

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 究 報 告

VOL. 4 No. 1 Sep. 1971

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

核理研研究報告 Vol. 4 No. 1 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, 斉藤悌二郎
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 ^{19}F による電子散乱 25
(核理研, 理学部物理^{*}) 小山田正幸, 寺沢辰生, 中原和夫
遠藤順正,^{*} 斉藤 肇,^{*} 田中英二^{*}
- I-3 (γ, p) 反応による中重核の研究 30
(核理研) 庄田勝房, 菅原真澄, 斉藤悌二郎, 宮瀬晴久
鈴木厚人, 及川四郎
- I-4 $(e, e'\alpha)$ 反応 42
(教養部物理, 理学部物理^{*})
阿部 健, 川村暢明,^{*} 坪田博明, 金沢正明^{*}
- I-5 50メートル飛行時間分析及びショートパルスビームの特性について 48
(理学部物理, 教養部物理,^{*} 核理研,^{**} 新潟大理^{***})
川村暢明, 坪田博明,^{*} 斉藤 肇, 陸路 直^{***}
一戸 隆,^{**} 栗原 亮^{**}
- I-6 ^{231}Ac の崩壊の研究 53
(工学部原子核, 核理研^{*})
山本 徹, 若林利男, 武田 靖, 板垣新治郎
今野 収,^{*} 古田島久哉

II 物性物理部門

- II-1 Spatial Distributions of Photo-Neutrons in the
200 MeV Electron Induced Cascade Shower 61
(工学部原子核, 核理研^{*})
江草龍男, 矢野歳和, 山崎尚宏, 渡辺 昇^{*}
小山田正幸,^{*} 木村一治^{*}

| | | |
|-------------|--|-----|
| II - 2 | TOF 中性子回折による固体の温度因子の測定 | 69 |
| | (教養部物理, 理学部物理*) 山田幸男, 寺崎 治,* 渡辺伝次郎* | |
| II - 3 | パルス電子線によるイオン結晶の光学的研究(7) | 72 |
| | (理学部物理) 上田正康, 平井正光, 近藤泰洋, 吉成武久 | |
| II - 4 | 50 MeV Electron Irradiation of Germanium Doped with Co-57 (II) | 77 |
| | (工学部, 選研*) 松井啓治, 大川 淳* | |
| II - 5 | An Indication of Germanium 73 Mössbauer Effect in 50 MeV Electron-Irradiated Germanium | 80 |
| | (工学部) 松 井 啓 治 | |
| II - 6 | On the Mössbauer Effect of Germanium 73:135 KeV Transition | 83 |
| | (工学部) 松 井 啓 治 | |
| III 放射線化学部門 | | |
| III - 1 | Fragmentation Distribution after Isomeric Transition of ^{80m}Br in Methyl Bromide | 97 |
| | (理学部化学) 滝田祐二, 平賀正之, 吉原賢二, 塩川孝信 | |
| III - 2 | 気相における $\text{CH}_4 - ^{80m}\text{BrBr}$ および $\text{CH}_4 - \text{H} ^{80m}\text{Br}$ 系の核異性体転移に ともなう化学的効果〔II〕 | 105 |
| | (核理研, 理学部化学*) 八木益男, 近藤健次郎, 小林孝彰* | |
| III - 3 | 残留核法による光核破碎反応の研究 | 109 |
| | (理学部化学) 加藤豊明, 森田勇人 | |
| III - 4 | 光量子放射化分析に関する研究 | 115 |
| | (理学部化学) 鈴木信男, 柴田弘志, 横井武秋 | |
| III - 5 | ウラニルキレートの特PPOとの付加錯体形成 | 126 |
| | (選研, 工学部原子核*) 秋葉健一, 和田幹雄,* 菅野卓治 | |
| III - 6 | 気送管を用いた短寿命核の研究 | 131 |
| | (工学部原子核) 板垣新治郎, 武田 靖, 松野禿男 千田 祝, 古田島久哉 | |

| | | |
|-----|--|-----|
| Ⅲ-7 | 放射線化学反応における線量率効果〔1〕 | 133 |
| | (非水研) 安川民男, 中西啓真, 田村三郎, 高橋 太 | |
| Ⅳ | 生物医学部門 | |
| Ⅳ-1 | ^{202}Tl の家兎組織内分布 | 137 |
| | (抗酸菌研) 伊藤安彦, 高橋邦文, 佐藤多智雄 栗野隆行, 菅野 敏, 奥山信一 | |
| Ⅴ | 加速器, データ処理装置稼動状況 | |
| Ⅴ-1 | 昭和45年度後期のマシン報告 | 159 |
| | (核理研) 小島融三, 浦沢茂一, 今野 収, 一戸 隆 栗原 亮, 田中 満, 阿部 勇, 平山忠衛 | |
| Ⅴ-2 | データ処理装置稼動状況 | 161 |
| | (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
齊藤悌二郎・伊藤広平・山口 晃
中田 章・光延信二・長尾真美子
細山 謙二

今期のまとめりとして次のことがあげられる。

- 1) ^{20}Ne , ^{24}Mg , ^{28}Si を Nilsson 的なモデルで解析して, Y_2 , Y_4 変形に関する常数を得た。
- 2) ^{40}Ca の巨大共鳴領域に於ける実験を更に追加した。
- 3) ^{116}Sn , ^{120}Sn の解析により基底状態の電荷分布は $A^{1/3}$ 法則を満たしていること, 第一 $2+$ 準位の転移電荷密度は実験を説明するためにはどうしても動径方向に節をもつ必要がある。
- 4) ^{208}Pb の低い励起準位の解析から Tassie モデルは不適當であることがますます明らかになった。更に複雑な転移電荷密度を考えなくてはならないが RPA はそれに対してヒントを与えている。

DETERMINATION OF THE DEFORMATION IN ^{20}Ne , ^{24}Mg AND ^{28}Si NUCLEI FROM INELASTIC ELECTRON SCATTERING

Recently, the possible existence of the higher-multipole deformations than quadrupole for strongly deformed nuclei, such as the rare earth and *s-d* shell nuclei, have been investigated by means of (α, α') [1] and (p, p') [2] reactions. The deformation parameters for these nuclei were determined under the assumption of a perfect rotor description for the nucleus by solving the resulting coupled equations. We have employed another approach for investigating the deformed nuclei by inelastic electron scattering. The interaction between electron and nucleus is well known and the neglect of the two-step process by electron has been considered to be not the main source

of the error of the analysis [3]. Using a rigid-body rotational model for the nucleus, particularly in the deformed even-even nucleus, the electroexcitations for the members of the ground-state rotational band are related directly to the spherically symmetric, quadrupole, hexadecapole, etc. parts of the ground-state charge distribution.

We have carried out high-resolution measurements of electron scattering from the deformed nuclei, such as ^{20}Ne , ^{24}Mg , and ^{28}Si , at 183 and 250 MeV using the beams of the Tohoku 300-MeV linac. The gas target was used for the ^{20}Ne experiment. A stainless steel cylinder of 40 mm in diameter, 40 mm in height and 0.12 mm in thickness was filled by natural Ne gas up to 21 kg/cm² in pressure. Ethane gas was filled in another cylinder of the same size up to almost the same pressure. The gas targets of two kinds were held on the target ladder where a BeO screen for the monitoring of the beam positions was also provided. The absolute cross section for ^{20}Ne was determined by comparing its yield with that of ^{12}C in the ethane target. Enriched ^{24}Mg (99.96%, 42.5/cm²) and ^{28}Si target (99.91%, 46.8mg/cm²) supplied from Oak Ridge National Laboratory were used. The absolute cross sections for these nuclei were determined as mentioned in elsewhere [4]. The spectra were collected with the overall resolutions of about 0.13% for the gas targets and 0.11% for ^{24}Mg and ^{28}Si . The experimental form factors were obtained by dividing the experimental cross section by the Mott cross section. The form factors obtained for the members of the ground-state rotational bands in these nuclei are shown as a function of q_{eff} [5] in figs.1-2. The 4^+ member at 4.12 MeV in ^{24}Mg was not separated from the 4.23-MeV (2^+) excitation within our experimental resolution. However the upper limit of the 4^+ form factor is estimated to be 5×10^{-5} .

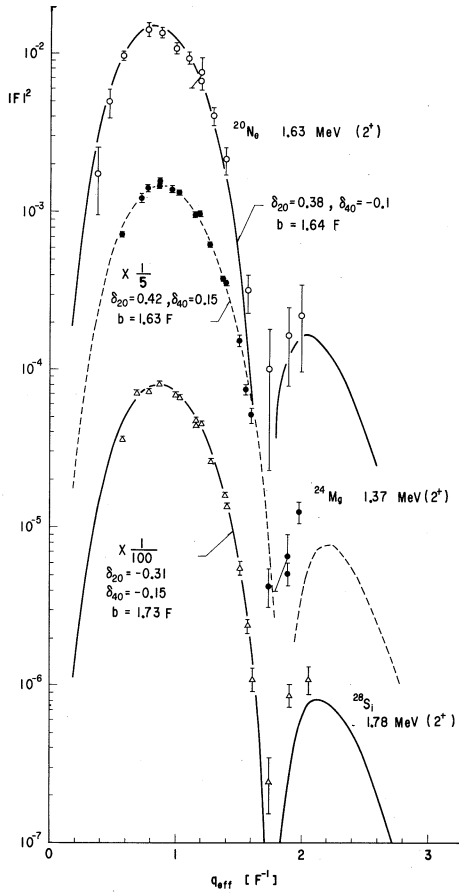


Fig.1. The experimental form factors for the 2^+ members of the ground-state rotational bands in ^{20}Ne , ^{24}Mg and ^{28}Si are shown as a function of the q_{eff}

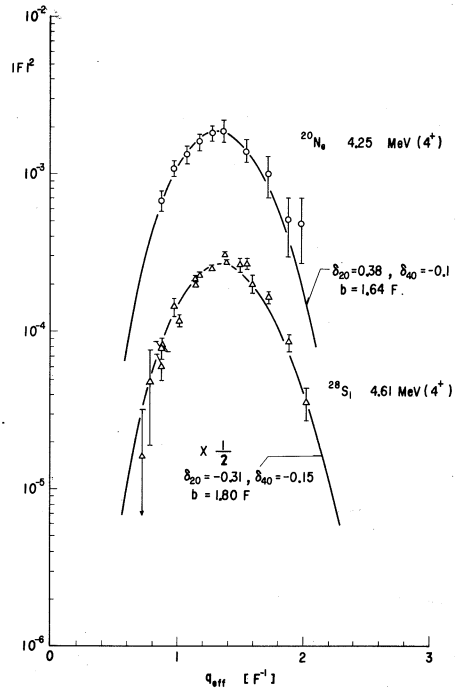


Fig.2. The same as for Fig.1 except for the 4^+ members in ^{20}Ne and ^{28}Si .

The nuclear multipole moments can be related with the rotational model to the reduced transition probabilities $B(\text{EL})$. The $B(\text{EL})$ values for these excitations were extracted from the experimental form factor by using the transition charge density of the Tassie type [6] by the Born approximation or with the distorted wave analysis (DWBA) [7]. In the former, the change of the electron wavelength in the nuclei is included in q_{eff} [5].

The best fit parameters were determined by minimizing the χ^2 quantity. The intrinsic nuclear multipole moments can be connected by $B(EL) = |Q_{LO}|^2$ where L means the multipole order. The values of Q_{LO} are shown in table I.

Table I. The values of Q_0 and Q_{40} obtained from different methods

| nucleus | Q_0 a) values in units of b | | | Q_{40} values in units of b^2 | |
|------------------|-------------------------------|--------------------|-----------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|
| | Born ^{b)} | DWBA ^{c)} | Nilsson ^{d)} | Born ^{b)} | Nilsson ^{d)} |
| ²⁰ Ne | 0.583 ± 0.039 | 0.597 ± 0.030 | $+0.634 \pm 0.037$ | $(2.48 \pm 0.13) \times 10^{-2}$ | $(+2.66 \pm 0.14) \times 10^{-2}$ |
| ²⁴ Mg | 0.613 ± 0.039 | 0.665 ± 0.034 | $+0.669 \pm 0.043$ | $< 0.14 \times 10^{-2}$ | |
| ²⁸ Si | 0.536 ± 0.037 | 0.588 ± 0.029 | -0.559 ± 0.033 | $(1.33 \pm 0.07) \times 10^{-2}$ | $(+1.89 \pm 0.10) \times 10^{-2}$ |

- a) Q_0 is related to Q_{20} by $Q_0 = \sqrt{\frac{16\pi}{5}} Q_{20}$
b) The values were calculated from the $B(EL)$ values extracted by the Born approximation.
c) The same as in b) except for DWBA.
d) The values were obtained from the Nilsson orbits which provide the best fit form factor.

These values are dependent on the model used. An alternative analysis may be made by extending the Nilsson model [8]. We have calculated the Nilsson orbits considering the couplings between all the states with principal quantum numbers N , $N + 2$, $N + 4$, $N + 6$, being N either 0 or 1. Such a mixing seems to be important in describing the enhanced multipole moments. Furthermore, an additional hexadecapole deformation of the nuclear potential was introduced. The deformed part of the total Hamiltonian is written as $\hbar\omega_0 r^2(-\delta_{20} \frac{4}{3} \sqrt{\frac{\pi}{5}} Y_{20} + \delta_{40} \sqrt{\frac{4\pi}{9}} Y_{40})$, where ω_0 is determined by the volume-conservation condition [9]. The single particle orbits were obtained as a function of the deformation parameters δ_{20} and δ_{40} . We have calculated with the obtained orbits the Coulomb form factors for the members of the ground-state rotational band and compared them with the experimental data as shown in figs.1-2. The multipole moments were obtained from the orbits which provide the best fit form factors and the

results are also shown in table I. Almost the same conclusion is obtained between the different models.

It is usual to describe the nuclear deformation with the size-independent shape parameters β_2 and β_4 which for the Y_{20} and Y_{40} deformations are defined by [8, 10]

$$\beta_2 = \frac{4\pi}{5} Q_{20} / Z \langle r^2 \rangle, \quad \beta_4 = \frac{4\pi}{7} Q_{40} / Z \langle r^4 \rangle,$$

where Z is the atomic number. The mean square radius $\langle r^2 \rangle$ and $\langle r^4 \rangle$ were estimated with the best fit Nilsson orbits. The values of β_2 and β_4 obtained are shown in table II. For

Table II. The values of β_2 and β_4 obtained from the present (e, e') and (p, p') reactions

| | β_2 | | β_4 | | | | |
|------------------|-----------|-----------------------------------|-----------|-----------------------------------|-------------|-------|------------|
| | present | (e, e') (p, p') ^{a)} | present | (e, e') (p, p') ^{a)} | | | |
| ²⁰ Ne | +0.623 | ± 0.036 | +0.47 | +0.455 | ± 0.024 | +0.28 | ± 0.05 |
| ²⁴ Mg | +0.538 | ± 0.034 | +0.47 | <0.06 | | -0.05 | ± 0.08 |
| ²⁸ Si | -0.375 | ± 0.022 | -0.37 | +0.17 | ± 0.01 | +0.25 | ± 0.08 |

a) ref.2.

comparison, the β_2 and β_4 values determined from the analysis of the (p, p') reactions [2] are also shown. Considering the difference of the methods determined β_2 and β_4 , the values of the present analysis are consistent with those obtained from the (p, p') experiment. It may be convenient to use these parameters in the comparison between theory and experiment. However, the direct comparison with the experimental form factor may be a more crucial test for selection among the various approximations.

Further details of this work will be published elsewhere.

We are very grateful to Mr. Y. Horikawa of Tokyo University for his suggestions concerning the analysis of the form factor.

References

- 1) D.L. Hendrie, N.K. Glendenning, B.G. Harvey, O.N. Jarvis, H. H. Duhm, J. Saudinos and J. Mahoney, Phys. Letters **26B** (1968) 127.
- 2) R. De Swiniarski, D. Glashausser, D.L. Hendrie, J. Sherman, A.D. Bacher and E.A. McClatchie, Phys. Rev. Letters **23** (1969) 317.
- 3) T. DeForest and J.D. Walecka, Advan. Phys. **15**(1966) 1.
- 4) K. Itoh, M. Oyamada and Y. Torizuka, Phys. Rev. **C2**(1970) 2181.
- 5) D.G. Ravenhall, quoted in R. Hofstadter, Rev. Mod. Phys. **28** (1956) 214.
- 6) L.J. Tassie, Australian J. Phys. **9**(1956) 407.
- 7) S.T. Tuan, L.E. Wright and D.S. Onley, Nucl. Instr. Methods **60**(1968) 70.
- 8) S.G. Nilsson Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. **29** (16)(1955).
- 9) P. Möller, B. Nilsson, S.G. Nilsson, A. Sobiczewski, Z. Wycech, and S. Wycech, Phys. Letters **26B**(1968) 418.
- 10) G. Ripka, in *Advances in Nuclear Physics*, edited by M. Baranger and E. Vogt (Plenum Press, Inc., New York, 1968), vol.1.

「電子散乱による ^{40}Ca の巨大共鳴の励起」

^{40}Ca の巨大共鳴領域を調べる目的で電子散乱実験を行った。99.91%に濃縮された厚さ 95.6 mg/cm^2 のターゲットを用い、先ず入射エネルギー 183 MeV 及び 250 MeV の電子線による散乱電子スペクトラムを励起エネルギー 30 MeV まで測定した。測定した運動量移行 q の領域は $0.56\sim 1.45\text{ F}^{-1}$ である。図1及び図2にスペクトラムの一例を示す。励起エネルギー 19 MeV を中心として約 4 MeV の巾を持つピークが観測された。図1の $(\gamma, p) + (\gamma, n)$ のスペクトラム¹⁾が示すように、光核反応で調べられ

てきた所謂巨大共鳴がこの巾広いピークに対応すると考えられる。このピークは運動量移行を上げると共に小さくなるがこの肩に観測された巾約 700 KeV の 16.8 MeV ピークは逆に成長していることが分る。更に 8 MeV から 16 MeV の間に約10本のピークが観測されたが、これらについては現在解析中である。

^{40}Ca の陽子及び α 粒子の閾値は、それぞれ 8.3 及び 7.0 MeV である。図1及び2において、励起エネルギー約 7 MeV から始まる連続スペクトラムの寄与が見られる。励起エネルギー 25 MeV 以上で

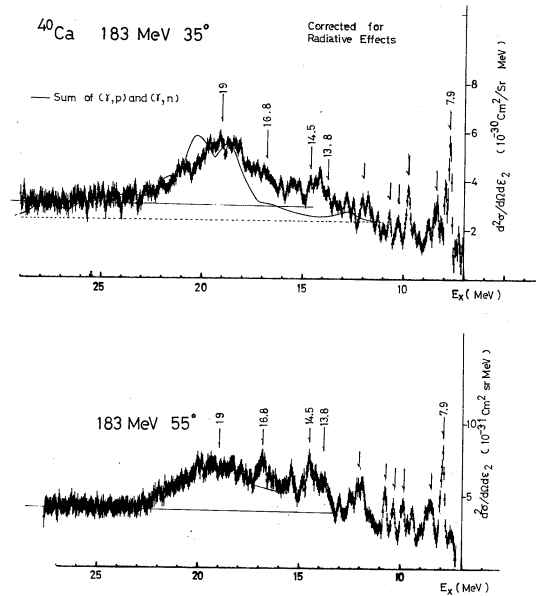


図 1

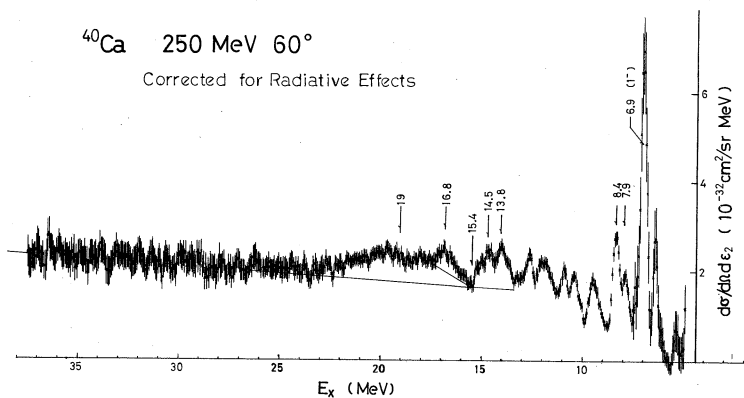


図 2

は、連続スペクトラムであることがはっきりするが、これらは準弾性散乱と考えられる。

電子による核の励起には縦波励起と横波励起があり、一般に励起エネルギーが大きい所では横波励起の寄与が考えられる。そこでこれら両成分をスペクトラム上で分けることを試みた。先に¹²Cの巨大共鳴領域に対して行われたとの同じ手法を用いた²⁾。即ち散乱電子スペクトラム $d^2/d\Omega d\epsilon_2$ は次の様に書ける。

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon_2} = \sigma_{\text{Mott}} |F(q)|^2 \delta(E_2 + \epsilon_2 - E_1 - \epsilon_1)$$

ここで ϵ_1, ϵ_2 は始及び終状態の電子のエネルギー、 E_1, E_2 は核の始及び終状態の全エネルギーである。励起エネルギーを ω とし、単位エネルギー当りの形状因子 $|W(q, \omega)|^2$ を次の様に定義する。

$$|W(q, \omega)|^2 = \frac{1}{\Delta\epsilon_2} \int_{\Delta\epsilon_2} |F(q)|^2 \delta(E_2 + \epsilon_2 - E_1 - \epsilon_2) d\epsilon_2$$

ボルン近似では $|W(q, \omega)|^2$ は縦方向成分 $|W_L(q, \omega)|^2$ と横方向成分 $|W_T(q, \omega)|^2$ とに次の様に分けられる。

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

q_μ, q はそれぞれ4次元及び3次元運動量移行である。

$$q_\mu^2 = q^2 - \omega^2$$

又一般に用いられている形状因子 $|F(q)|^2$ は $|W(q, \omega)|^2$ の励起エネルギー ω での積分に対応する。

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

従って同じ q でも角度が大きい所で横波励起が強調されることから、表1に示す様に、同じ q の所で前方と後方での散乱電子スペクトラムを測定し、2組のスペクトラムから両成分を分けるこ

表 1

| E_0 | θ | $q_{\text{eff}}^*(F^{-1})$ | E_0 | θ | Enhancement** |
|--------|----------|----------------------------|----------|----------|---------------|
| 183MeV | 35° | 0.56 | 65.5MeV | 120° | 5.8 |
| 183MeV | 45° | 0.71 | 77.4MeV | 135° | 9.4 |
| 183MeV | 55° | 0.85 | 92.7MeV | 135° | 8.2 |
| 250MeV | 50° | 1.07 | 115.5MeV | 135° | 8.8 |

* $E_X = 19\text{MeV}$ での値をとった。

** 前方と後方での $1/2 + \tan^2(\theta/2)$ の比

とを試みた。

$\Delta\omega = 150 \text{ KeV}$ 間隔で分けた結果の例を図3に示した。縦波励起が大きくて 8 MeV から 28 MeV までの形状因子の和をとってみると、横波励起成分は縦波励起成分の $\max 30\%$ ($q=0.56 \text{ F}^{-1}$) で、これより q が大きくなると横波励起成分は更に小さくなる。しかも横波励起のスペクトラムは特に大きなピークがなく、 25 MeV 以上まで続いている連続的なスペクトラムであることから、準弾性散乱が主であると考えられるが、個々の共鳴準位も含まれてはいるが断面積が小さい為区別出来なかった可能性がある。そこで Gillet 及び Sanderson²⁾ による Tamm-Dancoff 近似を用いた particle-hole 模型による波動関数を用いて、横波励起 (Transverse Electric dipole) の形状因子を計算し、比較した。即ち図4で実験値は励起エネルギー 15 MeV から 25 MeV までの 10 MeV の横波励起の形状因子 $|F_T|^2$ 、実線は励起エネルギーが $22.0, 20.2, 18.8, 16.8, 15.1 \text{ MeV}$ の5つの 1^- 準位の和をとったものである。これらの共鳴準位の寄与は、理論値では横波励起スペクトラムのうち $30\sim 60\%$ 程度を示めることになる。

19 MeV 共鳴準位

非弾性電子散乱スペクトラムを、準弾性散乱と共鳴準位の励起のスペクトラムの和と仮定して、 19 MeV の巾広いピークに対する準弾性散乱の寄与を、共鳴準位がない

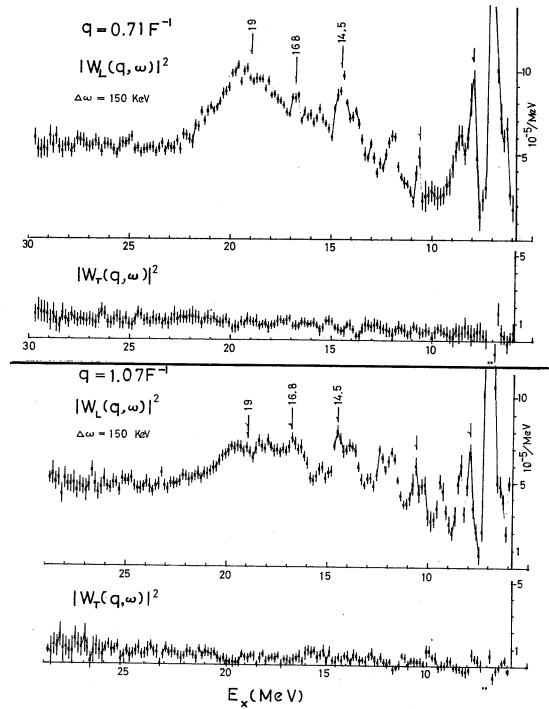


図 3

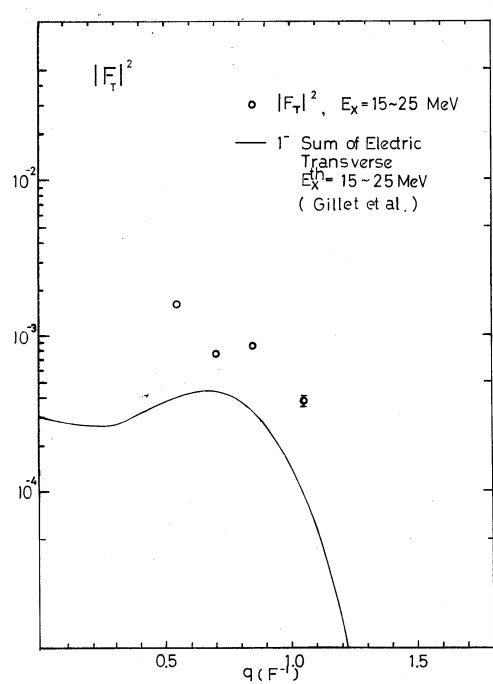


図 4

と考えられる励起エネルギー25MeV以上のスペクトラムからの外挿を線と仮定して形状因子を求めた。これを図5に示す。明らかなdiffraction patternを持っていないことは19MeVピークが単一の準位でなくて、いくつかのピークの複合か、又は異った多重極度の準位の存在の為かも知れない。実線は 1^- に対するparticle hole模型の計算値のうち、最も大きい18.76MeVの形状因子である。理論値は $1/2$ 倍してある。実験点の q -依存性は確かに $E1$ が強いことを示している。

16.8 MeV 準位

先に述べた様に q が大きくなると共に成長する16.8MeVのピークの形状因子を図6に示す。形状因子の計算はスペクトラム中の実線から上の面積から求めた。この準位の形状因子は $E3$ の q -依存性を示す。Gillet et al.の波動関数を用いた 3^- の形状因子のうちエネルギー的に一番近い16.71-MeV 3^- 準位の計算を破線で示した。所で 1^- の理論値のうち、16.75 MeVの形状因子は図に示す線に $E3$ に近い q -依存性を示す。又実験点もこの理論値に近い。particle hole模型で 1^- の形状因子がこのような $E3$ 類似になるのは18.76MeVの主配位が $(1f7/2, 1d5/2^{-1})$ に対して、16.75MeVは $(2p3/2, 1d5/2^{-1})$ で、今 $(2p3/2, 1d5/2^{-1})$ のみのone-particle

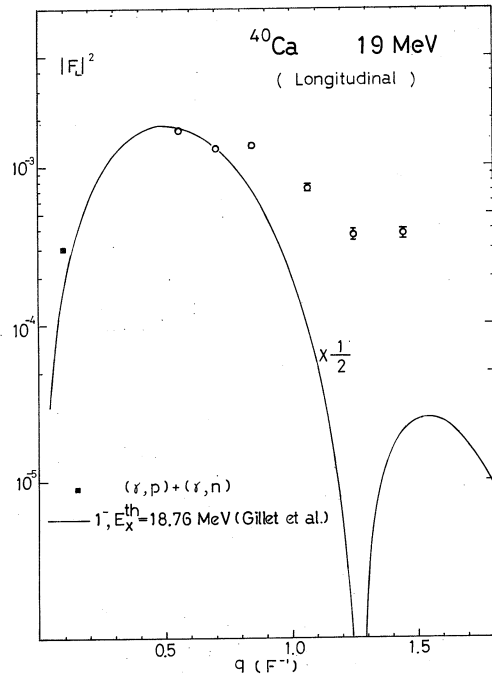


図 5

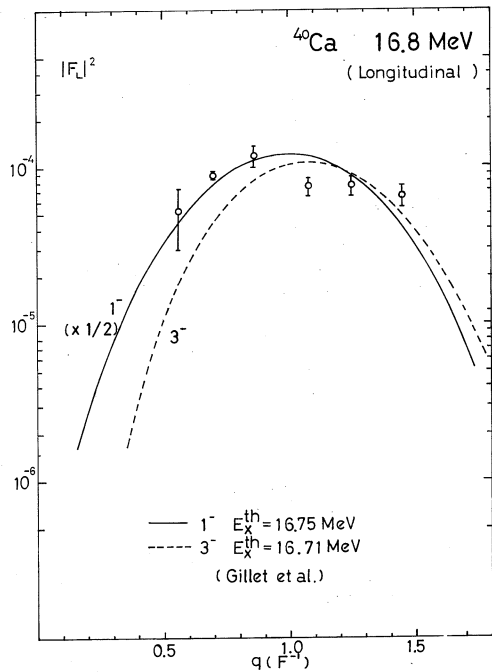


図 6

one-hole 励起を計算すると形状因子の 2nd diffraction が 1st diffraction と同程度に大きく出る。従って他の配位混合との干渉で $E3$ 類似の形状因子が出てくる。

^{40}Ca の巨大共鳴に対する同様な particle-hole 模型の計算が Eisenberg によって行われているが、やはり 18.5 MeV に $E3$ 類似の q -依存性を持つ準位がでる。16.8 MeV が $E1$ 励起であれば興味深い。

Reference

- 1) Quoted by V. G. Schevchenko, J. Phys. Soc. Japan Suppl. 24, 397 (1968).
- 2) Y. Yamaguchi, T. Terasawa, K. Nakahara, and Y. Torizuka, Phys. Rev. C 3, 1750 (1971).
- 3) V. Gillet and E. A. Sanderson, Nucl. Phys. A 91, 292 (1967).
- 4) L. J. Weigert and J. M. Eisenberg, Nucl. Phys. 53, 508 (1964).

Sn^{116 120} による電子散乱

(細山謙二)

エネルギー 183, 250 MeV の電子ビームを用いて, Sn¹¹⁶, Sn¹²⁰ の電子散乱実験を行ない, 基底状態及び第 1 2⁺ 励起準位の Cross section を求めた。弾性散乱は基底状態の電荷分布として Fermi 型を仮定した phase shift による計算結果と比較した。又第 1 励起準位は Tassie 模型を使った DWBA の計算結果と比較した。

今までこれらの核について, 60 MeV 65 ~ 150° ($q=0.3\sim 0.6\text{fm}^{-1}$), 150 MeV 35° ~ 90° ($q=0.6\sim 1.0\text{fm}^{-1}$) の電子散乱実験が行なわれ, 基底状態の電荷分布や 2⁺ 励起準位への転移電荷密度の大まかな様子が知られている。入射電子エネルギーを 183 MeV 35° ~ 95°, 250 MeV 35° ~ 120° とすることにより, 運動量移行 q は $0.5\sim 2.1\text{fm}^{-1}$ と大きくなり, 核の細かい構造が形状因子に反映されることが期待される。ここでは形状因子を cross section を Mott cross section で割ったもので定義する。

183, 250 MeV の電子ビームを成分比 Sn¹¹⁶ 95.74%, Sn¹²⁰ 98.39%, 厚さ夫々 91.8 mg/cm², 97.5 mg/cm² の metal foil のターゲットに当て, 散乱される電子のエネルギー・スペクトラムを観測した。スペクトロメータの立体角や, 検出器の効率等の未知の定数を除くために, 同時に, cross section の知られている C¹² の測定を行ない, それを標準にして, Sn¹¹⁶, Sn¹²⁰ の形状因子を求めた。図-1-(a) に Sn¹¹⁶ 250 MeV 55° のエネルギー・スペクトラムを示す。図-1-(b) にそれに輻射の補正をしたものを示す。

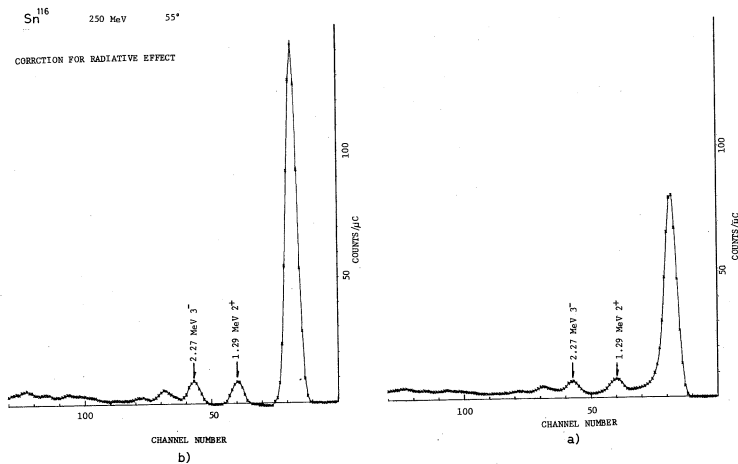


図 1 a), b)

弾性散乱

Sn^{116} の 183, 250MeV の弾性散乱の実験結果を図-3に示す。ここで 250MeV, 183MeVは我々の実験結果であり, 150MeVはOrsayの実験結果である。

基底状態の電荷分布は次の two-parameter Fermi 型分布を仮定した。

$$\rho(r) = \rho_0 \left[1 + \exp\left(\frac{44(r-c)}{t}\right) \right]^{-1} \quad (1)$$

しかしこの簡単な電荷分布を使用しただけでは 250MeV の $35^\circ \sim 120^\circ$ の範囲のすべての実験値を説明することは困難である。そこで c と t は, 250MeV $35^\circ \sim 95^\circ$ の範囲で χ^2 fit によって決定した。 χ^2 は次の式で表わされる。

$$\chi^2 = \frac{1}{N-2} \sum \frac{(|F^{th}|_i^2 - |F^{exp}|_i^2)^2}{(\Delta |F^{exp}|_i^2)^2} \quad (2)$$

ここで N は実験値の数であり, $|F^{exp}|_i^2$ は実験より求めた形状因子で, $\Delta |F^{exp}|_i^2$ は実験の誤差で, $|F^{th}|_i^2$ は計算値である。 c と t に対する χ^2 は図-3に示す。図中の閉じた実験は一標準偏差 $\chi^2 = \chi^2_{\min} (1 + 1/N_{-1})$ に相当する点である。表1にその結果と, Orsayで150 MeVの実験より求めた c と t の値を示す。表から分かるように, 我々の250MeVの実験より求

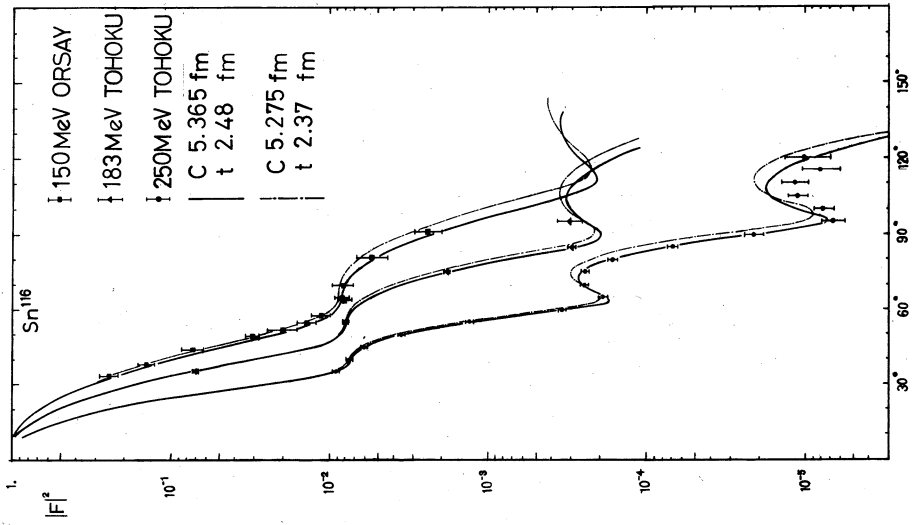
表 1

| TOHOKU 250MeV | c | t | $r_1 = CA^{-1/3}$ | $(r^2)^{1/2}$ | | $r_0 = RuA^{-1/3}$ |
|---------------|-------------------|-----------------|-------------------|---------------|-------|--------------------|
| 116Sn | 5.365 ± 0.015 | 2.48 ± 0.02 | 1.100 | 4.652 | 6.005 | 1.231 |
| 120Sn | 5.405 ± 0.015 | 2.55 ± 0.02 | 1.096 | 4.705 | 6.073 | 1.231 |
| ORSAY 150MeV | | | | | | |
| 116Sn | 5.275 ± 0.025 | 2.37 ± 0.05 | 1.082 | 4.551 | 5.875 | 1.205 |
| 120Sn | 5.315 ± 0.025 | 2.53 ± 0.05 | 1.078 | 4.640 | 5.990 | 1.214 |

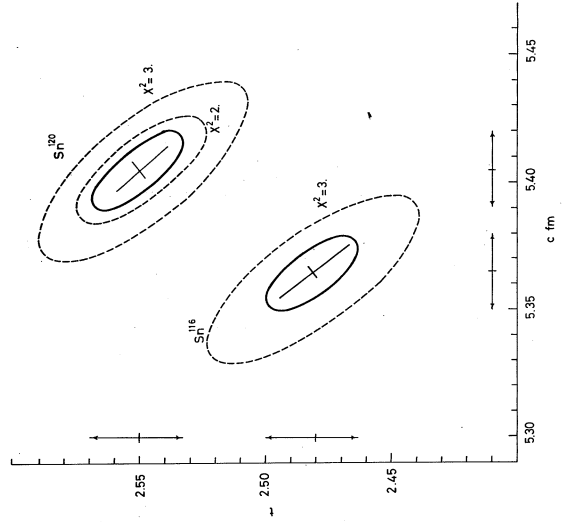
Unit in fm

めた c と t の値は, Orsayで求めた値より相対的に大きい値を示している。 c 及び equivalent-charge-uniformradius Ru の値は Sn^{116} , Sn^{120} について誤差の範囲で $A^{1/3}$ と矛盾しない。

図-2に上の方法で求めた parameter c , t を用いた 150MeV, 183MeV, 250MeV の phase shift の計算結果を実線で示す。この電荷分布は 250MeV $100 \sim 120^\circ$ の範囲では実験値を説明しないことが分かる。実験との一致は Fermi 型電荷分布を更に modify することによって改善されると思われる。図中の一点鎖線は Orsay で求められた c , t を用いた



☒ 2



☒ 3

phase shiftの計算結果である。これは250MeV 75°以上の実験結果を説明しない。

2+ 励起準位

実験より求めた2+ 励起準位の形状因子を図-5に示す。はSn¹¹⁶ 1.29MeV, はSn¹²⁰ 1.17MeV 250MeVの実験値であり*印が付いたものは183Meの実験値をDWBAを使って250MeVに焼き直したものである。

Tassie 模型

Tassieは核を非圧縮性・非回転性の不均質な液体とみなして, 励起準位をそのshape-oscillationしている状態と考えて, 転移電荷密度は基底状態と関係づけられて,

$$\rho_{if}(r) = \rho_{tr}(r) Y_{LM}^*(r) \quad (3)$$

$$\rho_{tr}(r) = N r^{L-1} (d\rho_0/dr) \quad (4)$$

ここで ρ_0 は基底状態の電荷分布であり, N は実験と計算値の比較から定まる定数で $B(EL)$ と関係している。Sn¹¹⁶の1.29MeV(2+), Sn¹²⁰の1.17MeV(2+)準位はvibrationalな性質を持つと言われている。今Tassie模型を仮定して基底状態の電荷分布として弾性散乱より求めたtwo-parameter

Fermi型を用いてDWBAのcode DUELSで,形状因子を求め,実験値と比較した。基底状態の c と t を用いたTassie Modelでは形状因子の2番目のピークが実験値より低くなり実験値との一致が良くない。そこで c と t を適当に変化させて実験値を再現する c, t を求めて, それを c_{tr}, t_{tr} とすると $c_{tr} = 1.03 c_0, t_{tr} = 0.6 t_0$ (ここで c_0, t_0 は弾性散乱より求めた c

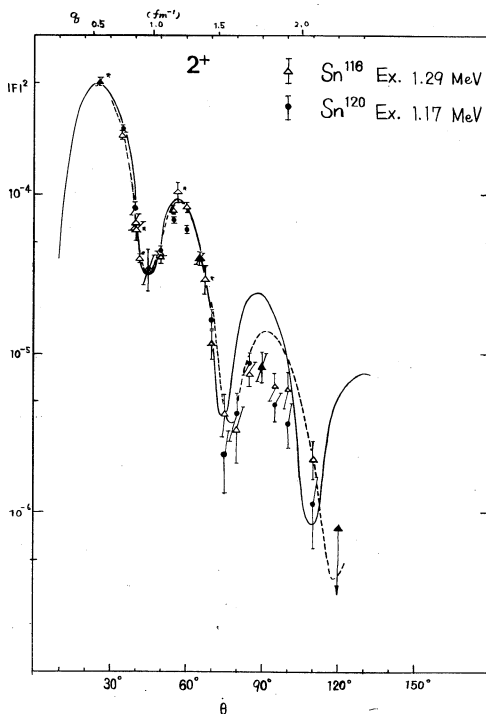


図 4

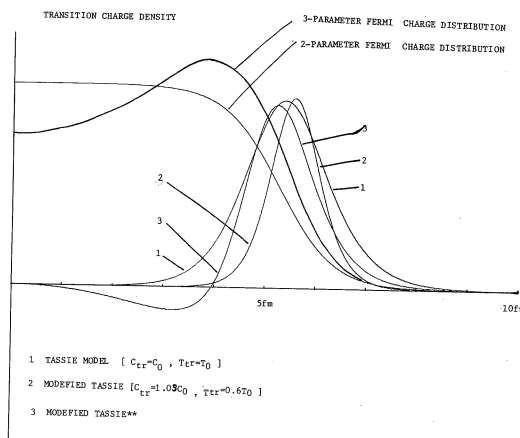


図 5

と t である)。で (図-5 の 2) 2 番目のピークまでの良い一致が得られる。その結果を図-4 の実線で示す、ところが 3 番目のピークは実験値より高くなり過ぎてしまう。実験値全部を説明するには、核表面に 1 個のピークを持つ転移電荷密度では不十分である。平面波 Born 近似での考察にすると、転移電荷密度に節を持たせることにより、実験値との一致が良くなることが調べられた。図-4 の破線は転移電荷密度に節を持たせた場合の形状因子で転移電荷密度は図-5 の 3 で与えられる。Tassie 模型を仮定してこの転移電荷密度を得るには基底状態の電荷分布は図-5 の 3 - PARAMETER FERMI CHARGE DISTRIBUTION の形となり実験から決めた電荷分布とは著しく異なる。

以上より第 1 2+ 励起準位への転移電荷密度は核表面付近に 1 個のピークを持つだけでは不十分で、核内に節を持つ転移電荷密度が必要であることが結論される。

Pb²⁰⁸ の低励起状態について

(長尾真実子)

A

Pb²⁰⁸ による電子散乱実験は、今までにYale大学¹⁾とStanford大学²⁾³⁾でおこなわれている。前者は、低励起状態(3⁻(2.6MeV以下同じ), 2⁺(4.1), 4⁺(4.3)etc)のスピンのB(EL)を求めることに成功した。後者は248.2MeV, 502.0MeVの電子ビームを使って、広範囲のmomentum transferに対する形状因子をもとめ、基底状態の電荷分布と、3⁻(2.6)状態への遷移電荷分布に関して、核表面付近ばかりでなくさらに内部の情報を提供した。今回の我々の実験は、これらの成果の上に、TOHOKUの高い分解能の解析装置を使って2⁺(4.1), 4⁺(4.3)やさらに高いスピンをもつ励起状態について調べようとするものである。

実験は、99.5%に濃縮した50.6mg/cm²のTargetを使って行った。入射電子ビームは183.0MeV, 248.2MeV, 運動量移行(q)は0.55F⁻¹から2.0F⁻¹である。散乱断面積の小さい数点をのぞいて、スペクトラムのエネルギー巾が入射エネルギーの0.12%以下になるようにした。形状因子の絶対値は同時に測定したO¹²の弾性散乱(一部4.43非弾性散乱)を標準にしてもとめた。輻射補正をしたスペクトラムの一例を図1に示す。

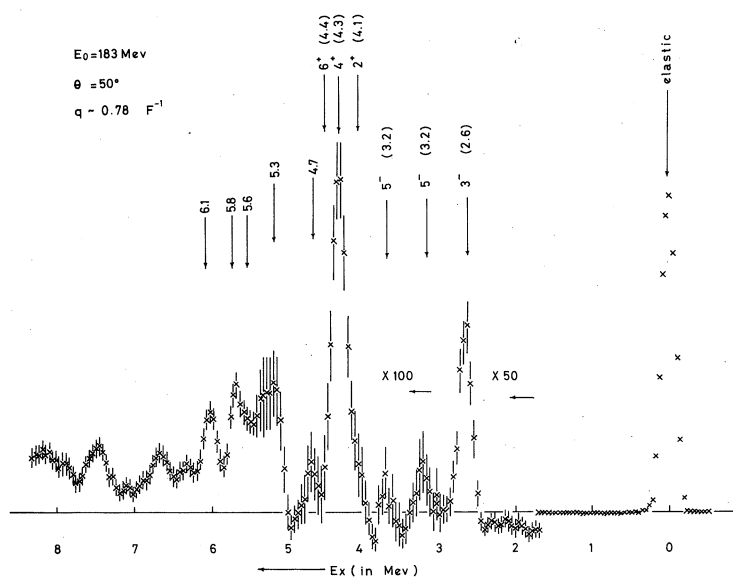


図 1

このようにして出した弾性散乱の形状因子は、Stanfordの解析結果の電荷分布

$$\rho(r) = \frac{1 + W \frac{r^2}{c^2}}{1 + \exp\left(\frac{r^n - c^n}{z^n}\right)} \quad (1)$$

$$C = 6.303f$$

$$Z = 2.89f$$

$$W = 0.345$$

$$n = 2$$

(2)

を使った計算結果と統計誤差の範囲でよく一致する(図2)。

ところが図1に示されているように、弾性散乱以降、4MeV付近まで輻射補正の結果が負の領域に入っている、この原因としては、輻射補正の式自体の問題と計算のしかたの問題とが考えられる。今回は次の2通りのやり方で処理した。

1) 輻射補正をおこなったスペクトラムのstructureのない部分から新しい座標軸をもとめ、スペクトラムを2MeV~5MeV付近にわたってもちあげる。

2) 輻射補正をおこなう前のスペクトラムから、非弾性散乱のYieldをとり出す。

どちらのやり方もかなり不正確になりやすい。この補正は、 $3^- (2.6)$ に対しては、Yield全体の約20%の割合を占め、 $5^- (3.2)$ では100%近い割合を占めることもある。

励起エネルギーが4ないし5MeVの領域ではレベルが混雑しているので、最小2乗法によってピークの大きさをきめるプログラムを使ってスペクトラムを分離した。この時、観測される予定のレベルと励起エネルギーは、G. Valloisらの(P, P')の実験データ⁴⁾を参考にした。

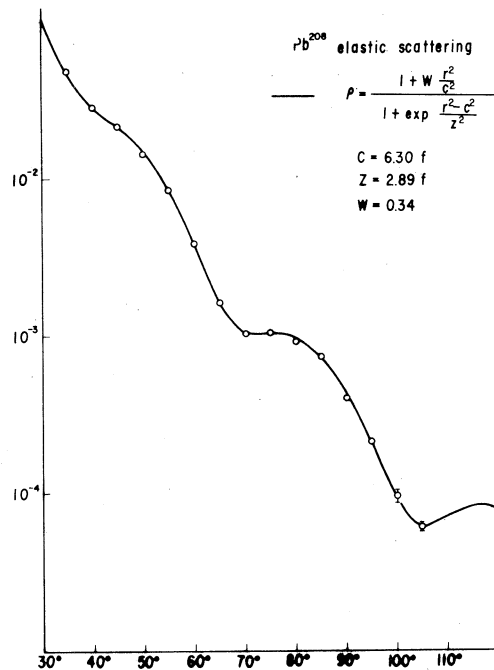


図 2

各々のスペクトラムに対し、その弾性散乱のピークに対するfittingをおこなって巾を決め、また形状因子の絶対値も弾性散乱のピークの高さから計算した(図3)

B

励起状態の解析にはTassie模型を使い、遷移電荷分布で

$$\rho_{tr} = r^{L-1} \frac{d\rho}{dr} (C_{tr}, Z_{tr}) \quad (3)$$

とした。 ρ としては(1)式をもちいる。 $n=1$ の型と $n=2$ の型とを比較したが、 C_{tr} を適当に選べば、我々の実験の q に対してはほとんどかわりない。また、同じ、 C_{tr} , Z_{tr} , n を使って、 $W=0.0$ とした場合と、 $W=0.345$ とした場合の形状因子の差は実験誤差内に入る。よって今回は、

$$\rho = \frac{1}{1 + \exp \frac{R^2 - C^2}{Z^2}} \quad (4)$$

とした。

3^- 状態については前述のように過去に詳しく調べられているので、 $B(E3)$ についてはYaleの値を、 C_{tr} , Z_{tr} についてはStanfordの値を使ってDWBA計算の形状因子にのせたのが図4である。2rd Diffraction付近で15%ものずれがある。我々のデータに問題があるとすれば、上述の輻射補正の不確定さが第一に考えられる。ちなみに183MeVデータにfitするような C_{tr} , Z_{tr} をもとめてみたが、248.2MeV

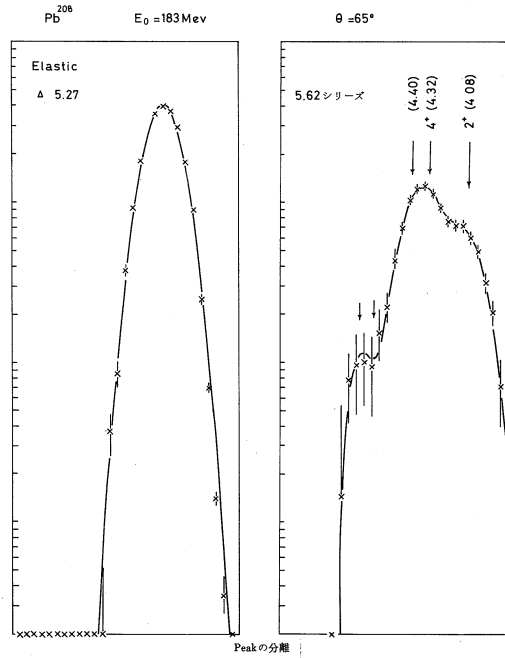


図 3

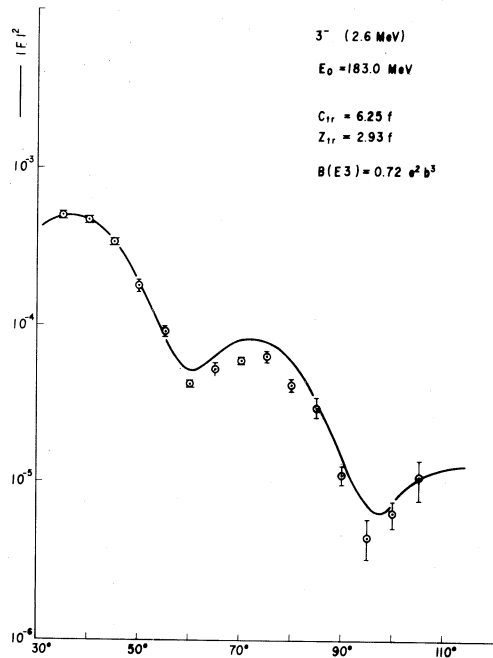
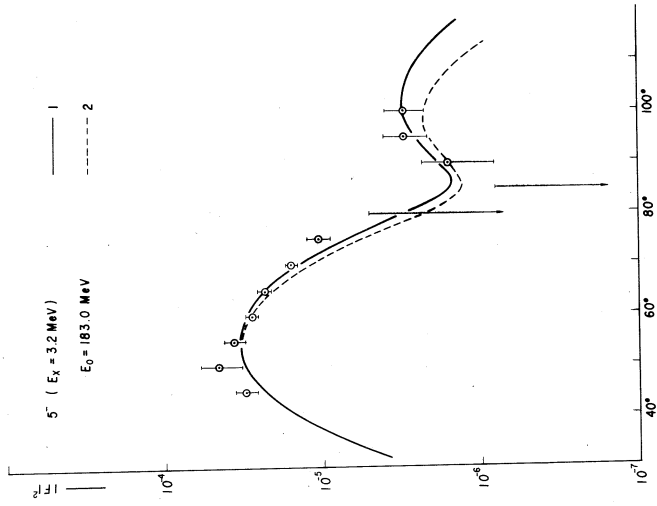
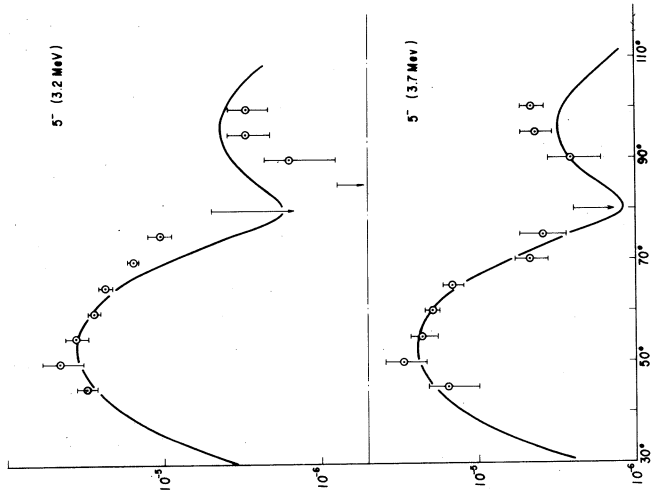


図 4



☒ 5'



☒ 5

データに fit しない。

5⁻ 状態は、3.2MeV, 3.7MeV にあるが、2つの間の形状因子は著しく異っている。図5は、同じパラメータ (C_{tr} , Z_{tr}) の形状因子の計算結果にのせたものである。実験結果を再現するようなパラメーターを求めると table 1 のようになる (図5', 図6)。

2⁺ (4.1MeV), 4⁺ (4.3MeV) についても、同様に同じパラメータでは fit せず、それぞれの良いパラメータの組合せは異ってくる (図7, 図8)。

2⁺ の $B(E2)$ は Yale の値を用いた。6⁺ (4.4MeV) については、DWBA 計算の限界なので、平面波近似で計算したものと比較した。

以上の結果を table 1 にまとめた。

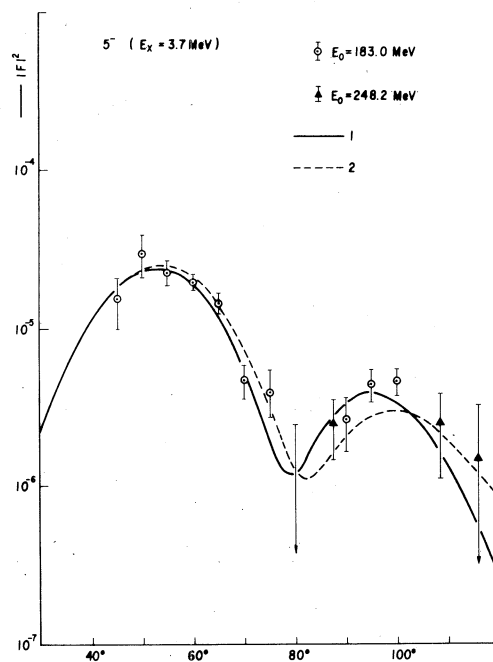


図 6

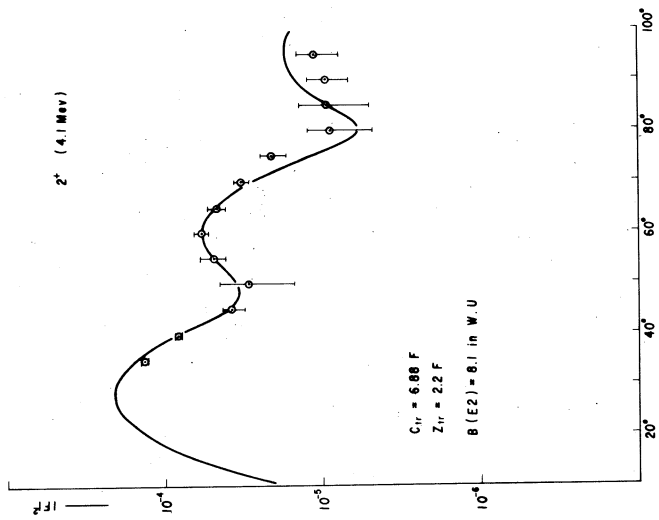
Table 1 EXCITATION OF Pb²⁰⁸

| J^π | E_X | C_{tr} | Z_{tr} | $B(EL) \text{ in } W. U.$ |
|----------------|-------|-------------|-------------|---------------------------|
| 3 ⁻ | 2.6 | 5.8 ± 0.45 | 3.2 ± 0.2 | 43 ± 5 |
| 5 ⁻ | 3.2 | 5.58 ± 0.05 | 2.98 ± 0.03 | 11.1 ± 0.8 |
| 5 ⁻ | 3.7 | 6.55 ± 0.09 | 2.74 ± 0.15 | 7.7 ± 2.4 |
| 2 ⁺ | 4.1 | 6.6 ± 0.3 | 3.0 ± 0.8 | 5.0 ± 3.0 |
| 4 ⁺ | 4.3 | ~5.8 | ~2.8 | ~15 |
| 6 ⁺ | 4.4 | ~5.0 | ~2.8 | |

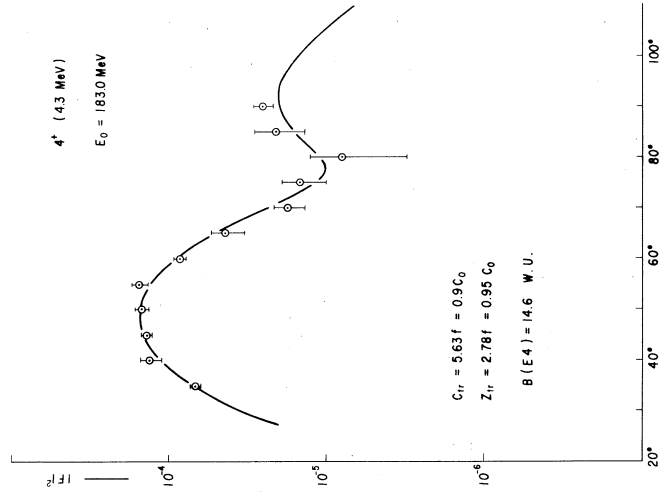
C

このような各レベルの性質のちがいを調べるために、Gilletらの計算⁵⁾の Random Phase Approximation による波動関数から、電子散乱の形状因子を計算した。この波動関数を使うと、遷移電荷は

$$\rho_{tr}^L(r) = \exp\left(-\frac{r^2}{b^2}\right) \cdot r^L \cdot \sum \alpha_a r^{2a} \quad (5)$$



☒ 7



☒ 8

という形になる。 $b = 2.33F$ 。

さらに核子が有限の大きさをもつことによる補正をする。核子の電荷分布として

$$\Delta(\vec{r}) = (2\pi g^2)^{\frac{3}{2}} \exp\left\{-\frac{1}{2g^2} r^2\right\} \quad (6)$$

を使うと、この補正をした遷移電荷は

$$\begin{aligned} \rho_{tr}^L(r) &= 2^{-(\lambda+1.5)} g^{-2(\lambda+1.5)} / \Gamma(\lambda+1.5) \\ &\times \sum \alpha_a \left\{ \Gamma\left(\frac{\alpha+\lambda}{2} + 1.5\right) \left(\frac{1}{b^2} + \frac{1}{2g^2}\right)^{-\left(\frac{\lambda+\alpha}{2} + 1.5\right)} r^\lambda b^{-\alpha} \exp\left[-\frac{r^2}{2g^2+b^2}\right] \right. \\ &\times F\left(\frac{\lambda-\alpha}{2}, 1.5+\lambda, \frac{-r^2 b^2}{2g^2(2g^2+b^2)}\right) \end{aligned} \quad (7)$$

になる。これを DWBA の CODE に入れて形状因子をもとめた。

2つの 5⁻ 状態については、 $B(EL)$ の大きさは小さいが、それぞれの性質のちがいをよく再現している(図5, 図6参照)。

2⁺, 4⁺ 状態については形状因子の形は実験データとかなりちがう。特に 2⁺ 状態ではその差はいちぢるしく、 $B(EL)$ の値も小さすぎる。しかし、Tassie Model に比べれば、形状因子の 2rd Diffraction がもちあがるという性質をよくあらわしている。

4~5MeV 付近のピークの分離にあたりプログラムの開発と指導して下さった中原助手に感謝する。

Reference

- 1) J. F. Ziegler and G. A. Peterson, Phys. Rev. **165**, (1968)1337.
- 2) J. H. Heisenberg and I. Sick, Phys. Letters **32B**, (1970)249.
- 3) J. H. Heisenberg et. al. Phys. Rev. Letters **23**, (1969)1402.
- 4) G. Vallois, Internal Report of CEN, Saclay.

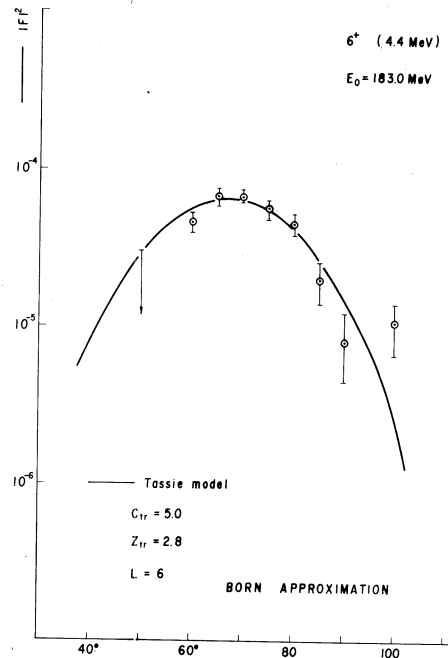


図 9

5) V. Gillet, A. M. Green and E. A. Sanderson, Phys. Letters.
 11, (1964)44; Nucl. Phys. 88, (1966)321.

Table 2

| PRESENT | | | | | | | | |
|-------------------|---------|-----------|-----------|-----------|---------------------|---------|----------------|---------|
| $E_X(\text{MeV})$ | J^π | 70MeV | 40MeV | 24.5MeV | 42MeV | J^π | 183MeV | RPA^e |
| | | $(ee')^a$ | $(pp')^b$ | $(pp')^c$ | $(\alpha\alpha')^d$ | ASSIGN | (ee') | |
| 2.6 | 3^- | 39.5 | 35.8 | 32 | 41.1 | 3^- | 43 ± 5 | 13 |
| 3.2 | 5^- | | 10.7 | 17 | 14.1 | 5^- | 11.1 ± 0.8 | 3.59 |
| 3.7 | 5^- | | | 3.9 | | 5^- | 7.7 ± 2.4 | 3.57 |
| 4.1 | 2^+ | 8.1 | 9.4 | 6.6 | 8 | 2^+ | 5.0 ± 3.0 | 0.66 |
| 4.3 | 4^+ | | | 11.4 | 14.8 | 4^+ | ~ 15 | 0.88 |
| 4.4 | 6^+ | | | 11.7 | | 6^+ | | |

I - 2 ^{19}F による電子散乱

核理研・理学部物理*

小山田正幸・寺沢辰生・中原和夫

遠藤 順政*・斎藤 肇*・田中英二*

^{19}F の奇パリティ低励起準位は、 α 粒子の移行反応で強く励起され、又、それ等の準位間の $E2$ 転移が非常に強いことが知られている^{1,2)}。又、理論的には、これ等の準位の励起エネルギー及び、集団運動の性質は、 ^{20}Ne の基底状態回転帯に、 $1P_{1/2}$ 及び $1P_{3/2}$ 軌道の陽子空孔を弱く結合させる模型によって、かなりよく説明されている³⁻⁵⁾。一方偶パリティ準位については、 $(sd)^3$ 配位の中間結合模型や、回転模型によって、エネルギー位置、スピン、強い $E2$ 転移確率等がよく説明される^{5,6)}。このような考え方の場合、パリティ変化を伴う $E\lambda$ 転移は、異なった band 間の転移であるため、転移確率は、集団運動的転移の場合に比べて、かなり小さくなる。しかるに、Litherland et al.⁷⁾ は、グリーン励起の実験により、 $1.35\text{MeV } \frac{5^-}{2}$ 準位から基底状態 $\frac{1^+}{2}$ への強い $E3$ 転移確率を得た。彼等はこの転移に関して、 ^{16}O -core の 8 重極振動の重要性を示唆している。

以下に報告する ^{19}F による非弾性電子散乱の実験でも、パリティ変化を伴う強い band 間の転移が観測された。

実 験

この実験では、標的として厚さ $107\text{mg}/\text{cm}^2$ と $40\text{mg}/\text{cm}^2$ のテフロン ($\{\text{CF}_2-\text{CF}_2\}_n$)、及び厚さ $391\text{mg}/\text{cm}^2$ の弗化カルシウム (CaF_2) を使用した。入射電子エネルギー $E_0 = 150\text{MeV}$, 250MeV , 散乱角 $\theta = 33^\circ \sim 90^\circ$ の範囲で散乱電子エネルギースペクトルを測定した。エネルギー分解能は約 0.13% である。通常は、テフロンを標的として使用し、 1.35MeV 準位と 1.56MeV 準位によるピークが炭素による弾性散乱ピークと重なる場合について弗化カルシウムを標的に使った。テフロン標的は、熱的に弱いので、約 2 秒の周期で $\pm 1\text{cm}$ 上下に振動させ、入射ビーム強度も標的の厚さに応じて、 $0.3\mu\text{A}$ 以下におさえた。散乱断面積の絶対値は、よく知られた ^{12}C の弾性散乱断面積を基準にして求めた。実験で得られたスペクトルに対して輻射補正をしたものの例を第 1 図に示す。

実験結果

^{19}F の基底状態のスピンは $\frac{1}{2}$ であるので、電磁的励起には、常に一つの電氣的励起モードと、それから多重極度が1だけ異なる一つの磁氣的励起モードとが存在する(但し、 $\frac{1}{2}^-$ 準位だけは例外で $E1$ だけ)。しかし、集団運動的な低励起準位に対しては、電子散乱は主に、

"電荷"によって起るので、クーロン形状因子は、簡単に(1)式で与えられる。

$$|F(q_{\text{eff}})|^2 = \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{exp}} / \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{point}} \quad (1)$$

ここで $(d\sigma/d\Omega)_{\text{exp}}$ は散乱断面積の実験値、 $(d\sigma/d\Omega)_{\text{point}}$ は、点電荷 Ze による散乱断面積である。 q_{eff} は "effective momentum transfer" であって、運動量移行 q から

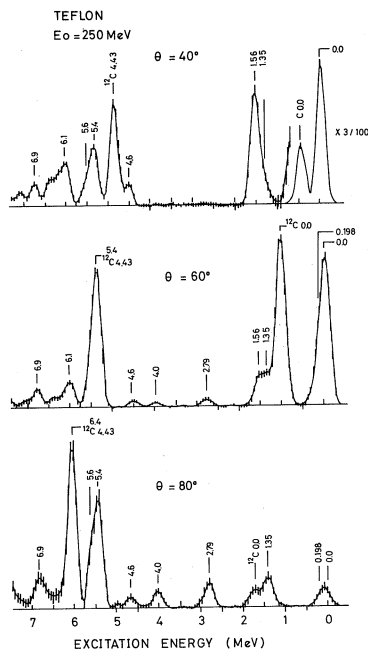
$$q_{\text{eff}} = q \left(1 + \frac{3}{2} \frac{Ze^2}{Ru} \frac{1}{E_0} \right) \quad (2)$$

で換算される。又、 Ru は "equivalent uniform radius" であって、

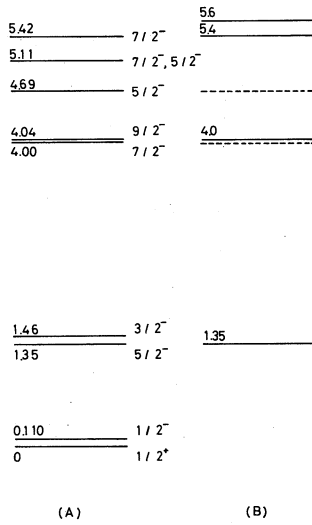
$$Ru^2 = \frac{5}{3} \langle r^2 \rangle \quad (3)$$

で定義される。 $\langle r^2 \rangle$ は電荷密度分布の自乗平均半径である。

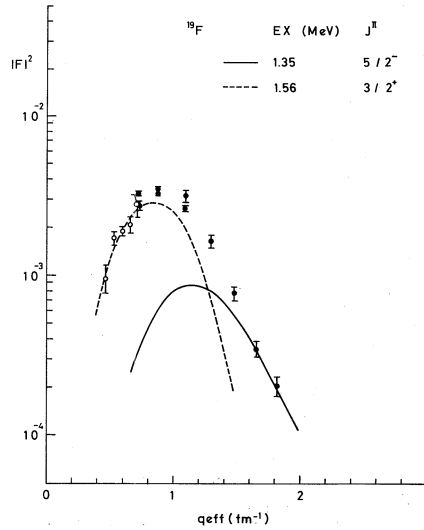
既に知られている奇パリティ準位⁹⁾と、この実験で強く励起された奇パリティ準位を第2図に示す。又、第3図には、 $1.35\text{MeV } 5/2^-$ 準位と、 $1.56\text{MeV } 3/2^+$ 準位の形状因子を示す。図の実験点は両者と含んでいる。この二つの準位は、幅の広がった複合ピークを形成しているが、計算で、2本のピークに分離して、それぞれに対応する形状因子も求め、実線と破線で示した。第4図には、 $4.00\text{MeV } 7/2^-$ 準位と、 $4.04\text{MeV } 9/2^-$ 準位の形状因子を示す。この二つの準位を分離して測定することは出来なかったが、 $1.35\text{MeV } 5/2^-$ 準位に対する $E3$ 形状因子の q 依存性を利用して、第4図の実線及び破線で示したように、 $E3$ と $E5$ 成分の大きさを推定することが出来る。第5図に示した 5.4MeV 及び 5.6MeV 準位の形状因子についても、第3図の場合と同様にして分離した。その附近には (p, p') 等の実験からいくつかの準位の存在する事が知られているが⁹⁾、形状因子の q -依存性から、前者は $5.42\text{MeV } 7/2^-$ 準位と考えられる。又、後者は、エネルギー



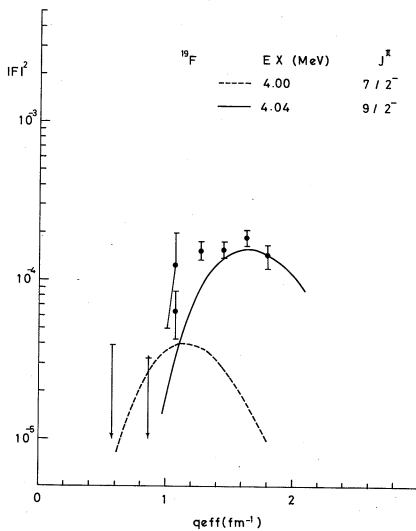
第1図 テフロンによる散乱電子エネルギースペクトル(輻射補正がしてある)。



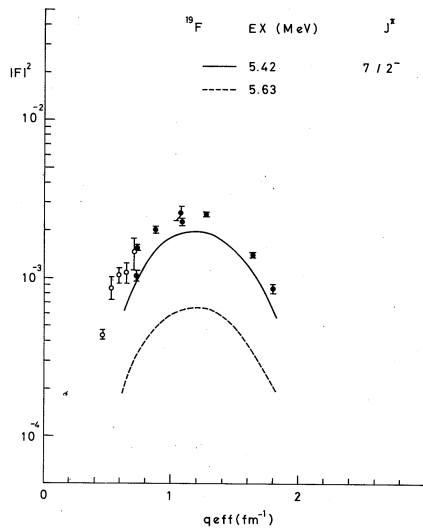
第2図 ^{19}F の奇パリティ・エネルギー準位。(A)最近の各種実験で奇パリティが明確な準位及び基底状態。(B)この電子散乱実験で明瞭に励起できた準位。破線は弱く励起された準位。



第3図 ^{19}F の1.35MeV 5/2⁻準位及び1.56MeV 3/2⁺準位の形状因子。測定点は両者を含む。実線及び破線は、二つのピークに計算で分離して得た実験点を滑かにつないだもの。



第4図 ^{19}F の4.00MeV 7/2⁻準位及び4.04MeV 9/2⁻準位の形状因子。測定点は両者を含む。破線は、1.35MeV 5/2⁻準位の形状因子の q 依存性をそのまま利用して推定した $E3$ 成分。実線は $E3$ 成分を差し引いた残りを滑かにつないだ線で $E5$ の q 依存性を示す。



第5図 ^{19}F の5.42MeV 7/2⁻準位及び5.63MeV準位の形状因子。

位置から見て5.63MeV準位であろう。

5.63MeV準位については、まだスピンパリティが不明であるが、この実験で形状因子がE3のq依存性を示すことから、 $\frac{5^-}{2}$ 或は $\frac{7^-}{2}$ と思われる。仮に ^{16}O -coreの8重極振動(^{16}O では6.13MeV準位)に外殻の核子の角運動量 $\frac{1}{2}$ が弱く結合して、 $\frac{5^-}{2}$ と $\frac{7^-}{2}$ の準位が出来ているとして、5.42MeV $7/2^-$ 準位をその一方とすれば、もう一方が5.63MeV $\frac{5^-}{2}$ 準位であるとも考えられる。もっとも転移確率が小さすぎることから、この点は確定的でない。さらに ^{16}O の7.12MeV, 1^- , $T=0$ 準位の形状因子がE3のq依存性を示すことと関連して、 ^{19}F の5.63MeV準位が、 $\frac{1^-}{2}$ 或は $\frac{3^-}{2}$ である可能性も否定できない。

これ等の形状因子の大きさを ^{16}O のE3形状因子と比較してみる。この場合、形状因子そのものを比較するのではなく、換算行列要素で比較しなければならない。

$$\begin{aligned} \frac{1}{2J_i+1} & | \langle J_f || \epsilon J_\lambda(qr) Y_\lambda(r) || J_i \rangle |^2 \\ &= \frac{Z^2 e^2}{4\pi} | F(q) |^2 \equiv e^2 f^2(q) \end{aligned} \quad (4)$$

ここで、 ϵ は電荷演算子、 λ は転移の多重極度、 J_i , J_f はそれぞれ基底状態と励起状態のスピンである。 ^{16}O の6.13MeV 3^- 準位の $f^2(q)$ の最大値と ^{19}F の主なE3励起準位の f^2_{\max} と比較してみると、1.35MeV $\frac{5^-}{2}$ 準位の f^2_{\max} は ^{16}O の約 $\frac{1}{5}$ 、4.00MeV $\frac{7^-}{2}$ 準位は $\frac{1}{10}$ 以下、5.42MeV $\frac{7^-}{2}$ 準位は約 $\frac{1}{2}$ である。又、 γ 線転移確率の概略値を知るために、形状因子に対して

$$| F(q) |^2 = \frac{1}{Z^2} \left(\frac{2J_f+1}{2J_i+1} \right) \left(\frac{3}{\lambda+3} \right)^2 \left(\frac{R_W}{R} \right)^{2\lambda} | M |^2 J_\lambda(qR) e^{-q^2 g^2} \quad (5)$$

なる関数を仮定した。ここで $| M |^2$ は、Weisskopf unitで表わした $J_f \rightarrow J_i$ の γ 線転移確率である²⁾。パラメータ R , g は、実験から得られた1.35MeV $\frac{5^-}{2}$ 準位のE3形状因子のq依存性に合うように $R=3.1\text{fm}$, $g=1.0\text{fm}$ とした。又、 $R_W=1.2A^{1/3}\text{fm}$ である。(5)式を実験値に合せて求めた $| M |^2$ の値を第1表に示す。これは概略値であって、factor 2程度の誤差が見込まれることに注意しなければならない。

4.04MeV $\frac{9^-}{2}$ 準位の強いE5励起は、これまでの理論的研究では全く取り上げられていなかったものであり、E3励起と共に、今後理論的にも究明されなければならない重要な問題となろう。

第1表 (5)式を使って(e, e')の実験値から求めた基底状態への γ 線転移確率(Weisskopf unit)。factor 2程度の誤差を含む概略値である。5.63MeV単位については、 $J^\pi = 5/2^-$ を仮定した時の値である。(a)文献7., (b)文献8.

| | E_X (MeV) | J^π | $ M ^2$ (w. u.) | |
|-----|-------------|-------------|-----------------|-------------------------------------|
| | | | (e, e') | Coulomb ex. |
| E 3 | 1.35 | $5/2^-$ | 7.5 | 12 ± 4 (a) 7.6 ± 1.3 (b) |
| | 4.00 | $7/2^-$ | 0.2 | |
| | 5.42 | $7/2^-$ | 12 | |
| | 5.63 | ($5/2^-$) | (6) | |
| E 5 | 4.04 | $9/2^-$ | 15 | |

参 考 文 献

- 1) Roy Middleton, in "Nuclear Reactions Induced by Heavy Ions" eds. R. Bock and W. R. Hering (North-Holland, Amsterdam, 1970) p. 263.
- 2) S. J. Skorka, J. Hertel and T. W. Retz-Schmidt, Nucl. Data **2A**, No. 4 (1966).
- 3) M. Harvey, Nucl. Phys. **52** (1964) 542.
- 4) A. Arima, H. Horiuchi and T. Sebe, Phys. Lett. **24B** (1967) 129.
- 5) H. G. Benson and B. H. Flowers, Nucl. Phys. **A126**, (1969) 305.
- 6) J. P. Elliott and B. H. Flowers, Proc. Roy. Soc. **A229**, (1955) 536.
E. B. Paul, Phil. Mag. **15**, (1957) 311.
A. Arima, S. Cohen, R. D. Lawson and M. H. Macfarlane, Nucl. Phys. **A108**, (1968) 94.
A. Arima, M. Sakakura and T. Sebe, preprint.
- 7) A. E. Litherland, M. A. Clark and C. Broude, Phys. Lett. **3**, (1963) 204.
- 8) T. K. Alexander, O. Hausser, K. W. Allen and A. E. Litherland, Can. J. Phys. **47**, (1969) 2335.
- 9) see e. g. C. Schmidt and H. H. Duhm, Nucl. Phys. **A155**, (1970) 644.

I-3 (γ, p) 反応による中重核の研究

核理研 庄田 勝房・菅原真澄
 齋藤悌二郎・宮瀬晴久
 及川 四郎・鈴木厚人

今期は主に $N=50$ の核 (Sr, Y, Zr, Mo) と Nd アイソトープについて実験を行ったのでその結果を報告する。

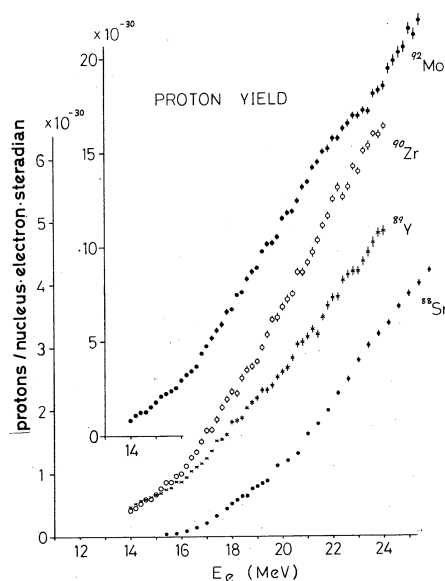
N=50 核の光核反応

$N=50$ 核の (γ, p) 反応を調べた。IAS については以前 (参考文献1) に述べたので、ここでは T_3 の coherent resonance について述べる。

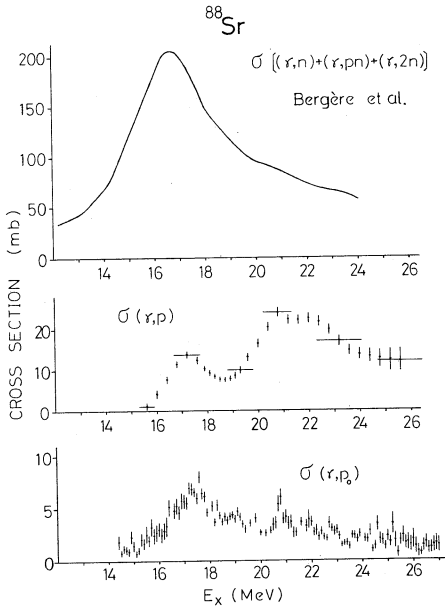
実験の方法は電子を直接 target 核に当て、いわゆる仮想光子によって核を励起する方法をとり、 $Si(Li)$ SSD 100 個よりなる広帯域分析電磁石で target 核より放出される陽子を測定した。

coherent resonance の状態を調べるために、入射電子の energy を約 200 keV 間隔で 14.0 MeV より 24.0 MeV にわたって変え、各 run 毎にスペクトルの陽子数の総和をとることに依って (但し、実験上の制約に依り $E_p \sim 3.4$ MeV より max までの和をとった) yield curve を得た (第1図)。これを photo-difference method と least structure method²⁾ とによって解析した (第2図 a, b, c, d)。

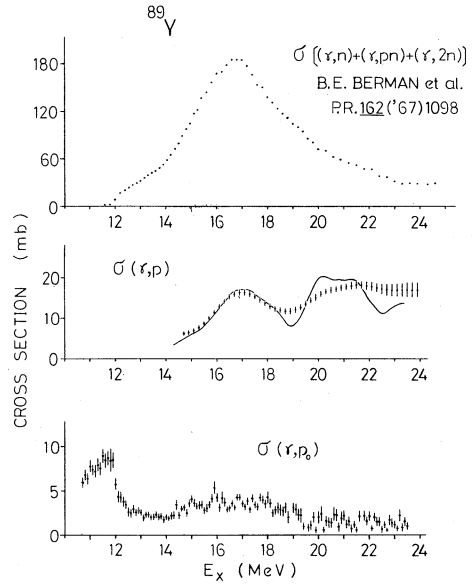
この辺の核では $E1$ 巨大共鳴が $E_X \sim 17$ MeV 付近にあることが (γ, n) 反応からわかっており、我々の結果に現われている $E_X \sim$



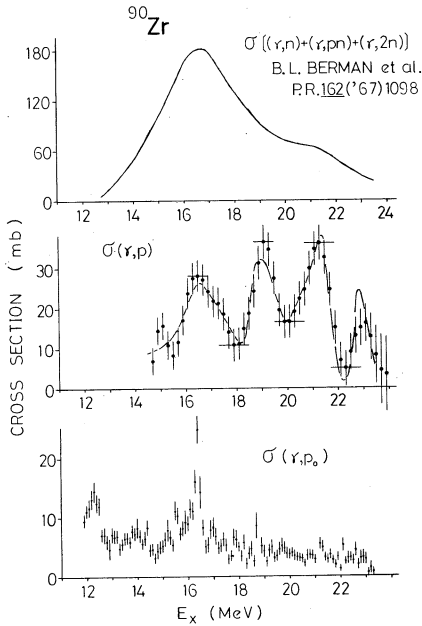
第1図 $E_p \sim 3.4$ MeV より max. までの proton yield.



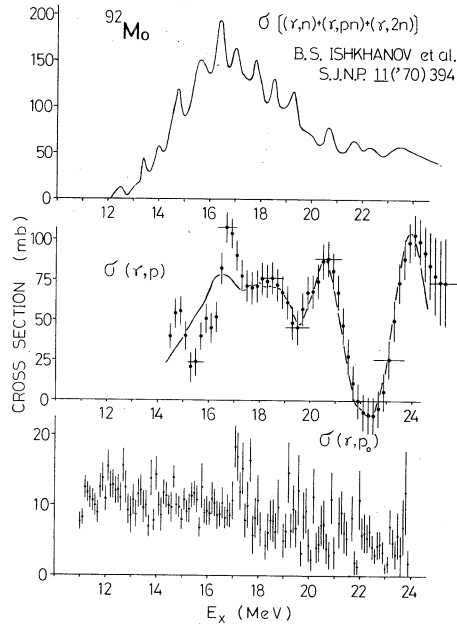
第2図 a) ^{88}Sr の $\sigma(\gamma, T_n)$, $\sigma(\gamma, p)$, $\sigma(\gamma, p_0)$



第2図 b) ^{89}Y の $\sigma(\gamma, T_n)$, $\sigma(\gamma, p)$, $\sigma(\gamma, p_0)$
 $\sigma(\gamma, p)$ の実線はphoto-difference method
 点はCookのleast structure methodに依る。



第2図 c) ^{90}Zr b)と同じ



第2図 d) ^{92}Mo b)と同じ

21MeV 附近の大きなグループは isospin が split した $T_>$ の coherent resonance と思われる。S. Fallieros et al.³⁾ に依れば $E1$ state の isobaric splitting は

$$E_{T+1} - E_T \approx U(T+1)/T > 0$$

で与えられる。しかし今、我々がみているのは coherent resonance であるためこのままでは比較出来ない。というのは $E1$ GR を作っている unperturbed state の数より $T_>$ coherent resonance を作っている $T_>$ unperturbed state の数の方が少なく、 $E_{T+1} - E_T$ は上の式よりも小さくなる。

$$E_{T+1} - E_T \approx 0.6 U(T+1)/T^4$$

更に参考文献3に依れば $T+1$, T 成分の基底状態への radiative strength の比は、

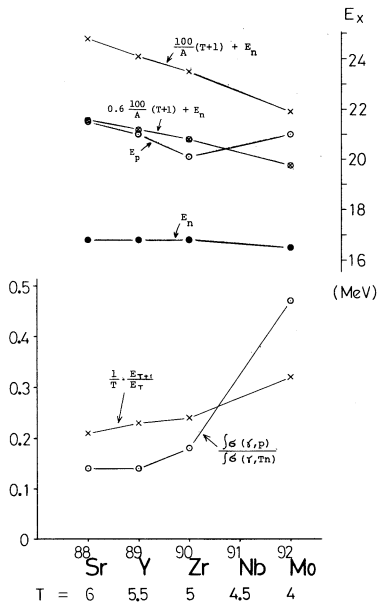
$$\frac{\Gamma_{T+1}}{\Gamma_T} = \frac{1}{T} \left(\frac{E_{T+1}}{E_T} \right)^3$$

で与えられる。今、 $T+1$ 成分よりは陽子の、 T 成分よりは中性子の放出が主であると仮定すると、この関係式は

$$\frac{\int \sigma(\gamma, p) dE}{\int \sigma(\gamma, n) dE} = \frac{1}{T} \frac{E_{T+1}}{E_T}$$

という結果を得る。これらを第3図に示す。

又、各励起 energy に於ける $\sigma(\gamma, p)/\sigma(\gamma, T_n)$, $\sigma(\gamma, p_0)/\sigma(\gamma, p)$ の比をみてみた(第4図)。これに依ると、GR 領域では $\sigma(\gamma, p)$ は小さいが 20 数 MeV 附近になると非常に大きくなり 5 ないし 6 割近くが陽子の放出にあてられていることがわかる。しかしこの結果は penetration に依る補正を入れてないのでもう少し変化する筈である。penetration factor は 1 の依存性が大きいので角分布をとるなどして 1 をある程度実験的におさえる必要があると思われる。



第3図 E_n はE1巨大共鳴の中心のenergy
 E_p は $T >$ coherent resonance
 の中心のenergy

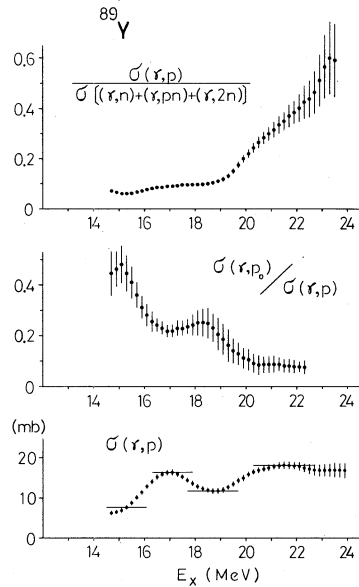
$\int \sigma(\gamma, p)$ は我々のdataを使用。

- ^{88}Sr については、15.6MeV~25.6 MeVのintegral.
- ^{89}Y については、11.0MeV~23.8 MeVのintegral.
- ^{90}Zr については、12.0MeV~23.8 MeVのintegral.
- ^{92}Mo については、11.0MeV~25.2 MeVのintegral.

$\int \sigma(\gamma, T_n)$ は $\int \sigma[(\gamma, n) + (\gamma, pn) + (\gamma, 2n)] dE$ の略。

dataは

- ^{88}Sr については、P. F. Yergin et al. P. R. 104 ('56)1334. 但し、 $\int \sigma(\gamma, 2n) dE = 0.1 \text{ b} \cdot \text{MeV}$ と仮定した。
- ^{89}Y については、B. L. Berman et al. P. R. 162 ('67)1098.
- ^{90}Zr " " "
- ^{92}Mo については、B. S. Ishkhanov et al. S. J. N. P 11 ('70)394.



第4図 ^{89}Y についての

$$\frac{\sigma(\gamma, p)}{\sigma(\gamma, T_n)}$$

$$\frac{\sigma(\gamma, p_0)}{\sigma(\gamma, p)}$$

$$\sigma(\gamma, p)。$$

文 献

- 1) 核理研究報告 Vol. 2 No.1 ('69)31.
- 2) B. C. Cook, Nucl. Instr. and Meth. 24 ('63)256.
- 3) S. Fallieros, B. Goulard and R. H. Venter, Phys. Letters 19 ('65)398.
- 4) S. Fallieros and B. Goulard, Nucl. Phys. A147 ('70)593. J. D. Vergados and T. T. S. Kuo, Phys. Letters 35B ('71)93.

§2 Nd($e, e'p$) 反応

これ迄N=82の核, ^{138}Ba , ^{140}Ce , ^{142}Nd , ^{144}Sm について photoreactionに見られる isobaric analogue state (IAS) について調べてきた¹⁾。これらの核では, proton spectrum (図1)に, $\sim 10\text{MeV}$ に sharpな proton group と $\sim 13\text{MeV}$ に interference type のやゝ broadな proton group が見られるのが特徴的である。この proton group は励起energyでいうと, $\sim 17\text{MeV}$ 及び $\sim 20\text{MeV}$ となり, この様な高い励起状態で sharpな cross section を示すことは, この proton group は IAS を経由した proton であると考えられる。(図1は proton spectrum であるが, p_0 transition とした場合, ほぼ同じ形の cross section が得られる)。実際 ^{140}Ce の場合に, sharpな proton group の state は ^{140}Ce の ground state の spin が 0^+ であり, $E1$ 励起とすれば 1^- の state であると考えられるが, 親の核 ^{140}La の対応した energy に 1^- の state が見つかっている。

今回は IAS の N dependence を調べる目的でこの附近の核で安定したアイソトープの多い Nd について実験を行った。ターゲットの純度及び厚さは ^{142}Nd (97.7%, $6.69\text{mg}/\text{cm}^2$), ^{144}Nd (97.5%, $4.25\text{mg}/\text{cm}^2$), ^{146}Nd (97.5%, $5.42\text{mg}/\text{cm}^2$), ^{148}Nd (93.3%, $4.71\text{mg}/\text{cm}^2$), ^{150}Nd (94.8%, $3.65\text{mg}/\text{cm}^2$) である。

図2に $\theta=125.3^\circ$ 方向で測定した Nd アイソトープの proton spectrum を示す。 $E1$ 吸収の場合は, 放出 proton の角度分布は,

$$W(\theta) = a + b P_2(\cos\theta)$$

と書け, $\theta=125.3^\circ$ では $P_2(\cos\theta)$ の項は零となり, この角度での diff. cross section を 4π 倍して total cross section が得られる。図2で, ^{142}Nd の場合は 90° で測定した図1と同様に 10.4MeV 及び 13.2MeV に明かに二つの proton group が見られる。破線は ground IAS, 実線は $E1$ IAS の位置を示す。 ^{142}Nd については, 親の核 ^{142}Pr で 85keV に 1^- の state が見つかっている²⁾。Spectrum ではこれに対応する

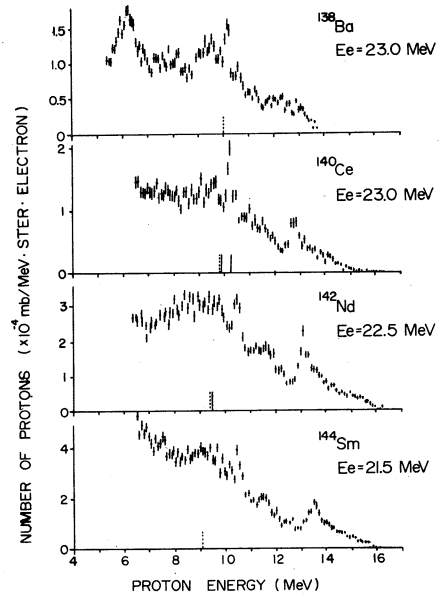


図 1

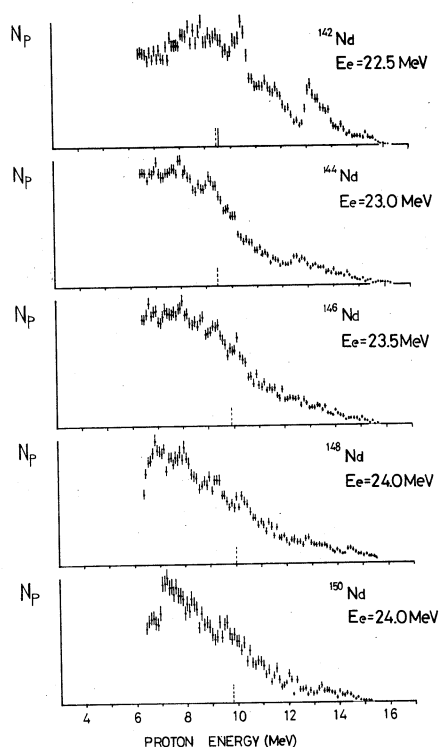


図 2

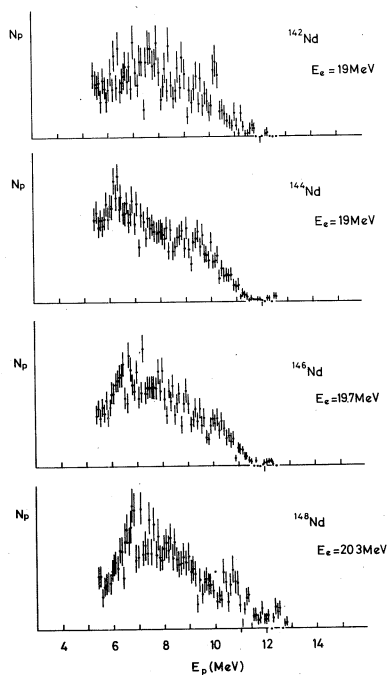
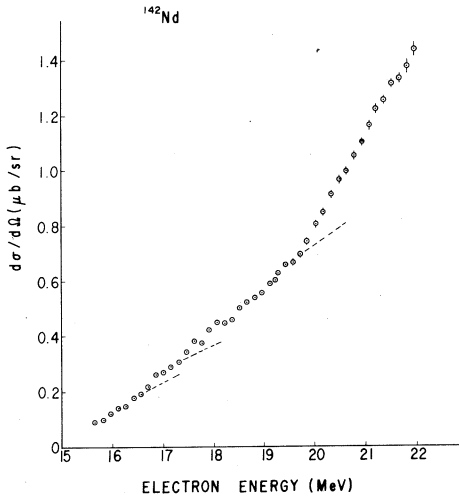


図 3

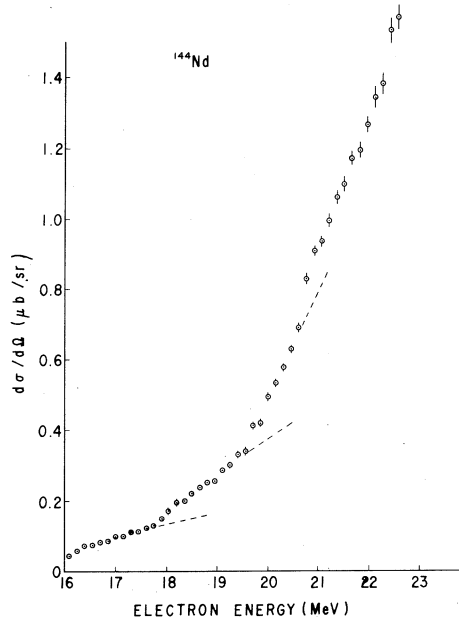
Peakは判然としないが、後述する様に、これに対応したresonanceがcross sectionに見出された。 ^{144}Nd では、9.2MeVと12.6MeVとにproton groupが見られる。9.2 MeVのpeakはground IASよりもenergyが低いが、これはprotonが ^{143}Pr の励起状態に落ちているものと考えられる。質量数が146以上ではinterference typeのproton groupは現われなくなり、sharpなproton groupだけが、それぞれ ^{146}Nd では10.2MeVに、 ^{148}Nd では10.2MeVに、 ^{150}Nd では9.5MeVにみられる。

図3は、図2で見られる低い方のproton groupを確かめるために、electron energyを下げて測定したspectrumである。多少peakのenergyのずれがあるが、いずれの核でも対応したproton groupがでていることがわかる。

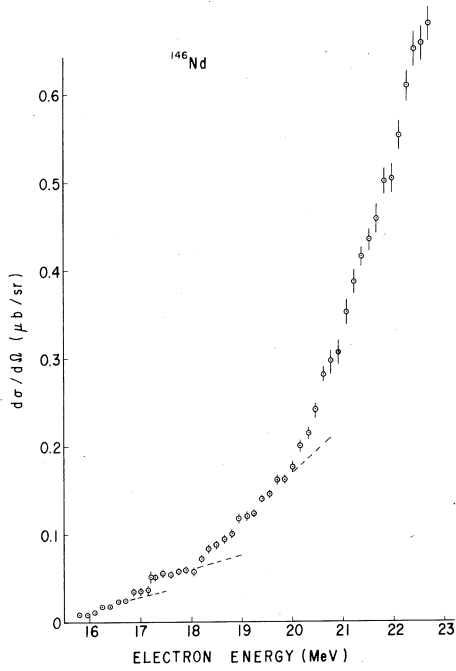
次に (γ, p) 反応のcross sectionを求めめるため、electron energyを150 keV間隔で変え、各照射energyについて5.5MeV以上のprotonの総和を求めた。Electron energyに対してprotonの総和をplotしたいわゆるyield curveを図4から図8に示す。その場合、縦軸は $(e, e'p)$ でのcross sectionになり、 $(\mu\text{b}/\text{sr})$ の単位で示してある。図の点線は、radiative widthを求めめる際にcontinuousな



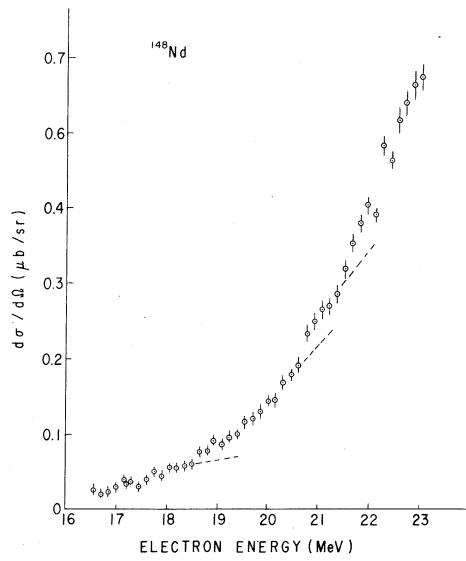
⊗ 4



⊗ 5



⊗ 6



⊗ 7

baseを差引くために、breakより低いenergyの側からextrapolateしたものである。

Radiative width Γ は以下に述べる方法で求めた。Yield curveでbreakよりもenergyの高い点でproton数と点線との差をとり、その増加分がbreakの位置でのresonanceによるものとして、それをbreakのenergyを持つphoton数で割りintegrated cross sectionを求めた。Radiative widthはintegrated cross sectionとの関係式

$$\int \sigma_R(E) dE = (\pi \hbar^2)^2 \frac{2I_{R+1}}{2I_0+1} \Gamma_R$$

を使って得られる。

図9はYield curveにみられるbreakのenergyをX印で、Yield curveから求めたcross sectionにみられるpeakのenergyを黒丸で示した(実線は解析上の分解能)。点線はground IASの励起energyの計算値を示す。 ^{148}Nd 、 ^{150}Nd では親の核のneutronのseparation energyが正確にわかっておらず、計算値に約500keVの誤差がある。 ^{142}Nd のbreakはground IASの計算値とほぼ一致するが、これはground IASよりも85keV上にある 1^- のstateによるE1 IASによるものと考えられる。次の17.3MeV及び19.7MeVのbreakはそれぞれspectrum上でsharpなproton group及びinterference typeのproton groupに対応しており、これらは親の核 ^{142}Pr で対応する 1^- のstateが見出されてないが、cross sectionの形や大きさからE1 IASと考えられる。 ^{144}Nd の二つのbreakも又spectrum上の二つのproton groupと対応しているものと思われる。しかしspectrumから p_0 として得られる低い方のproton groupの励

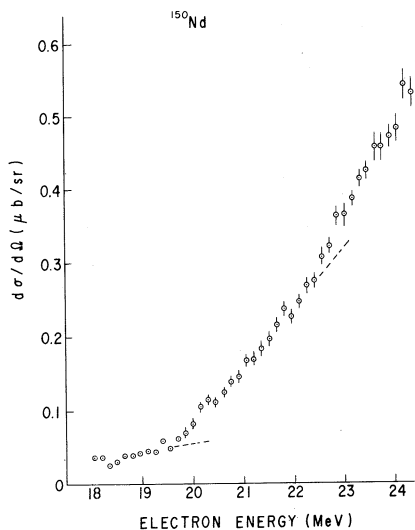


図 8

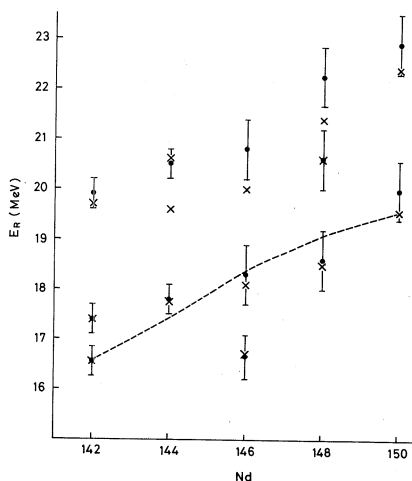


図 9

起energyは、breakのenergyと一致せず、これは p_0 ではなく、もっと高い励起状態に落ちているprotonであると思われる。 ^{146}Nd , ^{148}Nd , ^{150}Nd ではspectrumにenergyの高い方のproton groupが見られないが、図9から、 ^{142}Nd , ^{144}Nd の二つのgroupとsystematicに対応している位置にresonanceが存在していることがわかる。これ等のresonanceは今後更に検討しなければならないが、 ^{142}Nd の場合から類推してIASに依るものと考えられる。

図10は、二つのproton groupについて、先に述べた方法で求めたradiative widthを示す。白丸はenergyの高い方の、黒丸はenergyの低い方のgroupを示す。縦軸はradiative widthをWeisskopf unitで割り、single particle transitionと比較する場合のhindrance factor $2(T+1)$ を補正した値である。Energyの高い方のgroupは、 ^{142}Nd で1.0, ^{150}Nd では0.2となりneutronの増加に伴って、hinderされている様子がわかる。 ^{142}Nd の低いgroupの値が小さいが、これは近くにある

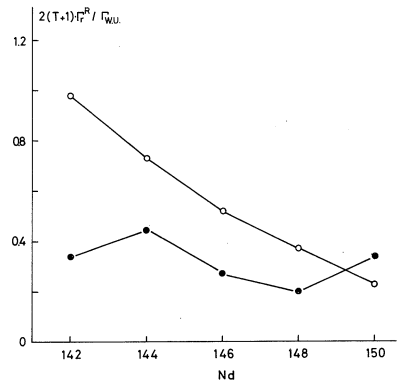


図 10

resonanceの影響のestimateが悪いためと思われる。図10はpreliminaryな結果でLorentz型のcross sectionを仮定して、peakのenergy, peak値, 半値幅をパラメーターとして、 χ^2 テストによるプログラムを準備中である。

図11から図15は、先のyield curveからCookのleast structure method³⁾で求めた(γp)反応のcross sectionである。図で横線は解析上の分解能を示す。質量数146以上では、統計誤差が大きく、yield curveに明かにbreakが見られても、cross sectionではpeakが判然としなくなる。

Table 1はcross sectionに見られるpeakのenergy及び半値幅 Γ (分離可能なものに対して)及び個々のintegrated cross

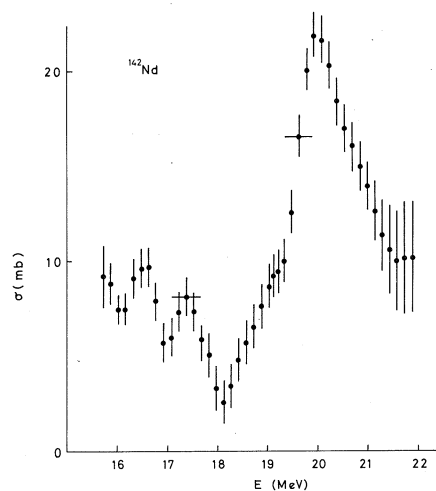


図 11

section, total integrated cross section (測定したenergyまで)をまとめて示した。これを (γ, n) のcross sectionと比較するために、同じTableに ^{140}Ce , ^{141}Pr の (γ, n) の結果を記した。Ndのアイソトープについても、Bergère等⁶⁾により実験が行われており、 ^{142}Nd のcross sectionのpeak energy及びintegrated cross sectionについては、上記の ^{140}Ce , ^{141}Pr とほぼ同じ値を得ている。

今回の (γp) の実験の結果を $T_{>}$ giant dipole resonance (GDR)として、 $T_{<}$ のGDRと比較してみる。

^{142}Nd の場合、 $T_{>}$ と $T_{<}$ のenergy差 ΔE の実験値は約5.1 MeVである。

一方理論的には

$$\Delta E = (T+1)U_D/T \quad U_D \approx 0.6U$$
で与えられ⁷⁾計算値は5.07 MeVとなり、

実験値と良く一致する。一方 $T_{>}$ と $T_{<}$ のintegrated cross sectionの割合は、近似的に

$1/T$ に比例するが($1/T = 0.09$)、実験値は、0.03でかなり違う。

今回はspectrum上でinterference typeのproton groupが含まれるenergyまでのyield curveの測定しか行わなかったが、 (γp) のcross sectionの全貌を明らかにするためには、更に高いenergyまでの測定が必要であり次回のマシンタイムに実験を行う予定である(斎藤)。

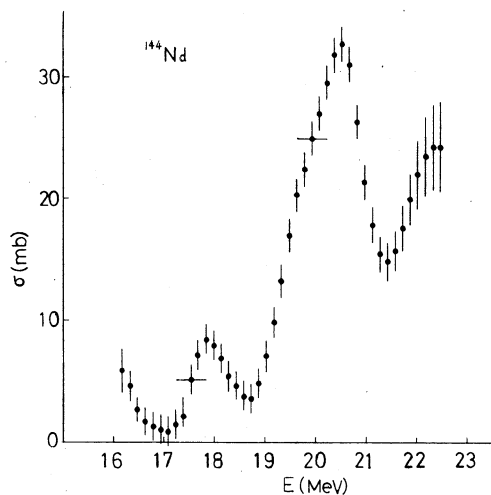


図 12

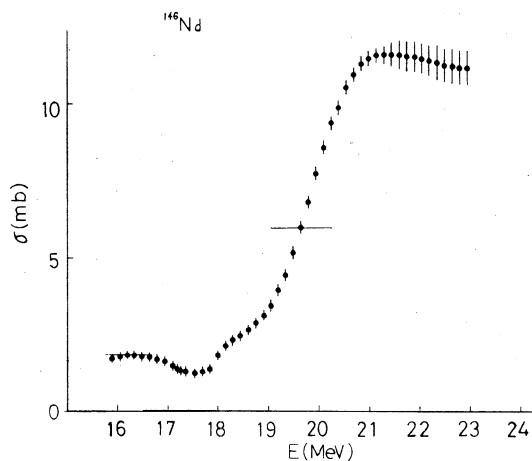
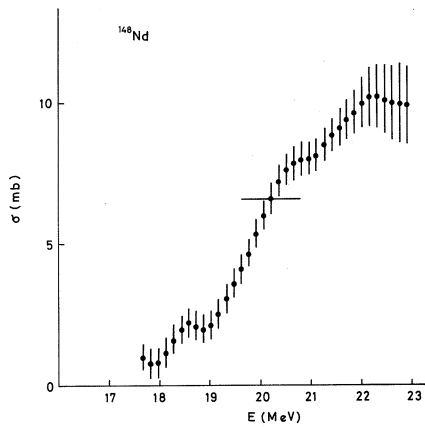
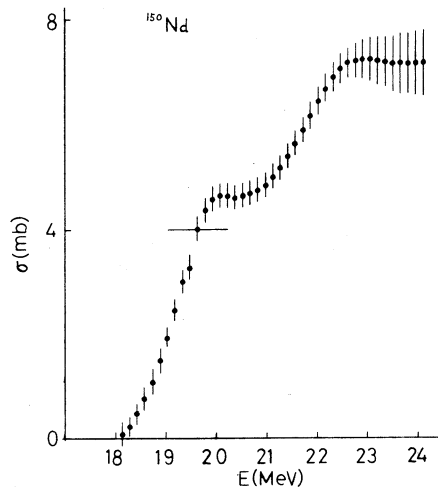


図 13



☒ 14



☒ 15

Table I

INTEGRATED CROSS SECTIONS

| Nucleus | E_R (MeV) | Γ (MeV) | $\int \sigma dE$ (mb MeV) |
|-------------------|-------------|----------------|---------------------------|
| ^{142}Nd | 16.5 | 0.6 | 7.8 |
| | 17.4 | 0.8 | 6.3 |
| | 20.0 | 1.8 | 36 |
| | | | 65 (to 22 MeV) |
| ^{144}Nd | 17.9 | 0.8 | 7.8 |
| | 20.5 | 1.6 | 52 |
| | | | 100 (to 22.5 MeV) |
| ^{146}Nd | 21.1 | | 42 (to 23 MeV) |
| ^{148}Nd | 18.6 | 1.0 | 1.6 |
| | 22.1 | | 31 (to 23 MeV) |
| ^{150}Nd | 22.8 | | 28 (to 24.1 MeV) |
| ^{140}Ce | 15.1 | | 2.13 b MeV (to 25 MeV) 4) |
| ^{141}Pr | 15.2 | | 2.10 b MeV (to 30 MeV) 5) |

文 献

- 1)核理研報告 Vol. 2 No. 2 (1969)32.
- 2)J. Kern, G. L. Struble, R. K. Sheline, E. T. Journey, H. R. Koch, B. P. K. Maier, U. Gruber and O. W. B. Schult, Phys. Rev. **173** 1133(1968).
- 3)核理研報告 Vol. 3 No. 2 (1970)25.
- 4)R. Bergère, H. Beil, P. Carlos et Veyssiere, Nucl. Phys. **A133** (1969)417.
- 5)Bramblett, J. T. Caldwell, B. L. Berman, P. R. Harvey and S. C. Fultz, Phys. Rev. **148** (1966)1198.
- 6)Bergère. private communication.
- 7)J. D. Vergados and T. T. S. Kuo. Phys. Letters **35B** (1971)93.

I-4 (e, e', α) 反応

教養部物理・理学部物理*

阿部 健・川村暢明*

坪田博明・金沢正明*

一個の検出器で粒子弁別を行ない、エネルギーも測定するという単一検出器計測の方法¹⁾はそれ自体固有の特長を有するが、真正面から入射する粒子以外に対しては原理的に無能であるために、第一実験室の現在の立地条件ではその特長を発揮させることができないことがわかったの²⁾、今回から dE/dX - E テレスコープを使用する方法に切替え、その実用化実験を通して問題点の把握と一層の改良整備に努めた。光アルファの測定手段としてはほぼ満足すべき状態に達した。ただし陽子は測定できない。Be(γ, α) のかなり良い予備データを得た。

1. (γ, α) の基本的な物理についてはすでに何度か述べたのでここでは省略する²⁾。また単一検出器計測の方法は、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、 α と p の収量比や p 収量を足掛りとした α の断面積の絶対値決めに有効であるので、30 MeV マシンによる pure γ 実験に予定してある。したがって単一検出器計測の方法の計測回路系を中心とする論議は、来期になると思われる 30 MeV マシンによる実験報告に譲る。

今回から L チャンネルの一部が開放されたので、ビーム発散の比較的小さい、明るい幾何学条件で実験することができたが、主として他のマイラー窓散乱槽を流用したために、実験室で電子線から制動放射線への転換を行なう必要があった。このため厳しいバックグラウンド環境における実験となった。計測系のブ

ロック図を図 1 に示す。計数管テレスコープは SSR 社 50 $\text{mm}^2 \times 10 \mu\text{m}$ の Si 完全空乏層表面障壁検出器 050-SBTM-10 と、掘場 100 $\text{mm}^2 \times 120 \mu\text{m}$ の Si 表面障壁検出器 100 SB 120 から成立

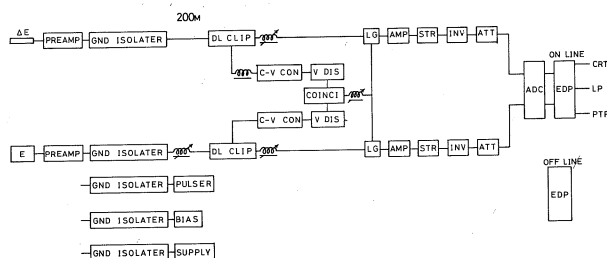


図 1 ブロック・ダイアグラム

つ。これらの検出器はリーク電流も比較的大きく、静電容量もそれぞれ500 pFと100 pF程度と大きい。立上り時間が25 ns程度以下でないと支障があるために、特別の前増幅器系を必要とする。約200×100×100 mm³の散乱槽中に、標的、内部遮蔽、テレスコープ、前増幅器系を収納した。第一実験室は加速器運転中の電気雑音レベルが高く、さらに第一実験室と第四測定室間が約200 m離れていて両者の雑音環境が著しく異なるので、散乱槽系を浮動状態にするGround isolaterが必要となる。比例ゲートの市販品は最も速いものでも500 ns程度で使いものにならないので、新しい原理の速いゲートを開発した³⁾。比例性もすぐれている。特別の前増幅器、Ground isolater、速い比例ゲートの三点がこの計測系の成否を決める要点である。 ΔE 信号とE信号を32チャンネル×128チャンネルのtwo parameterでオンライン処理した。図2~4に²⁴¹Am- α (5.486 MeV(s), 5.443 MeV(w))と、²²⁸Ra- α

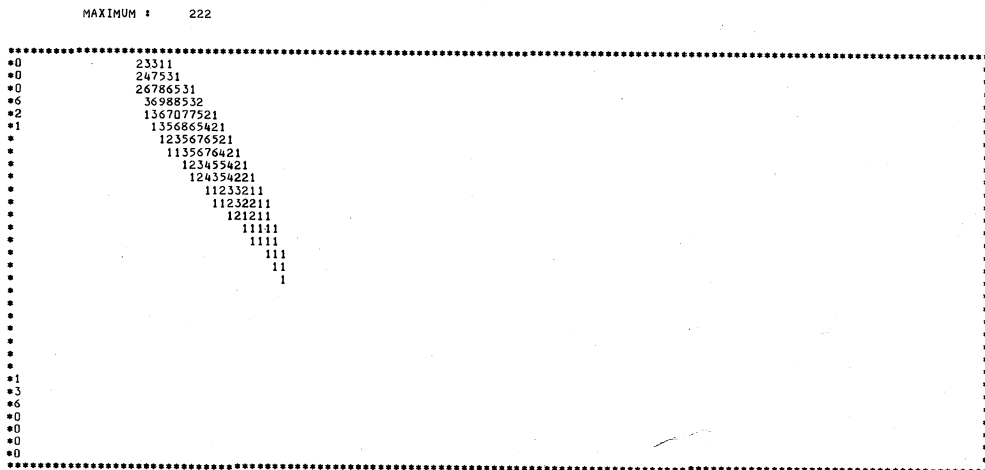


図2 ²⁴¹Am- α の $\Delta E - E$ 表示

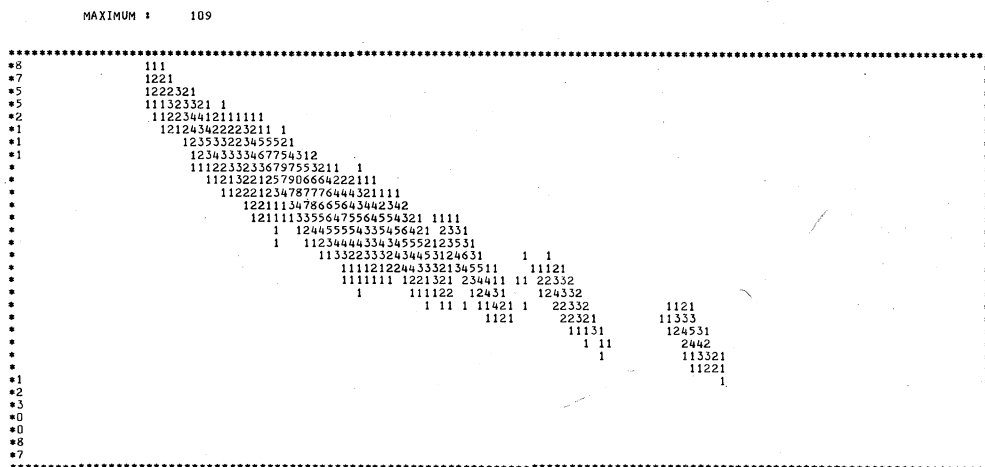


図3 ²²⁸Ra- α の $\Delta E - E$ 表示

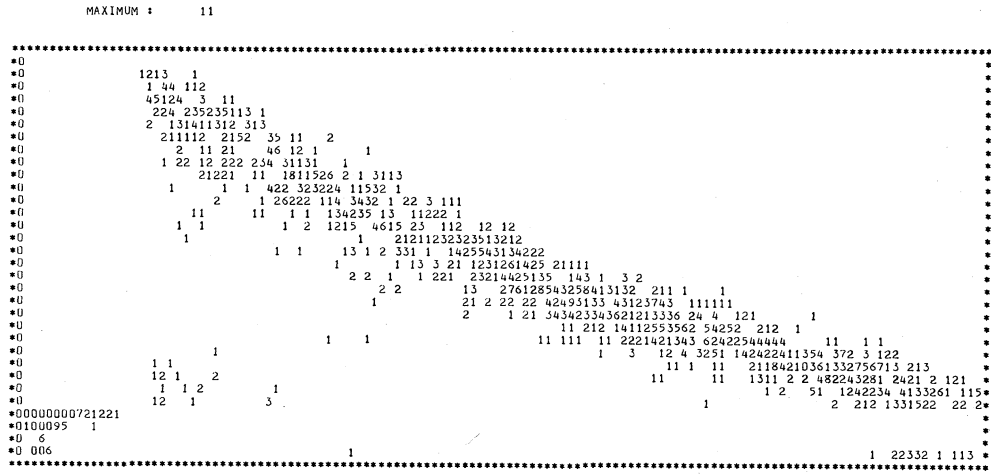


図4 $E_{Tm} = 35 \text{ MeV}$ における $\text{Be}(\gamma, \alpha)$ の $\Delta E - E$ 表示

(8.79, 7.81, 6.78, 6.29, 6.09, 6.05, 5.68, 5.43, (4.0)MeV)と, $E_{Tm} = 35 \text{ MeV}$ における約 $300 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の Be からの光 α の $\Delta E - E$ 表示の例を示す。縦軸が 32 チャンネルの ΔE で, 横軸が 128 チャンネルの E 分布である。実際には CRT で, 斜交座標軸をベースとする立体的表現で, いくつかの滑かな山脈の鳥瞰図が得られるが, ここでは直交座標の上に計数を規格化した数字で示してある。図 3 は比較的わかりやすいが, それでもこれから真のエネルギー・スペクトルを推測することは容易でない。 dE/dX 検出器が非常に薄いため Landau のゆらぎ効果が大きく, さらにその上に dE/dX の E 依存性が重畳されるほか, 回路系の非直線性が加味されるので, $\Delta E - E$ 分布から正しいエネルギー・スペクトルを構成するには厄介な処理を要する。Landau 効果が支配的であり, かつ dE/dX の E 依存性が直線的であるとして, 山脈の直線近似で $\Delta E - E$ 表示を解いた例を図 5~7 に示す⁴⁾。図 6 の $^{228}\text{Ra} - \alpha$ のスペクトルは single parameter の PHA によるものと一致する。図 7 では, 図 4 の左下の p グループを省略した。 dE/dX 検出器は $E_\alpha \geq 2.3 \text{ MeV}$ の α が貫通するが, E 検出器の信号と同時計数のとれるエネルギーはこれより小さいことがある。テレスコープ系の最小検出エネルギーは, 直接的には E 検出器信号のデスクリミネータのレベルで決定されるが, このエネルギー・レベルを中心とする Landau ゆらぎのために, このレベル付近ではしばしばディップが生じる。図にはそれが現われている。図 7 には顕著な構造が見られるが, Be は種々のモードで崩壊するので, $E_{Tm} = 35 \text{ MeV}$ のデータだけでは議論できない。ビーム条件は, 分解能を決めるスリットを開放とし, 繰返し率 300 Hz, 幅 $\sim 25 \mu\text{s}$, 電流最大 ($\geq 0.1 \mu\text{A}$) であった。遮蔽系については次回に述べる。強制空冷の Ta 制動標的 (0.2 mm, 0.5 mm, 1 mm, 1.2 mm) が融解するので, しばしば交換した

文 献

- 1) K. Abe, N. Kawamura and N. Mutsuro ; Nucl. Instr. Meth. **63**
(1968)105.
- 2) K. Abe, N. Kawamura and H. Tsubota ; Research Rep.
Labo. Nucl. Sci. Tohoku Univ. 1(1)(1968)~3(2)(1970).
- 3) to be published.
- 4) by courtesy of Prof Oyamada.
- 5) Elscint Ltd. Model AMP-N-2. Particle Identifier.

I-5 50メートル飛行時間分析系及びショートパルスビームの特性について

理学部物理・教養部物理*・核理研**・新潟大理***

川村暢明・坪田博明*・斎藤 肇

陸路 直***・一戸 隆**・栗原 亮**

阿部 勇**・浦沢茂一**

東北大核理研での高速中性子のTOF測定は、これまでは125m飛行管を使用して行われて来た¹⁾²⁾³⁾。

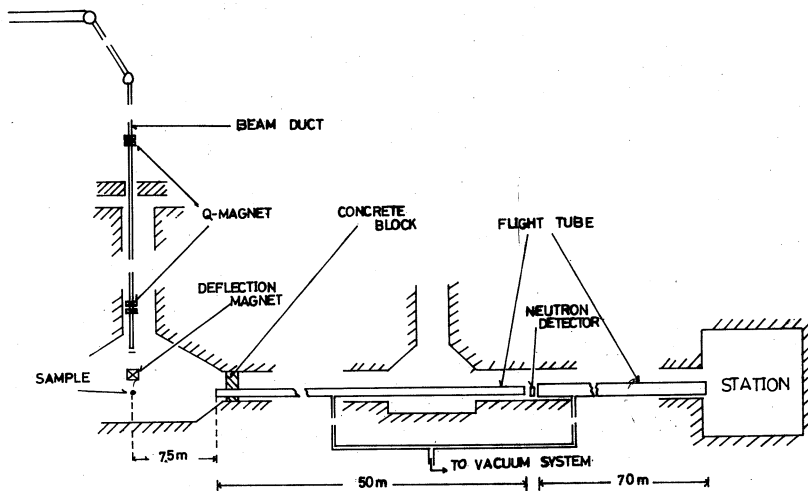
この測定系は、良好なエネルギー分解能(0.08nsec/m)を有するが、その反面当然の結果として、計数率が小さくなり、データの統計精度を上げる面で大きな困難があった。そのため我々は従来の方法¹⁾を変更して125m飛行管系の途中、50mの場所に中間の測定ステーションを新設し、45年度前期及び45年度後期の合計10日のマシンタイムで種々のテストを行った。

なお実験中ビームが異常になり、ショートパルス巾ビーム、いわゆるn-secビームとしての性能が得られなくなった。この対策は核理研のマシングループによってなされ、理学部グループもその一部分を共同で整備した。ビームの調整は予備日と実験日の一部に行い良い結果を得た。

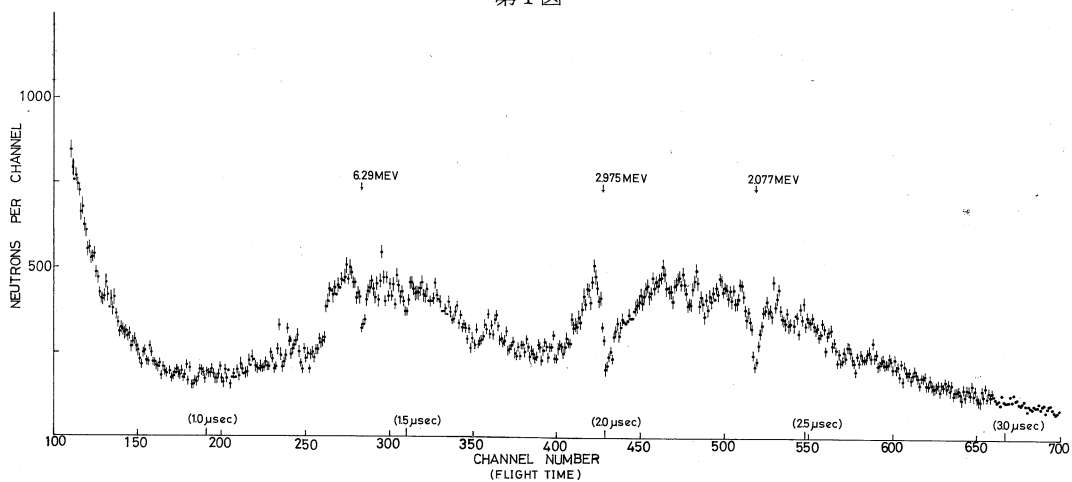
こゝでは、中間ステーションとn-secビームに関して、我々の得た実用的な資料の報告をする。

§1 50メートル飛行管について

これまでの飛行距離125mの測定系は直径30cm、長さ40mの管と直径50cm、長さ80mの管からなっており、全体がトンネル内に設置されている。80m管は合計15本の管を連結してあり、各管の内部には、厚さ1cm、直径約50cmの鉛の円板に30cm角の穴をあけたコリメーターが1枚ずつ、合計15枚入っている。40m管と80m管の間には50cm程の間隔がある。我々は最初こゝでテスト実験をしたが、こゝは電子散乱の実験のビームの捨て場所になっており、残留放射能が強く、測定に不適當であった。そこで直径30cmの管を更に10m程延長しそこに測定器を設置できる様な空間をつくった。新しい配置を第1図に示す。第2図は系のエネルギー較正のため、鉛の光中性子の¹²Cによる吸収曲線を測ったものである。照射エネルギーは55 MeVである。この図からわかる様に、low channel側に大きなtime dependentパ



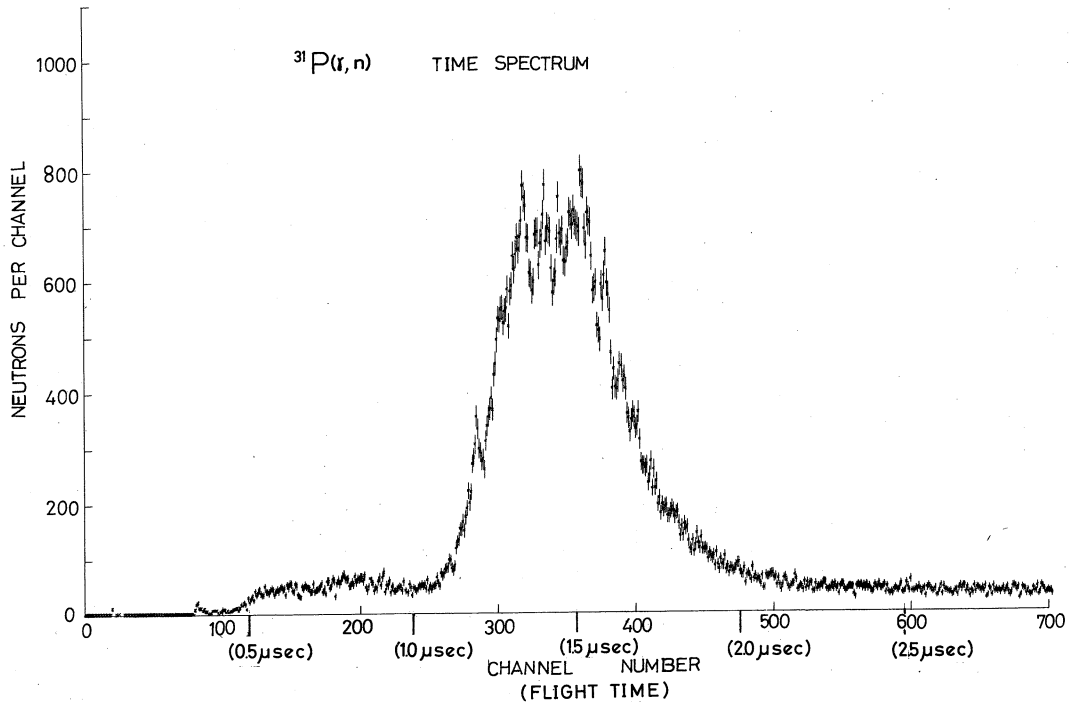
第1図



第2図

バックグラウンドがある。これを飛行距離125mのデータ(ref 2)第3図)と比べるとその異いがよくわかる。第2図のデータは、このバックグラウンドを減らすため、吸収体として5cmの厚さの鉛を入れてある。従ってスペクトルには ^{12}C による吸収線の外に鉛によるものもみえている。low channel側のバックグラウンドの部分と、 ^{12}C の吸収線のみられる中性子の部分とについて、鉛の吸収体のある場合と、ない場合のデータから両者の減衰の程度を比較して、バックグラウンドの部分は γ -線によるものと判断した。しかし数MeV以上の γ -線は5cmの厚さの鉛で1/10以下に減衰する筈であるが(数MeVの中性子は約1/3になる)、実際は1/5~1/6程度にしかならなかった。

なお、我々は $^{16}\text{O}(\gamma n)^{15}\text{O}$, $^{31}\text{P}(\gamma n)^{30}\text{P}$ 反応についても実験を行った。これらの軽い核の場合の γ -線バックグラウンドは、鉛のそれと比べると、はるかに小さかった。第3図は最大エネルギー21.5MeVの brems で得た $^{31}\text{P}(\gamma n)$ 反応のタイムスペクトルである。



第3図

以上の low channel のバックグラウンドについての結果をまとめると

- 1) γ -線である。
- 2) 吸収体による減衰のしかたは、 γ -線の吸収係数から予想されるよりも小さい。
- 3) 重いターゲット核の場合に強く現われる。

これらの事からこのバックグラウンドはターゲットによって散乱された γ -ビームで、検出器までの コリメーションが悪いため多重散乱によって長時間生き残ったものが検出されたと考えられる。

現在、飛行管のまわりの放射線遮蔽は入口にある約2mのコンクリートだけで、コリメーターの役をなすための二重遮蔽にはなっていない(第1図)。また、飛行管がトンネル内にある事が更に条件を悪くしており、入口から斜方向に入射した γ -線は、内部で散乱をくり返しながたてもっているものが相当あるものと思われる。

これらのバックグラウンドは、コリメーションの条件の他に、ビームに "grass" があっても

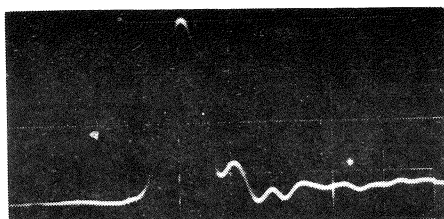
おこり得る。事実、我々は以前にも、また今度の実験中にもこのgrassには非常になやまされておあり、はじめはそれが原因でないかと考えた事もあった。しかし、第2図のデータは、ビームのいろいろな特性を調べて、入射系統の整備をした後で測定したものである。従ってこのデータに関する限り、バックグラウンドはgrassのせいでないことは確かである。

結局、現在のまゝの状態では、新設した50mステーションにおける重い核の10MeV以上(飛行時間にして $1\mu\text{sec}$ 以下)の中性子測定は困難である。

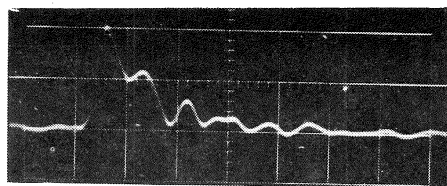
§2 ショートパルスビームについて

今回の実験期間中、ビームの調子が悪くなったので一時実験を中断して電子銃周辺の入射系の整備を行った。これまでもマシンのトリガーシステムによって設定されたタイミング以外にビームが発生したことがしばしばあった。その発生 of の仕方も次の様に二通りある。

- 1) 一つのトリガーサイクルに複数個のショートビームがでる。これはグリッドパルサーからガン-グリッドまでの伝送回路の故障で起ることが多い。
 - 2) 主ショートパルスビームの他に"こぼれ", いわゆるgrassが現われる。これはガンの劣化によってグリッドのcuff off特性が悪くなるのが原因と思われる。
- 1) の場合は、それらのビームが連続するとビーム巾が大きくなった事と同じになり、データの

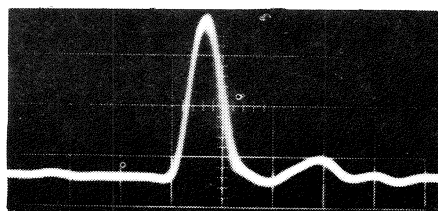


(a) グリッドパルサーの波形
14nsec/div.



(b) エミッション波形
14nsec/div.

エネルギー分解能を悪くする。それらの間の時間間隔がある程度大きくなると、それぞれのビームに対応したタイムスペクトルが重ね合わされて、意味のないスペクトルになる。2) の場合はバックグラウンドの増加をもたらし、S/N比を悪くする。これらgrassによるバックグラウンドはtime dependentであることが多く、しかもマシン



(c) ビーム波形
10nsec/div

の条件によって変るので、甚しいときは、データの再現性が全くなくなることさえある。我々は今回の整備で入射系各部の動作を調べ、一部を改良し、満足すべき結果を得た。第4図に現在のシステムが正常に動作している場合の様子を示す。第4図(a)はグリッドバルサの出力波形、(b)はガンのエミッション波形、(c)は電子ビームの出力波形である。エミッションの波形のみが他と異っているがその理由はまだ明らかでない。

§ 3 後 記

以上で50m中間ステーションにおけるTOF測定系と、ショートパルスビームの特性について述べた。飛行管のまわりを完全にシールドするのは、現状では困難なので、とりあえず簡単なシールドをとりつける予定である。ショートパルスビームについても、今後も同様なトラブルが再発する可能性はあるが、種々のcheckで原因も大体わかっており、こゝで得た経験は今後の対策を容易にするであろう。

なお、実験データのオンライン処理に関して、核理研の測定器グループの方々に多大な御協力をいただきました。ここに感謝の意を表します。

Reference

- 陸路直 他 核理研研究報告.
- 1) Vol. 2, No. 1, 57 (1969).
 - 2) Vol. 2, No. 2, 47 (1969).
 - 3) Vol. 3, No. 1, 48 (1969).

I-6 ^{231}Ac の崩壊の研究

工学部原子核・核理研*

山本 徹・若林利男・武田 靖
板垣新治郎・今野 収*・古田島久哉

概要 30MeV の制動輻射によるガンマ線を利用して、 $^{232}\text{Th}(\gamma, p)^{231}\text{Ac}$ 反応によって ^{231}Ac を生成し、その崩壊に伴うベータ線及びガンマ線をシンチレーション・カウンターと半導体検出器とを用いて測定した。反跳捕獲法により $^{232}\text{Th}(\gamma, f)$ 反応によって生ずる核分裂生成物を除去した後、TTAベンゼン溶液を用いた溶媒抽出法によってAcを化学分離した。測定された ^{231}Ac の半減期は、 $50\pm 5\text{min}$ であり、ベータ線の最高エネルギーは $2.3\pm 0.2\text{MeV}$ であった。又、約20本の新しいガンマ線が観測された。

§1 序 論

原子核を構成する陽子又は中性子の数が魔法数からはなれてくると、原子核の形は球対称からずれてくると考えられているが、この領域は質量数Aについて言えば $A\sim 25$, $150 < A < 190$, $A > 220$ の範囲に相当する。この領域では変形したポテンシャルを考えた殻模型と、原子核の回転運動模型とが原子核の諸モーメント、基底状態及び励起状態のスピン、パリティ等について、又、ガンマ崩壊やベータ崩壊に対する遷移確率等の観測値を比較的良く説明している。

現在まで核燃料物質のひとつであるトリウムと同位元素 ^{231}Th の励起準位については、多くの方法によって調べられているが、 ^{231}Ac のベータ崩壊によるものとしては1960年の高橋さん達¹⁾の報告があるのみである。彼らはベータトロンからの 25MeV の制動輻射を用いた $^{232}\text{Th}(\gamma, p)$ 反応によって ^{231}Ac を生成し、 ^{232}Th の光核分裂反応による核分裂生成物は、しょう酸による反跳捕獲法によって除去している。観測された ^{231}Ac の半減期としては、 $15\pm 1\text{min}$ 、 Q_β としては $2.1\pm 0.1\text{MeV}$ という値を報告している。又、ガンマ線については、 $3.8\text{cm}\times 3.8\text{cm}$ NaI(Tl)シンチレーションカウンターによって測定を行ない、 85keV , 185keV , 280keV , 390keV , 710keV のエネルギーのものが観測されている。一方、A. Ghiorso²⁾, S. A. E. Johansson³⁾, Iu. I. Filimonov達⁴⁾, R. Gaeta達⁵⁾, によって ^{235}U のアルファ崩壊から ^{231}Th の励起準位の様子が、調べられている。核反応を利用した核反応分光

学的方法からは、T. H. Breid 達⁶⁾の ^{230}Th の (d, p) 反応、Th. W. Elze 達⁷⁾の ^{232}Th の (He^3, α) 反応、J. S. Boyno 達⁸⁾の ^{232}Th の (d, t) 反応による研究等がある。

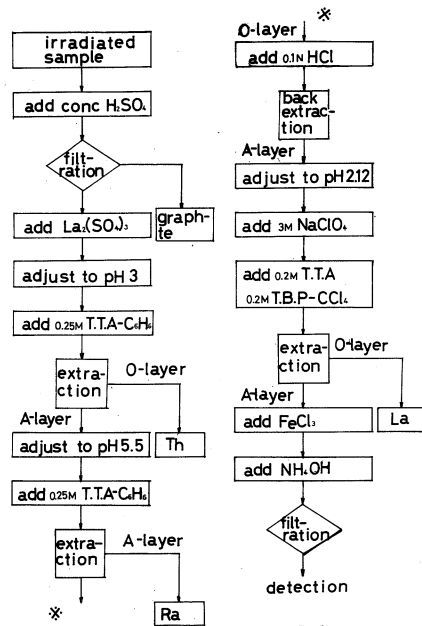
§2 試料の照射

反跳捕獲法を用いるために、照射試料としては直径約 5μ 程度の酸化トリウムと、直径約 50μ 程度のグラファイトとを重量比にして1:25に混合したもの約 500mg を用いた。照射は東北大学の 300MeV 電子リニアックを使用し、最高エネルギー 30MeV の制動輻射により60分間行なった。

§3 照射試料の化学分離

照射後、試料に濃硫酸を加えて酸化トリウムを溶かし、濃硫酸には溶けないグラファイトを濾過して、核分裂生成物を分離した。母液からのアクチニウムの分離には、 0.25M TTA ベンゼン溶液及び 0.2M TTA と 0.2M TBP 四塩化炭素溶液とによる溶媒抽出法を用いた。

第1図はそれらの操作を図式化して示したものである。抽出の操作を行なう前に、母液にアクチニウムの担体として 2mM $\text{La}_2(\text{SO}_4)_3$ 約 $2\text{m}l$ を加えた。次にアルカリを加え、母液を $\text{pH}3$ に調節し、等量の 0.25M TTA ベンゼン溶液を加え、トリウムを有機相に抽出した。次に水相を $\text{pH}5.5$ に調節し、再び等量の 0.25M TTA ベンゼン溶液を加え、アクチニウムを有機相に抽出し、 (γ, α) 反応で生成されると思われるラジウムを分離した。有機相のアクチニウムを 0.1N HCl によって水相に逆抽出した後、水相に 3M NaClO_4 を加えて全体として 1M NaClO_4 とし、等量の 0.2M TTA, 0.2M TBP 四塩化炭素溶液を加え、ランタンを有機相に抽出し、アクチニウムを分離した。最後に水相に少量の FeCl_3 溶液を加え、アルカリ性にして $\text{Fe}(\text{OH})_3$ の沈澱を作りアクチニウムを共沈させた。以上の化学操作に要した時間は約75分であった。



第1図 FLOW CHART OF CHEMICAL SEPARATION

§4 試料の測定

本研究では、 ^{231}Th の原子核の基底状態及び励起状態の様子を調べるために ^{232}Th の(γ, p)反応により生成される ^{231}Ac を反跳捕獲法を採用して化学的に分離した後、その崩壊に伴って放出されるベータ線及びガンマ線をプラスチックシンチレーションカウンタ及びGe(Li)の半導体検出器を用いて測定した。

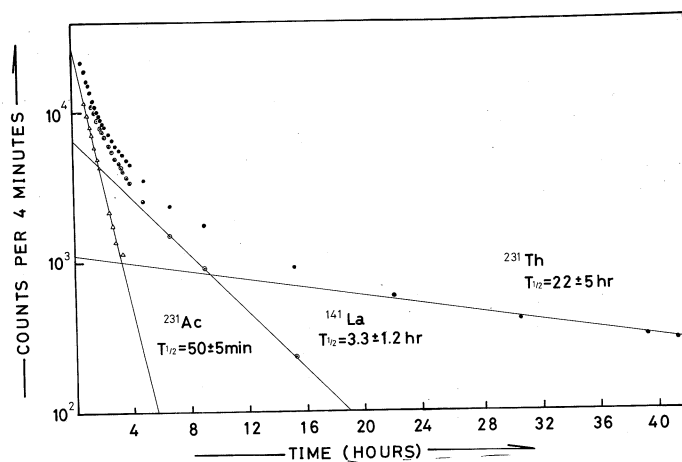
ベータ線の測定には、厚さ15mmのプラスチックシンチレーションカウンタを用い、エネルギー値の較正には、 ^{90}Sr , ^{114}In , ^{137}Cs のベータ線源を使用した。又、半減期の測定にはベル型のGMカウンタを併用した。

ガンマ線の測定は、ORTEC 24 cc Ge(Li)半導体検出器、ORTEC 118A低雑音パルス増幅器、TMC 1024チャンネル波高分析器を使用した。この測定系のエネルギー分解能は、 ^{60}Co の1332 keVの γ 線に対して4.4 keV FWHMであった。又、試料からのベータ線を防ぐために、厚さ2cmのルーサイトの吸収体を検出器の前に置いた。ガンマ線のエネルギーの較正には、 ^{22}Na , ^{54}Mn , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{88}Y , ^{133}Ba , ^{137}Cs の各線源を使用した。

§5 測定結果

第2図は、化学処理の最終段階であるアクチニウムとランタンの分離を省略した試料をGMカウンタで測定した崩壊曲

線である。図の中で半減期 $22\pm 5\text{hr}$ の成分は、その半減期が ^{231}Th の半減期25.5hrと実験誤差の範囲で一致する。この成分は ^{231}Ac がベータ崩壊してできた ^{231}Th のベータ崩壊によるものであると考えられる。同様に半減期 $3.3\pm 1.2\text{hr}$ の成分は、半減期3.9hrの



第2図 DECAY CURVE OF BETA-RAYS

^{141}La の崩壊によるものであると考えられる。この二つの成分を差し引いた後に残る半減期 $50\pm 5\text{min}$ の成分は、光核反応の断面積及びベータ崩壊のエネルギー等を考慮すると ^{231}Ac の崩壊によるものであると考えられる。

によって ^{235}U のアルファ崩壊から観測されたガンマ線と共に表 1 に示してある。

TABLE OF GAMMA RAYS (表 1)

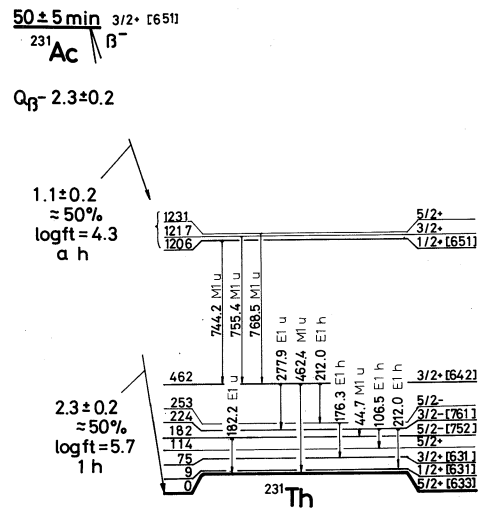
| BETA DECAY ¹⁾ | | ALPHA DECAY ⁵⁾ | | PRESENT WORK | |
|--------------------------|------------------------------|---------------------------|-----------------------|-----------------|-----------------------|
| ENERGY (KeV) | RELATIVE INTENSITY (%) | ENERGY (KeV) | RELATIVE INTENSITY | ENERGY (KeV) | RELATIVE INTENSITY |
| 85 | | 46±4 | 1 | 44.7±0.7 | 3.2 |
| | | 76±4 | 1 | 78.1±0.6 | 16.2 |
| | | 97±4 | 1 | 95.5±0.9 | 3.7 |
| | | 109±4 | 4.9 | 106.5±0.8 | 3.6 |
| | | 115±4 | 1 | | |
| | | | | 134.9±0.8 | 4.7 |
| | | 144±2 | 11.3 | | |
| | | 151±4 | 1 | | |
| 185 | | | | 161.3±0.6 | 45.6 |
| | | | | 176.3±0.6 | 39.4 |
| | | 184±2 | 54.9 1.5 | 182.2±0.6 | 67.8 |
| | | 196±4 | 4.5 | | |
| | | | | 202.8±0.7 | 23.7 |
| | | | | 212.0±0.6 | 70.1 |
| 280 | | | | 259.6±0.9 | 8.9 |
| | | | | 263.7±0.8 | 11.7 |
| | | 285±5 | 10 ⁻⁵ | 279.9±0.6 | 83.6 |
| | | | | 305.2±0.8 | 19.5 |
| | | | | 314.3±0.6 | 97.6 |
| 390 | | | | 336.6±0.7 | 17.3 |
| | | 350±5 | 6×10 ⁻² | | |
| | | | | 407.6±0.8 | 16.1 |
| | | 430±5 | 10 ⁻³ | 436.0±0.8 | 3.5 |
| 710 | | | | 462.4±0.7 | 21.0 |
| | | 510±5 | 3×10 ⁻³ | 484.7±0.7 | 24.6 |
| | | | | 567.8±0.6 | 46.5 |
| | | 620±10 | 2×10 ⁻² | | |
| | | 670±10 | 6×10 ⁻³ | | |
| | | | | 744.2±0.5 | 100 |
| | | 760±10 | 10 ⁻³ | 755.4±0.5 | 55.4 |
| | | | | 768.5±0.5 | 59.6 |
| | | | | 915.5±0.5 | 84.2 |
| | | 1010±20 | 10 ⁻⁴ | | |

§ 6 結 論

ベータ線のスペクトルの解析から、 ^{231}Ac の崩壊によると考えられるベータ線のエネルギーは、 $2.3 \pm 0.2 \text{ MeV}$ と $1.1 \pm 0.2 \text{ MeV}$ の2つである。このうち、 $2.3 \pm 0.2 \text{ MeV}$ の成分は、 ^{231}Ac と ^{231}Th の基底状態間の遷移によるものと考えられ、半減期の値 $50 \pm 5 \text{ min}$ を用いて $\log ft$ 値は約5.7と求められた。 ^{231}Th の基底状態は、 ^{235}U のアルファ崩壊^{2, 3, 4, 5)}や核反応を用いた実験^{6, 7, 8)}から $\frac{5}{2} + [633]$ であると報告されている。又、Nilsson⁹⁾の殻模型から期待される141個目の中性子の準位も $\frac{5}{2} + [633]$ 状態である。一方、 ^{231}Ac の基底状態は、同じ陽子数を持つ ^{227}Ac の基底状態が $\frac{3}{2} + [651]$ であるから、 $\frac{3}{2} + [651]$ であると考えられる。すると ^{231}Ac と ^{231}Th の基底状態間の遷移はallowed and hindered遷移となり、実験的に求められた $\log ft$ 値が5.7であるという事はこの考えを裏づけている様に思われる。

第5図は、本実験で得られたベータ線及びガンマ線の観測結果を基にし、Nilssonの殻模型⁹⁾により組み立てられた ^{231}Th の準位構造である。本実験において観測された744.2 keV、755.4 keV、768.5 keVの強いガンマ線は $\frac{1}{2} + [651]$ の回転状態から $\frac{3}{2} + [642]$ の固有状態への遷移と考えられ、1,200 keV付近に $\frac{1}{2} + [651]$ の励起状態が見い出された。

^{235}U のアルファ崩壊から解っている ^{231}Th の固有状態は、 ^{235}U の基底状態のスピンが高いために一般にスピンの大きいものである。一方、 ^{231}Ac の基底状態は、 $\frac{3}{2} + [651]$ 状態であるから、ベータ崩壊によりこれら既知のスピンの大きい状態の観測の可能性はあまり期待できない。しかし、その反面 ^{235}U のアルファ崩壊からは観測されない比較的小さい固有状態が観測される可能性があるわけである。第5図に示した約1,200 keV付近の $\frac{1}{2} + [651]$ の固有状態はこの様な事情のもとで、今回新たに観測された固有状態及びその回転状態であると考えられる事ができる。そうすると、 ^{231}Ac の基底状態からこの $\frac{1}{2} + [651]$ 状態へのベータ遷移は、漸近的量子数間の選択則によればallowed and unhindered遷移となり、 $1.1 \pm 0.2 \text{ MeV}$ の成分に対して実験的に求められた $\log ft$ の値4.3も、この考えを裏づけていると思われる。



第5図 PROPOSED DECAY SCHEME OF ^{231}Ac

謝辞 試料の照射に際し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助教授、近藤助手及び電子リニアックの運転を担当して下さった方々、又、アクチニウムの溶媒抽出法について適切な御助言を賜った瀬戸教授、本研究に対し御討論をして下さった相山教授に心から謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) K. Takahashi and H. Morinaga Nucl. Phys., **21**, 133(1960).
- 2) A. Ghiorso, Phys. Rev., **82**, 979(1951).
- 3) S. A. E. Johansson, Ark. Fys., **10**, 97(1956).
- 4) Iu. I. Filimonov and B. V. Pshenichnikov, Soviet Phys. JETP, **8**, 378(1959).
- 5) R. Gaeta and M. A. Vigon, Nucl. Phys., **76**, 353(1966).
- 6) T. H. Breid, R. R. Chasman, J. E. Erkine and A. M. Friedman Phys. Lett., **18**, 149(1965).
- 7) Th. W. Elze, T. V. Egidy and J. R. Huizenga, Nucl. Phys., **A128**, 564(1969).
- 8) J. S. Boyno, Th. W. Elze and J. R. Huizenga, Nucl. Phys., **A157**, 263(1970).
- 9) G. S. Nilsson, Mat. Fgs. Medd. Dan. Vid. Selsk. **29**, No. 16 (1955).

II 物性物理部門

II-1 Spatial Distributions of photo-Neutrons in the 200 MeV Electron Induced Cascade Shower

工学部原子核,* 核理研**

江草龍男*・矢野 歳和*・山崎尚宏*

渡辺 昇**・小山田正幸**・木村一治**

Summary

Preriminary measurements of spatial distribution of photo-neutron yield in the electron-photon cascades in lead by 200 MeV electrons have been carried out to offer some fundamental data on the design of the linac-booster system.

These data are compared with the results of the energy loss measured by Murata.²⁾

Introduction

As a repetitively pulsed intense thermal neutron source, a high power electron linac (200 MeV, 0.5 A) combined with a sodium cooled fission multiplication assembly with a rotating reflector, which we call a dynamic booster, has been proposed.¹⁾ The detailed information on electron induced photo-neutron production is required for the design of the booster. Although several measurements of electron induced cascade shower in various materials have already been made,^{2),3),4)} data on the spatial distributions of neutron production in the booster material and resulting neutron flux that are of our prime interest have not

* T. Yano, N. Yamazaki and T. Ekusa
Department of Nuclear Engineering, Tohoku University

** N. Watanabe, M. Oyamada and M. Kimura
Laboratory of Nuclear Sciences, Tohoku University

yet been measured. The purpose of the present experiment is to obtain the preliminary information about the spatial distribution of 200 MeV electron induced photoneutron source in a lead block which is considered to be the first order approximation for uranium booster core.

Experimental Procedure

In the present experiment, many activation foil detectors of copper, aluminium or sulfur were placed between lead Plates, which composed a part of lead pile of 250 mm \times 250 mm in lateral dimension and 200 mm in axial direction, and have been exposed to the 200 MeV electron beam from the electron linac at Tohoku University. The beam intensity was adjusted to the level such that lead absorber did not melt with air blowing only. The thickness of the foils was so thin (0.1 or 0.2 mm thick) that the effects of the insertion of detectors into the absorber material can be neglected. The diameter of the electron beam was about 5 mm. To measure the spatial distribution of electron induced photo-neutrons in lead, induced activity of $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)$ ^{64}Cu mode were used in the first approximation. Strictly speaking, the induced activity of copper foil does not give the neutron source intensity in lead but gives the spatial distribution of the photon intensity of the cascade in lead weighted by $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)$ ^{64}Cu cross section. However, the errors in this approximation will not be significant. The spatial distribution of the resultant neutron flux of hard and soft energy components were measured by $^{27}\text{Al}(n, \alpha)$ ^{24}Na ($E_t = 3.27$ MeV) and $^{32}\text{S}(n, p)$ ^{32}P ($E_t = 0.95$ MeV) threshold detectors respectively. With appropriate waiting time, the effects of the undesirable activities due to the various reactions on the measured data were confirmed to be negligible in these detectors. The lateral distribution curves at each depth

where the activation foil was placed were obtained by scanning the induced activities using NaI scintillation detector with P.H.A. The data of the relative activities are normalized to that of the monitor copper foil of 0.2 mm thick placed just behind the linac beam window.

Results and Discussions

Typical lateral distributions of photo-neutron source intensity utilizing $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$ activation in 200 MeV electron induced cascade shower are shown in Fig.1 (solid line) compared with the energy loss measured by MURATA²⁾ using X ray

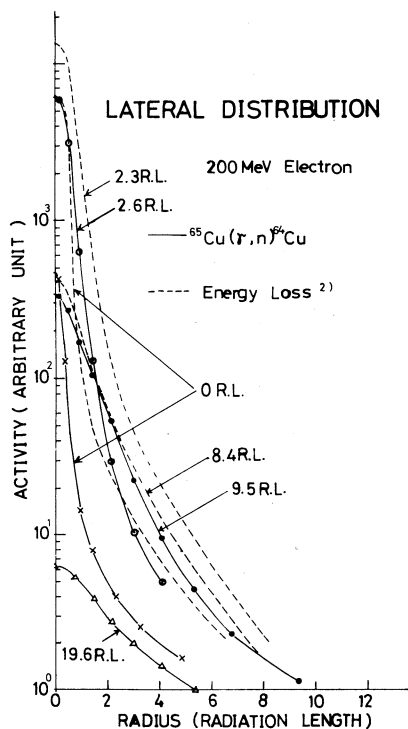


Fig.1. Lateral distributions of $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$ activities in the shower produced in lead by 200 MeV electron beam (solid lines). Dashed curves show the energy loss measured by Murata.²⁾ Normalization between two sets of curves is arbitrary.

film (dashed line). Although many number of curves were obtained in this experiment, only a few samples of them were presented to avoid confusion. In Fig.1 (Figs.2, 4, 5, and 6 also) numerals attached to the curves indicate the depth of the detector foil inserted in Pb block in radiation length. Normalization between copper data and energy loss curves is arbitrary. As seen in this figure, the photo-neutron productions as a function of radial distance show somewhat sharp decrease with increasing radial distance compared with that of the energy loss.

The concept of separating bremsstrahlung producing target from the neutron generating target (or booster core of fissile material) are being studied at other laboratories for the safety reason.^{5),6)} The separate target must be very thick and is to be of the order of 1 radiation length from the intensity consideration. The separate targets of various thickness were placed in front of the lead absorber pile and 10 cm apart, and the effect of this target on the spatial distribution of photo-neutron production were investigated. Figure 2 shows the results obtained with the separate target of 1 radiation length thick (solid curves) compared with those without separate target (dashed curves). These curves are normalized to each other. Loss of peak intensity and large broadening in the lateral distribution are predominant in the data with separate target.

Figure 3 shows the axial distributions of the copper data. The integration of the lateral distribution multiplied by $2\pi r dr$ (r = radial distance) with respect to r gives the total neutron yield in the plane at various depth. This curve (solid curve) is compared with that of the energy loss called "transition curve" (dashed curve). Again, normalization between them are arbitrary. It will be seen from both the axial distribution and the laterally integrated curve (transition curve) that neutron production gives

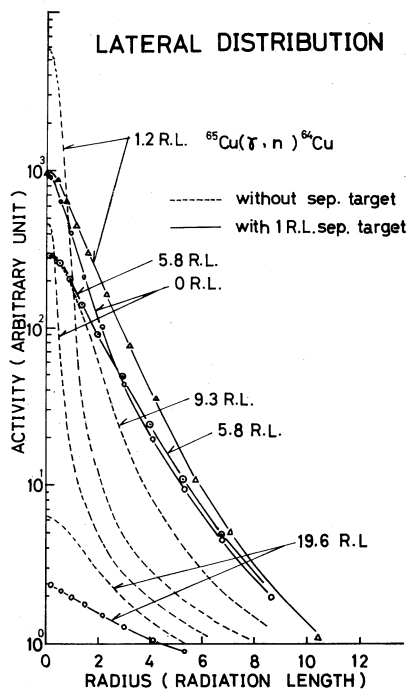


Fig. 2. Lateral distributions of $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$ activities with 1 R.L. separate target (solid lines) compared with that of without one (dashed line). These curves is normalized to each other.

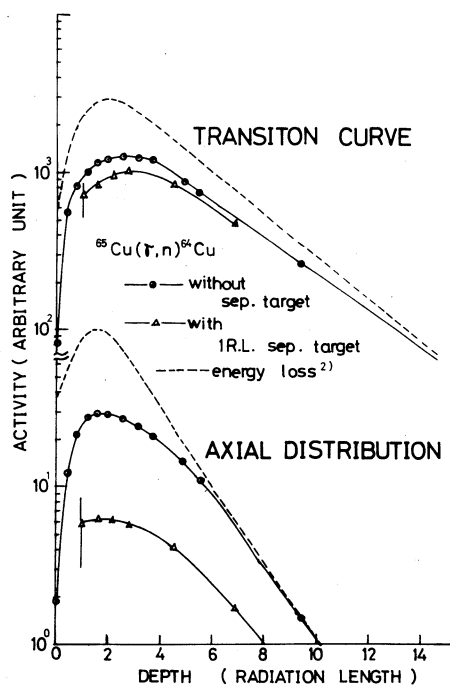


Fig. 3. Axial distribution and lateral integration curves of $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$ activities (solid lines) compared with that of energy loss measured by Murata.²⁾ Normalization between two sets of curves is arbitrary.

relatively broad maximum and is fairly shifted in forward direction. This result combined with that of the lateral distribution shows the forward character of the photons relative to the ionization.

Figure 4 shows the typical data of the lateral distributions of neutron flux measured by aluminium threshold detector (solid curves). In this figure, the similar data with the separate target (dashed curves) are also shown but normalized to each other.

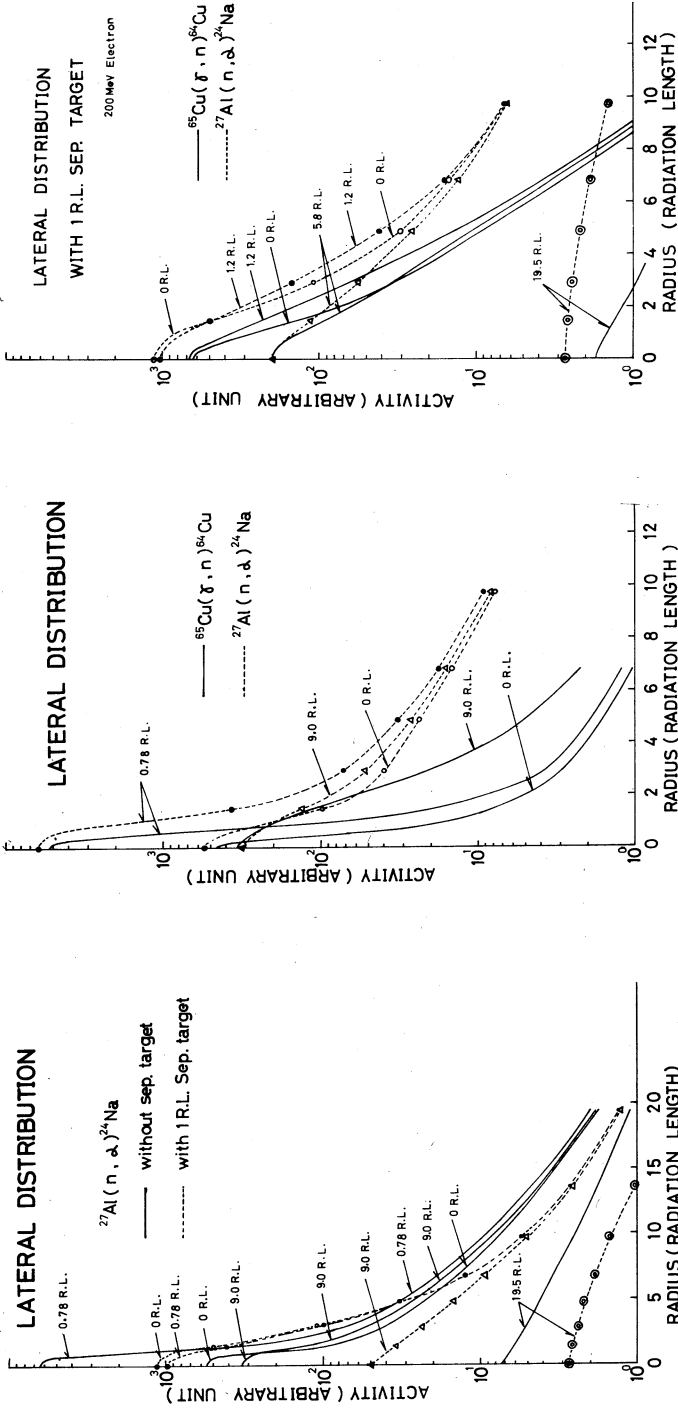


Fig. 4. Lateral distribution of neutron flux measured by $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ activities. Dashed curves show those with 1 R.L. separate target. (Normalized to each other).

Fig. 5. Lateral distribution without separate target. Solid curves show $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$ activities, and dashed curves show $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ ones. Normalization between two sets of curves is arbitrary.

Fig. 6. Lateral distribution with 1 R.L. separate target. Solid curves show $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$ activities, and dashed curves show $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ ones. Normalization between two sets of curves is arbitrary.

Figures 5 and 6 show the comparison of aluminium data to the copper ones. Normalization of these two sets of curves are arbitrary. The effect of neutron diffusion with respect to the source neutron distribution is predominant with increasing radial distance. Using the measured source distribution (copper data) and a suitable cross section set, one can carry out the neutron transport calculation to get the neutron flux (aluminium data).

Figure 7 shows the axial distribution and the lateral integration of neutron flux compared with that of photo-neutron

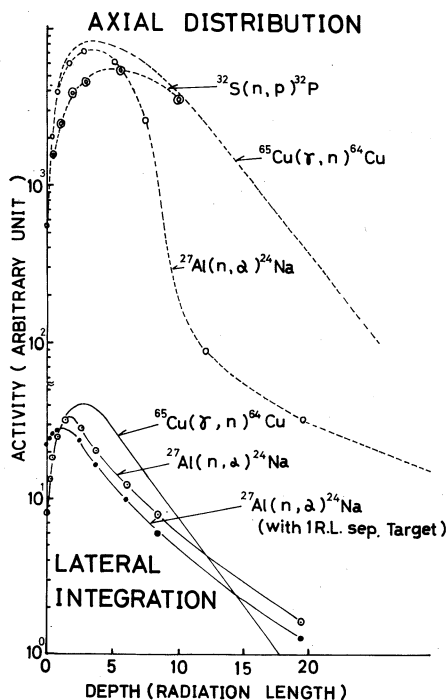


Fig.7. Axial distribution of $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$, $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ and $^{32}\text{S}(n, \alpha)^{32}\text{P}$ activities (dashed lines) and lateral integration curves of $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$ and $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ activities (solid lines). Normalization of these curves is arbitrary.

source distribution measured by copper foils. It should be noted that with respect to copper data, the aluminium curve shows the abrupt decrease with increasing with increasing depth in spite of the presence of the diffusion effect. On the contrary, sulphur data gives a broad and forward shifted peak compared to the copper data. These results show the presence of the depth dependence in photo-neutron spectrum in the shower. Neutrons having the harder spectrum come out to be born at the initial stage of the shower and this feature is to be consistent qualitatively with the axial dependence of the average photon energy in the shower.

The analysis of the present data is under progress.

References

- 1) S.An, H.Kihara, M. Kimura, S. Okamura, T. Shibata, and T. Suita: The paper for 4th Geneva Conf. (sept. 1971),(to be published)
- 2) Y. Murata: J. Phys. Soc. Japan, 20, 209 (1965)
- 3) Y. Murata et al.: Proc. of the International Symp. on Electron and Photon Interactions at High Energies, Vol.2 (Hamburg. 1965), p.417.
- 4) A. Kantz and R. Hofstadter: Phys. Rev. 89, 607 (1953)
- 5) R. L. Coats: Proc. of the National Topical Meeting on Fast Burst Reactors held at the University of New Mexico (1969) p.403
- 6) R. G. Fluharty: LA-4138-MS (1969)

II-2 TOF中性子回折による固体の温度因子の測定

教養部物理・理学部物理*

山田幸男・寺崎 治*・渡辺伝次郎*

§ 1 序 言

前回までの実験で、岩塩型構造をもつチタン酸化物、 $\text{TiO}_{0.80}$ および $\text{TiO}_{1.20}$ の温度因子を測定し、それぞれの結晶のデバイ温度、熱振動による原子の動的変位および結晶に存在する多量の空格子点の影響による原子の静的変位の量を求めた。^{1,2)} 今回は、本実験方法で求めた温度因子あるいはデバイ温度の結果に対する信頼性を検討する目的で、他の測定によりデバイ温度が知られている銅を試料として用い、 TiO の場合と全く同様な方法で実験を行なった。すなわち、室温および低温において測定した各反射の積分強度の比の対数を $(\sin \theta / \lambda_b)^2$ に対してプロットし、その直線の傾斜からデバイ温度 Θ を求めた。その結果、銅のデバイ温度として弾性定数やX線の測定などから求められている値に非常に近い値が得られ、本実験方法の信頼性を実証することができた。しかし、本研究の途中において、試料を低温に冷却する際の問題点が指摘された。

§ 2 実験および結果

5 cm ϕ \times 3 cm の銅製円筒容器に 100 メッシュの銅粉末約 60 cc, 154 g をつめ、それを液体窒素用クライオスタットにセットしたまま室温および低温で測定を行なった。円筒軸に平行な方向からビームを入射させ、回折パターンは散乱角 $2\theta = 90^\circ$ および 158° に固定された BF_3 カウンターで測定した。

試料温度は銅-コンスタンタン熱電対 (0.3 mm ϕ) を試料円筒の中心および縁から 0.5 cm 底面から 1.5 cm の位置に固定して測定した。その結果、低温においては試料の中心の熱電対は 157°K を示し、他の熱電対は 116°K を示した。試料の冷却を測定開始の 24 時間前から始めているにも拘らず試料温度がこのように不均一なのは、試料が粉末であるため熱伝導が悪い上に試料全体の体積が大きいことによるものと考えられる。この温度差をできるだけ小さくするために、第 2 回目の実験においては試料容器内に粉末試料とともに銅の foil を渦巻状に入れ、上述と同じ位置に熱電対をセットした。この状態で液体窒素で冷却したところ、中心部で 147°K、縁で 126°K となり、銅の foil を入れないときよりも温度勾配は著しく小さくなった。

以上のような注意を払った上で室温および低温での回折パターンでの測定を行った。図1に室温におけるパターンの一例を示す。解析にあたっては低温の測定温度として中心部の温度と縁の温度の平均値 137°K を採用した。また、銅の場合にはデバイ温度が比較的低いので熱散漫散乱の補正が必要になり、Chipman-Paskinの方法³⁾によってその補

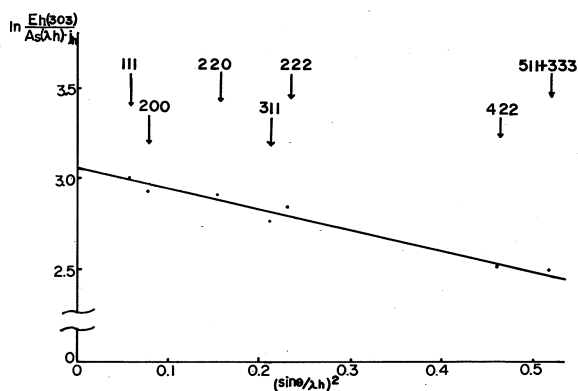


図 1

正を施した。その結果、本測定より銅のデバイ温度として 317°K という値が得られた。

以上の解析において、二つの温度における積分強度の比をとった理由の一つは、試料による中性子の減衰およびカウンタ効率を含む補正項を打消すためであったが、これらが正しく補正できれば二つの温度の比をとらなくても一つの温度での測定から温度因子を求めることができる。 $2\theta = 90^\circ$ の場合について計算されている補正係数 $A_s(\lambda_h)$ を用いて、²⁾ 室温における積分強度 E_h を規格化したものを $(\sin \theta / \lambda_h)^2$ の関数としてプロットすると図2のようになり、

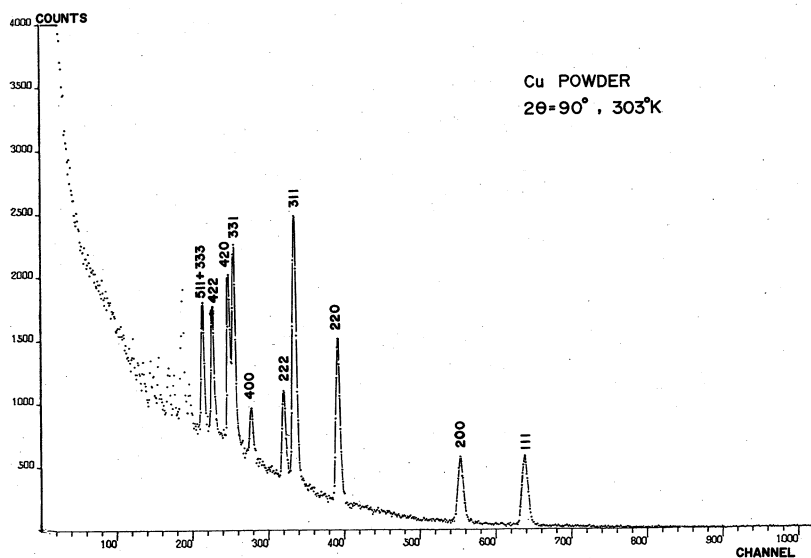


図 2

この直線の傾斜からデバイ温度を求めると 315°K となる。この値は前述の積分強度の比をとって求めた値 317°K とよく一致する。

§ 3 考 察

本実験によって、 $5\text{cm}\phi \times 3\text{cm}$ の容器内の粉末試料には低温においてかなりの温度勾配があることがわかった。これは本装置を用いて粉末試料の低温度測定を行なう場合に十分に留意しなければならないことであり、今後この温度勾配をなくする方法を考えなければならないであろう。本実験においては § 2 に述べたような工夫により温度差を 20° におさえて測定を行ない、デバイ温度として 317°K を得たが、試料温度の誤差 $\pm 10^{\circ}$ に由来するデバイ温度の誤差は $\pm 20^{\circ}$ となる。しかし、この測定値は、室温における積分強度に吸収の補正を施して求めた値 315°K および X 線回折あるいは弾性定数より求められているデバイ温度 $307-326^{\circ}\text{K}$ と良く一致しており、⁴⁾ TOF 中性子回折によって異なる温度での積分強度を求め、その比をとって温度因子を求める本実験方法の信頼性が実証されたといえる。

文 献

- 1) 渡辺他, 核理研研究報告 Vol. 2, (1969) No. 2, 111
- 2) 山田他, " Vol. 3, (1970) No. 1, 100
- 3) D. R. Chipman and A. Paskin, J. A. P. 30, (1959) 1992, 1998
- 4) F. H. Herbstein, Adv. in Phys. 10, (1961) 313

II-3 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

概 要

パルス電子線(エネルギー30MeV, ピーク電流0.5A, 時間巾15ns)照射によってアルカリハライド結晶中に過渡的に生ずる格子欠陥, 特に色中心およびそれらの triplet states の生成消滅を光学的手段を用いて測定してきた。KCl, NaClについてはすでに報告した。¹⁾ 今回は主としてKBr, KIについて実験を行ない, KCl, NaClで得られた色中心の生成消滅機構に関する知見を更に広めた。

結 言

1) KBr結晶では約4°KでF吸収帯が約600nmに現われ, 減衰時定数 $\sim 20\mu\text{s}$ と $70\mu\text{s}$ で消滅することを前回に報告した。今回はこの減衰時定数が結晶温度の上昇とともに減少することを観測し, その温度依存性から, F-H再結合の際の活性化エネルギーとして $\Delta E \approx 0.045\text{ eV}$ を得た。

2) 約4°KのKBr, KIで各々 $\sim 775\text{ nm}$, $\sim 900\text{ nm}$ に吸収帯が現われた。これらは各々 $\sim 100\mu\text{s}$, $\sim 3\mu\text{s}$ で減衰し, その温度依存性が固有発光のそれと同じことから, これらの吸収体は triplet 励起子に起因すると推測した。

3) KCl結晶に電子捕獲中心となる不純物(Ag^+ 0.1mole%)を混入するとF中心生成の量は純KClの場合の1/3に減少した。 Cu^+ の影響はほとんど認められなかった。

4) KCl中の励起子とF中心との間のエネルギー伝達について, 固有発光を通じて preliminaryな実験を行なったが, 定量的な結果は得られなかった。

実験装置, 条件は前回と同じである。

結果および考察

1) KBr

約4°KのKBrにパルス電子線を照射すると, F中心の一部が40ns以内に生成され, 一部は

1 μs の時定数で生成されること、生成されたF中心は $\sim 70\mu\text{s}$ 、 $\sim 20\mu\text{s}$ の時定数で減少することが前回の実験で明らかにされている。²⁾ 今回はこの減衰時定数の温度変化を測定した。図1に $\sim 70\mu\text{s}$ および $\sim 20\mu\text{s}$ の成分の温度依存性を各々黒丸、白丸で示す。

これらの成分 τ_s 、 τ_f は実線で示されるように、 T の関数として

$$1/\tau_{s,f} = \nu \exp[-\Delta E/kT] + 1/\tau_0$$

で現わすことができる。実験値が曲線によく乗るように ΔE を決めると

$$\tau_f \text{ に対して } \Delta E_f = 0.042 \text{ eV}$$

$$\tau_s \text{ に対して } \Delta E_s = 0.050 \text{ eV}$$

が得られた。

LHeTのような低温では、相補的な色中心FとH中心が互に数格子間隔離されたところにつくられる。³⁾ H中心を構成している格子間位置にあるClが結晶温度の上昇と共に熱エネルギーでF中心と再結合し、FとH中心が共に消滅することがKClで確かめられた。KBrでもこの現象が起こっていると考えられるので、ここに求めた ΔE_s および ΔE_f はこの再結合のための活性化エネルギーと考えられる。ただしKBrの場合H帯の減衰の時定数も測定して、上の再結合機構の議論を確証する必要がある。KClの場合は $\Delta E \approx 0.017 \text{ eV}$ であった。

前回の実験でF吸収帯の長波長側(690nmと775nm)に現われる吸収帯の減衰がtriplet excitonによる発光の寿命と一致することから、この吸収帯がtriplet excitonのさらに高エネルギー状態への遷移によるものと考えた。この考えを確かめるために、690nmでの吸収を $10^\circ\text{K} \sim 40^\circ\text{K}$ の範囲で測定して減衰時定数 τ の温度変化を求めた。図2に白丸で τ を温度の関数として示す。triplet excitonが消滅する際に放出される固有発光の強度の温度依存性とよく一致していることから690nm附近に現われる吸収帯がtriplet excitonによるものであることが確認された。測定値は式

$$1/\tau = \nu \exp[-\Delta E/kT] + 1/\tau_0$$

において

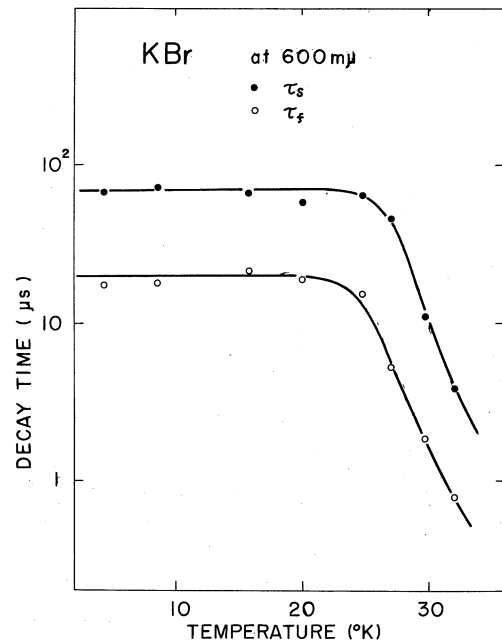


図 1

$$\Delta E = 38 \text{ meV}$$

とすればよく表わされる。この値は固有発光強度の温度依存性から求めた 37 meV とよく一致し, triplet state にある励起子 (Cl_2^{-*}) の励起電子が熱的に無輻射遷移によって基底状態に戻るか, または熱的に伝導帯へイオン化されるのに要するエネルギーに相当すると思われる。

2) KI

約 4°K の KI に電子線パルス照射後 1 μs に測定した光吸収スペクトルを図 3 に示す。前回の実験では不純物によると思われる吸収帯が 780 nm に現われたが図 3 にはない。

~900 nm (~1.4 eV) に現われる吸収帯は指数関数的に減少し, その時定数 τ は 3.5 μs である。試料の温度を上げるとこの時定数は 30°K ~ 100°K で 1.5 μs であり, 100°K から高温でさらに短くなる (図 4)。この吸収帯の 4.2°K での 3.5 μs という寿命は, 固有発光の減衰の時定数から推測されている triplet exciton

の寿命 4 ~ 6 μs より短い。しかし次の理由によってこの吸収帯は triplet

exciton によるものと考えられる。(1) 減衰時定数の温度変化が triplet exciton からの発光の強度の温度変化とよく一致する。(2) 不純物を含む KI 結晶では Pooley によって報告されているように, triplet exciton の寿命が短くなる。

30°K 以上の温度での τ は,

$$1/\tau = \nu \exp(-\Delta E/kT) + 1/\tau_0$$

でよく記述され

$$\Delta E = 0.12 \text{ eV}$$

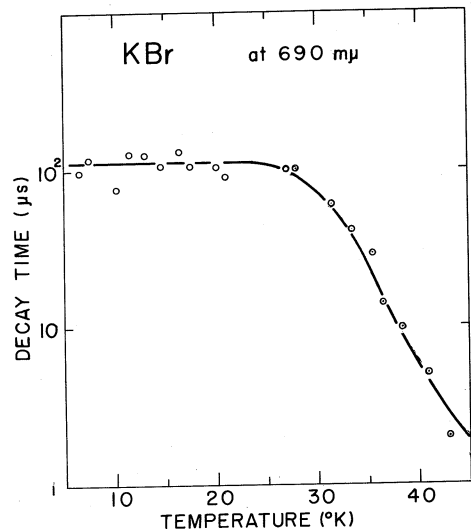


図 2

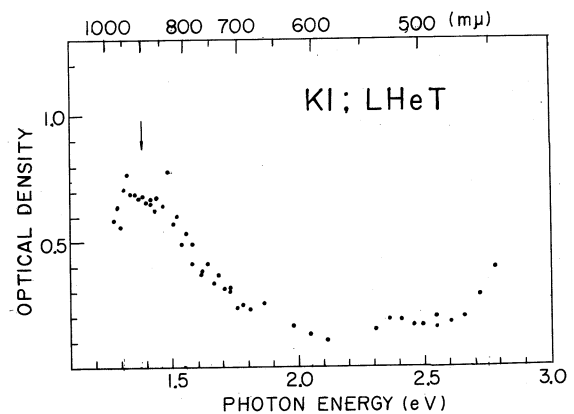


図 3

とすれば測定値によく合う。このエネルギーはKBrの場合と同じく, triplet excitonの熱的崩潰のための活性化エネルギーと考えられる。

3) KCl:Ag, KCl:Cu

0.1mole%のAgClを含んだKCl結晶に $\sim 4^\circ\text{K}$ で電子線を照射後 $1\mu\text{s}$, $15\mu\text{s}$ に測定して得た光吸収スペクトルを図5に示す。KCl pureの場合に比較して, Ag^0 中心に起因する 420nm にピークを持つ吸収帯が現われる。この吸収帯は 40ns 以内に生成され, その後減衰しない。F中心(540nm), triplet exciton(660nm)による吸収帯の生成量は, いずれもpureなKCl結晶の場合に比較して $1/3$ に減少している。この現象は電子線照射によって生成された自由電子と正孔のうち, 自由電子の大部分が Ag^+ に捕獲されて Ag^0 中心を作り, self trapped excitonおよびF中心, H中心生成に使われる割合が $1/3$ に減少すると考えれば説明される。

F中心およびtriplet excitonによる吸収帯の減衰時定数は $\sim 2\mu\text{s}$, $11\mu\text{s}$ および 5ms であって, これらはpure KClの値とほぼ同じである。したがってこれらの色中心の消滅に対する Ag^+ イオンの影響は測定の精度以内では見られなかった。

KCl:Cuについて同様な実験を行なったが, Ag^+ の場合と異なり, F中心生成量に対する影響は見られなかった。

4) 励起子とF中心の相互作用

約 20°K 以下のKClの固有発光帯は 540nm 附近にピークを持ち, 寿命は 5ms であることが知られている。今回の実験でも, $\sim 4^\circ\text{K}$ のKCl中でこの波長領域に $3\sim 5\text{ms}$ の寿命を持つ発

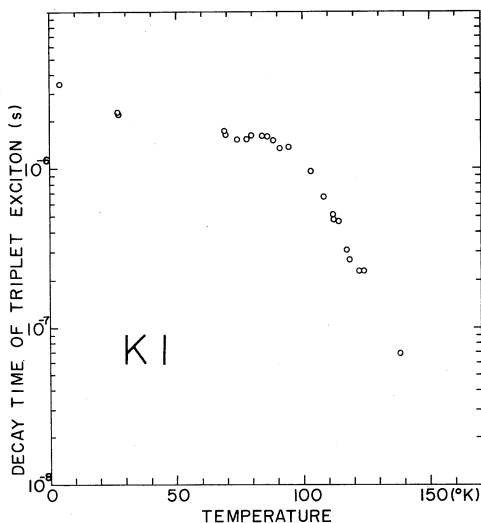


図 4

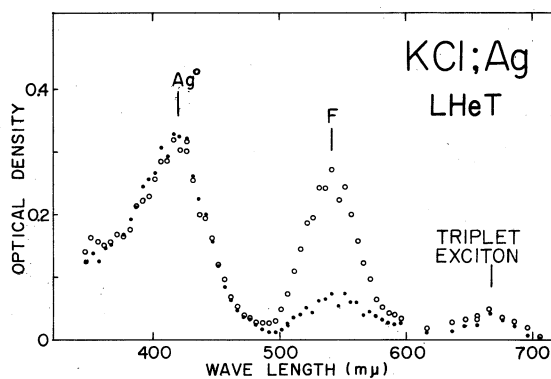


図 5

光が測定された。さらに短い寿命を持つ発光も測定されたが、この発光が何によるものかはまだはっきりしていない

KClではF中心による吸収帯のピークが540nmであることから、固有発光がF中心によって再吸収されることが知られている。電子線で高濃度のF中心を作り、これに更に電子線を照射してexcitonを結晶中に多量に発生させれば、F中心とexcitonとの距離が短くなってエネルギーの共鳴伝達が起こり、固有発光の寿命が減少すると予想される。この現象を検出する意図で固有発光の寿命を測定し、上記の3~5msの値を得た。この値はF中心の濃度が低くて励起子-F中心間のエネルギー共鳴伝達が考えられない結晶でのそれ(5ms)とほぼ等しく、今回は定量的な結論には到らなかった。

謝 辞

この実験を行なうにあたりライナックを運転して載きましたmachine Groupeの方々に感謝致します。

文 献

1) 上田他, 核理研報告 Vol. 1~3

M. Ueta, Y. Kondo, M. Hirai and T. Yoshinari, J. Phys. Soc. Japan, Vol. 26 (1969)1000

Y. Kondo, M. Hirai, T. Yoshinari and M. Ueta, J. Phys. Soc. Japan, Vol. 26 (1969)1553

M. Hirai, Y. Kondo, T. Yoshinari and M. Ueta, J. Phys. Soc. Japan, Vol. 30 (1971)440

2) 上田他, 核理研報告 Vol. 3, No. 2

3) M. Hirai, Y. Kondo, T. Yoshinari and M. Ueta, J. Phys. Soc. Japan, Vol. 30 (1971)440

II-4 50 MeV Electron Irradiation of Germanium Doped with Co-57 (II)

工学部*金研**

松井啓治*・大川 淳**

The pair formation observed in irradiated germanium is reported. The Co 57 doped silicon crystals were abandoned due to an accident in the irradiation. The Co 57 doping was made as described previously.³⁾

The germanium specimens ($-5 \times 7 \times 0.5 \text{ mm}^3$ in size) cut from initially 40 ohm.cm intrinsic material were bombarded by 50 MeV linac electrons for 7 hrs. Unfortunately the specimens experienced a heat-up to several hundreds degrees centigrade for a short while, due to a failure in the cooling water supply. The specimens were irradiated at 15°C for 1.5 hrs before the offset of the irradiation. The electron flux was roughly estimated to be $4 \times 10^{17} \text{ e}^-/\text{cm}^2 \cdot \text{hr}$.

The Mössbauer spectrum (vs. natural 310 S.S. absorber) obtained at 295°K for 2-16 hrs after the irradiation indicated 3 pairs of quadrupole doublets with an isomer shift +0.06 cm/sec, as shown in Fig.1. The resolution of the spectrum was lowered by strong bremsstrahlung possibly due to Ge 76 (82 min.), Ga 73 (4.8 hr), etc., produced by photonuclear reactions. The γ -ray were directed along an [111] axis.

The isomer shift of the doublets slightly differs from

* K. Matsui and A. Ohkawa**)

Faculty of Engineering
Tohoku University, Sendai, Japan

** Research Institute of Mineral Dressing,

+0.04 cm/sec of the Wertheim's doublet¹⁾ present prior to the irradiation. If the tentative interpretation of Wertheim is adopted, the doublet with $\delta = +0.04$ cm/sec corresponds to cobalt (or iron) substitutional.³⁾ Assuming an interstitial conversion event like those in silicon,²⁾ the isomer shift +0.06 cm/sec is likely to correspond to an interstitial cobalt free from covalent bondings. The charge state of the iron isomer would be +3, after the calibration of Danon.⁴⁾

The large quadrupole splittings $A_2 = 0.48$, and $A_3 = 0.67$ cm/sec indicate the formation of ion pairs, just as the cases observed in neutron-irradiated silicon.^{2,3)} The giant splitting formalism,⁵⁾ for Fe^{+3} paired with negatively charged defect or impurity in such a way that low spin configurations result, suggests that A_2 and A_3 correspond respectively to (113) and (023) axial field configurations in which the (lmn)'s denote $(d_0)^l (d_{\pm 1})^m (d_{\pm 2})^n$ with $l+m+n=5$. The two configurations are close in the electron-electron interaction, $E_{ee}(113) - E_{ee}(023) = 0.033 F^{(2)}(dd) = 1.6 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$. The splitting ratio $A_3/A_2 = 1.4$ is close to $q^{(023)}/q^{(113)} = +8/7 e \langle r^{-3} \rangle / +6/7 e \langle r^{-3} \rangle = 1.333$.

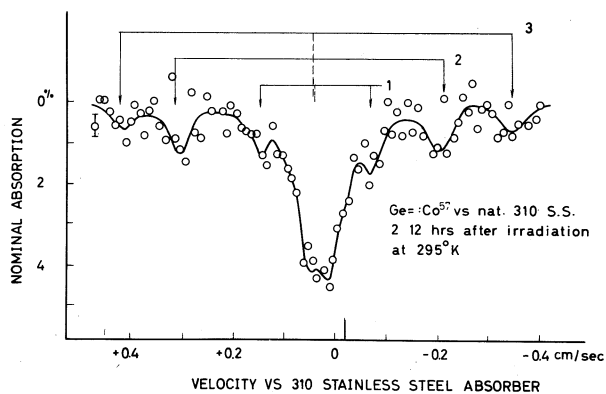
It may be added that the line intensity ratio $I(+v)/I(-v) = I(3/2 - 1/2)/I(1/2 - 1/2) \sim 1$ implies $\langle 100 \rangle$ ion pairs, both for A_2 and A_3 . For $\langle 111 \rangle$ pairs it amounts to 1.29.

It is necessary to investigate the Fermi level dependence^{2,3)} as well as annealing behaviours of the pairing phenomena.

Prof. Y. Kojima and his crew are acknowledged for the extended linac irradiation. Prof. S. Ishino (Univ. Tokyo) kindly supplied the crystals. Prof. A. Kigoshi (Res. Inst. Min. Dress.) is acknowledged for his courtesy in RI treatments.

References:

- 1) P.C. Norem and G.K. Wertheim: J. Phys. Chem. Solids, 23, 111 (1962).
- 2) K. Matsui, R.R. Hasiguti and H. Onodera: Radiation Effects, 8 (3-4), 195-201 (1971).
- 3) K. Matsui, H. Onodera and A. Ohkawa: Sci. Rep'ts Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ., Vol.3, No.2, 96-102 (Dec.1970).
- 4) J. Danon: "Applications of Mössbauer Effect in Chemistry and Solid State Physics", IAEA, Vienna (1966), p.89.
- 5) K. Matsui: Rep'ts 1971 Spring Meeting of Japan Phys. Soc., 7a-E-10.



II-5 An Indication of Germanium 73 Mössbauer Effect in 50 MeV Electron-Irradiated Germanium

工学部 松井啓治*

The Mössbauer spectra found in 50 MeV electron-irradiated germanium crystals are briefly reported in relation to 13.5 keV $5/2^+ - 9/2^+$ E2 transition of $Ge\ 73$.¹⁾ Three germanium wafers cut from an intrinsic crystal were stacked together to be bombarded in running water. Each wafer was 0.5 mm thick. They were irradiated by 50 MeV linac electrons for 7 hrs. The beam intensity was roughly estimated to be 4×10^{17} electrons/cm².hr. The specimens were accidentally heated up to several hundreds degrees centigrade for a short while at around 1.5 hrs before the offset of the irradiation.

Efforts were made to observe Mössbauer effect expected for $Ge\ 73$ 13.5 keV isomer, the possibility of which is discussed separately.¹⁾ The γ -rays from the irradiated specimens were intercepted by 0.5 mm thick intrinsic crystal (with 23 mg $Ge\ 73/cm^2$) employed as absorber. The γ -rays were made to pass along $\langle 111 \rangle$ axis both for the emitter and the absorber. The window of the pulse height analyser was set to 13.5 ± 2 keV. No detailed pulse height analysis was made simply because the specimens were doped with $Co\ 57$ ²⁾ which emits 14.4 keV γ -rays.

Fig.1 shows the decay of radiation-induced activities monitored as mentioned above. They were considered to comprise $Ge\ 76$ (82 min), $Ga\ 73$ (4.8 hr), etc., formed through (γ, n) and (γ, p) reactions by the bremsstrahlung during the

* Keiji MATSUI
Faculty of Engineering
Tohoku University, Sendai, Japan

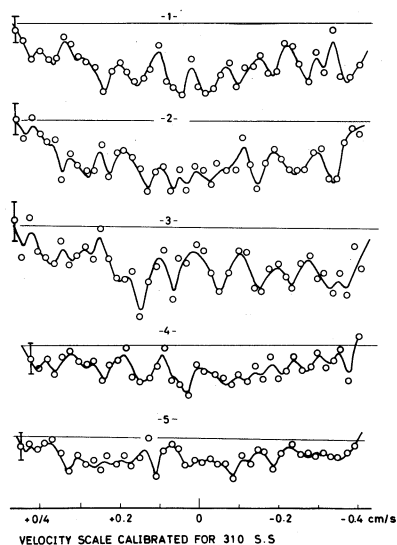
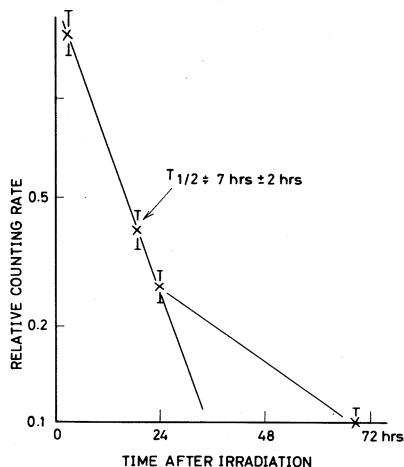


Fig. 1. Decays of Induced Activities

Fig. 2. Mössbauer Spectra Indicating 13.5 keV Effect

electron irradiation. It is possible to show that the 13.5 keV emission due to the β^- -decay of Ga 73 remains dominant during a few tens of hours after the irradiation.¹⁾

Fig. 2 indicates a series of the spectra obtained for 4.5 hr interval from 21 hrs after the irradiation. These were measured at 295°K. The velocity scale was obtained for 14.4 keV Fe 57 Mössbauer effect, which has to be contracted by 7 % for 13.5 keV emission. The maximum dips of the apparent absorption vary from 0.7 % in spectrum-1 to 0.3 % in spectrum-5, though the positions of off-resonance lines cannot be regarded as definitive. The errors indicated for one channel are simply the root of the total counts. The instrumental errors of the spectrometer are considered to be lower than the values indicated.

The spectra are too much complicated to compare with calculations.¹⁾ It appears that some radiation-induced defects mobile at the temperature of measurements made the spectra complex. The

"splittings", of a few mm/sec, do not contradict with the values expected for quadrupole effect.

These effects, obtained rather "accidentally", have to be checked by further experiments before any solid conclusion is drawn.

Prof. Y. Kojima and his crew are acknowledged for the extended linac irradiation. Mr. A. Ohkawa is acknowledged for his experimental aides.

Reference:

- 1) K. Matsui, submitted to the Scientific Reports of the Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University. II-6
- 2) K. Matsui and A. Ohkawa, the same as Ref. 1). II-4

Note Added In Proof:

A discrete spectrum, best represented by $|Q/Q_0| = 0.25$ and $|e Q_0 q/2| = 0.7$ mm/sec, has been observed at 295°K in an n-type crystal free from primary damages. The small Q raises questions as to the mixing of the state as in the case of the 86.5KeV transition of Gd 155. The remarkable line broadening observed, ~ 0.3 mm/sec, suggests the jumps of germanium interstitials with an energy of 0.4 eV, in 4 μ sec after the β -recoil of Ga 73. Closer discussion required further experiments. These will be presented for discussions at the Annual Meeting of Japan Phys. Soc., September 1971(30-a-U-10).

II-6 On the Mössbauer Effect of Germanium 73 : 13.5KeV Transition

工学部 松井啓治*

SUMMARY

The possibilities of Mössbauer effect associated with the 13.5 keV E2 transition of Ge 73 are discussed to make use of the effect for defect identification. Of the principal difficulties, i.e., large internal conversion coefficient for this transition and extreme narrowness of the resonance line, comparison with the 67.0 keV resonance indicates that the former may not be vital. The artificial broadenings of the resonance line can be fulfilled either by internal electric field or by external magnetic field applied. Among several ways of source preparation, the Ge 74 (γ, p) Ga 73 and Ge 74 ($d, 2n$) As 73 would be most promising, since both of the products can be obtained by bombarding germanium as target by which irradiation effects of the host lattice can simultaneously be studied.

INTRODUCTION

Between the two possible Mössbauer transitions to Ge 73 as shown in Fig.1, only the 67.0 keV line has been studied to a certain extent by means of Coulomb excitation of Ge 73 by 15 MeV oxygen ions.¹⁾ The 13.5 keV line, on the other hand, remains untouched probably because of nuclear reasons, viz., the narrowness of the line and the large internal conversion coefficient.¹⁾ It seems worthwhile to investigate experimental conditions to

* Keiji MATSUI
Faculty of Engineering
Tohoku University, Sendai, Japan

overcome these difficulties, because the 13.5 keV experiment has many advantages over the other, i.e., high recoil-free fraction, high resolution, etc. It may be added that the radiation damage study in germanium, in contrast to the case of silicon has been delayed by the lack of proper means of microscopic defect identification, like epr or Mössbauer effect. The present report deals with a trial to find a way of studying the 13.5 keV effect, with reference to subsidiary formalism.

FUNDAMENTAL MÖSSBAUER QUANTITIES

Several Mössbauer quantities of interest^{2,3)} are compared in Table 1 for Ge 73 (13.5 and 67.0 keV lines) and Fe 57 (14.4 keV line). The large recoil energy of the 67.0 keV line makes the recoil-free fraction much smaller than that of the 13.5 keV line. Czjzek et al reported $f = 0.011$ at 77°K in their Coulomb excitation experiment.¹⁾ The discrepancy from $f = 0.1$ may be ascribed to some spike phenomena.

It is seen from Tab.1 that the products $\sigma_0 f$ for 67.0 keV line (77°K, $f_{obs} = 0.011$) and 13.5 keV line (300°K) become comparable, to indicate that the latter experiment may be feasible.

It is also seen that the minimum observable line width ($2\Gamma_0$) is 2.5 mm/sec for the 67 keV line, which is too much large for detailed hyperfine spectrometry. The line width of the 13.5 keV line is about 1/25 of well known 14.4 keV line of Fe 57. As the Mössbauer spectrum is obtained as a 'product' of spectra for emitter and absorber, artificial line broadening in absorber may make the experiment feasible. The line broadenings may be brought about by quadrupole effect or magnetic dipole effect. These will be examined in the followings.

ELECTRIC QUADRUPOLE INTERACTION

The transition between nuclear states $5/2^+$ and $9/2^+$ can adequately be described by $I_\gamma = 2$ and $P_\gamma = +1$ where I_γ and P_γ represent the angular momentum and the parity of the γ -quantum.⁴⁾ The electric quadrupole transition intensities between substates characterized by m_I and m_{I_0} are expressed by⁵⁾

$$S = \left(\begin{array}{ccc} 9/2 & 2 & 5/2 \\ m_{I_0} & m_\gamma & -m_I \end{array} \right)^2 R(\theta) \quad (1)$$

where the first factor is the square of Wigner's $3j$ symbol⁶⁾ and the second one is a factor dependent upon the angle θ between the direction of γ -rays and the axis of quantization. The latter can be written as

$$R(\theta) = \begin{cases} \sin^2 \theta (1 + \cos^2 \theta) / 2, & \gamma_x = \pm 2 \\ (4 \cos^4 \theta - 3 \cos^2 \theta + 1) / 2, & = \pm 1 \\ 3 \sin^2 \theta \cos^2 \theta, & = 0 \end{cases} \quad (2)$$

The three angular factors reduce to $2/5$ for isotropic distribution of the axes of quantization, as in the case of powdered crystal.

The electric field gradient q at the nuclear site makes split each state into $(2I + 1)/2$ sublevels whose energies are given by⁷⁾

$$E_{m_I} = (eQq) [3m_I^2 - I(I+1)] / [3I^2 - I(I+1)] \quad (3)$$

, $-I \leq m_I \leq I$

in which Q refers to the quadrupole moment of the state.

Fig.2 shows the splittings of the ground and excited state under negative q . As the moment of the excited state remains unidentified, the 15 lines combining the sublevels in Fig.2 are represented versus Q/Q_0 in Fig.3. The line intensities indicated in Fig.'s 2 and 3 are $1/3$ times the square of Wigner's

3j symbol. Fig.4 schematically represents the emission patterns expected from Fig.3. The patterns are to be compared with spectrum obtained for powdered crystal to fix Q/Q_0 .

It may be necessary to work with single crystal (and with powdered absorber) to deduce the orientation of the E.F.G. axes, as in the case of ion pairing.⁸⁾ Fig.5 shows relative intensities obtained from eq.(2) for $\langle 111 \rangle$ and $\langle 100 \rangle$ E.F.G. axes. These values are to be combined with line intensities in Fig.'s 2,3, and 4 to obtain values for single crystals.

MAGNETIC HYPERFINE INTERACTION

The magnetic sublevels split by magnetic field H are given by ⁷⁾

$$E(m_I) = -(\vec{\mu} \cdot \vec{H}) = -\mu H m_I / I, \quad -I \leq m_I \leq I \quad (4)$$

where μ refers to the magnetic moment of I state. Fig.'s 6,7 and 8 show the level scheme, line positions versus μ/μ_0 (μ unidentified) and schematic powder patterns, respectively. It is interesting that a uniform absorption patterns are obtained for $\mu/\mu_0 \gtrsim 1$. It is to be noted that the magnetic moment of the ground state $\mu_0 = -0.8792 \text{ nm}$ is 6 times larger than μ of the excited state of Fe 57. This makes effective broadenings by application of external magnetic field possible, as shown later. Fig.9 indicates angular factors expressed by eq.(2). The application of external magnetic field also serves to detangle the 30 emission lines into three groups with $m_I = 0, \pm 1$ and ± 2 , by choosing appropriate angle between the magnetic field and the γ -rays.

LINE BROADENINGS

Among various origins of line broadening, including those

concerned with the radiation-after-effects following the disintegration of a parent Mössbauer nuclide, the magnetic- and quadrupole effects mentioned above are most straightforward to handle. These can strictly be discussed, however, with the knowledge of the moments (μ and Q) of the excited state. An approximate discussion goes as follows.

An observable line width ($2\Gamma_0$) of 0.1 mm/sec allows one very comfortable Mössbauer effect measurements. It may be understood from Fig.'s 4 and 8 that approximate broadenings of the spectra are expressed by $|eQ_0 q/2|$ and $|2\mu_0 H|$, respectively. If these correspond to 0.1 mm/sec, the 15 or 30 lines with minimum observable width 0.05 mm/sec make a continuum. The experiments can be performed using such a crystal as absorber.

It appears that the magnetic broadening is best suited for this purpose. An external (or internal, if necessary) magnetic field of 1000 Oe gives rise to $|2\mu_0 H| = 0.124$ mm/sec. The powder pattern in Fig.8 may properly be corrected by angular dependences shown in Fig.9. As a matter of fact, quadrupole broadening is likely to exist in solids, although the electric field gradient q of electronic and ionic origins formally disappears even in non-degenerated germanium as shown in the following.

The $4sp^3$ hybrid orbitals directed towards $\langle 111 \rangle$ are formed by an equal admixture of s , p_x , p_y and p_z .⁹⁾ The p -electrons contribute to $q = -(4/5)e \langle r^{-3} \rangle$ per electron⁷⁾ which amounts to $(eQq/2) = 1.6$ mm/sec if Slater function average $\langle r^{-3} \rangle = 4.9 \text{ \AA}^{-3}$ is assumed for the radial integral.¹⁰⁾ By symmetry the resultant E.F.G. for a neutral germanium at normal site vanishes.

The E.F.G. of ionic origin, in which the q 's are to be multiplied by Sternheimer's anti-shielding factor⁷⁾ of the order of 10, also disappears for the normal atom. These do not mean, however, that there is no E.F.G. in the real crystal, the specific

component q being much larger than those required for the line broadening.

The other possible origins of line broadening would be the followings. The non-uniformity associated with lattice strain and with impurity is expected to appear as a change in isomer shift. Thermal vibration and diffusional motion are also to be considered. Some of these will be referred to, when the events in irradiated crystal are discussed.

RADIATION-INDUCED EFFECTS

It is necessary to discuss the details of photonuclear reactions occurring in irradiated germanium in order to find an optimum condition of experiment with Ga 73 as source. Since the subject lies beyond the scope of the present reporter, only very qualitative arguments are made in the following.

It is known that a giant resonance of photonuclear reactions occurs at around $E_\gamma = 15$ MeV with nuclides $Z \lesssim 40$.¹²⁾ It would be appropriate to expect a falling order for cross sections (γ, n) , (γ, p) , (γ, α) , etc. The ratio in saturation yields $(\gamma, p)/(\gamma, n)$ for 22 MeV bethatron irradiations remains at around 0.5 for $Z \sim 32$.¹³⁾

The (γ, p) and (γ, n) reactions expected for isotopically natural germanium are shown in Tab.2. The solid lines in Fig.10 represent the formation and the decay of these products expected for an irradiation of 10 hours. The dashed lines show the decay rates of the products calculated by taking the isotopic weights in the target into account and by assuming equal cross sections for the reactions tabulated in Tab.2.

The results, though crude in nature, suggest that the emission from Ga 73 remains as dominant component during a few tens of hours, say, from 10 hours after the irradiation.

The reaction of interest $\text{Ge } 74 (\gamma, p) \text{Ga } 73$ may be induced either by adopting external $e^- - \gamma$ converter such as platinum foil ($Z = 78$) or by bremsstrahlung in the target germanium ($Z = 32$). It is possible to obtain irradiated crystal rich or poor in defect densities relative to Ga 73 density.

It is desirable to study the 13.5 keV Mössbauer effect also with an another parent As 73 whose long life (76 days) allows one finer experiments. The reaction $\text{Ge } 74 (d, 2n) \text{As } 73$ would be the most interesting one in the sense that germanium crystal can be used as target.

The differences between Ga 73 and As 73 source are interesting also from solid-state reasons. Fig.11 schematically indicates a variety of solid-state processes expected for Ga 73 experiment. A similar situation may be expected for As 73. Aside of the processes I and II in Fig.11 which can be restored by annealing treatments, the ion pairing process III and recoil process IV will directly reflect the nature of the parents.

The ion pairing can be treated by the giant splitting formalism⁸⁾ for both donor Ga and acceptor As. The recoil displacement can be expected only for Ga from which an interstitial-vacancy close pair similar to that formed by conventional electron irradiation, may emerge. The diffusional effect shown in IV will appear if the migration energy of the interstitial is lower than 0.4 eV.

These features strongly suggest the significance of Ge 73 13.5 keV Mössbauer effect experiments in radiation damage study.

CONCLUSION

The results of the present analysis may be summarized as follows.

a) The Mössbauer effect experiment on the 13.5 keV transition is

feasible at least with a precision of the Coulomb excitation experiment on the 67.0 keV transition, as far as available data indicate.¹⁴⁾

b) The 13.5 keV experiment has advantages over the 67.0 keV experiment from its small recoil energy and narrow line width, from which detailed spectroscopic data may be obtained even at room temperatures.

c) Seeming complexities related to the $5/2^+ - 9/2^+$ transition can be resolved, once the quadrupole and magnetic moments of the $5/2^+$ state are determined from Mössbauer effect measurements.

d) Artificial line broadenings, especially with external magnetic field of around 1 koe, provide a good absorber for the experiments.

e) It is likely that linac irradiation with electron energy 15-50 MeV on natural germanium is most suited for experiments with Ga 73 parent produced by $\text{Ge}^{74}(\gamma, p)\text{Ga}^{73}$.

f) There are a variety of solid-state processes which can be studied microscopically by means of defect identification techniques of the Ge 73 Mössbauer effect. The comparison between Ga 73 and As 73 parents are highly requested. The direct informations are expected to give a clue of understanding in the radiation damages in semiconductors.

Acknowledgments

Prof. K. Shōda is acknowledged for valuable discussions on photonuclear reactions. Prof. S. Ishino (Dep't of Nucl. Eng., Univ. Tokyo) is acknowledged for discussions on the radiation effects in germanium.

REFERENCES

- 1) G. Czjzek, J.L.C. Ford, Jr., F.B. Obenstein, and D. Seyboth: Phys. Letters, 19, 673 (1966)

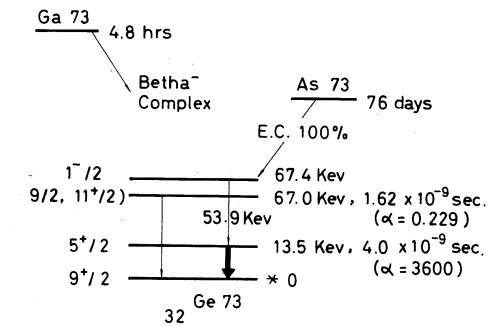
- 2) H. Frauenfelder: "The Mössbauer Effect" 2nd ed., pp.37-49, New York (1963). See also Ref.1).
- 3) A.H. Muir, K. Ando and H.M. Coogan (eds.): "Mössbauer Effect Data Index, 1958-1965", New York (1966)
- 4) H.A. Enge: "Introduction to Nuclear Physics", p.256, Tokyo (1966)
- 5) H. Frauenfelder, D.e. Nagel, R.D. Taylor, D.R.F. Cochran, and W.M. Visscher: Phys. Rev., 126, 1065 (1962)
- 6) A. Messiah: "Mécanique Quantique," Tome II, p.908, Paris (1964)
- 7) G.K. Wertheim: "Mössbauer Effect", New York (1964)
- 8) K. Matsui: Rep'ts of the Spring Meeting of Japan Phys. Soc., 7EalO (1971), in Japanese.
- 10) L. Pauling: "The Nature of the Chemical Bond", Ch.7, New York (1960)
- 11) J.C. Slater: "The Quantum Theory of Atomic Structure", Vol.I, New York (1960)
- 12) Ref.4), p.431.
- 13) N. Shibata et al: "Production of Radio Isotopes", in "Nuclear and Radiation Chemistry", p.525, Fig.8-13, Tokyo (1966), in Japanese.
- 14) An indication of the effect obtained in 50 MeV electron-irradiated germanium is referred to in a separate report to Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University. II-5.

Tab.1: Fundamental Mössbauer Quantities Compared for Ge 73
 and Fe 57

| | Ge 73 13.5 keV | | Ge 73 67.0 keV | | Fe 57 14.4 keV | |
|---|----------------|----------------------------------|-----------------------------------|----------------------------|----------------------------------|----------------------------|
| Recoil Energy (E_R) | 1.24 | 10^{-3} eV | 3.30 | 10^{-2} eV | 1.82 | 10^{-3} |
| Maximum Reso- nance Cross Section (σ_0) | 2.41 | 10^{-21} cm ² | 4.43 | 10^{-19} cm ² | 2.54 | 10^{-18} cm ² |
| Recoil-Free Fraction (f) | 0.8 (300°K) | | 0.001 | | 0.7 | |
| | 0.9 (77°K) | | 0.1, ($^{0.011}_{\text{obs.}}$) | | 0.9 | |
| | 1.0 (4.2°K) | | 0.2 | | 1.0 | |
| | | (θ_{Debye} 360°K) | | | (θ_{Debye} 420°K) | |
| Natural Line Width (Γ_0) | 1.14 | 10^{-10} eV | 2.80 | 10^{-7} eV | 4.64 | 10^{-9} eV |
| | 2.53 | 10^{-4} cm/sec | 1.25 | 10^{-1} cm/sec | 9.66 | 10^{-3} cm/sec |

Tab.2: Products expected for photonuclear reactions in germanium

| | (γ, p) | (γ, n) |
|---------------|---|--|
| Ge 70 20.52 % | Ga 69 stable | Ge 69 β^+ & EC 39.6 hr → Ga 69 stable |
| Ge 72 27.43% | Ga 71 stable | Ge 71 EC 11.4 day → Ga 71 stable |
| Ge 73 7.76% | Ga 72 β^- 14.1 hr → Ge 72 stable | Ge 72 stable |
| Ge 74 36.54% | Ga 73 β^- 4.8 hr → Ge 73 stable | Ge 73 stable |
| Ge 76 7.76% | - | Ge As 75 stable |



* $Q_{9^+ / 2} = -0.26 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$, $\mu_{9^+ / 2} = 0.8792 \text{ nm}$

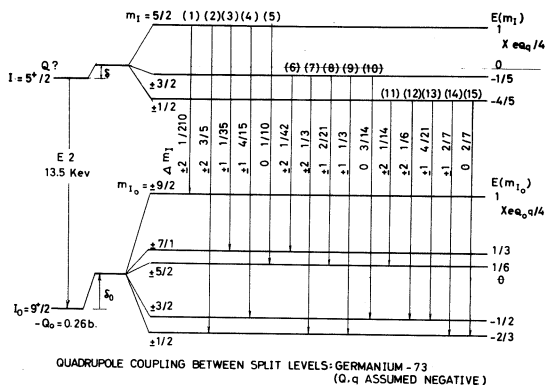


Fig.1. Level Scheme of Germanium 73

Fig.2. Quadrupole Hyperfine Splitting of $I = 5/2^+$ and $9/2^+$

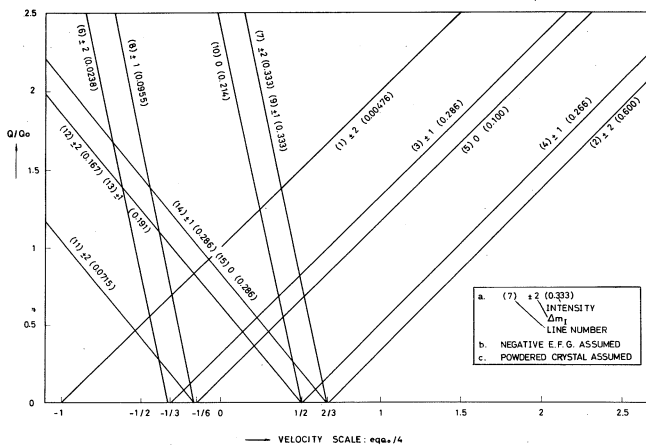


Fig. Quadrupole Effect Transition Lines vs Q/Q_0

Ge 73 MAGNETIC HYPERFINE SPECTRA (POWDER PATTERN)

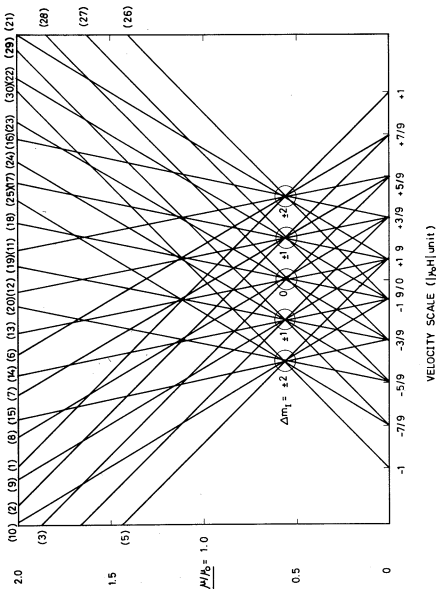
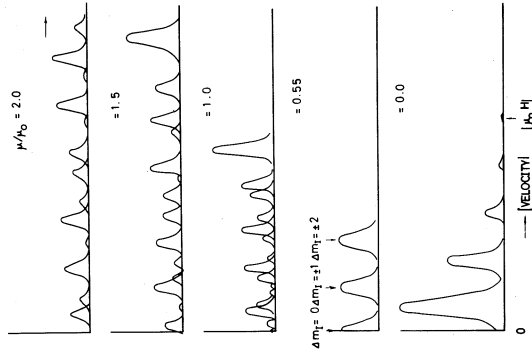


Fig. 7. Magnetic hfs Lines vs μ/μ_0

Fig. 8. Magnetic hfs Spectra in Powdered Crystal

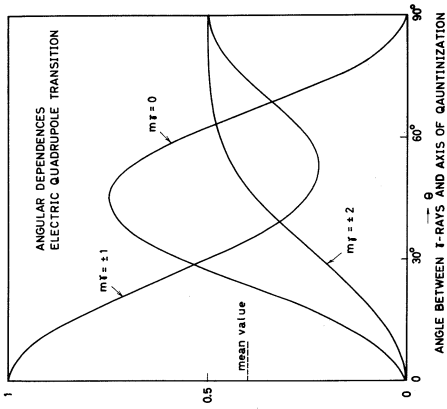


Fig.9. Angular Dependences of Electric Quadrupole Transition

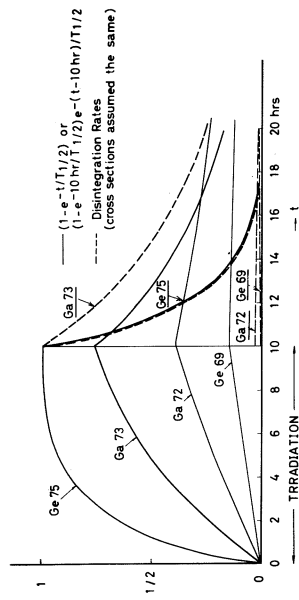


Fig.10. Production and Decay of Induced Activity in Irradiated Germanium

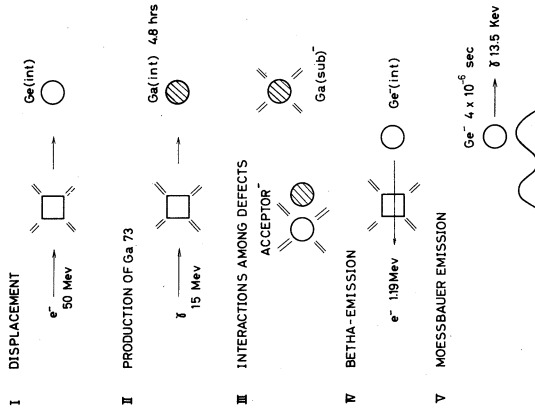


Fig.11. Solid-state Effects Expected in Irradiated Germanium

III 放射線化学部門

III-1 Fragment Distribution after Isomeric Transition of ^{80m}Br in Methyl Bromide

理学部化学 滝田祐二*・平賀正之*
吉原賢二*・塩川孝信*

Introduction

Fragment distribution after isomeric transition of ^{80m}Br in gaseous organic bromides has been studied by Wexler¹⁾ by means of a specially designed mass spectrometer (often called in the name of a charge spectrometer). He showed that a larger part of parent molecule broke up to the groups such as CH_3^+ , CH_2^+ , CH^+ , $\text{C}^+(\text{C}^{2+})$, $\text{H}^+(\text{H}_2^+)$ and Br^{n+} , although a smaller part was found in the parent ion CH_3Br^+ . Several years later, Carlson and White²⁾ studied the chemical effects of Auger processes in methyl iodide by X-ray irradiation. Their results indicated that complete bond rupture took place in the parent molecule and the ionic species found were H^+ , C^{n+} , and Br^{n+} . These phenomena were understood in the term of an "explosion model".

It is interesting to compare these results to each other. Wexler observed partial rupture of chemical bonds in the parent molecule, while Carlson and White stressed complete rupture of the parent molecule to the constituent atomic ions. It seems that these results are contradicting, inspite of the expectation

* Yuji Takita,^{†)} Masayuki Hiraga, Kenji Yoshihara and Takanobu Shiokawa
Department of Chemistry, Faculty of Science
Tohoku University, Katahira, Sendai, Japan

†) Present address: Toyo Rayon Co., Godo, Gifu, Japan

of the same Auger process for the isomeric transition and for the inner-shell ionization with X-rays.

Therefore, we have studied fragment distribution after isomeric transition of ^{80m}Br in gaseous methyl bromide, and obtained some novel facts as described below.

Experimental

A charge spectrometer (TOHOKU CS) was designed and constructed by co-operation of our laboratory with Hitachi Co. The specific features and functions of this apparatus have been published elsewhere.³⁾ A schematic diagram of the apparatus is shown in Fig.1. Radioactive gas is introduced in a 30 l source

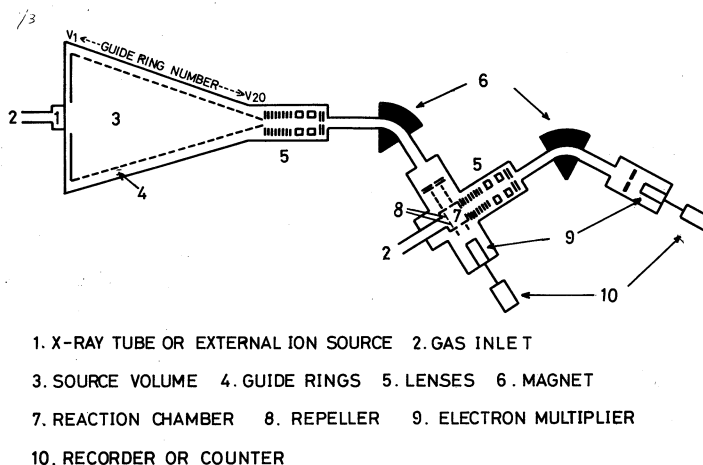


Fig.1. Schematic diagram of TOHOKU CS.

volume 3 through a gas inlet 2. An X-ray tube (target: tungsten) 1 is attached for irradiation of gasses in the source volume. The ions produced in the source volume are collected by the aid of the guide rings 4, focused by the Giese lenses 5, and analysed by a magnet 6. Resolving power of the apparatus is beyond

80. Measurements of the ions to be counted are performed by an electron multiplier of 16 stages 9 which is made by Hamamatsu T.V. Co. Pulse counting of these ions is done in the multiscaling mode by a counting system 10 connected with a 800 channel pulse-height analyser of Toshiba Co.

Methyl bromide labelled with ^{80m}Br was prepared according to the method of Moghissi.⁴⁾ Sodium bromide was irradiated with the bremsstrahlung of maximum energy of 60 MeV by the use of an electron linear accelerator of the Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University. The irradiated sample was mixed with dimethyl sulfate, sulfuric acid, and water in a reaction vessel, and the mixture was heated. Radioactive methyl bromide thus prepared was collected in a trap, and used for the experiments of charge spectrometry. The product was proved to be pure enough chemically and radiochemically. Specific activity of this sample was the order of 5 mCi/mM.

Results and Discussion

Fragment distribution after isometric transition of ^{80m}Br labelled methyl bromide has been studied by TOHOKU CS. Contamination of ^{82}Br was negligible in this case because (γ, n) reaction was the main event by the gamma ray irradiation. It is interesting to see that the parent ion and its hydrogen deficient derivatives can be detected as shown in Fig.2. Wexler reported only the presence of the parent ion, and did not point out the presence of these hydrogen deficient derivatives. Probably the reason of this difference is based on the improved resolving power of our apparatus. The abundances of these ions are considered to be relatively large. Determination of exact percentage relatively large. Determination of exact percentages for these ions is going on.

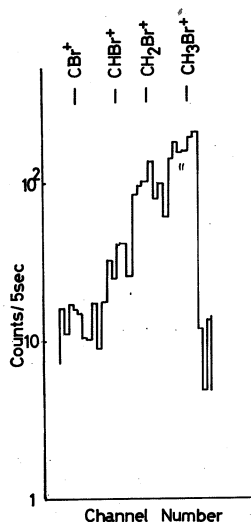


Fig. 2. Fragment distribution produced by the isomeric transition of ^{80m}Br in ^{80m}Br -labelled methyl bromide. Formation of the parent ion and its hydrogen-deficient derivatives.

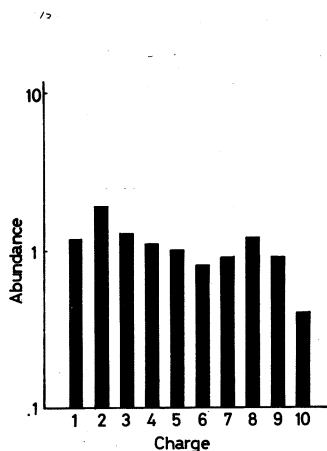


Fig. 3. Charge distribution of ^{80}Br produced by isomeric transition in $\text{CH}_3^{80m}\text{Br}$.

Fig. 3 shows the charge spectrum for $^{80}\text{Br}^{n+}$. This coincides with that of Wexler.

Almost 100% internal conversion take place on the event of isomeric transition of ^{80m}Br . Therefore, its daughter atom ^{80}Br is expected to bear multiple charge, and transfer its charge to the adjacent atoms. Distribution of charge in the whole molecule leads to the complete breaking up of the chemical bonds in a manner of explosion. This statement of the explosion model according to Carlson and White does not fit in our experiments. Probably it is needed that more elaborate considerations are set up to explain this discrepancy. Relation between the Auger electron yield and the fluorescence yield above L -shell may be important in connection with this.

The authors express their thanks to Dr. Yagi, Dr. Kondo and

the operating group of LINAC for their kind arrangement for irradiation of the samples used in this study.

References

- 1) S. Wexler, "Chemical Effects of Nuclear Transformations" Vol.I. P.115, IAEA, Vienne, 1961.
- 2) T.A. Carlson and R.M. White, "Chemical Effects of Nuclear Transformations", Vol.I, p.147, IAEA, Vienna, 1965.
- 3) T. Shiohara, K. Yoshihara, M. Yagi, T. Omori, H. Kaji, M. Hiraga, N. Nagatani and Y. Takita, Mass Spectroscopy, **18**, 1230 (1970)
- 4) A. Moghissi, Atompraxis, **9**, 10 (1963)

III - 2 気相における $\text{CH}_4 - {}^{80\text{m}}\text{BrBr}$ および $\text{CH}_4 - \text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$ 系の核異性体転移にともなう化学的効果〔II〕

核理研 八木益男・近藤健次郎
理学部化学* 小林孝彰*

§1 緒言

${}^{80\text{m}}\text{Br}$ および ${}^{82\text{m}}\text{Br}$ の核異性体転移にともなう内部転換と引きつづいて起る source molecule 内の電子移動によるクーロン反発で娘核 ${}^{80}\text{Br}$, および ${}^{82}\text{Br}$ は電荷とともにかなりの運動エネルギーを持つに至る。さきに Rack,^{1,2)} 立川ら^{3,4,5)} は $\text{CH}_4 - {}^{82\text{m}}\text{BrBr}$, $\text{CH}_3\text{Br} - {}^{82\text{m}}\text{BrBr}$ 系における ${}^{82\text{m}}\text{Br}$ の核異性体転移にともなう効果の検討から, 上記娘核の持つ運動エネルギー, および電荷の関与する反応が有機収率を与える上で重要な因子となることを明らかにした。

一方著者らは $\text{CH}_3\text{Br} - {}^{80\text{m}}\text{BrBr}$ 系⁶⁾ において同様な検討を試み, 得られた有機収率の大部分は娘核 ${}^{80}\text{Br}$ の持つ電荷の関与したイオン-分子反応によってもたらされ, 先に Rack²⁾, 立川ら⁵⁾ によって $\text{CH}_3\text{Br} - {}^{82\text{m}}\text{BrBr}$ 系で得られた有機収率が ${}^{82}\text{Br}$ の運動エネルギー依存の反応によるという結論と大いに相違することを指摘し, 両核異性体転移における崩壊形式の相違がその重要な因子となっていることを始めて明らかにした。さらにまた source molecule として娘核 ${}^{80}\text{Br}$ の取得する運動エネルギーが高々 1eV と非常に小さい $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$ を用いた場合には, 得られる収率はイオン-分子反応によるものであり, ${}^{80\text{m}}\text{BrBr}$ 系と比較した場合, 個々の生成物収率間にも大きな相違が見いだされることをあわせ指摘した。⁶⁾

しかし $\text{CH}_4 - {}^{80\text{m}}\text{Br}$ 系における核異性体転移にともなう同様な検討は極めて少なく, 本研究では前報にひきつづき source molecule として娘核 ${}^{80}\text{Br}$ の取得する運動エネルギー間に大きな差のある $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$, $\text{Br}^{80\text{m}}\text{Br}$ を用い, 不活性ガス添加による減速効果から娘核 ${}^{80}\text{Br}$ の持つ, これら運動エネルギーおよび電荷の有機収率に対する寄与を詳細に検討し, これまでに得られた $\text{CH}_4 - {}^{82\text{m}}\text{BrBr}$ 系^{1,7)} の結果と比較することにより娘核 ${}^{80}\text{Br}$ の再結合過程を一層明らかにすることを試みた。

§2 実 験

CH_4 , Kr は高千穂化学工業最高純度(いずれも純度99.9%以上)のもの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。 $^{80\text{m}}\text{BrBr}$ および $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$ の調製, 試料の調製, および抽出操作は常法^{6, 8, 9)}に従って行った。

有機, 無機層の放射能測定は36cc Ge(Li)半導体検出器を1024ch P. H. A. に接続して行い, それぞれの減衰曲線の解析から有機収率を求めた。また有機層の一部をガスクロマトグラフによって各生成物に分離し, 井戸型 NaI(Te) シチレーションカウンターによる, それぞれの放射能の相対強度から生成物収率を求めた。

§3 結 果

$^{80\text{m}}\text{Br}$ の核異性体転移で生成する娘核 ^{80}Br と CH_4 との反応において運動エネルギー依存の反応で有機収率がもたらされるならば, 不活性ガスなどの減速剤の十分な添加によって, これら有機収率は消去されるのに対し, 娘核 ^{80}Br の電荷の関与する反応は, その影響を受けないと期待される。それ故に適当な減速剤を添加すれば得られた有機収率を与える反応過程は娘核 ^{80}Br の運動エネルギー依存の反応と電荷の関与するイオン-分子反応の2つに区別することが出来る。本研究で用いた Kr は Br のイオン化電圧(11.84 eV)より高い13.93 eVのイオン化電圧を持ち, かつ娘核 ^{80}Br と質量がほぼ等しいため弾性衝突を仮定した場合, 1回の衝突による平均エネルギー損失割合 α は0.995と非常に大きな値になる。したがって上記運動エネルギー依存の反応による有機収率は顕著な影響を受けるものと期待される。

$\text{CH}_4 - ^{80\text{m}}\text{BrBr} (\text{Br}_2/\text{CH}_4 = 0.41)$ 系で得られた有機収率に対する Kr 添加の効果は図1に示した。図から $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ の収率は Kr 添加によって急激に減少を示し, Kr 1mf でほぼ0%に外挿できることは明らかである。一方 $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$ は Kr 濃度 0~0.6mf でほぼ一定値1.2%を与え, 0.6mf 以上の高濃度ではゆるやかな収率の増加を示す。これらのことから, 生成物のうち, ほとんどの $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ は娘核 ^{80}Br の持つ運動エネルギー依存の反応によって, また $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$ はイオン-分子反応によってもたらされたものとみなすことが出来る。一方先に試みた $\text{CH}_4 - ^{80\text{m}}\text{BrBr} (\text{Br}_2/\text{CH}_4 = 0.029)$ 系⁹⁾ における同様な検討によれば $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ 以外に $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$ の一部も運動エネルギー依存の反応によって生成されることが分ったが, 本研究における $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$ の生成には ^{80}Br の運動エネルギー依存の反応による寄与は全く認められなかった。また $\text{Br}_2/\text{CH}_4 = 0.029$ 系における運動エネルギー依存の反応およびイオン-分子反応による収率の割合はそれぞれおよそ80%, 20%であったのに対し $\text{Br}_2/\text{CH}_4 = 0.41$ 系ではそれぞれおよそ41%, 59%となり, 系の Br_2 濃度の違いによ

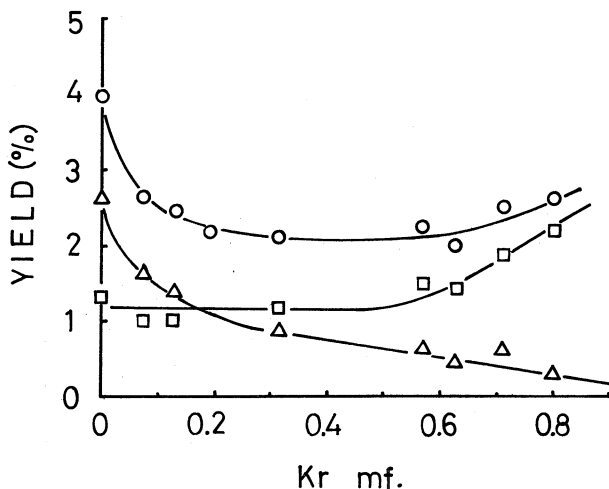


図1 $\text{CH}_4 - {}^{80}\text{mBrBr}$ ($\text{Br}_2/\text{CH}_4 = 0.41$)系における有機収率に対するKr添加の効果

- : 有機収率
- △: $\text{CH}_3 {}^{80}\text{Br}$
- : $\text{CH}_2 {}^{80}\text{BrBr}$

って両系には大きな違いがあることが判明した。

一方 $\text{CH}_4 - \text{H}^{80}\text{mBr}$ ($\text{HBr}/\text{CH}_4 = 0.19$)系に対するKr添加の効果について得られた結果は図2に示した。 ${}^{80}\text{mBrBr}$ をsource moleculeとした図1の結果と異なり有機収率はKr濃度に無関係にほぼ一定値を示した。このことは収率が娘核 ${}^{80}\text{Br}$ の関与するイオン-分子反応によってもたらされたことを示す。また $\text{CH}_4 - {}^{80}\text{mBrBr}$ 系では図1から明らかなようにKr 0mfでは $\text{CH}_3 {}^{80}\text{Br} > \text{CH}_2 {}^{80}\text{BrBr}$ であったのに対し $\text{CH}_4 - \text{H}^{80}\text{mBr}$ 系では逆に $\text{CH}_2 {}^{80}\text{BrBr} >$

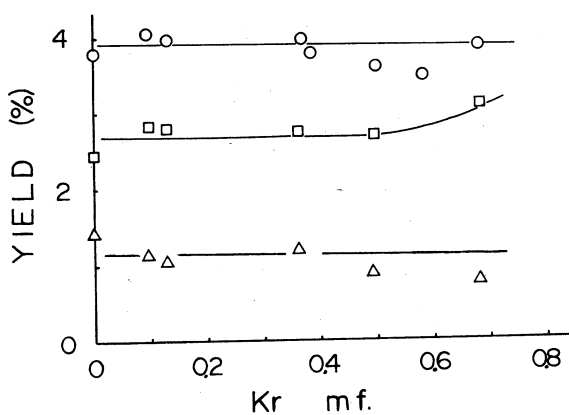


図2 $\text{CH}_4 - \text{H}^{80}\text{mBr}$ ($\text{HBr}/\text{CH}_4 = 0.19$)系における有機収率に対するKr添加の効果

- : 有機収率
- : $\text{CH}_2 {}^{80}\text{BrBr}$
- △: $\text{CH}_3 {}^{80}\text{Br}$

$\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ であり、両生成物を与える反応機構の間に大きな違いがあることを示した。

§ 2 考 察

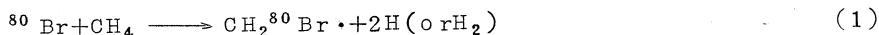
1) $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ および $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$ の生成機構…… ^{80}Br の核異性体転移は、7.37nsec の励起レベルを経由した2段の転移を行う。第1段は内部転換100%のM3転移、第2段はE1転移で61%の内部転移を行ない、残り39%は37KeV γ 線を放出して ^{80}Br となる。¹⁰⁾ $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$ を source molecule とした場合、第1段の核異性体転移にともなって取得する娘核 ^{80}Br の運動エネルギーは高々1eVであるのに対しC-H結合解離エネルギーは4.39eVであることから単にこれによるH置換は出来ず、有機収率は ^{80}Br の持つ電荷の関与するイオン-分子反応によってもたらされるものと考えられる。このような低運動エネルギーの ^{80}Br イオンに対しGioumoussis, Stevenson の式¹¹⁾ から $^{80}\text{Br}^+$ と CH_4 および HBr とのイオン-分子反応速度定数を求めるとそれぞれ 1.05×10^{-9} , $0.35 \times 10^{-9} \text{cc/molecule} \cdot \text{sec}$ (それぞれの分極率を 2.79×10^{-24} , $0.93 \times 10^{-24} \text{cm}^3$) がえられ、これらの値はほぼ衝突ごとに反応が進行することを示す。このことから本実験系では中間励起レベル (lifetime: $1.06 \times 10^{-8} \text{sec}$) でいったん各生成物が生成されたあと、さらに第2段の転移が起るものと考えられる。ここで第2段転移の際の37KeV γ 線放出による ^{80}Br 原子のうける反跳エネルギーはおよそ 10^{-2}eV 程度であり、その収率に及ぼす影響は十分無視しうる。

したがって図2において、収率に全く運動エネルギー依存の反応による寄与が認められなかった事実は、中間励起レベルの段階で生成した各生成物はさらに起る内部転換で ^{80}Br に十分な運動エネルギーを与えることの出来ない H^{80}Br , etc のような化学形であったと推定される。

一方 $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$ 系に比較し $^{80\text{m}}\text{BrBr}$ 系では第1段転移で取得する ^{80}Br の運動エネルギーは約40eV¹²⁾と高いので、このような高い運動エネルギーを持つ $^{80}\text{Br}^+$ イオンについて Gioumoussis, Stevenson の式の適用することは出来ない。しかしながら $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$ と同様に中間励起レベルでいったん生成物を与えたと仮定すれば、それはおそらく娘核 ^{80}Br の取得した運動エネルギーが図1に示すように $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ を与えるのに十分であるような化学形のものであったと推定される。Rack, および著者らは先に $^{82\text{m}}\text{Br}$ (内部転換100%の1段転換) について $\text{CH}_4 - ^{82\text{m}}\text{BrBr}$ 系で $\text{Br}_2/\text{CH}_4 = 0.029$ ¹⁾ $\text{Br}_2/\text{CH}_4 = 0.74$ ⁷⁾ の場合について不活性ガス添加の効果から、 Br_2 の濃度が大きくなるにつれ運動エネルギー依存による収率の割合は前者で50%であるのに対し後者では30%と小さくなることを見出した。一方本実験における $\text{CH}_4 - ^{80\text{m}}\text{BrBr}$ 系 ($\text{Br}_2/\text{CH}_4 = 0.41$) のような Br_2 の非常に高濃度の系においては、なお運動エネルギー依存の反応による収率の割合は約41%と高く、この事実からも $\text{CH}_4 - ^{82\text{m}}\text{BrBr}$ 系に比較し $^{80\text{m}}\text{Br}$ の核異性体転移では収率における運動エネルギー依存の寄与はかなり大きいものがある

ことがわかった。

$\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$ の収率については既に $\text{Br}_2/\text{CH}_4 = 0.029$ の系における $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ と同様一部運動エネルギー依存の反応が関与する次のような反応の寄与が考えられた。



二重置換で生成した $\text{CH}_2\text{Br} \cdot$ ラジカルは Br_2 と反応し $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$ を与えるものと考えられる。

図1において、 $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$ の生成にこのような反応の寄与が認められなかったことは、一般にこのような二重置換反応は高いエネルギー領域でのみ起ることが知られており、 Br_2 濃度の大きい系においては娘核 ^{80}Br の Br_2 によるモデレーター効果によって、反応時における ^{80}Br のエネルギー分布は低エネルギー側に片寄り(1)の反応が抑制されるためと説明されよう。

$^{80\text{m}}\text{BrBr}$ の場合、核異性体転移でいったん 7.37 nsec の励起中間レベルで如何なる生成物分布が与えられるのか、あるいは結合形成まで考慮せずに別の機構でこれら $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ および $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$ の生成が説明されるか、いまだ不明な点が多い。しかしながら今後同じ組成について内部転換100%の1段転移をする $^{82\text{m}}\text{BrBr}$ についての同様な検討は $^{80\text{m}}\text{Br}$ の核異性転移における中間励起レベルの寄与に関する多くの知見をもたらしてくれるであろう。

2) E-W 模型の適用

Estrup, Wolfgang^{13,14)} は反跳トリチウムの再結合反応はトリチウム原子のもつ反跳運動エネルギーによってもたらされ、反応は或る一定のエネルギー領域 $E_1 \sim E_2$ で起り、得られた有機収率(P)は次のように表わされるとした。

$$P = \sum_i \int_{E_1}^{E_2} f_i P_i(E) n(E) dE \quad (2)$$

ここで $P_i(E)$ はエネルギー E の状態で衝突によって反応する確率、 $n(E) dE$ はエネルギー $E \sim E + dE$ 間の衝突回数を示す。なお衝突確率 f_i は次式で表わされる。

$$f_i = \frac{X_i S_i}{\sum_i X_i S_i} \quad (3)$$

X_i , S_i はそれぞれ系の i 成分のモル分率および衝突断面積を表わす。

いま $^{80\text{m}}\text{BrBr}$ について核異性体転移で生成する ^{80}Br について上記トリチウムの場合と同様に、反応領域 $E_1 \sim E_2$ に比較し十分高いエネルギーを持つと仮定し、上記 E-W 模型を本研究の $^{80}\text{Br} + \text{CH}_4$ 系の運動エネルギー依存の反応による収率に対し適用してみる。(2), (3)式は Kr を含む系では次のように表わされる。

$$\frac{-1}{\ln(1-P)} = \frac{\alpha_{\text{CH}_4}}{I} + \frac{\alpha_{\text{Kr}}}{I} \left(\frac{1-f_{\text{CH}_4}}{f_{\text{CH}_4}} \right) \quad (4)$$

I, α_i はそれぞれ total reactive integral および i 成分との1回の衝突での平均対数エネルギー損失である。計算に用いたそれぞれの直径は Kr: 4.3 Å, Br: 4.2 Å, Br₂: 8.4 Å, CH₄: 4.2 Å である。式(4)で P は実験的に求まる運動エネルギー依存反応による有機収率であり, I および α_i は一定値であるから, E-W 模型が適合する場合は $-1/\ln(1-P)$ と $(1-f_{\text{CH}_4})/f_{\text{CH}_4}$ の間には直線関係が得られるべきである。

図3には本実験の Br₂/CH₄=0.41 の結果とともに, 先に報告した Br₂/CH₄=0.029 の実験値から計算したものを合せ示した。図よりいずれの場合もほぼ $-1/\ln(1-P)$ と $(1-f_{\text{CH}_4})/f_{\text{CH}_4}$ の間には直線関係が得られ, 核異性体転移で生成した ⁸⁰Br のうち運動エネルギー依存の

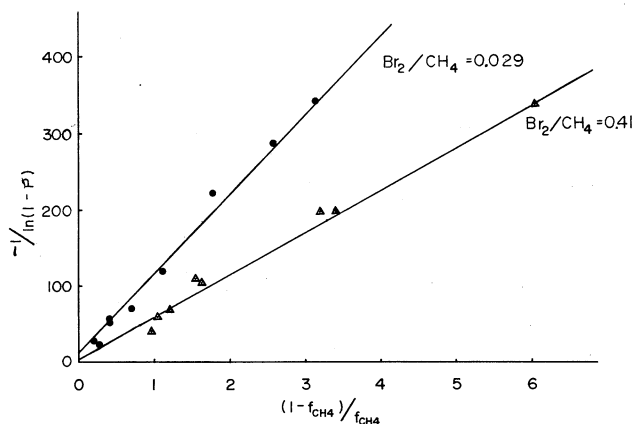


図3 $-1/\ln(1-P)$ と $(1-f_{\text{CH}_4})/f_{\text{CH}_4}$ の関係

反応による有機収率については, 一応 E-W 模型が適合することが判明した。

グラフの解析から Br₂/CH₄=0.029 の系について slope=103±10, intercept=11±2, intercept/slope=0.11±0.03, Br₂/CH₄=0.41 の系について slope=55.6±5.5, intercept=5.1±0.5, intercept/slope=0.09±0.02 がえられる。ここで intercept/slope は $\alpha_{\text{CH}_4}/\alpha_{\text{Kr}}$ の値に等しく平均としてその値は 0.1±0.02 であり, この値は先に Rackら¹⁾が ^{82m}Br の核異性転移で生成する ⁸²Br と CH₄ との反応で得た値と良く一致している。⁸⁰Br と Kr との衝突をビリヤード型の弾性衝突と考えれば α_{Kr} の値は 0.995 と与えられ, この値から α_{CH_4} を先に求めた $\alpha_{\text{CH}_4}/\alpha_{\text{Kr}} = 0.1\pm 0.02$ の関係から求めると 0.09±0.01 となる。このことは, 弾性衝突を仮定した α_{CH_4} は 0.344 であるので, 実際の衝突は非常に非弾性的なものであるかも知れないことを示している。

本実験を行うにあたり ^{80m}Br の製造にご協力いただいた東北大学電子ライナッククルーの皆様にご心から御礼申し上げます。

文 献

- 1 J. B. Nicholas, E. P. Rack, J. Chem. Phys., **48**, 4085(1968).
- 2 D. W. Oates, R. L. Ayres, R. W. Helton, K. S. Schwartz, E. P. Rack,
Radiochem. Radioanal. Letters., **4**, 123(1970).
- 3 E. Tachikawa, J. Okamoto, Radiochim Acta, **13**, 159(1969).
- 4 E. Tachikawa, Bull. Chem. Soc. Japan., **42**, 2404(1969).
- 5 E. Tachikawa, J. Okamoto, *idid.*, **42**, 1504(1969).
- 6 a) T. Shiohawa, T. Kobayashi, M. Yagi, K. Kondo Radiochem. Radio-
anal. Letters., in press
b) 塩川, 小林, 八木, 近藤, 核理研報告., **3**, (2) 132(1970).
- 7 M. Yagi, K. Kondo, T. Kobayashi.
Radiochem. Radioanal. Letters., in press
- 8 M. Yagi, K. Kondo, T. Kobayashi, *ibid.*, **5**, 75(1970).
- 9 M. Yagi, K. Kondo, K. Kobayashi,
Bull. Chem. Soc. Japan., **44**, 580(1971).
- 10 C. M. Lederer, J. M. Hollander, I. Perlman, "Table of Isotopes"
John Willey & Sons, New York (1968) pp. 215, 217.
- 11 G. Giomousis. D. P. Stevenson, J. Chem. Phys., **29**, 294(1958).
- 12 A. R. Kazanjian, W. F. Libby, *ibid.*, **42**, 2778(1965).
- 13 P. J. Estrup, R. Wolfgang, J. Amer. Chem. Soc., **82**, 2605(1960).
- 14 R. Wolfgang, J. Chem. Phys., **39**, 2983(1963).

III - 3 残留核法による光核破碎反応の研究

理学部化学 森田勇人・加藤豊明

250MeV制動輻射による ^{141}Pr の光核破碎反応

1 緒 言

照射粒子のエネルギーが数百 MeV を越す領域では、標的核から多数個の粒子やクラスターが一時に放出され、標的核とは質量数が著しく異なる残留核が誘導される、いわゆる破碎型の核反応が起る。このような核反応の機構に関しては、直接カスケード粒子を放出する速い過程と、それに続く蒸発過程よりなる Two-step model が 1947 年に Serber¹⁾ によって提案されており、このモデルはその後、高エネルギー核反応の実験結果の解釈によく利用され、反応過程がこのようなモデルに従うものとした計算の結果²⁾ともよく一致している。しかしこの種の研究は主として陽子による核反応についてなされており、高エネルギー光核反応の過程については、未だ充分検討されていない。光量子のエネルギーが 200 MeV となるとその波長は 10^{-13} cm のオーダーとなり、反応の初段階においては、核を構成する個々の粒子との作用が重要な役割を示すようになると考えられるから、光核反応においても Two-step model が適用される 2 段階の過程で破碎反応が生じると思われる。Halpern ら³⁾ は 320 MeV 制動輻射で原子番号 30 付近の核の破碎反応を調べ、最近 Fulmer ら⁴⁾ はアルミニウムおよび鉄核を数 GeV の電子で衝撃して反応生成物を検討したが、まだ研究例は少なく、特に重核領域の挙動が明らかでない。そこで本研究では東北大核理研の 300 MeV 電子線型加速器を利用し、重核の ^{141}Pr を 250 MeV 制動輻射で照射し、その結果生じるセシウム、ヨウ素、テルルおよびアンチモン核種を、それぞれ化学分離し、半導体検出器と、多重波高分析器による γ 線スペクトロメトリーで収率分布を求め、これらの結果を Halpern ら³⁾、Fulmer ら⁴⁾ の中核における結果と比較した。

2 実 験

ターゲット試料としては酸化プラセオジウム (Pr_2O_3) あるいは硝酸プラセオジウム ($\text{Pr}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) を用い、これらの一定量 500~1000 mg をアルミニウム箔で包装した。これに金箔をビームモニターとして添付して、同時に照射した。照射は 250 MeV で平均 20 μA 程度の電子ビームを

^{132}Cs については独立収率が求められている。Runnallsら⁶ の取扱いに従えば、たとえば、照射終了後、時間 τ を経て分離したフラクションの ^{125}Cs の放射能強度と、 ^{132}Cs の放射能強度との比は、次のように表わされる。

$$\frac{A_{125\text{Cs}}}{A_{132\text{Cs}}} = \frac{\epsilon_{125\text{Cs}} \cdot \lambda_{125\text{Cs}} \{ \lambda_{125\text{Ba}} \cdot N_{125\text{Ba}}^0 [\exp(-\lambda_{125\text{Ba}} \cdot \tau) - \exp(-\lambda_{125\text{Cs}} \cdot \tau)] \}}{\epsilon_{132\text{Cs}} \cdot \lambda_{132\text{Cs}} \cdot N_{132\text{Cs}}^0 \cdot \exp(-\lambda_{132\text{Cs}} \cdot \tau')} \cdot \frac{(\lambda_{125\text{Cs}} - \lambda_{125\text{Ba}}) + N_{125\text{Cs}}^0 \cdot \exp(-\lambda_{125\text{Cs}} \cdot \tau) \exp[-\lambda_{125\text{Cs}}(\tau' - \tau)]}{(1)}$$

ただし、 ϵ : 検出効率 ; N^0 : 独立に反応で生じた原子数 ; τ' : 照射終了時より最初の r 線計測までの時間である。

(1) 式は次のように変形できる。

$$\frac{A_{125\text{Cs}} \cdot \exp(\lambda_{125\text{Cs}} \cdot \tau') / \epsilon_{125\text{Cs}}}{A_{132\text{Cs}} \cdot \exp(\lambda_{132\text{Cs}} \cdot \tau') / \epsilon_{132\text{Cs}}} = \frac{\lambda_{125\text{Cs}} \{ \lambda_{125\text{Ba}} \cdot N_{125\text{Ba}}^0 [\exp(-\lambda_{125\text{Ba}} \cdot \tau + \lambda_{125\text{Cs}} \cdot \tau) - 1] \}}{\lambda_{132\text{Cs}} \cdot N_{132\text{Cs}}^0} \cdot \frac{(\lambda_{125\text{Cs}} - \lambda_{125\text{Ba}}) + N_{125\text{Cs}}^0}{(2)}$$

N^0 のかわりに収率値 Y を用いるなら、 $\lambda N^* = YIMS$ であるから、(2) 式は次のようになる。

$$\frac{A_{125\text{Cs}} \cdot \exp(\lambda_{125\text{Cs}} \cdot \tau') / \epsilon_{125\text{Cs}} \cdot S_{125\text{Cs}}}{A_{132\text{Cs}} \cdot \exp(\lambda_{132\text{Cs}} \cdot \tau') / \epsilon_{132\text{Cs}} \cdot S_{132\text{Cs}}} = \frac{\lambda_{125\text{Cs}} \cdot Y_{125\text{Ba}} \cdot S_{125\text{Ba}} \{ \lambda_{125\text{Ba}} [\exp(-\lambda_{125\text{Ba}} \cdot \tau + \lambda_{125\text{Cs}} \cdot \tau) - 1] \}}{\lambda_{125\text{Ba}} \cdot Y_{132\text{Cs}} \cdot S_{125\text{Cs}}} + \frac{Y_{125\text{Cs}}}{Y_{132\text{Cs}}} \quad (3)$$

すなわち、 $X = \lambda_{125\text{Ba}} [\exp(-\lambda_{125\text{Ba}} \cdot \tau + \lambda_{125\text{Cs}} \cdot \tau) - 1] / (\lambda_{125\text{Cs}} - \lambda_{125\text{Ba}})$ と

$$Y = \frac{A_{125\text{Cs}} \cdot \exp(\lambda_{125\text{Cs}} \cdot \tau') / \epsilon_{125\text{Cs}} \cdot S_{125\text{Cs}}}{A_{132\text{Cs}} \cdot \exp(\lambda_{132\text{Cs}} \cdot \tau') / \epsilon_{132\text{Cs}} \cdot S_{132\text{Cs}}}$$

との間には直線関係が成立ち、縦軸の切片から、照射後の壊変の寄与が補正された相対収率値が得られる。

実験結果を図 2 に示した。X vs. Y はそれぞれよい直線関係となった。この結果から、たとえば照射後 10 分を経て分離するとすれば、収率値は見掛け上 ^{125}Cs で 8.8%、 ^{127}Cs で 8.5%、 ^{129}Cs で 2.0% 程度高く得られることになる。

この補正は、壊変の影響の考えられる目的核種すべてについて調べることが望ましいが、本実験

においては、セシウム核種についてのみ調べた。

3-2 収率分布曲線

得られた個々の収率値を標的核からの質量数差に対してプロットして収率の分布曲線としたのが図3である。図3によると、各核種の収率値は、セシウム、ヨウ素、テルル、アンチモン核種の順に、ほぼ指数関数的な減少を示している。また、各分布曲線の最大収率値に対応する質量数は、セシウム、ヨウ素、テルル、アンチモン核種について、それぞれ、およそ127.5, 122.1, 119.6 および116.7と読みとることができる。これらの値をむすぶ直線から $\Delta Z=1$ の差異は、2.7質量数差に相当することがわかる。他方、核エネルギー曲面の最確電荷 (Z_A) に対応する質量数 (A_S) は、次式⁷⁾によりそれぞれ131.4 ($Z_A=55$), 126.0 ($Z_A=53$), 123.3 ($Z_A=52$) および120.6 ($Z_A=51$) と求められる。

$$Z_A = \frac{0.585A^{2/3} + 73.18A}{2(0.585A^{2/3} + 72.4)} \quad (4)$$

両者を比較すると最大収率値を与える質量数は核エネルギー曲面よりもこれらの核の領域では、およそ4質量数単位中性子不足側にシフトしていることに相当している。

これを、より詳細に観察する目的で、個々の収率値に $(2.7)^{\Delta Z}$ を掛けた値を $(A-A_S)$ に対してプロットすると図4のようになり、ピーク値を与える $(A-A_S)$ 値として3.7質量数単位を得た。

Halpernら³⁾が、 Z が30付近の核について求めた結果は0.5質量数単位の移行であったことと比べると、本研究の重核での移行は著しい。これは、カスケード粒子放出後の蒸発過程において、重核領域の核では、クーロン障壁のために陽子放出が抑制され、中性子放出が主役となったためと考えれば理解できる。また本結果は対応するエネルギー領域の陽子反応の結果とよく類似している。分布曲線の形状、収率値の減少傾向、陽子反応の結果との類似性などを総合すると、250MeV制動輻射による¹⁴¹Prの核反応はTwo-step modelが適用できる破砕型の核反応であると

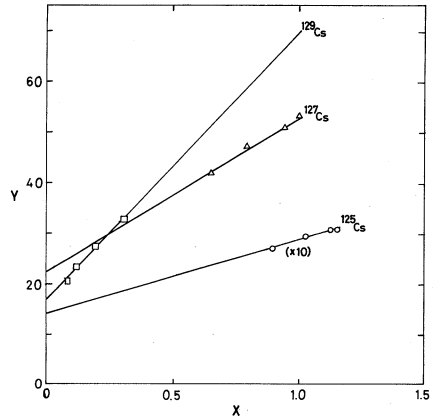


図2 X vs. Y

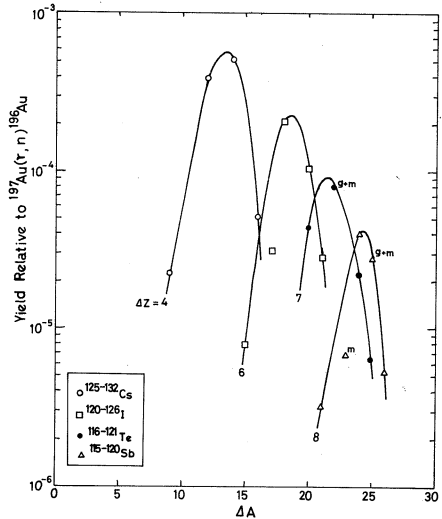


図3 250MeV制動輻射で照射された、¹⁴¹Prからのセシウム、ヨウ素、テルル、アンチモン核種の収率分布曲線

みることができる。

最後に、本研究を行なうに当りお世話いただいた核理研ライナックマシングループならびにRI実験室の諸氏に厚く御礼申し上げます。

文 献

- 1) R. Serber, Phys. Rev., **72**, 1114, (1947).
- 2) G. Rudstam, Z. Naturforschg., **21a**, 1027, (1966).
- 3) I. Halpern et al., Phys. Rev., **97**, 1325, (1955).
- 4) C. B. Fulmer, et al., Phys. Rev. C, **2**, 1371, (1970).
- 5) C. M. Lederer, J. M. Hollander and I. Perlman, "Table of Isotopes", 6th Ed; John Wiley & Sons, Inc., New York (1967).
- 6) N. G. Runnalls and D. E. Troutner, Phys. Rev. C, **1**, 316, (1970).
- 7) G. Friedlander, J. W. Kennedy and J. M. Miller, "Nuclear and Radiochemistry", 2nd Ed., John Wiley & Sons, Inc., New York (1964), p45.

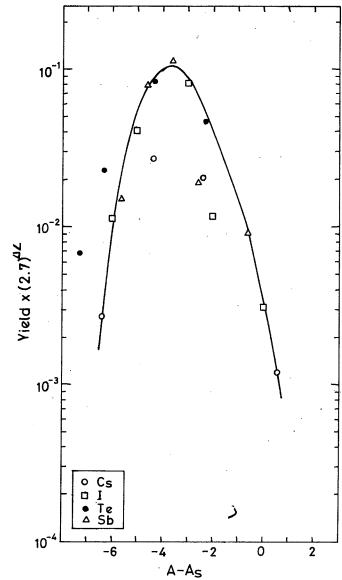


図4 収率値と Stable line からの質量数差との関係

III - 4 光量子放射化分析に関する研究

理学部化学 鈴木信男・横井武秋
柴田弘志I γ - γ 同時計数法による光量子放射化分析

1 緒 論

放射化分析にはこれまで熱中性子による (n, γ) 反応が最も多く利用されてきたが、光量子による放射化分析も種々の利点を有するものとして、諸元素の定量への利用の可能性が検討されている。分析には巨大共鳴吸収領域 (~ 30 MeV) の γ 線が用いられることが多いが、この巨大共鳴の現象は原子核によって特異的なものではないから一般に諸元素の (γ, n) 反応をもたらす結果となる。そこで、着目した元素の選択的定量法を得ることを目的として計測段階に γ - γ 同時計数法を用い、その有効性を基礎的に検討した。(γ, n) 反応の残留核には β^+ 壊変する核種が多く、その消滅放射が検出される。放射化分析において多種の β^+ 放出核が同時に生成するきらいはあるが、 β^+ 消滅放射は 180° の角度相関を示すので、試料に対して 180° 対称に配置した 2 個の検出器で同時計数する場合、角度相関を顕著に示さないカスケード γ 線を同時計数する場合に比べて非常に効率良く計数されるという利点がある。10 数種の元素について定量下限を求め、この点を確かめた。また、 β^+ 消滅放射を同時計数する場合、 β^+ 吸収体を用いて線源の近傍で β^+ を消滅させる必要がある。そこで、 β^+ 吸収体の同時計数率に及ぼす影響についても検討した。

2 実 験

2-1 照射用試料の調製

鉄、コバルト、ニッケル、銅、ジルコニウムは金属箔 (厚さ $0.1 \sim 0.2$ mm) を、ゲルマニウム、アンチモンは金属薄片を、ロジウムは金属粉末を、チタン、ヒ素、イットリウム、セリウム、ツリウムは酸化物 (それぞれ、 TiO_2 , As_2O_3 , Y_2O_3 , CeO_2 , Tm_2O_3) を数 10 mg \sim 100 mg 精秤し、石英管に封入した。線束強度監視の目的で石英管の外側に銅箔を試料の位置にまきつけ、同時に照射し、 ^{64}Cu の生成量を相互に比較した。

2-2 照射と測定

照射は東北大学原子核理学研究施設の電子線型加速器を利用し、30 MeV 電子ビームを厚さ 3mm の白金コンバータにより 30 MeV 制動輻射に変換して行なった。試料はコンバータ後方のホルダー内にビーム軸に並べて装着して照射した。照射時間はすべて 1 時間とした。

測定は図 1 に示したファスト、スロー組合せコインシデンス法により行なった。装置の分解時間はおおむね 50 nsec (2 τ) として行なった。試料は 2 個の 2" ϕ \times 2" NaI (Tl) クリスタルの中央に置き、クリスタル表面からの距離は 39mm に一定に保った。

3 定量下限の計算と結果

定量下限は従来様々な方法で示されてきたが、本研究では Currie¹ および Rogers² の取扱いに従った。その概略は以下のようである。

質量 m_Q の物質を測定した際に得られる平均の信号を L_Q 、その標準偏差を σ_Q とすると、 m_Q なる質量の物質は

$$L_Q = K_Q \sigma_Q \quad (1)$$

で示される K_Q の逆数を相対標準偏差として定量し得ることになる。放射化分析においては L_Q は一般にポアソン分布に従がう。しかし、ガンマ線スペクトルから光電ピーク面積を求め、これを信号として分析に利用する場合であれば、分散や標準偏差の表わし方はポアソン分布とは異なる。 A を光電ピーク面積とすると

$$A = \sum_{i=1}^N a_i - \frac{1}{2} N (a_1 + a_N) \quad (2)$$

$$\sigma^2(A) = A + \frac{1}{4} N(N-2)(a_1 + a_N) \quad (3)$$

が成り立つ。 N は光電ピーク下にあるチャンネル数、 a_i はチャンネル i の信号、 $\sigma^2(A)$ は分散である。(3) 式において $A = L_Q$ とした時の値が σ_Q^2 である。したがって

$$L_Q = \frac{K_Q^2}{2} \left\{ 1 + \left[1 + \frac{N(N-2)(a_1 + a_N)}{100} \right]^{1/2} \right\} \quad (4)$$

となる。いま相対標準偏差を 10% とすれば、 $K_Q = 0.1$ となり (4) 式は

$$L_Q = 50 \left\{ 1 + \left[1 + \frac{N(N-2)(a_1 + a_N)}{100} \right]^{1/2} \right\} \quad (4)$$

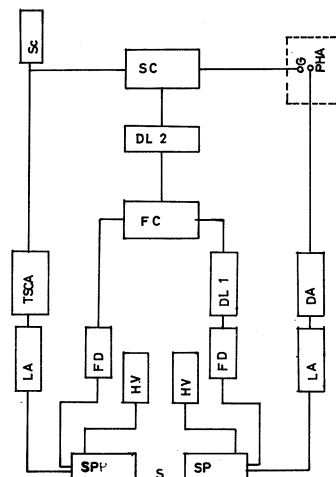


図1 ファスト・スロー組合せコ
インシデンス計数装置のプロ
ックダイアグラム

S: 試料

SP: シンチレーションプローブ、2" ϕ \times 2" NaI (Tl)

HV: 高圧電源

FD: ファストディスクリミネーター、150~1150mV 可変

DL1: ファストコインシデンス、10~110nsec 可変

DL2: ディレイライン、0~4 μ sec 可変

FC: ファストコインシデンス、10~110nsec 可変

SC: スローコインシデンス、1,2,4 μ sec

SC: スケーラー、LA: リニアアンプ

DA: ディレイアンプ G: ゲート

TSCA: タイミングシングルチャンネルアナライザー

PHA: 波高分析器 (200チャンネル)

となる。 L_Q は信号を表わしており、定量下限を求めるにはこれを物理量(質量) m_Q に換算しなければならない。この換算の際に照射条件、測定条件に対する補正をも合わせて行なって諸元素の定量下限を一定条件下で求める必要がある。この換算の係数を K とする。本研究では照射後の経過時間と測定時間に対する補正を行なった。試料 W gを一定時間照射し、照射後 d 時間経過してから Δt 時間測定したデータを求めた場合、これを照射終了時から $\Delta t'$ 時間測定した値に補正するには、

$$a'_i = a_i e^{\lambda d} (1 - e^{-\lambda \Delta t'}) / (1 - e^{-\lambda \Delta t})$$

の関係を利用する。このとき

$$L'_Q = 50 \left\{ 1 + \left[1 + \frac{CN(N-2)(a_1 + a_N)}{100} \right]^{1/2} \right\}$$

となる。ただし

$$C = e^{\lambda d} (1 - e^{-\lambda \Delta t'}) / (1 - e^{-\lambda \Delta t})$$

である。また、

$$K = AC/W$$

とおけば、

$$m'_Q = \frac{L'_Q}{K} = \frac{50W}{AC} \left\{ 1 + \left[1 + \frac{CN(N-2)(a_1 + a_N)}{100} \right]^{1/2} \right\} \quad (5)$$

となる。本研究では(5)式により定量下限を計算した。表1および表2には $\Delta t' = 10$ 時間とし

表1 β^+ 消滅放射を同時計数した場合の定量下限

| 元素 | 反応 | 生成核種 | 半減期 | 同時計数率 CPS/mg | 定量下限 mg |
|----|------------------|-------------------|--------|----------------------|----------------------|
| Ti | (γ, n) | ^{45}Ti | 3.09 h | 8.9×10^1 | 3.4×10^{-2} |
| Fe | ($\gamma, 2n$) | ^{52}Fe | 8.2 h | 8.5×10^{-2} | 2.1 |
| Co | (γ, n) | ^{58}Co | 71.3 d | 1.3 | 4.6×10^{-1} |
| Ni | (γ, n) | ^{57}Ni | 36 h | 3.0×10^1 | 6.1×10^{-2} |
| Cu | (γ, n) | ^{64}Cu | 12.8 h | 5.7×10^1 | 4.0×10^{-2} |
| Ge | (γ, n) | ^{69}Ge | 40 h | 2.4×10^1 | 7.2×10^{-2} |
| As | (γ, n) | ^{74}As | 17.9 d | 1.0×10^1 | 1.9×10^{-1} |
| Rb | (γ, n) | ^{84}Rb | 33 d | 3.4 | 2.4×10^{-1} |
| Zr | (γ, n) | ^{89}Zr | 78.4 h | 2.4×10^1 | 9.4×10^{-2} |
| Rh | (γ, n) | ^{102}Rh | 206 d | 5.2×10^{-1} | 8.5×10^{-1} |

表2 カスケード γ 線を同時計数した場合の定量下限

| 元素 | 反応 | 生成核種 | 半減期 | コインシデンス対, MeV | 同時計数率, cpm/mg | 定量下限, mg | | |
|----|---------------|-------------------|-------|-------------------|----------------------|----------------------|----------------------|-------------------|
| Co | (γ, n) | ^{58}Co | 71.3d | 0.511-0.81 | 3.3×10^{-2} | 8.7 | | |
| | | | | 0.81-0.511 | 3.4×10^{-2} | 4.0 | | |
| Ni | (γ, n) | ^{57}Ni | 36h | 0.511-1.37 | 5.5×10^{-1} | 1.9 | | |
| | | | | 1.37-0.511 | 4.5×10^{-1} | 7.2×10^{-1} | | |
| As | (γ, n) | ^{74}As | 17.9d | 0.596-0.511 | 1.2 | 7.0×10^{-1} | | |
| Rb | (γ, n) | ^{84}Rb | 33d | 0.511-0.88 | 6.7×10^{-2} | 4.4 | | |
| | | | | 0.88-0.511 | 3.2×10^{-2} | 3.3 | | |
| Ti | (γ, p) | ^{48}Sc | 18.3d | 1.31-0.983 | 8.9×10^{-2} | 1.7 | | |
| | | | | ^{46}Sc | 83.9d | 1.12-0.889 | 2.9×10^{-3} | 8.4 |
| | | | | | | 0.889-1.12 | 2.5×10^{-3} | 1.1×10^1 |
| Y | (γ, n) | ^{88}Y | 108d | 0.898-1.836 | 2.4×10^{-2} | 2.9 | | |
| | | | | 1.836-0.898 | 2.8×10^{-2} | 2.2 | | |
| Sb | (γ, n) | ^{120}Sb | 5.8d | 1.17-1.03 | 3.8×10^{-2} | 3.8 | | |
| | | | | ^{122}Sb | 2.8d | 0.686-0.564 | 1.6×10^{-1} | 2.2 |
| Ce | (γ, n) | ^{135}Ce | 17.2h | 0.901-0.265 | 6.2×10^{-3} | 1.1×10^1 | | |
| Tm | (γ, n) | ^{168}Tm | 85d | 0.831-0.185 | 4.0×10^{-1} | 1.7 | | |

た場合の値を示した。また、これらの値は照射時間1時間で、Cには線束強度に対する補正をも含めて計算した。図2には表示した値から縦軸に定量下限の逆数を取り、横軸に半減期をとって両対数グラフにプロットしたものを示した。

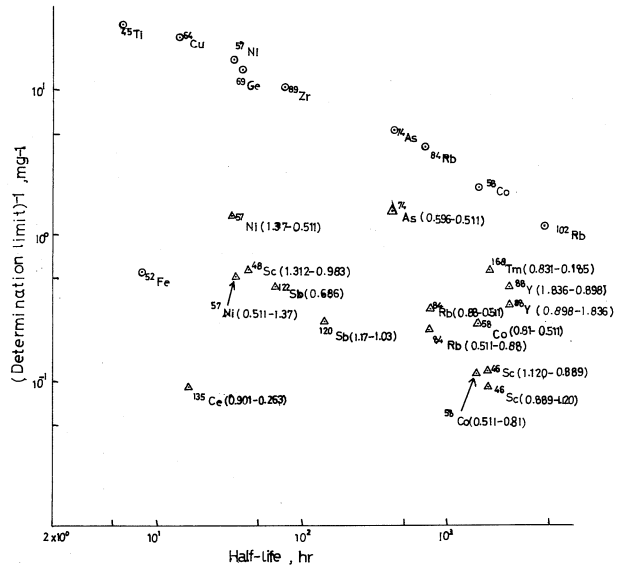


図2 定量下限と半減期の関係

○は β^+ 消滅放射 △はカスケード γ 線
 ()内は γ 線対(ゲート・シグナル)
 単位: MeV

4 結果の考察

表1に示した様に β^+ 消滅放射の同時計数法の定量下限は数 $10\mu\text{g}$ ~数 $100\mu\text{g}$ であり、表2に示したカスケード γ 線の同時計数法の定量下限が数 mg 程度であるのに比べてきわめて鋭敏であると言える。この様子は図2を見ればより明らかであって β^+ 消滅放射の中で ^{52}Fe だけがカスケード γ 線を測定する場合と同程度の鋭敏さしか示していないが、これは ^{52}Fe が $(\gamma, 2n)$ 反応の生成核種であるためであろう。したがって β^+ を放出する核種を他の角度相関を示さない共存核種から分別計測し得る。しかし、 β^+ 放出核種相互の妨害の除去には他の方法を考案する必要がある。照射エネルギーの選択や、壊変曲線の解析による方法で解決できない場合、 β^+ のエネルギー差を利用することが考えられるが、この点については後に5でも考察した。複雑な系の実験分析にあたっては化学分離を併用する必要がある場合も多いと考えられる。

5 β^+ 消滅放射の同時計数率に及ぼす吸収体の影響

5-1 実験

異なるエネルギーの β^+ を放出する5核種と3種類の β^+ 吸収体を用いて、吸収体の種類や厚さが同時計数率値に及ぼす影響を調べた。

利用した β^+ 放出核種は次のものである。

| 核種種 | 半減期 | β^+ 最大エネルギー |
|------------------|-------|--------------------------------|
| ^{68}Ga | 68.3m | 1.88MeV |
| ^{69}Ge | 40h | 1.22(95%), 0.62(5%) |
| ^{89}Zr | 78.4h | 0.90 |
| ^{57}Ni | 36h | 0.85(87%), 0.72(11%), 0.35(2%) |
| ^{22}Na | 2.6y | 0.545 |

これらのうち ^{68}Ga 、 ^{69}Ge 、 ^{89}Zr および ^{57}Ni は30MeV制動放射による照射で (γ, n) 反応で製造した。また、 ^{22}Na はThe Radiochemical Centre (Amersham England)製の標準線源を利用した。本実験の目的から試料内部において β^+ の吸収があることは好ましくない。したがって、試料はできるだけ薄いものを用いたが、以下に示す面積密度を有する。すなわち、 ^{68}Ga 試料： $30\text{mg}/\text{cm}^2$ 、 ^{69}Ge 試料： $200\text{mg}/\text{cm}^2$ 、 ^{89}Zr 試料： $60\text{mg}/\text{cm}^2$ 、 ^{57}Ni 試料： $60\text{mg}/\text{cm}^2$ および ^{22}Na 試料： $50\text{mg}/\text{cm}^2$ である。

β^+ 吸収体はアルミニウム(密度 $2.7\text{g}/\text{cm}^3$)、ルサイト(ポリアクリル樹脂)($1.20\text{g}/\text{cm}^3$)およびポリ塩化ビニル($1.41\text{g}/\text{cm}^3$)の3種を用いた。

測定は試料を2枚(ほぼ同じ厚さ)の β^+ 吸収体(円板)ではさみ、吸収体の面と検出器のクリスタルの面とが平行になり、かつ、2個の検出器に対して試料が180度対称の位置にくるように配

置して行なった。その他の測定条件は2-2に記したと全く同じである。

5-2 結果

図3はアルミニウム吸収体の厚さにより β^+ 消滅放射の同時計数率の変化する様子を、遮蔽体のない場合の値に対する相対的計数率を縦軸にとって表わしたものである。図4は図3の各曲線のピ

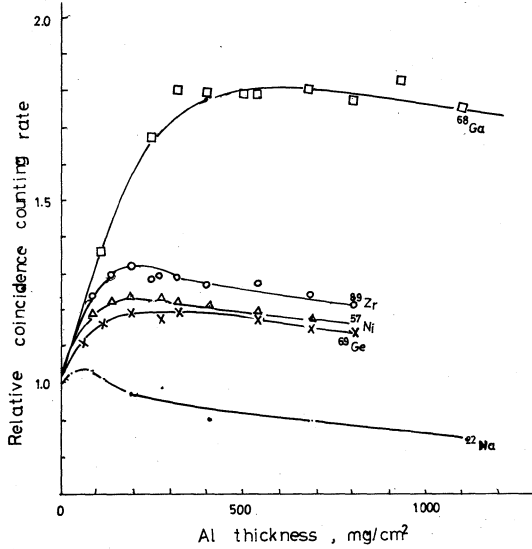


図3 アルミニウム板の厚さと同時計数率との関係

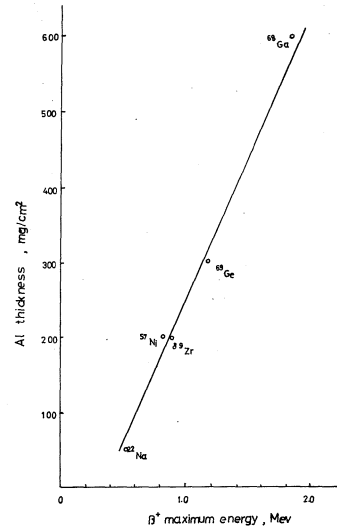


図4 最大の同時計数率を与えるアルミニウム吸収板の厚さと β^+ の最大エネルギーとの関係

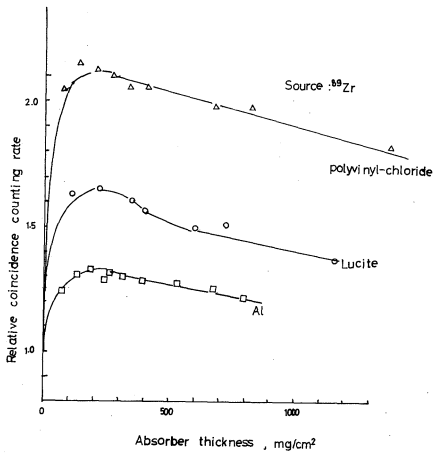


図5 β^+ 吸収体の種類と同時計数率との関係 (I)

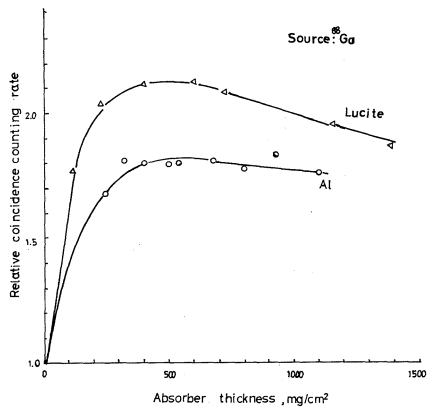


図6 β^+ 吸収体の種類と同時計数率との関係 (II)

ークを与える吸収体の厚さを読みとり、 β^+ の最大エネルギーとの関係を表わしたものである。また図5は ^{89}Zr について β^+ 吸収体の種類による同時計数率の変化を調べたものであり、図6は同様の变化を ^{68}Ga について求めたものである。

5-3 結果の考察

図5に見られるように β^+ の最大エネルギーによりピークの高さ、位置ともに変化しているが、ピークを与える厚さを正確に知るには試料の自己吸収に対する補正を必要とする。この補正は困難であるので、以後においては補正を施さない値で考察する。図4によれば、ピークの位置(mg/cm^2)と β^+ の最大エネルギーの間にはかなり良い直線関係が認められる。これは β^- 線の最大飛程と最大エネルギーとの関係³に類似している。この関係を利用すれば β^+ の最大エネルギーを知ることにより、最適の厚さを予測できる。図5および図6をみると β^+ 吸収体の種類は同時計数率にかなり大きな影響を与えることがわかる。この原因は β^+ 消滅放射の角度相関分布が変化することによると推定している。 β^+ 消滅放射の同時計数法で目的元素を定量しようとするとき、共存する β^+ 放出核種から分別計測する一方法に β^+ の最大エネルギーの差が利用できると考えられる。例えば、0.5 MeVの β^+ を放出する核種と2 MeVの β^+ を放出する核種が共存するとき、50 mg/cm^2 程度のアルミニウムで試料を遮蔽しその外側をさらに500 mg/cm^2 程度のポリ塩化ビニルで遮蔽すれば、0.5 MeVの β^+ はほとんどアルミニウム中で消滅し、一方、2 MeVの β^+ の多くはポリ塩化ビニル中で消滅するので、図5に示した関係からみて2 MeVの β^+ の方がより効率よく検出される。この方法は、さらに顕著な差をもたらす種類の吸収体を選択すればより効果的となるはずであり、半減期が相互に類似した β^+ 放出体の分別計測に利用できると考えられる。

参 考 文 献

- 1) L. A. Currie, *Anal. Chem.*, 40, 586 (1968).
- 2) V. C. Rogers, *Anal. Chem.*, 42, 807 (1970).
- 3) L. E. Glendenin, *Nucleonics*, 2[1], 12 (1948).
- 4) A. T. Stewart, L. O. Roellig, "Positron Annihilation", Academic Press, New York and London (1967).

II フッ素の光量子放射化分析

1 緒言

フッ素は、地球化学的には、岩石圏、水圏に広く分布し、大気圏にも微量ながら存在するとされている元素である。また、生物体における分布は、生物学あるいは医学的な立場からも重要な研究対象となっている。最近では大気汚染その他公害に関連して、環境試料中のフッ素の濃度が問題となっている。以上のような分野の研究においては、微量のフッ素が対象となるため、一般に、非常に鋭敏な放射化分析の適用が望まれる場合が多い。

フッ素の放射化分析には種々の核反応が利用されている。表1にそれらを示した。これらの反応で生じる放射性核種のうち、 ^{18}F は適当に長い半減期を有し、 β^+ の消滅放射 γ 線により検出も容

表1 フッ素の放射化分析に利用される核反応

| 核 反 応 | 半 減 期 | γ 線エネルギー, MeV |
|---|----------|----------------------|
| $^{19}\text{F}(n, 2n)^{18}\text{F}$ | 109.8min | 0.511(β^+) |
| $^{19}\text{F}(n, p)^{19}\text{O}$ | 29sec | 0.197 |
| $^{19}\text{F}(n, \alpha)^{16}\text{N}$ | 7.2 sec | 6.13, 7.12 |
| $^{19}\text{F}(n, \gamma)^{20}\text{F}$ | 114sec | 1.63 |
| $^{19}\text{F}(^3\text{He}, 2p)^{20}\text{F}$ | 114sec | 1.63 |
| $^{19}\text{F}(^3\text{He}, \alpha)^{18}\text{F}$ | 109.8min | 0.511(β^+) |
| $^{19}\text{F}(\alpha, \alpha n)^{18}\text{F}$ | 109.8min | 0.511(β^+) |
| $^{19}\text{F}(\gamma, n)^{18}\text{F}$ | 109.8min | 0.511(β^+) |

易で便利である。(n, 2n)反応による場合は、一般にT-D中性子源からの14MeV中性子が照射粒子として使われるが、その定量感度はトリチウムターゲットの量に依存するための制限を受ける。

荷電粒子による核反応を利用して ^{18}F を生じるが、一般に本法の難点といわれる発熱、自己遮蔽の影響が著しく、また、妨害反応の競合が避けられないなどの問題がある。

光核反応による放射化分析においては、 γ 線の透過力が大きく、比較的厚い試料も均一に放射化でき、また、 γ 線のエネルギーを選択することにより、副反応に基づく誘導放射能を減らすことができる等の利点が挙げられる。電子の制動輻射で生じる制動輻射 γ 線を照射 γ 線源とするならば、大規模な電子加速器を利用することにより、分析の鋭敏度を上げることができ、微量フッ素の定量に極めて有利と考えられる。

一般に、複雑な試料に含まれる目的元素を非破壊分析しようとする強いバックグラウンドの影響を受け、目的核種の分別計測が困難となるが、本研究においては、正確で妨害の少ない微量フッ素の

定量法を得る目的で $^{19}\text{F}(\gamma, n)^{18}\text{F}$ 反応を用い、 ^{18}F からの β^+ の消滅放射の 0.511MeV γ 線を 180° 対称の2個の検出器で同時計数する方法で定量することを試みた。この方法は、共存核種の放射能より分別して選択的に計測できることは勿論、他の同時計数法と比較しても特異的に鋭敏であるので、同時計数することによる感度の低下も少なく済み、有利である。

2 実 験

2-1 試料

検量線を作成する目的で種々の量のフッ素を含む試料を調製した。フッ素を含む化合物としては市販の酸性フッ化カリウムを水溶液から再結晶して精製したものを用いた。すなわち、フッ素の量が $0.5 \sim 50\text{mg}$ の間の種々の量を採取し、それぞれをホウ酸と均一に混合し、IR測定試料調製用の錠剤成型器で、直径 12mm 、厚さ約 0.5mm のペレットにして照射し、そのフッ素量と生成した ^{18}F の放射能強度との関係を求めた。また、約 2mg のフッ素を含むペレット状試料5個を同時に照射して、それらの比放射能のばらつきから、この定量法における精度を検討した。

本法を多量の金属元素および有機物が共存する試料に適用した場合の正確度を検討する目的で、種々の金属-TTA錯体を合成して放射化し、フッ素含量を求めてみた。金属としては、マンガ、鉄、コバルト、ニッケルおよび、亜鉛を選び、Berg¹ の報告に従って錯体を合成した。この方法で合成された錯体の組成は、表3に示された化学形のものと同様と確かめられている。

2-2 照射と測定

試料の照射は 30MeV 電子ビームを厚さ 3mm の白金コンバーターを通し、未変換の電子は電磁石で除いた制動輻射で1時間行なった。試料はコンバーター後方約 1m の位置に置いて照射した。個々の試料には同一直径の銅板をモニターとして添付し、 $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$ 反応による ^{64}Cu の生成量によって γ 線量の差異を校正した。放射能強度の測定には、前出I、図1にダイアグラムを示したような同時計数測定装置を用い、試料は 180° 対称に位置した2個の $2\phi \times 2\text{NaI(Tl)}$ クリスタルの中央の距離 3.9cm の位置に固定して、 0.511MeV γ 線の同時計数測定を行なった。

3 結果および考察

得られた検量線は図1の通りであって、かなり良好な直線関係となった。フッ素量の少ない範囲では、実測値はやや直線から外れて、低く得られる傾向を示しているが、 0.5mg から 50mg までの全濃度範囲で $[^{18}\text{F}(\text{cpm})]/[\text{F}(\text{mg})] = (9.39 \pm 0.91) \times 10^2$ で表わされ、とくに、フッ素 10mg 以上の領域での直線性はよく、

$$[^{18}\text{F}(\text{cpm})]/[\text{F}(\text{mg})] = (10.2 \pm 0.24) \times 10^2 \text{ で表わされた。}$$

同一組成の試料について繰り返し実験を行なった場合の精度は表2に示した通りであり、本実験

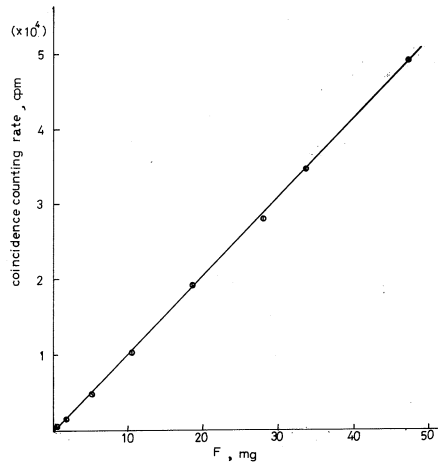


図1 検量線

表2 比放射能の再現性

| 試料番号 | フッ素重量, mg | 計数率, cpm | 比放射能, cpm/mg |
|------|-----------|--------------------|----------------------------|
| 1 | 1.96 | 1.80×10^3 | 9.18×10^2 |
| 2 | 1.94 | 1.81×10^3 | 9.33×10^2 |
| 3 | 1.94 | 1.74×10^3 | 8.97×10^2 |
| 4 | 1.93 | 1.59×10^3 | 8.24×10^2 |
| 5 | 1.89 | 1.59×10^3 | 8.41×10^2 |
| | | 平均 | 883×10^2 |
| | | 標準偏差 | 4.28×10^1 (4.85%) |

における ^{18}F の放射能強度のばらつきは、この実験では 5% 以内になることが確かめられた。

金属-TTA錯体内のフッ素含量を本法で求めた結果を表3に示した。錯体の組成から計算によって求められるフッ素量と、光量子放射化分析の結果とを比較すると、5.6%以内の正確さで定量されることが確かめられた。本研究に用いた試料のように有機物や重金属が共存しても、本法により正確に定量結果が得られると期待できる。

共存元素の妨害については、一般に諸元素の光核反応の結果、 β^+ 放出体を生じる場合が多いが、 $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ ($T_{1/2}=20.3\text{min}$) の生成による妨害は、減衰曲線の解析により除かれる。このことはTTA錯体の分析において確かめた。また、ハロゲン元素のうち多量の塩素が共存し、 $^{35}\text{Cl}(\gamma, n)^{34\text{m}}\text{Cl}$ ($T_{1/2}=32.0\text{min}$) が生じる場合は、 $0.511\text{MeV}-2.14\text{MeV}$ γ 線の同時計数法により $^{34\text{m}}\text{Cl}$ の量を求めて、その寄与を差し引けば解決できる。したがって、本研究のフッ素

表 3 金属 TTA 錯体中のフッ素の定量結果

| 試料 | フッ素量 | | | |
|--|-----------|---------|---------|---------|
| | 試料の重量, mg | 計算値, mg | 定量値, mg | 相対誤差, % |
| HTTA | 179.9 | 46.2 | 48.9 | +5.52 |
| Mn(TTA) ₂ | 182.1 | 41.6 | 42.4 | +18.9 |
| | 176.8 | 40.4 | 41.4 | +2.42 |
| Ni(TTA) ₂ · 2H ₂ O | 186.3 | 39.4 | 38.2 | -3.14 |
| | 187.2 | 39.6 | 39.6 | 0.00 |
| Co(TTA) ₂ · 2H ₂ O | 160.8 | 34.0 | 35.9 | +5.29 |
| | 169.7 | 35.9 | 36.9 | +2.71 |
| Fe(TTA) ₃ | 181.6 | 43.0 | 44.8 | +4.02 |
| | 164.3 | 38.9 | 39.2 | +0.77 |
| Zn(TTA) ₂ | 187.3 | 41.9 | 41.6 | -0.72 |
| | 143.4 | 32.1 | 31.3 | -2.56 |

HTTA; 2-Thenoyl trifluoroacetone

の光量子放射化分析法は正確で妨害の少ない定量法として、いろいろな試料の分析に適用されると考えられる。

最後に、照射に関してお世話いただいた核理研ライナック machine group および RI 実験室の方々に感謝致します。

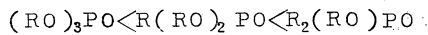
文 献

- 1) E. W. Berg, J. Phys. Chem., 64, 480(1960).

III - 5 ウラニルキレートとのTPPOとの付加錯体生成

選研・工学部原子核* 秋葉健一・和田幹雄*
菅野卓治

ウラニルのβ-ジケトキレートは多くの lone pair をもつ中性配位子と付加錯体を生成する。特に、有機りん酸エステル類との付加錯体は、一般に次の順序で P=O 基の電子密度が増すため、生成定数は増大する。



tributylphosphine oxide (TBPO) や trioctyl phosphine oxide (TOPO) は金属キレートと非常に安定な付加錯体を作るが、これらの phosphine oxide 類は配位能が強いため、キレート試薬との相互作用や、キレートの結合状態の変化等の副反応を伴うことがある。ここでは、副反応をさけるため、phosphine oxide のうちでも比較的配位能が弱いと考えられる triphenylphosphine oxide (TPPO) を選んで、ウラニルの thenoyltrifluoroacetone (TTA) キレートとの付加錯体生成についてしらべる。

方 法

LINAC 照射によって $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$ 反応で生成した ^{237}U をトレーサーとする二相間分配法を用いた。

前報¹⁾と同様な操作で得た $^{237}\text{UO}_2^{2+}$ を含む (H, Na)ClO₄ 水溶液 ($\mu=0.1$) を TTA および TPPO を含む有機溶液と 25°C の恒温室中で 20 時間ふり混ぜて平衡させた後、両相の γ -放射能を測定して分配比を求めた。

結 果

ウラニル-TTA キレート (UO_2A_2) の付加錯体生成は、



S は TPPO を、 K_S は付加錯体生成定数を示す。

TTA (HA) および TPPO (S) を含む有機溶液と水相間のウランの分配比 ($D_{M,S}$)

$$D_{M,S} = \frac{P_M \beta_2 [A^-]^2 \{1 + \sum K_S [S]^m\}}{1 + \sum \beta_n [A^-]^n} \quad (2)$$

β_n は水相でのキレート剤の安定度定数, P_M は中性のキレート UO_2A_2 の二相間分配係数である。

S を含まない TTA 溶液との分配比を D_M とすると,

$$D_{M,S} / D_M = 1 + \sum K_S [S]^m \quad (3)$$

付加錯体生成定数は (3) 式にもとづく curve fitting 法により求めることができる。

ウラニル濃度の影響

TTA による抽出に際して, 有機相のキレート剤濃度の増大につれ分配比の減少することが, いくつかの溶媒で認められている¹⁾。TPPO が共存する場合には, Fig. 1 に示す様に, $[S]_{equili}$

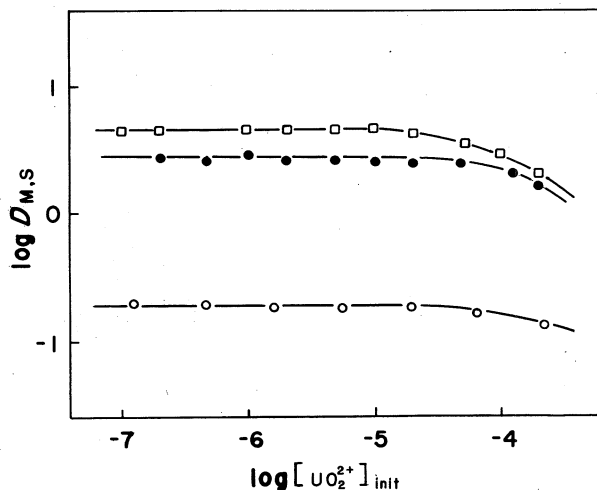


Fig. 1. The effect of uranyl concentrations on distribution ratios.

$[S]=10^{-4}$ M; pH=2.09; \square , carbon tetrachloride, $[HA]=10^{-2}$ M;
 \bullet , benzene, $[HA]=10^{-2}$ M; \circ , *n*-hexane, $[HA]=2 \times 10^{-3}$ M.

$\div [S]_{init}$ とみなされるウラニルの低濃度領域では, $D_{M,S}$ は濃度に無関係に一定値を示すが, 濃度の増大につれ遊離の TPPO 濃度の減少をきたすので, 見かけ上分配比も減少する。以後の実験は, $[S]$ の大過剰下で行い, $[S]_{equili} \div [S]_{init}$ とみなした。TPPO の溶解度等の制約から, 一部この条件を満たさぬ場合には, 付加錯体生成に伴う TPPO 濃度の減少を補正した。

付加錯体

TPPO が共存する場合の有機相の species を確めるため, $\log D_M$ vs pA をみると Fig. 2 に示す様に, 勾配 -2 の直線で表わされる。TTA 濃度を変えても, pH を変えても同一の勾配をもつことから, (1) 式で示した UO_2A_2 に S が付加した形とみなしてよい。次に, TPPO の寄与を知るため $\log D_{M,S} / D_M$ vs $\log [S]$ を見ると, Fig. 3 に示す様に, 最大勾配 1 の曲線となることから, 1 : 1 付加錯体 $UO_2A_2 \cdot S$ が生成している。

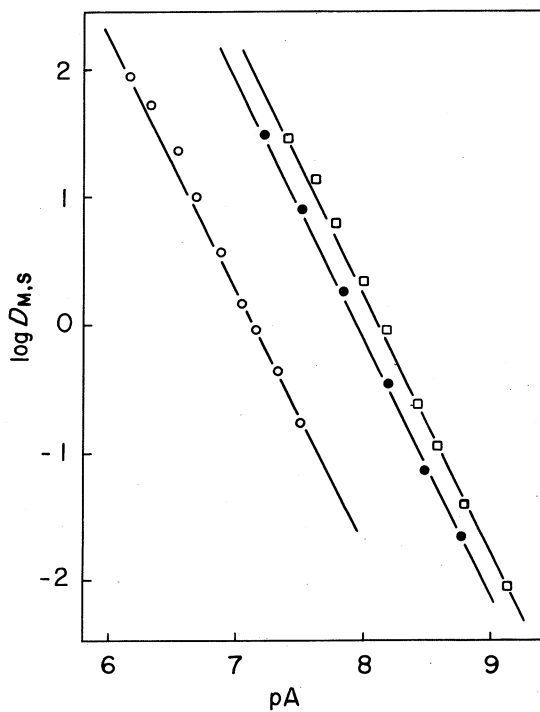


Fig. 2. Distribution ratios of uranyl complexes as a function of pA.

□, carbon tetrachloride, $[HA]=2 \times 10^{-3}M$, $[S]=10^{-3}M$;
 ●, benzene, $pH=2.10$, $[S]=10^{-4}M$; ○, *n*-hexane, $[HA]=10^{-3}M$
 $[S]=10^{-4}M$.

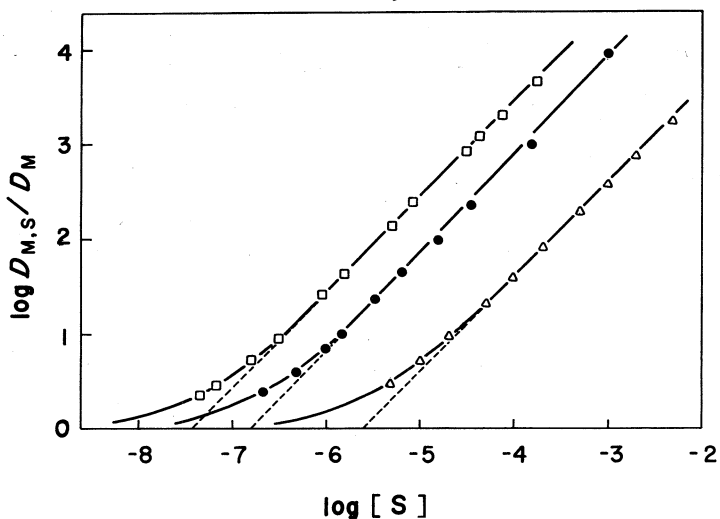


Fig. 3. Variation of distribution ratios as a function of TPPO concentrations.

$[HA]=10^{-2}M$; $pH=2.10$; □, carbon tetrachloride; ●, benzene;
 △, chloroform.

TBPOやTOPOの場合は1:1の他に1:3付加錯体も生成するのに対して²⁾, TPPOは1:1錯体のみ生成することは興味深い。

生成定数

各溶媒中で求めた付加錯体生成定数をTable 1に示す。これらを用いる溶媒によって大きく異なるが, $\log K_S$ の序列は tributyl phosphate (TBP)との付加錯体 ($UO_2A_2 \cdot TBP$)の場合に極めて類似している³⁾。ちなみに, 両錯体の生成定数を比較すると, Fig. 4に示す様に, 大部分の溶媒で勾配1の直線に近い値を示す。

$\log K_S (UO_2A_2 \cdot TBP)$ の規則性についてはすでに明らかにしてきたが³⁾, 両錯体の生成定数間に比例性が成り立つことは, TPPO付加錯体についても, TBP付加錯体の場合に類似した溶媒の効果が作用していることを示唆している。ここでは,

TPPOや付加錯体のモル容積や溶解度パラ

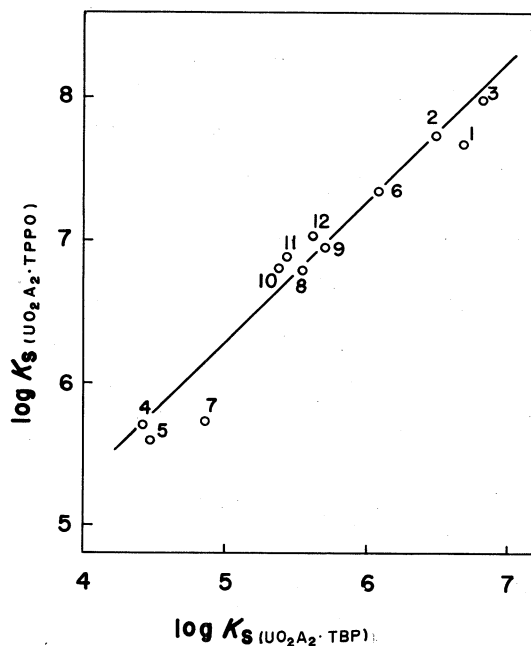


Fig. 4. Relation between the formation constants of $UO_2A_2 \cdot TPPO$ and those of $UO_2A_2 \cdot TBP$.

The numbers in Fig. 4 refer to those in Table 1.

Table 1. Adduct formation constants of uranyl thenoyltrifluoroacetate with triphenylphosphine oxide at 25°C.

| No. | Solvent | $\log K_S$ |
|-----|---------------------------|------------|
| 1 | <i>n</i> -Hexane | 7.67 |
| 2 | <i>n</i> -Heptane | 7.73 |
| 3 | Cyclohexane | 7.97 |
| 4 | Methylene chloride | 5.71 |
| 5 | Chloroform | 5.60 |
| 6 | Carbon tetrachloride | 7.33 |
| 7 | Bromoform | 5.73 |
| 8 | Benzene | 6.79 |
| 9 | Toluene | 6.96 |
| 10 | Isopropylbenzene | 6.81 |
| 11 | Chlorobenzene | 6.89 |
| 12 | <i>o</i> -Dichlorobenzene | 7.04 |

メーター等が未知なので、子細な検討は出来ないが、Fig. 4 に見られる生成定数の比例性は、溶媒の選択や生成定数の予測に有効な尺度を与えると考えられる。

文 献

- 1) K. Akiba, N. Suzuki, H. Asano and T. Kanno, *J. Radioanal. Chem.*, **7**, 203(1971).
- 2) H. Irving and D. N. Edgington, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **15**, 158 (1960).
- 3) K. Akiba and N. Suzuki, *Bull. Chem. Soc. Japan*, **44**, 1043(1971).

III - 6 気送管を用いた短寿命核の研究

工学部原子核 板垣新治郎・武田 靖
松野 秀男・千田 祝
古田島久哉

一般報告

今期は主として気送管設備の修理及び調整を行なったのでその点についての報告をいたします。先ずオフ・ビームでの動作試験では、気送管パイプの変形、及び異物に依るカプセルのパイプ内閉塞が起りました。そこで、変形部は新品と交換し、又閉塞部はその部分で気送管パイプを一時切断しカプセルを取出しました。これらは気送管設備の機械的な修理に属する事柄と考えられます。

次の段階では主として電気回路系の修理、調整を行ないました。その主なるものはカプセル通過を感知する機械的スイッチの可動探知片がプラスチック状のものであったため、長期にわたる放射線損傷の結果疲労して居り、簡単に破損してしまいました。以後、磷青銅の薄片を使用した手製の探知片におきかえ、現在に至っております。

以上の2段階を経ていよいよオン・ビームの実験をいたしました。加速電子のエネルギーは30 MeVで、ビームダクトの終端からコンバーター迄の約2 mの間は電子ビームは空気中を通しました。又、使用したコンバーターは直径5 cmのタンタル製で、気送管の照射部と直列に配管を施し水冷してあります。最初は、電子のスリーブマグネットを使用せずに、照射中のカプセルに対する熱除去の試験を行ないました。先ず1分間の照射を行なって特に問題になる点が無いと判断されたので、照射時間を順次に延長して行き、20分間照射の試験を行ないましたが、照射中も気送管中に送り込まれる空気による冷却効果のためか異常な温度上昇は認められませんでした。カプセルを照射位置から移送して取出すのに約2.5秒を要しますが、照射直後にカプセル表面を手で触れてみてその温度を推定した処では、照射中のカプセルの表面温度が60°Cを越える事は、30 MeVでの照射の場合先ず無いであろうと判断されました。この時点でカプセルのストッパーを上下するソレノイドが、放射線(電子ビーム)により焼損いたしました。これは上記のソレノイドの取付位置があまりにもビームセンターに近いためと思われましたので、取付位置を旧位置よりビームセンターに対して45 cm離す工事を行ないました。又、焼損したソレノイドは交換部品が入手困難の為、巻直して製作いたしました。スペース等の関係から旧ソレノイドの巻数6340回に対して新ソレノイドは5700回しか巻いてありません。しかし、このソレノイドはパルス的にしか動作させない

ものであるため、特に問題点は無いと思われます。実際動作試験を繰返した処では順調に働いております。その他機械的に細かい修理調整をいたしました。あまり重要で無いと考えられますので、省略させていただきます。次の機会には、適当なモニターを使用して気送管の照射位置での実際のビームの強さ及び拡がりの測定をする事から実験研究を始めたいと思っております。

謝 辞

気送管設備の修理、整備に際し細部に亘り御指導を賜った理学部原子核理学研究施設の八木助教授、近藤助手、武藤技官に心から感謝いたします。

III - 7 放射線化学反応における線量率効果 (I)

非水研 安川民男・中西啓真
田村三郎・高橋 太

放射線化学反応において全線量が同じでも、線量率が異なった場合、生成物の種類、生成量が異なることが注目されるようになってきた。これは放射線照射によりできる一次活性種の空間分布が異なるため、単分子的に反応がすすむ場合以外では、活性化、失活化あるいは拡散の効果が、放射線による一次活性種生成と競争的にはたらくためと考えられる。我々はこれまでいくつかの高分子へのグラフト反応についての実験を行ってきたがその過程で、活性点の性質および量が線量率により著しく異なることを認めた。これは高分子では拡散が極めておそいことに原因があると考えられる。本報告ではポリエチレンに γ 線および電子線を照射した場合についてその線量率効果を検討したい。

実験に使用したポリエチレン(PE)はハイゼックス1200p(結晶化度65%, 200メッシュ)である。

液体窒素温度、真空中で照射した場合ESRに6重線がみられ、一次活性種はアルキルラジカル $-\text{CH}_2\dot{\text{C}}\text{HCH}_2-$ である。アルキルラジカルはガラス転移温度以上では橋かけ反応またはアリルラジカルへの転換により消滅していく。

空气中で照射した場合にはアルキルラジカルの一部(非晶部あるいは結晶表面近くにあったもの)は酸素と結合しパーオキシラジカルとなる。図1に空気共存下、ドライアイス温度で電子線3Mrad照射したもののESRスペクトルを示す。線量率は0.1Mrad/sec程度である。非対称2重線を示すパーオキシラジカルと6重線を示すアルキルラジカルを別々に定量することが可能であり、標準試料との比較からその絶体量を決定した。図2に電子線照射PEでの20°C真空中のアルキルおよび

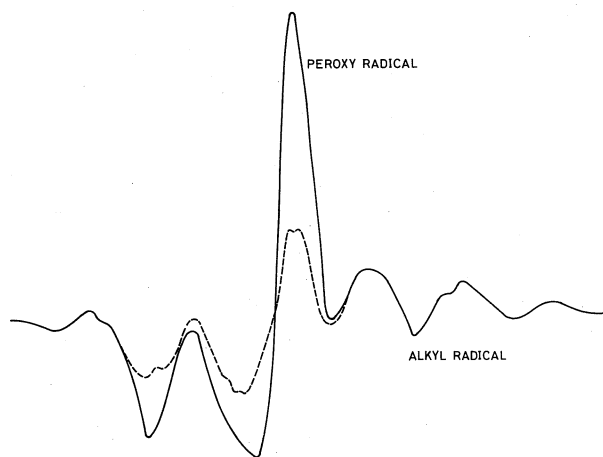


図1 空气中ドライアイス温度で電子線照射したポリエチレンのESRスペクトル(点線, アルキルラジカル)(測定温度 -196°C)

びパーオキシラジカルの消滅速度を示す。20°Cでパーオキシラジカルはかなりすみやかに減衰するが、これは一次的に隣接するPEから水素を引抜きハイドロパーオキシドとなると考えられ、後者は徐々に分解してアルデヒド・ケトンなどになるとされている。¹ アルキルおよびパーオキシラジカルの量は本実験の条件下では 10^{-6} スピン/g, PE程度であり、生成G値は1程度で通常の放射線化学反応により生成したことを示している。

電子線照射の場合と異なり γ 線照射(ドライアイス温度照射, 線量率 1.4×10^5 r/hr, 全線量 3M rad)ではESRシグナルは極めて弱く正確な定量は困難であった。

図3に3M rad照射したPEの赤外スペクトルを示す。(a)は比較のための未照射PE, (b)空気存在下で電子線, (c)同 $\cdot\gamma$ 線, を照射したものである。電子線を照射したものは、未照射試料と事実上差がないのに対し、 γ 線照射PEでは1085および 1170 cm^{-1} に強い吸収が現われ、その他、800, 520, 460および1800, 3400 cm^{-1} 付近に弱い吸収がみられる。 $1000\sim 1200\text{ cm}^{-1}$ の強い吸収はハイドロパーオキシ基によると考えられるが、この強さからみてかなり大量のハイドロパーオキシ基が生成していることになる。電子線照射の場合これらの吸収が事実上認められないのは、生成パーオキシカルの量が 10^{-6} スピン/g・PEであったことからみても当然といえる。したがって γ 線照射の場合、生成した一次ラジカルをもととした連鎖反応(2)-(3)により多量のハイドロパーオキシ基が

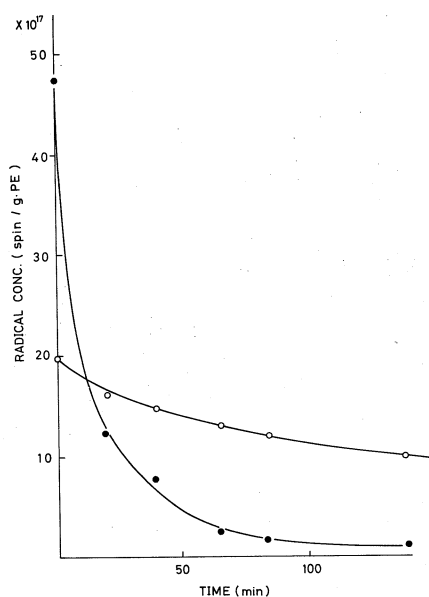
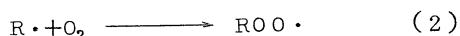
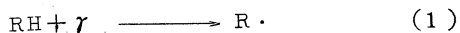


図2 空气中ドライアイス温度で3M rad電子線照射したポリエチレンの、真空20°Cでのアルキル(—○—)およびパーオキシ(—●—)ラジカルの減衰

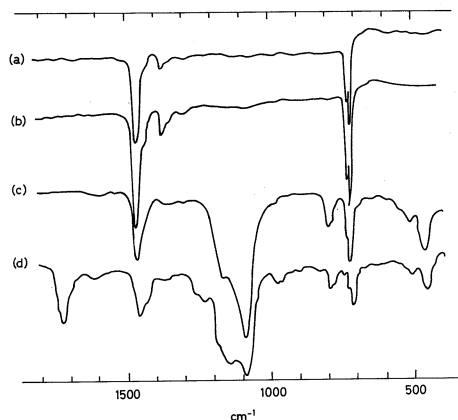


図3 未照射および照射ポリエチレンの赤外線吸収スペクトル(透過率)
a)未照射, b)電子線3M rad照射(線量率, 0.1 M rad/sec)
c) γ 線3M rad照射(線量率 1.4×10^5 r/hr)
d) c)の試料と窒素気中20°Cで1hrメタクリル酸メチルを作用させた後抽出, 分離したものを。

生成したと考えられる。 γ 線照射の場合、生成一次ラジカル濃度が低いため、それらの再結合による架橋反応の確率は低く、また長時間にわたる照射であるため酸素分子が充分供給され連鎖長が長くなるのであろう。

電子線照射後室温で空气中30日放置した試料、および電子線30M red照射した試料でも $1000\sim 1200\text{ cm}^{-1}$ のピークは現われなかった。無定形部に生成したアルキルラジカルはガラス転移温度以上では分子鎖の運動が容易なため再結合などにより速かに消滅する。室温で長時間残存するラジカルは結晶内部にトラップされているもののみであり、この部分には酸素分子の拡散が困難なため(2)~(3)の連鎖反応が有効に行なわれないのであろう。

図3(a)に γ 線照射したPEに 20°C 窒素気中でメタクリル酸メチルをグラフト重合させたものの赤外スペクトルを示す。この条件ではヒドロペーオキシドはほとんど減少せず、したがって活性点は結晶内部にトラップされていたアルキルラジカルと考えられる。

- 1) N. Grassie, "Chemistry of High polymer Degradation Processes", Interscience, (1956).

IV 生物医学部門

IV-1 ^{202}Tl の家兎組織内分布

抗酸菌研 伊藤 安彦・高橋邦文
佐藤多智雄・栗野隆行
奥山 信一・菅野 巖

緒 言

Thalliumの塩類は腸管から容易に吸収され、いったん吸収されたものは尿及び尿中に排泄される。1962年のICRP勧告によれば、 ^{200}Tl , ^{201}Tl , ^{202}Tl , ^{204}Tl のいずれも決定臓器は消化管(大腸下部)であり、この他 ^{202}Tl では腎、 ^{204}Tl では肺があげられている。一方、Thallium塩の使用(脱毛剤又は殺鼠剤として)は時により生体に対し致命的な影響を与えると報告されている。しかしTl核種の生体組織分布に関する報告は極めて少ない。

著者らは、研究の第1目的としてTl核種の家兎各組織への経日的分布をRadioassayにより検討した。

研究の第2点は、Tl核種の腫瘍内摂取を知る目的である。腫瘍診断におけるアイントープの応用は、核種、検出方法、炎症との鑑別など多くの点に今後の研究を俟たねばならない。しかし1969年Hayes及びEdwards¹⁾によって発表された ^{67}Ga は、従来のアイントープに比し最も優れた核種であり炎症との鑑別に問題点はあるが、著者らの発表²⁾では肺癌の診断適中率は97.9%(47例中1例のみ陰性)であった。又、 ^{111}In も優れた腫瘍親和性があることが報告されている³⁾。これら ^{67}Ga , ^{111}In の腫瘍親和性の機序は未だ明らかでないが、Tlとともに第Ⅲ族A元素である。研究の第2点としてTl核種の腫瘍親和性の有無について、家兎の実験腫瘍による基礎的検討を行った。

実験材料および方法

I. 標的試料

A. Metal Tl (American Smelting and Refining Co, U. S. A. 99.95%)

B. Enriched $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ (ORNL, Oak Ridge, U. S. A.)

II. 照射方法

東北大学原子核理学研究施設の最大エネルギー300MeV電子ライナックにより照射した。標的試料を石英管に封入し、照射条件はエネルギー50~60MeV, 電流120 μ A, ビーム巾3 \times 3mmである。

III. 生成核種の検出

Ge(Li)検出器, 1024チャンネル波高分析器を用い, ^{57}Co , ^{137}Cs を標準線源として作製したエネルギー校正曲線により核種を決定した。

IV. 放射性注射液の調製法

A. Me Tlより $^{*}\text{TlNO}_3$ の調製

Me Tl約200mgを量り, 照射後稀 HNO_3 に加熱溶解し, 稀NaOH液で中和して全量を約20mlとした。

B. Me Tlより $^{*}\text{Tl}_2\text{O}_3 \cdot \text{EDTA}$ chelateの調製

Me Tl約200mgを量り, 照射後 HNO_3 に加熱溶解し, 王水で処理して $^{*}\text{TlCl}_3$ となし, 約30mlの蒸留水に加熱溶解した。この溶液に稀NaOH液を滴加しながら, $^{*}\text{Tl}_2\text{O}_3$ の黒褐色沈澱がそれ以上生じなくなるまで加えた。生成沈澱物中の1価 $^{*}\text{Tl}$ を除去する目的で, 遠心操作により洗液がThionali d-Alcohol液あるいは K_2CrO_4 液で Tl^+ ion反応が生じなくなるまで温水で洗滌除去した後, この $^{*}\text{Tl}_2\text{O}_3$ をEDTA chelateとして溶解し全量を約20mlとした。

C. enriched $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ より $^{*}\text{TlOH} \cdot \text{EDTA}$ chelateの調製

$^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ 約50mgを量り, 照射後 HNO_3 に加熱溶解し, 王水処理を行って $^{*}\text{TlCl}_3$ となし, 蒸留水約5mlを加えて加熱溶解した。この溶液を稀NaOH液で微アルカリ性にして $^{*}\text{Tl}_2\text{O}_3$ の沈澱浮遊液を作り, H_2O_2 水で還元して $^{*}\text{TlOH}$ となし, EDTAでキレート化して全量を約10mlとした。

本操作に際し Tl_2O_3 を直接 H_2O_2 水で還元することは困難であったので, 上記の操作により一旦, 微細な Tl_2O_3 の懸濁液の形にしてから還元した方が反応が速やかで完全であった。

D. enriched $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ より $^{*}\text{Tl}_2\text{O}_3 \cdot \text{EDTA}$ chelateの調製

$^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ 約50mgを量り, 照射後B.の調製法と同様に王水処理を行って $^{*}\text{TlCl}_3$ となし, 蒸留水約10mlを加え加熱溶解した。この溶液に稀NaOH液を滴下しながら $^{*}\text{Tl}_2\text{O}_3$ の沈澱がそれ以上生じなくなるまで加えた。この生成沈澱中の1価 $^{*}\text{Tl}$ を除去した後, EDTA chelateとして溶解し全量を約10mlとした。

本操作に際し Tl_2O_3 を直接キレート化溶解することは困難であったので, 上記の操作により一

且、微細な Tl_2O_3 の懸濁液の形にしてからキレート化溶解した方が速やかで完全であった。

V. 生成した核種の放射能測定

^{113}Sn を比較線源として、調製試料の放射能を測定した。測定エネルギーは $439 \pm 50 KeV$ 。

VI. 動物実験

実験には $2.0 \sim 2.5 kg$ の日本白色家兔を用いた。

A. 1価及び3価 ^{203}Tl の血中よりのクリアランス

耳静脈内に投与後、心臓穿刺により一定量の血液を採取し、血液中の放射能をウェル型シンチレーションカウンターで測定し、その cpm/g 値を片対数表にプロットし、放射能値の半減するまでの時間を $T_{1/2} (min)$ で表わした。

B. 放射アッセイ

健康家兔および担癌家兔（左大腿筋肉に家兔の扁平上皮癌 $VX-2$ を移植、拇指頭大に増殖した時期15日目）について、それぞれ $20 \sim 40 \mu Ci$ の1価又は3価 ^{203}Tl を耳静脈内投与し、経目的に各臓器の放射能強度をウェル型シンチレーションカウンターで測定、各臓器 $1g$ あたりの cpm で表わした。又、血液あるいは筋に対する各臓器の放射能比を各々 T/B 、 T/M で表わした。

C. シンチレーション・スキャニング

健康家兔および担癌家兔に3価 ^{203}Tl の $50 \sim 100 \mu Ci$ を耳静脈内投与し、24時間後 $439 \pm 50 KeV$ で全身スキャニングを行った。スキャナーは $5" \phi \times 2"$ の NaI クリスタル、163孔、焦点距離 $10cm$ のハニコンコリメーター、マルチッド方式の東芝製スキャナーを用いた。

D. 病理組織検索

健康家兔及び $VX-2$ 大腿部移植家兔の耳静脈に $18 \mu Ci$ の $^{202}Tl_2O_3$ を投与後9日目に又、 $55 \mu Ci$ 投与後46日目に殺し、肝、脾、腎、肺、小腸、大腸、大腿筋、大腿骨髄、生殖線を摘出し、ホルマリン固定後 Hematoxyllin-Eosin 染色を行い、形態学的変化の有無を検討した。

実験成績

I. 生成核種 (Fig. 1, 2, 3) 照射により次の様な核種の生成が考えられる。

^{203}Tl を標的試料としその生成核種を $Ge(Li)$ 検出器で検出したところ、 $0.16MeV$ (^{201}Tl $73.0hr$) と $0.43MeV$, $0.52MeV$ (^{202}Tl $12.7d$) であった。又、 ^{201}Tl と ^{202}Tl の生成率は ^{201}Tl 3% 、 ^{202}Tl 97% で大部分は ^{202}Tl であった。

| | | | |
|------------|------------------|------------|--------|
| ^{203}Tl | (γ, n) | ^{202}Tl | 12.7d |
| ^{203}Tl | $(\gamma, 2n)$ | ^{201}Tl | 73.0h |
| ^{203}Tl | $(\gamma, 3n)$ | ^{202}Tl | 26.1h |
| ^{203}Tl | (γ, p) | ^{200}Hg | Stable |
| ^{203}Tl | (γ, p, n) | ^{201}Hg | Stable |

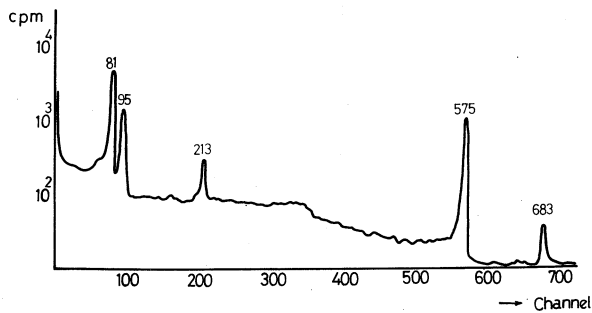


Fig. 1 Gamma Ray Spectra of Irradiated Thallium

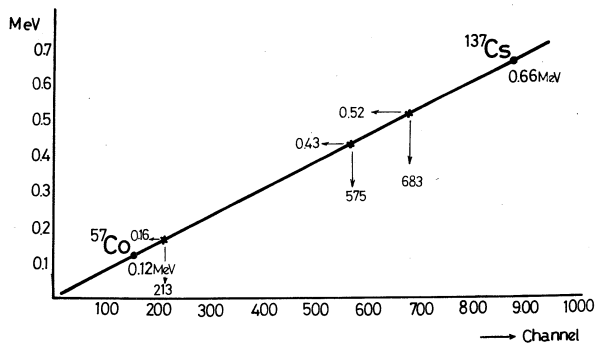


Fig. 2 Calibration Curve of Gamma Ray Energies

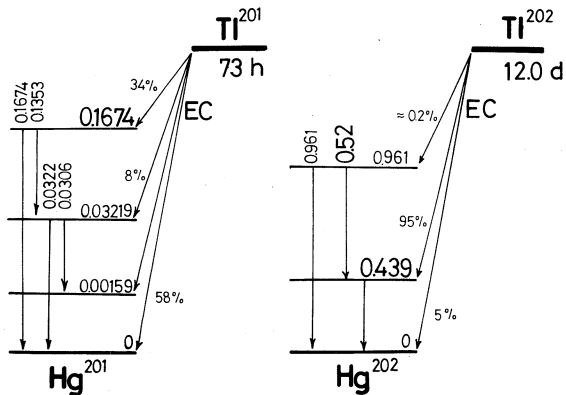


Fig. 3 Decay Schemes of ^{201}Tl and ^{202}Tl

^{202}Tl の生産総放射能は照射全実験を通じ約30~450 μCi であった (Table 1.)。

II. 血中よりの ^{202}Tl
のクリアランス (Fig.4)

1価 $\text{TlOH}\cdot\text{EDTA}$
chelateでは $\text{Tl}/2=$
4.0min, 3価 $\text{Tl}_2\text{O}_3\cdot$
EDTA chelate では
 $\text{Tl}/2=2.5\text{min}$ であり,
3価の方がより速やかであ
った。

III. 放射アッセイ

Metal Tlより調製し
た1価 TlNO_3 を健康家兎
の静脈内に投与し, 投与後
1時間より4日までの各臓
器への分布はTable 2.に
示したごとくである。即ち,

観察期間中腎への取込みが最も大であり, 血液中
の放射能は低値であった。腎以外, 一般に小腸,
筋, 骨, 肝への取り込みが高率であり, 骨髄, 膵,
肺は比較的少なかった。Metal Tlよりの3価
 $\text{Tl}_2\text{O}_3\cdot\text{EDTA}$ chelateを用いた分布は
Table 3.に示したように, 1価Tlと同様な傾向
を示し腎には投与量の1%程度が摂取された。

enriched $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ よりの1価 $^{202}\text{TlOH}\cdot$
EDTA chelate又は3価 $^{202}\text{Tl}_2\text{O}_3$ EDTA
chelateを担癌家兎に投与し, 投与後2日にお
ける両化学形の組織内摂取を比較すると(Table
4.), Metal Tlより調製した1価及び3価の
成績と同様な傾向を示した。血液に対する腫瘍の
比は1価で4.9, 3価で17.9であり, V X 2 腫瘍
に高率に摂取されたが筋に対する腫瘍の比は1価Tl, 3価Tlとも約1.0であった。

Table 1. Total activity of Tl-Nuclides
Produced by LINAC.

| Sample No. | Target | ^{202}Tl Activity (μCi) |
|------------|---|---|
| 1 | Metal Thallium | 28.7 |
| 2 | Metal Thallium | 112.0 |
| 3 | Metal Thallium | 446.7 |
| 4 | Metal Thallium | 76.8 |
| 5 | Enriched $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ | 158.5 |
| 6 | Enriched $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ | 73.2 |
| 7 | Enriched $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ | 58.3 |
| 8 | Enriched $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ | 280.5 |

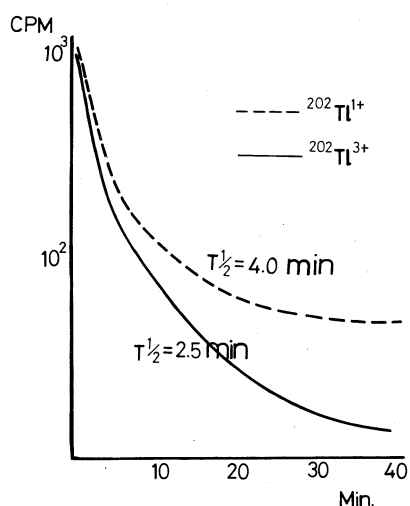


Fig.4 Disappearance of
 $^{202}\text{TlOH}\cdot\text{EDTA}$ and
 $^{202}\text{Tl}_2\text{O}_3\cdot\text{EDTA}$ from Blood

Table 2. Tissue Distribution of $^{202}\text{Tl}^{3+}\text{O}_3$ in Rabbits

| Order in Specific Activity | Post-Injection Time in Days of $^{202}\text{TlNO}_3$ with Metal Tl | | | | | | | | | | | | | | |
|----------------------------|--|------|------|-------------------------|------|------|-------------------------|------|------|-------------------------|------|------|-------------------------|------|-----|
| | 1 | | hr | | 1 | | 2 | | 3 | | 4 | | | | |
| | tissues (cpm/g) | T/B* | T/M* | tissues (cpm/g) | T/B* | T/M* | tissues (cpm/g) | T/B* | T/M* | tissues (cpm/g) | T/B* | T/M* | | | |
| 1 | Kidney 81079 | 1013 | 279 | Kidney 20904 | 774 | 40 | Kidney 3887 | 948 | 28 | Kidney 12990 | 1139 | 56 | Kidney 9503 | 2568 | 117 |
| 2 | Small Intestine 24968 | 312 | 86 | Muscle 5260 | 195 | | Bone 2074 | 506 | 15 | Small Intestine 3221 | 283 | 14 | Small Intestine 1390 | 375 | 17 |
| 3 | Pancreas | | | Bone | | | Muscle | | | Bone | | | Bone | | |
| 4 | 21368 | 267 | 74 | 5110 | 182 | 09 | 1379 | 337 | | 2748 | 241 | 12 | 1103 | 298 | 14 |
| | Spleen | | | Spleen | | | Small Intestine 1100 | | | Muscle | | | Liver | | |
| 5 | 19678 | 246 | 68 | 4177 | 154 | 08 | | 268 | 08 | 2335 | 205 | | 858 | 231 | 11 |
| | Lung | | | Small Intestine 4104 | 152 | 08 | Spleen | | | Liver | | | Muscle | | |
| | 14714 | 184 | 51 | 854 | 208 | 06 | 854 | 208 | 06 | 2296 | 201 | 09 | 810 | 218 | |
| 6 | Liver | | | Liver | | | Liver | | | Lung | | | Spleen | | |
| | 7317 | 91 | 26 | 3973 | 147 | 07 | 802 | 196 | 05 | 1040 | 91 | 05 | 722 | 195 | 09 |
| | Marrow | | | Pancreas | | | Lung | | | Spleen | | | Marrow | | |
| 7 | 6938 | 87 | 24 | 2991 | 111 | 06 | 665 | 162 | 04 | 493 | 43 | 02 | 499 | 135 | 06 |
| | Muscle | | | Lung | | | Marrow | | | Marrow | | | Lung | | |
| 8 | 2903 | 36 | | 2682 | 99 | 05 | 254 | 62 | 02 | 441 | 39 | 01 | 479 | 129 | 05 |
| | Bone | | | Marrow | | | Pancreas | | | Blood | | | Pancreas | | |
| 9 | 1676 | 21 | 06 | 1081 | 40 | 02 | 100 | 24 | 01 | 114 | | | 69 | 18 | 01 |
| | Blood | | | Blood | | | Blood | | | Pancreas | | | Blood | | |
| 10 | 800 | | 03 | 270 | | 01 | 41 | | 003 | 70 | 06 | 003 | 37 | | 003 |

$$T/M^* = \frac{\text{cpm per gram of each tissue}}{\text{cpm per gram of blood}} \quad T/M^* = \frac{\text{cpm per gram of each tissue}}{\text{cpm per gram of muscle}}$$

Table 3. Tissue Distribution of $^{202}\text{Tl}_2^{3+}\text{O}_3$ in Rabbits
 Post-Injection of Time in Days of $^{202}\text{Tl}_2^{3+}\text{O}_3$ with Metal Tl

| Order in Specific Activity | 1 | | | 2 | | | 3 | | |
|----------------------------|--------------------------|------|------|--------------------------|------|------|--------------------------|-------|------|
| | tissues (cpm/g) | T/B* | T/M* | tissues (cpm/g) | T/B* | T/M* | tissues (cpm/g) | T/B* | T/M* |
| 1 | Kidney 6,389 | 60.3 | 7.0 | Kidney 108,332 | 1180 | 18.3 | Kidney 17,287 | 125.3 | 6.4 |
| 2 | Small Intestine 1,677 | 15.8 | 1.8 | Muscle 5,913 | 6.5 | | Small Intestine 3,878 | 28.1 | 1.4 |
| 3 | Bone 1,467 | 13.8 | 1.6 | Lung 4,592 | 5.0 | 0.8 | Bone 3,147 | 22.8 | 1.2 |
| 4 | Spleen 1,105 | 10.4 | 1.2 | Small Intestine 3,780 | 4.1 | 0.6 | Muscle 2,696 | 19.5 | |
| 5 | Liver 967 | 9.1 | 1.1 | Liver 3,751 | 4.1 | 0.6 | Liver 1,990 | 14.4 | 0.7 |
| 6 | Muscle 917 | 8.6 | | Bone 1,996 | 2.2 | 0.3 | Spleen 1,847 | 13.4 | 0.6 |
| 7 | Lung 720 | 6.8 | 0.9 | Spleen 1,660 | 1.8 | 0.3 | Lung 1,265 | 9.2 | 0.5 |
| 8 | Marrow 216 | 2.0 | 0.3 | Pancreas 1,060 | 1.2 | 0.2 | Pancreas 1,038 | 7.5 | 0.4 |
| 9 | Pancreas 153 | 1.4 | 0.2 | Marrow 910 | 1.0 | 0.1 | Marrow 511 | 3.7 | 0.2 |
| 10 | Blood 106 | | 0.1 | Blood 915 | | 0.1 | Blood 138 | | 0.1 |

$$T/B^* = \frac{\text{cpm per gram of each tissue}}{\text{cpm per gram of blood}} \quad T/M^* = \frac{\text{cpm per gram of each tissue}}{\text{cpm per gram of muscle}}$$

Table 4. Tissue Distribution of $^{202}\text{Tl}^{1+}\text{OH}$ and $^{202}\text{Tl}^{3+}\text{O}_3$ in Rabbits

| Order in Specific Activity | Post-Injection of Time in Days of ^{202}Tl with $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ | | | | | | | | | | |
|----------------------------|--|-----------------|------|-------|------------|--|-------|-----------------|------|------|------------|
| | $^{202}\text{Tl}^{1+}\text{OH}\cdot\text{EDTA}$ | | | | | $^{202}\text{Tl}^{3+}\text{O}_3\cdot\text{EDTA}$ | | | | | |
| | 2 | tissues (cpm/g) | T/B* | T/M* | weight (g) | up take (%) | 2 | tissues (cpm/g) | T/B* | T/M* | weight (g) |
| 1 | Kidney 92393 | 31.1 | 4.1 | 27.0 | 130 | Kidney 116,923 | 109.9 | 5.9 | 220 | 1.04 | |
| 2 | Small Intestine 32,535 | 11.0 | 1.5 | | | Small Intestine 39,459 | 37.1 | 2.0 | | | |
| 3 | Spleen 27,256 | 9.2 | 1.2 | 2.6 | 0.04 | Spleen 30,311 | 28.5 | 1.5 | 1.6 | 0.03 | |
| 4 | Muscle 22,652 | 7.6 | | | | Bone 23,347 | 21.9 | 1.2 | | | |
| 5 | Marrow 20,853 | 7.0 | 0.9 | | | Liver 20,706 | 19.5 | 1.1 | 87.7 | 0.90 | |
| 6 | Bone 18,398 | 6.2 | 0.8 | | | Muscle 19,983 | 18.8 | | | | |
| 7 | Liver 15,050 | 5.1 | 0.7 | 111.2 | 0.89 | TUMOR 19,001 | 17.9 | 1.0 | | | |
| 8 | TUMOR 14,560 | 4.9 | 0.7 | | | Marrow 18,147 | 17.1 | 0.9 | | | |
| 9 | Lung 14,296 | 4.8 | 0.6 | 15.6 | 0.12 | Lung 17,488 | 16.4 | 0.9 | 15.3 | 0.14 | |
| 10 | Blood 2,967 | | 0.1 | | | Blood 1,064 | | 0.1 | | | |
| 11 | Pancreas 598 | 0.2 | 0.03 | | | Pancreas 355 | 0.3 | 0.02 | | | |

$$\text{T/B}^* = \frac{\text{cpm per gram of each tissue}}{\text{cpm per gram of blood}}$$

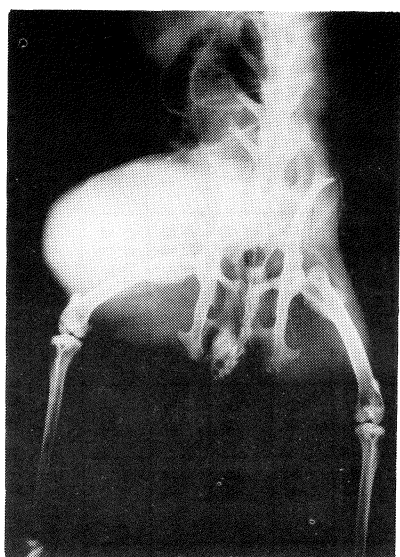
$$\text{T/M}^* = \frac{\text{cpm per gram of each tissue}}{\text{cpm per gram of muscle}}$$

Table 5. Tissue Distribution of $^{202}\text{Tl}_2^{3+}\text{O}_3$ in Rabbits

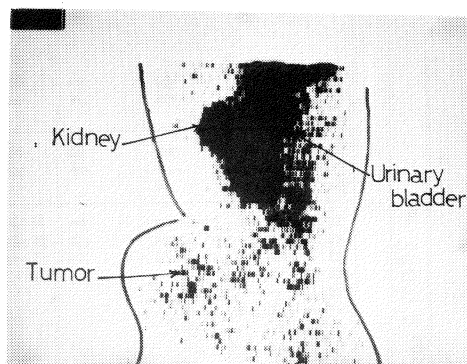
| Order in Specific Activity | Post-Injection Time in Days of $^{202}\text{Tl}_2^{3+}\text{O}_3$ with $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ | | | | | | | | | | | |
|----------------------------|--|-----------|---------------------|-----------|---------------------|-----------|---------------------|-----------|-----------------|-----------|-----------------|-----------|
| | 1 | | | 2 | | | 8 | | | 9 | | |
| | tissues (cpm/g) | T/B* T/M* | tissues (cpm/g) | T/B* T/M* | tissues (cpm/g) | T/B* T/M* | tissues (cpm/g) | T/B* T/M* | tissues (cpm/g) | T/B* T/M* | tissues (cpm/g) | T/B* T/M* |
| 1 | Kidney 10887 | 21.77 | Kidney 3928 | 137.4 | Kidney 1,028 | 102.8 | Kidney 1281 | 53.4 | 10.3 | | | |
| 2 | Small Intestine 2339 | 46.7 | Bone | 18.7 | Small Intestine 217 | 21.7 | Small Intestine 271 | 11.3 | 2.2 | | | |
| 3 | Muscle | | Small Intestine 516 | 17.8 | Bone | | Liver | | | | | |
| 4 | Spleen 1219 | 24.4 | Liver 471 | 16.2 | Muscle 89 | 8.9 | Bone 196 | 8.2 | 1.6 | | | |
| 5 | Bone 1,147 | 22.9 | Spleen 404 | 13.9 | Spleen 83 | 8.3 | Lung 167 | 7.0 | 1.4 | | | |
| 6 | Liver 1,040 | 20.8 | Lung 371 | 12.8 | TUMOR 81 | 8.1 | Spleen 162 | 6.8 | 1.3 | | | |
| 7 | Lung 827 | 16.5 | Muscle 347 | 12.0 | Liver 79 | 7.9 | Muscle 124 | 5.2 | | | | |
| 8 | TUMOR 813 | 16.3 | Marrow 231 | 8.0 | Lung 53 | 5.3 | TUMOR 99 | 4.1 | 0.8 | | | |
| 9 | Pancreas 541 | 10.8 | TUMOR 201 | 6.9 | Pancreas 45 | 4.5 | Pancreas 76 | 3.2 | 0.6 | | | |
| 10 | Marrow 483 | 9.7 | Pancreas 197 | 6.8 | Marrow 38 | 3.8 | Marrow 50 | 2.1 | 0.4 | | | |
| 11 | Blood 50 | 0.04 | Blood 29 | | Blood 10 | | Blood 24 | | 0.2 | | | |

$$T/B^* = \frac{\text{cpm per gram of each tissue}}{\text{cpm per gram of blood}}$$

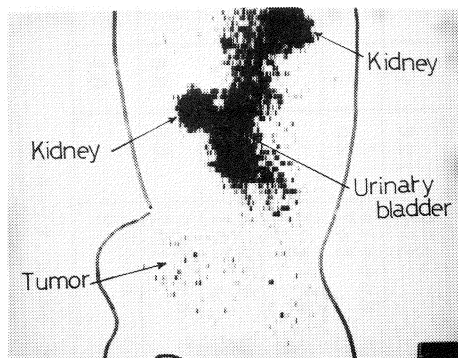
$$T/M^* = \frac{\text{cpm per gram of each tissue}}{\text{cpm per gram of muscle}}$$



A



B



C

Fig.5 Scintigrams with $^{202}\text{Tl}_2\text{O}_3\text{-EDTA}$

- A. X-ray of VX2 carcinoma
 B. The tumor shown in A was scanned slightly positive. The Kidney and urinary bladder were clearly depicted.
 C. Another case: Findings were same as B.

次に3価Tlにつき組織内分布を経的に観察すると、9日までの観察で血液に対する腫瘍の摂取比は5~10倍程度であったが、筋に対しては0.6~1.0であった (Table 5)。

IV. シンチレーション・スキヤニング

筋と腫瘍の摂取率が同程度であることより腫瘍のみを明瞭に描記することはできず腎、膀胱に著明な hot area が認められた (Fig. 5)。

V. $^{202}\text{Tl}_2\text{O}_3$ の静脈内投与による臓器の組織学的変化

18 μCi 投与後9日目の家兎では検索対照の各臓器に異常所見を認めなかった。55 μCi 投与

後46日目の家兎肝に脂肪化の認められた例があるが、これが $^{202}\text{Tl}_2\text{O}_3$ によるものと断定することはできなかった。この例においても、肝以外の各臓器に病的所見は認められなかった。

考 按

LINACにより生産されたTl核種には ^{201}Tl も混在しているが、その存在比は3%程度であること、放射能測定に用いたエネルギー巾は ^{202}Tl エネルギーであることより放射アッセイは ^{202}Tl についての成績であると見做し得る。

LINACにより生産されたTl核種の、静脈内投与による健康家兎組織内分布の成績では、標的試料がMe Tlの場合も、enriched ^{203}Tl の場合も硝酸塩、EDTA chelateの化学形、Tlの原子価に依らず、腎、小腸への摂取が高率であり、この傾向は経日的観察でもほぼ一定であった。Tl核種の血中クリアランスは極めて早いことから、投与後短期間で尿路及び消化管排泄が起るものと考えられる。 ^{204}Tl の吸収に関するHeydrauf⁴⁾の成績では、静脈内投与でも経口投与でも組織内分布が同一傾向であったことより、吸収は腸管で殆んど完全に行なわれるものであろう。

VX-2癌の大腿筋肉移植家兎の ^{202}Tl の組織内分布は、健康家兎と同一傾向を示した。 ^{202}Tl の腫瘍内摂取は血液に比し常に高率であり、筋を除き腫瘍、腫瘍外組織の摂取率は、著者らが既に発表した ^{67}Ga についての成績⁵⁾に類似している。しかし、腫瘍対筋の比は常に1以下であり、Fig.5に示した如く明瞭な腫瘍のシンテグラムは得られなかった。

アイソトープの腫瘍内摂取機序として、腫瘍の栄養素、腫瘍血管膜透過性、抗原抗体反応など多くの機序が考えられるが、Carrierの影響も極めて大であることは ^{67}Ga についての発表⁶⁾からも容易に推定される。Hayesによれば、マウスの自然発生乳癌について ^{67}Ga のCarrier freeと5mg/kgのCarrierを比較すると、Carrier freeのものは腫瘍内摂取率に変動を認めなかったが、腫瘍対筋比は2倍程度増加した。又、著者らのCarrier free ^{67}Ga -CitrateのVX-2担癌家兎の組織内分布に関する成績⁵⁾では、腫瘍対筋比は7.0~10.8であった。これらの事実はCarrier free ^{202}Tl の腫瘍診断への利用を示すものとして興味深い。

結 論

1. Me Tl, enriched ^{203}Tl を標的として、 ^{202}Tl を生産し $^{202}\text{TlNO}_3$, $^{202}\text{Tl}_2\text{O}_3$ ・EDTA, $^{202}\text{TlOH}$ ・EDTAの化学形にしたのち、健康及び担癌家兎の静脈内投与による臓器内分布、シンテスキュニング、病理検索を行なった。

2. 三化学形とも臓器内分布は同一傾向を示し、腎、小腸、骨、肝、筋に高率に摂取された。
3. 腫瘍対血液比は4.9~17.9, 腫瘍対筋比は0.6~1.0であった。
4. シンチスキャニングに投与したとほぼ同じ放射能の ^{202}Tl を健康家兎に投与し、46日で病理組織検索を行ったところ、Tlによる中毒性変化は明らかでなかった。

謝 辞

稿を終るにあたり、種々御教示いただきました、核理研、八木益男助教授、近藤健次郎博士に深甚の謝意を表わします。

文 献

- 1) Edwards, C. L. and Hayes, R. L. : J. Nucl. Med. 10:103, 1969.
- 2) ITO, Y., Okuyama, S., Awano, T., Takahashi, K., Sato, T., and Kanno, I., : Radiology, in Press.
- 3) Buchanan, J. w., Cooper, J. F. and Wagner, Jr. H. : J. Nucl. Med. 11:356, 1970.
- 4) Heydlauf, H. : European J. Pharmacology. 6:340, 1969.
- 5) ITO, Y., Okuyama, S., Sato, K., Takahashi, K., Sato, T., and Kanno, I. : Radiology, 100:352, 1971.
- 6) Hayes, R. L. : ORAU Research Report-107 P102, 1968.

V 加速器，データ処理装置稼動状況

V-1 昭和45年度後期のマシン報告

核理研 小島融三・浦沢茂一
 今野 牧・一戸 隆
 栗原 亮・田中 満
 阿部 勇・平山忠衛

300MeV. 第1表に示す様に割当のほとんどが実施された。

第1表 300MeV 使用状況表

| | 割当(日) | 使用(日) | 増減(日) | |
|--------------------------|-------|-------|-------|------|
| e-s (鳥塚) | 28 | 29 | +1 | |
| e-s (小山田) | 9 | 9 | 0 | |
| e-s (石松) | 5 | 5 | 0 | |
| γ -p (庄田) | 14 | 15 | +1 | |
| γ - α (阿部) | 3 | 3 | 0 | |
| RI | 22.5 | 22 | -0.5 | |
| TOF (川村) | 5 | 6 | +1 | 注(1) |
| EH (上田 平井) | 7 | 7 | 0 | |
| ND (渡辺伝) | 2 | 2 | 0 | |
| ND (渡辺昇) | 2 | 1.5 | -0.5 | |
| (松井) | 1 | 1 | 0 | |
| (江草) | 3 | 3 | 0 | |
| 生物 (粟冠 石田) | 2.5 | 2.5 | 0 | |
| マシン(浦沢) | 1.5 | 1 | -0.5 | |
| e+ (小島) | 1.5 | 0 | -1.5 | |
| 計 | 107 | 107 | 0 | |
| 工 事 | 22 | 39 | +17 | 注(2) |

注(1) 12月14, 15, 19の実験で電子銃のエミッション電流が、完全なナノセカンドパルスビームでなかったため、実験データの再現性がなく中止した。この件に関しては、2月の課題接収委で残りの実験日を含めて3日の割当があり、合計6日となった。尚技術的問題に関しては、川村 et. al.「50メートル飛行時間分折系及びショートパルスビームの特性について」(本誌前掲)を参照されたい。

注(2) 予定された工事日以外(17日)は、その半数が真空リークで他は各系の故障となっている。この17日のうち13日は予備日を当て残りの4日は休日に行った。

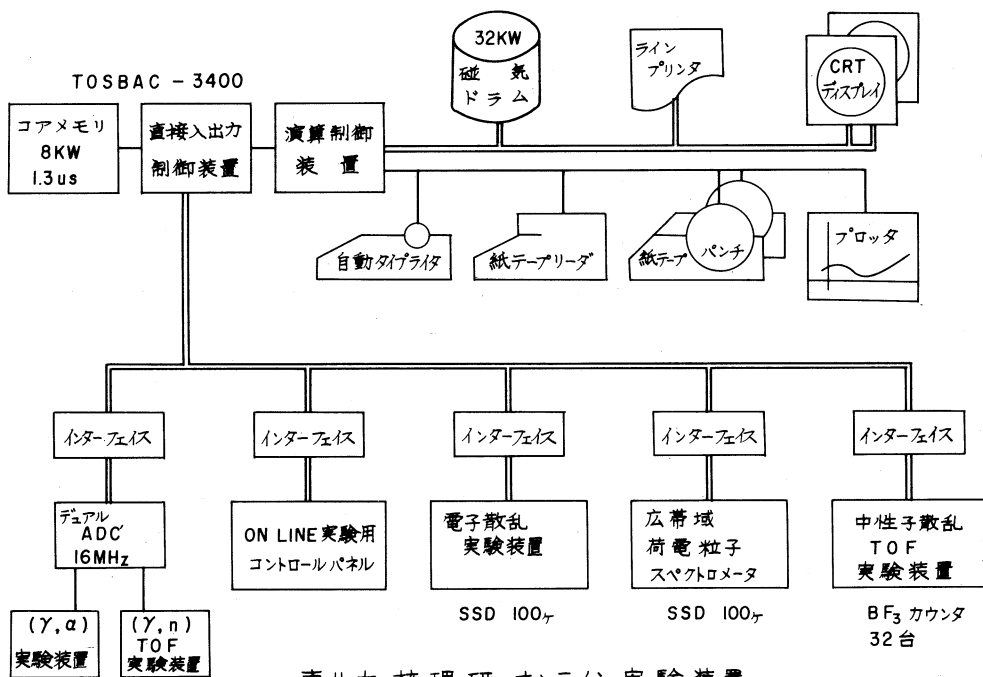
今期の主要な出来事

1. 加速管 A4の加速管は45年8月に交換した。その後耐圧不良(VSWRによるシャットダウン)の状態が続き、1月工事で加速管の解体作業を行った所、溶接不良により加速管とモード変換器(通称ドアノブ)との間の電氣的接触不良が発見され予備の加速管と交換した。
2. クライストロン 昭和42年7月からの運転で故障したクライストロンは購入数17本のうち13本になる。このうち修理を行ったものは5本で、保証時間以内に故障した4本は代品が納入された。従って現在数は使用中5本、スベア9本の14本である。
3. ディフファイニングスリットの駆動部の取替 余分な電子を除くためのこのスリットは、その電子による制動輻射で強力な γ 線のソースとなる。この放射線は、絶縁材料等の劣化を起す。スリット駆動部には制御電線、開度指示用ポテンシヨメータ等があり、この劣化が激しく、修理不能となったため、改良を行った駆動装置に交換を行った。作業の際放射線の被曝があるので1回の作業で1台しか交換出来ず、4台のうち現在まで2台の交換を行った。

V-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

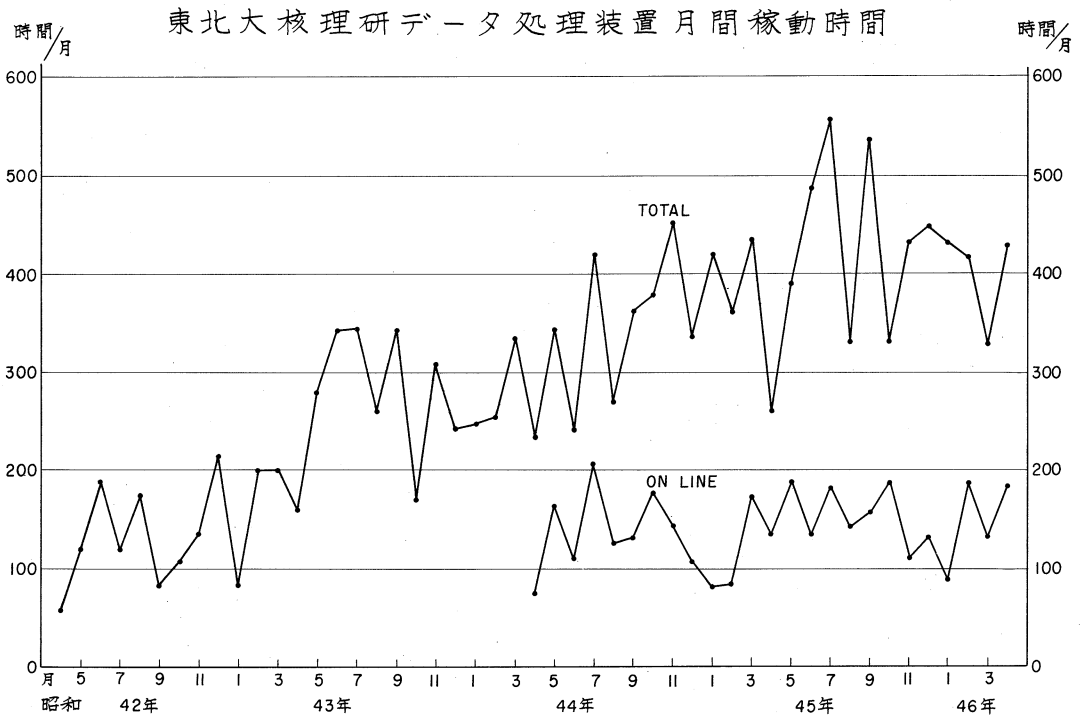
核理研のオンラインデータ処理システムが昭和42年4月に稼動を開始して以来今期で満4年である。その間新たにオンライン化した実験装置が3件、他に処理システムの周辺機器の増強などがあり、現在のシステム構成は第1図の通りである。今期はNDグループの設備増強工事のためND関係のマシントイムは最小限に切りつめられていたが、来期は工事が完成し多数グループの同時使用が可能になる。そのために従来の1024チャンネル×4系統のインターフェイスを512チャンネル×8系統に改造した。オンラインプログラムもマルチグループの同時使用に耐えられるものを新たに開発した。来期の加速器のマシントイムの内オンライン化されたものは約75%である。



今期の月間平均稼動時間は398時間で前期の427時間に比べて6.6%減で初めての減少である。現在の利用形態では400時間が一応の限界であろう。

昭和46年度後期からは本施設の利用が全国の研究者へ一部開放される動きもあり、加速器のテスト夜間運転も計画されている。近い将来のマシントイムの延長に沿ってデータ処理システムの増強予算を概算要求している。計画通り予算がつく事を願うものである。

第1表



1970-10

DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

| | 0 | 2 | 4 | 6 | 8 | 10 | 12 | 14 | 16 | 18 | 20 | 22 | 24 | ONC | OFF | TOTAL |
|----------|--------------|---|---|---|---|--------------|-----|-----|-----|-----|--------------|--------------|--------------|--------|--------|--------|
| 1 (THU) | FFFFFFFFFFFF | | | | | FFFFFFFFFFFF | FFF | FFF | FFF | FFF | FFFFFFFFFFFF | FFFFFFFFFFFF | FFFFFFFFFFFF | 0:00 | 11:08 | 11:53 |
| 2 (FRI) | FFFFFFFFFFFF | | | | | FFFFFFFFFFFF | FFF | FFF | FFF | FFF | FFFFFFFFFFFF | FFFFFFFFFFFF | FFFFFFFFFFFF | 0:00 | 8:55 | 8:55 |
| 3 (SAT) | FFFFFFFFFFFF | | | | | FFFFFFFFFFFF | FFF | FFF | FFF | FFF | FFFFFFFFFFFF | FFFFFFFFFFFF | FFFFFFFFFFFF | 0:00 | 6:50 | 7:20 |
| 4 (SUN) | | | | | | | | | | | | | | 0:00 | 0:00 | 0:00 |
| 5 (MON) | | | | | | | | | | | | | | 0:00 | 0:00 | 0:00 |
| 6 (TUE) | | | | | | | | | | | | | | 0:00 | 0:00 | 0:00 |
| 7 (WED) | | | | | | | | | | | | | | 2:45 | 1:15 | 4:30 |
| 8 (THU) | | | | | | | | | | | | | | 9:25 | 0:00 | 9:55 |
| 9 (FRI) | | | | | | | | | | | | | | 10:00 | 0:00 | 10:30 |
| 10 (SAT) | | | | | | | | | | | | | | 0:00 | 0:00 | 0:00 |
| 11 (SUN) | | | | | | | | | | | | | | 0:00 | 0:00 | 0:00 |
| 12 (MON) | | | | | | | | | | | | | | 11:05 | 3:34 | 15:09 |
| 13 (TUE) | | | | | | | | | | | | | | 10:25 | 7:00 | 17:55 |
| 14 (WED) | | | | | | | | | | | | | | 11:22 | 5:15 | 16:37 |
| 15 (THU) | | | | | | | | | | | | | | 0:00 | 0:40 | 1:10 |
| 16 (FRI) | | | | | | | | | | | | | | 10:52 | 2:18 | 14:10 |
| 17 (SAT) | | | | | | | | | | | | | | 10:40 | 0:30 | 12:20 |
| 18 (SUN) | | | | | | | | | | | | | | 0:00 | 0:00 | 0:00 |
| 19 (MON) | | | | | | | | | | | | | | 11:20 | 2:30 | 13:50 |
| 20 (TUE) | | | | | | | | | | | | | | 0:00 | 8:05 | 8:05 |
| 21 (WED) | | | | | | | | | | | | | | 12:59 | 0:00 | 14:30 |
| 22 (THU) | | | | | | | | | | | | | | 10:40 | 0:00 | 11:20 |
| 23 (FRI) | | | | | | | | | | | | | | 0:00 | 0:00 | 0:00 |
| 24 (SAT) | | | | | | | | | | | | | | 12:47 | 3:30 | 16:17 |
| 25 (SUN) | | | | | | | | | | | | | | 0:00 | 11:54 | 11:54 |
| 26 (MON) | | | | | | | | | | | | | | 10:50 | 3:10 | 14:40 |
| 27 (TUE) | | | | | | | | | | | | | | 10:35 | 1:15 | 21:35 |
| 28 (WED) | | | | | | | | | | | | | | 10:00 | 16:58 | 17:28 |
| 29 (THU) | | | | | | | | | | | | | | 10:30 | 6:16 | 17:16 |
| 30 (FRI) | | | | | | | | | | | | | | 11:00 | 5:30 | 17:30 |
| 31 (SAT) | | | | | | | | | | | | | | 188:10 | 121:24 | 331:44 |
| TOTAL | | | | | | | | | | | | | | 56.7 * | 36.6 * | |

| | | |
|-------------|--------|---------|
| LDM | 64:32 | 19.5 * |
| BDM | 75:42 | 22.8 * |
| DDM | 50:00 | 14.0 * |
| P | 27:46 | 6.9 * |
| PH | 121:28 | 36.6 * |
| F | 20:35 | 6.2 * |
| MAINTENANCE | 1:31 | 0.5 * |
| DOWN | 331:44 | 100.0 * |
| TOTAL | | |

LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE, TOHOKU UNIVERSITY

DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

1970-12

| | 0 | 2 | 4 | 6 | 8 | 10 | 12 | 14 | 16 | 18 | 20 | 22 | 24 | ON- LINE | OFF- LINE | TOTAL |
|----------|-----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|-------------|--------------|--------|
| 1 (TUE) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 2 (WED) | FFF | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 3 (THU) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 4 (FRI) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 5 (SAT) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 6 (SUN) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 7 (MON) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 8 (TUE) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 9 (WED) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 10 (THU) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 11 (FRI) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 12 (SAT) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 13 (SUN) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 14 (MON) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 15 (TUE) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 16 (WED) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 17 (THU) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 18 (FRI) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 19 (SAT) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 20 (SUN) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 21 (MON) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 22 (TUE) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 23 (WED) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 24 (THU) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 25 (FRI) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 26 (SAT) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 27 (SUN) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 28 (MON) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 29 (TUE) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 30 (WED) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| 31 (THU) | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | .. | 0400 | 1150 | 1210 |
| TOTAL | | | | | | | | | | | | | | 132400 | 262427 | 449412 |

L LDM 20.4 %
 B BDM 0.1 %
 N ND 0.1 %
 P PHA 9.0 %
 F OUTRAN 58.4 %
 MAINTENANCE 11.4 %
 DDM 46430
 TOTAL 449412 100.0 %

LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE, TOROKU UNIVERSITY

核 理 研 研 究 報 告 第 4 卷 第 1 号

昭和 46 年 9 月 発行

発行所 東北大学理学部附属原子核理学研究施設
仙台市富沢金山 1 (郵便番号 982)

印刷所 株式会社 山忠モノ・オフセット
仙台市鉄砲町 18 (城ビル内)
電(代) 43-4491

Research Report of Laboratory of Nuclear
Science, Tohoku University, Vol.4 No.1 Sep.1971
Laboratory of Nuclear Science,
Tohoku University
1, Kanayama, Tomizawa, Sendai, Japan