が残る。

c) チョッパー法によるデータは測定時間が短かく, 装置も最適な条件からほど遠い配置で得られたもので, このまま精密な検討には供し得ないが, バースト幅が少なくとも $15\mu sec$ 以下のチョッパーを最適に配置し, 遮蔽に改善を施せば, 現状の中性子源でも optical level の歪み等の細部の議論ができるであろう。

謝 辞

実験を行なうにあたり, YH_2 を提供して頂いた金研矢島教授, 試料の分析をして頂いた金研浅野肇氏, TiH_2 を提供して頂いた大阪チタン K・K の三井三郎氏に感謝いたします。

文 献

- 1) S. N. Purohit, et al., Neutron Thermalization and Reaction Spectra, Vol. I (1968) 407.
- 2) D. H. Saunderson, et al., Inelastic Scattering of Neutron in Solids and Liquids Vol. II, IAEA Vienna (1963) 265.
- 3) A. W. McReynolds, et al., Inelastic Scattering of Neutron in Solids and Liquids IAEA Vienna (1961) 511.
- 4) B. Stalinski, et al., Bull. Acad. Pol. Sci. Ser. Sci. Chim 8 (1960) 243.
- 5) 木村一治等; 核理研研究報告 3(1)(1970)67.
- 6) 木村一治等; 核理研研究報告 2(2)(1969)89.

II-3 液体金属の T-O-F 法による中性子回折

核理研・金研*・教養部**・工学部原子核***
富吉 昇一*・渡辺 昇・木村一治
小山田正幸・山田幸男**・高橋文信***
佐藤健太郎*

§1 緒 言

液体金属の構造は、結晶解析の場合と同様 X 線回折、中性子線回折等の方法を用いて研究されている。X 線は良く知られているように吸収が大きいので、液体の表面近傍でのみ散乱される X 線しか測定出来ない事と、試料容器による吸収が大きいなどの為に、実験技術的にかなりむづかしい。X 線に対して中性子線は、透過が良いので液体の全体的な構造を調べる事に向いており、強い中性子線源が得られれば、実験は比較的容易に行う事が出来、最近は中性子線回折によっても信頼出来るデータが得られるようになって来た。中性子回折の実験は、現在までは定常型原子炉に設置された回折装置を用いて行われており、この場合には、中性子の波長 λ を一定にして散乱角 2θ を変えて散乱ベクトル $Q = 4\pi \sin \theta / \lambda$ を変えて測定される。他方、電子ライナック等のパルス中性子源を用いる場合には、良く知られているように T-O-F 法が取られ、散乱角 2θ を一定にして液体により散乱された中性子の波長分析を行う。この時、散乱ベクトル Q は散乱角 2θ 一定で波長 λ を変える事により変えられる。中性子弾性散乱に於ては、散乱角 2θ を scan することと、波長を scan する事は、散乱ベクトル Q を変える上で全く等価であり、結晶による中性子散乱の場合については良く知られている事である。液体の場合にはもっぱら、散乱角を scan する方法が取られており、我々の知る範囲内では、波長を scan する T-O-F 法を用いて液体からの弾性散乱を測定した例は見当たらないようである。また理論的にも T-O-F 法についての考察は行われていないようである。

従って、液体金属による中性子散乱が T-O-F 法ではどのような形で現われるかということは興味あることであり、又、液体構造の決定上、T-O-F 法がどの程度役立つか調べる事は重要な意味があると思われる。この報告では液体のスズについての実験結果を報告し、T-O-F 法の問題点などについて議論する。

§2 実験装置について

測定装置としては、粉末試料の中性子回折に用いられている Debye-Scherrer 装置をそのまま用いた。粉末試料の場合と異なる点は、試料が液体スズに置き換えられただけである。試料容器は、横幅 60mm、高さ 70mm、厚さ 12mm の板状に液体スズが溶けこむような形をしており、厚さ 1.5mm の透明石英で作製したものをを用いた。そして、石英容器の両側面と底面の 3ヶ所に半田ゴテ用ヒーターを張りつけて試料を加熱した。試料温度の測定はアルメル・クロメル熱電対を用いて行い、測定中はほとんど温度変化が無い事を確めた。

BF₃ カウンターはこの Debye-Scherrer 装置では $2\theta = 33^\circ, 90^\circ, 158^\circ$ の 3ヶ所に設置されているが、試料が板状になっているため、 90° 系では吸収の補正がめんどろになることと、ヒーターを中性子が通過しなければならないなどの制約のため 90° 系は用いず、透過型で用いる 33° 系と反射型の 158° 系を用いた。

この装置での分解能は、結晶解析の時と同じように Q を散乱ベクトルとすると

$$\frac{\Delta Q}{Q} = \sqrt{\left(\frac{\Delta Q}{Q}\right)_{\Delta\theta}^2 + \left(\frac{\Delta Q}{Q}\right)_{\Delta L}^2 + \left(\frac{\Delta Q}{Q}\right)_{\Delta t}^2 + \dots}$$

で与えられるとすると

$$\left(\frac{\Delta Q}{Q}\right)_{\Delta\theta} = \cot \theta \Delta\theta \quad \Delta\theta : \text{角度のゆらぎ}$$

$$\left(\frac{\Delta Q}{Q}\right)_{\Delta t} = 2 \frac{\Delta t}{t} \quad \Delta t : \text{時間のゆらぎ}$$

$$\left(\frac{\Delta Q}{Q}\right)_{\Delta L} = \frac{\Delta L}{L} \quad \Delta L : \text{flight path } L \text{ のゆらぎ}$$

とあらわされる。すでに報告されているこの装置のパラメーターを用いると、分解能として 33° 系は 3~4%、 158° 系は 1~1.5% の値が得られる。

§3 実験結果

液体スズについての中性子回折の実験は North et. al. (J. Phys. C Vol. 1 (1968) 1075) により行われ、かなり精密に structure factor $S(Q)$ が定められている。彼らは 250°C で測定しており、我々は彼らのデータとの比較を容易にすため、 255°C で測定した。

測定はまず、石英容器に入ったスズを測定し次に、空の石英容器だけの測定を行い、容器からの散乱は空容器の値を差引く事により補正した。図 1 は石英容器に入ったスズ (容器 + スズ) の

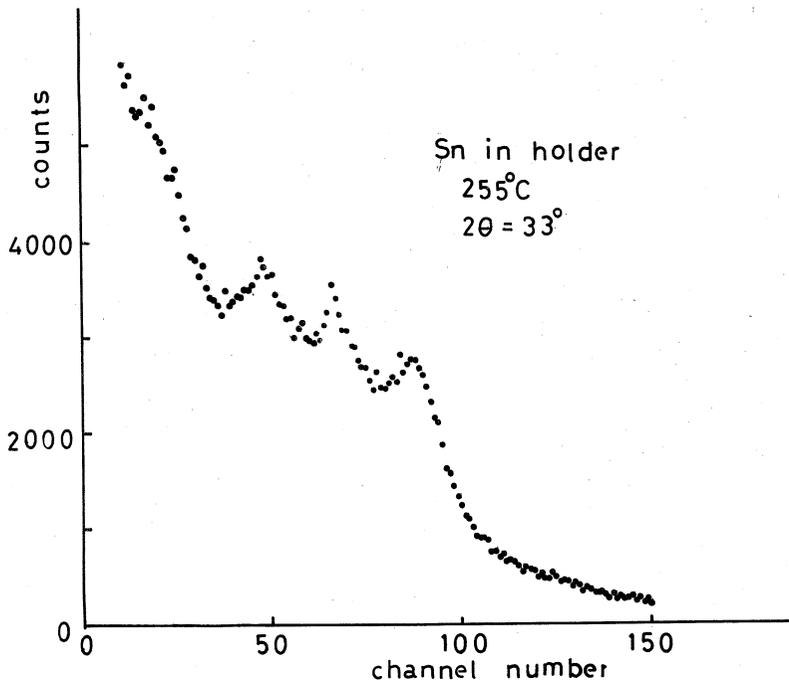


図1 石英容器に入ったスズによる散乱角 33° で測定したもの。
1channelは $4 \times 12 \mu\text{sec}$ である。測定時間はおおよそ3時間。スズの温度は 255°C である。

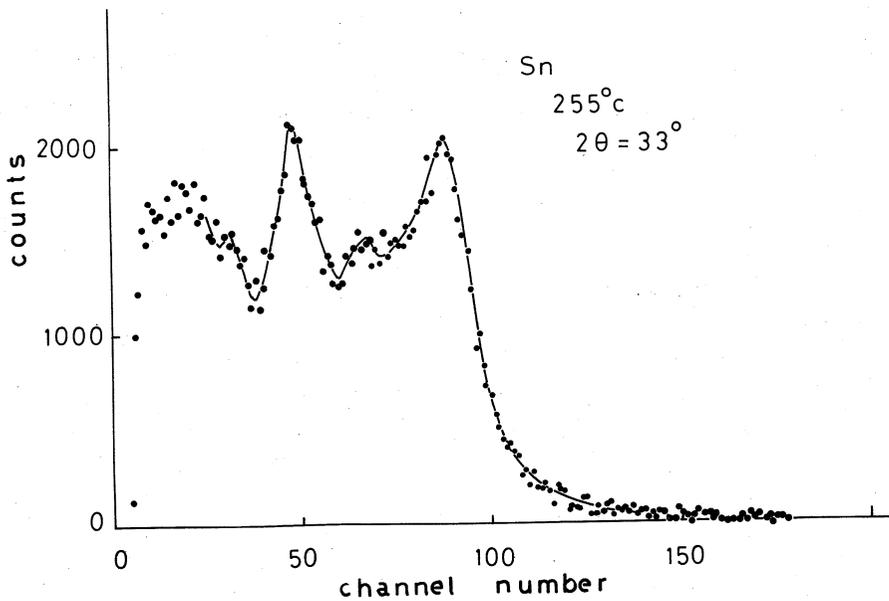


図2 石英容器に入ったスズのデータから、空容器のデータを差引いたもの。

データで散乱角 $2\theta=33^\circ$, 1 channel 当り $12\mu\text{sec}$ で測定したものを 4 channel づつまとめたものである。図 2 は図 1 のデータから空容器の値を差引いたものを示す（（容器+スズ）- 空容器）。石英はアモルファスで、液体と同じような形の散乱を与えるので試料容器としては望ましくないが、この場合は、取りあつかいが比較的容易であるので採用した。この容器は厚さ 1.5mm でかなり厚いので、容器にみる散乱が大きく、従って、図 2 は液体スズのみから多少ずれていると考えられる。どのような試料容器を用いるからという事は、試料容器からの散乱の補正を行う上に重要な意味を持ち、またこの補正は、むずかしい問題の 1 つである。

ところで、良く知られているように干渉性弾性散乱の微分断面積は

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = N b_c^2 S(Q) \quad (1)$$

であらわされる。ここで N は散乱に寄与する原子の数であり、 b_c は coherent scattering length である。また structure factor $S(Q)$ は次の式により定義されるものである。

$$S(Q) = \frac{1}{N} \left\langle \left| \sum_i^N \exp(i\vec{Q} \cdot \vec{r}_i) \right|^2 \right\rangle \quad (2)$$

$T-O-F$ 法の場合には、散乱された中性子の強度 $I(\lambda)$ と structure factor $S(Q)$ の関係は次のような関係式により表わされる。

$$\begin{aligned} I(\lambda) d\lambda &= i(\lambda) \frac{d\sigma}{d\Omega} d\lambda \\ &= i(\lambda) N b_c^2 S(Q) d\lambda \end{aligned} \quad (3)$$

ここで $i(\lambda)$ は入射中性子の波長分布である。従って

$$S(Q) = \frac{I(\lambda)}{i(\lambda) N b_c^2} \quad (4)$$

実際に測定された中性子線強度 $I(\lambda)$ は干渉性弾性散乱ばかりでなく、非干渉性弾性散乱、多重散乱、非弾性散乱等を含むし、試料による吸収 ($A(\lambda)$) があるので、(3) 式は次のように表わされなければならない。

$$I(\lambda) d\lambda = i(\lambda) [N \{ b_c^2 S(Q) + b_i^2 \} + (A_c + A_i)] A(\lambda) d\lambda \quad (5)$$

ここで b_i は incoherent scattering length. A は多重散乱をあらわす。 $S(Q)$ を正確に求めるには (5) 式に含まれる色々な補正を正しく行い $S(Q)$ による散乱部分のみを抽

出すことが必要である。

図3は、図2に示した散乱角 33° のデータを入射中性子分布 $i(\lambda)$ で割り Q で plot した

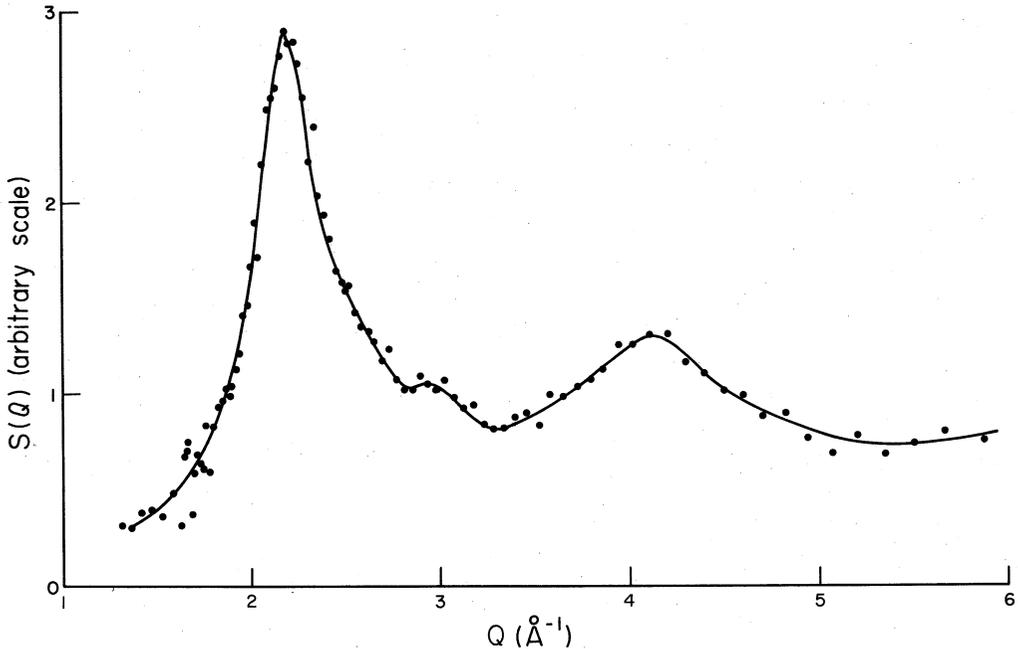


図3 図2に示しているデータを入射中性子分布 $i(\lambda)$ で割った値を Q で plot したものである。式(4)によれば $S(Q) \propto I(\lambda)/i(\lambda)$ であり $S(Q)$ を arbitrary scale で示したものである。

ものであり、吸収と multiple scattering の補正は行っていない。 $i(\lambda)$ としては以前に測定した $5 \times 5 \times 4$ cm の Vanadium の値を用いた (BF_3 カウンターを直接ビームにさらして測定した $i(\lambda)$ は γ -burst をかぶり、波長の短い所で正しい $i(\lambda)$ からずれるため、このようにして測定した $i(\lambda)$ は用いなかった (波長の長い所では、直接測定した $i(\lambda)$ と、Vanadium で散乱された $i(\lambda)$ はかなり良く一致する)。

図4に示すのは North et. al. の S_n についての $S(Q)$ のデータで、図3と図4の形はだいたい一致しているといえる。この事は(4)式によるデータの解析が正しいことを示していると思われる。しかし、さらに精密に図4と図3を比較すると、 Q の大きい所で、図3は小さくなっており、これらは(5)式に示す補正が図3の場合にはほどこしてないので、それらの影響が出たことによるものと思われる。

33° 系では $Q = 6 \text{ \AA}^{-1}$ 程度までしか測定出来なかったが、 158° 系では図示してないが、

10 \AA^{-1} 程度まで測定出来、4番目の山までは観測することが出来た。しかし $2\theta = 158^\circ$ の場合には入射中性子分布 $i(\lambda)$ に似た back ground に $S(Q)$ が重なったような形をしており、multiple scattering 等の効果が非常に良くきき、それらの補正が重要であることを示している。

§4 議 論

粉末結晶の場合のようにあるピークの積分強度で話を進める場合には、それぞれの点の値は乱れていても積分強度として正しい値を与えれば良く、しかも back ground の上

にピークが乗っているので back ground の差引きは容易である。それに対して $S(Q)$ の場合は、それぞれの測定点が意味を持っており、また back ground は測定値の中にもれてしまっており、何% back ground があるのか算出するのは難しい。しかも $S(Q)$ の値を Q の出来るだけ広い範囲にわたり求めることが液体構造を決定する上に必要である。従って、結晶による中性子回折よりも液体の中性子回折の実験の方がむづかしいといえる。

T-O-F 法の場合、back ground としては (5) に示しているように、非干渉性弾性散乱の項と多重散乱の項があり、非干渉性弾性散乱の項は b_i の値がわかっているならば、簡単に求めることが出来る。多重散乱の項は、波長に依存して変り、試料が厚い場合には良くきく。多重散乱の補正は、現在のところ T-O-F 法では正しく行うことは出来ないが、試料を出来るだけ薄くすることにより多重散乱の寄与を少なくすることが出来る。

吸収の補正も、波長に依存する cross section がわかっている場合には、簡単に行うことが出来るが、sample を薄くした方が、吸収が少なくなるので、補正は容易になる。T-O-F 法の場合には、薄い sample を用いても分解能を落さず、カウンターを多く用いてカウント数をかせぐことが出来るので、出来るだけ薄い試料を用いることが望ましい。

次に T-O-F 法固有の問題として、入射中性子 $i(\lambda)$ が試料内で散乱されて、試料内を進んで

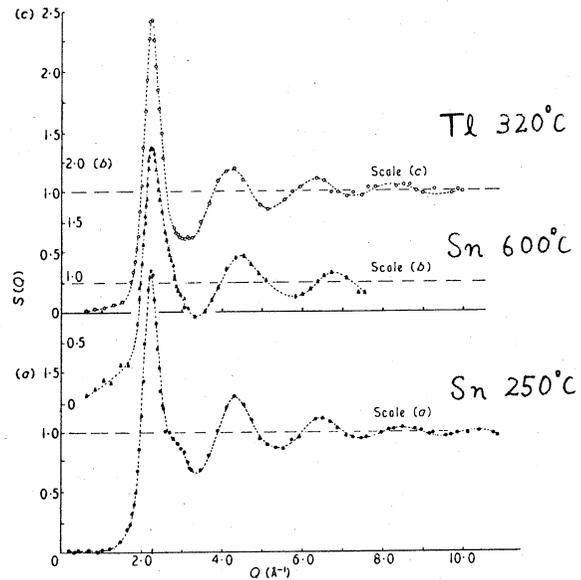


図4 North et. al. の測定したスズの $S(Q)$ のデータ (J. Phys. C Vol. 1 (1968) 1075 による)

いくうちに $i(\lambda)$ の形が違ってゆくことが考えられる。従って、実測した $i(\lambda)$ と、試料内での $i(\lambda)$ は一致しなくなり、これらの補正をほどこすことが必要になってくる。これは透過のスペクトルを取ることにより補正することが出来るが、粉末試料の実験では、この補正が重要であるとはいわれていないので、液体の場合もそれほど重要でないかも知れない。次に T-O-F 法では、波長 0.5 \AA 程度から 6 \AA 程度の範囲にわたる入射中性子線を用いるので、波長が長い中性子線と、液体との間に非弾性散乱が生ずることが考えられ、従って、長い波長まで測定する場合には、非弾性散乱の back ground の補正を考えなければならない。どの程度の波長になれば非弾性散乱が入って来るかなどについては全く予期出来ず、T-O-F で液体の研究を行う際の重要な課題になると思われる。

今回の実験はかなり初歩的なものであり、今後は散乱角を変えて測定し、また試料の厚さも出来るだけ薄くして測定し、T-O-F 法では適当な補正をほどこすことによりどの程度まで正確に $S(Q)$ を定めることが出来るか研究する予定である。

II-4 マグネリ相 V_4O_7 の中性子回折

理学部物理・教養部*

寺崎 治・山田幸男*・渡辺伝次郎

目 的

Ti_nO_{2n-1} ($4 \leq n < 10$), V_nO_{2n-1} ($4 \leq n \leq 8$) で表わされるチタンおよびバナジウムの酸化物はマグネリ相と呼ばれ、周期的な shear 構造を有することで知られている。¹⁾ これらの酸化物のうち単結晶作製に成功したものは、 V_7O_{13} を除き、すべて室温以下の低温で金属-半導体転移を示すことが報告されており、²⁾ そのうち或るものは冷却の際結晶が割れることから、金属-半導体転移に伴って結晶構造に何らかの変化が生じていることが推測されている。一方、このマグネリ相に関して単結晶を用いた結晶構造解析は Ti_5O_9 について成されているのみであり、³⁾ マグネリ相全般の結晶構造に関しても未だ若干の疑問が残されているように思われる。⁴⁾

われわれはまず、試料の作製が比較的容易で、酸素原子の位置だけの情報を与え、且つ金属-半導体転移点の高い V_nO_{2n-1} 系の酸化物 V_4O_7 (転移点は $250^\circ K$) を用いて T-O-F による中性子回折実験を行ない、得られた回折強度と構造模型について計算した強度と比較することを試みた。

実験と結果

試料は V_2O_5 と V_2O_3 を適当量混ぜて作製した粉末状のものを $50mm \times 50mm \times 13mm$ のアルミニウムカプセルに挿入し、ターゲットにあたる電子ビームの全照射量にして $57 \times 3000 \mu$ coulomb に相当する時間だけ測定を行なった。本実験において特に注目する反射は面間隔が $2.15 \text{ \AA} - 6.1 \text{ \AA}$ の大きい値の範囲にあるので、 $2\theta = 30^\circ$ の測定系を中心とし、同時に $2\theta = 90^\circ$ の測定系も用いて試料温度約 $190^\circ K$ で測定を行なった。 $2\theta = 30^\circ$ 系で得られた測定結果を図 1 に示した。

バナジウムの干渉性散乱断面積が小さいことと、測定時間が比較的短かったため、測定の出折パターンには 2 本の強いピークが 278 チャンネル (2.18 \AA) と 298 チャンネル (2.3 \AA) に見出されるのみで、その他の反射が現われておらず、これだけの測定データからは V_4O_7 の低温における結晶構造について議論することができなかった。

今回の実験結果から、マグネリ相の結晶構造、特に金属-半導体転移に伴う構造変化を中性

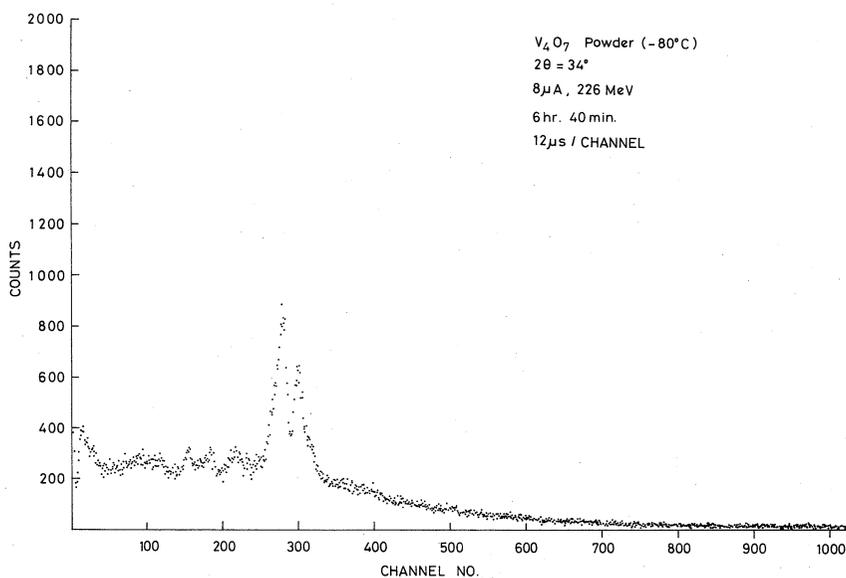


図 1

子回折で調べるには、中性子に対する干渉性散乱断面積の小さいバナジウムを含む酸化物はあまり得策でないことが判った。TOF法においては多量の試料を必要とするという問題点があるが、今後はこの点を克服して、 V_nO_{2n-1} 系と同型である Ti_nO_{2n-1} について中性子回折実験を行ない、金属-半導体転移に伴う結晶構造の変化を追求する。

文 献

- 1) S. Andersson and L. Jahnberg: Arkiv Kemi. **21**(1963)413.
- 2) H. Okinaka, K. Nagasawa, K. Kosuge, Y. Bando, S. Kachi and T. Takada: J. Phys. Soc. Japan **28**(1970)798, 803.
- 3) S. Andersson: Acta Chem. Scand. **14**(1960.)1161.
- 4) O. Terasaki and D. Watanabe: Japanese J. appl. Phys., to be published.

II-5 $VD_{0.77}$ の中性子回折

金研・核理研*・工学部原子核**・教養部***

浅野 肇・佐藤健太郎**・平林 真

木村一治*・渡辺 昇*・山田幸男***

高橋文信**・富吉昇一

§ 1 緒 言

Va族遷移金属のV, Nb, Taは体心立方格子の格子間位置に多量の水素原子を固溶し, 広汎な組成域にわたって侵入型合金 MH_x ($M: V, Nb, Ta; x$ は0からほぼ1まで)を形成する。その時水素原子がどの格子間位置を占有しているかを明らかにするのが本研究の目的である。前回のマシントイムでは $NbD_{0.89}$, $TaD_{0.72}$ の中性子回折を行ない, これら物質系では重水素原子が特定の四面体格子間位置を規則的に占有していることを報告した。¹⁾さらに著者らはV-D系に低温でNb-D, Ta-D系と同じ型の規則構造が存在すること, 又この規則格子は温度上昇と共に規則→不規則変態を伴うことを見出した。²⁾今回はV-D系の不規則相の結晶構造を決定する為に, $VD_{0.77}$ の室温における中性子回折を行なった。

§ 2 実 験

試料 $VD_{0.77}$ は粉末バナジウムと重水素ガスの固相-気相反応により作製した。X線回折の結果によると, 格子定数は $a = 3.160 \text{ \AA}$ である。測定試料は約70g (30cc)の $VD_{0.77}$ を0.1mm厚のアルミニウム薄で作った $3.4 \text{ cm} \phi \times 3.2 \text{ cm}$ の円筒に入れ, 円筒軸を入射ビームに平行にセットした。測定は室温で行ない, カウンターは 90° 系と 158° 系を使用した。測定時間は約20時間であった。

§ 3 結 果

$2\theta = 90^\circ$ 系で得られた回折パターンを図1に示す。なおこの図の縦軸はすでに観測強度 E を $i(\lambda)\lambda^4$ で規格化した値で示してある。各反射は $a = 3.160 \text{ \AA}$ の立方晶で指数付でき, $h+k+l = 2n$ の反射だけが観測されている。この回折パターンを満足する結晶構造を図2に示す。即ちVは体心立方格子を組み, そのすべての四面体格子間位置にDが占有確率0.13で統計的に分布している。この構造の構造因子 F および222反射で規格化した計算強度と観測強度を第1

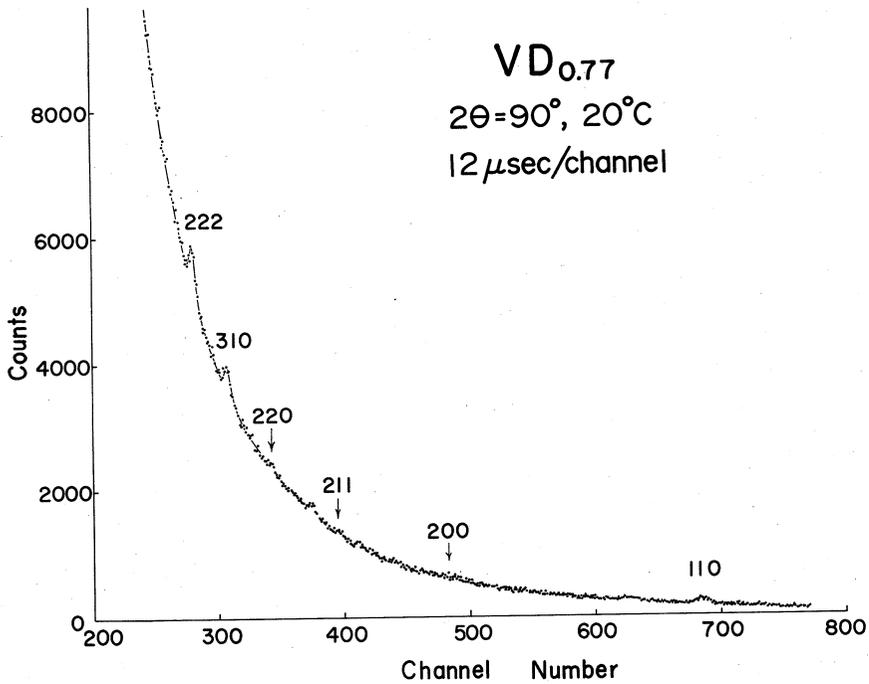


図 1

第 1 表

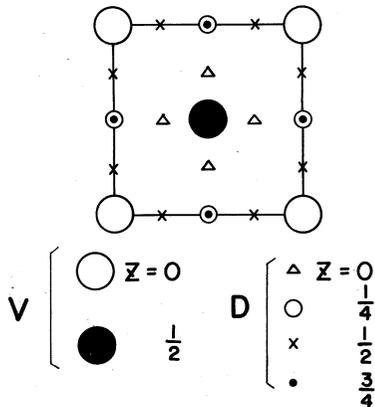


図 2

hkl	F	I_{cal}	I_{obs}
110	$2b_V - 0.51b_D$	29	46
200	$2b_V + 0.51b_D$	4	0
211	$2b_V + 0.51b_D$	16	2
220	$2b_V - 0.51b_D$	29	13
310	$2b_V - 0.51b_D$	55	76
222	$2b_V - 1.54b_D$	100	100

$$R = 0.31$$

表に示す。ただし強度は

$$I = \frac{E}{i(\lambda)\lambda^4} = j |F|^2 e^{-2W} A_s(\lambda)$$

で与えられ、 j は多重度因子、 e^{-2W} はDebye-Waller因子、 $A_s(\lambda)$ は吸収の補正である。

Debye-Waller因子の補正は、V原子についてはpureなV金属の値 $B_V = 0.81 \text{ \AA}^2$ を、又D原子については、Somenkovら³⁾が $\text{TaD}_{0.87}$ について定めた値 $B_D = 1.26 \text{ \AA}^2$ を使用して行なった。又吸収の補正は山田等によって報告されている方法⁴⁾で行なった。 R 因子を $\frac{\sum |I_{\text{obs}} - I_{\text{cal}}|}{\sum I_{\text{obs}}}$ で定義し、110~222の6ヶの反射について $R = 0.31$ が得られた。なお $2\theta = 158^\circ$ 系のdataは観測強度が非常に弱かったので解析には使用しなかった

§ 4 検 討

前報¹⁾に示した $\text{NbD}_{0.89}$ 、 $\text{TaD}_{0.72}$ の結果に比べて、今回の結果は約20時間のマシニングをかけたにもかかわらず非常に弱い反射しか得られていない。その原因について検討して見る。前報の $\text{TaD}_{0.72}$ を例に取ると、111、220、311等の基本格子反射の構造因子(F_1)は $2b_{\text{Ta}} + 1.44b_{\text{D}}$ 、211、031、231等の規則格子反射の構造因子(F_2)は $1.44b_{\text{D}}$ で与えられ、一方 $\text{VD}_{0.77}$ の構造因子(F_3)は第1表に与えられている様に $2b_V \pm 0.51b_{\text{D}}$ である。三種の反射の積分強度の比を大雑把に見積ってみるとほぼ $F_1^2 : F_2^2 : F_3^2 = 60 : 10 : 1$ となり、 $\text{VD}_{0.77}$ の反射強度が非常に弱いことは理解できる。そして、 $R = 0.31$ という比較的大きな R 因子の値も観測強度が弱い事に起因するものと思われる。

文 献

- 1) 木村一治他, 核理研報告 Vol. 3 (1970) No. 1, 67.
- 2) 浅野肇他: in preparation.
- 3) V. A. Somenkov, A. V. Gurskaya, M. G. Zemlyanov and A. A. Chertkov: Sov. Phys. - Solid State 10 (1969) 2123.
- 4) 山田幸男他, 核理研報告 Vol. 3 (1970) No. 1, 100.

II-6 中性子分光法によるアイソタクチック・ポリプロピレンの分子運動の研究

非水研・核理研*・工学部原子核**・教養部***
安川 民男・木村一治*・渡辺 昇*
小山田正幸*・山田幸男**・高橋文信**

§1 はじめに

分子運動の研究手段として、中性子散乱法には、a) 禁制則がない、b) 振動数分布を直接求められる、などの利点があり、一次元結晶とみなせる線状高分子の運動の研究に極めて有用なことがしめされている。先にフィルター法によるポリエチレンの「たたき下げ」スペクトルを報告した¹⁾のに引続き、今回はポリプロピレンについて実験を行ない、定常炉による「たたき上げ」法と比較し、その長所・欠点について検討した結果についてのべたい。

§2 実 験

使用したアイソタクチックポリプロピレンは東レ・トレファンBO（二軸延伸フィルム，結晶化度75%）で，試料厚さ0.6mmであった。測定は室温で入射ビームに対し45°の角度に試料を置き，90°方向に散乱された透過中性子を計数した。この条件ではプロトンの散乱断面積を80 barnとすれば中性子の透過率は約50%である。

§3 結果と検討

再現性をみるために7時間の測定を2回くり返し，チャンネル巾12 μ secを8チャンネルづつまとめれば十分な再現性があることを認めた。測定スペクトルを図1に示す。本実験は「たたき下げ」法によっているので計測される中性子はBeOの特性から，3.65~0 meVのエネルギー巾をもっていて，試料からカウンターまでの二次飛行の段階で長時間側に尾を引く鋸歯状のスペクトルを与える。

仮りに分子の振動が δ 関数であるとするとき，入射中性子のエネルギーが充分高いときはこの影響は $n/(430+t)^4$ で示される（ n ，比例定数，430 μ secは3.65 meVの中性子が試料からカウンターまで飛行するのに要する時間。 t は3.65 meVのピークが出現して以後の時間， μ sec）。実際の試料をそれぞれのエネルギーをもつ δ 関数の集合体とみだし，それぞれの単位

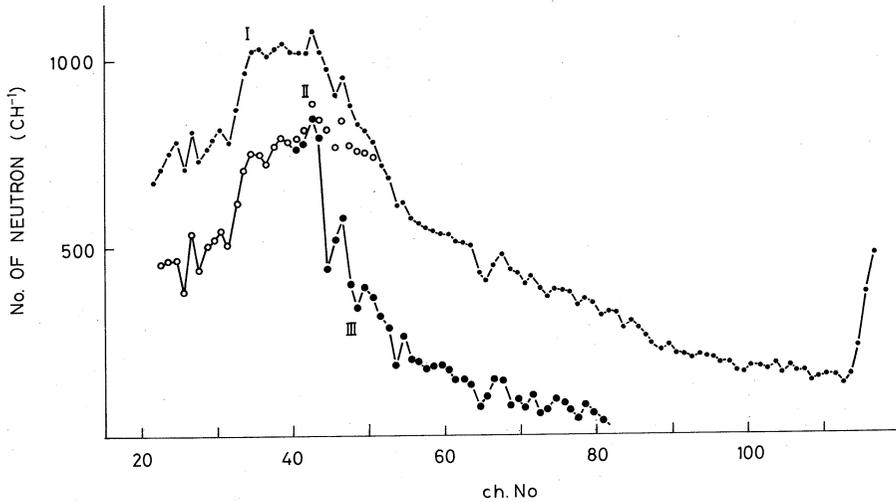


図1 アイソタクチック・ポリプロピレンの中性子散乱スペクトル (I 実測。II 高エネルギー側補正。III 低エネルギー側補正。)

が長時間側に尾を引く散乱スペクトルを与えると考えると補正を行なうと20チャンネル付近の散乱強度は約1/2に減る。入射中性子のエネルギーが低くなり98 μ secのチャンネル巾の間での入射中性子のエネルギー差が3.65meV以下となる40チャンネル以後ではこの補正の影響は小さくなる。そこで近似的に16チャンネル以降直線的にこの補正が小さくなり50チャンネルで0となると考え、その補正をそれぞれ98 μ sec巾で4チャンネルあたまで行なった結果を図1-II(白丸)に示す。

長時間側では別の補正が必要とされる。すなわち、40チャンネル以上では入射中性子の各チャンネル内でのエネルギー差は3.65meVより小さくなり、さらに長時間側では、各チャンネルについては単色に近い中性子が入射することになり、このため δ 函数的な振動によっても3.65meVに相当するチャンネル数だけ散乱がみられる。この場合にも鋸歯状の散乱スペクトルがえられる(散乱断面積が散乱中性子のエネルギーとともに小さくなるため)。

この補正を96 μ sec巾での入射中性子のエネルギーの差が3.65meV以下となる36チャンネルから、長時間側へいくほど鋸歯状の尾が比例的に長くなるとして補正を行なった結果を図1-III(黒丸)で示す。

ここでえられた散乱スペクトルより次式により振動数分布函数 $g(w)$ を求めた。

$$\frac{d^2\theta}{d\Omega dk} = \frac{S}{4\pi} \frac{2\hbar k^2}{mMk_0} \exp[-2W] \frac{(\mathbf{k} - \mathbf{k}_0)^2}{|k^2 - k_0^2|} \\ \times \left[\frac{1}{\exp[\hbar w/kT] - 1} + 1 \right] g(w)$$

k_0 , k は入射および散乱中性子の運動量ベクトル。

k_0 , k はその絶対値。

振動数分布の計算には入射中性子のスペクトルが必要となる。ホウ酸の1%水溶液を減速剤として用い、バナジウム金属により散乱された中性子のスペクトルは200meV以下では充分な精度で次式に示される。

$$I(t) = P_1 t - P_2 \cdot e^{-P_3 t^2}$$

(t , チャンネル数)。定数 P_1 , P_2 , P_3 は実測値に最適となるように決め、さらに本実験の飛行管は排気されていないので空気による散乱の補正を行ない、試料に直接入射した中性子のスペクトルを求めた。

振動数分布の計算結果を図2に示す。1000cm⁻¹以上はエネルギー間隔が大きくなり理論計

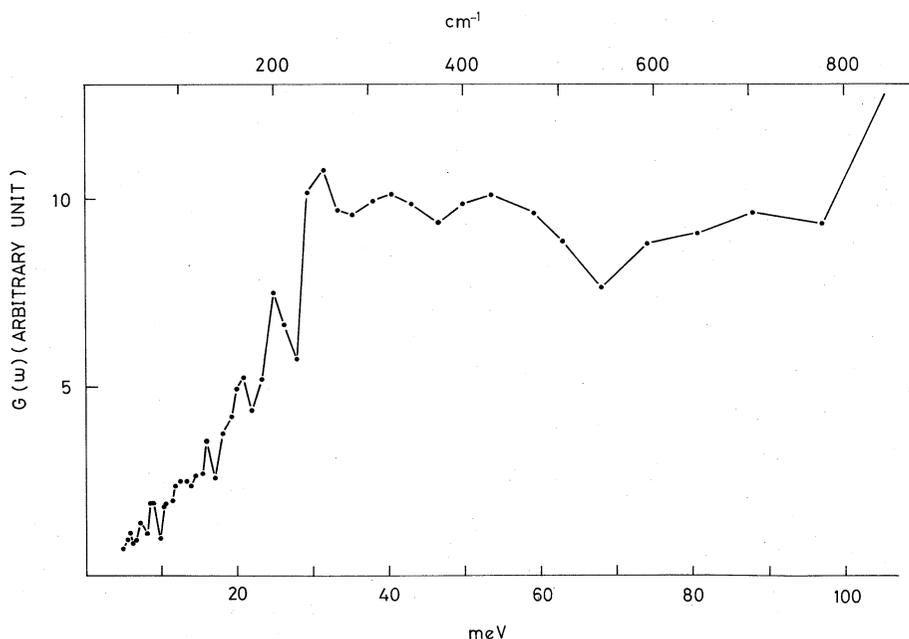


図2 アイソタクチック・ポリプロピレンの振動数分布函数(図1-IIIより計算)。

算との比較に不適当であるため省略した。

アイソタクチック・ポリプロピレンは単位格子に4本の分子鎖を含み、それぞれはGTのくり返し構造をとり3回らせんをまいている。²⁾分子鎖間の相互作用を考慮しない孤立鎖近似での分散曲線がZerbiら³⁾により計算されている。この理論計算より予想される振動数分布函数を図3に示す。

ポリプロピレンについての中性子散乱の実験はSaffordら⁴⁾の報告があるのみである。図

3の点線で示してあるのは結晶化度72%のアイソタクチックポリプロピレンの114°Kでの散乱スペクトルから計算された振動数分布函数である。293°Kでの測定からもほぼ同一の結果がえられているが580 cm^{-1} のピークの高さは1/2程度に低くなっている。

本実験のSaffordらの結果

との相違点をあげると、

1) 200 cm^{-1} 以下のピークが

明瞭に認められる(～90, 70, 50 cm^{-1} 他), 2) 理論計算で予測される200 cm^{-1} の強いピーク(- CH_3 基のねじれ振動)がSaffordらの実験ではまったくみられないのに対し, 本実験では明瞭にみられる, 3) 400～500 cm^{-1} 付近のピークが理論により近い形をしている, 4) 580 cm^{-1} のピークが弱い不明瞭なピークとしてみられる。

4)の580 cm^{-1} のピークについてのSaffordらの結果が本実験および理論と大きくずれている原因は、高いエネルギー準位の振動は充分熱励起されていないため「たたき上げ」法では精度よくその強度を測定できないことに原因があると思われる。本実験ではチャンネル巾を98 μsec と広くとったため500 cm^{-1} 以上では微細構造をみることはできなかった。分解能を向上させるためには、さらに長時間の測定または高密度の中性子源を用いての実験が必要であろう。

低波数領域で分解能がよいのは「たたき下げ」法では散乱中性子が鋸歯状のスペクトルを持つため、Beフィルターによる「たたき上げ」法に比較して有利な点といえよう。

§4 結 語

「たたき下げ」法によりえられたアイソタクチック・ポリプロピレンの中性子散乱スペクトルはBeフィルターによる「たたき上げ」法によるSaffordらの結果と比較して、より理論計算に近い結果を与えることができ、分解能もよりすぐれているといえてよいであろう。

ただ、振動数分布函数計算の際の散乱強度の補正については改善の余地がある。

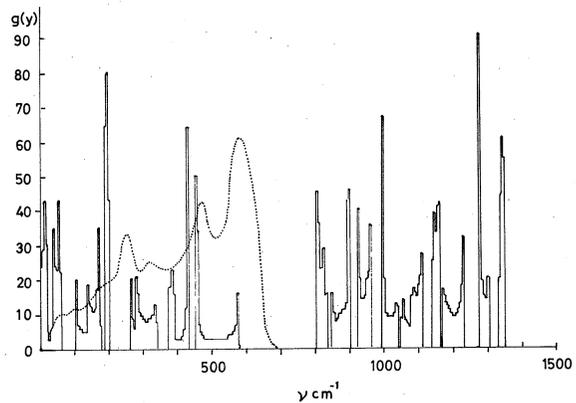


図3 アイソタクチック・ポリプロピレンの振動数分布函数(Zerbiら³⁾による計算値)。

文 献

- 1) 木村他, 本報告, Vol. 3, No. 1, 67(1970)
- 2) G. Natta, J. Polymer Sci., **25**, 119(1957)
- 3) G. Zerbi and L. Piseri, J. Chem. Phys., **49**, 3840(1968)
- 4) G. J. Safford et al., J. Chem. Phys., **40**, 1426(1964)

II-7 パルス電子線によるイオン結晶の光学的研究(6)

理学部物理 上田正康・平井正光
近藤泰洋・吉成武久

前回までの実験は主としてKClについて行われ、F中心生成に関して多くの点が明らかになった。特に triplet-state exciton から直接 F 中心が生成されるのではないことが明らかにされた。このことは、現在もっとも妥当と考えられている F 中心生成機構と一致しない。そこで今回は KBr, KI において、主として triplet-state exciton と F 中心生成との関連を明らかにすること、および前回の報告中で述べた F 中心生成機構を、KBr について確かめる目的で実験を行った。

さらに NaCl の triplet state によると思われる吸収帯の消滅時定数の温度変化を測定することにより、その吸収帯が exciton によるものであることを確かめた。

実験および考察

1) KBr

使用した結晶は、研究室でカイロポーラス法で作成したものを使い、照射する電子線のエネルギーは 30 MeV, ピーク電流 0.8 A, 時間中約 15 ns である。

電子線パルスをもとに 10°K において、KBr 結晶に照射後、80 ns, 300 ns, 2 μ s, 50 μ s, 0.5 ms の各時間における光吸収の変化を 1000 m μ から 10 m μ ごとくに 350 m μ まで測定し、optical density (O. D.) に換算したものを図 1, 2 に示す。1.58, 1.28, 2.06, 3.23 eV にそれぞれピークを持つ吸収帯が得られた。以下に各吸収帯について述べる。

1-1) 1.58 eV, 1.78 eV 吸収帯

この吸収帯の消滅時定数は 130 μ s であり、KBr の固有発光の寿命とよく一致する。また KCl, NaCl からの類推から、この吸収帯は triplet exciton による吸収帯と考えられる。

1-2) 2.06 eV 吸収帯

KBr の F 吸収帯 (2.06 eV) と位置が一致していることから、この吸収帯は F 帯と考えられる。この吸収帯の生成時定数は 30 ns 以下で、また消滅時定数は 70 μ s であり、triplet exciton の消滅時定数 130 μ s とは異なる。

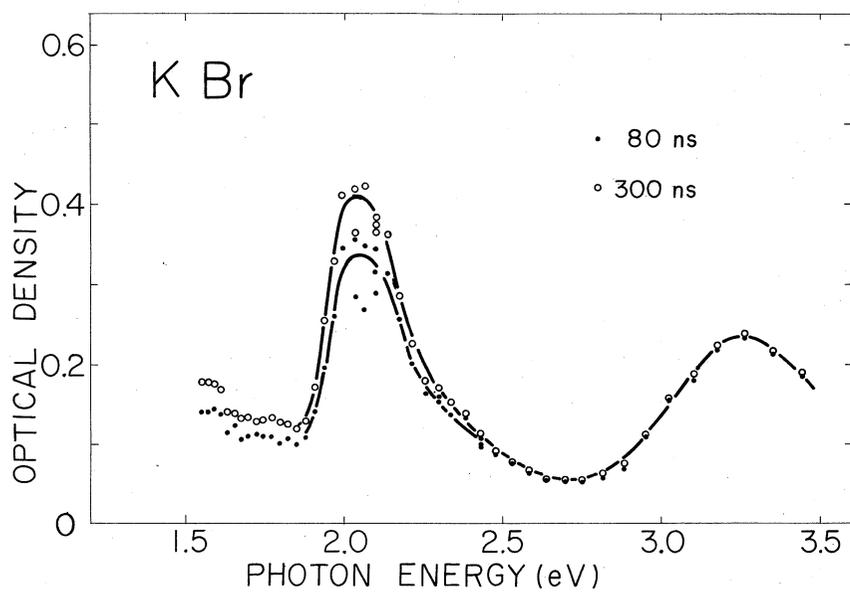


図 1

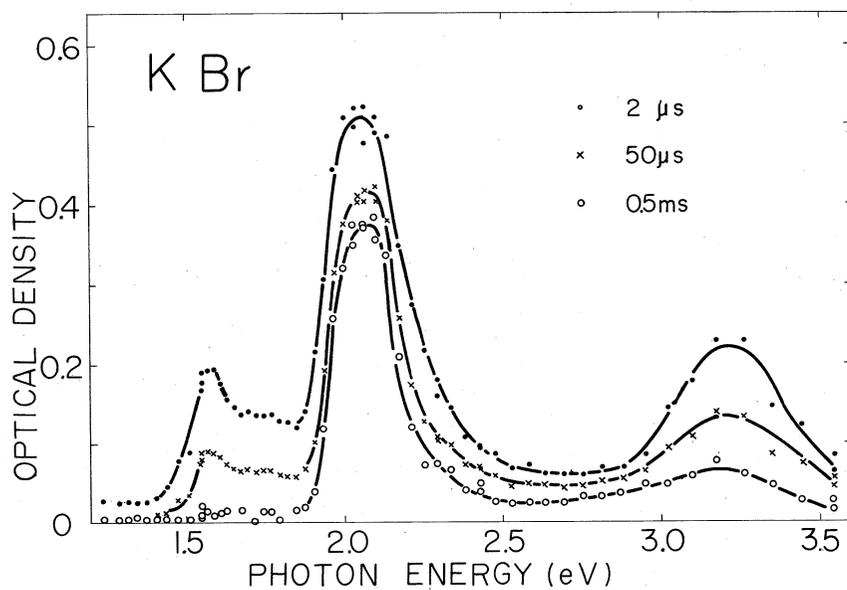


図 2

この吸収帯は照射パルス数に影響される。結晶に電子線パルスを2回照射し、白色光で褪色させることを3回くりかえした後の測定で得られたのが図3(a), 50回後が(b)である。曲線(b)の立ち上りの時定数を求めると $1\mu\text{s}$ であった。これはKBr中のF中心の第一励起状態の寿命と一致する。したがって(b)では結晶中に空格子点が多く存在し、この空格子点に電子線

により作り出された二次電子が捕えられ、 $1\mu\text{s}$ の時定数で基底状態のF中心を生成していると考えられる。空格子点の多くは、電子線照射によるF中心が、その後の白色光でイオン化され、電子線の照射回数とともに結晶中に蓄積されたものと考えられる。この過程はKCl, NaClにおいて観測された。

1-3) 3.23eV吸収帯

この吸収帯は、KBrの V_k (3.2 eV), H (3.3 eV) 吸収帯の位置に近く、消滅時定数は $70\mu\text{s}$ で、F帯の消滅時定数とよく一致する。KClではF中心, H中心が同じ時定数で消滅することから、この吸収帯はH中心によるものであることが類推され、KBrにおいても前回の報告で述べたF中心生成機構が成立しているものと思われる。

2) KI

図4にKIにおける結果を示す。図4で曲線a), b), c)は長波長側から短波長側へ測定する波長を変化させて得られたもので、d), e)はその後再び短波長側から長波長側にもどるときに得られた結果である。a), b)とd), e)の差は結晶内に蓄積された欠陥によるものと考えられる。KIはLHeTではX線照射によるF中心生成効率が低いので、F中心による吸収帯がほとんど現われないことが予想されたが、図に示すように、F帯の位置にはわずかな吸収帯が見られるだけである。1.18eVにピークがある吸収帯の消滅時定数は $4.2\mu\text{s}$ であり、この値はKIの固有発光の寿命と一致するので、この吸収帯はtriplet excitonによる吸収であると考えられる。

3) NaCl

NaClについては前回は報告したが、今回の実験でtriplet excitonによる吸収帯の

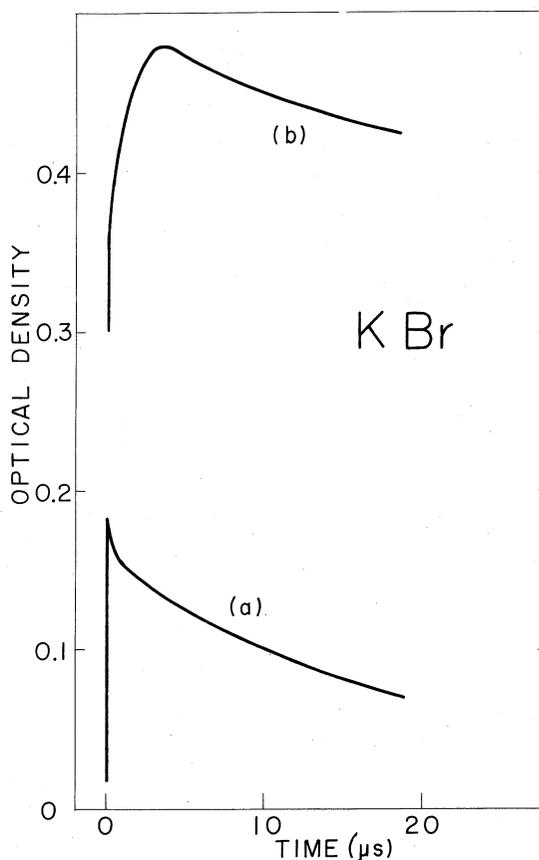


図3

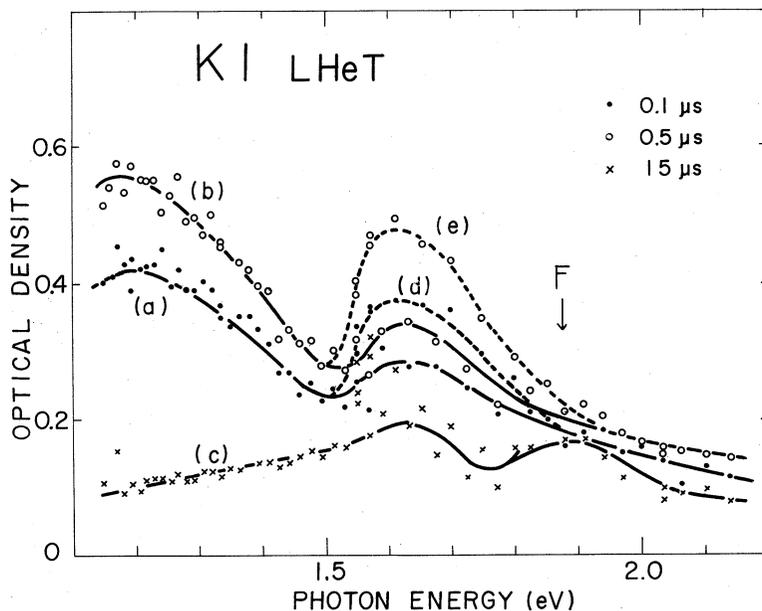


図 4

消滅時定数を, 30°K から 110°K の温度領域で測定した。図 5 に消滅時定数と温度との関係を示す。破線で示してあるのは, 3.36eV にピークをもつ固有発光強度の温度変化を示し (Ikezawa)

$$I = I_0 / (1 + \nu e^{-\Delta E/kT})$$

$$\Delta E = 0.01\text{eV}$$

で表わされる。 ΔE は triplet exciton の電子が熱的に励起されて伝導電子になるか, あるいは発光しないで正孔と再結合する際の活性化エネルギーである。点線と実験値がよく一致していることから, $610\text{m}\mu$ に表われる吸収帯が triplet exciton によるものであることが確かめられた。図 6 に照射直後の triplet exciton による吸収強度が, 温度でどのように変化す

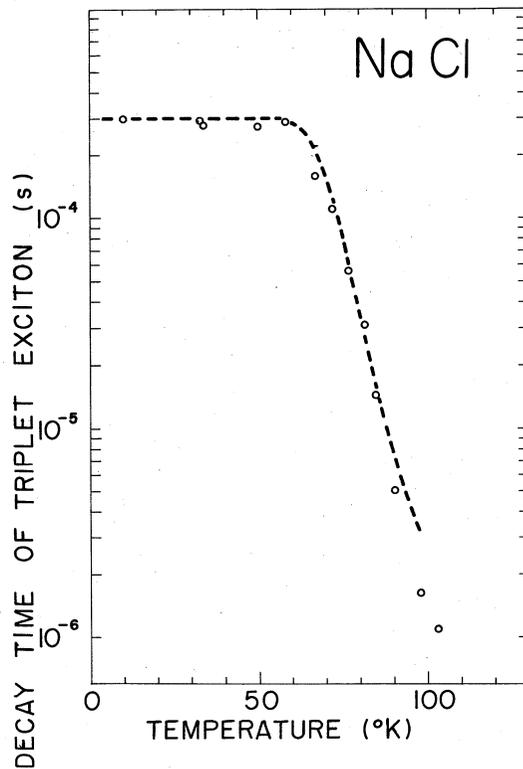


図 5

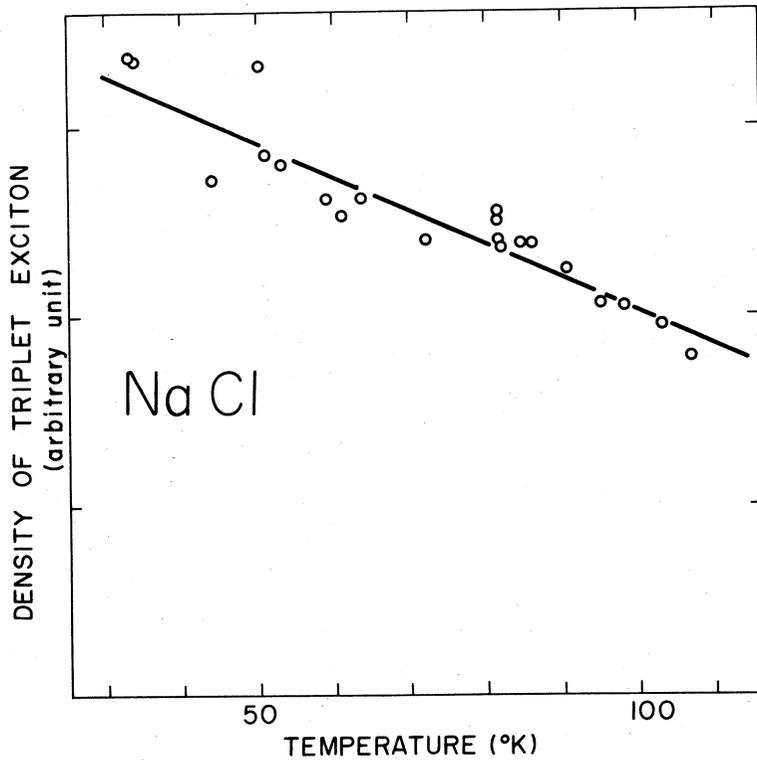
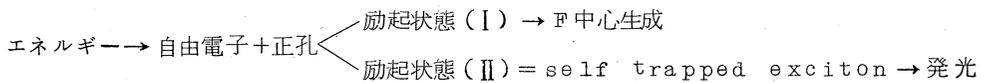


図 6

るかを示す。温度が上昇するにしたがって、triplet excitonの濃度は減少し、30°Kから100°Kで約2/3になるが、寿命ほどには変化しない。したがって、電子線で作られた二次電子と正孔が再結合してself-trapped excitonになる確率は、温度にほとんど影響されず、固有発光が温度でquenchされるのは、生成されたexcitonが熱的に分解するからであることがわかる。

前回のKCl, NaClの結果と、今回のKBr, KIの結果と合わせて考えると、triplet excitonが出来やすいNaCl, KIではF中心ができにくく、F中心ができやすいKCl, KBrではtriplet excitonが少ししかできないということが明らかになった。

したがって、triplet stateからF中心が生成されるとすると、次のような過程が考えられる。



自由電子+正孔の組が二種の状態に移る確率は、それぞれのアルカリ・ハライドで異なる。上に書いた励起状態(I)がsingle stateであるか否かは不明であるが、KBrでは

singlet state excitonからの発光が強くとも、F中心が生成されやすいことから、この状態がsinglet stateとは考えにくい。この励起状態がどのような状態であるかを明らかにするのは、今後の実験の目的のひとつである。

LINACを運転して下さいました小島、浦沢両氏とそのクルーの方々に感謝致します。

II-8 50 Mev Electron Irradiation of Silicon and Germanium studied by Cobalt-57 Moessbauer Probe

工学部*・(現金研**）・選研***

松井啓治*・小野寺秀也**・大川 淳***

Summary: A preliminary 50 MeV electron irradiation of silicon and germanium crystals has been made to study the interactions between radiation-induced defects and Co-57 Moessbauer probe incorporated in the host lattices.

The irradiation up to 3×10^{17} e^- /cm² at 15 °C induced in silicon conversion effects of interstitial- and vacancy -type with a Fermi level dependence different from that observed for fast neutron irradiation.

The irradiation produced a new resonance line at +0.12 cm/sec in *n*-germanium which disappeared in a few days at ambient temperature.

Introduction

Studies of irradiation effects in semi-conductors, most extensively made for silicon and germanium, have demonstrated that elemental defects hardly exist in isolated states. It follows that the interaction between the elemental defects and a certain impurity atom often provides a means to investigate the nature of the formers.

The use of Moessbauer probe can be expected to render supplementary informations in silicon for which much were done

* K. Matsui†)

** H. Onodera: Present adress: Inst. Iron, Steel and Other Metals,†)

*** A. Ohkawa: Res. Inst. Mining, Metallurgy and Ore Dressing,†)

†) Faculty of Engineering, Tohoku University, Sendai, Japan

by epr study¹) while essential ones in germanium for which epr studies are much less effective.

The linac irradiation on these materials has several advantages over irradiations by reactor or Van de Graaff in studying Moessbauer effect, such as the absence of induced radiations or the uniform distribution of Frenkel pairs.

Experimental

A small amount of CoCl_2 was smeared on the etched surfaces of the specimens. The specimens were heat-treated in hydrogen first at 600°C for 1 hr to reduce CoCl_2 . The silicon crystals were quenched into ethylene glycol from 1000 - 1200°C to introduce cobalt substitutional. One of germanium specimens was quenched from 800°C . The other was treated at 800°C without quenching. The Moessbauer spectra were obtained using a time-mode spectrometer with moving 310 s.s. absorber. The electron irradiation was made for the specimens immersed in running water. The temperature rises during the irradiation were negligibly small.

Results and Discussions

Silicon: The irradiation induced the changes in the ratio of cobalt substitutional at $v = +0.06$ cm/sec to cobalt precipitate at $v = +0.002$ cm/sec, as was the case of fast neutron irradiations.²) The differences from neutron irradiations are the following; (a) the unstable spectrum extending over -0.3 to $+0.3$ cm/sec was absent which indicates the absence of trapped cobalt interstitials, and (b) the pseudo-Fermi level dependence of conversion events (cf. Fig.1) exhibited a substantial departure from neutron irradiation (cf. Fig.2).

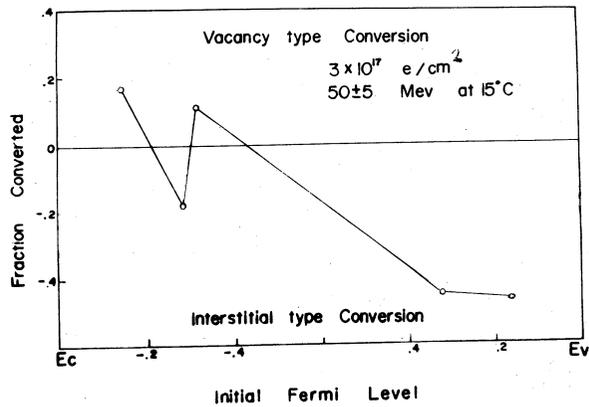


Fig. 1.

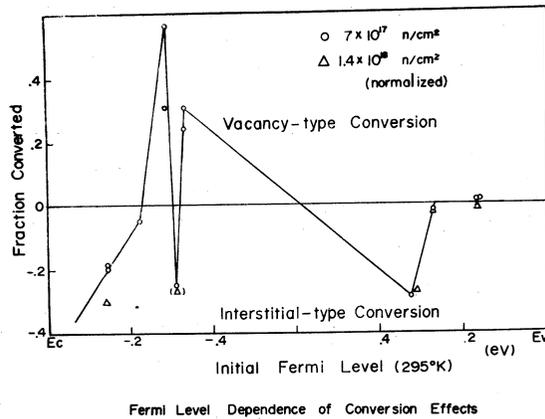


Fig. 2.

These findings suggest that the conversion mechanisms involved are rather simpler as compared to neutron irradiation. It appears that the large interstitial-type conversion in the lowest half of the forbidden gap is related to the charge state of single vacancy introduced. The definite conclusion can be reached, however, by studying carefully the above-mentioned phenomena.

* The fraction converted f in Fig.'s 1 and 2 is defined, by

$$f = \left(\frac{\text{Co}(s)/\text{Co}(p)}{\text{irradiated}} - \frac{\text{Co}(s)/\text{Co}(p)}{\text{quenched}} \right) / \frac{\text{Co}(s)/\text{Co}(p)}{\text{quenched}}$$

Germanium: It was demonstrated by Wertheim³⁾ that the doublet lines centered at $\nu = +0.04$ cm/sec correspond to cobalt substitutional, though reservations as to the assignment were made by the same authors. In the quenched specimen a broad absorption has been found in a region $+0.1 - 0.3$ cm/sec from the present experiment (performed using n -Ge, 7 ohm. cm). The broad line was disappeared by irradiation. A new resonance line at $+0.12$ cm/sec has been introduced by the irradiation in both specimens. It disappeared in a few days by leaving the specimens at 20°C .

The radiation induced line (singlet) falls in the region at which cobalt interstitial (d' ?) may emerge. As a working hypothesis, it may be assumed that $\text{Co}(s)$ is converted to $\text{Co}(i)$ by absorbing Ge-interstitial and that $\text{Ge}(i)$ makes long-range migration at ambient temperature.

The conversion efficiency, anyway, has turned out smaller than those in silicon. It is expected that more quantitative informations become available by further irradiation sequences.

Conclusion

It has been revealed that 50 MeV electron irradiation induces effective conversion effects for Co-57 Moessbauer probe incorporated in silicon and germanium. Detailed analyses as to the defect structures are left to further experiments.

Acknowledgment

Dr. F. Sawanagi (Institute of Physical and Chemical Research), Prof. Y. Kojima (Laboratory of Nuclear Science) and Dr. S. Ishino (Department of Nuclear Engineering, Tokyo Univ.) are acknowledged for RI treatments, Linac irradiation and sample preparation (Ge), respectively.

Appendix

It seems appropriate to mention here of the giant quadrupolar splitting due to the pairing of cobalt (or strictly 14.4 keV isomer of Fe-57) with charged defects, since this phenomenon recently found provides a strong means for defect study.^{2,4)}

Fig.3 shows schematically the rearrangements of 3d orbitals by the action of tetrahedral (in general, cubic) and axial ($C_{\infty v}$) crystal fields. Generally Hund's spin maximum rule is valid in the former case to produce small electric field gradient (-proportional to quadrupolar splitting) due to *d*-electrons. Upon the pair formation, the defect charge Z_e , whose potential being unbalanced at the nuclear site, makes split the crystal field orbitals by a large extent, often to yield low spin configurations.

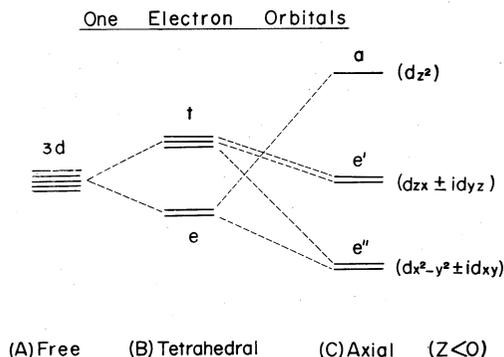


Fig.3.

The maximum values of the e.f.g. can be found in Fig.4. It is to be noted that possibilities exist such that two or more sets of doublets appear simultaneously if the electrostatic interaction between electrons is taken into account. An example: quadrupolar doublet with separation up to 1.2 cm/sec (!) can be expected from Fig.4 for d^5 or d^6 configurations and in fact has been detected in a number of substances.⁵⁾

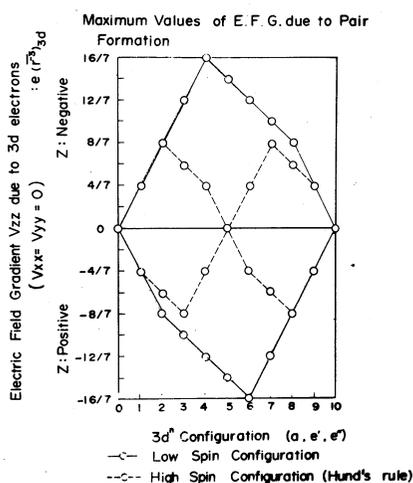


Fig.4.

Second, it is interesting that the e.f.g. axis practically coincides with the pair axis, which allows one to study, not merely the direction of the pair, but the reorientation motions of these by measuring angular dependence of the intensity ratio, $I(3/2 - 1/2) / I(1/2 - 1/2)$, of the doublet. Karyagin-Goldanskii effect appears for probe nuclei loosely bound in the lattice to modify largely the e.f.g. anisotropy, from which additional informations can be derived.

References

- 1) J.W. Corbett: Solid State Physics, Supl.7, F. Seitz and D. Turnbull, eds.
- 2) K. Matsui, R.R. Hasiguti and H. Onodera: Proc. 1970 Intern. Conf. on Radiation Effects in Semiconductors, Albany.
- 3) G.K. Wertheim: Proc. 2nd Intern. Conf. on Moessbauer Effect, Sacley.
- 4) K. Matsui.
- 5) K. Matsui, E. Yagi and A. Ohkawa: to be submitted shortly to "Solid State Communications".

Ⅲ 放射線化学部門

Ⅲ-1 残留核法による光核破碎反応の研究

理学部化学 齋藤達弥, 野村紘一, 加藤豊明

I Photonuclear reactions leading to ^{24}Na and ^{28}Mg (Tatsuya Saito)

Abstract: Photonuclear reaction yields of ^{24}Na and ^{28}Mg in magnesium, aluminium, silicon, phosphorus and sulfur were obtained at energies between 20 MeV and 250 MeV by the induced radioactivity method. The $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ yield was used as a standard for the beam monitor.

The excitation curves of the reactions $^{27}\text{Al} \rightarrow ^{24}\text{Na}$, $^{28}\text{Si} \rightarrow ^{24}\text{Na}$, $^{30}\text{Si} \rightarrow ^{28}\text{Mg}$, $^{31}\text{P} \rightarrow ^{24}\text{Na}$, $^{31}\text{P} \rightarrow ^{28}\text{Mg}$, $^{32}\text{S} \rightarrow ^{24}\text{Na}$ and $^{32}\text{S} \rightarrow ^{28}\text{Mg}$ were obtained from the yields by the photon difference method. Each of these excitation functions indicates the peak in the 50-70 MeV energy range, except in the case of sulfur target, and the peak is due to the contribution from compound nucleus process. In the energy range from 70 MeV up to 150 MeV, the cross sections are due to the contribution from the quasi-deuteron process. At energies above 150 MeV up to 250 MeV, the quasi-deuteron and pion production processes are competing.

Introduction

In the low energy region, photonuclear reactions have been studied and these informations have been obtained.¹⁻³⁾ Above the giant resonance region, the informations about the photonuclear cross sections and the reaction mechanisms are very scarce.

Many workers have investigated high energy reactions induced by high energy charged particles and the details of these mechanisms are by now well-known.⁴⁾

The mechanism of high energy nuclear reactions, cascade evaporation process, is currently regarded as providing the proper description for reactions initiated by particles with incident energies large in comparison with the binding energies of the nucleons within the target nucleons.^{5,6)} Similar reactions

induced by high energy bremsstrahlung of maximum energy greater than 100 MeV was expected. In order to explain the high energy photonuclear reactions, several experiments were reported previously on the yields and cross sections by the activation method.^{7 - 9)}

The purpose of the present experiments is to obtain the information about the character of interaction of photons with nuclei in the energy range from 20 MeV up to 250 MeV. Especially, the work reported here is to improve our understanding of these high energy photonuclear processes that occur at energies above the low energy giant resonance region.

Experimental

The target elements used in this experiments were magnesium, aluminium, silicon, phosphorus, sulfur, carbon and gold. A thin sheet of gold was used to determine the relative intensity of the bremsstrahlung dose to which each of the samples were irradiated. The experimental methods were essentially described in detail in previous papers.^{10 - 12)}

The electron beam in the energy region from 30 MeV to 75 MeV, accelerated by the "High Current" accelerating section of the machine produced bremsstrahlung in a 3 mm thick platinum converter. In the energy region from 100 MeV to 250 MeV, the electron beam accelerated by the "High Energy" accelerating section produced bremsstrahlung in a 0.2 mm thick tantalum converter.

After irradiation, the target samples were transferred into each "cold" aluminium foil. The γ -ray spectra were measured at a suitable counting geometry by using a 36 cm³ Ge(Li) detector coupled to a TMC 1024-channel pulse-height analyzer or a 3" ϕ \times 3" NaI(Tl) crystal coupled to a Toshiba 800-channel pulse-height

analyzer.

Results

A disintegration rate was determined by absolute calculation, i.e., chemical yield, counting efficiencies, branching ratio and internal conversion ratio.

The intensity integrated over the time of irradiation was standardized by means of the $^{12}\text{C}(r, n)^{11}\text{C}$ reaction, whose absolute yield had been measured as a function of the peak bremsstrahlung energy up to 250 MeV by Barber et al.¹³⁾

The yield was expressed by the following equation,¹⁰⁾

$$Y(E) = \frac{D_0}{I \cdot M \cdot (1 - e^{-\lambda t})}$$

where D_0 is the disintegration rate at the end of irradiation, I is the radiation dose rate, M is the amount of target nucleus expressed in atoms and λ is the decay constant.

The yield curves for the reactions $^{25}\text{Mg}(r, p)^{24}\text{Na}$, $^{27}\text{Al} \rightarrow ^{24}\text{Na}$, $^{28}\text{Si} \rightarrow ^{24}\text{Na}$, $^{31}\text{P} \rightarrow ^{24}\text{Na}$ and $^{32}\text{S} \rightarrow ^{24}\text{Na}$ together with the curve $^{11}\text{C}(r, n)^{11}\text{C}$ for the monitor reaction are shown in Fig.1 and 2, and those for the reactions $^{30}\text{Si}(r, 2p)^{28}\text{Mg}$, $^{31}\text{P}(r, 3p)^{28}\text{Mg}$ and $^{32}\text{S}(r, 4p)^{28}\text{Mg}$ are shown in Fig.3.

The cross section curves for the reactions $^{27}\text{Al} \rightarrow ^{24}\text{Na}$, $^{28}\text{Si} \rightarrow ^{24}\text{Na}$, $^{30}\text{Si}(r, 2p)^{28}\text{Mg}$, $^{31}\text{P} \rightarrow ^{24}\text{Na}$, $^{31}\text{P}(r, 3p)^{28}\text{Mg}$, $^{32}\text{S} \rightarrow ^{24}\text{Na}$ and $^{32}\text{S}(r, 4p)^{28}\text{Mg}$ calculated by the photon difference method¹⁴⁾ are shown in Figs.4-7, respectively.

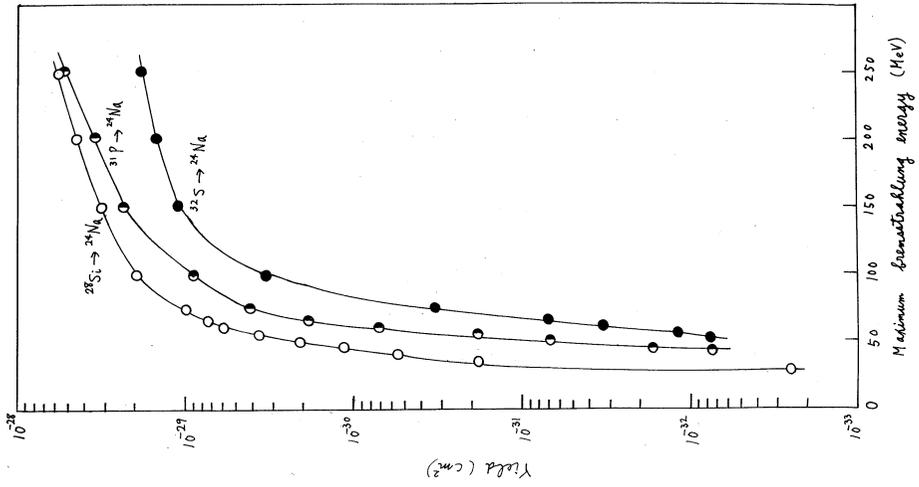


Fig. 2. The yield curves for the reactions $^{28}\text{Si} \rightarrow ^{24}\text{Na}$, $^{31}\text{P} \rightarrow ^{24}\text{Na}$, and $^{32}\text{S} \rightarrow ^{24}\text{Na}$.

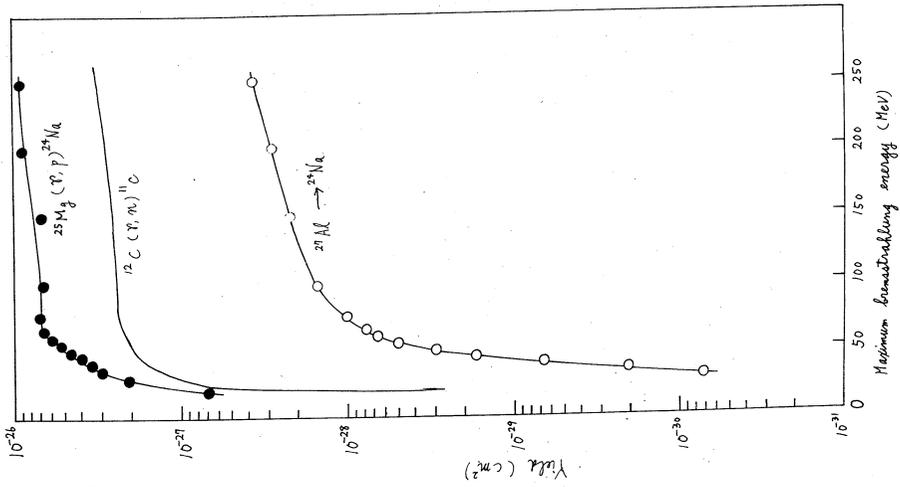


Fig. 1. The yield curves for the reactions $^{25}\text{Mg}(\gamma, p)^{24}\text{Na}$, $^{27}\text{Al} \rightarrow ^{24}\text{Na}$ and $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ as a monitor.

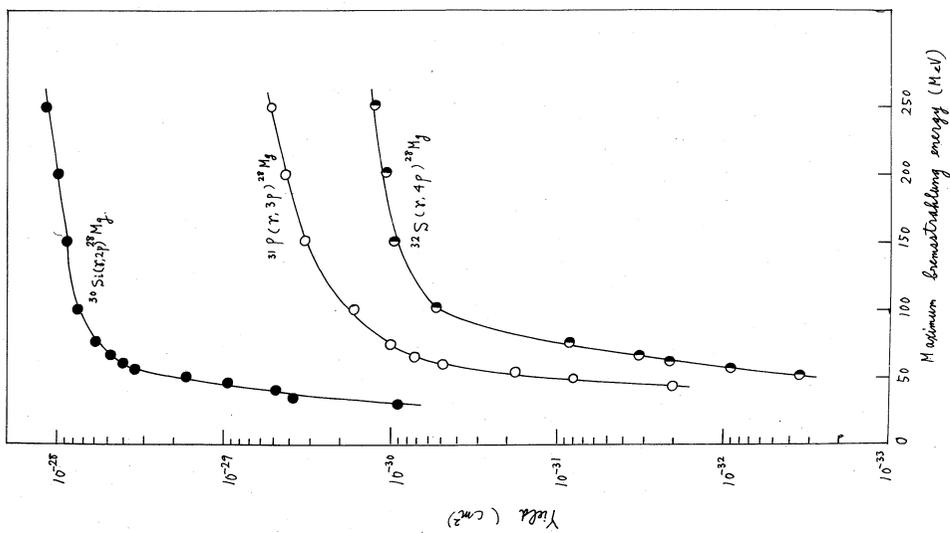


Fig.3. The yield curves for the reactions $^{30}\text{Si}(r,2p)^{28}\text{Mg}$, $^{31}\text{P}(r,3p)^{28}\text{Mg}$ and $^{32}\text{S}(r,p)^{28}\text{Mg}$.

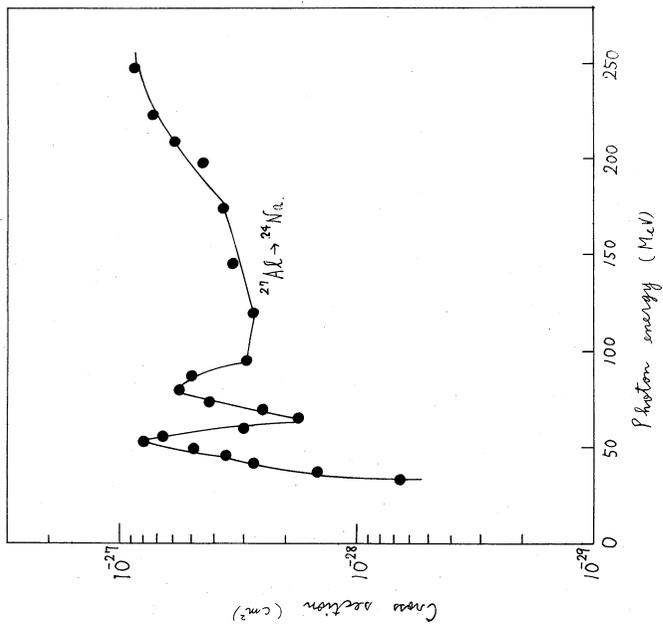


Fig.4. The excitation function for the reaction $^{27}\text{Al} \rightarrow ^{24}\text{Na}$

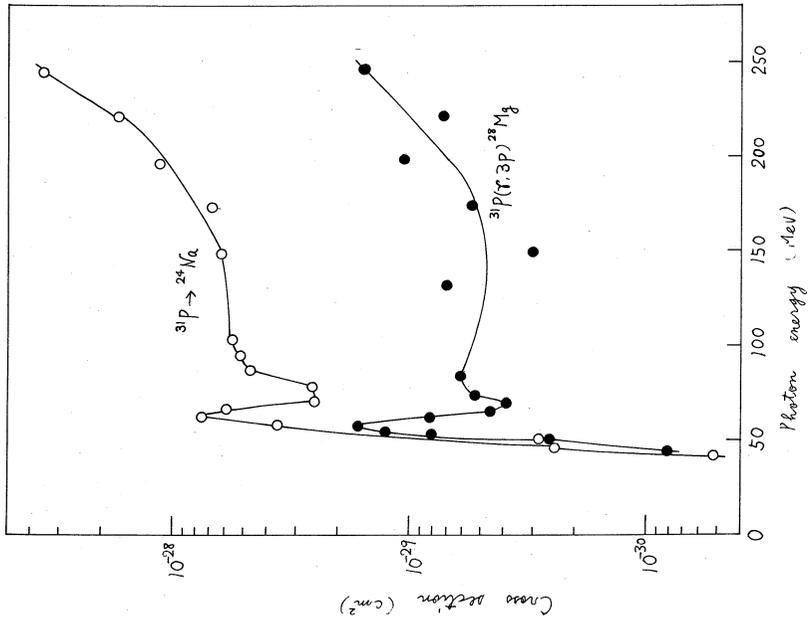


Fig.5. The excitation functions for the reactions $^{28}\text{Si} \rightarrow ^{24}\text{Na}$ and $^{31}\text{P}(r, 2p)^{28}\text{Mg}$.

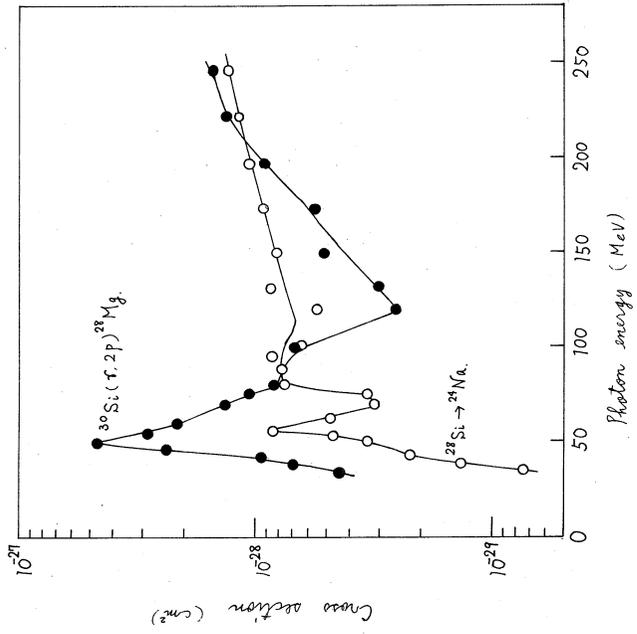


Fig.6. The excitation functions for the reactions $^{31}\text{P} \rightarrow ^{24}\text{Na}$ and $^{31}\text{P}(r, 3p)^{28}\text{Mg}$.

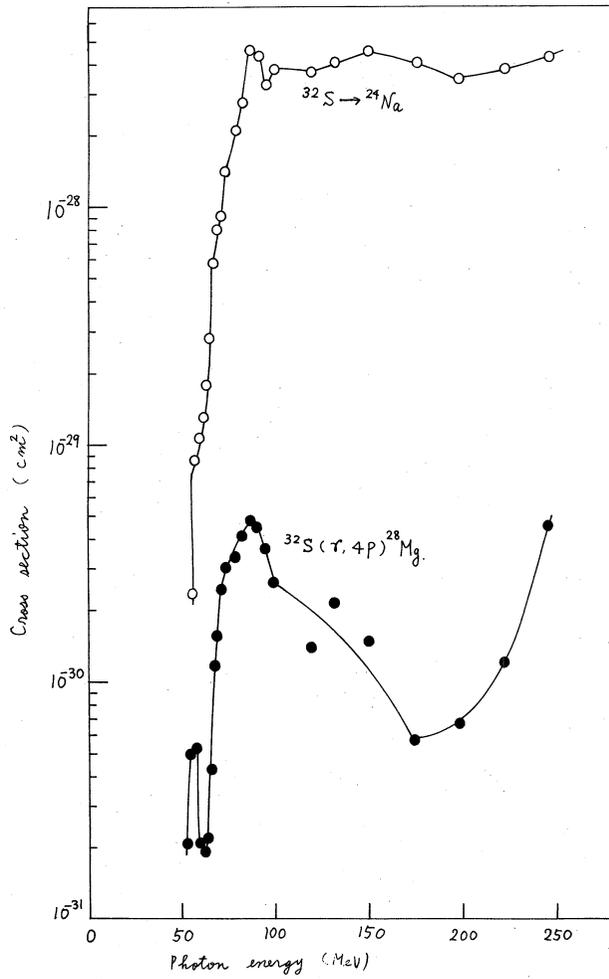


Fig.7. The excitation functions for the reactions $^{32}\text{S} \rightarrow ^{24}\text{Na}$ and $^{32}\text{S}(\gamma, 4p)^{28}\text{Mg}$.

Discussion

Reaction path

To consider the reaction path leading ^{24}Na and ^{28}Mg , Table 1 and 2 list the reaction types and these mass threshold values which were calculated on the bases of the mass differences.¹⁵⁾

Table 1. Calculated Mass Thresholds leading to ^{24}Na

Target nuclide	Abundance (%)	Reaction type	Eth(-Q)(MeV)
^{25}Mg	10.03	(r, p)	12.06
^{26}Mg	11.17	(r, pn)	25.94
		(r, d)	20.93
^{27}Al	100	($r, 2pn$)	31.41
		(r, dp)	29.20
		($r, {}^3\text{He}$)	23.71
^{28}Si	92.21	($r, 3pn$)	42.99
		($r, d2p$)	40.77
^{29}Si	4.70	($r, 3p2n$)	51.47
		($r, d2pn$)	49.24
		($r, \alpha p$)	23.19
^{30}Si	3.09	($r, 3p3n$)	62.08
		($r, d2p2n$)	59.85
		($r, \alpha pn$)	33.80
^{31}P	100	($r, 4p3n$)	69.36
		($r, \alpha 2pn$)	41.17
		($r, \alpha 3p2n$)	67.14
		($r, 3dp$)	62.69
		($r, {}^7\text{Be}$)	31.78
^{32}S	95.0	($r, 5p3n$)	78.22
		($r, \alpha 3pn$)	49.94
		($r, d4p2n$)	76.00
^{33}S	0.760	($r, 5p4n$)	86.86
		($r, 2\alpha p$)	39.61
		($r, d4p3n$)	84.63
^{34}S	4.22	($r, 5p5n$)	98.27
		($r, 2\alpha pn$)	41.71
		($r, d4p4n$)	96.05
^{36}S	0.014	($r, 5p7n$)	115.13
		($r, 2\alpha p3n$)	58.56
		($r, d4p6n$)	113.84

Table 2. Calculated Mass Thresholds leading to ^{28}Mg

Target nuclide	Abundance (%)	Reaction type	Eth(-Q)(MeV)
^{30}Si	3.09	($r, 2p$)	23.99
^{31}P	100	($r, 3p$)	31.27
^{32}S	95.0	($r, 4p$)	40.13
^{33}S	0.760	($r, 4pn$)	48.76
		($r, d3p$)	46.58
^{34}S	4.22	($r, \alpha 2p$)	31.91
		($r, d3pn$)	57.96
		($r, 4p2n$)	60.19
^{36}S	0.014	($r, 2\alpha$)	20.48
		($r, 4d$)	68.15
		($r, 4p4n$)	77.04

In the case of magnesium target, the reaction $\text{Mg} \rightarrow ^{24}\text{Na}$ was assumed to be attributed to the $^{25}\text{Mg}(r, p)^{24}\text{Na}$ reaction. The reaction $^{27}\text{Al} \rightarrow ^{24}\text{Na}$ can result from three different processes ($r, ^3\text{He}$), (r, dp) and ($r, 2pn$) whose thresholds are 23.71, 29.20 and 31.41 MeV, respectively. Since the registration of the corresponding activity from aluminium target began at energies around the thresholds of the (r, dp) and ($r, 2pn$) reactions, it is obvious that, of the three, the two latter processes play the most substantial parts. The yield of the reaction $\text{Si} \rightarrow ^{24}\text{Na}$ is the sum of the yields of the reactions $^{28}\text{Si} \rightarrow ^{24}\text{Na}$, $^{29}\text{Si} \rightarrow ^{24}\text{Na}$ and $^{30}\text{Si} \rightarrow ^{24}\text{Na}$.

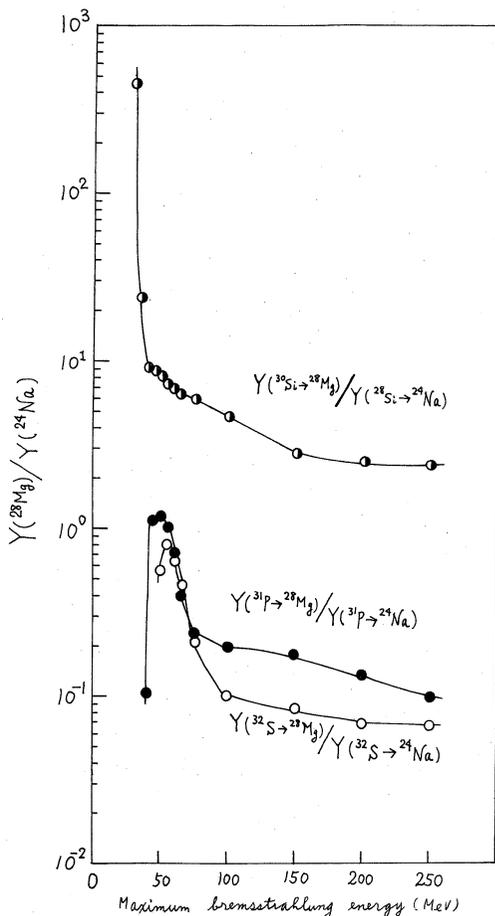
It can be assumed that the yields of the reactions $^{29}\text{Si} \rightarrow ^{24}\text{Na}$ and $^{30}\text{Si} \rightarrow ^{24}\text{Na}$ are negligibly small, because the isotopic abundances of ^{29}Si and ^{30}Si are the minor values of 4.70% and 3.07%, respectively. The reaction $^{31}\text{P} \rightarrow ^{24}\text{Na}$ is the result of a large number of reactions of which the energetically most convenient reaction ($r, ^7\text{Be}$) has a threshold 31.78 MeV and the energetically least convenient reaction ($r, 4p7n$) has a threshold 69.36 MeV.

The experimental threshold of the ^{24}Na yield from ^{31}P is in the neighborhood of 45 MeV in Fig.2. This indicates that

in this reaction processes involving the emission of complex particles, i.e., α -particle, the reaction type $(r, 4p7n)$ plays a substantial part. The yields of the reaction $S \rightarrow {}^{24}\text{Na}$ is the sum of the yields of the reactions ${}^{32}\text{S} \rightarrow {}^{24}\text{Na}$, ${}^{33}\text{S} \rightarrow {}^{24}\text{Na}$, ${}^{34}\text{S} \rightarrow {}^{24}\text{Na}$ and ${}^{36}\text{S} \rightarrow {}^{24}\text{Na}$. But, the reactions ${}^{32}\text{S}(r, 5p3n){}^{24}\text{Na}$ and ${}^{32}\text{S}(r, \alpha 3pn){}^{24}\text{Na}$ play the substantial parts.

In order to understand the results of these experiments, the existence of α -particle grouping within the nuclei must be considered.

Reaction paths leading to ${}^{28}\text{Mg}$ are the reactions ${}^{30}\text{Si}(r, 2p){}^{28}\text{Mg}$, ${}^{31}\text{P}(r, 3p){}^{28}\text{Mg}$, and ${}^{32}\text{S}(r, 4p){}^{28}\text{Mg}$, if the reactions ${}^{33}\text{S} \rightarrow {}^{28}\text{Mg}$, ${}^{34}\text{S} \rightarrow {}^{28}\text{Mg}$ and ${}^{36}\text{S} \rightarrow {}^{28}\text{Mg}$ are neglected.



Photonuclear reaction yield ratio

The yield ratios of $Y(^{28}\text{Mg})$ to $Y(^{24}\text{Na})$ were computed for silicon, phosphorus and sulfur and shown in Fig.8. It is of interest that the yield ratio curves of phosphorus and sulfur indicate the existence of the peak but that of silicon does not indicate it, because each target nuclides leading to ^{24}Na and ^{28}Mg is not the same one. In the peak energy region, it is assumed that the contribution of compound nucleus process decreases and that of the quasi deuteron process increases.

Photonuclear reaction cross sections

In Figs.5-7, the low energy peak is shown for each figure. In order to explain this, the compound nucleus model which is in good agreement with relative low energy experimental data, is considered. At photon energies exceeding about 50 MeV, the energy and momentum of the photon are also absorbed by a group of nucleons which leaves the nucleus, transferring to it only a part of the energy. One such mechanism proposed by Levinger¹⁶⁾ is the quasi deuteron mechanism. After quasi deuteron absorption, a neutron and a proton share the energy of the incoming photon and either escape from the nucleus or undergo collisions with other nucleons. In the light nuclei region, it may be very scarce that a neutron or a proton undergoes collisions with other nucleons and stays in the nucleus.

The reaction types leading to ^{28}Mg investigated here, i.e., $(r, 2p)$, $(r, 3p)$ and $(r, 4p)$ do not include in the emission of neutrons. On the contrary, the reaction types leading to ^{24}Na , i.e., $(r, 3pn)$, $(r, 4p3n)$, $(r, \alpha 2pn)$ and others, involve in the emission of neutron. Therefore, the reaction cross sections leading to ^{28}Mg may be small values, if the cross sections depend on the quasi deuteron process. In the energy region between 70 MeV

and 150 MeV, each of the cross section data leading to ^{28}Mg is shown relatively lower value compared with the peak cross section data, but that leading to ^{24}Na is almost the same value as the peak cross section data. In the energy region between 100 MeV and 150 MeV, it is difficult to explain the cross section data by the compound nucleus model and the quasi deuteron model is suitable to explain the data.

At energies above 150 MeV which is pion threshold energy, the quasi deuteron and pion production processes are competing. In the case of contribution to the reaction cross section from processes associated with pion production, two types of mechanism must be considered. One involves those events in which pion are produced and emitted from the nucleus. The other involves events in which pions are produced and then re-absorbed within the nucleus.

For the light nuclei, pion re-absorption process is generally less than 10% of those for pion emission.¹⁷⁾ In the energy region between 150 MeV and 250 MeV, photo pion reaction is the sum of the productions of both charged and neutral pions. For example, the reaction $^{27}\text{Al} \rightarrow ^{24}\text{Na}$ is now added the following photoreaction, i.e., $^{27}\text{Al}(\gamma, \pi^0 2pn)^{24}\text{Na}$, $^{27}\text{Al}(\gamma, \pi^+ p 2n)^{24}\text{Na}$, $^{27}\text{Al}(\gamma, \pi^- 3p)^{24}\text{Na}$, etc. Therefore, many reaction paths must be considered for the photon absorption processes in complex nuclei, if the pion productions take part in the reaction observed. On the high energy photonuclear reaction mechanisms, the quasi deuteron and pion production processes must be considered at an initial cascade process, but, the evaporation process may be considered after cascade process.

Recoil study

It is very difficult to obtain informations about photonuclear reaction mechanisms by the velocity measurements

for protons and neutron ejected in these complex reactions. In order to gain more informations, measurements of angular distributions of emitted particles were needed. Radiochemical techniques were suitable for observations of the recoil properties of the heavy residual nuclei.

The target foils used in this experiments were 3.12 mg/cm^2 magnesium and 4.57 mg/cm^2 aluminium. These were in all cases considerably thicker than the fragment ranges and were surrounded by recoil catchers consisting of 3.14 mg/cm^2 Mylar foils. The fraction of the ^{24}Na atoms that recoiled from the target into the Mylar catchers was measured by using a $3'' \phi \times 3'' \text{NaI(Tl)}$ crystal coupled to a 800-channel pulse-height analyzer. A number of thick target recoil experiments was performed in the energy range from 30 MeV to 250 MeV. The results of the recoil studies were shown in Fig.9. The listed quantities, FW and BW, were the

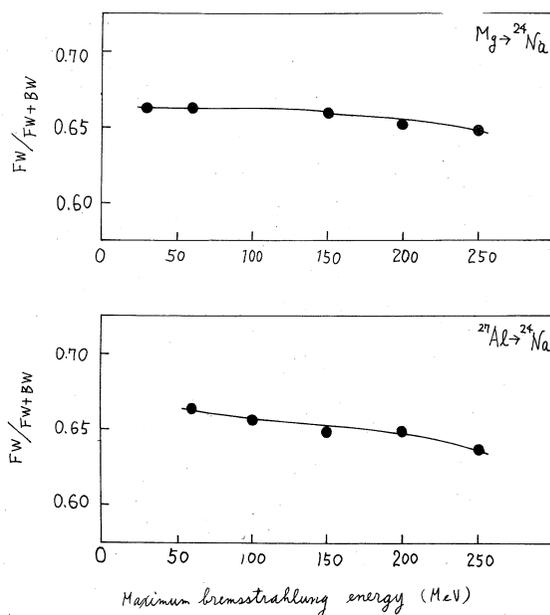


Fig.9. Recoil fraction rate for the reactions $^{25}\text{Mg}(\gamma, p)^{24}\text{Na}$ and $^{27}\text{Al} \rightarrow ^{24}\text{Na}$.

fragments of the ^{24}Na atoms recoiling into the forward and backward fraction, respectively. All of these data were shown in laboratory system. It is assumed that the $\text{FW}/(\text{FW} + \text{BW})$ value shows the angular distribution of the ^{24}Na fragment.

The reaction $^{25}\text{Mg}(\gamma, p)^{24}\text{Na}$ is due to the contribution from the compound nucleus process at low energy region.¹⁸⁾ Gorbunov et al.¹⁹⁾ assumed that at energies above 60 ~ 80 MeV, the interaction of photons with nuclei proceeds mainly via photon absorption by a group to intranuclear nucleons. But, as seen in Fig.9, in the energy range from 30 MeV to 60 MeV, the $\text{FW}/(\text{FW} + \text{BW})$ value of the reaction $^{25}\text{Mg}(\gamma, p)^{24}\text{Na}$ is the same value of the reaction $^{27}\text{Al} \rightarrow ^{24}\text{Na}$. Therefore, it will be concluded that the low energy peak of the reactions $^{27}\text{Al} \rightarrow ^{24}\text{Na}$, $^{28}\text{Si} \rightarrow ^{24}\text{Na}$, $^{30}\text{Si} \rightarrow ^{28}\text{Mg}$, $^{31}\text{P} \rightarrow ^{24}\text{Na}$, and $^{31}\text{P} \rightarrow ^{28}\text{Mg}$ are due to the contribution from the compound nucleus process.

References

- 1) R. Montalbetti, L. Katz and Goldemberg, Phys. Rev., **91**, 659 (1953).
- 2) R. Nathans and J. Halpern, *ibid.*, **93**, 437 (1954).
- 3) B.L. Berman, J.T. Caldwell, R.R. Harvey, M.A. Kelly, R.L. Bramblett and S.C. Fultz, *ibid.*, **162**, 1096 (1967).
- 4) J.M. Miller and J. Hudis, Ann. Rev. Nucl. Sci., **9**, 159 (1959).
- 5) K. Chen, Z. Fraenkel, G. Friedlander, J.M. Miller and Y. Shimamoto, Phys. Rev., **166**, 949 (1968).
- 6) R.G. Korteling and A.A. Caretto Jr., *ibid.*, C1, 1960 (1970).
- 7) R.J. Debs, J.T. Eisinger, A.W. Fairhall, I. Halpern and H.G. Richter, *ibid.*, **97**, 1325 (1955).
- 8) I. Halpern, R.J. Debs, J.T. Eisinger, A.W. Firehall and H.G. Richter, *ibid.*, **97**, 1327 (1955).

- 9) T.T. Sugihara and I. Halpern, *ibid.*, **101**, 1768 (1956).
- 10) Y. Oka, T. Kato, K. Nomura and T. Saito, *Bull. Chem. Soc. Japan*, **40**, 575 (1967).
- 11) Y. Oka, T. Kato, K. Nomura and T. Saito, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **4**, 346 (1967).
- 12) Y. Oka, T. Kato and I. Nagai, *ibid.*, **4**, 300 (1967).
- 13) W.C. Barber, W.D. George and D.D. Reagan, *Phys. Rev.*, **98**, 73 (1955).
- 14) A.S. Penfold and J.E. Leiss, *ibid.*, **114**, 1332 (1959).
- 15) G. Friedlander, J.W. Kennedy and J.M. Miller, "Nuclear and Radiochemistry", 2nd edn., J. Wiley and Sons, New York, London (1964), p533.
- 16) J.S. Levinger, *Phys. Rev.*, **84**, 43 (1951).
- 17) R.A. Meyer, W.B. Walters and J.P. Hummel, *Nucl. Phys.* **A122**, 606 (1968).
- 18) M.E. Toms and W.E. Stephens, *Phys. Rev.*, **84**, 43 (1951).
- 19) A.N. Gorbunov, F.P. Denisov and V.A. Kolotukhin, *Soviet Phys. JETP*, **11**, 783 (1960).

II 250MeV制動放射線による $^{43, 48}\text{Sc}$ の生成

(野村 紘一)

1 緒言

高エネルギー γ 線による破砕型核反応の研究は陽子を主とする荷電粒子を用いる核反応に比べてあまり行なわれていない。従前これを系統的に研究した例は、Halpernら¹⁾の $E_{\gamma \text{ max}} = 320\text{MeV}$ でのヒ素ターゲットからのヒ素-銅領域の光破砕反応収率の検討、Jonssonら²⁾の $^{127}\text{I}(\gamma, xnyp)$ 反応に関する報告がみられる程度である。当研究室では光破砕反応生成物の質量分布や荷電分布を調べる目的で、東北大学のライナックを用いて $^{133}\text{Cs}(\gamma, 2pxn)$ $^{120\sim 131}\text{I}$ 反応の収率、 ^{133}Cs および ^{139}La の光破砕反応についてすでに報告した。^{3,4)}これらの研究はいずれも"fixed target"である。本研究では中核のスカンジウム核種を"fixed product"として選び、バナジウムから銅に至る7種の元種をターゲットとして、 $E_{\gamma \text{ max}} = 250\text{MeV}$ で照射し、照射後、各試料からスカンジウムを化学的に分離し、 γ 線スペクトロメトリーによって、その収率を求めた。得られた結果をHalpernら¹⁾のヒ素-銅領域の結果と比較検討した。

2 実験

ターゲットとして用いた試料は、 ^{51}V (天然組成: 99.76%), クロム(平均質量: 51.966), ^{55}Mn (天然組成: 100%), 鉄(平均質量: 55.8), ^{56}Fe (99.9% enrich), ^{59}Co (天然組成: 100%), ニッケル(平均質量: 58.71)および銅(平均質量: 63.55)である。これらの一定量200mg~1gに金箔を線束モニターとして添付して照射した。照射は250MeVの電子ビームを0.2mm Taに於て、未変換の電子を除去した制動放射線で、1~3時間行なった。

スカンジウム核種の分離は、照射後の各試料にスカンジウムの担体10mgを加えて溶解した後、pH 1.8に調整し、0.5M TTA-キシレン溶液でスカンジウムを抽出した。なお、銅ターゲットではあらかじめ硫化物として銅を除去し、鉄ターゲットでは、塩酸溶液からエチルエーテルで鉄を抽出除去したあとで、スカンジウムを抽出した。抽出液から2N塩酸溶液で逆抽出したあと、水酸化物として沈殿、灼熱して酸化スカンジウムとして、化学収率を求めた。

γ 線測定は36cc Ge(Li)あるいは24cc Ge(Li)検出器と1024cPHAで行なった。

3 結果および考察

各ターゲットから分離して得られたスカンジウム核種の γ 線スペクトルから $^{43}\text{Sc}(T_{1/2} =$

3.92 hr), ^{44m}Sc ($T_{1/2} = 2.44 \text{ d}$), ^{44g}Sc ($T_{1/2} = 3.92 \text{ hr}$), ^{46}Sc ($T_{1/2} = 84.9 \text{ d}$), ^{47}Sc ($T_{1/2} = 3.44 \text{ d}$) および ^{48}Sc ($T_{1/2} = 1.83 \text{ d}$) の6核種の生成が確認された。それぞれの核種に起因する光電ピークの面積を照射終了時における dps 値として求め、ターゲット核1モル当りの飽和生成量に換算し、同様にして求めた $^{197}\text{Au}(\gamma, n)^{196}\text{Au}$ 反応の ^{196}Au の収率値との比をとって相対収率とした。得られた相対収率の値と放出粒子数(陽子+中性子)との関係を図1に示す。ここで ^{44}Sc の

収率値は ^{44m}Sc と ^{44g}Sc の収率値の和として示した。また、クロム、鉄、ニッケルおよび銅では結果は平均質量を用いて取り扱った。本研究においては、反応生成物として着目した核種が同一質量数の系列の核種の β^- , β^+ あるいは EC 壊変によっても生成する可能性がある。すなわち、 ^{43}Sc は ^{43}Ti ($T_{1/2} = 0.56 \text{ sec}$) の EC 壊変で、 ^{47}Sc は ^{47}Ca ($T_{1/2} = 4.53 \text{ d}$) の β^- 壊変でも生成する。 ^{47}Sc については照射後直ちに化学分離することによって、収率値に対する ^{47}Ca の影響を無視できる程度に減らし得た。

しかし、 ^{43}Sc の収率は、 $^{43}\text{Ti} \xrightarrow{EC} ^{43}\text{Sc}$ の収率との和であらわすべきものである。

天然組成の鉄ターゲットと ^{56}Fe

濃縮ターゲットについての収率値はほとんど差がみられない。これは天然組成の鉄が ^{56}Fe の存在度、91.6%であるため、他の安定同位体の影響が少ないことによるものと考えられる。

^{51}V 以外の核からのスカンジウム核種の収率分布曲線は parabolic form となり、Two-step model が適用できる過程で生成したものと理解できた。これらの曲線において極大の位置に相当するスカンジウム核種の質量数はほぼ 45.2 と読みとることができる。質量数

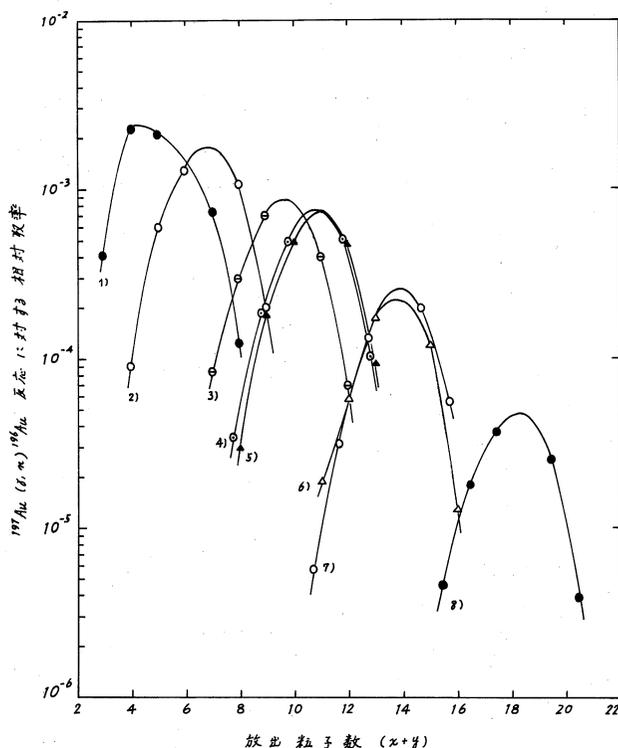


図1 ^{51}V , Cr, ^{55}Mn , Fe, ^{56}Fe , ^{59}Co , Ni, Cu ($\gamma, xnyp$) $^{43}\sim^{48}\text{Sc}$ の相対収率と放出粒子数の関係, target: 1) ^{51}V , 2) Cr (平均質量 52), 3) ^{55}Mn , 4) Fe (平均質量 55.85), 5) ^{56}Fe , 6) ^{59}Co , 7) Ni (平均質量 58.71) 8) Cu (平均質量 63.55)

45.2に相当する最確荷電(Z_A)は20.77と計算され、 $Z_A=21.00$ を与える質量数は45.75と求められた。すなわち、クロム-銅領域の核からスカンジウム核種を生成する場合、極大を与える質量数と核エネルギー曲面のstable lineとの間に移行がみられ、中性子過少核種の収率が高いことを示している。この結果はHalpernらの結果とよく一致している。この中性子過少側への移行は、 ^{139}La , ^{133}Cs からのヨウ素核種、アンチモン核種などの質量分布曲線では2~3質量単位と求められている。⁴⁾ 重い核では核内カスケード過程につぐ蒸発過程でクーロン障壁の影響が著しいため、陽子放出は抑制され、中性子放出が主になるのに対し、銅附近の核からのスカンジウム核の生成に対しては、この影響は顕著に現われない。このことは、この領域の核では(r, p)反応が(r, n)反応とほぼ同程度に起こることからも理解できる。^{5,6)} ^{59}Co とNi(平均質量:58.71)の場合の収率曲線を比較すると、極大附近で大差がないが、ターゲットの質量数がほぼ同じであるためと考えられる。

このように($r, xnyp$)反応($y \geq 3$)の収率分布曲線はparabolicとなり、"fixed product"の収率は放出粒子数に対し $(1.40)^{x+y}$ の関係でほぼ指数関数的に減少している。生成核種がターゲット核に近いバナジウムの場合についてみると、制動輻射線による照射結果では、より中性子が過剰でターゲット核に近い $^{47,48}\text{Sc}$ の生成は α 粒子放出を伴うような反応、すなわち、より低いエネルギーの r 線で誘起される反応の寄与が増えると考えられる。曲線の対称性が悪いのはこの原因によると考えられる。このことはSugiharaら⁷⁾の報告でも同様の考察がなされ、 $^{75}\text{As}(r, 2pxn)$ 反応で生成するガリウム同位体の収率曲線を制動輻射の最大エネルギーを140MeVおよび320MeVとして求めたところ140MeVの場合に中性子過剰核種の収率が相対的に高く得られ、両曲線の差を観察したときには、parabolicな曲線となり、その対称の中心はstable lineと一致した。この原因としてSugiharaらは α 粒子放出反応の寄与を指摘している。本研究の $^{51}\text{V}(r, 2pxn)$ 反応についても同様の考えが適用できるはずである。

中核領域の"fixed target"の実験結果では、¹⁾ 収率は親核の原子番号と生成核のその差(ΔZ)に対して指数関数的に減少すると言われたが、本実験の"fixed product"の結果を同様に取り扱ってみたのが図2である。図にみられるように規則的な起伏のある曲線が得られた。 ^{46}Sc の場合が最も直線に近いが ^{46}Sc は最確荷電21.00に相当する質量数45.75に最も近い。 ^{46}Sc よりも N/Z 比の大きい $^{47,48}\text{Sc}$ については、クロム、鉄およびニッケルで収率が極小を示し、小さい核、すなわち $^{43,44}\text{Sc}$ では、クロム、鉄およびニッケルで収率が極大を示す。クロム、鉄およびニッケルからは、それぞれ($r, 3pxn$)、($r, 5pxn$)および($r, 7pxn$)と奇数の陽子を放出する反応でスカンジウム核種を生成することと関連すると考えられ

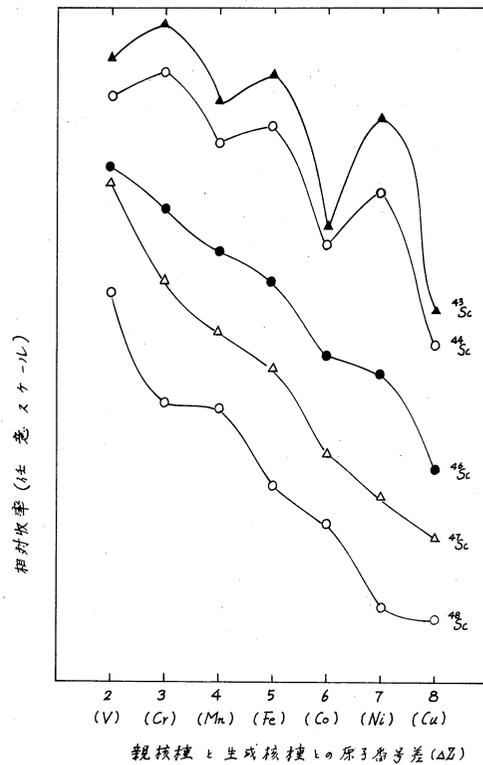


図 2

る。この点については、核構造と反応機構の双方から今後検討するつもりである。

最後に、この実験を行なうにあたり、お世話いただいた核理研ライナック machine groupの方々およびRI実験室の方々に感謝致します。

文 献

- 1) I. Halpern, R. J. Debs, J. T. Eisinger, A. W. Fairhall and H. G. Richter, Phys. Rev., **97**, 1327(1955).
- 2) G. G. Jonsson and B. Persson, Nuclear Physics Report, LUNP 7001 (March, 1970).
- 3) T. Kato, H-T. Tsai and Y. Oka, Bull. Chem. Soc., **43**, 576 (1970).
- 4) 蔡 恵沢, 核理研報告, **3**, No. 1, 117(1970).
- 5) Y. Oka, T. Kato, K. Nomura and T. Saito, Bull. Chem. Soc., **40**, 575(1967).

- 6) Y. Oka, T. Kato, K. Nomura, T. Saito and H-T. Tsai, Bull. Chem. Soc., 41, 380(1968).
- 7) T. T. Sugihara and I. Halpern, Phys. Rev., 101, 178(1956).

III-2 Chemical Effects Associated with EC and β^+ -Decay of $^{57}\text{Ni}(\text{II})$ Complexes in Aqueous Solutions

Takashi Omori, Shaw-Chii Wu,
Kunisuke Tsurumaki †) and
Takanobu Shiokawa

* Department of Chemistry, Faculty
of Science, Tohoku University,
Katahira, Sendai, Japan.

In the solid phase, a relatively large amount of ^{57}Co -
(III) species is found as a result of EC and β^+ -decay
of ^{57}Ni -labeled hexamminenickel(II) complex.¹⁾ Although
formation of the Co(III) species is considered to be
resulted from the Auger ionization following the electron
capture, a certain fraction of the coordinated Co(III)
species may also be formed as a consequence of reentry
of the degraded cobalt ion into a neighboring nickel
complex through exchange reaction.²⁾ Furthermore, the
yield of ^{57}Co (III) species in the nickel(II)-complex
matrix is appreciably affected by the nature of the outer-
sphere anion.¹⁾ Accordingly, the formation mechanism of
the ^{57}Co (III) species in the solid phase is rather compli-
cated and cannot be explained simply based on the ioniza-
tion through the Auger cascade.

In order to simplify these complicated effects on the
formation of the recoil ^{57}Co (III) species, the present
investigation was carried out in aqueous solution systems.
As the complexing agents, ammonia, ethylenediamine(en),
propylenediamine(pn) and ethylenediaminetetraacetic acid
(EDTA) were used.

EXPERIMENTAL

All the reagents used were of guaranteed-reagent grade.

†) Present address: Power Reactor and Nuclear Fuel Development
Corporation, Minato-ku, Tokyo.

Nickel oxide was irradiated by bremsstrahlung of maximum energy of 40 MeV with an electron linear accelerator at Tohoku University. Prior to synthesis, ^{57}Co produced by EC and β^+ -decay of ^{57}Ni and by (γ, p) reaction was separated by an anion exchange method.³⁾

The solution of $^{57}\text{Ni(II)}$ -complex was prepared by dissolving $^{57}\text{NiCl}_2$ in known amount of the complexing agent solution containing the Co(II) and Co(III) carriers, and was allowed to stand in a constant-temperature bath. All the reactions except for the EDTA complex were carried out in an atmosphere of purified nitrogen. Since the complexing agent is present in a large excess over the metal ion, all the nickel(II) and cobalt(II) ions seem to form the desired complexes.

The ^{57}Co -labeled species were separated by means of a cation exchange method. In the hexamminenickel(II) complex system, the hydrogen ion concentration of aliquots withdrawn at suitable intervals was adjusted to 0.1 M and then the recoil species were separated with reference to the procedure reported by Ikeda et al.⁴⁾ In the ethylenediamine and propylenediamine complexes, the hydrogen ion concentration of the aliquots was adjusted to 0.1 M and the solution was passed through a Dowex 50W-X8 column (9 mm ϕ \times 120 mm, 100 - 200 mesh, H-form). Separation of $^{57}\text{Co}^{2+}$ and $^{57}\text{CoCl}_2(\text{en})_2^+$ ($^{57}\text{CoCl}_2(\text{pn})_2^+$) was achieved by using 1 M ammonium tartrate solution as an eluant. Finally trisethylenediamine- or trispropylenediamine-cobalt(III) complex was eluted with 6 N hydrochloric acid. In the EDTA complex, the hydrogen ion concentration of the aliquots was adjusted to 0.5 M. Under this condition, only the $^{57}\text{Co(II)}$ -EDTA complex decomposed to Co^{2+} ion, which was separated from the $^{57}\text{Co(III)}$ -EDTA on a Dowex 50W-X8 column (9 mm ϕ \times 100 mm,

100 - 200 mesh, H-form). In all cases, the $^{57}\text{Co(II)}$ -fraction was further separated from ^{57}Ni by using an anion exchange column under concentrated acid solution.³⁾

Radioactivity of ^{57}Co was measured with an NaI(Tl) well-crystal connected with a 100 channel pulse height analyzer.

RESULTS

In the hexamminenickel(II) complex, the following ^{57}Co recoil species are separated: $^{57}\text{Co}^{2+}$, $^{57}\text{CoCl}(\text{NH}_3)_5^{2+}$ and $^{57}\text{Co}(\text{NH}_3)_6^{3+}$. As is seen in Table 1, the yield of $^{57}\text{Co}(\text{NH}_3)_6^{3+}$ increases initially at the expense of $^{57}\text{CoCl}(\text{NH}_3)_5^{2+}$ -yield, and then reaches a plateau value. In an alkaline solution, base hydrolysis of the $\text{CoCl}(\text{NH}_3)_5^{2+}$ takes place.⁵⁾ Thus, upon separation, the hydrolysis product, $^{57}\text{Co}(\text{OH})(\text{NH}_3)_5^{2+}$, is neutralized and appears in the $\text{Co}(\text{NH}_3)_6^{3+}$ -fraction.

Table 1.

Yield of $^{57}\text{Co(III)}$ species formed by the decay of ^{57}Ni -labeled hexamminenickel(II) ion in the aqueous phase

(25° C)

$[\text{Ni(II)}] = 2.92 \times 10^{-2} \text{ M}$; $[\text{Co(II)}] = 1.46 \times 10^{-2} \text{ M}$;

$[\text{Co}(\text{NH}_3)_6^{3+}] = 1.23 \times 10^{-2} \text{ M}$.

Time (day)	Yield of $^{57}\text{Co}(\text{NH}_3)_6^{3+}$ (%)			Yield of $^{57}\text{CoCl}(\text{NH}_3)_5^{2+}$ (%)		
	$[\text{NH}_3]$ = 5.5 M pH	6.5 M	7.5 M	5.5 M	6.5 M	7.5 M
	10.0	10.2	10.3	10.0	10.2	10.3
1	6.3	6.7	6.9	1.6	1.1	0.6
2	7.5	7.6	7.4	1.0	0.4	0.2
4	8.0	8.4	7.8	0.3	0.1	0.1
6	8.3	8.6	8.8	0.1	<0.05	<0.05
8	8.3	8.3	8.3	<0.05	-	-
10	8.2	8.9	8.4	-	-	-
12	8.4	8.4	8.7	-	-	-
26	8.6	9.0	8.5	-	-	-

According to the formation constants of the nickel(II) ammine complexes,⁶⁾ substantially all the nickel(II) ions exist in the hexamminenickel(II) complex under the experimental condition. Table 1 also shows that distribution of the recoil ^{57}Co formed by the decay of $^{57}\text{Ni}(\text{NH}_3)_6^{2+}$ complex is independent of the concentration of the ammonia.

In the ethylenediamine complex, the recoil ^{57}Co atoms are distributed only between Co^{2+} and $\text{Co}(\text{en})_3^{3+}$, and no bis-ethylenediamine complexes were detected as is shown in Table 2. When the concentration of the ethylenediamine is higher than 0.6 M, the $^{57}\text{Co}(\text{en})_3^{3+}$ -yield is essentially constant, being independent of the ethylenediamine concentration and reaction time. At 0.4 M ethylenediamine, a minute amount of ^{57}Ni would exist as the bisethylenediamine complex.⁶⁾ Therefore, the low $^{57}\text{Co}(\text{en})_3^{3+}$ -yield at 0.4 M ethylenediamine could be understood by

Table 2.

Yield of $^{57}\text{Co}(\text{en})_3^{3+}$ formed by the decay of ^{57}Ni -labeled trisethylenediaminenickel(II) ion in the aqueous phase (25°C)

$$[\text{Ni(II)}] = 2.92 \times 10^{-2} \text{ M}; [\text{Co(II)}] = 1.46 \times 10^{-2} \text{ M};$$

$$[\text{Co}(\text{en})_3^{3+}] = 1.65 \times 10^{-2} \text{ M}.$$

Time (day)	Yield of $^{57}\text{Co}(\text{en})_3^{3+}$ (%)			
	[en] = 0.4 M pH 10.2	0.6 M 10.4	0.8 M 10.5	1.0 M 10.6
1	6.2	7.5	7.7	7.6
2	6.0	7.6	7.8	8.0
4	5.9	7.0	7.5	7.9
6	6.0	8.0	7.3	8.1
8	6.5	7.4	8.1	8.2
10	6.3	7.0	8.6	8.0
12	6.3	7.3	8.0	8.4
26	6.0	7.6	7.9	8.5

taking into account the differences in the conditions of the parent complexes. In the propylenediamine complex, the similar results were obtained as is shown in Table 3.

Table 3.

Yield of $^{57}\text{Co}(\text{pn})_3^{3+}$ formed by the decay of ^{57}Ni -labeled trispropylenediaminenickel(II) ion in the aqueous phase (25°C)

$[\text{Ni}(\text{II})] = 2.92 \times 10^{-2} \text{ M}$; $[\text{Co}(\text{II})] = 1.46 \times 10^{-2} \text{ M}$;
 $[\text{Co}(\text{pn})_3^{3+}] = 1.56 \times 10^{-2} \text{ M}$.

Time (day)	Yield of $^{57}\text{Co}(\text{pn})_3^{3+}$ (%)			
	[pn] = 0.4 M	0.6 M	0.8 M	1.0 M
	pH 10.3	10.4	10.5	10.6
1	6.9	8.3	8.3	8.4
2	6.7	8.5	8.1	8.4
4	6.5	8.1	7.9	8.0
6	6.8	7.8	8.0	7.7
8	7.1	8.2	8.9	8.8
10	7.0	8.3	8.4	8.4
12	6.3	7.9	8.5	8.5
26	6.8	8.0	8.1	8.7

In the EDTA complex, the results are summarized in Table 4. The yield of the $^{57}\text{Co}(\text{III})$ species is independent of the pH and the reaction time, but it depends slightly on the temperature. It should be noticed that the yield is lower than that in the other complexes studied here. In Table 4, the results obtained in the absence of the carrier of the $\text{Co}(\text{II})$ and $\text{Co}(\text{III})$ complexes are also listed. In this case, the yield of the $^{57}\text{Co}(\text{III})$ -EDTA increases with the lapse of the reaction time. This anomalous feature will be attributed to the air-oxidation of the $^{57}\text{Co}(\text{II})$ -EDTA complex in carrier-free state.

Table 4.

Yield of $^{57}\text{Co(III)-EDTA}$ complex formed by the decay of ^{57}Ni labelled Ni(II)-EDTA complex in the aqueous phase
 $[\text{Ni(II)-EDTA}] = 2.0 \times 10^{-2} \text{ M}$; $[\text{EDTA}]_{\text{free}} = 3 \times 10^{-3} \text{ M}$

a) Results in the presence of Co(II) -and Co(III)-EDTA carriers.

Temperature ($^{\circ}\text{C}$)	Time (day)	Yield of $^{57}\text{Co(III)-EDTA}$ (%)				
		pH 3.0	3.5	4.0	4.5	5.0
0	3	3.8	3.8	3.7	4.0	3.1
	6	4.0	4.6	4.1	4.8	3.5
	10	4.5	4.2	4.4	4.5	4.7
	17	4.5	4.2	3.7	4.2	4.0
	20	4.0	3.9	4.2	3.9	4.2
	38	4.1	4.0	3.8	4.1	3.8
25	3	5.6	4.8	5.0	4.7	3.8
	5	5.3	5.4	5.3	4.7	3.9
	9	5.1	5.2	5.3	4.9	4.0

$[\text{Co(II)-EDTA}] = [\text{Co(III)-EDTA}] = 1.0 \times 10^{-2} \text{ M}$

b) Results in the absence of cobalt complex carriers.

Temperature ($^{\circ}\text{C}$)	Time (day)	Yield of $^{57}\text{Co(III)-EDTA}$ (%)				
		pH 3.0	3.5	4.0	4.5	5.0
0	1	6.0	-	5.8	6.0	6.0
	2	7.7	9.8	8.3	-	5.0
	4	10.2	10.2	10.0	-	6.5
	7	11.1	12.3	12.9	10.2	7.5
	12	12.6	13.1	12.0	11.0	6.2

DISCUSSION

About 53 per cent of the decay events of ^{57}Ni is the EC process and the remainder is the β^+ -decay.⁷⁾ The immediate effect of the β^+ -decay of the $^{57}\text{Ni(II)}$ complex will be the formation of the univalent cobalt species and this cobalt complex would be found as the Co(II) species. On the other hand, the electron-capture is usually followed by the Auger vacancy cascade, which would result in a multiply charged species. When the ^{57}Ni

is incorporated in a complex ion, the multiple charges of the daughter cobalt ion are rapidly distributed all over the molecule by the intramolecular electron-transfer. Therefore, exhaustive fragmentation of the molecule takes place as a consequence of the Auger event. In this case, the recoil ^{57}Co will be found in the divalent state. In practice, since charge spectrum of the daughter ion is continuous and possesses a maximum point,⁸⁾ there is a possibility that a certain fraction of the daughter ion can escape from the fragmentation, being found as the coordinated Co(III) species. Thus, the lowest $^{57}\text{Co(III)}$ -yield of ca. 4.5 per cent in the EDTA complex system is considered to be an upper limit for the probability of loss of one electron at the lower end of the charge spectrum, because the oxidation of the $^{57}\text{Co(II)}$ complex by air and the electron-transfer between Co(II) and Co(III) complexes⁹⁾ can be ignored. Strictly speaking, contribution of the oxidation process following the electron shake-off due to a sudden change in the nuclear charge should also be considered.^{8,10)}

In the hexamminecobalt(III) complexes, thermal decomposition is initiated by the electron-transfer from the outer-sphere anion,¹¹⁾ while in the Co(III)-EDTA complex decomposes thermally by the electron-transfer from the coordinated group of the EDTA molecule.¹²⁾ If we assume that this electron-transfer mechanism can be applied to the exhaustive decomposition of the multiply-charged daughter complex in the liquid phase, in the EDTA complex the multiply-charged daughter complex will be reduced by an intramolecular electron-transfer. On the other hand, an intermolecular electron-transfer reaction will take place simultaneously in the other complexes. If the latter reaction takes place in the neutralization of the multiple charges, the daughter complex will be stabilized as the coordinated Co(III) state without

any change in the inner-sphere configuration. Therefore, the fact that the yield of $^{57}\text{Co(III)}$ species is lower in the EDTA complex than in the other complexes may be explained by taking into account the reductive nature of the EDTA molecule.

ACKNOWLEDGEMENT

We wish to express our thanks to Dr. M. Yagi, Dr. K. Kondo and the operating group of LINAC for their kind arrangement for the bremsstrahlung irradiation.

REFERENCES

- 1) T. Omori, S.C. Wu and T. Shiokawa, *Radiochem. Radioanal. Letters*, **3**, 405 (1970).
- 2) A. Nath, S. Khorana, P.K. Mathur and S. Sarup, *Ind. J. Chem.*, **4**, 51 (1966); A. Nath, M.P. Klein, W. Kündig and D. Lichtenstein, *Radiation Effects*, **2**, 211 (1969).
- 3) G.E. Moore and K.A. Kraus, *J. Am. Chem. Soc.*, **74**, 843 (1952).
- 4) N. Ikeda, K. Yoshihara and S. Yamagishi, *Radiochim. Acta*, **3**, 13 (1964).
- 5) F. Basolo and R.G. Pearson, "Advances in Inorganic Chemistry and Radiochemistry," (ed. H.J. Emeléus and A.G. Sharpe), Academic Press Inc., New York (1961), Vol. 3, p.25.
- 6) L.G. Sillén and A.E. Martell, "Stability Constants of Metal-Ion Complexes," The Chemical Society, London (1964).
- 7) C.M. Lederer, J.M. Hollander and I. Perlman, "Table of Isotopes," (Sixth edition), John Wiley & Sons, New York (1967).
- 8) S. Wexler, "Actions Chimiques et Biologiques des Radiations," (ed. M. Haissinsky), Masson, Paris (1965), Vol.8, p.180.
- 9) D.R. Stranks, "Modern Coordination Chemistry," (ed. J.

Lewis and R.G. Wilkins), Interscience Publishers Inc.,
New York (1960), p.163.

- 10) T. Shiokawa and T. Omori, Bull. Chem. Soc. Japan, **42**, 696
(1969); T. Shiokawa, H. Kido and T. Omori, Bull. Chem. Soc.
Japan, **43**, 2076 (1970).
- 11) N. Tanaka and K. Nagase, Bull. Chem. Soc. Japan, **40**, 546
(1967).
- 12) K. Nagase and N. Tanaka, Bull. Chem. Soc. Japan, **43**, 2093
(1970).

III-3 気相系における $\text{CH}_3\text{Br}-\text{Br}^{80\text{m}}\text{Br}$ および $\text{CH}_3\text{Br}-\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$ の核異性体転移にともなう化学的效果

核理研・理学部化学*

八木益男・近藤健次郎・小林孝彰*

塩川孝信*

§1 緒言

$^{82\text{m}}\text{Br}$ および $^{80\text{m}}\text{Br}$ の核異性体転移で生成する娘核 ^{82}Br および ^{80}Br は、高い陽電荷をおびると同時に、それらが属する source molecule 内での電子移動にひき続く Coulomb 反発で、時にはかなりの運動エネルギーを取得するにいたる。¹⁾ したがって $^{82\text{m}}\text{Br}$ および $^{80\text{m}}\text{Br}$ の核異性体転移にともなう化学的效果、特にそれらの再結合過程を検討する場合には、それらのもつ電荷と運動エネルギーに最大の注意が払われなければならない。

著者らは先に CH_4 にたいする $^{80\text{m}}\text{Br}$ の核異性体転移にともなう化学的效果を検討し、 $\text{CH}_4-\text{Br}^{80\text{m}}\text{Br}$ 系では $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ および $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$ の一部は運動エネルギー依存過程によってもたらされるが大部分の $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$ の生成はイオン-分子反応過程をへてもたらされ、一方 $\text{CH}_4-\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$ 系では、両生成物ともイオン-分子反応過程のみをへて生成されることを明らかにした。またこれは $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$ を source molecule とした場合、 ^{80}Br の取得する運動エネルギーは高々 1 eV 過程であるのにたいし、 $\text{Br}^{80\text{m}}\text{Br}$ を source molecule とした場合のそれは、平均 40 eV にも達し、この取得運動エネルギーにおける差によるためとして説明した。^{2,3,4,5)}

一方立川⁶⁾らおよび Rack⁷⁾らは $\text{CH}_3\text{Br}-\text{Br}^{82\text{m}}\text{Br}$ 系においては、ともにイオン-分子反応過程はほとんど無視しうることを報告し、これは CH_3Br のイオン化電圧 (10.53 eV) が Br^+ (11.84 eV) のそれより低いためであり、イオン化電圧の高い CH_4 (12.99 eV) にたいするより、生成物の生成機構にかなり差があることを指摘した。

そこで本研究においては、先の $\text{CH}_4-\text{Br}^{80\text{m}}\text{Br}$ および $\text{CH}_4-\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$ 系における $^{80\text{m}}\text{Br}$ の核異性体転移にともなう化学的效果と、 $\text{CH}_3\text{Br}-\text{Br}^{80\text{m}}\text{Br}$ および $\text{CH}_3\text{Br}-\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$ 系での同様効果、立川⁶⁾ および Rack⁷⁾ による $\text{CH}_3\text{Br}-\text{Br}^{82\text{m}}\text{Br}$ 系でのそれらを、それぞれ比較し ^{80}Br の CH_3Br にたいする反応機構を一層明らかにすることを試みた。

§ 2 実 験

CH_3Br は東京化成工業製のものを真空ラインで3回蒸留し、その中留分を用いた。KrおよびXeは高千穂化学工業最高純度品(それぞれ99.9%以上)をそのまま使用した。他の一般試薬は純正化学製特級品を用いた。

$\text{Br}^{80\text{m}}\text{Br}$ および $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$ の調製、試料の調製、有機収率および各生成物生成比の測定は、先の $\text{CH}_4\text{-Br}^{80\text{m}}\text{Br}$ および $\text{CH}_4\text{-H}^{80\text{m}}\text{Br}$ 系における実験法にすべて準じておこなった。²⁾

ただし試料の全圧は、ほぼ600mmHgに保ち、各生成物のガスクロマトグラフによる分析は、内径3mm、長さ1.5mのカラムに80~100メツシユ Celite 545(silicon oil DC 703 20%添加)を充填し、40~130°Cでおこなった。

§ 3 結 果

2個のGM管(Aloka GM-2003)を使用したラジオガスクロマトグラフによって、いずれの系においても $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ 、 $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$ および $\text{CHBr}_2^{80}\text{Br}$ が生成されることを確めた。また $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$ と $\text{CHBr}_2^{80}\text{Br}$ の間に $\text{CH}_3\text{CHBr}^{80}\text{Br}$ と思われる痕跡程度の生成物を認めた。これらはいずれもRackら⁷⁾が $\text{CH}_3\text{Br-Br}^{82\text{m}}\text{Br}$ 系で検出した生成物と全く一致した。立川ら⁶⁾は同様系で $\text{CH}_3\text{CH}_2^{82}\text{Br}$ の生成を報告したが、それに相当する $\text{CH}_3\text{CH}_2^{80}\text{Br}$ の生成は全く認められなかった。

$\text{CH}_3\text{Br-H}^{80\text{m}}\text{Br}$ および $\text{CH}_3\text{Br-Br}^{80\text{m}}\text{Br}$ 系におけるHBrあるいは Br_2 の添加モル分率にたいする有機収率および各生成物収率の変化は、それぞれ図1および図2に示した。ただし

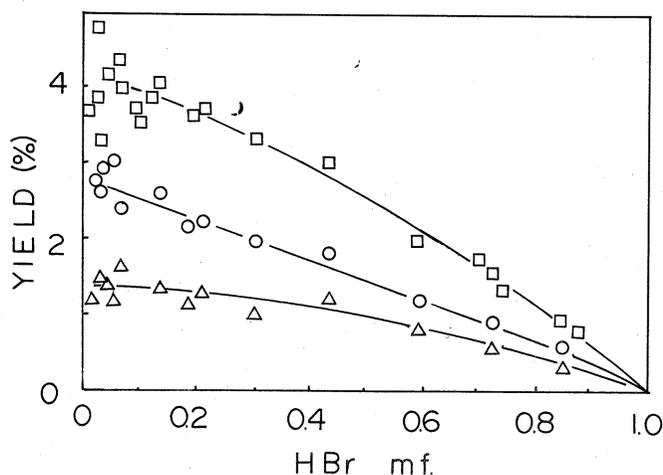


図1 $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br-CH}_3\text{Br}$ 系における収率に対するHBr添加の効果
 □: 有機収率 ○: $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ △: $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$

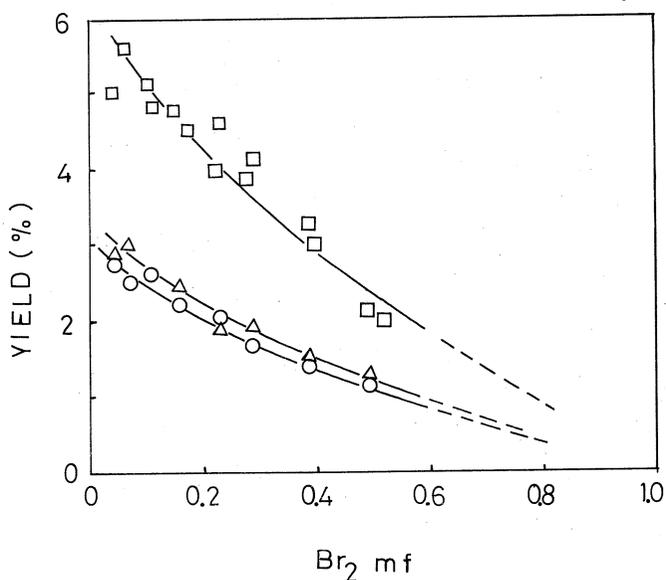


図2 Br^{80m}Br-CH₃Br系における収率に対するBr₂添加の効果
 □ : 有機収率 ○ : CH₃⁸⁰Br △ : CH₂Br⁸⁰Br

CH₃CHBr⁸⁰BrおよびCHBr₂⁸⁰Br収率はともに低い値のため省略した。

図1および図2から明らかなように、先にCH₄-Br^{80m}BrおよびCH₄-H^{80m}Br系²⁾において観測したBr₂またはHBr, 0.10 m. f. 以下での有機収率における急激な減少は、本実験系においてはいずれも観測されなかった。

一方両系における有機収率はRackら⁷⁾がCH₃Br-Br^{82m}Br系でえた値の2~2.5倍の高値を示し、この事実は^{82m}Brおよび^{80m}Br間の核異性体転移にともなう化学的效果に顕著な差があることを示唆した。

CH₃Brと⁸⁰Brの反応において、もし運動エネルギーを必要とする反応、すなわち運動エネルギー依存過程が関与するならば、⁸⁰Brのための適当な減速剤を系に添加すれば、その反応は消去さるべきであり、もしその減速剤添加によっても生成物収率になんらの影響を受けぬものがあれば、それはイオン-分子反応過程をへて生成されたものとして区別することが可能となろう。

Krは⁸⁰Brと質量がほぼ等しく、かつイオン化電圧(13.99 eV)はBr⁺(11.84 eV)のそれより高い。またXeの質量は約1.6倍であり、そのイオン化電圧(12.12 eV)はやはりBr⁺のそれより高い。それ故、これら希ガス元素の系への添加は上記検討に最適なものとすることができる。

そこでCH₃Br-H^{80m}Br系においてはHBr/CH₃Br=0.22、CH₃Br-Br^{80m}Br系ではBr₂/CH₃Br=0.18と一定比にたもち、これら試料にたいするKrおよびXeの添加による有

機収率および各生成物収率の変化を図3および図4にそれぞれ示した。ただし $\text{CH}_3\text{CHBr}^{80}\text{Br}$ および $\text{CHBr}_2^{80}\text{Br}$ 収率の表示は略した。

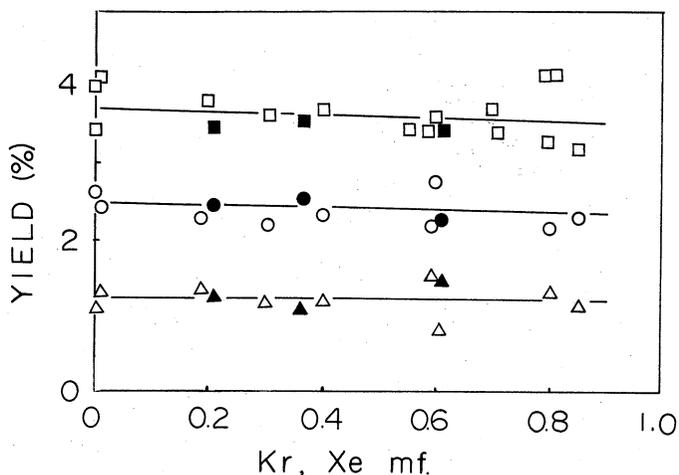


図3 HBr/ CH_3Br = 0.22系における収率に対するKrおよびXe添加による効果 (source molecule: $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$)
 a) Kr添加系 b) Xe添加系
 □: 有機収率 ■: 有機収率
 ○: $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ ●: $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$
 △: $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$ ▲: $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$

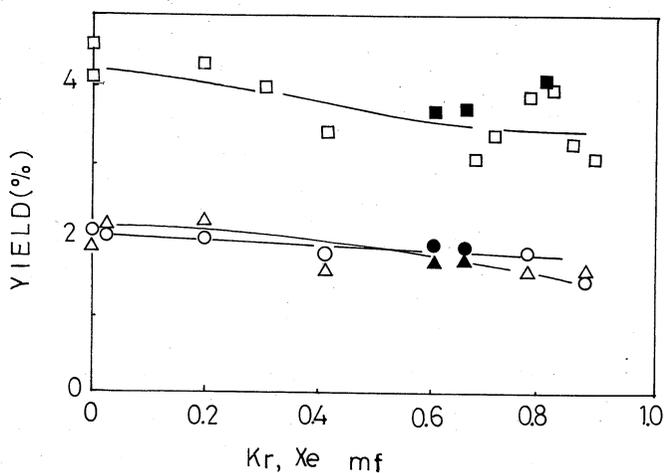


図4 $\text{Br}_2/\text{CH}_3\text{Br}$ = 0.18系における収率に対するKrおよびXe添加による効果 (source molecule: $\text{Br}^{80\text{m}}\text{Br}$)
 a) Kr添加系 b) Xe添加系
 □: 有機収率 ■: 有機収率
 ○: $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ ●: $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$
 △: $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$ ▲: $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$

図から明らかなように前者の系においては、有機収率および各生成物収率はともにKrおよびXeの添加によって影響されず、この系における全有機生成物は、いずれもイオン-分子反応過程をへてもたらされることを示した。

一方図4から後者の系においては、上記減速剤添加によって、有機収率は僅かな減少傾向を示したが、この系においてもやはり有機生成物は主としてイオン-分子反応過程をへて生成されることを示した。またこの事実は $\text{CH}_3\text{Br}-\text{Br}^{82\text{m}}\text{Br}$ 系での結果と著しく異なるものであった。

§ 4 考 察

図5に $^{82\text{m}}\text{Br}$ および $^{80\text{m}}\text{Br}$ の壊変図⁸⁾を示した。これから明らかなように、 $^{82\text{m}}\text{Br}$ は核異性体転移によって直接 ^{82}Br に転移するのに対し、 $^{80\text{m}}\text{Br}$ は7.37n-secの励起レベルをとおして2段階の転移をおこなう。前者はこの際M3転移で100%の内部転換を行い、後者の第1段はM3転移で100%の内部転換、第2段はE1転移で61%の内部転換をおこなう。

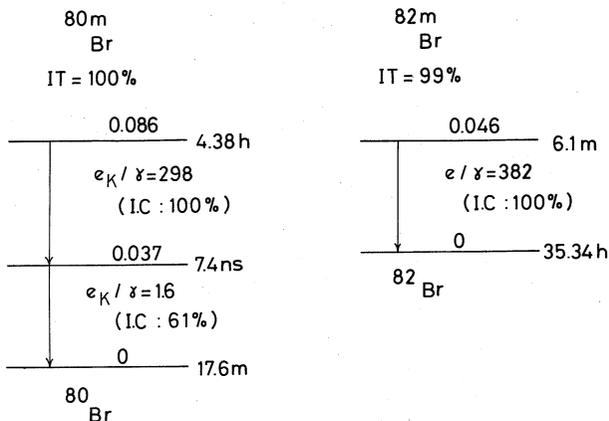
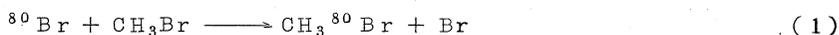


図5 Decay Schemes of $^{80\text{m}}\text{Br}$ and $^{82\text{m}}\text{Br}$

先に立川らおよびRackらは $\text{CH}_3\text{Br}-\text{Br}^{82\text{m}}\text{Br}$ 系において $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$ および $\text{CH}_2\text{Br}^{82}\text{Br}$ はともに運動エネルギー依存反応過程をへて生成されることを示し、これは、 $(\text{Br}^{82})^+$ より CH_3Br のイオン化電圧が低いからイオン-分子反応過程より電荷中和反応がそれに先行して起るためであると説明した。

しかし図4から明らかなように $\text{CH}_3\text{Br}-\text{Br}^{80\text{m}}\text{Br}$ 系においては、運動エネルギー依存過程による有機生成物の収率は極めて小で、大部分はイオン-分子反応過程をへて生成されることを示した。前者による有機収率の減少には、



のような反応が一部関与しているものと考えられる。後者のイオン-分子反応過程による有機収率への大きな寄与は、 $\text{CH}_3\text{Br}-\text{Br}^{82\text{m}}\text{Br}$ 系では殆んど観測されなかったものであり、これが $\text{CH}_3\text{Br}-\text{Br}^{80\text{m}}\text{Br}$ 系で顕著に観測されたことは甚だ興味あることといわなければならない。

$\text{CH}_3\text{Br}-\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$ 系においてはイオン-分子反応過程のみによって全有機生成が生成されることを示したが、この事実との関連において $\text{CH}_3\text{Br}-\text{Br}^{80\text{m}}\text{Br}$ 系におけるイオン-分子反応過程を考えてみるのも興味あるものかもしれない。すなわち、 ${}^{80\text{m}}\text{Br}$ の第一段転移による100%の内部転換から7.4n-sec ${}^{80}\text{Br}$ は引続くAuger効果、さらに起る分子内電荷移動、クーロン反発により平均40eVに達する運動エネルギーをうるにいたる。これら ${}^{80}\text{Br}$ の CH_3Br への衝突、すなわち運動エネルギー依存反応で、水素引抜き反応が主として起これば、7.4n-sec ${}^{80}\text{Br}$ は大部分 H^{80}Br (7.4n-sec)として存在することになり、これらは更に引続く61%内部転換の第2段転移により、 $\text{CH}_3\text{Br}-\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$ 系における化学的效果と同様な結果を与えるものと期待される。勿論、 $\text{CH}_3\text{Br}-\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$ 系で第一段転移によって生成する7.4n-sec ${}^{80}\text{Br}$ は、取得する運動エネルギーが極めて小さく、そのためイオン-分子反応過程で主として H^{80}Br (7.4n-sec)を生成すると期待されるので、以上の考察は必ずしも否定されるべきものではない。

しかし臭素に関するイオン-分子反応の資料が極めて乏しい現時点においては、 $\text{CH}_4-\text{Br}^{80\text{m}}\text{Br}$ 系および $\text{CH}_3\text{Br}-\text{Br}^{80\text{m}}\text{Br}$ 系の相関において、より詳細な機構解明をおこなうことは、はなはだ困難といわなければならないが、本研究において観測された事実は、ホットアトム化学分野の研究を遂行するにあたって、極めて重要な問題点を投げかけたものである。

本実験をおこなうにあたり ${}^{80\text{m}}\text{Br}$ の製造に御協力いただいた東北大学電子ライナック運転クルーの方々に厚く感謝の意を表わします。

文 献

- 1) A. R. Kazanjian, W. F. Libby, J. Chem. Phys., **42**, 2778('65).
- 2) M. Yagi, K. Kondo, Radiochem. Radioanal. Letters., **5**, 75('70).
- 3) 八木, 近藤, 小林, 核理研報告, **3**, 138('70).
- 4) M. Yagi, K. Kondo, T. Kobayashi, Bull. Chem. Soc. Japan., in press.
- 5) M. Yagi, K. Kondo, T. Kobayashi 投稿予定.

- 6) J. Okamoto, E. Tachikawa, Bull. Chem. Soc. Japan., 42, 1504('69).
- 7) D. W. Oates, R. L. Ayres, R. W. Helton, K. S. Schwartz, E. P. Rack, Radiochem. Radioanal. Letters., 4, 123('70).
- 8) C. M. Lederer, J. M. Hollander, I. Perlman "Table of Isotopes" John Willey & Sons, Inc., New York (1968) pp. 215, 217.

III-4 光量子放射化分析法の研究

理学部化学 蔡 恵沢・原田 光

18~75 MeV 制動輻射による数種のアルカリおよびアルカリ土類金属元素
の光核反応収率 (蔡 恵 沢)

1 緒 言

光電子による実際の放射化分析はこれまでフッ素程度までの軽い元素が定量目的元素として扱われたものが多い。試料としては地球化学的試料や生物体試料がよく対象とされたが、これらの試料中には通常多量のアルカリおよびアルカリ土類金属元素が共存する。したがって、これを炉内中性子で放射化した場合、多量の ^{24}Na が妨害放射能として生成し、その分離が必要となる。この場合、多量の被爆を避けるため遠隔操作を必要とする場合もある。光量子放射化法ではこのような困難はなく、本法の利点の一つと云えよう。

他方、アルカリおよびアルカリ土類金属元素の (γ, n) 反応によっては ^{132}Cs 、 $^{82\text{m}}\text{Sr}$ 等の分析に利用する上に有用な核種が生じる。筆者らは内基準法を適用してこれら諸元素共存時の微量成分の定量法を得る目的で一連の研究を行ってきた。^{1~4)} 一般に定量には目的元素の (γ, n) 反応生成物が使われ、照射エネルギーは妨害反応の競合を避けるには20 MeV附近が適当であるが、より鋭敏な定量法を得るには、より高いエネルギーが望ましい。この際、各照射エネルギーにおいて同時に起る諸反応の生成量を詳細に検討しておく必要がある。この様な基礎資料を得る目的で、本研究ではルビジウム、セシウム、カルシウム、バリウムおよびストロンチウムの5元素について18~75 MeV制動輻射のエネルギー領域で起る (γ, n) 、 (γ, p) 、 (γ, pn) 等の反応収率を求め、エネルギー依存性を検討した。

2 実 験

2-1 試 料

照射試料としては市販特級品から再沈澱で精製した炭酸バリウム、炭酸ストロンチウム、炭酸カルシウムおよび特級品の塩化ルビジウムと塩化セシウム等を用い、これらをそれぞれ約200 mg採取し内径6 mmの石英管に封入し照射試料とした。線量のモニターには各試料に金箔を添附

し, ^{196}Au の生成量によって較正した。

2-2 照射および測定

東北大学理学部の 300 MeV 電子線型加速器で加速した電子ビームを厚さ 3 mm の白金コンバータにより制動輻射に変換した γ 線でコンバータ後方の水冷されたターゲットホルダー内に装着した試料を放射化した。照射は 1 時間あるいは 3 時間とした。 γ 線の測定には ORTEC 社 Ge(Li) 半導体検出器 (有効体積 24 cm^3) あるいは 8101-30P 型 (36 cm^3 , 分解能, ^{137}Cs の 661.6 KeV の γ 線に対して 4.0 KeV) および TMC 社製 1024 チャンネル波高分析器を用いた。

3 結果および考察

3-1 カルシウムの光核反応

最大エネルギーを 75 MeV までの範囲で種々にエネルギーを変えてカルシウムを照射し, (γ , p), (γ , pn) 反応等で生じる放射性カリウム核種を化学分離して γ 線スペクトロメトリーを行った。分離は, 照射後のターゲットに K^+ 担体 20 mg を加えて希塩酸に溶解し, テトラフエニルホウ素酸塩として沈澱させて行なった。本実験で確認された核種は ^{42}K および ^{43}K の 2 核種であった。カルシウムの天然同位体組成, 反応しきい値およびクーロン障壁等を考慮して主反応径路として $^{44}\text{Ca}(\gamma, p)^{43}\text{K}$ および $^{44}\text{Ca}(\gamma, pn)^{42}\text{K}$ 反応によるものと考えた。それぞれの核種に起因する光電子ピーク面積計数率から照射終了時における dps/mole 値を算出し, 飽和生成量に換算した後, $^{196}\text{Au}(\gamma, n)^{196}\text{Au}$ に対する相対収率とした。得られた結果を Fig. 1 に示した。収率はともに 45 MeV 以上でほぼ一定値を示し (γ, pn) 反応の (γ, p) 反応に対する比率はこのエネルギー領域で約 30% である。

3-2 ルビジウムおよびストロンチウムの光核反応

ルビジウムは ^{85}Rb および ^{87}Rb の 2 種の天然同位体から成り, ストロンチウムは ^{80}Sr , ^{86}Sr , ^{87}Sr および ^{88}Sr の 4 種類から成る。本実験範囲内で双方

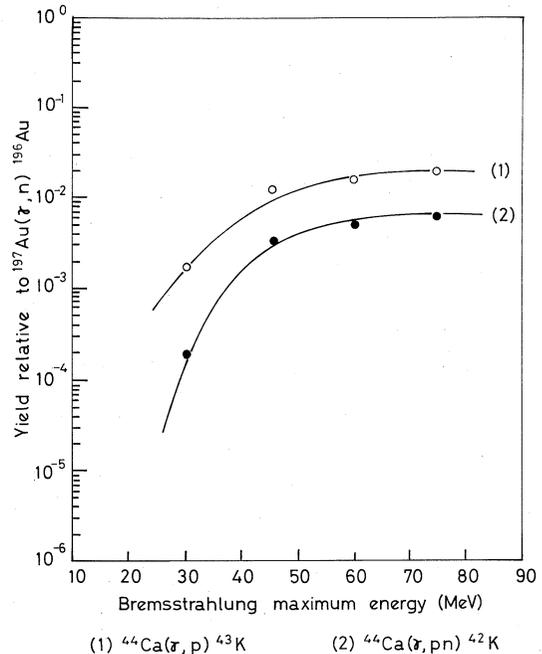


Fig. 1 The yield of potassium nuclides produced from calcium as a function of bremsstrahlung maximum energy

より生成が確認されたルビジウム核種はルビジウムからは ^{82m}Rb , ^{83}Rb , ^{84}Rb , ^{84m}Rb および ^{86}Rb の5種類であり, ストロンチウムからはこの他に ^{81}Rb も観察された。なお, ストロンチウムからルビジウムの分離法はテトラフェニルホウ素酸塩による沈澱法を採用した。3-1と同様にして求めた各反応の相対収率と最大エネルギーとの関係は Fig. 2 および Fig. 3 のとおりである。Fig. 2 から分るように $(r, 2n)$ および $(r, 3n)$ 反応では収率はエネルギー依存性が著しい。 ^{84m}Rb と ^{84g}Rb の生成比は 30 MeV では 3.7×10^{-1} , 45 MeV は 4.6×10^{-1} , 60 MeV は 4.8×10^{-1} , 75 MeV は 5.1×10^{-1} と得られ, このエネルギー領域であまり変化していない。Fig. 3 の結果から

$^{84}\text{Sr}(r, p)^{83}\text{Rb}$ 反応の収率はエネルギーの増加と共に $^{84}\text{Sr}(r, n)^{83}\text{Sr}$ の収率値に近づき, その比は 30 MeV では 0.34, 75 MeV では 0.58 などとなる。このことは最大エネルギーの増加と共に (r, p) 反応に対する直接過程の寄与が増大する結果と解される。 (r, pn) 反応の収率は 60 MeV においても (r, p) の約 10% 程度である。最大エネルギー 20 MeV 附近では (r, pn) , $(r, p2n)$ 反応はほとんど起らないから (r, n) あるいは (r, p) 反応を利用する放射化分析に妨害とならない。

3-3 セシウムおよびバリウムの光核反応

天然に存在するバリウムの同位体は 7

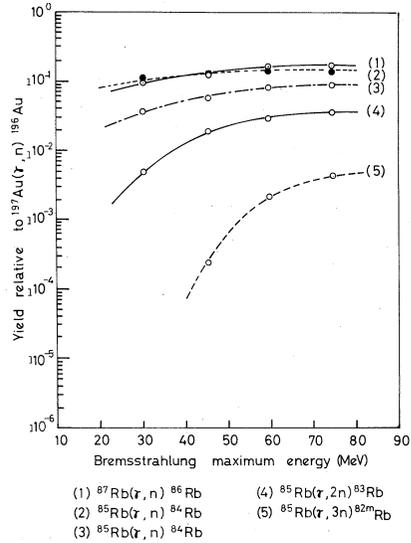


Fig. 2 The yield of rubidium nuclides from rubidium as a function of bremsstrahlung maximum energy

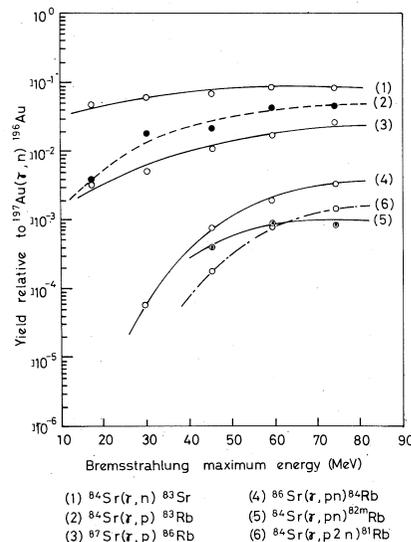


Fig. 3 The yield of rubidium nuclides produced from strontium as a function of bremsstrahlung maximum energy

種類で、セシウムは ^{133}Cs (100%)のみである。本実験では (γ, xn) , $(\gamma, 2pxn)$, $(\gamma, 3pxn)$ 反応等を検討した。バリウムからセシウムは同様にテトラフェニルホウ素酸塩として沈澱分離し、セシウムあるいはバリウムターゲットからのヨウ素核種は I^- 担体20mgを加えて希硝酸に溶解後、亜硝酸ナトリウムで酸化して四塩化炭素で抽出した。亜硫酸ナトリウム水溶液で逆抽出し、水溶液相からヨウ化銀の沈澱を得た。セシウムからは ^{132}Cs , ^{130}Cs および ^{129}Cs の3核種が得られ、バリウムからはこれらの他に ^{127}Cs , ^{134m}Cs , ^{135m}Cs および ^{136}Cs が生成した。照射エネルギーが増加すると共に

反応経路は複雑になり、一般に数種の反応が競合するようになるが、親核の存在比、反応しきい値およびクーロン障壁を考慮して主反応を推定した。Fig. 4に得られた結果を示した。 $^{132}\text{Ba}(\gamma, n)^{131}\text{Ba}$ および $^{133}\text{Cs}(\gamma, n)^{132}\text{Cs}$ 反応の収率値の間には大差はない。

$^{133}\text{Cs}(\gamma, 4n)^{129}\text{Cs}$ 反応の収率は低く、約40MeV附近から反応がおこる。また、バリウムからの ^{129}Cs についてみると、30MeVでは $^{130}\text{Ba}(\gamma, p)^{129}\text{Cs}$ 反応の他に、 $^{132}\text{Ba}(\gamma, p2n)$, $^{132}\text{Ba}(\gamma, dn)$ 等の反応がおこりはじめ、45MeV以上になると、さらに複雑

な反応が寄与し始めると考えられる。 $^{133}\text{Cs}(\gamma, n)^{132}\text{Cs}$ 反応をセシウムの定量に用いようとするときには共存するバリウムから (γ, pxn) 反応によって ^{132}Cs が生成するような条件は避けるべきでありFig. 4からこの条件は約20MeV以下と判断することが出来る。Fig. 5は $^{133}\text{Cs}(\gamma, 2pxn)$ 反応で生成するヨウ素核種の収率とエネルギーとの関係を表わしたものである。最大エネルギーが60MeVまでの範囲内で確認されたヨウ素核種としては ^{126}I , ^{130}I および ^{131}I である。エネルギーをさらに75MeVまで上げると新たに ^{121}I , ^{123}I および ^{124}I の核種が検出された。これらの相対収率はそれぞれ 5.32×10^{-5} , 2.06×10^{-6} および 1.31×10^{-6} と得られた。45MeV以下では ^{130}I および ^{131}I が生成するが、 ^{126}I は確認できなかった。 ^{126}I は $(\gamma, 2p5n)$ あるいは $(\gamma, \alpha 3n)$ 反応で生成するが両反応の荷電粒子放出に伴うクーロン障壁の抑制を受けたものとみられる。これらの結果から45MeV制動輻射による放射

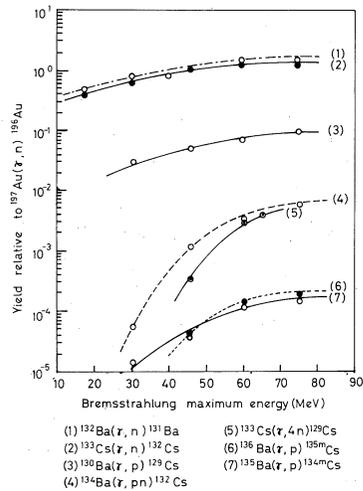


Fig. 4 The yield of cesium nuclides produced from cesium or from barium as a function of bremsstrahlung maximum energy

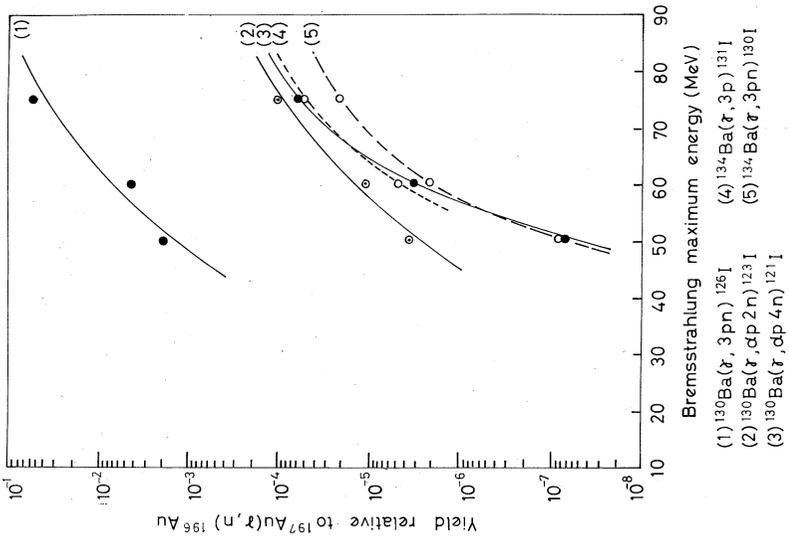


Fig. 6 The yield of iodine nuclides produced from barium as a function of bremsstrahlung maximum energy

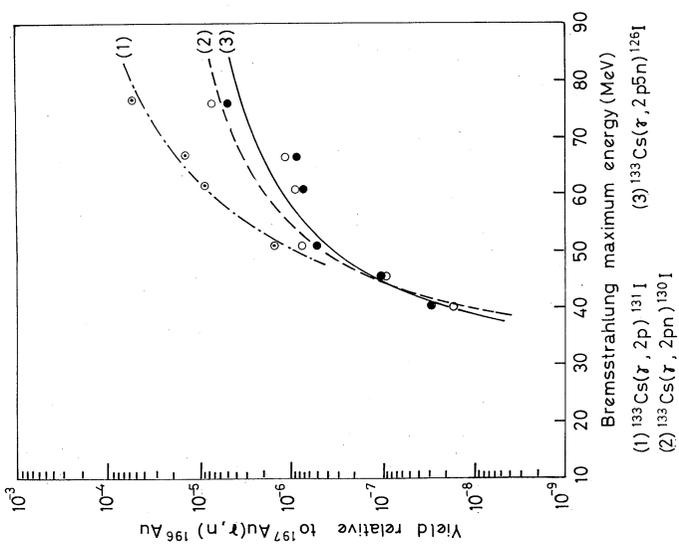


Fig. 5 The yield of iodine nuclides produced from cesium as a function of bremsstrahlung maximum energy

で $^{133}\text{Cs}(\gamma, 2pn)$ あるいは $(\gamma, 2p)$ 反応によって生じる ^{130}I あるいは ^{131}I を内基準核種とし、ヨウ素を定量することができる。この場合、セシウムから ^{126}I が生じて妨害することがなく、より鋭敏である。Fig. 6の $^{130}\text{Ba}(\gamma, 3pn)^{126}\text{I}$ 反応の収率は特異的に高い。また、 $^{130}\text{Ba}(\gamma, \alpha p 4n)^{121}\text{I}$ および $^{134}\text{Ba}(\gamma, 3pn)^{130}\text{I}$ 反応は、反応しきい値からみても50 MeV以下ではおこりえないことがわかる。

以上の結果はアルカリおよびアルカリ土類金属元素の共存時の相互の分析を行なう場合の鋭敏度や競合反応の妨害の程度を知る目的に有効に利用されると思われる。

本研究を行なうにあたり御協力いただいた核理研マシングループの方々ならびにRI実験室の皆様には厚く御礼申し上げます。

文 献

- 1) H-T. Tsai, T. Kato and Y. Oka, Bull. Chem. Soc. Japan, **43**, 2482(1970).
- 2) H-T. Tsai, T. Kato and Y. Oka, Bull. Chem. Soc. Japan, **43**, 2823(1970).
- 3) 蔡 恵沢, "セシウムを内基準元素とするルビジウムの光量子放射化分析", 日化, **92**, No. 1, (1970).
- 4) 蔡 恵沢, "バリウムを内基準元素とするセシウムの光量子放射化分析", 日化, No. 1, (1970).

III-5 ウラニル-TTA キレートの中性配位子 との付加錯体生成

選 研 秋 葉 健 一

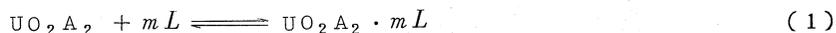
bis(thenoyltrifluoroacetato) uranium(VI) は配位座に余裕があることから、多くの lone pair をもつ中性分子と付加錯体を生成することが知られており、抽出における協同効果と関連して、多くの研究がなされてきた。しかし、溶媒抽出法では水相が共存するため、水分子の配位、試薬の分配、解離あるいは各化学種間の相互作用等の副反応を伴うため、解析の困難な系も多い。これらの影響をさけるため、溶解度法により、有機溶液中での付加錯体生成をしらべた。

方 法

LINAC 照射により生成した ^{237}U でラベルしたウラニルキレートを前回と同様にして合成した。¹⁾ キレートと中性配位子の *n*-hexane 溶液を 100 時間以上 25°C の恒温室中で振り混ぜて平衡させ、溶液の *r*-activity を測定して溶解度を求めた。溶解の際の容積変化は無視した。

結 果

キレート UO_2A_2 の配位子 *L* との付加錯体生成は次式で示される。



$$K_L = \frac{[\text{UO}_2\text{A}_2 \cdot mL]}{[\text{UO}_2\text{A}_2][L]^m} \quad (2)$$

配位子溶液へのウラニル錯体の溶解度を $S (M/l)$ とすると、

$$S = S_0 (1 + \sum K_L [L]^m) \quad (3)$$

S_0 は純溶媒へのキレートの溶解度を示す。

配位子の濃度変化に対する溶解度の変化を Fig. 1 および 2 に示す。いずれの場合も最大勾配 1 をもつ曲線を示すことから、1 : 1 付加錯体 $\text{UO}_2\text{A}_2 \cdot L$ のみが生成し、高次の付加体 $\text{UO}_2\text{A}_2 \cdot mL (m > 1)$ の生成は認められない。前回求めた *n*-hexane への $S_0 = 1.0 \times 10^{-5} (M/l)^1$ を用いて、curve fitting 法により求めた生成定数を Table 1 に示す。

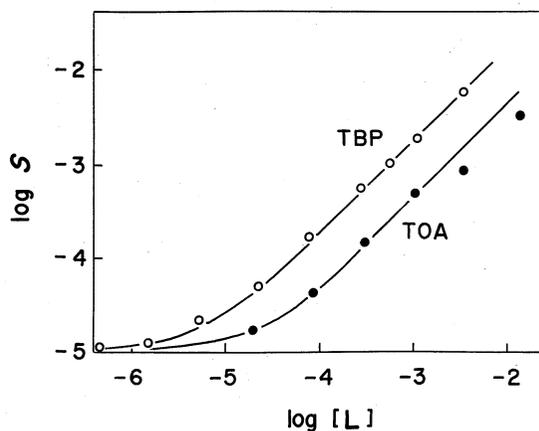


Fig. 1 Variation of solubility of uranyl complexes in *n*-hexane as a function of ligand concentration.

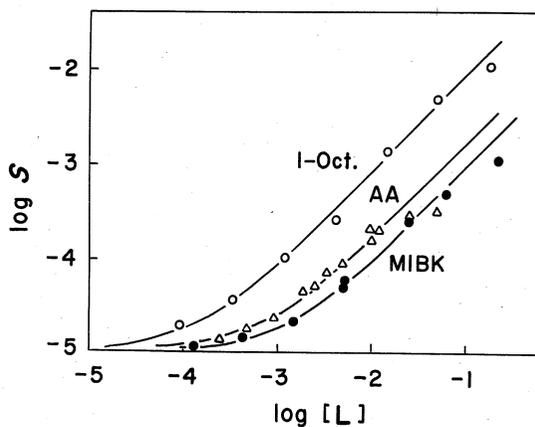


Fig. 2 Variation of solubility of uranyl complexes in *n*-hexane as a function of ligand concentration.

Table 1 Adduct formation constants of uranyl bis-TTA chelate with various ligand molecules. Solvent: *n*-hexane; 25°C

Ligand	$\log K_L$
Tributyl phosphate (TBP)	5.21
Tri- <i>n</i> -octylamine (TOA)	4.60
Acetylacetonone (AA)	3.20
1-Octanol	3.88
4-Methyl-2-pentanone (MIBK)	2.97

TBP については、水相が共存する抽出法による場合 ($\log K_L = 6.77$)²⁾ より小さい値を示す。抽出法では副反応のため生成定数を求めることが困難であった、TOA や AA についても付加錯体の組成および生成定数を求めることができた。また、酸素をもつ溶媒としてよく知られているアルコールやケトンはかなりの配位能を有することが明らかとなった。

文 献

- 1) 秋葉健一, 鈴木信男, 菅野卓治, 核理研研究報告, Vol. 2 (No. 2) 150 (1969).
- 2) 菅野卓治, 鈴木信男, 秋葉健一, 浅野宏子, 核理研研究報告, Vol. 1 (No. 2) 133 (1968).

III-6 放射化法によるグラフト反応 の解析 (その2)

非水研

佐々木康順・高橋 太・安川民男

前報¹⁾に於てBr 標識法で、放射線照射により高分子上にできた活性点量を十分な精度で定量できることを報告した。ラジカルはまたESRによっても定量することができる。本報ではこれら二つの方法を併用することでさらに精密にグラフト反応の解析を行なう可能性について検討した結果をのべたい。

§1 実 験

試料、実験法は前報¹⁾とほぼ同じ。

§2 結 果

電子線照射したポリエチレンでは6本線のシグナルがみられアルキルラジカル- $\text{CH}_2\dot{\text{C}}\text{HCH}_2-$ に帰属されている。空气中で照射した場合はこの他にパーオキシラジカルによる非対称二本線がみられるが、室温でかなり速く減衰しグラフト反応には関与しないと考えられる。アルキルラジカルは室温ではゆっくりと減衰し100分後ではほぼ1/2となる。ベンゼン、トルエンを加えても減衰速度はあまり影響されないが、スチレンを加えるとかなり減衰が促進され100分後で1/3にまでへる。DPPHで検定したピッチを標準試料として用い、減衰したアルキルラジカル量を時間に対して示す(図1)。○はトルエン中、△はスチレン中でのポリエチレン1g当りのラジカルの減衰量である。

Br 標識剤としてトリフェニルブロムメタンを用い、その0.3%トルエン溶液中に照射ポリエチレンを浸し、所定の時間後に分別・抽出した試料中のBr量を、同じく図1の●で示してある。ESRで求めた減衰量○と●がよく一致することからみて標識剤存在下ではトルエン中では消滅したラジカルはすべてBrと反応したことが分かる。トルエンの代わりにスチレンを用いた場合のBr量を▲で示す。この場合はESRで求めた減衰量△のほぼ1/3しかBr量がないことから、スチレン中ではラジカル同志の再結合、あるいは連鎖移動などの反応速度がトルエン系よりも速く、かなりのラジカルがBrと反応しないで消滅することが示された。

スチレン中に照射ポリエチレンを加え所定の時間の後標識剤を加え10分間振とうした場合のBr量が図1の小丸・に示されている。この場合には、はじめ標識剤が存在しないのでラジカルの

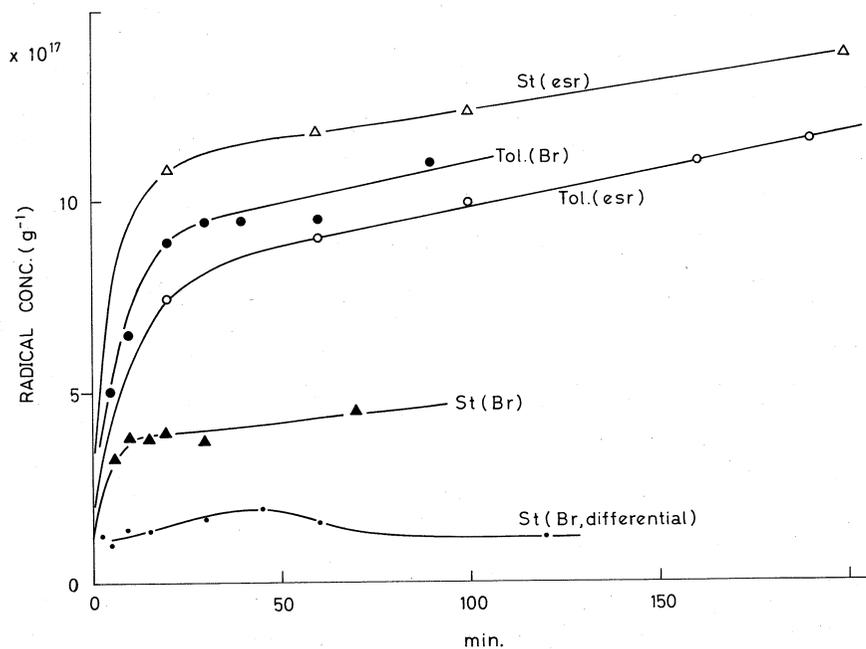


図1 3 Mrad照射ポリエチレン1g当りのラジカル減衰量 (○, トルエン中: △, スチレン中)およびBr 標識量 (●, トルエン中: ▲, スチレン中: -●-, スチレン重合系)

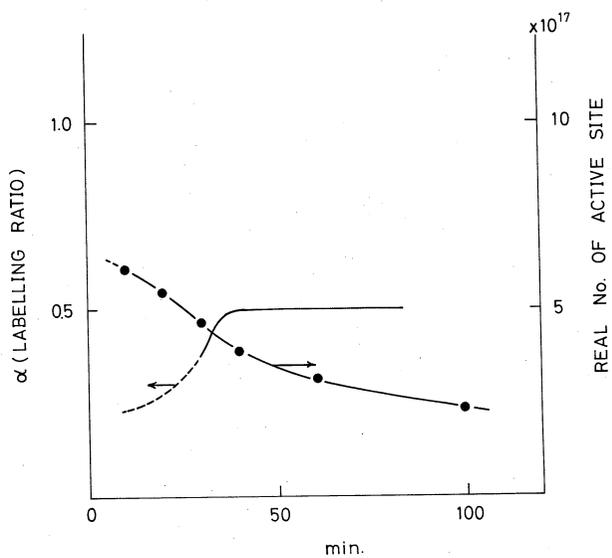


図2 スチレン重合系での標識率, α および活性点の成長速度 (20°C)

一部は再結合・連鎖移動などで消滅し、生残ったもののみがBrで標識される。しかし▲が△の1/3程度しかないことからみてすべてのラジカルが標識されるわけではない。この標識率は△の勾配と▲の勾配の比として求めることができる。

スチレン反応系において各時点で存在する活性点数は図1のBr(differential)量にこの標識率の補正を行なうことで求められる。えられた活性点数および標識率、 α を図2に示す。グラフト率の上昇速度を活性点数でわれば各時点での成長速度が求められ、反応の初期では毎秒3~2モノマーユニット、50分以後では1モノマーユニット以下となることが分かった。

ラジカル触媒によるスチレンの重合の速さは初期では毎秒100モノマーユニット程度¹⁾であるから、グラフト反応はかなり遅いことがわかる。その原因はグラフト活性点はポリエチレン結晶間または無定形部の奥のほうにあるためモノマーが活性点に近づくのが困難でありその有効濃度が極めて低いためと考えられる。しかしこのためポリエチレン分子鎖の運動が阻害され活性点の寿命は数1000秒に達する。これは触媒重合においても50%以上重合がすすみ系の粘度が極めて高くなった場合の活性点の寿命²⁾とほぼ同一であることは興味あることである。

成長速度および平均寿命がわかれば平均重合度が求められ 5×10^3 程度となる。アルキルラジカルとスチレンの反応は極めて速いと考えられるのでスチレン中でのESRで求めたラジカル消滅量をそのままスチレングラフト鎖の数と考えると、グラフト率から平均分子量が求められ、その重合度は 4×10^3 程度となる。

これら二通りの結果がよく一致することからみて上述の方法は充分信頼できるものといつてよいであろう。

文 献

- 1) P. J. Flory, "principle of polymer chemistry", Cornell University press (1953).
- 2) 藤井三郎, 高分子, 2, 441(1953).

IV 加速器，データ処理装置稼動状況

IV-1 加速器稼動状況

核理研 マシングループ

1970年4月から9月迄6ヶ月間の300 MeVリニアック稼動状況を第1表に示す。1日の稼動時間は夫々約10時間である。30 MeVリニアックは10月からの公開利用を目標に整備を行い、入射部真空ポンプ増設、スリット頭部改造を行い、*n*-sec pulserを整備中である。

第1表 加速器稼動状況(1970年4月~9月) 0は1日を表わす

00000 00000 00000 00000 00000 00000	Electron Scattering
00000 00000 000	
00000 00000 00000 00	γ, p
00000	TOF
000	γ, α
00000 00000 00000 00000 000	Radioisotope Production
00000 00000 00000 000	Neutron Diffraction
0000	Colour Center Optics
00	Radiobiology
0	Semiconductor Physics
00	Monitor Calibration
00	Positron Converter Test
0	Accelerator Physics
00000 00000 00000 00000 00000	Machine Maintenance

IV-2 データ処理装置稼動状況

核 理 研

小山田正幸・窪田健雄・上野智康

今期も大きな故障もなく働いてくれたシステムに対してまず感謝したい。1970年9月までの月間稼動時間を第1図に示す。利用区分は第1表に示した(註参照)。

今期の平均月間稼動時間は427時間で前期の396時間に比べて6%の増加にとどまった。前期の伸び率27%と比べてもわかるように、処理サービスのほぼ限界にきたものと考えられる。特にメカニカルな機器の老朽化が目立ち始めたので、紙テープパンチャーのメカを1台予備として増強して不時の故障に備えた。オンラインタイプライター、紙テープリーダーの更新は予算の関係で見送らざるを得なかった。ソフトウェアの面では従来の会話型のADC用オンラインプログラムに加えて、一段のPHAと同様の操作で利用出来るシングルパラメータ1024チャンネルPHA用のプログラムが教養部の坪田氏及び核理研窪田により2種完成し今期からTOF実験もオンライン化され一般の進歩をみた。更に2048、4096チャンネル及び2パラメータのプログラムも利用者の希望があれば開発し提供できる予定である。

註

L:電子散乱実験用プログラムによるオンライン

B:光陽子反応実験用 "

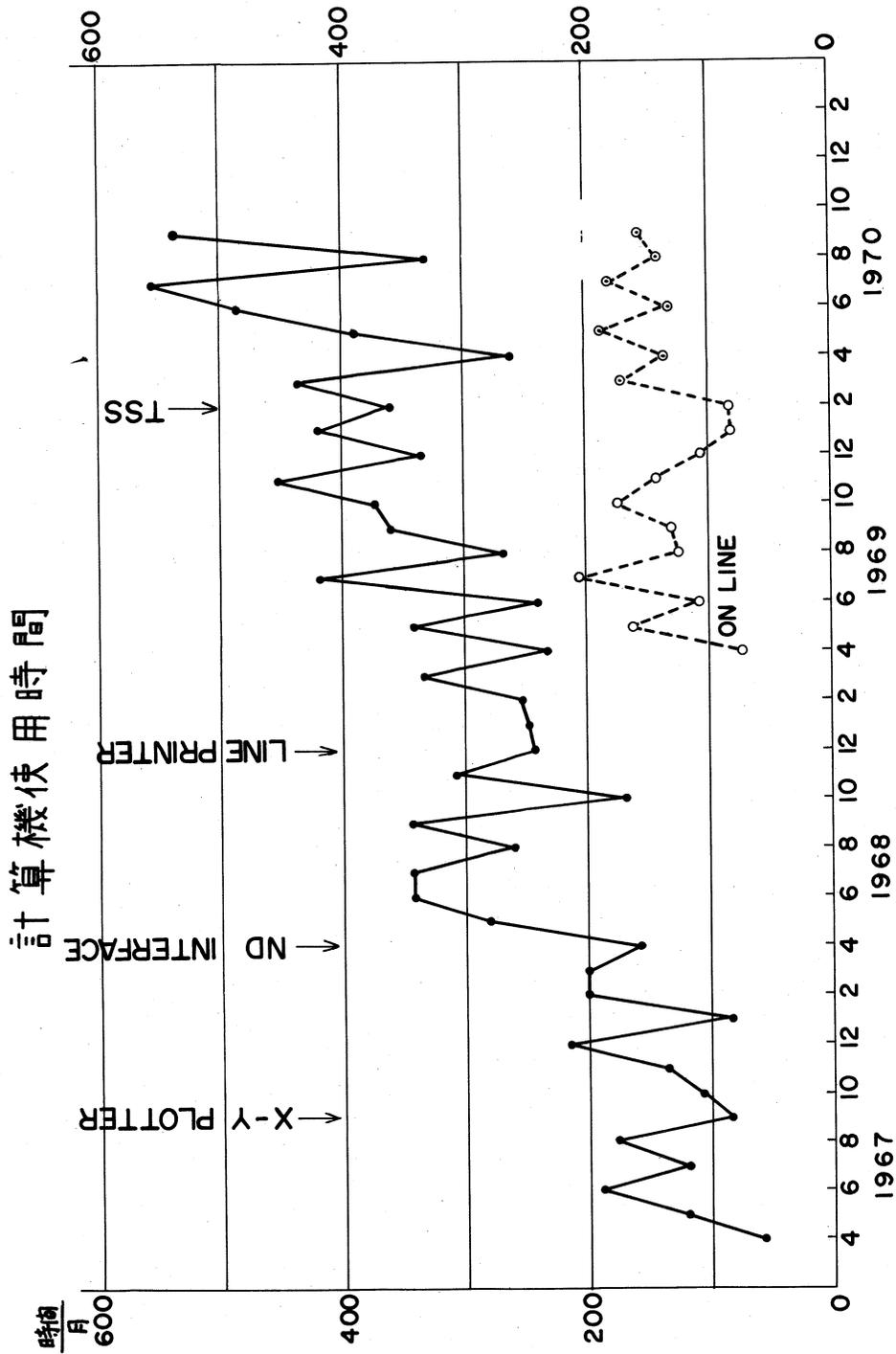
N:中性子回折実験用 "

P:光中性子反応実験用及び一般PHA用 "

F:オフラインのデータ処理及び一般科学計算

=:保守及び改良工事

*:故障による使用不能時間



DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

	0	2	4	6	8	10	12	14	16	18	20	22	24	ON- LINE	OFF- LINE	TOTAL
1 (PRI)	FFFFFFFFFF	10:10	8:35	18:45												
2 (SAT)	FFFF	10:10	6:21	16:30												
3 (SUN)	FFFFFFFF	0:00	2:05	2:05												
4 (MON)	FFFFFFFF	0:00	3:44	3:59												
5 (TUE)	FFFFFFFF	0:00	0:11	0:18												
6 (WED)	FFFFFFFF	0:00	0:00	11:40												
7 (THU)	FFFFFFFF	0:00	5:25	15:25												
8 (FRI)	FFFFFFFF	0:00	13:15	24:00												
9 (SAT)	FFFFFFFF	10:55	13:05	24:00												
10 (SUN)	FF	0:00	10:00	10:00												
11 (MON)	FF	11:00	4:25	15:55												
12 (TUE)	FFFFFFFF	9:55	5:55	15:50												
13 (WED)	FFFFFFFF	0:00	6:45	7:15												
14 (THU)	FFFFFFFF	0:00	7:11	7:40												
15 (FRI)	FFFFFFFF	12:55	0:50	14:25												
16 (SAT)	FFFFFFFF	10:59	6:21	17:10												
17 (SUN)	FFFF	0:00	5:35	5:35												
18 (MON)	FFFF	0:30	0:30	11:50												
19 (TUE)	FFFF	11:25	3:00	15:25												
20 (WED)	FFFF	11:20	1:55	13:40												
21 (THU)	FFFF	0:00	0:55	3:05												
22 (FRI)	FFFF	10:45	3:35	14:20												
23 (SAT)	FFFF	10:10	6:20	17:50												
24 (SUN)	FFFFFFFF	0:00	8:00	8:40												
25 (MON)	FFFFFFFF	10:50	4:20	15:50												
26 (TUE)	FFFFFFFF	9:00	3:10	17:10												
27 (WED)	FFFFFFFF	0:00	8:05	8:35												
28 (THU)	FFFFFFFF	0:00	12:00	12:15												
29 (FRI)	FFFFFFFF	10:00	1:17	12:40												
30 (SAT)	FFFFFFFF	10:50	3:37	15:20												
31 (SUN)	FFFF	0:00	12:20	12:20												
TOTAL														178:10	175:29	389:34
														48.3 %	45.0 %	

L	LDW	131:35	33.8 %
B	BDM	21:35	5.5 %
N	ND	32:00	8.0 %
P	PHA	0:00	0.0 %
F	FORTAN	175:129	45.0 %
=	MAINTENANCE	21:35	5.5 %
*	DOWN	4:20	1.1 %
	TOTAL	389:34	100.0 %

DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

	0	2	4	6	8	10	12	14	16	18	20	22	24	ON- LINE	OFF- LINE	TOTAL
1 (MON)	0:00	11:57	12:17
2 (TUE)	0:00	7:49	10:54
3 (WED)	0:00	14:35	15:05
4 (THU)	0:00	6:40	13:10
5 (FRI)	0:00	16:15	16:40
6 (SAT)	0:00	9:55	10:25
7 (SUN)	0:00	11:01	11:01
8 (MON)	0:00	9:45	9:45
9 (TUE)	12:10	5:15	18:25
10 (WED)	11:10	8:20	20:30
11 (THU)	0:00	18:30	16:55
12 (FRI)	0:00	4:30	16:00
13 (SAT)	11:00	5:50	16:50
14 (SUN)	0:00	12:07	12:07
15 (MON)	2:25	14:45	18:30
16 (TUE)	10:30	4:51	16:21
17 (WED)	0:00	9:01	10:46
18 (THU)	0:00	8:20	11:35
19 (FRI)	0:00	8:05	8:25
20 (SAT)	10:52	12:53	23:30
21 (SUN)	0:00	12:55	12:55
22 (MON)	10:40	12:05	23:45
23 (TUE)	11:00	9:30	21:30
24 (WED)	10:50	7:40	19:30
25 (THU)	0:00	18:45	19:20
26 (FRI)	0:00	21:10	21:10
27 (SAT)	11:00	12:00	23:00
28 (SUN)	0:00	18:10	18:10
29 (MON)	11:25	3:15	15:05
30 (TUE)	11:00	13:00	24:00
TOTAL														134:02	376:34	487:06
														27.5 %	67.0 %	

L	LDM	57:05
B	3DM	65:32
N	ND	11:25
P	PHA	0:00
F	PORTAN	326:34
=	MAINTENANCE	26:50
*	DOWN	0:00
	TOTAL	487:06

DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

	0	2	4	6	8	10	12	14	16	18	20	22	24	OFF- LINE	TOTAL
1 (WED)	0:00	15:30
2 (THU)	0:00	23:30
3 (FRI)	0:00	22:15
4 (SAT)	11:20	21:30
5 (SUN)	0:00	11:30
6 (MON)	3:30	14:35
7 (TUE)	9:45	21:48
8 (WED)	10:45	19:00
9 (THU)	9:00	12:25
10 (FRI)	5:15	12:51
11 (SAT)	11:30	15:30
12 (SUN)	0:00	3:10
13 (MON)	12:47	2:05
14 (TUE)	10:00	4:07
15 (WED)	10:39	10:05
16 (THU)	0:00	11:20
17 (FRI)	4:20	15:04
18 (SAT)	10:40	7:47
19 (SUN)	0:00	17:05
20 (MON)	11:15	11:45
21 (TUE)	10:35	10:55
22 (WED)	10:20	13:15
23 (THU)	0:00	12:58
24 (FRI)	10:29	13:01
25 (SAT)	9:40	12:07
26 (SUN)	0:00	19:25
27 (MON)	6:10	14:51
28 (TUE)	11:27	5:25
29 (WED)	0:00	23:00
30 (THU)	9:00	13:35
31 (FRI)	0:00	11:35
TOTAL														141:50	350:11
														32.7 %	62.9 %

L	LDM	72450	13.1 %
B	3DM	31430	5.7 %
N	ND	58415	10.5 %
P	PHA	19415	3.5 %
F	FORTAN	350411	62.9 %
=	MAINTENANCE	24430	4.4 %
*	DOWN	0420	0.1 %
	TOTAL	556451	100.0 %

DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

DATE	0	2	4	6	8	10	12	14	16	18	20	22	24	ON- LINE	OFF- LINE	TOTAL
1 (SAT)	FFFFFFFF	0:00	14:43	14:40												
2 (SUN)	FF	0:00	9:03	9:00												
3 (MON)	FF	0:00	10:10	10:40												
4 (TUE)	FF	10:13	1:20	13:05												
5 (WED)	FF	11:25	0:00	12:10												
6 (THU)	FF	0:00	0:20	1:40												
7 (FRI)	FF	0:00	0:30	1:00												
8 (SAT)	FF	11:00	3:30	15:30												
9 (SUN)	FF	0:00	2:35	2:35												
10 (MON)	FF	11:30	4:10	16:30												
11 (TUE)	FF	11:00	6:25	18:25												
12 (WED)	FF	2:35	12:50	15:55												
13 (THU)	FF	0:00	13:45	13:30												
14 (FRI)	FF	0:00	14:46	15:16												
15 (SAT)	FF	9:50	4:10	15:30												
16 (SUN)	FF	0:00	0:00	0:00												
17 (MON)	FF	8:20	0:00	9:05												
18 (TUE)	FF	0:00	2:05	3:50												
19 (WED)	FF	0:00	3:50	4:20												
20 (THU)	FF	1:05	2:55	4:30												
21 (FRI)	FF	2:00	6:15	8:45												
22 (SAT)	FF	10:30	0:00	11:40												
23 (SUN)	FF	0:00	0:00	0:00												
24 (MON)	FF	0:00	3:20	7:20												
25 (TUE)	FF	10:10	2:30	14:00												
26 (WED)	FF	9:50	4:00	15:50												
27 (THU)	FF	0:00	8:40	11:00												
28 (FRI)	FF	10:25	8:00	19:30												
29 (SAT)	FF	11:25	3:20	15:18												
30 (SUN)	FF	0:00	13:43	13:43												
31 (MON)	FF	11:15	5:10	17:10												
TOTAL														142:35	151:59	331:16
														43.0 %	45.9 %	

LDM	19.3 %	63:55
B	0.	0:00
N	9.6 %	31:45
P	14.2 %	46:55
F	45.9 %	151:59
PH	9.5 %	31:32
MAINTENANCE	1.6 %	5:10
DOWN		
TOTAL	100.0 %	331:16

