

RESEARCH REPORT  
OF  
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE  
TOHOKU UNIVERSITY

# 核 理 研 究 報 告

VOL. 5 No. 2 Dec. 1972

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

# 核理研研究報告 Vo. 5 No. 2 目次

## I 原子核物理部門

|     |   |    |
|-----|---|----|
| I-1 | 原子散乱による原子核の研究.....  | 1  |
|     | (核理研, 理学部物理*) 鳥塚 賀治, 小島 融三, 斎藤悌二郎,<br>伊藤 広平, 中田 章, 光延 信二,<br>長尾真実子, 細山 謙二, 福田 茂樹<br>三浦 英美, 宇井 治生,* 川添 良幸* |    |
| I-2 | $^{26}\text{Mg}$ による電子散乱.....   | 26 |
|     | (核理研, 理学部物理*) 小山田正幸, 寺沢 辰生, 岡崎 行男<br>中原 和夫, 菅原 真澄, 田中 英二*<br>斎藤 肇,* 山家 優*                                 |    |
| I-3 | (e, e'p)反応による原子核のIASの研究.....  | 32 |
|     | (核理研) 庄田 勝房, 菅原 真澄, 斎藤悌二郎<br>宮瀬 晴久, 鈴木 厚人, 及川 四郎<br>上柿 順一   |    |
| I-4 | $^{27}\text{Al}$ 及び $^{31}\text{P}$ の( $r$ , $p$ )反応<br>(教養部物理, 理学部物理,* 核理研)**.....                       | 44 |
|     | 坪田 博明, 川村 暢明, 及川 四郎**<br>菅原 真澄,** 庄田 勝房**   |    |
| I-5 | ガンマチャンネル整備<br>(核理研, 教養部物理,* 理学部物理)**.....   | 51 |
|     | 菅原 真澄, 阿部 健,* 田中 英二**<br>川村 暢明,** 坪田 博明,* 金沢 正明**<br>庄田 勝房  |    |

## II 物性物理部門

|      |   |    |
|------|---|----|
| II-1 | CsCl型化合物FeFi及びLaves相化合物 $\text{Fe}_2\text{Ti}$ の結晶構造..... | 57 |
|      | (金研, 教養部物理*) 池田 弘毅, 山田 幸男,* 中道 琢郎                         |    |
| II-2 | TiNi化合物の結晶構造(熱サイクルを受けたTiNi化合物の室温での中性子回折)<br>中性子回折).....   | 63 |
|      | (選研) 松本 実, 守護 嘉朗, 本間 敏夫                                   |    |

|       |   |                                    |
|-------|---|------------------------------------|
| II-3  | SiO <sub>2</sub> およびGeO <sub>2</sub> ガラスの構造因子の測定……………   | 67                                 |
|       | (核理研, 金研*)  | 渡辺 昇, 富吉 昇一*, 新村 信雄                |
| II-4  | L <sub>0</sub> ≫L Time-of-Flight Neutron Spectrometer and Measurement of High Momentum Transfer Structure Factor in Molecular Liquids………… | 73                                 |
|       | (金研)  | 三沢 正勝, 甲斐 謙三, 鈴木 謙爾<br>竹内 栄        |
| II-5  | Mn <sub>3.6</sub> Sn の中性子回折……………  | 82                                 |
|       | (金研, 核理研*)  | 富吉 昇一, 新村 信雄*, 渡辺 昇*<br>山内 宏, 渡辺 浩 |
| II-6  | 中性子TOF単結晶法での消衰効果……………   | 88                                 |
|       | (核理研, 金研*)  | 新村 信雄, 富吉 昇一*, 渡辺 昇                |
| II-7  | 電子リニアックを用いた中性子TOF法による過渡現象の構造解析<br>I. NaNO <sub>2</sub> の分極反転……………   | 91                                 |
|       | (核理研)   | 新村 信雄, 武藤 正勝                       |
| II-8  | 電子リニアックを用いた中性子TOF法による過渡現象の構造解析<br>II. LINACに同期した高電圧パルス発生装置(High Voltage Flip-Flop)……  | 95                                 |
|       | (核理研)   | 武藤 正勝, 新村 信雄                       |
| II-9  | Ta-H系による中性子非弾性散乱……………   | 98                                 |
|       | (金研)  | 山田 礼司, 浅野 肇, 平林 真                  |
| II-10 | Inelastic Scattering of Neutron from Polystyrene Solutions…………  | 103                                |
|       | (非水研, 核理研*)   | 安川 民男, 渡辺 昇*                       |
| II-11 | 電子リニアックを用いたMn 酸化物からの中性子常磁性散乱……………   | 106                                |
|       | (核理研, 理学部物理*)   | 渡辺 昇, 石川 義和*, 都 築一雄*               |
| II-12 | 半導体中性子検出器実験報告……………  | 115                                |
|       | (東大物性研)   | 高橋 四郎                              |
| II-13 | パルス電子線によるイオン結晶の光学的研究(8)……………  | 117                                |
|       | (理学部物理)   | 上田 正康, 平井 正光, 吉成 武久<br>唐沢 力, 勝山 俊夫 |

### III 放射化学部門

|       |  |                                |
|-------|--|--------------------------------|
| III-1 | 核異性体転移による <sup>80</sup> Br と CH <sub>4</sub> との熱イオン反応// に対する添加物の効果………… | 123                            |
|       | (理学部化学 核理研*)   | 小林 孝彰, 八木 益男*, 近藤健次郎*<br>塩川 孝信 |

|                   |   |     |
|-------------------|---|-----|
| Ⅲ-2               | Sensitivity List for Mutli-element Photon Activation Analysis<br>with 30 Mev Bremsstrahlung ..... | 137 |
|                   | (理学部化学) 加藤 豊明   |     |
| Ⅲ-3               | Hexachloropropeneの選択的塩素化反応によるウランとニオブの分離.....  | 148 |
|                   | (選研) 菅野 卓治, 伊藤 勝雄, 長谷川伸一  |     |
| Ⅲ-4               | 気相系における $C_2H_5^{80m}Br$ の核異性体転移に伴う化学的効果 .....  | 152 |
|                   | (理学部化学) 伊沢 郡蔵, 白井 康雄, 塩川 孝信   |     |
| Ⅲ-5               | 電子リニアックを利用した $Mg^{28}$ の製造法について.....  | 158 |
|                   | (工学部原子核) 武田 靖, 篠塚 勉, 板垣新治郎<br>古田島久哉   |     |
| Ⅲ-6               | 炉材料の放射化分析<br>(理学部R I中央実験室, 核理研*) .....  | 161 |
|                   | 山寺 亮, 八木 益男,* 野村 紘一*  |     |
| IV 加速器, 測定器部門     |   |     |
| IV-1              | 超伝導空洞<br>(核理研, 通研,* 理学部物理*) .....   | 165 |
|                   | 小島 融三, 百瀬 丘, 今野 収<br>光延 信二, 大塚泰一郎,** 上頷 香三*<br>小野寺 大,* 鳥塚 賀治,                                     |     |
| V 加速器・データ処理装置稼動状況 |   |     |
| V-1               | 昭和47年度前期マシン報告<br>(核理研マシングループ) .....   | 171 |
|                   | 浦沢 茂一, 今野 収, 一戸 隆<br>栗原 亮, 羽柴 満, 阿部 勇<br>平山 忠衛  |     |
| V-2               | データ処理装置稼動状況.....  | 173 |
|                   | (核理研) 小山田正幸, 窪田 健雄, 上野 智康   |     |
| V-3               | 300 MeV リニアック共同利用に於ける実施状況.....  | 182 |
|                   | (核理研共同利用係) 庄田 勝房, 工藤真知子   |     |

# I. 原子核物理部門

## I-1 電子散乱による原子核の研究

核理研 鳥塚賀治・小島融三・斎藤悌二郎  
 理学部物理\* 伊藤広平・中田 章・光延信二  
 長尾真実子・細山謙二・福田茂樹  
 三浦英美・宇井治生\*・川添良幸\*

今期の成果のまとめとして次のことがあげられる。

1) 従来核構造の研究に於て、主として調べられたのは、核表面に存在する数個の陽子又は中性子の関係する性質であった。唯一の例外は、光核反応で観測された  $E 1$  巨大共鳴で、陽子集団と中性子集団の振動としてとらえられている。 $E 1$  以外の振動が存在しているかどうか、電子散乱はそれを調べる有力な手段である。然し実験的困難があり、明確な結論を得ていなかった。我々はこの実験に成功した。

今回は $^{90}\text{Zr}$ と $^{208}\text{Pb}$ の結果が報告される。 $^{90}\text{Zr}$ に於ては $16.5\text{MeV}$ の $E 1$ 巨大共鳴以外に $14.0\text{MeV}$ に巨大共鳴が観測され、 $E 2$ の形状因子を示すが、 $(\rho, \tau_0)$ の詳しい実験があり、この附近に $E 2$ は観測されない。従って $14.0\text{MeV}$ 共鳴は幻の励起状態と考えられた $E 0$ 巨大共鳴にはば間違いないと思われる。 $^{208}\text{Pb}$ の結果は多少複雑で更に考察を進める必要があろう。

2) 電子散乱の面白い応用として、 $^{106}\text{Pd}$ と $^{114}\text{Cd}$ の第1励起状態 $2_1^+$ の四重極能率を求めた。その際用いた波動関数は、 $2_1^+$ と $2_2^+$ の形状因子を測定しその解析によって得た。その結果はクーロン励起による四重極能率と一致している。

 $^{90}\text{Zr}$  巨大共鳴領域の電子散乱実験

核理研報告前号<sup>D</sup>に引き続き $^{90}\text{Zr}$ の巨大共鳴領域の報告を行う。前号にあるように従来の $E 1$ 共鳴他に( $E 1; 16.7\text{MeV}$ )  $14\text{MeV}$ の励起エネルギーの所にかなり大きな共鳴が、又 $E 1$ の約2倍の $28\text{MeV}$ 付近に巾広い共鳴が見られる事がわかった。今回は更に $E 1$ が最も強く観測される運動量移行量( $q$ )領域、即ち入射エネルギー $E = 150\text{MeV}$ 、角度 $\theta = 35^\circ$ の実験が加わった。実験条件、解析方法は前号と全く同じである。図(1)は今迄に得られた電子散乱のスペクトラムである。又一番上に示してあるのは代表的な光核反応のスペクトラムである。<sup>2)</sup>

今迄準弾性散乱その他の寄与と各共鳴状態とを試行錯誤的に分離して来たが、その結果と得られた形状因子、換算転移確率等からの解析を報告する。

## (I) 各共鳴状態の分離

電子散乱実験で高励起準位を調べる時問題となるのは非常に大きい弾性散乱からの輻射の寄与と準弾性散乱からの寄与が重なる事である。輻射補正に関しては従来のプログラムを用いたが、 $q$ の低い所で引きすぎる傾向があつて問題は残る。又準弾性散乱に関しては particle の threshold energy をすぎてからどの様な形で、どの程度寄与しているのかわからないという事である。且つその理論や実験も余り多くない。

その中で準弾性散乱について Moniz ら<sup>3)</sup>が行つた実験を参考にしよう。準弾性散乱の最大値は

$$\overline{E}_x \simeq \frac{q^2}{2M} + \epsilon \quad \text{但し } \epsilon \text{ は核子の平均束縛エネルギー} \quad (1)$$

で与えられる。 $(e, e')$  でピークの中から核子のフェルミ運動量が、又位置から  $\epsilon$  がわかる。 $(\epsilon$  は理論値よりは大きいようである。)  $^{90}\text{Zr}$  で  $\overline{E}_x$  を推量する為に  $^{89}\text{Y}(e, e')$  (Moniz) の実験による  $\epsilon$  を参考にすると  $\overline{E}_x$  は我々の観測した  $q$  の範囲で大体  $\overline{E}_x = 40 \sim 60 \text{ MeV}$  に来る。従つて我々の観測している領域では準弾性散乱の寄与は単調にピークまで増加していると思われる。そこで我々は現象論的に次の形を仮定した。

$$\left( \frac{d\sigma}{d\Omega dE} \right)_{\text{quasi-elastic}} = a (E_x - E_0)^{\frac{1}{n}} \quad (2)$$

$a$  は structure のない所での実験値に合うように決まり、 $E_0$  としては今は  $(r, \alpha)$  の  $Q$ -値をとっている。 $n$  は実験から決まるパラメーターである。

次に電子散乱による実験の場合、実験による分解能以上に広い固有の巾を持っている場合にその共鳴準位はどの様な形をしているだろうか。Born 近似で、且つ横成分を無視すると(我々の場合  $\theta \sim 35^\circ$  ないし  $45^\circ$  で十分無視できる。)

$$\frac{d\sigma}{d\Omega dE} = \sigma_{\text{mott}} f(E) | \langle J_f | \hat{M}_\lambda(q) | J_i \rangle |^2 \quad (3)$$

$$\text{但し } \int f(E) dE = 1$$

となる事が予想される。

$f(E)$  として今回は光核反応でよく用いられている Lorentz Shape を用いたが、理論的にも  $\langle J_f | \hat{M}_\lambda(q) | J_i \rangle$  の  $E_x$ -dependence が十分小さい時には Breit-Wigner Type になる事がわかっている<sup>4)</sup>のでこの方法でも今後調べるつもりである。(但し余り大きな差はないと思われる。)我々の実験では準弾性散乱の形として(2)を仮定し、 $E 1$ 、及び  $14 \text{ MeV}$  に関しては Lorentz 型を仮定して、実験点から最小自乗法によって決定した。(但し  $E 1$  共鳴の励起エネルギー、及び  $\Gamma$ 、 $14 \text{ MeV}$  の励起エネルギーを固定している。)この様にして  $\chi^2$  が minimum になる所を求

めるとかなりきれいに分離できた。分離の際、共鳴状態が小さいと相対的に  $x^2$  に効くのが少くなる為かなりの範囲が許される。それらは誤差として最終的にくりこんである。この結果14MeVの準位は  $\Gamma \sim (4.8 \pm 0.6) \text{ MeV}$  ぐらいの中になった。又結果は図1に示してある。

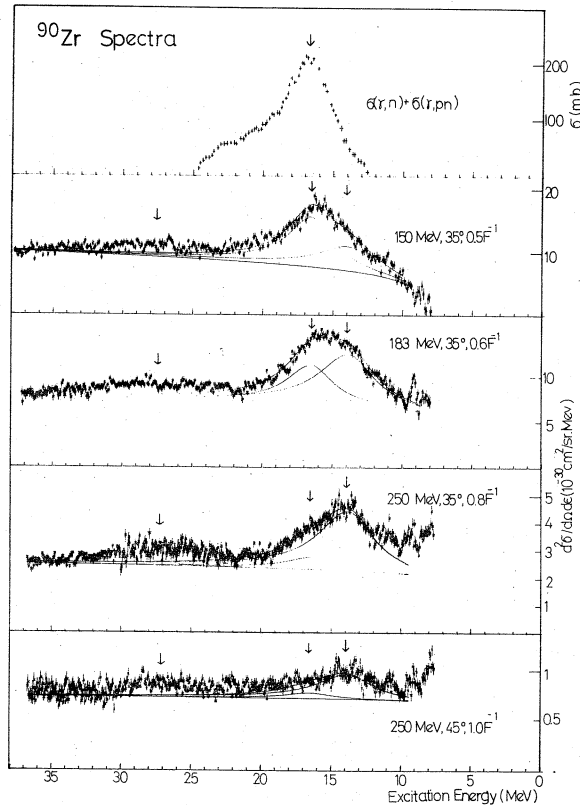


図1. 光核反応  $(r, n)$  及び電子散乱で得られた S spectrum。曲線は準弾性散乱，各共鳴を最小自乗法で分離したもの。

## Ⅱ) 形状因子，換算転移確率とその解析

(I)の方法によって best-fit の値に分離の際の誤差を含め(統計誤差は小さくて問題にならない。) yield を導出し，形状因子を  $E 1$ ，14MeVについて調べた。図2はその結果である。

図3は前記の方法で，更に残った28MeV付近の中広い共鳴準位の形状因子である。

(ここで，この中広い共鳴準位が共鳴準位でない他のプロセスという可能性について少し述べたい。1つは弾性散乱の instrumental scatteringという可能性であるが，これは入射エネルギー依存をもつ筈であり考えられない。次に  $p$ ， $n$  or  $\alpha$ の準弾性散乱のピークという可能性である



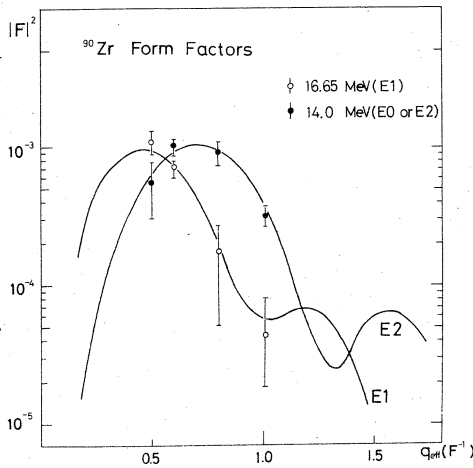


図2 E1:  $\rho_0$ として3-parameter Gaussian,  $c = 4.428$ ,  $z = 2.528$ ,  $w = 0.35$   
E2:  $\rho_0$ としてFermi型  
 $c_{tr} = 0.9c$ ,  $t_{tr} = t$

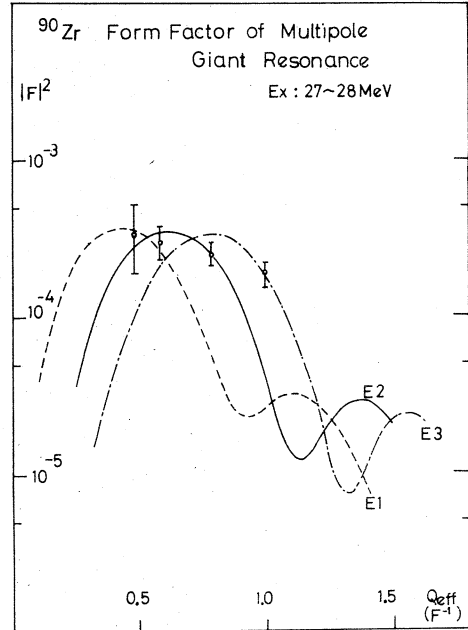


図3 28MeV付近の中広い準位の形状因子

がピークならば(I)で示したように  $q$ -依存性があり、やはり違うのではないと思われる。) )

以上の共鳴準位の multipolarity をしらべる為に DWBA で計算した。E1 は 1 つに集中していると考えられるので pure "Tassie Model" が成り立つと思われる。そこで Stanford 大学に於ける弾性散乱<sup>5)</sup> 実験の詳しい parameter を用いた Tassie Model による計算値である。結果はよく一致する。14MeV は E2 で合う  $q$  依存性を示しているが、少し  $q$  の高い方がもち上っておりその為に基底状態パラメーターはフェルミ型、 $c_{tr} = 0.9c$ ,  $t_{tr} = t$ , (但し  $c = 4.66$ ,  $t = 2.34$ ) を用いて fit した。次に電子散乱では E2 と E0 は同じ  $q$ -依存性を示す事が古くから知られている。そこで E0 とした場合に Born 近似で計算した。遷移電荷密度として核の Compressible Mode から導かれる次の型を用いた。<sup>6)</sup>

$$\rho_{tr} \propto \frac{1}{r^2} \frac{d}{dr} [r^3 \rho_0(r)] \quad (4)$$

実験点の fit は E2 と仮定した場合と同じく  $\rho_0(r)$  としてフェルミ型、 $c_{tr} = 0.9c$ ,  $t_{tr} = t$  で行った。この結果は図4に示してある。絶対値は実験点に合うように取っており、これから遷移の強さ ME を求めた。この結果 14MeV は E2 又は E0 でないと思われる。28MeV 付近の場合

図3からわかるように一義的にmultipolarityは決められず, 多くの contribution があると思われる。

各共鳴の遷移の強さを調べる為に model independent に double commutator から導かれる energy weighted sum rule について調べてみた。

$E1$  共鳴は  $T=1$  で

$$S_{ew}(E1; T=1) = \frac{9}{4\pi} \frac{\hbar^2 e^2}{2M} \frac{NZ}{A} \quad (5)$$

又  $L > 1$  且つ  $T=0$  の場合

$$S_{ew}(EL; T=0) = \sum B(EL; i \rightarrow f) \\ \times E_x = \frac{L(2L+1)^2}{4\pi} \frac{\hbar^2}{2M} \frac{Z^2}{A} e^2 \langle r^{2L-2} \rangle \quad (6)$$

monopole transition  $T=0$  に対しては

$$S_{ew}(0^+ \rightarrow 0^+) = \sum |M_{if}|^2 E_x = \frac{\hbar^2}{M} Z \langle r^2 \rangle \quad (7)$$

で与えられる。

(5), (6), (7)式でもって Sum rule limit,  $S_{ew}$  のどの程度を  $E1$ , 及び  $14\text{MeV}$  共鳴が占めるかを調べた。その結果を表1に示す。

表1

| $E_x$ (MeV) | $J^\pi$ | $P^{a)}$       | $E_x P / S_{ew}$ |
|-------------|---------|----------------|------------------|
| 16.65       | $1^-$   | $17.0 \pm 5.0$ | $0.89 \pm 0.27$  |
| 14.0        | $2^+$   | $990 \pm 300$  | $0.56 \pm 0.17$  |
| 14.0        | $0^+$   | $2050 \pm 610$ | $1.03 \pm 0.3$   |

- a)  $P$  は  $B(E1)$  の時  $e^2 F^2 \text{unit}$ ,  $B(E2)$  の時  $e^2 F^4 \text{unit}$ ,  $L=0$  の時  $|M_{fi}|^2$  で  $F^4 \text{unit}$   
 b)  $\langle r^{2l} \rangle$  の計算はフェルミ型の基底状態の型を用いている。

この結果いずれを仮定しても Sum rule limit の大部分を占めかなり collective な性格をもつ準位である事がわかる。

次に光核反応との比較をしてみよう。光核反応と電子散乱の関係式は長波長近似で関係づけら

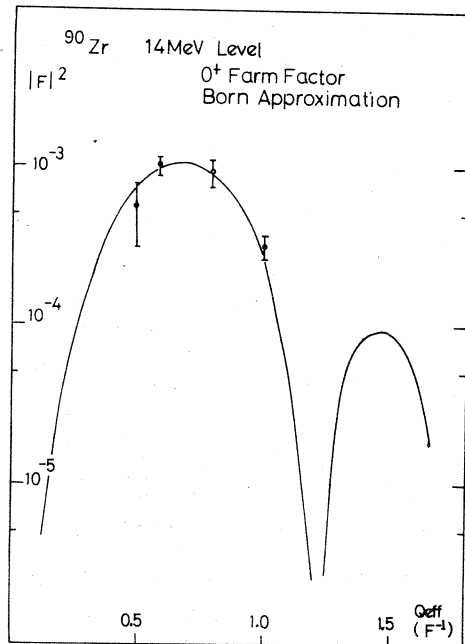


図4  $E0$  と仮定した場合の Born 近似の理論曲線と実験点

れ、その式は前号に載っている。<sup>1)8)</sup>従って換算転移確率  $B(EL)$  とともすぐ関係がついて次の様になる。

$$B(EL; O^+ \rightarrow J_f = L) = \frac{137}{8\pi^3} \frac{L[(2L+1)!!]^2}{L+1} \frac{(\hbar c)^{2L-2}}{E_x^{2L-1}} \int \sigma_{abs}(E) dE \quad (8)$$

$\int \sigma_{abs}(E) dE$  は厳密には total-photo absorption cross section を用いねばならないが中重核では  $\sigma(r, n) \gg \sigma(r, p)$  なので前者におきかえてしまう。(8)を用いて  $(r, n)$  実験より  $B(E1; O^+ \rightarrow 1^-)$  を求めると  $B(E1; O^+ \rightarrow 1^-) = 188 e^2 F^2$  となり我々の結果と大体一致する。

(我々が一寸小さめ。)次に E 2 を仮定して、我々の得た  $B(E2)$  より逆に  $(r, n)$  の integrated cross section を求めてやると約  $0.85 \times 10^{-2} \text{ MeV} \cdot \text{barn}$  となる。光核反応で 14 MeV に peak をもち巾 1 MeV をとってやると peak の所で 17 mb ぐらいになる。 $(r, n)$  の data<sup>2)</sup> では観測されていない。(17 mb はしかしかなり小さいが……) Bergère の実験はかなり精度は良いが観測されていないのは、鉛 - 208 の場合とかなり異なる点である。<sup>9)</sup>

光核反応では EO 遷移が禁止されるので E 2 の EO の区別が可能である。

#### Ⅳ ま と め

以上の結果 E 1 は  $(r, n)$  の予想と大体合う事、14 MeV 準位は E 2 又は EO と考えられ、どちらを仮定しても非常に collective な性格が強い事がわかった。28 MeV の巾広い準位に関しては—

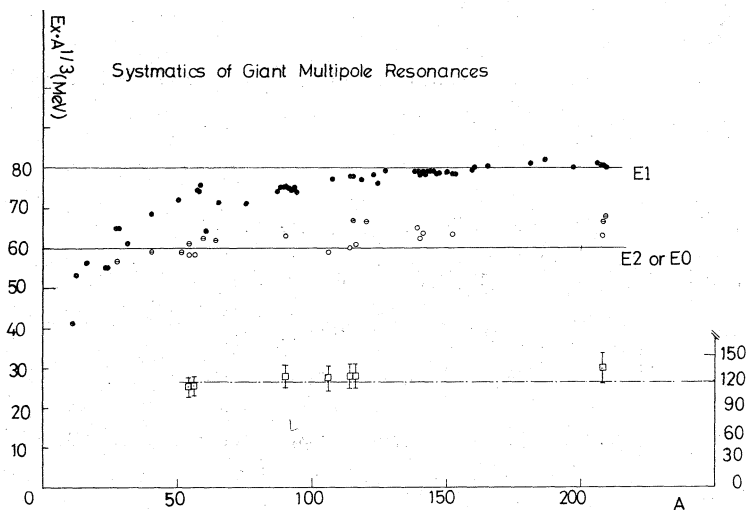


図 5 横線は各  $E_x A^{1/3} = 60, 80, 120$  の値をとったもの。

●は E 1, ○は E 2 (or EO) の  $(e, e')$ , ⊖は E 2 (or EO) の  $(p, p')$ , □は高い励起準位 (巾  $\pm 3 \text{ MeV}$ ) 又, E 1 の変形核領域は  $E_x = \frac{1}{3} (E_L + 2E_H)$  (但し  $E_L$  は低い方,  $E_H$  は高い方のピークの励起エネルギー) で出している。

義的に決定はできない。

この結果を他の核、他の実験と比較すると面白い。我々のグループで今 systematic に巨大共鳴領域について調べている。(  $^{54,56}\text{Fe}$ ,  $^{90}\text{Zr}$ ,  $^{106}\text{Pd}$ ,  $^{114}\text{Cd}$ ,  $^{116}\text{Sn}$ ,  $^{152}\text{Sm}$ ,  $^{181}\text{Ta}$ ,  $^{191}\text{Au}$ ,  $^{208}\text{Pb}$  )

又最近他の実験 ( $p$ ,  $p'$ ) でもようやく巨大共鳴領域について調べられている。<sup>10)</sup> 又 ( $e$ ,  $e'$ ) では Darmstadt で ( $\text{La}$ ,  $\text{Pr}$ ,  $\text{Ce}$ ,  $\text{Pb}$ ) について調べられている。<sup>11)</sup> これらは  $E_x = 60 \sim 65 / A^{1/3}$  ( $E2$  or  $E0$ ),  $E_x = 80 / A^{1/3}$  ( $E1$ ), 及び  $E_x \cong 120 / A^{1/3}$  ( $E1$ の上) の systematics がありこれらは図5に示してある。<sup>12)</sup> 従って核によらない collective な性格をもつ共鳴状態である事がわかる。

( 福 田 )

### 参 考 文 献

- (1) 核理研報告 5, No 1 (1972)
- (2) B. L. Berman et al., Phys. Rev. **162** (1967) 1098, A. Lepretre, R. Bergere et al., Nucl. Phys. **A175** (1971)
- (3) E. J. Moniz et al., Phys. Rev. Lett. **26** (1971) 445 その他の実験としては Klawansky, Isabelle et al., (to be published in Phys. Rev)
- (4) Uberall, Electron Scattering from Complex Nuclei (Academic, New York 1971) Part B, Drechsel et al., Phys. Rev. **181**, (1969) 1383
- (5) Fajardo et al. Phys. Lett. **37B** (1971) 363
- (6) Ref. (4) の Uberall の本による
- (7) O. Nathan and S. G. Nilsson in  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  Spectroscopy edited by Siegbahn (North-Holland, Amsterdam, 1965) Chap. X., R. A. Ferrell, Phys. Rev. **107**, (1957) 1631
- (8) de Forest and Walecka, Adv. Phys. **15** (1966) 1
- (9) A. Veysiere, R. Bergere et al., Nucl. Phys. **A159** (1970) 561 及び核理研報告今号の  $^{208}\text{Pb}(e, e')$  参照
- (10) M. B. Lewis et al., (to be published in) Nucl. Phys. Evidence from Inelastic Proton Scattering for a Giant Quadrupole Vibration in Spherical Nuclei 及び古い ( $p$ - $p'$ ) data として, スペクトラムのみであるが H. Tyren et al Nucl. Phys. **4** (1957) 637, **6** (1958) 446, **7** (1958) 24

(1) R. Pitthan et al., Phys. Lett. **36B** (1971) 563, F. R. Buskirk et al., Evidence for E2 Resonances at High Excitation Energies in  $^{208}\text{Pb}$

(2) E1 巨大共鳴に関しては

E. Hayward, *Photomuclear Reaction* (NBS-Monograph 118, 1970) 及びその Ref.

Bergire et al., ref(2), (9), Nucl. Phys. **A172** (1971), 426, 437

Gulkarov et al., Sov. J. Nucl. Phys. **9** (1969) 274

Vasiliev et al., Sov. J. Nucl. Phys. **13** (1971) 259

(p, p') は ref (10)

(e, e') は ref (11) 及び我々のグループの data

$^{106}\text{Pb}$  の電子散乱

$^{114}\text{Cd}$ ,  $^{116}, ^{120}\text{Sn}$  の電子散乱実験<sup>1)</sup>に引き継ぎ、純度97%に濃縮した厚さ  $48.6\text{mg}/\text{cm}^2$  のターゲットを用いて入射電子エネルギー 183, 250 MeV, エネルギー巾 0.12%, 散乱角  $\theta$  それぞれ  $35^\circ - 55^\circ$ ,  $35^\circ - 80^\circ$ ; 運動量移行  $q=0.6 - 1.8\text{fm}^{-1}$  で  $^{106}\text{Pd}$  の電子散乱実験を行った。その結果 0.51 MeV ( $2^+$ ), 2.09 MeV ( $3^-$ ), 2.7 MeV ( $4^+$ ) の強い励起準位が観測された。又 1.1 MeV 附近に  $2^+$  の性質を持つ弱い励起準位が観測された。

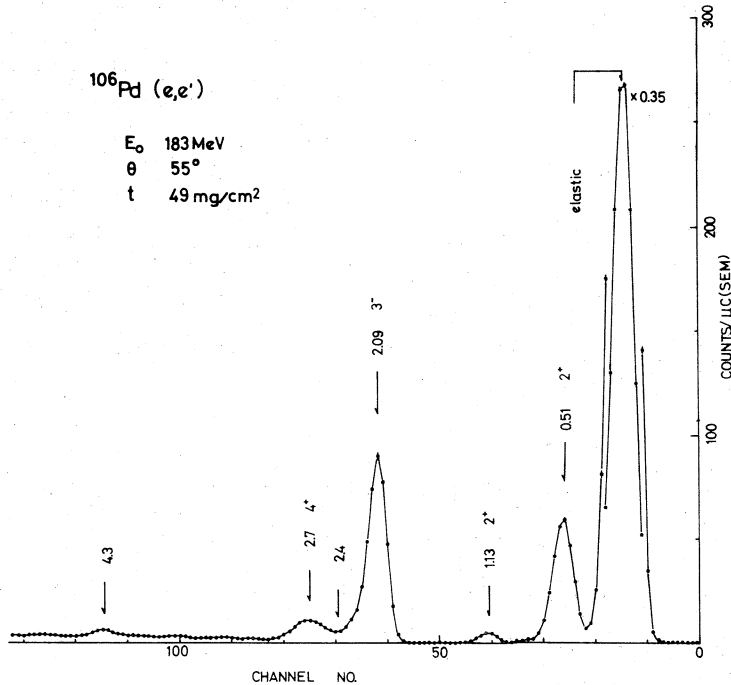


図 1.

図 1 に入射電子エネルギー  $E_0$  183 MeV, 散乱角  $\theta 55^\circ$  の輻射補正後のスペクトラムを示す。

図 2 に  $^{106}\text{Pd}$ ,  $^{114}\text{Cd}$ ,  $^{116}, ^{120}\text{Sn}$  の励起準位を示す。ここで一連の電子散乱の実験により観測された準位を丸印で示す。今回は  $^{106}\text{Pd}$ ,  $^{114}\text{Cd}$ ,  $^{116}, ^{120}\text{Sn}$  の第一  $2^+$  励起準位  $2_1^+$  及び第二  $2^+$  励起準位  $2_2^+$  について報告を行う。

これらの中重核の  $2_1^+$  励起準位は核の表面振動に因るものと考えられている。ところが  $^{116}, ^{120}\text{Sn}$  と  $^{114}\text{Cd}$  の  $2_1^+$  励起準位の間には、先回の核理研研究報告<sup>1)</sup>に報告したように大きな相違があること。即ち、 $^{114}\text{Cd}$  の  $2_1^+$  励起準位は核の shape oscillation を仮定した流体模型 (Tassie 模型) で与えられる形をした遷移電荷密度で説明できるのに対して、 $^{116}, ^{120}\text{Sn}$  の場合はこの模型では説明できないことが調らべられた。これは  $^{116}, ^{120}\text{Sn}$  が陽子 50 個で閉殻構造を作っているのに対

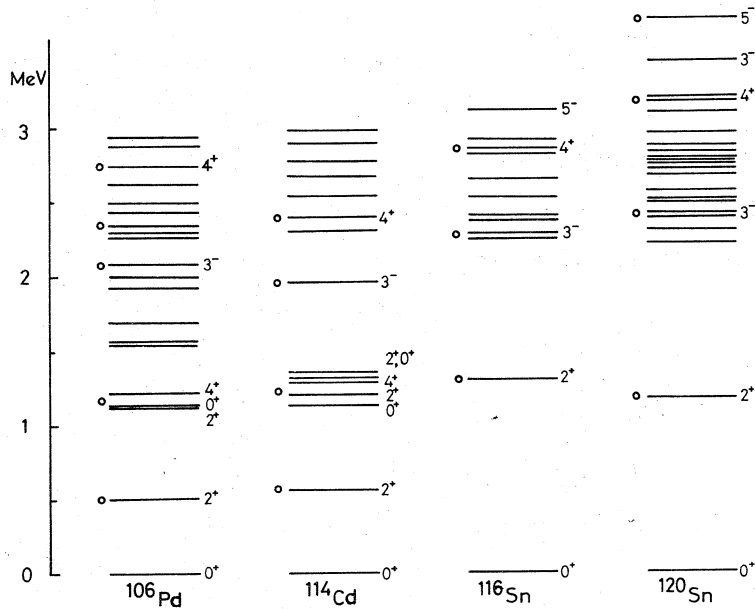


図2.  $^{106}\text{Pd}$ ,  $^{114}\text{Cd}$ ,  $^{116}\text{Sn}$ ,  $^{120}\text{Sn}$  の励起準位 ○印で電子散乱で観測された準位を示す。

して、 $^{114}\text{Cd}$  はそこから2個の陽子を取り去った核で閉殻構造が崩れて、より振動核的な性質を持つようになり、 $2_1^+$  励起準位が核の shape oscillation により記述されるようになった結果と解釈される。そこで、Cd から更に2個の陽子を取り去った、典型的な振動核と考えられている $^{106}\text{Pd}$  の $2_1^+$  励起準位が、核の shape oscillation を仮定した Tassie 模型で説明されるかどうかは興味深い問題である。

$^{106}\text{Pd}$  の  $0.51\text{MeV}$  ( $2_1^+$ )、 $^{114}\text{Cd}$  の  $0.56\text{MeV}$  ( $2_1^+$ ) は核の shape oscillation に因る 1-phonon state に対応し、 $1.2\text{MeV}$  付近の  $0_2^+$ 、 $2_2^+$ 、 $4_1^+$  励起準位は 2-phonon state に対応する励起準位と考えられている。ところが電子散乱実験より得られた  $1.2\text{MeV}$  付近の励起準位への形状因子は harmonic vibrator 模型で予想される 2-phonon 的な性質を示さず 1-phonon の  $2^+$  的性質を示すことが調べられた。これらの核で  $r$ -decay の実験<sup>2)</sup> が行なわれており、 $2_1^+$  励起準位から基底状態へ、 $2_2^+$  励起準位から  $2_1^+$  励起準位、 $2_2^+$  励起準位から基底状態への  $B(E2)$  の値が測定され、それらは harmonic vibrator 模型で求めた値と異なることが調べられた。又 reorientation effect の実験<sup>3)</sup> によりこれらの核の  $2_1^+$  励起準位の  $Q$ -moment の値が測定され、harmonic vibrator 模型で予想される値より遙かに大きな値を示すことが調べられた。これらを説明する

為に Tamura, Udagawa<sup>4)</sup> によって 1-phonon state と 2-phonon state の mixing を考えた anharmonic vibrator 模型が導入された。Lightbody<sup>5)</sup> は電子散乱実験により得られた<sup>60</sup>Ni, <sup>48</sup>Ti, <sup>68</sup>Zn の  $2_1^+$  励起準位への形状因子を anharmonic vibrator 模型を仮定し Born 近似を用いて解析を行った。その結果  $2_1^+$  励起準位に 1-phonon state の mixing を仮定すると実験値をうまく説明し、それより求めた  $2_1^+$  励起準位の Q-moment の値が reorientation effect の実験より求めた値と良い一致が得られることが調べられた。同様の解析を典型的な振動核といわれている <sup>114</sup>Cd, <sup>106</sup>Pd について行う。ところが Lightbody の解析では核の基底状態の電荷分布として sharp cut-off<sup>6)</sup> を仮定しており、1-phonon, 2-phonon state への遷移電荷密度はそれぞれ  $\delta$ -関数,  $\delta$ -関数の微分形で与えられるが、基底状態の電荷分布を sharp cutoff とすることは現実的でない、特に運動量移行  $q$  の大きい所で良くない。それで基底状態の電荷分布として Fermi 型の電荷分布を仮定した場合へ模型の拡張を行う。更に<sup>106</sup>Pd, <sup>114</sup>Cd の陽子数  $Z$  は 46, 48 であり、核の作るクーロン場による入射電子、散乱電子の distortion の影響が無視できなくなり、平面波 Born 近似は良い近似ではなくなり DWBA による解析が必要になる。拡張した模型を用いて

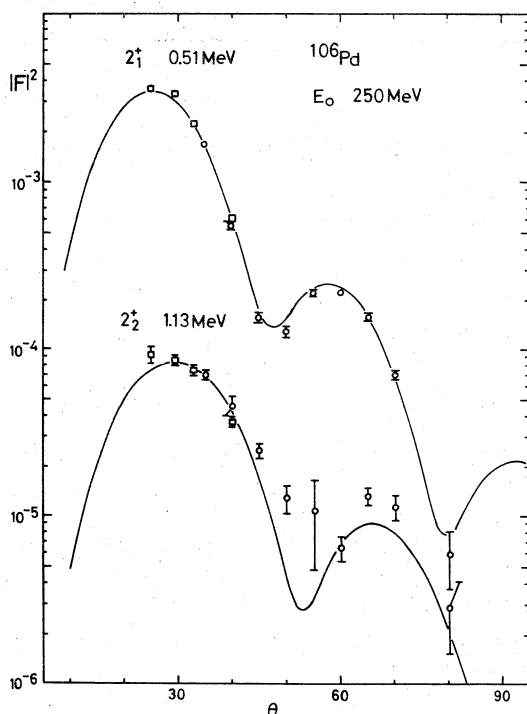


図3. <sup>106</sup>Pd の  $2_1^+$  (0.51 MeV),  $2_2^+$  (1.13 MeV) の形状因子を示す。実線はそれぞれ Tassie 模型, anharmonic vibrator 模型を仮定した場合の DWBA による計算結果である。



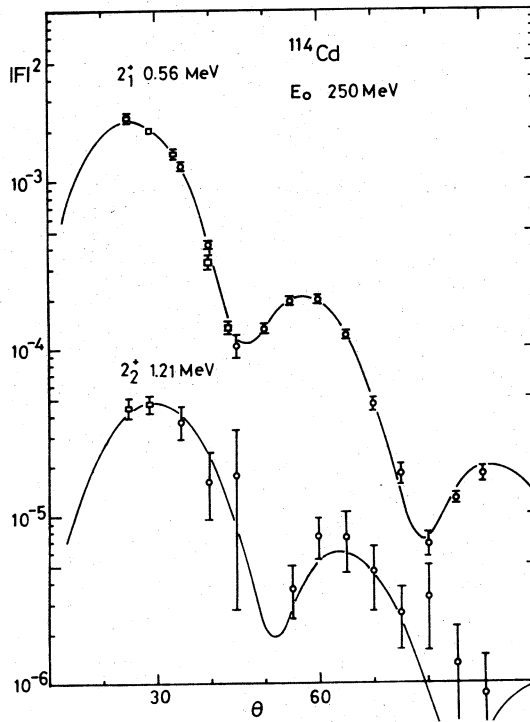


図4.  $^{114}\text{Cd}$  の  $2_1^+$  (0.56 MeV),  $2_2^+$  (1.21 MeV) の形状因子

DWBAによる解析を行う。

a)  $2_1^+$  励起準位

図3に $^{106}\text{Pd}$ の0.51 MeV ( $2_1^+$ ) 励起準位への形状因子を示す。入射電子エネルギー 183 MeVの実験値はDWBAのコードを用いて250 MeVに焼き直して□印で示す。実線はTassie模型を用いて、基底状態の電荷分布として、 $c_{tr} = 0.97 c_0$ ,  $t_{tr} = 1.05 t_0$ としたDWBAのコードDUE-LSによる計算結果である。ここで $c_0$ ,  $t_0$ は弾性散乱の実験より求めた値で $c_0 = 5.14 \text{ fm}$ ,  $t_0 = 2.59 \text{ fm}$ である。

図5に $^{106}\text{Pd}$ ,  $^{114}\text{Cd}$ ,  $^{116,120}\text{Sn}$ の $2_1^+$  励起準位への遷移電荷密度を示す。 $^{116,120}\text{Sn}$ のように陽子50個の閉殻構造を持つ核の遷移電荷密度はTassie模型で与えられる核表面に1個のピークを持つ形では与えられず、節を持つ形で与えられる。Dところが $^{114}\text{Cd}$ ,  $^{106}\text{Pd}$ のように陽子の閉殻構造の崩れた核はTassie模型で与えられる形をしている。

b)  $2_2^+$  励起準位

図3, 図4にそれぞれ $^{106}\text{Pd}$ の1.13 MeV ( $2_2^+$ ),  $^{114}\text{Cd}$ の1.21 MeV ( $2_2^+$ ) 励起準位の形状因

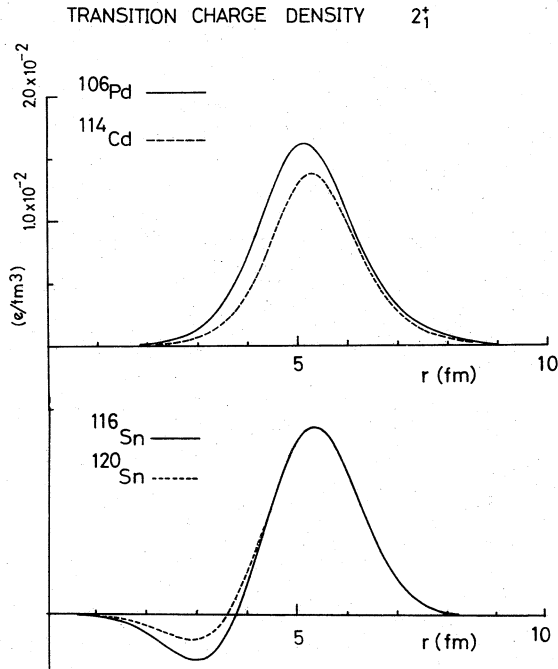


図5.  $^{106}\text{Pd}$ ,  $^{114}\text{Cd}$ ,  $^{116}\text{Sn}$ ,  $^{120}\text{Sn}$ の $2_1^+$ 励起準位への遷移電荷密度

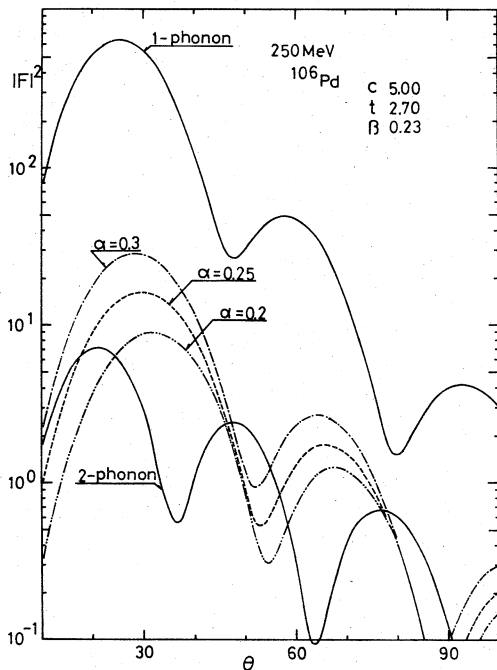


図6. anharmonic vibrator 模型による $2_2^+$ 準位の形状因子

子を示す。 $2_2^+$  励起準位の形状因子の角度依存性は  $2_1^+$  励起準位と似た様子を示し, harmonic vibrator 模型による 2-phonon state への形状因子の場合と大きな相違を示す。(図6に harmonic vibrator 模型による 2-phonon state への形状因子を示す) 実線は anharmonic vibrator 模型, 即ち 1-phonon state と 2-phonon state の mixing を考えた場合の BWBA による計算値であり, 実験値をうまく説明している。

anharmonic vibrator 模型では  $2_1^+$ ,  $2_2^+$  励起準位は(1)式で与えられるものと仮定する。

$$|2_1^+\rangle = \sqrt{1-\alpha^2} |1\text{ph}\rangle - \alpha |2\text{ph}\rangle \quad (1)$$

$$|2_2^+\rangle = \alpha |1\text{ph}\rangle + \sqrt{1-\alpha^2} |2\text{ph}\rangle$$

ここで  $|1\text{ph}\rangle$ ,  $|2\text{ph}\rangle$  はそれぞれ 1-phonon  $2^+$ , 2-phonon  $2^+$  励起準位の波動関数である。 $2_1^+$ ,  $2_2^+$  励起準位への遷移電荷密度は(2), (3)式で与えられる。

$$\rho_{tr}(2_1^+) = \sqrt{1-\alpha^2} \rho_{tr}(1\text{ph}) - \alpha \rho_{tr}(2\text{ph}) \quad (2)$$

$$\rho_{tr}(2_2^+) = \alpha \rho_{tr}(1\text{ph}) + \sqrt{1-\alpha^2} \rho_{tr}(2\text{ph}) \quad (3)$$

ここで  $\rho_{tr}(1\text{ph})$ ,  $\rho_{tr}(2\text{ph})$  はそれぞれ 1-phonon  $2^+$  励起準位, 2-phonon  $2^+$  励起準位への遷移電荷密度であり, 拡張した模型で次の(4), (5)式で与えられる。(Appendix 参照)

$$\rho_{tr}(1\text{ph}) = \frac{\beta}{\sqrt{5}} r \cdot \frac{d}{dr} \rho_0 \quad (4)$$

$$\rho_{tr}(2\text{ph}) = \sqrt{\frac{5}{28\pi}} \left(\frac{\beta}{\sqrt{5}}\right)^2 \cdot r^2 \cdot \frac{d^2}{dr^2} \rho_0 \quad (5)$$

ここで  $\rho_0$  は基底状態の電荷分布で Fermi 型を仮定する。 $\beta$  は遷移の強さを決定するパラメータで変形パラメータと呼ばれ、実験より求めた  $2_1^+$  励起準位への形状因子を再現するように決定される。(4), (5)式で示すように 1-phonon state への遷移電荷密度  $\rho_{tr}(1\text{ph})$  は  $\beta$  の 1 次のオーダーで与えられ、 $\rho_{tr}(2\text{ph})$  は  $\beta$  のオーダーで与えられる。(3)式で表わされるように anharmonic vibrator 模型では  $2_2^+$  励起準位への遷移電荷密度  $\rho_{tr}(2_2^+)$  は amplitude として  $\alpha$  の 1-phonon state への遷移電荷密度  $\rho_{tr}(1\text{ph})$  の寄与がある。 $\alpha$  の値はその符号を含めて、実験より求めた  $2_2^+$  励起準位への形状因子を説明するように決定される。 $\beta$ ,  $\alpha$  の値が求まると次の(6)式より  $2_1^+$  励起準位の Q-moment の値を計算することができる。

$$Q = \frac{8}{5} \sqrt{\frac{\pi}{14}} \langle 2_1^+ \| Q_2 \| 2_1^+ \rangle \quad (6)$$

$$\langle 2_1^+ \| Q_2 \| 2_1^+ \rangle = (1 - \alpha^2) \tilde{Q}_{11} + \alpha^2 \cdot \tilde{Q}_{22} - 2\alpha \sqrt{1 - \alpha^2} \tilde{Q}_{12} \quad (7)$$

ここで

$$\tilde{Q}_{11} = -\frac{15\sqrt{2}}{\sqrt{7\pi}} \langle r^2 \rangle \beta^2 \quad (8)$$

$$\tilde{Q}_{12} = 5\sqrt{2} \langle r^2 \rangle \beta \quad (9)$$

$$\tilde{Q}_{22} = \frac{3\sqrt{2}}{7} \frac{15}{\sqrt{7\pi}} \langle r^2 \rangle \beta^2 \quad (10)$$

$$\langle r^2 \rangle = \int_0^\infty \rho_0(r) r^4 dr, \quad 4\pi \int_0^\infty \rho_0(r) r^2 dr = Z \quad (8)$$

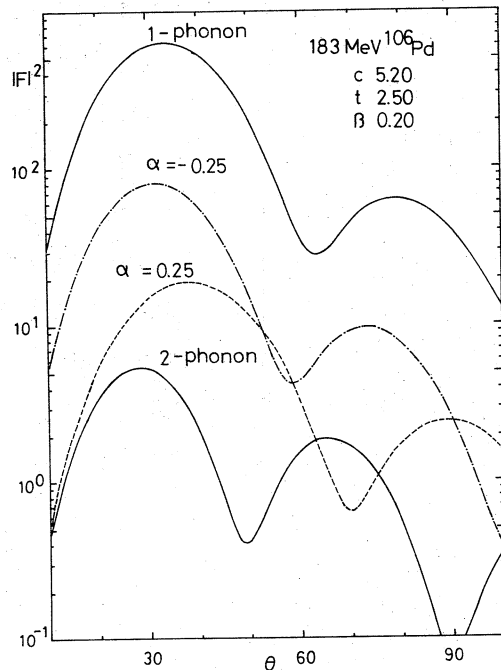


図7. anharmonic vibrator 模型による  $2_2^+$  準位の形状因子

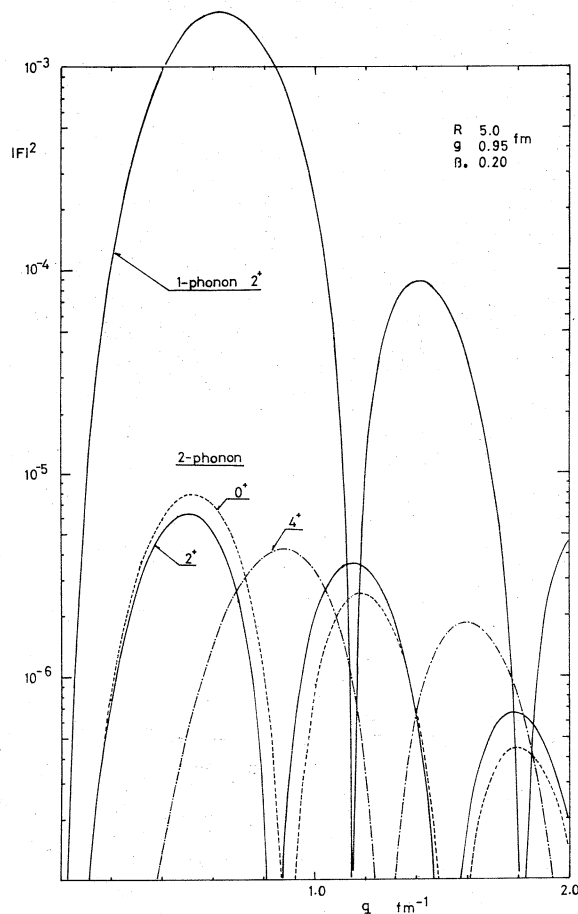


図8. harmonic vibrator 模型による 2-phonon  $0^+$ ,  $2^+$ ,  $4^+$  準位の形状因子 (Born 近似)

図11にmixing パラメータ  $\alpha$  の値の変化に因る Q-moment の値の変化を示す。

図9に $^{106}\text{Pd}$ ,  $^{114}\text{Cd}$  の 1-phonon  $2^+$  及び 2-phonon  $2^+$  励起準位への遷移電荷密度  $\rho_{tr}(1\text{ ph})$ ,  $\rho_{tr}(2\text{ ph})$  を示す。(  $\rho_{tr}(2_1^+)$  と  $\rho_{tr}(1\text{ ph})$  ) はほとんど同じで図の上で区別ができない。) ここで  $c_{tr}$ ,  $t_{tr}$  は  $^{106}\text{Pd}$ ,  $^{114}\text{Cd}$  でそれぞれ  $c_{tr} = 0.97 c_0$ ,  $t_{tr} = 1.05 t_0$ ,  $c_{tr} = 0.95 C_0$ ,  $t_{tr} = t_0$  である。 $2_2^+$  励起準位への遷移電荷密度  $\rho_{tr}(2_2^+)$  は実験値を最も良く再現する場合で, $^{106}\text{Pd}$  では  $\beta = 0.23$ ,  $\alpha = 0.25$ ,  $^{114}\text{Cd}$  では  $\beta = 0.18$ ,  $\alpha = 0.21$  である。図10, 及び図7にそれぞれ  $\alpha$  の符号の変化による  $\rho_{tr}(2_2^+)$  の変化及び  $2_2^+$  励起準位への形状因子の変化を示す。更に  $\alpha$  の値の変化による形状因子の変化を図6に示す。これらより明らかなように電子散乱の実験より求めた, 形状因子の角度依存性より  $\alpha$  の符号をそしてその強さから  $\alpha$  の値を決定することができる。

TRANSITION CHARGE DENSITY  $2^+$

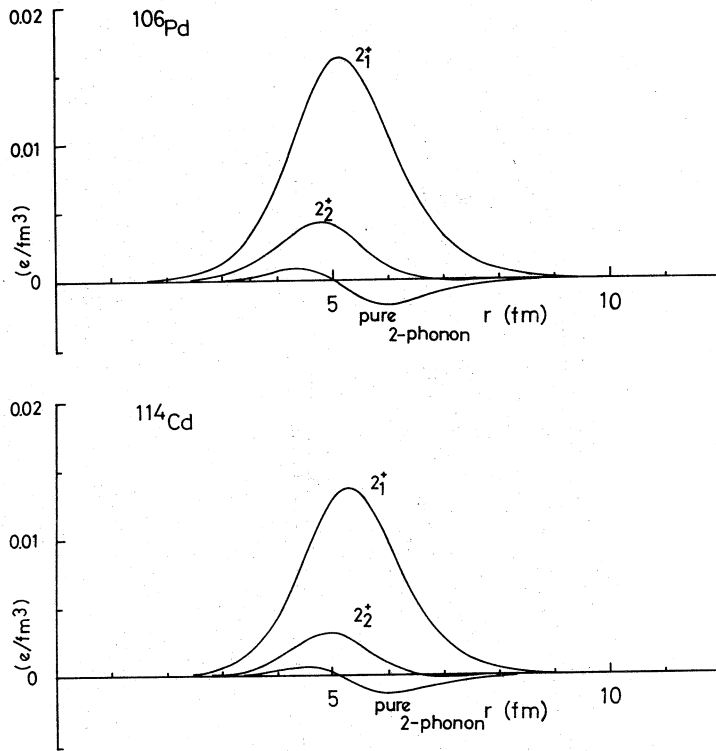


図 9.  $^{106}\text{Pd}$ ,  $^{114}\text{Cd}$  の  $2_1^+$ ,  $2_2^+$  準位への遷移電荷密度

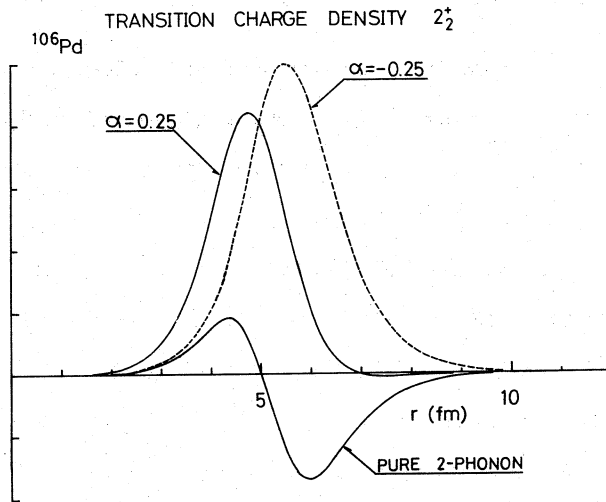


図 10. mixing パラメーター  $\alpha$  の符号の変化による遷移電荷密度の変化

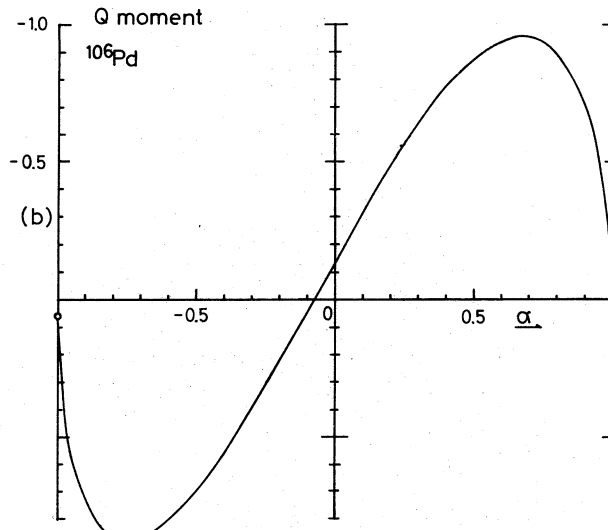


図 11. mixing パラメータ  $\alpha$  の値の変化による Q-moment の値の変化

図 3 に  $^{106}\text{Pd}$  の  $1.13\text{MeV}$  ( $2_2^+$ ) 励起準位への形状因子を示す。実線は  $\beta = 0.23$ ,  $\alpha = 0.25$  とした場合の DWBA による計算値である。

図 4 は  $^{114}\text{Cd}$  の  $1.21\text{MeV}$  ( $2_2^+$ ) 励起準位への形状因子を示す。実線は  $\beta = 0.18$ ,  $\alpha = 0.21$  とした DWBA による計算値である。

我々の実験では  $2_2^+$  励起準位の近くに存在する 2-phonon state に対応する  $0_2^+$ ,  $4_1^+$  励起準位を  $^{114}\text{Cd}$  の場合には更にその上の  $0_3^+$ ,  $2_3^+$  励起準位を分離することができず  $2_2^+$  励起準位への形状因子の中にこれらの励起準位からの寄与があると考えられる。 $^{114}\text{Cd}$  のこれらの  $0_2^+$ ,  $2_2^+$ ,  $4_1^+$ ,  $0_3^+$ ,  $2_3^+$  励起準位について (p, p') の実験<sup>7)</sup> が行なわれ、2-phonon state に対応する  $2_2^+$  励起準位は 1-phonon state の  $2^+$  準位の mixing が考える必要があるが他の  $0_2^+$ ,  $4_1^+$  励起準位は純粋な 2-phonon 的性質を示し、その上の  $0_3^+$ ,  $2_3^+$  励起準位への遷移の強さは小さいことが調べられた。図 8 に Born 近似による 2-phonon  $0^+$ ,  $2^+$ ,  $4^+$  励起準位への形状因子を示す。以上のことから  $^{106}\text{Pd}$ ,  $^{114}\text{Cd}$  の電子散乱で励起された  $1.2\text{MeV}$  附近の励起準位は 1-phonon  $2^+$  励起準位の mixing が考えられる  $2_2^+$  励起準位が主な寄与をしていると思われる。それで解析は  $2_2^+$  励起準位だけからの寄与を考えて行った。

表 1 に我々の電子散乱実験より求めた  $^{106}\text{Pd}$ ,  $^{114}\text{Cd}$  の  $2_1^+$  励起準位への  $B(E2)$  の値、変形パラメーター  $\beta$ , mixing パラメーター  $\alpha$  及びそれらのパラメーターを用いて計算した  $2_1^+$  励起準位

|                   | $\frac{B(E2)}{B_{sp}(E2)}$ | $\beta_0$ | $\alpha$ | $Q_2(b)$         | $\frac{B(E2)}{B_{sp}(E2)}$ | $Q_2(b)$                        |
|-------------------|----------------------------|-----------|----------|------------------|----------------------------|---------------------------------|
| $^{114}\text{Cd}$ | 29                         | 0.18      | 0.21     | $-0.39 \pm 0.07$ | 34<br>31.2                 | -0.38 a)<br>$-0.32 \pm 0.08$ b) |
| $^{106}\text{Pd}$ | 50                         | 0.23      | 0.25     | $-0.53 \pm 0.07$ | 48 $\pm$ 3<br>42 $\pm$ 3   | c)<br>$-0.458 \pm 0.059$ d)     |

表 1.

- a) S.G.Steadman et.al. N.P.A155(1970)1  
 b) A.M.Kleinfeld et.al. N.P.A158(1970)81  
 c) R.L.Robinson et.al. N.P.A124(1969)553  
 d) R.Beyer et.al. P.R. C2(1970)1469

の Q-moment の値を示す。又 Coulomb 励起の実験による B(E2) の値及び reorientation effect より求めた Q-moment の値を同時に示す。

1-phonon state と  
 2-phonon state の  
 mixing を考えた  
 anharmonic vibrator

模型を用いると電子散乱より求めた  $2_2^+$  励起準位への形状因子をうまく説明し、更にそれより求めた Q-moment の値は reorientation effect の実験より求めた値と良い一致を示す。

## Appendix

核の基底状態の電荷分布として Fermi 型を仮定すると

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

核内での振動モードとして色々なモードが考えられるが、今、次の振動モードを考える。

$$\text{mode I} \quad c = c_0 \left( 1 + \alpha_{00} Y_{00} + \sum_{\lambda, \mu} \alpha_{\lambda\mu} Y_{\lambda\mu}^* \right) \quad (2)$$

$$\text{mode II} \quad r = r_0 \left( 1 + \alpha_{00} Y_{00} + \sum_{\lambda, \mu} \alpha_{\lambda\mu} Y_{\lambda\mu}^* \right) \quad (3)$$

$$\text{mode III} \quad r = r_0 \left( 1 + \alpha_{00} Y_{00} + \sum_{\lambda, \mu} \alpha_{\lambda\mu} \frac{f(r_0)}{r_0} \cdot Y_{\lambda\mu}^* \right) \quad (4)$$

核を非圧縮性、非回転性の不均一の液滴と見なした Tassie 模型<sup>8)</sup>では核内の振動モードは(5)式で与えられ、 $\lambda = 2$  の場合は mode II と一致する。

$$\text{Tassie model} \quad r = r_0 \left( 1 + \alpha_{00} Y_{00} + \sum_{\lambda, \mu} \alpha_{\lambda\mu} \cdot r_0^{\lambda-2} \cdot Y_{\lambda\mu}^* \right) \quad (5)$$

今、mode II について  $\lambda = 2$  の場合を考える。

(3)式より

$$4r = r_0 \left( \alpha_{00} Y_{00} + \sum_{\mu} \alpha_{2\mu} Y_{2\mu}^* \right) \quad (6)$$

ここで  $\alpha_{00}$  は体積を一定に保つように決定する。

$$\alpha_{00} = -\sqrt{\frac{5}{\pi}} [\alpha^{(2)} \times \alpha^{(2)}]_0 \quad (7)$$

振動している核の電荷分布  $\rho(r)$  を基底状態の電荷分布でテーラー展開をする。

$$\rho(r_0 + \Delta r) = \rho_0(r_0) + \frac{\partial \rho(r_0)}{\partial r_0} \cdot \Delta r + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \rho(r_0)}{\partial r_0^2} (\Delta r)^2 + \dots \quad (8)$$

(8)式に(6)式を代入して  $\alpha$  の2次の order まで考える。

$$\begin{aligned} \rho(r) = & \rho_0(r) + r \cdot \frac{\partial \rho_0}{\partial r} \sum_{\mu} \alpha_{2\mu}^* Y_{2\mu} + r \frac{\partial \rho_0}{\partial r} \alpha_{00} Y_{00} \\ & + \frac{5}{2} r^2 \frac{\partial^2 \rho_0}{\partial r^2} \cdot \sum_{\ell=0,2,4} \frac{C(22\ell; 00)}{4\sqrt{4\pi}(2\ell+1)} (-)^{\mu} [\alpha^{(2)} \times \alpha^{(2)}]_{-\mu}^{\ell} Y_{\ell\mu} \end{aligned} \quad (9)$$

ここで

$$[\alpha^{(2)} \times \alpha^{(2)}]_m^{\ell} = \sum_{\nu, \mu} C(22\ell; \nu\mu) \alpha_{2\nu} \alpha_{2\mu} \quad (10)$$

変形  $\alpha$  が小さいならば核は基底状態の電荷分布の回りで harmonic な振動を行ない、 $\hat{\alpha}_{\lambda\mu}$  は電荷分布の harmonic な振動の creation, annihilation operator の1次結合で表わされる。<sup>9)</sup>

$$\hat{\alpha}_{2\mu} = \beta (\hat{\beta}_{2\mu}^+ + (-)^{\mu} \hat{\beta}_{2-\mu}) \quad (11)$$

ここで  $\hat{\beta}_{\lambda\mu}^+$ ,  $\hat{\beta}_{\lambda\mu}$  はそれぞれ phonon の creation, annihilation operator で  $\beta$  は deformation parameter と呼ばれる。1-phonon, 2-phonon state は次のように表わされる。

$$1\text{-phonon state} \quad |1, 2M\rangle = \hat{\beta}_{2M}^+ |0\rangle \quad (12)$$

$$2\text{-phonon state} \quad |2, IM\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [\hat{\beta}^{+(2)} \times \hat{\beta}^{+(2)}]_M^I |0\rangle \quad (13)$$

charge operator  $\hat{\rho}$  は

$$\begin{aligned} \hat{\rho}(r) = & \hat{\rho}_0(r) + r \cdot \frac{\partial \rho_0}{\partial r} \sum_{\mu} \hat{\alpha}_{2\mu}^* Y_{2\mu} - r \frac{\partial \rho_0}{\partial r} \sqrt{\frac{5}{\pi}} [\hat{\alpha}^{(2)} \times \hat{\alpha}^{(2)}]_0 \\ & + \frac{5}{2} r^2 \frac{\partial^2 \rho_0}{\partial r^2} \sum_{\ell=0,2,4} \frac{C(22\ell; 00)}{4\sqrt{4\pi}(2\ell+1)} (-)^{\mu} [\hat{\alpha}^{(2)} \times \hat{\alpha}^{(2)}]_{-\mu}^{\ell} Y_{\ell\mu} \end{aligned} \quad (14)$$

で表わされる。(14)式に(11)式を代入すると 1-phonon, 2-phonon state への遷移電荷密度はすぐに得られ、次の式で与えられる。

1 phonon state

$$\rho_{tr}(1\text{ ph}) = \left(\frac{\beta}{\sqrt{5}}\right) \cdot r \cdot \frac{d\rho_0}{dr} \quad (15)$$

2 phonon state

$$\rho_{tr}(2\text{ ph}) = \sqrt{\frac{5}{28\pi}} \left(\frac{\beta}{\sqrt{5}}\right)^2 r^2 \frac{d^2\rho_0}{dr^2} \quad \text{for } 2^+, 4^+ \quad (16)$$



$$\rho_{tr}(2\text{ph}) = \sqrt{\frac{5}{8\pi}} \left(\frac{\beta}{\sqrt{5}}\right)^2 \frac{1}{r^2} \frac{d}{dr} \left(r^4 \frac{d\rho}{dr}\right) \quad \text{for } 0^+ \quad (17)$$

multipole operator は次の式で与えられる。

$$\begin{aligned} \hat{Q}_{\lambda\mu} = & \sqrt{4\pi} \int_0^\infty \rho(r) r^2 dr \cdot \delta_{\lambda,0} - \int_0^\infty \frac{d\rho}{dr} r^3 dr \cdot \alpha_{00} \cdot \delta_{\lambda,0} \\ & + \int_0^\infty r \frac{d\rho}{dr} \cdot r^{\lambda+2} dr \hat{\alpha}_{\lambda\mu}^* \\ & + \frac{5}{2} \int_0^\infty r^2 \frac{d^2\rho}{dr^2} r^{\lambda+2} dr \cdot \frac{C(22\lambda; 00)}{\sqrt{4\pi(2\lambda+1)}} \cdot (-)^\mu [\hat{\alpha}^{(2)} \times \hat{\alpha}^{(2)}]_{-\mu}^\lambda \end{aligned} \quad (18)$$

(18)式より reduced matrix element  $\tilde{Q}_{if} \equiv \langle f\text{-phonon } 2^+ \| \hat{Q}_2 \| i\text{-phonon } 2^+ \rangle$  は次の式で与えられる。

$$\tilde{Q}_{11} = -\frac{15\sqrt{2}}{\sqrt{7\pi}} \langle r^2 \rangle \beta^2 \quad (19)$$

$$\tilde{Q}_{12} = 5\sqrt{2} \langle r^2 \rangle \cdot \beta \quad (20)$$

$$\tilde{Q}_{10} = 5 \langle r^2 \rangle \cdot \beta \quad (21)$$

$$\tilde{Q}_{20} = -\frac{15}{\sqrt{7\pi}} \langle r^2 \rangle \beta^2 \quad (22)$$

$$\tilde{Q}_{22} = \frac{3\sqrt{2}}{7} \frac{15}{\sqrt{7\pi}} \langle r^2 \rangle \beta^2 \quad (23)$$

ここで

$$\langle r^2 \rangle = \int_0^\infty \rho_0(r) r^4 dr, \quad 4\pi \int_0^\infty \rho_0(r) r^2 dr = z \quad (24)$$

sharp cut off, mode I, mode II, mode III, Tassie model の 1-phonon state, 2-phonon state への遷移電荷密度は次の式で与えられる。

$$\text{sharp cutoff} \quad \frac{3z}{4\pi} \frac{\beta}{\sqrt{5}} \frac{1}{R^2} \delta(r-R), \quad \frac{3z}{4\pi} \sqrt{\frac{5}{28\pi}} \left(\frac{\beta}{\sqrt{5}}\right)^2 \frac{1}{R} \delta'(r-R) \quad (25)$$

$$\text{mode I} \quad -\frac{\beta}{\sqrt{5}} c_0 \frac{\partial}{\partial c} \rho(r, c), \quad \sqrt{\frac{5}{28\pi}} \left(\frac{\beta}{\sqrt{5}}\right)^2 \cdot c_0^2 \frac{\partial^2 \rho(r, c)}{\partial c^2} \quad (26)$$

$$\text{mode II} \quad \frac{\beta}{\sqrt{5}} r \frac{\partial}{\partial r} \rho(r, c), \quad \sqrt{\frac{5}{28\pi}} \left(\frac{\beta}{\sqrt{5}}\right)^2 r^2 \frac{\partial^2 \rho(r, c)}{\partial r^2} \quad (27)$$

$$\text{mode III} \quad \frac{\beta'}{\sqrt{5}} \cdot f(r) \frac{\partial}{\partial r} \rho(r), \quad \sqrt{\frac{5}{28\pi}} \left(\frac{\beta'}{\sqrt{5}}\right)^2 \cdot (f(r))^2 \cdot \frac{\partial^2 \rho(r)}{\partial r^2} \quad (28)$$

$$\text{Tassie model} \quad \frac{\beta'}{\sqrt{5}} \cdot r^{\lambda-1} \frac{\partial}{\partial r} \rho(r), \quad \sqrt{\frac{5}{28\pi}} \left(\frac{\beta'}{\sqrt{5}}\right)^2 r^{\lambda-2} \frac{\partial^2 \rho(r)}{\partial r^2} \quad (29)$$

ここで 2-phonon state への遷移電荷密度の係数は  $(2^+)^2$  の  $2^+$  state への遷移の場合を示す。  
ここで sharp cut-off model は mode I の  $t \rightarrow 0$  の場合である。(細山)

### 参 考 文 献

1. 核理研研究報告 VoL. 4, No. 2 (1972) 15
2. R. L. Robinson et. al. Nucl. Phys. **A124** (1969) 553  
F. K. McGowan et. al. Nucl. Phys. **A113** (1968) 529  
F. K. McGowan et. al. Nucl. Phys. **66** (1967) 97
3. S. G. Steadman et. al. Nucl. Phys. **A155** (1970) 1  
A. M. Kleinfeld et. al. Nucl. Phys. **A158** (1970) 81  
R. Beyer et. al. Phys. Rev. **C2** (1970) 1469
4. T. Tamura and T. Udagawa Phys. Rev. **150** No. 3 (1966) 783
5. J. W. Lightbody Jr. Phys. Letters. **38B** No.7 (1972) 475
6. J. D. Walecka, Phys. Rev. **126** (1962) 653
7. M. Sakai and H. Ikegami et. al. Phys. Letters **8**, No. 3 (1964) 197  
P. H. Stelson, J. L. C. Ford et al. Nucl. Phys. **A119** (1968) 14
8. L. J. Tassie, Australian J. Phys. **9**, 407 (1956)
9. Eisenberg, Greiner "Nuclear Models" VoL. I

## $^{208}\text{Pb}$ の巨大共鳴領域電子散乱

$E1$  以外の巨大共鳴の存在が、 $^{90}\text{Zr}(e, e')$  等の実験で明きらかにされてきた。それらの巨大共鳴が

- (1) Mass Number  $A$  にどのように依存するか
- (2) 核構造をどのように反映するか

を調べる一つとして、2重閉殻 $^{208}\text{Pb}$ の電子散乱実験をおこなった。

入射電子エネルギーと散乱角度をかえて得られた輻射補正後のスペクトラムを図1に示す。これらの運動量移行の領域では、弾性散乱弾面積が比較的大きく、その radiation tail は、巨大共鳴領域にもかなりひいてきている。また、中性子、陽子の threshold がそれぞれ 7.4, 8.1 MeV であるので、この領域には、電子が核中の粒子をたたき出すことによる寄与がある。輻射補正の誤差と、particle emission の寄与を、

- (1) 粒子の threshold 近辺から影響が出て、
  - (2) 励起エネルギーの高いところには、核自体の励起はほとんどないであろう。
- という仮定にもとづいて

$$(A) \quad a (E_x - E_{th})^{\frac{1}{n}} \quad E_{th} = \text{粒子の threshold}$$

と考えた。ここで  $a$  と  $n$  は free parameter である。図1に、 $a$  と  $n$  を適宜に変化させた時の(A)の寄与を実線で示す。

次に、 $E1$  巨大共鳴からの寄与であるが、 $E1$  巨大共鳴は、 $(\gamma, n)^D$  で観測され、散乱弾面積は

$$\sigma_0 = 3.48 \pm 0.23 \text{ MeV b} \quad (1)$$

である。

photon excitation の cross section と、Transition probability の間には  $k \rightarrow 0$  の極限で

$$\sigma_0 \underset{k \rightarrow 0}{\sim} (2\pi)^3 \frac{\alpha}{k} \frac{1}{2J_i + 1} \left( \frac{k^J}{(2J+1)!!} \right)^2 \frac{J+1}{J} B(EJ) \quad (2)$$

の近似が成立つので、(1)の値から

$$B(E1) = 64 \pm 4.2 \quad e^2 \text{ f}^2 \quad (3)$$

電子散乱の形状因子

$$|F^{E1}(\theta, E_0)|^2$$

を Tassie model 及び Goldhaber - Teller model による遷移電荷分布

$$\rho_{tr}(r) = \alpha \frac{d\rho_0(r)}{dr} \quad (4)$$

$\rho_0(r)$  = 基底状態の電荷分布

で計算し、パラメータ  $\alpha$  を、 $B(E1)$  が(8)になるように決定する。 $E1$ の共鳴が

$$E^1 = 13.4 \text{ MeV}$$

$$\Gamma = 4.05 \text{ MeV}^{-1}$$

で Breit-Wigner 型であるとするとき電子散乱のスペクトラムに

$$(B) \quad |F^{E1}(\theta, E_0)|^2 \cdot \frac{1}{\pi} \cdot \frac{\Gamma}{(E_x - E^1)^2 + \frac{1}{4}\Gamma^2}$$

の寄与があることになる。

よって(A)と(B)をさしひいた残りが、 $E1$  巨大共鳴以外の共鳴の寄与と考えられる。図1で、ハンチングの領域以下が(A)と(B)の寄与である。

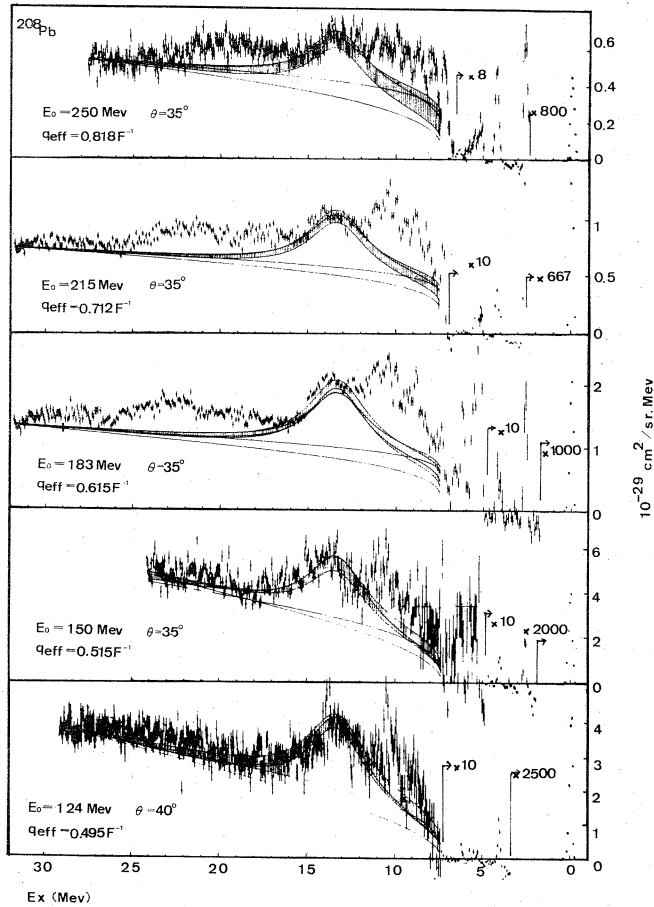


図 - 1  $^{208}\text{Pb}(e, e')$  のスペクトラム

これらは、 $^{90}\text{Zr}$ であきらかにされたような  $E1$  以外の巨大共鳴の存在を示しているばかりでなく、次のような特徴をもっている。

- (1)  $E1$  巨大共鳴より励起エネルギーの低いところ、8.9, 10.1, 10.5, 11.2 MeV に鋭い共鳴がみられる。
- (2) これらのピークのうち後三者が A. Veyssiere らの  $(r, n)$  でもみつがっている。<sup>1)</sup> その散乱断面積は三者合計 20~50 mb MeV である。

図 2 にこれらのピークの形状因子を示す。

photo-reaction では  $E0$  遷移は禁止され、これら 3 本のピークの形状因子はいずれも  $E2$  的であることから、次の 2 つの可能性がある。

- (1) 励起エネルギー 8 MeV から 12 MeV に  $E0$ 、又は  $E2$  の幅の広い共鳴があって、その上 10.1, 10.5, 11.2 MeV に  $E1$  の鋭いピークがある。この場合に、ピークとしてとび出した部分の形状因子の  $q$  依存性は  $E1$  的であるが、(図 2 に  $\times$  印で示す) この時の  $B(E1)$  は  $14.5 f^2$  で、それは  $\sigma_0 = 550 \text{ mb MeV}$  に対応し、 $(r, n)$  の実験結果と矛盾する。
- (2) 8.9, 10.1, 10.5, 11.2 MeV に幅 0.4~0.8 MeV の 4 本のピーク、ほか 9.5 MeV にも共鳴が存在してともに  $E2$  である。 $(r, n)$  と対応される 3 本の  $B(E2)$  は合計  $2,500 f^4$  で、 $\sigma_0 = 9.1 \text{ mb MeV}$  である。9.5 MeV, 8.9 MeV を  $E2$  とし、6.2 MeV, 4.1 MeV の  $E2$  と合計すると、energy-weighted sum rule の 63% を占める。

現在までのところは、(1), (2) どちらの可能性だと断定することができないが、低エネルギーでの  $(e, e')$ <sup>2)</sup> の実験がこの領域に  $2^+$  が存在することを示している。

さらに励起エネルギー 16~25 MeV に共鳴がみられるが、共鳴の中心が移動しつつあり、形状因子も  $E2$ ,  $E3$ ,  $E4$  のいずれかはっきりしない。(長尾)

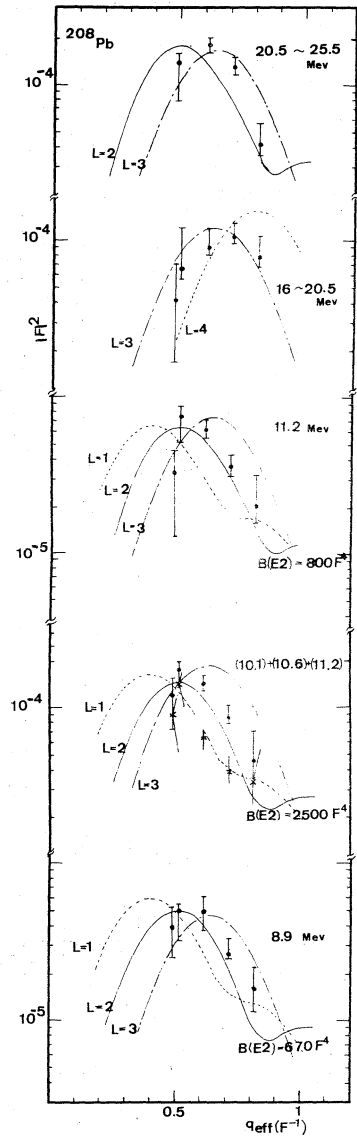


図 - 2 形状因子

## 参 考 文 献

- 1) A. Veysiere, et al Nucl. Phys. A 159, 561 (1970)
- 2) F. R. Buskirk, et al private communication

I - 2  $^{26}\text{Mg}$  による電子散乱

核理研・理学部物理\* 小山田正幸・寺沢辰生・  
 岡崎行男・中原和夫・菅原真澄・  
 田中英二\*・斎藤 肇\*・山家優\*

今回我々のグループが取上げた $^{26}\text{Mg}$ 核はs-d殻核の中で変形が葉巻型からパンケーキ型へ変化する転移領域にあり特に興味ある核であるが、他の近傍の安定核に比べて、その構造はまだよく知られていない。

この核の低励起状態のスピンのパリティは主にHinds等<sup>1)</sup>によって、 $(t, p)$ ,  $(d, p)$ ,  $(d, d')$ の実験結果から推定されているが、我々の実験結果とはかならずしも一致しないものがある。

更に興味あることは $^{26}\text{Mg}$ のように基底状態のアイソスピン $T_0$ が零でない核のE1巨大共鳴はその励起された状態のアイソスピン( $T_0$ 又は $T_0 + 1$ )により励起エネルギーが異なり、巨大共鳴の断面積に2つのピークが出来る、いわゆるアイソスピン・スプリッティングが予想される。分離した2つのピークのエネルギー差及び基底状態からのE1転移確率については理論的研究が種々なされている。<sup>2)</sup>

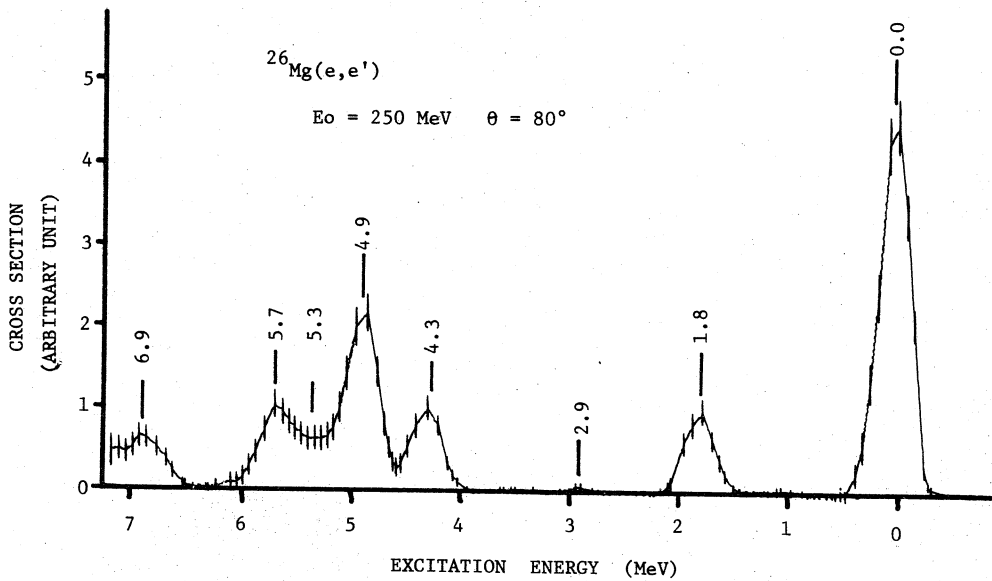
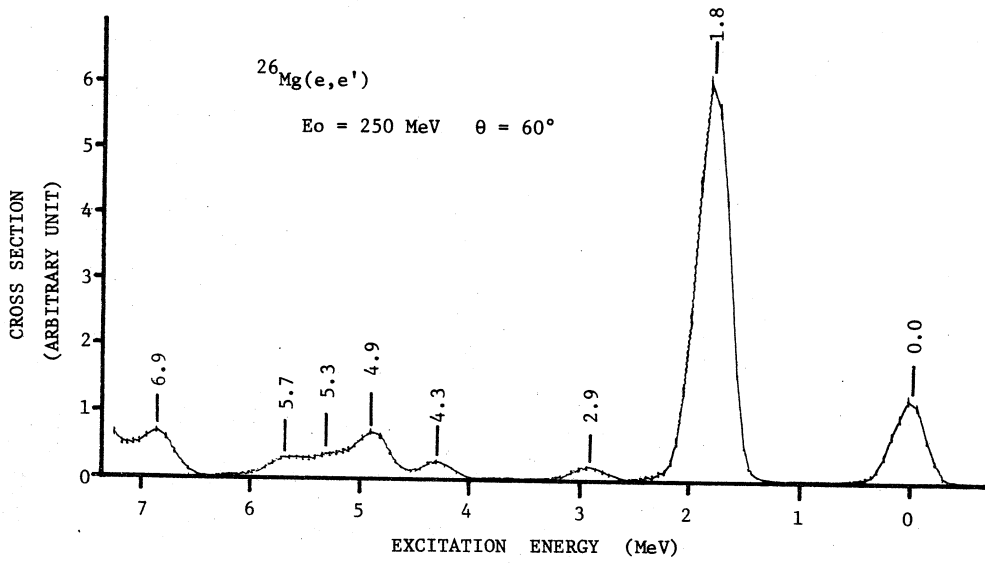
実験は現在継続中であるが、以下に中間結果を報告しておく。

## 実験方法及び結果

用いた $^{26}\text{Mg}$ ターゲットは99.4%に濃縮した $49.9\text{mg}/\text{cm}^2$ の金属板である。ターゲット面に対する電子の入射角及び放出角を同じにしてターゲットによる分解能の悪化を最小限にした。入射電子のエネルギーは250MeVで散乱角は $35^\circ$ ,  $50^\circ$ ,  $60^\circ$ ,  $70^\circ$ ,  $80^\circ$ を選んだ。測定装置は従来通り<sup>3)</sup>であるが、33チャンネルSSD検出器の相対効率の較正はグラフィットの準弾性散乱のスペクトルを分析電磁石の磁場設定を7回、少しづつづらして測定してCrannell<sup>4)</sup>の方法で決定した。

散乱角 $60^\circ$ 及び $80^\circ$ で得られた散乱電子のスペクトルに対して輻射補正を行ったものを第1図(A)及び(B)に示す。測定の分解能は0.12%である。

散乱断面積の絶対値は、同時に測定した $^{12}\text{C}$ の弾性散乱及び4.44MeV準位からの非弾性散乱のYieldとそれぞれの既知の断面積とから求めた測定系の効率を用いて知ることが出来る。この断面



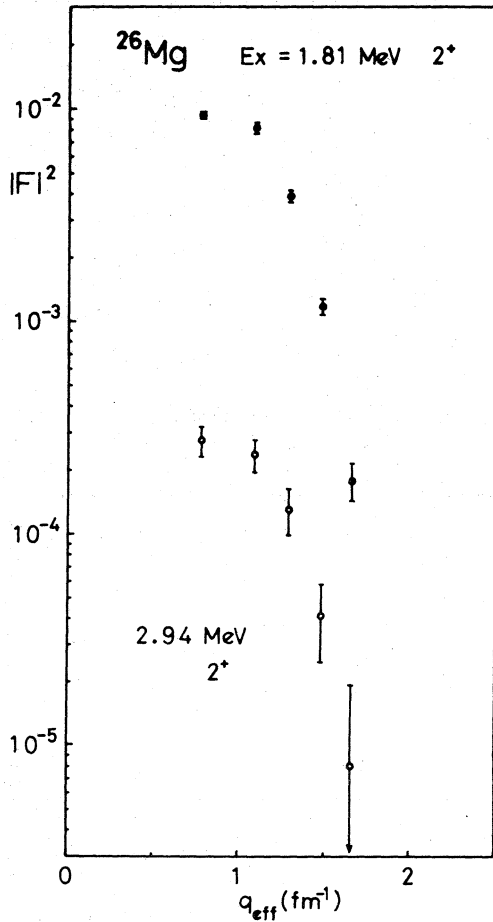
第1図(A)  $^{26}\text{Mg}$ からの散乱電子スペクトル(輻射補正済)  $E_e = 250 \text{ MeV} \quad \theta = 60^\circ$

(B)  $^{26}\text{Mg}$ からの散乱電子スペクトル(輻射補正済)  $E_e = 250 \text{ MeV} \quad \theta = 80^\circ$

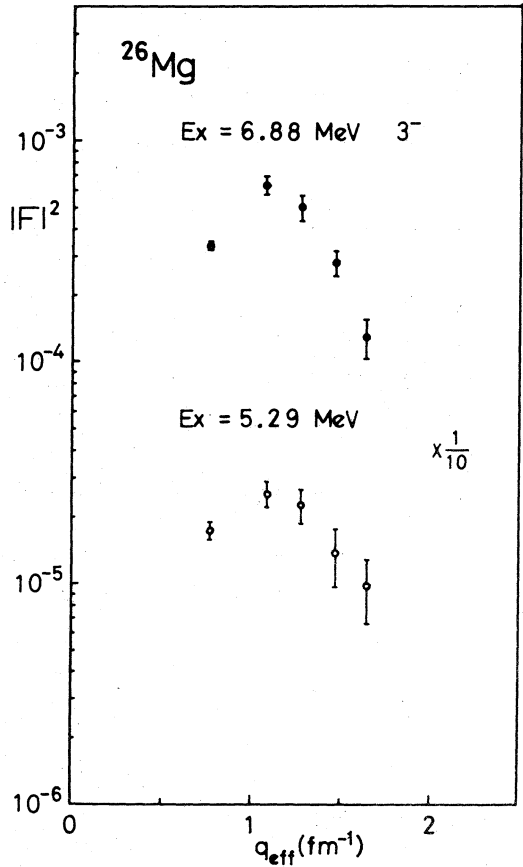
積をMott 散乱断面積で割って形状因子を求めた。各準位の形状因子を第2図~第4図に示す。

第2図は  $1.81 \text{ MeV } 2^+$  及び  $2.94 \text{ MeV } 2^+$  準位の形状因子であるが、これらは典型的な  $E 2$  励





第2図  $^{26}\text{Mg}$  1.81MeV  $2^+$  (黒丸),  
2.94MeV  $2^+$  (白丸) 準位の形状因子。



第3図  $^{26}\text{Mg}$  6.88MeV  $3^-$  (黒丸), 5.29MeV  
(白丸) 準位の形状因子。

起を示している。 $B(E2; 0 \rightarrow 1.81)$  が約 10 W. U. で集団運動的であるのに対して、 $B(E2; 0 \rightarrow 2.94)$  は 0.3 W. U. で単一粒子的励起を示唆している。

第3図に 5.29MeV 及び 6.88MeV 準位の形状因子を示す。6.88MeV 準位は  $3^-$  で典型的な  $E3$  励起であるが、5.29MeV 準位も図からは  $E3$  励起のように見える。更に  $q$  の大きい測定点が得られればはっきりするであろう。

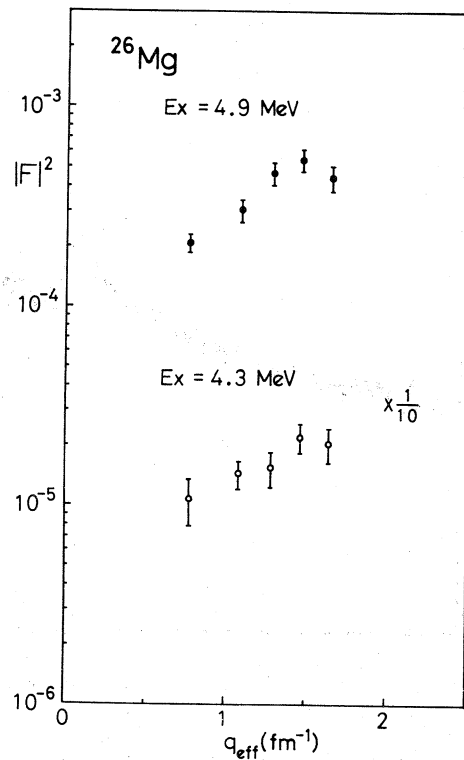
4.32-, 4.33-, 4.35-MeV の 3 本の準位及び 4.83-, 4.90-, 4.97-MeV の 3 本の準位は我々の実験ではそれぞれ分離して測定出来ないで、それぞれの和として第4図に示す。両者の形状因子は非常に良く似ており、4.9MeV 群の中には  $4^+$  準位が含まれているように見える。散乱断面積も大きく  $^{28}\text{Si}$  の 4.61MeV  $4^+$  準位ほどもある。 $^{26}\text{Mg}$  に基底回転帯 ( $K^\pi = 0^+$ ) を考えるならば

Hinds 等<sup>1)</sup>の考えとは異って、或はこの  $4^+$  準位がそのメンバーかも知れない。Hinds 等は  $4.90\text{MeV}$  準位を ( $2^+$ ,  $3^+$ ) としているがこの準位が  $4^+$  かも知れない。図には示していないが、 $5.7\text{MeV}$  準位の形状因子も、ほぼ  $E 4$  励起の  $q$ -依存性を示しており、 $4.9\text{MeV}$  準位と同程度の強さである。

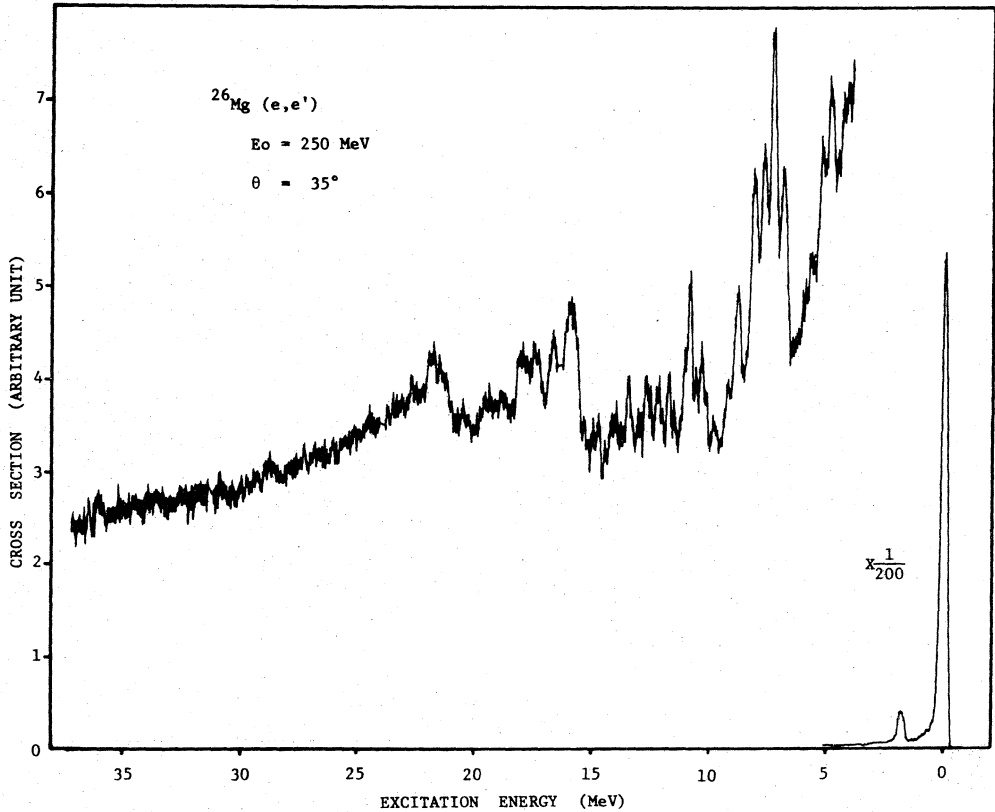
( $t, p$ ) 反応で強く励起される  $3.58\text{MeV}$   $0^+$  の準位は第 1 励起準位  $1.81\text{MeV}$   $2^+$  への  $r$  線転移確率が殻模型の計算では非常に小さく出るにもかかわらず実験値が  $2 \sim 5$  W. U. 程度あることから殻模型から大きくはずれた変形状態ではないかと考えられている。<sup>5)</sup> 我々の実験では散乱角  $35^\circ$  でわずかに見えており、更に小さな  $q$  で実験を行えば基底状態との関係が明かになるであろう。

第 5 図に入射電子エネルギー  $250\text{MeV}$  散乱角  $35^\circ$  で得た高励起状態までの散乱電子スペクトルを示した。Darmstadt のグループでも  $q = 0.25\text{fm}^{-1}$ ,  $0.41\text{fm}^{-1}$  について巨大共鳴領域の実験を行って励起エネルギー  $E_x \sim 17\text{MeV}$ ,  $22\text{MeV}$  に 2 つの大きな山を観測している。<sup>6)</sup>

我々のスペクトルでも同じエネルギーの所に大きな山を見ることが出来る。彼等はこの 2 つの山が Morinaga<sup>7)</sup>, Fallieros 等<sup>8)</sup> が指摘したアイソスピン・スプリッティングであるとしているが、古くから Danos<sup>9)</sup>, Okamoto<sup>10)</sup> が予想した変形核の長径と短径方向の振動数が異って巨大共鳴がスプリットする可能性も捨てることは出来ない。我々は今後更に多くの  $q$  で実験を行い、観測されているピークが本当に  $E 1$  励起によるものかどうかの検討も含め、この問題を解明する予定である。



第 4 図  $^{26}\text{Mg}$   $4.83, 4.90, 4.97\text{MeV}$  準位群 (黒丸) と  $4.32, 4.33, 4.35\text{MeV}$  準位群 (白丸) の形状因子。  $E 2$  と  $E 4$  の複合と考えられる。



第5図  $^{26}\text{Mg}$   $E_e = 250\text{MeV}$   $\theta = 35^\circ$  巨大共鳴領域までの散乱電子スペクトル。  
 $E_x \approx 17\text{MeV}$ ,  $22\text{MeV}$ 附近にそれぞれ  $T_{<}$  及び  $T_{>}$  の  $E1$  巨大共鳴が存在すると考えられている。  
 (文献6)

### 謝 辞

我々の実験計画の意義を認めマシントイムを割当てられた課題採択委員会に対して感謝すると共に、加速器の運転に際して献身的にご協力下さった加速器グループの皆様に深く感謝します。

### 参 考 文 献

- 1) S. Hinds et al., Nucl. Phys. **67** (1965) 257
- 2) R. Ö. Akyüz et al., Phys. Rev. Lett. **27** (1971) 1016
- 3) M. Kimura et al., Nucl. Instr. Meth. **95** (1971) 403
- 4) H. L. Crannell et al., Nucl. Instr. Meth. **44** (1966) 133
- 5) R. A. I. Bell et al., Nucl. Phys. **A133** (1969) 337

- 6) O. Titze et al., Phys. Lett. **31B**(1970)565
- 7) H. Morinaga, Phys. Rev. **97**(1955)444
- 8) S. Fallieros et al., Phys. Lett. **19**(1965)398
- 9) M. Danos, Bull. Am. Phys. Soc. Ser. II, **1**(1956)135
- 10) K. Okamoto, Phys. Rev. **110**(1958)143

## I-3 (e, e'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・鈴木厚人・及川四郎・  
上柿順一

今回のマシントイムを用いた研究の内容は大別して次の様に分ける事が出来る。

## 1) 変形核の Isobaric Analog State

これ迄の実験結果の精度を検討した。

2)  $^{209}\text{Bi}(e, e'p)$ によるIAS

(e, e'p) cross section による実験的結論には理論的解析の困難な事実が見出されている。今回はIASからの放出protonのspectrumを測定して反応機構をよりくわしく研究した。

## 3) メルボルン大学及び京城大学のグループとの共同研究。

メルボルン大  $\beta$ -tron による研究に関連して  $^{90}\text{Zr}$ ,  $^{91}\text{Zr}(e, e'p)$  の研究及び東北大学グループの提案になる  $^{181}\text{Ta}$  の (e, e'p) の研究を行なった。外国グループからの共同研究申出が課題採択後であった為 (r, p) グループのマシントイム中2日及び課題採択委員会より追加された夜間運転2回をこれにあてた。今回は preliminary な報告をする。国外からの参加者を次に示す。

University of Melbourne, Australia

M. N. Thompson

K. Allen

H. Askin

Seoul University, Korea

B. N. Sung.

## 4) Ni isotope の (r, p) cross section

精度を上げる為多少の実験を追加した。

## 変形核の Isobaric Analog state (III)

## §1 序

これまで我々のグループが行なった変形核  $^{181}\text{Ta}$ ,  $^{169}\text{Tm}$ , (e, e'p) 反応の断面積の測定結果によ

るとIASの励起エネルギーの測定値は理論によって予想されるエネルギーよりも500~800KeV程低いと思われる。<sup>1)</sup> この結論を得るに当って確認すべきことは、入射電子エネルギーの精度である。今期のマシンタイムでは入射電子エネルギーの calibration のほかメルボルン大学との合同実験として<sup>181</sup>Ta( $e, e'p$ )反応の陽子スペクトラムの測定を行なったのでそれらの結果を報告する。

## § 2 入射電子エネルギーの calibration

電子による原子核励起機構は仮想光子を仮定する事により実光子による励起機構と同等に近似出来る。この場合入射電子運動エネルギー  $E_e = E_\gamma(max)$  と書くことが出来る。  $E_\gamma(max)$  は ( $r, p$ ) 反応に於ける kinematics を考慮して

$$E_\gamma(max) = \frac{1}{2\alpha} \left\{ \delta - [\delta^2 - 4\alpha E'_\gamma]^{\frac{1}{2}} \right\} \quad (1)$$

で与えられる。

ここで

$$\alpha = \frac{1}{2(A-1)mc^2} \quad \beta = \sqrt{2E_p/mc^2}$$

$$\delta = 1 + \frac{\beta}{A-1} \cos\theta \quad E'_\gamma = E_{th} + E_p \frac{A}{A-1}$$

さらに  $A$  = 標的核の質量数

$mc^2$  = 核子の静止エネルギー

$E_{th}$  = 標的核に於ける ( $r, p$ ) threshold energy

$\theta$  = 実験室系での陽子放出角度

$E_p$  は最大エネルギー光子によって放出される実験室系での  $P_0$  陽子エネルギー (残留核を基底状態に残す時の放出陽子エネルギー) であり陽子スペクトラムに於ける最大陽子エネルギーを測定して決定出来る。この様に決定された  $E_p$  を用い、上式(1)から  $E_\gamma(max)$  が求められる。この方法では  $E_p$  の絶対値の精度が重要であり Broad Range Spectrometer のエネルギー calibration の ambiguity が直接  $E_\gamma(max)$  従って  $E_e$  の誤差を与える。従って次の様な相対測定によって  $E_p$  を決定した。

( $p, r_0$ ) 反応に於いて強い resonance が誘起される場合入射エネルギー  $\widetilde{E}_p$  (( $r, p_0$ ) 反応に於ける実験室系の値に変換) 及び対応する  $r$  線エネルギー  $\widetilde{E}_\gamma$  が精度よく決定されていれば、これを基準にしてこの resonance 付近の  $E_p$  を決定し  $E_\gamma(max)$  を求めることが出来る。図1に  $\widetilde{E}_p, E_p, \widetilde{E}_\gamma(max), E_\gamma(max)$  の関係を示す。図より

$$E_p = \frac{f(y)}{f(x)} \widetilde{E}_p \quad (2)$$

ここで  $f(y)/f(x)$  は

Broad Range Spectrometer の幾何学的条件で決まるエネルギー ratio である。よって  $y$  が  $x$  に近い場合は  $f(y)/f(x)$  の誤差の寄与は小さくエネルギー絶対値の誤差の依存度は少ない。上記の様な方法に適当な標的核としては  $^{90}\text{Zr}$  が上げられる。J. L. Black et. al <sup>2)</sup> によれば、 $^{89}\text{Y}(p, r_0)^{90}\text{Zr}$  に於いて入射陽子エネルギー 8.04 MeV に強い

resonance が見られ、これは  $^{90}\text{Y}$  の 3.164

MeV 励起状態の Isobaric Analog State であることが確かめられている。現在のエネルギー calibration では標的核にこの  $^{90}\text{Zr}$  (5.08 mg/cm<sup>2</sup>) を使用した。各パラメーターの値は

$$A = 90 \qquad E_{th} = 8.374 \text{ MeV}$$

$$m c^2 = 938 \text{ MeV} \qquad \theta = 125.3^\circ$$

$$\tilde{E}_p = 7.86 \text{ MeV} \quad (\text{実験室系での値})$$

calibrate した入射電子エネルギーは 15.80, 16.20, 16.40, 17.40 MeV であり、Spectrometer

の 3 つの強さの  
磁場を用いて計 10  
回測定を行なった。

(実際の解析では  
(2)式を使用するに  
当り標的核に於ける  
陽子のエネルギー  
- loss を考慮した)  
結果を表 1 に示す。

入射電子エネルギー  
のセッティングエ  
ネルギー  $E_e$  と上  
記の方法で定めた

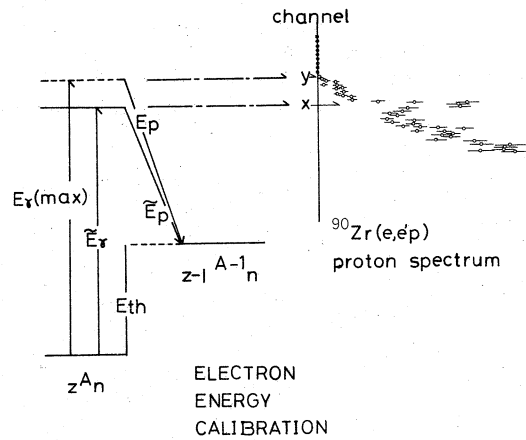


図 1.

| Incident Energy Ee (Mev) | Spectrometer Field (gauss) | Channel Number x, y | Ep (Mev) | Er(max) (Mev) |
|--------------------------|----------------------------|---------------------|----------|---------------|
| 17.40                    |                            | 61                  | 8.970    | 17.46         |
| 16.40                    |                            | 48                  | 8.079    | 16.56         |
| 16.40                    |                            | 48                  | 8.079    | 16.56         |
| 15.80                    | 7926.0                     | 45 39               | 7.427    | 15.90         |
| 15.80                    |                            | 38                  | 7.365    | 15.84         |
| 15.80                    |                            | 40                  | 7.489    | 15.96         |
| 15.80                    |                            | 39                  | 7.427    | 15.90         |
| 17.40                    |                            | 91                  | 8.920    | 17.41         |
| 16.20                    | 7003.8                     | 72 70               | 7.750    | 16.23         |
| 17.40                    | 9143.2                     | 17 29               | 8.936    | 17.43         |

表 1.

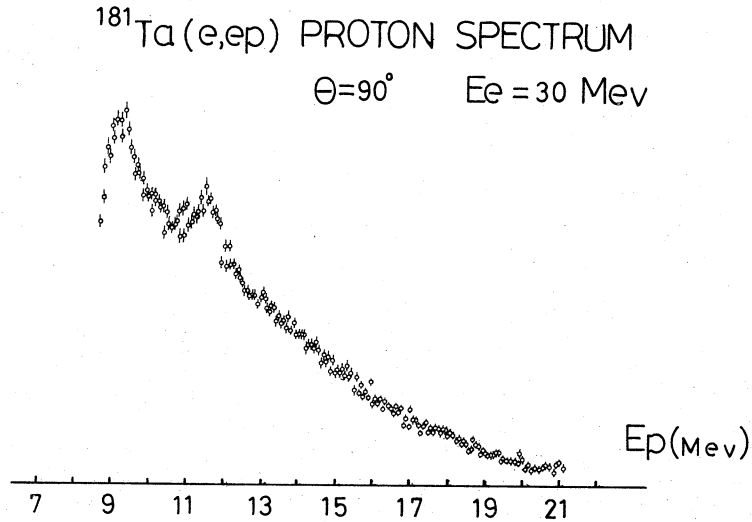


図 2.

入射エネルギー  $E_e$  ( $max$ ) との差は  $10 \sim 160 \text{ KeV}$  の範囲にあり、標準偏差値は  $107 \text{ KeV}$  であった。従って前述の実験結果は入射電子エネルギーの誤差によって大きく変えられない事が確かめられた。

### § 3 $^{181}\text{Ta}$ 陽子スペクトラム

今回の実験のねらいは以前測定した陽子スペクトラム (図 2) に見られる  $\sim 11.5 \text{ MeV}$ ,  $\sim 9 \text{ MeV}$  に於ける 2 つの強い陽子グループの性質を調べる事である。このグループは最近 (この一年間に) 測定した  $^{181}\text{Ta}(e, e'p)$  反応微分断面積 (図 3) の  $\sim 20.5 \text{ MeV}$  に於ける break 以上の  $E_e$  にも現われている。

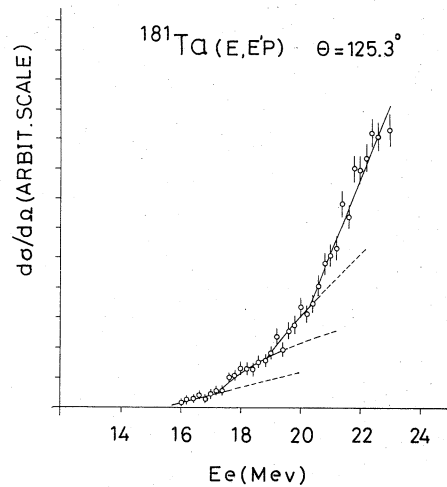


図 3.

そこで実験では  $20 \text{ MeV}$  前後の照射エネルギーで陽子スペクトラムを測定し、2 つの陽子グループの強さの変化を照射エネルギーの関数として調べた。結果を図 4, 図 5 に示す。

図から強い陽子グループは  $E_e \geq 20 \text{ MeV}$  で現らわれてくる事が認められる。この励起エネルギー値は isospin splitting の式  $(60 \times (T+1) / A)$  より求めた isospin upper coherent state のエネルギー  $= 20.6 \text{ MeV}$  とよく一致する。(但し isospin lower coherent state の位置は巨大共鳴の重心  $(\frac{1}{3} \times E_{低} + \frac{2}{3} \times E_{高}) = 14.43 \text{ MeV}$  とした) この事実によって 2 つの強い陽子グループが  $^{181}\text{Ta}$  のいかなる共鳴状態から放出されるのか、又残留核 ( $^{180}\text{Hf}$ ) の状態をいか



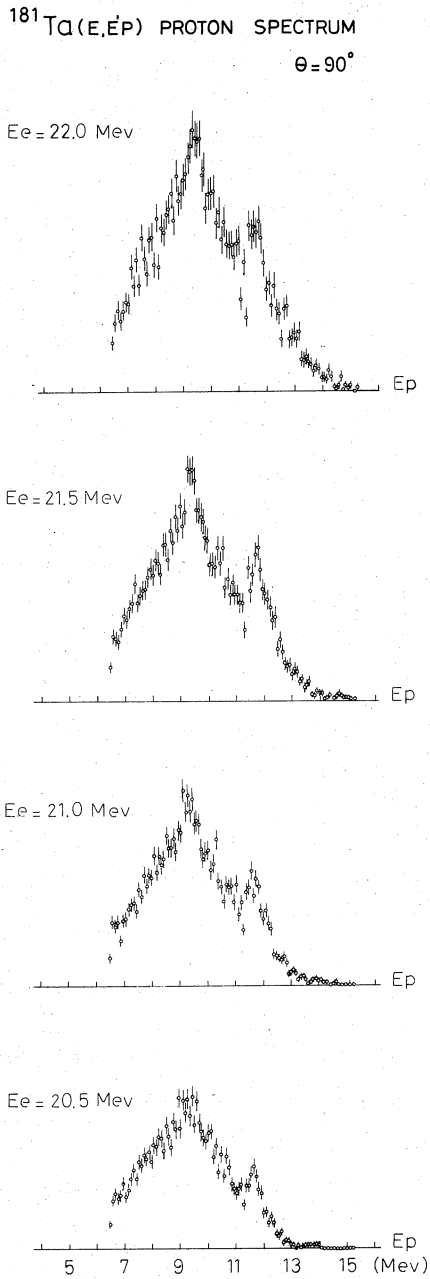


図 4.

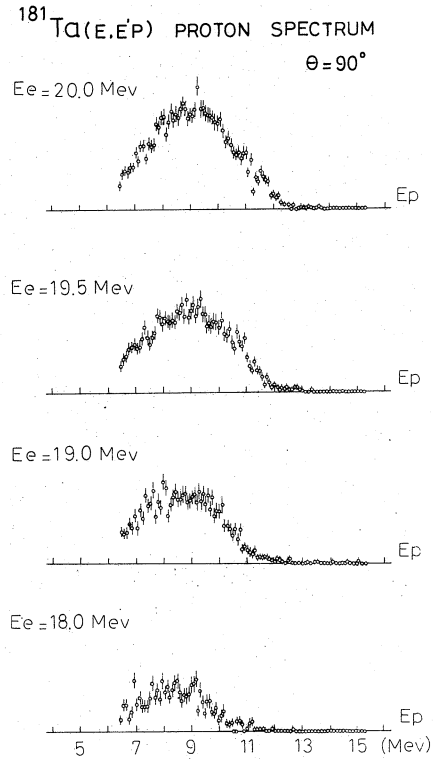


図 5.

なる状態に残すのかを研究する事が出来ると思われる。これに関しては来期に実験を加えて解析の結果を報告する。  
(鈴木)

参 考 文 献

- 1) 核理研報告 Vol 4. No 2. (Feb. 1972) 38  
Vol 5. No 1. (July. 1972) 44
- 2) J. L. Black et. al. Nucl. Phys. A 92 (1967) 365

## $^{209}\text{Bi}(e, e'p)$ によるIAS

### §1 序

前期に引き続き $^{201}\text{Bi}$ の $g_{7/2}$ -IASを、又新たに $i_{11/2}$ -IASのdecay modeを調べた。

荷電独立性を仮定すれば、核 ${}^A_Z$ におけるground IASのexcitation energy  $E_{IAS}$ は次のように表わされる。

$$E_{IAS} = \Delta E_c - S_n(Z-1, A_{N+1}) + S_p(Z, A_N)$$

ここに $S_n$ ,  $S_p$ はそれぞれ( )内に示された核のneutron及びprotonのseparation energy,  $\Delta E_c$ はcoulomb displacement energyであって半経験的に

$$\Delta E_c = 1444 \left( Z + \frac{1}{2} \right) / A^{1/3} - 1.13 \quad (\text{MeV})$$

で求められる。<sup>1)</sup>

又,  $E1$  transitionのselection ruleは

$$\Delta j = 0, \pm 1 \quad \Delta l = \pm 1$$

であるから,  $^{209}\text{Bi}$ の中に見い出されているIASのうち $E1$ のselection ruleを満足するものと

して, 18.7MeVに $g_{7/2}$ , 19.5MeVに $i_{11/2}$ , 21.17MeVに $g_{7/2}$ のstatesがある。 $^{209}\text{Bi}$ のground stateは $h_{7/2}$ であるから $g_{7/2}$ IASへのtransitionはspin-flip, 他の2つはspin-nonflipであって,  $g_{7/2}$ -IASへの $E1$  transitionは他のもの比べて2桁ほど小さいと考えられる。

ところが, 前回の核理研報告<sup>2)</sup>で述べたように,  $g_{7/2}$ -IASへのtransitionは他の2つとほぼ同程度であり, single particle estimateよりも2-order強いことが確認された。Fig. 1は $^{209}\text{Bi}(e, e'p)$ のcross sectionである。proton emission angleは $90^\circ$ と $125.3^\circ$ で測定したが, どちらにも18.7MeVにcurveの立ち上がりが見られる。(  $e, e'p$  )のcross sectionの増加量 $\Delta\sigma(e, e'p)$ と( $r, p$ )のresonanceのcross

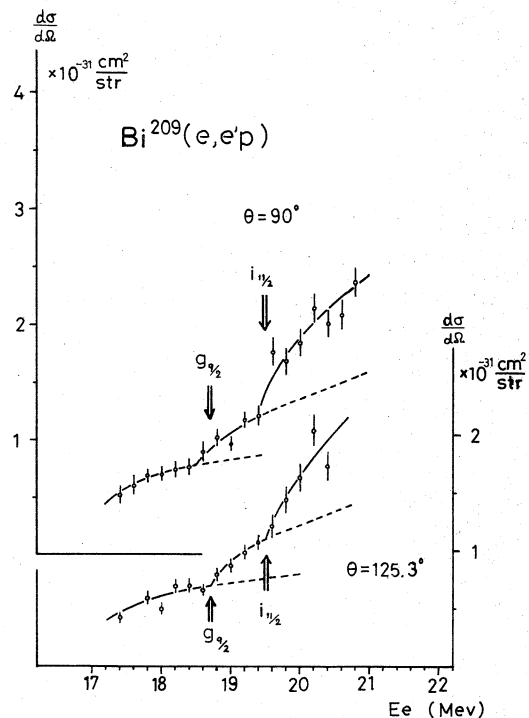


Fig. 1  $^{209}\text{Bi}(e, e'p)$ のcross section. 上図はproton emission angle  $\theta=90^\circ$ ; 下図は $\theta=125.3^\circ$ の結果。横軸はincident electron energy. 縦軸はcross section.

section  $\sigma^R(r, p)$  との関係は

$$d\sigma(e, e'p)(Ee) \approx CN(Ee, Ee') \int \sigma^R(r, p)(E) dE$$

と表わされるから、 $(e, e'p)$  の cross section の curve の立ち上がりの大きさは、resonance の強さを示している。

§  $g_{9/2}$  及び  $i_{11/2}$  IAS の decay mode

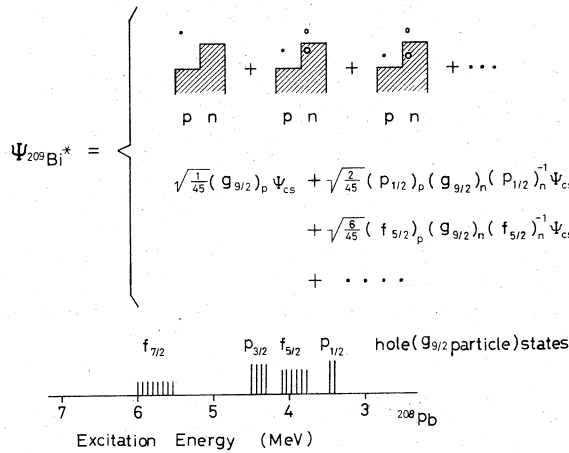


Fig. 2  $^{209}\text{Bi}$  の IAS

Fig. 2 は  $^{209}\text{Bi}$  の  $g_{9/2}$  - IAS の configuration 及び proton 放出数に対応する residual energy を示したものである。IAS は compound state であるから、decay mode はその state の励起方法によらないと考えられる。我々は  $^{209}\text{Bi}(e, e'p)$  における  $E1$  interaction によって励起した IAS の decay mode を調べ、 $^{208}\text{Pb}(p, p')$  における IAS の decay mode と比較検討した。

研究の方法としては proton spectra の difference method を用いた。このため  $g_{9/2}$  - IAS と  $i_{11/2}$  - IAS をはさむ 3 点 (incident electron energy  $E_e = 18.4\text{MeV}$ ,  $19.2\text{MeV}$ ,  $20.8\text{MeV}$ ) で  $^{209}\text{Bi}(e, e'p)$  による emitted proton の spectrum を測定した。Fig. 3 に結果を示す。target は、 $E_e = 20.8\text{MeV}$  の場合は純度 99.999% の self support Bi (natural) metal foil ( $12.3\text{mg}/\text{cm}^2$ ) を用いたが、metal の Bi は溶けやすく、beam intensity を通常得られるものの  $\frac{1}{2}$  以下にする必要があった。従って  $E_e = 19.2\text{MeV}$  と  $E_e = 18.4\text{MeV}$  の場合は  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  の target を用いた。これは  $1.55\text{mg}/\text{cm}^2$  の厚さの金箔を backing にして沈澱法を用いて作成した ( $\text{Bi}_2\text{O}_3$   $6.9\text{mg}/\text{cm}^2$ )。Fig. 3 の spectra は  $\text{Au}(e, e'p)$  の proton を別に測定して差し引き、

$^{209}\text{Bi}(e, e'p)$  の proton を estimate したものである。 $^{16}\text{O}$  からの proton は  $^{16}\text{O}(r, p)$  の threshold energy が高いため、この spectra の中には入ってきていない。これら  $^{209}\text{Bi}(e, e'p)$  の spectra は electron kinetic energy  $E_e$  に等しい maximum energy を持つ virtual photon によって放出されたものと考えることができる。IAS を経由して emit される proton は、これらの spectra に適当な factor をかけて差し引くことによって estimate 出来る。(difference method)。Fig. 4 はこの差し引きに関する virtual photon, 又差し引きの結果の spectra である。差し引きによる photon に対応する proton spectra を Fig. 5 に示す。

この方法に於ては IAS からの proton の他に  $T_{\leq}$  の continuous part からの back ground を含むはずである。これを  $(e, e'p)$  cross section から estimate し、実線で示してある。Fig. 6 において、AA' の長さは  $E_e = 19.2\text{MeV}$  の時の

proton spectrum の total yield を表わし、BB' は  $E_e = 184\text{MeV}$  の時のそれを表わす。2つの spectra の差し引きの factor を用いて AA' から差し引くべき量 C'A' が求められる。Fig 4 の total proton は AC' である。一方、resonance がなければ curve は破線のようにになると考えられるから IAR からの total proton の量は AD で、 $T_{\leq}$  の back ground からの proton は DC' である

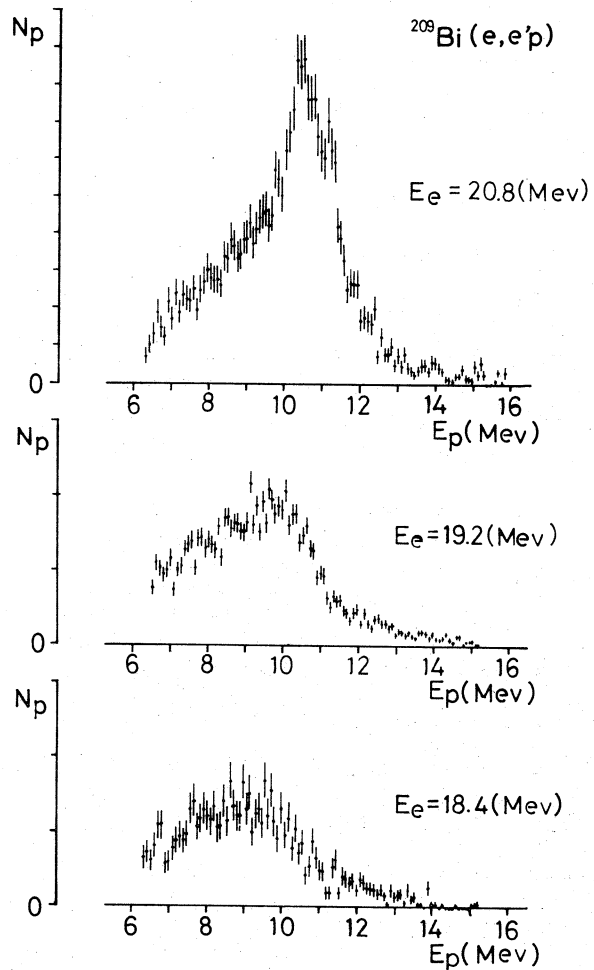


Fig. 3  $^{209}\text{Bi}(e, e'p)$  の proton spectrum. 横軸は proton energy. 上から順に incident electron energy が  $E_e = 20.8\text{MeV}$ ,  $E_e = 19.2\text{MeV}$ ,  $E_e = 184\text{MeV}$  の結果。proton emission angle は、いずれも  $\theta = 125.3^\circ$  である。 $E_e = 20.8\text{MeV}$  の結果は、縦軸が他のものに比べて半分縮小してある。

と考えられる。これから AD と DC' の ratio がわかる。又  $T_{<}$  からの back ground の spectrum は  $E_e = 18.4 \text{ MeV}$  における proton spectrum と類似した形を持つものと仮定した。

Fig. 5 は  $^{208}\text{Pb}(p, p')$  の実験<sup>3)4)</sup> から得られた partial width を, IAS の巾と考えられる 250 KeV 巾の Lorenz shape で変換して得られた spectrum との比較である。

#### §. 実験結果

$i^{11/2}$  - IAR の場合は  $(p, p')$  との比較において非常によい一致が見られる。即ち  $(r, p)$  の方では 10.4 MeV 及び 11.3 MeV に鋭い peak が認められ, 10.8 MeV に小さな peak が見られる。これは  $(p, p')$  の結果における residual 核の excitation energy 5.1 MeV, 4.2 MeV, 4.7 MeV に対応している。これらの residual state は neutron の one particle one hole state である。この state を示す zero-order 近似の shell model state を Fig. 7 に示す。

一方  $g^{9/2}$  - IAS の場合は 2 つの実験結果は一致しない。 $(r, p)$  の方の結果では proton は 9 MeV から 11 MeV の間に主として分布しているのに対し  $(p, p')$  の方の結果では proton の energy にして 10 MeV から 12 MeV の間の yield が大きい。更に  $(r, p)$  の  $p_0$  は 14.8 MeV に存在すべきであるが, yield が小さくて存在は明確でない。 $(p, p')$  の実験結果をこの  $p_0$  の yield に normalize すると, 破線で示した spectrum を得る。従って  $(r, p)$  における 9 MeV から 11 MeV の proton のほとんどは  $(p, p')$  に対応しないものと考えられる。

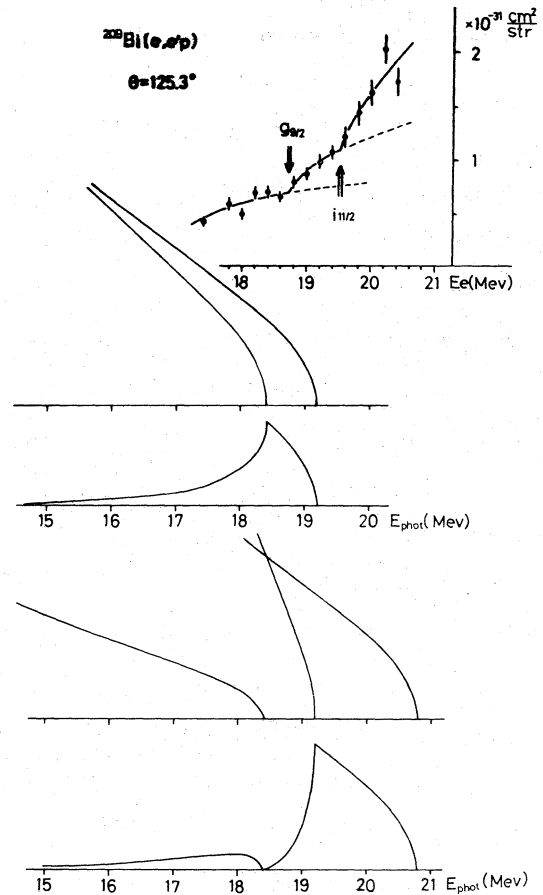


Fig. 4 Virtual photon spectra. ①, ②は  $g^{9/2}$  - IAS に対応するもので ( $E_e = 19.2 \text{ MeV}$  の spectrum) - ( $E_e = 18.4 \text{ MeV}$  の spectrum)  $\times 1.1$  とした。③, ④は  $i^{11/2}$  - IAS に対応するもので, ( $E_e = 20.8 \text{ MeV}$  のもの) - ( $E_e = 19.2 \text{ MeV}$  のもの)  $\times 1.6$  + ( $E_e = 18.4 \text{ MeV}$  のもの)  $\times 0.48$  とした。係数をこの様にえらぶことより  $g^{9/2}$  - IAS からの帰与が小さくできる。

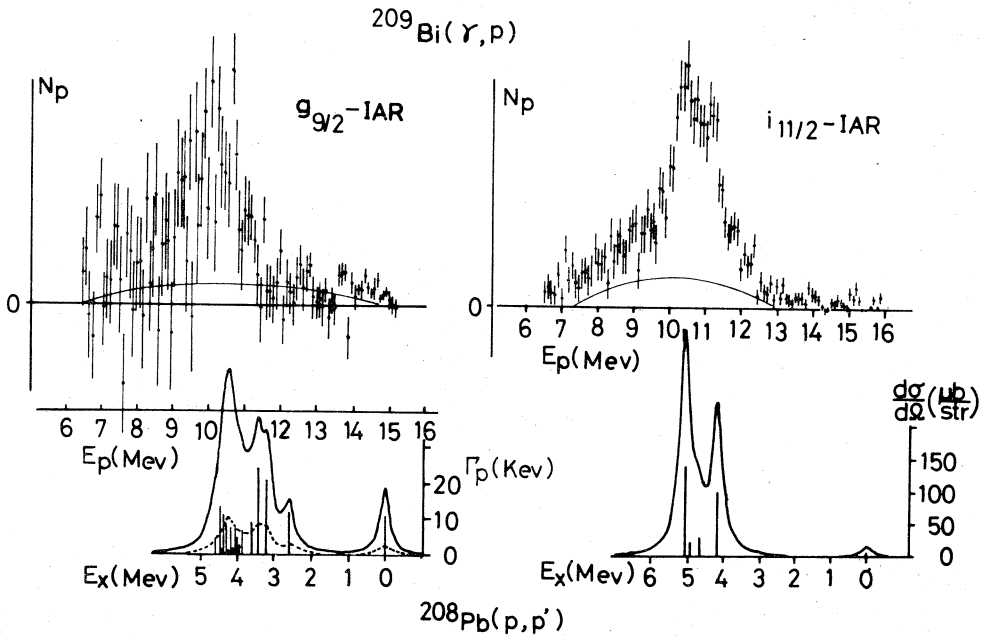


Fig. 5  $^{209}\text{Bi}(\gamma, p)$ と $^{208}\text{Pb}(p, p')$ との比較。左図は $g_{9/2}$ -IAS, 右図は $i_{11/2}$ -IASを、それぞれ経由した場合の結果である。横軸は、上の図ではprotonのenergyであり、下図ではresidual核のexcitation energyを示す。又、下図の縦軸のscaleは、ヒストグラムに対するものである。

なお、実験におけるproton energyのcalibrationは $^{90}\text{Zr}(e, e'p)$ で $^{90}\text{Zr}$ のstrong  $E1$  IASからの $P_0$  (7.8MeV)を用いて行い、同時に $^{90}\text{Zr}(e, e'p)$ のprotonのmaximum energyによってelectron energyもcalibrateした。

$g_{9/2}$ -IASにおけるprotonについては理論的に未解決である。 $(p, p')$ の結果に比較した場合の余分のprotonは $T_{<}$ からのback groundであるという可能性もある。これは更に精度をあげて $(e, e'p)$ のcross sectionを測定することによって明確に出きるものと思われる。しかし、現在の実験

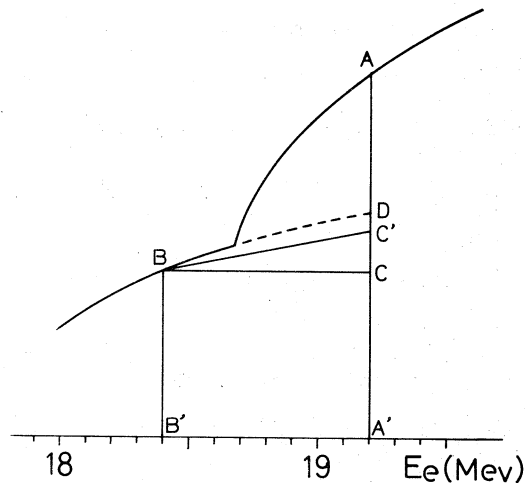


Fig. 6 Yield curve からの $T_{<}$ のback groundのestimation。

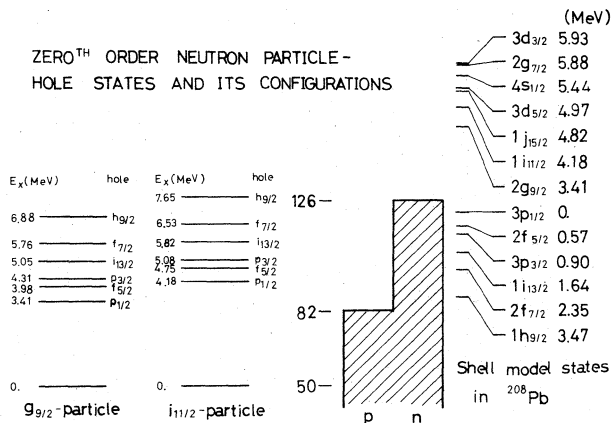


Fig. 7 <sup>208</sup>Pb の one particle one hole states.

における精度の範囲内でも 18.7MeV で curve が立ち上がっていることは確かであると考えられ、その立ち上がりの大きさの estimate に不確かさがあるとしても、余分の proton が無視できぬ程度に放出されているものと考えられる。又、18.7MeV よりも低い所の yield curve から、 $T_{<}$  の back ground はこの resonance に比べてかなり小さいものと思われる。

又、この IAS にかさなって他の resonance があるとも考えるのも困難である。なぜならば、この energy 領域では IAS 以外は continuous な  $T_{<}$  level だけであるからである。

又、IAS が compound state であることを考慮すれば、<sup>209</sup>Bi( $e, e'p$ ) における場合と <sup>208</sup>Pb( $p, p'$ ) における場合とで IAS の decay mode が異なるとは、interference を除けば考え難い。 $g^9_2$  - IAS におけるこの不一致については、まだ未解である。 (上 柿)

参 考 文 献

- 1) Phys. Rev. **138B** (1969) 615
- 2) 核理研報告 Vol. 5 No. 1 ( July 1972)
- 3) Phys. Rev. **183** (1969) 1007
- 4) Phys. Rev. **165** (1968) 1312

### $^{91}\text{Zr} (e, e'p)$ 反応実験

以前、 $^{90}\text{Zr}$  についての  $(e, e'p)$  反応の実験を行ったが、今年8月、オーストラリアのメルボルン大学等との共同で  $^{91}\text{Zr}$  の  $(e, e'p)$  反応の実験を行った。目的は主として  $^{91}\text{Zr}$  の  $T_{>}$  coherent resonance についてで、 $^{91}\text{Zr}$  の proton separation energy は  $8.71\text{MeV}$  で  $^{90}\text{Zr}$  の  $8.32\text{MeV}$  と非常に良く似ている。しかしながら、 $^{91}\text{Zr}$  は  $^{90}\text{Zr}$  の core に  $2d_{5/2}$  shell の neutron が1つついた neutron odd の核で、 $(e, e'p)$  反応の residual 核は proton-hole, neutron-particle の形となり、 $^{90}\text{Zr}$  の  $E_x = 16.3\text{MeV}$  の様な sharp な IAS はみられない。S. Fallieros et al. の理論に依れば、giant dipole resonance を  $\sim 16\text{MeV}$  と仮定して  $T_{>}$  coherent resonance は  $\sim 19.6\text{MeV}$  に来ることになる。

そこで  $E_x = 19.6\text{MeV}$  附近に対応する proton spectra を調べ、それが  $E1$  吸収であることを調べ、そのために角分布を測定した。また spectra には proton energy の低い領域にもグループがみられ、それがどのような性質のものか、現在実験を継続中である。 (宮瀬)

$^{91}\text{Zr}$

$$S(n) = 7.203\text{MeV}$$

$$S(p) = 8.709\text{MeV}$$

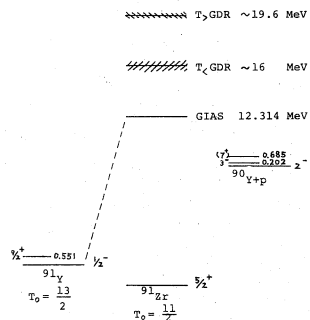
$$S(2n) = 19.185\text{MeV}$$

$$S(2p) = 16.276\text{MeV}$$

$$S(pn) = 15.569\text{MeV}$$

$$4E_c = 1.444 \frac{\bar{Z}}{A^{1/3}} - 1.13 = 11.551 (\text{MeV})$$

$$E_x(\text{GIAS}) = 4E_c - S(n)_{z-1} + S(p) = 12.314 (\text{MeV})$$





I-4  $^{27}\text{Al}$  及び  $^{31}\text{P}$  の  $(r, p)$  反応

教養部物理, 理物理\*, 核理研\*\*

坪田博明・川村暢明\*・及川四郎\*\*・

菅原真澄\*\*・庄田勝房\*\*

## § 1 はじめに

前回は、我々の一部<sup>P</sup>が T. O. F で測定した  $^{27}\text{Al}$  及び  $^{31}\text{P}$  の  $(r, n)$  の neutron エネルギースペクトルとの比較を行うため、 $(r, n)$  の主として proton エネルギースペクトル測定に重点をおいた。この結果については前回の報告に述べてあるが、更にこの結果を解析したところ、 $^{27}\text{Al}$ 、 $^{31}\text{P}$  の  $(r, p_0)$  反応の微分断面積は、夫々  $^{28}\text{Si}$ 、 $^{32}\text{S}$  のものに比して非常に小さいということが分った。そこで今回は統計精度を良くするため target の厚さを変えて、又微分断面積を求めるときに問題となる、各スペクトルの「継ぎ」を容易にするため、incident electron のエネルギー ( $E_0$ ) を 1 MeV step で変えて、 $(r, p)$  のエネルギースペクトルを測定し、これから  $(r, p_0)$  の微分断面積を求めことにした。

実験方法は前回と同じであるので、特にここでは述べないが、今回使用した target の条件を表 1 に示す。

表 1 使用した target

| 核種               | thickness<br>( $\text{mg}/\text{cm}^2$ ) | effective<br>thickness( $\text{mg}/\text{cm}^2$ ) |  |
|------------------|--|---|--|
| $^{27}\text{Al}$ | 10.76                                    | 15.16   | foil   |
| $^{31}\text{P}$  | 6.13                                     | 8.67  | 2.91 $\text{mg}/\text{cm}^2$ thick の Ta foil に赤燐を沈澱させたもの |

## § 2 実験結果及び考察

i)  $^{27}\text{Al}(r, p)^{26}\text{Mg}$  反応

図 1 は  $^{27}\text{Al}$  の proton エネルギースペクトルで、target の厚さを変えた場合の様子を示す。図中(A)は今回のもので、(B)は前回の測定したものである。共に  $E_0 = 23\text{MeV}$  である。両者は単位エネルギー  $\Delta E(\text{MeV})$ 、target thickness  $T(\text{mg}/\text{cm}^2)$ 、SEM の current  $D(1000\mu\text{Coulomb})$

+) 川村暢明, 坪田博明

で規格化してあるが、統計誤差及びエネルギー分解能の範囲内で、構造、そのエネルギー位置、計数率の絶対値がよく一致している。

図2は、今回得られた proton エネルギースペクトルである。このスペクトルみると、evaporation による proton が多く見えるが、この process による proton の割合等を現在検討中である。

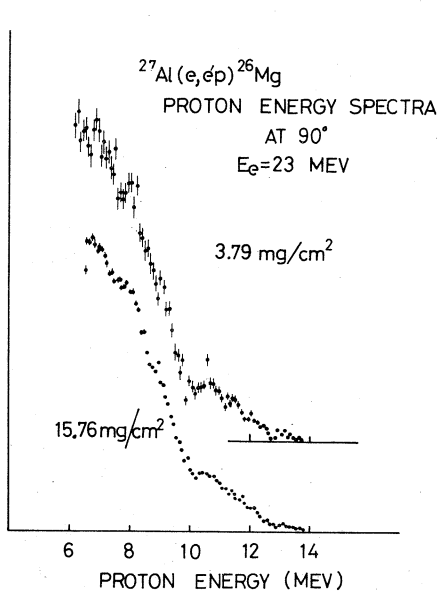


図1  $^{27}\text{Al}(\gamma, p)^{26}\text{Mg}$  の proton エネルギースペクトル。各 target の厚さは effective な厚さを示してある。

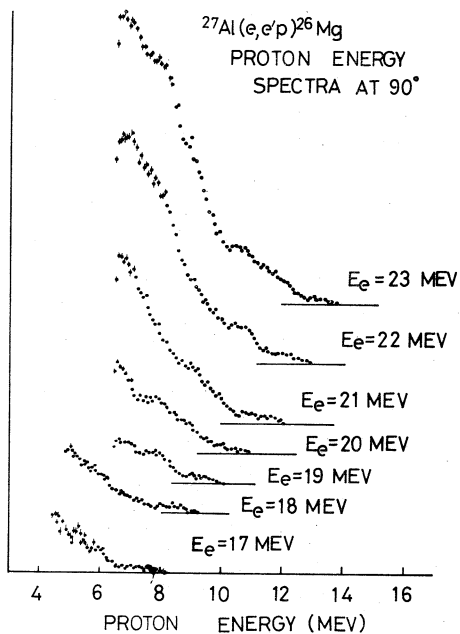


図2  $^{27}\text{Al}(\gamma, p)^{26}\text{Mg}$  の proton エネルギースペクトル。

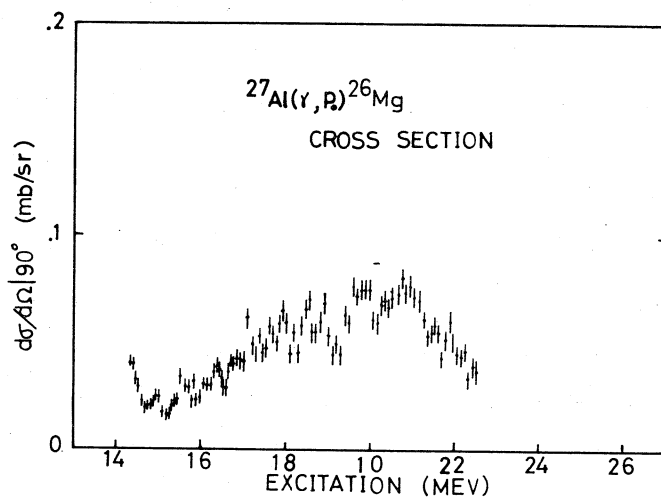


図3  $^{27}\text{Al}(\gamma, p_0)^{26}\text{Mg}$  の  $90^\circ$  での微分断面積

図2から得られた $^{27}\text{Al}(\gamma, p_0)^{26}\text{Mg}$ の $90^\circ$ での微分断面積を図3に示す。又統計精度は幾分良くないが、 $^{27}\text{Al}(\gamma, p_1)^{26}\text{Mg}$ の $90^\circ$ での微分断面積を図4に示す。

図3をみると $^{27}\text{Al}(\gamma, p_0)$ の微分断面積はだまかに3つの構造から成っている。これは $^{27}\text{Al}$ の $r$ -吸収断面積<sup>1)</sup>及び $(r, n)$ の断面積<sup>2)</sup>と、エネルギー位置、相対的強度が、エネルギー分解能の範囲で非常によく一致している。このことは、 $(\gamma, p_0)$ 、 $(\gamma, n)$ 反応は共に $r$ -吸収の仕方が似ていることを示している。

ところで $^{28}\text{Si}$ は $1d_{5/2}$  shell に proton の詰っている核で $^{27}\text{Al}$ の隣の核であるが、この核の $(\gamma, p_0)$ の $90^\circ$ での微分断面積は逆反応の方法で精度よく測定されている<sup>3)</sup>。それによると、excited エネルギー( $E_\gamma$ )が $16\sim 23\text{MeV}$ 領域では平均して $\sim 0.7\text{mb/sr}$ である。これは我々の求めた $^{27}\text{Al}$ の約10倍であって、 $^{27}\text{Al}(\gamma, p_0)$ は極めて少い。我々は $\int \frac{d\sigma}{dE} dE$ を求めたので $^{28}\text{Si}$ と比較して表2に示してある。但し $\int \frac{d\sigma(r, p)}{d\Omega} dE$ の data は角分布が isotropic であるとして、 $\int \sigma(r, p) dE$ を $4\pi$ で割ってあるので $R \equiv \int \frac{d\sigma(r, p)}{d\Omega} dE / \int \frac{d\sigma(r, p_0)}{d\Omega} dE$ は幾分大きめに estimate されている。

又図3、図4から $^{27}\text{Al}$ では $(\gamma, p_0)$ より $(\gamma, p_1)$ 断面積が幾分大きいことが分る。これは $^{26}\text{Mg}$ の ground state ( $0^+$ )、1st excited state ( $2^+$ )、 $^{27}\text{Al}$ の ground state ( $\frac{5}{2}^+$ )の spin parity によるものであると思われる。もし $E1-r$ の吸収が主であるとすれば、 $^{27}\text{Al}$ の excited state は $\frac{3}{2}^-$ 、 $\frac{5}{2}^-$ 、 $\frac{7}{2}^-$ であって、Kinematics から $0^+$ よりも $2^+$ への proton transition が強いことになる。

#### ii) $^{31}\text{P}(\gamma, p)^{30}\text{Si}$ 反応

今回の $^{31}\text{P}$ の proton エネルギースペクトルを図5に示す。この proton スペクトルをみると $E_p = 8\text{MeV}$ のガケは、 $E_e$ によって変らない。又この部分は $(\gamma, p_0)$ 断面積の谷に( $E_\gamma = 16\text{MeV}$ 付近)に対応している。(図6参照)。同じようなことは $E_p = 10.5\text{MeV}$ 、 $13.5\text{MeV}$ ( $E_\gamma = 18.5\text{MeV}$ 、 $22\text{MeV}$ に対応)でも起っている。このように $^{31}\text{P}(\gamma, p)$ の proton エネルギースペクトルは $(\gamma, p_0)$ 断面積に大きく左右されている。他の研究者達による $^{31}\text{P}(\gamma, p)$ のエネルギースペクトル<sup>4)</sup>、<sup>5)</sup>も、 $(\gamma, p_0)$ 断面積の構造で説明できることが分かる。又我々は evaporation

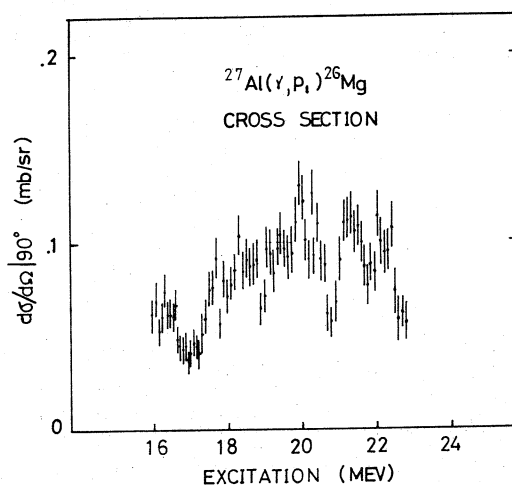


図4  $^{27}\text{Al}(\gamma, p_1)^{26}\text{Mg}$ の $90^\circ$ での微分断面積

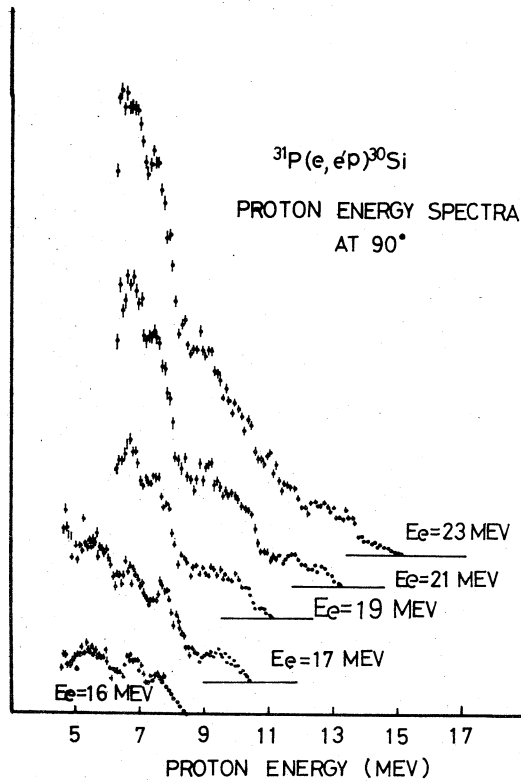


図5  $^{31}\text{P}(\gamma, p)^{30}\text{Si}$  の proton エネルギースペクトル

で放出される proton が以上のエネルギースペクトルにどの位寄与しているのか、その割合を解析中であるが、これが整理されれば、 $90^\circ$ での giant resonance の proton エネルギースペクトルの gross な形については、解明されると思われる。

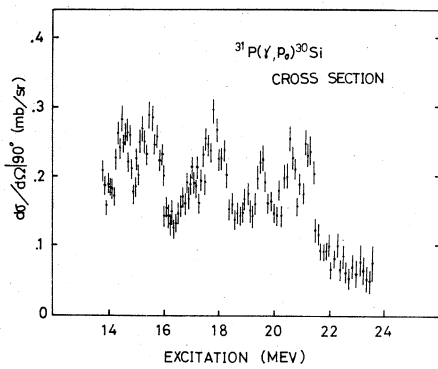


図6  $^{31}\text{P}(\gamma, p_0)^{30}\text{Si}$  の  $90^\circ$ での微分断面積

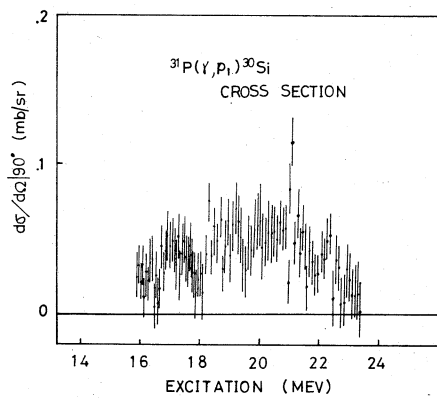


図7  $^{31}\text{P}(\gamma, p_1)^{30}\text{Si}$  の  $90^\circ$ での微分断面積

図 6, 図 7 は夫々図 5 から得られた  $90^\circ$  での  $^{31}\text{P}(r, p_0)$ ,  $^{31}\text{P}(r, p_1)$  の微分断面積である。図 6 は前回報告した  $(r, p_0)$  断面積と  $E_\gamma = 20\text{MeV}$  以上の部分が幾分異っている。これは前回の data は統計精度があまり良くなく、又  $E_e$  を  $2\text{MeV}$  step で変えたスペクトルから得られたもので、各スペクトルの継ぎの際の誤差等が大きかったためのものである。

図 6 をみると、 $^{31}\text{P}(r, p_0)$  の微分断面積は数多くの構造からなっている。又  $E_\gamma = 16\text{MeV}$  以下でも  $(r, p_0)$  の断面積が大きく、 $^{31}\text{P}(r, p_0)$  断面積は広い範囲にわたっていることが分る。

$^{32}\text{S}(r, p_0)^{31}\text{P}$  の微分断面積は  $^{31}\text{P}(p, r_0)^{32}\text{S}$  の反応によってエネルギー分解能の良い data<sup>6)</sup> が得られている。detailed balance theorem に従って求めた  $^{32}\text{S}(r, p_0)^{31}\text{P}$  の  $90^\circ$  での微分断面積と  $^{31}\text{P}(r, p_0)$  の data を比較すると、その gross な構造は非常によく一致している。このことは  $r$ -吸収の仕方が、 $^{31}\text{P}$  と  $^{32}\text{S}$  では共に同じであることを予想させる。(但し対応するエネルギー範囲での絶対値は平均して、 $^{31}\text{P}(r, p_0)$  は  $^{32}\text{S}(r, p_0)$  の  $1/3$  程度である。)

又  $^{31}\text{P}$  と  $^{32}\text{S}$  の  $(r, p)$  断面積に対する  $(r, p_0)$  断面積の割合の大体の傾向を知るため、R を表 2 に示した。この表で  $\int \frac{d\sigma}{d\Omega}(r, p) dE$  は角分布が isotropic であるとして  $\int \sigma(r, p) dE$  を  $4\pi$  で割ってある。従って R は幾分大き目に estimate されてある。この表から  $^{31}\text{P}$  は  $^{32}\text{S}$  より R がかなり少いことが分る。

表 2

|                  | $\int \frac{d\sigma}{d\Omega}(r, p) dE (\text{mb-MeV})$ | $\int \frac{d\sigma}{d\Omega}(r, p_0) dE (\text{mb-MeV})$ | $R = \frac{\int \frac{d\sigma}{d\Omega}(r, p_0) dE}{\int \frac{d\sigma}{d\Omega}(r, p) dE}$ |
|------------------|---|---|---|
| $^{27}\text{Al}$ | $7.96_0^{23}$ a)  | $0.39 \pm 0.05_{1.40}^{2.5}$                              | 0.05  |
| $^{28}\text{Si}$ | $11.15_0^{23}$ a)                                       | $4.68_0^{23.2}$ c)  | 0.42  |
| $^{31}\text{P}$  | $27.87_0^{32}$ b)                                       | $1.49 \pm 0.11_{15.6}^{2.1}$                              | 0.05  |
| $^{32}\text{S}$  | $20.71_0^{23}$ a)                                       | $\sim 4.7_{16}^{19}$ d)                                   | 0.23  |

- a) K. Shoda, K. Abe, T. Isizuka, N. Kawamura and M. Kimura J. Phys. soc. Japan **17** (1962) 735  
 b) B. S. Ishkanov, I. M. Kapitonov, V. G. Shevchenko and B. A. Yur'ev Phys. Lett. **9** (1964) 162  
 c) P. P. Singh, R. E. Segel, L. Meyer-schutzmeister, S. S. Hanna and R. G. Allas. Nucl. Phys. **65** (1965) 577  
 d) G. Dearnaley, D. S. Gemmel, B. W. Hooton and G. A. Jones Nucl. Phys. **64** (1965) 177

以上のことから,  $^{31}\text{P}(r, p_0)$ ,  $^{32}\text{S}(r, p_0)$ の微分断面積に主として寄与する proton は,  $^{31}\text{P}$ ,  $^{32}\text{S}$  共に同じ orbit にあるもので, その放出の割合は, residual 核の ground state の様子に依存するのではないと思われる。

$^{32}\text{S}$ の ground state は single な configuration と考えられ<sup>7)</sup>,  $^{31}\text{P}$ の ground state も主として  $2\text{S}_{1/2}$  proton による configuration である<sup>8)</sup>とされている。一方  $^{30}\text{Si}$ の ground state は configuration mixing が  $^{31}\text{P}$  より大きいと思われる<sup>9)</sup>。

そこで,  $^{32}\text{S}$  及び  $^{31}\text{P}$  の valence proton は共に  $2\text{S}_{1/2}$  にあり, これが主として  $(r, p_0)$  に寄与すると考えれば, giant resonance では  $E_1-r$  の吸収が主であれば, 放出される proton は共に p-wave でなければならない。この時  $(r, p_0)$  の proton は direct 的な process を通るとすれば,  $(r, p_0)$  の断面積は娘核の ground state の configuration の仕方に大きく左右されることになる。このように考えると,  $^{32}\text{S}$ ,  $^{31}\text{P}$ ,  $^{30}\text{Si}$  の上にのべた ground state の様子から  $^{32}\text{S}(r, p_0)$  が  $^{31}\text{P}(r, p_0)$  より大きくなり, 我々の得た data を定性的にはあるがよく説明できる。

更に詳しくは目下検討中であるが,  $^{27}\text{Al}$  についても同じような議論が可能と思われる。しかし, この場合はかなり煩雑になると考えられる。

図6, 図7を比較すると,  $^{31}\text{P}$  の場合は  $(r, p_1)$  が  $(r, p_0)$  の断面積よりも幾分少い。これは  $^{27}\text{Al}$  の場合と同じように,  $^{31}\text{P}$  の ground state ( $\frac{1}{2}^+$ ),  $^{30}\text{Si}$  の ground 及び 1st excited state が夫々  $0^+$ ,  $2^+$  であることから理解される。

### § 3 おわりに

我々は, s-d shell の odd-mass 核である  $^{27}\text{Al}$ ,  $^{31}\text{P}$  は, 周辺の even-even 核に比べて,  $(r, p_0)$  が極めて少い傾向にあることを見つけた。又  $(r, p_0)$  反応に主として寄与するのは valence nucleon であるとし, 簡単な direct 的な process を考えることでも, 定性的には我々の data を説明できることを示した。しかしこのことは更に実験的に確かめる必要がある。その1つとして将来角分布の測定を行い, 放出 proton の orbital angular momentum を求めることを計画している。

終りに核理研のマシングループの方々, 及び宮瀬, 鈴木両氏には, この実験の遂行にあたっていろいろご援助下さり, 謝辞を申し上げます。

---

9)  $^{30}\text{Si}$ の ground state については single particle 的な configuration であるという data は見当たらない。

## 参 考 文 献

- 1) J. Ahrens, H. Borchert, H. B. Eppler, H. Gimm, H. Gundrum, P. Riehn, G. Sitarum, A. Zieger, M. Kroning and B. Ziegler: 1972. 10. 国際シンポジウム於核理研
- 2) L. N. Bolen and W. D. Whitehead Phys. Rev. Lett. **9** (1962) 458
- 3) P. P. Singh, R. E. Segel, L. Meyer-Schutzmeister, S. S. Hanna and R. G. Allas Nuclear Physics **65** (1965) 577
- 4) K. Abe, N. Kawamura and N. Mutsuro J. Phys. Soc. Japan **25** (1968) 1725
- 5) K. Shoda, K. Abe, T. Ishizuka, N. Kawamura and M. Oyamada J. Phys. Soc. Japan **25** (1968) 664
- 6) G. Dearnaley, D. S. Gemmell, B. W. Hooton and G. A. Jones Phys. Lett. **1** (1962) 269

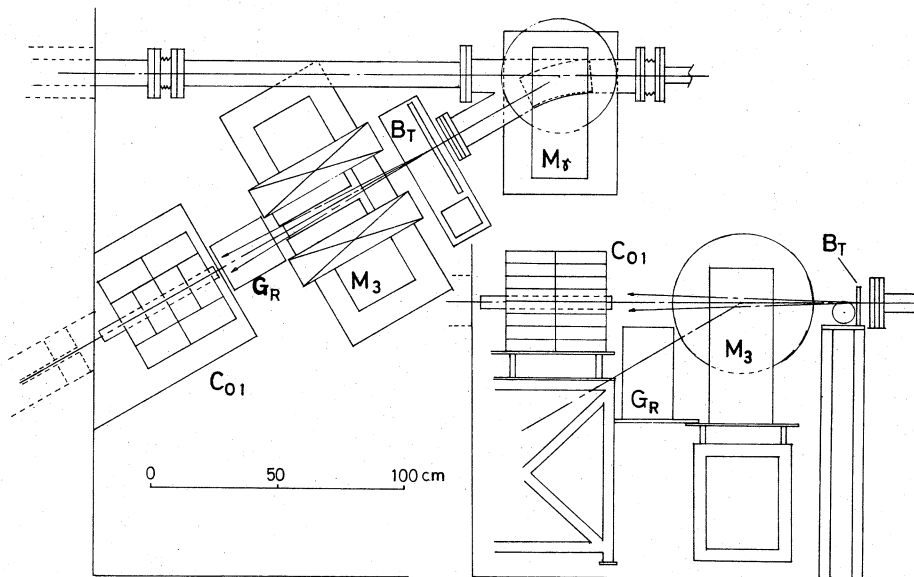
## I-5 ガンマチャンネル整備

核理研，教養部物理\*，理学部物理\*\*，  
 菅原真澄・阿部健\*・田中英二\*\*，  
 川村暢明\*\*・坪田博明\*・金沢正明\*\*，  
 庄田勝房

46年度予算で設置が認められたガンマチャンネルの整備が終了し，その性能が明らかになったのでテスト結果を報告する。

## 1) 機器の配置

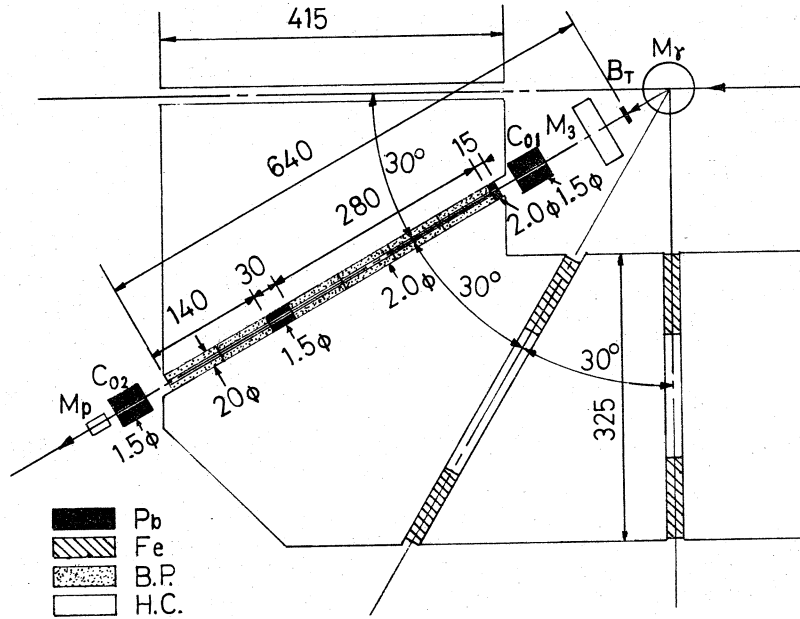
第1図に機器の配置を示した。第1電磁石室内に偏向電磁石( $M_1$ )を置き電子線を $30^\circ$ 偏向する。 $Ti(100\mu m)$ の窓から電子線を空気中に取り出した後，制動放射標的( $B_T$ )に当てガンマ線を作る。標的を通過した電子線はダンプ電磁石( $M_3$ )によって下方に $30^\circ$ 曲げられグラフアイトブロック( $G_R$ )によって止められる。ガンマ線は直進し，コリメーター( $C_{01}$ )を通り既設貫通孔を通過して第1実験室に到達する。貫通孔内には鉛コリメーター，硼砂入りパラフィンが遮蔽材として充



第1図 ガンマチャンネル電磁石系の配置



鎮してあり、第1実験室内のバックグラウンドを極力抑えるように考慮している。第1実験室入口には更に鉛コリメーター ( $C_{02}$ ) を設置しビームサイズを決定するとともに、その直後に永久磁石 ( $M_p$ ) を置いてコリメーター内で二次的に発生した低エネルギーの電子線を取り除いている。コリメーター、遮蔽材の配置、ガンマ線通過孔の直径等は第2図に示した。加速器運転のための電流モニターとしては、上述したグラファイトブロックを絶縁して使用する。又パルス波形観測用としてはビーム取出し窓外側にコアモニターを設置した。



第2図 コリメーター、シールドの配置

## 2) 制動放射用標的

制動放射標的の取付用枠は真鍮製でその外縁に冷却用パイプを取付けてあり、冷却水はビームダクト冷却系から分流している。この枠には同時に三ヶの標的 (直径 60mm) を取りつけることが可能であるが現在は厚さ 0.1mm の白金板、及び電子線位置観測用のベリリヤ板がついており残りは予備に空けてある。ベリリヤ板の発光を T.V. 装置によって観測してビーム位置を決定する。三ヶの標的は主制御室からの遠隔操作によって交換することができる。白金標的はビーム電流 40  $\mu$ A 程度までは試験済みで白熱するが熔けることはない。

### 3) 電磁石系の性質

運転を容易にするために  $M_7$  と  $M_8$  は直列に接続して一台の電源から電流を流し、 $M_7$  がビームを  $30^\circ$  偏向したときに  $M_8$  も  $30^\circ$  偏向になるように設計してある。

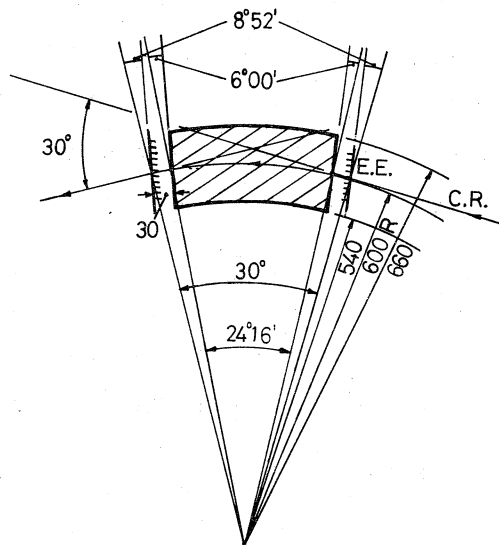
第3図に  $M_7$  のポールピースの形状を示した。一樣磁場ではあるが、入出のポール端を回転させて二重収束になるようにしてある。

入射電子エネルギーの広がりによる分散については特に考慮はしていない。実効磁場端 (E. E.) は磁場分布の測定結果からポール端より 3.0 cm 外側の位置にあることが分った。この位置から水平方向、垂直方向の焦点までの距離は 261 cm である。実効磁場端間の電子の軌道を示すマトリクスは水平面内の偏位を  $X$ 、垂直面内の偏位を  $Y$  とすれば長さの単位を cm として

$$(M_x) = \begin{pmatrix} 0.944 & 30.0 & 8.04 \\ -3.60 \times 10^{-3} & 0.944 & 0.521 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

$$(M_y) = \begin{pmatrix} 0.939 & 31.4 & 0 \\ -3.63 \times 10^{-3} & 0.939 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

で与えられる。これから出口端主面は実効磁場端から 15.4 cm 内側にあり、分散の集束点も略同じ位置にあることが分る。又  $Y$  方向の出口主面は 16.6 cm 内側にあることが分る。



第3図 ガンマチャンネル用偏向電磁石 ( $M_7$ ) のポールピース。斜線部分

第4図には電子エネルギーと対応する  $M_{\gamma}$  の励磁電流を示した。

#### 4) ガンマ線強度の測定

電磁石、制動放射標的、コリメーター等の配列を検査し更に第1実験室で得られるガンマ線強度を測定するために、電子ビーム位置と電流、ガンマ線強度の関係を測定した。

ガンマ線強度を測定するためのモニターとしてはP2-9(N. B. S. 製)チェンバーを第1実験室コンクリート壁面から約250 cm(制動放射ターゲットから約900 cm)離して置いた。このチェンバーからの電離電流は第1測定室の電流積分器(Ortec製)

を使って測定した。結果を第5(a)図に示す。測定の条件は電子エネルギー60 MeV、エネルギー巾0.5%である。横軸は制動放射標的上での水平方向のビーム位置を示す。(十が第1実験室に向けて左側-が右側)。ビーム位置の移動は  $M_{\gamma}$  の励磁電流を変えて行った。垂直方向のビーム位置はコリメーター軸に対して3mm下方にあった。(現在は  $M_{\gamma}$  の前にステアリングコイルを設置しているので垂直方向も調整可能である)。加速器の事故のため(ビーム取出し窓附近からの真空リーク)約半分しか測定できなかったがガンマ線強度最大の位置は中心軸から3mm程度以内にあり実用上は支障ないものと思われる。(リニャックの運転条件でこの程度の変動は予想されるので細かく調製しても意味がない)。ガンマ線強度はP2-9チェンバーの較正表(NBS Monograph 48)から電離電流  $I_{\gamma}$  ( $\mu\text{A}$  単位) のときは

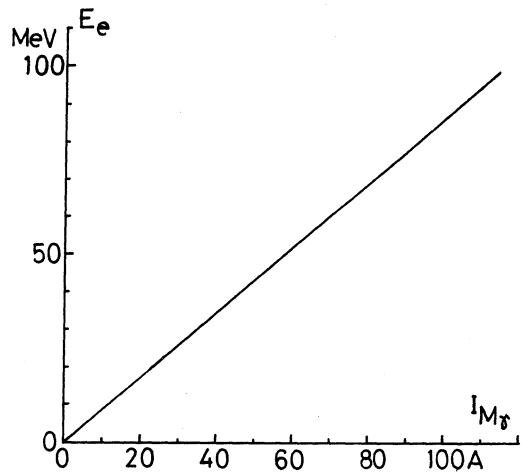
$$\phi_{\gamma} = 3.9 \times 10^4 I_{\gamma} \quad r \cdot \text{cm}^2 / \text{min}$$

で与えられる。(較正表で指定している  $4.5 \text{ gr/cm}^2$  のAl吸収体は使用しなかったがその差は小さい)。測定された  $\gamma$  線強度は理論的に次式を使って求めた値とよく一致している。

$$\phi_{\gamma} = B_0 \left( -\log \frac{(\varepsilon_e \theta)^2}{t + (\varepsilon_e \theta)^2} \right)$$

$$B_0 = \frac{\varepsilon_e^2}{\pi} I_e E_e, \quad \varepsilon_e = E_e / E_s$$

$$\theta = m_e c^2 / E_e,$$



第4図  $M_{\gamma}$  の励起電流とビームエネルギーの関係

$E_e$  は入射電子のエネルギー,  $t$  は放射長単位で測定した制動放射標的の厚さ,  $I_e$  は入射ビーム電流,  $E_s$  は特性エネルギー ( $\cong 21\text{MeV}$ ) である。(Ti のビーム取出し窓からのガンマ線発生も考慮しなければならないがここでは計算に入れなかった。10% 程度の寄与があるものと思われる。)

### 5) ガンマ線ビームの形状, バックグラウンド

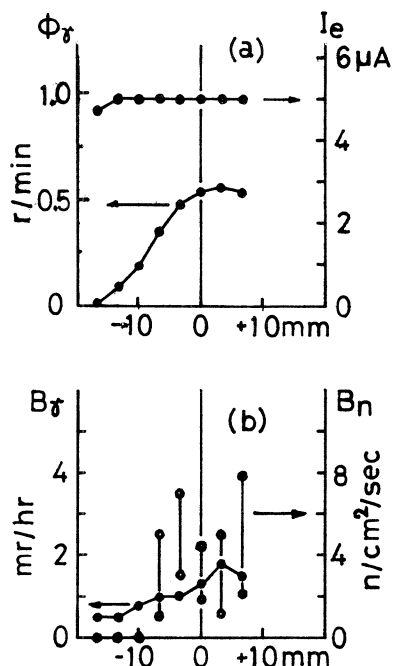
ガンマ線ビームの強度と同時に第1実験室内の中性子及びガンマ線のバックグラウンドを測定した。結果を第5(b)図に示す。測定点はビームから斜下方(実験室入口側)約1.5m, コンクリート壁面から1.5mの位置である。予想されたようにバックグラウンドは非常に少ない。第1実験室内のコリメーター $C_{O_2}$  から50cm離れてポラロイドカメラで撮影したガンマ線ビームの形状を第6図に示した。ビーム径は約15mmで真円でありガンマ線強度も円内で一様である。

### 6) おわりに

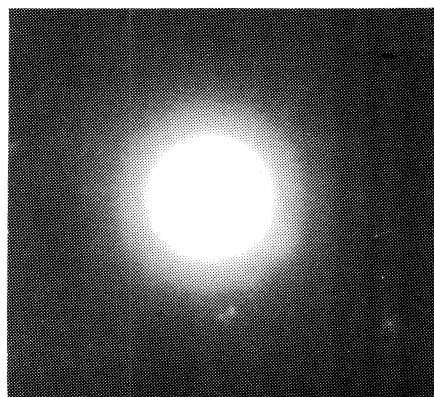
以上述べてきたように, ガンマチャンネルは予定通りの性能が得られることが分った。しかし機器の製作, 設置の遅れのために制動放射標的の耐久試験, thin wall chamber の較正, 振動容量型電流計の検査等, いくつかの附属装置のテストが今後の仕事として残った。

おわりにガンマチャンネルの実現にあたって御協力を得ました多くの方々, 又実際の設置テストにご尽力下さいましたマシングループの皆様へ深く感謝の意を表します。

第6図 第一実験室で測定したガンマ線ビームのポラロイド写真, ビームの径は約15mm



第5図 制動放射標的上のビーム位置と第一実験室でのガンマ線強度, バックグラウンドの関係,  $I_e$  はグラフアイトブロックで測定した電子ビームの電流値。



## II. 物 生 物 理 部 門

## Ⅱ-1 CsCl型化合物FeTi及びLaves相化合物Fe<sub>2</sub>Tiの結晶構造

金研 教養部物理\*

池田弘毅・山田幸男\*・中道琢郎

### 序言

Fe-Ti二元系には図1に示す如く3つの規則格子合金もしくは金属間化合物があるが、この中で1対1組成のCsCl型の規則度と2対1組成のLaves相化合物の低温変態の問題をとりあげて中性子回折による研究を行った。

以下、A、Bの2部に分けて研究内容を報告する。

### A Stoichiometry と nonstoichiometry 組成のCsCl型FeTiの規則度の決定

#### A-1 研究の目的

CsCl型FeTiはStoichiometry Compositionで顕著な超常

磁性的挙動を示し、それがこの物質の規則度の乱れによるものとする考えが出されている<sup>1)</sup>

一方、これを単相範囲(49.5~52.5 at. % Ti)内でTi rich側に組成をずらすと帯磁率の温度変化は急激に減少し、低温の比熱の超常磁性部分による定数項もまたそれに従って急激に消失する傾向を示す<sup>2)</sup> 更なる電気的性質ではstoichiometryで存在しなかった抵抗の温度変化における抵抗極小の現象が出現して<sup>3)</sup>この規則格子合金でのstoichiometryからのずれによる特異現象として関心がもたれている。

我々はこのような特異現象がこの規則格子合金の結晶構造、特にその規則度と何らかの関連性

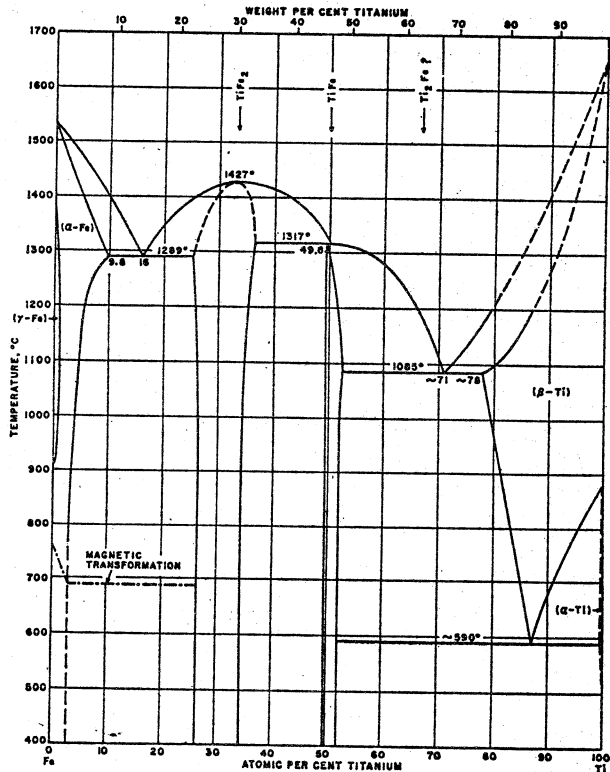


図 - 1

がありはしまいかと考えて、stoichiometryに近い  $\text{Ti}_{0.502}\text{Fe}_{0.498}$  と抵抗極小の著しい  $\text{Ti}_{0.515}\text{Fe}_{0.485}$  の2つの試料で中性子回折を試みた。

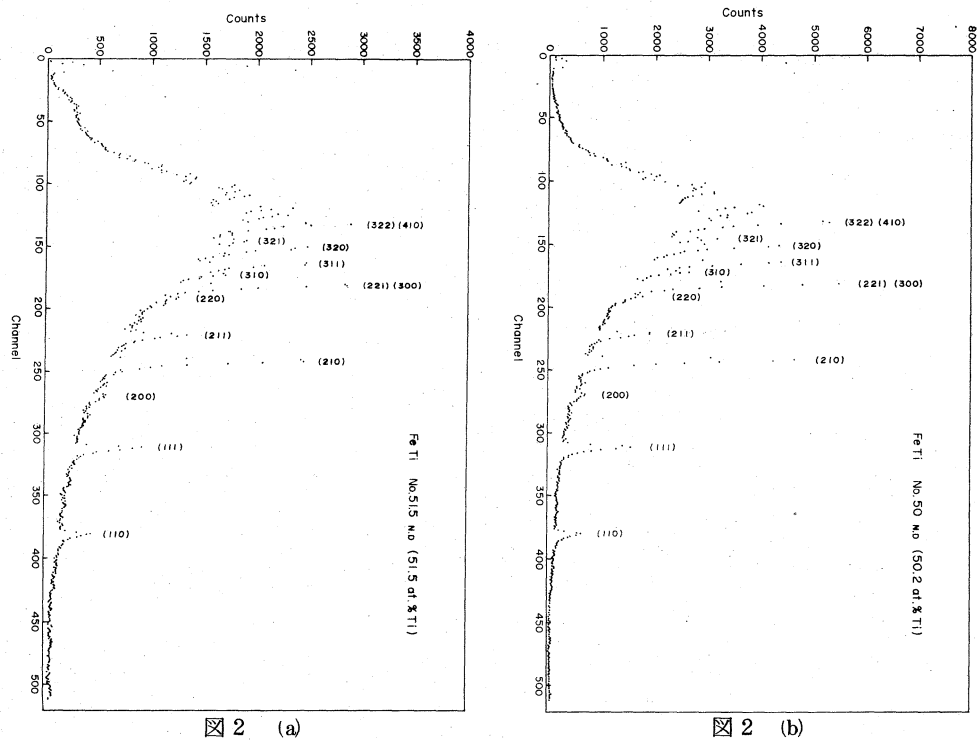
#### A-2 試料および実験条件

試料の原料は99.9%電解鉄と99.5%、スポンジチタンを用いた。所要の組成比50および51.5at.% Ti-Feの全量約100gのものを700mmHgのアルゴン雰囲気中で3度アーク熔解し、更に組成の均一化を保証するため、瑪瑙乳鉢でこれをすりつぶして後再度3回アーク熔解することを2度繰り返した。得られた試料の組成はA-2で示したように若干仕込み量よりもTi側にずれた。最終的にアーク熔解された試料をもう一度粉末にすりつぶした後で $10^{-7}$ mmHgの真空中で $1000^\circ\text{C} \times 10$  hrsの加工歪除去の熱処理をして中性子回折用の試料とした。

これらの試料を $50 \phi \times 10 \text{ mm}^2$ のAl製円筒容器につめてみ常温において円筒軸に平行な方向からビームを入射させ、回折パターンはTOF法により散乱角 $2\theta = 158^\circ$ に固定されたソーラー・スリットを通してBF<sub>3</sub>カウターで測定した。計数されたデータは飛行時間に応じて1チャンネルあたり $16 \mu\text{sec}$ である512チャンネルの中に蓄積された。高速中性子に対するモデレータとしてはH<sub>2</sub>Oを用いた。

#### A-3 実験結果と考察

実験結果は50.2および51.5 at.% Ti-Feについてそれぞれ図2(a)および(b)に示す通りで



ある。指数づけされた回折線からも明らかなように、bccの基本回折線 ( $h+k+l = \text{even}$ ) の他にCsCl型の規則格子線：(111), (210) etc. がはっきりと現われている。

我々はこれらの結果をもとに、2つの試料の規則度  $S$  を計算することを試みた。CsCl型の場合、 $\text{Ti}_{1+x}\text{Fe}_{1-x}$  として  $S$  は次のように定義される<sup>4)</sup>

$$S = \frac{\rho(A/\alpha) - C_A}{r_B} = 2\rho(A/\alpha) - (1+x) \quad (1)$$

但し、 $\alpha$  は Ti の占めるべき位置、 $A$  は Ti 原子、 $C_A$  は Ti の原子分率： $C_A = (1+x)/2$ 、 $r_B$  は Fe 席の割合： $r_B = \frac{1}{2}$ 、 $\rho(A/\alpha)$  は Ti 席を Ti 原子が占有する確率である。

この場合、回折強度は次のような形で与えられる。<sup>5)</sup>

$$E(T)_{\text{h}} = I_g \cdot i(\lambda_{\text{h}}) \cdot \lambda_{\text{h}}^4 \cdot \frac{\rho'(T)}{\rho(T)} \cdot \frac{j_{\text{h}} |F_{\text{h}}|^2}{V(T)^2 \sin^3 \theta_0} \times e^{-2W_{\text{h}}(T)} \cdot A_s(\lambda_{\text{h}}) \quad (2)$$

但し、 $\text{h}$ ： $h, k, l$  の代表、 $I_g$ ：測定器に特有の幾何学因子、 $i(\lambda_{\text{h}})$ ：入射中性子の波長  $\lambda_{\text{h}}$  における強度 ( $V$  の場合から推算)、 $\rho(T)$ 、 $\rho'(T)$ ： $T^\circ\text{K}$  での試料の塊状および粉末の密度、 $j_{\text{h}}$ ：指数  $\{hkl\}$  面の多重度、 $V$ ：単位胞の体積、 $\theta_0$ ：Bragg 角、 $F_{\text{h}}$ ： $\{hkl\}$  反射の構造因子、 $e^{-2W_{\text{h}}}$ ： $\{hkl\}$  反射の温度因子、 $A_s(\lambda_{\text{h}})$ ：波長  $\lambda_{\text{h}}$  での減衰係数である。そして、ここで、CsCl型では、

1) 基本回折線 ( $h+k+l = \text{even}$ )

$$\overline{F_{\text{h}}} = c_{\text{Ti}} b_{\text{Ti}} + c_{\text{Fe}} b_{\text{Fe}} \quad (3)$$

2) 規則格子線 ( $h+k+l = \text{odd}$ )

$$|F_{\text{h}}|^2 = \left(\frac{1}{4}\right) (b_{\text{Ti}} - b_{\text{Fe}})^2 S^2 \quad (4)$$

で与えられる。

そこで、我々は  $i(\lambda_{\text{h}})$ 、 $\lambda_{\text{h}}^4$  の項について補正を行い—— $e^{-2W_{\text{h}}(T)} \cdot A_s(\lambda_{\text{h}})$  の因子は確実な数値をつかみ得ないまま  $\lambda_{\text{h}}$  依存性を無視した——図 3(a)と(b)に示すように、 $S = 1$  とおいた  $j_{\text{h}} |F_{\text{h}}|^2$  を  $x$  とし、 $y$  を観測された回折強度にとることで、 $S$  を求めることにした。結果は明らかに、2つの試料での  $S$  の差異を歴然とした形で示している。計算された数値は

$$50.2 \text{ at. \% Ti-Fe} : S = 0.97 \quad \rho = 0.987$$

$$51.5 \text{ at. \% Ti-Fe} : S = 0.85 \quad \rho = 0.940$$

となる。



これらの結果は当初予想した超常磁性の崩壊に対応する nonstoichiometry での  $\rho$  値の上昇とは逆の結果であり、超常磁性の原因が必ずしも規則度の低下による Fe-クラスターの存在といった簡単な機構によるものではないことを示唆するように思われる。しかし  $e^{-2W_h}$  や  $A_s(\lambda_h)$  に対する補正が完全ではないのでその点を改善してより正しい解析値を得る心算である。

## B Fe-Ti系Laves相化合物の相変態の中性子回折による研究

### B-1 研究の目的

TiFe<sub>2</sub> は MgZn<sub>2</sub> 型の Laves 相といわれているが、我々の最近の電気抵抗の測定による

と、その温度変化に著しい熱履歴があり、特にその常温以下での非可逆的な振舞からみて無拡散変態で何か低温相が発生していると考えざるを得ない。<sup>6)</sup> この低温相に関しては Laves 相の他の Modification MgCu<sub>2</sub> 型や MgNi<sub>2</sub> 型が考えられるが、これらはいずれも単に積層形式の異なる構造であるためにその回折線は MgZn<sub>2</sub> 型のものと同様であり、お互いを区別する回折線は比較的弱く、低温相に変化した量が少ないためか X 線回折では低温相によると思われる回折線上的変化が認められなかった。

本研究では Ti と Fe の核散乱因子が符号を異にすることに注目して X 線とは異なった結果の得られることを期待して実験を行った。

### B-2 試料および実験条件

試料の作成と実験条件は A の場合とほぼ同様である。但し、高温相と低温相に当る試料は前者が 1000 °C × 10 hrs の熱処理をうけたのに対して後者では更に He 温度中で数時間冷却処理したものを常温に戻して使用した。これは我々の抵抗測定の結果によると高温相の試料を一旦液体 He 温度に冷却すると常温の抵抗値が約 1.5 倍にも増加し、その抵抗の降下、回復は 600 °C 以上の高温で始めて起ることから、一旦変態した低温相の部分は常温に戻しても充分その相の状態を維持しつづけると考えられるからである。したがって中性子回折はこの 2 つの試料に

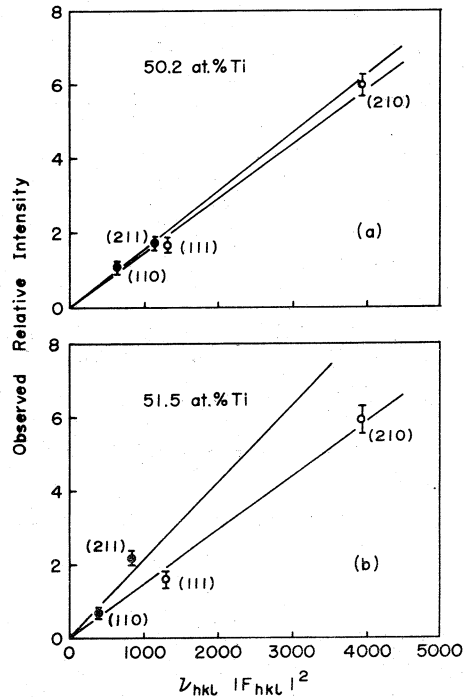


図 3

ついて常温で行われた。

### B-3 実験結果と考察

図4(a)と(b)にそれぞれ高温熱処理および低温処理されたものの中性子回折の結果を与えてある。この図から明らかであるが、両者の間には何らの著しい変化もみられず、その回折線は  $MgZn_2$  型のそれで十分に説明できる。各チャンネルのカウンタ数の相対比の比較からも誤差以上の違いは見出せなかった。

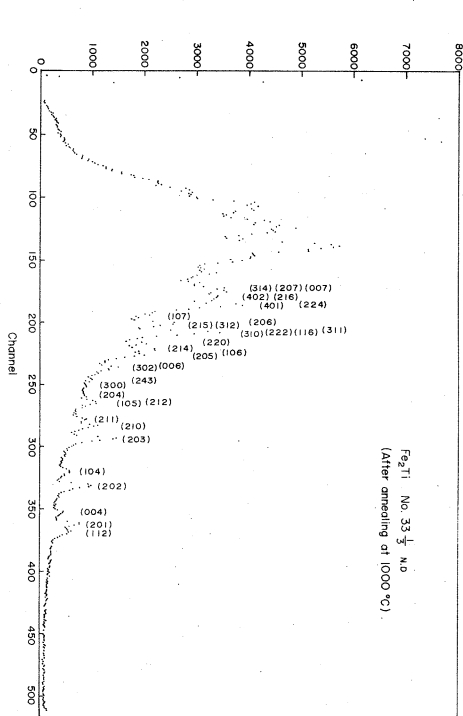


図4 (a)

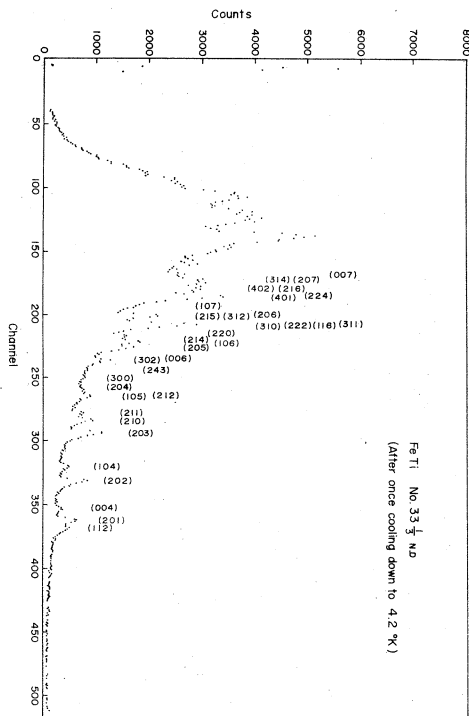


図4 (b)

この原因の1つは一般的にいて低温相の量がかなり少ないためとも考えられるが、寧ろ試料を粉末化したためにマルテンサイト変態が抑えられたためと考えられる。今後この化合物の反強磁性スピン構造の確定とも関連して単結晶による中性子回折を試みたい。

## 文 献

- 1) K. Schroder and C.H. Cheng : J. appl. phys. **31** ( 1960 ) 2154
- 2) K. Ikeda, T. Nakamichi, K. Noto, Y. Muto and M. Yamamoto : physica  
status solidi ( 6 ) **51** ( 1972 ), K 39
- 3) K. Ikeda, T. Nakamichi and M. Yamamoto : J. phys. Soc. Japan **32**  
( 1972 ) 280
- 4) 仁田勇監修 : X線結晶学(下) 丸善 p. 630
- 5) 渡辺他, 核理研究報告 Vol. 2 ( 1969 ) No. 2, 111
- 6) K. Ikeda, T. Nakamichi and M. Yamamoto : phys. stat. sol. ( a ) **12**  
( 1972 ) 595

## Ⅱ - 2 TiNi 化合物の結晶構造 (熱サイクルを受けたTiNi 化合物の室温での中性子回折)

選研 松本 実・守護嘉朗  
本間敏夫

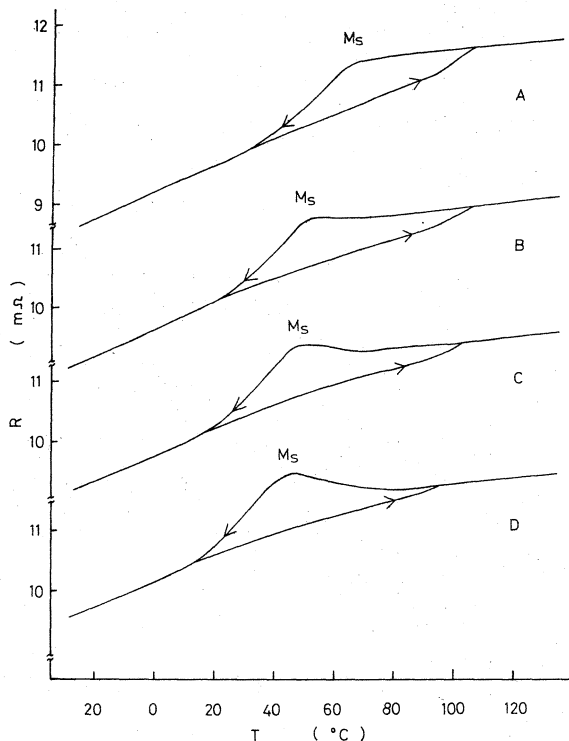
### 1 緒 言

TiNi 化合物は種々の特異な物理的、機械的性質をもち、それらが結晶構造やマルテンサイト変態と密接に関係していると考えられている。TiNi 化合物の母相、マルテンサイト相の結晶構造についてはすでに多くの研究者によっていくつかの報告があるが、いずれも不一致点が多い。<sup>1)</sup> 著者らはTiNi 化合物の結晶構造とその変態機構を明らかにする目的で、高温相(母相)と低温相(マルテンサイト相)についての中性子回折を多結晶試料について行い、高温相と低温相の中性子回折パターンはそれぞれCsCl型構造および単斜晶構造で説明できることを報告した。<sup>1-3)</sup>

今回はTiNi 化合物の高温相から低温相へ変態する時に通過する premartensite 状態における結晶構造を明らかにするため中性子回折実験を行った。

この premartensite 状態については主として電子回折の実験結果を基にして2つの考え方があ  
る。(1)Dautovichら<sup>4)</sup>はTiNi 化合物のマルテンサイト変態は母相の立方晶が菱面体の inter-  
mediate 構造をとる transition 相を経て三斜晶のマルテンサイト相になる二段変態であるとして  
いる。しかしこの transition 相についてはその後報告はない。(2)Hehemannら<sup>5)</sup>はこの premar-  
tensite 状態はマルテンサイト変態の前駆現象として lattice softening によるものとし、母相  
の B2 (CsCl 型) 構造は shuffle を起しながら連続的にマルテンサイト変態を起して orthor-  
hombic B19 構造がわずかに monoclinic に歪んだマルテンサイト構造になるとしている。

著者ら<sup>6)</sup>はTiNi 化合物のNi 濃度変化や第3元素(V, Cr, Mn, Fe, Co) 添加による  
変態温度の変化、およびこれらの熱サイクル効果を電気抵抗の温度変化を測定することにより調べ  
てきている。これによると第1図の  $Ti_{4.9}Ni_{5.02}$  の電気抵抗-温度曲線に示すように、はじめの  
状態(A)に熱サイクルを行うと、premartensite 状態の温度領域での電気抵抗値は熱サイクル数と共  
に大きくなり、 $M_s$  温度は低くなっていく(B~D)。このような現象は熱サイクルによって pre-  
martensite 状態が強く現れるためと考えられる。Waymanら<sup>7)</sup>はこの現象はこの温度領域での  
scattering 効果によるだけで、結晶構造の変化はないとしている。



第1図： $\text{Ti}_{49.8}\text{Ni}_{50.2}$  の電気抵抗に及ぼす熱サイクルの影響。(A)熱サイクルなし (B) 6回。(C) 24回。(D) 48回。

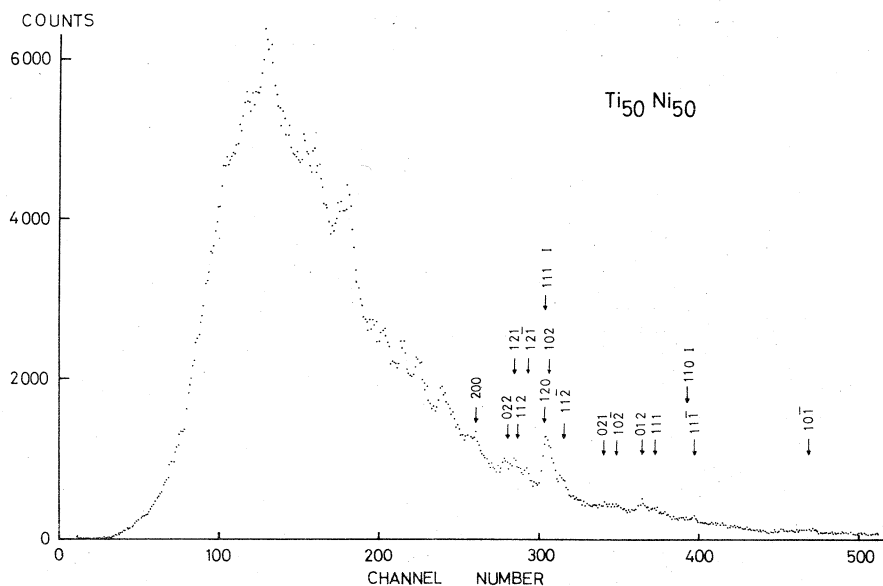
## 2 試料

試料は前回報告<sup>3)</sup>したTiNi化合物の低温相の中性子回折の実験に使用した5 cm直径、7 mm厚さの多結晶円板状試料 $\text{Ti}_{50}\text{Ni}_{50}$ を用いた。これを真空中で900 °C、2時間溶体化熱処理を行った後、液体窒素温度と100 °Cの間を20回くり返して熱サイクルを行い、100 °Cから室温へと温度を下げた。

第1図に示したようにこのような熱サイクルを行った試料の室温での状態は $M_s$ 温度以下の状態であり、低温相の他残留 premartensite 状態の結晶構造のものがかなり共存している状態である。

## 3 実験および実験結果

第2図に東北大学核理研中性子回折装置を用いたTOF Debye - Scherrer法による $\text{Ti}_{50}\text{Ni}_{50}$ の中性子回折パターンを示す。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 $2\theta = 158^\circ$ 、測定は室温で行った。回折パターンは低温相の回折パターン



第2図：熱サイクルを受けた  $Ti_{50}Ni_{50}$  多結晶試料の室温での中性子回折パターン。散乱角  $2\theta = 158^\circ$ 。110 I, 111 I はそれぞれ高温相 (110) および (111) による回折線。

と同様で、Otsukaら<sup>8)</sup>の報告している単斜晶構造で指数付けされる。回折パターンで 110 I, 111 I はそれぞれ高温相の (110) および (111) による回折線を示す。

premartensite 状態では、(1) Dautovichら<sup>4)</sup>によると菱面体構造、(2) Hehemannら<sup>5)</sup>によると母相からマルテンサイト相へ連続的に変る *fcc*, *orthorhombic*, *monoclinic* 等の各段階、(3) Waymanら<sup>7)</sup>によるとこの premartensite 状態は scattering 効果による状態であるから母相 (高温相) の結晶構造 (B2, CsCl型)、のいずれかが観測される。

この実験では低温相の単斜晶構造による回折線と残留高温相の回折線が観測されたが、この実験の目的とする高温相による回折線の変化の様子は回折強度が弱いことや (110), 低温相による回折線とのオーバーラップ (111) により premartensite 状態の結晶構造を明らかにするにはデータとして不十分である。

premartensite 状態の結晶構造を観測するには第1図の  $Ti_{49.8}Ni_{50.2}$  の電気抵抗-温度曲線から明らかなように、熱サイクルを行った後 Ms 温度以上の premartensite 状態の温度領域で中性子回折実験を行うか、51 at % Ni 濃度に近い TiNi 化合物では premartensite 状態が室温で存在するので、Ni 濃度を変えて室温で premartensite 状態を出現させ、中性子回折実験を室温で行うことが必要である。

## 文 献

- 1) 松本実, 守護嘉朗, 本間敏夫: 東北大学選鉱製錬研究所彙報, 28 ( 1972 ) 65
- 2) 本間敏夫, 松本実, 守護嘉朗: 核理研報告 4 № 2 ( 1972 ) 64
- 3) 松本実, 守護嘉朗, 本間敏夫: 核理研報告 5 № 1 ( 1972 ) 83
- 4) D. P. Dautovich and G. R. Purdy : Canadian Met. Quart. 4 ( 1965 ) 129
- 5) R. F. Hehemann and G. D. Sandrock : Scripta Met. 5 ( 1971 ) 801
- 6) 本間敏夫, 守護嘉朗, 松本実: 東北大学選鉱製錬研究所彙報 28 ( 1972 ) 74
- 7) C. M. Wayman, I. Cornelis and K. Shimizu : Scripta Met. 6 ( 1972 ) 115
- 8) K. Otsuka, T. Sawamura and K. Shimizu ; Phys. Stat. Sol. (a) 5 ( 1971 ) 457

## II-3 SiO<sub>2</sub>およびGeO<sub>2</sub>ガラスの構造因子の測定

核理研, 金研\*

渡辺 昇・富吉昇<sup>\*</sup>・新村信雄

Summary - A new diffractometer to measure the structure factor,  $S(Q)$ , for amorphous and liquid substances has been installed to the pulsed neutron source at Tohoku 300 MeV electron linac facility. The diffractometer was designed to measure  $S(Q)$  over the wide range of momentum transfer,  $Q$ , with high counting efficiency and reasonable accuracy. The installation has been used to measure the Structure factor for amorphous SiO<sub>2</sub> and GeO<sub>2</sub> glasses and preliminary results are presented.

### 〔 概 要 〕

電子リニアックよりの白色パルス中性子ビームを用いて液体および非晶体の構造因子  $S(Q)$  を測定するための回折装置が新たに設置された。この装置は広範囲の運動量変化  $Q$  に対して、特に非常に高い  $Q$  までかなり高い精度でかつ高い計数効率で測定できるよう設計されている。この回折装置を用いて SiO<sub>2</sub> および GeO<sub>2</sub> ガラスの  $S(Q)$  が  $30 \text{ \AA}^{-1}$  まで測定できた。

これら非晶体の  $S(Q)$  は  $30 \text{ \AA}^{-1}$  においてもまだダンプしないで振動している。

### 1 緒 言

パルス中性子源-TOF法は広範囲の  $Q-\omega$  空間を能率よくスキャンできるので、この全空間でのデータが重要となる液体、非晶体の研究には非常に適している。これら液体、非晶体の構造因子  $S(Q)$  はTOF法を用いることにより、通常の原子炉-回折装置の場合に比べ非常に効率よく、かつ高い精度での測定が可能である。本研究は非晶体の  $S(Q)$  がパルス中性子-TOF法でどの

---

Noboru Watanabe and Nobuo Niimura : Laboratory of Nuclear Science,  
Tohoku University.

Shoichi Tomiyoshi : Research Institute for Iron, Steel and Other Metals,  
Tohoku University.



ように有利に精度よく求められるかを実験的に検討し、今後ますます重要と考えられるカルコゲン系ガラス等の研究の第一歩としようとするものである。カルコゲンガラスとしては  $As_2S_x$  系,  $As_2Se_x$  系,  $Ge_2S_x$  系等が研究されているが  $Q$  の大きい領域での正確なデータが得られていない。<sup>3)</sup> 本実験ではまず本方法の有効性を確かめるため、試料入手が容易で比較的対比できるデータのある  $SiO_2$  ガラスと同じくネットワークガラスである  $GeO_2$  について  $S(Q)$  を測定し検討する。 $GeO_2$  は非弾性散乱実験で音響モードのほか低エネルギーモードが見つかったと云う報告もあり,<sup>3)</sup> 正確な  $S(Q)$  の測定が望まれる。

## 2 回折装置

中性子回折は核理研の H-4 中性子ビーム孔に新たに設置された液体用回折装置で行なわれた。この装置は運動量変化  $Q$  の広い領域に亘って、特に  $Q$  の非常に高い領域でも構造因子  $S(Q)$  を能率よく、かつかなり良い精度で測定できるように設計されている。 $S(Q)$  は通常中性子回折装置で測定する場合、装置が  $S(Q, \omega)$  をエネルギー変化  $\omega$  に関して自動的に積分した量を求めているわけであるが、正確な  $S(Q)$  を求めるためには  $Q$  一定で、かつ  $\omega$  に関し一様な重みで積分のなされることが重要である。TOF法では入射中性子飛行路長  $L_1$  と散乱中性子のそれ  $L_2$  を等しくすることにより、原子炉と通常の回折装置を用いては実現できない  $Q$  一定の積分がかなり広範囲の  $\omega$  にわたって行なわれると云う利点がある。<sup>1)</sup> ただしこの場合、 $L_1$  をある程度以下に小さくすることは遮蔽、分解能等の点から困難で、したがって  $L_2$  もかなり大きな値となってしまう、計数効率は非常に小さくなる。線源の強さが与えられた時、 $Q-\omega$  平面上での積分路も考慮に入れた分解能と計数効率との間での適当な妥協が重要となる。

本装置では電子リニアックで得られるパルス中性子の強度が減速材表面でピーク時に  $10^{12} n/cm^2 \cdot sec$  程度であることを考慮して、それでも十分な計数効率が得られるよう小さな  $L_2$  を採用し、その代り与えられた  $Q$  での  $S(Q)$  を得るのに、なるべく小さな散散乱を用いる(なるべく短波長の中性子を用いる)ことにより、 $|\omega| \leq 10 \text{ meV}$  の範囲では  $Q$  一定の積分が可能のようにしてある。

このように高いエネルギーの中性子が重要となって来るので、中性子検出器としては熱外中性子領域でも十分な計数効率が得られるよう  $1'' \phi$ , 10 気圧の  $He^3$  比例計数管 2 本がカスケードに用いられる。これがそれぞれの散乱角に対し入射ビームをはさんで左右対称に計 2 個づつ置かれるようになっている。散乱角  $2\theta_s$  は  $150^\circ$ ,  $60^\circ$ ,  $30^\circ$ ,  $15^\circ$  必要に応じさらに小角まで選ぶことが出来る。文献 4 の Table 1 に本装置の主要パラメータが示されている。

### 3 試料

SiO<sub>2</sub> 非晶体試料としては市販の石英ガラス棒(10 mm φ)が用いられた。GeO<sub>2</sub> ガラスは市販のGeO<sub>2</sub> 結晶粉末(純度 99.99%)を白金ルツボ中で1200℃で溶解したのち空气中で冷却することにより得た。これを粉末にし、試料容器からの散乱をなるべくさけるため、0.06 mm厚のアルミフオイル製円筒容器(10 mm φ)に入れて測定された。なおGeO<sub>2</sub> は溶解温度、冷却速度によっては完全にガラスにならなかった。測定に用いられた試料はX線によりガラス状であることの確認をしている。試料の有効長は40 mmであった。

### 4 実験結果および検討

He<sup>3</sup> 比例計数管が実験時には2本(標準装備16本)しかなかったので、測定は $2\theta = 30^\circ$ および $150^\circ$ の2系統のみ各1本で行なわれた。

Fig. 1は $2\theta = 150^\circ$ 系でSiO<sub>2</sub> ガラス試料に対し約3時間で得られたTOFスペクトルを示している。チャンネル巾は16 μsである。He<sup>3</sup> カウンターが1本で(標準装備4本)であったが非

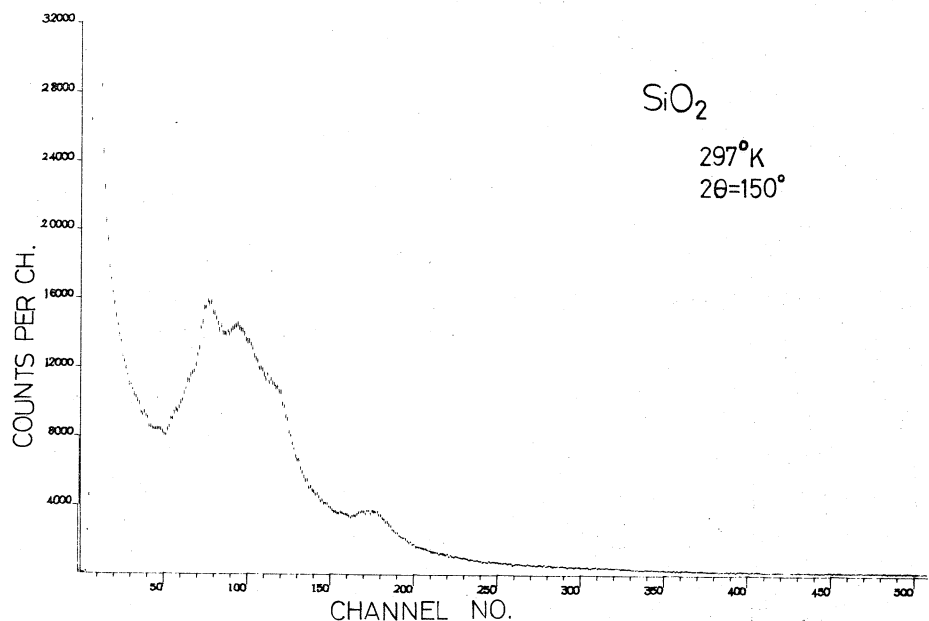


Fig.1 TOF pattern from SiO<sub>2</sub> glass obtained with 3 hours operation ( $2\theta_s = 150^\circ$ )

常に高い計数効率が実現できている。装置の遮蔽ドームは取りはずされた状態であったがバックグラウンドの測定結果は非常に小さかった。アルミ箔試料容器の散乱も非常に小さく、容器の散乱の差引きは通常の方法によった。入射中性子スペクトル補正は幾何学的形状の等しいヴァナジウム試

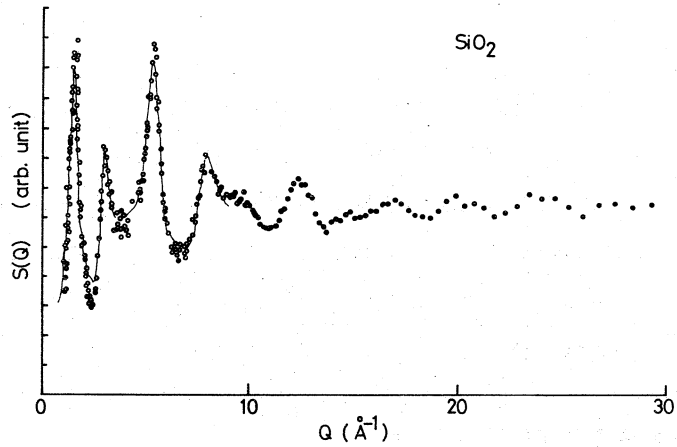


Fig. 2  $S(Q)$  for  $\text{SiO}_2$  glass. The solid curve shows the smoothed curve of the result of Carpenter et al.<sup>13)</sup> using  $L_1 = L_2$  spectrometer

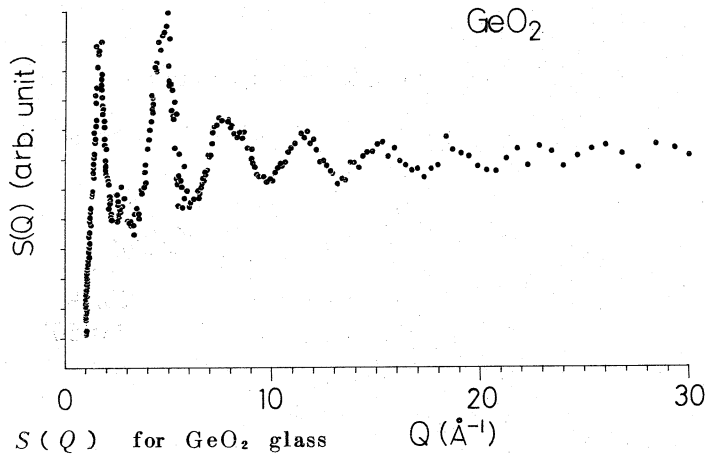


Fig. 3  $S(Q)$  for  $\text{GeO}_2$  glass

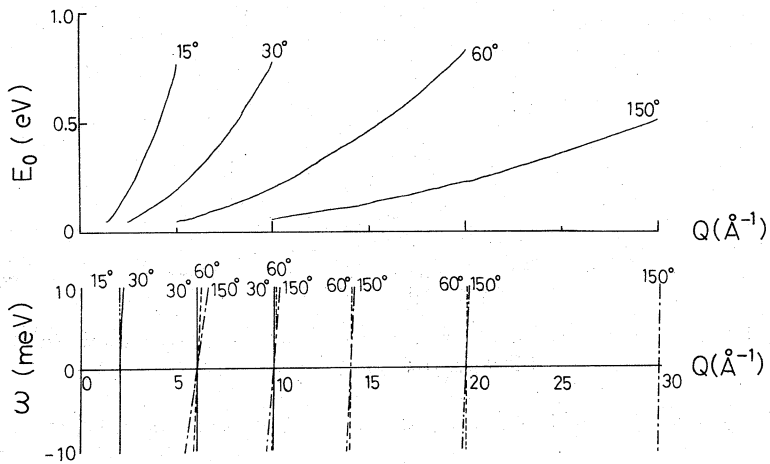


Fig. 4 Instrumental integration path in  $Q-\omega$  space for various  $2\theta$ s. Upper curves show the incident neutron energy  $E_0$  for elastic scattering at  $Q$

料の測定により行なわれた。その他多重散乱補正、試料中での減衰補正等を行ない、 $\text{SiO}_2$  および  $\text{GeO}_2$  ガラスに対し Fig. 2 および Fig. 3 に示す  $S(Q)$  を得た。

これらの図から明らかな如く、この種の非晶体では単純液体に比べ、あるいは分子性液体に比べても非常に  $Q$  の大きいところまで  $S(Q)$  が振動していることがわかる。このことはこの種の物質では非常に高い  $Q$  まで測定しなければ正しい動径分布関数  $\rho(r)$  その他が得られないことを意味している。通常原子炉よりの定常中性子ビームを用いて行なわれる測定では可能な  $Q$  の上限がせいぜい  $15 \text{ \AA}^{-1}$  程度であるが本装置では  $30 \text{ \AA}^{-1}$  でも容易に測定できる。今後  $\text{He}^3$  カウンターが全数装着され遮蔽ドームが置かれれば、そして適当に短いチャンネル巾が用いられれば  $40 \text{ \AA}^{-1}$  まで十分実測可能と考えられる。

Fig. 2 において実線は Carpenter 等<sup>1)</sup> による  $L_1 = L_2$  での測定結果をスムーズカーブで示したものである。両者の規格化はおおよそであるが、一致は非常によい。なお本実験のデータは  $Q$  の小さい領域でチャンネルまとめを行なっていないため ( $Q$  の小さいところではチャンネル当りの  $\Delta Q$  が非常に小さくなる) 一見ばらついて見えるが、第 1 ピークと第 2 ピークの間の谷以外での一致は非常によいと考えられる。

$Q > 9 \text{ \AA}^{-1}$  におけるデータがないためそれ以上での比較はできないが、ある  $\omega$  の範囲でどの程度正しく  $Q$  一定の積分がなされているかを見るため本装置の  $Q - \omega$  平面上での積分路を Fig. 4 に示した。  $Q$  の高い領域では  $2\theta_s = 150^\circ$  でも、ほとんど  $Q$  一定の積分が実現できていることがわかる。すでに述べた如く、ある  $Q$  における  $S(Q)$  を決めるのに、できるだけ小さい散乱角を用いれば、十分小さな  $Q$  まで  $Q$  一定が実現できることがわかる。  $\text{SiO}_2$  に関しては  $25 \text{ \AA}^{-1}$  まで測定された X 線データの報告もあるので今後検討したい。なお  $Q$  一定積分の可能な  $\omega$  の範囲をどこまでとらなければならないかについては、  $\text{SiO}_2$  ガラスの集団励起の上限が  $10 \text{ meV}$  以下で、それ以上の  $\omega$  では  $Q$  依存のない局部モードあるいは分子内振動となるので、  $|\omega| < 10 \text{ meV}$  で一応十分と考えられる。

以上の如く本回折装置は非晶体の研究に対しても非常に有力であると考えられるので、今後装置の完成を待ってさらに精度の検討を行なうたうえ、カルコゲンガラス系の興味ある物質について構造解析を行ないたい。

## 文 献

- 1) J. M. Carpenter and J. D. Sutton : Nucl. Instr. Methods 99 ( 1972 ) 453
- 2) A. J. Leadbetter : J. Chem. Phys. 51 (1969) 779
- 3) A. J. Leadbetter : S. R. C. Neutron Beam Research Committee Annual Report ( 1970 ) 57 and 59
- 4) M. Misawa et al : 核理研報告 Vol. 5, No. 2 ( 1972 )

## II-4 $Lo \gg L$ Time-of-Flight Neutron Spectrometer and Measurement of High Momentum Transfer Structure Factor in Molecular Liquids

全 研

三沢正勝・甲斐鎌三

鈴木謙爾・竹内 栄

### 1. Introduction

It was ascertained by Misawa et al<sup>(1)</sup> that the static structure factor of liquid metals could be observed by the T-O-F Dedye-Scherrer powder spectrometer<sup>(2)</sup> based on the Tohoku University 300 MeV electron LINAC and a fairly good agreement between the T-O-F result and the traditional diffraction one for liquid Sn was experimentally demonstrated.

Based on the conclusion described above, we have constructed the new T-O-F neutron spectrometer which is mainly served for the study of the static structure of a variety of liquids with fast data collection and high accuracy.

The structure factor data for liquids measured previously are almostly fallen into a restricted momentum transfer ( $Q$ ) region, for example  $1\text{\AA}^{-1} < Q < 15\text{\AA}^{-1}$ . However, the rapid and essential development in the field of the liquid study desires strongly the expansion of experimental observation range of  $Q$ .

---

M. Misawa, K. Kai, K. Suzuki and S. Takeuchi

The Research Institute for Iron, Steel and Other Metals,  
Tohoku University,  
Sendai 980  
Japan.

As a preliminary measurement for the high  $Q$  structure factors of liquid metals, the structure factors of  $\text{CCl}_4$  and  $\text{CS}_2$  molecular liquids were observed up to  $Q \simeq 30 \text{ \AA}^{-1}$  by the new T-O-F spectrometer.

These results are reported and discussed below.

## 2. $L_0 \gg L$ T-O-F Neutron Spectrometer

As is well known the double differential coherent scattering cross section for  $N$  molecules in the liquid can be written as

$$\frac{d^2\sigma_{\text{coh}}}{d\Omega d\omega} = N \left( \sum_i b_i^{\text{coh}} \right)^2 \left( \frac{k}{k_0} \right) \exp \left( \frac{\hbar\omega}{2k_B T} \right) \exp \left( -\frac{\hbar^2 Q^2}{8Mk_B T} \right) S(Q, \omega), \quad (1)$$

where  $k_0$  and  $k$  are wave vectors of the incident and scattered neutrons,  $\hbar\omega$  and  $\hbar Q = \hbar(k_0 - k)$  are energy and momentum transferred to the liquid in the scattering process,  $b_i^{\text{coh}}$  is the bound coherent scattering length of nucleus  $i$  in a molecule and  $i$  in  $(\sum_i b_i^{\text{coh}})$  ranges over the nuclei in a molecule.

In the measurement made by the T-O-F method the intensity distribution of scattered neutrons  $I_T(t, \theta)$  is measured as a function of time of flight  $t = L_0/v_0 + L/v$  at a fixed scattering angle as follows;

$$I_T(t, \theta) = \int_0^\infty dE_0 \int_0^\infty dE \phi(E_0) \delta \left( t - \frac{L_0}{v_0} - \frac{L}{v} \right) \Delta t \frac{d^2\sigma_{\text{coh}}}{d\Omega d\omega} \eta(E) \Delta\Omega, \quad (2)$$

where,  $L_0$  and  $L$  are the flight path lengths from source to sample and sample to detector,  $v_0$  and  $v$  are the velocities of incident and scattered neutrons,  $\Delta t$  is the burst time width of source neutron pulse,  $\phi(E_0)$  is the incident neutron flux per unit energy at energy  $E_0$ ,  $\Delta\Omega$  is the solid angle subtended by the detector at the sample position and  $\eta(E)$  is the detector efficiency for neutrons of energy  $E$ .

The energy integration of Eq. (2) is carried out along a locus in the  $(Q, \omega)$  space defined by

$$\frac{\hbar^2 Q^2}{2m} = E_0 + E - 2(E_0 E)^{1/2} \cos 2\theta \quad (3)$$

and

$$\hbar\omega = \frac{\hbar^2}{2m} (k^2 - k_0^2) = E - E_0 \quad (4)$$

by a detector under the condition of fixed  $2\theta$  and  $t$ .

If it is not worried to sacrifice the observed intensity, the instrumental integration path in the  $L_0 = L$  T-O-F spectrometer<sup>(3)</sup> can provide the closest approach to the constant-Q condition. On the other hand, the elastic scattering condition is apparently satisfied by choosing the smallest possible  $L$  for given  $L_0$ , because this arrangement can accumulate all the scattered neutrons from the sample in the nearly same time interval. Furthermore the  $L_0 \gg L$  arrangement can maximize the scattered intensity, as the counting rate is proportional to  $1/L_0^2 \cdot 1/L^2$ . However, unfortunately it is difficult to keep ideally the constant-Q integration path in the case of  $L_0 \gg L$ .

In order to derive the final  $S(Q)$  from  $I_r(t, \theta)$ , the necessary corrections have to be made for the energy distribution  $\phi(E_0)$  of incident neutrons, detailed balance condition  $\exp(\hbar\omega/2k_B T)$ , recoil effect  $\exp(\hbar^2 Q^2/8M k_B T)$  and detector efficiency  $\eta(E)$ .

We have constructed the  $L_0 \gg L$  T-O-F spectrometer based on the electron LINAC of Tohoku University in order to do mainly the measurement on liquid samples. The schematic diagram of the  $L_0 \gg L$  T-O-F spectrometer is shown in Fig. 1.

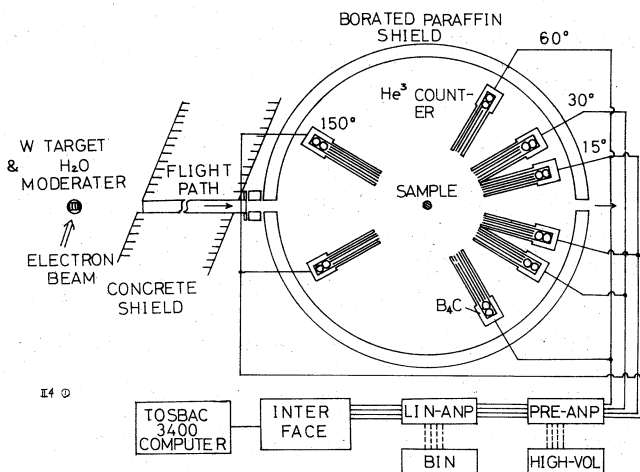


Fig. 1 Schematic diagram of the  $L_0 \gg L$  T-O-F neutron spectrometer



The scattered neutrons are counted simultaneously at four scattering angles  $2\theta=15^\circ, 30^\circ, 60^\circ$  and  $150^\circ$ , and two He-3 counters (25mm diameter, 150mm length 10 atms. He-3, Reutter Stokes Model RS-P4-0806-10) are located at each scattering angle. A pair of He-3 counters are shielded by a small counter box which contains B<sub>4</sub>C powder. The whole system of the sample and the counters are surrounded by a borated paraffin wall of 10cm thickness. The present lengths of  $L_0$  and  $L$  are fixed at 4.373m and 0.420m, respectively.

Fig. 2 shows some representative instrumental integration loci followed by the four scattering angles. Provided we make a clever choice for the relations between the desired  $Q$  value and the scattering angle, it can be found that the instrumental integration loci of the  $L_0 \gg L$  T-O-F spectrometer more nearly approach the constant- $Q$  condition than the conventional crystal diffractometer with 1 Å neutron incident beam.

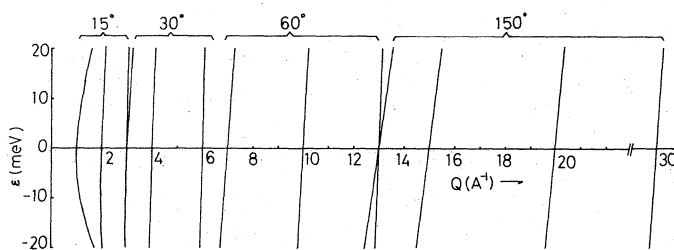


Fig. 2 Instrumental integration loci for the  $L_0 \gg L$  T-O-F neutron spectrometer ( $L_0/L=10.41$ )

The total resolution width of  $Q$  in T-O-F measurement is approximately given by the root mean square sum of the individual resolution widths,

$$\frac{\Delta Q}{Q} = \sqrt{\left(\frac{\Delta Q}{Q}\right)_{\Delta\theta}^2 + \left(\frac{\Delta Q}{Q}\right)_{\Delta t}^2 + \left(\frac{\Delta Q}{Q}\right)_{\Delta L}^2}, \quad (5)$$

where  $(\Delta Q/Q)_{\Delta\theta} = \cot\theta \cdot \Delta\theta$  is the angular resolution width of soller slit,  $(\Delta Q/Q)_{\Delta t}$  is the R. M. S. sum of burst and channel resolution widths and  $(\Delta Q/Q)_{\Delta L}$  is the path length resolution width due to the finite thickness of the detectors.

The calculated resolution widths are summarized in Table 1.

| $2\theta$                | $Q(\text{\AA}^{-1})$ | $\left[\frac{\Delta Q}{Q}\right]_{\Delta\theta}$ | $\left[\frac{\Delta Q}{Q}\right]_{\Delta t}$ | $\left[\frac{\Delta Q}{Q}\right]_{\Delta L}$ | $\left[\frac{\Delta Q}{Q}\right]$ | $\Delta Q(\text{\AA}^{-1})$ | $\Delta Q_{\Delta}(\text{\AA}^{-1})$ |
|--------------------------|----------------------|--|--|--|-----------------------------------|-----------------------------|--------------------------------------|
| $\lambda = 1.5 \sim 0.5$ |                      |  |  |  |                                   |                             |                                      |
| 15°                      | 1.0                  | 0.091  | 0.026  | 0.006  | 0.095                             | 0.095                       | 0.05                                 |
|                          | 2.2                  |  | 0.020  |  | 0.093                             |                             | 0.20                                 |
| 30°                      | 2.2                  | 0.038  | 0.026  | 0.006  | 0.046                             | 0.10                        | 0.05                                 |
|                          | 4.3                  |  | 0.020  |  | 0.043                             |                             | 0.18                                 |
| 60°                      | 4.3                  | 0.022  | 0.026  | 0.006  | 0.035                             | 0.15                        | 0.08                                 |
|                          | 8.1                  |  | 0.020  |  | 0.030                             |                             | 0.24                                 |
| 150°                     | 8.1                  | 0.010  | 0.026  | 0.006  | 0.028                             | 0.22                        | 0.13                                 |
|                          | 25.0                 |  | 0.020  |  | 0.023                             |                             | 0.58                                 |

Table 1 Calculated resolution widths

$\Delta Q_{\Delta E}$  indicates the momentum transfer range corresponding to  $\hbar\omega = \pm 10\text{meV}$

The apertures of the soller slits located just in front of He-3 counters are 0.015 rad. at the scattering angle  $2\theta = 15^\circ$ , 0.015 rad. at  $30^\circ$ , 0.02 rad. at  $60^\circ$  and 0.05 rad. at  $150^\circ$ . Therefore,  $(\Delta Q/Q)_{\Delta\theta}$  is decreased with increase of the scattering angle. The burst width of the incident pulse neutron is 12 to 44  $\mu\text{sec}$  corresponding to the neutron energy 125 to 20 meV by the room temperature water moderator of 40mm thickness used now.<sup>(4)</sup> The channel width of the time analyser is chosen as 16  $\mu\text{sec}/\text{ch}$ . Hence the burst width contributes mainly to the time resolution width of the high scattering angle detecting system.

### 3. Measured Results for Solid Vanadium and $\text{CCl}_4$ Liquid

All the measurements were carried out using the scattering angle  $2\theta = 30^\circ$  and  $150^\circ$  detecting systems with a He-3 counter of the  $L_o \gg L$  T-O-F spectrometer.

The Tohoku University electron LINAC was operated through these measurements at an electron acceleration energy of 250 MeV with a peak beam current of about 60 mA and at a pulse duration of 3  $\mu\text{sec}$  with pulse repetition frequency of 100 pps.

Fig. 3 shows the measured results for standard vanadium sample with 10mm diameter, which are quite useful to convert the observed intensities into the absolute ones, because vanadium is regarded as an almostly perfect incoherent scatterer. The details and practices of the conversion procedure have been discussed in the work of T-O-F neutron diffraction from liquid Sn by Misawa

et al. (1)

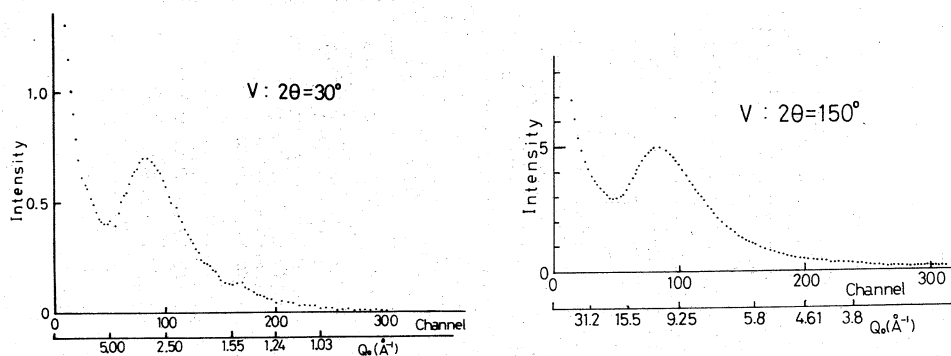
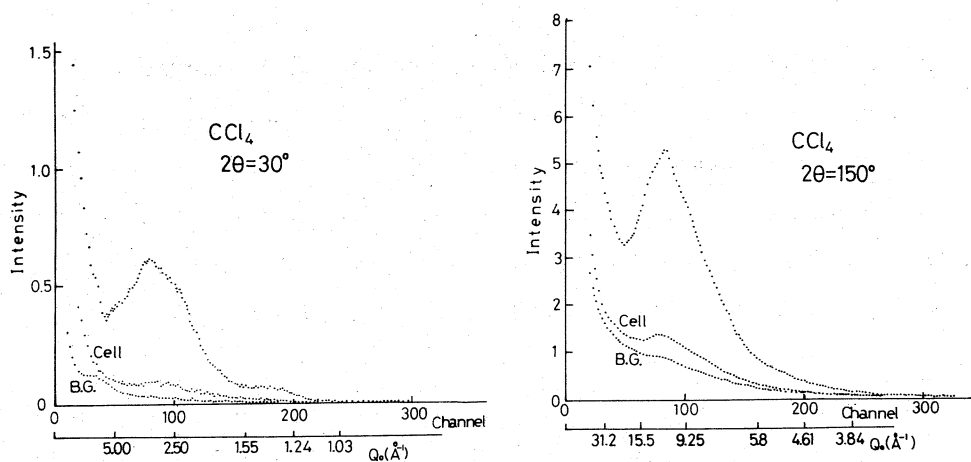


Fig. 3 Observed intensity for standard vanadium sample

$\text{CCl}_4$  sample was contained in a vanadium cylindrical cell with 0.25mm thick wall and 10mm diameter. Fig. 4 shows the observed intensities from the sample with the vanadium cell, the cell and the background, respectively. In the case of  $2\theta = 150^\circ$  detecting system the relative intensities from the cell and the background are higher than those of  $2\theta = 30^\circ$  detecting system. This behaviour is a very important factor to make the careful analysis of the data in high  $Q$  region.

Fig. 4 Observed intensity for  $\text{CCl}_4$  liquid

## 4. Tentative Analysis of High Momentum Transfer

### Structure Factor

The oscillation of structure factor in liquid metals is damped more rapidly in high  $Q$  region than that of rare gas liquids. This characteristic behaviour of liquid metals can be considered to come from the soft repulsive core of the effective interionic potential in liquid metals compared with that of rare gas liquids.<sup>(5)</sup> On the other hand, the long-range oscillation of structure factor must persist obviously in the liquid state of covalent chemical compounds, ionic salts and the special alloys with so-called clusters,<sup>(6)</sup> because the species having definite bond lengths and angles exist in their liquid states. Therefore, the detailed information about high  $Q$  structure factors are essentially important to interpret the relation between the structure and the interionic potential or the character of chemical bonds of liquids.

From the above point of view the experimental derivation of high  $Q$  structure factor up to about  $Q \approx 30 \text{ \AA}^{-1}$  was tentatively tried for  $\text{CS}_2$  and  $\text{CCl}_4$  liquids using the observed data by the  $L_o \gg L$  T-O-F spectrometer.

If the molecular orientation is completely correlated or uncorrelated, the molecular structure factor  $S_m(Q)$  may be written as follows,<sup>(7)</sup>

$$S_m(Q) = N_m \left( \sum_i b_i \right)^{-2} \sum_{i,j} b_i b_j \langle \exp(iQ \cdot r_{ij}) \rangle \quad (6)$$

$$= F_1(Q) + F_2(Q) [S_c(Q) - 1] \quad , \quad (7)$$

where  $N_m$  is the number of molecules in the sample,  $b_i$  is the mean coherent scattering length of nucleus  $i$ ,  $\langle \dots \rangle$  is the time average,  $\underline{r}_{ij} = \underline{r}_i - \underline{r}_j$  is the vector distance between the nuclei at  $r_i$  and  $r_j$ ,  $F_1(Q)$  is the molecular form factor for a single molecule,  $F_2(Q)$  is the form factor related to correlation of molecular orientation and  $S_c(Q)$  is the structure factor for molecular centres.

As  $S_c(Q)$  asymptotically becomes unity in high  $Q$  region,  $S_m(Q)$  approximates to  $F_1(Q)$ , that is,

$$S_m(Q) \approx F_1(Q) \quad , \quad (8)$$

if the structure and size of a single molecule are unchanged even in the liquid state. For a  $\text{CS}_2$  molecule,  $F_1(Q)$  is written as

$$F_1(Q) = \frac{b_c^2 + 4b_c b_s \sin(Qr_{cs}) / Qr_{cs} + 2b_s^2 [1 + \sin(Qr_{ss}) / Qr_{ss}]}{(b_c + 2b_s)^2} \quad (9)$$

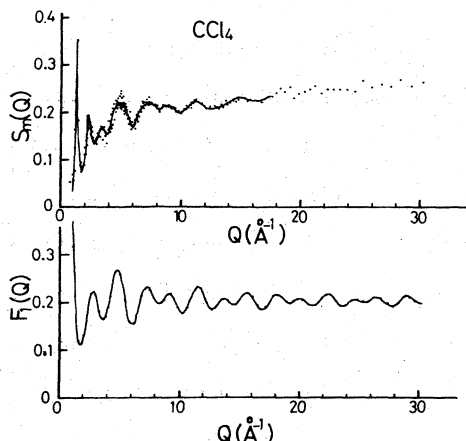


Fig. 5 Observed molecular structure factor  $S_m(Q)$  and calculated molecular form factor  $F_1(Q)$  for  $\text{CCl}_4$  liquid ( $r_{\text{cc1}} = 1.769\text{\AA}$ ,  $r_{\text{cl1}} = 2.890\text{\AA}$ ,  $b_c = 0.661 \times 10^{-12}\text{ cm}$ ,  $b_{\text{cl}} = 0.98 \times 10^{-12}\text{ cm}$ )

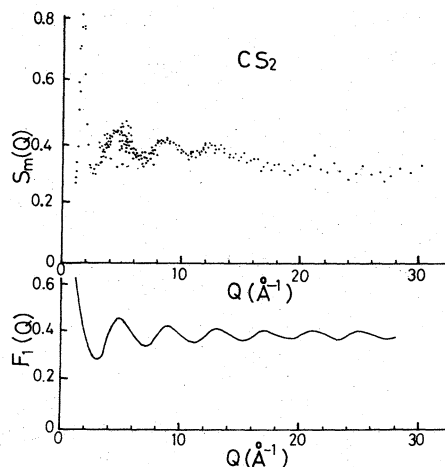


Fig. 6 Observed molecular structure factor  $S_m(Q)$  and calculated molecular form factor  $F_1(Q)$  for  $\text{CS}_2$  liquid ( $r_{\text{cs}} = 1.554\text{\AA}$ ,  $r_{\text{ss}} = 3.108\text{\AA}$ ,  $b_c = 0.661 \times 10^{-12}\text{ cm}$ ,  $b_s = 0.309 \times 10^{-12}\text{ cm}$ )

$S_m(Q)$  and  $F_1(Q)$  for  $\text{CCl}_4$  and  $\text{CS}_2$  liquids are shown in Figs. 5 and 6. The absolute values of  $S(Q)$  in high  $Q$  region still have the ambiguous errors due to the time resolution width which is shown in Table 1, the statistical fluctuation of counts and the several unsuitable correction parameters. Therefore, we cannot discuss the detailed behaviours of the high  $Q$  structure factors, which give obviously the relation  $S_m(Q) \simeq F_1(Q)$  at  $Q > 20\text{\AA}^{-1}$  in the case of  $\text{CS}_2$  liquid. The result of  $\text{CS}_2$  in Fig. 6 encourages us to make further experiments by improving the counting rate and the time resolution width.

### Acknowledgent

The authors acknowledge for Prof. N. Watanabe, Dr. N. Niimura and Dr. S. Tomiyoshi their continuous cooperation and valuable advices in this work.

**REFERENCES**

- 1) M. Misawa, N. Watanabe, S. Tomiyoshi, K. Kai, S. Takeuchi and M. Kimura, Res. Reports Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ., 4 [2] (1972), 67.
- 2) M. Kimura, M. Sugawara, M. Oyamada, Y. Yamada, S. Tomiyoshi, S. Suzuki N. Watanabe and S. Takeda, Nucl. Instr. and Meth., 71 (1969), 102.
- 3) J. M. Carpenter and J. D. Sutton, Nucl. Instr. and Meth., 99 (1972), 453.
- 4) N. Watanabe, M. Kimura, F. Takahashi, Y. Yamada, S. Tomiyoshi and M. Oyamada, Res. Rep'ts Lab. Nucl. Tohoku Univ., 3[1](1970), 85.
- 5) Y. Waseda and K. Suzuki, The Proceedings of the 2nd International conference on the Properties of Liquid Metals, 1972. to be published
- 6) S. Takeuchi, K. Suzuki, F. Itoh, K. Kai, M. Misawa and K. Murakami, The Proceedings of the 2nd International Conference on the Properties of Liquid Metals, 1972, to be published.
- 7) P. A. Egelstaff, D. I. Page and J. G. Powles, Molecular Phys., 20 (1971), 881.

II-5  $Mn_{3.6}Sn$  の中性子回折

金研・核理研\*

富吉昇一・新村信雄\*・渡辺 昇\*

山内 宏・渡辺 浩

## § 1 序 論

$Mn_3Sn$  は 75% より Mn 成分の多い所で安定な不定比化合物である。結晶構造は hex.  $D_{6h}$  型であるといわれており hcp に非常に近い構造である。図 1 に結晶構造を示す。この結晶構造に於て、過剰の Mn は Sn site に入る。この物質の磁気的質は Yasukochi et al.<sup>1)</sup> により研究され 360°K にネール点を持つ反強磁性体であることが明らかにされた。その後 Kouvel et al.<sup>2)</sup> は粉末試料による中性子回折の実験を行い  $Mn_3Sn$  は 0°C 以上で C 面に垂直な面内での三角配列のスピ構造を取る反強磁性体であり 0°C 以下では screw 構造へ変化することを報告している。また、この物質が弱強磁性をもつことを明らかにした。我々の測定した単結晶試料による磁化測定の結果を図 2, 図 3 に示す。この物質の磁性の特徴は、本質的には反強性でありながら弱い自発磁化を持っていることであり、金属的な磁性体に於て、このような weak ferro を示す物質はほとんど知られていない。また、普通弱強磁性体では磁化容易軸は変わらないのであるが、 $Mn_{3.6}Sn$  の場合、100°K 以上では C 面内、100°K 以下では C 軸方向と容易軸が変ることである。

我々の最終的目的は、 $Mn_{3.6}Sn$  の Mn site 及び Sn site に入った Mn の磁気構造を決定し、弱強磁性の発生する機構を明らかにすることであるが、今回は、主として結晶構造を決定すること、及び室温に於ける Mn site の磁気構造を決めることを目標に単結晶試料による中性子回折の実験を行った。

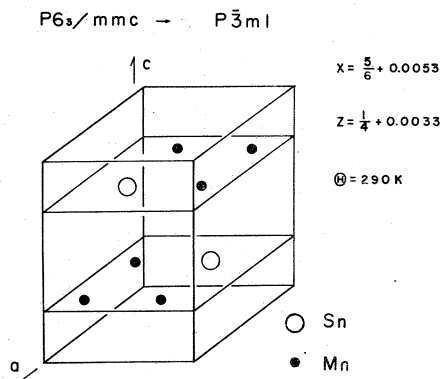


図 1  $Mn_{3.6}Sn$  の結晶構造,  $x, z$  parameter の値は最小二乗法により決定された。 $\theta$  はデバイ温度である。過剰の Mn は Sn site へ入るものと思われる。

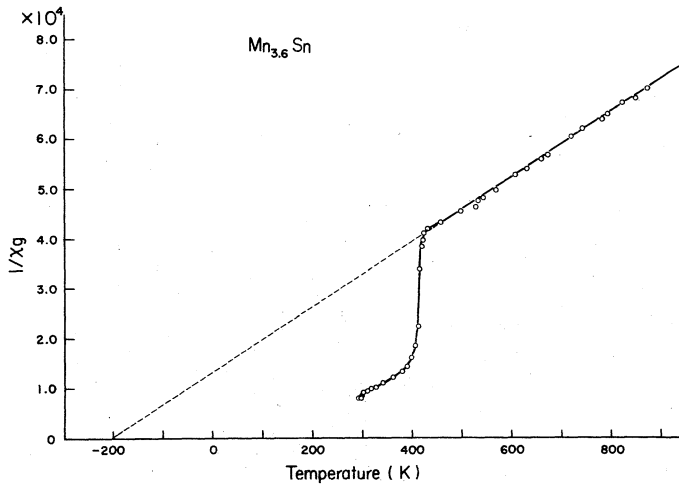


図2 逆帯磁率の温度変化。 $1/\chi_g$  は  $T_N = 420^\circ\text{K}$  以下で急激に減少する。 $\theta_p = -200^\circ\text{K}$   $\mu_{eff} = 2.9 \mu_B$  である。

## § 2 実験結果

### (a) 結晶構造

単結晶の場合の T-O-F 法による中性子回折の方法についてはすでに述べられておりその特徴は、逆格子点を一次的に scan するのである rod に沿った逆格子点の情報が一度に得られ見落が多い、高次指数の回折線まで測定できる等である。<sup>3)</sup> T-O-F 法の場合の積分強度は

$$I_{hkl} \propto i(\lambda) \lambda^4 |F_{hkl}|^2 e^{-2W} A(\lambda)$$

で与えられる。ここで  $A(\lambda)$  は試料による吸

収である。 $\text{Mn}_{3.6}\text{Sn}$  では  $\text{DO}_{19}$  型の結晶構造を仮定すると、003, 005, ……の回折線は消滅則により観測されないはずであるが、強度は弱いけれども図4に示すように観測された。従って空間群は以前にいわれていた  $P6_3/\text{mmc}$  ではなく、 $P\bar{3}m$  と考えるのが妥当であろう。X線のワイゼンベルグ写真には 001, 003, ……は写らず、この構造解析に関しては中性子回折の方が適していると考えられる。

表1に  $456^\circ\text{K}$  で測定した積分強度より求めた結晶構造因子  $|F|_{\text{obs}}^2$  と計算値  $|F|_{\text{cal}}^2$  を示す。

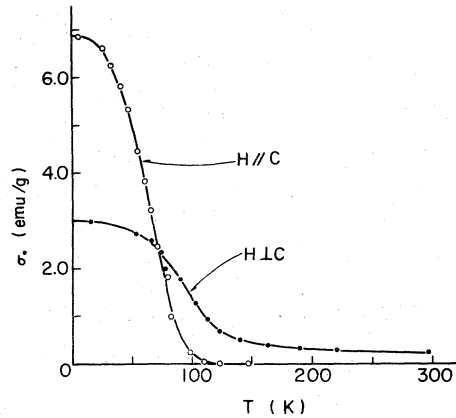


図3 磁場  $H \rightarrow 0$  へ外捜したときの自発磁化の値の温度変化。自発磁化の容易軸は高温では C 面内にあるが  $100^\circ\text{K}$  附近より C 軸方向へ変る



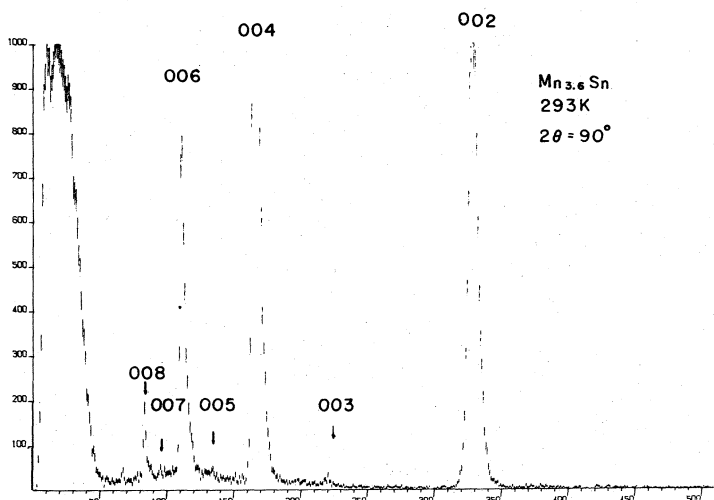


図4  $Mn_{3.6}Sn$ の室温で測定した中性子回折パターン。003, 005, 007の回折線がわずかに現われている。この回折線は $T_N$ 以上の温度に於ても消えない。

ここで計算値は空間群  $P\bar{3}m$  とし、最小二乗法を用いて、原子の位置のパラメーター  $x$ ,  $z$  の値、及び Debye 温度  $\theta$  を決定し、その値を用いて計算したものである。尚この計算では trigonal の場合  $hkl$  と  $hk\bar{l}$  の回折線の強度は異なるけれども、この結晶の場合、domain 分布が等しいために、 $hkl$  と  $hk\bar{l}$  の強度は等しいとした。Debye 温度は、002, 004, 006 の温度変化から求めると  $280^\circ K$  となり、二つの方法ではほぼ等しい結果が得られた。表1に見るように、測定値と計算値の一致はかなり良く、この結晶構造は信頼出来るものと考えられる。この測定に用いた試料はかまぼこ形に近い形をしているが、吸収の補正  $A(\lambda)$  は円筒形を仮定して行ったので  $A(\lambda)$  の補正はあまり良くない。きちっとした補正を行えば、計算値と測定値の一致はさらに良くなることが期待される。

表1 結晶構造因子の二乗の測定値と計算値。 $x = 5/6 + 0.0058$ ,  $z = 1/4 + 0.0033$  の値を用いた。

| $hkl$ | $ F _{obs}^2$ | $ F _{cal}^2$ |
|-------|---------------|---------------|
| 200   | 0.367         | 0.365         |
| 300   | 2.382         | 2.998         |
| 400   | 0.285         | 0.350         |
| 002   | 1.647         | 1.484         |
| 003   | 0.008         | 0.005         |
| 004   | 2.168         | 1.476         |
| 005   | 0.013         | 0.016         |
| 006   | 1.853         | 1.463         |
| 103   | 2.292         | 2.085         |
| 206   | 0.449         | 0.377         |
| 204   | 0.402         | 0.371         |
| 203   | 1.084         | 1.095         |
| 202   | 0.323         | 0.367         |
| 303   | 0.078         | 0.094         |
| 404   | 0.371         | 0.355         |
| 302   | 2.929         | 2.992         |
| 201   | 0.999         | 1.098         |
| 204   | 0.350         | 0.371         |
| 301   | 0.083         | 0.084         |
| 114   | 3.413         | 2.928         |
| 113   | 0.012         | 0.011         |
| 112   | 2.959         | 2.943         |
| 224   | 1.508         | 1.408         |
| 111   | 0.011         | 0.001         |
| 222   | 1.522         | 1.416         |
| 333   | 0.009         | 0.010         |
| 110   | 2.290         | 2.949         |
| 220   | 1.399         | 1.418         |
| 330   | 2.924         | 2.758         |
| 440   | 0.987         | 1.225         |

(b) 磁気構造

$Mn_3Sn$  では磁気回折線は核散乱回折線に完全に重る。すなわち Magnetic unit cell は Chemical unit cell に等しい。従って磁気散乱の部分を求めるためにはネール点以上の測定とネール点以下の測定を行い、Debye-Waller 因子の補正を行って、核散乱部分の差引きを行わなければならない。そのために測定精度は2倍以上悪くなる。

$Mn_3Sn$  のスピン構造のモデルとして、これまでに提出されたモデルは、図5 Model 1 に示す Kasper et al.<sup>2)</sup> のモデルがある。これは  $(100)$  面、及び  $(\frac{1}{2}10)$  面に投影したとき3ケのスピンが三角配列を取るモデルである。

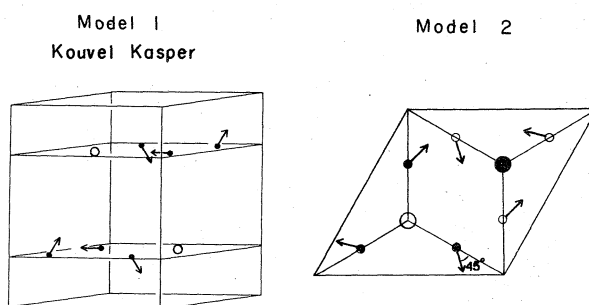


図5 スピン構造のモデル，Model 1は  $ac$  面内の三角配列のモデルである。Model 2は Kádár et alにより  $Mn_3Ge$  に対して出されたモデルである。

スピン構造を考える上に有力な方法として、群論的方法がある。これはスピン構造を組織的に考える際に非常に有力である。この結晶の対称性の場合、18ケのモデルが考えられる。

大きく分けると、スピンの  $C$  面及び  $C$  軸に沿う collinear spin 配列のモデルと、 $C$  面内の三角配列のモデルである。Model 1は結晶の対称性から導れる色々なモデルを重ね合わせても出て来ないモデルである。

その他にこの結晶構造のものに対して出されているものとして、 $Mn_3Sn$  と同じ結晶構造である  $Mn_3Ge$  に対して Kádár et al.<sup>4)</sup> により提出されたモデルがあり、図5 Model 2に示されている。これは結晶の対称性からは導かれないが、それらの重ね合わせとして導かれる。

以上述べた色々なモデルについて磁気構造因子を計算してみると、Model 2が一番良く合う。表2に、磁気構造因子の測定値と計算値を示す。Model 1はModel 2に比較して、100, 110, 112等の回折線について一致が良くない。Model 2の場合、Mn siteのMnの磁気モーメントの大きさは、室温で  $1.7 \mu_B$ 、 $0^\circ K$  へ外挿すると  $2.0 \mu_B$  となる。この計算に於て、我々は Sn siteに入った余剰のMnの寄与を無視した。Sn siteに入るMnの量は全体のMnの3%程度で

あり、全体の磁気構造因子への影響は非常に少ないと考えたからである。しかし我々の目標とするところは、Sn siteに入ったMnの磁気構造を決定し、weak ferroの起源を明らかにする所にあるので、今後の解析には取り入れて、また、実験的にも精度を上げて余剰Mnの影響を観測するようにしなければならぬと考えている。

次に温度変化について。一応ヘリウム温度からネール点以上にわたって測定した。

101の積分強度の温度変化は、ほぼ Brillouin curve にのり、420 °k 付近で磁気散乱部分は消失する。これは磁気測定の結果と一致し、従つてMn<sub>3</sub>Snの弱強磁性は、この結晶に含まれる不純物に帰因するものではなく、この結晶に本質的なものと思われる。磁化測定では100 °k 付近で磁化容易軸の変化が測定されているが、101回折線にはそれに対応する変化は見られなかった。多分、Mn siteのMnのスピンの構造は100 °k 付近では変化していないのではないかと推定される。Kasper et al.<sup>2)</sup> は粉末試料の測定に於て、0 °C 以下で三角配列のスピンの構造からスクリュウ構造へ変化することを見出したが、我々はヘリウム温度に於て101逆格子点の周囲を色々測定してみたが、スクリュウ構造による satellite を見出すことは出来なかった。我々の試料は850 °C で急冷したものであり、700 °C 付近で長時間 anneal して作った粉末試料の場合とは熱処理が異なるためではないかと考えられる。

結論として、Mn<sub>3</sub>Snの結晶構造はP6<sub>3</sub>/mmcではなく、空間群  $\overline{P}3m$  で  $x = 5/6 + 0.0053$ ,  $z = 1/4 + 0.0033$  であり、Mn siteのMnの磁気構造はC面内の三角配列でその磁気モーメントは  $2\mu_B$  であることが明らかになった。今後精度を上げた実験を行いたいと考えている。

この研究に対して色々援助して下さった核理研マシニンググループ、計測グループ及びNDグループの方々に感謝いたします。

表2 磁気構造因子の二乗の測定値と計算値, Model 1, 2は, 図5に示すモデルである。

| Index | $ F _o^2$ | $ F _c^2$ | $ F _c^2$ |
|-------|-----------|-----------|-----------|
|       | obs .     | Model 2   | Model 1   |
| 100   | 0. 271    | 0. 291    | 0. 458    |
| 101   | 0. 776    | 1. 220    | 1. 136    |
| 110   | 0. 574    | 0. 863    | 1. 161    |
| 200   | 0. 060    | 0. 006    | 0. 009    |
| 111   | 0. 001    | 0. 008    | 0. 009    |
| 002   | 0. 011    | 0. 000    | 0. 000    |
| 201   | 0. 118    | 0. 002    | 0. 002    |
| 102   | 0. 317    | 0. 211    | 0. 166    |
| 112   | 0. 580    | 0. 543    | 0. 148    |
| 202   | 0. 031    | 0. 004    | 0. 003    |
| 300   | 0. 410    | 0. 259    | 0. 372    |
| 301   | 0. 066    | 0. 000    | 0. 001    |
| 003   | 0. 004    | 0. 000    | 0. 000    |
| 103   | 0. 385    | 0. 249    | 0. 187    |
| 220   | 0. 116    | 0. 000    | 0. 000    |
| 302   | 0. 097    | 0. 155    | 0. 165    |

## 文 献

- 1) Kō Yasukochi, Kazuo Kanematsu, Tetuo Ohoyama : J. Phys. Soc. Japan  
Vol 16 ( 1961 ) 1123
- 2) J. S. Kouvel and J. S. Kasper : Proc. of the International Conference on  
Magnetism , Nottingham ( 1964 ) 169
- 3) 新村信雄, 富吉昇一, 渡辺昇, 木村一治, 核理研報告 Vol 5 ( 1972 ) 93
- 4) G. Kádár and E. Kfen Intern. J. Magnetism Vol 1 ( 1971 ) 143

## II-6 中性子TOF単結晶法での消衰効果

核理研, 金研\*

新村信雄・富吉昇一\*・渡辺 昇

### §1 序

中性子TOF単結晶法でBragg反射強度を測定し, 結晶構造因子を求めると結晶構造解析を行うに十分な精度で求められた。<sup>1, 2)</sup> しかしその際使用した試料は前処理を行い消衰効果を小さくして実験をした。結晶構造解析には常に消衰効果の小さい試料を用い得るとは限らないから, TOF法における消衰効果の補正法も検討しなければならない。TOF法では白色中性子を用いるために, 消衰効果の波長依存性を調べるのが重要であるが, 未だその補正の一般的方法は確立していない。通常の結晶回折法ではZachariasenの一般式<sup>3)</sup>やHamiltonの実験式<sup>4)</sup>等を用いて消衰効果の補正を行っている。

一方, TOF単結晶法では検出器の回転角を変える(中性子回折の散乱角を変える)ことにより, ある $hkl$  Bragg反射を起こす中性子の波長を任意に変えられるため, ある量の中性子の波長依存性を簡単に測定できる。消衰効果は一般に中性子の波長依存性が強いので, TOF法は消衰効果の検討を行うのに適した方法である。

### §2 実験

試料としては, 吸収の補正が簡単なように球に近い形(直径約7mm)に整形した $KBr$ 単結晶を用いた。消衰効果の波長依存性の実験に用いたBragg反射は111, 222, 333, 444の4ヶである。

散乱中性子の波長は次のようにして変化させた。検出器を固定し, 111, 222, 333, 444のBragg反射強度が最大になるような結晶位置を見出し, 測定する。次に検出器を回転させ各Bragg反射強度が再び最大になる結晶位置を見出し測定する。これを順次繰り返す。

散乱角の正確な値はBragg反射の現れるチャンネル数より計算して求められる。実験を行った散乱角は $33^{\circ}4'$ ,  $53^{\circ}14'$ ,  $61^{\circ}30'$ ,  $71^{\circ}16'$ ,  $83^{\circ}6'$ ,  $98^{\circ}20'$ ,  $112^{\circ}56'$ である。

### §3 結果と考察

今,  $I_0$ をBragg反射強度,  $I_k$ を動力学的理論(Kinematical approximation)より求めら

れる強度,  $Y$  を消衰効果を現わす因子とすると

$$I_o = I_k \cdot Y \quad (1)$$

となる。TOF法における $Y$ の一般式が求まれば、TOF法での消衰効果の補正が可能になる。

TOF単結晶法では

$$I_k = S \cdot |F|^2 \cdot i(\lambda) \cdot E(\lambda) \cdot A(\lambda) \cdot \lambda^4 / \sin^2 \theta \quad (2)$$

である。ここで、 $S$ は定数、 $i(\lambda)$ は入射中性子の強度、 $E(\lambda)$ は検出器の効率、 $A(\lambda)$ は試料による中性子の吸収率で、 $i(\lambda) \cdot E(\lambda) \cdot A(\lambda)$ 等の求め方については、文献(2)を参照のこと。(2)式を(1)式に代入して求めた $Y$ の値を波長 $\lambda$ を横軸にしてプロットすると図1のようになる。

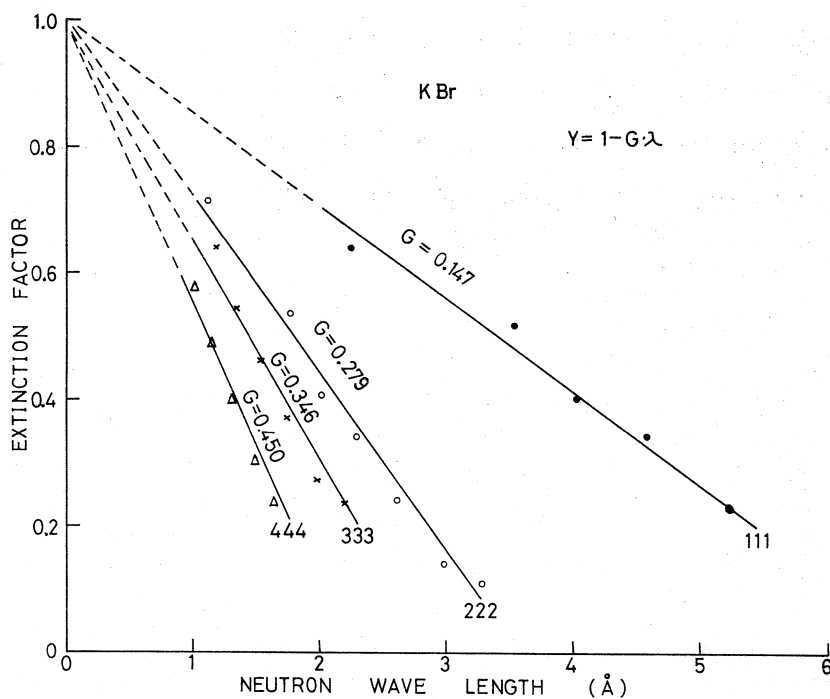


図 1

111, 222, 333, 444 各反射とも近似的に一次直線にのること、及び波長が零の極限で $Y$ の値は1に収束することにより、 $Y(\lambda)$ を

$$Y(\lambda) = 1 - G \cdot \lambda \quad (3)$$

と近似し、各反射での $G$ の値を最小自乗法で求めた。その結果は表1に記してある。

$G$ の意味は、次の様に考えられる。消衰効果の全くない反射では $Y(\lambda) = 1$ で $Y$ は常数になり $G \approx 0$ となる。消衰効果の強い反射では長波長程その効果が強くなることから $G$ は大きい値となる。

図1から明らかなように今回の実験結果では、 $G_{111} < G_{222} < G_{333} < G_{444}$ となりこれは説明しにくい結果である。

一つの解釈として(2)式の中の Lorentz 因子が適当でないのかもしれない。現在、TOF法の分解能関数も取り入れた Lorentz 因子の検討を行っている。

核理研マシニングループ、計測グループの方々に種々御助言いただき感謝致します。

表 1

| $hkl$ | $G$    |
|-------|--------|
| 111   | 0. 147 |
| 222   | 0. 279 |
| 333   | 0. 346 |
| 444   | 0. 450 |

### 文 献

- 1) 新村信雄他；核理研研究報告 Vol. 4 №2 ( 1972 ) 55
- 2) 新村信雄他；核理研研究報告 Vol. 5 №1 ( 1972 ) 93
- 3) W. H. Zachariasen : Acta Cryst. 23 ( 1967 ) 558
- 4) W. C. Hamilton : Phys. Rev. 110 ( 1958 ) 1050

## II - 7 電子リニアックを用いた中性子TOF 法による過渡現象の構造解析

### I $\text{NaNO}_2$ の 分 極 反 転

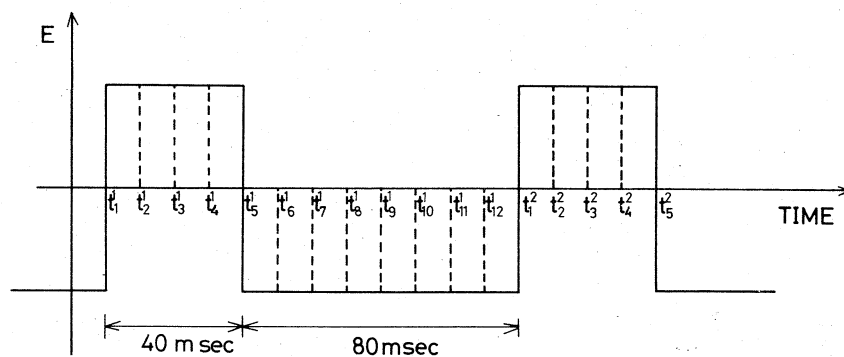
核理研 新村信雄・武藤正勝

#### § 1 序

ある物質（たとえば強誘電体）に外界からある刺激（たとえば電界）を印加すると、その物質はある応答（たとえば分極反転）をし、別の状態に変化していく。この種の現象の緩和機構を調べるには、印加する刺激と観測媒体（たとえば中性子線）とが常にある関係（たとえば同期）でその物質に加えられればその現象（過渡現象）を直接的に観測可能である。それ故、パルス中性子線を利用すれば過渡現象の構造解析が可能であり、古くからパルス中性子線利用の本命とさえ言われていた<sup>1)</sup>が、最近まで成功に至らなかった。その大きな理由は、パルス中性子のくりかえし周波数と同程度の時間変化で緩和する現象をもつ物質が見当らなかったことや、実験方法の具体的なパターンが確立していなかったこと等がある。今回我々は強誘電体物質である $\text{NaNO}_2$  の分極反転をこの方法で観測することを試みたので、その方法及び予備的な結果を報告する。

#### § 2 測定方法

強誘電体、亜硝酸ナトリウム<sup>\*1)</sup>は $135^\circ\text{C}$ で $2\text{kV}/\text{cm}$ の電界のとき約 $40\text{ msec}$ の switching time で分極が反転する。<sup>2)</sup> そのために第1図に示すような、リニアックに同期した矩形高電圧パルス発生装置<sup>\*2)</sup>を製作した。



第 1 図

\* 2) この装置の詳細な報告は、武藤，新村：核理研研究報告 Vol. 5, No. 2 (1973) に別に載せてある。

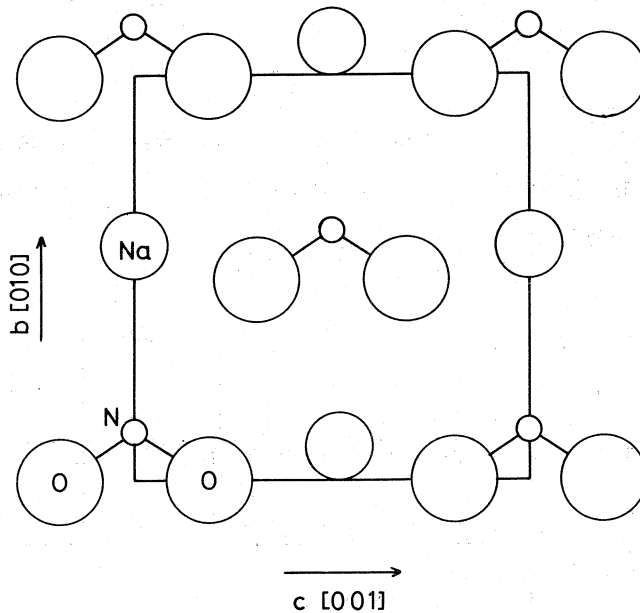
\* 1) 結晶構造及び分極反転のモデル等については § 3 で述べる。



時刻  $t_1^m \sim t_5^m$  ( $m=1, 2, 3, \dots$ ) の 40 m sec 間には正の電圧が、時刻  $t_5^m \sim t_1^{m+1}$  ( $m=1, 2, 3, \dots$ ) の 80 msec 間には負の矩形波高電圧パルスが発生する。パルス中性子は時刻  $t_n^m$  ( $m=1, 2, 3, \dots, n=1, 2, 3, \dots, 12$ ) に発生する。中性子のくりかえし周波数は 100 p. p. s である。 $t_1^m \sim t_2^m$  ( $m=1, 2, 3, \dots$ ) 間(以下、フレーム 1 と呼ぶ)、 $t_2^m \sim t_3^m$ 、 $t_3^m \sim t_4^m$ 、 $t_4^m \sim t_5^m$  間(夫々、フレーム 2、フレーム 3、フレーム 4 と呼ぶ)のデータを夫々別の time analyser  $A, B, C, D$  に集積する。電界が負の間  $t_5^m \sim t_1^{m+1}$  のデータは、この電源に内蔵してある logic 回路でどの time analyser へも行かないようにしてある。そしてこの間に試料を再び初期状態にもどしておき正の電圧が印加されるのを待つ。このようにして time analyser  $A \sim D$  に正の電圧が印加されて時間と共に分極が反転してゆく情報を取りこんだことになる。

### § 3 $\text{NaNO}_2$ の分極反転機構

亜硝酸ソーダ、 $\text{NaNO}_2$  の強誘電相の構造は、体心斜方の単位胞をもち、その  $a$  面投影は第 2 図に示すように  $b$  軸が極軸である。外部電場によって、 $\text{NO}_2$  基の配向は  $+b$  から  $-b$  に変わると共に  $\text{Na}$  イオンが  $b$  軸にそって移動する。この  $\text{NO}_2$  基の配向の変化をする機構としては、(i):  $[100]$



第 2 図

軸のまわりの  $\text{NO}_2$  基の回転、(ii):  $[001]$  軸のまわりの  $\text{NO}_2$  基の回転、(iii): 酸素原子が  $\text{N}-\text{N}$

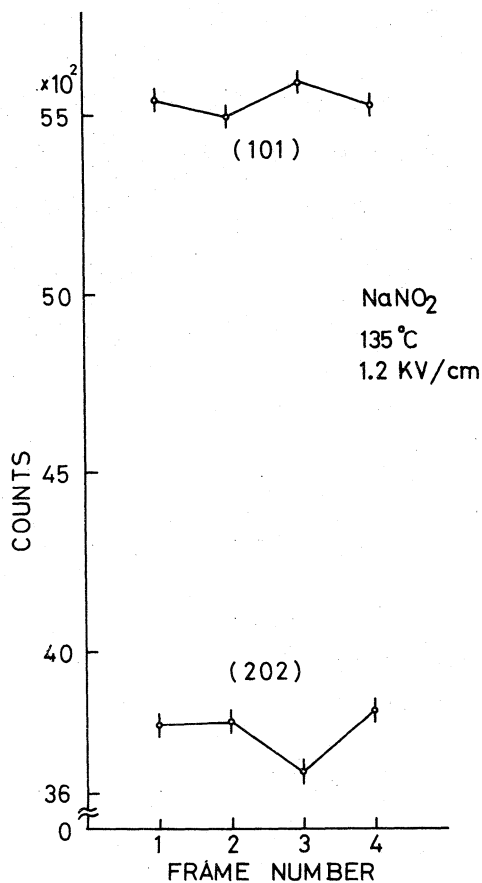
間をトンネルする。(V)：(i)と(ii)が両方起る。等が考えられる。赤外線吸収の実験<sup>3)</sup>からはモデル(i)が、又中性子線回折による常誘電相の構造の熱振動の異方性の解析<sup>4)</sup>から(但しパターンソン関数からの解析)はモデル(ii)が、又X線トポグラフィーの実験<sup>5)</sup>からはモデル(ii)が指示されている。特にこのX線トポグラフィーの実験では、試料に直流バイアスを与える実験を行い、分極反転の時間的変化について次の様な推測をたてている。電界をかけることによりまず、分域壁の厚さが増し始め、ついに分域内全体が分域壁と同じ結晶構造をもつようになり、最後に単分域状態ができる。そしてこの分域壁の構造としては、NO<sub>2</sub>基が〔001〕軸のまわりに約60°回転した構造を提出している。

#### § 4 結果と考察

§ 2の方法で(101)、(202)反射について実験を行った結果を図3に示す。横軸にフレーム番号をとったが、これは、時間に対応する。

101反射では、3番目のフレームで強度の増加が、202反射では、同じフレームで強度の減少がみられる。3番目のフレームに著しい強度変化が見られるのは、Suzukiらの云うように、結晶全体を何らかの構造をもった状態がこの時間にあらわれたと解釈できるかもしれない。しかしこの強度の変化は、彼等の提出した〔001〕軸のまわりにNO<sub>2</sub>基が60°回転した結晶構造をとっているというmodelでは説明がつかない。これだけの反射からではデータ不足で新しいモデルを提出することはできないが、電界をかけることにより、強度に有意性のある変化が見られ、この種の実験を可能にしたことには意義があると思われる。今後データ収集を続けてゆけば何らかのmodelを提出することができると考えている。

しかし、回折実験におけるこの種の実験での強度の変化が、結晶構造の変化に由来すると断定するには、次の確認も必要である。



第 3 図

- ① logic回路が十分な精度で各フレームのデータを対応する time analyser に送っていること。
- ② 電界印加による結晶軸の変化
- ③ 電界印加による消衰効果の変化

等である。

核理研, 中性子回折グループ, 計測グループ, マシングループの方々に種々御協力, 御指導いただいたことを感謝致します。

## 文 献

- 1) B. Buras, J. Leciejewicz : Phys. Stat. Sol. 4 ( 1964 ) 349
- 2) 飯田, 大野, 神前, 熊谷, 沢田 : 物理定数表 ( 1969 ) p. 151
- 3) Y. Sato; K. Geshi, Y. Takagi : J. Phys. Soc. Japan 16 ( 1961 ) 2172
- 4) 渋谷巖 : 中性子非弾性散乱研究会報告 ( 日本原子力研究所 ) JAERI 1157 ( 1968 ) p.67
- 5) S. Suzuki, M. Takagi : J. Phys. Soc. Japan 23 ( 1967 ) 667

## II-8 電子リニアックを用いた中性子TOF による過渡現象の構造解析

### II LINACに同期した高電圧パルス 発生装置 (High Voltage Flip-Flop)

核理研 武藤正勝・新村信雄

#### §1 緒言

高電圧のパルスを作るには Pulse forming network 回路, Hard tube 回路が知られている。しかし、これらの回路はパルス幅が数  $\mu$  sec のパルスを作るにはきわめて優れているが、約 35 m sec のパルス幅を得るパルス発生器として用いるには技術的に困難な点が多い。そこでここでは、DC-DC converter を用い、その動作を ON, OFF させることで高電圧のパルスを作った。この方式にはいくつかの改良点はあるが、現在実験に用い一応の成果は得ている。

#### §2 回路の説明

この装置は LINAC に同期して sample に印加される高電圧パルスを発生させる回路と、BF<sub>3</sub> counter から Time analyzer への signal を sample に正電界が印加されてる間順次 frame 別に 4 本の line に分配する回路の 2 つの部分から成る。この装置の Block diagram を Fig 1, Time

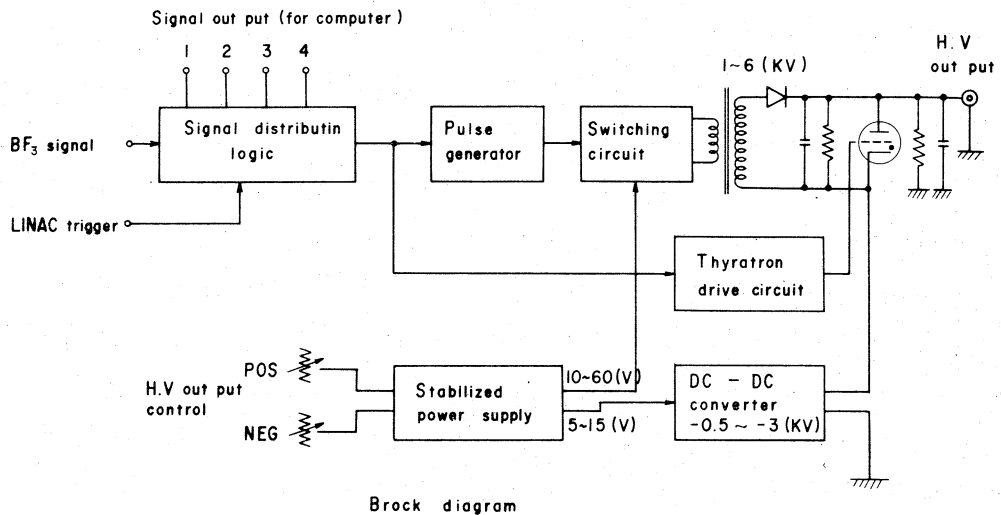


Fig. 1 装置のブロック図

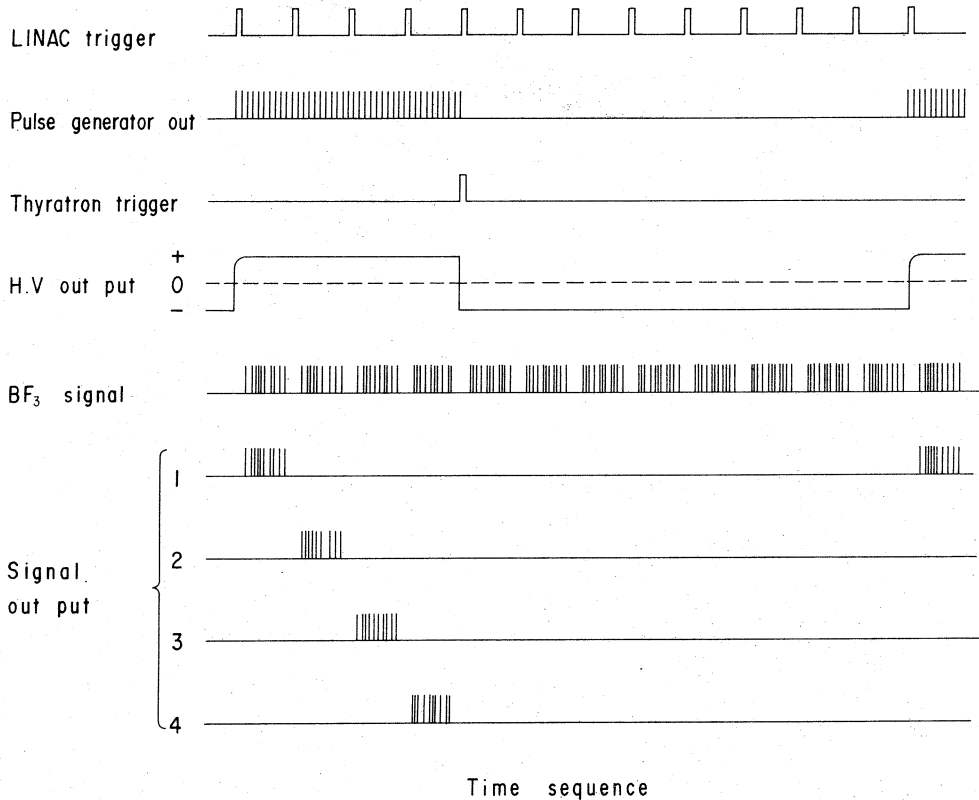


Fig. 2 装置各部のタイミング

sequence を Fig. 2 に示す。Signal distribution logic からある LINAC trigger に同期した gate signal で Pulse generator は約 9 kHz の方波を発生する。Switching circuit とその後の step up トランス及びトランスの 2 次側回路（整流，平滑回路）は DC-DC converter を形成しており，その出力は最大 +6 kV の高電圧を得ている。この電圧は Switching circuit に供給している電源の電圧を変えることにより任意の値に設定できる。sample に正電界を印加し，4 frame の data をとった後，4 つ目の LINAC trigger pulse で Pulse generator の動作を停止すると同時に Thyatron (1G35 P) を動作させコンデンサの残留電荷を放電し，最大振幅 +6 kV，立ち上がり時間約 2 msec，パルス幅約 35 msec（この実験では主に LINAC を約 115 pps で運転しており，LINAC trigger の時間間隔は約 3.7 msec である。）のパルスを作っている。

sample に正電界を印加した後の 8 frame 間は負電界を印加するため，最大 -3 kV の電圧を作る別の DC-DC converter と上記の正高電圧パルス発生回路を直列に接続し，出力として最大 ±3 kV の bipolar パルスを得ている。（Fig. 3 参照）

この方式の特徴は任意の電圧及び任意の時間幅の bipolar パルスが LINAC と同期して容易に得ら

れるところにある。ただこの方式ではどうしても出力インピーダンスが大きくなり ( $> 100 \text{ M}\Omega$ ) 装置の出力から sample 周辺も含めて絶縁 (leak current) に注意を払わなければならない。また出力変動要因として上記の絶縁の他に各 DC-DC converter に供給している安定化電源の電圧変動

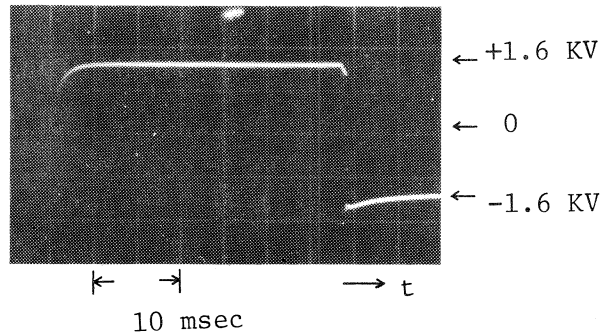


Fig. 3 装置の出力波形 (出力電圧  $\pm 1.6 \text{ kV}$ )

Pulse generator の周波数変動等が上げられる。

BF<sub>3</sub> counter からの signal はプリアンプ, メインアンプを通った後この装置の signal distribution logic で順次 frame 別に 4 本の line に分配し Time analyzer は各 line について解析を行う。この回路は全て digital IC を用いている。

### § 3 今後の方針

この装置は一応初期の要求を満たし実験に使用しているが、予備的テストを兼ねて製作したためさらに高い精度、信頼性をもった恒久的装置に改良することが必要である。今回のこの装置の結果をもとに次の点を考慮しながら 2 号機的设计を進めている。

- (1) 正電圧パルスの立ち上り時間を 1 msec 以下にする。
- (2) 出力インピーダンスを更に小さな値にする。
- (3) パルス幅 (正電圧 4 frame, 負電圧 8 frame) を任意に選択できるようにする。
- (4) BF<sub>3</sub> counter からの signal を正電圧, 負電圧とも任意の frame のものを Time analyzer に送れるようにする。

なおこの装置に関する詳細な回路図, data は次回に報告する予定である。

## II - 9 Ta-H系による中性子非弾性散乱

金研

山田礼司・浅野 肇・平林 真

### § 1 序

侵入型合金における規則-不規則変態には種々の興味ある問題が残されている。とくに、第V族遷移金属(V, Nb, Ta)中に含まれる水素の挙動については、まだ明らかでない点が多い。Ta-H系に関して述べれば、その平衡状態図は、Waite et al.<sup>1)</sup>などにより研究されているが、いまだにはっきりした結果は得られてない。またその構造に関しては、水素を重水素で置換したTa<sub>2</sub>D及びTaD<sub>x</sub> (x > 0.5) の中性子回折の実験が行われている。<sup>2,3)</sup> それによればTaDの構造は、室温では水素が体心立方格子の四面体格子間位置を規則的に取り、その規則配列の単位格子は  $a \sim b \sim \sqrt{2}a_0$ ,  $b/a \sim 1.01$ ,  $c \sim a_0$  ( $a_0$  は基本体心立方の格子定数) の斜方晶で、重水素は  $\frac{1}{4} \frac{1}{4}$ ,  $\frac{1}{4} \frac{3}{4} \frac{3}{4}$ ,  $\frac{3}{4} \frac{1}{4} \frac{1}{4}$ ,  $\frac{3}{4} \frac{3}{4} \frac{3}{4}$  の位置を占有している。またTa<sub>2</sub>D構造では、重水素は  $\frac{1}{4} \frac{1}{4} \frac{1}{4}$ ,  $\frac{1}{4} \frac{3}{4} \frac{3}{4}$  の位置を占有するといわれている<sup>4)</sup>。一方高温では体心立方格子のすべての四面体格子間位置を、確率的に無秩序に占有するモデルが実験と良い一致を見た<sup>5)</sup>。しかしながら、Ta-H系とTa-D系は、その状態図および原子配列が同じであるという事は立証されていない。

水素は良く知られているように、中性子の非干渉性散乱断面積が非常に大きいので ( $\sigma^{coh} \sim 1.8$  barns,  $\sigma^{inc} \sim 80$  barns), 中性子回折によりその配列を決めることは困難である。しかしその非干渉性散乱断面積が大である事を利用すれば、非干渉性非弾性散乱強度の測定により水素の振動数分布が求められ、Ta中の水素の配列位置および動的挙動を明らかにすることが可能である。この目的で以下にのべる実験を行なった。

### § 2 試料と実験方法

タンタルを電子ビームで融解後、圧延し、その板に水素を吸わせて粉碎し細粉にした後、脱水素処理した。この後再び既知量の純化した水素を吸わせて作製した粉末を試料として用いた。実験上できるだけ水素濃度が高い方が都合が良いことと、中性子回折の結果<sup>5)</sup>と比較することを考慮して、試料にTaH<sub>0.5</sub>およびTaH<sub>0.7</sub>を用いた。また測定温度は、規則状態である室温(25°C)と、不規則状態にあると思われる85°Cを選んだ。これらの試料の金属格子の格子定数はX線回折の結果、TaH<sub>0.5</sub>(25°C)では  $a = 3.367 \text{ \AA}$ ,  $c = 3.400 \text{ \AA}$ ,  $\gamma = 89.75^\circ$  の単斜晶、TaH<sub>0.5</sub>(85°C)では  $a =$

3.376 Åの体心立方晶。TaH<sub>0.7</sub> (25°C)では $a = 3.390$  Å,  $c = 3.438$  Å,  $\gamma = 89.50^\circ$ の単斜晶, TaH<sub>0.7</sub> (85°C)では $a = 3.405$  Åの体心立方晶であった。

試料は厚さ1 mm, 面積 $20 \times 20$  cm<sup>2</sup>のアルミニウム容器に入れた。試料温度を上げるため、ヒーターを取り付けた円筒状の容器に試料粉末を入れ、真空中に排気した後アルゴンガスに置換した。試料容器の上端と下端に銅-コンスタンタン熱電対をつけて、温度分布の測定と調節を行なった。

中性子散乱スペクトルの測定はBeO逆フィルターTOF法によって行なった<sup>6)</sup>。試料は入射中性子に対して30°に傾け、散乱角は90°で行なった。水素の全断面積を80 barnsとすると、この透過率はTaH<sub>0.5</sub>では79%, またTaH<sub>0.7</sub>では73%であった。測定時間は、パルス繰返し数114 ppsで一温度約10時間であった。

### § 3 実験結果および検討

結果の一例としてTaH<sub>0.5</sub>の25°CにおけるTOFスペクトルを、図1に示した。フィルターを通った後の中性子のエネルギーは、ほぼ単色と考えてよく、また飛行管は排気されており、カウンタ効率および空気の吸収補正の必要はない。非弾性散乱によるピークの両すそを指数関数に近似して、それをバックグラウンドとして差し引いた。

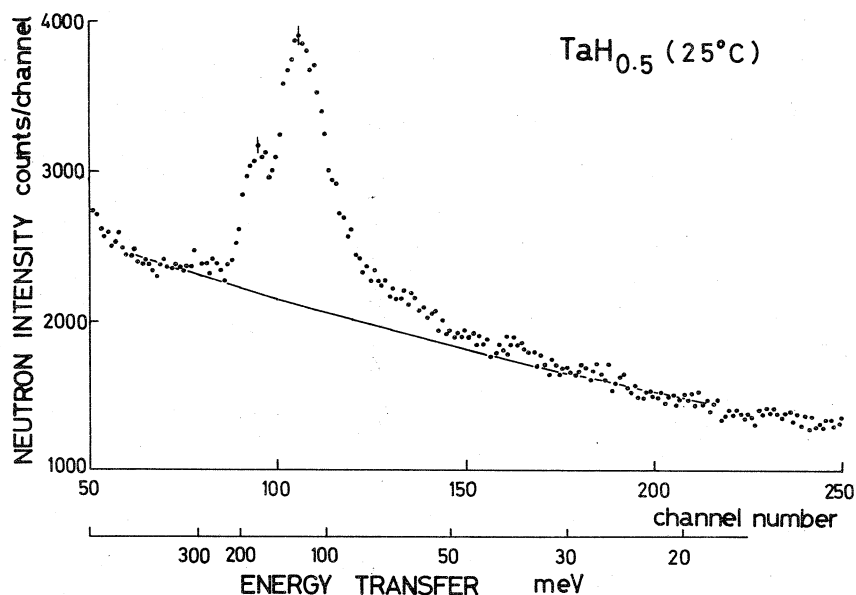


図1 TaH<sub>0.5</sub>の25°CでのTOFスペクトル。実線は指数関数に近似したバックグラウンド。

TOFスペクトル $I(\epsilon)$ と微分散乱断面積 $d^2\sigma/d\Omega d\omega$ の関係は次式で与えられる。



$$I(\omega) \propto \omega^{-3} \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} \quad (1)$$

一方、微分散乱断面積と振動数分布  $G(h\omega)$  の関係は、中性子のエネルギーが散乱後に減少する場合は、次式で与えられる<sup>7)</sup>

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = (a_{inc})^2 \frac{k}{k_0} K^2 \frac{h^3}{2m} e^{-\gamma K^2} \frac{G(h\omega) e^{h\omega/kT}}{h\omega(e^{h\omega/kT} - 1)} \quad (2)$$

ここで  $k$ ,  $k_0$  は散乱及び入射中性子の波数, ( $K = k - k_0$ ),  $a_{inc}$  は非干渉性散乱断面積  $h\omega$  は励起されたフォノンのエネルギーである。温度因子  $e^{-\gamma K^2}$  は、結晶が立方格子の場合、

$$\gamma = \frac{1}{2} \int \frac{h^2}{m\omega} \coth\left(\frac{h\omega}{2kT}\right) G(h\omega) d\omega \quad (3)$$

とおける。(1), (2) および (3) 式を用いて逐次近似法により  $G(h\omega)$  を求めた。入射中性子スペクトルによる規格化は、フィルターを取り除いたバナジウム-run により行なった。その際  $BF_3$  カウンターのエネルギー効率は計算により求めた。得られた結果を図2と図3に示す。120 meV 及び 180 meV 附近に水素の局在モードの2本のピークが観測された。図中の実線は、それぞれのピークがガウス型であると仮定して、観測結果を分解したものである。中心エネルギーと、強度の結果を表1

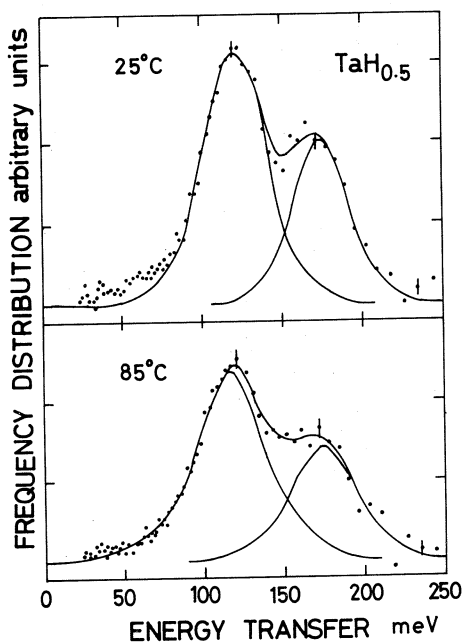


図2 TaH<sub>0.5</sub> の振動数分布

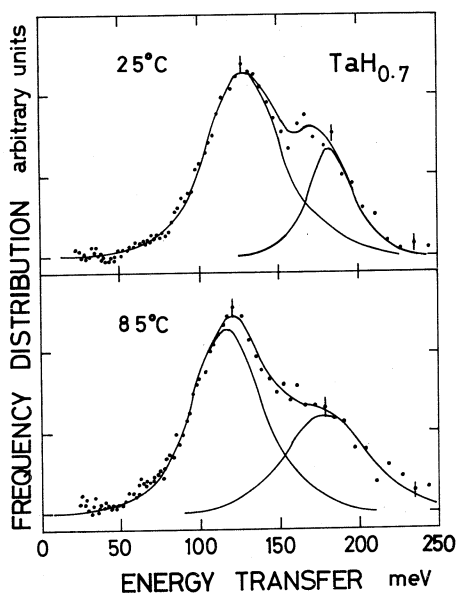


図3 TaH<sub>0.7</sub> の振動数分布

表1 Ta-H系における水素の局在振動の測定値

| Specimen                     | Energy of local mode $h\omega$ (meV) | Root mean square displacement of hydrogen $\sqrt{\mu^2}$ (Å) | Half-value width (meV) | Ratio of intensity between two local modes |
|------------------------------|--------------------------------------|--|------------------------|--|
| TaH <sub>0.5</sub><br>(25°C) | 121                                  | 0.13 <sub>1</sub>  | 48                     | 0.55                                       |
|                              | 175                                  | 0.10 <sub>9</sub>  | 41                     |  |
| TaH <sub>0.5</sub><br>(85°C) | 117                                  | 0.13 <sub>3</sub>  | 53                     | 0.55                                       |
|                              | 175                                  | 0.10 <sub>9</sub>  | 46                     |  |
| TaH <sub>0.7</sub><br>(25°C) | 128                                  | 0.12 <sub>7</sub>  | 54                     | 0.43                                       |
|                              | 180                                  | 0.10 <sub>7</sub>  | 40                     |  |
| TaH <sub>0.7</sub><br>(85°C) | 118                                  | 0.13 <sub>3</sub>  | 54                     | 0.60                                       |
|                              | 178                                  | 0.10 <sub>8</sub>  | 61                     |  |

に示す。得られた局在モードのエネルギーは、VH<sub>0.04</sub>における測定値 167 meV, 123 meVおよび NbH<sub>0.05</sub>の測定値 177 meV, 114 meVとほとんど変わらない値であった<sup>8)</sup>。しかし TaH<sub>0.5</sub>, TaH<sub>0.7</sub> 共に VH<sub>0.04</sub> 及び NbH<sub>0.05</sub> の場合と違って低いエネルギーの局在モードが、高いエネルギーのそれはほぼ2倍の強度を示していることは興味深い。水素-水素間の相互作用を無視した調和近似の下では、体心立方金属中において水素が四面体格子間位置をとる時には、高いエネルギーの局在モードが二重に縮退するはずである。一方八面体格子間位置をとる時には、低いエネルギーの局在モードが二重に縮退する事が予想される。このことを考慮すると上の実験結果は、水素がむしろ八面体格子間位置をとる事を示していると解釈される。

次に同一試料で測定温度が 25°C と 85°C の場合を比較すると、TaH<sub>0.5</sub>, TaH<sub>0.7</sub> とともに二つの局在モードのエネルギー比及び強度比とも大きな変化はなかった。このことから、規則状態においても、不規則状態においても水素は同種の格子間位置に分布しているものと解釈される。

また同一温度で TaH<sub>0.5</sub> と TaH<sub>0.7</sub> を比較した場合、低いエネルギーの局在モードのピーク半値巾は TaH<sub>0.7</sub> の方が TaH<sub>0.5</sub> のそれより大きい。これは水素-水素間の相互作用による増加の寄与と考えられる。

本実験で用いた試料の水素の濃度はかなり大きいので、水素-水素間の相互作用は無視しえないので、今後水素濃度の薄い試料を用いて実験を行い二つの局在モードの強度比がどう変化するかを調べてみたい。

最後に多くの援助をされた渡辺助教授を初めとする核理研中性子回折グループに深く感謝します。

## 文 献

- 1) T. Waite, W. Wallace and R. Craig : J. Chem. Phys. **24** (1956) 634.
- 2) V. Somenkov, A. Gurskaya, M. Zemlyanov, M. Kost, N. Chernoplekov and A. Chertkov : Soviet Physics - Solid State **10** (1969) 2123.
- 3) 浅野, 山口, 平林, 渡辺, 木村 : 日本物理学会予稿集 秋 ( 1970 ) 7 p -M - 13.
- 4) V. Petrunin, V. Somenkov, S. Shil'shtein and A. Chertkov : Soviet Physics - Crystallography **15** (1970) 137.
- 5) 浅野, 平林 : 核理研報告 Vol. **4** No. 2 (1972) 47.
- 6) 木村他 : 核理研報告 Vol. **2** No. 2 (1969) 89.
- 7) V. Turchin : Slow Neutrons, Jerusalem (1965).
- 8) G. Verdan, R. Rubin and W. Kley : Neutron Inelastic Scattering IAEA Vol. 1 (1968) 223.

## II—10 Inelastic Scattering of Neutron from Polystyrene Solutions (I)

非水研, 核理研\*

安川民男・渡辺昇\*

Inelastic scattering of neutrons from molecular liquids and solutions have been studied in terms of molecular dynamics of molecules in liquid phase and have afforded decisive results about collective and single particle motions. As for the solutions of high polymers, the molecular motions are fairly complicated; i. e., not only the center of gravity of a chain molecule drifts randomly (macro brownian motion) but each segment of molecule moves around the center of gravity ramblingly (microbrownian motion). Hitherto, the diffusion of the center of gravity of high polymers has been investigated by various methods but the natures of microbrownian have not been elucidated sufficiently. In the present work, we have attempted to study the microbrownian motion of polystyrene in solutions by means of neutron scattering

### Experimentals

Polystyrene (atactic, degree of polymerization, 1600—1800) was dissolved into carbon disulfide and was introduced into an aluminum cell of 150 x 150 x 3 mm. The thickness of aluminum wall was 0.2 mm.

Details of facility employed for the inelastic scattering experiments was described in a preceding paper; consisting of, pulsed white neutron source - flight tube - sample - BeO filter - BF<sub>3</sub> counter. In the present experiments, neutrons scattered by polystyrene solutions at 90° and passed through BeO filter were counted.

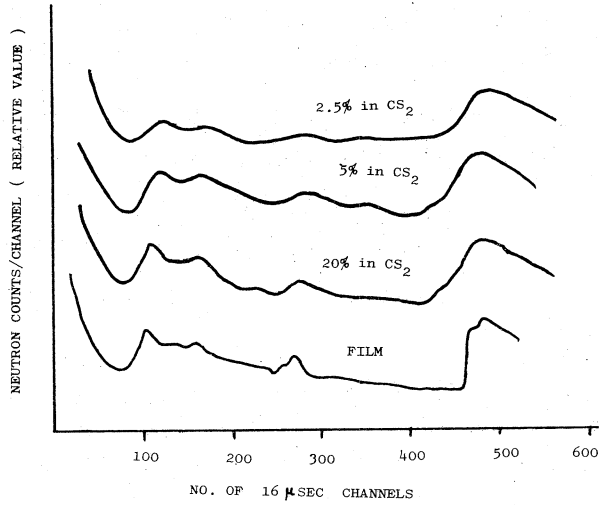


Figure 1. The time-of-flight spectra of pulsed neutrons scattered by polystyrene in  $\text{CS}_2$  and polystyrene film observed at room temperature. These data have not been corrected for back ground.

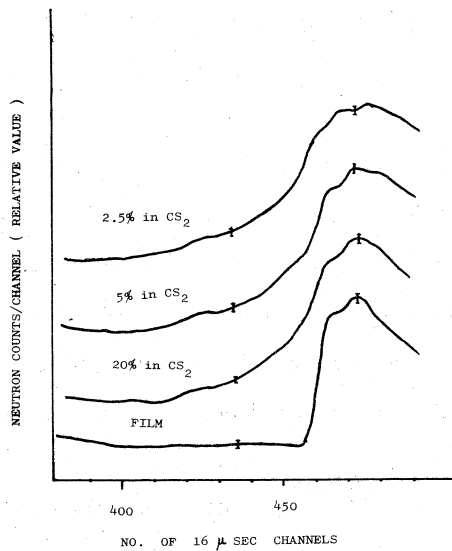


Figure 2. Enlarged quasi-elastic peaks of Figure 1.

Figure 1 shows the time-of-flight spectra of polystyrene solution in carbon disulfide (the concentration, 2.5, 5 and 20 w %), together with that of polystyrene film of 0.5 mm in thickness. While polystyrene film showed fairly well-resolved peaks, the spectra of solutions were generally broad and the resolution was reduced as the concentration decreased. Especially, the half width of quasi-elastic peak around 450 channel was remarkably influenced. It would be noteworthy that the peaks in high energy regions ( >350 channels) were sensitively affected by the concentration while quasi-elastic peak was slightly affected. Macroscopic viscosity of solution decreases remarkably with dilution, which might be responsible for reduced intensity and ill-resolved peaks in high energy transfer regions. On the other hand, the quasi-elastic peak was scarcely affected by the concentration. This peak is closely related with the diffusive long time motions of segment corresponding to a continuum of very small energy transfer and segmental motions is expected to be affected not by macroscopic viscosity of solutions but by hydrodynamic interaction between segments only.

Analyzing the broadening of the edge of beryllium filtered neutron spectra, Larson and Dahlborg<sup>1</sup> estimated the effective self-diffusion coefficient for glycerol from the line width curves plotted against  $Q^2$ : line width broadening  $\Delta E$  is related with  $D$  as follows,

$$\Delta E = \frac{2\hbar}{I_0} \left( 1 - \frac{e^{-x^2 Q^2}}{1 + Q^2 D I_0} \right)$$

Similar method would be applicable for the investigation of microbrownian motion of polymers. For this purpose, the compilation of experimental data with various scattering angles and incident (or scattered) neutron energies are necessitated.

1) K.E. Larsson and U. Dahlborg, *Physica*, 30, 1561 (1964).

## II-11 電子リニアックを用いたMn酸化物 からの中性子常磁性散乱

### Neutron Paramagnetic Scattering from Mn Oxides Using Electron Linear Accelerator

東北大核理研,\*東北大理学部物理  
渡辺 昇・石川義和\*・都筑一雄\*

#### 概 要

電子リニアックによって発生したパルス中性子源を用いて中性子非干渉性非弾性散乱を測定する方法を検討し、新しい分光器を設置した。これはパイロリティックグラファイトをモノクロメータに用いてパルス中性子を単色化し、その散乱中性子のエネルギースペクトルをTOF法で検出する方法である。この分光器を用いて種々のMn化合物からの常磁性散乱を測定した。この研究の主たる目的はこれら酸化物中で最も重要な役割を果たしているMn-Mn直接相互作用を決定し、その起因を追究することである。まず上記の装置を用いてこれら酸化物からの常磁性散乱が5時間程度の測定時間で十分に測定できることがわかった。その予備的結果について示す。

#### Abstract

A New type of Spectrometer to measure the neutron incoherent inelastic scattering has been installed to the pulsed neutron source produced by the Tohoku electron linear accelerator. The monochromatized pulse neutron beam has been obtained by the Bragg reflection from the large pyrolytic graphite plate with mosaic spread of  $3.5^\circ$  which has been placed about 2.7 meters far from the pulse neutron source. A counter bank composed of 6  $BF_3$  counters which has been placed about 2 meters apart from the sample with the glancing solid angle of 0.025 ster. has detected the scattered neutrons. The installation has been used to detect the neutron paramagnetic scattering from the various manganese oxides. The investigation has been aimed to determine the direct interaction between the  $Mn^{2+}$  ions in oxides which has been

---

N.Watanabe : Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University.

Y.Ishikawa and K.Tsuzuki : Department of Physics, Faculty of Science, Tohoku University.

reported to play an important role in the magnetic interaction in these magnetic compounds. It has been found that five hours operation is sufficient to accumulate the data for energy spectra of the scattered neutrons with reasonable energy resolution and fairly good signal to background ratio if the incident neutrons with the wavelength of about  $4 \text{ \AA}$  is used. A preliminary result obtained for  $\text{MnO}$ ,  $\text{MnTiO}_3$  and  $\text{MnGeO}_3$  has been presented.

## 1 序 論

パルス中性子源が中性子非干渉性散乱にとって優位である事は理論的には指摘されている事であるが、これを実証し、かつパルス中性子源の新しい利用法を確立するために非干渉性非弾性散乱用中性子分光器を開発しこれを設置した。この分光器は磁性体の常磁性散乱、 $f$  や  $d$  電子レベル間遷移散乱、磁性体や格子の局在モードによる散乱、液体、非晶体等の非弾性散乱研究に適しており広い分野での使用が期待されている。われわれの持った第一の興味は、この種の散乱研究が、東北大ライナック程度の中性子源で出来るか否かという事であったが、これは下記に示す方法で十分に可能であることが判明した。

次に具体的なテーマとしてまず  $\text{Mn}$  酸化物の常磁性散乱を取り上げた。これは一つには  $\text{Mn}^{2+}$  がスピン  $S = \frac{5}{2}$  を持ち、最も大きな散乱断面積を持っているためであるが、他にはこの常磁性散乱によって  $\text{Mn}^{2+}$  間の磁気相互作用を決定することを目標としたからである。常磁性散乱による中性子の散乱断面積は、多結晶で運動量変化  $Q$  が大きい場合 ( $Qr \gg 1$ ) は

$$\frac{d^2 \sigma}{d\Omega d\omega} = \left( \frac{e^2 r}{mc^2} \right)^2 \frac{\hbar f}{\hbar_0} |f(Q)|^2 \frac{2}{3} NS(S+1) \frac{Z}{\sqrt{2\pi \langle \omega^2 \rangle}} \exp\left(-\frac{\omega^2}{2\langle \omega^2 \rangle}\right) \quad (1)$$

で表わせる。この式で  $\langle \omega^2 \rangle$  は 2 次のモーメントで

$$\hbar^2 \langle \omega^2 \rangle = \frac{8}{3} S(S+1) \sum_r (J(r))^2 \quad (2)$$

なる関係でこの物質の磁気相互係数  $J(r)$  と結びついている。そこで測定されたエネルギースペクトルの指数関数の係数から、 $J(r)$  の和を決定することが出来る。本研究では特に  $\text{Mn}$  酸化物の中で  $\text{Mn}-\text{Mn}$  直接相互作用が最も重要な役割を果たしていると考えられる。  $\text{MnTiO}_3$  (ilmenite),  $\text{MnGeO}_3$  (pyroxene 及び ilmenite) を研究対象に選んだ。これはこれらの物質について厳密にこの直接相互作用係数を決定する事によって、直接相互作用の起因を研究するためである。直接相互作用は  $\text{Mn}^{2+}$  の  $d$  軌道のお互いの重畳に強く依存する相互作用で、酸化物中の  $d$  バンドと深い関連を持つと考えられ、現在の中心研究課題の 1 つである。



## II 実験方法

### A. 中性子分光器

Fig. 1 に測定に用いた中性子分光器の概念図を示した。単色中性子束を得るためにパイロリテックグラファイト板をモノクロメータとして、パルス中性子源の垂直上部、線源から約 2.7 m の位置においた。垂直ビーム孔を用いたのは線源の最も近くにモノクロメータを置くことができる理由と、比較的大口径のビームが取出せるため、モデレータ上部にはこの目的のための改造がなされた。パイロリテックグラファイトはモザイクの拡がり  $3.5^\circ$  のオリエント結晶  $2'' \times 2''$  を 5 枚平面状に揃べた (全面積  $125 \text{ cm}^2$ )。このモノクロメータをブラッグ反射が起るように設定した。これは図中のモニタの計数率が最大になるようモノクロメータのブラッグ角を遠隔操作により微調整して行なった。単色化中性子の波長は、粉末試料の場合、容易にブラッグ反射を避けることができることと、非弾性散乱スペクトルを非干渉性弾性散乱ピークから容易に分離できるエネルギー分解能を得ることができるため冷中性子を用いることが望ましく、本実験では  $\lambda \approx 4 \text{ \AA}$  に選んだ。Fig. 2 はこのモニタによって検出された単色化中性子であるが、結晶の高次反射に相当して、 $\lambda = 4 \text{ \AA}$  だけでなく、 $\lambda/2$ 、 $\lambda/3$ 、 $\lambda/4$  の波長の中性子が非常に高次まで同時に得られている。線源から試料までの距離  $L_1$  が試料から検出器までの距離  $L_2$  より大きい時には、波長  $\lambda$  の入射中性子にかかわる散乱スペクトルは、 $\lambda/2$  にかかわるスペクトルと重ならない。試料は約 200 gr の粉末をアルミ板で作ったカセット ( $10 \times 15 \times 0.5 \text{ cm}^3$ ) に収めてモ

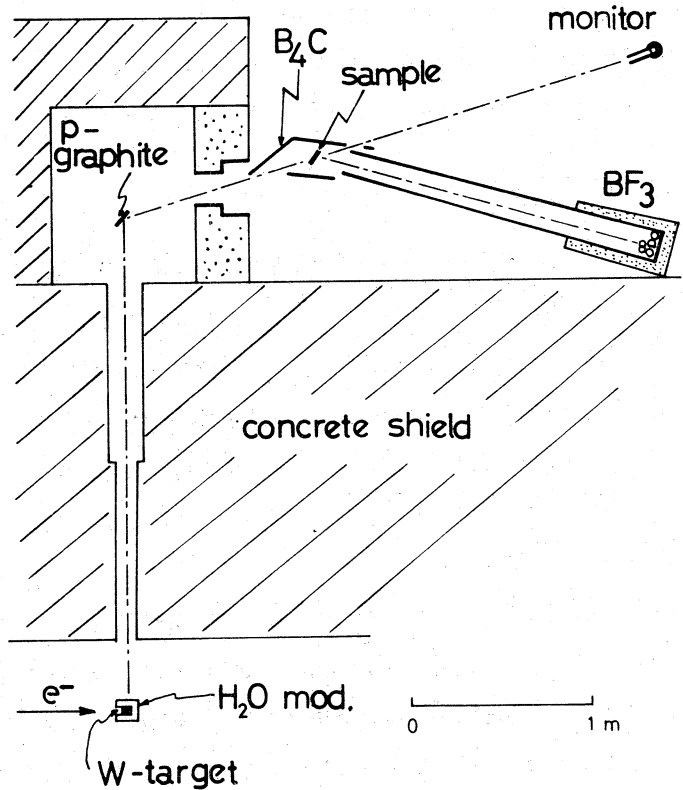


Fig. 1 Schematic diagram of the experimental set-up.

した。これは図中のモニタの計数率が最大になるようモノクロメータのブラッグ角を遠隔操作により微調整して行なった。単色化中性子の波長は、粉末試料の場合、容易にブラッグ反射を避けることができることと、非弾性散乱スペクトルを非干渉性弾性散乱ピークから容易に分離できるエネルギー分解能を得ることができるため冷中性子を用いることが望ましく、本実験では  $\lambda \approx 4 \text{ \AA}$  に選んだ。Fig. 2 はこのモニタによって検出された単色化中性子であるが、結晶の高次反射に相当して、 $\lambda = 4 \text{ \AA}$  だけでなく、 $\lambda/2$ 、 $\lambda/3$ 、 $\lambda/4$  の波長の中性子が非常に高次まで同時に得られている。線源から試料までの距離  $L_1$  が試料から検出器までの距離  $L_2$  より大きい時には、波長  $\lambda$  の入射中性子にかかわる散乱スペクトルは、 $\lambda/2$  にかかわるスペクトルと重ならない。試料は約 200 gr の粉末をアルミ板で作ったカセット ( $10 \times 15 \times 0.5 \text{ cm}^3$ ) に収めてモ

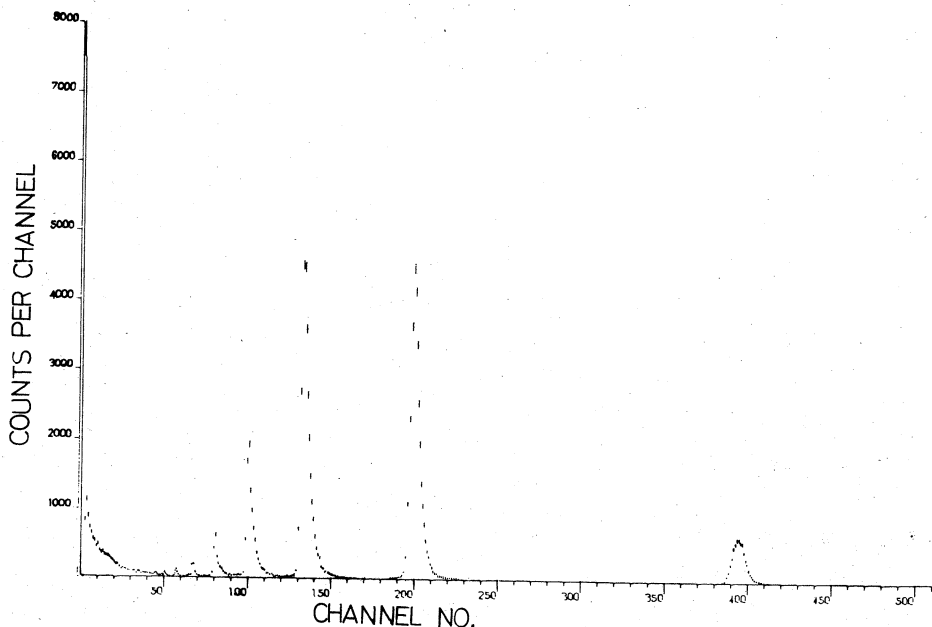


Fig. 2 Incident Monochromatic Neutrons.

モノクロメータから 113.5 cm の位置に置いた。散乱中性子の検出は  $BF_3$  カウンター (2"  $\phi \times 20$ ", 96%  $B^{10}F_3$  ガス 900 mmHg 充填) 6 本を前 2 本後 4 本束ねて 1 つの遮蔽材の中に収め、散乱角  $2\theta = 34^\circ 08'$  で試料からの距離  $L_2 = 197.8$  cm のところに置いて行った。これは  $\lambda = 4 \text{ \AA}$  に対しては、 $Q = 4\pi \sin \theta / \lambda = 0.91 \text{ \AA}^{-1}$  に相当する。このような配置の時、モノクロメータ線源間のコリメーションは  $\alpha_1 = 0.033$ 、モノクロメータ-試料間のそれは  $\alpha_2 = 0.053$  で入射中性子の波長のひろがり  $\Delta\lambda$  は  $4 \text{ \AA}$  の場合、 $\Delta\lambda / \lambda = 1/40 = 2.5\%$  である。また中性子源が試料を見る立体角  $\Omega_1$  は約  $5 \times 10^{-4}$  ster., 試料が検出器を見る立体角  $\Omega_2$  は 0.025 ster. である。 $4 \text{ \AA}$  の単色化中性子が試料を照射する時間のゆらぎ  $\Delta t$  は、モデレータの冷中性子放射時間及び波長のひろがり  $\Delta\lambda$ 、距離のひろがり  $\Delta L$  の効果を含め約  $\Delta t = 150 \mu\text{s}$  と推定される。また全試料に照射する  $4 \text{ \AA}$  中性子の強度は約  $1 \times 10^5$  n/sec である。

#### B. 試料

$MnTiO_3$  は  $Mn_3O_4$  と  $TiO_2$  の混合物を  $CO_2$  ガス雰囲気中で 8 時間  $1350^\circ C$  で焼成して作製した。一方  $MnGeO_3$  は  $MnO$  と  $GeO_2$  の混合物を空気中で 2 時間  $1100^\circ C$  に保った後、空气中に急冷することによって得た。 $MnO$  は  $Mn_3O_4$  を水素中に  $1000^\circ C$  2 時間保つことにより得た。Table 1 にこれら三物質の物理的性質を列記した。

Table 1

|                      | MnTiO <sub>3</sub> | MnGeO <sub>3</sub> | MnO           |
|----------------------|--------------------|--------------------|---------------|
| Symmetry             | rhombohedral       | Orthorhombic       | Cubic         |
| Space - Group        | $R\bar{3}$         | P bca              | Fm $\bar{3}m$ |
| Structure            | Ilmenite           | Orthopyroxene      | rock salt     |
| $T_N$                | 63.5 °K            | ~ 10 °K (不明)       | 117 °K        |
| Mn - Mn distance     | 3.04 Å             | 3.12 Å             | 3.14 Å        |
| Angle of Mn - O - Mn | 87.9 °             |                    | 91.6 °        |

### III 実験結果と議論

Fig. 3, Fig. 4, および Fig. 5 はそれぞれ MnO, MnTiO<sub>3</sub>, MnGeO<sub>3</sub> に対して得られた TOF スペクトルである。チャンネル幅は 16  $\mu$ s である。300 ~ 400 チャンネルに見られるのが 4 Å 入射中性子に対する散乱でピークは非干渉性弾性散乱によるものである。常磁性散乱スペクトルが、このピークの低チャンネル側に分離してみられる。200 チャンネル以下に  $\lambda/2$ ,  $\lambda/3$  …… の入射中性子に対する散乱がみられるが、ここではとりあえず 4 Å に関するスペクトルだけに着目することとする。すでに述べた如く、4 Å 中性子の高エネルギー側への散乱は  $\lambda/2$  のスペクトルとよく分離されている。 $\lambda/2$  よりの低エネルギー側への散乱は  $\lambda$  の高エネルギー側への散乱

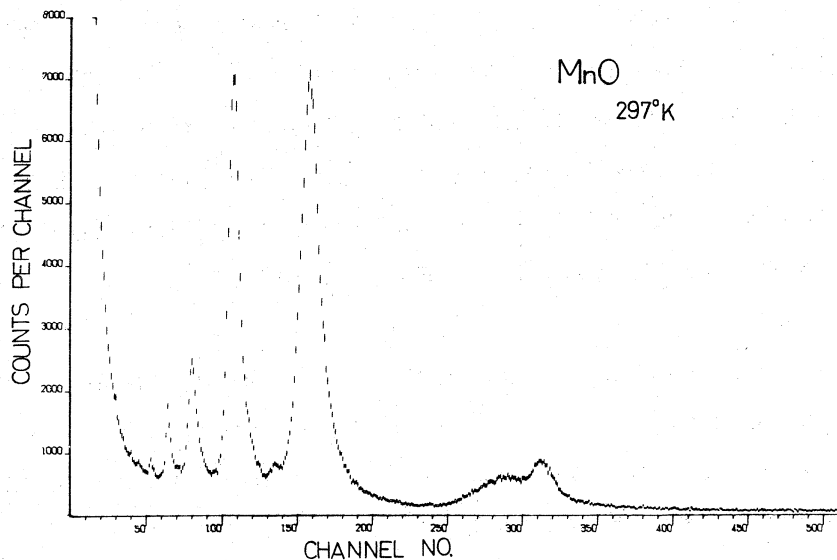
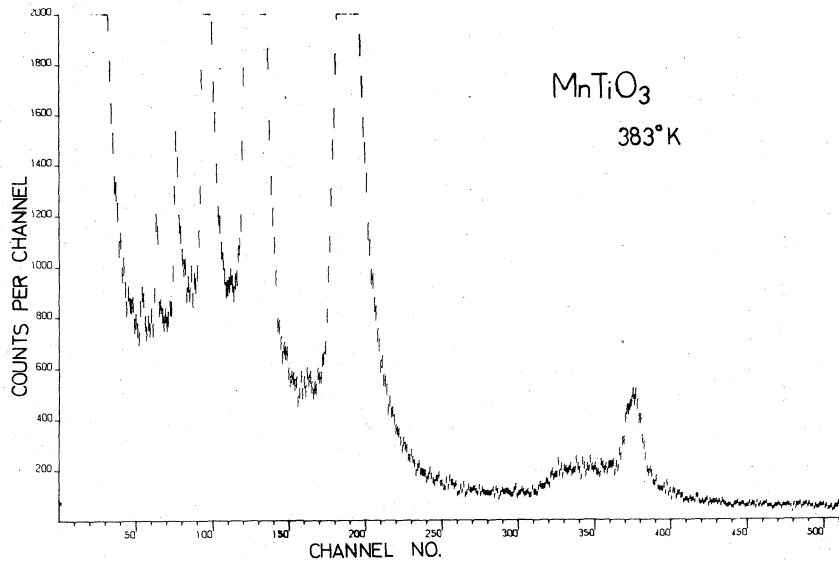
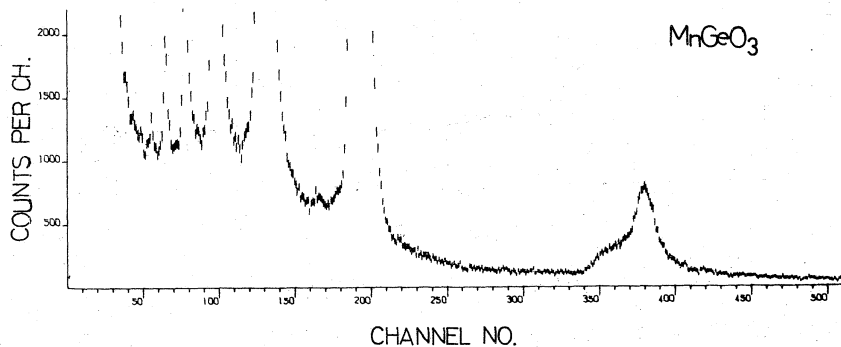


Fig. 3 TOF Spectrun from MnO

Fig. 4 TOF Spectrum from  $\text{MnTiO}_3$ Fig. 5 TOF Spectrum from  $\text{MnGeO}_3$ 

と重なっているはずであるが、前者はTOFのため殆んど単調なバックグラウンドを形成しており特に問題とならない。 $\text{MnO}$ の場合は $\text{MnTiO}_3$ 、および $\text{MnGeO}_3$ の場合よりもモノクロメーター試料間の距離をせばめて分解能を上述の値より多少落してある。この三者の場合とも測定時間はほぼ5時間程度である。現在JJR-2に設置されてある中性子分光器と同様にMn酸化物の常磁性散乱を測定すると平均1スペクトルを得るのに50時間程度かかることを思うと、線源強度がJJR-2に比べて2桁低い中性子源でこの様に高効率で測定出来ることは驚くべきである。これは主として $\Omega_1$ 、および $\Omega_2$ が大きいためであり、所要のエネルギー分解能を損なうことなくこの様に大きな立体角を取り得るのがパルス中性子源および非干渉性散乱の1つの特徴であると言えるであろう。この事はすでに序論で述べたようにこの様な常磁性散乱研究にパルス中性子源が適している事を示

している。またこれらの図から明らかな如く、冷中性子散乱の近傍でのバックグラウンドは非常に小さい。これは真のパルス中性子源を用いているための大きな長所である。

これら冷中性子散乱のTOFスペクトルから常磁性散乱を求めるためにはいくつかの補正が必要である。第一の補正はバックグラウンドの除去であるが、これはスペクトルの裾が非常によく単一指数減衰にフィッティングできるので、その内挿により行った。この様子を $\text{MnGeO}_3$ の場合についてFig. 6に示す。

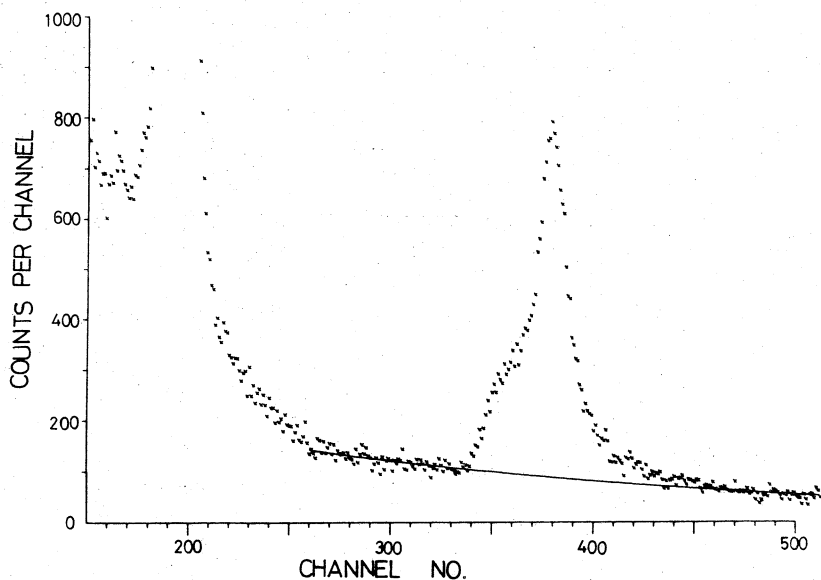


Fig. 6 Background subtraction ( $\text{MnGeO}_3$ )

第二は空気からの散乱の補正であるが、これは意外に大きい事がわかった。Fig. 7は試料の位置に何も置かなかった時の散乱スペクトルで、そのエネルギーの広りは $\text{MnGeO}_3$ の常磁性散乱のそれとほぼ一致している。しかしこの空気の散乱スペクトルを直接、常磁性散乱から差引くと引

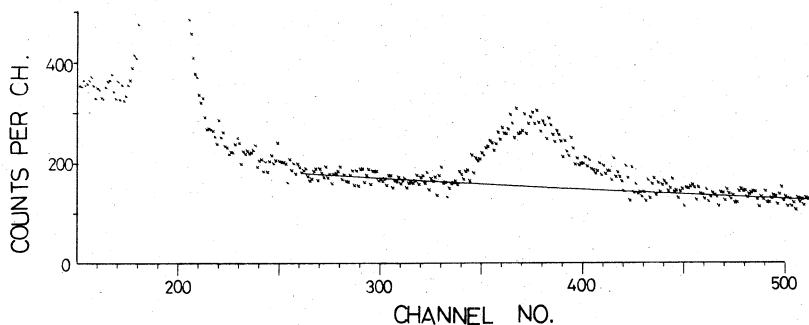


Fig. 7 Air scattering

き過ぎる事になる。これは実際には試料が存在するため、試料の遮蔽効果により空気による散乱の影響が、試料のない時に比べ減少するためである。そこでこの補正をするために  $\text{MnGeO}_3$  と吸収および非干渉性散乱断面積がほぼ等しく、かつ幾何学的形状の等しい模擬試料 ( $\text{Se} + \text{CuCl} + \text{Al}$ ) を作成して空気散乱の影響をたしかめた。Fig. 8はこの模擬試料のTOFスペクトルである。

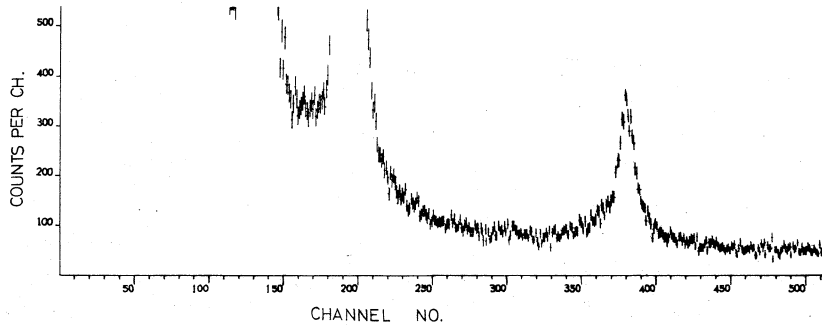


Fig. 8 Air Scattering and incoherent elastic scattering measured by simulated sample to  $\text{MnGeO}_3$ .

第三の補正は装置の分解能である。今角度分解能を無視すると、装置のエネルギー分解能関数  $R(\omega)$  はほぼガウス関数

$$R(\omega) = R_0 e^{-\omega^2 / \omega_0^2} \quad (3)$$

で表わすことが出来る。この  $\omega_0^2$  は非干渉性弾性散乱の半値幅から求めることが出来る。この時実測される散乱断面積  $I(\omega_1)$  は

$$I(\omega_1) \propto \int R(\omega) \frac{d^2 \sigma}{d\omega d\Omega}(\omega - \omega_1) d\omega \propto e^{-\omega^2 / \omega_m^2} \quad (4)$$

のように真の散乱断面積と分解能関数の積の形で求められ、これも簡単な計算でガウス関数形をしている事がわかる。この時実験的に求められる  $\omega_m^2$  は

$$\omega_m^2 = \langle \omega^2 \rangle + \omega_0^2 \quad (5)$$

なる関数で結びついている。ヴァナジウムの非干渉性弾性散乱の実測によると  $\hbar^2 \omega_0^2$  は  $0.18 (\text{meV})^2$  であった。

Fig. 9は  $\text{MnTiO}_3$  の散乱スペクトルの中、中性子のエネルギーが増加した散乱に関し、エネルギー変化の2乗を散乱強度の対数に対して画いたセミ対数プロットである。この図が示すように散乱強度はたしかにエネルギー変化に対して(1)式に示したようなガウス分布をしている。この図の傾斜から  $\langle \epsilon_m^2 \rangle = \hbar^2 \langle \omega_m^2 \rangle$  を求め、更に装置の分解能を補正すると真の2次のモーメントは  $\hbar^2 \langle \omega^2 \rangle = 46.9 (\text{meV})^2$  と求められる。 $\text{MnTiO}_3$  の反強磁性構造は2次元蜂の巣格子をしており、相隣るスピンはすべて反平行でかつ最近接スピン数は3であるので、最近接相互作用(直

接相互作用)以外の相互作用を無視すると(2)より  $J_{nn} = 0.826 \text{ meV}$  が求められる。これは分子場近似を用いて高温の磁化率より求めた値  $J_{nn} = 1.03 \text{ meV}$  よりかなり小さい。

一方  $\text{MnGeO}_3$  については、前述の模擬試料による空気の散乱スペクトルを差引いた後同様の補正をする事によって、 $k^2 \langle \omega^2 \rangle = 6.16$  ( $\text{meV}^2$ ) が求められた (Fig. 10)

この値から  $J_{nn}$  を推定するためには正しい反強磁性構造が知られていなければならない。現在のところこれ

は未定であり、この構造決定はまず今後の最初の課題である。

#### IV 結 論

以上の実験によってまず Mn 化合物の常磁性散乱は上記の装置で十分になし得る事がわかった。しかし補正、特に空気散乱に対する補正については模擬試料を用いても正確さを欠くので試料を含む中性子の全飛行行路を真空にすることが欲求される。次に非干渉性弾性散乱ピークをどのようにして差引くかが、より正確な  $\langle \omega^2 \rangle$  を求める上で重要となろう。又異った散乱角での測定を行う

事により、上記の測定では無視した散乱断面積の運動量変化  $Q$  依存性を正確に求める事も測定精度を高めるために必要であろう。これらの点を考慮しさらに別の試料を追加して物理学上興味ある結果を得るのが今後の課題である。

最後にこの研究に対して試料作製については神木氏および田島氏、測定に際しては新村氏の協力を頂いた。ここに感謝します。

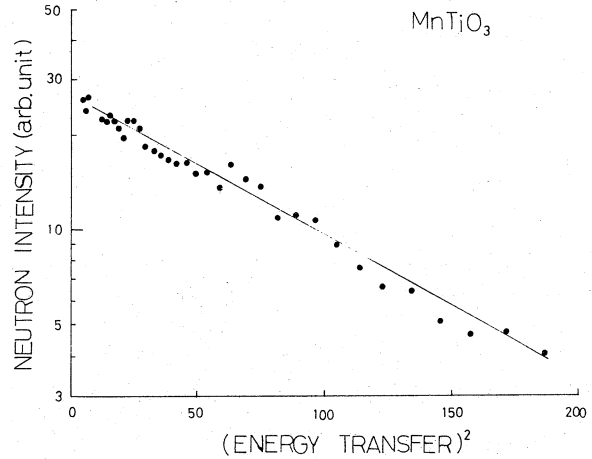


Fig. 9 Semi-logarithmic plot of the scattered neutron intensity against the square of the energy transfer of  $\text{MnTiO}_3$  at  $383^\circ\text{K}$

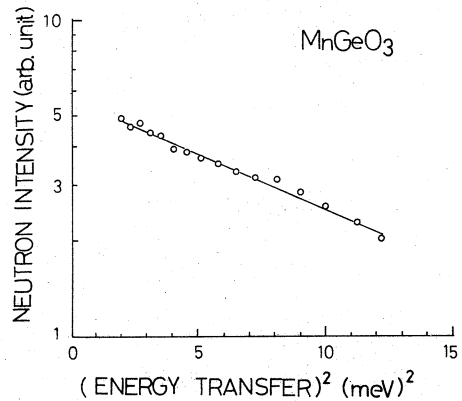


Fig. 10 Semi-logarithmic plot of the scattered neutron intensity against the square of the energy transfer of  $\text{MnGeO}_3$  at room temperature

## Ⅱ-12 半導体中性子検出器実験報告

東京大学物性研究所

高橋 四郎

### はじめに

昭和47年9月東北大学核理研ライナックによる半導体中性子検出器の研究について概要を報告する。

数年来半導体を主材とした中性子検出器の基礎研究を重ね、今年度は特に試験研究費により実験設備の拡充と、半導体無欠陥結晶の作成などから検出器の特性及び性能の向上を図ることを意とした。これまで検出器の計測に使用した中性子源は日本原子力研究所JRR-2, JRR-3原子炉に設備された東京大学物性研究所中性子回折用モノクロビームである。この単色化された熱中性子領域での検出効率等の性能については、すでに広く使用されている検出器BF<sub>3</sub>カウンターと比較し同程度の性能を有していることが究明されている。しかし、エネルギー依存性、 $\gamma$ -線効果などについてはまだ実験的に究明していない。そこでライナック線源を用いてエネルギー依存性及び $\gamma$ -線効果について、実験的にその特性を求めることが今回の主な実験目的である。

### 実験と結果

- 1) 中性子回折装置の提供を受け、同一バナジウム試料の非干渉性散乱中性子線を、設備されているBF<sub>3</sub>カウンターと実験用半導体検出器を用いて同時観測を試みた。その結果BF<sub>3</sub>カウンターに就いては充分その散乱中性子線は観測されたが半導体検出器については観測されなかった。
- 2) 次に反射率の高いグラファイト単結晶のブラッグ反射の観測を行なった。結果をFig. 1に示す。比較すべきBF<sub>3</sub>カウンターの効率については、これまで核理研中性子回折研究者によって充分確認されており今回の半導体検出器は10%程度の検出効率であるということである。したがって始めに試みたバナジウム試料の観測では、散乱中性子線の強度が弱いため半導体検出器では観測できなかったものと考えられる。以上のように目的とした事項について充分解明されずに本実験を終了した。

### 結 言

検出効率の低下によって目的を果すことができなかったが検出器の特性及び性能測定にライナッ



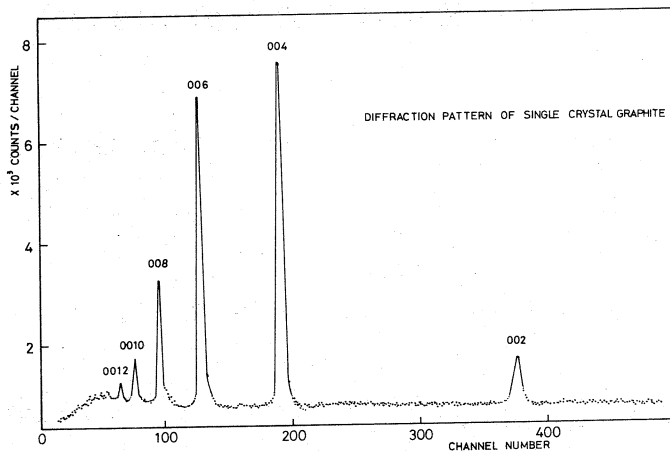


Fig. 1

クを使用すると能率よく実験を進めることができ大変有効であることが理解できた。検出効率の劣下原因については以後解明すべきことであるが、特に今回使用した検出器は新実験設備によって製作したもので、過去に製作した検出器とその特性を比較した時電気特性については、数倍精度の高い値を得ている。しかし、中性子線の検出、計測については原子炉の休止などによりあらかじめ試みなかったことは不備な点であった。

最後に、実験方法、実験条件などについて指導を受けた渡辺、新村両氏又、従来検出器と電氣的結合を異にする一連の計測処理に御努力載いた小山田、窪田、武藤各氏に感謝の意を表します。

以上

## Ⅱ-13 パルス電子線によるイオン結晶の光学的研究(8)

理学部 物理

上田正康・平井正光・吉成武久

唐沢 力・勝山俊夫

### 1 序

アルカリ・ハライド結晶に、高エネルギー放射線を照射すると色中心が作られるが、その生成機構は次の様に考えられてきた。放射線照射により結晶中にイオン化されたハロゲン分子( $X_2^-$  中心)が作られ、これに自由電子が捕獲される。この電子は一重項( $^1\Sigma_u^+$ )又は三重項( $^3\Sigma_u^+$ )準位に緩和し、その後無輻射的に基底状態に遷移する際のエネルギーで、緩和励起子( $X_2^- + e$ )の中の一つのハロゲン原子 $X^0$ が格子間に押し出され、いわゆる $H$ 中心となり、一方後に残った負イオン格子点に電子が一個残って $F$ 中心が作られる。この機構を励起子機構<sup>1)</sup>と呼んでいる。この色中心生成機構を明らかにする目的で、結晶にパルス電子線(エネルギー 30MeV, ピーク電流 0.5 A, 時間巾 $\sim 10$  n sec)を照射し、結晶中に過渡的に生ずる色中心、及び $^3\Sigma_u^+$ 準位の励起子の生成消滅を、光学的手段を用いて測定してきた。前回迄の実験から、KClについては、 $^3\Sigma_u^+$ 準位の励起子から直接 $F$ 中心が生成されるのではないことが明らかにされ、上記励起子機構は妥当でないことが判った。又KBrについても同じ結論に達している<sup>2)</sup>。一方液体ヘリウム温度(LHe T)でKI, 又はNaClに放射線照射すると、 $^1\Sigma_u^+$ 及び $^3\Sigma_u^+$ 準位の電子は、発光(固有発光)を伴って基底状態へ遷移する。この発光強度は、100 K又は70 K以上の高温では消滅し、それと相補的に $F$ 中心生成効率が大きくなる。このことから上記の励起子機構が提案されたのである。従ってもし $^1\Sigma_u^+$ や $^3\Sigma_u^+$ の緩和励起子のエネルギー放出で $F$ 中心が作られるのなら、固有発光効率が減少し、 $F$ 中心の生成効率が大きくなる温度では、 $F$ 中心は緩和励起子の寿命に等しい時定数で生成されることが期待される。このことを確かめるために、KI, NaClについて $F$ 中心、及び $^3\Sigma_u^+$ 準位の緩和励起子の過渡的生成消滅を測定した。測定に用いた実験装置は従来のもと同じである。

今回はこれに加えて、次に述べる新しい予備実験を行った。ライナックの電子線パルスは、R. F. のマイクロ波で加速されるために、bunchされて、picosec 時間巾の微細電子線パルス列を形成している。又空気中で $\sim 21$ MeV以上のエネルギーの電子は、Cerenkov 輻射をおこす。これらのライナック電子線の性質を利用して、picosec 領域の光学的過渡現象を調べることが可能である。特に今迄の測定で、電子線パルスの中( $\sim 10$  ns)以内で生成されている色中心の生成過程が、

picosec 領域で解明され、色中心生成機構に関して、新しい直接的な知見が得られるものと期待される。

## 2 結果及び考察

### 2-1 NaCl

LHeTでNaCl結晶にパルス電子線を照射すると、610 m $\mu$ 付近の波長領域に、光学吸収帯が現われる。この吸収帯の高さを optical density (OD) で表わし、パルス電子線照射後の時間変化を Fig. 1 に示す。

Fig. 1で、縦軸はODを対数目盛で、横軸は時間を表わしてある。この吸収帯はパルス電子線の照射時間内(< 10 ns)に成長している。その後時定数( $\tau_d$ ) $\sim$ 240  $\mu$ sで指数関数的に減少するのが判る。この減衰時定数は、固有発光の実験から求められた $^3\Sigma_u^+$ 準位の寿命とほぼ等しく、Fuller<sup>3)</sup>

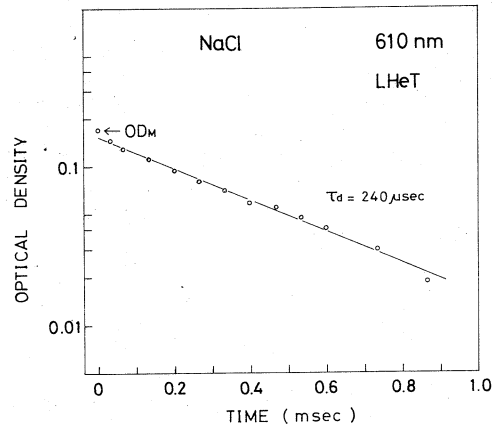


Fig. 1

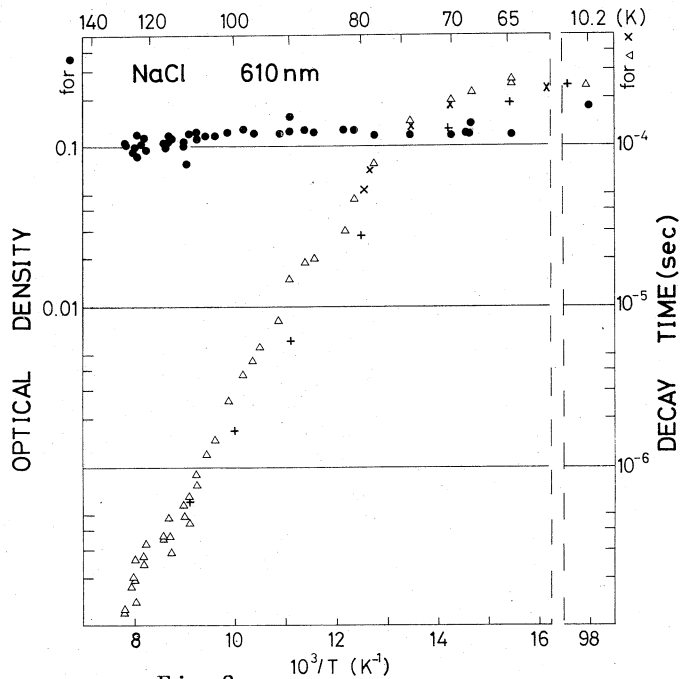


Fig. 2

等が指摘したように、この吸収帯は  ${}^3\Sigma_u^+$  から更に上の準位への遷移に伴う吸収である。

70 K 以上の温度では、 $\tau_d$  は Fig. 2 に (△) で示すように温度上昇と共に減少する。一方  ${}^3\Sigma_u^+$  準位からの固有発光の減衰時定数<sup>4)</sup>も、(×) で示すように、70 K 以上では減少し、その強度 (+) 印 (又は発光効率)<sup>5)</sup>も同じ温度領域で減少する。しかしこの吸収帯の、パルス電子線照射直後での高さ (Fig. 1 の  $OD_M$ ) は、Fig. 2 に (●) 印で示したように ~ 130 K まで、ほとんど一定である。このことから、電子線照射で作られた自由電子は、同じく電子線で作られた  $X_2^-$  中心の正孔に捕獲され、 ${}^3\Sigma_u^+$  準位の緩和励起子 ( $X_2^- + e$ ) が作られるが、自由電子に対する正孔の捕獲断面積は、温度にほとんど依存しないことが判る。又  $\tau_d$  と固有発光強度が 70 K 以上で減少するのは、この温度領域では  ${}^3\Sigma_u^+$  準位の電子が無輻射的に基底準位へ直接遷移するか或は一担伝導帯へ熱的に上げられた後、基底準位へ無輻射的に遷移するかのどちらかと考えられる。一方 NaCl の F 中心の吸収帯は LHeT で約 450 m $\mu$  にあるが、70 K 以下での電子線照射では F 帯はほとんど現われない。70 K 以上では、僅かに現われるが、その生成時定数は、10 ns 以下で、その後数 100  $\mu$ s でもほとんど減少しない。先に述べたように、 ${}^3\Sigma_u^+$  準位の緩和励起子の無輻射遷移に伴うエネルギー放出で F 中心が作られるのならば、 ${}^3\Sigma_u^+$  からの固有発光強度の効率が小さくなる 70 K 以上で、 ${}^3\Sigma_u^+$  の寿命を反映した時定数で F 中心が作られる筈であるが、F 帯生成の時定数には、そのような成分は見出されなかった。又 70 K 以上では、F 帯の生成量が固有発光強度の減少とは相補的に増加する筈であるが、今回の実験では、この温度領域での F 中心生成量の顕著な増加はみられなかった。以上の事実から、NaCl でも  ${}^3\Sigma_u^+$  準位の励起子のエネルギー放出に伴って F 中心が作られるという励起子機構は、妥当とは考えられない。

## 2-2 KI

KI 結晶については、前回報告したが<sup>6)</sup>、今回温度測定を精度を上げて、F 中心と  ${}^3\Sigma_u^+$  準位励起子の、生成消滅過程を調べた。今回は結晶に直接 Au:Fe-クロメル熱電対を固定し、結晶の温度を正確に測定した。

LHeT で KI に電子線照射すると、過渡的に 1000 m $\mu$  付近に吸収帯が現われる。この減衰時間は約 3  $\mu$ s で、 ${}^3\Sigma_u^+$  準位から基底準位への固有発光の減衰時間とは  $\sim$  等しいことから、この吸収帯は、 ${}^3\Sigma_u^+$  準位から更に上の励起状態への遷移に伴う光学吸収帯と考えられる。この吸収の減衰時定数は、Fig. 3 に (○) 印で示すように、90 K で約 1.5  $\mu$ s、100 K 以上で減少し始め、150 K で約 20 ns になる。これは Blair の固有発光の減衰時定数の温度変化測定 (Fig. 3 ▲印)<sup>7)</sup> と  $\sim$  一致している。

この吸収帯の高さは、NaCl と同様、電子線照射直後に最大になる。この吸収量 ( $OD_M$ ) を

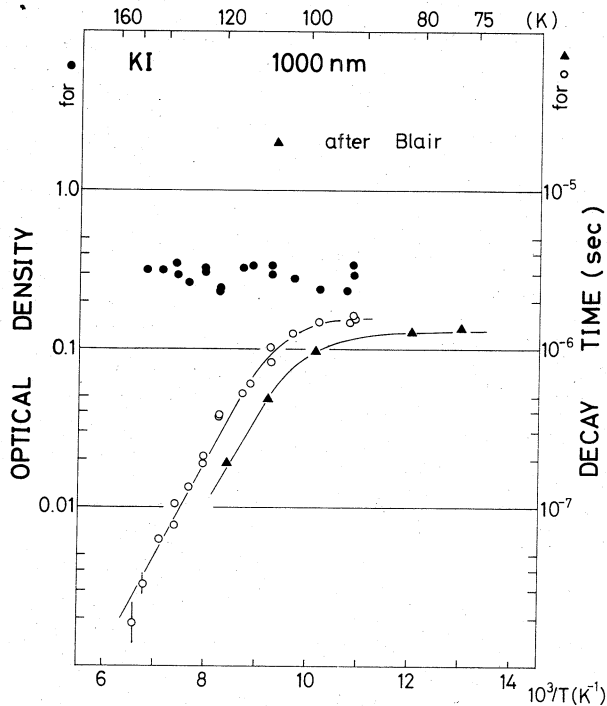


Fig. 3

Fig. 3 に (●) で表わしてある。KI に於いても温度に無関係に一定量の  ${}^3\Sigma_u^+$  準位の ( $X_2^- + e$ ) 緩和励起子が、過度的に作られていることを示している。前にも述べたように、KI の固有発光強度は 100 K 以上の高温では効率が減少する。一方それと相補的に、Fig. 4 に破線で示すように、 $F$  中心の生成効率は 100 K 以上では増加すると報告されている<sup>1)</sup>。パルス電子線照射でも、80 K 以下の温度で効率は悪いが、675 m $\mu$  付近に  $F$  帯が現われるので、その生成消滅の様子を調べた所、この  $F$  帯は、パルス電子線の時間巾 (< 10 ns) 内に成長し、その後ほとんど減少しないことがわかった。そこで照射後 20  $\mu$ s の  $F$  帯の高さを、種々の温度で測定した所、Fig. 4 に (○) で示すように、作られる  $F$  帯の高さは、90 K ~ 300 K の間でほとんど一定であった。これは破線で示した従来の測定方法による結果と著しく異なる。従来の方法では、X 線、電子線を結晶に照射後、結晶を吸収測定系に移し、光吸収を測定していた。従ってこの方法では結晶に安定に残っている色中心による光吸収しか測定出来ない。

前にも述べたように、この  $F$  中心生成効率と固有発光効率の温度に関する相補性から、励起子機構が提案されたのであるが、Fig. 4 の (○) に示した。我々の実験結果が正しいとすれば、この励起子機構は、KI に関しても再検討の必要があるので、今後パルス電子線による KI 中の  $F$  中心生成効率の温度変化を、更に正確に測定することが望ましい。

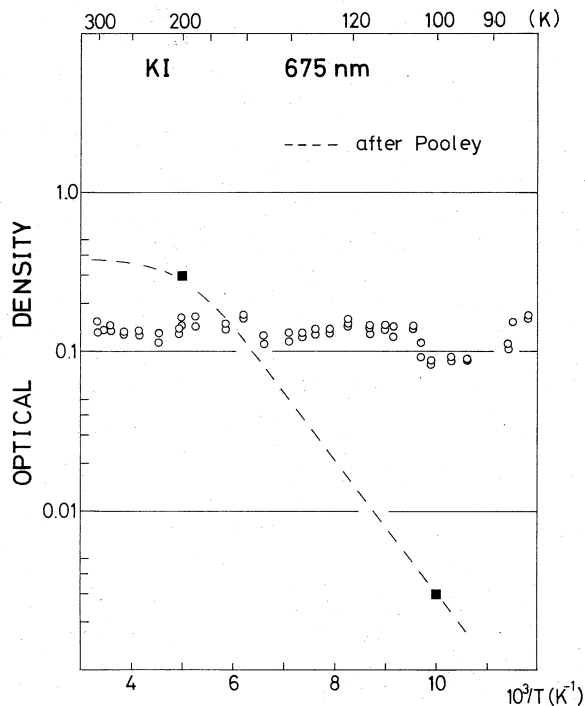


Fig. 4

### 2-3 $10^{-11}$ 秒領域での光吸収の時間変化の測定

KCl, KBr, KI, NaCl等現在まで測定してきたアルカリハライド結晶中に、種々の色中心や励起状態が作られるのに要する時間は、非常に早く、 $3\text{ ns}$ 以下であることが判ってきた<sup>7)</sup>。従ってこの生成機構及び励起状態の緩和機構を更に詳しく調べるためには、もっと速い時間内での光吸収の変化を測定出来る装置が必要である。前にも述べたように、ライナックの電子線は、R. F.で収束されているので、数 picosecの時間巾をもつ電子線パルスの列から成っている。この電子線と、これに伴うCerenkov放射とを用いて、数 ps - 数 100 ps 領域の時間内での吸収変化を測定する装置を準備し、その予備実験を行った。第一段階として、水の水和電子の生成消滅を ps 領域で観測するための予備実験を行ったが、ライナックの電子線照射によって生ずる水和電子による吸収は<sup>8)</sup>、数%程度であるため、S/N比が悪くて、現在の所、報告すべきデータが得られるに致っていない。

最後に、ライナックを運転して下さいました方々、多岐にわたり援助して下さいました小島、浦沢の諸氏に感謝致します。

## 文 献

- 1) D. Pooley, et. al. : Journal of Phys. C. Solid St. Phys. ; Vol. 3  
( 1970 ) 1815
- 2) 上田, 他 ; 核理研研究報告 Vol. 3 No. 1 ( 1970 ) 107  
" " Vol. 3 No. 2 ( 1970 ) 90  
" " Vol. 4 No. 1 ( 1971 ) 72
- 3) R. G. Fuller, et. al. ; Phys. Rev. Letters ; Vol. 25 (1970) 446
- 4) I. M. Blair, et. al. ; United Kingdom Atomic Energy Authority  
Research Group Report. 1971. AERE - R6906
- 5) M. Ikezawa, et. al. ; J. Phys. Soc. Japan ; Vol. 27 (1969) 1551.
- 6) 上田他 ; 核理研研究報告 Vol. 5 No. 1 (1972) 112
- 7) Y. Kondo, et. al. ; J. Phys. Soc. Japan ; Vol. 33 (1972) 151.
- 8) M. J. Bronskill, et. al. ; The Review of Scientific Inst. ; Vol. 41  
(1970) 333.

### III. 放 射 化 学 部 門



### Ⅲ - 1 核異性体転移による $^{80}\text{Br}$ と $\text{CH}_4$ との “熱イオン反応” に対する添加物の効果

理学部化学, 核理研\* 小林孝彰・八木益男\*  
近藤健次郎\*・塩川孝信

#### § 1 緒 言

核異性体転移によって励起された反跳臭素と媒体との再結合反応において運動エネルギーおよび電荷のはたす役割は、従来主として Kr 添加の効果にもとづいて、いくつかのアルカンおよびハロメタンとの反応について検討されてきた。<sup>1) 2)</sup> そのうち  $^{80\text{m}}\text{Br Br} - \text{CH}_4$  系では  $^{80\text{m}}\text{Br}$  の核異性体転移にともない  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$  とともに  $\text{CH}_2^{80}\text{Br Br}$  が生成するが、特に後者は Kr の添加によってもその収率が減少しない。この実験結果は、 $\text{CH}_4$  のイオン化電位が Br のそれより高いため反跳  $^{80}\text{Br}$  の一部は電荷の中和をまぬかれて熱平衡に達し、 $^{80}\text{Br}^+$  イオンの関与した“熱イオン反応”によって  $\text{CH}_2^{80}\text{Br Br}$  が生成するのだと説明されてきた<sup>1)</sup>。しかし  $\text{Br}^+$  イオンが関与して C-Br 結合が作られるというイオン-分子反応が質量分析法などで直接確認された例は報告されていない。

そこで  $\text{Br}^+$  イオンが関与しているという傍証を得る目的で、(1)イオン化電位の異なる比較的不活性の添加物を Kr の代りに加えて  $\text{CH}_2^{80}\text{Br Br}$  の収率に及ぼす効果を調べ、さらに(2)イオン-分子反応による  $\text{CH}_2^{80}\text{Br Br}$  の生成がエネルギー的に可能かどうかを検討した。添加物として、Ne, Ar, Xe,  $\text{CF}_4$ ,  $\text{CBrF}_3$ ,  $\text{CCl}_2\text{F}_2$  を用いた。

#### § 2 実 験

$\text{CH}_4$  および Ne, Ar, Xe は高千穂化学 KK より  $\text{CF}_4$ ,  $\text{CBrF}_3$ ,  $\text{CCl}_2\text{F}_2$  は Matheson 社より購入したものをそのまま使用した。他の試薬は純正化学 KK 製の特級品をそのまま用いた。 $^{80\text{m}}\text{Br Br}$  は東北大学電子ライナックの電子制動放射線(最大45~60 MeV)を照射した  $\text{Pd Br}_2$  を熱分解することにより得た。試料の調製、有機相、無機相への分離、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>3)</sup>

#### § 3 結 果

(1)  $\text{CF}_4$ ,  $\text{CBrF}_3$ , および  $\text{CCl}_2\text{F}_2$  は希ガスと異なり完全な不活性添加物ではない。すなわち

$\text{Br}_2/\text{CF}_4$ ,  $\text{Br}_2/\text{CBrF}_3$ , および  $\text{Br}_2/\text{CCl}_2\text{F}_2$  をそれぞれ 0.10 にした系の有機収率は  $0.34 \pm 0.03$ ,  $0.90 \pm 0.09$ , および  $0.95 \pm 0.09\%$  であった。

ラジオガスクロマトグラフィーによればいずれも 3~4 種類の生成物が認められた。これらは  $\text{C}^{80}\text{BrF}_3$ ,  $\text{C}^{80}\text{BrBrF}_2$ ,  $\text{C}^{80}\text{BrClF}_2$ ,  $\text{C}^{80}\text{BrCl}_2\text{F}$  などであるが他の高沸点生成物は適当な標準試料が得られず同定は行なえなかった。図-1に  $^{80}\text{m}\text{BrBr} - \text{CH}_4$  系に  $\text{CBrF}_3$  を 0.30 m. f. の濃度で添加した場合のラジオガスクロマトグラムを示した。Silicone D. C-550 1.5m,  $40^\circ\text{C}$  からの昇温を行なうと  $\text{C}^{80}\text{BrF}_3$ ,  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ ,  $\text{C}^{80}\text{BrBrF}_2$  の分離捕集は不可能でこの3つを一括捕集し fraction 1 とした。流速を小さくし  $0^\circ\text{C}$  からの昇温を行なえばこれら3つのピークを十分に分離することも可能であるが全体を分析するのに30分程度

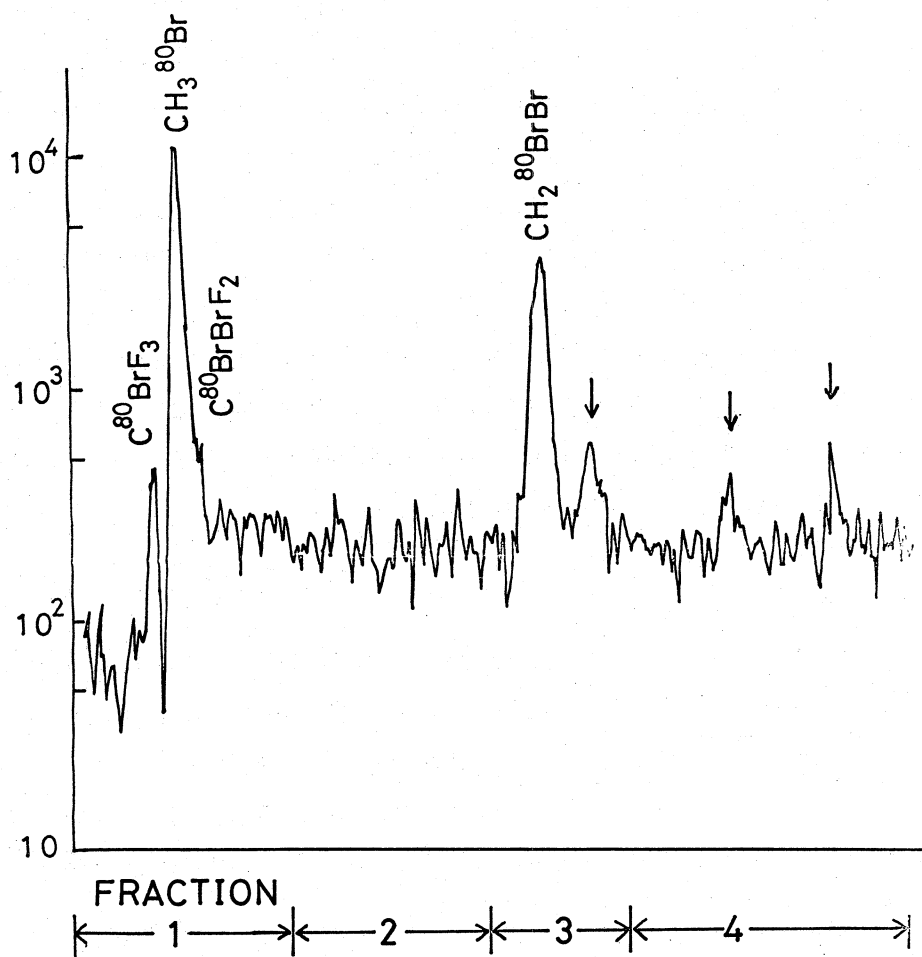
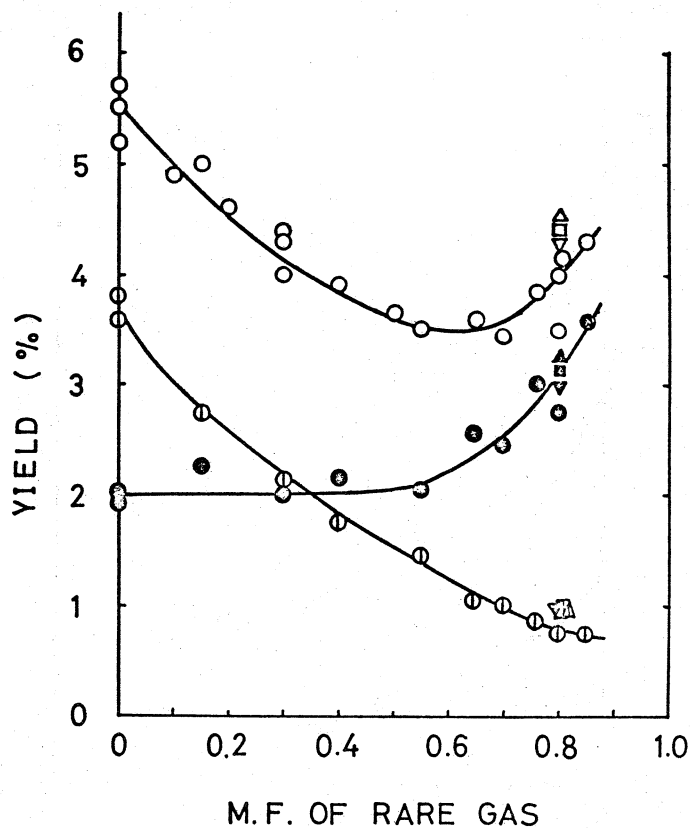


図-1  $^{80}\text{m}\text{BrBr} - \text{CH}_4 - \text{CBrF}_3$  系のラジオガスクロマトグラム  
( $\text{CBrF}_3$  0.30 m. f.)

かかるので今回は放射能の減衰の関係から一括捕集して分析時間を短かくした。 $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$ の後に3種のピークが見られるがこれらは $^{80\text{m}}\text{BrBr}-\text{CH}_4$ 系では確認されておらず $\text{CBrF}_3$ との反応生成物と思われる。特に $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$ の直後のピークは $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$ と十分に分離することが困難だったので $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$ と一括捕集した。 $\text{CF}_4$ ,  $\text{CCl}_2\text{F}_2$ を添加した系でも同様である。

(2) 図-2に希ガス添加系の収率の希ガス濃度依存性を示した。Ne, Ar, Xeは約0.8 m.f.の濃度の一点のみであるが、有機収率も各生成物の収率もKr添加系との間に有意の差は認められなかった。

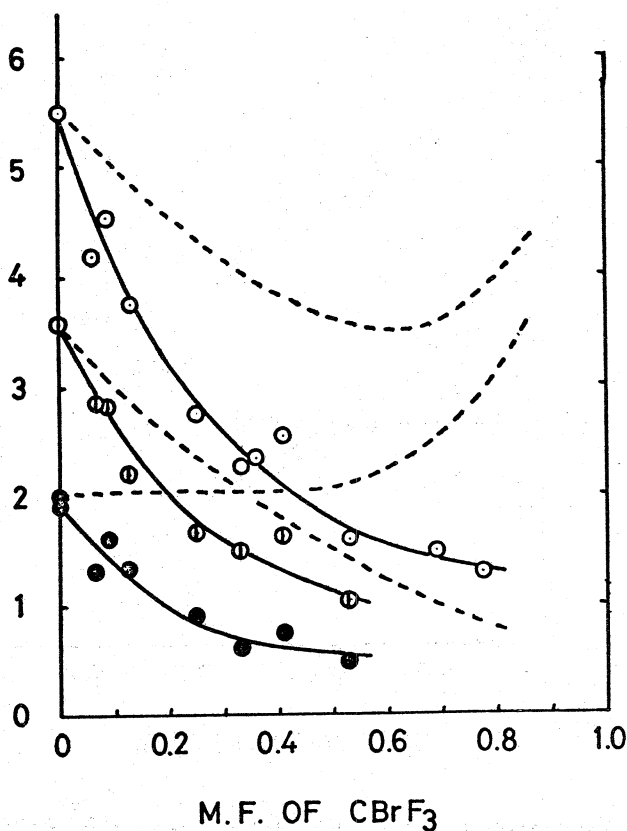


○ organic, ○●  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ , ●  $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$   
 ○● in Kr    △▲ in Ne    □■ in Ar    ▽▽ in Xe

図-2  $^{80\text{m}}\text{BrBr}-\text{CH}_4$ 系に対する希ガス添加効果

図-3～図-5に希ガスの代りに  $\text{CBrF}_3$ ,  $\text{CCl}_2\text{F}_2$ ,  $\text{CF}_4$  をそれぞれ添加物として用いた場合の収率の変化を示した。これらのフレオン添加系では有機収率の中にはフレオンとの反応による生成物が  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ ,  $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$  とともに含まれているが今回はこれを区別せずそのまま有機収率として示してある。比較のために Kr 添加系の収率の変化を破線で示した。

$\text{CBrF}_3$  を添加すると有機収率は急激に減少するがこれは  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$  を含む fraction 1 および  $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$  を含む fraction 3 両方の減少に対応している。特に fraction 3 は 0.2 m.f. までで  $1/2$  以下に収率が落ちこの濃度領域でまったく収率の変化が認められなかった Kr 添加系といちじるしく異なることがわかる。 $\text{CBrF}_3$  の濃度が高くなるとフレオンとの間の生成物が大きく寄与してくることを考慮すると、 $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$  収率は  $\text{CBrF}_3$  1 m.f. ではほ



○ organic, ⊙ fraction 1  
fraction 3, ---- Kr system

図-3  $^{80}\text{BrBr}-\text{CH}_4$  系に対する  $\text{CBrF}_3$  添加効果

ばゼロに外挿されるように思われる。図-4の  $\text{CCl}_2\text{F}_2$  添加系でも結果は  $\text{CBrF}_3$  添加系にはほぼ一致しており  $\text{CH}_2^{80}\text{Br Br}$  を含む fraction 3 の収率の急激な減少がみられた。

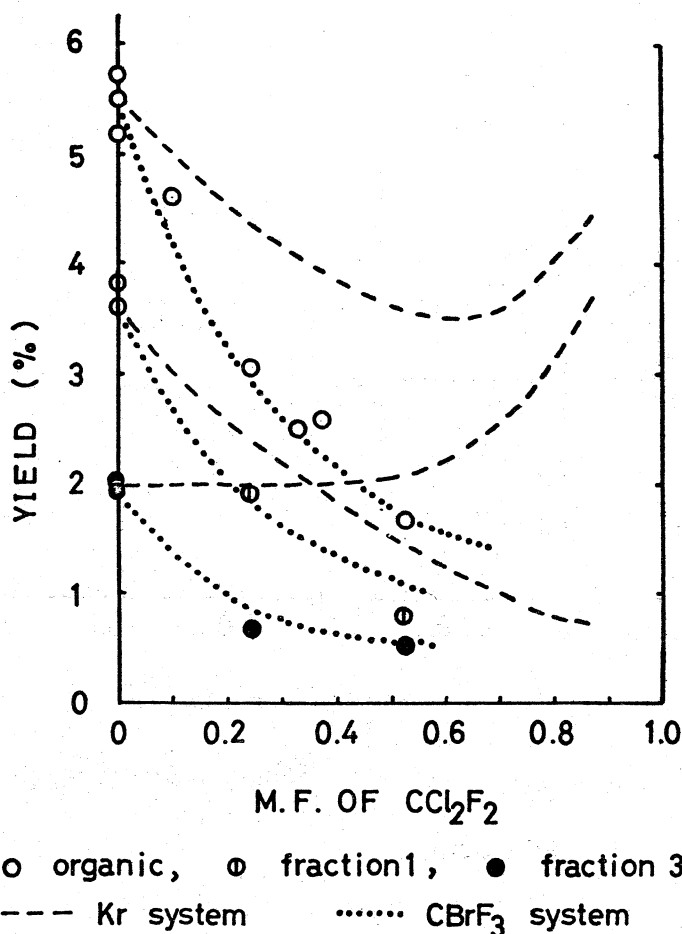
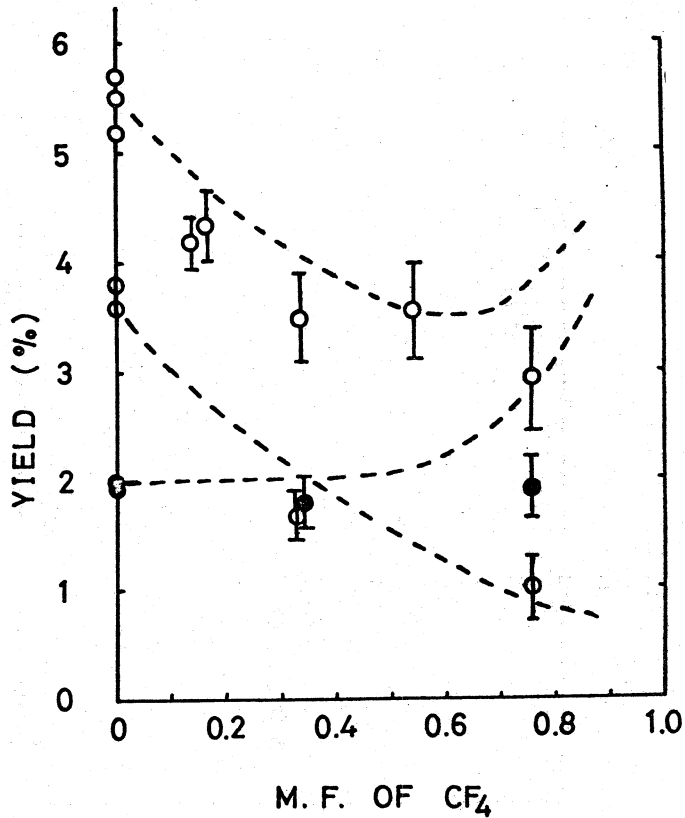


図-4  $^{80}\text{m Br Br} - \text{CH}_4$  系に対する  $\text{CCl}_2\text{F}_2$  添加効果

これに対して  $\text{CF}_4$  添加系ではどちらかといえば Kr 添加系に近い結果になる。得られた放射能強度が弱かったためこの系のみ誤差が大きいので詳細な比較は困難であるが 0.5 m.f. 以下の領域では Kr 添加系と同じといってよいほどであり、 $\text{CH}_2^{80}\text{Br Br}$  の収率はほとんど変化を受けない。



○ organic, ⊙ CH<sub>3</sub><sup>80</sup>Br, ● CH<sub>2</sub><sup>80</sup>BrBr  
 --- Kr system

図-5 <sup>80m</sup>Br Br-CH<sub>4</sub> 系に対する CF<sub>4</sub> 添加効果

比較のために Br<sub>2</sub> を添加物とした場合について図-6 に示した。これは <sup>80m</sup>BrBr-CH<sub>4</sub> 系のスカベンジャー曲線の値を <sup>41</sup>Br<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub> = 0.1 の系にさらに Br<sub>2</sub> を加えていくものとして計算しなおしたものである。CH<sub>2</sub><sup>80</sup>BrBr の収率は、ゆるやかで、Kr 添加系と CBrF<sub>3</sub>, CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub> 添加系との中間に位置していることがわかる。

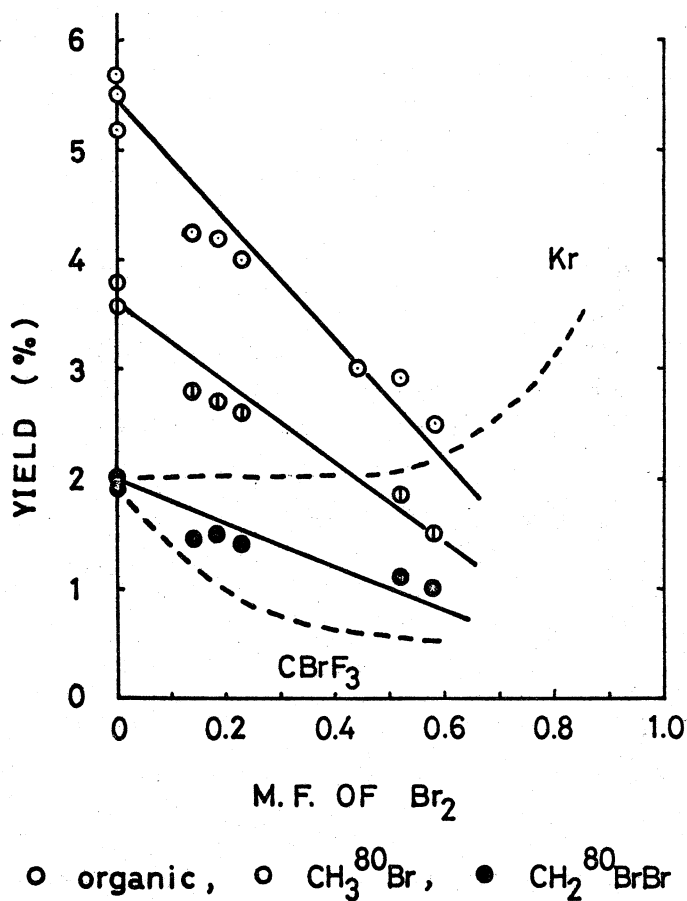


図-6 <sup>80m</sup>BrBr - CH<sub>4</sub>系に対する Br<sub>2</sub>添加効果

#### § 4 考 察

Br のイオン化電位は 11.84 eV でこれは基底状態 (<sup>3</sup>P<sub>2</sub>) に対応している。励起状態に対応するイオン化電位として Rack らは 12.23 (<sup>3</sup>P<sub>1</sub>) 12.32 (<sup>3</sup>P<sub>0</sub>)、および 12.95 (<sup>1</sup>D<sub>2</sub>) eV という値を引用している。<sup>5)</sup> 従って希ガスおよび CH<sub>4</sub> との間の電荷移動反応は吸熱となる場合がある。この場合反応断面積は threshold energy, *E<sub>th</sub>* をもつと考えられる。<sup>6)</sup>

$$E_{th} = \frac{M_n + M_i}{M_n} | \Delta E | \quad (1)$$

ただし *M<sub>n</sub>*, および *M<sub>i</sub>* はそれぞれ中性種およびイオンの質量, | $\Delta E$ | は吸熱量である。対応する threshold velocity は(2)式で与えられる。

$$V_{th} = \left( 2 \frac{M_n + M_i}{M_n \times M_i} | \Delta E | \right)^{1/2} \quad (2)$$

各希ガスおよび CH<sub>4</sub> との間の threshold energy を計算し表1にまとめた。

表-1 吸熱電荷移動反応 ( $\text{Br}^+ + \text{M} \rightarrow \text{Br} + \text{M}^+$ )  
に対する threshold energy (eV)

| M               | I <sub>p</sub> | threshold energy            |                             |                             |                             |
|-----------------|----------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|
|                 |                | <sup>3</sup> P <sub>2</sub> | <sup>3</sup> P <sub>1</sub> | <sup>3</sup> P <sub>0</sub> | <sup>1</sup> D <sub>2</sub> |
| Ne              | 21.56          | 48.21                       | 46.31                       | 45.87                       | 42.74                       |
| Ar              | 15.76          | 11.76                       | 10.60                       | 10.33                       | 8.44                        |
| Kr              | 14.00          | 4.22                        | 3.46                        | 3.28                        | 2.05                        |
| CH <sub>4</sub> | 12.99          | 6.90                        | 4.55                        | 4.01                        | 0.24                        |
| Xe              | 12.13          | 0.47                        | (発熱)                        | (発熱)                        | (発熱)                        |

これらの電荷移動反応はいずれも非共鳴的であるからイオンと中性種の相対速度が増せば反応断面積も大きくなりあるエネルギー値 ( $E_{max}$ ) 以上になると共鳴電荷移動の場合と一致すると考えられる。<sup>7)</sup>  $E_{max}$  の値は(3)式で与えられる。

$$E_{max} = \frac{1}{2} m \left( \frac{a}{h} \right)^2 | \Delta E |^2 \quad (3)$$

ただし  $m$  はイオンの質量,  $h$  はプランクの定数,  $a$  は Maseys' adiabatic parameter,  $\Delta E$  はエネルギー差である。  $a$  の値として  $7 \times 10^{-8}$  cm を採用<sup>8)</sup>した時の  $E_{max}$  の値を計算し表2に示した。

表-2 非共鳴型電荷移動反応 ( $\text{Br}^+ + \text{M} \rightarrow \text{Br} + \text{M}^+$ )  
に対する  $E_{max}$  (eV)

| M               | I <sub>p</sub> | $E_{max}$                   |                             |                             |                             |
|-----------------|----------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|
|                 |                | <sup>3</sup> P <sub>2</sub> | <sup>3</sup> P <sub>1</sub> | <sup>3</sup> P <sub>0</sub> | <sup>1</sup> D <sub>2</sub> |
| Ne              | 21.56          | $1.1 \times 10^6$           | $1.0 \times 10^6$           | $1.0 \times 10^6$           | $8.8 \times 10^5$           |
| Ar              | 15.76          | $1.8 \times 10^5$           | $15 \times 10^5$            | $1.4 \times 10^5$           | $9.4 \times 10^4$           |
| Kr              | 14.00          | $5.5 \times 10^4$           | $3.7 \times 10^4$           | $3.4 \times 10^4$           | $1.3 \times 10^4$           |
| CH <sub>4</sub> | 12.99          | $1.6 \times 10^4$           | $6.9 \times 10^3$           | $5.3 \times 10^3$           | $1.9 \times 10^1$           |
| Xe              | 12.13          | $1.0 \times 10^3$           | $1.2 \times 10^2$           | $4.2 \times 10^2$           | $1.3 \times 10^4$           |

<sup>80m</sup>BrBr の核異性体転移の際のクローン反発によって反跳 <sup>80</sup>Br の得る運動エネルギーは荷電数および電荷の分子内分布によって異なるが最高約 100 eV であるから Br<sup>+</sup> と希ガスあるいは CH<sub>4</sub> との間の吸熱電荷移動反応はエネルギー的にはまったくおこりえないものではない。しかし基底状態の Br<sup>+</sup> イオンを考えると CH<sub>4</sub> との電荷移動反応に対する threshold energy



は Ne ( 48.21 eV ), Ar ( 11.76 eV ) と Kr ( 4.22 eV ), Xe ( 0.47 eV ) との中間に位置し, これら各分子間で 0.47 eV から 48.21 eV との差がある。従って Ne や Ar が大過剰にある場合の方が Kr や Xe が大過剰にある場合よりも  $\text{Br}^+$  イオンの中和がおこりにくく熱イオン反応が促進されても不思議ではない。しかしながら実験結果は図-2 に示したとおりの希ガスをを用いても  $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$  の収率に有意の差はみられないことは, 4 種の希ガスとの間の電荷移動反応のおこりやすさには差があるとしてもそれらはいずれも  $\text{Br}_2$  あるいは  $\text{CH}_4$  との間の電荷移動反応に比べれば効率が悪く, 反跳  $^{80}\text{Br}$  の電荷の中和は大部分が  $\text{Br}_2$  あるいは  $\text{CH}_4$  との間で決定されることを示唆するものと考えられる。このことは励起  $^{80}\text{Br}^+$  イオンの寄与を仮定すれば十分理解できる。すなわち threshold energy は励起エネルギーが大きくなれば減少するが, Kr の場合  $^1\text{D}_2$  状態の  $\text{Br}^+$  でも 2.05 eV であるのに対し  $\text{CH}_4$  の場合 0.24 eV まで小さくなる。さらに  $E_{max}$  値は Kr の場合  $1.3 \times 10^4$  eV までしか下らないのに対し  $\text{CH}_4$  では 19 eV まで低下する。これらはともに励起  $^{80}\text{Br}^+$  イオンの場合,  $\text{CH}_4$  との電荷移動反応の断面積が他の希ガスとの電荷移動反応の断面積よりも大きな割合で低エネルギー側に張り出し, 効率よく電荷の中和がおこることを示しているのである。ここで励起イオンと Xe との間の電荷移動反応は発熱となるがこのことはただちにその反応断面積が大きくなることを意味するものではない。単原子分子との間の非共鳴電荷移動反応では  $E_{max}$  よりもはるかに低エネルギー側では発熱的であっても反応断面積は小さいからである。また Xe の場合は励起  $^{80}\text{Br}^+$  イオンになると,むしろ  $E_{max}$  の値が大きくなる場合もあることは, 励起イオンとの間の方が電荷の中和の効率が悪いことを示している。

これらの関係を, 電荷移動反応の断面積の平方根 ( $\sqrt{\sigma}$ ) と  $\text{Br}^+$  イオンと中性種との相対速度 ( $V$ ) との関係として図-7 に示した。共鳴電荷移動反応の断面積はあるイオンの電荷移動反応の断面積の上限値を与えるものであるが, Rapp および Francis が中速度領域 ( $10^5 \sim 10^6$  cm/sec) において衝突径数法により計算した結果を用いて  $\text{Br}^+$  イオンに対する値を求めた。

$^3\text{P}_2$  状態とすると Xe の方が  $\text{CH}_4$  よりも  $E_{max}$ ,  $E_{th}$  ともに小さく, 断面積が低エネルギー側に張り出しており, 実験結果を説明できないが  $^1\text{D}_2$  状態では Xe の  $E_{max}$  は大きく,  $\text{CH}_4$  の  $E_{max}$  は小さくなりまた  $\text{CH}_4$  の  $E_{th}$  も小さくなる結果, 矢印で示したように Xe および  $\text{CH}_4$  との間の電荷移動反応の断面積がずれ  $\text{CH}_4$  の場合が一番低エネルギー側まで張り出すこととなり, 希ガスの種類を変えても  $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$  の収率に系統的な差が認められなかった図-2 の結果を一応説明できる。

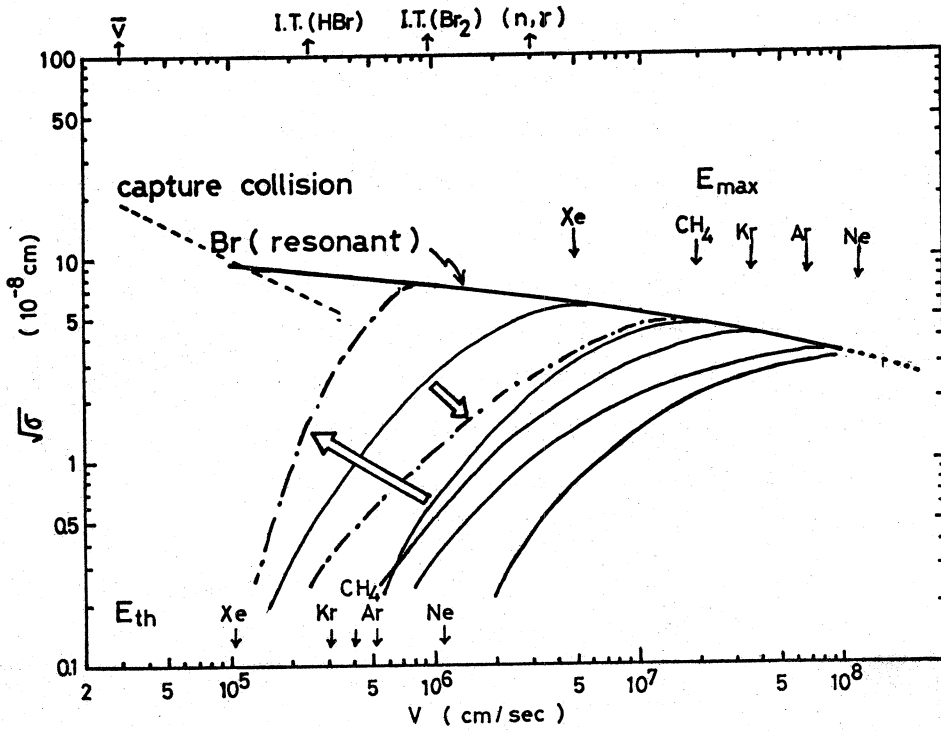


図-7 Hypothetical velocity dependence of cross sections for charge transfer.

次にフロンガスの効果について考察する。

表3にはCF<sub>4</sub>, CBrF<sub>3</sub>, CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub>のイオン化電位を他の分子のイオン化電位とともに示した。<sup>9)</sup>

表-3 本実験で用いた中性種のイオン化電位(eV)

| 中性種                             | イオン化電位              |                    |
|---------------------------------|---------------------|--------------------|
| N                               | 21.559 <sup>a</sup> |                    |
| CF <sub>4</sub>                 | 17.8 <sup>a</sup>   |                    |
| Ar                              | 15.755 <sup>a</sup> |                    |
| Kr                              | 13.996 <sup>a</sup> |                    |
| CH <sub>4</sub>                 | 12.99 <sup>b</sup>  |                    |
| Xe                              | 12.127 <sup>a</sup> |                    |
| CBrF <sub>3</sub>               | 12.3 <sup>c</sup>   | 11.89 <sup>d</sup> |
| Br                              | 11.84 <sup>a</sup>  |                    |
| CCl <sub>2</sub> F <sub>2</sub> | 11.8 <sup>e</sup>   |                    |
| Br <sub>2</sub>                 | 10.53 <sup>b</sup>  |                    |

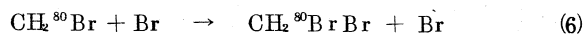
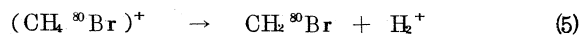
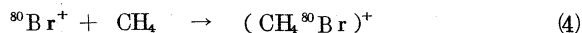
- a) spectroscopic method
- b) photoionization method
- c) electron impact method
- d) critical slope method
- e) vanishing current method

CF<sub>4</sub>, CBrF<sub>3</sub>, および CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub> の CH<sub>2</sub><sup>80</sup>BrBr の収率に及ぼす効果はイオン化電位の大きさに強く関係していることがわかる。すなわち CF<sub>4</sub> のイオン化電位は Ne と Ar の間の値であるのに対し CH<sub>2</sub><sup>80</sup>BrBr の収率を最も低下させた CBrF<sub>3</sub> あるいは CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub> のイオン化電位は Br のイオン化電位に他のどの分子よりも近い。従って基底状態の Br<sup>+</sup> イオンとの間には共鳴に近い条件で電荷移動がおこりえ、たとえ吸熱反応となってもその threshold energy は希ガスあるいは CH<sub>4</sub> との場合よりはるかに小さくなると考えられる。また励起イオンを考慮すると、AE は無視しえない大きさの発熱となるが、CBrF<sub>3</sub>, CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub> が多原子分子であり振動あるいは回転のエネルギー準位が各電子エネルギー準位に密に付随していることを考慮すると、励起<sup>80</sup>Br<sup>+</sup> イオンと CBrF<sub>3</sub>, CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub> との間に accidental resonant charge transfer<sup>9</sup> が成り立つ可能性はあると思われる。以上のことから CH<sub>2</sub><sup>80</sup>BrBr の収率が CBrF<sub>3</sub>, CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub> の添加によって顕著な減少を示したのは、CBrF<sub>3</sub>, CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub> が反跳<sup>80</sup>Br イオンに対する効果的な中和剤として作用し<sup>80</sup>Br<sup>+</sup> イオンを減少させたためと考えるのが最も単純でありかつ電荷移動反応の一般原則に矛盾しない。CF<sub>4</sub> はイオン化電位が高いために Kr と類似の効果を及ぼし、また Br<sub>2</sub> はかなりイオン化電位が低いために発熱型非共鳴電荷移動の一般的傾向に従い共鳴型電荷移動より中和の効率が悪いと考えられる。

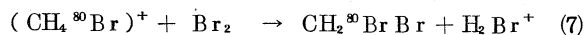
以上の考察から、Kr をはじめとする希ガスによっては抑制されず CBrF<sub>3</sub> あるいは CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub> によって抑制される CH<sub>2</sub><sup>80</sup>BrBr の生成は熱平衡に達した<sup>80</sup>Br<sup>+</sup> イオンが関与した“熱イオン反応”であり、CBrF<sub>3</sub> や CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub> は Br<sup>+</sup> イオンに対する効率のよい中和剤として作用していると推定することができる。

しかしながら CH<sub>2</sub><sup>80</sup>BrBr の生成が“熱イオン反応”つまり C-Br 結合をつくるイオン分子反応によるものであるためには、それがエネルギー的に可能(発熱)でなければならないということも重要である。

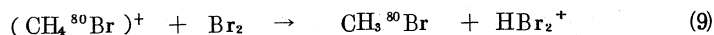
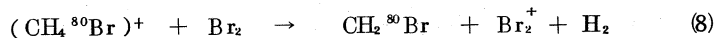
CH<sub>2</sub><sup>80</sup>BrBr を生成するイオン-分子反応として立川らは反応(4), (5), (6)を仮定した。<sup>10)</sup>



著者らは HCl 添加効果の結果から必ずしも CH<sub>2</sub><sup>80</sup>Br ラジカルを先駆体とはせず (CH<sub>4</sub>Br)<sup>+</sup> イオンと Br<sub>2</sub> との2分子反応で CH<sub>2</sub><sup>80</sup>BrBr が生成しうることを報告した。<sup>11)</sup>



そのほか考えられるいくつかの反応として



があるがこれらの反応のエンタルピー変化を次のようにして求めた。

エンタルピー変化は原系と生成系の標準生成エンタルピーの差として求められるが、原系中  $(\text{CH}_2\text{Br})^+$  の生成エンタルピーの代りに  $\text{CH}_4$  の生成エンタルピーと  $\text{Br}^+$  の生成エンタルピーとの和を用いることとする。  $\Delta H_f^\circ(\text{CH}_4) = -0.776\text{eV}$ ,  $\Delta H_f^\circ(\text{Br}_2) = 0.318\text{eV}$ ,  $\Delta H_f^\circ(\text{Br}^+) = 13.00\text{eV}$ ,  $\Delta H_f^\circ(\text{HCl}) = -0.96\text{eV}$ ,  $\Delta H_f^\circ(\text{CH}_2\text{Br}_2) = -0.04\text{eV}$ ,  $\Delta H_f^\circ(\text{H}_2\text{Br}^+) = 9.98\text{eV}$ ,  $\Delta H_f^\circ(\text{CH}_3\text{Br}) = -0.39\text{eV}$ ,  $\Delta H_f^\circ(\text{HBr}_2^+) = 16.18\text{eV}$ ,  $\Delta H_f^\circ(\text{CH}_2\text{Br}) = 1.52\text{eV}$ ,  $\Delta H_f^\circ(\text{Br}_2^+) = 10.87\text{eV}$ ,  $\Delta H_f^\circ(\text{CH}_2\text{BrCl}) = -0.52\text{eV}$ ,  $\Delta H_f^\circ(\text{H}_3^+) = 12.86\text{eV}$

という値を熱力学的データから算出して用いると(5)~(10)のイオン-分子反応の  $\Delta H$  として表-4の値が得られた。

表-4 イオン-分子反応の  $\Delta H$  (eV)

| 反 応  | $\Delta H$ |
|--|------------|
| $(\text{CH}_2\text{Br})^+ \rightarrow \text{CH}_2\text{Br} + \text{H}_2^+$                             | + 4.73     |
| $(\text{CH}_2\text{Br})^+ + \text{Br}_2 \rightarrow \text{CH}_2\text{BrBr} + \text{H}_2\text{Br}^+$    | <- 1.61    |
| $(\text{CH}_2\text{Br})^+ + \text{Br}_2 \rightarrow \text{CH}_3\text{Br} + \text{HBr}_2^+$             | <- 2.60    |
| $(\text{CH}_2\text{Br})^+ + \text{Br}_2 \rightarrow \text{CH}_2\text{Br} + \text{Br}_2^+ + \text{H}_2$ | - 0.15     |
| $(\text{CH}_2\text{Br})^+ + \text{HCl} \rightarrow \text{CH}_2\text{BrCl} + \text{H}_3^+$              | + 1.08     |

これから  $\text{CH}_2^{80}\text{Br}$  ラジカルが先駆体となるにしてもそれは  $(\text{CH}_2^{80}\text{Br})^+$  の単分子分解によってではなく  $\text{Br}_2$  との2分子反応によって生成すると考える方がエネルギー的に妥当であることがわかる。しかし実際には熱イオン反応生成物として観察されない  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$  がエネルギー的には可能であり、逆に実際に検出されている  $\text{CH}_2^{80}\text{BrCl}$  の生成反応がやや大きな吸熱となるなどの困難な問題も生じている。これはひとつには計算に用いた種々の標準生成エンタルピーの値がいくつかの仮定のもとに間接的に得られたものであるためと考えられる。しかし全体としては多くの反応が発熱であり  $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$  がイオン分子反応によって生成する可能性は少なくともエネルギー的には十分ありうると考えられる。

## § 5 結 論

核異性体転移によって励起された反跳臭素の反応性を支配する因子は数多いが、本研究においては比較的不活性な添加物として4種の希ガスと3種のフロンガスをとりあげ、特に従来“熱イオン反応”生成物とされてきた  $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$  の収率に及ぼす効果を調べた。その結果イオン化電位が Br に近い添加物である  $\text{CBrF}_3$  および  $\text{CCl}_2\text{F}_2$  が最も効率よく  $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$  の収率を減少させることを明らかにした。 $\text{Br}^+$  の電荷の中和を電荷移動反応の一般原則に基づいて考察すれば、得られた実験結果は  $\text{CBrF}_3$  あるいは  $\text{CCl}_2\text{F}_2$  が反跳  $\text{Br}^+$  イオンのよい中和剤として  $\text{Br}^+$  を scavenge していることを示していると考えられる。さらに標準生成エンタルピーの値を基に与えられた系で  $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$  の生成が発熱イオン-分子反応によっておこりうることをも示し、 $^{80m}\text{BrBr} - \text{CH}_4$  系で確かに“熱イオン反応”がおこっているという最初の傍証を得ることができた。

Kr によって収率が減少しない反応は本研究でとりあげた  $^{80m}\text{BrBr} - \text{CH}_4$  系以外にも、 $\text{H}^{80m}\text{Br} - \text{CH}_4$  系あるいは  $^{80m}\text{BrBr} - \text{CH}_3\text{Br}$  系や  $\text{H}^{80m}\text{Br} - \text{CH}_3\text{Br}$  系など多数が知られているので、これらの系に  $\text{CBrF}_3$  や  $\text{CCl}_2\text{F}_2$  を加えて収率に及ぼす効果を調べれば、Kr によって抑制されない反応が真に熱イオン反応であるかあるいはまったく別の新しい反応性によるものかが解明できるものと期待される。

本実験を行なうにあたり  $^{80m}\text{Br}$  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。

## 文 献

- 1) 八木, 近藤, 小林, 核理研研究報告 4, 136 (1972). 及びその引用文献
- 2) 八木, 近藤, 小林, 塩川, 核理研研究報告 5 161 (1972). 及びその引用文献
- 3) a) M. Yagi, K. Kondo, and T. Kobayashi  
Bull. chem. Soc. Japan, 44, 580 (1971)
- b) M. Yagi, K. Kondo, and T. Kobayashi  
Radiochem. Radioanal. Letters, 7, 275 (1971).
- c) T. Shiokawa, T. Kobayashi, M. Yagi, and K. Kondo  
ibid, 7, 281 (1971)
- 4) M. Yagi and K. Kondo, ibid, 5, 75 (1970)
- 5) J. B. Nicholas and E. P. Rack, J. chem. phys, 48, 4085 (1968)

- 6) C. F. Giese and W. B. Maier II, *ibid*, **39**, 197 (1963)
- 7) D. Rapp and W. E. Francis, *ibid*, **37**, 2631 (1962)
- 8) D. Seewald and R. Wolfgang, *ibid*, **47**, 143 (1967)
- 9) V. I. Vedeneyev et al "Bond Energies, Ionization Potentials, and Electron Affinities" London Edward Arnold LTD, (1966)
- 10) E. Tachikawa, *Bull. Chem. Soc. Japan*, **43**, 63 (1970)
- 11) 八木, 近藤, 小林, 日本化学会第26春季年会講演予稿集, **II**, 736 (1972)

### Ⅲ—2 Sensitivity List for Multi— element Photon Activation Analysis with 30 MeV Bremsstrahlung

理学部化学

加藤 豊明\*

Summary — Photon activation products and their gamma-ray photopeak activities have been tabulated for the interpretation of spectral data in multi-element photon activation analysis using high-resolution gamma-spectrometry. The table includes activity data for the gamma-rays emitted by essentially all of the product nuclides found in 71 elements, from carbon up to bismuth, with ~2 min as the lower half-life limit for detection with 30 MeV bremsstrahlung. Sensitivities have been calculated based on the minimum detectable photopeak areas and listed in ascending order of gamma-ray energies.

In recent years, activation analysis has been used as a tool for the simultaneous determination of a number of the elements in a sample non-destructively, or with a minimum of chemical separations, by many investigators to gain an overall view of the elemental patterns of complex samples of a wide variety such as geological, biological and environmental materials. The success of such a method has been dependent to a great degree on the high-resolution of a solid-state detector, referring exclusively to lithium-drifted germanium, and on the availability of the computerized gamma-spectrometer system for processing complex spectral data acquired by pulse-height analyzers. Because of its sensitivity, thermal

---

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

neutron activation analysis has exclusively been used for such purposes. A synthetic standard containing multi-elements was prepared and irradiated together with the sample for comparisons. In thermal neutron activation analysis, however, high swamping activities either from the matrix or from trace elements with high thermal neutron capture cross sections sometimes prohibit the determination of many elements by non-destructive method.

High-energy photon activation shares with thermal neutron activation the advantages of homogeneous activation, but produces an entirely different range of nuclides. 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. The multi-element photon activation analysis was assessed to be promising in our previous work<sup>1)</sup> in which a number of major and minor constituents in standard silicate rocks has been determined non-destructively by activation with 30 MeV bremsstrahlung followed by high-resolution gamma-spectrometry.

The main problem associated with the multi-element activation analysis is the nuclidic assignment of the gamma-rays found in the complex spectra. The quantitative evaluation of interferences with a certain gamma-ray of a given radionuclide is also an important problem. Recently, Galatanu and Grecescu<sup>2)</sup> have prepared the tables of gamma-rays emitted by radionuclides produced through photonuclear reactions based on the literature data for the nuclides. It was felt, however, that, for quantitative analyses, the wealth of counting data obtained under identical experimental conditions should be taken into account. The author has given thought and experimentation so far to the collection of the experimental data on the specific activities obtained for each element studied at a given electron energy and to the quantitative importance of interfering reactions. Thus, yields have been determined for the photonuclear reactions of various types induced in 71 elements, from carbon up to bismuth, by means of bremsstrahlung irradiation with maximum energies ranging from 30 to 72 MeV and of detection of the resultant activities with a 24 cm<sup>3</sup> Ge(Li) detector.<sup>3, 4)</sup>



The purpose of the present work was to prepare a sensitivity list, from the data obtained previously, with the intention of providing a useful tool for the interpretation of results in multi-element photon activation analysis.

The sample materials and experimental method involving photon irradiation and radioactivity measurements were just the same as those found in the previous papers.<sup>3,4)</sup> Table I summarizes the results of photopeak intensity and sensitivity in ascending order of the gamma-ray energies. This table includes activity data for gamma rays emitted by essentially all of the product nuclides found in 71 elements with  $\sim 2$  min as the lower half-life limit for detection with 30 MeV bremsstrahlung. All activity data have been expressed in cpm per milligram of the element, measured at 20 mm from the active surface of a  $24 \text{ cm}^3$  Ge(Li) detector, at the end of 1-hr irradiation with 30 MeV bremsstrahlung when a standard amount of bremsstrahlung photons had passed through the sample. With this dose rate,  $30.1 \mu \text{ Ci } ^{62}\text{Cu}$  was produced in 1 mg of copper. From this value, the dose rate was calculated as  $4.41 \times 10^6 \text{ R/min}$  by using the yield value of  $2.8 \times 10^6$  per mole per roentgen for the  $^{63}\text{Cu}(\gamma, n)^{62}\text{Cu}$  reaction reported by Katz et al.<sup>5)</sup> Sensitivity was then calculated on the basis of minimum detectable photopeak area. This was assumed, depending on the half-life of the product in question, to be the quantity of the element needed to give either 100 cpm for a radionuclide with a half-life shorter than 1 hr or 10 cpm for a radionuclide with a half-life longer than 1 hr under the present experimental conditions.

The author hopes that the present list will be useful for those working on multi-element activation analysis experiments in which high-energy photons are to be used.

Acknowledgement — The author expresses his appreciation to Professor Nobuo Suzuki for his continuous encouragement throughout this work and to members of the linac staff at the Institute of Nuclear Sciences, Tohoku University, for their kind cooperation with the irradiations.

### References

- 1) T. Kato, I. Morita and N. Sato, Presented at the C.N.R.S International Colloquium on Activation Analysis, Saclay, France (October, 1972) C 30
- 2) V. Galatanu and M. Grecescu, J. Radioanal. Chem., 10, 315 (1972).
- 3) T. Kato, Research Report of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, 5, No. 1, 133 (1972).
- 4) T. Kato, Presented at the International Conference on Modern Trends in Activation Analysis, Saclay, France (October, 1972) M65.
- 5) L. Katz, A. G. W. Cameron, Canad. J. Phys., 29, 518 (1951).

Table I. Sensitivity list for multi-element  
photon activation analysis with 30  
MeV bremsstrahlung

| Element | Reaction   | Half-life<br>of product | $\gamma$ -ray<br>observed,<br>(MeV) | Photopeak<br>activity, $\dagger$<br>(cpm/mg) | Sensitivity,<br>( $\mu\text{g}$ ) |
|---------|--|-------------------------|-------------------------------------|--|-----------------------------------|
| Os      | $^{192}\text{Os}(\gamma, n)^{191}\text{Os}$  | 15 d                    | 0.062<br>(X-ray)                    | $7.37 \times 10^3$                           | 1.4                               |
| Ho      | $^{165}\text{Ho}(\gamma, n)^{164}\text{Ho}$  | 37 min                  | 0.073                               | $1.25 \times 10^5$                           | 0.80                              |
| Lu      | $^{176}\text{Lu}(\gamma, \gamma')^{176\text{m}}\text{Lu}$  | 3.7 hr                  | 0.088                               | $3.22 \times 10^3$                           | 3.1                               |
| Eu      | $^{153}\text{Eu}(\gamma, n)^{152\text{m2}}\text{Eu}$   | 96 min                  | 0.089                               | $1.46 \times 10^4$                           | 0.69                              |
| Ho      | $^{165}\text{Ho}(\gamma, n)^{164}\text{Ho}$  | 37 min                  | 0.092                               | $2.73 \times 10^5$                           | 0.37                              |
| Ta      | $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)^{180\text{m}}\text{Ta}$  | 8.1 hr                  | 0.093                               | $7.93 \times 10^4$                           | 0.13                              |
| Se      | $^{82}\text{Se}(\gamma, n)^{81\text{m}}\text{Se}$  | 57 min                  | 0.103                               | $3.47 \times 10^4$                           | 2.9                               |
| Ta      | $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)^{180\text{m}}\text{Ta}$  | 8.1 hr                  | 0.103                               | $1.55 \times 10^4$                           | 0.65                              |
| Yb      | $^{168}\text{Yb}(\gamma, n)^{167}\text{Yb}$  | 18 min                  | 0.106                               | $2.96 \times 10^3$                           | 34                                |
| Nd      | $^{150}\text{Nd}(\gamma, n)^{149}\text{Nd}$  | 1.8 hr                  | 0.114                               | $5.87 \times 10^4$                           | 0.17                              |
| Yb      | $^{168}\text{Yb}(\gamma, n)^{167}\text{Yb}$  | 18 min                  | + 0.113<br>0.116                    | $1.09 \times 10^4$                           | 9.2                               |
| Eu      | $^{153}\text{Eu}(\gamma, n)^{152\text{m1}}\text{Eu}$   | 9.3 hr                  | 0.122                               | $2.17 \times 10^4$                           | 0.46                              |
| Hf      | $^{174}\text{Hf}(\gamma, n)^{173}\text{Hf}$  | 23.6 hr                 | 0.124                               | $6.77 \times 10^2$                           | 15                                |
| Os      | $^{192}\text{Os}(\gamma, n)^{191}\text{Os}$  | 15 d                    | 0.129                               | $6.55 \times 10^2$                           | 15                                |
| Hg      | $^{198}\text{Hg}(\gamma, n)^{197\text{m}}\text{Hg}$  | 24 hr                   | 0.134                               | $1.92 \times 10^3$                           | 5.2                               |
| Se      | $^{76}\text{Se}(\gamma, n)^{75}\text{Se}$  | 120.4 d                 | 0.136                               | $1.69 \times 10^2$                           | 59                                |
| Re      | $^{187}\text{Re}(\gamma, n)^{186}\text{Re}$  | 90 hr                   | 0.137                               | $7.12 \times 10^3$                           | 1.4                               |
| Gd      | $^{160}\text{Gd}(\gamma, p)^{159}\text{Eu}$  | 18 min                  | 0.143                               | $4.67 \times 10^2$                           | 214                               |
| Cl      | $^{35}\text{Cl}(\gamma, n)^{34\text{m}}\text{Cl}$  | 32.0 min                | 0.145                               | $2.65 \times 10^5$                           | 0.38                              |
| Ce      | $^{142}\text{Ce}(\gamma, n)^{141}\text{Ce}$  | 33 d                    | 0.145                               | $5.28 \times 10^2$                           | 19                                |
| Cr      | $^{50}\text{Cr}(\gamma, n)^{49}\text{Cr}$  | 41.9 min                | 0.153                               | $2.24 \times 10^4$                           | 4.5                               |
| In      | $^{113}\text{In}(\gamma, n)^{112\text{m}}\text{In}$  | 20.7 min                | 0.156                               | $5.32 \times 10^4$                           | 1.9                               |
| Nd      | $^{150}\text{Nd}(\gamma, n)^{149}\text{Nd}$  | 1.8 hr                  | 0.156                               | $3.08 \times 10^4$                           | 0.33                              |
| Sn      | + $^{118}\text{Sn}(\gamma, n)^{117\text{m}}\text{Sn}$<br>+ $^{117}\text{Sn}(\gamma, \gamma')^{117\text{m}}\text{Sn}$ | 14.0 d                  | + 0.158<br>0.159                    | $6.76 \times 10^2$                           | 15                                |
| Ti      | $^{48}\text{Ti}(\gamma, p)^{47}\text{Sc}$  | 3.43 d                  | 0.160                               | $7.49 \times 10^3$                           | 1.3                               |
| V       | $^{51}\text{V}(\gamma, \alpha)^{47}\text{Sc}$  | 3.43 d                  | 0.160                               | $3.07 \times 10^2$                           | 33                                |
| Sn      | $^{124}\text{Sn}(\gamma, n)^{123\text{m}}\text{Sn}$  | 41 min                  | 0.160                               | $4.87 \times 10^5$                           | 0.21                              |

| Element | Reaction   | Half-life<br>of product | $\gamma$ -ray<br>observed,<br>(MeV) | Photopeak<br>activity,<br>(cpm/mg) <sup>†</sup> | Sensitivity,<br>( $\mu$ g) |
|---------|--|-------------------------|-------------------------------------|---|----------------------------|
| Re      | $^{185}\text{Re} (\gamma, 2n) ^{183}\text{Re}$   | 71 d                    | 0.162                               | $1.21 \times 10^2$                              | 83                         |
| Ce      | $^{140}\text{Ce} (\gamma, n) ^{139}\text{Ce}$  | 140 d                   | 0.166                               | $2.07 \times 10^3$                              | 4.8                        |
| Tl      | $^{203}\text{Tl} (\gamma, 2n) ^{201}\text{Tl}$   | 73 hr                   | 0.167                               | $5.70 \times 10^2$                              | 18                         |
| In      | $^{113}\text{In} (\gamma, 2n) ^{111}\text{In}$   | 2.81 d                  | 0.173                               | $6.07 \times 10^2$                              | 16                         |
| W       | $^{186}\text{W} (\gamma, p) ^{185}\text{Ta}$   | 50 min                  | 0.175                               | $2.52 \times 10^3$                              | 40                         |
| Yb      | $^{168}\text{Yb} (\gamma, n) ^{167}\text{Yb}$  | 18 min                  | 0.176                               | $3.70 \times 10^3$                              | 27                         |
| Mo      | $^{100}\text{Mo} (\gamma, n) ^{99}\text{Mo}$   | 67 hr                   | 0.181                               | $6.43 \times 10^2$                              | 16                         |
| Lu      | $^{175}\text{Lu} (\gamma, 3n) ^{172}\text{Lu}$   | 6.7 d                   | 0.182                               | $7.60 \times 10^1$                              | 132                        |
| Dy      | $^{163}\text{Dy} (\gamma, p) ^{162}\text{Tb}$  | 8 min                   | 0.184                               | $2.52 \times 10^3$                              | 4.0                        |
| Zn      | $^{68}\text{Zn} (\gamma, p) ^{67}\text{Cu}$  | 59 hr                   | 0.185                               | $8.52 \times 10^2$                              | 12                         |
| Ir      | $^{191}\text{Ir} (\gamma, n) ^{190}\text{Ir}$  | 11 d                    | 0.187                               | $4.58 \times 10^3$                              | 2.2                        |
| Pd      | $^{110}\text{Pd} (\gamma, n) ^{109\text{m}}\text{Pd}$  | 4.7 min                 | 0.188                               | $7.96 \times 10^4$                              | 1.3                        |
| In      | $^{115}\text{In} (\gamma, n) ^{114\text{m}}\text{In}$  | 50 d                    | 0.192                               | $9.41 \times 10^2$                              | 11                         |
| Pt      | $^{198}\text{Pt} (\gamma, n) ^{197}\text{Pt}$  | 18 hr                   | 0.192                               | $8.43 \times 10^2$                              | 12                         |
| Hg      | $^{198}\text{Hg} (\gamma, n) ^{197}\text{Hg}$  | 65 hr                   | 0.192                               | $1.17 \times 10^2$                              | 86                         |
| Tm      | $^{169}\text{Tm} (\gamma, n) ^{168}\text{Tm}$  | 85 d                    | 0.198                               | $1.59 \times 10^3$                              | 6.3                        |
| Yb      | $^{170}\text{Yb} (\gamma, n) ^{169}\text{Yb}$  | 32 d                    | 0.198                               | $2.37 \times 10^2$                              | 42                         |
| Tb      | $^{159}\text{Tb} (\gamma, 3n) ^{156}\text{Tb}$   | 5.4 d                   | 0.200                               | $6.93 \times 10^{-1}$                           | $14 \times 10^3$           |
| Tm      | $^{169}\text{Tm} (\gamma, 2n) ^{167}\text{Tm}$   | 9.6 d                   | 0.208                               | $2.50 \times 10^3$                              | 4.0                        |
| Nd      | $^{150}\text{Nd} (\gamma, n) ^{149}\text{Nd}$  | 1.8 hr                  | 0.210                               | $5.12 \times 10^4$                              | 0.20                       |
| Er      | $^{162}\text{Er} (\gamma, n) ^{161}\text{Er}$  | 3.1 hr                  | 0.211                               | $5.99 \times 10^2$                              | 17                         |
| Hf      | $^{180}\text{Hf} (\gamma, \gamma') ^{180\text{m}}\text{Hf}$  | 5.5 hr                  | 0.215                               | $4.42 \times 10^2$                              | 23                         |
| Rb      | $^{85}\text{Rb} (\gamma, n) ^{84\text{m}}\text{Rb}$  | 20 min                  | 0.216                               | $5.05 \times 10^5$                              | 0.20                       |
| W       | $^{180}\text{W} (\gamma, n) ^{179\text{m}}\text{W}$  | 5.2 min                 | 0.222                               | $1.90 \times 10^3$                              | 53                         |
| Gd      | $^{158}\text{Gd} (\gamma, p) ^{157}\text{Eu}$  | 15.2 hr                 | 0.223                               | $1.45 \times 10^2$                              | 69                         |
| Dy      | $^{156}\text{Dy} (\gamma, n) ^{155}\text{Dy}$  | 10.2 hr                 | 0.227                               | $2.79 \times 10^2$                              | 36                         |
| Sr      | $^{86}\text{Sr} (\gamma, n) ^{85\text{m}}\text{Sr}$  | 70 min                  | 0.237                               | $2.01 \times 10^5$                              | 0.050                      |
| Er      | $^{168}\text{Er} (\gamma, p) ^{167}\text{Ho}$  | 3.1 hr                  | 0.237                               | $1.47 \times 10^2$                              | 68                         |
| Rb      | $^{85}\text{Rb} (\gamma, n) ^{84\text{m}}\text{Rb}$  | 20 min                  | 0.250                               | $8.35 \times 10^5$                              | 0.12                       |
| Dy      | $^{163}\text{Dy} (\gamma, p) ^{162}\text{Tb}$  | 8 min                   | 0.258                               | $9.10 \times 10^3$                              | 1.1                        |
| Ge      | $^{76}\text{Ge} (\gamma, n) ^{75}\text{Ge}$  | 82 min                  | 0.265                               | $2.28 \times 10^4$                              | 0.44                       |
| Ba      | $^{136}\text{Ba} (\gamma, n) ^{135\text{m}}\text{Ba}$<br>$^{135}\text{Ba} (\gamma, \gamma') ^{135\text{m}}\text{Ba}$ | 28.7 hr                 | 0.268                               | $6.25 \times 10^2$                              | 16                         |
| Nd      | $^{150}\text{Nd} (\gamma, n) ^{149}\text{Nd}$  | 1.8 hr                  | 0.269                               | $2.15 \times 10^4$                              | 0.47                       |
| Sc      | $^{45}\text{Sc} (\gamma, n) ^{44\text{m}}\text{Sc}$  | 2.44 d                  | 0.271                               | $5.17 \times 10^3$                              | 1.9                        |
| Ba      | $^{134}\text{Ba} (\gamma, n) ^{133\text{m}}\text{Ba}$  | 38.9 hr                 | 0.276                               | $8.83 \times 10^1$                              | 113                        |

| Element | Reaction  | Half-life of product | $\gamma$ -ray observed, (MeV) | Photopeak activity, (cpm/mg) <sup>†</sup> | Sensitivity, ( $\mu$ g) |
|---------|---|----------------------|-------------------------------|---|-------------------------|
| Hg      | $^{204}\text{Hg}(\gamma, n)^{203}\text{Hg}$               | 46.9 hr              | 0.279                         | $3.78 \times 10^2$                        | 27                      |
| Pb      | $^{204}\text{Pb}(\gamma, n)^{203}\text{Pb}$               | 52.1 hr              | 0.279                         | $1.56 \times 10^3$                        | 6.4                     |
| Ge      | $^{74}\text{Ge}(\gamma, p)^{73}\text{Ga}$                 | 4.9 hr               | 0.295                         | $8.80 \times 10^3$                        | 1.1                     |
| Ga      | $^{69}\text{Ga}(\gamma, 2n)^{67}\text{Ga}$                | 78 hr                | 0.296                         | $3.91 \times 10^2$                        | 26                      |
| Pd      | $^{102}\text{Pd}(\gamma, n)^{101}\text{Pd}$               | 8.4 hr               | 0.296                         | $7.13 \times 10^2$                        | 14                      |
| Hf      | $^{174}\text{Hf}(\gamma, n)^{173}\text{Hf}$               | 23.6 hr              | 0.297                         | $1.25 \times 10^2$                        | 80                      |
| Rh      | $^{103}\text{Rh}(\gamma, 2n)^{101\text{m}}\text{Rh}$      | 4.5 d                | 0.307                         | $2.59 \times 10^3$                        | 3.9                     |
| Ir      | $^{193}\text{Ir}(\gamma, n)^{192}\text{Ir}$               | 74.2 d               | 0.308                         | $3.98 \times 10^2$                        | 25                      |
| Ir      | $^{193}\text{Ir}(\gamma, n)^{192}\text{Ir}$               | 74.2 d               | 0.317                         | $1.21 \times 10^3$                        | 8.3                     |
| Cr      | $^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$                 | 27.8 d               | 0.319                         | $2.53 \times 10^2$                        | 40                      |
| Er      | $^{168}\text{Er}(\gamma, p)^{167}\text{Ho}$               | 3.1 hr               | 0.321                         | $2.89 \times 10^2$                        | 35                      |
| Ru      | $^{98}\text{Ru}(\gamma, n)^{97}\text{Ru}$                 | 2.9 d                | 0.325                         | $1.50 \times 10^2$                        | 67                      |
|         | $^{99}\text{Ru}(\gamma, 2n)^{97}\text{Ru}$                |                      |                               |   |                         |
| Dy      | $^{158}\text{Dy}(\gamma, n)^{157}\text{Dy}$               | 8.1 hr               | 0.327                         | $5.63 \times 10^2$                        | 18                      |
| Sm      | $^{152}\text{Sm}(\gamma, pn)^{150}\text{Pm}$              | 2.7 hr               | 0.334                         | $1.25 \times 10^2$                        | 80                      |
| Eu      | $^{151}\text{Eu}(\gamma, n)^{150}\text{Eu}$               | 12.6 hr              | 0.334                         | $3.12 \times 10^3$                        | 3.2                     |
| In      | $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma')^{115\text{m}}\text{In}$ | 4.5 hr               | 0.335                         | $6.30 \times 10^3$                        | 1.6                     |
| Ru      | $^{96}\text{Ru}(\gamma, n)^{95}\text{Ru}$                 | 1.7 hr               | 0.340                         | $5.59 \times 10^4$                        | 0.18                    |
| Sm      | $^{152}\text{Sm}(\gamma, p)^{151}\text{Pm}$               | 28 hr                | 0.340                         | $6.07 \times 10^1$                        | 165                     |
| Hf      | $^{176}\text{Hf}(\gamma, n)^{175}\text{Hf}$               | 70 d                 | 0.343                         | $1.99 \times 10^2$                        | 50                      |
|         | $^{177}\text{Hf}(\gamma, 2n)^{175}\text{Hf}$              |                      |                               |   |                         |
| Eu      | $^{153}\text{Eu}(\gamma, n)^{152\text{m1}}\text{Eu}$      | 9.3 hr               | 0.344                         | $1.92 \times 10^3$                        | 5.2                     |
| Er      | $^{168}\text{Er}(\gamma, p)^{167}\text{Ho}$               | 3.1 hr               | 0.346                         | $7.67 \times 10^2$                        | 13                      |
| Pt      | $^{198}\text{Pt}(\gamma, n)^{197\text{m}}\text{Pt}$       | 80 min               | 0.346                         | $2.38 \times 10^3$                        | 4.2                     |
| Dy      | $^{164}\text{Dy}(\gamma, p)^{163}\text{Tb}$               | 19 min               | 0.352                         | $2.35 \times 10^3$                        | 43                      |
| Au      | $^{197}\text{Au}(\gamma, n)^{196}\text{Au}$               | 6.18 d               | 0.356                         | $3.13 \times 10^4$                        | 0.32                    |
| Se      | $^{74}\text{Se}(\gamma, n)^{73}\text{Se}$                 | 7.1 hr               | 0.359                         | $1.49 \times 10^3$                        | 6.7                     |
| Ir      | $^{191}\text{Ir}(\gamma, n)^{190}\text{Ir}$               | 11 d                 | 0.361                         | $3.57 \times 10^4$                        | 0.28                    |
| Gd      | $^{160}\text{Gd}(\gamma, n)^{159}\text{Gd}$               | 18 hr                | 0.363                         | $5.85 \times 10^3$                        | 1.7                     |
| Ir      | $^{191}\text{Ir}(\gamma, n)^{190}\text{Ir}$               | 11 d                 | 0.371                         | $6.60 \times 10^4$                        | 0.15                    |
| Ca      | $^{44}\text{Ca}(\gamma, p)^{43}\text{K}$                  | 22.4 hr              | 0.374                         | $2.54 \times 10^2$                        | 39                      |
| Pb      | $^{204}\text{Pb}(\gamma, \gamma')^{204\text{m}}\text{Pb}$ | 66.9 min             | 0.375                         | $7.45 \times 10^2$                        | 13                      |
|         | $^{206}\text{Pb}(\gamma, 2n)^{204\text{m}}\text{Pb}$      |                      |                               |   |                         |
| Fe      | $^{54}\text{Fe}(\gamma, n)^{53}\text{Fe}$                 | 8.51 min             | 0.380                         | $1.24 \times 10^4$                        | 8.1                     |
| Y       | $^{89}\text{Y}(\gamma, 2n)^{87\text{m}}\text{Y}$          | 14 hr                | 0.381                         | $1.08 \times 10^3$                        | 9.3                     |
| Os      | $^{184}\text{Os}(\gamma, n)^{183}\text{Os}$               | 12 hr                | 0.382                         | $1.03 \times 10^1$                        | 967                     |

| Element | Reaction  | Half-life<br>of product | $\gamma$ -ray<br>observed,<br>(MeV) | Photopeak<br>activity,<br>(cpm/mg) † | Sensitivity,<br>( $\mu$ g) |
|---------|---|-------------------------|-------------------------------------|--------------------------------------|----------------------------|
| I       | $^{127}\text{I}(\gamma, n)^{126}\text{I}$   | 13 d                    | 0.386                               | $1.86 \times 10^3$                   | 5.4                        |
| Sr      | $^{88}\text{Sr}(\gamma, n)^{87\text{m}}\text{Sr}$   | 2.83 hr                 | 0.388                               | $4.95 \times 10^5$                   | 0.020                      |
| Y       | $^{89}\text{Y}(\gamma, pn)^{87\text{m}}\text{Sr}$   | 2.83 hr                 | 0.388                               | $8.33 \times 10^2$                   | 12                         |
| In      | $^{113}\text{In}(\gamma, \gamma')^{113\text{m}}\text{In}$<br>$^{115}\text{In}(\gamma, 2n)^{113\text{m}}\text{In}$ | 100 min                 | 0.393                               | $2.43 \times 10^4$                   | 0.41                       |
| Yb      | $^{176}\text{Yb}(\gamma, n)^{175}\text{Yb}$   | 101 hr                  | 0.396                               | $6.06 \times 10^2$                   | 17                         |
| Yb      | $^{174}\text{Yb}(\gamma, p)^{173}\text{Tm}$   | 8.2 hr                  | 0.399                               | $4.72 \times 10^2$                   | 21                         |
| Eu      | $^{151}\text{Eu}(\gamma, n)^{150}\text{Eu}$   | 12.6 hr                 | 0.406                               | $1.75 \times 10^3$                   | 5.7                        |
| Gd      | $^{158}\text{Gd}(\gamma, p)^{157}\text{Eu}$   | 15.2 hr                 | 0.407                               | $5.82 \times 10^1$                   | 172                        |
| Ir      | $^{191}\text{Ir}(\gamma, n)^{190}\text{Ir}$   | 11 d                    | 0.407                               | $7.27 \times 10^4$                   | 0.14                       |
| Hg      | $^{199}\text{Hg}(\gamma, p)^{198}\text{Au}$   | 2.698d                  | 0.412                               | $3.14 \times 10^1$                   | 318                        |
| Te      | $^{128}\text{Te}(\gamma, n)^{127}\text{Te}$   | 9.4 hr                  | 0.417                               | $6.49 \times 10^2$                   | 15                         |
| Au      | $^{197}\text{Au}(\gamma, n)^{196}\text{Au}$   | 6.18 d                  | 0.426                               | $2.73 \times 10^3$                   | 3.7                        |
| Tl      | $^{203}\text{Tl}(\gamma, n)^{202}\text{Tl}$   | 12.0 d                  | 0.439                               | $3.04 \times 10^3$                   | 3.3                        |
| Tm      | $^{169}\text{Tm}(\gamma, n)^{168}\text{Tm}$   | 85 d                    | 0.448                               | $2.33 \times 10^2$                   | 43                         |
| Te      | $^{130}\text{Te}(\gamma, n)^{129}\text{Te}$   | 69 min                  | 0.460                               | $3.91 \times 10^4$                   | 0.26                       |
| Rb      | $^{85}\text{Rb}(\gamma, n)^{84\text{m}}\text{Rb}$   | 20 min                  | 0.464                               | $1.95 \times 10^5$                   | 0.51                       |
| Ir      | $^{193}\text{Ir}(\gamma, n)^{192}\text{Ir}$   | 74.2 d                  | 0.468                               | $4.81 \times 10^2$                   | 21                         |
| Rh      | $^{103}\text{Rh}(\gamma, n)^{102}\text{Rh}$   | 206 d                   | 0.475                               | $1.50 \times 10^2$                   | 67                         |
| Y       | $^{89}\text{Y}(\gamma, 2n)^{87}\text{Y}$  | 80 hr                   | 0.483                               | $3.95 \times 10^2$                   | 25                         |
| Te      | $^{130}\text{Te}(\gamma, n)^{129}\text{Te}$   | 69 min                  | 0.487                               | $6.28 \times 10^3$                   | 1.6                        |
| Ru      | $^{104}\text{Ru}(\gamma, n)^{103}\text{Ru}$   | 39.6 d                  | 0.497                               | $3.51 \times 10^2$                   | 29                         |
| C       | $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$   | 20.3 min                | 0.511*                              | $4.44 \times 10^5$                   | 0.23                       |
| N       | $^{14}\text{N}(\gamma, n)^{13}\text{N}$   | 10.0 min                | 0.511*                              | $1.37 \times 10^5$                   | 0.73                       |
| O       | $^{16}\text{O}(\gamma, n)^{15}\text{O}$   | 124 sec                 | 0.511*                              | $7.78 \times 10^5$                   | 0.13                       |
| F       | $^{19}\text{F}(\gamma, n)^{18}\text{F}$   | 110 min                 | 0.511*                              | $2.94 \times 10^5$                   | 0.034                      |
| Na      | $^{23}\text{Na}(\gamma, n)^{22}\text{Na}$   | 2.60 yr                 | 0.511*                              | $2.55 \times 10^1$                   | 392                        |
| P       | $^{31}\text{P}(\gamma, n)^{30}\text{P}$   | 2.50 min                | 0.511*                              | $1.12 \times 10^6$                   | 0.089                      |
| Cl      | $^{35}\text{Cl}(\gamma, n)^{34\text{m}}\text{Cl}$   | 32.0 min                | 0.511*                              | $2.48 \times 10^5$                   | 0.40                       |
| K       | $^{39}\text{K}(\gamma, n)^{38}\text{K}$   | 7.71 min                | 0.511*                              | $3.26 \times 10^5$                   | 0.31                       |
| Sc      | $^{45}\text{Sc}(\gamma, n)^{44}\text{Sc}$   | 3.92 hr                 | 0.511*                              | $3.72 \times 10^5$                   | 0.027                      |
| Ti      | $^{46}\text{Ti}(\gamma, n)^{45}\text{Ti}$   | 3.09 hr                 | 0.511*                              | $2.07 \times 10^4$                   | 0.48                       |
| Cr      | $^{50}\text{Cr}(\gamma, n)^{49}\text{Cr}$   | 41.9 min                | 0.511*                              | $2.52 \times 10^4$                   | 4.0                        |
| Fe      | $^{54}\text{Fe}(\gamma, n)^{53}\text{Fe}$   | 8.51 min                | 0.511*                              | $6.76 \times 10^4$                   | 1.5                        |
| Co      | $^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{58}\text{Co}$   | 71.3 dd                 | 0.511*                              | $1.06 \times 10^2$                   | 94                         |
| Ni      | $^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$   | 36.0 hr                 | 0.511*                              | $2.22 \times 10^4$                   | 0.45                       |

| Element | Reaction                                     | Half-life<br>of product | $\gamma$ -ray<br>observed,<br>(MeV) | Photopeak<br>activity,<br>(cpm/mg) <sup>†</sup> | Sensitivity,<br>( $\mu$ g) |
|---------|--|-------------------------|-------------------------------------|---|----------------------------|
| Cu      | $^{63}\text{Cu}(\gamma, n)^{62}\text{Cu}$    | 9.8 min                 | 0.511*                              | $1.87 \times 10^6$                              | 0.054                      |
| Cu      | $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$    | 12.8 hr                 | 0.511*                              | $1.30 \times 10^4$                              | 0.77                       |
| Zn      | $^{64}\text{Zn}(\gamma, n)^{63}\text{Zn}$    | 38.4 min                | 0.511*                              | $1.54 \times 10^6$                              | 0.065                      |
| Ga      | $^{69}\text{Ga}(\gamma, n)^{68}\text{Ga}$    | 68.3 min                | 0.511*                              | $1.80 \times 10^6$                              | 0.0056                     |
| As      | $^{75}\text{As}(\gamma, n)^{74}\text{As}$    | 17.9 d                  | 0.511*                              | $2.13 \times 10^3$                              | 4.7                        |
| Br      | $^{79}\text{Br}(\gamma, n)^{78}\text{Br}$    | 6.5 min                 | 0.511*                              | $9.52 \times 10^5$                              | 0.11                       |
| Br      | $^{81}\text{Br}(\gamma, n)^{80}\text{Br}$    | 17.6 min                | 0.511*                              | $3.41 \times 10^4$                              | 2.9                        |
| Zr      | $^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr}$    | 78.4 hr                 | 0.511*                              | $4.31 \times 10^3$                              | 2.3                        |
| Mo      | $^{92}\text{Mo}(\gamma, n)^{91}\text{Mo}$    | 15.45 min               | 0.511*                              | $3.53 \times 10^5$                              | 0.28                       |
| Rh      | $^{103}\text{Rh}(\gamma, n)^{102}\text{Rh}$  | 206 d                   | 0.511*                              | $7.74 \times 10^1$                              | 129                        |
| Ag      | $^{107}\text{Ag}(\gamma, n)^{106}\text{Ag}$  | 24 min                  | 0.511*<br>+ 0.512                   | $1.62 \times 10^6$                              | 0.062                      |
| In      | $^{113}\text{In}(\gamma, n)^{112}\text{In}$  | 14 min                  | 0.511*                              | $3.22 \times 10^4$                              | 3.1                        |
| Sb      | $^{121}\text{Sb}(\gamma, n)^{120}\text{Sb}$  | 15.9 min                | 0.511*                              | $1.27 \times 10^6$                              | 0.079                      |
| La      | $^{139}\text{La}(\gamma, 3n)^{136}\text{La}$ | 9.5 min                 | 0.511*                              | $5.01 \times 10^3$                              | 20                         |
| Pr      | $^{141}\text{Pr}(\gamma, n)^{140}\text{Pr}$  | 3.39 min                | 0.511*                              | $2.60 \times 10^6$                              | 0.039                      |
| Pr      | $^{141}\text{Pr}(\gamma, 2n)^{139}\text{Pr}$ | 4.5 hr                  | 0.511*                              | $6.16 \times 10^3$                              | 1.6                        |
| Nd      | $^{142}\text{Nd}(\gamma, n)^{141}\text{Nd}$  | 2.42 hr                 | 0.511*                              | $1.58 \times 10^4$                              | 0.63                       |
| Sm      | $^{144}\text{Sm}(\gamma, n)^{143}\text{Sm}$  | 8.9 min                 | 0.511*                              | $1.12 \times 10^5$                              | 0.89                       |
| Sm      | $^{144}\text{Sm}(\gamma, 2n)^{142}\text{Sm}$ | 73 min                  | 0.511*                              | $3.45 \times 10^3$                              | 2.9                        |
| Eu      | $^{151}\text{Eu}(\gamma, n)^{150}\text{Eu}$  | 12.6 hr                 | 0.511*                              | $3.37 \times 10^2$                              | 30                         |
| Bi      | $^{209}\text{Bi}(\gamma, 3n)^{206}\text{Bi}$ | 6.24 d                  | 0.516                               | $1.31 \times 10^1$                              | 760                        |
| Br      | $^{79}\text{Br}(\gamma, 2n)^{77}\text{Br}$   | 57 hr                   | 0.522                               | $1.34 \times 10^2$                              | 75                         |
| Cd      | $^{106}\text{Cd}(\gamma, n)^{105}\text{Cd}$  | 53.5 hr                 | 0.530                               | $6.79 \times 10^2$                              | 15                         |
| Tb      | $^{159}\text{Tb}(\gamma, 3n)^{156}\text{Tb}$ | 5.4 d                   | 0.535                               | $2.44 \times 10^{-1}$                           | $41 \times 10^3$           |
| Se      | $^{77}\text{Se}(\gamma, p)^{76}\text{As}$    | 26.5 hr                 | 0.559                               | $1.06 \times 10^2$                              | 95                         |
|         | $^{78}\text{Se}(\gamma, pn)^{76}\text{As}$   |                         |                                     |   |                            |
| Sb      | $^{123}\text{Sb}(\gamma, n)^{122}\text{Sb}$  | 2.80 d                  | 0.564                               | $9.74 \times 10^3$                              | 1.0                        |
| Bi      | $^{209}\text{Bi}(\gamma, 2n)^{207}\text{Bi}$ | 30 yr                   | 0.570                               | $8.94 \times 10^{-1}$                           | $11 \times 10^3$           |
| Zr      | $^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89m}\text{Zr}$   | 4.18 min                | 0.588                               | $5.31 \times 10^5$                              | 0.19                       |
| Pd      | $^{102}\text{Pd}(\gamma, n)^{101}\text{Pd}$  | 8.4 hr                  | 0.590                               | $1.84 \times 10^2$                              | 54                         |
| As      | $^{75}\text{As}(\gamma, n)^{74}\text{As}$    | 17.9 d                  | 0.596                               | $1.84 \times 10^3$                              | 5.4                        |
| Br      | $^{79}\text{Br}(\gamma, n)^{78}\text{Br}$    | 65 min                  | 0.614                               | $4.92 \times 10^4$                              | 2.0                        |
| Cd      | $^{113}\text{Cd}(\gamma, p)^{112}\text{Ag}$  | 3.14 hr                 | 0.617                               | $9.57 \times 10^1$                              | 104                        |
| In      | $^{113}\text{In}(\gamma, n)^{112}\text{In}$  | 14 min                  | 0.617                               | $1.86 \times 10^3$                              | 54                         |
| Br      | $^{81}\text{Br}(\gamma, n)^{80}\text{Br}$    | 17.6 min                | 0.618                               | $2.48 \times 10^4$                              | 4.0                        |

| Element | Reaction  | Half-life<br>of product | $\gamma$ -ray<br>observed,<br>(MeV) | Photopeak<br>activity,<br>(cpm/mg) <sup>†</sup> | Sensitivity,<br>( $\mu\text{g}$ ) |
|---------|---|-------------------------|-------------------------------------|---|-----------------------------------|
| Ca      | $^{44}\text{Ca} (\gamma, p) ^{43}\text{K}$                  | 22.4 hr                 | 0.619                               | $1.15 \times 10^2$                              | 87                                |
| Ru      | $^{96}\text{Ru} (\gamma, n) ^{95}\text{Ru}$                 | 1.7 hr                  | 0.625                               | $5.10 \times 10^3$                              | 2.0                               |
| As      | $^{75}\text{As} (\gamma, n) ^{74}\text{As}$                 | 17.9 d                  | 0.635                               | $4.38 \times 10^2$                              | 23                                |
| Os      | $^{186}\text{Os} (\gamma, n) ^{185}\text{Os}$               | 94 d                    | 0.646                               | $1.53 \times 10^1$                              | 654                               |
| Ba      | $^{138}\text{Ba} (\gamma, n) ^{137\text{m}}\text{Ba}$       | 2.55 min                | 0.662                               | $2.14 \times 10^5$                              | 0.47                              |
|         | $^{137}\text{Ba} (\gamma, \gamma') ^{137\text{m}}\text{Ba}$ |                         |                                     |   |                                   |
| Mo      | $^{98}\text{Mo} (\gamma, p) ^{97}\text{Nb}$                 | 72 min                  | 0.665                               | $6.00 \times 10^3$                              | 1.7                               |
| I       | $^{127}\text{I} (\gamma, n) ^{126}\text{I}$                 | 13 d                    | 0.667                               | $8.39 \times 10^2$                              | 12                                |
| Cs      | $^{133}\text{Cs} (\gamma, n) ^{132}\text{Cs}$               | 6.5 d                   | 0.668                               | $1.14 \times 10^4$                              | 0.88                              |
| Zn      | $^{64}\text{Zn} (\gamma, n) ^{63}\text{Zn}$                 | 38.4 min                | 0.669                               | $3.36 \times 10^4$                              | 3.0                               |
| Re      | $^{185}\text{Re} (\gamma, n) ^{184}\text{Re}$               | 38 d                    | 0.793                               | $2.76 \times 10^2$                              | 36                                |
| Bi      | $^{209}\text{Bi} (\gamma, 3n) ^{206}\text{Bi}$              | 6.24 d                  | 0.803                               | $2.03 \times 10^1$                              | 490                               |
| Dy      | $^{163}\text{Dy} (\gamma, p) ^{162}\text{Tb}$               | 8 min                   | 0.810                               | $1.11 \times 10^3$                              | 9.0                               |
| Co      | $^{59}\text{Co} (\gamma, n) ^{58}\text{Co}$                 | 71.3 d                  | 0.811                               | $2.13 \times 10^2$                              | 47                                |
| Er      | $^{162}\text{Er} (\gamma, n) ^{161}\text{Er}$               | 3.1 hr                  | 0.827                               | $3.78 \times 10^2$                              | 26                                |
| Mn      | $^{55}\text{Mn} (\gamma, n) ^{54}\text{Mn}$                 | 303 d                   | 0.835                               | $9.30 \times 10^1$                              | 108                               |
| Ge      | $^{73}\text{Ge} (\gamma, p) ^{72}\text{Ga}$                 | 14.10 hr                | 0.835                               | $2.68 \times 10^2$                              | 37                                |
| Eu      | $^{153}\text{Eu} (\gamma, n) ^{152\text{m1}}\text{Eu}$      | 9.3 hr                  | 0.842                               | $4.09 \times 10^3$                              | 2.4                               |
| Fe      | $^{57}\text{Fe} (\gamma, p) ^{56}\text{Mn}$                 | 2.576hr                 | 0.847                               | $8.71 \times 10^2$                              | 12                                |
| Rb      | $^{85}\text{Rb} (\gamma, n) ^{84}\text{Rb}$                 | 33.0 d                  | 0.880                               | $7.43 \times 10^2$                              | 13                                |
| Dy      | $^{163}\text{Dy} (\gamma, p) ^{162}\text{Tb}$               | 8 min                   | 0.890                               | $1.07 \times 10^3$                              | 9.4                               |
| Y       | $^{89}\text{Y} (\gamma, n) ^{88}\text{Y}$                   | 108 d                   | 0.898                               | $3.10 \times 10^2$                              | 32                                |
| Re      | $^{185}\text{Re} (\gamma, n) ^{184}\text{Re}$               | 38 d                    | 0.904                               | $1.51 \times 10^2$                              | 66                                |
| Zr      | $^{90}\text{Zr} (\gamma, n) ^{89}\text{Zr}$                 | 78.4 hr                 | 0.913                               | $4.79 \times 10^3$                              | 2.1                               |
| Nb      | $^{93}\text{Nb} (\gamma, n) ^{92\text{m}}\text{Nb}$         | 10.16 d                 | 0.934                               | $1.51 \times 10^3$                              | 6.6                               |
| Eu      | $^{153}\text{Eu} (\gamma, n) ^{152\text{m1}}\text{Eu}$      | 9.3 hr                  | 0.963                               | $3.22 \times 10^3$                              | 3.1                               |
| Ti      | $^{49}\text{Ti} (\gamma, p) ^{48}\text{Sc}$                 | 1.83 d                  | 0.983                               | $7.56 \times 10^1$                              | 130                               |
| Ti      | $^{49}\text{Ti} (\gamma, p) ^{48}\text{Sc}$                 | 1.83 d                  | 1.040                               | $7.13 \times 10^1$                              | 140                               |
| Bi      | $^{209}\text{Bi} (\gamma, 2n) ^{207}\text{Bi}$              | 30 yr                   | 1.063                               | $2.70 \times 10^{-1}$                           | $37 \times 10^3$                  |
| Ga      | $^{69}\text{Ga} (\gamma, n) ^{68}\text{Ga}$                 | 68.3 min                | 1.078                               | $6.96 \times 10^3$                              | 1.4                               |
| Rb      | $^{87}\text{Rb} (\gamma, n) ^{86}\text{Rb}$                 | 18.66 d                 | 1.078                               | $5.21 \times 10^1$                              | 192                               |
| Ge      | $^{70}\text{Ge} (\gamma, n) ^{69}\text{Ge}$                 | 38 hr                   | 1.107                               | $7.19 \times 10^2$                              | 14                                |
| Nd      | $^{142}\text{Nd} (\gamma, n) ^{141}\text{Nd}$               | 2.42 hr                 | 1.130                               | $8.04 \times 10^2$                              | 12                                |
| Sc      | $^{45}\text{Sc} (\gamma, n) ^{44}\text{Sc}$                 | 3.92 hr                 | 1.156                               | $6.12 \times 10^4$                              | 0.16                              |
| Eu      | $^{151}\text{Eu} (\gamma, n) ^{150}\text{Eu}$               | 12.6 hr                 | 1.165                               | $4.21 \times 10^2$                              | 24                                |
| Sb      | $^{121}\text{Sb} (\gamma, n) ^{120}\text{Sb}$               | 5.7 d                   | 1.171                               | $1.74 \times 10^2$                              | 58                                |



| Element | Reaction  | Half-life of product | $\gamma$ -ray observed, (MeV) | Photopeak activity, (cpm/mg) <sup>†</sup> | Sensitivity, ( $\mu$ g) |
|---------|---|----------------------|-------------------------------|---|-------------------------|
| Sb      | $^{121}\text{Sb} (\gamma, n) ^{120}\text{Sb}$       | 15.9 min             | 1.171                         | $1.03 \times 10^4$                        | 9.7                     |
| Eu      | $^{151}\text{Eu} (\gamma, n) ^{150}\text{Eu}$       | 12.6 hr              | 1.224                         | $2.93 \times 10^2$                        | 34                      |
| Na      | $^{23}\text{Na} (\gamma, n) ^{22}\text{Na}$         | 2.60 yr              | 1.275                         | $4.18 \times 10^0$                        | $2.4 \times 10^3$       |
| Si      | $^{30}\text{Si} (\gamma, p) ^{29}\text{Al}$         | 6.6 min              | 1.28                          | $3.68 \times 10^3$                        | 27                      |
| Ca      | $^{48}\text{Ca} (\gamma, n) ^{47}\text{Ca}$         | 4.53 d               | 1.30                          | $6.10 \times 10^0$                        | $1.6 \times 10^3$       |
| Ti      | $^{49}\text{Ti} (\gamma, p) ^{48}\text{Sc}$         | 1.83 d               | 1.314                         | $5.38 \times 10^1$                        | 190                     |
| Cu      | $^{65}\text{Cu} (\gamma, n) ^{64}\text{Cu}$         | 12.8 hr              | 1.34                          | $5.46 \times 10^1$                        | 183                     |
| Mg      | $^{25}\text{Mg} (\gamma, p) ^{24}\text{Na}$         | 15.0 hr              | 1.369                         | $7.66 \times 10^2$                        | 13                      |
| Ni      | $^{58}\text{Ni} (\gamma, n) ^{57}\text{Ni}$         | 36.0 hr              | 1.370                         | $6.28 \times 10^3$                        | 1.6                     |
| Zr      | $^{90}\text{Zr} (\gamma, n) ^{89\text{m}}\text{Zr}$ | 4.18 min             | 1.510                         | $8.72 \times 10^3$                        | 12                      |
| Ca      | $^{43}\text{Ca} (\gamma, p) ^{42}\text{K}$          | 12.4 hr              | 1.524                         | $1.85 \times 10^0$                        | $5.4 \times 10^3$       |
|         | $^{44}\text{Ca} (\gamma, pn) ^{42}\text{K}$         |                      |                               |   |                         |
| Si      | $^{29}\text{Si} (\gamma, p) ^{28}\text{Al}$         | 2.31 min             | 1.78                          | $5.20 \times 10^3$                        | 19                      |
| Fe      | $^{57}\text{Fe} (\gamma, p) ^{56}\text{Mn}$         | 2.576hr              | 1.811                         | $8.88 \times 10^1$                        | 112                     |
| Y       | $^{89}\text{Y} (\gamma, n) ^{88}\text{Y}$           | 108 d                | 1.836                         | $1.36 \times 10^2$                        | 74                      |
| Fe      | $^{57}\text{Fe} (\gamma, p) ^{56}\text{Mn}$         | 2.576hr              | 2.110                         | $4.10 \times 10^1$                        | 244                     |
| K       | $^{39}\text{K} (\gamma, n) ^{38}\text{K}$           | 7.71 min             | 2.170                         | $2.53 \times 10^4$                        | 4.0                     |

\* Annihilation  $\gamma$ -ray.

† At the end of 1-hr irradiation by 30 MeV bremsstrahlung with a dose-rate of  $4.41 \times 10^6 \text{R/min}$ .

Detector :  $24 \text{ cm}^3 \text{ Ge (Li)}$ , Source-to-detector distance : 20 mm.

### Ⅲ-3 Hexachloropropene の選択的塩素化 反応によるウランとニオブの分離

選研 菅野卓治・伊藤勝雄・長谷川伸一

#### 1 序

塩素化剤として、有機塩素試薬 hexachloropropene ( $\text{CCl}_2 = \text{CCl} \cdot \text{CCl}_3$ ) は、ある種の金属酸化物と有効に反応して、それぞれの金属塩化物を生成する。  $\text{U}_3\text{O}_8$  とは  $70^\circ\text{C}$  付近から反応が始って、中間生成物である  $\text{UCl}_5 \cdot \text{C}_3\text{Cl}_4\text{O}$  が生成し、 $100^\circ\text{C}$  では4時間以内に99.9%以上の反応率を示した。その後温度を $130^\circ\text{C}$ 以上に上げることにより、中間生成物は熱分解して、 $\text{UCl}_4$  のかたちで析出することが知られた。<sup>1)</sup> また  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  は $200^\circ\text{C}$ 近辺で hexachloropropene と反応して、塩化物になるが、 $\text{ZrO}_2$  は反応しないことが知られている。<sup>2)</sup>

そこで hexachloropropene のこのような選択的な反応性を利用して、使用済原子炉燃料の再処理法を検討する目的で、まず  $\text{U}_3\text{O}_8$  と  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  の分離に関する基礎的な実験をした。

#### 2 実験

$\text{U}_3\text{O}_8$  (三菱金属鉱業製 99.9%) 99% に  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  (和光純薬製 99.9%) 1% を加え、V型混合機で1時間混合し、その混合物0.5gを実験に使用した。 $\text{Nb}_2\text{O}_5$  中には、LINAC照射により、 $^{95}\text{Nb}$  ( $r, n$ )  $^{92}\text{Nb}$  反応で生成した $^{92}\text{Nb}$  ( $T_{1/2} = 10.1\text{d}$ ,  $r$ -ray 0.98 MeV) の酸化物を混合しており、これをトレーサとして分離度を調べた。

反応は、 $\text{U}_3\text{O}_8$  -  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  混合物0.5gを、 $100^\circ\text{C}$ に保たれた hexachloropropene 10cc 中で4時間反応させた。 $\text{U}_3\text{O}_8$  は hexachloropropene と反応し、中間生成物  $\text{UCl}_5 \cdot \text{C}_3\text{Cl}_4\text{O}$ <sup>3)</sup> を生ずる。これはアルコールに非常によく溶け、又  $\text{NbCl}_5$  もアルコールには易溶であるので、反応後、東洋円筒炉紙 NO. 86R を用いてろ過し、アルコール洗浄を行なって、反応生成物と未反応酸化物を分離する。ろ紙上の放射能と炉液中の放射能を測定して、ウランとニオブの分離度を調べた。

#### 3 結果と考察

処理前の  $\text{U}_3\text{O}_8$  -  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  混合物の  $r$ -線エネルギースペクトルを Fig. 1. に示す。ろ紙上の未

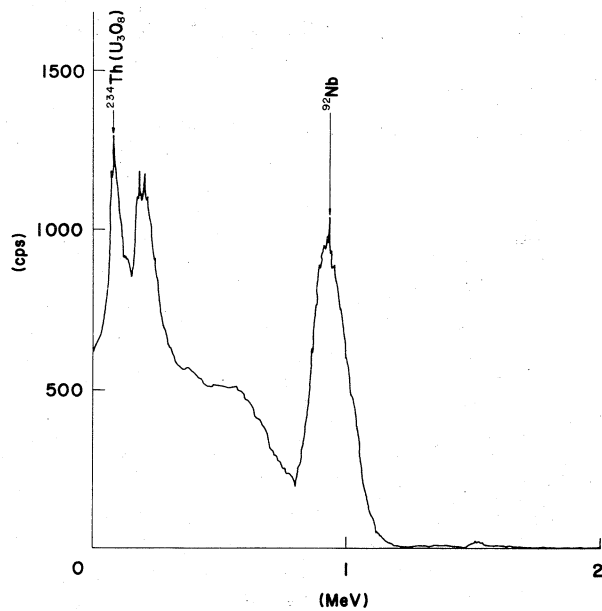


Fig. 1. 処理前の  $U_3O_8-Nb_2O_5$  混合物の  $\gamma$ -線エネルギースペクトル

反応物の  $\gamma$ -線エネルギースペクトルを Fig. 2. に示す。Fig. 2. から  $U_3O_8$  は hexachloropropene と反応して、汙紙には残存していないことがわかる。

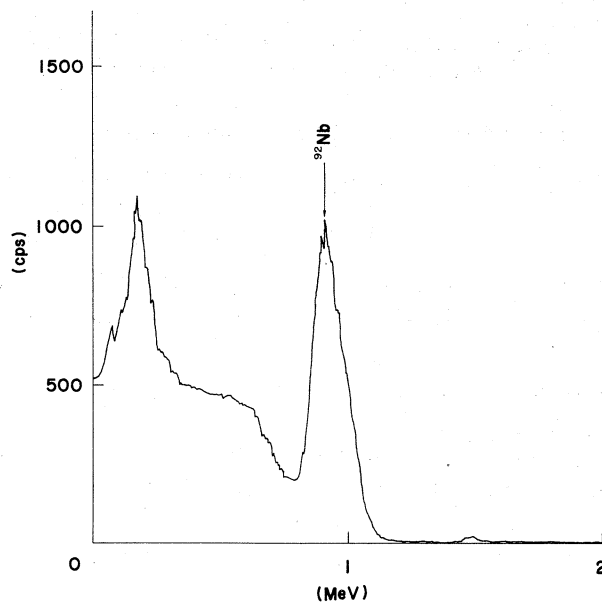


Fig. 2. 処理後、汙紙に残存していた未反応物の  $\gamma$ -線エネルギースペクトル

汚紙上の $^{92}\text{Nb}$ の計数率と初めに採取した $^{92}\text{Nb}$ の計数率とは全く変りなく、大部分の $\text{Nb}_2\text{O}_5$ が残っていることがわかる。

一方汚液を蒸発乾固したものの $\gamma$ -線エネルギースペクトルはFig.3.に示す。Fig.3.より、汚液

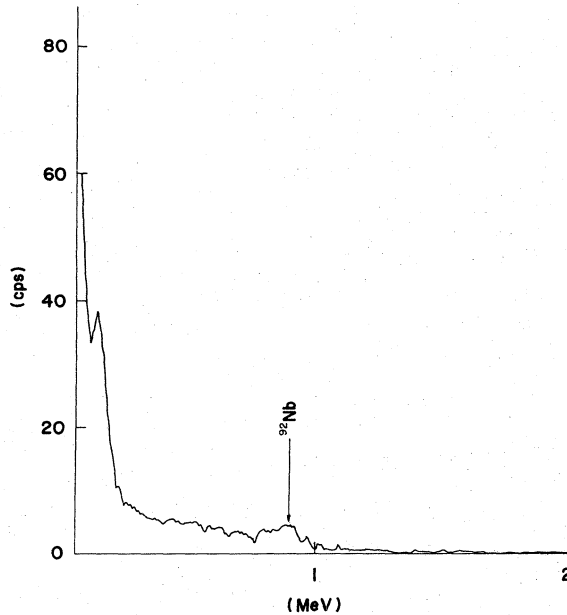


Fig.3. 処理後、汚液-洗液を蒸発乾固して得た残渣の $\gamma$ -線エネルギースペクトル

中に含まれているニオブは微量であり、 $100^\circ\text{C}$ では hexachloropropene は、 $\text{Nb}_2\text{O}_5$ と殆んど反応しないことがわかる。計数率から分離係数を計算すると、200以上の値が得られた。今回は、 $100^\circ\text{C}$ での反応後、温度を $130^\circ\text{C}$ に上げ、熱分解反応させ、ウランを $\text{UCl}_4$ のかたちで析出させ、回収する過程を取入れなかったが、この過程を入れることにより、さらにより分離度を期待できる。

hexachloropropene は  $\text{ZrO}_2$  とはほとんど反応しないことが知られている。使用済原子炉燃料の再処理において、塩化物揮発法では、ニオブ、ジルコニウムがウランから分離困難なF.P.になっている。そこで、hexachloropropene を塩化物揮発法の前処理に用いることによりさらに高い除染度が期待できる。

## 文 献

- 1) 伊藤勝雄, 菅野卓治: 日本原子力学会昭和46年年会講演要旨集

- 2) W. Porterfield Ph. D. Dissertation, Univ. North Carolina, 1962
- 3) J. Selbin , J. D. Ortego, and G. Gritzner, Inorg, Chem, 7 976 ( 1968 )

### Ⅲ - 4 気相系における $C_2H_5^{80m}Br$ の核異性体転移に伴う化学的効果

理学部化学 伊沢郡蔵・臼井康雄・塩川孝信

気相系における臭素のホットアトム反応についての研究は数多くが報告されているが、主として  $^{80m}Br$  又は  $^{82m}Br$  の IT 過程により生じる臭素ホットアトムが対象とされ、hydrocarbon 系<sup>1)</sup>、alkyl halide 系<sup>2)</sup> について研究が進められてきた。

ここでは IT 過程によって生じるホットアトムは核反応により生じる反跳臭素で認められた運動エネルギーを持つ中性原子状態の臭素反応の他に、熱イオン状態の臭素の反応が重要な因子となっていることが認められている。<sup>3)</sup> そこで熱イオン臭素の反応生成物の生成機構を検討するため、すでに光分解により、励起 1,2 -  $C_2H_4Br_2$  (1,2-DBE) からの分解安定化反応の生成機構の明らかとなっている  $C_2H_5Br$  (VB), 1,2-DBE を対象とし、 $C_2H_5^{80m}Br$  を  $^{80m}Br$  源として検討を行なった。

#### 実 験

##### 1) $C_2H_5^{80m}Br$ の合成

$NaBr$  約 0.5 g を東北大学 LINAC 60MeV で約 4~5 時間制動放射線を照射し  $Na^{80m}Br$  を得た。 $Na^{80m}Br$  を細粉し約 4.5 g の  $NaBr$  キャリヤーを加え、水 3 ml,  $C_2H_5OH$  約 5 ml を加えて還流器付フラスコで 30 分間濃硫酸を滴下しながら加熱した。生成した  $C_2H_5^{80m}Br$  は真空蒸留後、五酸化リンで乾燥し使用した。純度はガスクロマトグラフで検討の結果 99.5% 以上であった。

##### 2) 試料の調整及び生成物の分離

$C_2H_5^{80m}Br$  に酸素又はクリプトンと共に常法に従い 50ml~1 l の適当な大きさのアンブルに封入した。放射平衡に達するまで約 2 時間暗所に放置後、液体窒素で固化し、四塩化炭素-亜硫酸ナトリウム水溶液で抽出し、有機相、無機相に分離した。有機相は Si-DC550, 2.25 m,  $\phi$  5 mm をカラムとしたガスクロマトグラスで生成物を分離し、各フラクションをドライアイスエタノール寒剤で捕集した。

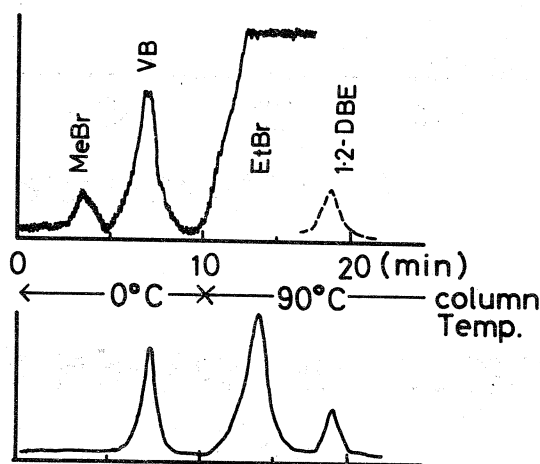
##### 3) 放射能の測定

各生成物の放射能は井戸型 NaI (Tℓ) シンチレーターにより、シングルチャンネル波高分析器により測定した。放射能汚染により $^{80m}\text{Br}$  が生成物中にも混入するため、 $^{80}\text{Br}$  と $^{80m}\text{Br}$  の分離は崩壊曲線より行なった。

## 結果と考察

### 1) $\text{C}_2\text{H}_5\ ^{80m}\text{Br}$ 系における生成物

$\text{C}_2\text{H}_5\ ^{80m}\text{Br}$  系における IT 過程により生じる $^{80}\text{Br}$  の反応生成物を検討した。検出はラジオガスクロマトグラフにより行ない結果を図1に示した。



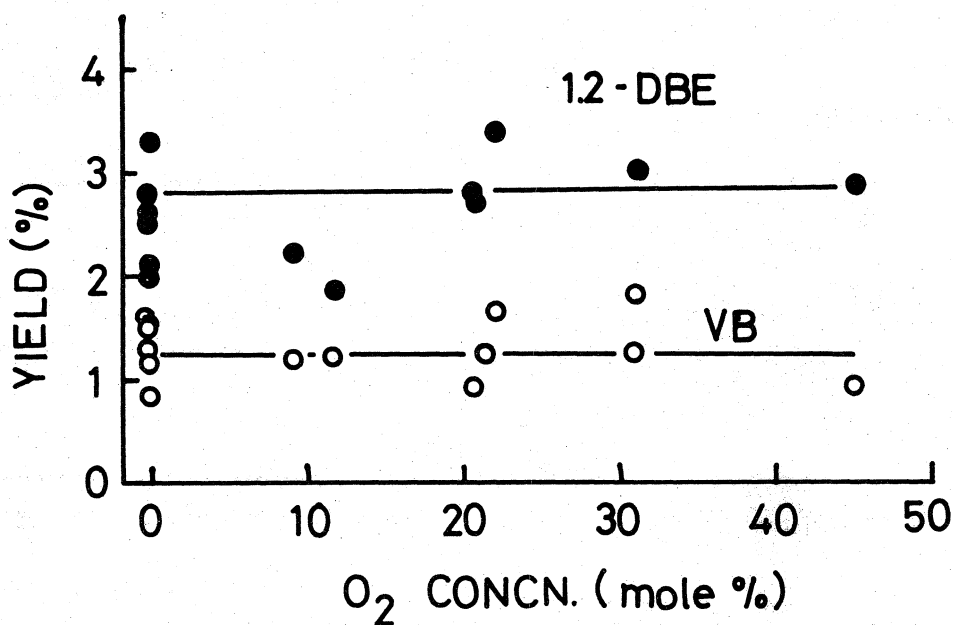
RADIOGASCHROMATOGRAM  
OF  $\text{C}_2\text{H}_5\ ^{80m}\text{Br}$

図 1.

主たる生成物は  $\text{CH}_3\text{Br}$  ,  $\text{C}_2\text{H}_5\text{Br}$  , 1,2-DBE であり,  $\text{CH}_3\text{Br}$  は  $\text{C}_2\text{H}_5\text{Br}$  の約  $\frac{1}{30}$  程度である。ガスクロマトグラフにおいて  $\text{C}_2\text{H}_5\ ^{80m}\text{Br}$  とほぼ同じリテンション時間を持つ  $n\text{-C}_3\text{H}_7\text{Br}$  ,  $iso\text{-C}_3\text{H}_7\text{Br}$  ,  $\text{CH}_2\text{Br}_2$  については,  $\text{C}_2\text{H}_5\ ^{80m}\text{Br}$  の放射能汚染のため検出は不可能であった。

### 2) 酸素スカベンジャー効果

$\text{C}_2\text{H}_5\ ^{80m}\text{Br}$  -酸素系における VB , 1,2-DBE の収率を図2に示した。全系圧  $10 \pm 1.0\text{ cm Hg}$  での VB , 1,2-DBE の収率は, それぞれ 1.2% , 3.0% であり, 酸素濃度 50% まで一定値である。



## EFFECTS OF OXYGEN SCAVENGER

図 2.

酸素は<sup>80m</sup>BrのIT過程によって生じる<sup>80</sup>Brの熱ラジカル反応に対するスカベンジャーの作用がある。VB, 1,2-DBEの収率が酸素添加の影響をうけないことから、これらの生成反応に熱ラジカル反応の寄与が少ないと考えられる。

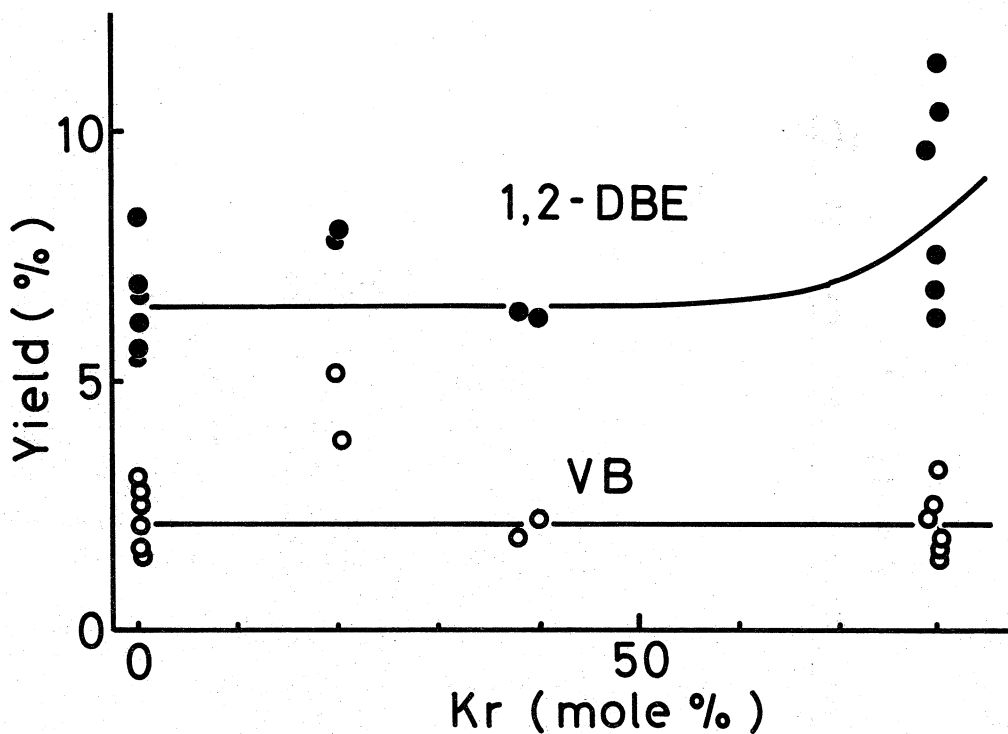
### 3) クリプトン添加効果

クリプトンは分子量 83.80 の単原子分子であるため、<sup>80m</sup>BrのIT過程によって生じる<sup>80</sup>Brとの衝突により、化学反応を起さずに<sup>80</sup>Brの運動エネルギーを減衰させるモデレーターとして、希ガス中で最も効果的に作用し、原子状態の<sup>80</sup>Brの高エネルギー反応を消去すると考えられる。C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>Brにクリプトンと酸素を加えた系における収率の変化を図3に示した。熱反応を除去するスカベンジャーとして、酸素濃度はC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>Brに対して20%に保った。

VBの収率は、クリプトン濃度によらず2.1%となり、1,2-DBEのそれはクリプトン濃度40%までは6.5%であるが、クリプトン濃度が高くなるに従って収率は8~9%まで増加した。

VBと1,2-DBEのいずれの生成反応にも運動エネルギーを持つ中性原子状態の<sup>80</sup>Brの寄与





Effects of Kr additive

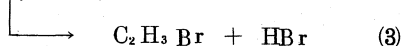
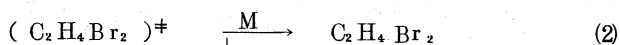
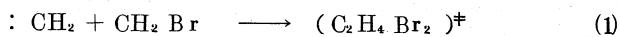
図 3.

は少ないと考えられる。

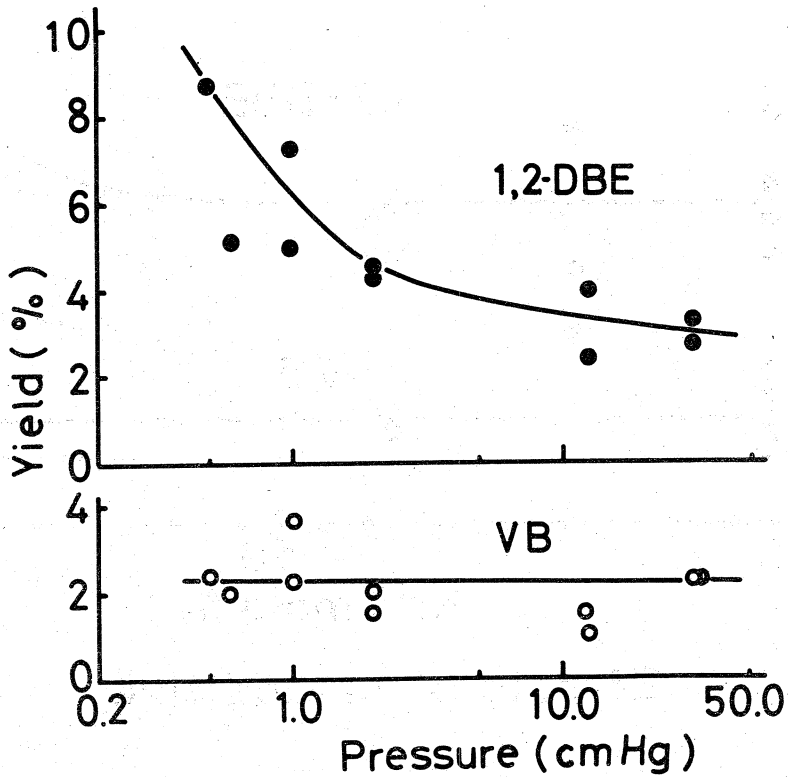
#### 4) 圧力効果

酸素スカベンジャーを20%加えた下で全系圧を0.4~20cmHgまで変化させ、VB、1,2-DBEの収率の変化を検討した。結果は図4に示すようにVBは系の圧力に関係なく2.3%であり1,2-DBEは圧力の増加と共に8.7%から3.0%まで収率は減少する。

Setzerらの報告<sup>4)</sup>によると、(1)式の反応により生じる。



励起状態のDBEは一分子分解反応(3)か、安定化反応(2)によりDBE又はVBをそれぞれ生じる。反応系の圧力の増加は分子間衝突の確率の増加により、(2)の安定化反応、DBEの収率の増加、VBの収率の減少が期待される。 $\text{C}_2\text{H}_3^{\text{om}}\text{Br}$ 系において生成するVB、DBEの収率の間には



### EFFECTS OF PRESSURE IN THE SYSTEM OF ETHYL BROMIDE

図 4.

系の圧力の増加に従い何等の相関関係は認められず、VB, 1,2-DBE は  $(C_2H_4Br_2)^+$  の同一の励起分子を前駆体とするものではないことが明らかとなった。

#### 5) $H^{80m}Br - C_2H_5Br$ 系

$H^{80m}Br$  から IT 過程によって生じる  $^{80}Br$  は、そのクローン反撓により得る運動エネルギーは約 1 eV であるため、運動エネルギーを持つ中性原子としての反応よりも熱イオンとしての反応が顕著となることが知られている。<sup>4)</sup>

$H^{80m}Br$  を  $^{80m}Br$  源とした場合の生成物の収率を表 1 に示す。VB の収率は 0.12~0.15%, DBE

表 1.

| Productu | Yields (%)    |
|----------|---------------|
| MeBr     | 0.056 ~ 0.077 |
| VB       | 0.12 ~ 0.15   |
| EtBr     | 1.29          |
| 1,2-DBE  | 1.72          |

| Composition         |            |
|---------------------|------------|
| EtBr                | 33.10 cmHg |
| H <sup>80m</sup> Br | 10.0       |
| O <sub>2</sub>      | 3.0        |

のそれは0.72%である。VB/DBEの比は約0.2でありC<sub>2</sub>H<sub>5</sub><sup>80m</sup>Br系の46cmHgにおけるVB/DBEの値は約0.8とH<sup>80m</sup>Br-C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>Br系における値に比べて小さく、これはDBEの生成反応は<sup>80m</sup>BrのIT過程により生じる熱イオンにより促進されることを示す。

更にこの結果は、クリプトン添加系において、クリプトン高濃度でDBEの収率が増加したことにより、<sup>80</sup>Br熱イオン状態のBr<sup>+</sup>イオンがDBEの生成に大きく寄与していることを示す。

## 謝 辞

著者は実験を実施する上に寄せられたライナック要員の方々に心から感謝致します。

## 文 献

- 1) J. B. Nicholas, E. P. Rack, J. Chem. Phys., **48** 4085 (1968)
- 2) J. Okamoto, E. Tachikawa, Bull. Chem. Soc. Japan, **42** 1504 (1969)
- 3) 八木, 近藤, 小林, 塩川, 核理研報告 **3** No. 2 132 (1970)
- 4) R. L. Johnson, D. W. Setser, J. Phys. Chem., **71** 4366 (1967)

### Ⅲ - 5 電子リニアックを利用した $Mg^{28}$ の製造法について

工学部原子核 武田 靖・篠塚 勉  
板垣新治郎・古田島久哉

#### 要 旨

電子リニアックを利用して高い比放射能をもつ半減期21.3時間の  $Mg^{28}$  を製造する方法の可能性について実験を行ない、65 MeV の制動輻射によるガンマ線の  $Si^{30}(\gamma, 2p)Mg^{28}$  反応により、約  $10\mu Ci$  程度の生成量が得られることが判った。

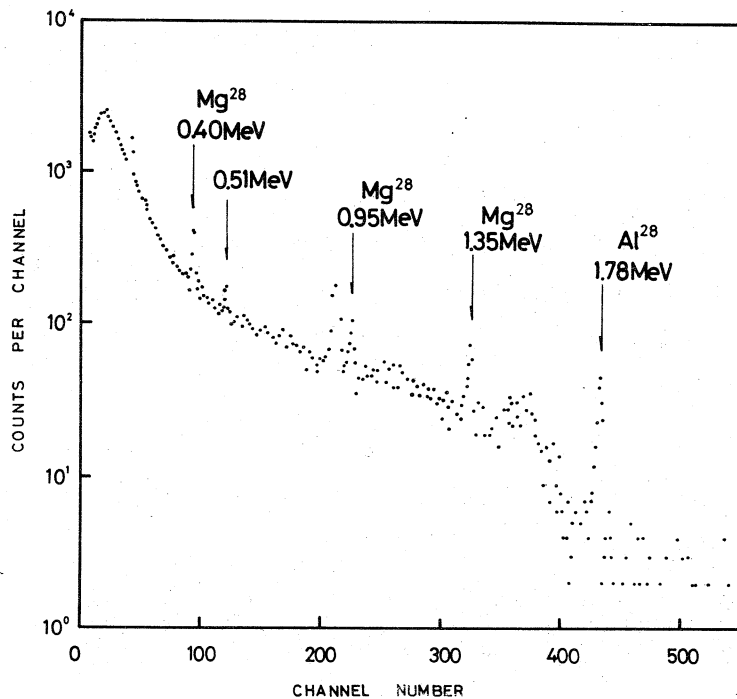
#### 序 論

原子番号12の  $Mg$  は、生物学、化学、医学、金属学等の分野で重要な元素であるが、この元素のトレーサーとしての放射性同位元素は、 $Mg^{28}$  以外は半減期が短く充分ではない。この  $Mg^{28}$  を製造する方法は従来から研究されており、現在では、原子炉内の熱中性子を利用した  $Li^6(n, \alpha)t$  反応で作った triton, 又は、VdGで直接加速した triton を用いた  $Mg^{26}(t, p)Mg^{28}$  反応を利用して製造する方法が確立されている。<sup>1)</sup> しかし、トリトンを加速する事が技術的に困難である事、得られる  $Mg^{28}$  の比放射能があまり高くない事等の難点があげられる。そこで我々は  $Si^{30}(\gamma, 2p)Mg^{28}$  反応に着目した。

R. K. Sheline 達<sup>2)</sup>は、 $Mg^{28}$  の核物理的研究を行なう際にこの方法を利用して  $Mg^{28}$  を生成した。この反応を利用して得られる  $Mg^{28}$  の比放射能は、照射後 Si - Mg の化学分離を行なうことにより充分高いものを得られることが期待されるので、この製造法の有効性を調べる事を目的として本実験を行なった。

#### 実験及び実験結果

試料には99.9%の natural ( $Si^{30}$  の存在比 3.1%) の Si metal 約 400 mg を用い、 $E_{\gamma max} = 40 \sim 65$  MeV の制動輻射で 5MeV 間隔の照射を行なった。照射時間は各エネルギーについて約2時間であった。照射後2時間試料を放置して短半減期の副生成物を充分崩壊させた後、33CC Ge (Li) 検出器で  $\gamma$  線を測定した。こうして得られたガンマ線のエネルギースペクトルの一例を図1に示す。これは  $E_{\gamma max} = 50$  MeV で2時間照射し、照射終了後2時間経過した後、2時間

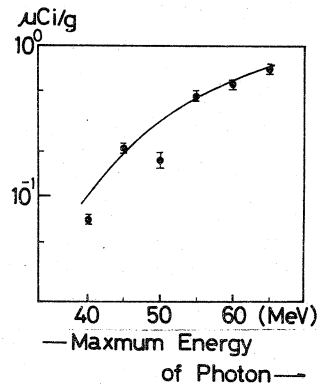


第1図  $^{33}\text{Ge}(\text{Li})$  検出器を用いて測定した  
 $\text{Mg}^{28} \rightarrow \text{Al}^{28} \rightarrow \text{Si}^{28}$  崩壊に伴う  $\gamma$  線スペクトル

測定して得られたスペクトルである。0.40, 0.95, 1.35 MeV の3本のガンマ線と, 1.78 MeV のガンマ線は, それぞれ  $\text{Mg}^{28}$  と  $\text{Mg}^{28}$  の娘核である  $\text{Al}^{28}$  の崩壊に依るものである。

このスペクトルのピークの面積に, 検出器の効率, ガンマ線の分岐率, 照射後の試料の崩壊等を補正して, 照射直後の  $\text{Mg}^{28}$  の生成量を求めた。更に各エネルギーでの照射に際しての電流時間積を  $170 \mu\text{Ah}$  に規格化して比生成量を求めた。試料 1 g 当りの  $\text{Mg}^{28}$  の生成量を示す生成曲線を図2に示す。

これによると, 40 MeV で約  $0.7 \times 10^{-1} \mu\text{Ci}/\text{Si 1 g}$  を示しエネルギーが増すに従って単調に増加し, 65 MeV で約  $7 \times 10^{-1} \mu\text{Ci}/\text{Si 1 g}$  と 40 MeV の値に対して一桁高い値を示している。



第2図  $\text{Si}^{30}(\gamma, 2p)\text{Mg}^{28}$  反応による  $\text{Mg}^{28}$  の生成曲線

## 考 察

制動輻射の $\gamma$ 線のスペクトル及び  $\text{Si}^{30}(\gamma, 2p)\text{Mg}^{28}$  の反応断面積から予想される様に、実験を行なった範囲では  $E_{\gamma\text{max}} = 65 \text{ MeV}$  で最大の生成量が得られた。この時の生成量は、試料を 1 g 用いると、 $7 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{Si}$  1 g である。これは、トレーサーとしては必ずしも十分な量ではないが、試料の量を増すとか又は、照射時間を延長する等の方法である程度解決できると思われる。

以上  $\text{Si}^{30}(\gamma, 2p)\text{Mg}^{28}$  反応を利用した  $\text{Mg}^{28}$  の製造法の有効性について調べたが、高い比放射能を持つ  $\text{Mg}^{28}$  が必要な場合については、この方法により約  $10 \mu\text{Ci}$  程度の  $\text{Mg}^{28}$  の製造が可能であるということが確かめられた。

## 文 献

- 1) L. G. Stang, Jr., W. D. Tukor, A. J. Weiss and H. O. Banks, Jr.,  
BNL - 3138 (1956)
- 2) R. K. Shelton and N. R. Johnson Phys. Rev., **89**, 520 (1953)  
R. K. Shelton and N. R. Johnson Phys. Rev., **90**, 325 (1953)

## Ⅲ - 6 ニッケル基耐熱合金の放射化分析

理学部 R I 中央実験室・核理研\*

八木益男\*・野村紘一\*・山寺 亮

### 1 緒 言

Inconelはニッケル基耐熱合金である。特に高温における物性が優れていることから、近年炉材料として脚光をあびている。Inconel は Ni 約70%, Cr 約15%, Fe 約5%を主成分とし、その他 Al, Si, Ti, Mn, Co, Cu, Zr, Nb, Ta 等多数の元素から成り、これらの元素の含有比が少し変わっても合金の物性は大きく変化する。従って、これら元素の含有量は正確に求められる必要がある。そのために各種の分析方法が試みられているが、化学的性質の類似した元素が多いことから良い分析方法がなく、信頼できる定量値は少ない。

本報は、その一つの試みとして光核反応を用いた Inconel の非破壊分析について検討したので、それについて報告する。

### 2 実 験

#### 2-1 試料及び照射

標準となる Inconel は各種の分析によって、ほぼ一致した分析値が得られている。Inconel  $\times$  750 A を用いた。また未知試料として Inconel C, D, E, F, G, H, I, 7種を用いた。これらの金属片(約 3mm  $\times$  3mm  $\times$  0.5mm) 100 ~ 200mg をアルミ箔に包装し、それぞれの未知試料を標準試料でサンドイッチして照射試料とした。照射は東北大学原子核理学研究施設の最大エネルギー300 MeV 電子ライナックで加速した 30MeV 電子線を厚さ 3mm の白金コンバーターにより制動放射線に変換して行ない、試料はコンバーター後方の試料ホルダー内にビーム軸に沿って並べて照射した。照射は2時間行なった。

さらに 30MeV 制動放射線では妨害反応がかなり多く生じることがわかったので、同施設の最大エネルギー 30MeV 電子ライナックで加速した 20MeV 電子線を厚さ 2mm の白金コンバーターにより制動放射線に変換して同様の照射実験を行なった。

#### 2-2 測 定

測定は表1に示した核反応によって生成される半減期が36 $\mu$ r ~ 303 d の  $\gamma$  線を放射する核種

を対象とした。 $\gamma$ 線スペクトルの測定は340CのGe(Li)半導体検出器と、東芝社製4096cPHAにより行なった。試料は半導体素子表面から1~5cmの距離で測定した。

表1. 核的性質

| 核反応   | 生成核の半減期 | 生成核の放出 $\gamma$ 線エネルギー (MeV) |
|---|---------|------------------------------|
| $^{58}\text{Ni} (\gamma, n) ^{57}\text{Ni}$         | 36 hr   | 0.127, 0.511, 1.37, 1.89     |
| $^{52}\text{Cr} (\gamma, n) ^{51}\text{Cr}$         | 27.8 d  | 0.320                        |
| $^{54}\text{Fe} (\gamma, pn) ^{52}\text{Mn}$        | 5.7 d   | 0.511, 0.744, 0.985, 1.434   |
| $^{47}\text{Ti} (\gamma, p) ^{46}\text{Sc}$         | 83.9 d  | 0.889, 1.120                 |
| $^{48}\text{Ti} (\gamma, p) ^{47}\text{Sc}$         | 3.43 d  | 0.160                        |
| $^{49}\text{Ti} (\gamma, p) ^{48}\text{Sc}$         | 1.83 d  | 0.983, 1.040, 1.314          |
| $^{93}\text{Nb} (\gamma, n) ^{92\text{m}}\text{Nb}$ | 10.16 d | 0.934                        |
| $^{55}\text{Mn} (\gamma, n) ^{54}\text{Mn}$         | 303 d   | 0.835                        |
| $^{59}\text{Co} (\gamma, n) ^{58}\text{Co}$         | 71.3 d  | 0.511, 0.810                 |

### 3 結果と考察

30MeV制動放射線照射によるInconel A (照射後89日)の $\gamma$ 線スペクトルを図1に示す。

照射後約1週間は $^{57}\text{Ni}$ の光電ピークが強く、その他の核種の $\gamma$ 線の同定はむずかしい。その後 $^{51}\text{Cr}$ ,

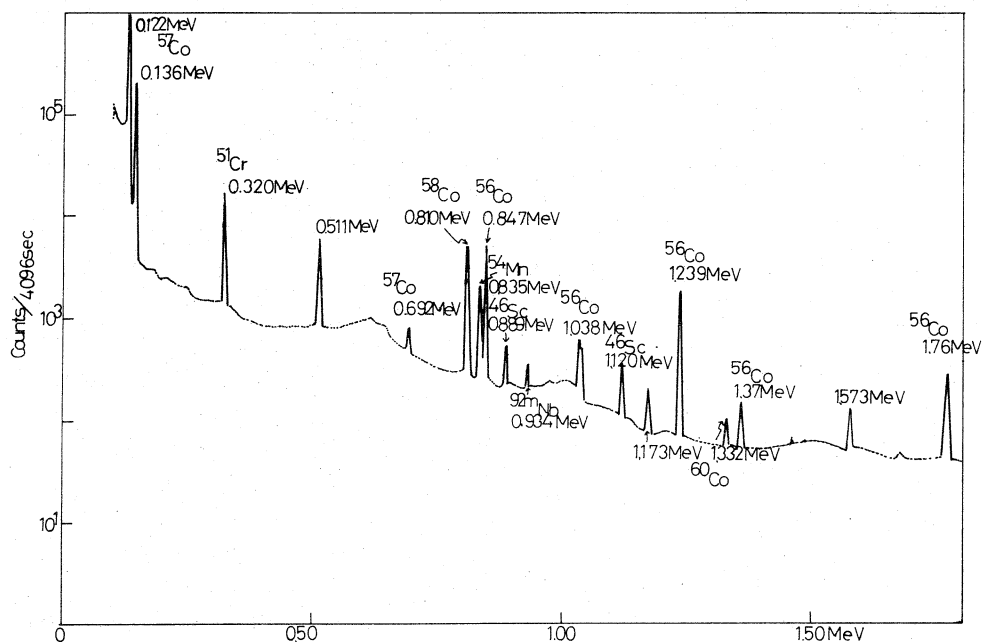


図1. 30 MeV 制動放射線照射によるInconel A (照射後89日)



$^{46}\text{Sc}$ ,  $^{92\text{m}}\text{Nb}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{58}\text{Co}$  の光電ピークが現われる。

$^{46}\text{Sc}$ , 1.120 MeV,  $^{54}\text{Mn}$  0.835 MeV,  $^{58}\text{Co}$  0.810 MeV,  $^{92\text{m}}\text{Nb}$  0.934 MeV,  $^{51}\text{Cr}$  0.320 MeV の光電ピークの面積計数率から、それぞれ、Ti, Mn, Co, Nb, Cr の分析値の算出を試みたが Cr 以外は分析値にかなりのばらつきを生じた。この原因として Mn では  $^{56}\text{Fe}$  ( $\gamma, \text{pn}$ )  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{58}\text{Co}$  ( $\gamma, \alpha \text{n}$ )  $^{54}\text{Mn}$  および Co では  $^{60}\text{Ni}$  ( $\gamma, \text{pn}$ )  $^{58}\text{Co}$ , 他の妨害反応が生じていること、および  $^{58}\text{Ni}$  ( $\gamma, \text{pn}$ )  $^{56}\text{Co}$  で生成する  $^{56}\text{Co}$  からの高エネルギー  $\gamma$  線によって、バックグラウンドが高められ、S-N比を悪くしていることが考えられる。

そこで、これらの妨害反応をおさえるために 20 MeV 制動放射線照射に切りかえた。20 MeV 制動放射線照射による Inconel A の  $\gamma$  線スペクトル (照射後 72 日) を図 2 に示す。

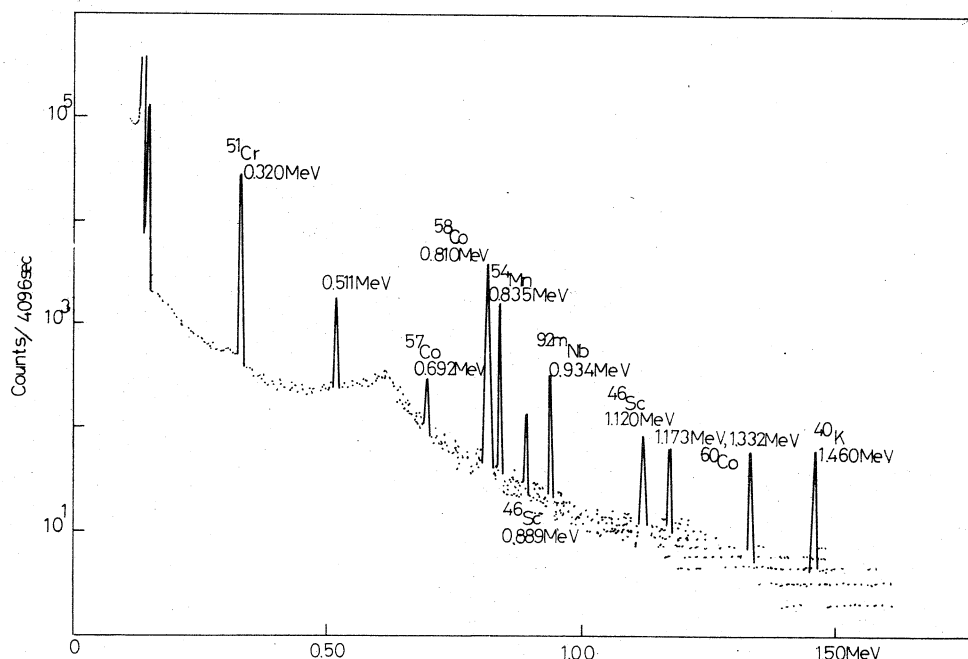


図 2. 20 MeV 制動放射線照射による Inconel A (照射後 72 日)

図から明らかに  $^{60}\text{Ni}$  ( $\gamma, \text{pn}$ )  $^{58}\text{Co}$  反応は生じていない。

また、妨害反応は同時に照射した高純度の Fe, Co, Ni 試料に妨害反応による光電ピークが見られないことから無視できることがわかった。

7 種の Inconel 未知試料について得られた結果は表 2 のとおりである。参考のために各未知試料の成分配合予定値を同時にカッコ内に示した。これらの結果については他の分析方法との比

表2. 定 量 値

(%)

|              | Mn             | Co             | Ti             | Nb                           |
|--------------|----------------|----------------|----------------|------------------------------|
| Inconel<br>C | 0.11<br>(0.04) | 0.04<br>(0.01) | 2.48<br>(2.46) | 0.96<br>(1.01 <sup>*</sup> ) |
| "<br>D       | 0.07<br>(0.04) | 0.04<br>(0.03) | 2.74<br>(2.73) | 0.93<br>(1.01 <sup>*</sup> ) |
| "<br>E       | 0.12<br>(0.07) | 0.04<br>(0.02) | 2.44<br>(2.46) | 0.93<br>(1.00 <sup>*</sup> ) |
| "<br>F       | 0.03<br>(0.03) | 0.05<br>(0.02) | 2.42<br>(2.40) | 0.92<br>(0.91 <sup>*</sup> ) |
| "<br>G       | 0.53<br>(0.53) | 0.08<br>(0.10) | 2.35<br>(2.33) | 0.46<br>(0.45)               |
| "<br>H       | 0.66<br>(0.67) | 0.11<br>(0.15) | 2.67<br>(2.74) | 0.51<br>(0.52)               |
| "<br>I       | 0.25<br>(0.23) | 0.18<br>(0.31) | 0.29<br>(0.28) | —<br>(—)                     |

\* Nb + Ta

較検討をする必要があるが、かなり満足すべき結果である。さらに再現性などの点について今後検討する予定である。

本実験をおこなうにあたり、お世話いただいた核理研ライナック寺沢助手および運転クルーの方々に厚く御礼申し上げます。

## IV. 加速器・測定器部門

## IV-1 超伝導空洞

核理研<sup>\*</sup>，通研<sup>\*\*</sup>，理学部物理<sup>\*\*</sup>小島融三<sup>\*</sup>，百瀬 丘<sup>\*</sup>，今野 収<sup>\*</sup>，光延信二<sup>\*</sup>，  
大塚泰一郎<sup>\*\*</sup>，上領香三<sup>\*</sup>，小野寺 大<sup>\*</sup>，鳥塚賀治<sup>\*</sup>

## 1 序

超伝導空洞を用いた線型加速器の有用性が指摘されている。<sup>(1)</sup> 我々は超伝導線型加速器を設計する上で必要な基礎的資料を得るため、ここではHigh Qの超伝導空洞を得るための条件を各種の表面処理を行なって検討した結果を報告する。

## 2 測定法

## 2-1 超伝導Nb空洞

使用した空洞は図1に示すもので、円筒型で、bulkのNbの素材からけずりだしたものである。内径40mmφ、軸方向長42.37mm、使用モードはTE<sub>011</sub>モードである。(尚、縮退TM<sub>111</sub>モードがあるので、モードトラップを底部に付している。)共振周波数は9794 MHzから9742 MHzであるが、この変動は表面処理によって空洞寸法が変化したことを示す。マイクロ波電力は25mWで、同軸ケーブルで給電し、その先端のNb線(0.6mmφ)のループで空洞を励振している。ループは図1では理解の容易のため、90°ずらして描いてある。空洞の上板、底板と円筒及び上板と上板支持板の間はIn線(0.7mmφ)で真空シールを行なった。

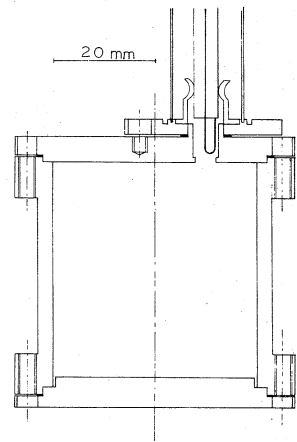


Figure 1 Cavity and coupling loop.

## 2-2 空洞の脱ガス

空洞の脱ガスはIn線によるシールを使用しているため100°Cで約3時間行なった。これは水町<sup>(2)</sup>等の残留ガスがQ値を劣化させるという例もあるので十分な配慮が必要である。

## 2-3 冷却系

図2に示すクライオスタットを使用した。脱ガスを行なった後、液体窒素で予冷し、更に液体ヘリウムで冷却して空洞を4.2°Kにする。又、クライオスタット内を減圧して、凡そ1.8°K

迄下げて、Q値の温度特性を測定した。温度制御は Cartesian Manostat を使用した。一重の  $\mu$ -Metal で磁気遮蔽を行なって超伝導状態における磁束のトラップを少なくしている。

2-4 マイクロ波測定系

図3にQ測定のプロックダイアグラムを示す。超伝導空洞はQが高く、slow sweep 法では周波数安定度の高い発振器を必要とするのでここでは Fast sweep 法<sup>(3)</sup>によって測定した。

クライストロンからFM波を空洞に入射させる。空洞側から戻る、FM波の反射波と空洞の放出する信号の和を、方向性結合器の一方に通し、FM入射波の一部を方向性結合器の他方に通す。各々を Magic Tee に通して後、検波する。その各々の検

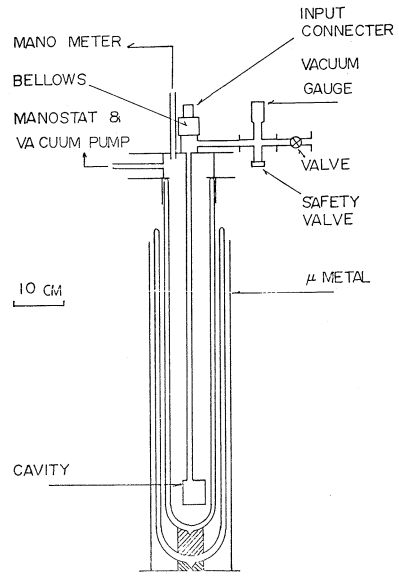


Figure 2 Cryostat for cavity measurement.

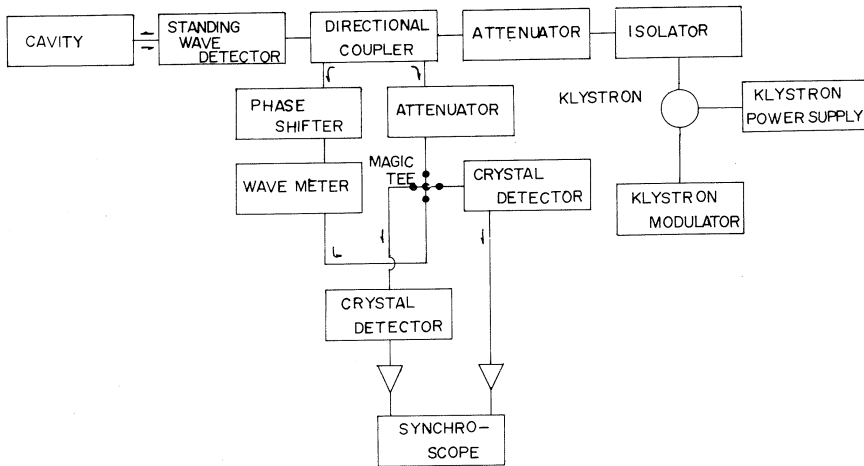


Figure 3 Block diagram of Q measurement.

波出力の内、空洞の放出信号以外は不必要であるから移相器によって絶対値を等しくし、増巾の後逆相にして和を取り打消す。

この放出信号の例を図4に示す。このビート波形の包絡線の漸近値  $y(t)$  は

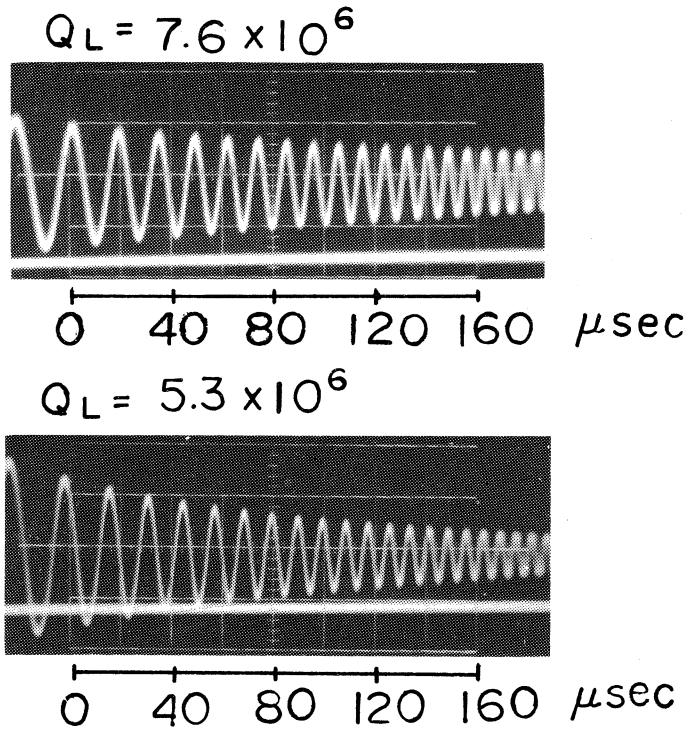


Figure 4 Beat phenomenon of a cavity. (0.005V/div)

$$y(t) \propto \frac{\beta}{\sqrt{\xi}} e^{-\frac{\omega_0}{2Q_L}(t-t_0)} \quad (1)$$

で表わされる。但し  $\beta$  は結合係数,  $\xi$  は掃引速度,  $t_0$  は共振点の時刻,  $Q_L$  は負荷  $Q$ ,  $\omega_0$  は共振角周波数である。よって  $Q_L$  は  $\log_{10} y(t)$  と  $t$  とをプロットして求められる。

ビート周波数  $f_B$  は

$$f_B = \frac{\xi}{2\pi} (t - t_0) \quad (2)$$

で表わされる。よって  $\xi$ ,  $t_0$  はビート周波数とそれに対応する時刻をプロットして求められる。

結合係数  $\beta$  は次の(3)で表わされる。

$$\beta = \frac{1}{Q_L} (Q_0 - Q_L) \quad (3)$$

(3)を(1)に代入して  $y(t_0)$  は

$$y(t_0) \propto \frac{Q_0 - Q_L}{\sqrt{\xi} Q_L} \quad (4)$$

である。 $Q_L = \omega_0 / \delta\omega_L$ であるから(4)に代入して

$$\frac{y(t_0)}{\delta\omega_L} \propto Q_0 - Q_L \quad (5)$$

である。よって $Q_L$ と $y(t_0)/\delta\omega_L$ のプロットから $Q_0$ が外挿により求められる。

### 3 超伝導 Nb 空洞の処理

一般に空洞内面は表面電流が流れるので表面の状態が $Q$ 値に影響する。ここではBulkのNbを機械旋削した後、酸化第2クロムでラップし、更にベンガラで仕上げた空洞にEtching, Electropolishing, Annealingの各処理を行なった。

#### 3-1 Etching

上板, 底板, 円筒を各一分間, 体積比で弗酸1, 硝酸3の溶液に浸した。

#### 3-2 Electropolishing

体積比で硫酸85, 弗酸10の溶液で, 陽極をNb, 陰極にAlを用いて, 通電10分間, 3分間offを繰返し上板,

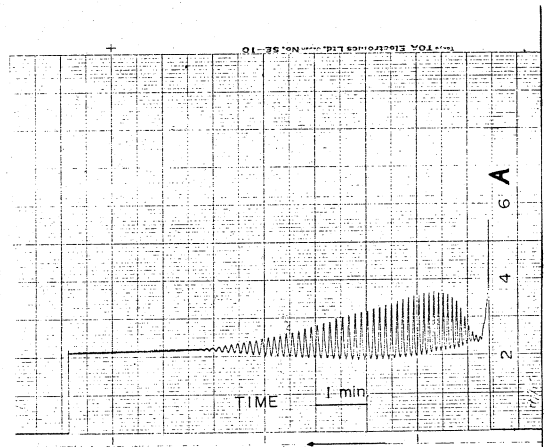


Figure 5 Electropolishing niobium current oscillations.

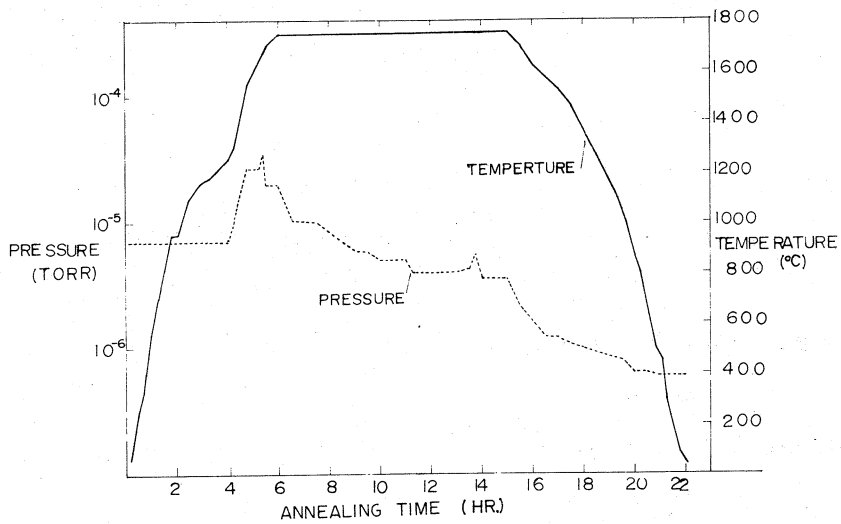


Figure 6 Heating cycle for a niobium cavity.

底板、円筒を各々2時間、2時間、3時間研磨した。

その際得られた電流変化を図5に示す。この波形が得られる時、電解研磨特性から良好な光沢面となる。

### 3-3 Annealing

Ta 炉を使用して炉の温度、真空度が図6に示す時間変化で行なった。その結果、結晶化が進みNb 円筒では2cm 平方程度の大きな grain が得られた。

## 4 測定結果及び考察

3で述べた処理を行なったNb 空胴のQ値を図7に示す。横軸に処理法と処理日を示し、●印、▲印は各1.8°K、4.2°KのQ値を示す。

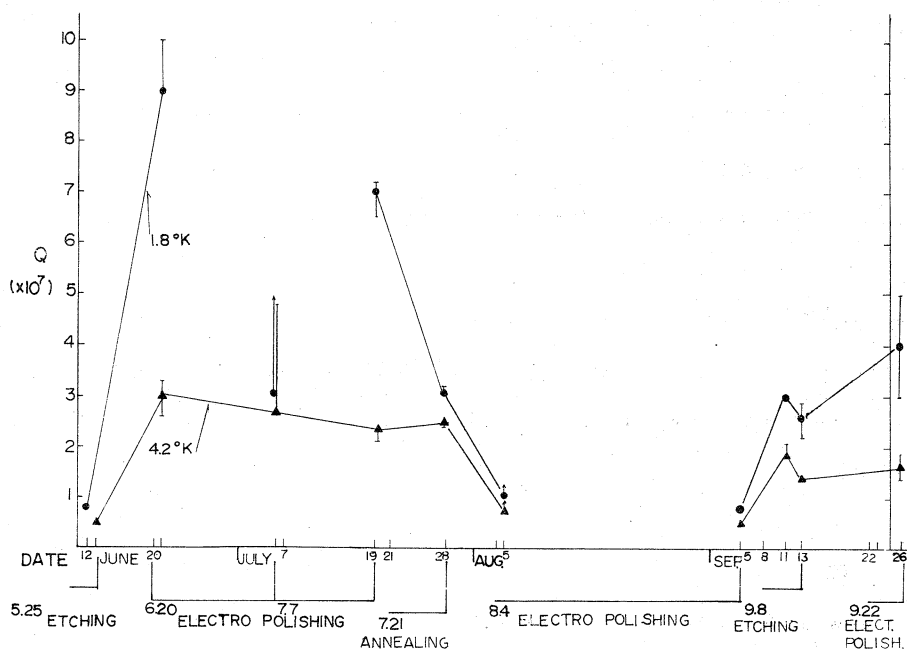


Figure 7 Q value for our cavity surface treatment.

4-1 或る処理を行なって次の処理を行なう迄の間の空胴の保存条件は全て同一ではないが、処理による効果はかなり明らかになった。

(i) Etching によってはQ値の大巾な上昇はないがこれは汚染表面の除去が不充分のためと思われる。

(ii) その点、研磨厚さを大きくとれるElectropolishing はQ値を上昇させる。Q値上昇に対



してこの方法の最適条件を更に調べる必要がある。

- (v) Annealing に対してQ値は劣化した。我々の行なったAnnealingの条件では grainの大きさより表面の状態の方がQ値に効いている。即ち  $10^{-5}$ 乃至  $10^{-6}$  Torrの真空度ではむしろ表面状態を劣化させると思われるので、より高真空にする必要がある。

又、以上の処理による表面状態を微視的に検討しうる方法を考えることが必要と思われる。

#### 4-2 これらの処理に対してQ値上昇のため、改善すべき点を次に述べる。

- (i) 空洞組立ては表面処理の後、大気中で行なわれているのでドラフトを作って乾燥窒素の中で行ない、全行程に於て酸素の表面に対する影響を除去し処理の効果がより直接的に表われるようにする必要がある。
- (ii) (i)と同様な事が、空洞内の真空度にも言える。これまで使用してきた系はコンダクタンスの悪い設計部分があるため、脱ガスが充分に行なわれず、空洞内の真空度は水蒸気分で凡そ  $10^{-4}$  Torrであり冷却した際、空洞内に附着する。それ故少なく共  $10^{-6}$  Torr以上に真空度を上げ、一方空洞内にガスの附着の起らない様な系を設計する必要がある。
- (iii) Q値の測定精度を上げるためTWT, Synthesizerを組込んだ測定系を考える必要がある。以上の三点は現在検討製作中である。

## 5 結 び

BulkのNbから削りだした空洞以上に述べた各種の表面処理をした結果、最高凡そ  $10^8$  のQ値を得ることができた。今後処理とQ値の関係の検討、改善を続けてQ値を安定に  $10^9$ 以上に上昇させる予定である。

## 文 献

- (1) 小島融三 低温工学 6 (1971) 129.
- (2) 水町芳彦他 物理学会第25回年会予稿(1970年)核物理, 4 a-L-3.
- (3) 鷹岡昭夫・裏克己 42年度電通学会全大, 予稿 476

## V. 加速器・データ処理装置稼動状況

## V-1 昭和47年度前期マシン報告

核理研 マシングループ

浦沢茂一, 今野 収, 一戸 隆, 栗原 亮

羽柴 満, 平山忠衛, 阿部 勇

## 300 MeV

## 概 況

- $\gamma$ チャンネル完成; 第1実験室で pure  $\gamma$ 線の実験が出来る様になった。
- 夜間運転; テストが終了し, 正式な課題割当をした。
- 48年4月に改修工事を行うことになった。

## マシンタイム実施状況

|                          | 割 当 ( 日 ) | 実 施 ( 日 ) | 増 減   |
|--------------------------|-----------|-----------|-------|
| e s ( 寺 沢, 小 山 田 )       | 11        | 11        | 0     |
| e s ( 鳥 塚, Peterson )    | 30        | 30        | 0     |
| e s ( 石 松 )              | 5         | 5         | 0     |
| e, e' p ( 菅 原, 庄 田 )     | 15        | 17*1      | + 2   |
| TOF ( 百 田 )              | 3         | 3         | 0     |
| e, e' p ( 坪 田 )          | } 6       | 6         | 0     |
| TOF ( 川 村 )              |           |           |       |
| $\gamma, \alpha$ ( 阿 部 ) | 3         | 2.5       | - 0.5 |
| EH ( 平 井 )               | 3         | 3         | 0     |
| EH ( 上 田 )               | 4         | 4         | 0     |
| ( 松 井 )                  | 1         | 1         | 0     |
| ND                       | 22        | 22.5      | + 0.5 |
| RI                       | 25        | 25        | 0     |
| 小 計                      | 128       | 130       | + 2   |
| $\gamma$ チャンネル整備         | 2         | 3         | + 1   |
| 工 事                      | 15        | 16        | + 1   |

|       | 割当(日)  | 実施(日)    | 増減   |
|-------|--------|----------|------|
| 定期点検  | 5      | 5        | 0    |
| 修理・故障 | 16(予備) | 15.5     | -0.5 |
| 小計    | 36     | 36.5     | +0.5 |
| マシン停止 | 3      | 4 *2     | +1   |
| 合計    | 169    | 173.5 *3 | +4.5 |

\* 1 オーストラリア(3名)、韓国(1名)が庄田グループと2日共同研究として追加された。

\* 2 国際学会参加者の施設見学等で予備日をこれに当てた。

\* 3 夜間運転 17日、夜間修理 9回(4.5日)を含む。

### マシン保守状況

故障の1位は真空リークで3回(8日)あった。他励振系2回(2日)分析電磁石電源、電子銃、電子銃パルサ等である。

クーリングタワー系の水を使用している機器のよごれがひどく、クライスロン冷却の熱交換器は清掃したが他のものもその必要がある。

クライスロンは4月(2本)、7月(2本)の計4本が納入された。

### 30 MeV

割当37日中12日実施。真空トラブルのため。

## V - 2 データ処理装置稼動状況

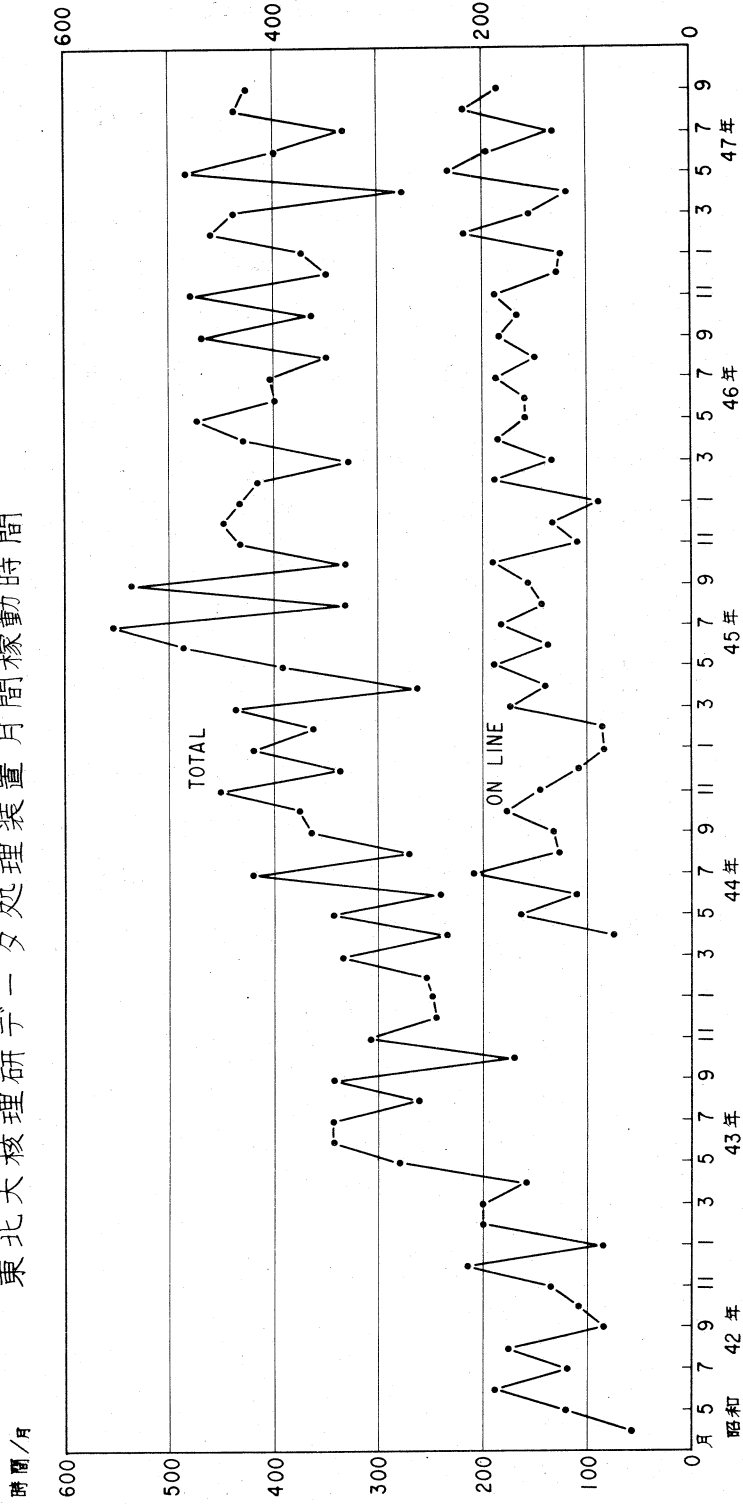
核理研 小山田正幸, 窪田健雄, 上野智康

今期の月平均稼動時間は 392 時間で最近 2 年間の平均 410 時間に較べて 4.4 % 減である。機器の故障による使用不能時間は前期の 9 時間/月 (1.3 %) から 3 時間/月 (0.4 %) へ減少した。オンライン・データ処理は前期 161 時間/月から 178 時間/月へ 10% 増加しこれまでの最高を記録した。来期からはオンラインの機能がデータ集積装置 (OKITAC-4500) に順次引き継がれオフライン・データ処理装置として引続き利用されることになる。

オンライン・データ集積装置は今期は 6 月末に中性子回析・散乱 (ND) 用タイムアナライザーが接続を終った。これは今後のコアメモリーの増強を予想し最終的には 256 チャンネル換算で 64 入力まで処理することが出来るものである。時期を同じくして電子散乱 (LDM) 用、広帯域分析電磁石 (BDM) 用インターフェイスも接続を完了した。更に 9 月中旬には東北大学大型計算機センター TSS (NEAC-2200/500) と OKITAC-4500 を 1200 BPS で結ぶ回線が開通した。これは当初はオンライン実験のない時間にデータ・ステーションとして利用する予定であるが、将来コアメモリーの増強次第ではオンラインで実験データを計算センターのファイルに転送して、各部局の利用者がそれぞれの端末からデータを処理することも考えられる。

4 月からオンライン・プログラム開発のプロジェクト・チーム (ND, LDM, BDM, TSS) を編成して作業を進めており来期初めから次々と稼動を開始する予定である。

東北大核理研データ処理装置月間稼動時間











DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

| 1        | 2     | 4     | 6     | 8     | 10    | 12    | 14    | 16    | 18    | 20    | 22    | 24    | ON-LINE | OFF-LINE | TOTAL  |
|----------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|---------|----------|--------|
| 1 (SAT)  | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 14:20   | 3:00     | 17:30  |
| 2 (SUN)  | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 8:40    | 9:25     | 18:05  |
| 3 (MON)  | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 10:45   | 9:20     | 20:25  |
| 4 (TUE)  | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 11:20   | 0:55     | 12:55  |
| 5 (WED)  | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 12:00   | 0:00     | 13:05  |
| 6 (THU)  | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 1:00     | 6:50   |
| 7 (FRI)  | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 2:15     | 2:50   |
| 8 (SAT)  | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 4:10     | 4:35   |
| 9 (SUN)  | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 12:30    | 12:30  |
| 10 (MON) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 6:25     | 6:55   |
| 11 (TUE) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 2:45     | 3:00   |
| 12 (WED) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 6:30     | 7:10   |
| 13 (THU) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 10:43    | 11:18  |
| 14 (FRI) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 4:00     | 6:40   |
| 15 (SAT) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 11:10   | 2:45     | 14:30  |
| 16 (SUN) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 8:20     | 8:20   |
| 17 (MON) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 5:45     | 13:35  |
| 18 (TUE) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 13:30   | 8:50     | 22:40  |
| 19 (WED) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 15:00   | 4:05     | 19:25  |
| 20 (THU) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 8:30    | 5:25     | 16:30  |
| 21 (FRI) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 12:40    | 13:10  |
| 22 (SAT) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 15:00   | 4:40     | 20:00  |
| 23 (SUN) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 8:30    | 12:50    | 21:20  |
| 24 (TUE) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 3:15     | 16:35  |
| 25 (WED) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 2:10     | 3:40   |
| 26 (THU) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 5:45     | 8:30   |
| 27 (FRI) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 10:10    | 10:10  |
| 28 (SAT) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 0:00     | 0:00   |
| 29 (SUN) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 0:00     | 0:00   |
| 30 (MON) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 0:00     | 0:00   |
| 31 (TUE) | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | ..... | 0:00    | 0:00     | 0:00   |
| TOTAL    |       |       |       |       |       |       |       |       |       |       |       |       | 128:45  | 159:38   | 352:13 |
|          |       |       |       |       |       |       |       |       |       |       |       |       | 38.8 %  | 48.1 %   |        |

|       |              |        |         |
|-------|--------------|--------|---------|
| L     | LDM          | 57:40  | 17.4 %  |
| B     | BDM          | 0:00   | 0.0 %   |
| N     | ND           | 34:50  | 10.5 %  |
| P     | PHA          | 36:15  | 10.9 %  |
| D     | DATA PROCESS | 77:25  | 23.3 %  |
| F     | FORTAN       | 82:13  | 24.7 %  |
| =     | MAINTENANCE  | 36:50  | 11.1 %  |
| *     | DOWN         | 7:00   | 2.1 %   |
| TOTAL |              | 352:13 | 100.0 % |

1972- 8

DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

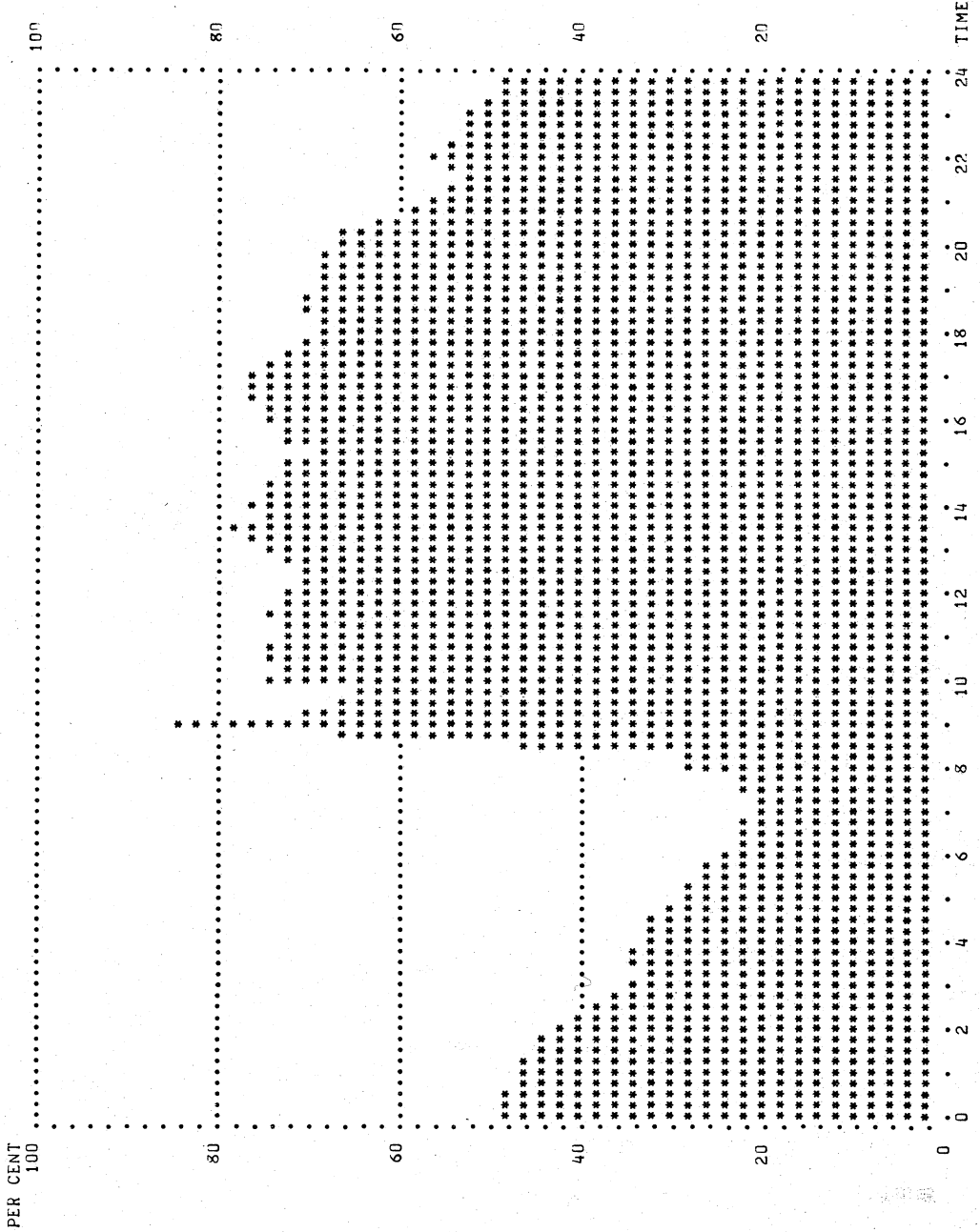
|          | 0            | 2 | 4 | 6 | 8 | 10 | 12 | 14 | 16 | 18 | 20 | 22 | 24 | ON-<br>LINE | OFF-<br>LINE | TOTAL  |
|----------|--------------|---|---|---|---|----|----|----|----|----|----|----|----|-------------|--------------|--------|
| 1 (TUE)  | .            | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 1:10         | 18:00  |
| 2 (WED)  | .            | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 4:30         | 5:15   |
| 3 (THU)  | FFFFFFFFFFFF | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 7:00        | 2:00         | 17:40  |
| 4 (FRI)  | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 11:50       | 4:02         | 23:30  |
| 5 (SAT)  | FFFFFFFFFFFF | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 5:40         | 11:50  |
| 6 (SUN)  | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 9:40        | 14:20        | 24:00  |
| 7 (MON)  | FFFFFFFFFFFF | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 11:30       | 10:00        | 21:10  |
| 8 (TUE)  | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 8:30         | 18:00  |
| 9 (WED)  | FFFFFFFFFFFF | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 4:30         | 5:15   |
| 10 (THU) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 2:00         | 17:40  |
| 11 (FRI) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 4:02         | 23:30  |
| 12 (SAT) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 5:40         | 11:50  |
| 13 (SUN) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 9:40        | 14:20        | 24:00  |
| 14 (MON) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 11:30       | 10:00        | 21:10  |
| 15 (TUE) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 8:30         | 18:00  |
| 16 (WED) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 4:30         | 5:15   |
| 17 (THU) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 2:00         | 17:40  |
| 18 (FRI) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 4:02         | 23:30  |
| 19 (SAT) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 5:40         | 11:50  |
| 20 (SUN) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 9:40        | 14:20        | 24:00  |
| 21 (MON) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 11:30       | 10:00        | 21:10  |
| 22 (TUE) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 8:30         | 18:00  |
| 23 (WED) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 4:30         | 5:15   |
| 24 (THU) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 2:00         | 17:40  |
| 25 (FRI) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 4:02         | 23:30  |
| 26 (SAT) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 5:40         | 11:50  |
| 27 (SUN) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 9:40        | 14:20        | 24:00  |
| 28 (MON) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 11:30       | 10:00        | 21:10  |
| 29 (TUE) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 8:30         | 18:00  |
| 30 (WED) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 4:30         | 5:15   |
| 31 (THU) | DDDDDDDDDD   | . | . | . | . | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | .  | 0:00        | 2:00         | 17:40  |
| TOTAL    |              |   |   |   |   |    |    |    |    |    |    |    |    | 218:08      | 191:07       | 435:40 |
|          |              |   |   |   |   |    |    |    |    |    |    |    |    | 50.1 %      | 43.9 %       |        |

|   |              |        |         |
|---|--------------|--------|---------|
| L | LDM          | 110:25 | 25.3 %  |
| B | BDM          | 68:23  | 15.7 %  |
| N | ND           | 11:30  | 2.6 %   |
| P | PHA          | 27:50  | 6.4 %   |
| D | DATA PROCESS | 104:45 | 24.0 %  |
| F | FORTRAN      | 86:22  | 19.8 %  |
| = | MAINTENANCE  | 24:25  | 5.6 %   |
| * | DOWN         | 2:00   | 0.5 %   |
|   | TOTAL        | 435:40 | 100.0 % |

DATA PROCESSOR OPERATION REPORT

| 0        | 2                        | 4                      | 6                      | 8                      | 10                     | 12                     | 14                     | 16                     | 18                     | 20                     | 22                     | 24                     | ON-<br>LINE | OFF-<br>LINE | TOTAL  |
|----------|--------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|-------------|--------------|--------|
| 1 (FRI)  | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD   | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD | 10:35       | 10:05        | 21:10  |
| 2 (SAT)  | DDDD                     |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 8:30        | 6:35         | 15:30  |
| 3 (SUN)  | FFFF                     |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 0:00        | 10:40        | 10:40  |
| 4 (MON)  | DDDDDDDD                 |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 0:00        | 7:35         | 14:50  |
| 5 (TUE)  | ***                      |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 9:00        | 4:05         | 14:50  |
| 6 (WED)  | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD   |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 10:35       | 4:55         | 15:30  |
| 7 (THU)  | FFFFFFF                  |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 0:00        | 11:20        | 18:50  |
| 8 (FRI)  | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD   |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 11:00       | 7:25         | 18:35  |
| 9 (SAT)  | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD   |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 11:45       | 7:55         | 19:40  |
| 10 (SUN) | FFFFFFF                  |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 0:00        | 10:00        | 10:00  |
| 11 (MON) | DDDDDDDD                 |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 0:00        | 5:45         | 5:45   |
| 12 (TUE) |                          |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 10:20       | 0:00         | 10:50  |
| 13 (WED) |                          |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 0:00        | 0:00         | 0:20   |
| 14 (THU) |                          |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 0:00        | 0:00         | 7:10   |
| 15 (FRI) |                          |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 0:00        | 0:00         | 0:00   |
| 16 (SAT) |                          |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 14:40       | 0:00         | 15:00  |
| 17 (SUN) | NNNNNNNNNNNNNNNNNNNNNN   |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 9:15        | 0:00         | 9:15   |
| 18 (MON) | FFFFFFF                  |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 0:00        | 4:20         | 10:10  |
| 19 (TUE) | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD   |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 0:00        | 16:35        | 16:55  |
| 20 (WED) | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD   |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 12:25       | 8:40         | 21:05  |
| 21 (THU) | FFFFFFF                  |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 0:00        | 13:40        | 13:40  |
| 22 (FRI) | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD   |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 14:30       | 4:50         | 19:50  |
| 23 (SAT) | LLLLLLLLLLLLLLLLLLLLLLLL |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 9:00        | 12:50        | 21:50  |
| 24 (SUN) | FFFFFFF                  |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 0:00        | 4:40         | 4:40   |
| 25 (MON) | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD   |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 12:30       | 8:50         | 21:50  |
| 26 (TUE) | DDDDDDDD                 |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 5:00        | 8:40         | 14:20  |
| 27 (WED) | DDDDDDDD                 |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 11:30       | 5:50         | 17:30  |
| 28 (THU) | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD   |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 0:00        | 18:00        | 18:20  |
| 29 (FRI) | DDDDDDDDDDDDDDDDDDDDDD   |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 10:35       | 10:05        | 20:40  |
| 30 (SAT) | FFF                      |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 12:00       | 4:50         | 16:50  |
| TOTAL    |                          |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 183:10      | 207:35       | 426:45 |
|          |                          |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        |                        | 42.9 %      | 48.6 %       |        |

|   |              |        |         |
|---|--------------|--------|---------|
| L | LDM          | 62:10  | 14.6 %  |
| B | BDM          | 26:35  | 6.2 %   |
| N | ND           | 94:25  | 22.1 %  |
| P | PHA          | 0:00   | 0.0 %   |
| D | DATA PROCESS | 75:05  | 17.6 %  |
| F | FORTAN       | 132:30 | 31.0 %  |
| F | MAINTENANCE  | 31:15  | 7.3 %   |
| * | DOWN         | 4:45   | 1.1 %   |
|   | TOTAL        | 426:45 | 100.0 % |



## V-3 300 MeV リニアック共同利用 に於ける実施状況

共同利用係 庄田勝房  
工藤真知子

核理研共同利用については昭和42年テスト実験を行なった後、43年4月-48年3月迄、6ヶ月を1期として10回の実施を行なった。目下第10回共同利用の採択課題を実施中である。

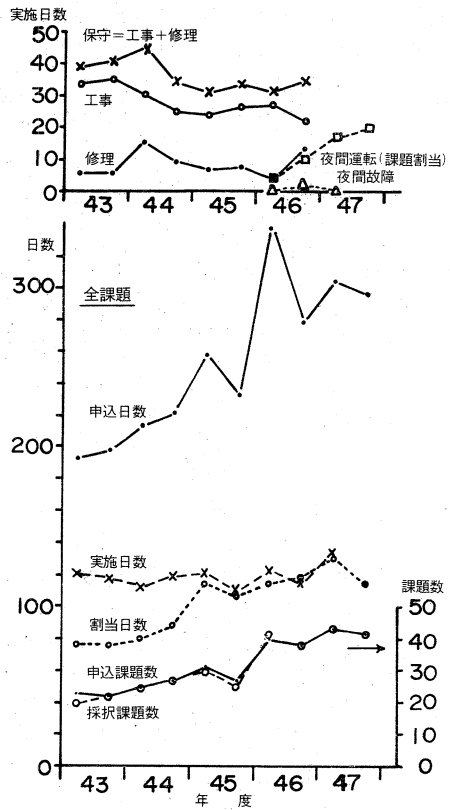
全学より募集した応募課題は課題採択委員会でその採択、日数につき検討し、更に約200万円/年の共同利用費を含めて割当て案を作り、施設運営委員会で決定される。課題割当てにあたっては、工事、保守に必要な日数及び予備日が予定される。第1図は申込課題、割当て及び実施日数を示したものである。実施日数と割当て日数が44年前後で異なるのは予備日の予定日数及びその取扱いの違いによるものである。第2図は工事や修理を実施した日数である。又46年以降テストを含めて実施された夜間運転の実施状況をも同図に示す。

第3図 (a)-(c)は課題申込み及び割当て実施の状況を分野別に日数で示したものである。第4図はそれらを課題申込数で示したものである。採択され実施された課題数は少数の例外を除き殆んど申込件数と同じである。

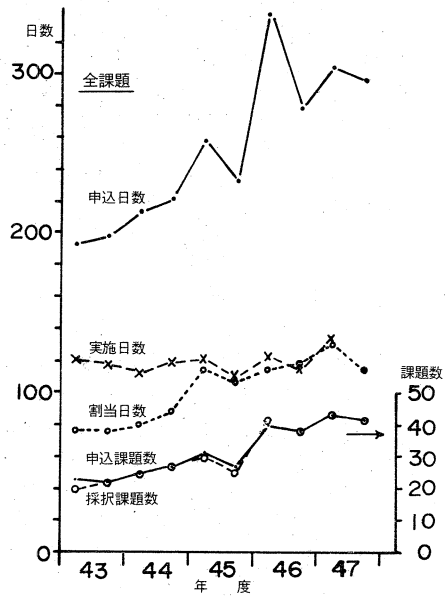
以上のグラフに於て、申込日数に関しては、課題申込に於て之が明示されていない場合があった。この場合には必要と思われる日数を推定した。

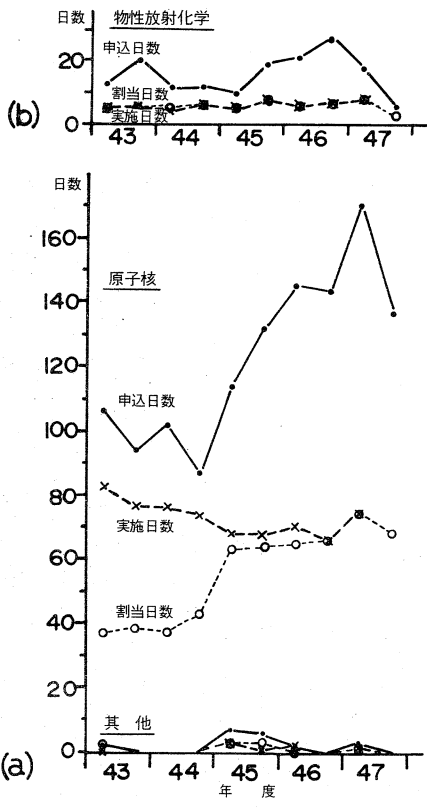
30 MeV マシンについても課題が募集され割当

第2図

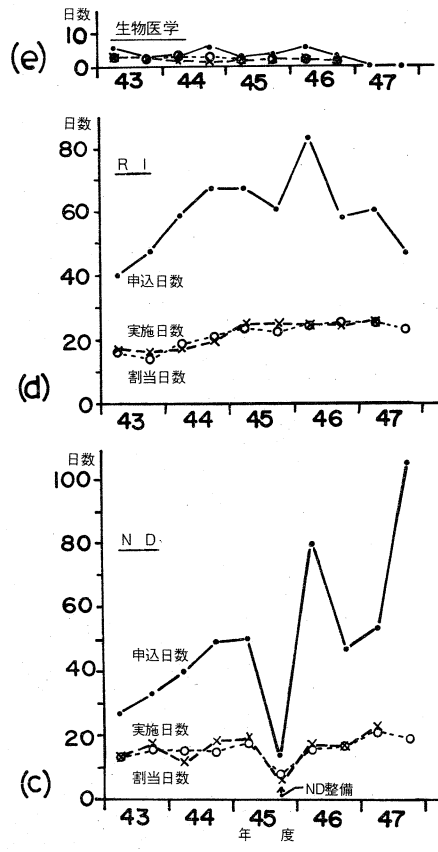


第1図

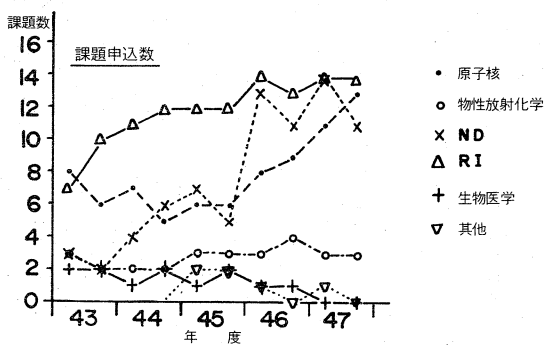




第3図 その1



第3図 その2



第4図

てられ実施されているが、未だ必ずしも定常状態ではない。これに関する集計は別の機会に報告することとする。

(昭和47年11月)

**核理研研究報告 第5巻 第2号**

昭和47年12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 東北プリント  
仙台市立町24番24号  
TEL (25) 6466(代)

Research Report of Laboratory of Nuclear  
Science Tohoku University Vol.5 No2 Dec. 1972  
Laboratory of Nuclear Science,  
Tohoku University  
1, Kanayama, Tomizawa, Sendai, Japan