

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 研 究 報 告

VOL. 4 No. 2 Feb. 1972

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. 2 目次

I 原子核物理部門

I - 1	電子散乱による原子核の研究.....	1
	(核理研) 鳥塚賀治, 木村一治, 小島融三, 斎藤悌二郎 伊藤広平, 中田 章, 光延信二, 長尾真美子 細山謙二, 福田茂樹	
I - 2	^{19}F による電子散乱(II).....	22
	(理学部物理, 核理研*) 田中英二, 山家 優, 遠藤 順政 斎藤 肇, 中原和夫,* 小山田正幸* 寺沢辰生*	
I - 3	^{27}Al による電子散乱(I).....	27
	(核理研, 理学部物理*) 寺沢辰生, 中原和夫, 小山田正幸 斎藤 肇,* 田中英二,* 山家 優* 遠藤順政*	
I - 4	(γ, p) 反応による中重核, 重核の研究.....	33
	(核理研) 庄田勝房, 斎藤悌二郎, 宮瀬晴久 及川四郎, 鈴木 厚人, 上柿順一	
I - 5	$^{31}\text{P}(\gamma, n)$ 反応.....	42
	(理学部物理, 教養部物理*) 川村暢明, 坪田博明,* 遠藤順政 斎藤 肇, 三宅正伸, 岡崎行男	

II 物性物理部門

II - 1	V a族遷移金属-水素系侵入型合金の規則構造.....	47
	(金研) 浅野 肇, 平林 真	
II - 2	中性子非干渉性非弾性散乱によるアントラキノンおよび1,2-ジクロロエタン結晶 の分子運動の研究.....	51
	(理学部化学, 核理研*) 大空 瞭, 宮崎芳雄, 伊藤光男 新村信雄,* 渡辺 昇,* 木村一治*	

II - 3	電子リニアックを用いた T. O. F. 中性子散乱による単結晶分光法	55
	(核理研, 金研*) 新村信雄, 富吉昇一*, 渡辺 昇, 木村一治	
II - 4	$Ni_{50}Ti_{46}V_4$ の高温相の中性子回折	64
	(選 研) 本間敏夫, 松本 実, 守護嘉朗	
II - 5	A Feasibility Study of Applying Neutron T-O-F Method for the Liquid Structure Analysis	67
	(金研, 核理研*) 三沢正勝, 渡辺 昇*, 富吉昇一 甲斐鎌三, 竹内 栄, 木村一治*	
II - 6	Anisotropic Scattering of Neutron from an Uniaxially Oriented Iso-polyPropylene	75
	(選研, 核理研*) 安川民男, 木村一治*, 渡辺 昇*	
II - 7	中性子回折による $RbDSO_4$ の構造解折	78
	(工学部応用物理) 山田 昌, 島津博徳	
II - 8	TOF クリスタル・アナライザーによる準弾性散乱	81
	(核理研, 金研*) 渡辺 昇, 佐藤建太郎*, 新村信雄 小山田正幸, 木村一治	
II - 9	50 MeV Electron Irradiation of Germanium Doped with Co^{57} (III)	89
	(工学部) 松井啓治	
II - 10	The Germanium-73 13.3KeV Mössbauer Effect with Gallium-73 Parent Produced by Photonuclear Reaction $Ge^{74}(\gamma, p)Ga^{73}$ in Germanium Lattice	93
	(工学部) 松井啓治	
II - 11	The Migrating-, Trapped-, and Converted Interstitials in Germanium Monitored by Mössbauer Effect of Germanium-73	101
	(工学部) 松井啓治	

Ⅲ 放射化学部門

Ⅲ-1 光量子放射化分析に関する研究.....117

(理学部化学) 鈴木信男, 本田潤二, 加藤豊明

Ⅲ-2 The Yield Distribution of Radioactive Nuclides
Produced by Photospallation Reactions in ^{138}Cs and
 ^{139}La with 250 MeV Bremsstrahlung.....122

(理学部化学) 加藤豊明, 蔡 恵沢

Ⅲ-3 $^{80\text{m}}\text{Br}_2-\text{CH}_4$ 系における核異性体転移にともなう化学的效果(Ⅲ)
有機生成物の生成機構について.....136

(核理研, 理学部化学*) 八木益男, 近藤健次郎, 小林孝彰*

Ⅲ-4 ウラニル錯体の抽出における協同効果.....143

(選 研) 秋葉健一

Ⅳ 加速器, データ処理装置稼動状況

Ⅳ-1 昭和46年度前期のマシン報告.....149

浦沢茂一, 今野 収, 一戸 隆

田中 満, 栗原 亮, 平山忠衛

阿部 勇

Ⅳ-2 データ処理装置稼動状況.....151

(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・中田 章
光延 信二・長尾真美子・細山謙二
福田 茂樹

今期の成果のまとめとして次のことがあげられる。

- 1) ^{12}C の ground state を変形していると考えると, 実測した 0^+ , 2^+ , 4^+ は, rotational band として取り扱うことが出来る。そこで Nilsson model を用いて, 実験から得られた 0^+ , 2^+ , 4^+ 準位の form factor を計算した。その結果実験を説明する Nilsson orbit がみいだされた。それを用いて Q -moment 及び Hexadecapole moment を求めた。
- 2) ^{20}Ne について主として excited rotational band に属する 0^+ , 2^+ を測定した。その form factor は夫々特徴がある。最近の many particle transfer の実験によって之等の level の性質はある程度わかってきている。これらの情報をもととした電子散乱の data の解析は更に詳細な核構造を知るのに有効である。
- 3) ^{40}Ca に於て 19 MeV 附近に giant dipole state のほかに同様な collective な性質をもつ octupole state の存在を発見した。19 MeV の form factor は強い octupole state の励起を考慮することなしには説明出来ない。giant resonance 領域に於て dipole 以外の高い multipole state の存在は極めて重要である。この様な事実は他の核にもあると予想される。
- 4) Sn isotope と ^{114}Cd との比較を行った。collective state は核によって急激に変化するとは考え難いが, Sn isotope と ^{114}Cd の transition charge density の間には非常に大きな相違があることがわかった。この差は microscopic な解析によってのみ明らかにされるものであろう。

電子散乱実験より ^{12}C の固有変形の決定¹⁾

^{12}C の ^{12}C による非弾性散乱で 14 MeV 附近に 4^+ の準位が測定されている²⁾。電子散乱実験

でも Fig. 1 に見られる様に 14.1 MeV に 4^+ の準位を測定した。この 4^+ は 4.43 MeV (2^+) と共に考察すると回転模型が予想する $L(L+1)$ の energy 依存性に良く合致している。Hartree-Fock³⁾ の計算が示す様に substantial shell が閉じていない軽核と同様に ^{12}C も強く変形していると考えられる。変形核に対して剛体模型を仮定すると基底回転帯に属する準位を励起する際の遷移確率は第 1 次 Born 近似で直接基底状態での核の変形の球形部分、四重極変形部分、八重極変形部分にそれぞれ関係している。ここでは弾性散乱及び $0^+ \rightarrow 2^+$, $0^+ \rightarrow 4^+$ の遷移を Nilsson 模型で解析した。その結果その模型で測定された同一回転帯内での遷移を ^{12}C の基底状態を示す変形、すなわち固有変形で説明出来た。実験の詳細は核理研報告⁴⁾ のその項を参照。

Fig. 2 に基底状態, 4.43 MeV (2^+) 及び 14.1 MeV (4^+) に対する形状因子を示す。横軸

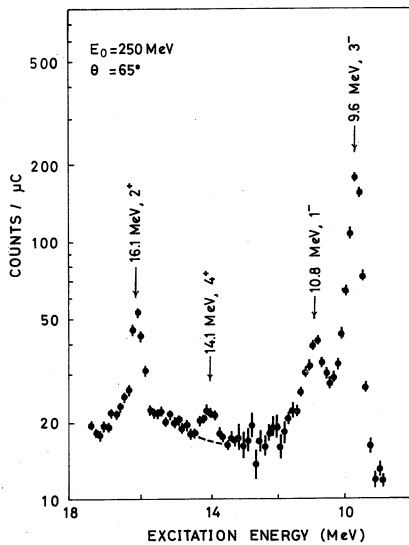


Fig. 1 The inelastic electron scattering spectrum for excitation energies of 9~17 MeV. The 14.1-MeV peak is seen superimposed on the inelastic continuum and the background was estimated as indicated with the dashed line.

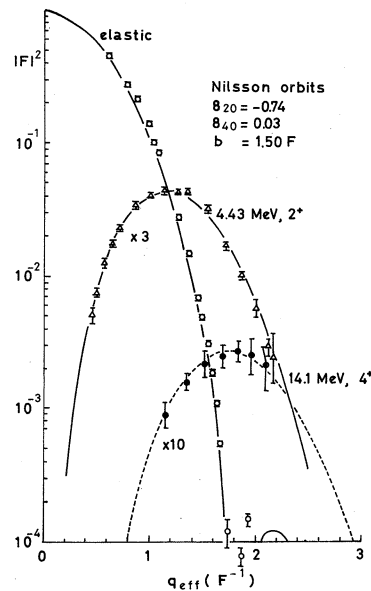


Fig. 2 The experimental form factors for elastic, 4.43-MeV (2^+), and 14.1-MeV (4^+) stated in ^{12}C . The form factors calculated from the Nilsson orbits with suitable parameters are shown along with the experimental data.

は q_{eff} で示されている。Nilsson 模型を用いて p -shell 核を解析した Vinciguerra and Stovall⁵⁾ の論文がある。我々もここでは偶-偶奇性の殻に対して 0, 2 の major shell が、奇-偶奇性の殻に対しては 1, 3 の major shell の混ざりを考慮して計算を

行なった。実験的に得られた形状因子の全てに理論値を合わせるために付加的な Y_4 変形も考慮に入れた。全 Hamiltonian の変形部分は

$$\hbar\omega_0 r^2 \left[-\delta_{20} \frac{4}{3} \left(\frac{1}{5}\pi\right)^{1/2} Y_{20} + \delta_{40} \left(\frac{4}{9}\pi\right)^{1/2} Y_{40} \right]$$

で表わされる。ここで ω_0 , 従って調和振動子定数 b は *rms* 半径が一定となる条件より求めた。一粒子振動関数は変形定数の関数として求められる。その波動関数を用いて Born 近似で基底回転帯に属する準位の電子散乱に対する形状因子が求められる。実験値との比較の際には陽子の大きさ, 及び調和振動子波動関数を用いた為の重心運動に対する補正を行なって比較した。Fig. 2 に実験値を良く再現する変形定数値での理論値を示す。計算の際にはこれまでの電子散乱で求められていた値 $\langle r^2 \rangle^{1/2} = 2.37 \text{ F}^5$ の代りに $\langle r^2 \rangle^{1/2} = 2.42 \text{ F}$ を用いている。 $b = 1.50 \text{ F}$ で実験値との一致は非常に良い。もし固有変形が Y_2 変形だけであるなら $0^+ \rightarrow 2^+$, $0^+ \rightarrow 4^+$ の形状因子を同時に満足させる事は出来ない。実際 Y_2 変形だけ入れて $0^+ \rightarrow 2^+$ の形状因子を良く再現する定数で $0^+ \rightarrow 4^+$ の形状因子を計算すると2倍程度大きくなってしまふ。従って Y_4 変形は $0^+ \rightarrow 4^+$ 形状因子を小さくする方向に入れなければならなかった。以上より $\delta_{20} = -0.74$, $\delta_{40} = +0.03$ として実験との良い一致が得られた。 δ_{20} の付号が負であるのは基底状態で ^{12}C は oblate 変形をしていると考えられているからである。Hartree-Fock³⁾ の計算からこの様な変形が考えられている。

実験を良く再現する波動関数より $\langle r^2 \rangle^{1/2}$, $\langle r^4 \rangle^{1/4}$, Q_0 , Q_{40} を計算して Table I に示す。又その波動関数より電荷に対する等電荷密度面を画く事が出来る。Fig. 3 に回転対称軸 z に垂直な面に射影した等電荷密度面を示す。密度は最大の密度を 1.0 に規格化してある。Fig. 3 には参考文献 3. で

Table I The values of ^{12}C parameters as calculated from the orbits which reproduce the experimental data.

$\langle r^2 \rangle^{1/2} (\text{F})$	2.42
$\langle r^4 \rangle^{1/4} (\text{F})$	2.68
$Q_0^a (e\text{F}^2)$	-20.1
$Q_{40}^b (e\text{F}^4)$	-21.5

^{a)} Q_0 is defined by

$$Q_0 = (16\pi/5)^{1/3} \langle \chi | \sum^Z r^2 Y_{20} | \chi \rangle.$$

^{b)} $Q_{40} = \langle \chi | \sum^Z r^4 Y_{40} | \chi \rangle.$

示されている Hartree-Fock の結果も示してある。これら二つの結果が良く一致しているのは興味深い事である。

核の大きさに関係しない変形定数 β_2 , β_4 も定義出来る。しかし Fig. 3 を見ると等電荷密度面の密度の異なる点での β_2 , β_4 は異なっている事が分る。等電荷密度面を

$$R = R_0(1 + \sum_{\lambda} \beta_{\lambda} Y_{\lambda 0})$$

で表わす事が出来る。第3図より R_0 , β_2 , β_4 を求めて Table II に示す。Table より分る事は核の内部程 β_2 , β_4 も絶対値で大きくなる事を示している。しかし核表面では β_4 の値が小さくさらに外では付号が変っている。核表面附近の β_2 の値は核を projectile とした実験⁶⁾ (≈ 0.5) と良く合っている。 (中田)

参考文献

- 1) A. Nakada and Y. Torizuka: Phys. Rev. Letters **27** (1971)745.
- 2) G. T. Garvey, A. M. Smith, and J. C. Heibert: Phys. Rev. **130** (1963)2397.
- 3) G. Ripka, in *Advances in Nuclear Physics* edited by M. Baranger and E. Vogt (Plenum, New York, 1968), Vol. 1
- 4) 鳥塚賀治 et. al.: 核理研報告 Vol. 2, No. 1 (1969)1.
- 5) D. Vinciguerra and T. Stovall: Nucl. Phys. **A132** (1969)410.
- 6) 例えば B. G. Harvey et. al., Phys. Rev. **146** (1966)712 参照.

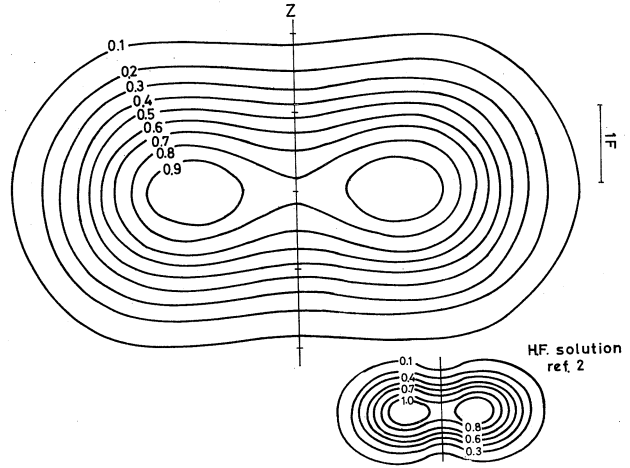


Fig. 3 The equidensity contour plot for the charge distribution in ^{12}C obtained from the Nilsson orbits which reproduce the experimental form factors.

Table II The equidensity contour shown in Fig. 2 is expressed by $R = R_0(1 + \beta_2 Y_{20} + \beta_4 Y_{40})$ and R_0 , β_2 , and β_4 for each contour line corresponding to $\rho/\rho_{\max} = 0.01 \sim 0.8$ are tabulated.

R_0 (F)	ρ/ρ_{\max}	β_2	β_4
1.09	0.8	-2.27	+0.73
1.48	0.7	-1.47	+0.34
1.71	0.6	-1.22	+0.23
1.93	0.5	-1.04	+0.15
2.13	0.4	-0.92	+0.10
2.36	0.3	-0.82	+0.07
2.63	0.2	-0.74	+0.04
3.01	0.1	-0.63	+0.01
3.33	0.05	-0.59	-0.004
3.90	0.01	-0.52	-0.02

^{20}Ne の 7 MeV 付近の 0^+ , 2^+ に対する電子散乱

核物理において電子散乱が有効な手段である理由の1つに γ 線ではその Spin が 1 であるため角運動量保存則により励起出来ない $E0$ 転移を観測出来る事が上げられる。

これは電子が核と Coulomb 相互作用を行う事に起因している。又その相互作用が比較的弱い
ため他の level を経由する多重励起の影響は小さい ($\propto \frac{1}{137}$) と考えられる。

さらに電子散乱では運動量移行 q を変化させる事により転移電荷密度の空間分布を知る事が出来る。Monopole 励起は原子核を古典的液滴と考えれば、半径方向の運動に対応し、核の外において Coulomb ポテンシャルは変化せず、核の内部において Coulomb 相互作用を行う事が必要となる。この面から言っても高エネルギー電子は十分核内に入ると考えられるので有効である。

我々は東北大学 300 MeV リアックを用いて ^{20}Ne の $E0$ と $E2$ の電子散乱実験を行った。そして $6.72(0^+)$, $7.20(0^+)$, $7.43(2^+)$ 及び $7.84\text{ MeV}(2^+)$ 状態に対する非弾性電子散乱の形状因子を得る事が出来た。実験は入射電子エネルギー 120, 200, 250 MeV, 散乱角 35° から 90° で行なわれた。ターゲットには、前の実験¹⁾と同様にガスターゲットを用いた。得られたスペクトラムの中で特徴

的な物を 1 図に示す。1 図

の上の方は 200 MeV 55°

で運動量移行 $q =$

$0.944 f_m^{-1}$ のスペクトラムで 6.72 , 7.20 , 7.84

MeV 状態が見えている。又

1 図の下の方は 250 MeV

80° で $q = 1.633 f_m^{-1}$ で

上の図ではよく見えなかつ

た 7.43 MeV 準位がはっきり見えている。

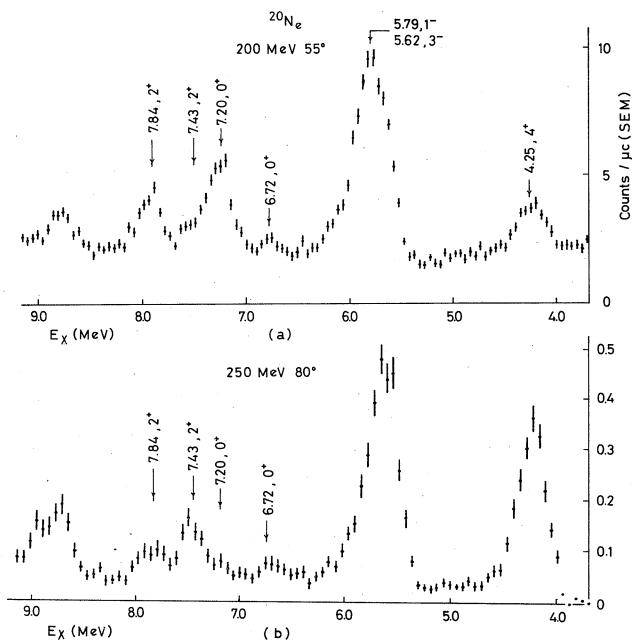
スペクトラムからピーク

の面積を求め、これと前の

実験¹⁾で形状因子の分って

いる $4.25(4^+)$, $5.7\text{ MeV}(3^-, 1^-)$ のピークの面積を比較する事によりそれぞれの形状因子を得た。2 図に形状因子を示す。

形状因子の特徴を上げると $7.84(2^+)$ 状態の形状因子は $1.63\text{ MeV } 2^+$ の形状因子¹⁾ と似てい

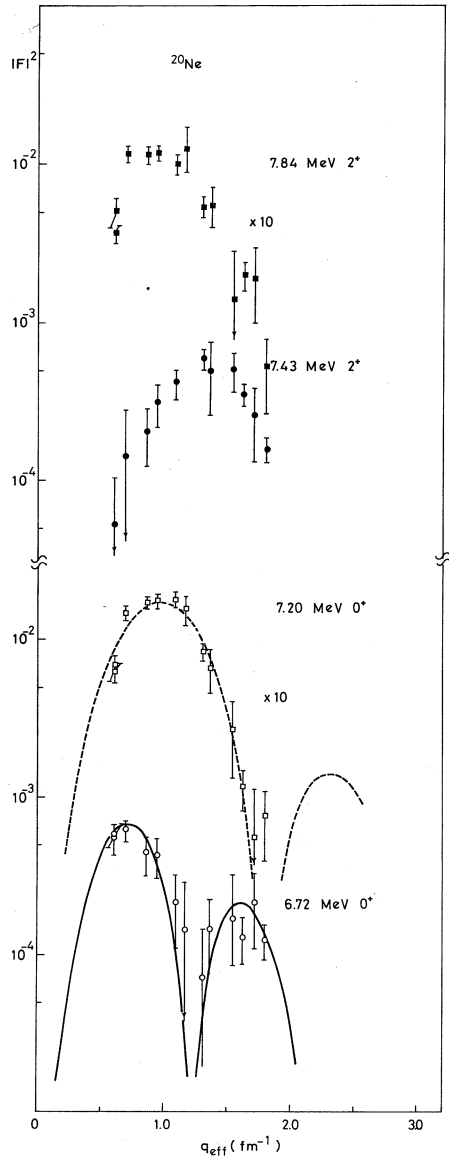


1 図

るが、少し q の大きい方へずれている。7.43 MeV (2^+)の形状因子は7.84 MeVと比べて形状因子の最大点が q の大きい方にずれている。そしてこれは4.25 MeV 4^+ の形状因子の形と非常に良く一致し、 4^+ 的に見えるが、 ^{20}Ne においてこのエネルギーに接近した 4^+ は見つかっていない。また他の可能性として天然のネオンガスを使用しているため、 ^{22}Ne が8%程混っており、 ^{22}Ne の 4^+ 準位と考え得るが、そうだとすると非常に大きな強さ ($B(E4) \approx 100 B_{sp}$)を持つことになり、このエネルギー領域にこのような強い準位は考えにくい。したがって何らかの理由で ^{20}Ne の7.43 MeV (2^+)準位の形状因子が 4^+ 的に表れた可能性が最も大きい。7.20 MeV (0^+)の形状因子は7.84 MeV (2^+)と同様な q 依存性を持っている。7.20 MeV付近には7.17 MeV (3^-)準位が存在する。我々の実験ではこれらの2つの準位を分離出来ていない。もしこの形状因子を 3^- のみであるとするところから得られる換算転移確率は20~30 B_{sp} となり、大きな値を取る事になり、強い 3^- が5.62 MeVにあるので、これを 3^- のみと考えにくい。したがって少なくとも q の小さい所では 0^+ が主であると見る事が出来る。さらにその q 依存性が滑らかである事から 3^- の影響が小さいと期待出来る。しかし

両方が重ね合わさったものが滑らかになる可能性は否定出来ない。我々は以下において希望の見方に立ち 3^- が小さいとして解析を行った。

6.72 MeV (0^+)の形状因子は最初の極大が7.84, 7.20 MeVよりずっと q の小さい方にあり、又2番目の極大が大きく出ているのが特徴的である。



2 図

E_0 に対する現象論的解析

電子散乱の E_0 Coulomb 励起の形状因子は Born 近似を用いて

$$|F_0(q)|^2 = 4\pi \left| \int j_0(qr) \rho_{tr}(r) r^2 dr \right|^2 \quad (1)$$

で与えられ $\rho_{tr}(r)$ は波動函数の直交性から

$$\int \rho_{tr}(r) r^2 dr = 0 \quad (2)$$

なる条件を満たしている。これは $\rho_{tr}(r)$ が node を持つ事を示している。 $j_0(qr)$ を展開すると

$$j_0(qr) = 1 - \frac{1}{6} q^2 r^2 + \frac{1}{120} q^4 r^4 - \frac{1}{5040} q^6 r^6 + \dots \quad (3)$$

であり、これを (1) に代入して (2) の条件を用いると展開の第 1 項目は 0 となり、整理すると形状因子は

$$F_0(q) = \frac{1}{z} \frac{ME}{6} q^2 \left(1 - \frac{q^2}{20} R_{tr}^2 + \dots \right) \quad (4)$$

$$ME \equiv \langle 0' \| r^2 \| 0 \rangle = Z \sqrt{4\pi} \int \rho_{tr}(r) r^4 dr \quad (5)$$

$$R_{tr}^2 \equiv \langle 0' \| r^4 \| 0 \rangle / ME \quad (6)$$

と表される。 ME は Matrix element と呼ばれ internal conversion の確率等に関係してくる量である。(4) 式から分る様に q が小さい所では E_0 と E_2 は似た q 依存性を持っている。これは Schiff により最初に指摘された事である²⁾。さらに Schiff は (2) の条件を取除く方法として (1) において $j_0(qr)$ を $j_0(qr) - 1$ に置換えるという方法を提案している。しかし実験から $\rho_{tr}(r)$ を求めようとするときこの方法では node を持たない転移電荷密度を得てしまう恐れがある。それ故我々は (2) の条件を満足しつつ (1) を用いて $\rho_{tr}(r)$ を求める方法を用いた。実験点は有限個しかないので $F_0(q)$ 又は $\rho_{tr}(r)$ に対し適当な函数型を仮定し、パラメトライズする方法が有効である。

ここでは $\rho_{tr}(r)$ に対し shell model を念頭において

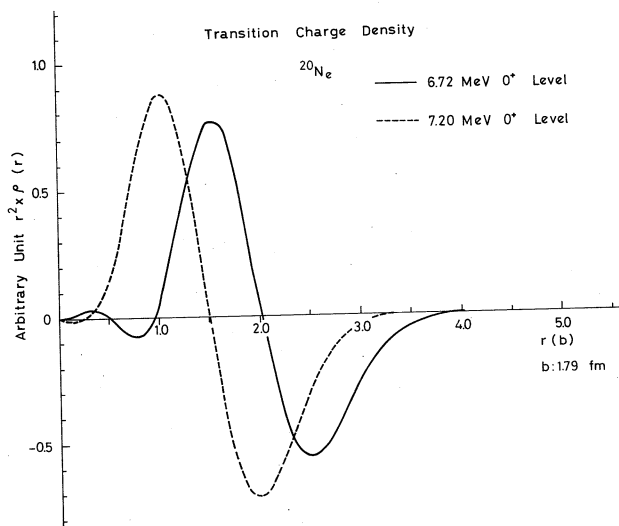
$$\rho_{tr}(r) = \left\{ \sum_{i=0}^3 a_i \left(\frac{r}{b} \right)^{2i} \right\} \exp \left(-\frac{r^2}{b^2} \right) \quad (7)$$

$$b = 1.79 f_m^{-1}$$

とおいた。 b は調和振動子パラメーターで弾性散乱の実験より求めたものを用いた。 a_i を実験から最小自乗法により決定する。その時 (2) の条件を Lagrange の未定係数法を用いて取り入れた。求められた $\rho_{tr}(r)$ を用いて ME , R_{tr}^2 等を計算する事が出来る。

この方法を用いて求めた
6.72 (0⁺), 7.20 MeV (0⁺)
の転移電荷密度を3図にそれぞ
れ実線及び点線で示す。またこ
のときの計算による形状因子を
2図に実験点に沿って書いてあ
る。この方法による $ME, R_{tr}/$
 $A^{1/3}$ を表1に載せてある。

表1には²⁸Siの4.98 MeV
(0⁺)について東北で行なわれ
たデータを用いて上に述べた
モデルに依存する方法により求
めた ME, R_{tr} とモデルに依存



3 図

表1 Matrix elements ME and transition radii R_{tr}

transition (Ex in MeV)	ME (F ²)	$R_{tr}/A^{1/3}$ (F)
²⁰ Ne(6.72)	7.28	2.11
²⁰ Ne(7.20)	6.58	1.62
²⁸ Si(4.98)	6.63 6.82 ± 0.52*	1.81 1.86 ± 0.09*

* Ref. 5

しない方法⁴⁾によるものとをくらべてあるが一致は良い。3図に示される様に6.72 MeVの方が7.20 MeVよりも ρ_{tr} が広がっている。²⁰Neにおいてshell model計算によると7 MeV付近には0⁺が一つしか出てこないため、もう一つの0⁺は $8p-4h$ 等の寄与が大きい状態であると言われている。最近の¹²C(¹²C α)²⁰Ne⁵⁾の実験によると7.20 MeV(0⁺)の方が $8p-4h$ 的準位である。2つの0⁺の形状因子の差はこれらの事情を反映していると思われるが、今後の理論計算により明らかにされるであろう。又7.43(2⁺)と7.84 MeV(2⁺)はそれぞれ6.72(0⁺)及び7.20 MeV(0⁺)を基とする回転バンドに属すると言われている⁶⁾。この2つの準位の形状因子の間にも大きな差があり多くの情報を含んでいると思われる。特に7.43 MeV(2⁺)の形状因子が4⁺的である事はこの転移電荷密度 $\rho_{tr}^{2+}(r)$ が偶然

$$\int \rho_{tr}^{2+} r^4 dr \simeq 0$$

である事が考えられ、nodeを持っている可能性が強い。

(光延)

参考文献

- 1) 東北大学「核理研研究報告」 Vol. 3, No. 1, No. 2(1970).
- 2) L. I. Schiff, Phys. Rev. **96**, 765(1954).
- 3) A. Nakada and Y. Torizuka, to be published in J. Phys. Soc. Japan.
- 4) P. Strehl and T. H. Schucan, Phys. Letters **27B**, 641(1968).
- 5) R. Middleton, J. D. Garrett, and H. T. Foutune Phys. Rev. Lett. **27**, 950(1971).
- 6) A. E. Litherland, J. A. Kuehner, H. E. Gove, M. A. Clark, and E. Almqvist, Phys. Rev. Lett. **7**, 98(1961).

電子散乱による ^{40}Ca の高励起準位の励起

^{40}Ca の非弾性電子散乱で、励起エネルギー9MeVから15MeV付近の間に観測された約10本のピークの主な励起モードはE3及びE2であること、19MeVを中心とした巾約42MeVの巨大井鳴の形状因子はdiffraction patternを示さず、殻模型 (particle-hole 模型) 又は集団運動模型 (Goldhaber Teller 模型) によるE1励起の理論曲線を実験値から差し引くと、E3の q -依存性を持つ形状因子が得られることについて述べる。

(1) 9~10MeV範囲の励起準位について

図1は入射エネルギー183MeVと250MeVで比較的前方散乱の、輻射補正を行なったスペクトラムで、エネルギー分解能 $\Delta E = 150\text{KeV}$ 間隔に分けたものである。粒子しきい値7MeV以上のスペクトラムは準弾性散乱と井鳴状態とから成っていると考えられる。準弾性散乱の寄与についてのいくつかの理論計算は、準弾性散乱断面積の大まかな形は再現出来るが、井鳴状態と競合する粒子しきい値から巨大井鳴領域では実験を説明出来るまでに至っていない^{1), 2)}。そこで準弾性散乱の寄与を、27MeV付近の連続スペクトラムと7MeVを結ぶ放物線；

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon} = \sqrt{a(E_x - 7.0)} \quad (1)$$

と仮定し、この上に井鳴状態が重なっているとして以下の解析を行なった。

既に報告した様に³⁾、同じ運動量移行 q で後方散乱を行った結果、井鳴状態の横波励起のピークは全て縦波励起と考えられる。励起エネルギー9~15MeVの領域の準位の位置、スピン、パリティ等は今迄よく調べられていなかったが、本実験で、比較的是っきりしたピークが $E_x = 9.4, 9.9, 10.3, 10.8, 11.9, 12.0, 12.6, 13.0, 13.8, 14.6, 15.4, 16.8$ 及び19MeVに見られた。しかし粒子しきい値より励起エネルギーが大きくなれば井鳴状態の数が混んできていわゆる連続状態に近くなることが予想される。実際、上のピークの位置、巾は運動量移行の変化と共に必ずしも一定でなく、いくつかの準位の集まりと見做した方がよい。しかし、その励起

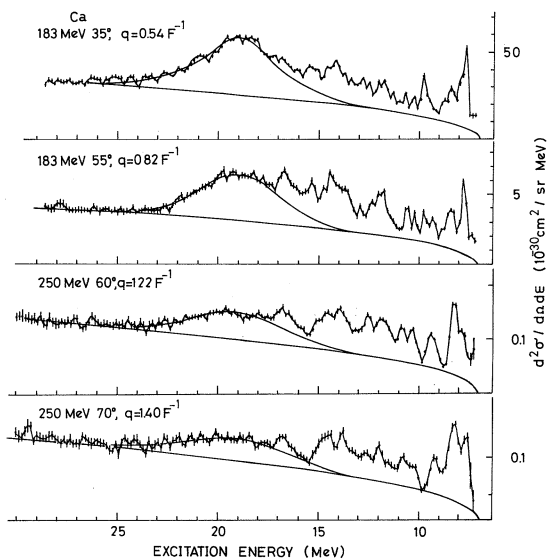


図 1

モードの主成分は考えられよう。今上記のエネルギーを中心としてエネルギー巾を数百keVにとって形状因子を求めてみた。

図2に、とったエネルギー巾を斜線で示し、図3, 4, 5にこの様にして求めた形状因子の例を示した。図3~5でE3の実線は 3_1^- (3.74 MeV)に最もよく合うTassie型 ρ_{tr} を用いた

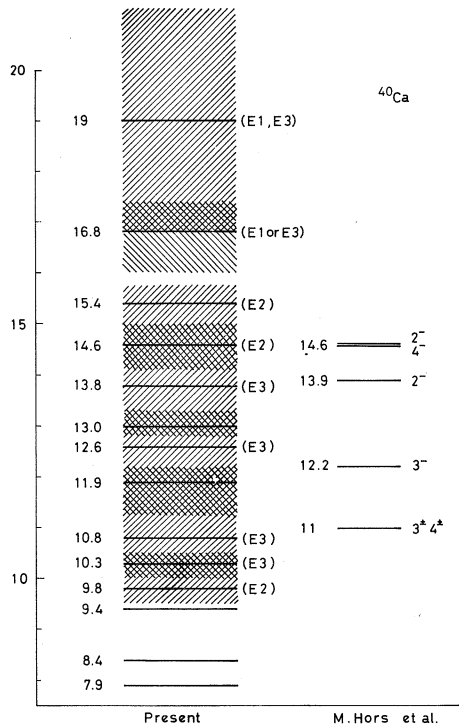


図 2

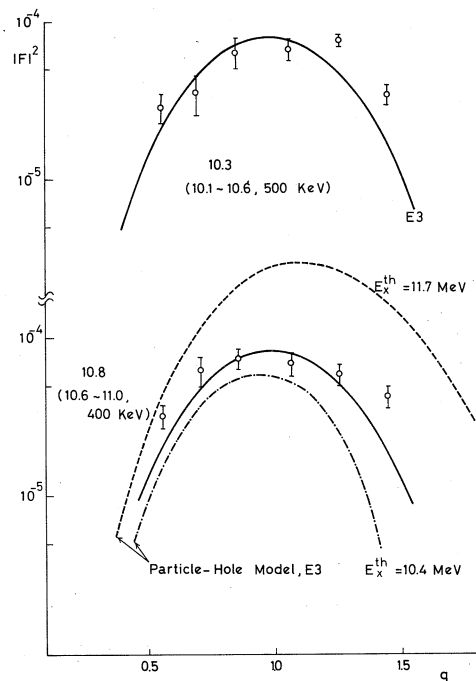


図 3

E3励起曲線⁴⁾で、又E2はTassie模型によるものである。9~15MeVの励起エネルギー範囲ではE3, E2を主成分とするピークが多い。図2の括弧内は主な励起モードを示してある。図3の右側はOrsayでの (e, e') の結果⁵⁾である。

(2) 19MeVピークについて

図1で明らかな様に、励起エネルギー19MeVを中心とした巾広いピークが、測定した運動量移行の全範囲で観測された。詳細に見るといくつかの微細構造を持っている様に見えるが、これらの小さなピークは现阶段でははっきりせず、一つの巾広いピークとして解析した。最近光核反応ではエネルギー分解能が上って、巨大共鳴が十数個のピークから成るとい報告もあるが⁶⁾、それらもやはり全体としては一つの巾広い共鳴状態と見做せよう。

このピークの形状因子を求める方法として、19MeVより高い励起エネルギー側のスペクトラ

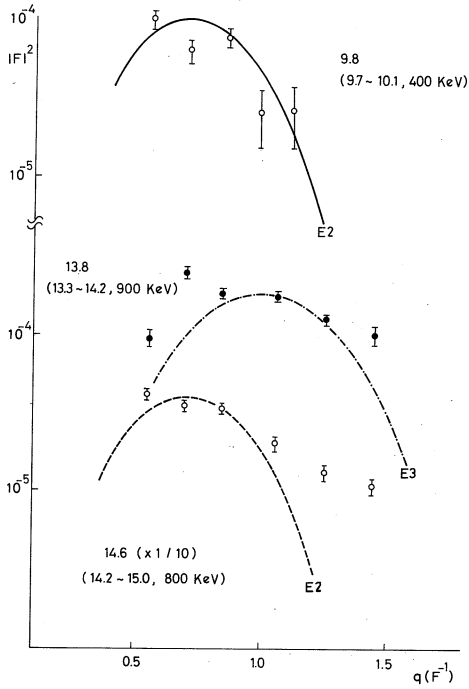


図 4

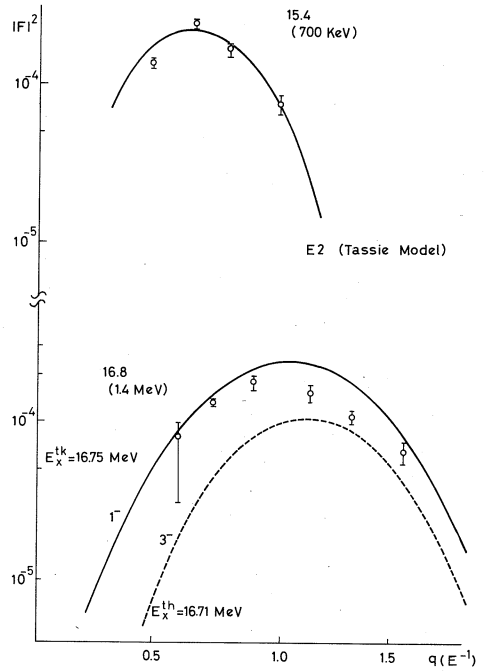


図 5

ムをスムーズ化して、19MeVを対称とした面積から求めた。この時の半値巾は約4.2 MeVで、光核反応の巨大井鳴の中とほぼ一致する。この様にして求めた形状因子を図6に示した。尚前回の報告では27MeV以上の連続スペクトラムの外挿線を用いた為に、19 MeVと16.8MeVピークの形状因子の値が若干変った。

光核反応の巨大井鳴に対応するこのピークの形状因子は図から明らかな様に diffraction patternを示さない。Gillet et al.の1967年版波動関数⁷⁾を用いて計算したparticle-hole模型の、E1縦波励起の形状因子と、Goldhaber Teller模型によるE1励起の計

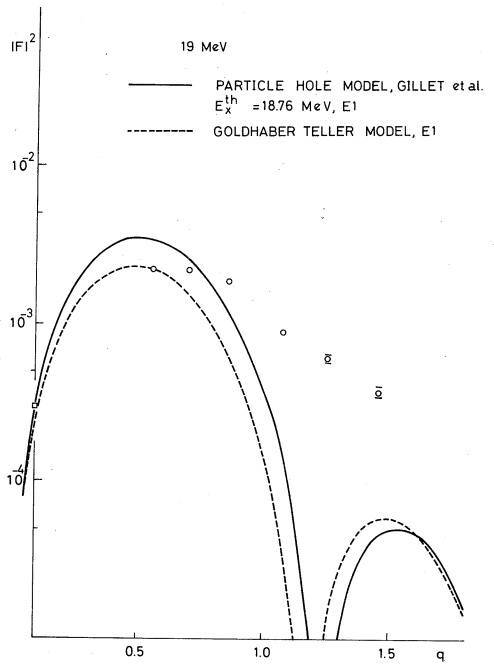


図 6

算値を図中に示した。

G. T. 模型の計算は T. deForest et al. の formalism^{8,9)} を用いた。中性子及び陽子集団 ($N=Z=A/2$) が反対向きに双極振動する時、その相対座標を q_n とすると、転移電荷密度 $\rho_{tr}(\vec{r})$ は

$$\rho_{tr}(\vec{r}) = -\frac{1}{2} \vec{q}_n \cdot \vec{r} \rho_0(\vec{r}) \quad (2)$$

と書ける。 $\rho_0(r)$ は基底状態の電荷分布である。換算行列要素は励起エネルギーを ω とすると

$$|\langle 1 || \hat{M}_1^{coul}(q) || 0 \rangle|^2 = \frac{q^2}{2AM\omega} |\langle 0 || M_0(q) || 0 \rangle|^2 \quad (3)$$

ここで

$$|\langle 0 || M_0(q) || 0 \rangle|^2 = \int \rho_0(r) j_0(qr) r^2 dr$$

従って

$$|F_{dipole}|^2 = \frac{\sqrt{4\pi}}{Z} \frac{q^2}{2AM\omega} \int \rho_0(r) j_0(qr) r^2 dr \quad (4)$$

ρ_0 として、 $c=3.60$, $t=250F$ の Fermi 型の基底状態の電荷分布をとった。(2)式に示すように、G. T. 模型の転移電荷密度は、基底状態の微分形で与えられ、 $E1$ 転移の時は Tassie 模型と同じ形をしている。

殻模型及び集団運動模型の $E1$ 巨大共鳴の形状因子は、同じような q -依存性を示す。実験値から G. T. 模型を差し引いて見ると $E3$ 励起の形をした形状因子が得られる。この大きさは $|F_{max}|^2$ の約 45%, 全体の約 40% を示める。

ところで Isospin 選択則によって、 $N=Z$ 核の $E1$ 転移は $E3$ 類似の q -依存性を示すことが分っている¹⁰⁾。Barker 及び Mann によって、 (γ, p) と (γ, n) の断面積の比から、Isospin mixing の値が求まることが示されている¹¹⁾。 $T=0$ 及び $T=1$ の波動関数の振巾を α_0 及び α_1 , $\alpha_0/\alpha_1 = \alpha$ とすると

$$\frac{\sigma_p}{\sigma_n} = \left| \frac{1+\alpha}{1-\alpha} \right|^2 \quad (5)$$

Segel¹²⁾ は上式から ^{40}Ca に対して $\sigma_p/\sigma_n = 5.21$ を用いて強度比 $\alpha^2 = 0.15$, 即ち 15% の $T=0$ 部分があるとした。これは前述の約 45% の強度比を説明するには小さ過ぎる。従って 19MeV ピークは $E3$ 励起が寄与をしていると考えられる。

^{40}Ca の低エネルギー状態からの全ての $E3$ 励起の形状因子を眺めてみる。 $E3$ 励起の実験値及び particle-hole 模型の $|F_{max}|^2$ を、励起エネルギーを横軸にして図 7 に示した。実験

値の 3_1^- , 3_2^- , 3_3^- の値は以前の実験結果を用いた。又理論値の 3_1^- , 3_2^- は R. P. A. によるもの、他は T. D. A. によるものである。16.8 MeV の点線は E3 励起の q -依存性を示すが、particle-hole 模型によると E1 の可能性もあると考えられるピークである。

particle-hole 模型によると E3 励起準位は数 MeV の

低エネルギー領域から、20.6 MeV まで 18 本に分散しているのに対して実験値は 19 MeV ピークに集中している。

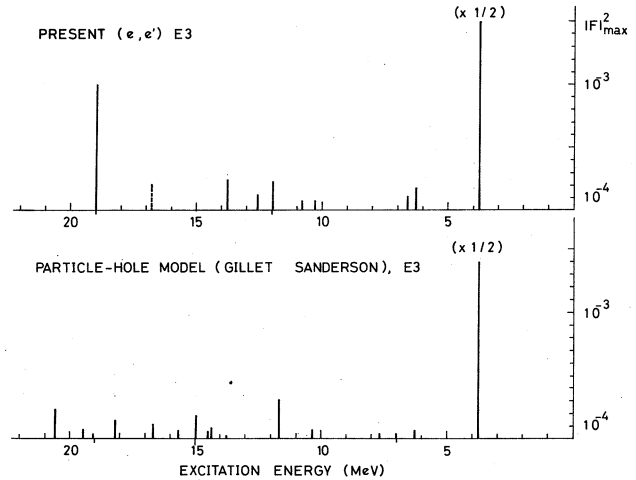


図 7

(伊藤)

References

- 1) T. W. Donnelly, Nucl. Phys. **A150**, 393(1970).
- 2) Y. Yamaguchi et al., Phys. Rev. **C3**, 1750(1971).
- 3) 核理研報告 **4**, No. 1, 7(1971).
- 4) K. Itoh et al., Phys. Rev. **C2**, 2181(1970).
- 5) M. Hors et al., Phys. Lett. **9**, 40(1964).
- 6) C. P. Wu et al., Nucl. Phys. **A147**, 19(1970).
- 7) V. Gillet et al., Nucl. Phys. **A91**, 292(1967).
- 8) T. deForest et al., Advan. Phys. **15**, 1(1966).
- 9) H. Überall, Phys. Rev. **137**, B502(1965).
- 10) Y. Torizuka et al., Phys. Rev. Letters, **22**, 544(1969).
- 11) F. C. Barker et al., Phil. Mag. **2**, 5(1957).
- 12) R. E. Segel, in *Proceedings of the Conference on Isobaric Spin in Nuclear Physics, Tallahassee, Florida, 1966* (Academic Press Inc., New York, 1966)

^{114}Cd , $^{116},^{120}\text{Sn}$ の電子散乱

$^{116},^{120}\text{Sn}$ に引き続いて、 ^{114}Cd の電子散乱実験を行ない、弾性散乱及び非弾性散乱の形状因子を求めた。弾性散乱の形状因子は、基底状態の電荷分布として、Fermi型、3-パラメータ Fermi型、modified Gaussian型を仮定して、phase shift¹⁾により形状因子の2乗 $|F|^2$ を計算し、実験値との χ^2 -fit²⁾により基底状態の電荷分布のパラメータを決定し、 $^{116},^{120}\text{Sn}$ の場合との比較を行った。更に0.56MeV(2⁺)、1.3MeV附近の(2⁺)、1.95MeV(3⁻)、2.31MeV(4⁺)準位への形状因子は、Tassie模型³⁾で与えられる遷移電荷密度を仮定してDWBA⁴⁾のコードDUELSで解析を行なった。その結果第1-2⁺励起準位への遷移電荷密度は ^{114}Cd 、 ^{116}Sn の間で大きな相違があることが明らかになった。

実験

99.2%に濃縮した厚さ50.3 mg/cm²の ^{114}Cd のターゲットを用い、エネルギー幅0.1%、入射電子エネルギー183, 250MeV、散乱角それぞれ35°~55°、35°~100°、運動量移行 $q = 0.6 \sim 1.8 \text{ fm}^{-1}$ の電子散乱実験を行った。図-1に ^{114}Cd 、 $^{116},^{120}\text{Sn}$ の入射電子エネルギー250MeV、散乱角55°の輻射補正後のスペクトラムを示す。

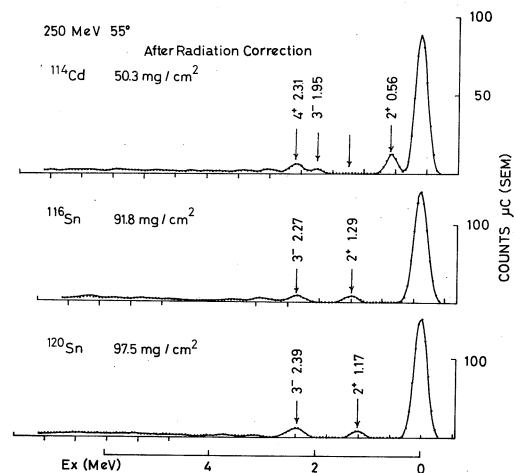


図-1

弾性散乱

基底状態の電荷分布として(1)式の3つの関数形を仮定して、phase-shiftで形状因子(ここで形状因子の2乗は散乱断面積をMott-Cross sectionで割った量と定義する。核の空間的広がりに関する情報は全てこの量に含まれる。)を求め実験値と比較し、基底状態の電荷分布を与えるパラメータ c 、 t 等は250MeV、35°~95°の実験値との χ^2 fitにより決定する。

$$\rho(r) = \frac{\rho_0}{1 + \exp\left(\frac{4A(r-c)}{t}\right)} \quad (\text{Fermi型})$$

$$\rho(r) = \frac{\rho_0}{1 + \exp\left(\frac{r \cdot r - c \cdot c}{z \cdot z}\right)} \quad (\text{Modified Gaussian型})$$

$$\rho(r) = \frac{\rho_0 \left(1 + w \left(\frac{r}{c}\right)^2\right)}{1 + \exp\left(\frac{4A(r-c)}{t}\right)} \quad (3\text{-パラメーター Fermi型}) \quad (1)$$

図-2に ^{114}Cd の 250 MeV の弾性散乱の形状因子を示す。 ^{116}Sn の場合に比較して、 ^{114}Cd では 45° 付近で大きくなり、 95° 付近で急に減少するという特徴を持っており、 $^{116}, ^{120}\text{Sn}$ の場合に基底状態の電荷分布として Fermi 型又は modified Gaussian 型を仮定することにより実験値を良く説明できるという事実と反して、 ^{114}Cd の場合には Fermi 型電荷分布では $\chi^2_{\min} = 8$ となり実験値との一致が悪い。基底状態の電荷分布として、3-パラメーター

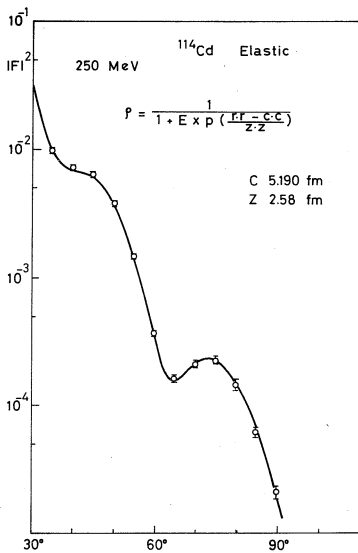


図-2

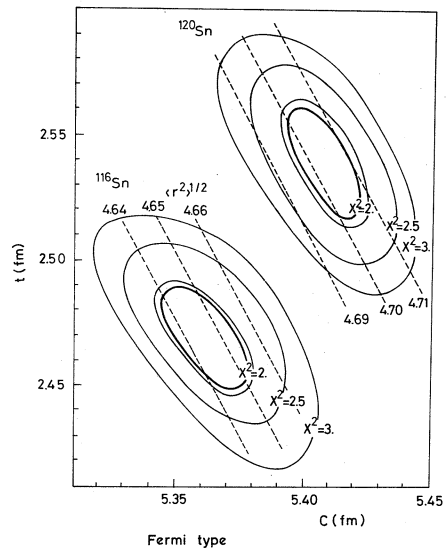


図-3

Fermi 型を仮定しても実験との一致は改善されないが modified Gaussian 型を仮定することにより実験との一致は改善され χ^2 -fit が良くなる。図-2 中の実線は χ^2 -best fit を与える計算結果である。図-3 は基底状態の電荷分布として Fermi 型電荷分

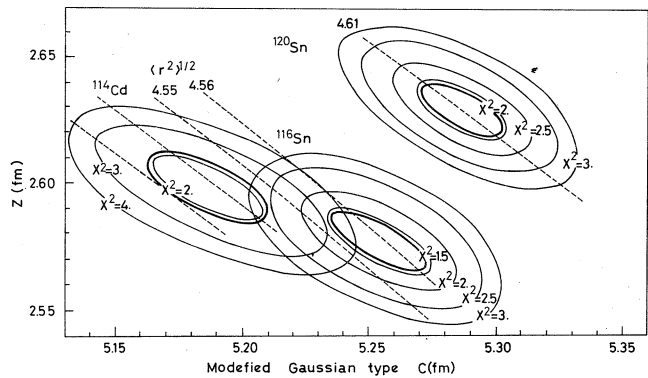


図-4

布を仮定した場合の $^{116,120}\text{Sn}$ の χ^2 -map を示す。図中の太い閉じた曲線は、1 標準偏差を示す。同様に modified Gaussian 型を仮定したときの ^{114}Cd , $^{116,120}\text{Sn}$ の χ^2 -map を図-4 に示す。これらより明らかなように、 $^{116,120}\text{Sn}$ の基底状態の電荷分布は modified Gaussian 型を仮定した方が Fermi 型電荷分布を仮定した場合よりも χ^2_{\min} は小さな値を示す。Fermi 型と modified Gaussian 型の相違は電荷分布の Tail の部分で現われる。(総電荷量を規格化することにより Tail の部分の変化は核の内部の変化となって現われる。)

図-5-a に電荷分布として Fermi

型を仮定した場合と modified Gaussian を仮定した場合におけるそれぞれの χ^2 -best fit を与える電荷分布を示す。核表面附近での様子は両方とも全く同じであり、電荷分布の関数形による相違は Tail の部分で現われる。そしてこれら Tail の部分での相違が χ^2_{\min} の値に反映している。

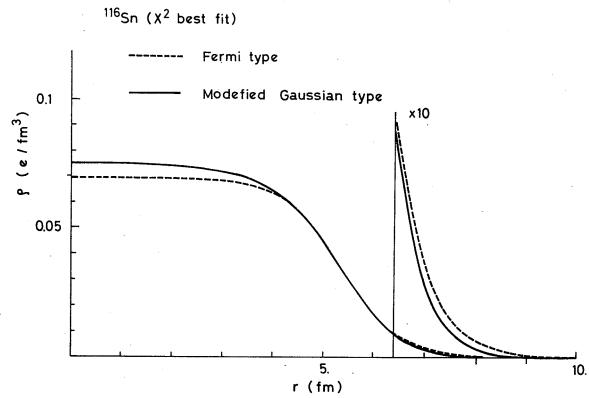


図-5-a

図-5-b に χ^2 -best fit を与える基底状態の電荷分布を示す。

これらの電荷分布の相違を明らかにする為にそれぞれ ^{116}Sn - ^{114}Cd , ^{120}Sn - ^{116}Sn の電荷分布の差をとり $4\pi r^2$ を掛けた量を求めた。それを図-6 に示す。A は ^{116}Sn と ^{114}Cd の差を表わす。これは核表面に 1 個のピークを持ち、陽子の $g_{9/2}$

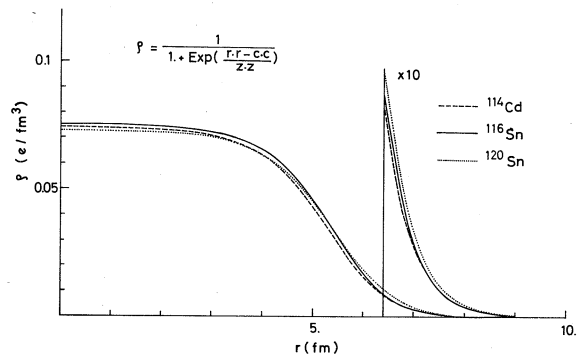


図-5-b

単位の 2 個の陽子の作る電荷分布に対応するものと考えられる。破線は調和振動子型のポテンシャル中の $g_{9/2}$ 単位の 2 個の陽子の作る電荷分布を示す。図より明らかなように、上述のように考えると大体の様子は説明できるが、細かいところは一致しない。B は ^{120}Sn と ^{116}Sn の電荷分布の差を示す。これは中性子数が 4 増加することにより核半径が広がり核内では電荷密度が減少し、核表面に電荷が浸み出すことを示している。ここで図-6 の A, B で表わされる電荷分布の差がどの程度、確からしいかが問題になる。勿論我々の実験から電荷分布の差の細かい構造につ

いて議論することは出来ないが、 χ^2 の1標準偏差の範囲で、A、Bの大体の様子は変わらないことから、これらの電荷分布の差の大まかな様子は有意であると思われる。

非弾性散乱

非弾性散乱の形状因子の解析は、核のShape Oscillationを仮定した流体模型の1つである、

Tassie模型を仮定して遷移電荷

密度を求め、D. W. B. Aで形状因子を計算し実験値と比較した。Collective励起準位への遷移はクーロン相互作用による部分が主で横方向の相互作用による部分は非常に小さく無視することが出来ると言われている⁵⁾。それでこれからの計算では無視することにする。

Tassie模型

核を非圧縮性、非回転性の不均質な液滴と見なして、励起準位をそのShape-oscillationしている状態を考えると遷移電荷密度は基底状態の電荷分布と関係づけられ、次の関係式で与えられる。

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

$$\rho_{tr}(r) = N r^{L-1} \frac{d\rho(r)}{dr} \quad (2)$$

ここで $\rho(r)$ は基底状態の電荷分布であり、 N は実験値と計算値との比較により決定される定数で $B(EL)$ と関係している。

$2^+(0.56) \text{ MeV}$

図-7は $2^+(0.56 \text{ MeV})$ 準位への形状因子を示す。破線は純粋なTassie模型、即ち $\rho(r)$ として弾性散乱により決定した基底状態を使用した場合の計算結果であり、実験値との一致が良くない。それで c, t をパラメータとして適当に変化させて実験値を再現する c_{tr}, t_{tr} を求めた。図-7の

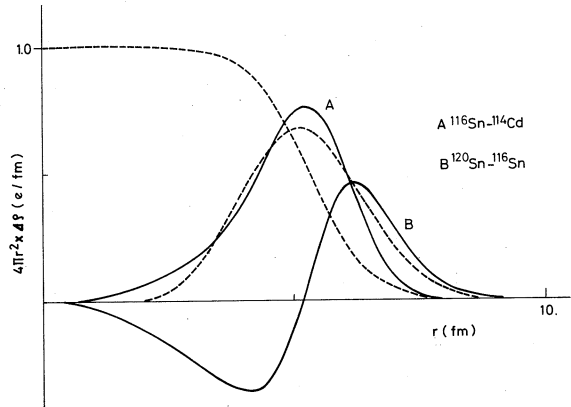


図-6

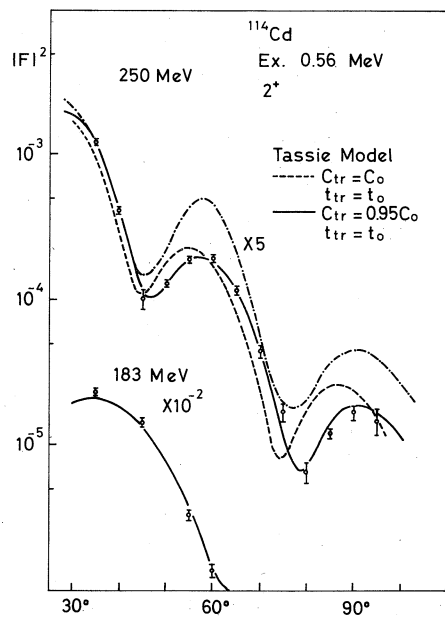


図-7

中の実線は $t_r = t_0$, $c_{tr} = 0.95c_0$ としたときの計算値で実験値との良い一致が得られている。一点鎖線は ^{116}Sn の実験値を5倍したもので、 ^{114}Cd の場合と比較して2番目のピークが大きいという特徴を持っている。この実験値を説明する為には遷移電荷密度が節を持つ必要がある。ところが ^{114}Cd の場合には Tassie 模型、即ち核表面に1個のピークを持つ遷移電荷密度を仮定することにより実験値を説明することが出来る。 $B(E2)$ は single particle unit で29で $^{116}, ^{120}\text{Sn}$ の場合の11に比較して約3倍の大きさを持つ。

$3^-(1.95\text{MeV})$

$^{116}, ^{120}\text{Sn}$ の 3^- の準位は、他の準位との分離が出来ず、純粋な 3^- 準位の形状因子を求めることが出来ない。ところが ^{114}Cd の場合は、図-8に示すように、純粋な 3^- 準位の形状因子を求めることが出来た。 $c_{tr} = 0.9c_0$, $t_{tr} = t_0$ とすると、実験値を説明できる。 $B(E3)$ は single particle unit で20である。

$4^+(2.31\text{MeV})$

2.31MeV 附近のピークの形状因子を図-9に示す。183MeV の実験値の運動量移行 q に対する依存性はこのピークが主に 4^+ であることを示している。250MeV の実験値が計算値と大きく違っているのは、 4^+ 準位以外の準位からの寄与がある為と考えられる。 $B(E4)$ は single particle unit で24である。

$0^+, 2^+, 4^+, 0^+, 2^+(1.3\text{MeV})$

図-10で1.3MeV 附近のピークの形状因子を示す。これは2-phonon 準位の $0^+, 2^+, 4^+$ 及び $0^+, 2^+$ の準位の位置と一致する。183MeV, 250MeV の形状因子の運動量移行 q に対する依存性は 2^+ の様相を示している。点線は0.56MeV 2^+ の実験値を再現する計算値である。 $B(E2)$ は Single-particle unit で2を与える。こ

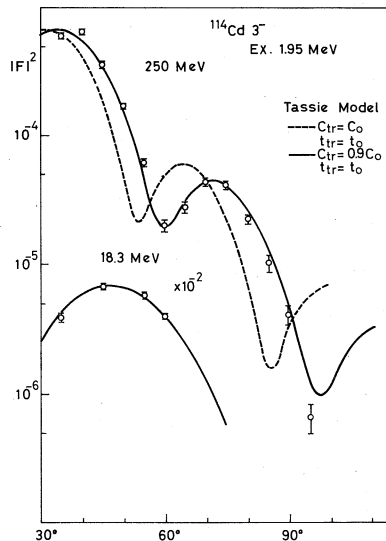


図-8

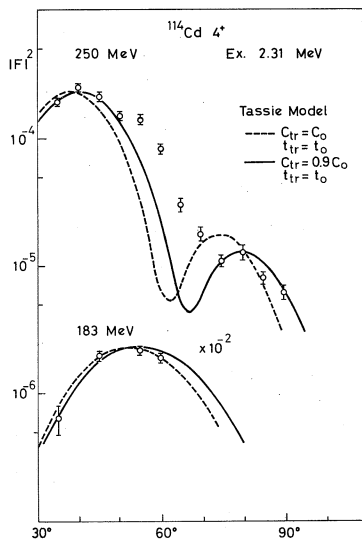


図-9

れは 2-phonon 準位の 2^+ である可能性もあるが、 q 依存性より判断して 2-phonon 準位の 2^+ でないと考えられる。

考 察

図-11-a⁶⁾ は偶-偶核の第 1- 2^+ 励起準位への $B(E2)$ の値がアイソトープ間でどのように変化するかを示す。図-11-b⁷⁾ はその準位のエネルギー位置の変化を示す。Sn アイソトープは陽子数は 50 個で、閉殻を作っており、その結果これらの図から明らかのように Sn の第 1- 2^+ 準位は Cd, Te アイソトープと異なった性質を持つと考えられる。第 1- 2^+ 励起準位を核の shape-oscillation によるものとするならば、上の事実は

次のように考えられる。即ち Sn のアイソトープの場合のように殻が閉殻構造を作ると核が硬くなり、Shape-oscillation による準位の励起エネルギーは高くなる。それと同時に Shape-oscillation が起こりにくくなり、その結果 $B(E2)$ は小さくなる。逆に Cd アイソトープの場合のように陽子 50 個

の閉殻から 2 個の陽子を取り去ると、閉殻構造が崩れ、核が軟かくなる。その結果準位の励起エネルギーが低くなり、 $B(E2)$ が大きくなる。

Tassie 模型では (2) 式で表わされるように遷移電荷密度は基底状態の微分形で与えられるが、核が閉殻構造を持つかどうかという事は規格化定数 N を通してのみ遷移電荷密度に反映される。即ち ^{114}Cd , ^{116}Sn の遷移電荷密度の形は同じでその大きさが約 $\sqrt{3}$ 倍異なるだけであり、このことは実験事実と明らかに矛盾する。ここで (2) 式で与えられる関係式を用いて実験値をうまく説明する遷移電荷密度を与える電荷分布 $\rho(r)$ を求めると ^{116}Sn , ^{114}Cd はそれぞれ

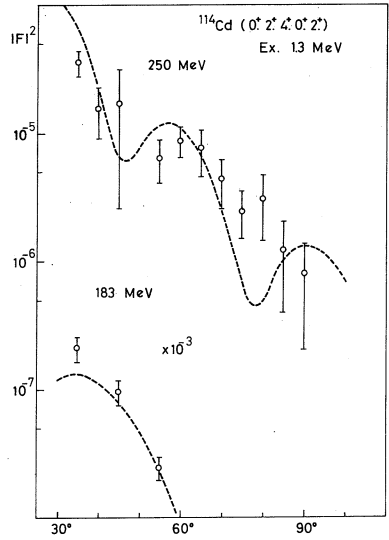


図-10

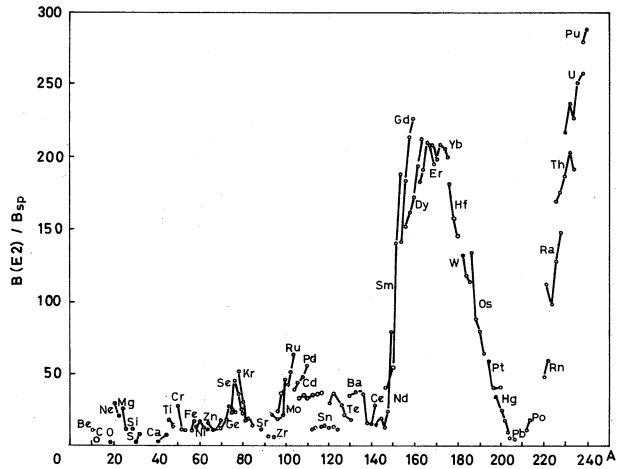


図-11-a

図-12で示される。ここで縦軸の大きさは任意である。このようにして求めた ^{116}Sn の $\rho(r)$ の形は弾性散乱により求めた基底状態の電荷分布の形と大きな相違があり、核の内部ではその差が大きい。いまその差を $\rho'(r)$ とすると基底状態の電荷分布 $\rho_0(r)$ は次の(3)式で表わされる。

$$\rho_0(r) = \rho(r) + \rho'(r) \quad (3)$$

ここで $\rho'(r)$ を遷移に関係しない電荷、即ち硬く動かない部分と考えるならばTassie模形で $\rho(r)$ として基底状態の電荷分布 $\rho_0(r)$ を用いるのではなく遷移に寄与する電荷分布 $\rho_0(r) - \rho'(r)$ を用いるべきである。以上の議論を ^{116}Sn , ^{114}Cd の場合に適応すると ^{116}Sn が陽子の閉殻を作っているということは、ただ単に核全体が硬くなっているということだけでなく、核の内部に硬くて動かない部分が存在していると考えることが出来る。

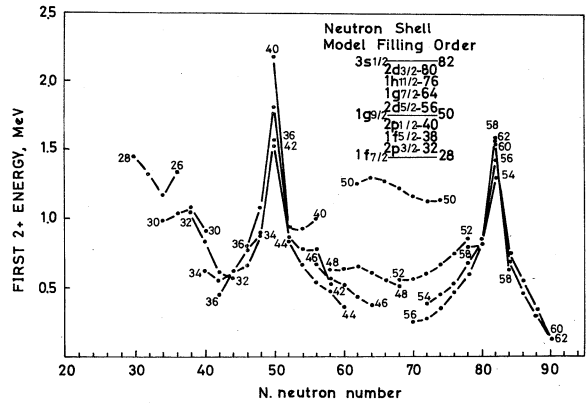


図-11-b

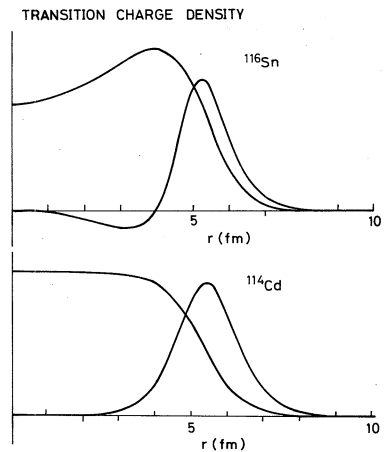


図-12

(細山)

References

- 1) D. R. Yennie et al. Phys. Rev., 92, 978(1953).
- 2) 核理研報告 Vol. 4 No. 1 Sep. 1971.
- 3) L. J. Tassie, Australian J. Phys., 9, 407(1956).
- 4) D. S. Onley, J. T. Reynolds and L. E. Wright, Phys. Rev., 134, B945(1964).
- 5) Chi-Shiang WU, Western Reserve University 1966.
- 6) D. J. Rowe, Fundamentals in Nuclear Theory Chapter 10.
- 7) E. Eichler, Reviews of Modern Physics 37, No. 3.

I - 2 ^{19}F による電子散乱 (II)

理学部物理・核理研*

田中英二・山家 優・遠藤 順政
齋藤 肇・中原和夫*・小山田正幸*
寺沢辰生*

^{19}F の巨大共鳴の構造について、今まで光核反応によって調べられてきたが、データの数そのものが比較的少なく、また電子散乱による測定はまだ行なわれていなかった。

$^{19}\text{F}(\gamma, n)^{18}\text{F}$, $(e, e'p)^{18}\text{F}$ 反応等の放出粒子スペクトルを T-O-F法, magnetic spectrometer等を用い、精度よく測定して、 ^{19}F の巨大共鳴の励起関数を求めたデータもあるが、これらはいずれも100%基底状態転移を仮定して得られたものである。全光核吸収断面積を測定したデータとして、Dolbilkin et al.³⁾およびBezić et al.⁴⁾によって測定されたものがあるが、両者のデータには絶対値および微細構造に相違があり、 ^{19}F の巨大共鳴の構造はまだ明らかでない。それ故、 ^{19}F の巨大共鳴を電子散乱を用いて調べることは大変興味がある。

実験および結果

^{19}F の標的としてテフロン(C_2F_4)_nを用い、入射電子エネルギー $E_0=250\text{MeV}$ 、散乱角 $\theta=33^\circ\sim 80^\circ$ について、散乱電子スペクトルを測定した。テフロン標的は $40\text{mg}/\text{cm}^2$ ($\theta=33^\circ, 40^\circ$)、および $107\text{mg}/\text{cm}^2$ ($\theta=40^\circ\sim 80^\circ$)厚のものを用い、 ^{19}F の励起エネルギーで 15.5MeV まで、 $\theta=33^\circ$ については 32MeV までの散乱電子スペクトルを測定した。

第1図にテフロンおよびグラファイトによる散乱電子エネルギースペクトル($E_0=250\text{MeV}$, $\theta=33^\circ$)を示す。Aはテフロン、Bはグラファイトによるスペクトルで、Bの高さはテフロン中の炭素成分の量に規格化されている。横軸は ^{19}F についての励起エネルギーを表わしている。第1図からわかるように、テフロン標的の中に含まれる炭素成分の寄与は約 $1/5$ であり、又 ^{19}F の巨大共鳴はその領域が広く、且つ顕著な微細構造をもっている。

次に、 $^{19}\text{F}(e, e')$ データと光吸収断面積とを比較検討したい。

光吸収断面積と電子散乱スペクトルとを比較する際には、一、二の注意が必要である。即ち、

光吸収は主に $E1$ 吸収であるが、電子散乱では $E1$ 以外の電氣的或いは磁氣的多重極成分も含まれること、および、電子散乱スペクトルには準弾性散乱の成分が含まれることである。これらの点を考慮して、全光吸収断面積を形状因子の形に換算し、電子散乱スペクトルと比較することにより、 ^{19}F の巨大共鳴の微細構造の性質を明らかにすることが期待できる。

光核吸収は圧倒的に核の伝導電流によって起るので、長波長近似では、光吸収断面積は電荷行列要素で書き表わせる。この時、電子散乱の Coulomb 形状因子は $q \rightarrow k$ の極限で、

$$|F_{C\lambda}(q)|^2 \underset{q \rightarrow k}{\approx} \frac{4\pi}{Z^2} \cdot \frac{k}{(2\pi)^3 \alpha} \cdot \frac{1}{\lambda+1} \int \sigma_{E\lambda}(\omega) d\omega \quad (1)$$

となる。ここで q は電子の運動量移行、 k は共鳴エネルギー、 $\sigma_{E\lambda}$ は電氣的 2^λ 重極光吸収断面積である。(1)式の右辺の積分は一つの吸収線について行なわれる。

形状因子の q -依存性を次のように仮定する。

$$|F_{C\lambda}(q)|^2 = (\beta_\lambda j_\lambda(qR) e^{-\frac{1}{2}q^2 R^2})^2 \quad (2)$$

これは、 $q \rightarrow k$ ($kR \ll 1$) のとき、

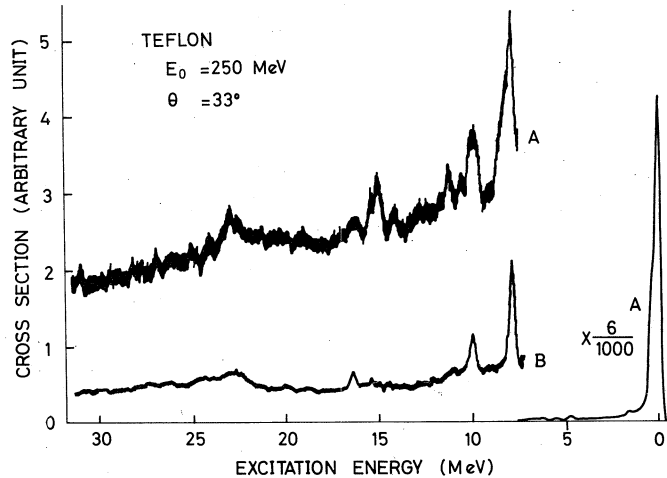
$$|F_{C\lambda}(q)|^2 \underset{q \rightarrow k}{\approx} \left[\beta_\lambda \frac{(kR)^\lambda}{(2\lambda+1)!!} \right]^2 \quad (3)$$

となるから、(1)式と(3)式との比較から、(2)式の β_λ は

$$\beta_\lambda^2 = \frac{4\pi}{Z^2} \cdot \frac{1}{(2\pi)^3 \alpha} \cdot \frac{k}{(kR)^{2\lambda}} \cdot \frac{\lambda[(2\lambda+1)!!]^2}{\lambda+1} \times \int \sigma_{E\lambda}(\omega) d\omega \quad (4)$$

となる。一方連続スペクトルの場合、微分形状因子を

$$\frac{d}{d\omega} |F_{C\lambda}(q, \omega)|^2 = \frac{d^2 \sigma}{d\Omega d\omega} / \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{Mott}} \quad (5)$$



第1図 テフロン(A)及びグラファイト(B)による散乱スペクトル。Bの高さはテフロン中の炭素成分の量に規格化されている。横軸は ^{19}F についての励起エネルギーを示す

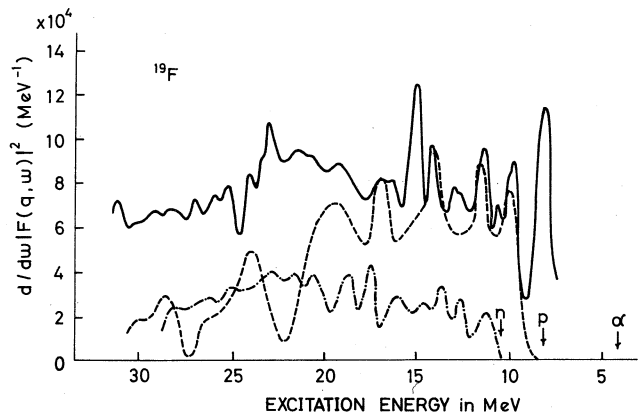
と定義することができる。この量は(4)式を励起エネルギー ω で微分することにより、

$$\frac{d}{d\omega} |F_{C\lambda}(q, \omega)|^2 \approx \frac{4\pi}{Z^2} \cdot \frac{1}{(2\pi)^3 \alpha} \cdot \frac{\lambda [(2\lambda+1)!!]^2}{\lambda+1} \\ \times \frac{\sigma_{E\lambda}(\omega)}{\omega^{2\lambda-1} R^{2\lambda}} (j_\lambda(qR))^2 e^{-q^2 g^2} \quad (6)$$

となる。

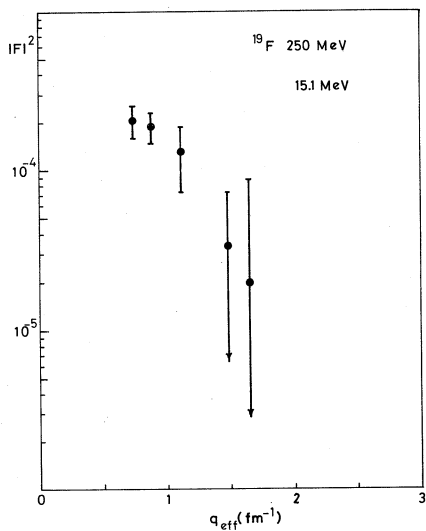
ここで、 ^{19}F の光吸収が $E1$ のみによるとき、 ^{19}F 1.35 MeV準位の $C3$ 形状因子によく合うように決めた値 $R = 3.1 \text{ fm}$, $g = 1.0 \text{ fm}$ を用いることにより、全光吸収断面積を微分形状因子の形にかくことができる。

第2図は ^{19}F による散乱電子スペクトルと Dolbilkin および Bezić による全光吸収断面積を夫々目でみながら smooth化したものを基に計算した微分形状因子とを示したものである。実線は ^{19}F による散乱電子スペクトル、点線と一点鎖線は夫々 Dolbilkin と Bezić とによる全吸収断面積である。矢印はアルファ粒子、陽子および中性子の閾値を示す。

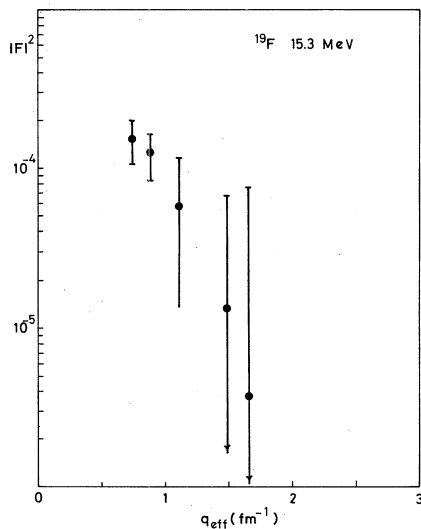


第2図 ^{19}F による散乱電子スペクトル(実線)と全光吸収断面積(Dolbilkinの測定値は点線, Bezićのは一点鎖線)の微分形状因子。矢印は α , p , n の閾値

巨大共鳴の約10 MeVから15 MeVまでの励起エネルギー領域には微細構造がみえるが、ここではDolbilkinの光吸収とわれわれの電子散乱による励起関数の絶対値がほぼ一致している。特に、10.0-, 11.4-, および14.0-MeVピークは互いにより一致がみられる。従って、これらのピークは、Dolbilkinのデータを信頼するならば、 $E1$ 励起によるものと考えられる。15 MeV近傍のピークは光吸収断面積にはみえない。したがって、このピークは $E1$ 以外の励起であると考えられる。15 MeV近傍には15.0-と15.3-MeVの二つのピークがあり、夫々について、形状因子を図示したのが、第3および第4図である。図からわかるように、これらのピークは主に $M1$ 励起と考えられる。しかし、 $M1$ だけとするには、運動量移行が大きくなる部分で、急激に下がっていないので $E2$ 成分も含まれると考えられる。これらのピークについては、今後形



第3図 ^{19}F の $E_x = 15.1\text{ MeV}$ ピークに対する $|F|^2 = 6(\text{exp})/6(\text{Mott})$



第4図 ^{19}F の $E_x = 15.3\text{ MeV}$ ピークに対する $|F|^2 = 6(\text{exp})/6(\text{Mott})$

状因子の縦成分と横成分とを分離できるように実験を行ない、夫々の寄与を調べたいと考えている。

1.06 -, 1.30 -MeV ピークについては、光反応データの誤差を考慮すると、今のところ何とも言えない。

全光吸収断面積の絶対値についてみると、Dolbilkin のデータと Bezić のデータの間には約 $2/3$ の相違がある。さらに、Dolbilkin のデータは 2.2 MeV 付近で急激に小さくなっているが、これは我々のデータとも異なり、又 Bezić のデータとも異っている。電子散乱に特有の準弾性散乱の寄与、或いは $E 1$ 励起以外の成分の寄与等を検討する際にも、信頼のおける全光吸収断面積が測定されることが望まれる。全光吸収断面積と散乱電子スペクトルとを総合的に検討することにより、巨大共鳴の構造は一層明らかになるであろう。

尚、我々の測定した励起関数には 20 MeV から 33 MeV までの間にもいくつかのピークがみられる。これらのピークについても、今後の実験でその再現性を調べたいと考えている。

参考文献

- 1) K. Kageyama, M. Mishina, E. Tanaka, and N. Mutsuro; to be published.
- 2) W. R. Dodge and W. C. Barber; Phys. Rev. **127**(1962)1746.

- 3) B. S. Dolblikin, V. A. Zapevalov, V. I. Korin, L. E. Lazareva,
and F. A. Nikolaev; Izv. Akad. Nauk. Fiz. **30**(1966)349.
- 4) N. Bezić and D. Brajnik, D. Jamnik, and G. Kernel; Nucl.
Phys. **A128**(1969)426.
- 5) T. deForest and J. D. Walecka; Advances in Phys. **15**(1966)1.

I-3 ^{27}Al による電子散乱 (I)

核 理 研 ・ 理 学 部 物 理 *

寺 沢 辰 生 ・ 中 原 和 夫 ・ 小 山 田 正 幸
齊 藤 肇 * ・ 田 中 英 二 * ・ 山 家 優 *
遠 藤 順 政 *

^{27}Al 核に関しては古くから数多くの実験的及び理論的研究がなされているが、その構造に関してはいまだにすっきりした解答が得られていない。 ^{27}Al 核は $s-d$ 殻に核子が半分満たされた附近に位置しており、この附近で $s-d$ 殻原子核の基底状態の変形は prolate (^{26}Mg) から oblate (^{28}Si) に転移すると考えられている¹⁾。したがって、現在までのこの核の低励起状態に関する研究の多くでは ^{26}Mg あるいは ^{28}Si を core と考え、この core の運動と odd-proton (或いは proton hole) との結合状態の強弱を論じている。それによると、 ^{27}Al 核の低励起準位は、Stripping 反応や pick-up 反応から得られる Spectroscopic factor に関しては強結合的な性質を示し²⁾、準位のエネルギー³⁾、非弾性散乱の断面積⁴⁾、電磁的転移確率⁵⁾ などに関しては弱結合の様相を示している。 ^{27}Al による非弾性電子散乱の実験は以前に、Lombard et al.⁶⁾ によって励起エネルギー 3 MeV 以下の準位に対して行なわれている。彼等は実験から γ 線転移確率を求め、回転模型及び弱結合模型と比較した。こゝでもやはり弱結合模型が実験結果の説明に有利である。

今回の我々の実験の目的は、精度の向上により ^{27}Al 核に関して、上述の二つの異った見解の間をつなげるような新しい情報を得ることにある。たとえば、運動量移行 q の高い領域での形状因子のふるまいは、 γ 線転移や q の低い領域での電子散乱実験では得られなかった情報 (多重極度の高いモードの励起など) が得られる可能性がある。今期の実験で我々は入射電子エネルギー 250 MeV で励起エネルギー 8 MeV (一部は約 15 MeV) までの準位の形状因子を測定した。今回は、弾性散乱及び、 $0.84\text{MeV } \frac{1}{2}^+$ 、 $1.10\text{MeV } \frac{3}{2}^+$ 、 $2.21\text{MeV } \frac{7}{2}^+$ 、 $2.73\text{MeV } \frac{5}{2}^+$ 、 $3.00\text{MeV } \frac{9}{2}^+$ 、 $3.68\text{MeV } \frac{1}{2}^+$ の各準位に対する非弾性散乱について得られた結果を報告する。

実 験 及 び 結 果

標的として 27.4mg/cm^2 (散乱角 $35^\circ, 40^\circ$)、 81.7mg/cm^2 ($50^\circ \sim 80^\circ$)、 163.9mg/cm^2

cm² (90°以上) のアルミ箔を用い、入射電子エネルギー250MeV、散乱角35°~120°の範囲で、²⁷Alの励起エネルギー約8MeV(一部は~15MeV)までの散乱電子スペクトルの測定を行った。ターゲットには約0.8%Feが含まれているが、測定された形状因子に対する影響は実験誤差に対して無視できる。散乱角60°で得られたスペクトルを図1に示す。エネルギー分解能は約0.12%である。

同時に、106mg/cm²のグラファイト標的を用いて¹²Cのスペクトルを測定し、弾性散乱及び4.44MeV準位からの非弾性散乱から相対的に²⁷Alの各準位の形状因子を求めた。0.84MeVと

1.01MeV準位及び2.73MeVと3.00MeV

準位のピーク分離は、輻射補正後のピークの形をガウス形として最小自乗法により観測値を再現するように合成して行った。得られた形状因子の値は図2~図8に示されている。

先に述べたように、²⁷Alの低励起準位の電磁的性質は弱結合モデルによって良く説明されることが知られている。弱結合の極限での原子核の状態は

$$|J_c j, JM\rangle = \sum_{M_c, m} (J_c M_c j m | JM) \times |J_c M_c\rangle |j m\rangle \quad (1)$$

で与えられる⁷⁾。ここにJ_c, jはcore及びodd-particleの角運動量であり、coreとodd-particleの間の反対称化は行なわれていない。

このように仮定すると電子散乱の形状因子は、

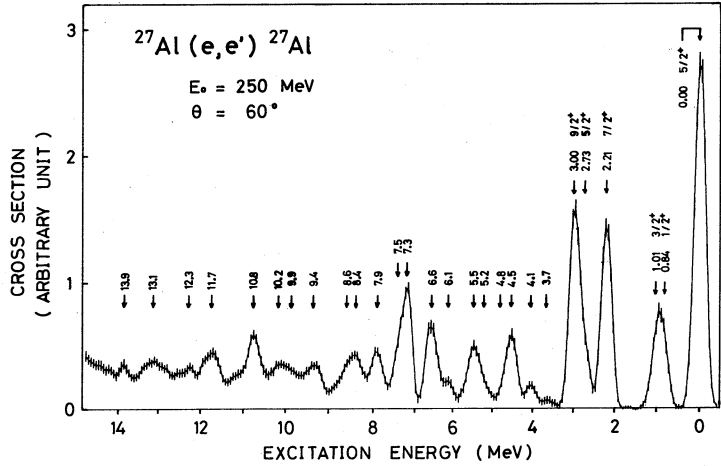


図 1

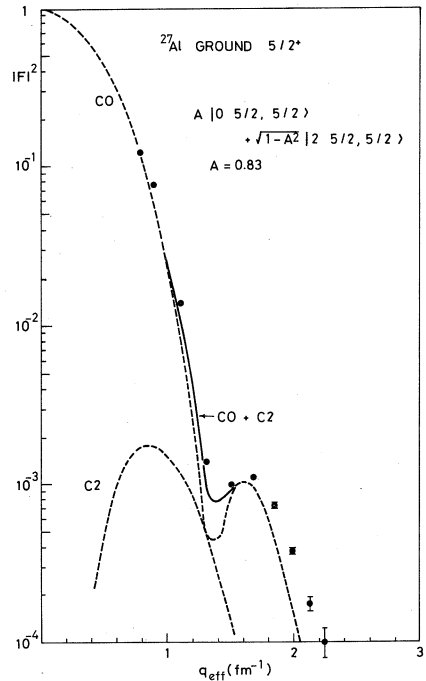
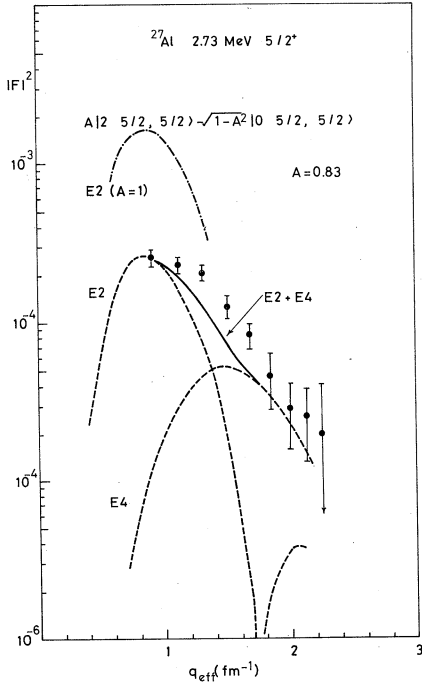
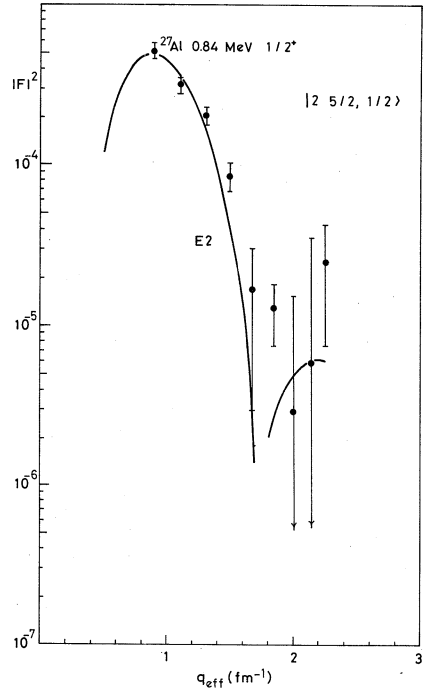


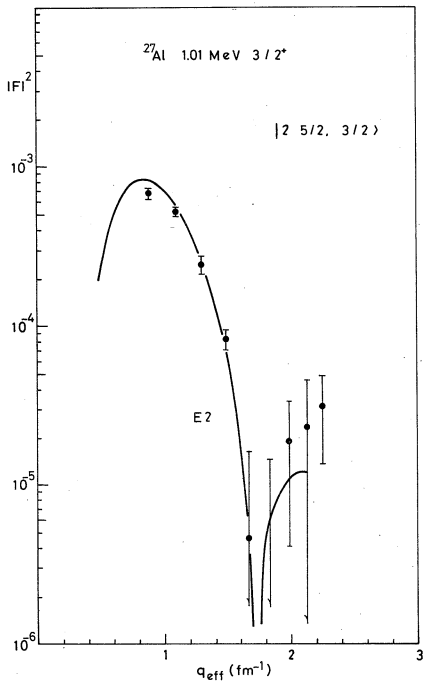
図 2



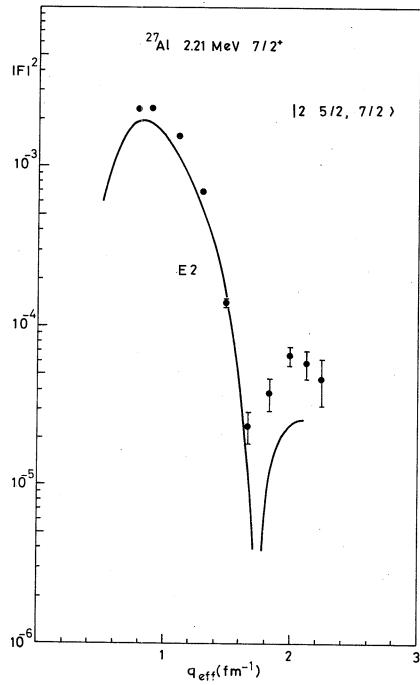
☒ 3



☒ 4



☒ 5



☒ 6

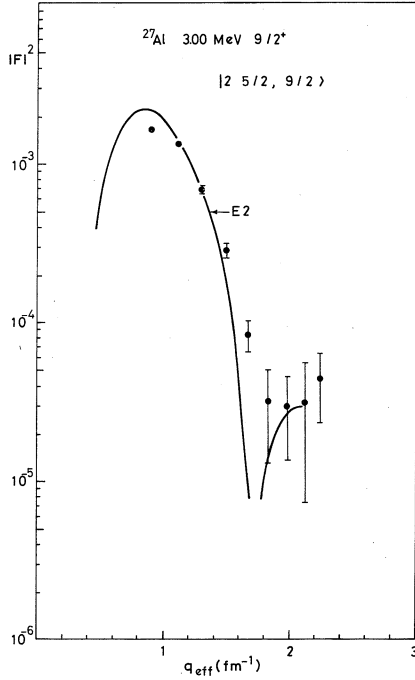


図 7

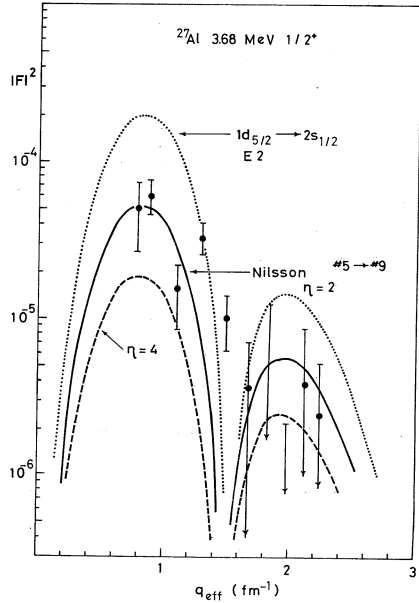


図 8

coreの部分と odd-particleの部分に分けて書くことができる。coreの状態として我々は ^{28}Si の基底状態及び $2^+(1.78\text{MeV})$ 励起状態を仮定した。このように仮定した主な理由は ^{28}Si の低励起準位に対する電子散乱実験が以前に核理研で行なわれ、上記の状態に対する形状因子の値が実験的に得られているからである⁸⁾。

またcoreの 2^+ 状態の静的な4重極能率及び16重極能率は零と仮定した。またodd-particle(この場合はproton hole)の部分の形状因子はcore励起が禁止される場合のみ調和振動子波動関数を用いて計算した。

(j) 基底状態及び $2.73\text{MeV } \frac{5^+}{2}$ 準位

図2に弾性散乱, 図3に 2.73MeV 準位に対する非弾性散乱の弱結合模型での形状因子の値が示されている。図2で C_0 は ^{28}Si の弾性散乱形状因子, C_2 はodd-particleの状態を $(d_{5/2})^{-1}$ と仮定して計算した4重極部分である。基底状態と 2.73MeV 準位の間にはcore-particle couplingを仮定した。これは $\frac{5^+}{2}$ 励起準位のエネルギーを実験値と一致させるためにThankappanによって以前に指摘されたもので, γ 線転移に於ても 2.73MeV から基底状態への $E2$ 転移の強さを弱結合模型で説明するために必要であることが知られている。図3で明らかのように, $A=1$ はcouplingのない場合で実験値はこの値に較べかなり低い。

Thankappanはエネルギー準位の計算から $A = 0.9088$ という値を得た。我々の実験から得た値は $A = 0.83$ で彼の理論値に較べいくぶん小さくなっている。

図3に示された2.73MeV準位の形状因子で注目すべきことは運動量移行が大きくなっても、 $|F|^2$ はゆっくりと減少している点である。このことはtransverse部分の寄与を示しているとも考えられるが、他の準位の形状因子がきれいなlongitudinal E2の形を示していることから、E2の他にE4転移が強くまざっている可能性が強い。我々の仮定ではE4転移はodd-particleからの寄与によるものであるが、この状態を $(d_{5/2})^{-1}$ としてE4形状因子を計算すると図3で示されたような値になり、実験値をかなり良く再現する。このことからcoreの 2^+ 状態の静的16重極能率の大きさは、ただか単一粒子による値と同程度と考えられる。

(ii) 0.84MeV $\frac{1}{2}^+$, 1.01MeV $\frac{3}{2}^+$, 2.21MeV $\frac{7}{2}^+$, 3.00MeV $\frac{9}{2}^+$ 準位

図4～図7に示されたこの4つの準位の形状因子は、 ^{28}Si の1.73MeV 2^+ 準位へのE2形状因子と同様の q -依存性を示し、coreの励起によるものと考えられる。各準位に対する形状因子の大きさは弱結合模型で良く説明される。形状因子の形からE2以外のモードは弱いと考えられ、coreの状態はかなり純粋な 2^+ であると思われる。

(iii) 3.68MeV $\frac{1}{2}^+$ 準位

測定された形状因子(図8)の大きさは0.84MeV $\frac{1}{2}^+$ 準位の形状因子に較べ絶対値の自乗で1桁小さい。従ってこの準位への転移はodd-particleの状態の変化によって起るものと考えられ、coreと結合しているodd-particleの性質を研究するうえで重要な準位である。我々はodd-particleの励起として $(1d_{5/2})^{-1} \rightarrow (2S_{1/2})^{-1}$ 及びNilsson orbit #5→#9(強結合を仮定)の2通りの計算を行なった。結果は図8に示されているとおり、 $\eta = 2$ とした場合のNilsson模型が最も実験値に近い。

結 論

今回の電子散乱実験の結果を解釈するにあたって、我々は二つの異った見解を同時に持たなければならぬようである。 ^{27}Al の低励起準位のうち、集団運動的励起と思われるものに対しては、弱結合模型は q の高い領域に於ても明らかにうまくいっていると考えられる。これに反して、3.68MeV準位の形状因子はprolateに変形した ^{26}Mg coreとodd-protonとの強結合という、Spectroscopic factorの解析から得られた結論²⁾をうらづけている。

この困難を解決するには、より多くの情報が必要である。形状因子のtransverse部分の測定や、より励起エネルギーの高い準位の測定、 ^{26}Mg に対する電子散乱形状因子の測定などから

そのような情報が得られることを期待している。

文 献

- 1) J. Bar-Touv and I. Kelson, Phys. Rev. **138**, (1965)1035.
- 2) W. Bohne et al., Nucl. Phys. **55**(1964)386.
- 3) V. K. Thankappan, Phys. Rev. **141**(1966)957.
- 4) G. M. Crawley and G. T. Garvey, Phys. Lett. **19**(1965)228.
- 5) D. Evers et al., Nucl. Phys. **A91**(1967)472.
- 6) R. M. Lombard and G. R. Bishop Nucl. Phys. **A101**(1967)601.
- 7) A. de-Shalit, Phys. Rev. **122**(1960)1530.
- 8) 核理研研究報告 Vol. 3 No. 2(1970)15.

I-4 (γ, p) 反応による中重核・重核の研究

核理研 庄田勝房・斎藤悌二郎
宮瀬晴久・及川 四郎
鈴木厚人・上柿 順一

今期の実験は shell model がよく成立つと思われている ^{208}Pb を前回に引続いて研究した。 (γ, p) 反応は isobaric analogue state の研究に有効である事は以前から述べてきた通りで今回の研究もこの立場から実行された。

変型核の isobaric analogue state はその energy 間隔が小さい為 (p, p) 等の粒子反応では研究が困難であったが, photon により励起される dipole state の間隔は一般に広い事を利用すればより明確な研究が可能である。今期の実験結果もこの可能性を裏づけている。

この他中重核の代表とも考えられる Ni isotope の実験も開始した。

§1 $^{208}\text{Pb}(\gamma, p)$ 反応 (その2)

今回は放出 Proton 角度 $\theta_p = 125.3^\circ$ で実験を行ない, 残留核 ^{207}Tl への Proton Emission mode を研究した。その結果は ^{208}Pb の $E1$ IAS 状態に含まれる P -particle N -hole 状態に関する Decay として理解できる事が分った。前回示した様に Proton Spectrum ($\theta_p = 90^\circ$) の例 (図-1) に於て, $E1$ IAS ($\approx 25\text{MeV}$) 以上の Energy の Electron で照射した proton spectrum には特徴的な Structure が存在している事が見られ

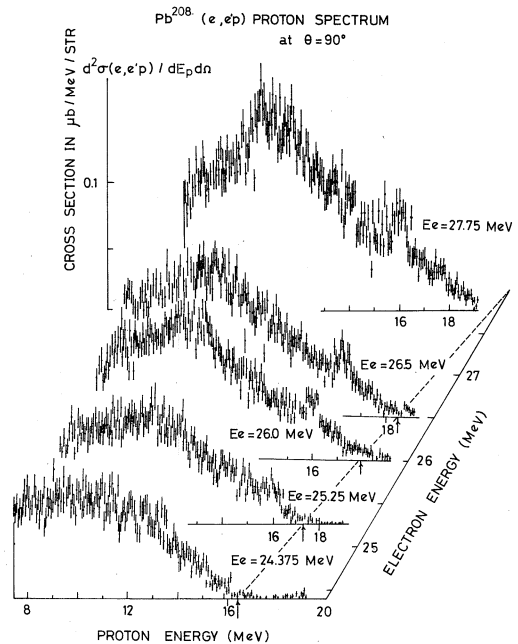


図-1

る。この特徴的な Structure は之をはさむ Energy の Electron 照射による Spectrum の差引き (Photon Difference Method) により調べる事ができる。25.0 MeV \leq $E_e \leq$ 26.6 の Spectrum の和 (= ㉔), 23.0 MeV \leq $E_e \leq$ 24.0 の Spectrum の和 (= ㉕), ㉔-㉕及び、これに対応する Equivalent Photon Spectrum を (図-2) に示した。²⁰⁸Pb の Photo Excitation による E1 IAS が理論的にも予想されている 25 MeV 附近から、このような Proton Group が生じている事がわかる。これをより定量的に調べるために、定まった Proton Energy E_p の Proton Yield を E_e を変数として Plot する所謂 "Isochromat" を図-2 の ㉑~㉖の部分について行なった (図-3 参照)。

この Proton Yield Curve から得られる Cross Section $\sigma^{(r,p)}(E_x, E_p)$ (..... 線) は定まった E_p に対する Photo Cross Section と考えられる。いずれの Proton Group も Photo Excitation Energy $E_x \approx 25$ MeV に Proton Yield の Peak を持つ事がわかる。実験精度から考えて $\sigma^{(r,p)}(E_x, E_p)$ の正確な形を求める事は困難であるが、Resonance の大きさ、及びその位置の概算値は求められる。この結果から得られた ²⁰⁷Tl への Branching Ratio の Histogram を図-5 の上部に示した。ここで残留核 ²⁰⁷Tl の Excitation

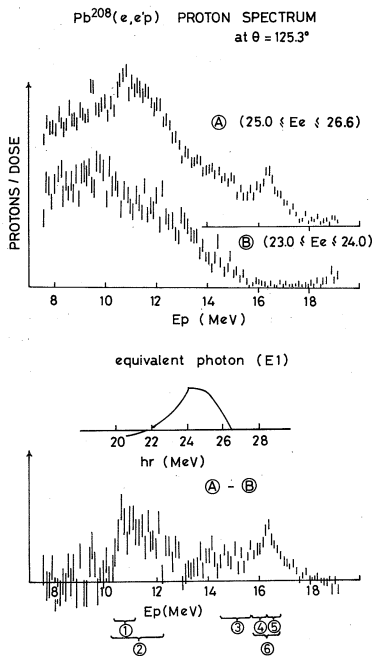


図-2

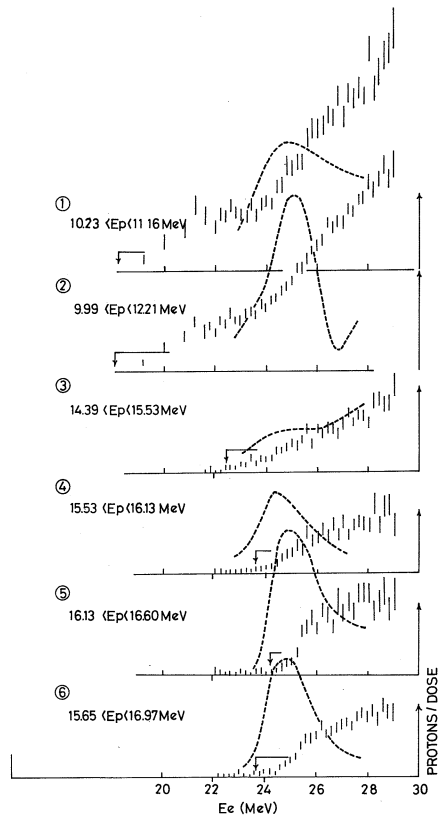


図-3

Energyは ^{208}Pb E1 IASの位置 E_A を
 25MeVとして決定した。この結果は
 Analogue State Configuration
 に関するProton Emission
 として考える事が出来る。(図-4)上部参
 照。 ^{208}Tl をParent Stateとする、
 E1 IASのConfigurationは

$$T_- |g_{9/2}, h_{11/2}^{-1}\rangle \text{と} T_- |i_{11/2}, h_{11/2}^{-1}\rangle$$

の二つの可能性があり、計算によると各々 $E_{A1} = 25.2\text{MeV}$, $E_{A2} = 25.8\text{MeV}$ 又、
 Radiative Width $\Gamma_r^{A1} = 370\text{ eV}$, $\Gamma_r^{A2} = 70\text{ eV}$ とEstimateされている¹⁾。又
 Proton放出後の残留核 ^{207}Tl のExcitation EnergyはUnperturbedの
 Single Particle Energy²⁾から計算した。これから $E_{A1} \approx 25\text{MeV}$ として放出
 Proton Energy E_{PA} がEstimateされる。得られたCross SectionがSingle
 Resonanceであるとすれば

$$\int_{E_{PA}-\Gamma_P^A}^{E_{PA}+\Gamma_P^A} \int_{E_A-\Gamma_A}^{E_A+\Gamma_A} \sigma(r,p)(E_x, E_p) dE_x dE_p \propto \frac{\Gamma_r^A}{E_A^2} \cdot \frac{\Gamma_P^A}{\Gamma_A}$$

の比例関係がある。ここで Γ_r^A はRadiative Width, Γ_P^A は各Decay Channelに
 対応するProton Partial Widthである。Single Particle Estimateで、
 核子が半径 R の球内に一様に分布しているとすれば、Reduced Widthは定数であるから、

$$\Gamma_P^A \propto (2j+1) \cdot T_l(E_P^A)$$

(T_l はPenetration factor)³⁾

が成立する。これに Γ_r^A を2つのIASに対するWeightとしてかけた数値を(表1)に、又そ
 の図を(図-5)の下部に示した。IASのConfigurationはproton放出に反映されて
 いると考えれば ^{208}Pb , ^{209}Bi のIASからのproton放出を次の様にestimateする事が
 出来る。

$$\begin{aligned} |^{208}\text{PbのIAS}\rangle &= \frac{T_-}{\sqrt{2T+2}} |^{208}\text{Tl}\rangle \\ &= \frac{T_-}{\sqrt{2T+2}} | \nu j, \pi j r^{-1} \cdot ^{208}\text{Pb} \rangle \\ &= \frac{1}{\sqrt{2T+2}} | \pi j (\pi j r^{-1} \cdot ^{208}\text{Pb}) \rangle \end{aligned}$$

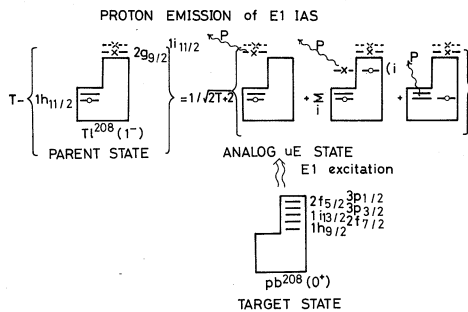


図-4

表1. MODE of PROTON EMISSION

channel	excitation energy of Tl^{207} (MeV)		$(g_{9/2} h_{11/2}^{-1}$ IAS 25.0 MeV) assumed	
			energy of Proton (MeV)	Partial width (arbitrary)
$g_{9/2}$	1.34		15.6	15
$i_{11/2}$		1.34	16.4	0.7
$p_{1/2}$	4.78	5.58	12.2	3 0.7
$f_{5/2}$	5.35	6.15	11.6 左	3 0.7
$p_{3/2}$	5.67	6.47	11.3 右	4 0.8
$i_{13/2}$	6.41	7.21	10.6 同	0.3
$f_{7/2}$	7.12	7.92	9.9 じ	2 0.3
$h_{9/2}$	8.25	9.05	8.7	0.3
	$(g_{9/2} h_{11/2}^{-1})$ IAS	$(i_{11/2} h_{11/2}^{-1})$ IAS		

$$\begin{aligned}
 & + \frac{1}{\sqrt{2T+2}} \sum_i |\pi j_i(\nu_j^{-1}, \nu_j, \\
 & \quad \pi j^{-1} {}^{208}Pb) \rangle \\
 |{}^{209}Bi \text{ の IAS} \rangle & = \frac{T_-}{\sqrt{2T+1}} |{}^{209}Pb \rangle \\
 & = \frac{T_-}{\sqrt{2T+1}} |\nu_j, {}^{208}Pb \rangle \\
 & = \frac{1}{\sqrt{2T+1}} |\pi j({}^{208}Pb) \rangle \\
 & + \frac{1}{\sqrt{2T+1}} \sum_i |\pi j_i(\nu_j^{-1}, \nu_j, \\
 & \quad {}^{208}Pb) \rangle
 \end{aligned}$$

上式中 () で示される configuration が残留核の状態を示すと考えれば ${}^{208}Pb$, ${}^{209}Bi$ の場合の残留核の相異は j のちがい及び j^{-1} の

有無である。これにもとづく energy のちがいを unperturbed energy として求め、之を両原子核の場合について補正して比較したのが図5の下部である。同図の上部に示す実験結

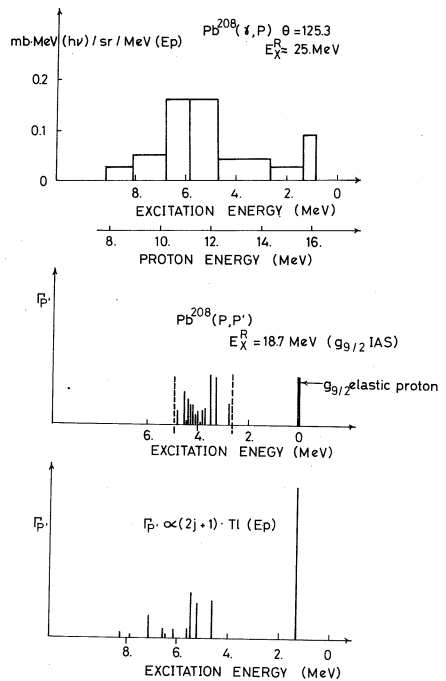


図-5

果はこれらに合うと考えられる。

(及川)

References

- 1) Z. B. Douer and J. Hufner, Phys. Lett. Vol. 32B, No. 4, 253.
- 2) Bohr and Mottelson, Nuclear Structure Vol. 1, 325.
- 3) Morrison, Nuclear Graph and Table.
- 4) P. Richard et al, Phys. Rev.(to be published).

§2 変形核の Isobaric Analog State (I)

変形核の isobaric analog state の研究は主に proton elastic, inelastic scattering によってなされているが, まだその歴史は浅く data の数は 10 を越えていない。

一般に odd- A (質量数) 変形核の低エネルギー励起状態のレベル間隔は非常に狭く 50 keV 以下である。これに対して isobaric analog state の total 幅は 100 ~ 150 keV の order であるので (p, p) や (p, p') の実験 data から個々のレベルを分離することは難しく, 正確な解析は困難をきたす。

一方現在の electron を使った実験では相互作用が明確で, その主な寄与は使用したエネルギー範囲では $E1$ 相互作用であると考えられるので数多くの isobaric analog state のうち \vec{J}^{π} (target の基底状態 spin-parity) + $\vec{1}^{-}$ の spin-parity を持つ state のみが選択励起されるので state 間のエネルギーは resonance が分離可能の大きさとなり isobaric analog state のより深い研究が可能になると思われる。

今回は ^{181}Ta , ^{155}Gd の実験結果について報告する。

1 $(e, e'p)$ differential cross section

Fig. 1 に測定した $(e, e'p)$ differential cross section を示す。

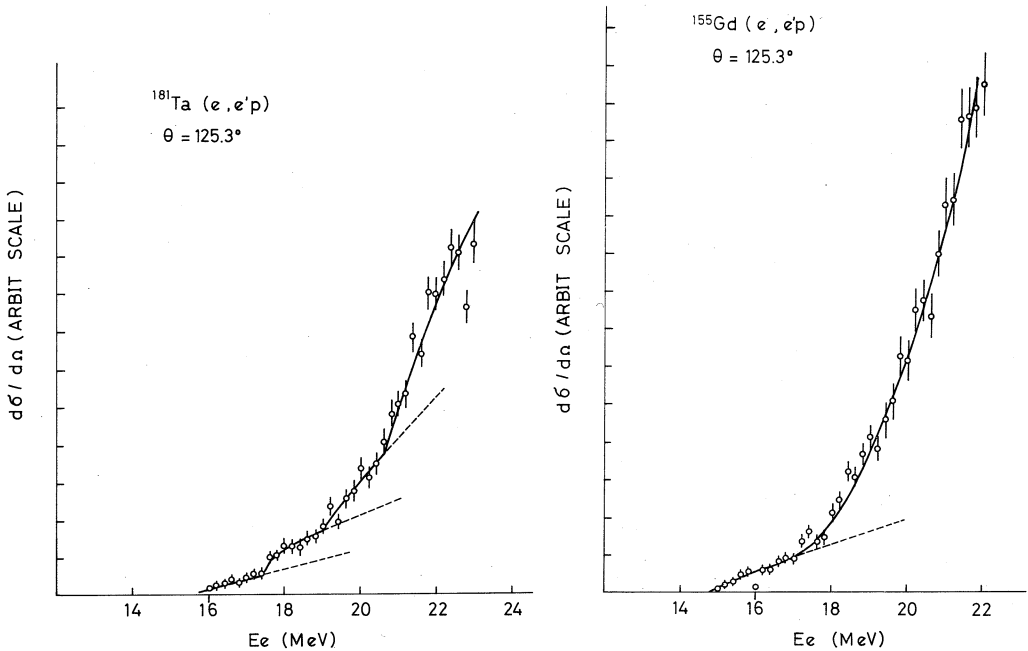


Fig. 1

§ $^{181}_{73}\text{Ta}_{108}$

^{181}Ta の基底状態は $7/2^+$ の J^π を持つので 1^- 変化で出来る低励起状態の isobaric analog state の J^π は $5/2^-$, $7/2^-$, $9/2^-$ である。 $^{180}\text{Hf}(d, p)^{181}\text{Hf}^1)$ によると $7/2^-$, $5/2^-$ の intrinsic state は基底状態からそれぞれ, 0.67, 1.64MeV の位置にあることが知られており, これらの isobaric analog state は electron エネルギー18.31, 19.28MeVで励起される。よって第1, 第2の break はこれらの状態に対応しているものと考えられる。一方 $9/2^-$ の intrinsic state は (d, p) では assign されていない。もしこの理由が $9/2^-$ state が high angular momentum state である為であるとすれば, Nilsson model による estimation から $9/2^-$ は $7/2^-$ と $5/2^-$ との間に存在するはずである。現在の実験で第2の break が broad な group を示しているので, この中に含まれている可能性がある。この事は radiative width を求めることによってさらにはっきりすると思われる。第3の break は ground isobaric analog state から3MeV以上の高励起状態にあるので, この break に対応する配位は複雑になると考えられる。 T (isospin) upper の coherent state energy を isospin splitting の式²⁾ $60 \times (T+1)/A$ を用いて estimate すると20.9MeVに位置する筈で break の位置をよく合う。(ただし T lower coherent state の位置は giant resonance の重心14.8MeVとした。)

§ $^{155}_{64}\text{Gd}_{91}$

^{155}Gd では1つの broad な break が得られる。ground isobaric analog state は15.6MeVでこの state への遷移は Alaga 規則³⁾で禁止される為に, hinder される。さらに ground isobaric analog から $\sim 1\text{MeV}$ までの state は proton state である為, $(e, e^i p)$ では励起出来ない。これらの事は現在の実験結果と一致する。しかし, $\sim 17.5\text{MeV}$ の break については, この data だけではまだその状態を決定する事は困難である。

2 Coulomb displacement energy

Fig. 1 の ^{181}Ta の data から, 第1の break ($7/2^-$) は17.6MeVに存在する。これから coulomb displacement energy ($\equiv \Delta E_c(\delta)$ δ は変形パラメータ) を計算すると16.7MeVになる。一方 Anderson et al⁴⁾ が球形近傍核の analog state の実験 data から導いた式では $\Delta E_c(0) = 17.4\text{MeV}$ である。よってここに $\Delta E_c(0) - \Delta E_c(\delta) \cong 0.7$ が得られる。核の変形による coulomb displacement energy の変化は変形核における isobaric analog state の実験の興味ある問題の1つであって, その変

化の詳細は知られていない。今、核の電荷が回転楕円体内に一様に分布していると coulomb displacement energy の球形核からのずれは $\Delta E_c(0) - \Delta E_c(\delta)$
 $= \frac{4}{45} \delta^2 \Delta E_c(0)^5$ で与えられる。 ^{181}Ta において $\delta \approx 0.3$ とすれば $\Delta E_c(0) - \Delta E_c(\delta)$
 $\cong 0.14\text{MeV}$ になるが、この結果だけでは現在の実験を説明することは出来ない。

以上変形核に関する実験は来期も引き続き行なり予定である。

(鈴木)

参考文献

- 1) F. A. Rickey et al, Phys. Rev. 170(1968)1157.
- 2) R. O. Akyuz et al, Phys. Rev. Lett. 27(1971)1016.
- 3) G. Alaga, Nucl, Phys, 4(1957)625.
- 4) J. D. Anderson et al. Phys, Rev, 138(1965)B615.
- 5) M. H. MacFarlane, Isobaric spin in nuclear Physics
Tallahassee(1966)399.

§3 Ni isotope

Niのdipole resonanceについては, K. Min et al¹⁾やB. I. Goryachev et al²⁾の (γ, n) の実験があり, 又, B. S. Ishkhanov et al³⁾の (γ, p) , E. M. Diener et al⁴⁾の inverse reactionがある。更に理論面ではDynamic Collective TheoryやOpen-Shell Random Phase Approximation等に依ってiso-spin splittingのstructureが示されている。しかし, これらの理論にしても実験の集積がおもわしくなく, 更に多くのdataが必要と思われる。我々は⁵⁸Ni, ⁶⁰Ni, ⁶²Niのenriched isotopeを用い, (γ, p) reactionに依って $T_0 + 1$ のdipole resonanceの測定に着手した。実験のmain partは次期に持越されたので次期の報告でまとめる事とする。 (宮瀬)

参考文献

- 1) K. Min et al, Phys. Rev. Letters, **21**, (1968), 1200.
- 2) B. I. Goryachev et al, S. J. N. P. **11**, (1970), 141.
- 3) B. S. Ishkhanov et al, S. J. N. P. **11**, (1970), 272.
- 4) E. M. Diener et al, Phys. Rev. C, **3**, (1971), 2303.

I-5 $^{31}\text{P}(\gamma n)$ 反応

理学部物理・教養部*

川村暢明・坪田博明*・遠藤順政

齋藤 肇・三宅正伸・岡崎行男

§1 序 文

我々は ^{31}P と ^{27}Al のPhotoneutronのエネルギースペクトルを測定して両者のdecay modeがかなり異っていることに気付いた。そこでこれら二つの核のphotoneutron放出過程をより詳しく調べるため bremsstrahlung の最大エネルギーを変えてエネルギースペクトルを測定した。

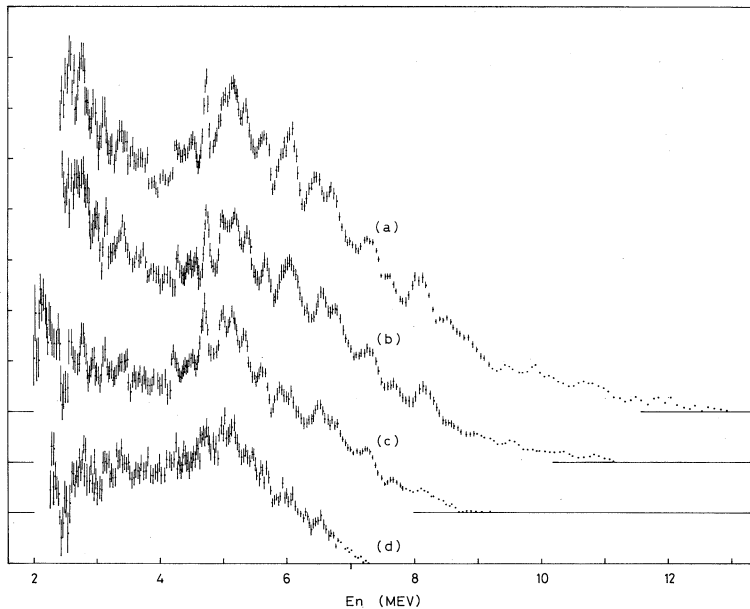
我々は特に (γn_0) 過程に興味をもって実験を行ったが、エネルギースペクトルから n_0 をとりだすためには brems の最大エネルギーを残留核の第1励起状態(^{30}P の場合は0.7MeV, ^{26}Al の場合は0.23MeV)のエネルギー以下のstepで変えなければならない。しかし実験時間の都合でそれが不可能なため、とりあえず広い領域にわたって、大体のdecay modeを知るため入射電子のエネルギーを20MeVより26MeVまで2MeVのstepで変えて測定した。 ^{31}P のデータは現在解析中であるのでこゝでは簡単な考察を述にとどめる。 ^{27}Al については未だ解析に手がつけられていないため実験結果のみを報告する。

§2 実験結果及び考察

1) $^{31}\text{P}(\gamma n)$ 反応

第1図に $E_{\gamma \text{ max}} = 2.0, 2.2, 2.4$ 及び26.0 MeVで得たスペクトルを示す。

第1図で20MeVと22MeVのスペクトルは互いに良く一致しているが、24MeVと26MeVのスペクトルを比較してみると、high energy partに ^{30}P のlow lying excited stateへtransitionしたものであると思われるpeakがある。更に20MeV及び22MeVのスペクトルに比べてlow energyになる程neutronが増大しているのはhigher excited state transitionの連続的なエネルギー分布をもった部分が重なっているためである。これらの事情をもっと明確にするため、20MeVと22MeVのスペクトルから、全てがground state transitionであると仮定して (γn_0) の断面積を求めた(第2図)。



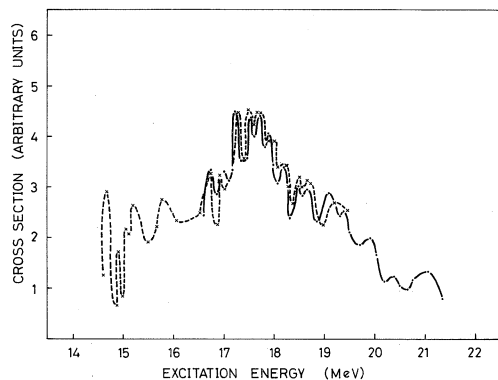
第1図 $^{31}\text{P}(\gamma n)$ エネルギースペクトル

- (a) $E_{\gamma \text{ max}} = 26.0 \text{ MeV}$, (b) $E_{\gamma \text{ max}} = 24.0 \text{ MeV}$
 (c) $E_{\gamma \text{ max}} = 22.0 \text{ MeV}$, (d) $E_{\gamma \text{ max}} = 20.0 \text{ MeV}$

点線で書いたものは $E_{\gamma \text{ max}} = 20 \text{ MeV}$ のスペクトルから得た (γn_0) の断面積で、実線は 22 MeV のものである。

両者は $19.1 \sim 19.5 \text{ MeV}$ の所で normalize して重ね合わせてあるが、きわめて良く一致している。これは 20 MeV から 22 MeV までの範囲の励起状態から放出される neutron は、殆ど全てが ground state transition をすることを意味しており、従って 20 MeV 以下の励起状態から放出された neutron についても ground state transition が predominant であると考えて良いであろう。

我々の測定では、brems の最大エネルギーを 20 MeV 以下に下げなかったので、 $E_{\gamma \text{ max}} = 20 \text{ MeV}$ のスペクトルの low energy part の neutron が ground state transition のものであるかどうか確認できなかったが、以上の理由から第2図は相当良い



第2図 $^{31}\text{P}(\gamma n_0)$ 反応断面積

精度で $^{31}\text{P}(\gamma n_0)$ 反応の励起曲線を表わしていると考えられる。McDonald et al¹⁾ 及び Bolen, Whitehead²⁾ によると (γn) 反応の全断面積は 20 MeV 以上の励起エネルギーの領域の方がむしろそれ以下の領域よりも大きい strength をもっている。これに対して、我々の (γn_0) 反応の断面積は 17 ~ 18 MeV に peak をもつ resonance となっており、20 MeV 附近、またはそれ以上の励起エネルギーでは小さな fraction しかない。これは 20 MeV 以上の resonance は主に core 内の $1d_{5/2}$ または $1p$ -shell の neutron が励起されたものであり、そのために残留核を励起状態に残す様な transition が主になっていることを示している。先に述べた様に 24 MeV 及び 26 MeV の brems によるスペクトルで low energy neutron が多くなっていることと high energy neutron の放出がおさえられている様にみえることも同じ理由によるものであろう。

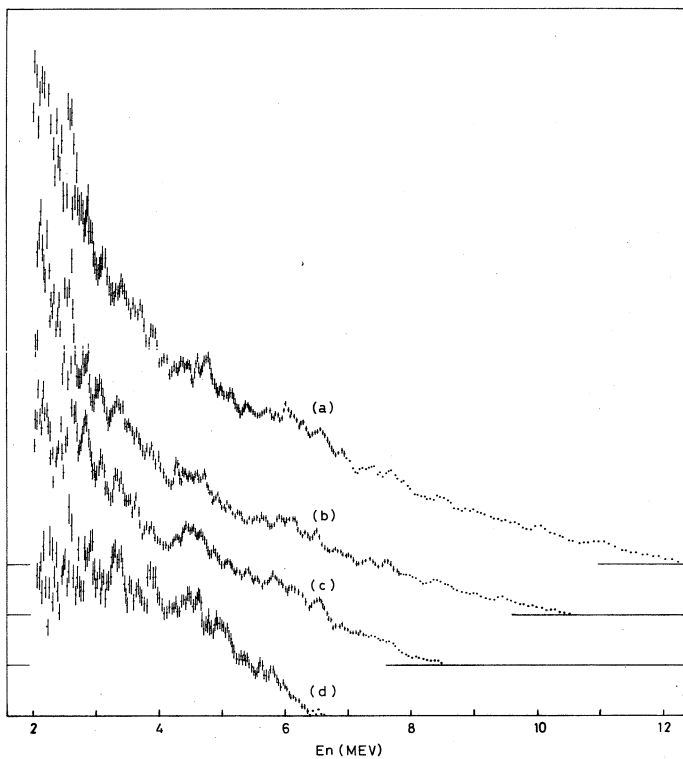
これに対して、17 MeV ~ 18 MeV に resonance の中心をもつ (γn_0) 反応は core の外側の shell ($2S_{1/2}$ または $1d_{3/2}$) の neutron が主に寄与している。即ち $^{31}\text{P}(\gamma n)$ 反応の resonance では、これら二つのタイプの transition がエネルギー的にかなり明確に split して分布していると考えられる。

2) $^{27}\text{Al}(\gamma n)$ 反応

第 3 図は ^{27}Al の photoneutron スペクトルである。 ^{27}Al の場合は ^{31}P と比べて structure があまり明らかでないが、その中で peak と確認できるものを取り上げてみると Table 1 (第 2 列) の様になる。Table 1 の第 3 列は ground state transition を仮定したときの ^{27}Al の励起状態のエネルギーである。4 ~ 6 列には、これまで報告されている $^{27}\text{Al}(\gamma n)$ 反応の giant resonance の structure のエネルギーを与えてある^{3) 5)}。structure の位置及び strength は夫々のデータで多少差があるが、gross structure を形成している group を A ~ H の行にまとめて、対応をつけてある。

第 3 図からわかる様に、 $\text{Al}(\gamma n)$ の場合は excited state transition が非常に強く、そのため peak が不明確になっているが、2.2 MeV 以上のスペクトルで 3.08 MeV と 4.30 MeV に明らかに excited state transition のものと思われる peak があるが、詳細な点については未検討の段階である。

最後に、実験中、核理研マシングループの方々に大変御協力をいただきました。またデータ処理のプログラミングに際して、計測グループの方々に大変御世話になりました。ここで御礼申し上げます。



第3図 $^{27}\text{Al}(\gamma n)$ エネルギースペクトル

(a) $E_{\gamma \text{ max}} = 26.0 \text{ MeV}$, (b) $E_{\gamma \text{ max}} = 24.0 \text{ MeV}$
 (c) $E_{\gamma \text{ max}} = 22.0 \text{ MeV}$, (d) $E_{\gamma \text{ max}} = 20.0 \text{ MeV}$

Table 1

	present	data	Fults et al ³⁾	Thompson et al ⁴⁾	Mutsuro et al ⁵⁾
	E_n (MeV)	E_{exc} (MeV)			
A	2.60	15.76	15.7	15.6	15.75
B	2.97	16.14		16.1	
C	3.34	16.53	16.4	16.4	
	3.44	16.63			
D	3.90	17.11	17.0	17.0	17.1
E	4.50	17.73	17.7	17.6	18.25
	4.66	17.79			
	5.00	18.25			
	5.40	18.67	18.2	18.1	
	5.60	18.88			
5.80	19.08	(19.0)	(19.1)	19.1	
F	6.20	19.50	20.0	19.6	
G	6.56	19.87	21.5	21.2	20.5
	6.94	20.27			
	7.40	20.74			
	7.62	20.97			
H	8.40	21.78	22.0	22.4	22.5
	9.45	22.87			

References

- 1) W. J. McDonald et al, Can. J. Phys, **41**, 180(1963).
- 2) L. N. Bolen and W. D. Whitehead, Phys. Rev. **132**, 2251(1963).
- 3) S. C. Fultz et al, Phys. Rev. **143**, 790(1966).
- 4) M. N. Thompson et al, Nucl. Phys. **64**, 486(1965).
- 5) N. Mutsuro et al. J. Phys. Soc. Japan, **17**, 1672(1962).

II. 物性物理部門

II-1 Va 族遷移金属-水素系侵入型合金の規則構造

金 研

浅 野 肇
平 林 真§1 Ta-D系侵入型規則格子の規則-不規則変態¹⁾

前回, $TaD_{0.72}$ の室温での中性子回折実験を行ない, Ta の格子間位置に固溶した重水素原子の規則構造を報告した。²⁾ この物質の熱分析の結果から, $TaD_{0.72}$ には室温以上で三つの相, 即ち $60^{\circ}C$ 以下の β_1 相, $60^{\circ}C$ と $103^{\circ}C$ の間の β_2 相, $103^{\circ}C$ 以上の α 相が存在することが確かめられた。又 X 線回折によると, 金属格子は β_1, β_2 相では単斜晶 ($a=b=3.39\text{\AA}$, $c=3.45\text{\AA}$, $\gamma=89.5^{\circ}$),* α 相では立方晶 ($a=3.40\text{\AA}$) である事がわかっている。今回は β_2 相と α 相の結晶構造を決定する為に, $80^{\circ}C$ と $130^{\circ}C$ で中性子回折を行なった。

測定は約 150g の粉末試料を 0.1mm 厚の Al 薄で作った $5\text{cm}\times 5\text{cm}\times 1\text{cm}$ の直方体の箱につめて, アルゴンガスを充たした高温クライオスタット中に行なった。カウンターは $2\theta=158^{\circ}$ 系を使用した。各温度での測定時間は約 4 時間であった。

$80^{\circ}C$ (β_2 相) の測定結果を図 1 に示す。各反射は $a=3.44\text{\AA}$ の立方晶で指数付けでき

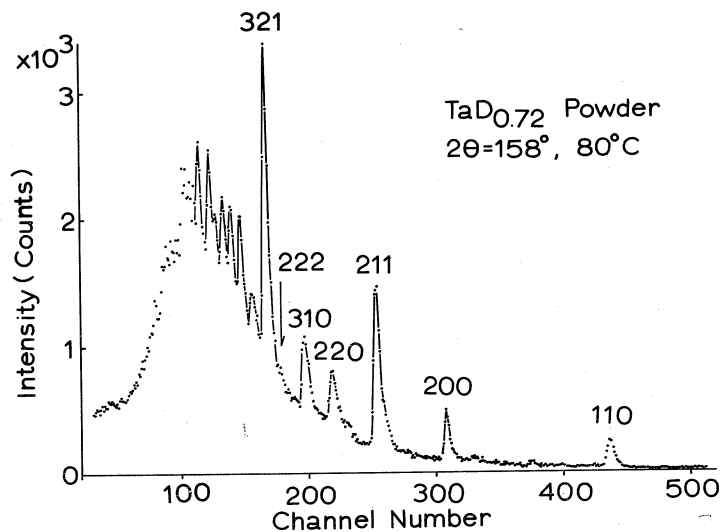


図 1

* 中性子回折実験では, X 線回折に比べて分解能が悪い為, 回折図形は $a=b\neq c$, $\gamma\neq 90^{\circ}$ の pseudocubic で指数付けできる。

$h+k+l=2n$ の反射だけが観測されている。これらの反射は基本格子反射であって、室温(β_1 相)で観測された規則格子反射は観測されていない。130°C(α 相)での測定でも強度は少し異なるがほぼ同様の回折図形が観測された。

これらの測定結果を説明する為、次の様な構造が考えられる。 β_2 相ではTa原子は(000, $\frac{1}{2}$ $\frac{1}{2}$ $\frac{1}{2}$)位置に存在し、D原子は4つの四面体格子間位置($\frac{1}{2}$ 0 $\frac{1}{4}$, $\frac{1}{2}$ 0 $\frac{3}{4}$, 0 $\frac{1}{2}$ $\frac{1}{4}$, 0 $\frac{1}{2}$ $\frac{3}{4}$)に占有確率0.36で分布した構造、又 α 相ではTa原子は(000, $\frac{1}{2}$ $\frac{1}{2}$ $\frac{1}{2}$)位置に存在し、D原子は12ヶのすべての四面体格子間位置にrandomに分布した構造が考えられる。表1に、これらの構造から計算された計算強度 $I_{cal} = jF^2 e^{-2w}$ と、 $i(\lambda)\lambda^4$ および吸収の補正を行な

表1 TaD_{0.72}の β_2 相(図1)、 α 相の観測強度と計算強度。これらの測定はモニター定数法で行なわれたので、130°Cのデータは80°Cの I_{321} に対して規格化している。

hkl	β_2 相(80°C)		α 相(130°C)	
	I_{obs}	I_{cal}	I_{obs}	I_{cal}
110	14.7	13.8	13.0	11.8
200	16.3	17.2	14.1	13.6
211	65.9	56.9	60.6	52.4
220	17.4	17.3	14.2	10.5
310	27.3	24.3	23.5	20.2
222	1.0	1.4	2.1	1.3
321	100.0	100.0	93.4	89.3

った観測強度 I_{obs} を示す。なお温度因子 e^{-2w} は回折図形のDebye-Waller plotにより決定した。110~321の7本の反射について $(\sum |I_{obs} - I_{cal}|) / \sum I_{obs}$ で定義したR-因子の値は、 β_2 相についてR=0.059、 α 相についてR=0.099が得られた。

以上で明らかになった如く、TaD_{0.72}の β_1 相、 β_2 相、 α 相は体心立方格子を組むTaの四面体格子間位置に固溶した重水素原子の配列の仕方の違いによって区別される相である。したがって β_1 - β_2 - α の変態は重水素原子の規則-不規則変態によるものと考えることができる。

§2 V-D系侵入型合金の規則構造

V-D系合金には、 α 相(高温相)、 β 相(V₂D相)、 γ 相(VD相の低温相)、および δ 相(VD相)の4つの相が存在することが我々の状態図的検討により明らかとなった。そして、 α 相と δ 相

の結晶構造については既に報告した。³⁾ 今回は β 相と γ 相の結晶構造を明らかにする為に、 $VD_{0.50}$ の室温 (β 相), $VD_{0.71}$ の液体窒素温度 (γ 相) の中性子回折を行なった。測定は 30° 系と 52° 系のカウンターを使用し、測定時間は各々約 8 時間であった。X 線回折によると、 $VD_{0.50}$ では V 原子の作る単位格子は $a=3.008\text{\AA}$, $c=3.291\text{\AA}$ の b. c. t. であり、 $VD_{0.71}$ では $a=3.148\text{\AA}$ の b. c. c. である。

図 2 に $VD_{0.50}$ の 30° 系の回折図形を示す。測定は約 130g の粉末試料を 0.1mm 厚の Al 薄で作った $5\text{cm}\times 5\text{cm}\times 2\text{cm}$

の直方体の箱につめて行なった。回折線の指数付けから、この物質は $A=2a_0$, $C=2c_0$ (a_0 , c_0 は基本格子の単位胞) の規則構造を取っていることが明らかとなったが、回折線の数が少ない為、構造解析はまだできていない。

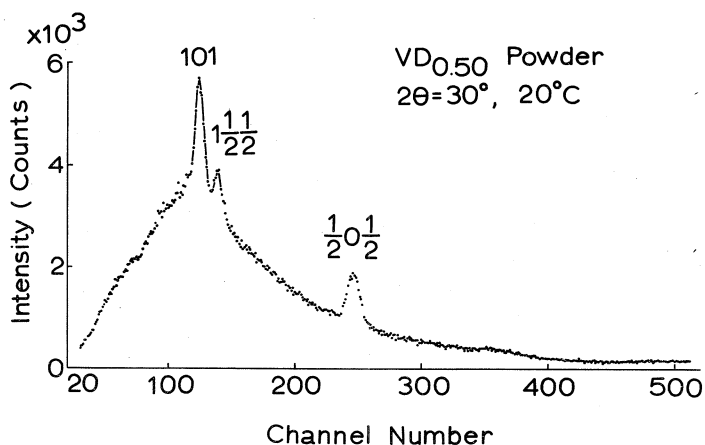


図 2

図 3 に $VD_{0.71}$ の 30° 系の回折図形を示す。

(図中 115 channel 付近の指数の付いていない反射は試料容器からの反射である。) この場合にも、試料の量が少なかつたせいもあって、4 つの反射しか観測されなかった。各反射の指数付けから、この物質は $A=2a_0$ (a_0 は基本格子の単位

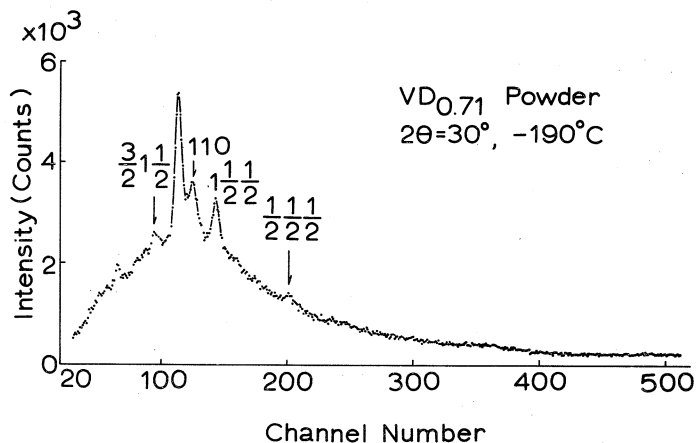


図 3

胞) の規則構造をとっていることがわかった。しかしながら、構造解析はまだ出来ていない。

以上に見られる様に、あるいは前報の浅野他 ($VD_{0.77}$)⁴⁾, 寺崎他 (V_4O_7)⁵⁾ の例にもある

様に、Vをふくむ物質のTOFによる中性子回折Debye-Scherrer法は相当きびしい実験であることがわかった。

文 献

- 1) H. Asano, S. Yamaguchi, M. Hirabayashi, N. Watanabe,
N. Niimura, Y. Yamada and M. Kimura: presented for THE JOINT
EURATOM-JAPAN MEETING ON THE PULSED NEUTRON SOURCES AND
THEIR UTILIZATION, ISPRA 1971.
- 2) 木村他, 核理研報告Vol. 3 (1970) №1, 67.
- 3) 浅野. 山口. 平林, 日本物理学会第26回年会(1971).
- 4) 浅野他, 核理研報告Vol. 3 (1970) №2, 82.
- 5) 寺崎他, 核理研報告Vol. 3 (1970) №2, 80.

II-2 中性子非干渉性非弾性散乱によるアントラキノンおよび1,2-ジクロロエタン結晶の分子運動の研究

理学部化学・核理研*

大空 瞭・宮崎芳雄・伊藤光男

新村信雄*・渡辺 昇*・木村一治*

§1 諸 言

アントラキノン結晶は、X線回折により詳細に結晶構造が調べられており、¹⁾ 又単結晶試料による偏光ラマン散乱の実験により、光学活性格子振動数およびその対称性が決定されている。²⁾ さらに基準振動の計算により Dashevsky 等の提出したポテンシャルが、光学活性格子振動をよく再現することが示されている。²⁾ 中性子散乱スペクトルの測定は、上で述べたポテンシャルを用いての振動数分布の計算値と実測値を比較し、このポテンシャルの妥当性を調べると共に、この結晶の状態密度を決定することを目的として行った。

1, 2-ジクロロエタン結晶は177° Kで相転移を行い、その機構についてX線、³⁾ NMR⁴⁾ などによる研究がなされている。それらによれば、この相転移は分子のC1...C1軸まわりの360°の回転が関与していることが示されている。われわれは先に、この相転移についてラマン散乱の実験を行い、低温相におけるC1...C1軸まわりの回転的格子振動が、高温相で同じ軸まわりの自由回転に近い運動に変化することを示唆した。⁵⁾ その際根拠としたのは、低温相で観測される上記の振動に基づくラマン線が、高温相で認められなくなるという事実であった。しかしこの事実は、ラマン線の消失を必ずしも意味しない。単に温度上昇による線巾の増大のために認められなくなったとも考えられるからである。このことを確かめる目的で中性子散乱スペクトルを測定した。問題となっている格子振動は赤外不活性であり、又他の振動と較べて水素原子の変位が大きいと考えられるので、中性子による実験が有利であると思われる。

§ 2 実 験

試料はアントラキノン, 1, 2-ジクロロエタンともに市販されているものを用いた。

測定はBeO逆フィルター法⁶⁾で行った。入射中性子の強度と計数率に対する考慮から, 試料の大きさは $20 \times 20 \times 0.1 \text{ cm}^3$ である。

常温で液体の試料(1, 2-ジクロロエタン)を固相において, しかも上で述べた大面積で測定を行う必要があったため, 新たにcryostatを製作した。その概略を図1に示す。試料は, lig. N_2 によりcopper Cを通しての熱伝導および内筒 I に閉じ込められた乾燥空気の流れにより冷却される。内筒 I のメタルパッキングとしてハンダを用いた。さらにcopper C上に取りつけたヒーター H により温度調節ができるように設計されている。lig. N_2 で冷却して, 抵温側は -130°C までの測定が可能であった。 -130°C におけるlig. N_2 の消費量は約2 l/3 hoursであった。

アントラキノン結晶は 20°C と -110°C の2つの温度で, 1, 2-ジクロロエタンは 20°C (液体), -50°C (高温相), -130°C (抵温相)の3つの温度でそれぞれ測定を行った。

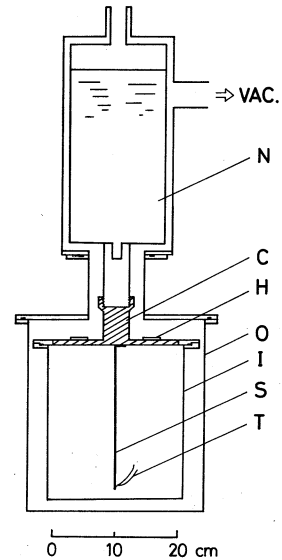


図1 Cryostatの概略図
N) lig. N_2 ; C) Copper; H) ヒーター; O) 外筒; I) 内筒; S) 試料; T) 銅-コンスタンタン熱電対

§ 3 結果と考察

1. アントラキノン結晶

図2に 20°C および -110°C のスペクトルを示す。 20°C では2, 6, 10, mev付近に, -110°C では2, 6, 8, 10 mev付近にそれぞれピークが観測された。

他方計算された振動数分付を図3に示す。原子座標はLonsdale等¹⁾により報告されている 20.5°C , -112°C のものを使用し, 剛体近似を用いて, 第1ブリルアン帯に1728個の波動ベクトルをとって計算を行った。 -112°C での振動数分布は 20.5°C と較べると全体が高エネルギー側にshiftしているが, 大きく分けて両温度とも4つのピークからなっている。各振動の固有ベクトルから, 2.5mev付近のピークは分子のtranslatory modesが, 7mev付近のピークは分子面に垂直な軸まわりのrotatory modesがおもに寄与していることがわかる。

実測と比較すると, 両温度において各ピークはかなりよく対応していると言える。この結果は用いた力場の妥当性を示していると考えられる。

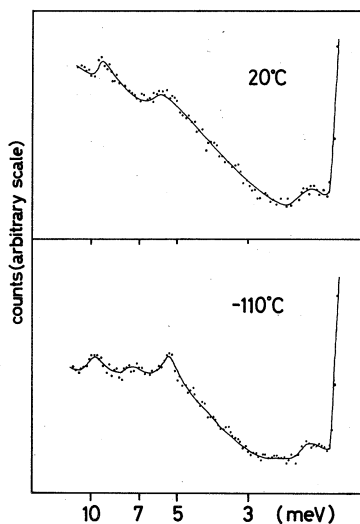


図2 アントラキノン結晶の中性子散乱スペクトル

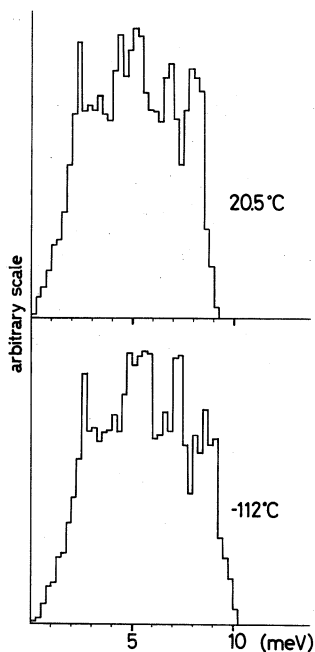


図3 アントラキノン結晶の振動数分布(計算値)

II. 1, 2-ジクロロエタン結晶

図4に低温相、高温相および液体のスペクトルを示す。高低両相ともに低エネルギー部分に顕著なピークは認められないが、高温相の弾性散乱ピークにquasi-elasticによるbroadeningが観測された。液体では弾性散乱ピークがほとんど観測されない。

上で得られたスペクトルから、Debye-Waller因子を1とし、Cubic-One-phonon近似を用いて求めた低温相および高温相の振動数分布を図5に示す。低温相に見られる10~13meV (1)および15~18meV (2)のbroadなピークが高温相では認められない。

さらに低温相、高温相ともに同じ空間群(

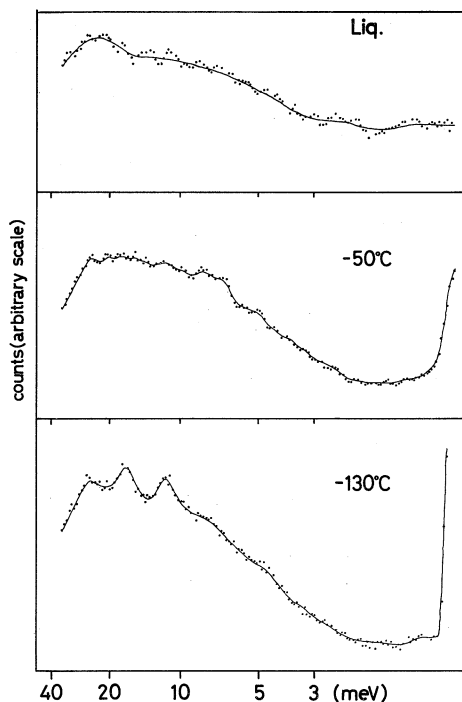


図4 1, 2-ジクロロエタンの中性子散乱スペクトル

$C_{2k}^5 - P_1^2 / c, z=2$)に属し、両相で塩素原子の位置がほとんど変わらない事実³⁾を考慮すると、低温相に存在した格子振動のある branch が、高温相で消失すること、そしてその消失は、高温相で分子が自由回転に近い運動を行うためにおこることを結論することができる。

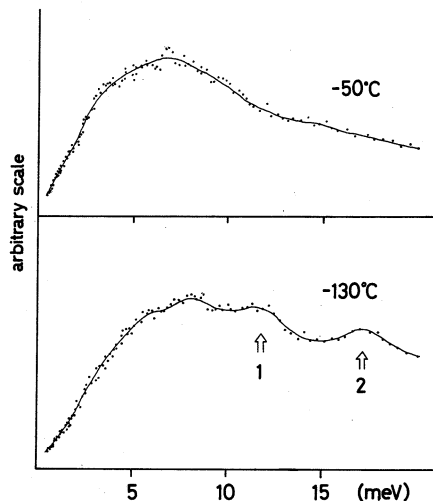


図5 1, 2-ジクロロエタン結晶の振動数分布

文 献

- 1) K. Lonsdale et al., Acta Cryst., 20, 1 (1966)
- 2) 宮崎, 伊藤, 化学会24年会予稿集1, p231 (1971)
- 3) M. E. Milberg, W. N. Lipscomb, Acta Cryst., 4, 369 (1951);
T. B. Read, W. N. Lipscomb, ibid 6, 45 (1953); W. N. Lipscomb
et al., ibid 14, 1100 (1961)
- 4) H. S. Gutowsky, G. E. Pake, J. Chem Phys 18, 162 (1950)
- 5) 大空, 中川, 伊藤, Bull. Chem. Soc. Japan 45, (1972)に掲載予定
- 6) 木村他, 核理研報告 vol 2, №2, p89 (1969)

II-3 電子リニアックを用いた T・O・F 中性子散乱による単結晶分光法

核理研・金研*

新村信雄・富吉昇一*

渡辺 昇・木村一治

要 旨

T・O・F単結晶分光法の特徴として¹⁾逆格子空間で原点を通る rod 上にある逆格子点を同時に測定できること。²⁾各 Bragg 反射に高調波による反射の寄与は決して入らないこと。³⁾高い指数の Bragg 反射を測定できること。⁴⁾中性子の異常分散の測定ができること。⁵⁾ $i(\lambda)_{\max}$ に任意の Bragg 反射を合わせられること。等がある。東北大学 300 MeV 電子リニアックより得られる中性子を用い、Au-Mn 合金、BaTiO₃、Si の単結晶で上記の特徴を検討した結果を示す。

§1 TOF 法による単結晶の Bragg 条件

白色パルスを用いて単結晶試料で実験をする測定方法を図1に示す。パルス中性子源から L_1 なる距離に試料を置き、 2θ の方向に散乱させ、試料から L_2 なる距離に検出器を置き、中性子の飛行時間を多重チャンネルの速度分析器で測定する。

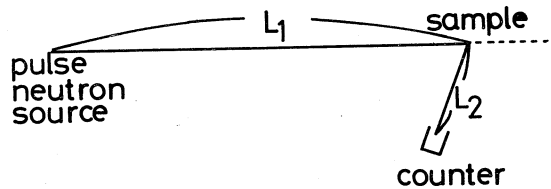


図1 T・O・F法の測定概念図

Bragg の条件式を次のように変形する。

$$2 \cdot \frac{m \cdot L}{h} \cdot \sin \theta \cdot \frac{1}{t_{hkl}} = \tau_{hkl} \quad (1)$$

ここで、 $\lambda = \frac{h}{mv} = \frac{h t}{m L}$ ($L = L_1 + L_2$) の関係を用いた。 m は中性子の質量、 h はプランクの定数、 L は中性子の全飛行距離、 t は波長 λ の中性子が L なる距離を飛行する時間である。

τ_{hkl} は原点から逆格子点 hkl のベクトルの大きさである。T・O・F法では(1)式から明らか

なように、結晶、及び検出器固定、つまり $2\theta =$ 一定で時間 t_{hkl} を変数にすることにより、各種の τ_{hkl} を測定することになる。図2でAO方向に中性子が入射した時、Bragg反射を起す条件は $|AO| = |AB|$, $\angle OAB = 2\theta$ である。T・O・F法では点Aが、AO上を時間と共に移動し、 $OA'B' = 2\theta$, $|A'O| = |A'B'|$ を満足するA'点にAが来た時、 $h'k'l'$ Bragg反射が起こる。

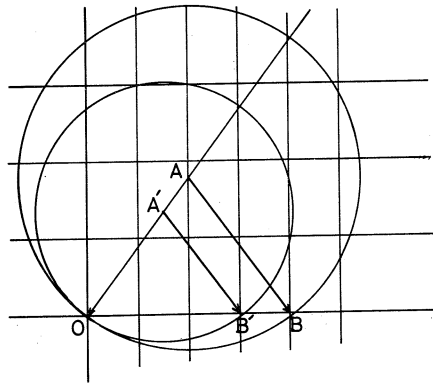


図2 T・O・F法で hkl 反射, $h'k'l'$ 反射をとる方法の逆空間での説明図

§2 TOF単結晶分光法の特徴

a) 逆格子空間で原点を通るrod上にのる逆格子

子点を同時に測定可能である。

くり返し数 $p(\text{sec}^{-1})$ のパルスが単結晶試料にあたると $1/p$ sec間に図2でエワルド反射球は無限度の大きさから零にまで変化し、検出器の角度を 2θ に固定しておく $\angle OAB = 2\theta$ の方向へ中性子が反射し、それが逆格子を横切る点でBragg反射を起す。これは逆格子空間の一次的な直線を観測できることであり、通常の中性子カウンター法では、一回のセットで空間の一点しか観測できないので、それに比べるとTOFではデータ集積効率は、大変高くなる。丁度、X線回折法で通常行なわれているワイセンベルグやプリセッション写真法等が、逆格子空間の二次的観測手段である有利さを持つのに似た特長をT・O・F法は備えていることになる。

この特徴を利用しての応用範囲は大変広い。

- ① 消滅則の判定 たとえばC軸方向に2回らせん軸がある時は、 $00l$ 反射で $l = \text{even}$ のみ現れるはずで、 $002, 004, 006 \dots$ という $00l$ 方向の反射を一度に観測できるので、消滅則の判断が確実、容易である。
- ② 温度因子の温度変化の実験 温度因子は一般に異方性をもっており、各種の方向の情報を得ることは重要である。T・O・F法ではある方向の情報が一度に得られるので、この種の実験には有効である。又、その温度変化をさせた場合、通常の場合では、 001 反射と 002 反射をふつうは同時に測定できないので、 001 反射を測定したときと 002 反射を測定したときとで温度差による誤差が入り込む余地が出てくる。しかし、T・O・F法ではそのようなことは全くない。
- ③ 超格子線出現による構造の研究 どこに超格子 line が現れるか全く不明の場合、カ

ウンター法の場合一点一点検討模索しなければならないので大変である。TOF法では、少く共一次元的なscanは自動的に行なわれているので、結晶を回転させれば、二次元的なscanも可能となる。

④ 逆格子空間内の強度mapping

⑤ 散漫散乱の異方性等の観測

b) 各Bragg反射に高調波による反射の寄与は決して入らない。

通常の結晶法の場合は単色中性子を取り出すのに結晶のBragg反射を利用しているから、単色といっても $\lambda/2$, $\lambda/3$ 等の波長の中性子が、入ったのを利用せざるを得ない。一方、T・O・F法では $\lambda/2$, $\lambda/3$ ……等は異なったエネルギーの中性子として区別されるから高調波はそれぞれ違ったチャネルに入り明確に分離される。通常の結晶法では、これらは、さけられないことだが、Filter等を用いて高調波を除去する方法が用いられているが、強度はかなり減少してしまうようだ。これの応用として

① 消滅則の判定が確実である。たとえば、Ge, Siのようにダイヤモンド構造をとる物質は hkl 反射で $h+k+l=4n+2$; ($n=0, 1, \dots$)を満たす反射は消滅則で消失することになっているがその確認の実験等に応用できる。

c) 高い指数のBragg反射を測定できる。

結晶法では、用いる波長を λ とすると、Bragg条件式から

$$\lambda/2d_{hkl} = \sin\theta_{hkl} \leq 1$$

$$\therefore \tau_{hkl} \leq \frac{2}{\lambda}$$

となり、観測できる反射の箇数に上限がある。更に実験には、シールド等の条件で $2\theta \approx 90$ 付近までの測定が限界であるため観測できる反射は実に小さい指数のものに限られてしまう。

一方、T・O・F法では、図2から明らかなようにエwald反射球が無限大の大きさから零まで変化するので、原理的には無限大の指数の逆格子点まで観測が可能となる。しかし、実際上は、やはりシールドやカウンターの効率等の問題で無限大の指数とはいかない。しかし、結晶法の約2倍の高い指数のBragg反射まで観測可能であり、逆格子全空間で考えれば、結晶法に較べ、8倍の箇数のBragg反射強度を集めることが可能となる。

構造解析等には可能な限り多くの反射強度データを集めることが、構造決定の精度に関係するので、これは重要な特徴となる。又、消衰効果の効く反射は高い指数の反射には、余り多

くないことも大変便利である。

d) 中性子の異常分散の測定可能

X線の異常分散効果はすでにX線回折の各種の分野で広く応用されている。

中性子もある種の元素には異常分散効果があることが判明しているが、中性子の異常分散の実験には、入射中性子の波長を変化させることが必要で、結晶法では、この種の実験は余りされていない。最近、中性子の異常分散を利用して格子振動のあるモードの polarization vector を決定することができるという報告があり、中性子の異常分散の実験が待たれている。²⁾

T・O・F法では白色中性子をそのまま使用し、各種の λ の中性子と試料との相互作用として波長依存性をもった反射強度を観測できるので、中性子の異常分散の実験に適している。但し、Bragg反射はとびとびの λ でしか起こらないから、とびとびの λ の情報しか得られない。しかし、次のe)で述べるが散乱角 2θ を変化させることによりあるBragg反射をする λ をもある程度任意に選択できるので異常分散項の情報量を増すことは可能である。

逆に結晶構造が既知の物質を使って、ある元素の異常分散項を求めることもできる。

e) $i(\lambda)_{\max}$ に任意のBragg反射を合わせられる。

電子リニアックで得られる白色パルスは一般にマックスウエルの波長分布をしている。その分布を $i(\lambda)$ とし、分布の最大値を $i(\lambda)_{\max}$ 、その時の波長を λ_m とすると $2d_{hkl} \cdot \sin\theta = \lambda_m$ になるように θ を選定すれば、特に興味ある指数 hkl 反射を強い強度で観測できる。

d)でも述べたが、一般にTOFでは観測したい反射を散乱角を適当に選定することにより任意のチャンネルに入れることは可能である。

§3 二、三の実例

東北大学300MeVリニアックより得られるパルス中性子を利用して§2で述べた特徴を実験的に検討した結果を簡単に紹介する。

図3は著者らが使用した単結晶スペクトルメーターの装置のあらましである。単結晶試料Sは測定室からセルシンモーターで、リモートコントロールで回転され、適当な面族を散乱ベクトルに垂直にすることが可能なようにしてある。検出器は円板Dの上を回転させることができ、散乱角 2θ を変化させられる。

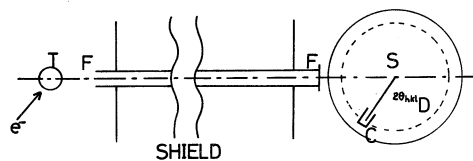


図3 東北大学300MeVリニアックに付設したT・O・F単結晶分光器

しかし現在のところ、検出器の回転はまだリモートコントロールは出来ていない。

この装置のパラメーターは次の通りである。パルス中性子の繰り返し数100 p. p. sチャンネル巾 $16\mu\text{sec}$ で512チャンネルの多重チャンネルの時間分析器を用いている。中性子の飛行距離は、中性子源から試料まで(L_1)が490cm試料から検出器まで(L_2)が45cmである。

この装置で散乱角 2θ をパラメータにとって、Bragg反射を起こすチャンネル数とそのBragg反射を起こす面の面間隔の関係を求め、図示すると図4のようになる。チャンネル数と面間隔は直線関係にあるので、Bragg反射の起こるチャンネル数を測定し、図4からその反射を起こす面の面間隔を求め指数付けすることができる。又、この図から 2θ を小さくすれば小さい指数のBragg反射が得られることもよくわかる。

本装置では、カウンターの低効率化等や、面間隔の小さい反射面は若いチャンネルにつめられるので、70チャンネルより若いチャンネルは一般に使いものにならない。しかし、 $2\theta=150^\circ$ で70チャンネルにBragg反射が入ったとするとその面間隔は 0.37\AA となる。これは、格子定数が約 4\AA の立方晶系の物質があったとすると11, 0, 0反射まで観測できることを意味する。これを結晶法で $\lambda=1\text{\AA}$ の中性子を使って $2\theta=90^\circ$ まで測定したとしても、600反射までしかとれず、§2 c)で述べたことが明らかになった。

この装置で $i(\lambda)\text{max}$ になる λ_m の中性子は100チャンネルに入ることが実測されており、100チャンネルに希望の指数を合わせるための散乱角をどのように選定すればよいかを示す図を図5に示す。横軸にその指数の面間隔を、たて軸に散乱角をとっている。以下二、三の実例につき述べる。

a) 反強磁性体の磁気散乱の測定

AuとMnの合金による中性子磁気散乱スペクトルを測定した。これは従来X線では見出せなかったものである。我々の試料は組成比2:1で合成させたがX線写真で、Auの粉末のスペクトルが若干観測されておるので、単結晶として AuMn 、 Au_2Mn のどちらができたか正確な点は現在検討中である。図6にAu-Mn合金の逆格子図を示す。図6のOA、OB方向でとったT.O.Fスペクトルを図7 a), b)に示す。OA方向では多くの磁気散乱を同時に

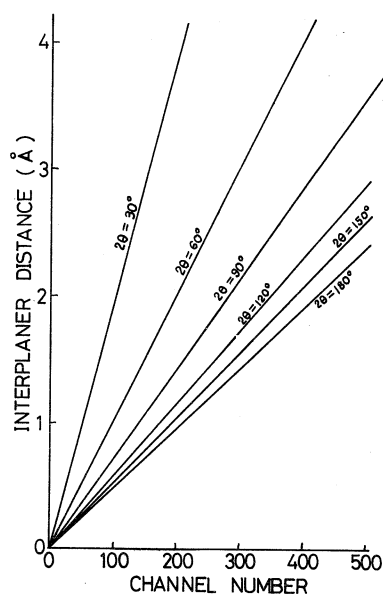


図4 図3の装置で、チャンネル巾 $16\mu\text{sec}$ 512チャンネルにした時、散乱角をパラメータにとって、Bragg反射を起こすチャンネル数と、そのBragg反射を起こす面の面間隔の関係図

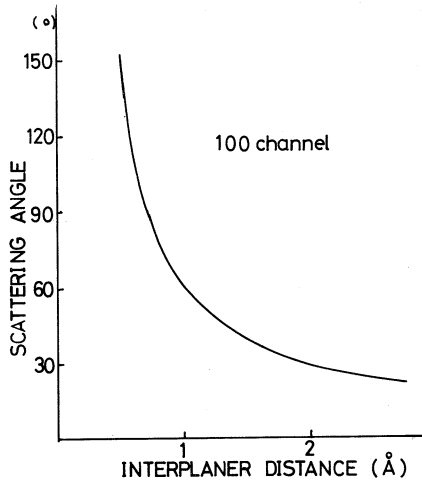


図5 本装置で i (°) が最大になる100チャンネルに入るBragg反射の面間隔と散乱角の関係図

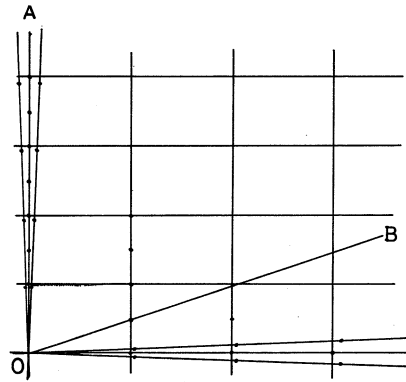


図6 反強磁性体Au-Mn合金の逆格子図

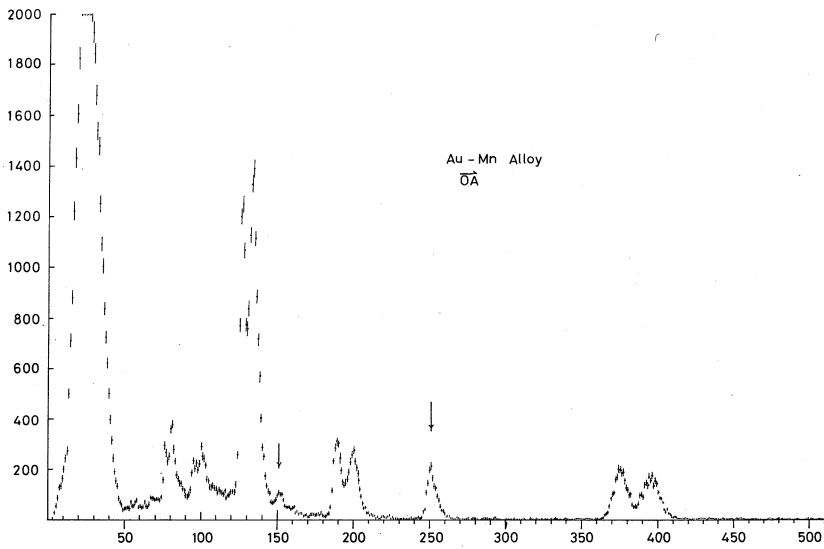


図7 a) 図6でOA方向

観測することができた。又OB方向では核散乱を観測しようとして、磁気散乱が、自動的に観測にかかった好例である。結晶法では、どのような磁気散乱がどこに現われるか目安をたて、そこを集中的に攻撃するという形態しかとれない。§2a)の特徴を生じた例である。

この物質の構造解析及び磁気構造解析は現在進行中である。

b) $BaTiO_3$ の温度因子の研究

T. Pedersenが $BaTiO_3$ の001反射の温度変化を20°Cから180°Cの範囲で測定した結果、 T_c の10下の

118°Cで007反射、009反射に異常を見出している。²⁾一方、坂田らはJRR-3に設置されてある物性研の中性子回折装置を用いて同様の実験を試みている。³⁾試料が小さい(約90mg)ので彼等は強度測定に相当苦勞をしている。

この様な001方向の各種の1のBragg反射の温度因子の情報を得るためには、すでに述べたT・O・F単結晶分光法の特徴が発揮される。図8に001方向のT・O・Fスペクトルを示

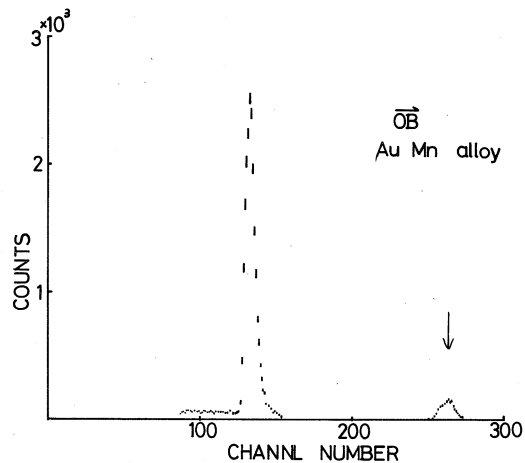


図7 b) 図6でOB方向のT・O・Fスペクトル図
図中矢印を付したのは磁気散乱によるピークを示している。

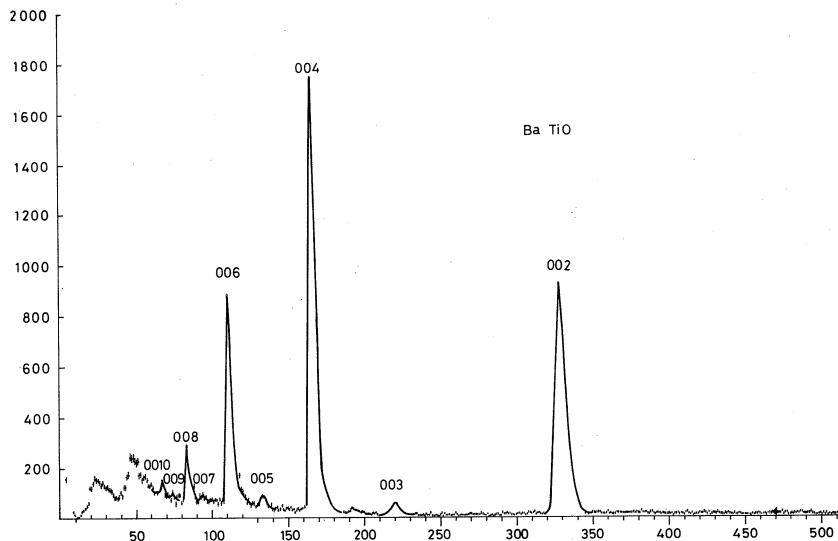


図8 $BaTiO_3$ 単結晶(重量約80mg)のC軸方向のT・O・Fスペクトル図
照射時間は約7時間

す。使った試料は重量約80mgの小片だが、弱い $l=odd$ の反射も測定にかかった。

- c) Siの222及び666禁制反射の測定ダイヤモンド構造を持つ物質の222及び666反射は構造の対称性から零である。ところがX線回折で、 $F(222)=1.46 \pm 0.04$ と観測されており、これはシリコンの結合電子がシリコンの周囲に非対称に存在するとして、この強度は説明されている。

一方シリコン原子の格子振動ポテンシャルが非対称的なものであれば、中性子でも、 $F(222) \neq 0$ となる。多くの人がこの観測を試みたが、皆否定的な結果に終わっている。最近始めてBNL-HFBRを用いて、 $F(222) \neq 0$ の実測に成功した。⁴⁾しかしその確認のために、Filterを用いるなどして高調波の混入等に最大の苦心を払っている。§2a)で述べたようにT・O・F単結晶法ではこの心配は全くなく、又、禁制反射の構造因子の式から判るように、高い指数の反射程、この強度が大きいことを利用して666反射を著者らは調べた。ここに非対称ポテンシャルを $V(r)=V_0 + \frac{1}{2}\alpha(x^2+y^2+z^2) + \beta xyz$ としたとき、 $F(hkl) = -8ib e^{-M} Y(h, k, l)$ 。但し $Y(h, k, l) = (2\pi/a)^3 (\beta/\alpha^3) (hkl) (kT)^2$ で与えられる。ここで b は中性子散乱振幅、 M はデバイ・ワラー因子で、 $M = 2\pi^2 kT (h^2 + k^2 + l^2) / \alpha a^2$ 、 a は格子定数である。⁵⁾ 図9にそのスペクトルおよび666反射付近の拡大図を示す。222、及び10, 10, 10は入射中性子強度不足のため存在を確認するのは困難であった。

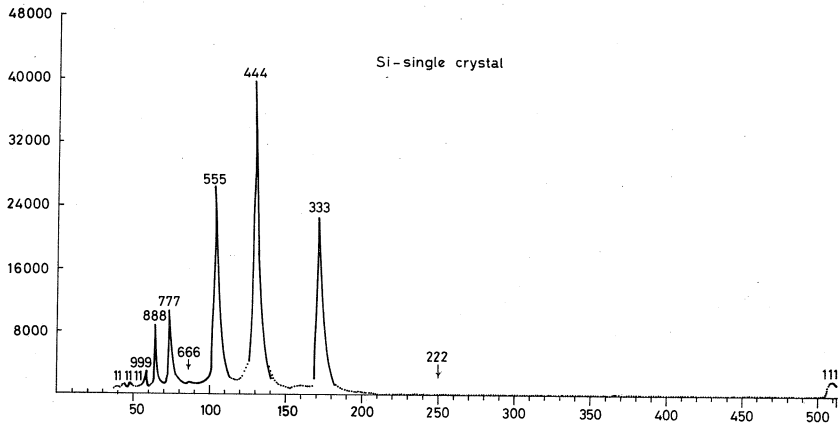


図9 a) Si単結晶の[111]方向のT・O・Fスペクトル図
照射時間は約8時間

§4 おわりに

電子リニアックから得られる白色パルス中性子を用いた単結晶分光法の特長には、上に述べた以外でもまだまだ数多くあると思われる。現在、著者らはすでに準備にとりかかっているが、過渡現象の研究にも向いていると考えている。たとえば、パルスのじよう乱による物質構造の時間変化を追うという問題である。更に、干渉性非弾性散乱は、結晶法ではQ-CONSTANT法、E-CONSTANT法等が用いられるがT.O.F法では使用できないため、全く不向きと考えられているが、そのような速断は余り良くないと思う。この点でも著者らは、干渉性非弾性散乱の実験も準備にとりかかっている。

このような新しい使い方を考えると同時に、T.O.F単結晶分光法で得られる強度式の再検討を、理論、実験の両面から行って行くことも又、重要である。

文 献

- 1) T. G. Ramesh, S. Ramaseshan : Acta Cryst. **A27** (1971)332
- 2) T. Pederson : J. Phys. Soc. Japan **29** (1970)1314
- 3) M. Sakata, J. Harada : private communication
- 4) D. Keating, A. Nunes, B. Batterman, J. Hasting : Phys. Rev Letters **27** (1971)320
- 5) B. Dawson, B. T. M. Willis : Proc. Roy. Soc. **A298** (1966)307

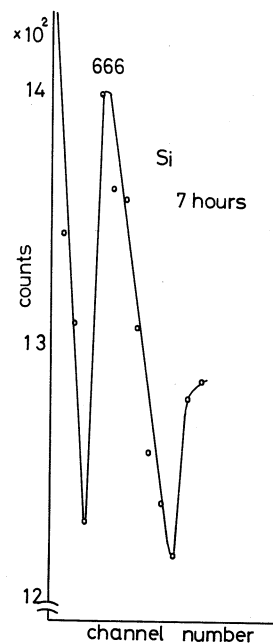


図9 b) 666反射の部分の拡大図

図7, 8, 9共、目下の目的には、分解能はあまり要求されないので、Posoningしない水のモデレーターを用いて、熱中性子パルス巾を多少犠牲にしても、強度をなるべく高くするようにしている。従ってすべてのピークは右の方に尾を引いている。

II-4 $\text{Ni}_{50}\text{Ti}_{46}\text{V}_4$ の高温相の中性子回折

選研 本間敏夫・松本 実
守護嘉郎

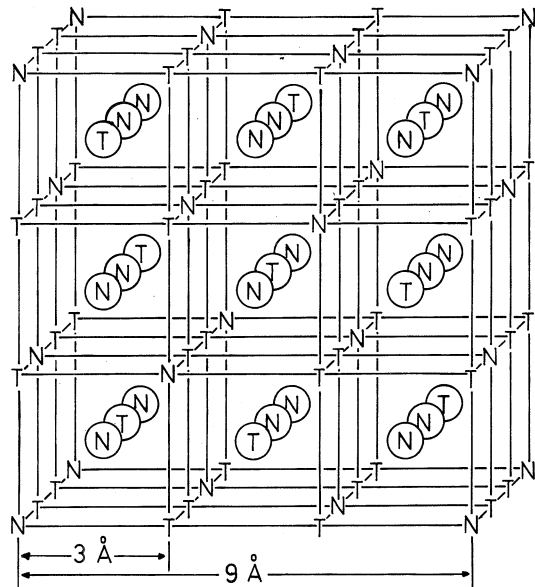
1. 緒 言

TiNi 化合物は良好な耐食性、加工性を有する新材料であり、高温における強度特性も優秀である。またこの材料は常温で変形を与えても 100°C 位に熱すると、変形は瞬時に消失して元の形状に戻るいわゆる形状記憶効果を示す特異な物質である。この特異な効果の生ずる原因はまだ解明されていないが、変形の消失が定った温度で生ずることから、この物質の相変態が大きな役割を演じていることが十分推察される。

化学量論 TiNi 化合物の相変態の生ずる温度は電気抵抗-温度曲線の急激な変化から求められ、冷却のさい高温相は 70°C でマルテンサイトの的に低温相に変態する。しかしながらこの材料の各相の結晶構造については不明な点が多い。

高温相の基本格子は bcc (格子定数: 約 3 \AA) であるが Dautouich¹⁾, Nagasawa²⁾ らが単純な CsCl 型であるというのに反し Wang³⁾ は単結晶の X 線回折から第 1 図に示すような 3 \AA 格子の 3 倍の格子定数をもつ 9 \AA 超格子モデルを提案している。

TiNi の超格子の構造因子は X 線回折の場合は Ti と Ni の原子散乱因子の差に比例し、中性子回折の場合には Ti と Ni の中性子散乱振巾の差に比例する。 TiNi の超格子を検出する場合、中性子回折 (中性子散乱振巾: $b_n = -3.3 \pm 0.3 \times 10^{-13} \text{ cm}(\text{Ti})$, $b_n = +10.25 \pm 0.09 \times$



第 1 図 Wang³⁾ による TiNi の 9 \AA 超格子モデル。
T: Ti 原子, N: Ni 原子。
T-T-N-T-T (0, 0, 0) 格子
 N-N-T-N-N ($1/2, 1/2, 1/2$) 格子

$10^{-13} \text{ cm}(\text{Ni})$)がX線回折(原子散乱因子: $\sin(\theta/\lambda)(\text{Å}^{-1})=0.0$ で $f=22(\text{Ti})$, $f=28(\text{Ni})$)より有利である。

本研究ではTiNiの高温相の結晶構造についてのWangら³⁾のモデルの確認のため中性子回折を行った。

TiNiの結晶構造は前述のように室温では低温相である。しかしながらTiNiの高温相から低温相に変化する変態温度は、遷移金属を添加することにより著しく低下することが我々⁴⁾によって見出されているので、本研究では室温で高温相を観察するため、少量のバナジウムをTiNiに添加した。

2. 試料

試料は次のようにして作製した。チタン(純度99.7%), ニッケル(純度99.9%), バナジウム(純度99.9%)を $\text{Ni}_{50}\text{Ti}_{46}\text{V}_4$ となるように秤量し、電子ビーム法で溶解した。得られたボタン状試料は750°Cで1.5mmの厚さに圧延した後、4.5cm平方の板状試料に製形した。これらの試料は950°Cで3時間真空中で熱処理を行った。中性子回折にはこれらの板状試料を3枚重ねて用いた。

X線デフラクトメーターで試料の各表面のX線回折を行った。回折パターンはいずれもbcc型で超格子線は見出されなかった。結晶粒の方位配列による回折線強度の差異は試料の各表面では認められなかった。

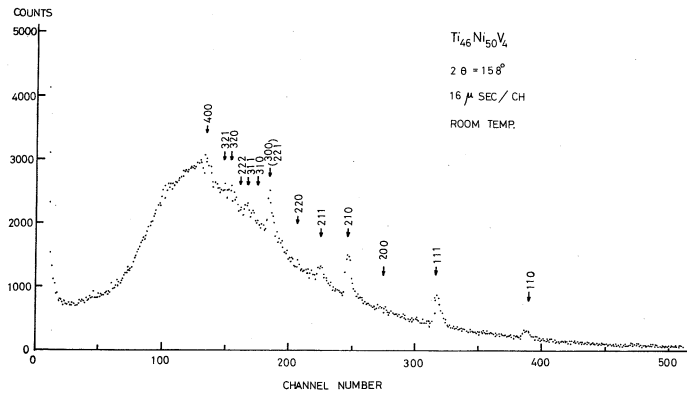
3. 実験および実験結果

中性子回折は東北大核理研中性子回折装置を用い、TOF Debye-Scherrerにより室温で行った。板状試料はその表面に中性子ビームが垂直に入射するようにおかれた。散乱角は $2\theta=30$ および158であった。照射時間は約8時間であった。

第2図は散乱角 $2\theta=158$ の場合に得られた中性子回折の実験結果である。回折パターンは $\text{C}_s\text{C1}$ 型で説明される。

散乱角 $2\theta=30$ の場合(111)の回折線(面間隔5.20Å)はWangら³⁾のモデルによると強い計算強度をもつが、観測されなかった。またこのモデルによる I_{330}/I_{333} の計算値は実験と一致せず、むしろ単純な $\text{C}_s\text{C1}$ 型による I_{330}/I_{333} の計算値が実験値に近く、Wangら³⁾の9Å超格子の存在は否定的である。

TiNiの結晶構造と結晶変態についてのいくつかのモデルが正しいかと中性子回折の実験から明らかにするには、更に低温での実験を行う必要がある。



第2図 $\text{Ni}_{50}\text{Ti}_{46}\text{U}_4$ の室温での中性子回折パターン
散乱角 $2\theta=158$

文 献

- 1) D. P. Dautouich and G. R. Purdy: Canadian Metallurg. Quat. 4 (1965)129
- 2) A. Nagasawa: J. Phys. Soc. Japan 31 (1971)136
- 3) F. E. Wang, W. J. Buehler and S. J. Pickart: J. appl. 36 (1965)3232
- 4) 本間敏夫, 松本実, 守護嘉朗: 日本金属学会昭和45年度秋期講演概要(1970)117

II-5 A Feasibility Study of Applying Neutron T-O-F Method for the Liquid Structure Analysis

金研^{*}, 核理研^{**} 三沢正勝^{*}, 渡辺 昇^{**}
富吉昇一^{*}, 甲斐鎌三^{*}
竹内 栄^{*}, 木村一治^{**}

Abstract

The preliminary study of applying time-of-flight neutron diffraction method for the determination of the structure factor of liquid metals has been examined. The diffraction pattern of liquid Sn at 260°C has been measured using a time of flight neutron diffractometer incorporated with a electron linear accelerator pulsed neutron source and a fairly good agreement between the present results and those of North et al. (1968) has been obtained. It was concluded that the T-O-F method incorporated with pulsed neutron source can yield reliable data for the liquid metal structure analyses which are as accurate as in the case of using steady reactor if some more improvement in measuring techniques were applied.

1. Introduction

The determination of the structure of liquid metals is one of the important utilization of thermal neutrons. The intensity of neutrons now available is insufficient to extract accurate informations on liquid state from the measured data and more intense neutron beams are earnestly desired in this field. If source intensity greater than

* Masakatsu Misawa, Shoichi Tomiyoshi, Kenzo Kai and Sakae Takeuchi
Research Institute for Iron, Steel and Other Metals, Tohoku University, Sendai, Japan.

** Noboru Watanaba and Masaharu Kimura
Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, Sendai, Japan.

10^{15} n/sec cm^2 is indispensable to yield more accurate measurements and if we can realize the neutron flux of this range only by pulsed form, we have to adopt T-O-F method whether we like it or not. The neutron diffraction method employing conventional dual axes spectrometer incorporated with the steady state reactor has been widely used to obtain the patterns from the liquid sample and several correction methods have been developed on this bases (North et al., 1968). T-O-F methods, on the other hand, remain still undeveloped. The purpose of the present investigation is to examine the feasibility of applying T-O-F method on the liquid structure analysis and to clarify the problems which must be overcome.

In a conventional neutron diffraction experiment, an integrated intensity is measured at given scattering angle, 2θ . So that the integration over the energy transfer is performed by the detector. In the T-O-F method, however, the neutrons which encountered energy transfer arrive at the detector at different time from those elastically scattered and the integration over the energy transfer can not be accomplished. However, if we adopt the path length of incident neutrons (L_1) very much longer than for the scattered ones (L_2), and if we use only the neutrons having the energies very much greater than that of the collective excitation in liquid metals, the situation in T-O-F method will become nearly same as that of conventional neutron diffraction method. Moreover, in case of pulsed neutron source, the neutron intensity in the shorter wavelength region ($\lambda < 1\text{\AA}$) is relatively high compared with that of the steady state reactor, so one can utilize the higher energy neutrons which give the accurate data at higher momentum transfer region and also improve the static approximation. Another important thing in T-O-F method is that almost all the parameters are wavelength dependent. It will be worthwhile to know the accuracy of the data obtained by means of T-O-F method in this preliminary experiment.

2. The Experimental Method

The measurement was made with the T-O-F type Debye-Scherrer powder spectrometer (Kimura et al., 1969) incorporated with pulsed neutron source of the Tohoku University 300 Mev electron linac facility. The block diagram of the ex-

perimental set up is shown in Fig. 1. The pulsed neutrons were obtained in the water cooled tungsten target irradiated by pulsed electron beam from the linac which was operated at an electron energy of 250 MeV

with a peak beam current of about 60 mA and at a pulse

duration of about 3 μ sec with pulse repetition frequency of 100 pps. Pulsed thermal neutrons of about 10^{12} n/cm² sec in peak with a pulse duration of about 50 μ sec in FWHM was obtained at the surface of a 4 cm thick water moderator surrounding the target and the neutron beams were directed to the liquid sample placed at a distance of 5 m from the source through the evacuated beam tube penetrating 3 m thick concrete shieldings.

The sample was contained in the slab shaped cell having 0,1 mm thick stainless steel windows bolted to a square iron frame and placed in an evacuated vessel. The liquid sample was 7 cm wide, 6 cm high and 5 mm thick, and its plane was at an angle of 45° to the incident neutron beam as shown in Fig. 1, so that the measurement was made in the transmission mode. The area of sample exposed to the incident neutron beams was 4 cm wide and 4 cm high. The T-O-F type Debye-Scherrer powder spectrometer (Kimura et al., 1969) was used with small modification to measure the diffraction pattern from the liquid sample. To ensure "the static approximation" the wavelength was limited to the region of $0.7 \text{ \AA} \leq \lambda \leq 1.5 \text{ \AA}$ where the

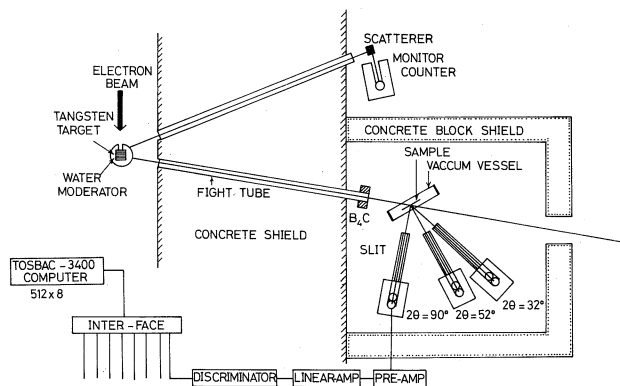


Fig. 1 Block diagram of the experimental set up.

integration over the energy transfer is nearly performed by the detector. Essentially there is no restriction on the lower limit of the wavelength, but in the present case, the spectrometer employs the cadmium Soller slit, so we restricted the lower limit of the wavelength to 0.7 \AA . As to the validity of the upper limit of the wavelength (1.5 \AA), we will discuss later. To cover the wide range of momentum transfer (at least up to 10 \AA^{-1}), we employed tentatively three sets of BF_3 counter systems with appropriate Soller slits placed at the scattering angle of 90° , 52° and 32° . The 90° , 52° and 32° counters were able to offer the data of high, intermediate and low Q regions respectively. In the present case, the scattered flight path length was about 1 meter.

The resolution of the momentum transfer Q in T-O-F method will be simply expressed as follows:

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

with

$$\left(\frac{\Delta Q}{Q}\right)_{\Delta\theta} = \cot\theta \cdot \Delta\theta \quad (\text{angular resolution})$$

$$\left(\frac{\Delta Q}{Q}\right)_{\Delta t} = \frac{\Delta t}{t} \quad (\text{time resolution})$$

$$\left(\frac{\Delta Q}{Q}\right)_{\Delta L} = \frac{\Delta L}{L} \quad (\text{path length resolution})$$

where 2θ , t and L are the scattering angle, time of flight and path of flight respectively, and $\Delta\theta$, Δt and ΔL are their respective ambiguity. The momentum resolutions of the spectrometer for 90° , 52° and 32° in the present experiment were about 3, 3.5 and 5 per cent respectively.

The neutron signals from the BF_3 counter systems were stored in the respective 512 channel time analyser through the pre- and main amplifier, discriminator and interface circuits.

In the T-O-F neutron diffraction method, an observed intensity, I , at a fixed scattering angle 2θ and at the time channel which corresponds to the time of flight for neutrons of the wavelength λ will be expressed as follows:

$$I(\lambda) \cdot d\lambda \propto g(\theta) i(\lambda) \eta(\lambda) A(\lambda) \left\{ \left(\frac{d\sigma_c}{d\Omega_{\text{eff}}} \right) + \left(\frac{d\sigma_i}{d\Omega_{\text{eff}}} \right) + A_c(\lambda) + A_i(\lambda) \right\} d\lambda \quad (1)$$

$$= g(\theta) i(\lambda) \eta(\lambda) A(\lambda) \{ N(b_c^2 S(\theta)_{\text{eff}} + (b_i^2)_{\text{eff}}) + A_c(\lambda) + A_i(\lambda) \} d\lambda$$

where $g(\theta)$, $\eta(\lambda)$, $i(\lambda)$ and $A(\lambda)$ are the geometrical factor, the incident neutron spectrum, counter efficiency and the attenuation in the sample and sample holder respectively. Other notations are the same as those of North et al. (1968) except for the λ -dependence factors introduced in this paper.

If we make the same measurements for vanadium sample as for the liquid metal, $g(\theta)$, $i(\lambda)$ and $\eta(\lambda)$ in equation (1) can be determined experimentally. The ratio of the observed intensities are written as follows

$$\frac{I^s}{I^v} = \frac{A^s(\lambda)}{A^v(\lambda)} \cdot \frac{N^2 (b_c^s)_{\text{eff}}^2 S(Q)_{\text{eff}} + A_c(\lambda)}{N^v (b_i^v)_{\text{eff}}^2 + A_i(\lambda)}$$

where the superscripts s and v refer to the liquid sample and the vanadium respectively and N denotes the number of atoms in unit volume. $A^s(\lambda)$ and $A^v(\lambda)$ can be determined from the numerical calculation. In equation (2), the liquid tin is regarded as a perfect coherent scatterer because of the small incoherent cross section and the vanadium as a perfect incoherent one.

The multiple scattering term A has been determined following Vineyard (1954) and is expressed in the simple form

$$A(\lambda) = \frac{\sum_{n=2}^{\infty} J_n(\lambda)}{A(\lambda)}$$

It is found that $\sum_{n=2}^{\infty} J_n(\lambda)$ is almost constant for liquid metals for the

wavelength between 0.7 \AA and 1.5 \AA used in the present experiment, because the λ -dependence of the cross section is nearly constant at that region. The estimated values of A/Nb^2 are about 0.14 for liquid tin (thickness 0.5 mm) and about 0.15 for vanadium (thickness 0.295 mm) respectively.

3. Results and Discussions

The measurements for liquid tin at 260°C , for empty holder and also for vanadium sample were performed successively. The time for data accumulation was about 5 hours for each run. A typical raw data obtained for liquid tin at $2\theta = 32^\circ$ is shown in Fig. 2 where the original data with $16 \mu\text{sec}$ channel width are added by each two channels. It is found that the contamination arising from Debye-Scherrer pattern of the holder material is relatively serious in the present measurements.

Figure 3 shows the $S(Q)_{\text{eff}}$ extracted from these data compared with smoothed curve of the result of North et al. (1968). The regions shown in the figure represent the regions where the wave-

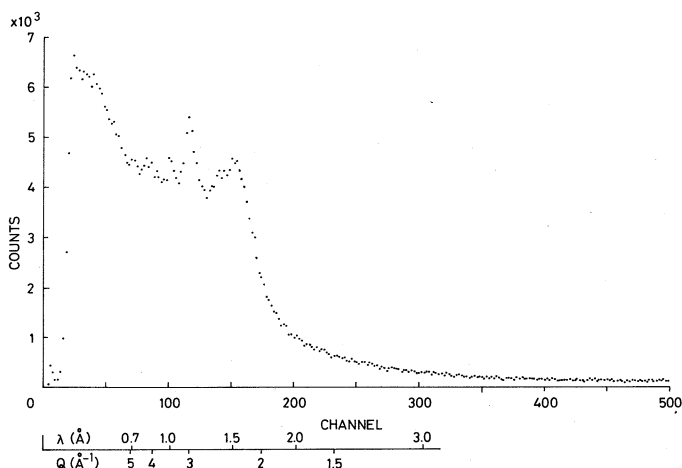


Fig. 2. A typical raw data of T-O-F pattern obtained from the liquid Sn at 260°C using the counter system, $2\theta = 32^\circ$.

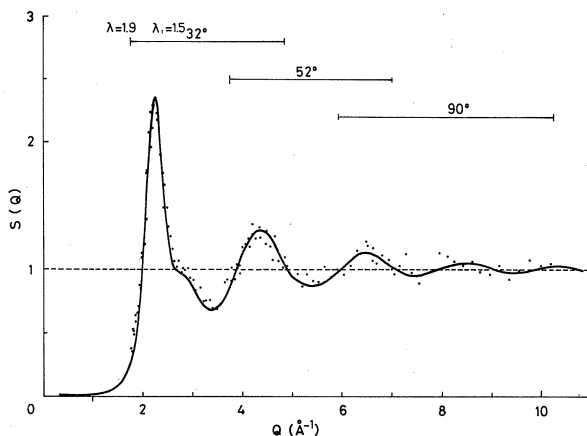


Fig. 3 $S(Q)$ for liquid Sn at 260°C .
The solid curve is the smoothed curve
of the result by North et al. (1968).

length λ lies between 0.7 \AA and 1.5 \AA for respective counter system. It will be seen that the agreement between the present results and those of North's (1968) is fairly good as far as Q is limited to the region plotted (especially at the main peak). $S(Q)$ at small Q is not shown here, because low angle counters such as $2\theta = 15^\circ$ system which satisfy the condition of "static approximation" at low Q region are not employed in the present experiment but we believe that if these counters were employed, the reliable data should be obtained at lower Q region. The scattering of data found in the high Q region is considered mainly due to the large back ground from the sample holder and may not be essential. It will be necessary to improve the sample holder. The effect of the inelastic scattering will be not serious as far as neutrons of the wavelength shorter than 1.5 \AA are used and the condition of $L_1 \gg L_2$ is satisfied. For example, even at the condition of $L_1/L_2 = 5$ as in the present case, neutrons with $\lambda = 1.5 \text{ \AA}$ which gain (loss) the energy of 5 meV in the inelastic scattering in sample are detected about $20 \mu\text{sec}$ before ($30 \mu\text{sec}$ after) the detection of elastically scattered neutrons, so that the time ambiguity due to inelastic scattering is of the order of a channel width.

As a conclusion, it will be said that for the determination of the structure factor for liquid metals, T-O-F method incorporated with the pulsed neutron source of about $10^{12}/\text{cm}^2 \text{ sec}$ in peak flux has a possibility to offer the data which are of the comparable quality as those obtained by employing conventional method with the flux of the order of $10^{13}/\text{cm}^2 \text{ sec}$ of the steady reactor, if some more improvements in the T-O-F spectrometer were made. High intense pulsed neutron sources of the order of $10^{15} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$ or more will be very valuable tools for the research of the liquid state.

References

- Kimura M., Sugawara M., Oyamada M., Yamada Y., Tomiyoshi S., Suzuki S., Watanabe N., and Takeda S., 1969, Nucl. Instr. Methods 71, 102-110.
- North D.M., Enderby J.E. and Egelstaff P.A., 1968, J. Phys. C. (2), 1, 784-794 and 1075-1087.
- Vineyard G.H., 1954, Phys. Rev., 95, 93-98.

II-6 Anisotropic Scattering of Neutron from an Uniaxially Oriented Iso-polypropylene

非水研^{*}, 核理研^{**} 安川民男^{*}, 木村一治^{**}
渡辺 昇^{**}

Previously we reported the neutron down scattering spectrum of iso-polypropylene and it was observed that the frequency distribution obtained from the observed spectrum agreed fairly well with the calculation based on a single chain model¹. However, a broad peak was observed at 230 - 280 cm⁻¹ which was not expected from a single chain model. Hence, in the present work, we attempted to study the anisotropic scattering of neutrons from an uniaxially oriented iso-polypropylene film in order to elucidate the nature of this peak and get a better understanding of the molecular motion of iso-polypropylene in crystal.

The sample was composed of a 0.45 mm thick stack of stretched films (5 times elongation) having a transmission probability of > 85 % at 50 meV. The scattering angle was fixed at 90° and the sample was held at 45° to the incident beam.

The facility consisted of, pulsed neutron source- primary flight path - sample - BeO filter - BF₃ counter. The length of primary path was 580 cm and that of secondary path was 35 cm.

First, the sample was hold so that the axis of sample orientation was in the same plane as k_1 and k_2 vectors. After the measurement of ca. 7 hr., the sample was transposed so that the axis of orientation was perpendicular to scattering vectors.

* T. Yasukawa: Chemical Research Institute of Non-Aqueous Solutions, Tohoku University

** M. Kimura, N. Watanabe: Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University

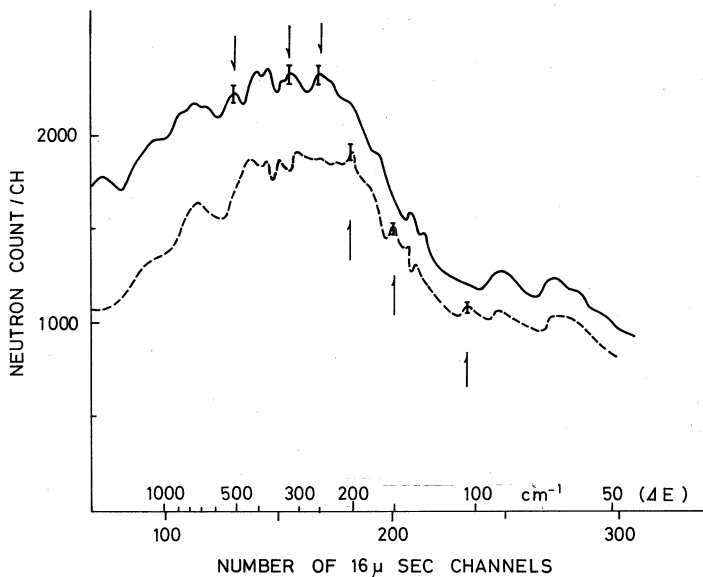


Fig. 1. Neutron down scattering spectra of uni-axially stretched-oriented iso-polypropylene.
 — perpendicular, - - - - parallel

Figure 1 shows the parallel and perpendicular scattering spectra observed at room temperature. The integrated amounts of incident neutron were not equal for these measurements and, therefore, the difference in the intensities of scattered neutron between these spectra is meaningless.

These two spectra are fairly different; i.e., the perpendicular spectrum shows fairly strong peaks at $\sim 500, 320, 250 \text{ cm}^{-1}$, while the parallel spectrum shows peaks at 200 and 160 cm^{-1} .

The IR spectra of oriented iso-polypropylene were reported by Miyazawa et al.² In Figure 2 are reproduced these IR spectra. The anisotropy of neutron scattering does not always correspond well with that of IR spectra because the anisotropy of infrared absorptions is due to the anisotropic changes of electric dipoles associated with the molecular motions.

The "constant Q" technique is not applicable to TOF method and the anisotropy at high energy regions is indistinct under the conditions of the present experiment.

The anisotropic phonon densities for the parallel and perpendicular cases derived from the present results will be compared with those calculated from normal modes in a following paper.

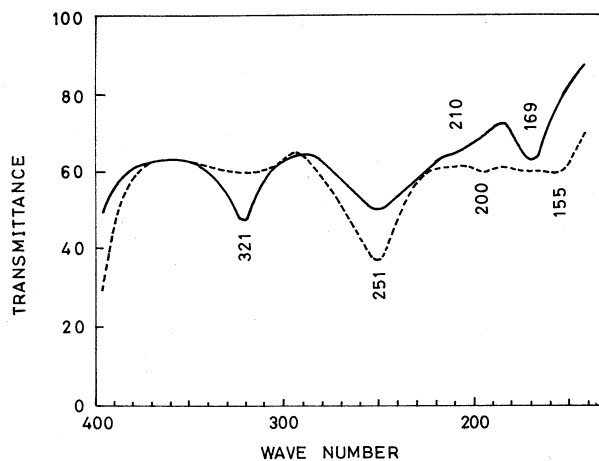


Fig. 2 Polarized IR absorption spectra of uni-axially stretched-oriented iso-polypropylene.²
 — perpendicular,
 ---- parallel

1) T. Yasukawa, M. Kimura,
 N. Watanabe and Y.
 Yamada, J. Chem. Phys.,
 55, 983 (1971).

2) T. Miyazawa, K. Fukushima and Y. Ideguchi, J. Polymer Sci., B-1,
 385 (1963).

II-7 中性子回折による RbDSO_4 の構造解析

工学部応用物理

山田 昌・島津博徳

大きさ $4.5 \times 4.5 \times 15 \text{ mm}^3$ の RbDSO_4 単結晶を用い電子リアックによる中性子回折の予備実験を行なった。6時間のマシンタイムで30個の積分反射を得ることができた。

§1 序 論

RbDSO_4 は -20°C にキュリー点を有する強誘電体であり、常温では単斜晶系である。格子定数は $a=14.421 \text{ \AA}$, $b=4.629 \text{ \AA}$, $c=14.851 \text{ \AA}$ であり、軸角は $\beta=121.37^\circ$ である。X線構造解析の結果 b 軸方向に水素結合の鎖がのびていることは確しかであるが重水素の位置はまだ決定されていない。一方赤外吸収、ラマン散乱およびNMRの実験は強誘電相における重水素原子のトンネル運動を結論している。したがって常電、強誘電両相における重水素の原子パラメータの決定が望まれている。

§2 実 験

単結晶は重硫酸 D_2SO_4 と硫酸ルビジウム RbSO_4 を等モルで反応させ、重水中温度降下法により育成した。試料としては円柱状に研磨した二種類の単結晶A、Bを用いた。試料Aは c 軸方向に長く、直径2mm、長さ15mmであり、試料Bは b 軸方向に長く、直径5mm、長さ15mmで

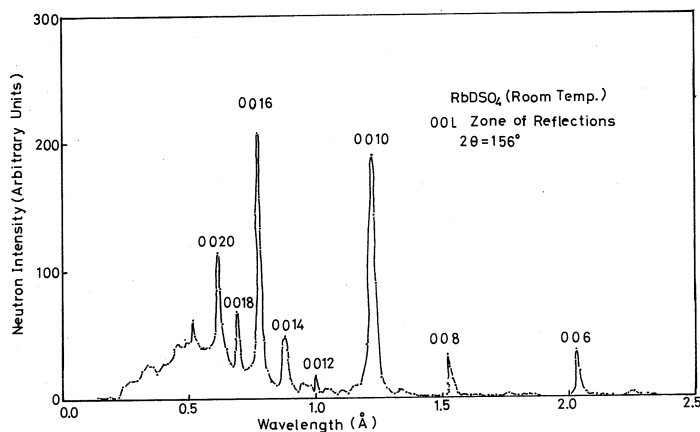


図1 Time-of-Flight法による RbDSO_4 単結晶のパターン

ある。水素結合の方向である〔010〕方向の情報が得られるはずのA試料は試料体積が小さいため入射中性子線と結晶方位との相対位置の決定にかなりの時間を要することがわかり、測定を断念した。B試料については結晶の方位設定に約20分、強度測定に20分で、1セッチングの測定に約40分を要した。この1回の方位設定で平均5個のスペクトルが得られた。結局、所要マシンタイム6時間で7セッチングの測定ができ、33個の積分反射強度を得ることができた。得られた回折パターン中の1例を図1に示す。

§3 結 果

time-of-flight法において単結晶からのLaue回折点の強度は吸収、消衰効果、熱振の影響を無視すると次式で与えられる。

$$I_{hkl} = i(\lambda)\lambda^2 [2|F|^2 d^2]_{hkl} V N^2$$

ここで $i(\lambda)$ は入射中性子のスペクトル、 λ は入射中性子の波長、 d は反射面 hkl の面間隔、 F は構造因子、 V は単結晶試料の体積、 N は単位体積中の単位格子の数である。本実験で得られた積分強度より構造振幅 $|F|^2$ を求め表1に示した。

表1 構造振幅の実測値

h	k	l	$ F ^2$	h	k	l	$ F ^2$	h	k	l	$ F ^2$
0	0	20	1.017	24	0	16	0.524	12	0	4	0.193
0	0	18	0.291	12	0	8	0.270	24	0	4	0.658
0	0	16	1.203	24	0	12	0.305	12	0	2	0.052
0	0	14	0.172	20	0	10	0.094	40	0	0	1.438
0	0	12	0.020	16	0	8	0.135	24	0	0	0.720
0	0	10	0.388	12	0	6	0.192	22	0	0	0.116
0	0	8	0.046	8	0	4	0.010	18	0	0	0.035
0	0	6	0.032	18	0	6	0.066	16	0	0	0.177

ところで RbDSO_4 の空間群は $P2_1/c$ ($B2_1/a$)であり単位格子内に8分子(16分子)を含むが対称性により独立な分子は2個だけである。したがってRbとSおよびOの原子パラメータとしてX線で決定した値を用いるならば本実験で得られた33個の反射強度から重水素の2次元パラメータを決定することが可能である。現在X線データを用い酸素パラメータの再精密化を行っている段階なので本実験の解析はまだ行っていない。

結論としていえることは現装置を用いて体積0.4cc以上の単結晶があれば RbDSO_4 の2次元中

中性子回折データは容易に得ることができる。したがって今後許されるならば a 軸を回転軸とする適当な試料を用意し、 $0k\ell$ 反射の強度測定を行いたい。

最後に単結晶ゴニオメータの整備から実際の測定まで面倒をみて下さった中性子回折グループの方々に深く感謝します。

II-8 TOF クリスタル・アナライザー による準弾性散乱

核理研・金研*

渡辺 昇・佐藤建太郎*・新村信雄

小山田正幸・木村 一治

概 要

パルス中性子源よりの白色エネルギーの中性子を試料に入射させ、特定波長の散乱中性子だけを単結晶で検出することにより準弾性散乱を測定する方式のスペクトロメーターを試作した。この方法はチョッパーまたは単結晶モノクロメーターにより単色のパルス状中性子を試料に入射させ、散乱中性子をTOF法で測定する方法に比べいくつかの特徴がある。この装置のエネルギー分解能は最高で0.05meV程度である。運動量変化の大きいところまで広範囲の測定が可能である。この装置を用いて α 相水素化バナジウム中での水素原子の自己拡散による準弾性散乱の実測が行なわれている。

1 緒 言

TOF クリスタルアナライザー法は、パルス中性子源より得られる白色エネルギーの中性子を入射ビームに用い、散乱中性子エネルギーを単結晶により分析する方法で、入射中性子のエネルギーはTOFにより決められる。この方法はチョッパーまたは単結晶モノクロメーターを用いて単色のパルス状ビームを入射させ、散乱中性子の波数ベクトルをTOFで決定する方法の逆で、Egelstaff(1960)により提唱された非弾性散乱実験の基本形の一つのTOF変形と考えられる。この方法をパルス中性子・TOF法に用いる場合の分解能等については電子リアックをパルス中性源として高エネルギー領域(0.1~0.5eV)の中性子分光を行なうことを目的とした場合についてはWebb(1965)により検討されているが、実際に用いられた例は非常に少ない。Day等(1971)は高エネルギー領域での分子運動の研究を目的として電子リアックを中性子源とするTOFクリスタル・アナライザーを実際に製作し、水素を含む分子について実測を行なっている。しかしながら低エネルギー領域で非干渉性の準弾性散乱あるいは純すいの非弾性散乱と分離された弾性散乱の測定を目的としたTOFクリスタル・アナライザーはまだ検討されていない。一方定常炉を中性子源とした場合、超高分解能で準弾性散乱を測定する方法としてBirr

(1970)はガイドチューブの端にシリコン単結晶を置きこれをバイブレートさせる方法を用いてグリセリンの準弾性散乱の精密測定に成功している。アナライザー単結晶にシリコン等の完全結晶を用いる方法は計画中のパルス炉SORAでも大巾に採用されようとしている(EUR report, 1971)。

液体中での原子あるいは分子の自己拡散、固体中での原子の自己拡散等に関する研究は今後とも重要である。本研究は東北大300MeV電子リニアックで得られるピーク時で 10^{12} n/cm²・secという弱いパルス中性子源でもこれらの研究に有効な、効率のよい、しかもかなり高分解能の特徴あるTOFクリスタル・アナライザーを試作することを第1の目的としている。この装置を用いての研究は著についたばかりであるが、例えば α 相水素化バナジウム中での水素原子の自己拡散については一部データが得られつつある。

2 クリスタル・アナライザー

さてTOFクリスタル・アナライザー法ではアナライザー単結晶で散乱中性子エネルギー E_a を固定した時、エネルギー変化 ϵ は次のように求められる。

$$\epsilon = E - E_a = \frac{5226L_1^2}{(t-t_2)^2} - E_a$$

但しここに t_2 は散乱中性子の飛行時間、 t は中性子の検出された時間、 L_1 は入射中性子の飛行路の長さである。

TOFクリスタル・アナライザー法は次の如き利点を有すると考えられる。

- 1) 散乱中性子飛行路が短かいため、試料・アナライザー・中性子検出器系がコンパクトになり、遮蔽が容易である。またチョッパーTOF法に比べ少数の中性子検出器で所要の立体角がカバーできる。よいS/Nが期待できる。
- 2) 準弾性散乱の測定では同時に高次の反射が得られるので、エネルギー分解能を許すかぎり、広範囲のQ空間での測定が同時に行ない得る。
- 3) アナライザー単結晶の反射率はパイロリテック・グラファイトが得られるようになったため1に近く、チョッパーのトランスミッションに十分対抗できる。
- 4) 入射中性子飛行路の長さは遮蔽体を通過するため一般にチョッパーTOF法における散乱中性子飛行路の長さ L_2 より長く、これがエネルギー分解能の高上に寄与している。(パルス中性子源を用いた低エネルギー中性子のチョッパーTOF法では L_1 は L_2 に比べ必要以上に長くなる)。
- 5) 将来エネルギーおよび時間のフォーカシングが可能となる。

逆に欠点としては高次反射がTOFスペクトルでの低チャンネル側に近接して現れることと非弾性散乱によるバックグラウンドが増大することが考えられるが、低エネルギー領域(パイロリテック・グラファイトでは006反射くらいまで)では、これはあまり深刻な問題とはならない。

さて、クリスタル・アナライザーのエネルギー分解能 ΔE は非常に簡単には次式で与えられる。

$$\Delta E = 2 \cdot E_{\alpha} \sqrt{\left(\frac{\Delta t}{t-t_2}\right)^2 + (\cot\theta_B \cdot \Delta\theta_B)^2}$$

ここに Δt は時間のゆらぎで、タイム・アナライザーのチャンネル巾 τ_t 、モデレーターの平均中性子放出時間 τ_m 等で決まるが、一般には τ_m が支配的である。リニアックをパルス中性子源としているため、中性子強度は非常に弱くモデレーター表面でパルス時のピークにおいて 10^{12} n/cm²・sec程度であり、 L_1 としては4 m程度が限度となる。この時002~006反射のところでの $\Delta t/t-t_2$ は2~3%となる。 $\cot\theta_B \cdot \Delta\theta_B$ は $\Delta t/t-t_2$ に比べ同程度以下になればよいが、できるだけ後方散乱を採用することにより小さくできる。図1に示す如く、 $2\theta_B = 160^\circ$ 程度は比較的容易に実現できる。入射

中性子ビーム、試料およびアナライザー単結晶の面積は、中性子強度に対する配慮から、いずれも約5 cm×5 cmで、したがって試料・アナライザー検出器間のコリメーションと同程度のモザイクのひろがりを入射ビームに許すとすると($3.5^\circ \sim 5^\circ$)、 $\Delta\theta_B$ の値は $1/10 \sim 1/20$ となり、 $\cot\theta_B \cdot \Delta\theta_B$ は $\Delta t/t-t_2$ に比べ少し小さい値となる。

図1にスペクトロメーターの概要を示す。モデレーターよりのパルス状白色中性子ビームはカドミウム製スリット⑦を経て、アルミニウム製クライオスタット①中に置

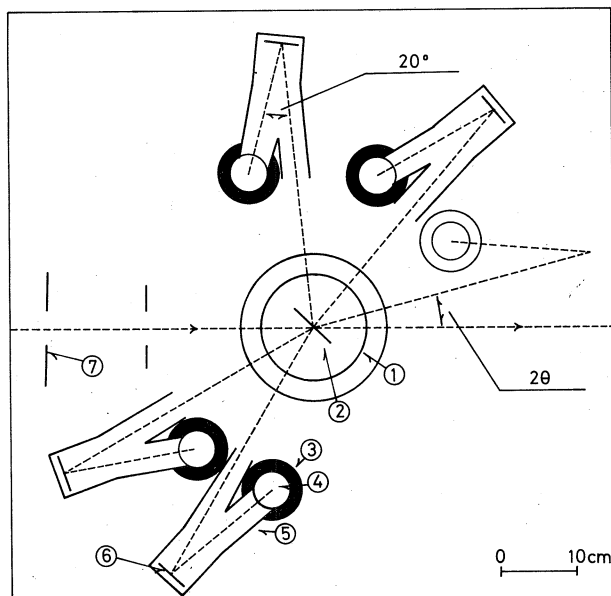


図1 TOFクリスタル・アナライザー法による準弾性散乱スペクトロメーター

かれた試料②に入射する。試料は入射ビームに対し 45° にセットされている。ビーム孔はH-3が用いられ、入射中性子飛行路 L_1 は391 cmであった。散乱角は任意であるが広範囲のQ空間で同

時に測定ができるよう(高次反射も含め),一先ず $2\theta=20^\circ, 50^\circ, 95^\circ, 120^\circ, 150^\circ$ にしてある。散乱中性子はカドミウム・スリット⑤を経てアナライザー単結晶⑥で,特定の波長の中性子のみが反射される。アナライザー単結晶にはモザイクのひろがり約 3.5° ,面積2インチ×2インチ,厚さ $1/16$ インチのパイロリテック・グラファイトが用いられた。アナライザーのプラグ角は所要の E_a により適当に変えられるが,高分解能を得るため $2\theta_B=160^\circ$ にセットされている。特定の E_a の散乱中性子は遮蔽筒③に納められた BF_3 カウンター④(5cm ϕ ,96% B^{10}F_3 ガス900mmHg封入)で検出され,そのタイミング信号はアンプ系を経てそれぞれ512チャンネルタイム・アナライザーに蓄積される。試料・アナライザー間およびアナライザー・ BF_3 カウンター間の距離はそれぞれ38cmおよび17.5cmである。装置全体がカドミウム内張りの10cm厚ボロン・パラフィン箱で遮蔽されている。図2は TiH_2 試料について予備実験のために測定された

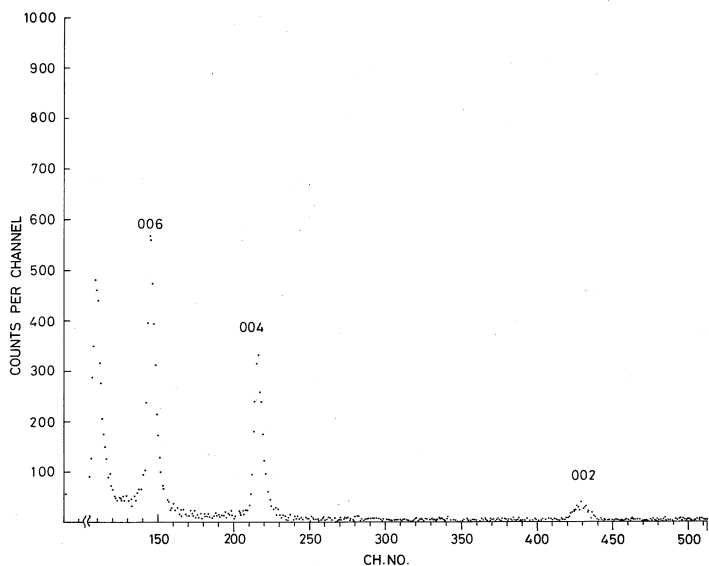


図2 TiH_2 の非干渉性弾性散乱のTOFスペクトル($2\theta=120^\circ$)

TOFスペクトルの1例である。チャンネル巾は $16\mu\text{sec}$ である。パイロリテック・グラファイトの002, 004, 006……に対応する波長での TiH_2 の準弾性散乱ピークが観測できる。ここで TiH_2 は弾性散乱をされると考えられるため,これらのピークはそれぞれ測定系の分解能関数を与えるものと考えることが出来る。分解能は表1に示す如く002では約 0.1meV となり,従って 0.05meV 程度のline broadeningまで十分測定可能と考えられる。

この装置を用いて液体,固体中の原子の自己拡散について種々研究が可能となるが,固体金属

表1 エネルギー分解能および Q のメッシュ

	$\lambda(\text{\AA})$	$\Delta E(\text{meV})$	$2\theta^\circ$	$Q(\text{\AA}^{-1})$
002	6.6	0.11	20°	0.33
			50°	0.8
			95°	1.4
			120°	1.65
			150°	1.84
004	3.3	0.35	20°	0.66
			50°	1.61
			95°	2.8
			120°	3.3
			150°	3.67
006	2.2	1.0	20°	0.99
			50°	2.41
			95°	4.2
			120°	4.94
			150°	5.5

中での水素原子の自己拡散の1例として、 VH_x での実測結果について次に述べる。

3 α 相水素化ヴァナジウム VH_x の準弾性散乱

VH_x の α 相についてはV原子は $a=3.03\text{\AA}$ のbcc格子を形成するが水素原子の占める位置に関してはtetrahedral sitesをとるかoctahedral sitesをとるか未だ決定されていない。 α 相では水素原子の拡散が顕著で温度因子は非常に大きく、低組成では単結晶も得られるが、通常の中性子回折では水素原子の位置およびジャンプの方向についての情報は得られていない。最近水素原子による非干渉性準弾性散乱ピークの中のひろがりの Q 依存性から、これらに関する知見を得ようとする試みがなされている(Rowe et al., 1971)。すなわち、line broadeningの理論値は水素原子のsitesにより異なった Q 依存性を示すので、実測値との比較からsitesについての情報が得られる。Rowe等(1971)は原子炉よりの冷中性子(冷却フィルター, 4.07\AA)・チョッパー-TOF法により種々の散乱角で準弾性散乱ピークの測定を行なったが、冷中性子のため Q の測定範囲が $Qa \leq 8$ に限られ、水素原子のsitesについて結論を下すことはできなかった。したがって Q の高い領域での測定が必要とされているが、 $Q=4\pi \sin\theta/\lambda$ より明らかな如く、小さい λ で測定を行なうことになるのでエネルギーに関して高い分解能を得ることは困難である。また温度因子が大きいことが、大きい Q での測定をさら

に困難にしている。

本研究で試作したTOFクリスタル・アナライザーは、比較的短波長(004および006反射)においてもかなりエネルギー分解能がよいので、 Q の大きい領域での測定が可能と考えられ、 α 相 VH_x の $Qa \geq 8$ での準弾性散乱の測定を試みた。

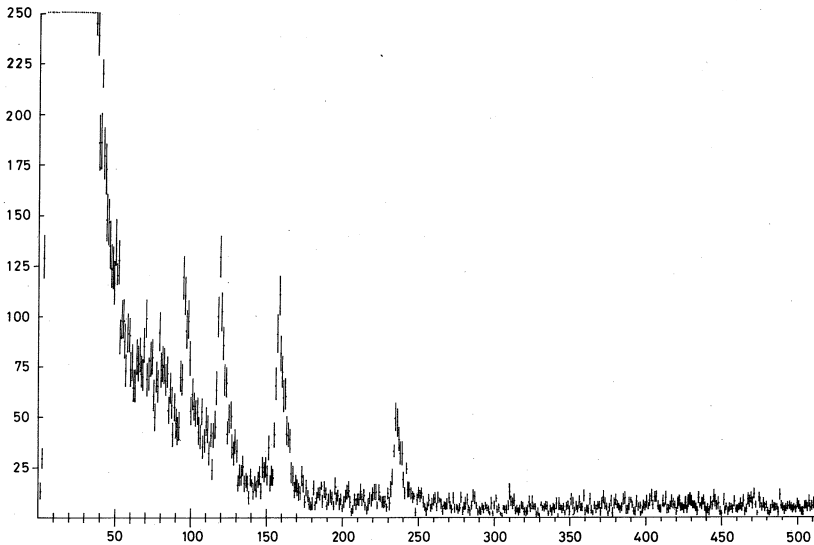


図3a Vの非干渉性弾性散乱のTOFスペクトル($2\theta = 50^\circ$)

図3aは純粋のバナジウム試料について $2\theta = 50^\circ$ 系で測定したTOFスペクトルで、002ピークは長波長であるため(6.6Å)バナジウムの大きな吸収断面積のため観測されていない。チャンネル巾は $16\mu\text{sec}$ である。これよりスペクトロメーターの分解能関数が得られる。

図3bは 210°C の $VH_{0.42}$ 粉末試料について $2\theta = 50^\circ$ 系で8時間の測定で得られたTOFスペクトルを示す。実験は総てトランスマッション80~90%で行なわれた。図3bから水素原子の拡散によるline broadeningが明らかに観測される(特に004ピーク)。002ピークについてはVの場合同様ほとんど観測されていない。

図4はこれらのTOFスペクトルからバックグラウンド・カウント(非弾性散乱を含む)を差し引いたピークについて、1例として Q の大きいものおよび小さいもの((a)および(b))を示す。図中実線は VH_x 中のVによる寄与を示したもので、これはバナジウム・ランより適当な補正、規格化をして得られる。これはすでに述べたように分解能をも表している。図4の(c), (d)はVの寄与を差し引いた水素原子による準弾性散乱を示すもので、Lorentzianにフッティング

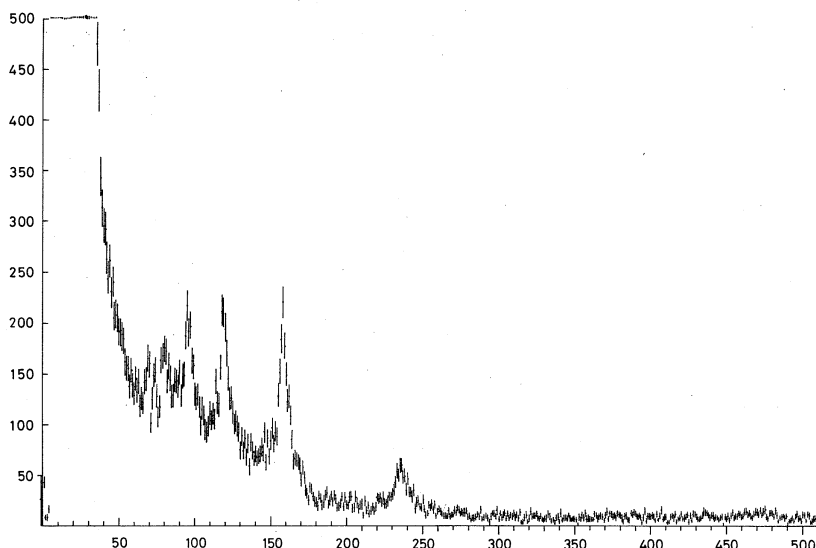


図3b 210°C α 相 $VH_{0.42}$ 粉末の準弾性散乱のTOFスペクトル ($2\theta=50^\circ$)

(実線)として示してある。 $Q=2.59\text{\AA}^{-2}$ での 4ω はRowe et al., (1971)の値 $1.35\times 10^{-12}\text{sec}^{-1}$ に非常によく一致している。また $Q^2=244\text{\AA}^{-2}$ については比較できるデータはないが一応分解能の範囲で測定できたと考えられる。

目下種々の組成比(H/V)での測定が進行中である。これは理論値が組成比零で与えられるため、理論値との比較のためには組成比零への外挿を必要とするためである。

4 結 言

$10^{12}\text{n/cm}^2\cdot\text{sec}$ のピーク中性子束で準弾性散乱の測定が行なえるスペクトロメーターがTOFクリスタル・アナライザー法で実現できた。本スペクトロメーターは液体、固体中での原子の自己拡散のほか、

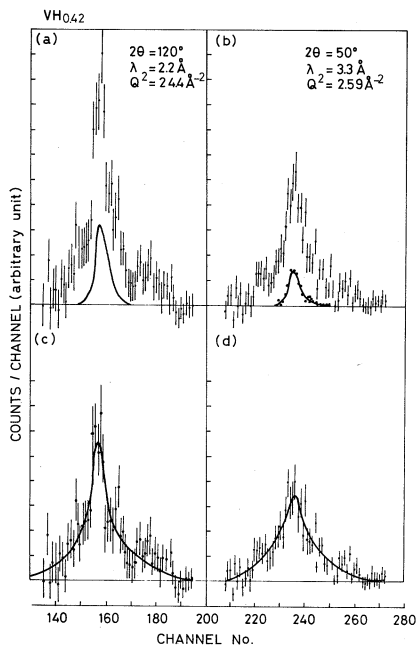


図4 210°C α 相 $VH_{0.42}$ の水素原子による準弾性散乱

スピンの $5/2 \sim 4/2$ 程度ある常磁性散乱の研究に有用であると考えられる。またこの方法のスペクトロメーターでは容易に純すいの弾性散乱のみを非弾性散乱から分離して測定できるので、多少の変形により、磁気不純物の電子状態、数Å程度の disturbance の研究等 diffuse scattering の研究に用いられるであろう。すなわち試料に磁場をかけ、磁場の方向に対し垂直な面および平行な面内にそれぞれ散乱角 30° 以内に 4 系統程度のクリスタル・アナライザーを配置することにより 1.5 \AA^{-1} 以内で 12~16 点の磁気形状因子の測定ができる。これらの実験については近く実施される予定である。

謝 辞

最後に有益な議論をいただいた金研の平林教授、試料作成に援助下さった金研の浅野博士に感謝します。

文 献

- Birr M., 1970, Z. Physik 238 208-220.
Day D. H. and Sinclair R. N., 1971, AERE-R6717.
Egelstaff P. A., 1960, AERE-R3593.
EUR/C-IS/766/71e, 1971.
Rowe M., Sköld Kurt and Flotow H. E., J. Phys. Chem. Solids, 32 41-54.
Webb F. J., 1965, AERE-R4263.

II - 9 50MeV Electron Irradiation of Germanium Doped with Co-57 (III)

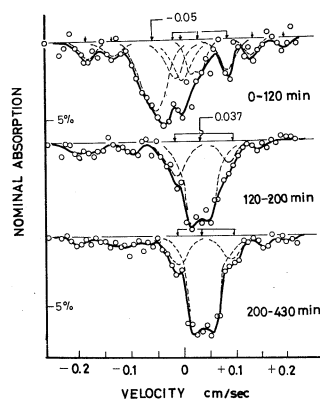
工学部 松井啓治*

The conversion phenomena observed in 50 Mev electron-irradiated germanium doped with Co 57 Mössbauer probe are reported in brief. The procedures of Co 57 doping and Mössbauer measurements were described in the previous reports. ^(1,2) The irradiation conditions are given in a separate report on Ge 73 effects. ⁽³⁾ The conversion phenomena in Co 57 doped silicon will be reported in a next occasion.

The unresolved doublet found by Wertheim ⁽⁴⁾ at +0.04 cm/sec appeared in all the specimens, irrespective of their Fermi energies, prior to the irradiation. The doublet has been converted to other spectra by the irradiation, though the details varying over several specimens investigated have not been satisfactorily understood.

Fig. 1 indicates a type of the conversion observed in a nearly intrinsic specimen (40 ohm.cm n-type before the irradiation). The specimen stored at -20°C for 3 days after the irradiation at 20°C or around was brought to 293°K for measurement. The spectrum at -0.05 cm/sec annihilated in two hours to leave the Wertheim doublet.

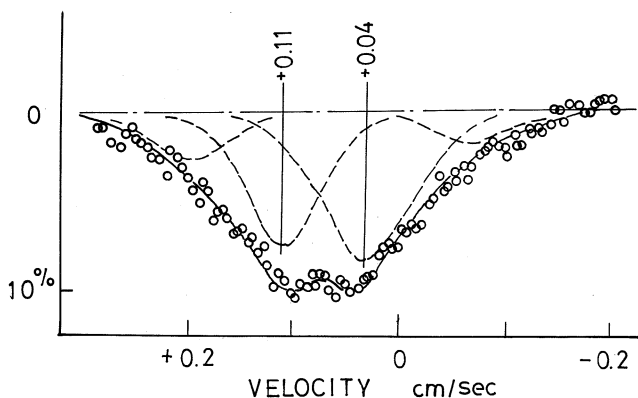
The charge state of the unstable center can be related to $\text{Fe}^{+4}(\text{int})$. ⁽⁵⁾ As the Wertheim doublet is believed to arise from substitutional cobalt, ⁽¹⁾⁽⁴⁾ a certain defect (interstitial cobalt or vacancy, for example) has to make a long range



* Keiji Mastui: Faculty of Engineering

migration in the two hours. In other words, it is difficult to make out such a process in terms of simple electronic redistribution, although one may be tempted to such an interpretation by assuming trapped carriers. Note that a similar unstable spectrum occurs in neutron-irradiated silicon in which the bremsstrahlung plays a certain rôle. (6)

A different type of conversion has been observed in 7 ohm.cm Sb-doped material as shown in Fig. 2. This is one of the specimens irradiated last time (2) conserved at room temperatures for 7 months. The spectrum (enriched SS absorber was employed) has been

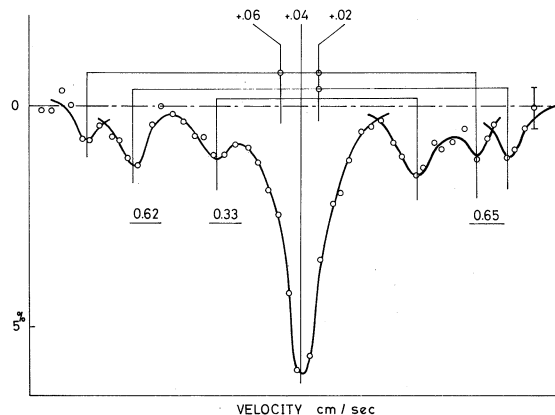


decomposed into Wertheim doublet plus a singlet at +0.11 cm/sec, which corresponds to $\text{Fe}(\text{int})^{+1 \sim +2}$. A similar singlet found in lightly irradiated 7 ohm.cm Sb-doped material was more unstable. (1) The singlet annihilated by an anneal at $150^\circ\text{C} \times 30 \text{ min}$. The structure as mentioned above has not been detected in 40 ohm.cm intrinsic crystal. The annealing would be understood by the migration of cobalt interstitial under a certain charge state.

The cobalt impurity detected by electrical or photocurrent measurements acts as double acceptor (7), though correlation does not exist between the Fermi-dependent defects and the Wertheim doublet. (4) These acceptors cannot be related to interstitials at least at this stage of both types of experiments.

A different giant splitting structure, viz., ion pairs with low spin d-electron configuration, (1,2) has been observed in 40 ohm.cm material, as shown in Fig. 3. The measurement was made under a similar condition as the specimen of Fig. 1 or the specimen of Fig. 1

in Ref. (2). The split pairs with quadrupole separation 0.33 and 0.62 cm/sec appear to have a common isomer shift +0.02 cm/sec, in contrast to +0.06 cm/sec obtained for the specimen of Fig. 1 in Ref. (2).



The quadrupole splitting ratio 1.85 seems to

be close to the field gradient ratio of $(d_0)^4(d_1)^m(d_2)^{5-1-m} q^{(014)}/q^{(023)}=1.75$. Such a structure may be difficult to arise simultaneously as expected by the difference of the electron-electron interaction given formally in Table 1.

The giant splitting pairs disappeared in a few hours after the specimen was brought to room temperatures, suggesting the instability

Table 1. Parameters Related to d^5 Axial Field Configurations

Configuration (lmn)	Spin (S)	Field Gradient ($q^{(lmn)}$)	Configuration Energy ($E^{(lmn)}$)	Electron-Electron Interaction ($E_{e_e}^{(lmn)}$)
014	1/2	$14/7 e\langle r^{-3} \rangle$	-7 A	$405 F^{(2)} + 125 F^{(4)} X(1/441)$
104	1/2	12/7	-6 A + 10 B	315 + 175
023	3/2	8/7	-4 A - 5 B	162 + 80
113	3/2	6/7	-3 A + 5 B	144 + 130
203	1/2	4/7	-2 A + 15 B	85 + 225
032	3/2	2/7	- A - 10 B	108 + 150
122	5/2	0	0	0

Note: 1) Paring with negative centers is assumed.

2) The crystal field is expressed by $V = a(3z^2 - r^2) + b(35z^4 - 30z^2r^2 + 3r^4)$ $A \equiv (2/7)\langle r^2 \rangle a$ and $B \equiv (8/21)\langle r^2 \rangle b$

3) $F^{(2)}$ and $F^{(4)}$ = two electron integrals defined by J.C. Slater.

of the relevant ion pairs.

These results indicate that the interactions between the cobalt probe and other defects are quite complex at room temperatures. More careful studies, especially at low temperatures, are evidently required.

The courtesy of Prof. M. Yagi and Prof. S. Hayashibe was essential in performing the present experiment. Besides the helps of the persons acknowledged in a separate report, Mr. A. Ohkawa (Res. Inst. Min. Dress.) aided the reported in performing the work.

Reference

- (1) K. Matsui, H. Onodera and A. Ohkawa: Res. Rep'ts Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ., 3, 96-102(1970).
- (2) K. Matsui and A. Ohkawa: Res. Rep'ts Lab. Nucl. Sci., 4, 77-79 (1971)
- (3) K. Matsui: submitted to Res. Rep'ts Lab. Nucl. Sci., (this issue).
- (4) P.C. Noem and G.K. Wertheim: J. Phys. Chem. Solids, 23, 1111 (1962).
- (5) L.R. Walker, G.K. Wertheim and V. Jaccarino: Phys. Rev. Letters, 6, 60 (1961).
- (6) K. Matsui, R.R. Hasiguti and H. Onodera: Radiation Effects, 8, 195-201 (1971). (Albany Conference Report).
- (7) S.M. Sze and J.C. Irvin: Solid State Electronics, 11, 599-602 (1968).

II-10 The Germanium-73 13.3keV Mössbauer Effect with
Gallium-73 Parent Produced by Photonuclear Reaction
 $\text{Ge}^{74}(\gamma p)\text{Ga}^{73}$ in Germanium Lattice

工学部 松井啓治*

Summary

The Mössbauer effect associated with 13.3 keV E2 ($5^{+}/2 - 9^{+}/2$) transition of Ge^{73} has been detected for Ga^{73} parent embedded in germanium single crystals by making use of a photonuclear reaction $\text{Ge}^{74}(\gamma p)\text{Ga}^{73}$. These crystals were bombarded by 50 MeV linac electrons at room temperatures. The bremsstrahlung induced the reaction.

The Mössbauer measurements were made in scattering geometry so as to detect the internally converted 9.89 keV Ge KX-rays in order to avoid the difficulty related with very high conversion coefficient of the transition.

A series of spectra, though not satisfactory in resolution, have been observed in an Sb-doped n-type crystal in which the primary damages of the electron irradiation were made to anneal out. The spectra measured at 293°K showed substantial line broadenings irrespective of the scatterers employed.

These spectra were tentatively fitted by quadrupolar multiplet lines. The fits with $Q_{5/2}/Q_{9/2} = \pm 0.25$ seem the bests at this stage of the experiment. These fits gave $q = \pm 1.3 \times 10^{16}$ cgs in agreement with $|q| = (4/5) e \langle r^{-3} \rangle = 1.5 \times 10^{16}$ cgs in which $\langle r^{-3} \rangle = 38.8 \times 10^{24} \text{ cm}^{-3}$ obtained from spectroscopic data.

There are a variety of defect models which give these values of electric field gradient. A plausible one would be an interstitial

* Keiji Matsui: Faculty of Engineering, Tohoku University

germanium $\text{Ge}(i)^{+1}/4s^2 4p^1$ migrating rapidly in the lattice after its production by the 1.2 MeV β -recoil of Ga^{73} . The interstitial exhibits the multiplet for $q = -(4/5)e\langle r^{-3} \rangle$ and a singlet, at hexagonal and tetrahedral interstitial site, respectively. An analysis based on this model suggests the hexagonal site preference and a migration energy lower than 0.1 eV for the interstitial.

Introduction

It was previously reported that the experiments on the 13.3 keV Ge^{73} Mössbauer effect⁽⁶⁾ are feasible though difficulties related to nuclear properties exist.⁽¹⁾ It was also pointed out there that some nuclear reactions, typically $\text{Ge}^{74}(\gamma p)\text{Ga}^{73}$, are interesting because they enable to inject the Mössbauer probes, Ga^{73} and As^{73} , into the lattices to be studied.

The present report deals with a first intentional experiment on Ga^{73} parent in germanium through the linac irradiations. The possible Mössbauer spectra for such an experiment are reported separately.⁽²⁾

Experimental

The 50 MeV electron beam was made to pass through (a) 0.5 mm silicon, (b) 0.5 mm germanium, (c) 0.2 mm platinum and finally (d) 0.3-0.7 mm germanium. This was a compromise to utilize the beam to other kinds of experiments. The specimens, in the layer (d), were single crystals with (111) surfaces differing in their Fermi levels. These targets were immersed in running water. The temperature rises were negligible during the irradiation with electron flux $\approx 3 \times 10^{17}$ / cm^2hr . The irradiation continued for 6 hrs.

The Mössbauer measurements were made in scattering geometry.⁽³⁾ The γ -rays from the irradiated specimen (\parallel [111] axis) were made to scatter by 90° by a germanium scatterer set at 45° to the γ -rays to fall into the window of a krypton-filled proportional counter. The

window of pulse height analyser was set to select 9.89 Ge KX-rays scattered from the scatterer. Unfortunately the experiment had to be performed with a degraded counter. The counts with and without the scatterer were 1:1 at best.

Two kinds of scatterers were employed. The first one was powdered crystal with $\approx 10^{18}$ Al/cm³. The second one was intrinsic single crystal with (111) face. They were about 1 mm thick. Both the specimen and the scatterer were at 293°K.

The measurements could be commenced 5 hrs after the irradiation. The scattering experiment had to be ceased at 15 hrs after the irradiation.

Results and Discussions

A few spectra indicating Mössbauer resonant scattering were obtained for the experimental conditions described above. The signal-to-noise ratio's of these spectra do not allow any accurate discussion on the spectra. The followings are to be regarded as tentative interpretations.

The crystal chiefly investigated was 7 ohm.cm Sb-doped n-type. The crystal was annealed at 290°C for 30 min. after the irradiation, in order to make the primary damages anneal out. The Fermi level of the specimen thus returned to its value before the irradiation, except for the effects of the internal radiations.

Fig. 1 shows three spectra taken for the crystal in succession. There were no essential difference in the spectra obtained for two kinds of scatterer. These spectra were hardly interpreted in terms of singlet lines. They are believed to arise from large electric field gradients, due to valence p-electrons.

The line width's of these spectra were quite large. It is likely that some motional broadenings were associated with the line broadenings.

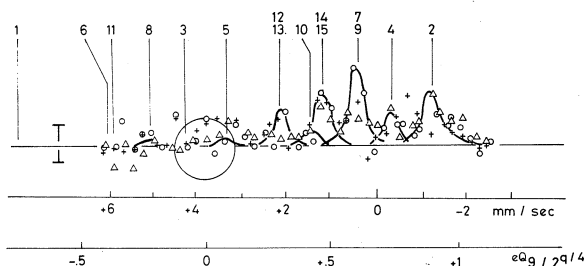


Fig. 1. The resonant scattering observed for Sb-doped n-type crystal. $r // [111]$. The circle = 1st run with powdered scatterer, the triangle = 2nd run with single crystal scatterer, and the cross = third run with powdered scatterer. The solid line = a fit assuming $Q_{5/2} = +0.25 Q_{9/2}$, $q = +(4/5)e \langle r^{-3} \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e.f.g. axes and the absence of Goldanskii-Karyagin recoil anisotropies. The line numbers in the top are the same as those used in Ref.(2). The velocity scale was determined by Fe 57 effect.

These spectra were fitted, on the basis of the above considerations, by the solid lines which correspond to quadrupole moment ratio $Q(5/2)Q(9/2) = 0.25$ and electric field gradient $q_E = +(4/5)e \langle r^{-3} \rangle$ directed to $\langle 111 \rangle$ axes.⁽¹⁾ An another choice $Q(5/2)/Q(9/2) = -0.25$ and $q_E = -(4/5)e \langle r^{-3} \rangle$ directed to $\langle 111 \rangle$ axes also fits in a similar way.

The expectation value of r^{-3} for the 4p-electron was calculated, using $Q(9/2) = -0.285 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$, to be $33.8 \times 10^{+24} \text{ cm}^{-3}$. The agreement with the value $38.8 \times 10^{24} \text{ cm}^{-3}$, obtained semi-empirically⁽⁴⁾ for $\text{Ge}(4s^2 4p^2)$, is quite satisfactory, since the value would be lower by about 10% for $\text{Ge}^+(4s^2 4p^1)$. It may be noted that such a discussion can be carried out with confidence for Ge 73 since its ground state has total spin 9/2.

It is of interest to estimate the radius of the excited state $R_n(5/2)$ given from isomer shift. The isomer shift is given by the following formula in which $Z_n =$ nuclear charge, $\phi_i(0)^2 =$ electron

probability density at the nucleus in the material $-j$.

$$\delta = (4\pi/5)Z_n e^2 R_n^2 [(R_n(5/2) - R_n(9/2))/R_n] (\phi_i(0)^2 - \phi_j(0)^2).$$

Czjzek et al determined $\Delta R_n/R_n \approx 0.9 \times 10^{-3}$ for the 67 keV excited state.⁽⁵⁾ Adopting their choice for the ground state nuclear radius and for the probability density of electron, a value $\Delta R_n/R_n \approx 0.4 \times 10^{-3}$ is obtained from the spectra of Fig. 1. It was assumed that the probability density of $4s^2 4p^1$ ($2130.702 \times 10^{26} \text{ cm}^{-3}$) can be obtained from the mean value for $4s^2 4p^0$ and $4s^2 4p^2$ calculated by Czjzek et al. Although any detailed discussion is not possible without nuclear models, the obtained value 0.4×10^{-3} appears to be not unreasonable comparing to the relevant value for the 67 keV level.

The line broadening, about 0.043 cm/sec or 0.31×10^{-19} erg, may involve instrumental ones. Still it amounts to about 160 times the natural line width. The peaks of the spectra in Fig. 1 are at around 1% of the scattered components. Even if the effective Lamb-Mössbauer factors of the emitting and the scattering nuclei were supposed to be as high as possible, the instrumental broadening could not be sufficient to explain the observed scattering yields.

It is necessary to know everything, Lamb-Mössbauer factors, the electric field gradients in the scatterers, various components of the scattered γ -rays, etc, etc, if the scattering yields are to be correlated with the line broadenings observed. In the absence of such knowledges, an interpretation of the line broadenings will be made in the following.

Let assume that one of the above mentioned fits, $Q(5/2)/Q(9/2) = -0.25$ and $q = -(4/5)e\langle r^{-3} \rangle$, is valid. The signs of $Q(5/2)$ and q_E are essential in the followings, while their magnitudes are allowed to change considerably.

The spectrum due to p_0 -orbital in $\langle 111 \rangle$ directions can be expected for an interstitial $\text{Ge}(i)^{+1}/4s^2 4p^1$ at the hexagonal interstitial site.⁽²⁾ The spectrum exhibited by the interstitial at the tetrahedral

interstitial site is expected to be a singlet. It is also expected that the interstitial can be very mobile along the T-H-T-H- path. It would be that the hexagonal site is a little preferred to than the tetrahedral site. The time-of-visit's for the two sites are related with the line broadenings of each spectrum by the Heisenberg's relation.

The static line broadenings at these sites are practically zero for the T-site and the order of $(1/100) q_E$ for the H-site.⁽²⁾ Thus the motional broadenings alone can be the order of the observed broadenings. The T-spectrum was not detected, since the time-of-visit was too short as well as the line width was too much large. The T-spectrum would have been observed as a singlet at $+0.037$ cm/sec.

The parameters related to the migrating interstitial model are summarized in Table 1. It is noted that this model is not more than one of the defect models possible.⁽²⁾ The interstitial model is acceptable from general considerations on the radiation damage theories of germanium and silicon.⁽²⁾ It is however evident that much more experiments are required to test such an interpretation.

Table 1 : Parameters Deduced for the Migrating Interstitial Spectra

Quadrupole moment	$Q_{5/2} \cong -0.25Q_{9/2} = +0.07 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$
Electric field gradient	$q \cong -1.3 \times 10^{16} \text{ erg/esu. cm}^2$
Expectation value of $1/r^3$	$\langle r^{-3} \rangle \cong 34 \times 10^{24} \text{ cm}^{-3}$
Line broadening	$\Gamma_{\text{exp}} \leq 0.04 \text{ cm/sec} = 0.3 \times 10^{-19} \text{ erg}$
Isoner shift ^(*)	$\delta \cong +0.38 \text{ cm/sec} = 2.7 \times 10^{-19} \text{ erg}$
Deviation in nuclear radii ^(*)	$\Delta R/R \sim +0.4 \times 10^{-3}$
Configuration at H-interstitial site	$= 4s^2 4p_0^1 (p_0 = p_z = p_{111})$
Migration energy	$E_m = E_f^{(T)} - E_f^{(H)} \leq 0.06 \text{ eV}$
Time-of-visit (293°K)	$t_H \leq 3 \times 10^{-8} \text{ sec} \quad t_T \sim 3 \times 10^{-9} \text{ sec}$
Number of jumps before the de-excitation (293°K)	$N_j \leq 2 \times 10^6$

(*) relative to velocity zero for Fe^{57} in iron

(**) assuming $\delta_{4sp3} = \delta_{\text{Fe}^{57}}$ in iron

Conclusion

a) An evidence of Mössbauer scattering associated with the 13.3 keV $5^{+}/2-9^{+}/2$ electric quadrupole transition of germanium 73 has been detected for Ga^{73} parent produced in germanium lattice by 50 MeV electron irradiation through $\text{Ge}^{74}(\gamma p)\text{Ga}^{73}$ photonuclear reaction. The effect has been detected through the 9.89 keV Ge KX-rays converted in the scattering atom.

b) The spectra obtained in a defect-free n-type specimen are likely to be understood in terms of a quadrupole multiplet due to the electric field gradients produced by valence p-electrons. Tentative fits to obtain the quadrupole moment of the excited state have been made.

c) A defect model consistent with the p-electron e.f.g. and the extensive line broadening observed has been presented. This is a migrating interstitial germanium (produced by the recoil of the parent gallium) taking a charge state +1 ($4s^2 4p^1$).

d) Further experiments are required to determine both the nuclear- and the solid-state parameters. The solid-state effects strongly influence the 13.3 keV Ge 73 Mössbauer spectra.

Acknowledgement

The reporter is much indebted to Prof. Y. Kozima for the realization of the present experiment. Mr. O. Konno and his crew performed the lengthy linac irradiation. The use of 200 channel analyser indispensable for the Mössbauer measurements was made possible with the courtesy of Prof. Y. Hiradate (Tohoku Inst. Tech.). The crystals were supplied by Prof. S. Ishino (Univ. Tokyo).

Reference

- (1) K. Matusi: Res. Rep'ts of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku Univ., 4, 83-96 (1971)

- (2) K. Matsui: submitted to Res. Rep'ts Lab. Nucl. Sci. (this issue).
- (3) H. Frauenfelder, D.R.F. Cochran, D.E. Nagel, and R.D. Taylor: Nuovo Cimento 19, 183 (1961).
- (4) R.G. Barnes and W.V. Smith: Phys. Rev., 93, 95-98 (1954).
- (5) G. Czjzek, J.L.C. Ford, Jr., J.C. Love, F.E. Obenshain, and H.H. F. Wegener: Phys. Rev., 174, 331-345 (1968). B. Zimmermann, H. Jena, G. Ischenko, H. Kilian, and D. Seyboth: Phys. Status Solidi, 27, 639-651 (1968).
- (6) Some nuclear parameters cited in Ref. (1) are revised in this report after "Mössbauer Effect Data Index" edited by J.G. Stevens and V.E. Stevens, pp.74-75, New York (1970).

Note Added in Proof

The latest experiment has shown that the Mössbauer spectra are strongly Fermi level dependent. The spectrum for partially degenerate n-type crystal coincides with Fig. 1 obtained for non-degenerate n-type one. The spectra for partially degenerate or non-degenerate p-type specimens show more complex structures consistent with the fact that ionized chemical acceptors act as an effective trapper of the interstitials. The spectra are also temperature dependent suggesting that the migration of the interstitials is involved in the processes. The maximum peaks attain to 4 % relative to the scattered γ -rays.

It is not clear if the spectrum for n-type specimens can be concluded as the "hide-and -seek" spectrum of Ge^{+1} . The germanium isomer stays for 0.53 sec at $1/2^-$ (66.7 kev) before decaying into $5/2^+$. With this fact overlooked earlier, the density of sinks must be less than $10^{12}/\text{cm}^3$ if the migration of the interstitials at 300°K is achieved with 0.1 ev. Calculations on the recoil anisotropies for the H-site have shown that the $\text{Ge}(i)^{+1}$ may have two equilibrium positions in lll direction. Jumps between these shallow valleys lead to an extensive line broadening.

II-11 The Migrating-, Trapped-, and Converted Interstitials in Germanium Monitored by Mössbauer Effect of Germanium-73

工学部 松井啓治*

Summary

A preparatory discussion is made on the Mössbauer spectra of Ge 73 13.3 keV effect in germanium and in other diamond lattice semiconductors, with an aim to apply the effect to the study of radiation damages in the materials.

A simple crystal field treatment of the two interstitial sites in germanium shows that a large quadrupole splitting appears from an electron on the p_0 orbital at the hexagonal site, while the spectra associated with the tetrahedral site remain singlet.

An interstitial $\text{Ge}^{+1}(4s^2 4p^1)$ is likely to make migration with very low energy to develop the two kinds of spectra alternatively. The charge state, crystal field configuration, lattice polarization, recoil anisotropy, migration energy and time-of-visit can be determined from the Mössbauer measurements. Studies on other charge states are also possible.

The giant splitting formalism applied to p-electron orbitals of interstitials trapped at charged centers shows in a similar way the possibilities of detailed microscopic identification of the paired structures.

The study of vacancy viewed from Ge 73 at a nearest neighbor site is also possible. A simple LCAO treatment indicates the relations of

* Keiji Matsui: Faculty of Engineering, Tohoku University

the Mössbauer spectra to various charge states and the Jahn-Teller distortions associated with the vacancy.

Such a structure may result from a post-conversion event of interstitials produced from Ga 73 parent or from an impurity-vacancy interaction of As 73 parent.

It appears that the Ge 73 (13.3 keV) Mössbauer effect works as the most direct microscopic tool in the radiation damage study on germanium. A similar study on GaAs etc., seems to be promising.

I. Introduction

In the course of the investigations of the radiation damages in semiconductors, it has been realized that the defect structures and the mechanisms of their production are in fact too complex to be followed by macroscopic experimental means, although the defects strongly influence the macroscopic properties.

This feature has typically been demonstrated by the epr studies on silicon made by Watkins and Corbett.⁽¹⁾ A number of simple and complex defect structures were determined with rigor. The studies have also revealed a very unexpected character of vacancy and interstitial: they can be mobile under certain charge states even in liquid helium temperature ranges.

The nature of the elemental defects has not been satisfactorily understood from theory. The current status of the interpretations of the damage effects in germanium, to which microscopic means were largely inapplicable, has been reviewed recently.⁽²⁾

The Mössbauer effect, with other solid-nuclear experimental techniques, is essentially microscopic. That the technique is useful in radiation damage studies has been demonstrated recently.⁽³⁾ A new Mössbauer nuclide Ge 73 ($5+2$ $-9+2$) especially useful in the radiation damage study in germanium is now available.⁽⁴⁾

The aim of the present report is to investigate into the Mössbauer spectra to be expected for various defect structures for this

narrow line transition. It is to be noteworthy that the effect has advantages over epr when dynamical informations are required.

The transition is especially adapted to the study of interstitials, but the study of vacancies is also possible. The interstitials in germanium and silicon have poorly been understood.⁽⁵⁾

An extensive study of the Ge 73 Mössbauer effect in germanium would be a short-cut to settle the disputes on "the difference" of these materials, to push forward the basic understandings of the radiation effects in semiconductors.

II. Physical Properties Monitored by Moessbauer Measurements

A detailed account of the Mössbauer effect and of the physical quantities associated was made, for an instance, by Werthim,⁽⁶⁾ who was one of the leading investigators of the radiation damages in silicon. The gross discussions on the electric quadrupole - and magnetic dipole-hyperfine spectra of the Ge 73 E2 transition were made previously.⁽⁷⁾

a) A Mössbauer line remains singlet when these hyperfine interactions are absent. The line position determines the electron density at the nucleus. A calculation on $4sp^3$, $4s^2p^0$, etc., was made by Czjzek et al in relation to Ge 73 67 keV Mössbauer effect (CRIME experiment). The electronic configuration will be determined if the isomer shift scale is established for the 13.3 keV effect.

b) The line intensity of course gives the (relative) amount of a defect in question. Still it is important to recall that the 13.3 keV line is extremely narrow⁽⁸⁾ since the isomer state ($5^+/2$) has a very

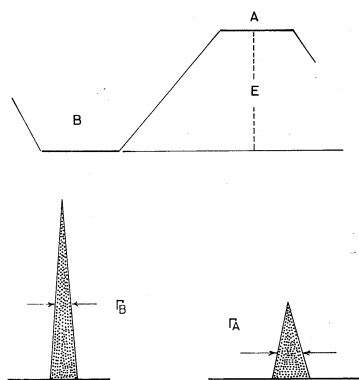


Fig. 1. A Motional Line Broadening

long life 4.0×10^{-6} sec. A line not broadened may become off-resonance.

c) The line width reflects, as far as the transition is concerned, sharply broadenings which are brought about by small static electric field gradients, by tunneling motions in Jahn-Teller type distortions around the defects, by migration motions of the defects, etc.

The last one may be treated as follows. Let the emitting nucleus belong to two interchanging chemical environments with finite lives t_a and t_b . The state with t_a is assumed to be higher in energy by E than the another. The energies of these states can be specified with uncertainties (line broadenings)

$\Gamma \approx \hbar/t$. Then these quantities are related by

$$\Gamma_b / (\Gamma_a + \Gamma_b) \approx t_a / (t_a + t_b) = \exp(-E/kT) \quad (1)$$

d) The quadrupole splitting is caused by two kinds of electric field gradients. The charges on the neighboring lattice atoms produce "lattice field gradients" q_L which contribute to the splitting as $(1 + \gamma)q_L$.⁽⁸⁾ The Sternheimer anti-shielding factor γ will be the order of 10.

Much larger contributions come from "valence electron field gradients" q_E when the p-electrons take non-spherical distributions. A p_z -electron yields $q_E = -(4/5)e\langle r^{-3} \rangle$. In principle the electron configurations and the crystal fields are deduced from the spectra.

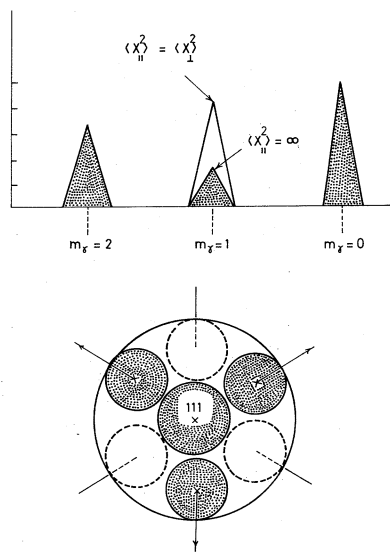


Fig. 2: The Karyagin Effect. Upper. Relative line intensities of E2 transitions associated with $\langle 111 \rangle$ e.f.g. anisotropy and $\langle 111 \rangle$ recoil anisotropy viewed from an $[111]$ axis. Lower. Anisotropy in Lamb-Mössbauer factor for $\langle 111 \rangle$ recoil anisotropy.

e) The quadrupole line intensity measures the directions of the field gradients and hence the defect symmetries, both for the strength and the sign. The line intensity is modified when the Karyagin-Goldanskii effect, ⁽¹⁰⁾ i.e., recoil anisotropy, is present. The effect gives the difference of mean-square displacements $\langle X^2 \rangle$ and hence the data on interatomic potentials.

For an instance, if the e.f.g.'s have rotational symmetry with respect to $\langle 111 \rangle$ axes, it may be expected that the recoil anisotropy also may be described by $\langle X_{\parallel}^2 \rangle$ and $\langle X_{\perp}^2 \rangle$ parallel and perpendicular to $\langle 111 \rangle$ axes. The relative line intensities of the emission along an $\langle 111 \rangle$ axes are modified by

$$\begin{aligned} I(m_{\gamma} = \pm 2) &= 1/3, \\ I(m_{\gamma} = \pm 1) &= 1/6 + (1/4) \exp \left\{ -(8/9\lambda^2) (\langle X_{\parallel}^2 \rangle - \langle X_{\perp}^2 \rangle) \right\} \\ I(m_{\gamma} = 0) &= 1/2 \end{aligned} \quad (2)$$

where m_{γ} is the projection of γ -ray angular momentum and $\lambda =$ wave length/ 2π .

III. Comparison between Ga 73 and As 73 parents

The Ge 73 Mössbauer effect can be studied either with Ga 73 or with As 73 parent. These nuclei are assumed to have been produced in the lattice from isotopes of germanium through such reactions as $\text{Ge}^{74}(\gamma, p)\text{Ga}^{73}$ and $\text{Ge}^{72}(d, n)\text{As}^{73}$. ⁽⁷⁾ These parents are undoubtedly in the form of interstitial directly after the production. They will have occasions to interact, within their lives, with other defects. The latter processes may properly be controlled.

The recoil energy of Ge* 73 decayed from Ga 73 amounts to 80.7 eV to result in a few displacement events. The probability of encounter, in the life of the isomer 4 μ sec, with some defect is conditional, depending upon the migration energies, charge states and densities of the interstitial and of the defect.

The jumps experienced by Ge* 73 before the Mössbauer emission are estimated from

$$N_j = t_{1/2} (kT/h) \exp(-E_m/kT) \cong 10^6 \exp(-E_m/kT).$$

There are possibilities that the $\text{Ge}^* 73$ may be at a non-equilibrium charge state. However the fast establishment of equilibrium will be assumed hereafter, based on the fact that the delayed coincidence Mössbauer effect studies for $\text{Co } 57$ embedded in insulators show that the equilibrium is established in less than $0.01 \mu\text{sec}$. (17)

The $\text{Ge}^* 73$ decayed from $\text{As } 73$, in contrast to the previous case, is expected to stay at the same lattice point. This allows the studies of defect structures associated with As impurity, such as As interstitial, arsenic-vacancy pair, $\text{As}(\text{int})\text{-As}(\text{sub})$ pair, etc.

It may be added that the photonuclear reaction $\text{As } 75 (\gamma, 2n) \text{As } 73$ allows a similar study on AlAs, GaAs, etc., through the $\text{Ge } 73$ Mössbauer effect.

IV. Induced crystal fields at interstitial sites

The diamond lattice has two kinds of interstitial site. (11) The tetrahedral (T-)site has 4 nearest neighbors at $0.433 a$ (a = unit cell length) and 6 second n.n.'s at $0.500 a$.

The hexagonal (H-) site has 6 n.n.'s at $0.415a$ and 8 second n.n.'s at $0.649a$. The H-site is coordinated by two tetrahedral sites along $\langle 111 \rangle$ axes.

An interstitial with charge $Z_{i,e}$ polarises the surrounding environment. The p- (also d-, f-) electrons attached to the interstitial feel the induced field. As for p-orbitals of the present interest, the tetrahedral, octahedral and cubic fields do not make split the orbitals.

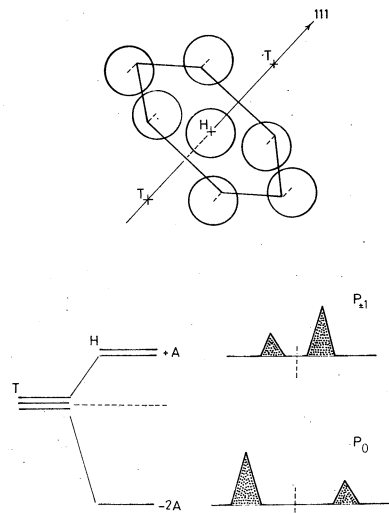


Fig. 3: An H-site interstitial with p-Electron. The quadrupole multiplets are represented for simplicity as doublets.

Let the 6 nearest neighbors of the H-site be charged by $Z_1 e$, as the directed dipoles on these atoms can be replaced by the effective charge.⁽¹²⁾ The crystal field can be written by dropping the constant term as

$$V_H = -(6Z_1 e^2 / b^3) P_2^0(\cos \theta_1) P_2^0(\cos \theta) r^2 \quad (4)$$

where $b = 0.415 a$, $\cos \theta_1 = 0.072 / 0.415$, (r, θ) = electron coordinate with z-axis is along [111].

The one-electron orbitals are p_0 and p_1 ($p_j = R(r)_{4p} Y_1^j(\theta, \phi)$) whose energies are given by

$$\langle 0 / V_H / 0 \rangle = -2A \quad (5)$$

$$\langle \pm 1 / V_H / \pm 1 \rangle = +A \quad \text{where } A \equiv 6Z_1 (e^2 / b^3) P_2^0(\cos \theta_1) (\langle r^2 \rangle / 5).$$

Assuming Ge(int)⁺¹ $4s^2 4p^1$, the p electron goes into the p_0 orbital with $q_E = -(4/5) e \langle r^{-3} \rangle$ and the configuration is stabilized by 2A. The field gradient at a finite temperature is expressed as

$$q_E(T) = -(4/5) e \langle r^{-3} \rangle (1 - e^{-3A/kT}) / (1 + 2e^{-3A/kT}) \quad (6)$$

The induced charges give rise to lattice field gradient expressed by

$$\dot{q}_L = (6Z_1 e^2 / b^3) P_2^0(\cos \theta_1) \quad (7)$$

A static broadening is expected for interstitials with spherical electron configurations from the small e.f.g., $(1 + \gamma) q_L$. Such a broadening is absent for the T-site.

An estimation of the parameters Z_1 , A , and q_L can be made from the polarization calculation made by Weiser.⁽¹¹⁾ The polarization energy for $Z_i = +1$ carried by the 6 nearest neighbors of the H-site amounts to be 2.8 eV for silicon. A close value may be expected for germanium. Equating the energy to the crystal field energy of zero-th order, one obtains

$$-(6Z_1 e^2 / b^3) = E_{\text{pol}}^{(H)}(n.n.) = 2.8 \text{ eV}, \quad (8)$$

$$\therefore Z_1 = -0.10.$$

With $Z_1 = -0.1$ and $\langle r^2 \rangle = 2.10 \text{ \AA}^2$ given by Slater average for Ge⁺¹, one gets $2A = 0.50 \text{ eV}$, which suggests a temperature-independence of $q_E(T)$

of eq.(6).

The ratio of $(1 + \gamma)q_L/q_E$ remains around 1/100. Thus the lattice field gradients at the H-site is important only for ions like $\text{Ge}^{+2}(4s^2 4p^0)$.

V. Migrating interstitials

The migration energies of some impurity interstitials were successfully explained by Weiser.⁽¹¹⁾

These are singly charged closed-shell ions (Li^+ , Cu^+ , Ag^+ ..). After

Weiser, the formation

energy E_f of the interstitial ions is given by

the difference of closed-shell repulsion E_r and polarization stabilization E_{pol} . The migration energy E_m is given by the difference of the E_f 's at the two interstitial sites.

Weiser calculated from Born-Mayer potential for interstitial ion with ionic radius $r_I E_r^{(H)} - E_r^{(T)} = 0.030 \text{ ev} \exp(r_I/0.30 \text{ \AA})$ for germanium. He obtained also $E_{\text{pol}}^{(H)} - E_{\text{pol}}^{(T)} = 0.75 \text{ ev}$. The important conclusion is that smaller ions prefer the H-site to the T-site and the preference is reversed for larger ions. The migration energy vanishes for ions with $r_I = 1.05 \text{ \AA}$.

The ionic radius of $\text{Ge}^+ \sim 1.1 \text{ \AA}$, obtained from an interpolation over 1.22 \AA (Ge^0), 0.93 \AA (Ge^{++}) and 0.53 \AA (Ge^{++++}),⁽¹³⁾ leads to $E_m = 0.15 \text{ ev}$ and the T-site preference. If the formation energy is reduced at the H-site by $2A = 0.5 \text{ ev}$, $E_m = 0.35 \text{ ev}$ and the H-site preference result. These values are only very approximate, of course. It may be expected, in addition, that the E_r at the H-site is reduced for $4s^2 4p_0^1$ relative to $4s^2 (4p_0 p_{+1} p_{-1})^1$.

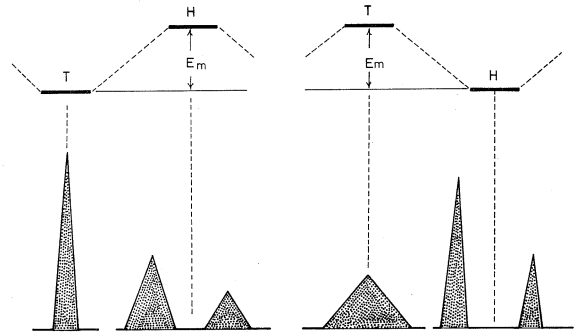


Fig.4: Prototype of "Cache-Cache" Spectra

The Weiser's theory suggests that probably Ge^+ (T or H) is mobile while Ge^0 (T) and Ge^{++} (H) are less mobile. The Mössbauer effect measurements on Ge^{73} are expected to be very useful to check these points, as discussed in the following.

The Mössbauer spectra will be speculated for particular configurations of Ge^0 , Ge^+ and Ge^{++} . These configurations would be expected for interstitials which do not make bondings with lattice atoms described by saturated $4sp^3$ covalent bonding.

The spectra expected for the T-site do not exhibit static quadrupole effects, since the tetrahedral nearest neighbor - and the octahedral second nearest neighbor - symmetries lead to $q_E = q_L = 0$. They remain as singlets to be distinguished from isomer shift values. The line width's of these singlets are extremely narrow that some of these singlets may well be "hidden". It would be possible, however, that the interstitials have equilibrium positions slightly displaced from the center of the T-site. Jumps between such sites (tunneling or thermally switched motion) would give rise to an effective broadening of the lines.

The T-spectra would be important for Ge^0 and Ge^+ but not for Ge^{++} since the T-site would be passed in a very short time in the migration process of the latter one. The γ -rays emitted from such excited configurations are practically zero. This would also be true for the H-spectra of Ge^0 .

The H-spectra for Ge^+ and Ge^{++} directly indicate their crystal field configurations. They are multiplets for $\text{Ge}^+(4s^2 4p^1)$ and $\text{Ge}^{++}(4s^1 4p^1)$ due to the p-electron at the p_0 orbital extended for $\langle 111 \rangle$ axes. The quadrupole splittings are determined by $q_E = -(4/5) e \langle r^{-3} \rangle$. The recoil anisotropies (cf. eq.(2)) are likely to exist. It is interesting to note that the excited crystal field configuration with $p_{\pm 1}$ orbitals has $q_E = +(2/5) e \langle r^{-3} \rangle$ which exhibits a mirror-image with contraction by half of the multiplet due to p_0 orbital.

The other configuration, more probable, of Ge^{++} , $4s^2 4p^0$, does not exhibit valence electron quadrupole splittings. The quadrupole splitting due to q_L (eq.(7)) will be small to make the 15 lines a continuum (\cong singlet).

The spectra expected for Ge^+ are interesting if Ge^+ is to migrate rapidly through the T-H-T-H- path. Two cases are possible. A T-site preference results in an intense singlet with less intense multiplet overlapped. The line width's of these spectra make the time broadenings given approximately by eq.(1). A H-preference appears as a reversed spectra. The T-singlet and the H-multiplet play "cache-cache". The migration energy of the interstitial may be deduced with confidence.

VI. Trapped interstitials

Consider an interstitial trapped by some charged center, at least during a time comparable to $4 \mu \text{sec}$. Interstitials produced from Ga 73, say, under the charge state Ge^+ or those decayed from As 73 may be found as such trapped interstitials.

The effective crystal field for p-electrons in the interstitials can be approximated by an axial field⁽³⁾ expressed by

$$V_p = A_0 r^2 P_2^0(\cos \theta) = -(Ze^2/2R^3)(3z^2 - r^2) \quad (9)$$

where Z_e = charge on the center, R = interatomic distance and (r, θ) = electron coordinate.

The one-electron p-orbitals are split into p_0 and $p_{\pm 1}$ whose energies are given by

$$\langle 0/V_p/0 \rangle = +(4/5)A_0 \langle r^2 \rangle = -(2/5)(Ze^2) \langle r^2 \rangle / R^3$$

and

$$\langle \pm 1/V_p/\pm 1 \rangle = -(2/5)A_0 \langle r^2 \rangle = -(1/5)(Ze^2) \langle r^2 \rangle / R^3$$

in which the left-hand side expressions are point-charge formulae.

A numerical example with $Z = -1$, $R = 2.3 \text{ \AA}$, $\langle r^2 \rangle = 2.10 \text{ \AA}^2$, $3B \equiv \langle 0/V_p/0 \rangle - \langle \pm 1/V_p/\pm 1 \rangle = 1.5 \text{ eV}$ suggests that the Hund's spin maximum rule is observed in general and that the e.f.g.'s of the p-electrons

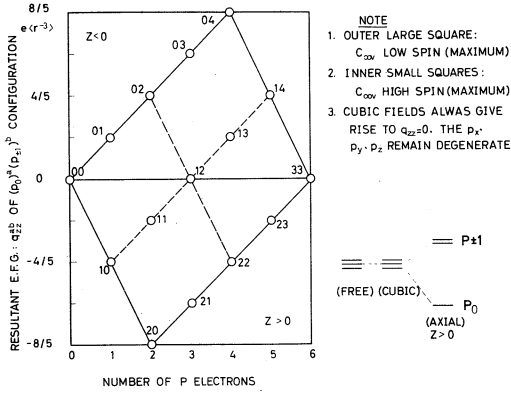


Fig. 5: The Maximum Electronic Field Gradients Associated with p-Electrons in Axial Crystal Fields. solid line = low spin configuration, dotted line = high spin configuration.

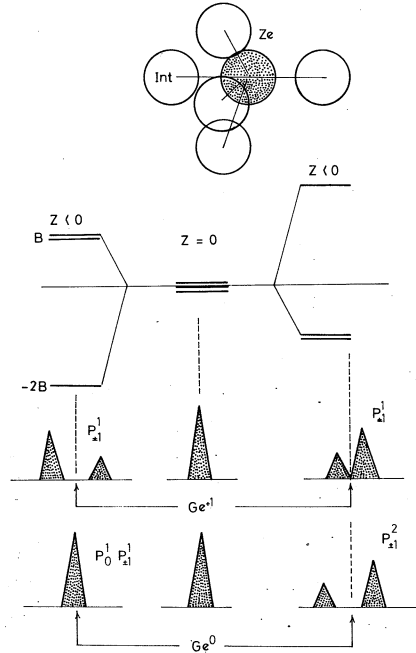


Fig. 6: Trapped Interstitials

remain temperature-independent in most cases. The q_E 's can be obtained in the same way as in the giant splitting calculations for d-electrons. (2)

It is to be noted that $Z < 0$ leads to $q_E > 0$ and vice versa. Thus Ge^+ trapped by Sn^- (sub) will exhibit a quadrupole splitting due to $q_E = +(2/5) e \langle r^{-3} \rangle$ with marked contrast to the H-site spectrum, though the e.f.g. axes are expected to be $\langle 111 \rangle$, as before.

In passing, without detailed discussions on the spectra of the trapped pairs, it may be noted that these spectra are quite useful in determinations of various pairing processes and their structures, evidenced by quadrupole splitting, line width, or the Karyagin effect. These spectra are very often accompanied by non-vanishing q_E and $q_L \approx (Ze^2/R^3)$.

VII. Converted Interstitials

The term is somewhat misleading as the interstitials become sub-

stitutional atom after the conversion, i.e., an interchange of lattice sites with substitutional impurities. The substitutional Ge* 73 produced by recombination of Frenkel pair has vanishing q_E and q_L , as mentioned previously. The line width of the singlet spectrum will be the order of natural width and probably "hidden" in usual spectroscopy.

In the cases that the impurity, driven out of the substitutional site, remains at around the Ge*(sub) site, the charge on the impurity interstitial exerts an axial field to the substitutional germanium isomer Ge*(sub). Such a structure will not give rise to large quadrupole splittings, if the bondings between nearest neighbor atoms are to be described by $4sp^3$ covalent bonds.

$$\phi = \frac{1}{2} \langle 111 \rangle_3 (s \pm p_x \pm p_y \pm p_z) \quad (11)$$

The sp^3 bonds extending to $\langle 111 \rangle$ axes involve an equal amount of p_x -, p_y -, and p_z - electrons to make q_E vanish. A static quadrupole broadening is expected, however, from $q_L = Ze^2/R^3$ arising from the impurity interstitial with its charge Ze at a distance R .

It is of interest to ask if a lattice vacancy may be studied by the Mössbauer effect. A vacancy with a near-by Ge*(sub) may be formed by the recombination of Ge*(sub) may be formed by the recombination of Ge*(int) with divacancy. The pair will be produced, however, much more efficiently by making use an arsenic (As^{73})-vacancy pair whose existence is inferred in many investigations. (11)

LCAO treatments of silicon vacancy have been made by Watkins, (14) Lannoo-Leman-Friedel, (15) and Larkins (16) to discuss the vacancies monitored by epr. Watkins's treatment, based on one-electron LCAO of sp^3 type, predicts the observed spin multiplicity, the relative electron density at the nearest neighbors (through if with Si^{29}), and the Jahn-Teller distortions associated, for V^+ and V^- ($V \equiv$ vacancy). The other states hidden in the epr spectra, V^0 and V^{--} , were also discussed.

A significant result obtained by Watkins is that the atoms (a-, b-, c-, d-) surrounding a vacancy are pulled together in pairs in $\langle 110 \rangle$

direction (a-d and b-c) both for V^+ and V^0 . The LCAO's for these charge states are $\phi_a \pm \phi_b \pm \phi_c \pm \phi_d$ (cf. eq.(11)). It follows that each of the two charged states is to be specified with a unique isomer shift. Note this is no more true for V^- as shown later.

Small quadrupole splittings due to q_E would be expected, since the distortions suggest a mixing of orbitals with a character like

$$\phi' = (1+N^2)^{-1/2} (s + N^{-1}(p_x + p_y)). \quad (12)$$

$\langle 110 \rangle$

The electronic re-distributions found in the epr spectra will produce time-broadened Mössbauer spectra. The recoil-free fractions are expected to be anisotropic, to be monitored in the singlets and multiplets. These Mössbauer experiments have to be performed below a temperature above which the vacancies make migration jumps in the life of the isomer. A careful experiment probably with stress-induced alignments will yield the migration energies associated with these charge states.

The distortions are much enhanced for V^- and V^{--} , after the theory of Watkins combined with his epr studies. For V^- the fifth electron is supposed to make a strong bonding between two atom, say, b-c. Under such a situation the 4 atoms are no longer equivalent in their electron densities. It might be that the relevant spectrum is composed of one singlet (a-d) and one multiplet (b-c) distinguished by two isomer shift values. Similar experiments proposed for V^+ and V^0 would be possible also for V^- and V^{--} .

The present status of the LCAO calculations on lattice vacancies does not allow any detailed speculations on the Mössbauer spectra. This type of measurement are expected to supply new informations to such calculations.

Conclusions

The preliminary considerations made in this report on the identifications of interstitials, interstitial-defect pairs, vacancies and other structures by means of the Ge73 13.3 keV Mössbauer effect suggest

that the effect would be quite useful in germanium for which microscopic tools have been rather deficite.

Such experiments, if extensively performed, would shed light, for an instance, on the behaviours of interstitials in silicon. Experiments on compounds semiconductors containg arsenic are also promising. Most of the considerations in the present report apply for these materials.

Aknowledgment

Dr. K. Tanaka (Nagoya Inst. Tech.) and Prof. S. Ishino (Univ. Tokyo) are acknowledged for discussions on several points treated in the report.

References

- 1) J.W. Corbett: "Solid State Physics," Suppl. 7. edited by F. Seitz and D. Turnbull, New York (1965).
- 2) J.W. MacKay and E.E. Klontz: Radiation Effects, 9, 27 (1971) (Albany Conference Report)
- 3) K. Matsui: Rep't to Sapporo Symposium on Lattice Defects (1971) (in Japansese)
- 4) K. Matsui: Res. Rep'ts of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University (this issue).
- 5) H.Y. Fan: Radiation Effects, 9, 279 (1971) (Albany Conference Report)
- 6) G.K. Wertheim: "Mössbauer Effect-Principles and Applications", New York (1964).
- 7) K. Matsui: Res. Rep'ts of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, 4, No.1, 83 (1971).
- 8) M.H. Cohen and F. Reif: "Solid State Physics", Vol. 5, p.321, New York (1958).
- 9) G. Czjzek, J.L.C. Ford, J.C. Love, F.E. Obenshain and H.H.F. Wegener:

- Phys. Rev., 174, 331 (1968).
- 10) S.V. Karyagin: Dokl. Akad. Nauk SSSR, 148, 1102 (1963).
 - 11) K. Weiser: Phys. Rev., 126, 1427 (1962).
 - 12) D.S. McClure: "Solid State Physics", Vol. 9, p.399, New York (1959).
 - 13) L. Pauling: "The Nature of the Chemical Bond", 3rd ed., Ch. 13, New York (1960).
 - 14) G.D. Watkins: "Les Effects de Rayonnements sur les Semiconduteurs", ed. par P. Baruch, p.97, Paris (1965) (Rayaumont Conference Report)
 - 15) M. Lannoo, G. Leman and J. Friedel: "Radiation Effects in Semiconductors", ed. by F. Vook, p.37, New York (1968) (Santa Fe Conference Report).
 - 16) F.P. Larkins: Radiation Effects, 9, 5 (1971) (Albany Conference Report).
 - 17) W. Trifthäuser et al.: Phys. Rev. Lett., 25, 1161, (1966).

III. 放射化学部門

III-1 光量子放射化分析に関する研究

理学部化学 鈴木信男・本田潤二
加藤豊明

標準岩石中のジルコニウムの光量子放射化分析

1. 緒 論

ジルコニウムは微量親石元素の一種で、その岩石や鉱物における存在度は岩石や鉱物の生成の物理条件や生成機構を知る上に重要な指針を与えるとされている。また、元素の宇宙存在度曲線¹⁾における $N=50$ のマジックに位置し、この領域の形状を知る上に不可欠であるなど地球化学的に極めて重要な元素である。月面の岩石ではチタン・ハフニウムなどと共に異常に高い濃縮度を示すと報告されている²⁾。

微量ジルコニウムの定量は、従来、X線蛍光分析法、発光分光分析法、熱中性子放射化分析法などによって行なわれており³⁾、岩石中のジルコニウムの定量にもさかんに適用されているが、方法や実施条件の差異によって、得られる定量結果にしばしば不一致がみられ正確な値が得難いと指適できる。標準岩石の元素組成に関するFlanaganの編集⁴⁾を見ればこの事情は明らかである。この原因の1つは複雑な化学分離操作を要するためと考えられる。熱中性子による放射化分析法では岩石の主要成分からの強い放射能より多段階の分離操作で ^{90}Zr を分離の後測定する。Schmittら⁵⁾の方法では満足な分離に20-stepを要している。また、この方法では化学的性質が類似しているハフニウムが強く放射化される結果、多くの場合これとの相互分離が必要で、特に Zr/Hf 比が小さい試料では正確な結果は得がたい。

以上のような理由で岩石中のジルコニウムを定量するのに、より容易で正確な方法が得られれば極めて有用と考えられる。

制動輻射 γ 線による放射化で $^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr}$ を利用する同元素の定量法が他元素に比べて特異的に鋭敏であることは光量子放射化分析に関する鋭敏度の検討の結果から明らかであり⁶⁾、本法によればハフニウム中に含まれるジルコニウムの非破壊分析も可能である⁷⁾。岩石を照射した場合でも、熱中性子の場合のような主成分に起因する強い放射能は避けられるから、取扱いが容易で分離法も簡易で目的をはたすに充分と思われる。そこで、本研究では8種の標準岩石を試料として選び、30MeV制動輻射による光量子放射化分析法でジルコニウムの定量を試み、それ

に必要な基礎検討と、得られた結果に対する考察を行なった。

2. 実 験

2-1 試料と照射

標準岩石はU. S. Geological Surveyのsilicate rock, すなわち, G-2 (Granite), GSP-1 (Granodiorite), AGV-1 (Andesite), BCR-1 (Basalt), PCC-1 (Peridotite), およびDTS-1 (Dunite)の6種, および地質調査所より配布のJG-1 (Granodiorite) およびJB-1 (Basalt)の合計8種を用いた。これらの一定量約300~500mgをアルミニウム箔に包装して9mm ϕ \times 4mmのdiscに成型して照射試料とした。

標準試料は無水ケイ酸に既知量の酸化ジルコニウム (J. - M., Specpure) を加え混合したものを用いた。ジルコニウムの濃度が100~600ppmの間で種々に異なるように加えて, V形混合器で均一と考えられるまで十分に混合した。この約130mgをアルミニウム箔に包装して同様に9mm ϕ \times 4mmのdiscに成型した。それぞれの標準岩石試料の前後に標準試料を置いて照射し, 標準試料について得られる ^{89}Zr の比放射能の平均値を用いて試料中のジルコニウム含有量を求めた。照射は東北大学原子核理学研究施設の電子ライナックで加速した30MeV電子ビームを厚さ3mmの白金コンバーターにより30MeV制動輻射に変換して行ない, 試料はコンバーター後方の試料ホルダー内にビーム軸に沿って並べて照射した。照射は2または3時間行なった。

2-2 化学分離

ジルコニウムの分離にはTTAによる溶媒抽出がよく行なわれるが, この方法では前処理における細かな条件の差異が抽出結果に影響し, 再現よく実施できない難点がある。本研究では酸性溶液からマンデル酸塩として沈殿分離した^{8,9)}。その概略は次のようである。

1) 照射後の岩石試料あるいは標準試料をアルミニウム包装のまま, 白金皿に移し, これに担体として酸化ジルコニウムの一定量(30mg)を秤りとる。少量の硫酸およびフッ化水素酸を加え静かに加熱する。フッ化水素酸を追加しながら加熱を続け試料と担体を完全に溶解してから蒸発濃縮する。

2) 水で希釈してから, ホウ酸の飽和水溶液を加え残存するフッ素イオンをマスクし, 過剰の水酸化ナトリウム水溶液を加えて水酸化ジルコニウムを沈殿させ, 遠心分離する。

3) 沈殿を希アンモニア水で洗浄してから6N塩酸20mℓに溶解し, 16%マンデル酸水溶液を加えて80~85°Cで30分間程温浴を続け, マンデル酸ジルコニウムを沈殿させ, グラスフィ

ルターで濾別する。

4) 沈殿を, 5%マンデル酸を含む1%塩酸約50ml, エチルアルコール25mlの順で洗浄し, 110°Cで3時間以上乾燥する。乾燥した沈殿を重量既知のアルミニウム箔に包装して9mmφ×4mmのdiscとし, 秤量とγ線スペクトルの測定を行なった。化学収率は70~80%である。またこの沈殿は, 一定量を培焼して酸化ジルコニウムとして定量し比較した結果, $Zr(C_6H_5 \cdot OH(OH)COO)_4$ とよく一致した。すなわち, マンデル酸ジルコニウムとして重量分析して差しつかえない。

2-3 測定

γ線スペクトルの測定は有効体積24cm³のGe(Li)半導体検出器(ORTEC 8001-30型)とTMC社製1024チャンネル波高分析器により行なった。試料は半導体素子表面より1cmの距離で測定した。

3. 結果と考察

分離後の試料のγ線スペクトルには0.511MeVおよび0.913MeVに顕著な光電ピークが現われる。ピーク面積についてそれぞれ減衰曲線を求めると半減期79.3時間を示し⁸⁹Zrに一致する。スペクトルには⁴⁸Ti(γ, p)⁴⁷Scで生じた⁴⁷Scのピークも認められるが, ⁸⁹Zrの0.913MeVピークにより定量するのに支障はなく, 分離は満足すべきものであった。30MeV, 1.1×10^7 R/min.の制動輻射で2時間放射化すると照射終了時に0.913MeVのピーク面積として25cpm/μg Zrが得られたから, 今, この条件で10cpmを与えるジルコニウムの量をもって定量下限とするならばZr 0.4μgに相当する。本研究に用いた標準岩石に含まれるジルコニウムは文献¹⁰⁾によればDTS-1の場合に最も少なく約1ppmであるから, 本法は十分な鋭敏度を有するものである。30MeV制動輻射のエネルギー領域で定量に妨害となると考えられる核反応に⁹⁴Mo(γ, αn)⁸⁹Zr(-Q=140.4MeV)および⁹⁵Mo(γ, α2n)⁸⁹Zr(-Q=21.24MeV)が挙げられるが, 標準岩石中のモリブデン含有量が10ppm以下⁴⁾であることを考慮すれば妨害の程度は無視できる。

8種の標準岩石について得られた結果は表1のとおりである。比較のために, Flanaganが編集したデータ⁴⁾および, 最近RebagayおよびEhmann¹⁰⁾が熱中性子放射化法で求めた値を同じく表1に示した。なお, 別にJG-1については発光分光法により74ppm, JB-1についてはX線蛍光分析法により148ppmという値が得られている¹¹⁾。

G-2およびGSP-1について得られた値は文献と比べればやや低いが結果の再現性はほぼ良好である。本法は操作が容易で, かつ, 鋭敏で正確なジルコニウムの定量法として, 今後色々の

表1 標準岩石中のジルコニウムの定量結果

標準岩石	本実験結果 (ppm)	Flanagan ⁴⁾ *	Rebagay ⁵⁾ (ppm)
G-2 (Granite)	230 301	250 ~ 400 (316)	393
GSP-1 (Granodiorite)	323 379	328 ~ 685 (544)	645
BCR-1 (Basalt)	250 193	144 ~ 275 (185)	184
AGV-1 (Andesite)	205 224	186 ~ 315 (227)	213
PCC-1 (Peridotite)	0.77 1.1	—	8.1
DTS-1 (Dunite)	1.5 0.92	—	1.4
JG-1 (Granodiorite)	823 83.3	—	—
JB-1 (Basalt)	186 172	—	—

* 定量値の存在範囲を示す。()内は平均値。

地球化学的試料の分析に利用できると思われる。

本研究を行なうにあたり御協力戴いた核理研マシニンググループの方々ならびにRI実験室の皆様
に厚く御礼申し上げます。

本研究で使用した標準岩石はU. S. G. S. のDr. F. J. Flanaganおよび地質調査所の安藤
厚博士のご好意により配分して戴いたものである。附記して謝意を表します。

文 献

- 1) H. E. Suess and H. C. Urey, Rev. Mod. Phys., **28**, 53(1956).
- 2) G. G. Goles, K. Randle, M. Osawa, R. A. Schmitt, H. Wakita,
W. D. Ehmann and J. W. Morgan, Geochim. Cosmochim. Acta,
Supplement I, Proceedings of the Apollo 11 Lunar Science
Conference, Vol. 2, 1165(1970).
- 3) A. K. Mukherji, "Analytical Chemistry of Zirconium and

Hafnium", 1st Edition, Pergamon Press 1970.

- 4) F. J. Flanagan, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **33**, 81 (1969).
- 5) R. A. Schmitt, E. Bingham and A. A. Chodos, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **28**, 1961 (1964).
- 6) T. Kato and Y. Oka, *Talanta*, **19**, (1972), in press.
- 7) 岡, 加藤, 日化, **86**, 835 (1965).
- 8) C. A. Kumins, *Anal. Chem.*, **19**, 376 (1949).
- 9) R. W. Adams and H. Holness, *Analyst*, **89**, 603 (1964).
- 10) T. V. Rebagay and W. D. Ehmann, *J. Radioanal. Chem.*, **5**, 51 (1970).
- 11) 地質調査所安藤厚博士よりの私信.

III-2 The Yield Distribution of Radioactive Nuclides Produced by Photospallation Reactions in ^{133}Cs and ^{139}La with 250 MeV Bremsstrahlung

理学部化学 加藤豊明*・蔡 惠沢**

Summary The yields of various radioactive nuclides produced in ^{133}Cs and ^{139}La as a result of the $(\gamma, xnyp)$ reactions with 250 MeV bremsstrahlung have been measured with the aid of radiochemical techniques in order to study the features of the photospallation reactions on nuclei in heavy mass region. When yields were plotted against the difference in mass between target and product nuclei, it has been found that the curves thus obtained showed a similar Gaussian form for any separated element and that the peak yields occurred at about three mass units to the neutron-deficient side of the valley of the beta-stability. Similarities were observed between the yield distribution patterns obtained and those by high-energy particles in this mass region.

Introduction

When bremsstrahlung photons with very high energies pass through the target nuclei, a number of radioactive products are induced as a result of the spallation-type photonuclear reactions. Studies of the production rates or yields of such products are helpful in understand-

* Toyoaki Kato: Department of Chemistry, Faculty of Science, Tohoku University.

** Hui-Tuh Tsai: (Present address) Division of Chemistry, Institute of Nuclear Energy Research, Atomic Energy Council, Taiwan, Republic of China.

ing the processes by which the particle emissions take place. The use of radiochemical techniques seems to be indispensable in such a study. Examinations of the distribution of the observed yields have exclusively been done so far in a variety of target mass number by irradiations with high-energy particles, but relatively little has been known with regard to photonuclear processes. Halpern et al.¹⁾ investigated yields of various radioactive products by irradiating several medium-weight target elements with 320 MeV bremsstrahlung, and Fulmer et al.²⁾ measured yields of radionuclides produced in iron and aluminum irradiated with electrons in the GeV energy region. They compared the observed yield surface patterns with the nuclear energy surface of beta-stability, and found that the former stays at neutron-deficient side of stability by few tenth of one mass unit. Strong similarities between the yield distribution patterns in irradiations by photons and those by high-energy particles could be observed in the medium-weight mass region, and cascade-evaporation mechanism was suggested to explain such behavior. In the heavy mass region, however, the experimental data of this kind are much less abundant. It is therefore of interest to study how the features of the high-energy photonuclear reactions depend on the target in this mass region. We reported, in a short communication,³⁾ the yields of $^{133}\text{Cs}(\gamma, xn)$ and $^{133}\text{Cs}(\gamma, 2pxn)$ reactions with 150, 200 and 250 MeV bremsstrahlung. More recently, Jonsson and Person⁴⁾ measured the yields for 28 different $^{127}\text{I}(\gamma, xnyp)$ reactions

-
- 1) I. Halpern, R.J. Debs, J.T. Eisinger, A.W. Fairhall, and H.G. Richter, Phys. Rev., 97, 1327 (1955).
 - 2) C.B. Fulmer, K.S. Toth, I.R. Williams, T.H. Handley, G.F. Dell, E.L. Callis, T.M. Jenkins, and J.M. Wyckoff, *ibid*, C, 2, 1371 (1970).
 - 3) T. Kato, H-T. Tsai, and Y. Oka, Bull. Chem. Soc, Japan, 43, 576 (1970).
 - 4) G.G. Jonsson and B. Person, Nucl. Phys. Report, IUNP 7004 (March, 1970).

from their thresholds up to 1 GeV.

The present report deals with a more extensive investigation of our previous work. Thus, the yield distribution curves for various radioactive nuclides produced in ^{133}Cs and ^{139}La irradiated with 250 MeV bremsstrahlung are presented. Comparisons of the observed yield distribution patterns have been made with both those in medium-weight mass region by high-energy photons and those by high-energy particles, and some considerations have also been given on the reaction processes occurred in the energy region of 250 MeV bremsstrahlung.

Experimental

Materials and Irradiation Cesium chloride and lanthanum oxide of the guaranteed grade reagents were used as the target materials. A definite amount of each material, weighing about 300 mg, was wrapped in an aluminum foil. A small piece of a 10 μ -thick gold foil was wrapped around each sample for normalizing varying bremsstrahlung dose rates. An amount of ^{196}Au produced by the (γ, n) reaction in terms of its 0.356 MeV gamma-ray photopeak area was used for comparisons. To ensure identical irradiation geometries, the width of the gold foil equalled the height of the target material.

All irradiations were performed by using a linear electron accelerator of Tohoku University which is able to accelerate electrons to energies up to 300 MeV. The machine was operated with the "High-Energy" accelerating section which provided a high-energy electron beam, the peak current being 33 mA at 250 MeV. The pulse repetition rate was 300 pps with a pulse width of 2 μ sec. The spread of electron energy in this operation condition was 2.5% from 250 MeV. The electron beam produced bremsstrahlung in a tantalum converter with

a thickness of 0.2 mm. Target materials were placed in a target holder located 1 m far from the converter on the beam axis. The remaining electrons in the bremsstrahlung beam were swept off before reaching the samples with a sweeping magnet settled between the converter and the target holder. The irradiation period was 1 hr for cesium and 2 hrs for lanthanum target.

Radiochemical Separation After irradiation, the target material was dissolved in a small amount of dilute nitric acid, along with known amounts (40 mg as element) of carrier solution of each of the elements to be separated, Cs^+ , I^- , TeO_3^{2-} and Sb^{3+} . The mixture was then subjected to one of the procedures outlined below. The final precipitates were individually packed in thin aluminum foil for the determination of the chemical yield and for the measurement of the gamma-ray spectra. All separations were performed as rapid as possible in order to reduce possible contributions of precursor nuclides to each of the yield values as described later.

(1) Cesium from Lanthanum. Cesium was precipitated from solution as its perchlorate by adding 0.1 M perchloric acid with ice-cooling. The precipitates was separated by centrifuge and dissolved with water on warming. Cesium tetraphenyl borate was then precipitated from the solution with 3.5% aqueous solution of sodium tetraphenyl borate, filtered, washed with water containing small amount of acetic acid and then with water, and dried at 110°C .

(2) Iodine from Cesium and Lanthanum. The sample solution was made up into 20 ml of 0.1 M nitric acid solution, and 3 ml of an aqueous 0.1 M sodium nitrite solution was added. The iodine was extracted with a 15 ml portion of carbon tetrachloride and then back-extracted with 20 ml of an aqueous 0.5 M sodium sulfite solution. The silver iodide was precipitated from this solution by the addition of 5 ml of 0.1 M silver nitrate solution, washed with dilute aqueous ammonia and then water, and dried at 200°C .

(3) Tellurium from Cesium and Lanthanum. After the extraction of iodine as described above, the aqueous phase was evaporated to nearly dryness. The residue was dissolved with 2 M hydrochloric acid and the tellurium was separated from the solution by passing gaseous sulfur dioxide, filtered, washed with water, and dried in a vacuum.

(4) Antimony from Cesium and Lanthanum. The filtrate after the tellurium precipitation was brought into 4 M hydrochloric acid solution, and antimony(III) sulfide was precipitated by passing hydrogen sulfide. After separation by centrifuge, the sulfide was dissolved with concd. hydrochloric acid. The solution was evaporated to nearly dryness and the residue was dissolved with 4 M hydrochloric acid. The antimony(III) sulfide was again precipitated with hydrogen sulfide, filtered, washed with water dried at 200° C.

Counting Equipment The counting equipment consisted of a lithium-drifted germanium detector with a sensitive volume of 24 cm³, ORTEC Model 8001-30, and its associated electronics coupled to a TMC 1024-channel pulse-height analyzer. The counting system had a resolution of 4 keV for the 661.6 keV gamma-line of ¹³⁷Cs. Energy calibration and photopeak counting efficiencies were determined by counting a series of calibrated sources of known activities. The precipitate and gold foil were separately counted at a fixed position, 12 mm in most cases, from the active surface of the detector.

Yield Determination A yield was defined as the production rate of a nuclide due to a certain photonuclear reaction in dps at the end of irradiation of one mole of a parent nucleus when a standard amount of bremsstrahlung radiation with a given maximum energy had passed through the target during the irradiation period. Some nuclear data for nuclides used for the yield determination are given in Table 1. The initial decay rates of the various activities produced were determined from a decay curve analysis of the counting rate of the relevant photopeak area. The corresponding saturation rates were computed and

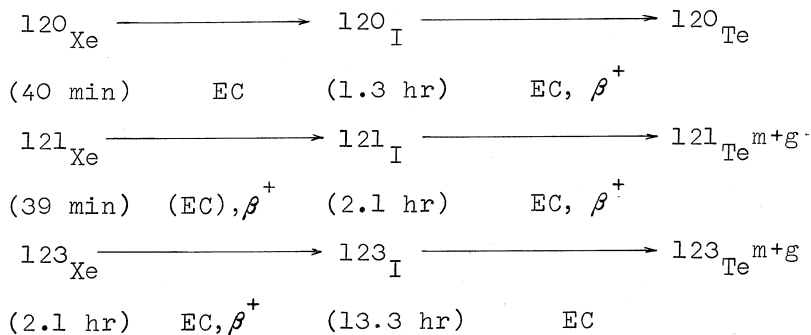
Table 1. Some nuclear data used for the yield determination

Nuclide	Half-life of product	Production reaction	Gamma-ray used (MeV) (Branching ratio,%)
^{136}Cs	13d	$^{139}\text{La}(\gamma, 2p_n)$	0.818(100)
$^{135\text{m}}\text{Cs}$	53min	$^{139}\text{La}(\gamma, 2p_2 n)$	0.840(100)
$^{134\text{m}}\text{Cs}$	2. 90hr	$^{139}\text{La}(\gamma, 2p_3 n)$	0.127(14)
^{132}Cs	6. 5d	$^{139}\text{La}(\gamma, 2p_5 n)$	0.668(97.7)
^{129}Cs	32hr	$^{139}\text{La}(\gamma, 2p_8 n)$	0.375(48.4)
^{127}Cs	6. 2hr	$^{139}\text{La}(\gamma, 2p_{10} n)$	0.286(3.6)
^{125}Cs	45min	$^{139}\text{La}(\gamma, 2p_{12} n)$	0.111(100)
^{131}I	8. 05d	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 2p)$	0.364(85.3)
^{130}I	12. 4hr	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 2p_n)$, $^{139}\text{La}(\gamma, 4p_5 n)$	0.538(100)
^{126}I	13d	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 2p_5 n)$, $^{139}\text{La}(\gamma, 4p_9 n)$	0.386(34.2)
^{124}I	4. 2d	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 2p_7 n)$, $^{139}\text{La}(\gamma, 4p_{11} n)$	0.603(68)
^{123}I	13. 3hr	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 2p_8 n)$, $^{139}\text{La}(\gamma, 4p_{12} n)$	0.159(99.1)
^{121}I	2. 1hr	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 2p_{10} n)$, $^{139}\text{La}(\gamma, 4p_{14} n)$	0.212(~100)
^{120}I	1. 3hr	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 2p_{11} n)$, $^{139}\text{La}(\gamma, 4p_{15} n)$	0.562(100)
$^{123\text{m}}\text{Te}$	117d	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 3p_7 n)$, $^{139}\text{La}(\gamma, 5p_{11} n)$	0.159(100)
$^{121\text{m}}\text{Te}$	154d	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 3p_9 n)$, $^{139}\text{La}(\gamma, 5p_{13} n)$	0.212(90)
^{121}Te	17d	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 3p_9 n)$, $^{139}\text{La}(\gamma, 5p_{13} n)$	0.573(80.6)
$^{119\text{m}}\text{Te}$	4.7d	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 3p_{11} n)$, $^{139}\text{La}(\gamma, 5p_{15} n)$	0.270(25)
^{119}Te	15.9hr	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 3p_{11} n)$, $^{139}\text{La}(\gamma, 5p_{15} n)$	0.645(85)
^{117}Te	61min	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 3p_{13} n)$, $^{139}\text{La}(\gamma, 5p_{17} n)$	0.720(65)
^{116}Te	2.50hr	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 3p_{14} n)$, $^{139}\text{La}(\gamma, 5p_{18} n)$	0.094(100)
^{122}Sb	2.80d	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 4p_7 n)$, $^{139}\text{La}(\gamma, 6p_{11} n)$	0.564(66.3)
^{120}Sb	5.8d	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 4p_9 n)$, $^{139}\text{La}(\gamma, 6p_{13} n)$	0.200(100)
$^{118\text{m}}\text{Sb}$	5.1hr	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 4p_{11} n)$, $^{139}\text{La}(\gamma, 6p_{15} n)$	0.254(100)
^{117}Sb	2.8hr	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 4p_{12} n)$, $^{139}\text{La}(\gamma, 6p_{16} n)$	0.158(100)
$^{116\text{m}}\text{Sb}$	60min	$^{133}\text{Cs}(\gamma, 4p_{13} n)$	0.545(69)

normalized for the bremsstrahlung intensity, which was measured by means of the amount of ^{196}Au activity produced by the $^{197}\text{Au}(\gamma, n)^{196}\text{Au}$ reaction in a gold foil irradiated together with the sample. After correcting for chemical yields, counting efficiencies, branching ratios,⁵⁾ and the internal conversion electrons,⁶⁾ the yields were expressed relative to that of the $^{197}\text{Au}(\gamma, n)^{196}\text{Au}$ process.

Results and Discussion

The Effect of Precursors It should be pointed out that the yields obtained in the present experiment are not all necessarily primary (independent) yields because the observed radionuclides are not all shielded nuclides. Of the iodine nuclides produced by the $(\gamma, 2\text{pxn})$ reactions on ^{133}Cs , for instance, ^{120}I , ^{121}I and ^{123}I can be formed through decays of the corresponding xenon nuclides generated by (γ, pxn) reactions thereby causing the positive yield values as shown below.



The yield for ^{126}I is the primary one, since it is one of the shielded nuclides under study. The contribution of any precursor xenon nuclide due to decay after irradiation can be corrected by

-
- 5) The decay schemes used were those listed in G.M. Lederer, J.M. Hollander, and I. Perlamm, "Table of Isotopes," Sixth Ed., John Wiley and Sons, New York (1967).
 6) The tables in M.E. Rose, "Internal Conversion Coefficients," North-Holland Publ. Co., Amsterdam (1958) were used.

means of the treatment suggested by Runnalls and Troutner.⁷⁾

Let λ be the decay constant; A , the counting rate at the time of gamma-count; N^0 , the number of atoms produced at the end of irradiation; ϵ , the counting efficiency; τ , the time interval between irradiation and separation; and τ' , the time interval between irradiation and gamma-count. For ^{120}I , for example, the quantities above are given as $\lambda_{120\text{I}}$, $A_{120\text{I}}$, and $N_{120\text{I}}^0$.

Then:

$$\frac{A_{120\text{I}}}{A_{126\text{I}}} = (\epsilon_{120\text{I}} \lambda_{120\text{I}} \{ \lambda_{120\text{Xe}} N_{120\text{Xe}}^0 [\exp(-\lambda_{120\text{Xe}} \tau) - \exp(-\lambda_{120\text{I}} \tau)] / (\lambda_{120\text{I}} - \lambda_{120\text{Xe}}) + N_{120\text{I}}^0 \exp(-\lambda_{120\text{I}} \tau) \} \exp[-\lambda_{120\text{I}} (\tau' - \tau)]) / \epsilon_{126\text{I}} \lambda_{126\text{I}} N_{126\text{I}}^0 \exp(-\lambda_{126\text{I}} \tau') \quad (1)$$

Rearranging:

$$\frac{A_{120\text{I}} \exp(\lambda_{120\text{I}} \tau') / \epsilon_{120\text{I}}}{A_{126\text{I}} \exp(\lambda_{126\text{I}} \tau') / \epsilon_{126\text{I}}} = (\lambda_{120\text{I}} \{ \lambda_{120\text{Xe}} N_{120\text{Xe}}^0 [\exp(-\lambda_{120\text{Xe}} \tau - \lambda_{120\text{I}} \tau') - 1] / (\lambda_{120\text{I}} - \lambda_{120\text{Xe}}) + N_{120\text{I}}^0 \}) / \lambda_{126\text{I}} N_{126\text{I}}^0 \quad (2)$$

When X and Y are defined as shown below, therefore, a plot of Y as a function of X results in a straight line with slope $\lambda_{120\text{I}} N_{120\text{Xe}}^0 / \lambda_{126\text{I}} N_{126\text{I}}^0$ and intercept $\lambda_{120\text{I}} N_{120\text{I}}^0 / \lambda_{126\text{I}} N_{126\text{I}}^0$.

$$Y = [A_{120\text{I}} \exp(\lambda_{120\text{I}} \tau') / \epsilon_{120\text{I}}] / [A_{126\text{I}} \exp(\lambda_{126\text{I}} \tau') / \epsilon_{126\text{I}}] \quad (3)$$

$$X = \lambda_{120\text{Xe}} [\exp(-\lambda_{120\text{Xe}} \tau + \lambda_{120\text{I}} \tau') - 1] / (\lambda_{120\text{I}} - \lambda_{120\text{Xe}}) \quad (4)$$

Now a primary yield, $Y(E)$, is written as:

$$\lambda_{120\text{I}} N_{120\text{I}}^0 = N^0 Y(E)_{120\text{I}} f(E) S_{120\text{I}} \quad (5)$$

$$\lambda_{120\text{Xe}} N_{120\text{Xe}}^0 = N^0 Y(E)_{120\text{Xe}} f(E) S_{120\text{Xe}} \quad (6)$$

$$\lambda_{126\text{I}} N_{126\text{I}}^0 = N^0 Y(E)_{126\text{I}} f(E) S_{126\text{I}} \quad (7)$$

where N^0 = number of target atoms (^{133}Cs), $f(E)$ = photon flux, and S = saturation factor.

The ordinate Y is then replaced by:

$$Y' = [A_{120\text{I}} \exp(\lambda_{120\text{I}} \tau') / \epsilon_{120\text{I}} S_{120\text{I}}] / [A_{126\text{I}} \exp(\lambda_{126\text{I}} \tau') / \epsilon_{126\text{I}} S_{126\text{I}}] \quad (8)$$

7) N.G. Runnalls and D.E. Troutner, Phys. Rev. C, 1, 316 (1970).

A plot of Y' versus X gives a straight line with slope

$\lambda_{120\text{I}} Y(E)_{120\text{Xe}} S_{120\text{Xe}} / \lambda_{120\text{Xe}} Y(E)_{126\text{I}} S_{120\text{I}}$ and intercept $Y(E)_{120\text{I}} / Y(E)_{126\text{I}}$. Thus, the primary yield of ^{120}I can be obtained as a ratio to ^{126}I from intercept of the line. A plot similar to that described for ^{120}I can be used to determine the values of $Y(E)_{121\text{I}}$ and $Y(E)_{123\text{I}}$.

A series of cesium targets were irradiated simultaneously for 1 hr, and the iodine activities were separated at several different separation times, 26, 133, 258, and 638 min. No corrections for chemical yield and bremsstrahlung intensity were necessary in this experiment, since all activities were in the same sample for a given run. Plots of Y' as a function of X for each of the iodine nuclides resulted in the straight lines as shown in Fig. 1. From intercepts of the lines, the primary yields of ^{120}I , ^{121}I and ^{123}I were calculated. It is found for a run with a separation time of 26 min., for instance, that the "fed-in" yields due to decays of the precursors turn out to be 6.0, 14.8 and 11.9% of the primary yields of ^{120}I , ^{121}I and ^{123}I , respectively.

Such corrections for precursors were not applied to all necessary cases other than xenon-iodine decay chains. Despite of this, the error

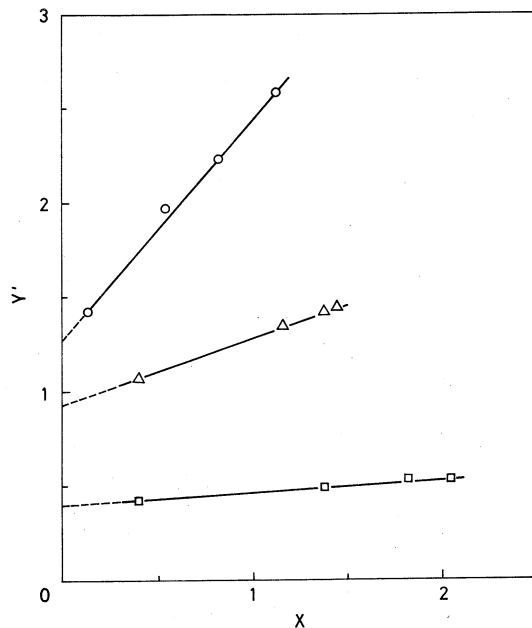


Fig. 1. X versus Y' for primary yields of ^{120}I (\square), ^{121}I (\triangle) and ^{123}I (\circ).

introduced by neglecting this source will be small, and the contribution of any "fed-in" yield may not have a pronounced effect on the general feature of the yield surfaces, because the experimental results indicate that the yields tend to decrease regularly for nuclides away from the stable valley of the nuclides as shown later.

The Yield Distribution Curve The experimental yields were plotted against the difference in mass between the target and product nuclei. Figures 2 and 3 show the results. The yield distribution curves, or the yield surfaces, thus obtained for any separated element are featured by similar parabolic forms. In the cases of ^{121}Te and ^{119}Te , both of the metastable and ground state isomers were measured, and the yield for a given mass number was expressed as the sum of the production rates of the two isomers. In some cases, however, only metastable isomer could be measured. Those were $^{135\text{m}}\text{Cs}(19/2^-)$, $^{134\text{m}}\text{Cs}(8^-)$,

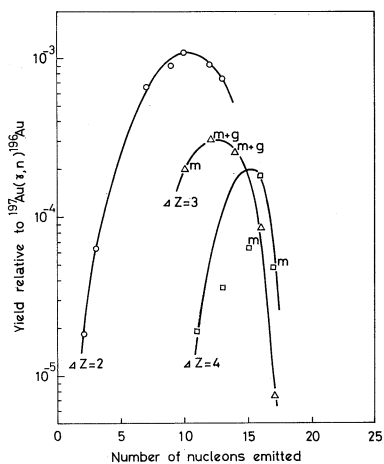


Fig. 2. The yield distribution curves for iodine (○), tellurium (△) and antimony (□) nuclides produced in ^{133}Cs irradiated with 250 MeV bremsstrahlung.

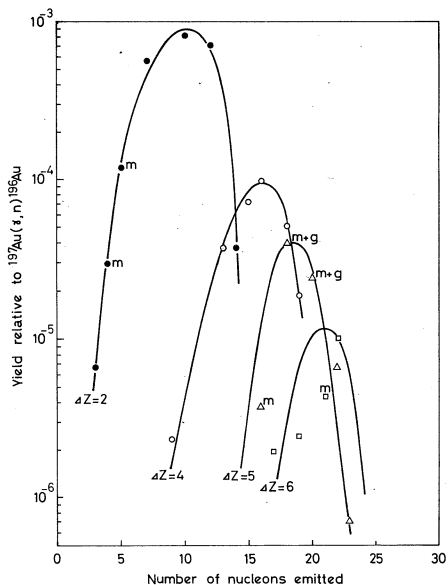


Fig. 3. The yield distribution curves for cesium (●), tellurium (○) and antimony (□) nuclides produced in ^{139}La irradiated with 250 MeV bremsstrahlung.

$^{123m}\text{Te}(11/2^-)$, $^{118m}\text{Sb}(8^-)$ and $^{116m}\text{Sb}(8^-)$. Their yield values are low in general due to very high spins. The yield value of $5.8 \text{ d-}^{120}\text{Sb}(8^-)$ is also low due to its very high spin as compared with the spin of 16 min-isotope, 1^+ .

The atomic weight at the peak of the yield surface and the atomic weight at the center of the stable valley for a given atomic number⁸⁾ are listed in Table 2. It can be seen from Figs. 2, 3 and Table 2 with respect to the shape of the yield surfaces that (1) the ridge stays fairly parallel to the stable valley at about three mass units to the neutron-deficient side, (2) the value of the slope of the yield surface ridge (decrease of yield per unit increase of ΔZ) can be estimated as to be ~ 3 , and (3) the width at half-maximum seems to be narrower when going from product elements near the target (Cs, I) to more distant ones (Te, Sb).

The yield surface characterized by Halpern et al.¹⁾ stayed at 0.5 mass units to the neutron-deficient side of the stability line,

Table 2. The peaks of the yield surfaces

Product atomic number, Z	Atomic weight		$\Delta A (= A - A_{obs})$
	at the center of the stable valley, A	at the peak of the yield surface, A_{obs}^*	
55 (Cs)	131.4	128.5	2.9
53 (I)	126.0	123.0	3.0
52 (Te)	123.3	120.5	2.8
51 (Sb)	120.6	118.0	2.6

*Almost identical to both targets.

8) Calculated by using the relation between Z_A and A given in G. Friedlander, J.W. Kennedy, and J.M. Miller, "Nuclear and Radio-chemistry," 2nd Ed., John Wiley & Sons, New York (1964). p.45.

and, hence, the surfaces observed in this work shift 2.5 mass units more towards the neutron-deficient side than those in the copper-to-arsenic mass region.

A high-energy nuclear reaction has been thought to take place in two steps, the initial nucleon cascade step and the subsequent evaporation step.⁹⁾ During the first step, some particles are ejected from nuclei as a result of a succession of internal collisions initiated by an incoming fast particle. Roughly equal numbers of neutrons and protons are emitted in this stage. The wavelength of the photons around 200 MeV is so small as to cause interaction with single nucleon or with pairs of nucleons, and as a result, some energetic nucleons can be removed from a nucleus without forming a compound nucleus. After this cascade step, the residual energy in a nucleus is dissipated by the evaporation of some particles and some photons. During this step, proton evaporation is less probable than neutron evaporation because of the Coulomb barrier. Relative probability for the evaporation of protons is quite smaller in the heavy mass region when compared with that in the medium-weight mass region, and, hence, the yield distribution curves shift more towards the neutron-deficient side of stability.

The yields for the reactions, in which only a few particles are emitted, may be greater than that expected from yield surface considerations, because photons with relatively low energies in the bremsstrahlung spectrum contribute more largely to the production of those reactions. A part of the yield for such reaction as $^{133}\text{Cs}(\gamma, 2p)^{131}\text{I}$ ($-Q = 15.53$ MeV) or $^{139}\text{La}(\gamma, 2pn)^{136}\text{Cs}$ ($-Q = 23.58$ MeV) is due to photons in the giant resonance region. Because of this, the widening towards higher mass number occurred for the distribution curves of

9) L. Yaffe, Ed., "Nuclear Chemistry," Vol. I, Academic Press, New York (1968). p. 191.

the elements close to the target. The reactions involving more deposition energy and the subsequent neutron evaporation give products which in general lie on the far neutron-deficient side of stability, thereby resulting in the symmetrical distribution and narrower width for the yield distribution curves of the elements far away from the target.

A considerable amount of information has been accumulated on the yields from nuclear reactions induced by high-energy particles in a number of regions of the isotope chart.^{10,11)} Fink and Wiig¹²⁾ studied the reaction products in cesium with 240 MeV protons and found that the maximum cross sections occurred around ^{123}I , ^{119}Te and ^{117}Sb for the productions of iodine, tellurium and antimony nuclides, respectively. Rudstam and Sørensen¹³⁾ measured cross sections of iodine isotopes produced in various target elements by the irradiation of 590 MeV and 18 GeV protons, and discussed the variation of the yield distribution of the iodine isotopes with target element and irradiation energy. They found a cross section maximum around mass number 121 in the irradiation of cesium and lanthanum targets. Hagebø and Ravn¹⁴⁾ reported cross section-mass curves for antimony nuclides produced in lanthanum, tantalum and gold with 18.2 GeV protons in which a maximum was found around ^{117}Sb . All of the yield surfaces observed in particle reactions have the general features of the photonuclear reaction surfaces. Strong increase in the yields for photon-induced spallation reactions was observed at the pion threshold, and this result was attributed to the production of nucleon-pion pairs.¹⁵⁾ In the interaction of these particles with other

10) D.H. Templeton, *Ann. Rev. Nucl. Sci.*, 2, 93 (1953).

11) G. Rudstam, *Z. Naturforsch.*, 21a, 1027 (1966).

12) R.W. Fink and E.O. Wiig, *Phys. Rev.*, 94, 1357 (1954).

13) G. Rudstam and G. Sørensen, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 28, 771 (1966).

14) E. Hagebø and H. Ravn, *ibid.*, 31, 897 (1969).

15) G.G. Jonsson and K. Lindgren, *Nucl. Phys. A*, 141, 355 (1970).

nucleons in the same nucleus, a two-step process will develop. Hence, the features of the surfaces appear to be rather independent of the nature of the incident projectile.

Acknowledgment The authors are indebted to Professor Nobuo Suzuki for his continuous encouragement in this work. We are also grateful to members of the Institute of Nuclear Science, Tohoku University, for their very fine services with the irradiations.

III - 3 $^{80m}\text{Br}_2 - \text{CH}_4$ 系における核異性体転移に ともなう化学的効果〔III〕

有機生成物の生成機構について

核理研・理学部化学*

八木益男・近藤健次郎・小林孝彰*

§ 緒 言

$^{19}\text{F}(\gamma, n)^{18}\text{F}$, $^{40}\text{Ar}(\gamma, p)^{39}\text{Cl}$, $^{79}\text{Br}(n, \gamma)^{80}\text{Br}$ および $^3\text{He}(n, p)^3\text{H}$ などの核変換反応で生成する原子は、反跳によって keV ~ eV にわたる運動エネルギーとともに多電荷をもつにいたる。気相においてこれら反跳原子と各種炭化水素化合物との反応で生成する有機生成物は、反跳原子のもつ運動エネルギー依存反応のみによってもたらされ、それにたいする電荷の寄与はほとんど認められていない^{1)~4)}。この事実は初期反跳エネルギーが大きい場合電荷中和反応が先行し、反跳原子は主として電荷をもたない中性原子として運動エネルギー依存反応をおこなうことを示している。

しかしながら ^{82m}Br および本研究で用いた ^{80m}Br の核異性体転移においては、source molecule として $^{80m}\text{Br}_2$ (または $^{82m}\text{Br}_2$) を用いる場合、娘核の平均電荷は +8 にまでなるのにたいし、その運動エネルギーは平均 40 eV を取得するに過ぎない⁵⁾。"Adiabatic Rule" を適用すると、このように低い反跳運動エネルギーの臭素イオンは、その電荷を中和されることなく反応に十分関与することもありうることを示唆する。著者らは先に $^{80m}\text{Br}_2 - \text{CH}_4$ ⁶⁾, $^{80m}\text{Br}_2 - \text{CH}_3\text{Br}$ ⁷⁾ および $^{82m}\text{Br}_2 - \text{CH}_4$ 系⁸⁾ における ^{80m}Br および ^{82m}Br の核異性体転移にともなう化学的効果において、娘核の運動エネルギーおよび電荷がともに反応に関与していることを観測し、取得反跳運動エネルギーの大小関係が反応時における娘核の電荷分布に大きな影響を与えることを明らかにした。

そこで今回は、さらに $^{80m}\text{Br}_2 - \text{CH}_4$ 系における娘核 ^{80}Br の再結合反応にたいする上記電荷および運動エネルギーの寄与を詳細に検討するため特に $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$ の生成に注目した実験をおこない、各生成物のそれぞれの生成機構を明らかにすることを試みた。

§ 実 験

ガス試料は高千穂化学 K. K. から入手したものをそのまま用いた。他の試薬は純正化学 K. K.

製の特級品を用いた。所定量の $^{80\text{m}}\text{Br}_2$ は東北大学電子ライナックで最大45~60MeVの制動放射線を照射したPdBr₂を熱分解することによりえた。試料の調製法、抽出操作、ガスクロマトグラフによる分離操作、放射能測定などは従来と全く同様^{6~8})にしておこなった。

§ 結果および考察

緒言でものべたように $^{80\text{m}}\text{Br}_2$, $^{82\text{m}}\text{Br}_2$ の核異性体転移で生成する娘核 ^{80}Br , ^{82}Br は+8の平均電荷と約40eVの運動エネルギーをもつにいたる⁵⁾。これらは周囲の分子との衝突により再結合反応をおこす前段階では*Br⁺(Kinetic energy), として分布していると考えられる。Seewald⁹⁾およびGordusら¹⁰⁾は ^3H および ^{80}Br のホットアトム化学の研究において、十分thermalizeした ^{80}Br は 10^{-2}mf 以下の少量のBr₂でscavengeしようと報告している。それ故、本実験系のBr₂濃度は0.029mf以上でおこなっているため、えられた有機収率はthermalizeした ^{80}Br によるものではなく、 ^{80}Br のもつ運動エネルギーあるいは電荷の関与した反応によってもたらされたものとみなすことができる。

一般にイオン化電圧Br⁺の11.84eVより高い不活性ガスの系への添加では、Br⁺との間の電荷移動あるいは励起種にたいするquenching効果は、余り期待できないから、運動エネルギー依存でもたらされた有機収率は、系に不活性ガスを添加し、そのmoderator効果を利用することによって消去することができる。したがって系にそのような不活性ガスを添加することは、有機収率が運動エネルギー依存反応あるいは電荷関与反応によって、どのような割合でもたらされたかを識別する非常に有効な手段となる。

$^{80\text{m}}\text{Br}_2/\text{CH}_4$ 比をかえた各組成にたいするKr添加の効果の二、三の例としてFig. 1 A, B, Cに $^{80\text{m}}\text{Br}_2/\text{CH}_4=0.029, 0.11, 0.41$ でえられた結果を示した。図から明らかなように $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ の大部分は運動エネルギー依存反応によって生成され、 $\text{CH}_2^{80}\text{Br}_2$ は主に電荷関与反応によって生成したとみなすことができる。しかしここで最も注目すべき点は、後者によって生成する $\text{CH}_2^{80}\text{Br}_2$ の収率がBr₂の濃度の増加に関連してKr濃度がおよそ0.5mf以上で増加する傾向を示したことであろう。このようなKr

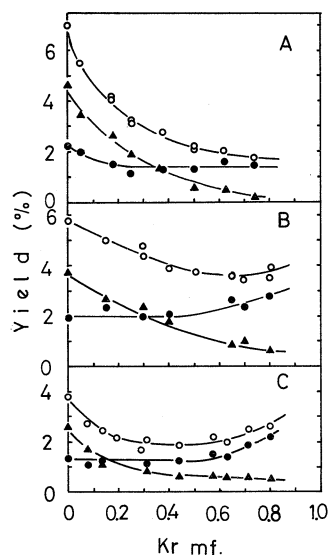
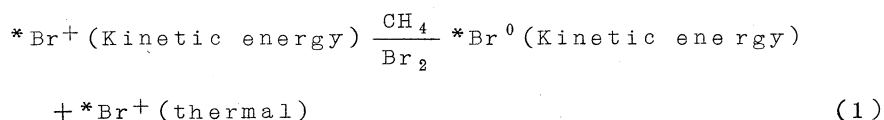


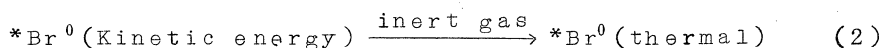
Fig. 1 $^{80\text{m}}\text{Br}_2-\text{CH}_4$ 系におけるKr添加の効果
 A : $\text{Br}_2/\text{CH}_4 = 0.029$
 B : $\text{Br}_2/\text{CH}_4 = 0.11$
 C : $\text{Br}_2/\text{CH}_4 = 0.41$
 ○ : 有機収率
 ▲ : $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$
 ● : $\text{CH}_2^{80}\text{Br}_2$

添加による収率増加という現象は全く新しい知見であり、不活性ガス添加系において不活性ガス 1mf へ外挿してえられる有機収率をもって単純に不活性ガス 0mf での電荷関与反応による収率に等しいとしてきた従来のデータ解析法は、この事実によって再考せざるをえなくなったことは明らかである。

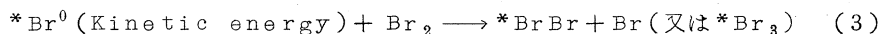
先に著者ら¹¹⁾および Rackら¹²⁾は、核異性体転移で生成する反跳臭素原子の不活性ガス添加系におけるデータ解析からえた運動エネルギー依存反応は Estrup-Wolfgang の "Impact theory"^{13,14)} にほぼ適合することを認めた。このことは反応時における生成臭素は電荷のない $*Br^0$ の状態 [$*Br^0$ (Kinetic energy)] であったことを示している。それ故 $*Br^0$ (Kinetic energy) はつぎの過程で、



Br_2/CH_4 比に応じて $*Br^0$ (Kinetic energy) と $*Br^+$ (thermal) を生成すると考えられる。この過程において特に $*Br^0$ (Kinetic energy) は Br_2/CH_4 比が小さい場合、 CH_4 との衝突で支配的に生成されるものと期待される。(1)過程によって生成された $*Br^0$ (Kinetic energy) は系に多量の不活性ガスが存在する場合

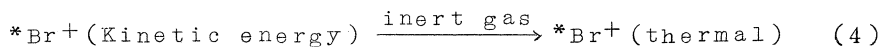


のように moderate され、結果的には thermal radical として Br_2 に scavenge される運命におかれ、



のように反応すると考えられる。

一方不活性ガスの存在は $*Br^0$ (Kinetic energy) の moderator としてばかりでなく、 $*Br^+$ (Kinetic energy) の moderator としても作用し、(4)過程による $*Br^+$ (thermal) の生成に寄与すると同時にその保護剤として働くとも考えられる。

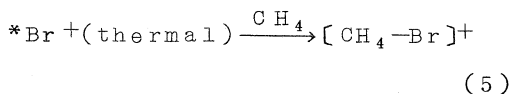


したがって系に不活性ガスが存在すると、運動エネルギー依存反応をおこなう $*Br^0$ (Kinetic energy) 濃度の減少が(2)過程を通してもたらされると同時に、反面、電荷関与反応をおこなう $*Br^+$ (thermal) の濃度が(4)過程を通して、より高められるという二つの対照的な作用が間接的、直接的に $*Br^+$ (Kinetic energy) にたいして作用することを意味する。

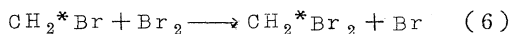
不活性ガスとしてKr添加濃度を変化させてえた結果について、最低プラト一値を電荷関与反応による収率とし(Kr 1mfへの外挿値が最低となりそうな場合はKr 0.8mfでの値を採用する)、Kr 0mfでの収率と上記収率との差を運動エネルギー依存反応にかかわるものとして、種々のBr₂/CH₄比組成の試料について解析すると

Fig. 2-A, B, Cのような結果がえられる。これらはすべてKr 0mfにおけるBr₂/CH₄比にたいする依存性として示される。Fig. 2-Aから運動エネルギー依存反応による有機収率はBr₂/CH₄比の増加とともに減少することは明らかであり、これによる各生成物の収率はFig. 2-B CH₃⁸⁰Br(—●—), CH₂⁸⁰Br₂(—▲—)のように対応している。またFig. 2-Aにおける電荷関与反応による収率はBr₂/CH₄=0.1附近で極大となり、Br₂/CH₄=0あるいは1でともに0%になることを示し、これによる各生成物の収率はFig. 2-C CH₂⁸⁰Br₂(—▲—), CH₃⁸⁰Br(—●—)のように対応している。またKr 0.8mfにおいて(4)過程によって生成される⁸⁰Br⁺(thermal)によるCH₂⁸⁰BrBrの増加はFig. 2-CのCH₂⁸⁰Br₂とCH₃⁸⁰Brの収率曲線の差、すなわち斜線の部分で示される。

先に立川ら^{15,16)}は電荷関与反応によるCH₂Br₂の生成は、



で生成する[CH₄-*Br]⁺の単分子分解でまずCH₂*Brができ、引続く



によってもたらされるものと説明した。しかし著者ら^{11,17)}

はCH₄-H^{80m}Br系における有機収率の大部分が電荷

関与反応によるものであり、CH₂⁸⁰BrBrの生成はCH₃⁸⁰Brのそれより大であったという実験事実にもとづき、同系においても同様CH₂*Brが生成されると仮定すると、つぎの(7)過程が

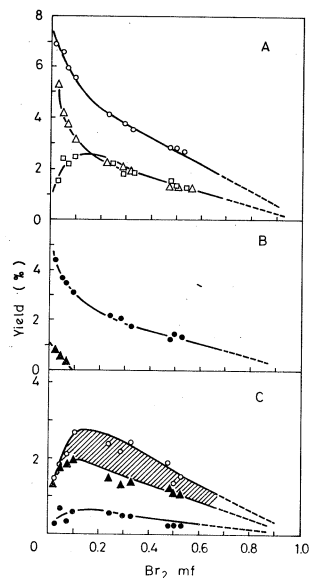
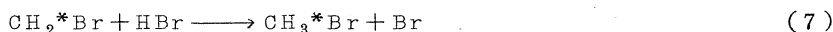


Fig. 2 Br₂/CH₄の各組成における娘核⁸⁰Brの持つ運動エネルギーおよび電荷の関与する反応で生成するCH₃⁸⁰Br, CH₂⁸⁰Br₂の収率

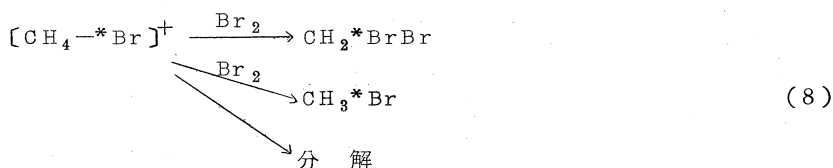
- (A) —○— : 有機収率
—△— : 運動エネルギー依存反応によるもの
—□— : 電荷の関与する反応によるもの
- (B) 運動エネルギー依存の反応による収率
—●— : CH₃⁸⁰Br
—▲— : CH₂⁸⁰Br₂
- (C) 電荷の関与する反応による収率
—●— : CH₃⁸⁰Br
—▲— : CH₂⁸⁰Br₂
—○— : Kr 0.8mfでのCH₂⁸⁰Br₂の値

発熱反応 ($\Delta H = 40.7$ kcal) で(6)過程が吸熱 ($\Delta H \doteq -1.0$ kcal)

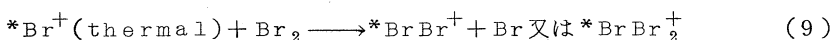


であることから明らかに(7)過程が有利となり CH_2^*Br の生成では $\text{CH}_4\text{-H}^{80\text{m}}\text{Br}$ 系における実験事実を全く説明することができないことを明らかにした。

一方 Pottier¹⁸⁾ は種々のアルキルハライド化合物について質量分析による研究をおこない attachment reaction で生成する $[\text{M-X}]^+$, $[\text{X: Br, XeI, CN など}]$, の M-X 結合は sticky で, この種イオンには 10^{-6} 秒以上の長い寿命をもつものがかなりの量存在するを見出した。この事実に基礎をおくと, 本実験におけるように 1 気圧前後のガス圧力においては, 1 回の衝突に要する時間は 10^{-9} 秒程度であるから, (5)過程で生成する $[\text{CH}_4\text{-}^*\text{Br}]^+$ は, その寿命からいって単分子分解する前に周囲の Br_2 分子と十分反応する機会にめぐまれるものと考えられる。それ故その生成機構の詳細は不明であるが, つぎのような過程によって CH_2^*BrBr および CH_3^*Br が生成されるものと考えられる。



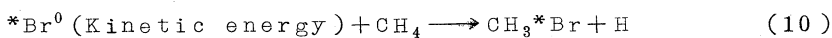
(1)過程による $^*\text{Br}^+$ (thermal) の生成と (8)過程による CH_2^*BrBr および CH_3^*Br の生成は Br_2 濃度に依存すると考えられるから, Fig. 2-C におけるそれぞれの $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ および $\text{CH}_2^{80}\text{Br}_2$ の収率曲線の $\text{Br}_2/\text{CH}_4=0$ から 0.1 へかけての増加は, 明らかに (1) および (8)過程によると説明され, また $\text{Br}_2/\text{CH}_4=0.1$ から 1 へかけての減少は

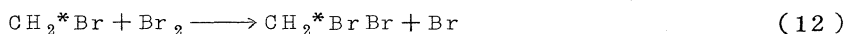
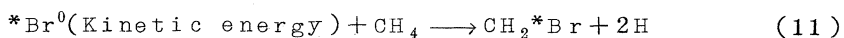


との競走過程による $^*\text{Br}^+$ (thermal) の減少のためと説明されよう。

一方 Kr 0.8mf において (4)過程でもたらされる $^*\text{Br}^+$ (thermal) による CH_2^*BrBr の増加は, 前述したように Fig. 2-C の $\text{CH}_2^{80}\text{Br}_2$ および $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ の収率曲線間の斜線の部分で示される。この場合も (4)過程で生成された $^*\text{Br}^+$ (thermal) は (5) および (8) 過程を通して各生成物を与えるが, $^*\text{Br}^+$ (thermal) の生成率が低いので CH_3^*Br の生成は実験誤差範囲内でしか増加せず, CH_2^*BrBr のように顕著な増加は認められないものと考えられる。

以上のような電荷関与反応にたいし, 運動エネルギー依存反応は, 主として (1)過程で生成された $^*\text{Br}^0$ (Kinetic energy) が





等の反応によって CH_3^*Br あるいは CH_2^*BrBr を生成するものと考えられる。勿論 (11) および (12) 過程によってすべての CH_2^*BrBr が生成されるとは期待できないかもしれないが、もしこの過程によって生成するとするならば (12) 過程にかかわる $*Br^0$ (Kinetic energy) の運動エネルギーは (10) 過程にかかわる $*Br^0$ (Kinetic energy) のそれより高エネルギー側にあらねばならないことはいうまでもないし、平均 40 eV の運動エネルギーを取得するにすぎないような本実験系においては、その収率は極めて小さいことも当然のことと理解される。

終りに本研究をおこなうにあたって $^{80m}Br_2$ の製造に協力いただいたライナツク・クルーの方々に厚く感謝の意を表わします。

文 献

- 1) N. Colebourne, J. F. J. Todd and R. Wolfgang "Chemical Effects of Nuclear Transformations" Vol. 2, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1965, p. 149.
- 2) E. P. Rack and A. A. Gordus, J. Phys. Chem., **65**, 944 (1961).
- 3) C. M. Wai and F. S. Rowland, J. Amer. Chem. Soc., **90**, 3638 (1968).
- 4) a, A. H. Rosenberg and R. Wolfgang. J. Chem. Phys., **41**, 2159 (1964).
b, P. J. Estrup and R. Wolfgang, J. Amer. Chem. Soc., **82**, 2661 (1960).
- 5) A. R. Kazanjian and W. F. Libby, J. Chem. Phys., **42**, 2778 (1965).
- 6) M. Yagi, K. Kondo, T. Kobayashi, Bull. Chem. Soc. Jap., **44**, 580 (1971).
- 7) T. Shiokawa, T. Kobayashi, M. Yagi and K. Kondo, Radiochem. Radioanal. Letters, **7**, 281 (1971).
- 8) M. Yagi, K. Kondo and T. Kobayashi, *ibid.*, **7**, 275 (1971).

- 9) D. Seewald and R. Wolfgang, *J. Chem. Phys.*, **47**, 143(1967).
- 10) L. D. Spicer and A. A. Gordus, *Symposium on Chemical Effects Associated with Nuclear Transformations and Radioactive Transformations(I. A. E. A. Vienna 1965) Vol. 1*, p. 185.
- 11) 八木, 近藤, 小林, *核理研報告*, **4**, 102(1971)
- 12) J. B. Nicholas and E. P. Rack, *J. Chem. Phys.*, **48**, 4085(1968).
- 13) R. Wolfgang, *J. Chem. Phys.*, **39**, 2983(1963).
- 14) P. J. Estrup and R. Wolfgang, *J. Amer. Chem. Soc.*, **82**, 2605 (1966).
- 15) E. Tachikawa and J. Okamoto, *Radiochim Acta*, **13**, 159(1970).
- 16) E. Tachikawa, *Bull. Chem. Soc. Jap.*, **43**, 63(1970).
- 17) 八木, 近藤, 小林, *核理研報告*, **3**, 138(1970).
- 18) R. F. Pottie and W. H. Hamill, *J. Phys. Chem.*, **63**, 877(1959).

III-4 ウラニル錯体の抽出における協同効果

選研 秋葉 健一

ウラニルイオンのキレート抽出に際して、配位能を有する有機りん化合物などが共存すると、キレートの付加錯体生成により、いわゆる協同効果 (synergistic effect) が起り、著しい分配比の増大をもたらす。

前報において、ウラニルのテノイルトリフルオルアセトン (TTA) キレート, UO_2A_2 , は tributyl phosphate (TBP) や triphenyl phosphine oxide (TPPO) と 1:1 付加錯体を生成することを明らかにし、種々の溶媒中での付加錯体生成定数を求め、その規則性を検討してきた。^{1), 2)}

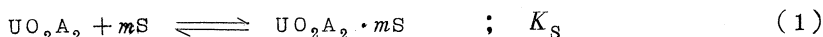
この報告では、有機りん化合物のうちでも特に配位能が強いと予想される trioctyl phosphine oxide (TOPO) が共存する場合の共同効果を知るため、ウラニル-TTA キレートの付加錯体生成定数を求め、他の有機りん化合物との付加錯体の場合と比較検討する。

方 法

$^{238}U(\gamma, n)^{237}U$ 反応により生成した ^{237}U を 3 トレーサーとして含む (H, Na) ClO_4 ($\mu=0.1$) と、TTA および TOPO を含む有機溶液を 25°C で 20 時間振り混ぜた後、両相の γ -放射能を測定してウラニル錯体の分配比を求めた。

結 果

ウラニル-TTA キレートの付加錯体生成は、



S は TOPO を K_S は付加錯体生成定数を示す。TTA と TOPO が共存する系でのウランの分配比 ($D_{M,S}$) は、

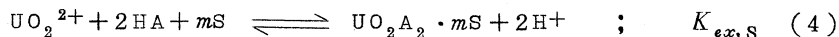
$$D_{M,S} = \frac{P_M \beta_2 [A^-]^2 \{1 + \sum K_S [S]^m\}}{1 + \sum \beta_n [A^-]^n} \quad (2)$$

β_n はキレートの安定度定数, P_M は UO_2A_2 の二相間分配係数である。TTA のみによる分配比を D_M とすると、

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

一般には(3)式にもとづく curve-fitting 法により, K_S を求めることができる。

ところで, 水相においては UO_2^{2+} , 有機相においては $UO_2A_2 \cdot mS$ が支配的である条件下では, 抽出平衡はみかけ上次の様に表わすことができる。



$$K_{ex,S} = D_{M,S} \cdot \frac{[H^+]^2}{[HA]^2 [S]^m}$$

$$= \frac{P_M \beta_2 K_a^2}{P_{HA}^2} \cdot K_S \quad (5)$$

ここで, $K_{ex,S}$ は TOPO 共存下の抽出定数, P_{HA} は TTA の分配係数および K_a は酸解離定数である。TTA のみによる抽出定数を $K_{ex} (= P_M \beta_2 K_a^2 / P_{HA}^2)$ とすれば, ³⁾ 次式により K_S を求めることができる。

$$K_S = K_{ex,S} / K_{ex} \quad (6)$$

ウラニル濃度の影響

TTA による抽出ではウラニル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たが, ³⁾ TOPO が共存する場合には, Fig. 1 に示す様に, ウラニルの 10^{-5} M 以下ではほとんど分配比は一定値を示す。ウラニルの高濃度での分配比の減少は, $UO_2A_2 \cdot mS$ 生成に伴う遊離の TOPO 濃度の減少によるものと考えられる。以後の実験は, ウラニルの初濃度を $10^{-6} \sim 10^{-5}$ M とし, 原則として, 付加錯体生成に伴

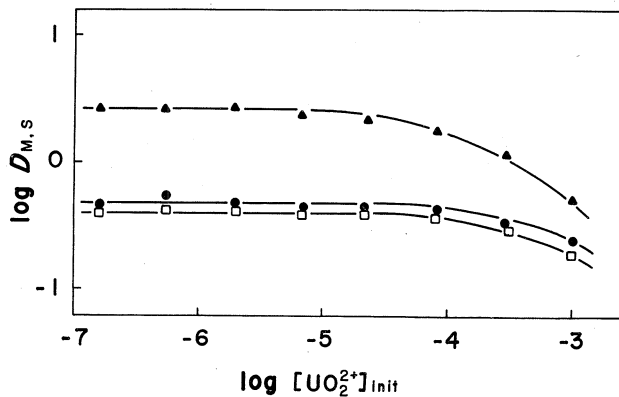


Fig. 1. The effect of uranyl concentrations on distribution ratios. $[HA]=10^{-3}$ M; $pH=1.34$; $[S]=10^{-3}$ M;
 ▲ cyclohexane, ● benzene,
 □ carbon tetrachloride.

う TOPO 濃度の減少が無視できる様に, $[UO_2A_2 \cdot mS] \ll [S]$ の条件下で分配比を求めた。

pA の影響

TOPO の配位能が強いため, TTA 自身の配位にも影響の起ることが報告されている。⁴⁾

TOPO 共存下における有機相の species を確かめるため, 分配比の $pA (= -\log[A^-])$

に対する変化を見ると, Fig. 2に示す様に, 勾配-2に近い直線となることから, (1)式で示した UO_2A_2 にSが付加した形とみなしてよい。すなわち, TTAの寄与については, 今まで調べてきたTBPやTPPOとの付加錯体の場合と^{1), 2)}変りないことが確認された。なお, TOPOのみによる抽出はTTAが共存する場合に比べて無視できる。

TOPO濃度の影響

クロロホルムおよび塩化メチレンを溶媒とした場合について, $\log D_{M,S}/D_M$ を $\log [S]$ に対してプロットすると, Fig. 3に示す様に, 最大勾配1の曲線となることから, 1:1付加錯体が生成していることが明らかである。

一方, ベンゼンの場合について $\log [S]$ に対する $\log D_{M,S}$ の変化を見ると, Fig. 4の曲線(1)で示す様に, みかけ上最大勾配2に近い曲線となる。しかし, この実験では, 必ずしも $[UO_2A_2 \cdot mS] \ll [S]$ の条件を満たさず, 付加錯体生成によって遊離のTOPO濃度は初濃度に比べて著しく減少しているため, この結果から高次の付加錯体の生成と見ることはできない。ちなみに, TTA濃度およびpHを下げて, 有機相のウラニル錯体の濃度を減少させて $[UO_2A_2 \cdot mS] \ll [S]$ の条件を満たす時には, Fig. 4の(2)で示す様に, 勾配1の直線となり, 1:1付加錯体のみが生成している。

シクロヘキサンなどの場合も, 同様に勾配1の直線となる(Fig. 5)。この様にいずれの溶媒の場合でも, 1:1付加錯体のみ生成していることが確認されたが, Healy⁵⁾の報告している高次の付加錯体の生成は認められなかった。

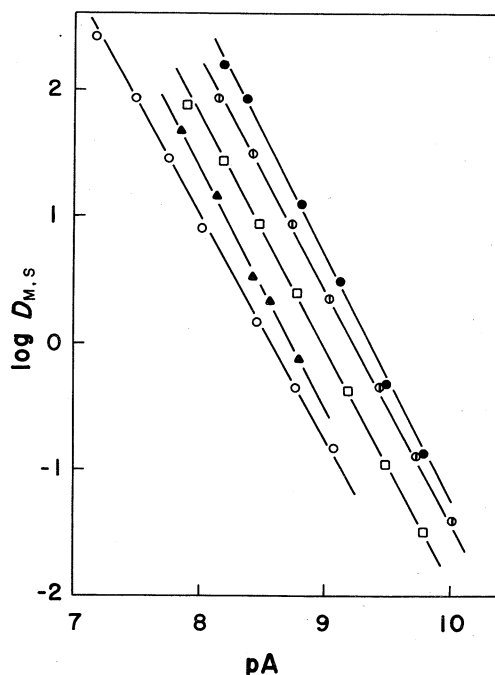


Fig. 2. Distribution ratios of uranyl complex as a function of pA. $[S]=10^{-3}M$; $[UO_2^{2+}]_{init}=10^{-5}M$; \circ n-heptane (pH=1.14), \square carbon tetrachloride (pH=1.07), \circ toluene (pH=1.11), \blacktriangle cyclohexane ($[HA]=10^{-3}M$), \bullet benzene ($[HA]=10^{-3}M$).

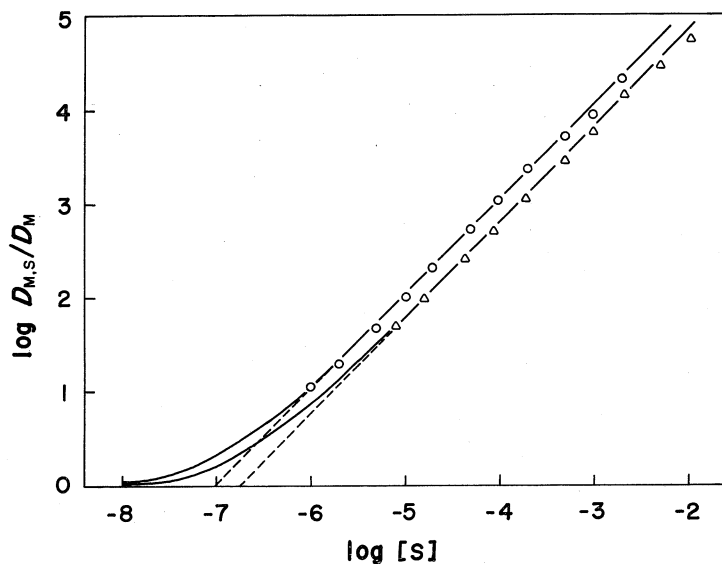


Fig. 3. Distribution ratios as a function of TOPO concentrations. $[HA]=10^{-2} M$; $pH=2.06$; $[UO_2^{2+}]_{init}=10^{-5} M$; Δ chloroform, \circ methylene chloride.

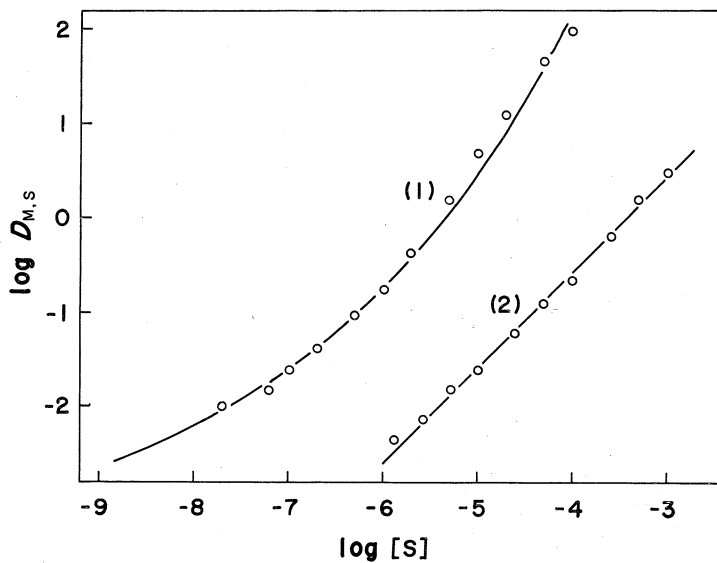


Fig. 4. Distribution ratios as a function of TOPO concentrations in benzene. $[UO_2^{2+}]_{init}=10^{-5} M$; (1) $[HA]=10^{-2} M$; $pH=2.06$ (dotted line: no TOPO), (2) $[HA]=5 \times 10^{-3} M$, $pH=1.14$

付加錯体生成定数

クロロホルム等の溶媒の場合は、分配比の変化は(3)式にもとづく normalized curve で表わすことができるので、curve-fitting 法により K_S を求めることができる。

一方、ベンゼンやシクロヘキサンなどの多くの溶媒の場合には、Fig. 4 や Fig. 5 に示す様な高い pA での TTA のみによる D_M は非常に小さな値となるため、実験的に求めることは困難である。この場合は、抽出定数を用いる(6)式によった。TTA のみによる抽出定数 $\log K_{ex}$ はすでに報告してあるものを用いた。³⁾

抽出定数ならびに 1:1 付加錯体生成定数を Table 1 に示す。 $\log K_S$ の値は、今まで調べてきた TBP や

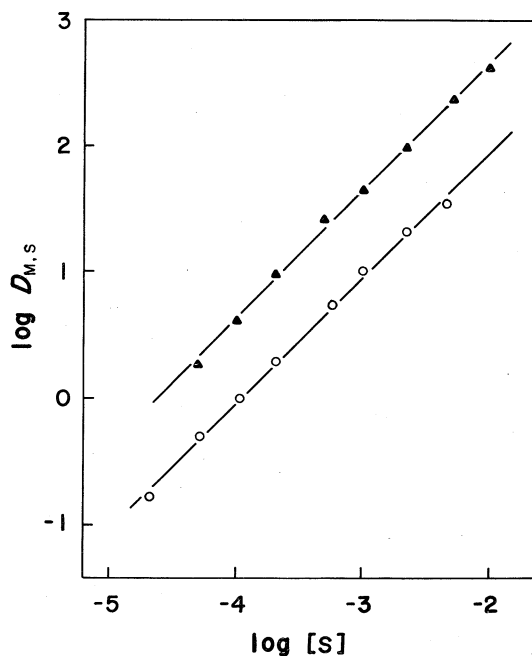


Fig. 5. Distribution ratios as a function of TOPO concentrations.

pH=1.14; $[UO_2^{2+}]_{init} = 5 \times 10^{-6} M$;
 ○ n-hexane ($[HA] = 5 \times 10^{-3} M$),
 ▲ cyclohexane ($[HA] = 10^{-2} M$).

Table 1. Extraction constants and adduct formation constants of uranyl thenoyltrifluoroacetate with trioctyl phosphine oxide at 25°C.

No.	Solvent	$\log K_{ex}^{*)}$	$\log K_{ex,S}$	$\log K_S$
1	n-Hexane	-3.18	6.40	9.58
2	n-Heptane	-2.91	6.40	9.31
3	Cyclohexane	-2.86	6.66	9.52
4	Methylene chloride	-2.50	4.53	7.03
5	Chloroform	-2.93	3.86	6.79
6	Carbon tetrachloride	-3.04	5.81	8.85
7	Bromoform	-2.80	4.27	7.07
8	Benzene	-2.68	5.78	8.46
9	Toluene	-2.85	5.77	8.62
10	Isopropylbenzene	-2.85	5.56	8.41
11	Chlorobenzene	-2.71	5.77	8.48
12	o-Dichlorobenzene	-2.70	5.80	8.50

*) Values from Ref. 3.

TPPO付加錯体の場合^{1),2)}よりも大きく、各溶媒でTBP < TPPO < TOPOの順でその付加錯体の生成定数は増している。また溶媒についてみれば、脂肪族炭化水素類で大きな K_S を示し、四塩化炭素、ベンゼンおよびその誘導体、クロロホルムなどの順に K_S は減少している。この序列はTBPやTPPO付加錯体の場合と極めて類似している。ちなみに、これらの付加錯体の生成定数を比較すると、Fig. 6に示す様に、勾配1の直線に近い値となっている。溶媒の変化に伴う各化学種の活量係数の変化の傾向がかなり類似していることがうかがえて興味深い。

ウランの照射にあたりお世話いただいた核理研八木助教、近藤助手ならびにマシングループの方々、および実験に御協力いただいた橋本裕之技官に感謝致します。

文 献

- 1) K. Akiba and N. Suzuki, Bull. Chem. Soc. Japan, 44, 1043(1971).
- 2) 秋葉健一, 和田幹雄, 菅野卓治, 核理研研究報告, Vol. 4 (No. 1), 126(1971).
- 3) K. Akiba, N. Suzuki, H. Asano and T. Kanno, J. Radioanal. Chem., 7, 203(1971).
- 4) J. R. Ferraro and T. V. Healy, J. Inorg. Nucl. Chem., 24, 1463(1962).
- 5) T. V. Healy, J. Inorg. Nucl. Chem., 19, 328(1961).

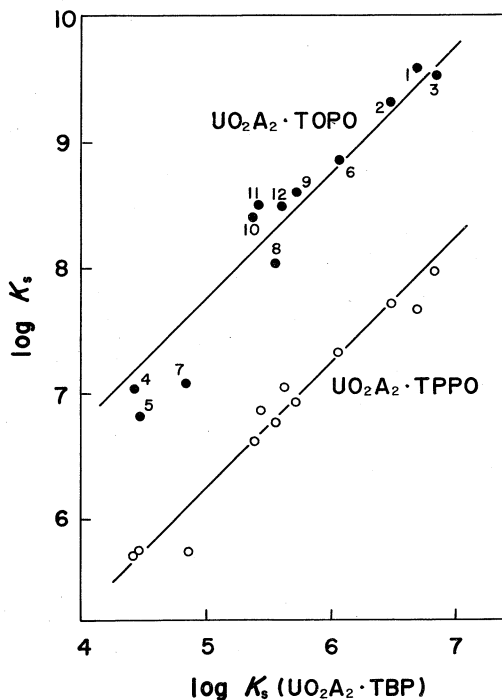


Fig. 6. Relation between the formation constants of trialkyl phosphine oxide adducts and those of tributyl phosphate adduct. The numbers in Fig. 6 refer to those in Table 1. The $\log K_S$ values were quoted from Refs. 1 (for $UO_2A_2 \cdot TBP$) and 2 (for $UO_2A_2 \cdot TPPO$).

IV. 加速器，データ処理装置稼動状況

IV-1 昭和46年度前期のマシン報告

核理研 浦沢茂一・今野 収
 一戸 隆・田中 満
 栗原 亮・平山忠衛
 阿部 勇

1. 300 MeV

○ マシンの実施状況 : 今期はほぼ予定通り実施された(第1表)。

第1表 実施状況 ()は夜間運転

	割 当(日)	実 施(日)	増 減	
e-s (鳥 塚)	25	25 (2)	0	注(1)
e-s (小山田 寺 沢)	11	10.5(1)	-0.5	注(1)
e-s (石 松)	5	5	0	
γ -p (庄 田)	13	12.5(1)	-0.5	注(1)
γ - α (阿 部)	3	3	0	
TOF (川 村)	6	6	0	
(百 田)	2	2	0	
EH (上 田 平 井)	5	5	0	
ND	16.5	17.5	+1	
(松 井)	1	1	0	
生物 (粟 冠)	2	2	0	
RI	24.5	24.5	0	
ND 調 整	0	1.5	+1.5	注(2)
計	114	115.5(4)	+1.5	

注(1) 夜間運転は翌日の8時30分迄

注(2) 第2実験室に建設中の中性子発生装置が完成したので、ビーム誘導、
 中性子発生状況、シールドのテスト等を行った。

○ マシン保守状況

今期より毎月第3月曜日を点検日とした。過去3年あまりの保守の経験から、点検項目を決め、実施した。

維持費の大半をしめるクライストロンは3本故障した。その内容は冷却水洩れ(高圧印加3.200時間) 耐圧不良(同350時間)及び、ガラス部破損(同170時間)であった。

第2表 マシン保守状況

	予定(日)	実施(日)	増減(日)
工事	15	21	+6
定期点検	5	5	0
修理	15(予備日)	5	-3.5
故障		6.5	
計	35	37.5	+2.5

○ 夜間運転

試験的に4回実施した。マシンの状態は日中より安定であった。マシンタイムの増加要求がユーザよりあり、維持費等の問題が解決されれば夜間運転の回数も少しずつ増加するものと思われる。

2. 30 MeV

課題割当が30日あったが、真空不良や加速管の耐圧不良等で全日数実施出来なかった。

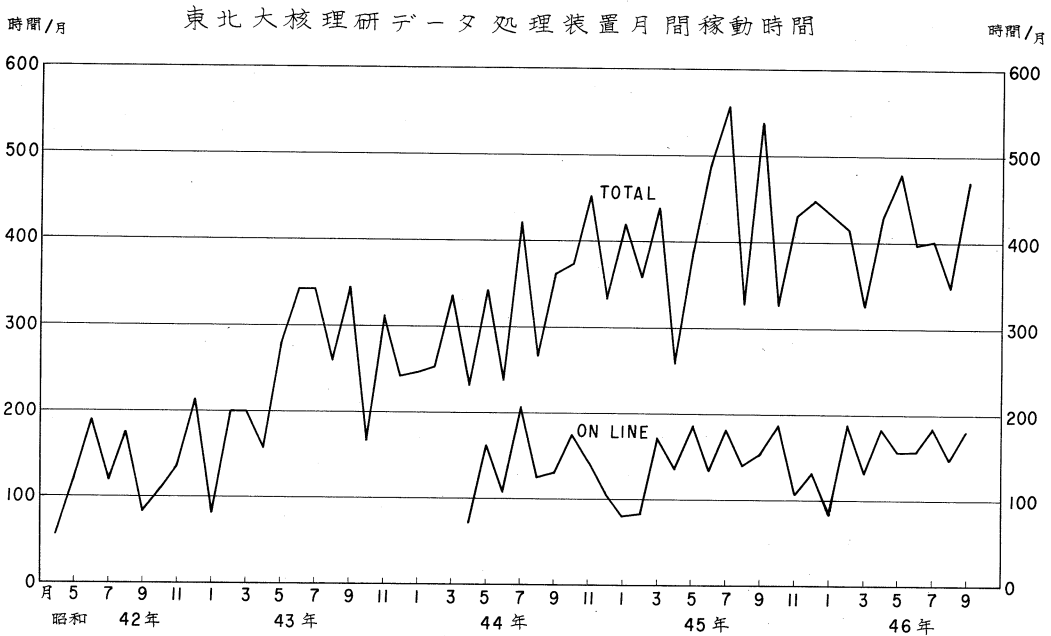
IV-2 データ処理装置稼動状況

核理研 小山田正幸・窪田健雄
上野 智康

今期の月間平均稼動時間は420時間で前期の398時間に対して5.5%の増である。この値は前年同期とほぼ同じで、ここ2年間は410±15時間と完全に頭打ちになった。

現在のデータ処理システムの部分的な改善は紙テープリーダーの更新のみである。

来期以降に予定されている加速器の夜間運転日数の漸増と、オンラインで接続される測定器数の急増に対処するため、施設内にデータ処理装置検討委員会を設置した。この委員会で検討立案されたデータ集積装置は核理運営委員会で予算化され機種検討委員会に具体的作業が委託された。機種検討委員会は利用者の意見も参考にして機種を決定した。データ集積装置は昭和46年度末納入される予定で、各種インターフェイスは昭和47年度以降順次接続される予定である。現在概算要求中のデータ処理装置の増強計画に予算がついた時点ではこのデータ集積装置と接続されて本格的コンピュータ・ハイアラキ(階層)システムとなる。



DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

	0	2	4	6	8	10	12	14	16	18	20	22	24	ON- LINE	OFF- LINE	TOTAL
1 (THU)	0:00	5:20	5:50
2 (FRI)	0:00	8:15	8:15
3 (SAT)	0:00	4:00	13:50
4 (SUN)	0:00	8:30	8:30
5 (MON)	0:00	4:00	15:20
6 (TUE)	0:00	3:40	15:00
7 (WED)	0:00	4:00	11:50
8 (THU)	0:00	0:00	12:00
9 (FRI)	0:00	0:00	12:35
10 (SAT)	0:00	2:30	13:45
11 (SUN)	0:00	14:30	14:30
12 (MON)	0:00	3:55	15:15
13 (TUE)	0:00	10:00	21:20
14 (WED)	0:00	9:10	20:20
15 (THU)	0:00	11:45	12:05
16 (FRI)	0:00	2:15	14:35
17 (SAT)	0:00	12:00	23:20
18 (SUN)	0:00	1:30	1:30
19 (MON)	0:00	5:50	14:40
20 (TUE)	0:00	4:55	16:15
21 (WED)	0:00	11:50	22:20
22 (THU)	0:00	6:10	7:30
23 (FRI)	0:00	4:00	15:20
24 (SAT)	0:00	18:30	18:50
25 (SUN)	0:00	14:10	14:10
26 (MON)	0:00	10:10	21:00
27 (TUE)	0:00	12:30	15:00
28 (WED)	0:00	8:50	20:20
29 (THU)	0:00	4:10	4:10
30 (FRI)	0:00	8:25	19:20
TOTAL														184:15	209:30	428:25
														43.0 %	48.9 %	

L	LDM	118:35	27.7 %
B	BDM	65:40	15.3 %
N	ND	0:00	0.0 %
P	PHA	0:00	0.0 %
D	DATA PROCESS	209:30	48.9 %
F	FORTAN	33:15	7.8 %
E	MAINTENANCE	1:25	0.3 %
*	DOWN	428:25	100.0 %
	TOTAL		

DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

LINE	ON-	OFF-	TOTAL
LINE	LINE	LINE	
3:30	11:15	3:30	15:05
1 (SAT)	0:00	0:00	13:40
2 (SUN)	0:00	0:00	0:00
3 (MON)	0:00	0:00	0:00
4 (TUE)	0:00	0:00	2:50
5 (WED)	0:00	0:00	9:40
6 (THU)	0:00	0:00	3:00
7 (FRI)	12:05	4:05	16:30
8 (SAT)	11:50	8:24	20:44
9 (SUN)	0:00	0:00	19:00
10 (MON)	0:00	8:25	13:25
11 (TUE)	0:00	10:00	21:20
12 (WED)	0:00	11:20	12:30
13 (THU)	0:00	9:20	9:40
14 (FRI)	10:40	5:40	16:20
15 (SAT)	8:50	13:10	22:30
16 (SUN)	0:00	10:55	10:55
17 (MON)	0:00	7:25	14:25
18 (TUE)	0:00	11:25	22:30
19 (WED)	0:00	19:35	19:35
20 (THU)	6:45	2:00	13:15
21 (FRI)	9:30	9:35	19:20
22 (SAT)	11:00	8:30	20:20
23 (SUN)	0:00	7:37	7:37
24 (MON)	0:00	10:10	10:30
25 (TUE)	0:00	20:43	21:13
26 (WED)	11:00	8:24	19:59
27 (THU)	0:00	15:45	17:55
28 (FRI)	11:15	6:50	18:40
29 (SAT)	11:10	8:40	20:30
30 (SUN)	0:00	12:50	12:50
31 (MON)	11:05	3:55	15:20
TOTAL	158:25	286:23	477:18
	33.2 %	60.0 %	

L	LDM	106:05	22.2 %
B	BDM	52:20	11.0 %
N	ND	0:00	0.0 %
P	PHA	0:00	0.0 %
D	DATA PROCESS	0:00	0.0 %
F	FORTRAN	286:23	60.0 %
=	MAINTENANCE	30:40	6.4 %
*	DOWN	1:50	0.4 %
	TOTAL	477:18	100.0 %

DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

0	2	4	6	8	10	12	14	16	18	20	22	24	ON- LINE	OFF- LINE	TOTAL
1 (TUE)	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	10:01	6:30	17:54
2 (WED)	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	7:20	12:30	20:50
3 (THU)	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	0:00	11:09	18:09
4 (FRI)	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	0:00	13:25	23:35
5 (SAT)	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	15:00	4:55	20:15
6 (SUN)	LLLL	LLLL	LLLL	LLLL	LLLL	LLLL	LLLL	LLLL	LLLL	LLLL	LLLL	LLLL	8:30	15:25	23:55
7 (MON)	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	6:45	10:35	17:45
8 (TUE)	BB	BB	BB	BB	BB	BB	BB	BB	BB	BB	BB	BB	19:25	3:20	22:45
9 (WED)	DD	DD	DD	DD	DD	DD	DD	DD	DD	DD	DD	DD	0:00	14:10	15:25
10 (THU)	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	0:00	15:20	15:40
11 (FRI)	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	0:00	9:20	9:55
12 (SAT)	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	10:30	10:45	22:15
13 (SUN)	0:00	0:05	0:05
14 (MON)	0:00	3:10	5:45
15 (TUE)	0:00	7:20	14:40
16 (WED)	0:00	5:55	6:15
17 (THU)	0:00	4:00	4:30
18 (FRI)	0:00	6:40	7:00
19 (SAT)	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	0:00	7:35	9:21
20 (SUN)	0:00	0:00	0:00
21 (MON)	0:00	3:30	14:40
22 (TUE)	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	10:40	4:25	15:20
23 (WED)	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	10:30	2:30	13:50
24 (THU)	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	0:00	7:10	10:40
25 (FRI)	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	0:00	10:50	11:10
26 (SAT)	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	10:30	1:35	12:25
27 (SUN)	0:00	0:00	0:00
28 (MON)	0:00	2:05	11:45
29 (TUE)	11:30	3:30	15:20
30 (WED)	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	10:15	5:19	16:04
TOTAL													157:41	203:52	397:18
													39.7 %	51.3 %	

L	LDM	94:51	23.9 %
B	BDM	41:20	10.4 %
N	ND	21:30	5.4 %
P	PHA	0:00	0.0 %
D	DATA PROCESS	22:33	5.7 %
F	FORTRAN	181:19	45.6 %
*	MAINTENANCE	34:45	8.7 %
	DOWN	1:00	0.3 %
	TOTAL	397:18	100.0 %

1971-7

DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

0	2	4	6	8	10	12	14	16	18	20	22	24	ON- LINE	OFF- LINE	TOTAL
1 (THU)	0:00	10:37	10:37
2 (FRI)	0:00	9:35	11:35
3 (SAT)	12:00	0:00	10:30
4 (SUN)	10:50	2:00	13:20
5 (MON)	0:00	10:37	10:37
6 (TUE)	1:30	9:35	11:35
7 (WED)	11:20	3:45	15:35
8 (THU)	12:00	2:55	15:20
9 (FRI)	0:00	9:39	11:49
10 (SAT)	11:20	5:25	17:15
11 (SUN)	11:20	5:07	16:57
12 (MON)	0:00	7:00	7:00
13 (TUE)	0:00	10:00	10:25
14 (WED)	11:10	4:50	17:10
15 (THU)	11:10	7:30	18:50
16 (FRI)	0:00	6:40	7:00
17 (SAT)	6:35	3:22	10:22
18 (SUN)	11:00	1:15	12:35
19 (MON)	0:00	11:00	11:00
20 (TUE)	0:00	9:30	14:30
21 (WED)	0:00	9:45	10:45
22 (THU)	0:00	9:50	9:50
23 (FRI)	6:45	3:00	10:05
24 (SAT)	19:55	3:00	23:15
25 (SUN)	10:50	7:39	18:49
26 (MON)	0:00	14:54	14:54
27 (TUE)	10:55	6:09	17:24
28 (WED)	14:30	4:54	19:44
29 (THU)	12:30	8:20	20:50
30 (FRI)	0:00	2:15	2:15
31 (SAT)	0:00	2:55	2:55
TOTAL													185:40	195:54	402:29
													46.1 %	48.7 %	

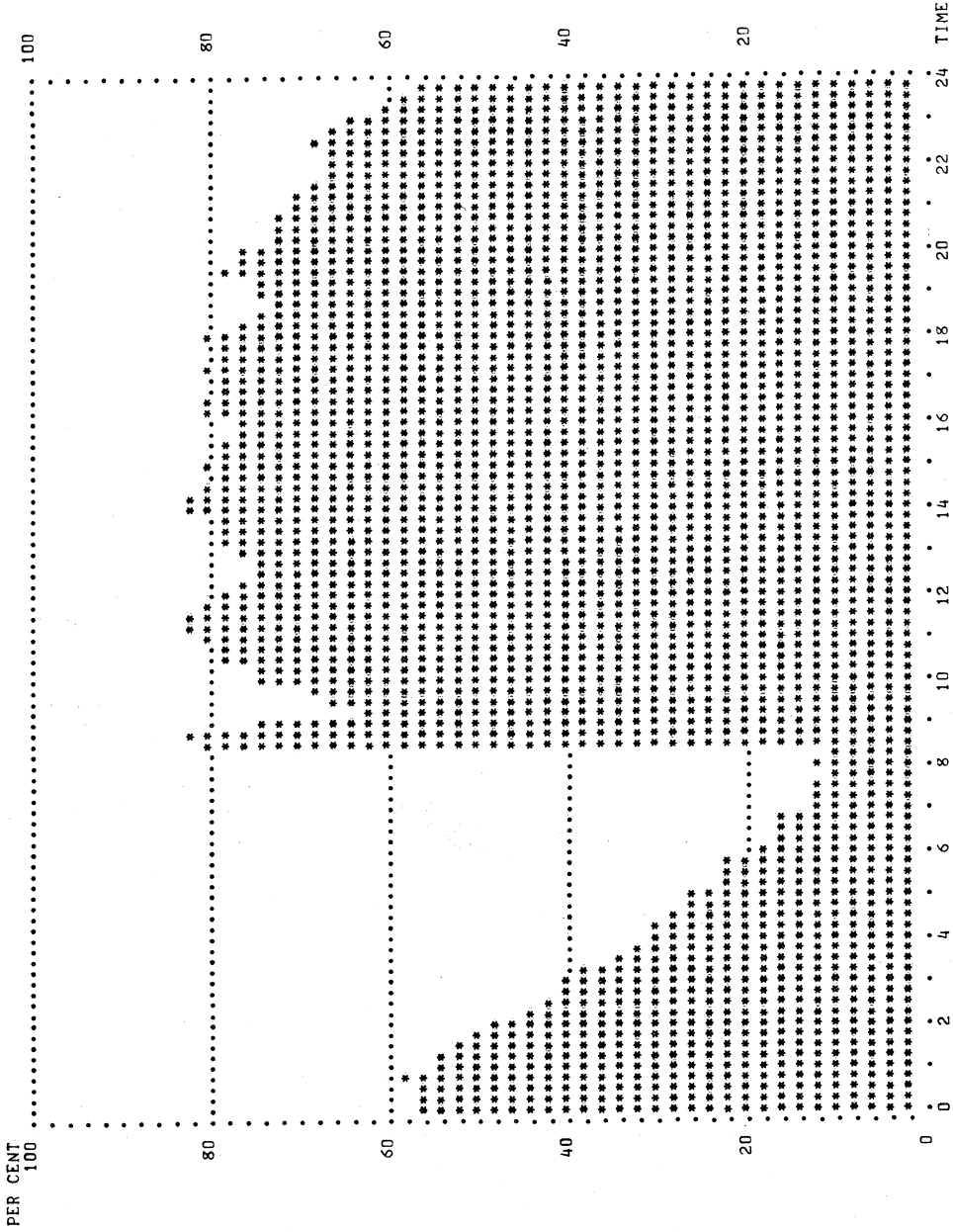
L	LDM	99:20	24.7 %
B	BDM	0:00	0.0 %
N	ND	59:10	14.7 %
P	PHA	27:10	6.7 %
D	DATA PROCESS	0:00	0.0 %
F	FORTAN	195:54	48.7 %
=	MAINTENANCE	20:55	5.2 %
*	DOWN	0:00	0.0 %
	TOTAL	402:29	100.0 %

DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

	0	2	4	6	8	10	12	14	16	18	20	22	24	ON- LINE	OFF- LINE	TOTAL	
1 (SUN)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	7:55	7:55	
2 (MON)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	8:10	8:40	
3 (TUE)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								2:20	9:39	12:19	
4 (WED)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	3:13	3:43	
5 (THU)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	3:55	10:35	
6 (FRI)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	6:05	6:05	
7 (SAT)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	9:10	9:10	
8 (SUN)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	9:15	9:15	
9 (MON)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	14:05	14:25	
10 (TUE)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	10:55	11:15	
11 (WED)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	11:55	11:55	
12 (THU)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	8:25	8:25	
13 (FRI)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								12:05	0:00	12:35	
14 (SAT)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								4:35	0:00	12:20	
15 (SUN)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	0:00	0:00	
16 (MON)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	1:50	14:20	
17 (TUE)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								11:10	3:00	15:20	
18 (WED)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	0:15	12:45	
19 (THU)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	8:24	8:49	
20 (FRI)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								11:05	2:40	14:10	
21 (SAT)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								12:10	1:55	14:25	
22 (SUN)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	10:03	10:03	
23 (MON)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	2:35	9:25	
24 (TUE)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								6:55	8:35	13:55	
25 (WED)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								12:45	3:45	16:50	
26 (THU)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	11:20	11:40	
27 (FRI)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								12:20	3:50	16:45	
28 (SAT)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								12:05	2:30	14:55	
29 (SUN)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								0:00	5:30	5:30	
30 (MON)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								13:45	0:00	14:05	
31 (TUE)	FFFFFFFF					FFFFFFFF								14:20	0:20	15:05	
TOTAL															146:55	169:15	348:41
															42.1 %	48.5 %	

L	LDM	13:25	3.8 %
B	BDM	0:00	0.0 %
N	ND	56:05	16.1 %
P	PHA	77:25	22.2 %
D	DATA PROCESS	2:02	0.6 %
F	FORTRAN	167:14	48.0 %
=	MAINTENANCE	22:30	6.5 %
*	DOWN	10:00	2.9 %
	TOTAL	348:41	100.0 %

DATA PROCESSOR OPERATION REPORT
1971-4 -- 1971-9



核 理 研 研 究 報 告 第 4 卷 第 2 号

昭和 47 年 2 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) 93-4491

Research Report of Laboratory of Nuclear
Science Tohoku University Vol.4 No.2 Feb.1972
Laboratory of Nuclear Science,
Tohoku University
1, Kanayama, Tomizawa, Sendai, Japan