

国寄

RESEARCH REPORT  
OF  
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE  
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 究 報 告

VOL. 8 No. 1 June 1975

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。用語は可能な限り文部省編さん「学術用語集」によって下さい。
2. 引用文献、記号、単位、数式、文字指定等は Journal of the Physical Society of Japan 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、イタリック、ゴシック、立体、まぎらわしい大文字及び小文字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、縮尺又は刷り上が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。原稿は下記あて提出して下さい。

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.8 No.1 目次

## I 原子核物理部門

|       |  |    |
|-------|--|----|
| I - 1 | 電子散乱による原子核の研究.....   | 1  |
|       | (核理研, 理学部物理,* マインツ大,** サンパウロ大***)  |    |
|       | 鳥塚 賀治, 斎藤悌二郎, 寺沢 辰生  |    |
|       | 細山 謙二, 笹尾真実子, 福田 茂樹  |    |
|       | 三浦 英美, 榎本 収志, 宇井 治生,*  |    |
|       | 川添 良幸,* J. Friedrich**,*   |    |
|       | J. R. Moreira***   |    |
| I - 2 | Elastic Electron Scattering from the M7 and M9<br>Magnetization Density of <sup>209</sup> Bi ..... | 19 |
|       | (サンパウロ大,* マインツ大,** 核理研)  |    |
|       | J. R. Moreira*, I. C. Nascimento*  |    |
|       | J. Friedrich**,* 榎本 収志   |    |
|       | 斎藤悌二郎, 福田 茂樹, 三浦 英美  |    |
|       | 笹尾真実子, 寺沢 辰生, 細山 謙二  |    |
|       | 鳥塚 賀治  |    |
| I - 3 | <sup>25</sup> Mg の横成分形状因子の解析 .....   | 40 |
|       | (核理研)  |    |
|       | 岡崎 行男  |    |
| I - 4 | <sup>26</sup> Mg による弾性電子散乱 .....   | 46 |
|       | (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, 斎藤 肇*, 田中 英二*   |    |
| I - 5 | <sup>52</sup> Cr による電子散乱(II) .....   | 55 |
|       | (核理研, 青山学院大*)  |    |
|       | 早川 建, 岡崎 行男, 小山田正幸   |    |
|       | 鳥塚 賀治, 有田 浩三*  |    |
| I - 6 | 荷電中間子光発生に関する予備実験.....  | 58 |
|       | (核理研)  |    |
|       | 大橋 英雄, 中原 和夫, 庄田 勝房  |    |
| I - 7 | <sup>6</sup> Li(e, e'd) <sup>4</sup> He 反応.....  | 67 |
|       | (山形大教養, 核理研*)  |    |
|       | 種市 宏, 上野 博昭, 庄田 勝房*  |    |

|           |  |                          |
|-----------|--|--------------------------|
| I - 8     | $^{51}\text{V}$ と $^{56}\text{Fe}$ の $(\gamma, p)$ 反応 .....  | 71                       |
|           | ( 教養部物理, 核理研* )  | 坪田 博明, 及川 四郎*, 上柿 順一*    |
|           |  | 玉江 忠明*                   |
| I - 9     | $^{56}\text{Fe}(\gamma, \alpha_0)$ 反応及び $^{56}\text{Fe}(\gamma, p_0)$ 反応 .....                                       | 82                       |
|           | ( 核理研, 教養部物理* )  | 玉江 忠明, 坪田 博明*, 菅原 真澄     |
| I - 10    | $^{140}\text{Ce}(e, e'p)$ 反応(II) .....   | 90                       |
|           | ( 核理研 )  | 斎藤 悌二郎, 庄田 勝房            |
| I - 11    | $^{139}\text{La} f_{7/2}$ IAR の崩壊機構(I) .....   | 93                       |
|           | ( 核理研 )  | 上柿 順一, 庄田 勝房             |
| I - 12    | $^{141}\text{Pr} f_{7/2}$ IAR の崩壊機構(II) .....  | 99                       |
|           | ( 核理研 )  | 上柿 順一, 庄田 勝房             |
| II 物性物理部門 |  |                          |
| II - 1    | Structure of Vitreous $\text{As}_2\text{Se}_3$ by T-O-F Pulsed Neutron<br>Diffraction Using the Electron Linac ..... | 107                      |
|           | ( 工学部金属材料, 金研* )   | 井垣 謙三, 伊藤寿美江, 鈴木 謙爾*     |
|           |  | 三沢 正勝*, 福嶋 喜章*           |
| II - 2    | Time-of-Flight Pulsed Neutron Diffraction of Molten<br>Salts .....   | 113                      |
|           | ( 金研 )   | 福嶋 喜章, 三沢 正勝, 鈴木 謙爾      |
| II - 3    | $\text{Mn}_3\text{Si}$ の中性子回折 .....  | 119                      |
|           | ( 金研 )   | 富吉 昇一                    |
| II - 4    | Gd 合金の熱外中性子回折(III) .....   | 125                      |
|           | ( 核理研, 理学部物理*, 広大総合科学部** )   | 渡辺 昇, 石川 義和*, 関根 久*,     |
|           |  | 鈴木三千郎*, 藤井 博信**, 岡本 哲彦** |
| II - 5    | $(\text{CuNi})_{3-x}\text{Al}_{1+x}$ 合金の格子緩和型変態の中性子非弾性散乱による研究 .....  | 129                      |
|           | ( 工学部金属材料 )  | 梶谷 剛, 平野 賢一              |
| II - 6    | ネマティック液晶相の電場印加による構造変化 .....  | 136                      |
|           | ( 核理研 )  | 新村 信雄                    |

II-7 Annealing Effects in Recoil-Damaged Uranium Dioxide  
 Studied by  $\text{Np}^{237}$  59.54 keV Mössbauer Effect ..... 141  
 (工学部無所属, 選研,\* 東北工大\*\*)

松井 啓治, 大川 淳,\* 庄司 忠良\*\*

II-8 Innershell Ionization by 150 MeV Electron Impact ..... 155  
 (九大工, 理学部物理,\* 核理研,\*\* 理学部化学\*\*\*)

俵 博之, 石井 慶造,\* 森田 右\*

斎藤 肇,\* 小山田正幸,\*\* 鍛冶 東海\*\*\*

朱 鉄吉,\*\* 塩川 孝信\*\*\*

### III 放射化学部門

III-1 第四級イオンによるII b族元素ハロゲン錯体のイオン対溶媒抽出..... 163  
 (工学部応用化学) 斎藤 達弥, 沢谷 次男

III-2 Multielement Determination in Tobacco Leaves by Photon  
 Activation Analysis ..... 173  
 (理学部化学, 岩手大教養\*) 加藤 豊明, 佐藤 允美,\* 鈴木 信男

III-3 スチレンの重合反応に対するLET効果 ..... 187  
 (非水研) 安川 民男

III-4 無担体  $^{28}\text{Mg}$  の調製 ..... 189  
 (核理研, 理学部RI中央実験室,\* 工学部金属材料,\*\* 理学部化学\*\*\*)

八木 益男, 山寺 亮,\* 藤川振一郎\*\*

塩川 孝信\*\*\*

III-5 残留核法による( $\gamma, \pi^{-}x n$ )反応..... 191  
 (核理研) 八木 益男

### IV 生物・医学部門

IV-1 高比放射能  $\text{Tm}-167$  の製造とその癌および骨親和性の研究(II) ..... 193  
 (金沢大医療短大, 金沢大医学部,\* 金沢大理学部\*\*)

安東 醇, 久田 欣一,\* 代田 悦章,\*\*

坂本 浩\*\*

V 加速器・測定器部門

|     |  |     |
|-----|--|-----|
| V-1 | ( $\gamma, p$ ) 反応の角分布測定装置 .....           | 203 |
|     | (核理研, 教養部物理,*) 菅原 真澄, 玉江 忠明, 坪田 博明*        |     |
| V-2 | 広帯域磁気分析計に原子核乾板を用いた測定について(I) .....          | 207 |
|     | (山形大教養, 核理研*) 種市 宏, 上野 博昭, 庄田 勝房*          |     |
| V-3 | 劣化したGe(Li)検出器の再生 .....                     | 213 |
|     | (理学部物理) 金沢 正明, 片倉 純一, 林部 昭吾<br>大島 真澄, 山家 優 |     |
| V-4 | 電源周波数に同期したLINACのトリガ発生器 .....               | 215 |
|     | (核理研) 武藤 正勝, 藤沢 政則                         |     |
| V-5 | 東北大核理研データステーション .....                      | 221 |
|     | (核理研) 窪田 健雄                                |     |

VI 加速器・データ処理装置稼動状況

|      |  |     |
|------|--|-----|
| VI-1 | 昭和49年度後期マシン報告 .....                                  | 227 |
|      | (核理研マシングループ) 浦沢 茂一, 今野 収, 一戸 隆<br>栗原 亮, 根本 重伸, 柴崎 義信 |     |
| VI-2 | データ処理装置・測定器稼動状況 .....                                | 229 |
|      | (核理研) 菅原 真澄, 藤沢 政則, 武藤 正勝<br>小山田正幸, 窪田 健雄            |     |

# I. 原子核物理部門

## I - 1 電子散乱による原子核の研究

|           |                  |
|-----------|------------------|
| 核理研       | 鳥塚賀治・斎藤悌二郎       |
| 理学部物理*    | 寺沢辰生・細山謙二†       |
| マイッツ大**   | 笹尾真実子・福田茂樹       |
| サンパウロ大*** | 三浦英美・榎本収志        |
|           | 宇井治生*・川添良幸*      |
|           | J. Friedrich**   |
|           | J. R. Moreira*** |

今期は巨大共鳴を含んだ準弾性散乱の実験とサンパウロ大学との協同研究のつづきとして $^{209}\text{Bi}$ の magnetic scattering の実験を行なった。

準弾性散乱と巨大共鳴を分離するためにスペクトラムを縦方向と横方向の成分に分離することを試みた。 $EL$ 巨大共鳴は殆んど縦方向成分のみを含んでいるのに対し、準弾性散乱には縦方向と横方向の成分が同程度に寄与している。実験で得られた横方向スペクトラムからフェルミガス模型の考察により準弾性散乱の形を決めることができた。準弾性散乱を差引いた残り、即ち巨大共鳴の部分の和をとり、その $q$ -依存性から巨大共鳴を $E_1, E_2, E_3, \dots, E_7$ 等の多重極度に分解した。

$^{209}\text{Bi}$ からの magnetic scattering はターゲットの高い $Z$ に起因したビームの拡がりによる back ground が大巾に増加し、magnetic scattering の約 100 倍もあり極めて困難な実験となった。然しビームダクトを改造し、ヘリウムバッグを作り、back ground を約 2 桁下げることと成功した。 $^{209}\text{Bi}$ の  $M9$  モーメントの形状因子が測定され、独立粒子模型による理論値に近い値が得られている。 $M9$  モーメントは原子核で測定される最高の多重極モーメントである。

---

\*現在 高エネルギー物理学研究所



## Quasielastic Electron Scattering and Giant Multipole Resonances in $^{116}\text{Sn}$

Inelastic scattering of electrons and hadrons from the nuclear continuum in a wide range of nuclei has revealed the existence of giant multipole resonances (GMR).<sup>1)</sup> The GMR appear as bumps riding on a large continuous background. Accordingly major uncertainties in the GMR data arise from the approximations used for the background. In order to estimate this background, as a first step, the procedure of subtracting the contributions due to the electrons degraded through radiative effects are used. Then the quasielastic electron scattering contributions arising from electron collisions with the individual nucleons in the nucleus must be subtracted. However, since the same processes are involved in the GMR as for quasielastic scattering these two effects have not been considered to be distinct.<sup>2,3)</sup>

Quasielastic electrons scattering (QES) is a simple knock-out reaction, which involves the proton and neutron form factors. In this process the longitudinal (charge) and transverse (magnetic) form factors are therefore comparable in magnitude, while in the collective electric multipole (EL) excitations the transverse form factor is reduced approximately to a fraction  $(\omega/q)^2$  of the longitudinal form factor, where  $\omega$  is the excitation energy and  $q$  is the momentum transfer.

According to the result<sup>4)</sup> of  $180^\circ$  electron scattering from  $^{197}\text{Au}$  in which only transverse terms contribute, the  $(M1+M3)$  peak with a width of  $\sim 3$  MeV has been observed at  $\sim 8$  MeV while no indications have been found at the expected energies of the GMR. We infer that the transverse form factor is the

sum of the individual excitation with rather single particle character. Therefore the transverse form factor obtained from a Rosenbluth plot, or a  $180^\circ$  scattering experiment, is confined to QES in the zero-th order and it may be used to determine the spectral shape for QES. The residual form factor is then interpreted as the resonance part and may be compared with the theoretical form factors obtained from the hydrodynamical model<sup>5,6)</sup> to resolve the possible multipolarities of the various GMR.

Inelastic electron scattering from  $^{116}\text{Sn}$  was measured using the beam of the Tohoku 300-MeV electron linear accelerator at an overall resolution of 0.15%. The experiments were carried out at incident energies and angles of 150 MeV,  $25^\circ - 35^\circ$ ; 183 MeV  $35^\circ$ ; 215 MeV  $35^\circ$ ; 250 MeV,  $25^\circ - 75^\circ$ ; and 130 MeV,  $155^\circ$ . A range of about 100 MeV in excitation energy  $E_x$  was covered. The experimental arrangement has been described elsewhere.<sup>7)</sup> We employed two 96%-enriched  $^{116}\text{Sn}$  self-supporting targets of 92 mg/cm<sup>2</sup> and 124 mg/cm<sup>2</sup>. The thicker one was used for experiments at 250 MeV,  $65^\circ$  and  $75^\circ$ , and at 130 MeV,  $155^\circ$ . The cross sections were normalized against elastic and inelastic electron-carbon cross sections. The spectra corrected for the radiative effects are displayed in Fig.1. We have attempted the unfolding somewhat phenomenologically by varying the effective target thickness so as to achieve the fitting in the region of the discrete levels. We believe this method may be useful up to the region of the GMR; however, it becomes uncertain in the high- $E_x$  side of QES. The negative value at high- $E_x$  region implies partly that the assumed energy dependence of elastic and inelastic form factors may not be adequate.

The obtained cross section spectra were divided by the

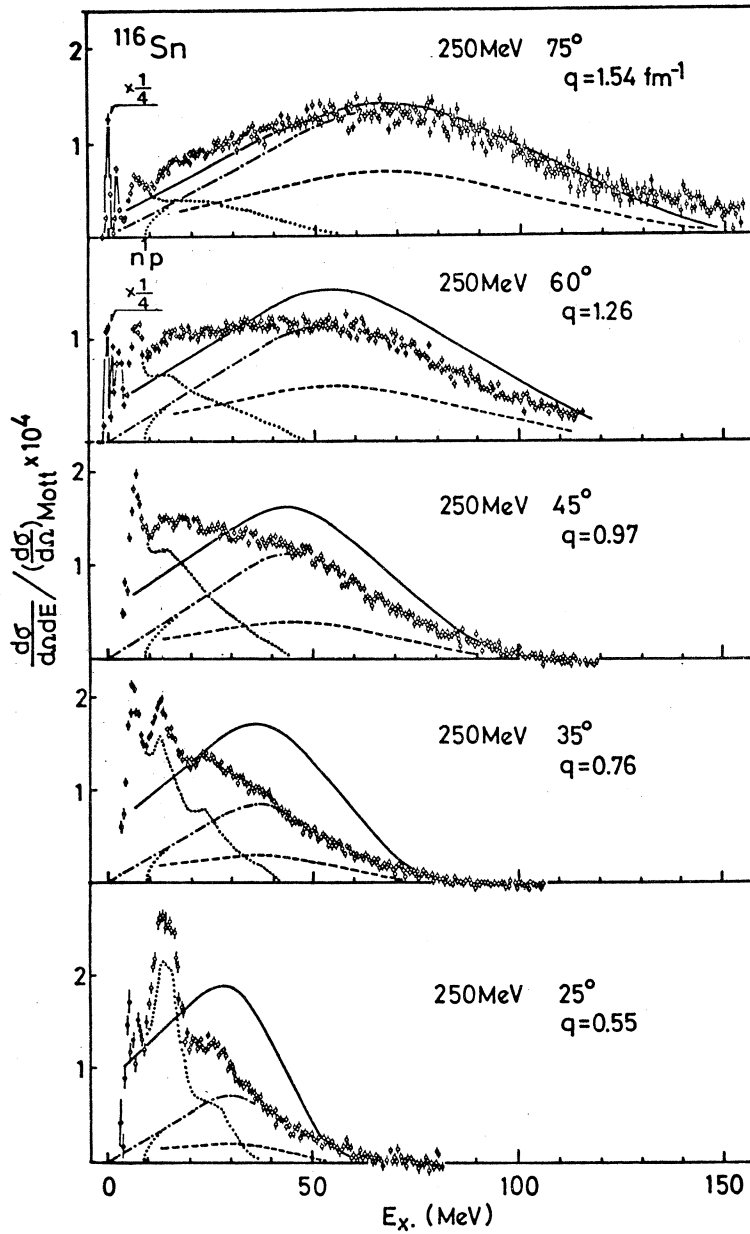


Fig.1 The form factor spectra at 250 MeV and  $25^\circ$ ,  $35^\circ$ ,  $45^\circ$ ,  $55^\circ$ ,  $60^\circ$ , and  $75^\circ$ . The total (full line) and transverse form factors (dashed line) are obtained from the Fermi-gas model. The spectra are divided into quasielastic (dash-dotted line) and resonance (dotted line) parts.

Mott cross section and the form factor spectra thus defined are shown in Fig.1. Besides a broad bump of QES, peaks are evident around 5, 15, and 25 MeV in the low- $q$  spectra. Roughly the QES peak for  $q \geq k_F$  appears at  $q^2/2M^*$  with a width of  $q \cdot k_F/M^*$  where  $M^*$  is the effective nucleon mass and  $k_F$  the Fermi momentum. For  $q < k_F$  the cross section is restricted by the Pauli principle and the peak deviates from  $q^2/2M^*$ . The obtained spectra are compared with the Fermi-gas model<sup>8</sup> at non-zero temperature ( $T=0.2$ ) where  $M^*$  is taken to be  $0.8M$  and  $k_F = 260$  MeV/c, which are consistent with the values so far known. The predicted curves fit the high- $q$  spectrum, but disagree at low  $q$  indicating an enhanced structure which overshoots the predicted curve at low excitation energies. This implies that the excess scattering results from excitation of the GMR and involves the residual interaction which has been neglected in the simple QES model. The Fermi-gas model transverse form factors are also shown in Fig.1.

The contribution of the longitudinal form factor  $F_L^2$  and transverse form factor  $F_T^2$  can be separated by making plot of

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

against  $\left( \frac{1}{2} + \tan^2 \frac{1}{2} \theta \right)$ . Such procedure as a function of  $E_x$  was performed between two spectra at 250 MeV,  $60^\circ$  and 130 MeV,  $155^\circ$  which corresponds to the same  $q_{\text{eff}} = 1.25 \text{ fm}^{-1}$  at the point of  $E_x = 15$  MeV. The result is shown in Fig.2. Also shown is the theoretical  $F^2$  and  $\left( \frac{1}{2} + \tan^2 \frac{1}{2} \theta \right) F_T^2$  obtained with the Fermi gas model. This model is in good agreement with the experimental  $F_T^2$  but not with the experimental  $F_L^2$ . The QES part of the 250 MeV,  $60^\circ$  spectrum was approximated using the spectral shape of the experimental  $F_T^2$  to be  $\alpha \left( \frac{1}{2} + \tan^2 \frac{1}{2} \theta \right) \times F_T^2$  as shown in Fig.2 where  $\alpha = 3.0$  is determined to fit the

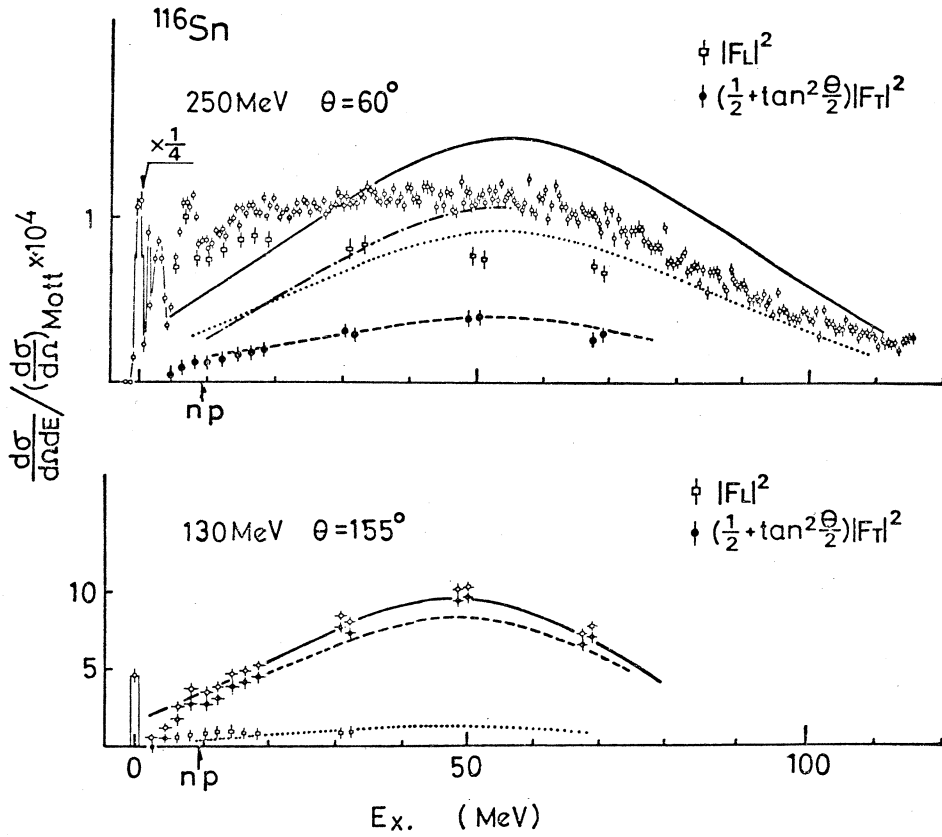


Fig.2 The spectra at 250 MeV,  $60^\circ$  and 130 MeV,  $155^\circ$  is separated into the  $F_L^2$  and  $(\frac{1}{2} + \tan^2 \frac{1}{2} \theta) F_T^2$  terms. The  $F^2$  (full line),  $F_L^2$  (dotted line), and  $(\frac{1}{2} + \tan^2 \frac{1}{2} \theta) F_T^2$  (dashed line) were obtained from the Fermi-gas model. The quasielastic contribution (dash-dotted line) was determined to be  $\propto (\frac{1}{2} + \tan^2 \frac{1}{2} \theta) F_T^2$

spectrum at high  $E_x$ . The QES parts were then determined from the following assumptions: 1. The QES peak is approximately given by the Fermi gas model. 2. At low  $E_x$  QES is a straight line starting from  $E_x=0$ . 3. At high  $E_x$  the cross section is entirely QES. 4. QES arises from the proton emission

threshold energy. The observed  $F_T^2$  below the proton threshold energy may indicate the magnetic multipole excitations. Each spectrum is then divided into the resonance and nonresonance parts as shown in Fig.1.

The resonance part at low  $q$  is consistent with the known GMR at 12 MeV ( $E2, T=0$ ), 16 MeV ( $E1, T=1$ ), and 25 MeV ( $E2, T=1$ ) which exhaust the corresponding energy weighted sum rule (EWSR). The 7-MeV peak which appears in all spectra is a complex of many narrow excitations with not single multipolarity. In Fig.3 the summed form factors for the resonance part in the certain ranges 3.5-5, 5-10, 10-15, 15-20, 20-25, 25-30 MeV are compared with conceivable combinations of multipoles. The form factors for the known GMR with  $T=1, E1$  and  $T=1, E2$  were obtained from Jensen-Steinwedel model.<sup>6)</sup> The other multipole excitations were regarded as  $T=0$  and their form factors were obtained by the Tassie model.<sup>5)</sup> The 3.5-5 MeV form factor is reproduced with the sum of  $E3+E5$ . For the 5-10 MeV form factor, since we expect a group of excitations across one major shell ( $1 \hbar\omega$ ), only odd parity states are introduced. The 10-15 MeV range involves the excitations of two major shell ( $2 \hbar\omega$ ) and the  $E1, T=1$  giant resonance. In the ranges of 15-20, 20-25, 25-30 MeV the form factors are compared with multipoles from  $E1$  to  $E7$ . In Table 1 the transition strengths obtained are indicated with percentages of the corresponding EWSR.

The anomalous structure around about 7 MeV which we claim to be a complex of  $E3, E5$ , and  $E7$  has also been observed in the other reactions.<sup>1)</sup> The disagreement between the QES model and the observed spectra arises mainly from the longitudinal part indicating the excitations of many GMR. The lower multipole strength is concentrated into narrow region, while the

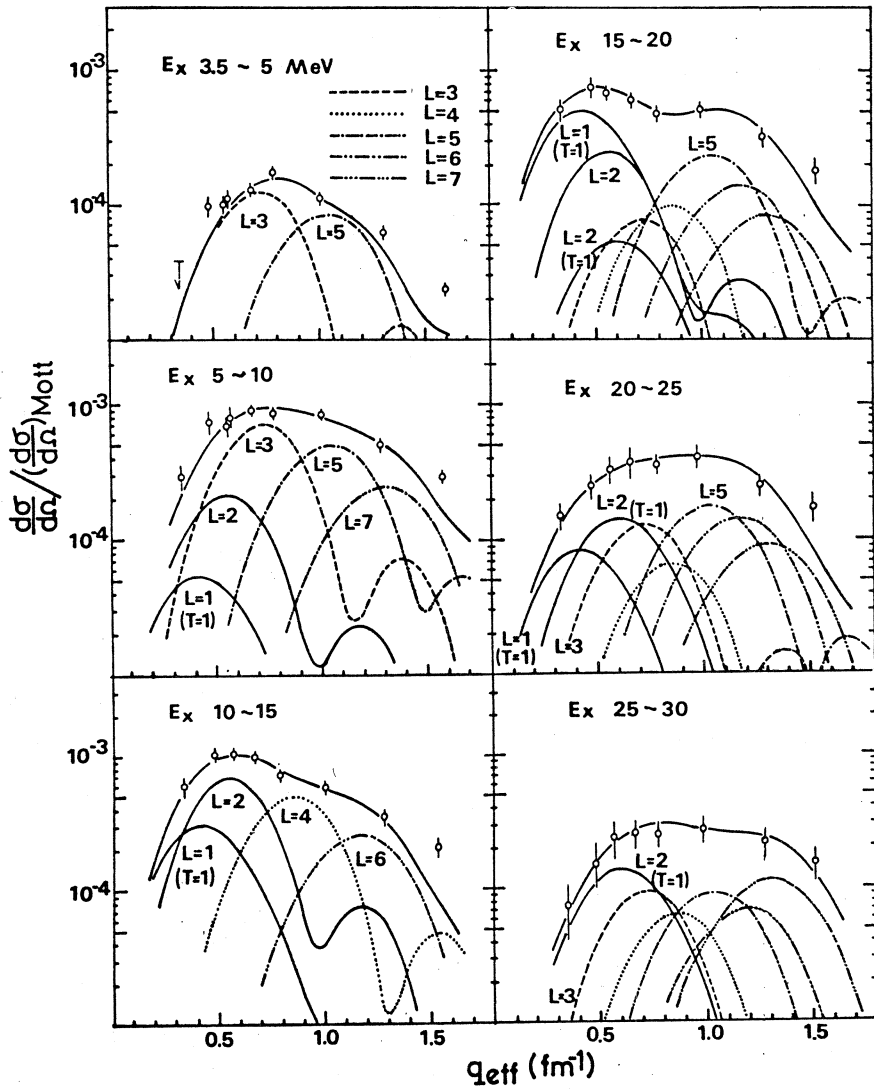


Fig.3 The form factors for the resonance part are compared with combinations of the multipoles.

Table I. The percentages of the energy weighted sum rule.

| $E_x(\text{MeV})$ | 0~3.5 | 3.5~5 | 5~10 | 10~15 | 15~20 | 20~25 | 25~30 |
|-------------------|-------|-------|------|-------|-------|-------|-------|
| $E1, T = 1$       |       |       | 3    | 25    | 50    | 10    |       |
| $E2, T = 0$       | 5     |       | 14   | 65    | 20    | 7     |       |
| $E2, T = 1$       |       |       |      |       | 11    | 13    | 16    |
| $E3, T = 0$       | 10    | 4     | 39   |       | 10    | 24    | 20    |
| $E4, T = 0$       | 8     |       |      | 47    | 12    | 10    | 12    |
| $E5, T = 0$       | 2     | 3     | 34   |       | 37    | 35    | 26    |
| $E6, T = 0$       |       |       |      | 38    | 29    | 35    | 20    |
| $E7, T = 0$       |       |       | 26   |       | 21    | 29    | 46    |

higher multipole is fragmented in accord with the recent theoretical results.<sup>9-11)</sup> (Y. Torizuka)

### References

- 1) G. R. Satchler: Phys. Reports **14 C** (1974) 99, and references contained therein.
- 2) T. De Forest Jr.: Nucl. Phys. **A 132** (1969) 305.
- 3) T. W. Donnelly: Nucl. Phys. **A 150** (1970) 393.
- 4) M. A. Lone, H. C. Lee, L. W. Fagg; W. L. Bendal, E. C. Jones, Jr., X. K. Maruyama, and R. A. Lingren: Contribution to *Second International Symposium on Neutron Capture Gamma Ray Spectroscopy and Related Topics* Petter, Netherlands-Sept. 2-6/74
- 5) L. J. Tassie: Aust. J. Phys. **9** (1956) 407.
- 6) H. Steinwedel, J. H. D. Jensen and P. Jensen: Phys. Rev. **79**, (1950) 1019, G. R. Satchler, Nucl. Phys. **A 195** (1971) 1.
- 7) M. Kimura et al.: Nucl. Instrum. Methods **95** (1971) 1403.
- 8) A. G. Sitenko and I. V. Simenog: Nucl. Phys. **70** (1965) 1535.
- 9) G. F. Bertsch and S. F. Tsai: preprint, to be published.
- 10) S. Kremald and J. Speth: Phys. Lett. **52 B** (1974) 295.
- 11) G. R. Hammerstein, H. McManus, A. Moalem and T. T. S. Kuo: Phys. Lett. **49 B** (1974) 235.



## $^{208}\text{Pb}$ の巨大共鳴(II)

$^{208}\text{Pb}$  の巨大共鳴領域の実験は 1972 年～ 1973 年におこなわれたが<sup>1)</sup>、今回はさらに momentum-transfer  $q$  をより変化させた測定、transverse 成分をもとめるための後方角度の測定、より励起エネルギーの高い領域(いわゆる準弾性散乱領域)の測定をおこなった(第 1 表参照)。

第 1 表

|   | 入射<br>エネルギー<br>(MeV) | 散乱角度 | 測定年  | ターゲット<br>の厚さ<br>(mg/cm <sup>2</sup> ) | 最大励起<br>エネルギー<br>(MeV) | (a)   | (b)    | $\Delta Q_{eff}^{(c)}$<br>(mster.) | $q_{eff}^{(d)}$ |
|---|----------------------|------|------|---------------------------------------|------------------------|-------|--------|------------------------------------|-----------------|
| ① | 183                  | 35°  | 1972 | 50                                    | 31                     | 1 %   | 0 %    | 2.39                               | 0.617           |
| ② | 124                  | 40°  | 1972 | 50                                    | 29                     | 1 %   | -0.5 % | (2.47) <sup>(e)</sup>              | 0.497           |
| ③ | 150                  | 35°  | 1972 | 100                                   | 21                     | 0.6 % | 1.1 %  | (2.05) <sup>(e)</sup>              | 0.517           |
| ④ | 215                  | 35°  | 1972 | 100                                   | 37                     | 1.1 % | 0.3 %  | 2.28                               | 0.714           |
| ⑤ | 250                  | 35°  | 1973 | 100                                   | 36                     | 1 %   | 0.3 %  | 2.28                               | 0.821           |
| ⑥ | 250                  | 25°  | 1974 | 50                                    | 88                     | 1.1 % | 0.4 %  | 2.35                               | 0.593           |
| ⑦ | 250                  | 35°  | 1974 | 50                                    | 68                     | 1 %   | 0.5 %  | 2.30                               | 0.821           |
| ⑧ | 250                  | 52°  | 1974 | 50                                    | 120                    | 1 %   | -0.3 % | 2.40                               | 1.193           |
| ⑨ | 250                  | 70°  | 1974 | 50                                    | 34                     | 1 %   | 1 %    | 2.47                               | 1.560           |
| ⑩ | 150                  | 30°  | 1974 | 50                                    | 26                     | 1.2 % | -0.1 % | 2.28                               | 0.447           |
| ⑪ | 124                  | 116° | 1974 | 50                                    | 29                     | 0.9 % | 1.4 %  |                                    | 1.216           |

(a) 弾性散乱の 2 MeV までの yield の比較。

$$\frac{(\text{unfolding 後}) - (\text{unfolding 前}) \times (\text{補正係数})}{(\text{unfolding 後})}$$

(b) 弾性散乱と第一励起のピークの間、unfolding 後の yield (弾性散乱の yield に対する比)

(c) マインツ大学で得られた弾性散乱の散乱弾面積を使ってもとめた。LDM 系の effective solid angle。

(d)  $q_{eff} = q \left( 1 + \frac{3}{2} \frac{Z\alpha}{ER_0} \right)$ 。  $E_f = E_i - 13 \text{ MeV}$

(e) この測定では current - monitor が正しく作動してなかったと思われる(本文参照)。

より  $q$  の低い実験をおこなう際には current monitor 系の精度が問題になった。そこで SEM, Faraday cup を併用、および ORTEC-439 current digitizer 3 台を組みあわせ、さらに current digitizer は pico Ampere source を使ってチェックした。その結果、current

digitizer は,

$$10^{-9} A < I < 3 \times 10^{-7} A \quad (I \text{ は monitor からの平均電流})$$

では 1% 以内の精度で安定, それ以外では個別の特性があることがわかった。この digitizer の特性の補正をした後の SEM / Faraday cup の比は

$$6 \times 10^{-9} A < I < 3 \times 10^{-7} A$$

の範囲では 0.5% の精度で安定であった。 $^{12}C$  (106 mg) のターゲットをおいた時この比は 0.10 であった。第 1 表の ②, ③, ⑩の測定では, 弾性散乱ピーク測定時の pile-up を防ぐため平均電流を上記の安定範囲よりも小さくせざるを得ない。よって ②, ③の測定には問題があったので今回 ⑩の測定を行なった。すなわち, 弾性散乱ピーク領域の dose は, 別にこのピークをさけて測定した (平均電流  $> 6 \times 10^{-9} A$ ) tail 部分のスペクトラムと一致するように normalize した。

入射エネルギーの小さい実験をする際には散乱電子エネルギーも小さくなって, 弾性散乱領域と準弾性散乱領域の, LDM 通過後の (detector の efficiency が変化する危具があった。この変化が, detector に入る電子の軌道がずれることから起るとすれば, background の影響の無視できる counting rate で single SSD の count と 3 coincidence 後の count との比が散乱電子エネルギー ( $E_{scat}$ ) によって変化するかどうかを調べてみればわかる。いくつかの channel について調べたところ, この比は

$$65 \text{ MeV} \lesssim E_{scat} < 250 \text{ MeV}$$

の範囲では統計誤差内でわからなかった。

channel ごとの efficiency の誤差を相殺するため, 測定はすべて, 一回の測定で cover するスペクトラムの 1/3 ずつ磁場をずらしておこなった。これらのデータを再編集し, 入射エネルギーが異ってもある channel の励起エネルギーが常に一定になるように以下に述べるようなプログラムをつくった。

1. 再編集前の channel の yield  $Y_i$  は, count 数  $C_i$  を dose と channel 巾  $\Delta E_i$ , efficiency  $\varepsilon_j$  ( $j = 1, \dots, 33$ ) で normalize する。

$$Y_i = \frac{C_i}{\text{dose}} \frac{1}{\varepsilon_j} \frac{1}{\Delta E_i} \quad (1)$$

$$DY_i = \frac{\sqrt{C_i + 1}}{\text{dose}} \frac{1}{\varepsilon_j} \frac{1}{\Delta E_i} \quad (2)$$

2. 散乱電子エネルギーは, 弾性散乱ピーク前後 5 channel を 2 次曲線で近似し, その中心エネルギーが

$$E_{scat} = \frac{E_o}{f} - \varepsilon(\text{collision loss from the window}) - \varepsilon(\text{collision loss from the target}) \quad (3)$$

$$f = 1 + \frac{E_o(1 - \cos\theta)}{\text{Nucleus Mass}}$$

$E_o$  = 入射エネルギー

$\theta$  = 散乱角度

となるよう中心軌道エネルギー  $E_c$  をもとめ、各 channel エネルギー  $E_i$  と巾  $\Delta E_i$  は2次の項まで入れて計算する。

3. 再編集後の  $k$  番目の channel ( 励起エネルギー  $E_{xk}$ , 巾  $\Delta E_{xk}$  ) に対し散乱電子エネルギー  $E_{sk}$  と巾  $\Delta E_{sk}$  を計算し

$$\begin{aligned} E_i - \frac{\Delta E_i}{2} &> E_{sk} - \frac{\Delta E_{sk}}{2} \\ E_i + \frac{\Delta E_i}{2} &< E_{sk} + \frac{\Delta E_{sk}}{2} \end{aligned} \quad (4)$$

となる channel  $i$  をすべてあつめる (  $m$  コ )

4. その範囲でスペクトラムを

$$y = a_1 + a_2 E_s + \dots + a_n E_s^{n-1} \quad (5)$$

$m > n$

で近似し、最小次乗法で  $a_1, a_2, \dots, a_n$  をもとめる。この際 dose から重みをもとめる。

5.  $k$  番目の yield は

$$y_k = \int_{E_{sk} - \frac{\Delta E_{sk}}{2}}^{E_{sk} + \frac{\Delta E_{sk}}{2}} (a_1 + a_2 x + \dots + a_n x^{n-1}) dx / \Delta E_{sk} \quad (6)$$

誤差は

$$d y_k = \sqrt{\frac{y_k}{\Delta E_{sk} \times \text{total dose}}} \quad (7)$$

プログラムのチェックとして、ある再編集前の channel エネルギー及びエネルギー巾を  $E_{sk}$ ,  $\Delta E_{sk}$  として、その yield を上記の再編集ルーチンを使ってもとめ、再編集前の yield とくらべてみた。その結果、 $n$  が 1 ( 平均操作と同等 )、あるいは 2 ではピークの前後で再現性がよくないが ( 再編集後ピークの巾がひろがる )、 $n$  が 3 以上ではほとんどの領域で統計誤差内で再現する。しかしピークの立ち上がりではずれが大きかった。これは 3 coincidence 後の detector

の effective な位置が設計位置からずれていた可能性があり、そのためによるものと考えられる。次に再編集時の channel 中,  $\Delta E_{xk}$  を変えて弾性散乱ピークの前後 ( $E_x = -0.5 \sim +0.5$  MeV) の領域の yield の和をくらべてみた。 $\Delta E_{xk} = 0.07, 0.1, 0.2$  MeV では、再編集前の yield の和に対し、それぞれ 0.6%, 0.8%, 0.7% 増で、efficiency の誤差を含む全体の統計誤差内であった。

次に輻射補正について考える。従来の輻射補正の方法には大きくわけて次のような問題があった。

1. 1 channel ごとに輻射補正と tail の差し引きをおこった場合 ((unfolding) の弾性散乱ピークの yield の和は、補正前の yield のある間隔 ( $\Delta E$ ) での和に、 $\Delta E$  に対する輻射補正係数  $K(\Delta E)$  をかけた値に対し、数%から 10% 以上もことなる。
2. unfolding 後のピークの後に大きな負の yield が残り、 $^{208}\text{Pb}$  の場合、低励起状態のピークはこのマイナスの上のった形になる。
3. いわゆる準弾性散乱領域をすぎた高励起エネルギーで unfolding 後の yield が負になる。<sup>3)</sup> 1., 2., については本誌前号で Friedrich 氏が深い検討をくわえ,<sup>2)</sup> tail の式と補正係数の対応をつけること、LDM と scattering chamber の窓の影響を考察すること、tail に寄与する三つの項を正確にたためこむこと、等によってほぼ解決できることがわかった。このことを考えて、高励起エネルギー領域まで tail の unfolding することを考える。

Friedrich 氏の提示した tail は次式によって与えられる。

$$g(k) = \underbrace{\frac{K^S K^R (\kappa + \varepsilon)}{k}}_{A \text{ 部}} \times \underbrace{g^{cal}(k)}_{B \text{ 部}} \quad (8)$$

ここで

$$k \simeq E_i - E_f \quad ,$$

$K^S, K^R, \kappa, \varepsilon, g^{col}$  については参考文献 2) を参照されたい。(8) 式の A 部は次のように解釈することができる。

エネルギー損失  $k$  の tail は、輻射場による何コかの photon の発生によるものと考えられる。このうち最もエネルギーの大きい ( $k'$ ) photon 1 コ発生と、その他の multiple photon の発生にわけて考えると、tail の cross section は

$$\int_0^{\frac{n}{n+1} k} \left[ \text{電子が 1 コの hard photon の発生でエネルギー } k' \text{ を失う確率} \right] \times \frac{d\sigma}{d\Omega}(E'_i)$$

$$\times \left[ \text{multiple photon の発生によってエネルギー } k'' \text{ を失う確率} \right] dk'' \quad (10)$$

であたえられる。ここで

$$k = k' + k''$$

$$n = \text{全体で発生する photon 数} - 1$$

である。

$$(10) \text{ 式} \sim A \times \int_0^{\frac{n}{n+1}k} \frac{(k')^{\kappa'-1}}{k-k''} dk'' \quad (11)$$

$$\kappa' = \kappa + \varepsilon$$

$$A = (f^{rad} + f^s) / 2 \times \frac{d\sigma}{d\Omega} \times \kappa^s \varepsilon^R \frac{\kappa'}{(E_i E_f)^{\kappa'/2}} \quad (12)$$

$f^{rad}$ ,  $f^s$ ,  $\kappa^s$ ,  $\varepsilon^R$  については, 参考文献 2 を参照のこと。

$$\begin{aligned} & \int_0^{\frac{n}{n+1}k} \frac{(k'')^{\kappa'-1}}{k-k''} dk'' \\ &= k^{\kappa'-1} \int_0^{\frac{nk}{n+1}} \frac{dk''}{k-k''} - \int_0^{\frac{n}{n+1}k} \frac{k^{\kappa'-1} - k''^{\kappa'-1}}{k-k''} dk'' \end{aligned} \quad (13)$$

第 2 項は  $n \rightarrow \infty$  で  $-k^{\kappa'-1} / \kappa'$  に収束する。第 1 項は

$$k^{\kappa'-1} \ln(n+1) \quad (14)$$

となる。

もしも有限な  $n_0$  コの photon で多重発生の影響を近似でき, しかも

$$\ln(n_0 + 1) < \frac{1}{\kappa'} \quad (15)$$

ならば第一項を無視できる。この時 (11) 式は (8) 式の  $A$  部に一致する。すなわち, 1 コの hard photon 発生のに  $K^S$ ,  $K^R$  をかけることによって多重発生の効果を考えていると解釈できる。

collision 項のたみこみはもっと複雑で, 実際には数値積分をするよりはかないが, これを channel ごとにおこなうことは我々の計算機の能力外であるし, collision の項は photon エネルギーが増すに従って急激に減少するので, ここでは次のような式を使うことにする。

$$\text{tail} = \left[ \text{one external hard photon 発生} + \text{one internal hard photon 発生} + \text{collision loss} \right] \times K^S K^R \quad (16)$$

Friedrich 氏の論文である程度良い近似とされた  $g^{prod}$  を考えると,

$$\text{tail} = \left[ \left\{ \text{one external hard photon 発生} + \text{one internal hard photon 発生} \right\} \times K^C + \text{collision loss} \right] \times K^S K^R \quad (17)$$

## 第 2 表

250 MeV, 25°の輻射補正の比較。(a), (b)は第1表に同じ。

| 式    | channel 巾 | (a)   | (b)   | 補正後の yield の和 |           |
|------|-----------|-------|-------|---------------|-----------|
|      |           |       |       | 10~11 MeV     | 18~19 MeV |
| (16) | 70 KeV    | 1.1 % | 0.4 % | 1466 ± 30     | 668 ± 21  |
| (16) | 100 KeV   | 1.5 % | 0.4 % | 1429 ± 30     | 667 ± 21  |
| (17) | 100 KeV   | 2.2 % | 0.4 % | 1423 ± 30     | 662 ± 21  |

であらわされるが、第2表に示されるように弾性散乱ピークで(6)式と(7)の間には、1, 2%の差があるが、非弾性散乱での差は無視できる。ここで internal photon 発生には、次のような peaking 近似を使用した<sup>4)</sup>。

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_f} = & \frac{\alpha}{\pi k} \left\{ \ln \left( \frac{2\sqrt{E_i E_f}}{m} \sin \frac{\theta}{2} \right) \left[ 1 + \left( \frac{E_f}{E_i - \omega} \right)^2 \right] - \frac{E_f}{E_i - \omega} \right\} \\ & \frac{d\sigma(E_i, E_i - \omega)}{d\Omega} + \frac{\alpha}{\pi k} \left\{ \ln \frac{2\sqrt{E_i E_f}}{m} \sin \frac{\theta}{2} \right. \\ & \left. \left[ 1 + \left( \frac{E_f - \omega}{E_i} \right)^2 \right] - \frac{E_f + \omega}{E_i} \right\} \frac{d\sigma(E_f + \omega, E_i)}{d\Omega} \end{aligned} \quad (18)$$

$E_i, E_f$  = 入射, 散乱電子エネルギー

$\omega$  = 励起エネルギー

これは従来使用していた式

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_f} = & \frac{\alpha}{\pi k} \left\{ \ln \left( \frac{2(E_i - \omega)}{m} \sin \frac{\theta}{2} \right) \left[ 1 + \left( \frac{E_f}{E_i - \omega} \right)^2 \right] - \right. \\ & \left. - \frac{E_f}{E_i - \omega} \right\} \frac{d\sigma(E_i, E_i - \omega)}{d\Omega} + \frac{\alpha}{\pi k} \left\{ \ln \left( \frac{2(E_f + \omega)}{m} \sin \frac{\theta}{2} \right) \right. \\ & \left. \left[ 1 + \left( \frac{E_f + \omega}{E_i} \right)^2 \right] - \frac{E_f + \omega}{E_i} \right\} \frac{d\sigma(E_f + \omega, E_f)}{d\Omega} \end{aligned} \quad (19)$$

とくらべると、photon 発生方向をすべて積分した値<sup>5)</sup>により近い。第3表に示されるように、入射エネルギーが124 MeVでも励起エネルギー50 MeVまでは3%の誤差内で使用できる。

次に(16), (18)式の計算に必要な形状因子は、弾性散乱と第一励起状態( $3^-$ )からの非弾性散乱については、DWBA計算の結果を入れたが、それ以外の非弾性散乱については考慮していない。5~6 MeVのE3, 13.5 MeVのE1共鳴のひく tail のこの近似が、励起エネルギー20~30 MeVでおこす誤差は、250 MeV 52°でそれぞれ0.03%, 0.06%以下であった。

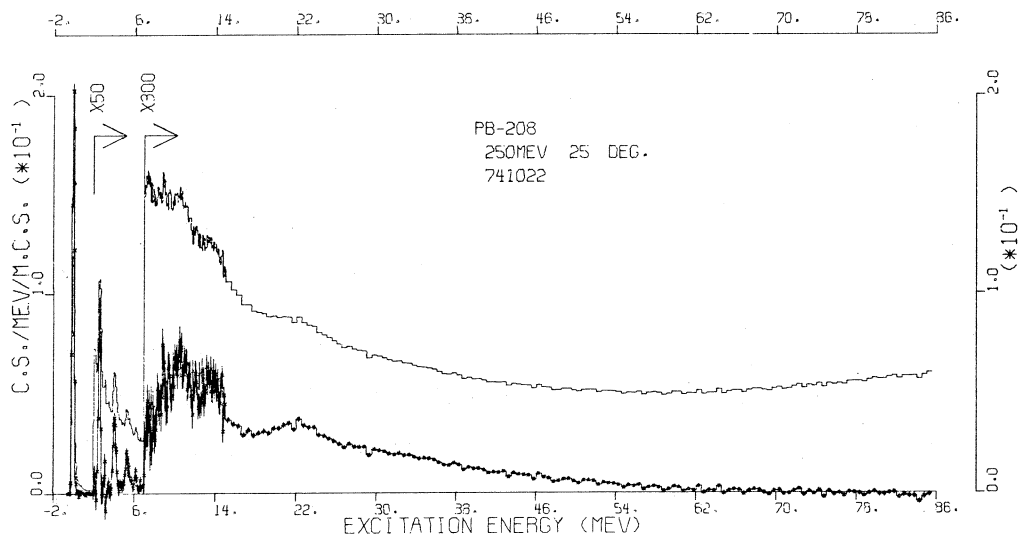
## 第 3 表

peaking 近似の誤差。本文中(18式, (19)式と exact な計算(参考文献5参照)を比較した。

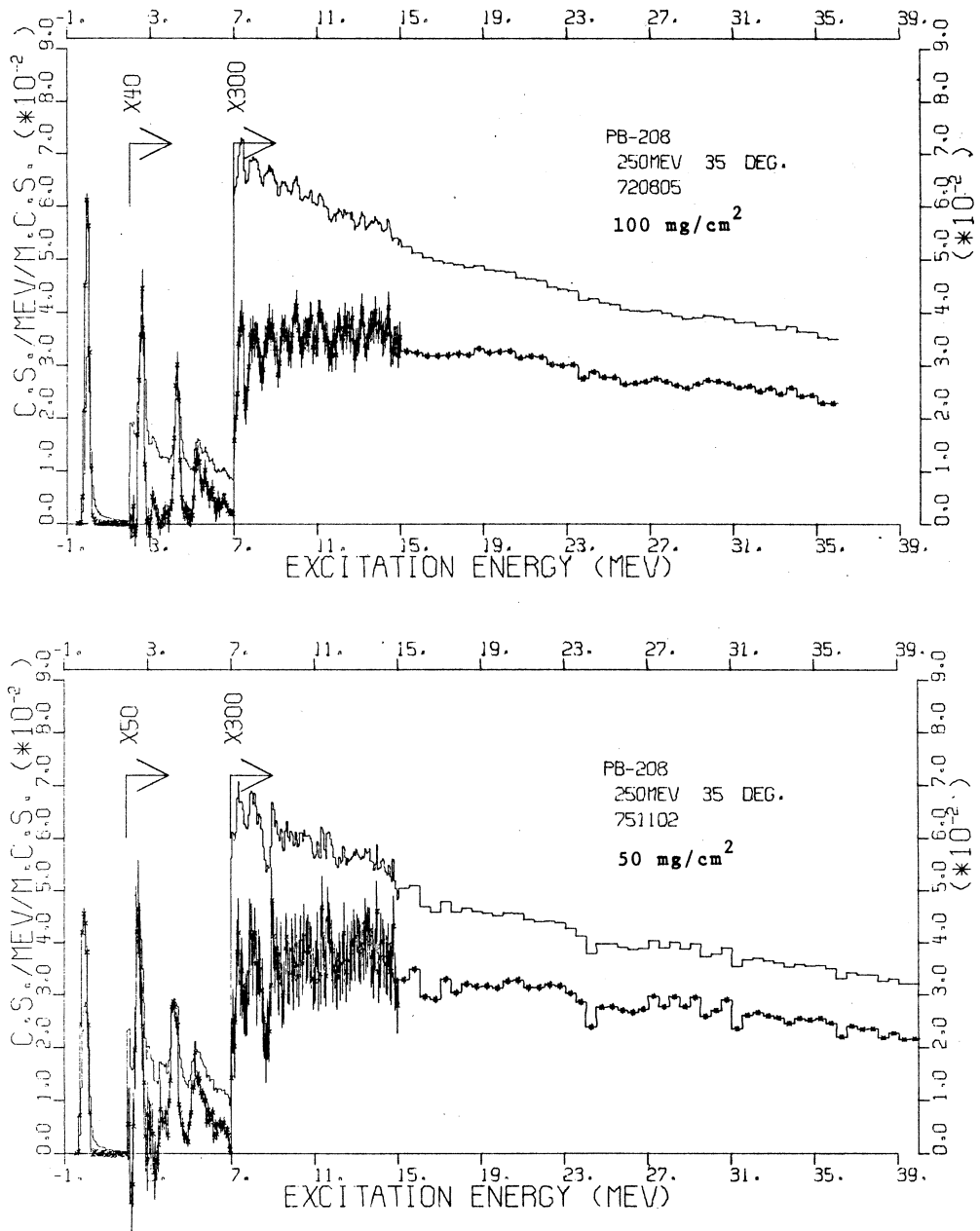
|               |        | $(\text{tail}(\text{peaking 近似}) - \text{tail}(\text{Exact})) / \text{tail}(\text{Exact})$ 単位 % |       |       |        |        |       |        |       |       |        |
|---------------|--------|---|-------|-------|--------|--------|-------|--------|-------|-------|--------|
| photon energy |        | 5MeV  | 10MeV | 20MeV | 30 MeV | 40 MeV | 50MeV | 60 MeV | 70MeV | 80MeV | 90Me V |
| 124 MeV       | (19) 式 | 1.4   | 1.8   | 3     | 4      | 6      | 9     |        |       |       |        |
|               | (18) 式 | 1   | 1     | 1     | 1      | 2      | 3     |        |       |       |        |
| 250 MeV       | (19) 式 | 1   | 0.8   | 1.5   | 1      | 1.2    | 1.4   | 0.8    | 2     | 2     | 3      |
|               | (18) 式 | 0.8   | 0.5   | 0.8   | 0      | -0.4   | -1    | -2     | -1.5  | -1.5  | -1.5   |

さらに, 1 channel の巾をかえると補正後の yield は多少変化することに注意しなければならない(第2表参照)。一般に巾を小さくするほど誤差は小さくなると思われる。

tail をひいた弾性散乱附近の誤差は第1表にまとめられている。準弾性散乱領域をすぎたスペクトラムの測定は, 250 MeV, 25° ののであるが, 第1図に示されるように yield が負になることはこの場合起こらなかったが, さらに高励起領域になると peaking 近似が良くなく, また  $q$  が大きくなると非弾性散乱の形状因子の  $q$ -dependence が無視できなくなるので問題になると思われる。



第1図 250 MeV 25° の輻射補正前と後のスペクトラム, ヒストグラムの方が輻射補正前。



第2図 250 MeV 35° の 50mg/cm<sup>2</sup> (下), 100mg/cm<sup>2</sup> (上) のスペクトラム。ヒストグラムの方が輻射補正前である。ビーム resolution, 統計などは2つの測定でことなる。

第2図は、250 MeV 35° でターゲットの厚さの異なる2回の測定のスペクトラムである。補正後の巨大領域の yield はほぼ同じであった。



## 参 考 文 献

- 1) Phys. Rev. Letters **30** (1973) 1068.
- 2) 核理研研究報告 VoL **7** (1974)254.
- 3) 核理研研究報告 VoL **7** (1974)239.
- 4) Review of Modern Physics **41** (1969) 205.
- 5) Phys. Rev. **133** (1964) B1344.

## I - 2 Elastic Electron Scattering from the M7 and M9 Magnetization Density of $^{209}\text{Bi}$

J. R. Moreira, I. C. Nascimento, J. Friedrich, A. Enomoto,  
T. Saito, S. Fukuda, H. Miura, M. Sasao, T. Terasawa,  
K. Hosoyama, Y. Torizuka

### § 1. Introduction

It has been pointed out in several theoretical studies<sup>1,2)</sup> that magnetic density distributions of high multipole order can be investigated by appropriate electron scattering experiments. Results of a magnetic scattering experiment on  $^{51}\text{V}$  have been recently reported<sup>3)</sup>. In this paper we present results for magnetic scattering from  $^{209}\text{Bi}$ . In particular we discuss the following points. (1) The separation of the charge scattering from the total cross section. (2) The accuracy with which the charge scattering cross section is known. (3) The radiative correction for an experiment in the reflection mode. (4) The constancy of the reference measurements. (5) The analysis of the present data.

---

\* Universidade de Sao Paulo, Instituto de Fisica, Sao Paulo, Brasil.

\*\* Institut für Kernphysik der Johannes Gutenberg Universität, 65 Mainz, Federal Republic of Germany.

## § 2. The separation of the charge scattering from the measured cross section

In Born approximation the total scattering cross section is given by

$$\sigma_{\text{total}}^{\text{BA}} = \sigma_{\text{M}} (Z^2 F_{\text{c}} + V_{\text{T}}(\theta) F_{\text{m}}) \quad (1)$$

(cf. e.g. ref.1). Here  $\sigma_{\text{M}}$  is the Mott cross section

$$\sigma_{\text{M}} = \left( \frac{e^2}{2E_0} \frac{\cos \theta/2}{\sin^2 \theta/2} \right)^2$$

The form factors  $F_{\text{c}}$  (charge) and  $F_{\text{m}}$  (magnetic) depend on  $q$  only, therefore a graph of  $\sigma_{\text{total}}^{\text{BA}} / \sigma_{\text{M}}$  as a function of  $V_{\text{T}} = 1/2 + \tan^2 \theta/2$  for  $q$  fixed may be used to separate the charge and magnetic contributions to the total cross section. Such a Rosenbluth plot can be applied successfully to low- $Z$  data. For high- $Z$  nuclei, however, the cross section is not described correctly by eq. (1). As a result of the Coulomb distortion the reduced cross section<sup>\*</sup> which we define by

$$\begin{aligned} \sigma_{\text{total}} &= \sigma_{\text{c}} + \sigma_{\text{m}} \\ \sigma_{\text{total}}^{\text{red}} &= \sigma_{\text{total}} / \sigma_{\text{M}}, \quad \sigma_{\text{c}}^{\text{red}} = \sigma_{\text{c}} / \sigma_{\text{M}}, \\ \sigma_{\text{m}}^{\text{red}} &= \frac{\sigma_{\text{m}}}{V_{\text{T}} \sigma_{\text{M}}} \end{aligned} \quad (2)$$

is not a function of  $q$  alone. The long-range effects are partly taken into account if one uses an effective momentum transfer

---

\* The reduced cross sections are defined such that they correspond to  $Z F_{\text{c}}$  and  $F_{\text{m}}$  of eq. (1), respectively.

$$q_{\text{eff}} = q \left( 1 + \frac{3}{2} \frac{Z e^2}{R E} \right)$$

( $R$  = equivalent radius). However, still the reduced charge scattering cross section is far away from being a constant as can be seen from Fig.1, which is a plot of  $\sigma_c^{\text{red}}$  for  $Z = 83$  as a function of  $V_T$  for fixed  $q_{\text{eff}}$ . The charge scattering cross sections have been calculated with a phase shift code making use of the Bi charge distribution which has recently been measured at Mainz<sup>4)</sup> (cf. section 3). In principle any distribution function could have been used for this investigation, the result certainly being dependent on the choice of the distribution. The slope of  $\sigma_c^{\text{red}}$  depends on  $q_{\text{eff}}$  and on  $\theta$ , therefore no general rule can be given as to how measured cross sections could be modified such that they can be analysed with a Rosenbluth plot.

As an example we analyze with a Rosenbluth plot some total cross sections calculated for fixed  $q_{\text{eff}}$  ( $2.4 \text{ fm}^{-1}$ ). The magnetic contribution to the cross section is calculated in DWBA with a computer program from Prewitt<sup>5)</sup>; here a single

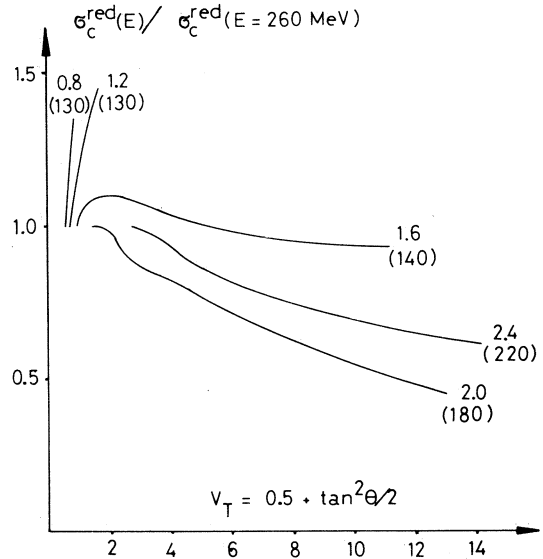


Fig.1 Reduced charge scattering cross section from  $^{209}\text{Bi}$  calculated with  $\rho_2^3(r)$  (cf. section 3) for fixed effective momentum transfer. The numbers in brackets are the energies of the endpoint of the corresponding curve.

particle oscillator wave function ( $b = 2.33$  fm) is used for the  $lh_{9/2}$ -proton. The proton form factor has not been taken into account. The relevant calculated numbers are given in Table I. If these values are analysed with a Rosenbluth

Table I Cross sections (Mott, charge, magnetic and total) and reduced cross sections calculated for different energy-angle-combinations with  $q_{\text{eff}} = 2.40$  fm $^{-1}$ .

| $E$<br>MeV | $\theta^{\circ}$ | $V_T$ | $\sigma_M \cdot 10^{32}$<br>cm $^2$ /sr | $\sigma_C \cdot 10^{33}$<br>cm $^2$ /sr | $\sigma_C^{\text{red}} \cdot 10^2$ | $\sigma_m \cdot 10^{33}$<br>cm $^2$ /sr | $\sigma_m^{\text{red}} \cdot 10^2$ | $\sigma_{\text{total}}^{\text{red}} \cdot 10^2$ |
|------------|------------------|-------|---|---|------------------------------------|---|------------------------------------|---|
| 220        | 150.3            | 14.8  | 0.80                                    | 0.11                                    | 1.38                               | 0.31                                    | 0.261                              | 5.23  |
| 240        | 126.7            | 4.5   | 2.83                                    | 0.54                                    | 1.91                               | 0.32                                    | 0.251                              | 3.04  |
| 260        | 112.5            | 2.8   | 4.95                                    | 1.05                                    | 2.12                               | 0.34                                    | 0.245                              | 2.81  |

plot (Fig.2, curve b) the magnetic form factor is found to be  $0.21 \times 10^{-2}$ , in fairly good agreement with the actual value (cf. Table I). However, if we omit the 220 MeV backward scattering value, the Rosenbluth plot (curve a) yields  $0.13 \times 10^{-2}$ , which is too low by more than a factor of two.

For heavy nuclei, where the reduced charge scattering cross section is not independent of  $\theta$  (or energy)

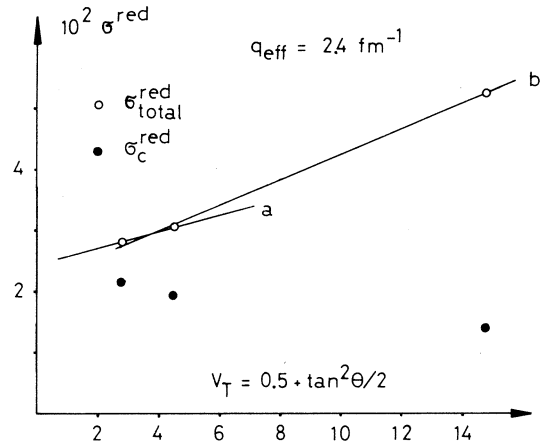


Fig.2 Rosenbluth plot of calculated reduced cross sections from  $^{209}\text{Bi}$  at  $q_{\text{eff}} = 2.40$  fm $^{-1}$ .

for fixed  $q_{\text{eff}}$  the Rosenbluth plot does not give reliable information about the magnetic scattering. This also holds true if a quantity like  $\sigma_{\text{total}} / \sigma'_c$  is plotted as a function of  $V_T$ , as has been proposed by Li et al.<sup>6)</sup>. Here  $\sigma'_c$  is the charge cross section measured for a neighbouring nucleus with spin  $I = 0$ . Even if  $\sigma'_c$  is the charge scattering cross section for the nucleus under investigation this procedure only means that the  $\theta$ -dependence in  $\sigma_c^{\text{red}}$  does not contribute additively but as a multiplicative factor as can be seen from the following equation

$$\frac{\sigma_{\text{total}}}{\sigma_c} = 1 + V_T(\theta) \frac{\sigma_m^{\text{red}}}{\sigma_c^{\text{red}}}$$

It depends on the particular situation if this procedure improves the method or not.

We conclude that the only way to separate the charge scattering from the total cross section is to subtract  $\sigma_c$ . The value of  $\sigma_c$  itself must of course be known for the momentum transfer under investigation, and it must be obtained from other measurements where it clearly dominates the magnetic contribution.

### § 3. How well is the charge scattering cross section known ?

Measurements at forward angles have been performed at Stanford<sup>7,12)</sup> and Mainz<sup>4)</sup> where both the  $^{208}\text{Pb}$  and the  $^{209}\text{Bi}$  nuclei have been investigated. The energies and the angular range of these experiments are compiled in Table II. Since the  $^{208}\text{Pb}$  cross sections are elaborated in detail we discuss the accuracy with which we know the charge scattering cross sections for this nucleus. The cross sections have been

Table II Energies and range of angle for which the elastic cross section has been measured at Mainz<sup>4)</sup> and Stanford<sup>7,12)</sup>. In these experiments the charge scattering is dominant.

| Laboratory | $E$<br>MeV | $\theta^\circ$ | $q_{\text{eff}}$<br>fm <sup>-1</sup> |
|------------|------------|----------------|--------------------------------------|
| Mainz      | 119.7      | 28 - 110       | 0.36 - 1.21                          |
| "          | 199.5      | 46 - 104       | 0.89 - 1.80                          |
| "          | 289.0      | 41 - 100       | 1.11 - 2.44                          |
| Stanford   | 248        | 20 - 122       | 0.48 - 2.43                          |
| "          | 502        | 15 - 62        | 0.70 - 2.76                          |

analyzed with two different parametrisations of the charge distribution:

$$\rho_1(r) = \rho_0 \frac{1 + wr^2/c^2}{1 + \exp\left(\frac{r^n - c^n}{z^n}\right)}, \quad n = 2, \quad (4a)$$

$$\rho_2(r) = \rho_0 \sum_{\nu=1}^N a_\nu j_0(q_\nu r) \quad (4b)$$

For a detailed discussion of the second parametrisation in particular concerning the choice of  $N$  and the meaning of  $q_v$  we refer to references<sup>8,9,10)</sup>.

The Mainz-experiment<sup>11)</sup> confirmed the Stanford result<sup>12)</sup> that the high- $q$  data ( $q_{eff} \geq 1.5 \text{ fm}^{-1}$ ) cannot be described correctly by the parametrisation  $\rho_1(r)$ . The more flexible distribution  $\rho_2(r)$  has been introduced into the analysis of electron scattering experiments by Meyer-Berkhout et al.<sup>13)</sup> and it has been applied to the  $^{208}\text{Pb}$  cross sections by Friar and Negele<sup>8)</sup> (they analysed the Stanford data<sup>12)</sup> together with old data from Mainz<sup>14)</sup>, low- $q$  cross sections from Darmstadt, and muonic X-ray energies), by Dreher et al.<sup>9)</sup> (Stanford data<sup>12)</sup> only), and by Euteneuer et al.<sup>11)</sup> (new Mainz data<sup>4)</sup> and Stanford

Table III Sets of data from which a charge distribution has been determined. The Mainz and Stanford data refer to refs. 4 and 11, and refs. 8 and 12, respectively.

| Set of data                    | Parametrisation |
|--------------------------------|-----------------|
| 1 Mainz                        | $\rho_2(r)$     |
| 2 Stanford                     | $\rho_1(r)$     |
| "                              | $\rho_2(r)$     |
| 3 Mainz and 10 Stanford values | $\rho_2(r)$     |



data<sup>12)</sup>). In Table III we compile the different sets of data from which charge distributions were extracted in<sup>11)</sup>; the distribution from the  $i$ -th set will be denoted by  $\rho_j^i(r)$  where  $j$  denotes the parametrisation. In the third set the ten Stanford cross sections with larger  $q_{\text{eff}}$  are supplemented to the Mainz data.

In Fig. 3 we compare the cross sections calculated for  $E = 200$  MeV with these different charge distributions for the range of momentum transfer in which we are particularly interested. We normalised all calculated cross sections to those calculated from  $\rho_2^3(r)$ . The result may be stated as follows:

(1) Adding the ten high- $q$  Stanford values to the Mainz data changes the cross sections which are calculated from the Mainz experiment alone by less than 6% ( $\theta = 140^\circ$ ,  $q_{\text{eff}} = 2.14 \text{ fm}^{-1}$ ) in the  $q$ -range under investigation (full line).

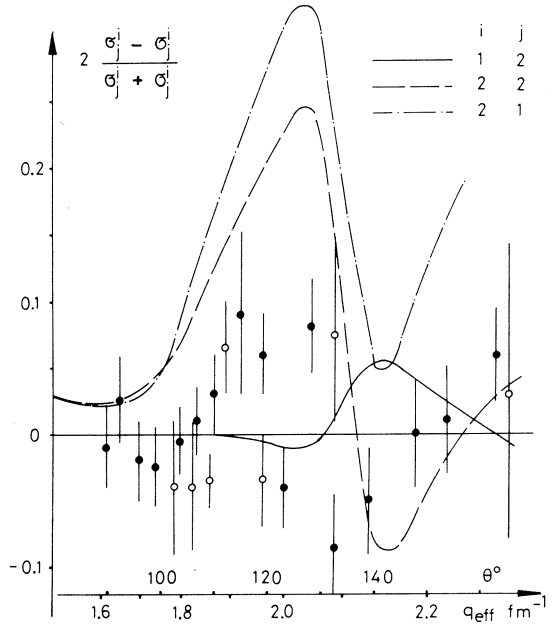


Fig.3 Comparison of  $^{208}\text{Pb}$  cross sections calculated at 200 MeV with the charge distributions which are deduced from different sets of experimental cross sections. The experimental points show the deviation of the Stanford data from a fit to these data (taken from Fig.6 in ref. 8, open circles are measured at 248 MeV, full circles at 502 MeV).

(2) The charge distribution  $\rho_2^2(r)$  extracted from the Stanford data yields cross sections differing from the Mainz experiment by as much as 25% ( $\theta = 128^\circ$ ,  $q_{\text{eff}} = 2.05 \text{ fm}^{-1}$ ; dashed line). A corresponding discrepancy also shows up in the  $^{12}\text{C}$  cross sections measured in Stanford<sup>15)</sup> and Mainz<sup>16)</sup>.

(3) The cross sections from the charge distribution  $\rho_1^2(r)$  differ from the Mainz experiment by up to 32%; they also deviate from the Stanford values for high  $q$  (dash-dotted line), demonstrating that the parametrisation (4a) is not appropriate to fit the high- $q$  data.

(4) In addition to the calculated curves we plotted the relative deviation of the Stanford experimental values from a fit to these data with parametrisation (4b). In the  $q_{\text{eff}}$  -range from  $1.9 \text{ fm}^{-1}$  to  $2.1 \text{ fm}^{-1}$  the fit does not describe the data satisfactorily. Actually there are three values which deviate from the others by more than 3 standard deviations and it is impossible to fit all these data simultaneously.

For  $^{209}\text{Bi}$  the experimental cross sections have not been analysed that thoroughly. But the situation is the same as for  $^{208}\text{Pb}$  since the ratios  $\sigma^{209} / \sigma^{208}$  which are measured at Stanford<sup>7)</sup> and at Mainz<sup>4)</sup> agree very well with each other.

We decide to separate the charge cross section from our  $^{209}\text{Bi}$  measurement at backward angles making use of the charge distribution corresponding to  $\rho_2^3(r)$ . The accuracy of the calculated charge cross sections should be comparable with the uncertainty of the measured values in this range of  $q_{\text{eff}}$  (roughly 8 to 16%<sup>4)</sup>).

In Fig.4 we compare the charge and the magnetic contributions to the cross section for  $E = 180, 200$  and  $220 \text{ MeV}$ , respectively. At  $155^\circ$  the magnetic scattering (for the

calculation of these cross sections cf. section 2) dominates the charge scattering by a factor of 4.7, 3.3 and 5.4, respectively, and the influence of the uncertainty in the charge cross section is reduced correspondingly. The situation would be worse (cf. Fig.4, dash-dotted curve) if the charge distribution of  $^{209}\text{Bi}$  were given by the two parameter Fermi distribution, which has been used by Prewitt<sup>5)</sup>

in order to estimate the relative contributions of the charge and magnetic scattering. Fortunately Prewitt (erroneously) also overestimated the magnetic scattering by a factor of 10 and he arrived at an optimistic estimate thus encouraging this experiment.

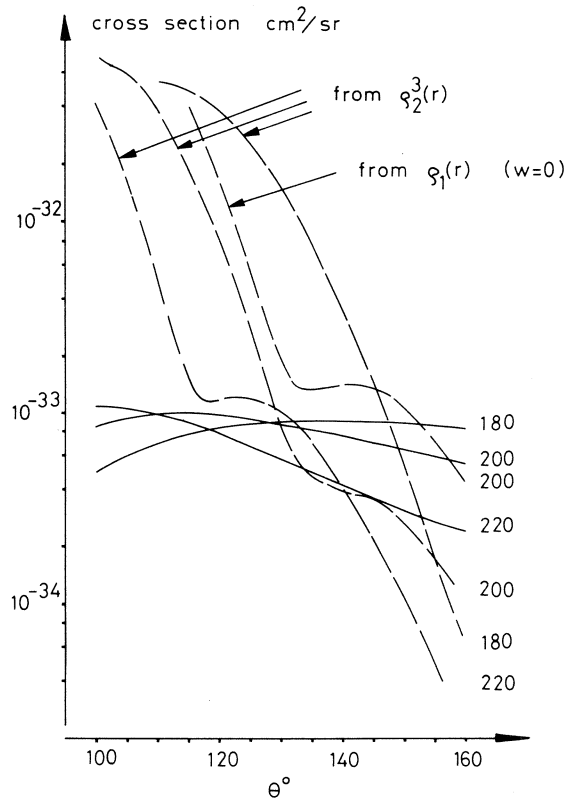


Fig.4  $^{209}\text{Bi}$  charge and magnetic cross sections for  $E = 180, 200$  and  $220$  MeV, respectively. The magnetic cross sections (continuous curves) are calculated in DWBA with Prewitt's<sup>5)</sup> code using an oscillator wave function ( $b = 2.33$  fm) for the  $1h_{9/2}$ -proton. The charge scattering cross sections (dashed curves) are calculated from  $\rho_2^3(r)$  (cf. text in this section) and from the two-parameter Fermi distribution which has been used in refs. 2 and 5.

#### § 4. The radiative corrections

In an experiment in the reflection mode electrons are scattered from different depths in the target. The situation is shown schematically in Fig.5. The electrons which are detected in a particular channel may have been scattered under very different conditions as far as radiative problems are concerned and we cannot imagine that these different contributions can be unfolded correctly. However, the integral correction factor can be calculated if we assume the incident energy distribution to be a  $\delta$ -function. It has been shown<sup>17)</sup> that this assumption results in an error of less than 1% for cut-off energies larger than approximately 0.4 MeV. Then the correction factor in the reflection mode is given by

$$K^r(\Delta E) = \frac{1}{t_{\text{eff}}} \int_0^{t_{\text{eff}}} K(\Delta E - \varepsilon_{\text{lon}} 2t, 2t) dt \quad (5)$$

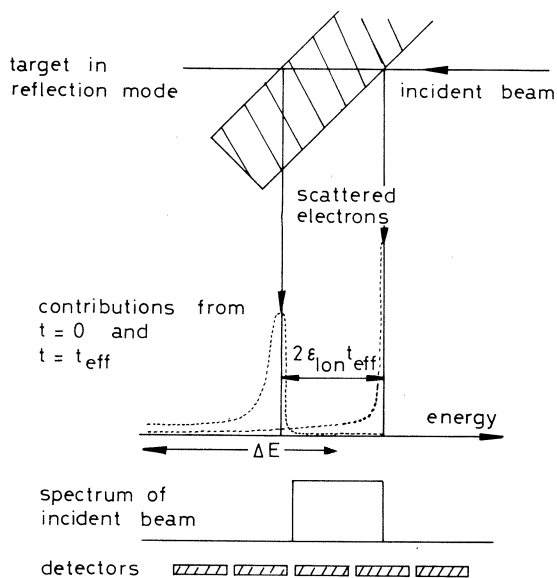


Fig.5 Contribution to the spectrum of the scattered electrons from different depths of the target (schematically).  $E_0 = 200$  MeV,  $\varepsilon_{\text{lon}} = 0.95$  MeV/g  $\text{cm}^{-2}$ ,  $t_0 = 123$  mg/ $\text{cm}^2$ ,  $\theta = 90^\circ$ .

Here  $\epsilon_{ion}$  is the most probable ionisation loss,  $K(\Delta E, t)$  is the correction factor in transmission mode for cut-off energy  $\Delta E$  and target thickness  $t$ ,  $t_{eff}$  is the effective target thickness in the reflection mode ( $t_{eff} = t_0 / \sin \theta/2$ ). On this assumption the cut-off energy must be measured from the high-energy edge of the elastic peak. In the evaluation of measured spectra, however, we shift  $\Delta E$  by half the width of the incident beam (cf. Fig.5).

Another way to calculate an approximate correction factor consists in assuming that all electrons are scattered from the middle-plane of the target, i.e.

$$K_{appr}^r(\Delta E) = K(\Delta E, t = 0.5 t_{eff}). \quad (6)$$

In Fig.6 we compare  $K^r$  with  $K_{appr}^r$  for several experimental conditions which correspond to the experiment which has actually been performed. The ionisation loss for  $^{12}\text{C}$  has recently been measured by O'Brien et al.<sup>18)</sup> and has been found in excellent agreement with the Sternheimer calculation<sup>19)</sup> ( $\epsilon_{ion} = 1.35 \text{ MeV/g cm}^{-2}$ ). For  $^{209}\text{Bi}$  we use the Sternheimer value of  $0.95 \text{ MeV/g cm}^{-2}$ .

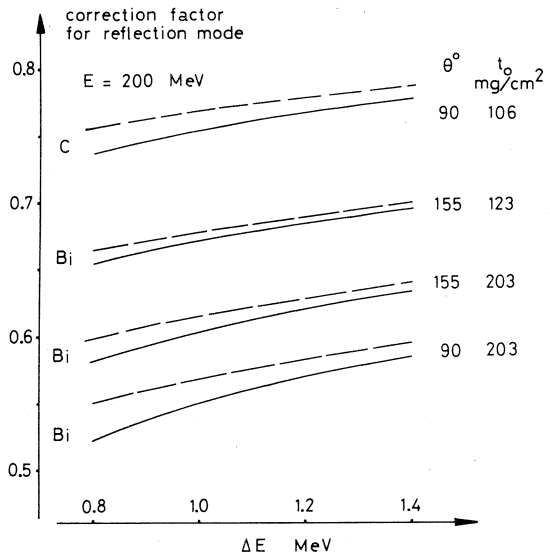


Fig.6 Correction factor for a reflection mode experiment for different sets of parameters. The continuous curves are calculated by eq. (5), the dashed curves represent the approximation of eq.(6).

## § 5. The reference measurements

For each measurement at backward angle ( $\theta = 135^\circ, 145^\circ$  and  $155^\circ$ ) we performed one or more reference measurements with  $^{12}\text{C}$  and  $^{209}\text{Bi}$  at  $90^\circ$  or  $100^\circ$ . These measurements too have been performed in the reflection mode. From these reference measurements and the known cross sections we can calculate the absolute efficiency expressed in terms of an effective solid angle<sup>20)</sup>. The  $^{12}\text{C}$  cross section is calculated from the two-terms charge distribution determined by Sick and McCarthy<sup>15)</sup>. For this calculation we used a new version of the TOELS code<sup>21)</sup> where now the centre-of-mass correction is included. The Bi charge scattering cross sections have been calculated with  $\rho_2^3$  (r) (cf. section 3).

In Fig.7 we plot the quantity

$$\begin{aligned} \bar{\eta} &= \frac{N(\Delta E) / K'(\Delta E)}{Qt_{\text{eff}} / A} \frac{1}{\sigma_c} \\ &= 1.85 \cdot 10^{37} \Delta \Omega_{\text{eff}} \end{aligned}$$

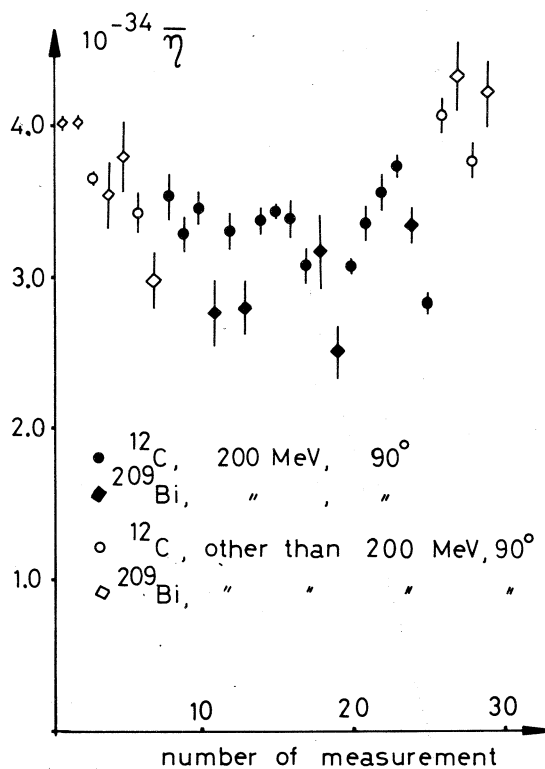


Fig.7 Plot of the  $\bar{\eta}$  values of Table IV.

as a function of the number of the measurement (this means essentially as a function of time during the period when this measurement was performed). In eq. (7)  $N(\Delta E)$  is the number of electrons in the elastic peak (corrected for relative efficiency) integrated to the cut-off energy  $\Delta E$ ,  $Q$  is the charge measured with the SEM-monitor in one run,  $A$  is the atomic number. The experimental details of each point are compiled in Table IV. The backward scattering cross sections are determined relative to the  $^{12}\text{C}$  reference measurements of the same day.

## § 6. The magnetic cross section for $^{209}\text{Bi}$

The Bi cross sections which we measure in this experiment are of the order of  $5 \times 10^{-34} \text{ cm}^2/\text{sr}$ . It would have been desirable to use a thick target in order to improve the statistical error. However, we are limited by the following reasons:

- (1) Beyond a certain target thickness (roughly  $100 \text{ mg/cm}^2$ ) the height of the elastic peak does not increase with increasing target thickness; instead the peak just gets broader in a reflection mode experiment. This cannot be tolerated here because it becomes difficult to separate the elastic peak from the first excited level at 0.9 MeV.
- (2) Because of the small radiation length of Bi the beam spreads considerably behind the target, thus producing a large background. The latter was reduced considerably by removing part of the beam pipe behind the scattering chamber and installing a long He bag (15 m long, 0.5 m in diameter)

Table IV The values of  $\bar{\eta}$  measured in the period of this experiment. Apart from the  $60^\circ$  data all measurements are performed in the reflection mode. In the cross section column the number in brackets indicates the negative power to 10.

| N <sup>o</sup> | date     | target | $t_{\text{eff}}$<br>mg/cm <sup>2</sup> | $E$<br>MeV | $\theta^\circ$ | $\sigma_c$<br>cm <sup>2</sup> /sr | $\bar{\eta} \cdot 10^{-34}$ |
|----------------|----------|--------|--|------------|----------------|-----------------------------------|-----------------------------|
| 1              | 74/12/11 | Bi     | 234                                    | 200        | 60             | 1.51(29)                          | 4.03 ± 0.04                 |
| 2              | "        | "      | 142                                    | "          | "              | "                                 | 4.02 0.03                   |
| 3              | "        | C      | 123                                    | "          | "              | 6.23(30)                          | 3.65 0.03                   |
| 4              | "        | Bi     | 265                                    | "          | 100            | 7.40(32)                          | 3.54 0.22                   |
| 5              | "        | "      | "                                      | "          | "              | "                                 | 3.79 0.23                   |
| 6              | "        | C      | 140                                    | "          | "              | 1.41(32)                          | 3.42 0.13                   |
| 7              | "        | Bi     | 161                                    | "          | "              | 7.40(32)                          | 2.98 0.18                   |
| 8              | 74/12/24 | C      | 151                                    | "          | 90             | 7.53(32)                          | 3.52 0.15                   |
| 9              | 75/01/08 | "      | "                                      | "          | "              | "                                 | 3.27 0.11                   |
| 10             | "        | "      | "                                      | "          | "              | "                                 | 3.45 0.11                   |
| 11             | "        | Bi     | 174                                    | "          | "              | 1.63(31)                          | 2.77 0.21                   |
| 12             | 75/01/17 | C      | 151                                    | "          | "              | 7.53(32)                          | 3.29 0.11                   |
| 13             | "        | Bi     | 287                                    | "          | "              | 1.63(31)                          | 2.80 0.18                   |
| 14             | 75/01/18 | C      | 151                                    | "          | "              | 7.53(32)                          | 3.37 0.08                   |
| 15             | "        | "      | "                                      | "          | "              | "                                 | 3.42 0.04                   |
| 16             | 75/01/21 | "      | "                                      | "          | "              | "                                 | 3.38 0.11                   |
| 17             | 75/01/22 | "      | "                                      | "          | "              | "                                 | 3.07 0.11                   |
| 18             | "        | Bi     | 174                                    | "          | "              | 1.63(31)                          | 3.17 0.23                   |
| 19             | "        | "      | 287                                    | "          | "              | "                                 | 2.52 0.17                   |
| 20             | "        | C      | 151                                    | "          | "              | 7.53(32)                          | 3.06 0.04                   |
| 21             | 75/01/28 | "      | "                                      | "          | "              | "                                 | 3.34 0.11                   |
| 22             | "        | "      | "                                      | "          | "              | "                                 | 3.55 0.12                   |
| 23             | 75/02/06 | "      | "                                      | 180        | "              | 2.71(31)                          | 3.72 0.08                   |
| 24             | "        | Bi     | 174                                    | "          | "              | 1.13(30)                          | 3.34 0.12                   |
| 25             | "        | C      | 151                                    | "          | "              | 2.71(31)                          | 2.83 0.07                   |
| 26             | 75/04/25 | "      | "                                      | 220        | "              | 1.52(32)                          | 4.06 0.11                   |
| 27             | "        | Bi     | 174                                    | "          | "              | 9.76(32)                          | 4.33 0.24                   |
| 28             | "        | C      | 151                                    | "          | "              | 1.52(32)                          | 3.76 0.10                   |
| 29             | "        | Bi     | 174                                    | "          | "              | 9.76(32)                          | 4.22 0.23                   |



between the SEM-monitor and the beam catcher.

In fact for most measurements we used a target with a thickness of 123 mg/cm<sup>2</sup>.

In Fig.8 we show two spectra measured at 155° for  $E = 180$  and 220 MeV, respectively. In the same figure there is shown (crosses) the Bi reference peak measured at 90°. The reference peaks are normalised such that form and position of the peaks can be compared. In the 180-MeV-measurement the elastic peak is much larger than the background, in the 220-MeV-measurement, however, we are very near to the lower limit which is accessible with the experimental set-up.

For the evaluation of the cross section the number of electrons in the elastic peak is corrected for the relative efficiencies of the single detectors, for background, and for radiative processes. The procedure for radiative correction has been discussed in section 4. The background has been counted in the channels above the elastic peak, the upper edge of the latter being determined by the 90°

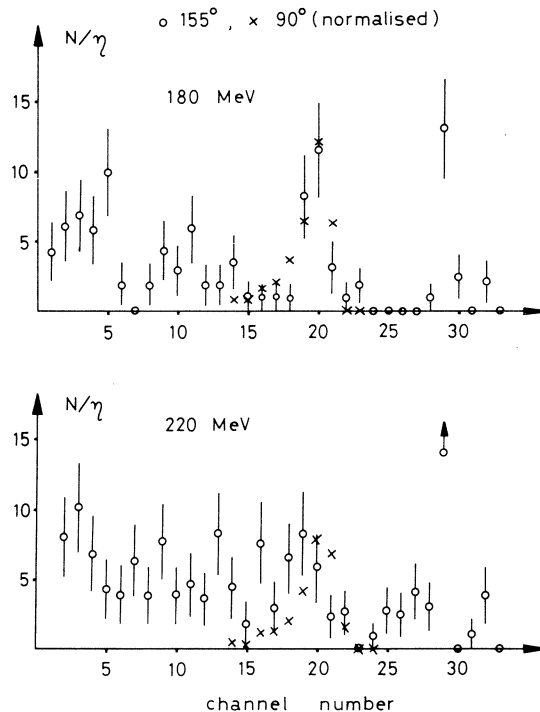


Fig.8 Measured Bi spectra. The difference in recoil energy between the 90° and the 155° measurement is 0.8 and 1.0 channels in the 180 and the 220 MeV measurement, respectively.

reference measurement. Channel 29 has not been taken into account for the determination of the background since in all measurements it accumulated an unreasonably large number of counts which was much larger than in any other channel.

The relative efficiency  $\eta$  of the detectors could not be measured together with the measurement at backward angle. For the data taken between December 1974 and February 1975 we used the values measured in November 1974. A measurement of  $\eta$  in March 1975 showed very good agreement with the former result apart from 4 detectors for which  $\eta$  changed by between 8% and 20%. These variations would change the Bi cross section by less than 3% in this measurement, this is negligible compared to the statistical error. However, in the last measurement we took care to measure the  $^{12}\text{C}$  and the  $^{209}\text{Bi}$  peaks with the same channels. This measure also seems necessary if the experimental set-up would have allowed to measure the relative efficiencies at forward angles: the example of channel 29 demonstrates that the efficiency for detecting electrons can be quite different from that for picking up background.

The result of the measurement is compiled in Table V.

In Fig.9 we compare the measured data with a model calculation. In order to find a convenient representation we first compare the reduced magnetic cross section (cf. section 2) with the first order Born approximation of reference<sup>1)</sup>. Both calculations use the single particle model with a harmonic oscillator wave function ( $b = 2.33$  fm, cf. section 2). It is demonstrated that one should not compare the reduced cross section as a function of  $q$  (dashed curve) or as a function of  $q_{\text{eff}}$  (dash-dotted curve) with the first order approximation (continuous line). However,  $\sigma_m^{\text{red}}$  agrees

Table V Compilation of the measured total cross sections at backward angles and the deduced magnetic contribution. Here we also included the value from ref. 6 measured at 248 MeV and  $122^\circ$ .

| $E$<br>MeV | $\theta^0$ | date         | $q_{\text{eff}}$<br>$\text{fm}^{-1}$ | $t_{\text{eff}}$<br>$\text{mg}/\text{cm}^2$ | $\sigma_{\text{total}} \cdot 10^{34}$<br>$\text{cm}^2/\text{sr}$ | $\sigma_C \cdot 10^{34}$<br>$\text{cm}^2/\text{sr}$ | $\sigma_m \cdot 10^{34}$<br>$\text{cm}^2/\text{sr}$ | $V_T \sigma_M \cdot 10^{31}$<br>$\text{cm}^2/\text{sr}$ | $\sigma_m^{\text{red}} \cdot 10^3$ |
|------------|------------|--------------|--------------------------------------|---|--|---|---|---|------------------------------------|
| 180        | 155        | 75 / 02 / 06 | 1.93                                 | 126   | $6.9 \pm 1.7$  | 1.84  | $5.1 \pm 1.7$                                       | 1.72  | $3.0 \pm 1.0$                      |
| 200        | 135        | 75 / 01 / 28 | 2.02                                 | 133   | 8.0  | 4.70  | 3.3   | 2.3   | 2.0                                |
| "          | 145        | 75 / 01 / 08 | 2.08                                 | 129   | 7.8  | 3.51  | 4.3   | 2.5   | 2.9                                |
| "          | "          | 75 / 01 / 21 | "                                    | "   | 10.4   | "   | 6.9   | 2.0   | 4.6                                |
| "          | 155        | 75 / 12 / 24 | 2.13                                 | 126   | 7.4  | 1.81  | 5.6   | 2.5   | 4.0                                |
| "          | "          | 75 / 01 / 17 | "                                    | 208   | 2.3  | "   | 0.5   | 1.2   | 0.4                                |
| 220        | 155        | 75 / 04 / 25 | 2.34                                 | 126   | 2.0  | 0.50  | 1.5   | 0.7   | 1.3                                |
| 248        | 122        |              | 2.35                                 |   |  |   |   |   | 0.53                               |
|            |            |              |                                      |   |  |   |   |   | 0.21                               |
|            |            |              |                                      |   |  |   |   |   | $4.0 \pm 1.0$                      |
|            |            |              |                                      |   |  |   |   |   | $1.1 \pm 0.8$                      |

within a few percent with the BA calculation if it is plotted as function of the variable  $\tilde{q}_{\text{eff}}$  defined by

$$\tilde{q}_{\text{eff}} = q \left( 1 + 0.065 \frac{Z\alpha}{RE^{1/2}} \right)$$

( $R$  in fm,  $E$  in MeV).

Therefore we have chosen this variable for a comparison of the measured data with the theoretical curve in Fig.9b.

Our measurement agrees very well in amplitude and form with the form factors calculated with this rough model. The measured points yield a ratio  $\sigma_m^{\text{red}}(\tilde{q}_{\text{eff}})/F_m(q) = 1.05 \pm 0.19$ , and  $\chi^2$  has a value of 4.7 for the four degrees of freedom. Therefore there is no need for

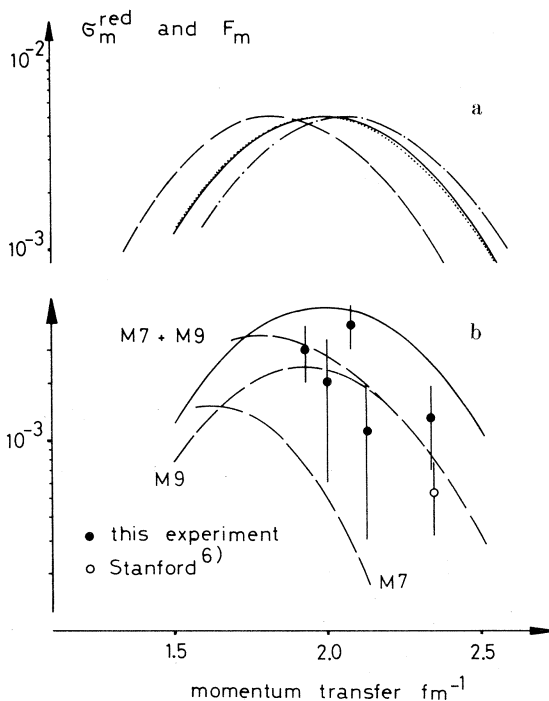


Fig.9 a) Comparison between calculated reduced magnetic cross section and Born approxi-

mation form factor (continuous curve).  $\sigma_m^{\text{red}}$  is plotted as a function of  $q$  (dashed curve), of  $q_{\text{eff}}$  (dash-dotted), and of  $\tilde{q}_{\text{eff}}$  (dotted). Here only M9 scattering has been considered.

b) Comparison between measured reduced magnetic cross sections (plotted as function of  $q_{\text{eff}}$ ) and BA form factors calculated with the harmonic oscillator wave function. The dashed curves take into account the proton form factor, the continuous curve (M9 only) does not.

something like "quenching"<sup>1,5)</sup> or even a change in the single particle potential in order that the calculation fits the measurements. However, the measurement is not yet very accurate. Since the two measurements at 200 MeV, 155° do not agree with each other, this measurement should be repeated (it should be mentioned, that one of these points is measured with very poor statistics, the other one with very large background). In addition the measurement at 180 MeV, 155° should be done again since it is best suited for increasing the accuracy in the determination of the amplitude.

(J. Friedrich)

### References

- 1) T.W. Donnelly and J.D. Walecka: Nucl. Phys. **A 201** (1973) 81.
- 2) J.F. Prewitt and L.E. Wright: Phys. Rev. **C 9**(1974) 2033.
- 3) I.C. Nascimento et al.: Phys. Lett. **53 B** (1974) 168.
- 4) H. Euteneuer: Thesis, Mainz, in preparation, and private communication.
- 5) J.F. Prewitt: Thesis, Ohio University, 1973.
- 6) G.C. Li et al.: Phys. Lett. **32 B** (1970) 317.
- 7) I. Sick: Nucl. Phys. **A 208** (1973) 557.
- 8) J.L. Friar and J.W. Negele: Nucl. Phys. **A 212** (1973) 93.
- 9) B. Dreher et al.: Nucl. Phys. **A 235** (1974) 219.
- 10) J. Borysowicz and J.H. Hetherington: Phys. Rev. **C 7** (1973) 2293.
- 11) H. Euteneuer et al.: preprint Institut für Kernphysik, Mainz, 1974.
- 12) J. Heisenberg et al.: Phys. Rev. Lett. **23** (1969) 1402.
- 13) U. Meyer-Berkhout et al.: Ann. of Phys. **8** (1959) 119.

- 14) J. Friedrich and F. Lenz: Nucl. Phys. **A 183** (1972) 523.
- 15) I. Sick and J.S. McCarthy: Nucl. Phys. **A 150** (1970) 631.
- 16) K. Merle: private communication.
- 17) J. Friedrich: preprint Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, Sendai, 1975.
- 18) O'Brien et al.: Phys. Rev. **C 9** (1974) 1418.
- 19) R.M. Sternheimer: cf. references in ref. 18.
- 20) M. Kimura et al.: Nucl. Instr. and Meth. **95** (1971) 403.
- 21) T. Terasawa and M. Oyamada: TOELS code.

I - 3  $^{25}\text{Mg}$  の横成分形状因子の解析

核理研 岡崎行男

## § 1. 序

$^{25}\text{Mg}$  の電子散乱実験による  $^{25}\text{Mg}$  の電磁形状因子とその縦成分の解析については既に報告した<sup>3)</sup>。今回は、横成分形状因子の解析について報告する。実験条件および測定値の詳細は文献 1 を参照されたい。

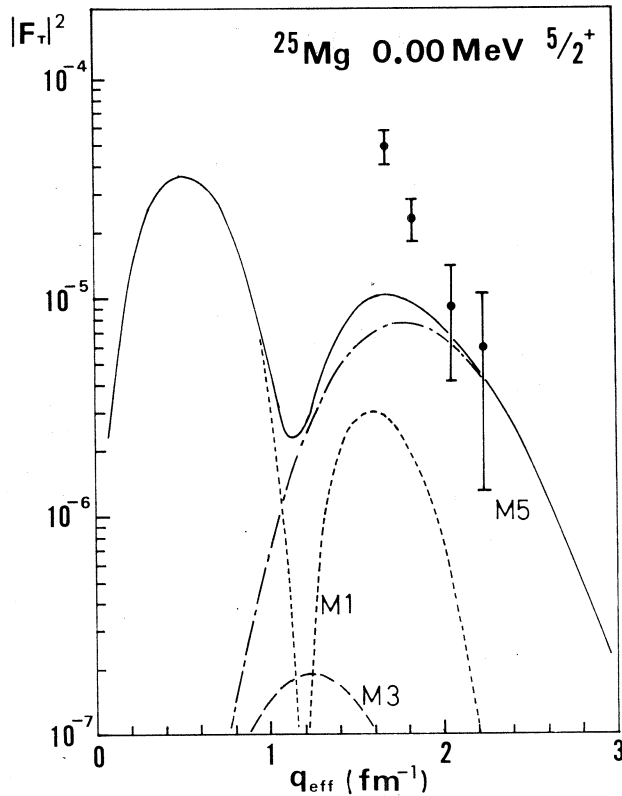
電子散乱において、横成分形状因子は核の磁荷および伝導電流からの寄与であり、又、縦成分形状因子は核の電荷からの寄与である。一般に、原子核は核子の対相互作用のため、比較的小さな磁気多重極能率を持ち、奇核の場合、核の磁氣的性質に対しては奇核子のふるまいが顕著にきいてくる。従って、横成分形状因子は、縦成分形状因子に比べ測定は困難であるが奇核子からの情報を直接見ることができる点で有効である。*sd* 殻領域の奇核でこれまで横成分形状因子が測定されているのは、 $^{19}\text{F}$  <sup>4,8)</sup>,  $^{23}\text{Na}$  <sup>8)</sup>,  $^{25}\text{Mg}$  <sup>6)</sup>,  $^{27}\text{Al}$  <sup>7,8)</sup>,  $^{31}\text{P}$  <sup>8)</sup>,  $^{39}\text{K}$  <sup>8)</sup> 等であるが、 $^{25}\text{Mg}$  を除いて、他はすべて奇陽子核である。従ってこの領域の奇中性子核の磁氣的性質を知る上で、 $^{25}\text{Mg}$  の横成分形状因子は重要と思われる。

## § 2. Nilsson 模型による解析

$^{25}\text{Mg}$  の縦成分形状因子は、Nilsson 模型<sup>9)</sup> による強結合波動関数で良く説明できた。そこで、この波動関数を用いて、横成分形状因子を計算した。(波動関数の詳細については文献 2 を参照) なお、ここでは、横成分形状因子の分離ができた基底回転帯 (0.00 MeV  $5/2^+$  準位, 1.61 MeV  $7/2^+$  準位, 3.40 MeV  $9/2^+$  準位) および  $\gamma$  振動的準位 (5.25 MeV  $11/2^+$  準位) についてのみ解析を行う。

## 2.1 基底回転帯

基底回転帯の準位に関しては、核の奇中性子による磁気能率および伝導電流からの寄与を計算すればよい。但し、 $M1$  転移の場合は、核の芯の回転から生ずる磁気双極子能率も考慮しなければならない。この計算では、奇核子の持つ磁氣的  $g$  因子  $g_s$  を  $(g_s - Z/A)$  で置きかえることにより、 $M1$  転移に対する核の芯の回転による効果を繰り込んだ<sup>9)</sup>。又、奇中性子の持つ有効電荷  $e_n^{\text{eff}}$  としては、次の量をとった。<sup>10)</sup>



第1図 基底状態  $5/2^+$  に対する横成分形状因子。実線は、Nilsson 模型で計算した  $M1$  (点線),  $M3$  (破線),  $M5$  (一点鎖線) を加えた横成分形状因子。  
( $\delta = 0.32$ ,  $\kappa = 0.09$ ,  $\mu = 0.23$ ,  $b = 1.74$  fm)

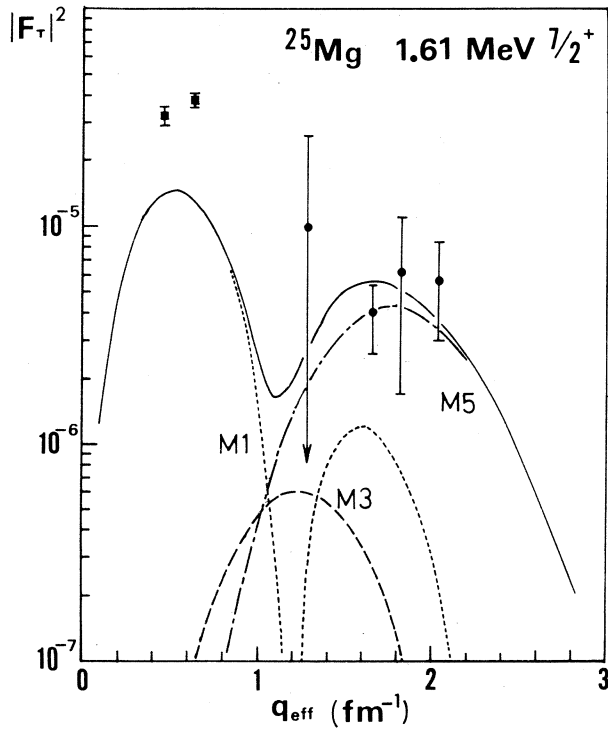
$$e_n^{\text{eff}} = Ze \left(-\frac{1}{A}\right)^l \quad (1)$$

ここで、 $e$  は電気素量、 $l$  は転移の多重極度である。

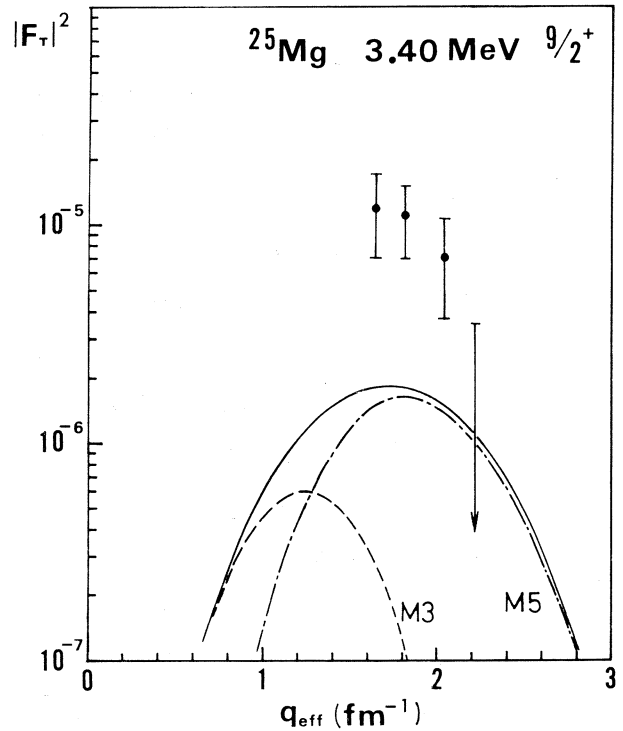
このようにして計算した基底回転帯 ( $K = 5/2$ ) の  $0.00 \text{ MeV } 5/2^+$  準位、 $1.61 \text{ MeV } 7/2^+$  準位および  $3.40 \text{ MeV } 9/2^+$  準位の横成分形状因子をそれぞれ、第1図、第2図および第3図に示す。なお、 $^{25}\text{Mg}$  のような変形した奇核では、回転・粒子結合 (R. P. C.) による奇中性子の Nilsson 軌道の混合が生ずるが、 $^{25}\text{Mg}$  の基底回転帯の場合この混じりは小さく R.P.C. を考慮した場合、形状因子の計算値は第1～3図に示したのものより若干小さくなるだけで殆ど変わらない。

$0.00 \text{ MeV } 5/2^+$  準位の場合、時間反転不変性から、電氣的転移は禁止され、磁氣的転移  $M1$ ,  $M3$ ,  $M5$  のみが可能である。又、 $1.61 \text{ MeV } 7/2^+$  準位および  $3.40 \text{ MeV } 9/2^+$  準位は、電氣的転移も可能であるが、磁氣的転移より小さく、図には現われていない。第1～第3図を見ると1.61





第2図 1.61 MeV  $7/2^+$  準位に対する横成分形状因子(●), 運動量移行  $q$  の低い所の2点(■)は  $F_{agg}^{\text{⑥}}$  による  $180^\circ$  散乱のデータである。実線は横成分形状因子の計算値で,  $M1$  (点線),  $M3$  (破線),  $M5$  (一点鎖線) および  $E2, E4, E6$  (小さくて図には表わしていない) を加えたものである。

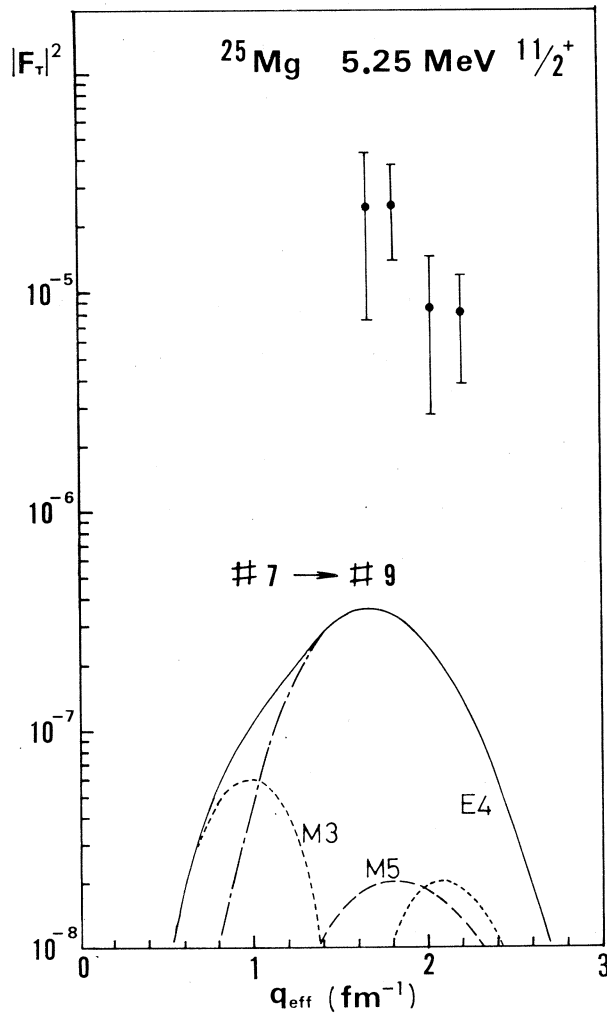


第3図 3.40 MeV  $9/2^+$  準位に対する横成分形状因子。実線は横成分形状因子の計算値で,  $M3$  (破線),  $M5$  (一点鎖線) および  $M7, E2, E4, E6$  をすべて加えたものである。

MeV $7/2^+$ 準位が比較的 実験値の傾向を説明しているようではあるが、 $q$ の低い所では2倍程度合わない。さらに、0.00 MeV $5/2^+$ 準位および3.40 MeV $9/2^+$ 準位については、1桁程度計算値が小さくなる。

## 2.2 $r$ 振動的準位

$r$  振動的準位に関しては、芯の固有状態は $K=2$ なるような核子の励起、即ち Nilsson 軌道 #6



第4図 5.25 MeV $11/2^+$  準位に対する横成分形状因子。実線は、Nilsson 軌道 #7  $\rightarrow$  #9 の核子の励起による粒子-空孔計算で、アイソスカラーの場合の計算値であり、M3(点線)、M5(破線)、M7、E4(一点鎖線)、E6、E8をすべて加えたものである。

→#5, #7→#9, #7→#11, #6→#8等の励起のコヒーレントな状態と考えられる。しかし、エネルギーの点からは#7→#9が主な成分と考えられるので、簡単化のため、#7→#9だけを考える。又、陽子も中性子も磁気能率を持っていて、横成分形状因子に寄与してくるため、芯励起準位の計算では、粒子-空孔の計算をしなければならない。さらに、核のアイソスピンの良い量子数とすると、低励起準位についてはアイソスカラー部分を計算すればよい。以上のようにして求めた形状因子を第4図に示す。実験値の方が計算値より2桁程度大きくなる。なお#7→#9以外の場合について計算しても、#7→#9の場合と同程度の大きさであり、又、アイソスピンの混りによりアイソベクトル部分が多少混ったとしても、実験値を説明することはできない。

### § 3. 議 論

以上で示したよう<sup>25</sup>Mgの場合には、縦成分形状因子をよく再現した波動関数を用いて、横成分形状因子を説明することはできない。これまでに、この領域の核では、<sup>19</sup>F<sup>4</sup>, <sup>23</sup>Na<sup>5,8</sup>, <sup>27</sup>Al<sup>7,8</sup>の横成分形状因子がこの種の計算で説明されている。しかし、これらの核は奇陽子核であり、<sup>25</sup>Mgのような奇中性子核の場合に比べ大きな横成分形状因子をもつ。<sup>25</sup>Mgの横成分形状因子の値が説明できない理由としては、奇中性子核の場合、形状因子の値そのものが小さいので、奇核子による芯の磁気偏極効果が奇陽子核に比べて相対的に大きな影響をもってくるためと考えられる。

### 参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 6 (1973) 225 ; 7 (1974) 43.
- 2) 核理研研究報告 8 (1974) 275.
- 3) Y. Okazaki *et al.* : Phys. Lett. 55 B (1975) 373.
- 4) 核理研研究報告 8 (1974) 268.
- 5) W. C. Barber and G. J. Vanpraet : Nucl. Phys. 72 (1965) 63.
- 6) L. W. Fagg, W. L. Bendel, E. C. Jones, Jr., H. F. Kaiser and T. F. Godlove : Phys. Rev. 187 (1969) 1384.
- 7) G. C. Li, I. Sick, J. D. Walecka and G. E. Walker : Phys. Lett. 32 B (1970) 317 ;

- T. W. Donnelly and J. D. Walecka : Nucl. Phys. **A 201** (1973) 81.
- 8 ) J. Goldemberg and Y. Torizuka : Phys. Rev. **129** (1963) 312.
- 9 ) S. G. Nilsson : K. Danske Vidensk. Selsk. mat. — fys. Medd. **29** (1955) No. 16.
- 10) J. M. Eisenberg and W. G. Greiner : *Excitation Mechanism of the Nucleus*  
(North-Holland, Amsterdam, 1970).

I - 4  $^{26}\text{Mg}$  による弾性電子散乱

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

$^{26}\text{Mg}$  による弾性電子散乱断面積を入射電子エネルギー 120, 150, 250 MeV, 散乱角  $35^\circ - 120^\circ$  で測定した。位相のずれによる解析をもとに  $^{26}\text{Mg}$  核の基底状態の電荷密度分布を求めた。

## § 1. はじめに

原子核による弾性電子散乱の実験資料から、原子核の電荷分布を求める際に生ずる二つの問題について考えてみる。その第一は、どのようにすれば散乱断面積の絶対値を正確に求めることができるか、という点である。標的の単位面積当りの原子数  $N_A$ , 入射電子ビームモニターの電流積分値  $Q$ , モニター効率  $\eta_M$ , スペクトロメーターの立体角  $\Omega$ , 検出器効率  $\eta_s$  等が正確に知られていれば、散乱電子数  $Y$  の測定値から、散乱断面積

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\eta_M Y}{N_A Q \Omega \eta_s} \quad (1)$$

を得ることができる。しかし、これ等すべてのパラメーターを正確に知るには、かなり困難な仕事を要する。我々が通常使う手は、黒鉛或はポリエチレンを標的として弾性散乱電子数を測定し、 $^{12}\text{C}$  或は  $^1\text{H}$  の既知の断面積をもとにして  $[\eta_M / \Omega \eta_s]$  の値を決める方法である。この場合は、標本及び基準核種 ( $^{12}\text{C}$ ,  $^1\text{H}$ ) の標的の厚さ (即ち  $N_A$ ) が正確に測定可能であるということを前提にしている。しかしながら、標的の厚さの一樣性が保障されていない場合には、 $N_A$  を良い精度で知ることはむずかしい。この困難は、§ 3 で述べるように、運動量移行  $q$  を 0 に近づけた時に、弾性散乱断面積は点電荷による散乱断面積に近づくという性質を使って、解決できる。

第二の問題は、測定した弾性散乱断面積から現象論的な電荷分布関数のパラメーターを決める時に生じる。フェルミ型分布関数を例にとり、断面積の実験値を良く再現する半電荷密度半径  $c$  と表面の厚さ  $t$  について考えてみる。散乱断面積をモット断面積で割って得られる形状因子  $F^2$  が第一極小を示す点での運動量移行  $q_0$  は殆ど  $c$  のみによって決まる。この時、 $F^2$  の実験値が

\*現在 住友重機械工業株式会社, 新居浜市

$q < q_0$  の範囲に限られていれば、 $t$  は電荷分布の自乗平均半径  $\langle r^2 \rangle$  を決めるパラメーターとなる。しかし、 $q \ll q_0$  で  $q_0$  の値が未知である場合には、 $F^2$  の実験値に最も良く適合する  $c$  及び  $t$  が、それぞれ半電荷密度半径及び表面の厚さであるとは必ずしも言えなくなる。一方  $F^2$  の実験値が  $q \gtrsim q_0$  の範囲の場合には、 $t$  は  $F^2$  の第二極大値を決めるパラメーターとなり、そこから求まる  $\langle r^2 \rangle$  の値が正確であるとの保障はなくなる。

$F^2$  の実験値が  $q \ll q_0$  の領域から第二極大まで得られている場合には、現象論的電荷分布のパラメーターは、一般に 3 個必要である。その際、通常は 3 パラメーターフェルミ型等の分布関数が用いられるが、そのパラメーターは 2 パラメーターフェルミ型の時の  $c$ 、 $t$  のような明瞭な意味を失い、解析もめんどろになる。そこで我々は、 $^{26}\text{Mg}$  による弾性電子散乱の実験資料を解析するにあたり、§ 4 で述べるように、電荷分布のパラメーターの与え方に工夫をこらした。その結果をグラスゴウの Lees 等<sup>D</sup> による電子散乱の実験結果 ( $q = 0.4 - 1.05 \text{ fm}^{-1}$ ) と比較する。

## § 2. 実 験

標的は 99.4% に濃縮した  $^{26}\text{Mg}$  の金属板で、重量を面積で割って求めた平均的な厚さは  $50 \text{ mg/cm}^2$  である。入射エネルギー  $E_0 = 120, 150$  及び  $250 \text{ MeV}$ 、散乱角  $\theta = 35^\circ - 120^\circ$  で散乱電子エネルギースペクトルを測定した。スペクトロメーターの 33 チャンネル検出器の各チャンネル間の幅のバラツキによるスペクトルの歪によって、各実験条件での測定値に無用のバラツキが生じないようにするため、弾性散乱ピークの検出器上の位置が常に一定になるようにした。標的的位置を上下にずらした場合は散乱電子の計数率を比較したところ、中心が最も厚く、 $\pm 0.5 \text{ cm}$ 、 $\pm 1.0 \text{ cm}$  とずれるほど薄くなって行くことがわかった。

輻射補正をした弾性散乱断面積は次の式から得られる。

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{Y}{CQ} \exp(\delta_s + \delta_B) \frac{\omega}{\omega - 1} \quad (2)$$

ここで  $Y$  は弾性散乱ピークについて、ピークから  $\Delta E$  だけ低い散乱電子エネルギーまで積分した散乱電子数である。ここでは、 $^{26}\text{Mg}$  の第一励起状態 ( $E_x = 1.81 \text{ MeV}$ ) の影響が入らぬように  $\Delta E = 1.25 \text{ MeV}$  とした。  $C$  は標的の厚さ等を含んだ定数  $C = N_A \Omega \eta_s / \eta_M$  であって、次節で述べる方法で決める。  $\delta_s$  は Schwinger 補正因子、 $\delta_B$  と  $\omega$  は有限の厚さの標的、散乱槽及びスペクトロメーター入口の窓 ( $70 \text{ mg/cm}^2$  ポリエステルフィルム ( $\text{C}_{10}\text{H}_8\text{O}_4$ )<sub>n</sub>) での輻射及び原子衝突によるエネルギー損失に対する補正因子である。これ等の因子は文献 2 に従って計算した。

### § 3. 弾性散乱断面積の絶対値

第(2)式の定数  $C$  は次のようにして決めることができる。

#### 3.1 平面波近似

スピン  $J = 0$  の原子核による弾性電子散乱断面積は、平面波近似で

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_M |F(q^2)|^2 \quad (3)$$

と書ける。ここで  $(d\sigma/d\Omega)_M$  は点電荷  $Ze$  によるモット断面積である。形状因子  $F(q^2)$  は球対称電荷分布  $\rho(r)$  に対して

$$F(q^2) = 4\pi \int_0^\infty \rho(r) j_0(qr) r^2 dr \quad (4)$$

で与えられる。 $q^2$  の小さい領域では

$$F(q^2) = a_0 + a_1 q^2 + a_2 q^4 + \dots \quad (5)$$

と展開できる。ここで  $a_0 = 1$  である。そこで  $q^2$  の小さい領域での実験値

$$\left[ \sqrt{C} F(q^2) \right]_{\text{exp}} = \left[ \left( C \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{exp}} / \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_M \right]^{1/2} \quad (6)$$

に  $a_0$  を自由パラメーターとした(5)式を最小自乗法であてはめれば、その時決まる  $a_0$  が即ち未知の定数  $C$  の平方根である。今回の実験では、 $E_0 = 120 \text{ MeV}$ ,  $\theta = 35^\circ - 65^\circ$  の7点の測定値を使って  $C$  の値を決めた。

#### 3.2 電子波の歪曲の効果に対する補正

電子波は原子核のクーロン場によって歪曲するため、上に述べた平面波近似からのずれを考慮に入れなければならない。その補正にはいくつかの方法が考えられる。

- (i) 平面波近似で求めた(5)式のパラメーター ( $a_0 = 1$  に規格化) を使って Hankel 変換 (文献 3. vol. 2, p. 313 ; vol. 3, p. 165) により電荷分布  $\rho(r)$  を求める。

$$\rho(r) = \frac{1}{2\pi^2} \int_0^\infty F(q^2) j_0(qr) q^2 dq \quad (7)$$

この際(5)式の右辺に  $\exp(-q^2 b^2/4)$  をかけた形を使うと計算に便利である。次にこの  $\rho(r)$  をもとに位相のずれによる解析で断面積を求め、その計算値を実験値の代りに使って(5)式をあてはめる。そこで得られる  $a_0$  は1からわずかずれた値になるが、それが定数  $C$  の平方根に対する補正因子となる。

- (ii) 実際に(i)の方法を試みると、必ずしも適当な  $\rho(r)$  が得られるとは限らないことがわかる。即ち  $\rho(r) < 0$  となる領域があったり、表面附近のみに電荷が集中した形になったりする場合が出

てくる。そこで  $\rho(r)$  として適当な関数（例えば 2 パラメーターフェルミ型等）を仮定して、その後は(i)と同様の方法で  $C$  の補正因子を求めても良い。ここで使う  $\rho(r)$  は必ずしも断面積の実験値を良く再現するものでなくてもよい。

- (iii) 平面波近似で断面積を与える(3)式では、モット断面積は点電荷  $Ze$  による弾性散乱断面積の  $Z\alpha \ll 1$  の場合の近似式として使われている。 $Z\alpha \ll 1$  が成り立たぬ時には、(3)式のモット断面積を一層近似の良い値で置きかえて形状因子を計算しなければならず、そうしてはじめて形状因子に(5)式を適用できるようになる。点電荷  $Ze$  による弾性散乱断面積  $(d\sigma/d\Omega)_{\text{point}}$  は、 $Z \lesssim 10$  の場合には、McKinley-Feshbach の式<sup>4)</sup>

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{MF}} = \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{M}} \left[ 1 + \alpha\pi Z \frac{(\sin \frac{1}{2}\theta)(1 - \sin \frac{1}{2}\theta)}{\cos^2 \frac{1}{2}\theta} \right] \quad (8)$$

第1表 McKinley-Feshbach の式(8)と位相のずれによる解析法とによる点電荷  $Ze$  からの弾性電子散乱断面積の計算値。 $Z = 12$ ,  $E_0 = 120$  MeV。断面積はモット断面積に対する比で示してある。

| $\theta$ (deg) | $q_{\text{eff}}$ (fm <sup>-1</sup> ) | $(\frac{d\sigma}{d\Omega})_{\text{MF}} / (\frac{d\sigma}{d\Omega})_{\text{M}}$ | $(\frac{d\sigma}{d\Omega})_{\text{point, PSA}} / (\frac{d\sigma}{d\Omega})_{\text{M}}$ |
|----------------|--------------------------------------|--|--|
| 10             | 0.112                                | 1.022  | 1.023  |
| 20             | 0.223                                | 1.041  | 1.044  |
| 30             | 0.332                                | 1.057  | 1.063  |
| 40             | 0.439                                | 1.070  | 1.079  |
| 50             | 0.542                                | 1.082  | 1.093  |
| 60             | 0.641                                | 1.092  | 1.106  |
| 70             | 0.735                                | 1.100  | 1.117  |
| 80             | 0.823                                | 1.108  | 1.127  |
| 90             | 0.905                                | 1.114  | 1.135  |
| 100            | 0.980                                | 1.119  | 1.142  |
| 110            | 1.048                                | 1.124  | 1.148  |
| 120            | 1.107                                | 1.128  | 1.153  |
| 130            | 1.158                                | 1.131  | 1.158  |
| 140            | 1.201                                | 1.133  | 1.161  |
| 150            | 1.234                                | 1.135  | 1.164  |
| 160            | 1.258                                | 1.137  | 1.166  |
| 170            | 1.272                                | 1.137  | 1.167  |



を使って比較的よい精度で計算できる。又、位相のずれによる解析 (PSA) の方法<sup>5)</sup> を使えば更に良い結果が得られる。この二つの方法による  $Z = 12$ ,  $E_0 = 120$  MeV の場合の計算結果を第1表に示す。第2表には  $\rho(r)$  にフェルミ分布を仮定した時の形状因子を(4)式を使った場合と、位相のずれによる解析の方法<sup>5)</sup> で計算した場合との比較を示す。この比較の際クーロン場による電子の波長のずれを考慮に入れて

$$q_{\text{eff}} = q \left( 1 + \frac{3}{2} \frac{Ze^2}{R_u E_0} \right) \quad (9)$$

を使った。ここで  $R_u^2 = \frac{5}{3} \langle r^2 \rangle$  である。第2表で、両者が非常に良い一致を示していることがわかる。このことは  $\rho(r)$  のとり方に依らずに言える。したがって(6)式で与えられる形状因子の実験値の代りに

$$\left[ \sqrt{C} F(q^2) \right]_{\text{exp}} = \left[ \left( C \frac{d\sigma}{d\Omega}_{\text{exp}} \right) / \left( \frac{d\sigma}{d\Omega}_{\text{point, PSA}} \right) \right]^{\frac{1}{2}} \quad (10)$$

を(5)式に最小自乗法であてはめれば、(i)或は(ii)のような電子波の歪曲の効果の補正を改めて行う必要がなくなる。このことは(iii)で得られた結果に(ii)の方法を適用することで確かめることができる。この(iii)の方法は  $Z$  がある程度大きくなると(ii)による補正が必要になってくる。

第2表 フェルミ分布に対する形状因子の計算値。  $Z = 12$ ,  $E_0 = 120$  MeV。平面波近似の(4)式  $|F(q^2)|^2$  と、位相のずれによる解析の計算値  $(d\sigma/d\Omega)_{\text{PSA}} / (d\sigma/d\Omega)_{\text{point, PSA}}$   
 $a = 3.04$  fm,  $t = 2.31$  fm。

| $\theta$ (deg) | $q_{\text{eff}}$ (fm <sup>-1</sup> ) | $ F(q^2) ^2$ | $\left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{PSA}} / \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{point, PSA}}$ |
|----------------|--------------------------------------|--------------|--|
| 25             | 0.278                                | 0.7853       | 0.7865   |
| 30             | 0.332                                | 0.7070       | 0.7087   |
| 35             | 0.386                                | 0.6259       | 0.6278   |
| 40             | 0.439                                | 0.5444       | 0.5464   |
| 45             | 0.491                                | 0.4658       | 0.4681   |
| 50             | 0.542                                | 0.3923       | 0.3946   |
| 55             | 0.592                                | 0.3255       | 0.3275   |
| 60             | 0.641                                | 0.2663       | 0.2681   |
| 65             | 0.689                                | 0.2150       | 0.2164   |
| 70             | 0.735                                | 0.1714       | 0.1725   |
| 75             | 0.780                                | 0.1351       | 0.1357   |
| 80             | 0.823                                | 0.1053       | 0.1056   |

我々の実際の計算では、形状因子の関数として(5)式の代りに  $q^2$  の級数の収束性を向上させるために

$$F(q^2) = \exp(-q^2 b^2/4) \sum_{n=0}^{n_{\max}} a_n q^{2n} \quad (11)$$

を使った。  $a_n$ ,  $b$  は未知のパラメーターとして扱った。  $n_{\max} = 1, 2, 3, \dots$  に対して(11)

式を実験値にあてはめ、 $F$  検定<sup>6)</sup>を行うことにより  $n$  の最も適当な最大値  $n_{\max} = 2$  を得た。

以上の手続きにより得られた断面積の実験値を統計誤差とともに第3表及び第1図に示す。定

数  $C$  の不確かさによる系統的誤差は 3.1% である。79.9 mg/cm<sup>2</sup> の黒鉛標的との比較から、

第3表 <sup>26</sup>Mg による弾性電子散乱断面積の実験値。モット断面積を単位として形状因子の形で与えられている。誤差は統計誤差のみを示す。

| $E_0$ (MeV) | $\theta$ (deg) | $q$ (fm <sup>-1</sup> ) | $q_{\text{eff}}$ (fm <sup>-1</sup> ) | $ F _{\text{exp}}^2$  | $\Delta  F _{\text{exp}}^2$ (%) |
|-------------|----------------|-------------------------|--------------------------------------|-----------------------|---------------------------------|
| 120.0       | 35.0           | 0.366                   | 0.386                                | 0.687                 | 1.5                             |
| 120.0       | 40.0           | 0.416                   | 0.439                                | 0.594                 | 1.5                             |
| 120.0       | 45.0           | 0.465                   | 0.491                                | 0.526                 | 1.6                             |
| 120.0       | 50.0           | 0.514                   | 0.542                                | 0.434                 | 1.7                             |
| 120.0       | 55.0           | 0.561                   | 0.592                                | 0.366                 | 1.8                             |
| 120.0       | 60.0           | 0.607                   | 0.641                                | 0.300                 | 1.8                             |
| 120.0       | 65.0           | 0.653                   | 0.689                                | 0.238                 | 1.2                             |
| 150.0       | 35.0           | 0.457                   | 0.477                                | 0.520                 | 2.1                             |
| 150.0       | 35.0           | 0.457                   | 0.477                                | 0.546                 | 2.0                             |
| 150.0       | 45.0           | 0.581                   | 0.607                                | 0.332                 | 2.5                             |
| 200.0       | 35.0           | 0.609                   | 0.629                                | 0.303                 | 1.6                             |
| 250.0       | 35.0           | 0.761                   | 0.781                                | 0.146                 | 2.2                             |
| 250.0       | 40.0           | 0.866                   | 0.889                                | $7.79 \times 10^{-2}$ | 2.0                             |
| 250.0       | 50.0           | 1.069                   | 1.097                                | $1.42 \times 10^{-2}$ | 1.6                             |
| 250.0       | 55.0           | 1.167                   | 1.198                                | $4.44 \times 10^{-3}$ | 2.4                             |
| 250.0       | 60.0           | 1.264                   | 1.297                                | $8.19 \times 10^{-4}$ | 3.3                             |
| 250.0       | 65.0           | 1.357                   | 1.393                                | $2.51 \times 10^{-4}$ | 4.5                             |
| 250.0       | 70.0           | 1.449                   | 1.487                                | $5.01 \times 10^{-4}$ | 3.5                             |
| 250.0       | 80.0           | 1.622                   | 1.665                                | $9.00 \times 10^{-4}$ | 3.7                             |
| 250.0       | 90.0           | 1.783                   | 1.830                                | $6.64 \times 10^{-4}$ | 3.8                             |
| 250.0       | 100.0          | 1.930                   | 1.981                                | $3.79 \times 10^{-4}$ | 5.8                             |
| 250.0       | 110.0          | 2.062                   | 2.116                                | $1.36 \times 10^{-4}$ | 10.8                            |
| 250.0       | 120.0          | 2.178                   | 2.235                                | $0.54 \times 10^{-4}$ | 19.8                            |

今回使用した $^{26}\text{Mg}$ 標的の中心部の厚さ  
55.5mg/cm<sup>2</sup>が得られた。

#### § 4. $^{26}\text{Mg}$ の基底状態の電荷密度分布

形状因子の実験値をもとに標的核の電荷密度分布を求める際に、現象論的分布関数のパラメーターをなるべく解析に便利なように与えるのがよい。我々は自乗平均半径 $\langle r^2 \rangle$ と、形状因子の絶対値が極小値をとる点の運動量移行 $q_0$ をパラメーターとして採用する。今回の実験では形状因子の極小は第一極小のみ観測されているので、 $q_0$ は一個だけである。

$q_0$ の値は実験資料から直に知ることができる。 $\langle r^2 \rangle$ は $q^2$ の比較的小さな領域 $q \lesssim q_0/2$ での断面積の測定値から $q_0$ 以外の他のパラメーターに殆ど依らずに決めることができる。

我々は関数の取り扱いやすさから電荷密度分布関数として、

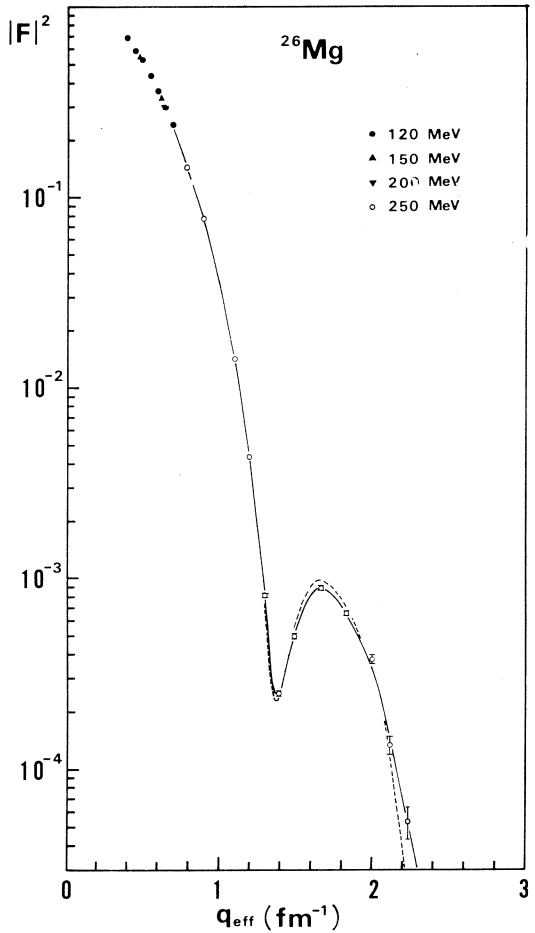
$$\rho(r) = \frac{1}{\pi^{3/2} b^3} \left[ A_0 + A_1 \left( \frac{r}{b} \right)^2 + A_2 \left( \frac{r}{b} \right)^4 \right] e^{-(r/b)^2} \quad (12)$$

を採用した。規格化条件

$$4\pi \int_0^\infty \rho(r) r^2 dr = 1 \quad (13)$$

より(文献3, vol.1, p.233)

$$A_0 = 1 - \frac{3}{2} A_1 - \frac{15}{4} A_2 \quad (14)$$



第1図  $^{26}\text{Mg}$ の弾性散乱形状因子の実験値(3式で定義)。実線は(12)式の電荷密度分布を使って実験値に最もよく適合した計算値(位相のずれによる解析)。破線はLees等(文献1)のフェルミ型電荷分布に対する計算値。(いずれも $E_0 = 250$  MeVに対する計算値。)

が得られる。次に  $\langle r^2 \rangle$  をパラメーターとして導入すると、

$$\langle r^2 \rangle = 4\pi \int_0^\infty \rho(r) r^4 dr \quad (15)$$

を計算して (文献 3, vol. 1, p. 233)

$$A_1 = \frac{2}{3} \frac{\langle r^2 \rangle}{b^2} - 1 - 5A_2 \quad (16)$$

となる。(12) 式から平面波近似で弾性散乱形状因子を求めると (文献 3, vol. 3, pp. 165, 200),

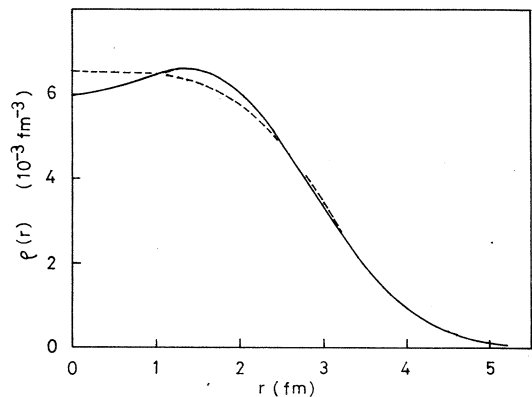
$$\begin{aligned} F(q^2) &= \left[ (A_0 + \frac{3}{2}A_1 + \frac{15}{4}A_2) - (A_1 + 5A_2) \left(\frac{qb}{2}\right)^2 + A_2 \left(\frac{qb}{2}\right)^4 \right] \\ &\quad \times \exp \left[ -\left(\frac{qb}{2}\right)^2 \right] \\ &= \left[ 1 - \left(\frac{2}{3} \frac{\langle r^2 \rangle}{b^2} - 1\right) \left(\frac{qb}{2}\right)^2 + A_2 \left(\frac{qb}{2}\right)^4 \right] \\ &\quad \times \exp \left[ -\left(\frac{qb}{2}\right)^2 \right] \end{aligned} \quad (17)$$

となる。ところで  $F(q_0^2) = 0$  であるから、

$$A_2 = \left[ \frac{2}{3} \frac{\langle r^2 \rangle}{b^2} - 1 - \left(\frac{2}{q_0 b}\right)^2 \right] \left(\frac{2}{q_0 b}\right)^2 \quad (18)$$

が得られる。これで (12) 式の  $\rho(r)$  は (14), (16), (18) 式を通して,  $\langle r^2 \rangle$ ,  $q_0$ ,  $b$  で記述される。

$q_0$  の値は形状因子の実験値 (第 1 図) から直に得られる。 $E_0 = 250$  MeV,  $\theta = 65^\circ$  での  $q$  の値を (9) 式で補正して  $q_0 = 1.393$  fm<sup>-1</sup> とした。 $\langle r^2 \rangle$  の値は  $E_0 = 120$  MeV での断面積の測定値に対して位相のずれによる解析を行なった。回帰分析により,  $\langle r^2 \rangle^{\frac{1}{2}} = 3.03 \pm 0.02$  fm が得られた。この誤差は断面積の系統的誤差を考慮に入れないで推定した標準偏差である。次にこれ等の値を使って, 断面積の実験値全部に良く適合するように  $b$  の値をさがした。このようにして得られ



第 2 図  $^{26}\text{Mg}$  の基底状態の電荷密度分布。  
 実線は今回の実験から求めた (12) 式の分布。 $\langle r^2 \rangle^{\frac{1}{2}} = 3.00$  fm,  $b = 1.85$  fm,  
 $q_0 = 1.393$  fm<sup>-1</sup> 破線は Lees 等 (文献 1) によって得られたフェルミ型分布。  
 $c = 3.04$  fm,  $t = 3.01$  fm

た電荷密度分布を第2図に示す。(  $q > 1.8 \text{ fm}^{-1}$  での適合度を良くするためには  $\langle r^2 \rangle^{\frac{1}{2}} = 3.00 \text{ fm}$  とする必要があった。) 比較のため Lees 等<sup>1)</sup> が電子散乱の実験から得たフェルミ分布もともに示す。又、それ等の  $\rho(r)$  を使った(3)式で定義される形状因子の PSA による計算値を第1図に示す。

## § 5. 結 論

標的が軽い核で、厚さが良い精度で知られていない時は、散乱断面積の絶対値を求める今回のような方法は、 $^{12}\text{C}$  や  $^1\text{H}$  のような基準となる断面積を使う必要もなく、極めて有効である。又、電荷分布のパラメーターを  $\langle r^2 \rangle$ ,  $q_0$  で与えることにより、解析を非常に容易に行なうことができる。但し、(12)式の調和振動子型の電荷分布を使う時は、 $\rho(r) < 0$  の領域が現れないようにパラメーターのとり方に特に注意する必要がある。

## 参 考 文 献

- 1) E. W. Lees, A. Johnston, S. W. Brain, C. S. Curran, W. A. Gillespie and R. P. Singhal : J. Phys. A7 (1974) 936.
- 2) H. Nguyen-Ngoc and J. P. Perez-y-Jorba : Phys. Rev. **136** (1964) B 1036.
- 3) 森口繁一, 宇田川銈久, 一松信 : 数学公式 (岩波, 1957).
- 4) W. A. McKinley, Jr. and H. Feshbach : Phys. Rev. **74** (1948) 1759.
- 5) D. R. Yennie, D. G. Ravenhall and R. N. Wilson : Phys. Rev. **95** (1954) 500.
- 6) P. R. Bevington : *Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences* (McGraw-Hill, New York, 1969).

I - 5  $^{52}\text{Cr}$  による電子散乱 (II)

核理研, 青山学院大\*

早川 建・岡崎行男・小山田正幸

鳥塚賀治・有田浩三\*

前回報告<sup>D</sup>したように,  $^{52}\text{Cr}$  の 2 本の  $4^+$  準位 (  $2.37\text{MeV } 4_1^+$ ,  $2.77\text{MeV } 4_2^+$  ) は, その形状因子の運動量移行量  $q$  についての依存性が異り,  $4_2^+$  準位は,  $f_{7/2}^4$  陽子配位を考え, その配位でのセニョリティーの混りを考慮することにより説明されるが,  $4_1^+$  準位は他の配位の混りを考えなければならぬことが明らかにされた。

今回は,  $4_1^+$  準位について, 配位の混りを取り入れた解析の結果を報告する。

## § 1. 形状因子

基底状態は,  $f_{7/2}^4$  配位でセニョリティー 0, スピン 0 の状態と考えられるからこれを仮定する。 $4_1^+$  準位の主となる配位,  $f_{7/2}^4 \nu$  の他に,  $f-p$  殻内で作られる次のような配位を考える。

$$f_{7/2}^3 \left( \frac{7}{2} \right) f_{5/2}, \quad f_{7/2}^3 \left( \frac{7}{2} \right) P_{1/2}, \quad f_{7/3}^3 \left( \frac{7}{2} \right) P_{3/2}$$

一般にセニョリティーが良い量子数であつて, 残留相互作用が 2 体力のみの場合, セニョリティーが 2 より大きい準位の励起エネルギーは, セニョリティーが 2 のすべての準位の励起エネルギーが判ると, *c.f.p.* を使って計算できる。<sup>2)</sup>  $^{52}\text{Cr}$  では, セニョリティー 4 の準位の励起エネルギーは,  $^{50}\text{Ti}$  のセニョリティー 2 の準位の励起エネルギー, あるいは  $^{52}\text{Cr}$  自身のセニョリティー 2 の準位の励起エネルギーから計算できる。そこで  $^{52}\text{Cr}$  のセニョリティー 2 とされる準位 (  $1.43\text{MeV } 2^+$ ,  $2.77\text{MeV } 4_2^+$ ,  $3.11\text{MeV } 6^+$  ) の励起エネルギーの値を使って計算すると, セニョリティー 4 の  $4_1^+$  準位の励起エネルギーは  $2.32\text{MeV}$  となり,  $4_1^+$  準位の励起エネルギー  $2.37\text{MeV}$  に非常に近い。従つて,  $4_1^+$  準位は, 他の配位の混りがあつたとしても, その主要な配位は  $f_{7/2}^4 \nu = 4$  であると考えられる。そこで,  $4_1^+$  準位の波動関数を

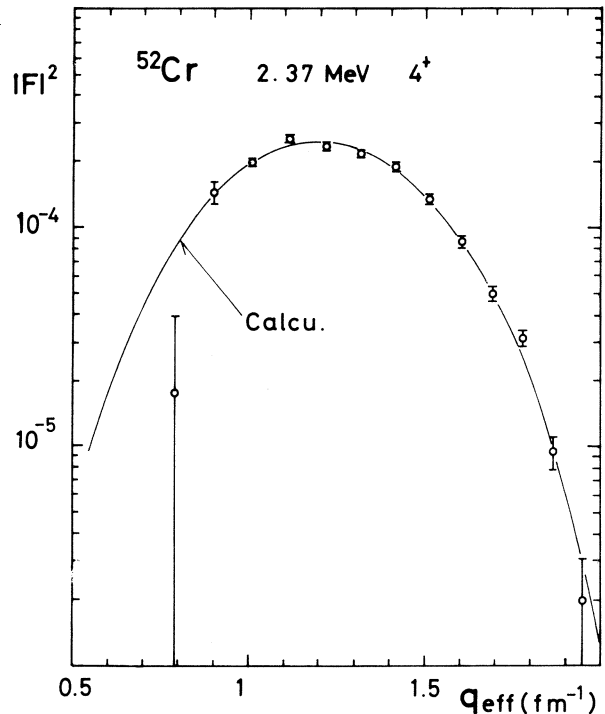
$$\begin{aligned} |4_1^+ \rangle = & \alpha_1 |f_{7/2}^4 \nu = 2 \rangle + \alpha_2 |f_{7/2}^4 \nu = 4 \rangle \\ & + \beta |f_{7/2}^3 \left( \frac{7}{2} \right) f_{5/2} \rangle + \gamma |f_{7/2}^3 \left( \frac{7}{2} \right) P_{1/2} \rangle + \delta |f_{7/2}^3 \left( \frac{7}{2} \right) P_{3/2} \rangle \end{aligned}$$

(1)

と書いて, この  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  及び  $\delta$  を次のような方針に従つて決めた。すなわち, 実験で

得られた形状因子を再現するようなパラメータの組み合わせで、 $\alpha_2$  の絶対値を最大にするものを選ぶ。一粒子波動関数は、調和振動子型を用い、そのポテンシャルのパラメータは弾性散乱の解析から求めた値 ( $\nu = 0.253 \text{ fm}^{-2}$ ) を使った。また形状因子の計算は平面波ボルン近似によって行なった。結果は第1図及び、第一表に示した。

$4_2^+$  準位についての同様な計算は、この準位が  $f_{7/2}^4$  配位だけで説明できると云う前回の報告の結論を支持している。



第1図 基底状態から、2.37 MeV  $4_1^+$  準位への  $C4$  転移の形状因子。実線は、調和振動子波動関数を使い、配位の混合を考慮した計算値である。

第1表  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  は  $f_{7/2}^4$  配位のセニヨリティ-2及び4の状態の確率振幅、 $\beta$ ,  $r$ 及び $\delta$ はそれぞれ、 $f_{7/2}^3 (\frac{7}{2}) f_{5/2}$ ,  $f_{7/2}^3 (\frac{7}{2}) p_{1/2}$  及び  $f_{7/2}^3 (\frac{7}{2}) p_{3/2}$  配位の状態の確率振幅である。

|         | $ \alpha_1 ^2$ | $ \alpha_2 ^2$ | $ \beta ^2$ | $ r ^2$ | $ \delta ^2$ |
|---------|----------------|----------------|-------------|---------|--------------|
| $4_1^+$ | 0.24           | 0.48           | 0.10        | 0.10    | 0.08         |
| $4_2^+$ | 0.63           | 0.37           | 0           | 0       | 0            |

## § 2. E 2 及び E 4 転移確率

前節で求めた波動関数を使って、3.11 MeV  $6^+$  準位から  $4_1^+$  及び  $4_2^+$  準位への E 2 転移確率、及び、これら2本の  $4^+$  準位から基底状態への E 4 転移確率を計算した。このとき  $6^+$  準位は  $f_{7/2}^4$

$\nu = 2$  配位を仮定した。結果は第二表に示す。なお、 $f_{7/2}$   $\nu = 4$  の状態と、他の状態との間の相対的位相は、計算値が最大になるように決めた。

$E 2$  については、実験値に比べて  $1/3 \sim 1/2$  程度となり、 $4_2^+$  準位からの  $E 4$  換算転移解率はほぼ実験値に等しいが、 $4_1^+$  準位からのものは、35%ほど計算値の方が大きくなっている。

第2表  $E 2$  及び  $E 4$  換算転移確率。 a) 参考文献3)。 b) ガウス型の転移電荷密度を仮定して、DWBAによる形状因子の解析から得られたもの。

|         | $B(E 2; 6^+ \rightarrow 4^+) e^2 \text{ fm}^4$ |                             | $B(E 4; 4^+ \rightarrow 0^+) e^2 \text{ fm}^8$ |                               |
|---------|--|-----------------------------|--|-------------------------------|
|         | Calcu.   | Exp. a)                     | Calcu.   | Exp. b)                       |
| $4_1^+$ | $2.90 \times 10$                               | $(5.95 \pm 0.34) \times 10$ | $1.04 \times 10^3$                             | $(1.19 \pm 0.03) \times 10^4$ |
| $4_2^+$ | $1.10 \times 10$                               | $(3.04 \pm 0.45) \times 10$ | $4.67 \times 10^4$                             | $(3.46 \pm 0.11) \times 10^3$ |

### § 3 議 論

今回の解析では、さほど不自然とは思われない仮定から出発して  $4_1^+$  準位の波動関数を決定した。しかし  $6^+$  準位から  $4_2^+$  準位への  $E 2$  転移の強さを同じ波動関数を使って計算すると、実験値の  $\frac{1}{2}$  程度しか説明されない。しかも今回考えた配位の範囲で計算する限り、どのような確率振幅の組を使っても実験値を再現することができない。今回の計算では  $^{48}\text{Ca}$  の Core は硬くて、転移に際して変化しないと考えたが、実際には何らかの影響を受けるはずである。計算値が実験値よりずっと小さくなってしまったのは、このことを考慮に入れなかったためだと考えられる。そこで、この Core の変化の効果を Core の外側の4個の陽子の有効電荷  $e_p$  と云う形で表現すると、 $6^+$  準位から  $4_1^+$  準位への  $E 2$  転移に関して、 $e_p = 1.43e$  となる。同様に  $4_2^+$  準位への  $E 2$  転移に関しては、 $e_p = 1.66e$  である。(早川)

### 参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 7 (1974) 279.
- 2) I. Talmi: Phys. Rev. **126** (1962) 1096.
- 3) B. A. Brown *et al.*: Phys. Rev. **C 9** (1974) 1033.



## I - 6 荷電中間子光発生に関する予備実験

核理研 大橋 英雄  
 中原 和夫  
 庄田 勝房

昭和49年度前期1日、後期2日を用いて行なった ( $e, e'\pi^+$ ) 反応による  $\pi^+$  の測定に関する予備実験の結果を報告する。

### § 1. 目的及び意義

原子核の ( $\gamma, \pi$ ) 反応は日本を始めいくつかのグループによって研究されている。これらはいずれも  $\pi^+$  の発生率、エネルギー分布、角度分布に関するものであるが、エネルギー分布の構造にまで立入った研究はまだない。Überall *et al.*<sup>1)</sup>, その他<sup>2),3)</sup> の計算によると、この反応において残留核の各準位にフィードする反応強度を分離して測定出来れば、その準位の電磁相互作用による転移強度を求める新しい手段を与えるはずである。この場合、光核反応で研究し得ないモードの励起が可能で非常に有力な研究方法となる。

( $\gamma, \pi^+$ ) の残留励起準位に関する分離は、 $\pi^+$  のエネルギー分布がちょうど Bremsstrahlung を用いた場合の光核反応励起曲線と類似であるので、スペクトルの折れ曲りを見出してその強さを測定すればよい。

予備実験の主な目的はこの様な実験計画に関して次の事を調べる事である。

- i) 電子照射 (仮想光子) により発生する種々の正荷電粒子 ( $p, e^+, \pi^+, \text{etc.}$ ) から  $\pi^+$  を分離して検出する事が可能か。
- ii)  $\pi^+$  のエネルギー分布を測定出来るか。この場合、予想出来るエネルギー精度の見積り。
- iii) 残留核の低励起準位にフィードする  $\pi^+$  の計数率はどの位か。

### § 2. 実 験

標的核として  $^{12}\text{C}$  をえらび予備的計算を行なった結果、II系に附属している二重収束型磁気スペクトロメーター (LDM) を利用する事によって次に述べる様に上記条件が満たされる見通しがついた。予備実験はこれを実際に確認するものである。

- i) LDMに設置されている半導体検出器 (SSD) は厚さ 1 mm の Si(Li) で、粒子の入射方向に3重に配列され同時計数がとられる様になっている。1個の検出器による入射粒子のエ

エネルギー損失の計算によれば、例えば約 30 MeV の  $\pi^+$  の波高は同時に入射する  $e^+$  のその約 2 倍である。一方入射陽子は 1 層目の検出器によって完全に吸収され 2 番目以降の検出器にパルスを生じないため同時計数を行なうことによって除去する事が出来る。

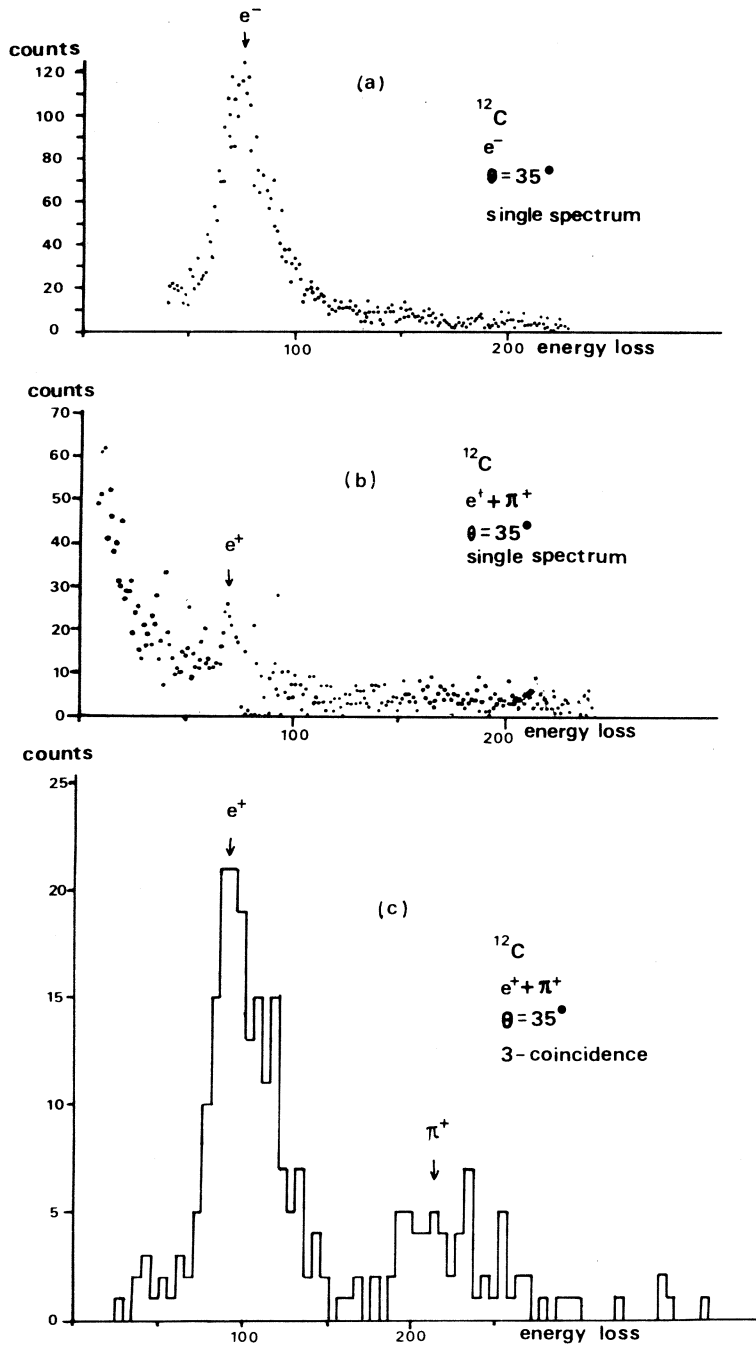
$\pi^+$  及び  $e^+$  による波高は幅の広いランダウ分布を示す。従って  $\pi^+$  の測定のために設定された波高範囲に  $e^+$  のそれも存在するが、この範囲に含まれる  $e^+$  の確率を  $\eta$  とすると、3 重同時計数をとることによって  $\pi^+$  の計数領域に含まれる  $e^+$  の数は  $e^+$  の全計数の  $\eta^3$  倍となり、一般には無視できる。また、雑音、中性子、 $\gamma$  線等のバックグラウンドの寄与も同時計数で減少出来る。

$\pi^+$  分離に関する予備実験は  $300 \text{ mg/cm}^2$  の  $^{12}\text{C}$  のターゲット及び  $34.4 \text{ mg/cm}^2$  の  $^{181}\text{Ta}$  のターゲットに 191, 195, 250 MeV の電子ビームを入射し LDM で運動量分析を行なった後 S S D に生ずる波高を波高分析器によって測定した。測定は S S D 系 No. 50 で行なったが、これは 3 重の S S D No. 49 - 50 - 51 の 2 番目に位置する。従って陽子によるカウントはない。

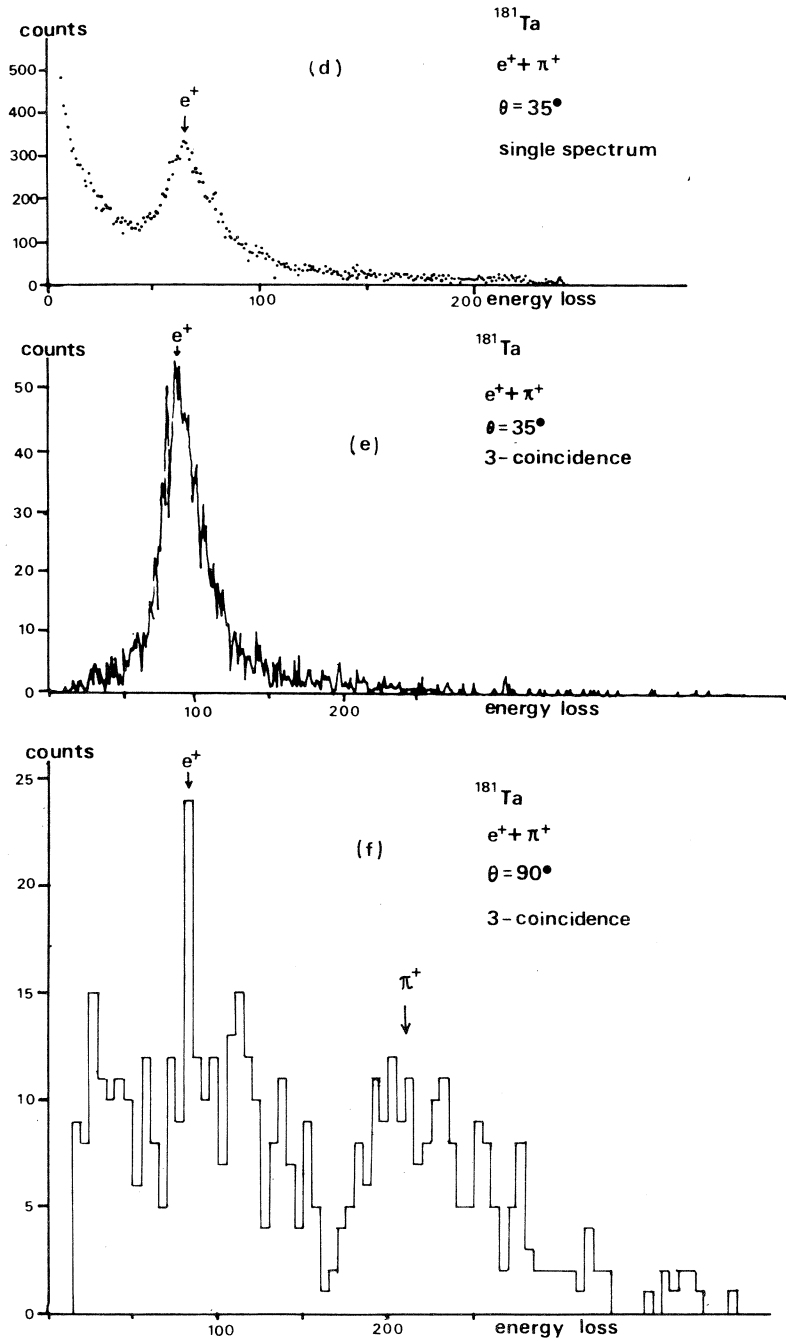
第 1 図(a)は散乱電子を  $\theta$  ( LDM の検出角度 ) =  $30^\circ$  で測定した  $e^+$  の波高分布である。これによって波高の平均的位置を知る事が出来る。(b)と(d)は(a)における LDM の磁場の絶対値を変えずに、向きを反転して求めた波高分布である。(a)で決めたピーク的位置に対発生による  $e^+$  のグループが見られるが、(a)の場合に比べて計数率が小さいため S/N 比が悪くバックグラウンドが大きい。(c)と(e)は No. 49, 51 との 3 重同時計数をとって測定した No. 50 の S S D に生ずる波高分布である。この場合各 S S D 系の波高選別器は  $e^+$  の波高に比べて十分小さく設定してある。結果は十分なバックグラウンドの減少を示していると共に、(c)においては  $\pi^+$  のグループの分離が明瞭である。(e)においては  $\pi^+$  のグループが見出されないが、これはターゲットが重核なので  $e^+$  の計数が  $\pi^+$  に対して相対的に多くなったためと思われる。(f)は(e)と同じ測定を  $\theta = 90^\circ$  で測定したもので、 $e^+$  の計数が(e)の場合より減少するため  $\pi^+$  が分離して測定される。

以上の結果から  $p_0 = 109 \text{ MeV}$  においては  $\theta$  を或程度以上大きくとれば、 $\pi^+$  は  $e^+$  と分離して測定出来ることが明らかになった。実際的方法としては波高分布において  $e^+$ 、 $\pi^+$  各グループの中間の適当な位置に波高選別器のバイアスを設定し、3 重同時計数をとって測定すればよい。前述した様にこのバイアスをこえて検出される  $e^+$  の計数は同時計数によって大きく減少する。

ii)  $\pi^+$  のエネルギー分布を測定するためには或程度の範囲において  $e^+$  と  $\pi^+$  の波高が分離



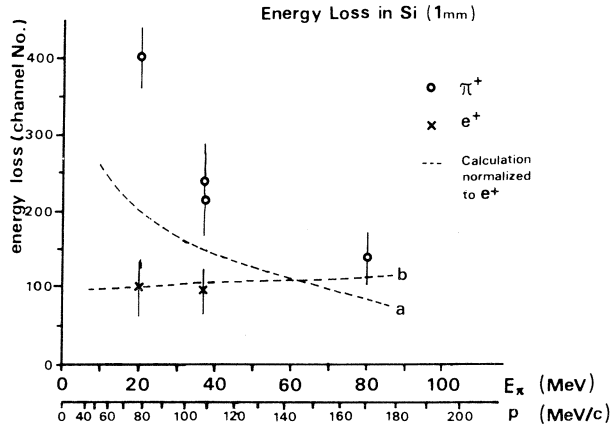
第1図  $^{12}\text{C}$  ( $300 \text{ mg/cm}^2$ ),  $^{181}\text{Ta}$  ( $34.4 \text{ mg/cm}^2$ ) の 250 MeV 電子線照射により検出器番号であるが、すべての図について原点からの距離の等しいものはエネルギー損失が (a):  $e^-$  の単一スペクトル, (b), (d): (a) における LDM の磁場を強度を変えずに向きをの 3 重同時計数を行なって, No. 50 に生ずるスペクトル, (f): (e) と同様で  $\theta = 90^\circ$  の場合。



No. 50 に生ずる波高分布,  $\theta$  はスペクトロメーターの検出角度, 横軸の数字は PHA のチャンネル等しくなるように規格化してある。

反転した場合の単一スペクトル, (c), (e) : SSD系No. 50 の前後の SSD を用い, No. 49-50-51 ただし以上はすべて  $pc=109\text{ MeV}$ .

している必要がある。この分離の割合はもちろんエネルギー損失の計算<sup>4)</sup>で予測出来る。この計算結果と検出粒子のエネルギーを変えて測定した実験値とを第2図に示す。与えられたマシンタイム中で十分な点をとる事は出来なかったが、



$pc \lesssim 130 \text{ MeV}$ では $\pi^+$ の分離測定が可能と思われる。

第2図 スペクトロメーターの半導体検出器からの波高分布の入射運動量に対する変化。破線 a, b は $\pi^+$ ,  $e^+$ に対する計算値を、 $e^+$ に対する実験値に規格化したもの。

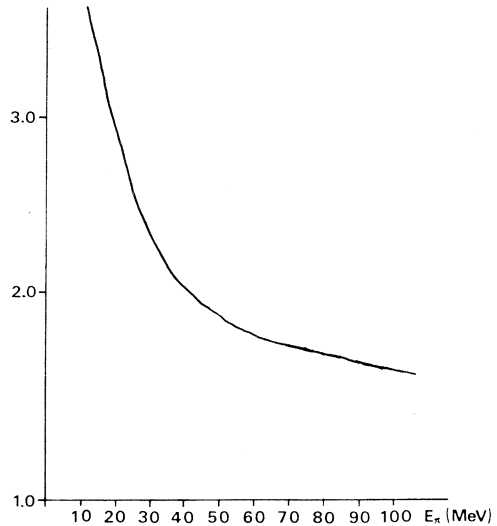
$\pi^+$ のエネルギースペクト

ルの分解能に関しては最高

SSD 1 チャネル幅まで可能であり $\Delta pc = 0.05\%$ である。 実際的にはカウント数、ターゲットの厚さによるエネルギー損失、LDMによる検出エネルギーの精度等が問題となるが、ターゲット設置角度の工夫、較正、補正等によって解決出来るものとする。

iii)  $\pi^+$ の計数率は既存の測定結果から一応の予想は可能であるが、各残留核の準位に関するものは実測を待つ以外に方法はない。

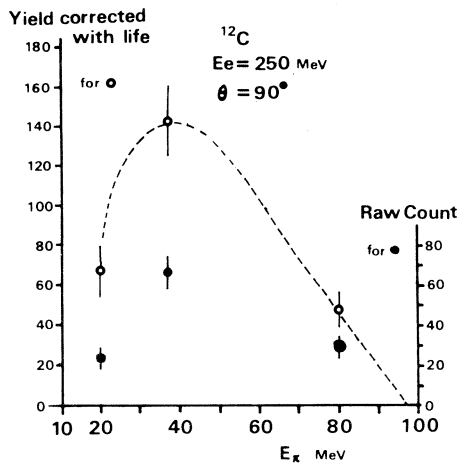
$\pi^+$ は比較的寿命が短いので実際の発生数を知るには検出数への補正が必要である。補正量は標的から検出器到着までの時間に依存する。寿命にもとづく補正係数を第3図に示す。



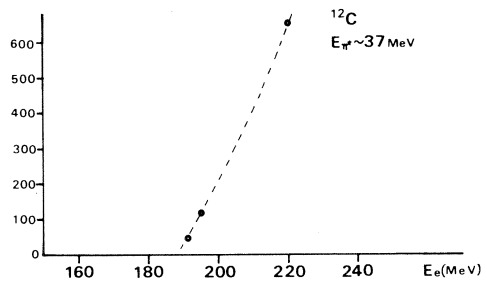
第4, 第5図は予備実験で測定した $\pi^+$ のエネルギー分布及び yield curve ( $36 < E_{\pi^+} < 38 \text{ MeV}$ )である。

第3図  $\pi^+$ の寿命にもとづく補正係数

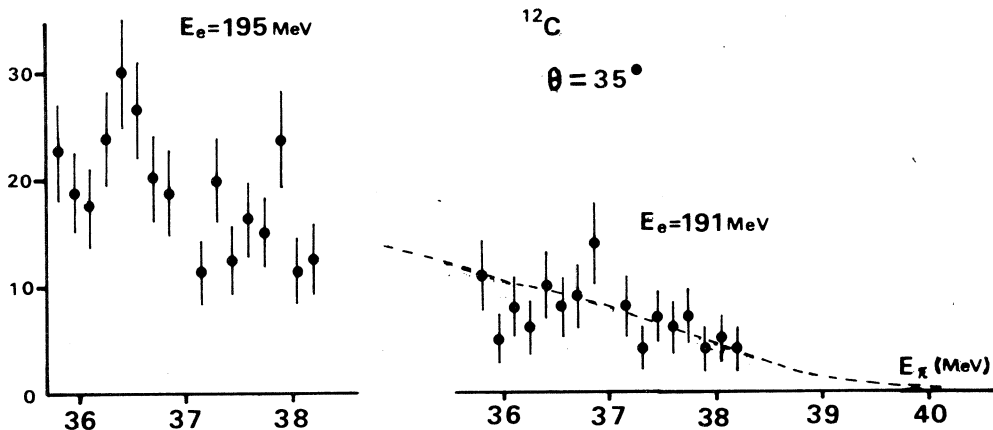
第6図は $^{12}\text{C}$ に電子を照射して得られた $\pi^+$ の最大エネルギー附近のエネルギー分布である。この場合エネルギー分解能は



第4図  $^{12}\text{C}$ に250MeV電子線を照射して得られる $\pi^+$ のエネルギー分布。●は検出された $\pi^+$ のカウント、○は寿命の補正を行なった結果。



第5図  $^{12}\text{C}$ に電子線を照射して得られる $\pi^+$ 発生 yield curve (スペクトロメーターの全チャンネルの計数の和)。ただし $\pi^+$ のエネルギーは36~38 MeV。



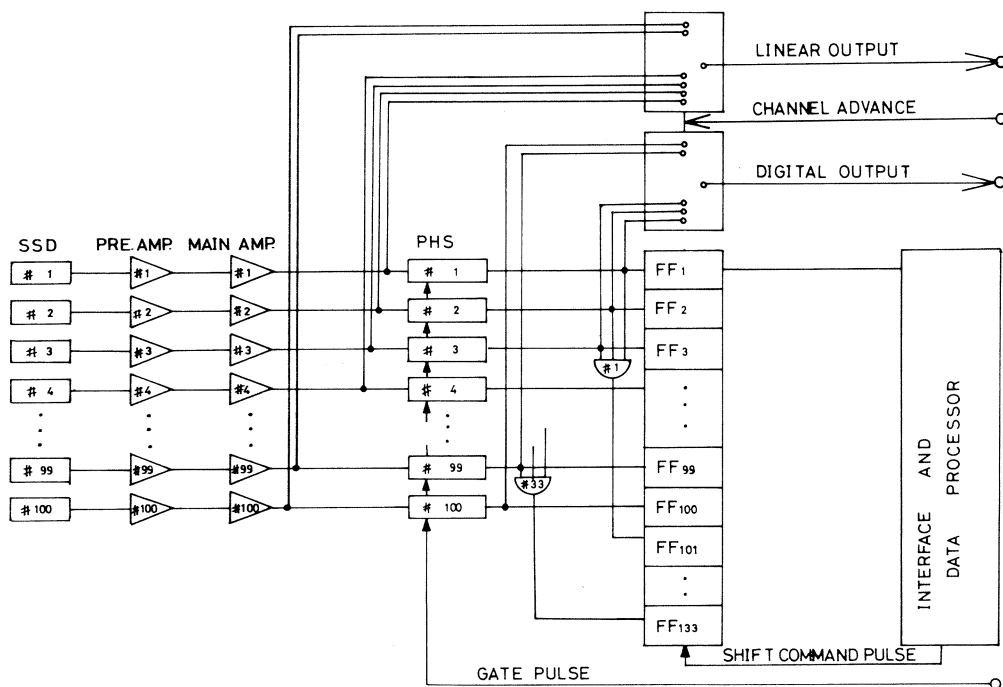
第6図  $^{12}\text{C}(e, e'\pi^+)$ による $\pi^+$ の最高エネルギー附近のスペクトル。

約0.8%であり測定時間は70分である。この結果から我々は $^{12}\text{C}(r, \pi^+)$ に関しては予想している精度で $\pi^+$ のエネルギー分布の測定が可能であると考える。

(庄田)

### § 3 ( $r, \pi^+$ ) 実験の測定系

( $r, \pi^+$ ) 実験を行なうにあたっての測定系は主としてLDMに附属した測定系<sup>⑤</sup>(第7図)を用いたが、特に我々の実験のために附加した測定系もあるのでそれについて述べる。



第7図 二重収束磁気スペクトロメーターの検出回路系

第1回予備実験においては第8図(a)に示したように既存の測定系をそのまま用いて、SSD系 No. 50の増幅器の出力(LIN OUT)を多重波高分析器(PHA)で、波高分布を測定した。その結果は前節に述べてあるように、バック・グラウンドが大きく、 $\pi^+$ の存在を確認することができなかった。

第2回予備実験においてはSSD系 No. 49 - 50 - 51の三重同時計数回路を新しく作って、その出力をPHAのゲートに用いた。結果はバック・グラウンドが十分に減少して $\pi^+$ と思われるグループが $e^+$ のピークと分離して観測された(第8図(b)及び第1図(c)と(f))。そこで、このグループが $\pi^+$ であることを確認するために $\pi^+$ の運動量を変化させてエネルギー損失の理論値と比較し、第2図に示すように、傾向の一致を見、このグループが $\pi^+$ であることを確認した。しかし、この場合波高選別器(PHS)バイアスはエネルギー損失スペクトルを測定するために、 $e^+$ も含むように十分に低く設定してあるため、陰極線管表示装置(CRT)に表示される各検出器の計測数はSSD系 No. 49 - 50 - 51を含むグループでは $e^+$ の計数も含むことになる(第8図(b)のCRT図中の中央附近の計数の多い部分)。そこでエネルギー・スペクトルも同時に得るためには新しくPHSを付け加える必要がある。

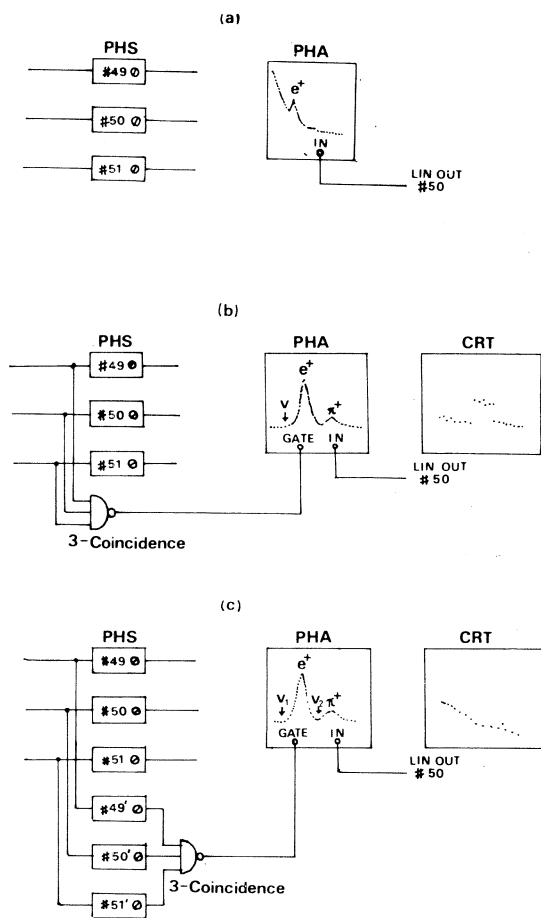
第3回予備実験においては第8図(c)に示すようにSSD系No. 49, 50, 51の各チャンネルにPHSを1台ずつ増設し、既存のPHSとは独立にバイアスを設定できるようにした。この場合既存の回路のバイアスは $e^+$ を含まないように、新設の回路のバイアスよりも高く設定した。そのようにして得た $\pi^+$ のエネルギー・スペクトルが第6図である。

他にLDMの磁場を反転してもFluxメータを使用できるように切り換えスイッチを取りつけた。

現在、ON-LINE計算機と連動したPHA制御装置を製作中である。

我々の実験を行なうにあたり、エレクトロニクス関係は菅原・小山田先生、計測グループの方々に、加速器運転の面では教養部の坪田講師・福田・岡崎・早川・玉江の各氏、及びマシン・グループの方々に御指導・御協力をいただきました。ここに感謝の意を表します。

(大橋)



第8図 測定系改良の過程

- (a) : No. 50の主増幅器の出力(LIN OUT)をPHAで測定。
- (b) : No. 49-50-51の信号の三重同時計数をgateに用いて、No. 50の信号を測定。図中 $v$ はPHSバイアスの位置。各検出器の計数数(CRTに表示)の中央附近の計数が多いのはこのグループのPHSバイアスを他のグループよりも小さく設定してあるため、 $e^+$ の計数も含まれるため。
- (c) : PHSを3台増設してバイアスを独立に設定できるように改良。図中 $v_1$ は新設PHSのバイアス、 $v_2$ は既設PHSのバイアスの位置。



## 参 考 文 献

- 1 ) H. Überall *et al.* : Phys. Lett. **44 B** (1973) 324.
- 2 ) K. Srinivasa Rao *et al.* : Nucl. Phys. **A 159** (1970) 97.
- 3 ) V. Devanathan *et al.* : Nucl Phys. **B 2** (1967) 329.
- 4 ) M. Rich *et al.* : UCRL-2301 (1954).
- 5 ) M. Kimura *et al.* : Nucl. Instrum. and Methods **95** (1971) 403.

I - 7  ${}^6\text{Li}(e, e'd){}^4\text{He}$  反応

山形大教養, 核理研\*

種市 宏・上野博昭・庄田勝房\*

## § 1 実 験

${}^6\text{Li}$  核は  $T_z=0$  なので,  $\Delta T=0$  の  $E1$  遷移は禁止される。しかし。これまでの2回の実験で,  ${}^6\text{Li}(e, e'd){}^4\text{He}$  反応の  $d$  のスペクトル<sup>D</sup> が測定されたので, この反応過程が  ${}^6\text{Li}$  の isospin impurity によるのか, あるいは  $E1$  以外の吸収によるかを調べるために角度分布の測定をおこなった。

ターゲットは 98.7% enrich  ${}^6\text{Li}$  金属を圧延した, 厚さ 20 mg/cm<sup>2</sup> の板を用いた。

角度分布は電子エネルギー 14, 20 と 30 MeV で, 角度は 42° と 138° の間で 16 点測定した。その結果を第1図に示してある。

反応断面積の絶対値は, 今回は決められなかった。

## § 2 考 察

$E2$  遷移を含む角度分布は

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = A_0 + A_1 P_1(\cos\theta) + A_2 P_2(\cos\theta) + A_3 P_3(\cos\theta) + A_4 P_4(\cos\theta)$$

のように記述される。第1図の曲線は, 上の式に測定点を入れて計算した結果である。計算で得られた Legendre の係数の比を第2図に示した。この係数の比は,

$$A_1/A_0 \rightarrow (E1, M1) + (E1, E2)$$

$$A_2/A_0 \rightarrow (E1)^2 + (M1)^2 + (E2)^2$$

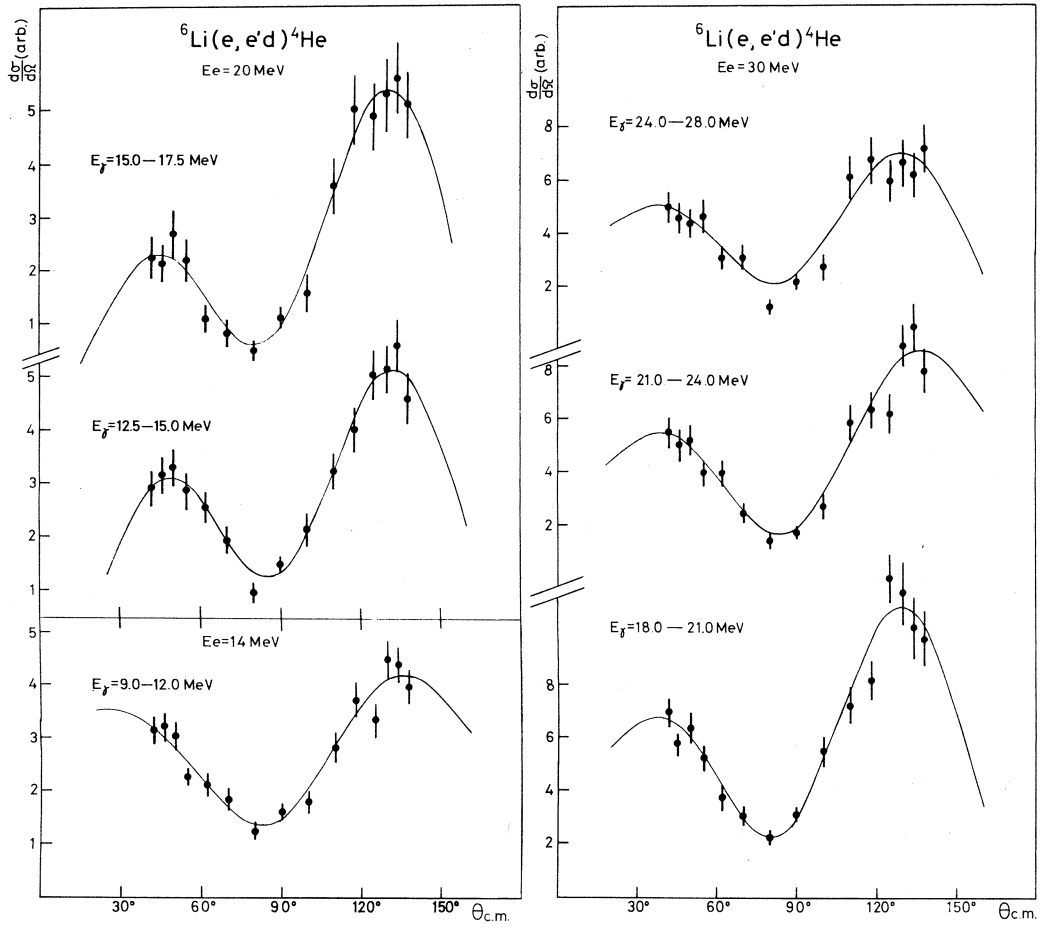
$$A_3/A_0 \rightarrow (E1, E2)$$

$$A_4/A_0 \rightarrow (E2)^2$$

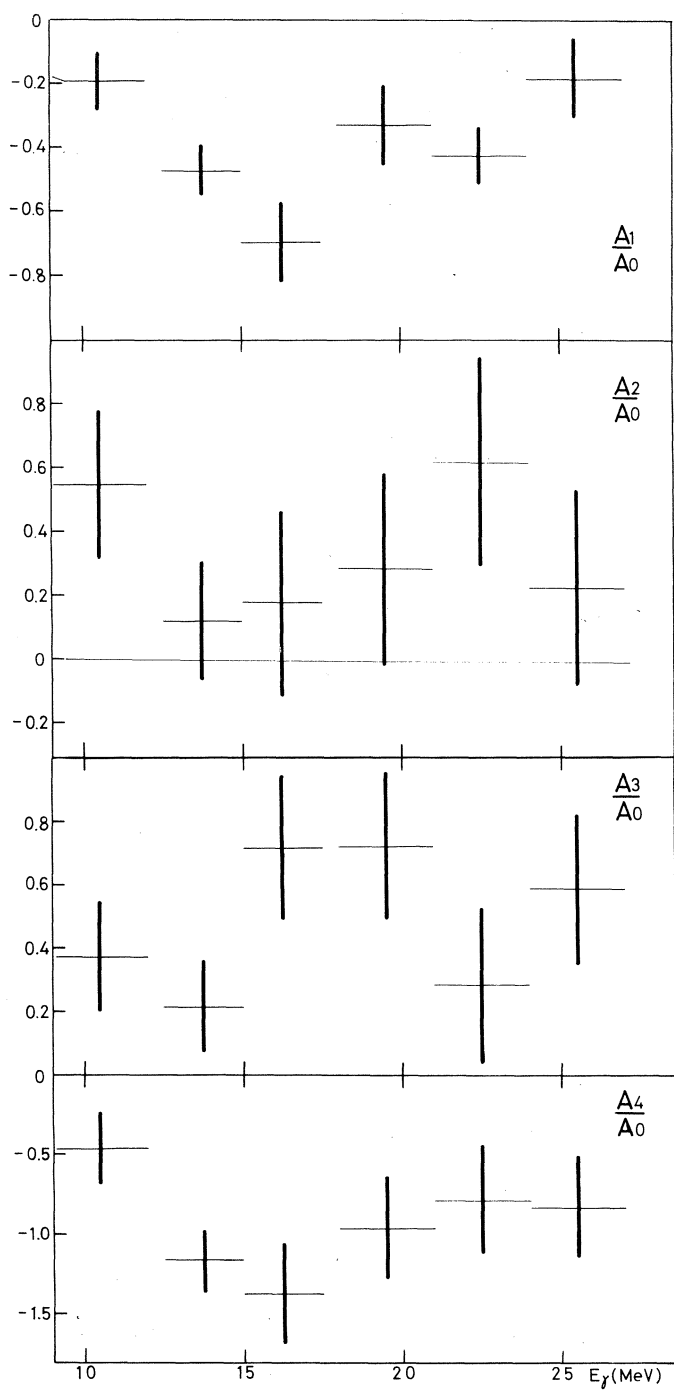
と記述<sup>2)</sup> される。 $A_4$  は  $E2$  だけの寄与であるから, 第2図より,  $E2$  が主であることがわかる。

また  $E1$  の寄与も見られ, この  $E1$  は isospin impurity によるものと思われる。

この実験に際して御援助いただきました核理研 (r, p) グループのメンバーの方々, マシーングループと測定器グループの方々に感謝致します。



第1図  ${}^6\text{Li}(e, e'd){}^4\text{He}$  反応の角度分布。  $E_e = 14, 20, 30$  MeV で測定。  $E_\gamma$  は  ${}^6\text{Li}$  の excitation energy を表わす。縦棒は統計誤差のみ。曲線は本文中に説明してある。



第2図 角度分布の Legendre 係数の比。縦棒は統計誤差を表わし、横棒はエネルギー範囲を表わす。

## 参 考 文 献

- 1) 種市宏, 上野博昭, 庄田勝房: 核理研研究報告 7 (1974) 62.
- 2) S. S. Hanna : *Proc. Intern. Conf. Nuclear Structure Studies Using Electron Scattering and Photoreaction, Sendai* , eds. K. Shoda and H. Ui  
( Laboratory of Nuclear Science , Tohoku University , 1972 ) P. 453.

I - 8  $^{51}\text{V}$ と $^{54}\text{Fe}$ の $(r, p)$ 反応

教養部物理、核理研\*

坪田博明・及川四郎\*† 上柿順一\*  
玉江忠明\*

## § 1. 序 論

多くの 1 f - shell 核の巨大共鳴領域での  $(r, n)$  反応断面積は二つの大まかな構造をもつか、又は幅が非常にひろい。特に  $^{51}\text{V}$ ,  $^{59}\text{Co}$  等はその典型的なものとして知られている。従来これらの巨大共鳴の構造については核の変形効果の面から主として論じられていた。

しかし最近の  $(p, r)$  反応や  $(e, e'p)$  反応での研究によると、1 f - shell 領域核に於いてもアイソスピンの巨大共鳴領域に及ぼす効果を無視できないことが示されている。特に Ni アイソトープについては、Fultz 等や Diener 等及び東北大核理研の  $(r, p)$  グループによって、議論されている。<sup>1)</sup>

Akyütç 等<sup>2)</sup>によると、E 1 吸収でできるアイソスピン  $T_0 (=T_<)$  の部分と、 $T_0+1 (=T_>)$  の部分の重心間のエネルギー差  $\Delta E_T$  は次のように与えられる。

$$\Delta E_T = 60 \frac{T_0+1}{A} \quad (\text{MeV}) \quad (1)$$

ここで  $T_0$  は標的核の基底状態のアイソスピンである。又 Fallieros 等<sup>3)</sup>によると総和則から次の式が導かれる。

$$\frac{\int \frac{\sigma(T_0+1)}{E} dE}{\int \frac{\sigma(T_0)}{E} dE} \approx \frac{1}{T_0} \frac{1 - \frac{3}{2} T_0 A^{-\frac{2}{3}}}{1 + \frac{3}{2} T_0 A^{-\frac{2}{3}}} \quad (2)$$

(1), (2)式と実験データとの比較から、光核反応におけるアイソスピンの巨大共鳴に及ぼす効果を推定できる。

我々は  $^{51}\text{V}$ と $^{54}\text{Fe}$ 核についてのアイソスピン効果及び核変形効果について調べることにした。そのためには、 $(r, n)$ ,  $(r, p)$  反応断面積が必要であるが、現在のところ  $^{51}\text{V}$ ,  $^{54}\text{Fe}$  の  $(r, p)$  反応データは少く、しかも上記の目的に用いることのできるような  $(r, p)$  反応断面

† 現在 : 島津製作所, 京都

積は測定されていない。そこで我々は $(r, p)$ 反応断面積を測定することにした。

今回の報告では、特にアイソスピン効果の面からのみ考えた一つの近似的な解析の方法を示す。Okamoto, Danosの核変形効果やHuber等のcollective surface - vibrationの効果<sup>4)</sup>についてはこの報告では触れないことにする。又 $(r, p_0)$ 又は $(r, p_0 + p_1)$ 反応と、 $(r, p)$ 反応又は $(r, n)$ 反応等との関連についての考察も興味あることであるが、現在検討中のため、 $(r, p_0)$ 、 $(r, p_0 + p_1)$ 反応の断面積についての議論は行なわない。測定できた断面積を示すにとどめる。

## § 2. 実験の方法及び解析

実験は東北大学核理研 300 MeV電子ライナックからの電子ビームを用いて行った。標的核に電子ビームを照射して、 $(e, e'p)$ 反応で放出される陽子のエネルギースペクトルを測定し、これからyield curveを求めた。先づ $90^\circ$ でのyield curveを測定し、次にいくつかの $E_0$ での陽子の角度分布を測定した。 $(^{51}\text{V}$ では $E_0 = 17 \sim 23$  MeVまで1 MeV stepでの角度分布を測定し、 $^{54}\text{Fe}$ では $E_0 = 16, 18, 19, 20, 22$  MeVでの角度分布を測定した。)  $90^\circ$ でのyield curveとこれらの角度分布のテータから $4\pi$ 方向のyield curveを求めた。このyield curveから仮想光子スペクトルを仮定して、 $(r, p)$ 反応の断面積を求めた。ここで仮想光子スペクトルはBarberの計算に従った<sup>5)</sup>。(但し $E_1$ のみを考えた。)ここで $^{51}\text{V}$ では $E_0 = 15.0 \sim 29.0$  MeV、 $^{54}\text{Fe}$ では $E_0 = 15.0 \sim 26.0$  MeVの範囲で0.2 MeV stepでyield curveを測定した。又、yield curveは $E_p > 2.6$  MeVのものである。陽子エネルギースペクトルは、磁気分析計で測定した。

この実験では陽子エネルギースペクトルを測定するので、残留核をある特定の状態にのこす $(r, p_0)$ や $(r, p_0 + p_1)$ 反応等の断面積も求めることができる。このことから、我々は $^{51}\text{V}(r, p_0)$ 反応断面積も測定した。 $^{54}\text{Fe}$ の場合は、残留核 $^{53}\text{Mn}$ の基底状態と第1励起状態間のエネルギーが約0.4 MeVであるため、この実験では $(r, p_0)$ 反応断面積は測定できなかった。そこで $^{54}\text{Fe}$ では $(r, p_0 + p_1)$ 反応断面積を求めた。又第1表から分るように、 $^{54}\text{Fe}$ の場合、 $(r, \alpha)$ 反応の閾値が $(r, p)$ 反応のものより低いため、陽子エネルギースペクトルの高エネルギー部分まで $\alpha$ が混入してくる。そこで、 $^{54}\text{Fe}(r, p_0 + p_1)$ 断面積測定の際には、検出器の直前にAl吸収体を置いて $\alpha$ 粒子を除いた。しかし、 $(r, p)$ 反応の断面積を求める場合には、 $\alpha$ 粒子の強度が陽子に比して小さいとして、Al吸収体を用いなかった。この実験で用いられた標的核の諸量を表1に示しておく。

第 1 表 用いられた標的核

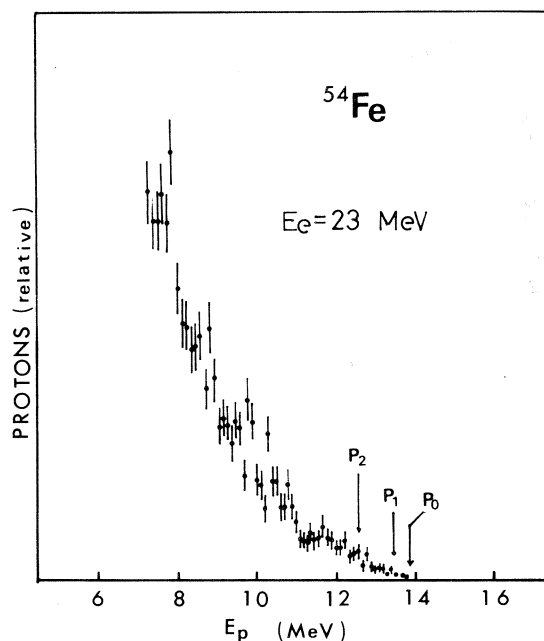
|                  | 厚さ<br>( $\text{mg}/\text{cm}^2$ ) | 純度<br>(%) | 反応の閾値 (MeV) |               |          |           | $(r, p)$ 反応の残留核<br>状態 (MeV) |      |      |
|------------------|-----------------------------------|-----------|-------------|---------------|----------|-----------|-----------------------------|------|------|
|                  |                                   |           | $(r, p)$    | $(r, \alpha)$ | $(r, n)$ | $(r, np)$ | 1st                         | 2nd  | 3rd  |
| $^{51}\text{V}$  | 7.48                              | 99.8      | 8.06        | 10.03         | 11.06    | 19.0      | 1.31                        | 1.38 | 1.54 |
| $^{54}\text{Fe}$ | 3.59                              | ~90       | 8.85        | 8.42          | 13.62    | 20.9      | 0.34                        | 1.28 | 1.43 |

陽子エネルギースペクトルから、 $(r, p_0)$  及び  $(r, p_0 + p_1)$  反応断面積を求める方法は、菅原等の方法に従い<sup>6)</sup>、yield curve から  $(r, p)$  反応断面積を求める方法は Cook<sup>7)</sup> の least structure method に従った。

### § 3. 結果と議論

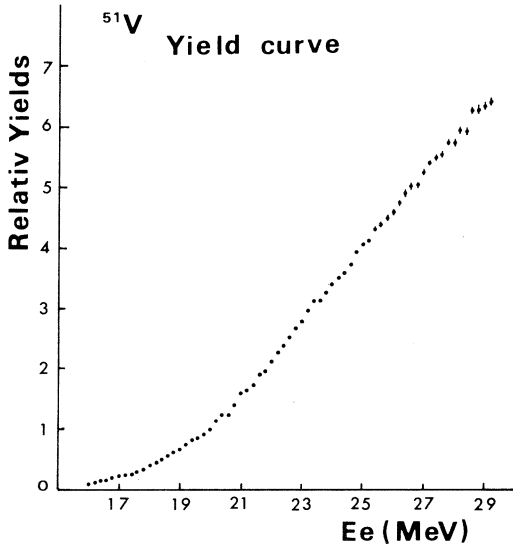
得られた陽子エネルギースペクトルの例を第1図に示す。第1図は  $^{54}\text{Fe}$  の  $E_e = 23\text{MeV}$  のもので、Al 吸収体を用いたものである。図で示されている  $p_0, p_1, p_2$  の位置は、 $(r, p)$  反応の閾値と  $E_e$  から予想される  $p_0, p_1, p_2$  の最大エネルギーである。 $^{54}\text{Fe}$  の  $(r, p_0 + p_1)$  反応断面積は、 $p_1 - p_2$  間の平均のものである。又  $90^\circ$  での yield curve と  $E_e = 18\text{MeV}$  の場合の角度分布の例を第2~5図に示す。第2, 3図から得られた  $90^\circ$  での  $(r, p)$  反応断面積を第6, 7図に示す。又、積分断面積の値を第2表に示す。これらの図から、 $^{51}\text{V}, ^{54}\text{Fe}$  共に巨大共鳴領域にいくつかの大まかな構造をもっており、又、 $(r, p)$  反応断面積と  $(r, p_0)$  又は  $(r, p_0 + p_1)$  反応断面積の間には、共鳴位置が非常によく対応していることが分る。

このような  $(r, p)$  反応断面積にあらわれる構造及びその強さが  $(r, n)$  反応のものと、どのように対応しているか比較

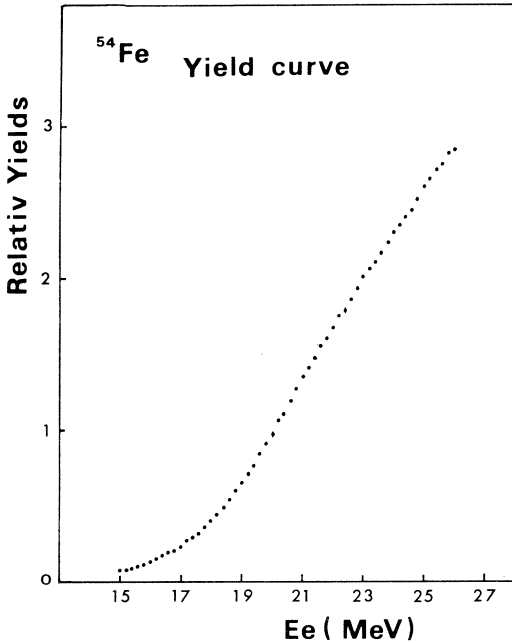


第1図  $^{54}\text{Fe}(e, e'p)$  反応の陽子エネルギー  
スペクトル

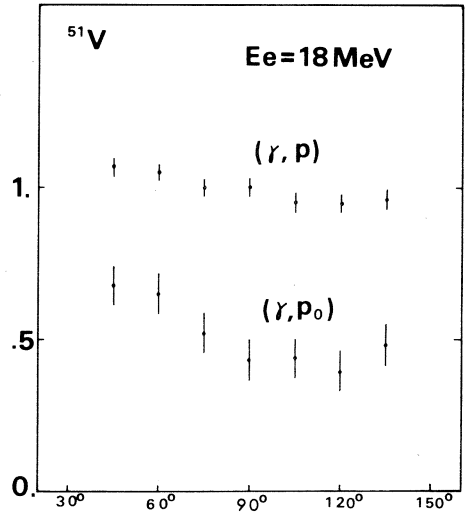




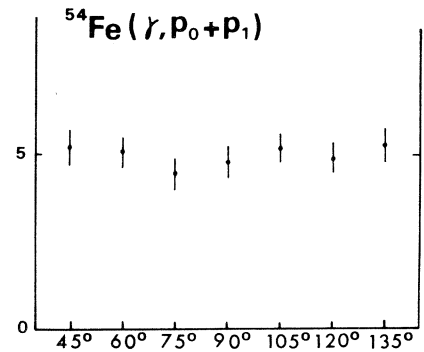
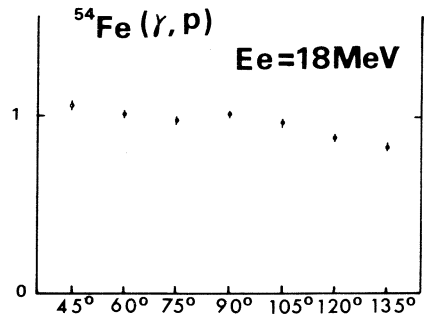
第2図  $^{51}\text{V}(e, e'p)$  反応の yield curve.  $E_p > 2.6 \text{ MeV}$ ,  $90^\circ$ ,  $\Delta p_e/p_e = 1.5\%$



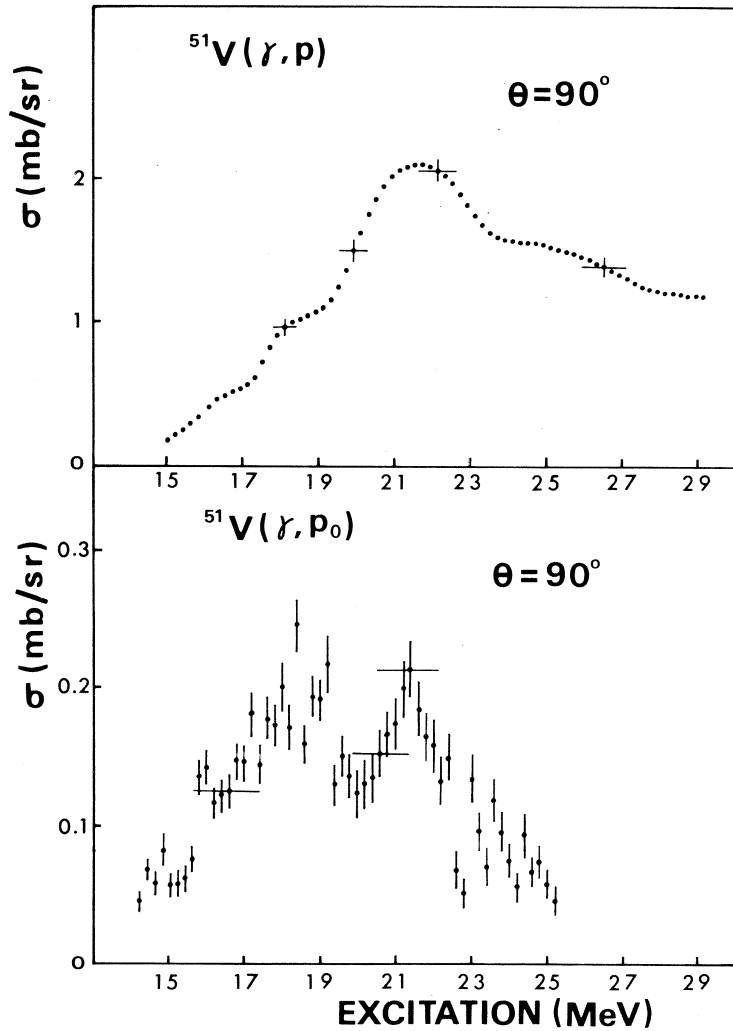
第3図  $^{54}\text{Fe}(e, e'p)$  反応の yield curve.  $E_p > 2.6 \text{ MeV}$ ,  $90^\circ$ ,  $\Delta p_e/p_e = 1.5\%$



第4図  $^{51}\text{V}(e, e'p)$  と  $^{51}\text{V}(e, e'p_0)$  反応の角度分布.  $E_e = 18 \text{ MeV}$ . 縦軸は相対値.



第5図  $^{54}\text{Fe}(e, e'p)$  と  $^{54}\text{Fe}(e, e'p_0 + e'p_1)$  反応の角度分布.  $^{54}\text{Fe}(e, e'p_0 + e'p_1)$  のものは Al 吸収体を用いたもの.  $E_e = 18 \text{ MeV}$ . 縦軸は相対値



第 6 図  $^{51}\text{V}$  の  $(\gamma, p)$  と  $(\gamma, p_0)$  反応の  $90^\circ$  での微分断面積。

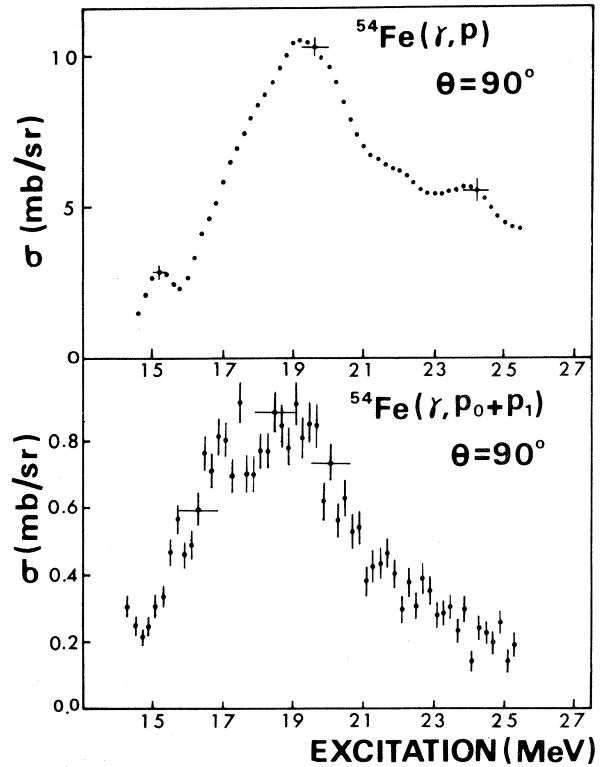
第 2 表  $(\gamma, p)$  反応断面積の積分値

|                  | $\int \alpha(\gamma, p) dE$<br>(MeV, mb) | $\int \alpha(\gamma, p) dE$<br>60NZ/A | $\int \alpha(\gamma, n) dE$<br>(MeV, mb) | $\int \sigma_t dE$<br>60 NZ/A |
|------------------|--|---------------------------------------|--|-------------------------------|
| $^{51}\text{V}$  | 15 ~ 29 MeV<br>214 ± 15                  | 0.28                                  | 0 ~ 28 MeV*)<br>557                      | 15 ~ 28 MeV<br>0.97           |
| $^{54}\text{Fe}$ | 15 ~ 26 MeV<br>761 ± 45                  | 0.95                                  | 15 ~ 26 MeV**)<br>259                    | 15 ~ 26 MeV<br>1.26           |

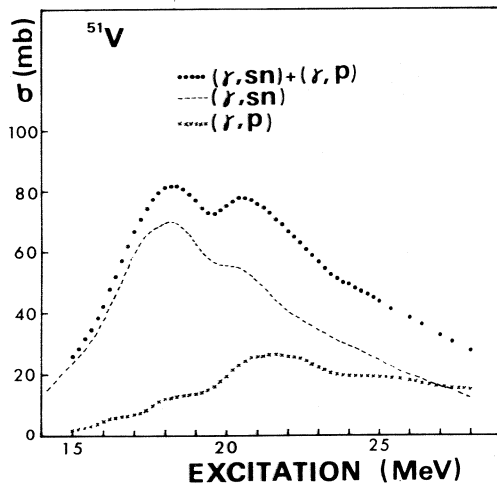
$$\int \sigma_t dE = \int \sigma(\gamma, p) d + \int \sigma(\gamma, n) dE$$

\*) 文献 8      \*\*) 文献 9

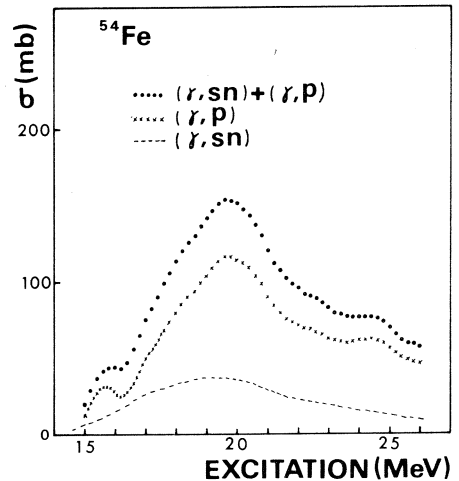
することは興味あることである。第8, 9図は $4\pi$ 方向の $(\gamma, p)$ 反応断面積と $(\gamma, Sn)$ 反応断面積を比較したものである<sup>8, 9)</sup>。これらの図をみると、 $^{51}\text{V}$ ,  $^{54}\text{Fe}$ 共に、 $(\gamma, n)$ ,  $(\gamma, p)$ 反応断面積の共鳴位置がよく対応している。又この比較で目につくのは、 $^{51}\text{V}$ の場合は $(\gamma, p)$ 反応断面積は $(\gamma, n)$ 反応のそれより数倍少ないのに、一方 $^{54}\text{Fe}$ の場合はその逆である。第2表に与えられた積分断面積をみると、 $^{51}\text{V}$ では $\int \sigma(\gamma, p) dE / \int \sigma(\gamma, n) dE$ が約0.38であるのに $^{54}\text{Fe}$ ではこの比が約2.94で



第7図  $^{54}\text{Fe}$ の $(\gamma, p)$ と $(\gamma, p_0+p_1)$ 反応の $90^\circ$ での微分断面積



第8図  $^{51}\text{V}$ の $(\gamma, p)$ と $^{51}\text{V}$ の $(\gamma, n)$ 反応断面積<sup>8)</sup>との比較



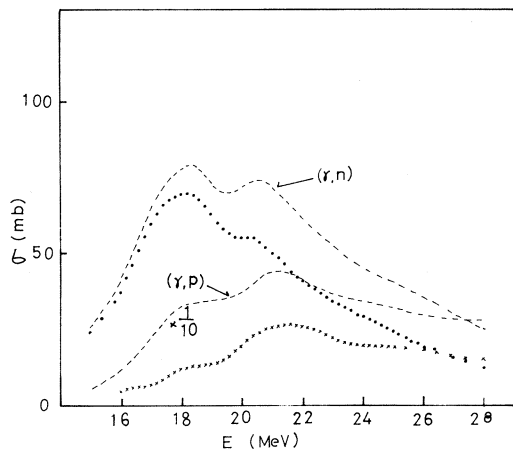
第9図  $^{54}\text{Fe}$ の $(\gamma, p)$ と $(\gamma, n)$ 反応断面積<sup>9)</sup>との比較

ある。この比が  $^{51}\text{V}$  と  $^{54}\text{Fe}$  で異なる原因を考えてみる。先づ考えられることは、 $(\gamma, n)$ 、 $(\gamma, p)$  反応の閾値である。即ち第1表から分るように、 $^{51}\text{V}$  では  $(\gamma, p)$  反応の閾値が  $(\gamma, n)$  反応のものより約 3 MeV 低いが、一方  $^{54}\text{Fe}$  では約 4.5 MeV も低い。従って、この閾値の差の大きさによって、 $^{51}\text{V}$  と  $^{54}\text{Fe}$  では  $(\gamma, n)$ 、 $(\gamma, p)$  反応断面積の強さの比が逆となると先づ考えられる。

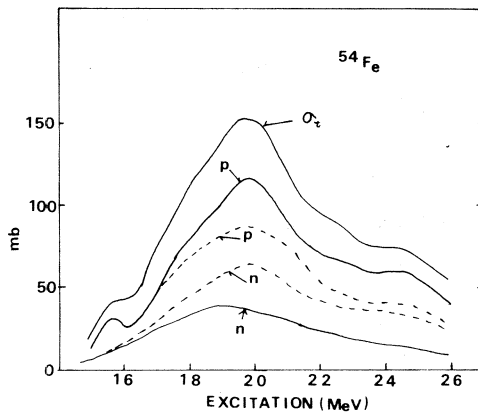
以上のことを考慮して、我々は解析の一段階として、複合核模型を考えてみた。この模型によれば、 $(\gamma, i)$  反応の平均断面積は

$$\sigma(\gamma, i) = \sigma_C(c, n) \frac{T_i}{\sum_c T_c}$$

となる<sup>10)</sup>。 $\sigma_C(c, n)$  は複合核形成断面積で、 $T$  は透過係数である。 $c$  はエネルギー的に放出可能な全てのチャンネルであるが、ここでは陽子と中性子放出のみについて考える。又  $\sigma_C(c, n)$  としては実験値  $\sigma(\gamma, \text{Sn}) + \sigma(\gamma, p)$  を用いる。(但し  $\sigma(\gamma, \text{Sn}) + \sigma(\gamma, p)$  の中には  $\sigma(\gamma, np)$  が重複して加算されることになるが、ここではその効果は無視した。) 又、透過係数は簡単のため、井戸型ポテンシャルを用いて計算し、準位密度としては Shifted Fermi gas 模型を用いた。<sup>11)</sup> (ここで用いた諸パラメーターは参考文献6と殆ど同じものである。) この計算結果を第10, 11図に示す。計算結果は、実験結果で得られた  $(\gamma, n)$ 、 $(\gamma, p)$  反応断面積の形状をよく再現している。又  $^{51}\text{V}$  では、 $(\gamma, n)$  反応断面積が  $(\gamma, p)$  反応のもの



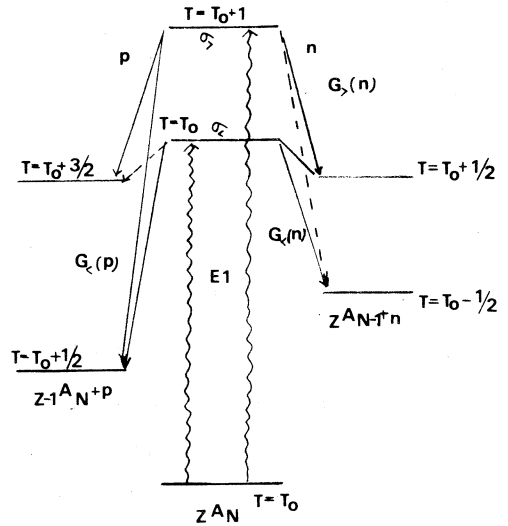
第10図  $^{51}\text{V}$  についての統計模型を用いて計算した結果。点線が計算結果。実線は実験結果。



第11図  $^{54}\text{Fe}$  についての統計模型を用いて計算した結果。実線は実験結果。 $\sigma_i$  は  $\sigma(\gamma, \text{Sn}) + \sigma(\gamma, p)$ 。

より大きく、一方  $^{54}\text{Fe}$  ではその逆であり、これらの大まかな傾向をよく示している。即ち複合核模型を用いると、巨大共鳴の形状を定性的には説明することができ、先の  $^{51}\text{V}$  と  $^{54}\text{Fe}$  での  $\int \sigma(r, p) dE / \int \sigma(r, n) dE$  の違いを閾値の違いとして説明できる。

しかし一方定量的にみると、この模型による計算結果は必ずしも実験値をよく説明しているとは思われない。 $^{51}\text{V}$ 、 $^{54}\text{Fe}$  共に、実験値に比して、 $(r, n)$  反応断面積は大きく、一方、 $(r, p)$  反応のそれは小さい。勿論、今の計算に於いては、透過係数の計算で井戸型ポテンシャルを用いており、核半径のとり方等に  $T$  がかなり依存することや、残留核の低励起準位密度が Fermi gas 模型では近似が粗すぎるという問題点はある。従って、別型のポテンシャルを用いるとか、低励起準位については別の準位密度を用いるとかして、更に検討する必要がある。しかし我々は一応、上の近似を用いて次のような計算を行ってみた。



第12図 アイソスピンの選択律

第12図に示すようなアイソスピン効果を取り入れる。即ち、 $(r, n)$  反応では、 $T >$  状態から残留核を基底状態に残すような中性子崩壊は禁止であるので、アイソスピン効果を考えると、 $(r, n)$  反応ではその強度が小さくなり、従って  $(r, p)$  反応強度が大きくなる筈である。このような観点から、 $T <$  状態、 $T >$  状態への  $E_1$  吸収断面積  $\sigma_{<}$ ,  $\sigma_{>}$  を分離してみた。但し第12図で、 $T >$  から  $T = T_0 + \frac{3}{2}$  状態への陽子崩壊は、透過係数が小さいので無視した。この図で、 $G_{<}(n)$ ,  $G_{<}(p)$  は夫々、中性子、陽子の崩壊強度に相当する量で、透過係数の和である<sup>6)</sup>。又、 $G_{<}$ ,  $G_{>}$  は夫々残留核の基底状態アイソスピン、及びそれに1を加えたアイソスピンをもつ状態への崩壊の強さを示す。実験データ  $\sigma(r, p)$ ,  $\sigma(r, n)$  が夫々  $T_{<}$ ,  $T_{>}$  状態を径由して崩壊したものの和であるとする。

$$\begin{aligned} \sigma(r, p)_{\text{実}} &= \sigma_{<}(r, p) + \sigma_{>}(r, p) \\ \sigma(r, n)_{\text{実}} &= \sigma_{<}(r, n) + \sigma_{>}(r, n) \end{aligned} \quad (3)$$

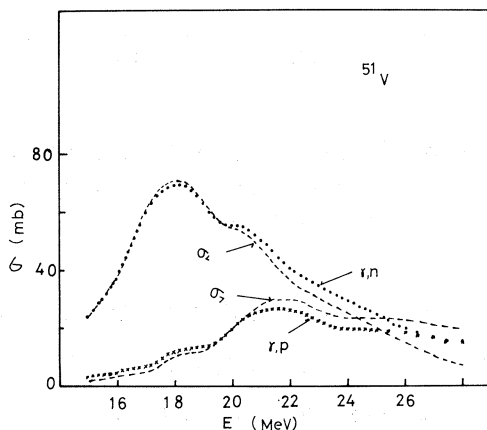
ここで

$$\sigma_{<}(r, p) = \sigma_{<} \frac{G_{<}(n)}{G_{>}(n) + G_{<}(n) + G_{<}(p)}, \quad \sigma_{>}(r, p) = \sigma_{>} \frac{G_{<}(p)}{G_{>}(n) + G_{<}(p)} \quad (4)$$

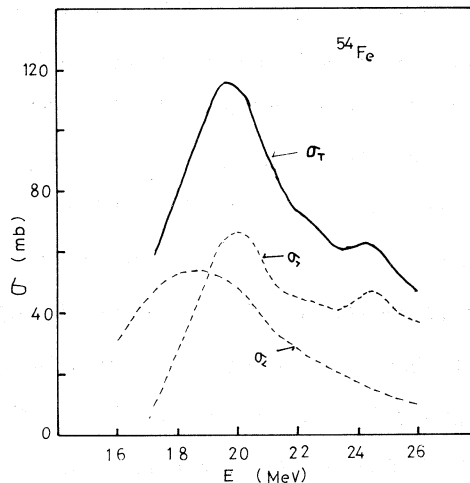
$$\sigma_{<}(r, n) = \sigma_{<} \frac{G_{<}(n) + G_{>}(n)}{G_{>}(n) + G_{<}(n) + G_{<}(n)}, \quad \sigma_{>}(r, n) = \sigma_{>} \frac{G_{<}(n)}{G_{>}(n) + G_{<}(n)}$$

である。 $\sigma_{<}(r, p)$ ,  $\sigma_{>}(r, p)$  は  $T_{<}, T_{>}$  状態から崩壊する陽子の断面積を示し、中性子に対しても同じ記号をとるとする。(4)式の  $G$  を計算し、(3)式の連立方程式を解いて  $\sigma_{>}$ ,  $\sigma_{<}$  を求める。但し中性子放出で、第12図の  $T = T_0 + \frac{1}{2}$  の閾値は、基底状態アナログの位置を用いた。例えば  $^{50}\text{V}$  の  $T_0 + \frac{1}{2}$  の閾値は、 $^{50}\text{Ti}$  基底アナログ位置を計算して求めた。

以上のようにして計算した結果を第13, 14図に示す。又、この  $\sigma_{<}, \sigma_{>}$  を用いて(4)式から  $\sigma_{<}(p)$



第13図  $^{51}\text{V}$  について分離された  $\sigma_{<}, \sigma_{>}$  成分と実験結果との比較。



第14図  $^{54}\text{Fe}$  についての分離された  $\sigma_{<}, \sigma_{>}$  成分。 $\sigma_T$  は  $\sigma(r, \text{Sn}) + \sigma(r, p)$

第3表 分離された  $\sigma_{<}$  と  $\sigma_{>}$  と理論値との比較

|                  | 実験データから分離したもの       |  |  |   | (1), (2)式からの計算値     |   |
|------------------|---------------------|--|--|---|---------------------|---|
|                  | $\Delta E$<br>(MeV) | $\int \frac{\sigma_{>}}{E} dE$<br>(mb) | $\int \frac{\sigma_{<}}{E} dE$<br>(mb) | $\int \frac{\sigma_{>}}{E} dE / \int \frac{\sigma_{<}}{E} dE$ | $\Delta E$<br>(MeV) | $\int \frac{\sigma_{>}}{E} dE / \int \frac{\sigma_{<}}{E} dE$ |
| $^{51}\text{V}$  | 3.5                 | 15~28 MeV<br>9.8                       | 15~28 MeV<br>26.4                      | 15~28 MeV<br>0.4  | 4.1                 | 0.4   |
| $^{54}\text{Fe}$ | 1.9                 | 15~26 MeV<br>20.0                      | 15~26 MeV<br>31.0                      | 15~26 MeV<br>0.7  | 2.2                 | 0.8   |

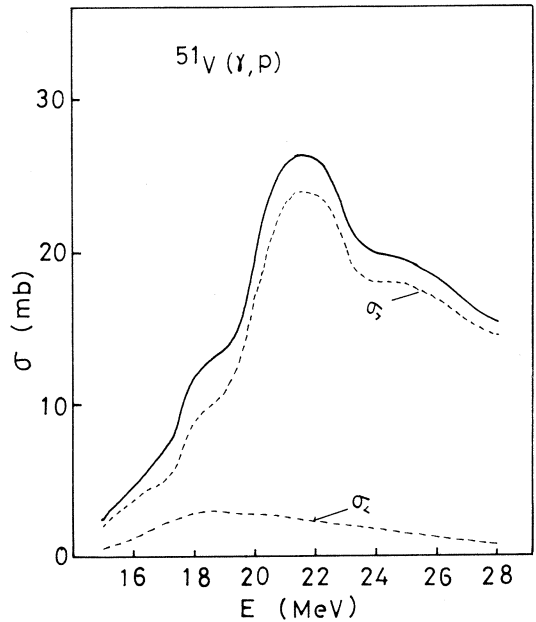
$\sigma_{>}(\rho)$ を求めたので  $^{51}\text{V}$  の例を第15図に示す。

第13~15図をみると分るように計算結果は、 $\sigma_{>}$ の大部分が $(\gamma, p)$ 反応で占められ、一方 $\sigma_{<}$ の大部分を $(\gamma, p)$ 反応で占めることを示している。このような一般的傾向は、重い核で論じられているものである。又分離された $\sigma_{<}$ 、 $\sigma_{>}$ の値及びその比は第3表に示されているが、その比は、(2)式で予想されるものとよく一致している。但し今の場合、 $T_{>}$ 、 $T_{<}$ 間のエネルギー差は不正確である。その理由は、 $\sigma_{>}$ が高い励起エネルギーの部分までかなり残っているためである。しかし定性的には(1)式で予想されるものに近い。

以上のことから、 $^{51}\text{V}$ 、 $^{54}\text{Fe}$ の巨大共鳴領域の $(\gamma, p)$ 、 $(\gamma, n)$ 反応断面積の

形状、強度は、定性的にはあるが、複合核模型でしかもアイソスピンが良い量子数であるとすれば、説明できる。しかし今回の解析では粗い近似を行っているので更に詳しい検討を要する。透過係数の計算、準位密度の取り方、更には、統計模型の他の現象(例えば陽子エネルギースペクトル)に於ける妥当性の検討等をする必要がある。これらについては目下検討中である。

この実験及びデータ解析にあたって、核理研、庄田教授、菅原助教授をはじめ、 $(\gamma, p)$ グループの方々、マシングループ、計測グループの方々にいろいろ御援助戴き感謝致します。



第15図  $^{51}\text{V}(\gamma, p)$ 反応断面積と分離された $\sigma_{<}(\gamma, p)$ と $\sigma_{>}(\gamma, p)$ との比較。実線は実験結果の $\sigma(\gamma, p)$ 。

## 参 考 文 献

- 1 ) S. C. Fultz *et al.* : Phys. Rev. **C 10** (1974) 608.  
E. M. Diener *et al.* : Phys. Rev. **C 3** (1971) 2303.  
H. Miyase *et al.* : to be published.
- 2 ) R. Ö. Akyüz *et al.* : Phys. Rev. Lett. **27** (1971) 1016.
- 3 ) S. Fallieros *et al.* : Nucl. Phys. **A147** (1970) 593.
- 4 ) K. Okamoto : Phys. Rev. **110** (1958) 143 ; M. Danos : Nucl. Phys. **5** (1957) 23 ; M. G. Huber *et al.* : Phys. Rev. **155** (1967) 1073.
- 5 ) W. C. Barber : Nucl. Phys. **111** (1958) 1642.
- 6 ) M. Sugawara *et al.* : 核理研研究報告 **6** (1973) 246.
- 7 ) B. C. Cook : Nucl. Instr. Meth. **24** (1963) 256.
- 8 ) S. C. Fultz *et al.* : Phys. Rev. **C 10** (1962) 2345.
- 9 ) J. H. Carver *et al.* : Austr. J. Phys. **10** (1957) 312.
- 10 ) A. M. Lane *et al.* : Rev. Mod. Phys. **30** (1958) 257.
- 11 ) E. Gadioli *et al.* : Phys. Rev. **167** (1968) 1016.



I - 9  $^{56}\text{Fe}(\gamma, \alpha_0)$  反応及び  $^{56}\text{Fe}(\gamma, p_0)$  反応

核理研, 教養部物理\*

玉江忠明・坪田博明\*・菅原真澄

$^{56}\text{Fe}(\gamma, \alpha_0)$  反応の断面積及び  $E_0 = 17\text{MeV}$  に於ける角度分布については前回報告<sup>1)</sup>したが、その後、系統的誤差なども含めて更に精密な解析を行なった。又、前回の報告では  $(\gamma, \alpha_0)$  反応断面積を複合核模型による計算値と比較する際に、光子吸収断面として適当なローレンツ形を仮定したが、今回は  $^{56}\text{Fe}(\gamma, n)$  断面積及び  $^{56}\text{Fe}(\gamma, p)$  断面積の実験値を使用して求めた光子吸収断面積を用いた。又、当研究施設及び他の研究室に於て行なわれた種々の核の  $(\gamma, \alpha_0)$  反応断面積を整理する事により、 $(\gamma, \alpha_0)$  反応断面積のピーク的位置に関する簡単な実験式が得られた。

$^{56}\text{Fe}(\gamma, p_0)$  反応断面積は励起エネルギーが  $14.6 \sim 25.0\text{MeV}$  の範囲で測定を行ない、複合核模型による計算値と比較したが、それらの形や大きさは全く異なり、 $(\gamma, p_0)$  反応に対しては pre-compound 過程からの寄与の大きい事を示している。

§ 1.  $(\gamma, \alpha_0)$  反応断面積

## 1.1 実験値の再解析

下に述べる2つの補正を行なって実験値を再解析した。

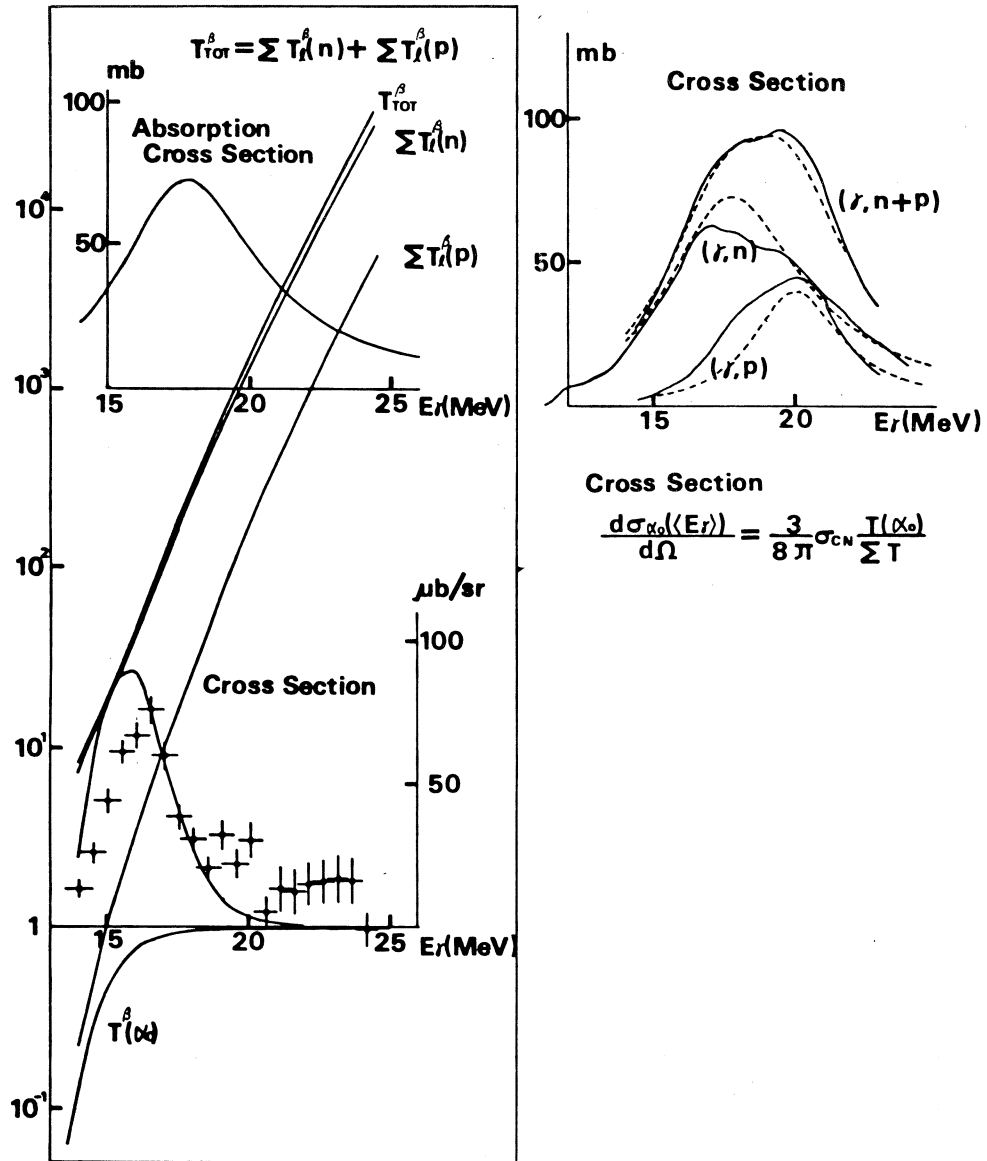
## (a) S S D 立体角の補正

前回の解析では全ての S S D のはる立体角が中心軌道上に存在する S S D のはる立体角に等しいと近似した。実験テーターとして使用しているのは、中心軌道上のチャンネルに近いチャンネル領域であるからこの近似もそう悪い近似ではないが、今回の解析では、各チャンネルに対して立体角補正を施したテーターを使用した。

## (b) B D M (広帯域磁気分析計) の磁場の狂いに対する補正

断面積の測定の際、電子エネルギーを変化させる毎に  $\alpha_0$  が S S D の同一チャンネル領域に入るように B D M の磁場を変化させた。磁場の測定は B D M 内の回転コイルを設置して第一測定室で磁束計を読んで行なったが、その際の測定の間違いや磁場設定後に於ける磁場の変動に対する補正の為に、natural の鉄と同時に測定していた  $^{54}\text{Fe}$  の陽子スペクトルの立ち上がりの位置を参考にし

た。つまり、 $^{54}\text{Fe}$ の陽子スペクトルの立ち上がりの位置から逆にその時のBDMの磁場を求めて $^{56}\text{Fe}(\gamma, \alpha_0)$ 反応断面積を求める為に使用するチャンネルの範囲に補正を加えたのである。それらの2つの補正を施して求めた $^{56}\text{Fe}(\gamma, \alpha_0)$ 反応断面積を第1図に示した。



第1図 (右)  $(\gamma, n)$  及び  $(\gamma, p)$  反応断面積 (実線) とそれから求めた  $T_{<}$  及び  $T_{>}$  巨大共鳴の断面積 (破線)  
 (左)  $T^{\beta}(\alpha_0)$ ,  $\Sigma_l^{\beta}(n)$ ,  $\Sigma_l^{\beta}(p)$ ,  $\Sigma_{TOT}^{\beta}$ ,  $T_{<}$  吸収断面積及び  $^{56}\text{Fe}(\gamma, \alpha_0)$  反応断面積

1.2 複合核模型による  $^{56}\text{Fe}(\gamma, \alpha_0)$  反応断面積の計算

前回の透過係数の計算ではアイソスピンの影響は考えなかった。しかし、アイソスピンの保存が成立する時にはアイソスピンも考えて透過係数を計算する必要がある、それはアイソスピンを考えない時の透過係数と次の関係にある。<sup>2)</sup>

$$T_c^\beta = \beta T_c \quad (1)$$

ただし  $T_c^\beta$  はアイソスピンを考えた時の透過係数、 $T_c$  はアイソスピンを考えない時の透過係数、 $\beta$  はアイソスピン係数で Clebsch-Gordan 係数を用いて次のように表わす事が出来る。

$$\beta(>, C) = |\langle T_c T_{c_z} t_c t_{c_z} | T+1, T \rangle|^2 \quad (2)$$

$$\beta(<, C) = |\langle T_c T_{c_z} t_c t_{c_z} | T, T \rangle|^2 \quad (3)$$

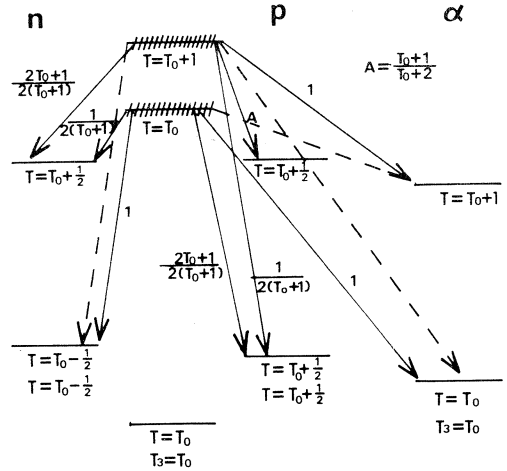
ここで  $|T_c, T_{c_z}\rangle$  は残留核のアイソスピン状態、 $|t_c, t_{c_z}\rangle$  は放出粒子のアイソスピン状態、 $T$  は標的核のアイソスピンである。これを様々なチャンネルについて計算すると第2図のようになる。点線は放出が禁止されているチャンネルである。この透過係数を用いると  $(\gamma, \alpha_0)$  断面積は

$$\sigma(\gamma, \alpha_0) = \sigma_{c, \text{omp}} \frac{T_1^\beta(\alpha_0)}{\sum T_c^\beta} \quad (4)$$

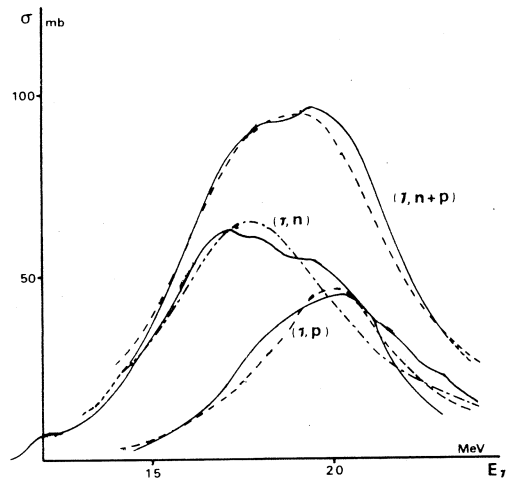
となる。ただし  $\sigma_{c, \text{omp}}$  は複合核形成断面積。第1図に関係するチャンネルに対する  $T_c^\beta$  を示した。

又、前回は、光子吸収断面積として3種類の適当なローレンツ型を仮定して  $(\gamma, \alpha_0)$  反応断面積の計算値を求めたが、今回は  $(\gamma, n)$  反応断面積と  $(\gamma, p)$  反応断面積とから  $T <$  巨大共鳴の断面積を求めてそれを使用した。

第3図に Costa 等によって測定された  $^{56}\text{Fe}$



第2図 アイソスピン係数  
上の n, p,  $\alpha$  は放出粒子。



第3図  $(\gamma, n)$  反応断面積<sup>3)</sup>及び $(\gamma, p)$ <sup>4)</sup>反応断面積  
破線及び一点鎖線は第1図の  $T <$  及び  $T >$  巨大共鳴の断面積から複合核模型を用いて計算したものの。

( $\gamma, n$ ) 反応断面積<sup>3)</sup>と Shoda 等によって測定された  $^{56}\text{Fe}(\gamma, p)$  反応断面積<sup>4)</sup>を実線で示した。

それらの断面積から  $T_<$  巨大共鳴の断面積を求めるのは次のような方法によった。まず ( $\gamma, n$ ) 反応断面積と ( $\gamma, p$ ) 反応断面積を加えると、これは光子吸収断面積にはほぼ等しい。それを  $T_<$  巨大共鳴と  $T_>$  巨大共鳴の2つの断面積に分離するのであるが、その際に分離した断面積から複合核模型を用いて計算した ( $\gamma, n$ ) 及び ( $\gamma, p$ ) の反応断面積がもとの実験値と一致するような2つのローレンツ型を決めた。

第1図右上の図の破線がそのようにして求めた  $T_<$  及び  $T_>$  の光子吸収断面積であり、それから複合核模型を使って計算した ( $\gamma, n$ ) 及び ( $\gamma, p$ ) 反応断面積が第3図の一点鎖線及び破線である。このようにして分離した  $T_<$  状態と  $T_>$  状態の断面積の比は Fallieros 等の予想値

$$\frac{\int \sigma_{>} dE}{\int \sigma_{<} dE} = \frac{1}{T} \frac{1 - \frac{3}{2} T A^{-\frac{3}{2}} E_{>}}{1 + \frac{3}{2} A^{-\frac{3}{2}} E_{<}} \quad (5)$$

にはほぼ等しい。ただし  $^{56}\text{Fe}$  の場合  $T_<$  に対する ( $\gamma, p$ ) 反応の寄与は小さいので、この割合を少々変化させても、合わせる事は出来る。又、 $T_<$  と  $T_>$  状態のエネルギー差は

$$\Delta E = E_{>} - E_{<} = \frac{60(T+1)}{A} \quad (6)$$

で予想される 3.2 MeV より 1 MeV 程度小さい。これを 3.5 MeV まで払げて実験値に合わせる事は不可能である。

( $\gamma, n + p$ ) 断面積は古典双極子総和則

$$\int \sigma dE = 60 \frac{NZ}{A} \quad (7)$$

の約 110% となっている。

こうして求めた  $T_<$  巨大共鳴の光子吸収断面積を複合核形成断面積  $\sigma_{\text{comp}}$  に等しいと近似して

$$\frac{d\sigma_{\alpha_0}(\langle E_{\gamma} \rangle)}{d\Omega} = \frac{3}{8\pi} \sigma_{\text{comp}} \frac{T^{\beta}(\alpha_0)}{\sum T^{\beta}} \quad (8)$$

から  $90^\circ$  方向に於ける ( $\gamma, \alpha_0$ ) 反応断面積を計算した。それを第1図中に実験値と比較して示した。19 MeV 以下の領域では計算値のピークが実験値のそれより 0.5 MeV 低いエネルギーの所にある以外はほぼ一致しているが、20 MeV 以上の領域では、やはり一致しない。

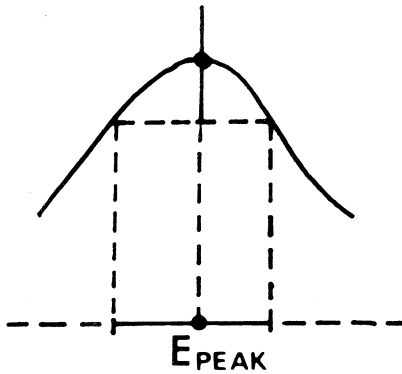
### 1.3 ( $\gamma, \alpha_0$ ) 反応断面積のピークの位置に関する系統的实验式

様々な核の ( $\gamma, \alpha_0$ ) や ( $\alpha, \gamma_0$ ) 反応の文献<sup>5-10)</sup>を集めて整理した結果 ( $\gamma, \alpha_0$ ) 反応断

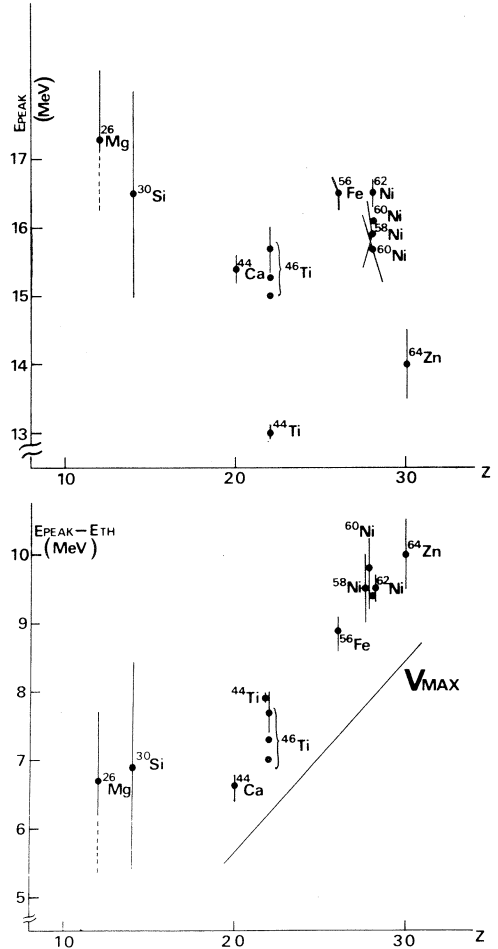
面積のピークの位置に対する簡単な実験式が得られたので、それについて述べる。

第4図(上)は横軸にZ数を取って様々な核の( $\gamma, \alpha$ )反応断面積のピークの位置をプロットしたものである。ただし縦棒は第5図のようにピークに於ける誤差棒の下端を横に伸ばし、断面積の曲線と交わる範囲とした。又、断面積に構造の見られるものについては、滑らかにしてから上の操作を行なった。 $^{26}\text{Mg}$ と $^{30}\text{Si}$ の( $\gamma, \alpha$ )反応断面積は幅が非常に広いので断面積最大の所の $3/4$ になる範囲を縦棒の範囲としている。同一核について数点の実験値の存在するものは別々の実験者によって行なわれた実験結果である。

第4図(上)のようにピークの位置をただ並べただけでは一見何の規則性も無いように見え



第5図  $E_{\text{PEAK}}$  の縦棒の決め方



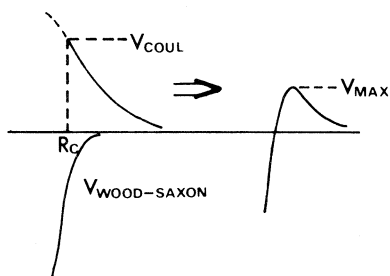
第4図

(上) Z数の関数として並べた( $\gamma, \alpha$ )反応断面積のピークのエネルギー $E_{\text{PEAK}}$ 規則性は見られない。

(下) Z数の関数として並べた $E_{\text{PEAK}} - E_{\text{th}}$   $V_{\text{MAX}}$ との相関が見られる。

るところがピークのエネルギーから( $\gamma, \alpha$ )反応の閾値を引いたものをやはり横軸をZ数としてプロットすると、第4図(下)のようにきれいな規則性を持っていることがわかる。

同じ図にReal Potentialの最大値 $V_{\text{MAX}}$ を書き入れてある。



第6図 クーロンエネルギー  $V_{\text{COUL}}$  と Woods-Saxon 型の Real Potential  $V_{\text{WOODS-SAXON}}$  及びそれらの和  $V_{\text{MAX}}$  は加え合わせたポテンシャルの最大値。

$V_{\text{MAX}}$  と云うのは、第6図で分かるように Woods-Saxon 型の Real Potential

$$V_{\text{CR}}(r) = V_0 \frac{1}{1 + \exp\{(r - R)/a_0\}} \quad (9)$$

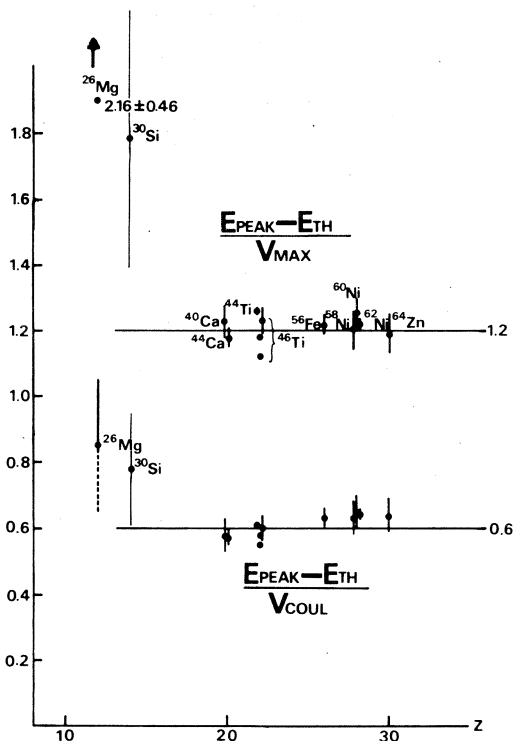
とクーロン・ポテンシャル

$$V_{\text{COUL}}(r) = \frac{2e^2 Z}{r} \quad (10)$$

の和の最大値である。第7図(上)は  $(r, \alpha_0)$  反応断面積のピークのエネルギーから  $(r, \alpha_0)$  反応の閾値を引いたものを  $V_{\text{MAX}}$  で割り、それを  $Z$  数の関数としてプロットしたものであるが、1.2 付近にきれいに並んでいる事が分かる。つまり

$$E_{\text{peak}} - E_{\text{th}} = 1.2 V_{\text{MAX}} \quad (11)$$

となる。この式は  $\alpha$  粒子の運動エネルギーがポテンシャルの壁の高さより少し高い所で  $(r, \alpha_0)$  断面積が最大になる事を示しており、複合核模型による予想と一致する。又、核表面  $R_c = 1.3 A^{1/3}$  (fm) に対する  $(E_{\text{peak}} - E_{\text{th}}) / V_{\text{COUL}}$  の値をやはり  $Z$  数の関数としてプロットすると(第7図(下))、0.6 付近に並ぶ事が分かる。しかし、 $^{26}\text{Mg}$  や  $^{30}\text{Si}$  はこれらの関係から外れるように見える。 $^{26}\text{Mg}$  や  $^{30}\text{Si}$  の断面積は幅の広いもので、ピークの位置もはっきりしないが、このくらい軽い核になると複合核模型で説明出来るかどうか、はっきりしなくなり、面白い領域である。



第7図

- (上)  $(E_{\text{PEAK}} - E_{\text{th}}) / V_{\text{MAX}}$   
Caより重い核では約1.2の所に並び、 $^{26}\text{Mg}$ 、 $^{30}\text{Si}$ はその値から離れている。
- (下)  $(E_{\text{PEAK}} - E_{\text{th}}) / V_{\text{COUL}}$   
Caより重い核では約0.6の所に並び  
 $^{26}\text{Mg}$ 、 $^{30}\text{Si}$ は少し離れている。

## § 2. ( $r, p_0$ ) 反応断面積

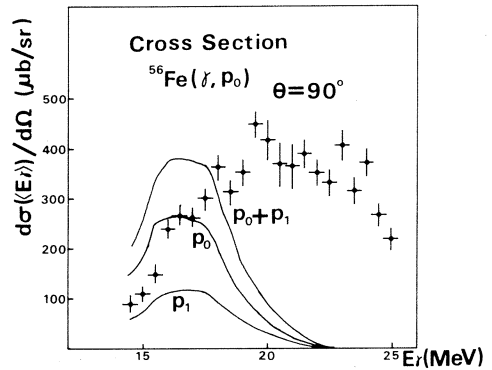
2.69 mg/cm<sup>2</sup> の天然鉄の標的にエネルギーを 15MeV から 25.5MeV まで 0.5MeV 間隔で変化させた電子を照射し、<sup>56</sup>Fe( $r, p_0$ ) 反応断面積を測定した。その際、バック・グラウンドとなる  $\alpha$  粒子をおとす為に SSD 前面に厚さ 7.74 mg/cm<sup>2</sup> のアルミニウムを挿入したが、 $\alpha$  粒子と共に陽子の一部も失われ計数が落ちる。そこで約 70 mg/cm<sup>2</sup> の厚い Zr のターゲットを用いて、その補正を行なった。

得られた結果は第 8 図に複合核模型によって計算した値と共に示した。ただし、残留核の

<sup>55</sup>Mn の基底状態と第一励起状態が接近している為に  $p_0$  の測定に際して  $p_1$  も混入して来る。従って計算の際に  $p_1$  の混入する量も計算して加えてある。

測定値と計算値は全く一致せず、( $r, p_0$ ) 反応に対しては pre-compound 過程の寄与の大きい事を示しており、( $r, p_0$ ) 反応断面積の形状が ( $r, p$ ) 反応断面積の形状と良く一致している事が分かる。

実験に協力していただいた ( $r, p$ ) グループ、マシン・グループ、計測グループの方々に感謝致します。



第 8 図 <sup>56</sup>Fe( $r, p_0$ ) 反応断面積及び複合核模型による計算値。両者は一致せず、( $r, p_0$ ) 反応には pre-compound 過程の寄与の大きい事を示している。

## 参 考 文 献

- 1) 玉江忠明他：核理研研究報告 7 (1974) 293.
- 2) S. M. Grimes, J. D. Anderson, A. K. Kerman and C. Wong : Phys. Rev. C 5 (1972) 85.
- 3) S. Costa, F. Ferrero, C. Manfredotti, L. Pasqualini and G. Piragino : Nuovo Cimento Vol. LIB, N. 1 (1967) 5891.
- 4) K. Shoda, K. Abe, T. Ishizuka, N. Kawamura, M. Oyamada and B. N. Sung : J. Phys. Soc. Japan 25 (1968) 664.
- 5) G. S. Foote, D. Branford, R. A. I. Bell and R. B. Watson : Nucl. Phys. A220 (1974) 505.
- 6) R. E. Peschel, J. M. Long, H. D. Shay and D. A. Bromley : Nucl. Phys. A232 (1974) 269.
- 7) R. B. Watson, D. Branford, J. L. Black and W. J. Caelli : Nucl. Phys. A203 (1973) 209.
- 8) 寺沢辰生他：核理研研究報告 7 (1974) 67.
- 9) 及川四郎他：核理研研究報告 7 (1974) 73.
- 10) 菅原真澄他：核理研研究報告 6 (1973) 246.



I - 10  $^{140}\text{Ce}(e, e'p)$  反応 (II)

核理研 斎藤悌二郎・庄田勝房

## § 1. 序

$N = 82$  核の isobaric analog resonance を調べる目的で,  $^{140}\text{Ce}(\gamma, p)^{139}\text{La}$  の全断面積を測定した実験については既に報告したが<sup>1)</sup>, その結果は第1図に示す様に, 20.7 MeV にピークがあり, その他に 16.5, 18.1 及び 24.4 MeV に共鳴が見られる。18.1 及び 20.7 MeV の共鳴に関しては, これ迄測定した  $^{140}\text{Ce}$

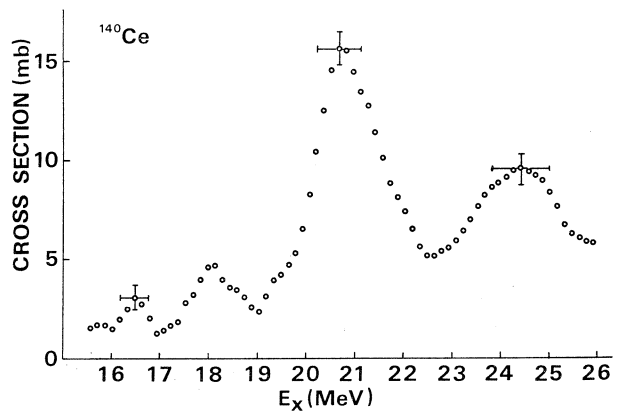
$(e, e'p)^{139}\text{La}$  の陽子スペクトルや  $^{140}\text{Ce}(\gamma, p)^{139}\text{Pr}$  の微分断面積に, 対応した励起エネルギーのところ幅の狭いピークが見られることから, isobaric analog resonance であろうと推定される。

一方 24.4 MeV の共鳴に対しては, スペクトルや  $(\gamma, p_0)$  の断面積に analog resonance 特有の鋭いピークは見当らず, 又最近見出された  $E_2$  巨大共鳴 ( $T = 1$ ) はこの附近

の核では 25 MeV に予想されることから, 今回は 24.4 MeV の共鳴が  $E_1$  か  $E_2$  であるか調べることを目的として次の様な実験を行なった。

通常は角分布を測定して, その Legendre に展開した係数から  $E_2$  の寄与を求めるが, 今回は Snover 等<sup>2)</sup> が  $^{208}\text{Pb}(p, \gamma)^{209}\text{Bi}$  反応で励起エネルギー 23.7 MeV に幅  $\sim 3.7$  MeV の  $E_2$  (又は  $M_1$ ) 共鳴を見出したと同じ方法を用いた。

角分布で  $E_1$  の角度依存の項が零になる角度 ( $P_2(\cos\theta) = 0$ ) 即ち  $54.7^\circ$  及び  $125.3^\circ$  で, 19 MeV から 26 MeV までの  $(\gamma, p_0 + p_1)$  の断面積を測定し, 二つの断面積の差が  $E_1$  と  $E_2$  の干渉項に比例することから, 24.4 MeV 附近で差の断面積に  $E_2$  共鳴に依るピークが現われるかどうかをみた。



第1図  $^{140}\text{Ce}(\gamma, p)^{139}\text{La}$  の全断面積。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。

## § 2. 実験及び結果

ターゲットは  $7.3 \text{ mg/cm}^2$  に圧延したセリウム箔 ( $^{140}\text{Ce}$  88.48%) を用い、入射電子エネルギーを  $20 \text{ MeV}$  から  $26.7 \text{ MeV}$  までは  $\leq 0.2 \text{ MeV}$  間隔で変え、各エネルギーに対して  $54.7^\circ$  及び  $125.3^\circ$  で  $^{140}\text{Ce}(e, e'p)^{139}\text{La}$  の陽子スペクトルを広帯域磁気分析計で測定した。又  $90^\circ$   $54.7^\circ$  及び  $125.3^\circ$  に対するターゲットの状態での測定を行ない、ターゲットの角度の違いによる補正を行なった。上記の陽子のスペクトルから  $^{140}\text{Ce}(\gamma, p_0+p_1)^{139}\text{La}$  の断面積を得るために、陽子スペクトルの先端から  $1.25 \text{ MeV}$  までの陽子を  $p_0+p_1$  の陽子と見做し ( $^{139}\text{La}$  の第1励起状態が  $0.166 \text{ MeV}$  なので  $p_0$  と  $p_1$  が分離できないため)、それを virtual photon で割り、それ等をつないで断面積を求めた。

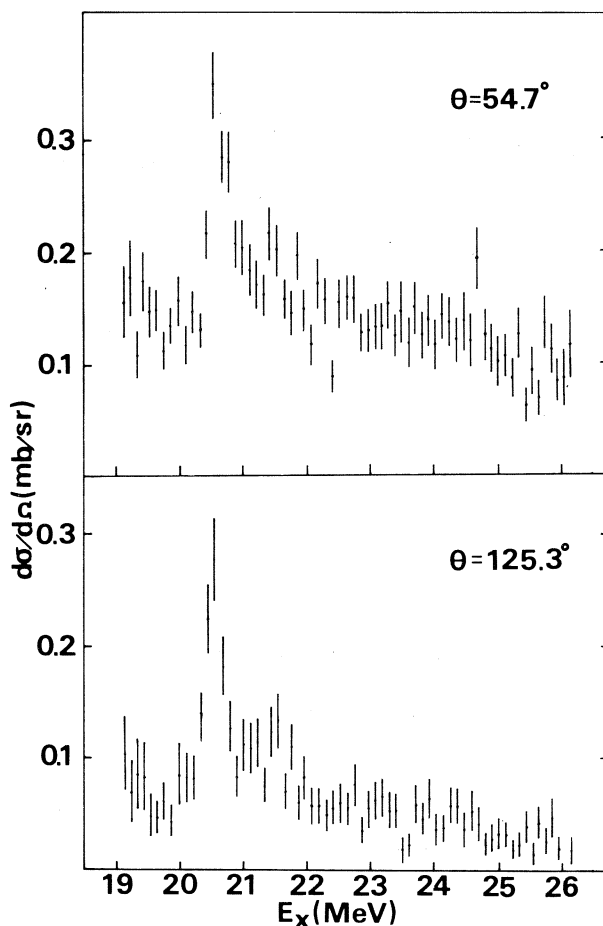
第2図に  $\theta = 54.7^\circ$  及び  $125.3^\circ$  に於ける  $^{140}\text{Ce}(\gamma, p_0+p_1)^{139}\text{La}$  の断面積を示す。図で  $20.5 \text{ MeV}$  のピークは第1図の全断面の  $20.7 \text{ MeV}$  の共鳴に対応しているが、その他には際立ったピークは見られない。

一般に  $E1$  と  $E2$  の共鳴が共存する場合にはその角分布は

$$Y(\theta) = \sum_{i=0}^4 A_i P_i(\cos\theta) \quad (1)$$

と書ける。

光核反応では、 $E1$  の寄与が大部分であり  $E2$  は  $E1$  に比べて非常に小さいことが予想されることから、その寄与は  $E1$  との干渉を通して現われると期待される。 $E2$  だけの寄与は小さいとの予想のもとで  $A_4$  の



第2図  $54.7^\circ$  及び  $125.3^\circ$  で測定した  $^{140}\text{Ce}(\gamma, p_0+p_1)^{139}\text{La}$  の微分断面積

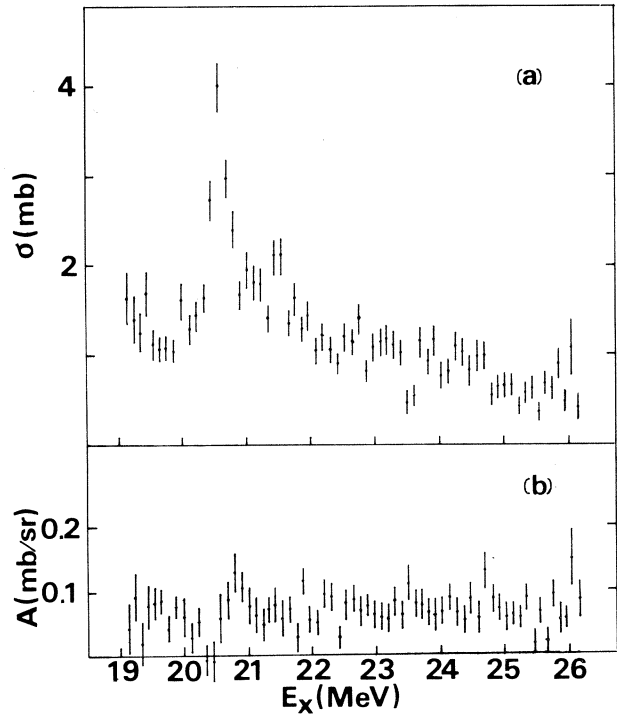
項を無視すると、全断面積及び干渉に依る asymmetry factor は次の様に書ける。

$$\sigma = 4 \pi A_0 = 2 \pi [Y(54.7^\circ) + Y(125.3^\circ)] \quad (2)$$

$$A \equiv A_1 - 0.68 A_3 = [Y(54.7^\circ) - Y(125.3^\circ)] / 2P_1(\cos 54.7^\circ) \quad (3)$$

第2図に示した( $r$ ,  $p_0 + p_1$ )の断面積を使って、 $\sigma$ 及び $A$ の値を求めた結果を第3図に示す。

asymmetry factor  $A$ は19MeVから26MeVまではほぼ平らであることから、今問題にしている24.4MeVの共鳴は、 $E_2$ ではなく $E_1$ が主な共鳴であると云える。



第3図 (a)  $^{140}\text{Ce}(r, p_0 + p_1)^{139}\text{La}$ の全断面積  
(b)  $^{140}\text{Ce}(r, p_0 + p_1)^{139}\text{La}$ 反応に於ける asymmetry factor

### 参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 7 (1974) 80.
- 2) K. A. Snover *et al.* : Phys. Lett. 32 (1974) 317.

# I - 11 $^{139}\text{La}$ $f_{7/2}$ IARの崩壊機構(I)

核理研 上柿順一・庄田勝房

## § 1. 序 文

$^{139}\text{La}$  は  $Z = 57$ ,  $N = 82$  核で中性子は  $^{141}\text{Pr}$  と同じコアを持ち、陽子はそれよりも 2 個少ない。 $^{139}\text{La}$  についても陽子散乱実験で IAS に関する情報は得られている。第 1 図は陽子散乱<sup>1)</sup>により観測された  $E1$  IAS の準位図である。

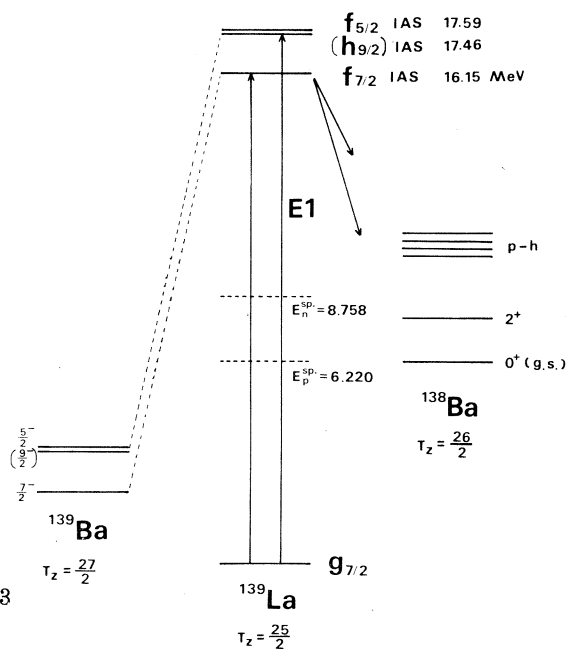
$E_x = 16.15\text{MeV}$  に  $f_{7/2}$  基底 IAS,  $E_x = 17.46\text{MeV}$  及び  $E_x = 17.59\text{MeV}$  にそれぞれ  $h_{9/2}$ ,  $f_{5/2}$  IAS がある。 $f_{7/2}$  IAS は  $^{141}\text{Pr}$  の  $f_{7/2}$  基底 IAS と同じ殻への陽子の  $E1$  励起により生じる。 $^{139}\text{La}$  の基底状態は  $g_{7/2}$  で、この励起はスピンフリップ遷移である。1 粒子モデルによる遷移確率の計算により  $^{139}\text{La} (g_{7/2} \rightarrow f_{7/2})$  と  $^{141}\text{Pr} (d_{5/2} \rightarrow f_{7/2})$  の遷移強度を比較すると

$$\frac{(2T_0 + 1)^{-1} \Gamma_{sp} (^{139}\text{La} : g_{7/2} \rightarrow f_{7/2})}{(2T'_0 + 1)^{-1} \Gamma_{sp} (^{141}\text{Pr} : d_{5/2} \rightarrow f_{7/2})} = 0.013$$

$T_0, T'_0$  はそれぞれ  $^{139}\text{La}, ^{141}\text{Pr}$

の基底状態のアイソスピン

であり、我々の実験精度では  $^{139}\text{La}$   $f_{7/2}$  IAR は観測できないと予想されていた。しかし、1969 年前期に核理研で行なわれた  $^{139}\text{La} (e, e' p)$  の実験<sup>2-3)</sup> では  $f_{7/2}$  IAR に対応する断面積の増加が認められており、又、 $^{209}\text{Bi}$  のスピンフリップ IAR ( $g_{7/2}$ ) も理論的予想に反して強く起こることが確認された<sup>4-6)</sup> 等もあり、今回  $^{139}\text{La}$   $f_{7/2}$  IAR の強度及び崩壊機構の測定を行なった。



第 1 図  $^{139}\text{La}$  の  $E1$  IAS 準位図

## § 2 実験方法及びその結果

リニアックの電子線エネルギーを 100 keV ステップで変化させ、 $^{139}\text{La}(e, e'p)$  反応により放出される陽子数を測定し、入射電子エネルギーに対する  $^{139}\text{La}(e, e'p)$  反応断面積を求めた。測定した陽子はそのエネルギーが  $E_p >$

5.0 MeV のものである。又エネルギー  $E_e = 15.3$  MeV, 15.9 MeV, 16.2 MeV, 16.5 MeV, 17.1 MeV の電子線による  $^{139}\text{La}(e, e'p)$  反応の放出陽子エネルギースペクトルを測定した。実験装置は  $^{141}\text{Pr}$  の実験<sup>7)</sup> の時と同じものを使用した。使用したターゲットはローラーで延ばしたセルフサポートの金属箔(化学純度 99.5%, 天然 La :  $^{139}\text{La}$  100%) で、厚さは目的に応じて  $16.6 \text{ mg/cm}^2$  から  $8.4 \text{ mg/cm}^2$  までの数種類である。

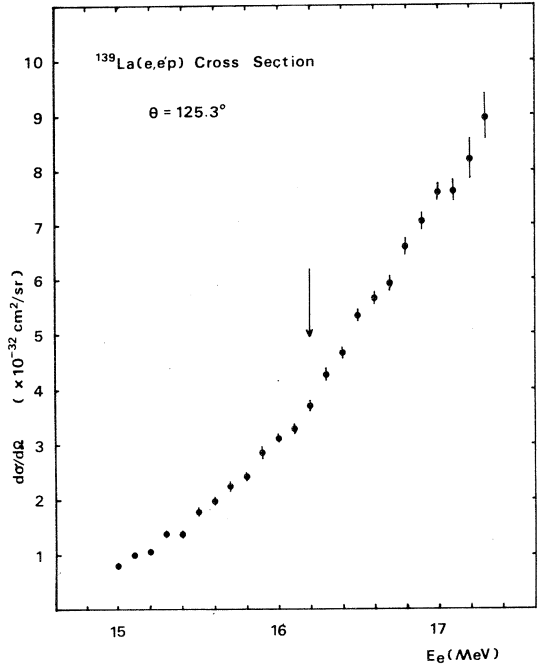
第 2 図に、今回新たに得られた  $^{139}\text{La}(e, e'p)$  反応断面積を示す。  $E_e = 16.2$  MeV の位置に  $f_{7/2}$  IAR に対応する断面積の増加が見られる。このレゾナンスの強度

の定量的解析はまだ終了していないが、我々の実験精度でレゾナンスとして観測されることから、1 粒子モデルによる IAS への遷移強度の計算値よりはるかに強いレゾナンスであることが予想される。

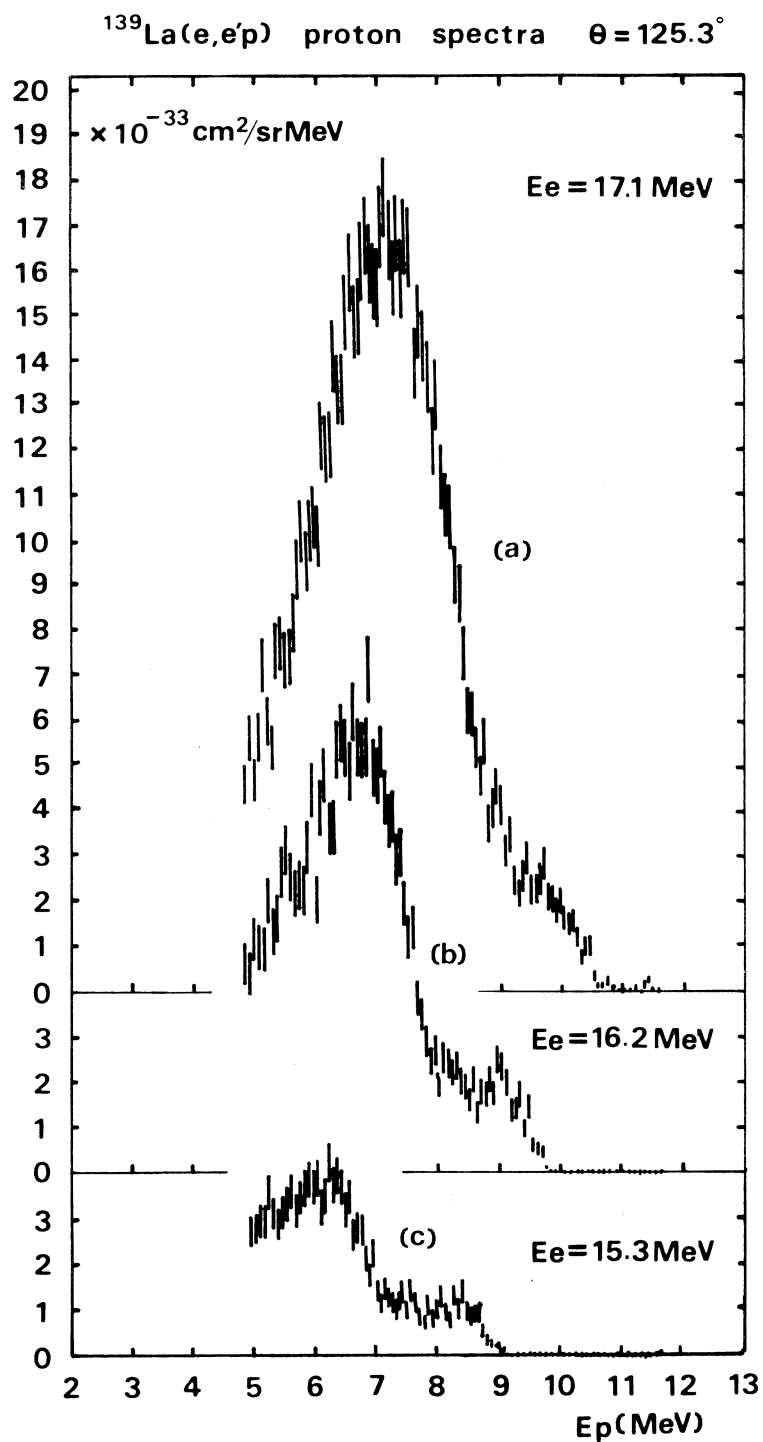
第 3 図は各々エネルギーが (a)  $E_e = 17.1$  MeV, (b)  $E_e = 16.2$  MeV, (c)  $E_e = 15.3$  MeV の入射電子による  $^{139}\text{La}(e, e'p)$  反応の放出陽子スペクトルである。(a) は  $f_{7/2}$  IAR からの放出陽子を含み、(b), (c) はそれを含まない。 $^{141}\text{Pr}$  の場合 (I-12 参照) と比較して  $p_0$  は少なく、又巾の狭いグループは認められない。

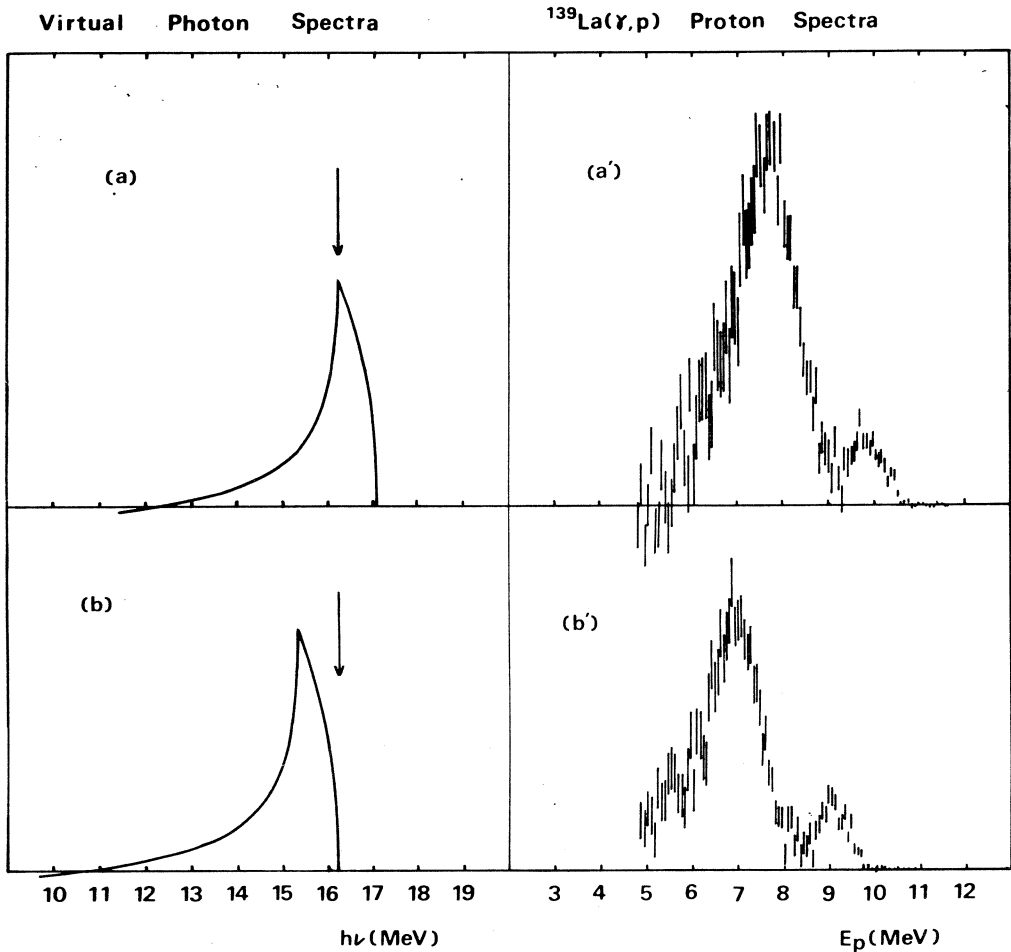
$^{141}\text{Pr}$  の場合 (I-12 参照) と同様、第 3 図のスペクトルを適当な割合で差し引くことにより、近似的に  $^{139}\text{La}(r, p)$  反応による放出陽子スペクトルを計算できる。結果を第 4 図に示す。

(a') 図, (b') 図はそれぞれ (a) 図, (b) 図に示すスペクトルを持つ仮想光子による  $^{139}\text{La}(r, p)$  反応の放出陽子スペクトルである。 $f_{7/2}$  IAR の励起エネルギーは  $E_x = 16.2$  MeV であり、(a') は  $f_{7/2}$  IAR 及び連続状態からの放出陽子を含み、(b') は連続状態からの放出陽子のみである。仮



第 2 図  $^{139}\text{La}(e, e'p)$  反応断面積



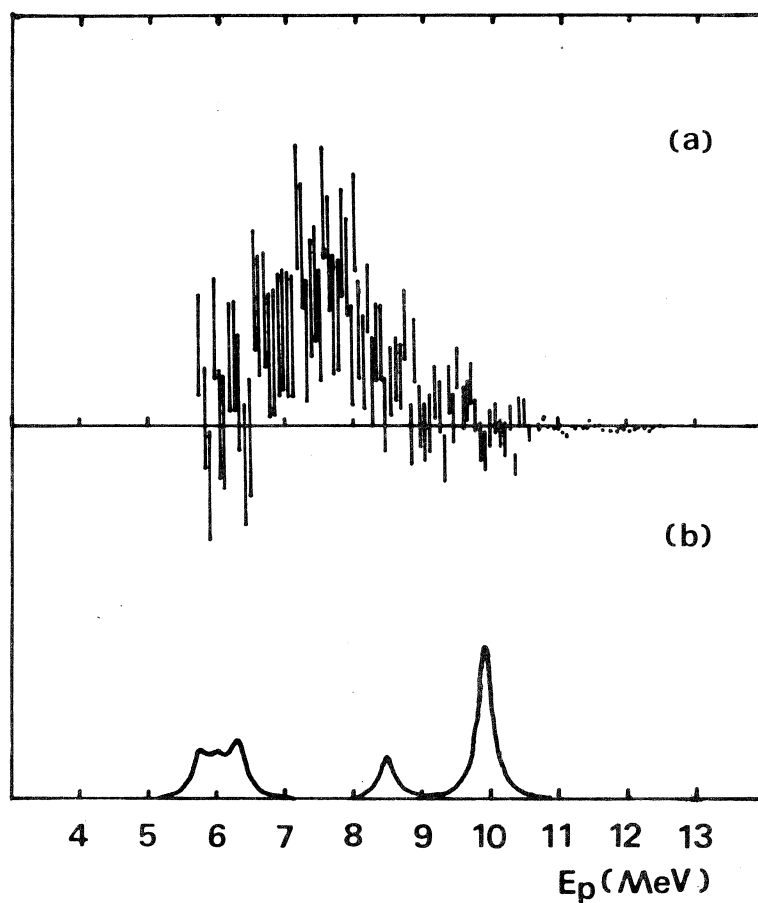


第4図 仮想光子による  $^{139}\text{La}(\gamma, p)$  反応陽子スペクトル

仮想光子のエネルギー幅を考慮すれば、連続状態は基底状態及び  $1.7 \text{ MeV} < E_x < 3.0 \text{ MeV}$  の励起状態へ崩壊している。

(a)と(b)の仮想光子スペクトルは近似的に同一の形を持ち、光子エネルギーが900 keVずれたものであるから、励起エネルギー  $E_x = 16 \text{ MeV}$  近傍の連続状態が900 keV間で同一構造を持つと近似することにより、(b)のスペクトルを高エネルギー側に900 keVずらして直接比較できる。その結果、両者はエネルギー分布の形は類似であるが、絶対値は異なる。その差を計算することにより  $f_{7/2}$  IARを經由して放出される陽子のスペクトルを得る。結果を第5図(a)に示す。主に  $6.2 \text{ MeV} < E_p < 9.0 \text{ MeV}$  の領域に分布することがわかる。

第5図(b)は陽子散乱実験<sup>8)</sup>で知られている放出陽子スペクトルを我々の実験と比較できる程度

Decay Proton Spectra through  $f_{7/2}$  IAR in  $^{139}\text{La}$ 第5図  $^{139}\text{La}$   $f_{7/2}$  IAR崩壊陽子スペクトル

に分解能を悪くして書いたもので、横軸は陽子エネルギーで表わした。(a)、(b)の縦軸は規格化してなく、両者は直接には比較できないが、明らかな不一致が見られる。即ち、陽子散乱による結果では  $E_p = 9.9 \text{ MeV}$  ( $p_0$ ) 及び  $5.7 \text{ MeV} < E_p < 6.4 \text{ MeV}$  ( $p'$ ) に陽子が分布する。これは  $^{139}\text{La}$  ( $e, e' p$ ) 反応における  $f_{7/2}$  IARの崩壊陽子がアナグロ状態の崩壊様式を持つもの以外の陽子グループで占められることを示す。これらの陽子がいかなる反応機構により放出されるかは現在検討中である。

又、これらの陽子グループが  $f_{7/2}$  IAS 近傍の狭いエネルギー領域から放出されるか否かを知る手段には、( $e, e' p$ ) 反応断面積の解析以外に、限られたエネルギー値を持つ放出陽子数を入射



電子エネルギーの関数で表わす方法（アイソクロマート）があり、現在解析中である。結果は次回に報告する。

### 参 考 文 献

- 1) H. Seitj *et al.* : Nucl. Phys. **A140** (1970) 673.
- 2) 核理研研究報告 **3** No.1, (1970) 37.
- 3) K. Shoda *et al.* : Phys. Rev. **C3** (1971) 2006.
- 4) 核理研研究報告 **5** No.1, (1972) 47.
- 5) 核理研研究報告 **5** No.2, (1972) 37.
- 6) 核理研研究報告 **7** (1974) 302.
- 7) 核理研研究報告 **7** (1974) 305.
- 8) G. C. Morrison *et al.* : Phys. Rev. Lett. **19** (1967) 592.

I - 12  $^{141}\text{Pr}$   $f_{7/2}$  IARの崩壊機構(II)

核理研 上柿順一・庄田勝房

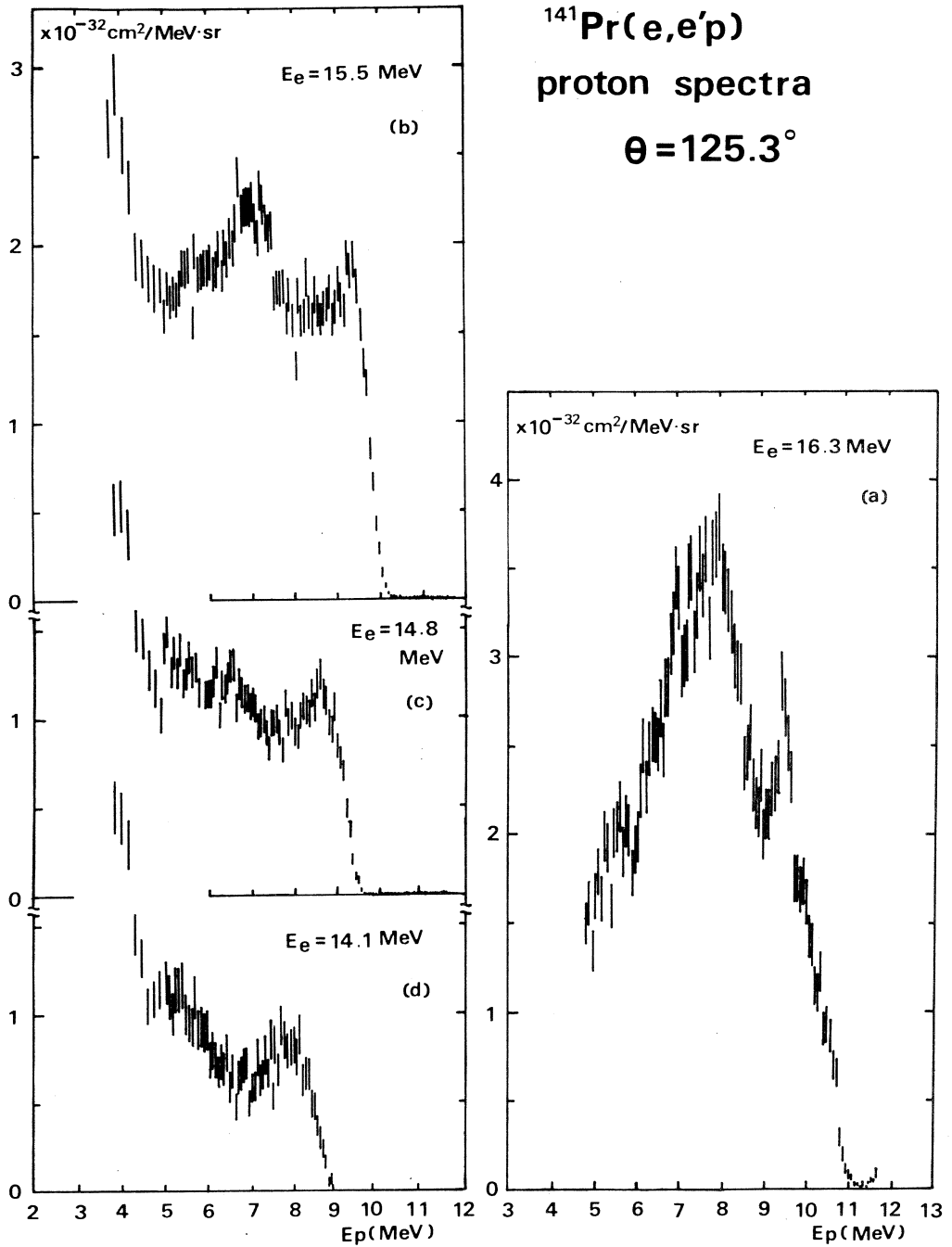
前回の核理研報告において、 $^{141}\text{Pr}(e, e'p)$  反応による  $f_{7/2}$  IAR (ノン・スピンフリップ) の実験結果を報告したが、その後さらに測定を重ね、解析を行なった。

第1図は  $^{141}\text{Pr}(e, e'p)$  反応によって放出される陽子のエネルギースペクトルで、それぞれ入射エネルギーが(a)  $E_e = 16.3$  MeV, (b)  $E_e = 15.5$  MeV, (c)  $E_e = 14.8$  MeV, (d)  $E_e = 14.1$  MeV の場合である。前回の報告<sup>1)</sup>にあるテーターにさらに測定を重ねて統計誤差を小さくした。又前回の報告<sup>1)</sup>にあるスペクトルは縦軸の絶対値が間違っているので訂正する。(a)図において  $E_e = 9.5$  MeVに見られるピークは  $f_{7/2}$  IAS から  $^{140}\text{Ce}$  基底状態への崩壊陽子 ( $p_0$ ) グループであり、このエネルギーから計算して  $f_{7/2}$  IAS の励起エネルギーは  $E_x = 14.8$  MeV であることが知られる。 $E_p = 9.5$  MeV のピークは(b)図にも含まれるが、連続状態からの  $p_0$  と重なってピークが判別し難い。各々のスペクトルで  $E_p < 4.2$  MeV 領域での大きい陽子グループは、中性子放出との競争過程によるものである。

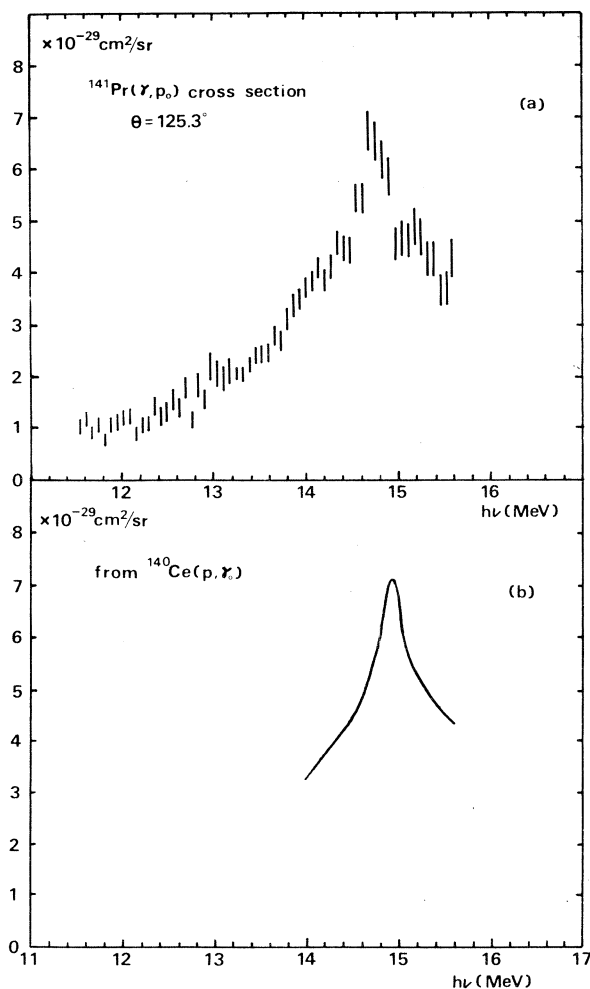
第2図(a)は第1図のスペクトルから計算した  $^{141}\text{Pr}(\gamma, p_0)$  反応断面積である。今回の計算で用いた仮想光子スペクトルは、Barber<sup>2)</sup>によるPWBAの計算式に Nascimento<sup>3)</sup>による補正項を加えて、DWBAによる計算値に近似したものをを用いた。その為、結果の絶対値は前回の報告<sup>1)</sup>による  $(\gamma, p_0)$  断面積よりも約30%小さくなっている。又前回の報告<sup>1)</sup>で述べた  $(\gamma, p_0)$  断面積の不一致(異なる入射電子エネルギーによる  $^{141}\text{Pr}(e, e'p)$  反応陽子スペクトルから計算した  $^{141}\text{Pr}(\gamma, p_0)$  断面積が各々の最大エネルギー部分約700 keVの領域で一致しない。)は Nascimento による補正項を用いても同様に生じ、仮想光子スペクトルの最大エネルギー部分は正確でないことを示唆している。第2図(a)は、得られた  $(\gamma, p_0)$  断面積が一致する領域のみを用いて計算したものである。

第2図(b)は、Ejiri *et al.*<sup>4)</sup>の測定による  $^{140}\text{Ce}(p, \gamma_0)$  反応断面積から、個別釣り合いの原理を用いて計算した  $^{141}\text{Pr}(\gamma, p_0)$  断面積である。 $^{140}\text{Ce}(p, \gamma_0)$  反応のテーターは、我々の実験と比較して分解能が格段によく、レゾナンスのピークは幅が68 keVであるが、(b)図は我々の実験結果と比較する為に分解能を悪くして幅を250 keVに広げたものである。この場合、 $^{140}\text{Ce}(p, \gamma_0)$  反応の測定は、レゾナンスを含む幅250 keVの領域でのみ行なわれている為、連

$^{141}\text{Pr}(e, e'p)$   
 proton spectra  
 $\theta = 125.3^\circ$



第1図  $^{141}\text{Pr}(e, e'p)$  反応陽子スペクトル

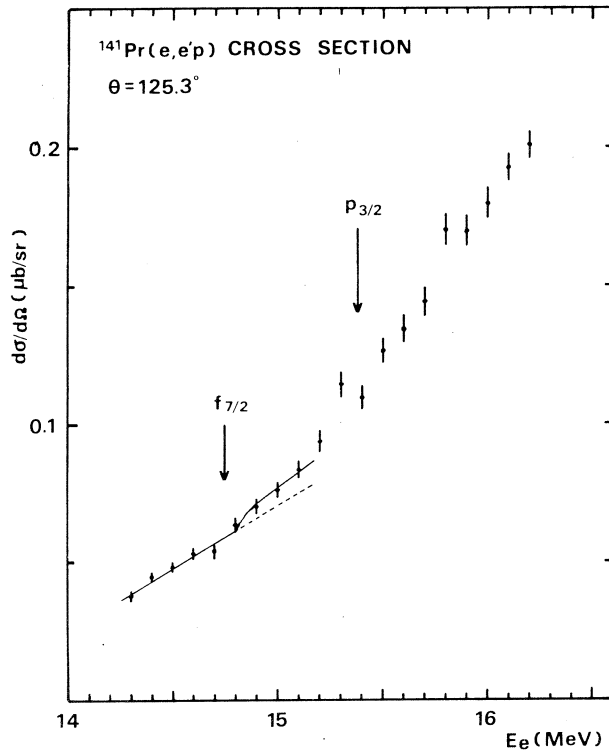


第2図  $^{141}\text{Pr}(\gamma, p_0)$  反応断面積。(a)  $^{141}\text{Pr}(e, e' p_0)$  による結果。  
(b) Ejiri *et al.* の  $^{140}\text{Ce}(p, \gamma)$  による結果(文献4)。

続状態(オフ・レゾナンス部分)の断面積の形を知ることができない。その為、(b)図を求める際には、レゾナンスエネルギーにおける連続状態断面積の絶対値は  $^{140}\text{Ce}(p, \gamma)$  による値を用い、その形は  $^{141}\text{Pr}(\gamma, p_0)$  で得られたものを用いた。

第2図の(a)と(b)の結果は、レゾナンスエネルギー、レゾナンス強度共、良い一致が見られる。

第3図は  $^{141}\text{Pr}(e, e' p)$  反応断面積を示す。測定した陽子はエネルギーが  $E_p \geq 5.0$  MeV のものである。(e, e' p) 反応断面積は入射電子エネルギーの増加関数であるが、強いレゾナンスがあるエネルギーで断面積の急な増加が起こり、変曲点を生じる。第3図の断面積では  $^{141}\text{Pr}(\gamma, p_0)$  によって得たレゾナンスエネルギー 14.8 MeV 附近の誤差範囲内に変曲線が見られる。



第3図  $^{141}\text{Pr}(e, e'p)$  反応断面積

これは  $f_{7/2}$  IAR に対応するものと考えて、そのレゾナンスエネルギーを 14.8 MeV として解析した。図中の実線は、オフ・レゾナンスの  $(e, e'p)$  断面積を直線で近似し、

$$\frac{d}{d\Omega} \sigma_{(e, e'p)}(E_e) = A E_e + B + C N(E_e, E_R)$$

$$C = \frac{d}{d\Omega} \int \sigma_{(r, p)}^R(E_r) dE_r$$

$N(E_e, E_R)$  ; 仮想光子スペクトル

$E_R$  ; レゾナンスエネルギー

$A, B, C$  はパラメーター

の関数形<sup>5)</sup>を用いて最小自乗法でフィットしたものである。得られたレゾナンス強度は、干渉効果

の補正<sup>5)</sup>をした結果  $\int \sigma_{(r, p)}^{\text{IAS}}(E_r) dE_r = (2.7 \pm 1.3) \times 10^{-28} \text{ cm}^2 \text{ MeV}$  である。

ここで、 $\int \sigma_{(r, p)}(E_r) dE_r = 4\pi \left[ \frac{d}{d\Omega} \sigma_{(r, p)}(E_r) dE_r \right]_{\theta=125.3^\circ}$

として計算した。又この計算では仮想光子のスペクトルに Barber<sup>2)</sup> による PWB A の計算値を用いた。この計算に関しては仮想光子の先端から数百 keV の領域におけるスペクトルの形と絶対値が結果に著しい影響を与える可能性がある。ここで用いた Barber のスペクトル及びそれに Nasci-meto による補正項<sup>3)</sup>を加えたものも同様に  $^{141}\text{Pr}(\gamma, p_0)$  断面積の計算結果を矛盾なく求めることができないことを前に述べた。従ってこの解析に用いる仮想光子スペクトルは、先の  $(\gamma, p_0)$  断面積の計算結果に矛盾を生じないものを用いるべきであるので検討中である。

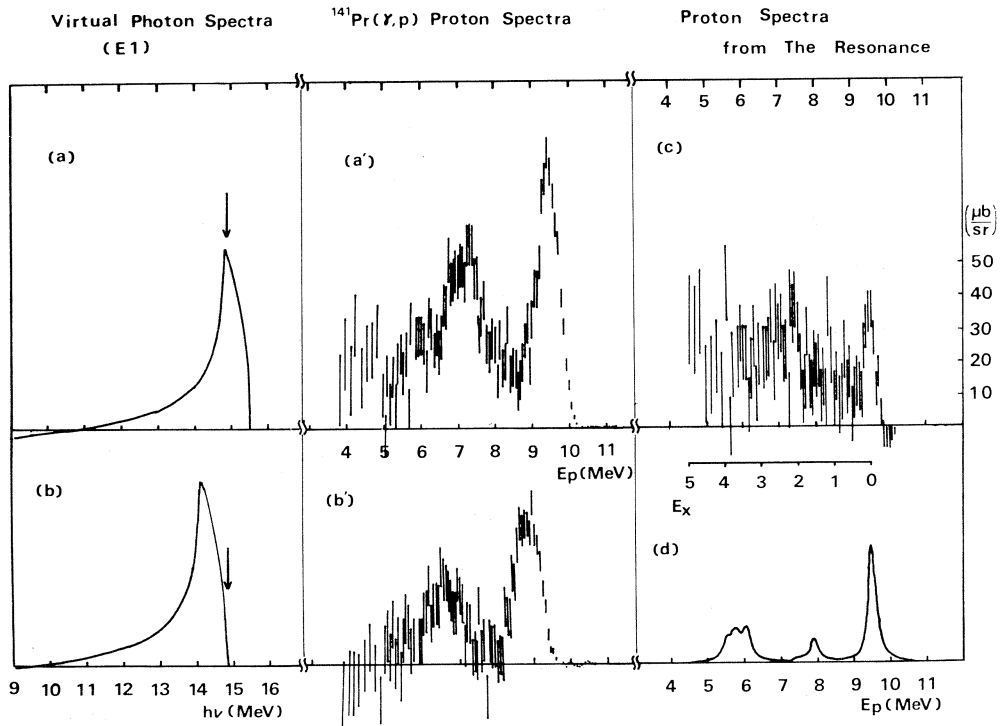
ここで得られたレゾナンス断面積の積分値は、レゾナンスの幅射幅  $\Gamma_\gamma$  と次の関係を持つ。

$$\int \sigma_{(\gamma, p)}^{\text{IAS}}(E_\gamma) dE_\gamma = \pi^2 \lambda^2 \frac{2J_{\text{IAS}} + 1}{2J_T + 1} \frac{\Sigma \Gamma_p}{\Gamma_{\text{tot}}} \Gamma_\gamma$$

従来は IAS がアイソスピンの良い量子状態であるという近似から  $\Sigma \Gamma_p / \Gamma_{\text{tot}} = 1$  と仮定して  $\Gamma_\gamma$  を計算していた<sup>6-8)</sup>。しかし最近陽子散乱の実験結果によると  $^{141}\text{Pr} f_{7/2}$  IAS では分岐比が  $\Sigma \Gamma_p / \Gamma_{\text{tot}} = 0.43$  である。IAS の陽子崩壊以外の部分幅がいかなるチャンネルに対応するかは知られていないが、陽子散乱で得られている分岐比を用いて計算される副射幅は、従来我々のグループが計算していた副射幅<sup>6-8)</sup>より約2倍大きい値が得られる。 $^{141}\text{Pr} f_{7/2}$  IAR では  $\Gamma_\gamma = 25.8$  eV となり、 $^{141}\text{Pr}(p, r_0)$  による結果<sup>4)</sup>  $\Gamma_\gamma = 13$  eV と一致しない。これは従来  $(p, r_0)$  の実験と一致すると考えていたスピントリップでない IAS に関しても  $(e, e'p)$  反応と  $(p, r_0)$  反応との間に不一致が生じる事を示している。先に  $(\gamma, p_0)$  の結果は  $(p, r_0)$  のそれと一致することを示した。従って  $p_0$  以外の放出陽子が矛盾の原因になっていることを示しており、 $(e, e'p)$  反応断面積の解析から IAS のレゾナンス強度を計算する際には新たな補正を考える必要があることを示している。

第1図に示した  $^{141}\text{Pr}(e, e'p)$  反応の放出陽子スペクトルを互いに適当な割合で差し引くことにより、近似的に  $^{141}\text{Pr}(\gamma, p)$  反応の放出陽子スペクトルを計算することができる(フォトンディファレンス法)<sup>1)</sup>。第4図はその結果で、(a)図、(b)図の形のスペクトルを持つ仮想光子による  $^{141}\text{Pr}(\gamma, p)$  反応の放出陽子スペクトルを、それぞれ (a') 図、(b') 図に示す。 $f_{7/2}$  IAR の励起エネルギーは 14.8 MeV であるから、(a') は  $f_{7/2}$  IAR 及び連続状態からの放出陽子を含み、(b') は連続状態からの放出陽子のスペクトルである。仮想光子のエネルギー幅を考慮すれば、連続状態は基底状態及び  $E_x = 2.3$  MeV 近傍の狭い領域の励起状態へ崩壊している。

(a)と(b)の仮想光子スペクトルは、近似的に同一の形を持ち、光子エネルギーが 700 keV ずれたものであるから、15 MeV 近傍の連続状態が 700 keV の間で同一構造を持つと近似することにより、(a') の中に含まれる連続状態からの放出陽子スペクトルは (b') のスペクトルが 700 keV 高エネル

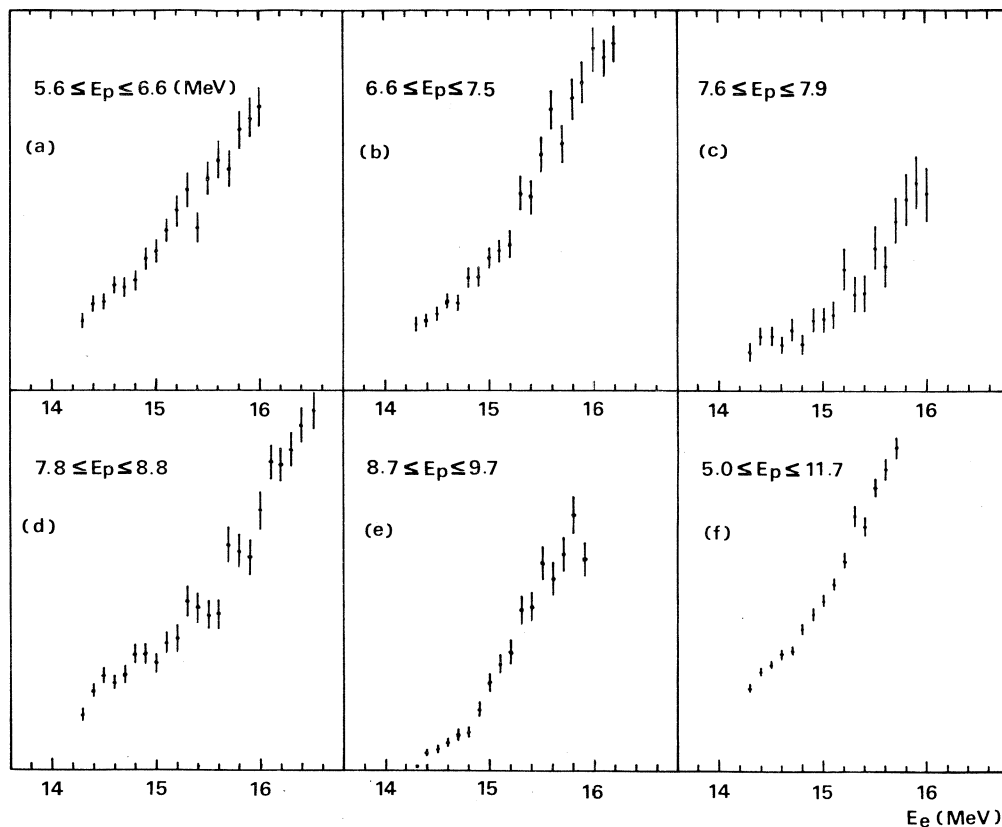


第4図 仮想光子による  $^{141}\text{Pr}(\gamma, p)$  反応陽子スペクトル

ギー側へずらした形をしていると考えてよい。この近似により、 $f_{7/2}$  IAR を通して放出される陽子のみのエネルギースペクトルが得られる。結果を(c)に示す。残留核の状態は基底状態及び  $1.5 \text{ MeV} < E_x < 4.5 \text{ MeV}$  領域の励起状態が主である。

(d)図は  $^{140}\text{Ce}(p, p')$  反応の実験<sup>9)</sup> で求められている  $f_{7/2}$  IAS の放出陽子スペクトルである。 $E_p = 9.5 \text{ MeV}$  のピーク ( $p_0$ ) で我々の結果に規格化し、我々の実験結果と直接比較できるように分解能を悪くして書いてある。IAS の配位の特長である中性子の1粒子1空孔状態は  $5.3 \text{ MeV} < E_p < 6.3 \text{ MeV}$  領域に分布し、 $E_p = 7.9 \text{ MeV}$  に第1励起状態の  $2^+$  状態が見られる。

我々の得た陽子スペクトル第4図(c)には  $6.3 \text{ MeV} < E_p < 7.8 \text{ MeV}$  領域に、陽子散乱のデータと一致しない陽子グループがある。このグループが IAS の崩壊陽子であると仮定すれば、その陽子グループに対応する残留核の励起エネルギーは  $1.2 \text{ MeV} < E_x < 3.2 \text{ MeV}$  である。一方これを連続状態からの陽子グループと仮定すると、仮想光子の幅を考慮して残留核の励起エネルギーは約  $E_x = 2.3 \text{ MeV}$  である。この場合は IAS と連続状態との干渉効果の IAR への影響が予想以上に大きい場合等に対応する仮定である。後者の励起エネルギーは第4図(b) 図の陽子スペクトルの

$^{141}\text{Pr}(e, e'p)$  ISOCHROMAT第5図  $^{141}\text{Pr}(e, e'p)$  反応アイソクロマート

残留励起状態と一致することから、後者の可能性は大きいと思われるが、更に研究の予定である。

第4図(c)のスペクトル中の各々の陽子グループが  $f_{7/2}$  IAS を経由して放出されたものであるか否かを調べるのに、限定されたエネルギーを持つ放出陽子の量を入射電子エネルギーの関数として表わす方法(アイソクロマート)<sup>10)</sup>がある。第5図はそれを表わしたものである。IARの位置での折れ曲がりが見えはつきり見えるのは  $p_0$  に関するグループ(e)のみで、その他については誤差が大きくてはつきりしない。誤差を考慮に入れた定量的な解析はまだ終了していないので次の報告に譲る。



## 参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 7 (1974) 305.
- 2) W. C. Barber : Phys. Rev. **111** (1958) 1642.
- 3) I. C. Nascimento : Private Communication.
- 4) H. Ejiri *et al.* : Nucl. Phys. **A128** (1969) 388.
- 5) 核理研研究報告 6 (1973) 51.
- 6) K. Shoda *et al.* : Phys. Rev. **C3** (1971) 2006.
- 7) K. Shoda *et al.* : Phys. Rev. **C4** (1971) 1842.
- 8) K. Shoda *et al.* : Phys. Rev. **C3** (1971) 1999.
- 9) J. P. Wurm *et al.* : Nucl Phys. **A128** (1969) 433.
- 10) 核理研研究報告 5 No.1, (1972) 47.

## II. 物 性 物 理 部 門

## II - 1 Structure of Vitreous $As_2Se_3$ by T-O-F Pulsed Neutron Diffraction Using the Electron Linac.

工学部金属材料

井垣謙三・伊藤寿美江

金研\*

鈴木謙爾\*・三沢正勝\*

福嶋喜章\*

### § 1. Introduction

Nowadays vitreous calcogenides have attracted attention as an electronic, optical and mechanical device of modern engineering. The vitreous  $As_2Se_3$  is one of the most fundamental materials among the various kinds of vitreous calcogenides and has been much investigated so far.

The complete information on the amorphous structure of vitreous  $As_2Se_3$  has not obtained yet, although a huge amount of X-ray diffraction experiments have been so far accumulated. This may come from the fact that As and Se are located at next site to each other in the periodic table. Furthermore, the X-ray diffraction experiment can not avoid truncating the measurement of structure factors at a relatively low momentum transfer value as well as the conventional reactor neutron diffraction experiment.

The short range order in the atomic arrangement of vitreous  $As_2Se_3$  is well known to persist still in the amorphous state

---

K. Igaki and S. Itō:

Department of Materials Science, Faculty of Engineering,  
Tohoku University, Sendai-980, Japan

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

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

as much as in the crystal state. Therefore, the oscillation in the structure factor of vitreous  $\text{As}_2\text{Se}_3$  must be surely observed up to the extraordinarily high momentum transfer such as  $Q \sim 30 \text{ \AA}^{-1}$ . If we can not take in the structure factor up to such a high  $Q$  region to be made Fourier transformation into the radial distribution function (RDF), the essential information on the amorphous structure in the real space must be lost, because the truncation effect of the Fourier transformation is not only piled up on the RDF but also the resolution in the real space falls down to much to separate the adjacent peak maximums in the RDF.

The purposes of this work are to measure the structure factor of vitreous  $\text{As}_2\text{Se}_3$  up to as high momentum transfer as possible as by using the pulsed epithermal neutron produced from the electron linac and to obtain the RDF in the real space with enough high resolution.

## § 2. Experimental

All the measurements were carried out by using the liquid T-O-F neutron diffractometer<sup>1)</sup> installed on the 300 MeV Tohoku University electron linac. The operating condition of the linac is entirely same with that in the previous reports.<sup>1)</sup>

The purities of the materials used here are 99.9999% As and 99.999% Se, respectively. The vitreous  $\text{As}_2\text{Se}_3$  was made by quenching the molten  $\text{As}_2\text{Se}_3$  from  $600^\circ\text{C}$  into liquid paraffin bath at  $80^\circ\text{C}$  and kept in 30 min. and quenched into water at the room temperature. The size of the sample is 10 mm diameter and 50 mm length. The average density of the sample is 4.575 g/c.c.

The procedures of the correction of the observed intensity

with background, absorption and multiple scattering, the derivation of the structure factor from the corrected intensity and the numerical calculation of the Fourier transformation of the structure factor into the RDF have been fully described in the previous reports.<sup>1,2)</sup>

### § 3. Result and Discussion

The observed structure factor  $S(Q)$  for the vitreous  $\text{As}_2\text{Se}_3$  at room temperature is shown in Fig. 1. A remarkable feature can be found in this  $S(Q)$  that there are a small hump at low  $Q$  side of the first peak maximum and a not-damping oscillation in the  $S(Q)$  even in the range of momentum transfer higher than  $10 \text{ \AA}^{-1}$ .

Fig. 2 is the RDF made the Fourier transformation from the  $S(Q)$  shown in Fig. 1. Although the ghost peaks due to the truncating effect of the Fourier transformation are still mixed with the RDF, the first and the second peak maximum are completely separated. Furthermore, the second peak maximum is going to be divided into two peaks.

As a reference, the RDF that was Fourier transformed from the  $S(Q)$  observed by the X-ray diffraction up to  $Q = 7 \text{ \AA}^{-1}$  is illustrated in Fig. 3.<sup>3)</sup> The width of the peak maximum in the RDF from the X-ray diffraction experiment is quite wide

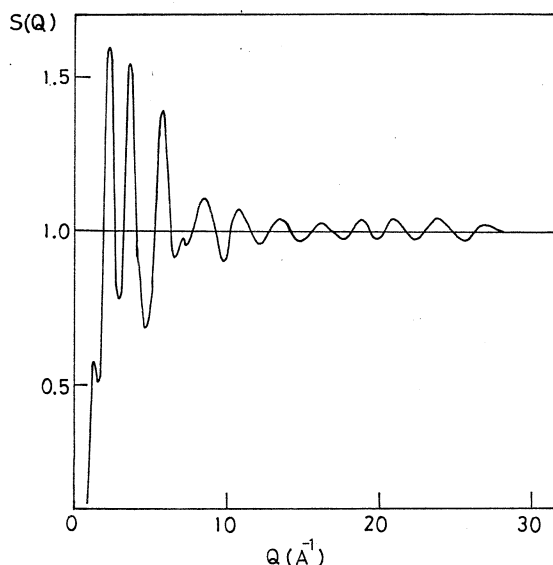


Fig. 1 Structure factor of Vitreous  $\text{As}_2\text{Se}_3$  observed by T-O-F pulsed neutron diffraction

compared with that from the pulsed neutron diffraction experiment. In fact, the first and the second peak maximum in the RDF are overlapped with each other in the X-ray diffraction experiment. On the other hand, the full width at half maximum of the first peak maximum of the RDF in Fig. 2 seems to correspond to the fluctuation of the nearest bond length between As and Se atom.

Table I is a summary of the atomic distance and the co-ordination number between the nearest neighbour atoms for vitreous  $\text{As}_2\text{Se}_3$  by both the pulsed neutron diffraction experiment and the X-ray diffraction experiment.

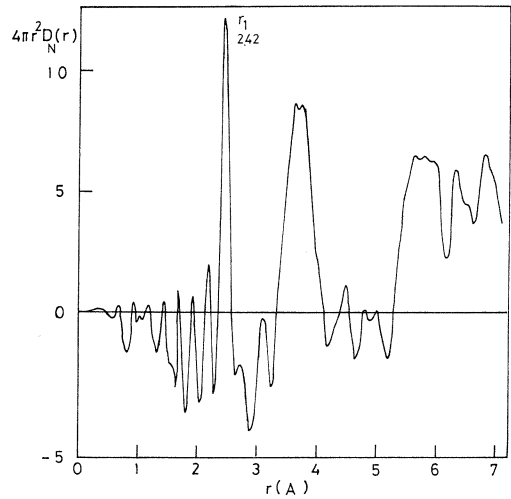


Fig.2 Radial distribution function of vitreous  $\text{As}_2\text{Se}_3$  made the Fourier transformation from the  $S(Q)$  in Fig.1

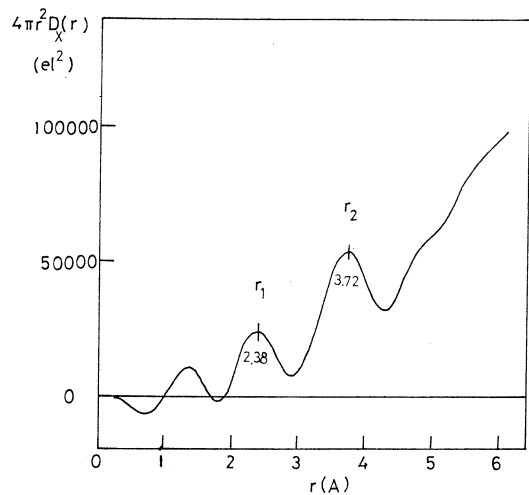


Fig.3 Radial distribution function of vitreous  $\text{As}_2\text{Se}_3$  obtained from the X-ray diffraction experiment

Table I Comparison between the linac experiment and the X-ray experiment

|                          | linac                | X-ray               |
|--------------------------|----------------------|---------------------|
| $Q_{\max}$               | 28 $\text{\AA}^{-1}$ | 7 $\text{\AA}^{-1}$ |
| $r_1$                    | 2.42 $\text{\AA}$    | 2.38 $\text{\AA}$   |
| $\Delta r_{\text{FWHM}}$ | 0.18 $\text{\AA}$    | 0.56 $\text{\AA}$   |
| $n_1$                    | 3.0                  | 3.1                 |

$Q_{\max}$  ; Value of momentum transfer truncated in Fourier transformation

$r_1$  ; Position of the first peak maximum in RDF

$\Delta r_{\text{FWHM}}$  ; Full width at half maximum of the first peak maximum in RDF

$n_1$  ; Co-ordination number of the nearest neighbour Se atoms around As atom

### Acknowledgment

The authors would like to thank the members of Nuclear Science Laboratory, Tohoku University for the operation of the electron linac.

### References

- 1) M. Misawa, K. Kai, K. Suzuki and S. Takeuchi: Res. Reports Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **5** [2] (1972) 73.
- 2) M. Misawa, Y. Fukushima, K. Suzuki and S. Takeuchi: Res. Reports Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **6** (1973) 88.
- 3) K. Igaki and S. Itō: Oyo Butsuri **41** (1972) 127.  
(in Japanese)

K. Igaki and S. Itō: Technol. Rep. Tohoku Univ. **38**  
(1973) 743.



## II - 2 Time-of-Flight Pulsed Neutron Diffraction of Molten Salts.

金研 福嶋喜章,\* 三沢正勝,\*\*  
鈴木謙爾\*\*\*

### § 1. Introduction

A molten salt is one of representative ionic liquids. The study of the ionic distribution in molten salts is interesting and important as a basic investigation for both the liquid theory and the process metallurgy.

There are two types of molten salts from the viewpoint of their liquid structure. The first group consists of charged spheres just like  $\text{Na}^+\text{-Cl}^-$  in the liquid state. The second group includes the ionic radicals having a definite arrangement of constituent atoms. A  $\text{NO}_3^-$  radical in molten nitrates, for example, forms the triangle of which corners and centre are occupied by three O-atoms and one N-atom, respectively.

It is quite essential to investigate the structure of a single ionic radical and the orientational correlation between these radicals as well as the interaction between metallic cations and anionic radicals in molten salts.

On the other hand, it is well known that liquid metals can be solved in molten salts. Bismuth-bismuthtrihalide systems are famous because all proportional solution happens

---

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

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

in a reasonable temperature and pressure range. Hence, these systems seem to be one of the best systems to study the critical phenomena between metallic and ionic liquids including the metal-nonmetal transition.

In this work, based on the points of view mentioned above, pulsed neutron diffraction of molten alkali metal nitrates and bismuthtrihalides was measured by the time-of-flight method using the electron linac as a pulsed neutron source.

## § 2. Experimental

All the measurements were carried out by using the liquid T-O-F neutron diffractometer<sup>1)</sup> installed on the 300 MeV Tohoku University electron linac. The operating condition of the linac is entirely same with that in the previous works.<sup>1)</sup> The molten  $\text{NaNO}_3$  and  $\text{RbNO}_3$  were adopted as the samples for alkali metal nitrates.  $\text{KNO}_3$  and  $\text{LiNO}_3$  are still under the measurement. As the first step of the study on bismuth-bismuth-trihalide systems, the temperature dependences of structure factors were observed for  $\text{BiCl}_3$ ,  $\text{BiBr}_3$  and  $\text{BiI}_3$  in the liquid state.

The samples were sealed in vacuum in a silica tube with 10 mm inner diameter and 0.2 mm thickness thin wall. Temperature of sample was kept by the electric heating furnace. Correction of observed intensity with background, silica tube, multiple scattering and so on, and derivation of structure factor from the corrected intensity were made following the procedures described in the previous reports.<sup>b2)</sup>

## § 3. Result and Discussion

Fig. 1 shows the observed structure factors  $S_m(Q)$  for molten  $\text{NaNO}_3$  at  $340^\circ\text{C}$  and  $\text{RbNO}_3$  at  $350^\circ\text{C}$ , and the calculated

form factor  $F_1(Q)$  for a single  $\text{NO}_3^-$  radical with equilateral triangle structure.

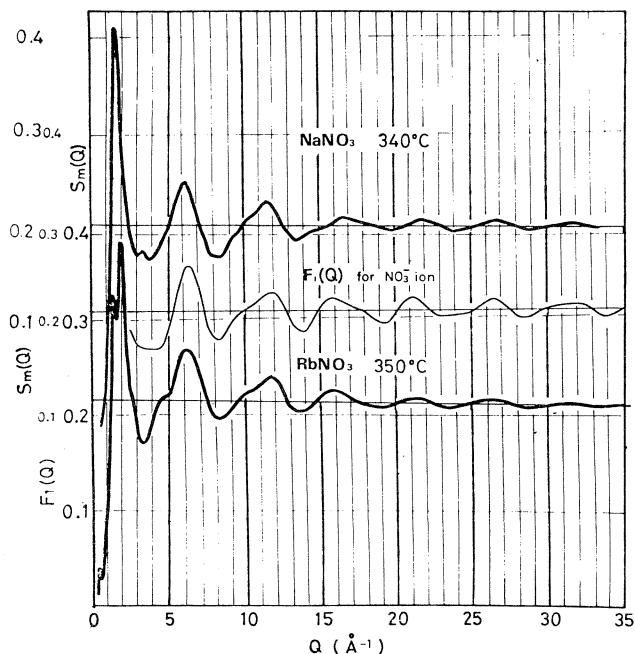


Fig.1 Observed structure factors  $S_m(Q)$  for molten  $\text{NaNO}_3$  and  $\text{RbNO}_3$  and calculated form factor  $F_1(Q)$  for single  $\text{NO}_3^-$  radical

The  $F_1(Q)$  for the  $\text{NO}_3^-$  radical is written as

$$F_1(Q) = \frac{1}{(b_{\text{Rb}} + b_{\text{N}} + 3b_{\text{O}})^2} \cdot \left( 6b_{\text{N}}b_{\text{O}} \cdot \frac{\sin(Q \cdot r_{\text{NO}})}{Q \cdot r_{\text{NO}}} + 6b_{\text{O}}^2 \frac{\sin(Q \cdot r_{\text{OO}})}{Q \cdot r_{\text{OO}}} + b_{\text{Rb}}^2 + b_{\text{N}}^2 + 3b_{\text{O}}^2 \right),$$

where  $b_{\text{N}}$  and  $b_{\text{O}}$  are the coherent scattering lengths of N and O nucleus, and  $r_{\text{NO}}$  and  $r_{\text{OO}}$  are the bond lengths between N and O and between O and O in  $\text{NO}_3^-$ . The above equation of  $F_1(Q)$  is normalized to the scattering length for a single  $\text{RbNO}_3$  molecule.

The value of  $r_{\text{NO}} = 1.27 \text{ \AA}$  used in the calculation of the  $F_1(Q)$  illustrated in Fig. 1 was determined from the position of the first peak maximum in the radial distribution function (RDF) of molten  $\text{RbNO}_3$  shown in Fig. 2.

There are big differences in the  $S_m(Q)$ 's for the both

molten nitrates in the range of momentum transfer less than  $5 \text{ \AA}^{-1}$ . In the case of molten  $\text{NaNO}_3$ , the first peak maximum of the  $S_m(Q)$  is simply smooth and a small hump can be observed in the neighbourhood of the first minimum  $Q$  position. In contrary to that, the first peak maximum of the  $S_m(Q)$  for molten  $\text{RbNO}_3$  is divided into the two peaks and a hump becomes big and shifts to the low  $Q$  side of the second peak maximum.

Nevertheless, the oscillatory behaviour in high  $Q$  region of the  $S_m(Q)$ 's for the both nitrates is very similar with each other. Especially, it is interesting that the positions of the maximum and minimum in the oscillation of the  $S_m(Q)$ 's and  $F_1(Q)$  are in good agreement in the range of  $Q$  higher than  $10 \text{ \AA}^{-1}$ .

The  $F_1(Q)$  in Fig. 1 does not include any fluctuations of the bond lengths in the  $\text{NO}_3^-$  radical. Therefore, the amplitude of the oscillation of the  $F_1(Q)$  never shows damping in high  $Q$  region.

Fig. 2 indicates that the size of the  $\text{NO}_3^-$  radical in molten  $\text{NaNO}_3$  is a little smaller than that in molten  $\text{RbNO}_3$ . Furthermore, the values of the bond lengths in the  $\text{NO}_3^-$  radical are summarized for the crystal state and the liquid state in

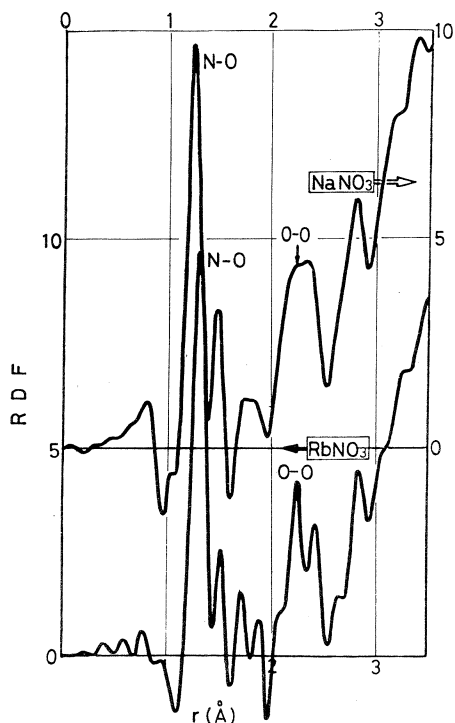


Fig.2. Radial distribution function (RDF) for molten  $\text{NaNO}_3$  and  $\text{RbNO}_3$

Table I. This table tells that the  $\text{NO}_3^-$  radical is stretched in the molten state. This result corresponds properly to

Table I. Bond lengths in  $\text{NO}_3^-$  radical of  $\text{NaNO}_3$  and  $\text{RbNO}_3$

|                                | $r_{\text{NO}} (\text{\AA})$ | $r_{\text{OO}} (\text{\AA})$ |
|--------------------------------|------------------------------|------------------------------|
| $\text{NaNO}_3$ Solid          | 1.22                         | 2.11                         |
| $\text{NaNO}_3$ Liquid (350°C) | 1.26                         | 2.20                         |
| $\text{RbNO}_3$ Liquid (340°C) | 1.27                         | 2.23                         |

the observation of Raman spectroscopy<sup>3)</sup> for alkali metal nitrates.

The observed results for the temperature dependences of the structure factors  $S(Q)$  are shown for pure  $\text{BiCl}_3$ ,  $\text{BiBr}_3$  and  $\text{BiI}_3$  in the molten state in Fig. 3. These  $S(Q)$ 's seem to be temperature-insensitive especially in high momentum transfer region. Therefore, it may be concluded that the pure molten  $\text{BiX}_3$  behaves like the molecular liquid of isomolecular structure such as  $\text{PX}_3$  from the structural point of view.

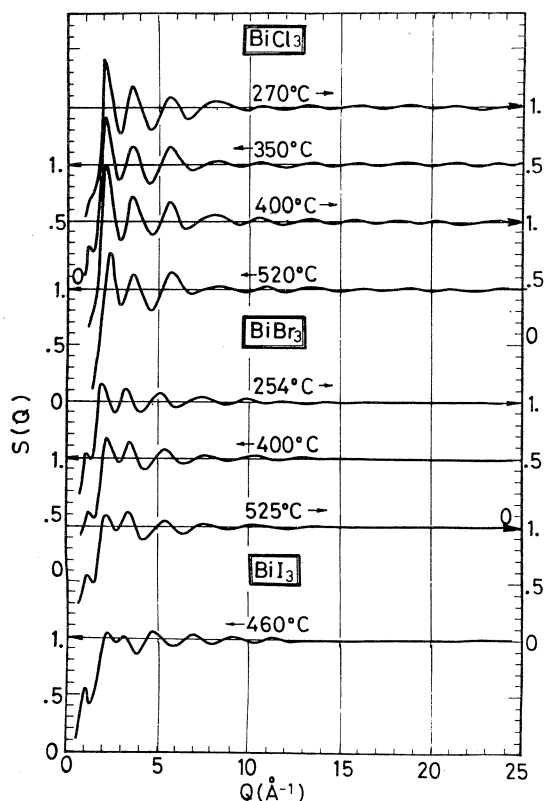


Fig.3. Observed structure factors  $S(Q)$  for molten pure  $\text{BiX}_3$  ( $X=\text{Cl}$ ,  $\text{Br}$ , and  $\text{I}$ ) at several temperatures

**Acknowledgment**

The authors would like to thank the members of Nuclear Science Laboratory, Tohoku University for the operation of the electron linac.

**References**

- 1) M. Misawa, K. Kai, K. Suzuki and S. Takeuchi: Res. Report Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **5** [2] (1972) 73..
- 2) M. Misawa, Y. Fukushima, K. Suzuki and S. Takeuchi: Res. Report Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **6** (1973) 88.
- 3) G. J. Janz and D. W. James: J. Chem. Phys. **35** (1961) 739.

II-3  $Mn_3Si$  の中性子回折

金研 富吉昇一

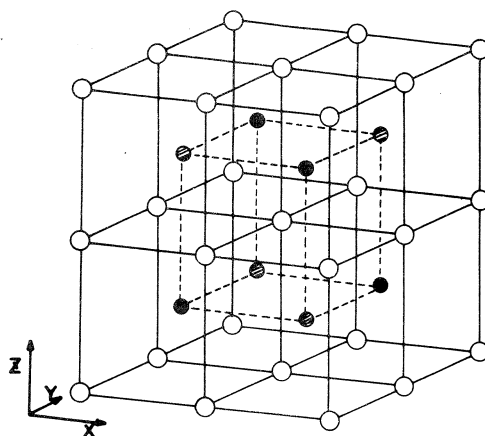
## § 1. 序 論

$Mn_3Si$  は図1に示すように cubic  $Fe_3Al$  型 ( $DO_3$  type, space group  $Fm\bar{3}m$ ) の結晶構造を取る。この結晶構造は bcc  $CsCl$  型の unit が基本になって構成されており,  $Mn$  原子は D site ( $Mn_I$ ) と A site ( $Mn_{II}$ ) の2つの site をしめる。 $Mn_I$  は8ケの  $Mn_{II}$  原子により囲まれ, bcc  $Mn$  と同じ最隣接原子の環境にあり,  $Mn_I$  原子だけについてみると fcc 格子を組む。一方,  $Mn_{II}$  原子は4ケの  $Si$  原子に囲まれ,  $Mn_{II}$  原子は単純立方格子を組む。 $Mn_3Si$  と同じ結晶構造を取るものに  $Fe_3Al$ ,  $Fe_3Si$  等があるが, それ以外に  $Fe_3Al$  型の構造を取るものはほとんど報告されていない。 $Fe_3Al$  と  $Fe_3Si$  は共に強磁性体であるが, これらの偏極中性子等による研究<sup>1,2)</sup> から D site の  $Fe_I$  原子は bcc  $Fe$  からあまりずれていない電子状態にあり, 一方, A site の  $Fe_{II}$  原子は最隣接の  $Al$  及び  $Si$  原子の影響を受けて, その磁気モーメントの大きさは bcc  $Fe$  の場合よりかなり小さくなるという実験結果が報告されている。 $Mn$  の場合, bcc 相は  $1134^\circ C$  以上の限られた温度範囲でしか安

定でないので bcc  $Mn$  の磁性は興味を持たれているにもかかわらず何も明らかになっていない。その点  $Mn_3Si$  の  $Mn_I$  原子に関することが明らかになれば,  $Fe_3Al$ ,  $Fe_3Si$  と bcc  $Fe$  との関係のように, bcc  $Mn$  に関する程度の見通しがつくと考えられる。

このようなことから我々は以前から  $Mn_3Si$  について興味をもち, 中性子回折によって磁気構造を決める試みを以前から行ってきた。

この物質に関する磁性の研究は, 我々が手がけたのが最初で,  $Mn_3Si$  の磁性の研究はほとんど何も行われていない。これまでに3回  $Mn_3Si$  の TOF 法による中性子回折の結果



- ⊗ Si atoms on B sites
- Mn atoms on D sites ( $Mn_I$ )
- Mn atoms on A sites ( $Mn_{II}$ )

第1図  $Mn_3Si$  の結晶構造  
( $Fe_3Al$  型,  $a = 5.722 \text{ \AA}$ )

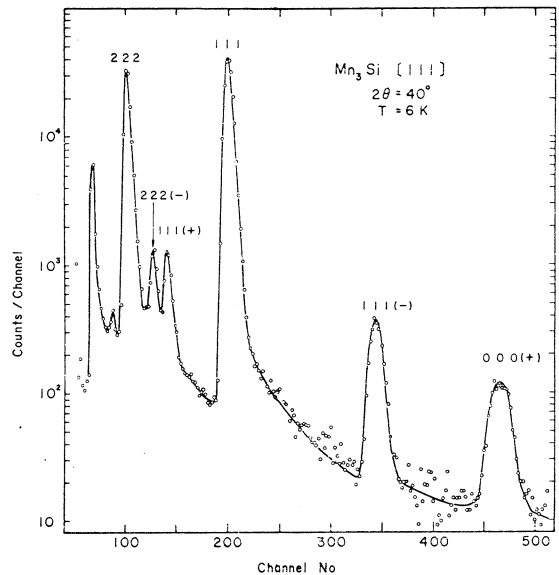
を核理研報告に報告してきたが、<sup>3,4,5)</sup> その結果がようやくまとまってきたので再び報告する。内容は文献5とあまり変わらないが、文献5のスピンの構造の図(第3図)はまちがっているので、それらの訂正を含めて、新ためて報告する。

## § 2. 実験結果

測定装置は単結晶用中性子回折測定装置であり以前の実験に用いたのと同じものである<sup>5)</sup>。結晶は新に作りなおした大きいもので、金研結晶製作室で Bridgman 法で作ったものである。我々が実験に用いたのは、完全に1つの grain から成るものではなく、わずかに小さいいくつかの grain が含まれたものである。測定に用いたのは直径 0.7 cm, 長さ 2 cm の円筒形に切り出したもので、その同筒軸の方向が  $\langle 110 \rangle$  に一致するものである。TOF法の場合、波長に依存する吸収補正のために、試料の形状が非常に重要であり、我々の実験の場合、円筒形が一番望ましい。文献5の実験では完全に円筒形でなかったため吸収の補正は充分でなかったと思われる。

ヘリウム用クライオスタットは以前から用いているもので熱伝導で冷す方式のものであり、温度の検出は Au (Co) - Cu の熱電対と、GaAs 半導体温度検出器を用いた。試料の最低到達温度は 6.0°K であった。

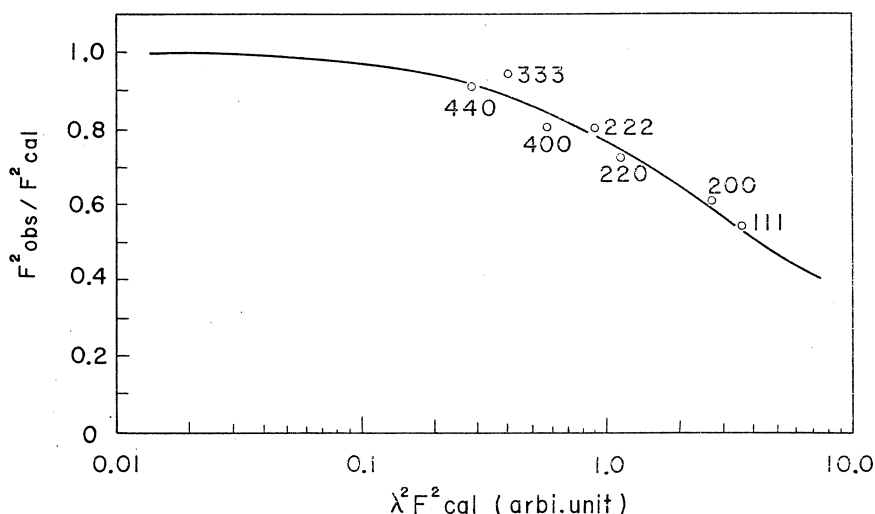
第2図は 6.0°K で  $2\theta = 40^\circ$  で測定した TOF 中性子回折図で文献5の第1図と同じものである。Mn<sub>3</sub>Si のスピンの構造は wave vector  $q$  が  $\langle 111 \rangle$  である incommensurable な spin 構造で、磁気的 satellite peak は各 Brillouin zone の  $\langle 111 \rangle$  方向の境界の近くにあらわれる。スピン構造を正確に決定するために  $2\theta = 60^\circ$  で、6ヶの satellite について測定した。測定した各 satellite の強度より磁気散乱因子を求める際に一番問題になるのは消衰効果の補正である。我々は、Mn<sub>3</sub>Si は Fe<sub>3</sub>Al 型の結晶構造であることより、主な核散乱ピークについて、消衰効果の補正を行い、次に、磁気散乱ピーク



第2図 Mn<sub>3</sub>Si の単結晶  $\langle 111 \rangle$  面による TOF 中性子回折図、横軸は飛行時間である。000(+), 111(-) は magnetic satellite line である。



についても同じ補正式が成立つことを仮定して、消衰効果の補正を行った。TOF法の場合の消衰効果の問題は、最近、新村達<sup>6)</sup>により研究され、理論式が導かれている。我々は彼らの結果を用いてデータの解析を行った。核散乱ピークについては、彼らの(21)式が良く当てはまることが明らかになった。第3図は $F^2_{\text{obs}}/F^2_{\text{cal}}$ を $\lambda^2 F^2$ でプロットしたものである。一応、測定値が



第3図 核散乱ピークに対する消衰効果の図。 $F^2_{\text{obs}}/F^2_{\text{cal}}$ を $\lambda^2 F^2$ で描いたものである。

計算値にのっていることがわかる。消衰効果の補正に関しては、まだ経験が浅いことでもあり不十分ではあるかもしれないが、我々は図3により核散乱と磁気散乱に関する構造因子 $|F|^2$ の補正値を求めた。

磁気構造は incommensurable spin structure の場合、いくつかの可能な model が考えられる。そのうち $\text{Mn}_3\text{Si}$ の場合に最も可能性のある model は proper screw 構造と、transversal sinusoidal spin 構造のいずれかである。screw 構造の場合の磁気構造因子は次の式で与えられる。

proper screw に対しては

$$|F^\pm(hkl)|^2 = \left(\frac{e^2 \gamma}{2mc^2}\right)^2 (1 + \kappa_z^2) \cdot |G^\pm(hkl)|^2 \quad (1)$$

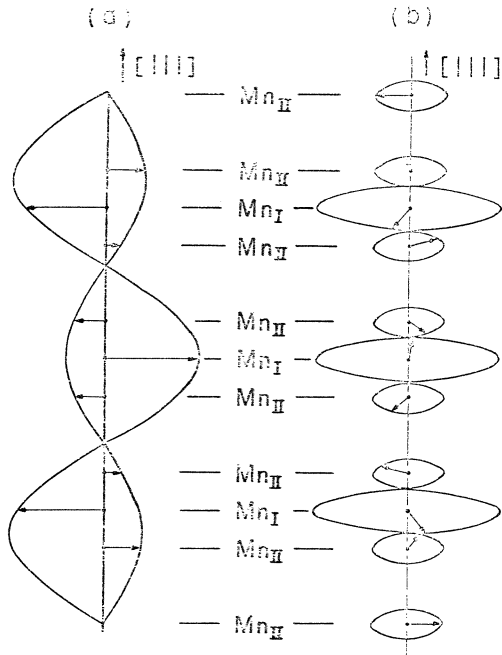
transversal sinusoidal screw に対しては

$$|F^\pm(hkl)|^2 = \left(\frac{e^2 \gamma}{2mc^2}\right)^2 (1 - \kappa_x^2) \cdot |G^\pm(hkl)|^2 \quad (2)$$

である。ここで

$$|G^{\pm}(hkl)|^2 = \left| \sum_i S_i f_i \exp [i(2\pi \mathbf{K}_{hkl} \pm \mathbf{q}) \cdot \mathbf{r}_i + i\phi_i] \right|^2 \quad (3)$$

ここで  $\kappa_x, \kappa_z$  は unit scattering vector の各成分で,  $z$ -軸は  $\mathbf{q}$  vector の方向に取る。  
 $x$ -成分は transversal sinusoidal の場合, spin が sinusoidal に変化している面の方向をあらわしており, 一般に, 等価ないくつかの面が考えられる。screw 構造の場合, (1), (2)式で明らかにどのような screw に属するかは  $(1 + \kappa_z^2)$  及び  $(1 - \kappa_x^2)$  等の項により類別される。しかし,  $\text{Mn}_3\text{Si}$  のような cubic の場合には domain 分布のためにその類別は容易ではない。 $\text{Mn}_3\text{Si}$  の場合,  $\mathbf{q}$  は  $\langle 111 \rangle$  で  $\kappa_z$  は unique に決る ( $\mathbf{q}$  が 4 ケの  $\langle 111 \rangle$  方向の domain に分れることを別にすれば), しかし, transversal sinusoidal の場合には  $\kappa_x$  は一般に 6 ケの等価な成分をもっているため, 我々の実験のような unpolarized neutron の場合には, それらの domain について平均してやらなければならない。 $x$  成分が等分布している場合には容易に証明されるように  $1 - \kappa_x^2$  は  $2(1 + \kappa_z^2)$  になり, 従って我々はこの実験に於て,  $\text{Mn}_3\text{Si}$  のスピン構造は transversal sinusoidal であるか, proper screw であるか類別することは出来なかった。第 4 図は  $\text{Mn}_3\text{Si}$



第 4 図  $\text{Mn}_3\text{Si}$  のスピン構造で (111) 面上のスピン位相の関係を示す。(a) は transversal sinusoidal 構造, (b) は proper spin 構造である。

第 1 表 結晶構造因子及び磁気構造因子 ( $F^2$ ) の測定値と計算値。satellite の表示は  $\mathbf{q} = (\delta, \delta, \delta)$  であらわした。

| $h, k, l$                            | $ F _{\text{obs}}^2$ | $ F _{\text{cal}}^2$ |
|--------------------------------------|----------------------|----------------------|
| 1, 1, 1                              | 10.641               | 10.497               |
| 2, 2, 2                              | 10.721               | 10.497               |
| 2, 0, 0                              | 10.930               | 10.497               |
| 4, 0, 0                              | 8.587                | 9.000                |
| 0, 2, 2                              | 8.724                | 9.000                |
| $2 - \delta, \delta, \delta$         | 0.2056               | 0.2049               |
| $1 + \delta, 1 - \delta, 1 - \delta$ | 0.1470               | 0.1342               |
| $\delta, 2 - \delta, 2 - \delta$     | 0.0768               | 0.0767               |
| $1 - \delta, 1 + \delta, 1 + \delta$ | 0.1213               | 0.1359               |
| $1 + \delta, 1 + \delta, 1 + \delta$ | 0.1470               | 0.1374               |
| $2 - \delta, 2 - \delta, 2 - \delta$ | 0.1677               | 0.1681               |

のスピ構造である。proper spin 構造を仮定すると  $M_{nI}$  と  $M_{nII}$  の磁気モーメントの大きさは、

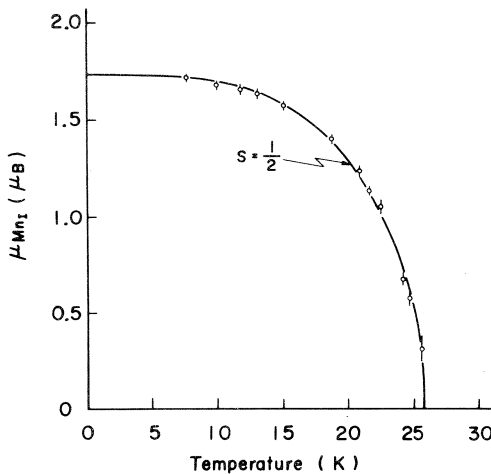
$$\mu_{MnI} = 1.72 \mu_B$$

$$\mu_{MnII} = 0.19 \mu_B$$

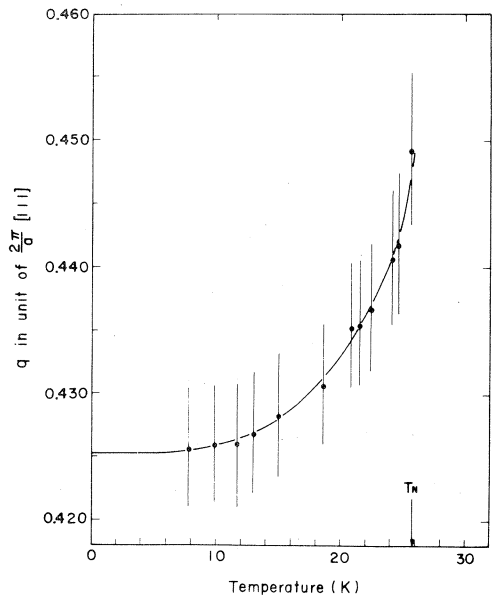
と求まる。表 1 は上記の値を最小 2 乗法で決めた場合の磁気構造因子の測定値と計算値を示す。

transversal sinusoidal spin 構造の場合には上記の値の  $\sqrt{2}$  倍が  $M_{nI}$  と  $M_{nII}$  のモーメントの値である。第 4 図で隣り合った (111) 面の  $M_{nII}$  と  $M_{nII}$  のモーメントの位相は  $76.5^\circ$  である。また、2 つの  $M_{nII}$  面にはさまれた  $M_{nI}$  のモーメントの位相はちょうど  $180^\circ$  ずれて couple しており、反強磁性的な coupling になっている。

次に wave vector  $q$  の温度変化の測定を行った。散乱角  $2\theta = 38^\circ$  で  $000^+$  と  $111^-$  の 2 つの satellite について測定し、それらのピークの位置の変化と強度の変化を追った。各温度について測定中に於ける温度の制御は  $\pm 0.1^\circ \text{K}$  以内であったと思われるが、 $000^+$  と  $111^-$  及び他の 111 軸上の回折線は TOF 法の場合、全く同じ温度のゆらぎの条件の下で測定されている。従って TOF 法はこのような測定には非常に適しているといえる。第 5 図は  $\mu_{MnI}$  の温度変化であり、Brillouin curve  $S = \frac{1}{2}$  に沿った変化をしている。 $\mu_{MnI}$  の温度変化より求めたネール点は  $T_N = 25.8 \pm 0.3 \text{K}$  であった。第 6 図は wave vector  $q$  の温度変化で、ネール点では  $q = 0.449 \cdot \frac{2\pi}{a} (1, 1, 1)$  であるがネール点直下で急激に減少し、その後は減少がなだらかになり低温では 0.425 になる。このような wave vector  $q$  温度変



第 5 図  $M_{nI}$  の磁気モーメントの温度変化。実線は  $S = \frac{1}{2}$  の Brillouin 曲線を示す。



第 6 図 wave vector  $q$  の温度変化

化は  $\text{Cr}^{\text{d}}$  の場合の wave vector  $\mathbf{q}$  に非常に類似している。この  $\mathbf{q}$  の温度変化の類似は、 $\text{Mn}_3\text{Si}$  のスピン構造の起源を考える上に重要であると思われ、注目すべき点の1つである。

### § 3. 議 論

この実験に於て、我々は  $\text{Mn}_3\text{Si}$  のスピン構造の決定を試みたが、第4図に示すように、transversal sinusoidal screw と proper screw スピン構造の2つの構造の可能性があり、どちらであるかということを決定出来なかった。これら2つを区別するためには、Cr について行われたように field cooling の方法を用いて domain を1つにし、いわゆる single  $\mathbf{Q}$  の状態にするのが一番手取り早いと思われる。一方 polarization analysis の方法を用いる中性子回折の実験でもこの2つの区別は可能であり、この実験は近いうちに行われる予定である。

次に  $\text{Mn}_3\text{Si}$  の電子状態に関する問題であるが、最近、 $\text{Fe}_3\text{Al}$  のバンド構造の計算が石田ら<sup>8)</sup> により行われ、 $\text{Fe}_3\text{Al}$  型の結晶構造に対しても、バンド構造の計算が行えることが示された。彼らの結果によると、 $\text{Fe}_3\text{Al}$  に於ける  $\text{Fe}_1$  の state density は、bcc Fe の場合に非常に良く似ており、一方、 $\text{Fe}_2$  は、まわりの Al の影響を受けて、bcc Fe の場合の band と異なることが示された。 $\text{Mn}_3\text{Si}$  の場合も、 $\text{Fe}_3\text{Al}$  の band 構造とあまり変わらないと思われるが、 $\text{Mn}_3\text{Si}$  の場合についても band 構造の計算が行われることが望まれる。 $\text{Mn}_3\text{Si}$  の band 構造が明らかになれば  $\text{Mn}_3\text{Si}$  の incommensurable spin 構造の origin 等も明らかになるであろう。

### 参 考 文 献

- 1) S. J. Pickart and R. Nathans : Phys. Rev. **123** (1961) 1163.
- 2) J. Moss and P. J. Brown : J. Phys. F **2** (1972) 358.
- 3) 富吉昇一, 鈴木隆司, 渡辺浩, 木村一治, 渡辺昇, 山田幸男, 小山田正幸, 高橋文信 : 核理研研究報告 **3** (1970) 94.
- 4) 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 **5** (1972) 101.
- 5) 富吉昇一 : 核理研研究報告 **7** (1974) 124.
- 6) 新村信雄, 高橋順一, 原田仁平 : 核理研研究報告 **7** (1974) 331.
- 7) S. A. Werner, A. Arrot, and H. Kendrick : Phys. Rev. **155** (1967) 528.
- 8) 石田尚治, 石田潤治, 浅野撰郎, 山下次郎 : 日本物理学会第38回年会(京都大学) 予稿 (1975) p148

## II - 4 Gd合金の熱外中性子回折(III)

核理研<sup>\*</sup>, 物理  
 渡辺昇<sup>\*</sup>・石川義和・関根久  
 広大総合科学部<sup>\*\*</sup> 鈴木三千郎・藤井博信<sup>\*\*</sup>  
 岡本哲彦<sup>\*\*</sup>

Gd Znの熱外中性子回折よりGdの核散乱振巾  $b_{Gd} = (1.20 \pm 0.15) \times 10^{-12}$  cmを得た。  
 Gd<sub>0.85</sub> Th<sub>0.15</sub>の熱外中性子回折により磁気構造を調べた。

## § 1. Gdの核散乱振巾

熱外中性子領域におけるGdの核散乱振巾については 1) Cu, KBr等散乱振巾および構造既知の単結晶との強度比較, 2) Gd<sub>0.9</sub> Y<sub>0.1</sub>無秩序合金における磁気回折線との強度比較, の二つの方法により概略値を求めず報告したが<sup>1), 2)</sup>, 今回はさらに正確な値を求めるためにGdの秩序合金Gd Zn単結晶を製作し熱外中性子回折を行なった。Znは散乱振巾既知でかつ着目する熱外中性子領域に共鳴レベルがなく, また吸収も無視できるため都合がよく, Gd Znの構造は単純なCs Cl型であることがよく知られている。この場合Gdの核散乱振巾は基本格子回折線と超格子回折線との強度比較から容易に求めることができる。

Gd Znの単結晶はMoルツボを用い石英容器中に真空封入しブリッジマン法により作られた。相図上Gd Znの相幅は極めて狭く, かつZnの蒸気圧が高いためGdとZnの混合体を650°Cに2日間保ち, ZnがGd中へ完全に浸透するのを待って徐々に温度上昇させ, 1000~1020°Cで溶解させ, ゆっくり温度を下げて単結晶を得た。この試料の秩序度を調べるため試料の一部を粉末にし, X線粉末回折装置による測定を行なった結果, 秩序度は1.00であることを確認した。

Gd Znの熱外中性子回折で得られた回折パターンの一例をFig 1に示す。図は<100>方向についての測定結果で, これより100および200反射の積分強度はそれぞれ  $(b_{Gd} - b_{Zn})^2$  および  $(b_{Gd} + b_{Zn})$  に比例してい

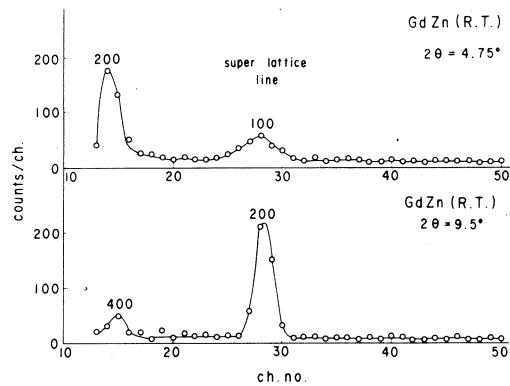


Fig. 1. Epithermal neutron diffraction patterns from a Gd Zn single crystal.

るとして  $b_{Gd}$  が求められる。積分強度を求めるには試料の吸収補正が大きな問題となるので、その不確かさを避けるため、100 および 200 が同一中性子波長で測定できるように  $\theta$ 、 $2\theta$  を変化させた。この場合都合のよいことには熱外中性子回折は小角散乱であるため  $\theta$  の変化は非常に小さく、したがって試料の幾何的形狀に基因する吸収の変化は無視できる。消衰効果に対する補正は前報で述べた如く熱外中性子領域ではほとんど無視できる。ローレンツ因子としては後述する如く問題はあるがひとまず  $\lambda^4 / \sin^2 \theta$  を用いた。このようにして Gd の核散乱振幅として  $b_{Gd} = (1.15 \pm 0.15) \times 10^{-12}$  cm が求められた。

この値は  $Gd_{0.9} Y_{0.1}$  の磁気回折線との比較より求められた値  $b_{Gd} = (1.20 \pm 0.15) \times 10^{-12}$  cm とよく一致している（前報では  $(1.40 \pm 0.05) \times 10^{-12}$  cm を報告したが、その後測定温度に誤りがあり 100 K ではなく 80 K であったことが判明した。80 K での磁気モーメントを用いると  $(1.20 \pm 0.15) \times 10^{-12}$  となる）。

ローレンツ因子が  $\lambda^4 / \sin^2 \theta$  となるためには回折線のスポットが全部カウンターに入ることが条件となる。実際には試料の大きさは数 mm  $\times$  10 mm 程度の断面積を有し、入射ビームの角度のひろがり、結晶のモザイクのひろがり等も無視できないので、実際に用いられたカウンターの窓寸法 12 mm  $\phi$  では一部の中中性子を数え落している可能性もあり若干問題が残る。このことについては今後窓を 20 mm  $\phi$  に改造し検討する予定である。

## § 2. $Gd_{0.85} Th_{0.15}$ の熱外中性子回折

$Gd_{0.85} Th_{0.15}$  単結晶の熱外中性子回折の予備的測定結果については前報で報告した。<sup>3)</sup> 002 まわりに磁気サテライト線が観測され、C 軸方向に進むヘリカルスピン構造であることが確認されたが、分解能・統計ともに十分でなく磁気構造の詳細は不明であったため引き続き測定を行なった。

測定は分解能および統計に対する配慮から 002 まわりについては  $2\theta = 6.5^\circ$  とした。室温および 80 K における  $\langle 001 \rangle$  スキャンの回折パターンを Fig 2 (a) および (b) にそれぞれ示す。低温ではきれいな磁気サテライト線が観測されている。前報の予備的測定では統計が不十分であったため高次のサテライト線が存在するようにも思われたが、Fig 2 から明らかな如く基本波のサテライト線は 002 の両側に逆格子空間で対称な位置 ( $S_1$ ) に観測されるのに対し、その 2 次の高調波に対応する回折線 ( $S_2$  の位置) は全く観測されない。サテライト線の位置 ( $S_1$ ) より磁気モーメントの周期は C 軸方向にレイヤー数で数えて 6.2 枚であることが分った。

$\langle 001 \rangle$  にサテライトが観測される磁気構造としては (i) プロパー・スクリュウ、(ii) サイクロイド (ac 面内で進む)、(iii) 横波正弦波、(iv) コニカル構造の 4 つが考えられる。このうち (iv) のコニカル構

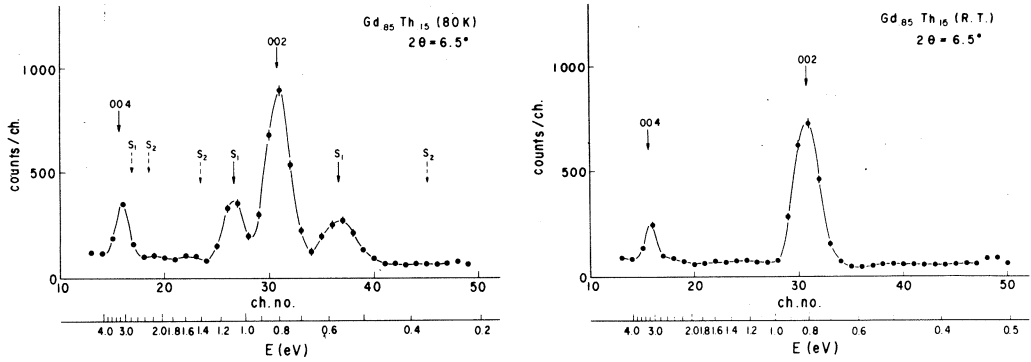


Fig 2 Epithermal neutron diffraction patterns from a  $Gd_{0.85}Th_{0.15}$  single crystal at room temperature (a) and at 80 K (b).  $S_1$  denotes the fundamental satellite line. No higher order satellite lines observed ( $S_2$  denotes 2nd order satellite)

造では磁気モーメントのC軸成分が存在するはずで、C軸に直角に散乱ベクトルを向け室温と低温で反射強度を調べれば判定できる。110反射を室温および80 Kで測定した結果その強度比は  $2.20 \pm 0.15$  対  $2.23 \pm 0.15$  で実験精度の範囲では差が見られなかった。また4.2 Kでの磁化測定でも ferro 成分はほとんど見られず、これらの事実よりコニカル構造ではないと推定できる。

(i), (ii), (iii) に対する磁気構造因子  $|F_{hkl}|^2$  は次のようになる。

(i) プロパー・スクリュー

$$|F_{hkl}|^2 \pm = \frac{1}{4} P^2 \left[ 1 + \frac{(\ell \pm \tau)^2}{C^2} \right] |G_{hkl} \pm|^2 \quad (1)$$

$$\frac{4}{3a^2} (h^2 + hk + k^2) + \frac{(\ell \pm \tau)^2}{C^2}$$

(ii) サイクロイド

$$|F_{hkl}|^2 \pm = \frac{1}{4} P^2 \left[ 1 + \frac{k^2}{a^2} \right] |G_{hkl} \pm|^2 \quad (2)$$

$$\frac{4}{3a^2} (h^2 + hk + k^2) + \frac{(\ell \pm \tau)^2}{C^2}$$

(iii) 横波正弦波

$$|F_{hkl}|^2 \pm = \frac{1}{4} P^2 \left[ 1 - \frac{1}{3a^2} (2h + k)^2 \right] |G_{hkl} \pm|^2 \quad (3)$$

$$\frac{4}{3a^2} (h^2 + hk + k^2) + \frac{(\ell \pm \tau)^2}{C^2}$$

但しここに  $P = \frac{e^2 \tau}{2mc^2} f_m(Q) \mu_{Gd}$  である。

これより 002 のサテライトの強度は(i)の場合(ii)または(iii)の場合の 2 倍となる。Gd<sub>0.85</sub>Th<sub>0.15</sub>中での Gd の磁気モーメント  $\mu_{Gd}$  が既知であるなら Fig 2 の測定結果からだけでも 002 ブラッグピークとの直接強度比較より磁気構造が(i)であるか(ii)または(iii)であるかの判別ができるが、今は  $\mu_{Gd}$  が未知であるためここには応用できない。参考のため  $s = 7/2$ ,  $T_N = 149$  K として分子場近似で求めた  $\mu_{Gd}$  と、逆に磁気構造を(i), (ii)または(iii)と仮定し、Fig 2 のデータと  $b_{Gd}$  の実測値 ( $1.17 \pm 0.15$ )  $\times 10^{-12}$  cm を用いて求めた  $\mu_{Gd}$  とを Table 1 に示しておく。これだけからはいずれのモデルがより妥当かは結論できない。

Table 1  $\mu_{Gd}$  in Gd<sub>0.85</sub>Th<sub>0.15</sub>

|                             | Molecular<br>Field Approx. | Proper Screw  | Cycloid       | Transverse<br>Sine |
|-----------------------------|----------------------------|---------------|---------------|--------------------|
| $\mu_{Gd}$<br>(in $\mu_B$ ) | 6.03                       | $5.0 \pm 1.0$ | $7.0 \pm 1.4$ | $7.0 \pm 1.4$      |

(1), (2), (3)式より明らかな如く 3 つのモデルの判定に 110 まわりの測定は有効で次回測定の予定である。002 まわりのサテライトは  $\langle 001 \rangle$  スキャンで同時に測定できたが、110 まわりを調べる場合にはステップ・バイ・ステップ  $\theta$  あるいは  $2\theta$  を変えて測定する必要があり多大の測定時間を要する。そのため回折装置を準マルチ・カウンター方式に改造し測定効率を向上させることを計画している。

### 参 考 文 献

- 1) 石川義和, 渡辺昇, 田島圭介, 神木正史, 鈴木三千郎: 核理研研究報告 6 (1973) 276.
- 2) Y. Ishikawa, N. Watanabe, K. Tajima and H. Sekine: Phys. Letters 48A (1974) 159.
- 3) 石川義和, 渡辺昇, 田島圭介, 遠藤康夫, 関根久, 鈴木三千郎, 藤井博信, 岡本哲彦: 核理研研究報告 7 (1974) 336.



## II-5 (CuNi)<sub>3-x</sub>Al<sub>1+x</sub>合金の格子緩和型変態の中性子非弾性散乱による研究

工学部金属材料 梶谷 剛・平野賢一

### § 1. 概 要

前記に引き続き,<sup>1)</sup> 本合金の(1 1 0)逆格子面での室温における非弾性散乱実験を行なった。今回の実験に用いた試料は950°Cで2時間真空中で焼鈍後0°Cの水中に焼入れ、約1ケ年間室温で時効したものである。本実験の結果、[1 1 1]規則格子反射の近傍に強度の大きいQuasi-Elastic-Peakが見つかった。この散乱ピークは<1 1 1>方向のLモード音子のダンピングと関連があると考えられる。また、<1 1 0>方向のB. C. C.の第一ブリュアン帯域の境界の近傍にも良く似た散乱ピークがあることが示された。

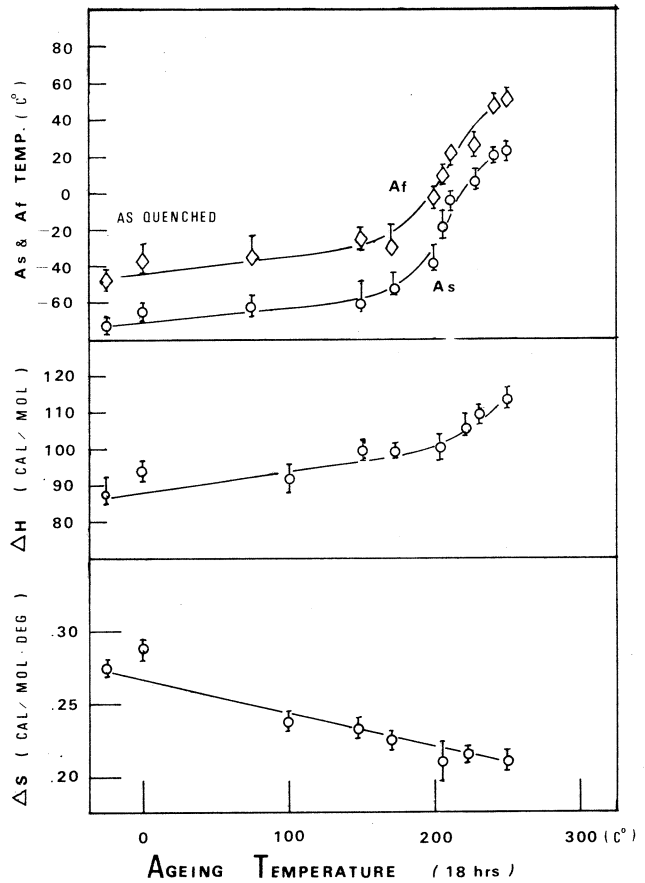
### § 2. 緒 言

金属結晶の相変態には原子の拡散を律速過程とする析出型相変態のような変態と、これを伴わない非拡散型相変態とがある。

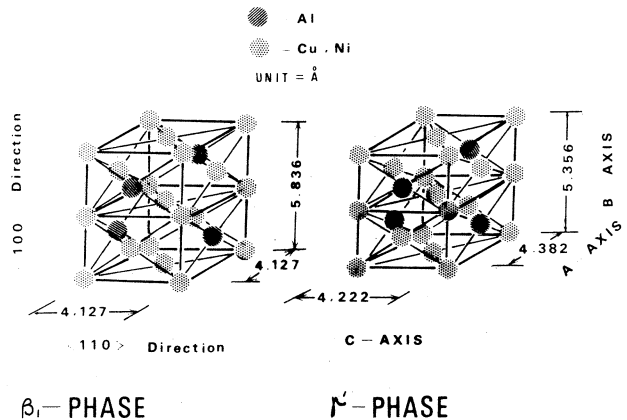
本合金はこれら2種の相変態のうちの非拡散型の相変態に属する「熱弾性型マルテンサイト変態」を起こすことが知られている。<sup>9),10)</sup> この変態の特徴については前報告<sup>1)</sup>に述べたので、ここでは省略する。著者らは本合金のマルテンサイト変態を比熱測定<sup>2)</sup>やX線回折<sup>3)</sup>の実態によっても調べている。本合金の変態に伴うエンタルピー変化、エントロピー変化、およびその試料の熱履歴による変化を求めた所次の結論を得た。変態に伴うエンタルピー変化は約100 cal/mol (約4.3 meV/atom)でありエントロピー変化は0.22 euである。変態開始および終了温度は試料の時効処理により100度程度変化し、合金の規則度(DO<sub>3</sub>構造)の上昇と共に上昇する。第1図は950°Cから0°Cの水中に焼入れた試料を横軸に示した各温度で18時間時効処理した後-100°Cから0.7~0.8°C/minの昇温速度で昇温し、長崎一高木式比熱測定装置で比熱を測定し、その結果決定された変態開始(A<sub>s</sub>)、変態終了温度(A<sub>f</sub>)、変態に伴うエンタルピー変化およびエントロピー変化量を示す。試料は冷却中にマルテンサイト変態を起こしており、β<sub>1</sub>相がγ'相に変態している。本合金のβ<sub>1</sub>相は弾性的なひずみに対して不安定であり、弾塑性変形により可逆的に変態する。この性質は熱弾性マルテンサイト変態に固有のものであり、本合金の形状記憶効果<sup>4),9),10)</sup>の原因になっている。

本合金のマルテンサイト変態に伴う格子変化の結晶学的特徴は  $\text{Cu}_3\text{Al}$  合金の場合とほぼ一致しており、大塚ら<sup>4</sup>は電子顕微鏡観察により  $(110)_H$  面が  $(001)_M$  面と平行であり  $\langle 1\bar{1}0 \rangle_H$  方向が  $\langle 010 \rangle_M$  方向と平行であることを報告している。添字のHはHeusler, MはMartensiteを示す。 $\gamma'$ 相は  $(110)_H$  面を底面とする  $18R$ 構造 ( $AB'CB'CA'BA'BC'BC'AC'AB'$ )であり、 $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ 方向のせん断変形を無視すると第2図のような格子定数変化と格子対応とがある。

本合金の相変態の反応次数は1次であるが、本合金に良く似た  $\text{Au}_x\text{Cu}_{53-x}\text{Zn}_{47}$  合金においては変態に先立ち弾性定数が低下し  $\langle 110 \rangle$ 方向の  $T_{A2}$  モードの音子が  $(\frac{2}{3}, \frac{2}{3}, 0)$  付近でソフト化する。<sup>5)</sup> 本合金においても星埜ら<sup>6)</sup>が同様の現象を見出している。しかしながら、そのソフト化は余り大きくないようである。今回は、長時間時効し、変態温度が室温に近くなった試料を用いて、T.O.F.法により逆格子空間の狭い範囲の音子の室温での



第1図 本合金の昇温過程における逆変態 (マルテンサイト  $\rightarrow \beta_1$ ) 温度, エンタルピー変化およびエントロピー変化に対する時効の影響。-5°Cのデータは30日の時効による。



第2図 せん断変形を考えない場合の変態前後の格子定数変化。 $\beta_1$ 相は  $DO_3$  構造,  $\gamma'$ 相は  $18R$  構造

エネルギー値を測定した。

### § 3. 実 験

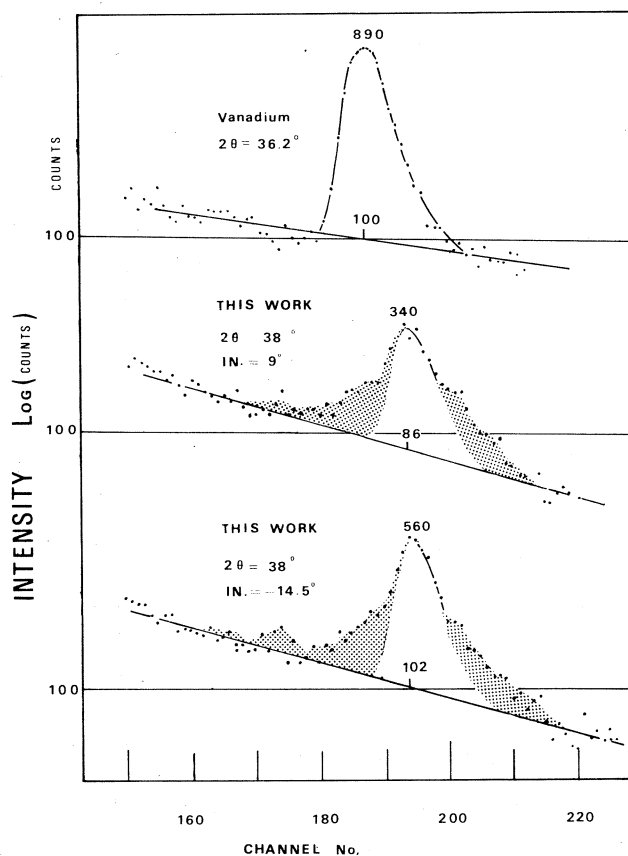
試料は前回の実験同様68Cu 4 Ni 28 Al 合金の約2 C. C.の単結晶試料を用いた。中性子分光装置は渡辺ら<sup>7),8)</sup>によって作製された固定2θ高分解能分光装置を使用した。試料はBridgman法によって作成し、950°Cで2時間焼鈍した後室温で約1ヶ年間時効したものを用いた。

相変態に伴う $\langle 1 \bar{1} 0 \rangle$ 方向の(1 1 0)面上のせん断変形の容易さや格子間隔のわずかな変化とその可逆性から、通常の1次相変態には無い、音子のソフト化、とりわけ $\langle 1 \bar{1} 0 \rangle$ 方位の $T_{A_2}$ モードのソフト化が予想され、規則度の低い試料でも一部その事実があるため、静的せん断変形の周期に対応する逆格子点( $\frac{2}{3} \sim \frac{3}{4}$ ,  $\frac{2}{3} \sim \frac{3}{4}$ , 0)の音子を測定しようとした。

また、結晶学的研究から、本合金のマルテンサイト変態においては、せん断変形と並び、格子定数変化に関しても音子のソフト化が予想され、対称性の高い軸でのLモードの情報をも得ようとした。

第3図は試料の(1 1 0)<sub>H</sub>面内の $\langle 1 \bar{0} 0 \rangle$ 方位から14.5°および9°傾いた方位から14.5 meVの単色中性子を入射させた時の2θが38°に固定されたカウンタに集積されたデータである。図中には渡辺ら<sup>7),8)</sup>によるバナジウムの多結晶についての同様なデータも示してある。後者の試料のデータには Coherent-

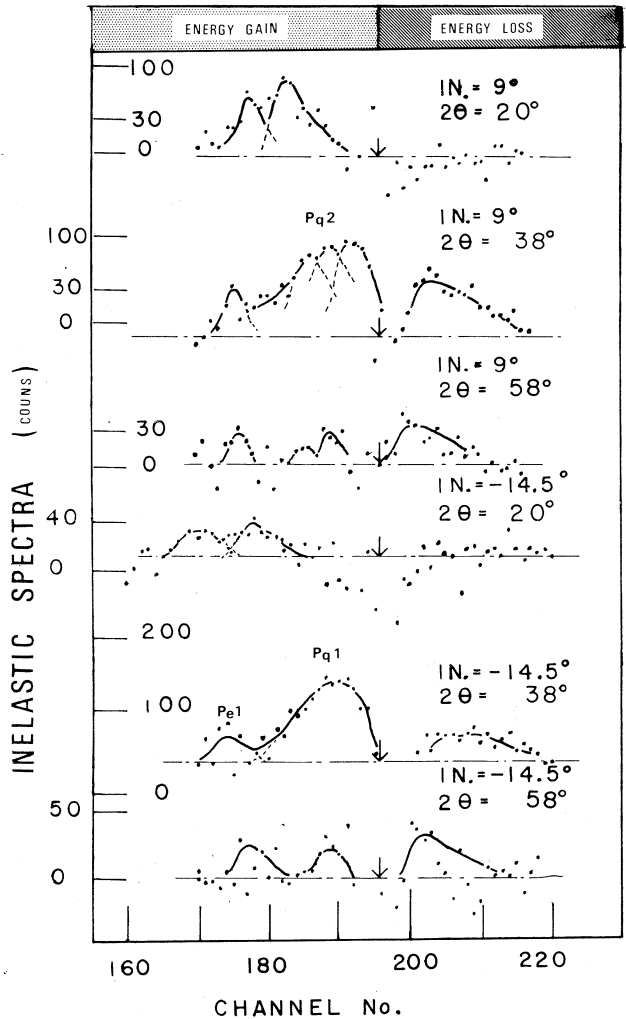
Inelastic - Scattering のピークが含まれておらず、ほぼ完全な干渉散乱に対するバックグラウンドの形を示している。分光装置に



第3図 バナジウムによる非弾性散乱ピーク(上図)と、 $(\text{CuNi})_{3-x}\text{Al}_{1+x}$ の散乱中性子スペクトル(中, 下図)

装着された3本のカウンタが集積したデータからこのバナジウムのデータを用いて、バックグラウンドを差し引いた結果を第4図に示す。データの集積は4時間程度であったため、非干渉性弾性散乱ピークで測った $S/N$ 比が6.5 dB程度で、バナジウムのデータの10 dBより劣るため、やゝ精度が悪いが入射線方向 $-14.5^\circ$ の場合の $2\theta = 38^\circ$ のカウンタが捕捉したUp-Scatteringのピーク( $Pq1$ )の巾は14.8 meVもあり、散乱強度分布の形が入射線の強度分布の形と大きく異っており、通常の干渉性非弾性散乱のピークではない。一方、同じカウンタが集積した入射角9度の場合のUp-Scatteringのピーク( $Pq2$ )の巾は17.3 meVもある。このピークにはコブ状のサブピークが3つあり、非弾性散乱ピークが3つ(あるいは2つ)重畳されているようにも見えるが、これらも巾広い非弾性散乱強度の上に乗っているとも考えられる。

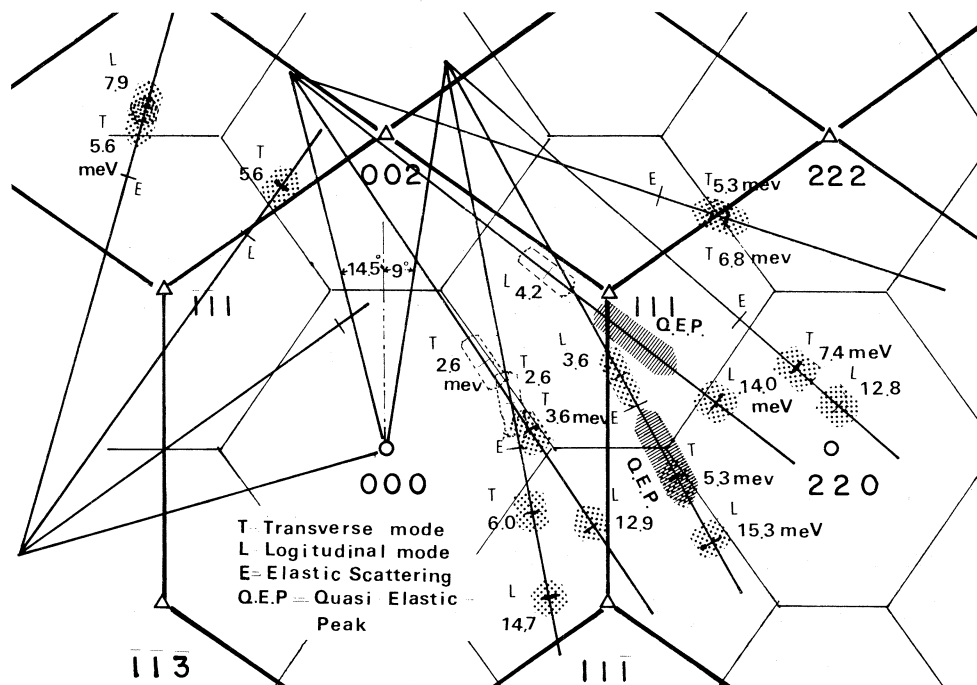
この2例のピークのエネルギーロス側の散乱強度は、バックグラウンドを差し引く際の差し引き方に影響される所が大きく、確実なことはいえないが、今回の実験の精度から見て、存在すると考えてよいだろう。非弾性散乱はエネルギーゲイン側にもロス側にも存在するが、エネルギーゲイン側のピーク( $Pe1$ )の形は入射線の強度分布の形が保存されており通常の非弾性散乱によるものである。ゲイン側の $Pq1$ ピークは準弾性散乱(Quasi-Elastic



第4図 集積したデータからバックグラウンドを差し引いたもの、図中のINは入射線の方位と $\beta_1$ 相<1 0 0>方位の為す角。正值は<0 0 1>方向から見て右回転の側に取った。矢印はエネルギー遷移移のチャンネル

Scattering) のピークであると考えられる。入射角が $-14.5^\circ$ の場合の $2\theta = 38^\circ$ の弾性散乱波の逆格子空間での反射点は $DO_3$  構造の $[1\ 1\ 1]$ 逆格子点の極く近傍にある。一方、入射角が $9^\circ$ の場合には $[1\ 0\ 0]$ に近い所になっている。

#### § 4. 討 論



第5図  $(1\ 1\ 0)$  面における入射線と散乱線、および非弾性散乱ピークの位置。実験は室温で行なった。太線は $B.C.C.$ の第一ブリュアン帯域、細線の六角は $DO_3$ の第一ブリュアン帯域、 $\circ$ は $B.C.C.$ の逆格子点、 $\triangle$ は $DO_3$ の規則逆格子点である。入射線のエネルギーは $14.5\text{ meV}$ である。 $(1\ 1\ 1)$ と $(1\ 1\ 0)$ の近傍に特異な反射強度がある。網目は分解能<sup>8)</sup>を示す。

以上の実験結果を図示したのが第5図である。図中の太線は $B.C.C.$ の第一ブリュアン帯域の、細線の六角形は $DO_3$ の第一ブリュアン帯域の、それぞれ境界である。図中の網目は非弾性散乱データの分解能を示す。分解能の計算法は文献7および8に従った。楕円の長円方向の長さは散乱ピークの半値巾には一致している。

$[1\ 1\ 1]$ 逆格子点近傍の擬弾性ピークは散乱波の方位からみて、 $L$ モードの音子によるものと考えられる。もしもエネルギー遷移を考えないなら、このようなdiffuseしたピークの原

因は  $[1 \ 1 \ 1]$  逆格子点が広がりを持つことによると考えられる。diffuseした逆格子点は電顕内の回折パターンやX線写真にもしばしば見られ、その原因としては、長範囲規則度が1未満で、短範囲規則状態にあるため；析出物が存在するため格子が部分的にひずんでいるため；あるいは静的な格子変化ではなく、格子中にlocalな極く低エネルギーの格子振動が起こり静的変形がかなり長時間存在するため、などが考えられる。もしも析出物や短範囲規則状態が存在すると考えると、散乱ピークは、エネルギー遷移がほぼ零の、弾性散乱ピークと良く似た鋭いピークとなるはずであって、エネルギー交換が広いエネルギー範囲で起こり、ピークの形が入射線の分布形から大きく異なるような現象はない。従って、このピークは結晶全体の不安定化と密接に関連していると考えられる。 $[1 \ 1 \ 0]$ に近い点の同様なピークも前述のような考察から結晶全体の  $\langle 1 \ 1 \ 0 \rangle$  方向の  $T_{A1}$  モード的な振動 (shear wave) の凍結によると考えられる。

この2つの現象は本合金のマルテンサイト変態の可逆性を説明するには極めて都合が良く、静的なせん断変形が容易化し、格子の伸縮が低い活性化エネルギーで、できるようになる。エネルギーロス側の非弾性散乱を存在するものと考え、これらは  $\langle 1 \ 1 \ 1 \rangle$  方向の  $[\frac{1}{2} \ \frac{1}{2} \ \frac{1}{2}]$  点近傍でのTモードのソフト化の可能性を示している。

## § 5. 結 論

今回の実験で明らかになった点は次の諸点である。

1.  $(\text{Cu Ni})_{3-x} \text{Al}_{1+x}$  合金のマルテンサイト変態では  $\langle 1 \ 1 \ 0 \rangle$  軸上の shear wave だけが凍結するのではない。
2.  $[1 \ 1 \ 1]$  逆格子点の近傍にはLモード的な Quasi-Elastic Peak が存在する。
3.  $[1 \ 1 \ 0]$  逆格子点の近傍にはTモード的な広いエネルギー分布を持つ低エネルギーの音子の Peak がある。
4. (やや不確実であるが)  $[\frac{1}{2} \ \frac{1}{2} \ \frac{1}{2}]$  に近い所にも低いエネルギーのTモードの音子が存在する。

## 参 考 文 献

1. 梶谷剛, 平野賢一: 核理研研究報告 **7** (1974) 342.
2. 梶谷剛, 平野賢一: to be published.
3. 梶谷剛, 平野賢一: 未発表.
4. 山田安定: 日本物理学会 1973 年春季大会講演.
5. 星埜禎男: in press.
6. K. Otsuka & K. Shimizu: Phil. Mag. **24** (1971) 481.
7. 渡辺昇, 石川義和, 都築一雄: 核理研研究報告 **6** (1973) 1350.
8. N. Watanabe, Y. Ishikawa & R. Tsuzuki: Nucl. Inst. Meth. **120** (1974) 293.
9. 永沢耿: 日本金属学会報 **11** (1972) 47.
10. 本間敏夫: 日本金属学会報 **12** (1973) 157.

## II - 6 ネマティック液晶相の電場印加による構造変化

核理研 新村 信雄

### § 1. 序

ネマティック液晶にDC電場を印加すると光の透過率が減少する現象は最初Williamsにより見出され、<sup>1)</sup>その後RCAグループにより精力的に研究されてきた。Heilmeyerはこの現象の機構を解明する目的で詳細な検討を続け、動的散乱モード (dynamic scattering mode) を提唱した。<sup>2)</sup>また、このような現象はDCだけでなく、AC電場でも見られることが判明し、これらの現象を統一的に理解することが必要になってきた。ORSAY液晶グループ<sup>3)</sup>は、これらの現象を、まず、DCで起る現象、低周波AC領域で起る現象、そして高周波・高電界AC領域で起る現象の3つに分類し、そのうちAC領域で起る現象の閾値電圧、閾値周波数、横ゆれ振動 (bending oscillation) の波数ベクトル $\mathbf{Q}$ の周波数依存性と磁場依存性等を理論的に求め、実験値と比較検討しており、それらの一致は良好である。しかし、これらはマクロな現象論的取扱いが主であり、電場あるいは磁場印加により分子がどのような効果を受け、液晶相の構造 (分子の配向、分子間の相対的存在確率等) がどのような変化を受けるかという、ミクロな立場からの検討は、その重要性にもかかわらず、実験・理論共に未だ充分なされていない。

液晶のミクロな構造決定はX線・中性子線等の散乱実験によるのが適当であり、事実、これらにより液晶の構造決定を目的とした実験はいくつかなされ、報告されている。<sup>4-10)</sup>しかし、電場等印加後の初期段階での液晶相での構造変化の過渡状態をミクロな分子レベルで調べることはこの現象の機構を解明するのに重要な手がかりを与えられ、そのような実験例はない。

電場印加後の液晶の構造の時間変化 (構造変化の過渡状態) をミクロな分子レベルでの構造変化として観測するため、著者らはパルス中性子を利用して実験を行い preliminary なデータが得られたので報告する。

### § 2. 実 験

#### 2.1 試 料

用いたネマティック液晶は Para-Azoxyanisole (PAA) であるが、中性子散乱実験では水素による非干渉性散乱によるバックグラウンド増を除くため、全水素を重水素に置換した試料 ( $d_{14}$



—PAA)を用いた。試料は第1図に示すように内部にアルミニウム極板を挿入したシリカガラス管内に封ぜられている。極板間隔は5 mmである。これを第2図に示すような炉中におき、温度制御、パルス電界印加が行なえるようになっている。試料温度は $124 \pm 0.5^\circ\text{C}$ に保たれ、パルス矩形波電界 ( $2 \text{ kV/cm}$ ) が約周波数  $10\text{Hz}$  で印加される。

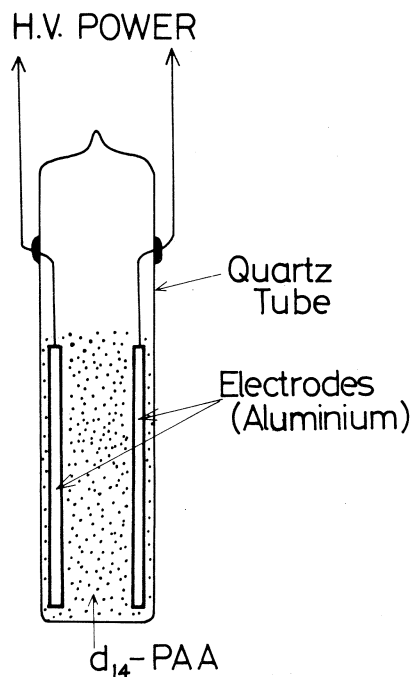
## 2.2 過渡現象の構造解析<sup>11,12)</sup>

本実験に用いた過渡現象の構造解析の詳細は、すでに文献(12)で述べてあるので、ここでは概略のみを説明する。第3図に示すようにパルス中性子発生と同期して試料に正電界 ( $2 \text{ kV/cm}$ ) を印加する。パルス中性子の周期は約  $10 \text{ msec}$  であるので、液晶の過渡現象の緩和時間を考慮して、正電界印加中、4回パルス中性子を発生させ、散乱データは夫々別の時間分析器に集積する。液晶に負電界を印加し(約  $80\text{msec}$ )、初期状態に戻して再び、上述の過程を行い、十分なデータ量が集積するまでくり返す。

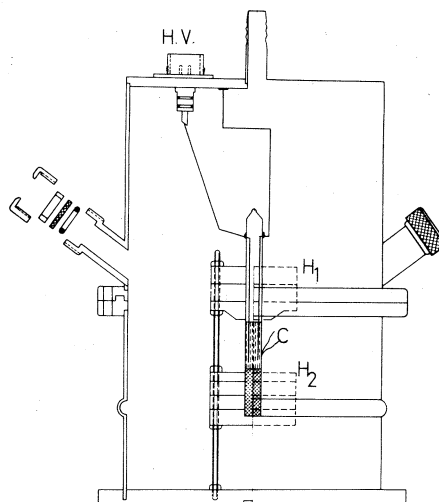
## 2.3 中性子散乱実験

分子の配向の情報は主に  $Q = (4\pi \sin \theta / \lambda)$  の小さい領域にあるので散乱角  $2\theta = 30^\circ$  で TOF法中性子散乱実験を行った。パルス中性子源には東北大学  $300 \text{ MeV}$  ライナック設置のものを用いた。

TOFスペクトルから構造因子  $S_m(Q)$  を求める過程は文献(10)に詳しく書いたもので、ここでは省略する。



第1図 試料容器



第2図 真空電気炉, H.V. : 高電界コネクタ  
H<sub>1</sub>, H<sub>2</sub> : ヒーター, C : 熱電対

§ 3. 結果と議論

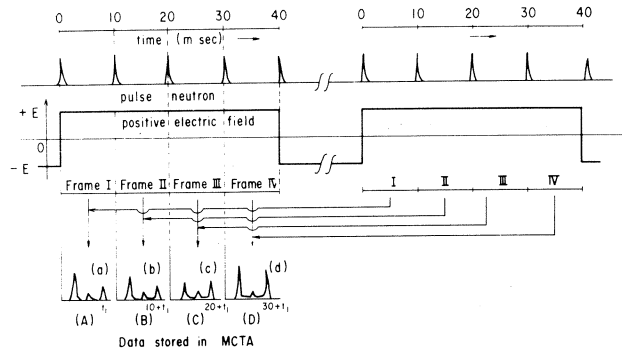
上記の散乱角で得られるスペクトルの  $Q$  の範囲は  $1 \text{ \AA}^{-1} \sim 5 \text{ \AA}^{-1}$  で第1ハローと第2ハローが観測される。第5図, 第6図に参考のため, 文献(10)に載っている液晶相および等方性液体相の  $S_m(Q)$  の図を示しておく。本実験では第1ハローと第2ハローの電界印加後の強度の時間変化が得られたので, 第4図に示す。ここで強度とは各ハローの積分強度を意味し, それを任意スケールであらわしてある。規格は正電界印加直前の点で1にしてある。

この図で特徴的なことは, 第1ハロー, 第2ハローともに約 20 msec 近辺で強度が最小値をとり似たような時間変化をすることである。これは定性的には次のように説明できる。

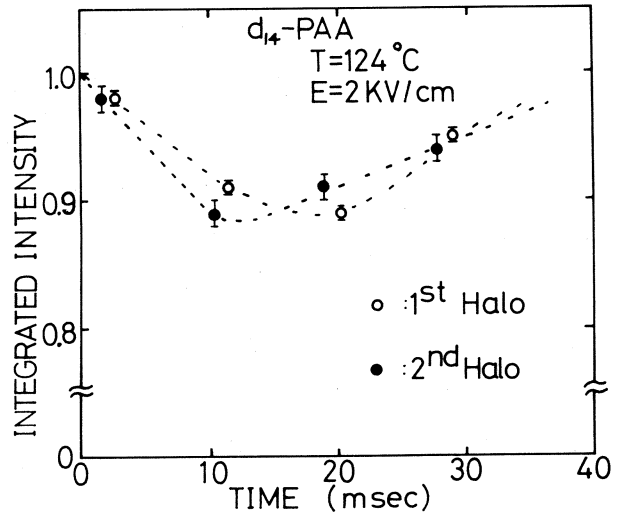
構造因子  $S_m(Q)$  は適当な座標変換と, ある種の仮定をおくことにより, 分子内からの寄与による項と, 分子間の寄与による項と分子中心の存在確率分布による項とに分離できる。<sup>13-16)</sup>

$$S_m(Q) = S_{intra}(Q) + S_{inter}(Q) = S_{intra}(Q) + F_{orient}(Q) \{ S_o(Q) - 1 \} \quad (1)$$

$S_{intra}(Q)$  は孤立分子の構造がわかっているならば計算でき, その結果は第7図に示してある。 $F_{orient}(Q)$  は, 液晶中で分子が全く平行配列をしているなら,  $S_{intra}(Q)$  と同一値になるが, 事実, ネマティック液晶ではそれに近い構造が予想されるので, 第2ハローには  $S_{intra}(Q)$  と  $F_{orient}(Q)$  の両方の寄与があると考えられる。 $S_{intra}(Q)$  は電場の影響を余り受



第3図 過渡現象の構造解析説明図<sup>12)</sup>



第4図 第1ハロー, 第2ハローの強度の時間変化

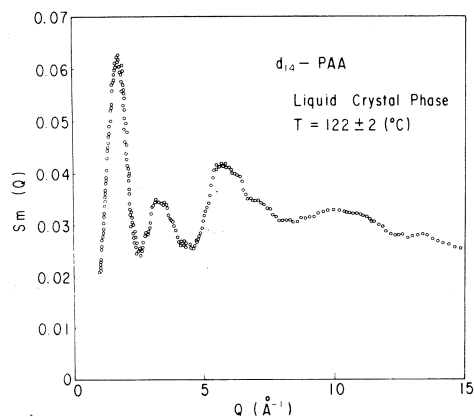
けないと思われるので、第2ハローの強度減少は、分子の平行配向がくずれた結果と推測される。

液晶中での分子配向がほぼ平行であると仮定すると、(1)式から  $S_o(Q)$  が求められ、 $Q = 1.8 \text{ \AA}^{-1}$  にするどいピークが得られることから、第1ハローは分子中心の存在確率分布に依るものと考えられる。第1ハローの強度減少は、 $Q = 1.8 \text{ \AA}^{-1}$  は  $r$  空間では  $3.5 \text{ \AA}$  になるので、この位置にある分子の存在確率が減少したことを意味している。

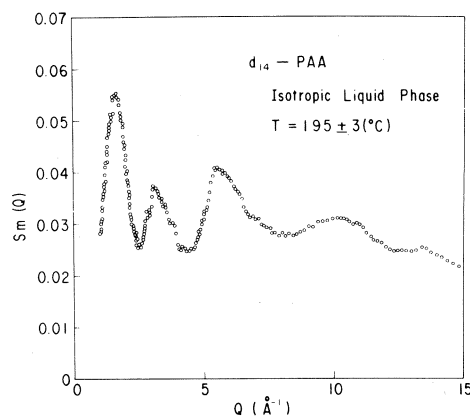
以上のことから、電界印加後 20 msec 頃、ネマティック液晶中での分子の平行配向性が乱れると同時に分子配列の規則性が最も減少するが、それから序々にこれらは再びもとの状態に回復していくことがわかる。更に定量的な検討は現在行っているが、ミクロな分子レベルで、電場印加による構造変化の初期過程を取り扱えることが可能になってきた。

種々技術的な討議をしていただいた武藤正勝氏に感謝致します。

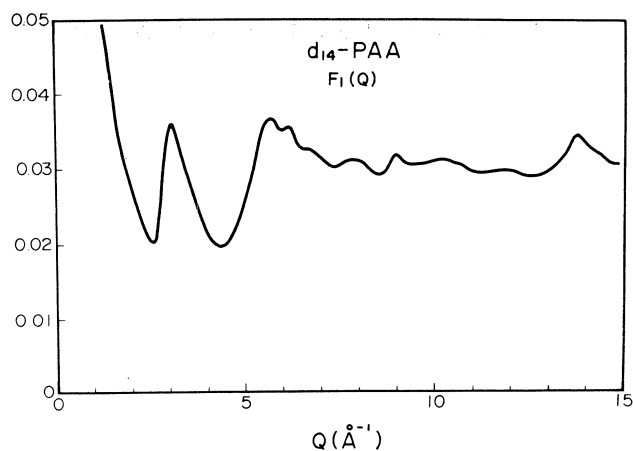
原稿を読んでコメントをいただいた九州大学平川一美助教授に感謝致します。



第5図 液晶相の構造因子<sup>10)</sup>



第6図 等方性液体相の構造因子<sup>10)</sup>



第7図 分子内寄与による構造因子

## 参 考 文 献

- 1) R. Williams : J. Chem. Phys **39** (1963) 384.
- 2) G. Heilmeyer, L. Zanon and L. Barton : Proc. IEEE **56** (1968) 1162.
- 3) ORSAY Liquid Crystal Group : Molec. Cryst. Liq. Cryst **12** (1971) 251.
- 4) I. G. Chistyakov, B. K. Vainshtein : Soviet Physics Crystallography **8** (1964) 458.
- 5) I. G. Chistyakov : ibid **8** (1964) 691.
- 6) I. G. Chistyakov, W. M. Chaikowsky : Molec. Cryst. Liq. Cryst **7** (1969) 269.
- 7) T. Takeuchi, H. Terauchi, K. Nakatsu, S. Kusabayashi : Japan J. appl. Phys. **12** (1974) 1639.
- 8) R. Pynn, K. Otness, T. Riste : Solid State Commun. **11** (1972) 1365.
- 9) N. Niimura : Phys. Letters **48 A** (1974) 375.
- 10) N. Niimura : Molec. Cryst. Liq. Cryst. (to be published).
- 11) N. Niimura, M. Muto : J. Phys. Soc Japan **35** (1973) 628.
- 12) N. Niimura, M. Muto : Nucl. Instrum Method. **125** (1975).
- 13) P. A. Egelstaff, D. I. Page, J. G. Powles : Molecular Phys. **20** (1971) 881.
- 14) J. G. Powles : Advances in Phys. **22** (1973) 1.
- 15) K. E. Gubbins, C. G. Gray, P. A. Egelstaff, M. S. Ananth : Molecular Phys. **25** (1973) 1353.
- 16) N. Niimura : Phys Letters **48 A** (1974) 377.

## II - 7 Annealing Effects in Recoil-Damaged Uranium Dioxide Studied by $\text{Np}^{237}$ 59.54 keV Mössbauer Effect.

工学部無所属 松井啓治\*  
選 研 大川 淳\*\*  
東北工大 庄司忠良\*\*\*

Annealing effects in the Mössbauer spectrum of Np isomer are studied for U parent probe implanted into  $\text{UO}_{2.05}$  through photonuclear reaction. A quadrupole quintet ( $\text{Np}^{+4}$ ) with  $e^2qQ/4 = 1.5 \pm 0.2$  cm/s and  $\eta = 0.80 \pm 0.05$  is found to change into singlet after  $200^\circ\text{C} \times 30$  min pulse annealing. A quadrupole triplet ( $\text{Np}^{+4}$ ) with  $e^2qQ/4 = 0.49 \pm 0.06$  cm/s and  $\eta = 1$  becomes dominant after  $600^\circ\text{C}$  annealing. Singlets distributed over  $\text{Np}^{+4}$  and  $\text{Np}^{+5}$  isomer shift ranges are found after  $800^\circ\text{C}$  annealing.

The annealing effect at  $200^\circ\text{C}$  is considered to arise from simple recombination of oxygen vacancy and oxygen interstitial in the near vicinity of the probe ion. Some models of the defects are discussed in terms of lattice efg. Higher temperature anneals are thought to induce clustering of defects involved in the spike produced by  $\text{U}^{237}$  recoil. The rate of recovery of the spike seems to be controlled by over-all excess oxygen content.

---

K. Matsui:\*

N. G., Faculty of Engineering

A. Ohkawa:\*\*

Research Institute of Mineral Dressing and Metallurgy

T. Shoji:\*\*\*

Tohoku Institute of Technology

## § 1.

A photonuclear reaction  $U^{238} (\gamma, n)$  has been found to be a good means to implant a Mössbauer parent probe  $U^{237}$  (6.75 days) into uranium compounds. The parent probe is recoiled-off from its lattice site to continue hard-sphere type collisions, initially mainly with oxygens and later with uranium, finally to find itself in a displacement spike. The high energy resolution of the relevant  $Np^{237}$  59.54 keV Mössbauer effect<sup>1)</sup> is suitable for the study of radiation damage thus formed.

A preliminary stage of the experiment<sup>2)</sup> on uranium dioxide indicated unresolved lines over a velocity range  $\pm 1$  cm/s after linac irradiation. A narrow line with 0.15 cm/s in width and +0.093 cm/s (relative to  $NpO_2$ ) in isomer shift was found in another specimen treated in hydrogen for 60 min at 800°C. The latter spectrum was ascribed to  $Np^{+4}$  at defect-free regular uranium site.

The present report deals with a fragmentary annealing experiment on  $UO_{2.05}$ , which had to be stopped at the end of June 1974 by the modification of radio isotope regulation rules in LNS.

## § 2.

Crystallites with defined stoichiometry  $UO_{2.05}$  of 100 mg in weight were irradiated for 8 hrs by the bremsstrahlung from 2 mm thick Pt convertor which was bombarded by 50 MeV linac electrons of about 100  $\mu$ A. Water cooling of the specimen was made as before to avoid radiation heating as much as possible. A very rough estimation gives 50  $\mu$ C for the source strength of  $U^{237}$ .

The signal-to-noise ratio, i.e., 59.5 keV  $\gamma$ -rays/backgrounds, was found to be about 3, employing a 5 mm thick Ge(Li)

detector and carefully shielding unnecessary area of the 200 mg/cm<sup>2</sup> Np<sup>237</sup>O<sub>2</sub> absorber (140 μC). Fast shaping was made in main amplifier to reduce saturation in the PHA system. The s/n ratio of the Mössbauer counts, registered in a 1024 ch time analyser, was improved by a factor of 15 as compared to the previous experiment made with NaI(Tl) detector.

To adapt to the horizontal window of the detector, the source was set at the lowest point of a long Al rod suspended vertically in a glass dewar vessel, to be driven at its mid-point by a transducer giving horizontal motion to the source. The lower half of the rod was immersed in liquid nitrogen to hold the source and absorber at 78°K. Velocity calibration was made by a Co<sup>57</sup> source set at the highest point of the rod. With careful balancing, linearity of velocity scale was attained over the calibrated range ± 0.85 cm/s with α-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Annealings were carried out in argon to keep the overall stoichiometry unchanged.

### § 3.

A series of Mössbauer spectra are shown in Fig.1. These spectra are corrected for parabolic baseline curvatures due to source motion. As the driving system was not of simple nature, the calibrated range in velocity scale is specified in Fig.1, to indicate that absorption dip positions outside of the calibrated range must be taken with reservation. As the spectra are in fact complex, the 30 lines found in Fig.1 are listed up in Tab.I with their line positions, line widths (the minimum observable width 0.0073 cm/s), and relative intensities in the measured velocity range.

The quadrupole splitting pattern for the  $5/2^- - 5/2^+$  Mössbauer transition<sup>3)</sup> is composed of quintet lines, as for

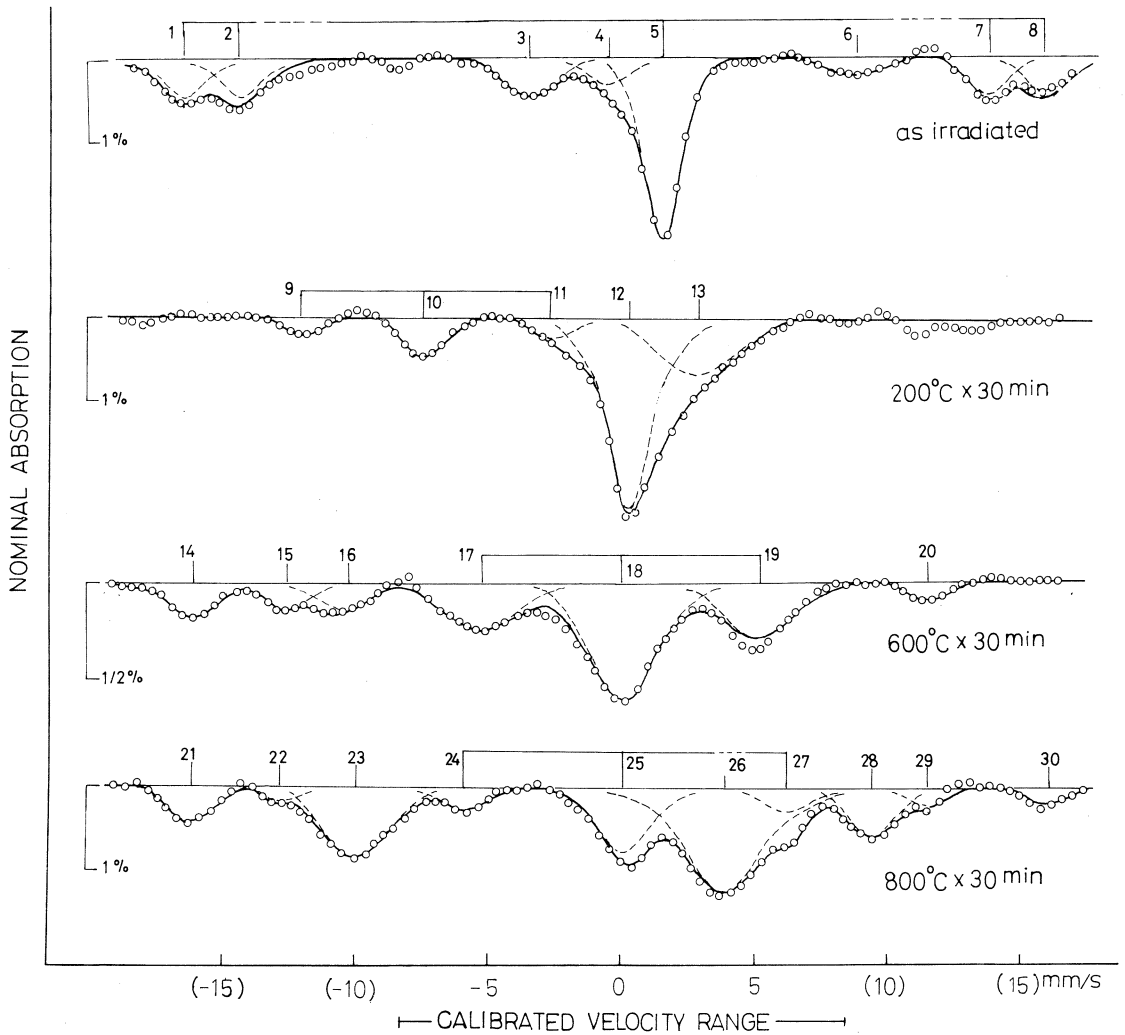


Fig.1 Spectra found in irradiated and annealed  $UO_{2.05}$  single crystallites. Both of the  $UO_{2.05}$  source and  $NpO_2$  absorber were kept at  $78^\circ K$ . The annealings were made in argon.

allowed transitions between substates. Let us write the line positions and line intensities as  $E(0)$ ,  $E(\pm 1)$ ,  $E(\pm 2)$  and  $I(0)$ ,  $I(\pm 1)$ ,  $I(\pm 2)$ , respectively. Here  $E(0)$  coincides with isomer shift  $\delta$  and  $I(0)$  is normalized to unity.



Table I: Analysis of Resonant Lines

| No                       | Line Position         | Width     | Intensity | Assignment                           |
|--------------------------|-----------------------|-----------|-----------|--------------------------------------|
| <u>after irradiation</u> |                       |           |           |                                      |
| 1                        | $-1.7^* \pm 0.1$ cm/s | 0.16 cm/s | 0.19      | $Q_1 = 1 + 2 + 5 + 7 + 8$            |
| 2                        | $-1.5^* \pm 0.1$      | 0.16      | 0.19      | $\delta = +0.093 \pm 0.01$ cm/s      |
| 5                        | $+0.09 \pm 0.0$       | 0.16      | 78 % 1    | $W/W_0 = 22$                         |
| 7                        | $+1.3^* \pm 0.1$      | 0.16      | 0.19      | $e^2 qQ/4 = 1.5 \pm 0.2$ cm/s(abs)   |
| 8                        | $+1.5^* \pm 0.1$      | 0.16      | 0.19      | $\eta = 0.80 \pm 0.05$               |
| 3                        | $-0.42 \pm 0.03$      | 0.23      | 9.7       |                                      |
| 4                        | $-0.12 \pm 0.04$      | 0.26      | 6.7       | $T_1 = 9 + 10 + 11$                  |
| 6                        | $+0.71 \pm 0.06$      | 0.18      | 5.5       | $\delta = -0.77 \pm 0.03$ cm/s       |
| <u>200°C x 30 min</u>    |                       |           |           |                                      |
| 9                        | $-1.2^* \pm 0.05$     | 0.19      | 0.37      | $W/W_0 = 26$                         |
| 10                       | $-0.77 \pm 0.03$      | 0.19      | 15.9 1    | $e^2 qQ/4 = 0.49 \pm 0.09$ cm/s(abs) |
| 11                       | $-0.29 \pm 0.04$      | 0.19      | 0.37      | $\eta = 0.9 - 1.0$                   |
| 12                       | $+0.01 \pm 0.01$      | 0.20      | 56.0      | $S_1 = 12$                           |
| 13                       | $+0.27 \pm 0.04$      | 0.35      | 28.1      | $\delta = +0.01 \pm 0.01$ cm/s       |
| <u>600°C x 30 min</u>    |                       |           |           |                                      |
| 14                       | $-1.6^* \pm 0.1$      | 0.23      | 8.4       | $W/W_0 = 27$                         |
| 15                       | $-1.3^* \pm 0.1$      | 0.20      | 6.4       | $S_2 = 13$                           |
| 16                       | $-1.0^* \pm 0.05$     | 0.25      | 8.0       | $\delta = +0.27 \pm 0.04$ cm/s       |
| 17                       | $-0.54 \pm 0.04$      | 0.31      | 0.39      | $W/W_0 = 48$                         |
| 18                       | $-0.01 \pm 0.03$      | 0.31      | 71.9 1    | $T_2 = 17 + 18 + 19$                 |
| 19                       | $+0.51 \pm 0.05$      | 0.31      | 0.39      | $\delta = -0.01 \pm 0.03$ cm/s       |
| 20                       | $+1.1^* \pm 0.1$      | 0.22      | 5.3       | $W/W_0 = 42$                         |
| <u>800°C x 30 min</u>    |                       |           |           |                                      |
| 21                       | $-1.6^* \pm 0.1$      | 0.23      | 7.6       | $e^2 qQ/4 = 0.49 \pm 0.06$ cm/s(abs) |
| 22                       | $-1.3^* \pm 0.1$      | 0.22      | 2.7       | $\eta = 0.9 - 1.0$                   |
| 23                       | $-1.0^* \pm 0.05$     | 0.33      | 21.0      | $S_4 = 23$                           |
| 24                       | $-0.59 \pm 0.04$      | 0.25      | 0.37      | $\delta = -1.00 \pm 0.05$ cm/s       |
| 25                       | $+0.01 \pm 0.02$      | 0.25      | 25.5 1    | $W/W_0 = 46$                         |
| 27                       | $+0.61 \pm 0.05$      | 0.25      | 0.37      | $T_3 = 24 + 25 + 27$                 |
| 26                       | $+0.38 \pm 0.03$      | 0.32      | 29.3      | $\delta = +0.01 \pm 0.02$ cm/s       |
| 28                       | $+0.92^* \pm 0.05$    | 0.22      | 9.1       | $W/W_0 = 35$                         |
| 29                       | $+1.1^* \pm 0.1$      | 0.20      | 2.5       | $e^2 qQ/4 = 0.57 \pm 0.08$ cm/s(abs) |
| 30                       | $+1.6^* \pm 0.1$      | 0.18      | 2.3       | $\eta = 0.9 - 1.0$                   |
| <u>800°C x 30 min</u>    |                       |           |           |                                      |
| 21                       | $-1.6^* \pm 0.1$      | 0.23      | 7.6       | $S_3 = 26$                           |
| 22                       | $-1.3^* \pm 0.1$      | 0.22      | 2.7       | $\delta = +0.38 \pm 0.03$ cm/s       |
| 23                       | $-1.0^* \pm 0.05$     | 0.33      | 21.0      | $W/W_0 = 44$                         |
| 24                       | $-0.59 \pm 0.04$      | 0.25      | 0.37      |                                      |
| 25                       | $+0.01 \pm 0.02$      | 0.25      | 25.5 1    |                                      |
| 27                       | $+0.61 \pm 0.05$      | 0.25      | 0.37      |                                      |
| 26                       | $+0.38 \pm 0.03$      | 0.32      | 29.3      |                                      |
| 28                       | $+0.92^* \pm 0.05$    | 0.22      | 9.1       |                                      |
| 29                       | $+1.1^* \pm 0.1$      | 0.20      | 2.5       |                                      |
| 30                       | $+1.6^* \pm 0.1$      | 0.18      | 2.3       |                                      |

\* outside of calibrated velocity range

The pattern is sensitive to asymmetry parameter  $\eta$  of efg tensor, which is uniquely determined by measurement.  $\eta = 0$  gives an equidistant symmetric quintet with  $I(\pm 1) = 0.302$  and  $I(\pm 2) = 0.189$ , if a very good approximation  $Q(5/2^-) = Q(5/2^+)$  is adopted. Relevant quadrupole splitting constant  $e^2 qQ/4$  is given by  $[E(+1) - E(-2)]/1.8$ . The other extreme  $\eta = 1$  leads to a symmetric triplet with sideline intensity  $I(\pm 1) + I(\pm 2) = 0.36$ . Much weaker outer lines appear from forbidden transitions.  $e^2 qQ/4$  is expressed by  $[E(+1) - E(-1)]/2.12$ .

On the left column of Tab.1, 8 dominant components (with relative intensities larger than 10%) are assigned. In deriving triplets  $T_1$ ,  $T_2$  and  $T_3$ , the sideline intensities are confounded with 0.36 ( $\eta = 1$ ), taking experimental accuracy into account. The  $\eta$  value =  $0.80 \pm 0.05$  for quintet  $Q_1$  is determined by line positions. The sideline intensities  $\sim 0.19$  are in accord with  $\sim 0.18(\text{cal})$ , within experimental accuracy. The center-of-gravity of these sidelines does not coincide with the central line position, probably because of non-linearity in the velocity scale. Such a non-linearity slowly increasing with velocity is difficult to discriminate from the baseline curvature due to source motion.

#### § 4.

In the isomer shift scale derived by many investigations on Np and Am compounds, Np(IV) and Np(V) are roughly located at  $(-0.5, +0.5)$  and  $(-3, -0.5)$  cm/s, respectively.<sup>4)</sup> It seems that dominant resonance lines have isomer shift in Np<sup>+4</sup> range until annealing proceeds above the temperature of single phase region, 430°C for UO<sub>2.05</sub>.<sup>5)</sup> About 20-30% of the measured spectra are found in Np<sup>+5</sup> range for the anneals at 600 and 800°C.

It is rather surprising to find a complicated spectrum after 800°C annealing, as shown in Fig.1, in marked contrast to the simple spectrum found previously in a specimen treated in hydrogen. A way to understand this effect is as follows. Annealing in hydrogen at 800°C effectively reduces excess oxygen. As the excess oxygen in  $UO_{2+x}$  is believed to exist in the form of clusters composed of interstitial oxygens and oxygen vacancies,<sup>6)</sup> the net flow of excess oxygen to outside of the displacement spike will accelerate its recovery. In the specimens treated in argon as is the present case, recovery of the spike will be retarded.

The hf interactions "seen" by the Mössbauer probe are essentially of short-range. The relatively simple structures and especially their narrow line widths found in the spectra after irradiation and 200°C annealing suggest the near environments of the probe are kept rather simple, although many defects are present in the spiked region around the probe. The broadened spectrum after 600°C annealing shows an onset of clustering of defects in the spike. These points of view must of course be examined by more extensive experiments.

Before entering into discussions on defect structures, some points of quadrupole interaction<sup>7)</sup> are recalled. The efg at probe nucleus is composed of contributions of valence electrons and of lattice ions, which add together with Sternheimer's shielding factors as their coefficients, i.e.,  $q = (1-R)q_v + (1-\gamma_\infty)q_L$ . The  $q_v$  is given by averaging efg operator for total wavefunctions of valence electrons, while  $q_L$  is obtained by lattice sum.

It is known that high oxidation states of actinides,  $Np^{+4}$ - $Np^{+7}$  for example, can be approximated by corresponding  $f^n$  configurations of trivalent rare earth ions,<sup>8-10)</sup>  $Nd^{+3}$  ( $f^3$ ) -  $La^{+3}$

( $f^0$ ) in this case. The f-electrons couple in |LSJ $J_z$ > scheme due to large spin-orbit coupling constants. Owing to the screening effect of outer  $s^2 p^6$  shell, the effect of crystal field remains small in such an order to remove degeneracy in  $J_z$ .

Under such a situation, the f-electron efg is given by

$$q_v = \langle J \| \alpha \| J \rangle \left[ 3J_z^2 - J(J+1) \right] \langle r^{-3} \rangle$$

where the reduced matrix elements  $\langle J \| \alpha \| J \rangle$ 's for  $\text{Nd}^{+3}$  ( $^4I_{9/2}$ ) and  $\text{Pr}^{+3}$  ( $^3H_4$ ) are calculated to be - 0.0064 and - 0.021, respectively. The inverse cube of electron coordinate averaged by radial function,  $\langle r^{-3} \rangle$ , is estimated to be 5-6 a.u. for these ions and is expected to be a little higher for actinide ions.

In principle we must calculate crystal field levels for a given defect arrangement to find a Boltzmann average of (linear combination of)  $q_v$ 's at  $T = 78^\circ\text{K}$ . As it is a long way, we must restrict ourselves to the simplest case of spherical f-electrons distribution  $q_v = 0$ , i.e., the level splittings are surmounted by thermal energy. In passing we notice the maximum quadrupole splitting constant  $e^2 q_Q/4$  ( $J_z = \pm 9/2$ ) for  $\text{Np}^{+4}$  attains to an order of 0.5-0.7 cm/s.

The lattice field gradient  $q_L$  is essentially temperature-independent.<sup>7)</sup> It directly appears for  $\text{Np}^{+7}$  (if  $f^0$  is assumed) or for the cases just mentioned in the above. The uranium sites in fluorite structure (note the probe is chemically uranium before Mössbauer emission) are considered to be either regular or interstitial surrounded by oxygens arranged in simple cube. Both of these sites give  $q_L = 0$  ( $= q_v$ ) in the absence of nearby defects.

We shall discuss  $q_L$  and related  $\eta_L$  in terms of point-

charge model. The case we are interested is to have high  $\eta$  value, as  $T_1 - T_3$  and  $Q_1$  in Tab.1. As the cubic site prescription on defect-free probe allows us to treat the efg given by defects alone, simple probe-defect pairs are excluded, since they give rise to  $q_L = 2Z/R^3$  and  $\eta_L = 0$  if the net charge number and pairing distance are written as  $Z$  and  $R$ , respectively.

The next simplest cases are the probe paired with two defects. With  $z$ -axis perpendicular to the plane of defect-probe-defect triangle with top angle  $\alpha$ , off-diagonal efg elements vanish if we choose  $\phi_1$  and  $\phi_2 = \phi_1 + \alpha$  such that,

$$\tan 2\phi_1 = -\sin 2\alpha / (K + \cos 2\alpha)$$

where  $K = (Z_1/R_1^3)/(Z_2/R_2^3)$  represents the relative intensity of efg's given by each of the defects. We shall choose  $K \geq 1$  for  $Z_1, Z_2 > 0$  and  $K \leq -1$  for the opposite case.

The  $q_L$  and  $\eta_L$  are given by

$$q_L = V_{33} \quad \text{and} \quad \eta_L = (V_{11} - V_{22})/V_{33} \quad \text{with} \quad |V_{33}| \geq |V_{22}| \geq |V_{11}|$$

by rearranging the following diagonal elements in the right order.

$$V_{xx} = 3(Z_1/R_1^3)[\cos^2\phi_1 + K^{-1}\cos^2\phi_2] + V_{zz}$$

$$V_{yy} = -V_{xx} - V_{zz}$$

$$V_{zz} = -(Z_1/R_1^3)[1 + K^{-1}]$$

Fig.2 shows how  $\eta_L$  depends upon  $K$  and  $\alpha$ . It is interesting to see that high  $\eta$  values are expected for wide range of angle for opposite sign case, while the range is rather limited for same sign case. Although the sign of  $q_L$  generally follows that of  $Z_1$ , it reverses between  $90^\circ$  and the cusps found for  $K = 1-2$ . The magnitude of  $q_L$  varies between  $m =$

1.5 and 3 in unit of  $(Z_1/R_1^3)$  for  $\eta_L > 0.5$ . The quadrupole

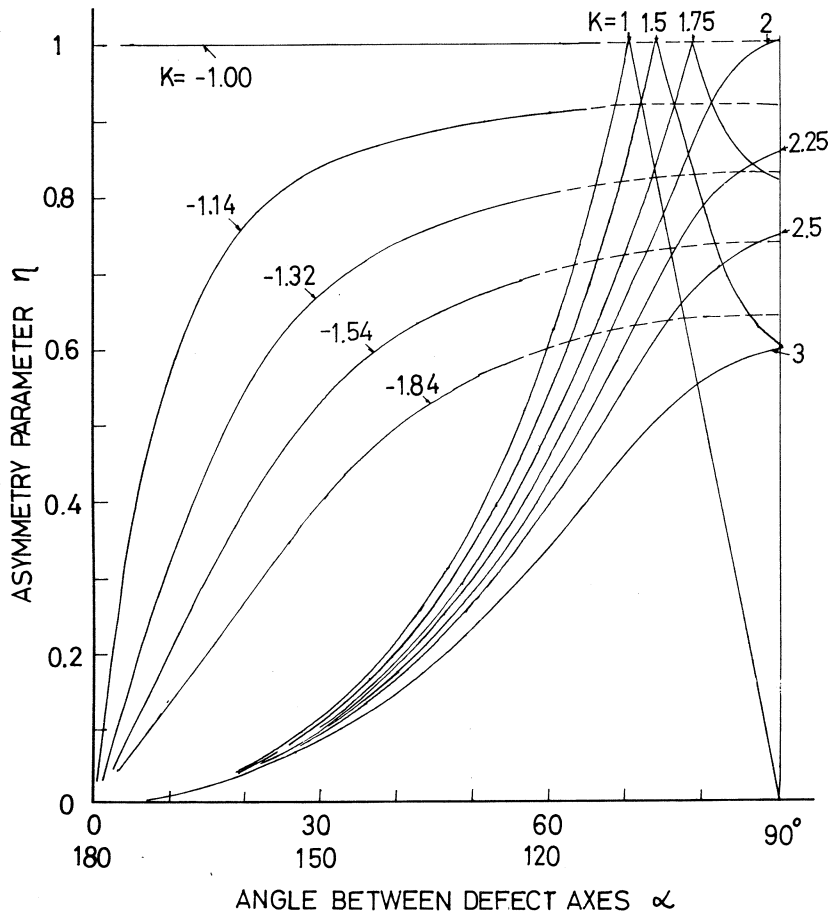


Fig.2: Asymmetry parameter of lattice electric field gradient at probe paired with two defects.  $K$  and  $\alpha$  are defined in the text.

splitting constant  $e^2qQ/4$  in cm/s is given by  $0.492(1-\gamma_\infty)mZ_1/R_1^3$  if  $R_1$  is expressed in a.u. =  $0.529 \text{ \AA}$ . The Sternheimer anti-shielding factor  $(1-\gamma_\infty)$  is considered to be much larger than 10 with an upper limit of 100.<sup>7)</sup>

In Tab.2 some of the defect models giving rise to large asymmetry parameter are listed, based on a few types of

Table II: Some Defect-Probe-Defect models leading to high  $\eta_L$  value

| Model                 | $\alpha$ | f     | $\eta_L$ | $q_L$      | $e^2(1-r_\infty)q_L Q/4^{**}$ |
|-----------------------|----------|-------|----------|------------|-------------------------------|
| $O_V(1)+O_V(1)$       | 70.5°    | 6 / 7 | 1.00     | $\pm 2.00$ | 1.75 cm/s                     |
| K=1                   | 0        | 1 / 7 | 0        | 4.00       | 3.50                          |
| $O_V(1)+O_V(2)$       | 29.5     | 1 / 4 | 0.1      | 2.8        | 2.5                           |
| K=1.83                | 58.5     | 1 / 2 | 0.45     | 1.1        | 1.0                           |
|                       | 80.0     | 1 / 4 | 1.0      | -1.6       | 1.4                           |
| $O_V(1)+O_i^{100}(1)$ | 54.7     | 1 / 1 | 0.684    | 2.22       | 1.94                          |
| K=-1.54               |          |       |          |            |                               |
| $O_i^{111}(1)+O_V(1)$ | 29.5     | 1 / 4 | 0.844    | 1.44       | 1.44                          |
| K=-1.14               | 58.5     | 1 / 2 | 0.906    | 2.47       | 2.47                          |
|                       | 80.0     | 1 / 4 | 0.918    | 2.84       | 2.84                          |
| $O_i^{110}(1)+O_V(1)$ | 43.1     | 1 / 2 | 0.753    | 1.94       | 2.24                          |
| K=-1.32               | 68.6     | 1 / 2 | 0.814    | 2.58       | 2.98                          |
| $O_V(1)+O_i^{100}(2)$ | 35.3     | 1 / 4 | 0.457    | 1.68       | 1.47                          |
| K=-1.84               | 57.0     | 1 / 2 | 0.587    | 2.21       | 1.94                          |
|                       | 74.2     | 1 / 4 | 0.630    | 2.47       | 2.16                          |

$O_V(1)$  = oxygen vacancy nearest to probe ( $R = 2.37 \text{ \AA}$ ,  $Z = +2$ )

$O_V(2)$  = next nearest oxygen vacancy ( $R = 4.32 \text{ \AA}$ )

$O_i^{100}(1)$  = oxygen interstitial of 100 type ( $R = 2.735 \text{ \AA}$ ,  $Z = -2$ )

$O_i^{111}(1)$  = 111 type interstitial nearest to probe ( $R = 2.27 \text{ \AA}$ )

$O_i^{110}(1)$  = 110 type interstitial nearest to probe ( $R = 2.16 \text{ \AA}$ )

$O_i^{110}(2)$  = next nearest to probe ( $R = 2.90 \text{ \AA}$ )

f = relative weight of the pairs if no correlations between each other

\*) in unit of  $Z_1/R_1^3$     \*\*) assuming  $(1-\gamma_\infty) = 80$

interstitial oxygens and oxygen vacancy found by neutron diffraction experiments on  $\text{UO}_{2.12}^{51}$ . Note that the probe is assumed to occupy regular uranium site, since interstitial uranium generally leads to low  $\eta$  values. Of course, both sites give identical results for divacancy models.

Inspection of Tab.2 for  $\eta$  values shows that two interstitial-vacancy pairs,  $O_i^{111} + O_v$  ( $29.5^\circ$ ) and  $O_i^{110} + O_v$  ( $68.6^\circ$ ), are appropriate for the  $Q_1$  spectrum in Tab.1. The former is more acceptable from geometrical consideration that the interstitial and vacancy stand at the closest approach.

As the choice of Sternheimer anti-shielding factor to be 80 in Tab.2 is rather arbitrary, the fortuitous agreement in quadrupole splitting constant cannot be regarded as a strong support. However, it may be remarked that the constants obtained by the choice are not in contradiction with those found for  $\text{Np}^{+7}$  ( $f^0$ ), 2.1-3.1 cm/s.<sup>11)</sup>

If the migration energy of interstitial oxygen 1.3 eV<sup>12,13)</sup> is employed, the times required for a jump are estimated to be 220 day ( $50^\circ\text{C}$ ), 10 hr ( $100^\circ\text{C}$ ), and 7 s ( $200^\circ\text{C}$ ). It follows that the  $200^\circ\text{C}$  annealing (30 min) is sufficient to make recombine these interstitial-vacancy pairs to result in vanishing efg at the probe, as found for  $Q_1 \rightarrow S_1$  in Tab.1.

There are cases in Tab.2 which give rise to  $\eta \sim 1$ , compatible with  $T_1$ ,  $T_2$  and  $T_3$  in Tab.1. The disagreements in splitting constants are, however, serious. These spectra must be re-examined by introducing  $q_v$ , or by testing more complex clusters. This is also true for  $Q_1$ , in spite of the seeming agreements.

The report is not more than a fragmentary approach to the damage and non-stoichiometry problems in  $\text{UO}_{2+x}$  through the  $\text{Np}^{237}$  Mössbauer effect. We hope further experiments become possible



with improvements in the RI laboratory of LNS.

### Acknowledgements

Prof. K. Naitô (Univ. Nagoya) kindly supplied the  $UO_{2+x}$  crystals. Mr. O. Konno (LNS) took the trouble of the Liniac irradiations. Prof. Y. Hiradate (Tohoku Inst. Tech.) offered the 1024 ch time-analyser. Dr. K. Kondô and Prof. M. Yagi (LNS) allowed the full use of the Ge(Li) detector and related facilities in their RI laboratory. The reporters wish to thank them for their courtesy.

### References

- 1) J. A. Stone: *Mössbauer Effect Data Index* 1972 p.33, IFI/Plenum (1973) See also the Data Indices 1958-65, 1966-69, 1970 and 1971 for the compiled lists of references.
- 2) A. Ohkawa, T. Shoji and K. Matsui: Res. Rept. LNS (Univ. Tohoku), **7** (1974) 140.
- 3) W. L. Pillinger and J. A. Stone: *Mössbauer Effect Methodology* Vol. 4 p.217 (Plenum, 1968)
- 4) J. A. Stone and W. L. Pillinger: Symp. Faraday Soc., No.1, 77 (1968)
- 5) H. R. Hoekstra *et al.*: J. Inorg. Chem. **32** (1970) 3237.
- 6) B. T. M. Willis: J. de phys. **25** (1964) 431.
- 7) M. H. Cohen and F. Reif: *Solid-State Physics* Vol. 5 (Academic Press, 1958) p.321.
- 8) S. Ofer, I. Nowik and S. G. Cohen: *Chemical Application of Mössbauer Spectroscopy* (Academic Press 1968) p.427.
- 9) B. D. Dunlap: *Mössbauer Effect Methodology* Vol. 7 (Plenum 1971) p.123.
- 10) W. Low: *Paramagnetic Resonance in Solids* (Academic Press 1960) p.137.

- 11) J. A. Stone, W. L. Pillinger and D. G. Karraker: *Inorg. Chem.* **8** (1969) 2519.
- 12) S. Aronson, R. B. Roof, Jr., and J. Belle: *J. Chem. Phys.* **27** (1957) 137.
- 13) A. B. Auskern and J. Belle: *J. Chem. Phys.* **28** (1958) 171.

## II - 8 Innershell Ionization by 150 MeV Electron Impact

九 大 工 俵 博之  
 理学部物理\* 石井慶造\* 森田 右\*  
 斉藤 肇\*  
 核 理 研\*\* 小山田正幸\*\*  
 理学部化学\*\*\* 鍛冶東海\*\*\* 朱 鉄吉\*\*\*  
 塩川孝信\*\*\*

### § 1. Introduction

The innershell ionization by electron impact has been investigated over many years. However, the impact energy was limited up to 1-2 MeV. Systematic investigations of the energy dependence and the Z-dependence (Z : the atomic number of target) are also still scarce. Very recently, Middleman et al.<sup>1)</sup> have extended electron energy up to 900 MeV using the Stanford Mark III electron linear accelerator and measured K- and L-shell X-rays for a variety of elements (Z = 29-83).

Theoretically, at these high energies and for high Z elements, both the incident and target electrons have to be treated relativistically. However, such fully relativistic calculations have not been done yet in these high energies. The theoretical treatments applicable to the innershell ionization by electron impact with ultrarelativistic energy has

H. Tawara:

Faculty of Engineering, Kyushu University.

K. Ishii, S. Morita and H. Saito:

Department of Physics, Tohoku University.

M. Oyamada:

Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University.

H. Kaji, T.C. Chu and T. Shiokawa:

Department of Chemistry, Tohoku University.

been given by Kolbenstvedt<sup>2)</sup>, based on the virtual photon concept, and by Pessa and Newell<sup>3)</sup>, based on Lotz semi-empirical ionization formula with relativistic correction factors.

In the present work, we have measured K-shell X-rays for Al, Si, Cu, Zn, In, and Sn, L-shell X-rays for In, Sn, Au, Pb and Bi, and M-shell X-rays for Au, Pb, and Bi by 150 MeV electron impact.

## § 2. Experiment

The accelerated electron beam impinged on thin targets kept inside a large scattering chamber and arrived at a beam dump located at about 15 m from the target. The faraday cup was removed to reduce background X-rays. The intensity of the electron beam was measured with a secondary electron emission monitor. To avoid the piling-up of X-ray pulses, the electron beam was kept below ~1 nA which corresponded to  $\sim 3 \times 10^7$  electrons per pulse. X-rays produced were measured with a Si(Li) detector and a flow-mode proportional counter. The targets were prepared by vacuum evaporation. Their thickness was determined from the number of electrons elastically scattered from the target and also independently from that of helium-3 ions from a van de Graaff accelerator. An example of typical K-shell X-ray spectra observed with a Si(Li) detector is shown in Fig. 1. The cross sections for X-ray production are determined from the following, assuming the isotropic distribution of the X-rays,

$$\sigma_x = (4\pi / \Delta\Omega) (Y/N), \quad (1)$$

where  $\Delta\Omega$  is the solid angle subtended by the X-ray detector, Y is the X-ray yields per incident electron, corrected for the detector efficiency and the absorption in window, air

path and target itself, and  $N$  is the number of the target atoms per  $\text{cm}^2$ .

The ionization cross sections  $\sigma$  are obtained by the equation (2),

$$\sigma = \sigma_x / \omega . \quad (2)$$

Here  $\omega$  is the fluorescence yield of the shell concerned and we used the compiled values of Bambynek et al.<sup>4)</sup>

### § 3. Results and discussions

The present results on the K-shell ionization by 150 MeV electron impact are shown in Fig. 2 as a function of the atomic number of the target, along with data of Middleman et al.<sup>1)</sup> and predictions of Kolbenstvedt and of Pessa-Newell. The absolute values of two predictions are slightly different from each other but the  $Z$ -dependence is very similar. The present data for Al and Si with large error bars were obtained with the Si(Li) detector. Because the detector efficiencies could not be calibrated accurately at these energies, the errors shown should be considered as lower limits. The agreement between experimental data and theories at 150 MeV is generally good for elements  $13 \leq Z \leq 50$ . Intensity ratios for K-shell X-rays ( $K\alpha/K\beta$ ) obtained

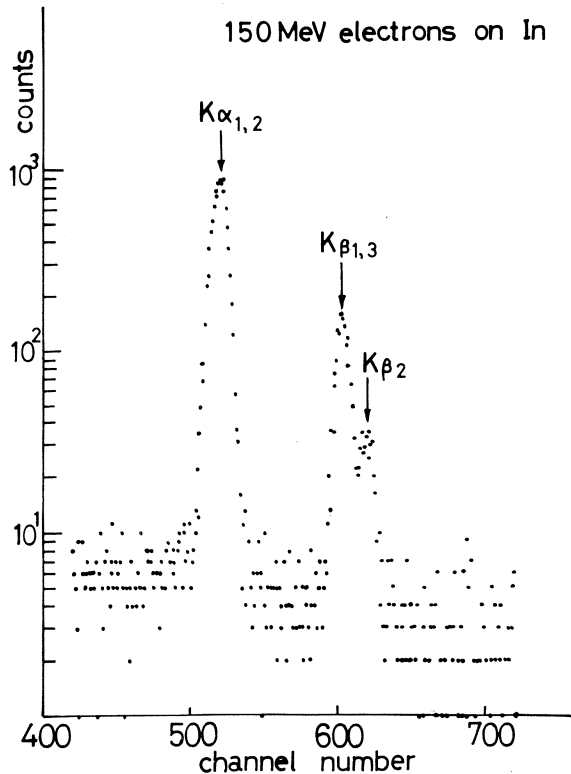


Fig.1 Typical K-shell X-ray spectrum observed with a Si(Li) detector.

are shown in Table I and are in reasonable agreement with recent calculation of Scofield<sup>5)</sup> with those compiled by Bambynek et al.<sup>4)</sup> and Nelson et al.<sup>6)</sup> and also with our data in proton impact<sup>7,8)</sup> The Z-dependence of total L-shell ionization similar to K-shell ionization is also observed for elements  $49 \leq Z \leq 83$ . However, no theoretical calculations of L-shell ionization at these high energies are available yet to be compared with experiment.

To derive so-called "scaling law" for the innershell ionization at ultrarelativistic energy range, we have used the present data and those of Middleman et al.<sup>1)</sup> Asymptotic formulae at very high energies ( $E/U > 10^4$ , ( $E$ : the kinetic energy of the incident electron,  $U$ : the binding energy of the innershell

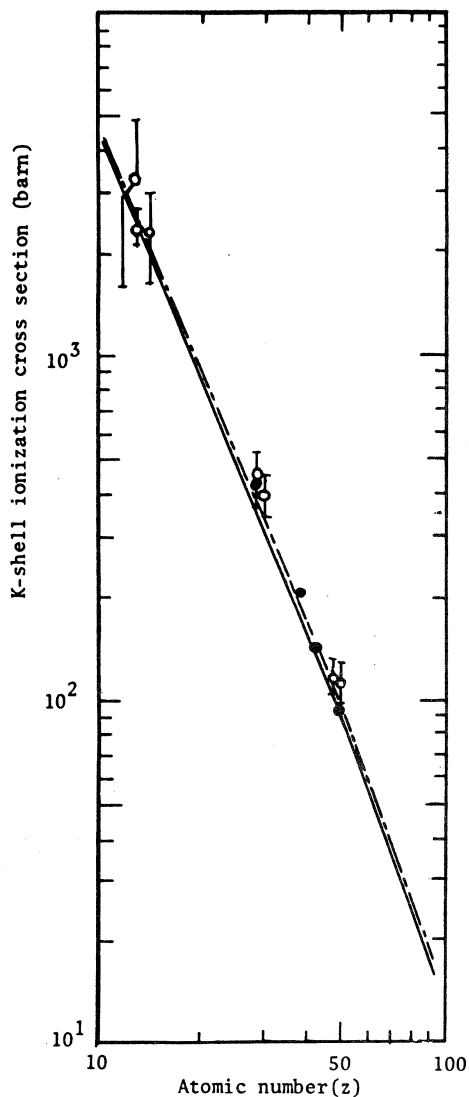


Fig.2. K-shell ionization cross section by 150 MeV

electron impact as a function of the atomic number of target ( $z$ ). solid line : Pessa-Newell. dotted line : Kolbenstvedt. ● : Middleman et al. ○ : present result.

electron), based on two predictions mentioned above, are given as follows :

$$\sigma U \sim \ln(E^2/U) \quad : \text{Kolbenstvedt formula (3)}$$

$$\sigma U \sim \ln(E/U) \quad : \text{Pessa-Newell formula. (4)}$$

Here  $\sigma$  is the ionization cross section.

In the  $\sigma U - E^2/U$  plot, experimental data on K-shell ionization at these high energies are considerably scattered but come close together on a single curve in the  $\sigma U - E/U$  plot, as shown in Fig. 3.

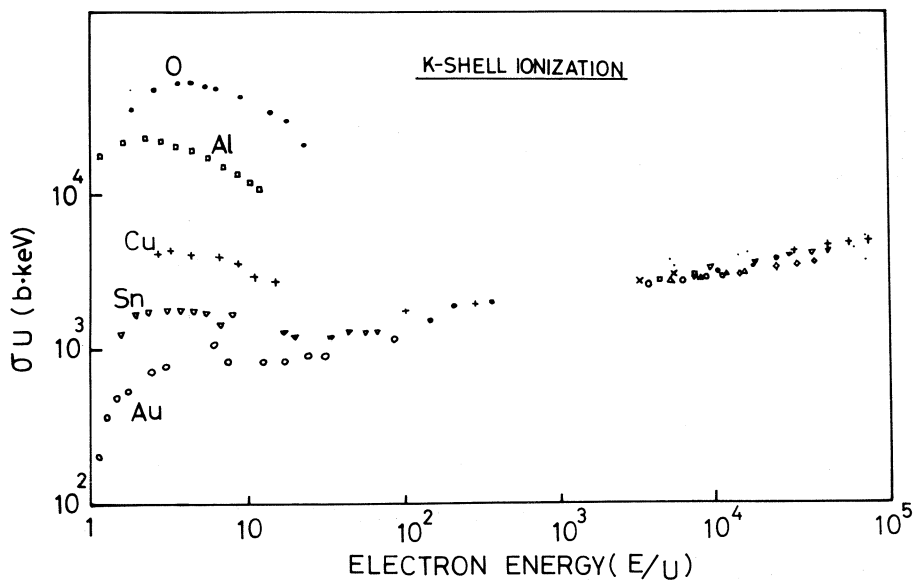


Fig.3 K-shell ionization cross sections as a function of the incident electron energy for a variety of elements. ( $\sigma U - E/U$  plot).

It should be noted that these include data for a variety of elements ( $13 \leq Z \leq 83$ ). Experimental data at lower energies were taken from literatures. It should be noted that data at lower energies for low and medium  $Z$  elements are well

described with a scaling law expected from the Bethe formula ( $\sigma U^2 \sim \ln(E/U)$ ). It is also found empirically that experimental data gather more closely on a single curve in the  $\sigma U - (E/U)/U$  plot, as shown in Fig. 4. At the present stage, we could not find theoretical backgrounds for this scaling law. It may be noteworthy that the prediction of Pessa-Newell is also expressed with a single curve in the  $\sigma U - (E/U)/U$  plot for elements  $Z > 20$  at  $(E/U)/U > 10 \text{ keV}^{-1}$ .

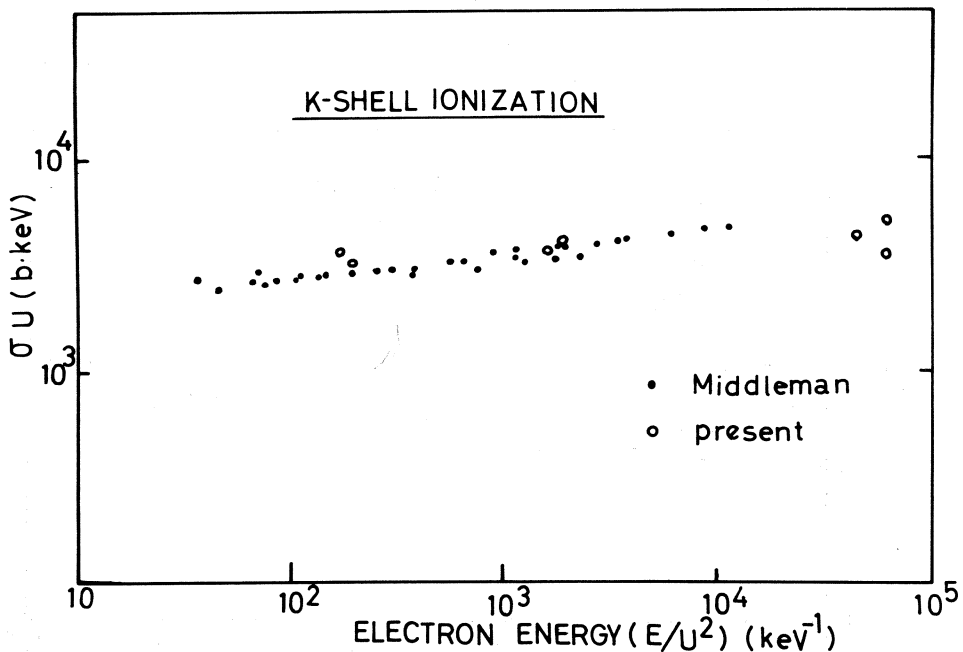


Fig.4 K-shell ionization cross section in the  $\sigma U - (E/U)/U$  plot at high energies.

However, observed data on L-shell ionization are scattered in those plots described above.

#### Acknowledgement

The authors would like to express their sincere thanks to the staff of the 300 MeV electron linac for their skillful



Table I. Intensity ratios in K-shell ionization ( $K\alpha/K\beta$ )

|    | Present data | Bambynek | Nelson | Proton data | Theory |
|----|--------------|----------|--------|-------------|--------|
| Cu | 7.24         | 7.41     | 7.41   |             | 7.47   |
| Zn | 7.22         | 7.41     | 7.30   | 7.04        | 7.30   |
| In | 4.64         | 4.61     | 4.57   |             |        |
| Sn | 4.42         | 4.55     | 4.50   | 4.41        | 4.57   |

operation.

### References

- 1) L.M. Middleman, R. L. Ford, and R. Hofstadter: *Phys. Rev.* **A 2** (1970) 1429.
- 2) H. Kolbenstvedt: *J. Appl. Phys.* **38** (1967) 4785.
- 3) V.M. Pessa and W.R. Newell: *Physica Scripta* **3** (1971) 165.
- 4) W. Bambynek, B. Craseman, R. E. Fink, H. U. Freund, H. Mark, C. D. Swift, R. E. Price and P. Venngopala Rao: *Rev. Mod. Phys.* **44** (1972) 716.
- 5) J.H. Scofield: *Phys. Rev.* **A 9** (1974) 1041.
- 6) G.C. Nelson, B.G. Sanders, and S.I. Salem: *Atomic Data* **1** (1970) 377.
- 7) H. Tawara, K. Ishii, S. Morita, H. Kaji, C. N. Hsu and T. Shiokawa: *Phys. Rev.* **A 9** (1974) 1617.
- 8) K. Ishii, S. Morita, H. Tawara, H. Kaji and T. Shiokawa: *Phys. Rev.* **A 10** (1974) 774.

### III. 放 射 化 学 部 門

### Ⅲ-1 第四級イオンによるⅡb族元素ハロゲン錯体のイオン対溶媒抽出

工学部応用化学 齋藤達弥・沢谷次男

#### § 1. 緒 言

第四級アンモニウム塩および第四級ホスホニウム塩は陽イオン界面活性剤として知られているが、陰イオンの沈澱試薬、抽出試薬<sup>1)</sup>あるいはポーログラフでの支持電解質<sup>2)</sup>としても広く用いられている。近年、高分子量の第四級アンモニウム塩としてテトラデシルジメチルベンジルアンモニウムクロライド（ゼフィラミン）、セチルトリメチルアンモニウムクロライド等を金属イオンとある種の有機配位子との錯形成時に共存させ、吸光光度定量法における感度増感試薬<sup>3)</sup>として用いられている。

第四級イオンは強塩基性であるが、アルキルあるいはフェニル側鎖の大きさにより、その塩基性度が多少異なり、また疎水性の度合も異なる。これらのイオンの塩基性度、親水性と疎水性のバランス（HLB）あるいはイオン半径の相違により陽イオンとして陰イオンとの反応性が異なることが期待され、陰イオンの溶媒抽出を行なう際にもその抽出傾向が異なると考えられる。従来の研究においては経験的に高分子量の陽イオン界面活性剤の方が低分子量のものをを用いた場合よりも金属陰イオンの抽出率が高いことが一般的とされているが、実際にイオン半径等の抽出を支配する因子を考慮して抽出率を調べた例はない。また、有機試薬の構造からその塩基性度を考察し、 $pK_a$  あるいは  $pK_b$  を求めた例はあるがその値の抽出率への影響は不明である。

本研究においては第四級アンモニウムブロマイドおよび第四級ホスホニウムブロマイドを用いてⅡb族元素である亜鉛、カドミウムおよび水銀のハロゲン錯体とイオン対を生成させ、極性の異なる各種有機溶媒で抽出し、そのイオン対溶媒抽出を支配する因子を求める目的でトレーサーによる実験を行った。

#### § 2. 実験および結果

##### 2.1 トレーサー

各金属のトレーサーは核理研 LINAC の I 系 RI コースでもって水銀の場合は特級の硫酸第二水銀を、カドミウムの場合は炭酸カドミウムを、亜鉛の場合は高純度金属亜鉛をターゲット物質として白金コンバンターの後方の水冷ホルダー中で照射し、 $^{204}\text{Hg}(\gamma, n)^{203}\text{Hg}$ ,  $^{116}\text{Cd}$

( $r, n$ )  $^{115}\text{Cd}$ ,  $^{66}\text{Zn}$  ( $r, n$ )  $^{65}\text{Zn}$  反応で得られる $^{203}\text{Hg}$ ,  $^{116}\text{Cd}$ および $^{65}\text{Zn}$ を用いた。またカドミウムに関してはNew England Nuclear製の $^{115\text{m}}\text{Cd}$ も用いた。

## 2.2 抽出試薬

抽出に用いた第四級塩はテトラメチルアンモニウムブロマイド, テトラエチルアンモニウムブロマイド, テトラ $n$ プロピルアンモニウムブロマイド, テトラ $n$ ブチルアンモニウムブロマイド, テトラ $n$ アミルアンモニウムブロマイド, トリメチルプロモエチルアンモニウムブロマイド, トリメチルエチルアンモニウムブロマイド, トリメチル $n$ プロピルアンモニウムブロマイド, トリメチル $n$ ブチルアンモニウムブロマイド, トリエチルメチルアンモニウムブロマイド, トリフェニルエチルホスホニウムブロマイド, トリフェニル $n$ ブチルホスホニウムブロマイドおよびアンモニウムブロマイドの計13種類である。これらの陽イオン界面活性剤は市販特級品およびメンシュトキン反応で合成, 再結晶したものである。

## 2.3 実験操作

照射後のターゲットを各々塩酸, 臭化水素酸およびヨウ化水素酸に溶解し, 水銀, カドミウム, 亜鉛のハロゲン錯体を生成させ, 第四級塩を大過剰に加えてイオン対を生成させた。クロロ錯体の場合は塩化カリウム, ブロモ錯体の場合は臭化カリウム, ヨード錯体の場合はヨウ化カリウムを加えてイオン強度を0.1とした。この時の酸濃度は $2.8 \times 10^{-2}$ モル, 金属濃度は $7.2 \times 10^{-6}$ モル, 第四級塩の濃度は $5.0 \times 10^{-3}$ モルである。この水溶液と等量の有機溶媒を加えてイワキ製のシェーカーで30分振りませた。振りませ時間に関しては水銀のブロモ錯体をテトラ $n$ ブチルアンモニウムイオンでもって抽出した場合, 3分から1時間の間は同一抽出率を示し, 抽出平衡に達しているものとみなせるが, 平衡に達するまでさらに時間がかかる場合も考慮して振りませ時間を30分とした。抽出後の水相および有機相からそれぞれ等量分取し, ウェル型NaI (T1) - 神戸工業製シングルチャンネルスケーラーで $^{203}\text{Hg}$ ,  $^{115}\text{Ca}$ あるいは $^{65}\text{Zn}$ の放射能を測定し, 抽出率を求めた。

## 2.4 実験結果

亜鉛ハロゲン錯体を第四級イオンでもってイオン対を生成させ, 有機溶媒への抽出を試みたが, クロロ錯体, ブロモ錯体, ヨード錯体いずれの場合においても本実験の条件ではほとんど抽出されなかった。カドミウムの場合はクロロ錯体ではプロトン溶媒である $n$ ブタノール以外の溶媒で

はほとんど抽出されなかったが、ブロモ錯体およびヨード錯体では他の有機溶媒でも高い  $E_T$  値になるに従ってよく抽出された。水銀ハロゲン錯体の場合は  $E_T$  値が高い値を示すに従って非極性非プロトン溶媒であっても抽出されるようになる。

各第四級塩を用いてカドミウムのブロモ錯体およびヨード錯体、水銀のクロロ錯体、ブロモ錯体およびヨード錯体のそれぞれの有機溶媒への抽出率を Fig. 1 ~ Fig. 7 に示す。

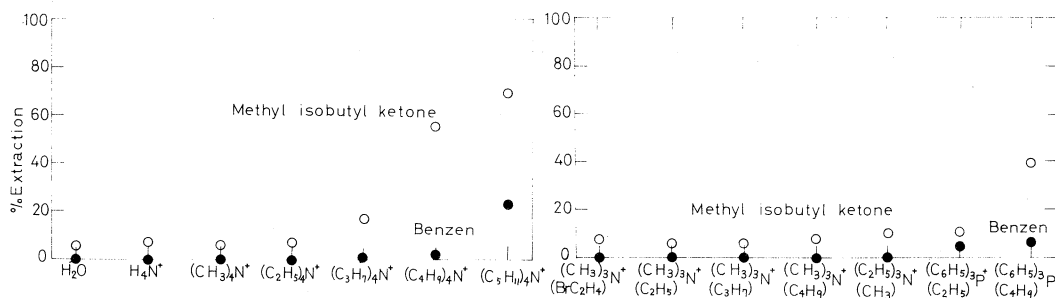


Fig. 1 Extraction of  $CdBr_4^{2-}$  as onium complexes into organic solvents.

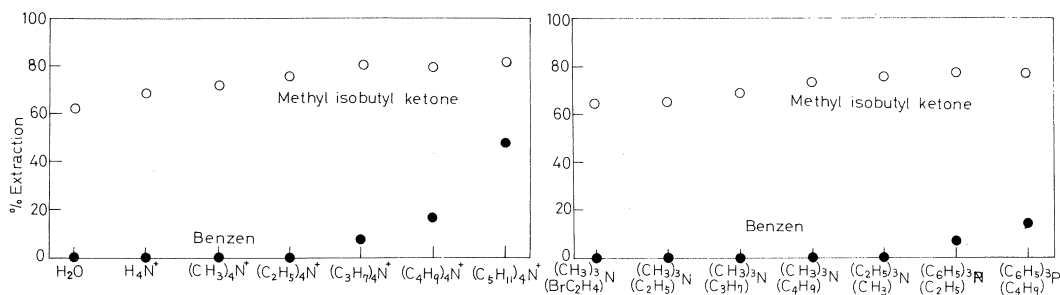


Fig. 2 Extraction of  $CdI_4^{2-}$  as onium complexes into organic solvents.

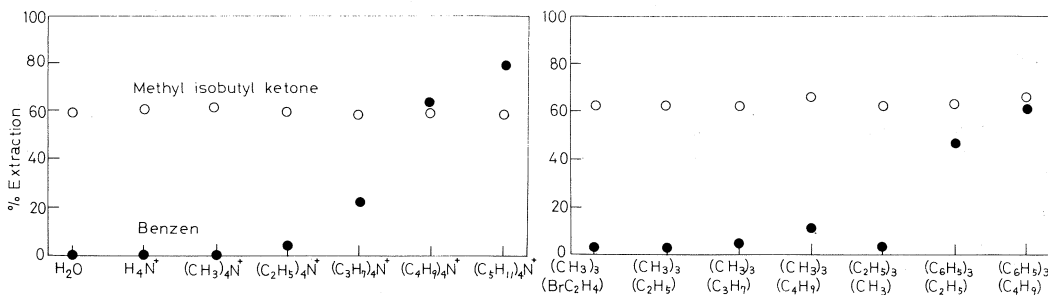


Fig. 3 Extraction of  $HgCl_4^{2-}$  as onium complexes into organic solvents.

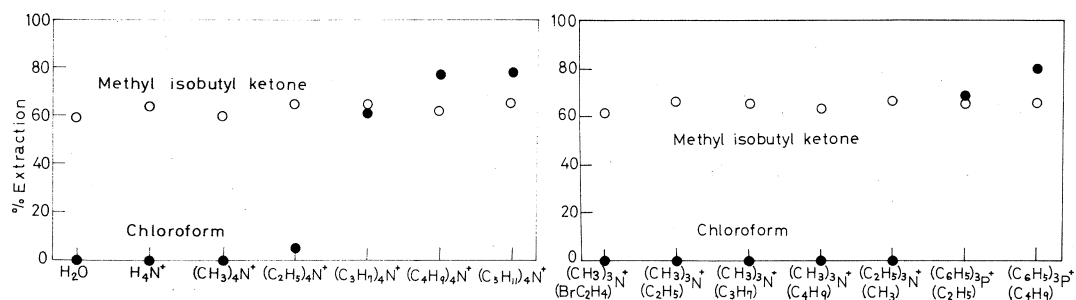


Fig. 4 Extraction of  $\text{HgBr}_4^{2-}$  as onium complexes into organic solvents.

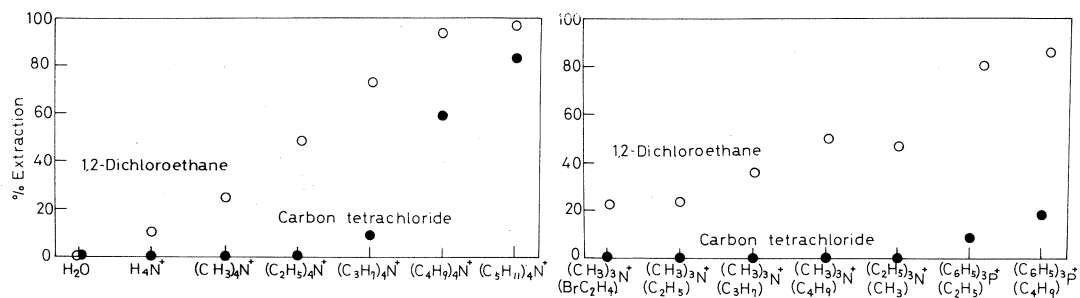


Fig. 5 Extraction of  $\text{HgI}_4^{2-}$  as onium complexes into organic solvents.

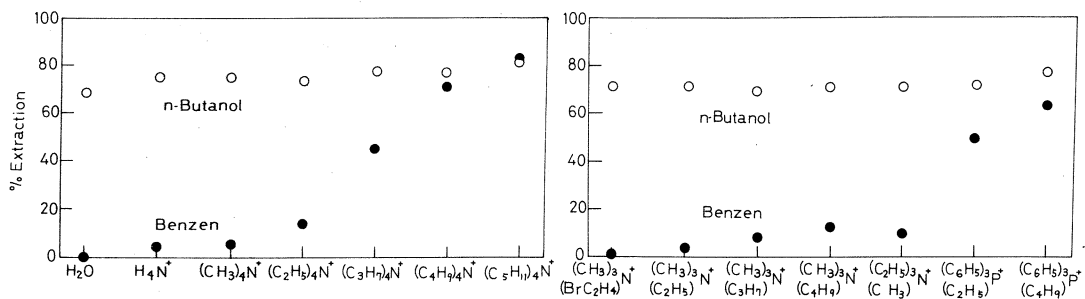


Fig. 6 Extraction of  $\text{HgI}_4^{2-}$  as onium complexes into organic solvents.

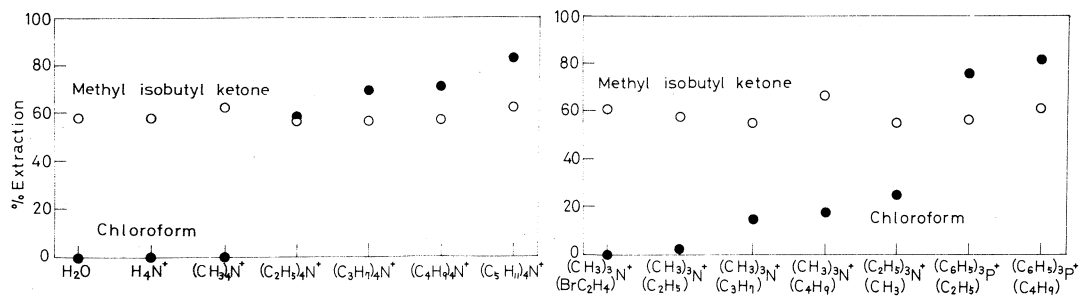


Fig. 7 Extraction of  $\text{HgI}_4^{2-}$  as onium complexes into organic solvents.

### § 3. 考 察

#### 3.1 抽出溶媒の極性

有機溶媒の極性をDimrothの極性パラメーター $E_T$  値<sup>4)</sup>でもって分類すると1)～3)となる。

1) 非極性非プロトン溶媒 ( $E_T$  : 30～40)

2) 双極性非プロトン溶媒 ( $E_T$  : 40～47)

3) プロトン溶媒 ( $E_T$  : 47～63)

本実験ではTable I に示した7種類の有機溶媒を用いたが、非極性非プロトン溶媒であり、低

Table I  $E_T$  values of solvents

|                        | $E_T$ |
|------------------------|-------|
| n-Hexane               | 30.9  |
| Carbon tetrachloride   | 32.5  |
| Benzen                 | 34.5  |
| Chloroform             | 39.1  |
| Methyl isobutyl ketone | 41.3  |
| 1,2 Dichloroethane     | 41.9  |
| n-Butanol              | 50.2  |
| Water                  | 63.1  |

い $E_T$  値の $n$ -ヘキサンでは全くハロゲン錯体は抽出されない。同じ非極性非プロトン溶媒であってもさらに $E_T$  値が高い四塩化炭素、ベンゼン、クロロホルムとなるに従って高分子量の第四級イオンの場合よく抽出される。双極性非プロトン溶媒では $E_T$  値がさらに高くなり、比較的分子量の第四級イオンによってもかなり抽出される。プロトン溶媒は $n$ -ブタノール等の含酸素溶媒がほとんどであり、高い $E_T$  値を持ち、水素結合性がかなり強い。しかもその酸素がオキシニウムイオンとなり、陰イオンに配位するために第四級イオンが存在せずともハロゲン錯体は抽出されており、第四級イオンとハロゲン錯体のイオン対生成物はほとんど抽出されていない。メチルイソブチルケトンプロトン溶媒ではないがケトンの酸素がオキシニウムイオンとなり、その配位によりハロゲン錯体が抽出されており、プロトン溶媒と同様な抽出機構により抽出されると考えられる。

### 3.2 テトラアルキルアンモニウムイオンのイオンサイズ

イオン対溶媒抽出を支配する因子の1つとして陽イオンのイオンサイズが考えられる。

陽イオンのイオン半径としては共有結合半径とファンデルワールス半径とを考慮して算定した半径： $r$ ，イオンの伝導度から求められた値からストークスの法則をあてはめて算定した半径： $r_s$ <sup>5)</sup>および水和半径： $r_{hi}$ <sup>6)</sup>等がある。

Table II に第四級イオンのうち対称的なテトラアルキルアンモニウムイオンの各イオン半径を

Table II Ionic radii and HLB

|                      | $r$ (Å) | ionic radius<br>$r_s$ (Å) | $r_{hi}$ (Å) | HLB<br>$7 + \sum J_w - \sum J_o$ |
|----------------------|---------|---------------------------|--------------|----------------------------------|
| $H_4N^+$             | 1.48    | 1.33                      | 3.31         | 16.4                             |
| $(CH_3)_4N^+$        | 3.47    | 2.02                      | 3.67         | 14.5                             |
| $(C_2H_5)_4N^+$      | 4.00    | 2.81                      | 4.00         | 12.6                             |
| $(n-C_3H_7)_4N^+$    | 4.52    | 3.92                      | 4.52         | 10.7                             |
| $(n-C_4H_9)_4N^+$    | 4.94    | 4.71                      | 4.94         | 8.8                              |
| $(n-C_5H_{11})_4N^+$ | 5.29    | 5.25                      |              | 6.9                              |

示した。Fig. 1～Fig. 7 までの抽出率のデータと比較するとイオン半径の増加に従っていずれの場合においても抽出率は増加する。各イオン半径も 5 Å に近づくに従って接近してきており、抽出率も高い値を示しているが、いずれのイオン半径値がイオン対溶媒抽出機構の解析に最も適しているかは溶液中での溶媒和の状態が明らかでないために不明である。

### 3.3 テトラアルキルアンモニウムイオンのHLB

第四級アンモニウムイオンは親水性のチッ素のまわりに疎水性のアルキル基が囲んでいるためにアルキル側鎖が長くなることはイオンがより疎水性になることである。すなわちイオン半径の増加は疎水性の増加になる。

これらの陽イオン界面活性剤の親水性と疎水性の程度を示すものとしてHLBがある。従来は洗剤等の用途を区別するため用いてきたが、第四級イオンに対して適用してみた。すなわちDavies<sup>7)</sup>によるHLB値を算出し、Table II に示した。第四級イオンのHLB値が小になるに従ってハロゲン錯体がよく抽出されており、抽出能力を示すパラメータとして有用と考えられ



る。HLBはイオン半径や分子量とは異なり、単なる分子の大きさだけでなく官能基の性質を示すことに特徴があるが、基礎的な数値の根拠がやや薄弱と思われる。

### 3.4 陽イオンの塩基性度

第四級イオンの塩基性度により抽出能力に差異がでることが考えられたのでテトラアルキルアンモニウム塩とトリフェニルアルキルホスホニウム塩のpHを測定しFig.8に示した。第四級塩は強電解質の塩であるために測定濃度では完全にイオン化しており、第四級イオンの $pK_a$ 値を精確に求めにくいため本実験では臭素塩の形でその塩のpHを求めた。得られたpH値と抽出率との間に相関性は見られず、陽イオンの塩基性度はイオン対溶媒抽出を支配する因子ではないと考えられる。

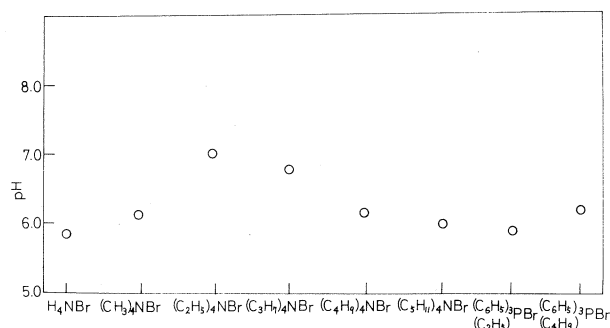


Fig. 8 pH values of 0.01N aq. solutions.

### 3.5 イオンによる水構造破壊および形成

第四級塩の水溶液は水の構造変化をもたらすが、表面のアルキル基あるいはフェニル基との疎水界面での相互作用およびイオンの強い電場による相互作用の結果によりその性質は異なる。 $R_4N^+$ 系列では $(CH_3)_4N^+$ イオンが水構造破壊子、 $(C_2H_5)_4N^+$ イオンが弱い水構造破壊子、 $(n-C_3H_7)_4N^+$ イオン、 $(n-C_4H_9)_4N^+$ イオン、 $(n-C_5H_{11})_4N^+$ イオン等は水構造形成子である。実験結果から水構造形成子の第四級イオンを用いた場合の方がハロゲン錯体がよく抽出されている。

### 3.6 II b族ハロゲン錯体のイオン半径

II b族元素イオンは十分にハロゲン化することによって陽イオンからハロゲン錯体となり、それぞれのイオン半径のハロゲンをその金属に配位して四面体型の構造をとる。これらの四面体型の配位結合の結晶イオン半径はHuggins, Pauling<sup>8)</sup>によって求められ、各ハロゲン錯体のイオン半径をTable IIIに示す。

Table III Ionic radii

| Ion                             | Radius (Å) |
|---------------------------------|------------|
| ZnCl <sub>4</sub> <sup>2-</sup> | 3.29       |
| ZnBr <sub>4</sub> <sup>2-</sup> | 3.53       |
| ZnI <sub>4</sub> <sup>2-</sup>  | 3.87       |
| CdCl <sub>4</sub> <sup>2-</sup> | 3.46       |
| CdBr <sub>4</sub> <sup>2-</sup> | 3.70       |
| CdI <sub>4</sub> <sup>2-</sup>  | 4.04       |
| HgCl <sub>4</sub> <sup>2-</sup> | 3.46       |
| HgBr <sub>4</sub> <sup>2-</sup> | 3.70       |
| HgI <sub>4</sub> <sup>2-</sup>  | 4.04       |

この値は結晶イオン半径であり、溶液中でのイオン半径とは異なるためカドミウムと水銀の値が同じとなり、Figの抽出率とこのTableの値とは適応しない。すなわち溶液中では溶媒との相互作用があり、結晶とは異ったイオン半径を持つと考えられる。

### 3.7 陰イオンのB係数

水溶液の粘性に対する Jones-Dole 式<sup>9)</sup> は

$$\eta/\eta_0 = 1 + A\sqrt{c} + Bc + Cc^2 + \dots \quad (1)$$

と表わされる。A, B, Cは溶質に特有の定数であり、特にBはイオン圏からの寄与を示す定数である。

“負の水和”<sup>10)</sup> に関して緩和現象から研究したHertz<sup>11)</sup> は(1)式を変形して(2)式とした。

$$\frac{1/T_1}{1/T_1^0} = 1 + A'\sqrt{c} + B'c + C'c^2 + \dots \quad (2)$$

このB'は水溶液の水和に関する係数である。Table IVにB係数およびB'係数を示した。Cl<sup>-</sup>, Br<sup>-</sup>, I<sup>-</sup> となるに従って負となり、負のB係数を持った構造破壊性のイオンが金属と配位してハロゲン錯体となると構造破壊性となり、負のB係数を持ち、いわゆる“負の水和”となる。

“負の水和”をした水銀とカドミウムのヨード錯体は第四級イオンとイオン対を生成し、有機溶

媒によく抽出される。

Table IV Ionic radii and B coefficients

| Ion          | Radius (Å) | $B^{\pm}$ (25°C) | $B^{\pm}$ (25°C) |
|--------------|------------|------------------|------------------|
| $F^{-}$      | 1.33       | 0.14             | 0.0965           |
| $Cl^{-}$     | 1.81       | -0.01            | -0.007           |
| $Br^{-}$     | 1.96       | -0.04            | -0.042           |
| $I^{-}$      | 2.20       | -0.08            | -0.064           |
| $HgI_4^{2-}$ | 4.85       | -0.06            |                  |
| $CdI_4^{2-}$ | 4.75       | -0.09            |                  |

### 3.8 イオン対生成物の組成比

第四級イオンとⅡb族元素ハロゲン錯体の組成比を求める目的で実験を行なった。組成比を求める方法としてはモル比法および連続変化法があるが、今回は連続変化法によって行なった。第四級イオンとしては  $(C_4H_9)_4N^{+}$  イオン、陰イオンとして水銀ブロモ錯体およびカドミウムブロモ錯体、抽出溶媒としては1,2ジクロロエタンを用いた。その結果を Fig. 9 に示すが、第四級イオン2に対しハロゲン錯体が1の割合であり  $(R_4H^{+})_2MX_4^{2-}$  のイオン対を生成していることがわかった。この際さらに会合し、 $\{(R_4N^{+})_2MX_4^{2-}\}_n$  ( $n=2, 3, \dots$ ) となっているかどうかは不明である。

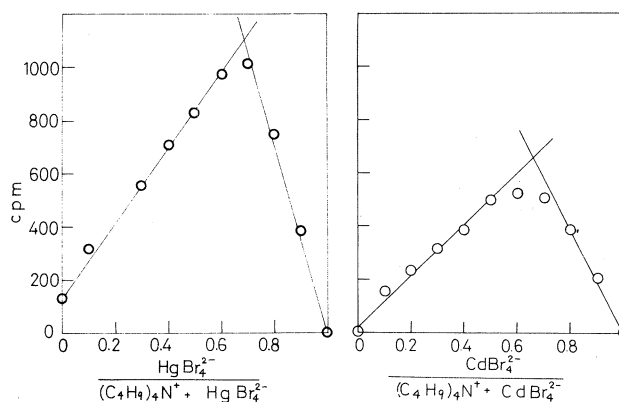


Fig. 9 Continuous variation methods.

## § 4. 結 論

第四級イオンとⅡb族ハロゲン錯体とのイオン対生成物の組成は有機溶媒中で  $(R_4N^{+})_2MX_4^{2-}$  となる。このイオン対溶媒抽出を支配する因子としては次の1)～3)とした。

- 1) 抽出溶媒の極性
- 2) 第四級イオンのHLB, イオン半径とその作用としての水の構造性

## 3) 陰イオンのB係数

## 参 考 文 献

- 1) A. M. Wilson, L. Churchill, K. Kiluk and P. Housepian : *Anal. Chem.* **34** (1962) 203.
- 2) B. C. Southworth, R. Osteryoung, K. D. Fleischer and F. C. Nachod : *Anal. Chem.* **33** (1961) 208.
- 3) 四条好雄, 武内次夫 : *分析化学*, **20** (1971) 297.  
B. Evtimova and D. Nonova : *Anal. Chim. Acta.* **67** (1973) 107.
- 4) K. Dimroth, C. Reichardt, T. Siepmann and F. Bohlmann : *Ann.*, **661** (1963) 1. *ibid.* **669** (1963) 95.
- 5) R. A. Robinson and R. H. Stokes; *Electrolyte Solutions*. (Butterworths, London 1959) p. 125.
- 6) Y. Marcus and A. S. Kertes; *Ion Exchange and Solvent Extraction of Metal Complexes* (Wiley-Interscience, 1969) p. 28.
- 7) J. T. Davies : *Proc. 2nd Intern. Congress of Surface Activity* (Butterworths, 1957) Vol. 1 p.426.
- 8) L. Pauling; *The Nature of the Chemical Bond*, 小泉正夫訳, 共立出版 (1960) p. 224.
- 9) G. Jones and M. Dole : *J. Am. Chem. Soc.* **51** (1929) 2950.
- 10) O. Ya. Samoilov : *Discuss. Faraday Soc.* **24** (1957) 141.
- 11) G. Engel and H. G. Hertz : *Ber. Bunsenges. Physik. Chem.* **72** (1968) 808.

## III - 2 Multielement Determination in Tobacco Leaves by Photon Activation Analysis.

理学部化学 加藤豊明\*  
岩手大教養 佐藤允美\*\*  
理学部化学 鈴木信男\*\*\*

### Summary

A nondestructive photon activation procedure with 30 MeV bremsstrahlung followed by high-resolution gamma-spectrometry has been designed for the multielement determination in tobacco leaves and commercial cigarettes. The elements determined by this method included essential minor elements such as Ca, Cl, K and Mg, essential trace elements such as Fe, Mn and Zn, and possibly toxic elements such as As and Sb. The NBS Orchard Leaves could successfully be used as a comparative standard. The method is quite simple and gives good reproducible results for at least 12 elements.

### §1. Introduction

Tobacco is one of the most important human consumptions in modern living. In addition to its physiological effects, many inorganic constituents are suspected to be carcinogenic or tumorogenic agents. A study on the nature and quantities

---

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

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

\*\*\* Nobuo Suzuki: Department of Chemistry, Faculty of Science, Tohoku University.

of many elements presented in tobacco leaves, especially those of suspected toxicity, is, therefore, of quite importance to the tobacco and health researches.

Neutron activation analysis together with high-resolution gamma-spectrometry has already been applied to the multielement determination in tobacco leaves and their products.<sup>1-4)</sup> With this technique, however, the high activities produced from abundant, high cross section isotopes such as Mn and Na often mask lower activities from the elements of interest, thereby preventing the full utilization of the desirable features of the high-resolution semiconductor detectors in nondestructive multielement analysis. An alternative nuclear method which can meet various requirements for the present purpose is photon activation analysis. In our previous reports,<sup>5-9)</sup> a discussion of the principles and the merits of this method have been presented, together with the data of analyses of various round robin materials like USGS silicate rocks,<sup>5,6)</sup> NBS biological reference standards<sup>7,8)</sup> and fly ash.<sup>9)</sup> In the present report, this method was further applied to the multielement analysis of tobacco leaves and commercial cigarettes. Abundances of up to 12 elements have been given in several kinds of Burley tobacco leaves and 6 different brands of commercial cigarettes. Orchard Leaves, NBS SRM-1571, has been found to be a suitable comparative standard for multielement analysis of tobacco leaves by photon activation.

## §2. Experimental

The Burley leaves were provided in a dried form from Morioka Tobacco Experiment Station, Japan Monopoly Public Cooperation. They were collected in the vicinity of Morioka, Iwate, Japan. Each leaf sample was powdered in an agate

mortar and was dried at 90 °C for 24 h. The cigarette samples were taken from commercial cigarette packets available on the open markets. The wrapping papers and filters were rejected, and the tobaccos were individually powdered in an agate mortar. They were dried at 90 °C for 24 h. One gram portion of each dried sample was placed in the stainless steel mold cavity of a lubricant press and was compressed into a cylindrical pellet with a diameter of 13 mm. Two kinds of the comparative standards were used in this experiment. One of them was a synthetic multielement pellet containing 25 elements distributed evenly in a matrix of cellulose. The elemental composition of this pellet was the same as described in our previous report.<sup>8)</sup> The other was the biological matrix standard reference material, NBS SRM-1971, Orchard Leaves. After dryness at 90 °C for 24 h as recommended by NBS,<sup>10)</sup> an amount weighing 1 g was pelletized for irradiation.

Bremsstrahlung irradiations were performed by a linear electron accelerator of Tohoku University. From a knowledge of the basic study regarding the sensitivity and interferences in photon activation analysis,<sup>11,12)</sup> an electron energy of 30 MeV was selected in the present work. The sample pellet and the comparative standards were stacked in a silica tube so that the standards were placed on the front and back of the sample for simultaneous irradiation. The tube was placed in a water-cooled sample holder and was aligned along the beam axis with the front face of the tube 10 - 15 cm from the photon-producing converter (2 mm thick Pt). Irradiations were terminated in 1 - 2 h. A large amount of heat due to the remaining electrons in the bremsstrahlung beam caused chemical decomposition of a compressed biological sample during irradiation. In a typical irradiation with a 70  $\mu$ A beam (on the average) of

30 MeV electrons, no significant damage was observed up to 2 h at 10 cm downstream from the converter. A total dose of  $10^8$  R was exposed to the sample under the present conditions.

Gamma-rays were observed with a 33-cm<sup>3</sup> Ge(Li) detector coupled to a 4096-channel pulse-height analyzer. Counting has been made consecutively for increasing intervals over a period of one month. The detail involving counting and data treatments for quantitations was essentially the same as described in our previous reports.<sup>7-9)</sup>

### § 3. Results and Discussion

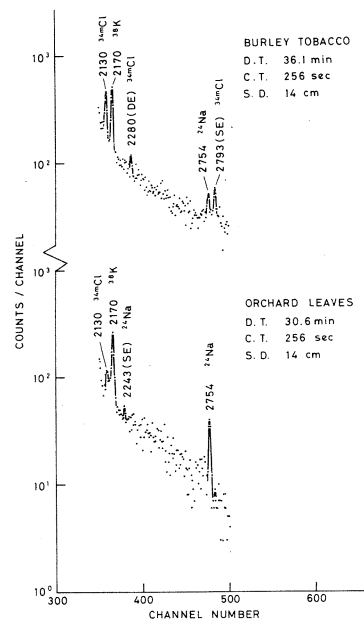
Typical gamma-ray spectra measured at several different decay times after irradiation of a Burley leaf sample are shown in Figs. 1 - 4, along with those of Orchard Leaves measured at comparable decay times. The nuclidic assignment

Fig.1 Gamma-ray spectra of

Burley tobacco leaves and standard Orchard Leaves (I).

D. T., C. T. and S. D. indicate time interval between irradiation and counting, counting period, and source-to-detector distance, respectively. SE

and DE designate single and double annihilation-photon escape peaks, respectively. Bg indicates peaks occurring in background. Values on each peak are energies in keV.





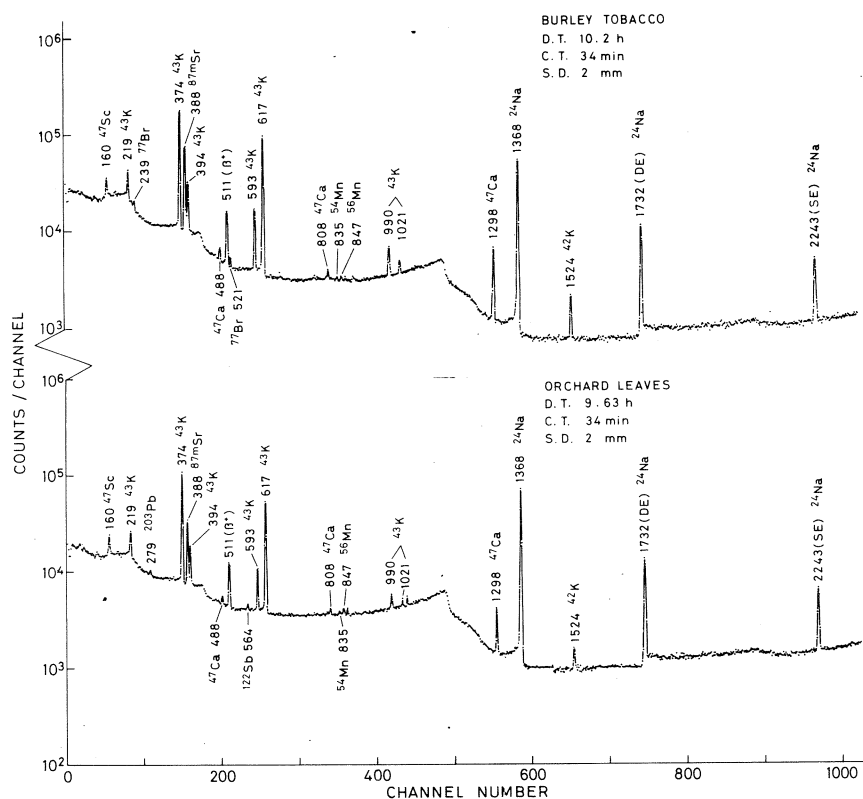


Fig.2 Gamma-ray spectra of Burley tobacco leaves and standard Orchard Leaves (II).

D. T., C. T. and S. D. indicate time interval between irradiation and counting, counting period, and source-to-detector distance, respectively. SE and DE designate single and double annihilation-photon escape peaks, respectively. Bg indicates peaks occurring in background. Values on each peak are energies in keV.

was based on the lists of the gamma-rays emitted by photon activation products previously reported.<sup>9, 12, 13)</sup> As had been shown in the multielement analysis of the other biological materials,<sup>7, 8)</sup> the only products used for quantitations at earlier decay times were 7.71-min <sup>38</sup>K and 32-min <sup>34m</sup>Cl. All of the products that were used for elemental determinations

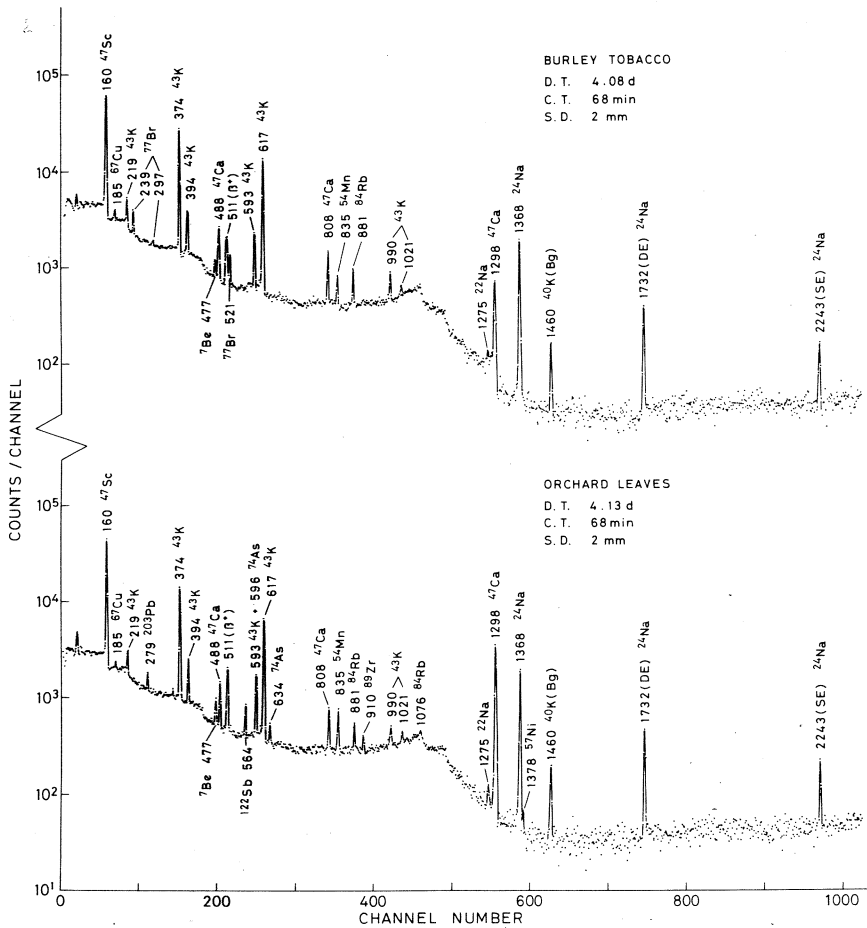


Fig.3 Gamma-ray spectra of Burley tobacco leaves and standard Orchard Leaves (III).

D. T., C. T. and S. D. indicate time interval between irradiation and counting, counting period, and source-to-detector distance, respectively. SE and DE designate single and double annihilation-photon escape peaks, respectively. Bg indicates peaks occurring in background. Values on each peak are energies in keV.

could be observed in the spectra up to 16 days after irradiation. Because of the relatively high contents of As, Sb and

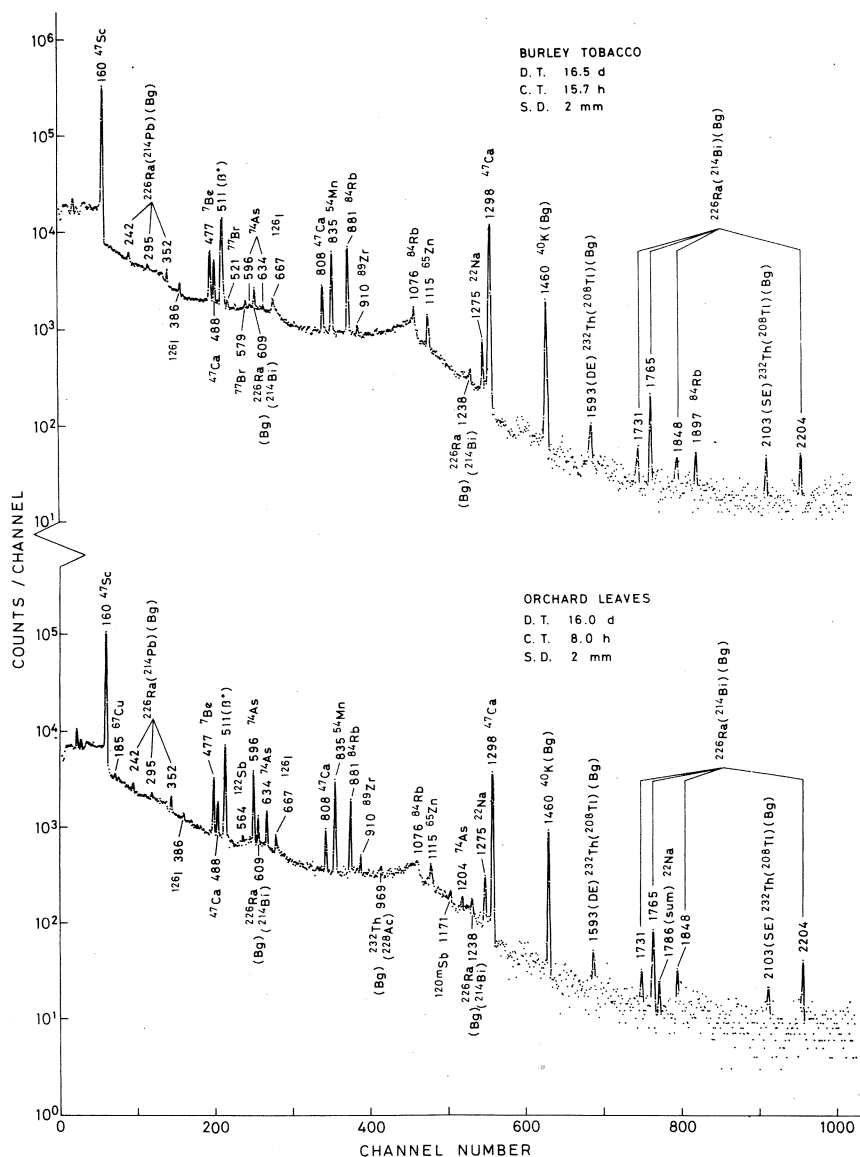


Fig.4 Gamma-ray spectra of Burley tobacco leaves and standard Orchard Leaves (IV).

D. T., C. T. and S. D. indicate time interval between irradiation and counting, counting period, and source-to-detector distance, respectively. SE and DE designate single and double annihilation-photon escape peaks, respectively. Bg indicates peaks occurring in background. Values on each peak are energies in keV.

Pb in Orchard Leaves, the photopeaks of 17.9-d  $^{74}\text{As}$ , 67-h  $^{122}\text{Sb}$  and 52-h  $^{203}\text{Pb}$  appeared more clearly in the spectra of this material than those of Burley leaves. While the several gamma-lines from 56-h  $^{77}\text{Br}$  produced by the  $^{79}\text{Br}(\gamma, 2n)^{77}\text{Br}$  reaction could be observed only in the spectra of Burley leaves. Otherwise, the shapes and decay properties of the gamma-ray spectra of both the sample and Orchard Leaves were essentially the same. Of the peaks from the elements of interest, intense, interference-free peaks were selected to calculate the abundances.

Because of a number of elements to be determined, the use of comparative standards of individual element was inadequate. A synthetic multielement standard or a multielement material with the similar nature of the matrix and elemental composition was thus desired. Orchard Leaves is a fairly well-characterized standard reference material by the certificate for elemental abundances.<sup>10,14,15)</sup>

Table I shows the comparison of the results of multielement analysis of Burley tobacco leaves obtained by using two different comparative standards. Duplicate samples provided a reasonable reproducibility in each case. The average relative deviations from the means (based on 11 elements) were  $\pm 2.7$  and  $\pm 4.4\%$  for the methods with the synthetic standard and Orchard Leaves, respectively. Agreement of the results given by the two comparative methods is also fairly good except for K and Zn. When the values from the duplicate analyses were averaged and compared for each of the elements, except K and Zn, the relative deviation from the mean was within  $\pm 13\%$ . Because of the simplicity of preparing a standard, it was decided thereafter to use Orchard Leaves as the comparative material.

Table II gives the elemental abundances in several kinds

Table I. Results of multielement analysis of Burley tobacco leaves obtained by using different comparative standards

| Element | Reaction product   | Gamma-ray used, keV | Elemental abundances (ppm unless indicated)*1 |               |                                       |               |               |            |
|---------|--|---------------------|---|---------------|---------------------------------------|---------------|---------------|------------|
|         |  |                     | With synthetic standard                       |               | With Orchard Leaves                   |               |               |            |
|         |  |                     | Analysis 1                                    | Analysis 2    | Concentration used for Orchard Leaves | Analysis 1    | Analysis 2    | Analysis 2 |
| As      |  | 596                 | 0.7 ± 0.1                                     | 0.6 ± 0.1     | 11 ± 2*2                              | 0.6 ± 0.3     | 0.4 ± 0.2     |            |
| Ca, %   | $\left\{ \begin{array}{l} {}^{43}\text{K} \\ {}^{43}\text{K} \end{array} \right.$    | 374                 | 3.06 ± 0.01                                   | 3.01 ± 0.01   |                                       | 2.99 ± 0.02   | 2.92 ± 0.03   |            |
|         |  | 617                 | 3.09 ± 0.01                                   | 3.06 ± 0.01   | 2.09 ± 0.03*3                         | 3.01 ± 0.03   | 2.99 ± 0.04   |            |
| Cl, %   | $\left\{ \begin{array}{l} {}^{47}\text{Ca} \\ {}^{34m}\text{Cl} \end{array} \right.$ | 1298                | 3.07 ± 0.02                                   | 3.01 ± 0.02   |                                       | 2.93 ± 0.02   | 2.90 ± 0.02   |            |
|         |  | 2130                | 1.08 ± 0.07                                   | 1.12 ± 0.09   | 0.072*4                               | 1.39 ± 0.12   | 1.47 ± 0.09   |            |
| Fe      |  | 847                 | 520 ± 100                                     | 517 ± 95      | 300 ± 20*3                            | 422 ± 48      | 410 ± 51      |            |
| K, %    |  | 2170                | 3.60 ± 0.19                                   | 3.58 ± 0.18   | 1.47 ± 0.03*3                         | 4.61 ± 0.48   | 4.42 ± 0.35   |            |
| Mg, %   |  | 1369                | 0.439 ± 0.002                                 | 0.429 ± 0.003 | 0.62 ± 0.02*3                         | 0.429 ± 0.005 | 0.427 ± 0.005 |            |
| Mn      |  | 835                 | 89 ± 2  | 84 ± 2        | 91 ± 4*3                              | 84 ± 4        | 88 ± 3        |            |
| Na      |  | 1275                | 84 ± 5  | 85 ± 7        | 82 ± 6*3                              | 92 ± 12       | 87 ± 9        |            |
| Rb      |  | 881                 | 22.5 ± 0.2                                    | 19.2 ± 0.2    | 12 ± 1*3                              | 25 ± 1        | 19 ± 1        |            |
| Sr      |  | 388                 | 110 ± 1                                       | 108 ± 1       | 37*5                                  | 113 ± 2       | 110 ± 2       |            |
| Zn      |  | 1115                | 65 ± 5  | 59 ± 7        | 25 ± 3*3                              | 31 ± 6        | 38 ± 9        |            |

\*1 Sample material: Burley tobacco, top leaves (1971); Errors are based on counting statistics.

\*2 Ref. (15). \*3 Ref. (10).

\*4 Determined by photon activation analysis: T. Kato, N. Sato and N. Suzuki, The 29th annual meeting of Chemical Society of Japan, Hiroshima (1973).

\*5 Ref. (7).

of Burley leaves. These leaves were cultivated in the same tobacco field, and the samples B, C and D were taken from the same stalk. Reproducibility of the results was again satisfactory for each sample leaf. It can be seen that the abundances for most of the elements determined in the lug leaves are generally higher rather than those in upper leaves.

Table III shows the results of multielement determination in several brands of commercial cigarettes. The concentration levels of the elements determined here are rather similar among the samples. The concentrations of Ca, K and Sr are much lower in the cigarettes than those in the Burley leaves, while the concentrations of Mn and Na are much higher in the cigarettes. Since these elements are usually in a highly mobile form, their levels would depend on differences in growing conditions and on different sources including the soil, fertilizers and agricultural sprays. Their levels could also have varied by handling processes in the cigarette manufacture.

As demonstrated by Tables I - III, up to 12 elements could be determined in tobacco leaves with fairly good precision by the present method. The elements included essential minor elements such as Ca, Cl, K, Na and Mg, essential trace elements such as Fe, Mn and Zn, and possibly toxic elements such as As and Sb.

Becker et al.<sup>15)</sup> pointed out that the high contents of As, Sb and La in Orchard Leaves limited the value of this material as a standard in instrumental neutron activation analysis, since these elements gave many intensive gamma-lines which complicated the determination of the other elements. However, this material could be used as a better standard in multielement photon activation analysis, although the levels of halogens were somewhat lower than those in ordinarily plant materials. Since

Table II. Elemental abundances in Burley tobacco leaves

| Element             | Concentration (ppm unless indicated)* <sup>1</sup> |               |                       |               |                                    |               |                                  |               |
|---------------------|--|---------------|-----------------------|---------------|------------------------------------|---------------|----------------------------------|---------------|
|                     | A : Top leaves (1972)                              |               | B : Top leaves (1971) |               | C : Cutter (Middle ) leaves (1971) |               | D : Lug ( Bottom ) leaves (1971) |               |
|                     | Analysis 1   | Analysis 2    | Analysis 1            | Analysis 2    | Analysis 1                         | Analysis 2    | Analysis 1                       | Analysis 2    |
| As                  | 0.3 ± 0.2  | 0.8 ± 0.3     | 0.6 ± 0.3             | 0.4 ± 0.2     | 0.5 ± 0.3                          | 0.5 ± 0.2     | 0.6 ± 0.3                        | 0.7 ± 0.3     |
| Ca, % <sup>*2</sup> | 3.44 ± 0.02  | 3.54 ± 0.02   | 2.98 ± 0.01           | 2.94 ± 0.02   | 3.69 ± 0.05                        | 3.69 ± 0.05   | 5.20 ± 0.04                      | 5.13 ± 0.05   |
| Cl, %               | 0.55 ± 0.13  | 0.57 ± 0.11   | 1.39 ± 0.12           | 1.47 ± 0.09   | 0.79 ± 0.17                        | 0.72 ± 0.15   | 1.12 ± 0.18                      | 1.14 ± 0.20   |
| Fe                  | 343 ± 121  | 299 ± 91      | 422 ± 48              | 410 ± 51      | 558 ± 65                           | 554 ± 96      | 714 ± 115                        | 697 ± 129     |
| K, %                | 4.11 ± 0.44  | 4.21 ± 0.53   | 4.61 ± 0.48           | 4.42 ± 0.35   | 4.12 ± 0.35                        | 4.10 ± 0.26   | 7.65 ± 0.99                      | 7.25 ± 1.40   |
| Mg, %               | 0.418 ± 0.005                                      | 0.444 ± 0.005 | 0.429 ± 0.005         | 0.427 ± 0.005 | 0.384 ± 0.005                      | 0.394 ± 0.006 | 0.430 ± 0.005                    | 0.419 ± 0.005 |
| Mn                  | 70 ± 2   | 75 ± 2        | 84 ± 4                | 88 ± 3        | 85 ± 2                             | 83 ± 2        | 142 ± 4                          | 140 ± 4       |
| Na                  | 87 ± 8   | 87 ± 11       | 92 ± 12               | 87 ± 9        | 95 ± 11                            | 81 ± 11       | 183 ± 22                         | 163 ± 22      |
| Rb                  | 25 ± 1   | 24 ± 1        | 25 ± 1                | 19 ± 1        | 21 ± 1                             | 21 ± 1        | 22 ± 1                           | 20 ± 1        |
| Sr                  | 111 ± 1  | 111 ± 1       | 113 ± 2               | 100 ± 2       | 152 ± 1                            | 153 ± 2       | 189 ± 2                          | 190 ± 3       |
| Sb <sup>*3</sup>    | ~0.4   | ~0.4          | ND                    | ND            | ND                                 | ND            | ~0.4                             | ~0.4          |
| Zn                  | 78 ± 27  | 80 ± 24       | 31 ± 6                | 38 ± 9        | 39 ± 6                             | 33 ± 5        | 33 ± 6                           | 37 ± 9        |

\*1 Orchard Leaf pellets were used as the comparative standards; Errors are based on counting statistics.

\*2 Average value obtained for each of the 374, 617 and 1298 keV peaks.

\*3 Relatively large errors exceeding 50%. ND indicates "Not Detected".

Table III. Elemental concentration in several commercial cigarettes determined by photon activation analysis<sup>\*1</sup>

| Element                | Peace        | Seven Stars  | Cherry       | Hi - lite    | Echo       | Golden Bat    |
|------------------------|--------------|--------------|--------------|--------------|------------|---------------|
| (ppm unless indicated) |              |              |              |              |            |               |
| As                     | 0.4, 0.4     | 0.6, 0.4     | 0.8, 0.9     | 0.6, 0.5     | 0.4, 0.4   | 0.6, 0.6      |
| Ca, %*2                | 2.23, 2.15   | 2.49, 2.45   | 2.74, 2.68   | 1.96, 2.21   | 2.79, 2.73 | 2.71, 2.59    |
| Cl, %                  | 1.05, 1.13   | 1.16, 1.14   | 1.08, 0.95   | 1.05, 1.18   | 1.34, 1.31 | 1.45, 1.43    |
| Fe                     | 330, 350     | 470, 470     | 540, 550     | 410, 440     | 590, 610   | 540, 500      |
| K, %                   | 3.25, 3.37   | 3.75, 3.92   | 3.25, 3.30   | 3.41, 3.73   | 354, 3.30  | 4.04, 3.97    |
| Mg, %                  | 0.458, 0.444 | 0.495, 0.486 | 0.503, 0.513 | 0.398, 0.450 | 0.635, 0.  | 70.545, 0.539 |
| Mn                     | 166, 163     | 189, 185     | 196, 204     | 144, 169     | 204, 202   | 227, 216      |
| Na                     | 212, 207     | 388, 375     | 396, 384     | 297, 305     | 243, 238   | 251, 257      |
| Rb                     | 20, 19       | 23, 22       | 23, 23       | 17, 19       | 24, 23     | 30, 30        |
| Sr                     | 84, 80       | 93, 92       | 92, 94       | 66, 72       | 89, 86     | 106, 102      |
| Sb                     | 0.3, 0.4     | 0.9, < 0.2   | < 0.2        | < 0.2        | < 0.2      | 0.6, 0.5      |
| Zn                     | 96, 130      | 41, 44       | 33, 34       | 40, 38       | 39, 39     | 16, 21        |

\*1 Results from duplicate samples.

\*2 Average value obtained for each of the 374, 617 and 1298 keV peaks.



the method includes no post-irradiation chemical handling, loss of volatile species or possible contamination of trace species during this process is excluded. Owing to its multielement capability, role of photon activation analysis can be seen as much more useful in the biomedical research than for the conventional analysis.

### Acknowledgements

The authors express their appreciation to members of the linac machine and radioisotope groups at the Institute of Nuclear Science, Tohoku University, for their kind cooperation with the irradiations. The Orchard Leaf sample was supplied by the U. S. National Bureau of Standards through the courtesy of Dr. G. J. Lutz. We also thank Mr. Kazuhiko Ozeki of Morioka Tobacco Experiment Station, Japan Monopoly Public Cooperation for the Burley tobacco leaves.

### References

- 1) R. A. Nadkarni and W. D. Ehmann: *Radiochem. Radioanal. Letters* **4** (1970) 325.
- 2) R. A. Nadkarni and W. D. Ehmann: *ibid.* **2** (1969) 161
- 3) R. A. Nadkarni and W. D. Ehmann: *ibid.* **11** (1972) 45.
- 4) M.-H. Yang, S.-F. Lai and S.-J. Yeh: *Radioisotopes* **22** (1973) 118.
- 5) T. Kato, I. Morita and N. Sato: *J. Radioanal. Chem.* **18** (1973) 97.
- 6) N. Sato, T. Kato and N. Suzuki: *Radiochim. Acta* **19** (1974).
- 7) T. Kato and N. Sato: *Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ.* **6** (1973) 143.
- 8) T. Kato and N. Sato: *ibid.* **6** (1973) 308.
- 9) T. Kato and N. Sato: *ibid.* **7** (1974) 164.

- 10) Provisional certificate of analysis, SRM-1571, Orchard Leaves, National Bureau of Standards, Washington, D. C., January, 1971.
- 11) T. Kato and Y. Oka: *Talanta* **19** (1972) 515.
- 12) T. Kato: *J. Radioanal. Chem.* **16** (1973) 307.
- 13) T. Kato: *Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ.* **5** (1972) 137.
- 14) P. D. LaFleur: *J. Radioanal. Chem.* **19** (1974) 227.
- 15) E. Orvini, T. E. Gills and P. D. LaFleur: *Anal. Chem.* **46** (1974) 1294.
- 16) R. R. Becker, A. Veglia and E. R. Schmid: *Radiochem. Radioanal. Letters* **19** (1974) 343.

## III-3 スチレンの重合反応に対するLET効果

非水研 安川民男

化学反応におけるLET効果は一次活性種の空間的分布とその動的性質と密接に関係し、重要な問題であるが、普通放射線化学の研究に用いられている電子線とガンマ線においては通常の化学反応ではこれらの線源の差によるLET効果は顕著なものではない。このためにさらにLETの高いアルファ線や重イオン、核分裂片による化学反応についての実験がのぞまれる。この観点から我々は先に各種有機酸—アンモニア水溶液中にホウ素化合物を加えた系について(n,  $\alpha$ )反応とガンマ線、電子線照射では、アミノ酸生成反応が大きく異なり、LETの高い(n,  $\alpha$ )系では複雑なカップリング反応がおこなっていることを報告した<sup>1)</sup>。この点について定量的なデータを得るのを目的として、とくに生成ラジカルのカップリング反応が比較的小さく、このため一層LET効果が顕著にみられると予想されるスチレンの重合反応に対するLET効果を検討した。

スチレンモノマーあるいはそのメチルエチルケトンまたはブロムベンゼン〔スチレン/溶媒=2/1, 1/1, 1/3〕を直径4 mmのステンレスパイプ(肉厚0.1 mm)中を流速30 cm/秒で流通させ、これに幅5 mmのスリットでカットした散乱電子線により照射した。スチレン溶液の温度を恒温に保つために照射部位以外は30°Cの恒温水を循環させるためのジャケットが照射部位の前および後に約1 mついている。一回の照射のできるポリマーの量は極少量であるので、モノマー溶液約300 mlを窒素雰囲気下でミニポンプにより上記の流速で循環させる方法をとった。線量率 $3 \times 10^{18}$  eV/g/sec, 全線量 $6 \times 10^{18}$  eVであった。照射後真空蒸留により試料を1/10量まで濃縮したあと、冷メタノールを加えポリマーを分別し、GPCによりその分子量分布をはかった。分子量分布はいづれの系でも分子量2,000付近のピークから単調に減少し、照射溶液の溶媒として粘度の低いメチルエチルケトンを用いた場合はブロムベンゼン系にくらべかなり狭い分子量分布をもっていた。モノマー濃度や、連鎖移動常数の補正を行ったあとの分子量分布からポリスチレンラジカル間のカップリング反応速度定数を知ることができ、これが溶液粘度に逆比例して減少することが知られた。

重合反応に対するLET効果をみるため、理化学研究所のサイクロトロンによる $C^{4+}$ イオン照射によるスチレンの重合をおこなった。えられたポリスチレンの分子量分布は電子線の場合とかなり異なり不均一反応としての解析が必要ながことが示された。

参 考 文 献

- 1) 安川民男：核理研究報告 5 No. 1 (1972) 172.

III-4 無担体  $^{28}\text{Mg}$  の調製<sup>+</sup>

核理研 八木 益 男  
 理学部 R I 中央実験室\* 山 寺 亮\*  
 工学部金属材料\*\* 藤 川 辰一郎\*\*  
 理学部化学\*\*\* 塩 川 孝 信\*\*\*

医学、生物学、農学、冶金学、金属学等の広い分野からその供給が渴望されていて、まだどこでもその製造に成功していない無担体 $^{28}\text{Mg}$ の調製法を $^{30}\text{Si}(r, 2p)^{28}\text{Mg}$ 反応を利用して検討した。すなわち天然組成の高純度ケイ素をターゲットとして30、45、60 MeV制動放射線を各2時間づつ照射し、 $^{28}\text{Mg}$ の収率とともに多量のケイ素からのその無担体分離法を検討した。

電子リニアックはパルス幅3  $\mu$ 秒、パルス繰返し数300回毎秒で運転し、試料は石英管につめ厚さ2 mmの白金コンバーターの後方に置いて照射した。 $^{28}\text{Mg}$ の収率に関する研究結果は第1表に示した。

$^{28}\text{Mg}$ と同時に $^{24}\text{Na}$ が副反応生成物として、多量に生成し、その収率は前者の数倍に達した。

第1表  $^{28}\text{Mg}$  の収率

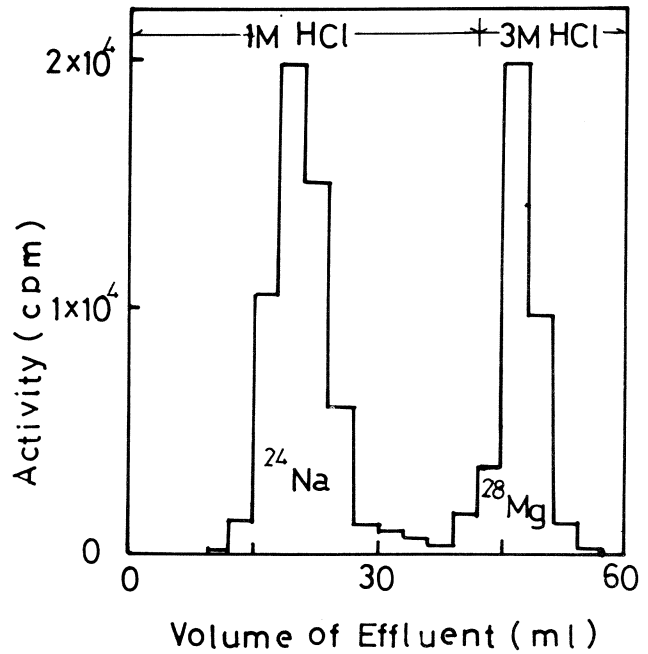
| エネルギー<br>(MeV) | 電流強度<br>( $\mu\text{A}$ ) | $^{28}\text{Mg}$ の収率<br>( $\text{m}\mu\text{Ci/g}$ ケイ素/時) | $^{24}\text{Na}$ の収率<br>( $\text{m}\mu\text{Ci/g}$ ケイ素/時) |
|----------------|---------------------------|---|---|
| 30             | 170                       | 5   | 84  |
| 45             | 200                       | 190   | 1,230   |
| 60             | 220                       | 320   | 2,580   |

そこで化学分離は照射試料を硝酸混液で処理してケイ素を除いたあと、残渣について陽イオン交換樹脂法を適用して無担体 $^{24}\text{Na}$ 、 $^{28}\text{Mg}$ の分離をおこなった。その分離曲線は第1図に示した。

<sup>+</sup> 本報告の詳細は Int. J. Radiation and Isotopes (in press) を参照されたい。

最終生成物無担体 $^{28}\text{Mg}$ についてガンマ線スペクトロメトリ—およびその半減期を測定したところ不純物は全く含んでいないことが確められ、化学的収率は96%に達することがわかった。

以上の結果から本調製法を適用すれば、多量の無担体 $^{28}\text{Mg}$ を調製でき、関係分野に供給できることがわかった。



第1図 Dowex 50 W×8樹脂による無担体 $^{24}\text{Na}$ と $^{28}\text{Mg}$ の分離

III-5 残留核法による( $\gamma, \pi^-xn$ ) 反応

核理研 八木益男

光核反応による $\pi$ 中間子生成反応のしきい値は100~200 MeV に出現し、東北大電子リニアックはエネルギー、電流値ともにその方面の研究に大いに活用できる。

そこで250 MeV 制動放射線による $^{89}\text{Y}(\gamma, \pi^-)^{89}\text{Zr}$ ,  $^{45}\text{Sc}(\gamma, \pi^-)^{45}\text{Ti}$ および $^{59}\text{Co}(\gamma, \pi^-2n)^{57}\text{Ni}$  反応について、残留核法による $\pi$ 中間子生成反応の収率を検査することを試みた。 $^{89}\text{Y}$ ,  $^{45}\text{Sc}$ ,  $^{59}\text{Co}$  は天然存在比が100%であり、生成核の観測が簡単な化学分離操作を加えれば比較的容易におこなうことができるためえられた。

上記ターゲット金属板を制動放射線束モニターとしてのポリエチレン板、アルミニウム板と交互に積み重ね、250 MeV 制動放射線で1~2時間照射した。その際、白金コンバーターは厚さ0.5 mm のものを用い、末転換電子線は磁場で強制的に除去した。

照射YからのZrの分離は試料を塩酸に溶解し、ついで陽イオン交換樹脂法を適用しておこなった。照射ScからTiの分離は、同様に試料を塩酸に溶解し、ついで少量の硝酸を加えて酸化し塩化物形に化学形をかえたあと、陰イオン交換樹脂法を適用しておこなった。照射CoからのNiの分離は試料を王水に溶解後塩化物にかえ陰イオン交換樹脂法によりおこなった。

それぞれ分離したZr, Ti, Niフラクションは $3'' \times 3''$  NaI(Tl)シンチレーターを用いて測定し、それぞれの生成量を求めた。結果として $^{89}\text{Zr}$ ,  $^{45}\text{Ti}$ ,  $^{57}\text{Ni}$  はターゲット1モル当たり $4 \times 10^{12}$ ,  $1 \times 10^{11}$ ,  $2 \times 10^{12}$  原子が生成されることがわかり、他の類似実験とは比較にならない精度でそれぞれの反応を観測できることがわかった。そこで引き続き照射エネルギーをかえて実験をおこなっている。

## IV. 生物 · 医学部門



## IV-1 高比放射能 $Tm-167$ の製造とその癌 および骨親和性の研究(II)

金沢大医療短大部 安東 醇  
 金沢大医学部\* 久田欣一\*  
 金沢大理学部\*\* 代田悦章\*\*坂本 浩\*\*

### § 1. 緒 言

われわれは、前報<sup>1)</sup>その他<sup>2~6)</sup>において、悪性腫瘍診断のための高比放射能 $^{167}Tm$  ( $T_{1/2}=9.24$ 日)の新製法としてライナックによる $^{168}Yb(r, n)^{167}Yb \xrightarrow[17.7\text{min}]{EC} ^{167}Tm$ に着目し、その検討結果を報告した。さらに、無担体分離された $^{167}Tm$ を用いた動物実験を行ない、 $^{167}Tm$ -citrate が強い腫瘍親和性と骨親和性を示し、すぐれた陽性描画薬剤として期待できることも合わせ報告した。今回は、ライナック照射、ターゲットからの陽イオン交換分離と精製など $^{167}Tm$ の調製面で若干の改良を試みると共に、動物実験では $^{167}Tm$ に微量の $Tm$ 担体を加えた場合の悪性腫瘍へのとり込みの影響、炎症巣への親和性、ならびに静注直後の体内分布を詳しく検討した。

### § 2. $^{167}Tm$ の製造と調製

前報<sup>1)</sup>ではターゲットとして天然同位体組成 ( $^{168}Yb: 0.135\%$ )の市販 $Yb_2O_3$ 、および22.5%濃縮の $^{168}Yb_2O_3$ を用いたが、前者は化学分離についての未検討部分が多い<sup>+</sup>こと、後者は極めて高価(¥7000-/mg)であることのため、今回はより安価(¥2000-/mg)な18.25%濃縮の $^{168}Yb_2O_3$  (ORNL製, 86mg)を用いた。なおこの濃縮同位体の他の安定同位体濃度は22.5% $^{168}Yb_2O_3$ とほとんど変りなかった。照射は、ターゲット粉末を内径4mm $\phi$ の石英管に熔封後、東北大核理研ライナックのRIコース水冷プールの白金コンバータ直後に置き、60MeVで電子線強度約180 $\mu A$ 、正味15.5時間行なった。その結果、照射終了時に換算して970 $\mu Ci$ の $^{167}Tm$  (11.3 $\mu Ci/mg$ -target)が得られた。これは、前報<sup>1)</sup>での実験結果(約200 $\mu A$ , 7時間照射で3~5 $\mu Ci/mg$ -22.5% $^{168}Yb$  target)と比較してかなり高い。照射中のターゲット配置に深く注意を払った結果と思われる。なお、副生成核種については22.5% $^{168}Yb$ ターゲットの場合と特に相異は認められなかった。

照射ターゲットは少量の王水に溶解、蒸発乾固、水抽出の後、陽イオン交換カラム(100~200

<sup>+</sup> 1mCiの $^{167}Tm$ を得るためには $\geq 50$ g  $Yb_2O_3$ からの無担体分離を必要とする。

mesh Dowex-50 W × 8, 1 cm φ × 60 cm) に移し, 約20mlの水で洗滌した。溶離液 0.12M α-hydroxyisobutylic acid (α-HIBA), pH 3.8 は, 2.5 M α-HIBA 水溶液と α-HIBA をNH<sub>4</sub>OHでpH 7.0, 2.5 Mとした溶液を容積比 3 : 2で混合し, 水で所要濃度に稀釈して調製した。溶離は室温 (16.5°C), 流速 15ml/hrで行ない, 約400ml流出後にYbが, さらに約300ml流出後にTmが溶離開始し, Tmは計 100 mlのフラクションに回収された。10 ml毎のフラクションの放射能チェックの結果, Tmフラクションの80%にはYbの放射能は検出されなかった。純Tm部分に c. H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>を加えて濃縮後, 数mgの Fe<sup>3+</sup>を加えて NaOHでFe(OH)<sub>3</sub>を沈殿させた。沈殿は数回の水洗後, 6 M HCl酸性としてFeをエーテル抽出し, 水層は加温してエーテル除去後, 6~8 M HCl酸性で0.7 cm φ × 7 cm, 100~200 mesh Dowex-1 × 8カラムで精製し, 蒸発乾固して下記動物実験に供した。

なお, Ybフラクションは濃縮後, 0.5 M HCl酸性で飽和しゅう酸を加えてYb-oxalate沈殿として回収し, 白金ルツボで焼いて酸化物とした。さらに, この<sup>168</sup>Yb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は60 MeV, 約120 μA, 7時間の照射を行ない, 上述と同様にTmを分離, 精製して下記の動物実験に追加供試した。

### § 3. 動物実験

#### 3.1 実験材料

- i) <sup>167</sup>Tm-citrate 注射液 (carrier free) : 上記ターゲットから分離, 精製した<sup>167</sup>Tmの希塩酸溶液 (carrier free) に 0.08 M クエン酸ナトリウム溶液と少量のNaHCO<sub>3</sub>を加えてpH 7に調製したのち, 15分間沸とう水浴中で加熱した。これを0.22 μミリアポフィルターに通したのち, ラット1匹あたり0.4 ml (約1.5 μCi)を注射した。
- ii) <sup>167</sup>Tm-citrate 注射液 (1匹投与あたり金属Tmに換算してTm 5 μg, 50 μg含む) : <sup>167</sup>Tm-citrate 注射液 (carrier free) の調製のさいの<sup>167</sup>Tmの希塩酸溶液に計算量の金属Tmを溶解したものを使用し, 以下同様に行なった。
- iii) 担吉田肉腫結節ラット : 体重 151 ± 11 g のドンリウ系ラットの右大腿皮下に約 2 × 10<sup>8</sup> 個の吉田肉腫腹水細胞を移植し, 6~7日間市販の固形飼料で飼育し, 腫瘍結節が約2cmの大きさになったときに実験に供した。
- iv) 担炎症および骨折ラット : 炎症部への親和性と骨折部への親和性を同時にみる目的で, 体重 232 ± 12 g のウイスター系ラットの右脛骨および腓骨を骨折後10日目に, 背部皮下にクロトンオイル0.05 mlを注射し, この48時間後(骨折からは12日後)に注射個所を炎症部として使用した。

#### 3.2 実験方法

$^{167}\text{Tm}$  の carrier の影響を調べるための実験として、上記の担吉田肉腫結節ラットをペントバルビタールナトリウム注射液（ネンブタール）の腹腔内注射で麻酔したのち、上記の  $^{167}\text{Tm}$ -citrate 注射液（carrier free および carrier として金属 Tm に換算して  $5\mu\text{g}$  および  $50\mu\text{g}$  を含む）を各々 5 匹ずつ静注し、静注 24 時間後に屠殺して腫瘍、血液、筋肉、肝臓、腎臓、脾臓、肺臓、骨（頭頂骨）等を摘出し、重量を測定後にその放射エネルギーをウエル型シンチレーションカウンターで測定して注射量を 100% とした場合のこれらの臓器組織 1 g あたりへの取込率を求めた。つぎに静注直後の  $^{167}\text{Tm}$  の体内分布の検討のための実験として上記の担吉田肉腫結節ラットを上記の場合と同様に麻酔し、 $^{167}\text{Tm}$ -citrate (carrier free) を静注し、静注後 10, 30, 60 および 120 分後に 5 匹ずつ屠殺して腫瘍、筋肉、肝臓、腎臓、脾臓、肺臓、骨（頭頂骨）等を摘出し、上記同様に臓器組織 1 g あたりへの取込率を求めた。また炎症巣および仮骨部へのとり込みを調べるために、上記の担炎症および骨折ラットに、上記  $^{167}\text{Tm}$ -citrate 注射液 (carrier free) を同様に静注し、静注 3 時間後および 24 時間後におのおの 5 匹ずつ屠殺して、炎症部、頭頂骨、脛骨、仮骨部、血液、筋肉、肝臓、腎臓、脾臓などを摘出し、上記と同様にこれらの臓器組織 1 g あたりへの取込率を求めた。

### 3.3 実験結果

i)  $^{167}\text{Tm}$ -citrate (carrier free, Tm  $5\mu\text{g}$ ,  $50\mu\text{g}$ ) の担吉田肉腫結節ラットでの体内分布：主要臓器組織への取込率を Fig.1 に示すごとく carrier free の場合は腫瘍 1 g あたりに注射量の 0.8% (0.8%/g) がとり込まれていた。取込率の最大のは骨で 2.6%/g であり、ついで腎臓の約 1.6%/g、肝臓の約 0.5%/g となり、血液、筋肉は非常に少なく 0.01%/g 以下であった。carrier の Tm が  $5\mu\text{g}$  となってもほとんど変化なかったが、 $50\mu\text{g}$  では腫瘍取込率はやや少なくなった程度であるが、肝臓、腎臓、筋肉、血液は非常に多くなり、骨は逆に少なくなっていた。

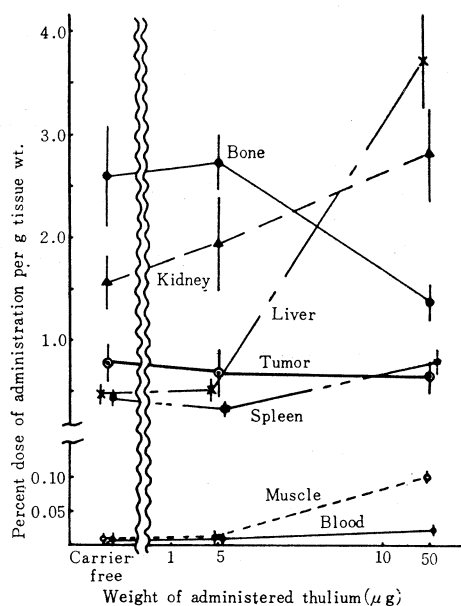


Fig.1. Mean retention values of  $^{167}\text{Tm}$ -citrate in tissues of rats with Yoshida sarcoma.

ii) 腫瘍/各臓器一比：悪性腫瘍を陽性描画するさいに重要なことの1つは、単位重量あたりで他の組織に比べて、腫瘍組織にいかにも多くとり込まれたかということである。Fig. 1 の腫瘍値を他の臓器組織の値で割った値を Table 1 に示した。この表からわかるように carrier free

Table 1 Tumor-organ concentration ratio of  $^{167}\text{Tm}$  at 24 hours after the administration of  $^{167}\text{Tm}$ -citrate (carrier free) and  $^{167}\text{Tm}$ -citrate (containing Tm of 5 and 50  $\mu\text{g}$ )

| Carrier                               | Tumor/Blood     | Tumor/Muscle    | Tumor/Liver    | Tumor/Kidney   | Tumor/Bone     |
|---------------------------------------|-----------------|-----------------|----------------|----------------|----------------|
| free                                  | 67.7 $\pm$ 11.1 | 78.7 $\pm$ 21.8 | 1.6 $\pm$ 0.2  | 0.5 $\pm$ 0.2  | 0.3 $\pm$ 0.03 |
| $^{167}\text{Tm}$<br>5 $\mu\text{g}$  | 64.4 $\pm$ 31.7 | 52.2 $\pm$ 22.9 | 1.4 $\pm$ 0.6  | 0.4 $\pm$ 0.2  | 0.3 $\pm$ 0.1  |
| $^{167}\text{Tm}$<br>50 $\mu\text{g}$ | 28.0 $\pm$ 9.3  | 7.0 $\pm$ 3.0   | 0.2 $\pm$ 0.06 | 0.2 $\pm$ 0.07 | 0.5 $\pm$ 0.2  |

の場合と Tm 5  $\mu\text{g}$  の場合はほとんど差がないが、Tm が 50  $\mu\text{g}$  ではその値は明らかに小さくなっていった。

iii)  $^{167}\text{Tm}$ -citrate (carrier free) の担炎症および骨折ラットでの体内分布：Table 2 に示

Table 2 Mean retention values of  $^{167}\text{Tm}$ -citrate in tissues of rats with fractured tibia and inflammatory tissue (%/g)

| (hr) | Blood             | Muscle           | Spleen          | Liver           | Kidney          | Inflammatory tissue | Parietal bone   | Tibia           | Callus          |
|------|-------------------|------------------|-----------------|-----------------|-----------------|---------------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| 3    | 0.21 $\pm$ 0.08   | 0.05 $\pm$ 0.004 | 0.28 $\pm$ 0.01 | 0.50 $\pm$ 0.13 | 3.24 $\pm$ 0.65 | 0.32 $\pm$ 0.07     | 1.58 $\pm$ 0.12 | 1.29 $\pm$ 0.15 | 2.38 $\pm$ 0.48 |
| 24   | 0.006 $\pm$ 0.001 | 0.01 $\pm$ 0.004 | 0.27 $\pm$ 0.03 | 0.41 $\pm$ 0.11 | 1.43 $\pm$ 0.36 | 0.20 $\pm$ 0.04     | 1.81 $\pm$ 0.13 | 1.53 $\pm$ 0.17 | 2.86 $\pm$ 0.34 |

すごとく、炎症部へは静注 3 時間後で 0.32 %/g であり、24 時間後にはほぼ 2/3 に減少していた。頭頂骨は 3 時間後で 1.58 %/g であるが、24 時間後には 1.81 %/g と増大していた。脛骨は頭頂骨よりは少ないが、同じ傾向を示した。仮骨は 3 時間後に 2.38 %/g と多く、24 時間後ではやや増大していた。血液は 3 時間後に 0.21 %/g であるが、24 時間後には極めて少なかった。筋肉は 3 時間後に 0.05 %/g であり、24 時間後には 0.01 %/g に減少した。脾臓、肝臓は 3 時間後におのおの 0.28 %/g、0.5 %/g であり、24 時間後にはともにやや減少した。腎臓は 3 時間後に 3.24 %/g であり、24 時間後にはその半分弱に減少した。以上は臓器組織 1g あたりへの取込率であるが、臓器全体への取込率はいくらになるかを求めるために、この値をもとにして血液、

肝臓, 骨, 腎臓, 脾臓, 筋肉をおのおの体重の 7.4%, 4.07%, 10%, 0.74%, 0.43%, 43%<sup>7,8)</sup>として計算により求め, その値を Table 3 に示した。この表から静注 3 時間後では骨 (脛骨の値から計算) に 28.9% とり込まれ, ついで腎臓の 5.5%, 肝臓の 4.7%, 筋肉の 4.5%,

Table 3 Mean retention values of  $^{167}\text{Tm}$  in rats with Yoshida sarcoma after the administration of  $^{167}\text{Tm}$ -citrate (carrier free)

| (hr) | Blood | Liver | Bone  | Kidney | Spleen | Muscle | Total |
|------|-------|-------|-------|--------|--------|--------|-------|
| 3    | 3.4%  | 4.7%  | 28.9% | 5.5%   | 0.3%   | 4.5%   | 47.3% |
| 24   | 0.1   | 3.9   | 35.8  | 2.5    | 0.3    | 1.3    | 43.9  |

血液 3.4%, 脾臓の 0.3% となった。24 時間後では骨が 35.8% と増大した。脾臓は変化していないが, 肝臓, 腎臓, 筋肉, 血液ともに減少し, 減少率もこの順序に大きかった。

IV) 骨/各臓器一比, 炎症部/各臓器一比: 単位重量あたりでの炎症部が, 他の臓器組織の何倍とり込まれたか (炎症部/各臓器一比) を示したものが Table 4 であり, Table 2 の炎症部または骨取込率を他の各臓器組織取込率で割って求めたものである。この表からわかるように, 炎症

Table 4 Tibia-organ and callus-tibia concentration ratio, and inflammatory tissue-organ concentration ratio of  $^{167}\text{Tm}$ -citrate in tissues of rats with Yoshida sarcoma

| (hr) | Tibia/Blood | Tibia/Muscle | Tibia/Liver | Tibia/Kidney | Callus/Tibia |
|------|-------------|--------------|-------------|--------------|--------------|
| 3    | 7.4 ± 3.0   | 28.3 ± 4.5   | 2.8 ± 1.1   | 0.4 ± 0.05   | 1.9 ± 0.3    |
| 24   | 241 ± 64    | 118 ± 44     | 4.0 ± 1.1   | 1.1 ± 0.3    | 1.9 ± 0.2    |

| (hr) | Infla./Blood | Infla./Muscle | Infla./Liver | Infla./Kidney | Infla./Tibia |
|------|--------------|---------------|--------------|---------------|--------------|
| 3    | 1.7 ± 0.5    | 7.1 ± 1.9     | 0.7 ± 0.3    | 0.1 ± 0.04    | 0.2 ± 0.03   |
| 24   | 35.7 ± 8.9   | 15.4 ± 6.3    | 0.5 ± 0.1    | 0.2 ± 0.06    | 0.1 ± 0.02   |

Infla.: Inflammatory tissue, Bone: Parietal bone

部は静注 3 時間, 24 時間後でそれぞれ血液の 1.7 倍, 36 倍となり, 同じく筋肉の 7.1 倍, 15.4 倍同じく肝臓の 0.7 倍, 0.5 倍, 同じく腎臓の 0.1 倍, 0.2 倍, 同じく頭頂骨の 0.2 倍, 0.1 倍であった。また脛骨は静注 3 時間, 24 時間後でおのおの血液の 7.4 倍, 241 倍となり, 同じく筋肉

の28.3倍, 118倍, 同じく肝臓の2.8倍, 4.0倍, 同じく腎臓の0.4倍, 1.1倍となった。また  
 仮骨/脛骨一対では3時間, 24時間後でおのおの1.9倍, 1.9倍となった。

ⅴ) 静注直後の体内分布: 臓器組織1gあたりへの取込率はFig.2に示した。この図からわかるよ

うに血液は10分後に約2.05%/g  
 であり, 急速に減少した。これに  
 対し, 腫瘍は10分後に約0.51%/g  
 であったが, 急速に増大し, 60分  
 後には0.9%/gとなり飽和した。  
 骨, 腎臓は10分後に0.7%/g,  
 0.79%/gであり急速に増大し,  
 120分後でもまた増大を続けてい  
 た。肝臓は10分後に0.44%/gで  
 あったものが60分後に0.68%/g  
 となり飽和した。脾臓は10分後に  
 0.36%/gであり, 30分後までや  
 や増大し, この点で飽和した。筋肉  
 は10分後に0.25%/gであり,  
 以後徐々に減少した。

臓器組織全体への取込率を求め  
 るために, Fig.2の値をもとにし  
 て血液, 肝臓, 骨, 腎臓, 脾臓,  
 筋肉をおのおの体重の7.4%,

4.07%, 10%, 0.74%, 43%<sup>7,8)</sup>とし, 腫瘍は2gとして計算により求め, Table 5に示

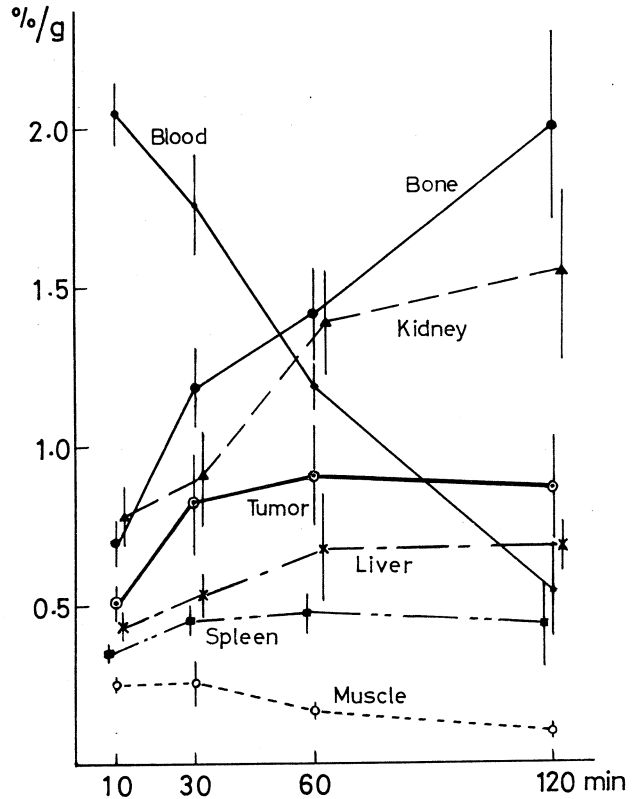


Fig2. Retention values of <sup>167</sup>Tm in tissues of rats with Yoshida sarcoma.

Table 5 Mean retention values of <sup>167</sup>Tm in tissues of rats with Yoshida sarcoma

|        | Blood  | Liver | Bone   | Kidney | Spleen | Muscle | Tumor | Total  |
|--------|--------|-------|--------|--------|--------|--------|-------|--------|
| 10min  | 23.2 % | 2.8 % | 10.6 % | 0.9%   | 0.2 %  | 16.4 % | 1.0 % | 55.1 % |
| 30min  | 19.3   | 3.2   | 12.5   | 1.0    | 0.3    | 16.4   | 1.7   | 54.4   |
| 60min  | 13.1   | 4.1   | 21.0   | 1.5    | 0.3    | 11.1   | 1.8   | 52.9   |
| 120min | 6.2    | 4.4   | 30.6   | 1.8    | 0.3    | 6.6    | 1.7   | 51.6   |

した。この表からもわかるように腫瘍は30分後に1.7%に達し、以後ほとんど変化していなかった。血液は10分後に23.2%であったものが、速やかに減少し、120分後には6.2%となり、筋肉も10分後に16.4%であったものが、比較的速やかに減少し、120分後には6.6%となった。しかし骨は逆に10分後に10.6%であったものが、120分後には30.6%と急速に増大した。その他肝臓、腎臓も増大したが、脾臓はほとんど変化しなかった。

V) 補正された腫瘍値：さてここで Fig. 2 の腫瘍値を考へてみると、腫瘍組織として摘出したものには血液を含んでおり、腫瘍組織中にとり込まれたものの他に腫瘍組織中の血管内放射能も計測していることになる。臨床スキニングは血液を含んだ状態で行なわれるが、腫瘍取込機序を考へるために、血液を除いた腫瘍組織へにとり込みを以下のごとくにして求めた。われわれは別の実験で吉田肉腫結節中の血液量は重量で6.5%以下であることを知っている。<sup>9)</sup>そこで腫瘍中の血液量を最大に見積って腫瘍重量の6.5%とし、Fig. 2 の腫瘍値から次の式のごとくにして血液に由来する放射能を腫瘍値から引き去り、“補正された腫瘍値”とした。〔補正された腫瘍値 (%/g) = 血液を含んだ場合の腫瘍値 (%/g) - 0.065 × 血液値 (%/g)〕このようにして静注各時間後の補正された腫瘍値を求め、血液、腫瘍値とともに Fig. 3 に示した。グラフからわかるように補正された腫瘍値は腫瘍値よりも小さく、静注60分後までは正の勾配が腫瘍値よりやや大きくなった。

### 3.4 考 察

$^{167}\text{Tm}$ -citrate (carrier free) は腫瘍によくとり込まれ、また骨、腎臓に多く、血液、筋肉に少ないことは前報<sup>1)</sup>で報告した。

Fig. 1 および Table 1 に carrier を含んだ  $^{167}\text{Tm}$  を  $^{167}\text{Tm}$ -citrate にした場合の結果を示した。今回、われわれが行なった  $^{168}\text{Yb}(\gamma, n)$   $^{167}\text{Yb} \xrightarrow{EC} ^{167}\text{Tm}$  の方法で

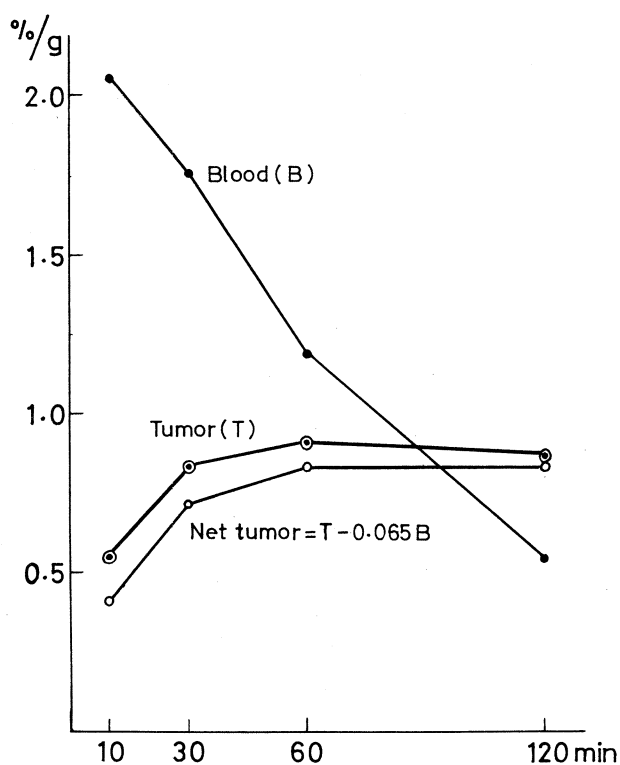


Fig. 3. Retention values of  $^{167}\text{Tm}$  in blood, tumor and tumor corrected for perfused blood.

は理論的には carrier free の  $^{167}\text{Tm}$  が得られるはずであるが、 $^{167}\text{Tm}$  の分離精製を迅速、簡単にするために、carrier として少量の Tm を加えることもあり、そのためどの程度まで carrier の影響を無視できるかを調べるために行なったものである。この結果からみると、ラット 1 匹あたり Tm  $5\ \mu\text{g}$  までは影響はないが、 $50\ \mu\text{g}$  では悪影響がでており、 $^{169}\text{Yb-citrate}$  で行なったときの結果と非常によく一致している。<sup>10)</sup> 大人の体重はラットのほぼ 400 倍あるので、単純に計算すると大人 1 人  $2\text{mg}$  となるが、Tm の化学毒性のことも考慮して、できるだけ少量におさえるべきであろう。以上の結果から、carrier free または carrier の少ない場合の  $^{167}\text{Tm-citrate}$  は吉田肉腫へ強い親和性をもつことは明らかであり、 $^{169}\text{Yb-citrate}$  の例から考えても、 $^{167}\text{Tm-citrate}$  が人の悪性腫瘍に強い親和性があると考えてよさそうである。またこれらの結果は Hayes ら<sup>11)</sup> Yano ら<sup>12)</sup> がわれわれの報告<sup>13)</sup> をもとにサイクロトロンにより  $^{167}\text{Tm}$  を製造して、動物腫瘍でテストし、非常に強い親和性を認めていることともよく一致する。つぎに  $^{167}\text{Tm}$  の骨親和性であるが、このことについてはすでにいくつかの報告<sup>14~16)</sup> があり、臨床テストの報告<sup>15,16)</sup> もあるが、今回このことを確認することも含めて行ない、その結果は Table 2, 3, 4 に示した。身体全体での骨へは、3, 24 時間後でおのおの 28.9%, 35.8% とよくとり込まれ、骨/血液一比は 3 時間, 24 時間後でおのおの 7.4, 24.1, また骨/筋肉一比は 3 時間, 24 時間後で 28.3, 118 と大きく、また仮骨部には正常骨の 2 倍弱のとり込みを認めたが、代表的骨親和性核種である  $^{85}\text{Sr-chloride}$  に比べれば小さかった。<sup>5)</sup> また現在、骨スキニングには  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  化合物である  $^{99\text{m}}\text{Tc-pyrophosphate}$ ,  $^{99\text{m}}\text{Tc-ethane-1-hydroxy-1 diphosphonate}$  が盛んに使用され、好成績をおさめているので、骨スキニングだけの目的にはわざわざ  $^{167}\text{Tm}$  を製造して使用する必要はなさそうである。以前に、われわれは  $^{169}\text{Yb-citrate}$  に炎症親和性のあることを報告<sup>10)</sup> したが、Table 2, 4 に示すごとく、 $^{167}\text{Tm-citrate}$  も炎症にもかなりの親和性を示しており、 $^{169}\text{Yb}$  によく類似した性質をもっていることが明らかとなった。

つぎに  $^{167}\text{Tm}$  の静注直後の体内分布であるが、補正された腫瘍値は血液量を最大に見積った場合であり、実際にはこれより少ないので、現実には血液を除いた腫瘍組織取込値は“腫瘍値”と“補正された腫瘍値”の間にあるはずである。Fig.3 から考えて、 $^{167}\text{Tm}$  は腫瘍組織に極めて短時間のうちにとり込まれ、一度とり込まれたものはほとんど腫瘍外へ排出されず、 $^{169}\text{Yb-citrate}$  で得た結果<sup>17)</sup> とよく一致していた。

#### § 4. 要 約

18.25% に濃縮した  $^{168}\text{Yb}_2\text{O}_3$  86 mg を核理研ライナックにより、60 MeV で電子線強度約



180  $\mu$ A, 正味 15.5 時間の照射を行なった。照射終了時に換算して 970  $\mu$ Ci の  $^{167}\text{Tm}$  (11.3  $\mu$ Ci /mg- target) が得られ, これを陽イオン交換法で無担体分離し, 動物実験に供した。

carrier free の  $^{167}\text{Tm}$ -citrate と金属 Tm に換算して 5  $\mu$ g の carrier を含む  $^{167}\text{Tm}$ -citrate は強い腫瘍親和性と骨親和性を示し, 腫瘍親和性物質としてはすぐれた核種であることが確認されたが, 骨親和性物質として考える場合は, 現在使用されている骨スキャンニング剤にまさるとは判断できなかった。同じく 50  $\mu$ g の carrier を含む  $^{167}\text{Tm}$ -citrate は腫瘍親和性も骨親和性も著しく弱くなった。また  $^{167}\text{Tm}$ -citrate は炎症へもかなり強い親和性を示した。 $^{167}\text{Tm}$  の腫瘍組織へのとり込みの観察から,  $^{167}\text{Tm}$  は静注直後速やかに腫瘍組織にとり込まれ, 一度とり込まれたものは腫瘍組織外へ排出されにくいことがわかった。これらの性質は  $^{169}\text{Yb}$ -citrate に非常によく類似していた。

本研究は, 昭和49年度科研費総合研究「300 MeV リニアックの共同利用による化学的研究」により行なった。また研究費の一部は厚生省がん研究助成金(筭班), 「財団法人・成人病医学研究振興財団」の研究助成金によるものであることを記し, 感謝の意を表します。

また東北大学理学部塩川孝信教授, 八木益男助教授, 金沢大学理学部阪上正信教授の方々に, 本研究を通じて終始お世話になった。あらためて謝意を表します。

## 参 考 文 献

- 1) 坂本, 代田, 安東, 久田: 核理研究報告 **7** (1974) 204.
- 2) 坂本, 代田, 安東, 久田: 第18回放射化学討論会講演要旨集 仙台, 1974年10月.
- 3) 坂本, 代田, 安東, 久田: 核医学 **11** (1974) 409.
- 4) 安東, 久田, 坂本, 代田: 核医学 **11** (1974) 407.
- 5) 安東, 久田, 坂本, 代田: *Radioisotopes* **24** (1975) 109.
- 6) 久田: *Advisory Group Meeting on Tumor Localization with Radioactive Agents in IAEA. Vienna* 1974年12月.
- 7) Subramanian, McAfee, Bell, Blair, O'Mara and Ralsten: *Radiology* **102** (1972) 701.
- 8) 奥木: 実験動物, p 273, 南山堂, 東京.
- 9) 未発表.
- 10) 安東, 久田: *Radioisotopes* **21** (1972) 648.
- 11) Hayes, Brown, Byrd and Carlton: *J. Nucl. Med.* **15** (1974) 501.
- 12) Yano, Chu and Anger: *J. Nucl. Med.* **15** (1974) 545.
- 13) Hisada and Ando: *J. Nucl. Med.* **14** (1973) 615.
- 14) Chandra, Braunstein and Thein: *Intn. J. Appl. Radiat. Isotopes* **23** (1972) 553.
- 15) Steinberg, Rasmussen, Ennow, Roy-Poulsen, Voetmann, Poulsen and Andersen: *Radiopharmaceuticals and Labelled Compounds* vol. II, p 151, IAEA-SM-171/27 (IAEA, Vienna, 1973)
- 16) Chandra, Braunstein, Lucy Duhov and Tilbury: *Brit. J. Radiology*, **47** (1974) 51.
- 17) 安東, 久田, 平木, 安東, 真田: *Radioisotopes* **23** (1974) 161.

## V. 加速器・測定器部門

V-1 ( $\gamma, p$ ) 反応の角分布測定装置

核理研 菅原真澄・玉江忠明  
 教養部物理\* 坪田博明\*

## § 1. はじめに

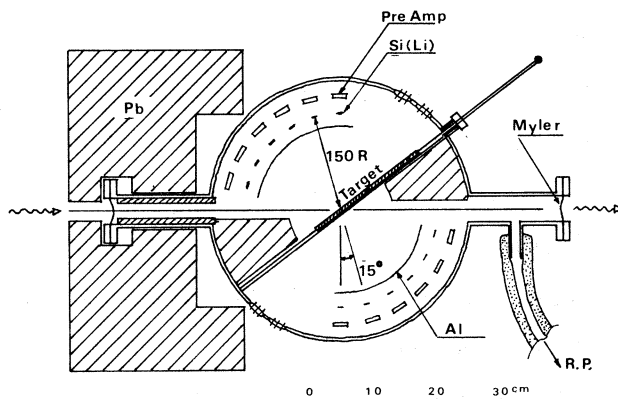
( $\gamma, p$ ) 反応によって放出される陽子の角分布測定装置をガンマ・チャンネルに設置したので、その構成と性能、試験測定の結果を述べる。

従来核理研では( $e, e' p$ ) 反応によって巨大共鳴の研究を行ってきたが、これから仮想光子法を使って求めた( $\gamma, p$ ) 断面積と実際にガンマ線を使用して測定された断面積の間には微妙な違いのあることが知られている。これが実験誤差によるものか、或いは反応機構の差によるものかは未だはっきりしているとは言い難く、( $e, e' p$ ) の測定と( $\gamma, p$ ) の測定を並行して行いその差異を明らかにする必要がある。又放出陽子の角分布は巨大共鳴の構造を知る上で重要な手懸りを与えるもので、ガンマ線・エネルギーの関数として連続に測定できることが望ましい。更には BDM (広帯域分析電磁石) を使わない測定器の充たすべき条件を調べる等の目的でこの装置を製作した。

## § 2. 測定装置

第 1 図に装置の概略を示した。散乱槽内には巾 2 ミリ、高さ 10 ミリ、厚さ 1 ミリの半導体検出器 (Si(Li), LDM, BDM と兼用) を 12 箇、ガンマ線の方向に対して、15 度から 165 度まで 15 度置きに配列してあり、前置増巾器が後続している。前置増巾器からの信号はハーメチック・シールを通して取り出される。核反応の標的は同時に 2 箇取り付けることが可能で、BDM のものと同じ大きさにし互換性をもたせた。散乱槽はガンマ線の入出窓として厚さ 0.2 ミリのマイラーを使用し、回転ポンプのみで排気される。

今回のように標的を直視して測定する場合には、入射ガンマ線が



第 1 図 散乱槽

パルス的であることも手伝って、標的その他から発生するガンマ線、電子、中性子等の雑信号が測定しようとする信号と重なり合って弁別不可能になることが多い。これをさけるには磁石等を使って電子を除去する、速い信号回路を使う。不必要に厚い検出器を使わないこと等が対策として考えられる。検出器は BDM, LDM で従来使っていたものを使用したため、大きさを自由に選択できなかったが厚さ 1 ミリは陽子の飛程にして 12 MeV に相当し、巨大共鳴からの陽子測定には適当な厚さである。前置増巾器は電荷増巾型は採用せず、エネルギー分解能は或る程度犠牲にして電流波形増巾型にした。検出器に 90 V のバイアス電圧をかけたときの出力波形はガウス型に近く、波高値、半値巾はそれぞれ約 13 mV/MeV, 50 ナノ秒、エネルギー分解能は約 150 keV である。信号は散乱槽から取り出された後波高弁別回路に入り、ある設定値以上の波高のものが計数される。計数回路には多重波高分析器を MCS モードで使用した。遮蔽として散乱槽の下方、側方、前方にそれぞれ 20, 5, 20 センチの鉛を置いてあるが、上方は殆んど遮蔽していない。

測定の結果では 15 度、165 度方向で雑信号が多いがそれ以外では無視できる程度であった。これは制動放射線発生場所と測定場所の間に充分な遮蔽(重コンクリート 3 m)があるためと思われる。

ガンマ線の照射量測定には薄窓型電離槽を使用した。

### § 3. $^{12}\text{C}$ , $^{54}\text{Fe}$ , $^{60}\text{Ni}$ ( $\gamma$ , p) 角分布

測定器の性能検査のために角分布のよく知られている  $^{12}\text{C}$ ,  $^{54}\text{Fe}$ ,  $^{60}\text{Ni}$  を標的として角分布の測定を行った。ガンマ線は 100 ミクロンの白金板に 24 MeV の電子線を照射して発生する制動放射線であり、標的の位置で約直径 15 ミリにコリメートされている。コリメータの前には厚さ 3 センチのアルミ板を置き、反応に関与しない低エネルギーのガンマ線を減らした。標的から発生する電子を止めるために検出器の直前に厚さ 100 ミクロンのアルミ薄板を吸収体として置いたが、この厚さは、電子で 150 keV, 陽子で 3.5 MeV, アルファ粒子で 14 MeV 以下のエネルギーのものを止めることができる。

標的は、 $^{60}\text{Ni}$  が 5.7 mg/cm<sup>2</sup>,  $^{54}\text{Fe}$  が 3.6 mg/cm<sup>2</sup>,  $^{12}\text{C}$  はポリエチレンを使い 8.2 mg/cm<sup>2</sup> の厚さであり、入射ガンマ線に対する標的面の角度は 37.5° である。波高弁別器の閾値は 4.0 MeV 相当に設定した。これは 100 ミクロンのアルミ吸収板でのエネルギー損失を考慮すると 5.6 MeV 以上の陽子を測定することになる。各検出器からの信号の波高分布を測定した結果によれば、電子によると思われる雑信号の最大波高値は 2.0 MeV で波高弁別器の閾値

をこえるものは  $15^\circ$ ,  $165^\circ$  方向を除いて非常に少ない。 $165^\circ$  方向で雑信号の多いのは入射ガンマ線のコリメートがよくないためと思われる。 $15^\circ$  方向では標的の厚さが増し原子番号が増えるに従って雑信号が増える傾向にあり標的から発生する電子線等が無視できないことが分る。

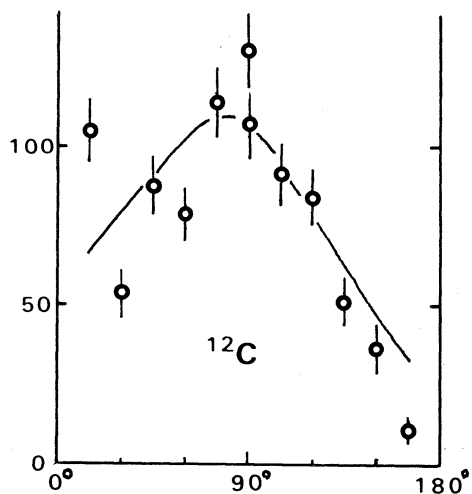
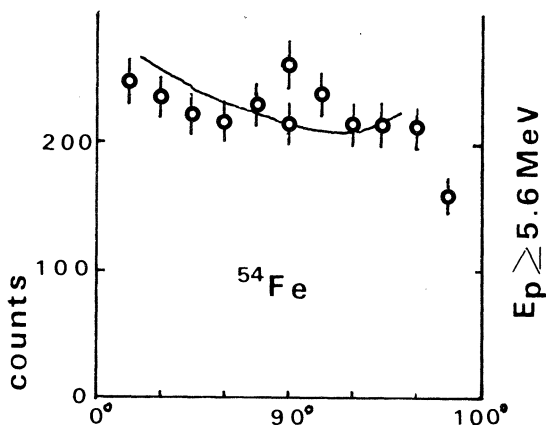
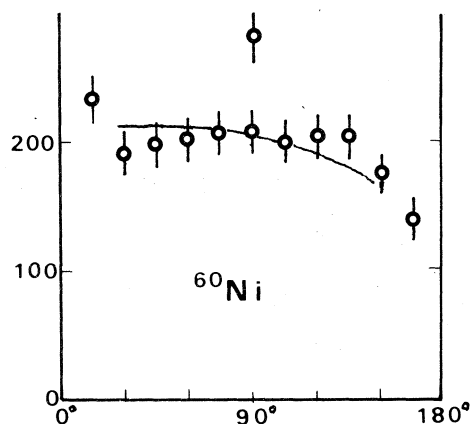
$^{12}\text{C}$ ,  $^{54}\text{Fe}$ ,  $^{60}\text{Ni}$  の角分布を第2図に示した。 $15^\circ$ ,  $165^\circ$  の測定値は前述したように雑信号を含んでいる怖れがある。 $^{60}\text{Ni}$  図中の実線は BDM で測定された角分布で測定条件は  $E_e = 23.3 \text{ MeV}$ ,  $E_p \geq 6.8 \text{ MeV}$  である。

$^{54}\text{Fe}$  中の実線は  $(e, e' p_1 + p_0)$  で  $E_e = 20 \text{ MeV}$  のものである。

$^{12}\text{C}$  図の実線は V. J. Vanhuyse の制動放射線による測定値で  $E_e = 40.0 \text{ MeV}$

$E_p = 6.81 \sim 9.09 \text{ MeV}$  である。個々の検出器の検出効率はそれぞれ異なっているので補正する必要がある。そのためには検出器の位置を相互に交換しながら測定をくりかえせばよいが、第2図はその補正を行っていない。簡便な方法は、すでに測定されている角分布を再測定して補正値を求めることである。

今回は試みに第2図の  $^{12}\text{C}$ ,  $^{54}\text{Fe}$ ,

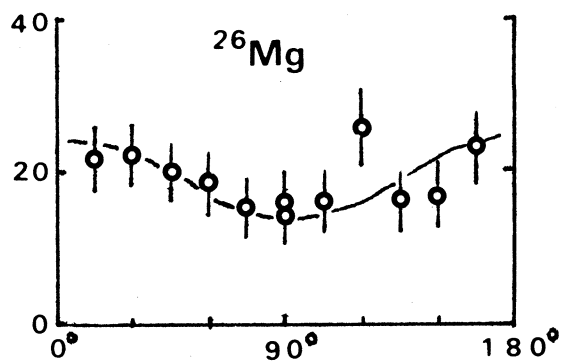


第2図  $^{60}\text{Ni}$ ,  $^{54}\text{Fe}$ ,  $^{12}\text{C}$  ( $\gamma, p$ ) 角分布。  
 $E_{\gamma\text{max}} = 24.0 \text{ MeV}$ ,  $E_p \geq 5.6 \text{ MeV}$ . 各角度での  
 検出効率は補正していない。 $^{60}\text{Ni}$ ,  $^{54}\text{Fe}$  の  
 実線は BDM で測定された  $(e, e' p)$  の値。  
 $^{12}\text{C}$  は V.J. Vanhuyse の  $(\gamma, p)$ .

$^{60}\text{Ni}$  の角分布からだした補正値を利用して  $^{26}\text{Mg}$  の角分布を求めた。結果を第3図に示す。

実線は  $d5/2 \rightarrow f5/2$  遷移を仮定したときの角分布である。

おわりに、測定回路の製作を武藤氏に担当して戴いたことを付記致します。



第3図  $^{26}\text{Mg}(\gamma, p)$  角分布  
 $E_{\gamma_{\text{max}}} = 24.0 \text{ MeV}$ ,  $E_p \geq 5.6 \text{ MeV}$ ,  
 各角度での検出効率を補正してある。  
 実線は理論値

## V-2 広帯域磁気分析計に原子核乾板を用いた測定について(I)

山形大教養，核理研\*

種市 宏・上野博昭・庄田勝房\*

### § 1. 序 文

1973年8月28, 29日の両日にわたって、広帯域磁気分析計(BDM)のSSDの代りに、原子核乾板を焦点面上にセットして実験した。Targetは ${}^6\text{Li}$ ,  ${}^{90}\text{Zr}$ , および Ta上に蒸着した ${}^6\text{Li}$ であった。今回は乾板上の位置とBDM上の絶対位置, エネルギー, 効率および断面積の絶対値について計算したので, 測定例を添えて発表する。

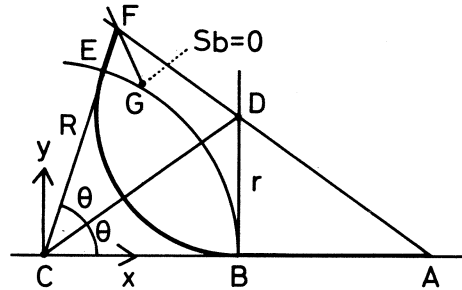
### § 2. 計 算

#### 2.1 乾板上の位置と軌道半径との関係

第1図のように円形磁場の中心を原点にとると、焦点面の座標は次式<sup>1)</sup>で表わされる。

$$\begin{cases} x = 2R(R^2 - r^2)/(3R^2 - r^2) \\ y = 4rR^2/(3R^2 - r^2) \end{cases} \quad (1)$$

$R$ は中心軌道の半径で550mmとする。焦点面の軌道は双曲線であるが、双曲線の長さは不完全楕円積分になり解析的に求められない。ここでは $r$ を318mmから1mmずつふやして対応する点列の座標を(1)で計算し、次に各点を直線で結んで長さを計算した。更に相隣る3点を通る放物線の長



第1図 Cは円形磁場の中心、GFは焦点面、粒子の軌道はABEF、BEは有効磁場のへり、G点が $r=318\text{mm}$ に対応する焦点面上の点で $s_B$ の原点である。

さを求めて上の直線近似と比較したが0.01mmの範囲で両者が一致したので精度は十分である。 $r=318\text{mm}$ の点を基準にした焦点面の長さを $s_B$ とする。第1表に $r, s_B, x, y$ の関係を示す。乾板上の距離を測る原点の絶対座標を求めるために ${}^{90}\text{Zr}$ の( $e, e'p$ )反応のプロトン・スペクトルの3つのピークの位置を利用した。第2図はそのスペクトルでA, B, Cのピークはそれぞれ5.9, 6.28, 7.79 MeVに対応し、乾板上の位置はそれぞれ38, 68, 201mmである。一方プロトンのエネルギーから対応する軌道半径 $r$ を求め、第1表の $r-s_B$ の関係から内挿法で $s_B$ を求めることができる。この方法で乾板上の原点(plate-holderの下端)から測った距離



第1表 軌道半径  $r$  に対応する  $s_B$  および焦点面の点の座標。単位は mm。

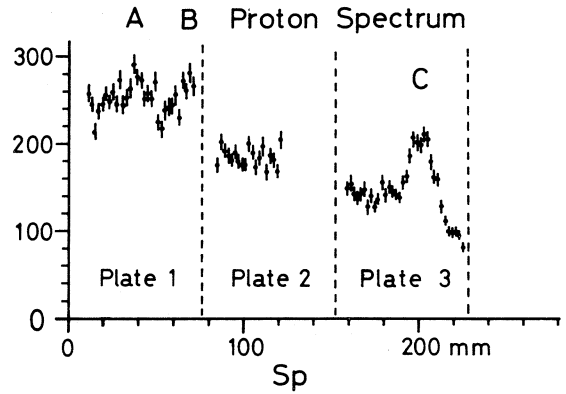
| $r$  | $s_B$   | $x$     | $y$     |
|------|---------|---------|---------|
| 320. | 3.99    | 273.39  | 480.93  |
| 330. | 24.20   | 266.67  | 500.00  |
| 340. | 44.99   | 259.62  | 519.51  |
| 350. | 66.28   | 252.23  | 539.49  |
| 360. | 88.16   | 244.49  | 559.97  |
| 370. | 110.70  | 236.39  | 580.98  |
| 380. | 133.89  | 227.90  | 602.54  |
| 390. | 157.73  | 219.01  | 624.70  |
| 400. | 182.38  | 209.70  | 647.49  |
| 410. | 207.79  | 199.95  | 670.95  |
| 420. | 233.95  | 189.73  | 695.12  |
| 430. | 261.07  | 179.02  | 720.04  |
| 440. | 289.15  | 167.80  | 745.76  |
| 450. | 318.20  | 156.03  | 772.34  |
| 460. | 348.33  | 143.68  | 799.83  |
| 470. | 379.59  | 130.73  | 828.28  |
| 480. | 412.05  | 117.13  | 857.78  |
| 490. | 445.80  | 102.85  | 888.37  |
| 500. | 480.96  | 87.83   | 920.15  |
| 510. | 517.58  | 72.04   | 953.20  |
| 520. | 555.79  | 55.42   | 987.60  |
| 530. | 595.70  | 37.92   | 1023.46 |
| 540. | 637.42  | 19.47   | 1060.89 |
| 550. | 681.11  | 0.00    | 1100.00 |
| 560. | 726.92  | -20.56  | 1140.93 |
| 570. | 775.01  | -42.29  | 1183.83 |
| 580. | 825.57  | -65.30  | 1228.86 |
| 590. | 878.81  | -89.67  | 1276.19 |
| 600. | 934.97  | -115.53 | 1326.03 |
| 610. | 994.28  | -143.00 | 1378.60 |
| 620. | 1057.05 | -172.22 | 1434.14 |
| 630. | 1123.63 | -203.37 | 1492.95 |
| 640. | 1194.35 | -236.61 | 1555.33 |

(以下  $s_P$  とかく) と  $s_B$  との比較ができる。これらの関係を表にしたのが第2表である。第2表から  $s_P$  は  $s_B$  から 140.3 mm 引いて求められる。

### 2.2 Efficiency

乾板上の track 数は測定面積で割って track density ( $1/\text{mm}^2$ ) として normalize する。測定の効率は、エネルギー幅  $\Delta E$  に対する乾板上のずれ  $\Delta s$  と scan 幅 ( $z$  方向) に対応する入射立体角によるので、別々に考える。

i) エネルギー幅と位置のずれ



第2図 プロトンのスペクトルで横軸はプレート上の距離  $s_P$  (ホルダーの端から測る) で縦軸は  $2\text{ mm} \times 4\text{ mm}$  の面積にふくまれるプロトン数である。

第2表  $s_B$  と  $s_P$  との差,  $^{90}\text{Zr}(e, e' p)$  の3つのピークについて一致している。

| ピーク        | A     | B     | C     |
|------------|-------|-------|-------|
| $E$ (MeV)  | 5.9   | 6.28  | 7.79  |
| $r$ (mm)   | 398.1 | 410.7 | 457.5 |
| $s_B$ (mm) | 177.6 | 209.6 | 340.7 |
| $s_P$ (mm) | 38    | 68    | 201   |
| 差          | 139.6 | 141.6 | 139.7 |

磁場の強さ、粒子の質量と電荷を一定とすれば、粒子のエネルギーは  $k$  を定数として

$$E = k \cdot r^2$$

$$\therefore dE = 2kr \cdot dr$$

一方(1)から  $r/R = x$  とおいて

$$ds = \frac{4\sqrt{9 + 10x^2 + x^4}}{(3 - x^2)^2}$$

$$\therefore \left(\frac{dE}{ds}\right) = \left(\frac{dE}{ds}\right)_R \cdot F(x) \quad (2)$$

ただし

$$F(x) = \frac{\sqrt{5} \cdot x(3 - x^2)^2}{2\sqrt{9 + 10x^2 + x^4}}$$

$$\left(\frac{dE}{ds}\right)_R = \frac{E_0}{\sqrt{5} \cdot R} \quad (3)$$

ここに  $ds = ds_B = ds_P$  である。

## ii) 立体角

核理研の BDM は  $z$ -focus していないので、立体角は path の長さ、BDM の入口 slit の幅と scan 幅とから計算できる。第 3 図は軌道をまっすぐのぼした図で  $O$  は target 上の 1 点、 $S$  は BDM の入口の slit で幅  $h = 60$  mm、 $p$  は入口までの距離で 430 mm、 $F$  は焦点面で  $w$  は scan 幅である。第 1 図から path 長  $l$  は

$$l = R + r(\pi - 2\theta) - r \cot(3\theta)$$

$$\theta = \arctan(r/R)$$

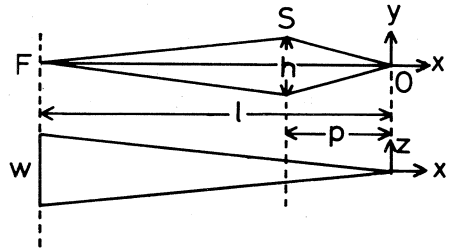
で、入射立体角は

$$d\Omega = d\Omega_R \cdot G(r) \quad (4)$$

$$\text{ただし } G(r) = \frac{2 + \pi/2}{1 + (r/R)\{\pi - 2\theta - \cot(3\theta)\}} \quad (5)$$

$d\Omega_R$  は  $r = R$  のときの立体角で

$$d\Omega_R = \frac{h \cdot w}{(\pi/2 + 2) \cdot p \cdot R} \quad (6)$$



第 3 図  $O$  はターゲットの中央、 $s$  は BDM の入口スリットで、ここで収束されて  $F$  に集まる。 $z$  方向は収束されずに進む。

iii)  $r = R$ を基準にした efficiency

次節の2.3で述べる絶対値の式(7)の形から, (2), (4)式の $F(x)$ と $G(r)$ の積が $r = R$ の位置を基準にした efficiency になる。第3表は  $s_p$ ,  $E/E_0$ , efficiency をまとめたものである。

第3表 プレート上の距離  $s_p$  と  $E/E_0$  および efficiency

| $s_p$ (mm) | $E/E_0$ | efficiency | $s_p$ (mm) | $E/E_0$ | efficiency |
|------------|---------|------------|------------|---------|------------|
| 0.         | 0.4845  | 1.8592     | 430.       | 0.9069  | 1.1391     |
| 10.        | 0.4952  | 1.8405     | 440.       | 0.9156  | 1.1257     |
| 20.        | 0.5059  | 1.8219     | 450.       | 0.9242  | 1.1124     |
| 30.        | 0.5165  | 1.8032     | 460.       | 0.9328  | 1.0994     |
| 40.        | 0.5270  | 1.7846     | 470.       | 0.9413  | 1.0865     |
| 50.        | 0.5376  | 1.7659     | 480.       | 0.9498  | 1.0737     |
| 60.        | 0.5481  | 1.7473     | 490.       | 0.9582  | 1.0611     |
| 70.        | 0.5587  | 1.7286     | 500.       | 0.9666  | 1.0487     |
| 80.        | 0.5692  | 1.7099     | 510.       | 0.9749  | 1.0364     |
| 90.        | 0.5796  | 1.6914     | 520.       | 0.9832  | 1.0243     |
| 100.       | 0.5901  | 1.6729     | 530.       | 0.9914  | 1.0124     |
| 110.       | 0.6004  | 1.6545     | 540.       | 0.9996  | 1.0006     |
| 120.       | 0.6108  | 1.6362     | 550.       | 1.0077  | 0.9890     |
| 130.       | 0.6210  | 1.6180     | 560.       | 1.0157  | 0.9775     |
| 140.       | 0.6313  | 1.5999     | 570.       | 1.0237  | 0.9661     |
| 150.       | 0.6415  | 1.5819     | 580.       | 1.0317  | 0.9549     |
| 160.       | 0.6516  | 1.5640     | 590.       | 1.0396  | 0.9439     |
| 170.       | 0.6618  | 1.5462     | 600.       | 1.0474  | 0.9330     |
| 180.       | 0.6718  | 1.5286     | 610.       | 1.0552  | 0.9222     |
| 190.       | 0.6819  | 1.5111     | 620.       | 1.0630  | 0.9116     |
| 200.       | 0.6918  | 1.4937     | 630.       | 1.0707  | 0.9012     |
| 210.       | 0.7018  | 1.4765     | 640.       | 1.0783  | 0.8908     |
| 220.       | 0.7116  | 1.4595     | 650.       | 1.0859  | 0.8806     |
| 230.       | 0.7215  | 1.4426     | 660.       | 1.0935  | 0.8706     |
| 240.       | 0.7312  | 1.4258     | 670.       | 1.1009  | 0.8606     |
| 250.       | 0.7410  | 1.4092     | 680.       | 1.1084  | 0.8509     |
| 260.       | 0.7506  | 1.3928     | 690.       | 1.1158  | 0.8412     |
| 270.       | 0.7603  | 1.3765     | 700.       | 1.1231  | 0.8317     |
| 280.       | 0.7698  | 1.3604     | 710.       | 1.1304  | 0.8222     |
| 290.       | 0.7794  | 1.3444     | 720.       | 1.1377  | 0.8130     |
| 300.       | 0.7888  | 1.3286     | 730.       | 1.1449  | 0.8038     |
| 310.       | 0.7982  | 1.3130     | 740.       | 1.1520  | 0.7948     |
| 320.       | 0.8076  | 1.2976     | 750.       | 1.1591  | 0.7859     |
| 330.       | 0.8169  | 1.2823     | 760.       | 1.1662  | 0.7771     |
| 340.       | 0.8261  | 1.2672     | 770.       | 1.1732  | 0.7684     |
| 350.       | 0.8353  | 1.2523     | 780.       | 1.1802  | 0.7598     |
| 360.       | 0.8444  | 1.2376     | 790.       | 1.1871  | 0.7514     |
| 370.       | 0.8535  | 1.2230     | 800.       | 1.1939  | 0.7431     |
| 380.       | 0.8626  | 1.2086     | 810.       | 1.2008  | 0.7348     |
| 390.       | 0.8715  | 1.1943     | 820.       | 1.2076  | 0.7267     |
| 400.       | 0.8804  | 1.1803     | 830.       | 1.2143  | 0.7187     |
| 410.       | 0.8893  | 1.1664     | 840.       | 1.2210  | 0.7108     |
| 420.       | 0.8981  | 1.1526     | 850.       | 1.2276  | 0.7030     |

## 2.3 絶対値

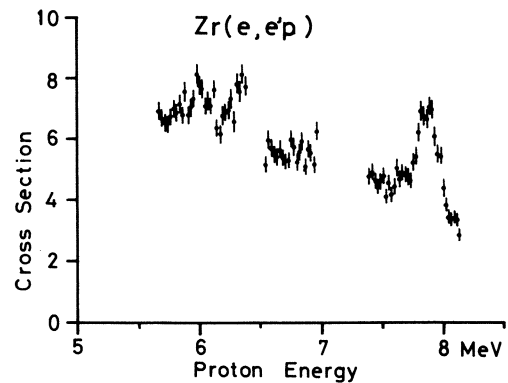
scan 副  $w$  ( mm ),  $s$  方向に  $ds$  ( mm ) の間の track 数を  $d^2N$  とすると, (2), (3), (4), (5), (6) から

$$\begin{aligned} \frac{d^2N}{dQ dE} &= \frac{d^2N}{ds \cdot w} \sqrt{5} \left( 2 + \frac{\pi}{2} \right) \frac{pR^2}{hE_0} \frac{1}{F(x) G(x)} \\ &= (\text{track density}) \frac{2.168 \times 10^6}{E_0} \frac{1}{F(x) G(x)} \quad (7) \end{aligned}$$

cross section を求めるためには, (7) を更に target thickness ( nucleus/cm<sup>2</sup> ) および dose ( electron 数 ) で割らなければならない。

## § 3. 測定例

第4図は  $^{90}\text{Zr}(e, e'p)$  のスペクトルである。横軸のエネルギーは第3表の  $s_p$  と  $E/E_0$  の関係から求め, target 内のエネルギー損失の補正をしたものである。縦軸のスケールは dose から  $\mu c$  にする factor が現在計算中であるので arbitrary になっている。測定点が全部つながらないのは乾板の端が emulsion の欠損で測定できないためと, 一部未測定のためである。SSD の測定にくらべると分解能がよくなっている。



第4図  $^{90}\text{Zr}(e, e'p)$  のスペクトル。縦軸は proton/electron-MeV · sr · nucleus であるが arbitrary unit である。

## § 4. 結 び

原子核乾板を用いる利点は粒子の弁別ができる点である。今回は proton と deuteron は互に分けることができたが, alpha

と triton は互に分けることができなかった。この点は現像の改良で分離が可能になるものと思われる。proton は SSD で十分測定できるので, 原子核乾板では, SSD で分離して測定することが困難な  $d$ ,  $\alpha$ ,  $t$  を測るようになればよい。この際 proton track が出ないような現象をすれば scan の手間もはぶけて能率が上がるはずで今後も機会を見てこの方針で実行したい。

この実験に際して御援助いただきました核理研 ( $\gamma$ ,  $p$ ) グループのメンバーの方々とマシングループ, 測定器グループの方々に感謝致します。

## 参 考 文 献

- 1) C. P. Browne and W. W. Buechner : Rev. Sci. Instrum. **27** ( 1956 ) 899 .

## V-3 劣化した Ge(Li) 検出器の再生

理学部物理 金沢正明・片倉純一・林部昭吾  
大島真澄・山家 優

## § 1. はじめに

核理研36cc Ge(Li) 検出器の再生の経過について簡単に報告する。この Ge(Li) 検出器は核理研で最初に購入したもので ORTEC 製、当時は  $^{60}\text{Co}$  1.33 MeV  $\gamma$  線に対し 4 keV の分解能であった。約三年程前、チェンバーがあせをかく現象がみられたといわれ、真空漏れの疑いが生じ同時に分解能が低下した。その後工学部が担当を引き受けられ、一年程前我々が引き継いだ。チェンバー排気用の真空系一式は工学部からそのまま引き継ぎ、我々のテストでは多少引きが遅い懸念はあったが作業には一応耐え得ると判断した。

現状は完全に満足すべき状態ではないが、以下に簡単な経過を報告する。

## § 2. 検出器再生の経過

1974年3月～5月の約3ヶ月間に20回以上に及び Ge(Li) のエッチング、clean up を繰返したが、 $^{137}\text{Cs}$  662 keV  $\gamma$  線に対し分解能約 10 keV、peak / compton 比約 3 倍が最良で多くは抵抗特性を示した。我々の方式は同軸型 Ge(Li) の両面をカーボンパウダーで研磨し、側面の  $n$  層をマスキングテープで覆った後、HF : HNO<sub>3</sub> 約 1 : 3 の溶液でエッチングする方法で手順そのものに問題があるとは思えなかった。又、チェンバーヘマウント後の clean up の方式の一例は氷 (NaCl 液) で数十 V で数時間後、ドライアイスアルコール液で約半日行ない、電圧は数百 V まで徐々に引き上げた。真空系はロータリー、ディフュージョンポンプの他にソーブションポンプも並用した。現状を打開しもっと根本的原因をさぐるため、原研の炉計測部門の阪井英次氏及び片桐政樹氏の助言と御援助を仰ぐことにし、承諾が得られた。

1974年6月18日～23日原研へ出向いた。

PN checker での点検によって  $n$  層の乱れが相当ひどいことが判明 (Li の析出などのため) したため、 $n$  層を削り落し、Li を蒸着後  $n$ -ペンタン中での drift を約 1 日半行ない  $n$  層の再生をはかった。drift 中 Ge 半導体の両極にかけた電圧は最も安定した時点で 500 V、16 mA であった。clean up はドライアイス冷却により、Ge(Li) の leak current を constant power に自動制御することにより、最終的に電圧を 1000 V 内外まで (電流 6～8 mA) 引き上げ、その作業に約半日かけた。つまり冷却棒による熱伝導と検出器の電流熱を釣合わせながら clean up を行

う方式である。エッチングの方法には片桐氏等と我々に基本的な違いはみられないが、片桐氏等はエッチング後の洗浄を直接アルコールで行なう点でこの方が成功率が高いということであった。又、エッチング液も大容器(500 cc位)でふんだんに使う点も参考になった。この時は作業は二回繰返したが、到達真空度が上らない( $1.3 \times 10^{-5}$  mmHg, 但し引き口)ため、チェンバーの整備をもう一度することで作業を打切った。運搬中に何かの原因でこれ迄あったピンホールが拡大したが、或いはもっと根本的欠陥によるものと判断された。参考までに測定したこの時のGe(Li)のリーク電流は1 Vで3.8 nA, 10 Vで7.8 nA, 1500 Vで42.5 nAであった。capacitanceは0 V 116.8 pF, 100 V 108.9 pF, 1000 V 99.1 pFであった。

核理研に引き返してからの作業はチェンバーの真空引き口の改善及びバルブ交換, 冷却棒とチェンバーの継ぎ目のテフロンパッキングの交換などで真空度の向上をはかり、最終的にはリークディテクターでチェックした。

1974年11月11日~15日再び原研に赴いたが、作業を短時日、能率的にすすめるため、driftを事前に済ませていただいた。したがって、マウントは到着直後から始めることができ、都合4回の試行を繰返した。結果はH.T. 1800 V で $^{137}\text{Cs}$  662 keV  $\gamma$ 線に対し4.02 keV,  $^{60}\text{Co}$  1.33 MeV  $\gamma$ 線に対し4.8 keVの分解能を得た。又、peak/compton比は1.33 MeVに対し18.8倍であった。

この様な状態で核理研に持ち帰ったが、専用のpre Ampの故障でスペクトルが測定できなかった。今年('75)4月の測定ではH.T. 1000 Vが最も良い状態で $^{137}\text{Cs}$  662 keV  $\gamma$ 線に対し分解能7.3 keV, peak/compton比約8倍,  $^{22}\text{Na}$  1.27 MeV  $\gamma$ 線に対し分解能10 keV, peak/compton比約4.5倍であった。耐圧が低下しているのが分解能低下の原因であるが、その理由は未だ分っていない。以前に我々がマウントした際も耐圧が次第に低下して来る現象が見られた。尚、現在のチェンバーの真空状態は極めて良好である。

原研に於いては阪井英次氏の格別の御好意をいただき、片桐政樹氏には作業中終始御援助をいただいた。又この間炉計測の研究室の皆様にも多大の御迷惑をおかけしたことに厚く感謝します。チェンバーの改修には市川勉氏を煩わし、リークディテクターによるテストには浦沢茂一氏に立ち合っていたいただいた。共に謝意を呈します。原研出張旅費に関し、筆者の二名は八木氏、近藤氏らに便宜をはかっていただいた。又二回目の旅費の不足分については筆者の一名が石松研から御援助をいただいたことを付記します。

## V-4 電源周波数に同期した LINAC のトリガ発生器

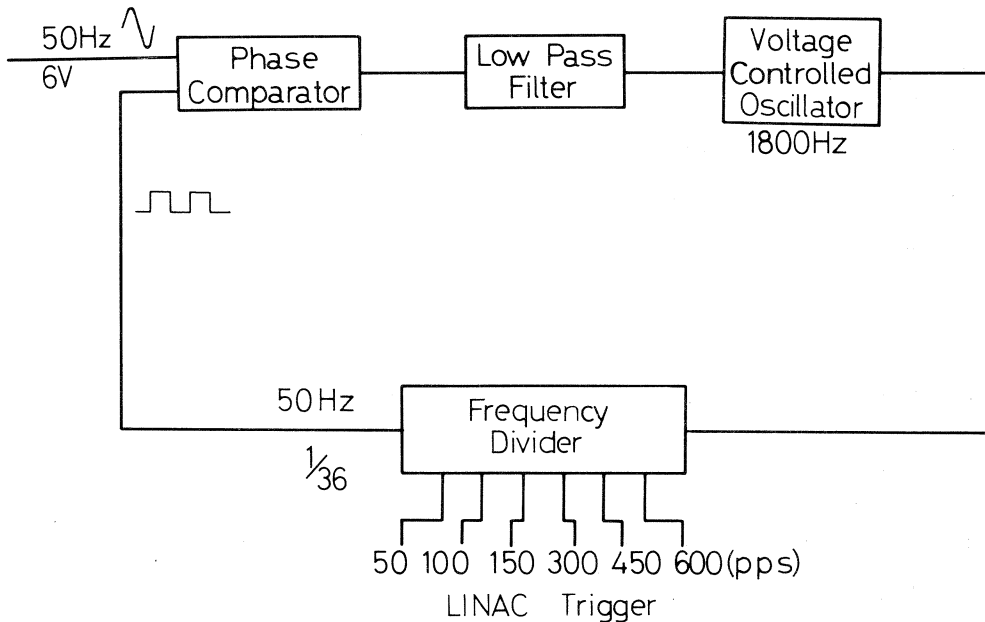
核理研 武藤正勝・藤沢政則

### § 1. 序

LINACは電源周波数に同期した 300 pps で運転している。これはクライストロンパルサーを始め、各種の装置が電源リップルの影響を受け、それにより加速ビームの安定性が損われないようにするためである。電源周波数と完全に同期し、しかも電源に含まれる SCR などによるノイズの影響を受けないトリガ発生器として、フェーズロック技術を応用した回路を試作した。

### § 2. 概 略

試作回路のブロックダイアグラムを第 1 図に示す。回路はフェーズコンパレータ、ローパスフィルタ、ボルテージ・コントロールド・オシレータ ( VCO )、周波数分周器などでループが構成されている。入力の電圧で発振周波数が変化する VCO は、1800 Hz で発振しているとすれば、それを周波数分周器で 36 分の 1 に分周し、その出力に 50 Hz が得られる。分周器の出力と電源周波数 ( 50 Hz ) をフェーズコンパレータに加え位相を比較する。両方の周波数が等しい場合、



第 1 図

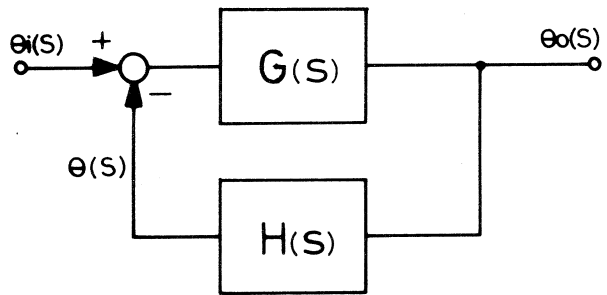


フェーズコンパレータの出力は0 (V)だが、VCOの周波数が電源周波数より高い場合は正、低い場合は負の電圧となる。これをローパスフィルタを通し、フェーズコンパレータの出力に含まれている50Hzの成分を取り除き、得られる直流電圧でVCOの発振周波数を制御する。このようなフェーズ・ロックのループを構成することにより、周波数分周器から電源周波数に同期したLINACのトリガー信号が得られる。

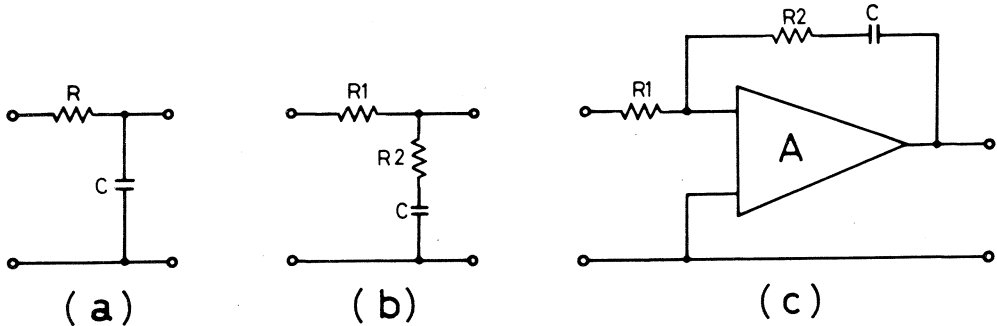
§ 3. 回路の設計

フェーズロック回路は追値制御型の自動制御系である。そこで、回路の定数を自動制御系の設計手法で求めた。回路の特性は(1)発振することなく安定に動作すること。(2)入力信号が変化しても、周波数分周器の出力信号(50 Hz)との位相のずれが小さいこと。(3)過渡特性が良好であることなどを満足してなければならない。具体的な設計手順としては(1)各要素の伝達関数を求め、そのパラメータを適当に選定する。(2)全体の特性を周波数応答法、根軌跡法などで解析し、上記のような要求する総合特性を満たしているかを比較する。(3)もし、要求を満たさなければ、各要素のパラメータを変えて、再度特性を解析するという試行錯誤でおこなう。今回は根軌跡法で特性を解析した。基本的な自動制御系

は第2図のように表わされ、 $G(s)$ は前向き伝達関数、 $H(s)$ はフィードバック伝達関数である。根軌跡法は、まず特性方程式 $1 + G(s)H(s)$ を求め、開ループ伝達関数 $G(s)H(s)$ のゲイン定数を0から $\infty$ まで変化したとき、特性方程式の根が描いた軌跡により、



第 2 図



第3図 ローパスフィルタ(a)ラグフィルタ、(b)ラグリードフィルタ、(c)アグティブCR フィルタ

ループの特性を判別する方法である。フェーズコンパレータ、VCO は IC の選択によりその特性が決まり、ループの特性を左右するのはローパスフィルタの定数である。この種の回路に使われるローパスフィルタには第 3 図に示す 3 つの回路があるが、今回の試作回路ではラグリードフィルタを使った。

ラグリードフィルタの伝達関数は

$$F(s) = \frac{s\tau_2 + 1}{s\tau + 1} \quad (1)$$

ただし  $\tau_1 = CR_1$  ,  $\tau_2 = CR_2$  ,  $\tau = \tau_1 + \tau_2$  で表わされる。フェーズコンパレータの特性はゲイン定数  $K_c$  ( V / rad ) , その出力電圧  $V_c$  とすると

$$V_c(s) = K_c ( \theta_i(s) - \theta(s) ) \quad (2)$$

となる。VCO は入力電圧  $V_v$  でその周波数が増加することから、 $\Delta\omega = K_o V_v$  となり、周波数は位相を時間で微分したものであることより、 $\Delta\omega = d\theta_o/dt$  ,  $d\theta_o/dt = K_o K_v$  となる。これをラプラス変換して、

$$\theta_o(s) = \frac{K_o V_v(s)}{s} \quad (3)$$

となる。ただし、 $K_o$  の単位は ( rad / V / S ) である。周波数分周器は周波数を  $1/N$  に分周するとすれば、

$$K_f = \frac{1}{N} \quad (4)$$

となる。式(1)(2)(3)(4)より、

$$G(s) = \frac{\theta_o(s)}{\theta_i(s) - \theta(s)} = \frac{K_c K_o (s\tau_2 + 1)}{s (s\tau + 1)} \quad (5)$$

$$H(s) = \frac{1}{N} \quad (6)$$

式(5)(6)より開ループ伝達関数は

$$G(s)H(s) = \frac{K (s\tau_2 + 1)}{s (s\tau + 1)} \quad (7)$$

ただし、 $K = \frac{K_c K_o}{N}$  となる。

特性方程式は次式で表わされる。

$$\begin{aligned} 1 + G(s)H(s) &= s^2 + \frac{1 + K\tau_2}{\tau} s + \frac{K}{\tau} \\ &= s^2 + 2\eta\omega_n s + \omega_n^2 = 0 \end{aligned} \quad (8)$$

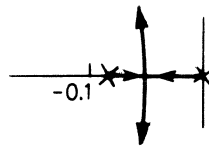
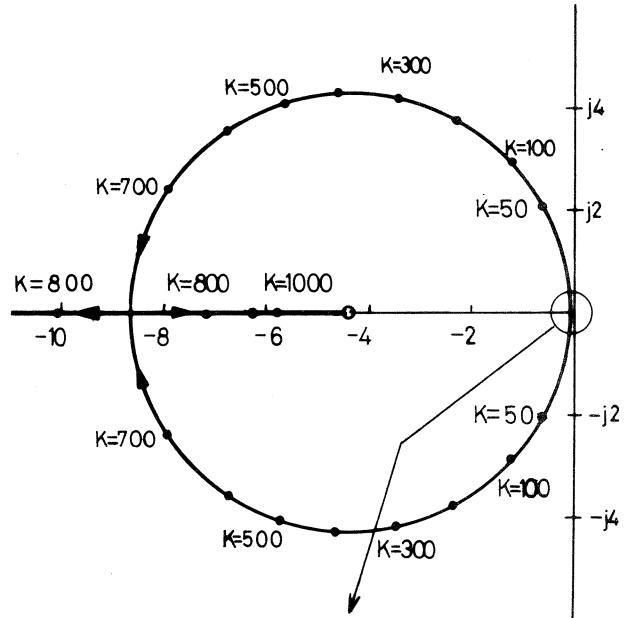
$$\omega_n = \sqrt{\frac{K}{\tau}} , \quad \eta = \frac{1}{2} \omega_n \left( \frac{1}{K} + \tau_2 \right)$$

式(8)の  $\omega_n$  はループの自然周波数、 $\eta$  はダンピング定数である。回路で  $K$  の取り得る範囲は 100

～ 500であり，追従制御系では， $\eta = 0.5 \sim 0.7$  の値が適当である。更に $\omega_n$ は大きいと応答は早くなるが，ループに 50 Hzの成分が現われ不安定となる。小さい場合は応答が遅くなり，入力信号の変化に対する追従性が悪くなるなどから， $\omega_n = 5$ 位が適当な値と思われる。 $\tau_1, \tau_2$ を変えて根軌跡を何度か描いたが，第 4 図は $\tau_1 = 10$ ， $\tau_2 = 0.25$ としたときの根軌跡である。同図で，根は虚軸の左側に存在し，ループは発振することなく安定に動作することがわかる。更に根の実軸の値を $\alpha_o$ ，虚軸の値を $\omega_o$ とすると

$$\tan \varphi = \frac{\alpha_o}{\omega_o} = \frac{\eta}{\sqrt{1 - \eta^2}} \quad \text{であり，}$$

$\eta = 0.5 \sim 0.7$  とすれば，虚軸と $\varphi = 30 \sim 44^\circ$ の放射線上で， $K$ を 200 ～ 380にとればよい。また， $\alpha_o^2 + \omega_o^2 = \omega_n^2$ であることから， $\eta = 0.5 \sim 0.7$  とすれば， $\omega_n = 6.1 \sim 4.5$ となる。これらの結果により， $\tau_1 = 10$ として $C = 33 \mu F$ ， $R_1 = 300 K\Omega$ ， $\tau_2 = 0.25$ として $R_2 = 7 K\Omega$ と定め回路を試作した。



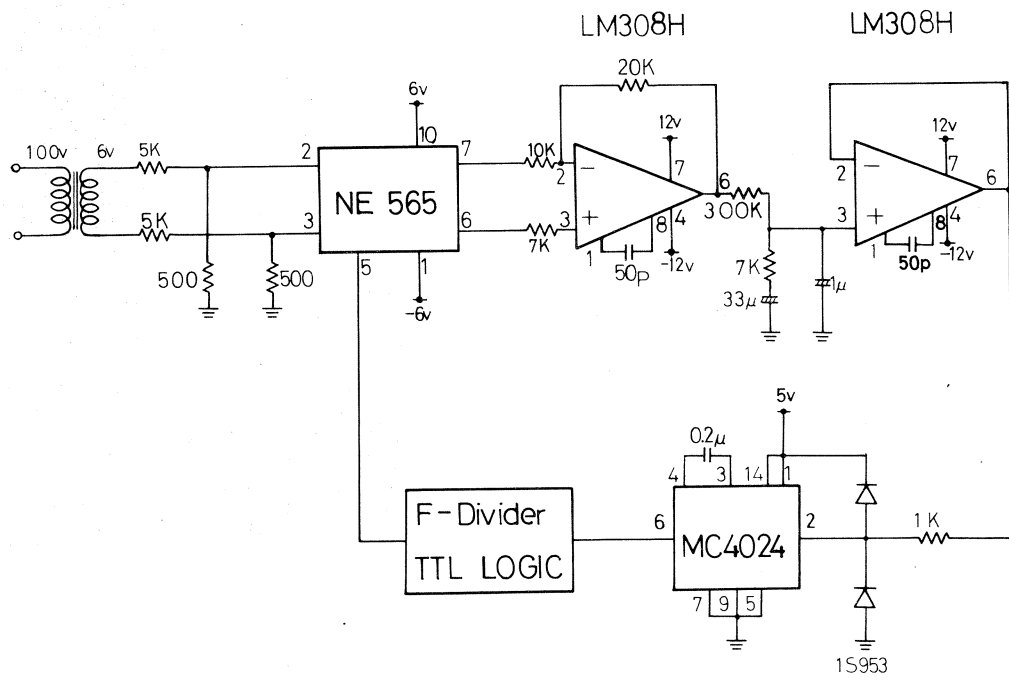
第 4 図

§ 4. 回路の説明

第 5 図は試作した回路である。フェーズコンプレータに使用した NE 565 は，VCO を内蔵した汎用の

PLL 用 ICである。この ICを使用した場合，ローパスフィルタは外部にC，又は CRを付加してラグフィルタ，ラグリードフィルタが形成できる。しかし，フィルタの時定数を大きく取るのは難しいと思われるので，NE 565 のフェーズコンプレータだけを使用しローパスフィルタ，

VCO はその外部に設けた。フェーズコンプレータのゲイン定数 $K_o$ は， $0.624 (V / \text{rad})$ である。その出力はゲイン 2 倍の反転増幅回路を通し，更にローパスフィルタ，インピーダンス変換回路を経て VCO ( MC 4024 )に加える。VCOのゲイン定数 $K_o$ は約  $7000 ( \text{rad} / \text{V} / \text{s} )$ である。MC 4024 は外部に付加した  $0.2 \mu F$  で，その発振周波数が決定される。ループのゲイ



第 5 図

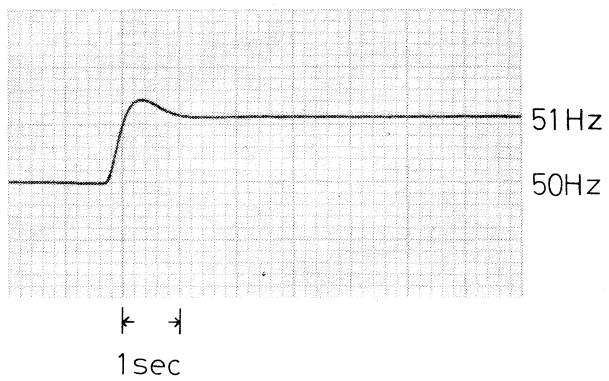
定数  $K$  は、 $0.624 \times 2 \times 7000 / 36 = 242.7 \text{ (sec}^{-1}\text{)}$  となり、これより  $\omega_n = 4.9$ 、 $\eta = 0.57$  となる。入力信号が 50Hz から 51Hz に変化した場合の入力信号と、周波数分周器からの信号との位相差のずれは、各要素のゲイン定数より約  $1.4^\circ$  と求まり、電源周波数の変動が 1 Hz 以下であることから問題にならない値であると思われる。（実際の測定で、位相のずれは約  $1.1^\circ$  であった） 試作回路の過渡応答特性

（閉ループ伝達関数のインディシャル応答）は、第 6 図に示すように  $\omega_n$ 、 $\eta$  共に計算通り要求を満たす値を示している。

§ 5 最後に

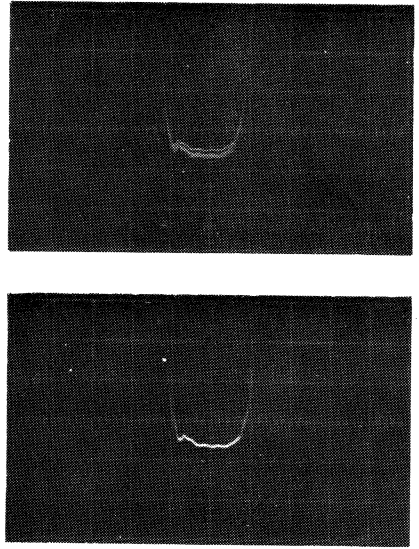
加速器のトリガ系に組み込み 3 カ月ほど実際に使用しているが、ほぼ良好な結果が得られた。従来  
のトリガ発生器では、クライスト

STEP RESPONSE



第 6 図

ロン1号機のマイクロ波出力(20MW, マイクロ波を  
検波したパルス波形)が約7%変動していたが  
(第7図, 上の写真), 今回の回路で変動は観測  
されない(第7図, 下の写真)。このことにより最  
終的なビームの安定度は, ある程度改善されたもの  
と思う(詳しいデータは取っていない)。現在この  
試作結果を基にして, ドリガ発生器を含めたトリガ  
システムを製作している。最後に回路を製作するに  
当り, 種々議論して頂いた小山田正幸, 浦沢茂一両  
氏に感謝いたします。



第 7 図

## V-5 東北大核理研データステーション

核理研 窪田 健 雄

## § 1. 序

東北大核理研に設置してあるオンラインデータ集積装置 (OKITAC-4500)<sup>1)</sup> を東北大学大型計算機センタ (以下センタと略す) のデータステーション (以下D.S.と略す) として利用する為のプログラムを作成したのでその仕様概略を記します。

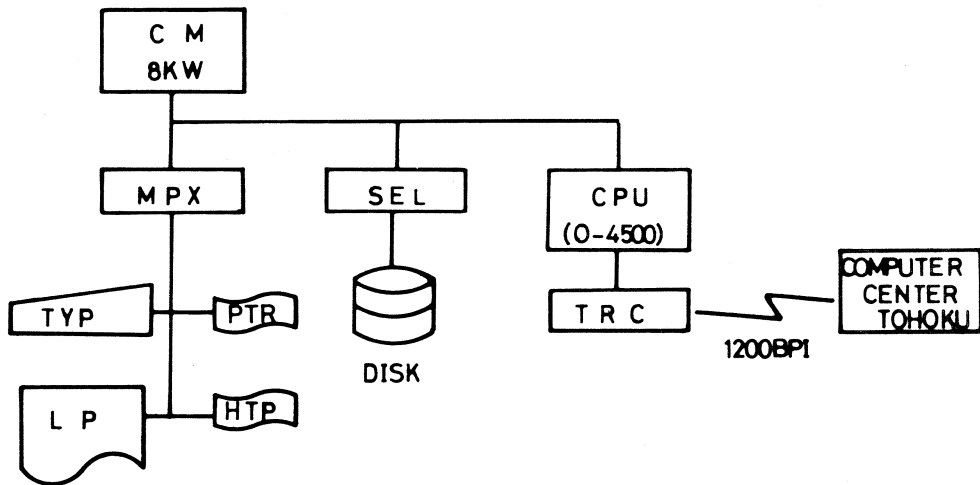
このプログラムは 1973 年に第 0 版を作成し今日まで運用してきたものを今回改修を行い、第 1 版のデータステーションプログラムとして完成させたものです。

今回の改修目的は①ディスクパック (カートリッジ) の利用, ②NEAC コードの入力, ③ SYSTEM BUSY 時の会話開始要求の自動化, です。① ②についてはセンタ指定の入出力装置名<sup>2,3)</sup>を D. S. 側で変更し, ③についてはオートコール機能を付加して実現してある。本稿では主に改修されている, ①②③について述べそれ以外の標準的な部分については省略してある。

入出力装置が D. S. 側で変更されているので一覧表を第 1 表に, D. S. としての構成を第 1 図に示しておきます。

第 1 表 入出力装置一覧表

| 略号  | センタ指定動作           | D. S. 側動作          |
|-----|-------------------|--------------------|
| KBI | キーボード入力           | 同 左                |
| TR1 | 紙テープリーダ入力         | 同 左                |
| MR1 | 〃 (印字付)           | PTR より NEAC コードの入力 |
| CDR | カードリーダ入力          | D. S. に接続していない     |
| MCR | 〃 (印字付)           | ディスクよりの入力          |
| TR2 | 高速紙テープリーダ入力 (PTR) | 同 左                |
| KBO | キーボードプリント出力       | 同 左                |
| TP1 | 紙テープパンチ出力         | 同 左                |
| MP1 | 〃 (印字付)           | ディスクに出力            |
| TP2 | 高速紙テープパンチ出力 (HTP) | 同 左                |
| LNP | ラインプリンター出力        | 同 左                |
| COP | 現在センターに組込んでない     | 同 左                |



第1図 データステーション構成図

## §2. ディスクパックの入出力

核理研のように多量のデータを処理する場合に現在のセンタは利用する上で種々の不便がある（バッチ、TSS 共に）。その一つは多量のデータの入出力の手段の問題である。その解決方法の一つとして、D.S. でディスクの利用を検討してみた。又、現在、核理研内で行っているデータ処理方法の一つに O-4500 ディスクオペレーティングシステム (DOS-45)<sup>4)</sup> があるがそこで利用しているディスクを D.S. で取扱えるとデータ処理が効率的に行える事が予想される。そこで DOS-45 で利用出来、D.S. として利用出来る方式でディスクを D.S. の入出力装置として組込む事にした。

ディスク内の FORMAT はカードイメージとして、ディスクの 1 セクター (256 W) にカード 6 枚を割当ててある。入力としてはセンタの IDV に MCR を指定し、出力としては ODV に MP1 を指定する。それにより D.S. 側では各々ディスクへの入出力として処理する。但し、出力の場合にはセンターより復改コード等がついてくるが D.S. 側で取り除き、又 80 文字に満たない場合は空白を追加して 1 データ 80 文字に編集してディスクに書いている。これらディスク内のデータには DOS-45 で処理出来るように DS-NAME<sup>4)</sup> がつけられている。

尚カートリッジパック 1 個にはカード約 28,000 枚分のデータを入れる事が出来る。

## §3. NEAC - コードの入力

核理研の D.S. の入出力コードは ISO の為他に端末で作成された紙テープを入力する事が

出来なかった。その解決方法として IDV に MR1 を指示した場合に D.S. 側は PTR を用いて入力出来るようにした。ここで変換可能な文字は NEAC - コード<sup>2)</sup>の内の上段文字と空白, B.S. ERR, ETX, 及び復改である, 下段文字は全て上段として扱われる。入力にパリティエラーが発生するとタイプに PARITY ERROR とプリントしてエラー文字を " ? " に変えて送信する。又 1 BLOCK 内のエラーが 8 個になるとその BLOCK は送信されず " 1 EOF " が送信され入力終了となる。

紙テープの色が黒以外の場合には PTR の読取時にエラーとなる事がある。このような場合には入力装置を PTR からメカニカルなリーダーの TR1 に切替える事が出来る。

#### § 4. オートコール

D. S. よりセンタに会話開始の要求を出した際にセンタの応答には WELCOM, SYSTEM BUSY<sup>2,3)</sup>の 2 通りがある。SYSTEM BUSY の場合には再度会話開始要求を出すか、オートコール機能は WELCOM の応答がくるまで自動的に会話開始要求を出し続けるものである。

D. S. で会話開始要求の代わりに、オートコールを行うと、まずコマンドの入力要求が出され、コマンドを 1 つ入力すると以後 WELCOM の応答があるまで会話開始要求を出す。センタより WELCOM の応答があると前に入力したコマンドを送信して、通常の動作に復帰する。この時に入力するコマンドに D. S. 側での制限はありませんが、最初のコマンドですので、HELLO, 又は SWITCH<sup>2,3)</sup> 以外は意味がありません。

この機能により一連の仕事を自動的に行わせる事が可能になります。紙テープに HELLO より BYE まで一連のコマンドをパンチしておき、それを TR1, 又は TR2 にセットし、コマンドに SWITCH TR1 (TR2) を入力すればセンタより WELCOM の応答がありしだい、紙テープにパンチしてある一連のコマンドを実行していきます。

#### § 5. 結 び

核理研に D. S. を開設した初期の目的はオンライン実験中に得られたデータを直ちにセンタに送り処理するという、オンラインリアルタイムデータ処理システムにありましたが。センタの現状から (SYSTEM BUSY) その実現はむずかしく、結局単なる D. S. となってしまいました。その為に第 0 版で出来たプログラムを約 2 年間改修せずにいましたが、先日カートリッジタイプのディスクを増設した事により今回のような改修を行いました。第 0 版のプログラムは前述のような事から実験用ソフトに組込めるように出来るだけ小さい容量で又他のプログラムに組込



む場合の事を考えて作成して居ります。その為に今回の改修においてもディスク利用の為にディスク名等は MP1 = ディスクライトというように一意的になって居ります。オフラインの D.S. として考えた場合はもっと自由度のある方法、例えば ASSIGN コマンドにより D.S. 側の変更というような形も考えられます。今後はオフラインの D.S. としてより使い易い形の D.S. プログラムに改良しなければならないと考えて居ります。

しかし今回の改修によりディスクを D.S. として利用出来る事は、多量のデータの入出力、核  
理研内のデータ処理 (DOS-45 による) と TSS との接続、TSS ファイル、ユーザーファイ

```

R 05(ENQ) R C3(KBC) R C3(KBC) T 06(A1) T 06(A1) R 84(ECT) R 84(ECT) T 84(FCT)
T 84(EOT) R 90(DLE) R 05(ENQ) T 06(A1) T 06(A1) R 90(DLE) R 05(ENQ) R C3(KBC)
R C3(KBC) T 06(A1) T 06(A1) R 82(STX) R 1D(BLK) R 0A(CR) R A0( ) R C5(E)
R CF(C) R 50(P) R A0( ) R A0( ) R A0( ) R A0( ) R 30(O) R 2F( )
R 35(5) R 84(4) R B3(B) R 00(NUL) R 03(ETX) R C9(LRC) T 95(A2) T 95(A2)
R 82(STX) R 1D(BLK) R 0A(CR) R 0A(CR) R A0( ) R D2(R) R C5(E) R 41(A)
R 44(D) R 59(Y) R A0( ) R B1(1) R B4(4) R 2D(-) R B4(4) R B7(7)
R 2D(-) R 30( ) R 33(3) R 0A(CR) R 00(NUL) R AA(*) R 00(NUL) R 03(FTX)
R F0(LRC) T 06(A1) T 06(A1) R 90(DLE) R 05(ENQ) T 06(A1) T 06(A1) R 90(DLE)
R 05(ENQ) R CF(KBI) R CF(KBI) T 82(STX) T 6F(KBI) T CF(C) T 59(Y) T 8B(35)
T 55(U) T D4(T) T 50(P) T 55(U) T D4(T) T A0( ) T 44(D) T AC( )
T 44(D) T B4(4) T 35(5) T C3(C) T 0A(CR) T 17(FTB) T 72(LRC) R 90(DLE)
R 05(ENQ) T 06(A1) T 06(A1) R 90(DLE) R 05(ENQ) R C3(KBC) R C3(KBC) T 06(A1)
T 06(A1) R 82(STX) R 1D(BLK) R 0A(CR) R A0( ) R 07(W) R 41(A) R C9(I)
R D4(T) R A0( ) R A0( ) R B1(1) R B4(4) R 2D(-) R B4(4) R B7(7)
R 2D(-) R B2(2) R 33(3) R 00(NUL) R 03(ETX) R B4(LRC) T 95(A2) T 95(A2)
R 84(ECT) R 84(FCT) T 84(ECT) T 84(ECT) R 90(DLE) R 05(ENQ) T 06(A1) T 06(A1)
R 90(DLE) R 05(ENQ) R C3(KBC) R C3(KBC) T 06(A1) T 06(A1) R 82(STX) R 0A(CR)
R A0( ) R A0( ) R A0( ) R B1(1) R 30(O) R 30(O) R A0( ) R 30(O)
R B1(1) R B2(2) R 33(3) R B4(4) R 35(5) R 36(6) R B7(7) R B8(B)
R 39(9) R 03(ETX) R 39(LRC) T 95(A2) T 95(A2) R 42(STX) R A(CR) R A( )
R A0( ) R A0( ) R B2(2) R 30(O) R 30(O) R A0( ) R 41(A) R 42(B)
R C3(C) R 44(D) R C5(E) R C6(F) R 47(G) R 48(H) R C9(I) R CA(J)
R 03(ETX) R 30(LRC) T 06(A1) T 06(A1) R 82(STX) R 0A(CR) R A( ) R A( )
R A0( ) R 33(3) R 30(O) R 30(O) R A0( ) R 43(K) R CC(L) R 4D(N)
R 4E(N) R CF(O) R 50(P) R D1(O) R D2(R) R 53(S) R D4(T) R 03(FTX)
R A5(LRC) T 95(A2) T 95(A2) R 84(ECT) R 84(ECT) T 84(FCT) T 84(ECT) R 90(DLE)
R 05(ENQ) T 06(A1) T 06(A1) R 90(DLE) R 05(ENQ) R C3(KBC) R C3(KBC) T 06(A1)
T 06(A1) R 82(STX) R 1D(BLK) R 0A(CR) R A0( ) R C5(E) R CF(O) R 50(P)
R A0( ) R A0( ) R A0( ) R A0( ) R 30(O) R 2F( ) R 35(5) R B2(2)
R 30(O) R 00(NUL) R 03(ETX) R 47(LRC) T 95(A2) T 95(A2) R 82(STX) R 1D(BLK)
R 0A(CR) R 0A(CR) R A0( ) R D2(R) R C5(F) R 41(A) R 44(D) R 59(Y)

```

第 2 図 D.S. 送受信ダンプ (横打ち)。

ルのD.S.側の DUMP ディバイスとしての利用等、一応の成果を上げるものと期待して居ります。

尚このプログラムを用いて D. S. を利用する場合には別にデータステーション操作説明書がありますので御参照下さい。

今回の改修目的ではありませんがセンタ↔D.S.間の送受信内容を DUMP する事が出来ます。これを見ると送受信のシーケンスが判りますので、キーボードの印字と DUMP したものを参考までにのせておきます。第2図が送受信のダンプ、第3図がキーボードのモニタ印字です。第2、3図の枠内が対応します。

第2表 DS 送受信ダンプ凡例

R 55 [ U ]

① ② ③

- ① 送受信の別 T：送信 R：受信  
 ② 送受信文字16進表示  
 ③ 送受信文字の文字表示及び制御文字

制御文字

STX : START OF TEXT  
 ETB : END OF TRANSMISSION  
 BLOCK  
 ETX : END OF TEXT  
 ENQ : ENQUIRY  
 DLE : DATA LINK ESCAPE  
 A1, A2 : ACKNOWLEDGE

```
READY 14-42-48
* OUTPUT D,D4011,,,,,,MP1
WAIT 14-43-11
EOP 0.395
```

```
READY 14-43-26
* INPUT D,D45C,CDR,P
WAIT 14-46-39
EOP 0.548
```

```
READY 14-47-03
* OUTPUT D,D45C
WAIT 14-47-23
100 0123456789
200 ABCDEFGHIJ
300 KLMNOPQRST
EOP 0.520
```

```
READY 14-47-57
*
```

第3図 モニター印字

第0版、第1版の作成に当って資料提供等御協力頂きました、日本電気KK、沖電気KK、の両社と、御指導頂きました、東北大学大型計算機センタ研究開発室の小川、武田の両氏及び核理研計測Gの諸氏に感謝致します。

## 参 考 文 献

- 1) 小山田, 窪田, 上野: 物理学会 1973年秋の分科会予稿集 12P-E-6 (1973) 92
- 2) 東北大学大型計算機センタ タイム・シェアリング・システム
- 3) 日本電気K.K. NEAC-TSS コマンド説明書
- 4) 沖 電 気K.K. OKITAC-4500 ディスクオペレーティングシステム説明書

## VI. 加速器・データ処理装置稼動状況

## VI-1 昭和49年度後期マシン報告

## 核理研マシングループ

浦沢茂一・今野 収・一戸 隆  
栗原 亮・根本重伸・柴崎義信

## ○ 概 況

順調に消化出来た。

## マシンタイム実施状況

(単位：日数)

| 課 題 (責任者)         | 割 当 | 実 施     | 増 減   |
|-------------------|-----|---------|-------|
| e s (鳥 塚)         | 16  | 16      | 0     |
| e s (Friedrich)   | 9   | 9       | 0     |
| e s (Moreira)     | 9   | 9       | 0     |
| γ π (庄 田)         | 2   | 5       | + 3 * |
| γ p (庄 田)         | 8   | 8       | 0     |
| γ p (斎 藤)         | 6   | 6       | 0     |
| γ p (坪 田)         | 10  | 10      | 0     |
| γ α (菅 原)         | 5   | 5       | 0     |
| γ x (種 市)         | 3   | 3       | 0     |
| (松 井)             | 2   | 2       | 0     |
| I O N (塩 川)       | 3   | 3       | 0     |
| N D               | 25  | 25.5    | + 0.5 |
| R I               | 23  | 23      | 0     |
| 医 学               | 1   | 1       | 0     |
| 計                 | 122 | 125.5** | + 3.5 |
| 工 事               | 23  | 23      | 0     |
| 定 期 点 検           | 6   | 6       | 0     |
| LDM, BDM, ND 点 検  | 2   | 2       | 0     |
| 拡 大 マ ジ ン グ ル ー プ | 1   | 1       | 0     |
| 予 備 (修 理)         | 20  | 16.5    | - 3.5 |
| 計                 | 52  | 48.5    | - 3.5 |

\* 昭和50年前期割当分のうち3日を繰上実施した。

\*\* 昭和49年前期末実施分夜間1日(RI)は今期実施した。表の125.5日にはこれは含まれていない。

## ○ 保 守

特別大きな故障はなかったが、I系右 channel ( R1 ) の四極電磁石に直列に負荷を接続し、電源とのインピーダンスを整合させた。この結果ビームスポットは安定になった。

## VI-2 データ処理装置, 測定器稼動状況

核理研 菅原真澄・藤沢政則・武藤正勝  
小山田正幸・窪田健雄

## 1. データ処理装置

○オンラインデータ処理装置, オンラインデータ集積装置の用途別利用実績を別表に示す。

T-3400 関係で前期(4月~9月)の平均155時間に対して後期(10~3月)の240時間と大巾な増加をしている。このことは前期の減少が一時的なもので T-3400 が依然としてデータ処理の主力であることを示している。しかし故障率についてみると前年度約2.6%, 今年度3%と増加して居り今後も増加するものと思われる。

O-4500 についてはオンラインが約2400時間と月平均200時間になりオンラインデータ集積装置として全稼働に入った事を示している。一方オフライン関係も増加して居りこれはデータ処理の一部がT-3400より移行した事を示している。しかしオンラインで2400時間を占めているのでデータ処理に多くを期待することには無理がある。これらのことを考えると前にもまして、次期データ処理装置の実現に努力する必要がある、利用者の皆様の御協力をお願い致します。

予算要求の資料としてT-3400, O-4500の年度別総使用時間及びオンライン時間のグラフを作成しましたので第1図に載せておきます。このグラフで特に気をつく所は45, 46年と48, 49年を比べるとオンラインの時間が増加している事です。これは加速器の夜間運転を行いマシンタイムを増加させた事を表わしていると思います。

○前期に増設致しましたADCについてはシングルパラメータPHA用のプログラム第0版が完成しましたので御利用下さい。又大型センターとのTSS用プログラムも一部改修を行いディスクバックを利用出来るようになりましたのでオンラインの台間を見て御利用下さい。各プログラムの操作説明書は計画Gに用意してあります。

○注意 現在O-4500ディスクオペレーティングシステム(DOS-45)についてマニュアルとソフトとの違い等一部障害が発生して居ります。今後DOS-45を利用する方は資料がありますので一度確認の上御利用下さい。

(窪田記)

第1表 昭和49年度オンラインデータ集積装置用途別利用実績表

( OKITAC - 4500 )

( 単位：時間 )

| 月 | 用途  | LDM  | BDM  | ND   | オンライン<br>合計 | データ<br>ステーション | 一般計算 | 保守  | 故障  | 月合計   |
|---|-----|------|------|------|-------------|---------------|------|-----|-----|-------|
|   | 4   | 65   | 49   | 63   | 177         | 5             | 16   | 6   | 0   | 204   |
|   | 5   | 83   | 58   | 42   | 183         | 6             | 40   | 7   | 0   | 236   |
|   | 6   | 107  | 19   | 80   | 206         | 1             | 37   | 7   | 0   | 251   |
|   | 7   | 0    | 74   | 4    | 78          | 12            | 70   | 9   | 0   | 169   |
|   | 8   | 36   | 172  | 56   | 264         | 8             | 36   | 11  | 0   | 319   |
|   | 9   | 141  | 71   | 25   | 237         | 5             | 92   | 19  | 4   | 357   |
|   | 10  | 123  | 68   | 78   | 269         | 9             | 81   | 20  | 4   | 383   |
|   | 11  | 106  | 45   | 66   | 217         | 2             | 103  | 22  | 3   | 347   |
|   | 12  | 92   | 42   | 62   | 196         | 1             | 77   | 30  | 0   | 304   |
|   | 1   | 68   | 49   | 91   | 224*        | 1             | 31   | 10  | 0   | 266*  |
|   | 2   | 45   | 81   | 24   | 162*        | 4             | 98   | 12  | 0   | 276*  |
|   | 3   | 53   | 110  | 12   | 175         | 10            | 199  | 5   | 0   | 389   |
|   | 合計  | 919  | 838  | 603  | 2388*       | 64            | 880  | 158 | 11  | 3501* |
|   | 月平均 | 77   | 70   | 50   | 199*        | 5             | 73   | 13  | 1   | 289*  |
|   | %   | 26.2 | 23.9 | 17.2 | 68.2*       | 1.8           | 25.1 | 4.5 | 0.3 |       |

注 \* : PHAの時間を含む。

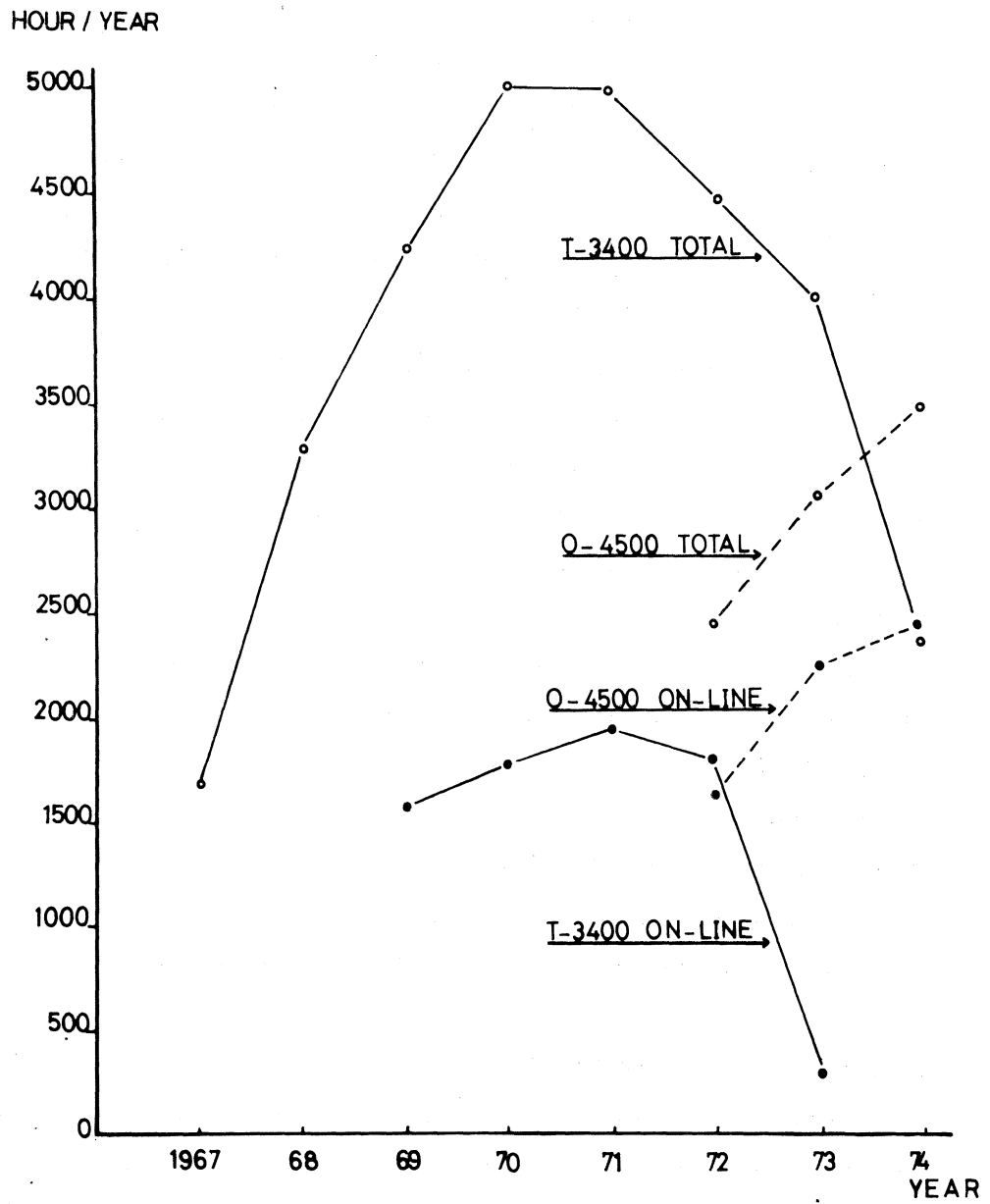
第2表 昭和49年度オンラインデータ処理装置用途別利用実績表

( TOSBAC - 3400 )

( 単位：時間 )

| 月 | 用途  | データ処理 | 一般計算 | 保守  | 故障  | 月合計  |
|---|-----|-------|------|-----|-----|------|
|   | 4   | 34    | 64   | 12  | 2   | 112  |
|   | 5   | 77    | 46   | 16  | 12  | 151  |
|   | 6   | 107   | 64   | 10  | 3   | 184  |
|   | 7   | 62    | 51   | 12  | 0   | 125  |
|   | 8   | 37    | 136  | 9   | 1   | 183  |
|   | 9   | 45    | 119  | 8   | 4   | 176  |
|   | 10  | 102   | 127  | 11  | 10  | 250  |
|   | 11  | 29    | 164  | 8   | 15  | 216  |
|   | 12  | 26    | 187  | 12  | 8   | 233  |
|   | 1   | 24    | 181  | 10  | 15  | 230  |
|   | 2   | 28    | 154  | 10  | 2   | 194  |
|   | 3   | 80    | 228  | 7   | 0   | 315  |
|   | 合計  | 651   | 1521 | 128 | 72  | 2369 |
|   | 月平均 | 54    | 127  | 10  | 6   | 197  |
|   | %   | 27.4  | 64.2 | 5.1 | 3.0 |      |





第 1 図 年度別利用時間

## 2 測定器

49年度後期製作した装置、継続して製作中の装置について報告する。

### (1) TMC・1024 CH・PHAのための PRINT OUT INTEGRATOR

TMC・PHA を使い易くするため、最近の新しい PHA に付加されている次のような機能を持たせた。

- ① Printer 打出しの際の打出す START channel, STOP channel が指定できる。
- ② 上記の範囲の data を累算しながら打出すことができる。
- ③ ②の他に途中の data を打出さず、最終累算結果だけを打出すこともできる。
- ④ Printer 打出のとき channel の表示は、従来の8進表示から10進表示になった。

### (2) 7-CHANNEL のための FAST DISCRIMINATOR, 他

14個のSSDからのPulse信号を処理するため、tunnel diodeを使用したdiscriminatorと、PHAのmemoryを14channelのscalerとして使用するための回路である。

### (3) 周波数 COUNTER のための DAC

HP-5245 L の count 内容(8桁のうち下5桁)の任意の3桁を analog 化し、記録計などに記録させる回路である。これは、主に周波数の変動などの測定に使用するものである。

### (4) 加速器の TRIGGER SYSTEM (製作中)

Trigger generator は Phase Locked Loop を応用した trigger 間隔の time jitters のない安定した回路である。(本誌「加速器・測定器部門」参照)

更にこの system の特徴は、将来の加速器の自動化に備え system の動作状態を monitor できるようにしている事、100% IC 化した事、保守がしやすい様な構成になっている事などである。

### (5) CAMAC MANUAL CONTROLLER

49年度 CRATA, 電源, SCALER, DAC, I/O-REGISTER を購入した。この Manual controller は、今後の module の開発、調整、修理、それに小型 computer と接続した場合、プログラムのテストのために使用するもので、現在設計はほぼ完了し、製作に入る段階である。この controller には Manual CRATE controller としての機能、Data way monitor として使用できる機能、Test module として使用できる機能などを持たせ、使用用途を広げることが特徴である。

(武藤記)

**核理研研究報告 第8巻 第1号**

昭和50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 Laboratory of Nuclear  
Science Tohoku University Vol. 8 No.1 June 1975  
Laboratory of Nuclear Science,  
Tohoku University  
1, Kanayama, Tomizawa, Sendai, Japan