

RESEARCH REPORT  
OF  
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE  
TOHOKU UNIVERSITY

# 核 理 研 究 報 告

VOL. 6 No. 1 June 1973

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

# 核理研研究報告 Vol. 6・No.1 目次

## I 原子核物理部門

- I-1 電子散乱による原子核の研究…………… 1  
 (核理研, 理学部物理,\*  
 サスカチュワン大\*\*\*) 鳥塚 賀治, 小島 融三, 斎藤悌二郎,  
 伊藤 広平, 中田 章, 光延 信二,  
 長尾真実子, 細山 謙二, 福田 茂樹,  
 三浦 英美, 宇井 治生,\* 川添 良幸,\*  
 Y. M. Shin\*\*\*)
- I-2 電子散乱による  $^{26}\text{Mg}$  及び  $^{27}\text{Al}$  の巨大共鳴領域の励起…………… 30  
 (理学部物理, 核理研\*) 斎藤 肇, 田中 英二, 岡崎 行男,\*  
 小山田正幸,\* 菅原 真澄,\* 寺沢 辰生,\*  
 中原 和夫\*
- I-3 (e, e' p) 反応による Isobaric Analogue State の研究…………… 41  
 (核理研) 鈴木 厚人, 及川 四郎, 上柿 順一,  
 宮瀬 晴久, 斎藤悌二郎, 菅原 真澄,  
 庄田 勝房
- I-4  $^{238}\text{U}$  高速中性子全断面積の測定…………… 60  
 (工学部原子核) 馬場 護, 野本 健二, 神田 一隆,  
 百田 光雄, 平川 直弘, 三井 鞆
- I-5  $^{238}\text{U}$  の光核分裂に伴う遅発中性子スペクトル測定(I)…………… 64  
 (工学部原子核) 岩崎 信, 若林 利男, 築 一正,  
 丸山 仁嗣, 佐野 健一, 相山 一典
- I-6  $r-r$  角相関で見た  $^{156}_{64}\text{Gd}_{92}$  の low-lying state …………… 70  
 (理学部物理) 林部 昭吾, 山家 優, 大島 真澄,  
 高橋 文穂, 清水 康夫, 石松 敏之

## II 物性物理部門

- II-1 TiNi 化合物の結晶構造…………… 81  
 (選研) 松本 実, 守護 嘉朗, 本間 敏夫
- II-2 Fe-Mn-C の中性子回折…………… 84  
 (工学部金属, 選研\*) 武井 広見, 松本 実,\* 守護 嘉朗,\*  
 本間 敏夫\*
- II-3 High Momentum Transfer Structure Factors in Liquid Heavy Water

	and Carbon Disulfide by T-O-F Neutron Diffraction.....	88
	(金研)	三沢 正勝, 福嶋 喜章, 鈴木 謙爾, 竹内 栄
II-4	単結晶中性子回折によるZrO <sub>2</sub> 型規則構造の研究.....	98
	(金研)	平林 真, 山口 貞衛, 荒井 徹治
II-5	AlとKBr単結晶の消衰効果.....	101
	(金研, 核理研*)	富吉 昇一, 新村 信雄,* 八代 勉
II-6	MnTiO <sub>3</sub> およびMnGeO <sub>3</sub> (pyroxyne)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,* 都筑 一雄*
II-7	溶液中のポリスチレンの動力学.....	118
	(非水研, 核理研*)	安川 民男, 渡辺 昇*
II-8	TOFフィルター法による単結晶の中性子非弾性散乱.....	116
	(金研, 核理研*)	富吉 昇一, 渡辺 昇,* 新村 信雄,* 渡辺 浩
II-9	FeSbの電子状態.....	123
	(金研)	八代 勉, 富吉 昇一, 渡辺 浩
III 放射化学部門		
III-1	気相H <sup>80m</sup> BrおよびH <sup>82m</sup> Br-CH <sub>4</sub> 系における核異性体転移にともなう化学的効果.....同位体効果, 熱イオン反応によるCH <sub>2</sub> *BrBrの生成について.....	129
	(核理研, 金研*)	八木 益男, 近藤健次郎, 小林孝彰,*
III-2	Photon Activation Analysis of Biological Materials I. Elemental Abundance of NBS Standard Reference Material, Orchard Leaves .....	148
	(理学部化学, 岩手大教養*)	加藤 豊明, 佐藤 允美*
IV 加速器・データ処理装置稼働状況		
IV-1	昭和47年度後期マシン報告.....	155
	(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
IV-2	データ処理装置整備稼働状況.....	157
	(核理研)	小山田正幸, 窪田 健雄, 上野 智康

# I. 原 子 核 物 理 部 門

## I - 1 電子散乱による原子核の研究

核理研 鳥塚賀治・小島融三  
 理学部物理\* 斎藤悌二郎・伊藤広平・中田章  
 サスカチュワン大\*\* 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\*・Y. M. SHIN\*\*

今期の我々のグループの成果として次のことがあげられる。

1)  $^{44}\text{Ca}$  に於て  $0.39 \sim 1.07 \text{ fm}^{-1}$  の  $q$  の範囲で実験を行ない、 $17\text{MeV}$  を中心として巾  $\sim 10\text{MeV}$  のバンプが測定された。この断面積を  $E 1$  sum rule と比較すると、実験値は理論値の 2 倍になる。そこでその断面積を  $E 1$  と  $E 2$  ( $E 0$ ) の成分にわけると、前者は sum rule の  $\sim 90\%$  を充たし、後者は  $E 2$  sum rule の  $148\%$ 、 $E 0$  の  $240\%$  を占有している。各成分のスペクトルは  $\sim 10\text{MeV}$  の巾を持ち、構造を示している。

2)  $^{56}\text{Fe}$  について励起エネルギー  $35\text{MeV}$  までのスペクトルを測定した。 $13.3$ 、 $16.1$ 、 $19.0$  および  $32\text{MeV}$  にピークが見出された。 $19.0$  と  $16.1\text{MeV}$  のピークについて解析を行ない、夫々  $E 1$  および  $E 2$  ( $E 0$ ) であることを確かめた。

3) 変形核  $^{152}\text{Sm}$  の巨大共鳴付近の電子散乱実験を行ない、Goldhaber - Teller 模型を用いて  $E 1$  巨大共鳴の断面積を計算し、測定したスペクトルから  $E 1$  の寄与を差引くと  $11.3\text{MeV}$  と  $24\text{MeV}$  にピークが残った。このピークについては夫々  $E 2$  ( $E 0$ ) と見做することができる。

4) 以上の議論は電子散乱に伴う radiation tail による background の差引き法に関係している。最後に弾性散乱の form factor が radiation tail の計算に重要な役割をすることを注意した comment を加えた。

電子散乱による  $^{44}\text{Ca}$  の多重極巨大共鳴の励起

$\text{Ca}$  同位体 ( $^{40}\text{Ca}$ ,  $^{42}\text{Ca}$ ,  $^{44}\text{Ca}$ ) による一連の電子散乱実験を行っているが  $^{44}\text{Ca}$  の巨大共鳴領域についての実験と解析結果を報告する。二重閉殻である  $^{40}\text{Ca}$  を中心として同位体による違いが高励起状態にどの様に反映するかを調べるのが一連の実験の目的である。 $\text{Ca}$  同位体の巨大共鳴領域は  $^{40}\text{Ca}$  を除いてはまだ殆どわかっていない。 $^{44}\text{Ca}$  については光核反応のくわしい data はないが、 $15\text{MeV}$  近辺に ( $\gamma$ ,  $n$ )、 $22\text{MeV}$  附近に ( $\gamma$ ,  $p$ ) の山があって、( $\gamma$ ,  $n$ )

の断面積が2倍以上大きいという報告がある。<sup>2,3)</sup>尚<sup>40</sup>Caでは( $\gamma$ ,  $p$ )の断面積の方が7倍程大きいことが分っている。

電子散乱実験に用いたターゲットは、98.55%に濃縮された44.3mg/cm<sup>2</sup>のplateを用いた。入射エネルギーは124, 150, 183及び250 MeV, 散乱角35°~50°の比較的前方の散乱実験を行った。得られた散乱電子スペクトラムは励起エネルギーはほゞ40MeVまで、運動量移行の範囲は0.4~1.1 F<sup>-1</sup>で、E1, E2及びE3励起がみやすい範囲である。輻射補正を行った散乱電子スペクトラムを図1に示した。150MeV 35°及び183MeV 35°に示した実線は既に我々が求めた<sup>40</sup>Caの電子散乱スペクトラムである。縦軸は同じscaleである。<sup>40</sup>Caでは光核反応で報告されているE1巨大共鳴とほゞ同じ励起エネルギー19MeVに鋭いpeakが観測されたが、<sup>44</sup>Caでは17MeV附近を中心として巾広い共鳴を示している。

スペクトラムは電子散乱に特有の準弾性散乱の寄与を含んでいる。準弾性散乱のpeakは更に高い励起エネルギーにあることが分っている。(例えば1.3 F<sup>-1</sup>ではほゞ60MeV)<sup>4)</sup>従って準弾性散乱の「すそ」に共鳴状態が重なっていると考えられる。準弾性散乱の寄与(連続領域)を直線と仮定し、その引き方に上下点線程度の誤差を考えて、10MeVから28MeVまで直線から上の面積をとって形状因子 $|F|^2$ を求めたのが図2である。形状因子の $q$ -依存性はE1励起だけでは説明出来なくて、かなりE2励起を含んでいることが分った。図中のE1, E2曲線はTassie模型を用いたDWBAによる計算値である。Tassie模型に用いた基底状態の電荷分布の常数はStanfordの実験結果を用いた。<sup>5)</sup>

$$c_0 = 3.748 F$$

$$z_0 = 0.5715 F$$

$$w = -0.0948$$

E1, E2の大きさは $\chi^2$ -fittingで実験値に合わせた。これから求めた行列要素B(E1)及びWeisskopf単位で表わしたB(E1)は

$$B(E1, \uparrow) = 8.9 e^2 F^2 \quad (3.8 \text{ W. U.})$$

$$B(E2, \uparrow) = 834 e^2 F^4 \quad (21.7 \text{ W. U.})$$

となる。このE2巨大共鳴ともいべきものは核理研で<sup>90</sup>Zr, <sup>56</sup>Fe, <sup>208</sup>Pb等の電子散乱で見出されたものと同じ性質の共鳴と考えられる。<sup>6)</sup>

但しこれまでも問題とされた様に、電子散乱で励起されるElectric Monopole (E0)はE2励起と $q$ -依存性が殆ど同じ為E0励起の可能性もある。転移電荷密度 $\rho_{tr}$ としてCompressible Mode

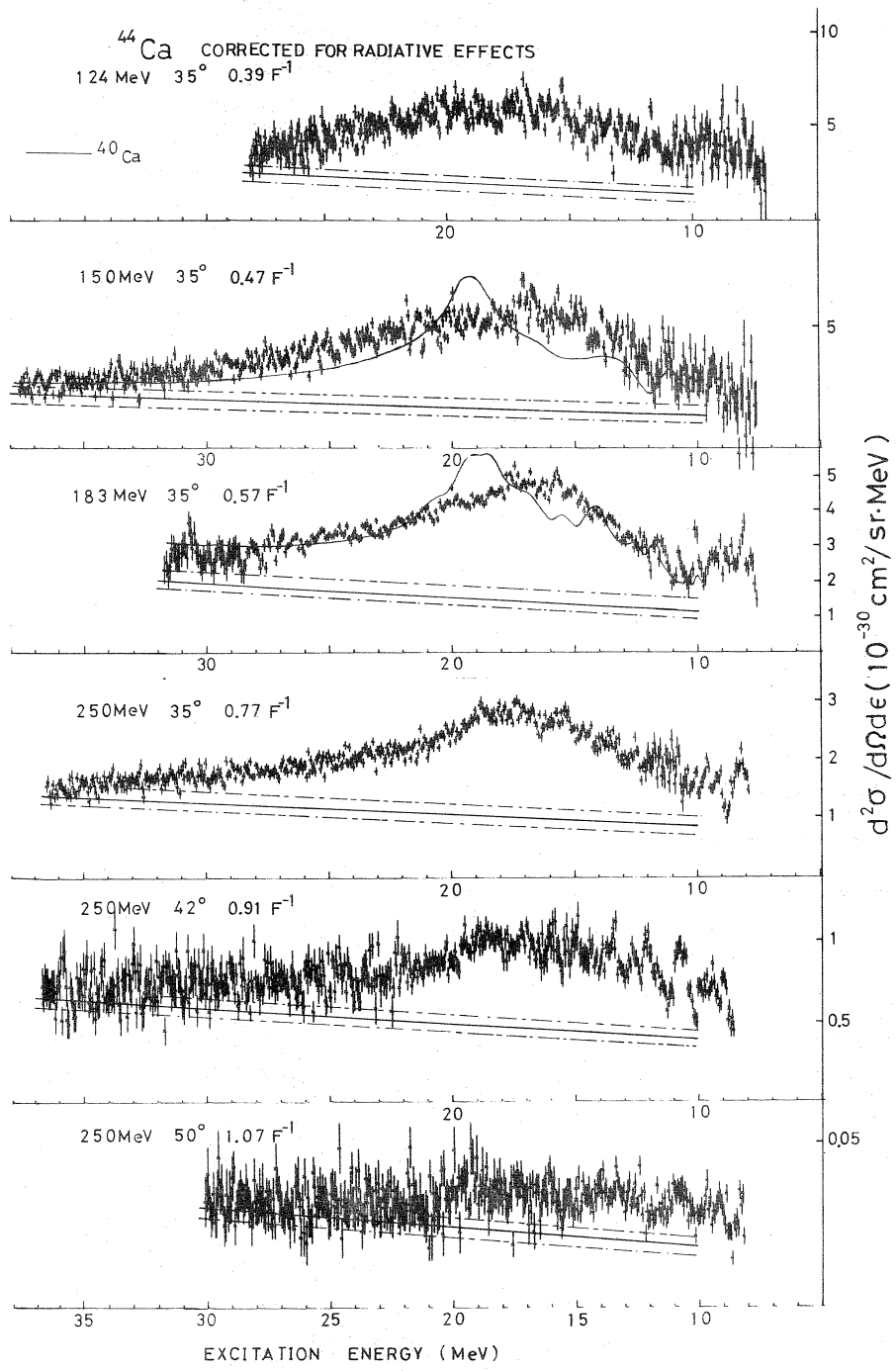


図1  $^{44}\text{Ca}$ による散乱電子スペクトラム。  
比較の為に $^{40}\text{Ca}$ のスペクトラムを150 MeV  $35^\circ$ 及び183 MeV  $35^\circ$ の図中に実線で示した。  
連続領域の寄与を実線(及びその誤差を鎖線)と考えた。

$$\rho_{tr} \propto \frac{1}{r^2} \frac{d}{dr}$$

$$[r^3 \rho_0(r)]$$

を用いてボルン近似で  $E 0$  の計算を行った<sup>7)</sup>。  $q$  - 依存性は  $E 2$  励起と殆ど同じである。これから求めた Monopole Matrix element  $|M(0)|^2$  は

$$|M(0)|^2 = 1550 F^4$$

となった。尚これらの値の誤差は 20% 程度と考えられる。

以上の実験値を Energy - Weighted Sum Rule (EWSR) と比較したのが表 1 である。総和則

$S_{ew}$  は次の式である。

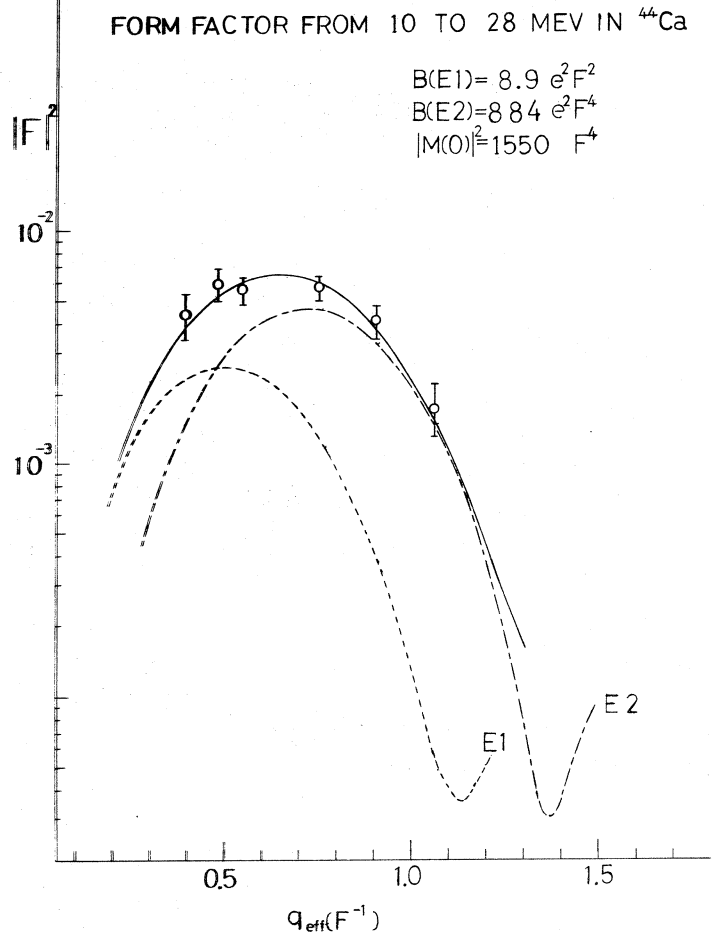


図 2

励起エネルギー 10 MeV から 28 MeV までの和をとった形状因子。  $E 1$  及び  $E 2$  の曲線は Tassie 模型を用いた DWBA による計算値で、  $\chi^2$  - fitting によって実験値に合わせた。

表 1

	$E_x$ (MeV)	$B(EL)$ or $ M(0) ^2$	fraction of $\Delta T=0$ EWSR	fraction of $\Delta T=1$ EWSR
E 2	17 *	884 $e^2 F^4$	148 %	123%
E 0	17 *	1550 $F^4$	240 %	
E 1	17 *	8.9 $e^2 F^2$		92%

\* center of energy from 10 to 28 MeV



$$\begin{aligned}
 E1 (\Delta T = 1) \quad S_{ew} &= \frac{9}{4\pi} \frac{\hbar^2}{2M} \frac{NZ}{A} e^2 \\
 E2 (\Delta T = 0) \quad S_{ew} &= \frac{\lambda (2\lambda + 1)^2}{4\pi} \frac{\hbar^2}{2M} \frac{Z^2}{A} e^2 \langle r^{2\lambda - 2} \rangle \\
 (\Delta T = 1) \quad S_{ew} &= \frac{\lambda (2\lambda + 1)^2}{4\pi} \frac{\hbar^2}{2M} \frac{NZ}{A} e^2 \langle r^{2\lambda - 2} \rangle \\
 E0 (\Delta T = 0) \quad |M(0)|^2 &= \frac{\hbar^2}{M} Z \langle r^2 \rangle
 \end{aligned}$$

$E0$  に対しての式は A. Ferrell が導いたものである<sup>8)</sup>。又  $\langle r^2 \rangle$ ,  $\langle r^{2\lambda - 2} \rangle$  等を求める為に基底状態の常数を用いた。

これから見ると  $E1$  励起はほぼ総和則を満していることが分る。 $\Delta T = 0$  の  $E2$  励起はほぼ 150% でこれが  $E0$  励起だとすると 250% に達し、総和則から見ると  $E2$  励起を favor する。

次に  $E1$  と  $E2$  がどの励起エネルギーで起っているかを調べる為に 10MeV から 28MeV まで 1 MeV 間隔で形状因子を求めた。

各 bin の形状因子に対して  $\chi^2$ -fitting をとって、 $E1$ ,  $E2$  励起の割合をきめた。

$$\chi^2 = \frac{1}{n-2} \sum_{i=1}^n \frac{(|F^{th}|_i^2 - \alpha |F^{exp}(E1)|_i^2 - \beta |F^{exp}(E2)|_i^2)^2}{(\Delta |F^{exp}|_i^2)^2}$$

この様子を図 3 に示した。例えば 18 ~ 19 MeV では  $E2$  励起の割合が大きいのが 22 ~ 23 MeV では  $E1$  と  $E2$  はほぼ同じ割合で励起されていることが分る。これをスペクトラムで示したのが図 4 である。

図 4 から次のことが分った。

- (1)  $E2$  励起は 16.5 MeV 付近を中心として存在している。
- (2)  $E1$  励起は 12 MeV から 28 MeV まで幅広く存在し、16.5 MeV と 20.5 MeV を中心とする 2 つの共鳴から成る。

$E2$  巨大共鳴の位置は電子散乱等の一連の実験から導かれた式

$$E = 60 \sim 65 / A^{\frac{1}{3}}$$

とほぼ一致する。<sup>6)</sup>

$E1$  巨大共鳴が 2 つの共鳴から成ることは、先に述べた様に  $^{44}\text{Ca}$  では  $(\gamma, p)$  と  $(\gamma, n)$  の中心エネルギーが違うこと、又  $^{41}\text{K}(\gamma, p)$   $^{42}\text{Ca}$  の実験では 17.4 と 20.4 MeV の 2 つの peak があること<sup>9)</sup> を考えると  $E1$  巨大共鳴が  $T=2$  及び  $T=3$  の状態に分かれたと考えられる。勿論変形核では  $E1$  巨大共鳴は 2 つの山に分れることはよく知られていて、Ca アイソトープに変形 band があることもほぼ分っているが<sup>10)</sup>、変形によるものであれば  $^{40}\text{Ca}$  でも事情は同じ筈であ

る。

Isospin Splitting

によって  $T >= 3$  と

$T <= 2$  の山が出来

たとして、理論的予

測<sup>11)</sup> と比較してみ

る。これら2つの山

のエネルギー差  $\Delta E$

は  $^{44}\text{Ca}$  の基底状態

のアイソスピンを  $T_0$

とすると ( $T_0 = 2$ )

$$\Delta E = 60 \frac{T_0 + 1}{A}$$

$$= 4.1 \text{ MeV}$$

これは実験値と合っ

ている。

次に  $T >$  と  $T <$  の強

度比は Clebsch -

Goldson 係数のみから

の計算は

$$|C >|^2 =$$

$$1 / (T_0 + 1) = 0.3$$

$$(|C >|^2 + |C <|^2$$

$$= 1)$$

実験値は定量的には

出していないがほゞ

同じ割合で出ている。更に particle - hole 配位も考え入れた式では

$$|C >|^2 = \frac{1}{T_0 + 1} \left[ \frac{1 - 1.5 (T_0 / A^{2/3})}{1 - 4 (T_0 / A)^2} \right] = 0.26$$

となり合いが悪くなる。

以上アイソスピン分離についての結果を Ca - 同位体についてまとめてみたのが表 2 である。

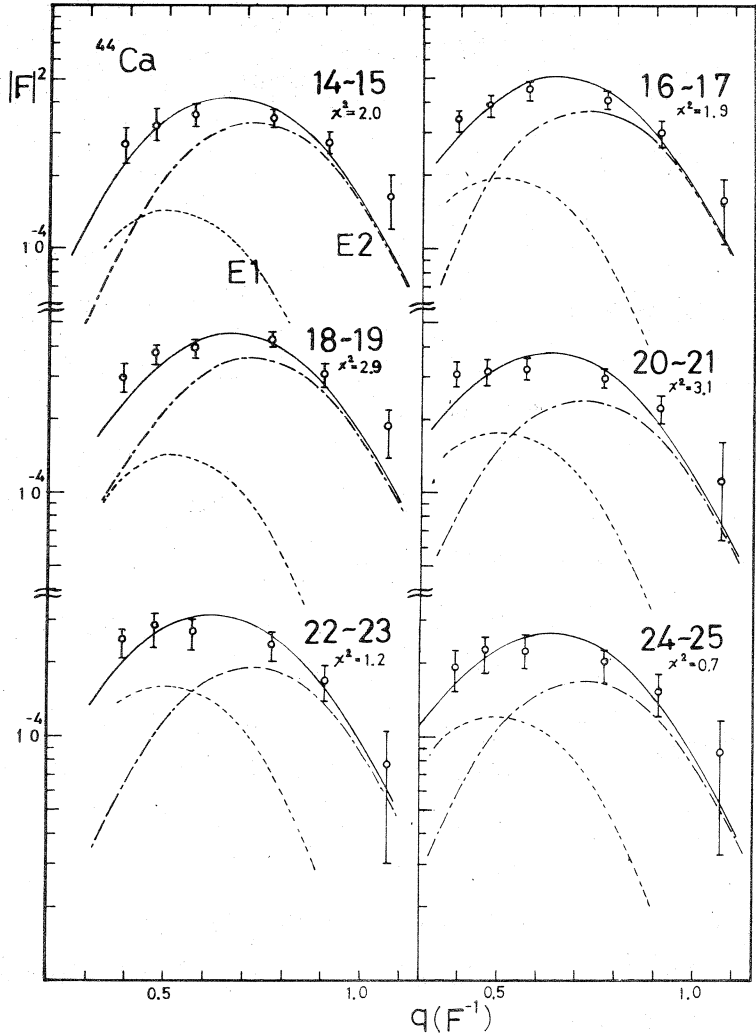


図3 1 MeV 間隔で形状因子を  $\chi^2$ -fitting で E1 と E2 成分に分けた例。

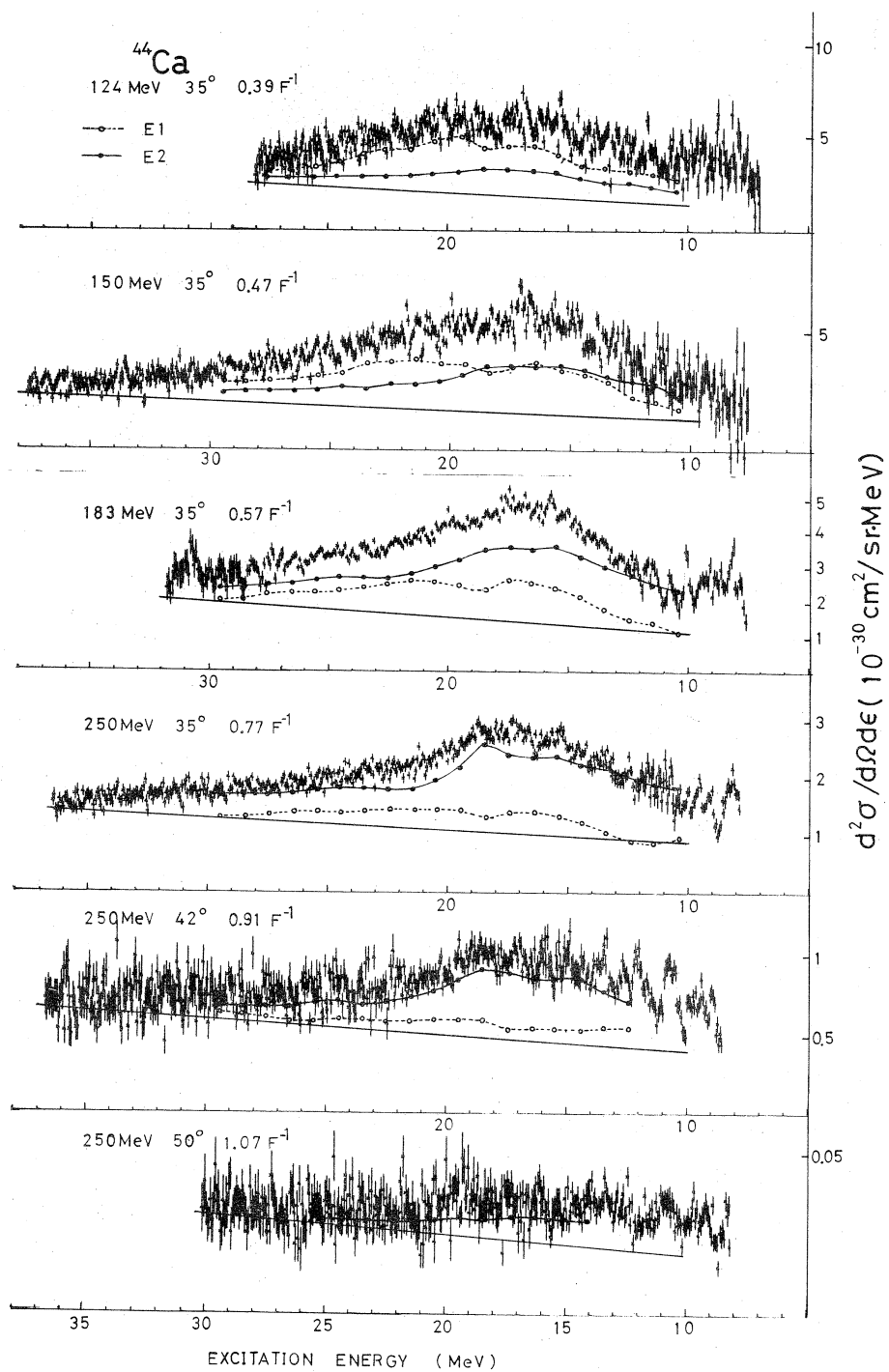


図4  $^{44}\text{Ca}$ による散乱電子スペクトラムを1MeV間隔でE1とE2成分に分離した。点線はE1, 実線はE2励起をあらわす。

表2

	$T_0$	$\Delta E_{th}$	$\Delta E_{exp}$	$ C\rangle ^{2_{th}}$	$ C\rangle ^{2_{exp}}$
Ca <sup>42</sup>	1	2.9	$3.0 \pm 0.2^*$	0.44	
Ca <sup>44</sup>	2	4.1	$\sim 4$	0.26	$\sim 0.5$
Ca <sup>48</sup>	4	6.3		0.11	

\* deduced from  $(p, \gamma_0)$ , Ref 9

現在更に<sup>42</sup>Caによる電子散乱実験が行われており、Ca同位体の高励起状態における Isospin Splitting,  $E_2$ ,  $E_3$  巨大共鳴の問題は更に明らかになると思われる。(伊藤)

### 参 考 文 献

- 1) 核理研報告 4, №2 (1972).
- 2) J. Goldemberg and L. Katz, Canad. J. Phys. **32**, 49 (1954)
- 3) P. Brix et al., Zeits. für Phys. **150**, 461 (1958)
- 4) T. W. Donnelly, Nucl. Phys. A**150**, 393 (1970)
- 5) R. F. Frosch et al, Phys. Rev. **174**, 1380 (1968)
- 6) S. Fukuda and Y. Torizuka, Phys. Rev. Letters **29**, 1109 (1972). Y. Torizuka et al., Proceedings of Conference on Nuclear Structure Studies Using Electron Scattering and Photoreaction (1972)
- 7) H. Überall, Electron Scattering From Complex Nuclei (Academic Press, New York, 1971), Part B, Chap. X.
- 8) R. A. Ferrell, Phys. Rev. **107**, 1631 (1957)
- 9) E. M. Diener et al., Phys. Rev. C **7**, 705 (1973)
- 0) E. P. Lippinkott and A. M. Bernstein, Phy. Rev. **163**, 1170 (1967)
- 1) B. Gourard and S. Fallieros, Canad. J. Phys. **45**, 3221 (1967)

## $^{56}\text{Fe}$ の巨大共鳴領域の電子散乱

最近核理研における中重核の巨大共鳴領域の電子散乱実験により、従来光核反応により調べられて来た  $E 1$  巨大共鳴の他に  $E 2$  又は  $E 0$  とと思われる大きな共鳴が見つげられた。<sup>1)</sup> 又 Darmstadt のグループにより同様な共鳴の存在が Lu, Pr, Ce について報告されている。<sup>2)</sup> 又以前に行なわれた H. Tyrén and Th. A. J. Maris の ( $s, d$ ) shell 及び ( $f, p$ ) shell 核の ( $p, p'$ ) の実験<sup>3)</sup> を、Lewis が再度解析して電子散乱で得られた  $E 1$  以外の共鳴と対応すると思われる共鳴を  $^{40}\text{Ca}$ ,  $^{51}\text{V}$  について報告している。<sup>4)</sup>

本実験は明らかになりつつある  $E 1$  以外の巨大共鳴の核依存性を調べる目的で行なわれた。

実験は核理研の 300MeV リニアックから得られる 150, 183, 250MeV の電子線を用い、ターゲットには  $^{56}\text{Fe}$  を 99% に濃縮した  $48.4 \text{ mg/cm}^2$  及び  $86.3 \text{ mg/cm}^2$  の金属板を用いた。散乱電子スペクトラムを核の励起エネルギーにして  $\sim 35\text{MeV}$  まで測定した。実験より得られたスペクトラムに輻射補正を行った後のものを図 1 に示す。縦軸は 1MeV 当りの断面積を Mott cross section で割って、1MeV 当りの形状因子  $|W(q, \omega)|^2$  の形で表してある。図 1 中 150MeV  $35^\circ$  のスペクトラムでは 16MeV, 19MeV, 32MeV 付近に巾の広い共鳴らしきものが見られる。

250MeV  $35^\circ, 42^\circ, 50^\circ$  と運動量移行  $q$  が大きくなるに従い、16MeV 付近及び 13.3MeV 付近の巾の狭いピークが残る。 $E 1$  巨大共鳴は  $^{56}\text{Fe}$  付近の核の systematics<sup>5)</sup> から  $\sim 19\text{MeV}$  付近である事が知られているので、上記の事は  $E 1$  以外の共鳴の存在を示唆する。この事をはっきりさせるために  $^{90}\text{Zr}$  において、共鳴の分離に用いた方法を用いてみた。<sup>1)</sup> 共鳴の下に共鳴に集中しなかった Level, 準弾性散乱等の寄与と思われる Continuum Background が存在するとして、これを次のように仮定した。

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega dE}\right)_{\text{continuum}} = q(E_x - E)^{\frac{1}{n}}$$

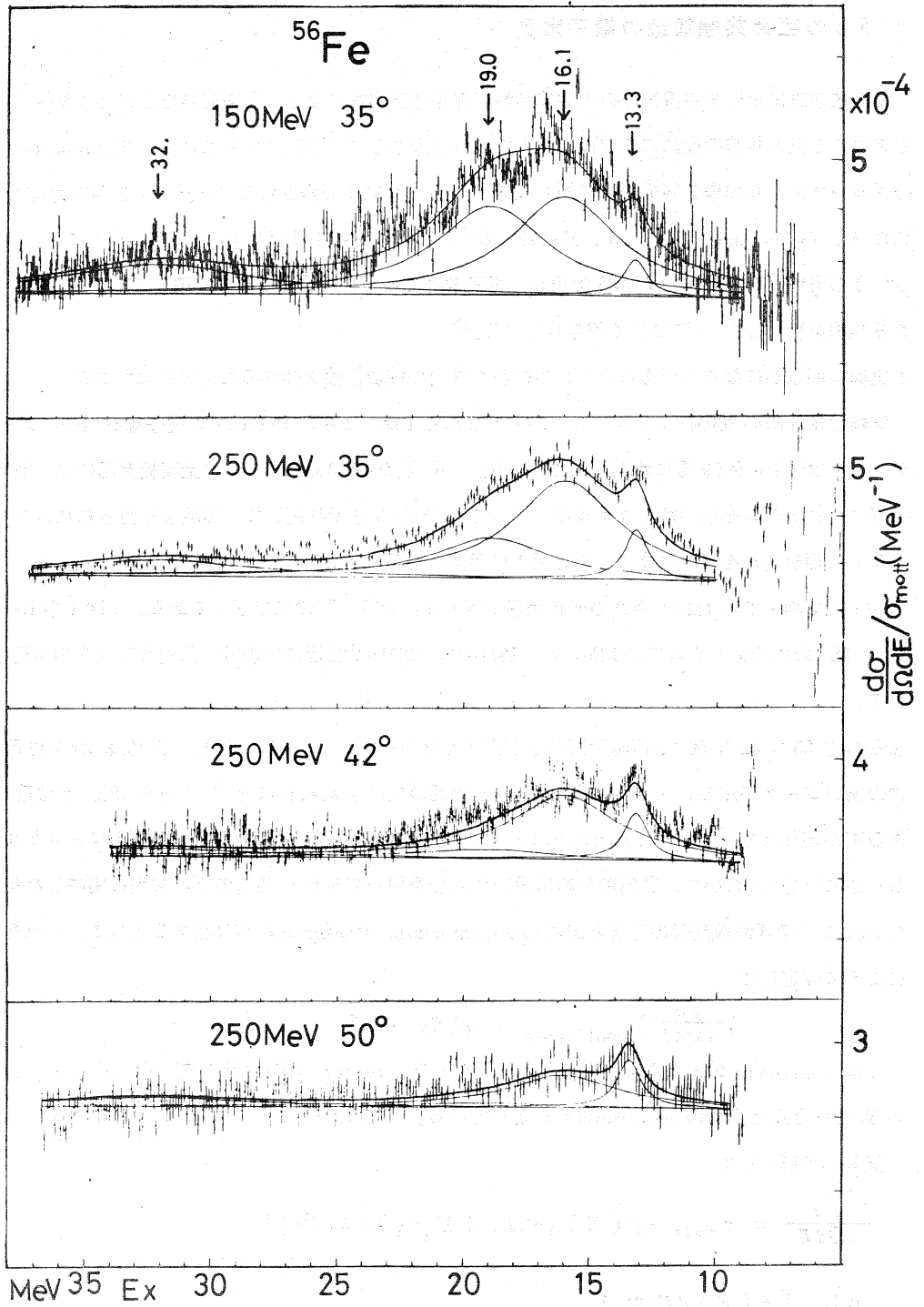
$q$  は continuum の大きさを決めるパラメーターで structure のない所で決める。図 1 の場合  $n = 50$  でほとんど直線の continuum を仮定している。

又共鳴の形として

$$\frac{d\sigma}{d\Omega dE} = \sigma_{\text{Mott}} \cdot f(E) |\langle J_f || M_\lambda(q) || J_i \rangle|^2$$

$$\text{但し } \int f(E) dE = 1$$

とした。



第1図

$f(E)$ としては次のBreit - Wigner Typeを用いた。

$$f(E) = \frac{N \cdot \Gamma}{(E-E_0)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}}$$

19.0 MeVにE1を仮定して巾 $\Gamma$ を5.3 MeV, 16.1 MeVに $\Gamma=4.7$  MeV, 13.3 MeVに $\Gamma=1$  MeV, 32 MeVに $\Gamma=9$  MeVの共鳴を仮定して実験を再現する様にそれぞれの強さを決め、それから形状因子を導出した。continuumの形及び大きさによる誤差は形状因子の誤差に入れていない。16.1 MeV及び13.3 MeVの形状因子を図2に示す。Tassie Modelを用いてDWBA計算を行ったものを同時に示してある。破線はE1のGoldhaber - Teller Modelの計算である。E1の場合G - T ModelとTassie Modelは転移電荷密度の形は一致し、Tassie Modelで転移電荷密度は次の様に与えられる。

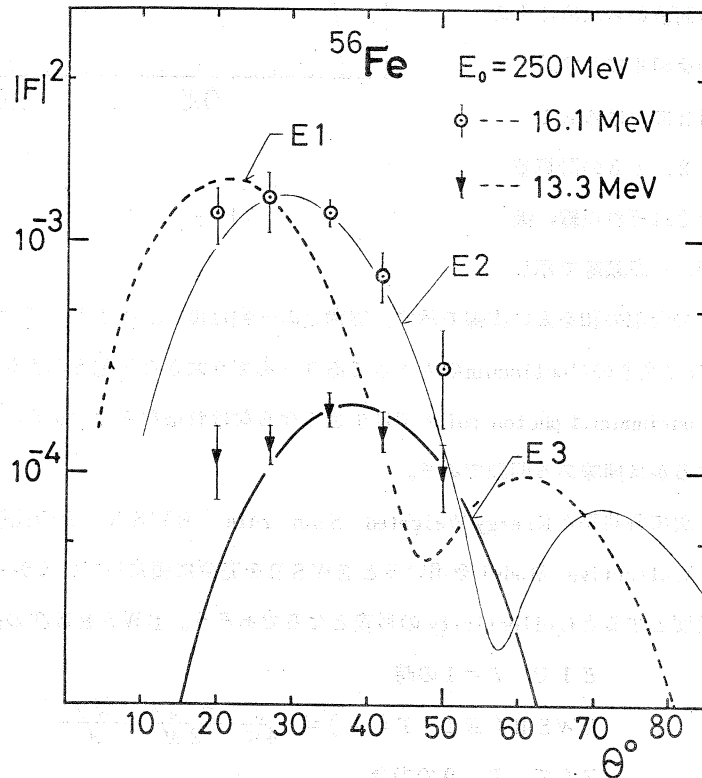
$$\rho_{tr}(r) = N r^{L-1} \frac{d}{dr} \rho_0(r)$$

普通 $\rho_0(r)$ は基底状態の電荷分布と一致するとしている。 $\rho_0$ としてFermi Typeの電荷分布を用い、Bellicard

et al.<sup>6)</sup>の実験値、

$c_0 = 4.16 F$ ,  $t_0 = 2.5 F$ を用いた。

図2より16.1 MeVはE2の計算値と合い13.3 MeVはE3と良く合う事が分る。計算値を実験に合せる時の係数としてそれぞれの $B(E, L)$ が求まる。電子散乱においてE2とE0転移の形状因子は $q$ の小さな所で同じ $q$ 依存性を持つ事が知られている。Compressional Model<sup>7)</sup>によると $E_x \sim 56/A^{1/3}$ で



第2図

あり  $A = 56$  の時 14.6

MeV であり, 15 MeV 付近に  $0^+$  が存在する可能性がある。

Compressional Model と 16.1 MeV との比較を図 3 に示す。16.1 MeV は  $0^+$  としても形状因子を説明出来る。

次に共鳴を分離せずに 10 ~ 25 MeV までの Continuum の上の面積から求めたものを図 4 に示す。

図 2 における  $E 1$ ,

$E 2$ ,  $E 3$  の計算値

をそれぞれ点線, 破

線, 一点鎖線で示し

その全部の和を太い実線で示す。実験との一致は良い。図 4 中 C で示したのは 16 MeV における 1 MeV 当りの Continuum の大きさであり, あまり大きな変化を示さない。

Continuum は photon point では小さくならなければならないから, さらに  $q$  の小さい所でどうなるかは興味ある問題である。

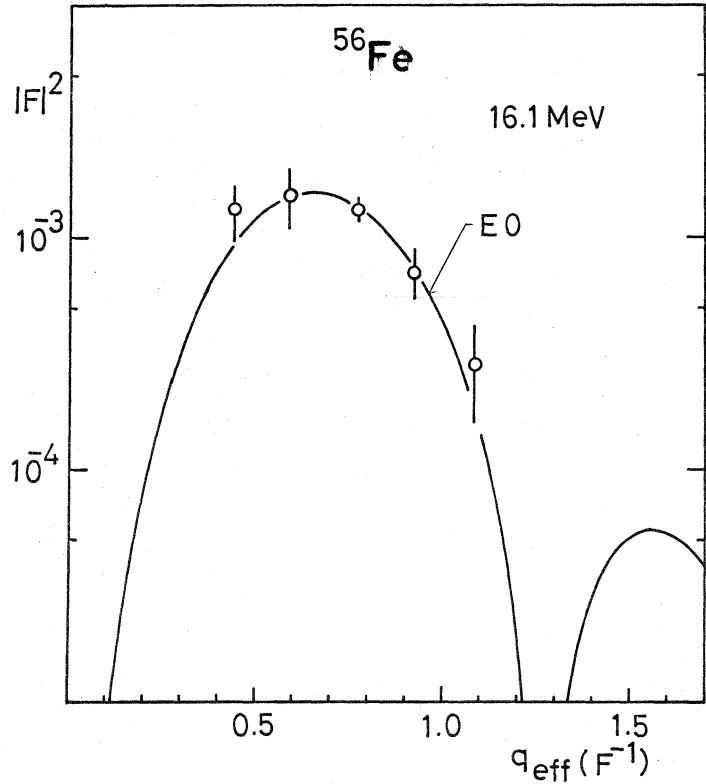
次に各共鳴と Energy Weighted Sum rule (EWSR) との比較を行う。一本に集中する様な Collective Model を用いると EWSR を完全に満たしているから, EWSR を共鳴の強さの尺度とすると Collectivity の目安となるであろう。EWSR は次の様に与えられている。<sup>8)</sup>

$E 1$  で,  $T = 1$  の時

$$\text{EWSR}(E 1, T = 1) = \frac{9}{4\pi} \frac{\hbar^2 e^2}{2M} \frac{NZ}{A}$$

$E L$  で,  $T = 0$  の場合

$$\text{EWSR}(E L, T = 0) = \frac{L(2L+1)^2}{4\pi} \frac{\hbar^2}{2M} \frac{Z^2}{A} e^2 \langle r^{2L-2} \rangle$$



第 3 図



E0でT=0の

場合

$$EWSR(E0, T=0) = \sum |M_{if}|^2 \cdot$$

$$E_x = \frac{\hbar^2}{M} Z \langle r^2 \rangle$$

実験との比較をそれぞれのB(EL)等と共に表1に示す。

16.1MeVはEWSRの大きな部分を占め、 $2^+$  or  $0^+$ のCollectiveな共鳴と言える。13.3MeVは9%とあまり大きくない。 $^{54}\text{Fe}$ の250

MeV  $35^\circ$ において

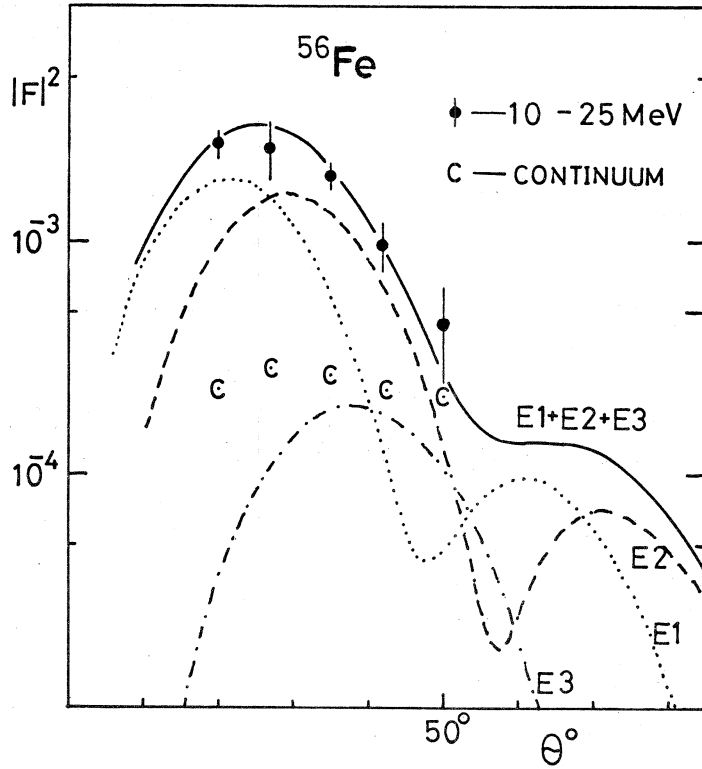
15MeVに同様な鋭

いピークが表れてい

る事から、核により位置は変化すると思われる。このエネルギー領域に鋭いピークが出る事は興味ある事である。近隣の他の核との比較により何らかの情報を得る事が必要であろう。

表1

$E_x$ (MeV)	$J \pi$	$\frac{P}{B(EL) \text{ or } ME}$	$\frac{E_x \cdot P}{EWSR}$
13.3	$3^-$	$5900 e^2 F^6$	0.09
16.1	$2^+$	$672 e^2 F^4$	0.80
	$0^+$	$1370 F^4$	1.43



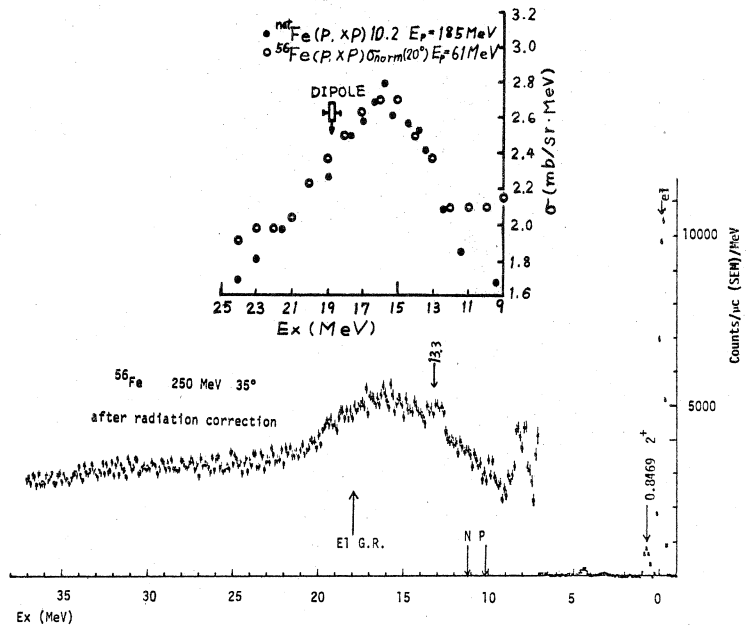
第4図

図5に( $\rho, \rho'$ )<sup>9)</sup>とのスペクトラムの比較を示してある。 $(\rho, \rho')$ の方は continuum

を差し引いた後のものである。電子散乱と大体良く一致したスペクトラムを示している。

不十分な解析ではあるが以上の事から $^{56}\text{Fe}$ の16MeV付近に強い $E2$ 又は $E0$ の共鳴が存在すると言える。

(光延)



第5図

参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 Vol. 5 No. 2 (1972) 1.  
S. Fukuda and Y. Torizuka, Phys. Rev. Lett. **29** (1972) 1109.
- 2) R. Pitthan and Th. Walcher, Phys. Lett. **36 B.** (1971) 563.
- 3) H. Tyren and Th. A. J. Maris, Nucl. Phys. **7,** (1958) 24.
- 4) M. B. Lewis, Phys. Rev. Lett. **29,** (1972) 1257.
- 5) E. Hayward, *Nuclear Structure and Electromagnetic Interactions.* (Oliver and Boyd, Edinburgh and London)
- 6) J. Bellicard and P. Barreau, Nucl. Phys. **36** (1962) 476.
- 7) T. de Forest and J. D. Walecka, Adv. Phys. **15** (1966) 1.
- 8) E. K. Warburton and J. Weneser, *Isospin in Nuclear Physics* (North-Holland Publishing Co. - Amsterdam)
- 9) M. B. Lewis and F. E. Bertrand, Nucl. Phys. A **196,** (1972) 337.

## 変形核 $^{152}\text{Sm}$ の巨大共鳴

### § 1. 序

$A=152$  附近の核は低励起準位のスペクトラムが質量数  $A$  の増加と共に振動モードから回転モードに変化する領域としてこれまでも良く研究されて来た。<sup>1)2)</sup> 今回変形核に属する  $^{152}\text{Sm}$  の巨大共鳴領域に対する電子散乱実験の報告をする。実験に用いたターゲットは 99.18% に濃縮された厚さ  $50.1\text{mg}/\text{cm}^2$  のものを用いた。

### § 2. 変形核に対する Goldhaber - Teller model

実験結果を解析するに当って  $E1$  巨大共鳴に対して Goldhaber - Teller model を用いたのであるが、これまでの G - T model は球形核に対して公式化されている。<sup>3)</sup> そこでこの G - T model を変形核に適用出来る様拡張した。

3次元調和振動子の Hamiltonian  $H$  は一般に

$$H = \frac{\mathbf{p}^2}{2M} + \frac{M}{2} (\omega_x^2 x^2 + \omega_y^2 y^2 + \omega_z^2 z^2) \quad \dots\dots\dots(1)$$

Potential が  $z$  軸に対して回転対称であるとする  $\omega_x = \omega_y$  とし (球座標を用いて)

$$H = \frac{\mathbf{p}^2}{2M} + \frac{M}{2} \{ (\omega_0^2 - \omega^2) r_0^2 + \omega^2 r^2 \} \quad \dots\dots\dots(2)$$

ここで  $\omega_x = \omega_y = \omega$ ,  $\omega_z = \omega_0$  とした。(2)式を量子化すると,  $[p_x, x] = -i\hbar$  等, を用いて

$$H = \hbar\omega (a_{+1}^+ a_{+1} + a_{-1}^+ a_{-1}) + \hbar\omega_0 a_0^+ a_0 + \hbar(\omega + \frac{1}{2}\omega_0) \quad \dots\dots\dots(3)$$

ただし

$$[a_m^+, a_{m'}] = \delta_{mm'} \\ r_m = \sqrt{\frac{1}{2M\omega_m}} (a_m^+ + (-)^m a_{-m}), \quad m = -1, 0, 1 \quad \dots\dots\dots(4) \\ p_m = \frac{1}{i} \sqrt{\frac{M\omega_m}{2}} (a_m - (-)^m a_{-m}^+)$$

$a_m^+$  は phonon の生成演算子である。(4)式の中で  $\omega_0 = \omega_0$ ,  $\omega_{\pm 1} = \omega$  としている。

G - T model での核に対する荷電演算子  $\hat{\rho}_N(\mathbf{x})$  は一般的に

$$\hat{\rho}_N(\mathbf{x}) = \rho_0(\mathbf{x} - \frac{N}{A}\mathbf{r}) \quad \dots\dots\dots(5)$$

ここで  $N$  は中性子数,  $A$  は質量数,  $\mathbf{x}$  は原子核に固定されている座標系を,  $\rho_0(\mathbf{x})$  は基底状態

での荷電分布,  $\mathbf{r}$  は中性子流体と陽子流体の重心間の距離を示す。今  $\mathbf{r}$  は十分に小さいものとする  
と  $\mathbf{r}$  で Taylor 展開して  $\mathbf{r}$  に対して 1 次まで、近似すると

$$\hat{\rho}_N(\mathbf{x}) \cong \rho_0(\mathbf{x}) - \frac{N}{A} \mathbf{r} \cdot \nabla \rho_0(\mathbf{x}) \quad \dots\dots\dots(6)$$

$\rho_0(\mathbf{x})$  は弾性散乱にしか関係しない, 従って以後は(6)式の第二項のみを考える。電子散乱に関与する遷移電荷密度  $\hat{\rho}_{\nu r}^{JM}$  は

$$\hat{\rho}_{\nu r}^{JM} = \int Y_{JM}(\Omega) \hat{\rho}_N(\mathbf{x}) d\Omega \quad \dots\dots\dots(7)$$

核に固定された固定系の実験室系での方向余弦を  $\alpha, \beta, \gamma$  として(7)式を書き変えると  $J=1$  に対して

$$\hat{\rho}_{\nu r}^{1M} = \int \hat{\rho}_N(\mathbf{x}) \sum_{\mu} D_{M\mu}^1(\alpha, \beta, \gamma) Y_{1\mu}(\Omega_{\mathbf{x}}) d\Omega_{\mathbf{x}} \quad \dots\dots\dots(8)$$

$D$  は云わゆる  $D$ -関数を示す。 $\rho_0(\mathbf{x})$  は一般的に球面調和関係で展開出来る。

$$\hat{\rho}_0(\mathbf{x}) = \sqrt{4\pi} \rho_0(x) Y_{00}(\Omega_{\mathbf{x}}) + \rho_2(x) Y_{20}(\Omega_{\mathbf{x}}) + \dots\dots\dots(9)$$

$\sqrt{4\pi} \rho_0(x), \rho_2(x)$  等は展開係数である。 $\rho_0(\mathbf{x})$  は今の場合  $Z$  軸に対して回転対称としているので(9)式中には  $Y_{2\pm 1}, Y_{2\pm 2}$  等は含まれない。従って

$$\begin{aligned} \nabla \rho_0(\mathbf{x}) &\cong \nabla \left\{ \sqrt{4\pi} \rho_0(x) Y_{00} + \rho_2(x) Y_{20} \right\} \\ &= -\sqrt{4\pi} \frac{d}{dx} \rho_0(x) Y_{010} - \sqrt{\frac{3}{5}} \left( -\frac{d}{dx} - \frac{2}{x} \right) \rho_2(x) Y_{230} \\ &\quad + \sqrt{\frac{2}{5}} \left( \frac{d}{dx} + \frac{3}{x} \right) \rho_2(x) Y_{210} \quad \dots\dots\dots(10) \end{aligned}$$

(6), (8), (10) を用いて(8)式を角度に対して積分を実行すると

$$\hat{\rho}_{\nu r}^{1M} = -\frac{N}{A} \sum_{\mu} D_{M\mu}^1 \left\{ \sqrt{\frac{4\pi}{3}} \frac{d}{dx} \rho_0(x) - \frac{3\mu^2 - 2}{\sqrt{15}} \left( \frac{d}{dx} + \frac{3}{x} \right) \rho_0(x) \right\} r_{\mu} \quad \dots\dots\dots(11)$$

$a_m^+$ ,  $a_m$  は dipole operator である。 $|0\rangle$  で核の基底状態の内部波動関数を表わすと  $a_m^+ |0\rangle$  は全角運動量 1 の状態である。これらの内部波動関数より一般的方法で核全体での波動関数は

$$\begin{aligned} |gr.\rangle &= \sqrt{\frac{1}{8\pi^2}} D_{00} |0\rangle \\ |1^- MK = \Omega = 0\rangle &= \sqrt{\frac{3}{8\pi^2}} D_{M0}^1 a_0^+ |0\rangle \quad \dots\dots\dots(12) \end{aligned}$$

$$|1^- MK = \Omega = 1\rangle = \sqrt{\frac{3}{8\pi^3}} \{ D_{M1}^1 a_{+1}^+ + D_{M-1}^{*} a_{-1}^+ \} |0\rangle$$

$$\int D_{M0}^{1*} D_{M'\mu}^1 D_{00}^0 d\Omega^3 = \frac{8\pi^2}{3} \delta_{\mu 0} \delta_{MM'} \dots\dots\dots (13)$$

(13)式を用いると

$$\langle 1^- M' K = \Omega = 0 | \rho_{tr}^{1M} | gr \rangle$$

$$= -\frac{1}{3} \sqrt{\frac{1}{2M\omega_0}} \frac{N}{A} \left\{ \sqrt{4\pi} \frac{d}{dx} \rho_0(x) + \frac{1}{\sqrt{5}} \left( dx + \frac{3}{x} \right) \rho_2(x) \right\} \delta_{M'M} \dots\dots\dots (14)$$

$$\langle 1^- M' K = \Omega = 1 | \rho_{tr}^{1M} | gr \rangle$$

$$= -\frac{2}{\sqrt{18}} \sqrt{\frac{1}{2M\omega}} \frac{N}{A} \left\{ \sqrt{4\pi} \frac{d}{dx} \rho_0(x) - \frac{1}{\sqrt{5}} \left( \frac{d}{dx} + \frac{3}{x} \right) \rho_0(x) \right\} \delta_{M'M} \dots\dots\dots (15)$$

普通遷移電荷密度  $\rho_{tr}$  は

$$|F(q)|^2 = \frac{4\pi}{Z^2} \left| \int \rho_{tr}(x) j_1(qx) x^2 dx \right|^2 \dots\dots\dots (16)$$

で表わされる。又

$$|F(q)|^2 = \frac{4\pi}{Z^2} \sum_{M'M} \left| \int \langle 1^- M' | \hat{\rho}_{tr}^{1M} | gr \rangle j_1(qx) x^2 dx \right|^2 \dots\dots\dots (17)$$

であるから  $\langle \hat{\rho}_{tr}^{1M} | gr \rangle$  と  $\rho_{tr}(r)$  の関係を求めると

$$\rho_{tr}(E1, K=0 : x) = -\frac{1}{\sqrt{3}} \sqrt{\frac{1}{2M\omega_0}} \frac{N}{A} \left\{ \sqrt{4\pi} \frac{d}{dx} \rho_0(x) \right.$$

$$\left. + \frac{2}{\sqrt{5}} \left( \frac{d}{dx} + \frac{3}{x} \right) \rho_2(x) \right\} \dots\dots\dots (18)$$

$$\rho_{tr}(E1, K=1 : x) = -\sqrt{\frac{2}{3}} \sqrt{\frac{1}{2M\omega}} \frac{N}{A} \left\{ \sqrt{4\pi} \frac{d}{dx} \rho_0(x) \right.$$

$$\left. - \frac{1}{\sqrt{5}} \left( \frac{d}{dx} + \frac{3}{x} \right) \rho_2(x) \right\} \dots\dots\dots (19)$$

実際に形状因子を計算する際には原子核の基底状態のパラメーターが必要であるが、 $^{152}\text{Sm}$  に対しては Ref. 4 の結果を用いた。

### § 3. Hydrodynamic model<sup>5)</sup>

巨大共鳴を Collective model で扱っている核模型の一つに Hydrodynamic model がある (詳細は Ref. 5 を参照) ただしこの模型は  $AT=1$  の準位に対して適用される事に注意すべきである。この模型での遷移電荷密度  $\rho_{tr}^{\mu\mu}(\mathbf{r})$  は

$$\rho_{\tau r}^{\lambda\mu}(\mathbf{r}) = \langle \psi_i | \rho_p | \psi_i \rangle$$

$$= \begin{cases} \frac{(-)^{\mu}}{4} \sqrt{\frac{\hbar\omega_{\lambda-\mu}\rho_0}{K}} F_{\lambda-\mu} j_{\lambda}(k_{\lambda-\mu}r) Y_{\lambda-\mu}(\Omega_{\mathbf{r}}), & r \leq R \\ 0 & , r > R \end{cases} \dots\dots\dots (20)$$

従って

$$\rho_{\tau r}^{\lambda\mu}(r) = \int Y_{\lambda\mu}^* \rho_{\tau r}^{\lambda\mu}(\mathbf{r}) d\Omega_{\mathbf{r}}$$

$$= \begin{cases} \frac{(-)^{\mu}}{4} \sqrt{\frac{\hbar\omega_{\lambda-\mu}\rho_0}{K}} F_{\lambda\mu} j_{\lambda}(k_{\lambda\mu}r), & r \leq R \\ 0, & r > R \end{cases} \dots\dots\dots (21)$$

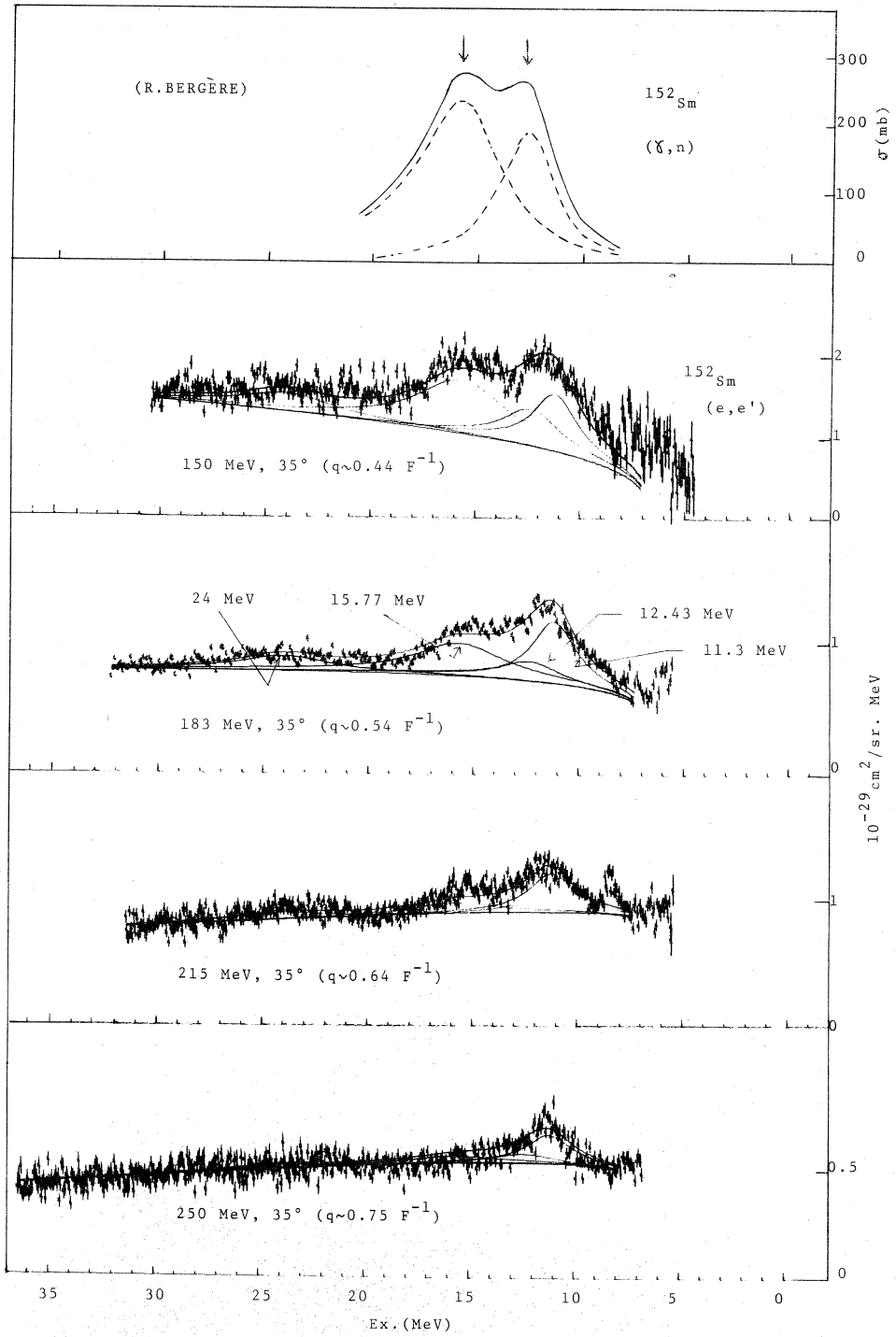
ここで  $\hbar\omega_{\lambda\mu}$  は準位の励起 energy  $\rho_0$  は原子核の質量密度,  $K$  は云々ゆる Symmetry energy ( $\sim 20\text{MeV}$ ),  $F_{\lambda\mu}$  は規格化定数,  $R$  は equivalent uniform charge radius,  $j_{\lambda}$  は球 Bessel 関数を示す。

#### § 4. 結果

第 1 図に電子散乱の結果を示す。continuous background に関しては Ref. 6 を参照。図中 12.43 MeV 及び 15.77 MeV の  $E 1$  巨大共鳴に関して形は Breit-Wigner で絶対値は Saclay で行なわれた ( $\gamma, n$ ) の実験 (図 2)<sup>7)</sup> で規格化してある。準位の中  $\Gamma$  もこの ( $\gamma, n$ ) の実験結果を用いた。又  $E 1$  巨大共鳴の  $q$ -依属性は § 2 で示した変形核に対する G-T model の  $q$ -依属性と同じとした。図 1 の中には明らかにこれら  $E 1$  巨大共鳴以外に 11.3 MeV 及び 24 MeV に準位が存在する事が示されている。この 2 々の準位の高さ及び巾を実験値を再現する様に求めた。その際準位の形は  $E 1$  の場合と同様形は Breit-Wigner の形を用いている。その再現性は図 1 に示されている通りである。11.3 MeV の準位の中は  $\Gamma = 2.5\text{MeV}$ , 25 MeV に対しては  $\Gamma = 5\text{MeV}$  であった。これら二々の準位の形状因子を求めると図 3, 4 となる。

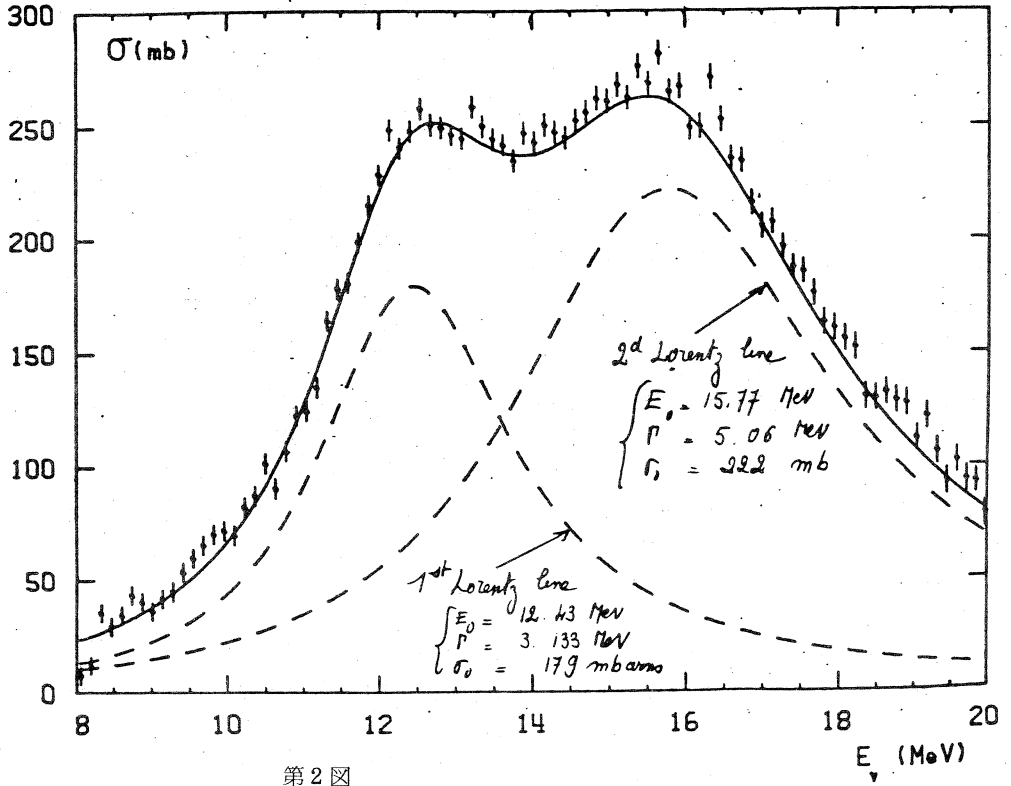
図中比較のため § 3 で解説した Hydrodynamic model での計算値を示す。計算は Born 近似である。理論値を実験値に合わせるための倍率を  $E 2 \times 0.6$  の様に示した。又  $q$ -依属性をも合わせるために Ref. 4 より求められた equivalent uniform charge radius  $R_0 = 6.574 F$  を変えた。その倍率を  $R = 1.06 R_0$  で示した。

以上の結果を表に示すと表 1 の様になる。表中には  $E 0$  巨大共鳴に対する compressible model も示されている。表の中で  $E 2$  に対する Tassie model 及び  $E 0$  に対する compressible model は  $\Delta T = 0$ , Hydrodynamic model は  $\Delta T = 1$  として計算してある。用いた Energy Weighted

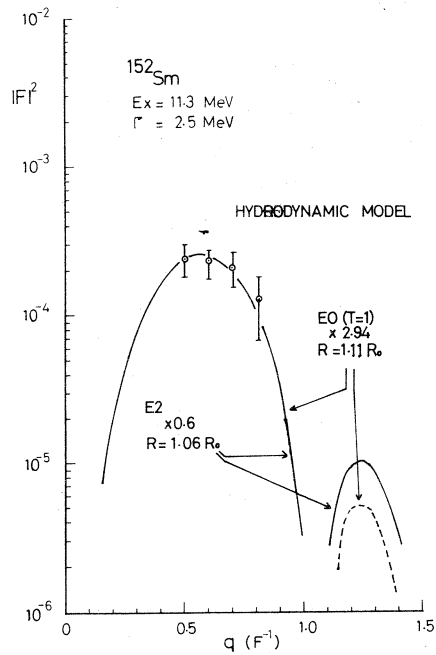


第 1 图

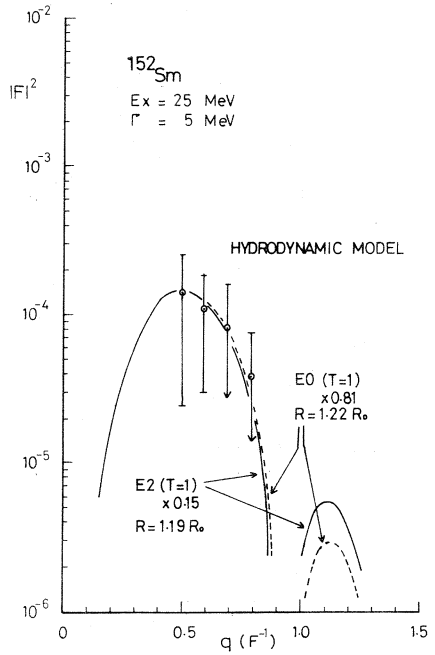
TOTAL CROSS SECTION OF SAMARIUM 152



第 2 图



第 3 图



第 4 图



表 1

Ex. [MeV]	$J^\pi \Delta T$	$P^a)$	Ex. P <sup>b)</sup>	(EWSR) <sup>b)</sup>	$\frac{\text{Ex. P}}{\text{(EWSR)}}$
11.3	$2^+$	0 $(1.01+0.20) \times 10^3$	$(1.14+0.23) \times 10^4$	$5.41 \times 10^4$	0.21
		1 $(9.97+2.0) \times 10^2$	$(1.13+0.23) \times 10^4$	$7.85 \times 10^4$	0.14
	$0^+$	0 $(2.15+0.43) \times 10^3$	$(2.43+0.49) \times 10^4$	$5.44 \times 10^4$	0.45
		1 $(2.05+0.41) \times 10^3$	$(2.32+0.46) \times 10^4$	$7.90 \times 10^4$	0.29
12.43	$1^-$	1 17.62	219.0	$5.46 \times 10^2$	0.40
15.77	$1^-$	1 27.83	438.9	$5.46 \times 10^2$	0.80
24.0	$2^+$	0 $(8.6+3.4) \times 10^2$	$(2.1+0.8) \times 10^4$	$5.41 \times 10^4$	0.39
		1 $(8.9+3.5) \times 10^2$	$(2.1+0.8) \times 10^4$	$7.85 \times 10^4$	0.27
	$0^+$	0 $(1.8+0.7) \times 10^3$	$(4.3+1.7) \times 10^4$	$5.44 \times 10^4$	0.79
		1 $(1.8+0.7) \times 10^3$	$(4.3+1.7) \times 10^4$	$7.90 \times 10^4$	0.54

a) P is B(E1) in units  $e^2 F^2$  for  $J^\pi=1^-$ , B(E2) in  $e^2 F^4$  for  $J^\pi=2^+$ , and  $|M_{E1}|^2$  in  $F^4$  for  $J^\pi=0^+$ .

b) Units are MeV times units of P.

## Sum Rule

$$E0 : \sum_n (E_n - E_0) |ME|^2 = \begin{cases} \frac{2\hbar^2}{M} \frac{Z^2}{A} \langle r^2 \rangle, & \Delta T=0 \\ \frac{2\hbar^2}{M} \frac{NZ}{A} \langle r^2 \rangle, & \Delta T=1 \end{cases} \dots\dots\dots (22)$$

$$E1 : \sum_n (E_n - E_0) B(E1) = \frac{\hbar^2}{2M} \frac{9e^2}{4\pi} \frac{NZ}{A}, \quad \Delta T=1 \quad \dots\dots\dots (23)$$

$$E2 : \sum_n (E_n - E_0) B(E2) = \begin{cases} \frac{\hbar^2}{2M} \frac{50}{4\pi} e^2 \frac{Z^2}{A} \langle r^2 \rangle, & \Delta T=0 \\ \frac{\hbar^2}{2M} \frac{50}{4\pi} e^2 \frac{NZ}{A} \langle r^2 \rangle, & \Delta T=1 \end{cases} \dots\dots\dots (24)$$

表 2

	$J^\pi$	Ex. (th.) [MeV]	B(EL) (th.) [ $e^2 F^4$ ]	Ex. (exp.) [MeV]	B(EL) (exp.) [ $e^2 F^4$ ]	R/R.
HYDRODYNAMIC MODEL (T=1),	$0^+$	26.6	$1.81 \times 10^3$	11.3	$2.05 \times 10^3$	1.11
		24.3	$2.39 \times 10^3$	24.0	$1.8 \times 10^3$	1.22
	$2^+$	20.6	$3.34 \times 10^3$	11.3	$9.97 \times 10^2$	1.06
		18.5	$4.62 \times 10^3$	24.0	$8.9 \times 10^2$	1.19
COMPRESSIBLE MODEL (T=0),	$0^+$	10.5	$4.52 \times 10^3$	11.3	$2.15 \times 10^3$	0.97
		10.5	$6.47 \times 10^3$	24.0	$1.8 \times 10^3$	1.06

$$R_0 = 6.574 [F]$$

表2はそれぞれの核模型が予測する励起 energy 及びB ( E L ) の実験値との比較を参考に示す。

(中田)

### 参 考 文 献

- 1) R. Bergère, H. Beil, P. Carlos et A. Veyssiere Nucl. Phys. A **133** (1969)417.
- 2) P. Carlos, H. Beil, R. Bergère, A. Lepretre and A. Veyssiere Nucl. Phys. A **172** (1971) 437.
- 3) T. DeForest and J. D. Walecka " *Electron Scattering and Nuclear Structure* " in ADVANCES IN PHYSICS Volume 15 (1966)
- 4) W. Bertozzi, T. Cooper, N. Engglin, J. Heisenberg, S. Kowalski M. Mills, W. Turchivetz, C. Williamson and S. P. Fivozinsky, J. W. Lightbody, Jr., and S. Penner, Phys. Rev. Letters **28** (1972) 1711.
- 5) M. Eisenbgrg and W. Greiner, " *Nuclear Models* " (North-Holland Publishing Company - Amsterdam . London 1970 )
- 6) 核理研報告 Vol. 5, № 2 (1972) 1
- 7) R. Bergère, private communication.

### 輻射補正について

§ 1. 電子散乱では、電子が

A ) 散乱される時に核の輻射場と相互作用する, ( Schwinger correction )

B ) ターゲット中の原子の輻射場と相互作用する, ( Bremsstrahlung )

C ) atomic ionization によってエネルギーを失う,

ことによる輻射補正が必要で、この補正は次のように記述される。( ref. 1 )。

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \sigma_{rad}}{d\Omega dE_{obs}}(E_i, E_f, \theta) &= \frac{d^2 \sigma_0}{d\Omega dE_f}(E_i, E_f, \theta)[1-\delta] \\ &+ \int_{\Theta} d\theta \left[ g(E_f, E_f) \frac{d^2 \sigma_0}{d\Omega dE'_f}(E_i, E'_f, \theta) + g(E_i, E'_i) \frac{d^2 \sigma_0}{d\Omega dE_f}(E'_i, E_f, \theta) \right] \\ E'_i &= E_i - \theta \\ E'_f &= E_f + \theta \end{aligned} \quad (1)$$

ここで  $\sigma_{rad}$  は輻射補正前の断面積,  $\sigma_0$  は輻射がないとした時の断面積である。第2項は, tail の寄与である。

従来は, 計算機により, 一チャンネルずつ第一項の補正を計算し, それがひく tail を以下のチャンネルからさしひくという方法を使って, 輻射がないと考えた時のスペクトルを再現していた。しかし, 特に  $Z$  が大きくなると, 次のような問題がでてきた。

イ) 弾性散乱の断面積が, 上記の方法で行った場合と, チャンネル和をとってから補正した場合とで, ある時は 20% ちかく差がある。

$$\sum \frac{d^2 \sigma_{obs}}{d\Omega dE} [1 - \delta(\Delta E)]^{-1} \quad (2)$$

ロ) 補正後のスペクトラムが, 励起エネルギーの低い部分で負になる (図3, 図4参照)。

ハ) 補正後の励起エネルギーの高いところの断面積が, ターゲットの厚さによりくいちがう (図4参照)。

これらの問題を, ひとつは補正式(1)自体の問題, ひとつは tail のさしひき方法の問題として考えてみる。

§2 補正式(1)の  $[1 - \delta]$  は, A), B), C), の理由による三つの因子の積である。

$$(1 - \delta) = \frac{\omega - 1}{\omega} e^{-\delta S - \delta B} \quad (3)$$

$e^{\delta S}$  (Schwinger 因子) は, Schwinger をはじめ多くの人が式を導いており, その比較を表1にまとめる。それぞれ第一次ボルン近似を仮定し, 電子と輻射場の相互作用の高次の項は,

$E_0 = 248.2 \text{ MeV}$ ,  $45^\circ$  表1 輻射補正因子の比較

	$e^{\delta S}$ (Schwinger)					$e^{\delta B}$ (Bremsstrahlung)			ionization loss
	Schwinger	Maximon (1)	" (2)	Mo&Tsai *	**	Bethe & Heitler	Bethe & Ashkin	Rossi	
参照	2, 3	4	4	5		1.6	7	5	6
$^{208}\text{Pb}$ (50.55 mg/cm <sup>2</sup> )	a	b	c	d	e	$X_0=5.85$ a	$X_0=6.54$ b	c	
at 1MeV	1.255	1.254	1.256	1.256	1.255	1.077	1.069	1.065	1.0040
at 8MeV	1.130	1.129	1.131	1.130	1.129	1.047	1.042	1.040	1.000
$^{12}\text{C}$ (106.7 mg/cm <sup>2</sup> )									
at 1MeV	1.255	1.254	1.256	1.256	1.254	1.020	1.021	1.020	1.010
at 8MeV	1.130	1.129	1.130	1.130	1.129	1.013	1.013	1.013	1.001

\* Mo & Tsai の式はMaximon(1)の式に  $(Z\alpha)$  について3次の項までを加えたものである。

\*\*  $\delta S = \frac{4\alpha}{\pi} \left\{ \left[ I_n \frac{4E_1}{4E} - \frac{13}{12} \right] \left[ I_n \frac{2E_1}{mc^2} \sin \frac{\theta}{2} - \frac{1}{2} \right] + \frac{12}{72} \right\}$ , Schwinger の式から  $f(\theta)$  をとりのぞいたもの。

Exponential におきかえて近似している。Schwinger 因子の大部分を占める soft photon term

$$\frac{2\alpha}{\pi} \ln \frac{1}{\Delta E} [\ln q^2 - 1]$$

に関しては、波長が充分長いので高次の項を Exponential にくりこんで良いことが証明されている (ref. 4)。表1のMaximon(1)は、Schwinger factor 全体を Exponential にくりこんだ場合、Maximon(2)は soft photon termのみをくりこんだ場合で、大きな差はない。電子と核のポテンシャルとの相互作用の高次の項に関しては、Suuraによって soft photon term はすべての order について同じだと証明されている。hard photon の term やポテンシャル、輻射場両者との高次の相互作用の項などについてはまだ計算されていないようである。

$e^{\delta B}$  は、Bethe & Heitler の式から計算される。表1の  $e^{\delta B}$  の第2行(b)は、radiation length として、Wheeler - Lamb factor と、一次ボルンに高次の補正を入れた式を使って計算したものである。(ref. 7)。しかし Mo & Tsai (ref. 5)によると Bethe & Heitler の式の精度は 20% 程度である。後に Bethe & Ashkinらが計算した式を用いた  $e^{\delta B}$  を、第3行(c)に示すが、鉛近辺では両者にかかなりの差がでる。

ionization loss の因子は Rossi (ref. 6) の式を使ったが、 $e^{\delta S}$ 、 $e^{\delta B}$  に比べると小さい。

§3 Tail のさしひき方法についておもに2つの問題がある。輻射補正因子  $[1 - \delta(\Delta E)]$  は、ピークの幅  $I$  が  $\Delta E$  より小さいと考えているが、実際に Tail をさしひく時は、1チャンネルごとに(1)式を使ってひいていくので、チャンネル幅を  $\Delta E$  とり、 $\Delta E$  がピーク幅より小さくなる。そこで従来は次のようなルーチンを2回まわらせてその誤差を少なくしていた。

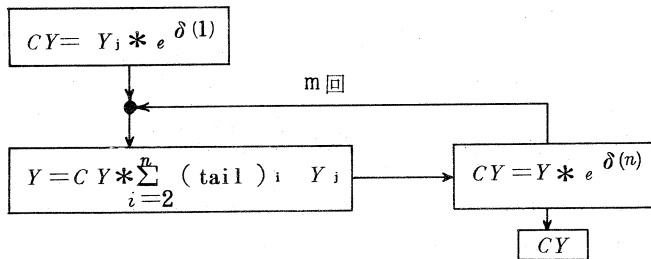


図1

- $Y_j$  : 補正前の  $j$  チャンネルの Yield
- $CY$  : 補正後の Yield
- $e^{\delta(1)}$  : 1チャンネル分の補正因子
- $e^{\delta(n)}$  :  $n$ チャンネル分の補正因子
- $(tail)_i$  :  $(i - 1)$ チャンネル後の tail の寄与 (相対値)

ただし、ピーク幅が入射エネルギー幅のみによると考えると、各入射エネルギーでできるスペクトラムの重ねあわせをみているわけであるから、このようなルーチンの必要はないはずである。

次にTailのさしひきで問題になるのは、(1)式の最後の項の、入射エネルギーの異なる弾面積を必要としていることである。すこしづつ入射エネルギーの小さいスペクトラムをいくつかとれば一番良いが、従来は、Mott 断面積による補正のみをして、 $E_i' \sim E_i$  として近似していた。励起エネルギーが20MeVのところでは、弾性散乱の大きい  $q \sim 0.6 F^{-1}$  の場合、その近似の悪さは数十%にも及ぶ。

§ 4 以上のことを考えて、図1のルーチンのパラメータ  $n$  と  $m$  を動かすこと、及び以下のような新しいプログラムを作ってみた。

- ① Schwinger 因子は、表1に示されるようにSchwinger の式から  $f(\theta)$  をとりのぞいたもので充分である。
- ② Mo & Tsai による考察から Bremsstrahlung 因子とそのTail は Bethe Ashkin の式を使う。
- ③ その際  $\frac{1}{2} b T \ln\left(\frac{E_i}{A E}\right)$  の高次の項は、無視する。
- ④ 入射エネルギーの小さいスペクトラムは、弾性散乱に関しては今までに得られた形状因子を使い、非弾性散乱では形状因子はすべて一定と仮定して再現する。

この時、ひきかたの適査を

- ① 弾性散乱から第一励起状態までの Yield の平均値

$$x = \frac{1}{N} \sum_i^N \frac{Y_i}{A Y_i}$$

が0になるか

- ② 弾性散乱の断面積が(2)式で計算した場合との比

$$y = \frac{\frac{d\sigma}{d\Omega} (1)}{\frac{d\sigma}{d\Omega} (2)}$$

がどれだけになるかで判定した。

$x$  と  $y$  の値を、 $n$  と  $m$  を動した場合について図2に示す。また、従来の方法と、新しい方法で得られた $^{208}\text{Pb}$  スペクトラムを、図3に示す。

§ 5 § 1 で提起した問題のうち、問題(イ)についてはほとんど解決することができることがわかった。しかし(イ)については多少改良したにすぎず、(ウ)についてはまだ多くの問題を残している。

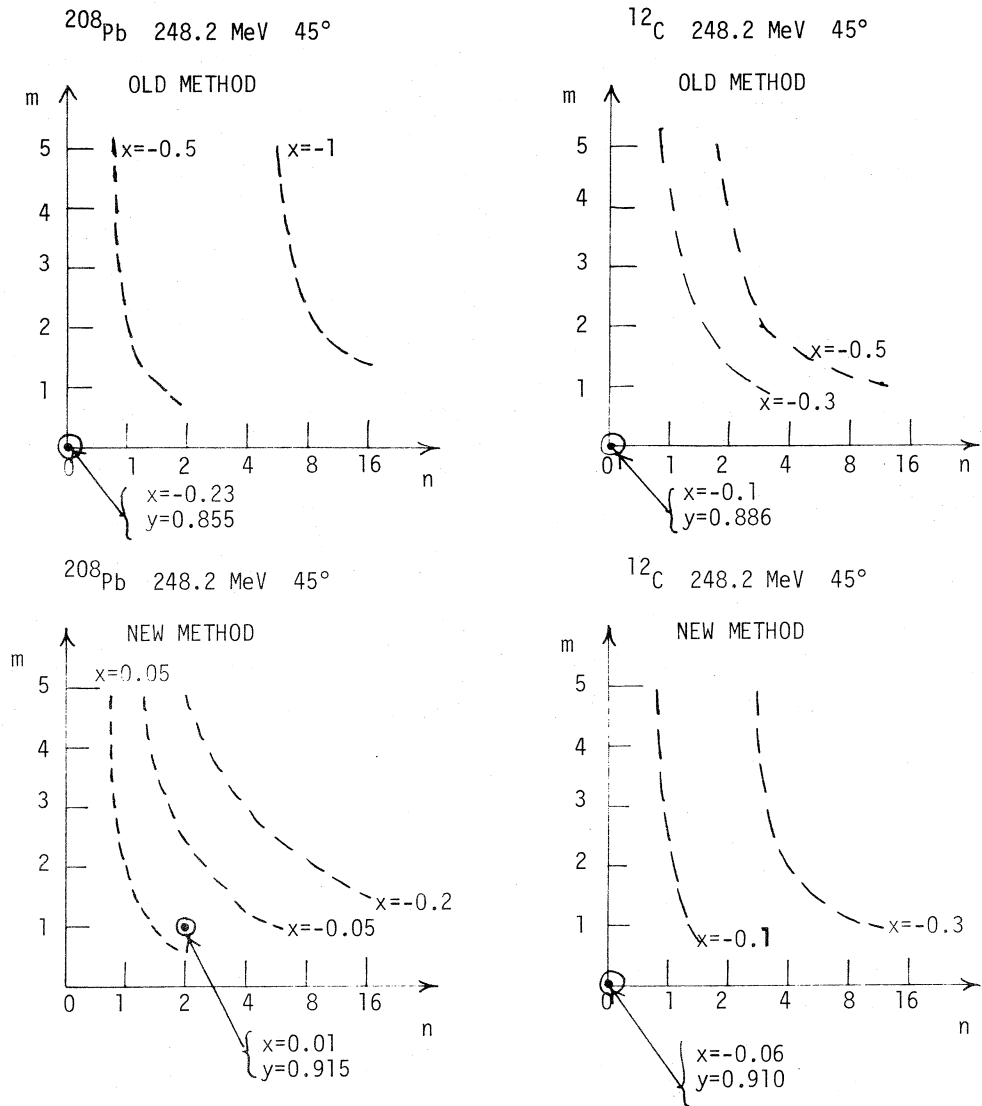


図2 map of  $x$ . 最小点を2重丸で示し、そこにおける  $y$  の値を付した。

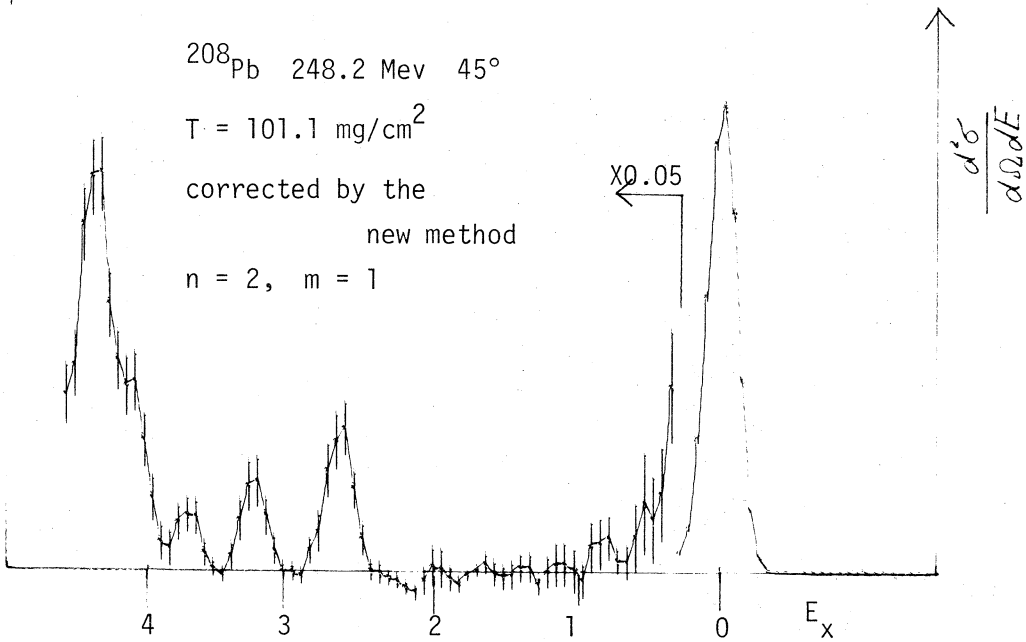
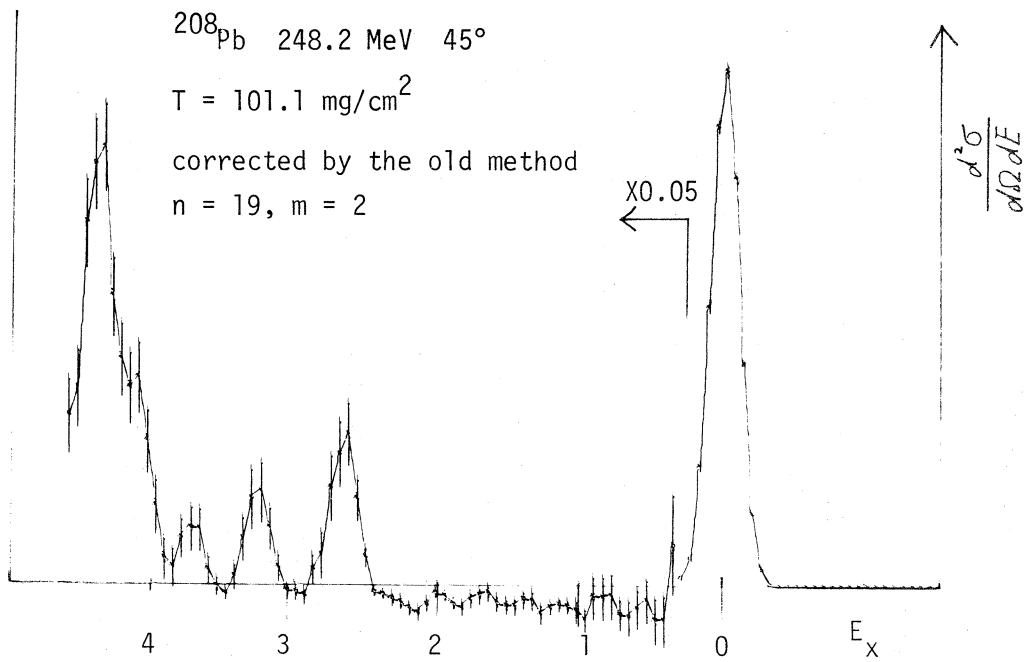


図3  $^{208}\text{Pb}$  248.2 MeV  $45^\circ$  のデータを新旧2つの方法で tail をひいたスペクトラム。縦軸は微分断面積で上下とも同じ倍率である。

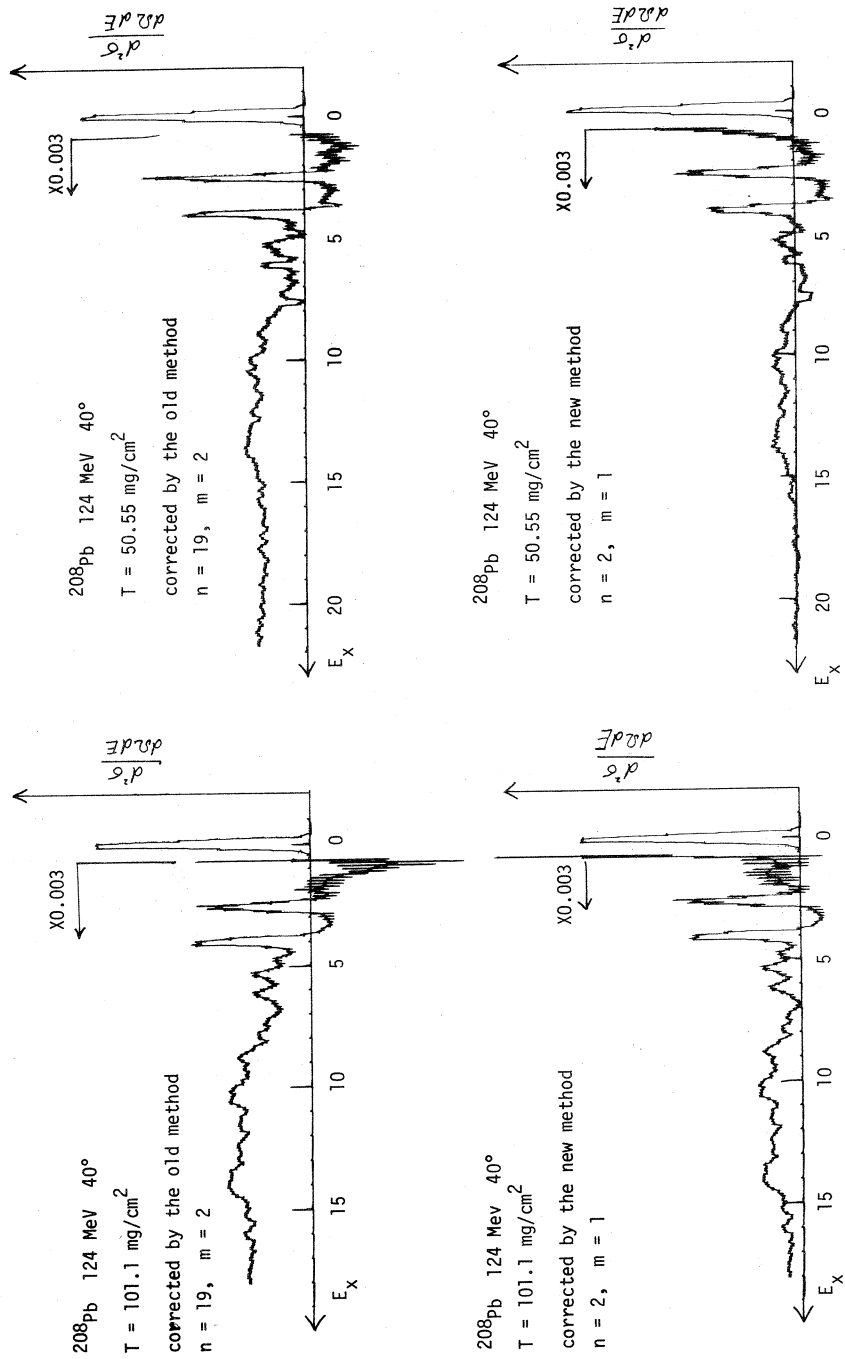


図4  $^{208}\text{Pb}$   $124\text{ MeV}$   $40^\circ$  のデータ ( $t = 50.55\text{ mg/cm}^2$ ,  $101.1\text{ mg/cm}^2$ ) を新旧2つの方法で tail をひいたスペクトラム, 縦軸は微分断面積で, すべて同じ倍率である。



図4に、入射エネルギー124 MeVで、50mg/cm<sup>2</sup>、100 mg/cm<sup>2</sup>のTargetをもちいた場合の補正後のスペクトラムを示す。このエネルギーの時は、弾性散乱と20MeV付近への非弾性散乱のDetectorの効率がかならずしも一致しないという事もあるが、Targetの厚さの相違による20MeV付近の断面積の差が非常に大きい。また、Tailのひきかたにより、このように断面積がちがうことは、高い励起をみる実験に大きな問題を残すのではないだろうか。(長尾)

### 参 考 文 献

- 1) H. Nguyen - Ngoc et al., Phys. Rev. **137** 4B (1964) 1036
- 2) J. Schwinger, Phys. Rev. **75** (1949) 898
- 3) H. Breuer, Nuclear Data Tables **9** (1971) 169
- 4) L. C. Maximon, Rev. Mod. Phys. **41** (1969) 193
- 5) L. W. Mo & Y. S. Tsai, Rev. Mod. Phys. **41** (1969) 205
- 6) B. Rossi, High Energy particles (Prentice Hall, Inc.,)
- 7) High Energy and Nuclear Physics Data Handbook (Rutherford Lab.)
- 8) W. Heitler, The Quantum Theory of Radiation (Oxford University press)

## I - 2 電子散乱による $^{26}\text{Mg}$ 及び $^{27}\text{Al}$ の巨大共鳴領域の励起

理学部物理, 核理研 \*

斎藤肇・田中英二・岡崎行男 \*

小山田正幸 \*・菅原真澄 \*・寺沢辰生 \*

中原和夫 \*

電子による巨大共鳴領域の励起は、幅の広い共鳴状態の励起と、準弾性散乱過程と云う二つの描像の間で明かな区別はつけられない。

運動量移行  $q$  が大きくなるに従って、だんだん後者の過程が主となると考えられている。<sup>1)</sup>

de Forest は、この二つが区別出来ないとの立場から、準弾性散乱模型を拡張して、核子の結合効果と、放出粒子波動函数の、核ポテンシャルによる歪を考慮に入れ、巨大共鳴を含む広い領域にわたって、散乱電子スペクトルの、大まかな構造を説明する模型を提案している。<sup>2)</sup> しかしながら、巨大共鳴が比較的幅の狭い多数の準位の集合であれば、この区別は可能かも知れない。

我々は  $^{26}\text{Mg}$  及び  $^{27}\text{Al}$  の巨大共鳴領域に対する電子散乱の実験を行い、上記の二つの立場から、検討した。

### 実験方法

核理研電子散乱実験装置を用い、入射電子のエネルギー  $E_0$  及び散乱角  $\theta$  は  $150\text{MeV } 35^\circ$ 、 $200\text{MeV } 35^\circ$  ( $\text{Mg}$  のみ)、 $250\text{MeV } 35^\circ$ 、 $40^\circ$ 、 $50^\circ$ 、 $60^\circ$  及び  $95\text{MeV } 135^\circ$  で  $^{26}\text{Mg}$  ( $99.4\%$ 、濃縮  $49.9\text{mg}/\text{cm}^2$ )、 $^{27}\text{Al}$  ( $81.7\text{mg}/\text{cm}^2$ 、但し  $250\text{MeV } 35^\circ$  の一部で  $27.4\text{mg}/\text{cm}^2$ ) による散乱電子のエネルギースペクトルを測定した。

スペクトロメータの、33チャンネルの検出器系の相対効率の較正は、 $^{12}\text{C}$  の励起エネルギーが高く、構造のない領域で散乱された電子の連続スペクトルを、重複する様に、スペクトロメータの磁場を  $0.8\%$  きざみで変えて、7点測定し、Crannell<sup>3)</sup> の方法によって行った。

入射電子数の測定は、SEM及びFaraday Cupによった。

断面積  $\sigma$  は、散乱電子の収量  $Y$  から

$$\sigma = Y / n \cdot N \eta \Omega \quad \dots\dots\dots(1)$$

によって得られる。

但し,  $n_e$  は標的に当たった全電子数

$N$  は標的の単位面積当りの原子数

$\eta$  は検出器の効率

$\Omega$  はスペクトロメーターの立体角

$\eta \cdot \Omega$  は $^{12}\text{C}$ による散乱電子エネルギースペクトルを測定して、そのよく知られている弾性散乱及び4.44MeV状態による非弾性散乱の断面積から決定した。

Born近似では、微分断面積 $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega}$ は、次の様に書ける。<sup>4)</sup>

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \frac{Z^2 e^4 \cos^2 \frac{\theta}{2}}{4 E_0^2 \sin^4 \frac{\theta}{2}} |W(q, \omega)|^2 \quad \dots\dots\dots(2)$$

$$|W(q, \omega)|^2 = \frac{q \mu^4}{q^2} |W_L(q, \omega)|^2 + \left(\frac{q \mu^2}{2 q^2} + \tan^2 \frac{\theta}{2}\right) |W_T(q, \omega)|^2 \dots (3)$$

但し,  $W_L(q, \omega)$ ,  $W_T(q, \omega)$ は形状因子のそれぞれ縦及び横成分である。

ある励起エネルギー範囲にわたる $|W(q, \omega)|^2$ の積分値を $|F(q)|^2$ と書く事にし、以下では $Z$ の異なる場合の比較を行うため、 $\frac{Z^2}{4\pi} |W|^2$ ,  $\frac{Z^2}{4\pi} |F|^2$ の形で与える。

## 結果と議論

輻射補正を行って、平滑化した散乱電子のスペクトルを図1, 図2に示す。図の縦軸は1MeV当りの形状因子で、目盛の大きさは、全てに共通である。

$^{26}\text{Mg}$ では17MeVと22MeVとを中心として、二つのピーク群がある事。それに対し $^{27}\text{Al}$ では20MeV近辺を中心として、幅の広い盛り上がりが見られる。更に $^{26}\text{Mg}$ ,  $^{27}\text{Al}$ とも、この構造の下に、大きな連続部分を持ち $E_{ex}=28\text{MeV} \sim 30\text{MeV}$ では両者の値が、ほぼ等しい。

(2), (3)式によって、 $q$ を一定にして角度の異なる断面積を比較すれば $|W_L|^2$ と $|W_T|^2$ を別々に求める事が出来る。250MeV 40°と95MeV 135°の測定値から、この様にして、両成分を分離した結果を図3に示す。

共鳴構造は、縦成分にのみ見られる。横成分形状因子は、縦成分に比較して小さいので、 $E_0 = 95\text{MeV}$ ,  $\theta = 135^\circ$ の場合を除いて、他の小さい散乱角でのスペクトルでは、ほとんど縦成分のみと考えてよからう。

de Forestは、電子による核の励起に対し、準弾性散乱模型を一般化して、核子の結合効果及び、エネルギー依存ポテンシャルによる放出粒子波動函数の歪を考慮して、巨大共鳴構造と、連続部分を同時に説明する模型を提案している<sup>2)</sup>。 $^{12}\text{C}$ に対する、この模型による計算は、実験スペ

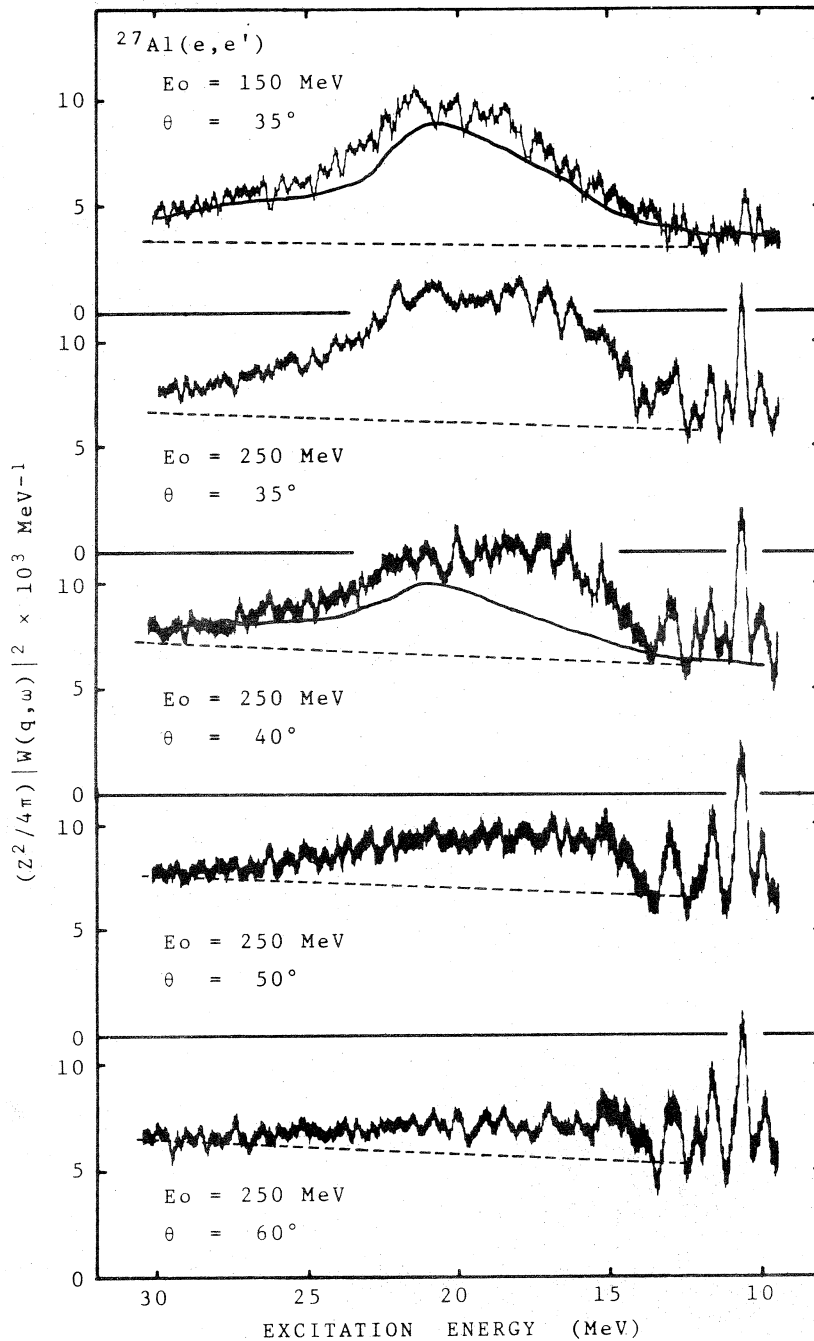


図1  $^{27}\text{Al}$ による散乱電子スペクトル  
 実線は全光吸収断面積を形状因子に焼き直したもの。破線は連続スペクトルの大きさを示す。

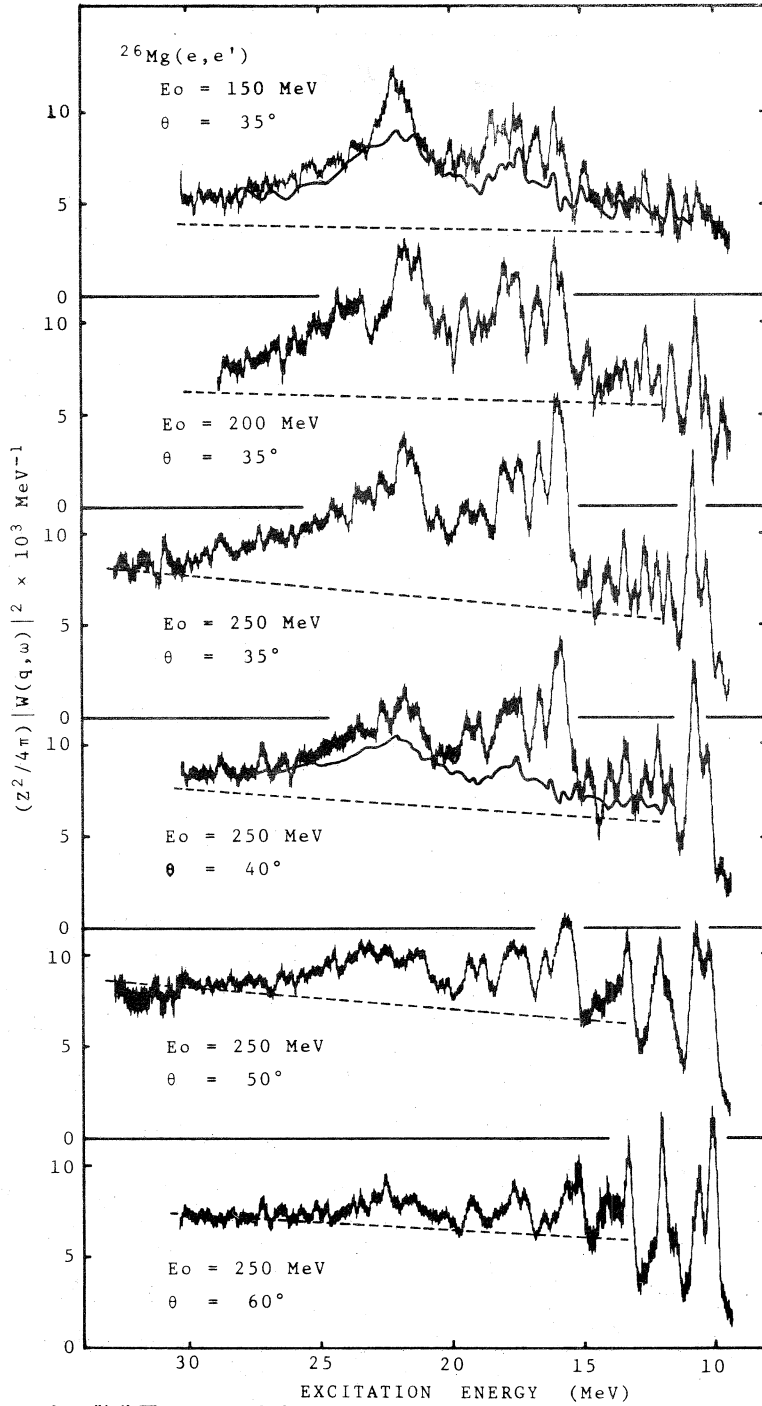


図2  $^{26}\text{Mg}$ による散乱電子のスペクトル  
 実線は $(\gamma, p) + (\gamma, n) + (\gamma, 2n) + (\gamma, pn)$ の断面積を形状因子に焼き直したものの。破線は連続スペクトルの大きさを示す。

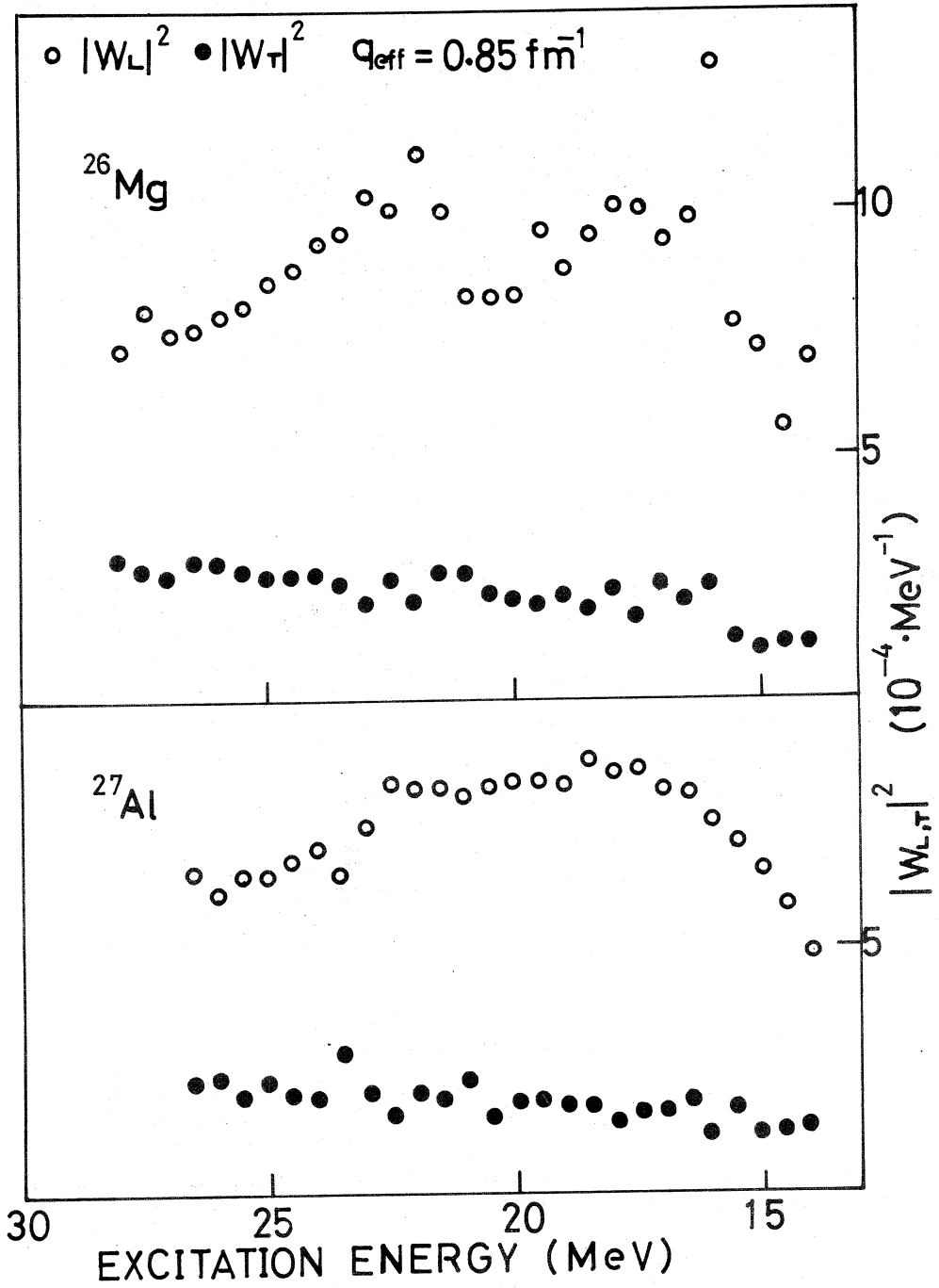


図3 縦形状因子と横形状因子

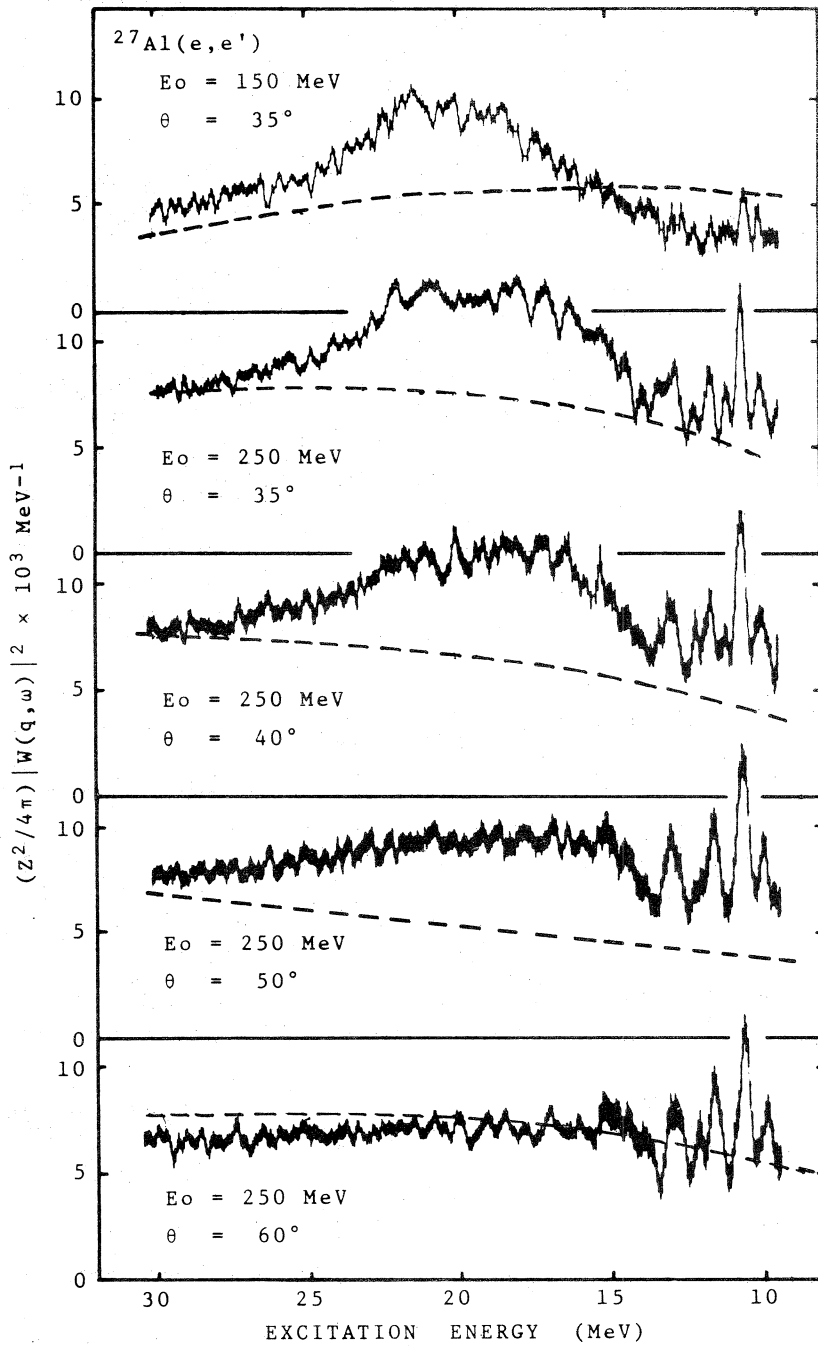


図4  $^{27}\text{Al}$ による散乱電子スペクトル。  
 破線は de Forest の模型による計算値 ( $\epsilon_0 = 100 \text{ MeV}$ ,  $b = 1.75 \text{ fm}$ )

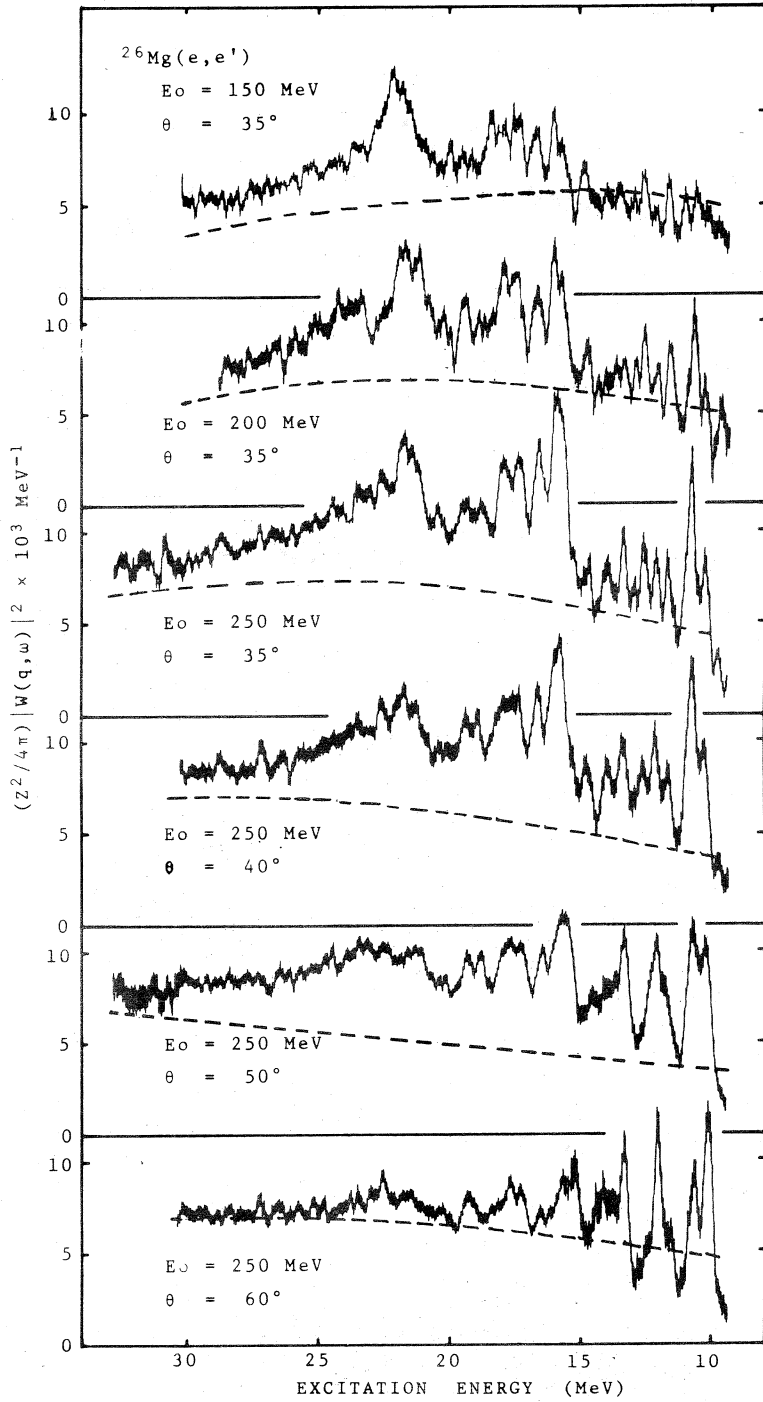


図5  $^{26}\text{Mg}$  による散乱電子スペクトル。  
破線は de Forest の模型による計算値 ( $\epsilon_0 = 100 \text{ MeV}$ ,  $b = 1.75 \text{ fm}$ )



クトルの大まかな構造をよく再現している。我々は、この模型を  $s-d$  殻核に拡張して、 $^{26}\text{Mg}$ 、 $^{27}\text{Al}$  の測定値と比べた。図 4、図 5 にそれを示す。但し陽子の波動函数には、調和振動子型 ( $b = 1.75 \text{ fm}$ ) を用い、クーロン部分のみを計算してある。エネルギー依存ポテンシャルは

$$V(\epsilon) = C(\epsilon - \epsilon_0) \dots\dots\dots(4)$$

と仮定し  $\epsilon_0$  は  $^{26}\text{Mg}$  の  $250 \text{ MeV } 60^\circ$  の測定値を再現する様に決めた。 ( $\epsilon_0 = 100 \text{ MeV}$ )

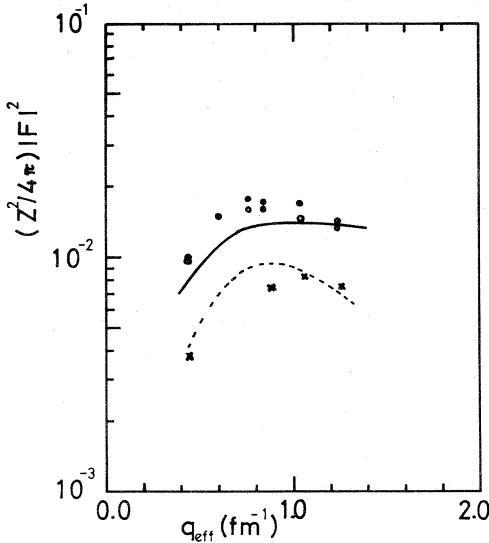


図 6  $E_{ex} = 28 \text{ MeV} \sim 30 \text{ MeV}$  間を積分した形状因子。(●  $^{26}\text{Mg}$ , ×  $^{27}\text{Al}$ , \*  $^{12}\text{C}$ )  
 実線は de Forest の模型による  $^{26}\text{Mg}$  に対する計算値 ( $\epsilon_0 = 100 \text{ MeV}$ ,  $b = 1.75 \text{ fm}$ )  
 破線は  $^{12}\text{C}$  に対する計算値 ( $\epsilon_0 = 90 \text{ MeV}$ ,  $b = 1.64 \text{ fm}$ )

更に  $E_{ex} = 28 \text{ MeV} \sim 30 \text{ MeV}$  の間で積分した形状因子を  $^{12}\text{C}$  のそれも含めて図 6 に示す。 $^{12}\text{C}$  の計算のパラメータは de Forest のものを用いた。 ( $b = 1.64 \text{ fm}$ ,  $\epsilon_0 = 90 \text{ MeV}$ ) 計算値は、特に巨大共鳴領域で、実験値より小さい。これは de Forest による  $^{16}\text{O}$  の計算と同じ傾向である。彼は、この事について、この模型には含まれていない多粒子 - 空孔相関による効果かも知れないと指摘している。

これらの事から、de Forest の理論は、非干渉性の部分のみを与えており、実験値は、その上に、集団運動による共鳴が存在している様に思われる。そこで、巨大共鳴部分と、準弾性散乱部分が分離出来るものとして、以下の解析を試みた。共鳴部分の大きさを求める

際、連続部分の大きさが不明なので、以下の様にして、これを推定した。

Goulard, Fallieros<sup>5)</sup> によれば全ての双極子状態について積分した形状因子は弾性散乱形状因子を使って表す事が出来、アイソベクトル成分は

$$F_d^1(q) = i q C^{-1} \frac{A}{2NZ} [ F_{e,1}^0(q) + \frac{N-Z}{A} F_{e,1}^1(q) ] \dots\dots\dots(5)$$

但し、 $C = (\Phi_a, D \Phi_0) = [ 2rA/NZ ]^{\frac{1}{2}}$

$r$  は調和振動子の動径パラメータで

$$r = 1/b^2$$

$$\text{又 } F_{e,1}(q) = F_{e,1}^0(q) + F_{e,1}^1(q) = (\Phi_0, \frac{1}{Z} \sum_i \exp(i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i) \frac{1 + \tau_3(i)}{2} \Phi_0)$$

ここで

$$[ F_{e1}^0(q) + \frac{N-Z}{A} F_{e1}^1(q) ] \simeq F_{e1}(q) \text{ (実験値)} \quad \dots\dots\dots(6)$$

として  $| F_{e1}^1(q) |^2$  を計算すると、この  $q$  依存性は、

$$| F_{e1}^1(q) |^2 \propto j_{\lambda}^2(qR) \exp(-q^2 g^2) \quad \dots\dots\dots(7)$$

と仮定して、低励起状態への  $C 2$  の形状因子の実験値を与える様に決めた  $R, g$  を使って計算した  $| F_{e1}(q) |^2$  のそれとよく一致する。形状因子のこの  $q$  の依存性を用いて、 $^{27}\text{Al}$  の場合は、全光吸収断面積の測定値<sup>6)</sup>を、 $^{26}\text{Mg}$  は  $(r, p)$ <sup>7)</sup> 及び  $\{ (r, n) + (r, 2n) + (r, pn) \}$ <sup>8)</sup> の測定値を用いてこれらの  $E_{ex} = 28 \sim 30 \text{ MeV}$  の値から、連続成分の大きさを決めた。図 1、図 2 に於る実線はこれらの光反応の断面積  $\sigma_{E\lambda}(\omega)$  を形状因子に焼き直したものである。

但し

$$\begin{aligned} \frac{Z^2}{4\pi} | W(q, \omega) |^2 &= \frac{1}{(2\pi)^3} \alpha \\ &\times \frac{\lambda [ (2\lambda+1)!! ]^2}{\lambda+1} \frac{\sigma_{E\lambda}(\omega)}{\omega^2 \lambda^{-1} R^{2\lambda}} j_{\lambda}^2(qR) \\ &\times \exp(-q^2 g^2) \quad \dots\dots\dots(8) \end{aligned}$$

の関係を使った。 $^{27}\text{Al}$  の  $150 \text{ MeV } 35^\circ$  の測定値は図 1 に示す様に、全光吸収断面積と形が大体一致する。又  $^{27}\text{Al}$  の場合  $q$  が大きくなるに従って  $E_{ex} \simeq 17 \text{ MeV}$  を中心として  $C 1$  (アイソベクトル) 以外の  $q$  依存性を持つと思われる成分が現れる。この様子を見るために  $^{26}\text{Mg}$  の場合は  $14.5 \text{ MeV} \sim 30 \text{ MeV}$  の間で、 $^{27}\text{Al}$  は  $13.5 \sim 30 \text{ MeV}$  間でそれぞれ積分した形状因子を図 7 に示す。図中の破線は、(7)式で与えられる  $q$  依存性を持つとした時の  $C 1, C 2$  成分である。

Goulard, Fallieros の理論に於ける  $| F_{e1}^1(q) |^2$  は一種の総和則であるが<sup>26</sup>  $\text{Mg}, ^{27}\text{Al}$  の  $C 1$  の大きさはともにこの約 50% である。Lewis<sup>9)</sup> 等は  $(p, p')$  によって  $^{27}\text{Al}$  の  $E_{ex} \simeq 19 \text{ MeV}$  にエネルギーの重み付き総和則の 50~100% を占める

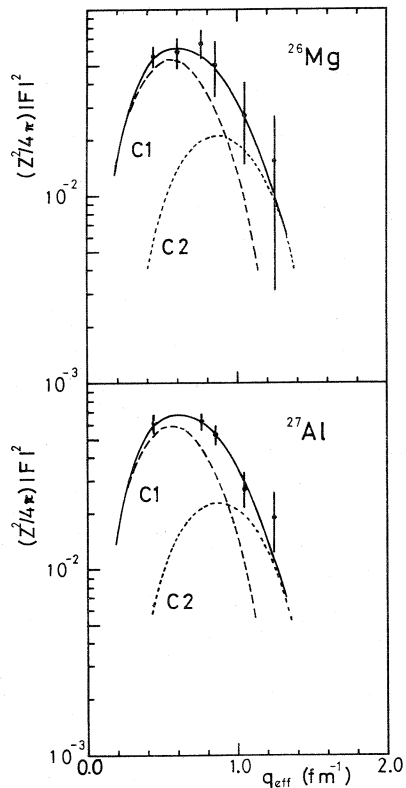


図7  $^{26}\text{Mg}, ^{27}\text{Al}$  の巨大共鳴の形状因子  
 $^{27}\text{Al}$  は  $E_{ex} = 13.5 \text{ MeV} \sim 30 \text{ MeV}$ 、  
 $^{26}\text{Mg}$  は  $14.5 \text{ MeV} \sim 30 \text{ MeV}$  間の積分値  
 破線は(7)式による  $C 1, C 2$  の計算値  
 ( $R = 3.2 \text{ fm}, g = 1.0 \text{ fm}$  :  $^{27}\text{Al}$ ,  $R = 3.1 \text{ fm}, g = 1.0 \text{ fm}$  :  $^{26}\text{Mg}$ )

四重極状態があるとしているが、我々の結果を同じ総和則に比べると、 $^{27}\text{Al}$ 、 $^{26}\text{Mg}$ ともに約25%である。尚、形状因子の実験値は、C1とC3の混合と考えても説明可能で、特にアイソスカラーの双極子状態は $^{16}\text{O}$ 等<sup>10)</sup>に見られる様に、C3型の $q$ 依存性と、かなりの強さを持つので興味がある。

基底状態のアイソスピン $T_0$ が零でない核では、巨大双極子状態が $T_0$ 及び $T_0 + 1$ のアイソスピンを持つ、二つの状態に分裂し<sup>11)</sup>、そのエネルギー差は、

$$\Delta E = \frac{T_0 + 1}{T_0} \tilde{U} \quad \dots\dots\dots(9)$$

$$\text{但し } \tilde{U} = \frac{T_0}{A} 60 \text{ MeV}$$

与えられる<sup>5)</sup>。 $^{26}\text{Mg}$ について、Titze等は<sup>12) 13)</sup> $q$ の小さい領域で( $e$ ,  $e'$ )の測定を行い17 MeVと22 MeVを中心に共鳴のグルーピングが起っている事を示し、これが(9)式から与えられる $\Delta E = 4.6 \text{ MeV}$ と合う事、及び( $\gamma$ ,  $n$ )、( $\gamma$ ,  $p$ )<sup>14)</sup>の結果から、アイソスピン分裂であると示唆している。又Wu等<sup>15)</sup>はTOF法によって( $\gamma$ ,  $n$ )反応の測定を行い、この事を裏付けている。

Goulard, Fallierosによれば、中性子と陽子の密度分布が異なれば、 $T_0$ 状態と $T_0 + 1$ 状態の形状因子の $q$ 依存性が異なり、 $|F_{T_0+1}|^2 / |F_{T_0}|^2$ は $q$ が大きくなるとともに小さくなる、予想されている。

我々の結果を14.5 MeV~20 MeVを $T_0$ の状態、20 MeV~25.5 MeVを $T_0 + 1$ の状態としてこの比を取ったものを図8に示す。Titze等の値は、我々の結果より大きい、彼らは $T_0$ 状態を14.5 MeV~19.5 MeV、 $T_0 + 1$ 状態を19.5~28 MeVとしているので矛盾はない。実線は理論値である。実験値がかなり大きくなっているのは、 $T_0$ 状態が励起エネルギーの高い方へスソを引い

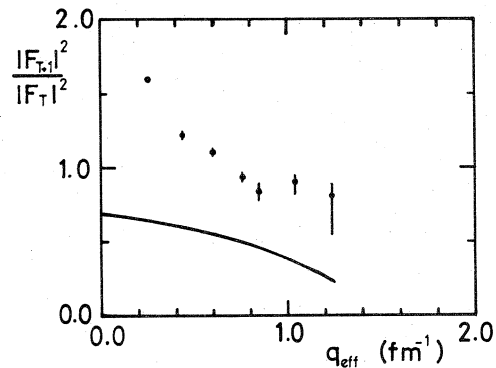


図 8

て、 $T_0 + 1$ 状態として勘定されている事も原因の一つと考えられる。一方、 $q$ の大きいところでこの比が下がっているのはむしろC1(アイソベクトル)以外の成分の寄与によるものと考えられる。

## 参 考 文 献

- 1) H. Überall, Electron Scattering from Complex Nuclei (Academic Press 1971) Part B pp 703
- 2) T. de Forest, Nucl. Phys. A132 (1969) 305
- 3) N. L. Cramell et al., Nucl. Instr. Meth. 44 (1966) 133
- 4) T. de Forest and J. D. Walecka, Advance in Physics 15 (1966) 1
- 5) B. Goulard and B. Fallieros, Can. J. Phys. 45 (1967) 133
- 6) J. Ahrens et al., Proceedings of International Conference on Nuclear Structure Studies Using Electron Scattering and Photoreaction (Sendai, 1972) pp 213
- 7) L. Katz and A. G. W. Cameron, Phys. Rev. 84 (1951) 1115
- 8) S. C. Fultz et al., Phys. Rev. C 4 (1971) 149
- 9) M. B. Lewis and F. E. Bertrand, Nucl. Phys. A 196 (1972) 337
- 10) Y. Torizuka et al., Phys. Rev. Lett. 22 (1969) 544
- 11) H. Morinaga, Phys. Rev. 97 (1955) 444
- 12) O. Titze et al., Phys. Lett. 31 B (1970) 565
- 13) A. Goldman, Z. Phys. 234 (1970) 144
- 14) L. Katz et al., Can. J. Phys. 32 (1954) 580
- 15) C. P. Wu, F. W. K. Firk and B. L. Berman, Phys. Lett. 32 B (1970) 675

# I-3 (e, e'p) 反応による Isobaric Analogue State の研究

核理研

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

1972年後期共同利用に於ては、従前と同様な方法で(e, e'p)反応のcross section, その放出陽子のスペクトル, 角度分布, 等を測定した。研究を行なった原子核は、変型核である<sup>181</sup>Ta等を主としたが、<sup>209</sup>Bi, <sup>142</sup>Nd等の測定を始め未完結になっている核について測定を終了した。一方より軽い核として<sup>40</sup>Ca, <sup>44</sup>Ca, <sup>45</sup>Scを取り上げ(e, e'p)反応によって( $\gamma$ , p)に関するcross section, 陽子スペクトルを測定したが、予備実験が終った状態である。これに関しては次期に本実験を行なう予定である。

## <sup>181</sup>Taの(e, e'p)反応

前回に引き続き<sup>181</sup>Ta(e, e'p)反応に於ける放出陽子エネルギー・スペクトラム及び(e, e'p)cross sectionを測定した。その結果励起エネルギー20.0MeVに強い共鳴状態が存在することが確認され、解析によってこの状態はT(isospin) upperのE1-巨大共鳴状態であると思われる。

### § 実験データの解析

図1に励起エネルギー18.0, 19.0, 19.5, 20.0, 20.5, 21.0, 21.5, 22.0MeVの放出陽子のエネルギー・スペクトラムを示す。励起エネルギーが20.0MeVを越えるとスペクトラムに2つの鋭いピークが現れる。1つは $8.1 < E_p < 9.6$  MeV(II)であり、もう1つは $11.0 < E_p < 12.0$  MeV(III)である。その他に $6.2 < E_p < 8.1$  MeV(I)にもbroadなピークが現れることがわかる。これらのグループの陽子数のSumを照射エネルギーの関数として表わすと図2になる。それぞれ▲, ●, ●印が領域(I), (II), (III)に対応する、又■印は $6.2 < E_p < 15.1$  MeVのyield curveを表わし、図1のスペクトラムからほぼ(e, e'p)反応に於けるtotal proton yieldに相当するものと近似出来る。(なお<sup>181</sup>Taのクーロン障壁は7.9 MeVであるので6.2 MeV以下のproton yieldは非常に小さいと考えられる) 図2に於いて各yield curveは励起エネルギー20.0MeVで大きなクニックを生ずる。これは20.0MeVに強い共鳴状態が存在し、その状態からの放出陽子は領域(I), (II), (III)の3つのグループに主に分布するこ

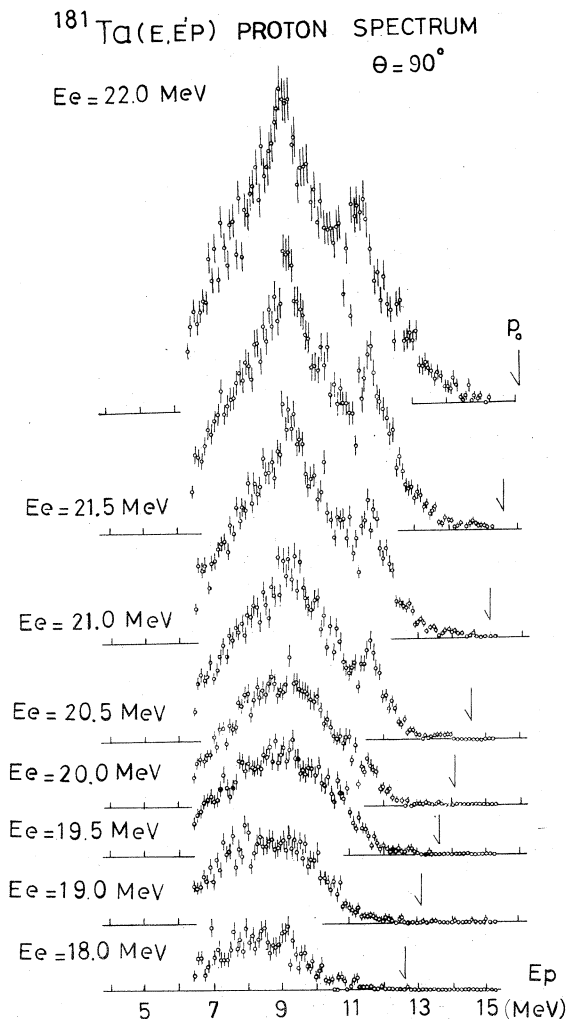


図1  $^{181}\text{Ta}$ からの放出陽子スペクトラム。  
矢印は  $P$ 。陽子 ( 残留核を基底状態に  
残す陽子 ) の位置を示す。

Weisskopf Unit の大きさであることが知られている。現在の結果はこの10倍もの大きさを持つことから coherency の強い共鳴状態であると言える。原子核の光子吸収による共鳴は  $1p-1h$  状態 で記述されるが、これだけでは neutron excess を持つ  $N > Z$  核に於いて必ずしも定まったアイソスピン状態には成り得ない。定まったアイソスピン状態は  $1p-1h$  state 及び excess state に於ける陽子・ $p$ -中性子・ $h$  の mono-pole 励起に相当する  $2p-2h$  状態の結合状態である。これらの状態間の coupling によって  $1p-1h$  状態は2つの定まったアイソスピン成分  $T+1$  状

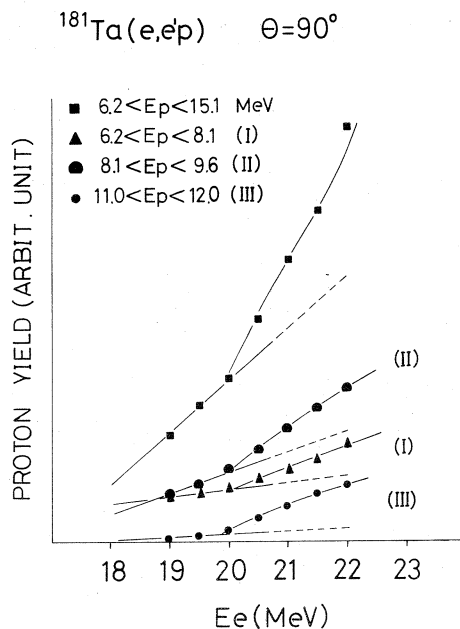


図2 陽子 yield curve.

とを示している。又これらのクニックの大きさからこの状態の radiative width は 2 Weisskopf Unit であり、さらに放出陽子のうち 80% が領域 (I), (II), (III) に分布していることがわかる。

一般に low lying Isobaric Analog State ( IAS ) の single particle 的な共鳴状態の radiative width は  $\sim 0.1$

態 ( $T_>$ ) ,  $T$  状態 ( $T_<$ ) に分離される。この関係は coherent 状態についても同じである。各 coherent 状態の重心間のエネルギー差は

$$\Delta E = 60 \cdot (T + 1) / A \text{ MeV}$$

で与えられる。<sup>1)</sup> ( $T$  は標的核の基底状態のアイソスピン)

重心として各アイソスピンの  $E 1$  - 巨大共鳴エネルギーをとると

$$E(T_> \text{ E 1 - giant resonance }) = E(T_< \text{ E 1 - giant resonance }) + \Delta E$$

とあらわされる。図 3 に以上の結論を図示した。 $T_< \text{ E 1 - giant resonance}$  として  $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)$  のデータ<sup>2)</sup>を用いて  $^{181}\text{Ta}$  の  $E(T_> \text{ E 1 - giant resonance })$  を求めると 20.6 MeV になる、この値は現在の実験結果 20.0 MeV とよく一致する。以上の 2 つの理由から  $^{181}\text{Ta}$  の 20.0 MeV 状態は  $T_>$  の  $E 1$  - 巨大共鳴状態であると思われる。

### ENERGY SPLITTING OF DIPOLE ISODOUBLETS

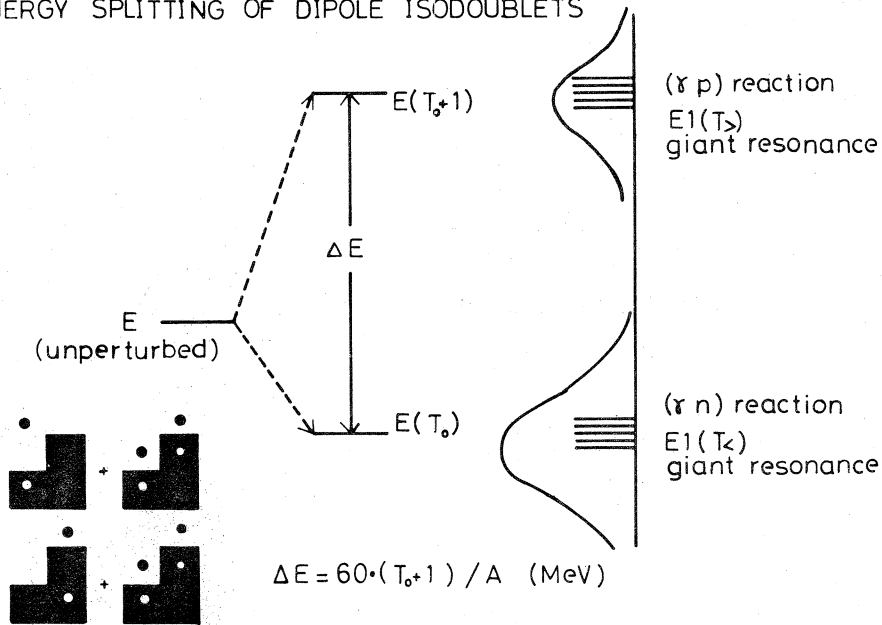


図 3 Dipole Isodoublets のエネルギー分離

§  $T_>$  - 巨大共鳴状態からの放出陽子エネルギースペクトラムの計算と実験データとの比較

$T_>$  - 巨大共鳴状態の configuration は lowlying I A S の configuration の重ね合わせで表わせる。今陽子が各 configuration を通って直接放出されるものと仮定すれば残留核状態には基底

状態, 陽子  $p-h$  状態, 中性子  $n-h$  状態, 陽子-中性子  $p-h$  状態がのこされる。(図4を参照)

これらの残留状態の励起エネルギーは Nilsson Model による level diagram<sup>3)</sup> (図5) と陽子, 中性子の pairing break-up エネルギー ( $2\Delta$ )<sup>4)</sup> を仮定すれば estimate 出来る。従って  $T>$  - 巨大共鳴状態の各 configuration から放出される陽子のエネルギーを決定することは可能であり, 更に次に示す様にエネルギー分布  $I(E)$  を求めることが出来る。

$$I(E) \propto \sum_{\alpha sl} \Gamma_{\alpha sl}(E)$$

但し

$E$  は放出陽子エネルギー

$\alpha$  は崩壊チャンネル

$s$  は崩壊チャンネルスピン

$l$  は陽子の軌道角運動量

$\Gamma_{\alpha sl}$  は放出陽子の部分幅を表わし, 次式で書き換えられる。

$$\Gamma_{\alpha sl} = \frac{2 \cdot \rho \cdot r_{\alpha sl}^2}{A^2 \alpha l (1 + \sum_{\alpha sl} r_{\alpha sl}^2 \cdot S_{\alpha l})}$$

$$\sim \frac{2 \cdot \rho}{A^2 \alpha l} \cdot r_{\alpha sl}^2$$

すなわち penetrability ( $\frac{2 \cdot \rho}{A^2 \alpha l} = P_{\alpha sl}(E, Z, A)$ ) と換算幅 ( $r_{\alpha sl}^2$ ) との積である。換算幅

に Nilsson 波動関数を使用すれば

$$r_{\alpha sl}^2 = |\psi_{\alpha sl}|^2 = \left| \sum_{l \Lambda \Sigma} C_{l \Lambda \Sigma}^{\alpha s} \cdot \chi_{N \Lambda \Sigma} \right|^2$$

$$= \sum_{l \Lambda \Sigma} |C_{l \Lambda \Sigma}^{\alpha s}|^2$$

となり, 結局放出陽子エネルギー分布は,

Configuration

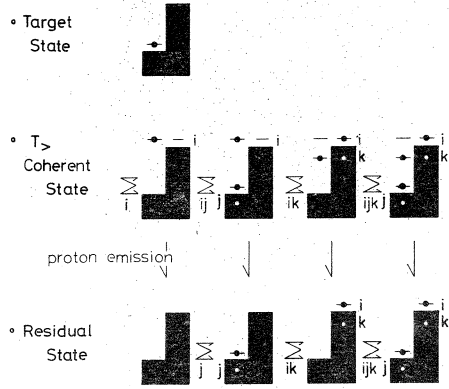
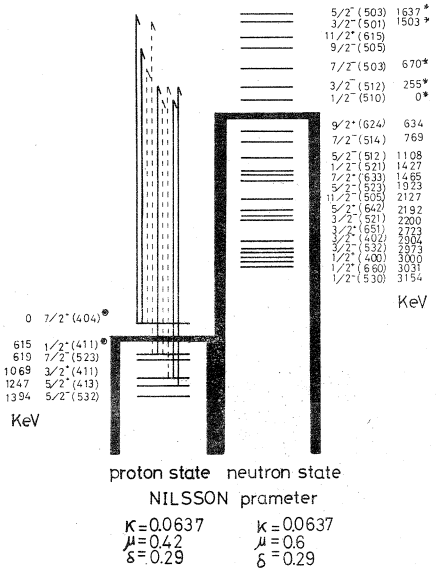


図4  $^{181}\text{Ta}$  の基底状態,  $T>$  - 巨大共鳴状態と陽子放出後の残留状態。

$^{181}\text{Ta}$  Level Scheme



\* F.A. Rieck, Jr and R.K. Sheline Phys. Rev. 170 (1968) 1157  
 © P. Alexander, H. Ryde and E. Seltzer Nucl. Phys. 76 (1966) 167

図5  $^{181}\text{Ta}$  に於ける陽子, 中性子の level diagram. 実線と破線は陽子 level から  $T>$  状態を作る様な  $E-1$  - 遷移を示す。又 level diagram 中の \* 印<sup>5)</sup>, © 印<sup>6)</sup> は実験値を示す。



$$I(E) \propto \sum_{\alpha sl} P_{\alpha sl}(E, Z, A) \cdot |C_{l\Delta\Sigma}^{\alpha s}|^2$$

与えられる。以上の仮定及び式より現在の  $T >$  - 巨大共鳴状態の各 configuration からの陽子放出では、崩壊チャンネルスピ、陽子の軌道角運動量及びエネルギーが決まるので penetrability を考慮すれば  $I(E)$  を計算することが出来る。

上にのべた計算結果と比較すべき  $I(E)$  の実験データは isocromate (図6の(I))の各クニックの大きさを求めることによって得られる。結果を図6の(II)に示す。

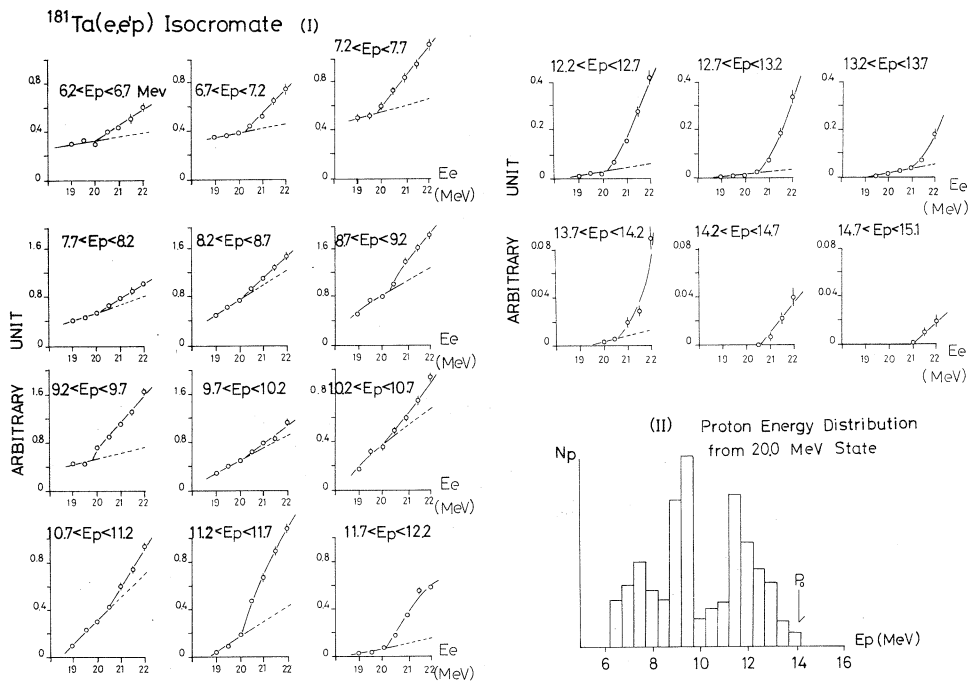


図6 (I) isocromate  
(II) isocromate の各クニックより求めた 20.0 MeV 状態からの陽子エネルギー分布

7 図は  $I(E)$  の実験及び計算結果の比較を表す。実際の計算では penetrability は main part である  $l = 0, 1, 2, 3$  の値<sup>7)</sup>を使った。

7 図から実験結果の大局的な形は  $P_0$  グループを除いて計算とよく一致していることがわかる、そして実験で得られた 3 つの陽子グループは、残留核を陽子  $p-h$ 、中性子  $p-h$ 、陽子-中性子  $p-h$  に残すものであるとすることが出来る。

7 図中の A, B, C 印はそれぞれの  $p-h$  状態の重心の位置を示す。しかし  $P_0$  グループの不一致

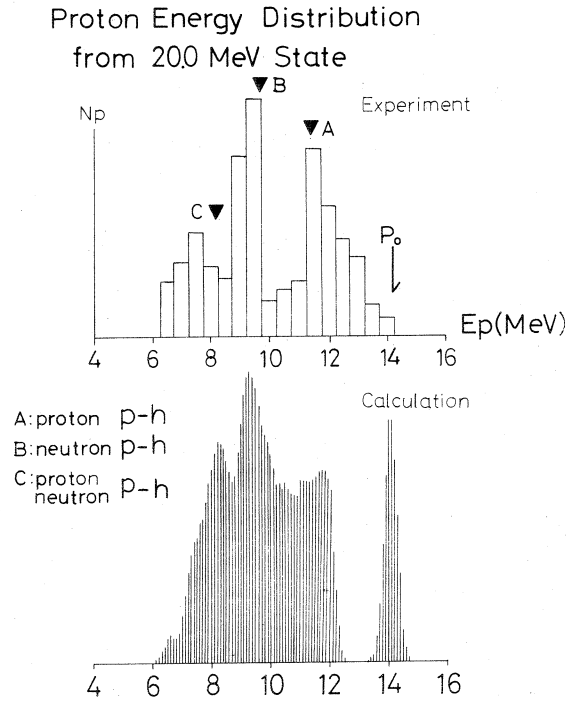


図7 20.0MeV状態からの陽子エネルギー分布の実験データと $T >$  巨大共鳴状態からの予想される陽子エネルギー分布の計算結果

は難しい問題であり、今の所明らかでない。(鈴木)

### 参 考 文 献

- 1) R. Ö. Akyüz and S. Fallieros, Phys. Rev. Letters. **27** (1971) 1016.
- 2) E. G. Fuller and M. S. Weiss, Phys. Rev. **112** (1958) 560.
- 3) S. G. Nilsson, Dan. Mat. Fys. Medd. **29** (1955) nr. 16.  
M. E. Bunker and C. W. Reich, Rev. Mod. Phys. **43**(1971) 348.
- 4) S. G. Nilsson and O. Prior, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. **32** No16(1961)
- 5) F. A. Rickey, Jr and R. K. Sheline, Phys. Rev. **170** (1968) 1157.
- 6) P. Alexander, H. Ryde and E. Seltzer, Nucl. Phys. **76** (1966) 167.
- 7) J. B. Marion and F. C. Young, *Nuclear Reaction Analysis Graphs and Tables*, (1968) North-Holland.

## $^{142}\text{Nd}(e, e'p)$ 反応

$\text{Nd}$  アイソトープの  $(e, e'p)$  反応について、励起エネルギーが  $22\text{MeV}$  までの断面積については既に報告したが<sup>1)</sup>、今回は  $^{142}\text{Nd}$  について励起エネルギーが  $26\text{MeV}$  までの yield curve をとり断面積を求めたのでその結果を報告する。

第1図は入射電子エネルギー  $E_0 = 22.5\text{MeV}$  で照射した時の  $^{142}\text{Nd}(e, e'p)$  の proton spectrum を示す。図では  $E_p = 10.0$  及び  $12.4\text{MeV}$  に sharp な proton group が見られ、これ等は励起エネルギーが  $17.3$  及び  $19.7$

$\text{MeV}$  の  $E1$  analogue resonance からの proton group と考えられる。

第2図は yield curve で入射電子エネルギーを  $15.8\text{MeV}$  から  $26\text{MeV}$  まで  $150\text{keV}$  の間隔で変え、各 run 毎に第1図に示した様な proton spectrum について、 $5.3\text{MeV}$  以上の proton を総和したものである。誤差は統計的なものだけを含み、 $16\text{MeV}$  で  $3\%$ 、 $26\text{MeV}$  で  $1\%$  である。図で明らかな様に  $20\text{MeV}$  及び  $22.5\text{MeV}$  に break が見られる。

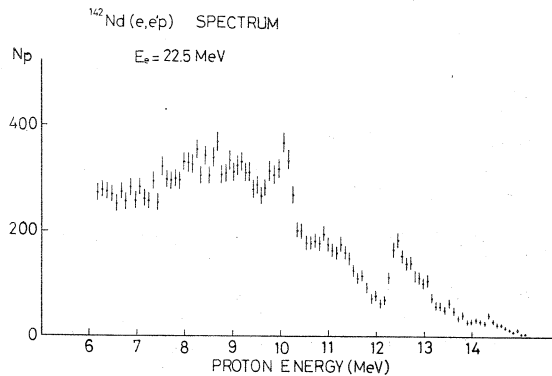
次にこの yield curve から virtual photon を仮定して、Cook の least structure method<sup>2)</sup> で求めた  $(\gamma, p)$  反応の断面積を第3図に示す。

図の中の十字の縦及び横はそれぞれ断面積及びエネルギーの誤差を示す。

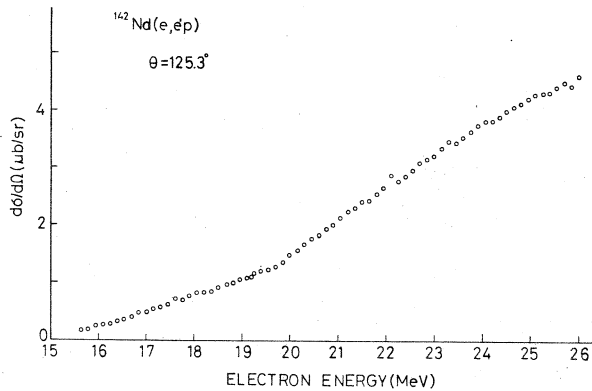
断面積で  $17.4\text{MeV}$  と  $20\text{MeV}$  の

resonance は第1図の proton spectrum に見られた二つの proton group に対応している。その他に  $16.5\text{MeV}$  と  $22.8\text{MeV}$  に resonance がある。

$^{142}\text{Nd}$  の親の核  $^{142}\text{Pr}$  で、 $1^-$  の準位が  $85\text{keV}$  に1つだけ実験的に見出されているが、これ



第1図



第2図

は $^{142}\text{Nd}$ の16.8MeVの励起準位に対応する。これと16.5MeVのresonanceとでは約300 keVのエネルギーの違いがあるが、 $(\gamma, p)$ の断面積には、この附近で約300 keVのエネルギーの誤差があるのでこのresonanceは $^{142}\text{Pr}$ で見つかっている $1^-$ の準位からのE1, IARの可能性はある。

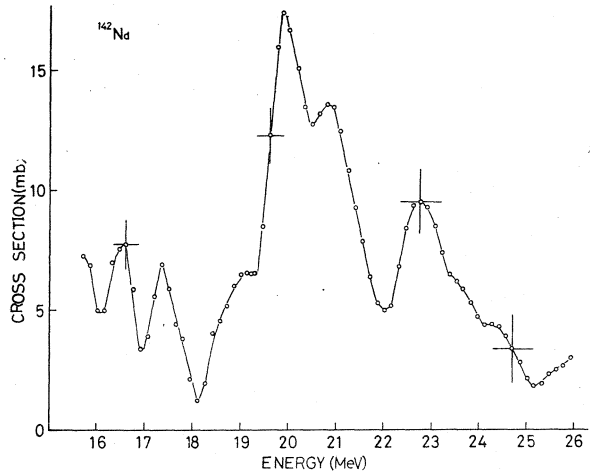
$^{142}\text{Nd}(e, e'p)^{141}\text{Pr}$ 反応で、残留核 $^{141}\text{Pr}$ の第1励起状態が145 keVと基底状態に接近して

いるが、第2励起状態は1.13MeVと離れているので、これを利用して $(\gamma, p_0 + p_1)$ の断面積を求めることができる。即ちproton spectrumを照射したvirtual photonのspectrumで割った時に、先端の1 MeVの部分は $(\gamma, p_0 + p_1)$ の断面積と見做せる。この様な手順を次々に行って求めた断面積を第4図の上に示す。第1図のproton spectrumに見られる二つのproton groupは $(\gamma, p_0 + p_1)$ の断面積に強く出ていることがわかる。中間の図は最近Hasinoff等<sup>3)</sup>によって行われた $^{142}\text{Nd}(\gamma, p_0)$ の逆反応 $^{141}\text{Pr}(p, \gamma_0)$ の結果で、我々が得た $(\gamma, p_0 + p_1)$ の結果と非常に良く一致している。下の図は $(\gamma, p)$ の断面積で、 $(\gamma, p_0)$ に対応するresonanceの他に22.8MeVに $(\gamma, p_0)$ に見られない大きいresonanceがある。このresonanceについては、今後調べる予定である。

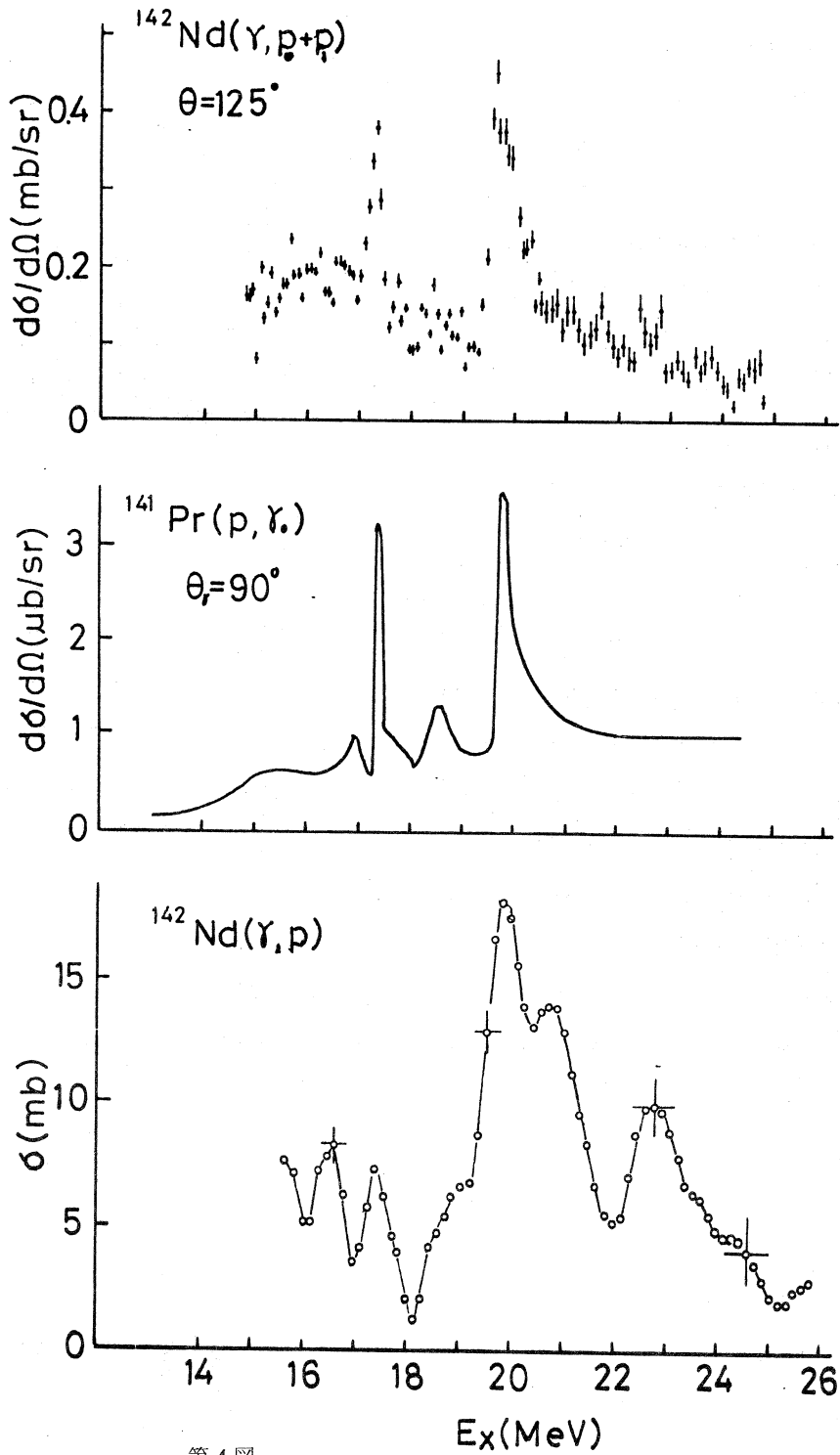
次に我々が求めた $(\gamma, p)$ の断面積をgiant resonanceのisospin splittingという立場から眺めてみる。Isospinが良い量子数であるとした場合に、 $T_<$ の状態からは $(\gamma, n)$ 、 $(\gamma, p)$ の両反応が可能であるが、 $T_>$ の状態からは $(\gamma, p)$ 反応のみが可能である。 $T_<$ からの $(\gamma, p)$ 反応は放出protonのエネルギーが低いため、Coulomb barrierの影響で押さえられるので、近似的に $T_<$ 、 $T_>$ 反応に対して $(\gamma, n)$ 、 $(\gamma, p)$ 反応が対応すると考えて差し支えない。

第5図に、Carlos等<sup>4)</sup>による単色 $\gamma$ 線で調べた $(\gamma, n)$ の断面積、今回実験で求めた $(\gamma, p)$ の断面積及び実験的にわかっているIARの位置を比較して示した。

Giant resonanceのisospin splittingに関して、Fallieros等<sup>5)</sup>は、 $T_<$ と $T_>$ とのdisplacement energy及びそれぞれのstrengthを理論的に導いた。 $^{142}\text{Nd}$ について計算すると



第3図  $^{142}\text{Nd}(\gamma, p)^{141}\text{Pr}$  cross section

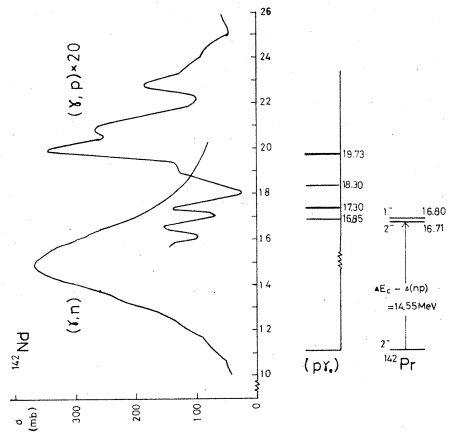


第 4 图

displacement energy は  $E_> - E_< = 5.1 \text{ MeV}$ , strength ratio は  $|C_>|^2 / |C_<|^2 = 2.3\%$  となる。

一方第5図に示した実験 data を使って求めると,  $E_> - E_< = (5.4 \pm 0.3) \text{ MeV}$ ,  $|C_>|^2 / |C_<|^2 = (2.6 \pm 0.6)\%$  となり, 今回の実験結果は isospin splitting theory で良く説明できる。

( 齊藤 )



第 5 図

## 参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告, Vol. 4 No. 1 ( 1971 ) 30.
- 2) B. C. Cook, Nucl. Instr. and Meth. **24** (1963) 256.
- 3) M. Hasinoff, G. A. Fisher, P. Kurjan and S. S. Hanna, Nucl. Phys. A **195** (1972) 78.
- 4) P. Carlos, H. Beil, R. Bergere, A. Lepretre and A. Veyssiere, Nucl. Phys. A **172** (1971) 437.
- 5) B. Goulard and S. Fallieros, Can. J. Phys. **45** (1967) 3221.  
R. Ö. Akyüz and S. Fallieros, Phys. Rev. Letters **27** (1971) 1061.

$^{209}\text{Bi}(e, e'p)$  反応

今期の machine time を使って  $\theta = 62^\circ$  における  $^{209}\text{Bi}(e, e'p)$  の cross section を測定し、これまでの data と合わせて  $^{209}\text{Bi}$  の  $g_{9/2}$  及び  $i_{11/2}$  IAS の  $\int \frac{d\sigma}{d\Omega}(\gamma, p) dE$  の角度分布を求めることを試みた。

$\theta = 62^\circ, 90^\circ, 125.3^\circ$  における  $^{209}\text{Bi}(e, e'p)$  cross section を Fig. 1 に示す。  $(e, e'p)$  cross section  $\sigma(e, e'p)$  は、  $(\gamma, p)$  の cross section  $\sigma(\gamma, p)$  と

$$\sigma(e, e'p)(E_e) = \int \sigma(\gamma, p)(E) N(E, E_e) dE \dots (1)$$

$N(E, E_e)$ : energy  $E_e$  の electron と等価な

virtual photon の spectrum<sup>1)</sup>

なる関係を持っており、  $\sigma(\gamma, p)$  は、

$$\begin{aligned} \sigma(\gamma, p)(E) &= C |A_J^{\text{IAS}} + \sum A_J^{\text{GD}}|^2 \dots (2) \\ &= C \{ |A_J^{\text{IAS}}|^2 + \sum |A_J^{\text{GD}}|^2 \\ &\quad + 2\text{Re}(A_J^{\text{IAS}} \cdot A_J^{\text{GD}*}) \} \\ &= \sigma_{(\gamma, p)}^{\text{IAS}}(E) + \sigma_{(\gamma, p)}^{\text{GD}}(E) + \sigma_{(\gamma, p)}^{\text{IF}}(E) \end{aligned} \dots (3)$$

と表わされる。ここに、  $C$  は kinematical constant で

$$A_J^{\text{IAS}} = i \frac{(\Gamma_\gamma^{\text{IAS}} \Gamma_p^{\text{IAS}})^{\frac{1}{2}} e^{i\phi_{\text{IAS}}}}{(E - E_{\text{IAS}}) + \frac{1}{2}i\Gamma^{\text{IAS}}} \dots (4)$$

$$A_J^{\text{GD}} = i \frac{(\Gamma_\gamma^{\text{GD}} \Gamma_p^{\text{GD}})^{\frac{1}{2}} e^{i\phi_{\text{GD}}}}{(E - E_{\text{GD}}) + \frac{1}{2}i\Gamma^{\text{GD}}} \dots (5)$$

である。従って (3) 式の各々の項は、

$$\sigma_{(\gamma, p)}^{\text{IAS}}(E) = C \frac{\Gamma_\gamma^{\text{IAS}} \Gamma_p^{\text{IAS}}}{(E - E_{\text{IAS}})^2 + \frac{1}{4}i\Gamma^{\text{IAS}2}} \dots (6)$$

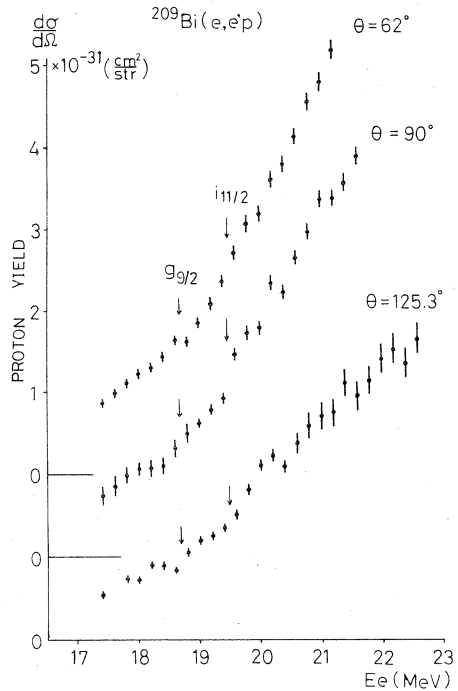


Fig. 1  $^{209}\text{Bi}(e, e'p)$  の cross section.

$$\sigma_{(\gamma, p)}^{\text{GD}}(E) = C \frac{\Gamma_{\gamma}^{\text{GD}} \Gamma_p^{\text{GD}}}{(E - E_{\text{GD}})^2 + \frac{1}{4} \Gamma^{\text{GD} 2}} \dots\dots\dots(7)$$

$$\sigma_{(\gamma, p)}^{\text{IF}}(E) = \sigma_{(\gamma, p)}^{\text{IAS}}(E) \left[ \frac{\sigma_{(\gamma, p)}^{\text{GD}}(E)}{\sigma_{(\gamma, p)}^{\text{IAS}}(E_{\text{IAS}})} \right]^{\frac{1}{2}} \frac{4}{\Gamma^{\text{IAS}}} \times [ (E - E_{\text{IAS}}) \sin(\phi_{\text{GD}} - \phi_{\text{IAS}}) + \frac{1}{2} \Gamma^{\text{IAS}} \cos(\phi_{\text{GD}} - \phi_{\text{IAS}}) ] \dots\dots\dots(8)$$

ここで  $\sigma_{(\gamma, p)}^{\text{GD}}(E)$  は IAS ( Isobaric Analoge State ) と同じ  $J^{\pi}$  を持つ GDR ( Giant Dipole Resonance ) の partial cross section である。  $\sigma_{(\gamma, p)}^{\text{IAS}}(E)$  と、  $\sigma_{(\gamma, p)}^{\text{IF}}(E)$  の第二項は、いずれも Lorentz shape を示し、その parameter は  $^{209}\text{Bi}$  の  $g_{9/2}$  IAS に対しては  $E_{\text{IAS}} = 18.7\text{MeV}$ 、  $i_{1/2}$  IAS に対しては  $E_{\text{IAS}} = 19.5\text{MeV}$  で、幅はいずれも  $\Gamma_{\text{IAS}} \approx 250\text{KeV}$  である。<sup>3)</sup>  $\sigma_{(\gamma, p)}^{\text{GD}}(E)$  も Lorentz shape を示すが、  $E_{\text{GD}} = 13.5\text{MeV}$ 、  $\Gamma_{\text{GD}} = 3.8\text{MeV}$  であって<sup>4)</sup>、  $E = E_{\text{IAS}}$  近傍ではかなりなだらかになっていると考えられる。

(  $\gamma, p$  ) cross section と (  $e, e'p$  ) cross section との関係を見るために、次のような例について計算を行なった。即ち (  $\gamma, p$  ) cross section が constant の場合、 Lorentz shape を示す場合、  $\sigma_{(\gamma, p)}^{\text{IF}}$  の第一項で示される anti-symmetric な場合、について図示すると Fig. 2 のようになる。実際には cross section が負になることはないから Fig. 2 の下段のような形は単独では存在しない。

(1)式は(6), (7), (8)を使って

$$\begin{aligned} \sigma_{(e, e'p)}(E_e) = & \int \sigma_{(\gamma, p)}^{\text{IAS}}(E) N(E, E_e) dE \\ & + \int \sigma_{(\gamma, p)}^{\text{GD}}(E) N(E, E_e) dE \\ & + \int \sigma_{(\gamma, p)}^{\text{IF}}(E) N(E, E_e) dE \dots\dots\dots(9) \end{aligned}$$

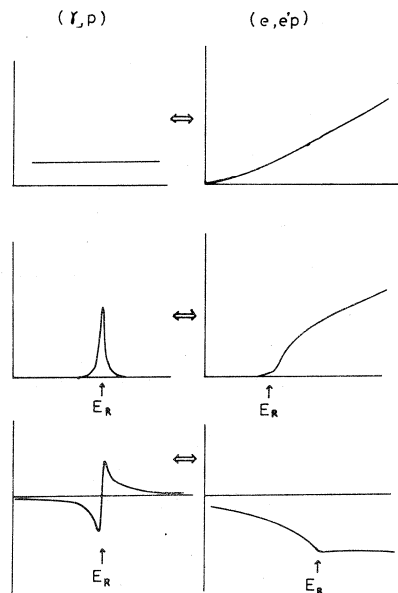


Fig. 2 仮想的な (  $\gamma, p$  ) cross section と、それに対応する (  $e, e'p$  ) cross section 。



と表わされる。  $E = E_{IAS}$  の近傍では(9)式の第一項及び第三項の形は定性的に Fig. 2 で示される。第二項は  $\sigma_{(\gamma p)}^{GD}(E)$  の low energy part の寄与が大きくこの部分の誤差による不定な要素を含んでいる。この項は  $E_e < E_{IAS}$  においては  $\sigma_{(e, e', p)}$  の main part であり、  $E_e > E_{IAS}$  では  $\sigma_{(e, e', p)}$  はこの part と  $\int \sigma_{(\gamma, p)}^{IAS}(E) dE$  を含む項との和で表わされ、これを正確に estimate することは非常に困難である。

そこで  $g_{9/2} - IAS$  の resonance の大きさを求めるに際しては、第一次近似として、

$E_e = E_{g_{9/2} IAS}$  の近傍で

$$\int \sigma_{(\gamma p)}^{GD}(E) N(E, E_e) dE + \int [\sigma_{(\gamma p)}^{IF}(E) \text{ の anti-symmetry part } ] N(E, E_e) dE \dots\dots\dots (10)$$

が  $E_e$  の一次関数であるという近似を用い

$$\sigma_{(e, e', p)}(E_e) = AE_e + B + \int \sigma_{(\gamma, p)}^{g_{9/2} IAS}(E) N(E, E_e) dE + \int [\sigma_{(\gamma, p)}^{IF}(E) \text{ の symmetry part } ] N(E, E_e) dE \dots\dots\dots (11)$$

$A, B$  : parameter

とおき、さらに  $\sigma_{(\gamma p)}^{IAS}$  及び  $\sigma_{(\gamma p)}^{IF}$  の幅が十分狭い ( $\sim 250 \text{ KeV}$ ) ことから

$$\sigma_{(e, e', p)}(E_e) = AE_e + B + N(E_{g_{9/2} IAS}, E_e) \times \int \sigma_{(\gamma p)}^{g_{9/2} Res}(E) dE \dots (12)$$

$$\sigma_{(\gamma p)}^{g_{9/2} Res}(E) = \sigma_{(\gamma, p)}^{g_{9/2} IAS}(E) + [\sigma_{(\gamma p)}^{IF}(E) \text{ の symmetry part } ]$$

と近似した。この(12)式を最小自乗法で data に fit し、  $\int \sigma_{(\gamma p)}^{g_{9/2} Res}(E) dE$  の値を求めた。この式は  $\sigma_{(e, e', p)}(E_e)$  に関するものであるが、 differential cross section  $\frac{d}{d\Omega} \sigma_{(e, e', p)}(E_e, \theta)$  の場合も全く同様にして求められる。

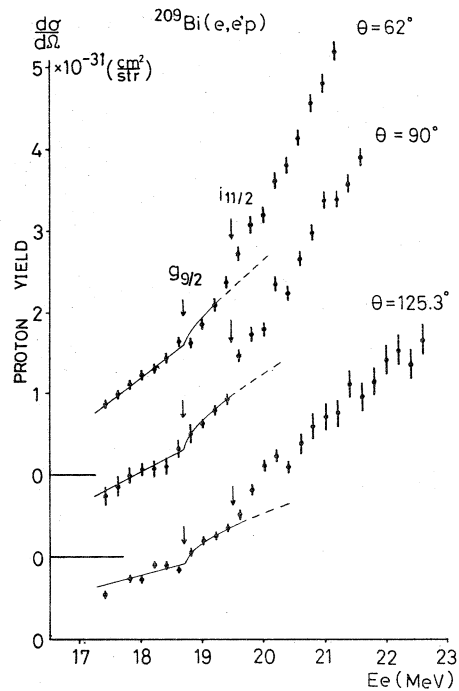


Fig. 3 Fig. 1 の data に (12) 式を fit したものの。

(10)式~(12)式に相当する differential cross section の式を用い、 $\int \frac{d}{d\Omega} \sigma_{(\gamma p)}^{g_{9/2} \text{Res}}(E, \theta) dE$  を求めた。その際に best fit させた曲線を各々の角度について Fig. 3 に示す。

同様の方法を  $i_{11/2}$ -IAS にも適用し、

$$-\frac{d}{d\Omega} \sigma_{(e, e' p)}(E_e, \theta) = AE_e + B + N(E g_{9/2} \text{IAS}, E_e) \int \frac{d}{d\Omega} \sigma_{(\gamma p)}^{g_{9/2} \text{Res}}(E, \theta) dE + N(E i_{11/2} \text{IAS}, E_e) \int \frac{d}{d\Omega} \sigma_{(\gamma p)}^{i_{11/2} \text{Res}}(E, \theta) dE \dots \dots \dots (13)$$

として  $\int \frac{d}{d\Omega} \sigma_{(\gamma p)}^{i_{11/2} \text{Res}}(E, \theta) dE$  の値を求めた。その際の fit した曲線を Fig. 4 に示す。

fit するのに使用した data は  $E_e \leq 20.4 \text{ MeV}$  の範囲である。

$\int \sigma_{(\gamma, p)}^{\text{Res}}(E) dE$  の中には IAS の part と interference の part が含まれている。

$$\int \sigma_{(\gamma, p)}^{\text{Res}}(E) dE = \int \sigma_{(\gamma, p)}^{\text{IAS}}(E) dE + \int [\sigma_{(\gamma p)}^{\text{IF}}(E) \text{ の symmetry part}] dE \dots \dots \dots (14)$$

(14) の第二項は(8)から

$$\int [\sigma_{(\gamma p)}^{\text{IF}}(E) \text{ の symmetry part}] dE = \int \sigma_{(\gamma p)}^{\text{IAS}}(E) \left[ \frac{\sigma_{J(\gamma, p)}^{\text{GD}}(E_{\text{IAS}})}{\sigma_{(\gamma p)}^{\text{IAS}}(E_{\text{IAS}})} \right]^{\frac{1}{2}} \times 2 \cos(\phi_{\text{GD}} - \phi_{\text{IAS}}) dE \dots \dots \dots (15)$$

従って

$$\int \sigma_{(\gamma p)}^{\text{Res}}(E) dE = \left[ 1 + 2 \left\{ \frac{\sigma_{J(\gamma p)}^{\text{GD}}(E_{\text{IAS}})}{\sigma_{(\gamma p)}^{\text{IAS}}(E_{\text{IAS}})} \right\}^{\frac{1}{2}} \cos(\phi_{\text{GD}} - \phi_{\text{IAS}}) \right] \times \int \sigma_{(\gamma p)}^{\text{IAS}}(E) dE \dots \dots \dots (16)$$

(6)を積分した式

$$\int \sigma_{(\gamma p)}^{\text{IAS}}(E) dE = \frac{1}{2} \pi \Gamma^{\text{IAS}} \sigma_{(\gamma p)}^{\text{IAS}}(E_{\text{IAS}}) \dots \dots \dots (17)$$

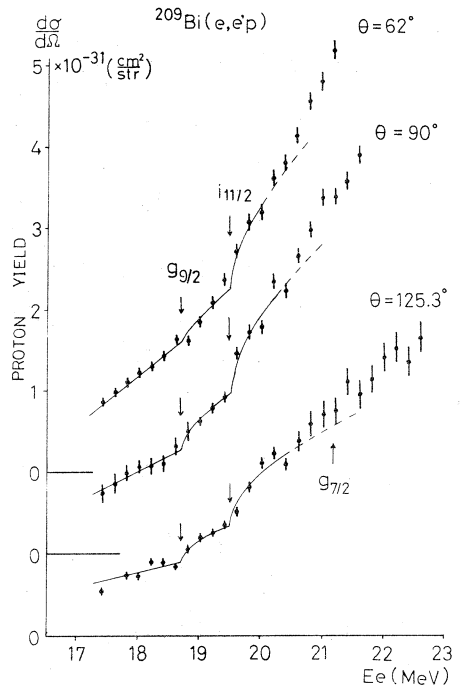


Fig.4 Fig.1 の data に (13) 式を fit したものの。

を使えば (16) は

$$\int \sigma_{(\gamma p)}^{\text{Res}}(E) dE = \left[ 1 + 2 \left\{ \frac{\frac{1}{2} \pi \Gamma^{\text{IAS}} \sigma_J^{\text{GD}}(\gamma p)(E_{\text{IAS}})}{\int \sigma_{(\gamma p)}^{\text{IAS}}(E) dE} \right\}^{\frac{1}{2}} \times \cos(\phi_{\text{GD}} - \phi_{\text{IAS}}) \right] \int \sigma_{(\gamma p)}^{\text{IAS}}(E) dE \quad \dots\dots\dots (18)$$

ここで

$$\eta = \frac{\frac{1}{2} \pi \Gamma^{\text{IAS}} \sigma_J^{\text{GD}}(\gamma p)(E_{\text{IAS}}) \cos^2(\phi_{\text{GD}} - \phi_{\text{IAS}})}{\int \sigma_{(\gamma p)}^{\text{Res}}(E) dE} \quad \dots\dots\dots (19)$$

$$R = \frac{\int \sigma_{(\gamma p)}^{\text{IAS}}(E) dE}{\int \sigma_{(\gamma p)}^{\text{Res}}(E) dE} \quad \dots\dots\dots (20)$$

とおくと (18) は

$$R + 2 \sqrt{\eta} \sqrt{R} - 1 = 0 \quad \dots\dots\dots (21)$$

$$R = 1 + 2 \eta \left[ 1 \pm \sqrt{1 + \frac{1}{\eta}} \right] \quad \dots\dots\dots (22)$$

となる。従って (19), (22) 式から  $R$  を計算すれば

$$\int \sigma_{(\gamma p)}^{\text{IAS}}(E) dE = R \int \sigma_{(\gamma p)}^{\text{Res}}(E) dE \quad \dots\dots\dots (23)$$

を求めることができる。  $\eta$  の計算に際しては、  $(\gamma, p)$  反応では  $E 1 - \text{transition}$  が main で

ground state  $h_{9/2}$  からは  $g_{9/2}, i_{11/2}, g_{7/2}$  state への transition のみが可能であると、

$J \pi = \frac{9}{2}^+, \frac{11}{2}^+$  に対する値を共に

$$\sigma_J^{\text{GD}}(\gamma p)(E_{\text{IAS}}) = \frac{1}{3} \sigma_{(\gamma p)}^{\text{GD}}(E_{\text{IAS}}) \quad \dots\dots\dots (24)$$

と近似した。

(10) 式を  $E_e$  の一次関数に近似して求めた  $\int \sigma_{(\gamma p)}^{\text{IAS}}(E) dE$  の値は、実際よりも大きい値を示すと考えられる。 Fig. 5 はその理由を定性的に示したものである。破線(a)は (10) 式の第一項が直線の場合の例を考えたもので、(10) 式はこれに Fig. 2 の下段の右のような形で表わされる第二項を加えたものであるから、結果は Fig. 5 の実線(b)で表わされる形になる。前述の解析にあたっては、これを Fig. 5 の点線(c)で示される様に一次関数で近似し、  $E_e < E_R$  の領域で

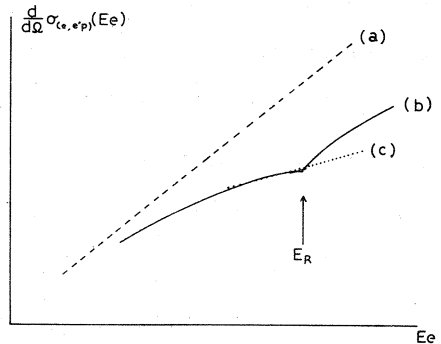


Fig. 5 破線(a)は (10) 式の第一項を仮りに直線で書いたもので、その場合 (10) 式は実線(b)のようになる。点線(c)は (b)を  $E_e$  の一次関数で近似したものである。

best fitを行なった。従って Fig. 5における  $E_R$  の位置での実線(b)の立ち上がりは  $\int \sigma_{(k,p)}^{IAS} dE$  の寄与に繰り込まれるので、 $\int \sigma_{(k,p)}^{IAS}(E) dE$  の結果は over estimate と考えられる。この誤差の estimation は非常に困難なため、これに対する補正は行なわなかった。(p, p') 等の実験結果<sup>3)</sup>によると anti - symmetry term によるこの誤差は非常に大きいとは思われない。

こうして各々の角度における  $\int \frac{d}{d\Omega} \sigma_{(k,p)}^{g_{9/2} IAS}(E, \theta) dE$  及び  $\int \frac{d}{d\Omega} \sigma_{(k,p)}^{i_{11/2} IAS}(E, \theta) dE$  を求め、それを角度分布として表わしたものが Fig.

6である。下段は  $E_e = 18.5 \text{ MeV}$

( $\langle E_{g_{9/2} IAS} \rangle$ ) における (12) 式の立体角微分形の値を、各々の角度について求め、角度分布として図示したもので、これは  $T_{<} \text{ part}$  と考えられる。

Fig. 6において、各々の角度分布をみると、 $i_{11/2} IAS$  及び  $g_{9/2} IAS$  ではほぼ  $90^\circ$  symmetry になっているのに対して、 $T_{<} \text{ part}$  では前方 peak になっていることがわかる。

又、 $E_e = 20.2 \text{ MeV}$  付近にあると考えられる  $g_{7/2} - IAS$  に関しても同様の目的で実験を行なったが、その附近に  $g_{7/2} - IAS$  による  $^{209}\text{Bi}(e, e'p)$  cross section の明確な立ち上がりを得るまでには至らなかった。この  $g_{7/2} - IAS$  の resonance に関して、paul<sup>4)</sup> は  $^{208}\text{Pb}(p, \gamma_0)$  の data を用いて  $g_{7/2} IAS$  の radiative width を計算しており、 $\Gamma_{\gamma}^{g_{7/2} IAS} \sim 15 \text{ eV}$  という結果を得ている。これは我々の  $^{209}\text{Bi}(e, e'p)$  の実験で求めた  $g_{9/2}$  及び  $i_{11/2}$  IAS の radiative width に比べて  $\frac{1}{5}$  から  $\frac{1}{10}$  の大きさであり、従って ( $e, e'p$ ) の立ち上がりもこの程度小さく、十分精度を上げて測定を行なわないかぎり ( $e, e'p$ ) の実験で  $g_{7/2} - IAS$  の resonance を見出すのは困難であると考えられる。

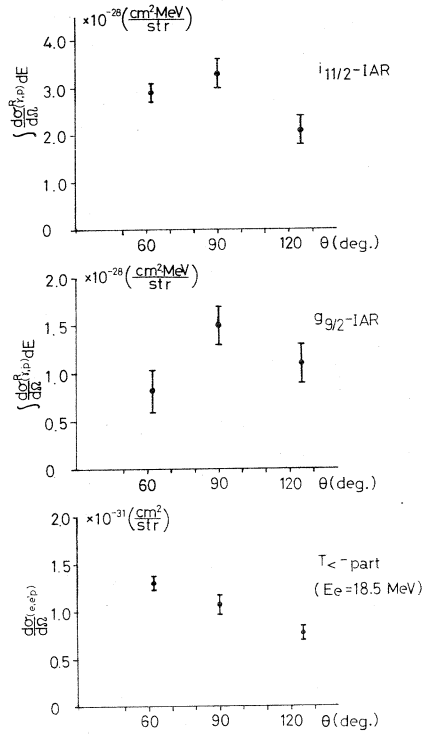


Fig. 6 上図：(12), (23)式によって求めた  $\int \frac{d}{d\Omega} \sigma_{(k,p)}^{i_{11/2} IAS}(E, \theta) dE$ 。中図：(13), (23)式によって求めた  $\int \frac{d}{d\Omega} \sigma_{(k,p)}^{g_{9/2} IAS}(E, \theta) dE$ 。下図： $E_e = 18.5 \text{ MeV}$  の electron による  $^{209}\text{Bi}(e, e'p)$  cross section の角分布で  $T_{<} \text{ part}$  を經由するものを表わす。

(上柿)

## 参 考 文 献

- 1) W. C. Barber , Phys. Rev. **111** (1958) 1642.
- 2) K. Shoda et al. , Phys. Rev. **3 C** ( 1971 ) 1999.
- 3) P. Richard et al. , Phys. Rev. **183** (1969) 1007.
- 4) R. R. Harvey et al. , Phys. Rev. **136** (1964) B 126.
- 5) P. Paul et al. , Phys. Letters **37 B** (1971) 29.

Ca 附近の ( $\gamma$ , p) 反応 (その 1)

Photoreaction としての Ca 附近の興味は二つある。一つは Closed Shell Nucleus に対する精密実験の一環としての  $^{40}\text{Ca}$  の Photoreaction であり他の一つは  $1f_{7/2}$  の neutron, proton の個数による G. D. R の Isospin Dependence を調べる事である。後者の意味で今回は  $^{44}\text{Ca}$ ,  $^{45}\text{Sc}$  の実験を行なった。Target はいずれも酸化物 ( $\text{CaO}$ ,  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ) を Ta foil 上に沈澱乾燥させて作製し、酸素による Spectrum を差引くための Ta 酸化物 ( $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ) Target も同様にして作った。矢印の位置は各々  $^{44}\text{Ca}$ ,  $^{45}\text{Sc}$  からの放出 proton Max Energy を示している。又  $^{45}\text{Sc}$  の場合は Free Hand で Smooth 化した結果を図にしてある。

$^{44}\text{Ca}$  と比較して  $^{45}\text{Sc}$  の場合 Residual Nucleus  $^{44}\text{Ca}$  を Low Lying State に残す割合が少ない。いずれの場合も測定を行なわなかった Low Energy proton 部分が無視できないので Yield Curve をとらずに ( $\gamma$ , p) Cross Section を求めた。 $^{44}\text{Ca}$  ( $\gamma$ , p) 反応の Residual Nucleus ( $^{43}\text{K}$ ) は First Excited State が 0.65 MeV, Second Excited State が 1.18 MeV であるが (First Excited State + Grand State) の意味での ( $\gamma$ , p) Cross Section を Fig. 1 の Proton Spectrum から求めた (Fig. 3)。

$^{45}\text{Sc}$  ( $\gamma$ , p) 反応の Residual Nucleus ( $^{44}\text{Ca}$ ) は First Excited State が 1.156 MeV と比較的離れているので純粹の ( $\gamma$ , p) Cross Section を求められる (Fig. 3)。

G. D. R を含むと思われる Excitation Energy が 15 ~ 23 MeV の範囲で  $^{44}\text{Ca}$  は  $\approx 1.4$  (mb · MeV / str),  $^{45}\text{Sc}$  は  $\approx 0.4$  (mb · MeV / str) の Total Differential Cross Section を持つ。尚  $^{40}\text{Ca}$  の

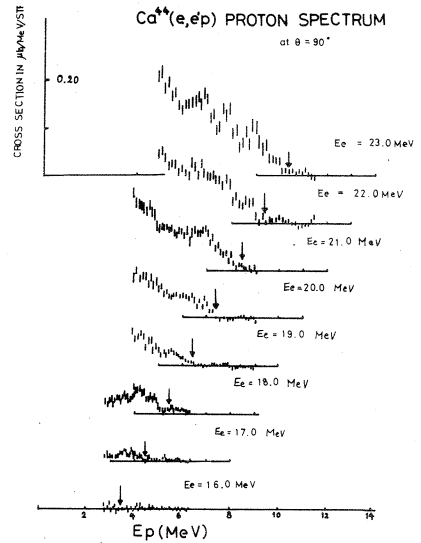


Fig. 1

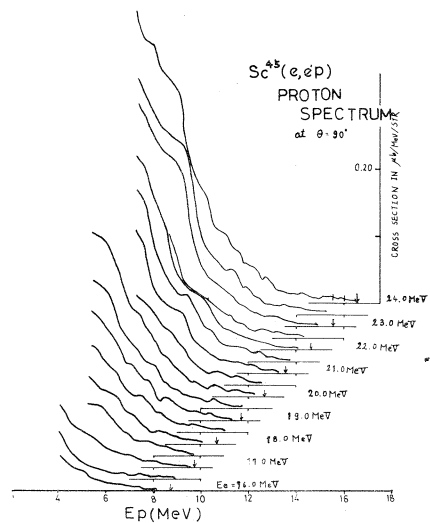


Fig. 2

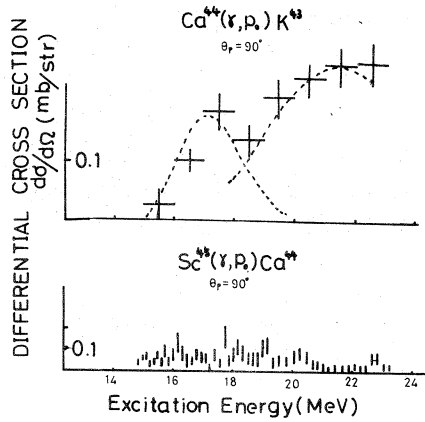


Fig. 3

	Ex (MeV)	$\sigma_r(\gamma, p)$ (mb/str)	% of $\sigma_r(\gamma, p)$ STRENGTH	$\Gamma$ (MeV)
$\text{Ca}^{40}$	$19.3 \pm 0.1$	$1.95 \pm 0.1$	100	$3.1 \pm 0.2$
$\text{Ca}^{42}$	$17.4 \pm 0.1$	$0.13 \pm 0.1$	13 ± 2	$3.3 \pm 0.5$
	$20.4 \pm 0.1$	$0.64 \pm 0.1$	87 ± 4	$4.4 \pm 0.1$
$\text{Ca}^{44}$	$17.0 \pm 0.5$	$0.17 \pm 0.05$	27 ± 5	$2.5 \pm 0.5$
	$22.0 \pm 0.9$	$0.25 \pm 0.05$	73 ± 10	$4.5 \pm 1.0$

Table 1

対応する値は $\sim 8.0$  (mb · MeV / str)である。<sup>1)</sup>

Ca Isotope の G. D. R の Structure を

I spin Splitting の現象として考えるため

の Parameter を Table. 1 において,  $^{40}\text{Ca}$

及び  $^{42}\text{Ca}$  の値と比較して示した。<sup>2)</sup> 又 G. D. R の Splitting を Deformation によるものとして考える事も可能であるので実験結果の解釈は精度が上がってから行ないたい。(及川)

### 参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 Vol. 5 No. 1 p 50.
- 2) E.M. Diener et al, Phys. Rev. C 7, 705 (1973)

I - 4  $U^{238}$ 高速中性子全断面積の測定

工学部原子核

馬場護・野本健二・神田一隆

百田光雄・平川直弘・三井鞆

前回<sup>1)</sup>に引き続き、 $U^{238}$ の高速中性子全断面積の測定を行い、他のデータや計算値と比較した。高精度の結果がえられ、recommended value が決定された。

## 実 験

実験方法は、120m flight path を用いた T-O-F で前回とほぼ同じである。前回の結果では、高エネルギー部 ( $E_n > 7 \text{ MeV}$ ) でバックグラウンドによると思われる不確かさがあったため、この点に関しての改良を行った。

1 つにはコリメーションの問題である。

川村氏らによって指適されている<sup>2)</sup>ように、T-O-F トンネルは、コリメーションが不十分であり、我々は新たに、40 m, 120 m, ステーションの2ヶ所に40 cm厚のコンクリート壁を設置し、\*flight tube 以外はほぼ完全にシールドした。他に $\gamma$ -flash による photomul の after pulse をおさえるために、gate をかけたこと、中性子束の monitoring はコリメータに入射する中性子束を  $BF_3$  カウンタ及び液体シンチレータで測定する方法に変更したことなどである。バックグラウンドは black resonance 法ではなく、中性子 beam を block することにより求めたが、シールド設置によると思われる低減がみられ、1%以下となった。多重散乱の影響は厚い sample (5 cm) を用いたにもかかわらず、 $10^{-4}$ 以下であり(計算による)、全く問題にならない。

## 結 果

得られた結果を他のデータとともに Fig. 1, 2 に示す。三本の曲線は Parker, Schmidt, ENDF/B-II による evaluation である。数多いデータのうち、Kopsch<sup>3)</sup> (Cyclotron T-O-F), Foster<sup>4)</sup> (V.d.G T-O-F) のデータが、実験方法の点からみて、信頼性が高く、evaluation の中では ENDF/B-II が最も新しい。他のデータおよび evaluation は問題が多い。

我々のデータは、Kopsch のデータと 1~2% で一致しており、Foster のデータ (バラツキが



大きい)の平均値との一致もよい。ENDF/B-IIに比して、5MeV以下で若干高めである。8MeV以上で、我々のデータとFosterのデータのくいちがいは大きい。このエネルギー領域では、我々の実験の場合、 $\gamma$ 線の混入が考えられ、従って断面積としては、over estimateの可能性があるので、現在それほどの信頼をおくことはできない。(川村氏らのデータ<sup>2)</sup>にも $\gamma$ 線のContamiがみられること、photomul gateにも関係しないことから考えると、 $\gamma$ 線によるものと考えるのが妥当であり、コリメーションに改良の余地がある。)

最近R. P. Iのデータが発表された。<sup>5)</sup> N. B. Sの同時期のデータともよく一致しているといわれる。これは、R. P. I lineacを用いてなされたものであるが、ENDF/B-IIに比べ1~5MeVの範囲で1~2%程度高めであり、この傾向おおよずれの大きさは、Kopsch及び我々の場合と一致する。これらは互いに独立な測定によるものであり、実験値の信頼性は極めて高いものと思われる。従って、現在recommended valueとしては、ENDF/B-IIの値を、1.5~5MeVの範囲で1~2%引き上げたものを用いるべきである。又Fosterのデータにみられるfluctuationは、統計によるaccidentalなものともみるのが妥当であろう。

Uのようなdeformed nucleusでは、sphericalなoptical modelを用いては、全断面積の実験値をほとんど再現できないことが知られている<sup>4)</sup>が、coupled channelの計算によっても事情はそれほど改善されない<sup>5)</sup>。この理由は明らかでなく、parametric surveyが必要と思われる。なお600KeV付近のintermediate structure<sup>3)</sup>に関しては、測定が不可能で、情報はえられなかった。

実験に際して、核理研小山田助教授、マシングループの方から多くの援助をいただきましたこと感謝します。

## 参 考 文 献

\*核理研共同利用費(47年度後期)による

- 1) 核理研報告, 5, No. 1, 66 ('72)
- 2) 同 上 4, No. 1, 48 ('71)
- 3) Nuclear Data for Reactors, (IAEA), Helsinki ('70)
- 4) Phys. Rev., C 3, No. 2, 576 ('71)
- 5) Nucl. Scien. Eng., 50, 243 ('73)

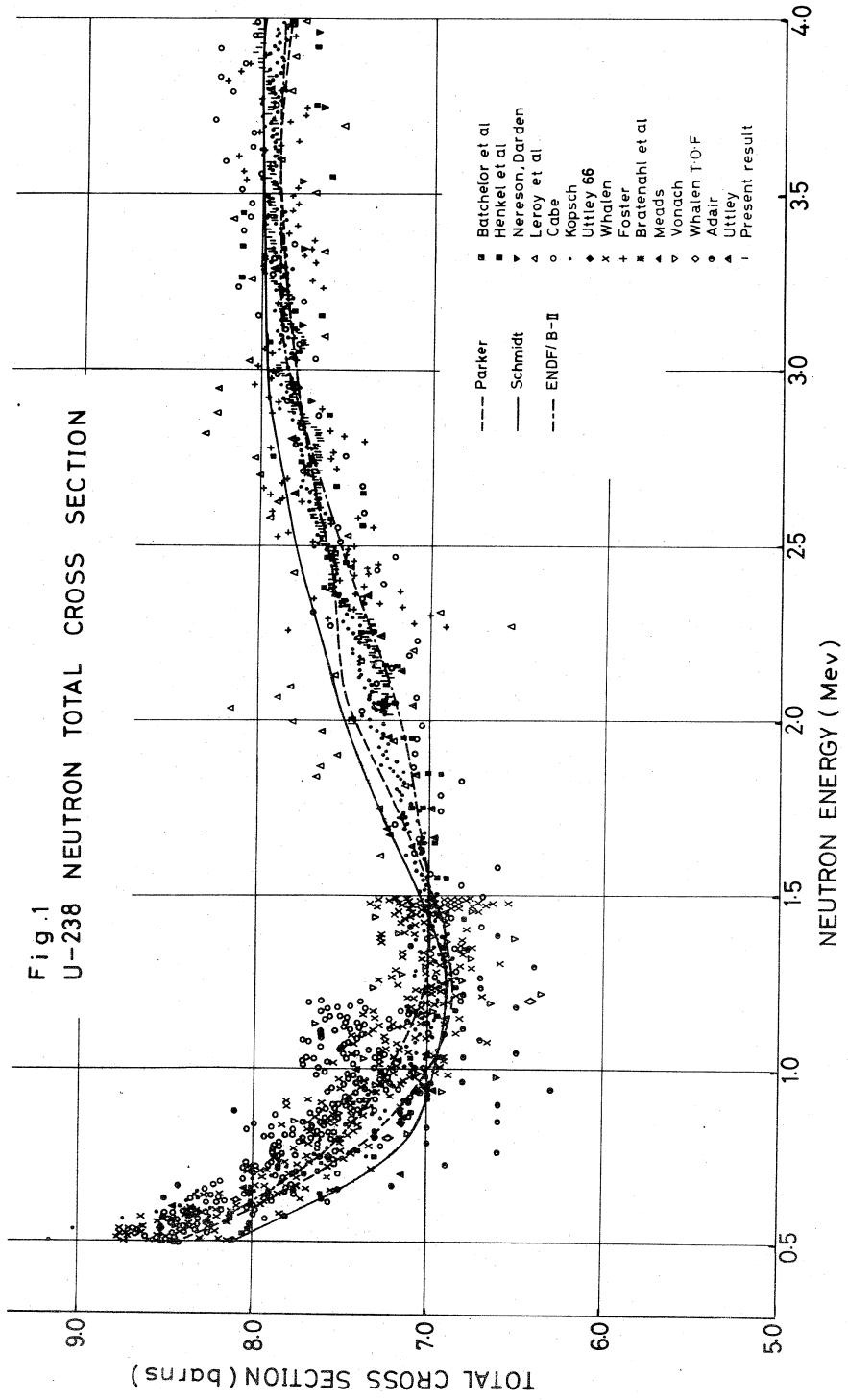


Fig. 1, Fig. 2 Total neutron cross section of U-238

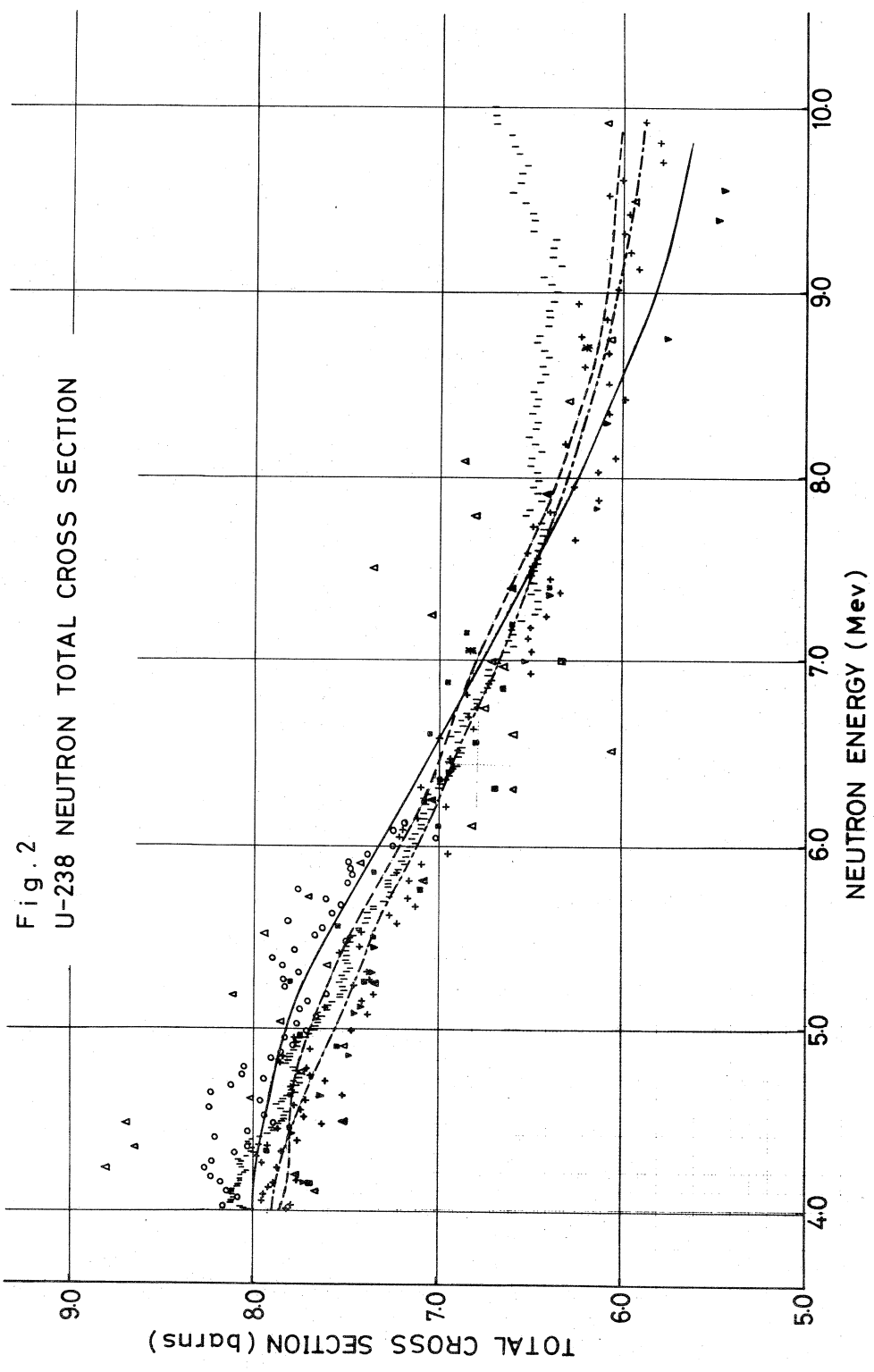


Fig. 2  
U-238 NEUTRON TOTAL CROSS SECTION

## I-5 $^{238}\text{U}$ の光核分裂に伴う遅発中性子 スペクトル測定 (I)

工学部原子核・岩崎 信, 若林利男<sup>\*</sup>  
 築 一正, 丸山仁嗣<sup>\*\*\*</sup>  
 佐野健一, 相山一典

### Measurement of Delayed Neutron Spectrum from Photofission of $^{238}\text{U}$ (I)

(Abstract) A measurement on delayed neutron spectrum of the second group ( $T_{1/2} = 22$  sec) from the photofission of  $^{238}\text{U}$  has been performed using Time-of-Flight technique between beta-particles and neutrons. The detector for the beta-particles was thin plastic scintillator and the detection system of the neutrons consisted of NE-213 liquid scintillator and the n-gamma discrimination circuit.

Preliminary result showed that the higher energy part ( $>300$  keV) of the delayed neutron spectrum was similar to the results obtained by several authors for the thermal fission of  $^{238}\text{U}$ .

### 1 序 論

核分裂に伴って放出される遅発中性子が原子炉の制御において重要な役割を果していることは、よく知られている。現在動力用として使われている熱中性子炉の動特性解析に必要な遅発中性子 parameter は、殆んど十分な精度で求められている。ところが近年、高速炉の開発が進むにつれて、 $^{235}\text{U}$ のみならず、 $^{238}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}$  等の高速炉燃料核種、増殖炉 blanket 核種についての遅発中性子 parameter の精度の向上が要求されるようになった。特に遅発中性子の energy spectrum は、熱中性子炉ではあまり問題にされなかったが、高速炉では重要な情報の一つであり、多

---

Shin Iwasaki, Toshio Wakabayashi, Kazumasa Yana, Hitoshi Maruyama,  
Kenichi Sano and Kazusuke Sugiyama

Department of Nuclear Engineering, Faculty of Engineering, Tohoku University

\* 現在、動力炉核燃料開発事業団

\*\* 現在、三菱重工業(神戸)

くの核分裂核種について精度よい data が要求されている。

遅発中性子 spectrum については、今まで1956年の Batchelor et. al.<sup>(1)</sup> の  $^3\text{He}$  計数管による測定 data がよく用いられてきた。近年、各国で研究が開始され  $^3\text{He}$  比例計数管<sup>(2)</sup> TOF 法<sup>(3),(4)</sup> 反跳陽子比例計数管<sup>(5)</sup>等による energy 分解能のよい data が報告されてきているが、それらの data 間でいくつかの相違点がみられ、いまだ信頼性のある spectrum が確立されていない。

我々は、比較的容易に energy 分解能を向上させることのできる TOF 法を用いた spectrum 測定 system を組み上げ、Linac を用いて  $^{238}\text{U}(r, f)$  の実験を行って、preliminary な結果を得たので報告する。今回の実験は、energy 分解能は犠牲にして、他の技術的問題点を明らかにする事を主眼としたものである。

## 2 実 験

遅発中性子放出の機構を Fig. 1 に示した。これからわかるように、中性子の放出に先行する  $\beta$  線と、中性子の検出信号を時間信号とすると、TOF 法により中性子 energy が測定できる。

$\beta$  線検出器としては、 $20\text{mm}\phi \times 1\text{mm}$  thick の plastic scintillator を用いた。この様に薄くしたのは、 $\gamma$  線に対する検出効率を下げる為 ( $< 1\%$ ) と、時間精度を向上させるためである。中性子検出器は  $5\text{in}\phi \times 1\text{in. thick}$  の液体有機 scintillator (NE213) が用いられた。

NE213 は、中性子検出効率が高く、中性子と  $\gamma$  線の弁別能力が優れており、圧倒的に多い background  $\gamma$  線の中で遅発中性子を測定するのに適している。中性子の飛行距離は、 $30\text{cm}$  とした。

Fig. 2 には、測定回路の block diagram を示してある。時間波高変換器 (T. A. C - I) への入力信号は、中性子 signal を start pulse とし、 $\beta$  線 signal を遅延 ( $160\text{ns}$ ) させて stop 信号に用いている。これは大部分が遅発中性子を伴わない  $\beta$  線 signal で T. A. C. を start させると偶然同時計数が多くなり、正常な測定ができなくなる事を避けるためである。

Fig. 2 の点線で囲まれた部分は、 $n - \gamma$  分離回路である。この原理は、scintillator 内での

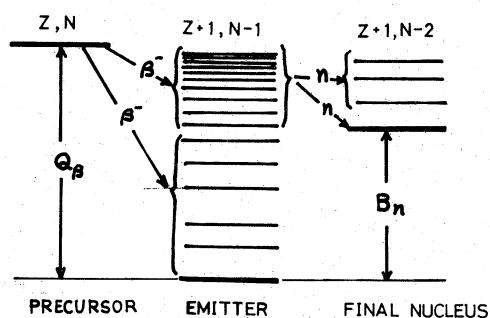


Fig. 1.

Schematic representation of delayed neutron emission:  $Q_\beta$  is the beta decay energy of the precursor and  $B_n$  is the neutron binding energy of the emitter.

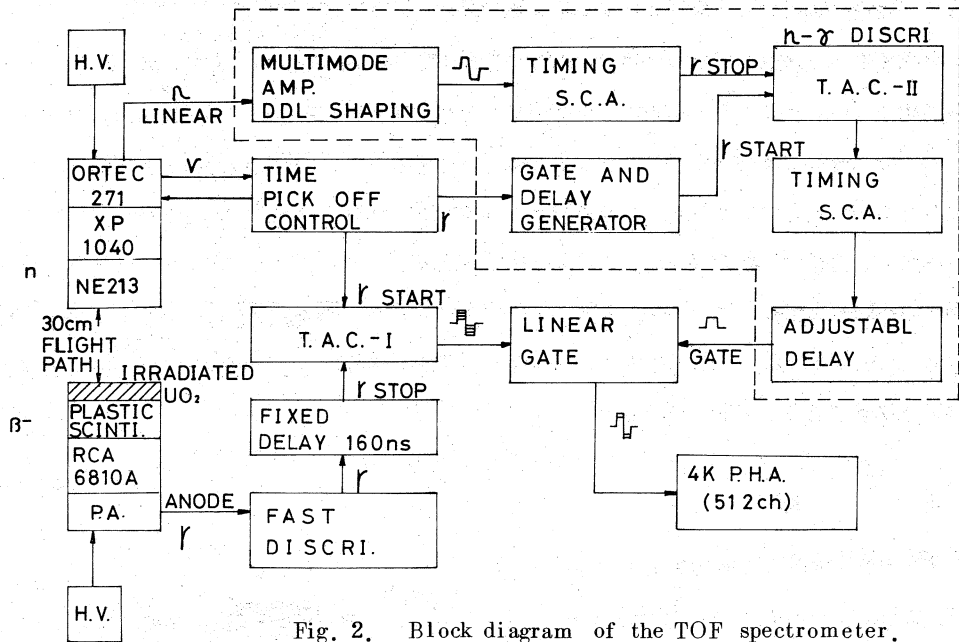


Fig. 2. Block diagram of the TOF spectrometer.

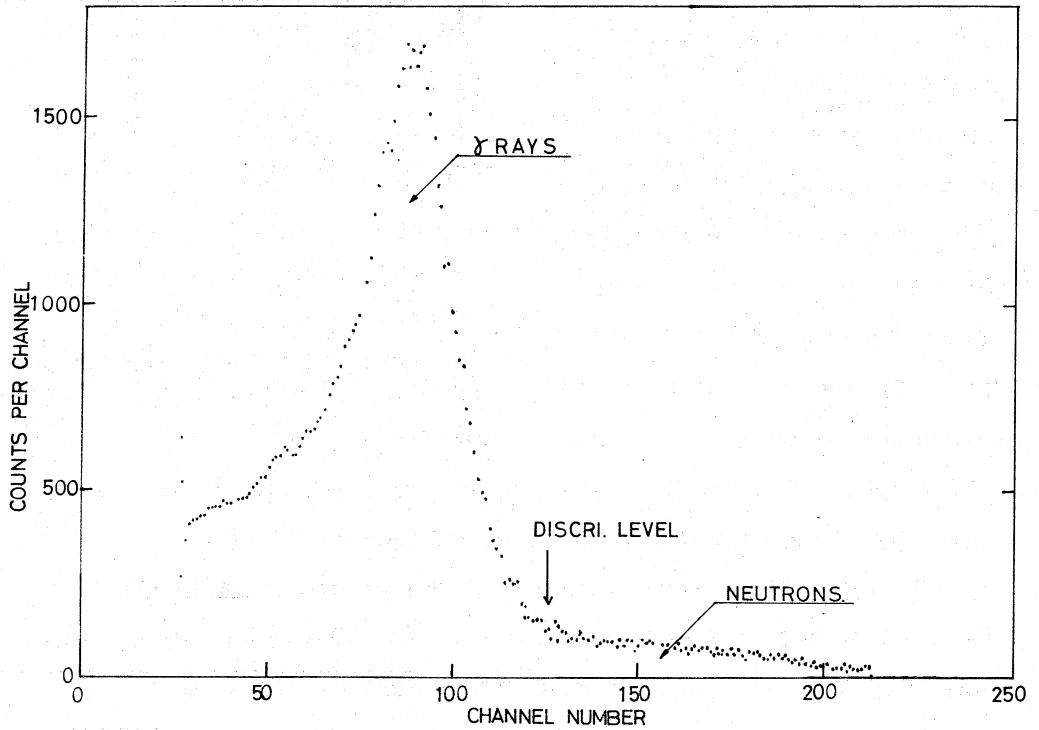


Fig. 3. n- $\gamma$  discrimination time spectrum obtained by T. A. C. - II (Fig. 2) for delayed neutrons and background  $\gamma$  rays.

$\gamma$  線 (変換電子) と中性子 (反跳陽子) による発光の減衰時間の差を, 二重微分 (D. D. L. clipping) 波形の zerocross 点の時間差で検出するものである。Fig. 3 には, 遅発中性子測定時の  $n-\gamma$  時間 spectrum を示す。中性子 energy が低いので分離の性能はあまりよくない。

照射試料は,  $UO_2$  (natural) 粉末 ( $\sim 50$  mg) をポリエチレン ( $3\mu$ ) に Al を  $3\mu$  の厚さに蒸着した foil にくるみ, 厚さ  $0.5$  mm の板状にしたものを用いた。試料の厚さは, 試料中での  $\beta$  線の吸収をできるだけ小さくする要求からきまってくる。

照射は, 核理研の気送管照射装置を用いて  $E_{\gamma\max} = 60$  MeV の制動輻射で行った。

60秒間照射し, 25秒間冷却した後 100秒間測定を 1 cycle としてくり返して data を集積した。今回は, 気送管の返送時間および遅発中性子の収量の関係から, 遅発中性子の第 2 group (半減期 22秒) に注目して, 照射および測定時間を設定した。

### 3 測定結果と検討

27回の照射-測定をくり返して得られた TAC (400 ns range) の生の時間 spectrum と,  $^{22}\text{Na}$  の消滅  $\gamma$  線と delay line を用いて測定した時間較正 spectrum を Fig. 4 に示した。

Fig. 4-A の 150 ~ 190 ch. にある山が, 遅発中性子によるものと思われる。200 ch. 付近の peak は,  $\beta-\gamma$  あるいは  $\gamma-\gamma$  の coincidence によるもので, Fig. 4-B と一致しており, 飛行時間 zero の基準となる。Fig. 4-A の B.G. level は, random coincidence によるものと考えられる。この事は 200 ch. 付近の peak よりも右側にも殆んど同じ高さで出てい

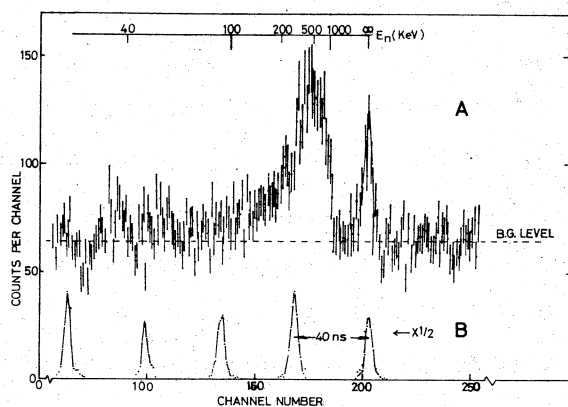


Fig. 4. A: Time of flight spectrum obtained by T.A.C.-I (Fig. 2)  
B: Time calibration spectrum for A using the delay line and the annihilation  $\gamma$  rays from  $^{22}\text{Na}$ .

る事からも明らかである。Fig. 4-B の各 peak の巾は (4ns) 測定 system の時間分解能を表わす。

Fig. 5 は, Fig. 4-A を中性子 energy spectrum (中性子数/単位 energy) に変換したものである。代表的な点に示してある横棒は, その点での energy 分解能を示す。この spectrum は中性子検出器の全検出効率で補正してあるが, 中性子弁別回路等の discrimination により 200

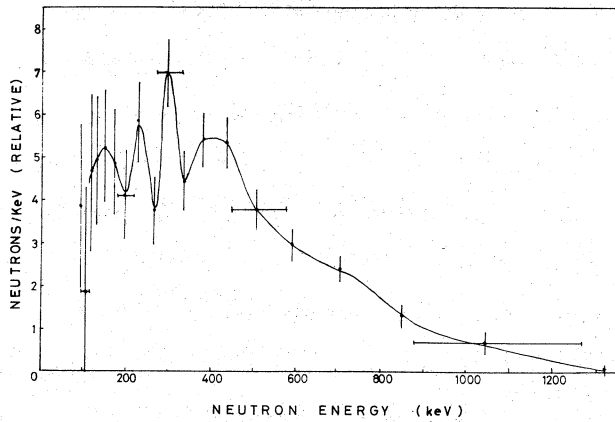


Fig. 5. Delayed neutron energy spectrum of the second group ( $T_{1/2} = 22$  sec) from photofission of  $^{238}\text{U}$ .

keV以下では実際の検出効率が全検出効率より小さくなっていると考えられるが、ここでは無視している。

Fig.5をみると、いくつかの peak や山がみられる。全体的傾向は Batchelor et al <sup>(1)</sup> や最近報告された  $^{235}\text{U}$  の thermal neutron fission についての data <sup>(2),(5)</sup> と特に 300 keV 以上で似ている。300 keV 以下の sharp な peak については、分解能のよい結果 <sup>(2),(5)</sup> にもみられる事で、遅発中性子放出核の励起状態が中性

子結合 energy 以上の連続的準位密度領域にもかかわらず、spin, parity の選択則が効いているためと思われる。

Fig.5の結果のみから、delayed neutron の energy spectrum の詳細について議論をすすめることは避けたい。更に中性子計数量を増やし、統計誤差を小さくする必要がある。そのために beam 強度又は試料の量を増加させることは、今のところ得策ではない。これらを行う事によって、中性子収量は増加するが fission product からの  $\beta$  ray や  $\gamma$  ray も増加し、 $\beta$  ray 検出器が overload になると共に accidental background が増加する事になる。結局、照射測定回数回数を積み重ねる以外に方法はない。energy 分解能も、flight path を 1 m 程度にする事によって、かなり改善が見込まれる。しかし、この事は必然的に data の統計量を少なくする事につながる。従って、中性子検出器の大型化等の方策もあわせて考える必要がある。今回の実験で細かい点を除いて、instrumental な問題は見通しがついたので、今後、統計量が充分であるような data を得る事を目的として、実験を行いたいと考えている。

この実験にあたって、核理研の八木助教授、近藤助手に大変お世話をいただき、深く感謝致します。machine group の方々の御努力にも心から謝意を表します。



## REFERENCES

- 1) R. Batchelor and H.R. McK. Hyder : J.Nucl. Energy **3**, (1956) 7.
- 2) S. Shalev and J. Cuttler : Trans. Am. Nucl. Soc., **14**, (1971) 373.  
S. Shalev and G. Rudstam : Ibid and Phys. Rev. Letters **28**, (1972) 687.
- 3) N. G. Chrysochoides, A. J. Nicolitsas, N. N. Papadopoulos, C. C. Zikides and C. A. Mitsonias : *IAEA Panel on Delayed Neutrons*, p. 224 IAEA (1968).  
N. G. Chrysochoides, J. N. Anoussis, C. A. Mitsonias and D. C. Perricos :  
J. Nucl. Energy **25**, (1971) 551.
- 4) E. T. Chulick, P. L. Reeder, C. E. Bemis and E. Eichler : Nucl. Phys. **A168**,  
(1971) 250.
- 5) W. R. Sloan and G. L. Woodruff : Trans. Am. Nucl. Soc., **15**, (1972) 942.

## I-6 $r-r$ 角相関で見た $^{156}_{64}\text{Gd}_{92}$ の low-lying state

理学部物理 林部昭吾, 山家 優, 大島真澄  
高橋文穂, 清水康夫, 石松敏之

$^{156}\text{Tb}_{91}$  ( $3^-, T_{1/2} = 5.4$  days) の EC 崩壊を利用して  $^{156}_{64}\text{Gd}_{92}$  の low lying state を  $r-r$  角相関で調べた。movable NaI(Tl)-fixed Ge(Li) detector system による  $4_g^+ - 2_g^+$  (0.199 MeV) gate での 8 つの transition について報告する。なお線源は natural abundance 100%  $^{159}\text{Tb}$  を  $E_{r_{\max}} = 35$  MeV の  $r$  線で照射し ( $r, 3n$ ) 反応によって生成した。

### §1 緒 言

$^{156}\text{Gd}$  は中性子数 92 で球形核から変形核へと変わる transition region にあり, その中でも変形核への入口とも言える。そのため, band 構造上興味あるこの核は様々な人によって, 特に spectroscopy を通して調べられている。 $^{156}\text{Tb}$  ( $3^-, T_{1/2} = 5.4$  days) からの崩壊を利用して,<sup>(1)-(8)</sup> あるいは  $^{156}\text{Eu}$  ( $0^+, T_{1/2} = 15$  days) からの  $\beta^-$  decay からでも知ることができる。<sup>(9)-(11)</sup> Fujioka は  $^{159}\text{Tb}$  からの崩壊で iron free  $\pi\sqrt{2}$  spectro meter を使い conversion electron の測定を行ない,<sup>(2),(3)</sup> 精度よい decay scheme の決定をし, また conversion 係数から transition multipolarity の mixing を出している。これを角相関の結果と比較することは興味深いものがある。 $^{156}\text{Eu}$  からの崩壊を利用した J. H. Hamilton et al. の角相関の実験があるが,<sup>(10)</sup> 親の核が  $0^+$  のため主に low spin state からの transition についてしか情報は得られない。その他  $^{155}\text{Gd}(n, r)$  の測定,<sup>(12)</sup> また level の life 測定<sup>(13)-(15)</sup> Coulomb excitation<sup>(16)</sup> や Gd isotope の ( $p, t$ )<sup>(17)</sup>, ( $d, d'$ )<sup>(18)</sup> などもある。Level scheme は基本的には確立されていると言ってよい。 $\beta$ -band,  $r$ -band からの branching ratio から transition の全てが E2 であるとして, B(E2) の比を求めても, Alaga Rule からのずれがみられる。Band mixing を perturbation で取扱おうとするこの辺の核での試みがあるが, consistent な結果が得られているとは言い難い。また  $\Delta I=0, \Delta I=1$  の transition で M1 が混じっていないとする根拠は何もない。 $^{154}\text{Gd}$ ,  $^{152}\text{Sm}$  では角相関から M1 の大きさを求めているが今までの band mixing の議論をくつ返す程の値ではない。<sup>(19),(20)</sup>  $^{156}\text{Gd}$  についてたとえそうだとすると, 実験的に M1 の有限の存在を確かめておくことは変形核での M1 transition がどういう interaction から出てくるのかを知るため

にも必要であると思われる。

## § 2 実 験

$^{156}\text{Tb}$  の線源は次のようにして作った。Natural abundance 100%  $^{159}\text{Tb}$  で purity 99.9% の  $\text{Gd}_4\text{O}_7$  の粉末を, electron linac からの bremsstrahlung  $r$  線  $E_{r_{\max}}=35$  MeV で照射し,  $^{159}\text{Tb}(\gamma, 3n)^{156}\text{Tb}$  反応で作った。Continuous な  $r$  線であるから  $(\gamma, n)$ ,  $(\gamma, 2n)$  反応も可能である。 $^{158}\text{Tb}$  は半減期  $1.2 \times 10^3$  years で殆ど邪魔にならず,  $^{157}\text{Tb}$  は半減期 150 years であるが  $Q_{\text{ec}}=0.06$  MeV で  $^{157}\text{Gd}$  の ground state へしか落ちない。そのほか短半減期 impurity の decay を待つため及び  $^{156}\text{Tb}$  の isomer ( $0^+$ ,  $T_{1/2}=5.5$  hours) の decay の影響を除くため丸一日放置してから測定している。線源は, 一度熱硝酸で溶解し, 直径 3 mm 前後の アクリル樹脂でできた sample holder に密封した。

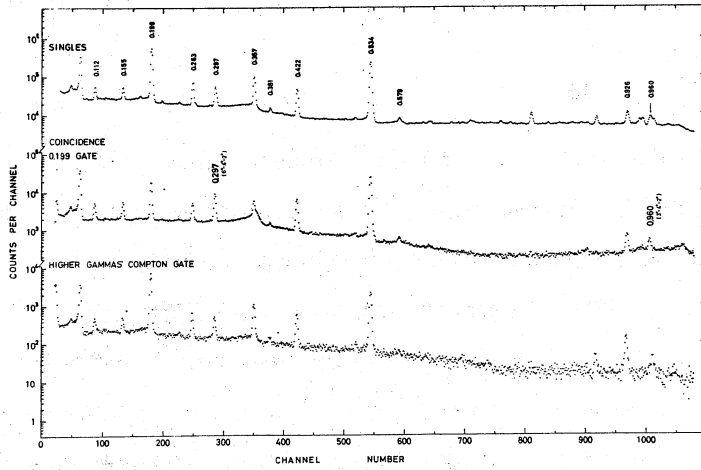
ORTEC 製同軸型  $\text{Ge(Li)}-34\text{cc} - 3''\phi \times 3''$  NaI(Tl) counter system を使用した。線源からの距離は, Ge(Li) 側 5 cm, NaI(Tl) 側 11.5 cm である。検出器の前面は鉛の cone で shield してある。まず測定に先立ち,  $^{22}\text{Na}$  の  $\beta^+$  annihilation  $\gamma$  0.511 MeV で二つの検出器の  $180^\circ$  方向を決定し, それを基準にして  $90^\circ \sim 270^\circ$ ,  $22.5^\circ$  おき 9 点で測定した。Systematic な誤差をなくするために  $180^\circ$  を境にして足し合わせ解析は 5 点で行なっている。同時計数の回路系として, fast coincidence は TAC で行なったが, その分解時間は  $2\tau \approx 100$  nsec で使用した。NaI 側からの energy select として  $4s^+ - 2s^+$  (0.199 MeV) photo-peak 及びその background となっている Compton 成分差引きのための higher Compton の二つを選んでいる。4096 ch P. H. A. を 2048 ch  $\times 2$  で使用し, 各 gate に対する coincidence 測定をした。そこで得られた spectrum を図 1, 図 2 に示す。Coincidence の geometry は  $180^\circ$  である。

Finite solid angle による attenuation factor  $Q_2, Q_4$  を実際に測定して決めた。図 3 に示すように線源から検出器を臨む角度を対称軸から測って  $\beta$  とすると,

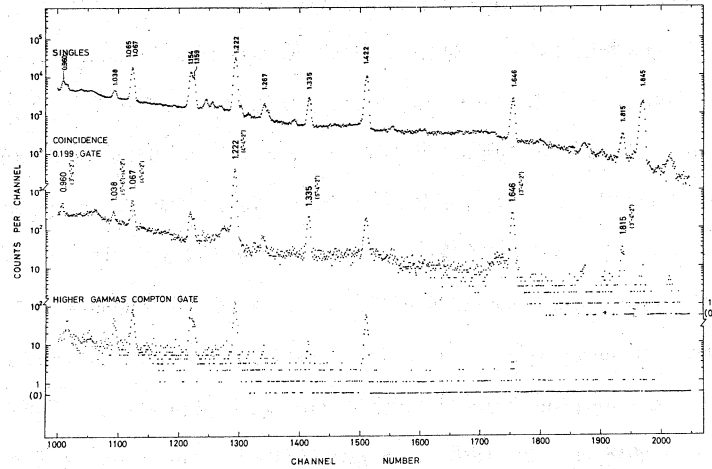
$$Q_k = \frac{\int_0^\theta P_k(\cos\beta) \varepsilon(\beta) \sin\beta d\beta}{\int_0^\theta \varepsilon(\beta) \sin\beta d\beta} \quad k=2, 4$$

で与えられる。 $\varepsilon(\beta)$  は角度  $\beta$  での検出器の efficiency で, 積分は検出器を臨む立体角を cover するような角度まで行なう。

標準線源として  $^{203}\text{Hg}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$  を使った。Differential efficiency  $\varepsilon(\beta)d\beta$



☒ 1



Ge 側は 2 点目を, NaI 側は 1 点目を 1 に normalize してある。Ge の内側で下がるのは主には P 層の影響によるものと思うが線源の finite size による効果も否定できない。一般的傾向として energy の低いものほど吸収係数は大きいため外側に拡がる。Attenuation factor  $Q_2$ ,  $Q_4$  は図 5 に示す。ところで最初  $180^\circ$  決向決定のため  $\beta^+$  annihilation  $\gamma$  を使って角相関を行なうわけだが, 0.511 MeV 1 点についてはあるがこれから attenuation factor についての情報が得られ,  $Q_2$  については誤差の範囲で一致したが,  $Q_4$  については多少の差がありあいまいさを残した。

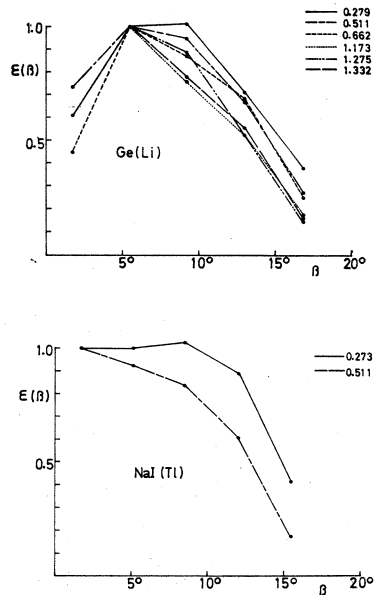


図 4

検出器の differential efficiency。上が Ge(Li) で二点目を 1 に normalize してある。下が NaI(Tl) で一点目を 1 に normalize した。

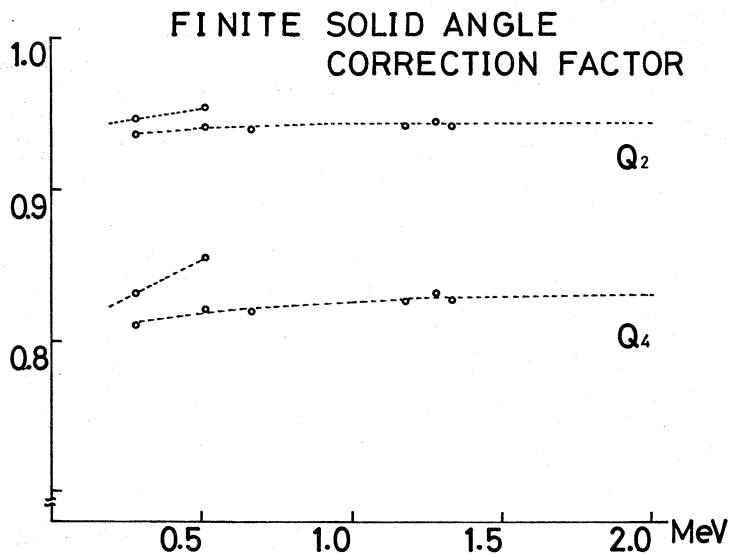


図 5

Finite solid angle による attenuation factor。 $Q_2$  を上に,  $Q_4$  を下に示す。NaI(Tl) については二点, Ge(Li) については六点の測定がなされた。

§ 3 結 果

$^{156}\text{Tb}$  ( $3^-$ ,  $T_{1/2} = 5.4$  days) からの EC 崩壊による level scheme は以前報告されているものと矛盾なく組み立てられた。

Ground band  $4^+ - 2^+$  0.199 MeV pure E 2 を gate にして得られた代表的な角分布を図 7 に示す。Total で測定時間は 1 角度あたり 150000 ~ 180000 秒である。Accidental coincidence, 及び higher Compton との coincidence を差引いている。Gate の数で normalize することにより崩壊の補正も行なっている。

Attenuation factor として

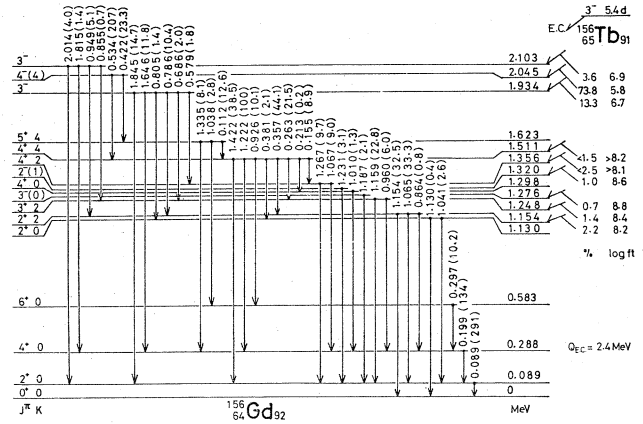


図 6

$^{156}\text{Tb}$  ( $3^-$ , 5.4 days) からの EC 崩壊による  $^{156}\text{Gd}$  の level scheme。

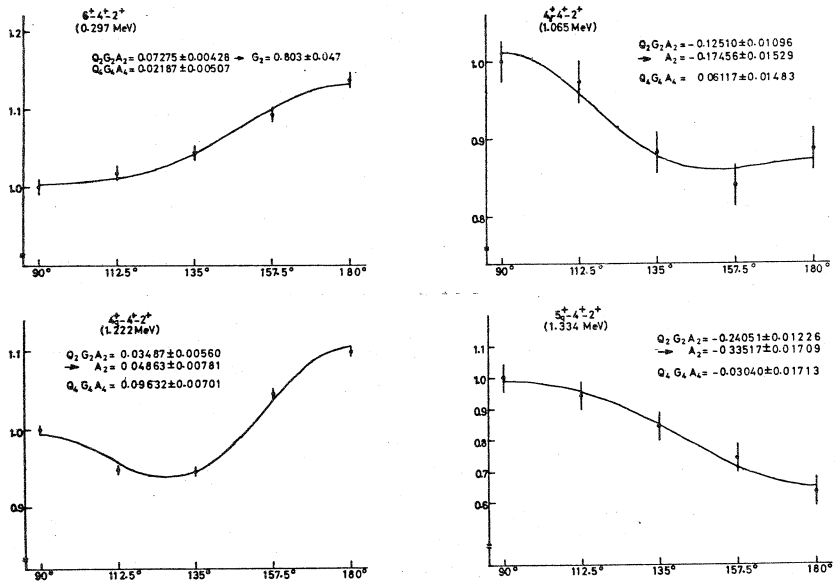


図 7  $4g^+ - 2g^+$  (0.199 MeV) gate による角相関。Accidental coincidence 及び higher Compton との coincidence を差引き, gate で normalize して崩壊の補正を行なっている。

は finite solid angle によるもののほかに、核外場の perturbation によるそれもある。その factor  $G_2$ ,  $G_4$  については  $6^+-4^+-2^+$  cascade E 2 transition の角分布を計算値と比較して求める。計算値  $A_2 = 0.10201$ ,  $A_4 = 0.00907$  から  $G_2 = 0.803 \pm 0.047$  が得られたが、 $G_4$  については  $A_4$  が小さすぎるためこの cascade では不可能である。よって解析は  $A_4$  の助けを借りながらも主には  $A_2$  の情報から  $\delta$  を決定した。図 7 の角分布から  $A_2$  を求め  $\delta$  を出したのが図 8 である。

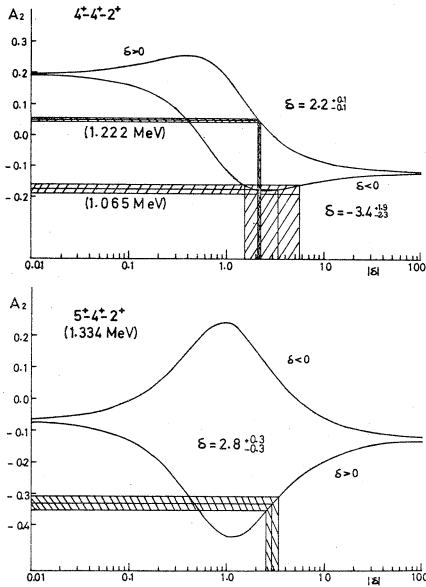


図 8  $4^+-4^+-2^+$  及び  $5^+-4^+-2^+$  cascade の場合の  $A_2$  と  $\delta$  の関係。

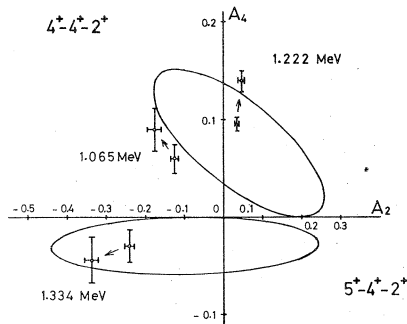


図 9  $4^+-4^+-2^+$  及び  $5^+-4^+-2^+$  cascade の場合の  $\delta$  を parameter とした時の  $A_2$  と  $A_4$  の関係。矢印は attenuation factor ( $G_4$  を除く) の補正の前後を示す。

ある。 $A_2$  だけからでは  $\delta$  は二つ可能だが、図 9 からわかるように  $A_4$  の助けを借りるならば、unique に  $\delta$  は決定できる。但し、図 9 では、estimate できなかった  $G_4$  による補正はしていない。

$\gamma$ -band ( $K^\pi = 2^+$ )

$3\gamma^+-4_g^+$  (0.960 MeV)

$$Q_2 G_2 A_2 = 0.028 \pm 0.039 \rightarrow A_2 = 0.039 \pm 0.054$$

$$Q_4 G_4 A_4 = -0.058 \pm 0.045 \rightarrow G_4 A_4 = -0.085 \pm 0.066$$

$$|\delta| \geq 25$$

$4\gamma^+-4_g^+$  (1.067 MeV)

$$Q_2 G_2 A_2 = -0.125 \pm 0.011 \rightarrow A_2 = -0.175 \pm 0.015$$

$$Q_4 G_4 A_4 = 0.061 \pm 0.015 \rightarrow G_4 A_4 = 0.090 \pm 0.022$$

$$\delta = -3.4 + 1.9$$

$$-2.3$$

表 1 には J. H. Hamilton et al. の  $2_g^+-0_g^+$  gate での  $2\gamma^+-2_g^+$  の結果も参考に上げておく。<sup>(10)</sup>

但し  $\delta$  の phase conversion は我々のものに統一してある。D. R. Bès et al. の Coriolis interaction を考慮した計算があつて<sup>(21)</sup> そこで M1 の mixing を予言しているので参考に掲げておく。

q. p.-band ( $K^\pi = 4^+$ )

$4_q^+-4_g^+$  (1.222 MeV)

$$G_2 Q_2 A_2 = 0.035 \pm 0.006 \rightarrow A_2 = 0.049 \pm 0.008$$

$$G_4 Q_4 A_4 = 0.096 \pm 0.007 \rightarrow G_4 A_4 = 0.141 \pm 0.010$$

$$\delta = 2.2 \pm 0.1$$

Fujioka の conversion electron の測定では<sup>(3)</sup>quadrupole content =  $0.658 \pm 0.078$  と報告されているが, conversion 係数の比  $L_1/L_2$ ,  $L_1/L_3$ ,  $L_2/L_3$  がばらついており  $L_2/L_3$  の値から計算している。今回の角相関では統計誤差が小さいこと, 最小二乗法による best fit に実験点のばらつきが殆どないことから精度よく  $\delta$  の値が求められたと思われる。また McMillan は Fujioka の前に K conversion 係数から M1 が 19 % と述べていて我々の値を支持している。

$$5q^+ - 6g^+ (-4g^+) \quad (1.039 \text{ MeV})$$

$$G_2 Q_2 A_2 = 0.150 \pm 0.023 \rightarrow A_2 = 0.209 \pm 0.032$$

$$G_4 Q_4 A_4 = -0.095 \pm 0.025 \rightarrow G_4 A_4 = -0.140 \pm 0.036$$

$$\delta = 2.8 \begin{matrix} +0.8 \\ -0.5 \end{matrix}$$

$$5q^+ - 4g^+ \quad (1.334 \text{ MeV})$$

$$G_2 Q_2 A_2 = -0.241 \pm 0.012 \rightarrow A_2 = -0.335 \pm 0.017$$

$$G_4 Q_4 A_4 = -0.030 \pm 0.017 \rightarrow G_4 A_4 = -0.044 \pm 0.025$$

$$\delta = 2.8 \pm 0.3$$

この band から ground band への transition で  $\delta$  の値が殆ど同じであることは level の性質が似ているためであろうし, 逆に言えば, これらの値が正しいことをお互いに示し合っていると考えられる。

$3^-$  から  $4g^+$  への transition

1.646 MeV

$$G_2 Q_2 A_2 = -0.134 \pm 0.010 \rightarrow A_2 = -0.186 \pm 0.014$$

$$G_4 Q_4 A_4 = 0.032 \pm 0.014 \rightarrow G_4 A_4 = 0.046 \pm 0.020$$

$$\delta = -0.05 \begin{matrix} +0.03 \\ -0.02 \end{matrix}$$

0.988 MeV

$$G_2 Q_2 A_2 = -0.070 \pm 0.085 \rightarrow A_2 = -0.101 \pm 0.122$$

$$G_4 Q_4 A_4 = 0.159 \pm 0.116 \rightarrow G_4 A_4 = 0.192 \pm 0.141$$

$$\delta = 0.05 \pm 0.15$$

1.815 MeV

$$G_2 Q_2 A_2 = -0.169 \pm 0.035 \rightarrow A_2 = -0.230 \pm 0.047$$

$$G_4 Q_4 A_4 = 0.067 \pm 0.049 \rightarrow G_4 A_4 = 0.080 \pm 0.058$$

$$\delta = 0.11 \begin{matrix} +0.07 \\ -0.03 \end{matrix}$$

これらの結果は予想どおり E1 が pure とも言える。最後のものは  $JK = 2$  transition のため



M2 が少し多いようである。

#### § 4 考 察

かつてband mixingを議論するのに transition の全てが E 2 pure と仮定されていたが、M1 の正当な評価のもとにそれを議論する必要がある。しかし今回の結果からすると今までの議論を根底的に覆すほどの M1 transition はない。

表2に $r$ -bandとground bandの mixing parameter  $Z_2$  を示す。Theory というのは所謂 Alaga Rule である。Correction factor とは実験値を theory で割ったものでこれから  $Z_2$  の値が求まる。 $3^+$  からの transition は共に E2 pure とした。 $2^+$  からの transition

は Hamilton et al. の  $\delta$  を使った<sup>(10)</sup>  $Z_2$  one parameter として band mixing を計算した Marshalek の値<sup>(22)</sup> をその下に示した。我々の計算では  $Z_2$  one parameter では consistent な値にはならなかったので  $\beta$ -band と  $r$ -band の mixing parameter  $Z_{02}$  も考慮する。 $3^+$  odd spin から求めた  $Z_2$  を standard と考えて  $Z_{02}$  を求めたがこれも一致しない。ところ

Multipolarity determinations for $^{156}\text{Gd}$			
Spin sequence (K J $\pi$ )	Transition energy (MeV)	Mixing ratio $\delta = \frac{\langle E2 \rangle}{\langle M1 \rangle}$	Quadrupole content $Q = \frac{\delta^2}{1 + \delta^2}$
$23^+ - 04^+ - 02^+$	0.961	$161 \geq 25$ <sup>1)</sup>	$\geq 0.998$
$24^+ - 04^+ - 02^+$	1.067	$-3.4 \cdot \frac{1.9}{2.3}$ <sup>2)</sup>	$0.92 \cdot \frac{0.050}{0.228}$
$22^+ - 02^+ - 00^+$	1.065	$18 \cdot \frac{3}{3}$ <sup>3)</sup>	J. H. Hamilton et. al.

D.R. Bès et.al. 161 1) 7.4 2) 5.8 3) 11.6

Multipolarity determinations for $^{156}\text{Gd}$			
Spin sequence (K J $\pi$ )	Transition energy (MeV)	Mixing ratio $\delta = \frac{\langle E2 \rangle}{\langle M1 \rangle}$	Quadrupole content $Q = \frac{\delta^2}{1 + \delta^2}$
$44^+ - 04^+ - 02^+$	1.222	$2.2 \cdot \frac{0.1}{0.1}$	$0.829 \cdot \frac{-0.012}{-0.014}$ <sup>1)</sup>
$45^+ - 04^+ - 02^+$	1.334	$2.8 \cdot \frac{0.3}{0.3}$	$0.887 \cdot \frac{-0.015}{-0.025}$
$45^+ - 06^+ - 04^+ - 02^+$	1.038	$2.8 \cdot \frac{0.5}{0.5}$	$0.887 \cdot \frac{0.041}{-0.046}$

<sup>1)</sup> M. FUJIOKA  $Q = 0.658 \pm 0.078$

Multipolarity determinations for $^{156}\text{Gd}$			
Spin sequence (K J $\pi$ )	Transition energy (MeV)	Mixing ratio $\delta = \frac{\langle E2 \rangle}{\langle E1 \rangle}$	Quadrupole content $Q = \frac{\delta^2}{1 + \delta^2}$
$(0)3^- - 04^+ - 02^+$	0.988	$0.05 \cdot \frac{0.15}{0.15}$	$\leq 0.038$
$(2,3)3^- - 04^+ - 02^+$	1.646	$-0.05 \cdot \frac{0.02}{0.03}$	$0.002 \cdot \frac{0.004}{0.001}$
$(2,3)3^- - 04^+ - 02^+$	1.815	$0.11 \cdot \frac{0.07}{0.03}$	$0.012 \cdot \frac{0.019}{0.006}$

表1  $r$ -band, quasi-particle-band,  $3^-$  level からの transition の multipolarity.

K=2 ( $\gamma$ -band)  $\rightarrow$  K=0 (gr.-band)

	EXP	THEORY	CORRECTION FACTOR	$Z_2$	$Z_{02}$	$Z_2'$
B(E2:4 $\rightarrow$ 4) B(E2:4 $\rightarrow$ 2)	6.109	2.945	2.074	$0.048 \cdot \frac{0.027}{-0.006}$	$-0.005 \pm 0.017$	$0.046 \pm 0.002$
B(E2:3 $\rightarrow$ 2) B(E2:3 $\rightarrow$ 4)	1.523	2.500	0.609	$0.039 \pm 0.005$		
B(E2:2 $\rightarrow$ 2) B(E2:2 $\rightarrow$ 0)	1.525	1.429	1.067	$0.011 \pm 0.010$	$0.021 \pm 0.004$	$-0.003 \pm 0.002$

E.R. Marshalek  
phenomenological  $Z$  0.056  
Case I 0.028  
Case II 0.025

表2  $r$ -band における band mixing parameter を示す。

Marshalek の計算は  $Z_2$  one parameter で、phenomenological: moment of inertia

$$g(\beta, \gamma) \propto \beta^2 \sin^2(\gamma - \frac{2}{3}\pi)$$

Case I: paring による empirical gap parameter を使った。

Case II: empirical moment of inertia を再現すべき gap parameter を使った。

でこれまでの計算は static quadrupole moment が band によって異ならないと仮定していたがこの仮定を破るとやはり  $Z_2$  の他に  $Z_2'$  が導入される。(  $\beta$ -band と  $r$ -band の mixing は考えない。 ) かしながら、これでも consistent な結果は導かれぬ。  $\beta$ -band,  $r$ -band が非常に接近して存在しているこれらの領域では、こういう perturbation 的取扱いができないのかも知れない。

$K^\pi = 4^+$ , q. p.-band に  $K^\pi = 2^+$  band が混入しているため  $\Delta K = 4$  の  $K$ -forbidden であるにかかわらず ground band への transition があると考えて  $r$ -band と同じような解析をした。表 3 にそれを示すが、  $Z_2$  one parameter ではやはりばらついている。  $Z_{02}$  を導入しても

K=4(q.p.-band) $\rightarrow$ K=0(gr.-band)					
	EXP	THEORY	CORRECTION FACTOR	$z_2$	$z_{02}$
$\frac{B(E2:5 \rightarrow 4)}{B(E2:5 \rightarrow 6)}$	0.732	1.705	0.418	$0.043 \pm 0.003$	
$\frac{B(E2:4 \rightarrow 4)}{B(E2:4 \rightarrow 2)}$	0.459	2.945	1.559	$0.030 \pm 0.004$	$0.005 \pm 0.002$
$\frac{B(E2:4 \rightarrow 6)}{B(E2:4 \rightarrow 4)}$	0.516	0.0864	5.971	$0.178 \pm 0.018$	$0.024 \pm 0.002$
$\frac{B(E2:4 \rightarrow 6)}{B(E2:4 \rightarrow 2)}$	2.369	0.255	9.308	$0.073 \pm 0.003$	$-0.059 \pm 0.001$

表 3

q. p.-band に  $r$ -band の混じりがあるため ground band に transition していると考えて、  $r$ -band の時と同じように、 band mixing を扱う。

q. p. - band properties				
Spin seq. ( J $\pi$ )	Transition energy (MeV)	Mixing ratio $\xi$	$\xi^2$	$R \times 10^{-3}$ <sup>1)</sup>
$5^+ - 6^+$	1.038	$2.8 \cdot \begin{smallmatrix} 0.8 \\ -0.5 \end{smallmatrix}$	$7.84 \cdot \begin{smallmatrix} 5.12 \\ -2.55 \end{smallmatrix}$	$3.75 \cdot \begin{smallmatrix} 2.45 \\ 0.84 \end{smallmatrix}$
$5^+ - 4^+$	1.334	$2.8 \cdot \begin{smallmatrix} 0.3 \\ -0.3 \end{smallmatrix}$	$7.84 \cdot \begin{smallmatrix} 1.77 \\ -1.59 \end{smallmatrix}$	$2.27 \cdot \begin{smallmatrix} 0.51 \\ -0.45 \end{smallmatrix}$ <sup>2)</sup>
$4^+ - 4^+$	1.222	$2.2 \cdot \begin{smallmatrix} 0.1 \\ -0.1 \end{smallmatrix}$	$4.84 \cdot \begin{smallmatrix} 0.45 \\ -0.43 \end{smallmatrix}$	$1.67 \cdot \begin{smallmatrix} 0.02 \\ -0.02 \end{smallmatrix}$

1)  $R \equiv \left[ \frac{B(E2)}{B(M1)} \right] / \left[ \frac{B(E2)}{B(M1)} \right]_{s.p.}$       2) M. Fujioka  
 $R = (0.63 \pm 0.22) \times 10^3$

表 4

q. p.-band から ground-band へ transition における R を示す。  $R \equiv \left[ \frac{B(E2)}{B(M2)} \right]_{exp} / \left[ \frac{B(E2)}{B(M1)} \right]_{s.p.}$  sp とは single particle model での計算値。

報告されているが<sup>(3)</sup> これを使って  $B(E2)$ ,  $B(M1)$  を計算し single particle model との比較をしてみたのが表 5 である。 E2 transition には明らかに band の違いによる差がみられる。

consistent な結果とは言えない。

二段階の band - mixing を考えているわけで考え方に無理がある。

表 4 にこの band での  $R \equiv \left[ \frac{B(E2)}{B(M1)} \right]_{exp} / \left[ \frac{B(E2)}{B(M1)} \right]_{s.p.}$  を示す。 s. p. とは single particle model での計算値である。いずれ

の transition でも R は  $10^3$  の order であってさほど差がない。 Fujioka は conversion electron の測定から 1.222 MeV transition

で  $R = (0.63 \pm 0.22) \times 10^3$  と報告しており<sup>(3)</sup> 他の band への

transition と比較して ground band へのその R は小さいと述べているが、今回の角相関の結果からすれば他の band と comparable な値となっている。

この band の  $4^+$  level の半減期は  $T_{1/2} = 0.188 \pm 0.01$  nsec と

$r$ -band へは 0.5 前後,  $\beta$ -band へは  $10^{-2} \sim 10^{-1}$ , ground band へは  $10^{-3}$  である。同じ  $K=0$  band の  $\beta$ -band と ground

で, これだけの差がある理由は定かではないが,  $r$ -band の mixing が  $\beta$ -band にかなりあるためかも知れない。 $r$ -band  $\beta$ -band への transition での M1 の値は Fujioka の結果を借用している。  
なお band mixing については ref(22) (23) (6) を参照のこと。

Single particle estimate			
1.511 MeV level $4q^+$ $T_{1/2} = 0.19$ nsec			
Spin seq. (J $\pi$ )	Transition energy (MeV)	Hindrance Factor	
		E 2	M 1
$4^+ - 4^+_y$	0.155	$0.39 \pm 0.02$	$(0.80 \pm 0.01) \times 10^{-4}$
$4^+ - 3^+_y$	0.263	$0.58 \pm 0.01$	$(0.11 \pm 0.01) \times 10^{-5}$
$4^+ - 2^+_y$	0.357	$0.40 \pm 0.01$	
$4^+ - 4^+_g$	0.213	$(0.18 \pm 0.04) \times 10^{-2}$	$(0.65 \pm 0.02) \times 10^{-6}$
$4^+ - 2^+_g$	0.381	$(0.13 \pm 0.02) \times 10^{-1}$	
$4^+ - 6^+_g$	0.926	$(0.36 \pm 0.02) \times 10^{-3}$	
$4^+ - 4^+_g$	1.222	$(0.91 \pm 0.01) \times 10^{-3}$	$(0.55 \pm 0.02) \times 10^{-5}$
$4^+ - 2^+_g$	1.422	$(0.36 \pm 0.2) \times 10^{-3}$	

表5 1.511MeV level ( $4^+_q$ ) からの reduced transition probability における hindrance factor.

R. I. の八木助教授, 近藤助手, また machine group の皆様に心から感謝申し上げます。

### 参 考 文 献

- 1) D. J. McMillan and J. H. Hamilton : Phys. Rev. C 4 (1971) 542.
- 2) M. Fujioka : Nuclear Phys. A 153 (1970) 337.
- 3) M. Fujioka : J. Phys. Soc. Japan 31 (1971) 632.
- 4) J. H. Hamilton, M. Fujioka, J. J. Pinajian, D. J. McMillan : Phys. Rev. C 5 (1972) 1800.
- 5) N. F. Peek : Phys. Rev. C 2 (1970) 587.
- 6) P. G. Hansen, O. B. Nilsen and R. K. Sheline : Nuclear Phys. 12 (1959) 389.
- 7) P. F. Keneally, E. G. Funk and J. W. Mihelich : Nuclear Phys. A 105 (1967) 522.
- 8) D. J. McMillan, J. H. Hamilton, M. Mladjenovic, J. C. Manthuruthil, J. J. Pinajian : Z. Phys. 241 (1971) 103.
- 9) N. R. Peek, J. A. Jungerman and C. G. Patten : Phys. Rev. 136 B (1964) 330.
- 10) J. H. Hamilton, P. E. Little, A. V. Ramayya, E. Collins, N. R. Johnson, J. J. Pinajian and A. F. Kluk : Phys. Rev. C 5 (1972) 899.
- 11) A. F. Kluk, N. R. Johnson and J. H. Hamilton : to be published.
- 12) T. Siddiqi, F. D. Cranston and D. H. White : Nuclear Phys. A 179 (1972) 609.

- 13) R. E. Bell and M. H. Jørgensen : Nuclear Phys. **12** (1959) 413.
- 14) N. Rud, G. T. Ewan, A. Christy, D. Ward, R. L. Graham and J. S. Geiger :  
Nuclear Phys. **A 187** (1972) 473.
- 15) D. Ward, R. L. Graham, J. S. Geiger, N. Rud and A. Christy : Nuclear Phys.  
**A 196** (1972) 9.
- 16) Y. Yoshizawa, B. Elbek, B. Herskind and M. C. Olesen : Nuclear Phys. **73**  
**73** (1965) 273
- 17) Th. W. Elze, J. S. Boyno and J. R. Huizenga : Nuclear Phys. **A 187** (1972) 473.
- 18) R. Bloch, B. Elbeck and P. O. Jjøm : Nuclear Phys. **A 91** (1967) 576.
- 19) N. Rud and K. B. Nielsen : Nuclear Phys. **A 158** (1970) 546.
- 20) L. Varnell, J. D. Bowman and J. Trischuk : Nuclear Phys. **A 127** (1969) 270.
- 21) D. R. Bes, D. Federman, E. Haqueda and A. Zuker : Nuclear Phys. **65** (1965) 1.
- 22) E. R. Marshalek : Phys. Rev. **158** (1967) 993.
- 23) C. W. Reich and J. E. Cline : Nuclear Phys. **A 159** (1970) 181.

## II. 物 性 物 理 部 門

## II-1 TiNi 化合物の結晶構造

選 研 松 本 実  
守 護 嘉 朗  
本 間 敏 夫

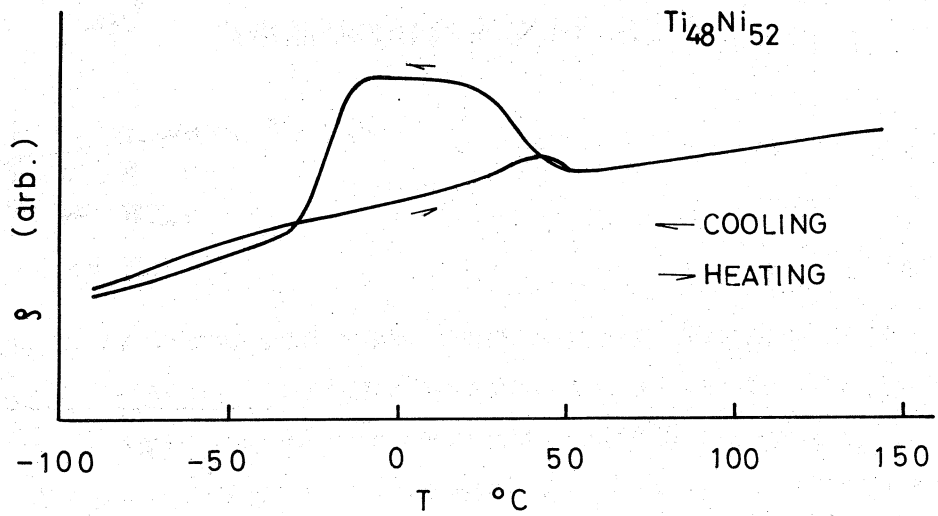
## 1 緒 言

TiNi 化合物は形状記憶効果等の特異な物理的、機械的性質をもつ物質で、温度変化と共に複雑な結晶変態をする。これら結晶変態の機構や各相の結晶構造についてはまだ明らかでない点が多い。<sup>1)</sup> TiNi 化合物では冷却の際、高温相(母相)はマルテサイトの低温相(マルテンサイト相)に変態するが、最近マルテンサイトの前駆現象としての lattice softening を伴う premartensite 状態の研究がさかんとなってきた。<sup>2)</sup> 著者らはこれらの結晶変態の機構や各相の結晶構造を調べるため中性子回折を行い、高温相と低温相の回折パターンはそれぞれ CsCl 型構造<sup>3)</sup> と単斜晶構造<sup>4)</sup> で説明できること、premartensite 状態の温度領域では低温相と残留高温相の回折パターンが得られたことを報告<sup>5)</sup> した。今回は premartensite 状態の出現する温度領域で再び中性子回折実験を行い、高温相が低温相に変態する時の結晶構造の変化を調べる。premartensite 状態が新しい結晶構造をとる状態であるならば、Dautovich ら<sup>6)</sup> によると菱面体構造か、Hehemann ら<sup>2)</sup> によると fct → orthorhombic → monoclinic の構造変化をとるかが考えられている。

## 2 試 料

試料はアーク溶解、熱間圧延を行った  $\text{Ti}_{48}\text{Ni}_{52}$  を用いた。圧延された板より 50 mm × 50 mm × 1.5 mm の板 3 枚を切出し、圧延方向が交互に直角となるように重ね合わせ中性子回折用試料とした。熱処理は真空中で 560 °C、5 時間加熱して炉冷を行った。同一試料の室温での X 線回折パターンでは高温相の CsCl 型構造の回折線のうち (110) が 2 本に分離して観測され、この状態では明らかに高温相とは異なる結晶構造をもつ premartensite 状態にあることを示している。

同じ熱処理を行った試料の電気抵抗—温度曲線は第 1 図に示すように温度が下ると共に電気抵抗は減少するが、50 °C 付近で増加しはじめ—10 °C 付近のマルテンサイト開始温度で再び減少しはじめる。このように冷却と共に電気抵抗が増加する温度領域は premartensite 状態の温度領域であることが、X 線回折<sup>7)</sup>、試料表面の光学および走査電子顕微鏡観察<sup>8,9)</sup> 等によって確

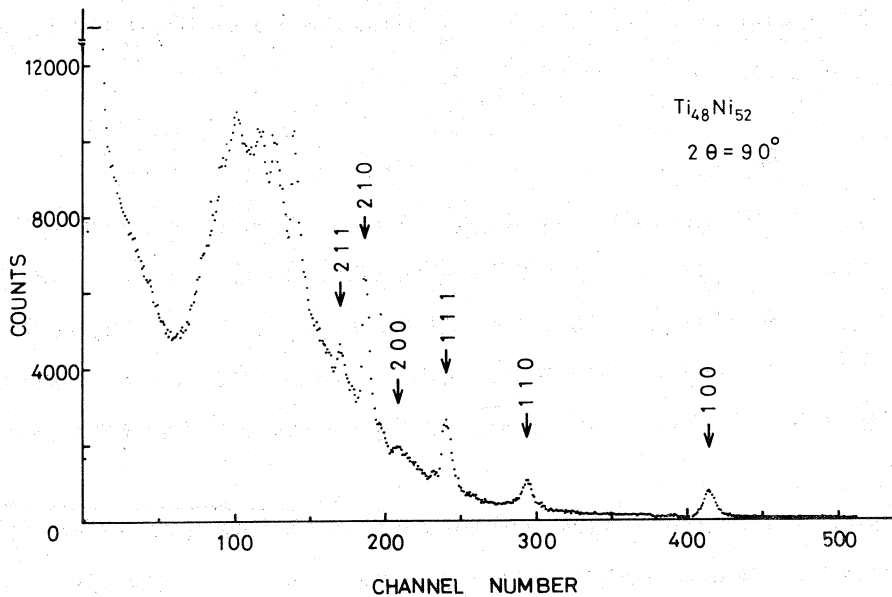


第1図  $\text{Ti}_{48}\text{Ni}_{52}$  の電気抵抗-温度曲線

認されている。

### 3 実験および実験結果

TOF Debye - Scherrer 法による中性子回折は東北大学核理研の中性子回折装置を用いて行った。試料の  $\text{TiNi}$  化合物の板は入射中性子線に対し  $45^\circ$  の角度をもつようにおかれた。散乱



第2図  $\text{Ti}_{48}\text{Ni}_{52}$  の室温での中性子回折パターン。散乱角  $2\theta = 90^\circ$

角は  $2\theta = 32^\circ$  および  $90^\circ$  で、測定は室温で行った。第2図は  $2\theta = 90^\circ$  での中性子回折パターンである。これらの回折線は TiNi 化合物の高温相 (CsCl型結晶構造) による回折線として説明される。回折線の分離は (100), (110), (200), (210), (211) の回折線において明瞭でなく、X線回折での (110) 回折線の分離とあわせて考えると説明が困難である。

premartensite 状態は高温相から低温相へ変態する際の lattice softening を伴う状態であるが、電子回折による観察では主スポット間の  $1/3$ ,  $2/3$  のところに extra スポットが生じ、<sup>9)</sup> またX線回折によれば (110) 回折線が分離することが認められている。<sup>7)</sup> しかし今回の中性子回折では高温相と異った現象は見出されなかった。これらの解釈については目下検討中である。

本研究に用いた原材料を作製していただいた古河電工中央研究所の方々に深く感謝いたします。

### 参 考 文 献

- 1) 本間敏夫：日本金属学会会報 12 (1973) 157.
- 2) R. F. Hehemann and G. D. Sandrock : Scripta Met. 5 (1971) 801.
- 3) 本間敏夫, 松本実, 守護嘉朗：核理研研究報告 4 No. 2 (1972) 64.
- 4) 松本実, 守護嘉朗, 本間敏夫：核理研研究報告 5 No. 1 (1972) 83 ; 東北大学選鉱製錬研究所彙報 28 (1972) 65.
- 5) 松本実, 守護嘉朗, 本間敏夫：核理研研究報告 5 No. 2 (1972) 63.
- 6) D. P. Dautovich and G. R. Purdy : Can. Met. Quart. 4 (1965) 129.
- 7) 本間敏夫, 松本実, 守護嘉朗：未発表
- 8) G. D. Sandrock and R. F. Hehemann : Metallography 4 (1971) 451.
- 9) G. D. Sandrock, A. J. Perkins and R. F. Hehemann : Met. Trans. 2 (1971) 2769.

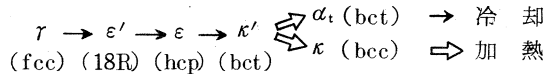


## II-2 Fe-Mn-C の中性子回折

工学部金属，選研\* 武井広見・松本 実\*  
 守護嘉朗\*・本間敏夫\*

## 1 緒 言

Lysak らによると，Fe-Mn-C合金は，次の順序でマルテンサイト変態し $\kappa'$ 相になる。<sup>1)</sup>



$\kappa'$ 相は，室温以下で分解して， $\alpha_1$ と $\kappa$ になる。マルテンサイト変態中に，炭素原子の拡散が起らないとすれば，各相における炭素原子位置は，次のように考えられる。<sup>2, 3)</sup>  $\gamma$ 相では，炭素原子は，全て八面体位置に存在するとすれば，積層欠陥上の炭素原子は，四面体位置を占めることになるので， $\epsilon'$ および $\epsilon$ 相では，八面体位置と四面体位置の炭素原子の比は，それぞれ5:1，1:1になるはずである。 $\kappa'$ 相では， $\epsilon$ 相の位置がそのまま保存される。加熱に伴う $\kappa'$ 相の分解は，炭素原子が，四面体位置から八面体位置へ拡散する過程であると考えられる。

このように，Fe-Mn-C合金のマルテンサイト変態では，炭素原子が重要な役割を果たすと考えられ，各相における炭素原子の位置を実験的に決定することは，変態機構を知る上できわめて意義がある。

今回は，まず，中性子回折による $\gamma$ 相中の炭素原子位置の決定を試みた。中性子回折では，炭素原子の中性子散乱振幅が( $b_c = 0.66 \times 10^{-12}$  cm)，鉄のそれ( $b_{Fe} = 0.96 \times 10^{-12}$  cm)に近く，また，マンガンが負の寄与( $b_{Mn} = -0.37 \times 10^{-12}$  cm)をするので，X線回折( $\sin \theta / \lambda = 0$ で， $f_c = 6$ ， $f_{Fe} = 26$ ， $f_{Mn} = 25$ )に比べて，炭素原子位置の決定に有利である。

なお，中性子回折によるFe-Mn-C合金 $\gamma$ 相中の炭素位置決定の実験としては，V. K. Kandarpa<sup>4)</sup>の報告がある。また，最近，志賀ら<sup>5)</sup>，木村ら<sup>6)</sup>は，それぞれFe-Ni-C，Fe-Mn-C合金において，メスbauer効果の測定により，マルテンサイト中の炭素原子の位置を決定している。

## 2 試 料

熱間鍛造によって作られた直径80 mmの丸棒から， $4 \times 50 \times 50$  mmの板状試料を切り出し真空中で，900°Cに2時間加熱後炉冷の熱処理を行った。

試料の化学組成は、第1表に示した。

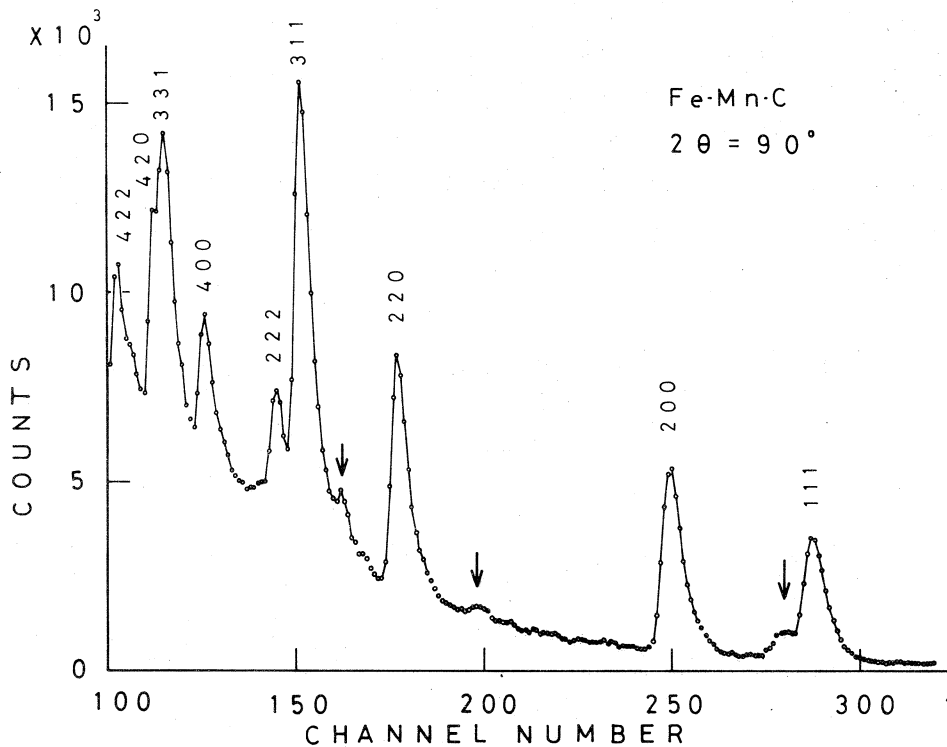
第1表 Fe-Mn-C合金の化学組成 (wt%)

Mn	C	Si	P	S	Ni	Cr	Cu
11.98	1.1	0.43	0.031	0.004	0.09	0.06	0.15

試料は、室温でオーステナイト( $\gamma$ 相)単相であると考えられる。

### 3 実験および実験結果

第1図に、TOF Debye-Scherrer法によるFe-Mn-C合金の中性子回折パターンを示す。試料板は、入射中性子線に対し $45^\circ$ の角度で置かれた。散乱角は、 $2\theta=90^\circ$ で、測定は室温で行った。主な回折線は、オーステナイト(fcc)で指数付けされたが、矢印をつけたピークについては、説明不能である。



第1図 Fe-Mn-C合金の室温での中性子回折パターン。散乱角 $2\theta=90^\circ$

TOF法では、構造因子の相対的大きさは、次のように表せる。<sup>7)</sup>

$$j \cdot |F_{hkl}|^2 \propto \frac{E_{hkl}^{obs}}{i(\lambda) \cdot \lambda^4 \cdot e^{-2w}} \quad (1)$$

ここで、 $j$ は多重度因子、 $|F_{hkl}|$ は構造因子、 $E_{hkl}^{obs}$ は観測積分強度、 $i(\lambda)$ は入射中性子線スペクトル、 $\lambda$ はその波長、 $e^{-2w}$ はDebye-Waller factorである。

また、V. Kandarpaら<sup>4)</sup>によると、Fe-Mn-C合金の構造因子は、面心立方格子中の鉄およびマンガンによる項( $F_{hkl}^1$ )と、炭素原子による項( $F_{hkl}^c$ )の和で表わせる。

$$F_{hkl} = F_{hkl}^1 + F_{hkl}^c \quad (2)$$

炭素原子による項は、炭素原子が八面体位置( $1/2 \ 1/2 \ 1/2$ )および、四面体位置( $1/4 \ 1/4 \ 1/4$ )に存在する場合、それぞれ(3)式、(4)式のようになる。

$$(F_{hkl}^c)_{octa} = \frac{4 a_c}{a_{Fe} + a_{Mn}} \cdot b_c \cdot \cos \pi (h+k+l) \quad (3)$$

$$(F_{hkl}^c)_{tetra} = \frac{4 a_c}{a_{Fe} + a_{Mn}} \cdot b_c \cdot \cos \frac{\pi}{2} (h+k+l) \quad (4)$$

ここで、 $a_i$ は*i*成分の原子分率、 $b_c$ は炭素原子の中性子散乱振幅である。

第2表に、全ての炭素原子が八面体位置に存在する場合、および、四面体位置に存在する場合の構造因子  $j \cdot |F|^2$  の計算値と、(1)式から求めた実験値を、(220)反射を100とした相対値で示した。(220)反射は、炭素原子が八面体位置でも四面体位置でも、等しい  $j \cdot |F|^2$  の値を示すので、これを基準とした。

第2表 Fe-Mn-C合金の構造因子、 $j \cdot |F_{hkl}|^2$ 、(200)を100とした相対値の計算値と実験値

	Theoretical		Experimental	
	octa	tetra	$2\theta = 90^\circ$	
(111)	55.6	61.0	80.0	74.1 ※
(200)	49.9	41.7	93.0	87.8 ※
(220)	100	100	100	100 ※
(311)	167	182	246	253 ※

※ 鉄の温度因子<sup>8)</sup>による補正を行った値。

結果は、第2表に見られるごとく、(220)の $j \cdot |F|^2$ の実測値が小さすぎることに、また、実測では、(111)と(200)の $j \cdot |F|^2$ の値の大きさが逆になっているなど、理論と測定値の相違が大きい。この原因の主なものとして、試料の優先方位配列の存在が考えられるので、粉末試料による実験を行うことが是非必要である。

### 参 考 文 献

- 1) L. I. LYSAK and B. I. NIKOLIN : Phys. met. metallog. **20** (1965) 547.
- 2) L. I. LYSAK and B. I. NIKOLIN : Phys. met. metallog. **22** (1966) 730.
- 3) L. I. LYSAK, YA. N. VOVK and YU. N. ROLISHCHUK : Phys. met. metallog. **23** (1967) 898.
- 4) V. KANDARPA, G. W. POWELL, R. A. ERICKSON and J. W. SPRETNAK : Trans. AIME **236** (1966) 840.
- 5) 志賀千晃, 木村匡克, 佐野芳明, 藤田英一 : 日本金属学会講演概要(第73回, 東京) **27**.
- 6) 木村匡克, 志賀千晃, 佐野芳明, 藤田英一 : 同 上 , **28**.
- 7) 木村一治, 他 : 核理研研究報告 **1** No. 2 (1968) 81.
- 8) カリテイ : X線回折要論(松村源太郎訳, アグネ, 1961) 399.

## II-3 High Momentum Transfer Structure Factors in Liquid Heavy Water and Carbon Disulfide by T-O-F Neutron Diffraction

金 研 三沢正勝・福嶋喜章  
鈴木謙爾・竹内 栄

### 1. Introduction

The new  $L \gg L_0$  T-O-F neutron diffractometer based on the Tohoku University 300 MeV electron LINAC as a pulse neutron source was constructed in order to study mainly the structure of liquids. As reported previously,<sup>(1)</sup> the performance of this diffractometer is characterized by easy and accurate measurement of high momentum transfer structure factors up to  $30 \text{ \AA}^{-1}$ .

The exact informations on high momentum transfer structure factors in the liquid state are not only necessary to make possible to analyse the structure of liquid semiconductors, multi-component systems including chemical compounds and molecular liquids, because definite bond lengths and angles persist in their liquid state, but also important to understand the effect

---

M. Misawa, Y. Fukushima, K. Suzuki and S. Takeuchi  
The Reasearch Institute for Iron, Steel and Other Metals,  
Tohoku University,  
Sendai 980,  
Japan.

of soft repulsive core in the effective pair potential on a variety of properties in liquid metals near the triple point.

Recently it has been emphasized that the intermolecular force and orientational correlation between molecules are very sensitive to the behaviour of structure factors in molecular liquids.<sup>(2)</sup> However, we must know precise molecular size in the liquid state as the prerequisite for such a analysis. So far as we know, molecular size has not been directly measured in the liquid state, but in the gaseous or solid state by diffraction method.

In the present work the counting rate and signal-to-noise (S/N) ratio in high momentum transfer region of the  $L_0 \gg L$  T-O-F neutron diffractometer were improved and the derivation of molecular size of  $D_2O$  and  $CS_2$  in the liquid state was tried as the first step of application of high momentum transfer structure factors to the study of liquid structures.

## 2. Improvement of $L_0 \gg L$ T-O-F Neutron Diffractometer

In order to improve the counting rate and S/N ratio the  $L_0 \gg L$  T-O-F neutron diffractometer was modified in accordance with following items.

1. New collimator with 50mm height  $\times$  20mm width  $\times$  120mm length was installed on incident beam flight path between biological concrete shield and borated paraffin shield. This collimator was made from the lead bricks with 100mm thick which was sandwiched between two  $B_4C$  walls with 10mm thick.
2. Large lead sheet with 500mm height  $\times$  2000mm width  $\times$  3mm thick was stucked on the incident beam side of borated paraffin shield.
3. Lead sheets with 1mm thick were located on the top of sample side of the Soller slits installed between

sample and He-3 counters for scattering angle  $2\bar{\theta}=30^\circ$ ,  $60^\circ$  and  $150^\circ$  detecting systems.  $2\bar{\theta}=15^\circ$  detecting system had lead sheet with 2mm thick, because  $\gamma$ -flash at the position of  $2\bar{\theta}=15^\circ$  system was stronger than that at the other positions.

4. The He-3 counter boxes filled with  $B_4C$  powder were covered with lead sheet with 3mm thick.
5. Two He-3 counters were installed in parallel to the scattered beam flight path for  $2\theta=150^\circ$  detecting system.
6. He-3 counters for T-O-F experiment<sup>(3)</sup> were installed instead of ones for industrial use.<sup>(4)</sup> FET pre-amplifiers with low noise characteristics were used and all RG-8U-type cable<sup>(5)</sup> replaced by RG-54AU-type one.<sup>(5)</sup>

The intensity of soft  $\gamma$ -flash was decreased at the positions of He-3 counters by taking the counterplan of item 1 to 4. Subsequently, deadtime of He-3 counters was remarkably reduced to recover the counting rate in low time channel area corresponding to the data in high momentum transfer region, as shown in Fig.1(c). In addition, Fig.1(c) shows the counterplan of item 5 also made the counting rate in high momentum transfer region increase. The improvement of S/N ratio, which was apparent by comparing Fig.1(a) with Fig.1(b), was totally achieved by the counterplan of item 1 to 6. Especially item 6 was essential to prevent the output pulse height from pre-amplifier from shrinking when four He-3 counters were used in a bunch.

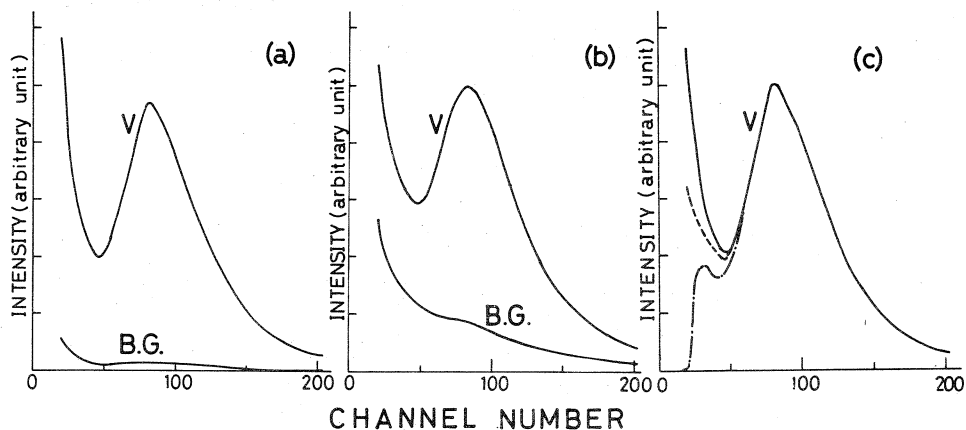


Fig. 1 Improvement of the counting rate and S/N ratio (V and B.G. denote the intensity of Vanadium sample and back grounds respectively.)

(a) Improved (b) Unimproved (c) Typical spectra; after taking the counterplan of item 1 to 6 (Solid line), after taking the counterplan of item 1 to 4 (broken line), and before taking the counterplan of item 1 to 6 (dot-dash-line).

### 3. Experimental Procedure and Result

The details of the  $L_{\infty}L$  T-O-F neutron diffractometer and the experimental procedure used in this work have been described in the previous report.<sup>(1)</sup> Liquid  $D_2O$  and  $CS_2$  samples were contained in a vanadium cylindrical cell with 0.25mm thick wall and 10mm inner-diameter. Solid vanadium rod with 10mm diameter was employed as a standard sample. Neutron counts were accumulated so that statistical errors were kept within 1% at the time channel position of peak maximum for almost scattering angles. Data collecting, processing and displaying were carried out by computer on-line with OKITAC-4500.

Fig.2 shows raw observed scattered intensities  $I(t, \theta)$  from solid vanadium, liquid  $D_2O$  and  $CS_2$  at room temperature for four fixed scattering angles. In T-O-F diffraction method the scattered intensity  $I(t, \theta)$  is observed as a function of time of



flight  $t$  of neutron with wave length  $\lambda$  and scattering angle  $2\theta$ .

Let's convert  $(t, \theta)$  to momentum transfer  $Q$  and define the normalized intensity  $I(Q)$  as follows:

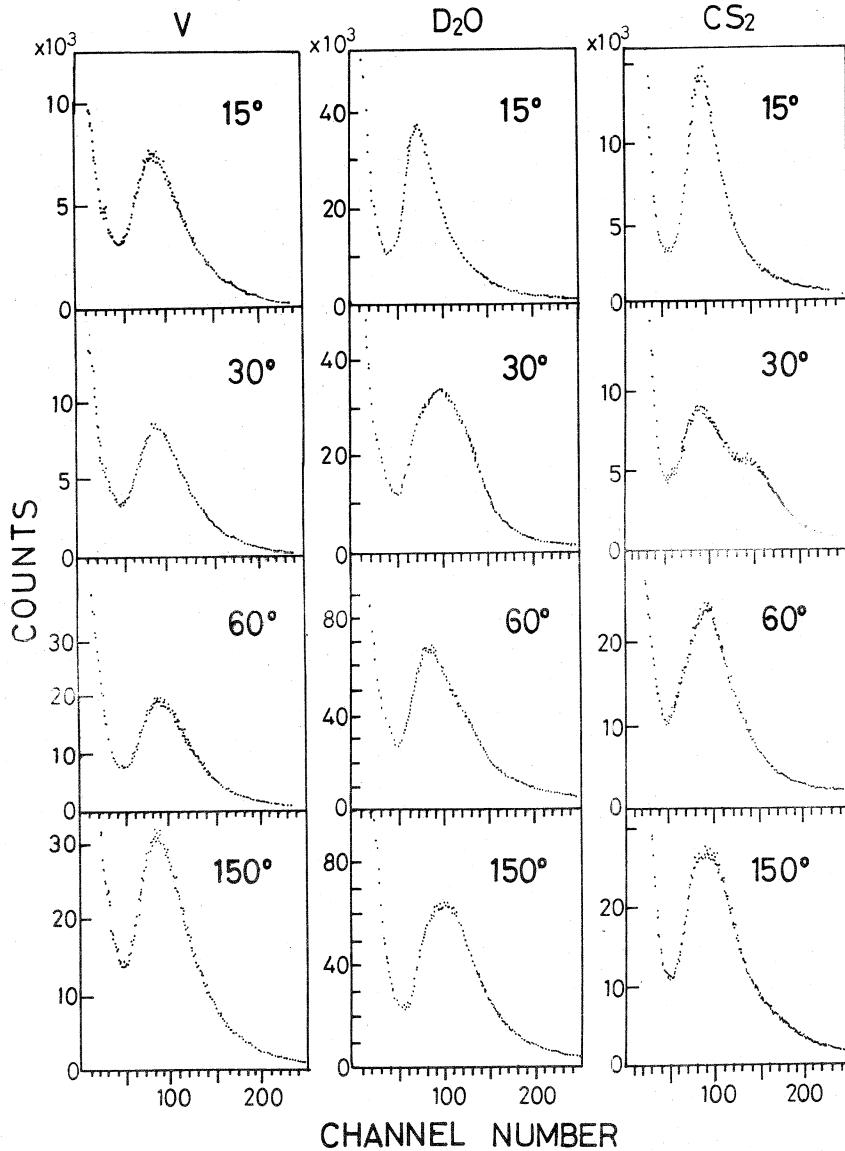


Fig. 2 Observed intensities for solid vanadium, liquid D<sub>2</sub>O and liquid CS<sub>2</sub> at room temperature for four fixed scattering angles.

$$I(Q) = \frac{I^S(t, \theta)}{I^V(t, \theta)} \cdot \frac{A^V(\lambda)}{A^S(\lambda)} \quad (1)$$

$$= \frac{N_m \left\{ \left( \sum_n b_{cn} \right)^2 S_m(Q) + \sum_n (b_{in})^2 \right\} + \Delta_M^S + \Delta_I^S}{N^V (b_{iv})^2 + \Delta_M^V + \Delta_I^V}, \quad (2)$$

where superscripts S and V refer to liquid sample and vanadium,  $A(\lambda)$  is attenuation of neutron in sample and vanadium cell,  $N_m$  is the number of molecules in sample,  $N^V$  is the number of atoms in vanadium standard sample,  $b_{cn}$  and  $b_{in}$  are coherent and incoherent scattering lengths of nucleus n, respectively,  $\sum_n$  means summation over all the nuclei in a molecule,  $\Delta_M$  is correction term for multiple scattering and  $\Delta_I$  is correction term for deviation from static approximation due to inelastic scattering.

$S_m(Q)$  in Eq. (2) is the normalized molecular structure factor defined as follows:

$$S_m(Q) = N_m \left( \sum_n b_{cn} \right)^2 \left\langle \left| \sum_n b_{cn} \exp(iQ \cdot r_n) \right|^2 \right\rangle. \quad (3)$$

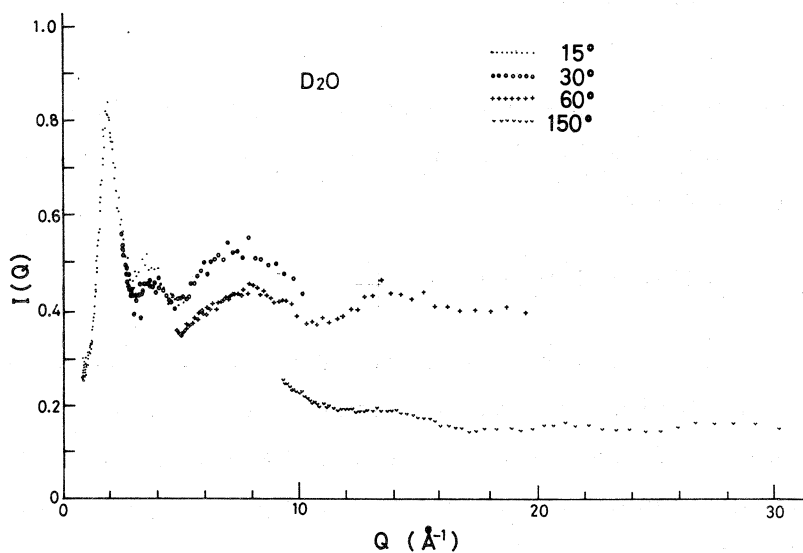


Fig. 3 Normalized Intensity  $I(Q)$  for liquid  $D_2O$ .

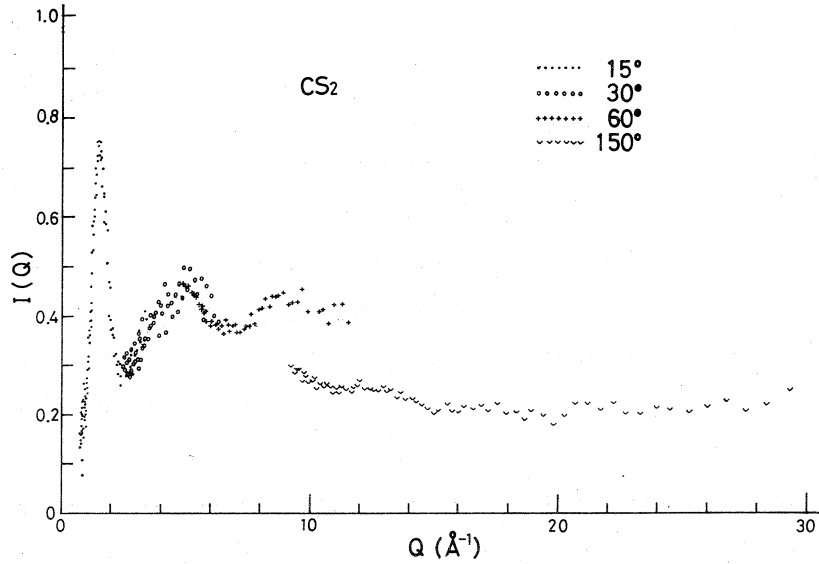


Fig. 4 Normalized intensity  $I(Q)$  for liquid  $CS_2$ .

$I(Q)$  for liquid  $D_2O$  and  $CS_2$  at room temperature are illustrated in Figs.3 and 4. If we wish to extract  $S_m(Q)$  from  $I(Q)$ , difficult corrections have to be applied to multiple and inelastic scattering, respectively.

#### 4. Discussion

If we assume completely correlated or uncorrelated molecular orientation, molecular structure factor  $S_m(Q)$  is known to be written as follows:<sup>(6)</sup>

$$S_m(Q) = F_1(Q) + F_2(Q)[S_c(Q) - 1], \quad (4)$$

where  $F_1(Q)$  is molecular form factor for a single molecule,  $F_2(Q)$  is form factor related to correlation of molecular orientation and  $S_c(Q)$  is structure factor for molecular centres.

As  $S_c(Q)$  asymptotically becomes unity in high  $Q$  region, we have the relation

$$S_m(Q) \approx F_1(Q) \quad , \quad (5)$$

from Eq.(4). Eq.(5) tells us that the structure and size of a single molecule in the liquid state can be obtained by the direct measurement of the oscillation in molecular structure factor in high momentum transfer region.

Narten<sup>(7)</sup> tried to estimate the bond lengths of a  $D_2O$  molecule in the liquid state from the usual structure analysis in the range of  $1\text{\AA}^{-1} < Q < 10\text{\AA}^{-1}$  and reported  $r_{OD} = 0.93\text{\AA}$  and  $r_{DD} = 1.53\text{\AA}$ . Fig.5 shows the three values of  $F_1(Q)$  for a  $D_2O$  molecule calculated from the solid state model(ice), the gaseous state model(vapor) and the liquid state model after Narten. We can

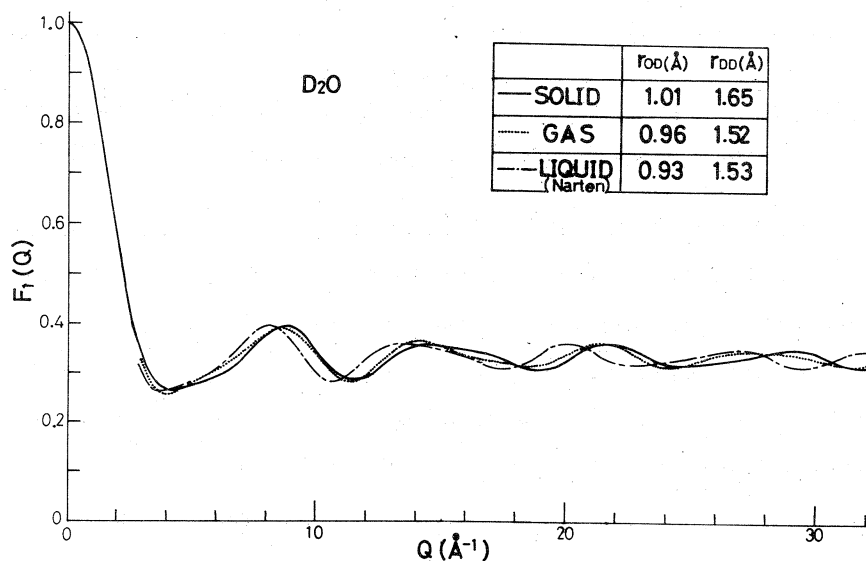


Fig. 5 Molecular form factors  $F_1(Q)$  for a  $D_2O$  molecule calculated from the solid state model, the gaseous state model and the liquid state model after Narten.

obviously find fairly large differences of the phase in oscillation in  $F_1(Q)$  between the above three models. The oscillation in  $S_m(Q)$  of liquid  $D_2O$  in the range of  $20\text{\AA}^{-1} < Q < 30\text{\AA}^{-1}$

is quite close to that in  $F_1(Q)$  of the gaseous state model in Fig.5.

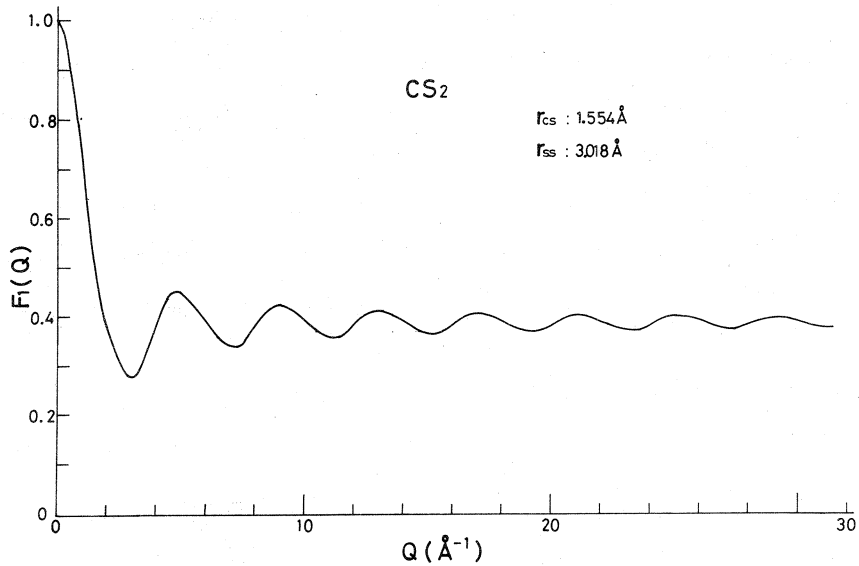


Fig. 6 Molecular form factor  $F_1(Q)$  for a  $CS_2$  molecule calculated from the gaseous state.

On the other hand, Figs.4 and 6 show that the bond lengths for a  $CS_2$  molecule in the liquid state may be expected to be shrunk in comparison with those in the gaseous state.

We are attempting to derive the final  $S_m(Q)$  for liquid  $D_2O$  and  $CS_2$  in the whole range of  $Q=0.5\text{Å}^{-1}$  to  $30\text{Å}^{-1}$  by the extension of both the Placzek<sup>(8)</sup> and free molecule<sup>(9)</sup> corrections.

#### References

- (1) M. Misawa, K. Kai, K. Suzuki and S. Takeuchi; Res. Reports Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ., 5[2](1972), 73.
- (2) K. E. Gubbins, C. G. Gray, P. A. Egelstaff and M. S. Ananth; Molecular Physics (to be published)
- (3) Reuter Stokes Model RS-P4-0806-30-10, 25mm diameter, 150mm active length, He-3 gas 10 atms, operating voltage 3500V.

- (4) Reuter Stokes Model RS-P4-0806-10, 25mm diameter, 150mm active length, He-3 gas 10 atms, operating voltage 1500V.
- (5) See "Fujikura Densen" Catalogue.
- (6) P. A. Egelstaff, D. I. Page and J. G. Powels; *Molecular Physics*, 20 (1971), 881.
- (7) A. H. Narten; *J. Chem. Phys.*, 56 (1972), 5681.
- (8) G. Placzek; *Phys. Rev.*, 86 (1952), 377.
- (9) W. Marshall and S. W. Lovesey; 1971 "Theory of Thermal Neutron Scattering" (Oxford Univ. Press).

## Ⅱ—4 単結晶中性子回折による ZrO<sub>2</sub> 型規則構造の研究

金 研 平林 真・山口貞衛・荒井徹治

### § 1 目 的

稠密六方ジルコニウムに固溶した酸素原子は、種々のタイプの侵入型規則配列をとる事が報告されている。最近、我々は単結晶試料を用いたX線回折、及び定常炉による中性子回折によって、ZrO<sub>0.40</sub>組成の合金における酸素原子位置の決定を試みたが、多重反射の寄与のため明確な結論を得るに至らなかった。

この点、TOF法による単結晶中性子回折においては、(1) 長波長の中性子を利用できるため、多重反射による寄与を避ける事が出来、(2) また結晶モノクロメーターを用いないから、高調波による寄与が入らない<sup>1)</sup>。このような利点をもつTOF法により、単結晶試料についてZrO<sub>2</sub>型結晶構造の解析を試みた。

### § 2 実 験 結 果

単結晶試料は、ZrとZrO<sub>2</sub>をアルゴンアーク炉で溶解し、さらに高周波帯溶融法により成長させた直径約3mmのほぼ球状のものを用いた。その組成は29.2 at% Oである。規則化処理としては600℃で7日、500℃で3日、400℃で14日間焼鈍を行なった。

実験は室温において、カウンター角90°で行ない、単結晶の $[1\bar{1}\cdot 0]$ を垂直に保持し、12種の反射強度を測定した。二、三のスペクトルを図1に示す。00・3,  $\frac{1}{3}$ ,  $\frac{1}{3}\cdot 1$ ,  $\frac{2}{3}$ ,  $\frac{2}{3}\cdot 2$ などいくつかの規則格子反射が認められる。実測強度 $I_{obs}$ から $I_{obs} \propto i(\lambda) \lambda^4 |F_{obs}|^2$ を用いて、構造因子 $F_{obs}$ を求めた。 $i(\lambda)$ は、入射中性子の波長分布である。得られた結果を表1に示す。この結果は、 $\epsilon$ -Fe<sub>2</sub>N型構造(空間群P312)を基本とするモデルでよく説明出来る。即ち、図2に示した様に、その単位胞の大きさは、 $a = \sqrt{3} a_0$ ,  $c = c_0$  ( $a_0$ ,  $c_0$ はhcpジルコニウム金属の格子定数)で、6ケのジルコニウム原子と24ケの酸素原子が含まれる。酸素原子の配列は、(AC)B(AC)B…という積層順序で記述出来るが、各々の格子点上の酸素原子の存在確率を、 $\varphi_A$ ,  $\varphi_B$ ,  $\varphi_C$  とすると、

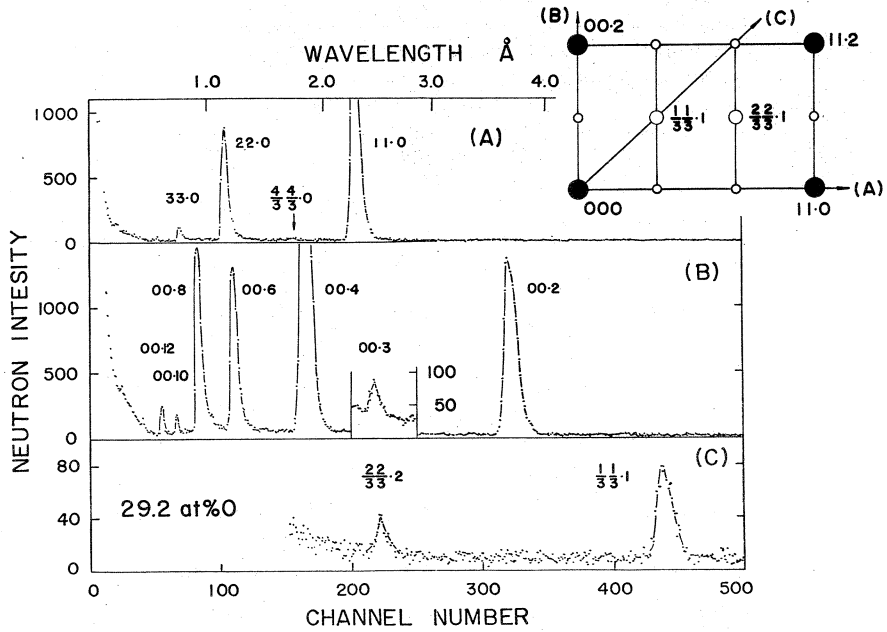


図1： Zr-29.2 at% O単結晶のTOFスペクトル。A, B, Cは右上に示した3つの逆格子方向に対応する。

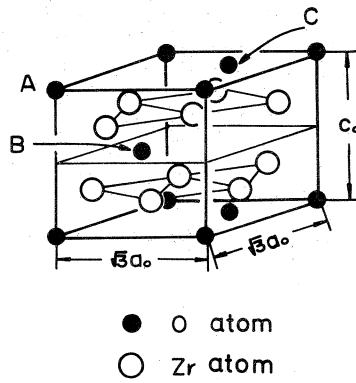


図2：  $\text{ZrO}_2$  型規則構造



表1 Zr - 29.2 at % Oの構造因子

指 数 $h k \cdot l$	構造因子 $\times 10^{-12}$ cm	
	$ F_{obs} $	$ F_{cal} $
0 0 · 2	3.06	2.78
0 0 · 4	5.40	5.55
0 0 · 6	2.93	2.78
0 0 · 8	6.14	5.55
0 0 · 10	3.07	2.78
1 1 · 0	5.03	5.55
2 2 · 0	5.23	5.55
3 3 · 0	4.65	5.55
0 0 · 3	0.38	0.37
$\frac{1}{3}\frac{1}{3} \cdot 1$	1.06	0.98
$\frac{2}{3}\frac{2}{3} \cdot 2$	0.30	0.16
$\frac{4}{3}\frac{4}{3} \cdot 0$	0.20	0.16

$\varphi_A = \varphi_B = 0.98$ ,  $\varphi_C = 0.62$ である。表1の  $F_{cal}$  はこの値を用いて求めたもので、多重反射を考慮したX線回折、並びに定常炉による中性子回折の結果と大体一致する。

## 参 考 文 献

- 1) 新村信雄, 富吉昇一, 渡辺昇, 木村一治; 核理研報告, 4 No. 2 (1972) 55

## II—5 Al と KBr 単結晶の消衰効果

金研, 核理研\* 富吉昇一・新村信雄\*・八代 勉

## § 1 序 論

単結晶の結晶構造解析で常に問題となるのは消衰効果の補正である。消衰効果の補正は通常試料の厚さ  $T$  を変えて  $T \rightarrow 0$  へ外捜して求めるか、あるいは入射線の波長  $\lambda$  を変えて  $\lambda \rightarrow 0$  へ外捜して求めるかいずれかの方法が用いられている。試料の厚さを変える方法は試料整形の過程で結晶のモザイクネスが変わるので、正確な補正の方法とはいえない。波長を変える方法は同一の試料について測定出来るので、前者に比べ正確な補正が可能な方法である。TOF法中性子回折では波長は散乱角を変えることにより簡単に換えられ、しかも連続的に広い波長領域にわたって換えられるので、消衰効果の補正には適した方法であろう。

最近、新村、他<sup>1)</sup>により TOF法に於ける KBr 単結晶の消衰効果の研究が行なわれたが、高次指数の回折線ほど消衰効果がきつという矛盾する結果が得られた。これは TOF法の場合、散乱角  $2\theta$  を変えたときの角度常数(あるいは Lorentz 因子)がはっきりしないために角度常数が消衰効果の中に含まれてしまったために起ったものと思われるが、角度常数を分離することが出来れば、消衰効果はかなりはっきりするのではないのではないかと考えられる。

TOF法単結晶中性子回折の場合の Bragg 反射の積分強度は次の式であらわされる。

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

$$I_k = C(\theta) \cdot i(\lambda) \cdot Q \cdot A(\lambda) \quad (2)$$

$$Q = |F|^2 \cdot e^{-2W} \cdot \lambda^4 / \sin^2 \theta \quad (3)$$

$I_k$  は動力学理論によりあらわされる強度で、 $Y$  は消衰効果の因子である。 $C(\theta)$  は散乱角を変えた場合に変る角度常数であり、 $i(\lambda)$  は入射中性子線の強度の波長分布であり、 $A(\lambda)$  は吸収因子である。 $Q$  は反射能をあらわす。TOF法の場合、通常の波長一定法とちがって、X線の Laue 反射と同じで(3)式のようにあらわされる。

Zachariazen<sup>2)</sup>によると、二次の消衰効果は、

$$Y = (1 + 2x)^{-\frac{1}{2}} \quad (4)$$

$$x = r \lambda^{-1} QT / \sqrt{1 + (r/\lambda g)^2} \quad (5)$$

のようにあらわされる。ここに  $r$  は完全結晶の球形 domain の半径,  $g$  はモザイクの拡がり,  $T$  は試料の厚さである。結局、波長の関数として  $Y$  の値が求まれば、 $Q$  の値を求めることができる。我々は  $Al$  と  $KBr$  について測定し、TOF法の場合の消衰効果が(4)式のような形にあらわされるかどうか検討を試みた。

## § 2 実験結果と論議

測定装置及び測定方法は文献1と同じである。 $Al$  の単結晶は円筒軸が  $[110]$  である  $10\text{ mm}$   $\phi$  の円筒状試料で、長さは  $20\text{ mm}$  である。 $KBr$  は文献1で用いたものと同じで  $7\text{ mm}$   $\phi$  の球状に近い試料である。

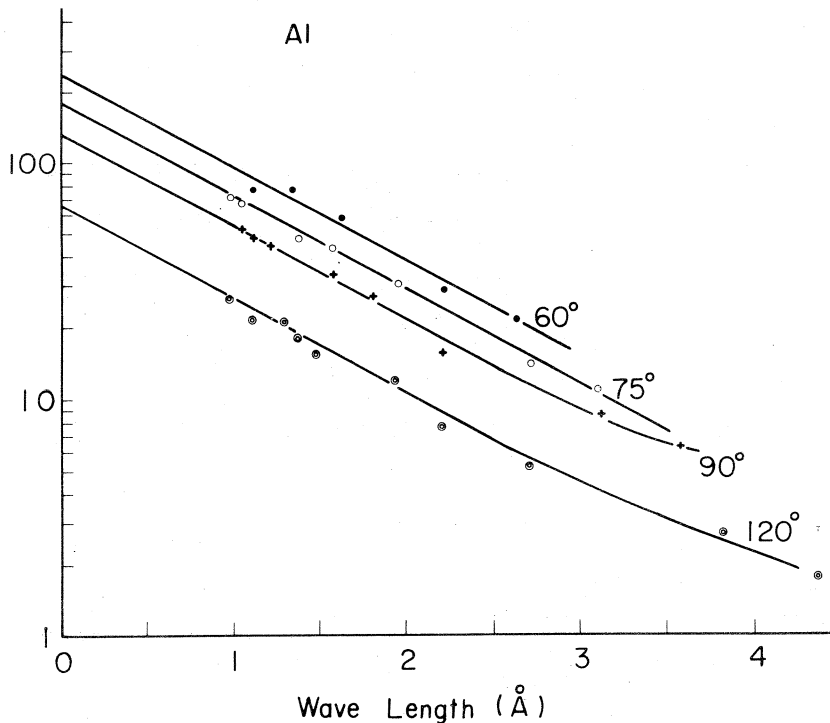


図1.  $Al$  の 100, 110, 111 面による Bragg 反射の強度 ( $I / i(\lambda) \cdot \lambda^4 \cdot |F|^2 \cdot e^{-2W}$ ) を各回折線に対して  $\log$  で plot したものの。

我々は角度常数  $C(\theta)$  を求めるために、 $Al$  の 100, 110, 111 面について、それぞれの散乱角において測定した。図 1 は測定結果で  $I/i(\lambda) \cdot \lambda^4 \cdot |F|^2 \cdot e^{-2W}$  の値を示す。 $Al$  の場合、吸収  $A(\lambda)$  は無視出来るから、これは結局  $Y \cdot C(\theta) / \sin^2 \theta$  の値を示している。 $\lambda \rightarrow 0$  で  $Y \rightarrow 1$  であるから  $\lambda = 0$  の値から  $C(\theta)$  の値を求めることが出来る。この図を見ると明らかなように、非常に良い近似で  $1 \text{ \AA} \sim 4 \text{ \AA}$  くらいまでにわたり対数表示で直線になっている。しかも散乱角が変わってもその勾配はほぼ一定である。もっとも、 $3 \text{ \AA}$  より波長が大きくなると、直線からのずれがみられる。直線部分を  $\lambda \rightarrow 0$  へ外挿して  $C(\theta)$  を求めると  $C(\theta)$  は  $\theta$  の関数として、 $C(\theta) \sim (\sin \theta)^{-\frac{1}{2} \sim -1}$  で近似される。 $C(\theta)$  が  $\theta$  により変るのは、分解能関数が Lorentz 因子からずれていることによるものと考えられる。

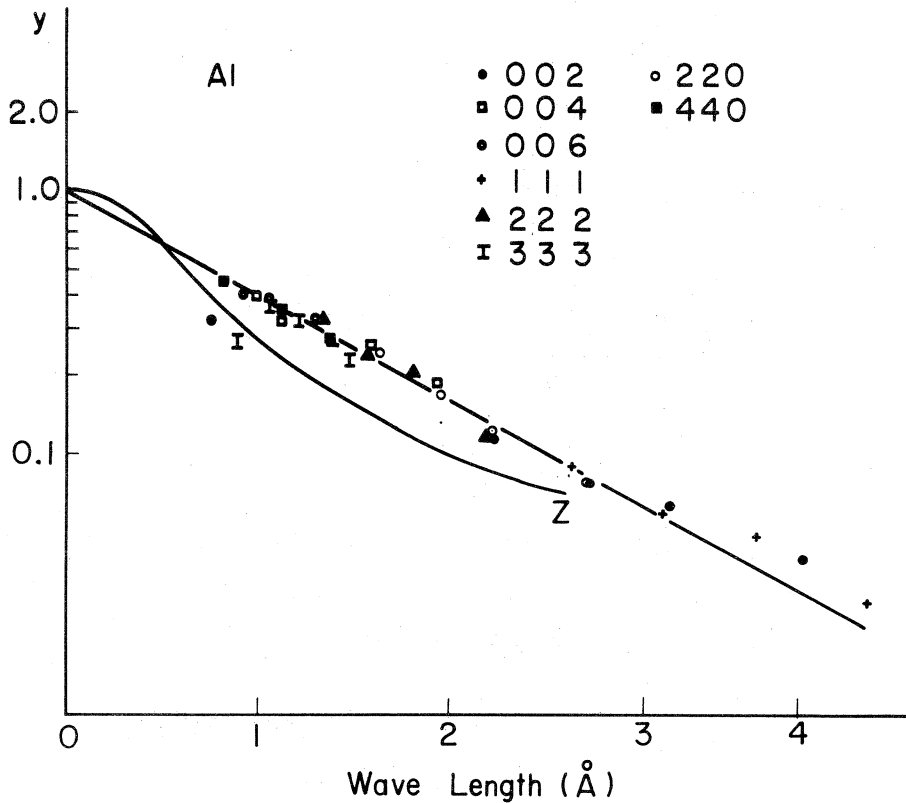


図 2.  $Al$  の消衰効果の波長依存性・曲線 Z は (4) 式を適当なパラメーターを入れて計算したものである。

図2は図1のそれぞれの散乱角での値を $\lambda = 0$ の値で規格化し、111, 200, 220, ... の回折線の波長依存性をあらわしたもので、消衰効果 $Y(\lambda)$ をあらわす。この場合も、ほぼすべての回折線に対して、ある直線にのっている。Alの場合各回折線がほぼ同じ直線にのるのが特徴である。図2のZは、式(4)の計算値が波長に対してどのように変るかを示したもので、適当に計算しやすいパラメーターを用いて計算したものである。(4)式がTOF法の場合に適用出来るかどうかは充分検討してみなければならぬ。

KBrについては111面のみの測定を行なった。この場合はAlと異って、奇数次の反射111, 333, ..., にくらべて偶数次222, 444, ..., の $|F|^2$ の値は11.4倍大きいので、消衰効果のきき方

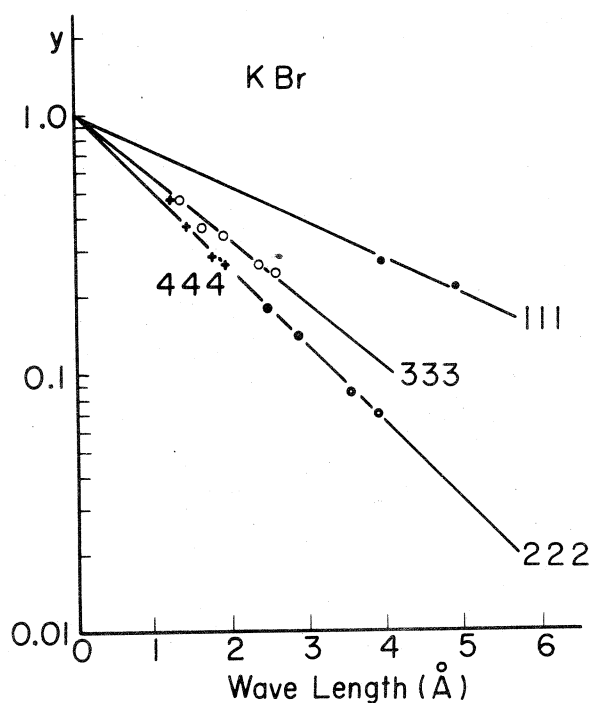


図3. KBrの消衰効果の波長依存性

もちがってくる。図3はAlの場合と同じ手続きで $c(\theta)$ を求め、規格化し、各回折線の消衰効果の波長依存性を示したものである。ただし吸収 $A(\lambda)$ は $e^{-\sigma \cdot \lambda}$ の形であらわされ本質的でないので、補正していない。KBrの場合も対数表示でほぼ直線であらわされるがAlの場合とことなり、勾配は各指数によりちがっている。そして $|F|^2$ の小さい奇数次の回折線は消衰効果が小さい。ここで $\lambda \rightarrow 0$ ですべての直線が1に集まることから $|F|^2$ の消衰効果を補正した値がほぼ正しく求められることがわかる。従って未知の構造解析の場合でも、いくつかの散乱角について測定し、適当な角度

常数で規格化し、それぞれの回折線の波長依存性を求め、 $\lambda \rightarrow 0$  へ外挿することにより消衰効果を補正した  $|F|^2$  の値を求めることが出来る。もし(4)式がTOF法の場合に適用できることが明らかになれば、代表的回折線だけでパラメーターを決定し、すべての回折線に対して消衰効果の補正を行なうことが出来る。

今後は色々な物質について測定し、直線性が一般的に成立するかどうかを検討してみたい。今回は  $\lambda > 1 \text{ \AA}$  の領域のみの測定であったが  $\lambda < 1 \text{ \AA}$  の場合も直線性が成立するかなどの研究を行なう予定である。

この研究に対して協力していただいた渡辺昇助教授はじめ核理研の方々に感謝いたします。

### 参 考 文 献

- 1) 新村信雄, 富吉昇一, 渡辺昇; 核理研研究報告 Vol 5 (1972) 88
- 2) W. H. Zachariasen; Acta Cryst. Vol 23 (1967) 558

## II-6 MnTiO<sub>3</sub> および MnGeO<sub>3</sub> (pyroxyne) の中性子常磁性散乱

核理研 渡辺 昇  
理学部物理\* 石川義和\*・都筑一雄\*

### 概 要

電子リニアックにより発生したパルス中性子を用いて中性子常磁性散乱を行なう方法をさらに改善し, MnTiO<sub>3</sub> および MnGeO<sub>3</sub> (pyroxyne) の測定を行ない, 磁気相互作用を求めた。MnGeO<sub>3</sub> に対する測定結果は  $J_1 = 0.203 \text{ meV}$ ,  $J_2 = 0.08 \text{ meV}$  で分子場近似による値とよい一致を示した。MnTiO<sub>3</sub> については, この物質が2次元的性質を示すところから, 最近接相互作用のみ考えると  $J_1 = 0.675 \text{ meV}$  となり, これは分子場近似を用いて常磁性キュリー温度より計算した  $1.0 \text{ meV}$  よりかなり小さい。面間の相互作用  $J_2$  を考慮すると  $J_1 \sim 0.64 \text{ meV}$ ,  $J_2 \sim 0.11 \text{ meV}$  が求められた。

### § 1 実験方法

すでに報告したごとく<sup>1)</sup>, 予備的測定装置による検討では, Mn 酸化物からの常磁性散乱に関しては, ほぼ 10 時間程度の測定時間で, 強度, エネルギー分解能, S/N ともに一応分析に十分なデータの得られることが分ったが, 問題点として 1 つには空気による散乱の影響が無視できないこと, もう 1 つは予備的装置であるため散乱角を自由に選ぶことが困難であることが指摘された。前者は特にエネルギー変化の小さい領域での測定精度に悪い影響を与え, 後者は散乱の  $Q$  依存性を調べるのに不便である。

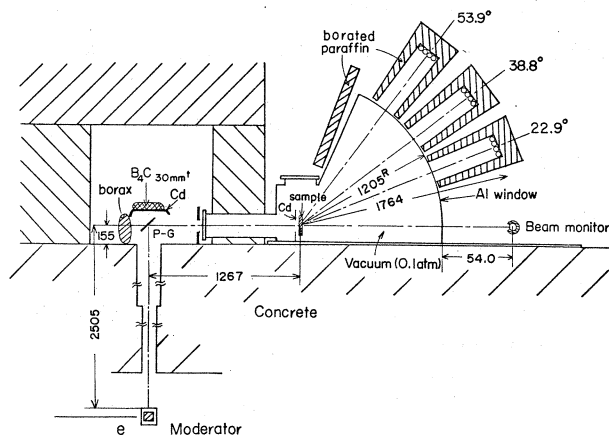


Fig. 1 : Block diagram of the spectrometer

以上の点を考慮し Fig. 1 に示す装置に改善を行なった。試料まわりの散乱槽が半径 1.2 m に亘り真空にできるようになっており、中性子カウンターバンクはとりあえず 3 系統任意の散乱角に設置できるようにした。散乱槽とカウンターバンクの間の窓には厚さ 2 mm の Al 板が用いられ、全散乱角がこの一枚の窓でカバーされている。モノクロメータ (パイロリティックグラファイト) のブラッグ角は  $2\theta_B = 90^\circ$  に固定である。単色化入射中性子スペクトルは Fig. 4 の一番上に示されており、002 反射が  $E_0 = 3.635 \text{ meV}$  ( $\lambda_0 = 4.744 \text{ \AA}$ ) の、004 反射が  $E_0 = 14.5 \text{ meV}$  の入射中性子を与える。

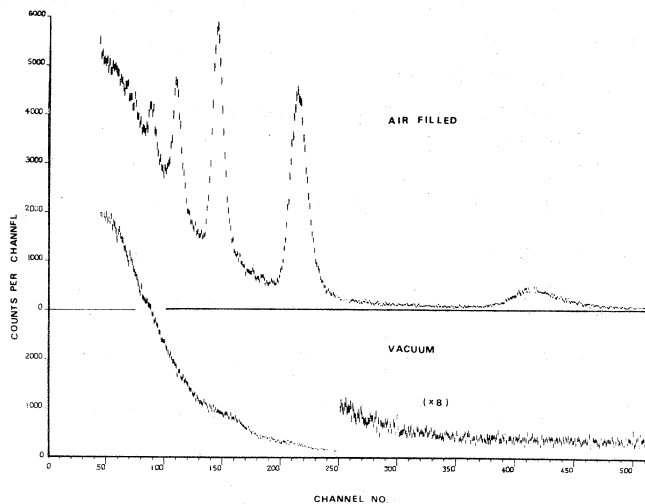


Fig. 2 : Effect of air scattering with and without air



Fig. 2 は散乱槽に一気圧の空気が存在する時と真空になった時の TOF スペクトルを示したものであるが、図から明らかなごとく、真空にすることにより空気による散乱は完全に除去されている。

## § 2 実験結果と議論

### (1) $\text{MnGeO}_3$ (pyroxyne)

pyroxyne 型  $\text{MnGeO}_3$  について室温で測定された散乱強度をエネルギー変化の 2 乗に対し semi-

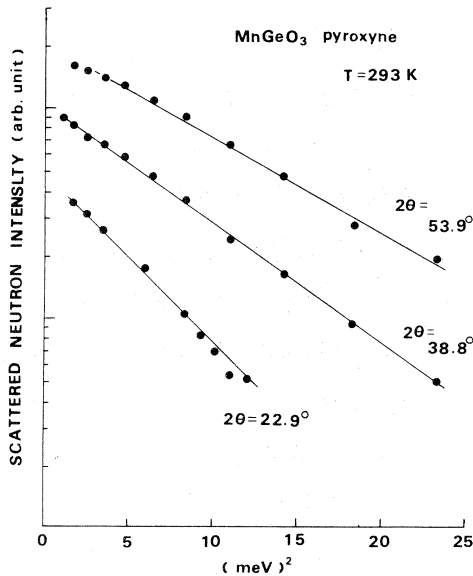


Fig. 3 : Semi-logarithmic plot of the scattered neutron intensity against the square of the energy transfer for  $\text{MnGeO}_3$  (pyroxyne) at room temperature.

log plot したものを Fig. 3 に示す。図から明か

なごとく  $\langle \omega^2 \rangle$  すなわち勾配は明らかに  $Q_0$

依存を示している。この物質は第 2 近接磁気

相互作用  $J_2$  が無視できないと報告されてい

るが<sup>2)</sup>, Fig. 3 のデータから  $J_1, J_2$  を分離

決定してやらねばならない。この物質の  $T_N$

は 10 ~ 20 K で、室温では十分高温近似が成

立していると考えられるので、 $Q$  の関数とし

て  $\langle \omega^2 \rangle$  と  $J_i$  を関係づける De Gennes の

式を用い、 $Q$  の値としては  $Q_0$  ではなく、そ

れぞれの散乱角での平均の  $Q(\bar{Q})$  を用いて

連立方程式を解くと  $J_1, J_2$  を求めることが

できる。但し上の計算では近接イオン間距離

$a_i$  はサイトによりわずかつ異なるが重み

平均により  $a_1 = 3.225 \text{ \AA}$ ,  $a_2 = 5.034 \text{ \AA}$  と

とし、また最近接イオン数は  $Z_1 = 4$ , 第 2

近似イオン数は  $Z_2 = 3.5$  である。また第 2 近似でスピンの向きが平行なイオン間に働く相互作用  $J_2'$  は  $J_2 = -J_2'$  として取扱った。

$J_1 = 0.203 \text{ meV}$ ,  $J_2 = 0.08 \text{ meV}$  が得られるが、この値は中性子回折、磁気測定、分子場近似による P. Herpin 等<sup>2)</sup> の結果  $J_1 = 0.22 \text{ meV}$ ,  $J_2 = 0.01 \text{ meV}$  と非常によく一致しており、この物質に対しては分子場近似はかなりよく適用できることを示している。

### (2) $\text{MnTiO}_3$

すでに報告した如く<sup>1)</sup>,  $\text{MnTiO}_3$  に関する  $T = 403 \text{ K}$ ,  $Q_0 = 0.91 \text{ \AA}^{-1}$  での予備的測定では、 $J_1$  の測定結果が分子場近似の結果に比べ、かなり小さい値を示した。そこでこの物質について

種々の  $Q_0$  に対しさらに測定を行なった。

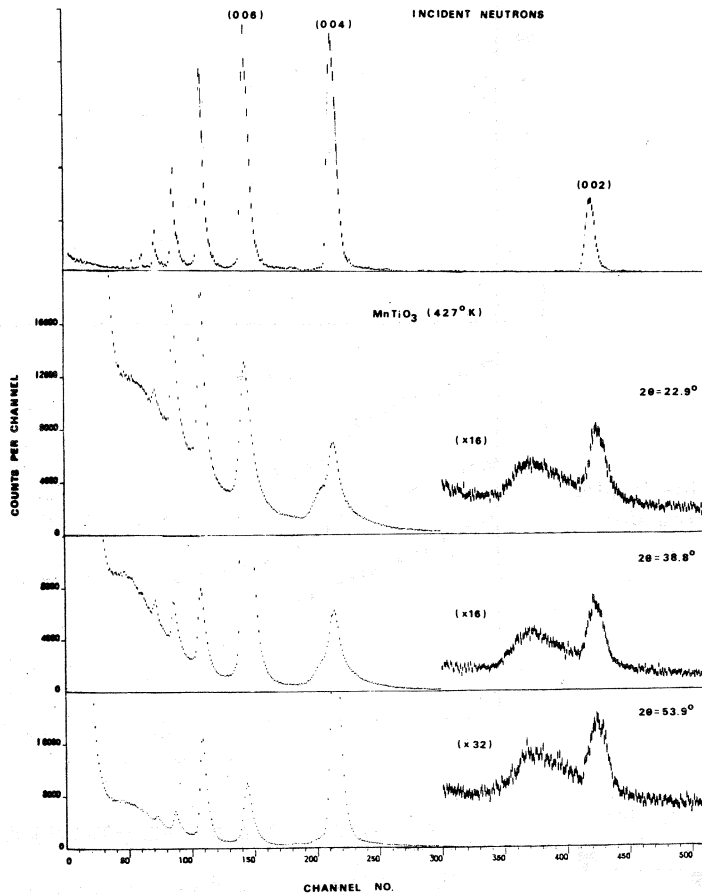


Fig. 4 : TOF raw spectra for  $\text{MnTiO}_3$  at  $T = 423$  K for various scattering angles. Upper spectrum shows incident neutrons.

Fig.4 は  $T = 423$  K での測定結果で、種々の散乱角における TOF スペクトルが入射スペクトルとともに示してある。パイロリティックグラファイトの 004 反射すなわち  $E_0 = 14.5$  meV 入射にかゝわる常磁性散乱も非干渉性弾性散乱ピークと十分分離して観測されており、その計数率は著しく大であることが注目される。Fig.5 は散乱強度のエネルギー変化の 2 乗に対する semi-log plot であるが、 $Q_0$  を変えても勾配に殆んど変化がみられない。上の 2 つのデータは  $E_0 = E_0 = 14.5$  meV 入射に関するもので、さらに高い  $Q$  でのデータを与えるものであるが、分解能補正を行なうと、 $E_0 = 3.635$  meV 入射にかゝわるデータと同じ勾配を与えており、 $\langle \omega^2 \rangle$  の  $Q$  依存は殆んど見られなかった。

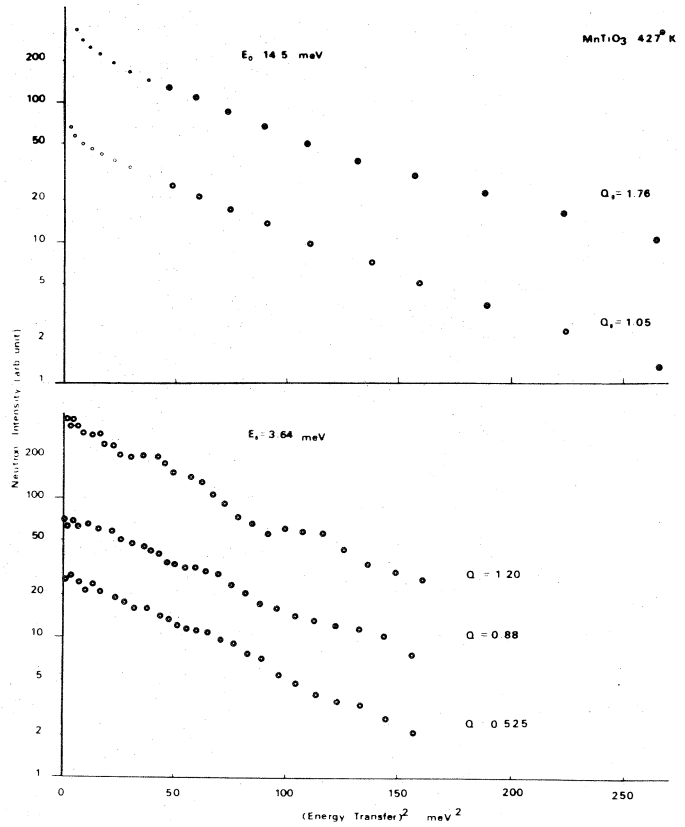


Fig. 5 :  
Semi - logarithmic plot  
of the energy transfer  
for Mn Ti O<sub>3</sub> at  
T = 423 K.

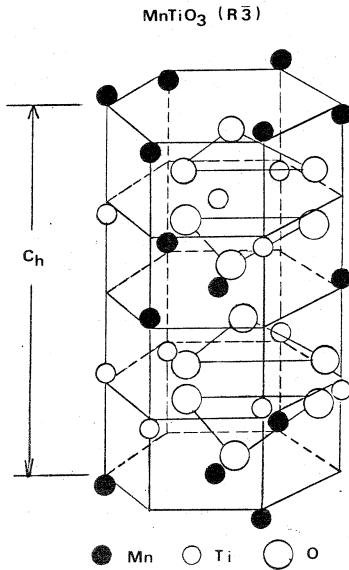


Fig. 6 : Crystal structure of  
Mn Ti O<sub>3</sub>

その理由として短距離秩序の影響の可能性も考えられるが、これは後に述べる事実により否定される。MnTiO<sub>3</sub>はFig. 6に示すような結晶構造をしており、T<sub>N</sub>は約67 Kでこの温度以上でMn<sup>2+</sup>を含む面相互間の長距離秩序はなくなるが、T = 2 T<sub>N</sub>程度まで面内の長距離秩序は残っている可能性があり、従ってT = 423 Kではまだ面内短距離秩序が残っており、高温近似が成立しないかも知れないと云うことである。この場合逆格子空間では点ではなくロッドとなり粉末試料ではあるQより大なる全Q空間でこの影響が現れることになる。このことについて検討するため室温での測定を実施した。Fig. 7はT = 293 KのデータをT = 423 Kの結果と比較して示したものであるが、図から明らかな如く両者の間に殆んど変化は見られなかった。

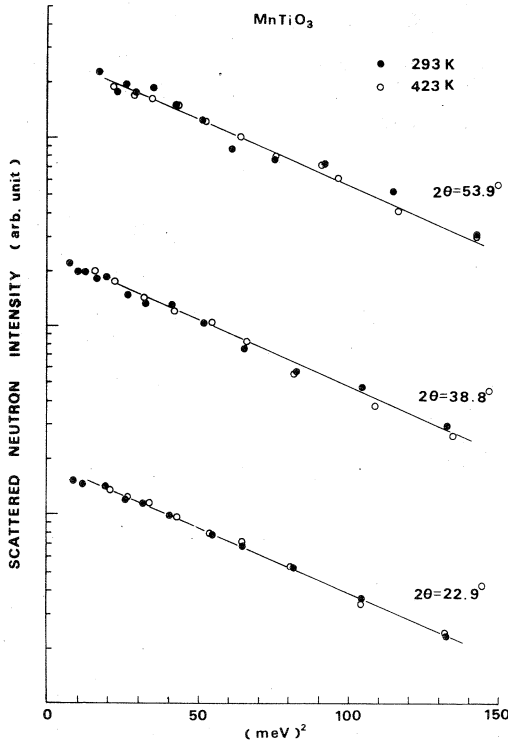


Fig. 7 : Comparison of the scattered spectra for Mn TiO<sub>3</sub> at different temperature.

と  $J_1 = 0.675 \text{ meV}$  となる。一方分子場近似を用いて、この物質のネール温度  $T_N$  と常磁性キュリー温度  $\theta$  から  $J_1$  を評価すると、 $0.31 \text{ meV} < J_1 < 1.0 \text{ meV}$  となり、上記の結果と矛盾しないが、上限値よりかなり小さい事は、最近接相互作用以外もかなり大きい事を示唆している。

次に面間の相互作用（酸素2層をへだてる）を考慮する。この相互作用としては、3種類あるが、近似的にすべて等しいと仮定して  $\bar{J}_2$  とおくと、常磁性キュリー温度  $\theta$  と、常磁性散乱の2次のモーメント  $\hbar^2 \langle \omega^2 \rangle$  は

$$3 k_B \theta = 2 s (s + 1) (3 J_1 + 10 \bar{J}_2)$$

$$3 \hbar^2 \langle \omega^2 \rangle = 8 s (s + 1) (3 J_1^2 + 10 \bar{J}_2^2)$$

となる。実験値を用いて  $J_1, \bar{J}_2$  を分離すれば、 $J_1 \sim 0.64 \text{ meV}$ 、 $\bar{J}_2 \sim 0.11 \text{ meV}$  が得られた。

もし短距離秩序の影響が強いたら、低温でこの影響はより顕著に現れるはずである。このことは室温での中性子回折で短距離秩序の見られなかったと云う報告や、磁気測定の結果が非常によく Curie-Weiss 則に従っていると云う事実とも一致しており、短距離秩序の存在を考えることは困難である。

一方 MnTiO<sub>3</sub> のように磁気相互作用の大きい物質では、常磁性散乱によるエネルギー変化が大きく、この測定で散乱角の最も小さい  $2\theta_s = 28.8^\circ$  の場合 ( $Q_0 = 0.525 \text{ \AA}^{-1}$ ) でも、 $\hbar^2 \omega^2 = 30 (\text{meV})^2$  ですので  $Q = 1.02 \text{ \AA}^{-1}$  となり、 $\hbar \omega > \pi$  なる条件を満足しており、 $\langle \omega^2 \rangle$  は一定値になっていると考えられる。したがって Fig. 5 のデータが十分高温近似を満足しているとし、また、この物質では最近接相互作用だけが重要であるとしてその  $J_1$  を求める

## 参 考 文 献

- 1) 渡辺, 石川, 都筑; 核理研報告 Vol. 5, № 2, (1972) 106
- 2) H. Perpin et al., ; phys. stat. sol.(b) 14 (1971) 71

## II-7 溶液中の高分子鎖の動力学

非水研 核理研\* 安川民男・渡辺 昇\*

## 1 は し が き

線状高分子の溶液物性あるいはマクロラジカルの反応性を明らかにするためには、個々の分子全体としての運動だけでなく、その重心のまわりでの各セグメントのミクロブラウン運動についての詳しい知見が必要とされるが、これまで有効な実験手段がなかった。たとえば、光散乱法ではその波長がランダムコイル状の個々の分子の直径より大きいためセグメント運動の研究には不適當であり、X線では散乱前後のエネルギー変化を検出するのが困難である。このため中性子散乱法が注目されるようになってきている。この目的のためにはパルス状単色中性子による  $S(Q, \omega)$  の測定が最有効と考えられるので、パイロリティック・グラファイトにより単色化した冷中性子を用いていくつかの実験を予備的に行なった。

## 2 実 験

重合度 1600～1800 のポリスチレンの 5w% 二硫化炭素溶液を肉厚 0.5 mm アルミ板製の試料容器 (15 × 10 × 0.3 mm) に入れ室温・空气中で中性子散乱実験を行なった。比較のため厚さ 0.4 mm の同質ポリスチレンフィルムについて同一条件で測定を行なった。単色中性子源としては、パルス線源の垂直上方約 2.7 m のところに置かれたパイロリティック・グラファイトよりブラッグ反射でえられる 4.744 Å 冷中性子を用いた。散乱中性子の計測は  $BF_3$  カウンター (2"φ × 20") により、 $2\theta = 22.9^\circ$ ,  $38.8^\circ$  および  $53.9^\circ$  について行なった (測定装置の詳細は別報に記述)。

## 3 結果と考察

図 1 に  $2\theta = 22.9^\circ$  での 5w% 二硫化炭素溶液およびフィルムについてえられた中性子散乱スペクトルを示す。チャンネル巾 16  $\mu$ s であるが、430 チャンネル付近の 4 Å 入射中性子の準弾性散乱ピークのほかに 220, 150, 110 …… チャンネル付近に  $\lambda/2$ ,  $\lambda/3$  の散乱ピークがみられる。いずれも TOF スペクトルであり、エネルギー移動が一般に小さいため短波長中性子による散乱ピークでは溶液とフィルムではあまり顕著な差はみられないが、4.744 Å 中性子の散乱スペクトルでは両

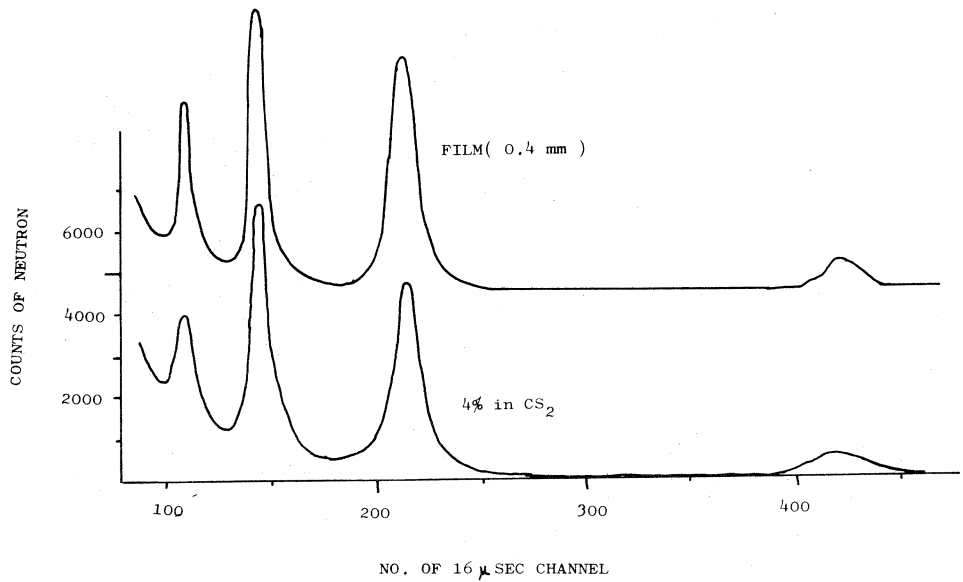


Fig. 1. Neutron scattering spectra from 4w% polystyrene in CS<sub>2</sub> and polystyrene film (0.4 mm); observed at room temperature,  $2\theta = 22.9^\circ$

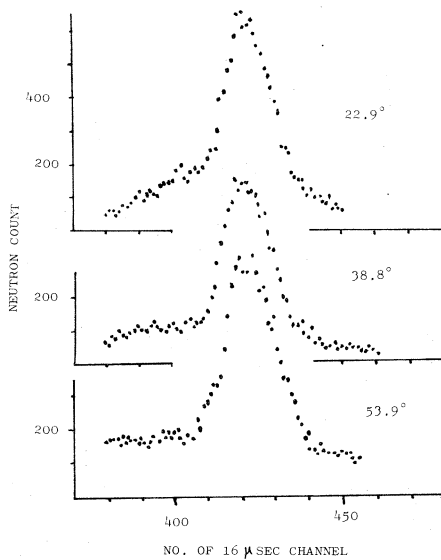


Fig. 2. Quasi-elastic scattering spectra from polystyrene film of 4 Å neutron.

者の間に大きな差がみられる。390~410チャンネルの広巾のピークは、パイロリテック・グラフライト-試料周辺を排気しなかったための空気による散乱によるものであり、溶液によるものではポリスチレンの散乱ピークが弱いため相対的に大きくなっている。図2, 3に430チャンネル付近の拡大したスペクトルを $2\theta = 22.9^\circ$ ,  $38.8^\circ$ および $53.9^\circ$ について示す。フィルム、溶液とも散乱角の増大とともにピークはシャープになる傾向がみられるが、溶液系ではフィルムにくらべ明らかにピーク巾が広がっている。

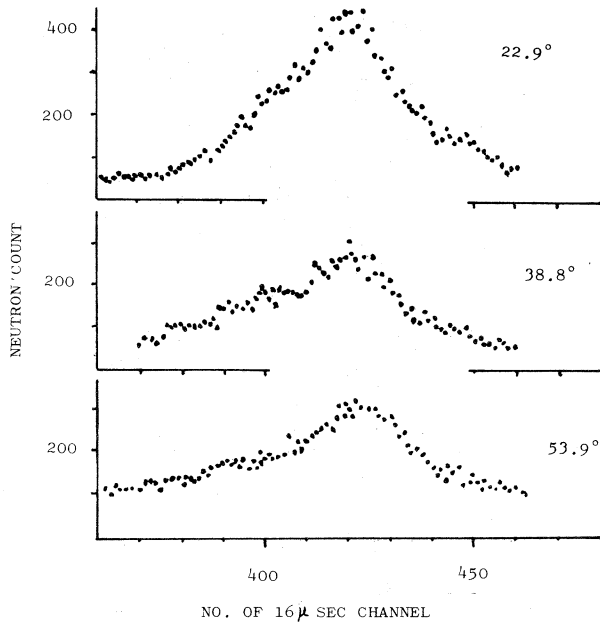


Fig. 3. Quasi-elastic scattering spectra from 5 w% polystyrene solution in CS<sub>2</sub> of 4 Å neutron.

屈曲性のある線状高分子鎖では  $S(Q, \omega)$  を決定する時空間相関函数  $G(r, t)$  は

$$G(r, t) = \sum_{i,j} \sum \langle \int dR \cdot \delta(r + r_i(t) - r_j(t)) q(R, t | R_0) \rangle$$

ここで  $q(R, t | R_0)$  は分子鎖の運動を決める拡散方程式の green 函数であり、モデルとして最も簡単な各セグメント間の流体力学的相互作用を無視した場合でも  $S(Q, \omega)$  に補正項としてセグメントの内部運動を表わす項が入ってくる。

$$S(Q, \omega) = P_0(x) \frac{D_G Q^2}{\omega^2 + (D_G Q^2)^2} + P_1(x) \sum \frac{2(\kappa/\xi) \lambda_n + D_G K^2}{\lambda_n^2 \{ \omega^2 + ((2\kappa/\xi) \lambda_n + D_G K^2)^2 \}} + \dots$$

ここで  $\kappa$  はセグメント間のバネ定数、 $\xi$  はセグメントの摩擦係数、 $D_G$  は重心の拡散係数、 $\lambda_n$  分子鎖の  $n$  番目のモードの振動を表わす定数。

現実には高分子鎖のブラウン運動において各セグメント間の相互作用が重要な役割をしていることを考えると、その内部運動の研究にはいろいろの重合度の試料についての精度の高い実験が必要であると思われる。



## Ⅱ-8 TOF フィルター法による単結晶 の中性子非弾性散乱

金 研 富吉昇一・渡辺 浩  
核理研\* 渡辺 昇\*・新村信雄\*

### § 1 序 論

中性子非弾性散乱の測定法の1つとして、TOF逆フィルター法は、以前からパルス中性子源との組合せに於て良く用いられてきた方法である<sup>1)</sup>。この非干渉性散乱断面積の非常に大きい水素に着目して結晶に含まれる水素原子の振動の局在モードなどを調べるために用いられている方法である。東北大ライナックでもBeOフィルターを用いてNH<sub>4</sub>Cl その他の有機物<sup>2)</sup>の水素を含む分子の振動に関する研究が早くから行なわれてきている。ところで非干渉性散乱断面積が大きい物質にこの方法が適用できるかどうかは興味がある問題である。実際にTOFフィルター法を用いてphonon, magnonなどの干渉性散乱を測定した例はない。TOFフィルター法では、白色中性子が当るので、非弾性散乱と共に、Bragg散乱の寄与があり、フィルターの漏れを考えると、粉末試料の場合には非弾性散乱の測定はほとんど不可能であるが、単結晶試料の場合には、Bragg散乱が混入しても、非弾性散乱のピークと重ならない限り分離でき、通常非弾性散乱測定装置の場合と同じように、phonon, magnonなどの分散関係の測定が可能であると考えられる<sup>3)</sup>。

電子ライナックなどのパルス中性子源を用いるTOFフィルター法の特徴は、これまで水素を含む分子の実験に於て度々示されたように200 meV程度の高いエネルギーまで非常にS/Nの良い条件で、しかも高分解能(第1 flight pathが長い)で測定することが可能なことであろう。原子炉を用いる場合、高いエネルギーのスピン波等の測定は非常に困難とされており、二、三の例を除けば、100 meV以上まで測定された例はない。従って、TOFフィルター法を用いてスピン波などの高いエネルギー状態の研究を行なうことは非常に重要な意味をもつものと考えられる。

図1は逆格子空間に於けるTOFフィルター法の場合の散乱条件を示す。スピン波等と中性子とのエネルギーとモーメントの保存則から、逆格子点のまわりに、ある定められた散乱角に対してscattering surfaceが描かれる。 $\mathbf{k}$ は入射中性子の波数ベクトルであり(パルスの白色中性子であるから時間と共に長さが変わる)、 $\mathbf{k}'$ は散乱中性子の波数ベクトルである。フィルター法の場合、

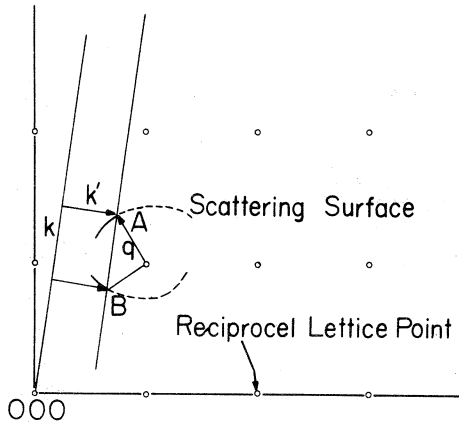


図1. 逆格子空間に於ける TOF フィルター法の散乱条件,  $\mathbf{k}$  は入射中性子線の波数ベクトルで  $\mathbf{k}'$  は散乱中性子の波数ベクトルである。フィルター cut-off 以下の中性子が検出器に達することが出来る。

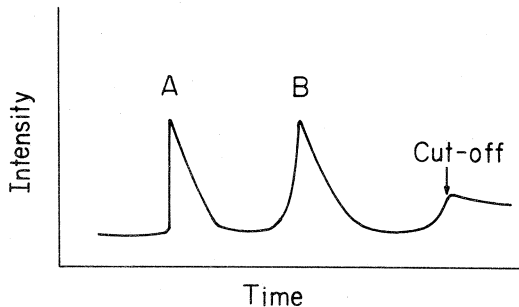


図2. 図1の場合の TOF スペクトルを示す。 $\mathbf{k} > \mathbf{k}'_{\text{cut-off}}$  で scattering surface に近づく A の場合は鋭い立ち上りになるが,  $\mathbf{k}' < \mathbf{k}'_{\text{cut-off}}$  で scattering surface に近づく B の場合は, 立ち上りが悪くなる。TOF フィルター法では A 型, B 型の二つの種類のピークが考えられる。

$\mathbf{k}'$  の長さは cut-off エネルギーにより定められていて,  $\mathbf{k}'_{\text{cut-off}}$  以下のものだけが検出器に達することが出来る。従って,  $\mathbf{k}'_{\text{cut-off}}$  と, scattering surface が交る A 点, B 点で散乱ピークが現われる。A と B の違いは, 時間と共に  $\mathbf{k}$  の長さが短くなってゆくにつれて, scattering surface と  $\mathbf{k}'_{\text{cut-off}}$  の交点で,  $\mathbf{k}' > \mathbf{k}'_{\text{cut-off}}$  から交わるか, その逆で交るかの違いによるものであり, 図2に示す時間スペクトルは, A と B の二つの型のピークになる。TOF フィルター法はバンドフィルターでありながら, フィルターの立ち上りがするどいため, 単結晶の場合,  $\mathbf{k}'_{\text{cut-off}}$  の線上にそって, エネルギーとモーメントの関係のはっきりした, するどいピークが観測されるのが特徴であろう。

## §2 実験装置及び実験結果

図3に実験装置の概略図を示す。以前から用いられていた粉末用 TOF フィルター装置と本質的に同じ装置である<sup>1)</sup>。主な違いは, 試料が単結晶であり, 試料の大きさが小さいのでフィルターの断面積を  $\frac{1}{4}$  ( $50 \times 150 \text{ mm}^2$ ) に小さくした点である。散乱角は  $90^\circ$  に設定した。フィルターは焼結した BeO であり, その total の厚さは  $15 \text{ cm}$  である。

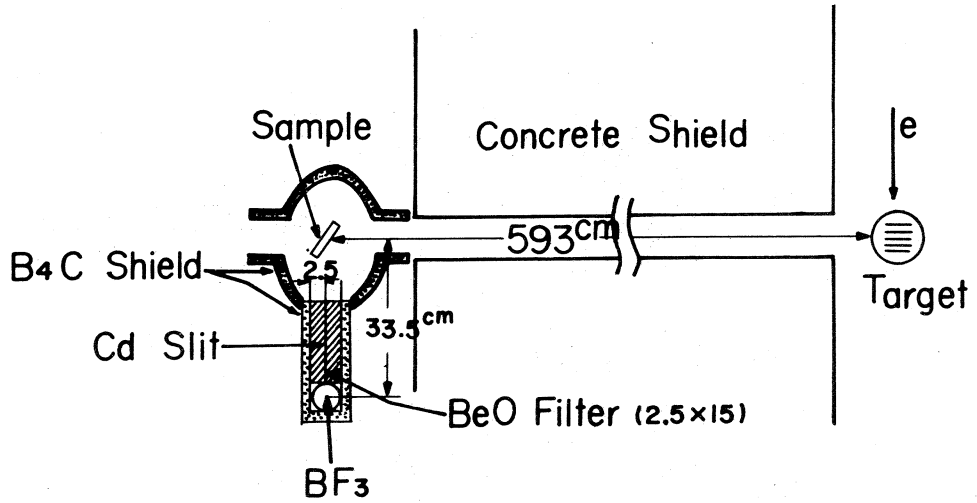


図3. 測定装置の概略図，散乱角は $90^\circ$ である。

我々は横方向のモーメントの分解能を良くするために、横方向は $25\text{ mm}$ おきにCdスリットを入れ、スリットの長さは $250\text{ mm}$ とした。また縦方向は $50\text{ mm}$ おきにスリットを入れた。横方向のモーメントの分解能は $6^\circ$ である（単結晶用スペクトロメーターとしてはこの程度の分解能は不十分で $30'$ 程度まで良くすることが望まれる）。

BeOフィルターのcut-offエネルギーは、 $3.65\text{ meV}$ である。これはcross sectionの立ち上りのエネルギーである。BeOの場合、cut-offの立ち上りは構造をもっていて、cross sectionが2桁大きくなる点のエネルギーは、 $4.2\text{ meV}$ 程度である。従ってtotalの立ち上がりがエネルギー分解能にきくものとするれば、このフィルターの立ち上りのエネルギー分解能は $0.6\text{ meV}$ 程度と考えてよいであろう。

他方、実際の測定ピークの立ち上りには、モダレーターによるパルス中性子のburstの波形を考慮しなければならない。これは良く知られたノコギリ歯状に似た形である。フィルタースペクトロメーターの分解能関数はノコギリ歯状であり、従って、totalの分解能関数はノコギリ歯状となる。よって、立ち上りを問題とする限り、二つ分解能関数の重ね合せは立ち上りの分解能をそれほど下げないので、エネルギー分解能はそれほど悪くならない。

銅単結晶は厚さ $1\text{ cm}$ 、高さ $10\text{ cm}$ 、巾 $3\text{ cm}$ で $[110]$ 軸を立てて使用した。角度の精度は $1^\circ$ 以内である。図4は、銅の測定結果である。この測定では、散乱角 $90^\circ$ の場合(100)面によるBragg反射による弾性散乱が現われるように結晶の角度を設定した。図中に200, 400, 600と示したピークはBragg反射によるelastic peakでフィルターにより $1/1000$ 程度に強度は減少するけれども

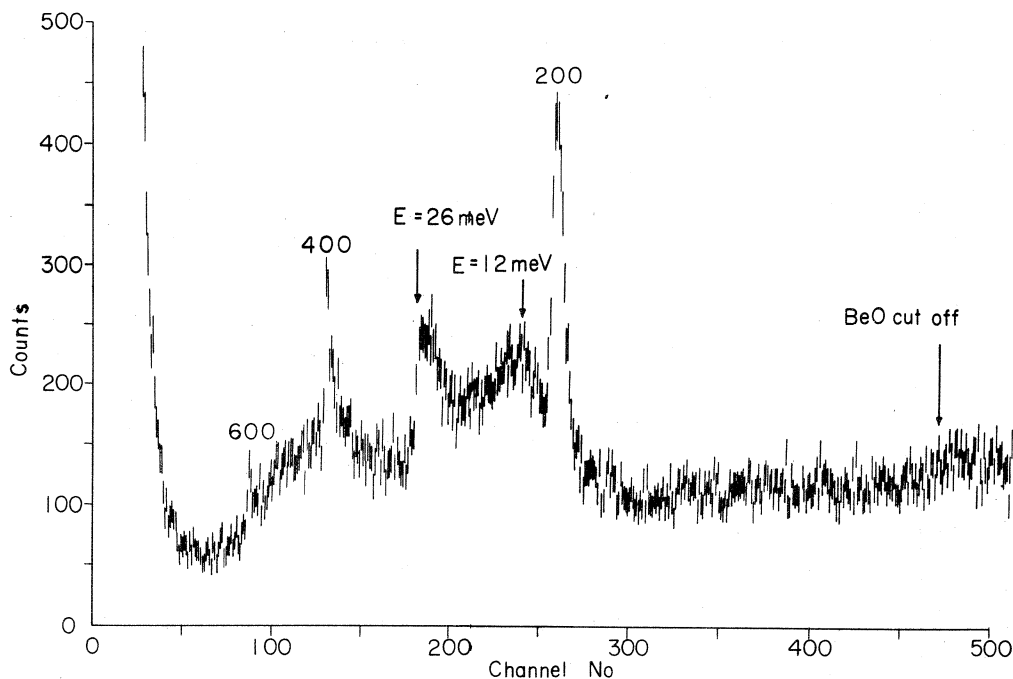


図4. 銅単結晶の phonon の測定, 200, 400, 600 と示したのは Bragg 反射でフィルターで完全に  
取り除けなかったために現われたものである。12meV, 26meV と示したのは, phonon  
によるピークで 12meV の方は B 型のピーク, 26meV の方は A 型のピークである。

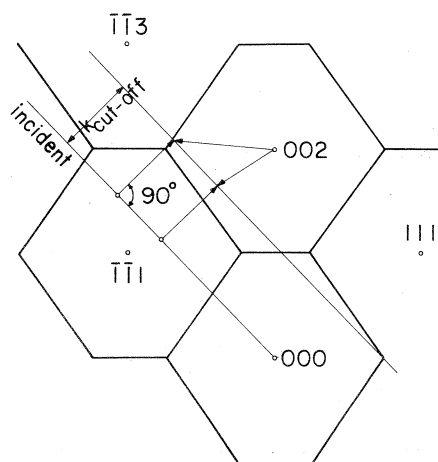


図5. 図4の場合の逆格子空間の作図

まだかなり強いことを示している。この setting で  $\Delta E = 26 \text{ meV}$ , 及び  $12 \text{ meV}$  に phonon によるピークが見出された。逆格子空間でのこの散乱の setting を図5に示す。phonon の  $\mathbf{q}$  ベクトルを求めると,  $\Delta E = 26 \text{ meV}$  のピークは,  $\mathbf{q} \parallel [110]$  方向で  $T_2$  mode に当り,  $\Delta E = 12 \text{ meV}$  のピークはおおよそ  $[111]$  方向で  $T$  mode に当る。これらの測定値は  $\mathbf{q}$  ベクトルが, 対称軸の方向からわずかずれているが, Svensson et al.<sup>4)</sup> の三軸分光器の銅の phonon の dispersion curve の測定結果と  $\pm 1 \text{ meV}$  の精度で一致している。

純鉄の単結晶は金属材料技術研究所, 武内朋之氏の

御好意によりゆずり受けたもので、strain annealの方法により成長させたものである。1 mm厚、巾40 mm、高さ15 cmのもの四枚を平行に重ね合わせて、1つの単結晶の試料とした。結晶の重ね合わせには光像法を用い、角度精度は $\pm 1^\circ$ 以内ですべての軸が一致しているものと考えられる。図6

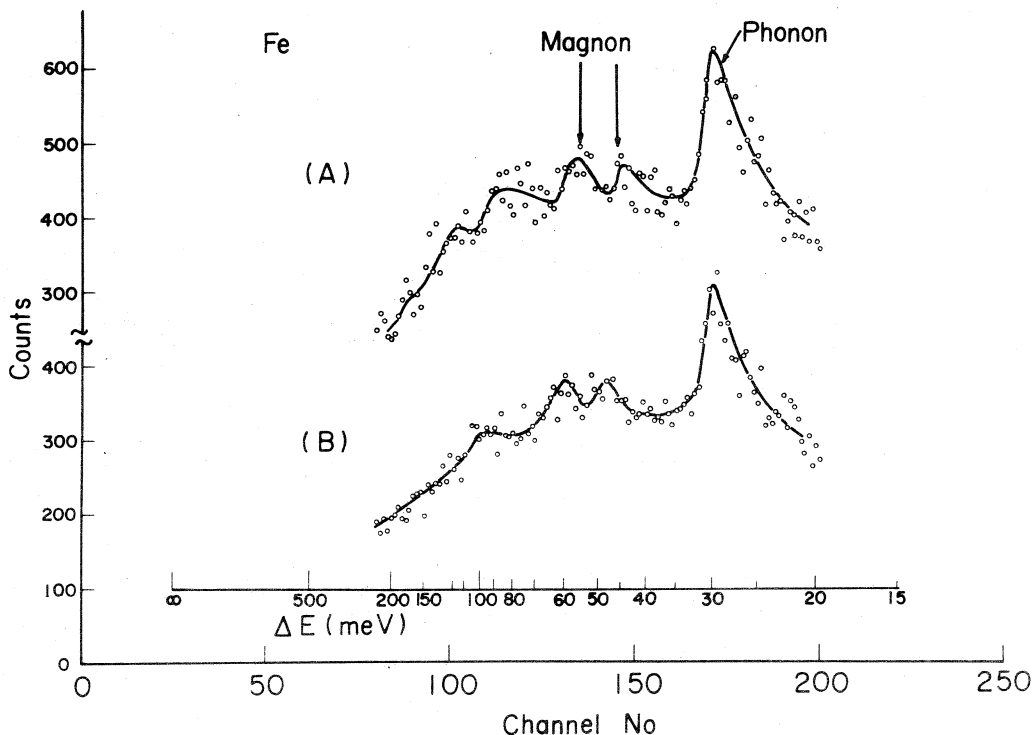


図6. 鉄単結晶の測定結果、AはBに対して結晶を $2^\circ$ 回転して測定したものである。

は $[1\ 10]$  逆格子面に於ける $1\ 1\ 2$  zoneのスピンの測定結果である。A, Bは結晶の角度を $2^\circ$ 回転して測定したものである。 $\Delta E = 30$  meVに現われている大きいピークはphononによるものである。 $\Delta E = 45$  meVと60 meV附近にある小さいピークはスピン波によるものと考えられる。結晶を $2^\circ$ 回転した場合、お互のピークの位置が少しずれていることがわかる。逆格子空間での作図を図7に示す。測定したスピンの $E(\mathbf{q})$ の値はエネルギーの $\mathbf{q}$ による異方性がないとすると、Shirane et al.<sup>5)</sup>の鉄のスピンの測定結果とほぼ一致する。100 meV以上の所にピークがあるように思われるが、統計が悪くはっきりしたことはわからない。これらの測定の後、BeOフィルターを取り除き、Bragg反射のもれの可能性を調べたが、エネルギーの低い3つのピークの所には、Bragg反射はみられなかった。スピン波のピークがそれほどシャープでないのは、単結晶が4

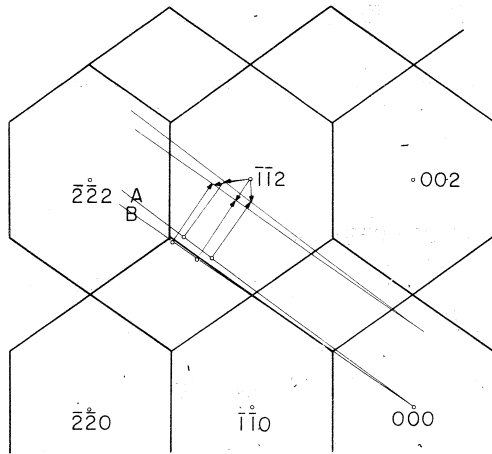


図7. 図6の場合の逆格子空間での作図, AとBの2回の測定の場合について示した。

と非常に良く一致することが示され、この測定方法によっても干渉性非弾性散乱の測定がかなりの良い精度で行なえることが明らかになった。TOF フィルター法の特徴は crystal analyser 法と同じように、入射線として白色熱中性子線を用いるので、入射中性子線の波長分布の高い所、すなわち  $1 \text{ \AA}$  より波長の短いところに於ても、比較的高い計数率で測定が可能であることであろう。鉄単結晶の場合、 $60 \text{ meV}$  程度のスピン波を測定することが出来たが、三軸分光器を用いる場合、 $50 \text{ meV}$  以上のエネルギーの測定は high flux reactor でしか測定出来ないのも、弱い線源でも測定出来る TOF フィルター法は、高いエネルギーの非弾性散乱の研究に非常に適した方法であると考えられる。

この方法では、チヨッパーなどの TOF スペクトロメーターと同じように、constant-Q, constant-E などの scan が出来ないのが欠点である。任意の  $q$  にそって測定するためには従って、非常に多くの散乱角にカウンターを設置して、逆格子空間をくまなくうめつくす方法しか取れない。

TOF フィルター法では検出器部分が比較的簡素であるので、色々な散乱角に多くのカウンターを置くことが可能である。

この研究に対して色々な御援助をして下さった東北大核理研の方々に感謝いたします。また、大きい純鉄の単結晶を提供して下さいました金属材料技術研究所、武内朋之氏に感謝いたします。

枚の重ね合せで、モザイクが非常に良くないことが大きい原因であると思われる。もう1つの原因は、モーメントの分解能が悪いために、鉄のスピン波のような立ち上りの激しい dispersion curve の場合には、わずかの  $q$  の変化に対して、エネルギーが大きく変りピークがぼけたと考えられる。モザイクの良い大きい結晶を用いれば、可成高いエネルギーまでこの方法を用いて測定出来るであろう。

### § 3 論 議

TOF フィルター法による銅単結晶の phonon の測定結果は以前測定された三軸分光器の結果

## 参 考 文 献

- 1) A. Bajorek, et al. ; Proc. Symposium on Inelastic Scattering of Neutrons (IAEA, Vienna, 1965 ) Vol II, P519
- 2) 木村一治他 ; 核理研研究報告 Vol 2 (1969) 89
- 3) S. Tomiyoshi ; J. Phys. Soc. Japan Vol 27 (1969) 1694
- 4) E. C. Svensson, B. N. Brockhause, and J. M. Rowe ; Phys. Rev. Vol 155 (1967) 619
- 5) G. Shirane, V. J. Minkiewicz, and R. Nathans ; J. app. Phys. Vol 39 (1968) 383

## II-9 FeSb の電子状態

金 研 八代 勉・富吉昇一・渡辺 浩

## § 1 目 的

FeSbはNiAs型の金属間化合物で、三角磁気構造をもつ反強磁性体である<sup>1)</sup>。ネール温度は100 K付近で、さらにexcess Feによるものと思われる帯磁率のanomalyが28 Kに現われる<sup>2)</sup>。三角磁気構造は、帯磁率のanomalyの現われる28 K以下の温度でも保たれている。

電気抵抗は小さく( $10^{-4} \Omega/cm$ )、Isomer shiftの測定、及びFe atomの磁気モーメントが、ほぼ $1 \mu_B$ であることなどから、FeSbにおけるFeの電子状態は $3d^7 \sim 3d^8$ と予想される。しかし、Isomer shiftの結果、及びFe atomの磁気モーメントについては、Feの電子状態として $3d^5$ としても矛盾なく解釈できる<sup>3)</sup>。

上述の2通りの電子状態について、我々は中性子回折実験によって、Fe atomの磁気形状因子の測定を試み、FeSbの電子状態を決定する事を目的とした。

従来、金属間化合物の磁性を解釈する場合、イオン結晶モデルで説明されて来た。実際、MnSbの場合、 $Sb^{3-}$ というイオン状態に対応して、 $Mn^{3+}$ (つまり $3d^4$ 状態)という状態が取られ、Mn atomの磁気モーメント $3.5 \mu_B$ を説明していた。しかし最近、鈴木らによって、偏極中性子回折実験から、Mn atomの磁気形状因子の測定がなされ、MnSbにおけるMnの電子状態は、 $3d^4$ の状態ではなく、 $3d^6$ ないし $3d^7$ の状態である事が明らかにされ、金属間化合物に対するイオン結晶モデルに疑問が投げかけられた<sup>4)</sup>。

今回の実験は、MnSbとの関係と合わせて、金属間化合物の電子状態の新しい解釈を与えるものと考えられる。また、電子ライナックによるTOF法中性子回折実験によって、磁気形状因子を測定する事は、初めての試みでもあるので、実験精度上の問題も含めて、今回の実験の目的とした。

## § 2 実 験

単結晶は、FeSbの粉末を、透明石英管の中に真空封入し、ブリッジマン法によって得たもので、大きさは1 cm角のものである。測定温度は液体ヘリウム温度、また単結晶は入射中性子線に対して、 $a^*$ 軸をたてた。counter angleは、high indexの散乱を求める必要から、 $2\theta = 90^\circ$ と設定した。



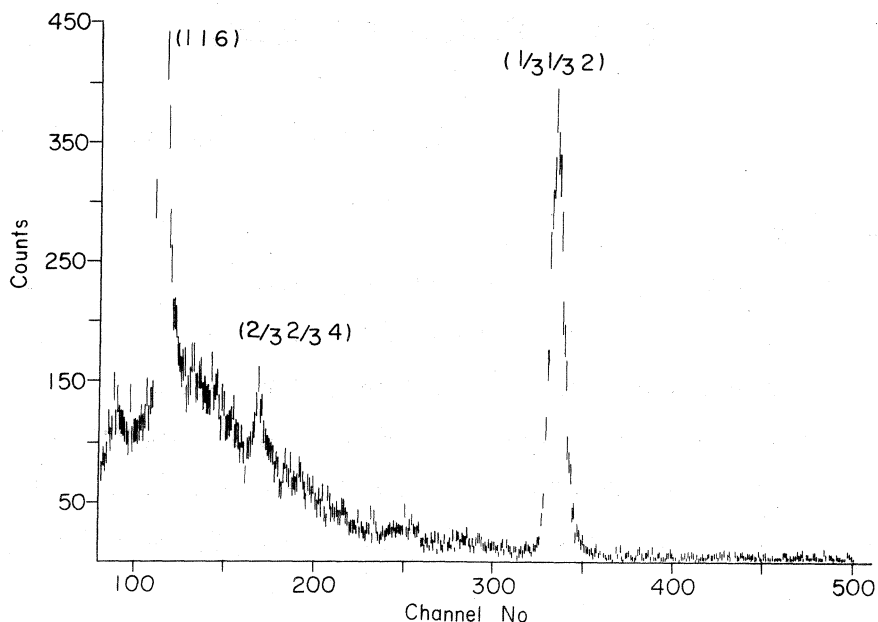


図1 単結晶 FeSb の磁気散乱の例  $(\frac{1}{3} \frac{1}{3} 2)$  及び  $(\frac{2}{3} \frac{2}{3} 4)$  が磁気散乱を示す。

図1に、磁気散乱の例を挙げる。非整数の指数で示してあるのが磁気散乱のものである。

Background の測定は off - Bragg method を用いた。

表1に、観測した磁気散乱について、観測強度及び、磁気形状因子の観測値と計算値とが示されている。ここで、観測強度は

$$I = \frac{E}{i(\lambda) \lambda^4} = Q \cdot y(\lambda) \quad (1)$$

で与えられる。 $Q = |F|^2 e^{-2W} A_s(\lambda)$ ,  $y(\lambda)$  は消衰効果を示す因子である。 $e^{-2W}$  は Debye - Waller 因子,  $A_s(\lambda)$  は吸収因子である。表1に示した観測強度は、これらの因子を無視したときの値である。また、 $f_{obs}$  の値において、 $(\frac{1}{3} \frac{1}{3} 0)$  は、粉末試料を用いたときの観測強度を用いて求めたもので、 $(\frac{2}{3} \frac{2}{3} 0)$  以下の high index の磁気散乱については、その粉末試料から得た値で規格化してある。

表 1 磁気散乱の観測強度及びmagnetic form factorの実験値と計算値の比較

$h$	$k \cdot l$	$I_{obs}$	$f_{obs}$	$f_{cal} (Fe^+)$
$(\frac{1}{3} \ \frac{1}{3} \cdot 0)$			0.922	0.92158
$(\frac{2}{3} \ \frac{2}{3} \cdot 0)$		3.185	0.736	0.73643
$(\frac{1}{3} \ \frac{1}{3} \cdot 2)$		3.279	0.549	0.60692
$(\frac{2}{3} \ \frac{2}{3} \cdot 2)$		2.287	0.459	0.50890
$(\frac{4}{3} \ \frac{4}{3} \cdot 0)$		0.941	0.400	0.35169
$(\frac{5}{3} \ \frac{5}{3} \cdot 0)$		0.327	0.251	0.22595
$(\frac{2}{3} \ \frac{2}{3} \cdot 4)$		0.505	0.210	0.20687

得られた  $f_{obs}$  と  $f_{cal}$  の値を  $\sin \theta / \lambda$  の関数として示したのが図2である。 $f_{cal}$  は Freeman and Watson による計算値で、 $3d^5 (Fe^{3+})$  の場合と  $3d^7 (Fe^+)$  の場合を示した。図から分かるように、Fe Sb中の Fe の磁気形状因子は、 $3d^7$  の場合の計算値によく一致している事が分かる。

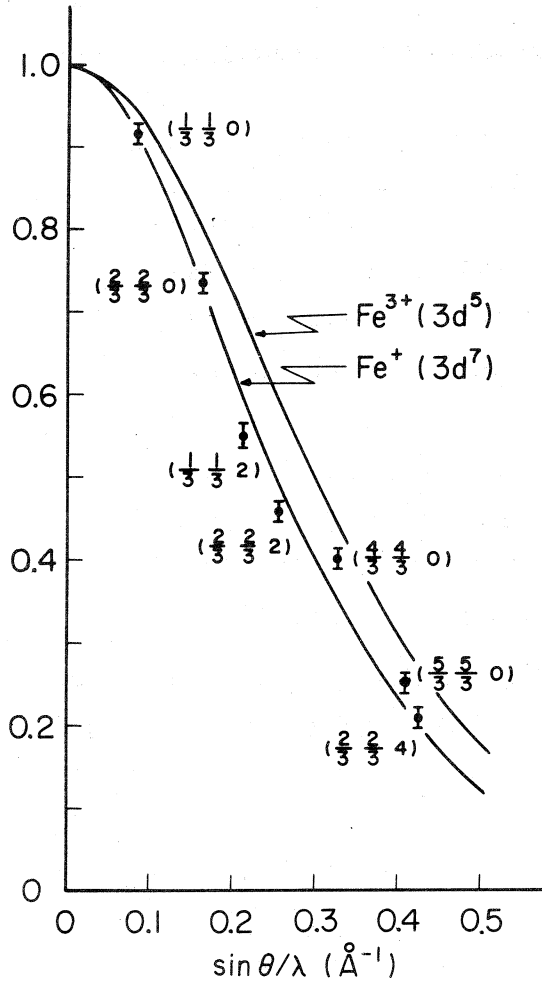


図2 FeSbのmagnetic form factorの実験値と計算値の比較。

での影響で、100 channel以上では、無視できる。我々の測定で得られた磁気散乱はすべて160 channel以上である。

所で、電子ライナックによるTOF法中性子回折実験による磁気形状因子の測定に対して、消衰効果の波長依存性に対する知識が得られれば、全体的には、形状因子の測定は可能であると考えられる。今回の実験は、磁気モーメントが $0.88 \mu_B$ と小さく、また結晶構造がやゝ複雑であった事のため、磁気散乱のresolutionを上げる事ができず、せいぜい $\sin \theta / \lambda \cong 0.6$ 程度までの散乱しか

### §3 考 察

実験結果は大ざっぱな解析ではあるが、次のような理由から、Feの電子状態は $3d^5$ の状態ではなく、 $3d^7 \sim 3d^8$ 程度であると考えられる。

- 1) 最も解析で困難な点は消衰効果の補正であるが、消衰効果は、磁気散乱のように、(特にFeSbでは磁気モーメントが小さいから)小さい散乱に対しては、きかないと考えられる。また、消衰効果が考えられるとしても、中性子の長波長側より大きくきくため、 $f_{obs}$ はますます $3d^5$ の計算値からはずれ、 $3d^7 \sim 3d^8$ の計算値へ近づく事が考えられる。
- 2) 吸収因子も上述の消衰効果とほぼ同様の効果をもたらすが、全体的に無視しうる。
- 3) Debye-Waller因子は、1), 2)とは逆の効果を示すが、その波長依存性は $e^{-\beta \lambda^{-2}}$ で、核散乱の観測値との比較から、channel no.になおして、せいぜい100 channel程度ま

得られなかった。結晶構造が cubic のように簡単で、しかも磁気モーメントが大きく、容易に大きな単結晶ができるような反強磁性体であれば、実験はもう少し詳細な議論を可能にすると思われる。実際、消衰効果に対しては、同じ  $|F|^2$  を取る核散乱についての多くの測定から、消衰効果の波長依存性を実験的に導く事が可能である。この消衰効果の波長依存性を用いて磁気散乱の消衰効果を見積る事は可能のようである。

現在の所、spin density map を描くまでの精度には到らないが、強い中性子線束を用いて、flight path を現在(約 6 m)より長くしたり、コリメーターを取り付ける事により、高分解能を得れば、 $\sin\theta/\lambda$  で 1.0 程度までの磁気散乱の測定を可能にし、spin density map を描く事も可能になるものと思われる。

### 参 考 文 献

- 1) K. Yamaguchi et al. J. Phys. Soc. Japan 33 (1972) 1292
- 2) 八代 勉 他 核理研報告 Vol 5 No 1 (1972) 88
- 3) T. Yashiro et al. J. Phys. Soc. Japan 34 (1973) 58  
八代 勉 昭和 46 年 修士学位論文
- 4) 鈴木隆司 昭和 48 年 博士学位論文

### III. 放 射 化 学 部 門

### III—1 気相 $H^{80m}Br$ および $H^{82m}Br-CH_4$ 系における核異性体転移にともなう化学的効果 …… 同位体効果, 熱イオン反応による $CH_2BrBr$ の生成について

核理研, 金研\* 八木益男・近藤健次郎  
小林孝彰\*

#### § 1 緒 言

気, 液相における $^{80m}Br$ および $^{80}Br$ の核異性体転移にともなう化学的効果についてはこれまで多くの研究者によって検討されてきた。著者らは気相 $CH_4$ 系において $^{80m}BrBr$ ,  $^{82m}BrBr$ および $H^{80m}Br$ を source molecule とした場合得られる生成物は $CH_3^*Br$ ,  $CH_2Br^*Br$ であり, かつこれらが核異性体転移に伴って $^{80}Br$ および $^{82}Br$ 原子に賦与される電荷および運動エネルギーの関与する反応によってもたらされることを明らかにした。<sup>1,2,3,4</sup> また $^{80m}BrBr$ ,  $^{82m}BrBr-CH_4$  両系の比較から, すでに立川ら<sup>5)</sup>が報告しているように明らかに同位体効果が存在することを認めた<sup>6)</sup>。立川らはその同位体効果が運動エネルギー依存の反応によって生成する $CH_3Br$ の収率間のみ認められるとしたが著者らは kinetic processによる収率間の違いよりも熱イオン反応による $CH_2BrBr$ の収率間に顕著な違いを認めた<sup>9)</sup>。

しかし $Br^*Br$ を source molecule としたこれらの実験では電荷および運動エネルギーの関与する反応が混在し, 特に熱イオン反応に起因する同位体効果については明確さを欠いている。

すでに報告したように $H^{80m}Br-CH_4$  ( $HBr/CH_4 = 0.19$ )系においては得られる生成物( $CH_3^{80}Br$ ,  $CH_2Br^{80}Br$ )は全て熱イオン反応のみによってもたらされることを明らかにした<sup>7)</sup>したがって熱イオン反応に起因する同位体効果を検討する上で source molecule として $H^*Br$ を用いることは最も適していると考えられる。本研究においては $H^{80m}Br-CH_4$ および $H^{82m}Br-CH_4$ 系( $HBr/CH_4 = 0.1$ )について上記同位体効果の有無について検討を加え, 得られた結果を $^{80m}Br$ ,  $^{82m}Br$ の崩壊型式の違いに基づいて考察した。

本研究におけるもう1つの目的は, 熱イオン反応による $CH_2BrBr$ の生成機構の解明である。これまで熱イオン反応による $CH_2BrBr$ の生成には反応中間体として $CH_2Br$ ラジカルが重要

な役割を果たすことが  $\text{Br}^{80\text{m}}\text{Br}-\text{CH}_4$  系について立川らによって提唱されてきた<sup>2)</sup> しかし既報<sup>7)</sup> のように著者らによって上記説明では 2, 3 の矛盾点があることが指摘された。また source molecule が  $\text{Br}^*\text{Br}$  の場合は先にのべたように運動エネルギーおよび熱イオンの関与する反応の寄与があるため熱イオン反応による再結合機構の解明には適していない。ここでは熱イオン反応による  $\text{C}_2\text{H}_2\text{Br}_2$  の生成機構を  $\text{H}^*\text{Br}$  を source molecule とし、系に  $\text{HCl}$  を添加することによってその解明を試みた。

$\text{H}^*\text{Br}$  を source molecule とした場合、核異性体転移にともなう起る内部転換、分子内電子移動によって娘  $^*\text{Br}$  原子がクーロン反発で得る運動エネルギーは高々 1 eV である。このような低エネルギー臭素イオンの再結合機構に関する知見はこれまで非常に乏しく著者らの研究に限られている。したがって  $\text{H}^*\text{Br}$  を source molecule とする詳細な再結合反応の検討は、他核変換反応によって生成する低エネルギーイオン種の反応についても新しい知見を与えるものと考えられる。

## § 2 実 験

$\text{CH}_4$ ,  $\text{Kr}$ ,  $\text{HCl}$  は高千穂化学 K K より購入した純度 99.995%, 99.9%, 99.9% のものをそのまま実験に用いた。  $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$  の調整……東北大電子ライナックを用い、最大 40~60 MeV 電子制御放射線を約 2 時間照射して得た  $\text{Pd Br}_2$  を熱分解し、発生する  $^{80\text{m}}\text{Br}_2$  を赤燐と少量の水を含む反応容器に導びき充分反応させ、さらに  $\text{P}_2\text{O}_5$  カラム、ドライアイストラップを通し純粋な  $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$  を得ることが出来た。  $\text{H}^{82\text{m}}\text{Br}$  の調整……石英アンプルに  $\text{HBr}$  を封入し、京都大学原子炉実験所気送管 No. 3 で常温 1 分間熱中性子照射したものを用いた。この際炉内放射線による分解によって少量の  $\text{Br}_2$  が認められたがドライアイストラップを通すことによって完全に除去できた。炉内中性子束は  $3 \times 10^{13} \text{ n/sec}\cdot\text{cm}^2$ , また  $\gamma$  線量率は  $10^6 \text{ r/hr}$  であった。試料の調製は圧力実験以外は反応系の圧力は 660 mm Hg とし、また全実験をとうして  $\text{HBr}/\text{CH}_4$  の値は 0.1 と一定に保った。 $^{82\text{m}}\text{Br}$  実験ではその半減期が 6.1 min と短いため試料調製は出来るだけ迅速に行う必要があるが、本実験では気送管ステーションのすぐ脇に真空ラインを組むことによって、照射終了から反応開始までの時間を 6 分あるいは 7 分と短縮することができた。これにより従来の実験結果よりも精度の高い結果をうることができた。抽出は試料を常温暗所に 2 時間以上放置後常法<sup>2,3)</sup>に従って行った分離した有機、無機層の放射能測定は  $\text{Ge(Li)}$  半導体検出器をマルチチャンネル PHA に接続して行った。 $^{82\text{m}}\text{Br}$  では 0.55 MeV,  $^{80\text{m}}\text{Br}$  では 0.61 MeV に相当する photo peak を測定対象とし、有機収率は各層の放射能の減衰補正を行って決定した。また有機層の一部をガスクロマトグラフにかけ生成物に相当するフラクションを捕集し、それぞれのフラクションの放射能の相対強度から生成物収率を求めた。

放射能測定は井戸型シンチレーション検出器を用いて行った。またガスクロマトグラフによる生成物の分析条件は従来<sup>7)</sup>と全く同様である。

### § 3 結 果

$H^{80m}Br-CH_4$  および  $H^{82m}Br-CH_4$  系のラジオガスクロマトグラムから生成物として  $CH_3 Br$ ,  $CH_2 Br Br$  および痕跡程度の  $CHBr_3$  が検出された。なお  $CHBr_3$  の収率は 0.2% 以下で実験誤差範囲内で無視しうる程度のものであった。一方  $H^{80m}Br-CH_4-HCl$  系では上記生成物の他に  $CH_2 Br Cl$  が認められた。ガスクロマトグラフによる捕集は  $CH_3 Br$ ,  $CH_2 Br Br$ ,  $CH_2 Br Cl$  および  $CH_2 Br Br$  よりもリテンション時間の長い部分の 4 つのフラクションに分けて行った。収率に対する圧力の影響は反応系圧力 100 mmHg~2800 mmHg の範囲で検討した。図 1 にその結果を示す。ここで  $HBr/CH_4$  は 0.1 と全圧力範囲にわたって一定に保った。図から明らかなように 100~1,400 mmHg の範囲では収率の圧力依存性がほとんどないことが判明した。

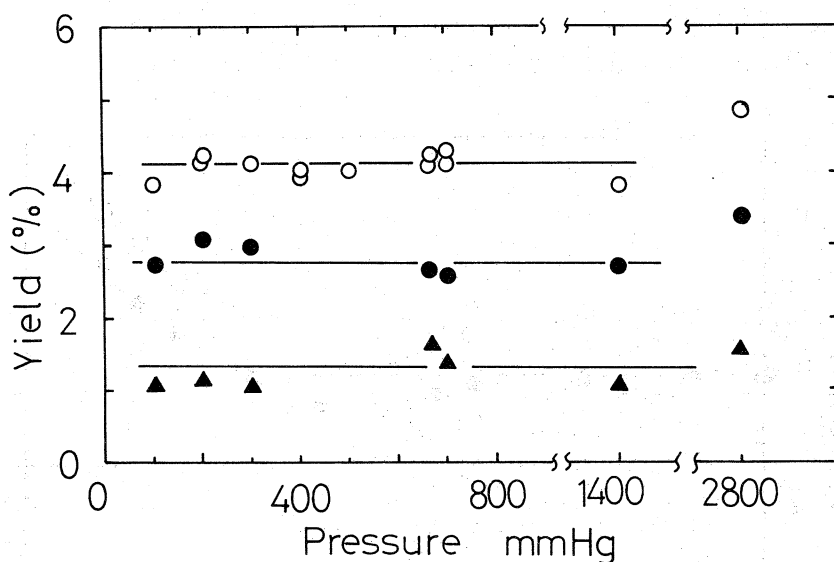


図 1 圧力効果

○ : 有機収率    ● :  $CH_2^{80}Br$   
▲ :  $CH_3^{80}Br$

一方  $H^{80m}Br-CH_4$  および  $H^{82m}Br-CH_4$  系において得られる  $CH_3^*Br$ ,  $CH_2Br^*Br$  を与える反応に対する核異性体転移で生成する  $^{80}Br$ ,  $^{82}Br$  原子の持つ電荷あるいは運動エネルギーの寄与を



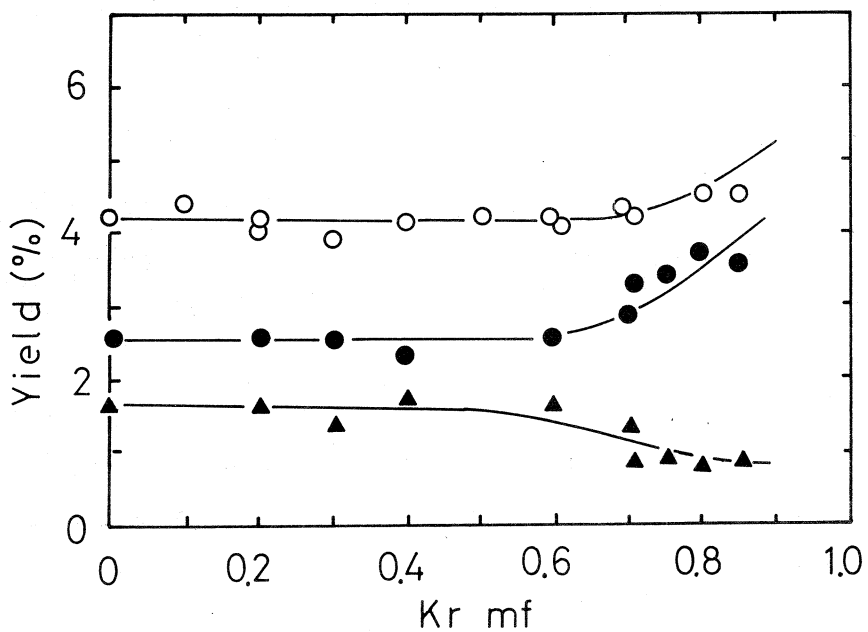


図2  $H^{80m}Br-CH_4$ 系に対する Kr 添加の効果 (caption は図1に同じ)

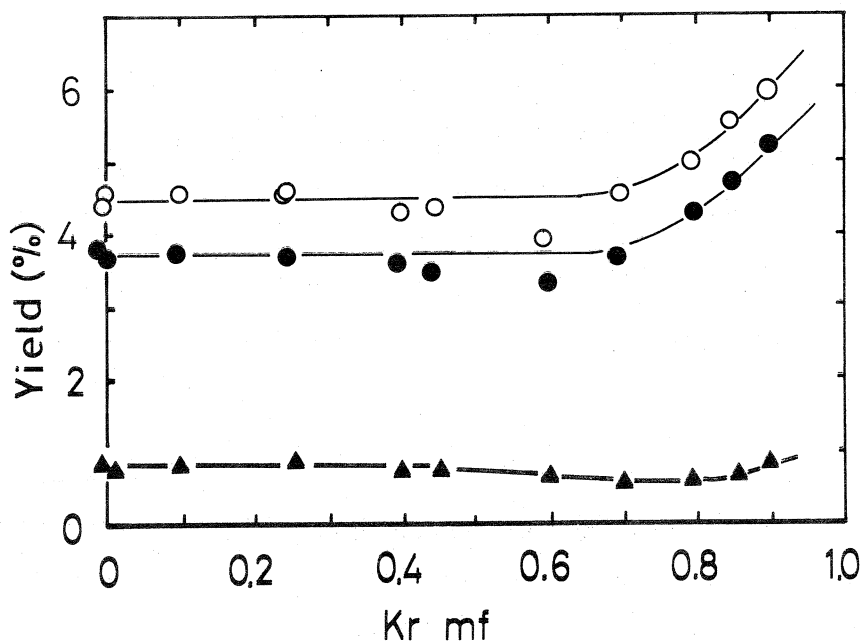


図3  $H^{82m}Br-CH_4$ 系に対する Kr 添加の効果

○ : 有機収率 ● :  $CH_2Br^{82}Br$

▲ :  $CH_3^{82}Br$

検討する目的で、系に対するKr添加の効果を検討した。その結果を図2,3に示した。両系ともKr濃度0~0.6mfのかなり広い範囲で全く収率変化は認められない。このことはこれら生成物が電荷の関与する熱イオン反応によってのみ生成していることを示している。有機収率は両系で大差は認められないが、 $\text{CH}_3^*\text{Br}$ 、 $\text{CH}_2\text{Br}^*\text{Br}$ の収率分布には両系の間にあきらかな相違が認められた。すなわち $^{80}\text{m Br}$ 系では $\text{CH}_2\text{Br}^*\text{Br}/\text{CH}_3^*\text{Br}$ の値がおよそ1.8であるのに対し $^{82}\text{m Br}$ 系では4.6と大きく、 $^{82}\text{m Br}$ 系では $\text{CH}_2\text{Br}^*\text{Br}$ の生成が顕著である。また両系においてKr濃度がおよそ0.6mf以上で $\text{CH}_2\text{Br}^*\text{Br}$ の収率の増加が認められた。これは先に $^{80}\text{m Br}-\text{CH}_4$ 系において熱イオン反応による $\text{CH}_2\text{Br}^*\text{Br}$ の収率が同じようにKr濃度が0.6mf以上でゆるやかな増加を示す現象と非常に類似している。同様に $\text{H}^{80}\text{m Br}-\text{CH}_4$ 系に対するHCl添加の効果を図4に示した。ここで $\text{HBr}/\text{CH}_4 = 0.1$ 、全圧660 mmHgと一定に保って行った。有機収率は本実験で行ったHCl濃度範囲ではほぼ定値を示し、先程のKr添加の場合と非常に類似している。

しかし各生成物の収率分布には大きな影響が認められた。HCl濃度の増加に伴って $\text{CH}_3\text{Br}$ 、 $\text{CH}_2\text{Br}^*\text{Br}$ の収率のほぼ直線的な減少するのに対応して $\text{CH}_2\text{BrCl}$ およびフラクション(X)(高沸点部分)の収率の増加が認められ、両者の間に明らかに相関関係が存在することが判明した。

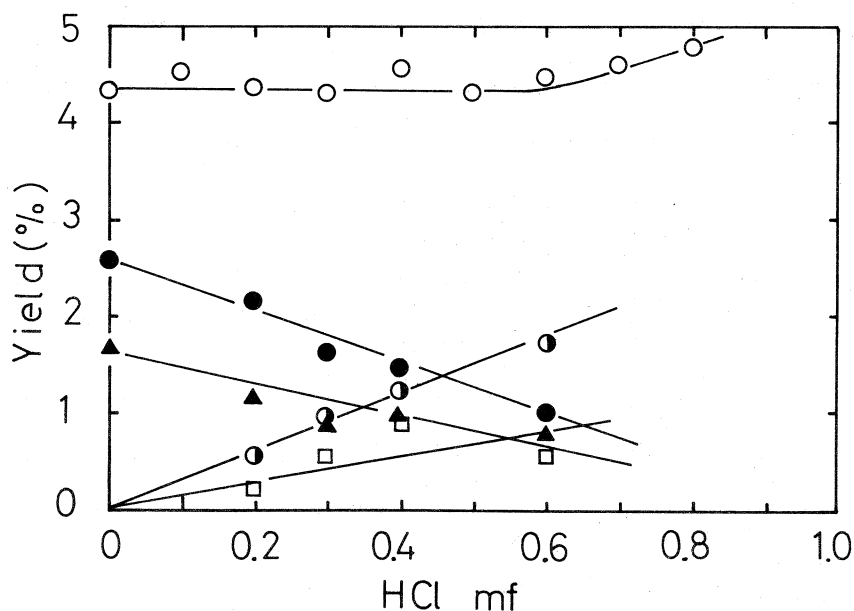


図4  $\text{H}^{80}\text{m Br}-\text{CH}_4$ 系に対するHCl添加の効果

- : 有機収率   ● :  $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$   
 ▲ :  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$    ○ :  $\text{CH}_2^{80}\text{BrCl}$   
 □ : フラクション(X)

## § 4 考 察

一般に核変換反応で生成する活性化された原子は通常の熱平衡にある原子に比較し高い運動エネルギーと電荷を持つに至る。従ってその再結合反応には電荷および運動エネルギーが大きな影響を及ぼすことが知られている。気相系における再結合反応に対するこれら核変換反応で生成する原子の持つ電荷および運動エネルギーの寄与の割合はこれまで常法として系に inert gas を添加することによって行なわれてきた<sup>9,10,11)</sup> Kr は化学的に不活性であるばかりでなく臭素原子と質量がほぼ等しく最も良い減速剤である。さらにそのイオン化電圧が 13.99 eV と臭素のそれ ( 11.84 eV ) よりも高く charge transfer reaction が起りにくく、かつ励起化学種に対する quenching の効果が非常に小さい。以上のような観点から本研究における核異性体転移で生成する臭素原子の再結合反応に対する電荷および運動エネルギーの寄与の割合を評価する上で Kr は理想的な添加物と考えられる。すなわち Kr 添加による収率の減少分は運動エネルギー依存の反応 ( kinetic process ) に起因し、一方影響を受けない部分は電荷の関与する反応 ( thermal ionic process ) によるものとして出来る。図 2, 3 から CH<sub>3</sub> Br, CH<sub>2</sub> Br Br の収率が Kr 濃度 0 ~ 0.6 mf ではほぼ一定であることから、H<sup>80m</sup>Br および H<sup>82m</sup>Br-CH<sub>4</sub> 系において核異性体転移で生成する <sup>80</sup>Br, <sup>82</sup>Br の再結合反応はいずれも電荷の関与する thermal ionic reaction によるものとして出来る。この事実は先に報告した Br\*Br を source molecule とする <sup>80m</sup>Br Br-CH<sub>4</sub> および <sup>82m</sup>Br Br-CH<sub>4</sub> 系の結果と大きく異っている。比較のため表 1 に既報の結果<sup>7,12)</sup> とともに示した。

表 1 収率に対する <sup>80</sup>Br および <sup>82</sup>Br の持つ運動エネルギーおよび電荷の寄与

反 応 系		<sup>80m</sup> BrBr - CH <sub>4</sub>	H <sup>80m</sup> Br - CH <sub>4</sub>	<sup>82m</sup> BrBr - CH <sub>4</sub>	H <sup>82m</sup> Br - CH <sub>4</sub>
有 機 収 率 %		5.40	4.25	5.20	4.45
K · E <sup>1</sup>	CH <sub>3</sub> Br %	3.05	0	2.45	0
	CH <sub>2</sub> Br Br %	0	0	0	0
Th <sup>2</sup>	CH <sub>3</sub> Br %	0.6	1.6	0.4	0.8
	CH <sub>2</sub> Br Br %	1.75	2.65	1.35	3.65

1 運動エネルギー依存の反応によるもの

2 熱イオン反応によるもの

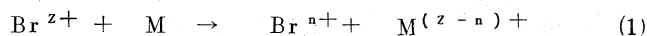
ここで Br<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub> or HBr/CH<sub>4</sub> = 0.1 である。

$\text{Br}^* \text{Br}$  を source molecule とした場合,  $\text{CH}_3^* \text{Br}$  は主に kinetic process によって生成するが  $\text{CH}_2^* \text{BrBr}$  は thermal ionic process による。一方  $\text{H}^* \text{Br}$  を source molecule とした場合いずれも thermal ionic process によってもたらされ運動エネルギー依存の反応の寄与は全く認められない。いずれを source molecule とした場合においても thermal process による  $\text{CH}_3^* \text{Br}$ ,  $\text{CH}_2^* \text{Br}^* \text{Br}$  の収率の大小関係は  $\text{CH}_2 \text{Br}^* \text{Br} > \text{CH}_3^* \text{Br}$  となっており, 電荷の関与する反応では  $\text{CH}_2 \text{Br} \text{Br}$  が優先的に生成することを示している。

source molecule の違いによる大きな差は核異性体転移に伴って起る内部転換とそれに引きつづく分子内電子移動によるクーロン反発によって臭素原子がうる kinetic energy の違いに起因している。すなわち内部転換によって臭素原子が持つ電荷を +7 と仮定した場合, その kinetic energy は  $\text{H}^* \text{Br}$  を source molecule とした場合は高々 1 eV であるのに対し  $\text{Br}^* \text{Br}$  の場合は平均 40 eV と両者の間に大きな違いがある。このようにして生成した臭素原子が  $\text{CH}_4$  と運動エネルギー依存の反応をするかどうかを検討する上で一つの目安である  $\text{CH}_4$  分子中の H 原子を置換するに必要な最小エネルギー (lower reaction energy threshold value)<sup>13)</sup> を計算すれば, その値は 6.78 eV となる。

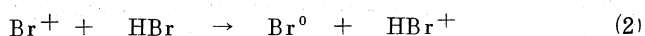
従って  $\text{H}^* \text{Br}$  を source molecule とした場合, 臭素原子が持つ運動エネルギーに比較してこの値は非常に高く運動エネルギー依存の反応は期待できない。一方  $\text{Br}^* \text{Br}$  の場合では臭素原子は十分  $\text{CH}_4$  と運動エネルギー依存の反応を行いうるものと考えられる。

Hamill と Young は<sup>14)</sup> 気相  $\text{C}_2 \text{H}_4$  系において  $\text{H}^{80m} \text{Br}$  を source molecule としてその核異性転移にともなう化学的効果を検討し, その化学的効果が同じ系における (n · r) 反応による  $^{80} \text{Br}$  による化学的効果と非常に類似していることから, また Libby は<sup>15)</sup> 同じように液相において n - Pr Br について  $\text{H}^{80m} \text{Br}$  の核異性体転移による  $^{80} \text{Br}$  および (n · r) 反応による  $^{80} \text{Br}$  の反応性の類似から核異性体転移にともなって多重電荷を持つに至った  $\text{Br}^{z+}$  は周囲の分子との partial neutralization (1)<sup>16)</sup> を含む collision によってかなりの運動エネルギーを持つに至る可能性があることを指摘した。しかしながら実際に添加物効果などによる反応に対する臭素原子の持つ電荷, 運動エネルギーの寄与の検討は試みられていない。



$\text{H}^* \text{Br}$  を source molecule とする本研究結果はたとえ上記 partial neutralization にともなう Coulomb 反発によって臭素原子が運動エネルギーを取得したとしても, それは  $\text{CH}_4$  との反応において水素置換反応を引き起すに十分なものではないことを示している。このような  $\text{H}^* \text{Br}$  を source molecule とした場合認められる thermal ionic process において,  $\text{Br}^{z+} (Z \geq 2)$  の

electron affinity は非常に高いことから反応に関与するイオン種としては  $\text{Br}^+$  が最も妥当と考えられる。基底状態の  $\text{Br}^+$  と  $\text{CH}_4$  および  $\text{Kr}$  との charge transfer reaction はそれぞれ 1.15, 2.5 eV だけ吸熱である。従ってこの反応が進行するための threshold value は  $\text{Br}^+ + \text{CH}_4$  に対し 6.90 eV,  $\text{Br}^+ + \text{Kr}$  に対し 4.22 eV である。また臭素原子の励起状態 ( $^3\text{P}_1$ ,  $^3\text{P}_0$ ,  $^1\text{D}_2$ ) を考慮しても、その反応は全て吸熱である。今臭素原子の持つ運動エネルギーが高々 1 eV であることを考えれば上記反応はほとんど無視しうるものと考えられる。一方系に同時に存在する  $\text{HBr}$  と  $\text{Br}^+$  との charge transfer reaction (2) は 0.2 eV だけ発熱である。



しかしながら反応(2)で生成した  $\text{Br}^0$  の持つ kinetic energy は “hot” reaction を引き起すに充分でなく、周囲の  $\text{HBr}$  によって scavenge され、有機収率を与えるようなことはない。

一般的に 1 eV 以下の低エネルギー領域における ion molecule reaction の cross-section ( $Q$ ) はイオンの運動エネルギー  $E$  との間に次のような関係がある。 $Q \propto E^{-\frac{1}{2}}$ , またその cross-section は gas-kinetic および charge transfer reaction の cross-section よりかなり大きい。従って本研究におけるような反応系の大部分が  $\text{Br}$  のイオン化電圧より大きい系では核異性体転移で生成する  $^{80}\text{Br}$  および  $^{82}\text{Br}$  の大部分は ion molecule reaction を行うものと考えられる。

$^{80}\text{mBr}$  および  $^{82}\text{mBr}$  の核異性体転移にともなう同位体効果：図 2.3 の生成物の収率分布から同位体効果が存在することは明らかである。この同位体効果は  $^{80}\text{Br}$ ,  $^{82}\text{Br}$  の同位体質量の差違にもとづくものとは考えにくく、 $^{80}\text{mBr}$ ,  $^{82}\text{mBr}$  の崩壊型式の違いにその原因を求めることが妥当と

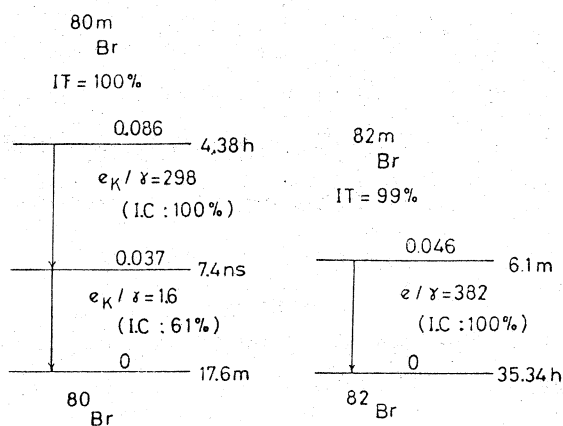


図5 Decay Schemes of  $^{80}\text{mBr}$  and  $^{82}\text{mBr}$

考えられる。図5に両者の崩壊図<sup>17)</sup>を示した。 $^{80}\text{mBr}$ は中間に 7.4 n sec の中間励起状態を経由する 2 段の核異性体転移を行い、その第 1 段は  $\text{M}3$  転移で  $\sim 100\%$  内部転換、第 2 段は  $\text{E}1$  転移で 61% が内部転換を行う。一方  $^{82}\text{mBr}$  は  $\text{M}3$  の一段転移 ( $\sim 100\%$  内部転換) を行う

ここで $^{80m}\text{Br}$ ,  $^{82m}\text{Br}$  両系におけるM3転移による化学的効果は本質的に同等のものと考えられる。すなわちこれによって生成する臭素原子の運動エネルギー、電荷は両者で差はないものと考えられる。しかしながら $^{80m}\text{Br}$  の中間励起状態からの転換は39%が37keV  $\gamma$ 線放出、残り61%が内部転換を伴う。ここで37keV  $\gamma$ 線放出によって $^{80}\text{Br}$ が取得する反跳エネルギーの大きさは、それが結合している化学形に大きく依存するが中間段階で種々の生成物が生成するとしたとしてもその値はおよそ $10^{-2}\text{eV}$ 程度であり、化学結合切断に至らない。したがってこれによる化学的効果は十分無視しうるものと考えられる。以上のような考察から核異性体転移で生成する $^{80}\text{Br}$ の化学的効果は次の2つに分けて考えることが出来る。

process(A) ……内部転換+37keV  $\gamma$ 線放出 (39%)

process(B) ……内部転換+内部転換 (61%)

process(A)は従って $^{82m}\text{Br}$ 系で得られた収率の39%に等しく、process(B)は $^{80m}\text{Br}$ の収率からprocess(A)の値を差し引いて得られる。このような解析によって得たprocess(B)による収率分布を図6に示した。process(A)と同様Kr濃度0~0.6mfで $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ ,  $\text{CH}_2^{80}\text{Br}$ ともほぼ一定の収率を示し、これらがthermal ionic reactionによってもたらされることを示している。process(B)による $\text{CH}_3^{80}\text{Br}/\text{CH}_2^{80}\text{Br}$ の値はおよそ1.14であるがこの値はprocess(A)における値0.243と大きく異っている。このことはprocess(B)においては $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ が優先的に生成する

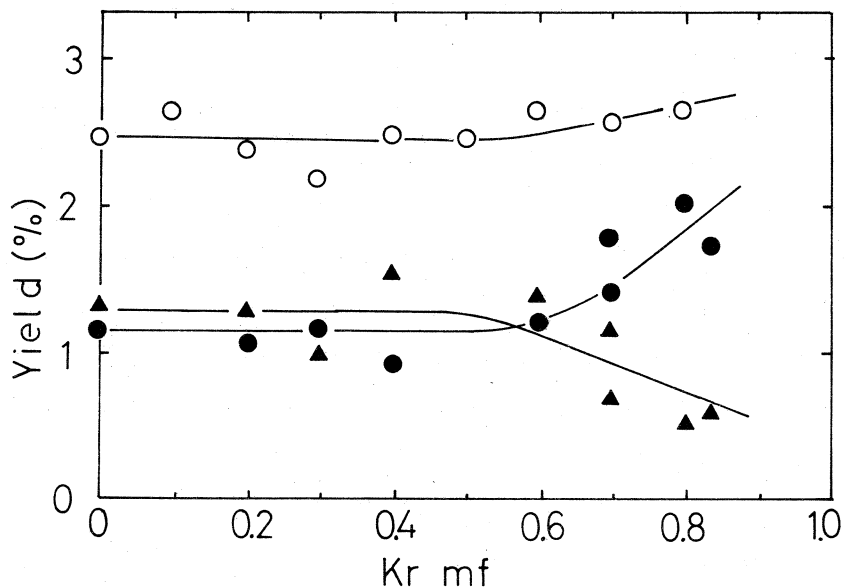


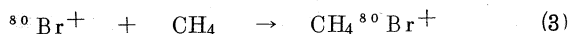
図6 process(B)による収率分布 (captionは図1に同じ)

ことを示している。また同様の解析による  $^{80m}\text{Br}-\text{Br}-\text{CH}_4$  系の process(B)の結果<sup>6)</sup>とも良い一致を示した。

以上のことから  $^{80m}\text{Br}$ ,  $^{82m}\text{Br}$  の核異性体転移にともなう同位体効果は  $^{80m}\text{Br}$  の process(B)に起因している。次に  $^{80m}\text{Br}$  の中間励起状態の役割について考察すると、いま中間励起状態にある  $^{80}\text{Br}^+$  が基底状態に崩壊する前に周囲の分子と反応する機会の有無が重要な点となる。

すなわちその life-time ( $1.1 \times 10^{-8}$  sec) が反応に必要な時間に比し短い場合は、引きつづく核異性体転移によって  $^{80}\text{Br}^+$  は単に additional build-up of charge を受け、その化学的效果は第一段転移の場合と全く同等であろうと考えることが出来る。一般に physico-chemical stage (moderation, ion-molecule reaction, charge transfer など) は  $10^{-9} \sim 10^{-10}$  sec order で完了することが知られており<sup>18)</sup>、 $^{80}\text{Br}^+$  は一旦中間励起状態でなんらかの化学種を与えるものと考えられる。このことは本実験結果においても裏づけられる。この中間励起状態における化学種としては、図6に示すように収率が全て thermal ionic process のみによってもたらされることから  $\text{H}^{80}\text{Br}$  あるいは  $^{80}\text{Br}$  のような引きつづく転移で  $^{80}\text{Br}$  がいわゆる "hot" reaction に必要な運動エネルギーを得ないような化学形となっていると考えられる。しかしながら生成する化学種の大部分が  $\text{HBr}$  あるいは  $\text{Br}$  のような化学形をしているとすれば引きつづく核異性体転移による化学的效果は結局 process(A) の場合と同じになるものと考えられる。従って一旦中間レベルでなんらかの化学種を与えるとすればそれからの引きつづく転移が起る際の周囲の雰囲気は process(A) のそれとは異っていることを示唆している。

第一段転移で生成する  $^{80}\text{Br}^+$  はまずすでに述べたように ion-molecule reaction が先行し、中でも過剰に存在する  $\text{CH}_4$  との反応(3)は energetically に最も起りやすい反応と考えられる。



このような sticky collision complex の存在についてはこれまで mass-spectroscopy における研究で、種々のアルキルハライド<sup>24)</sup> および炭化水素系<sup>19, 20)</sup> において数多く認められている。Henglein らは<sup>21)</sup>  $\text{CH}_4 \text{I}^+$  のような complex が分析に必要な  $10^{-6}$  sec 以上の長い life-time を持つことを報告している。また Magee ら<sup>22)</sup> はこのような complex イオンの life-time ( $\tau$ ) を評価する式として次式を提唱している。

$$\tau = \nu^{-1} \left( 1 - \frac{E_B}{E} \right)^{1-\alpha}$$

ここで  $\nu$ : 定数  $\sim 10^{-13}$      $E_B$ : binding energy

$\alpha$ : complex の振動の自由度 (一般には構成原子数を  $N$  とすると  $3N - 6$  で与えられる)

$E$ : 相対運動エネルギー

今  $N$  として 6,  $E_B$  を 0.25eV,  $E$  を  $E_B + kT$  としてみると  $\tau = 3.13 \times 10^{-1}$  sec となる。これは極端な場合であるが、いずれにしても  $\tau$  の値は、中間励起レベルの life-time ( $1.1 \times 10^{-8}$  sec) よりかなり長いことがわかる。また図 1 の圧力効果の実験からも少くとも系に  $10^{-11} \sim 10^{-8}$  sec 程度の短い時間内に分解をとまなうような高励起状態の化学種が存在しないことがわかる。このことから ion-molecule reaction によって生成した生成物は比較的長い life-time を持つものと考えられる。本実験条件においては 1 回の衝突に必要な時間はおよそ  $10^{-9}$  sec であるから反応(3)によって生成した  $\text{CH}_4^{80}\text{Br}^+$  と周囲の分子との相互作用の機会は充分ありうる。Lind が<sup>23)</sup> 先に気相における放射線化学の研究において、そのようなイオン種を核とした ion-cluster の形成が非常に出来やすいことを報告している。すなわち周囲の分子との間の dipole moment あるいは dipole-induced electrostatic force によって数個の分子を含む ion-cluster を形成するとしている。今  $\text{CH}_4^{80}\text{Br}^+$  が、中和および分解に先だってこのような ion-cluster を形成することは、中間レベルの life-time および  $\text{CH}_4^{80}\text{Br}$  のイオン化電圧が系に存在する  $\text{HBr}$ ,  $\text{CH}_4$  のいずれよりも低いと考えられることから充分考えられる。すなわち中間レベル  $1.1 \times 10^{-8}$  sec 以内にそのような ion-cluster を形成し、これから第 2 段転換が起るものと考えられる。このような反応場においてはその化学的効果はいわゆる液相における "cage effect" と非常に類似しているものと考えられる。一般に液相炭化水素における核異性体転移および ( $n, \gamma$ ) 反応による臭素原子の反応では得られる生成物は水素 1 置換体 > 水素 2 置換体……のような関係にあり、<sup>24)</sup> process (B) において  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$  が process (A) よりも非常に出来やすい事情はこのようにして説明されるものと考えられる。

しかしながらかならずしも第一段転移で生成する  $^{80}\text{Br}^+$  の全てがこのような process を経るものとは考えられず、process (A) および (B) の有機収率がほぼ同じことから、また process (A) において認められた  $\text{kr } 0.6\text{mf}$  以上での  $\text{CH}_2\text{BrBr}$  の収率の増加が同じように process (B) においても認められることから第 2 段転移が  $\text{H}^{80}\text{Br}$ ,  $^{80}\text{Br}^{n+}$  ( $n \geq 0$ ) のような化学種から出発している部分もかなりあるものと考えられる。

熱イオン反応による  $\text{CH}_2\text{BrBr}$  の生成: 既報<sup>5,6,7)</sup> において著者および立川らによって  $\text{Br}^{80\text{m}}\text{Br}-\text{CH}_4$  系における  $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$  の生成は thermal ionic process によることを示した。立川らは  $\text{Br}^+$  イオンと  $\text{CH}_4$  の反応で生成する  $\text{CH}_4^{80}\text{Br}^+$  の分解反応で生成する  $\text{CH}_2\text{Br} \cdot$  ラジカルが  $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$  を与える中間体であるとした。しかし本研究における  $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}-\text{CH}_4$  系において thermal ionic process による  $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$  の生成が同じように反応中間体として  $\text{CH}_2\text{Br} \cdot$  ラジカルを経由すると仮定するならば、その反応径路としては次の 2 つが考えられる。





本研究を行うにあたり東北大電子ライナックマシニンググループの方々および京大原子炉ホットラボ部門川本, 岩田両氏に原く感謝の意を表わします。

### 参 考 文 献

1. M. Yagi, K. Kondo, T. Kobayashi, Bull. Chem. Soc. Japan, 44, 580( 71)
2. M. Yagi, K. Kondo, T. Kobayashi, Radiochem. Radioanal. Letters, 7, 275( 71)
3. M. Yagi, K. Kondo, ibid, 5, 75 ( 70)
4. T. Shiokawa, T. Kobayashi, K. Kondo, M. Yagi, ibid, 7, 281 ( 71)
5. E. Tachikawa Bull. Chem. Soc, Japan., 43, 63( 70)
6. M. Yagi, K. Kondo, T. Kobayashi, 投稿予定
7. 八木, 近藤, 小林 核理研報告 4 102 ( 71)
8. E. Tachikawa, J. Okamoto, Radiochim Acta, 13, 159 ( 70)
9. E. P. Rack, A. A. Gordus, J. Phys. Chem, 65, 944( 61)
10. E. P. Rack, A. A. Gordus, J. Chem Phys, 34, 1855 ( 61)
11. J. B. Nicholas, E. P. Rack, J. Chem. Phys., 48, 4085 ( 68)
12. 八木, 近藤, 小林 第16回放射化学討論会講演要旨集 p 64 (72)
13. L. D. Spicer, A. A. Gordus "Chemical Effects of Nuclear Transformation"  
vol.1, IAEA Vienna ( 65) P185
14. W. H. Hamill, J. A. Young, J. Chem. Phys, 20, 888 ( 52)
15. A. R. Kazanjian, W. F. Libby, ibid, 42, 2778 ( 65)
16. J. L. Magee, E. F. Gurnee, ibid., 20, 894 ( 52)
17. C. M. Lederer, J. M. Hollander, I. Perlman, "Table of Isotopes"  
John Willey & Sons. Inc. New York ( 68)  
pp 215, 217
18. J. W. T. Spinks, R. J. Woods "An Introduction to Radiation Chemistry"  
John Willey & Sons. Inc New York ( 64) P 252
19. C. E. Melton, P. S. Rudolph, J. Chem Phys 32, 1128 ( 60)
20. C. D. Wagner, P. A. Wadsworth, D. P. Stevenson, J. Chem Phys 28, 517 ( 58)
21. A. Henglein, G. A. Muccini, Z. Naturforschg, 15 a, 584 ( 60)
22. J. L. Magee, M. Burton, J. Chem. Soc, 56, 842 ( 52)

23. S.C.Lind, "The Chemical Effects of Alpha Particles and Electrons"  
Chemical Catalog Co, New York ( 28) p 663
24. R.F.Pottie, W.F.Hamill, J. Phys. Chem, 63, 877 ( 59)

III-2 Photon Activation Analysis of Biological Materials I.  
Elemental Abundances of NBS Standard Reference  
Material, Orchard Leaves

理学部化学 加藤豊明\*  
岩手大教養 佐藤允美\*\*

Summary — Photon activation analysis with 30 MeV bremsstrahlung in conjunction with high resolution gamma spectrometry has been tested for survey analysis of trace elements in the NBS biological matrix standard reference material, orchard leaves. Simultaneous irradiation of the sample with synthetic multielement standards containing 23 elements has shown that the technique is particularly effective for the nondestructive determination of antimony, arsenic, calcium, magnesium, manganese, rubidium, strontium and sodium. Photopeak intensities, optimum decay times, signal-to-noise ratios, and other factors for quantifications have been stated and the elemental abundances of 8 elements were given.

Although a number of elements are found regularly in the tissues of animals and plants, only several trace elements — magnesium, iron, cobalt, copper, zinc, molybdenum and iodine

---

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

\*\* Nobuyoshi Sato : College of General Education, Iwate University, Morioka.

— have been characterized with certainty by their biological significance in the life processes. Many other trace elements may, however, play important vital roles in the life processes such as metabolic processes and enzymic actions. To know for certain, trace element analysis in the biological sciences is emerging as an increasingly attractive area of research attention. The multielement analysis to gain an overall view of the elemental patterns seems to be more important to investigate mutual roles of many elements in a living matter.

Since their concentrations are extremely low in general, activation analysis is often the only effective technique. Many investigators have so far applied neutron activation analysis for single element determination by means of radiochemical separations of pure radioactive products followed by gamma counting. In nondestructive method by neutron activation, the number of element determined is limited because of high swamping activities either from the matrix or from trace elements with high thermal neutron capture cross sections. This approach could only be achieved when a complex scheme for automated separation of a number of pure radioisotopes was conducted<sup>1,2)</sup> or when a strictly instrumental technique was introduced in conjunction with high resolution gamma spectrometry.<sup>3-6)</sup> Morrison and Potter combined chemical group separations with high resolution gamma spectrometry and obtained abundance information on 31 elements in several biological materials.<sup>7)</sup>

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 multielement photon activation analysis was assessed to be promising in our previous work<sup>8)</sup> in which a number of major and minor constituents in standard silicate rocks has been determined nondestructively by activation with 30 MeV bremsstrahlung followed by high resolution gamma spectrometry. Hislop and Williams applied photon activation technique to intact analysis of the reference biological material kale<sup>9)</sup>, human blood, urine and bone ash.<sup>10)</sup>

This paper deals with a part of such study as to investigate how the photon activation procedures are powerful as a tool for multielement analysis of biological materials. The sample selected in this work was a biological matrix standard reference material, SRM-1571, Orchard Leaves which was issued for trace element determinations by the United States National Bureau of Standards. This sample consisted mostly of peach tree leaves with a few apple and sour cherry leaves which was collected, dried, finely ground, homogeneously mixed, and distributed for intercomparisons. Some certification for elemental compositions was available for this material,<sup>11)</sup> and it was felt to be helpful in the assessment and development of the present method. Utilizing the experience gained in analyzing geological materials,<sup>8)</sup> it was decided to combine 30 MeV bremsstrahlung activation and intact measurements with a lithium-drifted germanium detector for analysis of orchard leaves to obtain maximum elemental information without chemical separations. 8 elements could be determined nondestructively in this work.

## Experimental

### Sample and multielement standard

The orchard leaves were dried prior to irradiations at 90°C for 24 hours as recommended by NBS.<sup>12)</sup> A portion of the

dried sample weighing 1 g was compressed into a pellet 13 mm in diameter with a thickness of about 5 mm. A reference standard used in the present experiment was a synthetic mixture containing the elements of interest distributed evenly in cellulose powder. This multielement standard consisted of 23 elements, mostly added as oxides, at an appropriate concentration in a matrix of cellulose. The concentration levels of the elements in this mixture were 1.4% of magnesium, 3.9% of calcium, 500 ppm of iron, 200 ppm of each of barium, copper, manganese, sodium, nickel, rubidium strontium and zinc, and 20 ppm of each of antimony, arsenic, cerium, cesium, chromium, cobalt, iodine, molybdenum, lead, titanium, thallium and zirconium. The reagents with chemical purity of 99.99% or better were used. About 1 g of this mixture was compressed into a pellet 13 mm in diameter.

#### Irradiation

All irradiations were performed for a period of 2 hours using a linear electron accelerator of Tohoku University operated at 30 MeV. The electron beam, the peak current being 90 mA, produced bremsstrahlung in a platinum converter with a thickness of 3 mm located 3 cm from the beam exit window. The average beam current was 70  $\mu$ A at the position of the converter measured by using a current monitor. Samples and the multielement standards were sandwiched together and placed in a water-cooled sample holder on the bremsstrahlung beam axis 12~14 cm from the converter. Because of heat generated in the vicinity of the photon-producing converter, the samples could not be positioned close to it and, hence, intensity was substantially reduced from that obtained immediately behind it. In a typical irradiation, a dose-rate of  $10^6$  R/min was obtained at the sample position.

### Activity measurement

The counting equipment consisted of a lithium-drifted germanium detector with a sensitive volume of  $33 \text{ cm}^3$ , ORTEC Model 8101-0525, and its associated electronics coupled to a 4096-channel pulse-height analyzer, Toshiba Model USC-1. The counting system had a resolution of 2.4 keV for the 1332 keV gamma-line. Counting has been made continually for a period of one month or longer.

### Evaluation

Nuclide identification was obtained from a knowledge of the gamma-ray energies, decay data, the gamma spectra obtained by irradiating pertinent pure elements, and nuclear data listed in the Table of Isotopes.<sup>13)</sup> In obtaining full-energy peak areas, total peak counts were computed and background contribution was subtracted, assuming linear variation of background over the peak of interest. Interferences from overlapping peaks were corrected by decay curve analyses. A mean specific activity in terms of the peak areas for any specified gamma-ray from standards on both sides was used for calculating the concentration of an element in question in a sample.

Duplicate analyses were made for each element.

### Results and Discussion

At shorter decay times after the end of irradiation, the gamma spectra of both the orchard leaves and the multielement standards were dominated by activation products from calcium ( $^{43}\text{K}$ ) and magnesium ( $^{24}\text{Na}$ ). The only trace element observed at this time was strontium ( $^{87\text{m}}\text{Sr}$ ). At longer decay times, photo-peaks due to the ( $\gamma, n$ ) reaction products of a number of elements could be observed. Those observed in the multielement standards were  $^{74}\text{As}$ ,  $^{47}\text{Ca}$ ,  $^{132}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{84}\text{Rb}$ ,  $^{122}\text{Sb}$ ,



$^{202}\text{Tl}$ ,  $^{89}\text{Zr}$  and  $^{126}\text{I}$ . In addition, the  $^{67}\text{Cu}$  activity from zinc was also measured. The photon activation products found in a multielement standard are given in Table 1 with half-lives, gamma-rays observed and their peak intensities, optimum counting times, and signal-to-noise ratios within the counting times for each element.

The elements identifiable in both sample and standard have been determined quantitatively. Those were antimony, arsenic, calcium, magnesium, manganese, rubidium, sodium and strontium.

Arsenic could be determined using the 596 keV photopeak of  $^{74}\text{As}$ . The 634 keV photopeak of  $^{74}\text{As}$  could also be measured, but, when used for quantification, the results seemed to be less precise as seen in Table 2. This peak was used for confirmation. Calcium was determined either by the  $^{44}\text{Ca}(\gamma, p)^{43}\text{K}$  or by the  $^{48}\text{Ca}(\gamma, n)^{47}\text{Ca}$  reaction. Of the peaks of  $^{43}\text{K}$  and  $^{47}\text{Ca}$ , the 374 keV and 619 keV peaks of  $^{43}\text{K}$  and the 1298 keV peak of  $^{47}\text{Ca}$  were found to produce accurate and precise values of calcium concentration (Table 2). The calcium result was the average of the values from these three different peaks. In the determination of magnesium using the  $^{25}\text{Mg}(\gamma, p)^{24}\text{Na}$  reaction, aluminum interferes through the reaction  $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ . A separate irradiation of each definite amount of magnesium and aluminum under identical conditions produced a ratio of  $^{24}\text{Na}$  specific activities of 206 : 1. The  $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$  contribution to the total  $^{24}\text{Na}$  activity could be estimated to be 0.04% when an aluminum concentration of 440 ppm in orchard leaves reported by Morrison and Potter<sup>7)</sup> was used.

The results of duplicate analyses are given in Table 3 together with those by Morrison and Potter<sup>7)</sup> and with the NBS certified values.<sup>10)</sup> The results of duplicate analyses for each of the elements generally agree with uncertainties better

than  $\pm 4\%$ . The arsenic results are low as compared with previously published data.

The method presented here is particularly valuable for the determination of antimony, arsenic, calcium, magnesium, manganese, rubidium, sodium and strontium. If an irradiation with much higher dose-rate were performed, the sensitivities would be improved so that the method could be applied to the determination of more elements with lower detection limits.

Further analyses on the biological standard reference materials of different origins as well as biological samples of a wide variety will be carried out in the near future.

Acknowledgement — The authors express their 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. The orchard leaf sample was provided by Dr. G. J. Lutz of the National Bureau of Standards, Washington, D. C., U. S. A. to whom the authors' thanks are due.

#### References

- 1) K. Samsahl, P. O. Wester and O. Landstrom, *Anal. Chem.*, 40, 181 (1968).
- 2) K. Samsahl, Aktiebolaget Atomenergi Report, AE-389 (1970).
- 3) R. A. Nadkarni and W. D. Ehmann, J. R. DeVoe ed., "Modern Trends in Activation Analysis," NBS Special Publ. 312, Vol. 1, p. 190 (1969).
- 4) R. A. Nadkarni and W. D. Ehmann, *J. Radioanal. Chem.*, 3, 175 (1969).
- 5) R. A. Nadkarni and W. D. Ehmann, *Radiochem. Radioanal. Lett.*, 4, 325 (1970).
- 6) R. A. Nadkarni and W. D. Ehmann, *ibid.*, 6, 89 (1971).

- 7) G. H. Morrison and N. M. Potter, *Anal. Chem.*, 44, 839 (1972).
- 8) T. Kato, I. Morita and N. Sato, Presented at the C. N. R. S. International Colloquium on Activation Analysis, Saclay, France (October, 1972) C30.
- 9) J. S. Hislop and D. R. Williams, Rep. U. K. Atom. Energy Auth., AERE-R6910 (1971).
- 10) J. S. Hislop and D. R. Williams, Presented at the International Conference on Modern Trends in Activation Analysis, Saclay, France (October, 1972) M67.
- 11) P. D. LaFleur, Presented at the C. N. R. S. International Colloquium on Activation Analysis, Saclay, France (October, 1972) C54.
- 12) Provisional certificate of analysis, SRM-1571, Orchard Leaves, National Bureau of Standards, Washington, D. C., January, 1971.
- 13) C. M. Lederer, J. M. Hollander and I. Perlman, "Table of Isotopes," 6th ed., J. Wiley & Sons, New York, 1967.

Table 1. Photon activation products observed

Element	Product nuclide	Process	Half-life observed	$\gamma$ -ray observed, (keV)	Concn. level, (ppm)	Photopeak intensity,* (cpm/ $\mu$ g)	Time interval for measurement after irradiation	S/N ratio
As	$^{74}\text{As}$	( $\gamma, n$ )	17.9 d	596	20	1.66	10~20 d	0.32~0.60
"	"	"	"	634	20	0.40	20 d	~0.17
Ca	$^{43}\text{K}$	( $\gamma, p$ )	22.4 h	374	39000	$2.26 \times 10^{-1}$	1~3 d	~1.9
"	"	"	"	619	"	$1.11 \times 10^{-1}$	"	~1.4
"	$^{47}\text{Ca}$	( $\gamma, n$ )	4.53 d	1298	"	$6.35 \times 10^{-3}$	10~20 d	5.6~3.0
Cs	$^{132}\text{Cs}$	( $\gamma, n$ )	6.5 d	668	20	10.4	10~20 d	1.0~0.87
I	$^{126}\text{I}$	( $\gamma, n$ )	13 d	386	20	3.64	10~20 d	0.61~0.75
Mg	$^{24}\text{Na}$	( $\gamma, p$ )	15.0 h	1369	14000	$8.88 \times 10^{-1}$	1~3 d	~4.0
Mn	$^{54}\text{Mn}$	( $\gamma, n$ )	303 d	835	200	$8.77 \times 10^{-2}$	20 d	1.9
Na	$^{22}\text{Na}$	( $\gamma, n$ )	2.60 y	1275	200	$6.27 \times 10^{-3}$	> 20 d	> 0.70
Rb	$^{84}\text{Rb}$	( $\gamma, n$ )	33.0 d	880	200	0.57	10~20 d	2.4~6.5
Sb	$^{122}\text{Sb}$	( $\gamma, n$ )	2.80 d	564	20	7.89	3~10 d	0.37~0.25
Sr	$^{87\text{m}}\text{Sr}$	( $\gamma, n$ )	2.83 h	388	200	346	2~10 h	2.2~0.89
Tl	$^{202}\text{Tl}$	( $\gamma, n$ )	12.0 d	440	20	2.92	10~20 d	0.47~0.57
Zn	$^{67}\text{Cu}$	( $\gamma, p$ )	59 h	185	200	0.59	~3 d	0.06
Zr	$^{89}\text{Zr}$	( $\gamma, n$ )	78.4 h	913	20	4.94	3~10 d	0.35~0.44

\* At the end of 2-h irradiation with 30 MeV bremsstrahlung ( $10^6$  R/min).

Table 2. Arsenic and calcium concentrations in Orchard Leaves determined by using different gamma-ray photopeaks

Element	Product	Photopeak (keV)	Concentration	
As	$^{74}\text{As}$	596	9.8 ppm	9.8 ppm
"	"	634*	9.3 ppm	10.1 ppm
Ca	$^{43}\text{K}$	374	1.95%	2.04%
"	"	619	1.94%	2.02%
"	$^{47}\text{Ca}$	1298	1.90%	1.93%
Average			1.93%	2.00%

\* Photopeak used for confirmation.

Table 3. Elemental abundances of NBS Standard Reference  
Material 1571, Orchard Leaves

Element, ppm unless indicated	This work (Nondestructive PAA)		Morrison and Potter <sup>7)</sup> (Destructive NAA)		NBS Certified value
As	9.8	9.8	10	10	14 ± 2
Ca	1.93%	2.00%	2.15%	2.04%	(2.09 ± 0.03)%
Mg	0.60%	0.63%	0.60%	0.59%	(0.62 ± 0.02)%
Mn	99	100	86	86	91 ± 4
Na	86	87	80	74	82 ± 6
Rb	10.3	10.7	11	11	12 ± 1
Sb	3.3	3.2	3.0	3.0	—
Sr	35	38	43	37	(37)*

\* Noncertified value.

#### IV. 加速器・データ処理装置稼働状況

## IV-1 昭和47年度後期マシン報告

核理研 浦沢茂一・今野牧・一戸隆  
 マシングループ 栗原亮・羽柴満・平山忠衛  
 阿部勇

## 300 MeV

## 概 況

- ・ nano-sec ビーム：主ビームの他にこぼれの電子が加速され、TOF法による( $\gamma$ , n) 実験が出来ない。原因は電子銃のカソード以外からのエミッションらしいが、対策は未定。このため今期はこの課題の採択はしない。
- ・ 予備日等：マシンの保守関係の日数を増加したため、課題割当日数の消化は順調に行えた。

## マシンタイム実施状況

	割 当 (日)	実 施 (日)	増 減
e s (小山田)	6	6	0
e s (鳥塚)	18	20 <sup>1</sup>	+2
e s (石松)	6	6	0
e s (寺沢)	6	6	0
e s (中原)	1	1	0
e, e/p (坪田)	4	4	0
e, e/p (川村)	2	2	0
e, e/p (庄田)	5	5	0
e, e/p (斎藤)	7	7	0
e, e/p (金沢)	1	1	0
$\gamma$ , $\gamma$ (菅原)	1	1	0
$\gamma$ , $\alpha$ (阿部)	4	4	0
TOF (百田)	3	3	0
e s (Shin)	0	4 <sup>2</sup>	+4
EH (平井)	2	2	0
(松井)	1	1	0
ND (11課題)	19	19	0
RI (14課題)	23	23	0
計	109	115	+6



	割 当 (日)	実 施 (日)	増 減
工 事	23	25	+2
定期点検	6	6	
修理・故障	19 (予備)	16	-3
計	48	47	-1
合 計	157	162.3	+5

- 1 48年前期分を実施
- 2 予備日使用
- 3 夜間運転 17.5日 夜間及び休日修理, 2.5日を含む

### マシン保守状況

- ・クライストローンは12月2本, 3月2本納入された。
- ・分析電磁石電源の故障が多くなった。

48年度に更新する予定

### 30MeV

課題採択は5課題23日 実施は4課題16日で残は4月に実施

## IV-2 データ処理装置整備稼動状況

核理研 小山田正幸・窪田健雄・上野智康

核理研のデータ処理装置の現状を第一図に示した。昭和42年3月に導入したオンライン・データ処理装置(TOSBAC-3400)はオンライン・データ処理のみならずオフライン・データ処理、一般科学計算にも非常に適しており、昼夜の別なく6年間使われてきた。近年処理需要が増加し夜間といえども空いている日が数える程しかなくなり、月間稼動時間の伸びが横這いになってきた。これは時間の供給が上限に近づいたためである。

一方加速器運転時間の延長の他に同一加速器運転時間に多数の実験グループが同時に測定したいという要望もありオンライン・データ処理能力並びにオフライン・データ処理能力の増強はどうしても実行しなければならなくなってきた。そこでオンライン、オフラインの機能の分離をはかり、前者の機能をオンライン・データ集積装置(OKITAC-4500)に分担させることにし、システムの設計に当っては徹底的にオンライン機能を追求した。各実験装置の接続換もほぼ完了し、残ったのはADCのみである。これも48年度中にはなんとか実現出来るように期待している。オンラインプログラムも次々と実用化され実際に使って見て従来に較べて機能が向上した事を実感している。更にコアメモリーを32K語まで拡張し、ディスクファイルを新設することにより処理能力は飛躍的に向上することが期待出来る。

更にOKITAC-4500に通信線制御装置を附加することにより東北大学大型計算機センターのTSSと1200ビット/秒の回線を通じて接続することが出来た。プログラムは大型センター、沖電気及び日本電気の協力を得て核理研で作成した。現在データ・ステーションとして順調に働いている。これは関係各位の御指導の結果と感謝している。この経験により将来核理研に中型の中央計算機が設置された時の計算機同志をオンラインで接続することのメドがついたと考える。

さてデータ処理装置導入以来の稼動時間の推移は第2図に示す通りであるが、昭和47年度の用途別時間表を別表に示した。今期について分析してみるとT-3400の方はO-4500導入以前の2年間平均稼動時間410時間から359時間と約月に50時間の減少を示している。これはオンラインがO-4500に移ったためであり、オフライン・データ処理については前期の月87時間から今期143時間と激増している。実験装置の多重運転が本格的になればオフライン・データ処理に要する時間は更に増加するのは必然である。オンライン実験中、中性子散乱の時間が減少していないのは、O

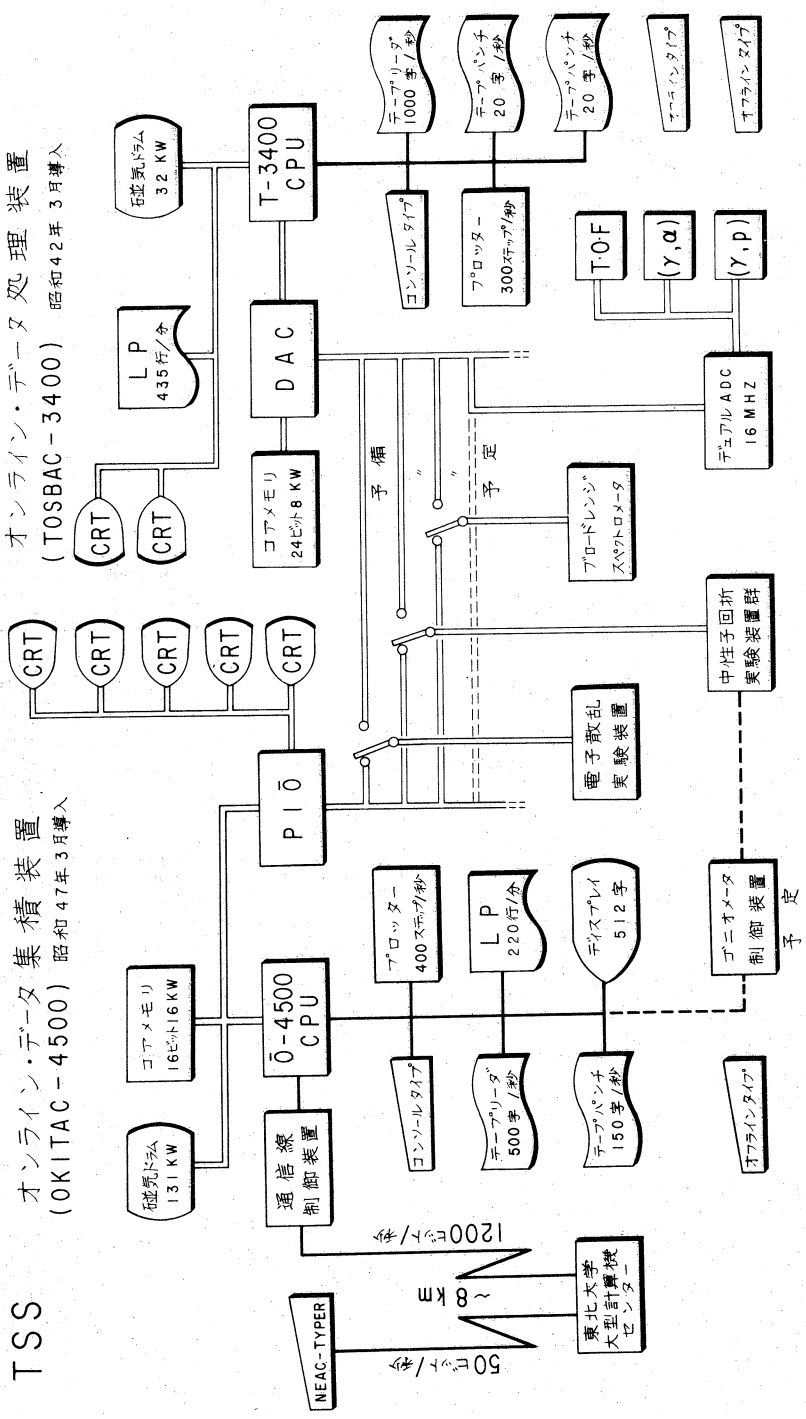
ー 4500 のメモリー容量がまだ不足しているため T-3400 も同時に使われているためである。

○ 4500 について今期の状況を見るとオンラインが月平均 187 時間で合計時間 232 時間に対して 80% になっている。故障に関しては 8 月から 11 月にかけて目立っているが、これは 11 月に徹底的に調べた結果、計算機室の湿度が 40% 以下になると使用している紙テープに高圧の静電気が発生してスパークするため異常になることが解り、空調機に湿度コントロール装置をつけて 65% 前後にして解決した。

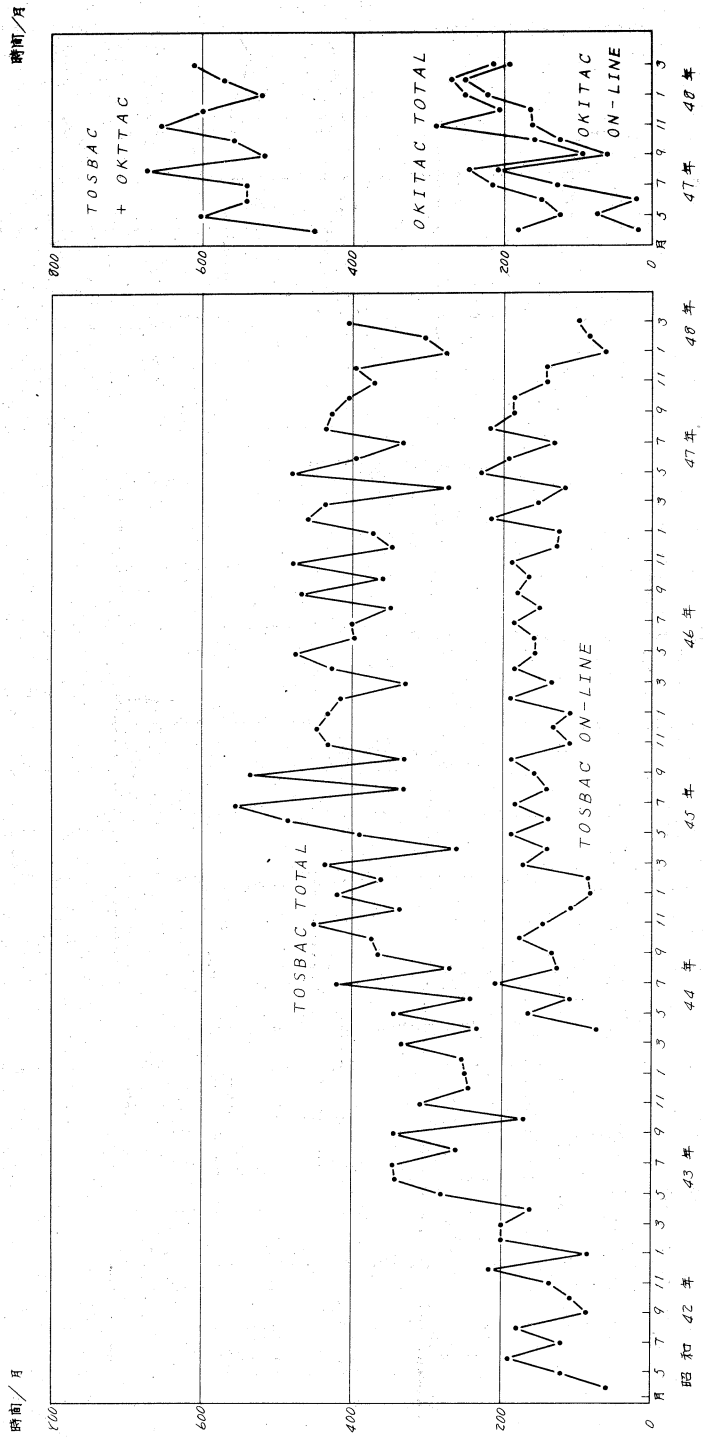
今後の整備計画としては名古屋大学工学部と核理研との協同研究として中性子回折用ゴニオメータが夏に設置され、秋には計算機によって制御されることになる。要求中のものはディスクファイルの新設とコアメモリーの拡張及び A D C の接続である。

最後に計測グループの一員であった上野氏は 4 月から科学技術庁航空宇宙技術研究所角田支所に移られた。氏の核理研在籍中の尽力に感諸すると共に今後の活躍を期待します。

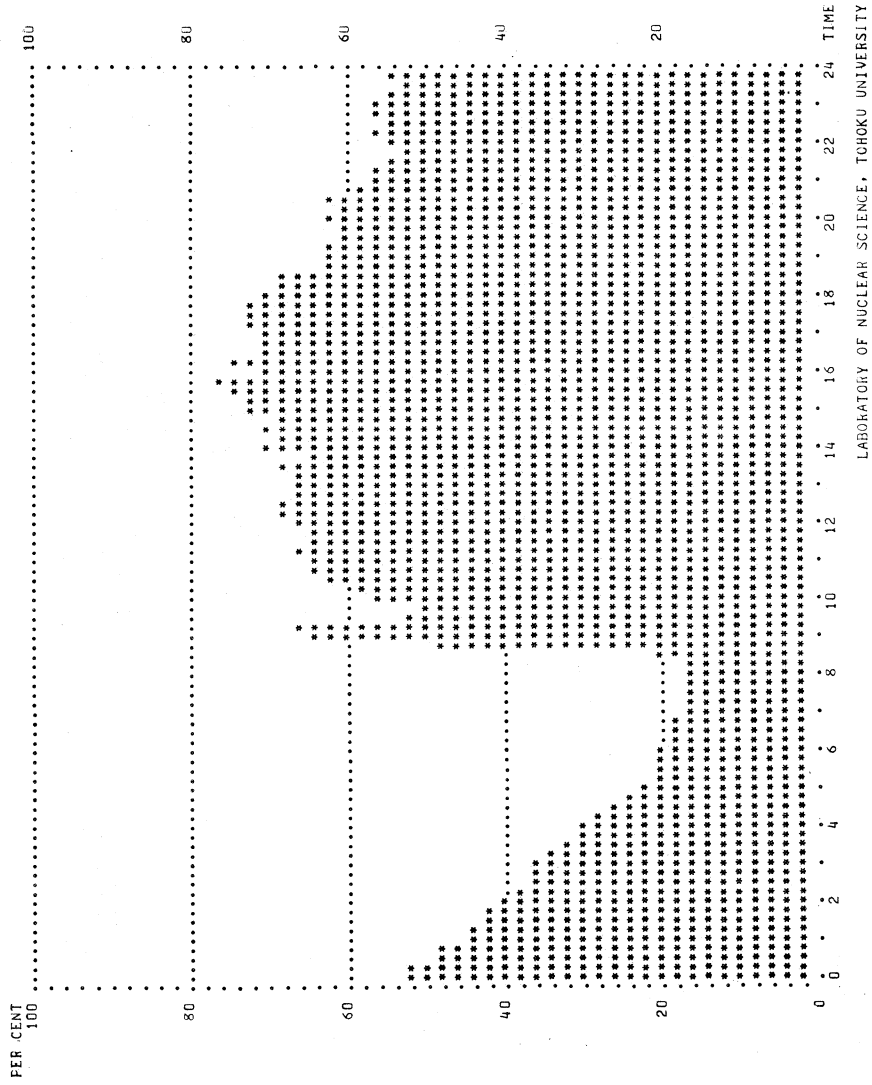
( 小山田 )



第1図 東北大学 原子核理学研究施設 データ処理装置ブロック図



第2図 東北大学核理研データ処理装置月間稼動時間



LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE, TOHOKU UNIVERSITY

第3図 T-3400 利用率



LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE, TOHOKU UNIVERSITY

第4図 O-4500 利用率

## 昭和47年度オンラインデータ集積装置用途別稼働時間表

(OKITAC-4500)

(単位：時間)

月	LDM	BDM	ND	データ ステー ション	オンラ イン計	一般 計算	保守	故障	月合計
4	2	11	7	0	20	27	136	0	183
5	8	53	15	1	77	26	21	0	124
6	18	0	1	3	22	51	76	0	149
7	69	41	17	2	129	80	6	0	215
8	47	110	45	5	207	21	8	10	246
9	9	47	2	4	62	15	14	3	94
10	104	0	20	0	124	27	5	2	158
11	41	77	29	14	161	5	118	8	292
12	50	77	9	30	166	28	12	0	206
1	120	55	34	14	223	8	19	0	250
2	153	0	76	26	255	7	7	3	272
3	97	4	91	0	192	14	6	0	212
合計	718	475	346	99	1,638	309	428	26	2,401
月平均	60	40	29	8	137	26	36	2	200
%	30.0	20.0	14.3	4.0	68.3	12.9	17.8	1.0	100.0

第1表 T-3400 用途別利用実績



## 昭和47年度オンラインデータ処理装置用途別稼動時間表

( T O S B A C - 3 4 0 0 )

( 単位：時間 )

月	LDM	BDM	N D	PHA	オンラ イン計	オフライ ンデータ 処理	一般 計算	保守	故障	月合計
4	58	22	36	0	116	68	60	30	0	274
5	129	76	25	0	230	115	113	19	6	483
6	89	33	71	0	193	79	107	18	0	397
7	58	0	35	36	129	77	82	37	7	332
8	110	68	12	28	218	105	87	24	2	436
9	62	27	94	0	183	75	133	31	5	427
10	114	50	19	0	183	91	97	32	2	405
11	21	45	48	28	142	132	69	25	1	369
12	59	45	23	12	139	143	81	22	12	397
1	0	0	35	28	63	121	63	18	9	274
2	10	22	48	5	85	154	42	21	2	304
3	0	11	87	0	98	215	38	27	26	404
合 計	710	399	533	137	1,779	1,375	972	304	72	4502
月平均	59	33	44	12	148	115	81	25	6	375
%	15.8	8.9	11.8	3.0	39.5	30.6	21.5	6.8	1.6	100.0

第2表 O-4500 用途別利用実績

核理研研究報告 第6巻 第1号

昭和48年6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. 6 No.1 June 1973  
Laboratory of Nuclear Science,  
Tohoku University.  
1, Kanayama, Tomizawa, Sendai, Japan