

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 研 究 報 告

VOL. 7 No. 1 June 1974

東北大学理学部

原子核理学研究施設

刊 行 規 定

1. 「核理研研究報告」は核理研共同利用による実験報告及びそれに直接関連した研究報告等を掲載します。
2. 本誌掲載の論文に対しては原則として審査を行っておりません。
但し、特別の事情がある場合には投稿論文の掲載を拒否し、あるいは書き直しを求める事があります。
3. 本誌の論文を欧文の論文中に引用される際は Research Report of Laboratory of Nuclear Science Tohoku University 又は Private Communication として引用する事とし、著者の承諾を得た上で引用して下さい。
4. 本誌は毎年6月と12月に発行します。

投 稿 規 定

1. 邦文の原稿はA4版400字詰原稿用紙を使用して下さい。
2. 引用文献、記号、単位、数式、文字指定等は Journal of the Physical Society of Japan あるいは Bulletin of the Chemical Society of Japan の「投稿の手引」に従って下さい。
特に次の点について御注意下さい。
原稿には添字、ギリシャ文字、大文字、小文字、イタリック、ゴシック、立体を赤鉛筆で指定して下さい。但し、文中の文字記号及び数式は原則としてイタリックで組みますので、単位及び元素記号、数式中特に立体とすべき文字記号は必ず立体の指定をして下さい。
3. 図及び表には1枚毎に「第1図」、「第2表」のように番号を付けて下さい。図は全て墨入れし、縮尺又は刷り上り寸法を記入して下さい。但し、1/3以下の縮尺は御遠慮下さい。
4. 図及び表の挿入個所を原稿に指定して下さい。
5. 図及び表の説明をそれぞれ別紙にまとめて原稿の末尾につけて下さい。
6. 原稿締切日は4月30日と10月31日です。原稿は下記宛提出して下さい。

仙台市富沢金山1 郵便番号 982

東北大学理学部原子核理学研究施設

「核理研研究報告」編集係

核理研研究報告 Vol.7 No.1 目次

I 原子核物理部門		
1-1	電子散乱による原子核の研究.....	1
	(核理研, 理学部物理*) 鳥塚 賀治, 斎藤悌二郎, 伊藤 広平 光延 信二, 笹尾真実子, 細山 謙二 福田 茂樹, 三浦 英美, 宇井 治生* 川添 良幸*	
1-2	Quasi-Elastic Electron Scattering (II). Transverse Components for ^{40}Ca and Discussions.....	23
	川添 良幸	
1-3	^{25}Mg の低励起準位の電磁形状因子.....	43
	(核理研, 理学部物理*) 岡崎 行男, 小山田正幸, 寺沢 辰生 中原 和夫, 早川 健, 斎藤 肇*	
1-4	$N=82$ 同調核による電子の弾性散乱.....	53
	(理学部物理) 斎藤 肇, 林部 昭吾, 川村 暢明 金沢 正明, 遠藤 順政, 山家 優 石松 敏之	
1-5	$^6\text{Li}(e, e'X)$ 反応の研究.....	62
	(山形大教養, 核理研*) 種市 宏, 上野 博昭, 庄田 勝房*	
1-6	$^{26}\text{Mg}(\gamma, \alpha_0)$ 反応.....	67
	(核理研, 理学部物理*, 教養部**) 寺沢 辰生, 玉江 忠明, 菅原 真澄 川村 暢明*, 斎藤 肇*, 坪田 博明**	
1-7	$(e, e'p)$ 反応による $T>$ 状態の研究.....	73
	(核理研) 及川 四郎, 斎藤悌二郎, 鈴木 厚人 玉江 忠明, 上柿 順一, 菅原 真澄 庄田 勝房	
1-8	BDM 散乱槽内に設置された制動放射 γ 線発生装置.....	85
	(核理研) 庄田 勝房, 菅原 真澄, 上柿 順一 玉江 忠明	

I-9	^{238}U の光核分裂に伴う遅発中性子スペクトル測定(II).....	88
	(工学部原子核)	岩崎 信, 築 一正, 佐藤 修 佐野 健一, 萩原 実, 相山 一典
II 物性物理部門		
II-1	$\text{ThC}_{0.76}$ の室温における中性子回折.....	91
	(工学部原子核, 選研*)	小川 徹, 松本 実,* 本間 敏夫*
II-2	Correlation Functions in Liquid Bromine and Carbon Tetra- chloride by T-O-F Neutron Diffraction.....	94
	(金 研)	三沢 政勝, 鈴木 謙爾
II-3	分子性液体の配向相関.....	100
	(核理研)	新村 信雄
II-4	T-O-F Neutron Diffraction of Liquid Gallium and Rubidium...	107
	(金 研)	福嶋 喜章, 三沢 正勝, 鈴木 謙爾
II-5	ネマティック液晶の中性子回折.....	116
	(核理研)	新村 信雄
II-6	アモルファス $\text{Fe}_{0.8}\text{P}_{0.13}\text{CO}_{0.7}$ のパルス中性子回折(I).....	122
	(学習院大理学部, 核理研*)	溝口 正, 山内 一志, 新村 信雄*
II-7	Mn_3Si の磁気構造.....	124
	(金 研)	富吉 昇一
II-8	TOF法中性子回折による精密結晶構造解析(II).....	129
	(名大工学部, 核理研*)	高橋 順一, 新村 信雄*, 原田 仁平
II-9	四軸型ゴニオメータの制御系.....	136
	(核理研)	窪田 健雄, 新村 信雄, 小山田正幸
II-10	Np^{237} Mössbauer Probe Embedded in Uranium Dioxide by Means of U^{238} (r/n) U^{237}	140
	(選研, 東北工大*, 工学部無所属**)	大川 淳, 庄司 忠良*, 松井 哲治**
II-11	Preparation of Ga^{73} Mössbauer Source in Germanium through Photoneuclear Reactions.....	147
	(工学部無所属, 核理研* 東大工学部原子力**)	

松井 哲治, 今野 収* 石野 稔**

Ⅲ 放射化学部門

- Ⅲ-1 ^{73m}Se , ^{73g}Se の壊変 157
(理学部化学) 玉木 洋一, 藤田 敬一, 鍛冶 東海
塩川 孝信
- Ⅲ-2 Nondestructive Multielement Photon Activation Analysis of
Environmental Materials 164
(理学部化学, 岩手大教養) 加藤 豊明, 佐藤 允美*
- Ⅲ-3 気相 $\text{CH}_4\text{-H}^{80m}\text{Br}$ および $\text{CH}_4\text{-H}^{82m}\text{Br}$ 系における核異性体転移にともな
う化学的効果.....添加物効果..... 179
(核理研) 八木 益男, 近藤健次郎
- Ⅲ-4 ^{46}K の崩壊 184
(工学部原子核) 市村 敏夫, 武田 靖, 篠塚 勉
古田島久哉
- Ⅲ-5 ^{115}In と ^{176}Lu の (γ , γ') 反応断面積 190
(理学部化学) 吉原 賢二
- Ⅲ-6 臭素の非破壊放射化分析 194
(理学部R I中央実験室, 理学部化学)
山寺 亮, 宮田 孝元, 塩川 孝信*
- Ⅲ-7 KCl 単結晶中の Br の非破壊放射化 201
(理学部R I中央実験室, 理学部化学* 理学部物理**)
山寺 亮, 宮田 孝元, 塩川 孝信*
真木 正子**
- Ⅲ-8 高比放射能 Tm-167 の製造とその癌および骨親和性の研究 204
(金沢大理学部, 金沢大医学部*)
坂本 浩, 代田 悦章, 安東 醇*
久田 欣一*
- Ⅲ-9 ヘキサクロロプロペンによる金属酸化物の分離に関する研究 215
(選 研) 菅野 卓治, 長谷川伸一, 伊藤 勝雄
- Ⅲ-10 人工鉱物中の不純物の放射化分析 219
(金 研) 武居 文彦, 小林 孝彰

Ⅳ 加速器・データ処理装置稼動状況

Ⅳ－１ 昭和48年度後期マシンタイム実施状況..... 225

(核理研)

阿部 勇, 一戸 隆, 浦沢 茂一

栗原 亮, 今野 収, 羽柴 満

Ⅳ－２ データ処理装置、測定器稼動状況..... 227

(核理研)

小山田正幸, 窪田 健雄, 四の宮しずえ

菅原 真澄, 平塚 嘉雄, 武藤 正勝

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
理学部物理*鳥塚賀治・斎藤悌二郎・伊藤広平
光延信二・笹尾真実子・細山謙二
福田茂樹・三浦英美・宇井治生*
川添良幸*

我々のグループはここ2、3年来電子散乱による巨大共鳴の研究を集中的に行ない、従来知られていたE1巨大共鳴の外にE2又はE0と思われる他の巨大共鳴の存在することを明らかにしてきた。その巨大共鳴は他の実験手段によっても研究が始められており、巨大共鳴は特殊な現象としてではなく、核構造を総合的に理解する手掛りになると関心を寄せられている。巨大共鳴のような複雑な現象に対して単一の実験だけで結論を出そうというのは困難であり、異なる実験の結果について比較検討を行ない、理論と実験との密接な協力が望まれている。

今回は特に軽い核 ^{16}O , ^{20}Ne , ^{42}Ca の巨大共鳴について述べる。

 ^{16}O の巨大共鳴

^{16}O の巨大共鳴の研究を目的とした電子散乱の実験については既に一度報告したが¹⁾、今回は更に $q_{\text{eff}} = 1.05 \text{ fm}^{-1}$ の実験を行なったので、その実験結果も合せて解析し、主に ^{16}O のE2巨大共鳴に関して報告する。

実 験

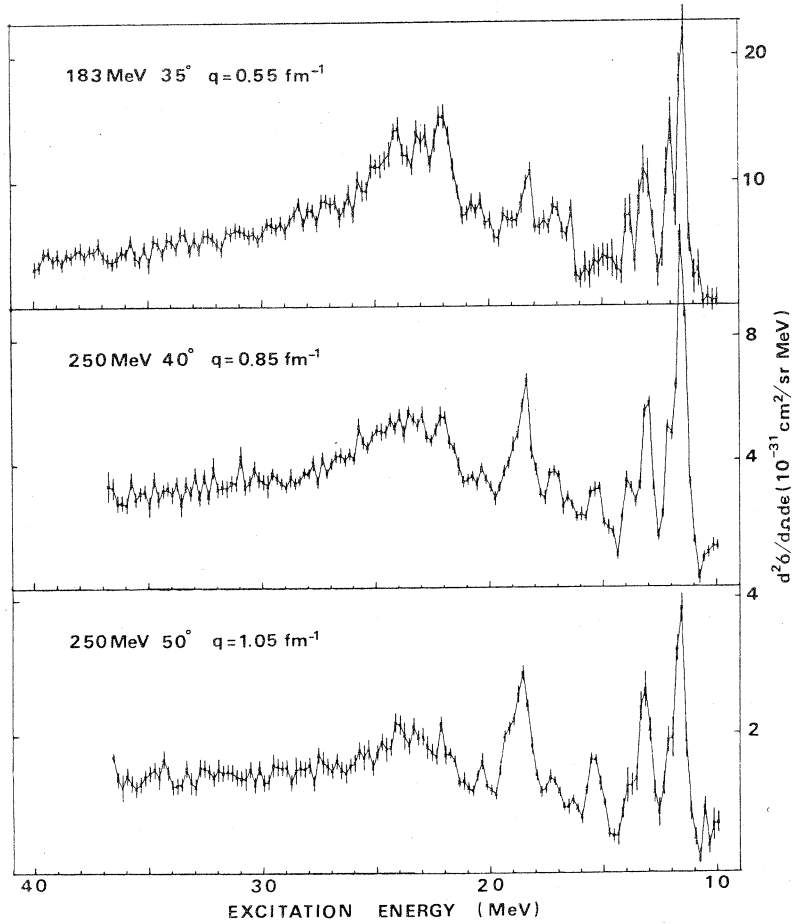
実験は形状因子の縦成分と横成分を分離するために、前方での実験とそれと同じ運動量移行を与える後方での実験を組にして行なった。運動量移行としては、励起エネルギーを20 MeVとして、 q_{eff} が 0.55, 0.85, 1.05になる次の様な入射電子エネルギー及び散乱角で実験を行なった。

I 183 MeV 30° 70 MeV 120° ($q_{\text{eff}} = 0.55 \text{ fm}^{-1}$)

II 250 MeV 40° 97 MeV 135° ($q_{\text{eff}} = 0.85 \text{ fm}^{-1}$)

III 250 MeV 50° 120 MeV 135° ($q_{\text{eff}} = 1.05 \text{ fm}^{-1}$)

第1図は前方での、第2図は後方での ^{16}O による散乱電子のスペクトルを示す。但し測定したスペクトルそのままではなく、各点のエネルギー幅を200 keVにしたときのスペクトルである。前方でのスペクトルでは、 0^+ , 2^+ 等の個々の準位の励起とともに、E1巨大共鳴が強く励起されている。しかし後方のスペクトルでは前方向強く励起されていない。



第1図
前方での ^{16}O による散乱電子のスペクトル。

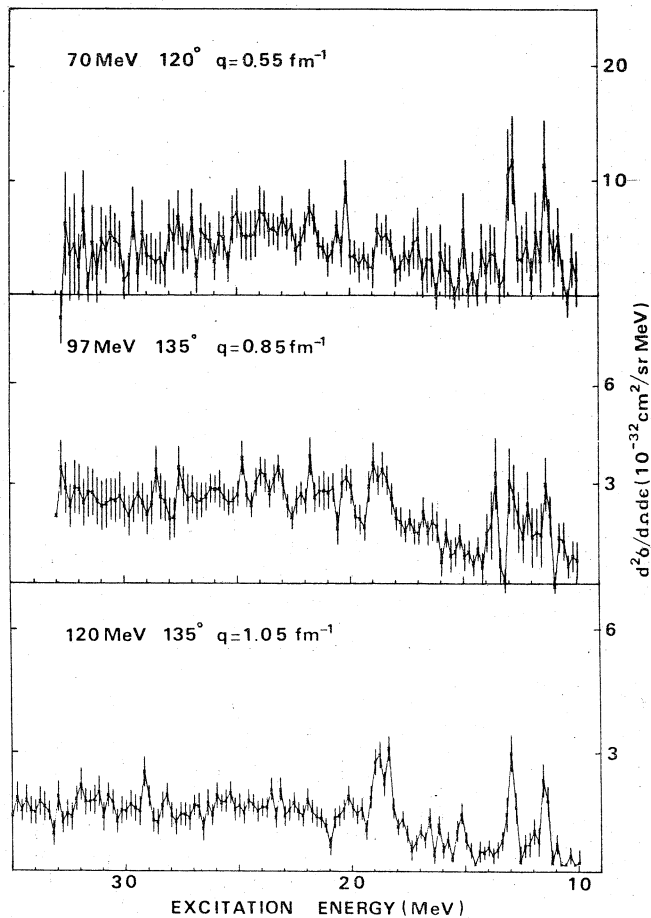
解析及び結果

第1, 2図のスペクトルを使って, スペクトルを形状因子の縦成分 $|W_L(q, \omega)|^2$ と横成分 $|W_T(q, \omega)|^2$ とに分離するために次式を用いた。

$$|W(q, \omega)|^2 = \frac{q^4}{q_\mu^4} |W_L(q, \omega)|^2 + \left(\frac{q^2}{2q_\mu^2} + \tan^2 \frac{\theta}{2} \right) |W_T(q, \omega)|^2 \quad (1)$$

ここで q は三次元運動量移行, q_μ は4次元運動量移行, θ は散乱角である。

第3図に(1)式を使って得られた縦方向形状因子のスペクトル $|W_L(q, \omega)|^2$, 第4図に横方向形状因子スペクトル $|W_T(q, \omega)|^2$ を示す。横方向形状因子については既に報告してあるので, 今回は横成分についての議論は省略する。



第2図

後方での ^{16}O による散乱電子のスペクトル。

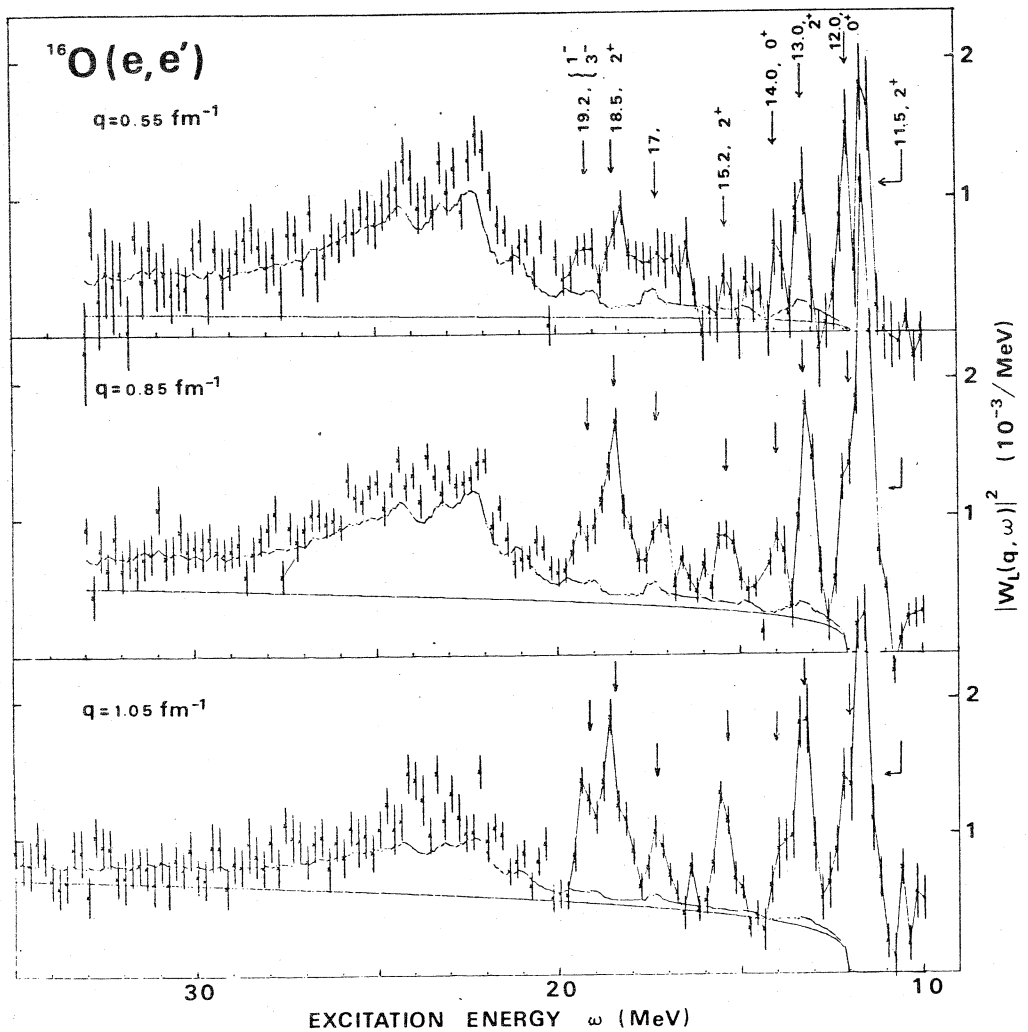
E 2 巨大共鳴を調べるために、形状因子の縦成分と光子の全吸収断面積との比較を行なった。

第3図で実線は、Ahrens等による ^{16}O の全光吸収断面積を電子散乱の結果と比較できる様に直したものである。その際 q -依存性としてTassie模型を仮定した。又図で滑らかな曲線はcontinuumの寄与を次式でestimateしたものである。

$$y = c (E_x - E_{th})^{1/4}$$

ここで E_{th} として陽子のしきい値12.1 MeV, n として4, c は33 MeVで y とE 1の断面積の和がスペクトルに合う様に決めた。

第3図に見られる様に、縦成分 $|W_L|^2$ には、11.5 MeV 2^+ , 12 MeV 0^+ , 13 MeV 2^+

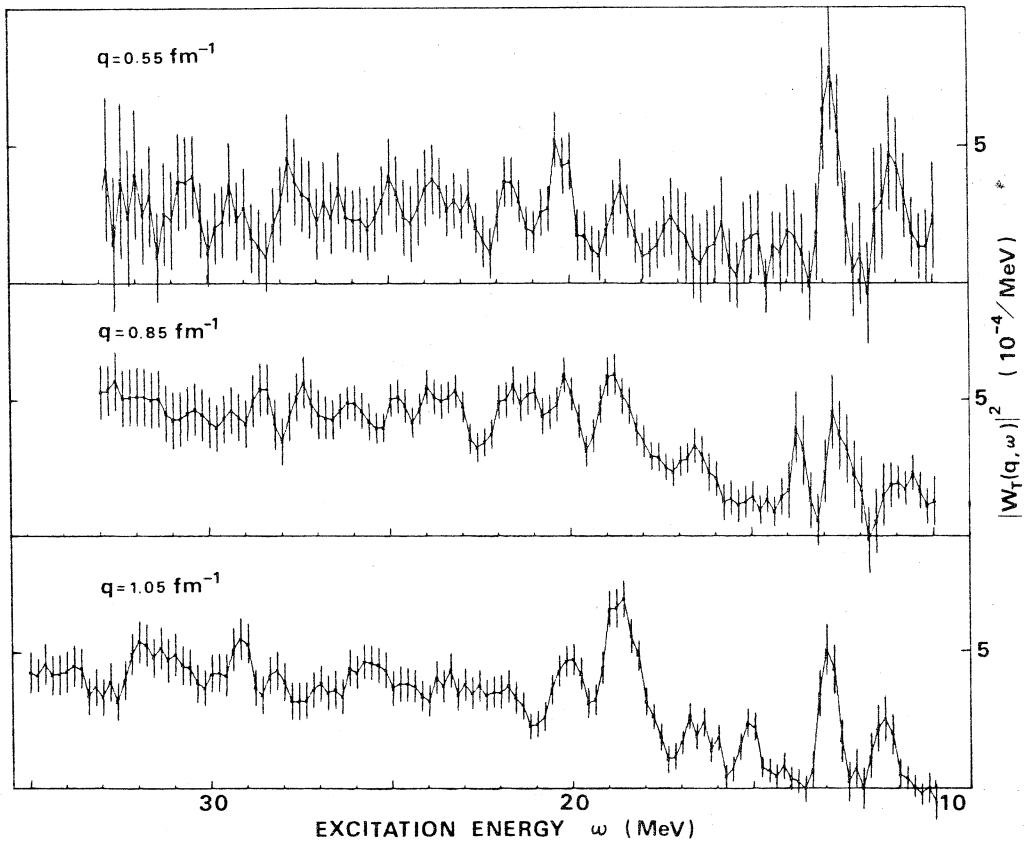


第3図

^{16}O の縦方向形状因子のスペクトル $|W_L(q, \omega)|^2$

14 MeV 0^+ , 15.2 MeV 2^+ , 18.5 MeV 2^+ , 19 MeV (1^- , 3^-) 及び E 1 巨大共鳴が強く励起されている。E 1 巨大共鳴領域に注目すると、運動量移行が大きくなっても、スペクトルは全光吸収断面積よりも大きいことから、この領域では E 1 より高い多重極の遷移を含んでいることを示す。

第5図は $|W_L|^2$ について積分した形状因子を示す。○印は今回の実験結果で積分範囲は 20 MeV から 30 MeV までである。●印は同様な Darmstadt のデータであるが、積分範囲は 21 MeV から 26 MeV までである。△印は Ahrens 等²⁾に依る全光吸収断面積を示す。図中の E 1 の曲線



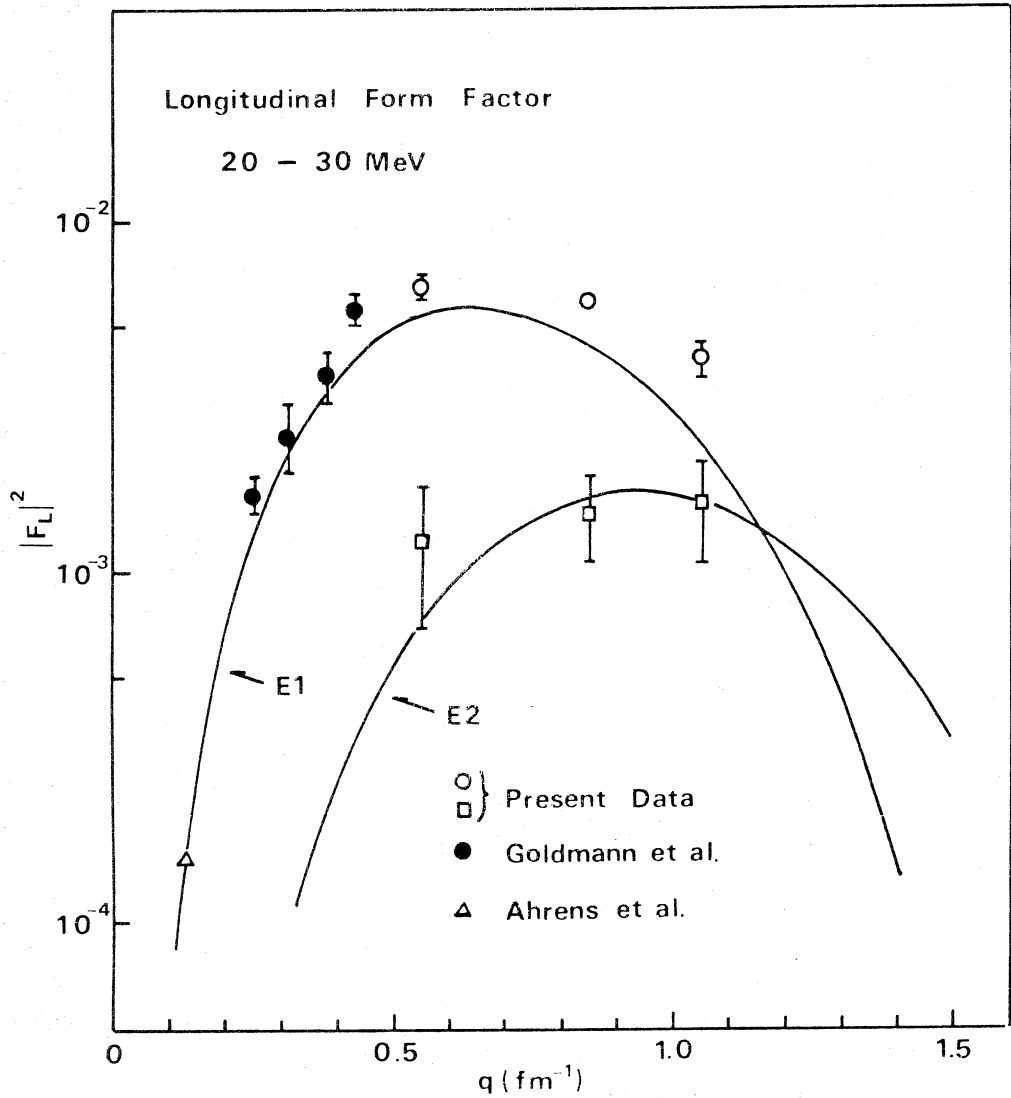
第4図

^{16}O の横方向形状因子のスペクトル $|W_T(q, \omega)|^2$ 。

はTassie 模型による q -依存性を使ったものである。□印は○印の実験値からE 1の形状因子を差引いた残りを示す。これはE 2的な振舞をしており、その遷移強度をTassie 模型を使って求めた。電子散乱ではE 2とE 0は形状因子の上では区別が出来ないが、ここではE 2として解析した。

ま と め

第1表に、上に述べたE 2共鳴及び他の 2^+ の準位の換算遷移確率、EWSRとの比較等を示した。15MeV以下の 2^+ の準位の $B(E 2)$ の値は、Stroetzel⁴⁾、Kim et al.⁵⁾、Stroetzel et al.⁶⁾の論文から引用した。18.5MeVの準位に関しては、Stroetzel等⁶⁾に依る $J=2$ の assignmentがあるが、我々の実験結果では縦方向励起が強いことから、 $J^\pi = 2^+$ と推定される。Tassie 模型を使って求めた $B(E 2)$ を表に示してあるが、誤差を含めたより精度の高い値



第5図

^{16}O の縦方向形状因子 $|F_L(q)|^2$ 。

を求めるべく、現在検討中である。

第1表から明らかなように、 ^{16}O の場合の 2^+ 遷移強度は20 MeV以下ではEWSRの44%を占め、E1巨大共鳴と同じエネルギー領域20~30 MeVでは21%を占めている。このことは中重核や重核に於いては一つのE2巨大共鳴にEWSRの60%以上ものstrengthが集中しているのに比べて非常に異なっている点である。

第1表

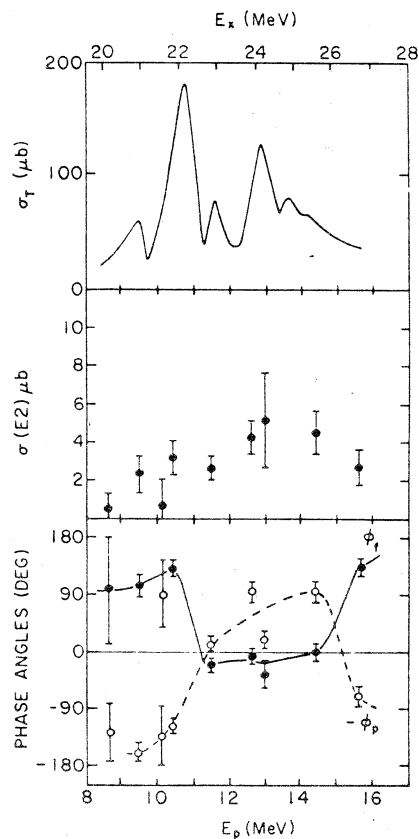
 ^{16}O に於ける E 2 遷移

E_x (MeV)	J^π	$B(E2)$	$B(E2)/B_w(E2)$	$E_x B(E2)/EWSR$
6.92	2^+	36 ± 4^a	3.0	0.11
9.85	2^+	0.67 ± 0.27^a	0.056	0.003
11.52	2^+	25.67 ± 2.83^b	2.1	0.13
13.15	2^+	13.8^b	1.2	0.08
15.15	2^+	8.1 ± 4.1^c	0.68	0.05
16.46	2^+	2.7 ± 0.9^c	0.22	0.02
18.5	2^+	8.0	0.67	0.06
			SUM	0.44
20.30	2^+	20 ± 8	1.7	0.21

a Stroetzel(1968). b Kim et al. (1970).

c Stroetzel et al. (1970).

次に ^{16}O のE 2 巨大共鳴に関する最近の実験について述べる。一つはWang and Shakin⁷⁾の仕事で、彼等は(γ, n)反応の角分布や偏極のデータの解析から、E 1 共鳴だけではデータの説明は出来ず、22.5 MeVにBreight-Wigner型の幅5 MeVのE 2 共鳴を仮定し、E 2のradiative width Γ_γ として330 eV(EWSRの60%相当)を仮定すれば、角分布及び偏極のデータが説明できることを示した。一方Hanna等⁸⁾は偏極陽子捕獲の角分布の測定からE 2の断面積を求めた。その結果を第6図に示す。この遷移強度はEWSRの約30%を占めるが、Hanna等はこのE 2 共鳴がE 1 巨大共鳴よりもエネルギーが高いことから、isovector型($T=1$)のE 2 巨大共鳴であろうと推定している。我々が電子散乱で得たE 2 共鳴の強度がEWSRの20%という結果はHanna等の結果をfavourする。この様に ^{16}O では



第6図 (p, γ) 反応での実験及び解析結果。
上: $^{15}\text{N}(p, \gamma)^{16}\text{O}$ の全断面積, 中:E2の全断面積, 下:E2遷移に関係した部分波の位相

(p, γ), (γ, n), (e, e') の反応を通して E 2 巨大共鳴の存在が確かめられた。

(斎藤)

参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 Vol. 5 No.1 (1972) 1.
- 2) J. Ahrens et al. : *Proc. Int. Conf. on Nuclear structure studies Using Electron Scattering and Photoreactions*, Sendai, 1972.
- 3) 核理研研究報告 Vol. 5 No. 2 (1972) 1.
- 4) M. Stroetzel : *Z. Phys.* **214** (1968) 357 .
- 5) J. C. Kim et al : *Canad. J. Phys.* **48** (1970) 83 .
- 6) M. Stroetzel and A. Goldmann : *Z. Phys.* **233** (1970) 245.
- 7) W. L. Wang and C. M. Shakin : *Phys. Rev. Lett.* **30** (1973) 301.
- 8) S. S. Hanna et al. : *Phys. Rev. Lett.* **32** (1974) 114.

^{20}Ne の巨大共鳴領域の電子散乱

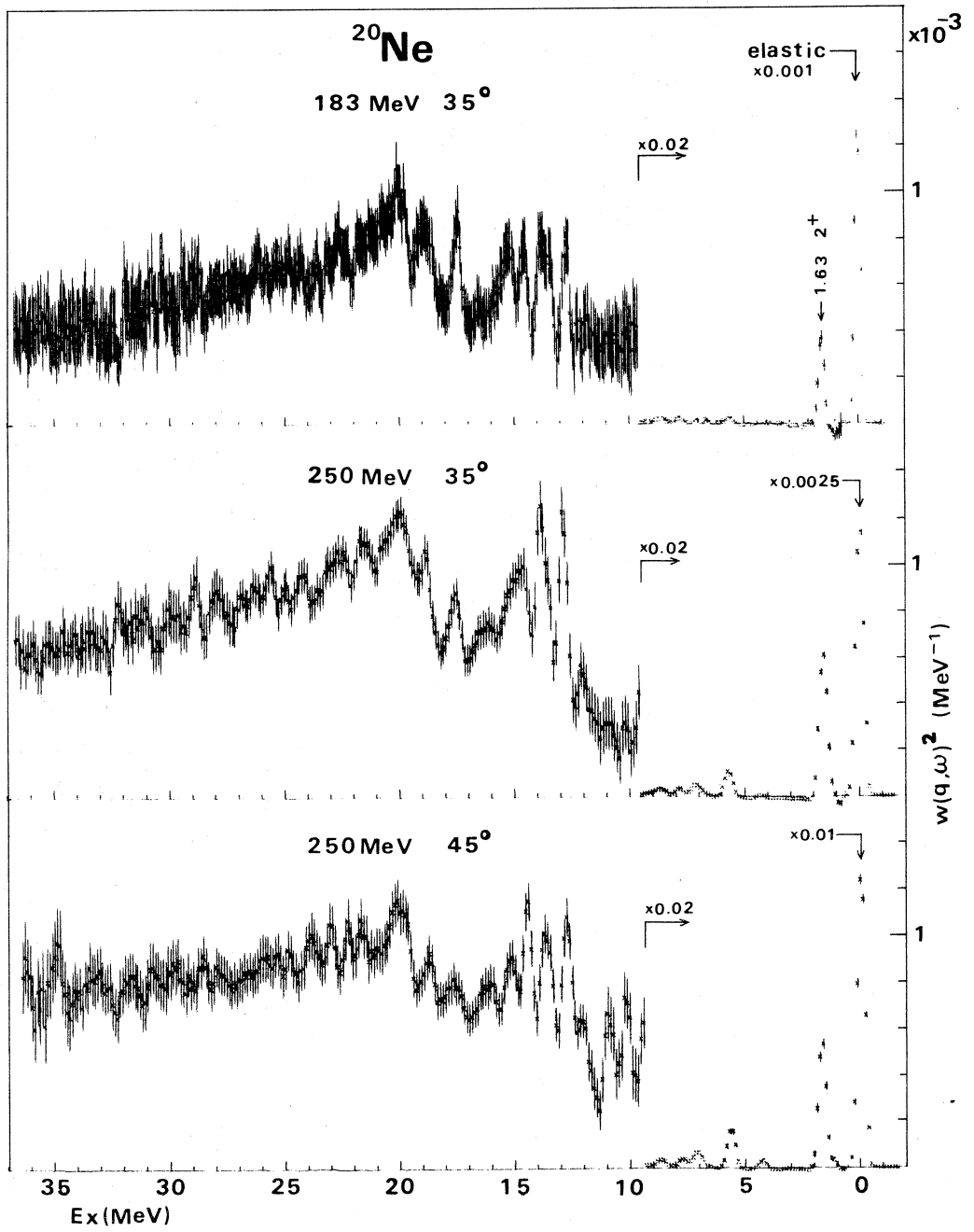
^{20}Ne の E 1 巨大共鳴に関しては $(e, e'p)$ ¹⁾ (r, p) ²⁾, (r, n) ³⁾ 又 (r, p_0) の逆反応である (p, r_0) ⁴⁾ 等の実験により調べられている。 (r, p) , (p, r_0) 及び $(e, e'p)$ の実験において, 17.7, 18.9, 19.9, 21.0 MeV に $J^\pi = 1^-$, $T = 1$ とと思われる巾 ~ 0.5 MeV の鋭いピークが報告されている。 (r, n) の実験は分解能が悪く, これらの structure を見い出してはいない。 ^{20}Ne において見られる E 1 巨大共鳴の大きな structure は ^{24}Mg , ^{28}Si 等の (sd) shell 核に共通に見出されている。これらの structure は核が変形している影響, 低い励起状態との coupling による $2p-2h$ 状態の mixing 等の為と考えられている。

変形の効果を入れた理論としては, W. H. Bassichis and F. Scheck⁵⁾ の Hartree - Fock 状態をベースにして, particle - hole model を Tamm-Dancoff 近似の下で解いた計算があり, $K = 0$ と $K = 1$ の状態の分裂を説明している。 $K = 0$ の状態は (sd) shell の粒子が (fp) shell に上る $(sd)^{-1}(fp)$ が強く, エネルギー的に低い位置に出てくる。又 $K = 1$ に対しては $p^{-1}(sd)$ が強く, エネルギー的に高く出る事が示されている。

実験及び解析

実験は Gas Target を用いて行なわれた。ステンレス容器に 21 気圧で天然のネオンガスを封入したものをを用いている。板のターゲットの場合検出器の相互の efficiency は, ^{12}C の板を用いて決めているが, Gas Target の場合には幾何学的条件をそろえるため同様な容器にエタンガスを封入したものをを用いて efficiency を求めている。又容器により散乱された電子が直接検出器に入らない様に容器の直径は十分大きくとられているが, スペクトルメーターの分解能の悪さ, 多重散乱等により容器の Back ground が入ってくる。この Back ground を取り除くには, 空の容器により対応するエネルギーの実験を行なわなければならない。

実験は E 1 及び E 2 励起が主として見られる 183 MeV 35°, 250 MeV 35°, 250 MeV 45°, を行なった。又, 予備的に 100 MeV 60°, 120 MeV 60° が励起エネルギーで ~ 25 MeV まで行なわれた。120 MeV 60° は空の容器の実験も行い Back ground を求めている。250 MeV の場合水素の実験の時得られる容器の Back ground の値を用いて推定している。励起エネルギー 35 MeV まで実験を行なった 183 MeV 35°, 250 MeV 35°, 250 MeV 45° のスペクトラムを第 1 図に示す。12.7, 13.6, 14.4, 15.1, 16.1, 17.6, 18.8 及び 20.1 MeV にピークが見出された。250 MeV 35° のスペクトラムには 20 MeV 以上にもピークが見られるが他のスペクトラとはっきり一致しておらず確定しない。又 10 MeV 付近に q が大きくなる 250 MeV 45° で急に立上るピークが見られ



1.
 輻射補正を行なった ^{20}Ne のスペクトラム

る。10 MeV付近には何本かの 4^+ 準位のが見つかっておりE 4であろうと思われる。図1で分る様に12~16 MeVに見られるピークは1.63 MeVの 2^+ と同じ様なq依存性を示しておりE 2転移が主に寄与していると思われる。17.6, 18.8, 20.1は最初の所でのべた様に $(e, e'p)$, (p, γ_0) 等で見られるピークとエネルギー的に一致しており, E 1転移が主であろうと思われる。スペクトラムからそれぞれの peakの面積を求める時, 準弾性散乱の寄与, 他の連続的に分布している状態の寄与が問題となる。

Kawazoe⁶⁾による準弾性散乱の計算によると, 30 MeV以上では実験と合っており, 30 MeV以上のエネルギーの高い所では準弾性散乱の仮定が良いと思われる。しかし巨大共鳴付近の準弾性散乱の寄与については, 理論的には良く分っていない。ここでは, ピークの下には準弾性散乱と連続的に分布する準位からの寄与と考えられる連続スペクトラムが存在すると仮定する。そして第2図の様に独立した peakと思われる peakの

下すれすれに30 MeVから10 MeVまでをなめらかな曲線で結び, Continuousなスペクトラムとした。その曲線の上の部分の peakの面積から, それぞれの形状因子を求めた。又20 MeV以上に対しては, 20 MeVの peakを, 巾1 MeV程度に取り, 残りを一まとめにして形状因子を求めた。13.6 MeVはスペクトラム上からは2本の接近した peakである様だが, 分離せず一つの形状因子にまとめて求めた。第3図及び第4図に求めた形状因子を示す。

図中C 1及びC 2で示した実線はTassie model⁷⁾の形状因子のBorn近似での計算値を示す。Tassie modelで転移電荷密度 $\rho_{tr}(r)$ は,

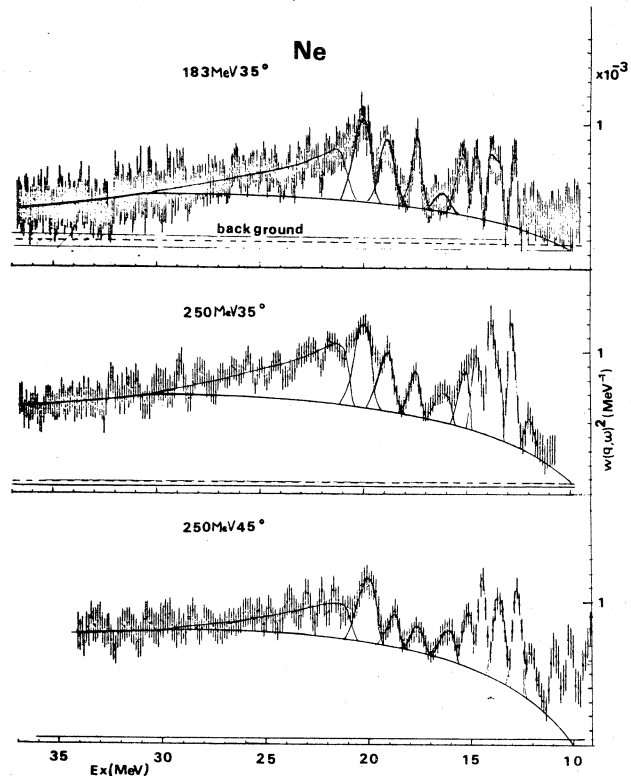


図2. 連続スペクトラムの差引きを示す。ターゲット容器からの寄与の推定をBack groundとして直線で示す。

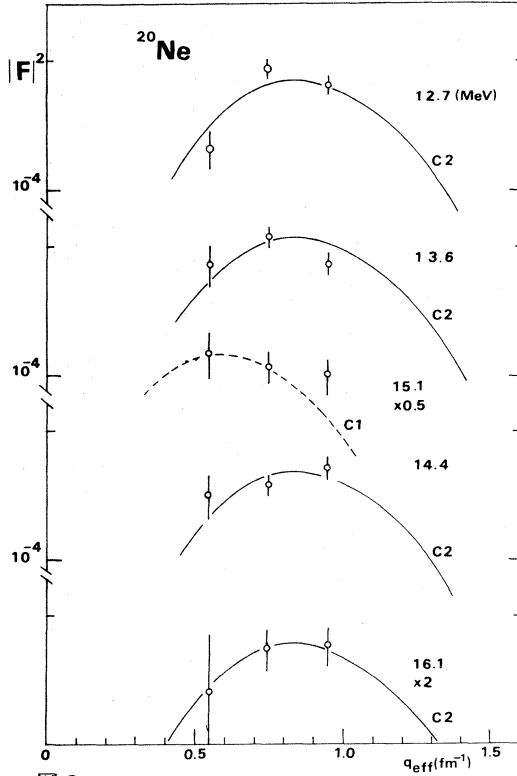


図 3.

12.7, 13.6, 14.4, 15.1, 16.1 MeV の形状因子を示す。実線は E 2 転移の形状因子、点線は E 1 転移の形状因子をそれぞれ示す。

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

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

で c , t は half density radius, 及び diffuseness を表すパラメーターで、基底状態の値

$$c = 2.65 \text{ fm}$$

$$t = 2.60 \text{ fm}$$

を用いている。E 1 の場合 Goldhaber - Teller model の転移電荷密度の形に一致している。

12.7, 13.6, 14.4, 16.1 は E 2 的な成分が主であり、15.1, 17.6, 18.8, 20.1 及び 20.5~30 MeV は E 1 的である。それぞれの $B(EL)$ を求め表 1 に示してある。電子散乱において E 2 と E 0 の形状因子は同じ q 依存性を持つので、E 2 的な peak は E 0 である可能性もある。E 0 とした場合の転移行列 ME を Breathing mode を仮定して求めた。Breathing mode の場合形状因子

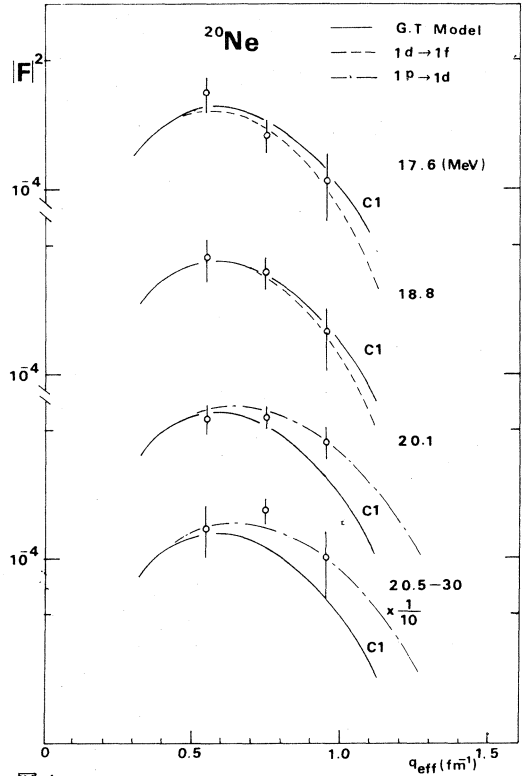


図 4.

17.6, 18.8, 20.1, 20.5 - 30 MeV の形状因子を示す。実線は G - T Model の形状因子、点線は 1 d → 1 f の E 1 転移の形状因子、点鎖線は 1 p → 1 d の E 1 転移を示す。それぞれ大きさは実験に合せてある。

の形は、Tassie modelと一致する。第4図よりわかる様にE1に近い形状因子の間に相違が見られるが、図中点線は(1f_{7/2}, 1d_{5/2}⁻¹)とした計算の形を用いた1d→1fのE1の形状因子の形を表し、一点鎖線は(1d_{5/2}, 1p_{3/2}⁻¹)の計算でやはり大きさを実験に合せたものである。これから(p, r₀)で強く出ている17.6 MeV及び18.8 MeVに対しては1d→1fが良く合い、20.1及び20.5-30 MeVに対しては1p→1dの形状因子が良く合う。次にこれらの共鳴の強さを知る為にenergy weighted sum rule (EWSR)との比較を行なって見た。E1, E0 E2に対してEWSRはそれぞれ次の様に与えられている。

T = 1 mode のE1 転移に対して

$$EWSR(E1, T=1) = \frac{9}{2M} \frac{\hbar^2}{4\pi} \frac{NZ}{A}$$

T = 0 のE2 転移に対しては,⁸⁾

$$EWSR(EL, T=0) = \sum W_i B_i(EL) \\ = \frac{Z^2}{A} \frac{\hbar^2}{8\pi M} L(2L+1)^2 \langle r^{2L-2} \rangle$$

T = 0 のMonopole 転移に対しては,⁹⁾

$$EWSR(E_0, T=0) = \sum \omega \cdot ME \\ = \frac{\hbar^2}{M} Z \langle r^2 \rangle$$

表1にEWSRと実験との比較を示してある。20.5-30 MeVに対してはE_x = 24 MeVとし

表1.

B(EL), ME and Percentage of the Energy Weighted Sum Rule

E _x (MeV)	J ^π	B(EL) e ² fm ^{2L}	ME fm ²	$\frac{E_x \cdot B(EL)}{EWSR}$ (%)	$\frac{E_x \cdot ME ^2}{EWSR}$ (%)
12.7	2 ⁺ or 0 ⁺	11	4.6	3.7	7.3
13.6	2 ⁺ or 0 ⁺	15	5.6	5.4	11.4
14.4	2 ⁺ or 0 ⁺	8.1	4.2	3.1	9.2
16.1	2 ⁺ or 0 ⁺	4.8	3.2	2.1	4.3
				Total 14.3	32.2
17.6	1 ⁻	0.16		3.9	
18.8	1 ⁻	0.24		6.0	
20.1	1 ⁻	0.37		10.0	
20.5-30	1 ⁻	0.82		26.6	
				Total 46.5	

てEWSRの計算に用いている。E 2はtotalで14.3%で小さい。基底band 1st 2^+ は14%程度EWSRを占めているのに比べてそう大きい値とは言えない。E 1は20.1及び20.5—30 MeVが、17.6及び18.8に対して強く1 d → 1 f には(s, d) shellの2ヶのprotonのみが寄与する事を考えると合理的な値になっていると言える。形状因子の形からの考察と合せて考えるとE 1の共鳴において、1 p → 1 d と 1 d → 1 f の分離が起っている事を示しているといえる。

参 考 文 献

- N. R. Dodge and W. C. Barber : Phys. Rev. **127** (1962) 1746 .
- K. Shoda, private communication .
- G. A. Ferguson, J. Halpern, R. Nathans and P. F. Yergin : Phys. Rev. **95** (1954) 776 .
- R. E. Segel, Z. Vager, L. Meyer - Schutzneister, P. P. Singh and R. G. Allas : Nucl. Phys. **93** (1967) 31.
- W. H. Bassichis and F. Scheck : Phys. Rev. **145** (1966) 771 .
- Y. Kawazoe, private communication.
- L. J. Tassie : Australian J. Phys. **9** (1956) 407 .
- O. Nathan and S. G. Nilson : Alpha, Beta and Gamma Ray Spectroscopy, ed. K. Siegban, (North - Hall and publishing Company Amsterdam, 1965) .
- R. A. Ferrell : Rev. **107** (1957) 1631.

^{42}Ca による電子散乱

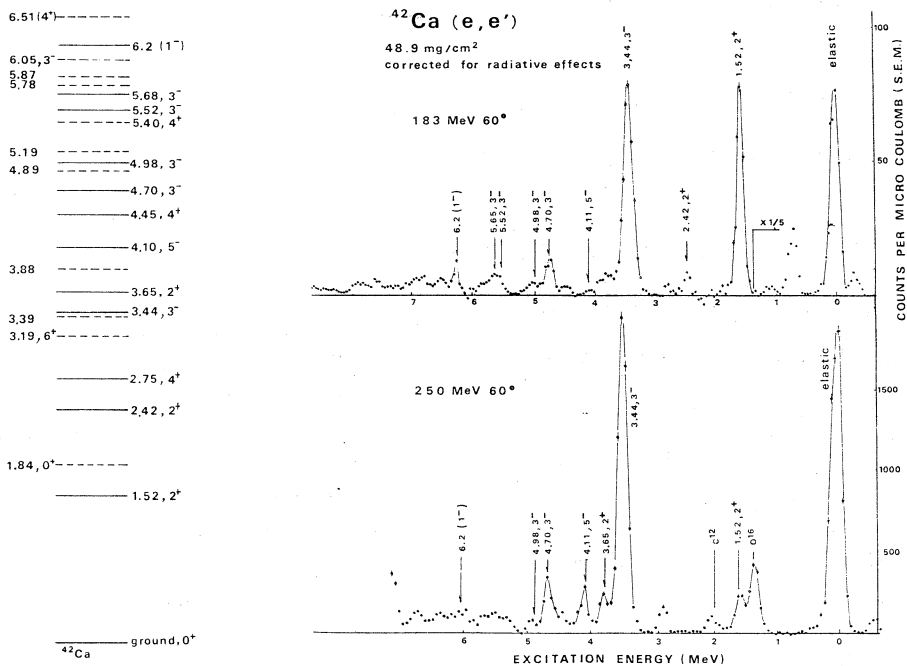
Ca アイソトープの励起状態を電子散乱で調べるプログラムの1つとして ^{42}Ca について実験を行なった¹⁾。濃縮度 94.42% 厚さ 48.9 mg/cm² のターゲットを用いた。

実験に用いた入射エネルギーと散乱角は 150 MeV 35°, 183 MeV 35°, 250 MeV 35°, 45°, 55° で励起エネルギー 37 MeV までの散乱電子スペクトラムをとり、この他に低励起準位を調べる目的で励起エネルギー 10 MeV まで数点観測を行なった。

輻射補正の式に、弾性散乱の形状因子を含めたが Stanford の実験結果 (3-parameter Fermi 型) を使った。

$$c_0 = 3.727 \text{ fm} \quad z_0 = 0.5911 \text{ fm} \quad w = -0.1158$$

Goldhaber - Teller, Tassie 模型による非弾性散乱の形状因子の計算にもこの値を用いたが、



第1図

電子散乱実験で励起された ^{42}Ca の準位を実線で示した。点線は電子散乱以外の実験から存在が分っている準位。特に(α , α')の結果を参考にした。

第2図

^{42}Ca の低励起準位のスペクトラム。

^{40}Ca , ^{44}Ca のパラメーターを使っても結果は殆ど同じである。

I 低励起準位

この実験で励起された6.5 MeVまでの準位を第1図、スペクトラムの例を第2図に示した。

(1) 3^- 準位

第3図に3rd 3^- までの形状因子と換算行列要素B(EL)をWeisskopf 単位で示した。 3_1^- , 3_2^- の形状因子のq-依存性は ^{40}Ca の 3_1^- (3.74 MeV)で合わせられるが, 3_3^- のq-依存性はE 2側に寄り, ^{40}Ca の 3_2^- , 3_3^- と同じ傾向を示す。

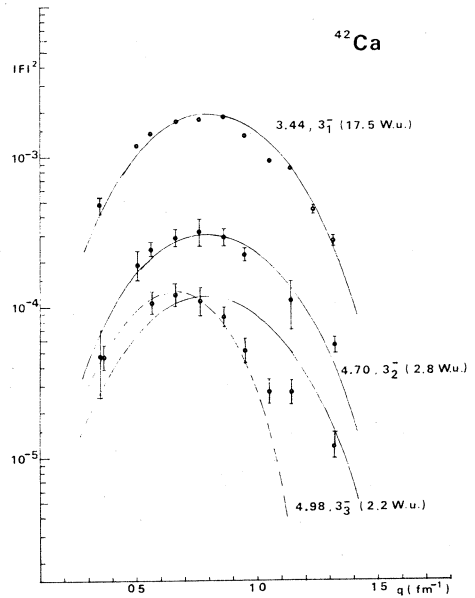
これら3本のE 3励起の他に、スペクトラムで見られる様に5.6 MeVの山は5.52 MeV 3_4^- , 5.65 MeV 3_5^- と考えられる。これら2本のE 3励起は合わせて約2.8 W.u.となる。

^{40}Ca では3本の 3^- , ^{42}Ca では5本の 3^- が電子散乱で励起されたが、図4で1st 3^- 及びこれらの和をとってCaアイソトープについて比較した。質量数が増えると共に 3_1^- 及び 3^- 励起の強度の和は急激に減る(準位数は逆に増える)。減少の傾向は (α, α') の結果と一致する。尚電子散乱の解析範囲ではB(E3)を求める場合の模型依存性はせいぜい3%程度であり、 (α, α') との絶対値のくい違いはそれ以外の原因と考えられる。

(2) 1.52 MeV, 2^+ 準位

形状因子を図5に示した。q-依存性は基底状態のパラメーターを用いたTassie模型の計算でよく合う。一般にCa-アイソトープのE 2励起のq-依存性は厳密な意味でのTassie模型でよく合う。

DWBA計算との比較から $B(EL, 7) = 470 e^2 \text{fm}^4$ が得られた。 ^{42}Ca の 2_1^+ 準位の換算転移

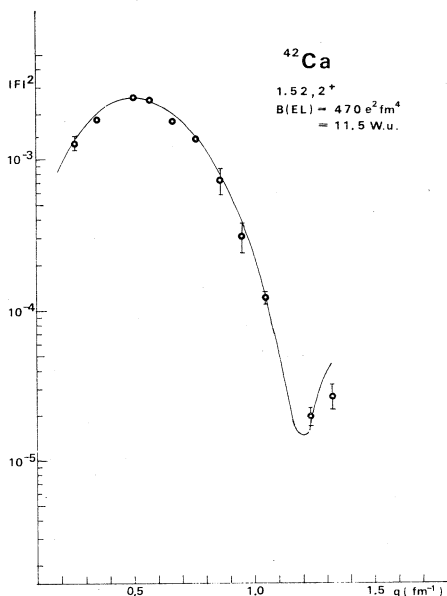


第3図

^{42}Ca の1st, 2nd及び3rd 3^- 準位の形状因子。実線は ^{40}Ca 1st 3^- の形状因子を最もよく説明するDWBAの計算値。但し絶対値は適当に規格化してある。3rd 3^- の形状因子は ^{40}Ca の2nd, 3rd 3^- 準位と同様やや異ったq-依存性を示す。点線は ^{40}Ca の2nd 3^- をよく説明するDWBA計算で、転移電荷密度は大きな節を持つ。尚

尚 $1 \text{W.u. (E3)} = 665.8 e^2 \text{fm}^6$

確率は、 ^{50}Ti 、 ^{54}Fe の様な同じ $(1f_{7/2})^{\pm 2}$ 殻の 2_1^+ 準位よりも大きく、単に $2p_{3/2}$ 殻を含める配位混合だけでは説明出来ず、変形帯の影響を考えねばならないが³⁾、 ^{44}Ca の1st 2^+ も含めて今後形状因子を説明する計算が必要である。

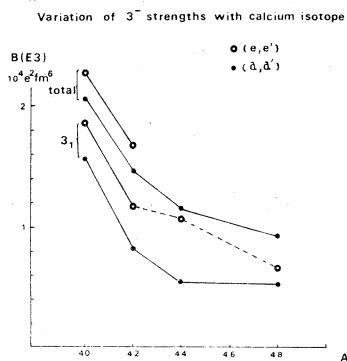


第5図 ^{42}Ca 1.52MeV 2_1^+ の形状因子、実線はTassie 模型によるDWBA計算。

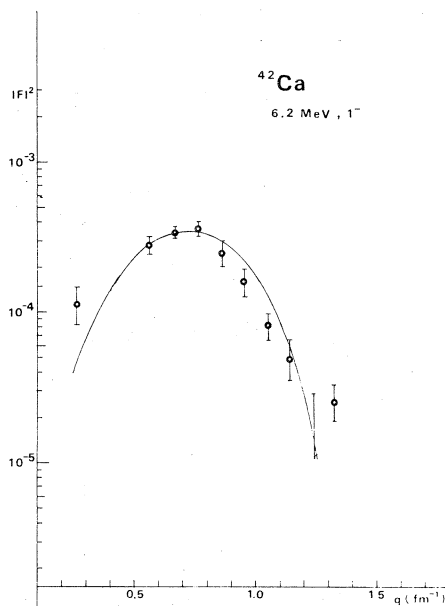
(3) 6.2 MeV, 1 準位

6.2 MeV ピークの形状因子は図6に示す様にE2とE3の中間のq-依存性を示す。(α α')の解析によると6.05及び6.17 MeVにそれぞれ 3_6^- 、(3_7^-)が存在する。しかし6.17 MeVの角分布ははっきりした 3^- を示さない。

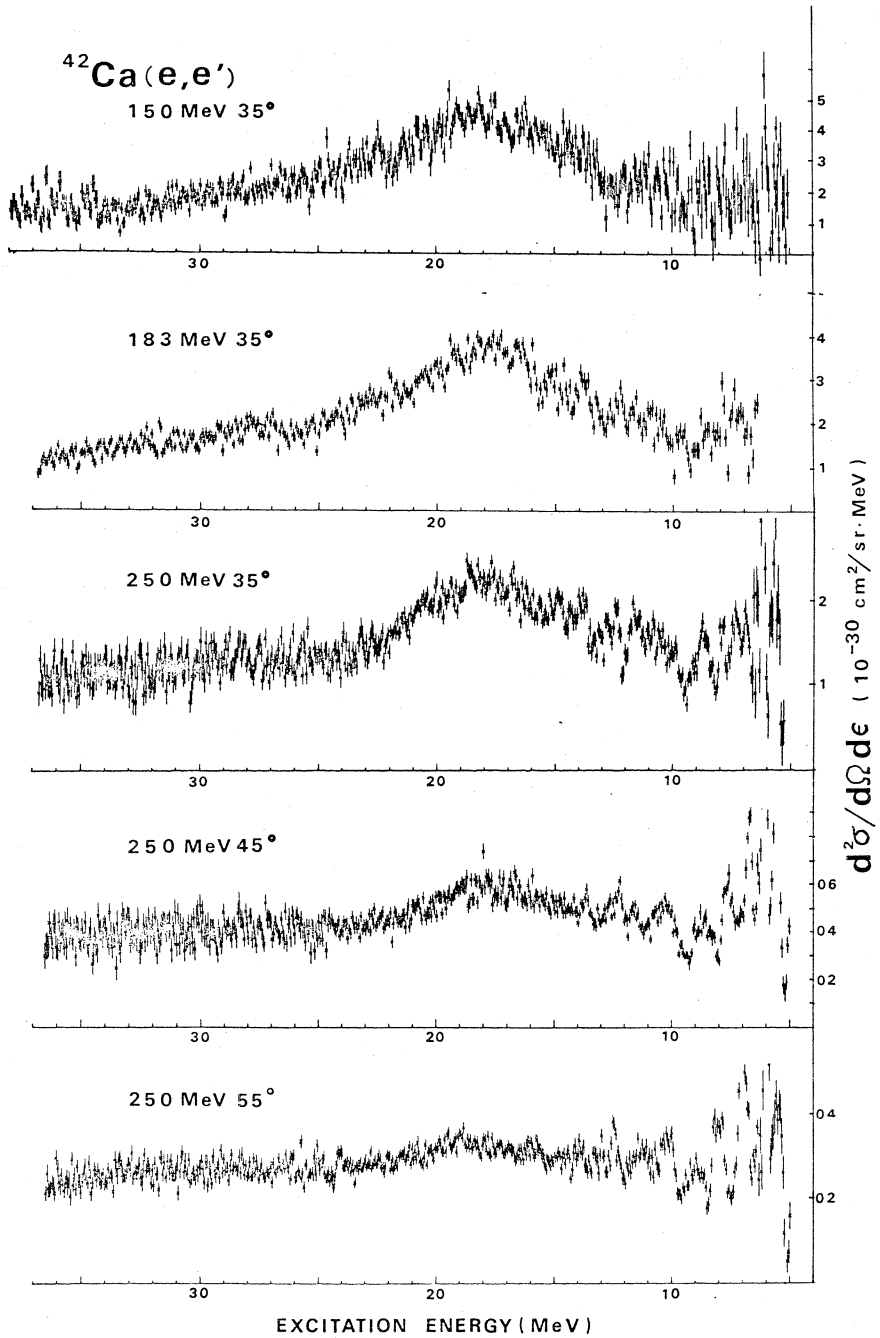
先に ^{12}C 、 ^{16}O 、 ^{40}Ca の様な $T_z = 0$ 核の $\Delta T = 0$ 型のE1励起はE3類のq-依存性



第4図 Caアイソトープの低励起エネルギー(7 MeV以下)における 3^- 振動準位の強度。totalとあるのは ^{40}Ca においては3本、 ^{42}Ca では5本の 3^- 準位の換算行列要素の和を示す。 ^{44}Ca の1st 3^- のデータは未だ実験解析とも未了、 ^{48}Ca の1st 3^- はYale大の実験結果。質量数が増すと共に強度が減る傾向は(α, α')の結果と同じだが、絶対値に喰い違いがある。



第6図 ^{42}Ca 6.2MeVに見出された(1^-)準位の形状因子



第7図

^{42}Ca 巨大共鳴領域の輻射補正後のスペクトラム。 ^{40}Ca では運動量移行の小さい領域で $\Gamma \sim 4.5$ MeV の共鳴を示したが ^{42}Ca では ^{44}Ca と同様巾広い共鳴を示している。

を示すことが分っており⁴⁾、これらと同様 6.2 MeV のピークは $\Delta T = 0$ 型の E 1 励起と考えられる。又 ^{40}Ca では 6.95 及び 5.9 MeV にこの様な E 1 が存在したが、これらと近いエネルギー領域にある。

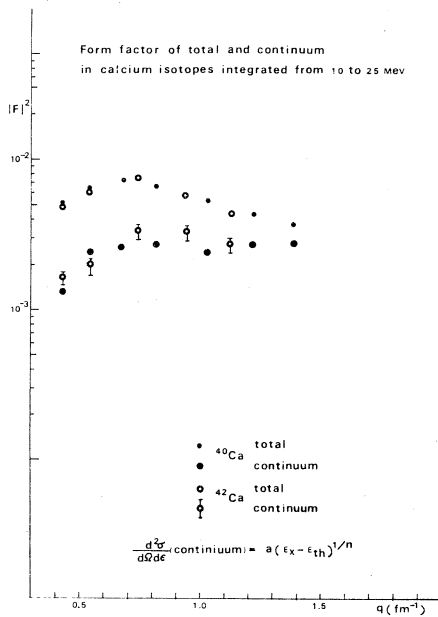
6.2 MeV が E 1 励起とすれば、 $N = Z$ 核以外でも $\Delta T = 0$ 型の E 1 励起は E 3 類似の角分布を示すことになり、 $\Delta T = 0$ の E 1 選択則が $N \neq Z$ 核でも働いて異常な q -依存性を示すことになる。

尚 6.2 MeV の強度は ^{40}Ca 6.95 MeV, 1Γ の $1/3$ 程度である。

II 巨大共鳴領域

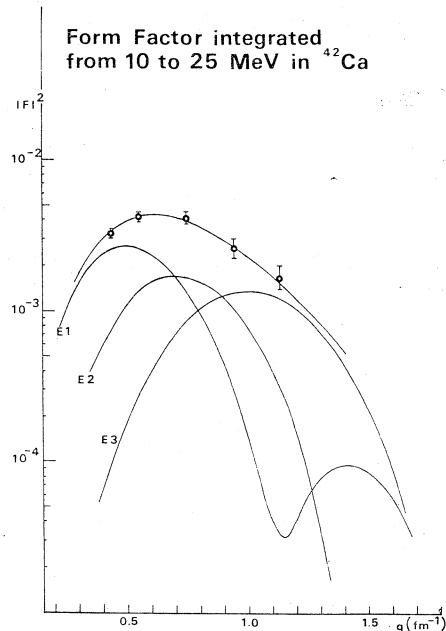
輻射補正を行なった散乱電子スペクトラムを第 7 図に示した。ターゲットの厚さが ^{40}Ca の半分程度のこともあって輻射補正の過程で特に問題はなかった。

スペクトラムは励起エネルギー約 18 MeV を中心として $\Gamma \sim 10$ MeV の広い中で共鳴状態を示している。スペクトラムから見る限り ^{44}Ca の結果と類似し、19.5 MeV を中心として $\Gamma \sim 4.5$ MeV でやや鋭い共鳴を示した ^{40}Ca と対照的である。



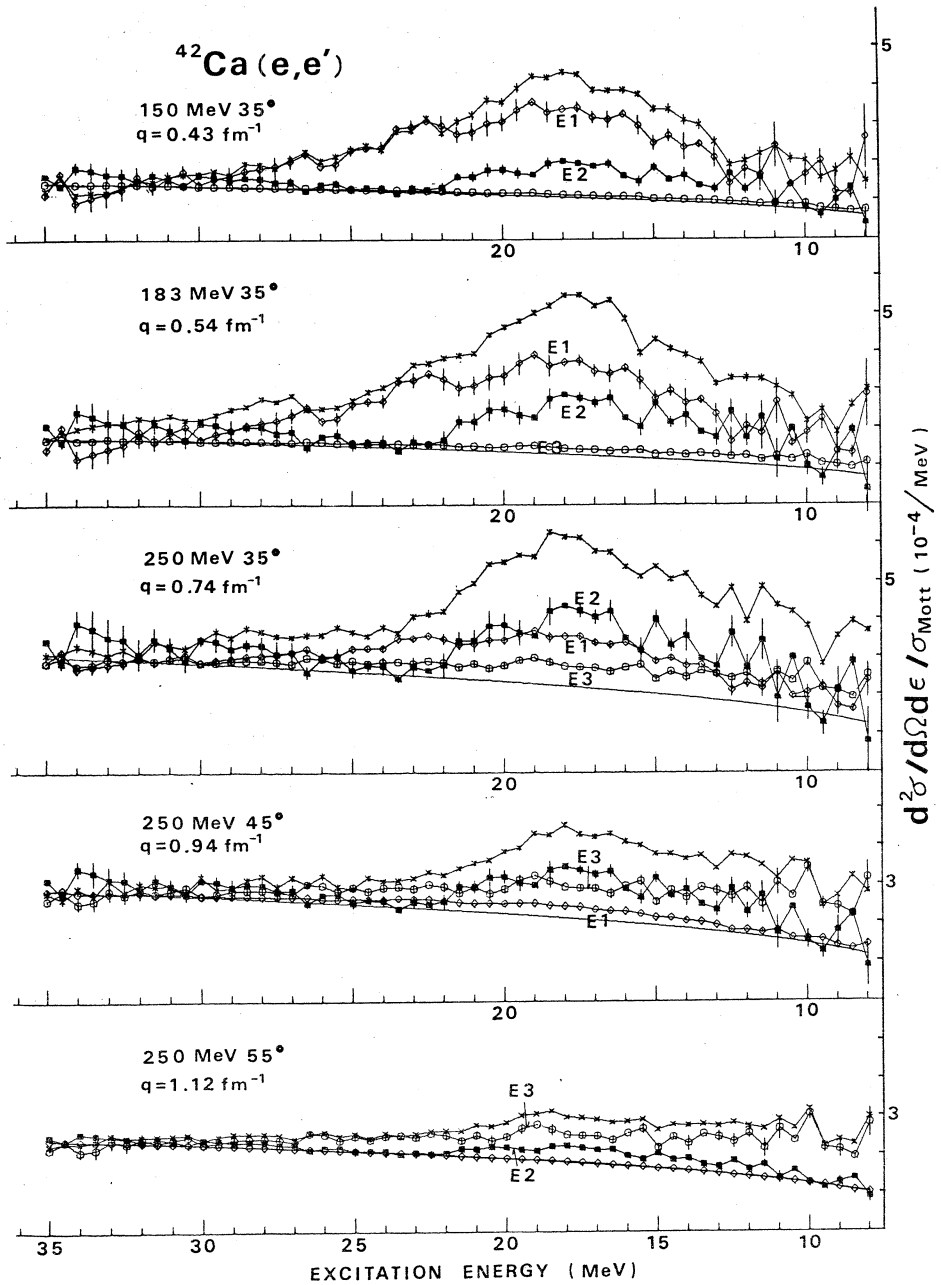
第 8 図

励起エネルギー 10 MeV から 25 MeV までを積分した形状因子及び準弾性散乱の寄与。 ^{40}Ca との間に違いは見られない。



第 10 図

励起エネルギー 10 MeV から 25 MeV まで積分した共鳴状態の形状因子と、第 9 図の様に E 1, E 2 及び E 3 励起に分けた時のそれぞれの成分。E 1 はほぼ総和則を満す。



第9図

励起エネルギー0.5 MeV間隔で共鳴状態をE 1, E 2及びE 3に分離した。連続状態の寄与は $a(E_x - E_{th})^{1/3}$ を用いた。E 1については $E_x \sim 18$ 及び ~ 22 MeVの2つの共鳴を示し、 ~ 17 MeVを中心としたE 2の共鳴は ^{40}Ca の場合によく似ている。

先ず 10 MeV から 25 MeV まで積分した形状因子を求め⁴⁰Ca と比較した。この形状因子は連続状態(準弾性散乱)も含んでいる。第 8 図から明らかな様に、⁴⁰Ca との違いは見出せなかった。⁴⁴Ca の絶対値とも違いはなさそうである。準弾性散乱の寄与は Ca アイソトープ間でほぼ同じであると考えられ、従って(イ)電子散乱で励起される共鳴状態の形状因子は Ca アイソトープを通じてほぼ同じになり、E 1 巨大共鳴だけでは説明出来ない。更に E 1 以外の多重極励起も同程度に寄与しているならば(ロ)光全吸収断面積は Ca アイソトープを通じてほぼ同じになる。

連続状態の寄与は

$d^2\sigma/d\Omega d\varepsilon = a (E_x - E_{th})^{1/n}$ とした。 $E_{th} = 6.0 \text{ MeV}$ (α 粒子のしきい値 = 6.2 MeV), $n = 3$ の場合が第 9 図である。これらの値のとり方の不確かさは連続状態の立ち上り部の解析にあまり残す。連続状態の形状因子を第 8 図に示した。⁴⁰Ca と誤差の範囲で一致する。

連続状態の寄与を全体から差し引いたものが我々が考える共鳴状態で、その形状因子を図 10 に示した。誤差の大きさは上述の式で $n = 2$ 及び $n = 4$ をそれぞれ上限、下限とした。他の Ca アイソトープと同様 E 1 だけでは説明出来ない。⁴²Ca について光核反応の実験は、⁴¹K (p, r_0)⁴²Ca⁵⁾があるだけで、(r, n)の寄与も(r, p)と同程度にあると考えられ、(r, n)のデータ又は電子散乱の photon-point に対応する光全吸収の実験データがあれば、⁴²Ca (⁴⁴Ca も同様)の E 1 励起以外の多重極励起の解析に非常に役立つであろう。

図 9 は共鳴状態を励起エネルギー 0.5 MeV 間隔に分けて E 1, E 2 及び E 3 に分離した結果である。E 1 の q -依存性は Goldhaber - Teller 模型、E 2 は Tassie 模型、E 3 は⁴⁰Ca の 3_1 に最もよく合う形状因子を用いて χ^2 -fitting を行なった。

図 9 から分る様に E 1 は 18 MeV を中心とする巾広い共鳴の他に 22 MeV 附近にも共鳴が見られる。(p, r_0) の実験から 20.4 MeV ($T = 1$) 及び 17.4 MeV ($T = 2$) に Γ 巾 4.4 及び 3.3 MeV のピークが見出されている。20.4 MeV の方が全体の 87 % を占める。電子散乱の結果は ~ 22 MeV に E 1 励起の存在を示しているがエネルギー的には合わない。尚この様にしてとり出した E 1 巨大共鳴はほぼエネルギー総和則 (EWSR) を満たす。

E 2 励起は 17 MeV を中心として“しきい値”近傍から巾広く分布し、特に 17 MeV 附近の様子は⁴⁰Ca によく似ていて同じ性質の E 2 励起と考えられる。E 3 励起も広く分散していることは⁴⁰Ca と似ているがその形はアイソトープ間で違いがある。第 1 表にこの様に分けた各多重極励起の EWSR に占める割合を示した。E 2, E 3 の占める割合は⁴⁰Ca に較べて小さくなっているが、⁴⁰Ca では E 1 励起については光全吸収実験のデータを使ったこともあり、これが有意義な差かどうかは現在再解析中の⁴⁴Ca の結果と共に今後議論したい。

第1表

^{40}Ca , ^{42}Ca の励起エネルギー 10 MeV から 25 MeV まで積分した各多重極励起の換算行列要素とエネルギー重み付き総和則に示める割合。E 1 以外は isoscalar 型と仮定した。

^{40}Ca				^{42}Ca		
	Ex MeV	B(EL) $e^2 \text{ fm}^2 L$	%	Ex MeV	B(EL) $e^2 \text{ fm}^2 L$	%
E 1	19.5	7.4	95	18	9.3	107
E 2 ⁺	17	421	66	17	341	54
E 0 ⁺		688	102		588	87
E 3 ⁺	17	12100	37	17	8930	27

参 考 文 献

1) ^{40}Ca については

鳥塚他：核理研研究報告 **6**(2) 1973, K. Itoh et al : Phys. Rev. **C2** (1970) 2181.

^{44}Ca については

鳥塚他：核理研研究報告 **6**(1) 1973, Y. Torizuka et al. : *Proc. of Int. Conf. on Photoneuclear Reactions and Applications*, Asilomar, Calif. (1973) 675.

2) E. P. Lippincott and A. M. Bernstein : Phys. Rev. Letters **17** (1966) 321,

Phys. Rev. **163** (1967) 1170, A. M. Bernstein : *Advan. in Nucl. Phys.* **3** (1969) 325.

3) S. Cochavi et al. : Phys. Rev. **C 2** (1970) 2241, W. J. Gerace and A. M.

Green : *Nucl. Phys. A* **93** (1967) 110.

4) Y. Torizuka et al. : Phys. Rev. Letters **22** (1969) 544.

5) E. M. Diener et al. : Phys. Rev. **C 7** (1973) 705.

I-2 QUASI-ELASTIC ELECTRON SCATTERING

(III)

Transverse components for ^{40}Ca and discussions

理学部物理 川 添 良 幸

Abstract: Transverse components of lp-lh excitation to continuum states in a square well shell model are found not to be so small compared to longitudinal excitations at $q \gtrsim 1\text{fm}^{-1}$ in ^{40}Ca . The maximum and minimum quasi-elastic background are defined and discussed.

§ 1 Introduction

In part one^{1) *} we calculated the lp-lh longitudinal excitation functions from the bound to continuum states for ^{40}Ca and ^{197}Au in a square well shell model. They explain the gross structure of the experimental cross sections rather well, but they have some weak points:

- (i) They are too large to be called backgrounds.
- (ii) They do not show a consistent behaviour for various q -values. (In the case of ^{40}Ca , they are larger at $q \sim 0.8\text{fm}^{-1}$ and they are smaller at $q \sim 0.4\text{fm}^{-1}$ and $q \sim 1.4\text{fm}^{-1}$ than the experimental cross sections.)
- (iii) They have too sharp peaks for experimental background

Y. Kawazoe: Department of Physics, Tohoku University,
Sendai, Japan

*) Hereafter we refer this paper as (I).

subtractions.

In sect.2 we calculate the transverse components for ^{40}Ca in the same model used in (I) and get improved results concerning (ii). We show some form factors associated with individual lp-lh excitations in sect.3. Two kinds of excitations are defined in this section for the longitudinal components. In sect.4 maximum and minimum quasi-elastic background are defined and discussed. Throughout this paper we take the case of ^{40}Ca nuclei for the example.

§ 2 Transverse excitation functions for ^{40}Ca

We could not explain the experimental cross sections consistently employing only the longitudinal excitation functions for ^{40}Ca , although the experimental data are taken at rather forward angles. We calculate the transverse components in the same model used in (I). The transverse response function is defined in the same notations as in (I),

$$R_T(q, \omega) = f_N(q_\mu^2) h_{C.M.}^2(q^2) \left[R^E(q, E) + R^M(q, E) \right]$$

where,

$$R^E(q, \omega) = 2 \sum_{T=0}^{\infty} \sum_{J=1}^{\infty} \left| \langle \Psi_{J,T} \| \hat{T}_{J,T}^E \| \Psi_{00} \rangle \right|^2$$

$$R^M(q, \omega) = 2 \sum_{T=0}^{\infty} \sum_{J=1}^{\infty} \left| \langle \Psi_{J,T} \| \hat{T}_{J,T}^M \| \Psi_{00} \rangle \right|^2$$

and

$$\begin{aligned} \hat{T}_{JM,T}^E(q) &= \frac{1}{2} \cdot \frac{q}{M} \left\{ \frac{e_i^{(T)}}{\sqrt{2J+1}} (-\sqrt{J} \vec{M}_{JJ+1}^M(\vec{r}_i)) \right. \\ &\quad \left. + \sqrt{J+1} \vec{M}_{JJ-1}^M(\vec{r}_i) \right\} \cdot \frac{1}{q} \vec{v} + \frac{1}{2} \mu_i^{(T)} \vec{M}_{JJ}^M(\vec{r}_i) \cdot \vec{\sigma}(i) \} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \hat{T}_{JM,T}^M(q) &= \frac{1}{2} \cdot \frac{q}{M} \left\{ \frac{\mu_i^{(T)}}{\sqrt{2J+1}} (\sqrt{J} \vec{M}_{JJ+1}^M(\vec{r}_i)) \right. \\ &\quad \left. - \sqrt{J+1} \vec{M}_{JJ-1}^M(\vec{r}_i) \right\} \cdot \vec{\sigma}(i) + e_i^{(T)} \vec{M}_{JJ}^M(\vec{r}_i) \cdot \frac{1}{q} \vec{v} \} \end{aligned}$$

Matrix elements are calculated numerically up to a sufficient J value; J_{\max} (at $q=0.43\text{fm}^{-1}$, $J_{\max}=5$ and at $q=1.4\text{fm}^{-1}$, $J_{\max}=10$) to get a cross section. The calculated transverse excitation functions are shown in Fig.1. by the dashed lines together with the sum of transverse and longitudinal ones by the solid lines and the experimental data. Experimental separation of the longitudinal and the transverse components is reported in 2 Ref.). One immediately sees the large contribution of the transverse components at $q \gtrsim 1.0\text{fm}^{-1}$ and the theoretical cross sections do not decrease compared with the experimental ones as q increases. We conclude that the problem (ii) mentioned in § 1 is thus half taken away. Examples of the contribution of each multipolarity are shown in Fig.2 for two cases. Cross sections are calculated at 2MeV intervals. This choice of the intervals is sufficient for the simple model used here, because the emission width, which corresponds to the individual excitation between two states shown in Fig. 3, is large enough compared with this intervals. We show main configurations of the peaks appear in Fig.2 and 3 in table I.

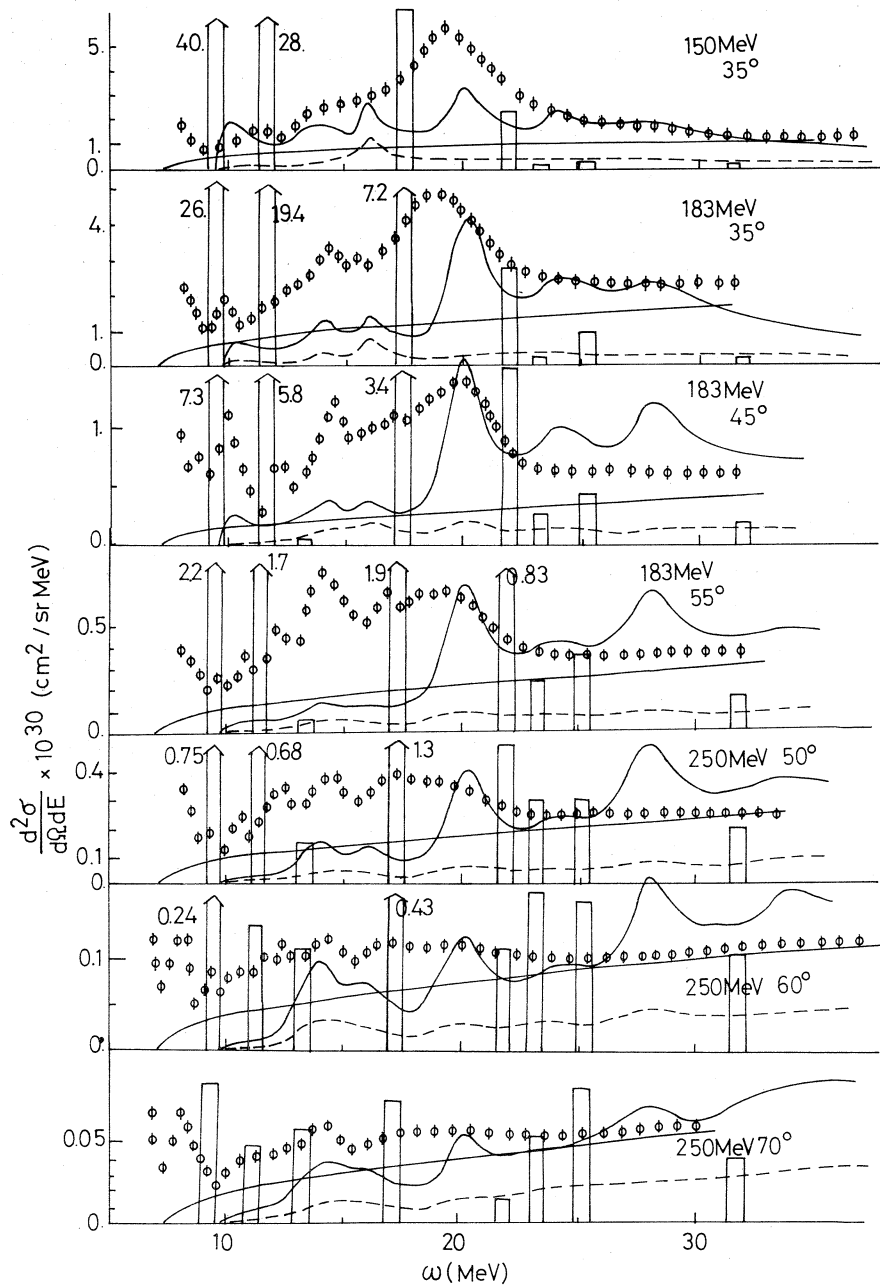


Fig.1. Theoretical excitation functions compared with the experimental ones at various q -values written in the figure for ^{40}Ca . Vertical bars with 1MeV width show bound to bound state transitions.

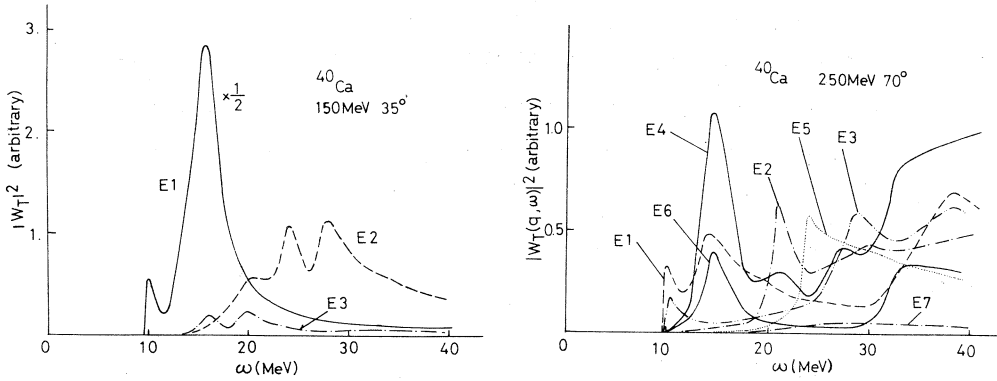


Fig.2a. Transverse electric excitation functions for each multipolarity at $E=150\text{MeV}$ and $\theta=35^\circ$, and $E=250\text{MeV}$ and $\theta=70^\circ$.

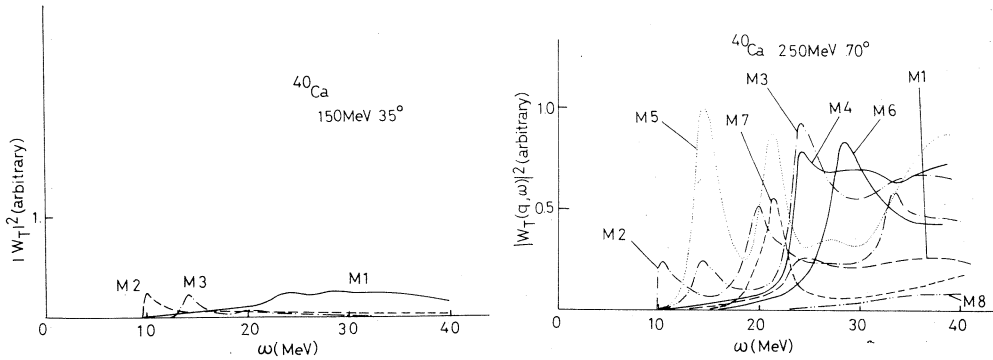


Fig.2b. Transverse magnetic excitation functions for each multipolarity at the same experimental conditions as for Fig.2a.

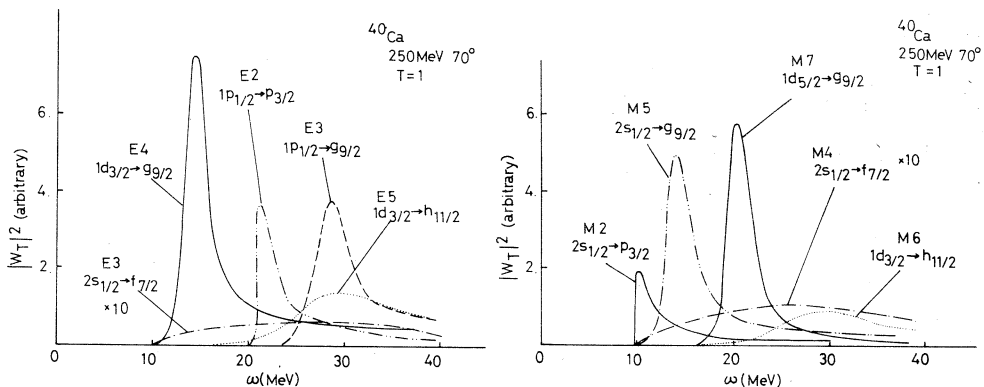


Fig.3. Individual 1p-1h excitation for ^{40}Ca .

Table I. Main configurations for the calculated peaks
of the transverse response functions.

Multipolarity	Excitation energy (MeV)	Main configuration
E 1	1 0	$2 s_{1/2} \rightarrow p_{3/2}, 1 d_{3/2} \rightarrow p_{3/2}$
	1 4	$1 d_{3/2} \rightarrow p_{1/2}, 2 s_{1/2} \rightarrow p_{1/2}$
	1 6	$1 d_{5/2} \rightarrow p_{3/2}$
E 2	2 0	$1 d_{5/2} \rightarrow g_{9/2}$
	2 1	$1 p_{1/2} \rightarrow p_{3/2}$
	2 4	$1 p_{3/2} \rightarrow p_{3/2}$
	2 8	$1 p_{3/2} \rightarrow p_{1/2}$
E 3	1 0	$1 d_{3/2} \rightarrow p_{3/2}$
	1 6	$1 d_{5/2} \rightarrow p_{3/2}$
	2 0	$1 d_{5/2} \rightarrow p_{1/2}$
	2 8	$1 p_{3/2} \rightarrow g_{9/2}$
E 4	1 5	$1 d_{3/2} \rightarrow g_{9/2}$
	2 1	$1 d_{5/2} \rightarrow g_{9/2}$
	2 8	
E 5	2 4	$1 p_{1/2} \rightarrow g_{9/2}$
E 6	1 4	$2 s_{1/2} \rightarrow p_{1/2}, 1 d_{3/2} \rightarrow p_{1/2}$
M 1	2 4	$1 p_{3/2} \rightarrow p_{3/2}$
	3 5	$1 d_{5/2} \rightarrow g_{7/2}$
M 2	1 0	$2 s_{1/2} \rightarrow p_{3/2}$
	2 0	$1 d_{5/2} \rightarrow p_{1/2}$
	3 3	$1 s_{1/2} \rightarrow p_{3/2}$
M 3	1 4	$1 d_{3/2} \rightarrow g_{9/2}$
	2 0	$1 d_{5/2} \rightarrow g_{9/2}$
	2 4	$1 p_{3/2} \rightarrow p_{3/2}$
M 4	1 6	$1 d_{5/2} \rightarrow p_{3/2}$
	2 4	$1 p_{1/2} \rightarrow g_{9/2}$
	2 8	$1 p_{3/2} \rightarrow g_{9/2}$
M 5	1 4	$2 s_{1/2} \rightarrow g_{9/2}, 1 d_{3/2} \rightarrow g_{9/2}$
	2 0	$1 d_{5/2} \rightarrow g_{9/2}$
M 6	2 8	$1 p_{3/2} \rightarrow g_{9/2}$
M 7	2 0	$1 d_{5/2} \rightarrow g_{9/2}$

§ 3 Form factors

The form factors for the $1p-1h$ excitation between bound states are well known³⁾. Calculations in the continuum are rare and we show some form factors here, although they are PWBA results. In Fig.4 the longitudinal form factors are shown for C0~C4. In Fig.5 the transverse electric and transverse magnetic form factors are shown for E1~E3 and M1~M3, respectively.

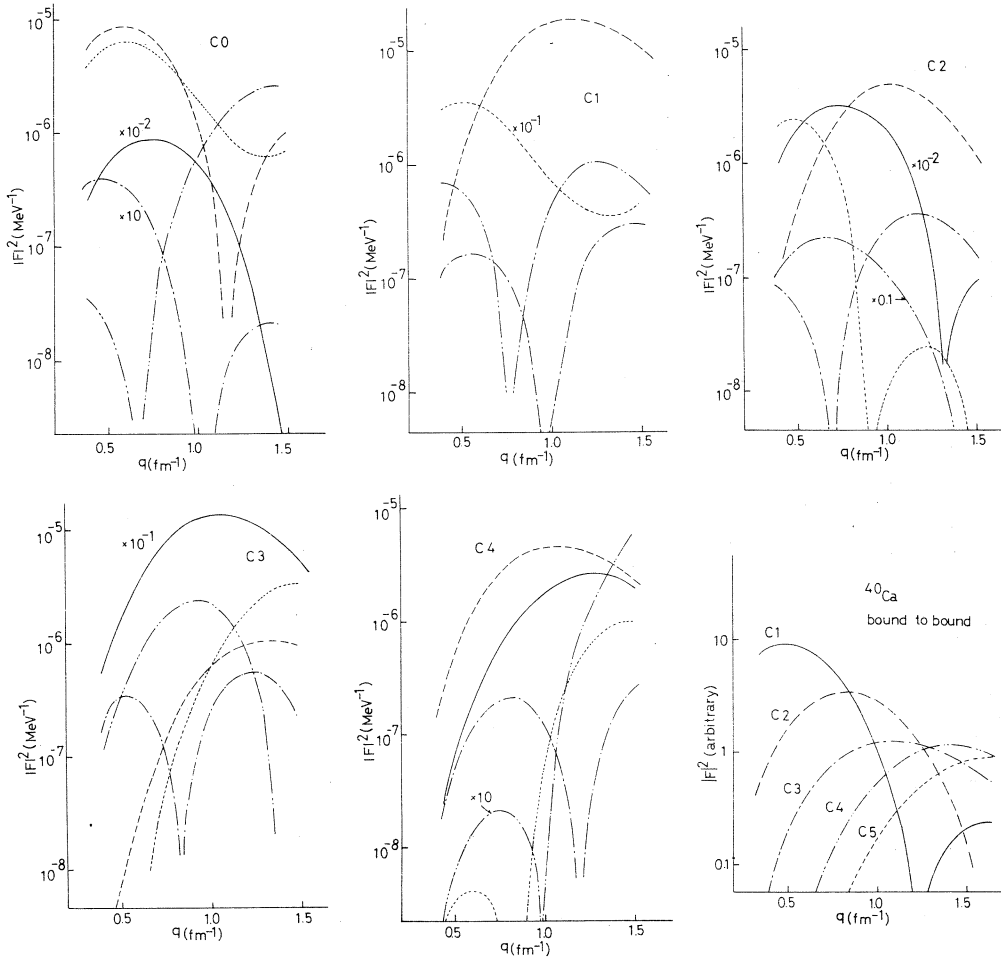


Fig.4. Longitudinal form factors for each multipolarity. In the last figure we show bound to bound state transition form factors for seeing typical q -dependency.

- C0: full line (F) $1p_{1/2} \rightarrow p_{3/2}$ ($\omega=24\text{MeV}$), dashed line (D) $1d_{3/2} \rightarrow d_{3/2}$ (28MeV), dotted line (Dt) $2s_{1/2} \rightarrow s_{1/2}$ (20MeV),
D-Dt $1d_{3/2} \rightarrow d_{3/2}$ (14MeV), D-Dt-Dt $1s_{1/2} \rightarrow s_{1/2}$ (60MeV)
- C1: D $1s_{1/2} \rightarrow p_{1/2}$ (34MeV), Dt $2s_{1/2} \rightarrow p_{1/2}$ (12MeV),
D-Dt $1d_{3/2} \rightarrow p_{3/2}$ (28MeV), D-Dt-Dt $1d_{3/2} \rightarrow p_{3/2}$ (14MeV),
- C2: F $1d_{5/2} \rightarrow g_{9/2}$ (20MeV), D $1d_{5/2} \rightarrow g_{9/2}$ (60MeV), Dt $2s_{1/2} \rightarrow d_{3/2}$ (14MeV),
D-Dt $1d_{3/2} \rightarrow d_{3/2}$ (12MeV), D-Dt-Dt $1d_{5/2} \rightarrow g_{9/2}$ (16MeV)
- C3: F $1p_{3/2} \rightarrow g_{9/2}$ (28MeV), D $1s_{1/2} \rightarrow f_{7/2}$ (34MeV), Dt $1s_{1/2} \rightarrow f_{7/2}$ (60MeV),
D-Dt $2s_{1/2} \rightarrow f_{7/2}$ (14MeV), D-Dt-Dt $1d_{5/2} \rightarrow p_{3/2}$ (20MeV)
- C4: F $1d_{3/2} \rightarrow g_{9/2}$ (14MeV), D $2s_{1/2} \rightarrow g_{9/2}$ (12MeV), Dt $1p_{1/2} \rightarrow f_{7/2}$ (28MeV),
D-Dt $1d_{5/2} \rightarrow d_{5/2}$ (20MeV), D-Dt-Dt $1d_{3/2} \rightarrow g_{9/2}$ (60MeV)

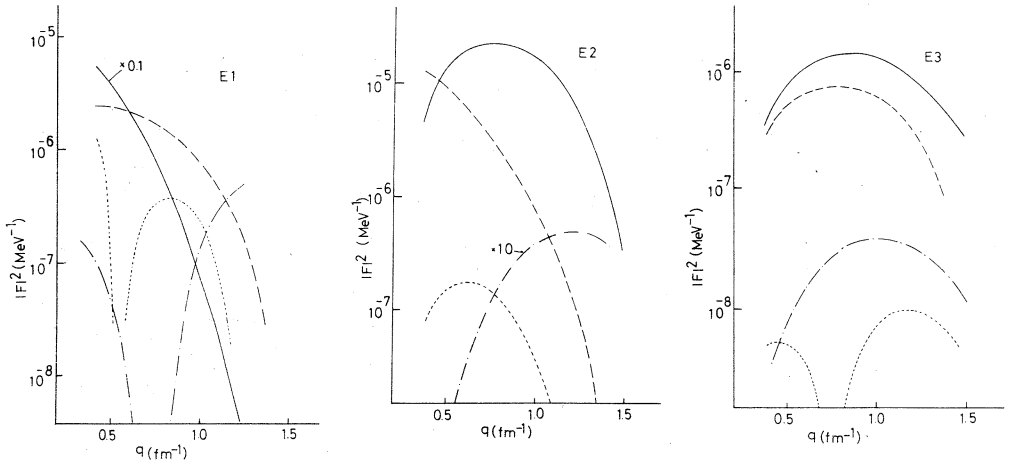


Fig.5a. Transverse electric form factors for each multipolarity.

- E1: F $1d_{5/2} \rightarrow p_{3/2}$ (16MeV, $\Delta T=0$), D $2s_{1/2} \rightarrow p_{1/2}$ (24MeV),
Dt $1d_{3/2} \rightarrow p_{1/2}$ (16MeV), D-Dt $1p_{3/2} \rightarrow d_{5/2}$ (32MeV)
- E2: F $1d_{5/2} \rightarrow g_{9/2}$ (20MeV), D $1p_{3/2} \rightarrow p_{3/2}$ (24MeV)
Dt $2s_{1/2} \rightarrow d_{3/2}$ (24MeV), D-Dt $1s_{1/2} \rightarrow d_{3/2}$ (32MeV)
- E3: F $1d_{5/2} \rightarrow p_{1/2}$ (24MeV), D $1d_{3/2} \rightarrow p_{1/2}$ (24MeV, $\Delta T=0$)
Dt $2s_{1/2} \rightarrow f_{7/2}$ (10MeV), D-Dt $1p_{3/2} \rightarrow g_{9/2}$ (24MeV)

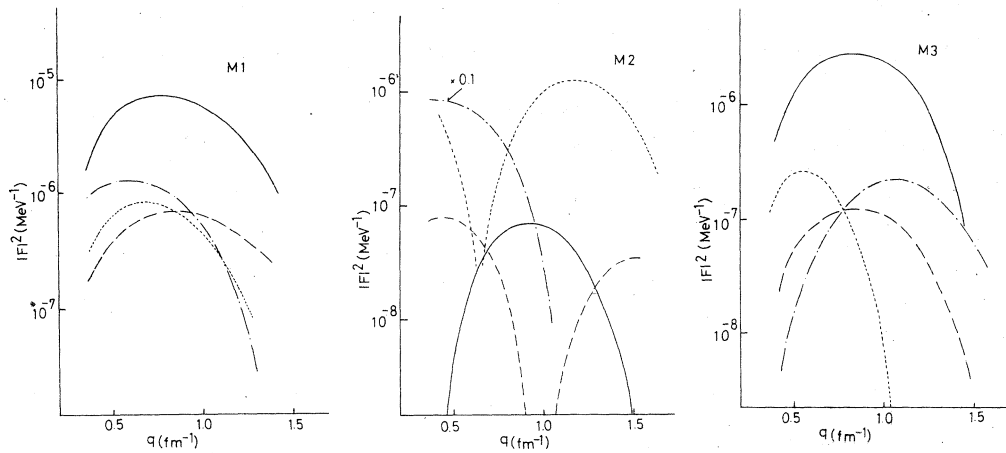


Fig.5b. Transverse magnetic form factors for each multipolarity.

M1: F $1p_{3/2} \rightarrow p_{3/2}$ (24MeV), D $1p_{3/2} \rightarrow p_{3/2}$ (24MeV, $\Delta T=0$)
 Dt $2s_{1/2} \rightarrow s_{1/2}$ (24MeV), D-Dt $1d_{3/2} \rightarrow d_{3/2}$ (24MeV)

M2: F $1p_{1/2} \rightarrow d_{3/2}$ (22MeV), D $1d_{3/2} \rightarrow p_{3/2}$ (12MeV)
 Dt $1d_{5/2} \rightarrow p_{3/2}$ (18MeV), D-Dt $2s_{1/2} \rightarrow p_{3/2}$ (10MeV)

M3: F $1d_{3/2} \rightarrow g_{3/2}$ (18MeV), D $1d_{3/2} \rightarrow g_{3/2}$ (18MeV, $\Delta T=0$)
 Dt $2s_{1/2} \rightarrow d_{5/2}$ (18MeV), D-Dt $1p_{1/2} \rightarrow f_{7/2}$ (30MeV)

($\Delta T=1$ transitions except four cases indicated as $\Delta T=0$)

Two kinds of form factors can be selected in Fig.4. One resembles very well Tassie's model form factor⁴⁾. But there is another kind belonging to node change transition cases. One of the latter case may be identified as the diffuseness oscillation mode⁵⁾.

Characteristic form factors for the lp-lh excitation between bound states (C1 to C5) are also shown in Fig.4 for comparison.

Since we do not have any attentions to the structure of the transverse excitations in the momentum transfer region considered here, transverse form factors are not classified, although they can be as seen in Fig.5.

§ 4 Discussions

The form factor ($d^2\sigma/d\Omega dE/Z^2\sigma_M$) at 30MeV is shown in Fig.6a. Larger theoretical cross sections around $q\sim 0.8\text{fm}^{-1}$ and the smaller ones at $q\sim 0.5\text{fm}^{-1}$ are seen. This indicates that cross sections are overestimated around C2 and C3 components in our model. This fact is considered as follows; In our quasielastic calculations we have not taken the residual interactions into account. In actual nuclei there may be C1 to C3 (and/or C0) giant resonances in the excitation energy region below 30MeV. From the sum rule considerations we conclude that some part of the cross sections calculated in our model at 30MeV is pull down to the giant resonance energy region and the cross section at 30MeV in our model decreases. The giant resonances spread over the energy region about 15MeV ($\omega=10\sim 25\text{MeV}$) and their form factors are extracted in this energy region⁷⁾. Form factors integrated from 10 to 25MeV are shown in Fig.6b. This integrated form factor is more reliable, because our model calculation employing square well potentials has some ambiguity about single particle levels.

It shows similar tendency as the one in Fig.6a.

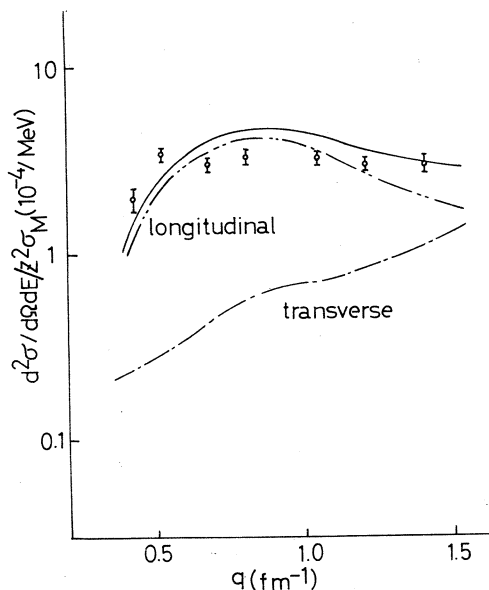


Fig.6a. Form factor ($d^2\sigma/d\Omega dE/Z^2\sigma_M$) at $\omega=30\text{MeV}$.

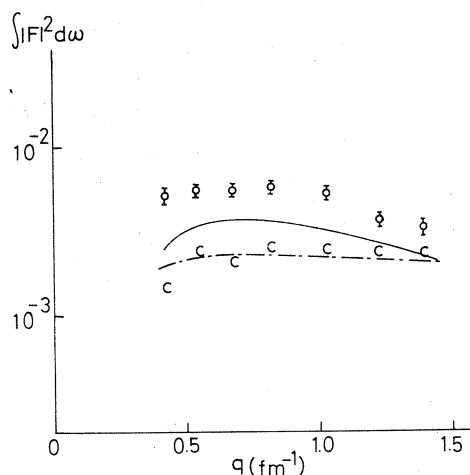


Fig.6b. Integrated form factor.

One without C2 component is shown by the dash-dot line. C: continuum background estimated for the experimental background subtraction.

To use our model calculation for background subtraction, there are other possible contributions; lp-lh bound to bound states transitions. (see Table II and the vertical bars in Fig.1) The sum of all these contributions (bound to bound and bound to continuum) is the all of the cross sections in our model. If the residual interactions are employed, some of these are couple to make giant resonances and the rest is called a background.

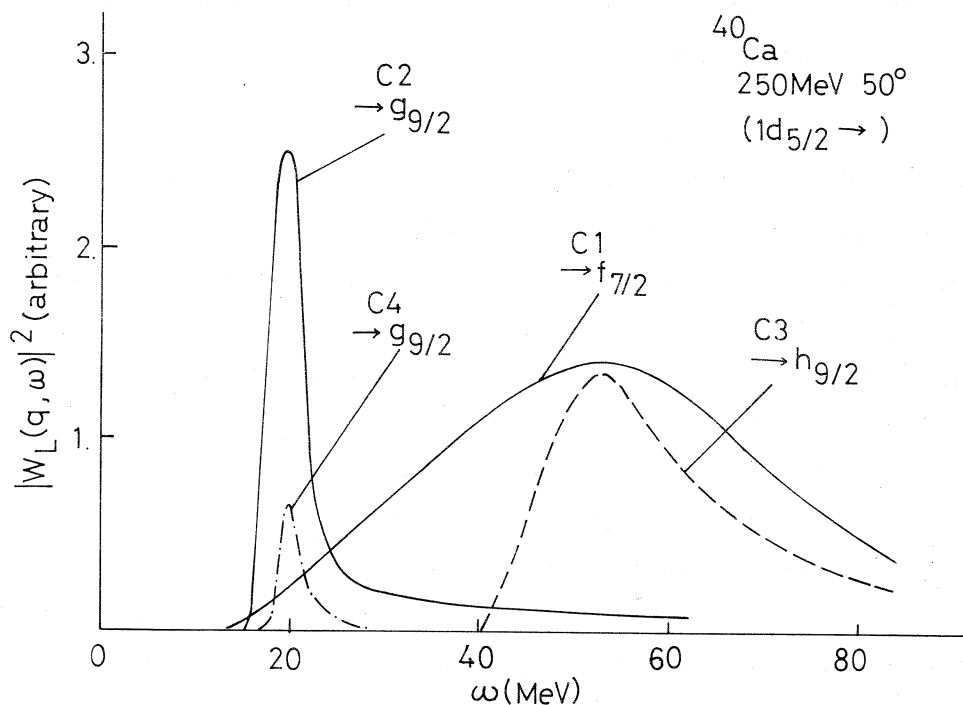
In the energy region considered here (10~35MeV), there

Table II. Multipolarities of the bound to bound state transitions appear in Fig.1 as vertical bars.

Multipolarity	Excitation energy (MeV)	configuration
C 1	9.31	$1 d_{5/2} \rightarrow 1 f_{7/2}$
	11.71	$1 d_{3/2} \rightarrow 1 f_{5/2}$
	17.69	$1 d_{5/2} \rightarrow 1 f_{5/2}$
C 2	17.25	$1 p_{3/2} \rightarrow 1 f_{7/2}$
	22.03	$1 p_{1/2} \rightarrow 1 f_{5/2}$
	25.62	$1 p_{3/2} \rightarrow 1 f_{5/2}$
C 3	3.09	$2 s_{1/2} \rightarrow 1 f_{7/2}$
	3.33	$1 d_{3/2} \rightarrow 1 f_{7/2}$
	9.31	$1 d_{5/2} \rightarrow 1 f_{7/2}$
	11.71	$1 d_{3/2} \rightarrow 1 f_{5/2}$
	11.47	$2 s_{1/2} \rightarrow 1 f_{5/2}$
	17.69	$1 d_{5/2} \rightarrow 1 f_{5/2}$
	23.46	$1 s_{1/2} \rightarrow 1 f_{7/2}$
	31.84	$1 s_{1/2} \rightarrow 1 f_{5/2}$
C 4	13.66	$1 p_{1/2} \rightarrow 1 f_{7/2}$
	17.25	$1 p_{3/2} \rightarrow 1 f_{7/2}$
	25.62	$1 p_{3/2} \rightarrow 1 f_{5/2}$
C 5	3.33	$1 d_{3/2} \rightarrow 1 f_{7/2}$
	9.31	$1 d_{5/2} \rightarrow 1 f_{7/2}$
	17.69	$1 d_{5/2} \rightarrow 1 f_{5/2}$
M 2	17.25	$1 p_{3/2} \rightarrow 1 f_{7/2}$
	22.03	$1 p_{1/2} \rightarrow 1 f_{5/2}$

are many continuum excitations for each multipolarity. They can couple to bound to bound states transitions and consequently δ -function cross section broadens, if the residual interactions are taken into account. One more factor for broadening is the coupling between $1h$ state and $2h-1p$ states⁶. It will be discussed later.

Then we should think that the sum mentioned above is the maximum value for background subtraction. Next we must seek for the minimum quasielastic background in our model. This may be obtained employing only the non-Tassie type form factors presented in sect.3. They are calculated, but there are only very small contributions in the excitation energy region, 10-35MeV. Above 35MeV there are considerable contributions from the non-Tassie type ones. (They are strictly the large- $\hbar\omega$ jump cross sections.) One important thing is that the excitation function is very smooth and have no sharp peaks for the transition of this type as shown in Fig.7.



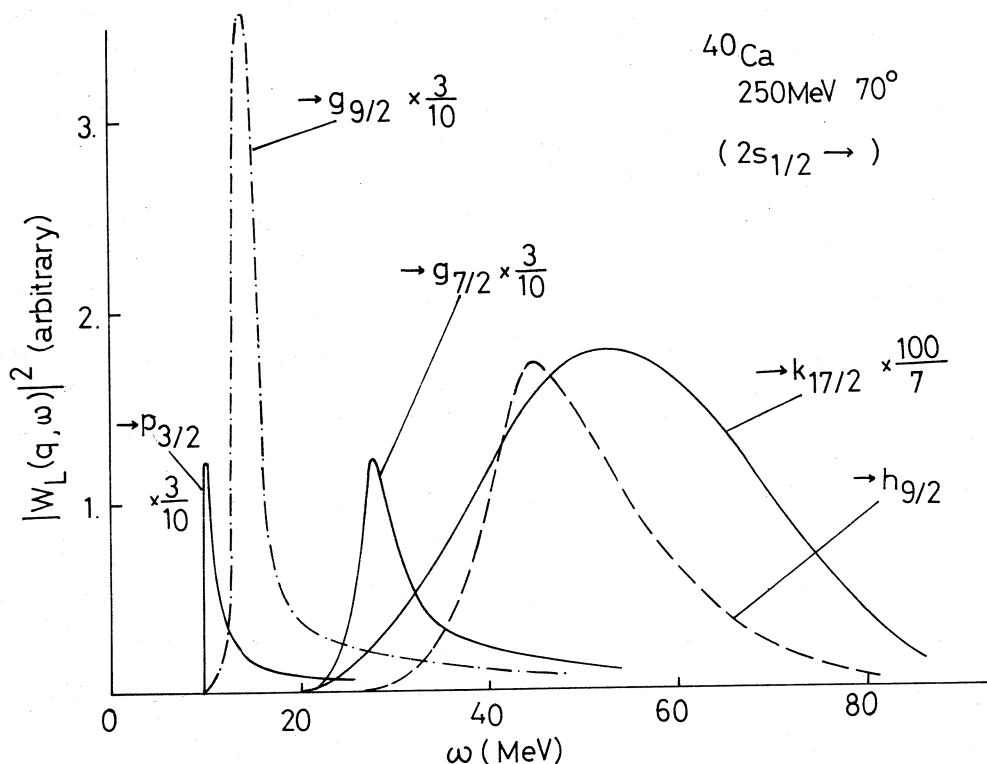


Fig.7. Longitudinal excitation functions for individual transitions.

Experimentally there are C1~C3 (and/or C0) giant resonances⁷⁾ in this nuclei which satisfy the energy weighted sum rule value about 100%(C1), 70%(C2), 36%(C3), and 100%(C0, if exists). Although the value of the percentage of each resonance depends hardly on the background subtraction, we believe the existence of the C1~C3(and/or C0) giant resonances in ^{40}Ca . Because there are also other indications of C0~C3 giant resonances in ^{40}Ca in (p, p') ⁸⁾ and $(^3\text{He}, ^3\text{He}')$ ⁹⁾ experiments.

For example, in our calculation, C2 strength spreads all over the energy region, except one concentration at 20MeV. In the actual nuclei there is a C2 giant resonance ($T=0$ mode) or there are two ($T=0$ and $T=1$), which have a large portion of the

energy weighted sum rule values. So we should exclude the C2 strength from the background calculated. This is very difficult problem to select which transition contributes to the giant resonance and which does not without any calculations (continuum states Tamm-Dancoff calculation may be employed).

In Fig.8 we show two excitation functions without C0-C3 components. The first one (at 250MeV 60°) agrees very well with the experimentalist's background subtraction which is used to determine the strength of giant resonances. We see in the second one that at low q values this gives lower value for background (indicated as "transverse", for there are very small contributions over $J=4$ at 150MeV and 35° in the longitudinal part as shown in (I)). This smallness is expected because some part of C0-C3 components (i.e. other than low lying level and giant resonance components) should be included in the background. At low q values it takes a large portion of the background.

Vertical bars in the upper figure in Fig.8 indicate the positions and the strengths ($d\sigma/d\Omega$ in $\text{cm}^2 \text{sr}^{-1}$ unit with 1MeV width for comparison with $d^2\sigma/d\Omega dE$ in $\text{cm}^2 \text{sr}^{-1} \text{MeV}^{-1}$ unit) of the bound to bound state transitions (C4 and C5). The (e,e'p) experiments⁷⁾ and the (p,2p)⁸⁾ experiments show that hole energies have some width; The hole state has a finite lifetime. If a nucleon is knocked out of the nucleus, nuclear collisions occur promptly (1h state couples to 2h-1p states and so on.).⁶⁾

So we give 2MeV width for the 1d holes and 10MeV width for the 1p holes in the bound to bound state transition cases and added to the bound to continuum transitions (indicated as "longitudinal" and "transverse" in Fig.8) to get a background. This spreading effect also changes the latter spectrum, but we do not take this effect into account for the latter ones

because of the calculational complexity.

We think that this last definition of the background is a reasonable one.

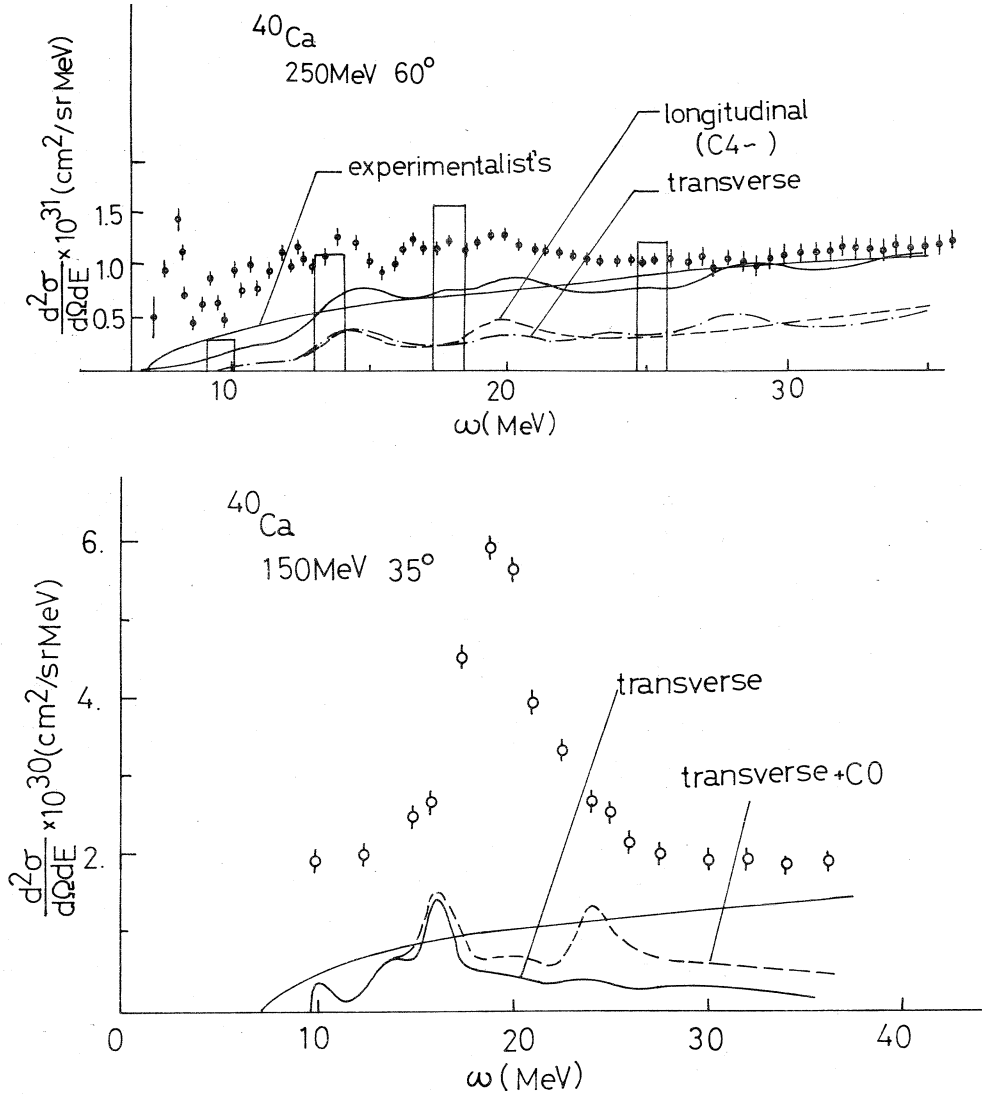


Fig.8. Excitation functions without C0-C3 components. Bound to bound state C4 and C5 transitions are included with a width of about 2MeV for 1d holes and 10MeV for 1p holes.

If there is C4 giant resonance, we subtract from C0 to C4 theoretical cross sections calculated without any residual interactions from the summed one mentioned above and get a background estimation.

We note that here the transverse components are included in the background.

Transverse excitation function calculated here has not so large and sharp peaks as longitudinal one has, and experimentally it is natural to be included in the background.

For the check of the model we calculate the cross section employing other square well potentials. One of the results using the square well of $R_0 = 4.25\text{fm}$ and $\langle v(\vec{r}) \rangle = -2.3\text{MeV}$ (see (I)) is shown in Fig.9 by the broken line. Comparing with the previous one, drawn by the full line, one can see that except that the positions of the sharp peaks, which are thought to contribute to giant resonances, moves several MeV upwards, there are no significant changes in the results.

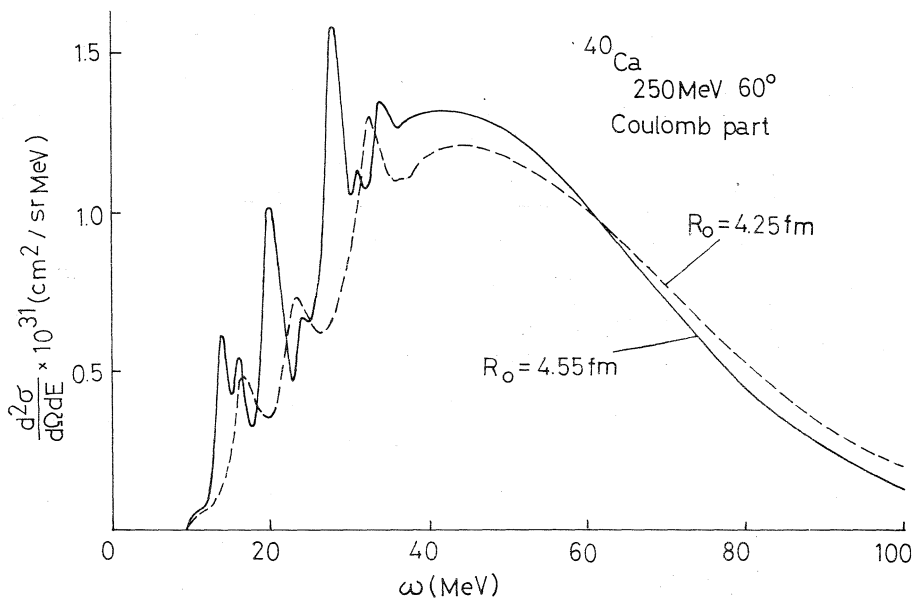


Fig.9. Comparison between two square well potentials ($R_0 = 4.55\text{fm}$ and 4.25fm).

Throughout this work we have used PWBA for the electron waves. In order to estimate the Coulomb distortion effect, so called effective momentum transfer $q_{\text{eff}} = q \left(1 + \frac{3Ze^2}{2ER_0}\right)$ is used and the result is shown in Fig.10. We can not see any serious changes, because of the high incident electron energies ($E=150\sim 250\text{MeV}$) and a small proton number ($Z=20$ for ^{40}Ca), and so our calculations using PWBA are justified.

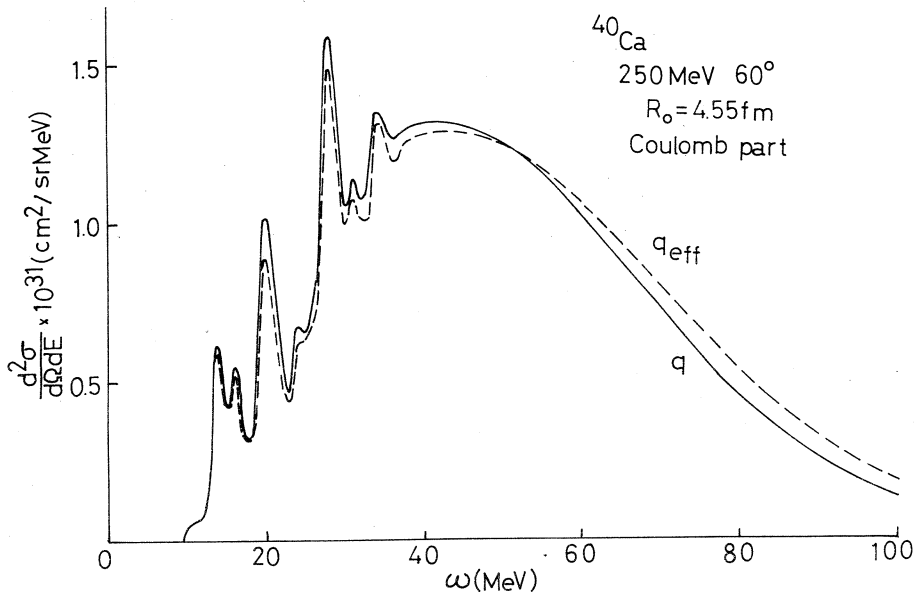


Fig.10. Coulomb distortion effect is measured by using effective momentum transfer q_{eff} .

Lastly we show the contribution of each hole state to the differential cross section in Fig.11 (bound to continuum transitions). Taking the deep hole concept⁶⁾ into account $1s$ and $1p$ hole cross sections spread over.

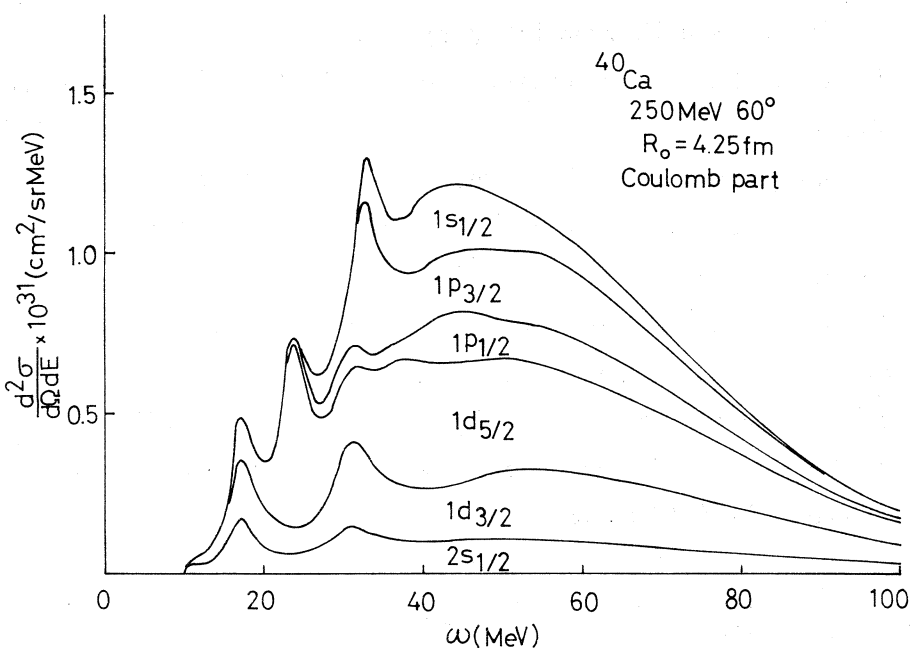


Fig.11. Contribution for each hole state to the differential cross section (Coulomb part).

Numerical calculations are carried out at the Computer Center of Tohoku University.

The model used in this paper is refined employing Saxon-Woods potential now in collaboration with Dr. H. Matsuzaki.

Acknowledgement. The author is grateful to Professor S. Yoshida for his careful reading of the manuscript.

References

- 1) Research report of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University 6 (1973) 216.
- 2) K. Itoh: Private communication.
- 3) K. Itoh, M. Oyamada and Y. Torizuka: Phys. Rev. C 2 (1970) 2181.

- 4) L. J. Tassie: Aust. J. Phys. **9** (1956) 407.
- 5) Y. Tanaka and M. Kawai: preprint.
- 6) T. A. Hughes, S. Fallieros and B. Goulard: *Particles and Nuclei*.
- 7) U. Amaldi Jr. et. al.: Phys. Letters **22** (1966) 593.
- 8) M. Riou and Ch. Ruhla: *Progress in Nuclear Physics* (Pergamon Press) vol.11, p.195.
- 9) Y. Kawazoe, H. Matsuzaki, G. Takeda, K. Itoh, Y. Torizuka and Y. M. Shin: preprint.
- 10) M. B. Lewis: Phys. Rev. Letters **29** (1972) 1257.
- 11) A. Moalem, W. Benenson and G. M. Grawley: Phys. Rev. Letters **31** (1973) 482.

I — 3 ^{25}Mg の低励起準位の電磁形状因子

核理研 岡崎行男・小山田正幸・寺沢辰生
理学部物理* 中原和夫・早川 建・斎藤 肇*

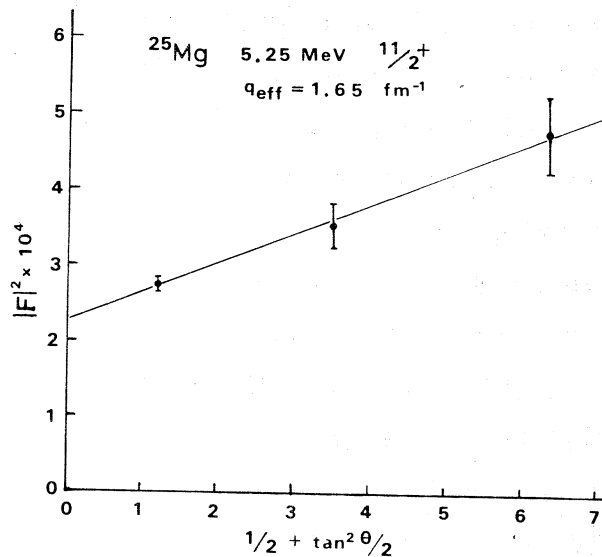
前に報告したように¹⁾, ^{25}Mg の基底回転帯の C 2 転移強度の比は, 強結合模型で説明され, ^{25}Mg の 2.56 MeV $1/2^+$ 準位から始まる $K^\pi = 1/2_2^+$ 回転帯と 4.06 MeV $9/2^+$ 準位から始まる $K^\pi = 9/2^+$ 回転帯は ^{24}Mg の $K^\pi = 2^+$ の回転帯と $\Omega = 5/2$ の奇中性子との強結合模型により説明される。しかし, $K^\pi = 1/2_2^+$ 回転帯に属すると考えられている 2.80 MeV $3/2^+$ 準位に対する形状因子は, ^{24}Mg の $K^\pi = 2^+$ 回転帯の形状因子の実験値から強結合模型を用いて推定した形状因子より大きく, 又, $K^\pi = 9/2^+$ 回転帯に属すると考えられる, 5.25 MeV $11/2^+$ 準位の形状因子は q の高い所で大きくなる傾向にあった。この不一致は, ^{25}Mg の奇中性子の存在により横成分形状因子からの寄与が散乱角が大きくなるに従って無視できなくなるためかと思われたので, 今回は縦成分形状因子と横成分形状因子とを分離する実験を行なった。これまで, ^{25}Mg における横成分形状因子は, 180° 散乱により q の低い所で 2 点測定²⁾ されている。

実験方法

散乱角 $\theta = 135^\circ$ (一部は, さらに 120° でも測定) で, 入射電子エネルギー $E_0 = 250$ MeV, $\theta = 60^\circ, 80^\circ, 90^\circ, 105^\circ, 120^\circ$ の運動量移行 q に相当するように入射電子エネルギーを変えて散乱電子エネルギースペクトルを測定した。電子散乱形状因子 F は, 縦成分 $F_L(q)$ と横成分 $F_T(q)$ とに分けて

$$|F(q)|^2 = |F_L(q)|^2 + \left(\frac{1}{2} + \tan^2 \frac{\theta}{2}\right) |F_T(q)|^2 \quad (1)$$

と書けるので, 同一の q で散乱角の異なる 2 つ以上の測定値から第 1 図に示すようにして, $|F_L(q)|^2$



第 1 図

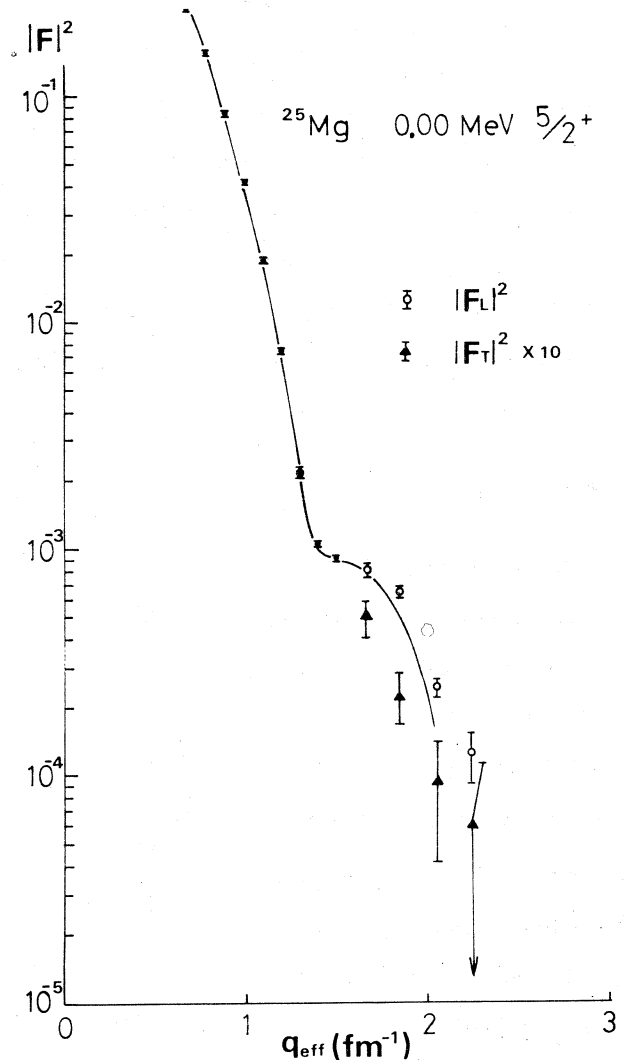
形状因子の縦成分と横成分を分離する方法を示している。実験点を結んだ直線が縦軸と交わる点が縦成分形状因子で, 直線の勾配が横成分形状因子である。

と $|F_T(q)|^2$ を分離する。横軸は $(1/2 + \tan^2 \frac{\theta}{2})$ に対して示してあり、縦軸との切片が $|F_L(q)|^2$ である。標的としては 99.2% に濃縮した 55.8 mg/cm^2 の ^{25}Mg の金属板を用いた。散乱断面積の絶対値は、前回と同じ方法により求めた。

実験結果

これまでの実験で得られた、弾性散乱形状因子を第 1 表に、非弾性散乱形状因子を第 2 表に示す。() の中は統計誤差を示し(%) で表わした。この他さらに標的の厚さ等に関係した系統誤差として 2.5% が加わる。表 3 には分離した縦成分形状因子と横成分形状因子を示す。又、第 2~6 図はそれぞれ弾性散乱および $1.61 \text{ MeV } 7/2^+$ 、 $3.40 \text{ MeV } 9/2^+$ 、 $2.80 \text{ MeV } 3/2^+$ 、 $5.25 \text{ MeV } 11/2^+$ 準位の形状因子で、○は縦成分形状因子、▲は横成分形状因子を表わす。●は縦横成分を分離していないが、小さい散乱角での測定値なので縦成分が大部分であると考えてよからう。

$5.25 \text{ MeV } 11/2^+$ 準位 (第 6 図) については、入射電子エネルギー $E_0 = 250 \text{ MeV}$ で測定した形状因子が、大きな q に対して、 ^{24}Mg の $K\pi = 2^+$ 回転帯の実験値から強結合模型を用いて求めた形状因子に比べて大きくなる傾向であったが、分離して求めた縦成分



第 2 図

基底状態 $5/2^+$ の形状因子の縦成分 (○) と横成分 (▲)。黒丸 (●) は縦横成分を分離していないデータである。実線は、部分波解析から求めた C 0 形状因子と、 1.61 MeV 準位 q 依存性を用いて推定した C 2 形状因子とを加えたもの。

第1表 弾性散乱形状因子の測定値

E_0 (MeV)	θ (deg)	q_{eff} (fm $^{-1}$)	$ F ^2$ (error %)
1 2 0.0	3 5	0.3 8 6	6.61×10^{-1} (0.80)
1 2 0.0	4 0	0.4 3 9	5.64×10^{-1} (0.92)
1 2 0.0	4 5	0.4 9 1	5.05×10^{-1} (0.96)
1 2 0.0	5 0	0.5 4 2	4.23×10^{-1} (1.1)
1 2 0.0	5 5	0.5 9 2	3.52×10^{-1} (1.3)
1 2 0.0	6 0	0.6 4 1	2.90×10^{-1} (1.2)
1 2 0.0	6 5	0.6 8 9	2.36×10^{-1} (1.3)
1 3 2.6	9 0	0.9 9 5	4.12×10^{-2} (1.4)
1 3 2.6	1 3 5	1.3 0	2.17×10^{-3} (3.0)
1 5 0.0	3 5	0.4 7 7	5.46×10^{-1} (0.69)
1 5 0.0	4 5	0.6 0 7	3.46×10^{-1} (0.71)
1 7 2.3	1 3 5	1.6 7	1.13×10^{-3} (3.2)
1 8 4.2	7 9	1.2 3	5.10×10^{-3} (2.4)
1 8 4.2	1 2 0	1.6 7	9.40×10^{-4} (3.8)
1 9 0.0	1 3 5	1.8 3	7.65×10^{-4} (3.4)
2 0 3.1	5 5	0.9 8 0	4.39×10^{-2} (0.85)
2 0 3.1	1 2 0	1.8 3	6.95×10^{-4} (3.6)
2 1 4.0	3 5	0.6 7 2	2.66×10^{-1} (1.6)
2 1 4.0	1 3 5	2.0 5	2.99×10^{-4} (4.3)
2 3 4.0	1 3 5	2.2 3	1.63×10^{-4} (6.5)
2 5 0.0	3 5	0.7 8 2	1.53×10^{-1} (0.50)
2 5 0.0	4 0	0.8 8 9	8.33×10^{-2} (0.25)
2 5 0.0	5 0	1.1 0	1.85×10^{-2} (0.21)
2 5 0.0	5 5	1.2 0	8.15×10^{-3} (0.98)
2 5 0.0	6 0	1.3 0	2.49×10^{-3} (1.5)
2 5 0.0	6 5	1.3 9	1.06×10^{-3} (1.3)
2 5 0.0	7 0	1.4 9	9.16×10^{-4} (1.8)
2 5 0.0	8 0	1.6 7	8.68×10^{-4} (1.9)
2 5 0.0	9 0	1.8 3	6.51×10^{-4} (2.2)
2 5 0.0	1 0 5	2.0 5	2.61×10^{-4} (4.5)
2 5 0.0	1 2 0	2.2 3	1.46×10^{-4} (8.0)

()内は統計誤差(%)であり、この他に標的の厚さ等に関する誤差 2.5 % が加わる。

第2表 非弾性散乱形状因子の測定値

E_0 (MeV)	θ (deg)	$ F ^2 \times 10^4$						
		$E_x=1.61\text{MeV}$	$E_x=2.56\text{MeV}$	$E_x=2.74\text{MeV}$ 2.80MeV	$E_x=3.40\text{MeV}$	$E_x=3.91\text{MeV}$	$E_x=4.06\text{MeV}$	$E_x=5.25\text{MeV}$
132.6	135	1.98 (2.4)	0.53 (15.0)	2.15 (14.2)	9.35 (6.2)	3.88 (6.8)		2.34 (19.9)
150.0	35	16.4 (2.8)	0.51 (57.0)	0.95 (48.0)	5.98 (4.9)			
150.0	45	30.4 (2.5)	0.92 (34.0)	1.49 (19.2)	11.8 (2.6)	0.581 (37.0)	2.60 (16.9)	
172.3	135	1.02 (6.7)		1.06 (7.4)	1.07 (9.3)	1.96 (6.3)		4.81 (11.5)
184.2	120	0.892(12.7)	2.66 (26.4)	0.890(12.0)	0.907(19.3)	1.74 (11.1)		3.56 (7.6)
190.0	135	0.503(14.3)		0.705(11.8)	0.82 (12.0)	1.76 (10.2)		2.73 (6.3)
203.1	120	0.32 (18.0)		0.494(13.3)	0.31 (24.0)	1.15 (10.8)		2.56 (7.3)
203.1	55	47.8 (2.8)	1.24 (42.5)	2.50 (21.7)	18.8 (5.2)	1.86 (21.0)	3.70 (16.3)	1.02 (30.7)
214.0	135	1.10 (7.6)		0.36 (16.0)	0.613(15.9)	0.96 (15.8)		1.23 (7.5)
234.0	135	0.956(11.1)		0.21 (34.0)	0.367(22.1)	0.44 (25.2)		0.636 (15.6)
250.0	35	46.3 (1.2)	1.37 (14.6)	1.85 (12.7)	18.7 (1.8)	1.10 (20.9)	3.11 (28.5)	0.30 (68.0)
250.0	40	48.3 (0.51)	1.41 (9.5)	2.49 (4.9)	19.5 (0.89)	1.21 (22.3)	3.94 (19.3)	0.78 (27.2)
250.0	50	40.4 (0.46)	1.02 (29.5)	2.50 (3.3)	15.2 (0.82)	1.44 (18.8)	3.86 (13.8)	1.78 (28.5)
250.0	55	29.3 (0.76)	0.88 (12.0)	2.16 (4.2)	11.8 (1.1)	1.42 (23.9)	2.81 (19.7)	2.21 (25.0)
250.0	60	21.7 (1.7)	0.76 (14.0)	1.97 (7.1)	7.57 (3.0)	1.46 (21.2)	2.34 (22.3)	2.85 (15.8)
250.0	65	11.2 (1.4)	0.50 (15.0)	1.69 (4.5)	5.13 (2.0)	1.40 (14.8)	1.62 (12.7)	3.41 (12.2)
250.0	70	5.60 (2.5)	0.23 (19.0)	1.34 (6.4)	3.08 (3.2)	1.29 (12.8)	1.07 (16.3)	3.36 (5.4)
250.0	80	0.813 (6.1)	0.15 (20.0)	0.67 (8.2)	0.652(6.4)	0.874 (6.4)	0.721(8.9)	2.76 (2.8)
250.0	90	0.197 (15.9)	0.12 (16.7)	0.45 (9.4)	0.161(16.0)	0.614 (8.5)	0.472(8.7)	2.04 (2.5)
250.0	105	0.862(8.6)	0.025(97.0)	0.22 (18.0)	0.315(15.7)	0.394 (15.5)	0.197(33.9)	8.76 (16.6)
250.0	120	1.13 (9.1)		0.13 (44.0)	0.371(19.1)	0.203 (30.1)	0.092(72.4)	4.12 (21.8)

()内は統計誤差(%)であり、この他に標的の厚さ等に関する誤差2.5%が加わる。

形状因子とは、ほぼ合うことがわかる。これは、奇中中性子の存在によって、 ^{24}Mg 芯の核子の結合状態が電荷の振動状態をあまり変えずに、磁気能率による励起をかなり増大させるように変化している事を示唆している。

2.80 MeV $3/2^+$ 準位(第5図)については、縦成分を分離しても、 ^{24}Mg の実験値から強結合模型を用いて求めた2.80 MeV $3/2^+$ 準位に対する形状因子と合わない。これは $K^\pi = 1/2_1^+$ 回転帯に属していて強くは励起されないと考えられていた2.74 MeV $7/2^+$ 準位からの縦成分形状因子への寄与が大きいとと考えられる。 ^{25}Mg の0.58 MeV $1/2^+$ 準位から始まる $K^\pi = 1/2_1^+$ 回転帯は、基底回転帯の奇中中性子(Nilsson軌道#5)を#9の軌道に励起することによって形

第3表 縦成分形状因子と横成分形状因子

Ex (MeV)	$q_{\text{eff}} (\text{fm}^{-1})$	$ F_L ^2 \times 10^4$	$ F_R ^2 \times 10^5$
0.0 0	1.6 7	8.0 1 \pm 0.4 2	4.9 \pm 0.9
	1.8 3	6.1 5 \pm 0.1 7	2.3 \pm 0.5
	2.0 5	2.4 1 \pm 0.2 8	0.9 1 \pm 0.4 9
	2.2 3	1.2 5 \pm 0.3 4	0.5 9 \pm 0.4 6
1.6 1	1.2 9	2 1.6 \pm 1.5	0.9 8 \pm 1.6 0
	1.6 6	0.7 6 \pm 0.0 2	0.4 0 \pm 0.1 4
	1.8 2	0.1 0 \pm 0.0 2	0.6 3 \pm 0.4 6
	2.0 4	0.7 4 \pm 0.1 5	0.5 7 \pm 0.2 7
3.4 0	1.2 9	7.1 3 \pm 0.6 4	5.3 \pm 1.8
	1.6 5	0.5 6 \pm 0.0 3	1.2 \pm 0.5
	1.8 2		* 1.1 \pm 0.4
	2.0 4	1.5 6 \pm 0.8 8	0.7 2 \pm 0.3 5
	2.2 2	3.5 2 \pm 0.1 8	<0.3 5
2.7 4 2.8 0	1.2 9	1.9 0 \pm 0.2 3	0.8 0 \pm 0.7 3
	1.6 6	0.5 8 \pm 0.0 4	0.7 8 \pm 0.2 0
	1.8 2	0.3 7 \pm 0.0 4	0.4 9 \pm 0.1 4
	2.0 4	0.1 4 \pm 0.0 8	0.3 4 \pm 0.1 6
	2.2 2	0.5 2 \pm 0.4 7	0.2 0 \pm 0.3 4
5.2 5	1.6 5	2.4 6 \pm 0.2 9	2.5 1 \pm 1.7 6
	1.8 1	1.6 5 \pm 0.2 3	2.5 8 \pm 1.1 9
	2.0 3	0.6 9 \pm 0.2 7	0.8 6 \pm 0.5 8
	2.2 1	0.1 4 \pm 0.2 2	0.7 9 \pm 0.4 1

$q_{\text{eff}} = 1.67$ および 1.83 fm^{-1} に関しては、 $\theta = 135^\circ$ の他に $\theta = 120^\circ$ の測定値も含めて計算した。但し、*は $|F_L|^2 = 0$ とした。

成されると考えられている。この考えに立つと、 $K^\pi = 1/2_1^+$ 回転帯の縦成分励起確率は、観測されない程に小さいはずである。しかし、 ^{25}Mg のような変形した奇核の場合、Coriolis 力による回転-粒子結合⁴⁾により角運動量の回転対称軸方向の成分 K は良い量子数でなくなり、 K に混りが生ずる。このような回転帯混合により $2.74 \text{ MeV } 7/2^+$ 準位に比較的強い励起が生ずる可能性が考えられる。

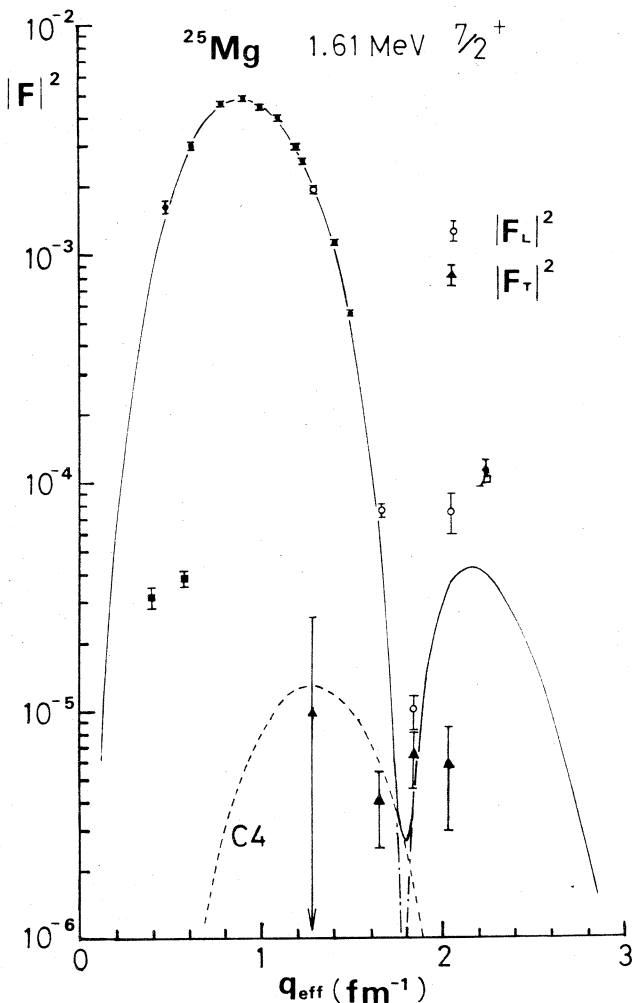
Nilsson 模型による 考察

^{25}Mg の 2.74 MeV $7/2^+$ 準位について、Nilsson 模型³⁾を用いて考察した。 ^{25}Mg の基底回転帯 $K^\pi = 5/2^+$ および $K^\pi = 1/2_1^+$ 回転帯が Nilsson 軌道 # 1~4, 6, 7 を満たした 24 個の核子より成る芯に奇中性子が結合してできていると考えて以下の計算をした。この場合、奇中性子の占める Nilsson 軌道は Coriolis 力によって混合する。Nilsson 模型のパラメータの定義は文献 6 に従った。 Y_{20} 変形パラメータとして 1.61 MeV $7/2^+$ 準位の実験で得た形状因子の最大値を再現するように $\delta = 0.32$ をとり、弾性散乱の実験値から求まる二乗平均半径に合うように、 $\hbar\omega = 13.6$ MeV をと

った。又、 ^{24}Mg の 1.37 MeV 2_1^+ 準位から慣性能率パラメータ $\hbar^2/2I = 0.228$ MeV とし、 ^{25}Mg の第 1 および第 2 励起準位の励起エネルギーをほぼ再現するように $\kappa = 0.09$ 、 $\mu = 0.23$ をと

り、主量子数の混りは $N \leq 4$ とした。このようにして計算したエネルギー準位と実験値との比較を第 7 図に示し、その場合の主成分が $N = 2$ の状態について、 K の混りの割合を第 4 表に示す。

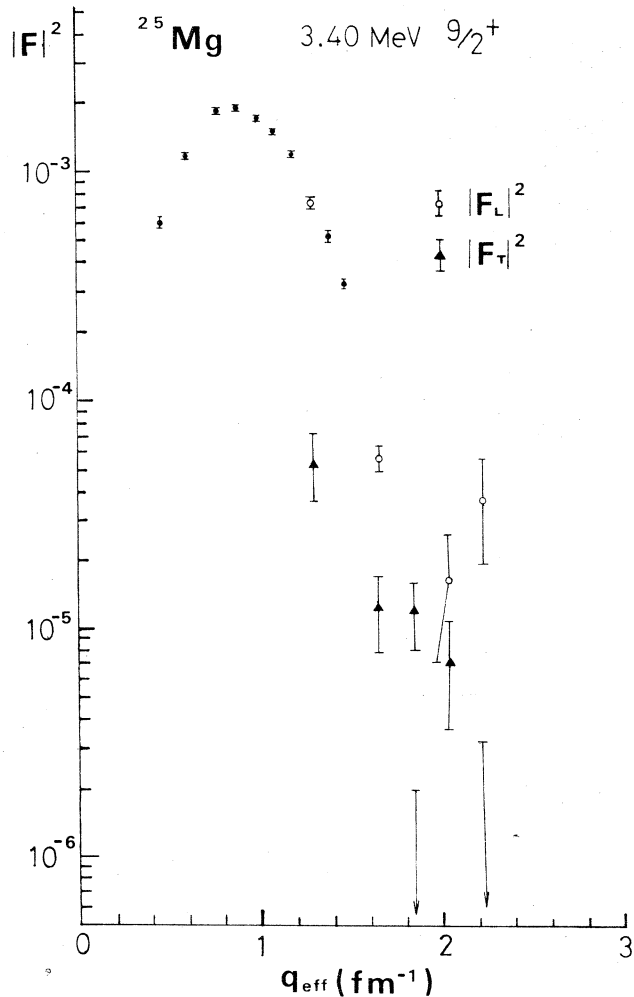
以上で求めた回転帯混合を入れて、2.74 MeV $7/2^+$ 準位に対する縦成分形状因子を計算すると第 5 図に示す破線のようになり、実験値を説明するにはこれの 10 倍程度の大きさが必要である。



第 3 図

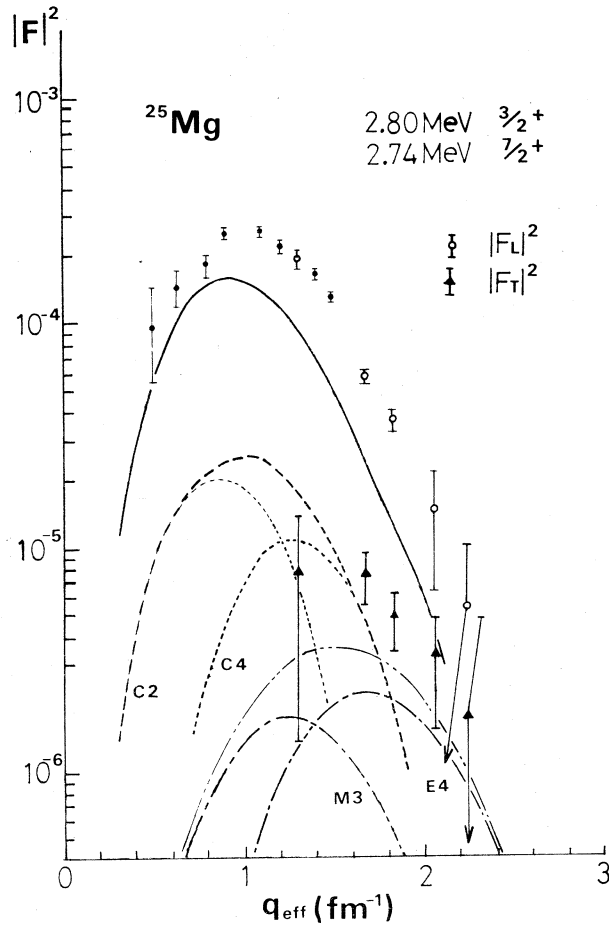
1.61 MeV $7/2^+$ 準位の形状因子。記号は図 2 に同じで、 \blacksquare は文献 2 の 180° 電子散乱による横成分形状因子である。一点鎖線、破線、実線はそれぞれ Nilsson 模型から求めた C 2, C 4 および C 2 と C 4 を加えた形状因子である。
($\delta = 0.32$, $\kappa = 0.09$, $\mu = 0.23$, $b = 1.74$ fm)

これは、単に、Nilsson 軌道井 1~4, 6, 7 を満たした24個の核子を芯とし、奇中性子軌道間の回転帯混合を考慮しただけでは説明できないことを示している。又、最近、 r 崩壊の実験により、 ^{25}Mg の $5.25\text{MeV } 11/2^+$ 準位から $2.74\text{MeV } 7/2^+$ 準位への r 線分岐率が13%であるという報告がなされているが、 $5.25\text{MeV } 11/2^+$ 準位を $K^\pi = 9/2^+$ 、 $2.74\text{MeV } 7/2^+$ 準位を $K^\pi = 1/2^+$ と考えると、 $\Delta K = 4$ なので K -選択則から、この r 線転移の分岐率はきわめて小さいはずである。これは恐らく、 $2.74\text{MeV } 7/2^+$ 準位が $K^\pi = 1/2_1^+$ 回転帯の他の準位と異なり、 $5.25\text{MeV } 11/2^+$ 準位との間に構造上の類似性を持つためと思われる。即ち、 5.25MeV 準位と同様の芯の励起状態をかなりの割合で含んでいるのであろう。このように考えることにより $2.74\text{MeV } 7/2^+$ 準位に対しての強い励起は説明されると思われる。



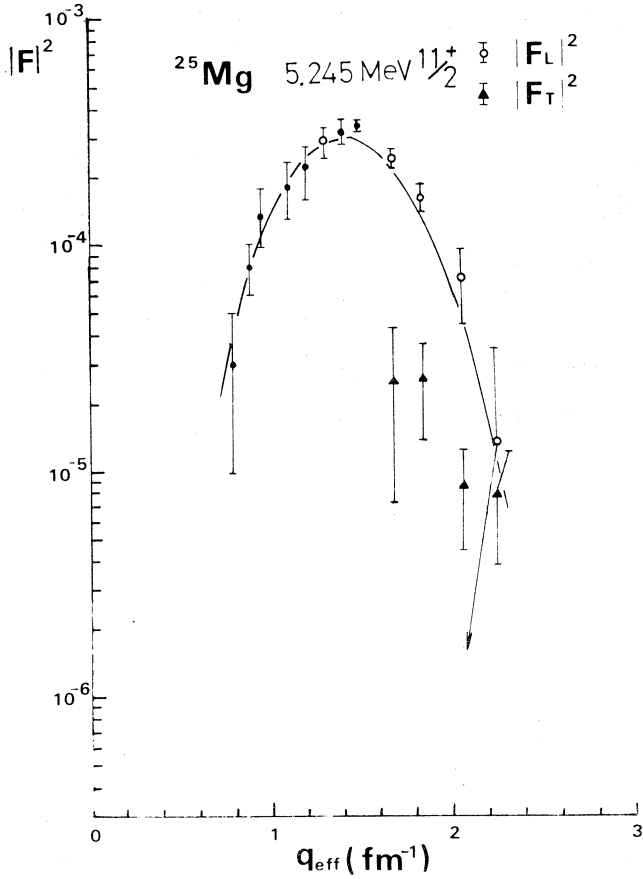
第4図

$3.40\text{ MeV } 9/2^+$ 準位の形状因子。
記号は第2図に同じ。



第5図

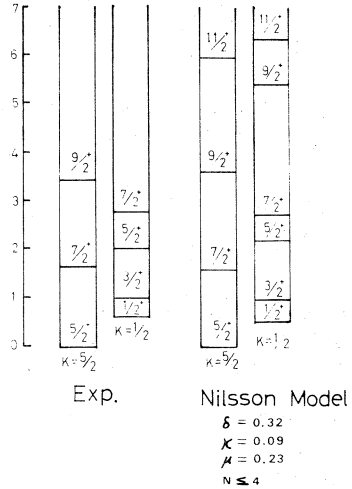
2.74 MeV $\frac{7}{2}^+$ 準位および 2.80 MeV $\frac{3}{2}^+$ 準位の形状因子。実線は、 ^{24}Mg の形状因子の実験値から強結合模型により求めた 2.80 MeV 準位に対する形状因子であり、破線および二点鎖線は各々 Nilsson 模型により計算した 2.74 MeV 準位に対する縦成分形状因子、横成分形状因子である。



第6図

5.25 MeV $11/2^+$ 準位の形状因子。

実線は、第5図と同様に強結合模型による形状因子。記号は第1図に同じ。



第7図

芯の内部状態を不変として、異なる奇中性子軌道間の回転帯混合を Nilsson 模型により計算した励起準位 (右)、と実験から得られる励起準位 (左)。

$\delta = 0.32$, $\kappa = 0.09$, $\mu = 0.23$, $N \leq 4$, $\hbar\omega = 13.6 \text{ MeV}$, $\hbar^2/2I = 0.228 \text{ MeV}$

第4表

E_x^{exp} (MeV)	E_x^{cal} (MeV)	J	Intensity (%)			
			$K=1/2_1$	$K=1/2_2$	$K=3/2_1$	$K=5/2_1$
0.00	0.00	$5/2$	0.02	0.00	0.10	99.88
0.58	0.54	$1/2$	99.36	0.64	-	-
0.98	0.96	$3/2$	96.26	2.28	1.45	-
1.61	1.57	$7/2$	0.34	0.04	0.35	99.22
1.96	2.18	$5/2$	93.06	4.14	2.70	0.03
2.74	2.70	$7/2$	86.75	7.08	5.56	0.55
3.40	3.64	$9/2$	0.25	0.00	0.52	99.08

芯の内部状態を不変として、異なる奇中性子軌道間の回転帯混合の計算による励起エネルギー、および主成分の $N = 2$ の殻の混合の強度を示す。 $\delta = 0.32$, $\kappa = 0.09$, $\mu = 0.23$, $N \leq 4$, $\hbar\omega = 13.6 \text{ MeV}$, $\hbar^2/2I = 0.228 \text{ MeV}$ 。

参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 **6** (1973) 225.
- 2) L. W. Fagg, W. L. Bendel, E. C. Jones, Jr., H. F. Kaiser, and T. F. Godlove : Phys. Rev. **187** (1969) 1384 .
- 3) S. G. Nilsson : K. Danske Vidensk. Selsk. mat.-fys. Medd. **29** No. 16 (1955).
- 4) J. P. Davidson : *Collective Model of the Nucleus* (Academic Press, 1968).
- 5) H. Röpke, V. Glattes, H. J. Brundiers, and G. Hammel : Z. Phys. **260**(1973) 67.
- 6) Benjamin E. Chi : Nucl. Phys. **83** (1966) 97.

I — 4 N = 82 同調核による電子の弾性散乱

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

最近電子の弾性散乱によって、隣り合った核の電荷分布を比べる事¹⁾が行われている。核子が付け加わる効果が、電荷分布にどの様に反映されるかは、興味ある問題である。

我々はN = 82 の同調核の核構造を電子散乱によって調べているが、ここではBa¹³⁸ , Ce¹⁴⁰ , Na¹⁴² の弾性散乱の結果と preliminary な解析について述べる。

実 験

東北大学核理研の電子線型加速器により加速された、平均電流約1 μ A の電子ビームを使い、 $E_e = 120$ MeV で Ce¹⁴⁰ , Nd¹⁴² について、散乱角 $\theta = 35^\circ$ から 85° まで 10° きざみ、 $E_e = 250$ MeV で Ba¹³⁸ , Ce¹⁴⁰ , Nd¹⁴² について $\theta = 35^\circ$ から 90° まで 5° きざみ (Ce¹⁴⁰ だけ 50° の代りに 49°) で、微分断面積の角分布を測定した。

ターゲットから散乱された電子は、中心軌道半径 1 m , 偏向角 169.7° の二重収束電磁石により、運動量分析され、焦点面上に階段状にならべられた 33 チャンネルの検出器で検出された。各チャンネルの検出器は、3 個の Si (Li) SSD のテレスコープで構成されている。

チャンネル毎の検出効率のバラツキは C¹² の厚いターゲットからの非弾性散乱の連続スペクトル部分を使って補正した。

断面積の絶対値は、同じ条件で測定した C¹² , O¹⁶ の弾性散乱の断面積の既知の値と比較する事により決めた。但し、この時、検出系の立体角も計算して、C¹² などの断面積が小さく充分な統計精度が得られない場合は、この立体角の値 Ω を使って求める断面積を計算した。

ここで

$$\Omega = \frac{Y}{\sigma_{std} \cdot n} \quad (1)$$

但し

Y : 単位入射電子数当り散乱電子数

σ_{std} : 既知の断面積⁽²⁾

* 現在東芝

n : 散乱核の単位面積当りの数

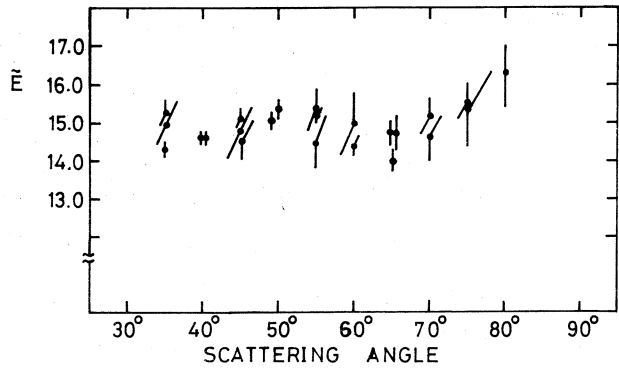
第1図に $E_e = 250 \text{ MeV}$ の場

合の \tilde{E} を

$$\tilde{E} = Q/E_e^2$$

として示した。

この中には測定時期の異なるものが、同時に示されているが、系統的な変動はない様に見える。



第1図

炭素の弾性散乱から決めた検出系の立体角 但し但し $\tilde{E} = Q/E_e^2$ としてプロットした。

ターゲット

Nd^{142} 97.55%に濃縮された金属を核理研のローラーで薄膜にして用いた。

厚さは面積と重さを測って決めた。

(22.6 mg/cm^2 , 但し $E_e = 250 \text{ MeV}$, 後方の角度でこれに規格化した 62.6 mg/cm^2 のものを用いた。)

Ce^{140} $E_e = 120 \text{ MeV}$ では 105.0 mg/cm^2 $E_e = 250 \text{ MeV}$, $\theta = 65^\circ$ より前方では 99.1 mg/cm^2 の天然金属膜 (Ce^{140} 88.48%) を用いた。

又, $E_e = 250 \text{ MeV}$ の $\theta = 70^\circ$ より後方及び $E_e = 120 \text{ MeV}$ $\theta = 75^\circ$, 85° $E_e = 250 \text{ MeV}$, $\theta = 45^\circ$ で $\text{Ce}^{140} \text{ O}_2$ (Ce^{140} の濃縮度 99.7%) を用いた。

CeO_2 のターゲットの作り方は次の通りである。 CeO_2 の粉末を 100 ton 程度の圧力で押し固め、直径 2 cm のペレット状にし、これを電気炉で $1,300^\circ\text{C}$ 48 時間加熱焼結したのち、カーボランダムで 0.5mm 程度の厚さに削る。この厚さは O^{16} の弾性散乱の既知の断面積の値を使って決めた。

Ba^{138} 濃縮金属が手に入らない事、還元が困難な事、酸化され易い事から、 BaCO_3 の形で用いた。このターゲットは次の様にして作った。ORNL* から 99.8% 濃縮 $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ の形で得たので、これを水に溶し Na_2CO_3 溶液を加え、 BaCO_3 を沈澱させ、充分水洗した後、遠心分離器で、直径 20 mm の円板の形に、沈降させる。取り出して、一様に乾燥させ、金属片など

* 濃縮ターゲットは全て Oak Ridge National Laboratory から得た。

で、適当な厚さに削り、電気炉で 500°C、20 時間程度の熱処理をする。この時、15 % 程度収縮した。この様にすると、かなりもろいが、実験に使える程度の、円板形の BaCO₃ が得られる。

このターゲットの化学的組成が BaCO₃ であるかどうかの検討を次の様にして行なった。

(1)式から

$$\frac{Y}{\sigma_{std}} \frac{1}{n\Omega} = 1$$

従ってもしこのターゲット中に C と O とが 1 : 3 の割合で含まれているとすれば、

$$\frac{Y(O^{16})}{\sigma_{std}(O^{16}) n_o \Omega} = \frac{3 Y(C^{12})}{\sigma_{std}(C^{12}) n_c \Omega} = 1$$

となる筈である。但し n_o は単位表面積当りの酸素原子数とする。我々の実験から得たこの量を第 2 図に示す。但し n_o は $\theta = 35^\circ$ から決めた。Ba の非弾性散乱の寄与がない場合は予想通り 1 に近い値となっている事から C と O の割合が 1 : 3 である事が分る。

この事からこの化合物は、

BaCO₃ として良いと思われる。

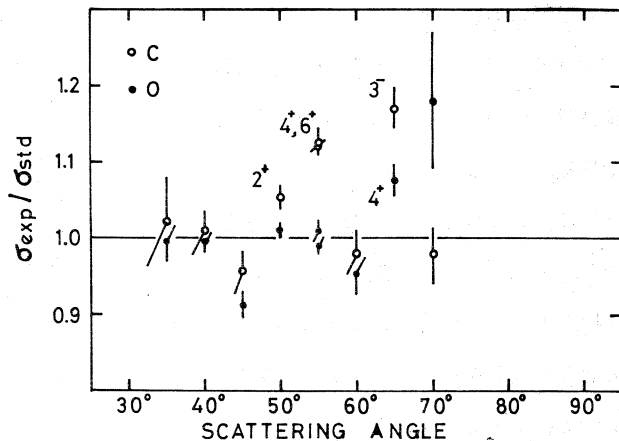
結 果

得られた電子のエネルギー

スペクトルのうち、Ba¹³⁸CO₃ E_e = 250 MeV $\theta = 40^\circ$ のものを第 3 図に示す。C、O によるピークも分れて現れている。ピークの面積は radiation tail を持った電子のスペクトルを、半理論的に計算し、大きさを最小自乗法で決める事により求めた。同一ターゲット中では、散乱核によって、スペクトルの形が変らないとした。図中の実線は、この方法で再現したスペクトルである。

得られた断面積から、次の形状因子 |F_{e1}|² を計算して、第 4 図に示す。

$$|F_{e1}|^2 = \frac{\sigma_{exp}}{\sigma_{Mott} \cdot f_{ec}} \quad (2)$$



第 2 図

BaCO₃ ターゲットの検定

$\sigma_{exp} = Y/n\Omega$. この $\sigma_{exp}/\sigma_{std}$ が角度によらず一定ならばターゲットの厚さも一定、O と C とでこの値が等しければ、含まれている O と C の割合が 3 : 1 となる様に規格化してある。2⁺, 3⁻, 4⁺, 6⁺ は Ba¹³⁸ のこの状態から寄与がある事を示す。

但し

σ_{exp} : 断面積の測定値

$$\sigma_{Mott} = \frac{Z^2 e^4 \cos^2 \frac{\theta}{2}}{4 E_e^2 \sin^4 \frac{\theta}{2}}$$

$$f_{rec} = \frac{1}{1 + \frac{2E_e}{AMC^2} \sin^2 \frac{\theta}{2}}$$

比較の為に、全てを同時に示した。

測定値の誤差のうち、統計誤差は、特に記入していないものは、2~3%である。

Ba¹³⁸とCe¹⁴⁰とは、ほぼ一致し、これに対しNd¹⁴²は、diffraction maximumのところと異なる様に見える。尚、Ceの天然金属とCe¹⁴⁰O₂とではE_e=120MeV、θ=75°、85°の測定では、よく一致した。

形状因子から、電荷分布を知るには、電荷分布に適当な関数を仮定し、パラメータをχ²-fitにより決める方法が一般的である。

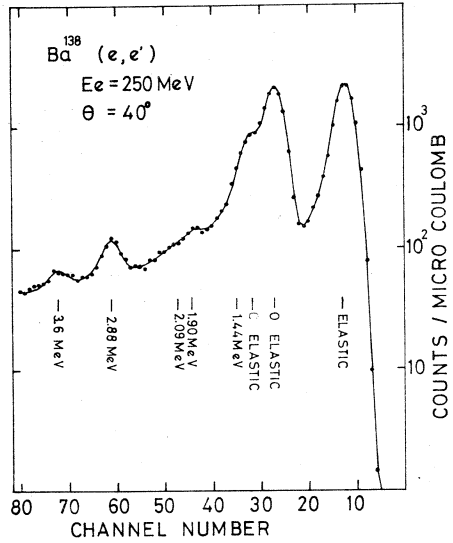
よく使われる関数は

$$\rho(r) = \frac{1 + w(r^2/c^2)}{1 + \exp((r-c)4.4/t)} \quad (3)$$

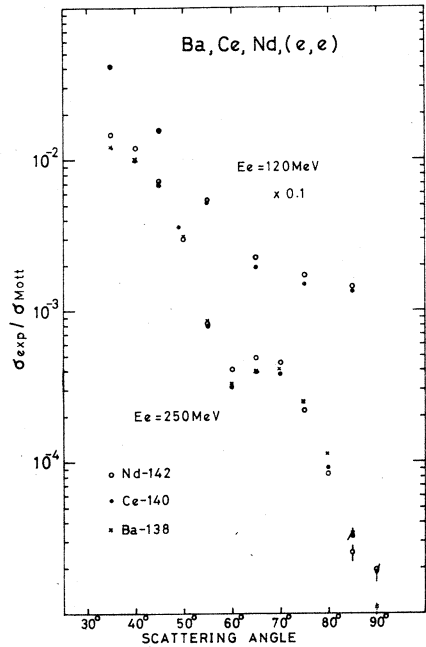
(3)を用いて、phase shift計算^{*}により形状因子を求め、我々のE_e=120MeVの測定値を再現する様にc及びtを決めた結果を第1表、第5図に示す。但しE_e=120MeVの我々の測定の範囲では(3)のwは冗長パラメータとなるのでw=0(Fermi型)とした。

球形核のsystematics³⁾からは、c=1.1A^{1/3} fm t=2.4 fmなので、我々の得たtの値は異常に小さいと云える。又、Ce¹⁴⁰とNd¹⁴²

* TOELSを使った。



第3図 BaCO₃ E_e=250 MeV θ=40°の散乱電子スペクトル。実線はピークの面積を求める為に実験値にfitさせた計算スペクトル。



第4図 Ba¹³⁸, Ce¹⁴⁰, Nd¹⁴²の弾性散乱の形状因子の角分布。

第1表 Fermi 型電荷分布のパラメータ

	c	t	$\langle r^2 \rangle^{\frac{1}{2}}$	
Ce ¹⁴⁰	5.77 ± 0.03	2.06 ± 0.05	4.80 ± 0.03	present, best fit
Nd ¹⁴²	5.79 ± 0.03	1.91 ± 0.07	4.77 ± 0.04	present, best fit
Nd ¹⁴²	5.83 ± 0.03	1.79 ± 0.18	4.77 ± 0.09	Madsen et al. ⁽⁴⁾
Nd ¹⁴²	5.6838	2.579 ± 0.013	4.913	Heisenberg et al. ⁽⁵⁾
Nd ¹⁴²	5.839 ± 0.033	2.50 ± 0.08	4.993 ± 0.035	Maas et al. ⁽⁸⁾
Nd ¹⁴²	5.75 ± 0.03	2.38 ± 0.08		Macanano et al. ⁽⁷⁾
Nd ¹⁴²	5.90 ± 0.06	2.05 ± 0.15		Bardin et al. ⁽⁶⁾

長さの単位は fm.

を比べ、t は Nd¹⁴² の方が小さいが、rms 半径はほぼ同じである。Nd¹⁴² に関する電子の弾性散乱は Yale⁴⁾ 及び Stanford⁵⁾ のグループによって報告されている。彼らの与えた電荷分布による $E_e = 120$ MeV での形状因子を第5図で我々の測定値と比較した。

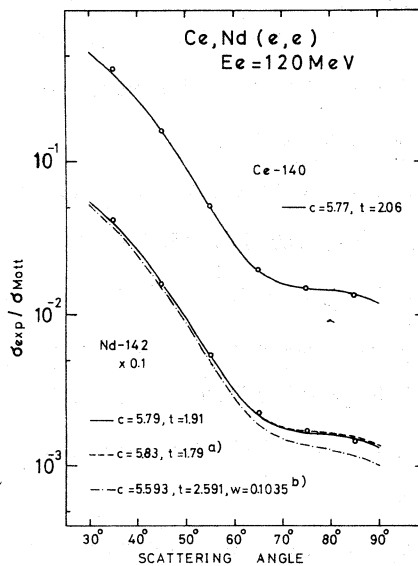
彼らの結果の間には、大きな違いがあり、我々の測定値は Yale のものとよく合っている。Yale の測定は $E_e = 60$ MeV 以下、Stanford のは $E_e = 129.5$ MeV 以上なので、我々の測定条件は後者に近い。

又最近 Maas et al.⁸⁾ によって Yale に近い条件での実験が行われ Nd¹⁴² に対し、第1表に示してある様に、Yale とは異った結果が報告されている。

μ -Xray の実験からも Nd¹⁴² の電荷分布が調べられている。Bardin et al.⁶⁾ によれば

$c = 5.90 \pm 0.06$ fm, $t = 2.05 \pm 0.15$ fm であるが、核の偏極を考慮に入れた解析では⁷⁾

$c = 5.75 \pm 0.63$ fm $t = 2.38 \pm 0.08$ fm である。



第5図

Ce¹⁴⁰, Nd¹⁴² $E_e = 120$ MeV の形状因子
実線は Fermi 型電荷分布による
計算値 (Best fit)。

Nd¹⁴² に関しては、報告されている電荷
分布による計算値も同時に示した。

a) ref 4 b) ref 5

この様に現在のところ Nd^{142} に関する電荷分布のパラメータはかなりの程度バラついている。

$E_e = 120$ MeV の測定から得られた電荷分布を用いて $E_e = 250$ MeV の形状因子を Nd^{142} について計算したものを第6図に、破線で示す。 $E_e = 250$ MeV 40° と $E_e = 120$ MeV 85° とは運動量移行がほぼ等しく、この近くで良く合っている事から、我々の測定の一応の Consistency が確められる。 65° 近くの極大 (以下 2 nd Max) では、大きく異なり、このような電荷分布に何らかの補正が必要な事を示している。

(3)式で w を変化させても、 Ba^{138} , Ce^{140} も含めて $E_e = 250$ MeV の測定値に合うものが得られなかった。この事は 1 st Max (40° 附近の極大) と 2 nd Max との関係が(3)の様な関数によって与えられるものから、大巾にずれている為と思われる。

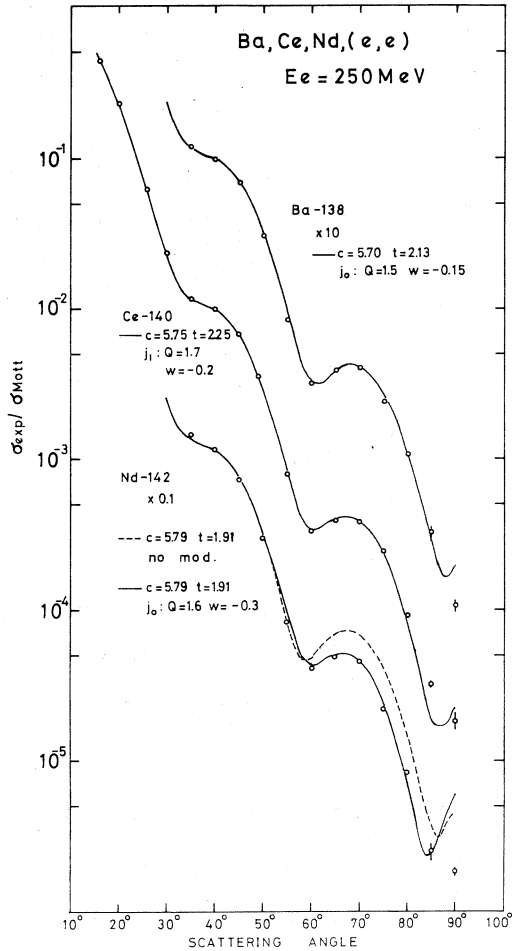
そこでこの 2 nd Max が下る効果をそのまま反映する補正がどの様なものか知る事を試みた。

平面波ボルン近似によれば、 $j_0(Qr)$

の様な電荷分布に対して、運動量移行 $q = Q$ のところでのみ値を持つ様な形状因子が得られる。

但し $j_0(Qr)$ は振動しながら、ゆっくり減衰するので、このままでは、核の外側に正負の電荷が存在する事になる。これを避ける為に、付加する電荷分布として次の様なものを仮定した。^{*}

* O^{16} に対し、 $\Delta\rho \propto \frac{\sin Qr}{Qr} e^{-g^2 r^2}$ の例がある⁽²⁾



第6図

$E_e = 250$ MeV の形状因子の測定値及び補正された電荷分布による計算値。

j_0 は $\Delta\rho(r) = w j_0(Qr) \rho_0(r)$

j_1 は $\Delta\rho(r) = 3w (j_1(Qr)/Qr) \rho_0(r)$ を示す
Ce 35° より前方の測定値は 120 MeV の data から
焼直したもの。

$$\rho(r) = \rho_0(r) + \Delta\rho(r)$$

$$\Delta\rho(r) = w j_0(Qr) \cdot \rho_0(r) \quad (4)$$

但し

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

これは、 $j_0(Qr)$ を核の広がり度で cut off した事に対応するが、この結果、形状因子に対する補正 $\Delta F(Q)$ は $q = Q$ で大きな値を持つ広がり度関数となり、我々の場合の様に 2nd Max 全体を変えたい場合には、かえって都合が良い様に思われる。 Q は変えようとする q の領域の中心に合わせて決める。

又、同様の考察から

$$\Delta\rho(r) = 3 \cdot w (j_1(Qr)/Qr) \rho_0(r) \quad (5)$$

の様に変えれば、もし 2nd Max を下げる様に w と Q を決めれば、1st Max を上げる事が出来る。

この様な補正を行なった電荷分布の様子を第7図に示し、得られた形状因子を測定値と比較したものを第6図に示す。

Nd^{142} の場合(4)で、 $\rho_0(r)$ を 120 MeV から得られたものを用い、 $Q = 1.6 \text{ fm}^{-1}$ に選んだところ $w = -0.3$ で 2nd Maxの大きさが再現出来た。

尚この結果 rms 半径は 4.767 fm となるが、 $\rho_0(r)$ だけによるものと殆んど変わらない。

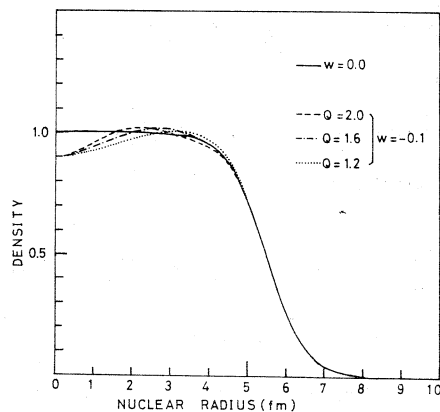
Ce^{140} の場合(5)を用いた結果を示した。

この場合は前に述べた様に 1st Max が上るので、その分だけ t の値が大きくなっている。

Ba^{138} については、(4)によるものを用いた。この場合 $t = 2.13 \text{ fm}$ で Ce^{140} 、 Nd^{142} 同様な小さな値である。

この結果から、定性的には、測定値を再現出来る事が分った。しかし、物理的な結論を出すには、次の様な問題がある様に思われる。

(a) 上では 2nd Max を下げる様に Q を決めたが、逆に 1st Max を上げる様に Q を選ぶ事も



第7図

$\rho(r) = \rho_0(r) + w j_0(Qr) \rho_0(r)$ の様子を示す。但し、 $\rho_0(r)$ は $c = 5.7 \text{ fm}$ 、 $t = 2.2 \text{ fm}$ の Fermi 型に取った。

可能で、この両者では、電荷分布の様子がかなり異なる。

(b) 定量的な χ^2 -fit を行う場合は、Q も自由パラメータとする必要があるので、結局全部で 4 コのパラメータの電荷分布になる。

最近、形状因子から電荷分布を知る色々な方法⁹⁾が提案されており、又その際の誤差についても考察¹⁰⁾されている。この一つの結論として、中心部分は全電荷に占める割合が小さいので、その密度決定に不定性が大きい。

我々の Nd¹⁴² の例では、中心が表面附近に比べ 30 % 以上へこんでいる事になるが、この中心部分の密度そのものには、あいまいさがある。

我々の測定から得られる結論としては、Ba¹³⁸、Ce¹⁴⁰、Nd¹⁴² とともに、Fermi 型の電荷分布に対し、① t が他の球形核に比べ小さい。② 核内で振動する様な補正が必要であると云う事である。

物理的に信頼出来る具体的な電荷分布の微細構造を得るには q の大きいところまでの測定値とともに、電荷分布に関する模型の検討が必要に思われる。

ターゲットの製作に関して有益な助言をして戴だいた塩川教授、天野氏、鈴木氏、山寺氏に感謝します。

核理研の中原氏、小山田助教授はじめ電子散乱グループ、マシングループの皆様の助言と協力に感謝します。

参 考 文 献

- 1) A. Lande and J. P. Svenne : Nucl. Phys. **A 164** (1971) 49 ;
R. Neuhauser, J. W. Light body, Jr. ,
S. P. Fivoziński and S. Penner : Phys. Rev. **C5** (1972) 124 ;
R. D. Wendling and V. H. Walter : Nucl. Phys. **A 219** (1974) 450 ;
R. P. Singhal, S. W. Brain, C. S. Cavan, T. E. Drake and W. A. Gillette :
Nucl. Phys. **A 216** (1973) 29.
など
- 2) I. Sick and J. S. MacCarthy : Nucl. Phys. **A 150** (1970) 631.
- 3) L. R. B. Elton : *Nuclear Sizes* (Oxford Univ. Press, London, 1961).
- 4) D. W. Madsen, L. S. Cardmann, J. R. Legg and C. K. Bokelmann :
Phys. Rev. Lett. **23** (1969) 1122 ;

- D. W. Madsen, L. S. Cardmann, J. R. Legg and C. K. Bokelmann :
Nucl. Phys. A **168** (1971) 97.
- 5) J. H. Heisenberg, J. S. McCanthy, I. Sick and M. R. Yearian :
Nucl. Phys. A **164** (1971) 340.
- 6) T. T. Bardin, R. C. Barrett, R. C. Cohev, S. Devons, D. Hithin, E. Macagno,
C. Nissin-Sabat, J. Rain Water, K. Runge and C. S. Wu : Phys. Rev. Lett.
16 (1966) 718.
- 7) E. R. Macagno, S. Bervow, S. C. Cheny, S. Devons, I. Dverdoth, D. Hitlin, J. W.
Kast, W. Y. Lee, J. Rain Water and C. S. Wu : Phys. Rev. C **1** (1970) 1202.
- 8) R. Maas and C. W. De Jager : Phys. Lett **48 B** (1974) 212.
- 9) J. Friedrich and F. Lenz : Nucl. Phys. A **183** (1972) 523 ;
J. L. Friar and J. W. Negele : Nucl. Phys. A **212** (1973) 93 ;
I. Sick : Nucl. Phys. A **218** (1973) 509.
- 10) J. Boysowicz and J. H. Hetterington : Phys. Rev. C **7** (1973) 2293.

I—5 ${}^6\text{Li} (e, e'X)$ 反応の研究

山形大教養, 核理研* 種市 宏・上野博昭・庄田勝房*

§ 1 序 文

軽い核の実験データは粒子反応, 光反応とも多数蓄積され, 低い状態の spin, parity etc の物理量は殆んど明らかになったと言えるが, 高い励起状態や幅の広い状態はまだ未知の部分が多く, 核構造も十分明らかになったとは言えない。

${}^6\text{Li}$ は low energy level が shell model を用いて理論的に研究されている他, cluster model を用いても研究されており, ある程度その構造を説明することが期待されている。cluster model の考えによれば, ${}^6\text{Li}$ は d と α の結合, t と ${}^3\text{He}$ の結合と考えることができ, 前者は $T=0$, 後者は $T=0$, $T=1$ の状態を構成する。一般に ${}^6\text{Li}$ の様に $T=0$ を基底状態とする核の電磁相互作用による励起では, $T=0$ 状態は禁止され $T=1$ の状態が励起されるが, $T=0$ の level でも関係する状態が $T=1$ の impurity を含めば励起可能である。一般には原子核の level は T の impurity をもち, その割合は励起エネルギーが高い程大きい。今までに行われた ${}^6\text{Li}$ の光反応の実験では proton や neutron を測定した例は多いが, deuteron, triton, ${}^3\text{He}$ や α を系統的に測定した例は少ない。また粒子反応で粒子移行による cluster の研究はあるが, この場合は反応機構が問題になるため解析は複雑である。我々は ${}^6\text{Li}$ の cluster 構造を調べるために $(e, e'X)$ 反応の実験を行ない, proton, deuteron, triton と α を測定した。

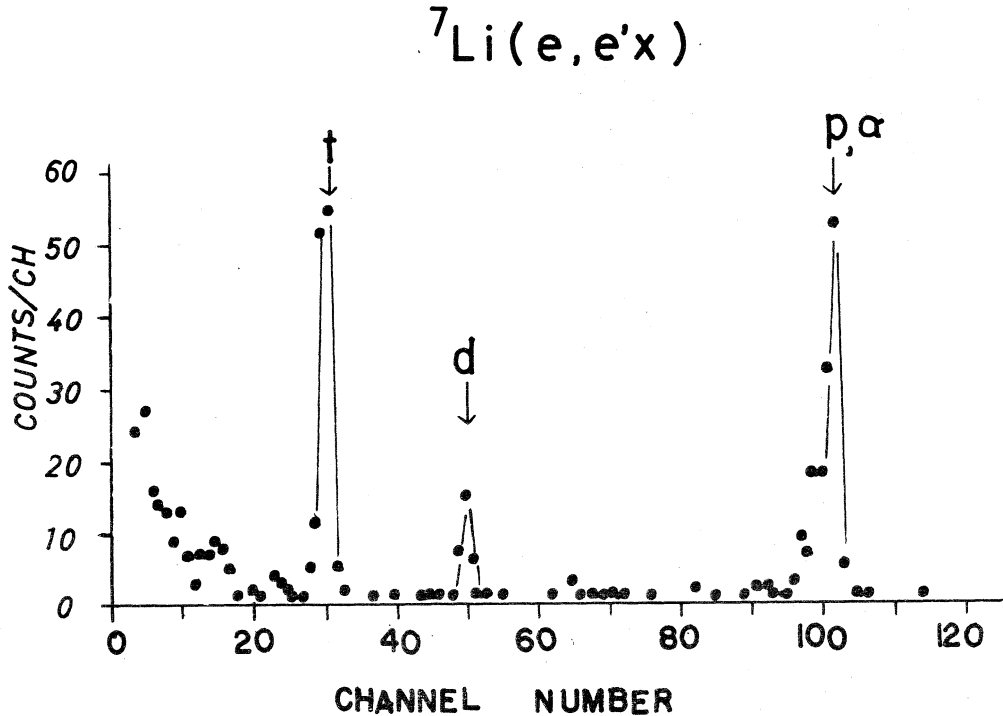
48年度後期3日間のマシントイムで実験し, 現在 data の解析中である。解析は電子を virtual photon として扱っているが, virtual photon と real photon の比較に関する研究があり, 電子エネルギーが低いときは両者の間にあまり差がないという報告¹⁾がある。

§ 2 実 験

東北大学電子リニアックで加速された電子を scattering chamber の Li target に照射した。実験した電子の加速エネルギーは 14 MeV から 25 MeV の間である。

${}^6\text{Li}$ target は 99.3% enrich の metal foil で, 厚さは約 3 mg/cm^2 であった。

反応生成粒子は $\theta_L = 90^\circ$ に set された Broad range magnetic spectrometer で運動量分析をし, magnet の focal plane に set された 100 個の SSD でエネルギー分析をして粒子の選別をし, on-line computer で処理された。SSD に入ってくる粒子のエネルギーを PHA で



第1図

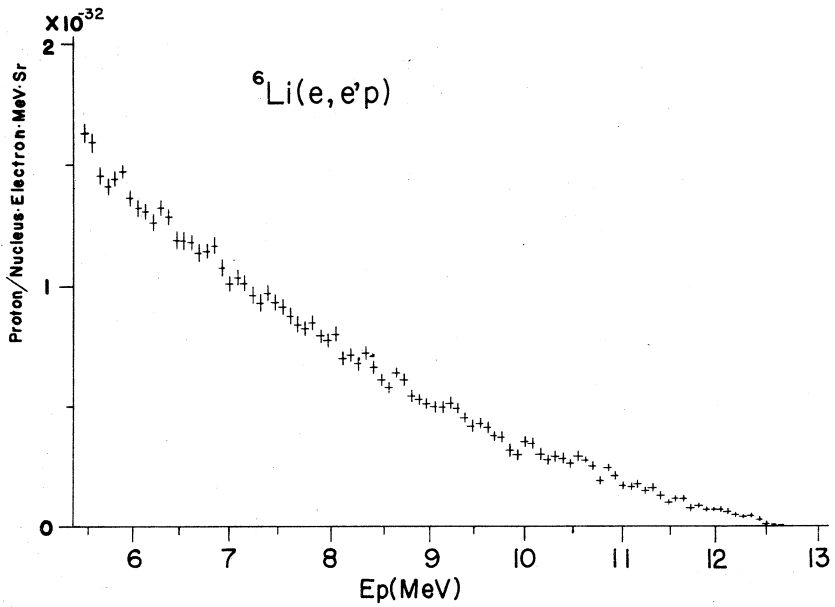
$\theta = 90^\circ$, $E_e = 25\text{MeV}$ における ${}^7\text{Li}(e, e'X)$ のemitted particlesをSSD(low energy sideより42番目)でエネルギー分析をした spectrumである。

で見ると第1図に示すようになる。検出系の circuit には discriminator があり、検出する粒子に適した discriminator level を set して spectra を得て、さらにそれ等の spectra を組合わせて差引きを行ない、各粒子の spectra を完成させた。proton と α は同じエネルギーなので、absorber で α を落とした。

照射した電子の dose は core monitor を用いて測定した。

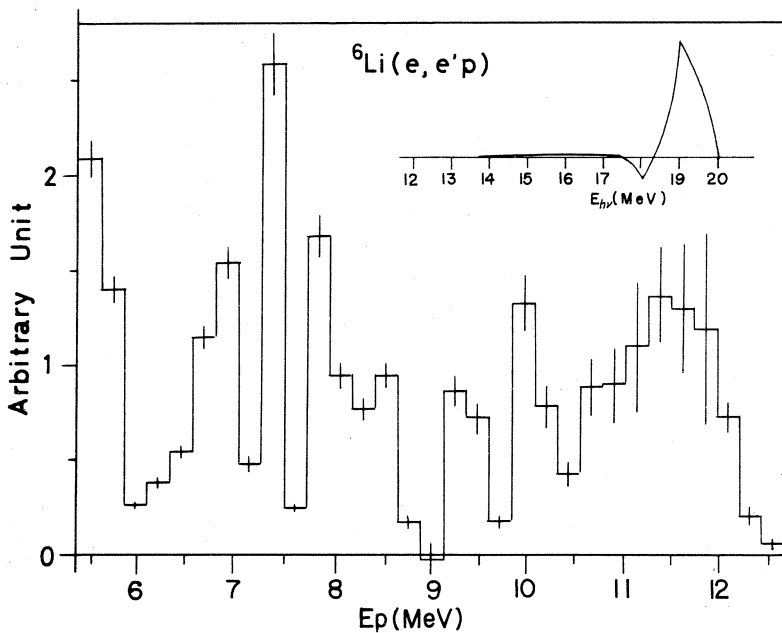
§ 3 結果と考察

Proton $E_e = 14, 15, 16\text{MeV}$ と $E_e = 18, 19, 20\text{MeV}$ で測定し、energy difference proton spectra を得た。proton spectrum と difference spectrum を第2, 3図に示してある。proton は ${}^6\text{Li} \rightarrow p + {}^5\text{He}$ と ${}^6\text{Li} \rightarrow p + n + \alpha$ の2つの反応からの生成と、 ${}^6\text{Li}(e, e'n) {}^5\text{Li}$ を通り ${}^5\text{Li} \rightarrow p + \alpha$ となる decay からの寄与がある。まだ解析中ではっきり言えないが、spectrum の shape は Bazhanov 等による $E_\gamma = 28\text{MeV}$ の ${}^6\text{Li}(\gamma, p)$ の data²⁾ に



第2図

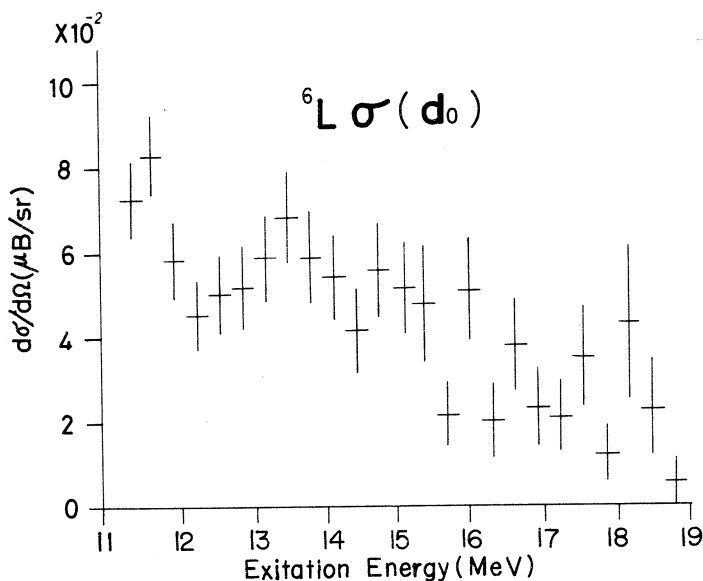
$\theta = 90^\circ$, $E_e = 20\text{MeV}$ における ${}^6\text{Li}(e, e'p)$ の proton energy spectrum である。



第3図

$\theta = 90^\circ$, $E_e = 18, 19, 20\text{MeV}$ の proton spectrum より得られた energy difference proton spectrum である。difference spectrum をつくるのに用いた係数は $Y_{20} - 1.47 Y_{19} + 0.436 Y_{18}$ である。右上の図は virtual photon spectrum である。

似ており、彼等は high energy の2つの maxima を ${}^6\text{Li}$ の excited state から ${}^5\text{He}$ の $1/2^-$ state への decay と見ているが、我々の data はそれには否定的である。



第4図

$\theta = 90^\circ$, $E_e = 20 \text{ MeV}$ における ${}^6\text{Li}(e, e'd){}^4\text{He}$ より得られた excitation function である。

Deuteron $E_e = 20 \text{ MeV}$ で測定した。図4に示した excitation curve には構造は見られない。cross section は小さいが、本来 isospin の selection rule によって禁止されている反応で、これより isospin impurity が求められる。現在解析中である。

Triton $E_e = 25 \text{ MeV}$ で測定したが、 $E_t = 1.3 \sim 3.0 \text{ MeV}$ とエネルギー範囲が狭いため有効な information を得るには、もっとエネルギー範囲を拡げる data をためる必要がある。

α $E_e = 25 \text{ MeV}$ で測定した。 α は ${}^6\text{Li} \rightarrow \alpha + d$ と ${}^6\text{Li} \rightarrow \alpha + p + n$, さらに ${}^6\text{Li}(e, e'n)$ ${}^5\text{Li}$ の ${}^5\text{Li}$ の decay から生成されるが、proton と deuteron の data と合わせて解析すると三体反応の寄与を評価できるが、まだ data が不足である。

この実験に際して御援助いただきました菅原助教授、及川、上柿、鈴木(厚)、玉江の各氏とマシングループの方々に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) C. F. Wong, R. M. Hutcheon, Y. M. Shin and H. S. Caplan : Can d. J. Phys.
48 (1970) 1917.
- 2) E. B. Bazhanov, A. P. Komar, A. V. Kulikov and E. D. Makhnovsky : Nucl. Phys.
68 (1965) 191.

I — 6 $^{26}\text{Mg} (\gamma, \alpha_0)$ 反応

核理研 寺沢辰生・玉江忠明・菅原真澄
 理学部物理* 川村鴨明*・斎藤 肇*
 教養部** 坪田博明**

§ 1 緒 言

E 1 巨大共鳴の荷電スピンによる分離の現象は、軽い核の領域では、 ^{26}Mg 核が最もよく研究の対象とされている。Darmstadt¹⁾ 及び核理研²⁾ で行なわれた電子散乱実験では励起エネルギー 17MeV 及び 22MeV に大まかなピークが観測され、各々 $T = 1$ 及び $T = 2$ の 1^- 状態の励起と考えられている。この二つのピークのエネルギー間隔、5MeV、は Goulard³⁾ の理論値

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

とも良く一致する。

上記の電子散乱実験以前に、Katz 等⁴⁾ は、 (γ, n) 反応及び (γ, p) 反応の実験からこの二つのピークの存在を確かめている。彼等は、 (γ, n) 反応に於て 17MeV に、また (γ, p) 反応では 22MeV にピークを観測した。このことは、荷電スピンの選択則から、各々 $T = 1$ 、 $T = 2$ の状態であるとする考えを支持している。

Wu 等⁵⁾ は (γ, n) 反応での放出中性子の飛行時間分析を行い、 ^{26}Mg 核の巨大共鳴領域の荷電スピン構造をより明確に観測することに成功した。彼等の実験結果によれば、励起エネルギー 19MeV の間では中性子は残留核、 ^{25}Mg を約 7.9 MeV の励起状態に残して放出される。 ^{25}Mg 核の 7.793 MeV 及び 7.873 MeV の状態は $T = 3/2$ として知られており、この事から彼等は ^{26}Mg 核の励起エネルギー 19 MeV から 23MeV の間の状態は荷電スピン $T = 2$ をもって結論している。

Fultz 等⁶⁾ は陽電子消滅による単色ガンマ線を使って、 $(\gamma, n) + (\gamma, pn)$ 反応と $(\gamma, 2n)$ 反応を各々独立に測定した。彼等の実験で特徴的な事は、 $(\gamma, 2n)$ 反応に於て励起エネルギー 22MeV に明らかなピークが観測される事、及び両者の反応で励起エネルギー 25 MeV 附近に巾の広いピークが存在する事、の二点である。Fultz 等によれば、 $(\gamma, 2n)$ に見られるピークは、 ^{26}Mg の $T = 2$ の状態が中性子放出により ^{25}Mg の 7.9MeV 附近の $T = 3/2$ の状態に崩壊し、さらに $(^{25}\text{Mg} (\gamma, n))$ のしきい値が 7.329 MeV であることから二番目の中性子を放出して ^{24}Mg の基底状態に崩壊したものとしている。励起エネルギー 25MeV 附近に見られる巾の広いピークは Ishkanov⁷⁾ 等の (γ, xn) 反応に於ても観測されている。Fultz 等はこれを

$T = 1 \quad J^\pi = 1^-$ の状態が ^{26}Mg 核の変形によって分離した結果生じたピークであるとしているが、このことは注目に値する。電子散乱実験に対する Titze 等の解析結果によれば、励起エネルギー 19.5MeV 以上を $T = 2$ の状態とすると、 $T = 1$ と $T = 2$ の状態に対する積分断面積の比は、 $\sigma_{T=2} / \sigma_{T=1} \simeq 1.7$ となる¹⁾。

Fultz 等の、 $(\gamma, n) + (\gamma, \text{qn}) + (\gamma, 2n)$ 反応でも、上記の仮定ではこの比は約 2 である。この値は Fallieros, 或いは O'Connell 等^{3), 6)}の理論値、 $0.7 \sim 0.8$ と著しく異っている。したがって ^{26}Mg 核で励起エネルギー 20MeV 以上にも $T = 1$ の 1^- 状態が存在すると考えるのは自然である。しかし、このエネルギー領域での $T = 1$ の状態の寄与に関しては未だに決定的な実験はなされておらず、これを明らかにすることは、上述の理論と実験の間のくいちがいの解明のみならず、変形核における E 1 巨大共鳴の解析に重要なことであると思われる。

我々は (γ, α_0) 反応を用いて、 ^{26}Mg 核の巨大共鳴領域に於ける $T = 1, J^\pi = 1^-$ 状態の分布を決定すべく実験を行なった。

§ 2 実験及び結果

標的として 99.4% に濃縮した厚さ $2.6\text{mg}/\text{cm}^2$ の ^{26}Mg 同位体を用い、入射電子エネルギー E_0 を 16.5MeV から 28MeV まで 0.5MeV 間隔で変えて $(e, e'\alpha_0)$ 反応による α 粒子を、反応角度 $\theta = 90^\circ$ で測定した。更に、 $E_0 = 20\text{MeV}$ で、放出 α 粒子の角分布の測定を行った。放出粒子のエネルギーは広帯域磁気分析器 (BDM) により分析し、 α 粒子の最大エネルギーの位置から陽子の最大エネルギーの位置までの計数を α_0 の収量とした。この間隔は、 $E_0 = 20\text{MeV}$ で、約 1.3MeV である。この測定値から、仮想光子スペクトルを用いて (α, α_0) 反応の断面積を求めた。(測定方法及び解析方法の詳細は、核理研報告 Vol. 6 No. 2, p. 246 を参照)。

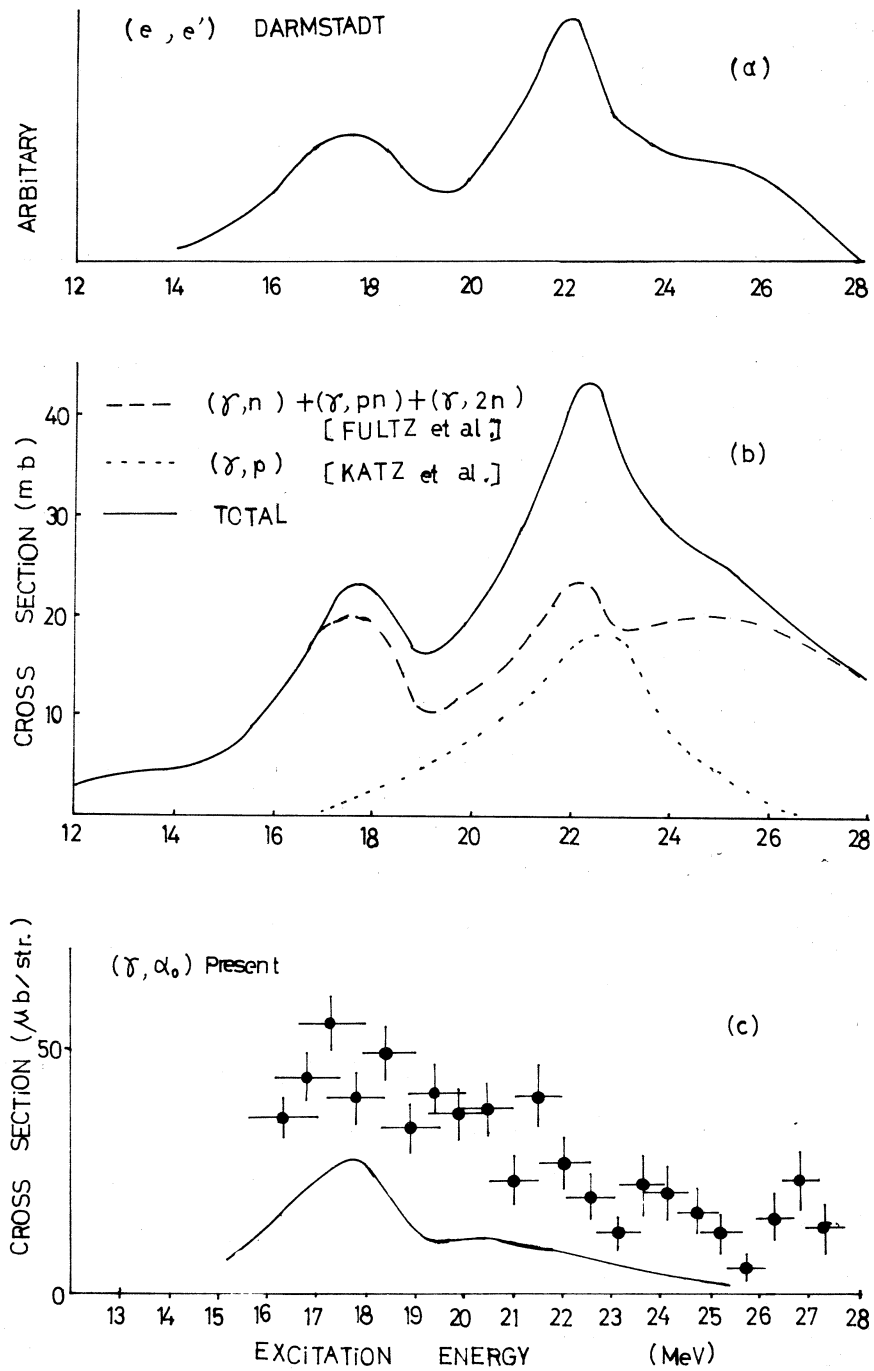
得られた (γ, α_0) 反応のスペクトルを第 1 図(c)に、角分布を第 2 図に示す。

§ 3 考 察

(i) スペクトル

我々の得た (γ, α_0) 反応の断面積 (第 1 図(c)) は励起エネルギー 20MeV 以上でも比較的大きな値をもち、この領域でも $T = 0$ の光吸収が起っている事を明らかに示している。

Fultz 等の測定結果 (第 1 図(b)) によれば、 $T = 1$ とみられる励起エネルギー 25MeV のピークは、励起エネルギー 20MeV 以上での断面積の主要な部分をしめている。したがって我々はこのピークを 17MeV のピークと同じく $T = 1, J^\pi = 1^-$ と仮定して、複合核統計模型を用いて $(\gamma,$



第1図

各反応における断面積の比較。このうち、(a)は散乱電子のスペクトルをE1のみとして光核反応スペクトルに焼き直したもの。

α_0) 反応断面積との比較を試みた。複合核統計模型によれば、 (γ, α_0) 反応の平均断面積は次の式で与えられる。⁸⁾

$$\langle \sigma(\gamma, \alpha_0) \rangle = \sigma_\gamma(C, N) \times \frac{T\alpha_0}{\sum_c T_c} \quad (1)$$

ここに $\sigma_\gamma(C, N)$ は $\Delta T = 0$ の光吸収断面積、 T_c は放出チャンネル C に対する透過係数である。C についての和は、エネルギー的に可能な全てのチャンネルについてとられるが、 $\sum_c T_c$ の主要素は陽子、中性子の放出であると考えられる。このことは、第 1 図(a)に示した電子散乱のスペクトルの形 (E 1 のみとして光核反応断面積に焼き直したものと、第 1 図(b)の $(\gamma, n) + (\gamma, pn) + (\gamma, 2n) + (\gamma, p)$ の断面積の形が良く一致している事から確かめられる。したがって、(b)が全光吸収断面積を与えると考えてよいであろう。我々は上式を用いて (γ, α_0) の断面積を計算する際、 $\Delta T = 0$ の光吸収断面積、 $\sigma_\gamma(C, N)$ 、として Fultz 等の測定した $(\gamma, n) + (\gamma, pn) + (\gamma, 2n)$ の断面積をそのまま用いた (第 1 図(b)の鎖線)。これはかなり荒い仮定であるが、Fultz 等の断面積には 22 MeV のピーク ($T = 2$ と考えられる) の寄与は顕著でなく、全光吸収断面積のうち $\Delta T = 1$ の部分は、大ざっぱに (γ, p) 反応の断面積 (b) の点線) で与えられると考えられる。井戸型ポテンシャルでの透過係数を用いて (1) 式を計算して得た微分断面積を第 1 図-(c)に実線で示す。絶対値は実験値の約半分であるが、スペクトルの相対的な形は良く再現されている。したがって複合核模型の不完全さを考慮に入れても、 $J^\pi = 1^-, T = 1$ の状態に対する我々の仮定はかなり真実に近いと思われる。

以上の結果を基にすると ^{26}Mg 核の巨大共鳴領域は大まかに、 $E_x = 17\text{MeV}$ $T = 1$, $E_x = 22\text{MeV}$ $T = 2$, $E_x = 25\text{MeV}$ $T = 1$ 、の三つのピークに分ける事ができ、各々に対する積分断面積の比は、概略 1 : 1 : 2 である。葉巻形に変形した核の E 1 共鳴の短軸成分と長軸成分の強度比が 2 になること⁹⁾、及び $T = 2$ と $T = 1$ の E 1 共鳴の強度比が約 1 であることを考えると、 $E_x = 22\text{MeV}$ のピークを $T = 2$ の長軸成分とみれば、上に得られた比の値は無理なく説明される。しかし、励起エネルギー 20 MeV 以上での $T = 1$ の 1^- 状態の正確な分布の決定には、より高精度の実験と、直接過程をも含んだ (γ, α) 反応理論による解析が必要である。又、 $T = 2$ の 1^- 状態の短軸成分 (励起エネルギー 30 MeV 附近に予想される⁶⁾) の発見も今後に残された興味ある問題である。

(ii) 角分布

第 2 図に $E_0 = 20\text{MeV}$ で得られた (γ, α_0) 反応による放出 2 粒子の角分布を示す。一般に、励起の多重度が一つに限られる場合は、光核反応による放出粒子の角分布は 90° 対象になること

が知られている。第2図の角分布は明らかに前方ピークを示しており、E1励起とE2励起の干渉が考えられる。E1励起とE2励起が共に存在する場合の (r, α_0) の角分布は次の式で与えられる¹⁰⁾。

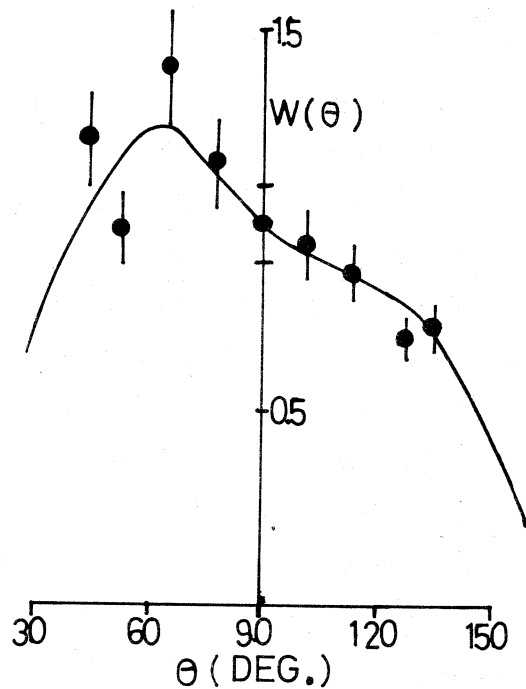
$$W(\theta) \sim \sigma_1 (1 - P_2) + \sigma_2 (1 + 0.71 P_2 - 1.71 P_4) - 2.63 \cdot \sqrt{\sigma_1 \sigma_2} \cdot \cos \theta_{12} \cdot (P_1 - P_3) \quad (2)$$

ここに、 σ_1, σ_2 は各々E1及びE2励起の断面積、 θ_{12} は各励起間の位相差、 P_n はLegendreの多項式である。最小自乗法を用いて(2)式を実験値と比較すると第2図の実線のようになり、 σ_1 と σ_2 の比として、

$$\sigma_1 / \sigma_2 = 0.3 \pm 0.1$$

という値が得られた。我々が角分布を測定した励起エネルギーは全光吸収断面積

の谷の位置に相当する事から、この部分に30%程度の $\Delta T = 0$ のE2励起が存在することは充分考えられる。しかし、近年注目されているE2巨大共鳴の存在等をこの実験データから議論するのは明らかに無理であり、より広い励起エネルギー領域にわたっての角分布の測定が必要であると思われる。尚、角分布が90°対称にならない事は、(1)で述べた統計模型が厳密には成立っていない事を示している。



第2図

$E_0 = 20 \text{ MeV}$ での、 (r, α_0) 反応からの放出 α 粒子の角分布。

参 考 文 献

- 1) O. Titze et al. : Phys. Lett. **31 B** (1970) 565.
- 2) 核理研研究報告 **6** (1973) 30.
- 3) B. Goulard and B. Fallieros : Canad. J. Phys. **45** (1967) 133.
- 4) L. Katz et al. : Canad. J. Phys. **32** (1954) 580 ; L. Katz and A. G. W. Cameron : Phys. Rev. **84** (1951) 1115.
- 5) C. P. Wu et al. : Phys. Lett. **32 B** (1970) 675.
- 6) S. C. Fultz et al. : Phys. Rev. **C 4** (1971) 149.
- 7) B. S. Ishkhanov et al. : Nucl. Phys. **A 186** (1972) 438.
- 8) 核理研研究報告 **6** (1973) 246.
- 9) K. Okamoto : Phys. Rev. **110** (1958) 143 ;
M. Danos : Nucl. Phys. **5** (1958) 23.
- 10) G. S. Foote et al. : Nucl. Phys. **A 220** (1974) 505.

I—7 (e, e'p) 反応による T_{1/2} 状態の研究

核理研 及川四郎・斎藤悌二郎・鈴木厚人
玉江忠明・上柿順一・菅原真澄
庄田勝房

1973 年後期共同利用に於ては、従前と同様な方法で (e, e'p) 反応の断面積、その放出陽子のスペクトル等を測定した。研究を行なった原子核は ⁴⁴Ca, ¹⁴⁰Ce, ¹⁵⁹Tb, ¹⁶⁵Ho 等である。

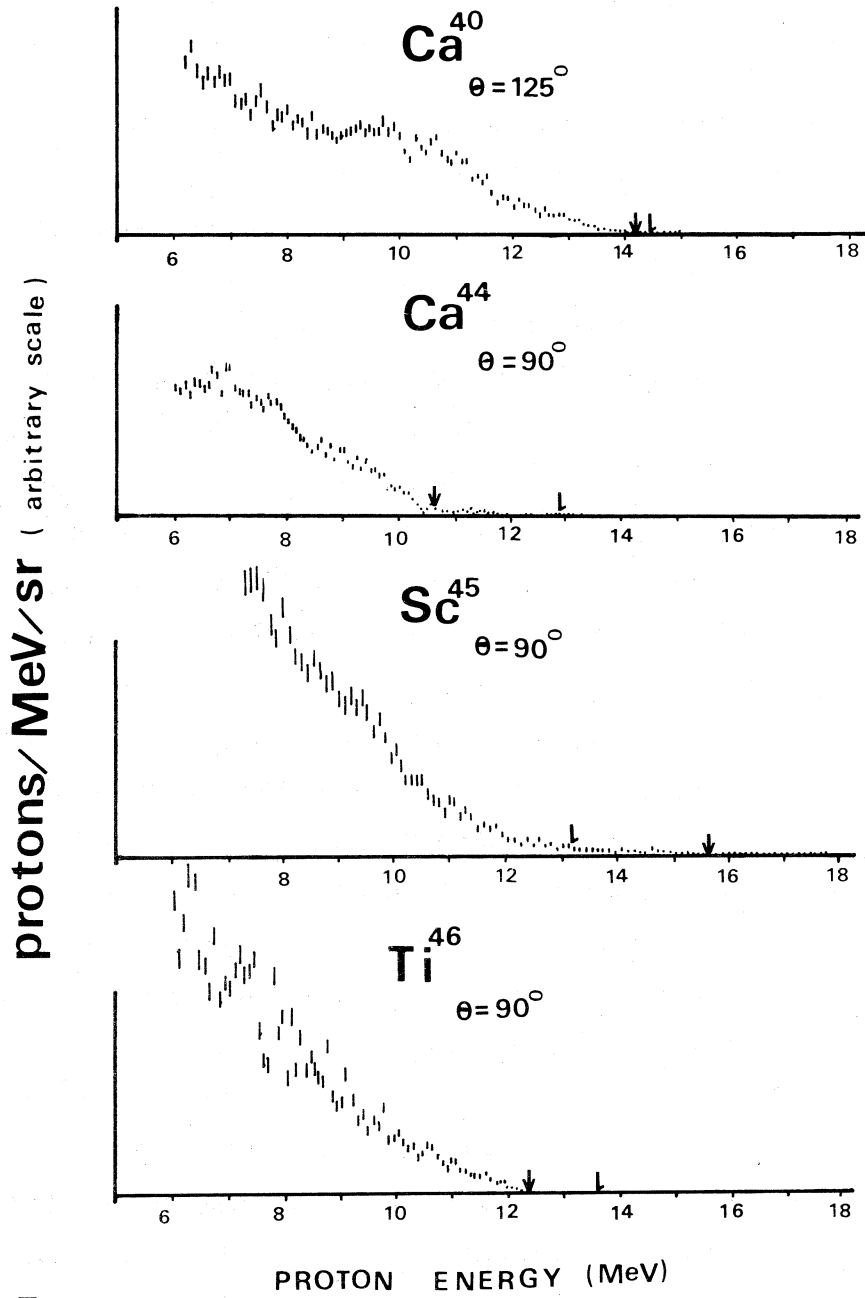
Ca⁴⁴ の (e, e'p) 反応

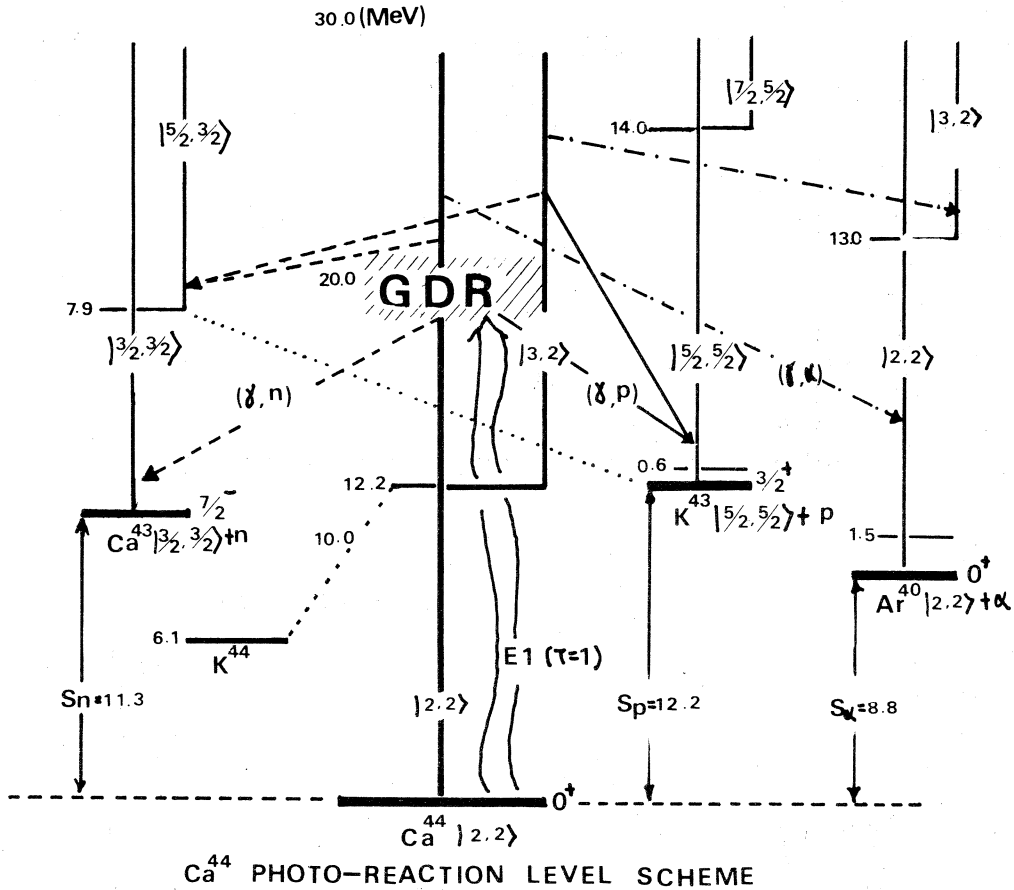
今期は Ca⁴⁴ (γ, P_α) 反応の実験を行なった。ターゲットは純度 (Ca⁴⁴) 98% 以上の self-support ターゲットである。尚 Ca⁴⁴ は空气中で酸化しやすく、又吸水性が強いので実験の前後において真空容器に保管するように留意した。厚さは 3.97 mg/cm² であり、実験 set up 状態 (θ_M = 90°, θ_T = 150°) で 5 MeV 陽子及び α 粒子の energy loss は各々 250 keV 及び 3 MeV である。(e, e' P_α) スペクトラムを第 1 図に示す。図において ↓ 印及び ↓ 印は各々 α 粒子、陽子の最大エネルギーの位置を示している。又 Ca⁴⁴ の光核反応に関係した level scheme を第 2 図に示したが、(γ, p) 及び (γ, α) 反応の残留核の第一励起状態が比較的離れているので (e, e' P_α) スペクトラムのデータから (γ, p₀) 及び (γ, α₀) の断面積を求めるのが容易である事が知れる。但しこの場合不純物 (≒ Ca⁴⁰) からの陽子が (e, e' P_α) スペクトラムに含まれているのに対する補正を既知の Ca⁴⁰ (γ, p₀)¹⁾ 断面積を用いて行なった。得られた (γ, p), (γ, p₀) 及び (γ, α₀) 断面積を第 3 図に示した。

図の中段には natural calcium による (γ, n) 断面積から activation method による Ca⁴⁰ (γ, n) 断面積を差引いて得られる Ca⁴⁴ (γ, n) の断面積²⁾ を示してある。Natural calcium の atomic % 及び σ (γ, n) の大きさのアイソトープ依存性を考えると Ca⁴² の寄与は 10% 程度と思われるから差引いた残りは大体 Ca⁴⁴ (γ, n) の断面積であるが高励起エネルギー部分において誤差は非常に大きいと考えられる。しかし明らかに (γ, p) の G. D. R. の位置が (γ, n) のそれより高い方にある。この傾向はこの附近の他の核 (Sc⁴⁵, Ti⁴⁶) に於いても見られ、neutron excess による G. D. R. の Isospin Splitting の表われと考えられる。一方 (γ, α₀) 断面積は 16 MeV 附近に比較的狭い巾のピークを形成している。Isospin が良い量子数であれば (γ, α) は T < G. D. R. から放出されるはずであるが、α 粒子放出は G. D. R. の一体オペレーター性によって複合核状態にくずれてからのみ可能である事、又複合核状

(e,e'p) PROTON SPECTRUM

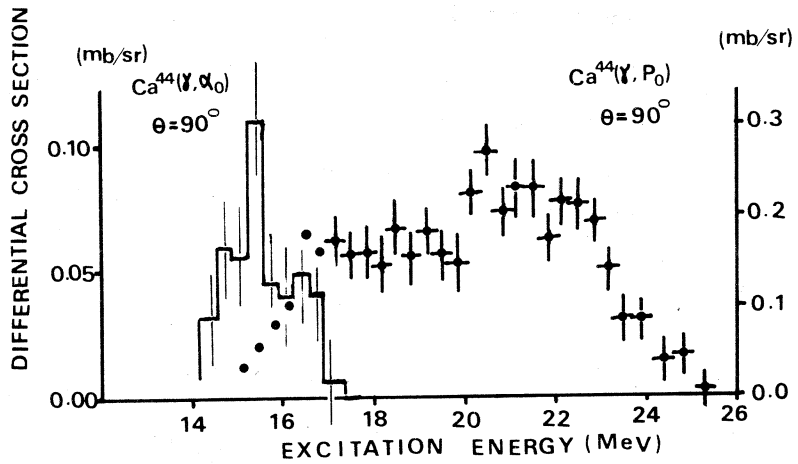
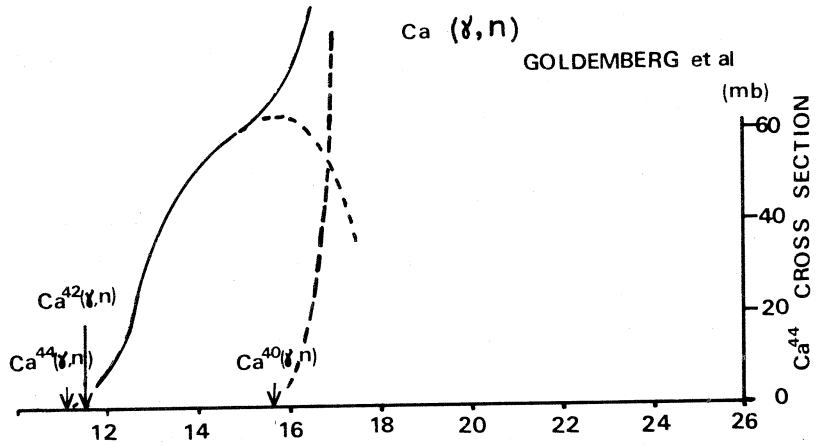
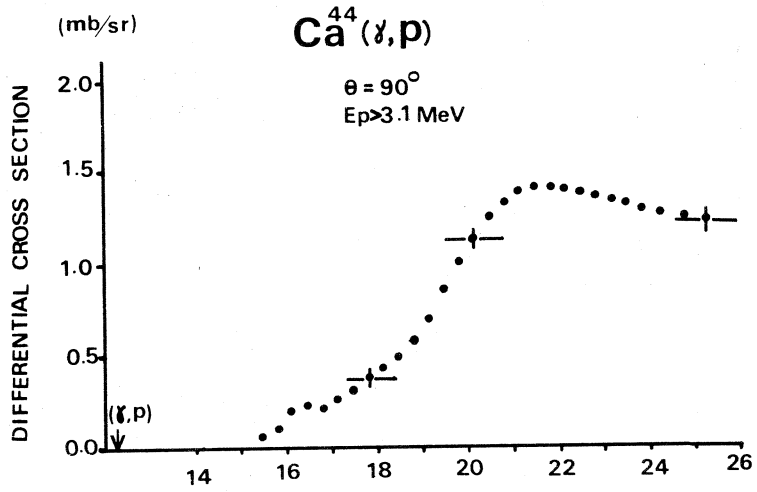
$E_e = 23 \text{ MeV}$





第2図

態からの粒子放出過程においては弱小チャンネル (penetrability が小さいという意味で。) は他のチャンネルとの競争過程により複合核形成の断面積の形から歪められる可能性がある事等により $T < G. D. R.$ の位置に関する正しい情報を得るのは困難の様に思われる。(r, p_0) 断面積は Ca^{44} , Sc^{45} , Ti^{46} の場合を総合すると (r, n), (r, p) 両方の断面積に対応する構造を持っており、この事は $T_>$, $T_<$ $G. D. R.$ の形に対する正しい information を与える事を示している。以下で Ca アイソトープ (Ca^{40} , Ca^{42} , Ca^{44}) の (r, p_0) 断面積の実験データを $G. D. R.$ の Isospin splitting の立場で考察する。 Ca^{40} と Ca^{42} に関しては (r, p_0) の実験データはないが逆反応 (p, r_0) の実験^{1), 3)} が Paul 等によって得られている。これを (r, p_0) に detailed balance の原理を用いて焼直したものと我々の得た Ca^{44} (r, p_0) 断面積は Ca アイソトープにおける (r, p_0) 断面積への excess neutron の効果を明確に示す。 Ca^{40} 及び Ca^{42} に関しては Paul 等によって 500 keV に smooth 化され、更に Ca^{42} に関して



は二つの Breit-Wigner 型によって fit されたのを第 4 図に示した。Ca⁴⁴ は実験データを二つの Lorentz 型によって best fit した。結果を第 1 表に示す。

第 1 表

T ₀	∫σ _{p0} (mb·MeV)	∫σ _{p0} /CDSR (%)	strength ratio upper/lower	upper		lower		ΔE	ΔE _t
				E _u	Γ _u	E _L	Γ _L		
Ca ⁴⁰ 0	77	13							
Ca ⁴² 1	52	8	6.7 ±	20.4	4.4	17.4	3.3	3.0	2.9
Ca ⁴⁴ 2	18 ± 3	3	1.3 ± 0.3	21.3	3.5	17.5	3.5	3.8	4.1

$$\text{CDSR} = 60 \cdot \frac{N \cdot Z}{A}$$

classical dipole sum rule に対する割合が neutron excess が増加するにつれて減っているのは neutron excess による symmetry energy の効果により S_p (proton separation energy) が増加し、一方 S_n は減少してくることによる。二つの Breit-Wigner 型によって fit した時の upper ピークと lower ピークとのエネルギー差 ΔE は T_>G, D, R. と T_<G, D, R. とのエネルギー差と考えられるが、これは Fallieros による表現⁴⁾において $\tilde{V} = 60$ MeV を用いた時の値 ΔE_t と実験精度の範囲で一致している。一方 upper ピークと lower ピークとの強度比は T_>G, D, R. (upper ピーク) への T_< 状態の isospin mixing の存在を考える事によって説明されるように思われる。以下これについて考える。Residual state はいずれの核も 1d_{3/2} hole state であるから、(r, p₀) に寄与している 1p-1h state は (2 p_{1/2}(p) 1d_{3/2}(h)) 及び (1 f_{5/2}(p) 1d_{3/2}(h)) であり、単一粒子転移強度 B_{sp} の大きさの比較から f 波放出が主であろうと思われる。T_>, T_<G, D, R. を経由した (r, p₀) 断面積の割合の理論的 estimation は下式のように行なった。T_>G, D, R. を経由した p₀ 放出の全断面積は分岐比を用いて次のように表わせる。

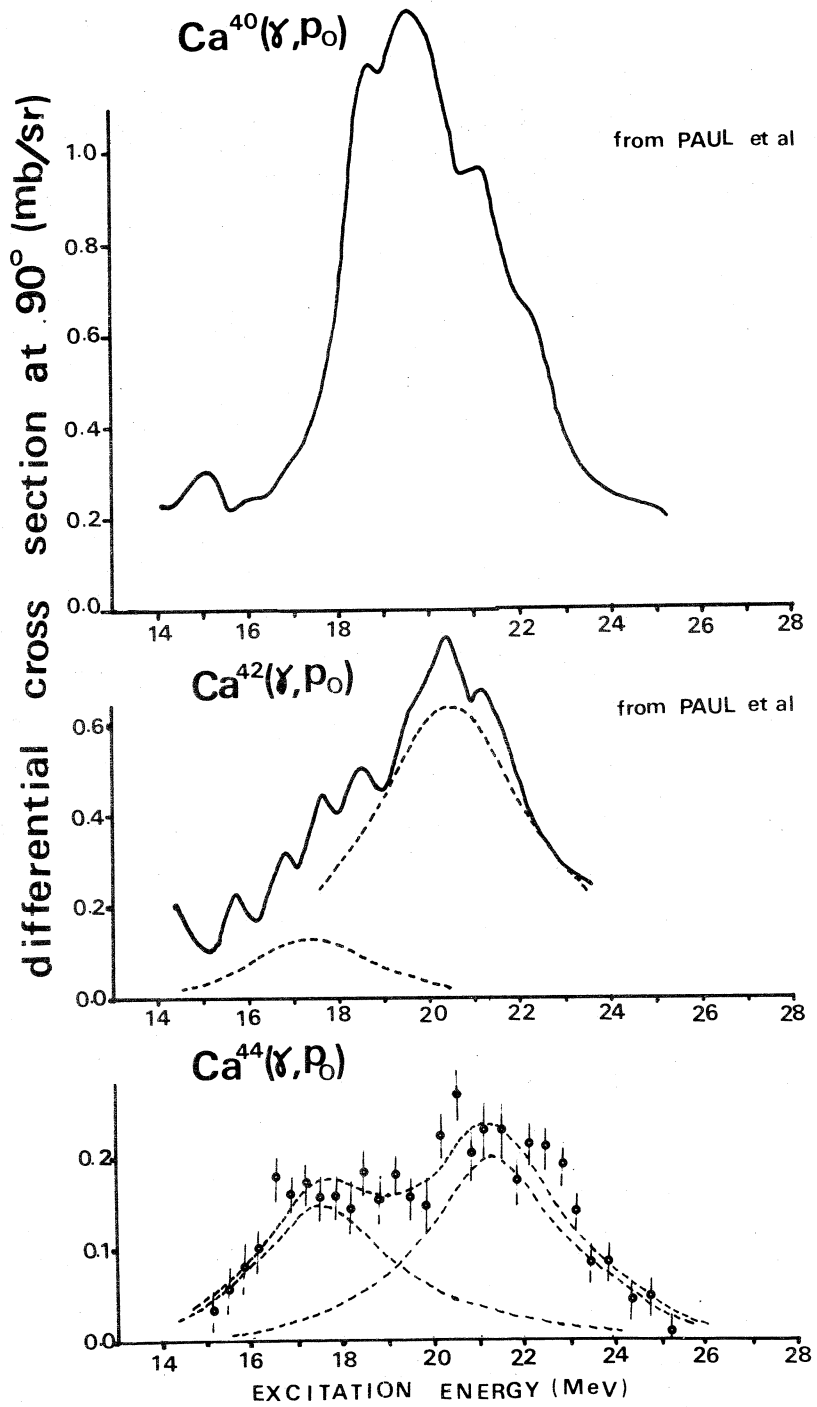
$$\int \sigma(r_>, p_0) = \sigma(r_>) \cdot \frac{\Gamma_{>p_0}}{\Gamma_{>}}$$

ここで σ(r_>) は T_> 成分の振巾 (C_>^{4), 6)} 及び T_>G, D, R. の位置 (E_>) を用いて

$$\sigma(r_>) \propto E_{>} \cdot |C_{>}|^2$$

と表わせる。Γ_{>p₀} は penetrability (P_{t>}) 及び換算巾 (|r_>|²) を用いて

$$\Gamma_{>p_0} = 2P_{t>} \cdot |r_>|^2 \cdot \frac{1}{2T_0 + 2} |1 + \alpha \sqrt{2T_0 + 1}|^2$$



と表わせる。ここで α は $T_>$ 状態への $T = T_0$ 状態のmixing amplitudeである。基底状態近辺にresidual stateを残す陽子放出は主にdirect及びsemidirect processによるだろうからこのような型のisospin mixingを考える事は妥当と思われる。Mixing amplitude (α) の大きさについては理論的estimationが未だ与えられていないけれども、 Ca^{40} のG. D. R. への $T = 0$ 状態のmixing amplitude⁵⁾ ($\alpha = 0.2 \pm 0.02$)は一つの目安になる。前述の諸式から結局

$$\frac{f^\sigma(r, p_0)}{f^\sigma(r, p_0)} = \frac{E_> \cdot |C_>|^2}{E_< \cdot |C_<|^2} \cdot \frac{\Gamma_<}{\Gamma_>} \cdot \frac{p_{l_>}}{p_{l_<}} \cdot \frac{1}{2T_0 + 1} \cdot |1 + \alpha \sqrt{2T_0 + 1}|^2$$

となる。ここで $|r_>|^2$ は $|r_<|^2$ と同じであるという仮定をした。これは $T_<$ 状態を形成しているのはほとんどanti analogue stateであると考え事に等しい。第1表に与えられた数値等を用いて $\frac{f^\sigma(r_>, p_0)}{f^\sigma(r_<, p_0)}$ に対する理論的estimationとして第2表を得る。

Isospin mixingの効果を含めた方が理論値はより実験値に近い事がわかる。

但しisospin mixing (α) のisospin依存性等の問題、更にはこのような形式のisospin mixingを取り入れる事の妥当性の問題は、今後実験的及び理論的に調らねばならない事と思われる。

(及川)

第2表

$$f^\sigma(r_>, p_0) / f^\sigma(r_<, p_0)$$

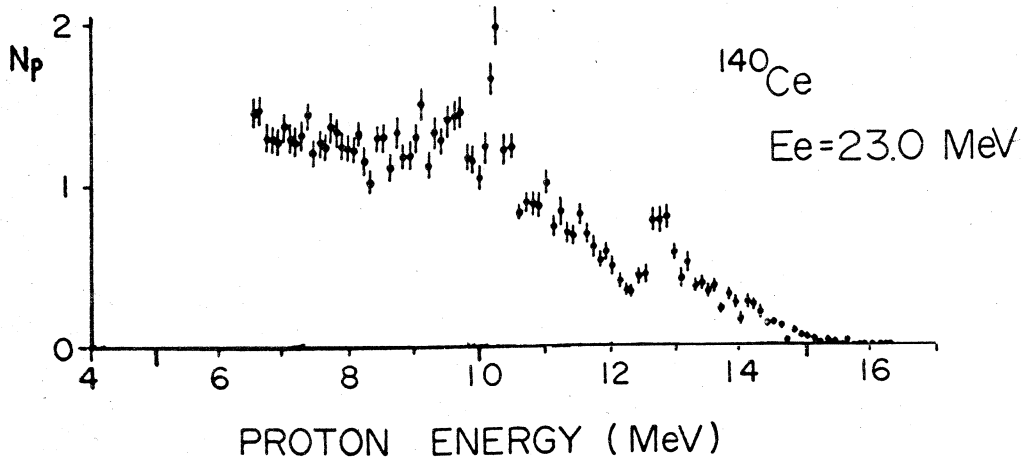
	実験値	理論値			
		$\alpha = 0$		$\alpha = 0.12$	
		p波	f波	p波	f波
Ca^{42}	6.7	0.6	1.3	0.9	1.9
Ca^{44}	1.3 ± 0.3	0.2	0.8	0.3	1.3

参 考 文 献

- 1) E. M. Diener, J. F. Amann and P. Paul : Phys. Rev. **C7** (1973) 695.
- 2) J. Goldemberg and L. Katz : Can. J. Phys. **32** (1953) 49.
- 3) E. M. Diener, J. F. Amann and P. Paul : Phys. Rev. **C7** (1973) 705.
- 4) Z. O. Akyuz and S. Fallieros : Phys. Rev. Letters **27** (1971) 1016.
- 5) C. P. Wu, F. W. K. Firk and T. W. Phillips : Nucl. Phys. **A 147** (1970) 19.
- 6) S. Fallieros and B. Goulard : Nucl. Phys. **A 147** (1970) 513.

$^{140}\text{Ce}(e, e'p)$ 反応

$N=82$ 核の $(e, e'p)$ 反応では、そのスペクトルに IAR からの強い proton group が見られるが、 ^{140}Ce に於いても同様に、第 1 図は入射電子エネルギーが 23 MeV の場合のスペクトルであるが、陽子エネルギー $E_p = 10.2$ 及び 12.7 MeV にピークが見られる。このような陽子スペクトルから予想される強い IAR と (r, p) 反応の全断面積との間にどのような関連があるかを調べることは興味のある問題で、今回は ^{140}Ce の (r, p) 反応の断面積を求める実験を行なった。



第 1 図

$^{140}\text{Ce}(e, e'p)$ 反応の陽子スペクトル。

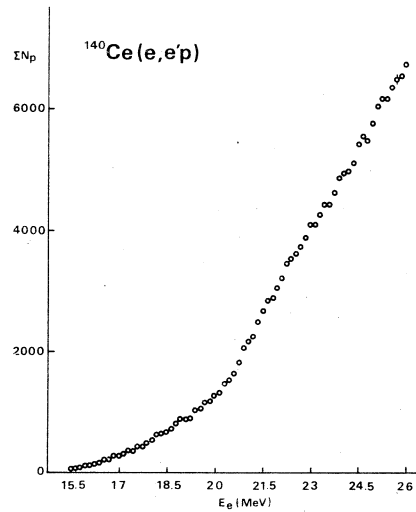
実験はターゲットとして natural cerium (^{140}Ce 88.48%) 厚さ 7.0 mg/cm^2 の self-support のターゲットを用いた。スペクトロメーターの 1 回の測定では、放出陽子の全エネルギー領域を被えないので、測定は proton decay の主部分 (E_p が 5.5 MeV ~ 13 MeV) と E_p が 13 MeV 以上及び 5.5 MeV 以下の三区分に分けて測定することにした。

今回は 5.5 MeV 以上の陽子の yield curve を測定した。第 2 図にその結果を示すが、これは各入射エネルギーに対して、第 1 図に示した様なスペクトルについて陽子の和をとったものである。入射エネルギーは 15.5 MeV から 26 MeV まで 150 keV 間隔で変えた。統計誤差は 16 MeV 位で 10%、25 MeV 位で 1.3% である。第 2 図の yield curve で、20.7 MeV 及び 24.5 MeV に break がみられ、この点で断面積にはピークを持つことが予想される。

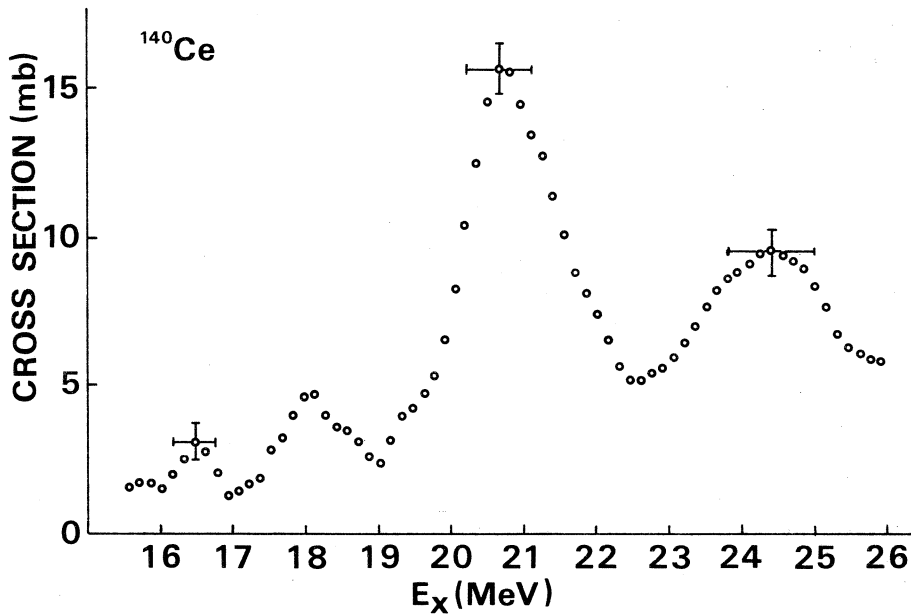
次にこの yield curve から、virtual photon のスペクトルを使って、Cook の least structure method¹⁾ で求めた (r, p) 反応の断面積を第 3 図に示す。図の中の十字の縦及び

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 18 MeV 及び 20.7 MeV の resonance は第 1 図のスペクトルに見られた二つの proton group に対応している。その他に 16.5 MeV と 24.5 MeV に resonance がある。24.5 MeV の resonance はエネルギーが高いことから E 1 IAR ではなく、E 2 resonance の可能性も考えられるが、今後角分布の測定等を行なって明らかにしたい。16.5 MeV の resonance は、今回の測定では E_p が 5.5 MeV 以下は含まれていないため、その yield を加えた時には、resonance の位置や絶対値がかなり変わる可能性がある。

Ce の (r, n) 反応の断面積については、Bergere の単色 r 線による実験²⁾もあり、今回の (r, p) 反応の断面積とから、Isospin Splitting に関連した議論もできるが、(r, p)



第 2 図
 $^{140}\text{Ce}(e, e'p)$ 反応の yield curve。



第 3 図
 $^{140}\text{Ce}(r, p)$ 反応の断面積

の断面積はまだ不十分であり、次回 5.5 MeV 以下の陽子の yield curve を測定し解析した上で、断面積に関する議論をするつもりである。(斎藤)

参 考 文 献

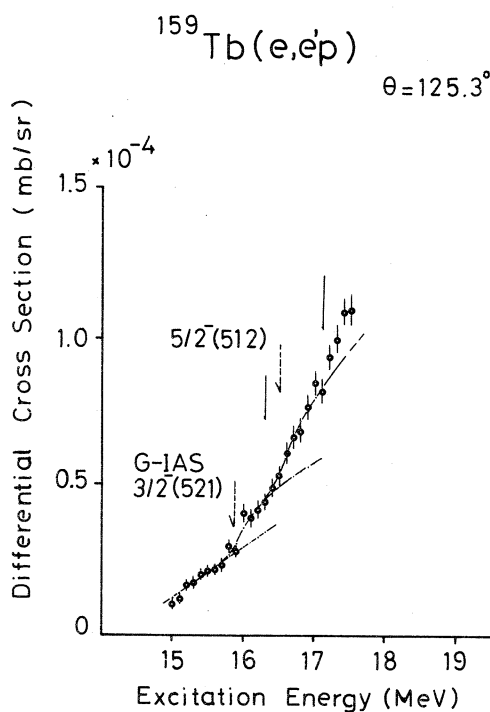
- 1) B. C. Cook : Nucl. Instr. and Meth. **24** (1963) 256.
- 2) H. Beil et al. : Nucl. Phys. A **172** (1971) 426.

変形核の Isobaric Analog State(V)

前回までの一連の実験から変形核の isobaric analog state (IAS)の励起エネルギーが理論より予想される値よりも小さい事が確認されたが(核理研報告Vol.4.No.2, Vol.5.No.1, Vol.5.No.2, Vol.6.No.2), 今回はさらに核種をふやしてこの事実の質量数(A)に関する systematics を調べた。

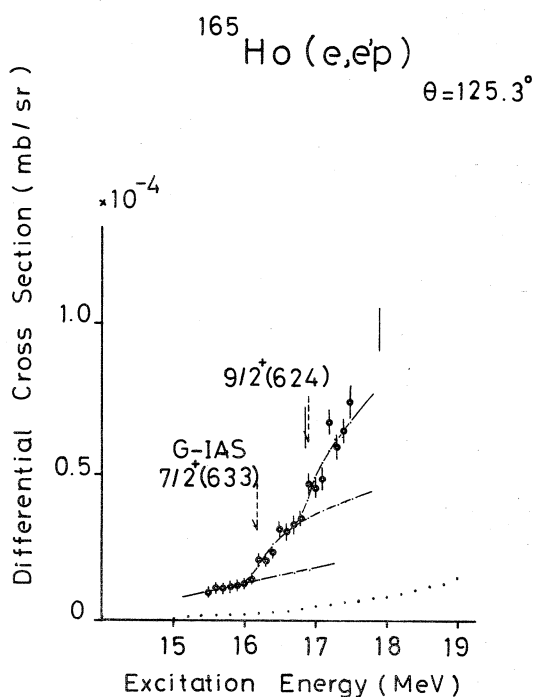
ターゲットは ^{159}Tb (99.9%), ^{165}Ho (99.9%) の self-supporting metal foil で圧延, アニール+圧延で製作した。厚さは ^{159}Tb 14.87 mg/cm², ^{165}Ho 11.64 mg/cm² である。

第1図, 第2図に得られた (e, e'p) yield curve を示す。



第1図

$^{159}\text{Tb}(e, e'p)$ yield curve.



第2図

$^{165}\text{Ho}(e, e'p)$ yield curve.

E 1 励起の spin-parity 選択則と (d, p), (n, γ) によるアナログ親状態の spin-assignment から ^{159}Tb の 1st break は基底 IAS の $3/2^-$ (521), 2nd break は 873 keV 励起状態の IAS $5/2^-$ (512) に対応し, ^{165}Ho の 1st break は基底 IAS の $7/2^+$ (633), 2nd break は ~ 1 MeV 励起状態であると言われている $9/2^+$ (624) に対応している。yield curve

より求めた IAS の励起エネルギーと理論値 (核理研報告 Vol. 5 No. 1 参照) とを比較すると, ^{159}Tb では ~ 500 keV, ^{165}Ho では ~ 650 keV 実験値が小さかった。この傾向は以前の ^{181}Ta の -900 keV, ^{175}Lu の -700 keV, ^{169}Tm の -500 keV と同じものである。今回の実験をもって変形原子核 $Z = 65, A = 159, Z = 67, A = 165, Z = 69, A = 169, Z = 71, A = 175, Z = 73, A = 181$ の systematic な研究が一応終了, 結果の discussion については次回に報告するつもりである。(鈴木)

I—8 BDM散乱槽内に設置された制動放射 γ 線発生装置

核理研 庄田勝房・菅原真澄
上柿順一・玉江忠明

昭和48年度科研費の配分を受けて、制動放射 γ 線発生装置をBDM(広帯域分析電磁石)散乱槽内に設置し、光核反応の測定を行なったので、その装置の概要、性能を紹介する。

§1 はじめに

これまで核理研では電子線を直接反応標的に照射し、電子線の非弾性散乱断面積を求め、仮想光子スペクトルを利用して光核反応断面積を求めてきた。この方法では、電子線の操作が電磁石、ステアリングコイル等で比較的容易に行なえるために、リニアックから取り出された電子線を効率よく利用することができ、データの集積能率に於いて格段の進歩を示し、微小断面積反応の測定が容易に行えるようになった。アイソバリック・アナログ状態を経由する(γ , p)反応の研究は、その成果の一つとしてあげられる。

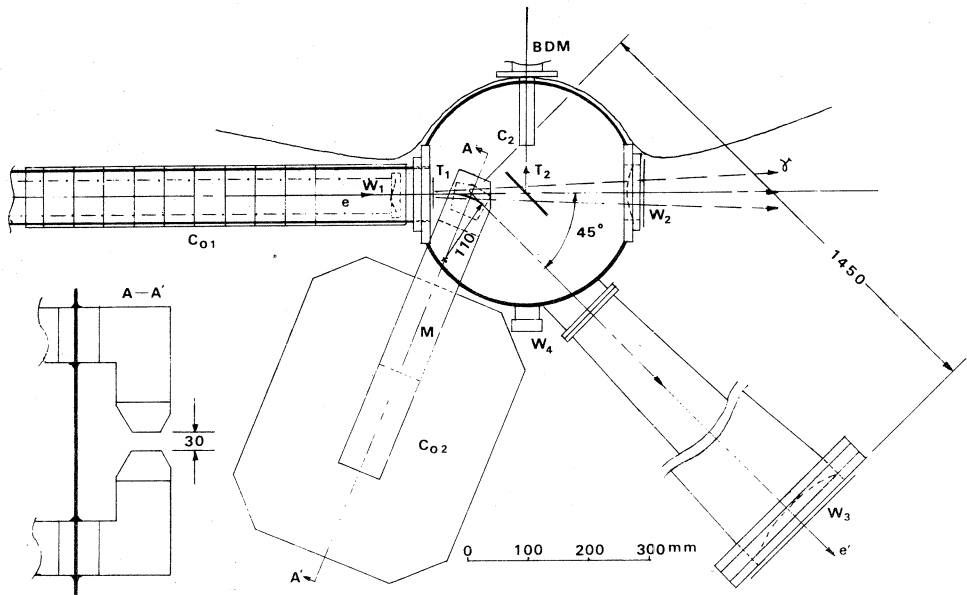
しかし一方では、データの蓄積に供ない、光核反応と非弾性電子散乱の差が問題になり、或いはこの差を積極的に利用しようという計画があり、制動放射 γ 線による実験も平行して行う事が考えられた。

又、実験技術の面からみても熱的に破損しやすい標的の場合は、発熱の少ない γ 線による実験が優利である。

このように、電子線と γ 線による実験が同じ装置(BDM)によって行うことができるようになれば、得るところが非常に大きい。

§2 制動放射発生装置

第1図に散乱槽附近の配置を示した。この二重ビームダクト内を進んできた電子線は薄窓 W_1 を通過して散乱槽に入り、散乱槽入口にある金の標的 T_1 によって制動放射 γ 線を発生し、スィープ電磁石Mに到達する。ここで 45° 曲げられてビームダクトの窓 W_3 を通過して空気中に放出される。標的 T_1 から発生した γ 線は核反应用標的 T_2 を通過して直進し、窓 W_2 から散乱槽外に出る。核反応標的から発生した陽子、 α 粒子等はコリメーター C_2 を通過して、BDMに入り、エネルギー分析される。スィープ電磁石は散乱槽外に励磁コイルがあり、第1図左下に示されるようにヨ



第1図

ークは散乱槽に熔接されている。場所の制限のため、ヨーク断面積、ポールピース面積に制限があり、現在の所、入射電子エネルギー 22 MeV 程度が限度であって、これ以上では 45° 方向に曲げきれない。又、コイルが外部にあるために漏洩磁束が割に多く、最初のテストで T_1 の位置で約 2 cm 水平方向にずれることがわかったので、それを補正するため、磁場補正コイル C_{01} を入射側ビームダクトに取り付けた。

T_1 の位置には制動放射 γ 線発生用の金の薄板の他にベリリア磁器薄板を置くことができ、 T_2 の位置に取り付けた鏡を通して BDM の後の窓から電子線の T_1 の場所での位置を知ることができる。標的 T_1 は、金、ベリリア、空穴（電子線を素通りさせるために使用）の 3 種類を縦に並べて同時に取り付け、散乱槽の外部からの操作によりそのどれか 1 つを選択することができるようになっている。

又、 T_2 の位置には裏面に ZnS を塗った鉛板（厚さ 2 mm）があり、その蛍光によって γ 線の位置を観測できるようになっている。この他に W_2 、 W_3 の位置にはやはり ZnS の蛍光板があり、 γ 線、電子線の位置を T.V. で見ながら補正コイル、電磁石の操作ができる。

§ 3 γ 線放射用標的（ラディエーター）及び γ 線の強度について

γ 線の強度及び線量は、現在のところ直接測定されるようにはなっていない。そこで補正コイ

ルの先のビームダクト内に設置された磁気コアモニターによって電子線の線量を測定し、間接的に算出する方法をとった。ラディエーターとしては白金及び金を使用した。発熱量が大きく、熱伝導率の大きい金の方が有用であることがわかった。

ラディエーターの厚さは発生する光子の数が、入射電子による仮想光子数とほぼ同じになるように計算して作製した。

P W B A の計算では $E_e = 20 \text{ MeV}$ の電子のもつ仮想光子の数は、 $E_\gamma = 15 \text{ MeV}$ の場合 $h\nu = 15 \text{ MeV}$ で

$$N = 4.8 \times 10^{-4} \text{ MeV}^{-1}$$

である。電子による制動放射断面積は白金標的の場合 $E_e = 20 \text{ MeV}$, $h\nu = 15 \text{ MeV}$ で

$$\frac{d\sigma}{dE} = 2.3 \times 10^{-24} \text{ cm}^2/\text{MeV}$$

である。従って仮想光子と同じ数の γ 線を得るには白金標的の厚さを 62 mg/cm^2 にすればよい。

そこで今回、 53 mg/cm^2 の白金をラディエーターに用い、反応標的 T_2 として ^{90}Zr を用いて、電子と γ 線によって ^{90}Zr から放出される陽子数を測定したところ、入射電子エネルギー $E_e = 20.8 \text{ MeV}$ において ^{90}Zr 1 mg/cm^2 , 電子線量 $1,000 \mu\text{Coulomb}$ 当り $6.2 \text{ MeV} \leq E_p \leq 15.2 \text{ MeV}$ の放出陽子数が

電子……………7 4.8 個

γ 線……………4 0.2 個

という結果が得られた。従って今回の実験精度ではほぼ計算通りの γ 線強度が得られたと考えられる。

しかし一方、 58 mg/cm^2 の金 ($Z=79$, $A=197$ で白金とほぼ同じ) をラディエーターとして、 ^{209}Bi の反応標的から放出される陽子数を同様にして測定したところ、 $E_e = 20.0 \text{ MeV}$ において ^{209}Bi 1 mg/cm^2 , 電子線量 $1,000 \mu\text{Coulomb}$ 当り $7.0 \text{ MeV} \leq E_p \leq 16.2 \text{ MeV}$ の放出陽子数が

電子……………4.0 2 個

γ 線……………1.0 6 個

という結果が得られた。この結果からは γ 線の強度が計算値と比べて非常に小さいと考えられ、又上の ^{90}Zr の場合の結果とも食い違がう。この点に関しては現在検討中である。

I—9 ^{238}U の光核分裂に伴う遅発中性子 スペクトル測定(II)

工学部原子核 岩崎 信・築 一正*・佐藤 修
佐野健一・萩原 実・梶山一典

(Abstract) Measurements on delayed neutron spectrum of the second group ($T_{1/2} = 22 \text{ sec}$) from photofission of ^{238}U have been performed using Time of Flight technique between beta particles and neutrons.

Experimental results showed fine structure in the neutron energy spectrum. The six peaks were observed in the spectrum; 200 keV, 240 keV, 280 keV, 380 keV, 540 keV and $\sim 750 \text{ keV}$. These were considered to correspond with the peaks reported by S. Shalev and J. Guttler except for the two peaks; 200 keV and 280 keV.

前回の preliminary な実験に引き続き, $^{238}\text{U}(\gamma, f)$ に伴う遅発中性子のエネルギースペクトルを TOF 法によって測定したので報告する。

§ 1 実 験

使用した測定法及び回路等の測定システム及び実験条件は, ほとんど前回⁽¹⁾と同様である。ここでは, 改良された点についてのみふれる。

前回の結果について, いくつかの問題点を指摘したが, その内

- イ) 中性子計数量が少ない事。
- ロ) エネルギー分解能が低い事。

の 2 点について改善を試みた。

イ)については, 測定回数を増やす方法を探った。実験は 2 回行ったが, 第 1 回目は 35 回, 第 2 回目は 66 回の測定回数を得, 後者の場合, 前回 (27 回) の場合の 2.5 倍で, 計数で約 3 倍近く向上した。

Shin Iwasaki, Kazumasa Yana, Shu Sato, Ken-ichi Sano, Makoto Hagiwara and Kazusuke Sugiyama

* 現在 日本 I B M (東京)

ロ) については、多少回路構成を変える事と、中性子検出器の厚さを薄くする事を行なった。すなわち、 β 線検出器用光電子増倍管からの fast timing signal の取り出し法を cross over 方式 (Fast Discriminator) から、constant fraction time pick off 方式 (ORTEC 270 pholomulbase) に換え、又中性子検出器 (NE 213 liquid scintillator) の厚さを 2.5 cm から 1.5 cm にした。この事によって、測定システムの時間分解能は、前回の 4 n sec から 3 n sec に向上した。

§ 2 結果と検討

2回の実験の結果得られた、中性子飛行時間スペクトルを、エネルギースペクトルに変換したものを Fig.1 に示す。

A が第 1 回目で、B が第 2 回目のものである。両者は、300 keV の点で規格化されている。図中の矢印は S. Shalev⁽²⁾ らが、高分解能 ^3He 検出器を用いて、 ^{238}U (n, f) に伴う、第 2 群の遅発中性子スペクトル測定を行なって、確認された。ピークのエネルギー値を示す。S. Shalev らの結果は、現在まで発表された実験結果のなかで、最も分解能が高く、信頼性のあるものである。

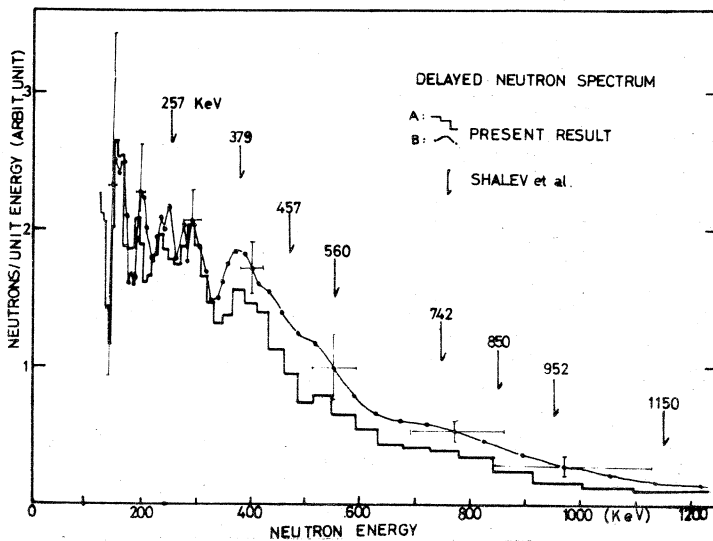


Fig. 1 Delayed neutron energy spectra of the 2nd group ($T_{1/2} = 22\text{sec}$) from photofission of ^{238}U obtained in the two series of experiment.

A : the first series of experiment

B : the second series of experiment

Fig.1 を見て次の3点が指摘できる。

1) 前回より時間分解能が向上し, fine structure がはっきりしてきた。

2) 2回の独立な実験結果を比較して再現性は良い。

3) S. Shalev らによって確認された peak に対応するものがはっきり存在する。

3)については, 257 keV, 379 keV, 560 keV のものがそれである。700 keV 以上については, 今回の結果も, 分解能が良くないが, 750 keV 付近が広く盛上っており, おそらく 742 keV 又は 850 keV に対応する peak であろう。

他に, 200 keV 及び, 280 keV の所に peak が確認される。

遅発中性子エネルギー分布について, 以前は, 連続スペクトルと考えられていたが, S. Shalev らによって始めて, はっきりとした fine structure が見出され, 注目された。この事が今回の実験でも確認された。

fine structure は, 先行核から, 中性子放出核の高い励起状態(中性子結合エネルギー以上)への β 遷移(主にGamov-Teller型許容転移)の過程, 及び, そこから娘核への中性子崩壊の過程で強い選択則が働いている事と同時に, 個々の level が, かなり sharp な巾をもっている事を示している。遅発中性子のエネルギースペクトルを, 精度よく測定し, 解析する事により, 原子核の高い励起状態の level 構造に関して, 新しい知見を得る事が期待できる。

この実験にあたって, 核理研 R I の八木助教授, 近藤助手には, 大変お世話を頂き, 深く感謝致します。マシンオペレーションに関して, マシングループの方々にも深く感謝致します。

参 考 文 献

- 1) 岩崎信, 若林利男, 築一正, 丸山仁嗣, 佐野健一, 梶山一典: 核理研研究報告 6 (1973) 64.
- 2) S. Shalev and J. Cuttler: Trans. Am. Nucl. Soc. 14 (1971) 373.

II. 物 性 物 理 部 門

II - 1 ThC_{0.76} の室温における中性子回折工学部原子核、選研* 小川 徹・松本 実*
本間敏夫*

1 緒 言

NaCl型fcc構造を有するトリウム-炭化物は、広い不定比組成幅をもち、室温ではほぼC/Th = 0.70 ~ 1.00の領域で存在する。佐藤¹⁾は、この不定比ThCの起電力(emf)を、W/Th, ThE₄/CaF₂/ThF₄, ThCx/W電池で測定し、830°Cにemfの温度依存性の異常のあることを見出した。この現象を説明するために、佐藤はThC_{0.75}組成付近での超格子の存在を仮定した。また、さらに、電気抵抗・熱膨張の温度変化を測って、この仮説を間接的に裏づけた。²⁾

佐藤の報告を踏まえて、LorenzelliとDieulvenlt³⁾は750°Cで150時間の規則化処理を施した、ThC_{0.74}N_{0.08}O_{0.012}のデバイ・シェラー法X線回折を行ない、極く弱いextra linesを観察した。観察されたextra linesは、すべて2倍格子の単純立方格子として指数づけできるが、それ以上詳しい構造の考察をするには、データとして充分ではない。

ThC_{0.75}組成の前後において、トリウム面心立方格子自体には何らの変化も見られないことから推して、もし超格子が存在するなら、その構成には、炭素原子(あるいは約25%の炭素空孔)のみが含まれているに違いない。そこで、回折強度への炭素の寄与が大きいという有利を見込んで、ThC_{0.76}粉末試料の中性子回折を行なった。中性子散乱振幅は、トリウムが $b_n = 1.01 \times 10^{-12}$ cm, 炭素が $b_n = 0.661 \times 10^{-12}$ cmである。

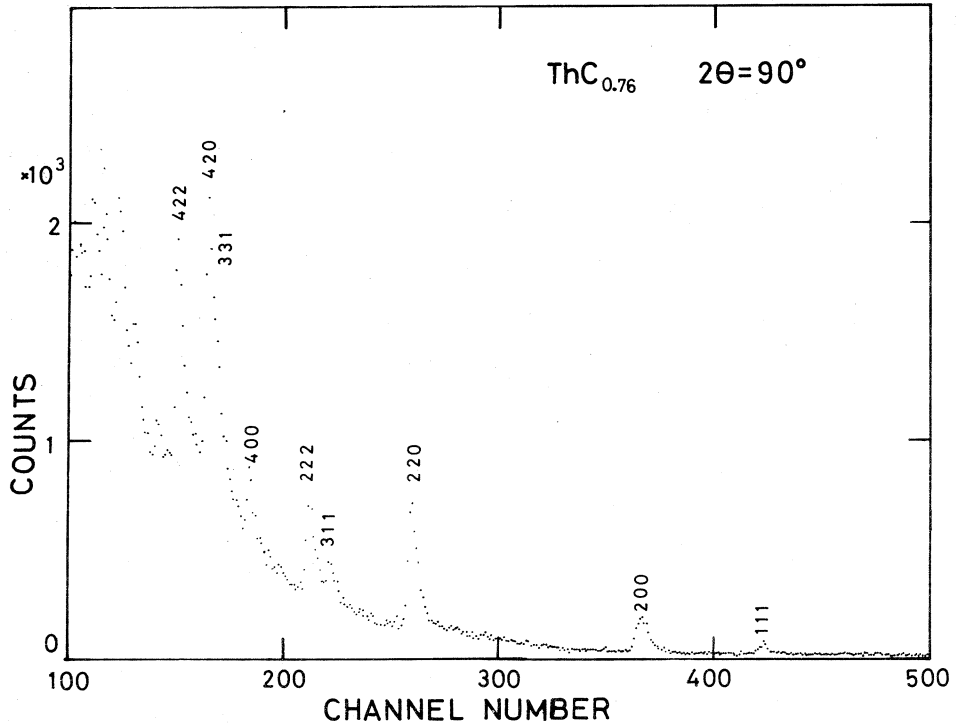
2 試料および方法

実験には、山形大学佐藤教授から提供を受けた試料を用いた。調製法については、文献(4)を参照されたい。トリウム炭化物の高い化学的活性のために、試料粉末は調製後直ちに、比熱測定用の石英ガラス・カプセル中に真空封入された。カプセルの寸法は、直径2 cm, 高さ3 cmである。測定は、このままの状態で行なわれた。

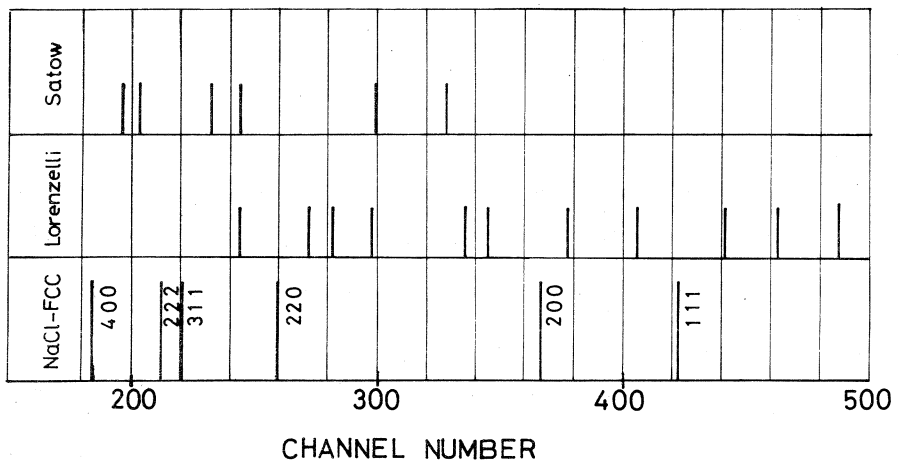
カウンターは、 $2\theta = 30^\circ$ 系および 90° 系を使用し、測定時間は約4時間30分であった。

3 結果と考察

第1図に $2\theta = 90^\circ$ での回折パターンを示す。また、第2図には、Lorenzelli ら³⁾の報告し



第1図 $\text{ThC}_{0.76}$ の中性子回折パターン。散乱角 $2\theta = 90^\circ$



第2図 予測される超格子線と、実測された基本格子線との回折位置の比較

ている extra lines, 佐藤¹⁾の仮定した Cu_3Au 型格子 (面心位置に炭素原子, 隅に炭素空孔) から導かれる extra lines の位置を, NaCl 型基本格子線と対比して示す。回折パターンには, いずれの extra lines も見出されなかった。しかし, 侵入型超格子では, extra lines が観察されない場合も, 基本格子線の積分強度に変化がある可能性がある。そこで, 第1表に, $i(\lambda)^4$ の補正をした観察値と, 原子比 0.76 の炭素原子の無秩序な分布を前提とした計算値とを比較した。(但し, 温度因子は, トリウム・メタル単体における $B = 0.5 \text{ \AA}^2$ を用いた。)粉末法中性子回折パターンからの積分強度の誤差の大きさを考慮するなら, 観察値と計算値との間に, 有意な程の差は存在しない。一つの目安として, $(\sum |I_{\text{obs}} - I_{\text{cal}}|) / \sum I_{\text{obs}}$ として R 因子を求めると, 約 9.1 % である。

第1表 観測相対積分強度と, 炭素原子の無秩序分布を前提とした計算相対積分強度との比較

hkl	I _{obs}	I _{cal}
111	6.3	7.6
200	38.8	50.1
220	100.0	100.0
311	28.2	22.6
222	71.8	66.4
400	46.8	49.7

以上, 今回の実験では, 超格子の存在は確認されなかった。次回は, 散乱角をより大きく設定した実験を行なって, より強い超格子線の期待される, 低波長側の回折パターンを得ることを計画している。

終わりに, 試料を提供して下さいました, 山形大学理学部佐藤経郎教授に深く感謝いたします。

文 献

- 1) T. Satow: J. Nucl. Materials **21** (1967) 255
- 2) T. Satow: J. Nucl. Materials **21** (1967) 263
- 3) R. Lovenzelli and I. De Dieuleveult: J. Nucl. Materials **29** (1969) 349
- 4) T. Satow: J. Nucl. Materials **21** (1967) 249

II-2 Correlation Functions in Liquid Bromine and Carbon Tetrachloride by T-O-F Neutron Diffraction

(金研) 三沢正勝*, 鈴木謙爾**

1 Introduction

The knowledge of the structure factor over a wide momentum transfer range is indispensable to understand characteristic behaviours of the structure in a variety of liquids. In the case of molecular liquids, structure factor in low momentum transfer region throws light on the orientational correlations between molecules which have been demonstrated by Egelstaff, Page and Powles(1), while high momentum transfer structure factor directly gives us a single molecular form factor in the liquid state. In this work, the high momentum transfer structure factors of liquid bromine and carbon tetrachloride were measured by means of T-O-F neutron diffraction and the molecular distribution in liquid bromine was discussed in terms of the orientational correlation functions defined by Egelstaff et al.(1).

2 Experimental

All the measurements of structure factors were made using the L. \gg L T-O-F neutron diffractometer which was constructed

M.Misawa* and K.Suzuki**
The Research Institute for Iron, Steel and Other Metals, Tohoku
University,
Sendai 980, Japan

at the 300 MeV Tohoku University electron linear accelerator for the purpose of studying liquid structures(2).

Liquid samples were sealed into a silica tube with 0.30 mm thick wall and 10 mm inner diameter. The accelerator was operated at electron acceleration energy of 250 MeV with peak beam current of 60 mA and at pulse duration of 3 μ sec with pulse repetition frequency of 100 pps. Incoherent scattering from vanadium as a standard sample was used to convert the observed intensity into the absolute one. The detailed procedure of the correction for absorption, multiple scattering, incoherent scattering, background, silica tube vessel and so on has been given in the previous papers(2,3) as well as the discussion of resolution and performance of this T-O-F neutron diffractometer.

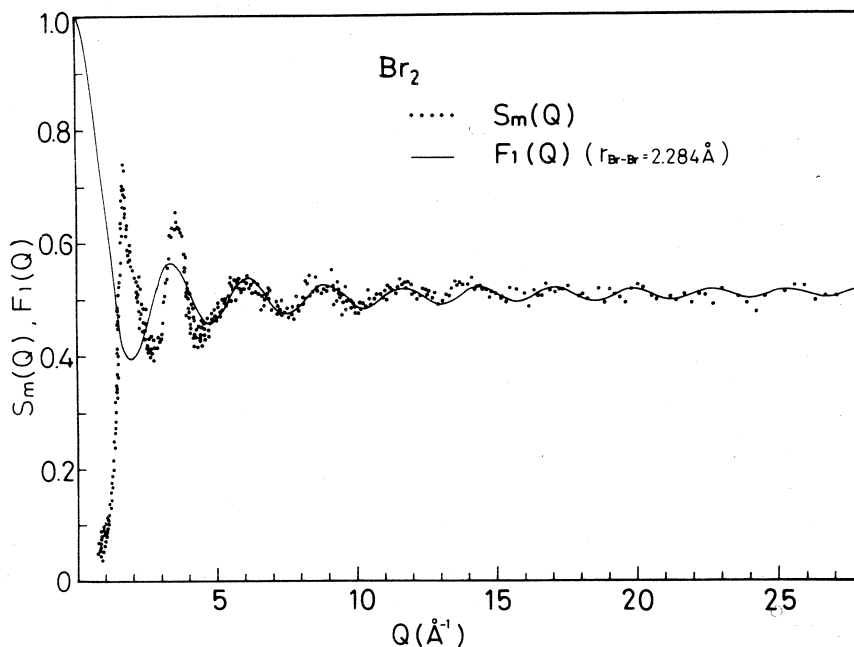


Fig. 1 Structure factor $S_m(Q)$ observed in liquid bromine and a single bromine molecule form factor $F_1(Q)$ calculated in the gaseous state.

3 High momentum transfer structure factor

The observed structure factors $S_m(Q)$ covered up to $Q=30 \text{ \AA}^{-1}$ are shown in Fig. 1 for liquid bromine and Fig. 2 for liquid carbon tetrachloride.

The structure factor for molecular liquids determined by neutron diffraction may be written as

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

where $F_1(Q)$ is a single molecular form factor, $F_2(Q)$ is the form factor related to the orientational correlation between molecules and $S_c(Q)$ is the molecular centres correlation function, if we assume that positions and orientations of molecules are uncorrelated(1). Therefore, in high Q region we have the relation

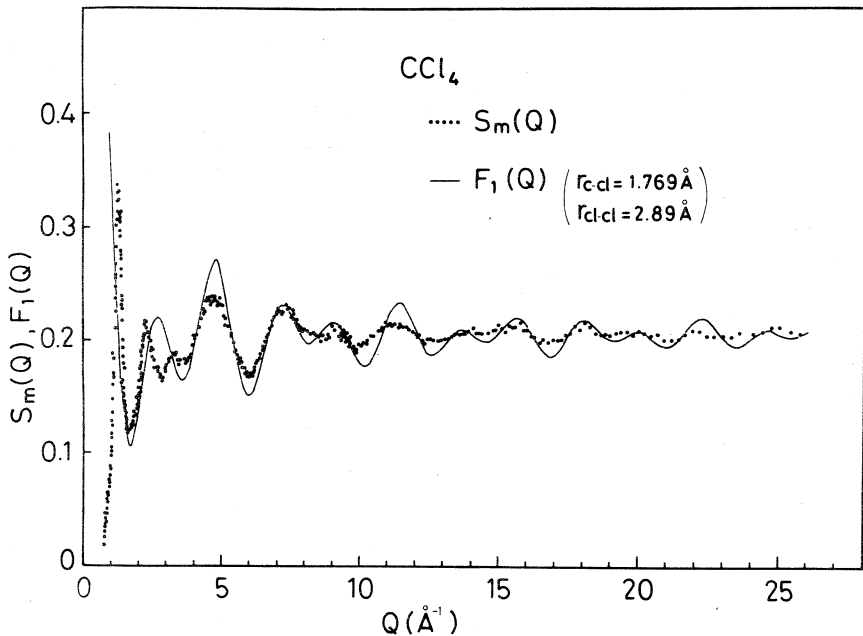


Fig. 2 Observed molecular structure factor $S_m(Q)$ for liquid carbon tetrachloride and calculated single molecular form factor $F_1(Q)$ in the gaseous state.

$$\lim_{Q \rightarrow \infty} S_m(Q) = F_1(Q), \quad (2)$$

because $S_c(Q)$ asymptotically becomes unity.

The solid line in Figs. 1 and 2 shows the calculated form factor $F_1(Q)$ for a single molecule in the gaseous state, which is the function

$$F_1(Q) = \frac{1}{2} \left(1 + \frac{\sin Q r_{\text{Br-Br}}}{Q r_{\text{Br-Br}}} \right) \quad (3)$$

for a bromine molecule and

$$F_1(Q) = \left(b_c + 4b_{\text{Cl}} \right)^{-2} \left(b_c^2 + 4b_{\text{Cl}}^2 + 8b_c b_{\text{Cl}} \frac{\sin Q r_{\text{c-cl}}}{Q r_{\text{c-cl}}} + 12b_{\text{Cl}}^2 \frac{\sin Q r_{\text{Cl-cl}}}{Q r_{\text{Cl-cl}}} \right) \quad (4)$$

for a carbon tetrachloride molecule, where $r_{\text{A-B}}$ means the inter-nuclear distance between the nucleus A and B in a molecule and b_A is the isotopic average scattering length of nucleus A.

In the range of high momentum transfer the agreement between solid line and observed data is reasonably good in Figs. 1 and 2. Hence, it may be concluded that the size of a single molecule of bromine and carbon tetrachloride in the liquid state is close to that in the gaseous state(4).

4 Molecular orientational correlation in liquid bromine

The existence of strong correlations between molecular orientations in molecular liquids can be well recognized by the analysis of low momentum transfer structure factors.

The orientational correlation functions $F_2(Q)$ in eq. (1) for liquid bromine are written as

$$F_{2u}(Q) = \left\{ \frac{\sin Q(r_{\text{Br}-\text{Br}}/2)}{Q(r_{\text{Br}-\text{Br}}/2)} \right\}^2 \quad (5)$$

for an uncorrelated case,

$$F_{2\perp}(Q) = \frac{\sin Q(r_{\text{Br}-\text{Br}}/\sqrt{2})}{Q(r_{\text{Br}-\text{Br}}/\sqrt{2})} \quad (6)$$

for a perpendicular(T) configuration and

$$F_{2\parallel}(Q) = F_1(Q) \quad (7)$$

for a parallel configuration. These three $F_2(Q)$'s are depicted in the bottom of Fig. 3, respectively.

As pointed out by Suzuki and Egelstaff(5) for CS_2 and CSe_2 linear molecules, we may assume that the centres correlation function $S_c(Q)$ for Br_2 molecules is also close to that for spherical Ar molecules in the liquid state. Therefore, we accepted the hard sphere structure factor solved from Percus-Yevick equation as an input datum for $S_c(Q)$ in eq. (1) and calculated $S_m(Q)$ using equations (5) to (7) for $F_2(Q)$ in accordance with the three models described above. The results are shown in the top of Fig. 3.

Although the molecular quadrupole interaction prefers the T configuration, the results of Fig. 3 shows that the parallel configuration is more probable and further investigation for more sophisticated configurations is necessary to understand the

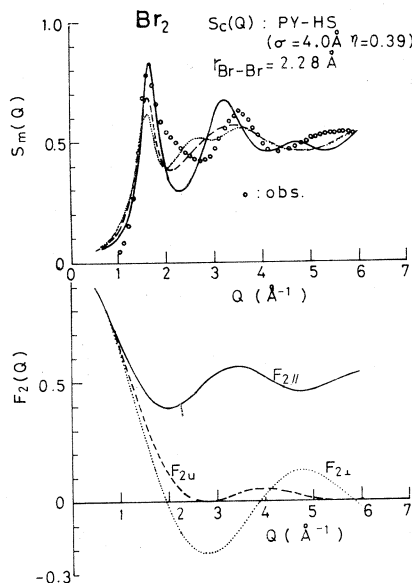


Fig. 3 Orientational correlation functions $F_2(Q)$ calculated from the three models in liquid bromine.

total behaviours of orientational correlation between Br₂ molecules.

References

- (1) P. A. Egelstaff, D. I. Page and J. G. Powles: *Molecular phys.*, **20**, (1971) 881.
- (2) M. Misawa, K. Kai, K. Suzuki and S. Takeuchi: *Res. Reports Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ.*, **5(2)**, (1972) 73.
- (3) M. Misawa, Y. Fukushima, K. Suzuki and S. Takeuchi: *Res. Reports Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ.*, **6(1)**, (1973) 88.
- (4) M. Misawa, Y. Fukushima, K. Suzuki and S. Takeuchi: *Phys. Letters A*, **45A**, (1973) 273.
- (5) K. Suzuki and P. A. Egelstaff: to be published.

II-3 分子性液体の配向相関

核理研 新村 信雄

§1 序

分子性液体による中性子散乱データの解釈での困難さは、散乱体が多く、スペクトルが複雑になることである。しかし分子の形がある程度わかっているものであれば散乱現象を分子内の原子間の干渉効果によるものと、分子間の原子間の干渉効果によるものとに分割して考えることができる。¹⁻³⁾ Egelstaf ら^{1,3)} は分子中心間の距離と分子の配向が独立であるという仮定で、 CCl_4 、 GeBr_4 分子性液体の取扱いを行っている。Gubbin らは²⁾ 分子間の配向相関を分子間に働らく各種の力を考慮して求めているが、計算は複雑であり、各種のパラメーターの選択には任意性がある。

著者は液体中での分子の配向を結晶構造を参考に求め、実測値と比較して再び更に真の値に近い分子配向を求める方法を検討した。この方法を分子性液体の Br_2 に応用してみた。

§2 配向相関の導入

試料による中性子の散乱断面積は干渉性及び非干渉性散乱断面積の和として次のように表わされる。

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \sum_i \sum_j \sum_{\alpha} \sum_{\beta} b_i b_j \exp(i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_{i\alpha j\beta}) > \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{inc} + \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{coh}, \quad (1)$$

ここで i と j は全分子 N_m 個についての和で、 α 、 β は一つの分子中の全部の原子についての和である。 $b_{i\alpha}$ は i 分子の α 原子の散乱長、 $\mathbf{r}_{i\alpha j\beta} = \mathbf{r}_{i\alpha} - \mathbf{r}_{j\beta}$ は i 分子の α 原子から j 分子の β 原子へのベクトルを意味する。

分子性液体の構造因子 $S_m(\mathbf{Q})$ は(1)式の干渉性散乱断面積に関係し、次のように表わされる。

$$S_m(\mathbf{Q}) = \frac{1}{N_m (\sum b_{\alpha})^2} \cdot \sum_{ij} \sum_{\alpha} \sum_{\beta} b_{\alpha} b_{\beta} \langle \exp(i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_{i j}) \rangle, \quad (2)$$

ここで $\mathbf{r}_{i j}$ を次のように書き替える。

$$\mathbf{r}_{i j} = \mathbf{R}_{ij} + (\mathbf{r}_{ci} - \mathbf{r}_{cj}), \quad (3)$$

ここで $\mathbf{R}_{ij} = \mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j$ で分子中心間の距離を、 $\mathbf{r}_{ci\alpha}$ は分子 i の中心からその分子内の原子 α

までの距離を表わす。(3)式を(2)式に代入すると、 $S_m(Q)$ は次のようになる。

$$S_m(Q) = S_{intra}(Q) + S_{inter}(Q), \quad (4)$$

ここで

$$S_{intra}(Q) = \frac{1}{(\sum_{\alpha} b_{\alpha})^2} \sum_{\alpha} \sum_{\beta} b_{\alpha} b_{\beta} \langle \exp [iQ \cdot (r_{ci\alpha} - r_{ci\beta})] \rangle, \quad (5)$$

$$S_{inter}(Q) = \frac{1}{N_m (\sum_{\alpha} b_{\alpha})^2} \sum_{i \neq j} \sum_{\alpha} \sum_{\beta} b_{\alpha} b_{\beta} \langle \exp(iQ \cdot R_{ij}) \cdot \exp [iQ \cdot (r_{ci\alpha} - r_{cj\beta})] \rangle \quad (6)$$

である。 $S_{intra}(Q)$ は分子を剛体として近似すると分子構造が判明しておれば計算可能で $F_1(Q)$ とおき、分子自身の構造因子と呼ばれる。一方、 $S_{inter}(Q)$ は液体中での分子の配向を取り入れた液体構造が判明して始めて計算可能な量であり、一般にはこの項を求めることが、分子性液体構造解析の目的の一つになる。

§3 分子配向の模型

(6)式を計算するに当り分子配向の相関関係にある仮定をおくと(6)式が簡単化される。

i) 液体中での分子の配向方向が一方向に限られている時は、ある分子から周囲をみまわすところの分子も皆同一の配向関係になっており、分子配向と、分子間距離が独立になり、(6)式は次のようになる。

$$\begin{aligned} S_{inter}(Q) &= \frac{1}{N_m (\sum_{\alpha} b_{\alpha})^2} \sum_{i \neq j} \sum_{\alpha} \sum_{\beta} \langle \exp(iQ \cdot R_{ij}) \rangle \cdot \langle \exp [iQ \cdot (r_{ci\alpha} - r_{cj\beta})] \rangle \\ &= \frac{1}{N_m \sum_{i \neq j} \langle \exp(iQ \cdot R_{ij}) \rangle} \cdot \frac{1}{(\sum_{\alpha} b_{\alpha})^2} \sum_{\alpha} \sum_{\beta} b_{\alpha} b_{\beta} \langle \exp [iQ \cdot (r_{ci\alpha} - r_{cj\beta})] \rangle, \end{aligned} \quad (7)$$

後半の α , β の和の項は $F_1(Q)$ に等しい。又、前半は Debye, Menke らにより分子中心の存在の確率関係 $g_c(R)$ を導入して計算されており

$$\frac{1}{N_m \sum_{i \neq j} \langle \exp(iQ \cdot R_{ij}) \rangle} = S_c(Q) - 1 \quad (8)$$

となる。^{4), 5)}

ここで $S_c(Q)$ は

$$S_c(Q) = \int g_c(R) \exp(iQ \cdot R) dR, \quad (9)$$

である。

以上より $S_m(Q)$ は

$$S_m(Q) = F_1(Q) + F_1(Q) \{ S_c(Q) - 1 \} \quad (10)$$

となる。

ii) 液体中での分子の配向方向が二種類以上ある時は、同一種類の配向関係にあるもの同志をまとめると、同一種類の配向をしている分子集団については、i)と同様に分子配向と分子間距離が独立になり(6)式は次のようになる。

$$S_{inter}(Q) = \frac{1}{N_m (\sum_{\alpha} b_{\alpha})^2} \left\{ \sum_{i_1 \neq j_1} \sum_{\alpha\beta} \langle \exp(iQ \cdot R_{i_1 j_1}) \rangle \cdot \langle \exp iQ \cdot (r_{c i_1 \alpha} - r_{c j_1 \beta}) \rangle \right. \\ \left. + \sum_{i_2 \neq j_2} \sum_{\alpha\beta} \langle \exp(iQ \cdot R_{i_2 j_2}) \rangle \cdot \langle \exp iQ \cdot (r_{c i_2 \alpha} - r_{c j_2 \beta}) \rangle \right. \\ \left. + \dots \dots \dots \right\}, \quad (11)$$

今液体状態を考えると、個々の分子は複雑に熱運動等を行っているが、時間、空間平均をとって考えると、分子中心間の距離は余り変化していない。そこで $\langle \exp(iQ \cdot R_{ij}) \rangle$ の項はまとめられ、(11)式は

$$S_{inter}(Q) = \{ S_c(Q) - 1 \} \cdot \sum_{(m)} \sum_{i \neq j} \sum_{\alpha\beta} W^{(m)} \langle \exp iQ \cdot (r_{c i \alpha}^{(m)} - r_{c j \beta}^{(m)}) \rangle, \quad (12)$$

となる。ここで添字(m)は(m)という種類の配向関係を意味する。 $W^{(m)}$ は分子中で(m)の配向関係をとる割合である。

$$F_{2c}(Q) = \sum_{(m)} \sum_{i \neq j} \sum_{\alpha\beta} W^{(m)} \langle \exp iQ \cdot (r_{c i \alpha}^{(m)} - r_{c j \beta}^{(m)}) \rangle, \quad (13)$$

とおき、 $F_{2c}(Q)$ を分子配向相関による構造因子と呼ぶ。

以上より $S_m(Q)$ は

$$S_m(Q) = F_1(Q) + F_{2c}(Q) \{ S_c(Q) - 1 \}, \quad (14)$$

と求まる。

§ 4 擬結晶構造模型

結晶構造の3次元的周期性を持つ対称性を表現する空間群は、いわゆる点群に並進対称性を加えて出来あがったものだが、今分子性液体で(13)式の配向相関の構造因子を計算する時はこの点群を利用する。点群は分子の配向関係を規定しており、その点群の各元素の対称操作により得られる配向関係は事実結晶中で実現しており、これは分子間に働らく種々のポテンシャルの最安定状態である。このポテンシャルは液体状態になっても若干の変化はあるにせよ固体状態に似たものであろうから、液体状態での分子の配向の第1近似として上の方法は適当である。

(13) 式中の $W^{(m)}$ は結晶中で実現している (m) 種の配向関係の分子中心間距離 $R_c^{(m)}$ とその分子数から求める。分子性液体中で分子間相互作用として最重要なのは、いわゆる Van der Waals力であるので、

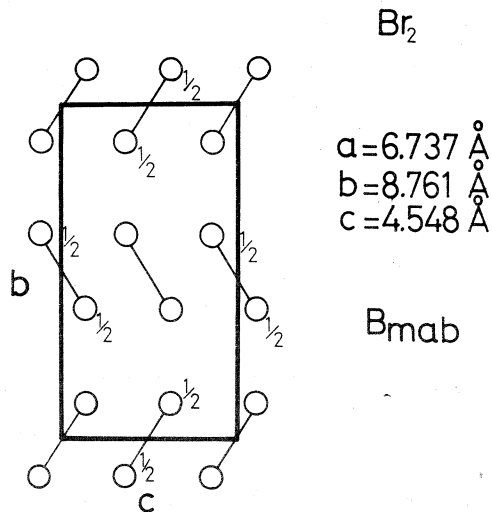
$$W^{(m)} = \sum_{(m)} N^{(m)} \{ R_c^{(m)} \}^{-6}, \quad (15)$$

として求める。ここで $N^{(m)}$ は (m) 種の配向関係にある数である。

§5 液体臭素の構造

いままで一般的に分子性液体の取扱いを述べてきたが、これを液体臭素に適用してみる。臭素の結晶構造を第1図に示す。⁹⁾ 空間群は

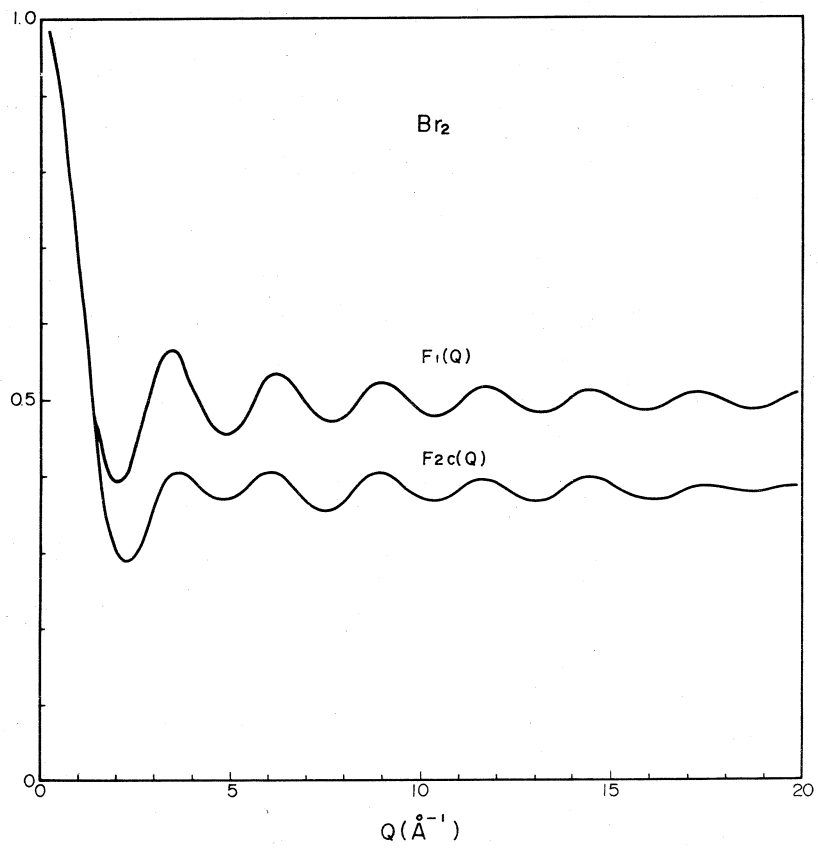
B_{mab} で分子自身が高い対称性を有するので結晶中で実現している分子配向は平行とほぼ直角 ($79^\circ 10'$) の二種類である。各々の配向について (13) 式の $\langle \exp i\mathbf{Q} \cdot (\mathbf{r}_{ci\alpha}^{(m)} - \mathbf{r}_{cj\beta}^{(m)}) \rangle$ を計算した。次に $W^{(m)}$ については各々の配向関係にある分子の中心の距離を求め (15) 式で $N^{(m)}$ は $R_c^{(m)}$ が 10 \AA 以下の球内にあるものまで和をとった。このようにして求めた $F_2c(Q)$ を $F_1(Q)$ と共に第2図に示しておく。



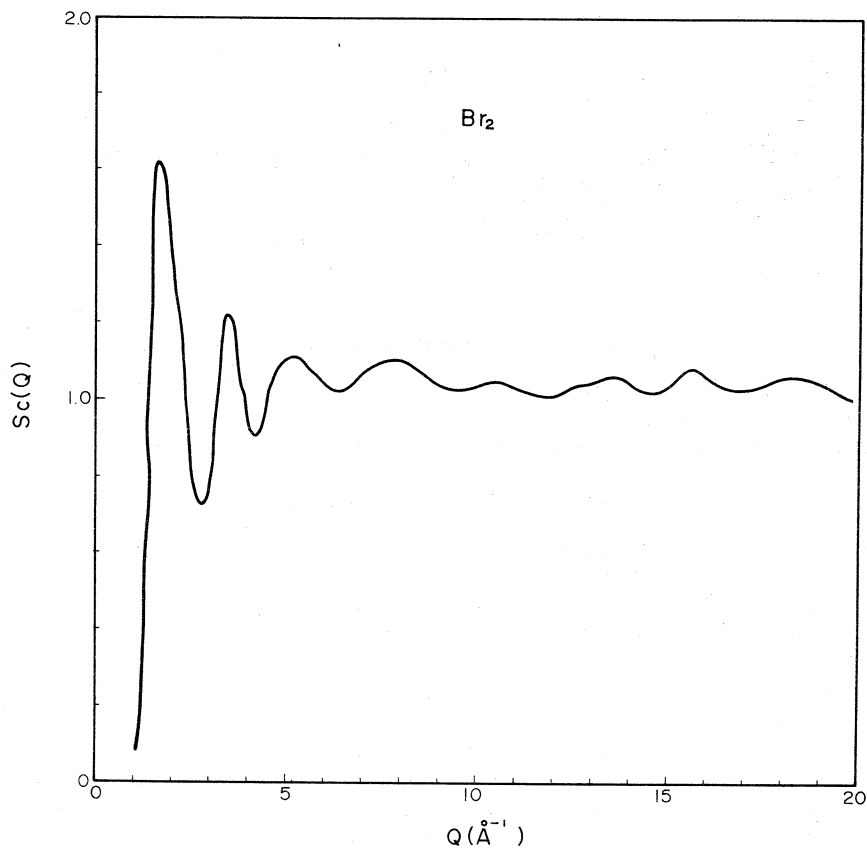
第1図 臭素の結晶構造

液体臭素の構造因子は Misawa らにより測定されており⁷⁾ それを用い、(14)式により $S_c(Q)$ を求めた。第3図に $S_c(Q)$ を示す。

このモデルの検討をしてみると、まず $S_c(Q)$ をフーリエ変換すると分子中心の存在確率 $G_c(R)$ が得られる。それを第4図に示す。

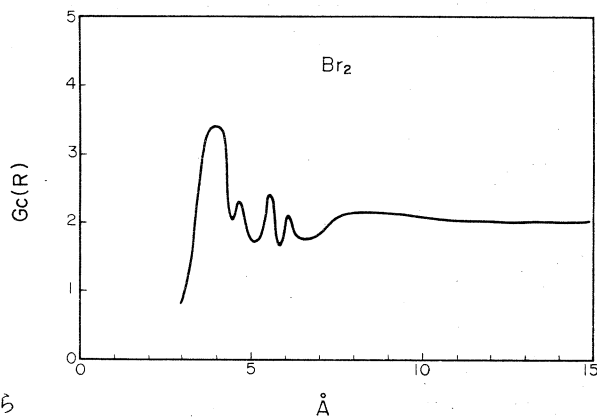


第2図 液体臭素の $F_1(Q)$ 及び $F_{2c}(Q)$

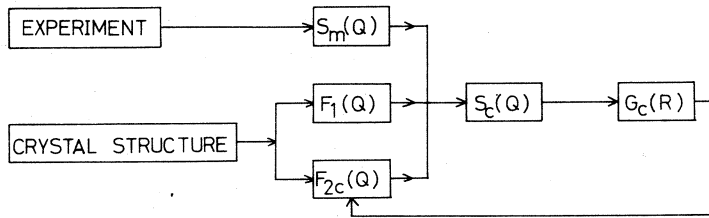
第3図 液体臭素の $S_c(Q)$

$R \simeq 4.0 \text{ \AA}, 4.7 \text{ \AA}, 5.6 \text{ \AA},$
 6.2 \AA に山があらわれ、ほぼ分子の
 パッキング等をうまく説明
 できる構造をしていることがわ
 かる。尚結晶中で実現している
 中心間距離は $4.06 \text{ \AA}, 4.55 \text{ \AA}$
 $4.94 \text{ \AA}, 5.54 \text{ \AA}, 6.74 \text{ \AA} \dots$
 ……である。

この $G_c(R)$ を参考にして(13式から
 $F_{2c}(Q)$ を再び計算し $S_c(Q)$ を求めると

第4図 液体臭素の $G_c(R)$

いうようくり返すことにより真の液体構造が得られる。この関係を第5図に示す。



第5図 分子性液体の構造解析方法の流れ図

将来この方法をいろいろな分子性液体に応用して更により良い方法を確立すると共に複雑な構造の分子性液体への応用の限界等を調べていくつもりである。

種々御教示いただきました鈴木謙爾、三沢正勝、福嶋喜章各氏に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) P. A. Egelstaff, D. I. Page, J. G. Powles : Molecular Phys. **20** (1971) 881.
- 2) J. G. Powles : Advances in Phys. **22** (1973) 1.
- 3) K. E. Gubbins, C. G. Gray, P. A. Egelstaff, M. S. Ananth : Molecular Phys. **25** (1973) 1353.
- 4) P. Debye, H. Menke : Phys. Z. **31** (1930) 797.
- 5) P. Debye, H. Menke : Ergebnisse der technischen Röntgenkunde Bd. II (1931) 1.
- 6) B. Vonnegut, B. E. Warren : J. Amer. Chem. Soc. **58** (1936) 2459.
- 7) M. Misawa, Y. Fukushima, K. Suzuki, S. Takeuchi : Phys. Letters **45 A** (1973) 273.

II-4 T-O-F Neutron Diffraction of Liquid Gallium and Rubidium

(金研) 福嶋喜章*, 三沢正勝**, 鈴木謙爾***

1 Introduction

The T-O-F neutron diffraction based on the electron linear accelerator as a pulse neutron source is known to provide a detailed information on the structure factor in high momentum transfer region. The high momentum transfer factor of liquid metals is necessary not only to perform an accurate Fourier transformation into the pair correlation function but also to identify a compound-like atomic association in liquid alloys(1) and derive the steepness of repulsive core in the pair potential of liquid metals(2).

Based on such a point of view, T-O-F neutron diffraction measurements were carried out on the liquid state of metallic gallium and rubidium at several temperatures.

2 Experimental

The $L_0 \gg L$ T-O-F neutron diffractometer(3) for liquids was used to measure the static structure factors for liquid gallium 40, 455 and 920 °C, and for rubidium at 55 and 370 °C. Liquid sample was sealed in vacua in a silica tube with 0.30 mm thick wall and 10 mm inner diameter. The electric furnace to heat a

Y. Fukushima*, M. Misawa** and K. Suzuki***

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

sample was particularly designed, as shown in Fig. 1, for heating elements not to be located in the way of neutron beams. The operating conditions of the 300 MeV electron linear accelerator and the method for data analysis are entirely same with those described in the previous report on molecular liquids(4).

3 High momentum transfer structure factor

The observed structure factors $S(Q)$ covered up to $Q=30 \text{ \AA}^{-1}$ are shown in Fig. 2 for liquid gallium and in Fig. 3 for liquid rubidium. The oscillation in $S(Q)$ for liquid gallium is more pronounced compared with that for liquid rubidium. Rapid dumping of oscillation in $S(Q)$ for liquid rubidium comes from a large atomic diameter and a soft repulsive core in the pair potential(2). On the other hand, the strong oscillation in $S(Q)$ for liquid gallium may be due to both of hard repulsive core and persistence of an atomic association like a molecule in the liquid state.

The existence of a Ga_2 -molecule in liquid gallium near the melting point has been often speculated, for example, by NMR studies(5), because the crystal structure of α -gallium is

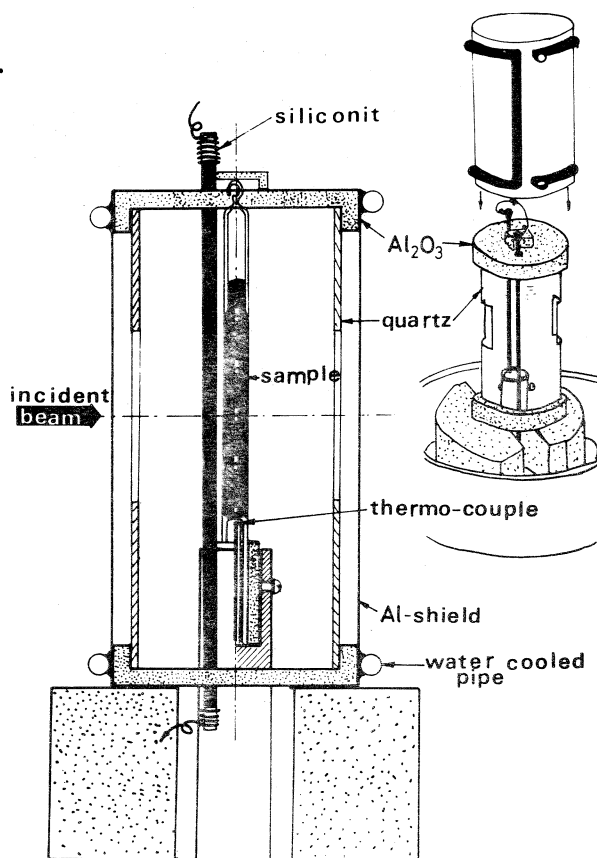


Fig.1 Electric heating furnace for T-O-F neutron diffractometer.

isomorphous with that of solid bromine which is composed from Br_2 -molecules as a constituting unit.

In high Q region, the observed structure factor $S(Q)$ tends asymptotically to the form factor for a single molecule $F_1(Q)$, that is,

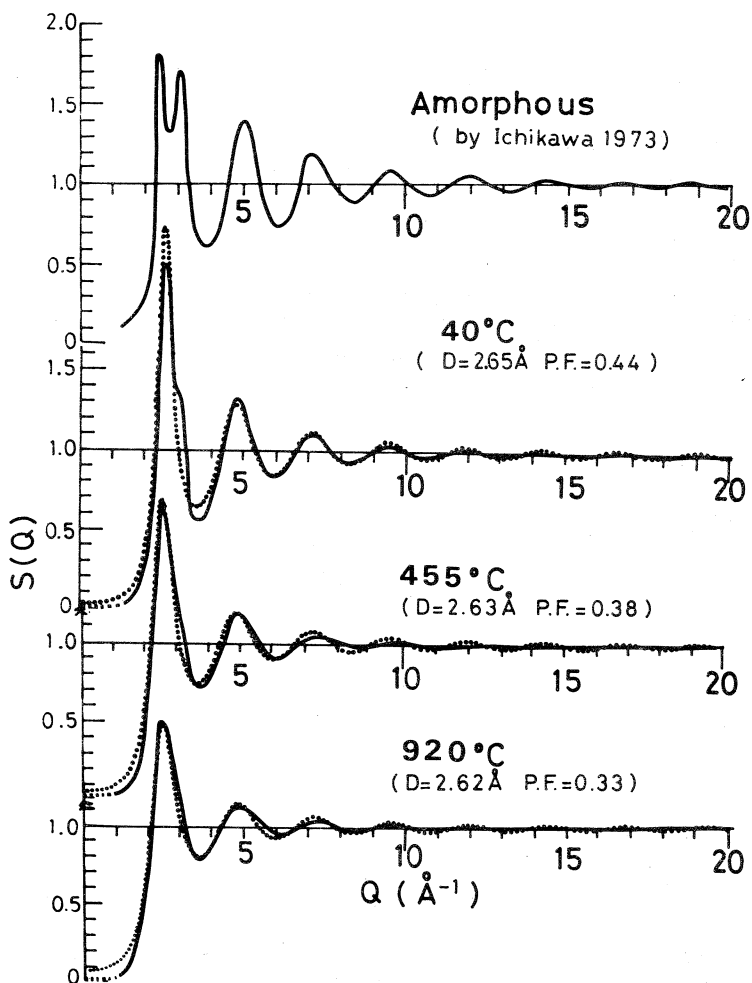


Fig.2 Observed structure factor $S(Q)$ for liquid gallium. Dotted line means the $S(Q)$ calculated from the hard sphere model with diameter D and packing fraction $P. F.$

$$\lim_{Q \rightarrow \infty} S(Q) = F_1(Q), \quad (1)$$

because the correlation of molecular centres becomes lost(6).
 $F_1(Q)$ for a diatomic molecule is written as

$$F_1(Q) = \frac{1}{2} \left(1 + \frac{\sin Qr}{Qr} \right), \quad (2)$$

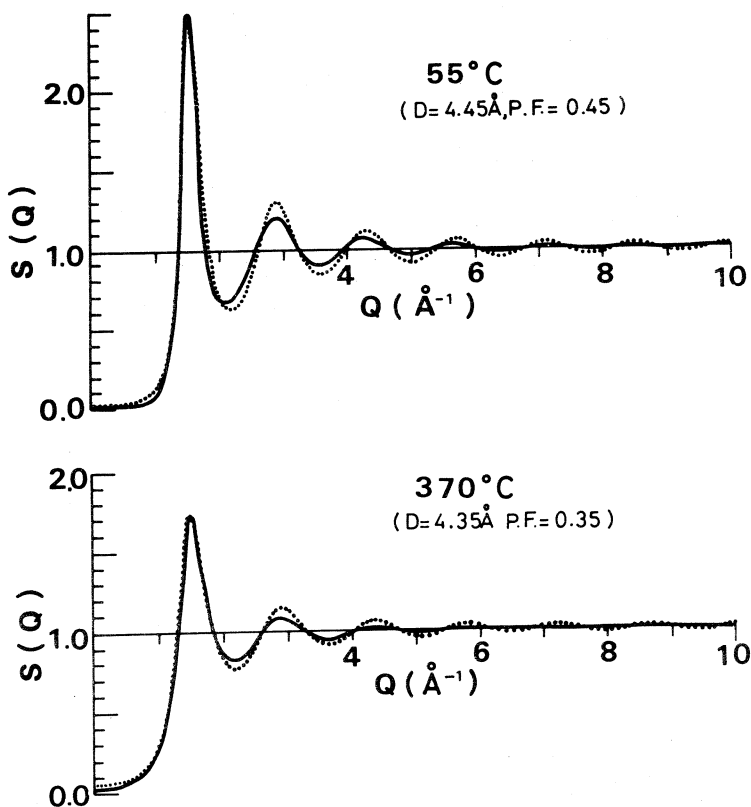


Fig.3 Observed structure factor $S(Q)$ for liquid rubidium.
 Dotted line has same meaning as in Fig.2.

where r is the inter-nuclear separation in a molecule.

The dash line in Fig. 4 is the form factor $F(Q)$ calculated by eq. (2) for $r=2.44 \text{ \AA}$ corresponding to the atomic separation in a gallium atom pair existing in α -gallium crystal (Fig. 5a), while the dotted

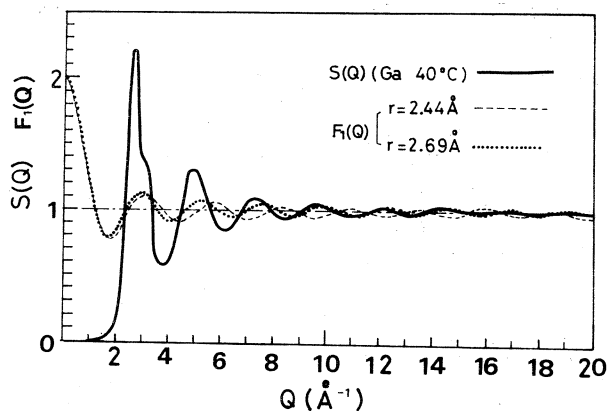


Fig.4 Comparison of observed $S(Q)$ with calculated $F(Q)$ in liquid gallium.

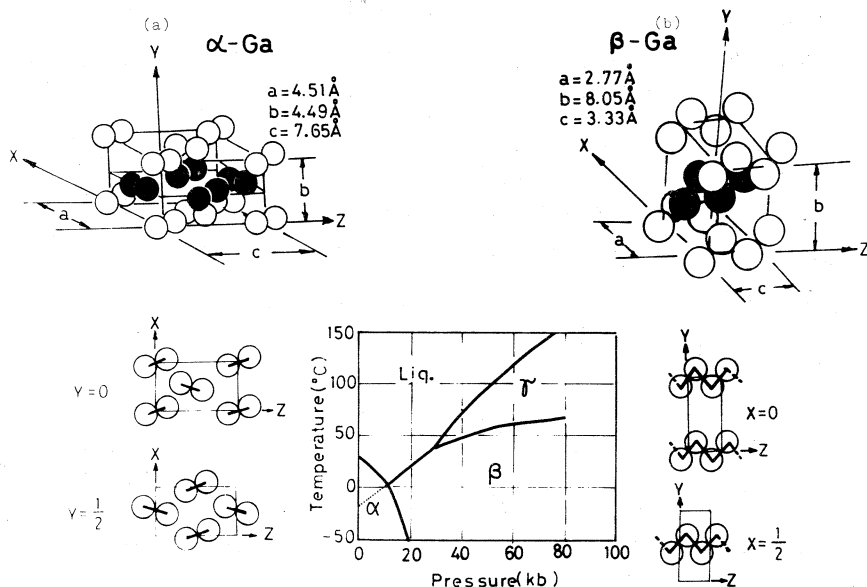


Fig. 5 Crystal structure and phase diagram of metallic gallium.

line in Fig. 4 is calculated by using $r=2.69 \text{ \AA}$ which is the nearest neighbour atomic distance in an atom-chain for β -gallium crystal (Fig.5b). The position of the subsidiary maximum on high Q side of the first peak in $S(Q)$ is found to coincide with the first peak of $F_1(Q)$ in either of the two

models. However, the phase of oscillation of $S(Q)$ for liquid gallium in high Q region is in quite agreement with that of $F(Q)$ for the β -gallium crystal model. It is interesting to mention that the density of liquid gallium is larger than that of α -gallium crystal and close rather than small compared with that of β -gallium crystal as a high pressure phase.

4 Subsidiary maximum in $S(Q)$ of liquid gallium

To get an accurate $S(Q)$ from neutron scattering measurements, experiments have to be done in the condition that the static approximation does hold. Use of incident neutron with the energy of more than 100 meV is empirically clever choice to realize the validity for the static approximation(7). However, the useful methods of correction for the static approximation have been proposed by Placzek(8) and Ascarelli and Caglioti(9).

Ascarelli and Caglioti have demonstrated that the subsidiary maximum on high Q side of the first peak for liquid gallium is pronounced in quasi-elastic diffraction pattern. In our T-O-F neutron diffraction measurement the position of the subsidiary maximum just corresponds to scattering of neutron with 0.5 Å wavelength at scattering angle $2\theta=15^\circ$, 1 Å at $2\theta=30^\circ$ and 2 Å at $2\theta=60^\circ$, respectively. As shown in Fig. 6, the two curves corresponding to higher neutron energy coincides well with each other, which may guarantee the validity of the static approximation in the experimental condition of this work. In contrast to this, the curve for 2 Å neutron has an emphasized shoulder indicating the invalidity of the static approximation in this energy region.

The number densities and atomic radii of liquid gallium and aluminium are known to be exactly same. Therefore, the comparison of diffraction data for the two liquid metals is quite instructive, because liquid aluminium has a really simple diffraction pattern without any subsidiary maxima. As shown

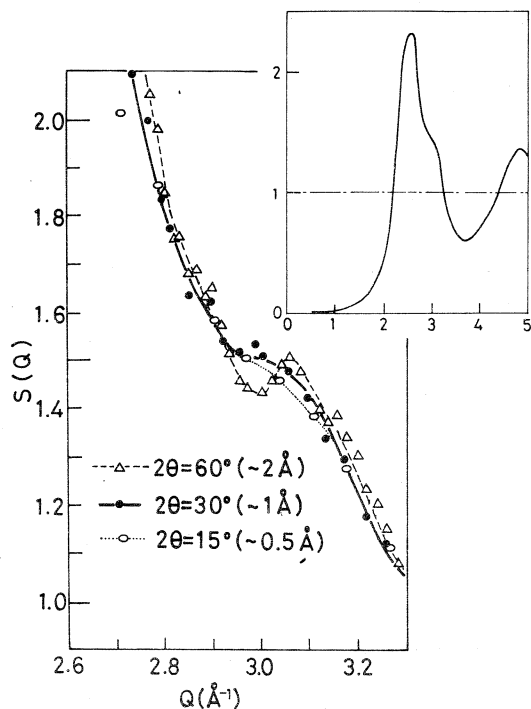


Fig.6 Subsidiary maximum on high Q side of the first peak in $S(Q)$ for liquid gallium.

in Fig. 7a, the position of the first peak in $g(r)$ for both liquids coincides, while the subsequent peaks for liquid gallium shift to larger region compared with those of liquid aluminium. On the other hand, Fig. 7b shows that the high Q behaviour of $S(Q)$ quite resembles to each other but the big difference comes out between the shapes of the first peak in both $S(Q)$'s.

Therefore, the subsidiary maximum in $S(Q)$ for liquid gallium may be expected to be due to the shift of the second peak and the subsequent ones in $g(r)$ to larger r region. In fact, the subsidiary maximum can be artificially reproduced, as shown in Fig. 8, by modifying the $g(r)$ for liquid aluminium in the fashion described above.

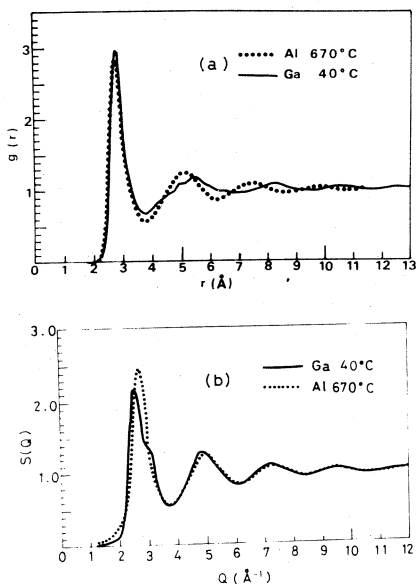


Fig.7 (a) Pair correlation function $g(r)$ for liquid aluminium and gallium. (b) Structure factor $S(Q)$ for liquid aluminium and gallium.

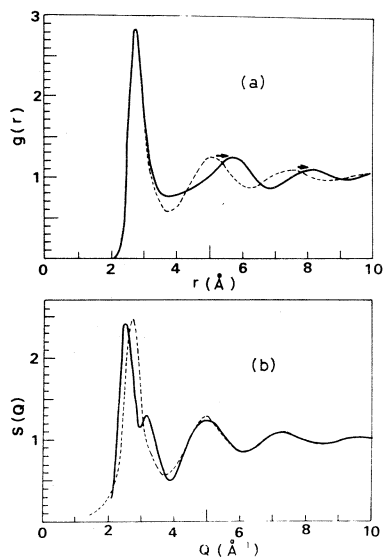


Fig.8 Simulation on reproducing a subsidiary maximum in $S(Q)$ due to modification of $g(r)$ for liquid aluminium. Dash lines are the observed $S(Q)$ and $g(r)$ for liquid aluminium.

References

- (1) S. Takeuchi, K. Suzuki, F. Itoh, K. Kai, M. Misawa and K. Murakami; The Properties of Liquid Metals, Proc. 2nd Intern. Conf. (Edited by S. Takeuchi, Taylor and Francis Ltd., London, 1973), p. 69.
- (2) Y. Waseda and K. Suzuki: *ibid.*, p. 37.
- (3) M. Misawa, K. Kai, K. Suzuki and S. Takeuchi: Res. Reports Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ., 5[2], (1972) 73.
- (4) M. Misawa, Y. Fukushima, K. Suzuki and S. Takeuchi; Res. Reports Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ., 6[1], (1973) 88.

- (5) K. Suzuki and O. Uemura: *J. Phys. Chem. Solids*, 32, (1971) 180.
- (6) J. G. Powles: *Adv. Phys.*, 22, (1973) 1.
- (7) J. E. Enderby: *Physics of Simple Liquids* (Edited by H. N. V. Temperley et al., North-Holland, 1968), p. 611.
- (8) G. Placzek: *Phys. Rev.*, 86, (1952) 377.
- (9) P. Ascarelli and G. Caglioti: *Nuovo Cimento*, 43B, (1966) 375.

II - 5 ネマティック液晶の中性子回折

核理研 新村 信雄

§1 序

液晶の微視的構造（分子の配向、及び分布等）を研究する手段として X 線及び中性子線等の回折現象を利用することは有効な方法であり、従来主に X 線により、この構造決定がなされてきた。¹⁻³⁾ 一方中性子線による構造決定は X 線によるよりいくつかの優れた特徴を備えているにもかかわらず、一般に液晶試料は水素を多く含む物質であり、水素による非干渉性散乱が強過ぎるため余り試みられていない。しかし、水素をすべて重水素に置換した物質を使うならこの困難は取り除かれ次の利点が活きてくる。i) バックグラウンドの差し引きが X 線に較べ誤差の少ない仕方で可能。ii) 非干渉性項が一意的に求まる。iii) 散乱断面積が Q （運動量変化）の大きい領域でも大きい。iv) 容器による散乱の影響は少なく、又補正もし易い。

しかしこのような利点はあっても液晶の分子配向や、その規則度等を求める時に入り込む不確定さは X 線でも中性子線でも変わりはない。⁴⁾ 最近、分子性液体の中性子回折データの解釈の仕方がすすんでおり⁵⁻⁷⁾ 著者も結晶構造を参考にする方法⁸⁾ を考えたので、それを液晶に応用して分子の配向の知見を得ることを試みてみた。尚、最近 pymn らが重水素化した液晶の中性子回折実験を行っているが、 Q の小さい領域 ($Q \sim 3.6 \text{ \AA}^{-1}$ まで) しか測定しておらず^{9, 10)} Q の大きい領域での散乱実験の液晶研究への貢献の重要性の指摘もあり、¹⁴⁾ ここに著者らの結果を報告する。

§2 実験

ネマティック液晶として重水素化したパラアゾオキシアニソール（以下 d_u -PAA と書く）を BIO-RAD Laboratories より購入した。（98 atom % 重水素化。）

試料は、石英ガラス円筒容器（内径 10 mm ϕ 、肉厚 0.3 mm）に封入され、試料の上下のヒーターで熱せられるようにした。第 1 図に試料周囲の配置を示してある。温度測定は銅-コンスタンタンで行うと共に液晶状態の確認等は肉眼でもできるように炉の横に小穴を開けてある。

中性子回折実験は核理研の
H-4 中性子ビーム孔設置の
液体用回折装置¹⁾で行った。

試料の実験温度は $122 \pm 2^\circ$
C (液晶状態) と $195 \pm 3^\circ$
C (等方性液体状態) で行った。
実験中は磁場、電場等の印加
による強制配向はしていない。

§3 結 果

a) Data Reduction

試料Sに当たる入射中性子
のスペクトルを J_0 , 試料に
よる微分散乱面積を $(d\sigma/d\Omega)_s$
とすると反射中性子強度は

$$I_s = \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_s \cdot J_0 \cdot A_s \quad (1)$$

となる。ここで $(d\sigma/d\Omega)_s$ は次のように書ける。

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_s = N_m \left(\sum_j b_j^{coh} \right)^2 \cdot S_m(Q) + \sum_j (b_j^{inc})^2 + \frac{\Delta_s}{4\pi} \quad (2)$$

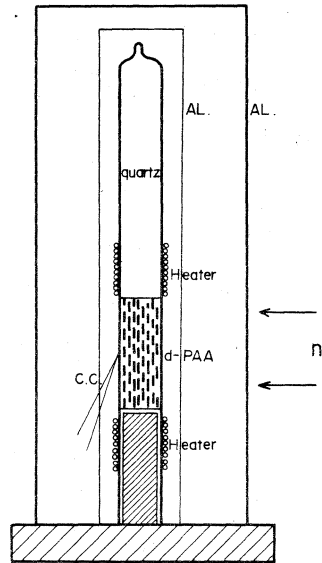
A_s は試料の吸収因子, N_m は単位体積当りの分子数, b_j^{coh} , b_j^{inc} は夫々 j 原子の干渉性及び非干渉性散乱長, $S_m(Q)$ は試料の構造因子, Δ_s は試料の多重散乱因子を意味する。(1)式の J_0 は Vanadium 標準試料により求める。

$$I_v = N_v \left(\sigma_v^{inc} + \Delta_v \right) \cdot J_0 \cdot A_v \quad (3)$$

添字VはVanadiumを意味し, N , Δ , A は上と同じ意味である。(1), (2), (3)より $S_m(Q)$ を求める。

b) $S_m(Q)$

a) の方法でデータ整理して求めた液晶相及び液体の $S_m(Q)$ を第2図、及び第3図にそれぞれ示す。



第1図 試料周囲の配置図

§ 4 分子の配向相関

分子性液体の構造因子 $S_m(Q)$ は

$$S_m(Q) = F_1(Q) + F_{2c}(Q) \times \{S_c(Q) - 1\}, \quad (4)$$

とあらわされる。⁸⁾ここで $F_1(Q)$,

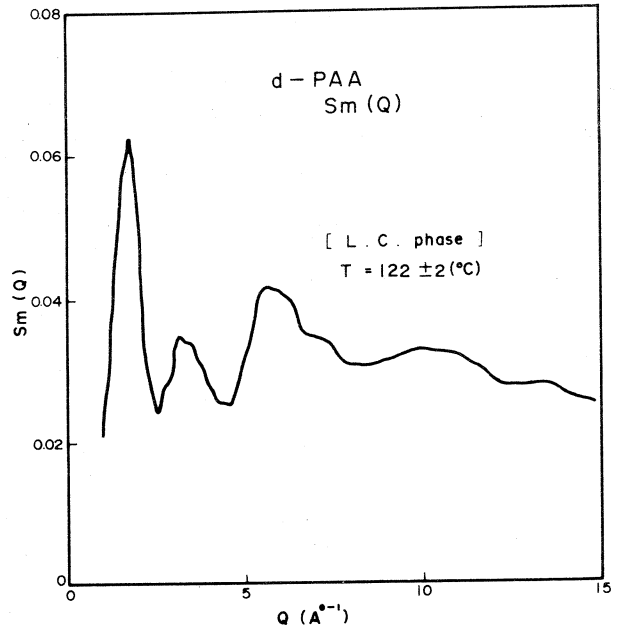
$F_{2c}(Q)$, $S_c(Q)$ は文献(8)を参照して頂き、夫々を d_{14} -PAA について求めてみる。

a) $F_1(Q)$

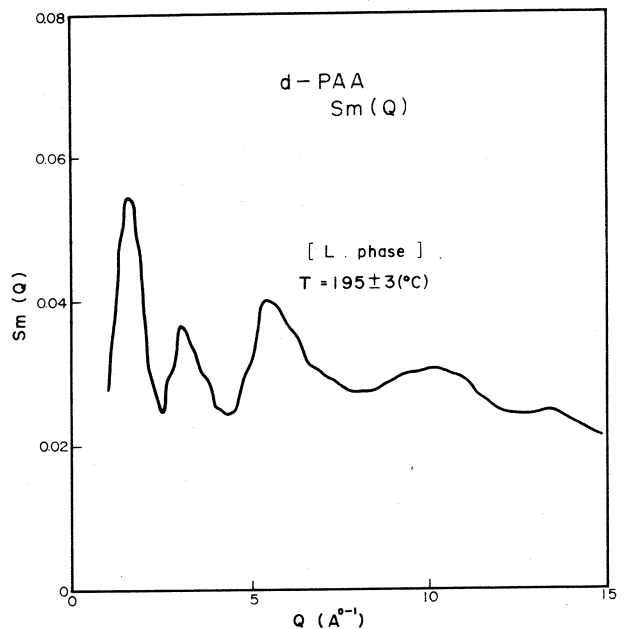
$F_1(Q)$ は分子自身の構造因子で Kriegbaum らの結晶構造解析の結果¹²⁾を用いて計算した。その結果を第4図に示す。 $Q \approx 3.1 \text{ \AA}^{-1}$, $Q \approx 5.5 \text{ \AA}^{-1}$ 付近に山があり、それらを実距離にすると $d \approx 2.03 \text{ \AA}$, $d \approx 1.14 \text{ \AA}$ となり前者はベンゼン環の各対角線の長さ、後者は各原子結合の長さに対応している。 $F_1(Q)$ の計算は一般には分子を剛体として行うが、分子のねじれ等で分子構造が若干変化しても、 $F_1(Q)$ のパターンは余り変化は受けない。文献(8)の(5)式から判明するように $Q \rightarrow \infty$ で $F_1(Q) \rightarrow \Sigma b^2 / (\Sigma b)^2$ となり d_{14} -PAA の場合は0.03となる。

b) $F_{2c}(Q)$

$F_{2c}(Q)$ は分子の配向相関による構造因子で、文献(8)に依れば配向は結晶の点群から計算出来る。 d_{14} -PAA は C_{2h}^5 に属す¹²⁾ので、対称



第2図 液晶相の $S_m(Q)$

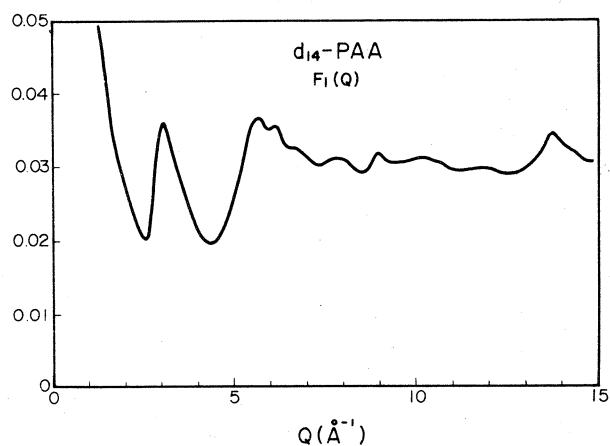


第3図 液体相の $S_m(Q)$

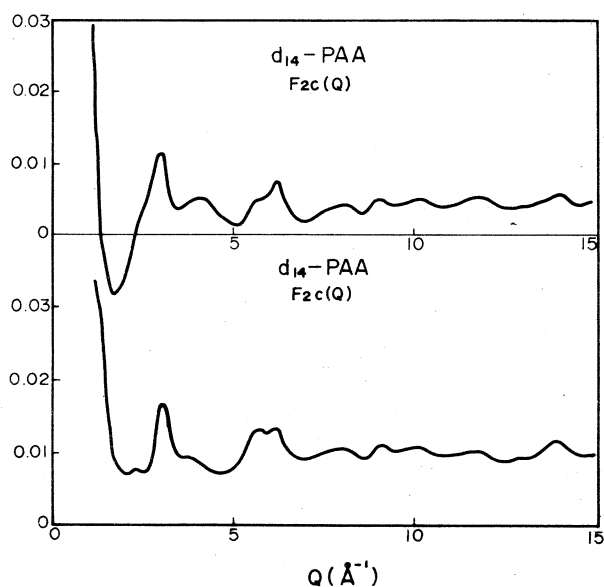
中心、 b 軸まわりの 180° 回転、及び鏡映の対称操作によって得られる配向関係も仮定して計算した。 $W^{(m)}$ は2種類のモデルで計算した。モデルⅠはすべての配向関係の割合が等しい場合でモデルⅡは結晶構造の結果から得られた分子間中心距離を用いて文献(8)で述べられたと同様の方法の場合である。モデルⅠ、モデルⅡ夫々の $F_{2c}(Q)$ を第5図に示す。

c) $S_c(Q)$

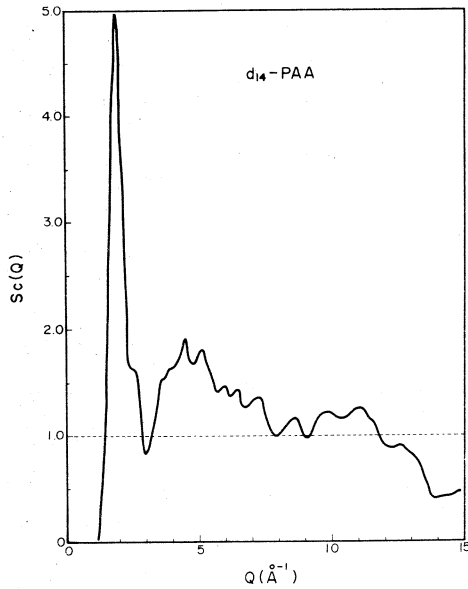
(4)式を用いて求めたモデルⅠ、モデルⅡの場合の $S_c(Q)$ を夫々第6図、(a), (b)に示す。



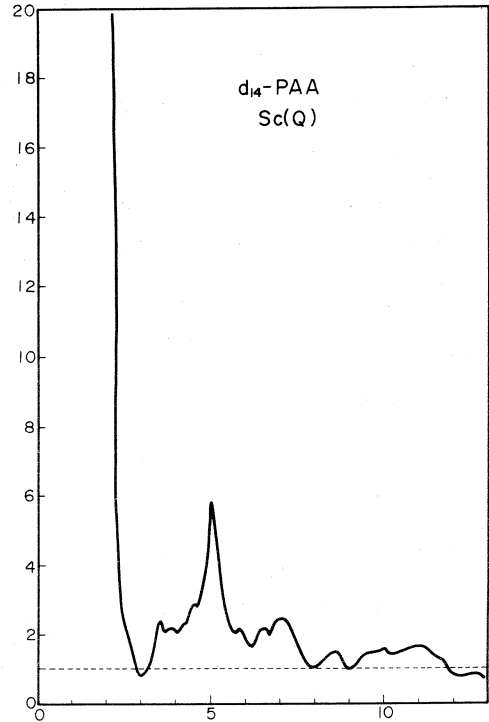
第4図 分子自身の構造因子 $F_1(Q)$



第5図 上側：モデルⅡの $F_{2c}(Q)$
下側：モデルⅠの $F_{2c}(Q)$



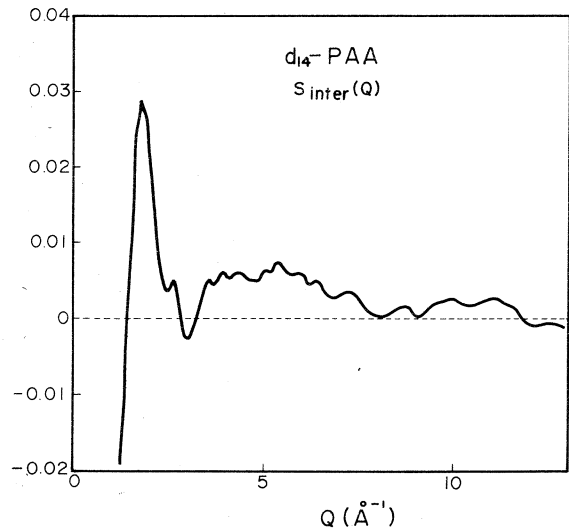
第6図(a) モデルIの $F_{2c}(Q)$ を用いて得られた $S_c(Q)$



(b) モデルIIの $F_{2c}(Q)$ を用いて得られた $S_c(Q)$

§5 議 論

d_{14} -PAA の液晶相の $S_m(Q)$ には(第2図) $Q \approx 1.8 \text{ \AA}^{-1}$, 3.2 \AA^{-1} と 5.7 \AA^{-1} に3つの山がある。 3.2 \AA^{-1} と 5.7 \AA^{-1} の山は殆んどが分子内相関の項 $F_1(Q)$ で説明がつく。しかし 1.8 \AA^{-1} の山は完全な分子間相関による項であるが、第6図(a), (b)両方共 1.9 \AA^{-1} に $S_c(Q)$ に大きな山があることから、分子の配向相関からでなくいわゆる体積排除効果¹³⁾によるものである。このように $S_m(Q)$ はこの体積排除効果と分子内相関でほぼ説明がつくが、第7図に $S_m(Q) - F_1(Q)$ の



第7図 $S_{inter}(Q) = (S_m(Q) - F_1(Q))$

図を示すが、 $3.5 \text{ \AA}^{-1} \sim 6.5 \text{ \AA}^{-1}$ の山は分子配向相関による項であろう。

種々、データ解析の際御教示いただきました鈴木謙爾、三沢正勝、福嶋喜章各氏、及び実験に際して御援助いただいた富吉昇一、渡辺昇、各氏に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) I. G. Chistyakov, B. K. Vainshtein : Soviet Physics - Crystallography **8** (1964) 458.
- 2) I. G. Chistyakov : ibid **8** (1964) 691.
- 3) I. G. Chistyakov, W. M. Chaikowsky : Molecular Phys. Liquid Crystals (1969) 269.
- 4) A. de Vries : J. chem. Phys. **56** (1972) 4489.
- 5) P. A. Egelstaff, D. I. Page, J. G. Powles : Molecular Phys **20** (1971) 881.
- 6) J. G. Powles : Advances in Phys. : **23** (1973) 1.
- 7) K. E. Gubbins, C. G. Gray, P. A. Egelstaff, P. A. Egelstaff, M. S. Ananth : Molecular Phys. **25** (1973) 1353.
- 8) 新村信雄 : 核理研研究報告 **7** (1974).
- 9) R. Phnn, K. Otnes, T. Riste : Solid State Commu. **11** (1972) 1865.
- 10) R. Pynn : J. Phys. Chem. Solids **34** (1973) 735.
- 11) 三沢正勝, 甲斐謙三, 鈴木謙爾, 竹内栄 : 核理研研究報告 Vol. **5** No. 2 (1972) 73.
- 12) W. R. Kriegerbaum, Y. Chatani, P. G. Barber : Acta Cryst. **B26** (1970) 97.
- 13) P. Debye, H. Menke ; Phys. Z **31** (1930) 797.
- 14) P. G. de Gennes : CR Acad. Sci (Paris) **274 B** (1972) 142.

II-6 アモルファス $\text{Fe}_{0.8}\text{P}_{0.13}\text{C}_{0.07}$ 合金のパルス中性子散乱(I)

学習院大理学部 溝口 正・山内一志
核理研* 新村信雄*

パルス中性子を用いた TOF 法による散乱実験は広い波数範囲をカバーでき、非晶質体の回折実験には大変適している。我々の研究室では以前よりアモルファス（非晶質 3d 遷移金属合金の研究をつづけてきておりその磁氣的性質に関しては、かなりの成果を得ることができた。今回、パルス中性子による回折実験を行うことは最も基本的な構造に関する情報が得られるという意味で貴重なことと考える。今回は予備実験的な意味を含めて行った。

試料は $\text{Fe}_{0.8}\text{P}_{0.13}\text{C}_{0.07}$ の組成をもつアモルファス合金である。試料の作製法を簡単に延べる。粉末状の Fe, P, C をよく混合して石英管に真空封入し、約 400°C で反応焼結させる。

さらにこれをより高温（約 800°C ）に上げ、最後に $1,250^\circ\text{C}$ 程度で一度熔融後室温へ急冷する。このようにして得られた母合金の一片をプラズマジェット炉で熔融し、そこを銅の平板でたたいて急冷し薄状のアモルファス合金試料を得る。X線回折によってハローパターンのみが観測されることを確かめ、さらに磁化過程をヒステリシススコープで観測して検定した。後者の方法は鋭敏であり、わずかでも結晶相が含まれるとヒステリシスループの形が顕著に変わるので簡便で大変よい検定法と思われる。この試料は室温で強磁性であり、キューリー点は約 310°C である。常磁性領域での散乱実験を行うために、前もって 350°C に長時間保持しても結晶化しないことを磁化測定によって確かめた。

中性子散乱実験に用いた試料は約 2 g で、適当に細かくして約 $9\text{ mm } \phi \times 30\text{ mm}$ のアルミ箔の円筒につめ、これを上下からヒーターではさみ、酸化等をふせぐため全体をアルミの外筒でおおって真空にひけるようにした。

常磁性領域約 350°C 及び室温でそれぞれ約 4 時間程度、散乱角 $2\theta = 15^\circ, 30^\circ, 60^\circ, 150^\circ$ で TOF の Data を蓄積した。生の data には結晶の Bragg peak らしきものがみられたが、これはヒーターを支えていたステンレス棒及びアルミの外筒からでていることが、後で試量を取りさって実験した結果わかった。バックグラウンドをさしひいた data を V のそれで Normalize し、また室温（強磁性）の data をさしひいて磁気散乱の部分を一応だしてみた。結果は計測時間不足のため統計誤差が大きいくまだ満足すべき状態ではないが、さらに実験をつづければ十分

に解析を行えるものと思われる。各散乱角のデータに共通し $\theta/\lambda \sim 0.24 \text{ \AA}^{-1}$ あたりに第1ハローが、 $2\theta = 30^\circ$ 及び 60° では $\theta/\lambda \sim 0.4$ あたりに第2ハローのピークが認められる。また非常に興味あるのは磁気散乱のみの peak が核散乱のそれよりやや長波長側へずれているようにみえることである。これはこのアモルファス磁性体で、磁気モーメントを荷っているのが Fe 原子のみであり、核散乱では C、P 原子をも含めたものがきいてくるからと考えられる。さらに精密な実験データをもとにして解析をすすめれば、この種のアモルファス磁性体の構造に関して重要な知見が得られることに自信をいだかせる新しい発見である。

II - 7 Mn_3Si の磁気構造

東北大金研 富 吉 昇 一

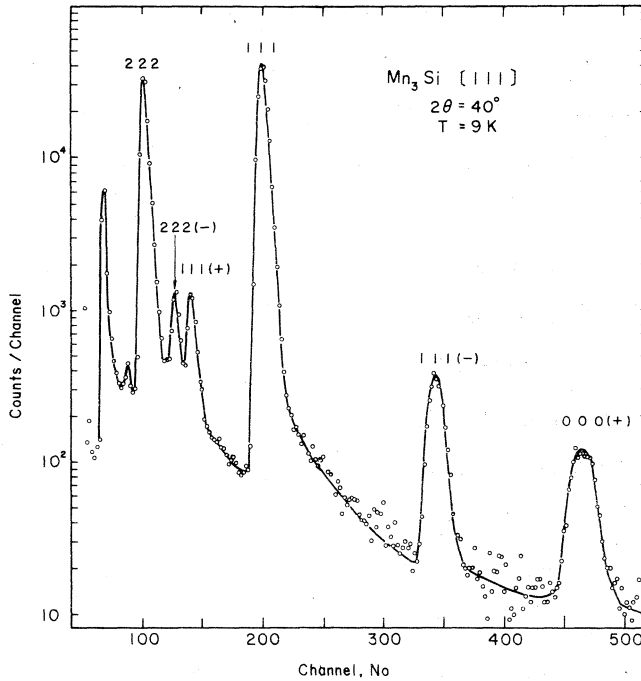
§1 序 論

Mn_3Si は bcc Fe_3Al 型の結晶構造をとるが、結晶構造が比較的簡単であることからいろいろな理論的計算が可能であると思われること、bcc 遷移金属 Cr, Mn, Fe などのうち bcc Mn は室温で安定でないので磁氣的に興味のある性質をもっているにもかかわらず、ほとんど研究が行われていないが、 Mn_3Si は bcc Mn にかなり近い（特に Mn_I ）と考えられることから Mn_3Si を研究することにより bcc Mn についての性質を推定することが可能ではないかと考えられること、などの点より我々は Mn_3Si に興味をもち、中性子回折により研究してきた。これまで行われた Mn_3Si の磁性に関する研究はほとんどなく、我々の行ったのが最初であるが、¹⁾ 以前行った粉末試料の中性子回折の測定に於ては nuclear line の他に小さい magnetic lineらしきものが観測されていたが、それらの回折線は結晶の index が見つからない位置にあったために impurity line として処理し、screw 構造による magnetic satellite line であることを見逃してしまった。¹⁾ その後、単結晶試料を用い精密な測定を行い Mn_3Si が 24 K 以下の温度で $[111]$ 方向に進む screw spin 構造にオーダーすることを確認したのでその結果について報告する。今回は解析がまにあわないので実験結果のみを簡単に記す。

§2 実験結果

測定に用いたのは単結晶測定用の 2 軸の測定装置である。散乱中性子の検出にはヘリウム-3 カウンターを用いた。試料とカウンターの間には 0.9° ($2\theta \geq 50^\circ$ の場合は 3°) のソーラースリットを用いた。単結晶は以前用いたものと同じである。¹⁾ $[110]$ 軸を立て、直径 0.7 cm の円筒形に成形し、吸収等の補正に便利にした。クライオスタットは熱伝導で冷却方式のもので、試料の最低到達温度は 9 K 程度である。

第 1 図は 111 面による測定結果である。111, 222, ……などの核散乱による回折線の他に、面間隔の大きい磁氣的回折線が得られた。110 逆格子面について可能性のある色々な逆格子の方向について scan した結果、これら magnetic satellite line は第 2 図に示すように fcc の index のつく nuclear line（すなわち Fe_3Al 型のすべての index）のまわりに現われ、そ



第1図 Mn_3Si の単結晶111面によるTOF法中性子回折図。512 channelで測定したものを2 channelまとめして示した。散乱角 2θ は 40° 、測定温度は9 Kである。000(+), 111(-), ……はmagnetic satellite lineである。

れ以外の所には現われないことが確かめられた。我々の測定精度の範囲内に於ては高次の satellite は見出されなかったので、これらの magnetic satellite line は antiphase domain によるものではなく、[111] 方向に進む screw spin 構造によるものと解釈することが出来る。screw の進む [111] 方向は4つの等価な方向があり、結晶内ではそれぞれの方向の domain に分かれている。従ってそれぞれの逆格子点に対しては合計8ヶの satellite が現われる。equivalent な satellite の積分強度は測定誤差の範囲内で等しいので、4つの domain はほぼ等しく分布していると考えられる。

proper screw spin 構造の中性子散乱強度は次の式で与えられる。²⁾

$$I = N^2 \left(\frac{e^2 \gamma}{2mc^2} \right)^2 (1 + \cos^2 \theta) \left| \sum_{\mathbf{k}} \frac{\mu_{\mathbf{k}} f_{\mathbf{k}}}{2} e^{i(\mathbf{h} \cdot \mathbf{r}_{\mathbf{k}} + \phi_{\mathbf{k}})} \right|^2 \delta(\mathbf{h} + \mathbf{q} - 2\pi \mathbf{B}_h)$$

$$+ \left| \sum_{\mathbf{k}} \frac{\mu_{\mathbf{k}} f_{\mathbf{k}}}{2} e^{i(\mathbf{h} \cdot \mathbf{r}_{\mathbf{k}} + \phi_{\mathbf{k}})} \right|^2$$

$$\times \delta(\mathbf{h} - \mathbf{q} - 2\pi \mathbf{B}_h)$$

ここで、すべての notation は文献2と同じである。この実験に於ては proper screw と横波正弦波構造とは分けることが出来ないで、ここでは一応 proper screw spin 構造として解析した。観測された satellite line が nuclear line のまわりに限られていて、それ以外の所、たとえば 100, 110, などには見出されないが、この消滅則は非常に厳しく、ほぼユニークに spin 構造が決定される。測定は散乱角 $2\theta = 30^\circ, 40^\circ, 60^\circ, 70^\circ$ の各角度について行ったが今回は 70° で測定した結果の解析のみを示す。消衰効果の補正などによってこれらの結果は多少変ると思われるがそれについては後ほど報告する予定である。

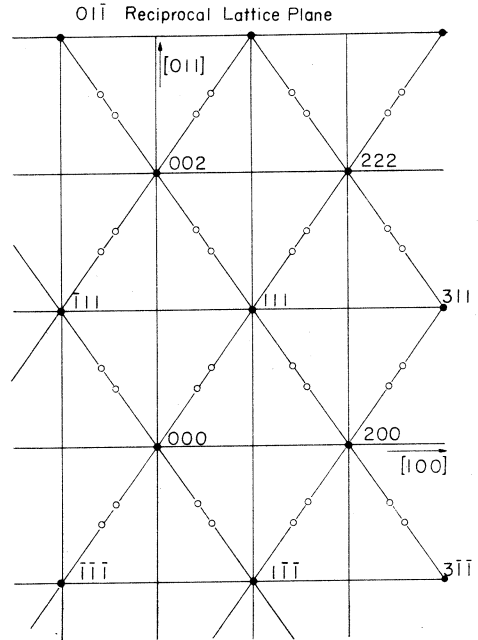
基本的な spin 構造は bcc の中心の Mn_I とコーナーの Mn_{II} が反強磁性的に結合しそれが [111] 方向を screw 軸として回転している構造である。この構造では同じ satellite の間に強度の差はない(上式の $+\mathbf{q}$ と $-\mathbf{q}$ の2つは同じである)。また構造因子に $(S_I - 2S_{II})^2, S_{II}^2, (S_I + 2S_{II})^2$ のものがあらわれ Mn_I は磁気モーメントを持つと仮定しないと積分強度の説明が出来ない。

第3図に得られ spin 構造を示す。1つの unit cell を進む間の回転角は(すなわち Mn_I と次の Mn_I の間の角度) おおよそ 150° である。磁気モーメントの大きさは 9 K の温度で

$$\mu_{\text{Mn}_I} = 2.07 \mu_B$$

$$\mu_{\text{Mn}_{II}} = 0.172 \mu_B$$

である。 Mn_{II} のモーメントの大きさは Mn_I の $1/12$ で非常に小さい磁気モーメントしかもっていない。



第2図 Mn_3Si の 110 逆格子面を示す。• : nuclear line, ○ : magnetic satellite line。satellite は nuclear line のまわりに限られ、100, 110 ……等の逆格子点のまわりには現われない。

次に magnetic satellite の温度変化より screw のピッチ q と磁化の温度変化を求めた。000 (+) と 111 (-) の 2 種の satellite の温度変化より μ_{MnI} と μ_{MnII} の副格子磁化の温度変化を求めることが出来るが、今回の測定ではそのような議論ができるほど測定精度が充分ではなかった。satellite の強度の温度変化より求めた T_N は 24K である。screw の wave vector q の値は T_N より温度の減少に対してはほぼ linear に減少し、さらに温度が下ると徐々に一定値に飽和する。この q の温度変化は Cr 及び Cr 合金の場合に類似している。 T_N での q の値は、 $q = 0.894 \times \frac{1}{2} K_{111}$ である。ここで K_{111} は [111] 方向の基本逆格子ベクトルで $K_{111} = \frac{2\pi}{a} (1, 1, 1)$ である。

§3 議 論

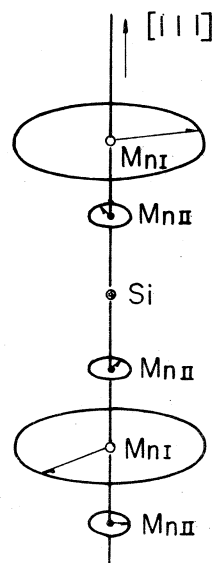
screw spin 構造は希土類金属、3d-遷移金属やそれらの化合物などについて数多く見出されているが、遷移金属を含むもので電気伝導の良いものの数はそれほど多くなく、 Mn_3Si は金属的な物質で screw spin 構造をとるという点から、かなり興味のある物質であると考えられる。単結晶が作りやすいということもこの物質を研究する上で非常に有利な条件であると思われる。

screw spin 構造が出現するのは次の 2 つの場合が考えられる。

(1) localized moment model で考えると、magnetic atom 間に働く交換積分 J_{ij} の Fourier 変換 $J(q)$ が $q = 0$, $\frac{1}{2} K$ 以外の値で最大値をもつ場合であり

(2) itinerant electron model では spin density wave (SDW) による場合である。Cr は典型的な SDW の例であり、Cr の band 構造の特殊な形が SDW を安定化すると考えられている。

我々は Mn_3Si は (1) よりむしろ (2) の場合に属しているのではないかと考えている。その理由としては第 1 に、 Mn_3Si では Mn_I と Mn_{II} の 2 つの種類の spin があるが、2 種の spin が 1 つの q で記述されるようならせん構造になっていること。さらに q ベクトルの温度変化が SDW の理論で考えられる q の温度変化に非常に良く当てはまることである。 Mn_3Si が Cr に類似していると思われるのは q の温度変化の他に、 q の大きさである。Cr の場合 $q = 0.95 \times \frac{1}{2} K_{200}$, Mn_3Si



第3図 Mn_3Si の spin 構造。[111] 方向に沿った図を示す。 Mn_I にはさまれた Mn_{II} は Mn_I と逆向きに couple している。 Mn_I から次の Mn_{II} までが 1 種の chemical unit cell の長さである。その間の回転角はおおよそ 150° である。

の場合 $q = 0.89 \times \frac{1}{2} K_{111}$ である。Cr の場合、[100] 方向の Brillouin zone の境界のすぐ近くに satellite が現われるが、 Mn_3Si の場合も [111] 方向の Brillouin zone の境界のすぐ近くに現われる。Cr の場合 Brillouin zone の Γ 点の周りの electron Fermi surface と H 点のまわりの hole surface が丁度 q だけずらすと重り合うために、S DW が安定化することが示されているが、³⁾ Mn_3Si も、たまたま band 構造が Cr の場合の機構と類似して、 Γ 点の electron surface と L 点の hole surface が q だけずらしたときに重り合っているのではないと考えられる。 Mn_3Si は primitive cell の中に Mn_I 1 個、 Mn_{II} 2 個で 3 個の Mn と 1 個の Si 原子を含み、くいつか結晶構造は複雑であるが、band 構造の計算は可能と思われるので、そのような計算が行われることが望まれる。

Mn_3Si では Mn_I は 8 個の Mn_{II} に囲まれ bcc の中心にあり bcc Mn に類似の状況になっている。 Mn_3Si で Mn_I が $2 \mu_B$ 程度の大きさの磁気モーメントを持っていることから bcc Mn も band 構造がどうなっているかにもよるが、多分磁気モーメントを持ち antiferro に order するのではないかとと思われる。

この実験に於ては、偶然に単結晶試料を用いて Mn_3Si が screw spin 構造になることを見出したが、TOF 法では逆格子空間を直線的に scan するのでより広い空間を短い時間で scan 出来、未知の物質の磁気構造を研究するのに適した方法であると思われる。

最後に、この実験の温度変化の測定に御協力していただいた山内宏氏に感謝いたします。

文 献

- 1) 富吉昇一, 渡辺昇, 新村信雄, 木村一治, 渡辺浩: 核理研研究報告 Vol 5 No. 1 (1972)

101

- 2) 星埜禎男, 山田安定: 日本物理学会誌 Vol 18 (1963) 122

- 3) W. M. Lomer: Proc. Phys. Soc. 80 (1962) 489

II-8 TOF法中性子回折による精密結晶構造解析(II)

核理研 高橋 順一*・新村 信雄
 名大工学部* 原田 仁平*

§1 序

TOF法により単結晶構造解析を行う場合、入射中性子の波長分布 $i(\lambda)$ を、いかにして測定するかということが、一つの重要な問題となる。従来の $i(\lambda)$ の測定方法は、前報¹⁾ に述べた通りであるが、direct-beam を $2\theta=0^\circ$ で測定する際に起る γ -burst のため、150チャンネル付近までカウンターに不感時間ができてしまうということが、最も根本的な問題であった。(第1図参照)これを補うために、1~100チャンネルまではバナジウム⁵¹の非干渉性散乱のデータを用

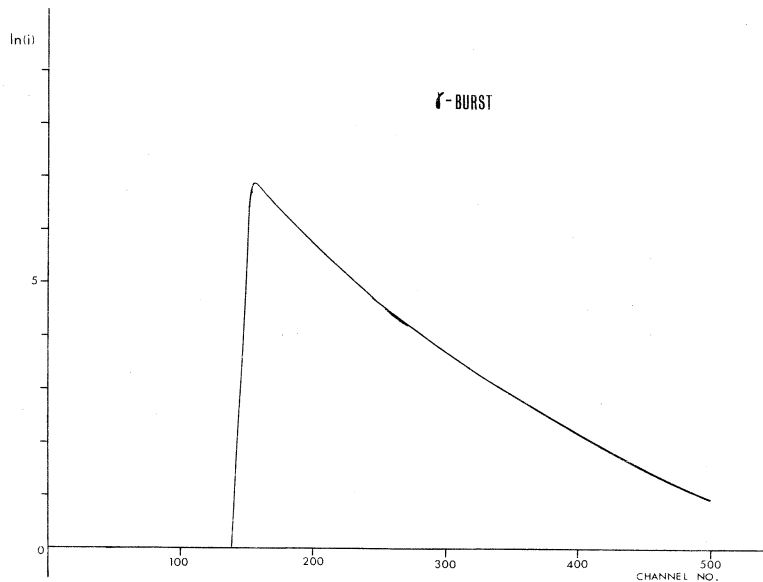


Fig.1

第1図

101~200チャンネルまでは、linac intensity を落して測定を行ってきた。しかしながら、バナジウムを用いたデータには、吸収の補正、多重散乱の補正、非弾性散乱の補正等を行わなければならない、誤差の入る可能性も大きい。又、linac-intensity を落して測定する場合は、ターゲット-モデレーター系の温度下降によって、 $i(\lambda)$ のピークが高チャンネル側にシフトする

可能性も考えられる。従って γ 線をカットして $i(\lambda)$ を直接測定する方法が最も理想的なものとなる。又、バックグラウンドを低くするという意味からも γ 線をカットすることは非常に重要なことである。以上のような観点から、 γ 線をカットするため、Pbのブロックをスリットとして用いた。以下においては、このようにして求めた $i(\lambda)$ について述べ、又、構造解析に伴う種々の補正法を検討するために、CuClのブラッグ反射を測定し、それから逆算した $i(\lambda)$ とdirectに測定した $i(\lambda)$ との比較も行って見たので、それについても報告することにする。CuClのデータとしては、原田、坂田が原研において行った定常炉での実験²⁾で得られた結果を使った。試料もその時と同一のものである。

§ 2 実 験

i) バナジウムによる測定

10 mm ϕ のバナジウムの円筒形の棒を用いて、 $2\theta = 90^\circ$ で測定を行った。第2図はバナジウムのデータからバックグラウンドを差引き、吸収の補正を行ったものであり、directに測定した $i(\lambda)$ との比較を示す。

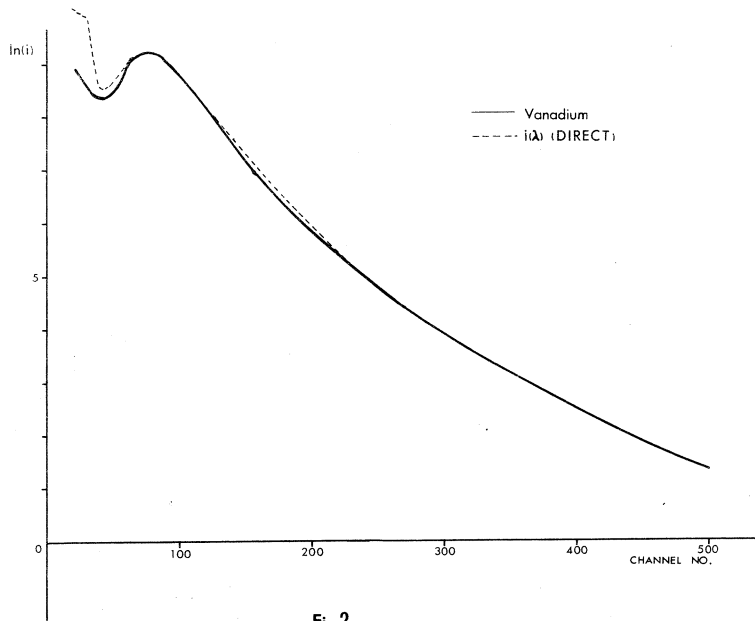


Fig.2

第2図

ii) direct beam の測定

γ -burst によるカウンターの不感時間を無くするために、Pbのブロックに穴をあけたものをスリットとして用い(第3図) $2\theta=0^\circ$ で direct beam を測定した。(第2図) linac intensity を落した場合の $i(\lambda)$ のピークのシフトを見るために、linac intensity を落した場合の測定も行った。

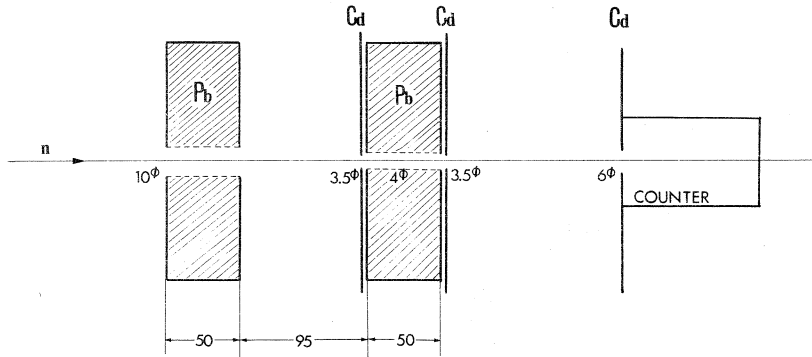


Fig.3 Pb-SLIT lay out

第3図

iii) CuClのブラッグ反射から逆算した $i(\lambda)$

試料は直径 6 mm の球状のものである。測定したブラッグ反射は次に示す。

- $2\theta = 40^\circ$ $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ のシリーズ
- $2\theta = 50^\circ$ $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ のシリーズ
- $2\theta = 60^\circ$ $[111]$, $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$
 $[200]$, $[\bar{2}00]$
 $[220]$, $[\bar{2}\bar{2}0]$
 $[311]$, $[422]$
 $[331]$, $[511]$
 $[422]$ の各シリーズ
- $2\theta = 90^\circ$ $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ のシリーズ
- $2\theta = 140^\circ$ $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ のシリーズ

但し、このときは、Pbのスリットは用いておらず、スリットとしてはCdを用い、入射スリ

ットには 8 mm ϕ 及び 9 mm ϕ のもの, カウンタースリットには 9 mm ϕ のものを用いた。

ブラッグ反射の強度式としては,

$$I_B = k |F|^2 i(\lambda) \frac{\lambda^4}{\sin^2 \theta} A(\lambda) Y(\lambda)$$

を用い, 吸収の補正 $A(\lambda)$ は, Rouse-Cooper の方法³⁾, $|F|^2$ は原田, 坂田による定常炉のデーターを用いた。k は尺度因子, $\frac{\lambda^4}{\sin^2 \theta}$ は Lorentz 因子である。Extinction の補正項 $Y(\lambda)$ は現在のところ未知の項として, $i(\lambda)Y(\lambda)$ をプロットしてみた。(第4図)

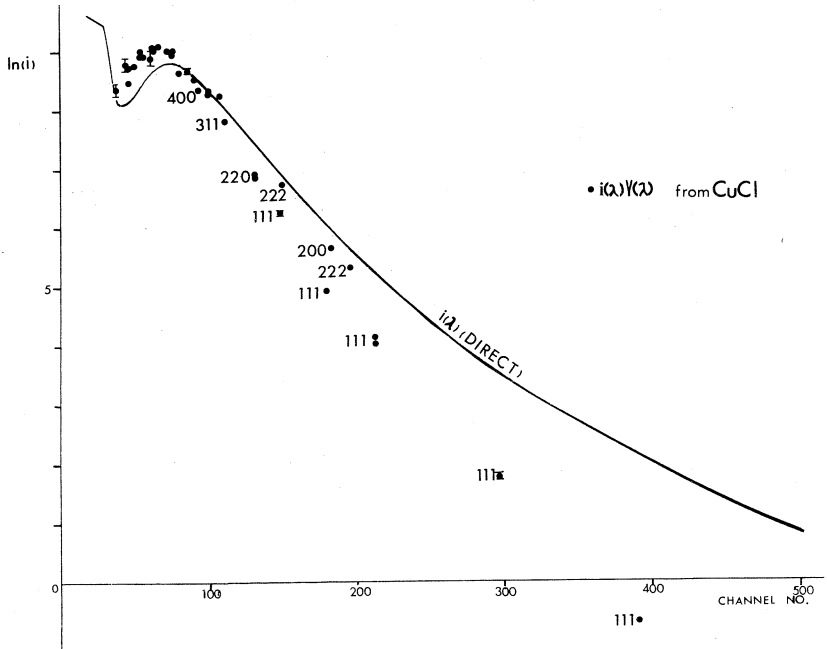


Fig.4

第4図

§3 実験結果の検討及び考察

1° 第2図から分るように, スリットとして Pb を用いると, γ -burst によるカウンターの不感時間は殆んど無くなった。従って, 種々の補正が必要なバナジウムによる $i(\lambda)$ の測定は不要になったと言える。しかしながら, direct に測定した $i(\lambda)$ に対しても, 今後, 分解能関数等についての検討も必要であろうと思われる。

2° linac intensity による $i(\lambda)$ の変化を見るために, linac intensity を落して $i(\lambda)$ を測定し, その 50 チャンネル以上のデーターを最小二乗法に用いて, 次次のパラメーターを決めてみた。

$$i(\lambda) = \alpha \frac{1}{t} e^{-\gamma/t^2}$$

(α , β , γ は fitting parameter, t はチャンネル数)

α は $i(t)$ の形には無関係な尺度因子, β は主にカウンター効率に依存すると考えられるパラメーター (カウンターは ^3He -カウンターである), γ は主にターゲット-モデレーター系の温度に依存 (linac intensity に依存) すると考えられるパラメーターである。そのときの β , γ の値及び $\text{RF} = \frac{\sum |i_o - i_c|}{\sum |i_o|}$ の値を次に示す。

linac intensity	通常	中弱	弱
β	5.41	5.50	5.48
γ	1.31×10^4	1.32×10^4	1.35×10^4
RF	7.1 %	4.6 %	6.8 %

γ の値を比較すると, linac intensity が $i(\lambda)$ におよぼす影響は, 殆んど無視し得る程度のものであると言える。第5図に linac intensity (通常) のデータと最小二乗法による計算との fitting の様子を示す。

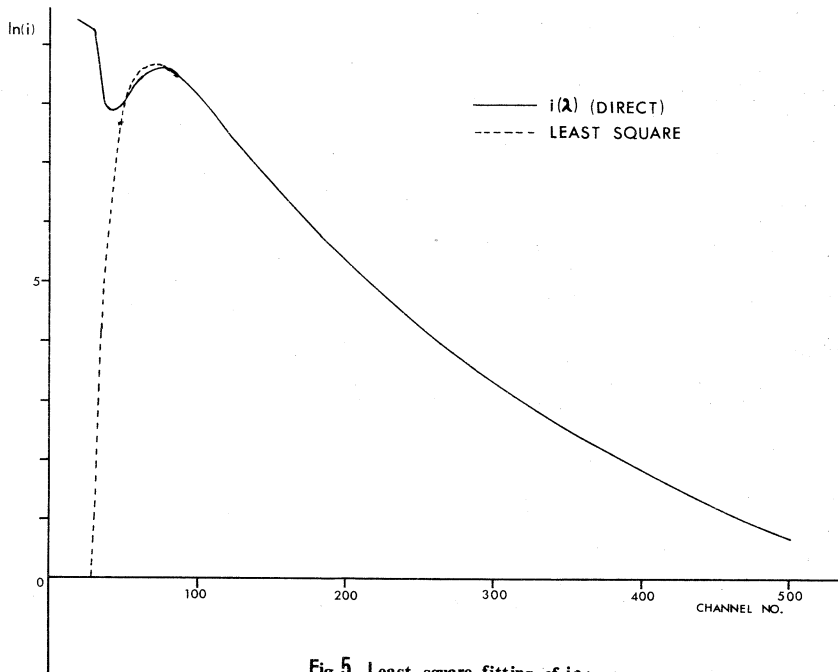


Fig.5 Least square fitting of $i(\lambda)$

3° 第4図は direct な $i(\lambda)$ と、CuCl₁からの $i(\lambda)Y(\lambda)$ とを、100チャンネル付近で一致するようにして書いたものであるが、[111]のみ 2θ を変化させて測定したので、はっきりとした Extinction が見られる。その他、図中に指数をつけた [220]、[311]、[400] など十分に Extinction が考えられる反射である。これらの反射についても、今後 2θ を変化させて測定していけば、更にはっきりすると思われる。しかしながら、定量的に見た場合、例えば290チャンネル以上の [111] では90%以上も強度が落ちている。これをそのまま Extinction として見てよいのかどうかは、疑問である。

4° 第4図の低チャンネル側の不一致(20~50%程度)は、未だ不明であるが、考えられる一つの原因として、TDSの補正が行われていないためと思われる。TDSの補正については現在検討中であり、次回以降報告することにする。

5° ブラッグピークの半値幅は、高チャンネル側(70チャンネル以上)では、ほぼ 5 ± 1 チャンネル程度であるが、低チャンネル側では、2~3チャンネル程度になっている。これは低チャンネル側のバックグラウンドの引き方が、ピークの重なりやTDSなどのために、うまくいっていないためと思われる。今後、この点についても検討を重ねていく。

§ 4 結語及び今後の方針

以上のように単結晶構造解析の検討を続けているが、 $i(\lambda)$ に関しては、ほぼその測定が可能になったと言える。しかしながら、実際のブラッグ反射の測定に際しては、低チャンネル側は、TDSその他不明の点があり、高チャンネル側も Extinction があるため、現在の所、必ずしも正確には direct に測定した $i(\lambda)$ との比較はできない。Extinction については、現在行っている CuCl₁の粉末結晶の測定によって、ある程度解決すると思われる。又、Pbブロックのスリット及び、現在検討中のカウンターシールドの改良などによって、今までよりも、バックグラウンドがかなり低くなることが期待される。TOF法により単結晶構造解析を行うには、まだまだ検討すべき点が多い。今後、一つずつ、今まで述べてきたことを解決して行くつもりである。

今回の実験において、いろいろ御教示いただいた、富吉昇一氏及び渡辺昇助教授、核理研の皆様へ感謝致します。

なお、最小二乗法の計算には、名古屋大学の大型計算機を使用した。

参 考 文 献

- 1) 新村信雄, 原田仁平, 高橋順一: 核理研研究報告 Vol. 6 No. 2(1973) 268
- 2) J. Harada, M. Sakata: Acta Cryst (in print)
- 3) K. D. Rousl, M J Cooper: Acta Cryst. **A26** (1970) 682

Ⅱ - 9 四軸型ゴニオメータの制御系

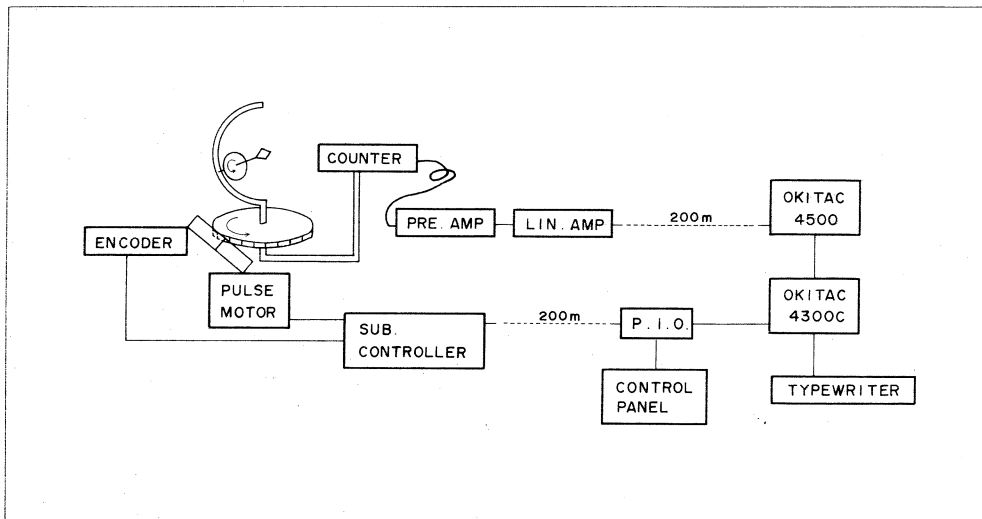
核理研 窪田健雄・新村信雄・小山田正幸

§1 序

TOF法中性子回折による精密結晶構造解析¹⁾に利用する、四軸型ゴニオメータを製作した。本稿ではその制御系の概要について報告する。ゴニオメーター本体の機械系及びその性能は他の報告を参照下さい。

§2 概 要

ゴニオメーター制御装置はミニコン(0-4300)を中心にコントロールパネル、サブコントローラーより構成されており、全体のブロックを第1図に示す。制御装置は、実験室と測定室に2分して設置され、両室間は約200mのケーブルで接続されている。測定室には制御の中心部となるミニコン、コントロールパネル、角度表示器、入出力用タイプ等が設置され、これらをメインコントローラーと呼んでいる。又実験室には手動操作の為のスイッチ、信号の送受信回路等のサブコントローラーとパルスモーター駆動回路、ロータリーエンコーダーのンプ、電源等が設置



第1図

されている。又中性子回折測定用のカウンターからの信号は他のケーブルを用いて時間分析装置を通してオンラインデータ集積装置(0-4500)に接続されている。²⁾

このシステムの特徴は第1図からもわかるようにゴニオメーターの制御にデータ集積用の計算機を利用せずに、別のミニコンを用いていることであり、計算機を分離することにより、データ集積用のプログラムとゴニオメーターコントロール用のプログラムが分離でき、互に影響なくソフトウェア等のレベルアップの作業を進める事が出来る。又こうすることによりミニコンが単にゴニオメーターの制御だけでなく、サンプルの環境等(例えば温度)の制御にも利用することが容易に行なえる。

両者間は比較的高速の回路で接続され、中性子回折データ、測定したいブラッグ反射の各軸の角度値、ゴニオメーターの駆動時期のパラメーター等の送受はこれにより行う。この接続で両者のプログラムに影響を与えるのは単にパラメーターのやりとりの為の部分に限られる。

§3 動作

第2図は制御装置のブロック図でこれには入出力タイプ、パルスモーター駆動装置、ロータリーエンコーダーのアンプ等は除いてある。尚ゴニオメーター本体と制御装置の主な仕様を下に記す。

○ゴニオメーター本体

軸数 4軸 (θ , ω , χ , ϕ)

駆動方式 パルスモーター(山洋電気製 103-701)

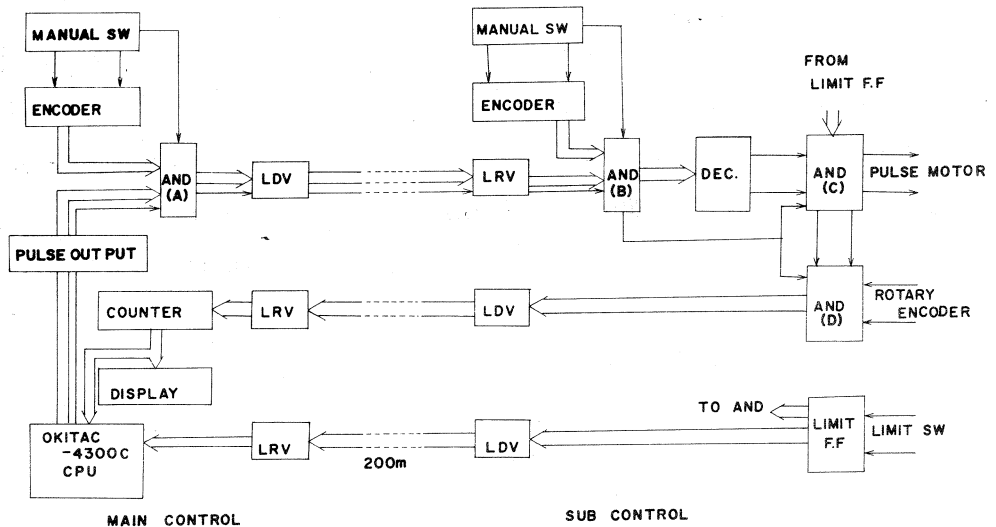
角度検出 ロータリーエンコーダー(ニコン RM-1000)

駆動単位 θ , ϕ 0.005°/1ステップ

ω , χ 0.00125°/1ステップ

○制御装置

- 専用のミニコンを用いる。
- 測定室、実験室の両室に手動操作回路を用意する。
- 角度表示は正負の真値とする、最大値は±180,000とする。
- ケーブルはツイストペアとし、送受信回路には、ICのSN 75110 NとSN 75107Nを用いる。



BLOCK CHART

第 2 図

1. 駆 動

駆動信号はメインコントローラーより駆動すべき軸の信号 2 本と、方向、駆動ステップ数のパルス列各 1 本の計 4 本の信号でサブコントローラーに送られ、サブコントローラーはそれをデコードして各パルスモーターの駆動回路に送る。即ち、CPUより軸と方向の信号、ステップ数をパルスアウト回路に送りそこでステップ数をパルス列に変換する。又手動の場合はスイッチからの信号をエンコーダーに入れて、CPUの時と同じように 3 本の信号とパルス列に変換してアンド(A)に送る。アンド(A)は、コントロールパネルのスイッチにより、CPU又は手動のどちらかの信号をラインドライバーを通して、サブコントローラーに送出する。サブコントローラーではサブコントローラーについている手動の場合の信号とをアンド(B)で切換えてどちらかの信号をデコードしてアンド(C)に送る。アンド(C)では指定された軸と方向がリミットになっていなければパルスモーター駆動回路に信号を送り、ゴニオメーターの駆動を開始する。又アンド(C)を用いて、テスト及び角度設定の為にパルスモーターを駆動しないで、駆動信号をロータリーエンコーダーの信号としてアンド(D)を通してメインコントロールに送出することが出来る。

2. 角 度 検 出

1.の駆動によりロータリーエンコーダーは角度検出を始め $\pm 90^\circ$ の位相差の 2 つの方形波をサブコントロールに送出する、(位相差の正負は回転方向により決まる)サブコントロールではア

ンド(D)を通してメインコントロールに送出する。メインコントロールではこの信号によりUP/DOWNカウンタを動作させ角度表示すると共に必要な場合にはCPUよりのREAD命令でカウンタの内容を知ることが出来る。カウンタは±の真値を表示するために零を横切る時にUP/DOWNを切替えている。

3. リミット信号

リミットは各軸のオーバーランをさける為に各軸に機械的に設定されたリミットスイッチを設け、この信号により、パルスモーターの駆動を停止させると共に、CPUに対して割込み信号を出し、軸のリミットにきた事を知らせる。測定室コントロールパネル上のランプを点燈しリミット信号の受信を表示できるようになっている。

参 考 文 献

- 1) 新村信雄 原田仁平, 高橋順一: 核理研研究報告 Vol. 6 No. 2 (1973) 268
- 2) 新村, 渡辺, 富吉, 山田, 大空, 窪田, 小山田: 核理研研究報告 Vol. 6 No. 2 (1973) 319

II-10 Np²³⁷ Mössbauer Probe Embedded in Uranium Dioxide by Means of U²³⁸ (γ/n)U²³⁷

選研・東北工大*・工学部無所属**

大川 淳, 庄司忠良*, 松井啓治**

Abstract

Uranium dioxide single crystals are irradiated by bremsstrahlung of its maximum energies of 35-65MeV. Practically pure U²³⁷ sources are prepared by the irradiations. The Np²³⁷ 59.54Kev Mössbauer spectrum at 78°K shows unresolved structure extending over -1 to +1 cm/s. An annealing in hydrogen at 800°C removes the radiation damage effects to produce isolated Np⁴⁺ ion at normal uranium site, which is detected as a singlet line with isomer shift value +0.093 cm/s and line width 0.15 cm/s.

Introduction

The Np²³⁷ 59.54Kev Mössbauer effect has been most extensively studied among actinide Mössbauer nuclei since it provides a means of high resolution hyperfine field study.¹⁻⁷⁾ Three kinds of parent nuclei are available, as shown in Fig.1.²⁾

The interest of the present work is to test the applicability of the U²³⁷ parent probe to lattice defect study in uranium compounds. Thanks to the 300 Mev electron linear accelerator at the Laboratory of Nuclear Science, the probe is directly introduced in UO₂ lattice by means of U²³⁸ (γ/n)U²³⁷.

A. Ohkawa: Research Institute of Mineral Dressing and Metallurgy

T. Shoji: Tohoku Insitute of Technology

K. Matsui: Faculty of Engineering

Experimental Procedure

Stoichiometric UO_2 single crystallites of 1 mm in their size were irradiated in water by the bremsstrahlung from 2 mm thick Pt converter. The energy of the electrons incident on the converter was varied from 35.5 to 65 Mev to find an optimum condition of the source preparation. Pulse height analyses of these specimens were made using Ge(Li) low energy photon counter (Ortec/8113.) and 4096ch analyser (Toshiba/USC-1 Model 10).

The specimens for Mössbauer effect measurements were similarly prepared by an irradiation of $50\text{Mev} \times 8\text{hr} \times 100 \mu\text{A}$. The specimen-1 was a single crystal of 70mg with defined composition $\text{UO}_{2.04}$. The specimen-2 was crystallites of 60mg which underwent an annealing treatment of $800^\circ\text{C} \times 1\text{hr}$ in hydrogen after the irradiation.

Both of the specimen and absorber ($200\text{mg}/\text{cm}^2 \text{ Np}^{237} \text{ O}_2/\text{Radiochemical Centre}$) were immersed in liquid nitrogen. The specimen was driven by a plastic rod connected to transducer to give velocity spanning -1.5 and $+1.5 \text{ cm/s}$.

The γ -rays detected by 2 mm thick NaI(Tl) scintillation counter were registered in 400ch analyser (Toshiba/USC EDS-34802) in time-mode operation. The measurements commenced 4

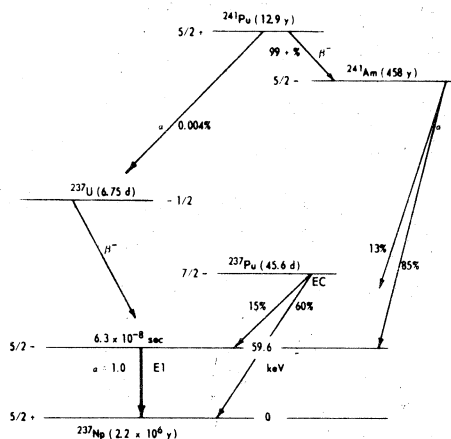


Fig.1 Partial decay scheme to levels of Np^{237} (after Ref.2).

days after the irradiation and ceased in a week.

Results and Discussion

Fig.2 shows a typical PHA spectrum obtained by the Ge(Li) counter about 8 hrs after the irradiations. The irradiations of 35–65Mev turned out to induce practically pure U^{237} source so far as the low energy part around 59.54keV was concerned. In practice the backgrounds due to the NpO_2 absorber, as given in Fig.2, claim for a high-resolution detector, if single crystal source (available only in small size) is preferred in the Mössbauer effect measurements.

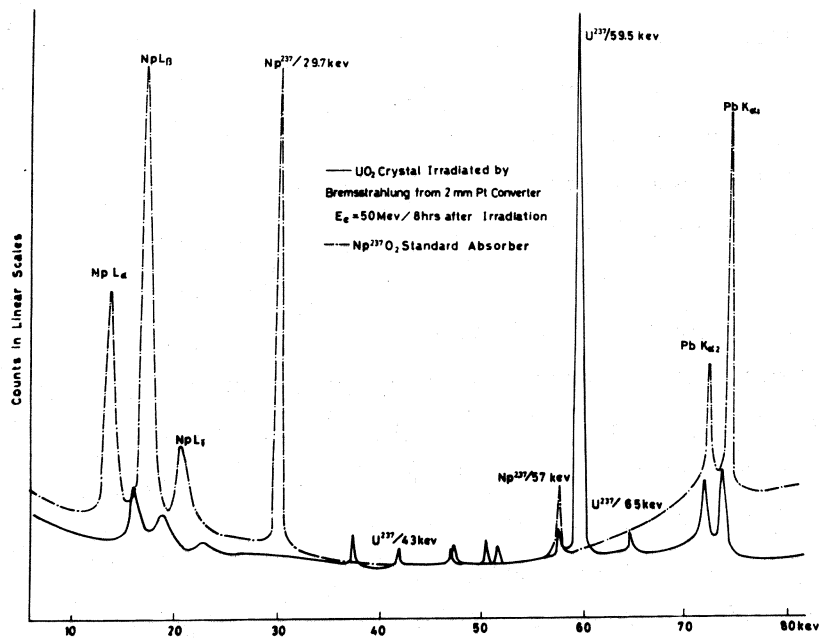


Fig.2: PHA spectrum of irradiated UO_2 (solid line) around the 59.54keV Mössbauer γ -rays, showing U^{237} γ -ray peaks at 38.5, 43.4, 51.0, 59.54, and 64.8 keV. PHA spectrum of $Np^{237}O_2$ standard absorber (dotted line) with γ -ray peaks at 29.6 and 56.8 keV.

Fig.3 indicates relative U^{237} yield as a function of the electron energy, suggesting an optimum energy at around 35MeV. For the sake of compatibility with the concurrently running Ga^{73} source preparation⁸⁾, 50MeV irradiation was made for the Mössbauer sources.

The source strengths in the Mössbauer measurements were such that the U^{237} 59.54keV peak heights were 2-3 times larger than those of the Np^{237} 56.8keV peak shown in Fig.2. Serious deterioration in signal-to-noise ratio was caused by the low resolution of the NaI(Tl) scintillator employed: disturbance came from Np KX, Np 86.9keV and their escape peaks.

In spite of the low s/n ratios, the Mössbauer spectra shown in Fig.4 can be interpreted as follows. The single line found in the fully annealed specimen-2 (Fig.4/lower) has an isomer shift +0.093 cm/s relative to Np^{+4} in NpO_2 absorber. The 5f-electron density on the Np^{+4} ion in UO_2 is found to be higher only by 3% than the normal Np^{+4} ion in the absorber,³⁾ suggesting that the probe occupies normal uranium site. The half width 0.15 cm/s is still 20 times as large as the natural observable width $2\Gamma_0 = 0.0073$ cm/s but one of the narrowest lines reported so far.⁶ The Np^{+4} ion is therefore concluded as substitutional free from nearby disorders.

A direct application of the substitutional U^{237} probe is the study of oxydation of UO_2 where non-stoichiometry problems are involved.⁹⁾ To preserve charge neutrality, 1/5 of the probes are expected to change into U^{+5} in U_4O_9 ¹⁰⁾ Similarly 1/3 and 2/3 should appear in U_3O_8 as U^{+6} and U^{+5} , respectively.¹¹⁾ In

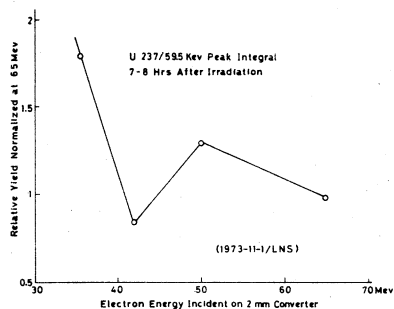


Fig.3: Relative U^{237} yield vs bombarding energy, normalized at 65MeV.

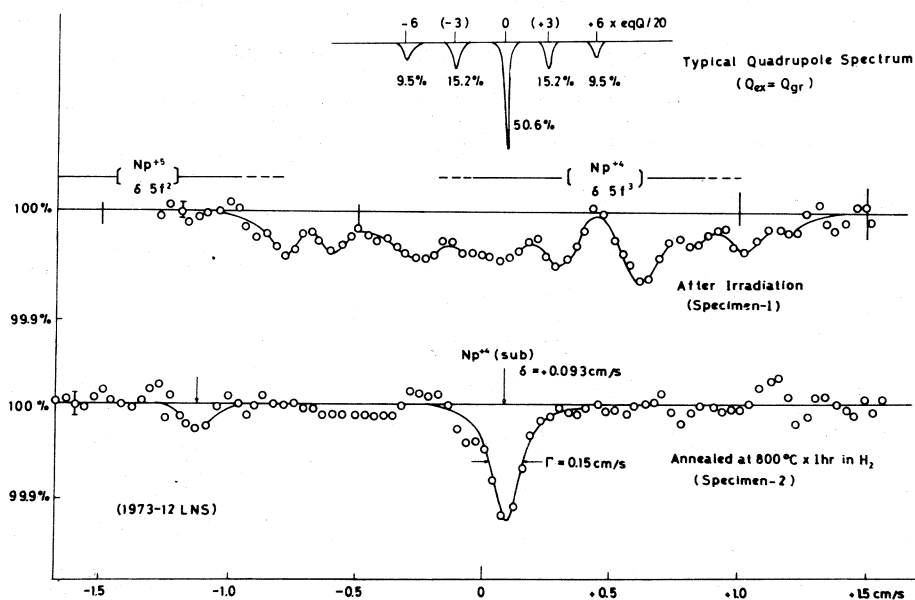


Fig.4: Mössbauer spectra relative to $200 \text{ mg/cm}^2 \text{ Np}^{237} \text{O}_2$ absorber at 78°K : Top/quadrupole spectrum pattern for axially symmetric electric field gradients, Upper/spectrum without annealing, and Lower/annealed in hydrogen for 1 hr at 800°C .

fact two different charge states have been reported for $\text{Np}_3\text{O}_8^{(3)}$. The probe before the Mössbauer emission is chemically indistinguishable from normal uranium ions. It is expected to carry over informations on charge distributions.

The spectrum found for the unannealed specimen-1 (Fig.4/upper) cannot be resolved at this stage of the experiment. It is indicative of split lines by quadrupole interaction due to the crystal fields of the nearby defects. Such probe-defect associations are highly probable, since each of the U^{237} probes necessarily undergoes recoil events by the emission of fast neutron from excited U^{238} nucleus. Annealings up to 800°C are expected to unravel the recoil damage structures.

The following improvements of the instruments are thought to be indispensable for further development: (a) to employ high resolution γ -ray detector like Ge(Li) counter used in the PHA analyses, and (b) to adopt high compliance transducer for the investigation of Np^{+5} and Np^{+6} range.

Conclusion

Experimental conditions are examined to apply the Np^{237} 59.54keV Mössbauer effect for lattice defect study in uranium compounds through U^{237} parent probe produced by photonuclear reaction. Recoil damage effects are found to recover by annealing, producing isolated Np^{+4} ion at normal uranium site.

Acknowledgment

The reporters wish to thank Prof. M. Yagi and Dr. K. Kondo for the use of Ge(Li) low energy photon counter, and Mr. O. Konno for the LINIAC irradiations. Prof. K. Naito (Nagoya University) kindly provided the reporters with UO_2 single crystals used in the experiment.

References

- (1) J. A. Stone and W. L. Pillinger: Phys. Rev. Lett., **13**, (1964) 200
- (2) J. A. Stone: "Applications of the Mössbauer Effect in Chemistry and Solid-State Physics," (IAEA, Vienna, 1966), p.179
- (3) J. A. Stone and W. L. Pillinger: Symp. Faraday Soc., No.1, (1967) 77
- (4) J. A. Stone and W. L. Pillinger: Phys. Rev., **165** (1968) 1319
- (5) W. L. Pillinger and J. A. Stone: "Mössbauer Effect Methodology," ed. I. J. Gruverman, Vol.4, (Plenum Press,

New York, 1968), p.217

- (6) B. D. Dunlap, G. M. Kalvius, S. L. Ruby, M. B. Brodsky, and D. Cohen: *Phys. Rev.*, **171**, (1968) 316
- (7) J. A. Stone, W. L. Pillinger, and D. G. Karraker: *J. Inorg. Chem.*, **8**, (1969) 2519
- (8) K. Matsui, O. Konno, and S. Ishino: a report in this issue.
- (9) B. T. M. Willis: *J. de physique*, **25**, (1964) 431
- (10) B. Belbeoch, C. Piekarski, and P. Péro: *Acta Cryst.*, **14**, (1961) 837
- (11) B. O. Loopstra: *Acta Cryst.*, **17**, (1964) 651

II-11 Preparation of Ga^{73} Mössbauer Source in Germanium through Photonuclear Reactions

工学部無所属・核理研*・東大工学部原子力**

松井啓治, 今野 収*, 石野 栞**

The optimum conditions of Ga^{73} source preparation and Mössbauer scattering experiment for the 13.3keV level of Ge^{73} have been examined with the use of Ge(Li) low energy photon counter.

Introduction

In previous papers^{1,2)} indications of the Mössbauer resonant scattering for the 13.3keV level of Ge^{73} were reported for Ga^{73} parent probe directly embedded in germanium crystals through $Ge^{74}(\gamma/p) Ga^{73}$. It was found that improvements in signal-to-noise ratios were essential to determine defect structures involved.

The problems are twofold; (a) to find irradiation conditions to give maximum Ga^{73} yield relative to other byproducts and (b) to establish favourable conditions to allow maximum Mössbauer scattering component relative to others. These analyses become feasible by the Ge(Li) low energy photon counter lately available at the Laboratory of Nuclear Science.

K. Matsui/Faculty of Engineering

O. Konno/Laboratory of Nuclear Science

S. Ishino/Department of Nuclear Engineering, University of Tokyo

Experimental

Pure germanium wafers of thickness 200–350 μm were irradiated in water by the bremsstrahlung from 2 mm thick platinum converter which was bombarded by electrons of 35.5 to 65 Mev. Pulse height analyses of these specimens were made for 5 to 600 keV by Ortec 8113 Ge(Li) LEPS, Ortec 716A amplifier and Toshiba USC-1 Model-10 4096ch analyser.

Mössbauer effect measurements were tried for 200 μm thick p-type crystals (10^{14} Ga/cm³) irradiated similarly for 8 hrs with 50 Mev electrons. The specimens were subsequently annealed at 500°C for 30 min. The Ge KX-rays scattered by 125° were detected by the LEPS coupled with Ortec 450 amplifier and Toshiba USC EDS-34802 400ch analyser in time-mode operation.

Results and Discussion

The isotopic abundance of natural germanium and the half-lives of the products through (γ/n) and (γ/p) reactions happen to be such that the emission from Ga⁷³ predominates over others for about 10 hrs after irradiation.¹⁾ The success of the Mössbauer experiment depends not only on the Ga⁷³ yield alone but on the details of the pulse height spectrum in Ge KX-ray region.

Fig.1 shows relative yields of a few nuclides versus electron energy of irradiation. Aside from two dips found at 42.5 and 57.5 Mev, there are tendencies that Ge⁷⁶ (γ/n) Ge⁷⁵ reaction depends little on electron energy while Ge⁷⁰ (γ/np) Ga⁶⁸ yield makes steep rise with energy, as expected. The Ga⁷³ yield, formally given by Ge⁷⁴ (γ/p) + Ge⁷⁶ ($\gamma/2np$), shows mild rise similar to the yield of Ge⁶⁹ given by Ge⁷⁰ (γ/n) + Ge⁷² ($\gamma/3n$).

The EC decay (67%) of Ge⁶⁹ is significantly harmful to the s/n ratio of Ge KX-rays by emitting Ga KX-rays, as shown later. Unfortunately the Ga⁷³/Ge⁶⁹ yield ratio rises only by 30% at

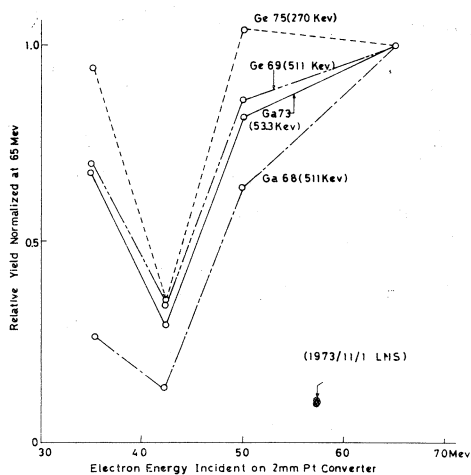


Fig.1 Relative yield normalized for 65Mev irradiation. The dip at 57.5Mev was observed twice.

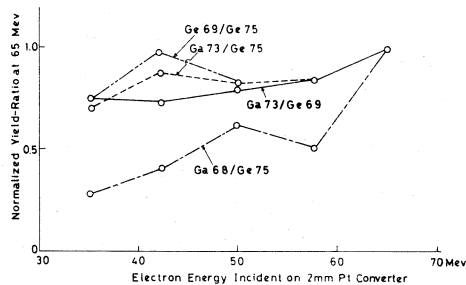


Fig.2 Yield ratio normalized for 65Mev irradiation.

65Mev, as shown in Fig.2. The situation becomes much worse for the electron energies below 35Mev.³⁾

Formal reaction products up to ($\gamma/2p$) are summarized in Tab.1. Presumably the reactions up to ($\gamma/3n$) are thought to be operative for irradiations of 50–65Mev. As the bremsstrahlung spectrum is rather flat in its nature, further verifications must be made before asking whether the dips in Fig.1 are to be related with preferential production of stable or long-life nuclides like the ($\gamma/2n$) products in Tab.1.

The pulse height spectra of the Ge KX-ray region are shown in Fig.3, which suggests that the predominance of Ga⁷³ emission ceases within 10 hrs after 65Mev irradiation. The Ge KX-rays in Fig.3 are not necessarily due to the full conversion⁴⁾ of the 13.3keV γ -rays from Ga⁷³. In fact the Ge K α peak integral is larger than the 53.3keV Ga⁷³ peak integral during a few hours after irradiation, as shown in Fig.4. The difference is thought to arise from β -decays of Ge⁷⁵, etc.

Tab.1: Formal reaction products, decay modes and half-lives

	Ge ⁷⁰ 20.52%	Ge ⁷² 27.43%	Ge ⁷³ 7.76%	Ge ⁷⁴ 36.54%	Ge ⁷⁶ 7.76%
(γ/n) Ge ^A	69/ β^+ & EC 39.6 h	71/EC 11.4 d	72/ ∞	73/ ∞	75/ β 82m
(γ/p) Ga ^A	69/ ∞	71/ ∞	72/ β^- 14.1 h	73/ β^- 4.9 h	—
($\gamma/2n$) Ge ^A	68/EC 230 d	70/ ∞	71/EC 11.4 d	72/ ∞	74/ ∞
(γ/np) Ga ^A	68/ β^+ & EC 68m	70/ β^- 21.1m	71/ ∞	72/ β^- 14.1 h	74/ β^- 7.8m
($\gamma/3n$) Ge ^A	67/ β^+ & EC 21m	69/ β^+ & EC 39.6 h	70/ ∞	71/EC 11.4 d	73/ ∞
($\gamma/2np$) Ga ^A	67/EC 77.9 h	69/ ∞	70/ β^- 21.1m	71/ ∞	73/ ∞
($\gamma/2p$) Zn ^A	68/ ∞	70/ ∞	71/ β^- 2.2m & 3 h	72/ β^- 49 h	—

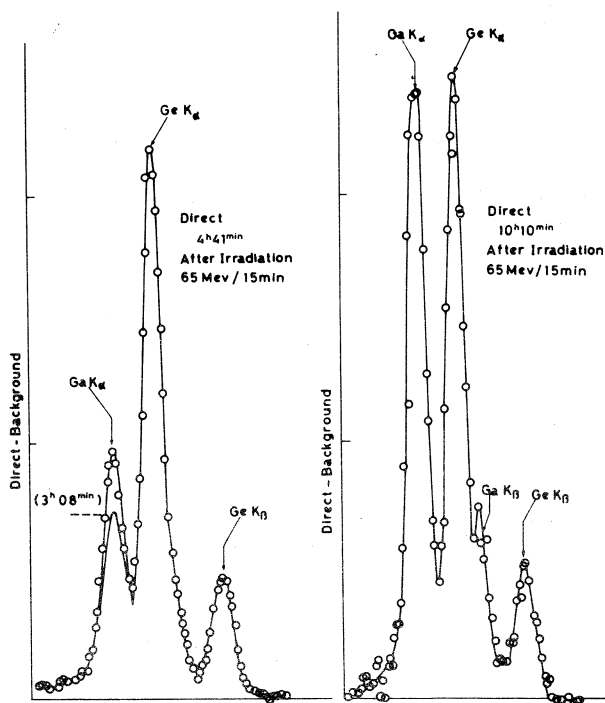


Fig.3 PHA spectra in Ge KX-ray region.

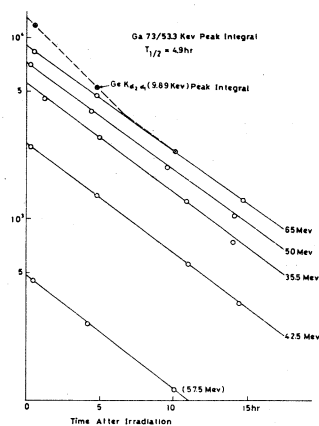


Fig.4 The decays of 53.3keV peak integral due to Ga.⁷³ The Ge K α peak integral does not coincide with that of 53.3keV, suggesting the rôle of short-life byproducts.

A scattering spectrum to be compared with the direct components in Fig.3 is shown in Fig.5. In this case the emissions from the source were made to scatter at right angle by 0.5 mm thick germanium wafer with (111) face. The detector was shielded from direct beam by 1 cm thick acryl and 2.5 cm thick lead. The intensity of the scattered beam remained a few percents of the direct beam. There were continuous backgrounds 50% as strong as the Ge K α peak in Fig.5.

Under assumption that a disintegration of Ga⁷³ in the source produces an emission composed of one 53.3keV-, one Ge KX-, and (1/1080) 13.3keV-photons,⁴⁾ relative intensity and range are compared in Tab.2 for various scattering processes to yield photons in the Ge KX-ray region. Formulae of Franz⁵⁾ and of Stobbe⁶⁾ were used to obtain the cross sections of Rayleigh

scattering and of photoelectric absorption, respectively.

The spectrum in Fig. 5 comprises scattering processes other than Mössbauer scattering. Since the Ga KX-rays in Fig. 5 can only be ascribed to the Rayleigh component, pure Rayleigh scattering spectrum should appear as the left side one with Ga K α peak correction to 3.08 hr. The Ge KX-rays in Fig. 5 are

considered to involve substantial photoelectric components other than that of 53.3keV γ -rays from Ga.³ The contribution of the photoelectric process is being evaluated in an experiment carried out at Kyoto University Reactor Institute.³⁾

The Mössbauer spectra obtained for a p-type source are indicated in Fig. 6. The scattering angle was chosen to 125° to minimize Rayleigh component. The γ -rays were monitored along [111] axis of the source. The shaping time constants of the Ortec 450 amplifier were set to 0.1-0.1 μ s to avoid saturation.

The spectra were studied for the conditions in which the β -recoiled interstitials should appear in trapped and converted states.^{4,2)} In fact a sort of Fermi-level or temperature

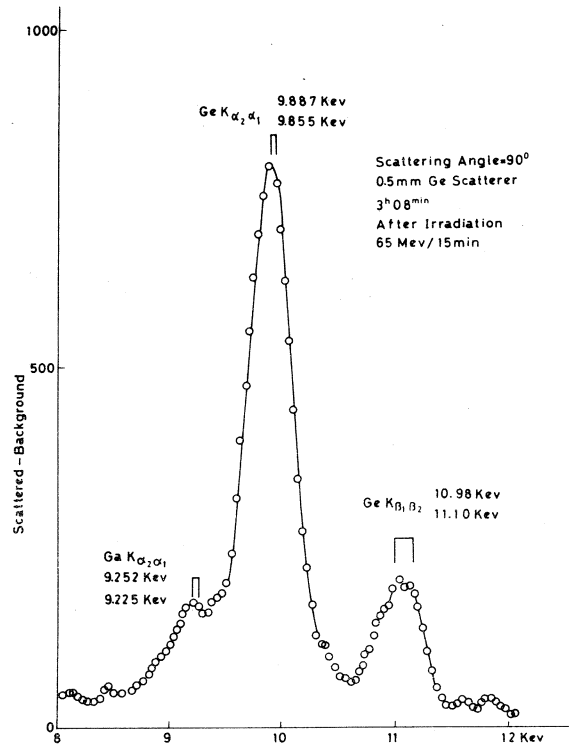


Fig. 5 PHA spectrum for 90° scattering. About 50% of the Ge K α arise through Rayleigh scattering.

Tab.2: Scattering of an emission composed of one Ge $K\alpha$ -,
(1/1080) 13.3keV-, and one 53.3keV-photons

process	relative intensity ⁽¹⁾	range ⁽²⁾
Compton scattering (90°) K α → 9.7 keV	1.4 %	10500 μm
Rayleigh scattering (90°) K α → K α	46.4	313
Photoelectric fluorescence 53.3 keV → K α	11.8	1230
Mössbauer scattering 13.3 keV → K α	40.4	357
Photoelectric absorption of 13.3 keV photon		50

(1) $100\% \sigma_K / \Sigma \sigma_K$

(2) 63.2% lost in the range

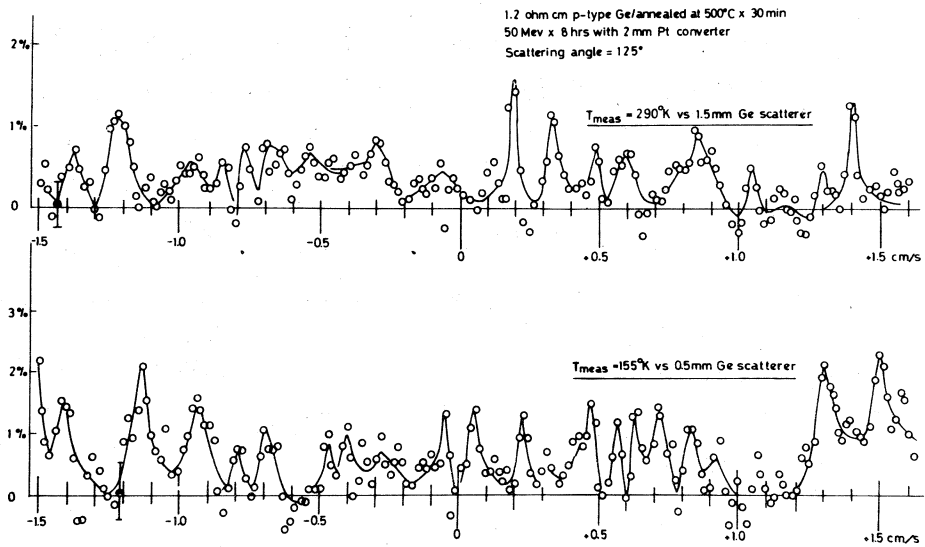


Fig.6 Mössbauer scattering spectra obtained for geometry giving baseline curvature less than 0.02%. Most of the peaks fall within statistical errors.

dependence seems to exist over the wide velocity range in Fig.6. The low s/n ratios due to high backgrounds made, however, detailed analysis impossible.

It is true that most of the 13.3keV γ -rays from the source are lost by photoelectric absorption beyond a penetration depth 100 μm in the scatterer. An ideal scatterer, black as regards to Mössbauer scattering and transparent to others, is 100 μm thick material highly enriched with Ge^{73} , as shown in Tab.2. Experiments with enriched scatterer are being prepared for the next semester.

Acknowledgment

Dr. K. Kondo and Prof. M. Yagi are acknowledged with gratitudes for their courtesy in performing the pulse height analyses. Mr. A. Ohkawa and Mr. T. Shoji offered assistance in all phases of the experiment.

References

- (1) K. Matsui: Research Report of Laboratory of Nuclear Science (Univ. Tohoku) a) 4/1, 83(1971), b) 4/2, 93(1972), c) 4/2, 101(1972), d) 5/1, 120(1972)
- (2) K. Matsui, O. Konno, and S. Ishino: "Radiation Damages and Defects in Semiconductors", p.447 (Institute of Physics/London, 1973)
- (3) S. Ishino and K. Matsui: Reports to the Kyoto University Reactor Institute for academic year 1973.
- (4) D. G. Douglas: Can. J. Phys., 47, (1969) 1813
- (5) W. Franz: Z. f. Phys., 98, 314(1935)/ formula cited in "Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy", ed. K. Siegbahn, p.528 (North-Holland/Amsterdam, 1955)
- (6) M. Stobbe: Ann. d. Phys., 7, (1930) 661/ formula cited in "Quantum Theory of Radiation", W. Heitler, ch.5 (Oxford, 1954)

III. 放 射 化 学 部 門

III - 1 ^{73m}Se , ^{73g}Se の壊変

理学部化学 玉木洋一*・藤田敬一**
鍛冶東海・塩川孝信

1 緒 言

質量, $20 < Z < 40$, $20 < N < 50$ の領域の核レベルについては典型的な核模型が存在せず, また奇質量核, 奇-奇核についてはさらに $n-p$ 相互作用などの因子が大きく働き複雑になっている。今回実験を行った $^{73}\text{Se} - ^{73}\text{As}$ もこのような領域にあり, 最近ニールソン模型を変形した計算が行われており^{1,2)} 粒子数はまだ多くはないが集団運動の性格が強く, 中性子, 陽子の疑似粒子準位とのカップリングが起こっており, 核種が異っても同じ性格のレベルの配列をすることがわかってきている。

^{73}As レベルの研究については半導体検出器を用いた詳しい実験がなされている^{3,4)} が, 励起エネルギー 250 ~ 1,800 keV の領域で, 実験者によって異ったエネルギーレベルの値を得ており, またさらに高いエネルギーに新しいレベルが存在する可能性がある。

これらの事より本実験では $^{73m,g}\text{Se}$ の壊変図を確立し, ^{73}As の励起レベルについての知見を得る事を目的とした。

2 実 験

測定試料: 照射試料は市販の特級亜セレン酸を用いた。 $^{73m,g}\text{Se}$ は電子線ライナックによる制動放射線 ($E_{\gamma, \text{max}} = 45, 60 \text{ MeV}$) を用いて $^{74}\text{Se}(\gamma, n)$ 反応によって得た。照射時間は ^{73m}Se , ^{73g}Se について各々 20 ~ 40 分, 3 ~ 6 時間である。妨害放射能を除くため照射後, ヒ素ゲルマニウムのキャリアーを入れた 9 N 塩酸に溶解し, 加熱後亜硫酸ガスを通じてセレン金属として沈殿分離し測定試料とした。化学分離は約 15 分, 照射後測定まで約 20 分を要した。

測定: 放射能の測定は全て γ -線で行い, 検出器はエネルギースペクトルの測定には 33 cc Ge (Li) を, コインシデンスのゲート側には γ -線のエネルギーに応じて X-線用 Ge (Li), $3'' \times 3'' \varnothing$ NaI (Tl) シンチレーターを使用した。光電ピークの計数効率⁵⁾ は ^{57}Co , ^{203}Hg , ^{22}Na , ^{137}Cs ,

* 現在宮城教育大学

** 現在ビジコン株式会社

^{54}Mn , ^{60}Co , ^{88}Y の標準線源によって求めた。r-r コインデンスはTPHCを用いた一般的なファースト、スローコインデンス回路を組み、分解時間 2τ を40~200 nsecの範囲で使用した。コインデンスの角度は β^+ の消滅r-線の妨害を避けるため全て 90° で行った。r線のエネルギースペクトルは東芝製USC-1 4096チャンネル波高分析器によって得た。

^{73m}Se : シングルスペクトルの各々の光電ピークについて壊変曲線を求め相対的な強度を得た。このうち31本のr線が ^{73m}Se であることを半減期から確認した。シングルスペクトルをFig. 1 (a)に示した。半減期の正確な値は394, 402 keVのr線から求め39.5分を得た。妨害核種は(n, n) 反応で生成する $^{81m,g}\text{Se}$, ^{83g}Se であった。r-r コインデンスはゲート側にX-線用Ge(Li)を用い、ゲートは85, 254 keVとした。85 keV r-線をゲートにした時のコインデンススペクトルをFig. 1 (b)に示した。基底状態へのIT壊変はエネルギーが26 keVと小さく 51 スピン変化からはほぼ100%が内部転換であるため、r-線測定ができない。このためIT壊変の分岐比は基底状態からの壊変のbuilt up から求めた。使用するr-線は分岐比が大きく妨害となるr-線のない361 keVが適当である。built upの様子をFig. 2に示した。この方法によるIT壊変の分岐比の決定には ^{73g}Se の壊変図を決定し、 ^{73m}Se の β^+ , EC壊変のみによる壊変図を作成した後ITと β^+ , ECの比を求める必要がある。

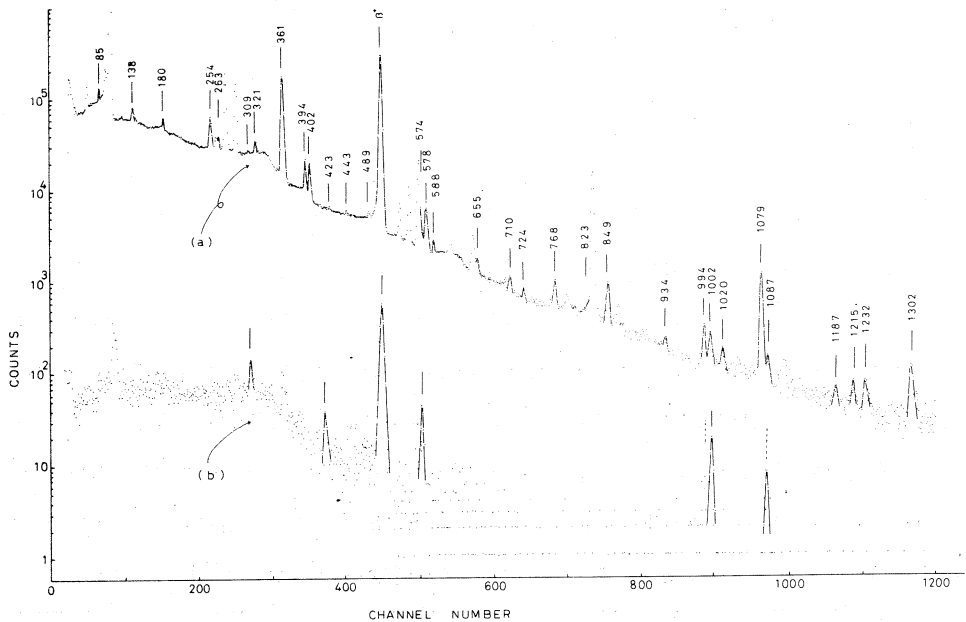


Fig. 1 Gamma ray spectra of ^{73m}Se decay. (a): single spectrum (counts/1024 sec)
(b): coincidence spectrum at the gate of 85 keV gamma ray (counts/8192 sec)

^{73g}Se : 半減期 (7.1 時間) から25本の r -線が ^{73g}Se と確認された。妨害核種はそれぞれ (r, n), ($r, 2n$) 反応によって生じる ^{75}Se と ^{72}Se の娘核種である ^{72}As であった。 r - r コインシデンスは67 keVと865 keVをゲートとした。865 keVのゲートはNa I (Tl)シンチレーターで行ったため約15%の847 keV r -線を含んでいる。

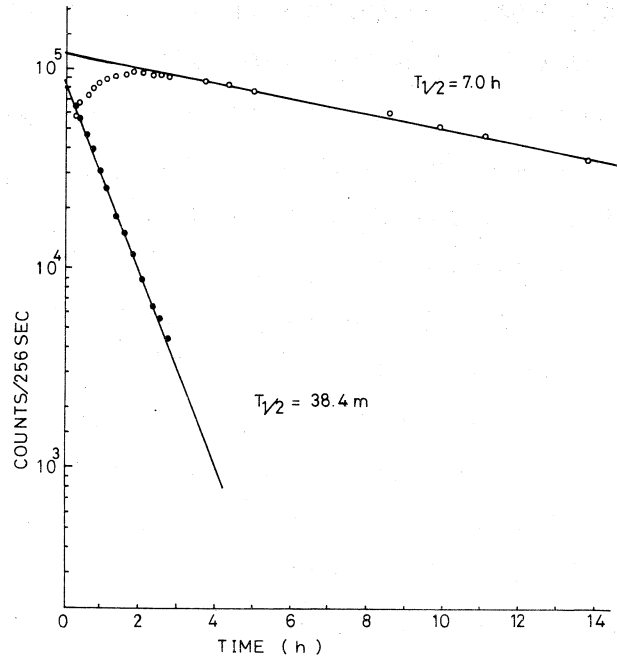


Fig. 2 Built up and decay curve of 361 KeV gamma ray.

3 結果および考察

以上の実験結果を Table 1 に示す。 r -線のエネルギー、強度

比、コインシデンスの結果と Ritz の結合原理、Kirchhoff の法則から衰変図を組み立てた。 β^+ と EC の比はスピン、パリティがすでに知られており、その変化がわかっているものについてはその理論値を用い、他のものは許容遷移と仮定して求めた。

^{73m}Se : Fig. 3(a) に結果を文献のレベル (b, c) と共に示す。図中、黒丸はコインシデンスする r -線を示し、白丸はコインシデンスする可能性のあるものです。Fig. 4 (b, c) に示すように励起エネルギーが 250~1,800 keV の領域で Marlow & Fass³⁾ と Murray⁴⁾ ではかなりくい違いがあるが、本実験では Marlow & Fass の値を支持する結果を得た。またコインシデンスの実験では彼らより良好な結果を得ており、より確かなものと思われる。IT の分岐比は 71% と決定された。Marlow & Fass の 1,958 keV レベルは遷移する r -線のエネルギー差から 1,695 keV レベルの方が適当であると思われるが確定的ではないので図の中には点線で示してある。

^{73m}Se のスピン、パリティ (Ω^π) は $1/2^-$ であり、 ^{73}As の基底状態は $3/2^-$ 、67 keV は $5/2^-$ と測定されている⁵⁾。logft の値からもこの 2 つのレベルの Ω^π は適当である。他のレベルについての Ω^π は 254 keV への遷移は第一禁制以上、その他のレベルは許容遷移か第一禁制遷移であるという事以外はわからず各々のレベルの Ω^π を決める事はできない。このうち 254 keV は強度

が強く、基底状態への遷移のみである事から小さいスピんで偶パリティであると考えられる。しかし 428 keV 以下での偶パリティの存在は ($^3\text{He}, d$) 反応⁶⁾ では見い出されておらず、また Coriolis force を考慮した計算でも現われず、レベルの帰属は不明である。

^{73g}Se : 結果を Fig. 4 に掲げる。表示法は Fig. 3 と同様である。本実験によって新たに 8 本の遷移と 1,753, 2,267, 2,310 keV の 3 本のレベルが加えられ、未確定であった 1,328 keV がコインシデンスの結果から決定された。

^{73g}Se の Ω^π が $7/2^+$ である事と $\log ft$ の値から、また Betts らの ($^3\text{He}, d$) 反応の実験⁶⁾ から 428, 510, 1,328, 1,753, 1,849 keV レベルの Ω^π は各々 $9/2^+$, $5/2^+$, $3/2^+$, $5/2^+$, $9/2^+$ と決定された。他の 1,179 から 2,310 keV までのレベルへは許容遷移か第一禁制遷移であり、これらのレベルは奇パリティであると思われるが Ω^π の値は決定できない。

以上の ^{73}Se の準安定状態と基底状態からの壊変で特徴的な事は ^{73m}Se と ^{73g}Se のスピンの差が大きいかもかわらず両遷移ともたくさんのレベルに分岐している。 $\log ft$ ははっきりと許容遷移とわかっているレベル以外は比較的大きい値である、などである。これらは遷移の段階で Configuration Mixing がかなり起こっていると考えれば説明できる。

以下に本研究の結果をまとめる。1) $^{73m,g}\text{Se}$ の壊変による ^{73}As レベルへの分岐, ^{73}As 励起レベルからの γ 遷移が実験によって求められ、新たに 9 本の遷移と 3 本の励起レベルが見い出された。2) 偶パリティのスピンのついてはそのレベルがかなり明確になったが、奇パリティをもつスピンのついては基底状態の近くの他はわかっていない。3) バックグラウンドのために十分に半減期を確認できない強度の弱い γ -線がまだ 4,5 本存在し、さらに実験条件を改善すれば $^{73m,g}\text{Se}$ に帰属させ得る可能性がある。4) ^{73}As 近傍の奇質量核では基底状態、励起レベルの低エネルギー部分においてそのエネルギー、スピン、パリティの値が非常に似たレベルが存在し、最近これらの核について、核の変形とそれに伴う Coriolis force, pairing force を考慮した系統的な研究がなされてきている^{1,2)}。今回のデータをこの解析に用いる事は有用であると思われる、 ^{73}As の励起レベルの性格について、さらに解析を進めている。

本研究を行うに当たり、いろいろお世話いただいた東北大学核理研の八木、近藤両博士およびライナック運転グループの方々に厚くお礼申し上げます。

^{73m}Se				^{73g}Se			
E_γ (keV)	Relative intensity	Coincidence gate	gate	E_γ (keV)	Relative intensity	Coincidence gate	gate
		85keV	254keV			67keV	847&865keV
85	20.9			67	70.5		
138	2.6			361	100.0	yes	
180	25.2			443	0.084	yes	
254	100.0			556	0.055		yes
263	= 5.0			578a)	0.12		prob.
309	9.5	yes		700	0.050		prob.
321	40.7		yes	765	0.22		prob.
394	76.8			783	0.098		prob.
402	65.0		yes	818	0.057		
443	1.7			847	0.17		
489	3.0			865	1.1		
570	= 15.0	prob.		901	0.26		
578	45.8			983	0.10		yes
588	3.4		prob.	1037a)	0.010		
655	6.4			1112	0.27	yes	
700	4.0			1339	0.15		
724	2.5			1421	0.40	prob.	
768	7.9			1483	0.06		
823	1.7			1548	0.04		
849	11.5			1753a)	0.018		
934	0.89			1801a)	0.034		
994	3.4	prob.		1851a)	0.013		
1002	2.8	yes		1883a)	0.044		
1020	1.9			β^+	71.0		
1079	27.3			681b)	≤ 0.05		yes
1087	1.4	prob.		1017a,b)	≤ 0.03		yes
1187	0.7			1225a,b)	≤ 0.01	yes	
1215	1.1						
1232	1.3						
1302	3.8						
β^+	1277						
423a)	≤ 1.0	prob.					

- a) new observed gamma-ray
b) Seen in coincidence only

Table 1 Observed energy and intensity of gammarays and coincidence results in the decay of ^{73m}Se and ^{73g}Se

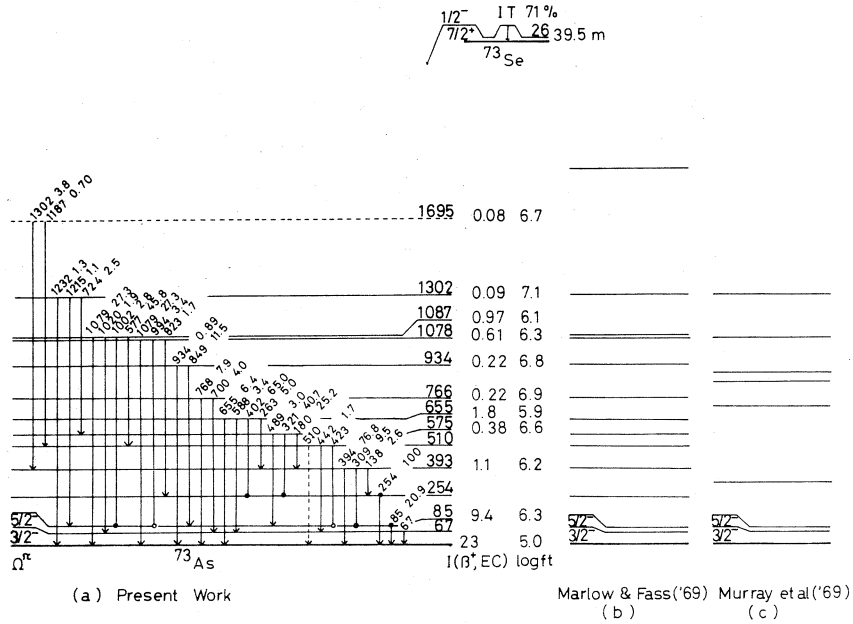


Fig. 3 Proposed decay scheme for ^{73m}Se

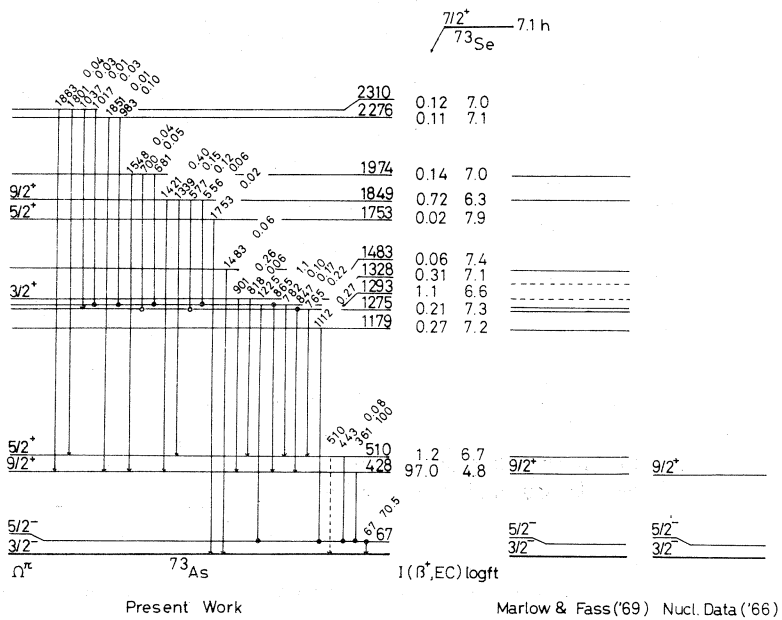


Fig. 4 Proposed decay scheme for ^{73g}Se

参 考 文 献

- 1) W. Scholz and F. B. Malik, Phys. Rev., 176, 1355(1968)。
- 2) N. Imanishi, M. Sakisaka and F. Fukuzawa, Nucl Phys, A125, 628(1969)。
- 3) K. W. Marlow and A. Fass, Nucl. Phys., A132, 339(1969)。
- 4) G. Murray, W. J. K. White and J. C. Willmott, Nucl Phys, A130, 563(1969)。
- 5) G. Murray, W. J. K. White and J. C. Willmott, Phys. Lett., 28B, 35(1968)。
- 6) R. R. Betts, D. J. Pullen and W. Scholz, Phys. Rev. Lett., 26, 1576(1971)。

III-2 Nondestructive Multielement Photon Activation Analysis of Environmental Materials

理学部化学 加藤 豊 明*

岩手大教養 佐藤 允 美**

Summary — A nondestructive photon activation procedure with 30 MeV bremsstrahlung followed by high-resolution gamma-spectrometry has been designed for the multielement analysis of environmental materials. Precision and accuracy of the method were tested by analyzing NBS standard reference material, Fly Ash, and abundance data for 17 elements were obtained. The agreement of the results with literature data, where comparable, is excellent. The method was then applied to the determination of up to 21 elements in atmospheric particulate matter collected on a Millipore filter. Those are As, Ca, Ce, Cl, Co, Cr, Fe, I, K, Mg, Mn, Na, Ni, Pb, Rb, Sb, Sr, Ti, Y, Zn and Zr.

Introduction

In view of the increasing concern regarding environmental pollution problems, much effort has so far been paid to develop improved techniques for the measurement of concentrations of elements in environmental materials, in particular, particulate materials or aerosols in the atmosphere. The method employed

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

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

must be sensitive, accurate, versatile, and, if possible, allow for the simultaneous determination of many elements. A serious problem with most analytical methods involving dissolution of the sample and subsequent wet chemical steps is the introduction of large errors either by loss or contamination of trace species during these chemical handling. Many of these difficulties are avoided by activation analysis without any chemical treatment prior to irradiation. Thus, instrumental neutron activation analysis has successfully applied to the measurement of concentrations of many elements in atmospheric particulate materials, but this method is not capable of analyzing all of the elements in them that are of considerable environmental concern. Alternate nuclear method which can meet the various requirements of the problem is photon activation analysis. Several reports have dealt with the instrumental photon activation analysis for multielement survey analysis of environmental materials, such as air pollution particulates^{1,2)} and muck soil samples.³⁾ We have presented a discussion of the principles and merits of non-destructive photon activation analysis in this application, together with the data of analyses of various silicate rocks^{4,5)} and several biological materials.^{6,7)}

In this paper, the method has been extended to the multi-element analysis of several environmental materials of current interest. Those were the NBS standard reference material, SRM-1633 Fly Ash, and atmospheric particulates collected on a Millipore filter from the urban atmosphere. The samples were irradiated with 30 MeV bremsstrahlung from a linear electron accelerator of Tohoku University, and, following irradiations, high-resolution gamma-ray spectrometry has been applied to them for intact measurements of various photon activation products. Elemental abundances of 17 elements in Fly Ash and 21 elements in the atmospheric particulates are presented in this work,

together with some filter blank data.

Experimental

Samples and irradiation

NBS SRM-1633, Fly Ash, was provided in a finely powdered form. This was sampled from six operating power plants in the United States. In five of the cases this was collected by electrostatic precipitators and in one case a mechanical collector was used. The fraction passing 170 mesh screen was taken.⁸⁾ An amount of this sample weighing 1 g was packed in a small piece of aluminum foil and made into a disk 13 mm in diameter with a thickness of about 5 mm.

Atmospheric particulates were collected by pumping 1000 m³ air through a 20 × 25 cm Millipore AA (0.8- μ pore diameter) membrane filter at 0.62 m³/min with a high-volume electric vacuum pump. This filter material has a collection efficiency for particulate materials down to the 0.1- μ range. Collection was carried out on the roof of the Miyagi Prefectural Office Building in Sendai, Japan. One major source of atmospheric pollution may be automobile exhaust from the heavy traffic just in the vicinity of this building. One-half of this filter was compressed into a cylindrical pellet 13 mm in diameter with a thickness of about 5 mm. The filter material with the same dimension was also compressed into a pellet for a blank study.

A comparative standard used in this experiment was a synthetic mixture containing 33 elements distributed evenly in a matrix of boric acid. The concentration levels of the elements in this mixture is shown in Table 1. One-gram of this mixture was compressed into a pellet 13 mm in diameter. The sample pellet and the multielement standards were encapsulated into a silica tube so that the standards were placed on the front and back of the sample for simultaneous irradiation. The

Table 1. Concentrations of the elements in a boric acid matrix multielement standard

Concentration level	Element
1 %	Ca, Cl, K, Na
0.5 %	Mg
200 ppm	Br, Cr, Cu, Fe, Mn, Ni, Pb, Ti, Zn
50 ppm	Ag, As, Ba, Cd, Ce, Co, Cs, I, In, Mo, Nb, Rb, Se, Sr, Sb, Te, Tl, Y, Zr

experimental conditions in the irradiation was just the same as described in our previous reports.^{6,7)}

Irradiations lasted 2 hours for Fly Ash and 6 hours for atmospheric particulates and filter material.

Counting and evaluation

Gamma-rays were observed with a 33-cm³ Ge(Li) detector coupled to a 4096-channel pulse-height analyzer. In the magnesium analysis in Fly Ash utilizing the ²⁵Mg(γ ,p) ²⁴Na reaction, the ²⁷Al(n, α) ²⁴Na reaction causes interferences, and, hence, an aluminum wrapper is a source of interference. After measurements of short-lived nuclides (³⁸K and ^{34m}Cl), therefore, aluminum foil was rejected and the content was again wrapped in fresh aluminum foil for further gamma-counting. The detail involving counting and data treatments for quantifications was also the same as described in our previous reports.^{6,7)}

Results and discussion

Gamma-rays observed

Gamma-rays observed in an irradiated multielement standard and sample materials are listed in Table 2 in ascending order of their energies. The nuclidic assignment of the gamma-rays was based on the experimental data previously reported⁹⁾ and on the literature data for the nuclides.¹⁰⁾

Table 2. List of the gamma-rays observed *

Nuclide	gamma-ray, keV	Process	Nuclide	gamma-ray, keV	Process
⁶⁷ Cu	93.3	⁶⁸ Zn(γ , p)	¹²⁶ I	386	¹²⁷ I(γ , n)
⁵⁷ Co	122	⁵⁸ Ni(γ , p) + ⁵⁸ Ni(γ , n; β^+)	^{87m} Sr	388	⁸⁸ Sr(γ , n)
⁵⁷ Ni	127	⁵⁸ Ni(γ , n)	⁴³ K	394	⁴⁴ Ca(γ , p)
⁵⁷ Co	136	⁵⁸ Ni(γ , p) + ⁵⁸ Ni(γ , n; β^+)	²⁰² Tl	439	²⁰³ Tl(γ , n)
^{99m} Tc	142	¹⁰⁰ Mo(γ , n; β^-)	⁷ Be	477	¹² C(γ , α n)
⁴⁷ Sc	160	⁴⁸ Ti(γ , p) + ⁴⁸ Ca(γ , n; β^-)	¹³² Cs	484	¹³³ Cs(γ , n)
¹³⁹ Ce	166	¹⁴⁰ Ce(γ , n)	⁴⁷ Ca	488	⁴⁸ Ca(γ , n)
⁴⁸ Sc	175	⁴⁹ Ti(γ , p)	Various	511	Annihilation
⁶⁷ Cu	185	⁶⁸ Zn(γ , p)	⁷⁷ Br	521	⁷⁹ Br(γ , 2n)
^{120m} Sb	196	¹²¹ Sb(γ , n)	¹¹⁵ Cd	530	¹¹⁶ Cd(γ , n)
⁴³ K	219	⁴⁴ Ca(γ , p)	⁶² Zn	548	⁶⁴ Zn(γ , 2n)
⁷⁷ Br	239	⁷⁹ Br(γ , 2n)	¹²² Sb	564	¹²³ Sb(γ , n)
²²⁸ Th (²¹² Pb)	239	Bg	⁴³ K	591	⁴⁴ Ca(γ , p)
⁷⁵ Se	265	⁷⁶ Se(γ , n)	⁷⁴ As	596	⁷⁵ As(γ , n)
⁷⁷ Br	271	⁷⁹ Br(γ , 2n)	²²⁶ Ra (²¹⁴ Bi)	609	Bg
²⁰³ Pb	279	²⁰⁴ Pb(γ , n)	⁴³ K	619	⁴⁴ Ca(γ , p)
²²⁶ Ra (²¹⁴ Bi)	295	Bg	⁷⁴ As	639	⁷⁵ As(γ , n)
⁵¹ Cr	319	⁵² Cr(γ , n)	¹²⁶ I	667	¹²⁷ I(γ , n)
^{115m} In	335	+ ¹¹⁵ In(γ , γ) ¹¹⁶ Cd(γ , n; β^-)	¹³² Cs	668	¹³³ Cs(γ , n)
²²⁶ Ra (²¹⁴ Bi)	352	Bg	¹²² Sb	693	¹²³ Sb(γ , n)
⁴³ K	374	⁴⁴ Ca(γ , p)	²²⁸ Th (²¹² Bi)	727	Bg
			¹²⁶ I	754	¹²⁷ I(γ , n)
			²²⁶ Ra (²¹⁴ Bi)	768	Bg
			⁸² Br	777	⁸¹ Br(n, γ)
			⁴⁷ Ca	808	⁴⁸ Ca(γ , n)

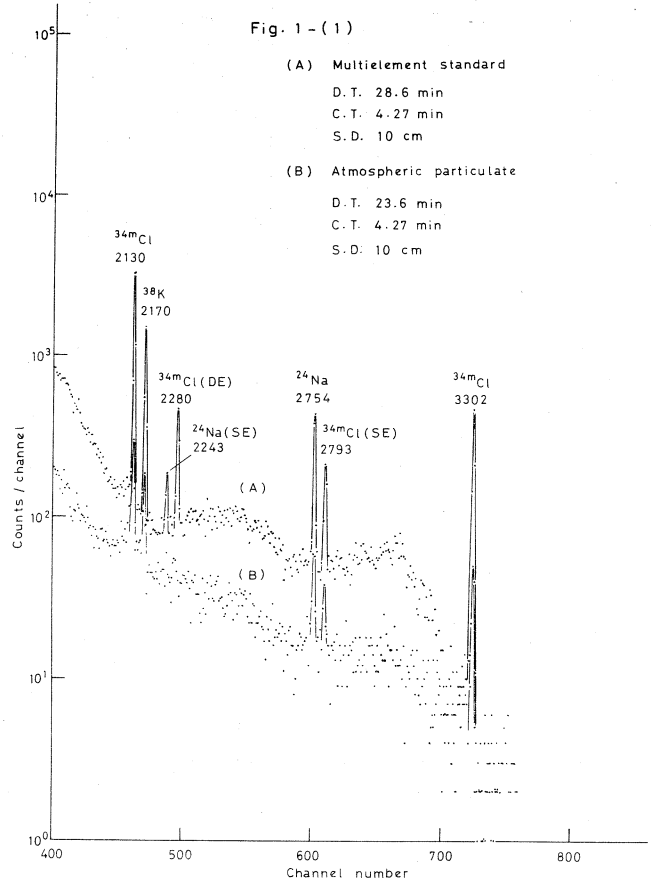
Table 2. (countd.)

Nuclide	gamma-ray, keV	Process	Nuclide	gamma-ray, kev	Process
⁵⁸ Co	811	⁵⁹ Co (γ , n)	⁵² Mn	1432	⁵⁴ Fe (γ , pn)
⁵⁴ Mn	835	⁵⁵ Mn (γ , n)	⁴⁰ K	1460	Bg
⁵⁶ Co	846	⁵⁸ Ni (γ , pn)	^{116m} In	1505	¹¹⁵ In(n, γ)
⁵⁶ Mn	847	⁵⁷ Fe (γ , p)	⁴² K	1524	⁴³ Ca (γ , p)
⁸⁴ Rb	881	⁸⁵ Rb (γ , n)	²²⁸ Th	1593 (DE)	Bg
⁴⁶ Sc	889	⁴⁷ Ti (γ , p)	(²⁰⁸ Tl)		
⁸⁸ Y	898	⁸⁹ Y (γ , n)	²⁴ Na	1732 (DE)	²⁵ Mg (γ , p)
⁸⁹ Zr	910	⁹⁰ Zr (γ , n)	⁵⁷ Ni	1757	⁵⁸ Ni (γ , n)
^{92m} Nb	934	⁹³ Nb (γ , n)	²²⁶ Ra	1765	Bg
⁵² Mn	934	⁵⁴ Fe (γ , pn)	(²¹⁴ Bi)		
²³² Th		Bg	²² Na	1786 (sum)	²³ Na (γ , n)
(²²⁸ Ac)	970		⁵⁶ Mn	1810	⁵⁷ Fe (γ , p)
⁴⁸ Sc	983	⁴⁹ Ti (γ , p)	⁸⁸ Y	1836	⁸⁹ Y (γ , n)
^{120m} Sb	1023	¹²¹ Sb(γ , n)	⁸⁴ Rb	1897	⁸⁵ Rb (γ , n)
⁴⁸ Sc	1037	⁴⁹ Ti (γ , p)	⁵⁷ Ni	1918	⁵⁸ Ni (γ , n)
⁸⁶ Rb	1078	⁸⁷ Rb (γ , n)	²²⁸ Th		
⁶⁵ Zn	1115	⁶⁶ Zn (γ , n)	(²⁰⁸ Tl)	2104 (SE)	Bg
⁴⁶ Sc	1121	⁴⁷ Ti (γ , p)	⁵⁶ Mn	2113	⁵⁷ Fe (γ , p)
¹³² Cs	1136	¹³³ Cs(γ , n)	^{34m} Cl	2130	³⁵ Cl (γ , n)
⁴⁴ Sc	1156	⁴⁵ Sc (γ , n)	³⁸ K	2170	³⁹ K (γ , n)
^{120m} Sb	1171	¹²¹ Sb(γ , n)	²²⁶ Ra		
⁷⁴ As	1204	⁷⁵ As (γ , n)	(²¹⁴ Bi)	2204	Bg
²² Na	1275	²³ Na (γ , n)	^{34m} Cl	2280 (DE)	³⁵ Cl (γ , n)
⁴⁷ Ca	1298	⁴⁸ Ca (γ , n)	²⁴ Na	2243 (SE)	²⁵ Mg (γ , p)
⁴⁸ Sc	1314	⁴⁹ Ti (γ , p)	^{34m} Cl	2280 (DE)	³⁵ Cl (γ , n)
¹³² Cs	1318	¹³³ Cs(γ , n)	²⁴ Na	2754	²⁵ Mg (γ , p)
⁸⁸ Y	1325 (SE)	⁸⁹ Y (γ , n)	^{34m} Cl	2793 (SE)	³⁵ Cl (γ , n)
²⁴ Na	1368	²⁵ Mg (γ , p)	^{34m} Cl	3302	³⁵ Cl (γ , n)
⁵⁷ Ni	1378	⁵⁸ Ni (γ , n)			

* Bg: Natural background, SE: Single escape peak,
DE: Double escape peak.

Typical gamma-ray spectra measured at several different decay times after irradiation of the atmospheric particulate sample are shown in Fig. 1, along with those of the multielement standard measured at comparable decay times. As had been observed in the multielement analysis of biological materials,^{6,7)} the analysis of elements giving rise to short-lived nuclides

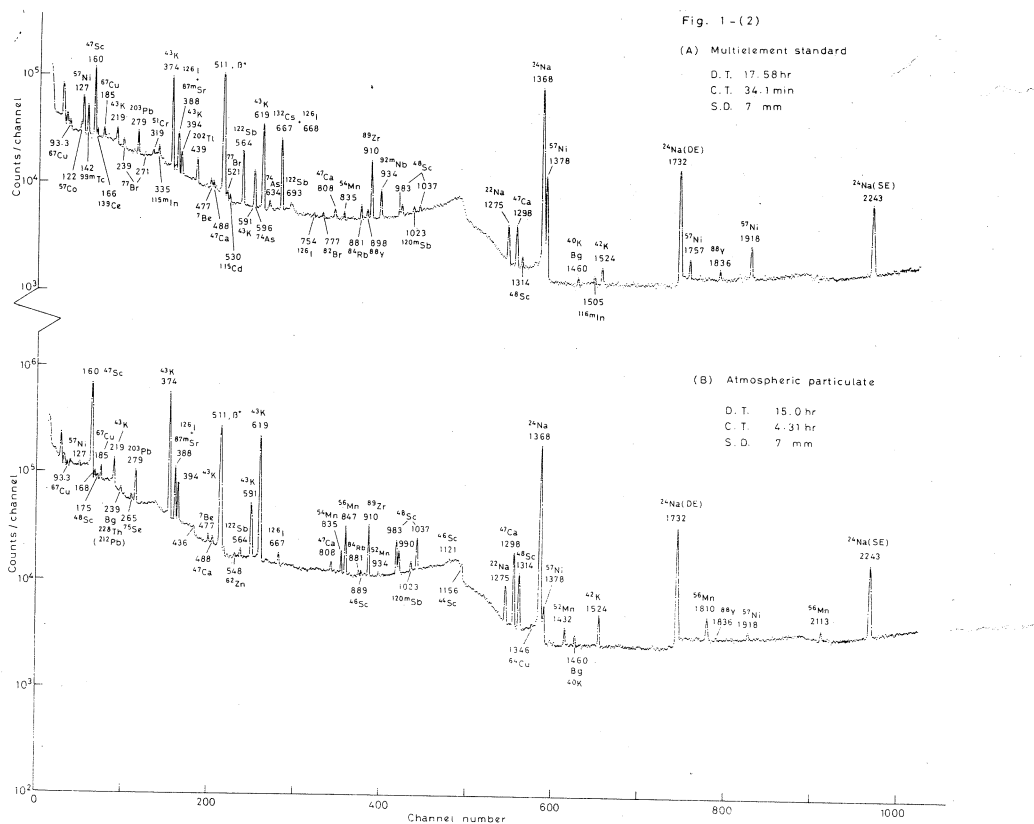
could only be done for those which emitted gamma-rays with higher energies because of the swamping 511-keV annihilation radiations from positron emitters. In the case of atmospheric particulates, such high activity was mainly due to 20-min ^{11}C from the filter material. The only products used for quantifications at earlier decay times were 7.71-min ^{38}K and 32-min ^{34}mCl . After a decay time of one day, however, essentially all of the products listed in Table 2 could be observed in gamma-ray spectra. In order to measure photopeaks due to longer-lived nuclides precisely, counting



has been made consecutively for increasing intervals over a period of one month. The concentrations of elements identified in both the sample material and the multielement standard has been evaluated. 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 a sample.

Fly Ash

Lehmden et al.¹¹⁾ mentioned that fly ash from coal-fired,



heat generation sources is important for two reasons. First, fly ash is a matrix similar to emissions to the atmosphere but larger in particle size. Second, there is considerable interest at the present time in determining trace element material balances on coal-fired processes, to assess the effectiveness of control techniques for removing trace elements. Some experimental data for elemental compositions were available for this material,⁸⁾ and, therefore, it was felt to be helpful in the assessment and development of the present method.

Elemental abundances of Fly Ash for 17 elements have been obtained in this work in duplicate and those are given in Table 3, together with the NBS certified or information values, if available.⁸⁾ There were possibilities of contributions to the (γ, n) reactions used for abundance determinations by (γ, pn) ,

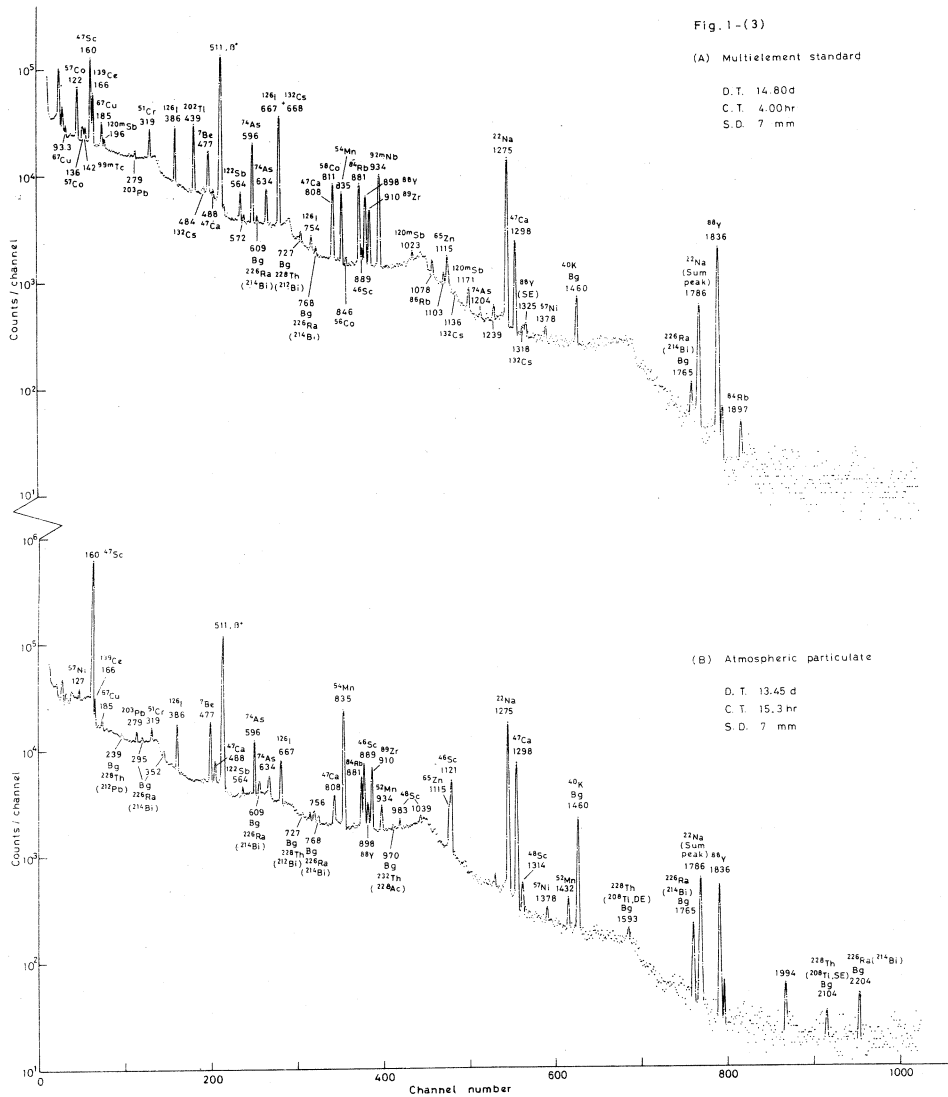


Fig. 1. Gamma-ray spectra taken with a 33-cm³ Ge(Li) detector at several different decay times after irradiation of atmospheric particulate sample with 30 MeV bremsstrahlung

D. T. : Decay time C. T. : Counting time S. D. : Source-to-detector distance Bg : Background
 Values on each peak are energies in keV SE : Single escape peak DE : Double escape peak

(γ, α) and/or ($\gamma, \alpha n$) reactions taking place on adjacent elements in the periodic table. However, detailed nuclear considerations based on the experimental yields of the photonuclear reactions of various types¹²⁾ showed that in most instances

Table 3. Elemental abundances of NBS standard
Reference material 1633, Fly Ash

Element ppm unless indicated	This work		NBS**
	Analysis 1*	Analysis 2*	
As	64 ± 1	65 ± 1	61 ± 3
Ca, %	5.17 ± 0.05	5.04 ± 0.04	—
Ce	156 ± 2	150 ± 2	—
Co	44 ± 5	40 ± 4	(38)
Cr	142 ± 13	141 ± 11	125 ± 10
Fe, %	4.14 ± 0.22	4.33 ± 0.30	—
K, %	1.67 ± 0.05	1.51 ± 0.08	1.68
Mg, %	1.51 ± 0.02	1.48 ± 0.02	—
Mn	512 ± 18	470 ± 16	495 ± 30
Na, %	0.391 ± 0.021	0.380 ± 0.016	—
Ni	95 ± 3	97 ± 5	98 ± 3
Rb	98 ± 2	93 ± 2	(112)
Sb	7.2 ± 0.6	6.9 ± 1.2	—
Sr	1222 ± 7	1266 ± 9	(1380)
Ti, %	0.786 ± 0.010	0.745 ± 0.009	—
Y	67 ± 2	66 ± 2	—
Zr	289 ± 8	307 ± 10	—

* Errors are based on counting statistics and comparison with standards.

** Ref. 8) : Probable certified values, () : Information values.

these secondary contributions did not produce serious interference problems in this study. Some comments on the determination of several of the elements are given below.

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}K and ^{47}Ca , the 374

and 619 keV peaks of ^{43}K and the 1298 keV peak of ^{47}Ca were found to produce precise values of calcium concentration. The calcium result listed in Table 3 was the average of the values from these three different peaks. For titanium, three different scandium isotopes, ^{47}Sc , ^{48}Sc and ^{46}Sc , produced by (γ, p) reactions could be used for quantifications. The 160 keV gamma-ray of ^{47}Sc gives the highest full-energy peak. Although ^{47}Sc can also be produced by the β^- -decay of ^{47}Ca , interferences from its decay were not significant at earlier decay times for this material. In the manganese determination using the $^{55}\text{Mn}(\gamma, n) ^{54}\text{Mn}$ reaction, the major source of interference is from iron by the $^{56}\text{Fe}(\gamma, pn) ^{54}\text{Mn}$ reaction. When an amount of pure iron was irradiated with 30 MeV bremsstrahlung, an activity ratio of 1.03×10^{-3} was obtained as the ratio of the 835 keV full-energy peak of ^{54}Mn to the 847 keV full-energy peak of ^{56}Mn at the end of irradiation. The ^{54}Mn activity due to the $^{55}\text{Mn}(\gamma, n) ^{54}\text{Mn}$ reaction for a given sample was, therefore, calculated by multiplying the count rate under the 847 keV peak by 1.03×10^{-3} and then by subtracting this value from the count rate under the 835 keV peak corrected for decay to the end of irradiation. Correction of 56% was required for Fly Ash. For yttrium and zirconium, nondestructive analysis by thermal-neutron activation is generally not attainable because these elements are not highly activated or because their (n, γ) reaction products are relatively short-lived or emit no gamma-rays. This technique is also not feasible for the determinations of titanium, nickel and strontium because of overshadowing by strong gamma-activities produced simultaneously. The present method can be used to advantage for these elements. The peaks of ^{203}Pb (279 keV), ^{115}Cd (530 keV), ^{126}I (667 keV), and ^{67}Cu from zinc (185 keV) were also observed, but not used for abundance determinations because of the low signal-to-noise ratios. Chlorine could not be determined in the Fly Ash because of its low

abundance.

As seen in Table 3, the average relative deviation for all the elements determined here based on the duplicate samples was $\pm 2\%$. Although the data from NBS are not complete, where comparable, the agreement is excellent.

Atmospheric particulates

Besides 17 elements determined in Fly Ash, several additional elements could be measured in the atmospheric particulate sample by this method. Those were chlorine, iodine, lead and zinc. The results obtained are shown in Table 4. Lead analysis can not be done by instrumental neutron activation analysis. The $^{56}\text{Fe}(\gamma, \text{pn})$ ^{54}Mn contribution to the total ^{54}Mn activity was estimated as described above, and found that a correction required for this material was 14%.

A critical requirement for the method is that the filter material used has very small blanks for the elements to be determined. Table 5 gives the concentrations of the elements determined in a Millipore filter material used, along with the literature data,^{13),14)} where available. Considerable variations can be found from one lot of filter material to another. The blank values for all elements except chlorine were small enough that there were no problem for us to correct for them to obtain their atmospheric concentrations. The chlorine blank in our filter was fairly large. It turned out to be 63% of the total amount of chlorine observed on a filter sample. A large chlorine blank was also reported on a Delbag membrane filter, but the blanks for most elements are smaller for the Millipore filters than for the Delbag filters.¹³⁾

In conclusion, the present method is quite promising for the study of atmospheric particulate materials and other environmental samples of a broader range. One can measure the concentrations of 20 or more elements in the same sample

Table 4. Atmospheric concentrations of several elements in Sendai determined by photon activation analysis

Element	Reaction product	Gamma-ray used, keV	Concentration, ng/m ³
As	⁷⁴ As	634	12
Ca	⁴³ K	374	15540
//	⁴³ K	619	15500
//	⁴⁷ Ca	1298	15250
Ce	¹³⁹ Ce	166	8.6
Cl	^{34m} Cl	2130	570
Co	⁵⁸ Co	811	2.7
Cr	⁵¹ Cr	319	20
Fe	⁵⁶ Mn	847	8760
I	¹²⁶ I	388	10
K	³⁸ K	2170	1510
Mg	²⁴ Na	1368	2830
Mn	⁵⁴ Mn	835	437
Na	²² Na	1275	5270
Ni	⁵⁷ Ni	1378	13
Pb	²⁰³ Pb	279	220
Rb	⁸⁴ Rb	881	9.5
Sb	¹²² Sb	564	3.4
Sr	^{87m} Sr	388	52
Ti	⁴⁷ Sc	160	1030
//	⁴⁸ Sc	1314	1050
Y	⁸⁸ Y	1836	6.2
Zn	⁶⁷ Cu	185	280
Zr	⁸⁹ Zr	910	25

* Sample collection : 18 - 19 February 1974, 27 hrs, clear weather .

with high sensitivity and precision. Abundance determinations of arsenic, lead and nickel are quite important because of their known toxicities.

Table 5. Concentrations of elements in Millipore filter material.

Element*	Concentration, ng / cm ²		
	This work	Dudey et al. ¹³⁾	Dale et al. ¹⁴⁾
Ca	508	—	—
Cl	2470	60	—
Co	ND**	0.08	0.29
Cr	18	20	20
Fe	17	—	2060
I	12	—	—
Mg	118	—	—
Mn	5.8	0.25	4.72
Na	809	50	500
Ni	5.1	—	—
Pb	5.2	—	—
Rb	0.3	—	—
Sb	ND**	0.013	0.20
Sr	3.2	—	—
Ti	5.5	—	—
Zn	11	0.16	14

* As, Ce, K, Y, and Zr were not detected.

** Not determined.

Acknowledgement — The authors express their appreciation to Professor Nobuo Suzuki for his continuous encouragement and to members of the linac machine and radioisotope groups at the Institute of Nuclear Science, Tohoku University, for their kind cooperation with the irradiations.

References

- 1) J. S. Hislop and D. R. Williams, *J. Radioanal. Chem.*, **16**, 329 (1973).
- 2) N. K. Aras, W. H. Zoller, G. E. Gordon and G. J. Jutz,

- Anal. Chem., **45**, 1481 (1973).
- 3) A. Chattopadhyay and R. E. Jervis, Presented at the Internatl. Conf. Photonucle. Reactions and Applications, Pacific Grove, Calif., U. S. A., March 26-30 (1973).
 - 4) T. Kato, I. Morita and N. Sato, J. Radioanal. Chem., **18**, 97 (1973).
 - 5) N. Sato, T. Kato and N. Suzuki, Radiochim. Acta, in press.
 - 6) T. Kato and N. Sato, Research Report of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, **6**, No.1, 143 (1973).
 - 7) T. Kato and N. Sato, *ibid.*, **6**, No.2, 308 (1973).
 - 8) P. D. LaFleur, IAEA/SM-175/25.
 - 9) T. Kato, Research Report of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, **5**, No.1, 133 (1972).
 - 10) C. M. Lederer, J. M. Hollander and I. Perlman, "Table of Isotopes," 6th Ed., J. Wiley & Sons, New York, 1967.
 - 11) D. J. von Lehmden, R. H. Jungers and R. E. Lee, Jr., Anal. Chem., **46**, 239 (1974).
 - 12) T. Kato, J. Radioanal. Chem., **16**, 307 (1973).
 - 13) N. D. Dudey, L. E. Ross and V. E. Noshkin, J. R. DeVoe, Ed., "Modern Trends in Activation Analysis," Vol. I, National Bureau of Standards, Washington, D. C., 1969, p.55.
 - 14) I. M. Dale, H. J. Duncan and C. McDonald, Radiochem. Radioanal. Letters, **15**, 77 (1973).

Ⅲ - 3 気相 $\text{CH}_4\text{-H}^{80m}\text{Br}$ および $\text{CH}_4\text{-H}^{82m}\text{Br}$ 系における核異性体転移にともなう化学的効果…… 添加物効果について

核理研 八木益男 近藤健次郎

§ 1 緒 言

著者らはこれまで気相系における ^{80m}Br および ^{82m}Br の核異性体転移にともなう化学的効果を CH_4 、および CH_3Br について種々の観点から検討を加えて来た。 ^{80m}Br および ^{82m}Br の核異性体転移で生成する娘核 ^{80}Br 、 ^{82}Br の再結合過程には、これら娘核が転移の際取得する陽電荷および運動エネルギーが大きな役割を持つことを明らかにするとともに、両者の間には崩壊型式の相違に起因する同位体効果が存在し、とくに thermal ionic process において顕著であることを示した。^{1,2,3,4)} すなわち内部転換率 100%の一段核異性体転移を行う ^{82m}Br に対し ^{80m}Br は中間に 7.4 ns の半減期を持つ 2 段核異性体転移を行い、その化学的効果は process (A)……内部転換 (100%) + 37 KeV γ 線放出 (39%), Process (B)……内部転換 (100%) + 内部転換 (61%) の 2 つの過程に分けることが出来るが、Process (A) は本質的には ^{82m}Br の化学的効果と同様であるから上記同位体効果は Process (B) に由来する。Process (B) において第 1 段転移で生成した ^{80}Br がその life-time (1.1×10^{-8} sec) の時間内で与える生成物あるいは反応の場が引きつづいて起る核異性体転移による化学的効果に大きな影響を及ぼすものと考えられる。既報⁵⁾において $\text{CH}_4\text{-H}^{80m}\text{Br}$ 系における種々の無機化合物添加効果および温度効果から、thermal $^{80}\text{Br}^+$ は中間レベルで一旦 CH_4Br^+ 、 HBrBr^+ のような sticky collision complex を形成するとしても、引きつづく核異性体転移は ^{80}Br に kinetic energy を賦与しないような雰囲気、すなわちこれらイオン種を核とし、数個の原子を含むイオンクラスター中で起ることを示唆した。

今回は上記イオンクラスター形成の際の大きな因子となる dipole moment の異なる種々の添加物効果を $\text{CH}_4\text{-H}^{82m}\text{Br}$ 系について検討し既報の $\text{CH}_4\text{-H}^{80m}\text{Br}$ における結果と比較を試みた。また $\text{CH}_4\text{-H}^{80m}\text{Br}$ 系については CH_3Cl 、 CBrF_3 、 CCl_2F_2 など有機化合物添加系についても検討し、二、三知見を得たので報告する。

§ 2 実 験

各種ガスは全て高千穂 K. Kより購入したものを使用した。CH₃Cl, CCl₂F₂, CBrF₃は真空ラインで数回蒸留したのち、その中央留分を実験に供した。一方他のガスはそのまま実験に用いた。H^{80m}Brの調整……東北大電子ライナックを用い、発生する40~60MeV電子制動放射線で約2時間照射して得たPdBr₂を熱分解し、発生した^{80m}Br₂を真空ライン中で赤燐と少量の水を含む容器に導びき、充分反応させた上、発生したH^{80m}BrをP₂O₅およびドライアストラップを通し精製し純粋なH^{80m}Brを得ることが出来た。H^{82m}Brの調整……必要量のHBrをプレーカブル石英アンプルに封じ、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。照射の際ごく少量の放射線分解によるBr₂の発生が等められたが、真空ライン中でドライアストラップを通すことによって除去出来た。炉内熱中性子束は $3 \times 10^{13} \text{ n/sec} \cdot \text{cm}^2$ またγ線量率は 10^6 r/hr であった。試料の圧力は全実験を通じ660mmHgとしたHBr/CH₄=0.1で行った。フェロシアン化カリ法による生成物分離の際のみ試料内容積約10mlのプレーカブル管を用い、他は50mlあるいは100ml反応管を用いた。生成物の分離及び収率決定はH₂S, CO, CO₂, SO₂, O₂添加系ではフェロシアン化カリ法をまた他の系では従来のCCl₄, Na₂SO₃水溶液による抽出法によって行った。抽出条件、ガスクロマトグラフ分離条件および放射能測定は従来^{5,6)}と全く同様である。

§ 3 結果および考察

第1表にCH₄-H^{80m}Br系における添加物効果を示した。既報⁵⁾の無機化合物の添加効果に加

第1表 CH₄-H^{80m}Br系に対する添加物効果(H^{80m}Br/CH₄=0.1)

添加物 (0.3mf)	イオン化電圧 (eV)	dipole moment (μ)	Org. Yie ld (%)	CH ₃ ⁸⁰ Br (%)	CH ₃ ⁸⁰ BBr (%)	other (%)	CH ₃ ⁸⁰ Br Br /CH ₃ ⁸⁰ Br
—	—	—	4.25	1.65	2.60	—	1.6
Kr	13.9	0	4.3, 4.0	1.45	2.55	0	1.63
CO ₂ *	14.4	0	3.95	1.46	2.32	0.12	1.60
Co	12.5	0	4.0	1.54	2.27	0.09	1.55
HCl	13.8	1.08	4.25	1.13	1.61	1.51	1.42
SO ₂ *	13.1	1.47	2.1, 1.97	1.46	0.45	0.07	0.31
Co *	14.1	0.912	3.0	1.33	1.56	0.11	1.18
H ₂ S *	10.42	0.97	2.6, 3.0	1.12, 1.14	0.31, 0.31	1.17, 1.53	0.27
CH ₃ Cl	11.25	1.85	2.90	1.35	0.65	0.85	0.48
CCl ₂ F ₂	11.8	0.51	3.50	3.30**	0.20	—	—
CBrF ₃	12.3	0.65	2.60	1.79**	0.88	—	—

* フェロシアン化カリ法による。

** フレオン- ^{80}Br と $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ 収率の和を示す。

え、今回はさらに CH_3Cl , CCl_2F_2 , CBrF_3 などの有機化合物の添加効果を検討した。また第2表には $\text{CH}_4-\text{H}^{82m}\text{Br}$ 系における各種添加物効果を示した。表から明らかなように CH_3Br , CH_2BrBr の収率分布 ($\text{CH}_2\text{BrBr}/\text{CH}_3\text{Br}$ の値参照) から添加効果が顕著な化合物は $\text{CH}_4-\text{H}^{80m}\text{Br}$, $\text{CH}_4-\text{H}^{82m}\text{Br}$ いずれにおいても dipole moment を持つ化合物 H_2S , CO , SO_2 etc などであり、一方 Kr , CO_2 , O_2 など dipole moment を持たない化合物では添加効果は殆んど認められない。既報⁵⁾において $\text{CH}_4-\text{H}^{80m}\text{Br}$ 系における添加物効果および温度効果から第1段核異性体転移で生成する $\text{thermal}^{80}\text{Br}^+$ はまず CH_4 , HBr と反応し CH_4^*Br^+ , HBr^*Br^+ のような ion-complex (Sticky collision complex) を形成し、これらイオン種の life-time⁶⁾ から CH_4Br^+ , HBrBr^+ イオンを核とするイオンクラスターの形成が充分考えられることを示唆した。

第2表における実験結果から $\text{CH}_4-\text{H}^{82m}\text{Br}$ 系においても核異性体転移 (100%内部転換) で

第2表 $\text{CH}_4-\text{H}^{82m}\text{Br}$ 系に対する添加物効果 ($\text{H}^{82m}\text{Br}/\text{CH}_4=0.1$)

添加物 (0.3mf)	イオン化電 圧 (eV)	dipole moment(μ)	Org-Yield (%)	$\text{CH}_3^{82}\text{Br}$ (%)	$\text{CH}_2^{82}\text{BrBr}$ (%)	Other (%)	$\text{CH}_2^{82}\text{BrBr}/$ $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$
—	—	—	4.50	0.80	3.70	—	4.62
CO_2 *	14.4	0	4.10	0.70	3.25	0.15	4.64
O_2	12.5	0	4.05	0.85	3.00	0.20	3.52
Kr **	13.9	0	4.51	0.80	3.71	—	4.63
CO *	14.1	0.912	2.60	0.95	1.65	—	1.73
HCl	13.8	1.08	4.03	0.65	1.83	1.55	2.81
H_2S *	10.42	0.97	4.20	0.50	1.10	2.60***	2.2
Br	11.84	0					
HBr	11.62	0.82					
CH_4	12.99	0					

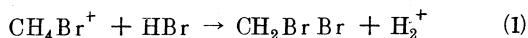
* フェロシアン化カリ法による

** $\text{Kr}=0.25\text{mf}$ での値を示した

*** $\text{CH}_2^{82}\text{BrSH}$ と 思われる生成物収率が 2.54% を占める

生成した $\text{thermal}^{82}\text{Br}^+$ はまず周囲の CH_4 , HBr と反応し CH_4Br^+ , HBrBr^+ をつくり ion-cluster は ^{80}Br の場合同様これらを核として形成されるものと考えられる。第1,2表から明らかなように添加物効果が顕著に認められるのは主に CH_2^*BrBr についてであり、このことは CH_2^*

Br Br の生成が一旦生成した CH_4Br^+ と HBr との反応によってもたらされることを示している。



すなわち今 dipole moment を持つ無機化合物が系に存在する場合、そのイオンクラスターは CH_4Br^+ を中心に、その周辺を数個の無機化合物が dipole induced electro static force によって引きつけられた状態で形成されるものと考えられる。したがってこれら無機化合物とのイオンクラスター形成により CH_4Br^+ は HBr との衝突の機会が著しく妨げられることになり、結局 $\text{CH}_2\text{Br Br}$ 収率の減少をもたらすものと考えられる。

一方 $\text{CH}_4\text{-H}^{80m}\text{Br}$, $\text{CH}_4\text{-H}^{82m}\text{Br}$ いずれの系においても CH_3Br の収率は H_2S , HCl 添加系をのぞいて殆んど添加物効果は認められない。このことは CH_3Br の生成過程が $\text{CH}_2\text{Br Br}$ のそれと幾分異っていることを示している。 CH_3Br の生成過程としては (i) sticky collision complex CH_4Br^+ の単分子分解過程あるいは (ii) 反応 (1) と競争的に CH_3Br を与える反応過程が考えられる。(ii) は本実験における添加物効果から否定される。一方 (i) の考え方は既報における $\text{CH}_4\text{-H}^{80m}\text{Br}$ 系における圧力効果の実験結果⁶¹ から CH_4Br^+ の分解がおおよそ $10^{-10}\text{-}10^{-11}\text{ sec}$ 以下の速い過程で起るか、あるいは $10^{-6}\text{-}10^{-7}\text{ sec}$ 以上の遅い過程で起る場合の 2通りが考えられる。精度の高い高圧 (10気圧以上) および低圧 ($\sim 10\text{mmHg}$ 以下) での実験が可能となれば、 CH_3^*Br の生成機構はより明らかになるものと期待される。

H_2S , HCl, 添加系で幾分 CH_3Br 収率の減少を認めたが、これら添加物の場合は化合物自体の反応性が大きな役割を示している。すなわち、 H_2S , HCl 添加系でそれぞれ $\text{CH}_2\text{Br SH}$ (未確認) および $\text{CH}_2\text{Br Cl}$ の収率が org. yield のかなりの部分を占めている。また ^{80m}Br および ^{82m}Br 系における org. yield の比較では H_2S の場合をのぞいて両者に大きな違いは認められない。 ^{82m}Br 系における H_2S 添加系は point data であり追試実験が必要と思われる。

一方 $\text{CH}_4\text{-H}^{80m}\text{Br}$ 系における CH_3Cl , CCl_2F_2 , CBrF_3 添加効果は添加物自身が反応性を有しておりその寄与も複雑である。しかし thermal $^{80}\text{Br}^+$ とこれら添加物との反応では CH_3Cl 系をのぞいて CH_3^*Br , $\text{CH}_2^*\text{Br Br}$ の生成は期待できない。第 1 表において CH_3Br フラクションはフレオン (^{80}Br) の部分も含んでおり、直接比較の対照とならないが CH_2Br_2 は dipole moment を持つ他の無機添加物の場合同様大きな減少が認められた。一方 CH_3Cl の場合、得られる CH_3Br , $\text{CH}_2\text{Br Br}$ いずれも $\text{CH}_3\text{Cl-H}^{80m}\text{Br}$ のラジオガスクロマトグラフから CH_3Cl と thermal $^{80}\text{Br}^+$ との反応生成物でもあることが確認されており、直接比較は出来ないが $\text{CH}_2\text{Br Br}$ の収率に対する CH_3Cl からの直接的寄与は非常に少ないものと考えられるので、第 1 表に示した $\text{CH}_2\text{Br Br}$ の収率減少は同じように CH_3Cl もまたイオンクラスター形成剤と

なり反応(I)における $\text{CH}_4 \text{Br}^+$ と HBr との反応の妨害剤としての役割を果しているものと考えることが出来る。

実験結果をまとめると、これら添加物効果は先に述べたように添加物のイオン化電圧の違いによるよりも、イオンクラスター形成の際の大きな因子である dipole moment の違いから論ぜられるべきである。また $\text{CH}_4\text{-}^{80\text{m}}\text{Br}$ 、 $\text{CH}_4\text{-}^{82\text{m}}\text{Br}$ 系においては CH_3Br 、 CH_2Br_2 収率において相違が認められるものの、添加物効果は両者において全く同様であった。以上の結果はイオンクラスター形成に対するより確かな傍証を与えるものである。

さらに著者らは CH_4 、 CH_3F 、 CH_3Cl 、 CH_3Br - $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br}$ および $\text{H}^{82\text{m}}\text{Br}$ 系における ^{80}Br 、 ^{82}Br の水素 I 置換生成物、およびハロゲン置換生成物収率から反応におけるこれら化合物の dipole moment、 C-X (X : ハロゲン) bond energy、およびイオン化電圧などの諸因子の役割について検討し、thermal Br^+ イオンの反応過程についていくつかの興味ある結果を得ているが、これについては次回に報告予定である。

本研究を行うにあたり、お世話いただいた京都大学原子炉実験所ホットラボの方々および東北大ライナッククルーの方々に厚くお礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) M. Yagi, K. Kondo, T. Kobayashi, Bull. Chem. Soc. Japan 44, 580 (1971)。
- 2) M. Yagi, K. Kondo, T. Kobayashi, Radiochem. Radioanal. Letters, 1, 275 (1971)。
- 3) M. Yagi, K. Kondo, ibid, 5, 75 (1970)。
- 4) T. Shiokawa, T. Kobayashi, K. Kondo, M. Yagi, ibid, 7, 281 (1971)。
- 5) 八木, 近藤 核理研研究報告 6. 299 (1973)。
- 6) 八木, 近藤, 小林 ibid, 6, 129 (1973)。

Ⅲ - 4 ^{46}K の崩壊

工学部原子核 市村敏夫・武田靖
篠塚勉・古田島久哉

Abstract

Gamma rays of 1.347 MeV, 1.675 MeV, 2.030 MeV, 2.266 MeV, 3.019 MeV, 3.060 MeV, 3.708 MeV, 4.030 MeV, 4.186 MeV and 5.059 MeV have been observed following the decay of ^{46}K which was produced by the $^{48}\text{Ca}(\gamma, pn)^{46}\text{K}$ reaction with 60-MeV bremsstrahlung. The decay curve has been measured with a plastic scintillation counter and analyzed by using multiple component direct fitting method giving a result of $T_{1/2} = 108.3 \pm 3.3$ sec.

§ 1 序 論

核分光学的的方法による Ca の偶-偶核の準位構造の研究は、核分光学の創設以来数多くの研究者により精力的に行われている。しかし ^{40}Ca , ^{42}Ca , ^{44}Ca と比較して ^{46}Ca の場合には、その親核である ^{46}K の半減期が約 100 秒と短いことと、 ^{46}Sc 側からの ^{46}Ca への崩壊が期待できないために、Parsa *et al.*¹⁾ 及び Sugiyama *et al.*²⁾ の報告があるだけで、精度の良い測定がなされないまま現在に至っている。

そこで私達は ^{46}Ca の準位構造を調べるために、 $^{48}\text{Ca}(\gamma, pn)^{46}\text{K}$ 反応により ^{46}K を生成し、その崩壊に伴うベータ線及びガンマ線の測定を行った。

§ 2 実験方法

測定試料は、東北大学原子核理学研究施設の電子リニアックを用いて、99%に濃縮された ^{48}Ca の炭酸塩約 5 mg を 60 MeV の制動輻射により照射し、 $^{48}\text{Ca}(\gamma, pn)^{46}\text{K}$ 反応により ^{46}K を生成した。また、ベータ線及びガンマ線の測定に際しては、同一試料を再度照射測定に使用せざるを得

なかった事情から、照射後における化学処理は一切行わなかった。

2-1 半減期の測定

^{46}K の半減期の測定は、その崩壊に伴うベータ線を厚さ16mmのルサイトの吸収体を通し40 mm ϕ ×10 mmのプラスチック・シンチレータで検出する事により行った。これは、照射により生成される夾雑物のうち、 ^{46}K の Q_{β} 値約 7.7MeV³¹ と同程度の Q_{β} 値を持つものとしては、 ^{48}Ca (r, p) ^{47}K 反応により生成される、 Q_{β} 値 6.1MeV⁴¹ の ^{47}K が考えられるが、 ^{47}K の半減期は17.5秒⁴¹ と短いために照射後ある程度の時間が経過すれば、 ^{47}K のベータ崩壊からの寄与は非常に少くなり、また ^{47}K 以外の夾雑物からのベータ線の影響はいずれもその崩壊エネルギーが低いので、適当な厚さのベータ線の吸収体を使用して取除くことができるからである。

測定には、1チャンネル当り4秒にセットした4000チャンネルの波高分析器をMCSモードで使用し、測定試料は3分間照射を行ったものを用いた。半減期の解析は、得られた崩壊曲線より長い成分のものから順に差引いて行く方法が一般に用いられるが、この方法では、目的とする核種の半減期が短い場合には、その誤差が他の成分の誤差の蓄積により必要以上に大きくなる。そこで本研究においては、この誤差の蓄積を避けるために、非線型最小自乗法を用いたMultiple Component Direct Fitting 法(附録参照)を採用した。数値計算には東北大学大型計算機センターのNEAC2200-Model 700 電子計算機を使用し、 ^{46}K の半減期として

$$T_{1/2} = 108.3 \pm 3.3 \text{ 秒}$$

を得た。この値は Parsal による

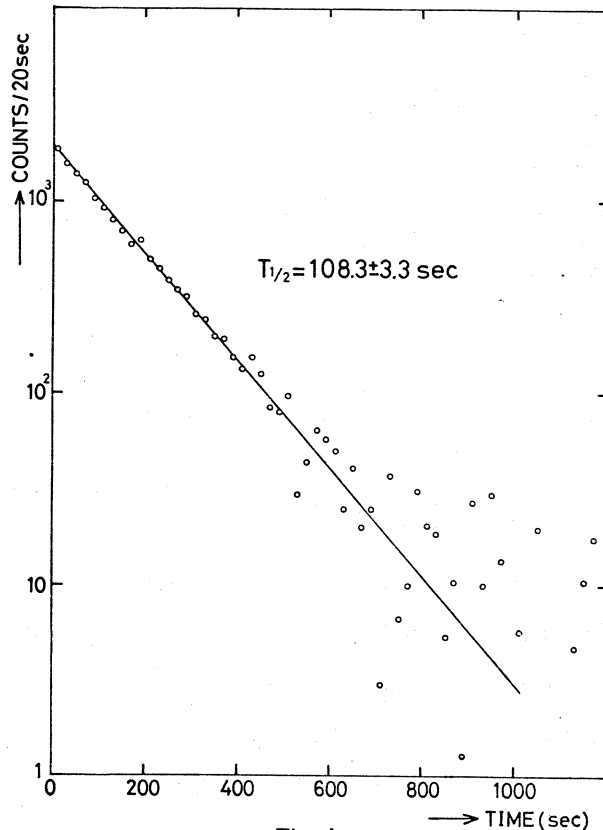


Fig. 1

Table 1

Energy (keV)	Relative Intensity	Energy (keV)	Relative Intensity
1347 ± 1	100	3060 ± 3	4 ± 2
1675 ± 1	8 ± 1	3708 ± 3	35 ± 3
2030 ± 2	6 ± 2	4030 ± 3	4 ± 1
2266 ± 2	8 ± 1	4186 ± 5	2 ± 1
3019 ± 3	5 ± 2	5059 ± 10	1 ± 0.5

§ 3 結 果

以上の結果をもとに、核反応により調べられた⁴⁶Caの準位構造⁶⁾も参考にして組立てた⁴⁶Kの崩壊様式をFig. 3に示す。図中に示した Q_{β} 値はWapstra *et al.*³⁾により評価された値である。

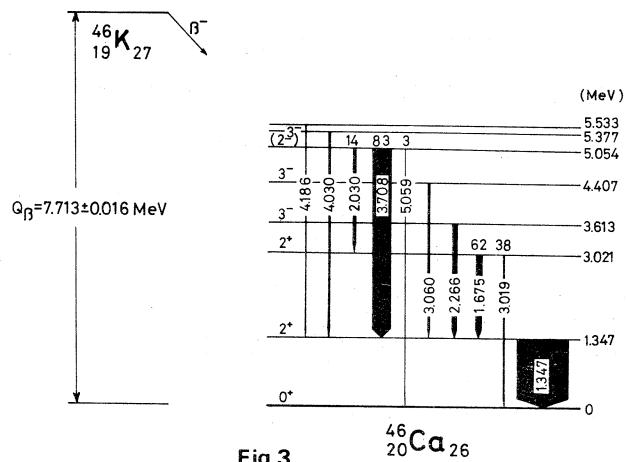


Fig.3

謝 辞

最後に、本研究に際し数々の世話をお願いしたR. I. 実験室の八木助教授、近藤助手及びマシン・グループの方々に深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) B. Parsa and G. E. Gordon, Phys. Letters **23**, 269 (1966).
- 2) 相山一典, 八木益男, 伊藤郡蔵, 鍛冶東海, 中田章, 核理研研究報告 Vol. 1, No. 2 60 (1968).
- 3) A. H. Wapstra and N. B. Gove, Nuclear Data Tables **9**, 265 (1971).
- 4) T. Kuroyanagi, T. Tamura, T. Tanaka and H. Morinaga, Nucl. Phys. **50**, 417

(1964).

- 5) F. Adams and R. Dams, *Applied Gamma-ray Spectrometry* (Pergamon, Oxford, 1970) p. 484.
- 6) W. W. Daehnick and R. Sherr, *Phys. Rev.* **C7**, 150 (1973). Y. Dupont, P. Martin and M. Chabre, *Phys. Letters* **31B**, 68 (1970). D. C. Williams, J. D. Knight and W. T. Leland, *Phys. Rev.* **164**, 1419 (1967).
- 7) 北村正晴, 篠原慶邦, *J AERI-M5131* (1973).

附 録

Multiple Component Direct Fitting法 MURSEL Codeについて

本コードは多成分からなる崩壊曲線を最小自乗法によりフィットするためのものである。

(NEAC 2200/700(500)用にプログラミングしてある)。

今, 時間 $T=0$ で強度 A_j であった核種が, 時間 $T=t-\Delta t$ と $T=t$ との間に崩壊する数 N_j はその崩壊定数を λ_j として

$$\begin{aligned} N_j &= \int_{t-\Delta t}^t A_j \exp(-\lambda_j T) dT \\ &= (A_j / \lambda_j) \exp(-\lambda_j t) (\exp(\lambda_j \Delta t) - 1) \end{aligned} \quad (1)$$

により与えられる。従って n 個の核種が存在していれば, その時の全カウント数は,

$$N = \sum_{j=1}^n N_j + C \quad (2)$$

で与えられる。ここで C は時間に無関係なバックグラウンドである。本コードでは, t 及び Δt の誤差はないものとして崩壊曲線に(1), (2)式をフィットする。通常このようなフィッティングを計算機で行う場合, 初期値として与える A_j° , λ_j° , C° の値が問題となり, その値の与え方によってはフィッティングが困難となる場合が生ずる。そのため, これを解決する手段として, 最小自乗法によるフィットを行う前に, 統計的探索法⁷⁾により A_j° , λ_j° , C° を求めるようにしてある。最後に本コードの特徴を列挙すると次のようになる。

1. MCSモードによる測定結果の解析を主眼とする。
2. 観測点の数は最大4100個まで。
3. 成分数さえ適切に与えれば, 各成分の初期値は粗い近似値でよい。
4. 一度フィッティングを終了すると, データの棄却を行い, 棄却されたデータがある場合には残りのデータを用いてフィッティングをやり直す。その際, 棄却のための信頼帯は任意に

とれる。

5. 任意のチャンネル間を任意のチャンネルだけバンチングすることができる。(最大 10 区間, MCS モードによる測定の場合のみ)。

Ⅲ - 5 ^{115}In と ^{176}Lu の (r, r') 反応断面積

理学部化学 吉原賢二*

Abstract

Cross sections of ^{115}In and ^{176}Lu for the (r, r') reactions were measured using an electron linear accelerator. The values of the integrated cross section at 1078 KeV were compared among the results of several authors.

§ 1 はしがき

^{115}In と ^{176}Lu の (r, r') 反応の断面積については前者が比較的良好に知られているのに対して、後者の知見ははなはだ乏しい。筆者らは以前からいろいろの核種の (r, r') 反応断面積の測定をおこない、¹⁾ また (r, r') 反応を用いて固相反跳反応における出現エネルギー (*appearance energy*) の決定をおこない興味ある成果をおさめつつある。²⁾ とくに出現エネルギーの決定については精確な励起関数の知識が必要である。本報ではこれらの核種の励起関数などについて二三の実験と考察をおこなったので以下に記す。

§ 2 実験および結果

r 線照射は東北大学原子核理学研究施設 30MeV 電子直線加速器によっておこなった。電子線は所定のエネルギーに加速し、これを 2 mm の厚さの白金板によって制動放射線に変えた。ターゲットは試薬特級酸化インジウムおよび酸化ルテチウムを用いた。ターゲットは同時に同位置において照射し、照射位置の小さな変化は幾組かの照射においてキャンセルされるようにした。インジウムに対するルテチウムの放射能比を求め、インジウムの励起関数を規準としてルテチウムのそれを算出した。放射能の測定は $1.75'' \times 2''$ の NaI(Tl) クリスタルにより、 ^{115m}In の 335 KeV の r 線および ^{176m}Lu の 89 KeV の r 線を測定した。計数効率はあらかじめ IAEA の r 線標準によって較正してある。

測定結果は Fig. 1 に示すとおりである。ルテチウムの $^{176}\text{Lu}(r, r')^{176m}\text{Lu}$ 反応に関する放射化断面積はインジウムのそれより大きく、励起関数の極大値は $^{115}\text{In}(r,$

* Kenji Yoshihara: Department of Chemistry, Faculty of Science, Tohoku University.

r') ^{115m}In 反応のそれとほぼ似たところにある。しかし本実験の精度からは非常に詳細な情報を得ることは困難であった。なお $^{115}\text{In}(r, r')^{115m}\text{In}$ 反応の励起関数の標準としては、Burkhardtら³⁾の測定値を採用した。しかし、この測定値はのちにも述べるように2 MeV以下の低エネルギー部分ではかなりの誤差があるように思われるが、それ以外の部分ではとくに問題は無いものと見られる。

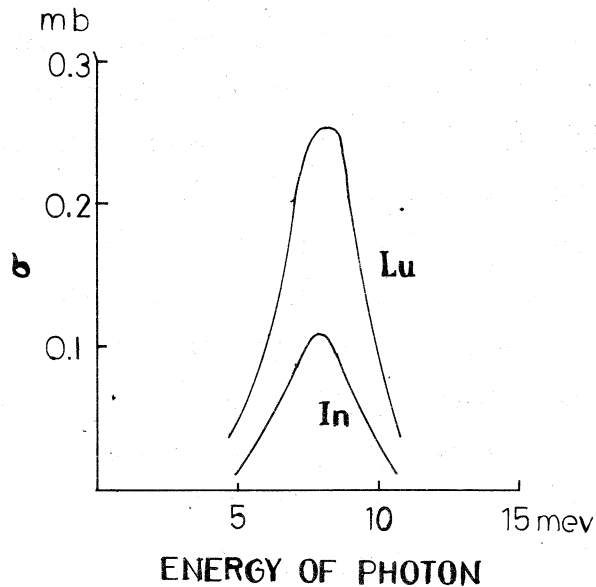


Fig. 1. Cross sections of ^{115}In and ^{176}Lu for the (r, r') reactions.

§ 3 考 察

Burkhardtの測定した $^{115}\text{In}(r, r')^{115m}\text{In}$ 反応の第1励起準位(1.02MeV)および第2励起準位(1.45MeV)の積分断面積 integrated cross section は Table 1 に示す通りである。第1励起準位の integrated cross section はのちに筆者¹⁾によって ^{60}Co の r 線源を用いる放射化

Table 1. Energy levels and integrated cross sections for the $^{115}\text{In}(r, r')^{115}\text{In}$ reaction.

Burkhardt et al	Yoshihara	Boivin et al.
E(keV) $\sigma_m(\mu\text{b. MeV})$	E(keV) $\sigma_m(\mu\text{b. MeV})$	E(keV) $\sigma_m(\mu\text{b. MeV})$
		$600 \pm 10 \quad (2 \begin{smallmatrix} +4 \\ -1 \end{smallmatrix}) \times 10^{-7}$
		$830 \pm 10 \quad (1.3 \begin{smallmatrix} +3.0 \\ -0.6 \end{smallmatrix}) \times 10^{-7}$
		$932 \pm 2 \quad (1.1 \begin{smallmatrix} +0.5 \\ -0.3 \end{smallmatrix}) \times 10^{-5}$
		$943 \pm 2 \quad (2 \begin{smallmatrix} +2 \\ -1 \end{smallmatrix}) \times 10^{-2}$
1020 2×10^{-3}	1040 $(2.3 \pm 0.4) \times 10^{-1}$	$1078 \pm 3 \quad (3 \begin{smallmatrix} +4 \\ -2 \end{smallmatrix}) \times 10^{-1}$
1450 1×10^{-2}		$1465 \pm 5 \quad (1.3 \begin{smallmatrix} +1.0 \\ -0.7 \end{smallmatrix}) \times 10^{-1}$
		$1495 \pm 5 \quad 1.0 \begin{smallmatrix} +0.6 \\ -0.4 \end{smallmatrix}$
		$1565 \pm 10 \quad (7.2 \begin{smallmatrix} +6.5 \\ -5.0 \end{smallmatrix}) \times 10^{-2}$
		$1635 \pm 15 \quad (7.6 \begin{smallmatrix} +8.2 \\ -6.6 \end{smallmatrix}) \times 10^{-2}$

実験の結果、 $(2.3 \pm 0.4) \times 10^{-31} \text{ cm}^2 \cdot \text{MeV}$ と改訂された。Burkhardt の値は r 線量の評価が不正確であったため小さ過ぎるものとなったものと思われる。最近になってフランスの Boivin ら⁴⁾が決定した核レベルおよび断面積はより詳細に検討されている。Burkhardt および筆者が 1.02 MeV および 1.04 MeV とした核レベルは Boivin らによれば 1078 KeV の位置にある。筆者の与えた積断面積は Boivin らのデータによっても 10% 以上の改訂は必要とせず、Boivin らの 1078 KeV の値 $(3 \pm \frac{4}{2}) \times 10^{-31} \text{ cm}^2 \cdot \text{MeV}$ あるいは $(3 \pm \frac{4}{2}) \times 10^{-1} \mu\text{b} \cdot \text{MeV}$ に比べてはるかに精度は高いものと考えられる。これは ^{60}Co r 線源を使用した放射化実験の特色とも見られるのでここに言及しておく。筆者と同様な実験によりハンガリーの Veres⁵⁾はこの値を $4.9 \times 10^{-31} \text{ cm}^2 \cdot \text{MeV}$ と与えたが、このさい使用された ^{60}Co 線源のキュリー数は筆者らのものより 1 桁以上低く、誤差の限度も示されておらず、信頼度は劣るものと考えられる。

つぎに ^{115}In の (r, r') 反応と ^{176}Lu の (r, r') 反応を比較する。 ^{115}In の ground state のスピンは $9/2+$ 、metable state は $1/2-$ 、 ^{176}Lu の ground state は $7-$ 、metastable state は $1-$ であり、 m 、 g のスピンの差は ^{176}Lu の方が大きい。この反応は励起準位を経由する m 、 g 準位準位間の競争過程とみられないこともないが、このような見地から検討した例は Hui zenga ら⁶⁾の研究にみられる。かれらの結果によれば $^{103}\text{Rh}(r, r')$ ^{103m}Rh 反応の $\frac{\sigma_m}{(\sigma_g + \sigma_m)}$ の比は $^{115}\text{In}(r, r')$ ^{115m}In 反応のそれよりかなり大きい。 $^{115}\text{In}(r, r')$ ^{115m}In 反応と $^{176}\text{Lu}(r, r')$ ^{176m}Lu 反応との間でこのような比較が可能かどうか、Hui zenga らと同様の方法で r 線放出多重度 N_r 、Spin cut-off parameter σ を種々に仮定して計算をおこなうことができる。7 MeV 程度の励起についていえば、 ^{115}In に対しては N_r は 3、 ^{176}Lu に対しては 4 くらいと見てよいと思われるが、 σ の変化に対して metastable level への部分断面積比 $\sigma_m / (\sigma_g + \sigma_m)$ が大きく変動し、どの値がもっとも確からしいかの判定は困難であった。ただし ^{176}Lu については r 線放出の多重度 N_r の増大に対して $\sigma_m / (\sigma_g + \sigma_m)$ が増加する傾向はあきらかに見られた⁷⁾この詳細については今後なおよく検討したい。

§ 4 む す び

以上 ^{115}In と ^{176}Lu の (r, r') 反応に対する断面積について述べた。 ^{176}Lu については低エネルギー部分での各レベルの詳細な検討が今後興味ある課題であろう。 ^{176}Lu の (r, r') 反応のさいの r 線放出の多重度がかなり大きいことは、出現エネルギー appearance energy の絶対値を問題にするときには重要なポイントとなる。しかし相対的な値の比較という観点のみに立つときは、上に述べたような事実を心得た上でデータ処理をおこなうことができよう。

終りにこの研究をおこなうに当って東北大学原子核理学研究施設ライナック運転クルーの方々にあつくお礼申し上げる。また種々ご教示をいただいた塩川孝信教授、八木益男助教授にお礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 吉原, 同位体と放射線 **3**, 472(1960); 池田, 吉原, *Radisotopes*, **7**, 11(1958)。
- 2) K. Yoshihara, and H. Kudo, *J. Chem. Phys.* **52**, 2950(1970)。
- 3) J. L. Burkhardt, E. J. Winhold and T. H. Dupree, *Phys. Rev.* **100**, 199(1955)。
- 4) M. Boivin, Y. Cauchois and Y. Heno, *Nucl. Phys.* **A176**, 626(1971)。
- 5) A. Veres, *Intern. J. Appl. Rad. Isotopes* **14**, 123(1963)。
- 6) J. R. Huizenga and R. Vandenbosch, *Nucl. Phys.* **34**, 457(1962)。
- 7) 鍛冶, 吉原, 未発表データ。

Ⅲ - 6 臭素の非破壊放射化分析

理学部R I中央実験室, 理学部化学*

山寺亮・宮田孝元

塩川孝信*

§ 1 緒 言

Br 化合物は、農薬、殺虫剤、医薬等に広く用いられており、これら薬品の生体中での挙動は興味がある。また、血液中の Br イオンの量は、高血圧、神経障害に関係があると言われている、等、生体中の Br の良い定量法が要求されている。生体試料中の Br の定量方法としては、熱中性子放射化分析^{1,2,3,4,5,6)} X線分析^{7,8,9)}、蛍光光度分析¹⁰⁾等をあげることができる。生体試料は特に非破壊分析が好ましいが、熱中性子放射化分析では、生体中に多量に含まれる NaCl から ^{24}Na , ^{38}Cl 等を生じるので、非破壊分析がむずかしくなったり、できても s-n 比が悪くなったりする欠点がある。また X線分析では非破壊分析が可能であるが、試料の厚さや密度により、X線の吸収の程度が変化し⁷⁾特に生体試料では、試料の形状を定めにくいので得られた値の精度が悪くなる等の欠点がある。

一方、光量子放射化分析では、 $^{81}\text{Br}(\gamma, n)^{80m}\text{Br}$ の反応によって ^{80m}Br を選択的に生成させることができ、生体中の Br を非破壊定量できる可能性がある。ここでは、その可能性を検討するために、生体試料と組成の類似した海水中の Br、及び、血液中の Br の非破壊定量することを試み、良好な結果を得た。

§ 2 実 験

2-1 試料及び照射

照射試料は、日本標準海水、深沼海水、スタンダード (NaCl と NaBr との混合水溶液) 及び血液であり、これを内径 8 mm、厚さ 2 mm の太鼓形石英アンプルに 0.1 ml 入れ、そのまま密封ないしは、乾燥後密封したものである。照射は、ライナックで加速した 30 MeV 電子線を、厚さ 3 mm の白金コンバーターで制動放射線に変換して行なった。試料は、コンバーター後方の試料ホルダー内に、ビーム軸に沿って並べて照射した。照射時間は 2 時間ないし 3 時間とした。乾燥試料については、照射位置がずれないようにアルミフォイルで包み、束にして照射したが、乾燥していない試料では、そのようにすると試料内に熱が潜って爆発する危険があるので、アル

ミ線を用いて試料ホルダーに固定した。

2-2 測定

照射した石英アンプルは中から試料を取り出すことなく、そのまま測定器にかけた。照射直後は海水の主成分であるClから $^{35}\text{Cl}(\gamma, n)^{34m}\text{Cl}$ (半減期 32.4m)によって生成する ^{34m}Cl の放射能が強いので2時間冷却して、 ^{34m}Cl の減衰を待ち、次に、 $^{81}\text{Br}(\gamma, n)^{80m}\text{Br}$ 反応によって生成する ^{80m}Br の37keV γ 線を測定した。照射後10日たってから $^{23}\text{Na}(\gamma, n)^{22}\text{Na}$ 反応によって生成する ^{22}Na の0.511MeV γ 線を測定した。

^{80m}Br からの37keV γ 線を測定する場合の測定系は、Ge(Li)検出器(ORTEC社製2cm \times 0.5cm)と4096cPHA(東芝社製)である。検出器は約30keVないし60keVの γ 線に対し、100%の検出効率を示し、分解能は37keVの γ 線に対し、0.8keVであった。測定位置は検出器表面から3cmの距離とし、測定時間は100sないし2000sとした。

^{22}Na の測定にはGe(Li)検出器(ORTEC社製24cc)を用いた。尚、 ^{22}Na の測定は、各試料に照射された制動放射線量を補正するために行なったものである。

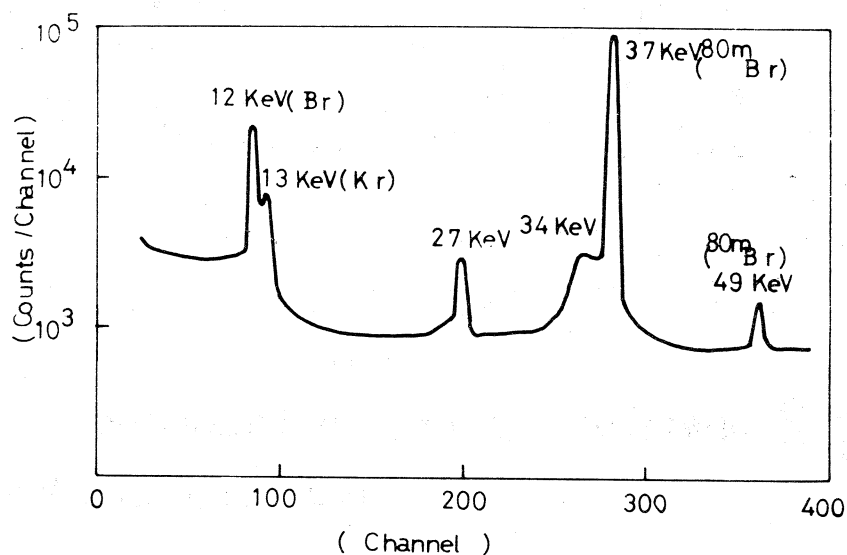


Fig1. Spectrum of
Photon Irradiated Na Br

§ 3 結果と考察

3-1 γ 線スペクトル

Fig 1に照射後2時間のNa Brの γ 線スペクトルを示す。37 keVと49 keVの γ 線は、半減期4.4 hで減衰し、 ^{80m}Br と同定された。12 keV及び13 keVのピークはBr及び ^{80m}Br が嬗変して生成する ^{80}Kr からのX線であろう。27 keV及び34 keVのピークは、37 keVのピークとほぼ同様に減衰するが、何に起因するかは明らかでない。 ^{80m}Br が減衰してくると、31 keVにピークが現われ、半減期約21hで減衰し ^{28}Mg と同定された。これは石英アンプルのSiから $^{30}\text{Si}(r, 2p)^{28}\text{Mg}$ 反応によって生成する、 ^{28}Mg である。

Fig 2に深沼海水の γ 線スペクトルを示す、12 keV及び37 keVのピークはいずれも ^{80m}Br

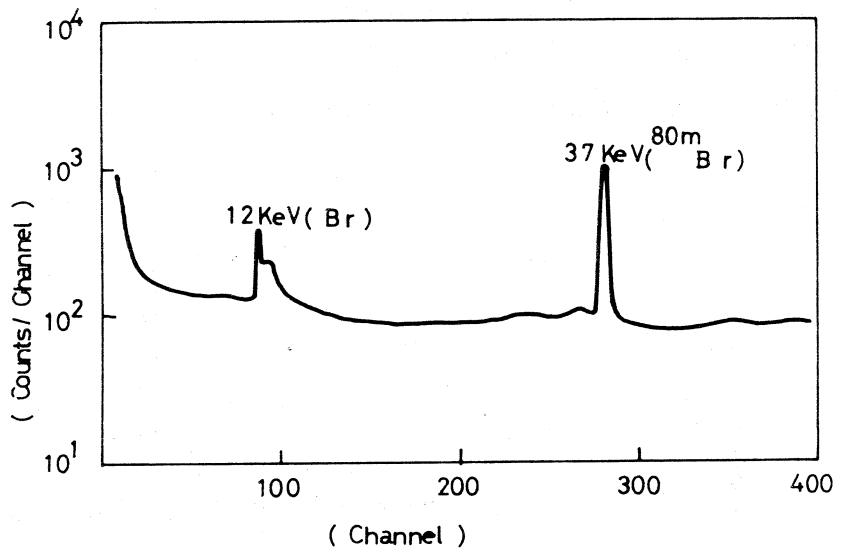


Fig 2 Spectrum of Photon Irradiated
Fukamuma Sea Water

からの γ 線である。49 keVの γ 線は、back groundにかくれて見られない。Br 元素以外の元素からのピークはない。

血液試料を照射した場合にも Fig 2 と同じスペクトルが得られる。

2-3 照射線量補正

各試料に照射される制動放射線量の補正は、各試料中の Na の量に対する ^{22}Na の生成量の

比を求めて行なった。その為には、各試料中の Na の量を正確に求める必要があるが、海水試料中の Na の量は、酢酸ウラニル塩法によって求めた。血液試料については、採血後すみやかに凝血してしまつたので、定量は行なわず、佐々木ら¹¹⁾の平均値を用いた。

3-2 妨害となる反応

3-2-1 ^{28}Mg の生成

^{28}Mg は、石英アンプルの成分の Si から $^{30}\text{Si}(r, 2p)^{28}\text{Mg}$ 反応によって生成する。この反応の Q 値は 23.9 MeV であり、最大エネルギー 30 MeV の制動放射照射によれば充分起りうる反応である。 ^{28}Mg は、31 keV の r 線の他に、1.35 MeV 他の r 線を放出するので、37 keV の r 線を測定する場合には、back ground を上げ、s-n 比を小さくすることになって好ましくない。本実験のように、石英管を照射アンプルとし、そのまま測定する場合には避けられない問題となる。しかし、最大エネルギー 30 MeV の制動放射線に対するこの反応の断面積は比較的小さく、その上、標的核の ^{30}Si の存在度も 3.12% と小さいので、約 100 μg ぐらいまでの Br の定量には本実験の方法によって充分よい精度が期待できる。100 μg 以下の Br の定量には、照射エネルギーを下げて $^{30}\text{Si}(r, 2p)^{28}\text{Mg}$ の反応を抑制したり、照射アンプルとして石英以外のものを用いる等の工夫が必要となる。

3-2-2 その他の妨害反応

Table 1 に、海水 (Average Sea Water) 中に 1 ppm 以上含まれる元素¹²⁾ を日本標準海水 (J. S. Water) の値とともにリストした。これらの元素のうち、光核反応によって生成し、生成核の半減期が 30 m ないし 5 d のものを、Table 2 にリストした。熱中性子によって生じる反応も併にリストした。

光核反応で生じる核種は ^{34m}Cl と ^{80m}Br の 2 個だけ

Table 1 Abundance of Sea Water

Elements	Average Sea Water	J. S. Water
B	4.8 ppm	0 ppm
C	28	15
Na	10500	10700
Mg	1300	1320
Si	3	0
S	900	897
Cl	19000	19300
K	380	387
Ca	401	420
Br	65	66
Sr	8	0

であり、しかも ^{34m}Cl の半減期は32.4 mと短かく、一方 ^{80m}Br の半減期は4.36 hと長いので、 ^{80m}Br の測定に妨害となる反応はないと考えてよい。一方熱中性子によっては、6個の反応が生じ、これがBrの非破壊定量をむずかしくしている。事

実海水を熱中性子で照射したところ、 ^{80m}Br の37 keVのピークを確認できたが、s-n比の高い値しか得られなかった。

3-2-3 蛍光X線

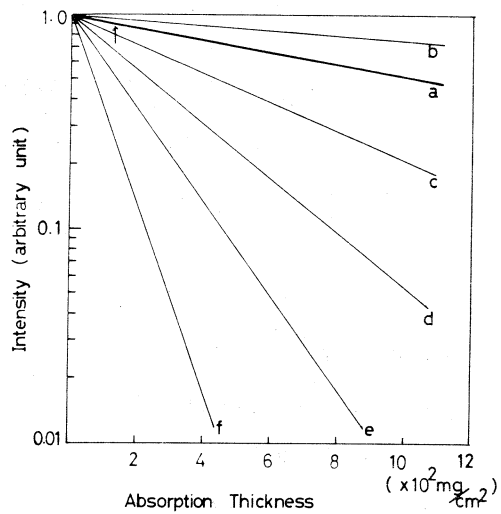
37 keVの γ 線を測定するに妨害となる元素はCs(31 keVのX線を発生)より重い元素である。しかし、Table 1から明らかに、海水中にはCsより重い元素はない。

3-3 γ 線の吸収

γ 線の質量吸収曲線をFig 3に示す。石英アンブルは壁厚0.6 mmであり、37 keVの γ 線は、7.3%の吸収を受ける。石英アンブルの壁厚のばらつきを±0.2

Table 2 Produced Nuclide with Half-Lives 30min~5days

neutron activation			photon activation		
reaction		$T_{1/2}$	reaction		$T_{1/2}$
$^{23}\text{Na}(n,r)$	^{24}Na	15.0h	—		
$^{30}\text{Si}(n,r)$	^{31}Si	2.62h	—		
$^{37}\text{Cl}(n,r)$	^{38}Cl	37.3m	$^{35}\text{Cl}(r,n)$	^{34m}Cl	32.4m
$^{41}\text{K}(n,r)$	^{42}K	12.4h	—		
$^{79}\text{Br}(n,r)$	^{80m}Br	4.36h	$^{81}\text{Br}(r,n)$	^{80m}Br	4.36h
$^{81}\text{Br}(n,r)$	^{82}Br	35.3h			



- a : 37 Kev
- b : 59.5 "
- c : 26.4 "
- d : 20.8 Kev
- e : 17.8 "
- f : 13.9 "

Fig 3 Absorption of X-rays in Al

mmとすれば 37keV の r 線の透過度は $92.7 \pm 2.8\%$ となる。この程度のばらつきは、充分、放射化分析の精度以下である。

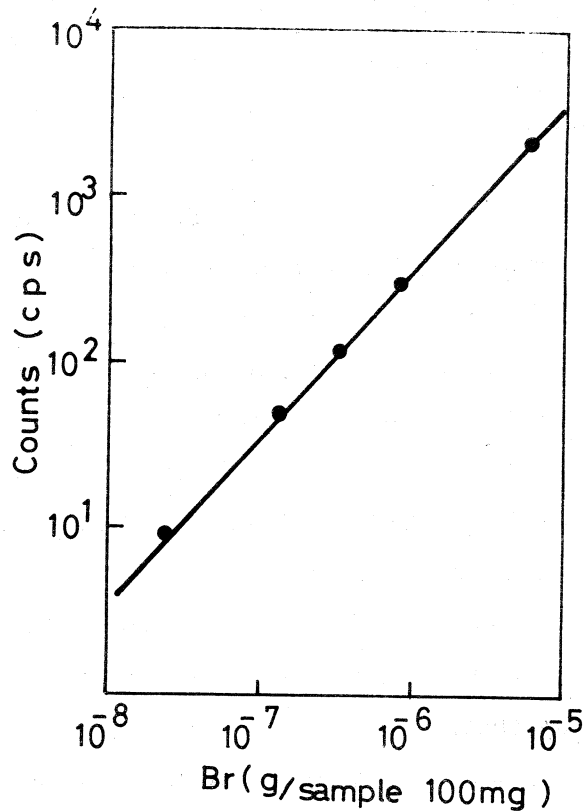
3-4 Br の検量線

スタンダード試料中の Br の量と、 ^{80m}Br 37 keV 光電ピークの面積との関係を Fig4 に示す。グラフは直線を示し、かつその傾きは 1 であることから、Br の量と光電ピークの面積との間には比例関係がある。

3-5 定量値

Fig4 を用いて日本標準海水、深沼海水及び血液中の Br の定量した結果を Table 3 に示す。血液試料に多少のばらつきが見られる他は、ほぼよい一致をしている。血液試料のばらつきの原因は明らかでないが、血液が照射アンプル中で速やかに偏在して固まってしまったことも一つの原因であろう。サンプリングの方法を検討する必要がある。

検出限界は、5 cps をあたる Br の量とすれば、 $10\ \mu\text{g}$ 、即ち、 $100\ \text{mg}$ の試料について、0.1ppm まで Br が定量できる。ただし、石英管アンプルを使用する限り、1ppm 以下の Br の定量の精度は期待できない。1ppm 以下の Br の定量には照射エネルギーを下げる



irradiation time : 3 h
cooling : 2 h

Fig 4 Calibration Curve

とか、アンプルとして石英管以外のものを用いるとかの工夫が必要である。生体試料には、Brは1 ppmないし、100 ppm含まれており、本方法は生体試料中のBrの定量に充分応用できる。

本研究を行なうにあたり、お世話いただいた核理研、八木助教授、近藤助手及び、運転クルーの方々に厚くお礼申し上げます。

Table 3. Analytical Results

Sample	Br
J. S. Water	69 ppm
	68 " (66 ppm [*])
	68 "
	64 "
F. S. Water	77 "
	68 " (65 ppm ¹²¹)
	66 "
Blood	6.1 " 4.31 ppm ⁵¹
	4.8 " 5.30 "

* 配合値

参 考 文 献

- 1) Tadakazu Takeo and Masao Shibuya, Radioisotopes, 20 (1), 25, (1971)。
- 2) R. A. Nadkarni, W. D. Ehmann, Radiochem. Radioanal. Letters, 6 (1), 89 (1971)。
- 3) M. Heurtebise, W. J. Ross, J. Radioanal. Chem. 8, 5, (1971)。
- 4) S. Ohno, Analyst, 96, 423, (1971)。
- 5) F. C. Gillespie et al., Radiochem. Radioanal. Letters 4 (2), 43, (1970)。
- 6) 石井大道, 中島正彦, Radioisotopes, 19 (3), 129, (1970)。
- 7) Polly J. Dunton, Applied Spectroscopy 22 (2), 99, (1968)。
- 8) J. Suitel, P. Schiller, J. Radioanal. Chem. 5, 343, (1970)。
- 9) Joseph M. Jaklevic and Fred S. Goulding IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-19, 384, (1972)。
- 10) Brigitle Gutsche and Roland Herrmann, Analyst, 95, 805, (1970)。
- 11) 佐々木匡秀, 他, 臨床病理, 16, 27, (1968)。
- 12) 化学大辞典, 2, 250, (1963)。

Ⅲ - 7 KCl 単結晶中の Br の非破壊放射化分析

理学部 R I 中央実験室, 理学部化学*
理学部物理**

山寺亮・宮田孝元
塩川孝信*・真木正子**

§ 1 緒 言

KCl 単結晶に X 線を照射すると, 放射線効果を受けて紫色に変色する。これは, KCl 中に、いわゆる, F-中心が生成される為であることは, 良く知られている。しかし, 放射線照射直後における, F-中心生成のメカニズムを解明するためには, より低いエネルギー, 例えば紫外線のような, radiation によって, F-中心が生成されるか否かということを確認する必要がある。最近, 真木らは, $liq N_2$ 温度に冷却した KCl 単結晶を, 単色紫外線照射することによって, KCl 中に不純物として含まれている微量の Br^- イオンが, KCl の F-中心の着色効率を著しく高めていることをみつけた。このことについて, 一層知見を得るためには KCl 中の不純物である Br の量を正確に求める必要が生じた。

ところで, KCl 中の Br を ppm order で定量するよい方法は, まだ知られていない。

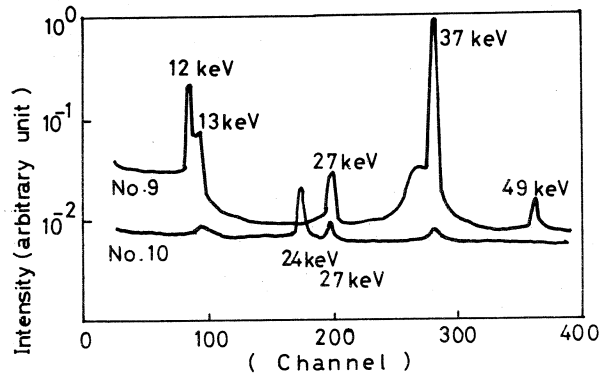
例えば, 熱中性子放射化分析では, $^{79}Br(n, \gamma)^{80m}Br$, 又は $^{81}Br(n, \gamma)^{82}Br$ のいずれかの反応で Br を定量することが考えられるが, マトリックス成分の K から $^{41}K(n, \gamma)^{42}K$ の反応を生じ, ^{42}K (半減期 22.4 h) の放射能が強すぎて, ^{80m}Br (半減期 4.4 h) 及び ^{82}Br (半減期 35.9 h) のいずれも測定がむずかしい。従って Br の定量には破壊分析が必要となる。一方, 光核反応によれば, K からの妨害反応はなく, 非破壊で Br を定量できる可能性がある。ここでは, 先の報告の一つの応用として, KCl 中の Br の非破壊分析を行なった。

§ 2 実 験

照射試料は KCl 単結晶 (約 50 mg ~ 100 mg) と, KCl に既知量の KBr を配合したスタンダード試料である。これらを石英管に封入して照射し, 照射後は石英管より取り出して測定器にかけた。測定は, 照射後まず $^{35}Cl(\gamma, n)^{34m}Cl$ (半減期 32.4 m) 反応によって生成する ^{34m}Cl からの 2.10 MeV γ 線を測定し, ^{34m}Cl の減衰を待って, $^{81}Br(\gamma, n)^{80m}Br$ 反応によって生成する ^{80m}Br の 37 keV γ 線を測定した。測定系は先の報告と同じである。尚, ^{34m}Cl は, 各試料に照射される制動放射線量を補正するモニターである。

§ 3 結果及び考察

KCl 単結晶 (未知試料) の γ 線スペクトルを Fig 1 に示す。No. 9 の試料は Br を約 1×10^3 ppm 含むもので、先の報告の Fig 1 (NaBr のスペクトル) とほとんど同じスペクトルである。一方, No. 10 の試料は約 1 ppm の Br を含む試料であり, 37 keV に ^{80m}Br のピークを確認することができる。この試料は In を含み 24 keV 及び 27 keV のピークはいずれも In の蛍光 X 線 ($K\alpha$, 24 keV; $K\beta$, 27 keV) である。



No. 9 104 mg, cooling 9.5 h
No. 10 68 mg, cooling 8.0 h

Fig 1 Spectrum of
Photon Irradiated KCl

Fig 2 に, スタンダード試料による検量線を示す。検量線の傾きは, 1 であり, かつ, 直線を示していることから, Br の量と ^{80m}Br の光電ピーク面積の間には比例関係がある。Fig 2 を用いて未知試料中の Br を定量した結果を第 1 表に示す。定量値はほぼ良い一致をしている。

第 1 表 分 析 値

サンプル No	Br の量 (ppm)
No 8	{ 3.7×10^2 3.1×10^2
9	{ 1.0×10^3 1.3×10^3
10	{ 1.4×10^0 1.3×10^0
11	{ not detected 0.4×10^0
12	{ 7.5×10^1 6.0×10^1
13	{ 3.0×10^2 2.5×10^2

定量限界は, 5 cps を与える Br の量と考えれば 50mg の KCl 中の Br は 0.2 ppm まで分析可能である。しかし, 実際の分析例では, 約 1 ppm 以下の定量はできなかった。この理由としては,

KCl 中に In 他の微量の不純物が含まれており、それらによって *back ground* が持ち上げられていることをあげることができる。

本研究を行なうにあたり、お世話いただいた、核理研、八木助教授、近藤助手及び運転クルーの方々に厚くお礼申し上げます。

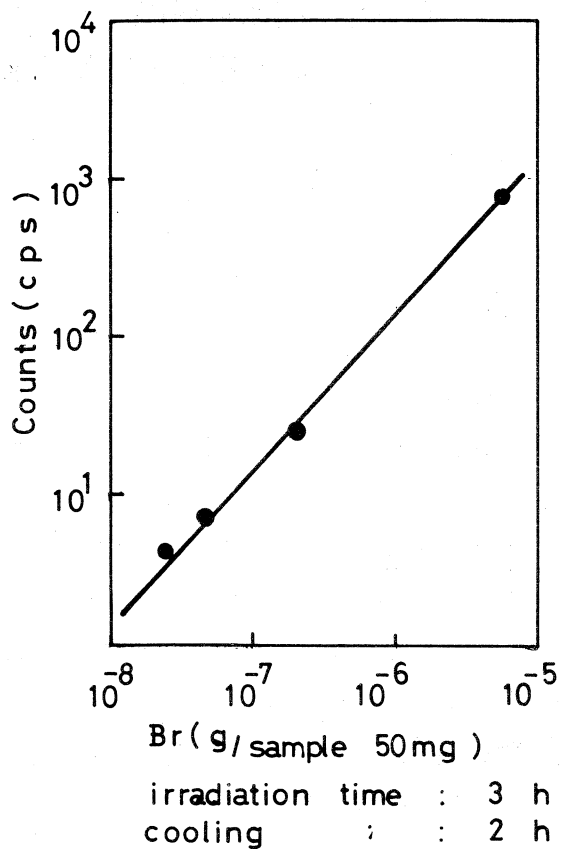


Fig 2 Calibration Curve

Ⅲ—8 高比放射能 ^{167}Tm —167の製造と その癌および骨親和性の研究

金沢大理学部 金沢大医学部*

坂本 浩, 代田 悦章

安東 醇* 久田 欣一*

〔要 旨〕

悪性腫瘍や骨の放射性スキヤニング剤として好適な ^{167}Tm を、長寿命 Tm核種、特に ^{168}Tm を含まない形で調製するために、新しく Linacによる $^{168}\text{Yb}(r, n) \xrightarrow{^{167}\text{Yb} \xrightarrow{17.7\text{min}} \text{EC}} ^{167}\text{Tm}$ の方法で検討した。60 MeVの電子線強度 $\sim 200 \mu\text{A}$ では、22.5%濃縮の $^{168}\text{Yb}_2\text{O}_3$ をターゲットとすると7時間照射で $\sim 50 \mu\text{Ci}/10\text{mg-target}$ の ^{167}Tm が得られ、同条件で天然同位体比の Yb_2O_3 ターゲットでは $\sim 20 \mu\text{Ci}/\text{g-target}$ である。無担体 ^{167}Tm を調製するため、室温での陽イオン交換分離 (YbSO_4 沈澱を併用)を検討し、溶離条件を設定した。最後に、22.5% $^{168}\text{Yb}_2\text{O}_3$ の40 mgを60 \sim 30 MeV, 200 μA で積算22時間照射して約500 μCi の ^{167}Tm を作り、無担体分離の後、担吉田肉腫結節ラットに $^{167}\text{Tm-citrate}$ として静注、腫瘍・骨・その他各臓器への取り込み率、その時間変化を調べた。その結果は、以前に $^{170}\text{Tm-citrate}$ で行なったものとほぼ同様で、本法で製造した ^{167}Tm が期待通りの腫瘍および骨親和性を示すことが動物レベルでは十分証明できた。

1 緒 言

悪性腫瘍にのみ特異的に集積する放射性核種またはそれを含む化合物が発見されるならば、悪性腫瘍病変部をシンチグラフィ的に陽性描画して診断に利用できる。本研究者ら(安東, 久田)はこの目的のために、これまで種々の放射性核種についての検討を行ってきた¹⁻⁵⁾。中でもランタノイド諸核種、殊にイッテルビウムやツリウムに強い腫瘍親和性のあることが動物実験から明らかになった⁶⁻¹¹⁾。そこで、 $^{169}\text{Yb-citrate}$ を調製して癌患者に投与しシンチカメラで撮像したところ、かなり良好な成績が得られた^{8,11)}。しかし、 ^{169}Yb は半減期が32 dと長いので内部被曝を考慮し、投与量を低くしたため陽性描画にいま一步の鮮明さを欠いた。ツリウムはイッテルビウムにまさる腫瘍親和性があり、 ^{167}Tm は臨床応用上に好都合の半減

期(9.24d)とシンチグラフィーに好適な γ 線エネルギー(主に208KeV)をもつ核種である。 ^{167}Tm は従来サイクロトロンにより $^{165}\text{Ho}(\alpha, 2n)$ や $^{167}\text{Er}(p, n)$ あるいは $^{167}\text{Er}(d, 2n)$ 反応で作られているが¹²⁻¹⁴⁾, $^{165}\text{Ho}(\alpha, n)$ や $^{168}\text{Er}(p, n)$ などから93d ^{168}Tm が生成したり, $^{170}\text{Er}(p, n)$ で129d ^{170}Tm が生成するので臨床応用上には難点となる。

本研究では, 新しく, 電子線Linacによる $^{168}\text{Yb}(\gamma, n)$ $^{167}\text{Yb} \xrightarrow[17.7\text{min}]{\text{EC}} ^{167}\text{Tm}$ の方法に着目した。ここでは長寿命の ^{168}Tm は原理的に作られないし, ^{170}Tm は $^{171}\text{Yb}(\gamma, p)$ 反応が考えられるがその収率はかなり低いことが予想される^{15, 16)}。従って, もしこの方法による ^{167}Tm の核反応収率が高く, 放射化学的に高純度で調製できれば, 臨床的に悪性腫瘍検出のために極めて有用となる。

1973年度前期の実験では, 60MeV制動放射線による ^{167}Tm の核反応収率の測定, 副生成核種の検討, ならびに医学利用に適する高比放射能 ^{167}Tm のYbターゲットよりの化学分離・精製法を検討した。後期の実験においては, できるだけ多量の ^{167}Tm を製造し, 無担体分離を行った。次いで, 担癌動物での腫瘍親和性や骨親和性を ^{167}Tm の比放射能との関連において調べることが目的とし, 担吉田肉腫結節ラットに $^{167}\text{Tm-citrate}$ を静注, 腫瘍, 骨および各臓器組織への取込み率やその時間変化を検討した。

2 ^{167}Tm の製造

a ターゲットおよび照射

ターゲット物質としては, 天然同位体比(^{168}Yb : 0.135%)の Yb_2O_3 (和光純薬 99.9% 0.3~20g), および22%濃縮の $^{168}\text{Yb}_2\text{O}_3$ (ORNL, 5.6mg)を用いた。これらの同位体組成を第1表に示す。それぞれの酸化イッテルビウム粉末は内径6mmの石英管に熔封し, 核理研LinacのRIコース水冷プールにビーム上1列に並べて照射した。60MeV照射の濃縮ターゲットは白金コンバーター(2mm厚 \times 10mm \times 15mm \times 4枚, 転換率30~40%)の直後, 即ちプール最前方に, その他の場合はかなり後方に配置した。照射は, 60MeVでは6.7hr, 白金モニターで測った電子線強度ははじめの3hr05minは2.8 μA , あとの3hr35minは3.5 μA で, 全照射時間を通じてほぼ一定($\leq 10\%$)であった。白金モニターのefficiency factor(60 \pm 10)を考慮すると¹⁷⁾平均193 μA に相当する。30MeV照射では3.1hr, 平均180 μA であった。

b 放射線測定— ^{167}Tm の生成率と副生核種

照射終了後, 各 Yb_2O_3 ターゲットは石英管から取り出し, 一部を点状線源として γ 線測

Table 1 Isotope Composition of Targets

Mass Number	Enriched Yb ₂ O ₃	Natural Yb ₂ O ₃
168	22.5 %	0.14 %
170	6.2	3.03
171	17.2	14.31
172	19.5	21.82
173	11.2	16.13
174	18.1	31.84
176	5.3	12.73

定を行なった。測定には核理研 RI の Ortec 24cc Ge (Li) 検出器と東芝4096 channel PHA, および金沢大 RI 研の20cc Ge (Li)—横浜国大石塚氏製—と NAIG 256 channel PHAを用いた。X線および $\lesssim 100$ KeV の γ 線の測定には Ortec Be窓の 2 ccGe (Li) 検出器, Low Energy Photon Spectrometer, を用いた。これらのエネルギー較正と photopeak efficiency はいくつかの標準点線源 (主に IAEA 製) によって求めた。各試料線源は数ヶ月にわたって photopeak decay を追跡し, 核種同定を確認した。

Fig. 1 には天然および濃縮ターゲットについて, 60 MeV 照射の40時間後における γ 線スペクトルを例示した。主な生成核種は, Yb では (γ, n) による ^{169}Yb (32 d) と ^{175}Yb (4.2 d), Tm では目的の ^{167}Tm の他に, (γ, p) による ^{173}Tm (8.2 hr), さらに濃縮ターゲットでは ^{166}Tm (7.7 hr) と ^{165}Tm (30.1 hr) の生成がみられる。あとの2つはそれぞれ $^{168}\text{Yb} (\gamma, 2n) \xrightarrow{^{166}\text{Yb} \xrightarrow{57.5 \text{ hr}} \text{EC}} ^{166}\text{Tm}$ と $^{168}\text{Yb} (\gamma, 3n) \xrightarrow{^{165}\text{Yb} \xrightarrow{10 \text{ min}} \text{EC}, \beta^+} ^{165}\text{Tm}$ によるものである。30 MeV 照射ではこれらの生成は60 MeV 照射と較べて幾分少ないが, いずれにしても ^{167}Tm に比して短寿命であり, 本研究の目的からは問題にならない。(γ, p) による長寿命の ^{170}Tm (130 d) と ^{171}Tm (1.91 y) は 2 ccGe (Li) の Low Energy Photon Spectrometer による 80 KeV 近辺の γ 測定でも検出できないほど少なかった。この他, (γ, p) による ^{172}Tm (64 hr) と ^{173}Tm (8.2 hr) は僅かに認められた。

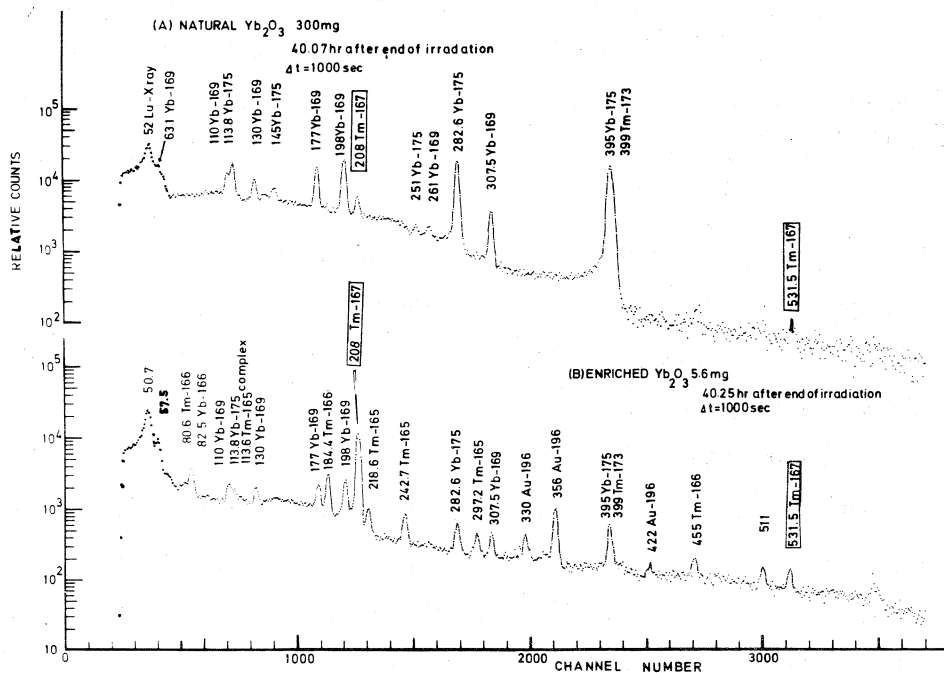


Fig. 1. Gamma-Ray Spectra for Natural and Enriched Targets.

Measurements were performed 40 hrs. after the 60 MeV Irradiation.

以上のうちの長寿命生成核種の照射終了時に換算した生成率を Table 2 に示す。表の値は

Table 2

Yield Data for Tm and Yb Isotopes in the (Yb+30&60 MeV γ)
Reactions

	Maximum energy	30MeV	60 MeV
Beam Current*		2.9 μ A X (60 \pm 15)	3 μ A X (60 \pm 15)
Irradiation time		3.1 hr	6.7 hr
Target			
Enriched Yb ($^{168}\text{Yb}_2\text{O}_3$) 22.5 %	^{167}Tm	1.9 X 10 ³ dps / mg	2.1 X 10 ⁵ dps / mg
	^{166}Tm	9.3 X 10 ² dps / mg	7.7 X 10 ⁴ dps / mg
	^{165}Tm	(7.5 \pm 1.7) X 10 ² dps / mg	1.3 X 10 ⁵ dps / mg
	^{169}Yb	3.7 X 10 ² dps / mg	2.9 X 10 ⁴ dps / mg
	^{175}Yb	2.0 X 10 ³ dps / mg	1.7 X 10 ⁵ dps / mg

Natural Yb (Yb ₂ O ₃)	{	¹⁶⁷ Tm	(12.9 ± 1.3) dps / mg	1.3 X 10 ³ dps / mg
		¹⁶⁶ Tm	4.9 dps / mg	4.7 X 10 ² dps / mg
		¹⁶⁵ Tm	_____	_____
		¹⁶⁹ Yb	2.5 X 10 ² dps / mg	6.8 X 10 ³ dps / mg
		¹⁷⁵ Yb	8.5 X 10 ³ dps / mg	1.7 X 10 ⁴ dps / mg

* Beam current = (monitor value) X (efficiency)

一応の目安を与えるためのもので、ターゲットの形状、照射位置や時間、ビーム強度の時間変化等についての差異は補正してない。また、Ybの壊変生成によるTmについては親核の完全壊変を外挿したものである。

c Yb-Tmの化学分離

悪性腫瘍描画のためのヒトに対する1回の¹⁶⁷Tm投与量は数100μCi~1mCiである。上記のビーム条件(核理研Linacの現状での最高に近い運転の由)では、22%濃縮ターゲットなら数100mg、天然ターゲットでは数10~数100gを要し、これから¹⁶⁷Tmを高比放射能で分離しなければならない。

本研究では常法のα-hydroxyisobutyric acid (α-HIBA)を溶離剤とする陽イオン交換分離を検討した。この分離法は無担体分離としては最も優れているが、実験室的規模では数10mg~数100mgYb₂O₃が限度である。また、Yb-Tmの如く、殊に重稀土類元素で原子番号が隣り合い、かつ重い方が多量の場合はその tailingが大きくなって相互分離は非常に難しい。

まず、数g~数100gの天然ターゲットの場合を想定し、イオン交換分離の前処理としてFig2に示す¹⁶⁷Tmの濃縮(Yb < 100mg)を試みた。原理は、ターゲットに数mgのGd hold back carrierを加えて醋酸溶液とし、Na-amalgamでYb²⁺に還元してYbSO₄を沈澱させる。Gdはあとの陽イオン交換で容易に除去できる。YbSO₄

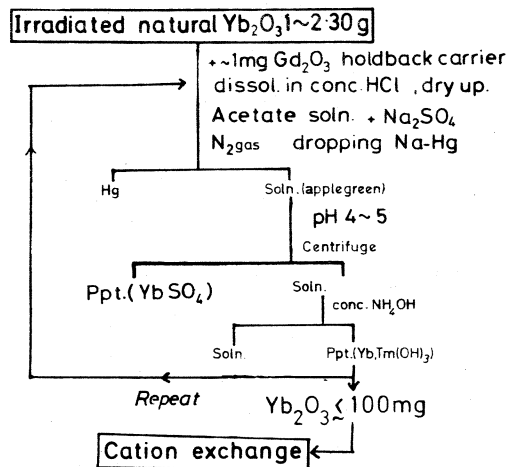


Fig. 2 Chemical Pretreatment of a Massive Yb Target.

は溶解度が高いので液量を低く保ちながら沈澱操作を繰り返す必要がある。この方法はまたかなりの検討の余地があり、現在さらに他の方法も合わせ研究中である。

次いで、イオン交換法を装置的に簡便な室温溶離の条件で検討した。Dowex-50W(×8) 100~200 meshを1.5 cm φ×40 cmのカラムとし、15ml/hrの流速で0.12M α-HIBAを種々のpHでYb-Tmの溶離度を調べた。その結果をFig. 3Aに示す。pHが

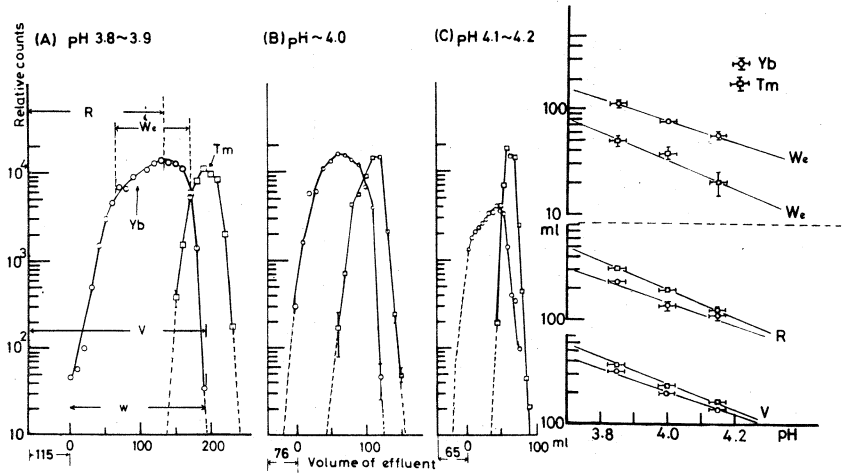


Fig. 3. Elution Behaviours of Yb and Tm in a Cation-Exchange.

A. Effects of pH

Variation of Elution Curves of 25 mg-Yb and Carrier-Free Tm with pH of the Eluant (left) and a Quantitative Presentation of Variation of the Half-Width and Retention Volumes for Yb and Tm (right).

低いほど分離はよくなるが、溶離は遅くなる。pH 3.8でのYb量の影響を調べたのがFig.3Bである。Yb量の増大と共にYbの溶離曲線の中も大きくなり、かつ非常に遅くなる。また、流速を大きくすると分離はよくない。これらの結果から、Ybの数10mg~100mgに対して、15 ml/hrの流速ではpH 3.8で数100ml~1 lほどの溶離剤と、

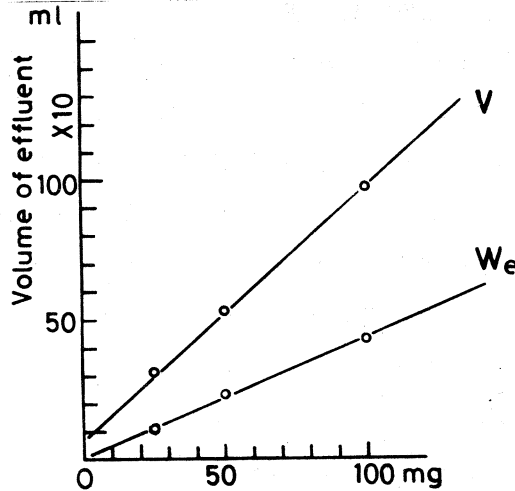


Fig.3 B. Effects of Yb amount

10 hr~数日を要することが判った。trichloroethylene 蒸気によるカラムの加温(87°C)を行なえば、条件はかなり改良されるはずであるが、本実験では後述の如く室温のまま、かつ Tm に対する Yb の tailing による contamination はもう一度イオン交換分離で除去することとした。この場合の Yb は極めて僅か(はじめの数%)となるため、分離は迅速でかつ良好な分離ができる。

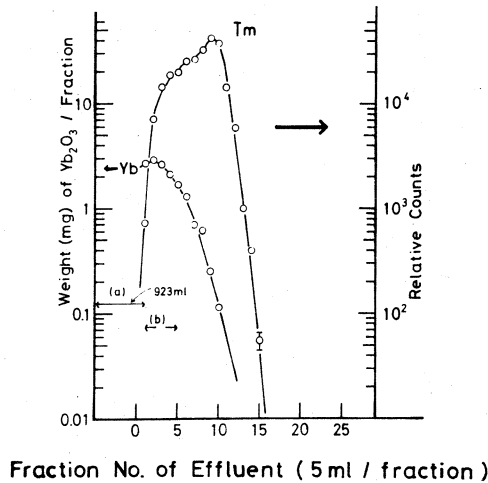


Fig. 4. Tm fraction in the elution curve of 40mg of $^{168}\text{Yb}_2\text{O}_3$ irradiated by 30 & 60 Mev Bremsstrahlung.

d 動物実験用 ^{167}Tm の調製

担癌動物による実験(次章)のために、数 100 μCi の無担体 ^{167}Tm を調製した。ターゲットには22.5%濃縮の $^{168}\text{Yb}_2\text{O}_3$ 40.16 mg を用い、30 MeV および 60 MeV (便乗照射のため)で平均 250 μA 、積算22時間の照射を行なった。その結果、約 0.5 mCi の ^{167}Tm が得られ、前述のイオン交換法のみを適用して放射化学的に分離、精製を行なった。第1回分離の溶離曲線を Fig.4 に示す。ここでは Yb は Yb_2O_3 としての mg 数で、Tm は 208 keV photopeak の計数率で示してある。やや再現性が悪く、上述の予備実験 Fig.3A と較べると Yb の tailing は大きい。fraction No.10 の γ 線スペクトルを分離前のそれと比較すると Fig.5 の如くで、この部分での Yb 除去はほぼ完全である。そこで fraction No.8 以上と以下に分け、後者は再度陽イオン交換を行ない、後に全 Tm fraction を合してそのまま蒸発乾涸した。さらに白金ルツボ中で灼熱して後、無担体のまま、あるいは必要量の金属 Tm を加えて、dilHCl に溶解し、以下の動物実験に供した。

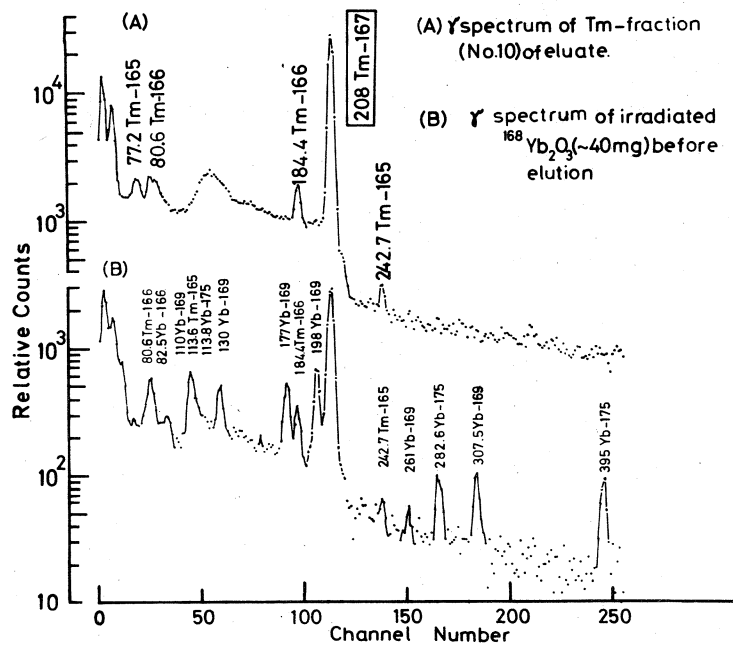


Fig. 5. Gamma-Ray Spectra for a Sample before and after the Cation Exchange Separation.

3 ^{167}Tm の動物腫瘍への親和性実験

a 実験材料と方法

使用動物：体重 163 ± 13 g のドンリウ系ラットの右大腿の皮下に約 2×10^8 個の吉田肉腫腹水細胞を移植して、6～7日間市販の固形飼料で飼育し、腫瘍結節が約 2 cm の大ききになったときに実験に供した。

^{167}Tm -citrate注射液： ^{167}Tm の希塩酸溶液 (Carrier free) を NaHCO_3 で中和後、0.08 M クエン酸ナトリウム 10 ml を加え、pH 7 に調整したのち 15 分間沸とう水溶液中で加熱した。これを 0.22 μm ポアフィルターに通し、ラット 1 匹あたりこの 0.4 ml (約 1.5 μCi) を注射した。

体内分布実験：上記ラットをペントバルビタールナトリウム注射液 (ネプタール) 0.1 ml を腹腔内に注射して麻酔したのち、上記 ^{167}Tm -citrate 注射液を尾静脈よりゆっくりと注射した、静注 3, 24, 48 時間後に各々 5 匹ずつ屠殺して腫瘍、血液、肝臓、腎臓、脾臓、筋肉、骨の各臓器組成を摘出し、各臓器組成 1 g あたりへの ^{167}Tm の取込率 (注射量を 100% とし、かつ減衰補正した) を求めた。またこの値をもとにして、単位重量あたりで

腫瘍組織に各臓器組織の何倍が取り込まれているかも求めた。

b 実験結果

体内分布は Fig. 6 に示すごとく、腫瘍組織は静注 3 時間後に 0.95% / g であり、以後ゆるりと減少して、24 時間、48 時間後に各々約 0.8% / g、0.65% / g となった。3 時間後に腫瘍以外での最高は腎臓で 3.7% / g 強であり、以後急速に減少し 24 時間、48 時間後には各々 1.6% / g 強、約 0.9% / g になった。つぎに骨は 3 時間後に 2% / g、24 時間、48 時間後にはともに約 2.6% / g であった。これに対し肝臓、脾臓はかなり小さく、3 時間後にともに 0.5% / g 強であり、24 時間、48 時間後は 0.5% / g 弱となった。血液、筋肉は更に小さく、3 時間後で血液は 0.2% / g、筋肉は 0.05% / g であり、24 時間以後は両者ともほとんど認められない程度であった。

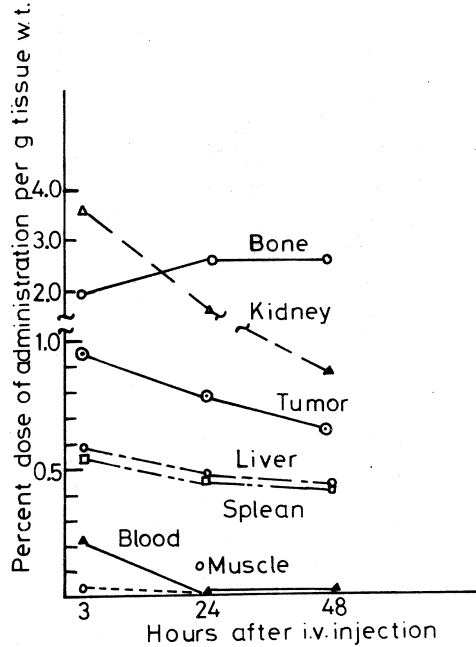


Fig. 6. Time Variation of ^{167}Tm Distributions in Various Organs of Yoshida Sarcoma-bearing Rats.

(腫瘍/各臓器)一比の値は Table 3 に示したが、(腫瘍/血液)一比は 3 時間後に 4.4 であったものが、24 時間、48 時間後には 70 前後の値となり、腫瘍中に比べ血液中にいかに ^{167}Tm が少いかを示していた。(腫瘍/筋肉)一比は 3 時間後にすでに 25 となり、以後この値が更に大きくなり、血液と類似の性質を示した。これに対し(腫瘍/肝臓)一比は時間によらず

Table 3 Tumor - organ Concentration Ratio

Time	Tumor / Blood	Tumor / Muscle	Tumor / Liver	Tumor / Kidney	Tumor / Bone
3 hr	4.4	24.7	1.5	0.27	0.48
24 hr	67.7	78.7	1.6	0.51	0.30
48 hr	74.7	46.8	1.5	0.74	0.25

1.5 前後であり、肝臓には常時ほぼ腫瘍の 2 / 3 が取り込まれていることを示していた。

(腫瘍/腎臓), (腫瘍/骨) 一比は時間によらず 1.0 以下であり、腫瘍よりも取り込みの大きいことを示していたが、腎臓が経時的に大きくなるのに対して骨は逆に小さくなった。

c 考察と結論

この実験で得られた結果は、以前我々が¹⁷⁰Tm citrate で得た結果とほぼ同様であり、上記の方法で製造した¹⁶⁷Tm が期待通りの腫瘍親和性を示すことが動物レベルにおいては十分証明できた。まず腫瘍組織への取込率であるが、投与 3 時間~48 時間後に腫瘍 1 g あたりへ投与量の 0.5~1.0 % が取り込まれる(体重 150 g 前後のラットで)ことは、いくつかある腫瘍親和性物質では比較的多い方であり、また(腫瘍/血液), (腫瘍/筋肉) 一比が極めて大きな値になることは、この元素の大きな長所といえる。肝臓に比較的多く集積する点と腎臓、骨に多い点はこの元素のやや難点といえるが、また逆に骨に極めて強い親和性をもつことは、骨腫瘍、骨転移腫瘍の検出には大きな武器となる。これらの結果から、十分の量の¹⁶⁷Tm が得られるならば、ヒトの軟部腫瘍および骨腫瘍の診断に十分使用できることがわかった。

本研究を通じて終始貴重な助言を戴いた金沢大学理学部阪上正信教授、Linac 照射について大変お世話になった東北大学理学部核理研八木益男助教授と近藤健次郎博士に深く感謝します。

参 考 文 献

- 1) 安東, 久田, Radioisotopes, 19 589 (1970)
- 2) 安東, 久田, ibid, 20 171 (1971)
- 3) 安東, 久田, ibid, 20 273 (1971)
- 4) 安東, 久田, 安東, ibid, 22 7 (1973)
- 5) 安東, 久田, ibid, 22, 286 (1973)
- 6) 安東, 久田, ibid, 21, 549 (1972)
- 7) 安東, 久田, ibid, 21, 648 (1972)
- 8) 久田, 平木, 安東, Jap. J. Clin. Radiol, 18 191 (1973)
- 9) 安東, 久田, 平木, 安東, Radioisotopes, 22 415 (1973)
- 10) Hisada and Ando, J. Nucl. Med, 14 615 (1973)
- 11) Hisada, Tonami, Hiraki, and Ando, ibid, 15 210 (1974)

- 12) Chandra, Hernbery, Braunstein, and Rosenfeld, *Radiology*, 100 687 (1971)
- 13) Chandra, Braunstein, Thein, and Tilbury, *Intn. J. Appl. Radiat. Isotopes*, 22 489 (1971)
- 14) Steinberg, Rasmussen, Ennow, Roy-Poulsen, Voetmann, Poulsen, and Andersen, "Radiopharmaceuticals and Labelled Compounds" Vol. II, p. 151, IAEA-SM-171 / 27 (IAEA, Vienna, 1973)
- 15) 加藤, 核理研研究報告, 1 137 (1972)
- 16) 加藤, *ibid*, 5 133 (1972)
- 17) 八木, private communication (1973)

Ⅲ—9 ヘキサクロロプロペンによる 金属酸化物の分離に関する研究

選研 菅野 卓治, 長谷川伸一
伊藤 勝雄

1 緒 言

使用済原子炉燃料の乾式再処理法の一つである塩化物揮発法では、金属酸化物に高温で四塩化炭素を反応させ、生成した塩化物の蒸気圧の差を利用して分離することが行なわれてきた。そのため、塩素化段階には選択性がなく、除染係数として 10^4 程度の値が得られているにすぎず、湿式法に比べ 10^3 程度低い。塩素化反応に選択性のある反応を用いれば、さらに除染係数を上げるものと考えられる。

著者らは有機塩素化合物の一つであるヘキサクロロプロペンが 100°C において U_3O_8 と反応し、ヘキサクロロプロペンと U_3O_8 とのモル比によって、 $\text{UCl}_5 \cdot \text{C}_3\text{Cl}_4\text{O}$ または $\text{UCl}_6 \cdot \text{C}_3\text{Cl}_6$ が生成することを認めた。この反応温度を用いれば他の金属酸化物のほとんどは反応しないことが考えられるので、この方法によるウランと核分裂生成物との分離について検討した。

2 実 験

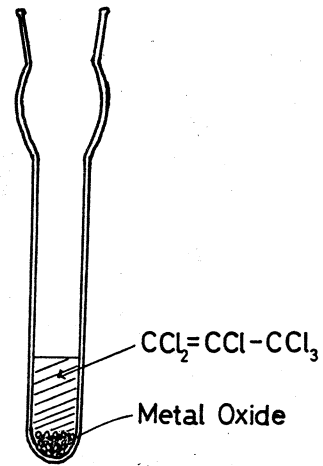
東北大学理学部原子核理学研究施設のライナックを用いて光核反応で放射化した ZrO_2 、 Nb_2O_5 および RuO_2 をそれぞれ U_3O_8 に1%混合し、これを試料として分離実験を行なった。これらの酸化物中に生成する主な核種を第1表に示す。

第1表 各酸化物中に生成する主な核種

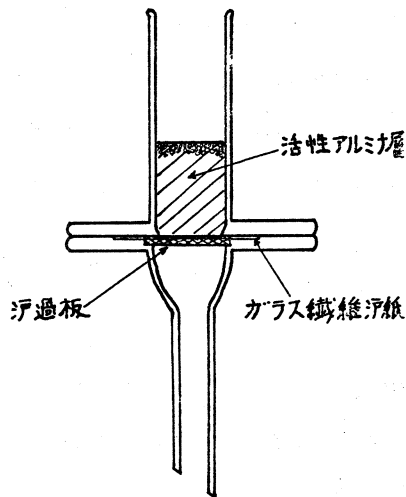
酸化物	核反応	生成核の半減期	放射線のエネルギー (MeV)
ZrO_2	$^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr}$	79.3 h	β^+ 0.90 max
			e^- 0.89
			γ 0.511(44%), 0.91(99%)
Nb_2O_5	$^{93}\text{Nb}(\gamma, n)^{92}\text{Nb}$	10.1 d	γ 0.984(99%)
RuO_2	$^{104}\text{Ru}(\gamma, n)^{103}\text{Ru}$	39.8 d	β^- 0.70 max
			γ 0.497(88%), 0.610(6%)

反応には図1に示す小型の反応槽にコンデンサーを付したものを用いた。この反応槽中に所定の混合酸化物0.1 gを入れたのち、NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータで γ 線スペクトルを測定し、さらにヘキサクロロプロペン 4 ml を加え、コンデンサーをつけたのち、 100°C で1時間反応させた。反応終了後第2図に示す濾過装置を用いて濾過し、アルコールで十分洗浄する。この濾液にアンモニア水を加えてウランを重ウラン酸アンモニウムとして沈澱した。これを濾過洗浄したのち、焼いて U_3O_8 とし、再び γ 線スペクトルを測定した。

処理前後の ^{89}Zr 、 ^{92}Nb 、 ^{103}Ru の γ 線ピークの面積から除染係数を計算した。



第1図：反応槽



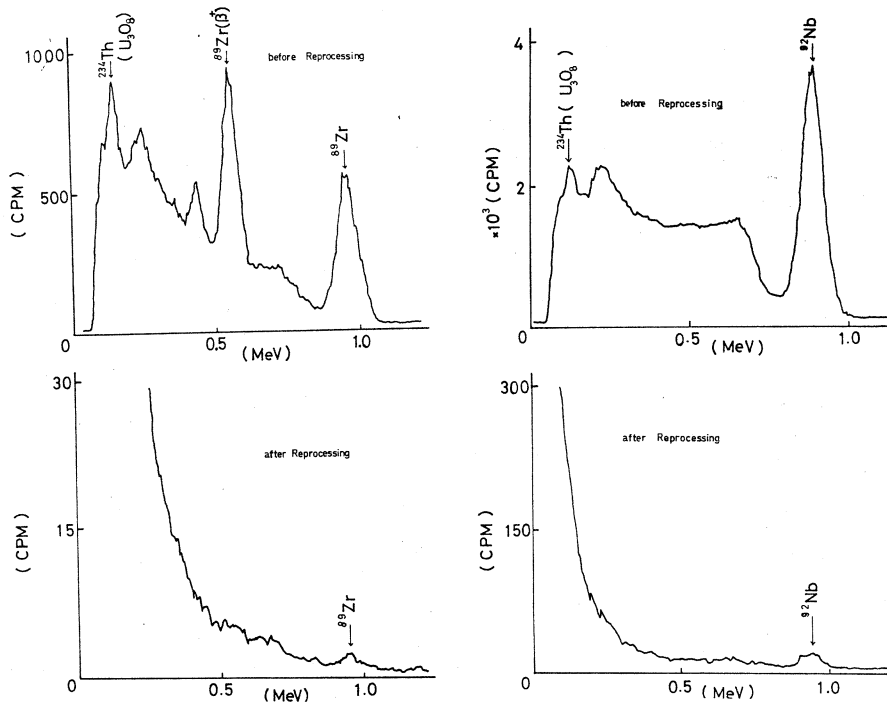
第2図：濾過装置

3 実験結果

3, 1 混合試料による実験

$\text{U}_3\text{O}_8 - \text{ZrO}_2$ 系における処理前後の U_3O_8 の γ 線スペクトルを第3図に示した。明らかにUとZrは分離されており、処理後では ^{89}Zr の2つのピークはほとんど消滅している。この時の除染係数は約500であった。

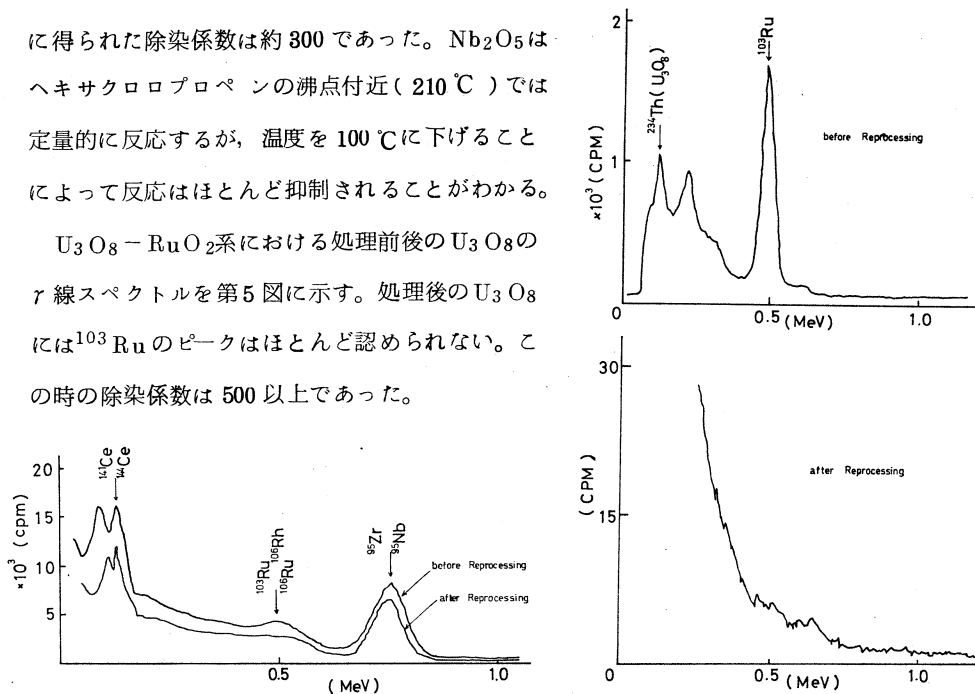
$\text{U}_3\text{O}_8 - \text{Nb}_2\text{O}_5$ 系における処理前後の U_3O_8 の γ 線スペクトルを第4図に示す。この時



第3図： $U_3O_8-ZrO_2$ 系の γ 線スペクトル 第4図： $U_3O_8-Nb_2O_5$ 系の γ 線スペクトル

に得られた除染係数は約300であった。 Nb_2O_5 はヘキサクロプロペンの沸点付近(210℃)では定量的に反応するが、温度を100℃に下げることによって反応はほとんど抑制されることがわかる。

$U_3O_8-RuO_2$ 系における処理前後の U_3O_8 の γ 線スペクトルを第5図に示す。処理後の U_3O_8 には ^{103}Ru のピークはほとんど認められない。この時の除染係数は500以上であった。



第6図：中性子照射試料の γ 線スペクトル 第5図： $U_3O_8-RuO_2$ 系の γ 線スペクトル

3, 2 中性子照射試料による実験

日本原子力研究所のJRR-2で1サイクル(280時間)照射した U_3O_8 を約250日間冷却したものを等量の非照射 U_3O_8 でうすめて試料として用いた。

処理前後の U_3O_8 の γ 線スペクトルを第6図に示す。この場合は混合試料を用いた時とは異なり、 γ 線スペクトルに大きな差が得られず、除染係数は約1.5にすぎなかった。

4 考 察

中性子照射によって U_3O_8 中に生成した核分裂生成物の化学形は明らかでないが、生成量はトレーサー量であるうえ、粒子も極めて小さいと考えられ、仮に酸化物になっていたとしても極めて活性であることが考えられる。実際の使用済燃料は燃焼度も極めて大きく、そのため核分裂生成物の生成量は極めて多い。また酸化物系燃料は UO_2 であるため、この方法を適用する場合には、前処理として酸化過程を入れる必要がある。核分裂生成物が仮に金属状態として存在したとしてもこの過程で酸化物となり、混合酸化物の状態に近いものとなるであろうと想定され、この場合にはかなりの除染係数が期待される。

Zr, Nb および Ru は従来の塩化物揮発法では分離の困難な元素であることを考えると、塩素化処理にこの方法を用いれば除染係数を大きく改善することができると考えられる。この処理によるウランの回収率は99%以上であった。また核分裂生成物中に多量に含まれる希土類元素の酸化物は、この条件ではヘキサクロロプロペンとほとんど反応しなかった。

Ⅲ — 10 人工鉍物中の不純物の放射化分析

金研 武居 文彦, 小林 孝彰

§ 1 緒 言

著者らはⅢa族金属を含む希有金属およびその化合物材料の合成, 特に単結晶材料の合成を中心に, それら材料の物性に関する研究を行なっている。チョクラルスキー法や気相成長法によって育成される単結晶はなんらかの形で不完全性を持っており, これが実際にある結晶の性質に大きく影響していることが多い。そのような成長過程において導入される不完全性のうち原料あるいはるつぼからの不純物は構造敏感な物性と密接に関連していることが知られており, その定量は材料化学において基本的に重要な問題である。

当面研究対象としているカルコゲナイド化合物あるいはケイ酸塩には難溶性のものが多くまた発光分光分析法の検出限界以下の微量成分にも注目しているので, このような場合放射化分析法は有効な研究手段となりうる。制動放射線を利用すると(n, γ)反応では得られない半減期やエネルギースペクトルを持った核種が得られ, また妨害反応を小さくすることもできる場合がある点に注目し, 本研究では種々の人工鉍物単結晶中の微量成分のうち, 通常分析法や熱中性子による放射化法では分析が困難なものを重点的にとりあげる。

今回は加速器を用いる放射化分析法の実際を習得する目的で, シリコン半導体単結晶中の炭素の定量について予備検討を行なった。

§ 2 実 験

試料……シリコンは引き上げ法によって作成した単結晶を数種類東芝より入手し, ダイアモンドカッターで直径10mm, 厚さ2~5mmに切り出した。カッターからドープされる炭素を除くためカーボランダムおよびフッ硝酸で研磨した。炭素の標準試料としては黒色および緑色カーボランダム(それぞれ320meshおよび200mesh)とポリエチレンフィルムを使用し比較を試みた。ポリエチレンは照射前に精秤した。

照射……内径10mmの石英管に, シリコンをアルミ箔に円板状に包んだ標準試料で適宜はさんで入れた。管の最前部および最後尾部には線束強度の空間的分布をモニターする目的で銅板を入れ, 常圧封入した。管を水冷式照射ボート内にビームが試料に直角にあたるようにおき,

最大エネルギー30 MeV および60 MeV の制動放射線で20~40分間照射した。

測定……照射終了後、シリコンはさらにフッ硝酸で研磨した後全量を測定試料とし精秤した。カーボランダムは10~50 mg を分取、精秤した。ポリエチレンは照射分解の程度を知るため照射後も精秤した。 γ 線スペクトロメトリーには主として3×3インチ NaI(Tl)検出器を用い、一部24 cm³ Ge(Li)検出器も使用した。各測定試料は厚さ1 cm のアクリル板ではさみ検出器から約10 cm 離して測定した。

§ 3 結果と考察

γ 線スペクトロメリー……シリコンについては、照射約1時間後から100分間、さらに24時間後および1ヶ月後に測定した。検出されたピークを同定された生成核種と共に表1に示す。

第1表

シリコン照射にともなう γ 線スペクトル

制動放射線 最大エネルギー	ピーク	生成核種	半減期 (文献値)
30 MeV	0.51 MeV	¹¹ C	20.4 min
	1.28 "	} ²⁹ Al	6.56 min
	2.43 "		
	1.78 "	²⁸ Al	2.27 min
60 MeV	¹¹ C, ²⁹ Al, ²⁸ Alの他に		
	0.51 MeV	} ²² Na	2.58 year
	1.27 "		
	0.40 "	} ²⁸ Mg	21.2 hr
	0.94 "		
	1.34 "		
	1.78 "		
	1.37 "	} ²⁴ Na	15.0 hr
	1.73 "		
	2.24 "		
2.74 "			

すなわち、最大エネルギーが 30 MeV, 60 MeV の時とも目的とする $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ 反応のほか $^{30}\text{Si}(\gamma, p)^{29}\text{Al}$ および $^{29}\text{Si}(\gamma, p)^{28}\text{Al}$ 反応がおこる。シリコン bulk からの妨害反応としておこるこれらの (γ, p) 反応の寄与が大きいため ^{29}Al および ^{28}Al のコンプトン端以下の低エネルギー側に現われる ^{11}C の 0.51 MeV のピークの検出と定量はかなり困難である。

最大エネルギーが 60 MeV の時にはさらに $^{30}\text{Si}(\gamma, 2p)^{28}\text{Mg}$ 反応がおこり、アルミニウム箔からも $^{27}\text{Al}(\gamma, \alpha n)^{22}\text{Na}$, $^{27}\text{Al}(\gamma, ^3\text{He})^{24}\text{Na}$ などの反応がおこり、条件によっては反跳核がシリコン中にたたきこまれることもある。また ^{24}Na は $^{29}\text{Si}(\gamma, 2p)^{24}\text{Na}$ や $^{28}\text{Si}(\gamma, ^3\text{He})^{24}\text{Na}$ 反応によって生成しているかもしれない。

今期便乗期間中 Ge(Li) 検出器がほとんどあいていなかった状況下では、60 MeV 照射にもなって 0.40 MeV ピークが生じること、多数の高エネルギーピークのコンプトン部が 0.51 MeV 付近に重なることは ^{11}C の減衰を追う上で致命的であるから、その意味では 30 MeV 照射の方が望ましいといえる。

カーボランダムについては、照射後 5 時間までの測定では事実上 ^{28}Al , ^{29}Al , および ^{11}C によるピーク以外認められなかった。またポリエチレンについては 0.51 MeV のピーク以外まったく検出されなかった。

制動放射線束強度の空間的分布……ある照射試料がビームに垂直な方向で均一な線束強度にさらされているかどうかを調べるため、石英管両端部においた銅板を約 1 mm 幅に切りそれぞれの比放射能を求めた。照射ボートの先端から 8 cm 以上離せば直径 10 mm の試料は事実上均一な線束内にあることがわかった。

次に、ビームに平行な方向の線束強度の試料位置による変動を知るため、石英管内の各位置にある標準試料の比放射能を調べた。結果を表 2 に示す。

第 2 表

照射位置による線束強度の変動

RUN	最大エネルギー	標準試料構成*と比放射能**
1224-1	30 MeV	SiC//SiC, PE
		15.7 14.3 7.4
1224-2	60 MeV	SiC//SiC, PE
		22.0 12.3 12.5

124-1	30 MeV	SiC, PE//PE, SiC//PE, SiC	14.6	112	88	12.4	76	10.3
124-2	30 MeV	SiC, PE//SiC, PE//PE	7.2	51	6.0	47	41	
200-1	30 MeV	SiC, PE//SiC//PE, SiC	7.3	6.4	6.7	4.2	5.0	

* SiCはカーボランダム，PEはポリエチレンを表わす。

//印はここにシリコン試料があることを示す。

左側が照射ポート前方

** $\frac{\text{任意時刻における計数率 (cpm)}}{\text{炭素重量に換算した試料重量 (mg)}}$

カーボランダムについてもポリエチレンについても後部の試料ほど比放射能は小さくなっておりそれだけ線束強度が落ちていることがわかる。これは制動放射線自身の照射試料内における減衰とともに、透過電子線による試料内での制動放射にともなう放射化の寄与が後部の試料ほど小さくなることに起因していると考えられる。

ひとつの重要な問題は、カーボランダム、ポリエチレンのいずれの場合も線束強度の変化の傾向は同じであるが、比放射能の絶対値が両者の間で必ずしも一致しないことである。特にRUN 124-1, 124-2においてはポリエチレンの方が約7倍も大きく、逆にRUN 1224-1, および200-1ではむしろカーボランダムの方が大きいという傾向がみられる。これは炭素の定量において大きな困難をもたらすものであるが、その原因はいまのところ不明である。

いずれにせよ、適当な標準試料でシリコンをはきんで照射すれば線束強度の試料位置による差は補正されると考えられる。

炭素含量の決定……シリコンおよび標準試料中の炭素重量をそれぞれ W_1 および W_0 、照射した時生成する ^{11}C の放射能強度をそれぞれ A_1 、および A_0 とすると次式が成り立つ。

$$W_1 = \frac{A_1}{A_0} W_0$$

RUN 124-1および124-2においてはシリコンに0.511 MeVピークが認められた。カーボランダムを基準として炭素重量を求めると3種のシリコンについてそれぞれ0.80 μg 、0.80 μg および1.86 μg と算出された。

しかし、RUN 200-1 においてはシリコンに 0.51 MeV ピークは認められなかった。この場合前記 2RUN における標準試料の比放射能と比較すると、照射後同一時刻における値に換算して約 1/100 であり、生成放射能が小さかったことが 0.51 MeV ピークの見られなかった主因であると思われる。

加藤らは¹⁾最大エネルギー 30 MeV の制動放射線の光核反応による放射化分析感度を一連の元素について求めた。これによれば炭素は 0.23 μg である。試料重量および照射や測定条件の違いを考慮に入れば、本実験で得られた上記結果は妥当なものといえよう。

市販されているシリコン半導体中の炭素含量は一般に $10^{15} \sim 10^{17}$ atoms/cm³ すなわち 0.01 ~ 1.0 ppm あるいはそれ以下である。²⁾これはシリコン試料 1 g に対して 0.01 ~ 1 μg ということであるから本加速器を用い最大エネルギー 30 MeV 制動放射線を利用する放射化分析の検出限界領域の量である。

従って 30 MeV 照射で炭素含量を精度よく求めようとすれば、照射するシリコンの量を増すこと、電流値をできるだけ大きくすること、照射ボートの比較的前の位置に試料を置くことが望ましい。しかし一方、有効制動放射線強度を上げることが効果的で当然 60 MeV 照射の方が高感度となる。¹⁾(加藤のデータでは炭素について 0.037 μg)もし Ge(Li) 検出器を照射直後から用いることができれば、60 MeV 照射においても ¹¹C の 0.51 MeV[○]ピークの分離が可能であることは本実験において確かめられたので 60 MeV 照射も考えたい。

いずれの場合でも ²⁹Al や ²⁸Al のコンプトンは障害となるのでこれを避けるには 180 °C 方向の同時計数法によるのが適当であろう。

参 考 文 献

- 1) T. Kato and Y. Oka, TALANTA, 19, 515 (1972).
- 2) 加藤, 核理研究報告, 5, 137 (1972).
- 2) T. Nozaki, J. Electrochem. Soc., 117, 1566 (1970)

IV. 加速器・データ処理装置稼動状況

IV—1 昭和48年度後期マシンタイム実施状況

核理研 阿部 勇・一戸 隆
 浦沢 茂一・栗原 亮
 今野 収・羽柴 満

○ 概 況

3月まで順調に経過したが、3月に入って真空トラブルがあり、故障日数が増加した。しかし結果的には、ほぼ予定通り終了した。

マシンタイム実施状況

(単位は日数)

課題(責任者)	割当(追加)	実 施	増 減
e s (鳥塚)	17 (2)	19	0
e s (中原)	6 (2)	8	0
e s (石松)	3	3	0
e s (有田)	6	4	-2
r p (菅原)	6	6	0
r p (坪田)	5 (1)	5	-1
r p (庄田)	7	7	0
r p (斉藤)	3	3	0
r p (川村)	3	3	0
r α (寺沢)	3	3	0
r X (種市)	3	3	0
T O F (百田)	4	4	0
E H (平井)	3	3	0
(松井)	1.5	1.5	0
R I	23 (1)	22	-2
N D	20.5 (1.5)	20	-2
計	114 (7.5)	114.5	-7
工 事	23	32	+9
定 期 点 検	6	6	0
予 備 (修 理)	19	10.5	-8.5
計	48	48.5	+0.5

1) 追加は概況にも述べた様に予備日が残りそうだったので、課題選択委員会で割当てた。

○ 保 守

・ イオンポンプ

使用台数 31台 NEVA製 50 l/s (電圧4KV)約7年の使用実績から寿命は、真空度と一気圧にする頻度に依る。加速管部では約5年、ビームダクト部で約3年である。今期は加速管部が18台、ビームダクト部が2台のオーバーホールを実施した。来期はビームダクト系を重点に予定している。

・ クライストロン

48年7月から新品を故障するまで使用する方法(修理ができない場合もある)を採用した。その結果49年3月末で2本が3,000時間(高圧印加)を越えた。これ迄の平均寿命を大巾に上まわる結果が得られた。

・ クライストロンパルサ

#2と#4のオーバーホールを実施した。外見上異常が認められない個所でも放電していた部分が発見された。3年毎に点検をする。

・ ビームダクト

エネルギー分析、ビーム取出し部の消耗がはげしい。RI製造チャンネルは前期に交換を完了したが、I系分析部は来期(49年度)より交換すべく現在検討中である。構造等できるだけ単純化し、価格の低減をはかる予定である。

IV—2 データ処理装置，測定器稼動状況

核理研 小山田正幸・窪田 健雄
四の宮しずえ・菅原 真澄
平塚 嘉雄・武藤 正勝

1 データ処理装置

1 オンラインデータ集積装置（O—4500）

オンラインデータ集積装置の用途別稼動状況を第1表に示す。年間合計は3,105時間で前年に比べて約700時間の増加である。これはオンライン関係のT—3400よりの移行が終了したためにオンライン関係が前年比約500時間の増加，ディスクの増設によりFORTRAN—7000の利用が可能になり，一般計算が約400時間の増加した事，その反面装置が安定してきて保守関係が約300時間の減となったものである。

年度当初見送られたADCの増設も年度末に実現し，49年下期よりは実用に供される予定で，す。今後はオンライン関係がさらに増加して行くと思われます。

2 オンラインデータ処理装置（T—3400）

オンラインデータ処理装置の用途別稼動状況を第2表に示す。年間合計は4,011時間と前年比で約500時間の減少である。これはオンライン関係のO—4500への移行による減少が約1,500時間あるが，その反面データ処理等が約1,100時間の増加となったためである。

このように年間約3,500時間に及ぶデータ処理，一般計算を行なうT—3400も稼動開始以来満7年を過ぎ近年老朽化による故障，誤動作が増加している（故障時間は前年比約40時間増であるが，数字に現われない故障，誤動作が目立っている）。このような現状を考えると今後マシンタイム増等により増加するデータ処理を全面的に処理していく事はむずかしい事と予想されます。その為に本年度予算に，オンラインデータ処理の一部肩代りと，利用度の高いプロット作業を主目的としたオンラインプロットシステムの導入を計画しましたが，実現致しませんでした。この結果今後もT—3400を利用する訳ですが，前述より故障時間等の増大が予想され，さらに旧型のために部品等の入手難もあり復旧に長時間を要する事は充分考えられます。担当グループと致しましては早期復旧に努力致しますが，利用者の皆様もデータ処理の主力をT—3400から「大型計算センター」等への移行を検討下さいようお願い致します。

（小山田，窪田，四の宮）

第1表

昭和48年度オンラインデータ集積装置用途別稼動時間表

(OKITAC-4500)

(単位：時間)

月	LDM	BDM	ND	オンライン 計	データ 処理	一般 計	保守	故障	月合計
4	40	0	14	54	28	90	7	0	179
5	106	0	40	146	47	32	4	0	229
6	113	125	38	276	12	15	3	0	306
7	83	87	58	228	7	25	28	0	288
8	25	17	68	110	9	32	12	6	169
9	65	63	71	199	17	18	9	2	245
10	47	75	49	171	20	74	6	0	271
11	109	80	46	235	5	125	8	0	373
12	99	55	25	179	10	121	3	0	313
1	59	80	75	214	0	61	5	0	280
2	123	46	26	195	2	45	5	7	254
3	39	0	40	79	7	103	6	3	198
合計	908	628	550	2,086	164	741	96	18	3,105
月平均	76	52	46	174	14	62	8	1	259
%	29.2	20.2	17.7	67.1	5.3	23.9	3.1	0.6	/

第2表

昭和48年度オンラインデータ処理装置用途別稼動時間表

(TOSBAC-3400)

(単位：時間)

月	BDM	ND	PHA	オンライン計	データ処理	一般計	保守	故障	月合計
4	0	9	0	9	118	15	13	10	165
5	87	37	0	124	131	62	8	6	331
6	1	37	0	38	143	74	24	12	291
7	0	10	0	10	211	71	17	8	317
8	0	0	47	47	262	91	8	2	410
9	0	0	0	0	275	115	10	40	440
10	0	0	0	0	230	136	19	13	398
11	0	0	57	57	135	218	25	9	444
12	0	0	0	0	189	195	15	0	399
1	0	0	0	0	82	308	7	4	401
2	0	0	0	0	54	128	14	2	198
3	0	0	0	0	110	101	5	1	217
合計	88	93	104	285	1,940	1,514	165	107	4,011
月平均	7	8	9	24	161	126	14	9	334
%	2.2	2.3	2.6	7.1	48.4	37.7	4.7	2.7	/

2 測定器

○ 48年度はNIM モジュールの開発を主テーマに仕事を進め、すでに実験に供しているモジュールもあるが、計画が遅れ開発途中のまま今年度に繰り越したものもある。今年度前期は引き続きモジュール(汎用性のある測定器)の開発に取り組み実験者から測定器製作の要求が出たらすぐ製作できる体制にしたい。

今年度製作予定の測定器, 実験装置を次に列挙しておく。

- ファーストパルスディスクリミネータ
- TMC 1024. PHA用 デジタル インテグレータ

- RI ゴニオメータコントローラー
- 中性子カウンタープリアンプ, メイアンプ
- 昨年度 計測及びガンマ・チャンネルの予算で次のような測定器を購入し計測, ガンマ・チャンネルだけでなく希望する実験者にも貸し出している。

- CHARGE AMPLIFIER (ORTEC 109A)
- LINEAR AMPLIFIER (" 410)
- GATED BIASED AMPLIFIER (" 444)
- LINEAR GATE (" 426)
- TIMING SINGLE CHANNEL (" 455)
- BIAS SUPPLY (0~5KV) (" 459)
- DUAL COUNTER / TIMER (核理研製)

マニュアル等は計測グループ室で保管しており, 使用希望者は貸出しノートに記載の上使用して頂きたい。

(武藤, 菅原, 平塚)

核理研研究報告 第7巻 第1号

昭和49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.7 No.1 June 1974
Laboratory of Nuclear Science,
Tohoku University
1, Kanayama, Tomizawa, Sendai, Japan