

RESEARCH REPORT  
OF  
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE  
TOHOKU UNIVERSITY

# 核 理 研 究 報 告

VOL. 5 No. 1 July. 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. 5 No. 1 目次

## I 原子核物理部門

I - 1	電子散乱による原子核の研究 .....	1
	(核理研, 静岡大*)	
	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, 長尾真実子, 細山謙二	
	福田 茂樹, 堀田 明男*	
I - 2	$^{27}\text{Al}$ による電子散乱 (II) .....	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 - 3	電子散乱による $N=82$ 核の higher spin state .....	32
	(理学部物理)	
	石松敏之, 斎藤 肇, 林部昭吾, 川村暢明	
	金沢正明, 遠藤順政, 山家 優	
I - 4	$(\gamma, p)$ 反応による原子核の IAS の研究 .....	40
	(核理研)	
	庄田勝房, 菅原真澄, 斎藤悌二郎, 宮瀬晴久	
	及川四郎, 鈴木厚人, 上柿 順一	
I - 5	$^{31}\text{P}$ 及び $^{27}\text{Al}$ の photo proton について .....	53
	(教養部物理, 理学部物理*, 核理研**)	
	坪田博明, 川村暢明*, 菅原真澄**	
	及川四郎**, 庄田勝房**	
I - 6	$^{27}\text{Al}$ 及び $^{31}\text{P}$ の photoneutron の崩壊形式 .....	60
	(理学部物理, 教養部物理*, 核理研**)	
	川村暢明, 坪田博明*, 遠藤順政	
	三宅正伸, 岡崎行男**	
I - 7	リニアック T. O. F による $\text{C}^{12}$ , $\text{U}^{238}$ の高速中性子全断面積の測定 .....	66
	(工学部原子核)	
	野本健二, 馬場 護, 神田一隆	
	平川直弘, 三井 毅, 百田光雄	
	横山次男	



I-8	C と Mg の ( $\gamma$ , $\alpha$ ) 反応 .....	71
	(教養部物理, 理学部物理*) 阿部 健, 川村暢明*	
	坪田 博明, 金沢正明*	
II 物性物理部門		
II-1	Measurements of the Structure Factor for Liquid Pb and Se .....	77
	(金研, 核理研*) 甲斐謙三, 三沢正勝, 渡辺 昇*	
	竹内 栄, 木村一治*	
II-2	TiNi 化合物の低温相の結晶構造 .....	83
	(選研) 松本 実, 守護嘉朗, 本間敏夫	
II-3	Fe <sub>1+<math>\delta</math></sub> Sb の中性子回折 .....	88
	(金研) 八代 勉, 富吉昇一, 渡辺 浩	
II-4	単結晶試料による TOF 法の結晶構造解析への応用 .....	93
	(核理研, 金研*) 新村信雄, 富吉昇一,* 渡辺 昇	
	木村一治	
II-5	反強磁性 Au <sub>2</sub> Mn の結晶構造と磁気構造 .....	97
	(核理研, 東大物性研*) 新村信雄, 茂木 博*	
II-6	中性子回折による Mn <sub>3</sub> Si の磁性の研究 .....	101
	(金研, 核理研*) 富吉昇一, 渡辺 昇*, 新村信雄*	
	木村一治*, 渡辺 浩	
II-7	Cu-Mn 合金単結晶の短範囲規則配列 .....	106
	(金研) 山口貞衛, 鎌田圀尚, 平林 真	
II-8	Molecular Dynamics of H <sub>2</sub> O in Crystalline K <sub>2</sub> C <sub>2</sub> O <sub>4</sub> · H <sub>2</sub> O .....	109
	(非水研, 核理研*) 安川民雄, 渡辺 昇*	
II-9	パルス電子線によるイオン結晶の光学的研究 (7) .....	112
	(理学部物理) 上田正康, 平井正光, 近藤泰洋	
	吉成武久, 唐沢 力	

II-10	50MeV Electron Irradiations of Silicon Doped with Cobalt-57 (IV)	116
	(工学部) 松井啓治	
II-11	Germanium 73 13.3keV Mössbauer Effect in Germanium / Fermi Level Dependence of Spectra	120
	(工学部) 松井啓治	
II-12	Recoil Anisotropy and Karyagin-Goldanskii Effect of Interstitials in Silicon and Germanium (I)	129
	(工学部) 松井啓治	
III 放射化学部門		
III-1	Yields of Photonuclear Reactions for Photon Activation Analysis with High-Energy Bremsstrahlung	133
	(理学部化学) 加藤豊明	
III-2	Non-Destructive Photon-Activation Analysis of Standard Rocks with 30 MeV Bremsstrahlung	150
	(理学部化学) 鈴木信男, 森田勇人, 佐藤允美 加藤豊明	
III-3	$^{80m}\text{BrBr}-\text{CH}_3\text{Cl}$ 系における核異性体転移にともなう化学的效果	161
	(理学部化学, 核理研*) 塩川孝信, 小林 孝彰 八木益男*, 近藤健次郎*	
III-4	ウラニル-TTAキレート の酸化トリアルキルオスフィンとの付加錯体	167
	(選研) 秋葉健一, 橋本裕之, 菅野卓治	
III-5	放射線化学反応におけるLET効果 有機酸-アンモニウム水溶液よりのアミノ酸生成反応	172
	(非水研, 京大原子炉*) 安川民男, 田村三郎 高田実弥*, 小林慎江*	



#### IV 生物医学部門

IV - 1	パルス電子線照射による細胞コロニー形成率に就いて.....	177
--------	-------------------------------	-----

(医学部放射線基礎 医学, 核理研; 放射線医学総合研究所\*\*)

栗冠正利, 佐々木俊作, 浦沢茂一\*, 稲田哲雄\*\*

IV - 2	殺菌土壌における二十日大根の生育.....	182
--------	-----------------------	-----

(農学部農芸化学) 門脇 信, 藤原彰夫, 松本 徹

佐々木瑞雄

#### V 加速器, データ処理装置部門

V - 1	昭和46年度後期のマシン報告.....	185
-------	---------------------	-----

(核理研) 浦沢茂一, 今野 収, 一戸 隆, 栗原 亮

羽柴 満, 阿部 勇, 平山忠衛

V - 2	データ処理装置稼動状況.....	189
-------	------------------	-----

(核理研) 小山田正幸, 窪田健雄, 上野智康

V - 3	Operation Report of Tohoku 300 MeV Linear Accelerator .....	197
-------	--	-----

(核理研) 小島融三, 浦沢茂一

# 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・静岡大\* 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・長尾真実子  
細山謙二・福田茂樹・堀田明男\*

今期のまとめとして次のことがあげられる。

- (1)  $^{16}\text{O}$  の巨大共鳴附近をしらべた。spin-isospin mode の励起はたしかにおこっているが、strength はある energy 領域に分散していることがわかった。
- (2)  $^{20}\text{Ne}$  に於て測定された二つの  $0^+$  の form factor について考察した。そのうちの一つは s-d shell 内でつくられる状態と考えられていたが、sd だけでは matrix element は零になる。shell 間の configuration をとりいれなくてはならない。特別の shell を仮定することにより form factor のおおまかな性質を説明することができる。
- (3) Ni の同位元素の core excited states のうち特に  $6^+$  を ( $1f_{5/2}$ ,  $1f_{7/2}^{-1}$ ) configuration と比較した。shell model の計算に於ては Core を仮定しているが、 $f_{7/2}$  の Orbit は殆んど閉じていることがわかった。
- (4) 中重核について  $E1$  以外の巨大共鳴の存在を得している。 $^{90}\text{Zr}$  については 14 MeV 付近に resonance が存在し前者は  $E2$  又は  $E0$  後者は従来光核反応で予想されてまた  $E2$  巨大共鳴に関連していると考えられる。

### 電子線散乱による $^{16}\text{O}$ 巨大共鳴

二重閉殻の  $^{16}\text{O}$  の巨大共鳴領域での高分解能電子線散乱の実験結果について述べる。

この実験の目的は高分解能のスペクトラムを得ることと運動量移行  $q$  を同一にする条件で前方散乱と後方散乱の測定を行なって、縦波成分と横波成分を分離し、合わせて巨大共鳴領域の性質を明らかにすることである。

### (A) 実 験

ターゲットは  $^{16}\text{O}$  ガスを壁厚 0.12 mm, 直径 40 mm  $\phi$  のステンレス製の円筒容器に 30 kg/cm<sup>2</sup>

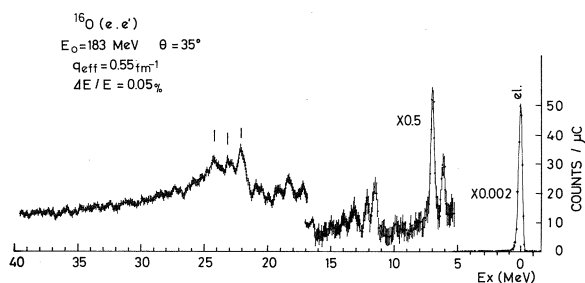
( $180.96 \text{ mg/cm}^2$ ) と  $20 \text{ kg/cm}^2$  ( $105.3 \text{ mg/cm}^2$ ) で封入したものを用いた。基準となる  $^{12}\text{C}$  は  $\text{C}_2\text{H}_6$  ガスを上記の容器に  $20 \text{ kg/cm}^2$  ( $117.0 \text{ mg/cm}^2$ ) に封入したものを使用した。実験は運動量移行  $q_{eff} = 0.55 \text{ fm}^{-1}$ ,  $q_{eff} = 0.85 \text{ fm}^{-1}$ ,  $q_{eff} = 1.05 \text{ fm}^{-1}$  ( $E_x = 20 \text{ MeV}$  で) の点で行なった。前方散乱では入射エネルギー  $E_0$ , 散乱角  $\theta$  は各々  $E_0 = 18.3 \text{ MeV}$ ,  $\theta = 35^\circ$ ,  $E_0 = 25.0 \text{ MeV}$ ,  $\theta = 40^\circ$ ,  $E_0 = 25.0 \text{ MeV}$ ,  $\theta = 50^\circ$  で実験し、後方散乱では  $E_0 = 7.0 \text{ MeV}$ ,  $\theta = 120^\circ$ ,  $E_0 = 9.7 \text{ MeV}$ ,  $\theta = 135^\circ$  で実験をした。

ガスターゲットを用いた利点は例えば  $\text{BeO}$  の固体ターゲットを用いた場合に比べて  $\text{Be}$  からの寄与の差し引きにより生ずる誤差をさけることが出来ることである。しかしガスの封入圧力が限られてるため後方散乱では計数の統計が上がらない苦しさがある。次にガスターゲット容器の Back ground 等の影響について考察する。容器は直径  $40 \text{ mm}$   $\phi$  であるので、今回の実験した散乱角では、ターゲットとスペクトロメーター及び検出器の幾何学的条件から容器の壁より散乱された電子は検出器に入って来ない。又容器の壁からの多重散乱による Back ground は容器を空にして  $E_0 = 12.0 \text{ MeV}$ ,  $\theta = 60^\circ$ ,  $q_{eff} = 0.51 \text{ fm}^{-1}$  ( $E_x = 20 \text{ MeV}$  で) で実験したデータによると、励起エネルギー  $20 \text{ MeV}$  以上に対しては、今回の実験の統計誤差内に入っているので無視出来る。

Radiation correction は中味的气体と容器 (ステンレスを  $^{56}\text{Fe}$  とみなして) について各々別々に Radiation の過程について考慮して補正をした。

## (B) 巨大共鳴の構造と Particle-hole model

第1図(a)に前方散乱  $E_0 = 18.3 \text{ MeV}$ ,  $\theta = 35^\circ$ ,  $q_{eff} = 0.55 \text{ fm}^{-1}$  の実験で Radiative correction をしたスペクトルを示す。巨大共鳴領域に  $22.17$ ,  $23.2$ ,  $24.2 \text{ MeV}$  の大きいピークが見られる。第1図(b)に total photo-absorption の実験の Burgov et al<sup>1)</sup> との比較を示す。励起エネルギー  $22.17$ ,  $23.2$ ,  $24.2$ ,  $25.2 \text{ MeV}$  のピークの位置が良い一致を示している。



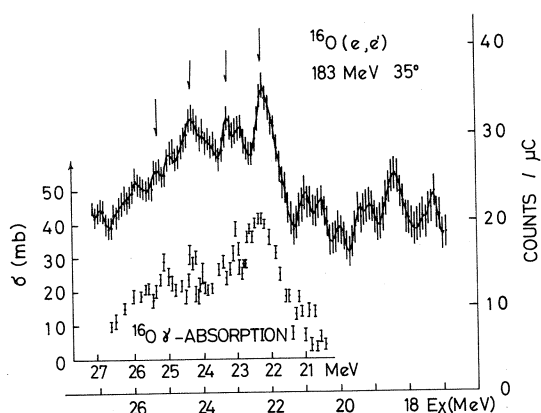
第1図(a)

第2図に Barashov et al<sup>2)</sup> の計算値と今回の実験の前方散乱のスペクトルとの比較を示す。Barashov は殻模型で  $1p-1h$  に  $2p-2h$  configuration の coupling を導入

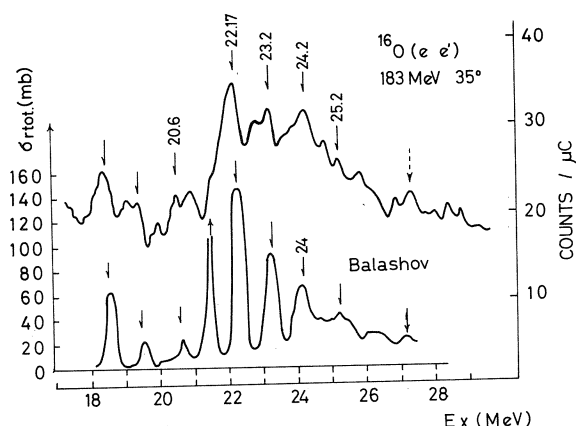


し、 $1p-1h$ のチャンネルに巾0.2 MeVをとって、total photo-absorptionに対する断面積を計算した。22MeVから上の5本の単位について、励起エネルギーの位置とピークの相対の高さが良い一致を示している。又18MeVから21MeVにかけての3つのピークも良い一致を示している。第2図(b)にはGillet et al<sup>3)</sup>のparticle-holeによる解析を示す。実線は $1p-1h$ に $2p-2h$  configurationのcouplingを考えたものである。22MeVから27MeVまでに5本のピークがみられる。この場合は励起エネルギーの位置については実験との対応は良くないが5本の分離したピークが巨大共鳴の構造を説明している。点線は $1p-1h$ のみの計算値で、これは22.2MeVと25MeVにピークがあるのみで、巨大共鳴の構造を説明し得ない。又22.5MeVの谷はGillet<sup>3)</sup>が $^{14}\text{N}(d, \gamma)^{16}\text{O}$ の実験との推論から $2p-2h$ の影響のために出て来た谷で $1p-1h$ では出て来ないものとしている。この谷も今回の実験で観測されている。

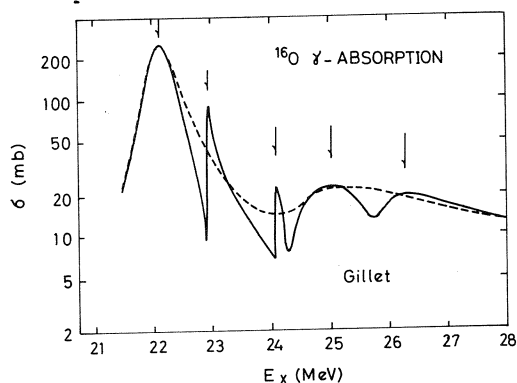
以上から $2p-2h$  configurationまで考慮に入れると $^{16}\text{O}$ の巨大共鳴が数個の共鳴状態から成る構造が、ほぼ説明されると思われる。



第1図(b)



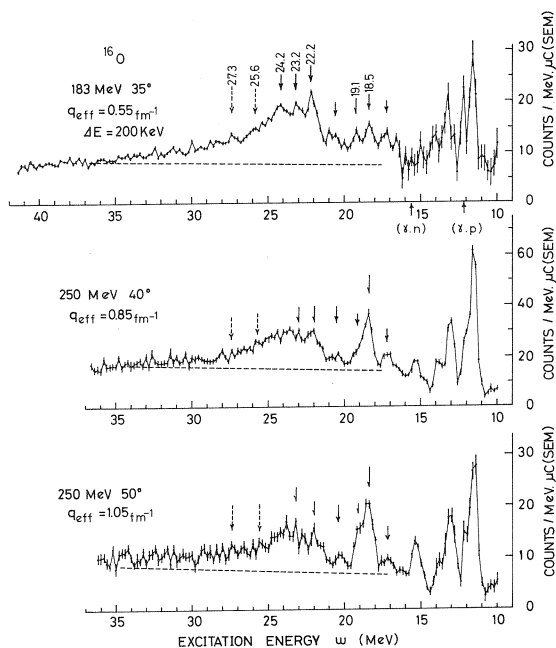
第2図(a)



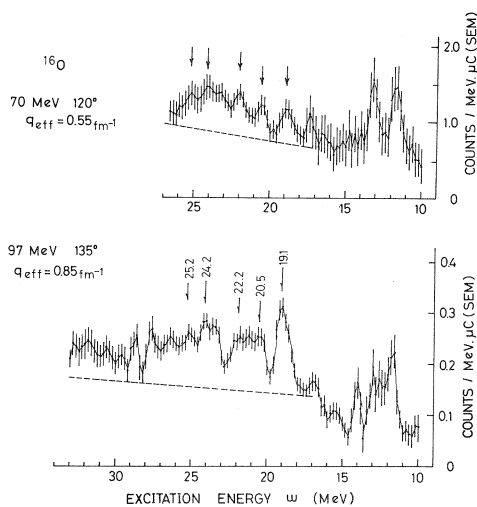
第2図(b)

### (C) 縦方向及び横方向励起 の分離

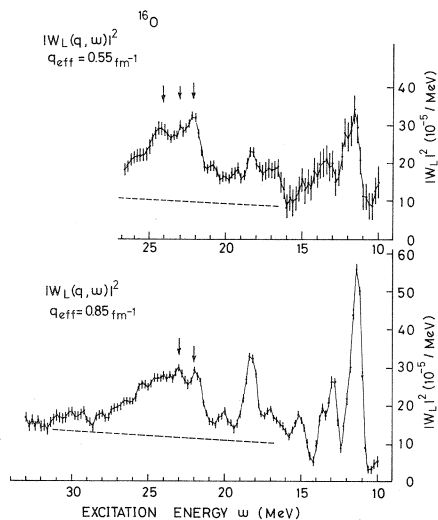
第3図に前方散乱のスペクトラムで Radiation correction をしたものを示す。運動量移行が大きくなると巨大共鳴に見られる構造が序々に明確さをかいて行く。第4図は Radiation correction をした後方散乱のスペクトラムである。 $19.1\text{MeV}^4)$  の明確なピークと  $20\text{MeV}$  以上に、 $25\text{MeV}$  までに  $20.5$ ,  $22.2$ ,  $24.2$ ,  $25.2\text{MeV}$  のピークが観測された。第3, 第4図のスペクトラムはエネルギー分解能  $\Delta E=200\text{KeV}$  でプロットしてある。又点線は電子散乱にともなう準弾性散乱の寄与する成分とみなしたものを示す。



第3図



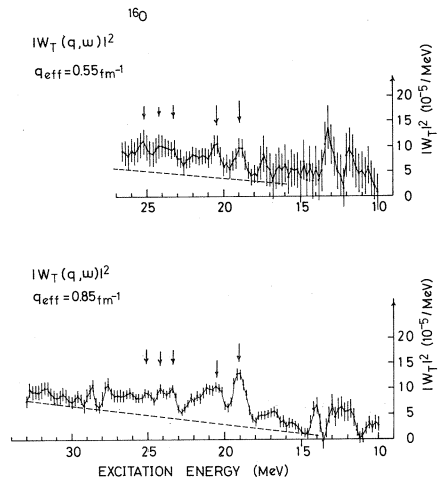
第4図



第5図



前方散乱及び後方散乱のスペクトラムから第1 Born 近似を用いて縦波励起成分 (longitudinal) の形状因子  $|F_L|^2$  及び横波励起成分 (transverse) の形状因子  $|F_T|^2$  を分離した。エネルギー分解能  $\Delta E=200\text{KeV}$  で各々の形状因子を分離したものを第5, 第6図に示す。第5図は縦波成分形状因子で,  $20\text{MeV}$  以上では,  $22.2, 23.2, 24.2\text{MeV}$  のピーク以外は明確なピークはない。第6図は横波形状因子で,  $19.1, 20.5, 23.4, 24.2, 25.2\text{MeV}$  にピークが観測されたが,  $19.1\text{MeV}$  以外は構造が分散している。又統計があまりよくない。第5, 第6図で点線で示す直線は準弾性散乱の成分の推定である。



第6図

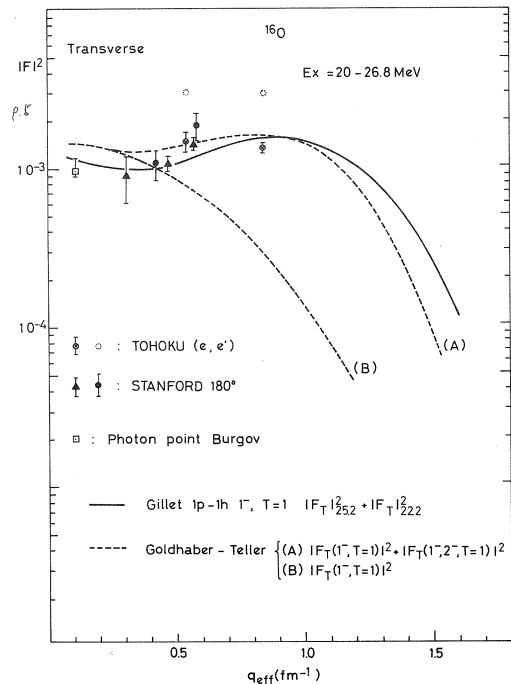
これらの分離した  $|F_L|^2$ ,  $|F_T|^2$  についてまず励起エネルギー  $20\text{MeV}$  から  $26.8\text{MeV}$  までの各々の和をとって,  $|F_L|^2$  の  $q$  の使い方は, Darmstadt<sup>5)</sup> の  $(e, e')$  のデータ,  $|F_T|^2$  の  $q$  の低い方には Stanford の  $180^\circ$  散乱  $(e, e')$  のデータを各々付加えて議論する。

#### C-1) 縦波形状因子

第7図に縦波形状因子を示す。⊗, • は今回の実験値で準弾性散乱の寄与を差し引いてある。○, △ は準弾性散乱の寄与を含んでいる。Darmstadt のデータは励起エネルギー  $E_X=21.4$  から  $26\text{MeV}$  までの和をとったものである。

Photon Point は total photo-absorption の実験の Burgov et al<sup>1)</sup> Bezic et al<sup>8)</sup> のデータで Burgov は  $E_X=18.9\sim 26.6\text{MeV}$  までの積分しており Bezic は  $E_X=15\sim 31\text{MeV}$  まで積分している。

Photon absorptior と form factor の関係について Walecka<sup>9)</sup> より



第7図

$$\int_{\text{one line}} \sigma_{\text{abs}}(E) dE = (2\pi)^3 \alpha \frac{(\hbar c)^2}{E_X} \frac{z^2}{4\pi} \frac{\lambda+1}{\lambda} |F_{E\lambda}(k_{if})|^2$$

$$q \cong k_{if} = E_X / \hbar c$$

を用いた。これらのデータと今回の実験データはスムーズにつながっている。理論値は殻模型では Gillet<sup>10)</sup> の波動関数を用いて  $1p-1h$ ,  $1^-$ , ( $T=1$ ) について計算し, 22.2MeV と 25.2MeV の  $|F_L|^2$  の和をとったものである。22.2MeV がそのうちでも大きい部分を占め, その主な configuration は  $(1p_{3/2}^{-1}, 1d_{5/2})$  である。尚, Darwin-Foldy 項の補正, 核子の有限の大きさ, 核の重心の補正をしてある。理論値は実験値より約 2 倍大きい。

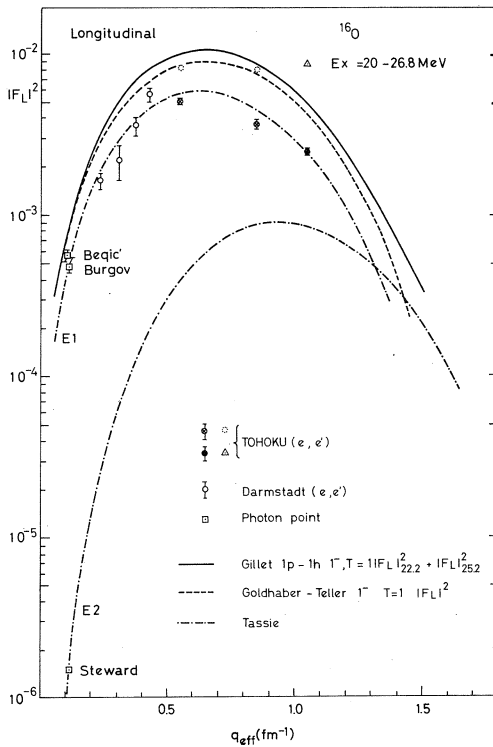
集団運動模型の Goldhaber-Teller Model による計算は基底状態の電荷分布をフェルミ型にとって Walecka<sup>9)</sup> の方法で計算したものである。これも実験値より 2 倍弱大きい形状因子の様子は particle-hole で計算したものに似ている。又実験点も相対的に計算にのるように分布している。

この領域に  $E2$  成分の寄与について考察する。 $E2$  photon point として  $(r, p)$  の角度分布の測定した Steward et al<sup>10)</sup> の  $(r, p_0)$ ,  $E2$  のグラフから読みとり, 励起エネルギー 21MeV から 27MeV までの和として,  $299.5 \mu b MeV$  と求めたデータを使い,  $E1$ ,  $E2$  の形状因子を核を非圧縮性, 渦なしの液体と考えた集団模型の Tassie model を用いて計算し,  $E1$ ,  $E2$  各々の photon point で合わせてグラフを描いたものが一点鎖線である。これによると  $E2$  成分の寄与については運動移行の大きいところに少なからず含まれると思われるが, 明確なことは言えない。

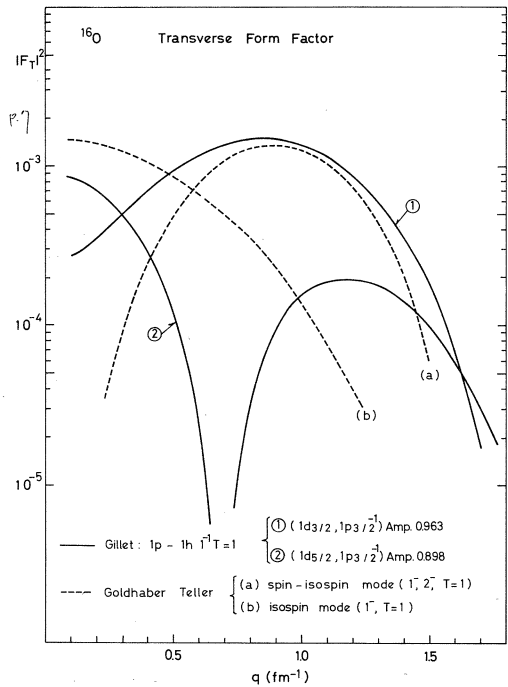
## C-2 横波形状因子

第 8 図に横波形状因子を示す。⊗ は今回の実験で準弾性散乱の寄与を差し引いたデータで, ○ は準弾性散乱を含んだデータである。180° ( $e, e'$ ) のデータで ▲ は Vanpreat<sup>7)</sup> の実験, ● は Goldenberg and Baber<sup>6)</sup> の実験データである。Stanford と今回の実験のデータはほぼ良いつながりを示している。殻模型の  $1p-1h$  による計算は Gillet<sup>10)</sup> の波動関数を用いて,  $1^-$ ,  $T=1$  について前と同様に計算し,  $|F_T|^2$  の 25.2MeV と 22.2MeV の各々の形状因子の和をとったものである。25.2MeV は  $(1d_{3/2}, 1p_{3/2}^{-1})$  が主な Configuration でこれは spin flip を含み, 運動量移行の高い方できている。この様子を第 8 図 (b) に示す。

集団運動模型の Goldhaber-Teller model では (B) はいわゆる Goldhaber-Teller model といわれるもので, 陽子と中性子集団が互いに逆位相で振動する (isospin



第8図(a)



第8図(b)

mode)のみで、これは $q$ の高い方の実験点を説明し得ない。(A)はisospin modeの他に spin-isospin modeを加えたものである。spin-isospin modeとは核のスピン反転(Spin-flip)を考慮したもので、スピン上向き陽子とスピン下向き中性子からなる集団が、スピン下向き陽子とスピン上向き中性子からなる集団に対して互いに逆方向に振動するmodeで Uberall<sup>11)</sup>が導入した。このmodeを含めると $q$ の高い方の実験点までが良く説明出来る。第8図(b)にこれら両modeの計算値が示してある。spin-isospin modeはparticle-holeのconfigurationの考えでspin-flipの( $1d_{3/2}$ ,  $1p_{3/2}^{-1}$ )を主な configurationとする25.2MeVの $|F_T|^2$ に相当するものである。今回の実験で $^{16}\text{O}$ 巨大共鳴の横波励起成分に対してはspin-flipの成分の寄与が相当あることが明らかになった。しかしこのspin-flipからの寄与は第6図からみると、分散していると考えられる。

(堀田明男)

## REFERENCE

- 1) N. A. Burgov, G. V. Danilyan, B. S. Dolbilkin, L. E. Lazareva. and F. A. Nikolaev, Sov. Phys. JETP **16**(1963)50.
- 2) V. V. Barashov and N. M. Kabachnik Phys. Lett. **25B**(1967)316.
- 3) V. Gillet, M. A. Melkanoff and J. Raynal, Nucl. Phys. **A97**(1967) 631.
- 4) 東北大学「核理研報告」Vol 2 No. 2(1969)9.
- 5) A. Goldmann and M. Stroetzel Z. Physik **239**(1970)235.
- 6) J. Goldemberg and W. G. Barber Phys. Rev. **134**(1964)B963.
- 7) G. J. Vanpraet Nucl. Phys. **74**(1965)219.
- 8) N. Bezic, D. Brajnik, D. Jaminik and G. Karnel Nucl. Phys. **A128**(1969)426.
- 9) T. de Forest, Jr and J. D. Walecka Advances in Physics Vol 25 No. 57(1966).
- 10) Vincent Gillet Nucl. Phys. **54**(1964)321.
- 11) H. Uberall Nuovo Cim. **41B**(1966)25.

 $^{20}\text{Ne}$  の  $0^+$  準位について

$^{20}\text{Ne}$  の 7MeV 付近の 2つの  $0^+$  準位に対する電子散乱実験を前号の核理研報告において報告した<sup>1)</sup>。ここでは非常に簡単なモデルによるその解析を示す。

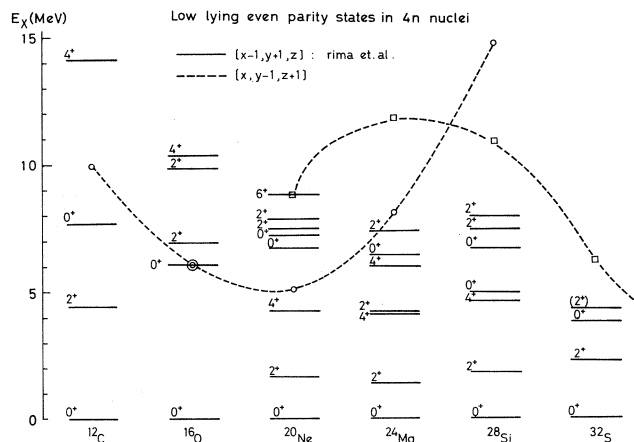
第1図に  $4n$  核の even parity state の level scheme をのせてある。全ての  $4n$  核の低励起エネルギーの所に  $0^+$  準位が見つかっており、これら全てを shell model を用いて説明する事は出来ない。特に  $^{16}\text{O}$  の 6.02MeV  $0^+$  は第一励起準位であり早くから注目され、多くの研究がなされている。

$^{20}\text{Ne}$  の 7MeV 付近の 2つの  $0^+$  準位については、その内の一本は shell model 計算により説明出来るが、もう一本は  $^{16}\text{O}$  の  $0^+$  と同様に 1p shell に 4つの hole が出来る状態ではないと言われていた。第1図の点線で示す様に Arima et al<sup>2)</sup> により Quartet model を用いて  $4n$  核で低い励起エネルギーの所に  $0^+$  準位が存在する可能性が示されている。注目すべき点は  $^{20}\text{Ne}$  では  $[220]$  (後述) の他に  $[301]$  の状態も低い事である。この様な可能性



は慣性性能率に対する考察から Morinaga により指摘されていた。

又  $EO$  を強く励起する転移として  $(n l j) \rightarrow (n+1, l, j)$  の型の  $2\hbar\omega$  転移が知られている。ここでは shell model, Quartet model,  $2\hbar\omega$  転移の 3つのモデルを用いて、それぞれを簡単化して電子散乱実験とくらべて見る。



第 1 図

### i) $(2s, 1d)^4$ の shell model と $EO$ 転移の禁止

$EO$  転移の電子散乱の operator が 1 体演算子である事及び  $0^+$  state がスカラー状態である事を用い、波動函数として調和振動子のものを用いると、 $(sd)^4 \rightarrow (sd)^4$  ( $^{16}O$  までのコアは省略して書く) の転移電荷密度は

$$\rho_{tr}^{0+} = A \{ R_{2s}^2 - R_{1d}^2 \} \quad (1)$$

と表わされ、その形は一意的に決まってしまう。そして大きさ  $A$  だけが残留相互作用等に依存する。又次の関係<sup>4)</sup>

$$\langle n l | r^2 | n l \rangle = \left( N + \frac{3}{2} \right) b^2$$

$$N = 2(n-1) + l \quad (2)$$

を用いると、 $EO$  転移の Moment とも言うべき Matrix element  $ME$  は

$$ME = \int P_{tr}^{0+}(r) r^4 dr = 0 \quad (3)$$

となり、第 0 次近似において、 $EO$  転移は禁止される。

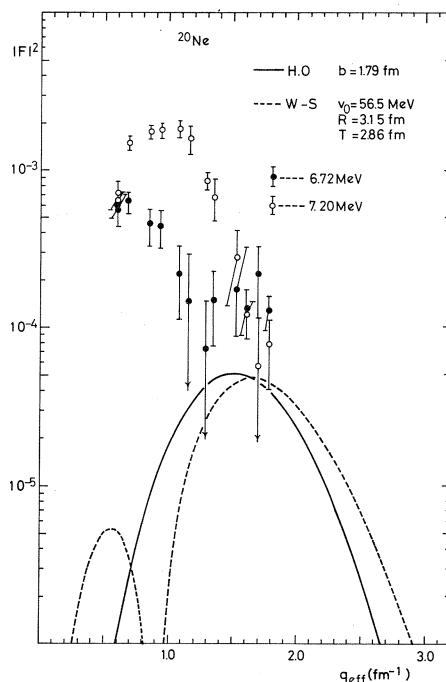
電子散乱の形状因子を  $q^2$  で展開したとき、第 1 項目の  $q^2$  の係数は  $MF$  に比例していたから<sup>1)</sup>、この場合電子散乱の形状因子は  $q^4$  から始まり、 $q$  の小さい所でのふるまいは  $E4$  的になる事が期

待される。

ここでは Ripka<sup>5)</sup> の Hartree-Fock の波動函数による計算と実験との比較を第2図に示す。前回の報告で述べた様に実験は両方の  $0^+$  共に  $2^+$  的であり計算値と実験の一致は良くない。これは  $(2s, 1d)^4$  の配位では説明出来ない事を示しており、実験を説明するためには  $2h$  の以上 ( $6p-2h, 8p-4h$  等も含めて) の配位の大きな混合がなくてはならないと思われる。

又ポテンシャルを Woods-Saxon にした時の結果の例を2図の点線で示してあるが、(2)の関係が成立しなくなるため  $q$  の小さいところに、 $q^2$  に比例して立上る小さな山が出てくるが、実験を再現出来る程になるとは思われない。

W-S ポテンシャルについてはまだ十分なパラメーター・サーチをしていないが  $^{20}\text{Ne}$  付近では H-O ポテンシャルで得られた結果を決定的に変える事はないだろう。



第2図

## ii) Quartet Model

Arima, Gillet and Ginocchio<sup>2)</sup> は  $4n$  核に対する  $\alpha$ ,  $^8\text{Be}$ ,  $^{12}\text{C}$  の移行反応において a) 核の状態密度が高いにもかかわらず、30~40 MeV までの間で 2, 3 の状態を選択的に励起する。b) その巾が非常にせまい。という2つの特徴に注目して、核子の大部分の自由度が  $J=0, T=0$  の4粒子 (quartet) の中にとじ込められる状態が存在するとした。その例として  $1p$  shell から  $(2s, 1d)$  shell への1つの quartet の励起、 $(2s, 1d)$  shell から  $(1f, 2p)$  shell への quartet の励起が、 $^{16}\text{O}$  の  $6.06\text{ MeV } 0^-$  及び  $^{40}\text{Ca}$  の  $3.35\text{ MeV } 0^+$  状態にそれぞれ対応するとした。そして他の  $4n$  核における quartet の励起による  $0^+$  状態の励起エネルギーを求めた。

Arima et al の書き方に従って、 $1p$  の quartet の数を  $x$ ,  $(2s, 1d)$  のそれを  $y$ ,  $(2p, 1f)$  のそれを  $z$  として、状態を  $(x, y, z)$  と表す。 $^{20}\text{Ne}$  では  $[3, 1, 0]$  が基底状態

であり,  $[2, 2, 0]$  が  $5.1 \text{ MeV}$  に,  $[3, 0, 1]$  が  $8.8 \text{ MeV}$  に予想されている。

波動関数を作る時, 2つのproton及び2つのneutronが4重に縮退した  $j$ -orbit に入るとした。又波動関数を簡単にするため,  $^{20}\text{Ne}$  では  $1d_{5/2}$  に入るとした。  $T=0$  の  $0^+$  state は quartet を  $(n l j \pm m)$  と表わして

$$[310] = \frac{1}{\sqrt{20!}} \begin{vmatrix} (1s_{1/2} \pm \frac{1}{2}) & (1p_{3/2} \pm \frac{3}{2}) & \cdots & (1d_{5/2} \pm \frac{5}{2}) \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ \vdots & \vdots & & \vdots \end{vmatrix}$$

と表わされ,  $[220]$ ,  $[301]$  等も同様に表わされる。

それぞれの状態が純粋であるとする, 電子散乱の1体operatorによつてのそれぞれの間の転移は起らない事になる。しかし基底状態にその状態が混合を起している場合には転移が起きる。ここではその混合の割合をparameterに取り, どの程度実験を説明出来るか見る事にする。基底状態及び励起状態を次の様に書く。

$$\begin{aligned} \phi_{\text{ground}}^{0+} &= \beta [310] + \alpha [xyz] \\ \phi_{\text{ex}}^{0+} &= -\alpha [310] + \beta [xyz] \end{aligned} \quad (5)$$

ここで  $[xyz]$  は quartet が励起された状態である。2成分の混合を考えたが  $\alpha$  が小さい時は3つ以上の混合は考えなくて良いだろう。転移電荷密度は,

$$\rho_{tr}(r) = \frac{\alpha\beta}{\sqrt{4\pi z}} \{ ([xyz] | \hat{\rho} | [xyz])_0 - ([310] | \hat{\rho} | [310])_0 \} \quad (6)$$

と表わされる。

$[310] \rightarrow [220]$  の場合

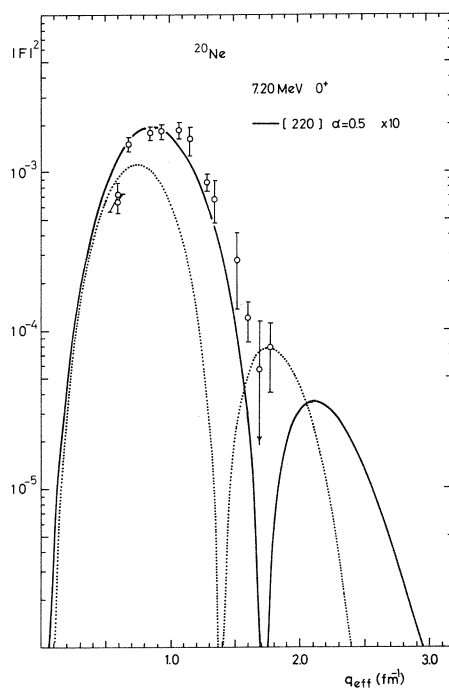
$$\rho_{tr}(r) = \frac{2\alpha\beta}{\sqrt{4\pi z}} \{ R_{1p}(r)^2 - R_{1d}(r)^2 \} \quad (7)$$

$[310] \rightarrow [301]$  の場合

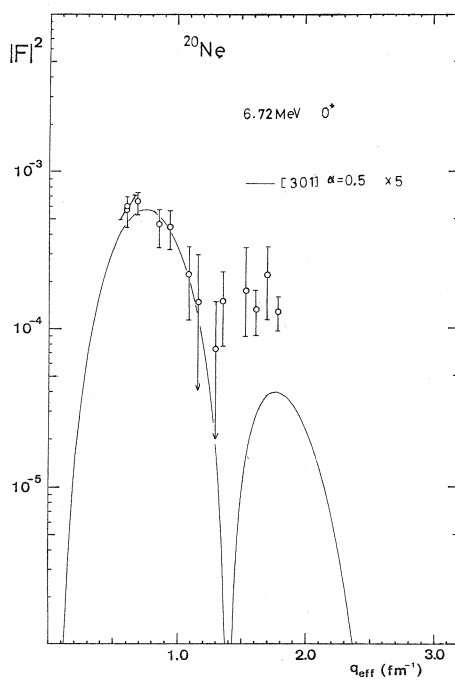
$$\rho_{tr}(r) = \frac{2\alpha\beta}{\sqrt{4\pi z}} \{ R_{1f}(r)^2 - R_{1d}(r)^2 \} \quad (8)$$

となる。(7), (8) から形状因子を計算して実験と比較したものを第3図, 第4図にそれぞれ示す。

計算値は10及び5倍して書いてある。大きさは説明出来ないが形は  $[220]$  が  $7.20 \text{ MeV}$  に  $[301]$  が  $6.72 \text{ MeV}$  に形状因子の最初の山の付近については良く合う。



第 3 図



第 4 図

### iii) $2\hbar\omega$ 転移

大きなEO転移行列要素を持っている転移として  $(n\ l\ j) \rightarrow (n+1, \ l, \ j)$  の  $2\hbar\omega$  の転移が知られている。これは(3)の条件を自動的に満しかつMEが

$$\langle n+1\ l \mid r^2 \mid n\ l \rangle = \sqrt{n(n-l+\frac{1}{2})} \ b^2 \quad (9)$$

と大きな値を与える事による<sup>4)</sup>。ここでは  $1p \rightarrow 2p$ ,  $1d \rightarrow 2d$ ,  $2s \rightarrow 3s$  の転移行列要素を計算し実験と比較して見た。計算値と実験値の比較を第5図に示す。形状因子の形に注目すると  $1p \rightarrow 2p$  は7.2MeVに、 $1d \rightarrow 2d$ は6.72 MeVにそれぞれ良く合う。 $j-j$  結合の波動関数で一粒子転移と考えると第5図の計算値に0.5程度の係数が掛かるが、一粒子の転移程度と考えて大きさもだいたい良い一致を示す。

### モデルの比較

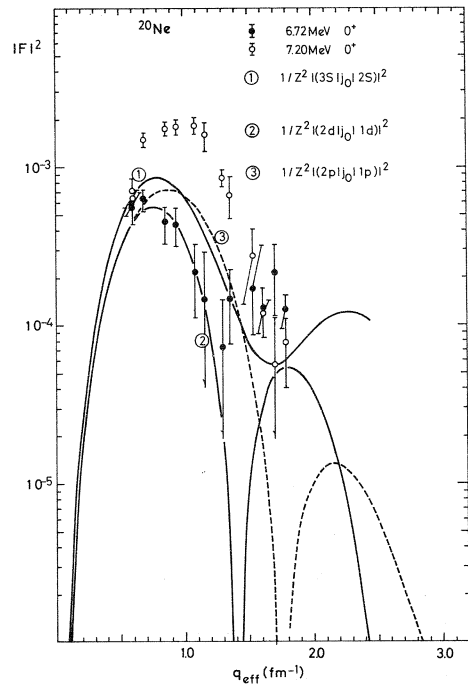
3つのモデルについて、それぞれ実験との比較を行ったが、これらのモデル相互の比較をさらにはっきり行い転移電荷密度を用いて比較して見よう。転移電荷密度は

$$\rho_{tr} = \left( \sum_{i=0}^3 a_{2i} y^{2i} \right) e^{-y^2};$$

$$y = \frac{r}{b} \quad (10)$$

と表わされたから、 $y^{2i}$  の係数  $a_{2i}$  につい

て、 $a_{2i}/a_4$  を1表に示してある。文献1)でのべた実験より求めた転移電荷密度も同時にのせてある。又それぞれを図にしたものを第6図に示す。第6図より形状因子における比較のときのべた様に6.72MeVと[301]、7.20MeVと[220]を対応させると定性的には良い事が分かる。1表より[301]と $1d \rightarrow 2d$ 、[220]と $1p \rightarrow 2p$ の転移電荷密度が同じ形を持っている事が分かり、 $1d \rightarrow 2d$ と $1p \rightarrow 2p$ の違いとしても6.72MeVと7.20MeVの違いは説明出来る事になる。この一致はH. O波動関数において



第5図

$$R_{2l} \cdot R_{1l} = \frac{1}{\left(l + \frac{3}{2}\right)^{1/2}} \left( R_{1l}^2 - R_{1, l+1}^2 \right) \quad (11)$$



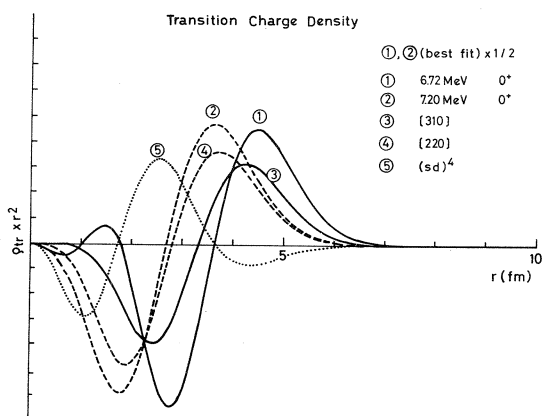
Table 1. Ratios of coefficients

Transition Charge	$a_0/a_4$	$a_2/a_4$	$a_4/a_4$	$a_6/a_4$
best fit 6.72 MeV	0.2486	-1.0604	1.	-0.1834
best fit 7.20 (MeV)	-0.5224	-1.9453	1.	-0.0236
$(sd)^4$	3.7496	-4.9977	1.	0.
[220]	0.	-2.5	1.	0.
[301]	0.	0.	1.	-0.2857
$1p \rightarrow 2p$	0.	-2.5	1.	0.
$1d \rightarrow 2d$	0.	0.	1.	-0.2857
$2s \rightarrow 3s$	0.8654	-1.7308	1.	-0.1538

$$\rho_{tr} = \left( \sum_{i=0}^3 a_i y^{2i} \right) e^{-y^2} : y = \frac{r}{b}$$

の関係が成立つためである。形状因子の形だけではどちらのモデルが良いかは言えない事になる。

以上簡単なモデルを用いて解析を行ったが問題点として、 $w-s$ ポテンシャルにして、さらに $l-s$ タームに radial dependence を持たせた時  $(sd)^4$  モデルがどうなるか？  $2\hbar\omega$  の配位を混せて大きな  $2\hbar\omega$  の混りを持った状態が低いエネルギーの所



第6図

に出てくるか？ クラスターモデルではどうか？ 変形について考慮しなくて良いか等々多くの問題点が上げられる。

(光 延 信 二)

## 文 献

- 1) 核理研研究報告, Vol. 4 No. 2 (1972)5.
- 2) A. Arima, V. Gillet and J. Ginocchio, Phys. Rev. Letters, 25 (1970)1043.
- 3) H. Morinaga, Phys. Rev., 101(1956)254.
- 4) S. G. Nilsson, Dan. Mat. Fys. Medd., 29, No. 16(1955)1.
- 5) Advances in Nuclear Physics Vol. 1, p. 183.

## THE CORE EXCITED $6^+$ STATES IN NICKEL ISOTOPES OBSERVED WITH INELASTIC ELECTRON SCATTERING

The core excited states in the nickel isotopes are expected at the excitation energies of several MeV and one of which identified to be a  $6^+$  state has reported previously at 5.05 MeV in  $^{60}\text{Ni}$  [1]. If there are actually core states, the positions and and also strengths should be fairly constant among isotopes, since the properties of the core are not much affected by the number of outer neutrons [2,3]. Among these states, high-spin state such as  $6^+$  considered to be built from a single particle-hole configuration ( $1f_{5/2}$ ,  $1f_{7/2}^{-1}$ ) affords a direct measure for the closure of the  $1f_{7/2}$  shell, comparing the transition strength with the theoretical value based on this simple configuration. In order to investigate the properties of such  $6^+$  states in Ni isotopes, the inelastic-electron-scattering experiment was carried out on the  $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{60}\text{Ni}$  and  $^{62}\text{Ni}$  nuclei using the Tohoku 300-MeV electron linear accelerator. For  $^{60}\text{Ni}$  the new data at the high momentum transfer were added.

The  $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{60}\text{Ni}$  and  $^{62}\text{Ni}$  targets were isotopically enriched to 99.95%, 97.8% and 98.7%. The experiment was performed at incident energies of 183.0 and 250.0 MeV with an overall resolution of 0.12%. The spectrometer and detection apparatus have been described elsewhere [4]. The excitation energies are accurate  $\pm 200$  keV in the vicinity of 5 MeV.

Fig. 1 shows a spectrum at the incident energy of 250 MeV and scattering angle of  $82.2^\circ$ , which is chosen to obtain the value of the momentum transfer favorable for  $6^+$  state. The spectrum was corrected for the usual radiation effects. The prominent peak which may correspond to  $6^+$  excitation is seen at 5.15 MeV. The peak of the same kind was also found in  $^{62}\text{Ni}$

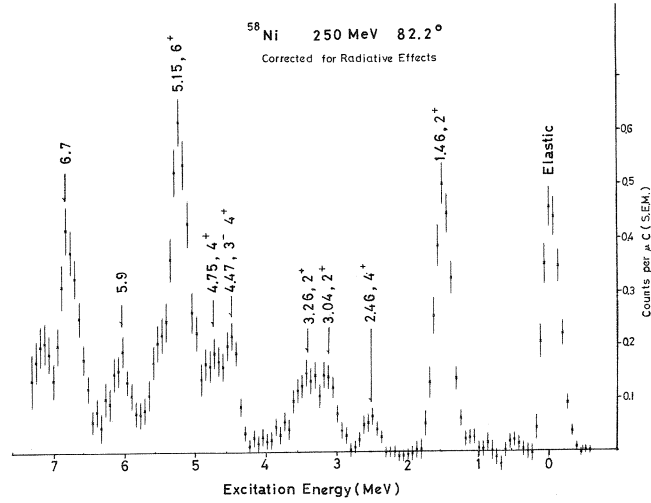


Fig. 1

at 5.70 MeV. The absolute cross section for each peak was obtained by comparing its yield with that of  $^{12}\text{C}$  measured in the same experiment. The form factor is defined by dividing the cross section by the Mott cross section ( $Z=28$ ). The form factors obtained are shown in fig. 2 as a function of the effective momentum transfer  $q_{\text{eff}}$  [5]. The 5.15-, 5.05- and 5.70-MeV form factors for each  $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{60}\text{Ni}$  and  $^{62}\text{Ni}$  indicate quite similar behavior in magnitude and also in  $q$  dependence. The 5.15- and 5.7- MeV peaks are observed as single one, while 5.05-MeV peak in the low- $q$  spectra is mainly contributed by the E4 excitation. This

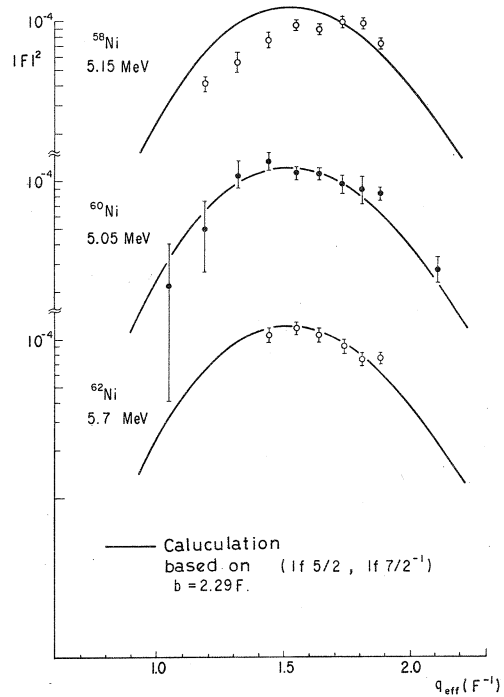


Fig. 2

component was subtracted as described in reference 1.

If these states are assumed to be core excited  $6^+$  states, the form factor can be described with a pure configuration of  $(1f_{5/2}, 1f_{7/2}^{-1})$ . The theoretical form factor calculated with the Born approximation is shown in the same figure, where the length parameter of the wave function is determined to be 2.29 fm. as a best fit parameter. This value is consistent with the data of elastic electron scattering on the same nucleus [6].

The absolute value of each experimental form factor is satisfactory described by the same theoretical curve. This results indicates that the core of the Ni isotopes is almost completely filled by nucleons. The spin-orbit splitting energy of the  $1f$  state in Ni isotopes is estimated to be about 6 MeV assuming a reasonable particle-hole interaction of about 1 MeV.

In the shell model calculation of the low-lying states in the Ni isotopes, an inert core ( $^{56}\text{Ni}$ ) is assumed and obtained a successful description treating only the neutrons outside the core [7,8]. The present experimental result is consistent with this assumption.

## REFERENCES

- 1 Y. Torizuka et al. Phys. Rev. 185 (1969) 1499.
- 2 C. Bloch, N. Cindro and S. Hara, Prog. in Nucl. Phys. 10, Pergamon Press, Oxford, 1969.
- 3 R. Ballini, N. Cindro, J. Delaunay, J. Fouan, M. Loret and J.P. Passerieux, Phys. Letters 21 (1966) 708.
- 4 M. Kimura et al. Nucl. Instr. 95 (1971) 403.
- 5 D.G. Ravenhall, quoted in R. Hofstadter, Rev. Mod. Phys. 28 (1956) 214.
- 6 R. Hofstadter, Nuclear and Nucleon Structure, W.A. Benjamin, New York, 1963.

- 7 S. Cohen, R.D. Lawson, M.H. Macfarlane, S.P. Pandya and M. Soga, Phys. Rev. 160 (1967) 903.
- 8 N. Auerbach, Phys. Rev. 163 (1967) 1203.

## FIGURE CAPTIONS

- Fig. 1 The inelastic-electron-scattering spectrum of  $^{58}\text{Ni}$  obtained at 250 MeV and  $82.2^\circ$  indicates a prominent peak at 5.15 MeV.
- Fig. 2 The experimental form factors of the  $6^+$  states for the Ni isotopes are compared with the theoretical form factors calculated with the  $(1f_{5/2}, 1f_{7/2}^{-1})$  configurations.

## $^{90}\text{Zr}$ の電子散乱

東北大 300MeV 電子線型加速器を用いて入射エネルギー 150MeV, 183MeV, 250MeV で  $^{90}\text{Zr}$  の電子散乱実験を行った。 $^{90}\text{Zr}$  は厚さ  $49.9\text{mg}/\text{cm}^2$ , 成分比 97.5% の metal foil 状のものである。実験で低励起準位 (約  $E_x \sim 4\text{MeV}$ ) 及び高励起準位 (約  $E_x \sim 35\text{MeV}$ ) についての性質を調べた。

従来  $^{90}\text{Zr}$  の電子散乱実験としては Yale 大学<sup>1)</sup> 及び Stanford 大学<sup>2)</sup> で行なわれていて、前者は入射エネルギー約 60MeV で低い運動量移行量の範囲 ( $q=0.3\sim 0.6\text{fm}^{-1}$ ) に於る弾性散乱,  $2^+(2.18)$ ,  $3^-(2.75)$ ,  $2^+(3.84\text{MeV})$  について調べている。後者は入射エネルギー 300MeV で高い運動量移行迄 ( $q\sim 2.8\text{fm}^{-1}$  迄) 測定して基底状態について詳しく調べた。一方中重核で高い励起状態を電子散乱で調べたのは数少ないが Darmstadt のグループが Lu, Pr, Ce について調べ,  $M1(\text{or } 2)$ ,  $E1$ ,  $E2(\text{or } 0)$  の巨大共鳴があるのでないかという興味深い報告が行われている<sup>3)</sup>。

我々の 300MeV 電子線型加速器を用いると、非弾性散乱実験で高いスピン状態が励起できる。従って  $^{90}\text{Zr}$  に於て、古くから Shell Model 的描像<sup>4)</sup> で  $(2p\ 1/2)^2$ ,  $(2p\ 1/2)(1g\ 9/2)$ ,  $(1g\ 9/2)^2$  にある  $0^+ \sim 8^+$  の準位が測定できる可能性があるし、高い励起状態も  $E1$  以外の状態について調べられるというのが、実験の目的である。解析は低い準位に対し基底状態の電荷分布として Fermi 型、及び 3-parameter Gauss 型を持つ Tassie 模型及び簡単な Shell Model による比較を行った。高い準位では従来良く知られている  $E1$  巨大共鳴以外の共鳴が見られ、Lorentz 型を仮定して現象論的に Form Factor を求めてみた。但しここでいう Form Factor は Cross Section を Mott Cross Section で割ったもので定義する。実験結果を調べるに当り、スペクトロメーターの立体角やカウンターの未知数を除く為に良く調べられた  $^{12}\text{C}$  の断面積を基準にし形状因子を求めた。図 [1] にスペクトラムの一例を示す。

### (A) 弾性散乱実験

Stanford 大学の詳しい基底状態の解析によると 3 parameter Gauss 型 (及び類似



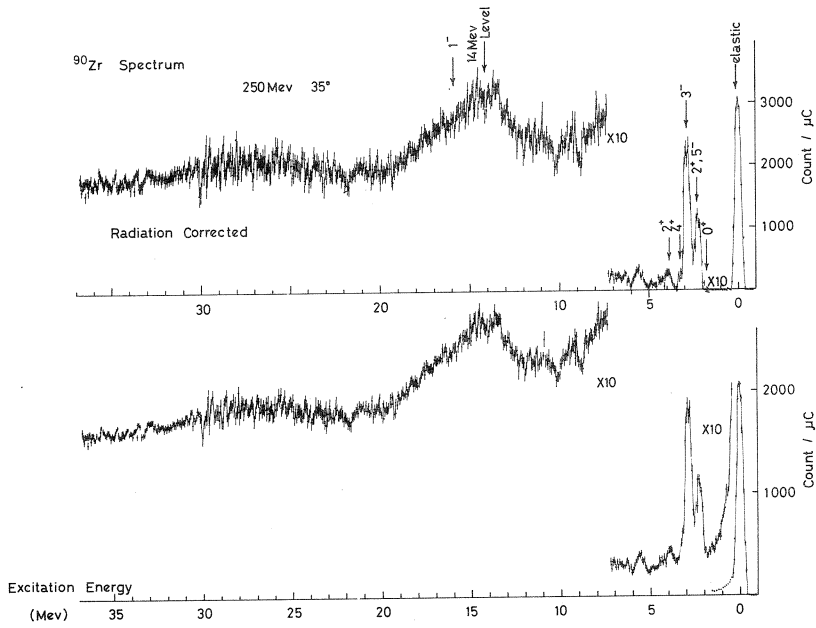


図 1

の 2 ～ 3 の型) に振動項をれた電荷分布を求めているが、我々の  $q$  の範囲では振動項を入れない上記の型で統計誤差の範囲内で良く一致する。Yale 大学の Fermi 型の電荷分布は  $q$  の高い所で合わない (図 [2])。

Stanford Parameter

$$\rho(r) = \rho_0 \frac{1 + w \left( \frac{r}{c} \right)^2}{1 + \exp \left( \frac{r^2 - c^2}{z^2} \right)}$$

$$\textcircled{1} \quad c = 4.428 (\text{fm}) \quad (1)$$

$$z = 2.528 (\text{fm}) \quad c = 0.35$$

Yale の Parameter

$$\rho(r) = \rho_0 \frac{1}{1 + \exp \left( \frac{r - c}{t / 4.4} \right)}$$

(2)

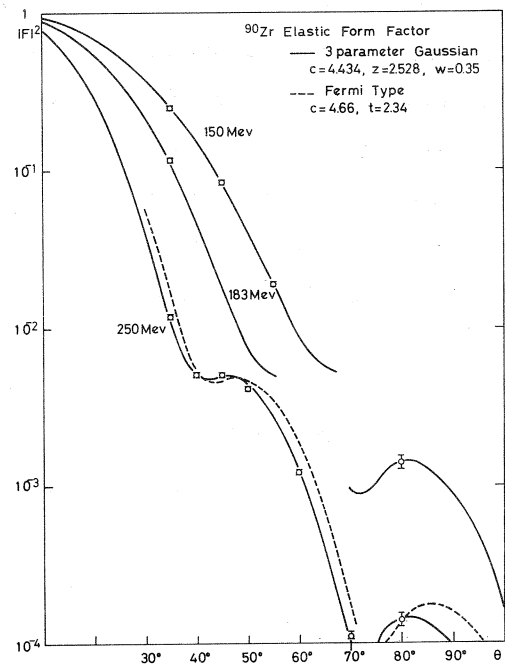


図 2

$$\textcircled{2} \quad c=4.66(\text{fm}) \quad t=2.34(\text{fm})$$

### (B) 非弾性散乱 低励起準位

低い励起準位に関しては今回は,  $3.08\text{MeV}(4^+)$  迄調べた。励起された単位は,  $2^+(2.18)$ ,  $5^-(2.34)$ ,  $3^-(2.75)$ ,  $4^+(3.08)$  であり, このうち有名な Collective な  $3^-$  を除き Shell Model で予測される単位である(図 3)。  $5^-$  及び  $2^+$  は我々の分解能では分離出来ない。又  $4^+$  は  $3^-$  の据にある為に, 以上 3 つの単位は最小自乗法による Peak 分離を用いて形状因子を出した (準位の中は  $(p, p')$ <sup>5)</sup>  $(\alpha, \alpha')$ <sup>6)</sup> 等のデータをを用い, Peak の型は Gauss 型を仮定した)。これらの準位に関して, 遷移電荷分布を調べる為に Tassie 模型を用いた。Tassie 模型は核を非圧縮性, 非回転性の不均質な液体と見なし励起状態はその表面振動によって生ずるとする。遷移電荷分布は, 基底状態の電荷分布と次の関係にある。

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

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

但し  $\rho_0$  は基底状態の電荷分布。

現象論的に遷移電荷分布を求める為に,  $\rho_0$  の  $c, t(z), w$  を変えたものを用い実験に合うものを探した。その結果を図[4]に示す(まだ  $\chi^2$ -fit は行っていない)。

次に簡単な Shell Model による遷移電荷分布を求めてみる。<sup>90</sup>Zr の low-lying は <sup>88</sup>Sr の core に proton 2 個がついた簡単な Configuration で説明がつくといわれている。基底状態は

$$|0_{g.s.}^+ \rangle = 0.8 |(2p1/2)^2 \rangle + 0.6 |(1g9/2)^2 \rangle \quad (5)$$

遷移電荷分布は電荷の Operator を  $\hat{\rho} = \sum \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i)$  として(5)と励起準位の波動関数ではさんでやるとよい。この結果は, 調和振動子の波動関数を用いると,  $2^+, 4^+$  の遷移電荷分布の radial dependence は

$$\rho(r) = C |u_{1g}(r)|^2 \quad (6)$$

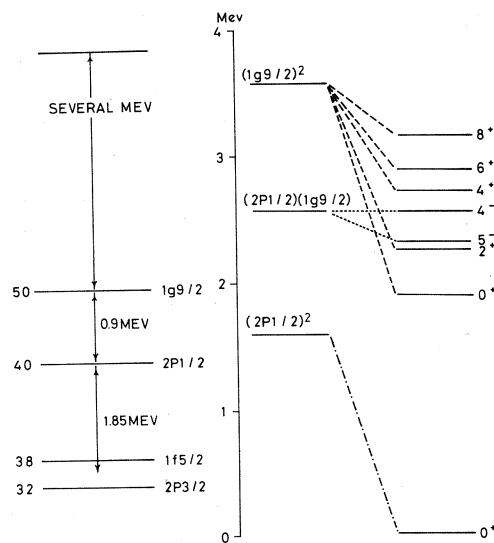


図 3

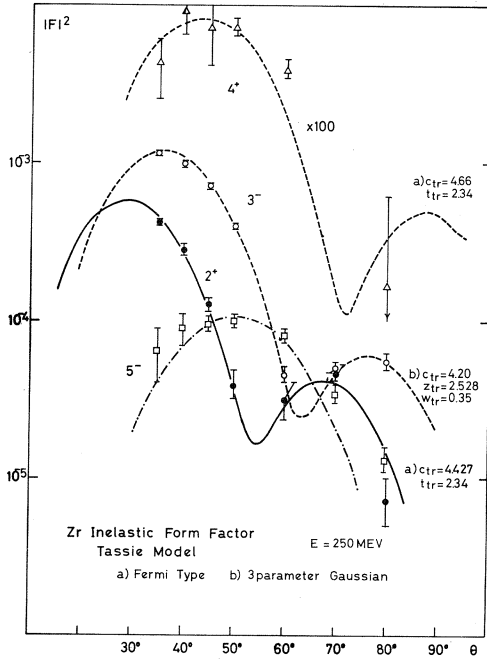


図 4

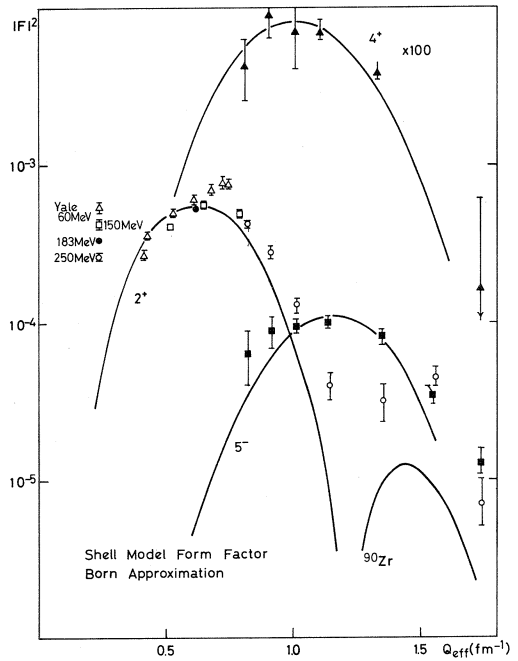


図 5

5<sup>-</sup>の遷移電荷分布のradial dependenceは

$$\rho(r) = C' u_{1g}(r) u_{2p}(r) \quad (7)$$

但し

$$\left. \begin{aligned} v_{1g}(r) &= \pi^{-\frac{1}{4}} \alpha^{\frac{3}{2}} \frac{8}{(9!!)^{\frac{1}{2}}} (\alpha r)^4 \exp\left[-\frac{1}{2}(\alpha r)^2\right] \\ v_{2p}(r) &= \pi^{-\frac{1}{4}} \alpha^{\frac{3}{2}} \frac{4}{(5!!)^{\frac{1}{2}}} (\alpha r) \left[\frac{5}{2} - (\alpha r)^2\right] \exp\left[-\frac{1}{2}(\alpha r)^2\right] \\ \alpha^2 &\equiv \frac{m\omega}{\hbar} \sim 1.9 \times 10^{25} \text{ cm}^{-2} \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

これによると遷移電荷分布を用いて形状因子をBorn近似で計算した。この結果絶対値は説明できないが、今の実験範囲の $q$ では、遷移電荷分布の形が違ってもかかわらず良く形状因子の $q$ 依存性が説明される(図5)。これは遷移電荷分布の細かい構造は形状因子の2nd及び3rd peak付近に反映する為と思われる。以上の結果、絶対値を問題にしなければ、 $^{90}\text{Zr}$ の簡単なConfigurationでlow-lyingは割合良く説明がつくといえる。 $B(EL)$ に関してはYaleの実験値とか、他の実験と少し違いが見られる(特に第1-2+準位)<sup>7)</sup>。我々が今の範

図で求めた $B(E2)$ ,  $B(E3)$ について表にして示す。

表

	$2^+(2.18\text{MeV})$	$3^-(2.78\text{MeV})$
Present Work(hydrodynamical model)	4.9	25
Yale $(e, e')^{1)}$ (hydrodynamical model)	6.9	32
$(e, e')$ from Ref <sup>7)</sup>	3.7	—
$(r, r')^{7)}$	5.1	—
$(\alpha, \alpha')^{6)}$	5.7	20
$(p, p')^{5)}$	3.6	19

注1 単位はsingle particle unit

$$B(EL\uparrow)_{s.p.u} = \frac{2L+1}{4\pi} \left[ \frac{3}{L+3} R^L \right]^2$$

$$R = 1.20 A^{1/3} = 5.36 \text{ fm}$$

注2 我々のhydrodynamical modelに対するパラメーターは

$$2^+ ; C_{tr} = 4.427, t_{tr} = 2.34 \text{ (Fermi型)}$$

$$3^- ; C_{tr} = 4.20, z_{tr} = 2.528, w_{tr} = 0.35 \text{ (3-parameter Gaussian型)}$$

### (C) 非弾性散乱 — 高い励起準位

約35MeVまでの高い励起状態の実験は183MeV 35°, 250MeV 35°, 45°の3点について行い $q_e \sim$ 約0.55, 0.75, 0.95である。この範囲の $q$ -dependenceを調べる事により $E1$ ,  $E2(\text{or } 0)$ ,  $E3$ の区別がつけられる。図6に光核反応のスペクトラムとともに示す。この結果従来良く知られていた $E1$ 巨大共鳴の他に $q$ -dependenceの異なるかなり大きな共鳴が14MeV付近に見られる。又約27MeV付近にも巾広い共鳴が見られる。

$^{90}\text{Zr}$ の光核反応は良く調べられていて<sup>7)</sup>, それらは長波長近似の極限で電子散乱と関係づけられる<sup>8)</sup>。

$$\int \sigma_{\text{abs}}(E) dE \underset{k \rightarrow 0}{=} (2\pi)^3 \alpha \frac{(\hbar c)}{E_{fi}} \frac{1}{2J_i + 1} \sum_f |(J_f \| \hat{T}_J^{e1}(k) \| T_i)|^2$$

$$\langle J_f \| \hat{T}_J^{e1}(k) \| T_i \rangle \underset{k \rightarrow 0}{=} \left( \frac{J+1}{J} \right)^{1/2} \langle J_f \| \hat{M}_J^{\text{coul}}(k) \| J_i \rangle \quad (9)$$

$$k = \frac{E_{fi}}{\hbar c}$$

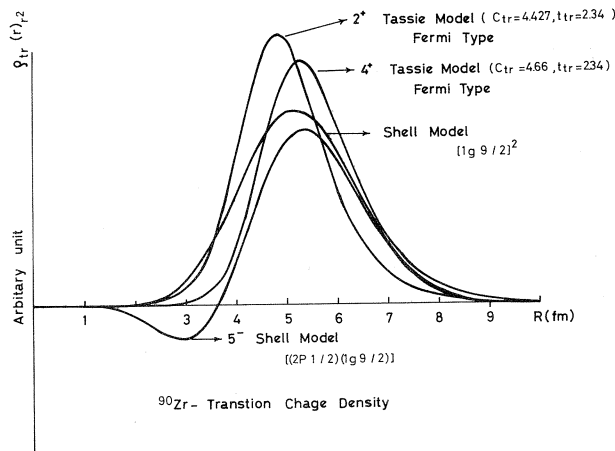


図 6-1

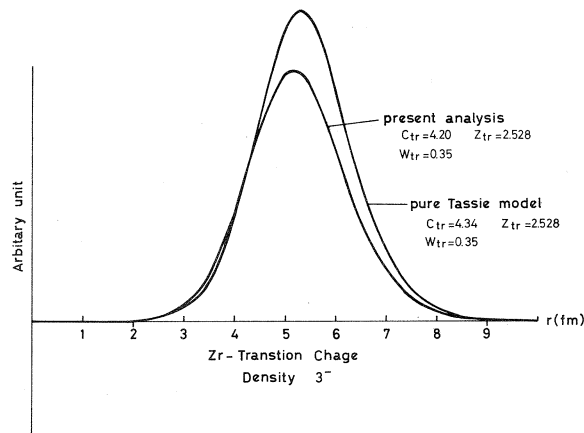
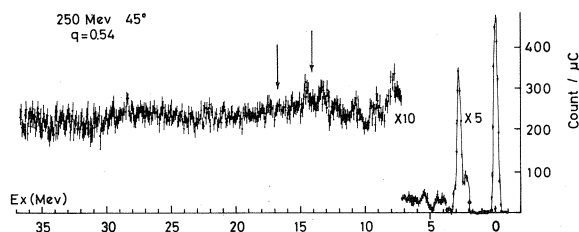
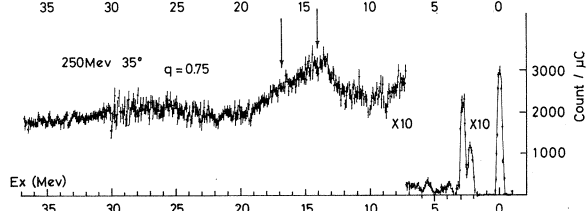
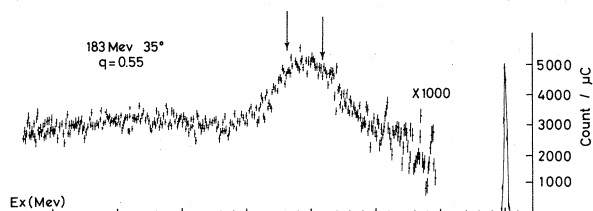
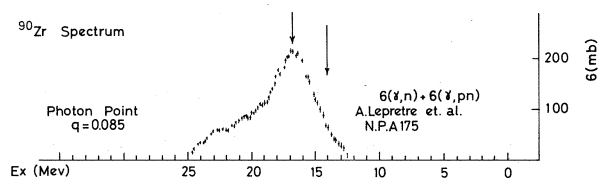


図 6-2

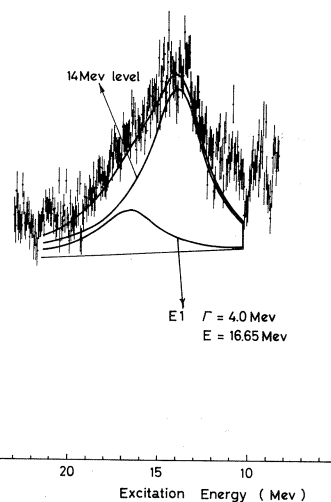
形状因子への焼き直しは  $Ref(8)$  の下の方を用いた。これは Born 近似による古典的な  $E1$  巨大共鳴の Goldhaber=Teller 模型と 10% の範囲内で絶対値迄説明する。又中重核に於ける  $E1$  共鳴は 1 つの準位 Sum Rule の 100% 近くを満足するので、この様な準位に対して Tassie Model が良く合う事が期待できる<sup>9)</sup>。そこで未知の共鳴を調べる為に、Goldhaber=Teller Model にあう様に  $B(E1)$  を決め DWBA の結果を用いて  $E1$  をさしひき、14 MeV 付近の共鳴の形状因子を求めた。この様な方法は高い励起準位を調べる時、問題になる Quasi-elastic Scattering の Process を通る電子の寄与の大体の目安がつけられるのが利点である。 $E1$  の Yield を出すのは、 $q$  の低い所では  $E1$  の型は大きく変化しない



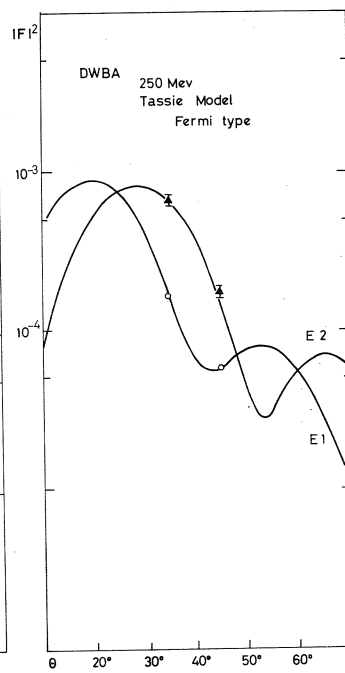
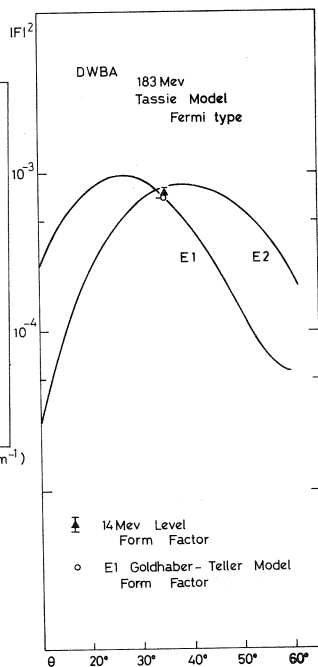
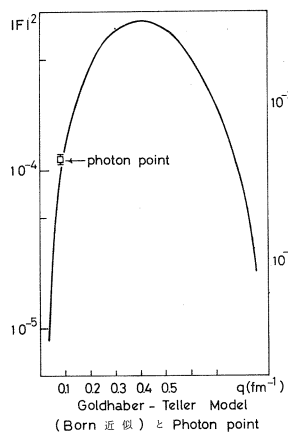


7

$^{90}\text{Zr}$  Peak Separation  
with Lorentz Shape



8



9

と仮定して,  $(r-n)$  reaction で決められた Lorentz 型の parameter をそのまま用いた (図 8)。この様にして求めた 14 MeV 付近の準位の形状因子の形を DWBA を用いて, 種々の Multipolarity の理論曲線 (Fermi 型 (2) 式を基底状態の電荷分布とした Tassie 模型) と比較すると  $E2$  のスピン依存性を示す事がわかった (図 9)。従って, この準位は  $E2$  (or 0) ではないかと思われる。

以上の結果はまだ色々問題点もあるので, 今後更に詳しく解析を行うつもりである。

(福 田 茂 樹)

### Reference

- 1) J. Bellicard et al, Nucl. Phys. A143(1970)213.
- 2) L. A. Fajardo et al, Phys. Lett. 37B(1971)363.
- 3) R. Pitthan et al, Phys. Lett. 36B(1971)553.
- 4) S. Bjornhalm et al, Phys. Rev. 115(1959)1613.  
B. Baymann et al Phys. Rev. 115(1959)1627.  
K. W. Ford, Phys. Rev. 98(1955)1516.
- 5) J. K. Dickens et al, Phys. Rev. 168(1968)1355.
- 6) E. J. Martens et al, Nucl. Phys. A117(1968)241.
- 7) F. R. Mettyger, Nucl. Phys. A182(1972)213.
- 8) 例えば  
B. L. Berman et al, Phys. Rev. 162(1967)1098.  
A. Lepretre, R. Borgere et al, Nucl. Phys. A175(1971).
- 9) T. de-Forest and J. D. Walecka, Adv. in Phys. 15(1966)1.
- 10) 宇井先生, private communication.

I-2  $^{27}\text{Al}$  による電子散乱 (II)

核理研・理学部物理\* 寺沢辰生・中原和夫  
小山田正幸・斉藤 肇\*・田中英二\*  
山家 優\*・遠藤順政\*

前回の核理研報告<sup>1)</sup>に於て、我々は $^{27}\text{Al}$ の低励起準位の電子散乱形状因子の測定結果について報告した。前期の実験は、比較的小さな散乱角で測定を行ったため、得られた形状因子は主に longitudinal 部分をあらわしていると考えられる。そして、この longitudinal 部分に関しては、 $^{27}\text{Al}$ の低励起準位に対する弱結合模型<sup>2)</sup>が実験結果を非常に良く説明することは前回報告の通りである。今期の実験では形状因子のもう一つの成分、transverse 部分の測定を目的とした。形状因子の transverse 部分は核の電流分布と電子との相互作用を表わしている。核の電流分布は、核子の持つ電荷の運動によって生ずる部分の他に、核子の固有磁気エネルギーから生ずる部分を含んでいる。したがって核の電荷との Coulomb 相互作用を表わしている、longitudinal 部分に較べ、transverse 部分の測定からは核内での核子の結合状態に関してより詳細な情報が得られることが期待できる。

## 実 験 方 法

散乱角、 $\theta=135^\circ$  (一部は  $120^\circ$ ) で、入射電子エネルギー、 $E_0$  を変化させて、 $^{27}\text{Al}$  核からの散乱電子のエネルギー・スペクトルを測定した。入射電子エネルギーは、先に測定された大きな散乱角での一連の測定点<sup>1)</sup>と同じ運動量移行、 $q$  になるように変化させた。このようにして得られた同じ  $q$  の点での散乱角の異なる二つの測定結果から、形状因子の longitudinal 部分及び transverse 部分を求めることができる。今回の測定では、散乱角が大きいため、 $^{27}\text{Al}$  のターゲットとして  $81.7\text{mg}/\text{cm}^2$ 、 $163.9\text{mg}/\text{cm}^2$  の厚さのものを用いた。散乱断面積の規格化は、 $^{12}\text{C}$  の弾性散乱及び  $4.44\text{MeV}$  準位からの非弾性散乱を測定して行ったが、 $^{27}\text{Al}$  のターゲット厚の増大と、低い入射電子エネルギー (最も小さな  $q$  の点 ( $q=0.565\text{fm}^{-1}$ ) に対しては  $E_0=59\text{MeV}$ ) のため、ターゲット通過後の入射ビームの拡がりや SEM の有効断面積をこえる事態が生じた。このため  $^{12}\text{C}$  のターゲット ( $79.9\text{mg}/\text{cm}^2$ ) とほぼ等しい輻射距離をもつ  $27.4\text{mg}/\text{cm}^2$  の  $^{27}\text{Al}$  ターゲットを用いて弾性散乱を測定し、厚いターゲットを用いたときの SEM の電流値を補正した。この補正值は、ターゲット通過後のビームの拡がりをガウス型と仮定した計算値<sup>3)</sup>と

実験誤差の範囲内で一致する。

## 実験結果

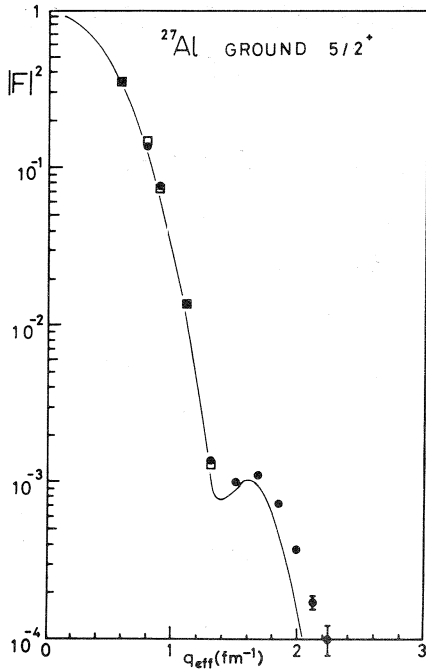


図1  $^{27}\text{Al}$  による弾性電子散乱形状因子  $|F|^2 = \sigma(\text{exp})/\sigma(\text{Mott})$ 。黒丸は運動量移行が最小の点 ( $E_0 = 180 \text{ MeV}$ ) 以外は  $E_0 = 250 \text{ MeV}$ 。白四角印は  $\theta = 135^\circ$  での測定値である。実線は弱結合模型による計算値である(文献1)。

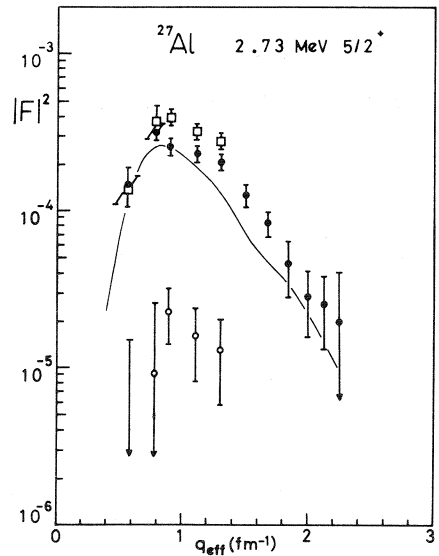


図2  $^{27}\text{Al}$  の  $2.73 \text{ MeV } 5/2^+$  準位の形状因子。白丸印はtransverse形状因子。図1の説明参照のこと。

図1～4に、それぞれ弾性散乱、及び  $2.73 \text{ MeV } (J^\pi = \frac{5^+}{2})$ ,  $2.21 \text{ MeV } (J^\pi = \frac{7^+}{2})$ ,  $300 \text{ MeV } (J^\pi = \frac{9^+}{2})$  準位からの非弾性散乱の測定から得られた形状因子の値を示した。黒丸(●)で示したデータは、前回の核理研報告に発表された、散乱角の小さい測定結果である。今回の測定結果は□印で示されている。弾性散乱(図1)及び  $2.21 \text{ MeV}$ ,  $300 \text{ MeV}$  (図3～4)準位に関しては、二つの測定値は殆んど一致し、形状因子は主に longitudinal 部分により構成されることを示している。 $2.73 \text{ MeV}$  準位(図2)に対しては、今回の測定では明らかに、散乱角

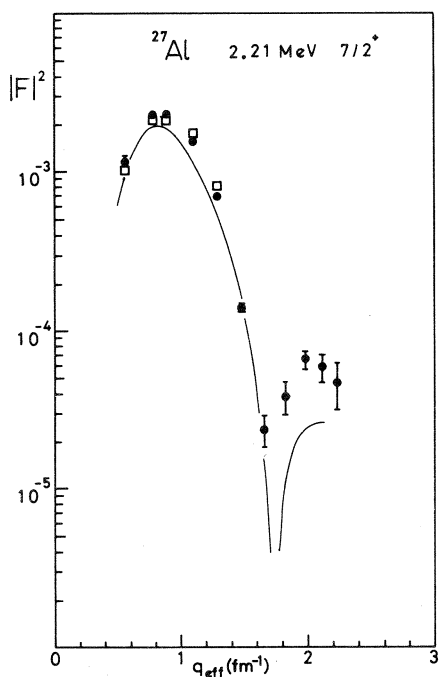


図3  $^{27}\text{Al}$  の 2.21 MeV  $7/2^+$  準位の形状因子。図1の説明参照のこと。

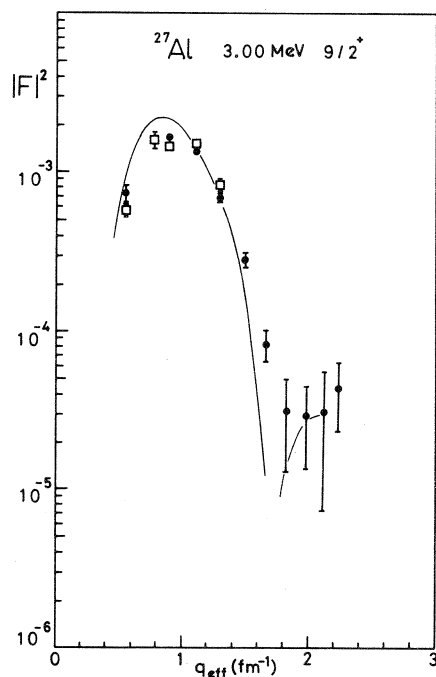


図4  $^{27}\text{Al}$  の 3.00 MeV  $9/2^+$  準位の形状因子。図1の説明参照のこと。

の増大に伴う形状因子の増加がみられる。この増加は transverse 部分の寄与によるもので、二つのデータから、transverse 形状因子として白丸(○)で示されるような値が得られた。この形状因子の多重極度に関しては、図に示された測定値の  $q$ -依存性は、transverse  $E2$  形状因子の可能性が強いことを示している。以下の議論では、これを  $E2$  と仮定する。

## 議 論

弱結合模型によれば、転移の行列要素は、coreの行列要素とodd-particleの行列要素の線型結合で表わされる。 $^{27}\text{Al}$ の低励起準位の弱結合模型波動関数は以下のように与えられている<sup>1), 4)</sup>。

$$\begin{aligned}
 E_X = 0.00 \text{ MeV } (J^\pi = \frac{5}{2}^+) & ; \quad \alpha |0 \frac{5}{2}, \frac{5}{2}\rangle + \beta |2 \frac{5}{2}, \frac{5}{2}\rangle \\
 2.73 \text{ MeV } (J^\pi = \frac{5}{2}^+) & ; \quad \alpha |2 \frac{5}{2}, \frac{5}{2}\rangle - \beta |0 \frac{5}{2}, \frac{5}{2}\rangle \\
 2.21 \text{ MeV } (J^\pi = \frac{7}{2}^+) & ; \quad |2 \frac{5}{2}, \frac{7}{2}\rangle \\
 3.00 \text{ MeV } (J^\pi = \frac{9}{2}^+) & ; \quad |2 \frac{5}{2}, \frac{9}{2}\rangle
 \end{aligned}$$

但し  $\alpha^2 + \beta^2 = 1$

$$|J_c j, JM\rangle \equiv \sum_{M_c m} (J_c j M_c m | JM) |J_c M_c\rangle |j m\rangle$$

$J_c$  は core の角運動量,  $j$  は odd-particle の角運動量。

ここで, longitudinal  $E2$  operator を  $M_2(q)$ , transverse  $E2$  operator を  $T_2(q)$  と書くと, 転移行列要素,  $\langle J_f \| M_2(q) \| J_i \rangle$  および  $\langle J_f \| T_2(q) \| J_i \rangle$  は, 上述の波動関数を用いて,

$$\langle 2.73(\frac{5^+}{2}) \| M_2(q) \| 0.0(\frac{5^+}{2}) \rangle = C_{5/2} \cdot (\alpha^2 - \beta^2) \cdot \langle 2 \| M_2(q) \| 0 \rangle$$

$$\langle 2.73(\frac{5^+}{2}) \| T_2(q) \| 0.0(\frac{5^+}{2}) \rangle = C_{5/2} \cdot (\alpha^2 - \beta^2) \cdot \langle 2 \| T_2(q) \| 0 \rangle$$

$$\langle 2.21(\frac{7^+}{2}) \| M_2(q) \| 0.0(\frac{5^+}{2}) \rangle = C_{7/2} \cdot \alpha \cdot \langle 2 \| M_2(q) \| 0 \rangle$$

$$\langle 2.21(\frac{7^+}{2}) \| T_2(q) \| 0.0(\frac{5^+}{2}) \rangle = C_{7/2} \cdot \alpha \cdot \langle 2 \| T_2(q) \| 0 \rangle$$

$$\langle 3.00(\frac{9^+}{2}) \| M_2(q) \| 0.0(\frac{5^+}{2}) \rangle = C_{9/2} \cdot \alpha \cdot \langle 2 \| M_2(q) \| 0 \rangle$$

$$\langle 3.00(\frac{9^+}{2}) \| T_2(q) \| 0.0(\frac{5^+}{2}) \rangle = C_{9/2} \cdot \alpha \cdot \langle 2 \| T_2(q) \| 0 \rangle$$

但し,  $C_{J_f} \equiv [(2J_f+1)(2J_i+1)]^{1/2} \cdot \left\{ \begin{matrix} J_c' & J_f & j \\ J_i & J_c & 2 \end{matrix} \right\} \cdot (-1)^{J_c'+j+J_f}$

と表わされる(同じ状態間の  $T_2(q)$  の行列要素,  $\langle J_c \| T_2(q) \| J_c \rangle$  などは零になる<sup>5)</sup>。

したがって, transverse 部分の行列要素と longitudinal 部分の行列要素の比

$$R = \frac{\langle J_f \| T_2(q) \| J_i \rangle}{\langle J_f \| M_2(q) \| J_i \rangle}$$

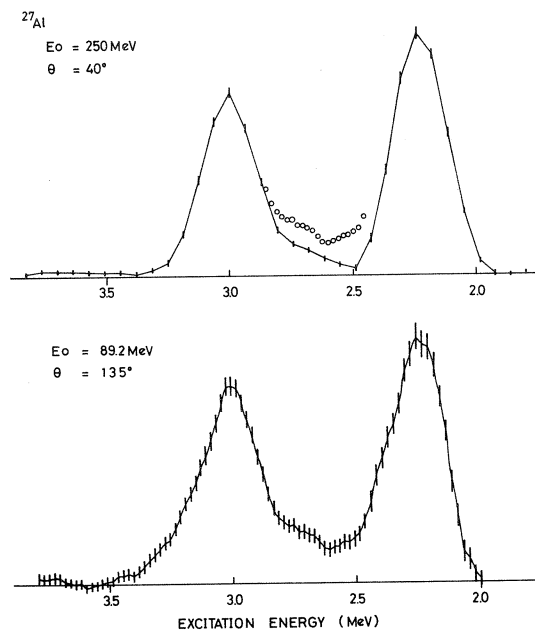
は, 上にのべた 3 つの準位の励起に関しては, 弱結合模型を仮定すれば全て等しい。すなわち

$$R = \frac{\langle 2 \| T_2(q) \| 0 \rangle}{\langle 2 \| M_2(q) \| 0 \rangle}$$

となる。

ところで, 実験では 2.73 MeV 準位のみに, transverse 励起が強く観測された。図 5 に  $q=0.885 \text{ fm}^{-1}$  で, 輻射補正後の散乱電子スペクトルを示す。この図では,  $\theta=40^\circ$  及び  $\theta=135^\circ$  のスペクトルで, 2.21 MeV, 3.00 MeV の二つのピークは同じ高さにプロットされている。この二つのピークに較べ,  $\theta=135^\circ$  では 2.73 MeV 準位に相当する部分(白丸で示す)が明らかに増加していることがわかる。このことは,  $R$  が上述の各準位に対して同じになるという, 弱結合模





第5図  $^{27}\text{Al}$  による散乱電子エネルギースペクトルに輻射補正を加えたもの。上図と下図は、同じ運動量移行で、散乱角を変えて測定したもの。上図の白丸印は  $\theta = 135^\circ$  での測定点で、2.73 MeV 単位に対する transverse 形状因子の大きな寄与を示している。

型がこれらの単位間の  $\gamma$  線転移確率（すなわち  $q \approx 0$  での転移行列要素）を非常によく説明する事実<sup>6)</sup>と併せて考えると、この困難は核と電子との transverse 相互作用のうち  $q$  の大きな値で寄与してくるところの、核子の固有磁気能率による核電流の部分にあると思われる。

## 文 献

- 1) 核理研研究報告 Vol. 4 No. 2(1972) 27.
- 2) A. de-Shalit, Phys. Rev. **122**(1960)1530.
- 3) B. Rossi, High Energy Particles. (Prentice Hall, Inc. New York, 1952).
- 4) V. K. Thankappan, Phys. Rev. **141**(1966)957.
- 5) T. de Forest and J. D. Walecka, Advances in Phys. **15**(1966)1.
- 6) D. Everse et al., Nucl. Phys. A91(1967)472.

# I-3 電子散乱による $N=82$ 核の higher spin state

理学部物理 石松敏之・斉藤 肇・林部昭吾  
川村暢明・金沢正明・遠藤順政  
山家 優

比較的大きなスピンを持つ励起状態の、基底状態との間の電磁氣的転移確率は、核構造を理解する上で有力な情報であるが、実験的測定の方法は限られる。電子の非弾性散乱は、それが可能な有効な方法である。

我々は、 $Ce^{140}$ ,  $Nd^{142}$ ,  $Pb^{206}$  等について、電子散乱によって、主として low lying state を調べており、現在実験は継続中であるが  $Ce^{140}$ ,  $Nd^{142}$  の両方について、 $E_{ex} \sim 3$  MeV にかなり強い  $E5$  遷移を見出した。更に  $Ce^{140}$  の  $2.084$  MeV の  $4^+$  状態の形状因子を、今までより広い運動量移行（以下  $q$  と略記する。）の範囲にわたって測定した。以下にこれらについて報告する。

実験は、東北大学  $300$  MeV 電子線型加速器と電子散乱実験装置を使って行われた。

以下に示すデータは、 $Ce$ ,  $Nd$  とも、 $E_e = 120$  MeV  $\theta = 35^\circ \sim 85^\circ$  ( $10^\circ$  毎) 及び  $E_e = 250$  MeV  $\theta = 35^\circ \sim 65^\circ$  ( $5^\circ$  毎), 即ち  $q$  の範囲にして  $0.35 \text{ fm}^{-1} \sim 1.5 \text{ fm}^{-1}$  で得られたものである。

測定された電子のスペクトルの例を図 1 に示す。入射電子ビームのエネルギー巾は、over all で  $0.1 \sim 0.15\%$  最大電流は約  $1.5 \mu A$  であった。

電子ビームは SEM で計量した。但し、ターゲットが厚く、電子のエネルギーが低い時は、収集効率が低下するので、補正を要する。

Appendix 1, 図 4 にこの効率を示す。

$Nd^{142}$  のターゲットは、ORNL で  $97.55\%$  に濃縮された金属を、薄膜にして使った。厚さは  $22.6 \text{ mg/cm}^2$  である。

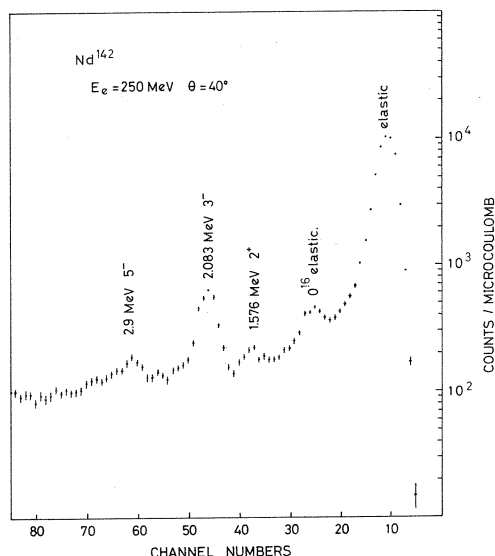


図 1 測定された電子のスペクトル

$Nd^{142}$   $E_e = 250 \text{ MeV}$   $\theta = 40^\circ$

$Ce^{140}$  のそれは天然金属 ( $Ce^{140}$   $88.48\%$ )

の膜で、厚さは 21.0, 26.5, 44.5, 99.1, 105.0 mg/cm<sup>2</sup> である。立体角などについての不定性を避ける為に、C<sup>12</sup> による散乱と比較する方法で断面積の絶対値を決定した。C<sup>12</sup> のターゲットはグラファイトで、厚さは 106.7 mg/cm<sup>2</sup> である。得られたスペクトルから断面積を求める計算は Appendix 2 の方法で行った。

この実験で得られた 4<sup>+</sup>, 5<sup>-</sup> と結論した状態の形状因子を図 2, 図 3 に示す。尚 Nd<sup>142</sup> では

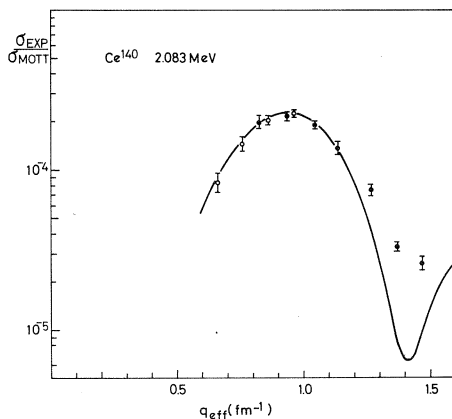


図 2 Ce<sup>140</sup> 4<sup>+</sup> 状態の形状因子

白丸は  $E_x = 120 \text{ MeV}$ , 黒丸は  $E_x = 250 \text{ MeV}$  の測定値。実線は Tassie 型電荷分布に対する DWBA 計算値  
 $C_{tr} = 5.2 \text{ fm}$ ,  $t_{tr} = 1.79 \text{ fm}$

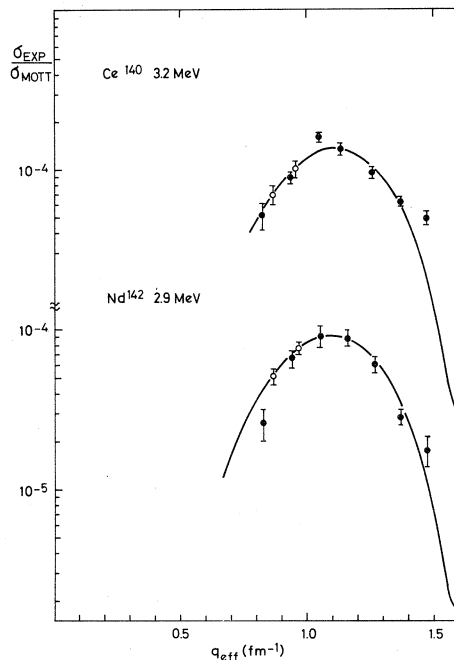


図 3 5<sup>-</sup> 状態の形状因子

白丸と黒丸の意味は図 2 と同じ。計算値のパラメータは  
 Ce<sup>140</sup> に対し  $C_{tr} = 5.1 \text{ fm}$   $t_{tr} = 1.79 \text{ fm}$   
 Nd<sup>142</sup> に対し  $C_{tr} = 5.2 \text{ fm}$   $t_{tr} = 1.79 \text{ fm}$

Ce<sup>140</sup> と異り 4<sup>+</sup> 状態は観測されなかった。

$E_x = 120 \text{ MeV}$  の場合と  $E_x = 250 \text{ MeV}$  の場合とで同じ  $q$  での形状因子が、ほぼ同じ値を取る事が図からわかる。この事から、これらの状態への遷移には場の縦成分が主な寄与していると考えて良いので、スピン、パリティは一意に定まる。

解析は Tassie 型電荷分布と DWBA によった。DWBA の CODE は DUELS である。この時

$$\rho_{tr} = r^{L-1} \frac{d}{dr} \rho_0$$

$$\rho_0 = 1 / (1 + \exp(\frac{r - C_{tr}}{Z_{tr}}))$$

$$Z_{tr} = t_{tr} / 4.4$$

電子の波動関数を決める際に必要な基底状態の電荷分布は、我々の弾性散乱の $q$ の小さい部分をよく再現する。Madsen et al<sup>1)</sup>によるものを使った。これはFermi型で

$$C_{gs} = 5.83 \text{ fm} \quad t_{gs} = 1.79 \text{ fm}$$

である。上式中、 $C_{tr}$ は測定値の極大を再現する様に決め、又、 $t_{tr}$ は $t_{gs}$ に等しく取った。

DUELSの出力値と測定値を比較すると $B(EL\uparrow)$ が求まる。この時Weisskopf unitを次式で計算し、この単位でのと併せて、結果を表1に示した。但し、

$$B(EL)_{sp} = \frac{2L+1}{4\pi} \left( \frac{3 \cdot R^L}{L+3} \right)^2$$

$$\text{ここで } R = 1.2 A^{1/3}$$

表1 結 果

核 種	$J^\pi$	$E_{ex}(\text{MeV})$	$B(EL\uparrow)(e^2 \text{ fm}^2 L)$	$B(EL)/B_{sp}$	$B(EL)/B_{sp}^{a)}$	$B(EL)/B_{sp}^{b)}$
$\text{Ce}^{140}$	$4^+$	2.08	$2.83 \times 10^6$	9.5	$21 \pm 4$	7.8
	$5^-$	3.2	$9.44 \times 10^7$	8.7		4.9
$\text{Nd}^{142}$	$5^-$	2.9	$7.78 \times 10^7$	6.8		

$B(EL)$ の誤差は $\sim 10\%$

a) ref 2 ( $ee'$ )による。

b) ref 5 ( $\alpha\alpha'$ )による。

$\text{Ce}^{140}$ の $4^+$ 状態の $B(EL\uparrow)$ はPitthanの( $ee'$ )による値<sup>2)</sup>と著しく異なる。彼の測定は $E_e = 50 \text{ MeV}$ 及び $60 \text{ MeV}$ 、 $\theta = 141^\circ$ の二点のみで、しかも $q < 0.6 \text{ fm}^{-1}$ であるから、形状因子の極大まで届いていない。従って余り精度の高い値とは思えないので、この違いは深刻ではないと考えられる。

尚、我々の測定値が $q \sim 1.4 \text{ fm}^{-1}$ で計算値より著しく大きいのは、この測定値に $2.108 \text{ MeV}$ の $6^+$ <sup>3)</sup>の寄与が含まれている為とも考えられるが、明らかではない。

$\text{Ce}^{140}$ のこれらの $4^+$ 、 $5^-$ 状態と同じと考えられる状態に関して、Baker et al<sup>5)</sup>が

( $\alpha\alpha'$ )によってIsoscalar transition rate  $B(ISL)$ を測定している。この結果を表1の第七欄に示す。更にJones et alが陽子移行反応によって調べて居り、 $La^{139}$  ( $He^3, d$ )<sup>6)</sup>で2.10MeVの状態は $L=2$ , 3.25MeVの状態は $L=5$ を示す事、又、 $Pr^{141}$  ( $d, He^3$ )では2.08MeVの状態は $L=2, 4$ を示す事を報告している。

Bernstein<sup>8)</sup>は $T=0$ 核の $T=0$ の状態への転移及び"中性子と陽子が一緒に動いている"(=mass vibration)状態への転移では $B(EL) \cong B(ISL)$ となる事を示した。

表1に見られる様に我々の $B(EL)$ の測定値はBaker et alの $B(ISL)$ と比べて、 $4^+$ はかなり近い値を、 $5^-$ は約2倍大きな値を示している。

以上の事から、 $Ce^{140}$ の $4^+, 5^-$ 状態は、陽子の粒子一空孔配位とCoreのmass vibrationが結合して構成されている状態と考えられる。又、 $Nd^{140}$ の $5^-$ 状態がその励起エネルギー、 $B(EL)$ ともに $Ce^{140}$ のそれと近い値を示している事から、 $N=82$ 核の3MeV附近に、かなり集団性を持つ $5^-$ 状態が、系統的に存在している事が予想される。

尚我々は、引き続いて $q$ の大きい領域及び $N=82$ 核のsystematicsとして $Ba^{138}$ の実験を計画している。

核理研の加速器グループの方々、電子散乱グループの方々に御指導と御協力を心から感謝致します。

## Appendix 1

多重散乱によって、ターゲットを通った電子が、ガウス型の角分布を持つとすると、それを特徴づけるパラメータは<sup>10)</sup>

$$\langle \theta^2 \rangle = \left( \frac{E_c}{E} \right)^2 \frac{t}{X_0}$$

ここで  $X_0$  ; radiation length

$$\frac{1}{X_0} = 4\alpha \frac{Z}{A} (Z+1) N_0 r_e^2 \ln 183 Z^{-1/3}$$

$t$  ; ターゲットの厚さ

$r_e$  ; 古典電子半径

$N_0$  ; アボガドロ数

$E_c = 21 \text{ MeV}$

$E$  ; 入射電子のエネルギー

$2 \cdot \theta_{SEM}$  をターゲットからSEMを見込む角とするとSEMの収集効率 $R$ は

$$R = \int_0^{\theta_{SEM}} \exp(-\theta^2 / \langle \theta^2 \rangle) \tan \theta d\theta / \int_0^{\pi/2} \exp(-\theta^2 / \langle \theta^2 \rangle) \tan \theta d\theta$$

$\theta_{SEM}$  は実測によれば  $0.0352$  ラジアンでこの値を使って上式によって計算した  $R$  を図 4 に示す。図中の測定点は A. Yamaguchi<sup>4)</sup> による。この図から、99%以上の効率を得る為には  $\langle \theta^2 \rangle < 2.5 \times 10^{-3}$  でなければならない事が分る。これは  $E_e = 120 \text{ MeV}$  場合 Ce に対しては  $t < 74 \text{ mg/cm}^2$  に当る。

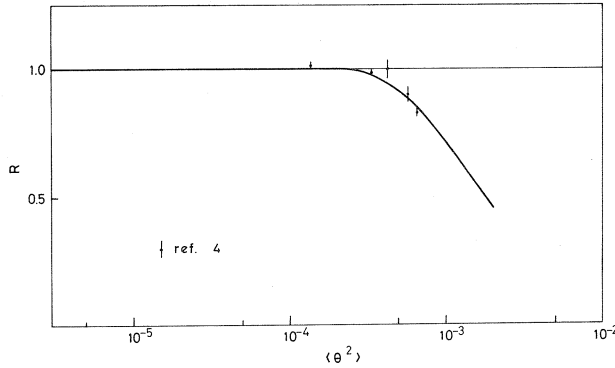


図 4 SEMの電子流収集効率 測定点はref 4による

## Appendix 2

実験データを解析するに当って、被散乱電子の tail を考慮して正しい収率を求める為の、計算機プログラムを作った。それは単一準位の被散乱電子に対し、適当なエネルギー・スペクトルを仮定しそれを各準位について重ね合わせて、測定されたスペクトルを再現する様に、各準位の強さを最小自乗法で決めるものである。準位の位置が正しく与えられれば、接近したピークを合理的に分離する事が出来る。誤差は tail を引く際に生ずる分も考慮してある。単一準位に関するスペクトルに対し、二種類の関数を仮定したが、いずれも核理研の unfolding procedure による方法とよく分離されたピークに対して1%以下の誤差で一致する。以下に計算方法の概略を述べる。

単一準位による被散乱電子のスペクトルを  $\Psi(E'', k)$  とする。但し  $E''$  は被散乱電子のピークのエネルギー。 $k$  は  $E''$  から測ったエネルギー損失。

ある準位の励起エネルギーを  $E_i$ 、その強さを  $a_i$  とすれば  $N$  個の準位によって散乱された電子の最終的なスペクトル  $Y(E, E')$  は

$$Y(E, E') = \sum_{i=1}^N a_i \Psi(E - E_i, k)$$

但し  $E$  は弾性散乱のピークに於る電子のエネルギー

$$E' = k + E_i$$

$\Psi(E'', k)$  が与えられれば,  $a_i$  は実験値を再現する様に最小自乗法によって決められる。各準位の収率を  $I_i$  とすれば

$$I_i = a_i \int_0^{\Delta E} \Psi(E, k) dk S(\Delta E)$$

ここで  $S(\Delta E)$  は tail を  $\Delta E$  の巾しか勘定に入れない事に対する補正因子で, 次式で与えられる<sup>11)</sup>。

$$\begin{aligned} S(\Delta E) &= \exp(\delta_B + \delta_S) \frac{\omega}{\omega - 1} \\ \delta_S &= \frac{4\alpha}{\pi} \left\{ \left[ \ln\left(\frac{2E}{mc^2} \sin \frac{\theta}{2}\right) - \frac{1}{2} \right] \left[ \ln \frac{E}{\Delta E} - \frac{13}{12} \right] + \frac{17}{72} \right\} \\ \delta_B &= t \cdot \ln(E/\Delta E) / (X_0 \cos \frac{\theta}{2} \cdot \ln 2) \\ \omega &= \lambda + 0.37 - \frac{\lambda - 0.63}{\lambda + 0.37} \ln(\lambda + 0.37) \\ \lambda &= \Delta E / (0.154 \frac{Z}{A} t / \cos \frac{\theta}{2}) \end{aligned}$$

$X_0$ ; radiation length App. 1を見よ。

$\Psi(E, k)$  に仮定する関数

1. Yale 大学のグループ<sup>9)</sup> が用いているのと似た方法で次の様に仮定する。

$$\Psi(E, k) = \exp\left(-\frac{(E-k)^2}{W^2}\right) + \frac{C_1 k}{k^2 + \delta_1} + \frac{C_2 k}{k^2 + \delta_2}$$

但し  $k < 0$  で  $C_1 = C_2 = 0$

$W, \delta_1, \delta_2$  を外から与え,  $C_1, C_2$  を弾性散乱の tail を使って決める。従って弾性散乱の tail が充分広くない場合には使えない。

2. 入射電子のスペクトルを  $\varphi(E, \varepsilon)$ , 単色の電子が散乱された時持つスペクトルを  $\psi(E, k')$  とすれば

$$\Psi(E, k) = \int_{-\varepsilon_{\max}}^{\varepsilon_{\max}} \psi(E + \varepsilon, k') \varphi(E, \varepsilon) d\varepsilon$$

この場合  $k = k' - \varepsilon$

$\varphi(E, \varepsilon)$  としてビームのエネルギー巾が 0.1% 程度の時はガウス型が良い。

$$\varphi(E, \varepsilon) = \exp\left(\frac{-\varepsilon^2}{W^2}\right)$$

$\psi(E, k)$  は次の様に与えられている<sup>10), 11)</sup>。

$$\begin{aligned}\phi(E, k) &= \left\{ \frac{\alpha}{\pi} \frac{1}{k} \left[ \left( 1 + \left( \frac{E-k}{E} \right)^2 \right) \ln \left( \frac{2E}{mc^2} \sin \frac{\theta}{2} \right) - \frac{E-k}{E} \right] \right. \\ &\quad \left. + t/2 \cdot \cos \frac{\theta}{2} [f_{\text{rad}}(E, k) + f_{\text{coll}}(E, k)] \right\} \left( \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \left( \frac{E}{E-k} \right)^2 \right)^* \\ f_{\text{rad}}(E, k) dk &= 4\alpha r_e^2 \frac{N_0}{A} Z(Z+1) \frac{dk}{k} F(E, k) \\ F(E, k) &= \left[ 1 + \left( 1 - \frac{k}{E} \right)^2 - \frac{2}{3} \left( 1 - \frac{k}{E} \right) \right] \ln 183 Z^{-1/3} + \frac{1}{9} \left( 1 - \frac{k}{E} \right) \\ f_{\text{coll}}(E, k) dk &= 0.154 \frac{Z}{A} \frac{dk}{k^2} \left( \frac{E^2 - kE + k^2}{E^2 - kE} \right)^2\end{aligned}$$

但しこの式は $k \rightarrow 0$ では使えないから“原点”の値は別な決め方をしなければならない。もし1チャンネル当りのエネルギー巾が充分大きければ、規格化の条件から定める事が出来る。不幸にして、我々の場合はこの方法ではtailの高さに比べ、“原点”が大きくなり過ぎて使えなかったで、”原点”を1に取りtailとしては前の式にある因子を掛けたものを用いた。この因子は実験点を再現する様に選んで外から与える。図5の実線はこの方法によって計算したものである。

尚誤差は各計数値の統計誤差から来るものと、fittingの際の平均自乗誤差との自乗和とした。

## References

- 1) D. W. Madsen, L. S. Cardman, J. R. Regg and C. K. Bockelman  
N. P. **A168**('71)97.
- 2) R. Pitthan, Z. Naturforsch.  
25A('70)1358.
- 3) H. W. Bear, J. J. Reidy and M. L. Wiedenbeck, N. P. **A113**('68)  
33.
- 4) A. Yamaguchi, Ph. D. diss.  
Tohoku Univ. 1970.

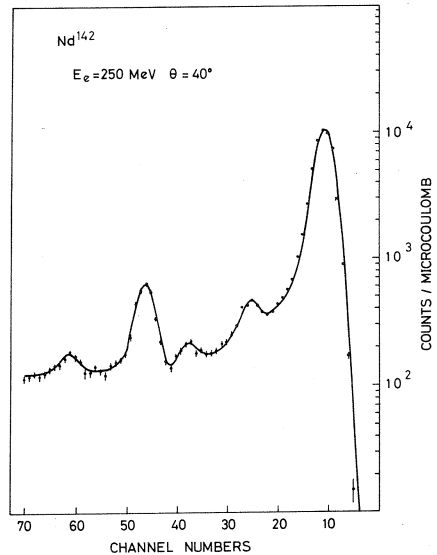


図5 スペクトル解析の様子

実線は App 2-2 の方法による計算値

\* 形状因子が測定しているtailのエネルギー範囲で一定と仮定している。



- 5) F. T. Baker and R. Tuckle, P. R. **5(1)**('72)182.
- 6) W. P. Jones, Ph. D. diss. Univ of Michigan 1969(unpublished)  
L. W. Borgan, Ph. D. diss. Univ of Michigan 1969(unpublished).
- 7) W. P. Tones, L. W. Borgman, K. J. Hecht, J. Bardwick and W. C.  
Parkinson(to be published).
- 8) A. M. Bernstein, Advances in Nuclear. Physics(Plenum New  
York 1969). Vol III PP 325-476.
- 9) J. F. Ziegler and G. A. Peterson, P. R. **165(4)**('68)1337.
- 10) B. Rossi, High Energy Particles(Prentice Hall New Jerrey).
- 11) G. R. Bishop, Nuclear Structure and Electromagnetic  
Interaction(Oliver and Boyd 1964)p. 231.

I-4 ( $\gamma, p$ ) 反応による原子核の IAS の研究

核理研 庄田勝房・菅原真澄・斎藤悌二郎  
宮瀬晴久・及川四郎・鈴木厚人  
上柿順一

原子核の IAS (Isobaric Analog State) は一般に proton scattering 等で研究されてきたが、( $\gamma, p$ ) 反応を用いれば次の様な点で独特の研究が行なえる事が核理研に於ける一連の実験によって示された。

- i) ( $\gamma, p$ ) 反応によって IAS を励起する機構は proton scattering 等他の方法の場合と異なる為、特異な IAS を発見する事が可能である (例えば  $T_{>}$  coherent state 等)。
- ii) ( $\gamma, p$ ) 反応によって励起し得る IAS は target の ground state に対して主に  $E1$  transition 可能なものに限られる。proton scattering 等による IAS の研究にはこの様な制限はないので、多くの states が励起出来る反面 level 数の増加と共に個々の IAS の分離が困難となる。( $\gamma, p$ ) による研究はこの様な level 数の多い region に於ても  $E1$  state だけを分離して研究する事が出来る。従ってこれは deformed nuclear region に於ける IAS の研究に特に有利である。

今回は  $T_{>}$  coherent state を主な研究課題として Ni isotope に関する実験、deformed nucleus の low excited IAS に関する実験を前回に引続いて行なった。この他  $^{209}\text{Bi}$  の ground IAS が spin-flip transition にもかゝらず強く excite される事実を確認する為、再実験を行なった。更に Ca の ( $\gamma, p$ ) 反応の研究の予備実験として  $\text{Ca}(\gamma, p_0)$  の cross section を測定した。 (庄田)

## §1 Ni isotopes の光核反応

一般に  $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{60}\text{Ni}$ ,  $^{62}\text{Ni}$  の様な non-self-conjugate 核に於ては、 $E1$  巨大共鳴は  $T_{>} = T_0 + 1$  と  $T_{<} = T_0$  に対応する 2 つの isobaric-spin 成分に分けられる。ここに  $T_0$  はその核の ground state の isobaric-spin である。Goulard and Fallieros<sup>1)</sup> に依れば、 $T_{>}$  成分、 $T_{<}$  成分の相対的な大きさをそれぞれ  $C_{>}$ ,  $C_{<}$  とすると、

$$|C_{>}|^2 = \frac{1}{T_0 + 1} \left[ \frac{1 - 1.5T_0/A^{2/3}}{1 - 4(T_0/A)^2} \right]$$

$$|C_{<}|^2 = \frac{T_0}{T_0 + 1} \left[ \frac{1 + 1.5/A^{2/3} - 4T_0(T_0 + 1)/A^2}{1 - 4(T_0/A)^2} \right]$$

で与えられる。またこの2つの成分のenergy separationは、

$$\Delta E = E_{T_{>}} - E_{T_{<}} \approx 60(T_0 + 1)/A$$

で与えられる<sup>2)</sup>。

$T_{>}$ の状態からの中性子の放出はisobaric-spin selection ruleに依って禁止され、陽子の放出が主となる。また、 $T_{<}$ の状態からは中性子も陽子も放出可能であるが、

Coulomb barrierの影響で陽子の放出はおさえられる。この為、 $T_{<}$ の状態は $(r, n)$ 反応に、 $T_{>}$ の状態は $(r, p)$ 反応に強く現われる。今まで、photoneutron cross sectionは種々の核について調べられて来たが<sup>3-6)</sup> photoproton反応についての実験はNi-isotopesでは最近2, 3行われただけで<sup>6-8)</sup> dataは非常に不足している。そこで我々はlinacからの電子とSSD 100個を附属した広帯域分析電磁石を用いて、Ni-isotopesのphotoproton cross sectionを調べた。

## 実験および結果

実験は電子を直接targetにあて、いわゆるvirtual photonに依って核を励起する方法をとった。この反応はbremsstrahlungに依る核の励起と機構的には同等である。

targetはそれぞれ99.89%, 99.79%, 96.16%にenrichされた<sup>58</sup>Ni, <sup>60</sup>Ni, <sup>62</sup>Niで厚さは9.62mg/cm<sup>2</sup>, 5.68mg/cm<sup>2</sup>, 7.84mg/cm<sup>2</sup>である。Ni-isotopesでは中性子の数が増すに従って陽子のseparation energyが8.18MeVより11.21MeVと高くなるので、<sup>58</sup>Niについては $E_e = 14.0 \sim 26.6$ MeV, <sup>60</sup>Niは $E_e = 15.4 \sim 28.0$ MeV, <sup>62</sup>Niは $E_e = 17.0 \sim 29.0$ MeVまで200keV stepで電子のenergyを変えて陽子のspectraを測定し、陽子数を合計してyield curveを求めた(Fig.1)。ここで測定した陽子のenergy領域は $E_p = 3.37$ MeVよりmaximum energyまでである。これをCook<sup>9)</sup>に依るleast structure methodで解析すると、Fig.2に示した様なphotoproton cross sectionを得ることが出来る。Fig.2に破線で示したのは、Ishkhanov et al.<sup>7)</sup>に依る実験結果である。

これらのcross sectionはtarget核のneutronの数が増すに従って著しく減少することがわかる。我々の測定したintegrated cross sectionをTable 1に示す。total photoabsorptionを $\sigma = \sigma_p + \sigma_n$ と仮定すると、<sup>58</sup>Ni, <sup>60</sup>Niの $\int \sigma dE$ はE1 sumの約90%にあたる。残念な事に<sup>62</sup>Niに対する $(r, n)$ 反応の実験はいまだ行われてい

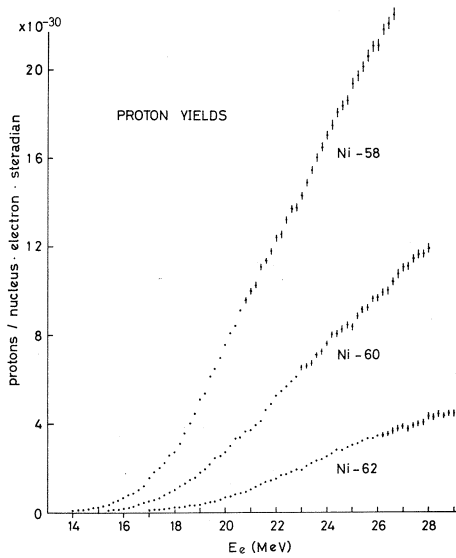


Fig. 1

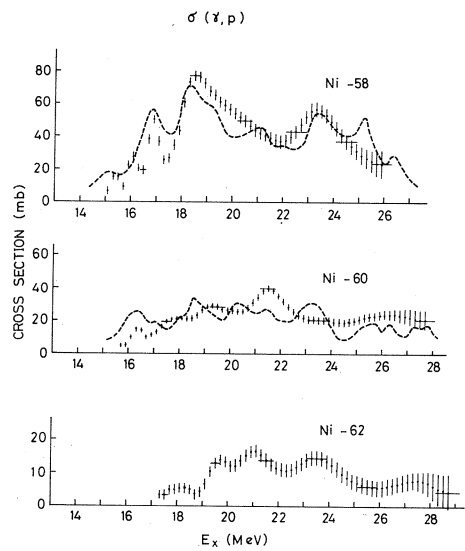


Fig. 2

Table 1 Integrated Cross Sections

Nucleus	$\int \sigma_p dE^1)$ (mb·MeV)	$\int \sigma_n dE^2)$ (mb·MeV)	$\int \sigma dE^3)$ (mb·MeV)	$\frac{\int \sigma_p dE}{\int \sigma dE}$	$\frac{ C ^2}{ C ^2 +  C ^2}^4)$
$^{58}\text{Ni}$	$480 \pm 40$	$310 \pm 30$	$790 \pm 70$	61%	45%
$^{60}\text{Ni}$	$210 \pm 30$	$620 \pm 50$	$830 \pm 80$	25%	27%
$^{62}\text{Ni}$	$110 \pm 10$		$850^5)$	13%	17%

1) 積分範囲は  $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{60}\text{Ni}$ ,  $^{62}\text{Ni}$  に対してそれぞれ 14.0~26.0, 15.5~27.6, 17.0~29.0 (MeV).

2) B. S. Ishkhanov et al., Sov. J. Nucl. Phys. 11('70)272.

3)  $\sigma = \sigma_p + \sigma_n$

4) B. Goulard and S. Fallieros, Can. J. Phys. 45('67)3221.

5)  $E1$  sum の 90% と仮定。

いので,  $^{62}\text{Ni}$  に対する  $\int \sigma dE$  の値を  $E1$  sum の 90% と仮定すると,  $\int \sigma dE$  に対する  $\int \sigma_p dE$  の割合は  $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{60}\text{Ni}$ ,  $^{62}\text{Ni}$  でそれぞれ 61%, 25%, 13% となる。Goulard, Fallieros<sup>1)</sup> に依れば  $E1$  巨大共鳴 ( $T_{<} + T_{>}$  成分) のうち  $T_{>}$  成分の占める割合はそれぞ

れ45%, 27%, 17%で我々の実験結果と $^{58}\text{Ni}$ を除けば良くあっている。 $^{58}\text{Ni}$ の実験値と計算値の違いは、陽子のseparation energyが8.18MeVと低いため、 $T_{<}$ 成分からの陽子がCoulomb barrierの影響をあまり受せずに放出されるものと考えられる。

我々は各電子のenergyごとにspectrumを得ており、このspectrumのhigher energy partは残留核を基底状態に残して放出される陽子だけからなると考えられる。そこで、これ等を利用することに依って $(r, p_0)$ のcross sectionを求めることが出来る。

この結果をFig. 3に示す。 $^{60}\text{Ni}$ の破線はStony BrookのDiener et al.<sup>8)</sup>

の $^{59}\text{Co}(p, r_0)^{60}\text{Ni}$ のdataでdetailed balanceで $^{60}\text{Ni}(r, p_0)$ に直したものである。

これらのcross sectionをみると、 $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{60}\text{Ni}$ ,  $^{62}\text{Ni}$ のそれぞれ19MeV, 20MeV, 21 MeV附近にgroupがみられる。これ等のgroupはE1巨大共鳴の $T_{>}$ 成分と考えられる。他方、 $T_{<}$ 成分の位置は $(r, n)$ 反応で調べられており、およそ17MeVである。したがって、 $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{60}\text{Ni}$ ,  $^{62}\text{Ni}$ に於ける $T_{>}$ ,  $T_{<}$ 成分のenergy separationはそれぞれ $\sim 2\text{MeV}$ ,  $\sim 3\text{MeV}$ ,  $\sim 4\text{MeV}$ で、これはAkyüz et al.<sup>2)</sup>が予想した

energy separation  $\simeq 2\text{MeV}$ ,  $\simeq 3\text{MeV}$ ,  $\simeq 3.9\text{MeV}$ と非常に良く一致している。

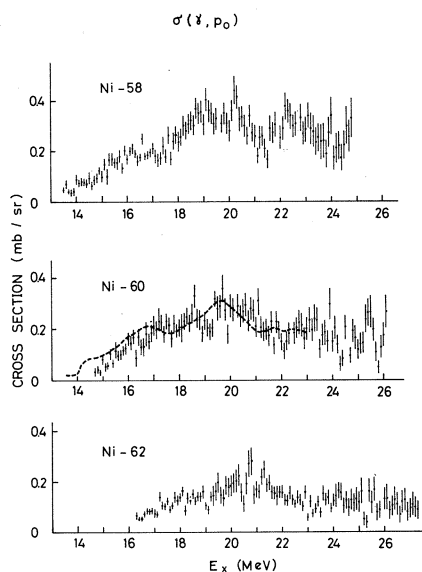


Fig. 3

(宮瀬)

## 参 考 文 献

- 1) B. Goulard and S. Fallieros, Can. J. Phys. **45**('67)3221.
- 2) R. Ö. Akyüz and S. Fallieros, Phys. Rev. Letters **27**('71)1061.
- 3) K. Min and T. A. White, Phys. Rev. Letters **21**('68)1200.
- 4) B. I. Goryachev et al., Sov. J. Nucl. Phys. **11**('70)141.
- 5) D. G. Owen et al., Nucl. Phys. **A140**('70)523.
- 6) J. H. Carver and W. Turchinetz, Proc. Phys. Soc. **73**('58)585.
- 7) B. S. Ishkhanov et al., Sov. J. Nucl. Phys. **11**('70)272.
- 8) E. M. Diener et al., Phys. Rev. C **3**('71)2303.
- 9) B. C. Cook, Nucl. Instr. Methods **24**('63)256.

## §2 変形核の Isobaric Analog State (II)

前回に引続いて行なった変形核 ( $^{181}\text{Ta}$ ,  $^{169}\text{Tm}$ ) に於ける  $(e, e'p)$  反応の実験結果を報告する。

標的核に於ける Ground- $\text{IAS}$  の励起エネルギーは核力の荷電独立性を仮定すれば、標的核の陽子分離エネルギー ( $S_p$ )  $\text{IAS}$  一親核の中性子分離エネルギー ( $S_n$ ), coulomb displacement energy  $\Delta E_c$  を用いて次の様に表わせる。

$$E_{IAS} = \Delta E_c + S_p - S_n \quad (1)$$

Anderson et al.<sup>1)</sup> は球形近傍核の  $(p, n)$  反応の data から  $\Delta E_c$  の半経験的な式を求めた。

$$\Delta E_c = 1.444(Z + \frac{1}{2}) / A^{1/3} - 1.131 \quad (\text{MeV}) \quad (2)$$

(1)(2) 式及び  $S_p$ ,  $S_n$  (実験値) を用いれば  $\text{IAS}$  の励起エネルギーが計算出来、これと実験値とを比較することによって変形による  $\Delta E_c$  の変化を調べることが可能になる。

### §1 $(e, e'p)$ 微分断面積

(1)  $^{169}_{69}\text{Tm}_{100}$  (図 1')

$^{169}\text{Tm}$  の基底状態のスピンは  $\frac{1}{2}^+ [4, 1, 1]$  であるので  $1^-$  変化で遷移出来る状態は  $\frac{1}{2}^- [5, 2, 1]$ ,  $\frac{1}{2}^- [5, 1, 0]$ ,  $\frac{3}{2}^- [5, 0, 1]$ ,  $\frac{1}{2}^- [5, 0, 1]$ , ..... のうち  $E1$  operator  $\vec{r}$ ,  $\vec{\sigma} \times \vec{r}$  に対し Alaga の規則を満たす状態は  $\frac{1}{2}^- [5, 2, 1]$ ,  $\frac{1}{2}^- [5, 1, 0]$ ,  $\frac{3}{2}^- [5, 1, 2]$  で、これらに対するエネルギーは共に  $(d, p)$

反応を用いて求めた  $\text{IAS}$  一親核 ( $^{169}\text{Er}$ ) に於ける励起エネルギーから決められる。(1)(2) 式を使って求め

たこれらの  $\text{IAS}$  の予想位置を図 1 に矢印で示した。次

の order の  $E2$ ,  $M1$  遷移に関しては、Alaga 規則を満たす状態は  $^{169}\text{Er}$  の低励起エネルギー領域には存在しない。よって  $\frac{1}{2}^- [5, 2, 1]$  状態が Ground- $\text{IAS}$  であることを考えると、 $T$  (アイソスピン) lower 状態に  $\text{IAS}$  の様な鋭い共鳴状態が存在しない限り、図 1 の 1st break は  $\frac{1}{2}^- [5, 2, 1]$  が対応しているものと思われる。この対応には 500 keV のエネルギーシフトが必要であり、同じシフトにより 2nd break が  $\frac{1}{2}^- [5, 1, 0]$  に対応する。

(2)  $^{181}_{73}\text{Ta}_{108}$  (図 2)

前回同様<sup>2)</sup>, 今回の実験においても 17.4, 19.0 MeV に大きな break が測定された。 $^{180}\text{Hf}$

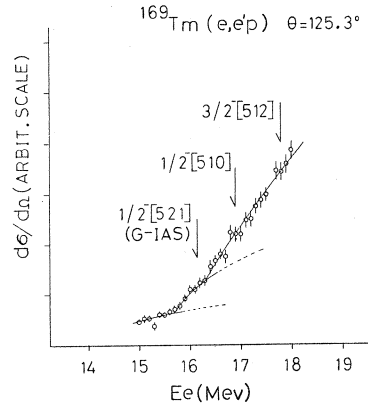


図 1

$(d, p)^{181}\text{Hf}$  の実験結果によれば  $^{169}\text{Tm}$  と同じ理由から 1st break には Ground-IAS よりも  $670\text{keV}$  高い励起状態の  $\frac{7^-}{2}[5, 0, 3]$ , 2nd break には  $1637\text{keV}$  高い励起状態の  $\frac{5^-}{2}[5, 0, 3]$  が対応しているものと思われる。この時のエネルギーシフトは  $800\text{keV}$  である。しかし  $^{181}\text{Ta}$  の場合の状態の assignment に関して次の様な問題点が含まれる。(1) IAS-親核  $^{181}\text{Hf}$  の基底状態と  $\frac{7^-}{2}[5, 0, 3]$  状態の間に  $(d, p)$  では励起されないが  $(e, e', p)$  で励起可能な状態が存在するのではないか? (2) 1st

break が  $\frac{7^-}{2}[5, 0, 3]$  としても 2nd break は  $800\text{keV}$  のエネルギーシフトから正確には  $\frac{5^-}{2}[5, 0, 3]$  状態に対応せず  $300\text{keV}$  位 break の位置が高い。しかし 2nd break に関する実験点は 1st break に比べてばらついており、break の位置を決定するにはまだ不確実と思われる。

### (3) 結果

以上の  $(e, e', p)$  微分断面積の実験結果において、IAS の励起エネルギーは (1)(2) 式から予想されるものよりも低い。そのずれは  $^{169}\text{Tm}$  では  $500\text{keV}$ ,  $^{181}\text{Ta}$  では 1st break が  $\frac{7^-}{2}[5, 0, 3]$  とすれば  $800\text{keV}$  である。荷電独立性のもとではこのエネルギーシフトは変形核の  $\Delta E_c$  と球形核の  $\Delta E_c$  の間に差がある事を示している。

## §2 coulomb displacement energy

一般に原子核が変形するに従ってクーロンエネルギーは小さくなるが、原子核の荷電が回転楕円体内に一様に分布しているとすれば

$$\Delta E_c^{(3)}(\delta) = \Delta E_c(0) \left( 1 - \frac{4}{45} \delta^2 + \dots \right) \quad (3)$$

ここで  $\delta$  は変形パラメーターで  $\delta = \frac{R(\theta=0) - R(\theta=\pi/2)}{R_0}$  で定義され、 $\Delta E_c(0)$  は荷電が球形内に一様に分布している時の  $\Delta E_c$  である。今  $\delta \cong 0.3$ ,  $\Delta E_c(0) =$  第(2)式として  $\Delta E_c(\delta) - \Delta E_c(0)$  を求めると、 $^{169}\text{Tm}$   $^{181}\text{Ta}$  に対してはそれぞれ  $-134$ ,  $-139\text{keV}$  となり、この補正だけで現在の実験結果を説明することは出来ない。変形核における IAS の実験は  $(p, p)$ ,  $(p, p')$  反応で行なわれており、いくつかのデータが publish<sup>4)</sup> されている。これらの実験結果及び東北大で行った  $(e, e'p)$  の実験結果<sup>5)</sup> から  $\Delta E_c(\text{experiment}) - \Delta E_c(0) =$  第(2)式の値を求めて図3に示した。図3から球形核近傍では  $(p, p)$   $(p, p')$   $(e, e'p)$

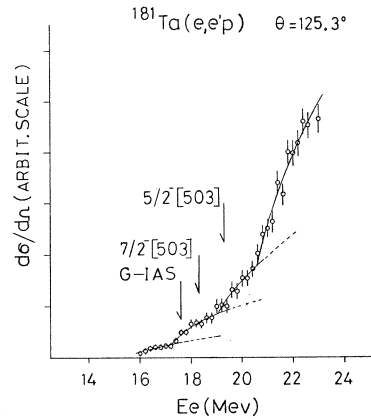


図 2

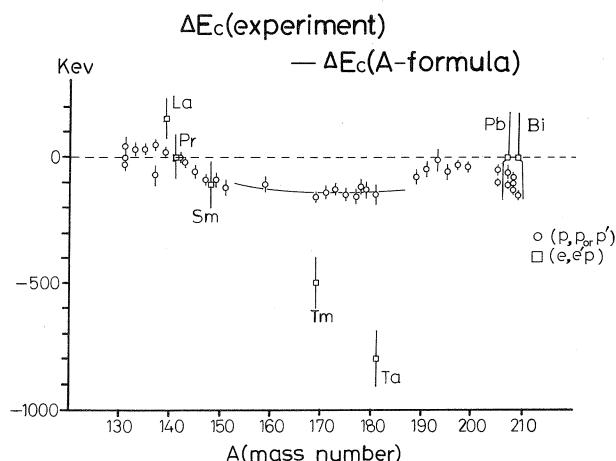


図 3

の実験値の一致は良く、 $\Delta E_c(0)$  = 第(2)式に近い値をとる。質量数 150~190 の変形核では  $\Delta E_c$  (実験値) は(2)式よりも小さい値をとり、この差は  $(e, e'p)$  の実験値の方が著しく、 $(p, p)$   $(p, p')$  の実験値は変形による補正 ( $\Delta E_c(\delta)$  = (3)式) でよく説明がつく。この  $(e, e'p)$  と  $(p, p)$ ,  $(p, p')$  との実験値の相違の原因は現在の所明らかでない。この点に関しては次の様な問題点が指摘される。(1)  $(p, p)$   $(p, p')$  の実験の難しさからくるデーターの信頼性の問題 (詳細は(2)を参照) (2)  $(d, p)$  等による IAS - 親核の spin-parity 決定の確実性。(3)  $(e, e'p)$  の入射電子エネルギーの誤差の問題……。この内(3)の問題については最近  $^{90}\text{Zr}$  を標的核として calibration を行なった。その結果入射電子エネルギーの誤差は  $\pm 100\text{keV}$  の範囲であることが分った。この値は現在の実験結果を大きく変えることはない。今後さらに入射電子エネルギーの calibration を実験の折々にチェックするつもりであり、その詳細は来期に報告する。(鈴木)

### 参 考 文 献

- 1) J. D. Anderson et al., Phys. Rev. 138B, 615(1965).
- 2) 核理研報告, Vol. 4 No. 2, 38(Feb 1972).
- 3) M. H. Macfarlane, Isobaric Spin in Nuclear Physics, Tallahassee 399(1966).
- 4) D. L. Allan et al., Phys. Letters, 27B, 11(1968).  
Y. Cassagnou et al., Phys. Letters, 27B, 631(1968).



A. Adam et al., Phys. Letters. 25B, 122(1967).

5) K. Shoda et al., Phys. Rev. 3c, 1999(1971).

Phys. Rev. 3c, 2006(1971).

### §3 Bi<sup>209</sup>( $r$ , $p$ )

Bi<sup>209</sup> の excited state の中に現われる low lying IAS のうち  $E1$ -transition で excite できるものに、 $g_{9/2}$  (18.7 MeV),  $i_{11/2}$  (19.5 MeV),  $g_{7/2}$  (21.2 MeV) がある。Bi<sup>209</sup> の ground state は  $h_{9/2}$  であって、 $h_{9/2} \rightarrow g_{9/2}$  の transition は spin flip.  $h_{9/2} \rightarrow i_{11/2}$  は spin non-flip transition である。

一般に  $E\lambda$ -transition において、transition probability  $T_{i \rightarrow f}^{E\lambda}$  は、

$$T_{i \rightarrow f}^{E\lambda} = \frac{8\pi(\lambda+1)}{\lambda[(2\lambda+1)!!]^2} \frac{1}{\hbar} \left(\frac{\omega}{c}\right)^{2\lambda+1} B(I_i \rightarrow I_f)$$

$$B(I_i \rightarrow I_f) = \frac{e^2}{4\pi} (2\lambda+1) \left| \langle j_1 \frac{1}{2} \lambda 0 | j_2 \frac{1}{2} \rangle \right|^2 \left| \langle j_2 | r^\lambda | j_1 \rangle \right|^2$$

で表わされるから、 $E1$ -transition では

$$T_{i \rightarrow f}^{E1} = \frac{4}{3} \frac{1}{\hbar} \left(\frac{\omega}{c}\right)^3 e^2 \left| \langle j_2 | r | j_1 \rangle \right|^2 \left| \langle j_1 \frac{1}{2} 1 0 | j_2 \frac{1}{2} \rangle \right|^2$$

である。従って、spin flip の  $h_{9/2} \rightarrow g_{9/2}$  transition は、spin non-flip の  $h_{9/2} \rightarrow i_{11/2}$  の transition に比べて 2-order 小さいと考えられる。ところが我々は electron による  $E1$ -transition が Bi<sup>209</sup> の  $g_{9/2}$  IAS では single particle width に比較して約 200 倍 enhance されるという実験結果を得、それはすでに発表した通りである<sup>1)2)</sup>。しかしながらその後、Bi<sup>209</sup>( $r$ ,  $p_0$ ) 反応の逆反応である Pb<sup>208</sup>( $p$ ,  $r_0$ ) の実験を Stony Brook の Snover 達が行なったところ、 $g_{9/2}$  に相当する resonance は見い出されなかった<sup>3)</sup>。我々は今期の machine time を使って、前回の Bi<sup>209</sup>( $e$ ,  $e'p$ ) の実験をくり返し行ない、更に Bi<sup>209</sup> の  $g_{9/2}$  -IAS からの proton の decay mode を調べる実験を行なった。

Fig. 1 は今回の実験によって得られた Bi<sup>209</sup>( $e$ ,  $e'p$ ) 反応の cross section である。横軸には electron の energy  $E_e$  がとってある。 $(e, e'p)$  の cross section の増加量  $\Delta\sigma_{(e, e'p)}$  と ( $r$ ,  $p$ ) の resonance の cross section  $\sigma_{(r, p)}^R$  の間には

$$\Delta\sigma_{(e, e'p)}(E_e) = CN(E_x, E_e) \int \sigma_{(r, p)}^R dE$$

の関係があるから、yield curve が立ち上がっているところには  $E1$  を吸収する resonance

が存在すると考えられる。ここに  $N(E_x, E_e)$  は virtual photon の spectrum,  $E_e$  は resonance の energy,  $C$  は constant である。Fig. 1 の yield curve は  $g_{9/2}$  - IAS に対応する 18.7 MeV のところと  $i_{11/2}$  - IAS に対応する 19.5 MeV のところにやはり立ち上がりが見い出され、前回の実験結果を再現している。今回の実験では、proton の emission angle  $\theta = 90^\circ$  の場合  $E_e = 22.2$  MeV まで測定したが、21.2 MeV のところに  $g_{7/2}$  - IAS に対応する立ち上がりが現われている。

これによって、 $E1$ -transition による  $h_{9/2} \rightarrow g_{9/2}$  の spin flip transition が理論的に予想されるよりも 2-

order 強く起ることが再確認されたので、 $(e, e'p)$  反応で  $g_{9/2}$  - IAS から emit される proton の decay mode を調べた。Fig. 1 は 6.2 MeV から 15.2 MeV までの energy を持つすべての proton の yield curve であるが、更に energy を fix した proton に対する yield curve 即ち Isochromate を作った (Fig. 2)。各 proton energy に対応する Isochromate に於ける 18.7 MeV における立ち上がりは、 $g_{9/2}$  - IAS を通って decay する proton によるものであり、その大きさは、resonance を通り該当する energy を持った proton の yield に比例する。従って、proton の energy を横軸にとり、Isochromate の  $g_{9/2}$  - IAS での立ち上がりの大きさを縦軸にとってヒストグラムを抽くと  $g_{9/2}$  - IAS から emit される proton spectrum が得られる (Fig. 3. a)。この spectrum に於ては fine structure はわからないが、この resonance を通り residual nucleus  $\text{Pb}^{208}$  の ground state へ decay する proton  $p_0$  (14.9 MeV) はほとんど無く、 $\text{Bi}^{209}$  の  $g_{9/2}$  - IAS は  $\text{Pb}^{208}$  の excited state へ decay することがわかった。そこで  $\text{Bi}^{209}$  - IAS を通り emission される proton spectrum の structure から partial width を求めるために、次の方法をとった。即ち、 $g_{9/2}$  - IAS をはさむ二つの energy の electron を夫々に  $\text{Bi}^{209}$  に照射し、各々の場合の proton

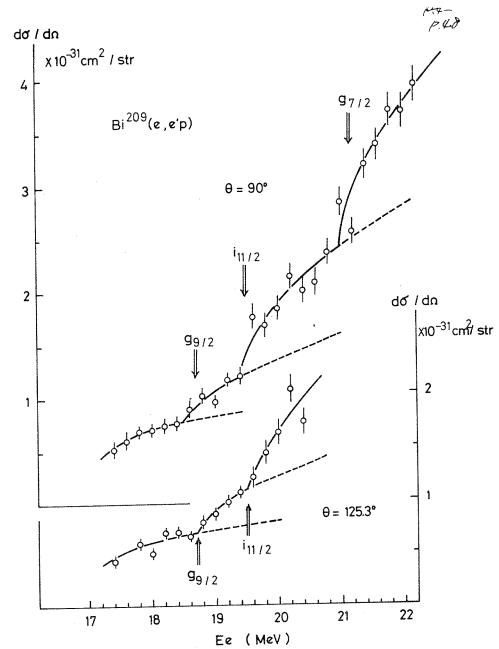


Fig. 1

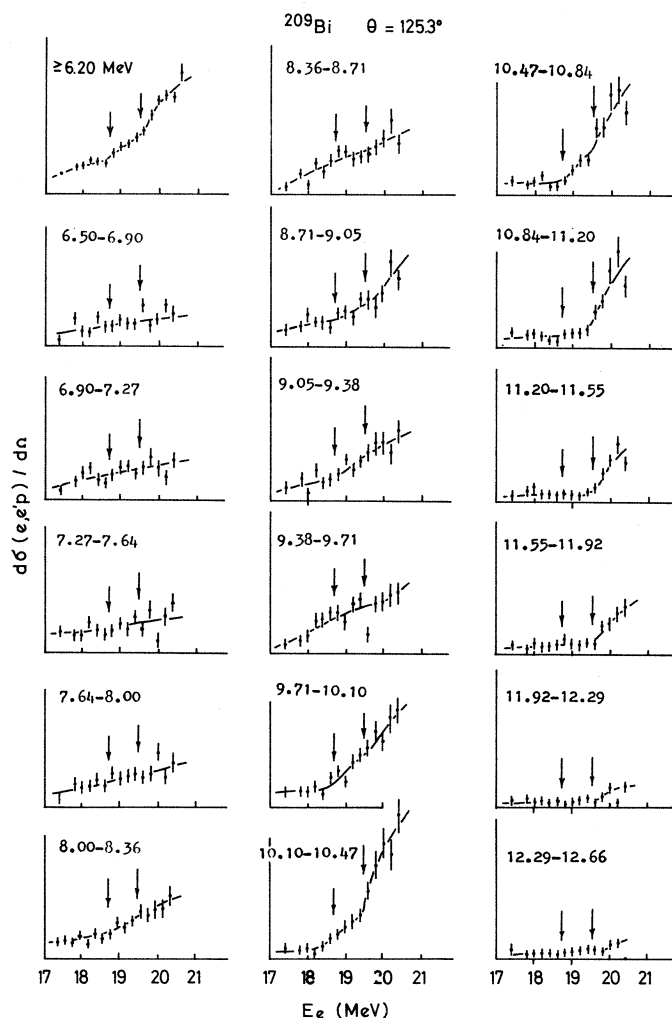


Fig. 2

spectrumを測定し、その二つのspectrumを差し引けば、 $g_{9/2}$  - IAS を通ってdecayするprotonのspectrumが得られる (Photon Difference Method)。

Fig. 3. bはこの方法で $E_e = 19.2\text{MeV}$ と $E_e = 18.4\text{MeV}$ から求めたproton spectrumである。 $p_0$ はほとんど現われない。 $\text{Pb}^{208}(p, r_0)$ は $\text{Bi}^{209}(r, p_0)$ の逆反応であるから、 $\text{Pb}^{208}(p, r_0)$ で $g_{9/2}$  - IASのresonanceが現われなかったことと一致する。参考のためFig. 3cにP. Richard etc. の $\text{Pb}^{208}(p, p')$ の実験から求めた $g_{9/2}$  - IASからのprotonのpartial width<sup>4)</sup>を示した。machine timeの都合上、 $g_{9/2}$  - IASからのproton spectrumは、まだ不十分なのでくわしい解析は次期machine timeに持ち越すこととなった。

(上柿)

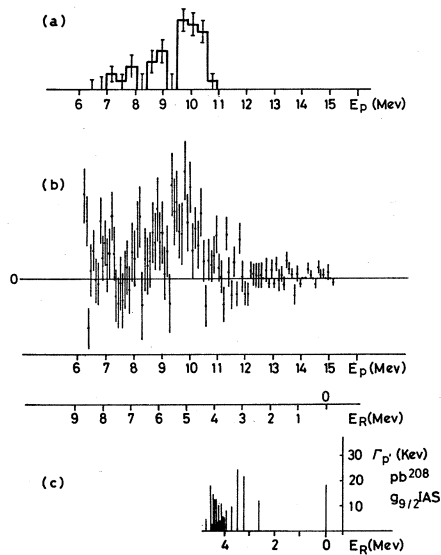


Fig. 3

## References

- 1) 核研報告Vol. 3 No. 1 (Oct. 1970).
- 2) Phys. Rev. 3c(1971)1999.
- 3) Phys. Lett. 37B(1971)29.
- 4) Phys. Rev. 183(1969)1007.

## §4 $^{40}\text{Ca}(\gamma, p)$ の反応 (その1)

今回は preliminary な実験として,  $^{40}\text{Ca}(\gamma, p_0)$  反応の differential cross section を求めた。この cross section を求めることは residual nucleus の first excited state が 2.53 MeV で比較的高いので解析が楽である。又実験 data も比較的多く, 本実験の energy scale 及び絶対値に対して check も行なう事ができる。cross section の絶対値は secondary emission monitor の dose の 12 倍が effective dose であるとして estimate した (Fig. 1)。(Fig. 2) には  $^{40}\text{Ca}(\gamma, n_0)^{39}\text{Ca}$  の cross section (次ページ図) と  $^{39}\text{K}(p, \gamma)^{40}\text{Ca}$  の実験データを焼き直して得られた  $^{40}\text{Ca}(\gamma, p_0)^{39}\text{K}$  の cross section (次ページ図) を示した<sup>1)</sup>。又  $E1$  excitation が強調される前方散乱での電子散乱の結果<sup>2)</sup>を (Fig. 3) に示した。 $^{40}\text{Ca}$  の巨大共鳴の structure と考えれば, これらは比較的良好に合っている。今後は excited

Fig. 1

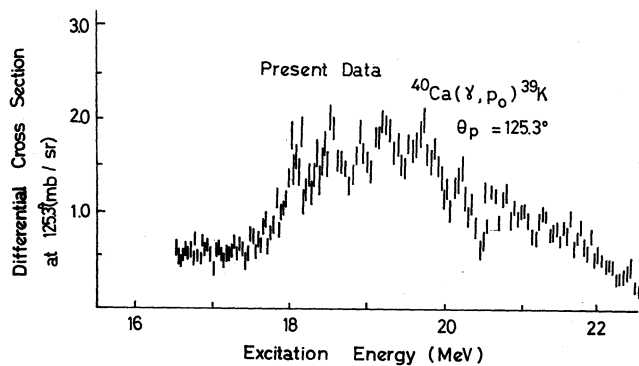


Fig. 2

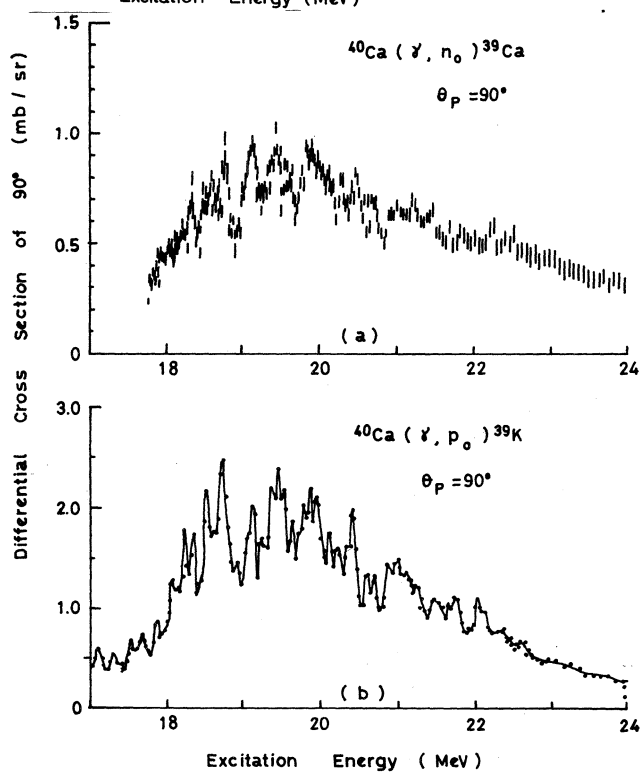
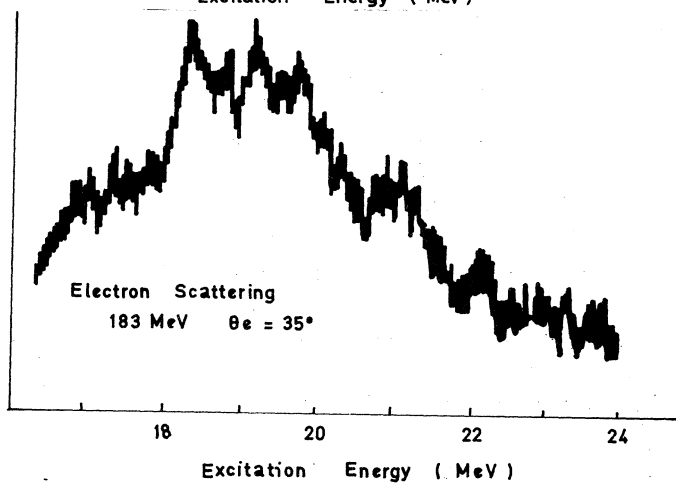


Fig. 3



stateへのproton decay modeを定量的に調べたい。

#### 参 考 文 献

- 1) C. P. WU et al., Nucl. Phys. A147(1970)19.
- 2) K. Itoh, M. Oyamada and Y. Torizuka, Phys. Rev. C. 2(1970)2181.

(及川)

I-5  $^{31}\text{P}$  及び  $^{27}\text{Al}$  の photoproton について

教養部物理・理学部物理\*・核理研\*\*

坪田博明・川村暢明\*・菅原真澄\*\*

及川四郎\*\*・庄田勝房\*\*

## 1 序 文

$2s-1d$  shell核についての光核反応の研究は精力的にすすめられている。特に $^{12}\text{C}$ ,  $^{16}\text{O}$ ,  $^{28}\text{Si}$ ,  $^{40}\text{Ca}$ 等の $4n$ 核では、実験と共に理論面でも研究がすすんでいる。しかし、odd mass核については実験dataの集積も少く、理論的にもよく研究がすすんでいるとは云えない。

川村等<sup>1)</sup>は $^{27}\text{Al}$ と $^{31}\text{P}$ のphotoneutronのエネルギースペクトルを $T. O. F$ の方法で測定している。それによると、 $^{31}\text{P}$ については、 $E_r^{\text{max}}=22\text{MeV}$ ,  $20\text{MeV}$ のスペクトルは $(\gamma, n_0)$ が主であることがわかった。 $^{27}\text{Al}$ についても $(\gamma, n_0)$ が相当ある。 $^{27}\text{Al}$ ,  $^{31}\text{P}$ は共に $(\gamma, n)$ 反応によるresidual stateはodd-odd核で、そのlevelは混んでいて、第1励起状態もgroundから余り離れていない( $^{26}\text{Al}$ の1st,  $0.23\text{MeV}$ ,  $^{30}\text{P}$ の1st,  $0.68\text{MeV}$ )。このような核に於ても、ground stateへemitするneutronが多いということは興味あることである(但しexcitation energy  $\sim 22\text{MeV}$ 以下のエネルギー領域で)。

一方これらの核での $(\gamma, p)$ はどのような様子を示すのか、又subshellの効果は断面積にどのようにあらわれるのだろうか。しかし現在のところ、 $^{27}\text{Al}$ ,  $^{31}\text{P}(\gamma, p_0)$ の直接測定、又は逆反応による断面積は見当らない。

以上から我々は核理研のlinacを使用し、magnetic spectrometerで $^{27}\text{Al}$ ,  $^{31}\text{P}$ の $(e, e'p)$ によるprotonエネルギースペクトルを測定してこれから $(\gamma, p_0)$ の断面積をもとめることにした( $(e, e'p)$ と $(\gamma, p)$ の断面積の関係についてはref. 2)を参照)。

46年度後期のマシンタイムで主として $^{31}\text{P}(e, e'p)$ を測定し、 $^{27}\text{Al}$ については47年度前期のマシンタイムで一応完成させた。従って $^{27}\text{Al}(e, e'p)$ については現在解析中であるので、今回の報告には、代表的なエネルギースペクトルのみを示し、その特徴的な一部について述べるにとどめる。又magnetic spectrometerのenergy calibrationが十分でないので、それについて現在検討中であり、以下にのべるdataの考察はそのエネルギーの不確定の範囲に限る。

## 2 実験方法及び結果

broad range magnetic spectrometerを用いて, incident electron のbeam方向に対して $90^\circ$ にemitされるprotonのエネルギースペクトルを測定し, これから $\frac{d\sigma}{d\Omega}(\alpha, p_0)$ を求めた。spectrometerについては他の報告<sup>3)</sup>があるのでここでは省略する。立体角はfocal plane上の中心で $7.11 \times 10^{-4}$  strである。

targetの条件はTable 1にまとめた。

Table 1

核 種	自 然 存在比 (%)	half thickness along proton path (mg/cm <sup>2</sup> )	エネルギー損失(keV)		備 考
			at $E_p=5\text{MeV}$	at $E_p=10\text{MeV}$	
$^{27}_{13}\text{Al}_{14}$	100	1.102	62	37	foil, $E_e=24, 22, 20,$ 18, 17 MeVで使用
		1.902	107	63	foil, $E_e=26, 25, 23,$ 21, 19 MeVで使用
$^{31}_{15}\text{P}_{16}$ (赤燐)	100	1.446	53	31	Taのbacking(1.960 mg/cm <sup>2</sup> )に沈澱させたもの

spectrometerは100channelであるが, これらのchannelの検出器間のcounting ratioは80mg/cm<sup>2</sup>のNi foil(natural)による( $e, e'p$ )のprotonスペクトルを最小二乗法でスムーズ化してそれを標準にした。図1-aはNi( $e, e'p$ )のprotonスペク

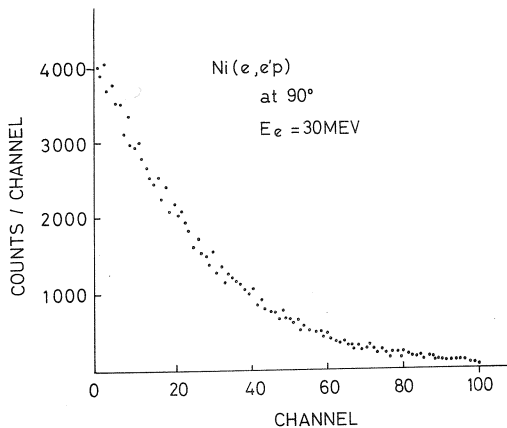


図1-a Ni( $e, e'p$ )のprotonスペクトル。 $E_e=30\text{MeV}$ ,  $90^\circ$

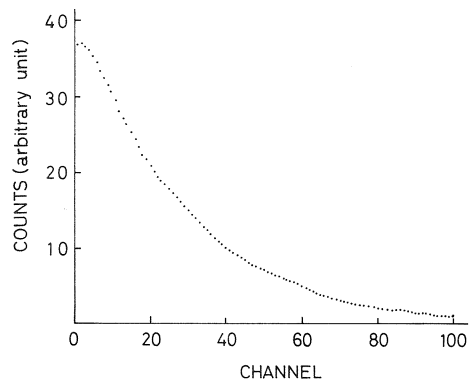


図1-b スムーズ化したNi( $e, e'p$ )のprotonスペクトル。図1-aのprotonスペクトルを最小二乗法でスムーズ化したもの。縦軸は任意スケール。



トルで、スムーズ化したNiのものを図1-bに示した。図1-bの縦軸は任意の単位である。又図1-a, 図1-bは共に $E_e=30\text{MeV}$ のものである。

spectrometerのエネルギースケールは、我々の実験したprotonエネルギー領域についての詳しい実測値がなかった。そこで $E_e$ の値を正しいとして(incident electron beamのmomentum resolution 1.5%を考慮), 知られているQ-valueを用いたスペクトルの最大エネルギーの位置からと、又47年度のマシンタイムでの実験data, 及び宮瀬氏(核理研)の資料等からエネルギースケールを決めた。尚この問題については更に検討中であるので、今回報告する測定結果は、今後幾分修正される可能性がある。各dataにはこれを含めた誤差を示してある。

$^{27}\text{Al}$ では $E_e=26\text{MeV}$ から $1\text{MeV}$  Stepで $E_e=17\text{MeV}$ までのスペクトルを得。(但し46年度後期マシンタイムでは $E_e=24, 22, 18\text{MeV}$ しか測定できなかった) $^{31}\text{P}$ では $E_e=26\text{MeV}$ から、 $E_e=18\text{MeV}$ まで $2\text{MeV}$  Stepで測定し、又 $E_e=17\text{MeV}$ のエネルギースペクトルも得た。このスペクトルから $d\sigma/d\Omega(90^\circ)$ を求めた。

図2は $^{27}\text{Al}(e, e'p)^{26}\text{Mg}$ のprotonエネルギースペクトルである。図は $E_e=24\text{MeV}$ ,  $22\text{MeV}$ ,  $20\text{MeV}$ ,  $18\text{MeV}$ のものである。縦軸は相対的な $\text{counts}/(\text{MeV})/1000\mu\text{C}$ を示す。エネルギースケールはより詳しくは現在検討中であるが、 $E_p=6\text{MeV}$ で $\pm_{150}^{50}\text{keV}$ ,  $E_p=12\text{MeV}$ で $\pm 500\text{keV}$ の誤差を見込む必要がある。

K. Abe et al<sup>4)</sup>は $^{27}\text{Al}$ について $E_r^{\text{max}}=21.5\text{MeV}$ と $E_r^{\text{max}}=26.5\text{MeV}$ の $90^\circ$ でのphoto-protonスペクトルを得ている。我々の $E_e=22\text{MeV}$ の $(e, e'p)$ スペクトルと $E_r^{\text{max}}=21.5\text{MeV}$ のスペクトルはよく一致している。またエネルギー分解能の範囲内で $E_e=22\text{MeV}$ のスペクトルは、Dodge et al<sup>2)</sup>の( $E_r^{\text{max}}=30\text{MeV}$ ,  $76^\circ$ )ものとも一致している。しかし47年度前期のマシンタイムで得た我々の $E_p=26\text{MeV}$ のスペクトル(詳しくは現在解析中)とK. Abe et alの $E_r^{\text{max}}=26.5\text{MeV}$ のスペクトルを比較すると、我々の $(e, e'p)$ スペクトルは、protonのQ-value

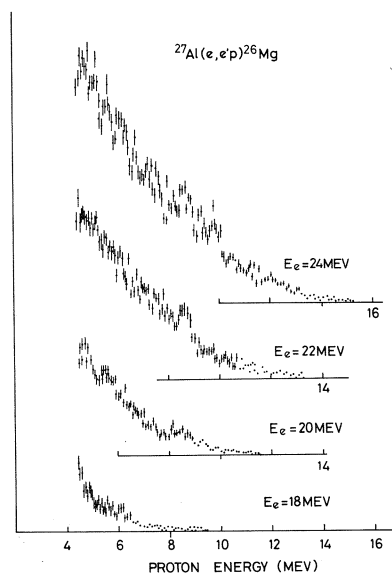


図2  $^{27}\text{Al}(e, e'p)^{26}\text{Mg}$ のprotonエネルギースペクトル。 $90^\circ$ , 縦軸は $\text{counts}/(\text{MeV})/1000\mu\text{C}$ のスケール。 $E_p=6\text{MeV}$ で $\pm_{150}^{50}\text{keV}$ ,  $E_p=12\text{MeV}$ で $\pm 500\text{keV}$ の誤差を見込む必要がある。

と  $E_e$  から予想される最大エネルギーまで proton yield があるのに対して, K. Abe et al の  $E_p^{\max} = 26.5 \text{ MeV}$  のものは, 予想される proton の最大エネルギーより約  $3.5 \text{ MeV}$  以下のエネルギーの proton しか見られない。それ以上のエネルギー領域では yield が皆無に近い。この点で, 我々の data と K. Abe et al のものは一致しない。又図 2 をみると  $E_e = 22 \text{ MeV}$  では  $E_p = 8.6 \text{ MeV}$  に peak が見える。 $E_e = 20 \text{ MeV}$  では peak は見られなくなる (47 年度の data によると  $E_e = 21 \text{ MeV}$  でも見える)。 $^{26}\text{Mg}$  の 1st excited state は  $1.81 \text{ MeV}$  なのでこれは明らかに non-ground state への transition proton によるものである。

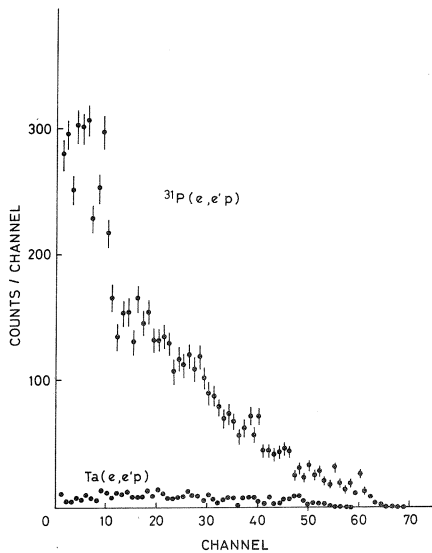


図 3  $^{31}\text{P}(e, e'p)^{30}\text{Si}$  の proton スペクトル。上方は Ta のバックグランドによるバックグラウンドを含んだスペクトル。下方は Ta のバックグランドによるスペクトル。両者は electron の dose で規格化してある。

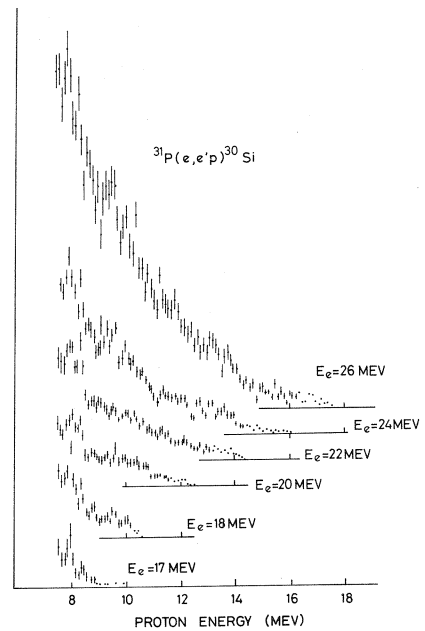


図 4  $^{31}\text{P}(e, e'p)^{30}\text{Si}$  の proton エネルギースペクトル。90°, 縦軸スケールは相対的な counts/(MeV)/1000  $\mu\text{C}$ 。  $E_p = 8 \text{ MeV}$  で  $+50$  keV,  $-250$  keV,  $E_p = 10 \text{ MeV}$  で  $\pm 400 \text{ keV}$  の誤差を見込む必要がある。

図 3 は  $^{31}\text{P}(e, e'p)^{30}\text{Si}$  の proton スペクトルである。図の上方のスペクトルは Ta のバックグランドによるバックグラウンドを含んだ  $^{31}\text{P}(e, e'p)$  のスペクトルで, 下方は Ta だけのものである。縦軸は electron の dose で規格化してある。

図 4 に得られた  $^{31}\text{P}(e, e'p)^{30}\text{Si}$  の proton エネルギースペクトルを示す。縦軸のスケ

ールは相対的な  $\text{counts}/(\text{MeV})/1000\mu\text{C}$  である。エネルギースケールは  $E_p=8\text{MeV}$  で  $\pm 180\text{keV}$ ,  $E_p=10\text{MeV}$  で  $\pm 400\text{keV}$  の誤差がある。より詳しいエネルギースケールについては現在検討中である。

K. Abe et al.<sup>5)</sup> は  $^{31}\text{P}$  の  $(r, p)$  反応の proton スペクトルを測定している。それによると,  $E_r^{\text{max}}=21.5\text{MeV}$  のスペクトルと我々の  $E_e=22\text{MeV}$  のスペクトルはエネルギーの分解能の範囲でよく一致している。しかし  $^{27}\text{Al}$  の場合のように  $E_r^{\text{max}}=26.5\text{MeV}$  のものと, 我々の  $E_e=26\text{MeV}$  のものは, proton のエネルギーの大きい領域で一致していない。

図4から得られた  $90^\circ$  での  $(r, p_0)$  の微分断面面積を図5に示す。但し図では相対的な値を示している。これは現在, electron monitor の response 等について検討中のため次回の報告にまとめる予定である。我々の得た  $^{31}\text{P}(e, e'p_0)^{30}\text{Si}$  で見い出された resonance peak の位置とその相対的な peak の高さを Table 2 にまとめた。

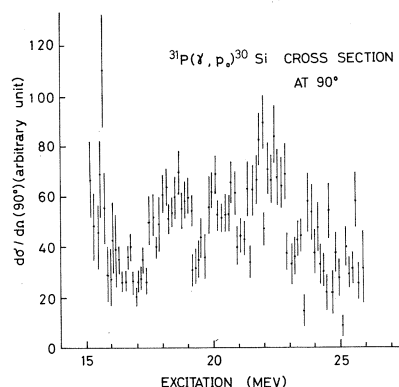


図5  $^{31}\text{P}(r, p_0)^{30}\text{Si}$  の  $90^\circ$  での微分断面面積。縦軸は任意スケール。

Table 2

resonance の 励起エネルギー (MeV)	$\frac{d\sigma}{d\Omega}$ (相対強さ)
$15.66 \pm 0.10$	$110 \pm 20$
$16.10 \pm 0.10$	$43 \pm 10$
$16.74 \pm 0.20$	$40 \pm 6$
$18.13 \pm 0.20$	$64 \pm 8$
$18.61 \pm 0.30$	$70 \pm 9$
$18.96 \pm 0.30$	$60 \pm 8$
$20.04 \pm 0.30$	$69 \pm 8$
$20.70 \pm 0.40$	$66 \pm 8$
$21.92 \pm 0.40$	$90 \pm 12$
$23.72 \pm 0.50$	$58 \pm 13$

### 3 結果の考察

先に幾度も断わったように、現在実験dataを解析中であるため、以下にのべることは、定性的なことにとどまる。更に詳しくは、次回の報告にまとめる予定である。

#### i) $^{27}\text{Al}(e, e'p)^{26}\text{Mg}$ のエネルギー・スペクトル

H. Lichtblau et al<sup>6)</sup> は  $E_{\gamma}^{\text{max}} = 36\text{MeV}$  で  $90^\circ$  における  $^{27}\text{Al}(\gamma, p)^{26}\text{Mg}$  の proton エネルギー・スペクトルを測定している。これによると  $E_p = 8.6\text{MeV}$  に hump が見えるが、この hump は  $E_{\gamma} = 21.2\text{MeV}$  から、 $^{26}\text{Mg}$  の  $3.94\text{MeV}$  の excited state へ transition するものであるとしている。図 2 をみると  $E_e = 20\text{MeV}$  では  $E_p = 8.6\text{MeV}$  の peak は消えて居り、 $E_e = 22\text{MeV}$  でははっきり見えている。又 47 年度の data を見ると (詳しくは解析中)  $E_e = 21\text{MeV}$  でも  $E_p = 8.6\text{MeV}$  の peak は見えている。 $^{26}\text{Mg}$  の 1st, excited state は  $1.81\text{MeV}$  であるから、この peak は明らかに non-ground Transition によるものである。しかし、H. Lichtblau et al の云うように excitation =  $21.2\text{MeV}$  からのものではなく、excitation =  $21\text{MeV}$  以下のものである (incident electron beam の energy resolution 及び測定系の energy 不確定性を考慮に入れて)。K. Abe et al の  $E_{\gamma}^{\text{max}} = 21.5\text{MeV}$  の data にも  $E_p = 8.65\text{MeV}$  の peak が見えており、bremsstrahlung の photon スペクトルを考えると上の我々の結論を裏付けるものと思われる。更に詳しくは次回の報告にまとめる。

#### ii) $^{31}\text{P}(\gamma, p_0)^{30}\text{Si}$ の断面積

図 6 は我々が得た  $^{31}\text{P}(\gamma, p_0)^{30}\text{Si}$  の  $90^\circ$  での微断面積と他の研究者の実験 data とを比較したものである。各 data の縦軸は任意のスケールであって、構造の変化の具合を比べたものである。序文でも述べたように、川村等の data は  $E_{\gamma}^{\text{max}} = 20\text{MeV}$ ,  $22\text{MeV}$  の photoneutron エネルギー・スペクトルが ground transition が main であるということから、エネルギー・スペクトルは全て  $(\gamma, n_0)$  として、 $90^\circ$  での微断面積に直したものである。N. Mutsuro et al<sup>7)</sup> 及び B. S. ISHKANOV et al<sup>8)</sup> のものは全断面積である。以上の data を比較してみると、エネルギー分解能を考慮した範囲では、 $(\gamma, p_0)$  と  $(\gamma, n)$  の断面積の resonance 間には、特別目立つ相関

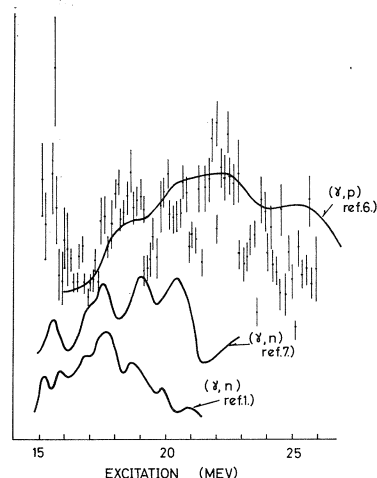


図 6  $(\gamma, n)$ ,  $(\gamma, p)$ ,  $(\gamma, p_0)$  の断面積の比較。縦軸は任意スケール。 $(\gamma, p)^6)$  及び  $(\gamma, n)^7)$  は全断面積で、 $(\gamma, n)^1)$  は  $90^\circ$  での微断面積。

は認められない。一方 $(r, p)$ 及び $(r, p_0)$ については、その角分布がisotropic又は $90^\circ$ 対称であると仮定すればgrossな構造は似ている。 $^{27}\text{Al}(p, r_0)^{28}\text{Si}^9)$ 及び $^{31}\text{P}(p, r_0)^{32}\text{S}^{10})$ と比べると $^{31}\text{P}(r, p_0)$ の断面積は excitation=16~18MeVで resonance の位置と intensity の相対的な強弱の傾向が $^{31}\text{P}(p, r_0)^{32}\text{S}$ と合っている(但しこのことは更に詳細に解析しなければ結論付けはむずかしいが)。又 Tanner et al<sup>11)</sup>は $T(p, r_0)$ から $^{39}\text{K}(p, r_0)^{40}\text{Ca}$ まで、多くの核について $(p, r_0)$ 反応の実験を行っている。それによると $^{28}\text{Si}$ 及び $^{32}\text{S}$ の $(p, r_0)$ の断面積は多くの structure から成っている。我々の求めた $^{31}\text{P}(r, p_0)$ の断面積も多くの構造からなっていることが分った。又 valence nucleon の影響を調べるには、更に統計精度を上げ、エネルギースケール及び断面積の絶対値を正確にしなければならない。又 $(r, p_0)$ の角度分布等も必要と思われる。

最後にこの実験を行うにあたって、いろいろの面で御援助下さった核理研の斉藤 悌二郎, 上柿 宮瀬, 鈴木 の各氏に謝辞を申し上げます。

#### 参 考 文 献

- 1) 川村等, 核理研報告, Vol. 4, No. 2, (1972)42.
- 2) W. R. Dodge et al., Phys. Rev. **127**(1962)1746.
- 3) K. Shoda et al., 核理研報告, Vol. 1, No. 2 (1968)37.
- 4) K. Abe et al., J. Phys. Soc. Japan, **25**(1968)1724.
- 5) K. Abe et al., J. Phys. Soc. Japan, **25**(1968)1725.
- 6) H. Lichtblau et al., Aust. J. Phys. **19**(1966)297.
- 7) N. Mutsuro et al., J. Phys. Soc. Japan, **17**(1962)1672.
- 8) B. S. ISHKANOV et al., Phys. Lett. **9**(1964)162.
- 9) P. D. Singh et al., Nuclear Phys. **65**(1965)577.
- 10) G. Dearnaly et al., Nuclear Phys. **64**(1965)177.
- 11) N. W. Tanner et al., Nuclear Phys. **52**(1964)29.

I-6  $^{27}\text{Al}$  及び  $^{31}\text{P}$  の photo neutron の崩壊形式

理学部物理・教養部物理\*・核理研\*\*

川村暢明・坪田博明\*・遠藤順政

三宅正伸・岡崎行男\*\*

## §1 序 文

これまでの光核反応の巨大共鳴の研究は、反応断面積の測定や、エネルギースペクトルによる fine structure の観測から、励起関数の構造を調べることが主であった。理論的計算で観測された structure の位置と、強度を合わすことは、軽い  $1p$ -shell 核や重い核について良く行なわれ、相当な成果をおさめている。その理由は、前者は励起の機構の単純さのため、後者は励起関数が高々 2～3本の Lorentz curve で適合できる様な簡単な形をしているためである。

一方  $2s-1d$  shell 核では、 $1p$ -shell 核より可能な transition の数のはるかに多くなり、実験的にも多数の structure があることが知られている。現在の所、これらの個々の structure がどういう transition で生ずるのか、殆どわかっていないため、計算もその有効性を確かめるのが困難である。我々は  $2s-1d$  shell 核の巨大共鳴の内容をより詳しく知るため、 $^{27}\text{Al}$ 、 $^{31}\text{P}$  について放出中性子の崩壊形式を調べた。

## §2 実 験 結 果

$^{27}\text{Al}$ 、 $^{31}\text{P}$  の  $(\gamma n)$  反応のエネルギースペクトルは既に前号で報告した<sup>1)</sup>。 $E_{\text{max}}$  が 20, 22, 24, 26 MeV の brems で測定したスペクトルを 17 MeV の photon 数で規格化し、その差を求めた。

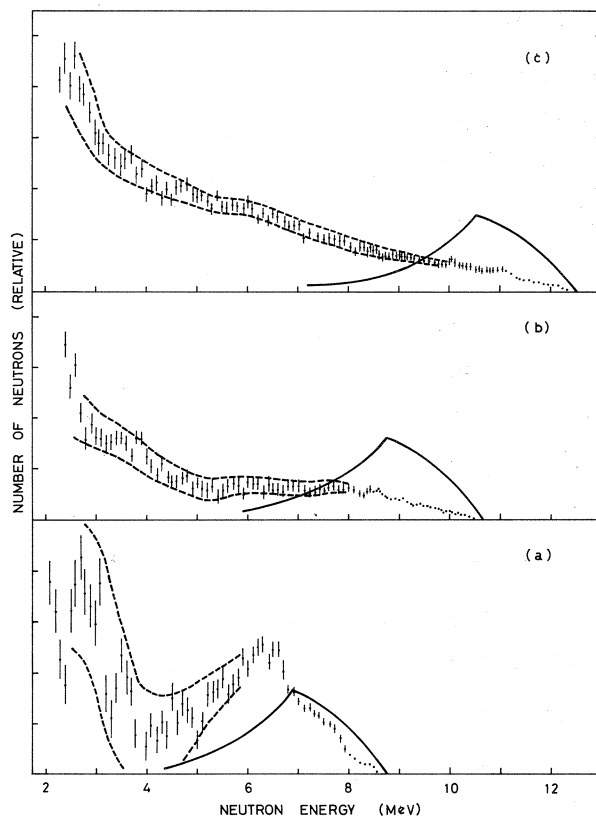
第1図は  $^{27}\text{Al}$ 、第2図は  $^{31}\text{P}$  の photoneutron の差スペクトルである。第1図、第2図共、(a), (b), (c) は夫々 22 MeV と 20 MeV, 24 MeV と 22 MeV, 26 MeV と 24 MeV の brems で得たスペクトルの差である、各々のスペクトルに対応している実線の曲線は brems の差で、等価的な入射  $\gamma$ -線スペクトルである。

$\gamma$ -線のエネルギーと横軸の中性子エネルギーとは

$$E_n = (E_\gamma - Q)(A-1)/A$$

で対応づけられている ( $Q$  は反応の  $Q$ -値,  $A$  はターゲット核の質量である)。

誤差棒は統計的なもののみを含むが、この他に規格化定数の決め方と、中性子検出器の効率の測定にともなう誤差がある。差スペクトルの実験点の中心附近をsmoothに結んだ曲線に対し上の二つの誤差による上限と下限を破線で示してある。



第1図  $^{27}\text{Al}(n)^{26}\text{Al}$ 反応の差スペクトル

- (a) 22MeVスペクトルと20MeVスペクトルの差  
 (b) 24MeVスペクトルと22MeVスペクトルの差  
 (c) 26MeVスペクトルと24MeVスペクトルの差

1)  $^{27}\text{Al}(n)^{26}\text{Al}$  (第1図(a), (b), (c))

(a) 22MeV—20MeV スペクトル

残留核の $^{26}\text{Al}$ はodd—odd核でlevel densityが大きいと、測定が2MeVステップで行われたために個々のlevelを区別することは不可能であるが、grossな性格は判断できる。4MeV以下と5〜7MeVに強いneutronグループがあるがこれは夫々 $^{26}\text{Al}$ の約5MeV及び2〜3MeVのexcited state transitionに対応している。これらと7MeV以上

のグループ( $^{26}\text{Al}$ の0~1.5MeV statesに対応する)との強度比は5:4:1になる。

(b) 24MeV-22MeV スペクトル

5MeV以下に強いグループがみられる他は明確なものはない。low lying states transitionに対応する9MeV以上の部分と5~9MeV及び5MeV以下の部分に区別するとこれらの強度比は1:4:9になる。これらに対応する残留核の状態は夫々0~1.5MeV, 1.5~5MeV, 5MeV以上の励起エネルギーになる。

(c) 26MeV-24MeV スペクトル

このエネルギー領域になると高い励起状態へのtransitionがより多くなり、スペクトルは低エネルギーになるにつれて単調増加している様にみえる。しかし約4MeVと7MeVに明らかなbreakがあり、残留核の8.5MeV及び5.5MeV(上記(a), (b)の5MeV stateと同一のものであろう)に強いbranchingをもったstateがあることを示している。10.5MeV以上, 7~10.5MeV, 4~7MeV, 4MeV以下の部分の強度比は1:6:9:12である。

2)  $^{31}\text{P}(r_n)^{30}\text{P}$  (第2図(a), (b), (c))

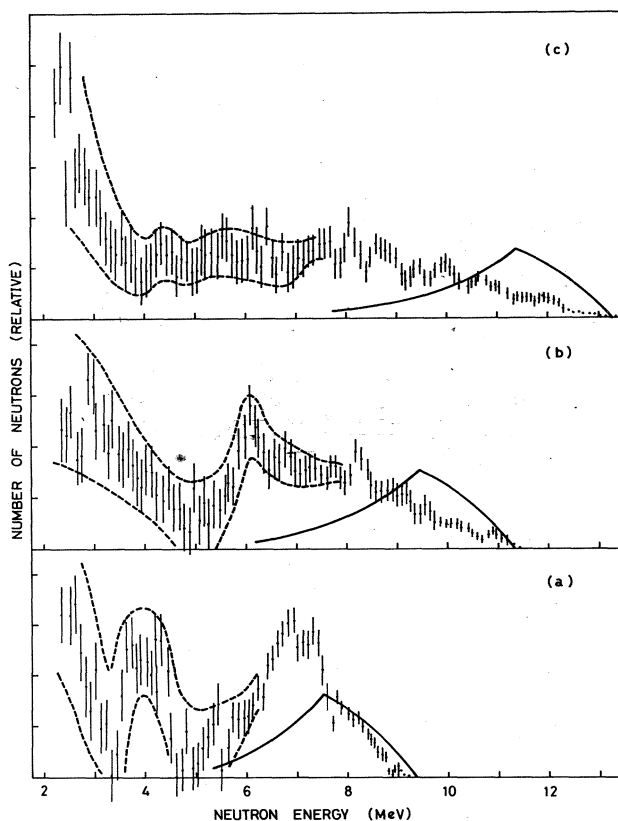
(a) 22MeV-20MeV スペクトル

$^{27}\text{Al}$ の場合と同様、このエネルギー領域では、スペクトルにgrossな構造が明らかに現われて、中性子放出のchannelがselectiveであることが良くわかる。6~9MeVの領域は残留核 $^{30}\text{P}$ の0~2MeVまでの状態に対応する、6.9MeV及び7.3MeVのpeakは20MeVスペクトルにも現われており<sup>1)</sup>、 $^{31}\text{P}(r_n)$ 反応のthreshold energyから予想される中性子の最大エネルギーより0.7MeV( $^{30}\text{P}$ の1st level)以内の範囲にあるので、ground state neutronであることがわかる。他に3~6MeV及び3MeV以下に強いグループがあり、 $^{30}\text{P}$ の約3MeV及び4.5MeVまたは6MeVにこれに対応するstateがあることを示している。6~9MeV, 3~6MeV, 3MeV以下のグループの間の強度比は1:0.9:0.6である。

(b) 24MeV-22MeV スペクトル

前の(a)の場合に比べるとground state及びlow lying excited stateへのtransitionに対応するグループが弱くなりあまり明確でなくなるが、6MeVにpeakが、5MeVにdipがあらわれる。これは第2図(a)の4MeV peakと3MeV dipが励起エネルギーが2MeV高くなった分だけシフトしたものと考えられる。従って、このスペクトルを8~11.3MeV, 5~8MeV及び5MeV以下に分けることができる。これらはそれぞれ、 $^{30}\text{P}$ の0~3MeV, 3~6MeV及び6MeV以上のstateへのtransitionに対応し、強度比は1:4:≧3である。





第2図  $^{31}\text{P}(\gamma n)^{30}\text{P}$  反応の差スペクトル

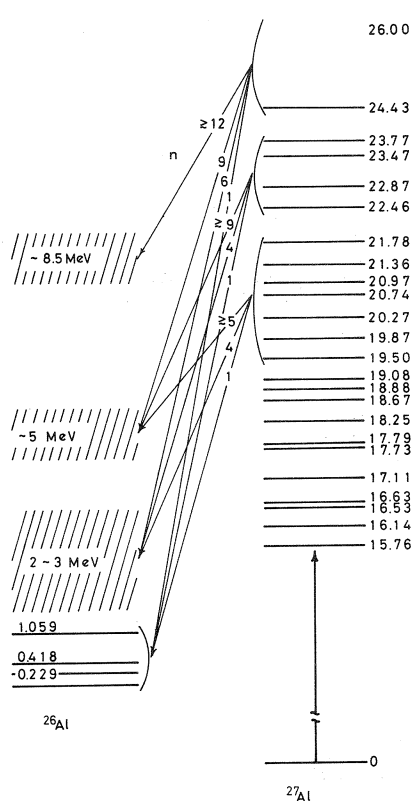
- (a) 22MeVスペクトルと20MeVスペクトルの差
- (b) 24MeVスペクトルと22MeVスペクトルの差
- (c) 26MeVスペクトルと24MeVスペクトルの差

(c) 26MeV-24MeVスペクトル

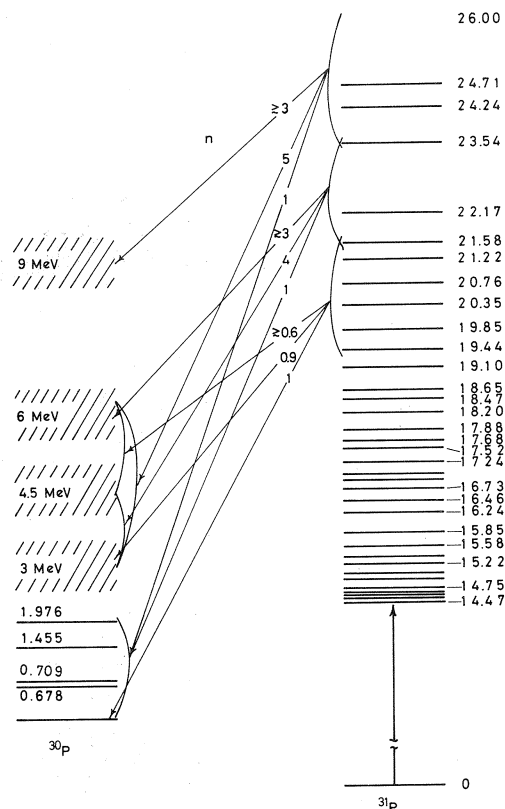
4MeV以下に強いグループがある以外は明らかな構造がないので便宜的に(a), (b)の場合と同じ様に,  $^{30}\text{P}$ の0~3MeV transitionに対応する10MeV以上の中性子部分のみを分離し, 4~10MeVの範囲は一つのグループにまとめる。4MeV以下の強いグループは,  $^{30}\text{P}$ の9MeVのあたりに大きいbranchingをもつstateがあることを示している。これらの強度比は1:5:≧3である。

### §3 考 察

以上の結果を第3図及び第4図に整理した。第3図は $^{27}\text{Al}(\gamma n)$ 反応のエネルギースペクトルから得られた巨大共鳴内で分離できるresonanceのエネルギー<sup>1)</sup>と第1図の差スペクトル



第3図  $^{27}\text{Al}(r_n)$  の巨大共鳴の resolved resonance energy と photo-neutron の decay scheme.



第4図  $^{31}\text{P}(r_n)$  の巨大共鳴の resolved resonance energy と photo-neutron の decay scheme.

から求めた三つの excitation region からの photoneutron branching ratio である。エネルギー・スペクトルは 2 MeV ステップで測ったため、特定の transition に対応する準位を決めることができないので、decay に関与している initial と final の state の範囲を斜線または弓状の印で示してある。decay をあらわす矢線上にある数値は branching ratio で、最も低い状態に対応する強度を 1 にとってある。これらの値は差スペクトル（第1図、第2図）において、統計的、photon 数の規格化定数、検出器の効率の誤差を無視して、単に点をなめらかに結んだ線上の積分値である。最も高い状態への decay についている不等号は、2 MeV 以下の中性子が統計が悪いので除かれていることによって、小さく見積られていることを考慮したものである。

$^{27}\text{Al}(r_n)^{26}\text{Al}$  反応について、残留核  $^{26}\text{Al}$  の 2~3 MeV, 5 MeV 及び 8.5 MeV に強い

branchingをもつ状態があることがわかった。Ishizaki et al.<sup>2)</sup>によると $^{27}\text{Al}(pd)^{26}\text{Al}$ 反応で、 $^{26}\text{Al}$ の強いneutron hole stateは2.0, 5.1, 8.4及び9.9MeVにある。我々の結果はエネルギー的にこれと良く一致している。 $(\gamma n)$ 反応で放出中性子のbranching ratioが大きい状態と $(pd)$ 反応で得られたhole stateが同一のものであると仮定すると $^{27}\text{Al}$ の $(\gamma n)$ —巨大共鳴は1particle—hole状態を通った直接反応的な過程が強いことを意味する。Ref 2)によると8.4MeV及び9.9MeVのstateは1p—shellのholeである。従って $^{27}\text{Al}$ の巨大共鳴の1p—shell excitationの成分は約24MeV程度から含まれてくる。

第4図は $^{31}\text{P}(\gamma n)^{30}\text{P}$ 反応の巨大共鳴領域のresonanceの位置とdecayのbranching ratioである。 $^{27}\text{Al}$ の場合と同様高い励起状態(24~26MeV)になると $^{30}\text{P}$ の9MeVの状態に強いbranchingをもつ成分があらわれる。 $s$ — $d$  shell核及びより重い核での1p—shellは質量数と共にゆるやかに深くなっていくので、この9MeVの状態は1p—neutron holeであると予想される。

また $^{31}\text{P}$ の17~18MeVの領域には $2s_{1/2}$  neutronと思われる比較的強い $(\gamma n_0)$ 成分があり<sup>1)</sup>, 20MeVまたはそれ以上の領域でground stateまたはlow lying statesへのdecayが弱くなるのとは異っている。従って、 $^{31}\text{P}$ の巨大共鳴は18MeV程度まで $2s_{1/2}$ 成分があり、20MeVを中心に $1d_{5/2}$ 成分が分布し、24~25MeV位から1p成分が現われる。

我々の実験ではビーム強度の点から、bremsの最大エネルギーを20MeVより低くすることができず、 $^{31}\text{P}$ の $2s_{1/2}$ 成分と思われる領域はあまり良く調べられなかった。巨大共鳴の異った角運動量成分を分離するためには角分布を測定する必要があるが、それは今後実験systemの完成を待って行いたいと考えている。

終りに、実験中御協力いただいた核理研マシングループのスタッフに感謝します。

## References

- 1) 川村他, 核理研報告Vol. 4, No. 2, 42(1972).
- 2) Y. Ishizaki et al., J. Phys. Soc. Japan. 20 2118(1965).

## I-7 リニアック T・O・F による $C^{12}$ , $U^{238}$ の 高速中性子全断面積の測定

工学部原子核 野本健二・馬場護・神田一隆  
平川直弘・三井靱・百田光雄  
横山次男

### 1 ま え が き

中性子全断面積の核物理的、炉物理的重要性は言うまでもないが、リニアック T・O・F を用いて精力的に仕事が成されてきた共鳴領域に比べ、数 100 keV 以上の領域では不確定が大きい傾向にある。

一方強力なリニアック・パルス中性子源の出現によって、以前はほとんどバンデグラフの単色中性子源のみに依っていた高エネルギー部分でも、ホワイト・スペクトラムの中性子源を用いた T・O・F が可能になり、R. P. I.<sup>1)</sup>, G. G. A.<sup>2)</sup>, Geel<sup>3)</sup> などに於て 200m 程度の flight path を用い、500 keV ~ 40 MeV の範囲で、0.05 nsec/m 程度の分解能を持つ測定が行なわれ始めている。T・O・F は、一度に広いエネルギー範囲にわたった測定が可能であり、バンデグラフの単色中性子源を用いる実験に比べて高分解能が可能、energy calibration が容易である等、幾つかの優れた点を有する。ただ、リニアック T・O・F はバックグラウンドの評価に難点が存在する。

我々は、核理研 T・O・F システムを用いた高速中性子全断面積の測定を計画し、今回  $C-12$ ,  $U-238$  についての測定を行なった。 $C-12$  は断面積がもっともよく知られており、システム及び測定法のチェックとして、 $U-238$  は重要性にも拘らず精度の悪い (5~10%) 核種として選んだものである。

125m flight path を用いた場合 0.1 nsec/m 以下の分解能を持ち、かつバックグラウンドが極めて低い測定ができる見通しである。

### 2 実 験 方 法

T・O・F システムは Fig. 1 に示すように川村氏らのグループ<sup>4)</sup> と同じ TAC を用いた start-stop 方式である。60 MeV の電子ビームで厚さ 1 cm の鉛ターゲットを直撃し中性子源とした。ホワイト・スペクトラムを用いた T・O・F ではバックグラウンドの評価に特に注意が必要である。

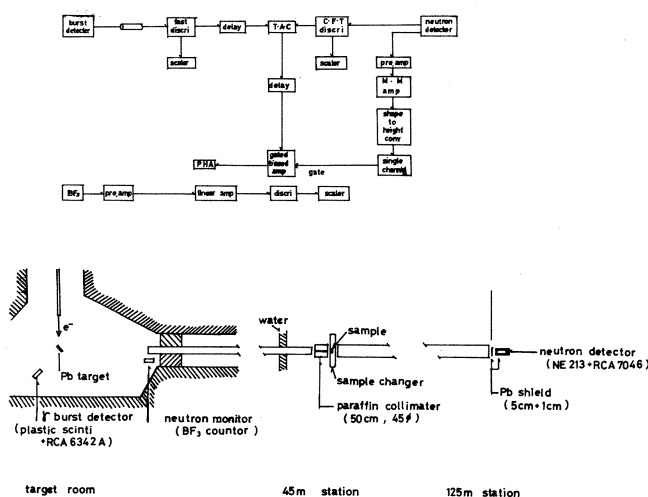


Fig. 1

バックグラウンドの原因としてはin-scatteringおよび室内散乱に大別できるが、我々の用いたGeometryの場合in-scattering index<sup>5)</sup>が $10^{-4}$ 以下であることからin-scatteringは無視でき、室内散乱のみとなる。従ってバックグラウンドを減少させるにはコリメータにより中性子ビームをよくdefineし、さらに室内散乱中性子による捕獲 $\gamma$ 線を鉛でシールドするのが有効と考えられる。今回の測定ではライナックからのX-rayのバーストによる検出器(5"φ×2"の液体シンチレータ)の飽和効果のため良好な $n-\gamma$ 弁別特性が得られなかったので鉛によるシールドは特に重要であった。

タイムアナライザーおよびコリメータ系のチェックとして共鳴に対してblack-absorberとなるような22cm厚のcarbonに対するtransmissionを測定した。Fig. 2にそれを示すが、共鳴で0にならない部分即ちバックグラウンドは小さく、コリメーションが良好であることを示している。このデータとチャンネル巾とからバックグラウンドの大きさを評価するとopen-beam(Fig. 3)に対して1%程度の大きさであり、これはR. P. I., G. G. Aなどと同程度の大きさである。

又、モニターとしては中性子検出器を用いこれで計数率の規格化を行なった。

測定はopen-beam, sample in, backgroundの3runについて行なったが、ディテクターのH. Vや回路系のgainやlevelの僅かな変動の積み重ねによる誤差を軽減できるよう測定は短いサイクルに分けて交互に行なった。

断面積の誤差( $\frac{\Delta\sigma}{\sigma}$ )に及ぼすsampleの厚さと測定時間配分の影響を考慮した結果、一定時

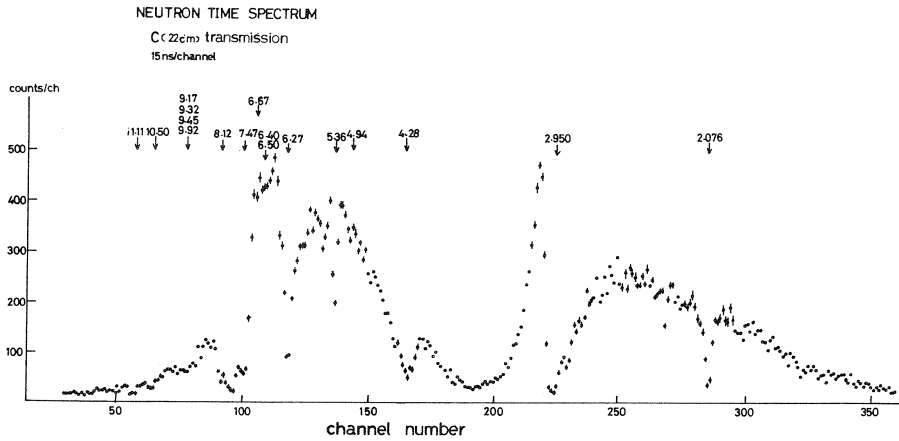


Fig. 2

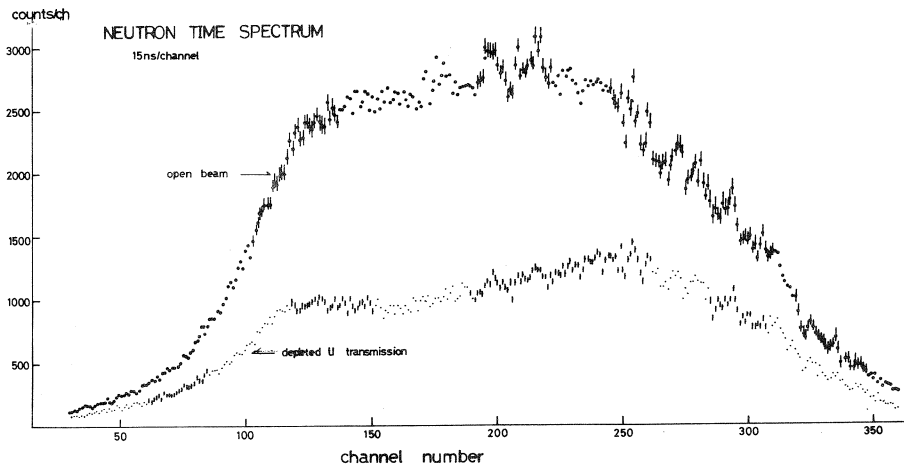


Fig. 3

間内の測定で $\frac{\Delta\sigma}{\sigma}$ を最小にするような時間配分が存在する<sup>6)</sup>。それらはバックグラウンドに依存して決まるため、我々はバックグラウンドの測定をはじめに行ない、その結果ウランのsampleの厚さとして5cm、測定時間の配分としてopen-beam, sample in, backgroundに対して5:10:4を選んだ。

### 3 実 験 結 果

データから断面積を求める際、バックグラウンドの評価および数え落しの補正が重要な factor である。バックグラウンドはエネルギー依存性がないという仮定<sup>2)</sup>のもとで上述の方法にて評価した。数え落しは1バーストあたり2ケまでの可能性を考慮した補正を行なった。open-beam に対して観測されたTACの計数率は0.6コ/burstの程度である。energy-calibration はcarbonの共鳴を用いて行なった。

Fig. 3にopen-beam spectrumとdepleted uraniumのtransmissionを示す。両者に於てflight tubeおよびshield材のAl, Pbによるstructureが見られる。

以上の結果として得られた全断面積がFig. 4に示してあるが、誤差は点の中に入る程度である。 $^{12}\text{C}$ の全断面積については7MeV以上の高エネルギーで数%程度低い値を示していることを

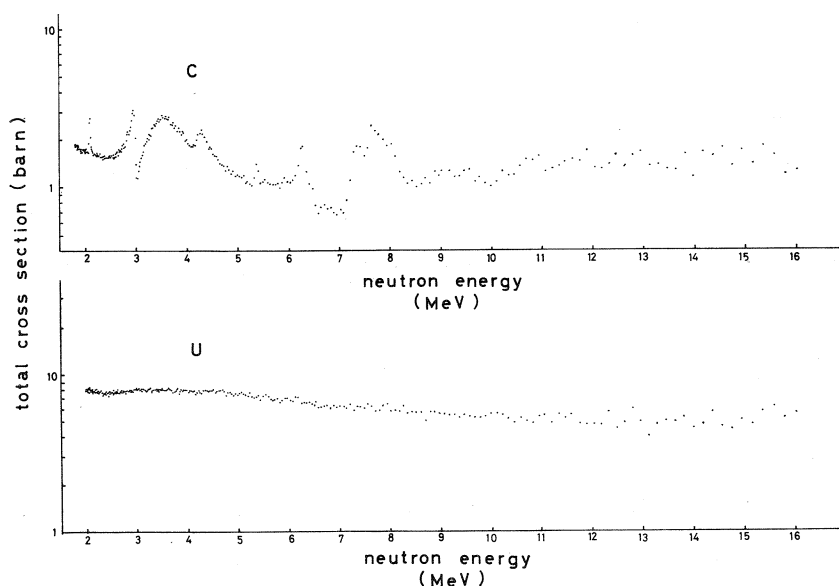


Fig. 4

除けばKFK-Groupの値と極めてよい一致を示している。また $\text{U}^{238}$ の値は、やはり高エネルギー部分で他の測定値(精度は非常に悪い)に比して低目の値に属する。

### 4 検 討

以上のように核理研T. O. Fシステムは15MeV程度までの良好な高速中性子スペクトロメー

タとして使用可能である。今回はyieldをあげるため15nsec/channelとしたため、分解能が十分に生かされていないきらいがあるが、とくに $C^{12}$ についてはKarlsruhe groupの高分解能データ<sup>7)</sup>との対応はよく分解能はチャンネル巾を数nsec程度にすることにより更に改善されよう。

今回は統計が不十分であるが断面積の絶対値は $C^{12}$ 、 $U^{238}$ とも高エネルギー部( $>7MeV$ )でいく分低めであり、目下エネルギー依存のバックグラウンドの検討を行なっている。

$U^{238}$ ではFoster et al<sup>5)</sup>にみられるような3~4MeVでのstructureは表われていない。又Cierjacks<sup>3)</sup>により指摘されている $U^{238}$ の600keV附近のintermediate structureは興味があり次回測定範囲を広げ分解能を上げた測定を行なう予定である。

## 謝 辞

実験の御世話をいただいた核理研庄田助教授、小山田助教授、実験に協力して下さった核理研マシングループの方々に深く感謝いたします。

## 参 照 文 献

- 1) RPI-328-209(AEC Contract No. AT(30-1,2,3)-328).
- 2) A. D. Carlson and R. J. Cerbone, Nucl. Sci. Eng., **42** 28(1970).
- 3) Nuclear Data for Reactors, IAEA conference, HELSINKI (1970).
- 4) 核理研研究報告Vol. 2, No. 1, 57(1969).
- 5) D. G. Foster, Jr., and D. W. Glasgow, Phy. Rev. C3, No. 2, 576 (1971).
- 6) M. E. Rose and M. M. Shapiro, Phy. Rev. **74**, 12, 1853(1948).
- 7) S. Cierjacks, et al., KFK 1000(EANDC(E)-III "V").



I-8 C と Mg の  $(r, \alpha)$  反応

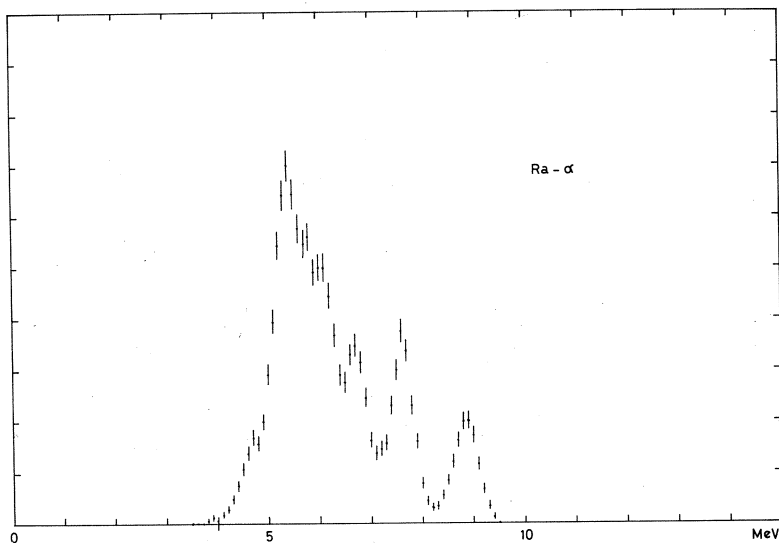
教養部物理・理学部物理\*

阿部 健・川村暢明\*

坪田博明・金沢正明\*

固体検出器テレスコープを用いて、炭素と天然マグネシウムの  $(r, \alpha)$  スペクトルの予備データを得た。前々回の実験との比較のために、ベリリウムについても粗いデータを得た。 $r$  ビーム・チャンネルが整備されつつあり、散乱槽直前で電子線から制動放射線への転換を行ないながらの実験は、これが最後となるであろう。

1. 第1実験室の  $L$  チャンネルの一部が開放され、ビーム発散の比較的小さい場所で実験することができたが、周辺のコンクリート・ブロックの山は従来のまゝであり、セットアップに苦労した。約3トンの鉛遮蔽と約  $0.5 \text{ m}^3$  のボロン・パラフィン遮蔽を施した。実験室内での制動放射線転換や、狭い空間などの悪条件にもかかわらず、比較的明るい幾何学条件で実験することができた。詳細は省略する。計測系は従来とほぼ同じであるが、テレスコープはSSR社050-SBTM-10と掘場50SB120Lで構成した。

図1  $^{228}\text{Ra}-\alpha$  (2元)

$\Delta E$ 検出器の前置増幅器の等価入力容量を  $5 \times 10^4$  pF 以上に増し、雑音を 12 keV 程度にしても、 $\Delta E-E$  2 元表示におけるゆらぎが従来とほとんど変わらず、やはり Landau のゆらぎ効果が圧倒的であることがわかった。図 1 に  $^{228}\text{Ra}-\alpha$  の 2 元表示からのスペクトル、図 2 に 1 元解析によるスペクトルを示した。回路系の非直線性は無視しうるのでこの分解能の低下は、検出

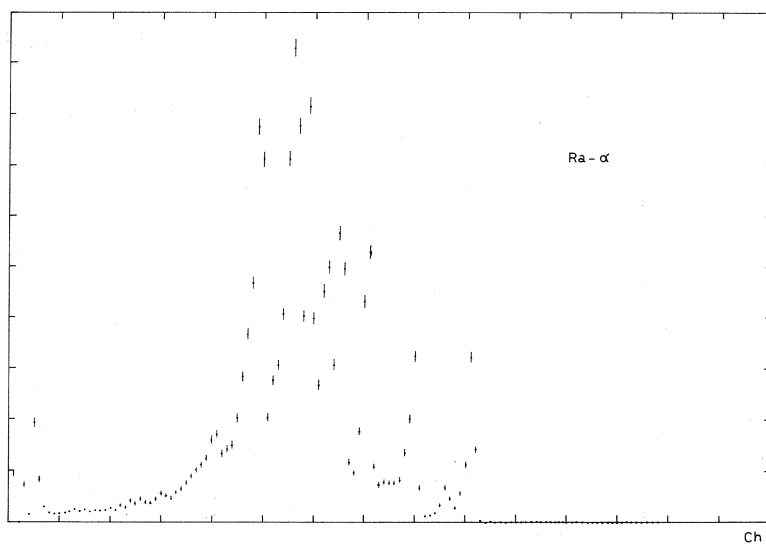


図 2  $^{228}\text{Ra}-\alpha$  (1 元解析)

器自体の雑音 (速いクリップのため  $\sim 100$  keV) のほか、2 元表示からのやき直し法の不備に基づくが、一応図 1 の作成と同じ要領で他のアルファ・スペクトルを導いた。図 3 に  $E_{\gamma m} = 2.5$  MeV における  $\text{Be}(\gamma, \alpha)$  スペクトルを示した。 $E_{th} = 2.53$  MeV であるが、実験室系では  $\alpha$  は約半分の運動エネルギーを持ち出すので、最大エネルギーについては問題がない。しかし  $E_{\gamma m} = 3.5$  MeV のデータ<sup>1)</sup>と比較してみると、 $E_{\alpha} = 7 \sim 9.5$  MeV の間で著しくぐいちがう。 $E_{\alpha} < 6$  MeV のカット・オフはデスクリのせいである。図 4、図 5 に  $\text{C}(\gamma, \alpha)$  のスペクトル ( $E_{\gamma m} = 26, 30$  MeV) を示した。標的は伸展したポリエチレン・シート ( $45^\circ$  半厚  $\sim 18 \mu\text{m}$ ,  $\sim 16 \text{ mg/cm}^2$ ) で、厚過ぎて補正が困難であるので検出エネルギーをなまのまゝ示した。炭素については薄い固体検出器や<sup>2)</sup>、原子核乳剤による<sup>3)</sup>  $(\gamma, \alpha)$ ,  $(\gamma, 3\alpha)$  のデータがあるが測定が粗く、不十分であるので、薄い標的による実験を計画している。これらはその準備データである。

Mg については  $^{24}\text{Mg}$  標的を準備中であるが、ここではその準備実験として天然マグネシウム ( $^{24}\text{Mg}$  78.7%,  $^{26}\text{Mg}$  11.2%,  $^{25}\text{Mg}$  10.1%, しきい値 9.3, 10.6, 9.9 MeV) を用い

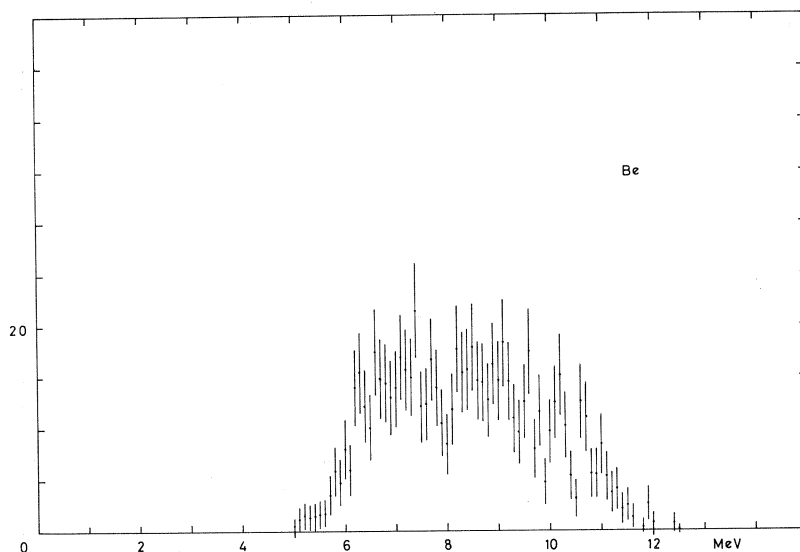


図3  $\text{Be}(\gamma, \alpha)$

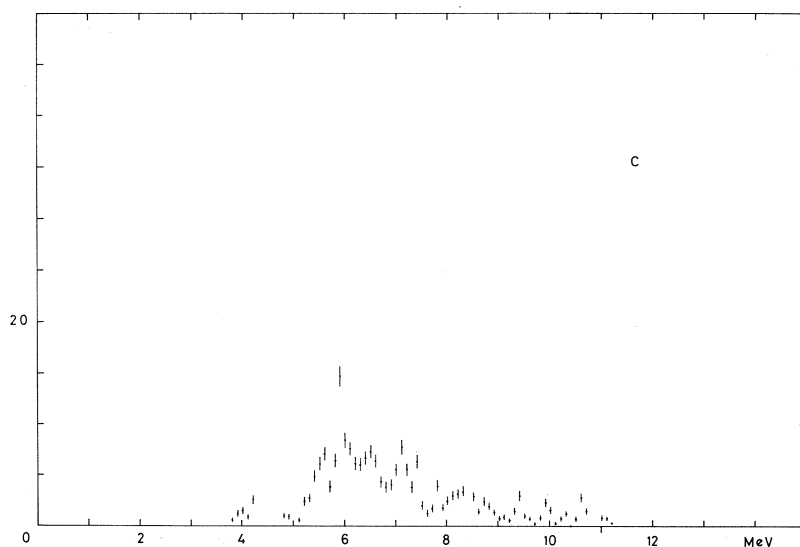


図4  $\text{C}(\gamma, \alpha)(E_{\gamma m} = 26 \text{ MeV})$

た。0.19 mg/cm<sup>2</sup> のAu箔上に 100.0 μg/cm<sup>2</sup> の厚さ蒸着した。等価厚が約 70 μg/cm<sup>2</sup> で、3 MeV 以上でのエネルギー損失が 50 keV 以下であるので、エネルギー補正は不要である。図 6 で、5 MeV 近辺より低い方の計数が急に落下しているのは、低いパルスに対するADCの動作不良に基づく。この打開策としてのアナログ前処理は今回の実験には間に合わなかった。また 4 MeV 近辺では、Landauゆらぎに基づく偽のディップの対策としての  $\Delta E - E$  同時計数の解除

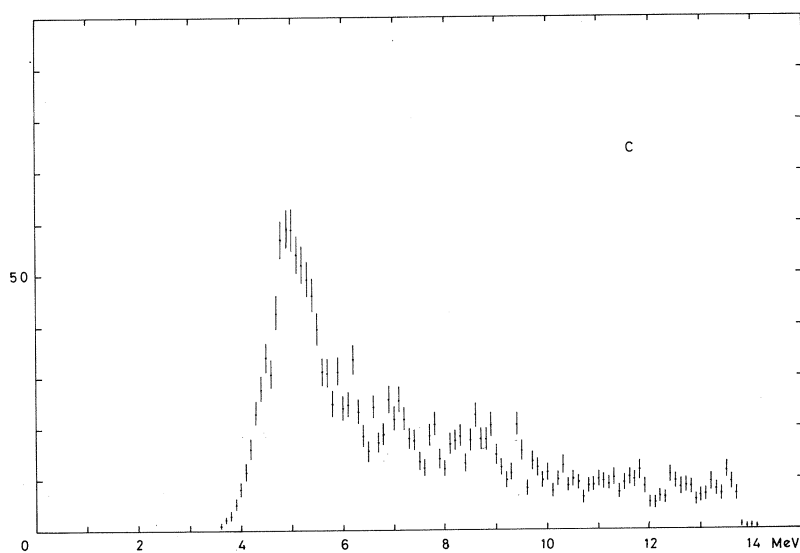


図5  $C(r, \alpha)(E_{rm} = 30 \text{ MeV})$

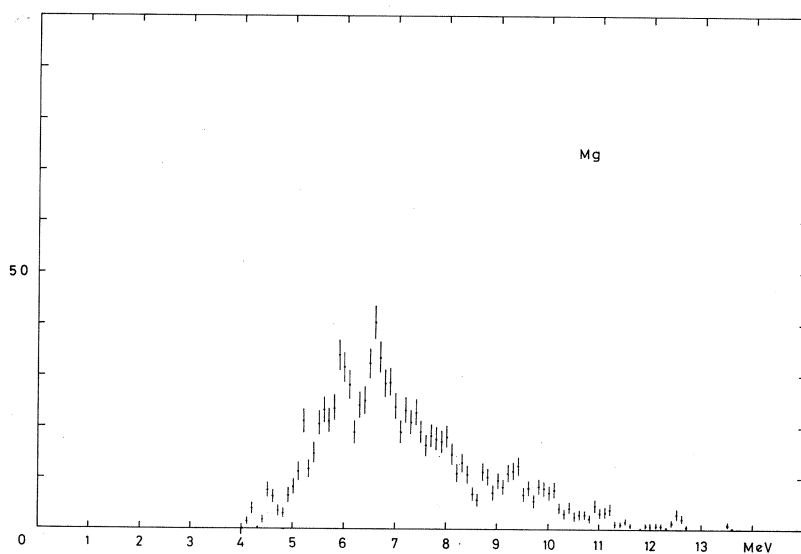


図6  $^{nat}\text{Mg}(r, \alpha)(E_{rm} = 25 \text{ MeV})$

も必要となるが、今回は実施していない。しかし図7のHoffmann達の $N_d/315 \text{ keV}$ のデータと比較すれば、約6 MeV以上については一致していると言える。約18時間の照射であったが統計とエネルギー分解能ははるかに良く、詳細な議論も可能のように見える。 $^{24}\text{Mg}$ の本実験が期待される。 $(r, \alpha)$ は断面積が小さく、マシンタイムが少く、妨害粒子が多く、かつ実験立地条件が悪いという四重苦にもかかわらず他<sup>4~5)</sup>に比べてはるかに能率よく良質のデータ

が得られた。最後者は $\gamma$ チャンネルの開設により解消されることになった。

今回は乏しいマシンタイムを精一杯活用したとの印象が残った。マシン・グループと計測グループの適切なアドバイスと支えに感謝致します。

## 文 献

- 1) K. Abe, N. Kawamura, H. Tsubota and M. Kanazawa: Research Rep. Labo. Nucl. Sci. Tohoku Univ. 4(1) (1971)42.
- 2) S. Tamura: Private communication.
- 3) M. E. Toms: Nucl. Phys. 50(1964)561.  
J. Muto, E. Takekoshi, T. Nakamura, A. Imamura, Y. Tsuneoka: J. Phys. Soc. Japan 12(1957)109.
- 4) H. Hoffmann, B. Prowe and H. Ullrich: Nucl. Phys. 85(1966) 631.
- 5) N. A. Keller and D. B. McConnell: Nucl. Instr. Meth. 81(1970)305.

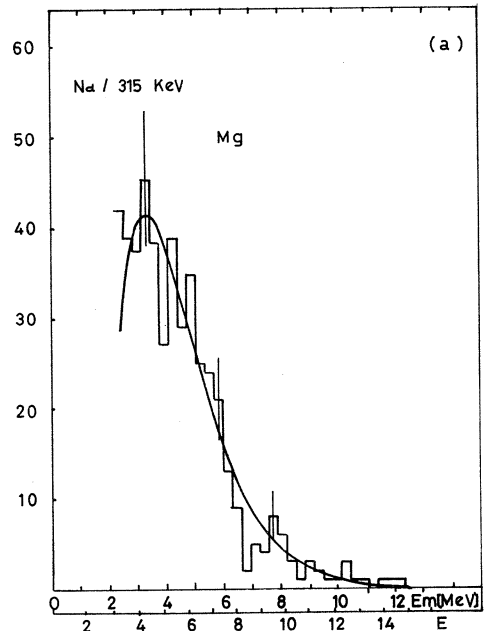


図7  $Mg(\gamma, \alpha)(E_{\gamma m} = 31 \text{ MeV})$

## II. 物 性 物 理 部 門

## II-1 Measurements of the Structure Factor for Liquid Pb and Se

金研\*・核理研\*\* 甲斐鎌三\*・三沢正勝\*  
渡辺 昇\*\*・竹内 栄\*・木村一治\*\*

### ABSTRACT

The structure factor for liquid lead at 380°C and liquid selenium at the temperature close to the melting point and at the elevated temperature (250°C~600°C) have been determined by means of the T-O-F neutron diffraction method. Several improvements in the experimental technique have been made and highly reliable data for liquid lead was obtained.

### 1. INTRODUCTION

In the previous paper (Misawa et al., 1972), we examined the application of the time-of-flight neutron diffraction method incorporated with pulse neutron source for the determination of the structure factor  $S(Q)$  of liquid metals and reported that the T-O-F method could offer very reliable data to the liquid structure if some more experimental improvements were made.

In the present investigation, an additional counter system was placed at the scattering angle of 15° of arc in order to

---

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

\*\* Noboru Watanabe and Motoharu Kimura: Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, Sendai, Japan.



obtain  $S(Q)$  at lower  $Q$  region, and the sample cell was changed to the cylindrical system using the quartz glass tube instead of the slab one having the stainless steel window in order to eliminate the strong Debye-Scherrer peak from the sample cell. The measurement of liquid lead, reliable  $S(Q)$  of which have already been reported by North et al. (1968), was performed under the improved conditions mentioned above aiming to examine the further reliability of this method.

The structure factors of liquid selenium were successively measured using the same experimental method and the data reduction procedure. Liquid selenium is one of the liquid semiconductors having the particular behaviours in physical and chemical properties in contrast to simple liquid metals. For example, viscosity coefficient is about 2500 cp at melting point higher compared to 1 cp of simple liquid metal, such as aluminium, and electrical conductivity is about  $2 \times 10^{-5} \text{ ohm}^{-1} \text{ cm}^{-1}$  at melting point and shows semiconductive temperature dependence having the activation energy of 0.5~2.0 eV (Gobrecht et al., 1971). Liquid selenium is expected to have the complicated structure such like that of liquid tellurium. There are, however, no accurate data for  $S(Q)$  of liquid selenium because of the experimental difficulties arising from high vapor pressure, active chemical property, large nuclear absorption etc.

## 2. THE EXPERIMENTAL METHOD

The measurements were made using the same spectrometer as that in previous paper. New additional counter system was placed at the scattering angle of  $15^\circ$  of arc in order to obtain the accurate  $S(Q)$  at the lower  $Q$  region compared to the previous measurement. For a each scattering angle, two symmetrical



counters to the incident beam were employed. The incident beam was collimated using the  $B_4C$  slit in 20 mm wide and 45 mm high at the exit of the beam tube.

The sample was contained in the fused quartz tube (10 mm in inner diameter, 12.5 mm in outer diameter) and sealed off in vacuum at  $10^{-6}$  mmHg. The purities of the samples were 99.99% for both lead and selenium. The sample was heated using the two electric resistance furnaces placed at the upper and lower end of the sample, and to improve the temperature distribution in the sample, the additional heaters of silicon carbide were placed at both side of the sample about 20 mm apart from it. With this heating arrangement, the sample was easily heated up to  $1000^\circ\text{C}$ .

The extraction method of  $S(Q)$  from the measured spectrum was the same as that in previous paper. Several corrections for the attenuation in the sample and the cell to the observed intensities were made following Paalman and Pings (1962), and corrections for multiple scattering were also made following Blech and Averbach (1965) somewhat modified taking into account wave length dependence of the cross sections in the T-O-F method.

### 3. RESULTS AND DISCUSSIONS

The measurements for liquid lead and selenium at various temperatures, for empty cell, for vanadium and for background were performed successively. The times for the data accumulations were about 10 hours for respective run.

Figure 1 shows the measured  $S(Q)$  for liquid lead at  $380^\circ\text{C}$  compared with the smoothed curve of the result of North et al.

(1968). It will be seen that the agreement between the present result and that of North's is highly satisfactory. Using the additional counter system of  $15^\circ$  of arc, we were able to obtain accurate  $S(Q)$  at lower  $Q$  region down to about  $1 \text{ \AA}^{-1}$ , and taking

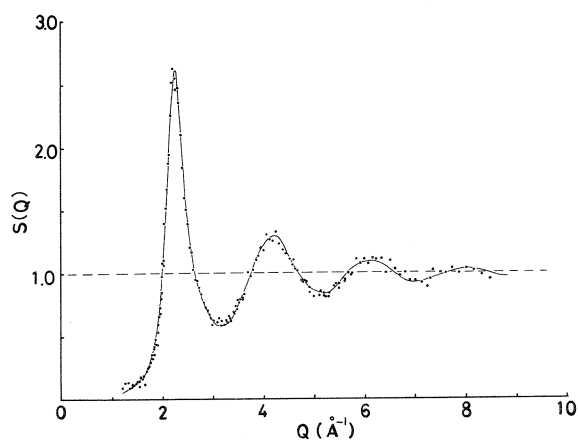


Fig. 1.  $S(Q)$  for liquid Pb at  $380^\circ\text{C}$ ; solid curve shows the smoothed one of the result of North et al. (1968) at  $340^\circ\text{C}$ .

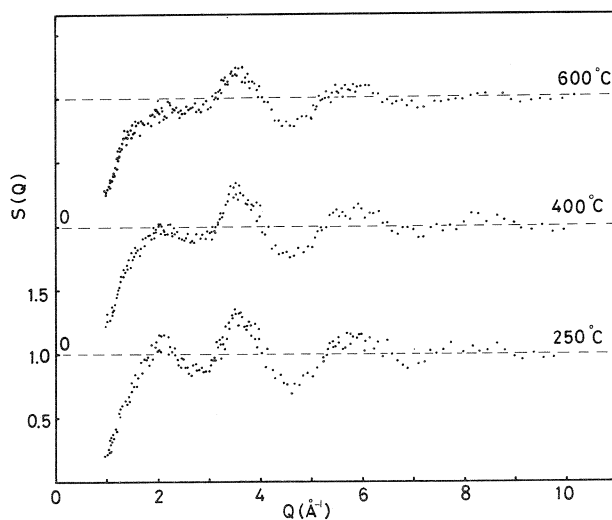


Fig. 2.  $S(Q)$  for liquid Se at  $250^\circ\text{C}$ ,  $400^\circ\text{C}$  and  $600^\circ\text{C}$ .

care of the cell arrangement, the scattering of the data at higher  $Q$  region was improved compared to the previous results. From these results, we were convinced that the T-O-F method is very usefull for the precise determination of the structure factor of liquid metals.

We have also measured the structure factors of liquid selenium at 250°C, 400°C and 600°C. The results were shown in Fig. 2. It will be seen that  $S(Q)$  of selenium has a peculiar form compared to simple liquid metals such as lead and is similar to that of liquid sulfur at high temperature or liquid tellurium, but is fairly different from these elements in detail. It will be also seen that the first peak is extremely lower than the second one in contrast to the case of simple liquid metals and extends toward the low  $Q$  region. Figure 3 shows the temperature dependence of  $S(Q)$  for liquid selenium around the first maximum.

The curves show the smoothed ones of  $S(Q)$  in Fig. 2. It is apparent from Fig. 3 that the first peak decreases rapidly as the temperature is increased. The behaviour described above appears to show the chain molecule structure remaining in the liquid state and the process of the chains with increasing temperature. The analysis of  $g(r)$  is under progress and the detailed discussions will be reported elsewhere.

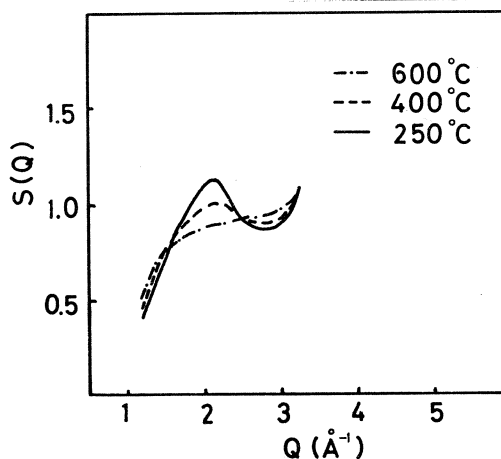


Fig. 3 Temperature dependence of  $S(Q)$  for liquid Se around the first maximum. The curves show the smoothed ones of  $S(Q)$  in Fig. 2.

## ACKNOWLEDGMENTS

We wish to acknowledge the valuable help of Mr. S. Tomiyoshi, Dr. N. Niimura, Assistant professor M. Oyamda, Mr. K. Kubota, Mr. Y. Yamada and Mr. A. Ozora.

## REFERENCES

1. Blech, I.A. and Averbach, B.L., 1965, Phys. Rev., 137, A1113.
2. Gobrecht, H., Mahdjuri, F. and Gawlik, D., 1971, J. Phys. C., 4, 2247.
3. Misawa, M., Tomiyoshi, S., Kai, K., Takeuchi, S., Watanabe, N. and Kimura, M., 1972, Research Report of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, 4, No.2, 67.
4. North, D.M., Enderby, J.E. and Egelstaff, P.A., 1968, J. Phys. C. [2], 1, 1075.
5. Paalman, H.H. and Pings, C.J., 1962, J. Appl. Phys., 33, 2635.

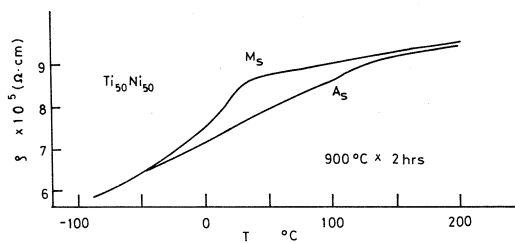
## II-2 TiNi 化合物の低温相の結晶構造

選研 松本 実・守護嘉朗・本間敏夫

### 1 緒 言

新高温材料ニチノール (TiNi 化合物) が  $50^{\circ}\text{C}$  近傍でマルテンサイトの相変態するということは、すでに多くの研究者によって見出されている。この化合物の高温相の結晶構造については、TOF 法による中性子回折を行った結果、CsCl 型体心立方格子であることが確認され、すでに前報<sup>1)</sup>で報告した。

第1図は  $900^{\circ}\text{C}$ 、2時間焼鈍を行った TiNi 化合物の電気抵抗-温度曲線<sup>2)</sup>である。高温より冷却していくと、図中の  $M_s$  温度で低温相への変態が始まり、電気抵抗は減少する。逆に低温相を加熱すると  $A_s$  温度で低温相 → 高温相の変態が起こり、電気抵抗が増加す



第1図 TiNi の電気抵抗の温度変化

る。すなわち、この試料の室温における状態は大部分が低温相であって、一部高温相が残留していると考えられる。

低温相については高温相と同様、研究者によっていくつかの結晶構造が提唱されている。高温相よりさらに一段と問題を複雑にしている点は、試料の濃度や予め受けた熱処理や加工歪みによって低温相の結晶構造や結晶変態の機構が影響を受ける可能性があるということである。すなわち、TiNi の Ni 濃度を化学量論値より大にした場合、または Ni 量の一部を Co や Fe で置換場合<sup>3)</sup>、あるいは試料を  $400 \sim 600^{\circ}\text{C}$  で長時間焼鈍を行ったり、加熱-冷却サイクルを行った場合<sup>4)</sup>、第1図の  $M_s$  温度よりやや高い温度で電気抵抗の急激な増加が認められ、われわれが中間相と呼んでいる異った結晶構造を持つ相が低温マルテンサイト相の生ずる以前に出現し、変態の挙動は非常に複雑となってくる。しかしながら  $900^{\circ}\text{C}$  で十分焼鈍した化学量論 TiNi 化合物では第1図に示したように中間相の生成は認められず、直接高温相 → 低温相の変態のみが生じている。

低温相の結晶構造についてのこれまでの研究を次に述べる。(1) Dautovich ら<sup>5)</sup> の立方晶母相が菱面体中間相を経て低温相としては三斜晶となるという2段変態説。

(2) Nagasawa<sup>6)</sup>によると低温相は $4H(2\bar{2})$ と $12R(3\bar{1})_3$ のような稠密層を持つ構造であり、 $2H$ と $18R$ が観測されることもある。(3) Wangら<sup>7)</sup>は $TiNi(II)$ (高温相)は $B2(CsCl$ 型構造)と $P\bar{3}m1$ (三方晶)構造の共存状態で、 $TiNi(III)$ (低温相)は $B2$ からの変態相 $P\bar{1}$ 、 $P1$ (いずれも三斜晶)構造と $P\bar{3}m1$ からの変態相 $P6/m$ (六方晶)構造から成ると報告している。(4) Otsukaら<sup>8)</sup>は菱面体 $B19$ 構造がわずかに単斜晶にひずんでいるとしており、これはHehemannら<sup>9)</sup>の結果とほぼ一致する。Otsukaら<sup>8)</sup>、Hehemannら<sup>9)</sup>は変態の機構に関してはpremartensiteの状態の存在を主張している。

(5) Marcinkowskiら<sup>10)</sup>は $B2$ 構造が2種のshearを起すことにより低温相は2種の異った稠密単斜晶マルテンサイトになるとしている。

高温相、中間相、低温相の各々の結晶構造を中性子回折で調べることは、X線、電子線回折等の結果と共に $TiNi$ の結晶構造と変態機構の解明に有力な手がかりとなると考えられる。

今回は前回の高温相の実験<sup>1)</sup>にひきつづき、低温相の結晶構造を調べる目的で室温における $TiNi$ 焼鈍試料のTOF法による中性子回折実験を行った。

## 2 試料

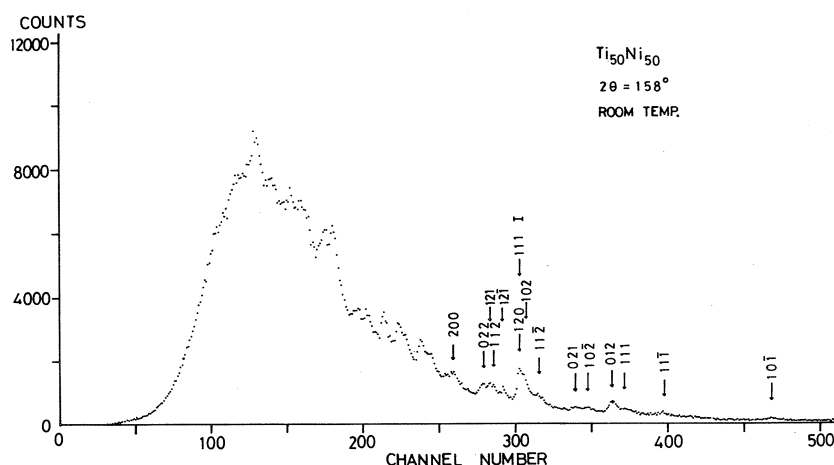
試料は次のようにして作製した。チタン(純度99.7%)、ニッケル(99.9%)を $Ti_{50}Ni_{50}$ となるように秤量し、電子ビーム法で熔解した。得られた熔解ボタンは高温鍛造により5cm直径、厚さ7mmの円板状試料とした。その後900°Cで2時間真空焼鈍を行った。同じインゴットから切出した試料による電気抵抗の温度変化の測定から、室温においてこの試料は大部分低温相の状態にあることがわかった。

結晶粒の方位配列による回折強度に対する影響については前回のようにX線回折による確認は行なわなかったが、試料表面における結晶粒は非常に小さい。

## 3 実験および実験結果

TOF Debye-Scherrer法による中性子回折は東北大核理研中性子回折装置を用い室温で行った。円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 $2\theta = 158^\circ$ 、照射時間は約10時間であった。

第2図は実験によって得られた中性子回折パターンを示す。回折線は低温相からのものばかりではなく高温相( $CsCl$ 型結晶構造)からのものも含んでいる。この事は $TiNi$ 化合物を900°C、2時間熱処理した後冷却すると、高温相の大部分が低温相に変態し、室温では残留高温相と低温相の共存の状態であることを示している。第2図で111 Iは高温相( $CsCl$ 型結晶構造)



第2図 TiNiの室温での中性子回折パターン。  
散乱角  $2\theta = 158^\circ$ 。  
111 Iは高温相(111)による回折線。

の(111)による回折線を示す。

先に述べたように低温相については種々の結晶構造が報告されているが、それらのいくつかは結晶構造が全く異なるものでなく、格子定数と角度についてかなり類似性のある点が多い。例えば Otsukaら<sup>8)</sup>は低温相を単斜晶として  $a = (2.889 \pm 0.005) \text{ \AA}$ ,  $b = (4.120 \pm 0.012) \text{ \AA}$ ,  $c = (4.622 \pm 0.016) \text{ \AA}$ ,  $\beta = (96.80 \pm 0.32)^\circ$ としているが、Dautovichら<sup>5)</sup>はこれを三斜晶として  $a = 4.60 \text{ \AA}$ ,  $b = 2.86 \text{ \AA}$ ,  $c = 4.11 \text{ \AA}$ ,  $\alpha = 90.1^\circ$ ,  $\beta = 90.9^\circ$ ,  $\gamma = 96.7^\circ$ としている。このような類似性は高温相が低温相にマルテンサイト変態するときの、原子面の移動の複雑さを示していると考えられる。このような観点から、低温相を単斜晶として回折パターンを整理した結果を第1表に示す。面間隔の計算値  $d_{\text{cal}}$  および観測値  $d_{\text{obs}}$  はそれぞれ前記の Otsukaら<sup>8)</sup>の値および回折線のチャンネル数より求めた値である。TOF Debye-Scherrer法において構造因子  $F_{hkl}$  の相対的大きさは温度因子および吸収因子を省略すると

$$P \cdot |F_{hkl}|^2 \propto \frac{E_{hkl}^{\text{obs}}}{i(\lambda) \cdot \lambda^4}$$

で表わされる<sup>11)</sup>。ここで  $P$  は多重度因子,  $E_{hkl}^{\text{obs}}$  は  $hkl$  の Bragg 反射の観測積分強度,  $i(\lambda)$  は入射中性子線スペクトル,  $\lambda$  はその波長である。第1表は  $P|F_{hkl}|^2$  の相対値の計算値および観測値を示す。

Wangら<sup>7)</sup>は低温相は2種の三斜晶と六方晶の共存状態であると提唱している。それによると粉末試料によるX線および中性子回折パターンはいずれも三斜晶および六方晶で指数付けされ、

第1表 単斜晶による面間隔および構造因子の計算値および実験値

$h$	$k$	$l$	$F$	$P F ^2_{\text{cal}} \%$	$P F ^2_{\text{obs}}$	$d_{\text{cal}} \text{ \AA}$	$d_{\text{obs}} \text{ \AA}^*)$
0	0	1	0			4.59	
0	1	0	$b_{\text{Ti}} - b_{\text{Ni}}$	17		4.12	
0	1	1	$\sqrt{3}(b_{\text{Ti}} - b_{\text{Ni}})$	100		3.07	
1	0	0	$2(b_{\text{Ti}} - b_{\text{Ni}})$	67		2.87	
1	0	$\bar{1}$	0		VW	2.57	2.55
1	1	0	$b_{\text{Ti}} + b_{\text{Ni}}$	9	—	2.35	—
1	0	1	0		—	2.31	—
0	0	2	$2(b_{\text{Ti}} + b_{\text{Ni}})$	18	—	2.29	—
1	1	$\bar{1}$	$\sqrt{3}(b_{\text{Ti}} + b_{\text{Ni}})$	26	VW	2.18	2.17
0	2	0	$b_{\text{Ti}} + b_{\text{Ni}}$	4	—	2.06	—
1	1	1	$\sqrt{3}(b_{\text{Ti}} + b_{\text{Ni}})$	26	W	2.02	2.03
0	1	2	$b_{\text{Ti}} - b_{\text{Ni}}$	33	M	2.00	1.99
1	0	$\bar{2}$	$2(b_{\text{Ti}} - b_{\text{Ni}})$	67	VW	1.91	1.90
0	2	1	$\sqrt{3}(b_{\text{Ti}} + b_{\text{Ni}})$	26	VW~W	1.88	1.86
1	1	$\bar{2}$	$b_{\text{Ti}} + b_{\text{Ni}}$	9	VW	1.73	1.72
1	0	2	$2(b_{\text{Ti}} - b_{\text{Ni}})$	67	} S	1.70	1.67
1	2	0	$b_{\text{Ti}} - b_{\text{Ni}}$	33		1.67	1.65
1	2	$\bar{1}$	$\sqrt{3}(b_{\text{Ti}} - b_{\text{Ni}})$	100	VVS	1.61	1.59
1	1	2	$b_{\text{Ti}} + b_{\text{Ni}}$	9	VW	1.57	1.56
1	2	1	$\sqrt{3}(b_{\text{Ti}} - b_{\text{Ni}})$	100	VS	1.54	1.55
0	2	2	$b_{\text{Ti}} + b_{\text{Ni}}$	9	VW~W	1.53	1.53
0	0	3	0			1.53	—
2	0	0	$2(b_{\text{Ti}} + b_{\text{Ni}})$	18	VW	1.43	1.42

\* ) 散乱角  $2\theta = 15.8^\circ$  では  $d = 2.79 \text{ \AA}$  より大きい面間隔は観測されない。

これより三斜晶のパラメーターは  $a = 4.17 \text{ \AA}$ ,  $b = 3.11 \text{ \AA}$ ,  $c = 12.55 \text{ \AA}$ ,  $\alpha = 96.06^\circ$ ,  $\beta = 105.18^\circ$ ,  $\gamma = 84.09^\circ$ , 六方晶のパラメーターは  $a = b = 4.02 \text{ \AA}$ ,  $c = 4.61 \text{ \AA}$ ,  $\alpha = \beta = 90^\circ$ ,  $\gamma = 120^\circ$  としている。本研究の中性子回折パターンにおいては Wang ら<sup>7)</sup> による三斜晶の  $(\bar{1}04)$  ( $d_{\text{cal}} = 2.79 \text{ \AA}$ , 計算相対強度  $I_c = 52$ ),  $(\bar{2}\bar{1}2)$  ( $d_{\text{cal}} = 1.81 \text{ \AA}$ ,  $I_c = 24$ ) による回折線は観測されなかった。また六方晶の  $(\bar{2}11)$  ( $d_{\text{cal}} = 1.84 \text{ \AA}$ ,  $I_c = 96$ ) による回折線も観測されなかった。

以上より本研究の中性子回折パターンは単斜晶で指数付けされ、TiNi の低温相は単斜晶であると考えられる。



## 文 献

- 1) 本間敏夫, 松本実, 守護嘉朗: 核理研報告 4, No. 2(1972)64.
- 2) 本間敏夫, 松本実, 守護嘉朗: 日本金属学会講演概要, 昭和47年度春期(1972)26.
- 3) 竹内栄, 本間敏夫, 鈴木謙爾, 山崎勲: 日本金属学会講演概要, 昭和42年度春期(1967)197.
- 4) 本間敏夫, 守護嘉朗: 日本金属学会講演概要, 昭和45年秋期(1970)117.
- 5) D. P. Dautovich and G. R. Purdy: Canadian Metallurg. Quart., 4(1965)129.
- 6) A. Nagasawa: J. Phys. Soc. Japan, 31(1971)136.
- 7) F. E. Wang, S. J. Pickart and H. A. Alperin: J. appl. Phys., 43(1972)97.
- 8) K. Otsuka, T. Sawamura and K. Shimizu: Phys. Stat. Sol., (a), 5(1971)457.
- 9) R. F. Hehemann and G. D. Sandrock: Scripta Met., 5(1971)801.
- 10) M. J. Marcinkowski, A. S. Sastri and D. Koskimaki: Phil. Mag., 18(1968)945.
- 11) 木村一治, 他: 核理研報告 1, No. 2(1968)81.

## II-3 $\text{Fe}_{1+\delta}\text{Sb}$ の中性子回折

東北大・金研

八代 勉・富吉昇一・渡辺 浩

### §1 目 的

$\text{Fe}_{1+\delta}\text{Sb}$  は、 $0.08 \leq \delta \leq 0.6$  の範囲で、単一相をもつ NiAs 型の金属間化合物で、その磁性は反強磁性である。Stoichiometry からずれた余剰の Fe atom は、interstitial site を不規則に占めている (図 1)。以下、本来の NiAs 型の Ni atom の site を占める Fe atom を "normal Fe" と呼び、余剰の Fe atom を "excess Fe" と呼んで両者を区別する事にする。

帯磁率の温度変化 (図 2) から明らかなように、約 30 K 及び、100 K 付近に帯磁率の anomaly が見い出され、それぞれ、excess Fe 及び、normal Fe のネール温度に相当している。これは、山口ら<sup>1)</sup> の Mössbauer 効果の実験でも明らかである。また帯磁率の大きさは、excess Fe が增加するにつれて、急激に増大する。

著者らは、帯磁率に anomaly のある 100 K 付近において、単結晶試料  $\text{Fe}_{1.14}\text{Sb}$  を用いて、

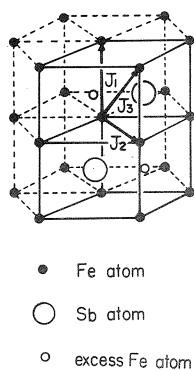


図 1  $\text{Fe}_{1+\delta}\text{Sb}$  の結晶構造

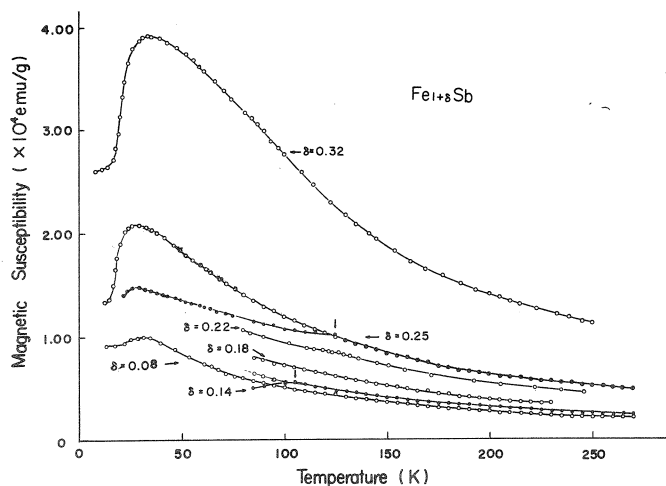


図 2 帯磁率の温度変化

$\delta = 0.08, 0.18, 0.32$  は粉末試料、 $\delta = 0.14, 0.22, 0.25$  は単結晶試料である。矢印は高温側のネール温度で、単結晶試料について、 $H \perp C$  軸 (● 印) の場合の測定によってのみ見い出されている。

中性子回折実験を行なった結果, normal Feについて, 磁気構造はC面内で三角配列をしている事(図3)及び, その磁気モーメントはspin 1/2のBrillouin函数に従って温度変化する事が分かった。\*)

Fe<sub>1+δ</sub>Sbは, さらに30k付近にもうひとつの帯磁率のanomalyがあり, そこではさらに, excess Feが磁気秩序をもつものと考えられ, atomicには無秩序に位置するexcess Feが, どのような機構で磁氣的秩序をもつか興味深い。また, 単にexcess Feのみならず, normal Fe

も新たに磁気変態を起す可能性が考えられ, この温度付近での中性子回折実験を行う事は興味深い。

最近, Mn<sub>1+δ</sub>Sbについて, 偏極中性子回折装置を用いて行なわれた実験結果から, excess Mnは磁気モーメントを持たない事が証明され, 従来の磁化測定の実験結果に再考を加える必要性を指摘している<sup>2)</sup>。Mn<sub>1+δ</sub>Sbは強磁性体であるが, Fe<sub>1+δ</sub>Sbと同様, excess Mnによって, その磁性は強く影響を受けており, 興味ある物質である。excess atomの影響という観点から言えば, 両者は同じmechanismをもつものと考えられる。この意味においても, Fe<sub>1+δ</sub>Sbについて, 液体ヘリウム温度での中性子回折実験を行ない, excess Feに対する知識を得る必要がある。

## 2 実 験

99.9%の電解鉄の粉末と99.9999% Sbの塊とを適量に秤量し, 870°Cで約1週間真空中で焼鈍し, 水中焼結した試料を, 細かく粉碎し, 再び上記の手続きをくりかえし, 一様な試料を得る事につとめた。実験に使用した試料はFe<sub>1.1</sub>Sbの粉末試料である。2θ = 32°の場合と2θ = 52°の場合とで測定された。

図4に10kにおける2θ = 32°の場合の中性子回折パターンを示す。整数の指数が付いているものが, nuclear peakで, そうでないものが, magnetic peakである。得られた

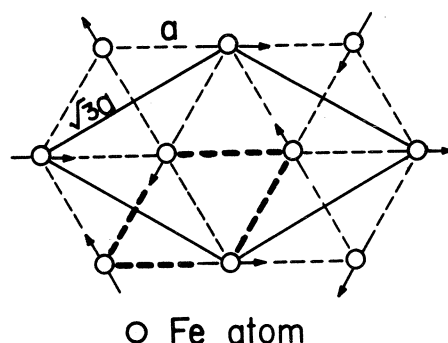
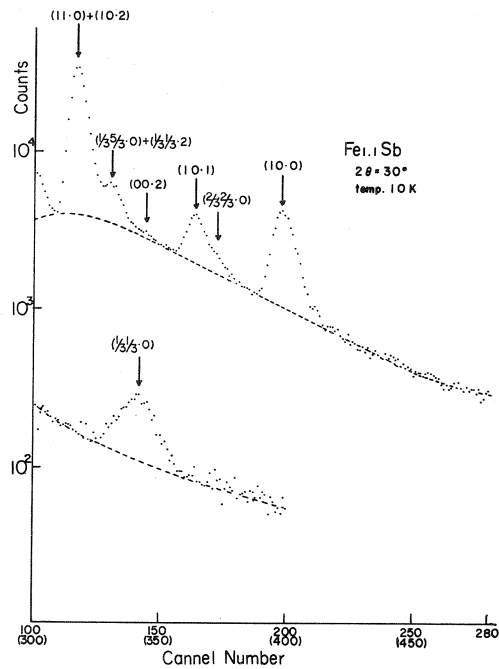


図3 Normal FeのC面内の磁気構造

太い破線はchemical unit cellを示し, 実線はmagnetic unit cellを示す。またC軸に沿って, 磁気モーメントは平行にそろっている。

\* この実験は原研3号炉内にあるTOG中性子回折装置を使用して行なわれたもの。

図4 Fe<sub>1.1</sub>Sb の中性子回折パターン

magnetic peakは、すべてnormal Feの磁気構造であるC面内三角配列の磁気構造をもつものばかりで、それ以外のmagnetic peakは観測されなかった。従って、10kでも、依然normal Feの磁気構造に変化はない事が分かったが、excess Feの磁気構造についての知識は得られなかった。

表1に比較的分離のよいnuclear peak及び、magnetic peakの観測値と計算値を $j|F|^2$ の値で示す。ただし、観測強度は

表 1

$$I = \frac{E}{i(\lambda)\lambda^4}$$

$$= j|F|^2 e^{-2w} A_s(\lambda)$$

(1)

で与えられる。ここに、 $j$ 及び $F$ は多重因子及び構造因子である。また $e^{-2w}$ ,

$A_s(\lambda)$ は、それぞれ、Debye-Waller因子、吸収の補正項であるが、小さいので無視する事ができる。

10kでの磁気モーメントは、 $0.88 \mu_B/\text{normal Fe atom}$ となり、単結晶による中性

$(h \quad k \quad l)$	$j F ^2_{\text{cal}}$	$j F ^2_{\text{obs.}}$
$(1 \quad 0 \quad 0)$	100.00	100.00
$(1 \quad 0 \quad 1)$	75.35	} 82.84
$(2/3 \quad 2/3 \quad 0)$	7.40	
$(1/3 \quad 1/3 \quad 0)$	9.47	9.47

子回折実験で得た normal Fe の磁気モーメントを絶対零度へ外挿した値とよい一致を示している。この様子を図 5 に示す。

### §3 考 察

中性子回折の実験結果から, normal Fe は, 低温側の帯磁率の anomaly を示す温度 (約 30 K) 以下においても, 依然 C 面内三角配列を保ち, excess Fe による影響はない。またその磁気モーメントは, 約  $1 \mu_B$  程度である。

normal Fe は excess Fe の影響

なしに, 比較的独立にイオン結晶的にふるまっているように見える。実際, normal Fe の ionic configuration を  $\text{Fe}^{3+}$  とし, 結晶場の影響を強く受けている low spin state であれば,  $1 \mu_B$  の磁気モーメントをもつ。従って,  $\text{Fe}_{1+\delta}\text{Sb}$  における電気伝導性は主に excess Fe によるものと考えられる。

所で, 遷移金属原子と Sb の金属間化合物の中で, CrSb, MnSb 等は, 結晶場の影響が少ない high spin state として説明され, 磁気モーメントも大きい。また FeSb, CoSb, NiSb はすべて, low spin state である。CoSb については著者のひとりが, 磁化測定を試みた結果, 非磁性体のようにふるまう事が分かり,  $\text{Co}^{3+}$  の電子状態が  $3d^6$  であり, low spin state では磁気モーメントをもたない事で説明が付く。以上のように, 遷移金属原子が Cr から Mn, Fe, Co と移るにつれて spin state が high spin state から low spin state へ移行する事は, d-electron の数が増加するにつれて, d-electron が結晶の結合に関与する程度が増大し, 遷移金属原子の Sb との距離が短くなり, その結果  $\text{Sb}^{3+}$  からの結晶場の影響が増大してゆくものと考えられる。

$\text{Mn}_{1+\delta}\text{Sb}$  についての偏極中性子回折実験は excess Mn は磁気モーメントを持たない事を示しているが, 磁化測定は Ferri 磁性を示し, excess Mn が, normal Mn と反強磁性的に結合している事でよく説明が付いている。この矛盾した結果に対する説明はないが,  $\text{Fe}_{1+\delta}\text{Sb}$  についても, 磁化測定の結果から excess Fe についての解釈を加える事は危険があると思われる。

今回は, excess Fe の少ない  $\text{Fe}_{1.1}\text{Sb}$  粉末試料を用いた実験であるため, excess Fe

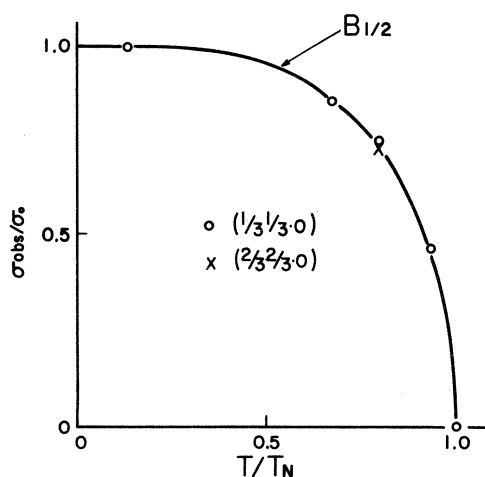


図 5 Normal Fe の磁気モーメントの温度変化

に関する知識は不明のままであった。 $\text{Mn}_{1+\delta}\text{Sb}$ の excess Mnのように excess Feも磁気モーメントを持たないという可能性も考えられる。また excess Feが磁気モーメントを持つ場合、MnとFeの電子構造的相違及び、各々の化合物等の磁性の違いといったものに対する知見を提供するものと考えられる。今後、以上の目的のために、単結晶試料 $\text{Fe}_{1.22}\text{Sb}$ を用いて、精密な中性子回折実験を行なう予定である。

## 謝 辞

磁化測定の際に協力をいただいた山内宏氏に感謝します。また中性子回折実験の際、協力をいただいた渡辺昇氏、新村信雄氏、ならびにLINACを運転して下さった方々、データ処理を行なって下さった方々に感謝します。

## 参 考 文 献

- 1) K. Yamaguchi, H. Yamamoto and H. Watanabe: J. Phys. Soc. Japan **31**('71)1041.
- 2) 日本物理学会予稿集(春の分科会) 1972年 p. 43.
- 3) L. M. Corliss, N. Elliott, J. M. Hastings and R. L. Sass: Phys. Rev. **121**('61)1402.

## II-4 単結晶試料による TOF 法の結晶構造解析への応用

核理研・金研\*

新村 信雄・富吉 昇一\*

渡辺 昇・木村 一治

### ABSTRACT

In order to check whether T-O-F method is reliable to apply to the structure analysis, we tried to collect the Bragg reflections of KBr. To exclude the extinction effect samples were dipped in the liquid nitrogen a few times. The structure factors were obtained by using the formula

$$I_0 \propto i(\lambda) \cdot \lambda^4 \cdot |F_0|^2$$

The coincidence of the calculated and the observed structure factor is very well. We can conclude that the T-O-F method is very powerful in application to the structure analysis.

### §1 序

中性子回折実験で通常の結晶法(モノクロメータを用い連続単色中性子を試料にあてる方法を以下結晶法と呼ぶ)と比較して種々の特徴がTOF法にあることは既に報告した<sup>1)</sup>。その中でも特に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、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、高い指数の Bragg 反射を測定できることのこれら三つの特徴は結晶構造解析に TOF 法が応用された時最も生かされることが考えられる。しかしそのための問題点もいろいろあるので今回は結晶構造が既知の臭化カリウム単結晶を用いて各種の問題点を検討してみることにした。

### §2 実験及び結果

実験には 7mm × 6mm × 6mm の KBr 単結晶を用いた。出来るだけ多くの Bragg 反射を集めること又、最も面間隔の長い 111 反射も同一の散乱角設定で得られる様散乱角は 90° にした。[100] 軸、及び [111] 軸を回転軸にして、Bragg 反射を収集した。35 ケの独立な反射を

集められた。

a) データ処理

i) バックグラウンドの差し引き

$$I_0 = \sum_{N=N_S}^{N_E} I_N - (I'_{N_S} + I'_{N_E}) \times \frac{N_E - N_{S+1}}{2}$$

但し、 $I_N$ は $N$ チャンネル

の強度、 $N_S$ 、 $N_E$ はブラッグ反射の山の始まりチャンネル及び終了チャンネル、 $I'_{N_S}$ 、 $I'_{N_E}$ は夫々 $N_S$ チャンネル、 $N_E$ チャンネル前後3～5チャンネルの平均値をとっている (Fig. 1 参照)。

ii)  $i(\lambda)$ 及びカウンターの効率の波長依存性の補正

入射中性子強度の波長分布 $i(\lambda)$ の測定は、バナジウムが完全な非干渉性散乱体に近いことを利用して、1mm厚みのバナジウム板をサンプル台におき、試料を測定した時と同一の条件で測定する。こうすることによりカウンターの効率の波長依存性も同時に測定できる。

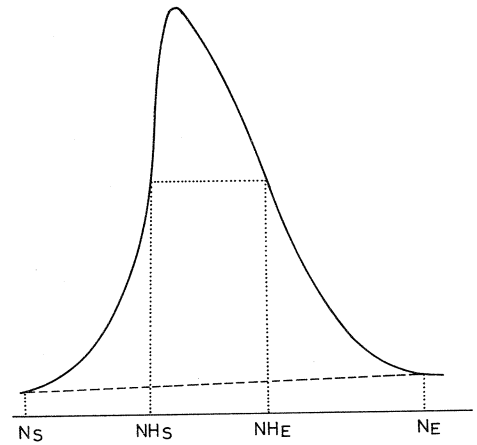


Fig. 1

あるBragg反射の $i(\lambda_0) \cdot E(\lambda_0)$ は次の様に求めた。

$$i(\lambda_0) \cdot E(\lambda_0) = \frac{1}{NH_E - NH_{S+1}} \sum_{NH=NH_S}^{NH_E} i(\lambda)_{NH}$$

$NH_S$ 、 $NH_E$ はBragg反射の半値巾の始まりのチャンネル及び終りのチャンネル、 $i(\lambda)_{NH}$ はバナジウムによる散乱の $NH$ チャンネルの強度である (Fig. 1 参照)。

iii) 吸収の補正

中性子の吸収断面積は波長依存性があるためこの補正も大変困難である。しかしかなりの元素に対する中性子の熱中性子領域での吸収断面積は $1/v$ 法則にのるので、それを利用して次の様に行う。

$$A(\lambda) = \exp\left\{-\sum_S N_S \sigma_S(\lambda) l\right\}$$

$$\sigma_S(\lambda) = \frac{\sigma_S(\lambda_0)}{\lambda_0} \cdot \lambda$$



ここで  $N_S$  は  $S$  元素の単位体積当りの箇数,  $\sigma_S(\lambda)$  は波長  $\lambda$  の中性子の吸収断面積,  $l$  は試料を球あるいは回転軸が母線となる円筒形とした時の直径である。

### b) 観測結晶構造因子の導出

以上の補正を施し  $|F_0|$  を求めた。但しその時用いた強度式は

$$I_0 \propto |F_0|^2 \cdot \lambda^4 \cdot A(\lambda) \cdot i(\lambda) \cdot E(\lambda)$$

である。このようにして求められた  $|F_0|$  の値を Table 1 にしておく。又, X線により求められている温度因子,  $K$  については  $2.06 \text{ \AA}^2$ , Br については  $1.92 \text{ \AA}^2$  を用いて計算した値を  $F_c$  として同時に記しておく。

### c) 観測値の精度

観測値の精度は Bragg 反射の起こすチャネルとその反射の構造因子に依る。KBr では,  $h+k+l = \text{even}$ , と  $h+k+l = \text{odd}$  でその構造因子が異なるので夫々に分けて精度とチャネルとの関係を求めると Fig. 2 の様になる。70 チャネルまでは精度よく反射強度を集められることがわかる。

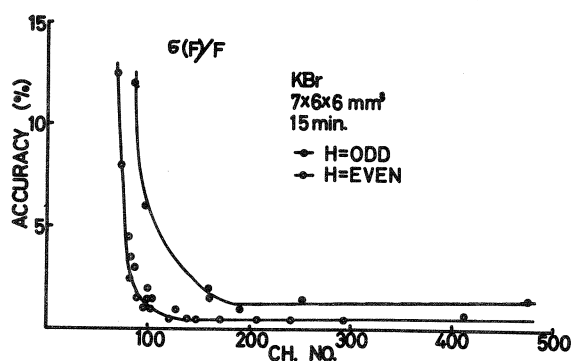


Fig. 2 The channel number dependence of the accuracy of the observed structure factor.

Table 1

$h$	$k$	$l$	$F_0$	$F_c$
1	1	1	1.03	1.29
0	0	2	2.10*	3.96
2	2	0	2.91*	3.84
1	1	3	1.24	1.21
2	2	2	3.24	3.73
0	0	4	3.17	3.62
3	3	3	1.15	1.14
2	2	4	3.33	3.41
3	3	3	1.10	1.08
1	1	5	1.03	1.08
4	4	0	3.31	3.21
4	4	4	3.19	3.12
0	0	6	3.01	3.12
2	2	6	3.09	2.94
4	4	4	3.03	2.85
0	0	8	2.43	2.53
4	4	6	2.48	2.45
2	2	8	2.54	2.38
6	6	0	2.40	2.38
5	5	5	0.75	0.75
2	6	6	2.48	2.31
6	6	4	2.74	2.11
4	4	8	2.00	1.99
3	3	9	0.73	0.63
0	0	10	1.88	1.93
6	6	6	2.05	1.82
2	2	10	1.71	1.82
8	8	0	1.55	1.57
4	8	8	1.25	1.39
0	0	12	0.86	1.39

\*印は消衰効果のためと思われる。

### §3 考 察

§2で判明したように構造因子の実験値と計算値がかなりよく一致したことより用いた強度式は適当だったと考えられる。しかし各種の補正の仕方は大変あらく今後更に改良してゆく必要があると思われる。

i) 吸収の補正……各 $\lambda$ の吸収断面積をデータに与えて内挿法ですべての $\lambda$ の吸収断面積を求める。

ii) バナジウムの吸収の補正はしていないので $i(\lambda) \cdot E(\lambda)$ の精度をあげる。

iii) 高い次数の反射は隣りの反射とオーバーラップして真の積分強度を取り出すのが困難である。これを取り除くのに実験的には、モデレーターを軽水でなくボロンを溶かすとかしてパルスの中をせまくする等がある。又得られたBragg反射のプロファイルを適当な実験式で表現して、それを積分する方法とがある。

#### iv) 消衰効果の補正

結晶法でも消衰効果の補正を完全に行うことは大変困難である。TOF法でも同様の困難さはあるが、しかし波長依存性としての測定が可能である<sup>1)</sup>ことから、むしろTOF法では適当な補正法が開発出来そうである。これについては現在、アルミニウムやKBrで、散乱角を変化させ一つの反射をいろいろな波長でとって検討するという初歩的な段階から検討を始めている。すでに著者らは核理研研究報告で単結晶試料でのTOF中性子回折法で構造解析への応用に適していることを報告してきた。特に近年X線結晶構造解析の精度が向上していくのに対し中性子による通常の方法(結晶法)では高い次数の反射を精度よく観測できない(通常結晶法では一度結晶モノクロメータを通してビームを単色化する過程を経るため高次の反射は広巾なピークになる)。このためX線と中性子線による結晶構造解析の比較から何らかの知見を得ようとする際、常に中性子線回折による結果の精度が問題になる。このような本質的な欠点を結晶法にはつきまとうのに対し、TOF法には、それがないのは結晶構造解析への応用に最適と考えられる。

この実験に際し種々の援助をいただいた、核理研マシニンググループ、計測グループ、中性子回折グループの方々に感謝致します。

### 文 献

- 1) 新村信雄他：核理研研究報告 vol. 4, No. 2(1972)55.

II-5 反強磁性  $\text{Au}_2\text{Mn}$  の結晶構造と磁気構造

東北大核理研・東大物性研\*

新村 信雄・茂木 博\*

## ABSTRACT

Possible existence of polymorphism in  $\text{AuMn}_{0.5}$  structure was surveyed using pulsed neutrons. Weighed amounts of gold and manganese were melted in an argon arc furnace. The ingots were then maintained in an induction furnace in an argon atmosphere slightly above one atmosphere at  $690^\circ\text{C}$  for 10 hrs, and then cooled very slowly. The cooling rate was a few degrees per an hour. The crystal is orthorhombic, with one formula unit in a cell of dimensions;  $a=3.14\text{\AA}$ ,  $b=3.18\text{\AA}$ ,  $c=3.29\text{\AA}$ . The space group is  $P2_22$ . Figure 1 shows the determined crystal structure of  $\text{AuMn}_{0.5}$  and the magnetic structure of  $\text{AuMn}_{0.5}$  was found to be "Collinear Spin Structure". It was found that our sample of  $\text{AuMn}_{0.5}$  was a new polymorph.

## §1 序

金とマンガンは各種の組成比で合金を作り大変複雑な相図が出来、報告されている<sup>1)</sup>。その中で  $\text{Au}_2\text{Mn}$  については体心正方格子の  $\text{CaC}_2$  型の結晶構造で、スクルースピン構造をとることが報告されている<sup>2)</sup>。著者らは従来報告されているのとは異った構造を持つ  $\text{Au}_2\text{Mn}$  を見出したので、その結晶構造及び磁気構造を決定した。

## §2 実 験

金 4.70 g, マンガン 6.56 g をアーク炉の中でマンガンがとばないようにヘリウムガス 1 気圧の雰囲気中で溶解混合し、Au-Mn 合金のインゴットを作製した。このインゴットを細断後高周波炉でヘリウムガス 1 気圧の雰囲気中で溶解後（融点  $730^\circ\text{C}$ ） $5^\circ/\text{分}$  の速度で室温まで温度を下げた後単結晶炉に入れ  $690^\circ\text{C}$  の温度から  $30^\circ/\text{日}$  の速度でゆっくり温度を下げ  $600^\circ\text{C}$  にした。

600°C で2日程アニールを行った後、室温に下げた。

出来た試料はX線ラウエ写真により単結晶であることを確認した。比重の実測値は11, 化学分析の結果  $\text{Au}_2\text{Mn}$  合金であることが確認された。

単結晶試料を細断し, X線振動写真及びワイゼンベルグ写真を撮った。中性子回折実験には, 3mm × 3mm × 5mmの単結晶試料を用い, 東北大300MeVリニアックにより得られたパルス中性子で中性子回折を行った。

### §3 結 果

#### 1) 結晶構造

結晶は斜方晶系に属し, 格子定数は  $a = 3.14 \text{ \AA}$ ,  $b = 3.18 \text{ \AA}$ ,  $c = 3.29 \text{ \AA}$  で空間群は  $P_{222}$  である。比重の実測値が11であるから単位格子に含まれる成分数  $z$  を計算すると  $z = 0.5$  となり  $\text{AuMn}_{0.5}$  という組成と考える方が結晶学的には妥当であろう。パッキングを考慮し, 空間群  $P_{222}$  の対称性を満足する結晶構造は Au が  $(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$  と Mn が  $(0, 0, 0)$  に  $1/2$  の disorder を考えた Fig. 1 が一義的に決定される。

この構造で中性子線による結晶構造因子を計算すると

$$F(hkl) = \frac{b_{\text{Mn}}}{2} + b_{\text{Au}} \cos \pi(h+k+l)$$

で  $h+k+l = \text{even}$

$$F_{hkl} = \frac{b_{\text{Mn}}}{2} + b_{\text{Au}} = 0.578 \times 10^{-12} \text{ cm}$$

$h+k+l = \text{odd}$

$$F_{hkl} = \frac{b_{\text{Mn}}}{2} - b_{\text{Au}} = -0.948 \times 10^{-12} \text{ cm}$$

中性子回折強度が,  $h+k+l = \text{偶数}$  の反射は弱く,  $h+k+l = \text{奇数}$  の反射は強いことになる。表1に  $|F_0|^2$  の  $[010]$  方向,  $[101]$  方向,  $[111]$  方向での実測値を示す。上に述べた指数の条件が成立していることがわかる。但し, Auの吸収断面積が大きいこと ( $\sigma_{\text{Au}} = 98.8 \text{ barns}$ ,  $\lambda = 1.81 \text{ \AA}$ ) 及び, この結晶は複雑な双晶構造をしており, 未だ各双晶成分の大きさを決定するに至っていないので rod 間の強度関係は得られていない。但し表1の値も吸収の補正をしてあるとはいえ, Au程の大きな吸収断面積を持つものには吸収の補正にどれ程意味があ

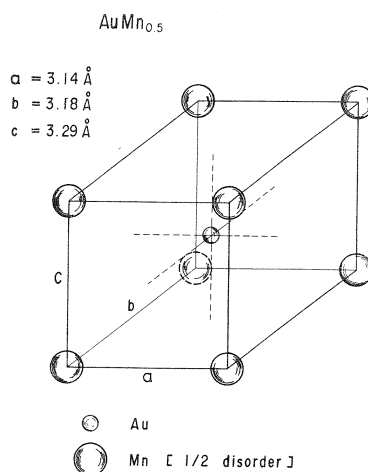


Fig. 1 The crystal structure of  $\text{AuMn}_{0.5}$

るか疑問である。

温度因子を考慮に入れると表1の結果は指数の関係が $h+k+l$   
=偶数の時反射強度が強く、 $h+k+l$ =奇数の時強いという傾向  
はよく一致している。

## 2) 磁気構造

中性子回折で反強磁性構造に起因する磁気散乱を観測した。得ら  
れた反射は $0\ 1/2\ 0$ ,  $0\ 3/2\ 0$ ,  $0\ 5/2\ 0$ ,  $1\ 1/2\ 1$ ,  
 $1\ 3/2\ 1$ で、これらの反射を説明する磁気構造をFig. 2に示  
す。b軸方向に周期が2倍になった、よく知られたco-linear  
な反強磁性体である。

$0\ 1/2\ 0$  磁気反射の温度変化を測定してみた。Fig. 3に積  
分強度の温度変化の様子を示してある。165°Cで磁気散乱が消失  
し常磁性体になる。

約110°C近辺に結晶の対称性が高くな  
る転移点がある。Fig. 4に29°Cと  
116°Cでの $0\ 2\ 0$ ,  $0\ 0\ 2$ 反射のプロフ  
イルを示す。110°Cより上での結晶構造  
は未だ決定していない。

結晶構造、磁気構造ともに解析は現在  
進行中で、その結果は後日報告する予定  
である。

この実験に際し種々の援助をいただいた、  
核理研マシングループ、計測グルー

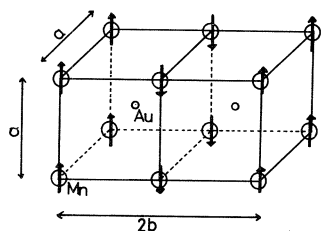


Fig. 2 The magnetic structure of  $\text{AuMn}_{0.5}$

表 1

$h$	$k$	$l$	$k F_0 ^2$
0	1	0	402.7
0	2	0	8.4
0	3	0	14.1
0	4	0	1.5
0	5	0	5.1
1	1	1	168.7
2	2	2	9.2
3	3	3	18.2
4	4	4	
1	0	1	110.4
2	0	2	13.7
3	0	3	4.9
4	0	4	1.7

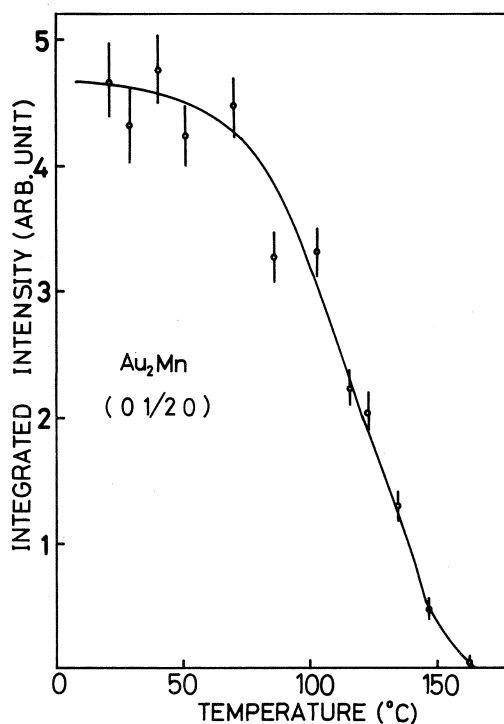


Fig. 3 The temperature dependence of the integrated intensity of the  $0\ 1/2\ 0$  magnetic reflection

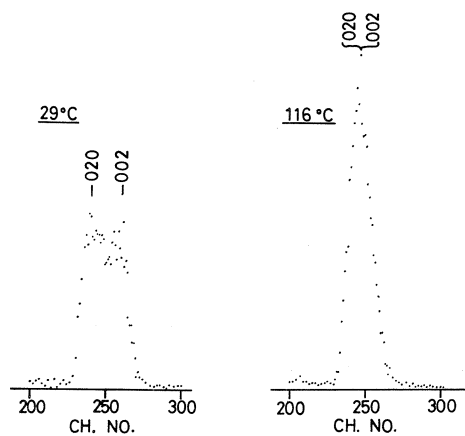


Fig. 4 The profiles of 020  
and 002 reflections at  
29°C and 116°C

中性子回折グループの方々に感謝致します。

#### 文 献

- 1) E. Raub, U. Zwicker and H. Baur: Z. Metallkunde, 44(1953)312.
- 2) A. Herpin, P. Meriel and J. Villain: C. R. Acad. Sci. Paris, 249(1959), 1334.

## II-6 中性子回折による $\text{Mn}_3\text{Si}$ の磁性の研究

東北大金研・核理研\*

富吉昇一・渡辺 昇\*・新村信雄\*

木村一治\*・渡辺 浩

### §1 序 論

単体のマンガンは $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ ,  $\delta$ の結晶構造の違う4つの相をもつ金属であるが、磁性に於てもそれに伴って色々興味ある性質を示すので、最近金属マンガンの磁性の研究がさかんに行われるようになった。しかし、4つの相のうちbcc構造の $\delta$ -Mnは、 $1143^\circ\text{C} \sim 1244^\circ\text{C}$ の高温でのみ安定なので、低温に於ける磁気的性質はほとんど明らかになっていない。MnとCr, V等との合金に於ては、50%Mnまでbcc相は安定であるが、Mnの濃度がそれ以上増すと、他の相に変わるので合金化した場合も安定なMn成分の多いbcc相を得ることは難しい。

ところで、 $\text{Mn}_3\text{Si}$ は図1に示すような $\text{Fe}_3\text{Al}$ 型の結晶構造をもつ規則合金である<sup>1)</sup>。この結晶構造でMnはA siteとD siteの2種のsiteを占める。A siteのMnは4ケのD siteのMnと4ケのSi原子により囲まれる立方体の体心の位置を占め、D siteのMnは8ケのA siteのMn原子により囲まれる立方体の体心を占める。従って、D siteのMnについて考えたとき、最近接原子のみが原子の電子状態に大きい影響を与えるものと仮定すれば、bcc Mnに非常に近い状態にあると予想される。

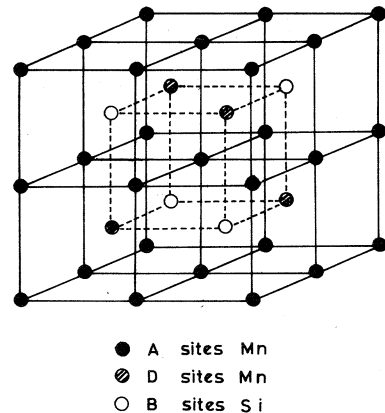


図1  $\text{Mn}_3\text{Si}$  の結晶構造

$\text{Mn}_3\text{Si}$ と同じ結晶構造をもつものはMnの場合他に見出されていないので、比較検討することは出来ないが、Feの場合、 $\text{Fe}_3\text{Al}$ ,  $\text{Fe}_3\text{Si}$ の2つの相があり、しかも、Fe-Al, Fe-Si系では、bcc Feから連続してbcc相が安定であるので、この系列は色々な面からくわしく研究されている。 $\text{Fe}_2\text{Al}^{2)}$ ,  $\text{Fe}_3\text{Si}^{3)}$ の偏極中性子回折の実験によると、 $\text{Fe}_3\text{Al}$ ではA siteのFeの磁気モーメントは $1.5\mu_B$ , D siteは $2.2\mu_B$ ,  $\text{Fe}_3\text{Si}$ の場合には、A siteのFeの磁気モーメントは $1.2\mu_B$ , D siteは $2.4\mu_B$ である。bcc Feの磁気モーメン

トが $2.2\mu B$ であることを考えると、A siteのFeのモーメントはAl及びSiとのbondingにより減少するが、D siteのFeはbcc Feとはほぼ同じモーメントを持っていて、 $d$ -電子の状態はbcc Feに近い状態を保っていると考えられる。安定なbcc相が得られないことを考慮すれば、 $Mn_3Si$ に於けるD siteについての情報はbcc Mnを推定するうえに重要な意味を持つと思われる。

Mn原子間のexchange interactionの距離依存性はこれまで、半経験的にBethe-Slater curveに乗ることが知られている。 $Mn_3Si$ の場合、最近接原子間距離 $d = 2.477 \text{ \AA}$ であり、Bethe-Slater curve からいうとMn-Mn原子間には強い反強磁性的な相互作用が働くことが期待される<sup>4, 5)</sup>。現在まで $Mn_3Si$ の磁気的性質に関する研究はほとんど行われておらず、帯磁率の測定からweak ferroの様子を示すことが知られているだけである。しかし $Mn_3Si$ の試料には必ず他の相がまざり磁気測定のみからは、はっきりしたことはわからない。我々は以前に液体窒素温度に於て、中性子回折の実験を行ったが磁氣的オーダーは見出されなかった<sup>6)</sup>。今回は単結晶を用い、ヘリウム温度に於て中性子回折の実験を行ったので、その結果を報告する。

## §2 実 験

Mn-Si系の相図の75% Mn附近はかなりこみいっていて、粉末試料のX線写真に必ずわずかではあるが他の相が見られ、粉末の純粋な $Mn_3Si$ を作製することは困難である。今度用いた粉末試料にも少し他相が含まれている。粉末試料の中性子回折の実験は散乱角 $32^\circ, 52^\circ$ のDebye-Scherrer装置を用いて行った。試料をヘリウム温度まで下げるために試料部分にExchange Gasを入れ、Exchange Gasが良く冷えるようにcryostatを改造した。これによりかなり大量の試料を約 $10^\circ K$ まで一様に下げることが出来るようになった。図2に $10^\circ K$ で測定した散乱角 $32^\circ$ の $Mn_3Si$ 粉末試料のDebye-Scherrer patternを示す。このpatternで液体窒素温度で測定した場合に見出されなかったNuclear peak以外に320 channelと430 channelに小さいpeakがあることが明らかになった。これは多分磁気散乱によるものと思われる。320 channelのpeakは100と指数づけられるようであるが、430 channelのpeakに当る指数は見当たらない。前にも述べたように、 $Mn_3Si$ の粉末試料には他相の混入は避けられないので、更にはっきりさすために、単結晶試料による測定を行った。

単結晶は、融点より少し高い温度より $50^\circ C/h$ 程度の速度で徐々に温度を下げて作った。直径1cm程度のかかなり大きい結晶が得られた。測定は単結晶用回折装置を用い散乱角は $90^\circ$ 及び $50^\circ$



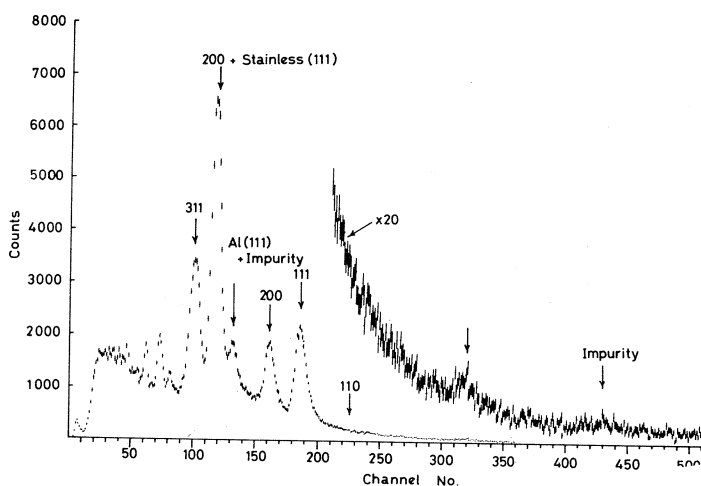


図2 10°Kで測定した $\text{Mn}_3\text{Si}$ 粉末試料のDebye-Scherrer pattern. 200~512 channelの縦軸を20倍にして示した。

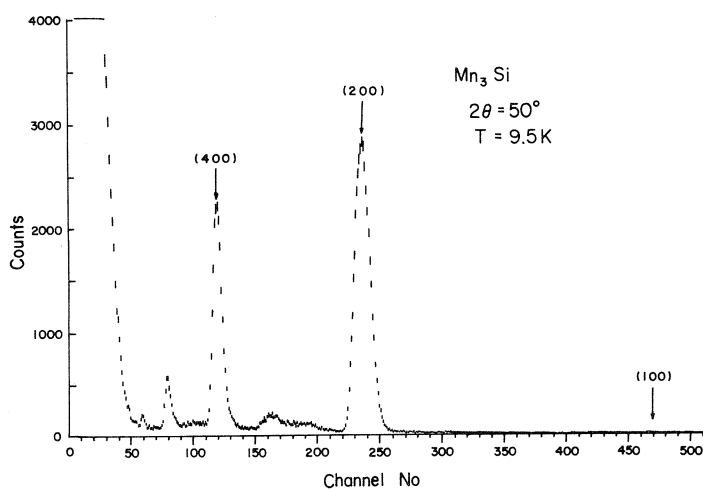


図3  $\text{Mn}_3\text{Si}$ 単結晶の〔200〕面反射の pattern. 150~200 channel当りに現われているのは cryostatからの散乱によるものである。

について行った。図3に $T = 9.5^\circ\text{K}$ で測定した〔100〕面の回折図を示す。単結晶の場合には 100 peakは全く現われなかった。またNuclear peak以外のpeakは、この面による反射には表われなかった。図3で150~200 channelに見られる山はcryostatからきたものである。同様の測定を〔111〕面について行ったがNuclear peak以外何も見出されな

った。次に Nuclear peak と Magnetic peak が重なっている可能性があるので 200 peak と 111 peak の温度変化を測定した。その結果を図 4 に示すが、それぞれのピークの温度変化は全く認められなかった。

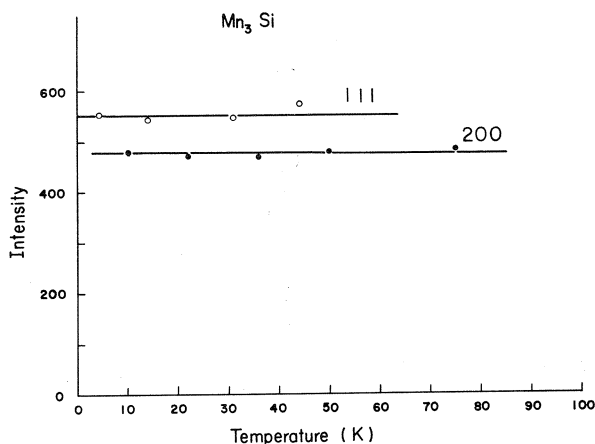


図 4  $\text{Mn}_3\text{Si}$  の 200 と 111 回折線の温度変化

### § 3 議 論

粉末試料の測定に於て magnetic peak らしきものが観測されたが、単結晶では全く magnetic peak が認められなかった理由は、粉末試料では他相の混入があり、 $\text{Mn}_3\text{Si}$  以外の相の magnetic peak が観測されたことによると考えられる。

D site の Mn の磁気モーメントが chemical unit cell と同じ大きさの magnetic unit cell をもってオーダーしたとすると必ず、回折 pattern に 110 peak が観測されるはずであるが<sup>4)</sup>、110 peak が出ていないので、D site の Mn は磁気モーメントを持っていないか、あるいは、もっていてもネール点がヘリウム温度以下であるかのいずれかである。他方 A site の Mn の場合は unit cell の大きさ、及びスピン構造は色々な場合が考えられるが、magnetic unit cell と chemical unit cell は等しく、スピン構造は一番簡単な collinear model を取るとすると、100, 110, 111 等のいずれかの magnetic peak が現われるはずであるが、実際には観測されていないので、A site の Mn も D site と同様磁気モーメントを持たないが、ネール点が低いかのいずれかであろう。多分  $\text{Mn}_3\text{Si}$  の Mn は磁気モーメントを持たないのではないかと考えるのが妥当であろう。

Mn-Si 系において  $\text{MnSi}$ <sup>7)</sup>、 $\text{Mn}_5\text{Si}_8$ <sup>8)</sup> が磁性をもった物質として知られている。 $\text{MnSi}$  は 38°K にキュリー点をもつ強磁性体で Mn 当りの飽和磁気モーメントは  $0.39 \mu_B$  である。また

$\text{Mn}_5\text{Si}_3$  は  $68^\circ\text{K}$  にネール点をもつ反強磁性体であり、各 Mn の site により磁気モーメントの大きさが異なり、 $0\mu\text{B}$ ,  $0.4\mu\text{B}$ ,  $0.3\mu\text{B}$ ,  $1.1\mu\text{B}$  の各値をもつことが報告されている。いずれも磁気変態点は低く、また磁気モーメントの値も小さい。 $\text{Mn}_5\text{Si}_3$ ,  $\text{MnSi}$  の場合には、Si の組成が多いので当然 Si 原子の  $3s$ ,  $3p$  electron との bonding が強く、Mn のモーメントを小さくしているものと考えられる。 $\text{Mn}_3\text{Si}$  と同じ結晶構造の  $\text{Fe}_3\text{Si}$  の場合、A Site の Fe 原子は 4 ケの Fe と 4 ケの Si により囲まれているために Si による影響が大きく、磁気モーメントは  $\text{bcc Fe}$  と比べて、40% の減少を示している。しかし D site の Fe 原子は、8 ケの Fe により囲まれているために Si による影響をほとんど受けず、磁気モーメントの大きさも  $\text{bcc Fe}$  とほぼ同じ大きさである。 $\text{Mn}_3\text{Si}$  の D site の Mn の状態と、 $\text{bcc Mn}$  の状態の関係が、 $\text{Fe}_3\text{Si}$  と  $\text{bcc Fe}$  の関係と同じようであるとすれば  $\text{bcc Mn}$  はこの実験結果より磁気モーメントを持っていないのではないかと推定される。今後さらに  $\text{bcc Mn}$  に関する実験的及び理論的研究が望まれる。

最後にライナックを運転して下さった方々、及び計測グループの方々に感謝いたします。また、実験を手伝って下さった ND グループの方に感謝致します。

## 文 献

- 1) B. Aronsson: Acta Chemica Scandinavica, **14**(1960)1414.
- 2) S. J. Pickart and R. Nathans: Phys. Rev. **123**(1961)1163.
- 3) A. Paoletti and L. Passar: IL Nuovo Cimento Vol. 32 (1964) 1449.
- 4) 山田竹実, 国富信彦: 物性 Vol. 9 (1971)249.
- 5) 遠藤康夫, 石川義和: 固体物理 Vol. 5 (1970)245.
- 6) 富吉昇一, 鈴木隆司, 渡辺 浩, 木村一治, 渡辺 昇, 山田幸男, 小山田正幸, 高橋文信: 核 理 研 報 告 Vol. 3, No. 1 (1970)94.
- 7) H. J. Williams, J. H. Wernick, R. C. Sherwood and G. K. Wertheim: J. Appl. Phys. **37**(1966)1256.
- 8) G. H. Lander, P. J. Brown and J. B. Forsyth: Proc. Phys. Soc. **91**(1967)332.

## II-7 Cu-Mn 合金単結晶の短範囲規則配列

金研      山口貞衛・鎌田圀尚・平林 真

### §1 緒 言

Cu-Mn系合金は高温において置換型全率固溶体であり面心立方構造をもつ。この合金系の熱分析、電気抵抗、常磁性帯磁率などの研究から25at%Mn近傍の組成域において、短範囲規則の存在が予測されている。

原子配列の短範囲規則による散漫散乱の振巾は構造原子の散乱因子の差に比例する。Cu-Mn合金の場合には互に原子番号が近接しているため、X線回折強度に対する短範囲規則の寄与は非常に少い。これに対して中性子回折では、CuとMnの散乱振幅はそれぞれ $b_{\text{Cu}} = 0.76 \times 10^{-12}$  cm,  $b_{\text{Mn}} = -0.36 \times 10^{-12}$  cmであるから、X線回折に比べはるかに有利である。また、T. O. F. 中性子回折法は逆格子空間内で原点を通る線上の強度分布が同時に得られるので散漫散乱強度の空間的分布を能率よく測定ができる利点をもつ。

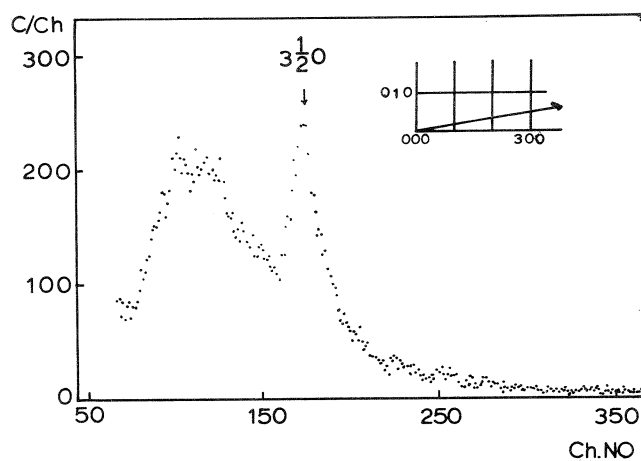
このような利点をもつT. O. F. 中性子回折により、Cu-Mn合金における短範囲規則散漫散乱強度を単結晶合金試料について測定し、CuおよびMn原子の短範囲規則度を定量的に求める目的で本研究を行なった。

### §2 実験方法

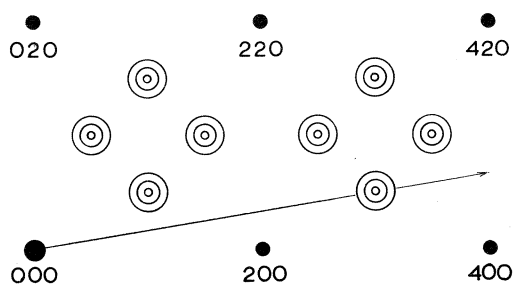
無酸素銅(99.99%)とジョンソン・マッセイ社の高純度Mn(99.9%)を配合して高周波真空溶解後、ブリジマン法で直径約10mmの球形単結晶を作製した。単結晶試料の組成は27.2および19.3at%Mnの2種で、格子定数はそれぞれ3.707および3.680Åであった。両者はともに800°C2日の均一化処理を経て、250°Cから145°Cまで79日にわたって段階的に冷却した。なお、中性子強度の測定はカウンター角90°で行なった。

### §3 結 果

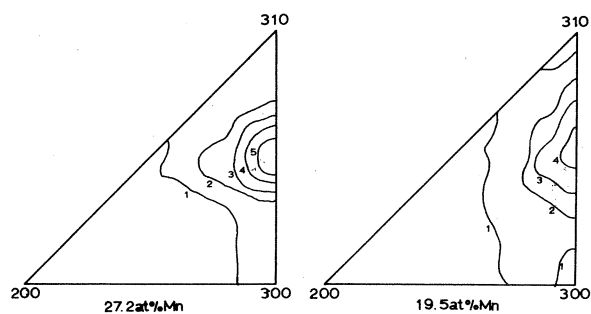
逆格子 $hko$ 面上において、1試料当たり14本のスペクトルを求めた。その1例を第1図に、また $hko$ 面における散漫散乱分布の模式図を第2図に示す。第3図は標準化した短範囲規則散漫散乱強度分布である。強度の標準化は多結晶ヴァナジウムより求めた中性子強度分布を用いて行なった。第3図において、組成の違いによる散漫散乱強度の極大の位置の変化は認められない。し



第 1 図



第 2 図



第 3 図

かし、19.5 at % Mn の散漫散乱は 27.2 at % Mn のそれよりも  $[010]$  方向へ多少のびた強度分布を示す。

標準化した強度をヴァナジウムの非干渉性散乱強度と比較することによりラウエ単位に換算した。この換算した強度から次の関係により二次元の短範囲規則度  $A_{lm}$  が得られる。

$$A_{lm} = \sum_{h=0} \sum_{k=0} I_{\text{Laue}} \cos 2\pi(hl + km) \Delta h \Delta k$$

27.2 at% Mn 合金で得られた  $A_{lm}$  の値を表 1 に示す。三次元短範囲規則度  $\alpha_{lmn}$  は原理的には  $A_{lm} = \sum_n \alpha_{lmn}$  の関係より求めることができる。表 2 に  $Z$  の関係を用いて求めた  $\alpha_{lmn}$  の値を示す。比較のため完全に規則化した  $\text{Ni}_4\text{Mo}$  型規則構造における  $\alpha_{lmn}$  の値を併せて示している。数値は各  $lmn$  につきほぼ一致し、Cu-Mn 系の短範囲規則配列は  $\text{Ni}_4\text{Mo}$  型の短範囲規則と類似するものと推定される。

なお本研究結果の一部は昭和 47 年 4 月、日本金属学会春期大会で発表した。

第 2 表 3 次元パラメータ  $\alpha_{lmn}$ 

$\alpha_{lmn}$				
$l$	$m$	$n$	27.2 at% Mn	$\text{Ni}_4\text{Mo}$ 型
0	0	0	1.000	1.000
1	1	0	-0.117	-0.250
2	0	0	0.138	0.167
2	1	1	0.057	0.167
2	2	0	-0.047	-0.250
3	1	0	-0.004	-0.042
2	2	2	-0.096	-0.250

第 1 表 2 次元パラメータ  $A_{lm}$ 

$l$	$m$	$A_{lm}$
0	0	1.675
1	0	-0.242
1	1	-0.003
2	0	0.056
2	1	0.173
2	2	-0.195
3	0	-0.008
3	1	-0.025
3	2	0.043
4	0	0.200
4	1	-0.079
3	3	-0.010
4	2	0.006
4	3	-0.076
5	0	0.032
5	1	-0.005
5	2	0.004
4	4	0.028
5	3	-0.001
6	0	0.004
6	1	0.034
6	2	-0.032
5	4	-0.016
6	3	0.016
7	0	-0.004
5	5	0.006
7	1	0.013
6	4	0.013
7	2	0.012

## II-8 Molecular dynamics of $\text{H}_2\text{O}$ in crystalline $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$

非水研・核理研\*

安川民男・渡辺 昇\*

There are various types of bonding of  $\text{H}_2\text{O}$  molecules in crystals and Chidambaram<sup>1</sup> classified them into 12 types. Among them, that of  $\text{H}_2\text{O}$  in  $\text{K}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$  is a singular one; lone pair of  $\text{H}_2\text{O}$  molecule is not specifically directed to any of the surrounding atoms and ions. In this respect, several workers studied molecular motions of  $\text{H}_2\text{O}$  in this crystal. For example, Prask and Boutin<sup>2</sup> reported the neutron up-scattering spectra of  $\text{K}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$  and  $\text{K}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot \text{D}_2\text{O}$  and discussed the torsional and translational motions of water molecule in these crystals. However, their spectra were ill-resolved and insufficient for the detailed discussions of molecular dynamics of this crystal.

In the present work the down-scattering spectrum of  $\text{K}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$  was measured by pulsed neutrons from a LINAC of the Laboratory of nuclear science, Tohoku University. Details of facility and experimental conditions were practically identical to those of previous works.<sup>3</sup>

Figure 1 shows the down-scattering spectrum of powdered  $\text{K}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$  (density,  $0.5\text{g}/\text{cm}^3$ ) observed at room temperature.

Strong peaks around  $500\text{ cm}^{-1}$  originate from librational motions of  $\text{H}_2\text{O}$ . The peak around  $190\text{ cm}^{-1}$  was tentatively assigned to hydrogen bond stretching by Prask and Boutin.<sup>2</sup> To certify the assignment of vibrational modes, Raman spectra of this sample were measured. Figure 2 shows the laser Raman

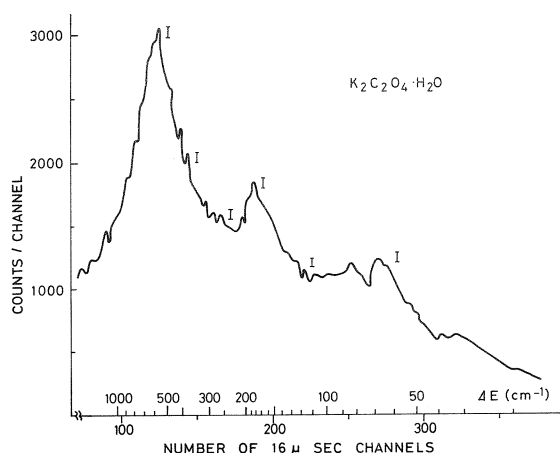


Fig. 1. ND spectrum of  $K_2C_2O_4 \cdot H_2O$

spectra of  $K_2C_2O_4 \cdot H_2O$  and  $K_2C_2O_4 \cdot D_2O$  observed at room temperature. IR spectra of these samples were reported by several workers and Fukushima<sup>4</sup> assigned vibrational modes by normal coordinate treatment. In Table 1 are summarized the frequencies of vibrational modes observed by ND, Raman and IR method. In ND spectrum all vibrational modes are observed while only  $A_u$  and  $B_u$  species are observable by IR spectrum by virtue of selection rule and for-

bidden bands are observed by Raman spectrum. Thus, the correspondence between ND and (IR, Raman) is fairly agreeable.

Detailed investigations on the frequency distribution in  $K_2C_2O_4 \cdot H_2O$  will be presented in a near future.

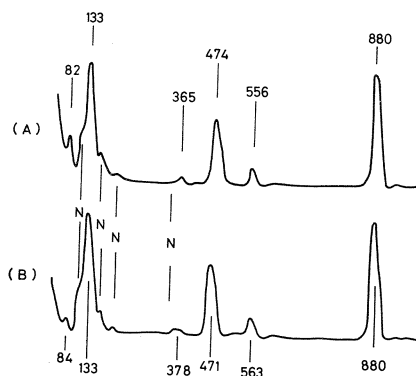


Fig.2. Laser Raman spectra ( $Ar^+$  300 mV) observed at room temperature  
(A)  $K_2C_2O_4 \cdot H_2O$   
(B)  $K_2C_2O_4 \cdot D_2O$



Table I. Frequencies of vibrational modes of Crystalline  $K_2C_2O_4 \cdot H_2O$  (observed at room temperature).  
 ND, neutron scattering: Raman, Raman scattering:  
 IR, infrared absorption.

Sample	Method	Frequency ( $cm^{-1}$ )				
$K_2C_2O_4 \cdot H_2O$	ND	880	720	480,	220, 210, 190	68
			610	420, 380	120, 110, 98	
			550	280, 260	84	
"	RAMAN	880	556	471	133, 82	
				365		
"	IR <sup>4)</sup>	758	718		210, 190	56
			614		160, 129	
			524	351	115, 92	
			libration			

## REFERENCES

- 1) R. Chidambaram, A. Sequeira and S.K. Sikka, J. Chem. Phys., 41, 3616 (1964).
- 2) H.J. Prask and H. Boutin, ibid, 45, 699 (1966).
- 3) T. Yasukawa et al., This Report, Vol. 4, No.2.
- 4) K. Fukushima, Bull. Chem. Soc. Japan, 43, 39, L313 (1970).

## II-9 パルス電子線によるイオン結晶の 光学的研究(7)

理学部物理

上田正康・平井正光・近藤泰洋

吉成武久・唐沢 力

### 1 序

アルカリハライド結晶中の色中心の生成消滅機構を解明する目的で、今までパルス電子線照射によって生ずる色中心、及び緩和励起子の三重項状態の過渡的な生成消滅を、光学的手段を用いて測定してきた。今回は、従来F中心生成機構として最も妥当と考えられてきたExcitonic Mechanismの提案の根拠となったKI結晶を中心に実験を行った。比較のため、KCl結晶についても実験を行った。実験装置、使用条件は、前回と同様である。

### 2 結果及び考察

#### 2-1 KI

##### 2-1-1 三重項励起子

118KでKI結晶に電子線パルスを照射すると、光エネルギーにして1.2~2.2 eVの領域で吸収帯が現われる。その一部は時定数1.3  $\mu$ sで減少するが、残りは~20  $\mu$ s後にも安定に残る。1.3  $\mu$ sで減少する成分の、電子線が照射された時点( $t=0$ )での吸収密度( $OD$ )を、光エネルギーの関数として示すと、Fig. 1 中+印の曲線で表わされる。この吸収帯の極大値は測定出来なかったが、その減衰時定数(1.3  $\mu$ s)は、三重項励起子からの固有発光の減衰定数(3~6  $\mu$ s)に近いことから、三重項励起子状態から更に上の状態への遷移に伴う吸収と考えられる。この事は既にFullerらによって、KCl, KBr等について観測されている。<sup>1)</sup> Fig. 2の黒丸で示す様に、この吸収帯の減衰時定数は、170K附近で~10nsに減少し、三重項励起状態が熱的に不安定になったことを示しているが、 $t=0$ での吸収帯の $OD$ (白丸)は118Kでの値と余り変わらない。この事は三重項励起子が温度に無関係に、過渡的に作られていることを示している。一方この三重項励起状態からの固有発光は、100~200Kの温度領域で、温度の上昇と共にその強度が減少するので、一担作られた三重項励起子は、温度上昇と共に無輻射的に基底状態へ戻る確率が大きくなることは確かな様である。この無輻射遷移と、F及びH中心生

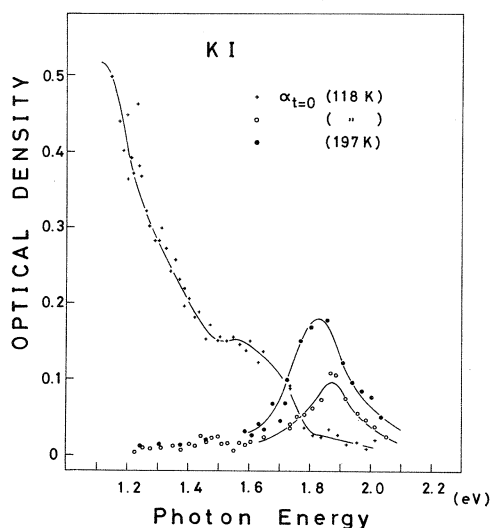


Fig. 1

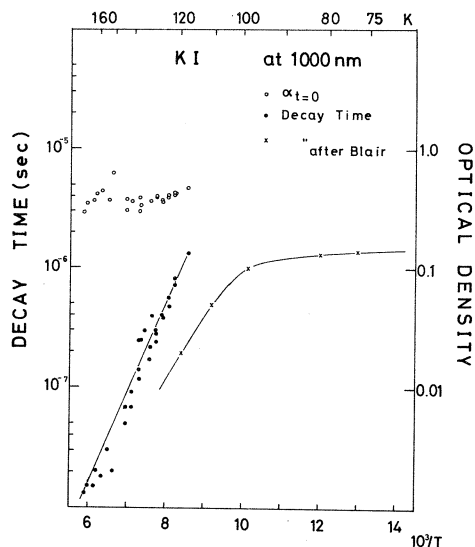


Fig. 2

成との関係は KCl, KBr では否定されているが, KI では今後の問題である。

#### 2-1-2 F 吸収帯

KI 結晶に 118 K で電子線照射後  $\sim 20 \mu\text{s}$  以後も残っている吸収成分を, Fig. 1 に白丸で示す。 $\sim 1.8 \text{ eV}$  付近に現われている吸収帯は, そのエネルギー位置  $\sim 1.84 \text{ eV}$  と半値巾  $\sim 0.18 \text{ eV}$  が, 普通の付加着色等による F 吸収帯のそれ ( $1.88 \text{ eV}$ ,  $0.18 \text{ eV}$ ) とほぼ一致することから F 吸収帯と考えられる。この吸収帯は  $10 \text{ ns}$  以下の時定数で増加している様であるが, 前節の三重項励起子による吸収 (+印) と重なっているため, 時定数の詳しい値は判らない。197 K では F 帯の生成量は 118 K でのそれよりもやや増加している (Fig. 1, 黒丸)。120~300 K の温度領域での F 帯の生成量を Fig. 3 に白丸で示す。点線は, 従来測定されたデータで, X線又は電子線で作られ, 安定に残っている F 中心の生成効率の温度依存性を表わす。<sup>2)</sup> 従来の測定では 200 K 以下の温度領域では, F 中心の生成効率は急激に減少しているが, パルス電子線照射直後, 又はその後  $\sim 20 \mu\text{s}$  での F の生成効率は, 今回の測定に関する限り, 温度にほとんど無関係であった。この結果は, 尚十分な検討

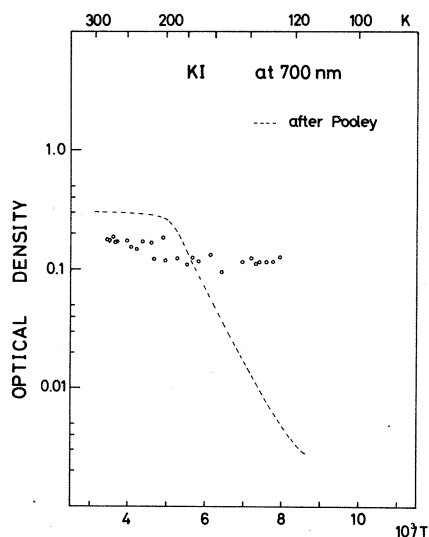


Fig. 3

が必要である。励起子機構に従えば、F 中心の生成時定数は、三重項 ( $3 \sim 6 \mu s$ ) 又は一重項 ( $2.1 ns$ ) の寿命を反映するものである。併し、KI では F 帯の生成時定数は、 $10 ns$  以下であって、三重項の寿命 ( $3 \sim 6 \mu s$ ) に相当するものはなかった。一重項の寿命は短かすぎて観測にはかゝらなかったで、励起子機構の有無についての結論は出せない。

## 2-2 KCl

KCl 結晶に LHeT で電子線を照射すると F 吸収帯が現われその高さは、 $\sim 3 \mu s$  と  $15 \mu s$  以上の減衰時定数で減少する。Fig. 4 に白丸で示す様に  $\sim 3 \mu s$  の成分は、 $8 \sim 80 K$  の温度範囲でその量がほとんど変化しないが、遅い成分は、 $20 K$  以上で急激に減少する。Fig. 4 には  $t = 0$  での各成分の OD を、温度の逆数の関数として図示してある。 $3 \mu s$  で減少する成分の生成量は、前述の様に  $8 \sim 80 K$  の間でほとんど変化しないが、その減衰時定数は、 $20 K$  以上の温度で急激に減少した (Fig. 5)。この結果は次の様に解釈される。F と H 中心対が電子線照射により一担作られ、その量は温度によらず一定量である。しかし高温では H 中心を作っている

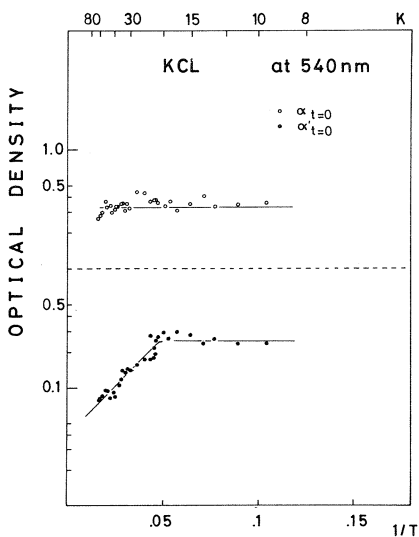


Fig. 4

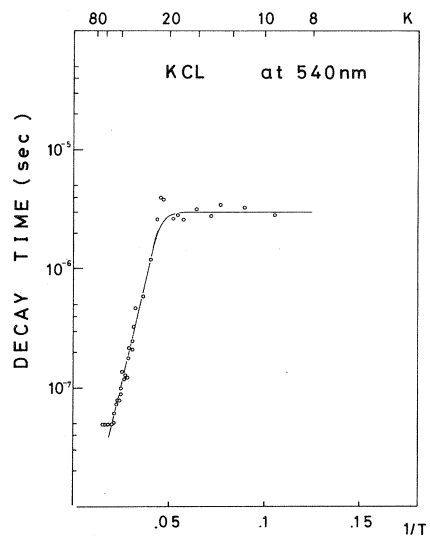


Fig. 5

$Cl^0$  原子が動き易くなり、F と再結合する確率と速度が大きくなるため、F 帯の減衰時定数が小さくなる。一方ある程度離れて作られた F-H 対は、低温で安定だから遅い成分として残っているが、高温ではこれらの H 中心の  $Cl^0$  原子も動き易くなって、F と再結合してその量が減少すると考えられる。又は最初から攪乱のため F から余り離れた所へ移動出来ず、安定な F-H 対が出来にくいのかも知れない。 $\sim 3 \mu s$  の時定数で減少する成分の減衰時定数の温度変化を Fig.

5に示す。時定数 $\tau$ は温度の関数として

$$1/\tau = \nu \exp \{ -\Delta E / kT \} + 1/\tau_0$$

で現わすことが出来るとして、実験値とよく合うように $\Delta E$ を決めると

$$\Delta E \simeq 0.014 \text{ eV}$$

であった。これは前回の結果、0.017 eVと良く一致する。<sup>3)</sup> この値はF中心に近い所にあるH中心の移動のための活性化エネルギーと考えられる。十分離れて安定なH中心の移動のための活性化エネルギーは、従来の測定では0.04 ~ 0.09 eVである。遅い減衰をもつ成分は、このようなF-H対が残っている部分と考えられる。Fig. 4の生成効率 $\eta_F$ の温度変化から、

$$\eta_F = \eta_0 / (1 + \nu \exp \{ -\Delta E / kT \})$$

を実験値とよく合うように $\Delta E$ を決めると

$$\Delta E \simeq 0.034 \text{ eV}$$

であった。この値は、十分Fと離れたH中心の活性化エネルギー0.04 eVと近い値である。KCl結晶では12K以上の温度で、三重項励起子からの発光効率が急激に激少するが、この温度近傍でのF中心の生成効率との相関の問題は、今回の測定だけでは結論を得るに至らなかった。

尚、前回までの実験で、LHeTでKCl結晶に電子線を照射すると、F中心の一部は20 ns以内に生成され、一部は~80 nsの時定数で生成されることが認められた。<sup>4)</sup> 今回は測定系のケーブルによるなまりを考慮して、第一実験室の入口近くまで測定系を移して実験を行った。その結果電子線パルス巾内で生成されるF中心があることが確かめられたが、~80 nsの時定数で出来る成分については、試料依存性があることが判り、F中心生成に於けるこの立上りは、結晶中の浅いTrapに電子が一時的に捕えられるためであると推測した。しかし定量的な結論を得るまでには至らなかった。

最後にLinacを運転して下さいました machine groupの方々、特に小島、浦沢の諸氏に感謝致します。

## 文 献

- 1) R. G. Fuller, R. T. Williams and M. N. Kabler: Phys. Rev. Letters Vol. 25 (1970)446.
- 2) Blair et.al.: Journal of Phys. C, Solid State Phys. Vol. 3 (1970)1815.
- 3) 上田他: 核理研報告 Vol. 4, No. 1 (1971)72.
- 4) 上田他: 核理研報告 Vol. 2, No. 1 (1969)108.

## II-10 50 MeV Electron Irradiations of Silicon Doped with Cobalt-57 (IV)

工学部 松井啓治\*

The fluence dependence observed in the conversion ratio of  $\text{Co}^{57}$  Mössbauer probe is reported. The experimental procedure was similar to those described in the previous reports. (1)

Quenching from 1200°C into ethylene glycol was made to enhance substitutional cobalt (I.S. = +0.06 cm/sec) up to comparable density with precipitated cobalt (I.S. = +0.00 cm/sec). (2) The electron irradiations were made for the specimens immersed in running water.

In marked contrast to the case of fast neutron irradiations, (3) the conversion efficiencies were found to be non-linear with the electron fluence. This is shown in Fig. 1 for

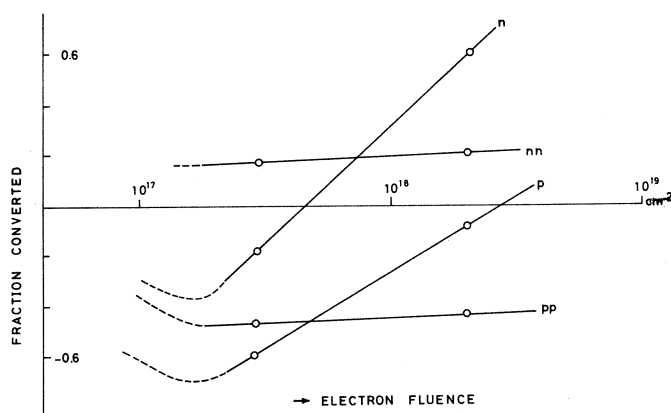


Fig. 1

\* Keiji MATSUI: Faculty of Engineering

heavily doped n-type (nn,  $E_F(0) = E_C - 0.14$  eV at 300°K), moderately doped n-type (n,  $E_C - 0.25$  eV), moderately doped p-type (p,  $E_V + 0.31$  eV), and heavily doped p-type region (pp,  $E_V + 0.17$  eV). No unstable spectrum<sup>(3)</sup> was observed.

The fluence dependence may be compared with a simplified model in the following way. Let assume two types of conversion mechanism are operative in competition<sup>(3)</sup>:  $\text{Co}(s) + \text{Si}(i) = \text{Co}(i)$  and  $\text{Co}(p) + \text{Si}(v) = \text{Co}(s)$ . The absence of the unstable spectrum, which was attributed to trapped forms of interstitial cobalt,<sup>(3)</sup> the  $\text{Co}(i)$  is assumed to precipitate during the irradiations.

The rate of change in the density of  $\text{Co}(s)$  or  $\text{Co}(p)$  with fluence can formally be written as

$$dN_S/d\phi = -dN_P/d\phi = -aN_S + bN_P \quad (1)$$

with  $N_S + N_P = N_t = \text{total density of cobalt}$ . The coefficients,  $a$  and  $b$ , represent the conversion efficiencies of interstitial-type and vacancy-type, respectively.

With an assumption that  $a$  and  $b$  are independent of fluence  $\phi$ , eq.(1) leads to fraction converted  $f$  given by

$$\begin{aligned} f(\phi) &= [N_S(\phi)/N_P(\phi) - N_S(0)/N_P(0)]/[N_S(0)/N_P(0)] \\ &= -1 + [1 + (N_t/N_S(0))(b/a + b)(e^{(a+b)\phi} - 1)] / \\ &\quad [1 + (N_t/N_P(0))(a/a + b)(e^{(a+b)\phi} - 1)]. \end{aligned} \quad (2)$$

The "high" and "low" fluence limits of the fraction converted are found to be

$$f = -1 + (b/a)/[N_S(0)/N_P(0)], \quad \text{for } e^{-(a+b)\phi} \rightarrow 0 \quad (3)$$

$$\begin{aligned} f &\cong [-a(N_t/N_P(0)) + b(N_t/N_S(0))]\phi, \\ &\quad \text{for } e^{-(a+b)\phi} \cong 1 - (a+b)\phi. \end{aligned} \quad (4)$$

It is rather surprising that the heavily doped cases (nn and pp) for electron irradiation behave as eq.(3), while eq.(4) appears to be valid for neutron irradiation. The number of Frenkel pairs introduced by the neutron irradiations is formally much larger than that of the electron irradiations. However,

most of Frenkel pairs in the former case are believed to make interactions between themselves inside of spike zones, as evidenced by infrared absorption and electron micrograph. An alternative explanation is that the reaction efficiencies are much larger for the electron irradiations ( $\sim 20^\circ\text{C}$ ) than for the neutron irradiations ( $\sim 80^\circ\text{C}$ ).

The most reliable data of the introduction rates of "free vacancy" ( $\sim$  "free interstitial") for electron irradiations of 30 - 60 Mev are given by the epr studies on oxygen-vacancy pair, <sup>(4)</sup> which gives  $\sim 0.5$  vacancy/50 Mev electron at  $300^\circ\text{K}$ . The fluences given in Fig. 1 suffice, therefore, to make saturate vacancy traps ( $\text{O}(\text{i}) \approx 10^{17}/\text{cm}^3$ ,  $\text{P}(\text{s}) \leq 10^{17}/\text{cm}^3$ ) or interstitial traps ( $\text{B}(\text{s}) < 10^{17}/\text{cm}^3$ ). The cobalt density is of course much lower than these traps ( $< 10^{14}/\text{cm}^3$ ).

The fluence dependence observed for moderately doped regions (n and p) cannot be deduced from eq.(2). These regions show first a predominance of interstitial-type conversion and then that of vacancy-type conversion. It is thought that a certain mechanism inducing lower  $\alpha$ -values becomes in operation with fluence. A possible mechanism would be re-conversion of  $\text{Co}(\text{i})$  by vacancy. Further investigations are required to understand these effects.

The reporter wishes to thank Mr. O. Konno and his crew for LINIAC irradiations, to Mr. A. Tamura and Mr. A. Ohkawa (Res. Inst. Min. Dress.) for quenching treatments.

- (1) K. Matsui et al.: Res. Rep'ts Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ., 3-2, 96(1970), 4-1, 77(1971), 4-2, 89(1972).
- (2) P.C. Norem and G.K. Wertheim: J. Phys. Chem. Sol., 23, 1111 (1962)



- (3) K. Matsui, R.R. Hasiguti and H. Onodera: Rad. Eff., 8, 195  
(1971)
- (4) G.D. Watkins and J.W. Corbett: Phys. Rev., 138, A543 (1965)

## II - 11 Germanium 73 13.3 keV Mössbauer Effect in Germanium/Fermi Level Dependence of Spectra

工学部 松井啓治\*

### SUMMARY

The  $\text{Ge}^{73} 5^{+}/2 - 9^{+}/2$  Mössbauer effect with  $\text{Ga}^{73}$  parent embedded in germanium single crystals are studied for various Fermi energies. The crystals are free of damages due to electron irradiation. The spectra obtained for n-type crystals are similar to each other irrespective of the Fermi level positions. The spectra obtained for p-type crystals, on the contrary, indicate a dependence on the Fermi level positions. The latter spectra cannot be assigned to a single defect species.

The temperature-dependence of spectra is studied to a certain extent in p-type region. The spectrum with  $E_V + 0.23$  ev ( $E_V$  = valance band edge) at  $290^\circ\text{K}$  is partly altered by cooling the specimen to  $180^\circ\text{K}$  at which the Fermi level changes to  $E_V + 0.11$  ev. The  $180^\circ\text{K}$  spectrum however does not coincide with the  $290^\circ\text{K}$  spectrum with  $E_V + 0.11$  ev.

These experimental facts are closely related with the fate of interstitials produced in the crystals by the 1.2 Mev  $\beta^-$ -recoil of  $\text{Ga}^{73}$ . Part of the interstitials are distributed among various sinks and traps during the 0.53 sec ( $I = 1^-/2$ ) to form various defect structures. These processes are governed by Fermi level, temperature, and density of defects.

Rigorously within the limits of the present experiments,

---

\* Keiji MATSUI: Faculty of Engineering

the n-type spectra can numerically be assigned to  $\text{Ge}^{+1}(\text{int})/s_p^{2,1}$  assuming the sinks to be dislocations. The mechanism of line broadenings cannot however be uniquely assigned to migration jumps. Jumps between the Karyagin potential of the hexagonal interstitial site also need to be considered. The p-type spectra are compatible with possible trapping effects by  $\text{Ga}^-$  (sub). The recoil-free fractions in p-type region are apparently higher than in n-type one.

These phenomenological descriptions show, as expected earlier, the value of the  $\text{Ge}^{73}$  Mössbauer effect in the microscopic identification of primary defects. However unambiguous assignments require more extensive experiments.

## INTRODUCTION

In the previous papers<sup>(1,2)</sup> the detection of the narrow-line 13.3 keV Mössbauer effect for  $\text{Ga}^{73}$  parent embedded in germanium lattice by  $\text{Ge}^{74}(r, p) \text{Ga}^{73}$  photonuclear reaction were reported. The nuclear-<sup>(3)</sup> and solid-state<sup>(4)</sup> events expected for the effect were qualitatively discussed.

The present report deals with a second experiment on the effect to investigate the Fermi level dependence of the spectra. Such an experiment is inevitable as the migration and interaction of interstitials are expected to be charge-state dependent. A detailed treatment of the induced crystal fields and the Karyagin lattice potentials is separately reported.<sup>(5)</sup>

## EXPERIMENTAL

The experimental procedure was similar with that reported earlier.<sup>(2)</sup> The 50 MeV electron beam from the 300 MeV Linac of the Laboratory of Nuclear Science of Tohoku University was made to pass through (a) 0.5mm silicon, (b) 0.5mm germanium,

(c) 0.2mm platinum and (d) 0.3-0.5mm germanium. The platinum foil enhanced the bremsstrahlung irradiating the specimens in layer (d). These targets were maintained at around 20°C by direct water cooling during the electron irradiation for 6 hrs with current  $\sim 40 \mu\text{A}$ .

The Mössbauer measurements were performed for the specimens annealed at 510°C for 30 min. The  $\gamma$ -rays from the specimen ( $// [111]$ ) were scattered by 90° on the surface of degenerated powder germanium to fall on a Xenon-filled proportional counter. The window of the pulse height analyser was set to 9,89 keV Ge KX-rays obtainable from  $\text{Co}^{57}$  doped germanium. The count rate with and without the scatterer was 5:1 at best and 2:1 at worst case. The measurements were possible from 5 to 15 hrs after the off-set of the irradiation.

## RESULTS AND DISCUSSIONS

The spectra are shown without the base line corrections. The base line curvatures come from finite distance between the source, scatterer-, and detector.<sup>(6)</sup> The correction used earlier<sup>(2)</sup> was empirically determined with  $\text{Co}^{57}$  in Pd versus  $\text{Fe}^{57}$  (90% enriched) in 310 stainless steel as source and scatterer, respectively. This time it was not possible due to the decay of the  $\text{Co}^{57}$  source. It was felt better to present the results without corrections especially for some spectra with low signal-to-noise ratio's.

The n-type spectra in Fig. 1, though low in SN-ratio, can be understood in terms of the quadrupole splitting  $(4/5)e\langle r^{-3} \rangle$  characteristic to a p-electron in  $p_0$ -orbital.<sup>(2,4)</sup> The expectation value of  $r^{-3}$  is compatible with  $6.7 a_B^{-3}$  determined by atomic beam experiment.<sup>(7)</sup> The line broadenings are again quite large as compared to the observable natural width 5 x

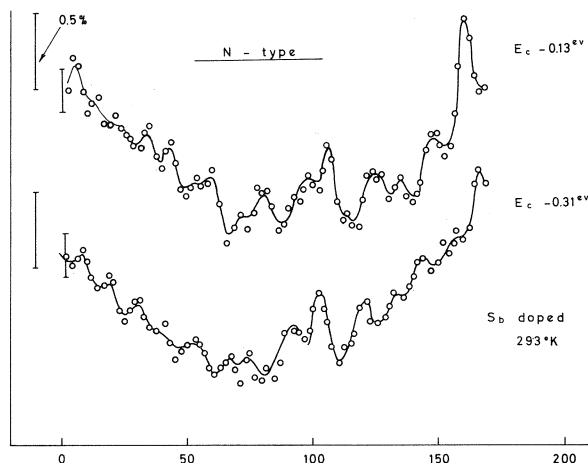


Fig. 1

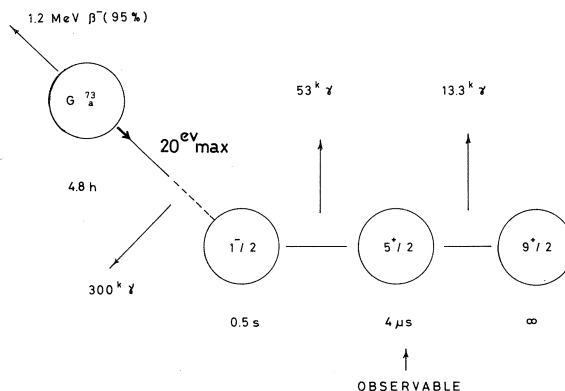


Fig. 2

$10^{-4}$  cm/sec. (3)

The n-type spectrum was tentatively interpreted as arising from free interstitial with  $4s^2 4p^1$  ( $\text{Ge}^{+1}$  (int)) at hexagonal interstitial site. (2) Such a model will break down if the interstitial is to annihilate to some sinks before the Mössbauer emission, as illustrated in Fig. 2. (8) A simple argument in the following will show the situation.

The direct recombination with nearby vacancy if ever needs not to be considered, since the germanium isomer at substitutional

site cannot be detected in conventional spectroscopy.<sup>(4)</sup> The trapping by chemical donor Sb (sub)<sup>+1</sup> is hardly expected because of the Coulombic repulsion. It remains to consider the trapping or conversion events between impurities and dislocations inherent in the lattice. The formers are considered to exist in their densities  $10^{12}/\text{cm}^3$  or less if electrically active. The density of sinks corresponding the dislocation density ( $\sim 10^3/\text{cm}^2$ ) is about  $5 \times 10^{10}/\text{cm}^3$ .

Most of the interstitials will survive in free state untill the Mössbauer emissions, provided their migration energy is larger than 0.04 eV for the dislocation sinks or 0.15 eV for some traps with  $5 \times 10^{12}/\text{cm}^3$ . These values of the migration energy are compatible with the line broadenings observed. In addition much higher migration energy is possible if the mechanism of the line broadenings are to be related with the jumps within the hexagonal interstitial site.<sup>(5)</sup>

Although the n-type spectrum can be related with free interstitials, one should be open-minded to other interpretations. Further experiments will clarify this point.

The p-type spectra, as shown in Fig. 3, cannot be inter-

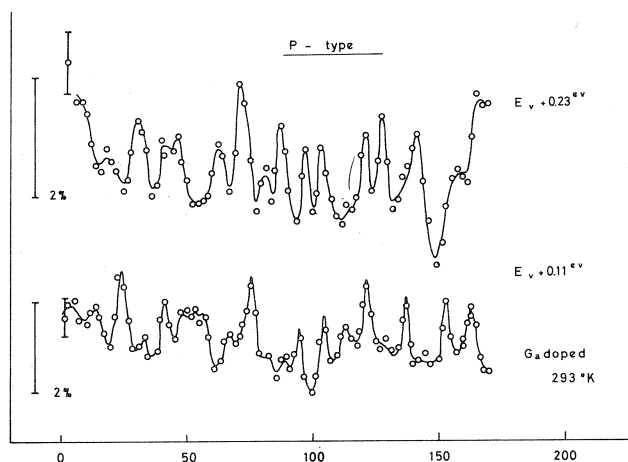


Fig. 3

preted in terms of a single defect species. In fact chemical acceptors  $\text{Ga}(\text{sub})^{-1}$  abundant  $10^{15}$ - $10^{17}/\text{cm}^3$  act as strong trap and sink, as evidenced by epr studies for silicon.<sup>(8)</sup> This explains the difference in spectra between the specimens with  $E_V + 0.11$  ev.

It was not successful to decompose these spectra into contributions of certain defect structures, say, trapped- or converted interstitials.<sup>(4)</sup> This point again is left to further experiments. Fragmentary observations relevant to the p-type spectra will be discussed in the followings.

There are evidences indicating that the recoil-free fractions are substantially higher in p-type region than in n-type one. The spectrum with  $E_C - 0.13$  ev (Fig. 1, upper) was measured at similar conditions with the spectrum with  $E_V + 0.11$  ev (Fig. 3, lower). This point favors for above-mentioned models.

At least part of the p-type spectra are temperature-dependent. Fig. 4 (upper) shows the spectrum when the temperature of the specimen giving rise to Fig. 3 (upper) was lowered to 180°K. The spectrum partly contains degenerated multiplets to be expected for the germanium isomer under small electric

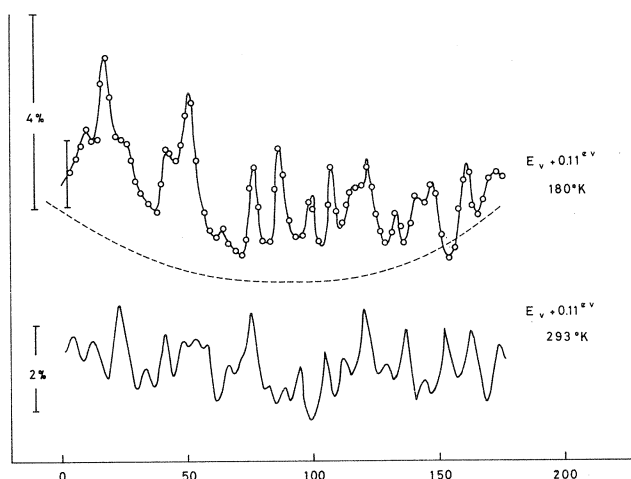


Fig. 4

field gradients of lattice origin.<sup>(4)</sup> The positions of such singlets are to be compared with Fig. 5 giving isomer shifts  $\delta$  versus deviation in nuclear radii  $\Delta R/R$ . The results of self-consistent-field calculation made by Czjzek et al<sup>(9)</sup> have been used to obtain Fig. 5.

The temperature dependence cannot be regarded as simple electronic re-distribution events between the defects involved, since a common Fermi energy  $E_F + 0.11$  eV does not result in identical spectrum, as shown in Fig. 4 (cf. upper and lower).

The ideal signal-to-noise ratio of the scattering experiments is estimated as follows. Douglas performed a careful pulse height analysis<sup>(10)</sup> to obtain the ratio 13.3 keV  $\gamma$ -ray/Ge KX-ray = 1/1080. If such a pure emission is incident on the scatterer, the scattering cross sections by  $90^\circ$  amount to  $4 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$  (KX-ray, Mössbauer process),  $0.2 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$  (KX-ray with energy reduction by 2%, Compton process) and  $0.08 \times 10^{-19}$

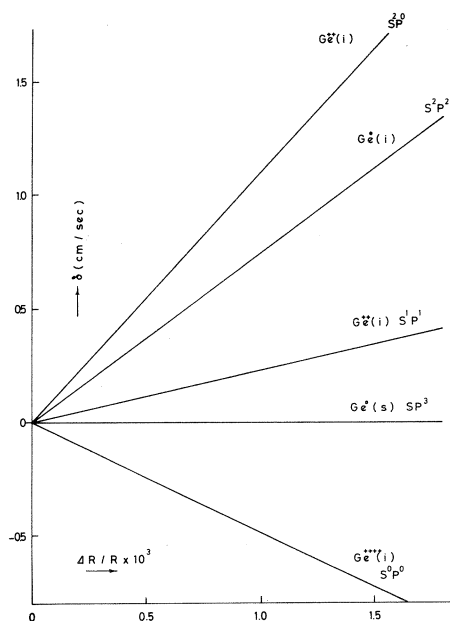


Fig. 5



$\text{cm}^2$  (KX-ray, photoelectric process), respectively. The Mössbauer KX-rays dominate over other components.

In actual experiments, however, strong bremsstrahlungs and self-absorptions are believed to degrade the signal-to-noise ratio. An estimation with the Stobbe's formula<sup>(11)</sup> shows that a specimen thickness about 0.05 mm is optimum. The use of Si (Li) low energy photon detector will improve the ratio by a factor 5.

## CONCLUSION

The  $\text{Ge}^{73}$  13.3 keV Mössbauer effect experiment with  $\text{Ga}^{73}$  parent gives a series of spectra which are strongly dependent upon the Fermi energies of the germanium lattice in which the parent is embedded. The effect is a positive support of the interstitial behaviour produced by the  $\beta$ -recoil of the parent.

Neither nuclear parameters nor defect models have decisively been fixed by the present experiment. This is because of the fact that the Mössbauer spectra in the present case are strongly sensitive to defect structures. A few defect models are presented to be rigorously tested by subsequent experiments.

## ACKNOWLEDGEMENTS

This programme has been performed with the courtesy of Prof. Y. Kozima (Labo. Nucl. Sci.). Mr. O. Konno and his crew are acknowledged for the linac irradiation. The courtesy of Prof. Y. Hiradate (Tohoku Inst. Tech.) as regards the 200 channel analyser employed was essential in performing the present experiment. Dr. H. Hotta and Mr. A. Ohkawa (Inst. Min. Dress.) are acknowledged for their experimental supports.

The crystals were supplied by Prof. S. Ishino (Univ. Tokyo).  
Miss T. Kayaba (Fac. Eng.) made the data arrangements.

## REFERENCES

- (1) K. Matsui: Res. Repts. Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ., 4/1, 81 (1971)
- (2) K. Matsui: *ibid.* 4/2, 93 (1972)
- (3) " : *ibid.* 4/1, 83 (1971)
- (4) " : *ibid.* 4/2, 101 (1972)
- (5) " : *ibid.* (this issue)
- (6) G.K. Wertheim: "Chemical Applications of Mössbauer Effect", IAEA/Wien (1965)
- (7) W.J. Childs and L.S. Goodman: Phys. Rev., 141, 15 (1966)
- (8) G.D. Watkins: "Radiation Effects in Semiconductors", p.97, Dunod, Paris (1965)
- (9) G. Czjzek, J.L.C. Ford, Jr., J.C. Love, F.E. Obenshain, and H.H.F. Wegener: Phys. Rev., 174, 331 (1968)
- (10) D.G. Douglas: Can. J. Phys., 47, 1813 (1969)
- (11) W. Heitler: "Quantum Theory of Radiation", Chap. 5, Oxford (1954)

## II-12 Recoil Anisotropy and Karyagin-Goldanskii Effect of Interstitials in Silicon and Germanium (1)

工学部 松井啓治\*

The Mössbauer effect is suited to the microscopic identification of interstitials in semi-conductors as reported previously.<sup>(1)</sup> This note deals with the use of the Karyagin-Goldanskii effect<sup>(2)</sup>, viz., the recoil anisotropy appearing in quadrupole line intensities, based on the treatment of Weiser.<sup>(3)</sup> Most of numerical results will be given in a next occasion.

Interstitials in diamond-lattice solids make migration through tetrahedral and hexagonal sites. To obtain the anisotropy in the Lamb-Mössbauer factor, the lattice potentials at these sites have to be expanded for displacements relative to the centers of symmetry. The lattice potentials are composed of elastic repulsive term ( $E_r$ ) and polarization attractive term ( $E_p$ ). The equilibrium positions inside of a site are determined in a 1st-order approximation by minimizing the sum with respect to the displacements. A correction comes by considering crystal field energy ( $E_c$ ) calculated for the equilibrium positions.

It is clear that H-site is of primary importance because of the H-site preference of charged interstitials.<sup>(1)</sup> In addition the recoil anisotropy expected for T-site becomes less due to the over-all symmetry. The repulsive energy for H-site can be expanded for small displacements as

---

\* Keiji MATSUI: Faculty of Engineering

$$E_r(xyz) = E_r(O) + E_r(O) \left[ (1 + \rho/a)(\sin^2 \theta/2) - \rho/a \right] (x^2 + y^2)/2\rho^2 \\ + E_r(O) \left[ (1 + \rho/a)(\cos^2 \theta) - \rho/a \right] z^2/2\rho^2 \quad (1)$$

where  $E_r(O) = 6A \exp(r_L + r_I - a)/\rho$ ,  $A = 0.63$  ev,  $r_L$  = radius of host atom,  $r_I$  = radius of interstitial,  $a$  = radius of hexagonal cavity ( $= r_H$ ),  $\rho$  = screening radius of Born-Mayer potential, and  $\theta = 80.0^\circ$  = a geometrical constant of H-site.

Eq.(1) shows, by inserting material constants valid for silicon and germanium,<sup>(3)</sup> that H-site does not have stationary points for neutral interstitials. This is also true for larger displacements. The effect of polarization cancels the negative curvature in the z-direction (// 111-axis).

The polarization calculation for zero displacements performed by Weiser<sup>(3)</sup> indicates that a good approximation can be attained by treating the atoms beyond the next nearest neighbours as continuum. Under such an approximation, the polarization energy is expressed as

$$E_p(xyz) = -(Z_I e/2) \sum_{j=1}^6 \mu_j / r_j^2 \\ - (Z_I^2 e/2) (1 - 1/K) (1/1.56a) \\ \times [1 + (2/3)(x^2 + y^2 + z^2/(1.56a)^2)] \quad (2)$$

where  $Z_I e$  = interstitial charge,  $\mu_j$  = dipole moment induced at j-th nearest-neighbor atom at a distance  $r_j$  from the charge,  $K$  = dielectric constant, and  $1.56a$  = radius of sphere made by 2nd nearest neighbors.

The induced dipoles are obtained by solving

$$\mu_j = \alpha [Z_I e / r_j^2 + \sum_k E_{kj} \mu_k], \quad (j, k = 1, \dots, 6) \quad (3)$$

in which  $\alpha$  = atomic polarizability obtainable from  $K$  by the Lorentz-Lorentz equation,  $E_{kj}$  = electric field at point-j due to unit dipole at point-k ( $E_{kk} = 0$ ). The  $E_{kj}$ 's for zero displacements are found in Ref. (3). They have to be developed

for displacements. The results are omitted here.

The solution of eq.(3) is equivalent to find the inverse matrix  $6 \times 6$ , which cannot be performed algebraically. Computer calculations are in progress.

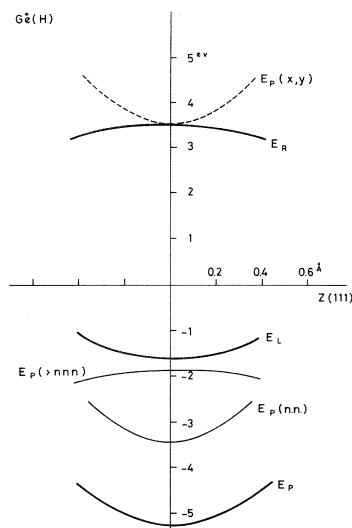


Fig. 1

Fig. 1 shows contributions of each term for a **special case**: a displacement along lll-direction for  $\text{Ge(int)}^{+1}$  in germanium lattice. The resultant lattice potential ( $E_L$ ) gives a stationary point at the center of H-site. With introduction of higher order term another stationary points may emerge. The positive curvature of  $E_P(x, y)$  is reduced by adding the relevant polarization term.

The Lamb-Mössbauer factor can be found as

$$f(xyz) = \exp[-(\langle x^2 \rangle + \langle y^2 \rangle + \langle z^2 \rangle) / \lambda^2],$$

$$\langle x^2 \rangle = \int x^2 e^{-E_L(xyz)/kT} dx / \int e^{-E_L(xyz)/kT} dx \quad (4)$$

for each stationary point. - The Kayagin-Goldanskii effect factors are obtained upon multiplying the Lamb-Mössbauer factors by quadrupole line intensities and by averaging the products with respect to equivalent defect axes.

It seems that doubly charged interstitials are definitely displaced in (x,y) plane since the strength of polarization is

proportional to  $Z_I^2$ . The induced field orbitals under such conditions must be found on solving secular equations with matrix elements for crystal field given by the new set of dipoles. The defect jumps between such equilibrium

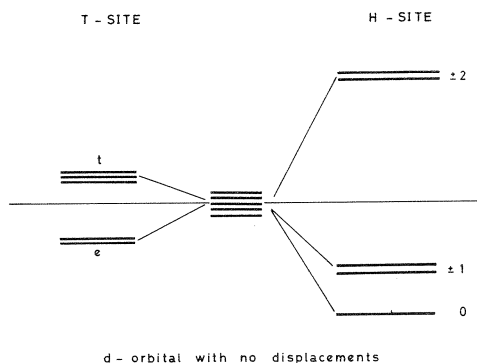


Fig. 2

positions will lead to temperature-dependent line broadenings.

Although the present work is made with special reference to  $\text{Ge}^{73}$  13.3 keV Mössbauer effect, it is also applicable, for instance, to  $\text{Co}^{57}$  Mössbauer probe. Fig. 2 shows the one-electron orbitals of the d-electron probe. With strong displacements expected for trivalent ions, the highest orbitals ( $d_{\pm 2}$  for zero displacements) are likely to make further promotions to violate the Hund coupling. This effect might be a clue to understand the giant splittings observed in  $\text{Co}^{57}$  doped germanium.<sup>(4)</sup>

## REFERENCES

- (1) K. Matsui: Res. Rep'ts Laboratory of Nuclear Science, Tohoku Univ., 4-2, 101 (Feb., 1972)
- (2) S.V. Karyagin: Dokl. Akad. Nauk USSR, 148, 1102 (1963)
- (3) K. Weiser: Phys. Rev., 126, 11427 (1962)
- (4) K. Matsui and A. Ohkawa: *ibid.* (1), 4-1, 77 (1971), 4-2, 89 (1972)



### III. 放 射 化 学 部 門

### III - 1 Yields of Photonuclear Reactions for Photon Activation Analysis with High-Energy Bremsstrahlung

理学部化学 加藤豊明\*

#### SUMMARY

Experimental reaction yields have been determined for the photonuclear reactions of various types induced in 71 elements by means of bremsstrahlung irradiation with maximum energies ranging from 30 to 72 MeV and of detection of the resultant activities with a lithium-drifted germanium detector. From the results obtained, sensitivities in photon activation analysis were evaluated and the reactivity of high-energy photons with nuclei in a wide range of atomic number was discussed. Some nuclear considerations in photon activation analysis involving the relative probability of forming each product as a result of the  $(\gamma, xnyp)$  reactions were also given.

#### INTRODUCTION

In recent years photon activation analysis has been exploited as a useful analytical method for the determination of trace amounts of a number of elements in the periodic table. A cyclic or linear electron accelerator capable of producing high-current electron beam has preferably been used as the irradiation facility, and several reports concerning with the experimental or calculated sensitivities have been published with

---

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



bremsstrahlung of moderate maximum energies ( $\sim 35$  MeV).<sup>1-6)</sup> Sensitivities well below  $1 \mu\text{g}$  are obtained for many elements, and the emphasis is on the determination of those elements whose nuclear properties are unfavorable for thermal-neutron activation analysis such as carbon, nitrogen, oxygen and fluorine. In addition, severe difficulties due to sample self-shielding are encountered when a mixture to be analyzed contains substantial amounts of elements with large thermal-neutron capture cross sections. In these cases, photon activation analysis is found to be very promising.

A general feature of the photon absorption cross section for a nucleus is characterized by a peak  $5 \sim 6$  MeV wide at an energy located between the photodisintegration threshold and about 30 MeV, and, in this energy region, the main nuclear events are the emission of one neutron or one proton. A considerable amount of work has been done in the past for the determination of the  $(\gamma, n)$ ,  $(\gamma, p)$  and  $(\gamma, \alpha)$  reaction yields for many elements with bremsstrahlung produced by 20 MeV electrons.<sup>7-9)</sup>

Since yield is a strong function of photon energy, it should be noted that higher sensitivities can be expected with an accelerator giving bremsstrahlung of higher maximum energies. The excitation of a nucleus by gamma-rays with higher energies, however, gives rise to more complex events. Apart from the reactions described above, those with the emission of two or more nucleons become important, thereby causing difficult interfering problems in photon activation analysis. A basic problem in photon activation analysis under such conditions is, therefore, the necessity to investigate the production rates or yields of various photonuclear reactions induced simultaneously in a sample to be analyzed over the energy range of a given bremsstrahlung.

The work described here was undertaken for the purpose of evaluating the potential for determining trace amounts of many elements by inducing the ( $\gamma$ , xnyp) reactions with bremsstrahlung from a linear electron accelerator of the Tohoku University and by detecting the resultant activities with a lithium-drifted germanium detector. Thus, firstly, sensitivities were obtained for some 17 elements at two different bremsstrahlung maximum energies, 30 and 60 MeV, and, secondly, the yield values for 170 different reactions will be presented at 30 MeV with some nuclear considerations for photon activation analysis involving the relative probability of forming each reaction product, and, finally, dependences of bremsstrahlung maximum energies on the yields for various types of the reactions have been given, so that one can consider the more general applicability of photon activation analysis to sensitive and accurate determination of many elements in a wide variety of materials.

## EXPERIMENTAL

### The accelerator

The 300 MeV linear electron accelerator of the Tohoku University was used as the bremsstrahlung source. The machine was operated with the "High Current" accelerating section which provided a high intensity electron current, the peak current being at least 100 mA with energies up to 75 MeV. In many cases the pulse repetition rate was 200 pps with a pulse width of 3  $\mu$  sec. The beam was deflected 90° from the original beam path of the accelerating section, and again deflected 45° onto the beam exit window. The spread of electron energies in this operating condition is 3% from the selected value. The

electron beam produced bremsstrahlung in a platinum converter with a thickness of 3 mm located 3 cm from the beam exit window. The average beam currents were measured at the position of the converter using a current monitor, and found, in typical operating conditions, to be 70 and 100  $\mu$ A at 30 and 40 - 75 MeV, respectively.

#### Sample materials and irradiation

Sample of 71 elements, either in the form of metals or simple compounds, with chemical purity of 99.9% or over were used. A metallic sample was a small disc 6 mm in diameter with a thickness of about 0.1 mm. The powdered samples were individually wrapped in small pieces of aluminum foil and made into small discs 6 mm in diameter with thickness within 2 mm. An amount loaded was between 10 mg and 100 mg, depending on the production rate of the desired activity. The sample was placed in a water-cooled sample holder on the bremsstrahlung beam axis immediately behind the converter for irradiation.

The distribution of the bremsstrahlung flux behind the converter was far from homogeneous. In order to monitor the flux under such conditions, accurately weighed discs of copper, 0.1-mm thick, were placed in the front and back of each sample and irradiated together with the sample. The  $^{64}\text{Cu}$  activities produced by the  $^{65}\text{Cu}(r, n)^{64}\text{Cu}$  processes were used for comparisons. A mean specific activity was used for determining the dose rate of bremsstrahlung to which the sample was exposed. The experimental results showed that the vertical spread of flux did not have a pronounced effect on the results, if the samples were limited to dimensions of the above size, and that a flux gradient along the length of the sample was less than 5%, even if in the case of the sample of high atomic

number

A typical irradiation was terminated in 30 min to 1hr.

#### Radioactivity measurement

The counting equipment consisted of a lithium-drifted germanium detector with a sensitive volume of 24 cm<sup>3</sup>, 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 <sup>137</sup>Cs. Energy calibration and photopeak counting efficiencies were determined by counting a series of calibrated sources of known activities. The sample and copper monitor to be measured were separately sandwiched between 10-mm thick Lucite plates to absorb positrons from any positron emitters, and they were counted at a fixed position, 20 mm in most cases, from the active surface of the detector. Because of the high resolving power of the detector, no chemical separations were required for the present purposes unless otherwise noted. Nuclide identification was obtained from a knowledge of the target nuclide, the gamma-ray spectra, decay data, data listed in the Table of Isotopes,<sup>10)</sup> and current literature data. The initial decay rates of the various products were determined from decay curve analyses of the specified gamma-ray photopeak areas and normalizations were applied to them for the dose rate and sample weight.

#### Yield determination

The yield values were computed from the activity data by using the detection efficiency and the decay scheme parameters from the literature<sup>10)</sup> for each nuclide. A yield was defined as the production rate of a nuclide due to a certain photo-nuclear reaction in dps at the end of irradiation of one mole of a parent nucleus. This was converted to the corresponding saturation rate and expressed relative to that of the

$^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$  process which occurred in copper discs used for flux monitoring. In obtaining the yield data for 30 MeV bremsstrahlung, a dose rate was determined by using the yield value of  $2.8 \times 10^6$  per mole per roentgen for the  $^{63}\text{Cu}(\gamma, n)^{62}\text{Cu}$  reported by Katz et al.,<sup>11)</sup> and a yield was expressed in the form of dps/mole·R. In a typical operating condition at 30 MeV, a dose rate of  $4.41 \times 10^6$  R/min was obtained at the sample position.

## RESULTS AND DISCUSSION

### Experimental sensitivity

Of a great number of the product nuclides identified in this work, some 18 nuclides were selected for the sensitivity evaluations at two different bremsstrahlung maximum energies, 30 and 60 MeV. The elements chosen for the sensitivity determinations were those whose nuclear properties are unfavorable for thermal-neutron activation analysis or those proved to be highly activated when irradiated with 20 MeV bremsstrahlung.<sup>2)</sup>

Table I lists the results. In Table I, all activity data have been expressed in cpm per milligram of the element at the end of 1-hr irradiation at each bremsstrahlung maximum energy when a standard amount of bremsstrahlung photons has passed through the sample. With this dose rate,  $2.4 \mu\text{Ci } ^{64}\text{Cu}$  was produced in 1mg of copper with 30 MeV bremsstrahlung, or  $4.7 \mu\text{Ci } ^{64}\text{Cu/mg Cu}$  was produced with 60 MeV bremsstrahlung.

The limit of detection was then calculated on the basis of minimum detectable photopeak area. The limit was assumed, depending on the half-life of the product in question, to be the quantity of the element needed to give either 100 ( $T_{1/2} \leq 1 \text{ hr}$ ) or 10 ( $T_{1/2} > 1 \text{ hr}$ ) cpm under the present experimental conditions. It should be noted that sensitivities for light

Table I. Experimental sensitivities for photon-activation analysis with 30 and 60 MeV bremsstrahlung

Element	Reaction	Half-life of product	$\gamma$ -ray energy, MeV	30 MeV		60 MeV	
				Photopeak activity, $\dagger$ cpm/mg	Limit of detection, $\mu$ g	Photopeak activity, $\dagger$ cpm/mg	Limit of detection, $\mu$ g
C	$^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$	20.3 min	0.511 <sup>*</sup>	$4.44\times10^5$	0.23	$2.71\times10^6$	0.037
O	$^{16}\text{O}(\gamma, n)^{15}\text{O}$	20 min	0.511 <sup>*</sup>	$7.78\times10^5$	0.13	$5.32\times10^6$	0.019
F	$^{19}\text{F}(\gamma, n)^{18}\text{F}$	110 min	0.511 <sup>*</sup>	$2.94\times10^5$	0.034	$6.43\times10^5$	0.016
Si	$^{30}\text{Si}(\gamma, p)^{29}\text{Al}$	6.56 min	1.28	$3.68\times10^3$	27	$1.10\times10^4$	91
Sc	$^{45}\text{Sc}(\gamma, n)^{44}\text{Sc}$	392 hr	0.511 <sup>*</sup>	$3.72\times10^5$	0.027	$4.01\times10^5$	0.025
"	"	"	1.156	$6.12\times10^4$	0.16	$7.28\times10^4$	0.14
Ti	$^{46}\text{Ti}(\gamma, n)^{45}\text{Ti}$	309 hr	0.511 <sup>*</sup>	$2.07\times10^4$	0.48	$6.31\times10^4$	0.16
Fe	$^{54}\text{Fe}(\gamma, n)^{53}\text{Fe}$	8.9 min	0.511 <sup>*</sup>	$6.76\times10^4$	1.5	$2.02\times10^5$	0.49
Ga	$^{69}\text{Ga}(\gamma, n)^{68}\text{Ga}$	68 min	0.511 <sup>*</sup>	$1.80\times10^6$	0.0056	$2.45\times10^6$	0.0041
Sr	$^{88}\text{Sr}(\gamma, n)^{87\text{m}}\text{Sr}$	283 hr	0.388	$4.95\times10^5$	0.020	$8.19\times10^5$	0.012
Zr	$^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89\text{m}}\text{Zr}$	418 min	0.588	$5.31\times10^5$	0.19	$1.21\times10^6$	0.083
Nb	$^{93}\text{Nb}(\gamma, n)^{92\text{m}}\text{Nb}$	101.6d	0.934	$1.51\times10^3$	6.6	$2.75\times10^3$	36
Sn	$^{124}\text{Sn}(\gamma, n)^{123\text{m}}\text{Sn}$	40 min	0.160	$4.86\times10^5$	0.21	$7.09\times10^5$	0.14
I	$^{127}\text{I}(\gamma, n)^{126}\text{I}$	13 d	0.386	$1.86\times10^3$	5.4	$7.54\times10^3$	1.33
Cs	$^{133}\text{Cs}(\gamma, n)^{132}\text{Cs}$	6.5 d	0.668	$1.14\times10^4$	0.88	$1.73\times10^4$	0.58
Pr	$^{141}\text{Pr}(\gamma, n)^{140}\text{Pr}$	3.4 min	0.511 <sup>*</sup>	$2.60\times10^6$	0.039	$4.31\times10^6$	0.023
Tl	$^{203}\text{Tl}(\gamma, n)^{202}\text{Tl}$	12 d	0.439	$3.04\times10^3$	3.3	$6.79\times10^3$	1.5
Pb	$^{204}\text{Pb}(\gamma, n)^{203}\text{Pb}$	521 hr	0.279	$1.56\times10^3$	6.4	$4.59\times10^3$	22
"	$^{204}\text{Pb}(\gamma, \gamma')^{204\text{m}}\text{Pb}$	66.9 min	0.375		13	$6.94\times10^3$	1.4
+	$^{206}\text{Pb}(\gamma, 2n)^{204\text{m}}\text{Pb}$			$7.45\times10^2$			

\* Annihilation  $\gamma$ -rays.

$\dagger$  At the end of 1-hr irradiation with a standard dose rate of bremsstrahlung photons. With this dose rate,  $2.4 \mu\text{Ci}^{64}\text{Cu}$  or  $60.1 \mu\text{Ci}^{62}\text{Cu}$  is produced in 1 mg Cu at 30 MeV, or  $4.7 \mu\text{Ci}^{64}\text{Cu}$ /mg Cu at 60 MeV.

elements can be improved significantly by bremsstrahlung irradiation with higher maximum energies. With our accelerator, the most of the elements listed here can be determined in amounts well below 1  $\mu\text{g}$  with 30 MeV bremsstrahlung and these amounts are generally reduced by one-half with 60 MeV bremsstrahlung. In case of lead the limit of detection at 60 MeV is almost one-tenth of that at 30 MeV, because the  $^{204\text{m}}\text{Pb}$  can be produced in part through the  $(\gamma, 2n)$  reaction and because this reaction is strongly energy-dependent. In such cases, the excitation by bremsstrahlung with higher energies will be useful in analysis. The present results reveal the possibility of determining these elements in ppm levels in various materials.

#### The yield as a function of atomic number

The photon absorption cross section for a nucleus is an increasing function of atomic number, and a considerable amount of the cross section data has already been published through direct measurement of photoneutrons or photoprotons.<sup>12-14)</sup> However, it can be said that some ambiguities should be present in applying these data on the general consideration of photon activation analysis utilizing particular residual nuclides generated from each of the photonuclear reactions.

For most nuclei, an excitation energy of 30 MeV is sufficient to cause the emission of one or two particles, and, especially for heavy nuclei, of three particles. By means of the residual activity method, the yields for 170 different photonuclear reactions could be measured separately in 71 elements from carbon up to bismuth with 30 MeV bremsstrahlung. Those were the 96  $(\gamma, n)$ , 31  $(\gamma, p)$ , 20  $(\gamma, 2n)$ , 13  $(\gamma, pn)$ , 4  $(\gamma, \alpha)$  and 6  $(\gamma, 3n)$  reactions. Several of the  $(\gamma, \gamma')$  reaction

products were also measured but are excluded from the present compilation because of their low production rates. The individual yield was plotted against atomic number ( $Z$ ) of the target element as shown in Fig. 1.

The yield values for the  $(r,n)$  reactions lie in the range of  $10^4$  to  $10^8$  mole $^{-1}$ ·R $^{-1}$ , and increase in the main regularly with atomic number. The  $(r,2n)$  yield values become an appreciable extent around chromium and, rising rapidly with increasing atomic number, reach about 10 per cent of those of the  $(r,n)$  reactions with high  $Z$  nuclei. The  $(r,3n)$  reactions were only measured for the elements of

high atomic numbers. For low  $Z$  nuclides, the  $(r,n)$  and  $(r,p)$  yields are of the same order of magnitude. With increasing  $Z$ , however, the  $(r,p)$  yield drops rapidly since proton emission is more and more hindered by the Coulomb barrier.

It is seen that the  $(r,p)$

yield curve levels off at a roughly constant value for elements with atomic number greater than 50. The presence of direct effects in the photoproton emission from heavier nuclei will be responsible for this behavior as had been suggested by several workers.<sup>14,15)</sup> The shape of the curve for the  $(r,pn)$  reactions

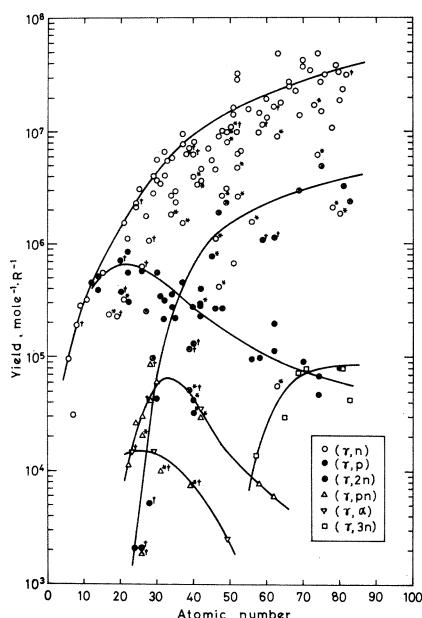


Fig. 1. The yields of photoreactions as a function of atomic number with 30 MeV bremsstrahlung.

\* The yields of meta-stable isomers

† The yields for the reactions on target nuclides of neutron or proton magic.



is very similar to that for the  $(r,p)$  reactions, which shows an initial rise and then, through a maximum point, drops rapidly with increasing atomic number with tailing around  $Z = 60$ .

For light elements both  $(r,n)$  and  $(r,p)$  reactions can be used for analytical purposes, whereas for heavier elements the  $(r,n)$  reaction is the most widely used. Other types of reactions are generally of little practical use and will mainly have to be considered when studying interferences.

### Isotopic yield ratio

The cross section for photoneutron emission from a neutron . excess isotope is expected to be large, and vice versa for photo-proton emission. From the yield data obtained with 30 MeV bremsstrahlung, several examples of this sort were taken out and listed in Table II. As for the  $(r,n)$  processes in antimony isotopes, the total cross section for the formation of the excited state of  $^{121}\text{Sb}$  are shared between two different  $^{120}\text{Sb}$  isotopes,

Table II. The yield ratios of several isotopic pairs with 30 MeV bremsstrahlung

Reaction pathway	Isotopic pair	Yield ratio
$\text{Cu}(r, n)$	$^{64}\text{Cu}/^{62}\text{Cu}$	1.72
$\text{Zn}(r, n)$	$^{65}\text{Zn}/^{63}\text{Zn}$	1.62
$\text{Ge}(r, n)$	$^{75}\text{Ge}/^{69}\text{Ge}$	1.71
$\text{Se}(r, n)$	$^{75}\text{Se}/^{73}\text{Se}$	2.12
$\text{Sb}(r, n)$	$^{120}\text{Sb}/^{122}\text{Sb}/^{120}\text{Sb}$ (16min) (5.8d)	1/0.89/0.041
$\text{Ce}(r, n)$	$^{139}\text{Ce}/^{141}\text{Ce}$	1.45
$\text{Yb}(r, n)$	$^{175}\text{Yb}/^{169}\text{Yb}$	1.13
$\text{Si}(r, p)$	$^{28}\text{Al}/^{29}\text{Al}$	1.30
$\text{Ti}(r, p)$	$^{46}\text{Sc}/^{47}\text{Sc}/^{48}\text{Sc}$	1/0.67/0.39
$\text{Ge}(r, p)$	$^{72}\text{Ga}/^{73}\text{Ga}$	1.52
$\text{Se}(r, p)$	$^{76}\text{As}/^{77}\text{As}$	1.23
$\text{Mo}(r, p)$	$^{95}\text{Nb}/^{96}\text{Nb}/^{97}\text{Nb}$	1/0.74/0.57
$\text{W}(r, p)$	$^{183}\text{Ta}/^{185}\text{Ta}$	1.46

16-min  $^{120}\text{Sb}(1^+)$  and 5.8-d  $^{120}\text{Sb}(8^-)$ . The yield of the 5.8-d isotope was determined to be 4% of that of the 16-min isotope as a result of small probability of formation due to the large spin change.

As seen in Fig. 1, anomalously small yield values were obtained for the reactions on the parent nuclides of neutron or proton magic. These are the  $(r,n)$  reactions on  $^{16}\text{O}(Z=8)$ ,  $^{39}\text{K}(N=20)$ ,  $^{52}\text{Cr}(N=28)$ ,  $^{54}\text{Fe}(N=28)$ ,  $^{58}\text{Ni}(Z=28)$ ,  $^{89}\text{Y}(N=50)$ ,  $^{90}\text{Zr}(N=50)$ ,  $^{123}\text{m}\text{Sn}(Z=50)$ ,  $^{141}\text{Pr}(N=82)$ ,  $^{144}\text{Sm}(N=82)$  and  $^{204}\text{Pb}(Z=82)$ , and the  $(r,2n)$  reactions on  $^{54}\text{Fe}$ ,  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{89}\text{Y}$ ,  $^{90}\text{Zr}$ ,  $^{141}\text{Pr}$  and  $^{144}\text{Sm}$ , and the  $(r,p)$  reactions on  $^{43,44}\text{Ca}(Z=20)$ , and the  $(r,pn)$  reactions on  $^{54}\text{Fe}$ ,  $^{58,60}\text{Ni}$  and  $^{89}\text{Y}$ , and the  $(r,\alpha)$  reaction on  $^{51}\text{V}(N=28)$ .

#### Isomeric yield ratio

As seen in Fig. 1, the yields of metastable state isomers are low in general. The yield ratios of several isomeric pairs determined with 30 MeV bremsstrahlung are given in Table III together with their spins and half-lives. In many cases in which an excited state of the compound nucleus can decay to either isomer through intermediate states in gamma-cascades, gamma-transitions of low multipolarity are accorded preference over those of high multipolarity. Since the absorption of 30 MeV bremsstrahlung by a nucleus can in the main be regarded as electric dipole photon absorption,<sup>16)</sup> the spins of the excited states may not differ remarkably from that of the parent nucleus. The yield ratios, therefore, favor the isomers whose spin is closer to that of the target nucleus as seen in Table III, although the results for  $^{89}\text{Zr}$  and  $^{95}\text{Nb}$  isomers are the exceptions to this category. Dependences of excitation energy on the isomeric yield ratios were not appreciable extent over

Table III. The yield ratios of several isomeric pairs with 30 MeV bremsstrahlung

Parent		Reaction	Residual					Yield ratio, $Y_m/(Y_m+Y_g)$
Target nucleus	Spin		Ground state		Metastable state			
			Spin	Half-life	Spin	Half-life		
$^{45}\text{Sc}$	$7/2^-$	$(\gamma, n)$	$2^+$	3.92 hr	$6^+$	2.44 d	0.173	
$^{85}\text{Rb}$	$5/2^-$	$(\gamma, n)$	$2^-$	330 d	$6^+$	20 min	0.147	
$^{90}\text{Zr}$	$0^+$	$(\gamma, n)$	$9/2^+$	78.4 hr	$1/2^-$	4.18 min	0.381	
$^{107}\text{Ag}$	$1/2^-$	$(\gamma, n)$	$1^+$	24 min	$6^+$	8.4 d	0.042	
$^{116}\text{Cd}$	$0^+$	$(\gamma, n)$	$1/2^+$	53.5 hr	$11/2^-$	43 d	0.213	
$^{113}\text{In}$	$9/2^+$	$(\gamma, n)$	$1^+$	14 min	$4^+$	20.7 min	2.62	
$^{120}\text{Te}$	$0^+$	$(\gamma, n)$	$1/2^+$	15.9 hr	$11/2^-$	4.7 d	0.166	
$^{198}\text{Pt}$	$0^+$	$(\gamma, n)$	$1/2^-$	18 hr	$13/2^-$	80 min	0.166	
$^{198}\text{Hg}$	$0^+$	$(\gamma, n)$	$1/2^-$	65 hr	$13/2^-$	24 hr	0.089	
$^{89}\text{Y}$	$1/2^-$	$(\gamma, 2n)$	$1/2^-$	80 hr	$9/2^+$	14 hr	0.304	
$^{96}\text{Mo}$	$0^+$	$(\gamma, p)$	$9/2^+$	35 d	$1/2^-$	90 hr	0.430	
$^{54}\text{Fe}$	$0^+$	$(\gamma, pn)$	$6^+$	5.7 d	$2^+$	21 min	9.79	

the energy range investigated (see Fig. 3).

The yield as a function of excitation energy

Reactions of the type  $(r, xn)$ ——For most of the medium and heavy weight nuclei, the energy range of 30 MeV bremsstrahlung covers the substantial part of an excitation function of the  $(r, n)$  reaction, and hence the yield reaches at almost constant value beyond 30 MeV. Typical yield curves for the  $(r, n)$  reactions are given in Fig. 2. The yield curves for the  $^{12}\text{C}(r, n)^{11}\text{C}$  reaction ( $-Q = 18.72$  MeV), however, rises up to 60 MeV to a value three times higher than that at 30 MeV.

Improvement in sensitivities in the  $(r, n)$  activation analysis for heavier elements with bremsstrahlung at high energies is mainly due to the production of more photons to cause resultant activities.

The yield of a reaction with the emission of more than one neutron appears to be strongly energy dependent. Several yield curves for the types  $(r, 2n)$ ,  $(r, 3n)$  and  $(r, 4n)$  are shown in Fig. 3. The registration of the activity due to the  $(r, 3n)$  reactions starts substantially beyond 40 MeV for the medium weight nuclei, and the  $(r, 4n)$  reaction products can be measured only for the heavy weight nuclei at 40 MeV. The relative yields of forming each nuclides by the  $(r, xn)$  reactions appear likely to show almost an order of magnitude decrease with each increasing  $x$  value. Figure 4 gives the relative yields for

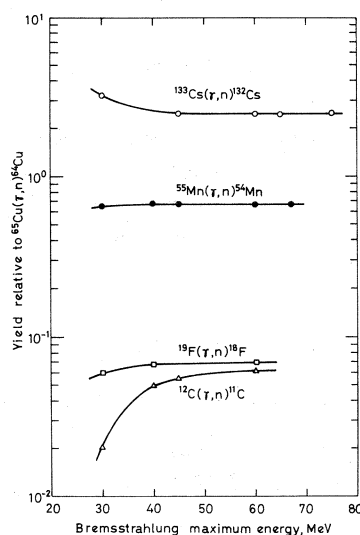


Fig. 2. The yield curves for several  $(r, n)$  reactions.

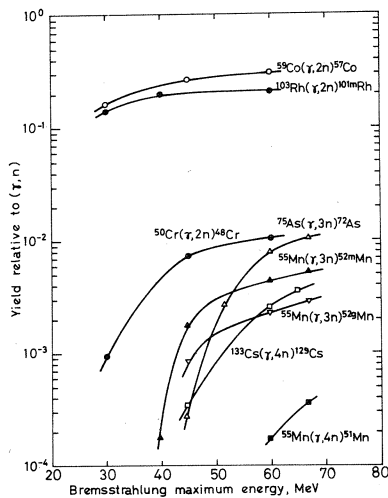


Fig. 3. The yield curves for several  $(r,2n)$ ,  $(r,3n)$  and  $(r,4n)$  reactions.

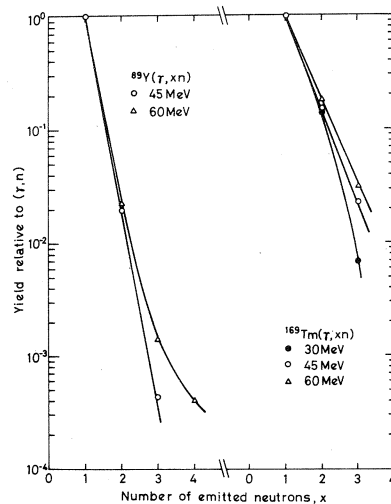


Fig. 4. The relative yields of the  $(r,xn)$  reactions on  $^{89}\text{Y}$  and  $^{169}\text{Tm}$  as functions of  $x$ .

the  $(r, xn)$  reactions on  $^{89}\text{Y}$  and  $^{169}\text{Tm}$ .

Reactions of the type  $(r,pxn)$ —The yield curves for the  $(r,p)$  reactions on  $^{44}\text{Ca}$ ,

$^{96}\text{Mo}$  and  $^{152}\text{Sm}$  are shown

in Fig. 5. Over the energy range investigated, the yield increases gradually with increasing energies. The contribution of the direct photo-proton emission mechanism may become more important at high energies, thereby causing the enhancement

of the yield values. The

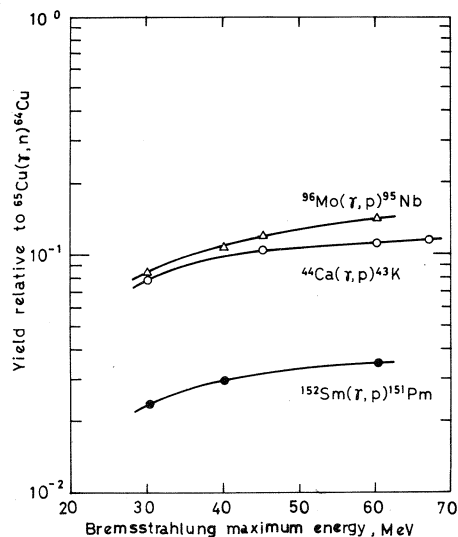


Fig. 5. The yield curves for several  $(r,p)$  reactions.

enhancement of the yield values is more significant for the  $(r, pn)$ ,  $(r, p2n)$  and  $(r, p3n)$  reactions as shown in Fig. 6. For the production of the reactions of such types, the quasi-deuteron effect plays the important role, depending on the atomic number of the reacting nucleus and on the incident photon energy.<sup>17)</sup> At high energies this process can be thought to be responsible for the increase in yield values.

Other complex reactions — Other

reactions with the emission of more particles are substantially forbidden from the mass-threshold considerations for most of the light nuclei in the energy range covered in this experiment, but in some heavy nuclei they can still occur.

When iodine activities were chemically separated from an irradiated cesium sample, the  $^{126}\text{I}$  activity formed by the  $(r, 2p5n)$  reaction on  $^{133}\text{Cs}$  ( $-Q = 55.4$  MeV) was measured together with the  $^{131}\text{I}$  and  $^{130}\text{I}$  activities.<sup>18)</sup> The reaction paths other than  $(r, 2p5n)$  would also occur simultaneously; the reactions  $(r, \alpha, 3n)$  ( $-Q = 27.1$  MeV),  $(r, dt2n)$  ( $-Q = 44.7$  MeV),  $(r, {}^3\text{He}4n)$  ( $-Q = 47.7$  MeV),  $(r, 2d3n)$  ( $-Q = 51.0$  MeV) and  $(r, pd4n)$  ( $-Q = 53.2$  MeV).

Although the yield values for the reactions of such types are negligibly small in general, a difficult interference problem will occur when these reactions produce a nuclide identical to that thought in the activation analysis.

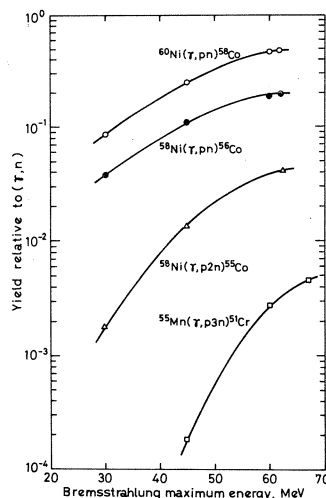


Fig. 6. The yield curves for several  $(r, pn)$ ,  $(r, p2n)$  and  $(r, p3n)$  reactions.

## CONCLUSION

Although considerable effort has been devoted to the photon activation analysis for traces of light elements, it appears also to be quite promising to apply this method to the determination of many other elements at trace levels. Under the present experimental conditions with our accelerator, sensitivities well below 1  $\mu\text{g}$  were obtained for many elements. These sensitivities are, of course, improved with an accelerator giving bremsstrahlung of much higher dose rate and with better counting efficiencies. The amount of activation is very dependent on electron energy, and the  $(\gamma, 2n)$  reactions, besides the  $(\gamma, n)$  and  $(\gamma, p)$  reactions, become useful in analysis. The interference problem, however, become serious under such conditions, and thus the yield data for various photonuclear reactions which occur simultaneously at a given electron energy should serve to provide useful indications. The combination of an efficient chemical separation and solid state detection technique will also improve sensitivity, accuracy and versatility in the determination of the heavier elements in photon activation analysis.

The author believes that the foregoing presentation should be very useful to those who plan to determine the content of an element by photon activation analysis with best sensitivity obtainable with minimum interference error.

Acknowledgement—The author expresses his appreciation to members of the Institute of Nuclear Science, Tohoku University, for their very fine services with the irradiations.

## REFERENCES

- 1) E. Schweikert and Ph. Albert, Colloque Sur les Methodes

- Radiochimiques d'Analyse, Salzburg, I.A.E.A., SM-SS/66, (1964).
- 2) Y. Oka, T. Kato, K. Nomura and T. Saito, J. Nucl. Sci. Technol., 4, 345 (1967).
  - 3) G.H. Anderson, F.M. Graber, V.P. Guinn, H.R. Lukens and D.M. Settle, Proceedings of the Symposium on Nuclear Activation Techniques in the Life Sciences, Amsterdam, I.A.E.A., SM-91/63, (1967).
  - 4) D. Brune, Anal. Chim. Acta, 44, 9 (1969)..
  - 5) G.J. Lutz, Anal. Chem., 41, 424 (1969).
  - 6) Ch. Engelmann, J. Radioanal. Chem., 6, 399 (1970).
  - 7) Y. Oka, T. Kato, K. Nomura and T. Saito, Bull. Chem. Soc. Japan, 40, 575 (1967).
  - 8) Y. Oka, T. Kato, K. Nomura, T. Saito and H-T. Tsai, *ibid.*, 41, 380 (1968).
  - 9) Y. Oka, T. Kato, K. Nomura, T. Saito and H-T. Tsai, *ibid.*, 41, 2660 (1968).
  - 10) C.M. Lederer, J.M. Hollander and I. Perlman, Table of Isotopes, 6th Ed., Wiley, New York, (1967).
  - 11) L. Katz and A.G.W. Cameron, Canad. J. Phys., 29, 518 (1951).
  - 12) G.A. Price and D.W. Kerst, Phys. Rev., 77, 806 (1950).
  - 13) R. Montalbetti, L. Katz and J. Goldenberg, *ibid.*, 91, 659 (1953).
  - 14) E.V. Weinstock and J. Halpern, *ibid.*, 94, 1651 (1954).
  - 15) V.G. Shevchenko and B.A. Yuryev, *ibid.*, 37, 495 (1962).
  - 16) J.M. Blatt and V.F. Weisskopf, Theoretical Nuclear Physics, p. 651. Wiley, New York (1952).
  - 17) J.S. Levinger, Phys. Rev., 84, 43 (1951).
  - 18) H-T. Tsai, T. Kato and Y. Oka, Bull. Chem. Soc. Japan, 43, 2482 (1970).



### III-2 Non-Destructive Photon-Activation Analysis of Standard Rocks with 30 MeV Bremsstrahlung

理学部化学      鈴木信男<sup>\*1</sup>・森田勇人<sup>\*2</sup>  
佐藤允美<sup>\*3</sup>・加藤豊明<sup>\*4</sup>

**Summary**      Photon-activation analysis has been applied to the non-destructive determination of four U.S.G.S. standard silicate rocks for some 15 elements. The rock sample and the multi-element standards were irradiated simultaneously with 30 MeV bremsstrahlung, and  $(\gamma, n)$  and  $(\gamma, p)$  reaction products were measured with a Ge(Li) detector. The validity of the method is demonstrated by presenting data obtained for these rocks for the following elements: Na, Mg, Ca, Ti, Mn, Fe, Co, Ni, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Ba and Ce.

## INTRODUCTION

The determination of a number of constituents in standard rocks has been performed by various analytical methods, and, as a result, a considerable amount of the data has been accumulated until recently, as compiled by Fleischer<sup>1,2)</sup> and Flanagan<sup>3)</sup> for the U.S.G.S. standard rocks. Thermal-neutron activation

- 
- \*1 Nobuo Suzuki: Department of Chemistry, Faculty of Science, Tohoku University.
  - \*2 Isato Morita: (Present address) Takachiho Chemical Industries, Ltd., Tokyo.
  - \*3 Nobuyoshi Sato: College of General Education, Iwate University, Morioka.
  - \*4 Toyooki Kato: Department of Chemistry, Faculty of Science Tohoku University.

analysis has preferably been used for the determination of a number of trace elements in them, and, especially combined with the use of high-resolution gamma-ray spectrometry, those elements could be determined non-destructively.<sup>4-9)</sup>

However, the non-destructive thermal-neutron activation analysis is accompanied by certain limitations due to the high  $^{24}\text{Na}$  activity induced in a rock material. Self-shielding problem is sometimes serious in these work. These difficulties are, however, not inherent in activation analysis by high-energy photons. In some cases, alternate products induced by  $(\gamma, n)$  or  $(\gamma, p)$  reactions have more convenient half-lives or gamma-ray energies than those produced by  $(n, \gamma)$  reactions. Despite of those advantages, relatively little attention has so far been paid to the use of photon-activation method in analysis of materials of geochemical origins.

The present report deals with a part of such study as to evaluate the potential for determining many elements simultaneously in geochemical materials by photon-activation analysis. Determinations of four U.S.G.S. standard rocks (G-2, GSP-1, AGV-1 and BCR-1) for some 15 elements (Na, Mg, Ca, Ti, Mn, Fe, Co, Ni, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Ba and Ce) have been made non-destructively by activation with 30 MeV bremsstrahlung and high-resolution gamma-ray spectrometry.

Multi-element standard method proposed by Kuncíř et al.<sup>8)</sup> for the instrumental neutron activation analysis of rocks has been used in this work.

## EXPERIMENTAL

Samples and standards     4 U.S.G.S. standard rocks were provided by the U.S. Geological Survey in a finely powdered form.

Rock samples were individually placed in small aluminum containers made from thin foil and made into discs 9 mm in diameter with thickness about 4 mm. An amount of the rock loaded varied in the range of 400 - 450 mg. The multi-element standards (MES) were prepared in such manner that an aliquot of a mixed solution of the minor or trace elements was added to a known amount of a solid mixture of the major constituents. The composition of the MES was aimed at simulating the average composition of the standard rocks to be analyzed. The reagents with chemical purity of 99.99 per cent or better were used in this experiment.

A solid standard was a mixture of oxides of Si(66.51), Mg(5.92), and Ti(1.06) and Fe(III)(5.29) and carbonates of Na(11.9), and Ca(9.31), where values in brackets indicate the weight fractions (%) of the compounds in the mixture. Known amounts of these compounds were sealed in a "V-form" tube and were mixed homogeneously by rotating it for a period of 2 days. Three multi-element standard solutions were prepared, the first containing Co(9.95), Mn(89.5), and Rb(115) and the second Ba(419), Sr(118), Y(8.50) and Ni(6.42) and the third Zr(74.1) and Nb(6.91), where values in brackets show the amounts of each element ( $\mu\text{g}$ ) in a 0.1 ml aliquot of each solution. Besides, a standard solution of cerium was prepared by dissolving  $\text{Ce}(\text{SO}_4)_2 \cdot 2(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  in water ( $102 \mu\text{gCe}/0.1 \text{ ml}$ ). A known amount of solid standard weighing 150 mg was placed in a small aluminum container made from thin foil, and 0.1 ml each of the standard solutions were pipetted onto it. It was dried at  $110^\circ\text{C}$  and then made into a disc with a diameter of 9 mm and 4 mm high.

The multi-element standards were placed on the front and back of each sample and irradiated simultaneously. An aluminum disc weighing 100 mg was also irradiated for an interference study.

Irradiation The linear electron accelerator of Tohoku University which is able to accelerate electrons with energies up to 300 MeV was used as the bremsstrahlung source. From a knowledge of the previous study regarding the sensitivity and interferences in photon-activation analysis,<sup>10)</sup> an electron energy of 30 MeV was selected in the present work. The electron beam, the peak current being 90 mA, produced bremsstrahlung in a platinum converter with a thickness of 3 mm located 3 cm from the beam exit window. The average beam current in a typical operating condition was 70  $\mu$ A at the position of the converter measured by using a current monitor.

The sample and standards were placed in a water-cooled sample holder on the bremsstrahlung beam axis immediately behind the converter for irradiation. In a typical irradiation, a dose-rate of  $4.41 \times 10^6$  R/min was obtained at the sample position.<sup>10)</sup> The experimental result showed that the vertical spread of flux did not have a pronounced effect on the results, if the samples were limited to dimensions of the above size, and that a flux gradient along the length of the sample was 10 per cent or less.

All irradiations were terminated in 2 hours.

Counting and evaluation The counting equipment consisted of a lithium-drifted germanium detector with a sensitive volume of 24 cm<sup>3</sup>, ORTEC Model 8001-30, and its associated electronics coupled to a TMC 1024-channel pulse-height analyzer. The counting system had a resolution of 2.6 keV for the 1332 keV gamma-

line. Besides, a 33 cm<sup>3</sup> Ge(Li) detector, ORTEC Model 8101-0525 (FWHM = 2.4 keV for 1330 keV gamma-line), coupled to a 4096-channel pulse-height analyzer made by Toshiba Electric Co. Ltd., Japan, was also used. The rock sample and standard were separately counted at a fixed position, 12 mm in most cases, from the active surface of the detector. Counting has been made continually for a period of one month or longer.

Nuclide identification was obtained from a knowledge of the gamma-ray energies, decay data, the gamma-ray spectra obtained by irradiating pertinent pure elements, and nuclear data listed in the Table of Isotopes.<sup>11)</sup> In obtaining full-energy peak areas, total peak counts were computed and background contribution was subtracted, assuming linear variation of background over the peak of interest. Interferences from overlapping peaks were corrected by decay curve analyses. The most complex case of this sort was found in the 1.37 MeV peak analysis, which was the composite peak of <sup>24</sup>Na(15.0 h) and <sup>57</sup>Ni(36.0 h). A mean specific activity in terms of the peak area for any specified gamma-ray from standards on both sides was used for calculating the concentration of an element in question in a sample.

Duplicate analyses were made for each element, and the result was the average with the range from this value.

## RESULTS AND DISCUSSION

The elements determined here were those which give relatively long-lived radionuclides in photon-activation analysis. The particulars of the nuclear characteristics of the nuclides of the present importance are listed in Table 1. The peak intensities due to those gamma-rays are also included which were obtained by irradiating each pure element under the similar

experimental conditions.

By means of the comparative method, concentrations of each element were calculated. Table 2 lists the results for 5 major constituents, and Table 3 10 trace elements. The literature data published by Flanagan<sup>3</sup> were also included for comparisons.

In the determination of magnesium, the  $^{24}\text{Na}$  activity produced by the  $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$  reaction due to photoneutrons causes interferences. This interference is particularly serious for rocks low in magnesium and high in aluminum

Table 1 The particulars of nuclear data on photon-activation products used for determinations

Element	Activation product	Process	Half-life of product	Gamma-ray used, keV	Peak intensity, cpm/mg*
Na	$^{22}\text{Na}$	$(\gamma, n)$	2.60 y	1275	$1.40 \times 10^1$
Mg	$^{24}\text{Na}$	$(\gamma, p)$	15.0 h	1369	$2.49 \times 10^3$
Ca	$^{43}\text{K}$	$(\gamma, p)$	22.4 h	374	$9.13 \times 10^2$
Ti	$^{47}\text{Sc}$	$(\gamma, p)$	3.43 d	160	$2.84 \times 10^4$
Mn	$^{54}\text{Mn}$	$(\gamma, n)$	303 d	835	$3.22 \times 10^2$
Fe	$^{56}\text{Mn}$	$(\gamma, p)$	2.576 h	847	$2.66 \times 10^3$
Co	$^{58}\text{Co}$	$(\gamma, n)$	71.3 d	811	$7.33 \times 10^2$
Ni	$^{57}\text{Ni}$	$(\gamma, n)$	36.0 h	1370	$2.07 \times 10^4$
Rb	$^{84}\text{Rb}$	$(\gamma, n)$	33.0 d	880	$2.54 \times 10^3$
Sr	$^{87\text{m}}\text{Sr}$	$(\gamma, n)$	2.83 h	388	$1.62 \times 10^6$
Y	$^{88}\text{Y}$	$(\gamma, n)$	108 d	1836	$4.46 \times 10^2$
Zr	$^{89}\text{Zr}$	$(\gamma, n)$	78.4 h	913	$1.63 \times 10^4$
Nb	$^{92\text{m}}\text{Nb}$	$(\gamma, n)$	10.16 d	934	$5.18 \times 10^3$
Ba	$^{135\text{m}}\text{Ba}$	$(\gamma, n)$	28.7 h	268	$2.29 \times 10^3$
Ce	$^{139}\text{Ce}$	$+(\gamma, \gamma')$ $(\gamma, n)$	140 d	166	$9.87 \times 10^3$

\* At the end of 2-h irradiation with 30 MeV bremsstrahlung with a dose-rate of  $4.41 \times 10^6$  R/min : 24 cm<sup>3</sup> Ge(Li), source-to-detector distance 12 mm.

(granitic rocks).  $^{24}\text{Na}$  activity from an aluminum container was also source of interference. The experimental results showed that one mg of magnesium corresponds to 206 mg of aluminum in terms of the production rate of  $^{24}\text{Na}$  under the present experimental conditions. The  $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$  contribution to the total  $^{24}\text{Na}$  activity can be estimated to be approximately 12 per cent for G-2, assuming the magnesium-to-aluminum ratio in weight to be  $0.058^3$  and the weight of an aluminum container 35 mg. The magnesium data listed in Table 2 are those corrected for aluminum in such way, and, therefore, should be considered as the provisional values. The magnesium

Table 2 Concentration of major constituents in standard rocks (in per cent)

Constituent	G-2 78/2*	GSP-1 30/3*	AGV-1 54/7*	BCR-1 2/12*
$\text{Na}_2\text{O}$				
This work	$4.02 \pm 0.17$	$2.79 \pm 0.02$	$4.14 \pm 0.13$	$3.23 \pm 0.10$
Compiled data**	4.15	2.88	4.33	3.31
$\text{MgO}$				
This work	$0.96 \pm 0.03$	$1.03 \pm 0.04$	$1.57 \pm 0.01$	$3.49 \pm 0.04$
Compiled data**	0.78	0.95	1.49	3.28
$\text{CaO}$				
This work	$1.94 \pm 0.04$	$2.02 \pm 0.02$	$4.65 \pm 0.12$	$6.82 \pm 0.12$
Compiled data**	1.98	2.03	4.98	6.95
$\text{TiO}_2$				
This work	$0.50 \pm 0.05$	$0.68 \pm 0.01$	$1.03 \pm 0.01$	$2.15 \pm 0.03$
Compiled data**	0.53	0.69	1.08	2.23
$\text{Fe}_2\text{O}_3$				
This work	$2.74 \pm 0.04$	$4.67 \pm 0.10$	$7.08 \pm 0.28$	$13.55 \pm 0.03$
Compiled data**	$2.76_8$	$4.33_4$	$6.80_4$	$13.50_8$

\* Split/Position.

\*\* Ref. 3 : Average value.

Table 3 Concentration of trace elements in standard rocks  
(in ppm)

Element	G - 2	GSP - 1	AGV - 1	BCR - 1
Mn				
This work	217 ± 12	360 ± 16	600 ± 24	1301 ± 3
Compiled data*	180 ~ 360 (265)	260 ~ 450 (362)	640 ~ 870 (728)	1040 ~ 1600 (1350)
Co				
This work	5.8 ± 0.2	12.0 ± 0.6	19.6 ± 2.6	32.6 ± 3.8
Compiled data*	2 ~ 21 (4.9)	3 ~ 22 (7.5)	10 ~ 30 (15.5)	29 ~ 60 (35.5)
Ni				
This work	9.0 ± 1.9	11.6 ± 1.2	13.1 ± 0.9	14.5 ± 4.0
Compiled data*	2 ~ 14 (6.4)	3 ~ 25 (10.7)	11 ~ 27 (17.8)	8 ~ 30 (15.0)
Rb				
This work	137 ± 4	198 ± 25	55.8 ± 1.9	43.3 ± 5.0
Compiled data*	108 ~ 513 (234)	200 ~ 690 (343)	68 ~ 130 (89.4)	45 ~ 150 (72.8)
Sr				
This work	531 ± 8	262 ± 4	742 ± 6	346 ± 5
Compiled data*	235 ~ 680 (463)	148 ~ 400 (247)	348 ~ 1050 (657)	244 ~ 525 (345)
Y				
This work	12.2 ± 0.5	35.2 ± 1.1	26.0 ± 1.6	45.6 ± 4.1
Compiled data*	8 ~ 20 (12.2)	20 ~ 51 (36.6)	10 ~ 30 (25.3)	20 ~ 60 (46.2)
Zr				
This work	300 ± 14	531 ± 13	219 ± 12	171 ± 2
Compiled data*	250 ~ 400 (316)	323 ~ 685 (544)	186 ~ 315 (227)	144 ~ 275 (185)
Nb				
This work	11.5 ± 0.5	25.9 ± 2.1	18.8 ± 0.6	27.3 ± 2.3
Compiled data*	8 ~ 20 (16.1)	24 ~ 36 (28.3)	16 ~ 30 (21.7)	10 ~ 97 (34.1)
Ba				
This work	1955 ± 5	1435 ± 5	1326 ± 10	1404 ± 59
Compiled data*	1500 ~ 3000 (1950)	855 ~ 2000 (1360)	1040 ~ 2700 (1410)	480 ~ 1230 (790)
Ce				
This work	180 ± 5	532 ± 7	73.2 ± 0.4	47.8 ± 4.3
Compiled data*	144 ~ 180 (166)	350 ~ 800 (555)	57 ~ 110 (76)	40 ~ 53 (49)

\* Ref.3 : Ranges of trace elements. Values in brackets show the average ones.



results may be accurate only for rocks high in magnesium and low in aluminum.

The  $^{54}\text{Mn}$  activity coming from iron through the  $^{56}\text{Fe}(\gamma, \text{pn})^{54}\text{Mn}$  reaction causes interference in the manganese determination. When an amount of pure iron was irradiated with 30 MeV bremsstrahlung, an activity ratio of  $1.03 \times 10^{-3}$  was obtained as the ratio of the 0.835 MeV peak area of  $^{54}\text{Mn}$  to the 0.847 MeV peak area of  $^{56}\text{Mn}$  at the end of irradiation. The  $^{54}\text{Mn}$  activity due to the  $^{55}\text{Mn}(\gamma, \text{n})^{54}\text{Mn}$  reaction for a given rock sample was, therefore, calculated by multiplying the counting rate under the 0.847 MeV peak by  $1.03 \times 10^{-3}$  and then by subtracting this value from the counting rate under the 0.835 MeV peak corrected for decay to the end of irradiation.

When titanium is determined by means of the  $^{48}\text{Ti}(\gamma, \text{p})^{47}\text{Sc}$  reaction, the  $^{51}\text{V}(\gamma, \alpha)^{47}\text{Sc}$  reaction interferes. The production rate (cpm/mg) of  $^{47}\text{Sc}$  by the latter turns out to be only 4 per cent of that by the former.<sup>10)</sup> From this fact and the literature data<sup>3)</sup> for the content of vanadium, interferences from vanadium are negligibly small: In case of BCR-1, with the highest vanadium-to-titanium ratio under study, it turns out to be only 0.1 per cent. There were no additional interference problems in this study. The results of two separate determinations for each of these elements generally agree with uncertainties better than  $\pm 10$  per cent.

For yttrium, zirconium and niobium, non-destructive methods by thermal-neutron activation are generally not attainable because these elements are not highly activated or because their  $(\text{n}, \gamma)$  reaction products are relatively short-lived or emit no gamma-rays. These elements can, however, be measured non-destructively by photon-activation analysis even at ppm

levels.

Further applicability and versatility of the method would lie in the determination of many other elements in rock materials by photon activation followed by efficient chemical separation, and these problems will be studied in the near future.

The authors would like to express their appreciation to members of the linac staff at the Institute of Nuclear Science, Tohoku University, for their kind cooperations with the irradiations. The U.S.G.S. standard rocks were provided by Dr. F.J. Flanagan of the U. S. Geological Survey to whom the authors' thanks are due.

## REFERENCES

1. M. Fleischer, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 29, 1263 (1965).
2. M. Fleischer, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 33, 65 (1969).
3. F.J. Flanagan, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 33, 81 (1969).
4. A.O. Brunfelt, E. Steiness, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 30, 921 (1966).
5. J.C. Cobb, *Anal. Chem.*, 39, 127 (1967).
6. G.E. Gordon, K. Randle, G.G. Goles, J.B. Corliss, M.H. Beeson, S.S. Oxley, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 32, 369 (1968).
7. I.M. Dale, P. Henderson, A. Walton, *Radiochem. Radioanal. Letters*, 5, 91 (1970).
8. J. Kuncír, J. Bendada, Z. Řanda, M. Vobecký, *J. Radioanal. Chem.*, 5, 369 (1970).
9. R. H. Filby, W.A. Haller, K.R. Shah, *J. Radioanal. Chem.*, 5, 277 (1970).
10. T. Kato, Y. Oka, *Talanta*, 19, 515 (1972).

11. C.M. Lederer, J.M. Hollander, I. Perlman, Table of Isotopes, 6th ed., J. Wiley & Sons, New York, 1967.

### III-3 気相 $^{80m}\text{BrBr}-\text{CH}_3\text{Cl}$ 系における 核異性体転移にともなう化学的効果

核理研・理学部化学\*

八木益男・近藤健次郎・小林孝彰\*・塩川孝信

#### §1 結 言

核異性体転移によって励起された反跳臭素は、他の核変換による励起と比べた場合、運動エネルギーのあまり大きくない多重電荷イオンとして生成する点に特徴がある。<sup>1)</sup> 従って種々の有機化合物との反応において運動エネルギーと電荷の役割を評価することは、反跳臭素のもつ特異的な反応性を理解する上で基本的に重要である。

先に著者ら<sup>2)</sup>は  $^{80m}\text{BrBr}-\text{CH}_3\text{Br}$  系においてはいずれの有機生成物も希ガス添加の効果をほとんど受けないことを報告した。これは  $^{82m}\text{BrBr}$  系について岡本ら<sup>3)</sup> および Rackら<sup>4)</sup>が見出した  $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$ ,  $\text{CH}_2^{82}\text{BrBr}$  のいずれも希ガス添加によりその生成が完全に抑制されるという事実といちじるしい対照をなすものである。そこで著者らはこのような  $^{80}\text{Br}$  と  $^{82}\text{Br}$  との化学的挙動の差異の一般性を検討する目的で  $\text{CH}_3\text{Br}$  同様イオン化電位が  $\text{Br}$  より低い  $\text{CH}_3\text{Cl}$  をとりあげ、まず  $^{80m}\text{BrB}$  系について希ガス添加の効果を調べた。

#### §2 実 験

$\text{CH}_3\text{Cl}$  はマチソン社製のものを3回真空蒸留したものを用いた。 $\text{Kr}$  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. 製の特級品をそのまま用いた。 $^{80m}\text{BrBr}$  は東北大学電子ライナックで最大 45~60 MeV の制動放射線を照射した  $\text{PdBr}_2$  を熱分解することにより得た。試料の調製、抽出操作、ガスクロマトグラフィーによる有機生成物の分離および放射能測定は従来とまったく同様の方法に従った。<sup>5)</sup>

#### §3 結 果

反跳  $^{80}\text{Br}$  と  $\text{CH}_3\text{Cl}$  との反応による有機生成物はラジオガスクロマトグラフィーにより6種が検出された。このうち3種類は  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ ,  $\text{CH}_2^{80}\text{BrCl}$  および  $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$  と同定されたが残り1, 2- $\text{C}_2\text{H}_4^{80}\text{BrBr}$ ,  $\text{CH}^{80}\text{BrBr}_2$ ,  $\text{CH}^{80}\text{BrClBr}$  などのいずれかと思われるが retention time に若干の不一致が認められた。後者3種の寄与は小さいので  $\text{C}_2\text{H}_4\text{Br}_2$

付近をfraction 4,  $\text{CHBr}_3$  付近をfraction 5として捕集した。

全圧を 65cmHg 一定にして  $\text{CH}_3\text{Cl}$  と  $^{80}\text{mBrBr}$  との混合比を変えた時の生成物の分布をFig.1に示した。fraction 4およびfraction 5はほとんど  $\text{Br}_2$  濃度の影響を受けないのに対し  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$  および  $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$  は  $\text{Br}_2$  濃度とともに増加の傾向を,  $\text{CH}_2^{80}\text{BrCl}$  は減少の傾向を示した。これは生成物分布が  $\text{Br}_2$  濃度に依存しなかった  $^{80}\text{mBrBr}-\text{CH}_3\text{Br}$  系とは異なる結果である。

$\text{Br}_2/\text{CH}_3\text{Cl} = 0.11$  全圧 65 cmHg をそれぞれ一定に保って Kr 濃度を変化させた場合の生成物分布を Fig.2 に示した。  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$  および  $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$  は Kr 濃度とともに減少する傾向をみせるのに対し  $\text{CH}_2^{80}\text{BrCl}$  が増加の傾向を示した。fraction 4およびfraction 5はこの場合もほとんど Kr 濃度の影響を受けないことがわかる。  $^{80}\text{mBrBr}-\text{CH}_3\text{Br}$  系においては  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$   $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$ ,  $\text{CH}_2^{80}\text{BrCH}_2\text{Br}$  および  $\text{CH}^{80}\text{BrBr}_2$  の分布は Kr 濃度 0~0.8m. f. の範囲で変らなかったから, 先の  $\text{Br}_2$  濃度の影響とともに,  $\text{CH}_3\text{Br}$  系と  $\text{CH}_3\text{Cl}$  系とでは相違のあることが明らかになったわけである。

Kr 濃度の効果を個々の生成物の収率に対して表わしたものが Fig.3 である。fraction 4およびfraction 5は省略し, 全有機収率を合わせ示してある。これから  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$  および  $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$  の収率は Kr の添加によって減少はするが Kr 濃度 1m. f. への外挿値はゼロと

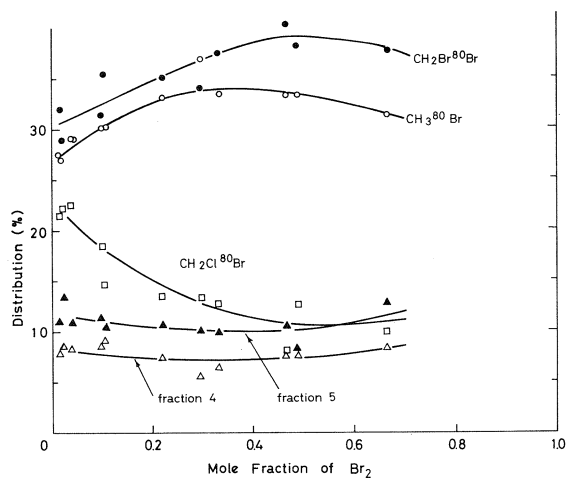


Fig.1 Effect of  $\text{Br}_2$  Additive on Product Distribution in the Reaction of (I. T.)-Activated  $^{80}\text{Br}$  with  $\text{CH}_3\text{Cl}$ .

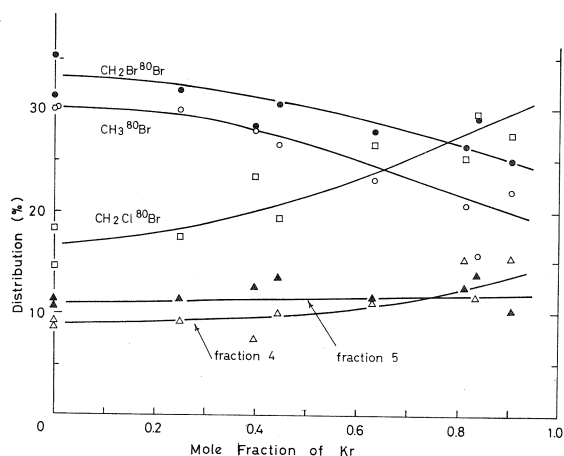


Fig.2 Effect of Krypton Additive on Product Distribution in the Reaction of (I. T.)-Activated  $^{80}\text{Br}$  with  $\text{CH}_3\text{Cl}$ .

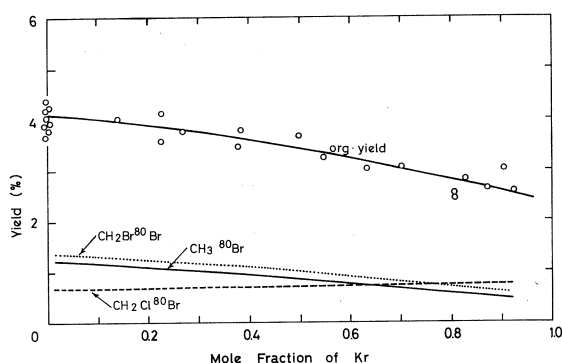


Fig. 3 Effect of Krypton Additive on the Organic Yield in the Reaction of (I. T.)-Activated  $^{80}\text{Br}$  with  $\text{CH}_3\text{Cl}$ .

はならないこと、また  $\text{CH}_2^{80}\text{BrCl}$  の収率は Kr 濃度 0~0.9 m. f. の範囲で一定であることがわかる。Kr 添加による全有機収率の減少高は、Kr 0 m. f. で 4.2%, Kr 1 m. f. への外挿値は 2.2% であるから  $\text{CH}_3\text{Br}$  系 (4.1%→3.1%) の場合よりやや大きいと云える。

#### § 4 考 察

Kr は質量が Br とほぼ等しく反跳臭素との衝突による減速効果は最も大きいと期待される。またそのイオン化電位 (13.99 eV) は Br のそれ (11.84 eV) より大きく単原子分子であるので  $\text{Br}^+$  イオンとの荷電交換による反跳臭素イオンの中和や励起 Br 原子に対する quenching の効果は小さい。したがって Kr の添加によって抑制された反応は運動エネルギー依存過程 (ホットアトム反応, ホットイオン反応) であると考えられる<sup>5a)</sup>。本実験条件下では有機ラジカルと反跳臭素との再結合による  $^{80}\text{Br}$  標識有機化合物の生成は起こりえないから、Kr の添加によって抑制されない反応は、 $\text{Br}_2$  分子の熱分解や光分解で生成する基底状態の臭素原子 ( $\text{Br}_{3/2}\cdot\text{Br}_{1/2}$ ) とは異なる励起状態の臭素原子か、または電荷が中和されるにいたらない  $\text{Br}^+$  イオンかに関与した反応であると考えられる。

イオン化電位が Br よりも大きい  $\text{CH}_4$  (12.99 eV) との反応においてみられた Kr によって抑制されない反応は、熱平衡に達した  $^{80}\text{Br}^+$  イオンの関与した熱イオン反応であると考えられた。これは  $\text{Br}^+$  と  $\text{CH}_4$  との電荷移動反応による中和は吸熱反応となる場合があるので、核異性体移の際のクローン反発によって得る運動エネルギーの寄与を考慮しても中和が不可能な場合があることに基づいている。<sup>5a, 6)</sup>

一方イオン化電位が Br より低い  $\text{CH}_3\text{Br}$  (10.53 eV)  $\text{CH}_3\text{Cl}$  (11.23 eV) の場合電荷移動反応は発熱的となるからエネルギー的には中和が起こりうる。事実、岡本ら<sup>3)</sup> および Rack ら<sup>4)</sup>

は先に $^{82m}\text{BrBr}-\text{CH}_3\text{Br}$ 系において $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$ ,  $\text{CH}_2^{82}\text{BrBr}$ の生成がともに希ガス添加によって完全に抑制されることに対して,  $^{82}\text{Br}^+ \rightarrow ^{82}\text{Br}$ への電荷移動反応が効率よくおこり, 反応時にはホット $^{82}\text{Br}$ 原子として関与しているためであると説明した。

しかし, 先に報告した $^{80m}\text{BrBr}-\text{CH}_3\text{Br}$ 系<sup>2)</sup>および今回の $^{80m}\text{BrBr}-\text{CH}_3\text{Cl}$ 系においてKrの添加によって抑制されない反応がみられたことは, イオン化電位の大小関係だけから反跳臭素の荷電状態, 中和の可能性を論ずることは必ずしも妥当でないことを示唆するものである。多重電荷イオンの電荷移動反応機構は不明な点が多いが $\text{Br}^{n+}$ から $\text{Br}^+$ への部分中和過程は極めて速いとも考えられる。<sup>3)</sup> この場合 $\text{Br}^+$ から $\text{Br}^0$ への中和がおこるとすれば, 励起状態の $\text{Br}^0$ を生成する過程はかなりの吸熱反応となるので, ほとんどが基底状態の $\text{Br}^0$ となると思われる。従って $\text{CH}_3\text{Br}$ ,  $\text{CH}_3\text{Cl}$ 系でみられた運動エネルギーに依存しない過程も熱イオン反応によるものと考えられる。

Brよりもイオン化電位が低い媒体中で熱イオンが生成することは,  $^{80m}\text{Br}$ の核異性体転移が37KeVの中間レベルを経由する successive two step transitionであること<sup>7)</sup>および熱イオンとして反応に関与するかホットアトムとして反応に関与するかは単に中和がエネルギー的におこりうるかという平衡論的観点からではなく電荷移動反応とイオン分子反応との競争の結果によるとの観点から考察すべきことを考慮に入れば, その可能性は否定されるものではない。

すなわち電荷移動反応はイオン分子反応に比べ高エネルギー領域で支配的であるが比較的低エネルギーになると両者は競争しうようになり, またその区別も困難となる<sup>8)</sup>。いま $\text{Br}^+$ イオンの電荷移動による中和の断面積と $\text{Br}^+-\text{CH}_3\text{Cl}$ 系のイオン分子反応の断面積の速度依存性を考えてみる。最大の電荷移動断面積は $\text{Br}^+-\text{Br}$ 間の共鳴電荷移動の場合に得られるが, これはRappおよびFrancisにより理論計算値が得られている。<sup>9)</sup>  $\text{Br}^+$ と $\text{CH}_3\text{Cl}$ との電荷移動においてaccidental resonance<sup>10)</sup>が成りたてば, その断面積は $\sigma_{\text{RCT}}$ に近くなるが一般にはこれより小さい値をとると思われる。一方イオン分子反応の指標としてはLangevinの orbiting collision または capture collisionの断面積が一般に用いられこれは次式で表わされる。<sup>11)</sup>

$$\sigma_L = \frac{2\pi e}{V} \sqrt{\frac{\alpha}{\mu}}$$

$$\sigma_M = \frac{2\pi e}{V} \sqrt{\frac{\alpha}{\mu}} + \frac{2\pi e}{V^2} \cdot \frac{\mu_D}{m_{\text{ion}}}$$

ただし $V$ は相対速度,  $e$ は電荷,  $\alpha$ は中性分子の分極率,  $\mu_D$ は中性子の双極子モーメント,  $m_{\text{ion}}$

はイオンの質量,  $\mu$  は系の換算質量である。

$\alpha \text{CH}_3\text{Cl} = 4.56 \times 10^{-24} \text{ cm}^3$   $\mu_D \text{CH}_3\text{Cl} = 1.86 \text{ Debye}$  を代入して計算した  $\sigma_L$ ,  $\sigma_M$  の値を  $\sigma_{\text{RCT}}$  とともに Fig. 4 に示した。明らかに相対速度が  $\sim 3 \times 10^5 \text{ cm/sec}$  以下 (1 eV 以下) になると  $\sigma_L$ ,  $\sigma_M$  は急激に大きくなり  $\sigma_{\text{RCT}}$  を越えるようになることがわかる。したがって  $^{80\text{m}}\text{Br}$  の核異性体転移によって励起された  $^{80}\text{Br}$  が, かなりの低速イオンとして存在すれば, イオン化電位が Br より低い  $\text{CH}_3\text{Cl}$  との反応においても中和に先行してイオン分子反応がおこりうると考えられる。低速  $^{80}\text{Br}$  + イオンは, 1st step internal conversion の結果生じる  $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$  または  $^{80\text{m}}\text{Br}$  などの  $10^{-8}$  秒程度の短寿命中間体からの 2nd step internal conversion によって生成すると思われる。

一方 1st step internal conversion の結果生じた  $^{80\text{m}}\text{Br}$  のうち 39% は  $\gamma$  線放出によって 2nd step I. T. を行なうので熱イオンとして残る可能性は小さく, 運動エネルギー依存過程を経て反応する確保が大きい。これが Kr の添加によって抑制される部分に対応していると考えられる。

$^{80\text{m}}\text{Br}$  は本質的に異なる 2 種類の遷移を行なうからその核異性体転移にともなう化学反応を詳細に解析するためには, 単純な遷移を行なう  $^{82\text{m}}\text{Br}$  系の実験結果を必要とするが現在までにこの種のデータは得られておらず上記考察の妥当性は今後さらに検討の余地を残している。

核異性体転移によって励起された反跳臭素と  $\text{CH}_3\text{Cl}$  との反応における希ガス添加の効果を検討したのは本研究がはじめてであるが, 先の  $\text{CH}_3\text{Br}$  の場合と同様, 熱イオン反応と考えられる過程の寄与が無視できないことが明らかになり, 反応機構は核異性体転移に特徴的な複雑さをもっていると考えざるを得ない。

本実験を行なうにあたり  $^{80\text{m}}\text{Br}$  の製造に御協力いただいた東北大学電子ライナック運転クルーの方々に厚く御礼申し上げます。

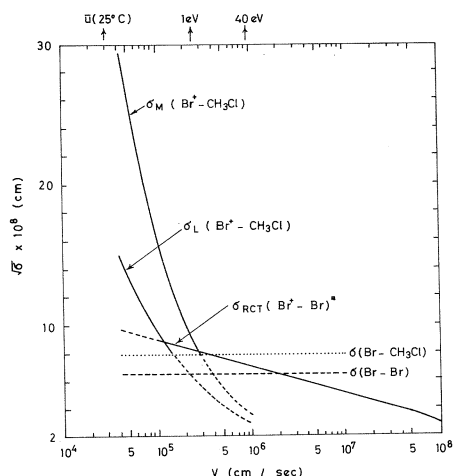


Fig. 4 Velocity Dependence of the Cross Sections for "Capture Collision" and Resonant Charge Transfer  
\* Rapp & Francis, J. Chem. Phys., 37, 2631 (1962).



## 文 献

- 1) A. R. Kazanjian and W. F. Libby, J. Chem. Phys., **42**, 2778(1965).
- 2) 八木, 近藤, 小林, 塩川, 核理研研究報告, **3**, 132(1970).
- 3) J. Okamoto and E. Tachikawa: Bull. Chem. Soc. Japan, **42**, 1504 (1969).
- 4) D. W. Oates, R. L. Ayres, R. W. Helton, K. S. Schwartz and E. P. Rack: Radiochem. Radioanal. Letters, **4**, 123(1970).
- 5) a. M. Yagi, K. Kondo and T. Kobayashi: Bull. Chem. Soc. Japan, **44**, 580(1971).  
b. T. Shiokawa, T. Kobayashi, M. Yagi and K. Kondo: Radiochem. Radioanal. Letters, **7**, 281(1971).
- 6) 八木, 近藤, 小林, 核理研研究報告, **4**, 102(1971), **4**, 136(1972).
- 7) C. M. Lederer, J. M. Hollander and I. Perlman "Table of Isotopes" John Willey & Sons, Inc., New York (1967) PP215-217.
- 8) a. T. F. Moran and L. Friedman: J. Chem. Phys., **45**, 3837(1966).  
b. P. Worneck, *ibid*, **46**, 513(1967).
- 9) D. Rapp and W. E. Francis, *ibid*, **37**, 2631(1962).
- 10) O. K. Bohme, J. B. Hasted and P. P. Ong: J. Phys. **B1**, 879(1968).
- 11) J. V. Dugan, Jr and J. L. Magee: J. Chem. Phys., **47**, 3103(1967).

### III-4 ウラニル - TTA キレート の酸化トリアルキル ホスフィンとの付加錯体

選 研 秋葉建一・橋本裕之・菅野卓治

種々の中性配位子と金属キレートの付加錯体生成の規則性を明らかにするため、今まで tributyl phosphate (TBP) をはじめとする数種の有機りん化合物とウラニル - thenoyltrifluoroacetone (TTA) キレートとの付加錯体生成を調べてきた。

この報告では、ウラニル - TTA キレート ( $\text{UO}_2\text{A}_2$ ) の tris(2-ethylhexyl) phosphine oxide (TEHPO) 付加体の生成について調べる。TEHPO 付加体の生成定数を多くの有機溶媒中で求め、他の配位子との付加体の場合と比較検討する。

#### 実 験

LINAC 照射により、 $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$  反応で生成した  $^{237}\text{U}$  をトレーサとする分配法により、付加錯体生成を調べた。 $^{237}\text{U}$  を含む水相 ( $\text{H, Na})\text{ClO}_4$  ( $\mu=0.1$ ) と TTA および TEHPO を含む有機相を  $25^\circ\text{C}$  で 20 時間振り混ぜて平衡させた後、両相の  $\gamma$ -放射能を測定してウラニル錯体の分配比を求めた。

ウラニル濃度は  $10^{-4}\text{M}$  以下で分配比に影響をおよぼさないことを確めた上、 $10^{-5} \sim 10^{-6}\text{M}$  で実験を行った。TTA および TEHPO は有機相のウラニル錯体の濃度に対して大過剰とした。

#### 結 果

ウラニル - TTA キレート ( $\text{UO}_2\text{A}_2$ ) の TEHPO (S) との付加錯体生成は、



$$K_S = \frac{[\text{UO}_2\text{A}_2 \cdot m\text{S}]}{[\text{UO}_2\text{A}_2][\text{S}]^m} \quad (2)$$

ここで、 $K_S$  は付加錯体生成定数である。TTA のみによる分配比を  $D_M$ , TTA と TEHPO が共存する時の分配比を  $D_{M, S}$  とすると、

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

したがって、curve-fitting 法により平衡定数を求めることができる。また、TTA のみ

による抽出定数を  $K_{ex}$ , TEHPO 共存下の抽出定数を  $K_{ex,S}$  とすれば, 次式からも  $K_S$  が求められる。

$$K_S = \frac{K_{ex,S}}{K_{ex}} \quad (4)$$

#### 付加錯体の組成

TEHPO 共存下における抽出錯体の組成を知るために, 分配比の  $pA$  に対する変化を見ると, Fig.1 に示す様にいずれの溶媒でも勾配約 -2 の直線となる。

TTA 濃度を変えた場合も pH を変化した場合も, 勾配は -2 となり, キレート  $UO_2A_2$  に何分子かの TEHPO が付加した形とみなせる。この実験条件下では, TEHPO 単独での抽出は無視できる。

TEHPO 濃度変化に対する分配比の変化を Fig.2 に示す。各溶媒で勾配 1 の直線となり,  $UO_2A_2$  に対して一分子の TEHPO が付加した 1:1 錯体  $UO_2A_2 \cdot S$  が生成しているとみなされ, 高次の付加体の生成は認められない。

付加体の組成を連続変化法で調べた結果を Fig.3 に示す。すなわち, キレート剤 TTA と 付加剤

TEHPO の総濃度を一定に保ち, 両者の濃度比を変えて分配比の変化をみると, TTA(HA):

TEHPO(S) = 2:1 で最大となる曲線で表わすことができ,  $UO_2A_2 \cdot S$  の生成が確認された。

第一段の付加体のみ生成することは, 従来調べてきた他の有機りん化合物との付加体の場合と同じ

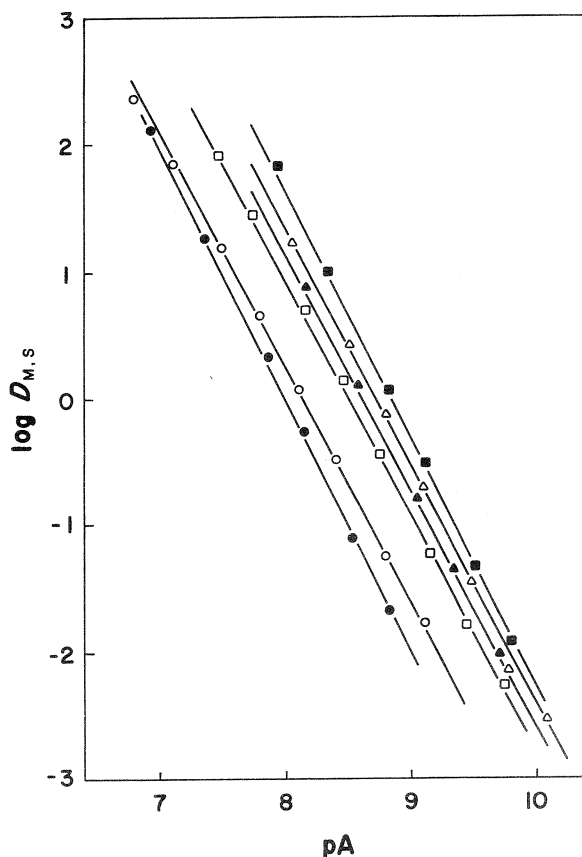


Fig.1. Distribution ratios of uranyl complexes as a function of  $pA$ .  
 $[U]_t \div 10^{-5} M$ ,  
 $pH = 1.09$ ;  $\triangle$  benzene ( $[S] = 1.00 \times 10^{-3} M$ ),  
 $\square$   $CCl_4$  ( $[S] = 1.47 \times 10^{-3} M$ ),  $\circ$  cyclohexane ( $[S] = 1.18 \times 10^{-3} M$ ).  
 $[HA] = 10^{-3} M$ ;  $\blacksquare$  toluene ( $[S] = 1.34 \times 10^{-3} M$ ),  $\blacktriangle$  methylene chloride ( $[S] = 1.38 \times 10^{-3} M$ ),  $\bullet$   $n$ -heptane ( $[S] = 9.00 \times 10^{-4} M$ ).

る呈色反応によった。

## 2 結 果

図1に、各種有機酸 —  $2\text{NNH}_3 \cdot \text{H}_3\text{OB}_3$  の水溶液中での  $(n, \alpha)$  反応により生成したアミノ酸の酢酸；ブタノール；水（2：4：1）による展開でのクロマト図を示す。図2は $\text{NH}_3$ の代りに $\text{CH}_3\text{NH}_2$ を用いたもののクロマト図である。図の上に標準試料の $R_f$ 値を示してある。いずれの系でもかなり多種類のアミノ酸が生成していることがわかる。電子線照射試料のクロマト図を図3、4に示す。 $\gamma$ 線照射試料でもほとんど同じ結果がえられた。電子線あるいは $\gamma$ 線照射では単純な置換反応で予想されるアラニンの他にプロリン、バリンと思われるものが一部にみられるのみである。これに対し  $(n, \alpha)$  反応では多量のアミノ酸が生成しているので各アミノ酸の帰属のため二次元展開を行なったところ、多くの有機酸についてカップリング反応により、生じたと考えられる、アスパラギン酸、グルタミン酸、スレオニンなどがみられた。

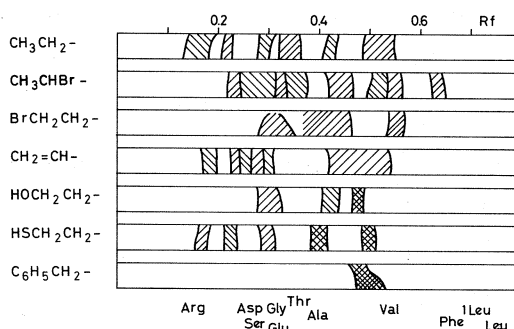
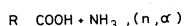


図1 アンモニア — 各種有機酸系での  $(n, \alpha)$  反応生成物を酢酸 — ブタノール — 水により展開したクロマト図

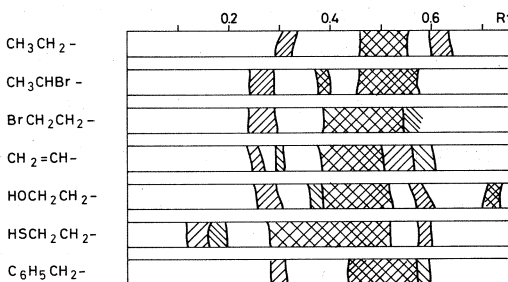
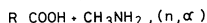


図2 メチルアルミン — 各種有機酸系での  $(n, \alpha)$  反応による生成物を酢酸 — ブタノール — 水により展開したクロマト図

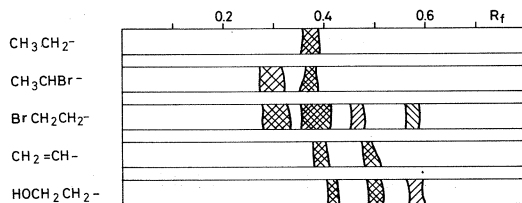
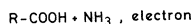


図3 アンモニア — 各種有機酸系での電子線照射生成物を酢酸 — ブタノール — 水により展開したクロマト図

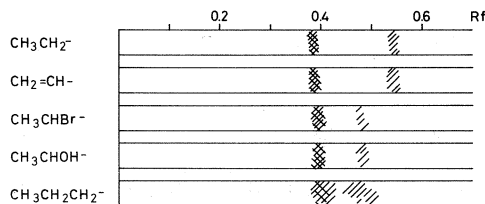
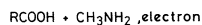


図4 メチルアミン — 各種有機酸系での電子線照射生成物を酢酸 — ブタノール — 水により展開したクロマト図

### 3 検 討

図1, 2と3, 4の比較からただちにわかるように $(n, \alpha)$ 反応と電子線では反応生成物が明らかに異なっている。本実験の条件下では $B(n, \alpha)Li$ で放出されるエネルギー $1 \times 10^{22} \text{ eV/g}$ 程度であり共存 $\gamma$ 線による吸収エネルギー $2 \times 10^{21} \text{ eV/g}$ より約5倍大きく、したがって原子炉照射での複雑な反応は $(n, \alpha)$ 反応にともなう高いLET効果によるものと考えられる。

本実験では多量の水が共存しているので各種放射線により生成する一次活性種はほとんどが水分子に起因する $\cdot OH$ ,  $H$ ,  $e^-(aq)$ などであり、これらの一次活性種が有機酸、アンモニアなどと反応するという過程をとると思われる。脂肪酸<sup>3)</sup>, アミノ類<sup>4)</sup>の水溶液の $\gamma$ 線照射でできる活性種の構造についてはすでにいくつかの報告がある。電子線照射や $(n, \alpha)$ 反応でも基本的には同じ反応様式にしたがうと考えられるが、とくに $(n, \alpha)$ 反応の場合一次活性種の濃度が格段に高いため、たとえば $\cdot OH$ ラジカルと $CH_3CH_2COOH$ の反応で生じる $CH_3CHCOOH$ ラジカルがさらに $\cdot OH$ ラジカルで攻撃されるとか、これらの二次活性種間のカップリングなどの反応がおこる確率が大きくなるであろう。事実Garrison<sup>5)</sup>らは酢酸水溶液を $He$ イオンで照射した場合 $\cdot CH_2COOH$ の単純なカップリングでできると予想されるコハク酸のほかマロン酸、リンゴ酸、クエン酸などが生成し複雑なカップリング反応がおこっていることを示した。

本実験でも $\gamma$ 線や電子線では比較的単純な反応で生成すると思われるアラニンのほかにセリン、バリンなど小数のものが副成しているのみであるのに対して、 $(n, \alpha)$ 反応ではアスパラギン酸、グルタミン酸、スレオニンなど非常に複雑なカップリング反応がおこっていると推定される生成物がみられこの反応には顕著なLET効果のあることが示された。

Getoffら<sup>1)</sup>はアミノ類- $CO_2$ 系では $\gamma$ 線照射でも多種類のアミノ酸が生成することを報告しているがアミンから生じる活性種が比較的安定で逐次的に反応をおこすためと考えられる。

### 4 結 語

有機酸-アンモニア(アミン)水溶液よりのアミノ酸生成反応には顕著なLET効果があることが示された。とくにアミノ酸は微量分析法が確立していることを考えると、この反応は放射線化学反応におけるLET効果の研究に適した実験系であると期待される。

### 文 献

- 1) N. Getoff, G. O. Schlenck, Radiation Research, **31**, 486(1967).
- 2) 品川, 増田, 引地; 昭和46年日本原子力学会年会(大阪)
- 3) P. Neta, M. Smic, E. Hayon, J. Phys. Chem., **73**, 4207, 4214(1969).

- 4) P. Neta, R. W. Fessenden, J. Phys. Chem., **75**, 738(1971).
- 5) W. M. Garrison et al., J. Amer. Chem. Soc., **75**, 2459(1953), 2720  
(1955).

る呈色反応によった。

## 2 結 果

図1に、各種有機酸 —  $2\text{NNH}_3 \cdot \text{H}_3\text{OB}_3$  の水溶液での  $(n, \alpha)$  反応により生成したアミノ酸の酢酸；ブタノール；水（2：4：1）に

よる展開でのクロマト図を示す。図2は $\text{NH}_3$ の代りに $\text{CH}_3\text{NH}_2$ を用いたもののクロマト図である。図の上に標準試料の $R_f$ 値を示してある。いずれの系でもかなり多種類のアミノ酸が生成していることがわかる。電子線照射試料のクロマト図を図3、4に示す。 $\gamma$ 線照射試料でもほとんど同じ結果がえられた。

電子線あるいは $\gamma$ 線照射では単純な置換反応で予想されるアラニンの他にプロリン、バリンと思われるものが一部にみられるのみである。これに対し  $(n, \alpha)$  反応では多量のアミノ酸が生成しているので各アミノ酸の帰属のため二次元展開を行なったところ、多くの有機酸についてカップリング反応により、生じたと考えられる、アスパラギン酸、グルタミン酸、スレオニンなどがみられた。

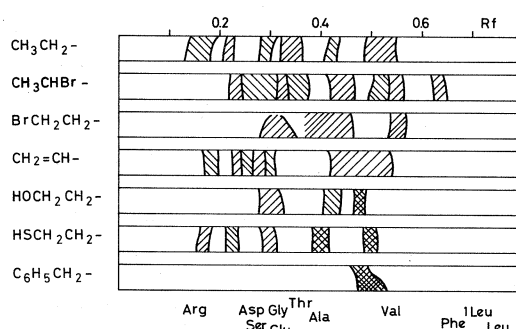
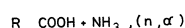


図1 アンモニア — 各種有機酸系での  $(n, \alpha)$  反応生成物を酢酸 — ブタノール — 水により展開したクロマト図

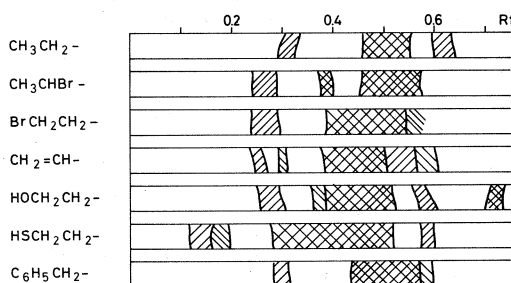
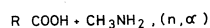


図2 メチルアルミン — 各種有機酸系での  $(n, \alpha)$  反応による生成物を酢酸 — ブタノール — 水により展開したクロマト図

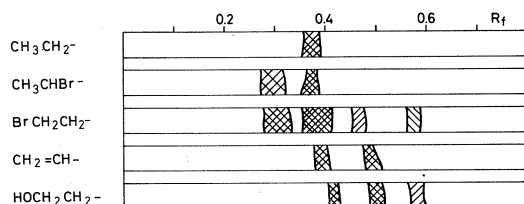
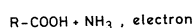


図3 アンモニア — 各種有機酸系での電子線照射生成物を酢酸 — ブタノール — 水により展開したクロマト図

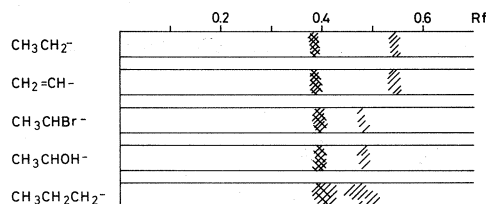
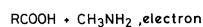


図4 メチルアミン — 各種有機酸系での電子線照射生成物を酢酸 — ブタノール — 水により展開したクロマト図

### 3 検 討

図1, 2と3, 4の比較からただちにわかるように $(n, \alpha)$ 反応と電子線では反応生成物が明らかに異なっている。本実験の条件下では $B(n, \alpha)Li$ で放出されるエネルギー $1 \times 10^{22} \text{ eV/g}$ 程度であり共存 $\gamma$ 線による吸収エネルギー $2 \times 10^{21} \text{ eV/g}$ より約5倍大きく、したがって原子炉照射での複雑な反応は $(n, \alpha)$ 反応にともなう高いLET効果によるものと考えられる。

本実験では多量の水が共存しているので各種放射線により生成する一次活性種はほとんどが水分子に起因する $\cdot OH$ ,  $H$ ,  $e^-(aq)$ などであり、これらの一次活性種が有機酸、アンモニアなどと反応するという過程をとると思われる。脂肪酸<sup>3)</sup>, アミノ類<sup>4)</sup>の水溶液の $\gamma$ 線照射でできる活性種の構造についてはすでにいくつかの報告がある。電子線照射や $(n, \alpha)$ 反応でも基本的には同じ反応様式にしたがうと考えられるが、とくに $(n, \alpha)$ 反応の場合一次活性種の濃度が格段に高いため、たとえば $\cdot OH$ ラジカルと $CH_3CH_2COOH$ の反応で生じる $CH_3CHCOOH$ ラジカルがさらに $\cdot OH$ ラジカルで攻撃されるとか、これらの二次活性種間のカップリングなどの反応がおこる確率が大きくなるであろう。事実Garrison<sup>5)</sup>らは酢酸水溶液を $He$ イオンで照射した場合 $\cdot CH_2COOH$ の単純なカップリングでできると予想されるコハク酸のほかにマロン酸、リンゴ酸、クエン酸などが生成し複雑なカップリング反応がおこっていることを示した。

本実験でも $\gamma$ 線や電子線では比較的単純な反応で生成すると思われるアラニンのほかにセリン、バリンなど小数のものが副成しているのみであるのに対して、 $(n, \alpha)$ 反応ではアスパラギン酸、グルタミン酸、スレオニンなど非常に複雑なカップリング反応がおこっていると推定される生成物がみられこの反応には顕著なLET効果のあることが示された。

Getoffら<sup>1)</sup>はアミノ類 $-CO_2$ 系では $\gamma$ 線照射でも多種類のアミノ酸が生成することを報告しているがアミンから生じる活性種が比較的安定で逐次的に反応をおこすためと考えられる。

### 4 結 語

有機酸—アンモニア(アミン)水溶液よりのアミン酸生成反応には顕著なLET効果があることが示された。とくにアミノ酸は微量分析法が確立していることを考えると、この反応は放射線化学反応におけるLET効果の研究に適した実験系であると期待される。

### 文 献

- 1) N. Getoff, G. O. Schlenck, Radiation Research, **31**, 486(1967).
- 2) 品川, 増田, 引地; 昭和46年日本原子力学会年会(大阪)
- 3) P. Neta, M. Smic, R. Hayon, J. Phys. Chem., **73**, 4207, 4214(1969).



- 4) P. Neta, R. W. Fessenden, J. Phys. Chem., **75**, 738(1971).
- 5) W. M. Garrison et al., J. Amer. Chem. Soc., **75**, 2459(1953), 2720  
(1955).

#### IV. 生 物 医 学 部 門

## IV-1 パルス電子線照射による 細胞コロニー形成率に就いて

医学部放射線基礎医学・核理研\*  
放射線医学総合研究所\*\*

栗冠正利・佐々木俊作・浦沢茂一\*・稲田哲雄\*\*

電子直線加速器を用いる放射線生物学研究には少く共2つの特色が有る。第1は巨大線量の生物学的効果の研究である。この報告は既に済ませた<sup>1)2)</sup>。第2は大線量率で極めて短時間照射を与えるパルス効果の研究である。普通の直線加速器から発射される電子線エネルギーは数MeV以上であって低LET,粗イオン密度のものであるが1パルスの中はマイクロ秒以下であるから生物学的標準の中に起こるイオン化は粗な飛跡が重なり合い、重粒子による密イオン化放射線とは違う効果が期待される。この報告で我々は実験がん培養細胞のコロニー形成能抑制作用を指標として、パルス照射と連続照射(コバルト60ガンマ線)の効果を比較して線量率効果について補足的な資料を提供し一解釈を与えたい。

### 材 料 と 方 法

東北大学理学部原子核理学研究施設第1実験室生物照射台の60MeV電子線を用いた。射出口近くにQ磁石を置き線錐を上げ射出口から1.5mの距離で直径約5cmになるようにした。床と水平で高さ160cmの水平線錐を用いたため被照射体は総て木台の上にセットした。線錐の位置と大きさは予めITVで調整してく。射出口から1.5mに厚さ1mmの紙で遮光したフジプロセスフィルム(オーソ)手札判を線錐に直角に線錐内に置く。このフィルムは線錐内の強さの分布を知る為に用意した。フィルム系(フィルムと遮光紙の一组を指す)の背後(射出口から見てフィルムの遠側)に線量計システムをフィルムに密着してセロテープで固定する。線量計システムは円管とボラスから成立っている。円管はアクリル製で外径20mm,高さ30mm,壁厚1mmの小円筒の中に線量計用Fe<sup>++</sup>溶液を満たしライフエンシートで蓋をしたものである。ボラスはアクリル製厚板,100mm×100mm×30mmであってその中心に円管を納める円柱をあげ上から円管を収納したあとで導入口の空間部をアクリルの円栓できっちりと封じておく。円管は稲田が調整し照射2~3日前に仙台に到着するよう郵送されてきた。

細胞はC3Hはつかねずみの乳がん培養細胞FM3Aである。指數的に生長している細胞集団を照射の前日夕方に集め培地と共に直径20mmのガラス試験管に5ml中に約 $10^4$ コだけ注ぎゴム

栓をあてて 37℃ におき翌朝 8 時半室温に取り出し魔法瓶に入れ自動車で約 20 分運搬して 照射室まで至る。照射は通常午前 11 時過ぎから約 1 時間にわたって行われた。細胞浮遊液を入れた試験管は線量計システムの背後にセロテープで貼り着け円筒中心と試験管内の細胞浮遊液の中心が水平線上に並ぶ様に努めた。フィルム系、線量計システムおよび試験管は 1 ブロックを成して居るので細胞浮遊液中心を電流モニターの中心におけば照射の幾何学的条件は再現性がある様に整える事ができる。

照射は 60MeV, 毎秒 180 パルス, パルス巾 3 マイクロ秒で 1 ないし数十パルスを与えた。照射が終れば再び自動車で 20 分かけて細胞浮遊液を培養室まで運び午後 3 時ころから細胞計数の上、モニターの読みに応じて細胞密度を考えながら培地にまき培養に移り約 2 週間たってから染色し肉眼で見えるコロニーを計数し無照射対照コロニー数との比を用いて生存曲線を描いた。

被曝フィルムは東北大学歯学部で歯科 X 線フィルム現像と同条件で処理した上、稲田が濃度測定を行った。照射済みの Fe 線量計の読みも稲田が担当した。

## 成 績

パルス数とマイクロクロン数の直線性は良い。図 1 に 3 回の実験結果を示してある。実験のたびにパルス当りのマイクロクロン値は違うが同一実験日には 1 パルスは等しい電流を与えているので線量 (ラド) をマイクロクロンに読み換え、又、マイクロクロンをパルス数に換算しても線量-効果曲線が描ける事が明らかである。パルス数と Fe 線量計の読み (キロラド) の直線性もほぼ確かめられた (図 2)。この場合も同一実験日の 1 パルスはほぼ一定量のラドを与えていると考え、線量の代わりにパルス数をとっても線量-効果関係は描ける。細胞コロニー形成能で見た生存曲線を図 3 に示してある。1 ないし 10 パルスの範囲では生存率  $Y$  は  $Y = A \cdot X^{-B/P}$  の関係に近似している。但し  $A$ ,  $B$  は定数,  $P$  はパルス数でこの実験では  $B$  は 52~68° の間に有った。1 パルス当たりの線量と生存率の実測および外挿値は 71-9-23

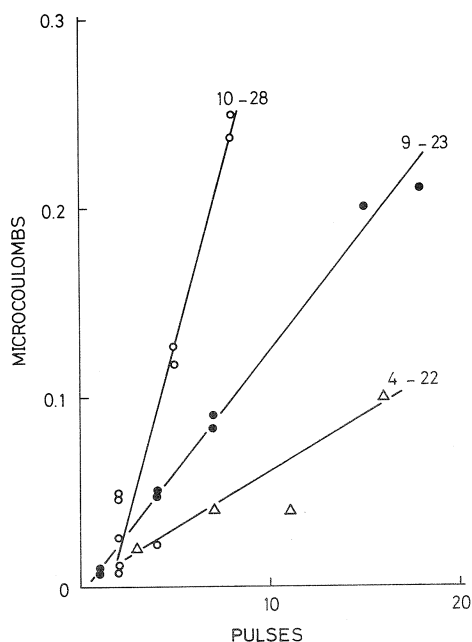


図 1 パルス数とモニターの読み  
横軸はパルス数を、縦軸は電流モニターの読みを示す。図中の小数字は実験番号を示す。

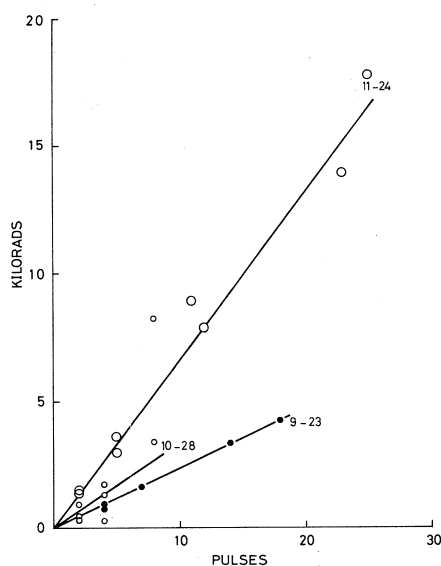


図2 パルス数とフリック線量計の読み  
横軸はパルス数を、縦軸はフリック線量計の値をキロラドで示す。図中の小数字は実験番号を示す。

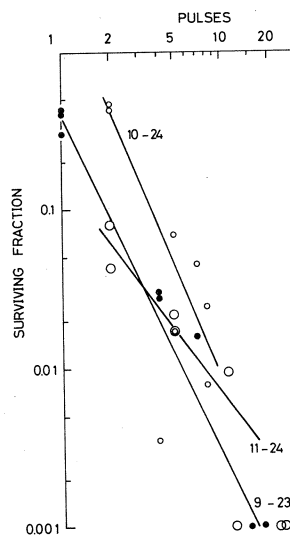


図3 生存曲線  
横軸にはパルス数を、縦軸にはコロニー形成率を両軸共に対数で示す。図中の小数字は実験番号を示す。

実験では300ラド及び $3.5 \times 10^{-1}$ 、71-11-24実験では750ラドおよび $1.5 \times 10^{-1}$ であった。図3に示す通りパルス数が大きくなるに随ってコロニー形成抑制力は低下する。普通の低線量率照射では生存分率は肩の部分を超えた線量に対しては指数的に減少するので低線量率照射とパルス照射の線量一効果曲線にはかなり大きな差がある。図4はコバルト60ガンマ線の普通照射と、本実験図3の71-23の生存曲線を比較して示したものである。

## 考 察

この培養細胞を普通のガンマ線照射でコロニー形成を抑制する場合の平均線量は150ラドであるのにパルス照射の致死能率は300ラド相等で $3.5 \times 10^{-1}$ であるから明らかに低い。パルス照射が致死能率の低い事は既に幾つかの報告があるが出発点に当るものはDeweyとBoag(1959)が微生物 *Serratia*

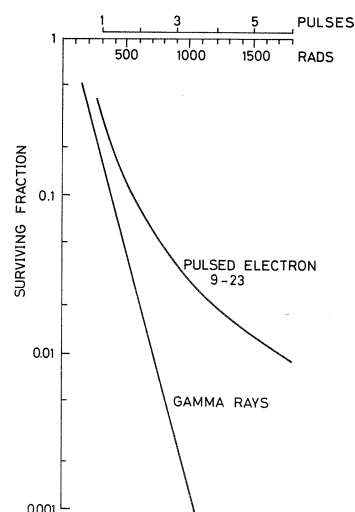


図4 生存曲線の比較  
縦軸はコロニー形成率を、横軸はパルス数(この時はパルス電子に対応)およびラド(この時はガンマ線に相当)を示し、二つの型の放射線によって生存曲線の異なる事を示す。図中の小数字は実験番号である。



*marcescens*について行ったもので1%酸素条件で $2\mu s$ の1パルス照射による生存率上昇はパルスの始めのうち生物体溶解酸素がremoveされる為に生存曲線が窒素中で照射された時の曲線に一致するので、別の飛跡上に生じたイオンクラスタ間の相互作用によるものではないと説明した。Eppら(1967)は大腸菌について全く同じ現象を見、全じ解釈を与えた。Eppら(1968)はパルスの強さを増すと始めの $ns$ のうちに酸素が消費し尽される為にある線量以上では生存曲線が無酸素条件の照射の値に同じくなる為、生存曲線に曲がり(breakとかbreak awayとか称する)を生ずる事を発見した。1発パルスの実験でブレイクを見た例はDeweyとMichael(1969), PhilipsとWorsnop(1969)だが之に反して酵母を用いたKieferとEbert(1970)はブレイクを見ていない。OHラジカルの拡散距離は25Åだから細胞内では280Krd以下では一次種間の相互作用は無いと云うのがその説明である。微生物についての多パルス照射はLerch(1971)が行い、ブレイクを見ている。全般に微生物ではDeweyとBoagの説が認められていると見てよい。

一方、哺乳動物細胞培養ではブレイクがある例はTownら(1967), Philipsら(1968), Berryら(1969), Griemら(1969)でその線量は微生物がKrd域であるのに比し100rdの域であって極めて低いのが特色である。哺乳動物細胞ではブレイクのない例が多くToddら(1967), Kannonら(1968), Toddら(1968), Niasら(1969), Niasら(1970)は認めていない。ブレイクの存在を認めている人もその線量が低い点をうまく説明できるものは無く、細菌と違って細胞内では低線量で酸素がうばわれる事を承認するか酸素以外の第2事象の進行に原因を求めるか(Oliver, 1969)しかない。放射線化学的には媒体内の酸素収だつが起こるに必要な線量率は $3 \times 10^{10}$  rd/s(Berryら, 1969)又は $2 \times 10^{11}$  rd(Niasら, 1970)であると云う。

我々の実験細胞の照射時の酸素条件はやゝ低酸素的であるが、パルス巾が長い事と、同じパルス巾の多パルスであること、およびパルス間隔が充分に長いことで酸素収だつによって生存曲線が曲がるとは考えられない。致死能率の低下はもっと寿命の長い物質に帰因するものと思われる(Kronenbergら, 1971)。

## 文 献

### A 巨大線量照射に関するもの

- 1) Sakka, M. et al., XII ICR Book of Abstracts F 1083, p 560, 1969.
- 2) 栗冠, 佐々木, 猪股, 日本医放会誌, 30, 566-8, 1970.

## B パルス照射に関するもの

- Berry, R. J. et al, Brit. J. Radiol., **42**, 102-7, 1969.
- Dewey, D. L. & J. W. Boag, Nature, **183**, 1450-1, 1959.
- Dewey, D. L. & B. D. Michael, Radiat. Res., **39**, 82-9, 1969.
- Epp, E. R. et al, Radiat. Res., **31**, 646, 1967.
- Epp, E. R. et al, Radiat. Res., **34**, 320-5, 1968.
- Griem, M. L. et al, Radiat. Res., **39**, 514, 1969.
- Kannon, W. et al, Radiat. Res., **35**, 564-5, 1968.
- Kiefer, J. & M. Ebert, Biophysik, **6**, 271-4, 1970.
- Kronenberg, S. et al, Radiat. Res., **47**, 589-97, 1971.
- Lerch, I. A., Radiat. Res., **45**, 63-71, 1971.
- Nias, A. H. W. et al, Brit. J. Radiol., **42**, 553, 1969.
- Nias, A. H. W. et al, Int. J. Radiat. Biol., **17**, 595-8, 1970.
- Oliver, R., Brit. J. Radiol., **42**, 231-2, 1969.
- Phillips, T. L. et al, Radiat. Res., **35**, 545, 1968.
- Phillips, T. L. et al., Int. J. Radiat. Biol., **14**, 573-5, 1969.
- Todd, P. W. et al, Radiat. Res., **31**, 644, 1967.
- Todd, P. W. et al, Acta Radio., **7**, 22-6, 1968.
- Town, C. D. Nature, **215**, 847, 1967.

## IV-2 殺菌土壌における二十日大根の生育

農学部農芸化学 門脇 信・藤原彰夫  
松本 徹・佐々木瑞雄

土壌に生育する植物に及ぼす微生物の働きについては古くから指摘され、土壌微生物群の環境による変動、土壌中での存在様式が明らかにされつつある。

土壌微生物群及びその特定微生物と植生との関係を明らかにする為には、対照として無菌土壌を得る事が必要であり、その方法が問題となる。従来、土壌殺菌法として加熱及び化学処理が用いられてきたが、これらの方法は土壌の物理、化学性に変化を与え植物生育を阻害する結果が多く報告されている。近年  $\gamma$  線照射による殺菌方法が土壌に及ぼす影響が少いとして推奨され、試験管内での植物栽培で生育が良好であるという報告がある。そこでアイソレーター内で各種殺菌土壌を培地として二十日大根の生育をファイトロン下で調べた。

実験方法 供試土壌は宮城県熊ヶ根土壌（牧草跡）で風乾し 2mm の篩で篩別したものをを用いた。  
土壌殺菌法

a) オートクレーブ法：120℃，1.1～1.2kg/cm<sup>2</sup> の条件下で1.5時間の処理を連日3回にわたって行った。

b)  $\gamma$  線照射法：風乾土壌（水分量9.3%，2mm篩別）の450gをポリエチ袋に三重封入し、アルミ箔で更に覆って照射した。照射条件は50～75MeVで約8時間照射した。

殺菌土壌を用いた二十日大根の無菌栽培

人工光ファイトロン内にアイソレーター（120cm×60cm×60cm）を収容。アイソレーター内温度は昼24℃（14時間），夜20℃（10時間），照度は $1.6 \times 10^4$  Lux，アイソレーター内空気交換量は5～10回／1時間に調節。二十日大根種子を70%アルコール，10%さらしこ，200倍希釈逆性石けん液を通してアイソレーター内に搬入，滅菌土壌（オートクレーブ， $\gamma$ 線）を入れたポット（各7ポット）に移植，29日間栽培した。各ポット（120g土壌容）には無機要素としてN；228mg，P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>；240mg，K<sub>2</sub>O；89mgを加えた。尚水分量の蒸発を防止するためアルミ箔のカバーをした。加える水は市水道を滅菌して使用した。

結果— $\gamma$ 線照射は $10^7$  r以上で細菌及び放線菌，かびは—，オートクレーブ法も上記条件での結果を得た。この各種土壌でのアイソレーター内二十日大根は無菌性が確められた。

表1に示すが如く $\gamma$ 線照射殺菌土壌区での生育がオートクレーブ殺菌土壌区での生育に比較して良好であった。表2からオートクレーブ土壌では $y_1$ （滴定酸度）の増大が見られる。これが植



表1 無菌栽培での二十日大根の生育量(地上部)

	$\gamma$ 線殺菌土壌	オートクレーブ土壌
*生体重 g/plant	0.52(0.10 <sup>**</sup> )	0.38(0.23 <sup>**</sup> )
*乾物重 mg/plant	60(18 <sup>**</sup> )	46(22 <sup>**</sup> )

\* 9本平均, ( <sup>\*\*</sup> )標準偏差

表2 殺菌処理による土壌の物理化学変化

	処理前生土壌	処 理 直 後	
		$\gamma$ 線土壌	オートクレーブ土壌
水分量(%)	9.34	9.33	8.60
T-N(%)	0.137	0.137	0.120
T-C(%)	1.55	1.53	1.57
C/N	11.3	11.2	13.1
pH	5.5	5.4	5.1
最大容水量(%)	85	84	82
滴定酸度( $y_1$ )	3.96	4.46	7.80
腐植	2.67	2.64	2.71
Ca(me/100g土壌)	4.40	4.27	4.26
Mg(me/100g土壌)	0.81	0.83	0.84

物生育阻害の一因子かも知れない。

オートクレーブ殺菌土壌に水を与えた処理区では幼根の伸長阻害及び根毛の発育阻害が著しい。 $\gamma$ 線照射殺菌土壌では幼根の伸長は生土壌に比較して差はないが、根毛は少い。 $\gamma$ 線照射殺菌土壌にオートクレーブ殺菌処理土壌の水浸出液を注入した所、更に幼根の伸長も阻害された。オートクレーブ処理土壌の水浸による生育阻害は生土では発現しなかったという事は生土の微生物が関与しているかも知れない。上記の結果から殺菌土壌を培地として二十日大根の生育は、オートクレーブで法によるよりも $\gamma$ 線照射殺菌土壌による方が良いと結論し得る。

## V. 加速器，データ処理装置部門

## V-1 昭和46年度後期のマシン報告

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

## ○ 300 MeV

## 概 況

マシンタイムの消化はほぼ予定通り行なわれたが、予猶のある状態ではなかった。これは、真空系の新たな故障が加わったためのものである。詳細は後述するが、その他、寿命的な故障もほぼつぼつ発生のきざしが認められる。テーマが固定しているので運転方法も固定している。このため誤操作による故障は皆無に近い。

## マシンタイム実施状況

第1表に示す。夜間運転が増加したがそれに伴う故障の増加ははっきりとは現われていない。

第1表 マシンタイム実施状況

	割当(日)	実施(日)	増減(日)
e-s (鳥 塚)	25	25 (5)	0
e-s (小山田)	11	11 (3)	0
e-s (寺 沢)	5	5	0
e-s (石 松)	5	5	0
ee'p (庄 田)	13	13.5(2.5)	+0.5
ee'p (坪 田)	3	3	0
TOF (川 村)	6	3	0
TOF (百 田)	3	3	0
ee'α (阿 部)	3	3	0
EH (上 田)	6	6	0
ND (平 井)	17	17	0
ND (松 井)	1	1	0
生物 (栗 冠)	2	1.5	-0.5
RI	25	24.5	-0.5
	117	116.5(10.5)	-0.5

	割当(日)	実施(日)	全日数に対する割合(%)
工 事	15	15	
定 期 点 検	6	6	
修 理 ・ 故 障	(15予備日)	17	
計	36日	38日	24.7

## マシン保守状況

・真空系 常時使用しているイオンポンプ(排気速度 $50\text{L/sec}$ )、31台のうち約10台がガス出し(高真空の状態、時々ガスを放出し、真空度が低下する)、電極の短絡及び電源端子の短絡等の症状を呈した。これらの原因が単純な寿命か、真空系に問題があるのか、ポンプそのもののどれかにより対策が異なる。2月下旬に使用不能のもの6台を交換し、その取りはずしたものを点検した結果、ガス出し、短絡ともチタンと思われる金属箔が原因と判明し、簡単な洗滌及び電極の交換等で解決した。尚今後全数のオーバーホールを続行する予定である。

I系の分析電磁石で分析されたビームのうちエネルギーの高いものと低いものがそれぞれビームダクトの外側と内側とをたたき、だんだん疲弊し、相次いで穴が明いた。機械的作業は単純であるが、作り直せば大工事になるだろう。

・クライストロン 今期のうちでクライストロンの寿命が延びている件は朗報である。三菱製のものは輸入品より、約250万円安かったが故障が多く、保守に追われていた。3回目の改良によりようやく平均寿命が1,000時間を越え、1,500時間位の見透しが出てきた。これまでのクライストロンの故障等を第2表に示す。

第2表 クライストロン故障一覧表 (昭和47年4月1日現在)

		トムソンバ リアン社	三菱電機(カ ッコ内は別 品納入)	計
購入数		10本	11本	22本
故障数		9	2(5)	11(5)
故障 原因	電子銃の寿命 (エミッション低下)	4	2	6
	ガラス破損	2	0(1)	2(1)
	R F 窓破損	1	0	1
	冷却水洩れ	1	0(3)	1(3)
	耐圧不良	0	0(1)	0(1)
クライストロン以外の 原因による故障		1	0	1
平均寿命		1,577時間	1,319時間(362時間)	1,530時間(362時間)

・クライストロンパルス用 パルス整形回路のコンデンサ

1台につき4  $\mu\text{sec}$  の巾のとき28ヶ使用している(2ヶ並列14セクション)。クライストロンパルス納入時のもののパンクの原因はコンデンサエレメントをまとめるためのバンド(金属性)に切断の際のバリが残っていてそれで絶縁物を傷つけたためと判明,その後購入のものはこの点を改良した。しかしまだパンクの頻度が高く現在メーカーで原因を調査している。

昭和47年度予定

47年後期にマシン全体の改修工事を計画している(施設予算に要求)。前述の真空系のイオンポンプに代表される様,寿命等による故障を未然に防止したいと考える。改修工事はマシン完成時の仕様が現在満足していない系が中心となるだろう。

## ○30MeV

### 概況

46年度前期は種々のトラブルが起り,利用されなかったが次の点の修理等により47年2月から再開された。

主なトラブルの起因はすべて真空系とかかわりがあった。加速管部とビームダクト部の間のゲートバルブを交換した。真空を良くすること,放出ガスを少なくするためのガス出しを徹底しておこなった。加速管の温度を上げマイクロ波電力を加速管に除々にフィードし,又電子銃カソードのガス出しを気長に行い,ついに電子銃からのエミッション電流を1Aに,加速管の耐電力を

5 MWまで回復させることが出来た。

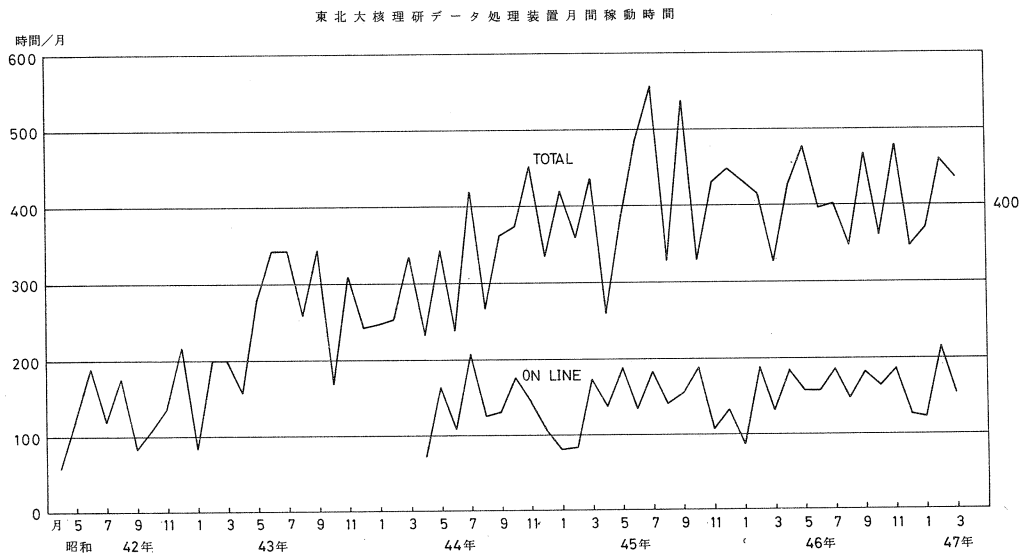
大巾な遅れと利用者の都合で1テーマ(R I 吉原)6日のみの実施にとどまった。

## V-2 データ処理装置稼動状況

核理研 小山田正幸・窪田健雄・上野智康

今期の月平均稼動時間は410時間でここ2年間の平均値と同じである。故障による使用不能時間は前期の3時間/月(0.4%)から9時間/月(1.3%)へ微増した。

オンライン・データ処理装置(TOSBAC-3400)の周辺装置の改善はなされなかったが、前期に発注していたオンライン・データ集積装置(OKITAC-4500)は3月末に納入された。インターフェイス関係は中性子散乱(ND)用は当初の予定より若干遅れ、電子散乱(LDM)、広帯域分析電磁石(BDM)用と共に昭和47年6月に納入される予定である。更に昭和48年度以降に考えられるのはADCの移設、速中性子用タイムアナライザー、更に単結晶分析用ゴニオメータの自動化等である。



東北大核理研データ処理装置月間稼動時間



1971-10

## DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

	0	2	4	6	8	10	12	14	16	18	20	22	24	ON- LINE 0:00 0:00 0:00	OFF- LINE 0:25 0:01 0:20	TOTAL
1 (FRI)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
2 (SAT)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:01	0:25
3 (SUN)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
4 (MON)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
5 (TUE)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
6 (WED)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
7 (THU)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
8 (FRI)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
9 (SAT)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
10 (SUN)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
11 (MON)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
12 (TUE)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
13 (WED)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
14 (THU)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
15 (FRI)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
16 (SAT)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
17 (SUN)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
18 (MON)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
19 (TUE)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
20 (WED)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
21 (THU)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
22 (FRI)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
23 (SAT)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
24 (SUN)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
25 (MON)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
26 (TUE)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
27 (WED)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
28 (THU)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
29 (FRI)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
30 (SAT)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
31 (SUN)	FFFFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
TOTAL														154:00	180:04	362:09
														45.3 %	49.7 %	

L LDM 95:05  
 B BDM 68:55  
 N ND 0:00  
 P PHA 0:00  
 D DATA PROCESS 33:45  
 F FORTRAN 143:19  
 \* MAINTENANCE 16:05  
 DOWN 2:00  
 TOTAL 362:09

LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE, TOHOKU UNIVERSITY





1971-12

## DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

	0	2	4	6	8	10	12	14	16	18	20	22	24	ON- LINE	OFF- LINE	TOTAL
1 (WED)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	4:30	5:40
2 (THU)	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	0:00	12:52	13:27
3 (FRI)	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	0:00	12:30	12:55
4 (SAT)	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	0:00	9:55	10:25
5 (SUN)	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	0:00	10:50	10:50
6 (MON)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	12:25
7 (TUE)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:15	14:35
8 (WED)	FFFFDDDDDD	FFFFDDDDDD	FFFFDDDDDD	FFFFDDDDDD	FFFFDDDDDD	FFFFDDDDDD	FFFFDDDDDD	FFFFDDDDDD	FFFFDDDDDD	FFFFDDDDDD	FFFFDDDDDD	FFFFDDDDDD	FFFFDDDDDD	0:00	10:15	22:55
9 (THU)	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	0:00	12:51	16:31
10 (FRI)	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	0:00	10:45	23:40
11 (SAT)	FFDDDDDDDD	FFDDDDDDDD	FFDDDDDDDD	FFDDDDDDDD	FFDDDDDDDD	FFDDDDDDDD	FFDDDDDDDD	FFDDDDDDDD	FFDDDDDDDD	FFDDDDDDDD	FFDDDDDDDD	FFDDDDDDDD	FFDDDDDDDD	10:30	7:10	18:00
12 (SUN)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	5:00	5:00
13 (MON)	FFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:40	7:46	11:11
14 (TUE)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	13:20
15 (WED)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	8:50	9:20
16 (THU)	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	5:15	5:20	11:10
17 (FRI)	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	9:10	9:40	18:50
18 (SAT)	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	FFFFFFFFFF	0:00	10:09	11:10
19 (SUN)	DDDDFFF	DDDDFFF	DDDDFFF	DDDDFFF	DDDDFFF	DDDDFFF	DDDDFFF	DDDDFFF	DDDDFFF	DDDDFFF	DDDDFFF	DDDDFFF	DDDDFFF	0:00	5:30	5:30
20 (MON)	.	FFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	4:20	7:50
21 (TUE)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:45	12:45
22 (WED)	.	.	FF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	6:25	5:30	12:25
23 (THU)	.	.	.	.	FFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	5:55	9:00
24 (FRI)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	11:05	3:30	15:10
25 (SAT)	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	DDDDDDDDDD	11:40	3:50	16:05
26 (SUN)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
27 (MON)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	2:30	2:30
28 (TUE)	.	FFFFFFFFFF	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	11:00	12:20
29 (WED)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	6:30	6:30
30 (THU)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	3:00	3:00
31 (FRI)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	3:20	3:20
TOTAL														125:05	194:09	347:49
														36.0 %	55.8 %	

L	LD4	51:30	14.8 %
B	BDM	37:15	10.7 %
N	ND	36:20	10.4 %
P	PHA	0:00	0.0 %
D	DATA PROCESS	93:36	26.9 %
F	FORTAN	100:33	28.9 %
=	MAINTENANCE	28:35	8.2 %
*	DOWN	0:00	0.0 %
	TOTAL	347:49	100.0 %

1972- 1

## DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

	0	2	4	6	8	10	12	14	16	18	20	22	24	ON- LINE	OFF- LINE	TOTAL
1 (SAT)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
2 (SUN)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
3 (MON)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
4 (TUE)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	2:05	2:05
5 (WED)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
6 (THU)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	4:40	4:40
7 (FRI)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	0:00	0:00
8 (SAT)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	3:35	3:35
9 (SUN)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	5:30	5:30
10 (MON)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	5:15	5:15
11 (TUE)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	12:30	2:07	13:05
12 (WED)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	10:25	2:40	13:55
13 (THU)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	5:07	14:30
14 (FRI)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	12:00	8:30	21:05
15 (SAT)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	13:30	13:30
16 (SUN)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	12:00	12:00
17 (MON)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	3:05	8:25
18 (TUE)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	14:00	1:09	15:00
19 (WED)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	7:20	7:50
20 (THU)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	1:20	19:20	21:20
21 (FRI)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	4:05	13:05
22 (SAT)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	1:30	12:10
23 (SUN)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	17:25	17:25
24 (MON)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	7:20	15:50
25 (TUE)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	10:45	1:35	12:55
26 (WED)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	11:45	3:30	16:50
27 (THU)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	8:05	13:40	22:05
28 (FRI)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	10:15	9:55	20:45
29 (SAT)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	14:50	8:37	23:40
30 (SUN)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	7:00	15:30	22:30
31 (MON)	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	0:00	15:05	24:00
TOTAL	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	122:45	193:35	371:10
	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	.	33.1 *	52.2 *	

L LDM 78:55 21.3 %  
 B BDM 30:30 8.2 %  
 N ND 13:20 3.6 %  
 P PHA 0:00 0.0 %  
 D DATA PROCESS 133:20 35.9 %  
 F FORTAN 60:15 16.2 %  
 = MAINTENANCE 22:15 6.0 %  
 \* DOWN 32:35 8.8 %  
 TOTAL 371:10 100.0 %

LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE, TOHOKU UNIVERSITY

## DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

[illegible]

LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE, TOHOKU UNIVERSITY

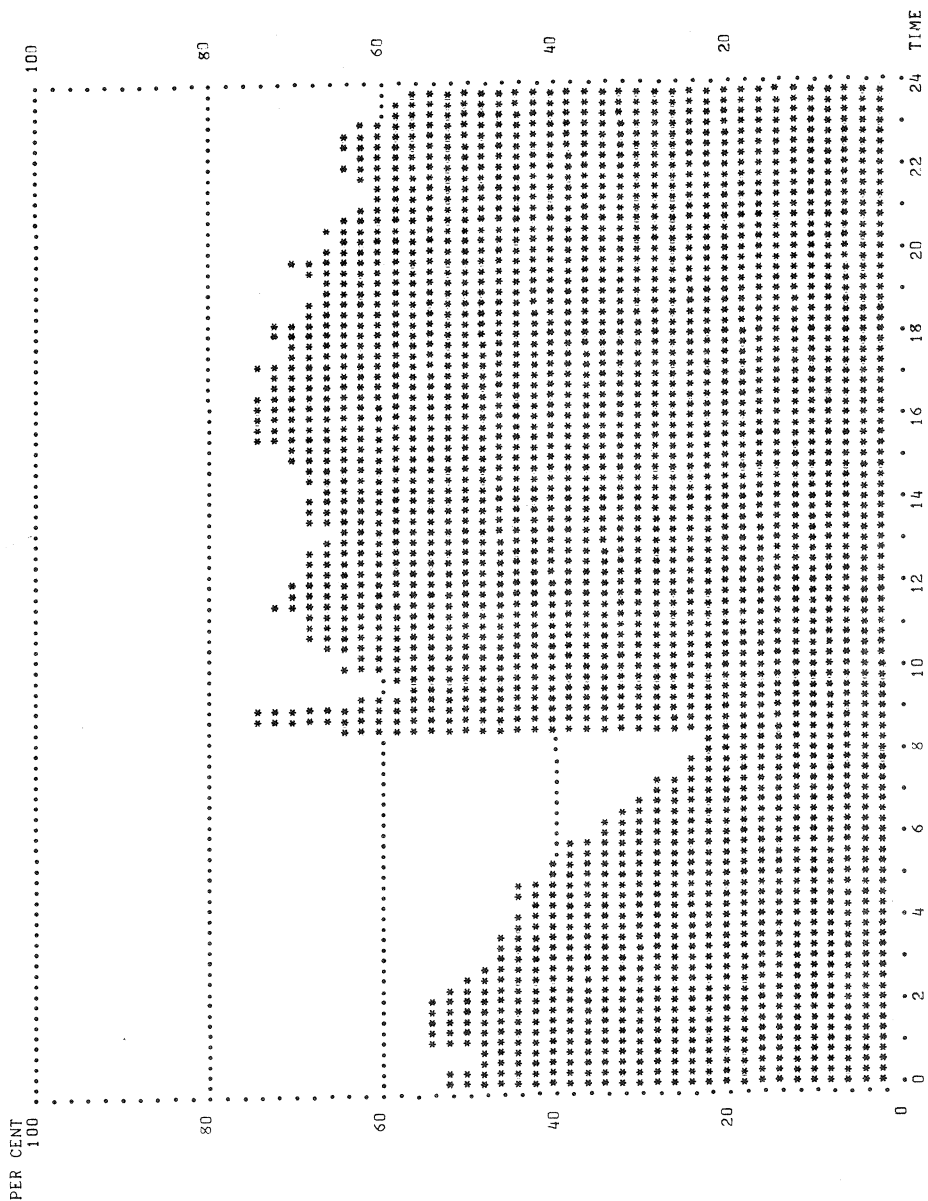
1972- 3

## DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

	0	2	4	6	8	10	12	14	16	18	20	22	24	ON- LINE	OFF- LINE	TOTAL
1 (WED)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	12:35	3:30	16:25
2 (THU)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	14:00	5:15	19:55
3 (FRI)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0:00	14:40	19:40
4 (SAT)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0:00	15:40	16:00
5 (SUN)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0:00	2:30	2:30
6 (MON)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	14:55	8:45	24:00
7 (TUE)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	5:50	3:35	9:40
8 (WED)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	11:00	19:20	19:20
9 (THU)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0:00	5:05	6:30
10 (FRI)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0:00	14:00	14:30
11 (SAT)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	14:40	5:15	20:25
12 (SUN)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	8:50	4:00	12:50
13 (MON)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0:00	4:05	10:30
14 (TUE)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0:00	4:15	4:50
15 (WED)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0:00	5:45	9:05
16 (THU)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0:00	9:05	9:30
17 (FRI)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0:00	8:35	8:55
18 (SAT)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	10:30	4:00	14:50
19 (SUN)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0:00	13:01	13:01
20 (MON)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0:00	7:05	7:05
21 (TUE)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0:00	11:20	15:20
22 (WED)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0:00	11:10	11:30
23 (THU)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	5:45	13:11	20:56
24 (FRI)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	8:30	2:35	11:05
25 (SAT)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	11:15	7:50	19:30
26 (SUN)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0:00	12:25	12:25
27 (MON)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0:00	20:35	20:35
28 (TUE)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	11:10	11:05	22:35
29 (WED)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	11:30	4:55	16:45
30 (THU)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0:00	12:30	13:00
31 (FRI)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	11:55	2:07	13:35
TOTAL														152:05	256:12	436:47
														34.8 %	58.7 %	

L	LDM	56:25	12.9 %
B	BDM	10:30	2.4 %
N	ND	50:25	11.5 %
P	PHA	34:05	8.0 %
D	DATA PROCESS	142:58	32.7 %
F	FORTAN	113:14	25.9 %
=	MAINTENANCE	19:50	4.5 %
*	DOWN	8:40	2.0 %
	TOTAL	436:47	100.0 %

DATA PROCESSOR OPERATION REPORT  
1971-10 -- 1972- 3



LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE, TOHOKU UNIVERSITY

### V-3 Operation Report of Tohoku 300 MeV Linear Accelerator

核理研 小島融三\*・浦沢茂一\*

#### I. OPERATION STATISTICS

The Tohoku 300 MeV linear accelerator has been in operation for approximately five years. Record of the operation statistics is given in Fig. 1. It shows the general increase in percentage of operation time. Further decrease in percentage of down time will occur if the operation time increases, for instance, by 24 hours operation. Until September 1969, operation time was about 10 hours per day and was extended to 11.5 hours per day from October 1969. 24 hours operation was being tested once or twice a month during the last fiscal year and will be conducted more frequently hereafter.

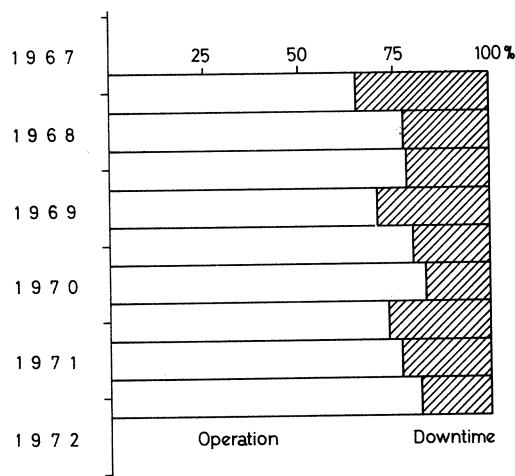


Fig. 1. Accelerator operation statistics

A typical machine time distribution for various research fields is given in Fig. 2.

---

\* Yuzo Kojima, Shigekazu Urasawa: Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, Sendai, Japan

## II. KLYSTRON EXPERIENCE

The replacement of original French klystron TV2014 with Japanese klystron PV2014B has been started about one year after the beginning of beam operation, and completed at the end of 1971 fiscal year. Both types have almost the same characteristics, but we have experienced some early stage trouble with PV2014B, including the problems on electrode material and body cooling near the anode. Fig. 3 shows life distribution of all tubes.

## III. IMPROVEMENTS

Our efforts have mainly involved improvements in beam current and operational stability. Some of the improvements are mentioned below.

### ACCELERATING TUBE

Several accelerating tubes at the low energy part of the machine have been replaced by new tubes having different

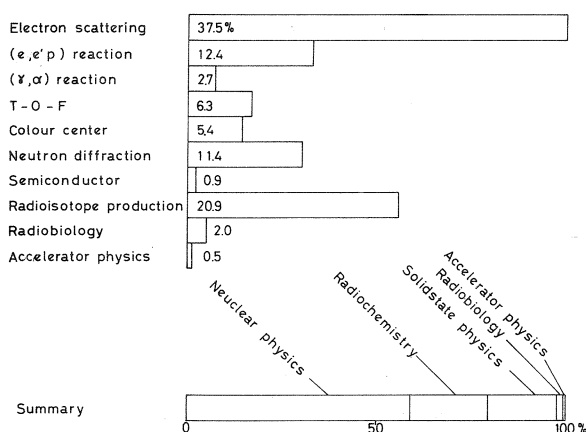


Fig. 2. Machine time distribution (Oct. 1970 ~ Sept. 1971).

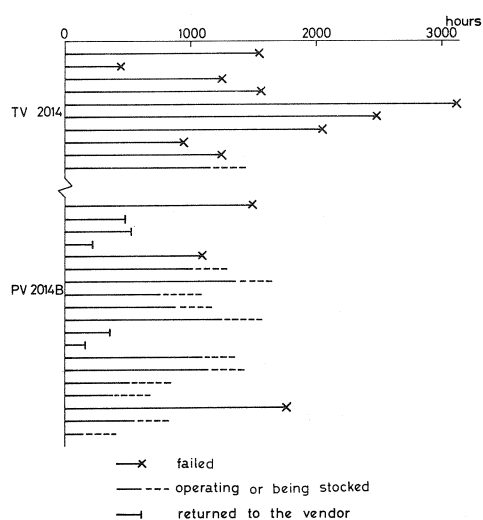


Fig. 3. Klystron life distribution



dimensions, in order to increase the threshold current of beam break up (1969-1970). These new tubes have the different resonance frequency for  $TM_{11}$  mode but the same frequency for  $TM_{01}$  mode as the original tube.

### *INJECTOR*

New injector having the adjustable mechanism for alignment has been installed (1969).

Nano-second gun grid pulser has been installed (1968).

### *BEAM TRANSPORT SYSTEM*

Five pairs of quadrupole magnets have been added between or on the accelerating tubes, to strengthen the focusing and to increase the break-up threshold current (1968).

Automatic voltage regulator has been added to the power supply for beam steering coils (1968).

Flanges of beam pipe near the deflecting magnets have been modified to the welded type in order to prevent the accidental leakage (1968).

To extract the beam to the T-O-F tunnel, an extension tube has been installed (1969).

Beam dump windows have been replaced with the welded type (1970).

The driving mechanism of beam slits have been replaced by simplified and more reliable one (1970).

### *KLYSTRON PULSER*

Coaxial cables connecting the pulse transformer to pulse forming network have been replaced by rigid coaxial tubes (1968).

High voltage cables in the pulser have been replaced by

new 50 KV cables (1968).

### *RF DRIVER*

Crystal oscillator and frequency multiplier have been replaced by a triode oscillator (1968), and triode power amplifier has been replaced by klystron amplifier (1970). These modifications have increased the reliability and simplified the maintenance.

### *EXPERIMENTAL FACILITIES*

A concrete shielding having eight neutron beam channels for flow neutron experiment has been built (1971).

Deflecting magnet,  $\gamma$ -radiator and sweep magnet have been added to the 1st deflecting line (1972), they are expected to provide the extraction of pure  $\gamma$ -rays to the experimental area.

The authors are grateful to the accelerator crew for improvements and operation of linac.

核 理 研 究 報 告      第5卷   第1号

昭和47年7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.5 No.1 July.1972  
Laboratory of Nuclear Science,  
Tohoku University  
1, Kanayama, Tomizawa, Sendai, Japan