

RESEARCH REPORT  
OF  
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE  
TOHOKU UNIVERSITY

# 核 理 研 究 報 告

VOL. 9 No. 1 June 1976

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. 9 No. 1 目次

## I 原子核物理部門

I-1	電子散乱による $^{23}\text{Na}$ の低励起準位の研究 (I) .....	1
	(核理研) 岡崎 行男	
I-2	$^{48}\text{Ti}$ 及び $^{50}\text{Ti}$ による電子散乱 (I) .....	7
	(静岡大教養*, 核理研) 堀田 明男*, 高山 健, 早川 建 岡崎 行男, 小山田正幸	
I-3	$^{58}\text{Ni}$ の巨大共鳴 (II) .....	12
	(核理研) 斎藤悌二郎	
I-4	$^{90}\text{Zr}$ の多重極展開 (II) .....	18
	(核理研) 福田 茂樹	
I-5	$^{209}\text{Bi}$ の磁化分布による弾性電子散乱 (II) .....	28
	(核理研) 榎本 収志	
I-6	$^{12}\text{C}(\gamma, \pi)$ 反応による核構造の研究 (II) .....	34
	(核理研) 大橋 英雄, 中原 和夫, 庄田 勝房	
I-7	$^6\text{Li}(e, e'd)^4\text{He}$ 反応 .....	39
	(山形大教養, 核理研*) 種市 宏, 上野 博昭, 庄田 勝房*	
I-8	$^{25}\text{Mg}$ の光核反応 .....	43
	(教養部, 核理研*) 宮瀬 晴久, 坪田 博明, 菅原 真澄* 玉江 忠明*	
I-9	Photo-proton Studies on $^{48}\text{Ca}$ .....	48
	(メルボルン大*, 核理研, 教養部**) M. N. Thompson*, 庄田 勝房 菅原 真澄, R. E. Pywell*, 斎藤悌二郎 坪田 博明**, 宮瀬 晴久**, 上柿 順一 玉江 忠明, 大橋 英雄, 浦野 隆夫	



I-10	(e, e'p)反応における $^{139}\text{La}$ , $^{141}\text{Pr}$ の $f_{7/2}$ IAR	53
	(核理研) 上柿 順一, 庄田 勝房	
I-11	$^{112}\text{Ag}$ 及び $^{112}\text{In}$ の崩壊による $^{112}\text{Cd}$ の準位	69
	(理学部物理) 川村 暢明, 片倉 純一, 林部 昭吾 金沢 正明, 山家 優, 大島 真澄 平沢 正信, 田原 譲, 藤岡 学 石松 敏之	
I-12	$^{168}\text{Er}$ 励起状態の Q モーメント	84
	(新潟大理学部, 東北大理学部*) 加藤 光明, 下村 裕二, 大矢 進 古沢 昭, 陸路 直, 林部 昭吾*	
 II 物性物理部門		
II-1	金属間化合物 $\text{Ti}_{50}\text{Ni}_{47}\text{Fe}_3$ の中性子回折による相変態の研究	89
	(選研) 松本 実, 本間 敏夫, 守護 嘉朗	
II-2	T O F Pulsed Neutron Diffraction of Amorphous and Liquid $\text{Pd}_{0.8}\text{Si}_{0.2}$ Alloy	96
	(金研) 福永 俊晴, 三沢 正勝, 鈴木 謙爾	
II-3	Structure of Molten $\text{NaNO}_2$ and $\text{KNO}_2$ by T O F Pulsed Neutron Diffraction	103
	(金研) 福嶋 喜章, 鈴木 謙爾	
II-4	パルス中性子による反強誘電体 硫酸銅 4 水和物の研究 (I)	110
	(名工大, 核理研*) 岡田 健吉, 鈴木 昱雄, 杉江 紘 新村 信雄*	
II-5	Time-Dependent Perturbed Angular Correlations of $^{111}\text{Cd}$ in Liquid $\text{In}_2\text{Bi}$	121
	(新潟大理学部, 新潟大教養部*) 土屋 良海, 田巻 繁, 古沢 昭 岡崎 秀雄*	



II-6 Inner-Shell Ionization by Relativistic Electrons ..... 127

(理学部物理, 九大工学部,\* 核理研,\*\* 理学部化学\*\*\*)

森田 右, 石井 慶造, 神谷 正己  
 世良耕一郎, 俵 博之, 小山田正幸\*\*  
 鍛治 東海,\*\*\*, 朱 鉄吉\*\*\*

III 放射化学部門

III-1 無担体スカンジウム-47の調製 ..... 139

(核理研) 八木 益男, 近藤健次郎

III-2 光量子放射化分析用照射装置 ..... 145

(核理研) 八木 益男, 近藤健次郎

III-3 H<sup>80m</sup>Br-CH<sub>4</sub>系における<sup>80m</sup>Brの核異性体転移に伴う化学的効果  
 .....CH<sub>2</sub>Br<sup>80</sup>Brの生成機構について(II) ..... 150

(核理研) 八木 益男, 近藤健次郎

III-4 ゼオライトの耐酸性および天然ゼオライト焼成体からのCsおよび  
 Srの浸出性 ..... 157

(選研) 三村 均, 菅野 卓治

III-5 Multielement Analysis of Deep-Sea Sediments by Photon Activation ... 161

(東北大理学部, 岩手大教養\*) 加藤 豊明, 佐藤 允美\*, 鈴木 信男

III-6 <sup>80m</sup>Br標識AgBrコロイドの粒度と励起X線との関係 ..... 170

(理学部 RI中央実験室, 理学部化学\*)

山寺 亮, 塩川 孝信\*, 宮田 孝元

III-7 光核反応にともなうテトラフェニルポルフィン錯体の反跳化学 ..... 177

(東京教育大理学部) 池田 長生, 荘司 準, 酒井 陽一  
 中島 茂

III-8 γ線による核反応を利用する反跳インプランテーション:  
 新化学種合成への応用 ..... 183

(理学部化学) 吉原 賢二, 佐伯 孝, 奥野 健二

伊沢 郡蔵, 塩川 孝信



III-9	In 錯体の反跳効果について： $(\gamma, \gamma')$ 反応による出現エネルギー測定	193
	(理学部化学)	吉原 賢二, 藤田 明久, 塩川 孝信
IV 加速器・測定器部門		
IV-1	多線比例計数管 (MWPC)	199
	(核理研)	玉江 忠明, 菅原 真澄
V 加速器・データ処理装置稼動状況及び放射線安全管理		
V-1	昭和50年度後期マシン報告	205
	(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
V-2	データ処理装置・測定器稼動状況	207
	(核理研)	小山田正幸, 窪田 健雄, 佐藤 新悦 菅原 真澄, 藤沢 政則, 武藤 正勝
V-3	核理研における個人被曝	209
	(核理研放射線小委)	渡辺 昇, 浦沢 茂一, 近藤健次郎 八木 益男
V-4	被曝線量軽減のための RI 照射装置の改良	213
	(理学部安全管理室, 核理研放射線小委*)	山寺 亮, 塩川 孝信, 近藤健次郎* 八木 益男*, 浦沢 茂一*, 渡辺 昇*

# I . 原 子 核 物 理 部 門



I—1 電子散乱による  $^{23}\text{Na}$  の低励起準位の研究 (I)

核理研 岡崎行男

## § 1. はじめに

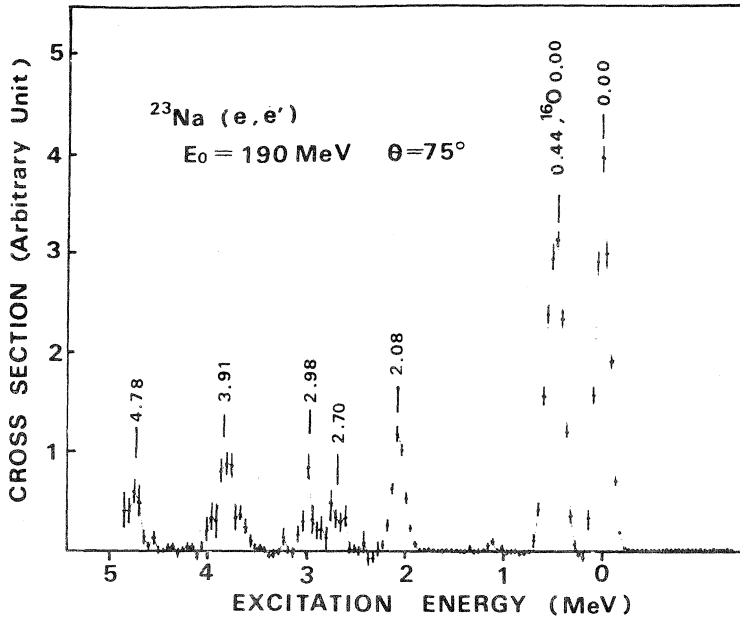
$^{23}\text{Na}$  は  $^{25}\text{Mg}$  とともに、s - d 殻の奇核の中では葉巻型に大きく変型した核と考えられており、強結合模型の立場からの理論的あるいは実験的研究<sup>1-4)</sup>が数多くなされている。電子散乱による  $^{23}\text{Na}$  の研究としては、これまで、Barber ら<sup>2)</sup>による  $180^\circ$  散乱での弾性散乱および  $4.43\text{ MeV } 1/2^+$  準位の形状因子の測定と、Savitskii<sup>3)</sup>らによる弾性散乱および  $2.08\text{ MeV } 7/2^+$  準位の形状因子の測定とが行われただけで、 $^{23}\text{Na}$  の低励起準位の電磁的性質は良くわかっていない。

強結合模型によると、 $^{23}\text{Na}$  においては、 $d_{5/2} \Omega = 3/2$  の奇陽子が  $K^\pi = 0^+$  あるいは  $K^\pi = 2^+$  状態の芯と結合し、それぞれ基底回転帯 ( $K^\pi = 3/2^+$ ) と 2 つの  $\gamma$  振動的回転帯 ( $K^\pi = 1/2^+$  および  $7/2^+$ ) を形成することが期待される。このうち、基底回転帯に属する低励起準位はわかっているが、 $\gamma$  振動的回転帯がどの準位に該当するのかはまだ明らかではない。我々の今回の実験の目的はこの点を明らかにすることである。

## § 2. 実験および解析

実験では、標的として  $57.4\text{ mg/cm}^2$  の厚さの天然の金属ナトリウムの箔を用いた。標的作成の際には、金属ナトリウムの酸化を防ぐため、表面に石油を塗り、フロンガス中で圧延した。入射電子エネルギー  $E_0 = 100\text{ MeV}$  (散乱角  $25^\circ, 30^\circ, 40^\circ, 50^\circ, 60^\circ, 65^\circ, 90^\circ, 100^\circ$ ) および  $190\text{ MeV}$  ( $35^\circ$  から  $80^\circ$  まで  $5^\circ$  間隔で 10 点および  $100^\circ$ ) で散乱電子エネルギースペクトルをエネルギー分解能約 0.1% で測定した。 $E_0 = 100\text{ MeV}$  の前方散乱の場合、弾性散乱断面積が大きいので、スペクトロメータ入口のスリットを狭めることにより、線量モニタ系の有効範囲をはずれないようなビーム強度で実験を行った。その場合、線量モニタとしては、ファラデイカップを用いた。標的の酸化による  $^{16}\text{O}$  の量は、 $190\text{ MeV } 100^\circ$  および  $100\text{ MeV } 90^\circ, 100^\circ$  の散乱電子エネルギースペクトルの  $^{16}\text{O}$  の弾性散乱ピークから推定した。これによると、真空の散乱槽内に入れておいても標的の酸化が進み、標的に含まれる  $^{16}\text{O}$  の量は、 $5.06 \pm 1.82\text{ mg/cm}^2$  (2月4日実験)  $7.82 \pm 2.19\text{ mg/cm}^2$  (2月13日) および  $14.63 \pm 0.78\text{ mg/cm}^2$  (2月20日) である。散乱断面積の絶対値は  $E_0 = 100\text{ MeV}$  で散乱角  $65^\circ$  以下の 7 点の弾性散乱形状因子  $F(q^2)$  から、 $q^2 \rightarrow 0$  で  $F(q^2) \rightarrow 1$  になるように決めた。このようにして決めた散乱断面積の絶対値の系統的誤差は 9.5% である。

測定された散乱電子エネルギースペクトルに輻射補正を施したものの一例を第 1 図に示す。



第1図  $^{23}\text{Na}$  からの散乱電子エネルギースペクトル (輻射補正後)  
 $E_0 = 190 \text{ MeV}$ ,  $\theta = 75^\circ$

実験で得られた形状因子から (1) 式を用いて、基底状態への  $\gamma$  線転移確率  $B(E\lambda; J_f \rightarrow J_i)$  を求めた。この際、形状因子に含まれる横成分は小さいと考慮して無視した。

$$|F(q_{\text{eff}}, C\lambda; J_i \rightarrow J_f)|^2 = \frac{4\pi}{Z^2} \cdot \frac{1}{R^{2\lambda}} \cdot j_\lambda^2(q_{\text{eff}} R) \cdot \exp(-g^2 q_{\text{eff}}^2) \cdot \frac{2J_i + 1}{2J_f + 1} B(E\lambda; J_f \rightarrow J_i) \quad (1)$$

ここで、 $q_{\text{eff}}$  は運動量移行  $q$  と次のような関係にある。

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

$$R_u = \left\{ \frac{5}{3} \langle r^2 \rangle \right\}^{1/2} \quad (3)$$

$Z$ : 原子番号

$\langle r^2 \rangle$ : 平均二乗半径

$\lambda$  は多重極度で、 $R$  と  $g$  は  $2.08 \text{ MeV } 5/2^+$  準位の形状因子の  $C_2$  部分の  $q$  依存性を、再現するように、 $R = 3.04 \text{ fm}$ ,  $g = 0.98 \text{ fm}$  に選んだ。このようにして求めた  $B(E\lambda; J_f \rightarrow J_i)$  と、他の実験から求めた  $B(E\lambda; J_f \rightarrow J_i)$  の値との比較を第1表に示す。



## 第 1 表

実験で得られた形状因子から、(1)式を用いて求めた基底状態への $\gamma$ 線転移確率(Weisskopf unit)。パラメータ $R$ および $g$ は、2.08 MeV  $7/2^+$ 準位のC2形状因子の $q$ 依存性を再現するように選んだ。(  $R=3.04$  fm,  $g=0.98$  fm )

( a ) 文献3 ( b ) 文献5 ( c ) 文献6

$E_x$ [MeV]	$J_f^\pi$	転移	$B(E\lambda: J_f \rightarrow J_i)$ [W. u.]	
			実験値	他の実験値
0.44	$5/2^+$	E 2	$18.9 \pm 5.0$	$18.4 \pm 3.9^a)$ $20 \pm 3^b)$ $23.2 \pm 2.6^c)$
		E 4	$< 15.5$	
2.08	$7/2^+$	E 2	$8.48 \pm 1.70$	$13 \pm 2^b)$
		E 4	$1.9^{+2.4}$ $-1.9$	
2.70	$9/2^+$	E 4	$6.6 \pm 3.2$	
2.98	$3/2^+$	E 2	$1.62 \pm 0.35$	$0.9 \pm 0.3^c)$
3.91	$5/2^+$	E 2	$0.42 \pm 0.14$	$0.91 \pm 0.29^b)$
		E 4	$20.0 \pm 9.7$	
4.78	$7/2^+$	E 2	$< 0.09$	
		E 4	$8.8^{+8.5}$ $-4.4$	

## § 3. 結果および考察

文献4によると、 $^{23}\text{Na}$ の回転準位は第2図に示されたように分類される。以下この分類に従って話を進める。今回の実験では基底回転帯に属する0.0 MeV  $3/2^+$ , 0.44 MeV  $5/2^+$ , 2.08 MeV  $7/2^+$ , 2.70 MeV  $9/2^+$ 準位, と2.39 MeV  $3/2^+$ 準位から始まる $K^\pi=1/2^+$ 回転帯の2.98 MeV  $3/2^+$ , 3.91 MeV  $5/2^+$ , 4.78 MeV  $7/2^+$ 準位についての形状因子が得られた。

(1) 基底回転帯 ( $K^\pi=3/2^+$ )

弾性散乱形状因子を第3図に示す。 $^{23}\text{Na}$ 基底状態はスピンの $3/2$ であるので、弾性散乱形状因子には、C0以外にC2の寄与がある。第3図の実線は、 $^{23}\text{Na}$ の電荷分布が、 $^{22}\text{Ne}$ の電荷分布と $^{24}\text{Mg}$ の電荷分布との平均の形を示すと仮定して、部分波解析法により計算したC0形状因子である。図では $q_{\text{eff}} \sim 1.2 \text{ fm}^{-1}$ 附近に、C2からの寄与が見られる。

第4図に、0.44 MeV  $5/2^+$ , 2.08 MeV  $7/2^+$ , 2.70 MeV  $9/2^+$ 準位の形状因子を示す。実線は、C2およびC4形状因子の形として(1)式(但し $R=3.04$  fm,  $g=0.98$  fm)を用いて、形状因子の実験値に合わせたものである。2.70 MeV  $9/2^+$ 準位に現われるC4と認められる

形状因子は、実線との合いが悪い。  
 このことに対して次の2通りの原因  
 が考えられる。一つは、横成分形状  
 因子からの寄与があるため、もう一  
 つは、2.08 MeV  $5/2^+$  準位の C 2  
 形状因子に合うように選んだ R と g  
 の値が C 4 形状因子では適当でない  
 ためである。単純な回転模型による  
 0.44 MeV  $5/2^+$  準位と 2.08 MeV  
 $7/2^+$  準位の C 2 転移強度の比は  
 $(3/2 \ 3/2 \ 2 \ 0 \mid 5/2 \ 3/2)^2 /$   
 $(3/2 \ 3/2 \ 2 \ 0 \mid 7/2 \ 3/2)^2 =$   
 1.8 となる、一方実験値は  $1.67 \pm 0.50$   
 である。

$$\underline{5.54} \quad (1/2^+)$$

$$\underline{5.38} \quad (5/2^+)$$

$$\underline{4.78} \quad 7/2^+$$

$$\underline{4.43} \quad 1/2^+$$

$$\frac{3.85 \quad 5/2^-}{3.68 \quad 3/2^-}$$

$$3.91 \quad 5/2^+$$

$$K^\pi = 1/2^+$$

$$\underline{2.70} \quad 9/2^+$$

$$\underline{2.64} \quad 1/2^-$$

$$\underline{2.98} \quad 3/2^+$$

$$\underline{2.08} \quad 7/2^+$$

$$K^\pi = 1/2^-$$

$$\underline{2.39} \quad 1/2^+$$

$$K^\pi = 1/2^+$$

$$\underline{0.44} \quad 5/2^+$$

$$\underline{0.00} \quad 3/2^+$$

$$K^\pi = 3/2^+$$

## <sup>23</sup>Na

第 2 図 回転模型による <sup>23</sup>Na の準位の分類。  
 分類の仕方は文献 4 に、又、準位の  
 励起エネルギーは文献 5 に従った。

(2)  $K^\pi = 1/2^+$  回転帯

2.39 MeV  $1/2^+$  準位から始まる  $K^\pi = 1/2^+$

回転帯に属する準位の形状因子を第 5 図に

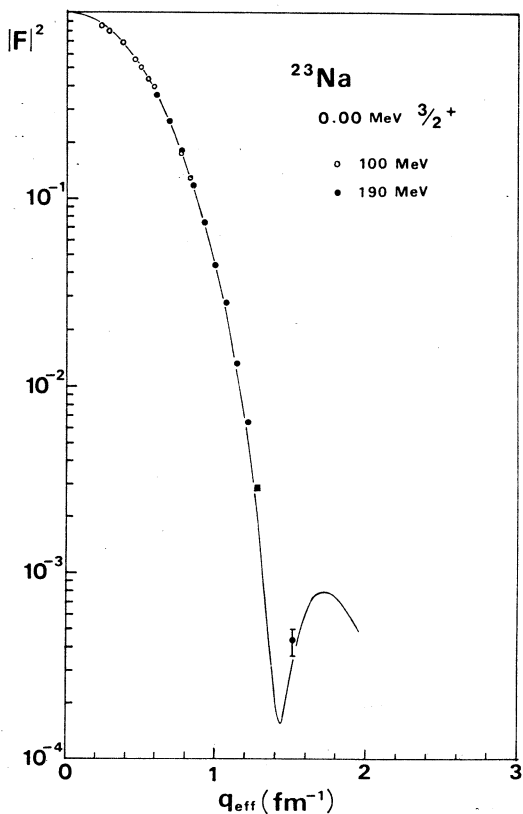
示す。実線は C 2, C 4 形状因子として (1)

式を用いて、形状因子の実験値に合わせたものである。2.39 MeV  $1/2^+$  準位は小さくて観測  
 できなかった。単純な回転模型によれば、2.39 MeV  $1/2^+$  準位と 2.98 MeV  $3/2^+$  準位の C 2  
 転移強度は同じ大きさになるはずであるが、2.39 MeV  $1/2^+$  準位が観測されないのは、 $K^\pi$   
 $= 1/2^+$  回転帯では Coriolis 力による回転-粒子結合の影響が大きいためであろうと思われる。

4.78 MeV  $7/2^+$  準位の C 4 形状因子の形も、基底回転帯と似た傾向で実線からはずれており、  
 基底回転帯の場合と同じ原因が考えられる。<sup>23</sup>Na においては、芯の  $\gamma$  振動的な状態  $K^\pi = 2^+$   
 に  $d_{5/2} \ \Omega = 3/2$  の奇陽子が強く結合してできる  $K^\pi = 1/2^+$  と  $K^\pi = 7/2^+$  回転帯の存在が  
 予想される。Röpke<sup>9)</sup> は  $\gamma$  振動的回転帯の先頭となる準位の候補として、 $K^\pi = 1/2^+$  回転帯  
 に対して、2.39 MeV  $1/2^+$  準位あるいは 4.43 MeV  $1/2^+$  準位、 $K^\pi = 7/2^+$  回転帯に対して  
 4.78 MeV  $7/2^+$  準位をあげている。今回の実験からは、比較的強く励起される 2.39 MeV  $1/2^+$   
 準位から始まる  $K^\pi = 1/2^+$  回転帯が  $\gamma$  振動的回転帯ではないかと思われる。又、その場合、  
 4.78 MeV  $7/2^+$  準位が第 2 図に示すような  $K^\pi = 1/2^+$  回転帯に属するか、それとも Röpke<sup>9)</sup>  
 の言うような  $K^\pi = 7/2^+$  回転帯の先頭となる準位に該当するのかは、後のより詳しい解析か

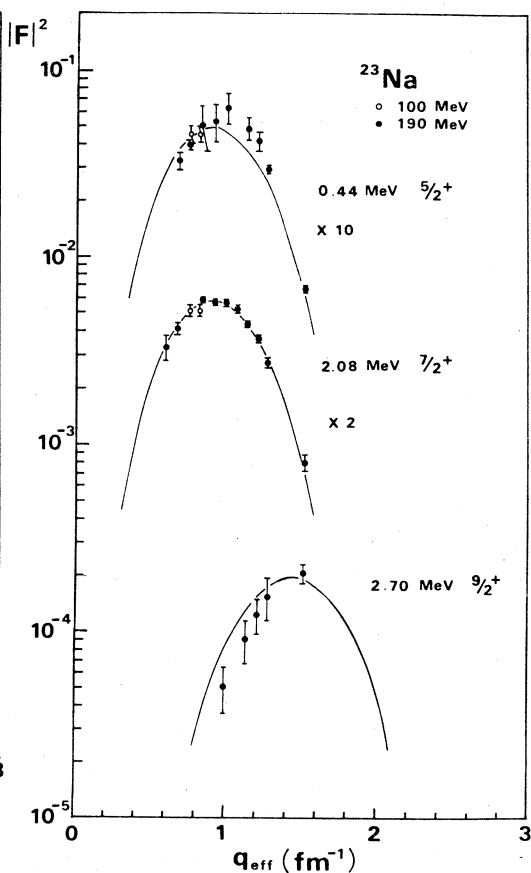


ら明らかになると期待される。



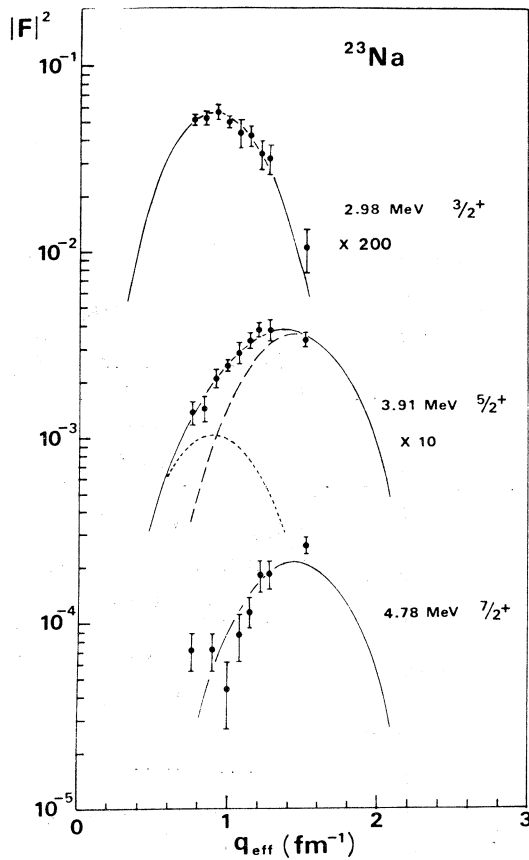
第 3 図

$^{23}\text{Na}$ の弾性散乱形状因子。実線は $^{23}\text{Na}$ の電荷分布の形として $^{22}\text{Ne}$ と $^{24}\text{Mg}$ の電荷分布の相加平均の形を仮定した場合の部分波解析による $^{23}\text{Na}$ のC0形状因子である。 $^{22}\text{Ne}$ と $^{24}\text{Mg}$ の電荷分布としては2パラメータフェルミ形を採用し、それぞれ $c=2.782\text{fm}$ ,  $t=2.412\text{fm}$ (文献7)および $c=2.981\text{fm}$ ,  $t=2.296\text{fm}$ (文献8)である。



第 4 図

$^{23}\text{Na}$ の基底回転帯( $K^\pi=3/2^+$ )の形状因子。実線は、第1表の $\gamma$ 線転移確率を求める際の(1)式で表わされる形状因子でC2およびC4の和である。



第5図

$^{23}\text{Na}$ の  $K\pi = 1/2^+$  回転帯に属する準位の形状因子。実線は第4図の説明に同じ。

参 考 文 献

- 1) G.M. Crawley and G.T. Garvey : Phys. Rev. **167** (1968) 1070.
- 2) W.C. Barber and G.J. Vanpraet : Nucl. Phys. **72** (1965) 63 ; W.C. Barber, J. Goldemberg, G. A. Peterson and Y. Torizuka : Nucl. Phys. **41** (1963) 461.
- 3) G. A. Savitskii *et al.* : Izv. Akad. Nauk (ser. fiz.) **33** (1969) 60.
- 4) R. A. Lindgren *et al.* : Nucl. Phys. **A180** (1972) 1.
- 5) P. M. Endt and van der Leun : Nucl. Phys. **A214** (1973) ; Atomic Data and Nuclear Data Tables **13** (1974) 67.
- 6) S. J. Skorka, J. Hertel and T.W. Retz-Schmidt : Nucl. Data **A2** (1966) 347.
- 7) R. P. Singhal, H. S. Caplan, J. R. Moreira and T. E. Drake : Can. J. Phys. **51** (1973) 2125.
- 8) A. Nakada and Y. Torizuka : J. Phys. Soc. Japan **32** (1972) 1.
- 9) H. Röpke, V. Glattes and G. Hammel : Nucl. Phys. **A156** (1970) 477.



I - 2  $^{48}\text{Ti}$  及び  $^{50}\text{Ti}$  による電子散乱 (I)

核理研, 静岡大\* 堀田明男\*・早川 建・高山 健  
岡崎行男・小山田正幸

$1f_{7/2}$  殻核の核構造の研究の一環として,  $^{52}\text{Cr}^{1,2)}$  について  $^{48}\text{Ti}$  及び  $^{50}\text{Ti}$  をとりあげ, 電子散乱実験を行った。現在進行中の実験であって, 未だ詳細な解析を報告する段階には至っていない。今回は弾性散乱についての解析結果を報告するのに止める。

## § 1. 実 験

実験は核理研300MeV電子線型加速装置を用いて行った。使用したターゲットは, 純度99.1%, 厚さ45.8 mg/cm<sup>2</sup> の  $^{48}\text{Ti}$  及び純度67.72%, 厚さ49.37 mg/cm<sup>2</sup> の  $^{50}\text{Ti}$  のいずれも金属板である。入射電子エネルギー, 及び散乱角  $\theta$  は, 180 MeV で  $\theta = 35^\circ, 40^\circ, 45^\circ, 50^\circ, 55^\circ, 60^\circ, 65^\circ, 75^\circ, 85^\circ$  及び  $95^\circ$  の各点, 250 MeV で  $\theta = 40^\circ, 45^\circ, 50^\circ, 55^\circ, 60^\circ, 65^\circ$  及び  $75^\circ$  の各点で測定を行った。

散乱断面積の絶対値は, 平行して測定した $^{12}\text{C}$  ターゲット (79.9 mg/cm<sup>2</sup>) よりの弾性散乱断面積をその既知の絶対値と比較することにより測定器系の有効立体角と検出効率を求め, その値を使って決めた。 $^{12}\text{C}$  の散乱断面積の絶対値は電荷分布関数  $\rho(r)$  として文献3より

$$\rho(r) = \rho_0 \left\{ \left( 1 + \frac{4}{3} \frac{r^2}{B^2} \right) \exp\left(-\frac{r^2}{A^2}\right) + a \exp\left[-\frac{(r-b)^2}{c^2}\right] \right\} \quad (1)$$

を採用し, 部分波解析コードによる計算により求めた。各パラメーターの値には, 同じ文献の値

$$A = 1.649 \text{ fm}, \quad B = 1.705 \text{ fm}, \\ a = 0.0019, \quad b = 4.4 \text{ fm}, \quad c = 1.1 \text{ fm},$$

を使った。

$^{50}\text{Ti}$  のターゲットには不純物として, 主に  $^{48}\text{Ti}$  が含まれているので,  $^{50}\text{Ti}$  と平行して測定した  $^{48}\text{Ti}$  のターゲットによるスペクトルを使って  $^{48}\text{Ti}$  の寄与する成分を  $^{50}\text{Ti}$  のターゲットのスペクトルより差し引いた。

§ 2.  $^{48}\text{Ti}$  及び  $^{50}\text{Ti}$  の弾性散乱

比較的パラメーターの検索が容易で, 形状因子の再現性も優れている2パラメーターフェル

ミ (2pF) 型電荷分布を用いて解析を行った。電荷分布関数は

$$\rho(r) = \frac{\rho_0}{1 + \exp[4.4(r-c)/t]} \quad (2)$$

である。ここで  $\rho_0$  は規格化条件

$$4\pi \int_0^{\infty} \rho(r) r^2 dr = 1, \quad (3)$$

で定まる規格化定数である。弾性散乱断面積の計算は、(2)式の関数の未知のパラメーター  $c$ 、 $t$  に適当な値を与え部分波解析コードを使って行った。パラメーター  $c$ 、 $t$  の多数の組に対して計算を行い実験値との間の  $\chi^2$  を求めた。この  $\chi^2$  の最小となる点における  $c$  と  $t$  の組が実験値に最もよく適合するパラメーターである。 $^{48}\text{Ti}$  及び  $^{50}\text{Ti}$  に対して

$$^{48}\text{Ti} : c = 3.83 \pm 0.02 \text{ fm}, t = 2.48 \pm 0.04 \text{ fm}$$

$$^{50}\text{Ti} : c = 3.89 \pm 0.02 \text{ fm}, t = 2.36 \pm 0.04 \text{ fm}$$

を得た。以上のパラメーターの値を使って、 $^{48}\text{Ti}$  及び  $^{50}\text{Ti}$  の電荷分布の自乗平均半径

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

を計算し、 $^{48}\text{Ti}$  について  $\langle r^2 \rangle^{1/2} = 0.63 \pm 0.12 \text{ fm}$   $^{50}\text{Ti}$  に対して  $\langle r^2 \rangle^{1/2} = 3.61 \pm 0.12 \text{ fm}$  を得た。これ等の結果をまとめて第1表に示す。この表で誤差は統計誤差<sup>4)</sup>のみを示

第1表  $^{48}\text{Ti}$ 、 $^{50}\text{Ti}$  の2pF分布パラメーター及び自乗平均半径。  
比較のため3pF分布のパラメーター及び自乗平均半径<sup>5,6)</sup>を示した。  
*Stanford 1*は文献5、*Stanford 2*は文献6による。

	$^{48}\text{Ti}$		$^{50}\text{Ti}$	
	<i>Present</i>	<i>Stanford 1</i>	<i>Present</i>	<i>Stanford 2</i>
$c$ (fm)	$3.83 \pm 0.02$	3.8474	$3.89 \pm 0.02$	3.8413
$t$ (fm)	$2.48 \pm 0.04$	2.467	$2.36 \pm 0.04$	2.373
$w$	—	-0.0761	—	-0.0381
$\langle r^2 \rangle^{1/2}$ (fm)	$3.63 \pm 0.12$	3.5773	$3.61 \pm 0.12$	3.5617

し測定器系等の誤差から現われる系統的誤差は考慮していない。第1表には比較のために3pF分布のパラメーター<sup>5,6)</sup>も示した。

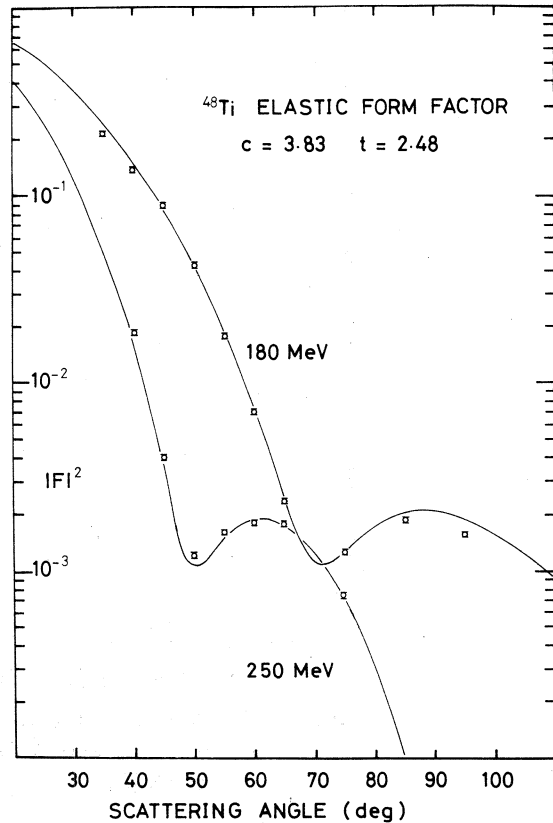
第1図及び第2図に形状因子の実験値と2pF分布でfitさせた計算値とを示した。

第1表から判るように、 $^{48}\text{Ti}$ と $^{50}\text{Ti}$ とでは誤差の範囲内で自乗平均半径は一致するが、2pF分布のパラメーター  $c$ 、 $t$  については、かなり異なっており、両者の基底状態の電荷分布に相違あることを示している。この相違が形状因子の上にもどのように現われるかを見るために次の様な量

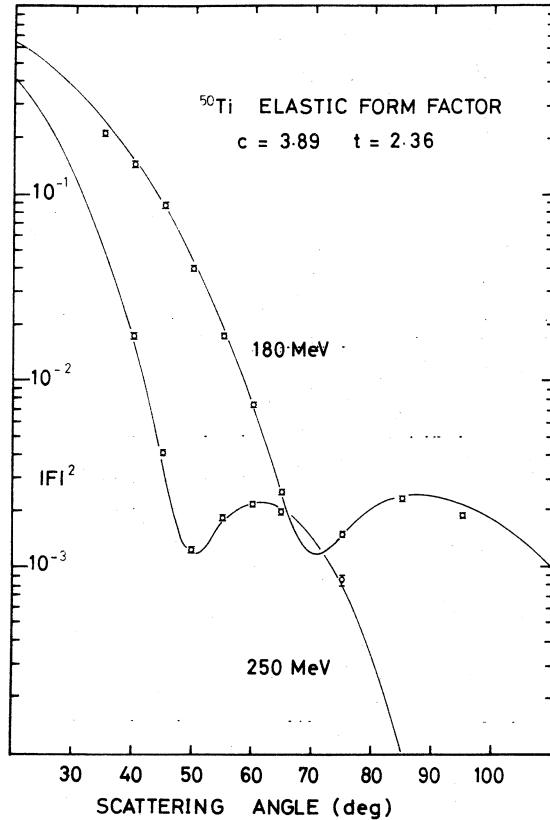
$$D = \frac{|F(50)|^2 - |F(48)|^2}{|F(50)|^2 + |F(48)|^2} \quad (5)$$

を各角度につき計算した。これを図示したものが第3図である。ここで  $F(50)$ 、 $F(48)$  はそれぞれ  $^{50}\text{Ti}$  及び  $^{48}\text{Ti}$  の形状因子である。図から明らかのように、形状因子の第1極小点 ( $\sim 65^\circ$ ) あたりから急に両者の差が著しくなっている。逆に、第1極小点までの形状因子の角度依存性は、電荷分布の細かい構造に依存せず、自乗平均半径等のような核の大きさを示すパラメーターだけでほぼ決ってしまうと考えられる。従って電荷分布の細かい構造を見るためには、角度の高い領域、すなわち運動量移行量の大きい領域での実験が必要である。

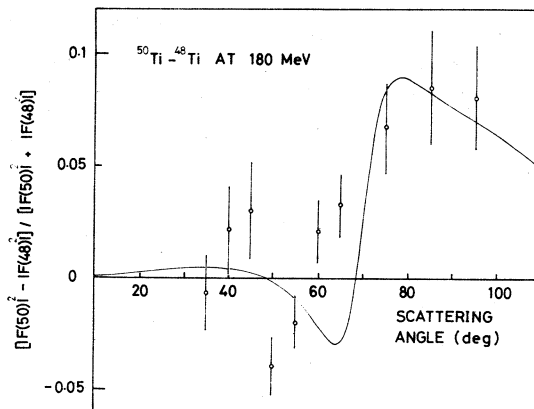
$^{48}\text{Ti}$  の2pF分布のパラメーター  $t$  は  $^{50}\text{Ti}$  の  $t$  と比較して大きくなっている。これは核変形<sup>7)</sup>の影響が現われているとも考えられるが、今の段階では確定的なことは言えない。



第1図  $^{48}\text{Ti}$  の弾性散乱形状因子、実線は入射電子エネルギー180MeV及び250MeVにおける部分波解析コードによる計算



第2図 <sup>50</sup>Tiの弾性散乱形状因子, 実線は入射電子エネルギー180MeV及び250MeVにおける部分波解析コードによる計算値



第3図 入射電子エネルギー180MeVにおける<sup>48</sup>Tiと<sup>50</sup>Tiの形状因子の大きさの差  $[|F(50)|^2 - |F(48)|^2] / [ |F(50)|^2 + |F(48)|^2 ]$  をプロットしたもの。実線は各々の核で最もよく適合した2pFのパラメータを使い、部分波解析コードによる計算値について上記の差をとったものである。



参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 7 (1974) 297.
- 2) 核理研研究報告 8 (1975) 55.
- 3) I. Sick and J. S. McCarthy ; Nucl. Phys. **A150** (1970) 631.
- 4) 核理研研究報告 8 (1975) 251.
- 5) R. F. Frosch *et al.* ; Phys. Rev. **174** (1968) 1380.
- 6) J. Heissnberg *et al.* ; Phys. Rev. **C6** (1972) 381.
- 7) G. Ripka ; *Proc. Topical Conf. on the Structure of  $f_{7/2}$  Nuclei* ( Editrice Compositori, Bologna, 1971) .

I-3  $^{58}\text{Ni}$  の巨大共鳴 (II)

核理研 斎藤悌二郎

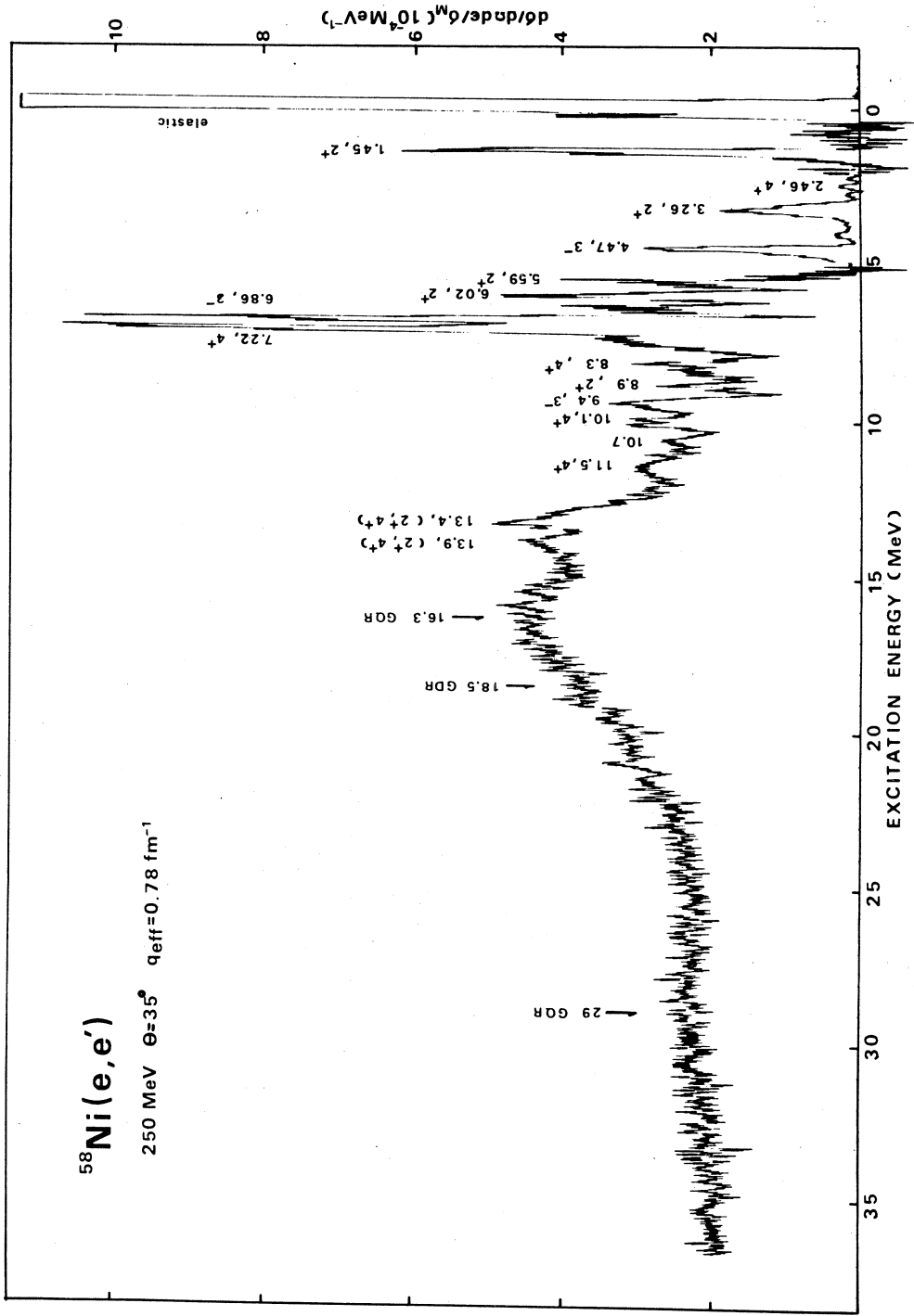
$^{58}\text{Ni}$  の巨大共鳴に関する電子散乱の実験については既に報告したが<sup>1)</sup>、今回はその後行なった入射エネルギー及び散乱角が 250 MeV 25°, 55°, 65° 及び 150 MeV 25° の実験データを加えて解析した結果のうち、主として 13 MeV の準位について報告する。

第 1 図は  $^{58}\text{Ni}$  による散乱スペクトルの一例で 250 MeV 35° の場合である。励起エネルギーが 5 MeV までは、縦軸は 0.1 倍してある。この領域では良く知られている  $1.45\text{ MeV } 2^+$ ;  $3.26\text{ MeV } 2^+$ ;  $4.47\text{ MeV } 3^-$  の準位が強く励起されている。5 MeV から 11.5 MeV の領域では図に見られる様に 10 本の準位が励起されているが、その形状因子や転移強度の詳細については次号に譲る。

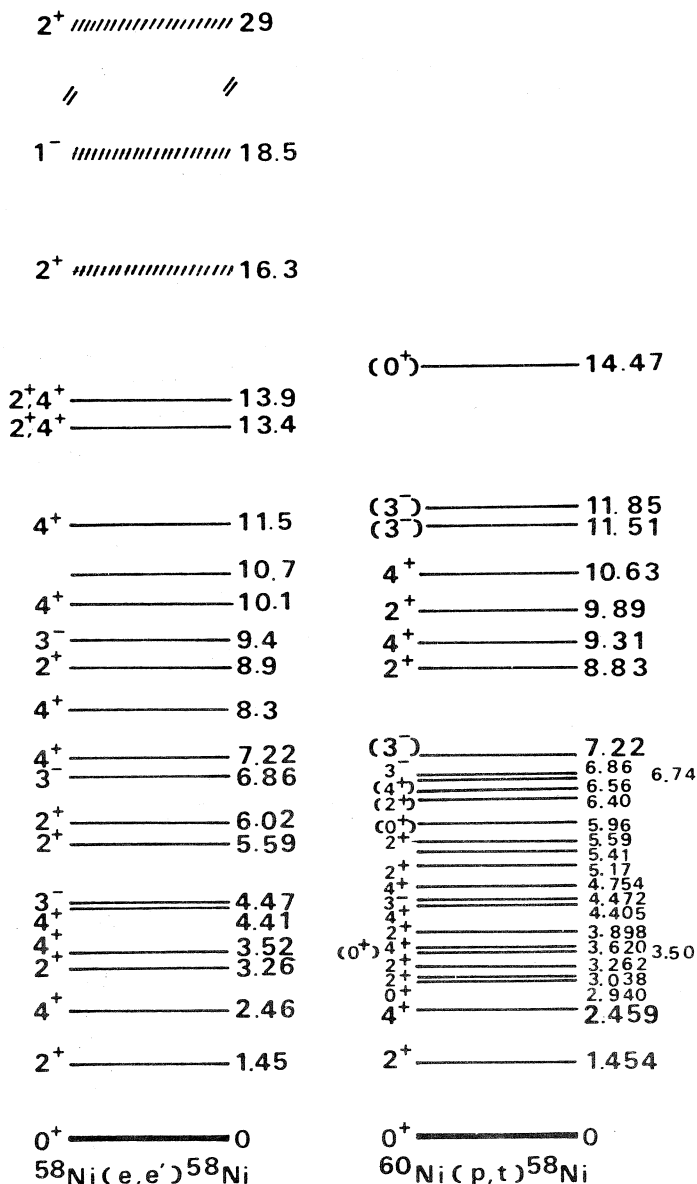
次に今回問題にしている 13 MeV の準位についてみると、他のハドロン等の実験では 13.5 MeV に一つの準位として観測されているのに対し、電子散乱の実験では、実験の精度が良く 13.4 と 13.9 MeV の準位に分離して観測されている。250 MeV 35° のスペクトルでは運動量移行が  $q_{\text{eff}} = 0.78\text{ fm}^{-1}$  に相当し、E2 励起が主であるため、18.5 MeV の E1 巨大共鳴 (GDR) は小さく 16.3 MeV の E2 巨大共鳴 (GQR) が顕著であることがわかる。又 29 MeV 附近に  $T = 1$  の GQR の励起が見られる。

第 2 図は第 1 図のスペクトルで観測された準位を準位図にまとめたものである。 $^{58}\text{Ni}$  では 5 MeV 以下の準位については、スピン、パリティ、寿命等の詳細なデータが例えば Nuclear Data Sheets<sup>2)</sup> に集められている。しかしながら 5 MeV 以上の準位についてのデータは少なく、今のところ Bruque 等<sup>3)</sup> による  $^{58}\text{Ni}(\alpha, \alpha')^{58}\text{Ni}$  反応で 7.5 MeV までの測定と Kong-A-Siou 等<sup>4)</sup> による  $^{60}\text{Ni}(p, t)^{58}\text{Ni}$  で 14.5 MeV の準位までの測定した実験が主なものである。第 2 図では電子散乱で励起された準位及びその解析から推定されるスピン、パリティを (p, t) 反応の結果と比較して示してある。多くの準位について (p, t) の結果と一致するが、 $3^-$  及び  $4^+$  と推定した準位で (p, t) の結果と一致しないものもあり、更に電子散乱の解析を進めた上で、個々の準位についての議論をするつもりである。

第 3 図は 13.4 及び 13.9 MeV 準位の形状因子を示す。ともにほぼ同様な形状因子の振舞をしている。実線は Tassie 模型<sup>5)</sup> を使った計算値で  $c = 4.14\text{ fm}$   $t = 2.46\text{ fm}$  を用いた。図から明らかなの如く、E2 だけでは形状因子全体を説明できず、実験値を再現するには E4 の成分を考慮に入れなければならない。図では 13.4 及び 13.9 MeV の各々の準位に対して、最もよく合う E2 及び E4 の成分を実線で示してある。これ等の準位に対する換算転移確率を第 1 表に示す。但し Weisskopf 単



第1図  $^{58}\text{Ni}$ による散乱電子スペクトル。励起エネルギーが5MeV以下ではスペクトルは1/10倍になっている。



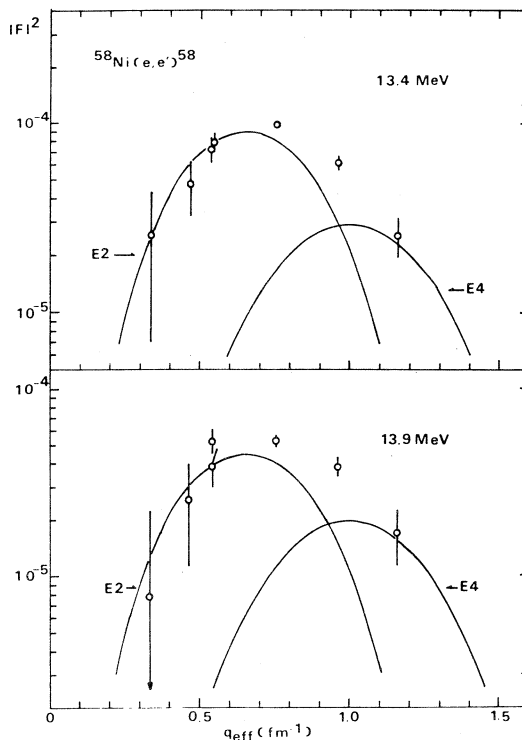
第 2 図  $^{58}\text{Ni}(e,e')^{58}\text{Ni}$  及び  $^{60}\text{Ni}(p,t)^{58}\text{Ni}$  反応で励起された準位の比較

位及びエネルギー総和則に対する割合で示してある。

最後に 13 MeV の準位について他の実験ではどのような結果が得られているかを簡単に記す。

第 4 図は Kocher 等<sup>6)</sup>の実験で、60.2 MeV 偏極陽子の  $^{58}\text{Ni}$  による非弾性散乱のスペクトルを示す。 $E_x=13.5\text{MeV}$  にピークが見られ、断面積の解析から最初 E 2 であるとしたが後に E 0 転移と訂正された。





第 3 図 13.4 及び 13.9 MeV 準位の形状因子

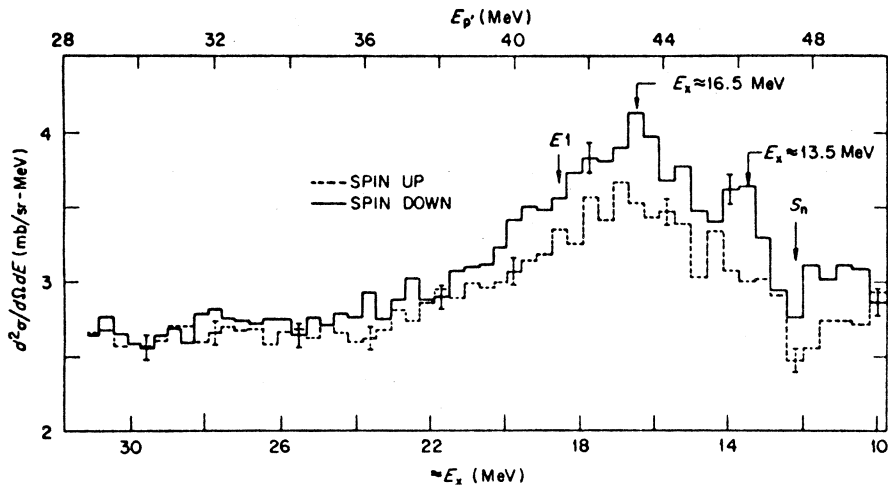
第 1 表 13.4 及び 13.9 MeV 準位の換算転移確率 (Weisskopf 単位) とエネルギー重みつき総和則(EWSR)に占める割合

$E_x$	$J^\pi$	$B_w(EL)$	$E_x \cdot B(EL)/EWSR$
13.4	$2^+$	0.66	0.036
	$4^+$	2.7	0.029
13.9	$2^+$	0.35	0.020
	$4^+$	1.8	0.019

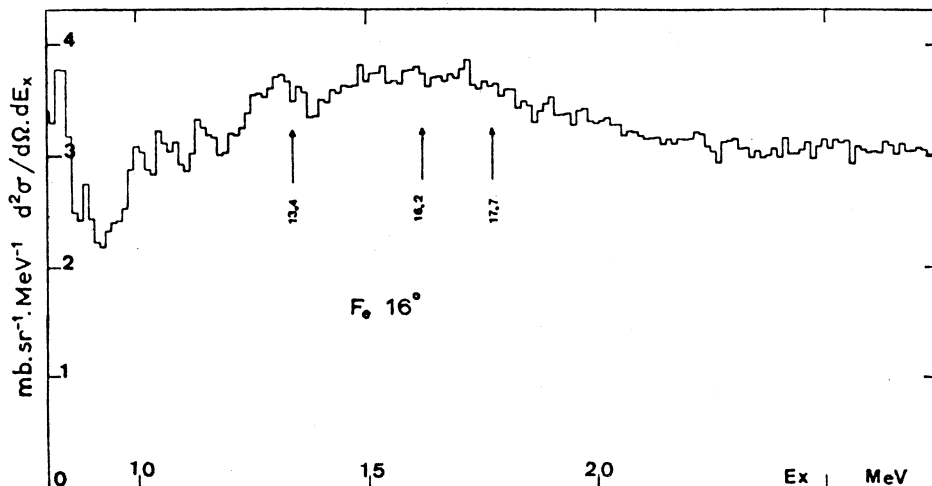
第 5 図は Marty 等<sup>7)</sup>の実験で、155 MeV 陽子の Fe による非弾性散乱のスペクトルを示す。  $E_x = 13.4 \text{ MeV}$  にピークが見られる。この準位の断面積は明示されていないが、E 3 転移であると推定している。

第 6 図は Arvieux 等<sup>8)</sup>による  $^{56}\text{Fe}$  からの  $80 \text{ MeV } ^3\text{He}$  の非弾性スペクトル及び  $13.5 \text{ MeV}$  準位の断面積を示す。実験データと計算値との比較から  $L = 2$  の転移としているが、 $L = 4$  の可能性も指摘されている。

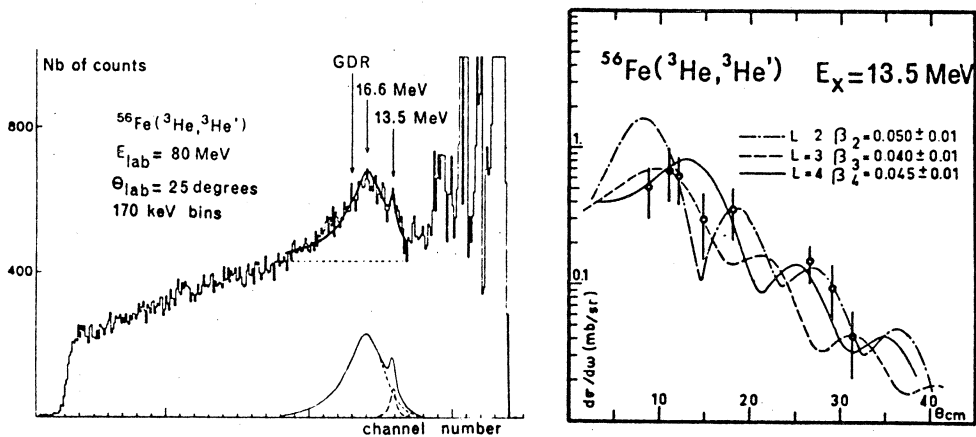
以上のことから、 $^{58}\text{Ni}$  の  $13 \text{ MeV}$  の準位は  $13.4$  と  $13.9 \text{ MeV}$  との準位からなり、その  $J^\pi$  は  $2^+$  が主で他に  $4^+$  がまじっていると考えられる。



第4図 60.2MeV偏極陽子の<sup>58</sup>Niによる非弾性散乱スペクトル<sup>6)</sup>



第5図 155MeV陽子のFeによる非弾性散乱スペクトル<sup>7)</sup>



第6図 80MeV<sup>3</sup>Heの<sup>56</sup>Feによる非弾性散乱スペクトル及び13.5 MeV準位の断面積<sup>8)</sup>

### 参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 6 (1973) 165.
- 2) Nucl. Data 3 (1970) B 3-3, 4-145.
- 3) G.Bruque *et al.*: Phys. Rev. Lett. 29 (1972) 259.
- 4) D.H.Kong-A-Siou *et al.*: Nucl. Phys. A221 (1974) 45.
- 5) L.J.Tassie: Aust. J. Phys. 9 (1956) 407.
- 6) D. C. Kocher *et al.*: Phys. Rev. Lett. 31 (1973) 1070.
- 7) N.Marty *et al.*: Nucl. Phys. A238 (1975) 93.
- 8) J. Arvieux *et al.*: Nucl. Phys. A247 (1975) 238.

I - 4  $^{90}\text{Zr}$  の多重極展開 (II)

核理研 福田茂樹

前号に引き続き  $^{90}\text{Zr}$  の多重極展開の結果について報告する。本稿ではまず多重極展開に関する模型依存性を調べる。次に簡単な準弾性散乱理論との比較及び微視的殻模型による理論との比較について述べる。最後に多重極展開と関係はないが後方 ( $\theta = 155^\circ$ ) での一連の実験で観測された  $E_x \approx 9\text{MeV}$  の構造について簡単な報告を行う。実験条件、方法及び解析の詳細については前号を参照されたい。<sup>1)</sup>

## § 1. 多重極展開と模型依存性

多重極展開は現象論的バックグラウンドを一切仮定せず、観測されたスペクトルを各多重極転移の重ね合せとして解釈しようというものであり、高励起状態の様々な構造がある程度明らかにできるという利点を持っている。

各スペクトルの対応する励起エネルギーに対して

$$|W_L(q, E_x)|^2 = \sum a_j |W_L(q, E_x)|^2 \quad (1)$$

と展開し、最小自乗法により  $a_j$  を決定する訳であるが、ここで必然的に  $|W_L(q, E_x)|^2$  の中に模型に依存する部分が生じてくる。即ち多重極転移  $J^\pi = L$  を指定しても一義的に転移電荷分布  $\rho_{\text{tr}}^{L, \pi}(r)$  は決まらず、核模型の仮定が必要であるからである。そこで我々はアイソスカラー励起に対しては総和則から導かれる Tassie 模型<sup>2)</sup>

$$\rho_{\text{tr}}^{L, \pi=0}(r) = Cr^{L-1} \frac{d\rho_0(r)}{dr} \quad (L \geq 2) \quad (2)$$

を、アイソベクター励起に対しては代表的な Generalized Goldhaber-Teller 模型<sup>2)</sup> (アイソスピンモード) (以下 G-T 模型と呼ぶ)

$$\rho_{\text{tr}}^{L, \pi=1}(r) = Cr^{L-1} \frac{d\rho_0(r)}{dr} \quad (3)$$

及び Jensen-Steinwedel 模型<sup>2)</sup>

$$\rho_{\text{tr}}^{L, \pi=1}(r) = \begin{cases} C j_L(k_L r) & r < R \\ 0 & r \geq R \end{cases} \quad (4)$$

を用いる事で模型依存性を調べた。但し  $C$  は転移の強さを表わす定数、 $\rho_0(r)$  は基底状態の電荷分布、 $k_L$  は境界条件で決まる定数、 $R$  は核表面半径である。又(4)式は  $r = R$  でシャー



プカットされた電荷分布であるので、表面のだれをSatchler 流<sup>3)</sup>に考慮した

$$\rho_{tr}^{L,T=1}(r) = Cr^L \rho_0(r) \quad (5)$$

も又用いた。本稿では前者をJ-S (I), 後者をJ-S (II) と呼ぶ事にする。総和則上はG-T 模型とJ-S 模型を比較すると、前者は転移電荷分布が核表面に集中している表面振動型であるのに対して、後者はその分布が核内部迄広がっている体積振動型である。従って第1図からわかる通り、形状因子の $q$  依存性はかなり違っている事がわかる。

多重極展開の模型依存性を調べるために、次の様な模型の組み合わせで多重極展開を行った。

(i) G-T 模型 (E1, T=1 のE2) +Tassie 模型 (T=0)

(ii) J-S (I) 模型 (E1) +G-T 模型 (T=1 のE2) +Tassie 模型 (T=0)

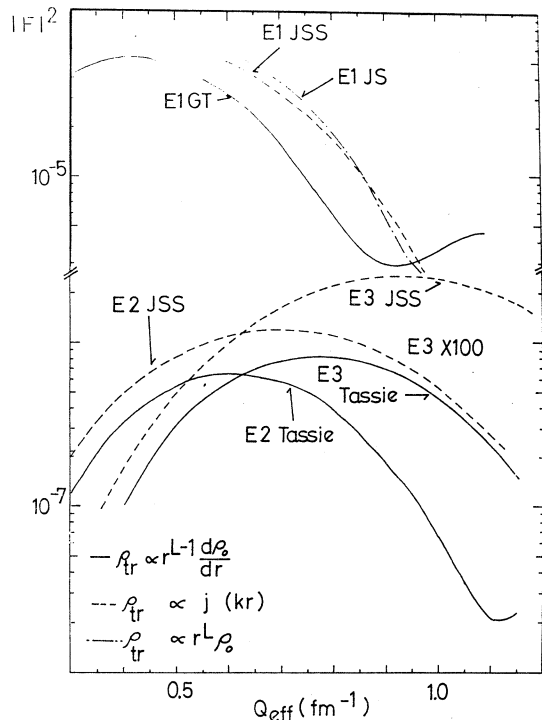
(iii) J-S (II) 模型 (E1) +G-T 模型 (T=1 のE2) +Tassie 模型 (T=0)

(iv) J-S (I) 模型 (T=1) +Tassie 模型 (T=0)

(v) J-S (II) 模型 (T=1) +Tassie 模型 (T=0)

ここで $T=0$  と $T=1$  の境界について述べるとE1 転移はすべて $T=1$  とし、E2 転移以上は $\hbar\omega_0 \approx 40A^{1/3}$  (MeV) とすると、E2 転移に対し $T=1$  は $2\hbar\omega_0$  あたりから期待される。今回はその値を $E_x \approx 20$  MeV にとった。E3 以上では今回の解析範囲である $E_x \leq 30$  MeV に対しては省略した。(8図参照)

前号でも述べたように多重極展開の是非の判定の一つとして結果のE1 成分が光核反応の結果と首尾一貫するかどうかがある。第2図第3図からわかる様にE1 成分は $E_x \sim 16.5$  MeV 付近に幅4MeV 程度の幅広い共鳴状態として展開され、1本のBreit-Wigner 型でフィットできる事、又転移強度もG-T 模型、J-S 模型いずれもE1 の総和則の $\sim 97\%$ ,  $\sim 99\%$  を占め、光核反応で得られた $95\%$  (Saclay<sup>4)</sup>) と良い一致が見られる。他の多重極転移に関して



第1図 形状因子の模型依存性

JS とあるのは本文のJ-S (I) 模型、JSS とあるのは本文のJ-S (II) 模型である

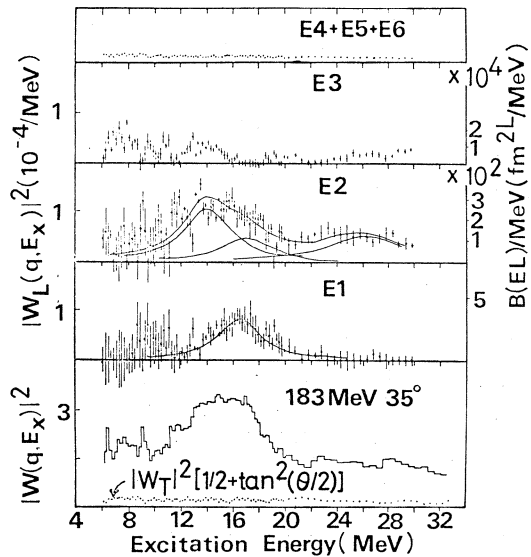
は採用した模型によって傾向が異なるが、共通の特徴を上げると次の点を指摘できる。

- (i) E 2 成分は  $E_x = 14\text{MeV}$ , 26~27 MeV 付近での寄与の他に  $E_x = 17\text{MeV}$  にも寄与がある。
- (ii) E 1 成分は  $E_x = 20\text{MeV}$  以上では寄与が非常に小さい。
- (iii) E 3 成分に構造が見られ,  $E_x = 6 \sim 10\text{ MeV}$ ,  $E_x = 12 \sim 14\text{ MeV}$ ,  $E_x = 30\text{MeV}$  に寄与がある。

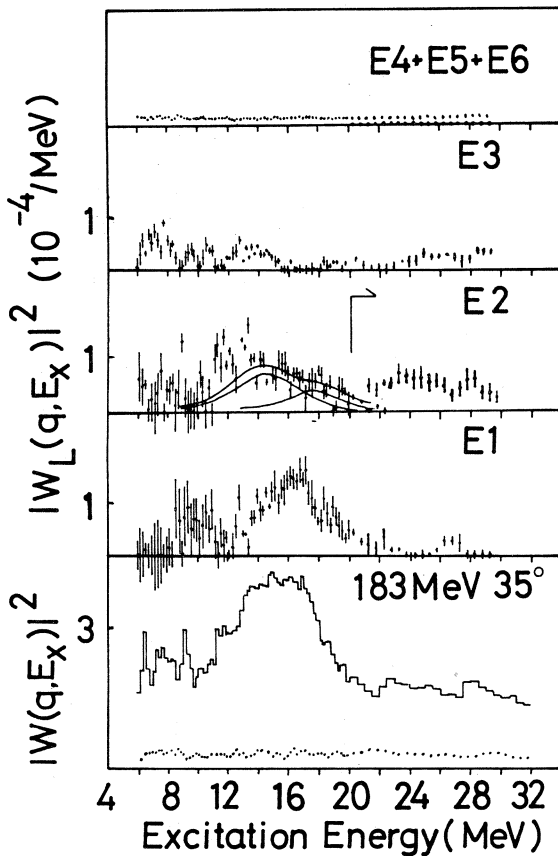
(iv) E 4 以上の成分は構造がなく一様に分布し,  $q$  の高い部分で大部分を占める。且つ  $q$  の高い領域での現象論的ピーク分離を行った場合の連続スペクトルにほぼ対応する。

これに対して模型に依存する特徴としては, J-S 模型の形状因子の  $q$  依存性が高い方迄広がっている事から E 2 以上の成分が小さくなる事, 特に GDR と同じ励起エネルギーにある  $17\text{MeV}$  付近の E 2 成分の減少が目立つ。

しかし全体的には展開に用いた模型により, 断面積の大きさは変化するが前記 (i) ~ (iv) の傾向は変化せず多重極展開の方法が有効である事がわかる。又以上の観点から展開結果に対する物理解釈は前号と全く同一に行える。第 1 表に G-T 模型及び J-S (II)



第 2 図 多重極展開の結果 (I), 本文の (i) による組合せ



第 3 図 多重極展開の結果 (II), 本文の (iv) による組合せ

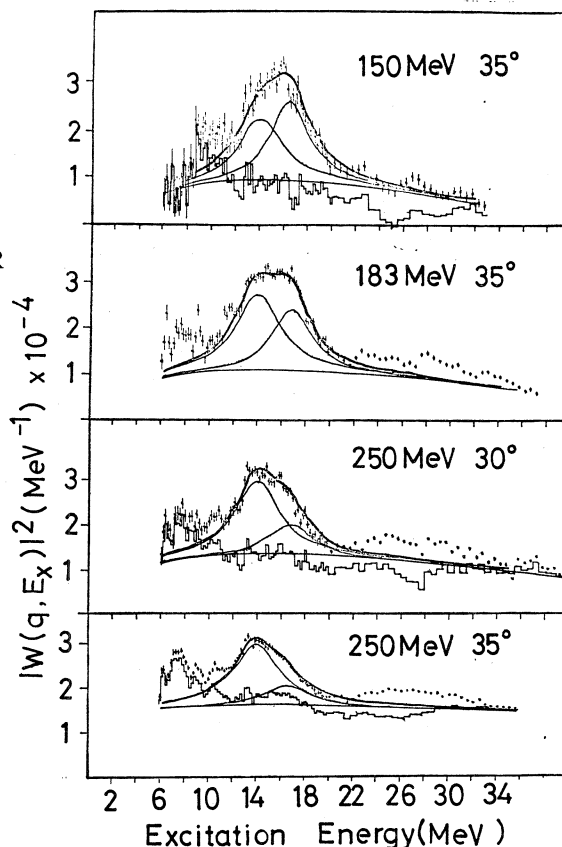
第1表 Parameters of peak separation for multipole expansion data

$E_x$ (MeV)	$\Gamma$ (MeV)	L	G- T Expansion, (fraction for EWSR)	J- S Expansion (fraction for EWSR)
14.0	4.5	2	$B(E2) = 1594e^2 fm^4$ 84% (T=0)	$B(E2) = 917 e^2 fm^4$ 48% (T=0)
16.7	4.0	1	$B(E1) = 19.4e^2 fm^2$ 97% (T=1)	$B(E1) = 19.9 e^2 fm^2$ 99% (T=1)
17.0	4.0	0	$ ME ^2 = 1698 fm^4$ 108% (T=0)	$ ME ^2 = 983 fm^4$ 63% (T=0)
26.0	6.0	2	$B(E2) = 933 e^2 fm^4$ 73% (T=1)	$B(E2) = 976 e^2 fm^4$ 76% (T=1)

模型を用いた場合の各共鳴状態の転移の強さを総和則に対して占める割合として示してある。

次に現象論的ピーク分離法と多重極展開の関係について触れる。第4図に2本のBreit Wigner型の曲線(GDR+14MeVのGQR)と現象論的バックグラウンドを用いてフィットした結果を示した。(前号第5図参照)

このバックグラウンドに対応するものとして、多重極展開したものうちGDRと14MeVのE2成分を除いたすべての和をヒストグラムとして同図に載せてある。この図から従来用いていたバックグラウンドは各多重極転移の和及び横成分形状因子から成り立っているという事がわかる。

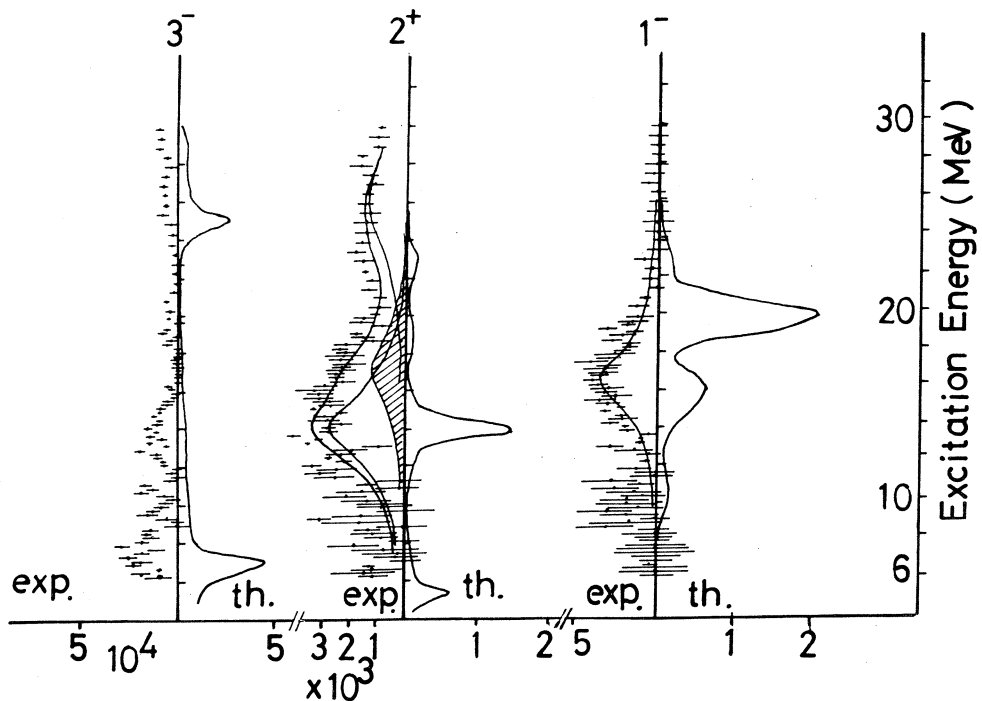


第4図 ピーク分離と現象論的バックグラウンド

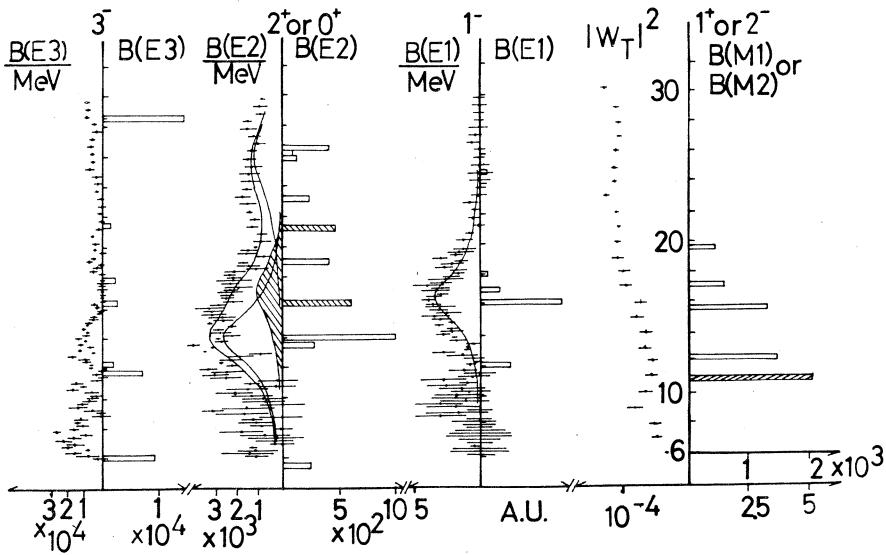
## § 2. 理論との比較

最近高励起状態に対する関心が高まった事から微視的計算が多くの人により行われている。その中で多くの多重極転移について計算のされている Bertsch<sup>5)</sup>, Krewald<sup>6)</sup>及び Liu & Brown<sup>7)</sup>等の計算を中心に<sup>90</sup>Zrの結果と比較する。

Bertschは“Response Function 理論”という新計算法により今迄の殻模型では無理だった多くの配位まで考慮に入れたRPA計算を行った。相互作用としてSkyrme相互作用を取っている。<sup>90</sup>Zrとの比較は第5図に示してある。E2転移は $2_1^+$ 準位が高い励起エネルギーを与えているが、GQR ( $T=0$ )は良く一致した結果を与えている。GDRは計算が2本に分れ、より強い成分は実験値と合わない。 $T=1$ のGQRも含め一般にBertschの結果はアイソベクター励起に対して余り良い結果を与えていない。Krewaldの計算との比較は数値的に前号で比較してあるので簡単に触れる。<sup>90</sup>Zrとの比較は第6図に示してある。E3の構造等



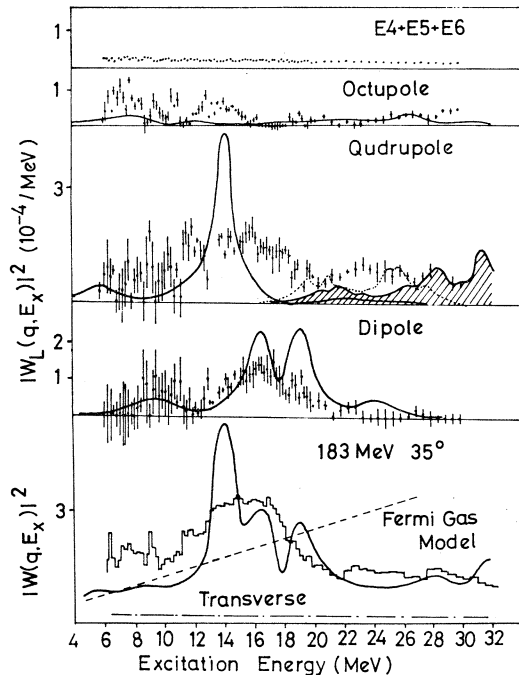
第5図 Bertsch の理論との比較。実験データの斜線部はE0を示す



第6図 Krawald の理論との比較, E2 に関する斜線部はE0を示す。1<sup>+</sup> or 2<sup>-</sup>の所の斜線部はM1を示す

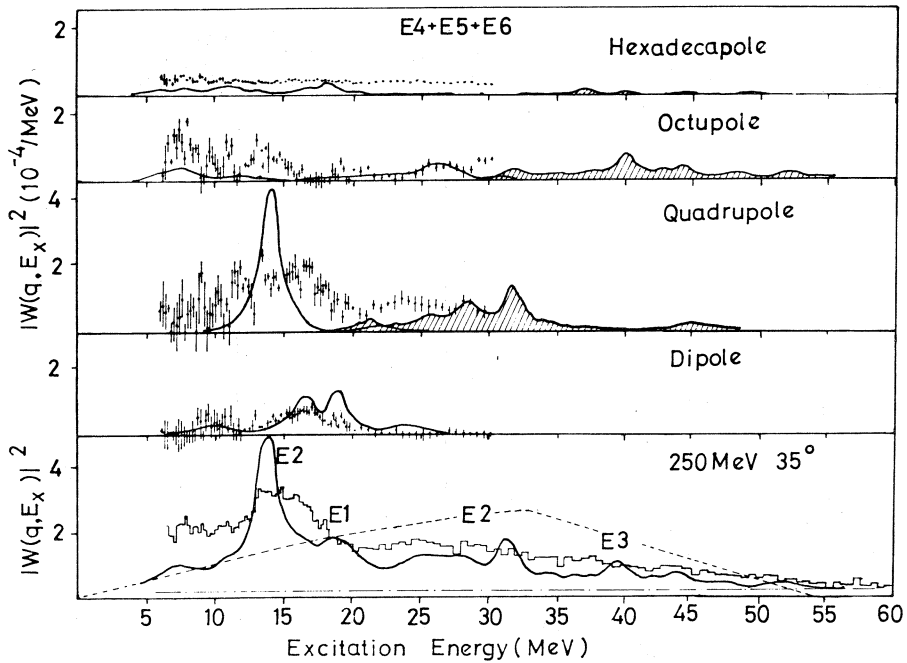
も含め, 良い一致を示している。

Krawald の計算で興味深いのは,  $E_x^{th} = 11\text{MeV}$  に強いM1 転移を予言している事で, これは次節や最近興味集中している Giant Magnetic Dipole Resonance と関連して面白と思われる。最近 Liu & Brown により Bertsch とほぼ同様の計算が行われた。Bertsch との違いは Skyreme 相互作用として少し拡張した Skyreme I-III という力を用いている点である。E0 ~ E4 まで各々アイソスカラー, アイソベクター両方の計算が行われている。計算結果で興味深いのはアイソベクターモードはE1 ~ E4 に対し,  $1\hbar\omega_0, 2\hbar\omega_0, 3\hbar\omega_0, 4\hbar\omega_0$  以上になってから寄与がある事で, 多重極展開した際に仮定した  $T = 0$  と  $T = 1$  の境界について裏付けている事



第7図 多重極展開の結果 (183MeV, 35°) とLiu 等の理論の比較。斜線部は  $T = 1$ , 点線部はE0 転移を示す。最下図の破線部はフェルミガス模型

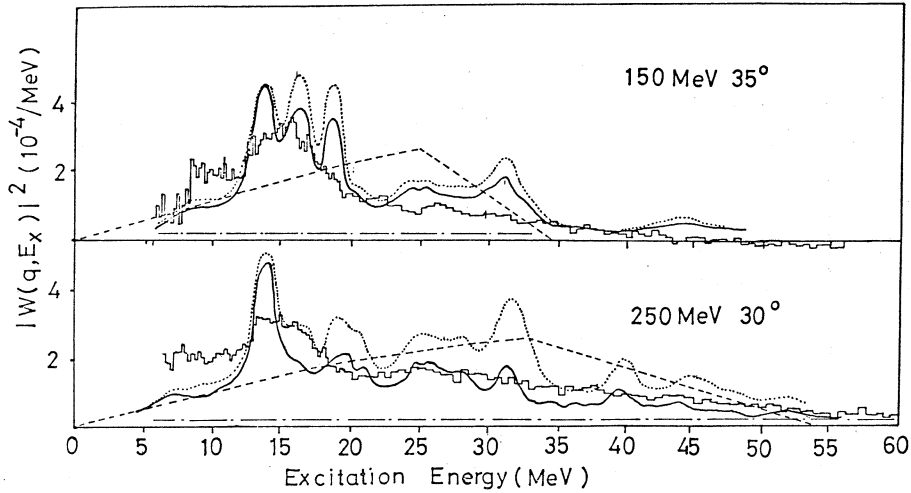




第 8 図 多重極展開の結果 (250 MeV, 30°) と Liu 等の理論の比較。第 7 図参照

である。第 7 図に 183 MeV 35°, 第 8 図に 250 MeV 30° のデータと理論結果に G-T 型の角分布を採用したものを比較してある。全体の傾向を非常によく再現している事、 $E_x \geq 30$  MeV ではアイソベクター励起が重要である事がわかる。Liu 等の場合も GDR に対しては 2 本に分離し余り良い結果を与えていない。又  $T=0$  の E0 転移は実験結果よりも若干高い励起エネルギーの所に表われている。Liu 等の計算結果に対し J-S 模型の角分布を採用すると実験結果よりも理論値が大きくなり、一致が良くない事も結論できた。E0 転移に関する理論は最近非常に多く計算がされているが、その中では Suzuki<sup>8)</sup> が単極-単極相互作用の強さを Hartree 場の自己無撞着性から定め、原子核の束縛エネルギーを再現する様にすると E0 総和則を満足する準位は  $E_x \approx 75A^{-1/3}$  MeV に存在する事を示し、実験結果と良い一致を得た。同様の結合定数  $\chi_s$  を用いた Tamm-Dankoff 計算が H. Sagawa<sup>9)</sup> により行われ、実験と良い結果を示している。

次に準弾性散乱について簡単に考察する。最も簡単な模型としてはフェルミガス模型がある。この模型では核子相互間の相互作用は無視している (Pauli の禁止則のみ考慮) ために  $E_x = 0$  から立ち上がる単純な応答関数で与えられる。ここでは Moniz<sup>10)</sup> のフェルミガス模型を用いて計算した結果は第 9 図及び第 10 図に示す。有効質量としては  $M^* = 0.8 M$  を用いている。実験との比較から、明らかに  $q$  が低いほど合いは良くない。これは当然の結果で現実の核子は

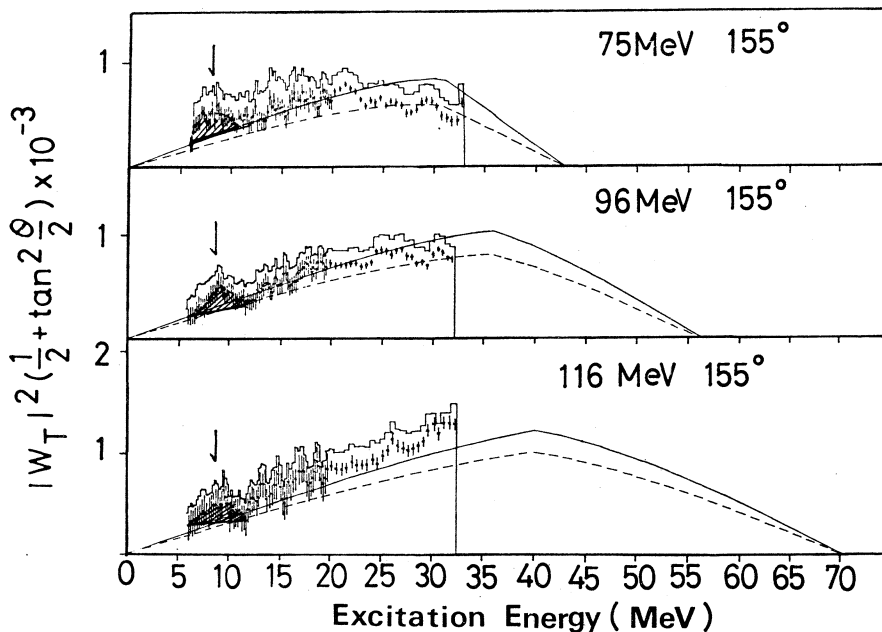


第9図 準弾性散乱領域の実験と理論の比較。点線はフェルミガス模型、実線はG-T模型を仮定した場合のLiu等の計算結果。一点鎖線は横成分の寄与を示す。

お互いに相互作用を行っていて、ブラウンの概略模型で考えると残留相互作用によって、非摂動状態から  $T=0$ ,  $T=1$  に従って分離し集団励起状態としてGDRやGQRを形成する。従ってその様な集団励起が主な寄与を示す所では合わないが、 $q$ が高くなると次第に合うようになる。この事はBertschもResponse Functionとの関連で述べている<sup>5)</sup>がむしろ準弾性散乱と原子核励起が区別できない事を考えると、Liu & Brownの計算の様に高励起状態迄、適当な相互作用による微視的計算を行った方がより現実的であろう。第9図の様に $q$ の低い領域でも良い結果を与えている。

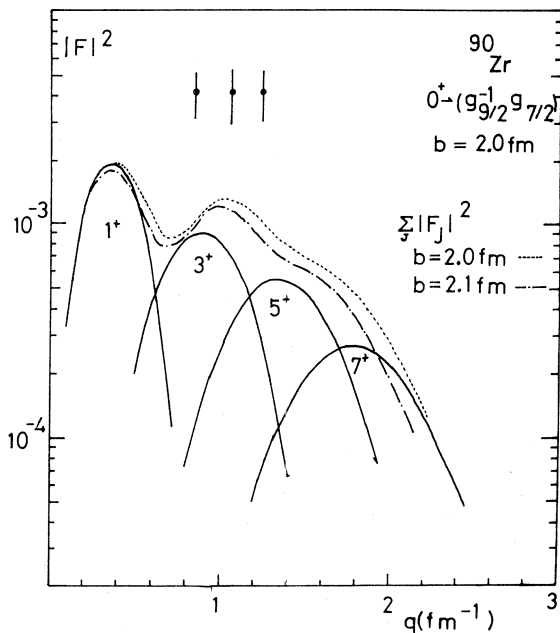
### § 3. 後方散乱について

第10図に $\theta=155^\circ$ での一連の実験結果を示したが、これから $E_x \approx 9\text{MeV}$ に共通してbumpが観測され、磁化分布からの寄与と考えられる。最近この方面で多くの実験データが集積され、特に $^{208}\text{Pb}$ についてM1, M2成分が存在する事が指摘されている。 $^{90}\text{Zr}$ の場合も中性子が $g_{9/2}$ を満たしており、 $1^+(g_{9/2}^{-1} g_{7/2})$ が可能な事から、Fagg等により、電子 $180^\circ$ 散乱実験が行われた。この結果 $E_x \sim 9\text{MeV}$ に $E_{in}=37\text{MeV}$ で測定されなかったが、 $E_{in}=60\text{MeV}$ で共鳴状態が測定され、M1転移とするとtotal width  $\Gamma \leq 5\text{eV}$ であると報告がなされている。又これと関連し $^{90}\text{Zr}(p, n)^{90}\text{Nb}$ 反応でGiant Gamow Teller Resonanceが測定されたという報告がある。 $^{90}\text{Nb}$ の励起エネルギーで8.4 MeVに幅が約4 MeVの共鳴状態が測定され、M1である事がわかった。これは親核である $^{90}\text{Zr}$ のM1準位と深く関連しており、 $E_x \sim 9\text{MeV}$ にM1が存在するという事と首尾一貫している。今回の後方散乱の予備的



第10図 後方 ( $\theta = 155^\circ$ ) の実験データ。実線はフェルミガス模型, 斜線部は断面積の計算に用いた部分

な解析によると、以上の報告にある M1 準位と励起エネルギー等是一致的だが、運動量移行量  $q_e$  で見ると M3 が主に寄与する所である事がわかった。配位として  $(g_{9/2}^{-1} g_{7/2})$  を仮定すると  $1^+, 3^+, 5^+, 7^+$  が可能である。励起エネルギーに関してはより詳しい計算を行わなければこれらの準位が縮退しているかどうかは明らかではない。 $(g_{9/2}^{-1} g_{7/2})$  を仮定したボロン近似による計算<sup>13)</sup>と、共鳴状態に対し直線的にバックグラウンドを差し引いて断面積を比較した結果を第11図に示す。この結果殻模型の予想値より大きい事がわかった。より詳しい考察その他について



第11図  $(g_{9/2}^{-1} g_{7/2})$  配位を仮定した場合の形状因子。実験値は第10図の斜線部より出したもの

は今後の課題である。なお後方散乱という事で実験の統計も不十分である事から、これらの実験は再度追実験を行い、十分な統計を得、やはり9MeV 付近にふくらみが存在する事を確認したので付け加えておく。

### 参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 : 8 (1975) 234 .
- 2) H. Überall : *Electron Scattering from Complex Nuclei* (Academic Press, 1971) Vol II.
- 3) G. R. Satchler : Nucl. Phys. **A195** (1972) 1.
- 4) A. H. Leprêtre, H. Beil, R. Bergère, P. Carlos, A. Veysiere and M. Sugawara : Nucl. Phys. **A175** (1971) 609.
- 5) G. Bertsch and S. F. Tsai : Phys. Rep. **18C** (1975) 125.
- 6) S. Klewald and J. Speth : Phys. Lett. **52B** (1974) 295.
- 7) K. F. Liu and G. E. Brown : to be published.
- 8) T. Suzuki : Research Report of LNS - TU 8 (1975) Suppl. p. 146.
- 9) H. Sagawa : INS - Report 250, December (1975) .
- 10) E. J. Moniz : Phys. Rev. **184** (1969) 1154.
- 11) L. W. Fagg, W. L. Bendal, E. C. Jones, N. Ensslin and F. E. Cecil : *Proc. Intern. Conf. on Nuclear Physics*, eds. T. de Boer and H. J. Mavy (North-Holland, Amsterdam, 1975) Vol. 1.
- 12) R. R. Doering, A. Golonsky, D. M. Patterson and G. F. Bertsch : Phys. Rev. Lett. **35** (1975) 1691.
- 13) Y. Arita : private communication.

## I-5 $^{209}\text{Bi}$ の磁化分布による弾性散乱 (II)

核理研 榎本収志

前回の報告では実験解析法を中心に詳しく議論された。今回はその議論を基礎として、その後付加された  $200\text{ MeV } 155^\circ$ ,  $180\text{ MeV } 155^\circ$  のデータも併せて、結果の物理解釈、考察を中心に報告する。

### § 1 . 序

$^{209}\text{Bi}$  原子核の磁気能率は殻模型による第1近似としては、 $^{208}\text{Pb}$  閉殻のまわりを廻る  $1h_{9/2}$  単一陽子のスピン磁気能率  $\mu_p = g_s \cdot \vec{s}$  と軌道運動による能率  $g_l \cdot \vec{l}$  によると期待される。従って実験的興味の第1は、実験値と単一粒子模型の理論値の比較から始まる。

更に次段階の興味として、 $1h_{9/2}$  陽子の芯との相互作用の影響 (芯偏極効果)、核子が陽子、中性子の他に  $\pi$  中間子から成り立っていることによる  $\pi$  中間子電流の影響 (中間子効果) が出てくる。単一粒子模型では  $g_s = 5.585$ ,  $g_l = 1$  とするが、上に述べた2つの効果は、 $g_s^{\text{eff}} = g_s + \delta g_s$ ,  $g_l^{\text{eff}} = g_l + \delta g_l$  の様に  $g_s, g_l$  の中にくみ込むことによって考慮できる。(以下、磁気能率の単位は全て核磁子とする。)ところが、一般に芯偏極効果と中間子効果では、 $\delta g_s, \delta g_l$  への現れ方が異なる。例えば磁気双極子 (M1) 能率では  $\delta g_s$  に対しては芯偏極、 $\delta g_l$  に対しては中間子効果が主として現われるという理論的結果があり、実験値をおおむね説明する<sup>1)</sup>。従って実験上の問題として、 $g_s$  と  $g_l$  を分離して測定できるかどうか一つの焦点となる。これに関しては、 $^{210}\text{Po}$  の  $11^-$  アイソマーの磁気能率を測定して  $\delta g_l = 0.09 \pm 0.02$  の結果を出した山崎敏光グループの研究が有名だが<sup>2)</sup> 電子散乱ではどういう見通しを持てるだろうか。

### § 2 . 理論

原子核による電子散乱の微分断面積は、核の電荷分布と磁化分布の各々による散乱の和として書くことができる：

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = 4\pi\sigma_M\eta^{-1}(|F_L(q)|^2 + \left(\frac{1}{2} + \tan^2\frac{\theta}{2}\right)|F_T(q)|^2) \quad (1)$$

但し 
$$\sigma_M = (e^2 \cos\frac{\theta}{2} / 2E_0 \sin^2\frac{\theta}{2})^2$$

$$\eta = 1 + 2E_0 \sin^2\frac{\theta}{2} / M_T c^2$$

$$q = (2E_0/\hbar c) \eta^{-\frac{1}{2}} \sin \frac{\theta}{2}$$

ここで  $E_0$ ,  $\theta$ ,  $M_T$  は電子の入射エネルギー, 散乱角, 標的の静止質量である。(1)で磁気形状因子  $|F_T(q)|^2$  は一般に

$$|F_T(q)|^2 = \sum_{\lambda=1, \text{odd}}^{2j} N_\lambda^{lj} \left( \frac{qM\lambda}{M_p} \right) \{ \langle j_{\lambda-1} \rangle + A_\lambda^{lj} \langle j_{\lambda-1} \rangle \}^2 \quad (2)$$

$$\langle j_\lambda \rangle \equiv \int_0^\infty R_{nl}(r)^2 j_\lambda(qr) 4\pi r^2 dr$$

の様に,  $M\lambda$  能率による散乱の和の形に書ける<sup>3)</sup>ここで,  $(n, l, j)$  は核の調和振動子の量子数, 軌道及び全角運動量量子数である。又  $\lambda$  は磁気多重極度  $2\lambda$ ,  $j_\lambda$  は球ベッセル関数,  $M_p$  は陽子の静止質量,  $N_\lambda^{lj}$ ,  $A_\lambda^{lj}$  は定数である。 $M\lambda$  は単一粒子模型の磁気  $2\lambda$  重極能率で

$$M\lambda = (-1)^k \frac{(2l+1)! (l+k)! \lambda!!}{(2l+\lambda)! (l-k)! (\lambda-1)!!} \langle r^{\lambda-1} \rangle 2^{\lambda-1} B_\lambda^{lj} \quad (3)$$

$$k = (\lambda-1)/2$$

$$B_\lambda^{lj} = \begin{cases} g_s/2 + g_l(2l+1-\lambda)/(\lambda+1) & (j=l+\frac{1}{2}) \\ \left( -\frac{g_s}{2} + g_l \frac{2l+1+\lambda}{\lambda+1} \right) \frac{(2l-\lambda)(2l-\lambda+1)}{2l(l+1)} & (j=l-\frac{1}{2}) \end{cases}$$

と書ける。 $\lambda=1$  のときは Schmidt 値を与える。(2), (3)によれば, 実験によって断面積の大きさを説明する様に波動関数の形と  $M\lambda$  能率の大きさを決めれば,  $M\lambda$  能率の単一粒子値に対する比を求めることができる<sup>3,4)</sup>

磁気形状因子は  $g_s \vec{s}$  と  $g_l \vec{l}$  による散乱の寄与の和の形に書くこともできる:

$$|F_T(q)|^2 = \sum_{\lambda=1, \text{odd}}^{2j} (F_{T\lambda}^{\text{spin}}(q) + F_{T\lambda}^{\text{orbital}}(q))^2 \quad (4)$$

第1図に  $|F_{T\lambda}^{\text{spin}}| / (|F_{T\lambda}^{\text{spin}}| + |F_{T\lambda}^{\text{orbital}}|)$  の比を示す。本実験では  $g_s \vec{s}$  が主に散乱に寄与し,  $|F_T|$  はほぼ  $\mu_p (\frac{1}{2} g_s)$  に比例する。一方,  $q_{\text{eff}} = 0.46 \text{ fm}^{-1}$  付近では  $g_l$  に関する情報が得られる。

### § 3. 実験結果の解釈と考察

実験による磁気形状因子の値を第1表に示す。実験値の導出法は殆ど前報告に等しいが, 異なる点は,

(1) 弾性散乱の生カウント  $Y^{\text{aw}}(\Delta E)$  として, ピークのふらつきを考慮して, 上限, 下限をとり各々について形状因子を導出した後に平均化した。



(2) 差し引きが必要な電荷断面積の値は Mainz と Stanford の値で 18% ~ 57% の差異があるので、これを無視せず統計誤差として処理した。

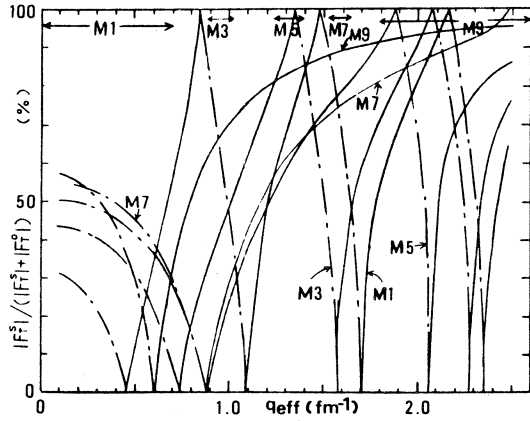
解析に用いる理論は①平面波ボルン近似②単一粒子模型及び調和振動子型波動関数である。①で歪曲波の効果は実験値を  $q_{\text{eff}}$  でプロットすることによって考慮する。 $q_{\text{eff}}$  の式は前報告と同じ方法で求めた経験式で

$$q_{\text{eff}} = q \left( 1 + 0.343 \frac{z\alpha}{\sqrt{RE_0}} \right) \quad (5)$$

$R$ : equivalent uniform radius

である。H. O. 波動関数の oscillator length parameter  $b=2.33 \text{ fm}^5$  を用いて計算した  $|F_T|^2$  の値と実験点を第 2 図に示す。

理論値の実験値への  $\chi^2$ -fit は



第 1 図 磁気形状因子  $F_T = F_T^{\text{spin}} + F_T^{\text{orbital}}$  の中で、 $g_s s$  の寄与の占める割合： $|F_T^{\text{spin}}| / (|F_T^{\text{spin}}| + |F_T^{\text{orbital}}|)$  一点鎖線は  $F_T^{\text{spin}}$  と  $F_T^{\text{orbital}}$  の符号が異なることを示す。

第 1 表

日時	$E$ (MeV)	$\theta$ (Deg)	$q_{\text{eff}}$ ( $\text{fm}^{-1}$ )	$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)^{\text{exp}}$ ( $10^{-34} \text{cm}^2$ )	$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{charge}}^{\text{cal}}$ ( $10^{-34} \text{cm}^2$ )	$ F_T^{\text{mag}} ^2$ ( $10^{-4}$ )
12.24	200	155°	2.13	7.10 ± 2.63	1.81 ( 25 % )	3.03 ± 1.54
1.08	"	145°	2.08	7.68 ± 2.30	3.51 ( 46 % )	2.22 ± 1.19
1.21	"	"	"	11.0 ± 1.64	" ( 32 % )	3.96 ± 0.89
1.28	"	135°	2.02	9.51 ± 2.38	4.70 ( 49 % )	2.33 ± 1.12
2.06	180	155°	1.93	6.77 ± 1.96	1.84 ( 27 % )	2.29 ± 0.79
4.25	220	155°	2.34	1.70 ± 0.63	0.50 ( 29 % )	0.83 ± 0.42
5.06	200	"	2.13	6.08 ± 1.22	1.81 ( 20 % )	2.45 ± 0.68
5.08	180	"	1.93	5.44 ± 1.20	1.84 ( 34 % )	1.67 ± 0.55

5 ~ 7 欄は順に散乱の全微分断面積、Mainz の電荷分布を用いて計算 (phase shift analysis) した電荷断面積、結果として得られた磁気形状因子である。全断面積の誤差は弾性散乱ピークの計数の統計誤差の他にバックグラウンドの誤差、ピークのふらつきによる誤差、差し引くべき電荷断面積の計算誤差を含む。6 欄の%は (電荷断面積/全断面積) を示す。

$$(1) \chi_{(1)}^2 = \sum_{i=1}^5 \left[ \frac{|F_T|_i^{2\text{exp}} - a|F_T(b)|_i^{2\text{cal}}}{\delta|F_T|_i^{2\text{exp}}} \right]^2$$

$$(2) \chi_{(2)}^2 = \sum_{i=1}^5 \left[ \frac{|F_T|_i^{2\text{exp}} - |F_T(b, \mu_p)|_i^{2\text{cal}}}{\delta|F_T|_i^{2\text{exp}}} \right]^2$$

$$(3) \chi_{(3)}^2 = \sum_{i=1}^5 \left[ \frac{|F_T|_i^{2\text{exp}} - |F_T(b, R7, R9)|_i^{2\text{cal}}}{\delta|F_T|_i^{2\text{exp}}} \right]^2$$

の3段階をふむ。

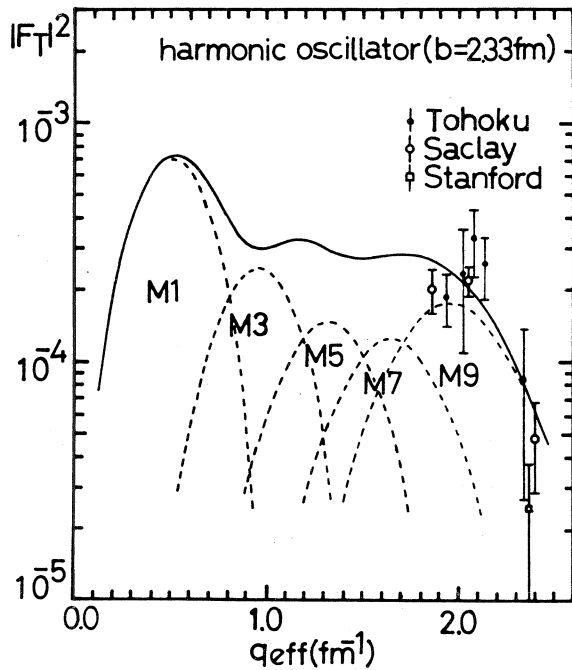
(1)で $a$ は形状因子の単一粒子模型値にかける倍数であり、1に近い値ならその模型が良いことを意味する。 $b$ の値は波動関数の広がり、即ち形状因子の $q$ 方向への広がりを変化させる。 $a, b$ は第2図で理論値を各々、上下及び左右に動かす。 $^{209}\text{Bi}$ の様に $Z$ の大きな核では第2図で用いた $b = 2.33 \text{ fm}$ の様なC0散乱による決め方は必ずしも良いと断定できないので $a$ と同時に $b$ もパラメーターにする。

(2)で $\mu_p$ 即ち $g_s$ のみをパラメーターにし $g_l$ を動かさなかったのは本実験では散乱に $g_l$ は殆ど効かないからである。実験で $\mu_p^{\text{eff}}$ 即ち $g_s^{\text{eff}}$ を決めると $\delta g_s$ は一般に芯偏極と中間子効果の2つの内容を含み、実験的に区別する

のは困難なので、理論の予言値と各々比較するにとどめざるを得ない。尚、注意すべきことは、芯偏極は一般に $\lambda, q$ により異なり、 $g_s^{\text{eff}}(q, \lambda)$ となるので、 $g_s^{\text{eff}} = \text{const}$ として扱う場合、それはこの $q$ の範囲での平均を示す。従って2つの多重極にまたがる様な大きな $q$ について(2)のfitをするのは好ましくない。本実験ではOKであり、 $g_s^{\text{eff}}$ は(1)の $a$ の物理的内容となっている。

(3)で、 $R7, R9$ は $M7$ と $M9$ の形状因子にかける倍数であり(2)式より

$$(M7)^{\text{eff}} = \sqrt{R7} (M7)_{s.p.}$$



第2図 磁気形状因子 $|F_T|^2$ の理論値と実験値。実験値は重みつき平均をとって5点にまとめている。

の関係をもつ。R 7, R 9 は芯偏極効果等の効き方の多重極度による差異を考慮するものであり、(2)と違って2つ以上の多重極にまたがる様に広い $q$ 領域による fitが必要である。

fitの結果は(1)で $a = 0.80 \pm 0.20$ ,  $b = 2.15 \pm 0.20$ ,  $\chi^2_{(1)\min} = 3.4$ , (2)で $\mu_p^{\text{eff}} = 2.45 \pm 0.35$ ,  $b = 2.15 \pm 0.20$ ,  $\chi^2_{(2)\min} = 4.1$ 。(3)は前に述べた通り $q$ 領域が狭く、一つの多重極形状因子で fit してしまう結果( $R7=0 + \alpha(\alpha > 1.2)$ ,  $R9 = 1.3 \pm 0.2$ ,  $b = 2.3 \pm 0.1$ )になった。 $\chi^2$  fit の結果を第3図に示す。

(1)の結果は誤差の範囲内で単一粒子模型が良いことを示す。この事実は周知の $^{209}\text{Bi}$ のM1能率の単一粒子値からのずれ(約54%)と矛盾するように思われるが、これは核のM9能率による電子散乱には $g_l \vec{l}$ が効かないこと、 $g_s \vec{s}$ に対する芯偏極効果も効き方が異なることによると解釈できる。即ちM1能率の場合は、54%のいずれのうち約半分を芯偏極による $\delta g_s$ 、残りの半分を中間子効果による $\delta g_l$ で説明するが、これまでの最も有力な結論であると思われる。<sup>1)</sup>

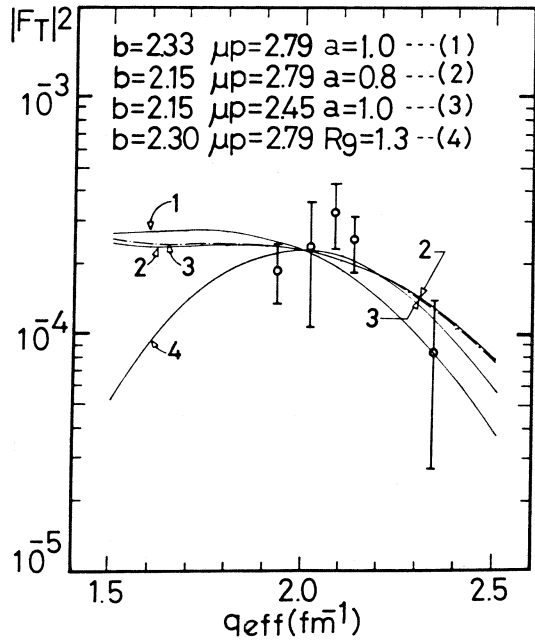
誤差の範囲での結論は以上であるが、今後の見通しとして統計処理上の最良の見積りである中心点の評価を付加しておくのも無駄ではなかろう。(2)で $\mu_p^{\text{eff}} =$

2.45  $\pm$  0.35 という値は(1)の $a = 0.80 \pm 0.20$ の物理的内容である。この中心値は自由陽子の2.79より削減される傾向を示している。これは、芯励起、中間子効果の両方又は片方によると思われるが、この大きさは、例えば後者の理論値 $\delta\mu = -0.17$ <sup>6)</sup>で説明できる程度の大きさであることを指摘しておく。この傾向は最近のSaclayの実験結果と<sup>3,7)</sup>とも一致している。

(2)の結果を考慮してM9能率を与えると、

$$\begin{aligned} M9 &= \sqrt{0.80 \pm 0.20} \times (-4.24b^8) \\ &= -(1.74 \pm 1.31) \times 10^3 \text{ (n. m. fm}^8\text{)} \end{aligned}$$

となる。



第3図  $\chi^2$  fitした磁気形状因子の理論曲線と実験値

参 考 文 献

- 1) 有馬朗人 : Butsuri 28 ( 1973 ) 654.
- 2) T. Yamazaki *et al.* : Phys. Rev. Lett. 25 ( 1970 ) 547.
- 3) L. Lapika : *Saclay meeting on Electron Scatterig at Intermediate Energy*  
(1975).
- 4) T. Griffy and D. Yu : Phys. Rev. 139 ( 1965 ) B 880.
- 5) G. Li *et al.* : Phys. Lett. 32B ( 1970 ) 317.
- 6) 宮沢弘成 : Butsuri 27 ( 1972 ) 974.
- 7) D. Huberts *et al.* : Phys. Lett. 60B ( 1976 ) 157

I-6  $^{12}\text{C}(\gamma, \pi)$  反応による核構造の研究 (II)

核理研 大橋英雄・中原和夫・庄田勝房

前号に引き続いて $^{12}\text{C}(e, e'\pi^+)^{12}\text{B}$ 反応の実験結果および解析に関する報告を行なう。実験結果をHelm模型および殻模型による理論計算と比較し、理論値の方が実験値の2倍から10倍程度大きいという結論を得た。

## § 1. 解析

第1図に $^{12}\text{C}(e, e'\pi^+)^{12}\text{B}$ 反応により放出された $\pi^+$ のエネルギースペクトルを示す(実験方法などについては前号<sup>1)</sup>参照)。このスペクトルから $(r, \pi^+)$ 反応の断面積を求めるためにはこれらの間の関係式

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE}\right)_{(e, e'\pi^+)} = \sum_i \int \left(\frac{d\sigma_{E_R}^{(i)}}{d\Omega}\right)_{(r, \pi^+)} N_{h\nu}(E_e, k) dk \quad (1)$$

を利用する。ここに $N_{h\nu}(E_e, k)dk$ は入射電子エネルギー $E_e$ に付随するエネルギー幅 $dk$ の間の仮想光子の数である。残留エネルギー $E_R^i$ の準位の $(r, \pi^+)$ 反応の断面積

$(d\sigma_{E_R}^{(i)}/d\Omega)_{(r, \pi^+)}$ は入射光子のエネルギーが200MeVの前後約10MeVの範囲内でほぼ一定であると仮定して積分の外に出すと

$$\sum_i \left(\frac{d\sigma_{E_R}^{(i)}}{d\Omega}\right)_{(r, \pi^+)} \approx \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE}\right)_{(e, e'\pi^+)} / N_{h\nu}(E_e, k) dk \quad (2)$$

となり $(r, \pi^+)$ 反応の断面積が求められる。仮想光子スペクトルには前号<sup>1)</sup>の付録に示した式(A6~A10)を用い、全分解能も考慮に入れた計算をおこなった。

実験結果の解析には以下に述べる2通りの観点からおこなった。

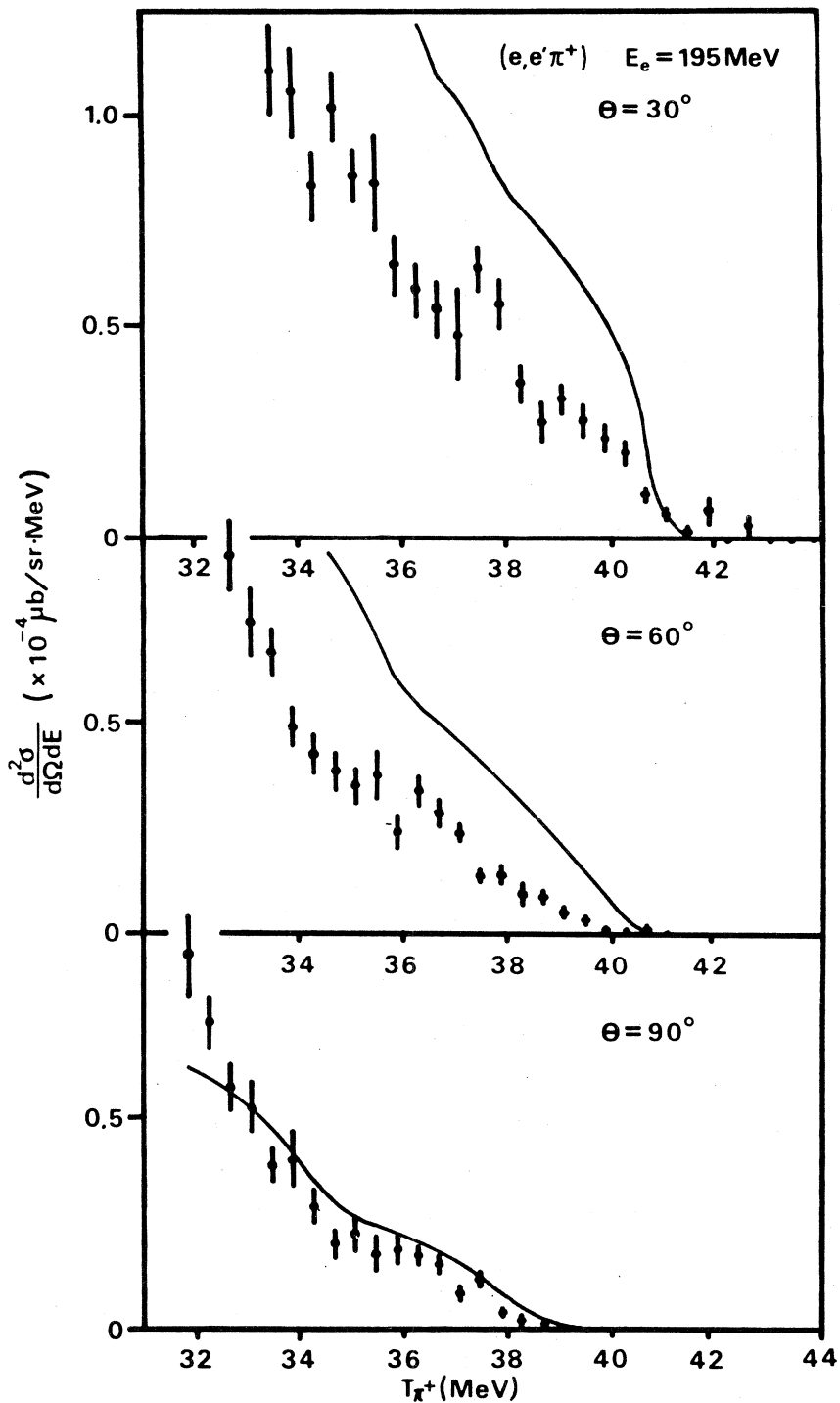
(1) まず、実験値のだいたいの傾向を求めるためにスペクトルの先端から6MeVまでの範囲のデータを用い、6MeV以下のすべての準位からの寄与を考慮に入れた理論値

$(d^2\sigma/d\Omega dE)_{\text{theo}}$  と比べて

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE}\right)_{\text{exp}} = a \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE}\right)_{\text{theo}} \quad (3)$$

となる規格化定数 $a$ を最小二乗法により求めた。こうして求められた $a$ の値は $\theta_M$ ( $\pi^+$ の検出角) =  $30^\circ, 60^\circ, 90^\circ$ においてそれぞれ $0.50 \pm 0.03, 0.38 \pm 0.05, 0.78 \pm 0.05$ であった。第1図に実線で示したものは $(d^2\sigma/d\Omega dE)_{\text{theo}}$ である。

(2) 次にスペクトルの先端から2.7MeVまでの範囲(この範囲には基底状態からの寄与は



第 1 図  $^{12}\text{C}(e,e'\pi^+)^{12}\text{B}$  反応により放出された  $\pi^+$  のエネルギースペクトル。入射電子エネルギーは 195 MeV。図中の実線は Helm 模型による計算値。



理論計算の結果<sup>1)</sup>を考慮して無視した)のデータを用いて、基底状態および第1励起状態の断面積を2つの自由パラメーター $(d\sigma/d\Omega)_1$ ,  $(d\sigma/d\Omega)_2$ として

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE}\right) = \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_1 \int N_{M1}^{E_1}(E_e, k) dk + \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_2 \int N_{E2}^{E_2}(E_e, k) dk \quad (4)$$

によって計算される曲線を実験値に最小二乗法によってあてはめてその大きさを求めた。M1, E2は $^{12}\text{C}$ の基底状態から $^{12}\text{B}$ の基底状態および第1励起状態への転移の多重極度、誤差は標準偏差である。こうして求めた値をHelm模型、殻模型による計算値とともに第1表、第2図に示す。ただしHelmによる計算値は参考文献2をもとに $E_e = 195\text{MeV}$ として計算したものである。殻模型の計算の方は参考文献3の第4, 7図から読みとったもので、この計算は $E_T = 200\text{MeV}$ のものであるため $E_e = 195\text{MeV}$ の値とは多少異なっているはずであるが一応の比較のために示してある。

なお、 $E_R = 4.53\text{MeV}$ の第9励起状態については $\theta_M = 90^\circ$ において、スペクトルの先端より $1.6\text{MeV}$ の範囲であてはめた基底状態の寄与によるスペクトルをバックグラウンドとして差し引くことによって、 $33.1 \leq T_\pi \leq 35.1\text{MeV}$ の範囲からその断面積 $(d\sigma/d\Omega)_{10}$ を求めたものを示してある。

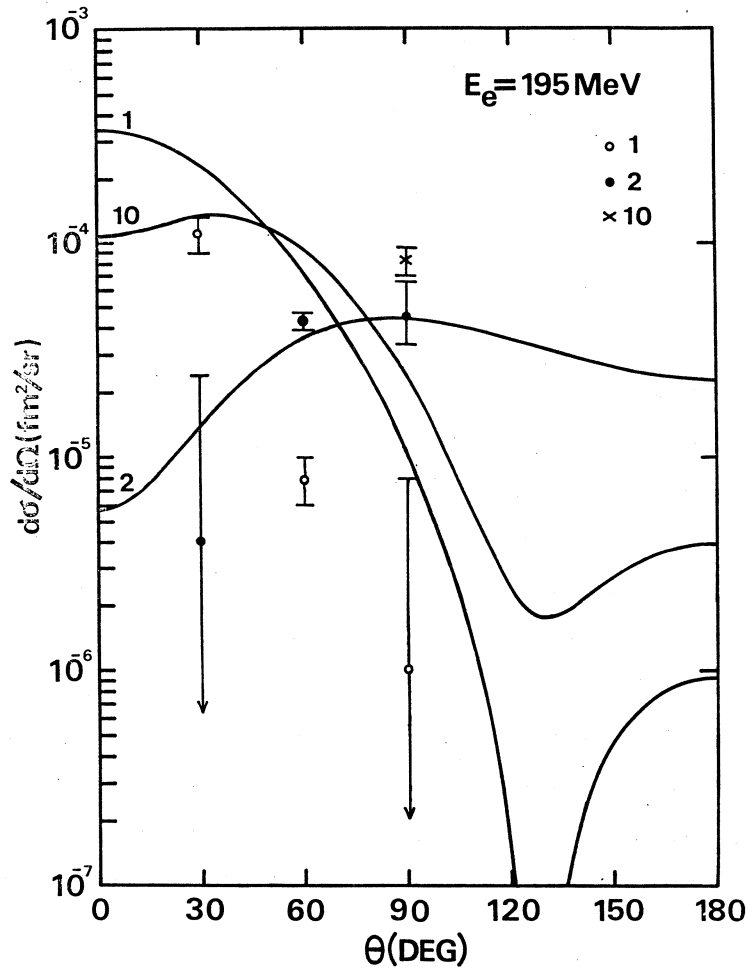
## § 2 . 議 論

第1表、第2図に示したように計算値の方が実験値の2倍から10倍程度大きいという結果が得られたが、この結果と直接に比較できるような実験はまだおこなわれていない。しかし $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{12}\text{N}$ 反応による $^{12}\text{N}$ の $\beta$ 崩壊を測定することによって求められた全断面積<sup>4,5)</sup>の結果と、 $\sigma(\gamma, \pi^-) / \sigma(\gamma, \pi^+) \cong 1$ であることを考えると $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{12}\text{B}$ 反応の全断面積についても理論値の方が大きいという結論が得られる。

また、殻模型による断面積の計算結果は実験値よりも約10倍、Helm模型による計算値よりも約4倍大きい、これは他の過程( $\mu$ 中間子捕獲の捕獲率や $\beta$ 崩壊の $ft$ 値など)についても同様の結果が得られるとの報告<sup>3)</sup>があるため、殻模型の一般的傾向と思われる。

理論計算の結果は誤差を考慮しても実験値と一致しないが、これは $(\gamma, \pi^+)$ 反応の相互作用ハミルトニアンとして相対論的分散式を用いて求められたCGLN振幅<sup>7)</sup>の第一項しか考慮していないこと、さらに放出された $\pi^+$ を平面波で近似していることが主な原因であろう。CGLN振幅のすべての項を考慮し、 $\pi^+$ の波の原子核によるひずみや吸収を考慮に入れた計算をおこなうと、断面積が約30%小さくなるということが報告されている。<sup>2)</sup>

この種の実験により $(e, e' \pi^+)$ 反応のスペクトルからスピン反転型の転移強度を求めること



第2図 断面積のHelm模型による計算値との比較. 実線はHelm模型による計算値で番号は準位の番号を表わしている(前号の第1表参照).

第1表  $\left(\frac{d\sigma_{E_R}^{(i)}}{d\Omega}\right)_{(r, \pi^+)}$  の理論値との比較

Level No. <sup>a)</sup>	$E_R$ in $^{12}\text{B}$ (MeV)	$J^\pi$	$\left(\frac{d\sigma_{E_R}^{(i)}}{d\Omega}\right)_{(r, \pi^+)} (\mu\text{b}/\text{sr})$		
			$\theta = 30^\circ$	$\theta = 60^\circ$	$\theta = 90^\circ$
1	0	$1^+$	$1.1 \pm 0.2$ (2.32) <sup>b)</sup> (8.2) <sup>c)</sup>	$0.08 \pm 0.02$ (0.75) <sup>b)</sup> (3.3) <sup>c)</sup>	$0.01 \pm 0.07$ (0.10) <sup>b)</sup> (1.0) <sup>c)</sup>
2	0.95	$2^+$	$0.04 \pm 0.2$ (0.14) <sup>b)</sup> (0.38) <sup>c)</sup>	$0.43 \pm 0.04$ (0.36) <sup>b)</sup> (1.3) <sup>c)</sup>	$0.45 \pm 0.12$ (0.45) <sup>b)</sup> (2.1) <sup>c)</sup>
10	4.53	$2^-$			$0.83 \pm 0.13$ (0.24) <sup>b)</sup> (1.6) <sup>c)</sup>

a) 文献 2 および前号参照. b) Helm 模型による計算値.  
 c) 殻模型による計算値, 文献 3 の図より読み取った値.

ができる。

今回の実験結果については電子散乱の形状因子の実験値にHelm型曲線をあてはめて求められたパラメーターを用いた計算である程度説明できることがわかった。

まもなく新設されるエネルギー圧縮装置により加速器のビーム強度の増加が期待できるので、他の種々の原子核についても同様の実験をおこなってゆき、 $(\gamma, \pi^+)$  反応に関するシステムティックスを得るために今後も実験を継続してゆく予定である。

### 参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 8 (1975) 256.
- 2) F. Cannata, B. A. Lamers, C. W. Lucas, A. Nagl, H. Überall and C. Werntz :  
Can. J. Phys. 52 (1974) 1405.
- 3) J. B. Seaborn, V. Devanathan and H. Überall : Nucl. Phys. A219 (1974) 461.
- 4) V. D. Epaneshnikov, V. M. Kuznetsov and O. I. Stukov : Sov. J. Nucl. Phys.  
19 (1974) 242.
- 5) A. M. Bernstein, N. Paras, W. Turchinez, B. Chasan and E. C. Booth :  
*Contribution to the VI International Conference on High Energy Physics  
and Nuclear Structure, Santa Fe, New Mexico, 1975, p285.*
- 6) R. M. Littauer and D. Walker : Phys. Rev. 86 (1952) 838.
- 7) G. F. Chew, M. L. Goldberger, F. E. Low and Y. Nambu : Phys. Rev. 106  
(1957) 1345.

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

${}^6\text{Li}(e, e'd){}^4\text{He}$  に関する励起モードは放出dの角度分布の測定結果から、E2が主であることはすべに述べた。<sup>1)</sup> しかし角度分布は90°対称ではなく、後方が前方より大きい。この非対称はE2とE1の干渉の存在を示すので、E1の寄与も考慮しなければならない。一方、我々の実験よりもエネルギー範囲はやや低いがSaskatchewanの結果<sup>2)</sup>は前方が後方より大きく両結果は互に一致しない。

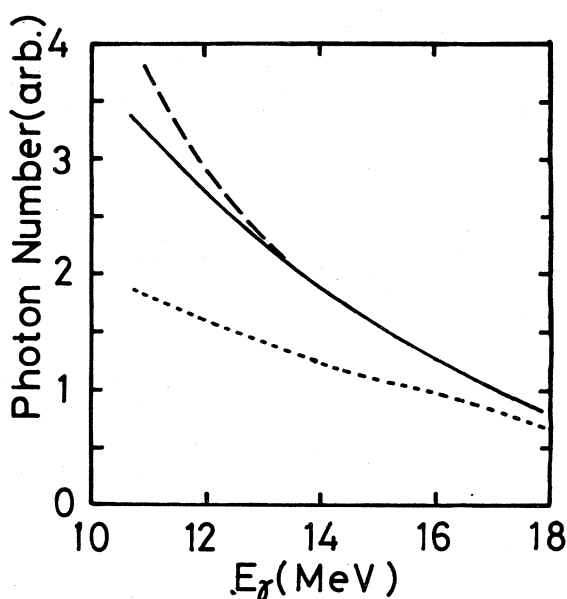
そこで、我々は $E_e = 20\text{MeV}$ の再実験を行ない角分布を確認するとともに、 $E_e = 17, 24\text{MeV}$ の角度分布も測定した。更に電子照射に関する仮想光子スペクトルと制動輻射スペクトルの比較をするために制動輻射による ${}^6\text{Li}(\gamma, d){}^4\text{He}$ を最大エネルギー20MeVで $\theta = 50^\circ, 110^\circ$ において測定した。

ターゲットは99.3%濃縮 ${}^6\text{Li}$ 金属を圧延した厚さ $20\text{mg}/\text{cm}^2$ の板を用いた。

制動輻射は金箔にリニアックからの電子を照射した後掃引電磁石を用いて電子ビームを除去して得た。 $E_e = 20\text{MeV}$ の電子照射による角度分布の結果は以前の結果<sup>1)</sup>を再現した。また、 $E_e = 17, 24\text{MeV}$ の角度分布のパターンは他のエネルギーの場合と同様なパターンを示した。

電子で照射したときのdのスペクトルと制動輻射で照射したときのスペクトル

との比 $r$ から、E2励起による仮想光子スペクトルを求めることができる。第1図の点線は計算による制動輻射スペクトルで、実線は(制動輻射スペクトル $\times r$ )であり、仮想光子スペク



第1図  $E_e = 20\text{MeV}$ におけるE2仮想光子スペクトルの計算<sup>3)</sup>及び実験による結果。点線は制動輻射スペクトルの計算値で、実線はこの値に ${}^6\text{Li}(e, e'd)$ 反応によるdのyieldと ${}^6\text{Li}(\gamma, d)$ 反応によるdのyieldの比をかけて求めた仮想光子スペクトル、破線はE2仮想光子の計算値で、図は計算値が実験による結果とほぼ一致していることを示している

トルを与える。破線は計算<sup>3)</sup>によるE2 photon 数である。これにより我々の計算に用いているE2 仮想光子スペクトルは実験に関するエネルギー範囲内ではほぼ正しいものであることがわかる。

## § 2. クラスタモデルによる計算と考察

${}^6\text{Li}(\gamma, d){}^4\text{He}$  の断面積の計算を Tombrello *et al.*<sup>4)</sup> の計算と類似の方法で行なった。 ${}^6\text{Li}$  を  $\alpha$  と  $d$  のクラスターと考えると  $(\gamma, d)$  反応の逆反応  $(d, \gamma)$  の微分断面積は次の式で与えられる。

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{K}{hV_1(2I_1+1)(2I_2+1)} \Sigma |\langle f, m_f | H_{\text{int}}^p | i, M_i \rangle|^2 \quad (1)$$

ここで、 $K$  および  $P$  はそれぞれ  $\gamma$  の波数と円偏光成分である。 $V_1$  は  $d$  の  $\alpha$  に対する相対速度である。

次に、 $H_{\text{int}}^p$  は Bailey *et al.*<sup>5)</sup> によると

$$\begin{aligned} H_{\text{int}}^p = & \Sigma \left\{ -i \sqrt{\frac{4\pi}{3}} P e K \mu \left( \frac{Z_d}{M_d} - \frac{Z_\alpha}{M_\alpha} \right) D_{MP}^{(1)*}(\phi_\gamma, \theta_\gamma, 0) \theta_{E1}(r) \right. \\ & \cdot Y_1^{M*}(\theta, \phi) - \sqrt{\frac{\pi}{15}} P e K^2 \mu^2 \left( \frac{Z_d}{M_d^2} + \frac{Z_\alpha}{M_\alpha^2} \right) D_{MP}^{(2)*}(\phi_\gamma, \theta_\gamma, 0) \\ & \cdot \theta_{E2}(r) Y_2^{M*}(\theta, \phi) + (-1)^M \frac{e h K}{2 M_d C} D_{MP}^{(1)*}(\phi_\gamma, \theta_\gamma, 0) \theta_{M1} \\ & \left. \cdot \left[ \mu \left( \frac{Z_d}{M_d^2} + \frac{Z_\alpha}{M_\alpha^2} L + \mu_d \sigma_d + \mu_\alpha \sigma_\alpha \right) \chi_1^{-M} \right] \right\} \quad (2) \end{aligned}$$

と表わされ、

$$\begin{aligned} \theta_{E1}(r) &= \frac{3}{\rho^3} [(\rho^2 - 2) \sin \rho + 2 \rho \sin \rho] r \\ \theta_{E2}(r) &= \frac{15}{\rho^5} [(5\rho^2 - 12) \sin \rho + (12 - \rho^2) \rho \cos \rho] r^2 \\ \theta_{M1}(r) &= \frac{1}{2\rho} (\sin \rho + \rho \cos \rho) \\ \rho &= Kr, \quad \mu = \frac{M_d \cdot M_\alpha}{M_d + M_\alpha} \end{aligned} \quad (3)$$

である。始状態と終状態は  $\alpha, d$  によるクラスターモデルに関する  $\alpha(d, r)^6\text{Li}$  反応について考えると

$$|i, M_i\rangle = \left[ \sqrt{4\pi} e^{i\delta_0} \frac{R_0(r)}{kr} Y_0^0 - \sqrt{20\pi} e^{i\sigma_2 - \sigma_0} e^{i\delta_2} \frac{R_2(r)}{kr} Y_2^0 + \sqrt{36\pi} e^{i(\sigma_4 - \sigma_0)} e^{i\delta} \frac{R_4(r)}{kr} Y_4^0 \right] \chi_1^m \quad (4)$$

$$|f, m_i\rangle = \left[ N(1 - e^{-r/R})^3 \frac{e^{-\kappa r}}{r} \right] \left[ (1 - \epsilon^2)^{1/2} y_{01}^{1M} + \epsilon y_{21}^{1M} \right] \quad (5)$$

と表わされる。終状態は  ${}^6\text{Li}$  の基底状態で Noble<sup>6)</sup> の与えた関数を用いた。(5)式の  $\kappa$  の値は  $0.31\text{fm}^{-1}$  であり、 $N$  は次式で与えられる。

$$N^2 = \left[ \int dr e^{-2\kappa r} (1 - e^{-r/R})^6 \right]^{-1} \quad (6)$$

$\epsilon$  は  $D$  波の寄与の割合  $(1 - \epsilon^2)^{1/2}$  は  $S$  波の寄与の割合を示す。

(4)式の  $R_l(r)$  はクーロン関数で

$$R_l(r) = F_l \cos \delta_l + G_l \sin \delta_l \quad (7)$$

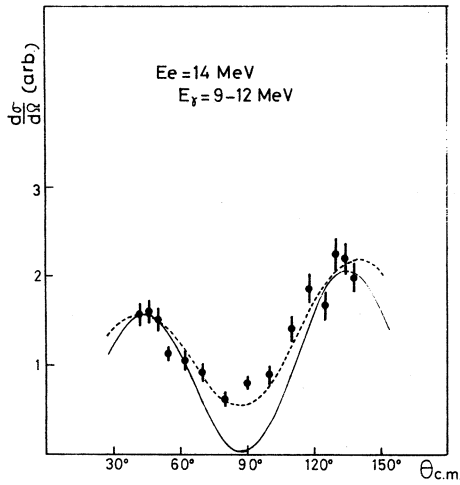
と表わされる。この  $\delta_l$  は nuclear phase shift で、 $d$  の  ${}^4\text{He}$  による弾性散乱<sup>7)</sup> から求められた値を外挿して用いた。詳細釣合の方法で(1)式より  $(\gamma, d)$  反応の式を求めると、次のような形にまとめられる。

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma}{d\Omega} = & \frac{(hc)^2 e^2}{5 \cdot 6^3 \pi (M_p C^2)^{5/2}} \frac{N^2 E_r}{E_d^{3/2}} \\ & \cdot \left\{ \pi \left( \frac{E_r}{E} \right)^2 I_{E_2} + 5 \cdot 3^3 I_{M_1} + 3 \sqrt{\pi} \frac{E_r}{E_d} I_{E_2 - M_1} - \left( \frac{M_p}{M_d} - 2 \frac{M_d}{M_\alpha} \right) \right. \\ & \left. \cdot \sqrt{5} \cdot 8 \pi \left( \frac{E_r}{E_\alpha} \right) \left( \frac{M_p C^2}{E_d} \right)^{1/2} I_{E_2 - E_1} \right\} \quad (8) \end{aligned}$$

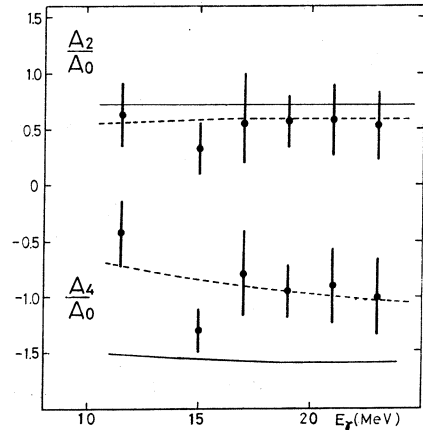
ここで、 $I$  は動径方向の積分の和である。この式の中で大きく寄与すると考えられる項は  $I_{E_2}$  の項であり、 $90^\circ$  非対称に寄与するのは  $I_{E_2 - E_1}$  の項であるから、この2つの項について計算を行なった。

計算結果を第2図に示した。第2図の実線は  $\delta = 0.1$  の計算、点線は  $\delta = 0.3$  の計算である。第3図は角度分布を Legendre 展開したときの係数の比である。実線と点線はそれぞれ  $\delta = 0.1$  と  $0.3$  のときの計算である。





第2図  ${}^6\text{Li}(e, e'd)$  反応の  $d$  の角度分布。黒丸は測定値<sup>1)</sup>。実線および点線はそれぞれ  $\epsilon=0.1$  および  $0.3$  としたときの計算値。



第3図  ${}^6\text{Li}(e, e'd)$  反応の角度分布を  $\Sigma A_i P_i$  の形に展開したときの  $A_2/A_0$  および  $A_4/A_0$  の比。黒丸測定値で、実線および点線はそれぞれ  $\epsilon=0.1$  および  $0.3$  としたときの計算値。

$\delta=0.3$  の場合の計算は実験結果によく合う。しかし他の方法によって得られた値よりもかなり大きいので、更にM1の寄与をも入れた場合をしらべる予定である。

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

### 参 考 文 献

- 1) 種市宏・上野博昭・庄田勝房：核理研研究報告 8 (1975) 67.
- 2) Y. M. Shin : private communication.
- 3) W. C. Barber and T. Wiedling : Nucl. Phys. **18** (1960) 575.
- 4) T. A. Tombrello and P. D. Parker : Phys. Rev. **131** (1963) 2582.
- 5) Baily *et al.* : Nucl. Phys. **A94** (1974) 502.
- 6) J. V. Noble : Phys. Rev. **C9** (1975) 1209.
- 7) W. Gruebler *et al.* : Nucl. Phys. **A242** (1975) 265.

I - 8  $^{25}\text{Mg}$  の光核反応

教養部 宮瀬晴久・坪田博明  
核理研\* 菅原真澄\*・玉江忠明\*

## § 1. はじめに

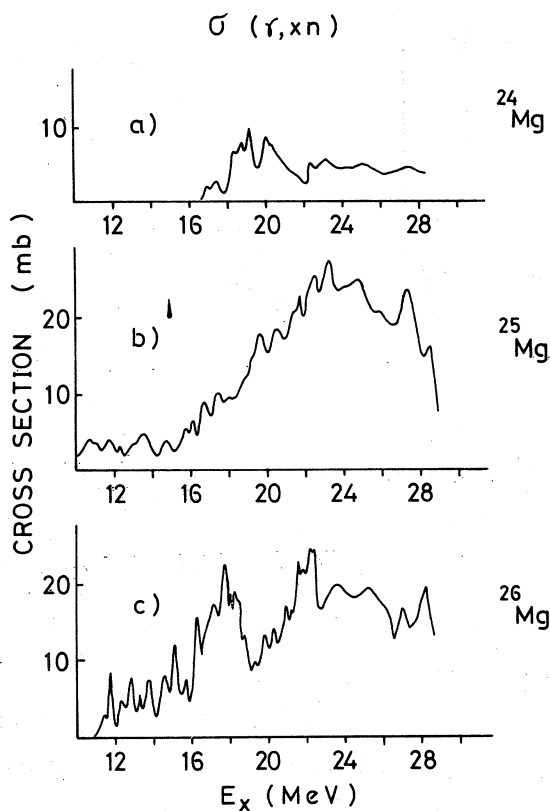
Mgの同位元素についての $(\gamma, n)$ 反応による断面積は, Livermore のLawrence Radiation Lab. のグループに依って単色エネルギーの $\gamma$ 線を用いてすでに測られている<sup>1)</sup>。

第1図にその結果を示す。これによると質量数の変化により,  $(\gamma, n)$ の断面積が非常に変化していることがわかる。 $^{25}\text{Mg}$ についての $(\gamma, p)$ 反応による断面積は2, 3求められているが<sup>2)</sup>, それらの一致はあまり良くない。 $^{25}\text{Mg}$ のアイソスピンは1/2でFallieros等<sup>3)</sup>の理論に依れば, E1巨大共鳴は2つのグループに分かれ, そのエネルギー差は3.6 MeVになる。またこの辺りの核は変形しており, その効果がどの様に断面積に現われるか興味深い。ここ核理研で $^{25}\text{Mg}(\gamma, p)$ 反応の断面積を求めたので, その結果を報告する。

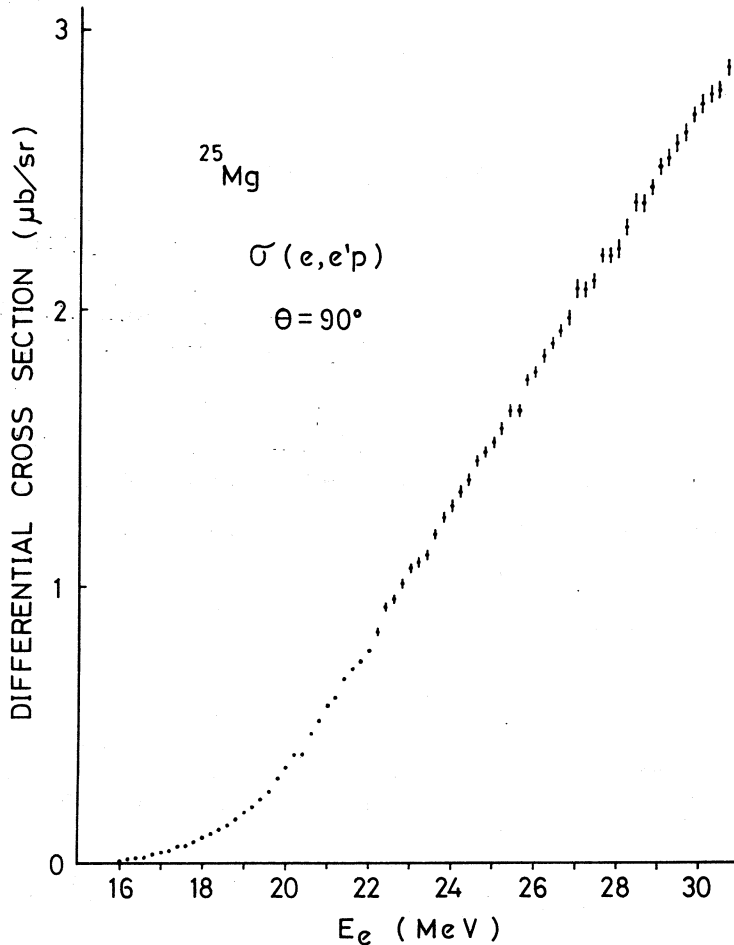
## § 2. 実験および結果

実験には, 99.21%に濃縮した厚さ2.27mg/cm<sup>2</sup>の $^{25}\text{Mg}$ を用いた。入射電子数は標的の前におかれたコア・モニターで測定した。

入射電子エネルギー $E_0$ を16.0 MeVより30.6 MeVまで200keV間隔で変化させ, 各エネルギーに於て90°方向に放出される $E_p = 2.85$  MeV以上の陽子を測定することにより,



第1図 Mgアイソトープに於ける $(\gamma, xn)$ 反応の断面積。

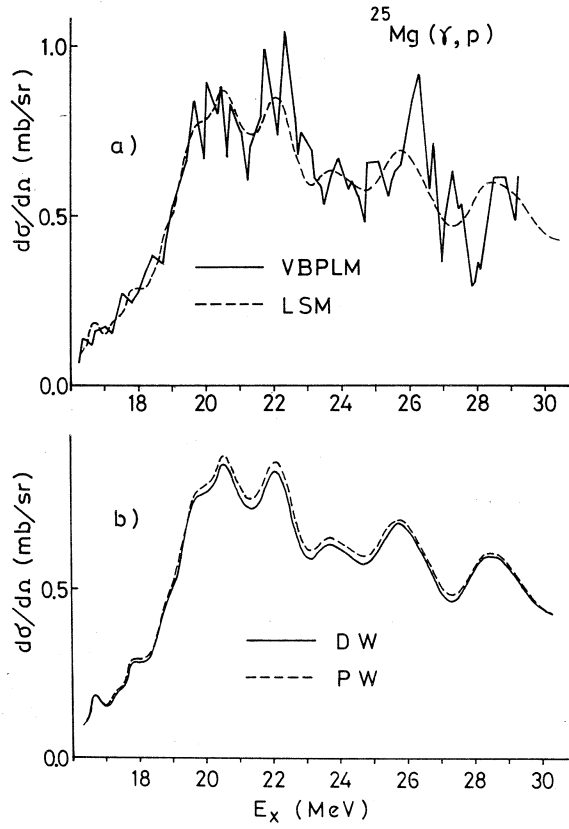


第2図  $^{25}\text{Mg}$  (e, e'p) 反応の微分断面積

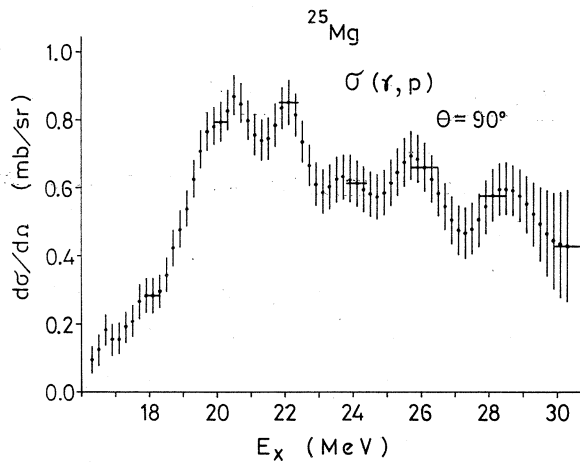
$^{25}\text{Mg}$  の (e, e'p) 微分断面積を求めた (第2図)。誤差は統計的なものだけを含み,  $E_e = 16\text{MeV}$  付近で 10%,  $E_e = 30\text{MeV}$  付近で 1% 程度である。

次にこの (e, e'p) 微分断面積より仮想光子の概念を用いて,  $^{25}\text{Mg}$  の ( $\gamma$ , p) 微分断面積を求めた。第3図a) に variable bin Penfold-Leiss 法<sup>4)</sup> に依る結果 (実線) と Cook の least structure 法<sup>5)</sup> に依る結果 (破線) を併せて示した。結果は良く一致している。次に仮想光子のスペクトルを歪曲波近似によるものと平面波近似に依るものとを第3図b) に示した。これによれば  $^{25}\text{Mg}$  の様に小さな  $Z (= 12)$  に対しては, それ程の差のないことがわかる。こうした考察の下に求めた  $^{25}\text{Mg}$  の  $90^\circ$  に於ける ( $\gamma$ , p) 微分断面積を第4図に示す。

第5図に Livermore のグループ<sup>1)</sup> に依る  $^{25}\text{Mg}$  の ( $\gamma$ , xn) 断面積と今回求めた ( $\gamma$ , p) 断面積を比較した。ただし, 放出される陽子は方向性が無いと仮定し ( $\gamma$ , p) 微分断面積を  $4\pi$  倍して ( $\gamma$ , p) 断面積とした。( $\gamma$ , p) 反応の積分断面積は  $94.4 \pm 12.2 \text{ mb} \cdot \text{MeV}$  で古典的総和則の 25% に当り, ( $\gamma$ , xn) 反応の積分断面積は  $249 \text{ mb} \cdot \text{MeV}$  で 67% であり, 総和で 92% であった。



第3図  $(e, e'p)$  反応微分断面積より  $(\gamma, p)$  反応微分断面積への変換の比較



第4図  $^{25}\text{Mg}$  に於ける  $(\gamma, p)$  反応微分断面積

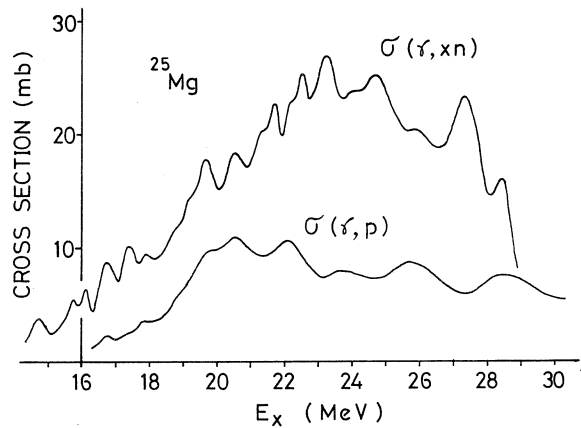
$^{25}\text{Mg}$  の様な ( $Z \neq N$ ) 核では、 $\gamma$ 線のE1 励起によって  $T_>$  ( $=T_< + 1$ ),  $T_<$  ( $=T_0 = \frac{N-Z}{2}$ ) という異なったアイソスピンの状態を励起することが知られている。Fallieros 等<sup>3)</sup> に依ればそのエネルギー差は3.5MeVで、その強さの比は  $|C_>|^2 / |C_<|^2 \sim 2$  である。

第5図からはこの事について直接的には何もいえない。というのは、第6図に示した様な事情によるためである。即ち、 $T_>$  状態よりの基底状態への中性子放出はアイソスピン選択則により禁止され、 $T_<$  状態よりの陽子放出はCoulomb障壁のためにおさえられ、一般に  $T_>$  状態は ( $\gamma, p$ ) 反応に  $T_<$  は ( $\gamma, n$ ) 反応に強く現われるが、 $^{25}\text{Mg}$  の場合、中性子放出が許される状態が  $E_x = 16.8\text{MeV}$  より始まり、( $\gamma, n$ ) 反応に  $T_<$ ,  $T_>$  状態の様子が現われるため、( $\gamma, p$ ) 反応に  $T_>$  状態が、( $\gamma, n$ ) 反応に  $T_<$  状態が強く現われるということは云えない。

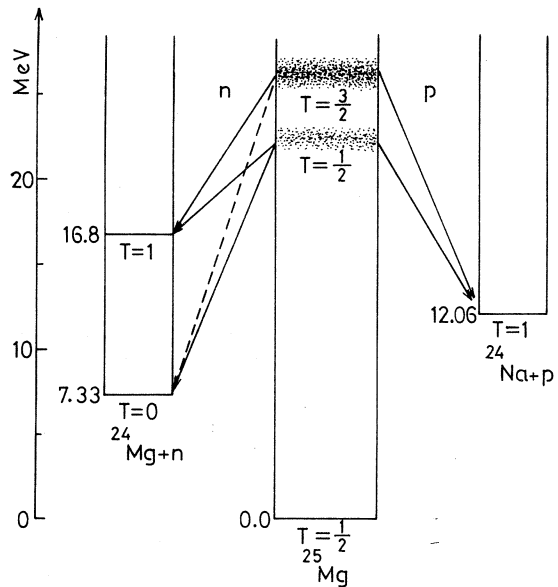
第7図に、( $\gamma, p$ ) 断面積と ( $\gamma, xn$ ) 断面積との和を示した。これによるとE1 吸収の大部分は  $E_x = 20\text{MeV}$

から28MeVに集中しており、しかもその大きさは約30mbと平均化されている。このことはE1 吸収が単に  $T_>$ ,  $T_<$  状態を形成するというだけではなく、他の要因がある様に思われる。

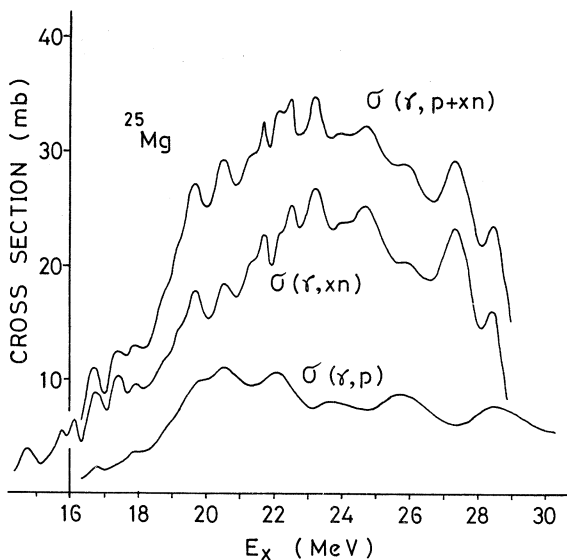
Livermore のグループ<sup>1)</sup> に依れば、 $^{25}\text{Mg}$  の変形によりE1 吸収が2つに分かれ、そのエネルギー差を3.6MeVとしている。即ち、アイソスピンによる効果と変形による効果が重なり合って第7図の様になったと考えられる。



第5図  $^{25}\text{Mg}$  に於ける ( $\gamma, xn$ ), ( $\gamma, p$ ) 反応断面積の比較



第6図  $^{25}\text{Mg}$  に於ける反応機構



第7図  $^{25}\text{Mg}$  に於ける  $(\gamma, xn)$ ,  $(\gamma p)$ ,  $(\gamma, p+ xn)$  反応断面図

### 参 考 文 献

- 1) S. C. Fultz *et al.* : Phys. Rev. C4 (1971) 149; R. A. Alvarez *et al.* : Phys. Rev. C4 (1971) 1673.
- 2) E. Toms *et al.* : Phys. Rev. 82 (1951) 709.  
L. Katz *et al.* : Phys. Rev. 84 (1951) 1115.  
L. Katz *et al.* : Can. J. Phys. 32 (1954) 580.
- 3) R. Ö. Akyüz *et al.* : Phys. Rev. Letters 27 (1971) 1016; S. Fallieros *et al.* : Nucl. Phys. A147 (1970) 593.
- 4) SuSu : Aust. J. Phys. 14 (1961) 174.  
Penfold *et al.* : Phys. Rev. 114 (1959) 1332.
- 5) B. C. Cook : Nucl. Instr. 24 (1963) 256.

## I - 9 Photo-proton Studies on $^{48}\text{Ca}$

M. N. Thompson, K. Shoda,<sup>†</sup> M. Sugawara,<sup>†</sup>  
R. E. Pywell, T. Saito,<sup>†</sup> H. Tsubota,<sup>††</sup> H. Miyase,<sup>††</sup>  
J. Uegaki,<sup>†</sup> T. Tamae,<sup>†</sup> H. Ohashi,<sup>†</sup> and T. Urano,<sup>†</sup>

*School of Physics, University of Melbourne*

<sup>†</sup>*Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University*

<sup>††</sup>*College of General Education, Tohoku University*

### §1. Introduction

As reported earlier<sup>1)</sup> a systematic study of photoproton and photoneutron cross sections for nuclei centered around  $^{48}\text{Ca}$  is being undertaken. The range of nuclei, which includes the even isotopes of Calcium and the even isobars with  $N = 28$ , from  $^{48}\text{Ca}$  to  $^{54}\text{Fe}$ , should allow a study of systematic effects due to both deformation and isospin.

At the present time in the project, few of the photoneutron cross sections are available, so that the procedure outlined in ref. 2, to derive the  $T_{<}$  and  $T_{>}$  components of the giant dipole resonance cannot yet be utilized. This situation will hopefully be changed when collaborative measurements of some relevant photoneutron cross sections will be made at Melbourne University. Subsequently the discussion of the implications of the present data must of necessity be preliminary.

### §2. Experiment

A thin ( $5.07 \text{ mg/cm}^2$ ) isotopically enriched foil of  $^{48}\text{Ca}$  (97%) was irradiated by electrons from the electron linac at this laboratory. The Broad Range Magnetic Spectrometer was used to analyze the photoprotons. Spectra were taken at a series of electron energies from 18.6 MeV to 29 MeV in 200keV intervals. The yield of protons with energies greater than 3.2 MeV was



obtained from each spectrum and a yield curve from the reaction was constructed.

Although  $^{40}\text{Ca}$  is a less than 3% isotopic impurity in the target, protons from the  $^{40}\text{Ca}(r,p)$  reaction cause a 30% contribution in the recorded spectra using the  $^{48}\text{Ca}$  enriched foil target. This is because the  $^{48}\text{Ca}(r,p)$  cross section is about an order of magnitude smaller than that for  $^{40}\text{Ca}$ . This background complicates the data collection since a yield curve using a  $^{40}\text{Ca}$  target must be taken as well, to allow for the large background.

### § 3. Discussion

Three yield curves were taken as described above in October 1975. Analysis using the method of Cook<sup>3)</sup> produced the cross section shown in Fig. 1. This result is surprising since the major strength occurs near 24.5 MeV, nearly 3 MeV higher than for the isotopes of mass 40, 42 and 44 (see ref. 1). However significant strength is still present at 20-21 MeV, although the region around 17 MeV cannot be seen because of the combined effects of the high  $(r, p)$  threshold and the energy threshold

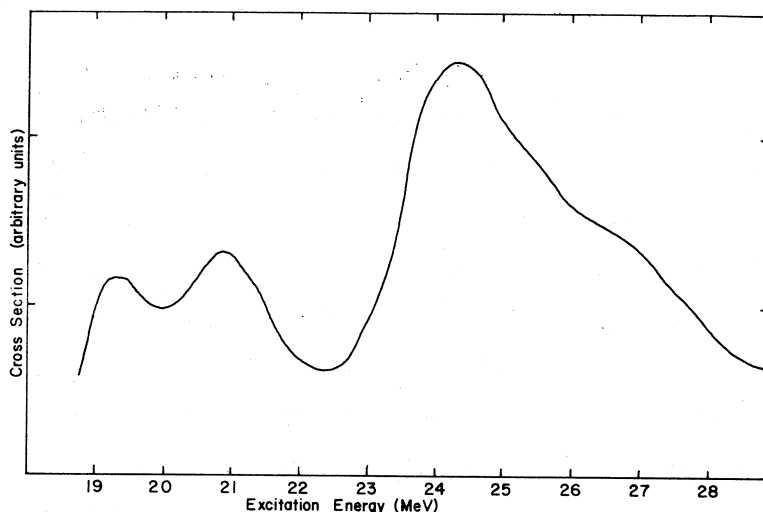


Fig. 1 The  $^{48}\text{Ca}(r,p)$  cross section. (Cook analysis)

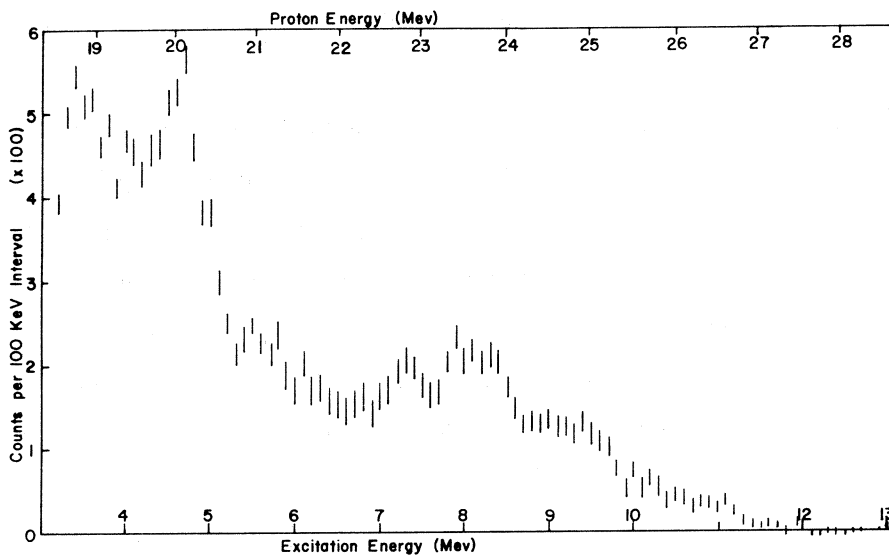


Fig. 2 Spectrum of protons from the reaction  $^{48}\text{Ca}(r,p)^{47}\text{K}$ . The incident electron energy is 27.8 MeV.

inherent in the proton detection method used. (see § 2)

This surprising shape prompted a second series of yield curve measurements in January, analysis of which is not yet complete. The interpretation of the cross section is further confused when reference is made to Fig. 2, which shows the spectrum of photoprotons emitted from  $^{48}\text{Ca}$  when electrons of 27.8 MeV are incident.

In Fig. 2 considerable proton strength is present at proton energies between 7 and 10 MeV. On the assumption of proton emission to the ground state only of  $^{47}\text{K}$ , this would correspond to states in the  $^{48}\text{Ca}$  giant resonance at between 22.5 and 25.5 MeV. This is clearly not a true assumption since the spectrum has its major strength between 3 and 5 MeV (19 to 21 MeV excitation in  $^{48}\text{Ca}$ ), whereas the cross section of Fig. 1 shows little strength in this region. Some degree of consistency is brought about if it is assumed that the states producing the resonance at about 24.5 MeV in the cross section, decay predominantly to

an excited state in  $^{47}\text{K}$  at about 3.5 MeV. Since there is no information concerning states in  $^{47}\text{K}$  above the first excited state at 295 keV, we can check this postulate only by experiment.

In January, in addition to measuring three further yield curves for the  $^{48}\text{Ca}(r,p)^{47}\text{K}$  reaction, spectra with good statistics were taken at 400 keV intervals between 19 and 27 MeV. These were designed to allow the  $^{48}\text{Ca}(r,p_0)^{47}\text{K}$  cross section to be deduced. Although this analysis is not yet complete, it is already clear from the spectra that protons with energies between 4 and 5 MeV are largely due to decays from the GDR to excited residuals in  $^{47}\text{K}$ . Final conclusions cannot be made at this stage, but the outcome of these measurements seems likely to be quite exciting.

These high resolution spectra also revealed that the  $^{48}\text{Ca}(r,\alpha)^{44}\text{A}$  cross section is significant, and it is very likely

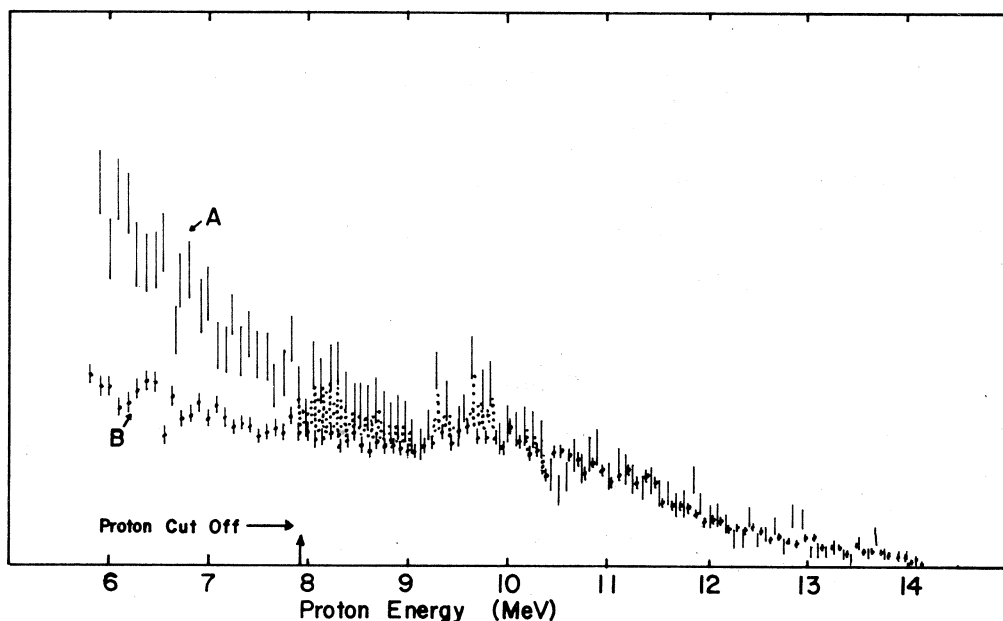


Fig. 3 Proton spectra with 23.4 MeV electrons incident.  
 Curve A: Enriched  $^{48}\text{Ca}$  target  
 Curve B: Natural calcium target.  
 The shaded area indicates  $\alpha$ -particles from the  $^{48}\text{Ca}(r,\alpha)^{44}\text{A}$  reaction.

that a cross section for this reaction will be able to be produced. Figure 3 shows these  $\alpha$ -particles in the spectrum taken with electrons of 23.4 MeV. The spectra from the  $^{48}\text{Ca}$  target and the natural Calcium target are normalized so that protons above 7.9 MeV should be due to  $^{40}\text{Ca}$  only. It is clear that for 2 or 3 MeV above this energy the curves do not agree, although at higher energies the normalization is quite good.

The shaded area indicates the contribution due to  $\alpha$ -particles. From the many such spectra taken it should be possible to deduce the  $^{48}\text{Ca}(\gamma, \alpha)^{44}\text{A}$  cross section. Already, from the cut-off energy of the  $\alpha$ -particles a threshold for the reaction of 12.9 MeV has been estimated. This is the only measurement of this threshold, and consequently the first accurate estimate of the mass of  $^{44}\text{A}$  is now possible.

#### § 4. Conclusions

At this stage, because of the missing photoneutron data, final conclusions from this data and that of ref. 1 cannot be made. However even at this preliminary stage entirely new information on the photoproton and photoalpha reactions in  $^{48}\text{Ca}$  are available.

#### References

- 1) M. N. Thompson *et al.*: Kakuriken Research Report 8 (1975) 266.
- 2) S. Oikawa: Ph. D. thesis, Tohoku University, 1974.
- 3) B. C. Cook: Nucl. Instr. 24 (1963) 256.

# I-10 (e, e'p)反応における $^{139}\text{La}$ , $^{141}\text{Pr}$ の $f_{7/2}\text{IAR}$

核理研 上柿順一・庄田勝房

## § 1. 序

$^{139}\text{La}$  および  $^{141}\text{Pr}$  の  $f_{7/2}\text{IAR}$  に関する (e, e'p) 反応実験の中間報告は、これまでの核理研研究報告<sup>1-4)</sup>で行なってきた。その後、さらに実験を行い、測定値および解析方法に関して改良を加えた。その結果を報告する。ここに記載する測定値とその解析結果の報告は、以前の報告と重複する部分や、以前の結果と一致しないものがあるが、今回の報告が最終的な実験結果のまとめである。

## § 2. 実験

核理研 300 MeV リニアックで得られる電子ビームをエネルギー分析して単色 ( $4p/p \approx 0.015$ ) にした後、I 系ストレートの散乱槽に導いてターゲットに照射し、(e, e'p) 反応の実験を行なった。実験は  $^{139}\text{La}$  および  $^{141}\text{Pr}$  の各々のターゲットについて行なった。ターゲットには、天然 La (化学純度 99.5%,  $^{139}\text{La}$  アイソトープ純度 99.9%) および天然 Pr (化学純度 99.9%,  $^{141}\text{Pr}$  アイソトープ純度 100%) のセルフサポート金属箔を用いた。目的に応じて、いずれも厚さが 8.4 ~ 14.6 mg/cm<sup>2</sup> のターゲットを使用した。以下の測定結果では、その厚さの違いにより生ずる影響はすべて補正してある。

(e, e'p) 反応により、入射電子ビーム方向に対して  $\theta = 125.3^\circ$  方向にターゲットから放出される陽子を、広帯域分析電磁石でエネルギー分析し、電磁石の焦点面上に並べた 100 個の SSD により観測、計数して、(e, e'p) 反応陽子スペクトルを得た。

また入射電子エネルギー  $E_e$  を 100 keV 間隔で変えて測定した各々の (e, e'p) 反応陽子スペクトルを、陽子エネルギー  $E \geq 5.0$  MeV の範囲で  $E$  について積分して、 $\theta = 125.3^\circ$  における (e, e'p) 反応微分断面積を得た。

## § 3. 実験結果と議論

実験で得られた (e, e'p) 反応陽子スペクトルと微分断面積を、 $^{139}\text{La}$  および  $^{141}\text{Pr}$  について、第 1 図 ~ 第 4 図に示す。ここに示す陽子スペクトルと微分断面積の測定値は、各々独立した実験により得られたものである。

$^{141}\text{Pr}$  については、 $E_e = 16.3$  MeV と  $E_e = 15.5$  MeV のスペクトル中、 $E = 9.5$  MeV の位置に強いピークが見られる。各々のスペクトルの高エネルギー端 1.6 MeV の範囲は、基底残留状態への崩壊に対応する  $P_0$  のみから成り、このピークはその範囲にあることから、これ

は $^{141}\text{Pr}$ の $14.8 \pm 0.1 \text{ MeV}$ の励起状態にレゾナンスが生じることを示している<sup>3)</sup>。このエネルギーが、 $^{140}\text{Ce}(p, \gamma)$ や、 $^{140}\text{Ce}(p, p)$ 等の実験<sup>5-6)</sup>で観測されている $f_{7/2}$ 基底IASの励起エネルギーと誤差の範囲で一致することから、このレゾナンスは $f_{7/2}$ IASを中間状態とする反応に対応すると考えられる。このレゾナンス強度は

$$\frac{d}{dQ} \int \sigma_{(\gamma, p_0)}^{\text{IAR}} dE = 3.5 \pm 0.7 \mu\text{b} \cdot \text{MeV}/\text{sr}$$

で、この逆反応過程である $^{140}\text{Ce}(p, \gamma_0)$ の実験結果<sup>5)</sup>とも一致する<sup>3)</sup> ( $^{141}\text{Pr}(\gamma, p_0)$ 断面積に関しては参考文献5参照。)

$^{139}\text{La}$ については $(e, e'p)$ 反応陽子スペクトル中に幅の狭いピークは判別できない。

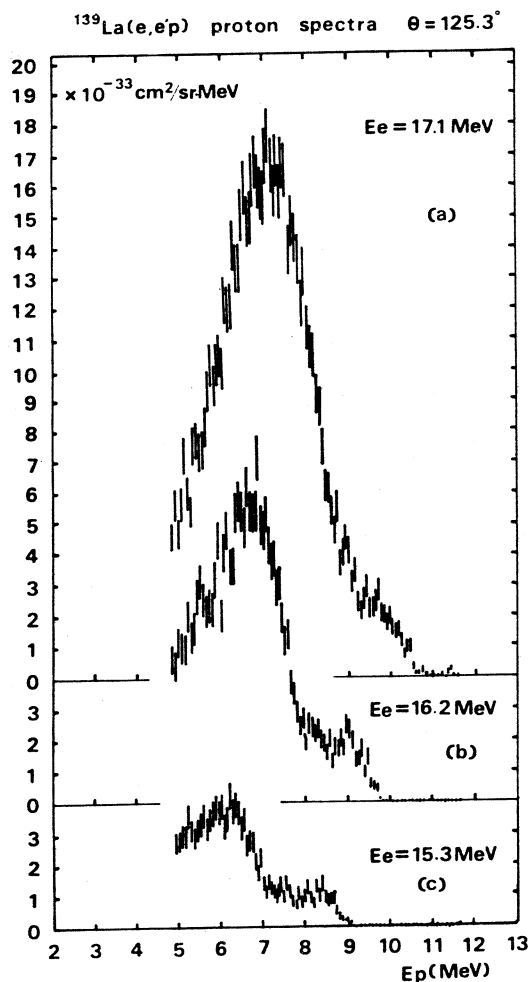
$^{139}\text{La}(e, e'p)$ 反応微分断面積には、 $16.2 \text{ MeV}$ の位置に幅の狭いレゾナンスに対応する変曲点が見られる。レゾナンス以外の連続状態を經由する断面積が大

きいために、この変曲点は十分に目立たないが、第5図(a)に示すように、オフ・レゾナンス領域でほぼ断面積の値に一致する曲線を考え、その直線と断面積との差を図示すると第5図(b)に示す結果が得られることから、レゾナンスの存在は明確である。このレゾナンスのエネルギーが、陽子散乱<sup>7)</sup>で確認されている $f_{7/2}$ IARに対応すると考えられる。

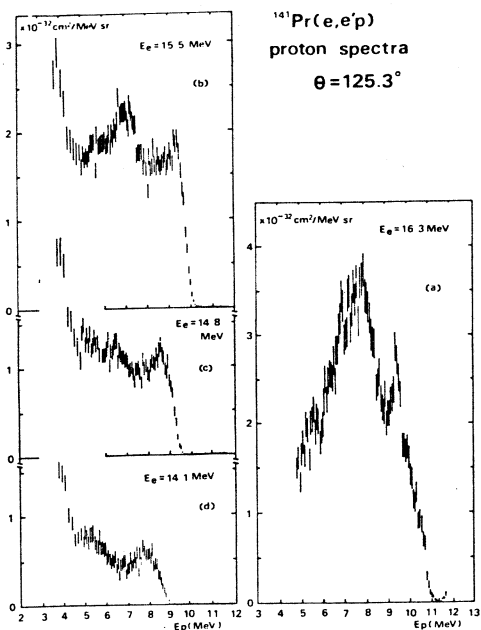
オフ・レゾナンス領域の断面積を、さらに高次の近似曲線でフィットし、レゾナンスの断面積を

$$\frac{d}{dQ} \sigma_{(e, e'p)}(E_e) = AE_e^2 + BE_e + C + D \int \frac{(\frac{\Gamma}{2})^2}{(E - E_R)^2 + (\frac{\Gamma}{2})^2} N(E_e, E) dE \quad (1)$$

で近似し、最小自乗法を用いてフィットして、パラメーターA, B, C, Dの最適値を求めた。ここで $E_R, \Gamma, N(E_e, E)$ は、それぞれレゾナンス・エネルギー、レゾナンスの幅、エネル



第1図  $^{139}\text{La}(e, e'p)$ 反応陽子スペクトル

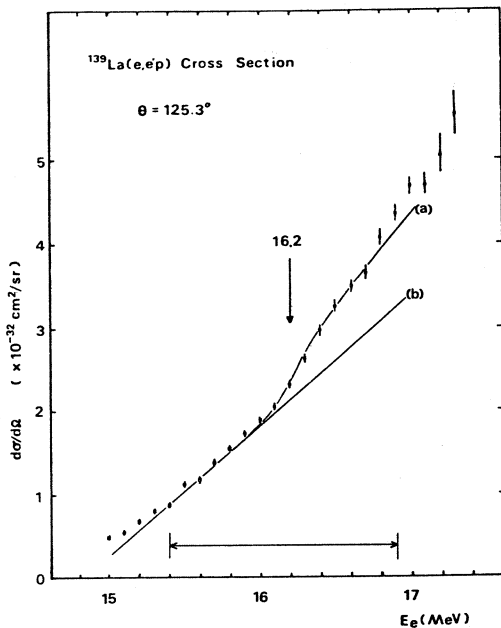


第2図  $^{141}\text{Pr}(e, e'p)$  反応陽子スペクトル

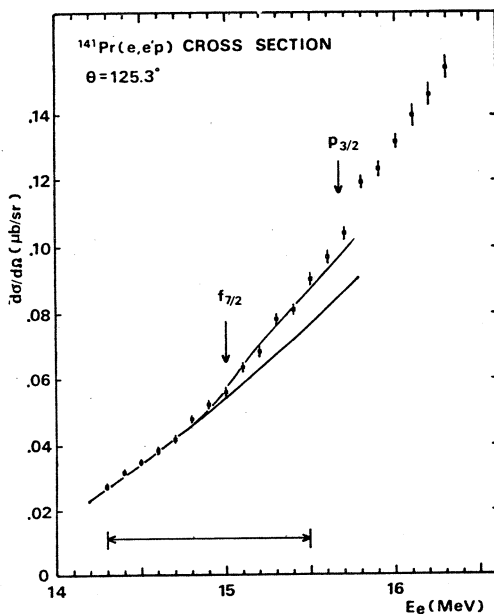
ギー  $E_e$  の電子に対応する仮想光子スペクトルを表わす。仮想光子スペクトルは、Wolynec 達<sup>8)</sup>による近似式に、入射電子のエネルギー精度を考慮したものを用いた。 $E_R = 16.2 \text{ MeV}$ ,  $\Gamma = 0.07 \text{ MeV}$ <sup>9)</sup>としてフィットした結果を第3図に示す。フィットに用いた測定点の範囲は  $15.4 \text{ MeV} \leq E_e \leq 16.9 \text{ MeV}$  である。レゾナンス強度は得られたパラメーターの値から知ることができる。

$$\frac{d}{d\Omega} \int \sigma_{(7,p)}^R dE = \frac{\pi}{2} \Gamma \cdot D \quad (2)$$

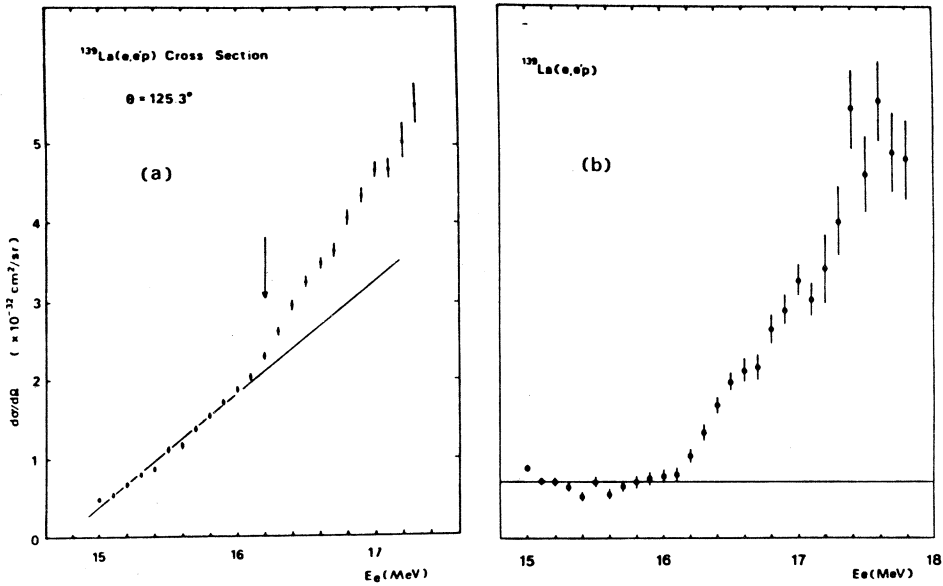
$^{141}\text{Pr}(e, e'p)$  反応の微分断面積中には、 $^{141}\text{Pr}(e, e'p)$  反応陽子スペクトルで確認された  $f_{7/2}$  IAR が、 $^{139}\text{La}$  の場合よりもさらに判別し難いが、これは  $^{139}\text{La}$  に比べて  $^{141}\text{Pr}$  の連続状態の断面積が約2倍程



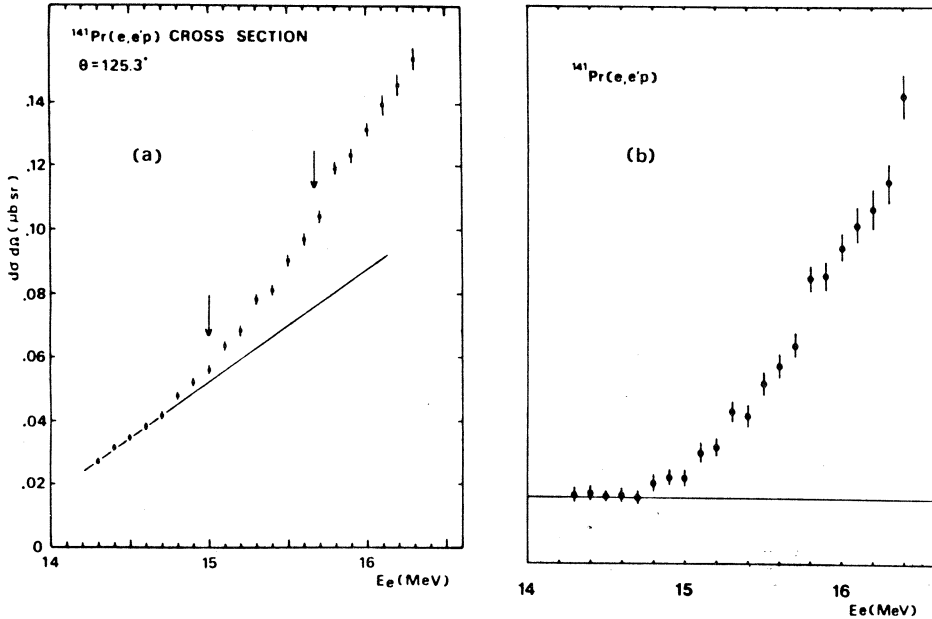
第3図  $^{139}\text{La}(e, e'p)$  反応微分断面積。(a)は(1)式による最小自乗法最適曲線。(b)は  $D=0$  としたものの。



第4図  $^{141}\text{Pr}(e, e'p)$  反応微分断面積。(a)は(1)式による最小自乗法最適曲線。(b)は  $D=0$  としたものの。



第5図  $^{139}\text{La } f_{7/2}$  基底 IAR。(a) 図中の直線と断面積との差を図示すると (b) になる。



第6図  $^{141}\text{Pr } f_{7/2}$  基底 IAR。(a) 図中の直線と断面積との差を図示すると (b) になる。

度大きいことによる。 $^{139}\text{La}$  の場合と同様、 $^{141}\text{Pr}$  についてもオフ・レゾナンス領域の  $(e, e'p)$  反応微分断面積を直線で近似し、その直線と測定点との差を図示すると第6図が得られる。約 15.0 MeV に変曲点があることが知られる。 $^{141}\text{Pr } (e, e'p)$  反応微分断面積についても、(1) 式でフィットして、レゾナンス強度を求めた。フィットに用いた測定点の範囲を  $14.3 \text{ MeV} \leq E_e \leq 15.5 \text{ MeV}$ ,  $E_R = 15.0 \text{ MeV}$ ,  $\rho = 0.07 \text{ MeV}^{-5}$  とした場合に得られた曲線を第4図に



に示す。

得られたレゾナンス強度に干渉の補正<sup>10)</sup>をすれば、 $f_{7/2}$  IAR の強度  $\frac{d}{d\Omega} \int \sigma_{(\gamma,p)}^{IAR} dE$  が知られる。第1表に (e, e'p) 反応陽子スペクトルから得られた  $\int \sigma_{(\gamma,p)}^{IAR} dE$  と、(e, e'p) 反応微分断面から得られた  $\int \sigma_{(\gamma,p)}^{IAR} dE$  を示す。立体角積分は、 $\theta = 125.3^\circ$  の微分断面積を4π倍して得た<sup>11)</sup> これらが  $f_{7/2}$  IAS を中間状態として経由する断面積であるならば、その比は  $f_{7/2}$  IAS の分岐比と等しい。

$$\int \sigma_{(\gamma,p_0)}^{IAR} dE / \int \sigma_{(\gamma,p)}^{IAR} dE = \Gamma_{p_0} / \Gamma_p \quad (3)$$

また IAS は複合核状態であり<sup>12)</sup>、それが形成される過程の違いに関係せず、同じ分岐比を持つと考えられているから、この実験で得られた結果を、陽子散乱実験で得られている結果と比較することができる。陽子散乱実験<sup>6-9)</sup>によると<sup>139</sup>La および<sup>141</sup>Pr の基底 IAS のどちらについても  $\Gamma_{p_0} / \Gamma_p \approx \frac{1}{2}$  であり、第1表に得られた結果と一致しない。

第1表 (γ, p<sub>0</sub>) と (γ, p) における  $f_{7/2}$  IAR の強度、及び  $f_{7/2}$  IAR を経由して放出される陽子群1と陽子群2の割合。

	$\int \sigma_{(\gamma,p_0)}^{IAR} dE$ (μb MeV)	$\int \sigma_{(\gamma,p)}^{IAR} dE$ (μb MeV)	陽子群 1 (%)	陽子群 2 (%)
<sup>141</sup> Pr	44 ± 9	240 ± 30	40 ± 10	60 ± 10
<sup>139</sup> La	< 5	260 ± 30	95 ± 5	5 ± 5

この矛盾の原因は、フォトン・ディファレンス法により (e, e'p) 反応陽子スペクトルを解析した結果、理解された。第7図(a), (b)は、第1図に示された<sup>141</sup>Pr (e, e'p) 反応陽子スペクトルを、適当な割合で差し引くことにより得られるスペクトルで、各々(a'), (b') 図に示すスペクトルを持つ仮想光子による (γ, p) 反応に対応する<sup>3)</sup><sup>141</sup>Pr のこの領域の連続状態は、<sup>140</sup>Ce の基底状態へ非常に強く崩壊することが知られる。(a') と (b') の仮想光子スペクトルは、光子エネルギーが全体に700keVずれている点が異なるが、形は近似的に等しい。そこで<sup>141</sup>Pr の14 ~ 15 MeV 領域の連続励起状態が約700keVの範囲で同一構造を持つと近似するならば、(a)のスペクトル中に含まれる、連続状態からの放出陽子は、(b)のスペクトルが700keV高エネルギー側にずれたスペクトルを持つと近似できる。この近似により、レゾナンスを経由する放出陽子を分離すると<sup>3)</sup>結果は(a')に示された連続エネルギー分布を持つ仮想光子により励起され、 $f_{7/2}$  IAR を経由して各残留状態Xへ崩壊する際に放出される、陽子 p<sub>x</sub> のスペクトルである。すなわち、

$$Y(E_p) = \sum_x \frac{d}{d\Omega} \sigma_{(\gamma,p_x)}^{IAR} (E'_p + E_x + S_p) N^*(E'_p + E_x + S_p) \quad (4)$$

$$E'_p = E_p \cdot \frac{A}{A-1}$$

が得られる。ここで  $\frac{d}{dQ} \sigma_{(\gamma, p_x)}^{IAR}(E)$  は IAR を經由して残留状態 X へ崩壊する断面積,  $E_x$ ,  $S_p$  は各々残留状態 X の励起エネルギー, 陽子放出のしきい値, また  $N^*(h\nu)$  は (a') 図に示された仮想光子スペクトルを表わす。A は標的核の質量数で,  $E'_p$  は残留核の反跳エネルギーを含めた陽子エネルギーを表わす。IAR の幅約 70 keV 範囲では,  $N^*(h\nu)$  の値を一定値  $N^*(E^{IAR})$  で近似しても結果に重大な影響をあたえることはないと考えれば, IAS を經由するスペクトルを

$$\frac{Y(E_p)}{N^*(E^{IAR})} = \sum_x \frac{d}{dQ} \sigma_{(\gamma, p_x)}^{IAR}(E'_p + E_x + S_p) \quad (5)$$

の形で得ることができる。その結果を (c) に示す。これは  $f_{7/2}$  IAR を經由して  $^{140}\text{Ce}$  の残留状態 X へ崩壊する  $^{141}\text{Pr}(\gamma, p_x)$  反応の微分断面積を, 各残留状態について残留エネルギーの値だけずらして加え合わせたものである。

(d) 図に陽子散乱実験<sup>6)</sup>で知られている微分断面積の値を用いて計算した

$$\sum_x \frac{d}{dQ} \sigma_{(p, p_x)}^{IAR}(E'_p + E_x + S_p) \quad (6)$$

を図示したものである。個別つり合いの原理から,

$$\sigma_{(\gamma, p_x)}^{IAR} = k \cdot \frac{\Gamma_{70}}{\Gamma_{p_0}} \sigma_{(p, p_x)} \quad (7)$$

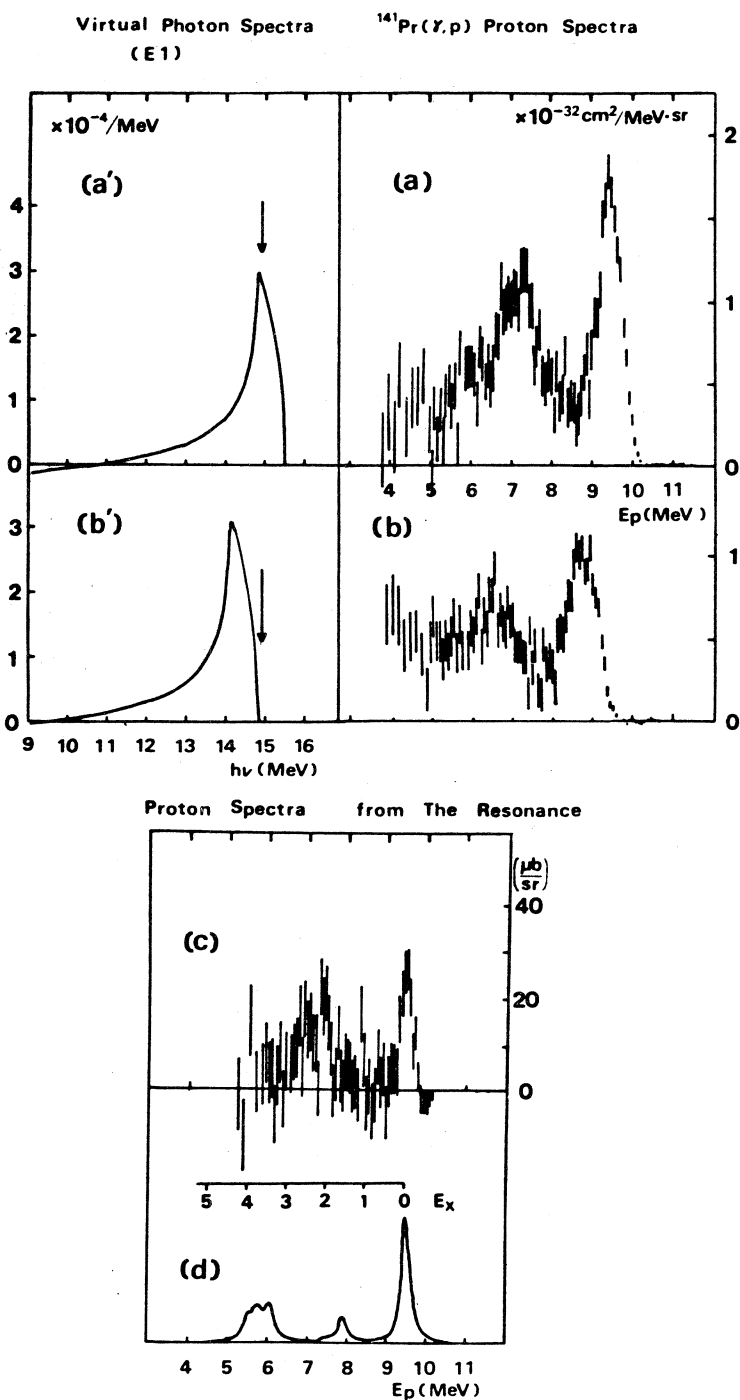
なる関係が知られるから, (6) は (5) と直接比較できる量である。ここで  $k$  は標的核, 残留状態, IAS のスピンとエネルギーにより定まる定数で,  $\Gamma_{70}$ ,  $\Gamma_{p_0}$  は IAS の部分幅である。(d) 図は (c) と  $p_0$  で規格化し, レゾナンスの形はブライト・ウィグナー形を用い, (e, e'p) 反応の実験精度に合わせて幅を広くしてある。この場合, (e, e'p) 反応から得られた (c) 図は IAR と連続状態との干渉による成分を含んでいるので, 厳密には (5) そのものではない。しかし干渉の成分は残留状態の異なる各々の反応過程に対して各々の寄与をするため, これを正確に補正することは非常に困難である。一般に干渉は小さく, 補正項と考えられるので, ここでは干渉の補正をしない (c) 図と陽子散乱から得られる (d) 図を  $p_0$  で規格化して比較を行った。

その結果, 両者には大きな違いが認められる。まず (d) 図では  $p_0$  の他, 第 1 励起状態 ( $2^+$ ;  $E_x = 1.6 \text{ MeV}$ ) と  $E_x = 3.2 \sim 4.2 \text{ MeV}$  の中性子 1 粒子 1 空孔残留状態へ崩壊するグループより成るが, (e, e'p) 反応からの結果には, (d) 図に見られない  $E_x = 1.5 \sim 3.2 \text{ MeV}$  のグループが見られる。

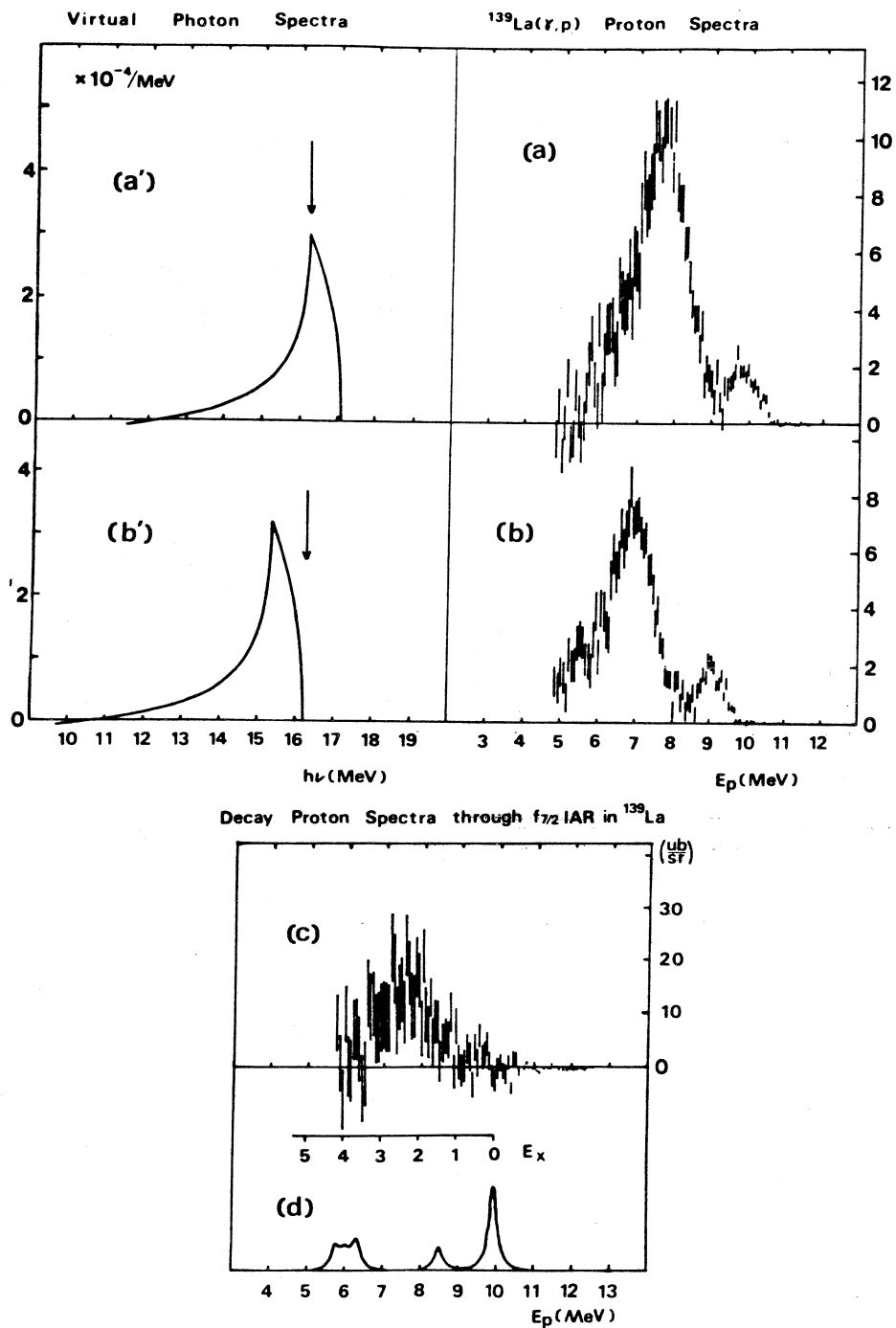
この解析には, 14 ~ 15 MeV の連続励起状態が約 700 keV の間隔で同じ崩壊様式を持つ

と近似したが、これはこの領域が  $T_{<}GDR$  領域で状態の急激な変化はないと考えられることによる。なお、 $(\gamma, n)$  反応の実験<sup>13)</sup>から、 $^{141}\text{Pr}$  の  $T_{<}GDR$  のエネルギーは 15.1 MeV、幅は 4.3 MeVと知られている。

$^{139}\text{La}$  についても同様の解析を行なった結果を第8図に示す。(a)、(b)の陽子スペクトルは各々(a'),(b')のスペクトルを持つ仮想光子に対応するものである。レゾナンス・エネルギーが 16.2 MeV であるから、(a)はオン・レゾナンス、(b)はオフ・レゾナンスのスペクトルである。(b)の陽子スペクトルの形と(b')の仮想光子スペクトルの形の比較から、この領域の連続状態は、エネルギー約 2.3 MeV のかなり狭い範囲(幅数百 keV)の残留状態へ崩壊することがわかる。



第7図 フォト・ディファレンス法による  $(e, e'p)$  反応陽子スペクトルの解析結果。本文参照。



第8図 フォト・ディファレンス法による  $(e, e'p)$  反応陽子スペクトルの解析結果。本文参照。

この場合、(a')と(b')の仮想光子スペクトルの光子エネルギーの差は900 keVである。  
<sup>139</sup>Laに関する(5)の結果は(c)に示す。これに対応する陽子散乱実験<sup>9)</sup>の結果は(d)図示する。実際は(c)の中のp<sub>0</sub>のグループが近似的にゼロであるので、(c)と(d)をp<sub>0</sub>で規格化すると(d)はほとんどゼロになり、両者は一致しない。ここに示す(d)図は両者の残留状態のエネルギー分布の比較が可能のように、任意に拡大して図示したものである。エネルギー分布についても一致しないことがわかる。<sup>139</sup>Laにおいても、(e, e'p)反応で見られる、陽子散乱の結果と一致しないグループに対応する残留状態は、E<sub>x</sub>=1.5 ~ 3.2 MeV であり、<sup>141</sup>Prの場合とほぼ一致する。

この様に、陽子スペクトルの解析から、(e, e'p)反応においては、<sup>141</sup>Pr, <sup>139</sup>La の各々のf<sub>7/2</sub> IARの崩壊陽子スペクトルは、陽子散乱実験で知られるf<sub>7/2</sub> IASの崩壊様式と一致するグループと、一致しないグループとから成ることがわかった。以下では記述の容易さの為に、前者を陽子群1、後者を陽子群2と呼ぶ。<sup>141</sup>Prでは、陽子群1と陽子群2がほぼ同程度の強さを持ち、<sup>139</sup>Laでは、レゾナンスのほとんどが陽子群2から成り、陽子群1は分離できない程度にわずかである。(e, e'p)反応微分断面積から得られたレゾナンス強度が各々のIASの分岐比と矛盾する原因は、陽子群2の存在による。

陽子群2がf<sub>7/2</sub> IARを経由して放出されることを確認するためには、陽子群2に対応する残留状態に着目して、それらの残留状態Xへ崩壊する(γ, p<sub>x</sub>)反応の断面積を測定し、f<sub>7/2</sub> IARの位置に幅の狭いレゾナンスがあることを確認すればよい。実際には単色のγ線を入射粒子に用いることができないので、アイソクロマート<sup>4)</sup>から、これと類似のものを計算することを考える。E<sub>p1</sub> ≤ E<sub>p</sub> ≤ E<sub>p2</sub>の範囲のエネルギーEを持つ陽子で構成されるアイソクロマート(E<sub>e</sub>, E<sub>p1</sub>, E<sub>p2</sub>)は、

$$I(E_e, E_{p1}, E_{p2}) = \Sigma \int_{E_{p1}' + S + E_x}^{E_{p2}' + S + E_x} \sigma(\gamma, p_x)(E) N(E_e, E) dE \quad (8)$$

$$E_{p1}' = E_{p1} \cdot \frac{A}{A-1}, \quad E_{p2}' = E_{p2} \cdot \frac{A}{A-1}$$

と表わされる。ここでσ<sub>(γ, p<sub>x</sub>)</sub>(E)を、レゾナンス部分σ<sup>R</sup><sub>(γ, p<sub>x</sub>)</sub>(E)と連続状態部分σ<sup>C</sup><sub>(γ, p<sub>x</sub>)</sub>(E)とに分けて考える。

$$\sigma_{(\gamma, p_x)}(E) = \sigma_{(\gamma, p_x)}^C(E) + \sigma_{(\gamma, p_x)}^R(E) \quad (9)$$

これらの断面積は、特徴的な違いを持っている。すなわち、σ<sup>R</sup><sub>(γ, p<sub>x</sub>)</sub>(E)は幅の狭い限られた範囲の励起状態のみで寄与が大きいものに対して、σ<sup>C</sup><sub>(γ, p<sub>x</sub>)</sub>(E)の寄与は励起エネルギーの広い範囲においてほぼ一定である。そのため、陽子エネルギー範囲の変化に伴うアイソクロマートの変化を解析する方法では、レゾナンスに関しては多くの残留状態に関する反応を同時に取り扱うことができるが、連続状態に関してはそれが困難である。そこで簡単の為に、連続状態を経

由する反応に対応する残留状態は幅の十分狭い1本の準位のみであると仮定し、レゾナンスを經由する反応については多くの残留状態を同時に扱う。この時(8)は、

$$I(E_e, E_p1, E_p2) = \int_{E_p1' + S_p + E_x}^{E_p2' + S_p + E_x} \sigma_{(r, px)}^c(E) N(E_e, E) dE + \sum_{E_x} \int_{E_p1' + S_p + E_x}^{E_p2' + S_p + E_x} \sigma_{(r, px)}^R(E) N(E_e, E) dE \quad (10)$$

と表わされる。(10)の第1項の寄与は  $E_e = E_p1' + S_p + E_x \equiv E_e^1$  の点で始まり、その大きさが増加を始める。また第2項の寄与は、 $E_p1' + S_p + E_x \leq E_R \leq E_p2' + S_p + E_x$  の範囲でのみ生じ、その寄与の大きさはレゾナンス強度に比例する。そこでこの性質を利用して、 $E_e^1$  から狭いエネルギー間隔  $\Delta E_e (< E_p2' - E_p1')$  でのアイソクロマートの増加を考える。

$$\begin{aligned} \Delta I(E_e^1, \Delta E_e) &= I(E_e^1 + \Delta E_e, E_p1, E_p2) - I(E_e^1, E_p1, E_p2) \\ &= \int_{E_e^1}^{E_e^1 + \Delta E_e} \sigma_{(r, px)}^c(E) N(E_e^1 + \Delta E_e, E) dE \\ &+ \sum_{E_x} \int_{E_e^1}^{E_e^1 + \Delta E_e} \sigma_{(r, px)}^R(E) N(E_e^1 + \Delta E_e, E) dE \quad (11) \end{aligned}$$

ここで  $E_x$  での和は

$$E_R - S_p - E_p1' \geq E_x \geq E_R - S_p - E_p2' \quad (12)$$

の範囲の残留状態へ崩壊する反応についてとることを意味する。幅  $\Delta E_e$  の積分区間で  $\sigma_{(r, px)}^c(E)$  が一定と近似すると、平均値の定理から  $E_e^1 < E_e^c < E_e^1 + \Delta E_e$  なる  $E_e^c$  を使って

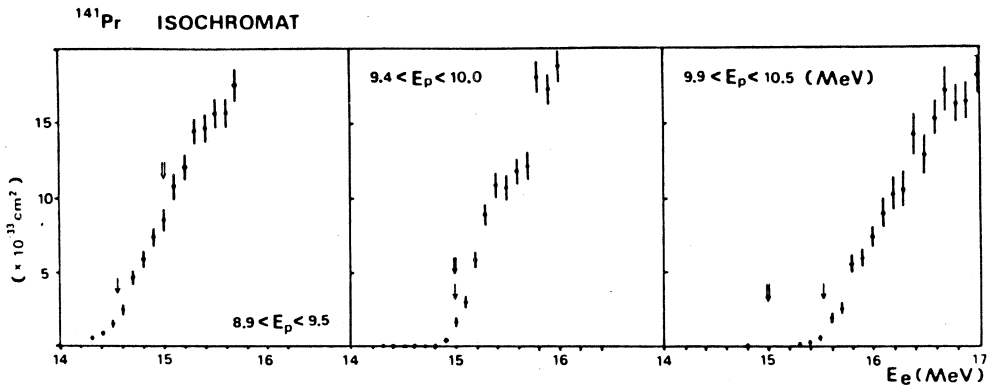
$$\begin{aligned} \Delta I(E_e^1, \Delta E_e) &= \sigma_{(r, px)}^c(E_e^c) \int_{E_e^1}^{E_e^1 + \Delta E_e} N(E_e^1 + \Delta E_e, E) dE \\ &+ \sum_{E_x} \int_{E_e^1}^{E_e^1 + \Delta E_e} \sigma_{(r, px)}^R(E) N(E_e^1 + \Delta E_e, E) dE \quad (13) \end{aligned}$$

と表わされる。

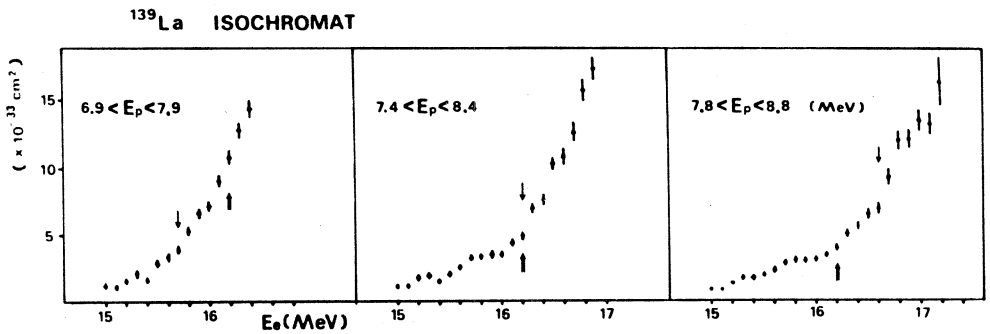
連続状態を經由する残留状態が1本の準位でない場合でも、実験の精度で不連続に存在する残留状態があれば、他の残留状態への崩壊に対応する陽子グループに重なって、着目する残留

状態に対応する (13) の立ち上がりが  $E_e^I$  の点に見られる。

実際のアイソクロマトでは、 $E_{p1}$  の値から計算される  $E_e^I$  の位置ではなく、少し高エネルギー



第9図 <sup>141</sup>Pr のアイソクロマトの例。p<sub>0</sub> 領域。↓と⇓は各々  $E_e^I + \Delta E_e^I$  と  $E_R$  の位置を示す。



第10図 <sup>139</sup>La のアイソクロマトの例。p' 領域。↓と⇓は各々  $E_e^I + \Delta E_e^I$  と  $E_R$  の位置を示す。

ギー側へずれた  $E_e^I + \Delta E_e^I$  の位置で増加を始めるように観測される。これは仮想光子の先端が急速にゼロになっているために、(8) の積分が  $E_e \approx E_e^I$  の附近で小さい値をとることの他、 $E_e$  と  $E_p$  の測定値の絶対値の誤差に由来する  $E_e^I$  のずれが生じている可能性をも示している。第9～10図にアイソクロマトの例を示す。一重と二重の矢印は各々  $E_e^I + \Delta E_e^I$  と  $E_R$  の位置を示す。

上述のことを考慮して (13) を修正した後、

$$\frac{\Delta I(E_e^I + \Delta E_e^I, \Delta E_e)}{\int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e^I} N(E_e^I + \Delta E_e^I + \Delta E_e, E) dE}$$

$$\begin{aligned} & \sum_{E_x} \int_{E_e^I + \Delta E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e^I + \Delta E_e} \sigma_{(r, p_x)}^R(E) N(E_e^I + \Delta E_e^I + \Delta E_e, E) dE \\ & \approx \sigma_{(r, p_x)}^C(E_e^I + \Delta E_e^I) + \frac{\int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e} N(E_e^I + \Delta E_e^I + \Delta E_e, E) dE}{\quad} \end{aligned} \quad (14)$$

を得る。ここで  $\sigma_{(r, p_x)}^C(E_e^I) \approx \sigma_{(r, p_x)}^C(E_e^I + \Delta E_e^I)$  とした。

各アイソクロマートにおいて  $E_e^I + \Delta E_e^I - \Delta E_e \leq E_e \leq E_e^I + \Delta E_e^I + \Delta E_e$  の範囲で定義され、 $E_e = E_e^I + \Delta E_e^I$  に屈折点を持つ線分

$$Y(E_e, E_e^I + \Delta E_e^I) = A E_e + B + k \cdot C (E_e - E_e^I - \Delta E_e^I) \quad (15)$$

ただし、 $E_e \leq E_e^I + \Delta E_e^I$  のとき  $k = 0$

$E_e > E_e^I + \Delta E_e^I$  のとき  $k = 1$

$A, B, C$  はパラメーター

$$E_e^I = E_p 1' + S + E_x \quad (16)$$

を用いてアイソクロマート近似し、最小自乗法を用いて測定値にフィットし、パラメーター  $C$  の値を求め、

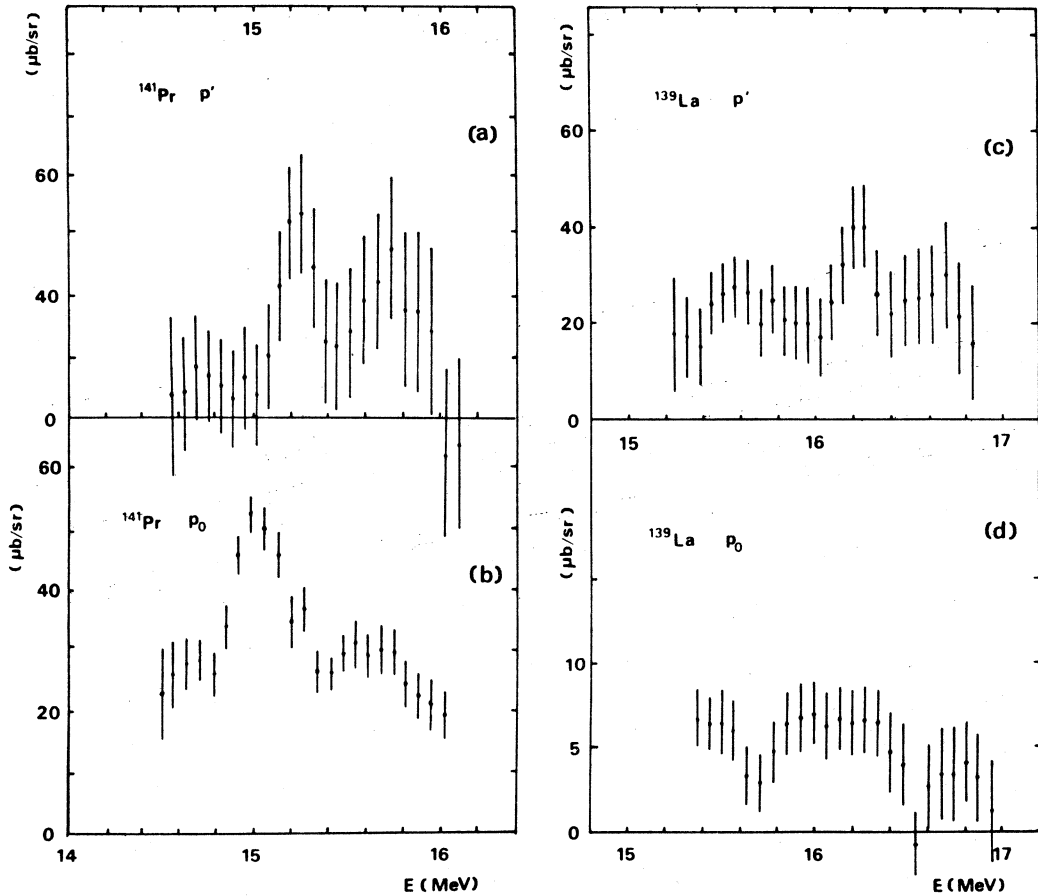
$$\Delta I(E_e^I + \Delta E_e^I, \Delta E_e) = C \cdot \Delta E_e \quad (17)$$

として  $\Delta I(E_e^I + \Delta E_e^I, \Delta E_e)$  を計算した。この時  $\Delta E_e^I = 0.2 \text{ MeV}$ ,  $\Delta E_e = 0.4 \text{ MeV}$  とした。(17)の意味は  $E_e < E_e^I + \Delta E_e^I$  における  $I(E_e)$  を  $E_e > E_e^I + \Delta E_e^I$  まで延長して  $I'(E_e)$  とし、 $E_e = E_e^I + \Delta E_e^I + \Delta E_e$  における  $I$  と  $I'$  の差を  $\Delta I$  としたことに相当する。これにより、隣接する状態から  $\Delta E_e$  以上に離れた残留状態の各々について、それが単独で存在する場合と同等の結果を得る。各々のアイソクロマートから (17) を求め、基底および  $E_x = 2.3 \text{ MeV}$  の励起残留状態について (14) を計算した。ここで実際の解析には、 $\theta = 125.3^\circ$  の微分断面積について行なった。結果を第11図に示す。この場合、(b), (d) は各々基底残留状態に対応するもので、第1励起状態との差が  $1.4 \text{ MeV}$  以上あるので、この方法の適用について問題はない。また  $^{139}\text{La}$  の連続状態は、すでに述べた様に励起エネルギー約  $2.3 \text{ MeV}$  のかなり狭い範囲 (幅数百 keV) の残留状態へ崩壊していると考えられるので、この方法が適用できる。 $^{141}\text{Pr}$  の連続状態は  $^{139}\text{La}$  の場合と比較して広いエネルギー範囲の残留状態へ崩壊すると考えられるが、 $p'$  は  $p_0$  と明確に分離して近似的に  $E_x \geq 2.3 \text{ MeV}$  に分布するので、この方法を適用すれば (14) の第2項の寄与の大きさを知ることができる。その時第1項は  $2.3 \text{ MeV} \leq E_x \leq 2.5 \text{ MeV}$  の範囲の残留状態について、低エネルギー側にウェイトをおいて加え合わせたも



のになるが、定量的には明確でない。

レゾナンス領域では、(14)の第2項の寄与により、極大点が生じる。(14)第2項の分子



第11図 アイソクロマート解析の結果。本文参照。

$$\sum_{E_x} \int_{E_e^I + \Delta E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e^I + \Delta E_e} \sigma_{(r, p_x)}^R(E) N(E_e^I + \Delta E_e^I + \Delta E_e, E) dE \quad (18)$$

は、 $\rho \ll \Delta E_e$  の場合には  $E_e^I + \Delta E_e^I \approx E_R$  の位置で最大値を持ち、 $\Gamma \approx \Delta E_e$  の場合には  $E_R - \frac{1}{2} \Delta E_e < E_e^I + \Delta E_e^I < E_R$  の範囲において最大値を持つ。また(14)第2項の分母は  $E_e^I$  に対して近似的に一定の値を持つ。そこで(14)の  $E_e^I + \Delta E_e^I$  と励起エネルギー  $E_r$  との間に  $+\frac{1}{4} \Delta E_e$  の補正を行い、(14)を

$$E_r = E_e^I + \Delta E_e^I + \frac{1}{4} \Delta E_e \quad (19)$$

の関数として表わせば、レゾナンスの位置は  $\pm \frac{1}{4} \Delta E_e$  の精度で知ることができる。第11図はこの補正をしてある。(14)の第1項が一定値をとると近似すれば、(14)の極大値から  $E_r =$

$E_R$  における (18) の値

$$\int_{E_R - \frac{1}{4} \Delta E_e}^{E_R + \frac{3}{4} \Delta E_e} \sigma_{(r, p_x)}^R(E) N(E_R + \frac{1}{4} \Delta E_e, E) dE$$

$$\approx N(E_R + \frac{3}{4} \Delta E_e, E_R) \sum_{E_x} \int_{E_R - \frac{1}{4} \Delta E_e}^{E_R + \frac{3}{4} \Delta E_e} \sigma_{(r, p_x)}^R(E) dE \quad (20)$$

が知られる。ここで、レゾナンスの幅の範囲で仮想光子数を一定値  $N(E_R + \frac{3}{4} \Delta E_e, E_R)$  で近似した。第11図は、すべて  $\Delta E_e = 200$  (keV) とした結果で、(20) の積分はほぼレゾナンスの全体にわたる積分に等しい。この結果得られたレゾナンス強度を第2表に示す。ここで  $E_x$  での和は (12) で決まる範囲についてとった。

第2表  $f_{7/2}$  IAR における  $\sum_{E_x} \int \sigma(r, p_x) dE_0$ ;  $E_x$  は  $p_x$  に対する残留状態のエネルギーを表わす。

	残 留 状 態	アイソクロマートから の結果 ( $\mu\text{b} \cdot \text{MeV}/\text{sr}$ )	スペクトルからの 結果 ( $\mu\text{b} \cdot \text{MeV}/\text{sr}$ )
$^{141}\text{Pr}$	$p_0$	$11.2 \pm 2.1$	$10.0 \pm 1.0$
$^{141}\text{Pr}$	$1.2 < E_x < 2.3$ (MeV)	$21 \pm 10$	$13 \pm 3$
$^{139}\text{La}$	$1.7 < E_x < 2.3$ (MeV)	$9 \pm 5$	$7.1 \pm 2$

第11図(a), (c)の結果で、陽子群2を放出するレゾナンスの存在が明確である。 $^{139}\text{La}$ の  $f_{7/2}$  IARのエネルギーは、(c)における値  $E_R = 16.2 \pm 0.1$  MeVと、先に(e, e'p)反応微分断面から得た値とが一致し、ここで示した方法で、レゾナンス・エネルギーが正しく得られることを示すものである。 $p_0$ に関する(d)では、絶対値が小さく、レゾナンスは判別できない。また(c)は、 $^{141}\text{Pr}$ の  $f_{7/2}$  IARの陽子群1である  $p_0$ に対応するレゾナンスを示し、 $E_R = 15.0 \pm 0.1$  MeVである。これと、(e, e'p<sub>0</sub>)反応陽子スペクトルから得た値  $E_R = 14.8 \pm 0.1$  MeVとは、前者の誤差が入射電子の、後者のそれが放出陽子のエネルギーの測定精度で決まることから、各々の全誤差の範囲では一致していると考えてよい。また前者は(e, e'p)反応微分断面の変曲点の位置と一致している。

一方、第11図(a)と(c)、すなわち $^{141}\text{Pr}$ の  $f_{7/2}$  IARの、陽子群2と陽子群1の各々に対応するレゾナンスのエネルギーが、それぞれ  $E_R = 15.2$  MeV と  $E_R = 15.0$  MeVで、200 keVの差がある。これは同時に測定した実験データを同じ方法で解析した結果得られた差であり、次の2通りの可能性が考えられる。第1は、予想できない実験誤差が含まれる場合、第2は、実際に陽子群1と陽子群2に対応するレゾナンスの成分がエネルギー的に200 keV分離してい

る場合である。後者の場合、第7図に示したスペクトルの解析では判別できない。この200 keVの差が、解析方法の誤差から生じたものではなく、測定結果の中に原因があることは、 $E \geq 5.0$  MeV の範囲の陽子から成るアイソクロマートである $^{141}\text{Pr}(e, e'p)$ 反応微分断面積の $15.0 \leq E_e \leq 15.5$  MeV領域の形が、幅の狭いレゾナンスが孤立して存在する場合の特徴である「上に凸の形」(第5図(b), 第6図(b)参照)をしていないことから支持される。すなわち、少なくとも測定値は $E_\gamma = 15.0$  MeVと $E_\gamma = 15.2$  MeVの2ヶ所にレゾナンスがあるという解析結果と矛盾しない。しかしこれに関して結論を出すには、さらに実験を行い、確認する必要がある。

以上の研究により、 $(e, e'p)$ 反応において観測される $^{139}\text{La}$ および $^{141}\text{Pr}$ の $f_{7/2}$  IARは、陽子散乱等の実験で観測されている $f_{7/2}$  IASを中間状態として経由する過程としてのレゾナンス成分以外に、光核反応特有のレゾナンス成分を含むことが明確になった。この実験結果から、 $^{209}\text{Bi}$ の $g_{9/2}$ 基底 IARの崩壊様式が陽子散乱実験の結果と異なる<sup>14)</sup>のも同様の現象であると予想され、その他の原子核の IARについてもこの現象が生じる可能性がある。そして、光核反応でスピンプリップ IARが強く励起される<sup>11-15)</sup>のは、この陽子群2を放出するレゾナンスの存在によると考えられる。ここでは、このレゾナンスも含めて IARと呼んできたが、この光核反応特有のレゾナンス成分は、中間状態として IASを經由するものではないと考える方が自然であり、その成因については今後の問題である。その研究は原子核の光核反応機構について新しい知見をあたえることが予想される。

## 参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 7 (1974) 305.
- 2) 核理研研究報告 8 (1975) 93.
- 3) 核理研研究報告 8 (1975) 99.
- 4) 核理研研究報告 8 (1975) 272.
- 5) H. Ejiri et al. : Nucl. Phys. A128 (1969) 388.
- 6) J. P. Wurm et al. : Nucl. Phys. A128 (1969) 433.
- 7) L. Veesser et al. : Nucl. Phys. A115 (1968) 172.
- 8) E. Wolyneec et al. : Phys. Rev. C11 (1975) 1083.
- 9) G. C. Morrison et al. : Phys. Rev. Lett. 19 (1967) 592.
- 10) 核理研研究報告 6 (1973) No. 1, 51.
- 11) K. Shoda et al. : Phys. Rev. C3 (1971) 1999.
- 12) P. Richard et al. : Phys. Rev. Lett. 14 (1964) 343.

- 13) H. Beil et al. : Nucl. Phys. **A172** ( 1971 ) 426.
- 14) 核理研研究報告 5 ( 1972 ) No. 2, 37.
- 15) K. Shoda et al. : Phys. Rev. **C3** ( 1971 ) 2006.

I-11  $^{112}\text{Ag}$  及び  $^{112}\text{In}$  の崩壊による  $^{112}\text{Cd}$  の準位

理学部物理 川村暢明・片倉純一・林部昭吾  
 金沢正明・山家 優・大島真澄  
 平沢正信・田原 謙・藤岡 学  
 石松敏之

3.2 h の  $^{112}\text{Ag}$  の  $\beta^-$  崩壊並びに 14.4 min の  $^{112}\text{In}$  の  $\beta^+$  及び E. C. 崩壊に伴う  $\gamma$  線を Ge (Li) 検出器を用いて測定し,  $^{112}\text{Ag}$  に対しては Ge (Li) - Ge (Li) で同時計数スペクトル, Ge (Li) - NaI (Tl) で角度相関の測定を,  $^{112}\text{In}$  に対しては Ge (Li) - NaI (Tl) で同時計数スペクトルの測定を行った。 $^{112}\text{Ag}$  の崩壊では 2122.3 keV ( $2^+$ ) 準位を新しく見出し 546.9, 688.5 及び 1504.4 keV の  $\gamma$  線が準位図式に組入れられた。527.0, 1007.1 及び 1754.7 keV の  $\gamma$  線は以前とは異なる準位間の転移として組入れられた。 $^{112}\text{In}$  の崩壊では, 新しく 832.9, 1614.1 及び 2157.7 keV の  $\gamma$  線を検出し, 2231.8 keV に新しく準位を設定した。以前報告されていた 1507 keV の  $\gamma$  線は  $^{112}\text{In}$  崩壊からは除かれた。角度相関測定より  $^{112}\text{Cd}$  の 694.9 keV ( $2_2^+ \rightarrow 2_1^+$ )  $\gamma$  転移の E 2/M 1 多重極混合比  $\delta$  は,  $\delta = 3.12 \pm \begin{smallmatrix} 0.62 \\ 0.59 \end{smallmatrix}$  が得られた。

## § 1. 結論

$^{112}\text{Cd}$  は質量数  $A \approx 110$  近傍の偶-偶核の一つであって, 低い励起準位が振動模型の良く合う領域の核である。<sup>1)</sup> この核については現在まで (d, p)<sup>2)</sup>, (p, p')<sup>3,4)</sup>, (d, d')<sup>5)</sup>, (r, r')<sup>6)</sup> クローン励起<sup>7)</sup> 等の核反応や  $^{112}\text{Ag}$ <sup>8-11)</sup> 及び  $^{112}\text{In}$ <sup>12-14)</sup> の崩壊から調べられており, 低い励起準位は振動模型で定性的には説明されている。しかしながら  $2_2^+ \rightarrow 2_1^+$  転移の E 2/M 1 多重極混合比  $\delta$  に関しては  $\delta = 0.77 \pm 0.06$  等の小さい値から  $\delta = 4.0 \pm 0.7$  等の大きな値までいくつかの値が報告されており,<sup>7-11)</sup> はっきりと確定されていない。また核反応の結果では 2 音子三重状態と考えられている  $0^+$ ,  $2^+$ ,  $4^+$  には殻模型的な性質も見られ,  $^{112}\text{Cd}$  についての我々の核研での (p, d) 反応でも同様な結果を得ている。<sup>16)</sup>  $^{112}\text{In}$  の崩壊形式には報告者によって一致しない所が多くある。このようなことから,  $^{112}\text{Cd}$  の核構造の研究は興味がある。今回の実験は  $^{112}\text{Cd}$  の  $2_2^+ \rightarrow 2_1^+$  転移の  $\delta$  の値を求めることを, 主な目的の一つとして,  $^{112}\text{Cd}$  の準位構造を  $^{112}\text{Ag}$  ( $2^-$ ) 及び  $^{112}\text{In}$  ( $1^+$ ) の崩壊により調べた。

## § 2. 実験及び結果

2. 1  $^{112}\text{Ag}$  の崩壊

$^{112}\text{Ag}$  の線源は, 金属及び CdO の形の濃縮度 96.30 % の  $^{113}\text{Cd}$  を核理研ライナックからの

制動輻射で単一検出器スペクトル測定用には  $E_{\gamma \max} = 30 \text{ MeV}$  で、 $\gamma$ - $\gamma$ 同時計数及び角度相関測定用には、 $E_{\gamma \max} = 60 \text{ MeV}$  で照射し、( $\gamma, p$ ) 反応で作った。単一検出器スペクトル測定用線源は照射後試料を  $\text{HNO}_3$  で溶かし、Ag の粉末を少量 carrier として加えた後  $\text{HCl}$  で  $\text{AgCl}$  の形で沈殿させて作った。同時計数及び角度相関測定用線源は化学分離を行わなかったが、主な妨害は  $^{111\text{m}}\text{Cd}$  (48 min) によるものであり、測定には大きな支障にはならなかった。

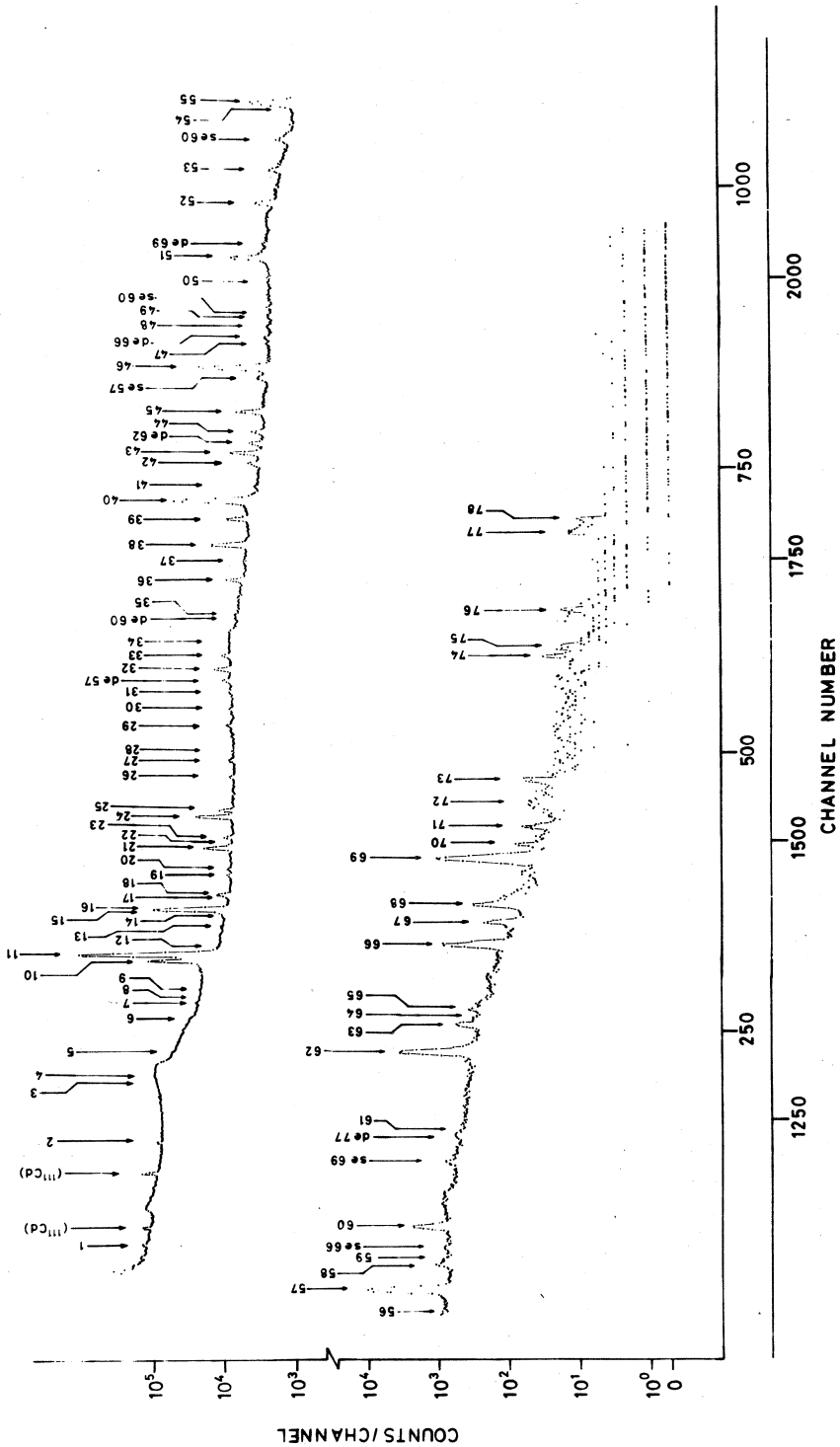
$\gamma$ 線単一検出器スペクトルの測定には  $33 \text{ cm}^3 \text{ Ge (Li)}$ 、 $70 \text{ cm}^3 \text{ Ge (Li)}$  及び  $40 \text{ cm}^3 \text{ Ge (Li)}$  検出器により行なった。同時計数スペクトル測定には、ゲート側に  $24 \text{ cm}^3 \text{ Ge (Li)}$  検出器を使用し、角度相関測定にはゲート側に  $3'' \phi \times 3'' \text{ NaI (Tl)}$  検出器を使用し、それぞれ  $33 \text{ cm}^3 \text{ Ge (Li)}$  との組合せで行った。回路系の分解時間は  $2\tau \approx 200 \text{ n sec}$  であった。角度相関は  $90^\circ \sim 270^\circ$  まで  $22.5^\circ$  間隔で行った。

$\gamma$ 線の単一検出器スペクトルを第1図に示す。全部で78本の  $\gamma$ 線を検出した。これら  $\gamma$ 線のエネルギー及び相対強度を第1表に示す。

$617.7 \text{ keV} (2_1^+ \rightarrow 0_1^+)$ 、 $606.9 \text{ keV} (0_1^+ \rightarrow 2_1^+)$   $\gamma$ 線をゲートにとった同時計数スペクトルを第2図に示す。単一検出器スペクトルと比べ、 $617.7 \text{ keV}$  ゲートでは、 $606.9$ 、 $694.9$ 、 $718.8$ 、 $798.3$ 、 $816.1$ 、 $851.8$ 、 $1126.2$ 、 $1253.7$ 、 $1388.0$ 、 $1504.4$ 、 $1539.1$ 、 $1614.3$ 、 $1799.1$ 、 $1889.5$ 、 $2057.1$ 、 $2107.2$ 、 $2212.8$ 、 $2553.1$  及び  $2687.0 \text{ keV}$  の  $\gamma$ 線が同時計数しているのが見られる。又、 $606.9 \text{ keV}$  ゲートでは、 $617.7$ 、 $1007.1$ 、 $1282.4$  及び  $1949.1 \text{ keV}$  の  $\gamma$ 線が同時計数しているのが見られる。 $^{111}\text{Cd}$  の  $\gamma$ 線が見えているのは、偶然の同時計数によるものである。

単一検出器及び同時計数スペクトルから組立てた準位図式を第3図に示す。第1表中に英文字で示してある assignment は第3図の準位間の転移を表わしてある。新しく検出した  $\gamma$ 線で準位図式に組入れられたものは、 $546.9$ 、 $623.8$ 、 $1700.8$  及び  $2560.9 \text{ keV}$  の4本であり、その他としては、 $1155.3 \text{ keV}$  の  $\gamma$ 線も見られた。 $693.0 \text{ keV}$  の  $\gamma$ 線はピークに肩が見られ、Macdonald *et al.*<sup>9)</sup> も同時計数の測定から  $693.0 \text{ keV}$   $\gamma$ 線を報告しており、我々もこの  $\gamma$ 線を assign してある。準位図式に点線で示してある転移は、エネルギー和の一致が悪く  $1 \text{ keV}$  以上の差があるものである。

この準位図式は、以前報告されていたもの<sup>8-9)</sup> とほぼ同じであるが、 $2122.3 \text{ keV}$  に準位を考へることにより、 $546.9$ 、 $688.5$  及び  $1504.4 \text{ keV}$  の3本の  $\gamma$ 線を準位図式に新しく組入れることができた。この  $2122.3 \text{ keV}$  の準位は  $^{112}\text{Ag}$  の崩壊からは今まで報告されていなかったものであるが、( $d, p$ )<sup>2)</sup>、( $\gamma, \gamma'$ )<sup>6)</sup> 等の核反応の実験からは報告されていたものであり、 $2^+$  準位と考えられる。今回 assign した  $\gamma$ 線の転移もこのこととは矛盾しない。その他にも、 $527.0$ 、 $1007.1$  及び  $1754.1 \text{ keV}$  の  $\gamma$ 線転移について、Wallace *et al.*<sup>10)</sup> の assignment と違

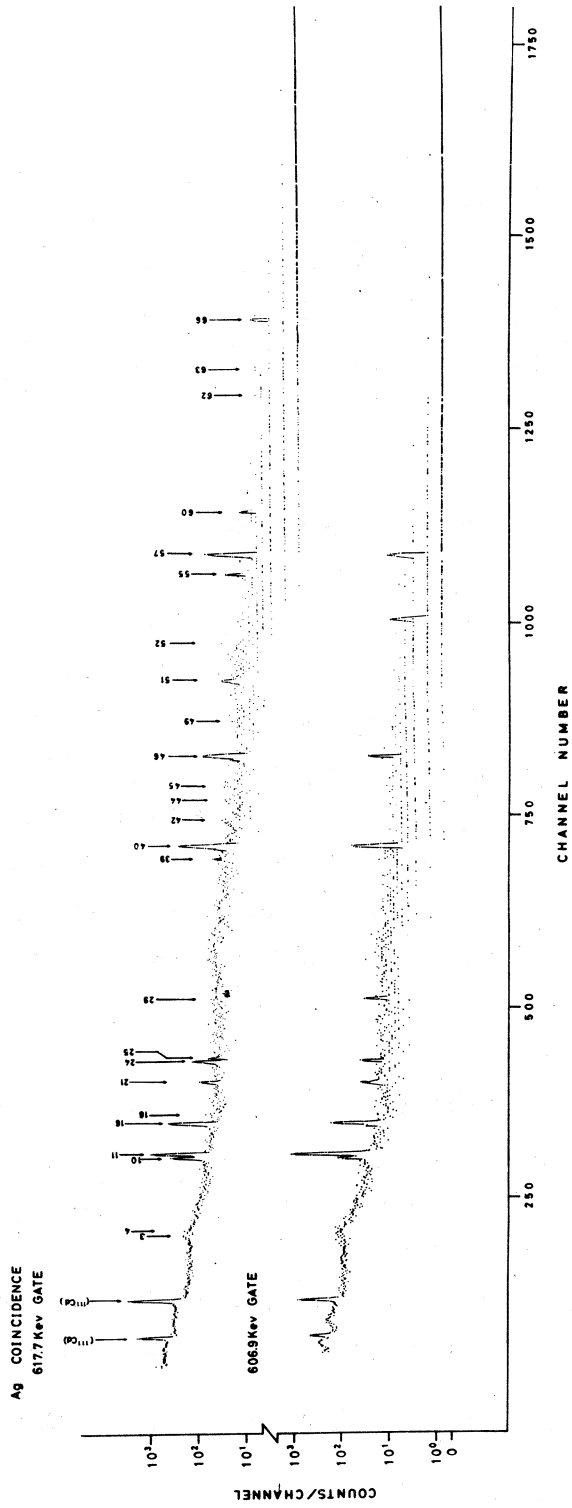


第1図  $^{112}\text{Ag}$  の崩壊による  $\gamma$ 線の単一検出器スペクトル

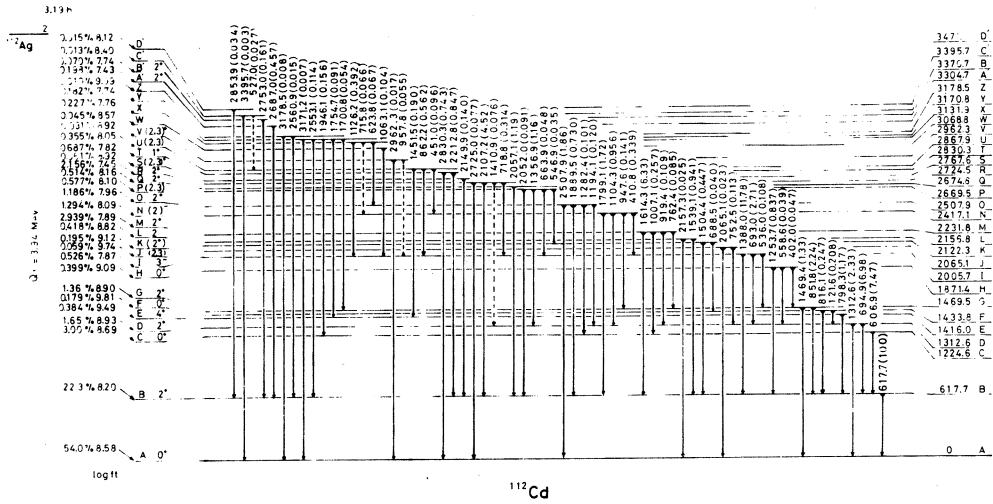
第1表  $^{112}\text{Ag}$  の崩壊による  $\gamma$  線のエネルギー及び強度

No.	$E_\gamma$ (KeV)	$I_\gamma$	Assignment	No.	$E_\gamma$ (KeV)	$I_\gamma$	Assignment
1	121.6	$0.208 \pm 0.010$	FD	37	1282.4	$0.101 \pm 0.029$	OC
2	296.8	$0.346 \pm 0.024$		38	1312.6	$2.33 \pm 0.04$	DA
3	402.0	$0.047 \pm 0.015$	HG	39	1356.9	$1.16 \pm 0.04$	PD
4	410.8	$0.339 \pm 0.022$	NI	40	1388.0	$11.78 \pm 0.09$	IB
5	451.0	$0.096 \pm 0.019$	UN	41	1410.9	$0.076 \pm 0.030$	RD
6	527.0	$0.027 \pm 0.014$	CU	42	1451.5	$0.190 \pm 0.036$	UE
7	536.0	$0.108 \pm 0.018$	IG	43	1469.4	$1.33 \pm 0.06$	GA
8	546.9	$0.035 \pm 0.016$	PK	44	1504.4	$0.447 \pm 0.056$	KB
9	558.6	$0.039 \pm 0.016$	HD	45	1539.1	$0.941 \pm 0.054$	LB
10	606.9	$7.47 \pm 0.05$	CB	46	1614.3	$6.33 \pm 0.09$	MB
11	617.7	100	BA	47	1645.1	$0.085 \pm 0.030$	
12	623.8	W	XO	48	1684.7	$0.148 \pm 0.046$	
13	663.9	$0.048 \pm 0.018$	PI	49	1700.8	$0.054 \pm 0.025$	YG
14	688.5	$0.040 \pm 0.018$	KF	50	1754.7	$0.091 \pm 0.036$	YE
15	693.0	$2.71 \pm 0.03$	ID	51	1799.1	$1.72 \pm 0.08$	NB
16	694.9	$6.98 \pm 0.04$	DB	52	1889.5	$0.730 \pm 0.065$	OB
17	715.8	$0.066 \pm 0.017$	XN	53	1946.1	$0.156 \pm 0.034$	YC
18	718.8	$0.314 \pm 0.021$	RI	54	2052.0	$0.091 \pm 0.031$	PB
19	752.5	$0.113 \pm 0.020$	JD	55	2057.1	$1.19 \pm 0.08$	OB
20	762.4	$0.085 \pm 0.019$	MG	56	2065.1	$0.023 \pm 0.019$	JA
21	798.3	$1.17 \pm 0.03$	EB	57	2107.2	$4.52 \pm 0.08$	RB
22	804.3	$0.025 \pm 0.018$		58	2149.9	$0.140 \pm 0.029$	SB
23	816.1	$0.247 \pm 0.022$	FB	59	2157.3	$0.025 \pm 0.019$	LA
24	851.8	$2.24 \pm 0.04$	GB	60	2212.8	$0.847 \pm 0.064$	TB
25	862.2	$0.562 \pm 0.026$	UI	61	2364.5	$0.037 \pm 0.017$	
26	919.4	$0.109 \pm 0.021$	MD	62	2507.9	$1.86 \pm 0.06$	OA
27	947.6	$0.141 \pm 0.022$	NG	63	2553.1	$0.114 \pm 0.030$	YB
28	957.8	$0.055 \pm 0.022$	VI	64	2560.9	$0.015 \pm 0.011$	ZB
29	1007.1	$0.275 \pm 0.029$	MC	65	2578.0	$0.056 \pm 0.022$	
30	1035.4	$0.112 \pm 0.025$		66	2687.0	$0.457 \pm 0.034$	A/B
31	1063.1	$0.104 \pm 0.026$	WI	67	2725.0	$0.077 \pm 0.020$	RI
32	1104.3	$0.956 \pm 0.034$	ND	68	2753.0	$0.161 \pm 0.023$	B/B
33	1126.2	$0.392 \pm 0.030$	XI	69	2853.9	$0.743 \pm 0.030$	TA
34	1155.3	$0.056 \pm 0.023$		70	2853.9	$0.034 \pm 0.009$	D/B
35	1194.1	$0.120 \pm 0.029$	OD	71	2884.3	$0.023 \pm 0.009$	
36	1253.7	$0.837 \pm 0.036$	HB	72	2920.1	W	
				73	2962.3	$0.017 \pm 0.009$	VA
				74	3171.2	$0.007 \pm 0.003$	YA
				75	3178.5	$0.008 \pm 0.003$	ZA
				76	3243.8	$0.007 \pm 0.003$	
				77	3384.1	$0.003 \pm 0.002$	
				78	3395.7	$0.003 \pm 0.002$	C/A





第2図  $^{112}\text{Ag}$  の崩壊による  $\gamma$  線の同時計数スペクトル



第3図  $^{112}\text{Ag}$  の崩壊図式

っているが、エネルギーの一致は我々の方が良いように思われる。

角度相関の測定は  $617.7 \text{ keV } (2_{1}^{-} \rightarrow 0_{g}^{+}) \gamma$  線をゲートにとり、 $606.9, 694.9, 851.8, 1388.0, 1539.1, 1614.3, 1799.1$  及び  $2107.2 \text{ keV}$  の  $\gamma$  転移を調べた。 $617.7 \text{ keV } \gamma - 606.9 \text{ keV } \gamma$  の  $0_{1}^{+} \rightarrow 2_{1}^{-} \rightarrow 0_{g}^{+}$  を標準にして角度相関係数の補正を施した。 $694.9 \text{ keV } (2_{2}^{-} \rightarrow 2_{1}^{-}) \gamma$  転移との角度相関係数を求めるには次のように行った。 $694.9 \text{ keV } \gamma$  線と  $693.0 \text{ keV } (3_{1}^{-} \rightarrow 2_{2}^{-}) \gamma$  線とは  $1.9 \text{ keV}$  しか離れていないため我々の用いた検出器では分離できなかった。従って、角度相関の実験から求まる係数  $A_2, A_4$  には両者の影響が混じって入っている。同時計数に寄与する  $694.9 \text{ keV}$  と  $693.0 \text{ keV}$  の  $\gamma$  線の強度比を  $1 : \alpha$  とすると、実験から求められる係数  $A_{\nu}$  は

$$A_{\nu} = \frac{A_{\nu}^{(1)} + \alpha A_{\nu}^{(2)}}{1 + \alpha}$$

と表わされる。ここで  $A_{\nu}^{(1)}$  は  $694.9 \text{ keV}$  との、 $A_{\nu}^{(2)}$  は  $693.0 \text{ keV}$  との角度相関係数である。 $A_{\nu}^{(1)}$  はスピン順序  $2-2-0$  で  $F$  係数を用いて次のように表わされる。

$$A_{\nu}^{(1)} = \frac{F_{\nu}(1122) + 2 \delta F_{\nu}(1222) + \delta^2 F_{\nu}(2222)}{1 + \delta^2} \times F_{\nu}(2202)$$

$A_{\nu}^{(2)}$  はスピン順序  $3-2-2-0$  のもので  $2-2$  の中間  $\gamma$  線を測定しない場合であって、 $693.0 \text{ keV } (3_{1}^{-} \rightarrow 2_{2}^{-})$  の転移を純粋な  $E1$  と仮定すると、 $F$  係数と  $W$  係数を用いて、

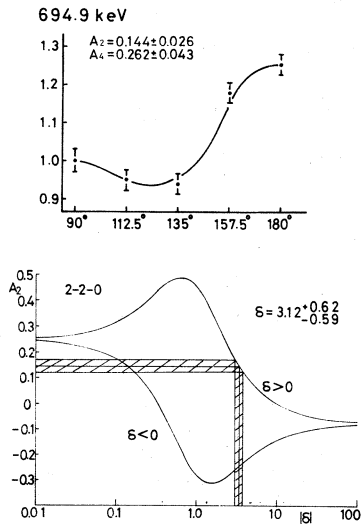
$$A_{\nu}^{(2)} = F_{\nu}(1132) \cdot \frac{5}{1 + \delta^2} [-W(2222; \nu 1) + W(2222; \nu 2) \delta^2] F_{\nu}(2202)$$

と表わされる。 $A_{\nu}^{(1)}$ ,  $A_{\nu}^{(2)}$ 共に  $2_{2}^{-} \rightarrow 2_{1}^{+}$  転移の  $\delta$  の関数となる。この  $\delta$  が今求めたい値である。

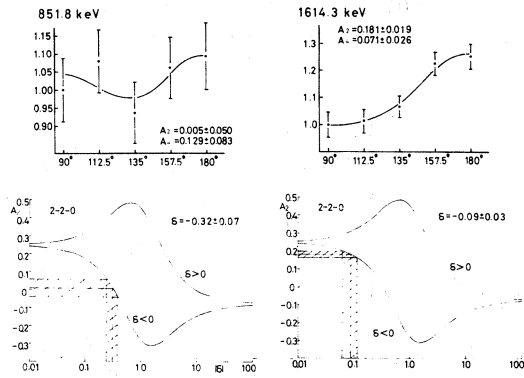
実験から得られる  $A_{\nu}$  の値を再現するように、 $\delta$  と  $\alpha$  をパラメータとして変化させて求めた。

第2表に 617.7 keV ( $2_{1}^{+} \rightarrow 0_{g}^{+}$ ) ゲートの角度相関の結果を示す。1539.1 keV 及び 1799.1 keV  $\gamma$  との角度相関は、今まで報告されていなかったものである。統計が悪く、誤差が大きい、ある程度値を知ることができる。

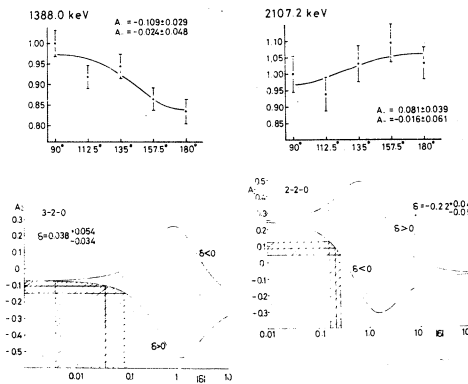
第4図～第7図までに角相関を、第8図～10図までに  $A_2, A_4$  の図を示す。



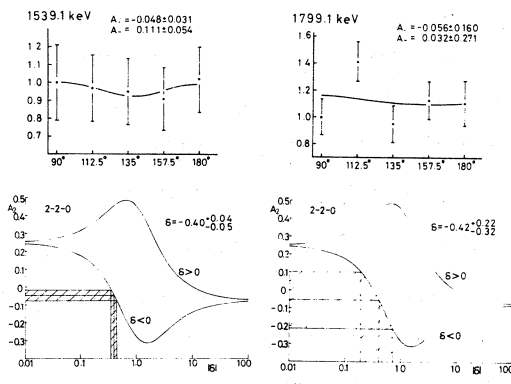
第4図 694.9 keV 角相関



第5図 851.8 keV, 1614.3 keV の角相関



第6図 1388.0 keV, 2107.2 keV の角相関

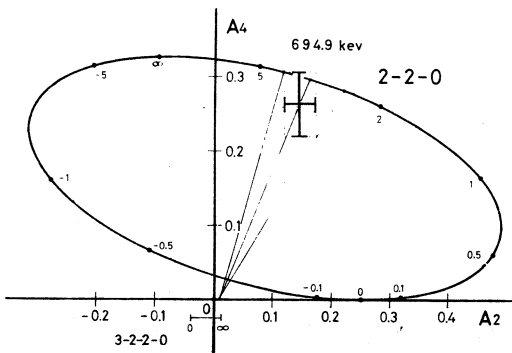


第7図 1539.1 keV, 1799.1 keV の角相関

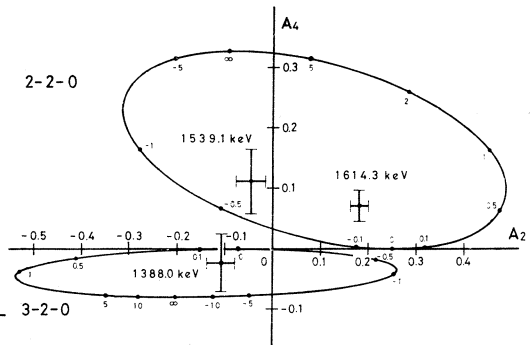
第2表 617.7 keV ゲート角相関の  $A_2$ ,  $A_4$  及び混合比

617.7 keV ( $2_1^+ \rightarrow 0^+$ ) gate Angular Correlation

Transition Energy (keV)	$A_2$	$A_4$	$\delta$
694.9 ( $2_2^+ \rightarrow 2_1^+$ )	$0.144 \pm 0.026$	$0.262 \pm 0.043$	$3.12 \pm \begin{smallmatrix} 0.62 \\ 0.59 \end{smallmatrix}$
851.8 ( $2_3^+ \rightarrow 2_1^+$ )	$0.005 \pm 0.050$	$0.129 \pm 0.083$	$-0.32 \pm 0.07$
1389.0 ( $3^- \rightarrow 2_1^+$ )	$-0.109 \pm 0.029$	$-0.024 \pm 0.048$	$0.04 \pm \begin{smallmatrix} 0.05 \\ 0.03 \end{smallmatrix}$
1539.1 ( $2^+ \rightarrow 2_1^+$ )	$-0.048 \pm 0.129$	$0.111 \pm 0.159$	$-0.40 \pm \begin{smallmatrix} 0.18 \\ 0.23 \end{smallmatrix}$
1614.3 ( $2^+ \rightarrow 2_1^+$ )	$0.181 \pm 0.019$	$0.071 \pm 0.026$	$-0.09 \pm 0.03$
1799.1 ( $2_2^- \rightarrow 2_1^+$ )	$-0.056 \pm 0.160$	$0.032 \pm 0.271$	$-0.42 \pm \begin{smallmatrix} 0.22 \\ 0.32 \end{smallmatrix}$
2107.2 ( $2^+ \rightarrow 2_1^+$ )	$0.081 \pm 0.039$	$-0.016 \pm 0.061$	$-0.22 \pm \begin{smallmatrix} 0.04 \\ 0.05 \end{smallmatrix}$



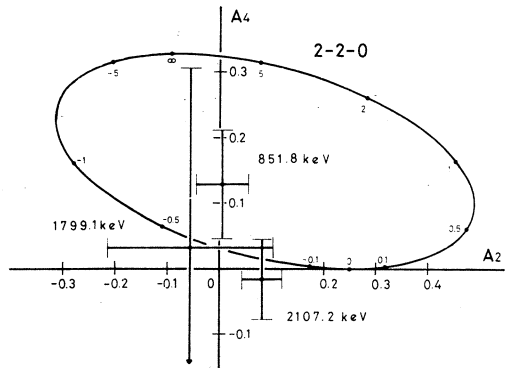
第8図 694.9 keV の  $A_2$ ,  $A_4$



第9図 1388.0 keV, 1539.1 keV, 1614.3 keV の  $A_2$ ,  $A_4$

## 2. 2 $^{112}\text{In}$ の崩壊

$^{112}\text{In}$  の線源は  $\text{In}_2\text{O}_3$  の形の濃縮度 96.4% の  $^{113}\text{In}$  を核理研ライナックからの制動放射で  $E_{T \text{ max}} = 30 \text{ MeV}$  で照射し ( $\gamma, n$ ) 反応で作った。 $^{112}\text{In}$  の半減期は、14 min で短いため化学分離は行わなかった。測定の妨害として入って来た  $\gamma$  線は  $^{111}\text{In}$  (2.8 d),  $^{113\text{m}}\text{In}$  (1.7 h),  $^{114}\text{In}$  (50.0 d),  $^{115}\text{In}$  (4.5 h) 及び  $^{116}\text{In}$  (54.0 min) の崩壊によるものであ



第10図 851.8 keV, 1799.1 keV, 2107.2 keV の  $A_2$ ,  $A_4$

った。特に $^{116}\text{In}$ は $^{115}\text{In}$ の中性子捕獲の断面積が大きく最も妨害となるものである。このためCd板で試料を包んで照射し、中性子捕獲の影響を小さくするようにした。

$\gamma$ 線単一検出器スペクトルの測定には $33\text{ cm}^3\text{ Ge (Li)}$ 及び $70\text{ cm}^3\text{ Ge (Li)}$ 検出を用いた。Sum peakを確かめるためには、1 cm厚の鉛の吸収体を検出器の前に置いて測定した。同時計数スペクトルの測定には、ゲート側に $3''\ \phi \times 3''\ \text{NaI (Tl)}$ 検出器を使用し、 $33\text{ cm}^3\text{ Ge (Li)}$ との組合せで行った。ゲートとしては、 $617.7\text{ keV } (2_1^+ \rightarrow 0_g^+)$ 、 $851.4\text{ keV } (2_3^+ \rightarrow 2_1^+)$   $\gamma$ 線をとった。

第11図に $^{112}\text{In}$ の崩壊に伴う $\gamma$ 線の単一検出器スペクトル及び $617.7\text{ keV}$ 、 $851.4\text{ keV}$   $\gamma$ 線ゲートの同時計数スペクトルを示す。今回新しく見出した $\gamma$ 線は、 $832.9$ 、 $1614.1$ 及び $2157.7\text{ keV}$ の3本の $\gamma$ 線である。以前報告されていた $1507\text{ keV}$ の $\gamma$ 線<sup>14)</sup>は、 $^{116}\text{In}$ の崩壊に伴うものを除くと、 $^{112}\text{In}$ の崩壊に属するものとしては検出できなかった。 $1614.1\text{ keV}$   $\gamma$ 線は $617.7\text{ keV}$   $\gamma$ 線と同時計数しているのが分る。

単一及び同時計数スペクトル測定の結果から組立てた崩壊図式を第12図に示す。

新しく見出した $\gamma$ 線のうち $1614.1\text{ keV}$   $\gamma$ 線は、 $617.7\text{ keV}$   $\gamma$ 線と同時計数しており、 $2231.8\text{ keV}$  準位からの転移とした。この準位からは他の $\gamma$ 線は見えていないが、対応する $\gamma$ 線の見える $^{112}\text{Ag}$ の崩壊でこの準位から崩壊する他の $\gamma$ 線の強度比を考慮して矛盾しない。

$20.7\text{ min}$ の $^{112}\text{mIn } 4^+$ から直接 $^{112}\text{Cd}$ へ崩壊する成分は検出されなかった。 $^{112}\text{In } 1^+$ の半減期が $14\text{ min}$ であるので、検出された $\gamma$ 線の崩壊曲線からどちらの状態からの崩壊であるかを決定するのは困難であるが、今回検出された $\gamma$ 線が $2301.5\text{ keV}$ 準位から崩壊する $\gamma$ 線を除いて、残り全部が $0^+$ 及び $2^+$ 準位から崩壊する $\gamma$ 線であるので、これらの準位への $^{112}\text{mIn } 4^+$ 状態からの $\beta$ 崩壊は2次禁止又はそれ以上の禁止になるので検出されないものと考えられる。又、 $2301.5\text{ keV}$ 準位については、 $J^\pi$ は確定されていないけれども、 $(\gamma, \gamma')$ <sup>6)</sup>の実験から $1^-$ 準位とE1転移で結ばれているので $2^+$ 又はそれ以下のスピンを持つことになり、この準位へも他の準位へと同様2次又はそれ以上の $\beta$ 禁止となり検出されないものと考えられる。

### § 3. 考察

基底 $0^+$ 準位

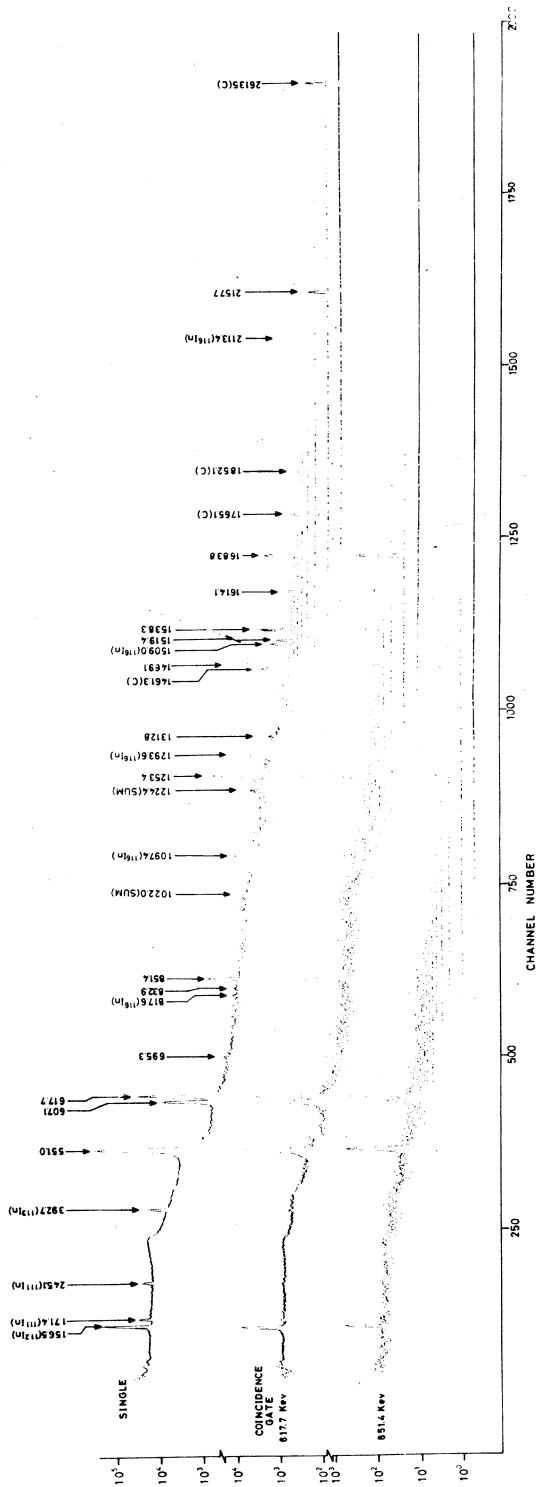
$^{112}\text{In } 1^+$ からの $\beta$ 崩壊の $\log ft$ は $4.91$ で最も小さい。

$617.7\text{ keV } 2_2^+$ 準位

$^{112}\text{In } 1^+$ からの $\log ft$ は $5.20$ で $0_g^+$ へのものより $0.29$ 大きい。

$1224.8\text{ keV } 0_1^+$ 準位

$607.1\text{ keV } \gamma$ - $617.7\text{ keV } \gamma$ の角度相関は典型的な $0-2-0$ の形を示している。 $^{112}\text{In } 1^+$ からの $\log ft$ は $5.12$ で $0_g^+$ への値と、 $2_1^+$ への値の間にある。



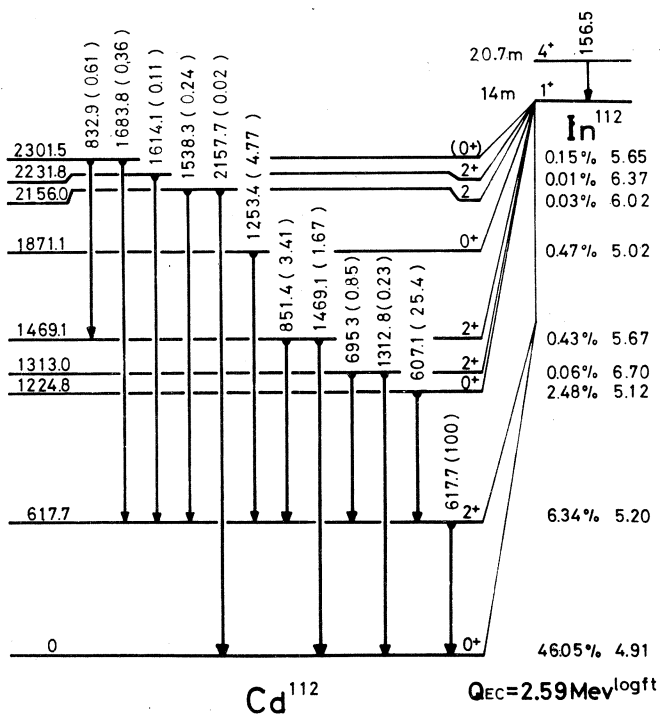
第 11 図  $^{112}\text{In}$  の崩壊による  $\gamma$  線の単一及び同時計数スペクトル

1312.8 keV  $2_2^+$  準位

この準位から  $2_1^+$  への 694.9 keV  $\gamma$  転移は角度相関測定から

$$\delta = 3.12 \pm \begin{matrix} 0.62 \\ 0.59 \end{matrix}$$

の結果を得た。他の実験と比較して第3表に示す。今までは 0.77から4.0 までの値が報告され、確定されてはいなかったものである。我々の結果は、今までの  $\delta$  の中、大きな値に近いものとなった。



第12図  $^{112}\text{In}$  の崩壊図式

第3表  $^{112}\text{Cd}$  の  $2_2^+ \rightarrow 2_1^+$  転移の混合比

$^{112}\text{Cd}$	$2_2^+ \rightarrow 2_1^+$ Transition		$\delta$
	$A_2$	$A_4$	
Present	$0.114 \pm 0.026$	$0.262 \pm 0.043$	$3.12 \pm \begin{matrix} 0.62 \\ 0.59 \end{matrix}$
Milner et al.			$3.5 \pm \begin{matrix} 0.9 \\ 0.8 \end{matrix}$ or $0.87 \pm \begin{matrix} 0.10 \\ 0.10 \end{matrix}$
Wallace et al.	$0.13 \pm 0.04$	$0.31 \pm 0.08$	$4.0 \pm 0.7$
Grabowsky et al.			$0.77 \pm 0.06$

単一粒子模型では  $|\delta_s| = 0.025$  であり、これと比較して、E2 が M1 に較べかなり大きいことが分る。音子状態であることを示しているといえるが、振動模型では禁止される M1 転移が約 10% 含まれている。 $^{112}\text{In } 1^+$  からこの準位への  $\log ft$  は 6.70 で  $0^+_g$ ,  $2^+_1$ ,  $0^+_1$  への  $\log ft$  と比較し、それぞれ 1.71, 1.50, 1.58 大きくなっている。

#### 1469.5 keV $2^+_3$ 準位

この準位は粒子的性格の準位と考えられていたものであるが、今回の実験でもこの準位から  $2^+_1$  への 851.8 keV  $\gamma$  転移は角度相関測定から

$$\delta = -0.32 \pm 0.07$$

と比較的小さな値になっており、上記のことを支持している。単一粒子模型では  $|\delta_s| = 0.03$  で、これに較べれば E2 が大きい。以前報告されていた値は  $\delta = 0.22 \pm 0.05$ <sup>10)</sup>,  $\delta = 0.10 \pm 0.07$ <sup>11)</sup>,  $\delta = -0.21 \pm \frac{0.05}{0.06}$ <sup>14)</sup> である。最後のものを除いて、符号が我々のものと異なっているが、これは位相のとり方が我々と異なっているためである。又、この準位は  $^{112}\text{In } 1^+$  からの  $\log ft$  は 5.67 で 2 音子状態の  $2^+_2$  に較べ 1.03 小さな値になっている。

#### 2005.7 keV $3^-$ 準位

1388.0 keV - 617.7 keV の角相関からスピン 1 又は 3 である。(p, p') 反応<sup>4)</sup>で  $3^-$  と assign された  $2000 \pm 10$  keV 準位と考えられる。又、以前  $3^-$  と assign されていた 1973 keV 準位<sup>3,8,9)</sup>は、我々の実験では検出されなかった。このことは G. Wallace *et al.*<sup>10)</sup> によって指摘されており、彼らの実験でも、1973 keV 準位への転移及び、この準位からの転移は報告されていない。我々の結果はこのことを支持し、2005.7 keV 準位を  $3^-$  と assign した。

#### 2231.8 keV $2^+$ 準位

この準位は、 $^{112}\text{In}$  の崩壊では報告されていなかった準位である。 $^{112}\text{Ag}$  の崩壊で、この準位から転位する 762.4 keV, 919.4 keV, 1007.1 keV の  $\gamma$  線は、 $^{112}\text{In}$  の崩壊では見えなかったが、この準位へ崩壊する割合が小さいためと思われる。この準位から  $2^+_1$  準位への 1614.3 keV  $\gamma$  転移は角相関の測定から

$$\delta = -0.09 \pm 0.03$$

の混合比を持つ。単一粒子模型では、 $|\delta_s| = 0.06$  であり、我々の実験値と良く一致することから、この準位は、粒子的な性格が強いことが言える。

#### 2417.1 keV ( $2^-$ ) 準位

1799.1 keV - 617.7 keV の角相関から、この準位のスピンは、(1, 2, 3) と矛盾しない。但し、スピン 3 は、(d, p) 反応の報告 (0, 1, 2)<sup>2)</sup> と矛盾する。又、この準位から  $0^+$  準位への  $\gamma$  転位が見られないことからスピン 1 の可能性も少ないと思われる。パリティは、(d,



p) 反応<sup>2)</sup>の実験で負であると報告されている。従ってこの準位は $2^-$ であると考えられる。

2724.5 keV  $2^+$  準位

この準位から  $2_1^+$  準位の 2107.2 keV  $\gamma$  転移は、角相関の測定からその混合比が、

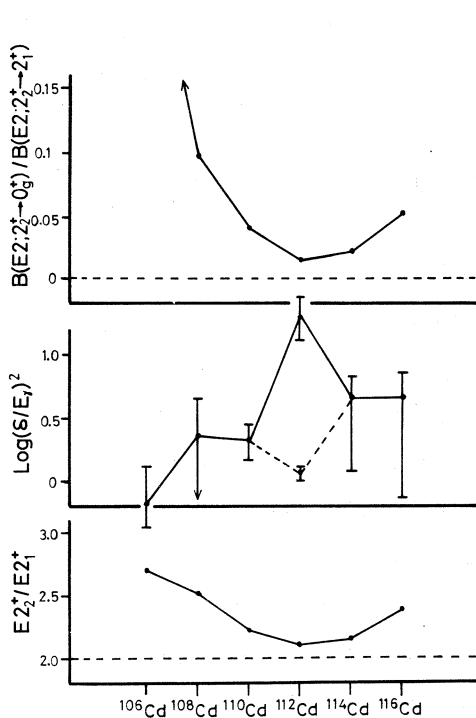
$$\delta = -0.22 \pm \frac{0.04}{0.05}$$

と得られた。以前の報告<sup>10)</sup>では、 $\delta = -18.5 \pm \infty^{9.5}$ であり我々の結果と大きな相違を示している。しかしながら、このように割合エネルギーの高い準位では、粒子的な性格も強いと考えられる。単一粒子モデルでは  $|\delta| = 0.103$  であり、我々の結果は、この値に近い。

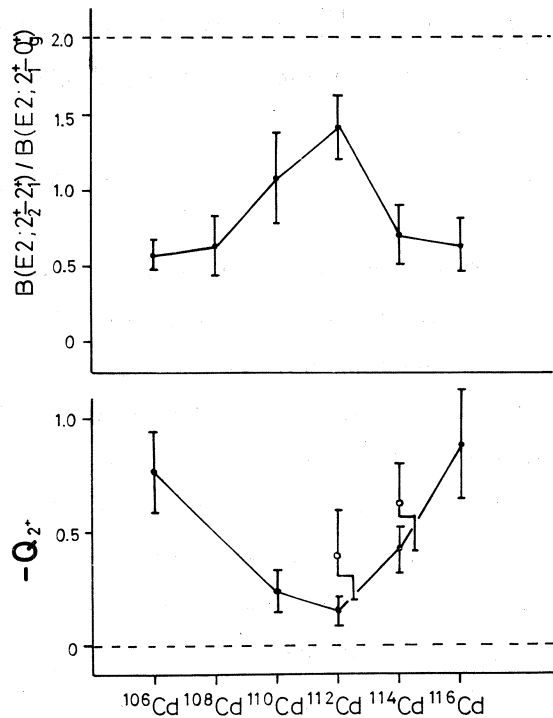
#### §.4. 結論

第13図、第14図で、 $E_{2_2^+}/E_{2_1^+}$ 比、 $\log(\delta/E)^2$ 、 $B(E2; 2_2^+ \rightarrow 0_g^+)/B(E2; 2_2^+ \rightarrow 2_1^+)$ 比、 $B(E2; 2_2^+ \rightarrow 2_1^+)/B(E2; 2_1^+ \rightarrow 0_g^+)$ 比、第一 $2^+$ 準位の四重極モーメントを偶-偶Cd同位体について比較した。

これらの図から分かるように、<sup>112</sup>Cdが最も振動的な性質を持っており、<sup>112</sup>Cdに近づくに従って系統的に振動的な様子が強くなっていく。振動モデルからは、第二 $2^+$ 準位から第一 $2^+$ 準位へ



第13図 Cd同位体の $E_{2_2^+}/E_{2_1^+}$ 、 $\log(\delta/E)^2$ 、 $B(E2; 2_2^+ \rightarrow 0_g^+)/B(E2; 2_2^+ \rightarrow 2_1^+)$ の比較



第14図 Cd同位体の四重極モーメント及び $B(E2; 2_2^+ \rightarrow 2_1^+)/B(E2; 2_1^+ \rightarrow 0_g^+)$ の比較

の  $\gamma$  転移は純粋な E2 であるが、我々の角相関の結果は、10% の M1 が混じっていることを示している。このような M1 の混合は、Greiner<sup>17)</sup> によると、陽子と中性子の対相互作用の強さが違うため、変形も異なり、そのための  $g$  因子がスカラー量でなく、テルソン量となるために起ると説明している。彼によると混合比  $\delta$  は

$$\left( \frac{\delta}{E_{2_2^+ \rightarrow 2_1^+}} \right) = \left( \frac{3.718}{5} \right)^{1/2} \times 10^{-3} \times \frac{A^{5/3} \beta_0}{(1-2f) \cdot f}$$

と書き表わされる。但し、 $f$  は陽子と中性子の対相互作用の強さが違うために現われるパラメータで  $g$  因子と次の関係で結びつけられる。

$$g(2) = \frac{Z}{A} (1-2f) \left( 1 + \frac{2}{3}f \right)$$

又、 $\beta_0$  は有効変形と呼ばれ、変形に関するパラメータである。

Stelson et al.<sup>4)</sup> の得た  $\beta_0 = 0.20$  と、Heestand et al.<sup>18)</sup> の得た  $g(2) = 0.30$  の値を用いると、<sup>112</sup>Cd の  $2_2^+ \rightarrow 2_1^+$  転移の混合比に対して  $\delta = 2.97$  の値が得られる。この値は、我々の実験値  $\delta = 3.12 \pm \frac{0.62}{0.59}$  と良く一致している。しかしながら、他の核についての同様な計算では合わないものもあり、より詳しい計算には、集団的な面だけでなく粒子的な面も考えに入れることが必要であろう。

### 参 考 文 献

- 1) E. Eichler : Rev. Mod. Phys. 36 (1964) 809.
- 2) P. D. Barnes et al. : Phys. Rev. 155 (1967) 1319.
- 3) M. Koike : Nucl. Phys. A 98 (1967) 209.
- 4) P. H. Stelson et al. : Nucl. Phys. A 119 (1968) 14.
- 5) Y. S. Kime and B. L. Cohen : Phys. Rev. 142 (1966) 788.
- 6) R. Moreh and A. Nof : Phys. Rev. C 4 (1971) 2265.
- 7) W. T. Milner et al. : Nucl. Phys. A 129 (1969) 687.
- 8) E. W. A. Lingeman et al. : Nucl. Phys. A 122 (1968) 559.
- 9) J. A. Macdonald and H. D. Sharma : Nucl. Phys. A 156 (1970) 321.
- 10) G. Wallace et al. : Nucl. Phys. A 182 (1972) 417.
- 11) Z. W. Grabowski and R. L. Robinson : Nucl. Phys. A 206 (1973) 633.
- 12) J. Ruan et al. : Nucl. Phys. 30 (1962) 431.
- 13) 梶山一典 他, : 核理研研究報告 3 (1970) No. 2, 38.

- 14 ) Y. Kawase *et al.* : Nucl. Phys. A 193 (1972) 204.
- 15 ) Nuclear Data Sheets (1973).
- 16 ) N. Kawamura *et al.* : Private Communication.
- 17 ) W. Greiner : Nucl. Phys. 80 (1966) 417.
- 18 ) G. M. Heestand *et al.* : Nucl. Phys. A 133 (1969) 310.

# I-12 <sup>168</sup>Er 励起状態の Q モーメント

新潟大理学部 加藤光明・下村裕二・大矢 進  
東北大理学部 古沢 昭・陸路 直・林部昭吾\*

## § 1. 序

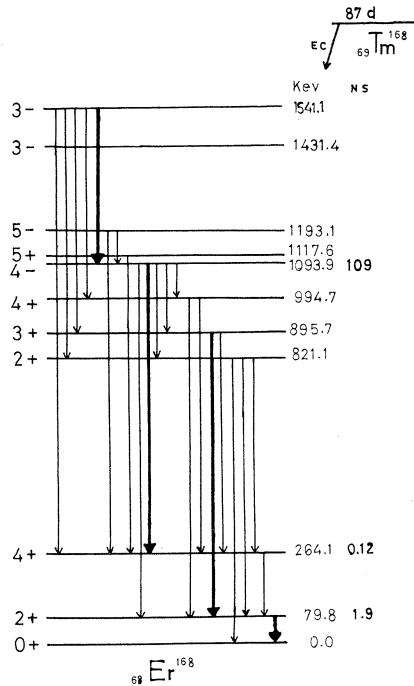
<sup>168</sup>Er核の励起状態について多くの研究者達により、スピン、パリティ等の測定報告<sup>1-4)</sup>があるが、それらの結果から典型的な偶-偶変形核としてかなりよく回転-振動模型が適合する。第1図 80keVの第一2<sup>+</sup>準位を含む基底回転帯、821keVの2<sup>+</sup>準位を先頭とする  $\gamma$ 振動帯が顕著に現われ、それらの準位間隔もよく理解出来る。又1094keV準位については3<sup>-</sup>又は4<sup>-</sup>と報告されてきたが、最近のものによると4<sup>-</sup>が妥当であるとされ、半減期も109 nsと長く、粒子状態と解釈される。しかしこの準位は半減期が長いにも拘らず、磁気能率の報告<sup>5)</sup>があるだけで、Qモーメントについての測定はない。摂動角相関(perturbed angular correlation (PAC))による試みはあったが、角相関係数が非常に小さい為失敗している。我々は2つのGe検出器を用いることにより、角相関係数が比較的大きいと予想される447keV-830keVカスケードについての時間微分PACを可能にし、スピンrotation  $\omega_0$ を測定した。更にNaIとGe検出器を用いて第一励起状態2<sup>+</sup>準位のスピンrotation  $\omega_0$ を測定してこれらの比較をすることにより 1094keV 準位の Q モーメントを決めた。

更にいくつかの転移についてGe- Ge角相関を測定し、多重極混合比を決定した。

## § 2. 実 験

### 2. 1 線源準備

<sup>168</sup>Tm線源は<sup>169</sup>Tm金属を核理研ライナックで照射し、<sup>169</sup>Tm( $\gamma, n$ )<sup>168</sup>Tm反応を得たもので金属の粉末である。これを内径約2mm位のプラスチック製ホルダーに入れ、測定むらのない様にホルダーを回転させた。



第1図 <sup>168</sup>Erのエネルギー準位 (太線は時間微分測定 of 転移, Nuclear Dataより)

## 2. 2 装置及び測定

447keV - 830keVカスケードの時間微分 PAC測定については核理研にある角相関装置を用いた。447keVの $\gamma$ 線は33cm<sup>3</sup>Geを、830keVの $\gamma$ 線は70cm<sup>3</sup>Geをそれぞれ線源から5.0cm,6.0cm離して測定した。又高速同時計数回路系は通常のconstant fraction timingを用いたもので時間分解能は約6.0nsであった。但しエネルギー幅はいずれも $\pm 3.0$ keVとした。

815keV - 80keVカスケード時間微分PAC測定については、2"  $\times$  2" NaIで80keVの $\gamma$ 線を、35cm<sup>3</sup>Geで815keVの $\gamma$ 線をそれぞれ $\pm 6.0$ keV,  $\pm 3.0$ keVのエネルギー幅でとらえた。又、時間分解能は約4.0nsであった。

$\gamma$ 線転移における多重極混合比  $\delta$ の測定は、2つのGe検出器（体積35cm<sup>3</sup>）を用いた角相関測定装置を用いて行った。エネルギー分解能は約4.0keVで、fast timing系はtimepick offタイプのもので時間分解能は約40nsとした。線源と検出器間の距離は可動検出器（ゲート）側で約5.5cm,固定検出器側で約6.0cmとし、立体角補正はモンテカルロ法を用いて計算した。又angle setは90°-180°間を5点測定とし、自動ゴニオメーターにより自動的にマルチに加算された。

## § 3. 結果及び議論

### 3. 1 多重極混合比

多重極混合比の測定結果を第1表に示す。今日迄のNaIによる測定結果は、転移エネルギーが接近している為、多くの転移についてのデータはないが、J.J.Reidy等の結果と比較すると830keV-184keVカスケードについて角相関係数 $A_{22}$ が大きく異なり、我々の結果では $\delta$  (830keV) $\approx -0.05$ でE1 predominantとなり、妥当であろう。又粒子状態と思われる1541keV, 1094keV準位からの転移はE1 predominant, いわゆる $\gamma$ 振動帯から基底回転帯の転移と思われる632keV $\gamma$ 線の $\delta$ が、M1混入の大きいこと、1541keV準位から896keV準位への転移はM2がかなり混入すること等注目される。最近、Ge検出器を2つ用いた角相関の報告<sup>6)</sup>が出たが、我々の実験と大体一致している。

但し、646keV, 547keV転移についての多重極混合の報告はない。

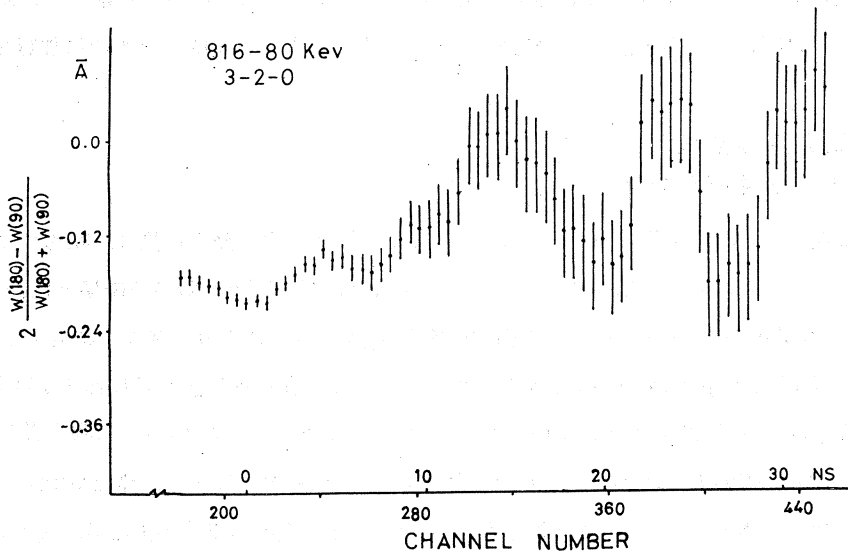
### 3. 2 Q moment

第2図に3-2-0カスケードによる第一励起状態のspin rotationの測定結果を示す。2<sup>+</sup>準位の半減期が1.9nsと短い為、5~6ns以上の所では急激に誤差が大きくなって来るが、スピン2のパターンはよく現われている。これより $\omega_0(2^+) = 224 \pm 4$ Mcとなる。

第3図に3-4-4カスケードによる1094keV励起状態のspin rotationの測定結果を示す。3-4-4カスケードでは角相関係数 $A_{22} \approx -0.06$ 位が予想され測定可能となった。図より2

第1表 角相関係数 $A_{22}$ 及び $A_{44}$ と多重極混合比 $\delta$

CASCADE	A 2	A 4	MIXING $\delta$
1277-184	$-0.144 \pm 0.010$	$0.014 \pm 0.014$	$-0.004 \pm 0.012$ (1277)
830-184	$0.172 \pm 0.011$	$0.037 \pm 0.033$	$-0.053 \pm 0.023$ (830)
816-646	$0.100 \pm 0.025$	$-0.231 \pm 0.034$	$1.22 \begin{matrix} +0.38 \\ -0.35 \end{matrix}$ (646)
816-198	$-0.030 \pm 0.004$	$0.012 \pm 0.008$	$-0.054 \pm 0.076$ (108)
816-80	$-0.121 \pm 0.007$	$-0.034 \pm 0.019$	ATTENUATED
741-80	$-0.032 \pm 0.046$	$0.208 \pm 0.062$	ATTENUATED
730-184	$-0.105 \pm 0.013$	$0.135 \pm 0.023$	$22.7 \begin{matrix} +770 \\ -10.8 \end{matrix}$ (730)
730-547	$0.105 \pm 0.025$	$-0.005 \pm 0.043$	$-0.054 \pm 0.061$ (547)
720-821	$0.100 \pm 0.032$	$-0.005 \pm 0.046$	$-0.034 \pm 0.061$ (720)
632-184	$0.241 \pm 0.039$	$-0.105 \pm 0.073$	$3.53 \begin{matrix} +1.21 \\ -0.97 \end{matrix}$ (632)



第2図  $Tm$ 中の $^{169}Er$ 第1励起状態のPACスペクトル

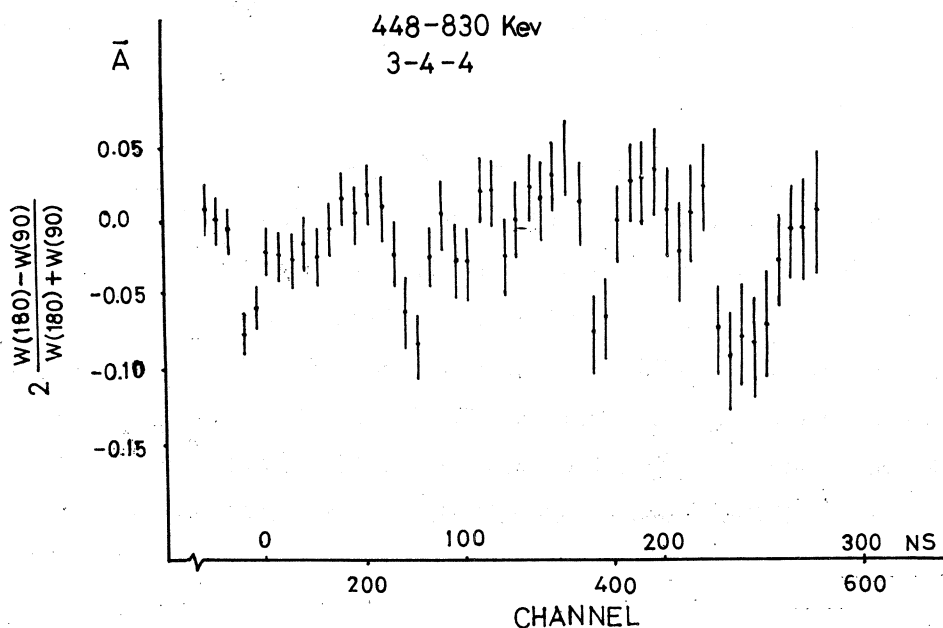
周期迄をとり、最小2乗適合により、 $\omega_0(4^-) = 80.3 \pm 2.6$  Mcが得られた。

一方、このあたりの変形核では第一励起状態は基底回転帯と考えられるのでその転移に対する $B(E2)$ 値と固有 $Q$ モーメント $Q_0$ とは(1)式で示される。

$$B(E2) = \frac{5e^2}{16\pi} Q_0^2 \quad (1)$$

により $Q_0(2^+) = 7.7 \pm 0.2$  barn

これを実験室系に変換すると(2)式により、



第3図 Tm中の<sup>168</sup>Er 1094keV励起状態のPACスペクトル

$$Q = \frac{3K^2 - I(I+1)}{(I+1)(2I+3)} Q_0 \quad (2)$$

$Q(2^*) = -2.21 \pm 0.05$  barn となる。

又spin rotationと電場勾配,  $V_{zz}$ ,  $Q$  モーメント等の関係式は次式で示される。

$$\omega_0 = - \frac{3eQV_{zz}}{4I(2I-1)h} \quad (3)$$

これを用いて

$$\left| \frac{Q(4^-)}{Q(2^*)} \right| = 1.67 \pm 0.07$$

$$Q(4^-) = 3.67 \pm 0.19 \text{ barn}$$

更にbody fixed では

$$Q_0(4^-) = 7.20 \pm 0.38 \text{ barn}$$

基底回転帯に比べると4励起状態では若干小さく出る様である。W.Michaelis等<sup>7)</sup>は1094keV励起状態を  $[633\uparrow + 521\downarrow]_{nn}$  の2つの中性子による準粒子準位と解釈しているが、上述のニルソン軌道で1粒子ならばこのあたりの変形度で約0.14 barn (但し有効電荷を1eとして)位なので、詳しい議論は実験精度とともに今後検討していきたい。

最後にこの実験にいろいろ便宜をはかっていただいた核理研及び石松研の皆様に感謝の意を表します。

### 参 考 文 献

- 1) J.J.Reidy, E.G.Funk, and J.W.Mihelich: Phys. Rev. **133** (1964) B556.
- 2) C.Gunther and D.R.Parsignault: Phys. Rev. **153** (1967) 1297.
- 3) G.E.Keller, E.F. Zganjar and J.J.Pinajian: Nucl. Phys. **A129** (1969) 481.
- 4) J. Lange, R.L.Rasera, H.F.Wagner and W.Schaffner : Nucl. Phys. **A171** (1971) 92.
- 5) B.T.Kim, W.K.Chu and J.C.Glass : Phys. Rev. **C8** (1973) 1920.
- 6) M.Behar, L.M.Quinones and Z.W.Grabowski : Z. Phys. **A274** (1975) 359.
- 7) W.Michaelis, H.Ottmar and F. Weller : Nucl. Phys. **A150** (1970) 161.



## II. 物 性 物 理 部 門

## II-1 金属間化合物 $\text{Ti}_{50}\text{Ni}_{47}\text{Fe}_3$ の中性子回折による相変態の研究

選研 松本 実・本間敏夫・守護嘉朗

### § 1 . 緒言

TiNi のマルテンサイト変態とそれに伴う特異な物性の変化については、未解決の問題が多い<sup>1)</sup>。例えば TiNi の電気抵抗は温度降下と共に単調に減少し、マルテンサイト変態開始温度 ( $M_s$  点) で急激な減少をして小さくなっていく。しかし TiNi に熱サイクルを加えながら電気抵抗の温度変化を観測していくと、冷却の際の電気抵抗-温度曲線において、 $M_s$  点のやや高温側にピークが現われる。 $M_s$  点とピークの高さは熱サイクル数と共に変化する。すなわち熱サイクル数の増加と共に  $M_s$  点は降下し、ピークの高さが増大する。 $M_f$  点以下の温度からの加熱の際の電気抵抗は、冷却の際のような変化をせず、温度上昇と共に単調な増加をつけて母相の電気抵抗値と一致する。温度上昇の際の電気抵抗の温度変化は熱サイクルによって影響を受けない<sup>2)</sup>。このような冷却に伴う電気抵抗の変化は、電気抵抗の温度ヒステリシスにおける加熱曲線の単調さから、折出物等による電気抵抗増加のためとは考えられず、原因は明らかになっていない。このようなことから電気抵抗が温度降下とともに増大する温度 ( $M'_s$  点) から  $M_s$  点に至る温度範囲では、母相やマルテンサイト相とは異った状態にあるものと考えられる。

このような特異な電気抵抗の温度変化は、TiNi に熱サイクルを加えた時以外に、TiNi の Ni を数 at % の遷移金属元素 (V, Cr, Mn, Fe, Co) で置換した場合においても観測される<sup>3, 4)</sup>。この場合は試料に熱サイクルを加えなくとも  $M_s$  点での電気抵抗値はピークを示し、 $M_s$  点は試料における平均自由電子濃度の変化に比例して降下する。TiNi の Ni を Fe で置換した場合、Fe 原子の増加と共に  $M'_s$  点および  $M_s$  点はいずれも降下するが、降下の割合は  $M_s$  点の場合の方が大きい。Fe 4.25 at % 以上では  $M_s$  点は  $-150^\circ\text{C}$  以下となる。 $\text{Ti}_{50}\text{Ni}_{47}\text{Fe}_3$  においては液体窒素温度以上で電気抵抗-温度曲線に巾広いピークが現われ、マルテンサイト変態が完了し<sup>4)</sup>、 $M_s$  と  $M'_s$  点の差は大きい。このため本研究の試料として  $\text{Ti}_{50}\text{Ni}_{47}\text{Fe}_3$  を用いた。 $\text{Ti}_{50}\text{Ni}_{47}\text{Fe}_3$  の相変態の研究は TiNi のマルテンサイト変態における問題の解決に有力な手がかりになると考えられる。

本研究グループはこれまで  $\text{Ti}_{50}\text{Ni}_{47}\text{Fe}_3$  の電気抵抗、帯磁率および比熱の温度変化を測定し、室温と液体窒素温度の温度範囲で X 線回折を行った。本研究では  $\text{Ti}_{50}\text{Ni}_{47}\text{Fe}_3$  の相変態に伴う



結晶構造変化を明らかにする目的で、中性子回折を行い、変態機構について考察する。

## § 2 . 試料

$Ti_{50}Ni_{47}Fe_3$  の試料は次のようにして作製した。チタン（純度99.7%）および電解ニッケルおよび電解鉄（いずれも純度99.9%）を所定の混合比に秤量し、電子ビーム法によって熔解した。試料の均一化のため、再熔解をくり返した。得られた熔解ボタンはそれぞれの測定目的に応じて鍛造あるいは圧延処理を行った後成形された。試料はいずれも多結晶試料であり、成形後真空中で900°C、2時間焼鈍をしてから炉冷した。電気抵抗測定には $2 \times 2 \times 15$ mm, X線回折には $19 \times 17 \times 1$ mm, 中性子回折には比熱測定試料と同一の円筒状試料（直径20mm, 長さ20mm）を用いた。帯磁率は粒状試料を用いて測定した。

## § 3 . 実験方法

電気抵抗は電位差計法および4端子交流法で測定した。4端子交流法ではミリオームメーターを用い、電気抵抗の温度変化はX-Yレコーダーに記録した。電気抵抗の温度変化の著しい温度領域では主として4端子交流法によって測定した。試料は真空にした石英管の中におかれ、液体窒素および電気炉を使って温度変化させた。

帯磁率は磁気天秤を用いて測定した。

比熱は断熱型熱量計を用い、液体窒素温度から測定した。

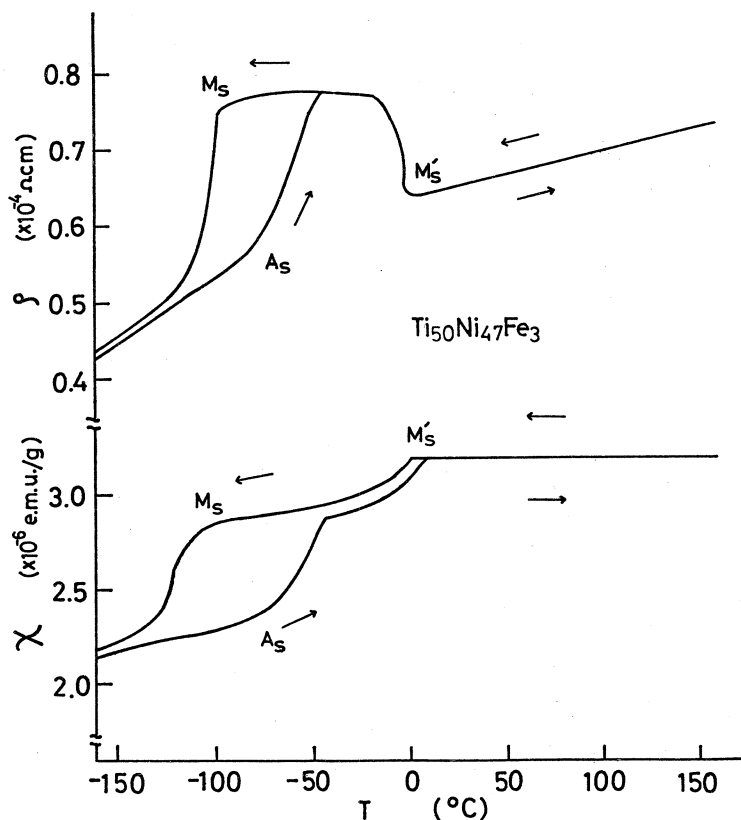
X線回折は低温用ディフラクトメーターにより、冷却あるいは加熱しながら各温度において回折パターンを得た。

中性子回折は東北大学核理研の中性子回折装置を用い、TOF - Debye - Scherrer 法により行なった<sup>5)</sup>。温度変化は液体窒素用クライオスタットを用いて行った。入射中性子ビームは鉛およびボロンナイトライド板のスリットを通して試料に導かれた。カウンターは $2\theta=30^\circ$ 、 $60^\circ$ および $90^\circ$ におかれた。

CsCl 型の結晶構造をもつ TiNi では、中性子回折においてチタンとニッケルの中性子散乱振幅 ( $b_n = - (3.3 \pm 0.3) \times 10^{-13} \text{cm (Ti)}$ ,  $b_n = + (10.25 \pm 0.09) \times 10^{-13} \text{cm (Ni)}$ ) が互いに逆符号のため規則格子線が基本格子線より検出しやすく、X線回折においてはチタンとニッケルの原子散乱因子 ( $\sin \theta / \lambda (\text{\AA}^{-1}) = 0$  で  $f = 22$  (Ti),  $f = 28$  (Ni)) が接近しているため基本格子線が規則格子線より検出しやすい。

## § 4 . 実験結果

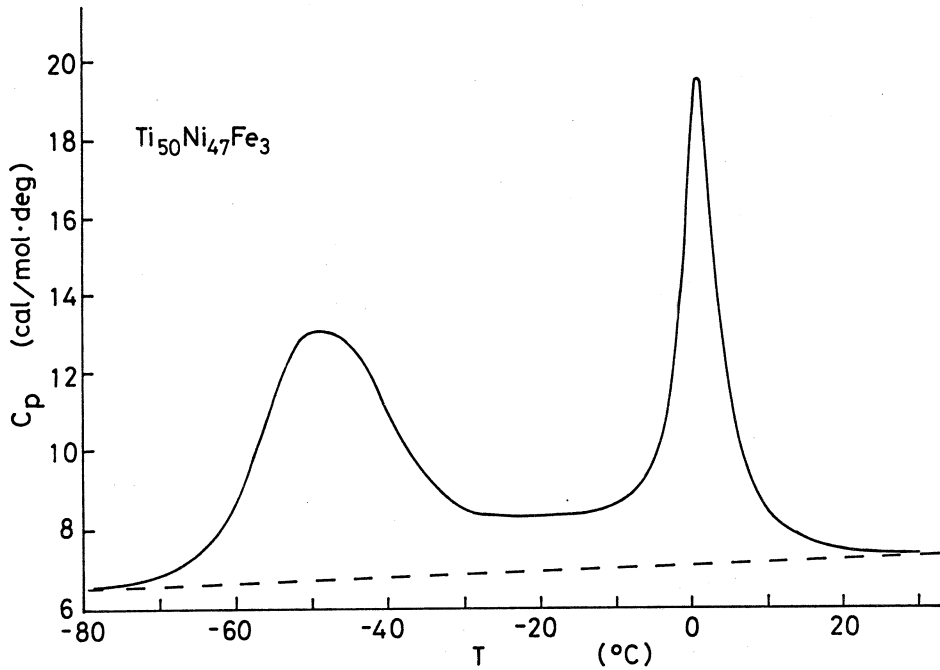
(1) 電気抵抗, 帯磁率, 比熱, およびX線回折



第1図  $Ti_{50}Ni_{47}Fe_3$  の電気抵抗および帯磁率の温度変化。

電気抵抗および帯磁率の温度変化の測定結果を第1図に示す。室温での電気抵抗値は冷却と共に減少したが、 $M'_s$ 点において急激に増加しはじめた。帯磁率は室温以上で温度変化は小さかった。さらに冷却を続けると、電気抵抗値は温度変化が小さくなり、 $M_s$ 点で急激に減少して電気抵抗-温度曲線に巾広いピークを作った。帯磁率は冷却に伴って $M'_s$ 点からわずかに減少しながら温度変化をして、 $M_s$ 点で急激に減少した。-150°Cでの帯磁率は室温の値の $\frac{2}{3}$ となった。一方液体窒素温度から加熱した場合、電気抵抗と帯磁率はともに単調に増加したが、-80°C付近で急激に増加しはじめた。-40°C付近で電気抵抗は冷却の際の電気抵抗-温度曲線と一致し、高温まで逆の経路をたどった。帯磁率は-40°C付近から温度変化が小さくなり+10°C付近で冷却時の値と一致して温度変化は小さくなった。

比熱の測定結果を第2図に示す。比熱-温度曲線において-48.6°Cおよび+0.6°Cに極大値をもつ吸熱ピークが2つ現われた。低温側の吸熱曲線は高温側のものに比べ広い温度巾で観測された。これら吸熱に伴う熱量は、低温側では118cal/mol、高温側では103cal/mol



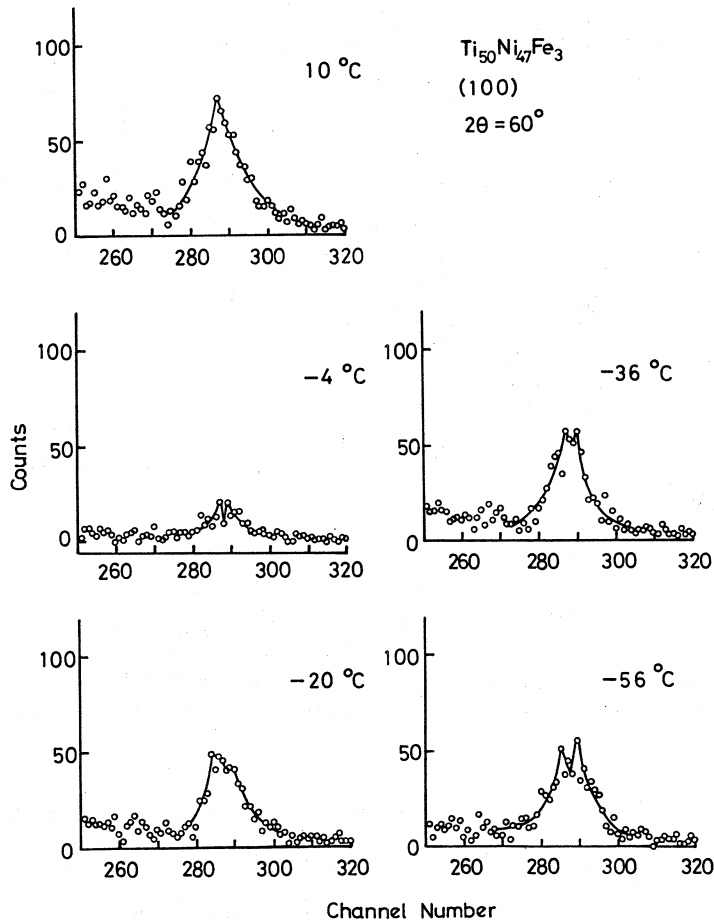
第2図  $Ti_{50}Ni_{47}Fe_3$  の比熱-温度曲線。

と算出された。二つの吸熱ピークの間温度領域では、比熱の値がベースラインに比べ大きくなって観測された。

X線回折は室温から液体窒素温度へ冷却する過程および液体窒素温度から室温へ加熱する過程での各温度で行った。室温での回折線はCsCl型構造で説明される。(110)回折パターンの回折角附近に注目すると、冷却に伴い $M'_s$ 点以下では(110)は2本に分離して観測された。 $M_s$ 点以下では(110)の2本に分離した回折線と共にマルテンサイト相からの回折線が現われはじめ、温度降下と共にマルテンサイト相からの回折線の強度が大きくなり、2本に分離した(110)回折線の強度は小さくなっていった。液体窒素温度ではすべてマルテンサイト相からの回折線で、これらは歪んだB19構造で説明される。液体窒素温度からの加熱の際は、温度上昇に伴いマルテンサイト相からの回折線に(110)の2本に分離した回折線が現われた後、マルテンサイト相からの回折線が消失して、(110)の2本に分離した回折線だけとなり、室温においては(100)の回折線だけとなった。

(2) 中性子回折

中性子回折の結果もX線回折の場合と同様な結果を示した。回折パターンは室温(10°C)ではCsCl型構造で説明できるが、 $M'_s$ 点(0°C)以下では(100)の規則格子線の分離が観測された。第3図に冷却に伴う(100)の回折パターンの変化を示す。

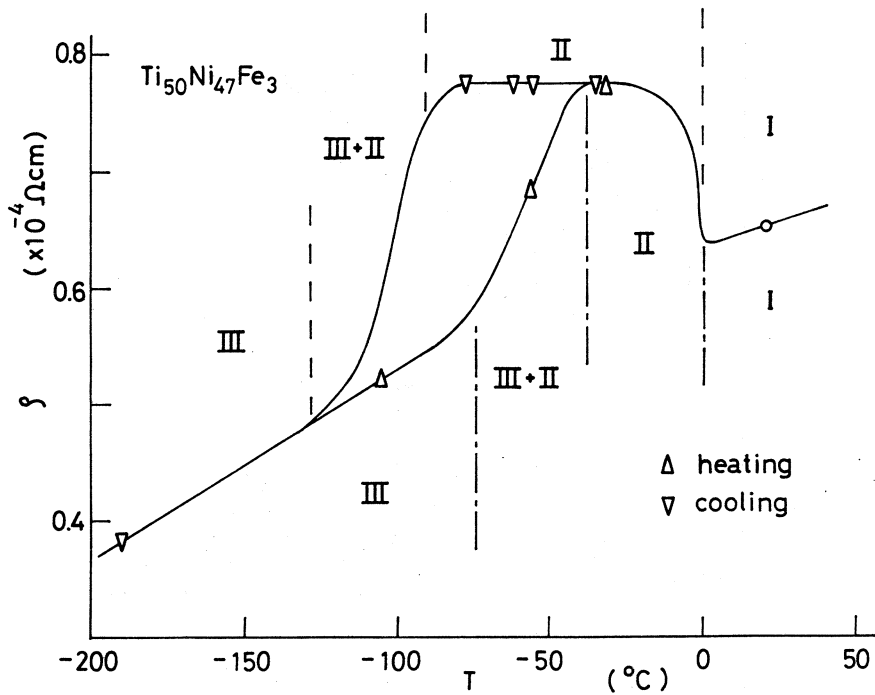


第3図  $Ti_{50}Ni_{47}Fe_3$  の中性子回折。  $2\theta = 60^\circ$  での冷却に伴う (100) 回折線の温度変化。

### § 5 . 考 察

$Ti_{50}Ni_{47}Fe_3$  の電気抵抗、帯磁率および比熱の温度変化とX線および中性子回折の結果から、 $Ti_{50}Ni_{47}Fe_3$  の相変態について次のように考えることができる。第4図に示すように冷却と共に母相 (CsCl型構造, 図中I) は  $M'_s$  点で全体として中間状態 (CsCl型正方晶,  $c/a = 1.03$ , 図中II) に変態する。この変態は一般のマルテンサイト変態とは異なる。更に冷却を続けると、この中間状態は  $M_s$  点でマルテンサイト変態を起してマルテンサイト相 (歪んだB19構造, 図中III) になる。一方液体窒素温度から加熱の場合、マルテンサイト相 (III) は中間状態 (II) を経て、母相 (I) になる。マルテンサイト変態はBurgers の関係<sup>6)</sup>で説明される。

冷却に伴う電気抵抗および帯磁率の異常な温度変化は、母相から中間状態を経て、マルテン



第4図 電気抵抗-温度曲線上に示した $Ti_{50}Ni_{47}Fe_3$ の相変態の関係。  
○は室温,  $\nabla, \Delta$ は冷却および加熱時にX線回折が行なわれた温度を示す。

サイト相に変態する過程を示している。加熱に伴いマルテンサイト相から中間状態を経て母相への逆変態は電気抵抗, 帯磁率および比熱の温度変化に現われている。比熱-温度曲線における低温側の吸熱ピークはマルテンサイト相から中間状態, 高温側の吸熱ピークは中間状態から母相への相変態を示している。

$Ti_{50}Ni_{47}Fe_3$ の相変態における $M'_s$ 点と $M_s$ 点は $\sim 100^\circ$ の温度間隔がある。 $M'_s$ 点と $M_s$ 点のFe濃度依存性からTiNiの $M'_s$ 点と $M_s$ 点を考えてみるとこれらは非常に接近している。 $Ti_{50}Ni_{47}Fe_3$ において観測された中間状態がTiNiにおいても存在するとすれば, TiNiのマルテンサイト変態に伴う諸現象の複雑さは, この中間状態に原因するためとも考えられる。

### 参 考 文 献

- 1) 本間敏夫: 日本金属学会会報 12 (1973) 157.
- 2) C. M. Wayman, I. Cornelis and K. Shimizu: Scripta Met. 6 (1972) 115.
- 3) 本間敏夫, 守護嘉朗, 松本実: 東北大学選鉱製錬研究所彙報 28 (1972) 209.
- 4) 竹内栄, 本間敏夫, 鈴木謙爾, 山崎勲: 日本金属学会講演概要 昭和42年

(第60回東京) 197.

- 5) 松本実, 守護嘉朗, 本間敏夫 : 東北大学選鉱製錬研究所彙報 28 (1972) 65.
- 6) W. G. Burgers : Physica 1 (1934) 561.



## II - 2 T-O-F Pulsed Neutron Diffraction of Amorphous and Liquid Pd<sub>0.8</sub>Si<sub>0.2</sub> Alloy

T. Fukunaga, M. Misawa and K. Suzuki

*The Research Institute for Iron, Steel and Other Metals,  
Tohoku University*

### § 1. Introduction

Conventional X-ray diffraction experiment does not seem to be fruitful to explore in detail the structure of metal-metalloid amorphous alloys, because atomic scattering amplitudes of metalloid atoms for X-ray are fairly small compared with those of metallic atoms and maximum wave numbers of scattering vector available in X-ray experiment are limited within a relatively low value of  $Q (=4\pi\sin\theta/\lambda)$ , for example,  $17\text{\AA}^{-1}$  for the use of MoK $\alpha$  radiation. Furthermore, precise measurement of total structure factor  $S(Q)$  by X-ray diffraction often becomes very difficult due to remarkable decrease of atomic scattering amplitude and contamination of Compton scattering in high  $Q$  region.

It has been pointed out that the short-range order determined by strong chemical bonds between unlike atoms has played a major roll in stabilizing the amorphous structure of metal-metalloid alloys<sup>1)</sup> Crucial informations about the short-range structure may be expected to appear distinctly in the  $S(Q)$  observed in high  $Q$  region.

The neutron yield in epithermal region corresponding to its wavelength from 0.3 to 0.5  $\text{\AA}$  is fairly high in the energy spectrum of neutrons produced by an electron linac compared with that by conventional nuclear reactor.<sup>2)</sup> Therefore, the electron linac is quite powerful as a pulsed neutron source to

measure the  $S(Q)$  for a variety of liquids and amorphous solids in high  $Q$  region.

We measured the  $S(Q)$  of  $\text{Pd}_{0.8}\text{-Si}_{0.2}$  alloy in both the amorphous and liquid state over a wide range of  $Q$  up to  $40 \text{ \AA}^{-1}$  by means of time-of-flight pulsed neutron diffraction based on the electron linac. Results and discussions are described below.

## §2. Experimental

Measurements of total structure factor  $S(Q)$  were made using the time-of-flight pulsed neutron diffractometer installed at Tohoku University electron linac.<sup>3)</sup>

Ribbons of  $30 \mu\text{m}$  thickness and  $2.0 \text{ mm}$  width were prepared for the sample of  $\text{Pd}_{0.8}\text{-Si}_{0.2}$  amorphous alloy by splat cooling from the melt using twin-roll technique. The ribbon was cut into small pieces less than  $5 \text{ mm}$  length and then contained in a vanadium cylinder of  $0.1 \text{ mm}$  wall thickness,  $10 \text{ mm}$  inner diameter and  $50 \text{ mm}$  length for the measurement of the  $S(Q)$  at room temperature.

The liquid alloy was sealed in vacuum in a silica tube of  $0.2 \text{ mm}$  wall thickness,  $10 \text{ mm}$  inner diameter and  $50 \text{ mm}$  length. Temperature of the liquid alloy was held at  $980^\circ\text{C}$  during the measurement by an electric heating furnace which was specially designed for heating elements not to be located in the way of neutron beams.

Necessary and detailed procedures of correction for absorption, sample vessel, background and multiple scattering have been given in a previous report<sup>4)</sup> as well as discussions of resolution and performance of the diffractometer.

## §3. Result

The observed  $S(Q)$  of  $\text{Pd}_{0.8}\text{-Si}_{0.2}$  amorphous and liquid

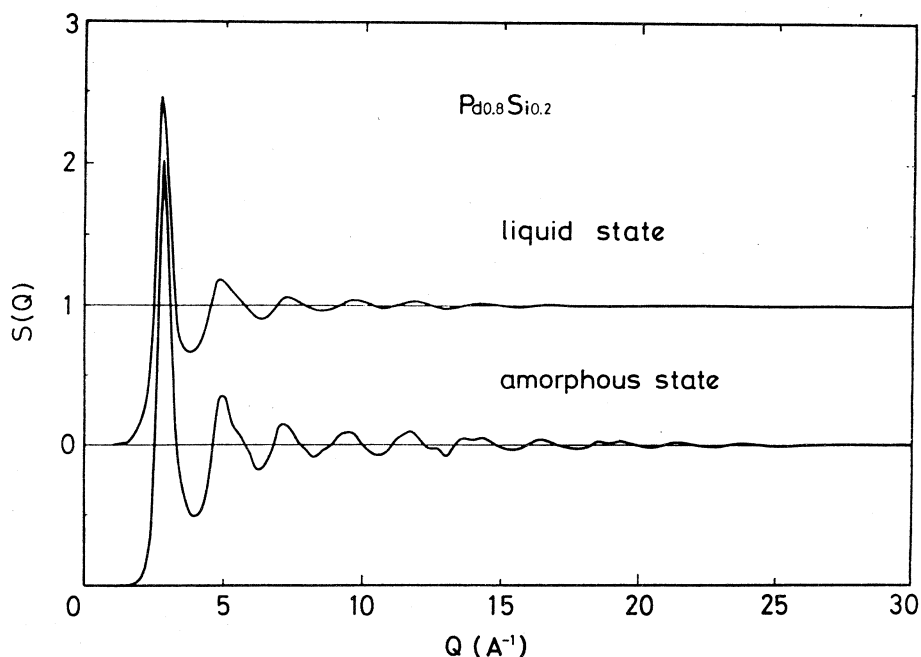


Fig. 1 Total structure factors of  $\text{Pd}_{0.8}\text{-Si}_{0.2}$  amorphous and liquid alloy.

alloy are shown in Fig. 1. The  $S(Q)$  of the amorphous alloy has definitely shown that an oscillation persists up to the value of  $Q$  close to  $25 \text{ \AA}^{-1}$ . Shoulders can be realized on the high  $Q$  side of the 3rd peak as well as the 2nd peak and fine subpeaks appear on higher peaks.

On the other hand, the  $S(Q)$  of the liquid alloy has more smoothly broadened peaks, of which positions correspond exactly to those of the amorphous alloy. The oscillation of the falls down so rapidly with the increase of  $Q$  that any oscillation can not be found in the range of  $Q$  higher than  $17 \text{ \AA}^{-1}$ .

Figures 2 and 3 show the effect of truncating numerical integration of Fourier transformation of the observed  $S(Q)$  into the radial distribution function(RDF) in both the amorphous and liquid alloy. As a resolution in real space is progressively improved by truncating Fourier transformation at higher  $Q_{\text{max}}$ ,

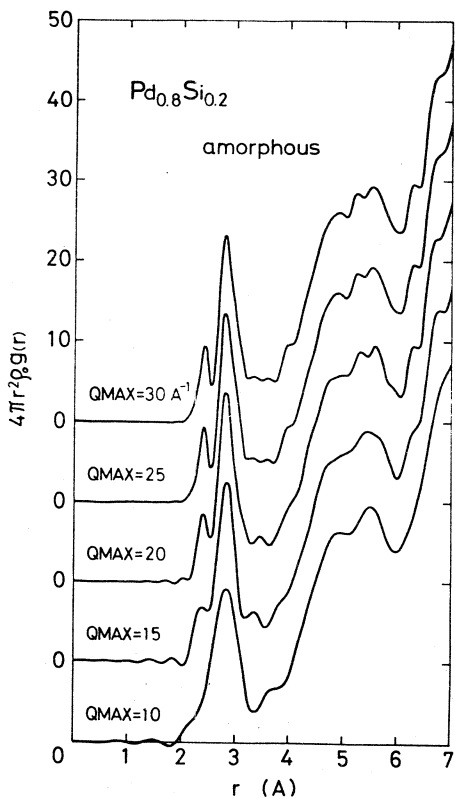


Fig. 2 Radial distribution functions of  $\text{Pd}_{0.8}\text{Si}_{0.2}$  amorphous alloy Fourier-transformed by truncating total structure factor at various values of scattering vector ( $Q_{\text{max}}$ )

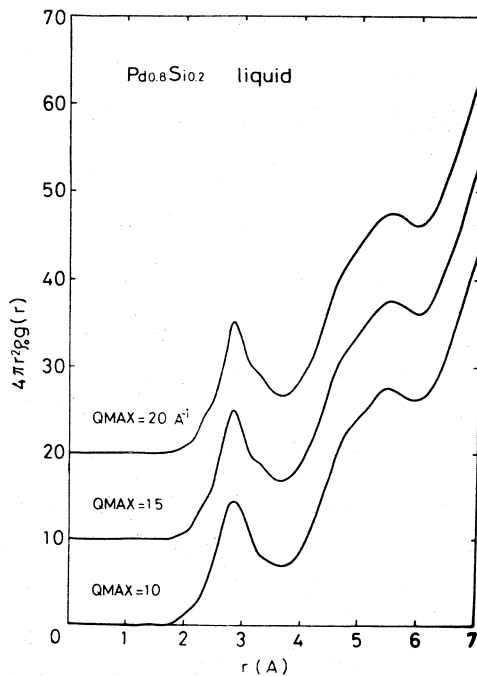


Fig. 3 Radial distribution functions of  $\text{Pd}_{0.8}\text{Si}_{0.2}$  liquid alloy Fourier-transformed by truncating total structure factor at various values of scattering vector ( $Q_{\text{max}}$ )

splitting of the 1st peak into two subpeaks is distinctly found in the amorphous alloy where  $Q_{\text{max}}$  is higher than  $20 \text{ \AA}^{-1}$ . The 1st subpeak is located at 2.42  $\text{\AA}$ , while the position of the 2nd subpeak is 2.81  $\text{\AA}$ .

In the RDF of the liquid alloy distinct splitting of the 1st peak like in the amorphous alloy can not be observed even

in case of  $Q_{\max} = 20\text{\AA}^{-1}$ .

The 1st peak of the RDF is much spread out and the height at large distance side of the 1st peak rises up in the liquid alloy.

#### § 4. Discussion

Although there have been several discussions<sup>5)</sup> on the asymmetric character of the 1st peak of the RDF for metal-metalloid amorphous alloys so far, the result shown in Fig. 2 may be, as far as we know, the first observation of distinct splitting of the 1st peak of the RDF for  $\text{Pd}_{0.8}\text{-Si}_{0.2}$  amorphous alloy.

Figure 4 shows a comparison between the crystalline

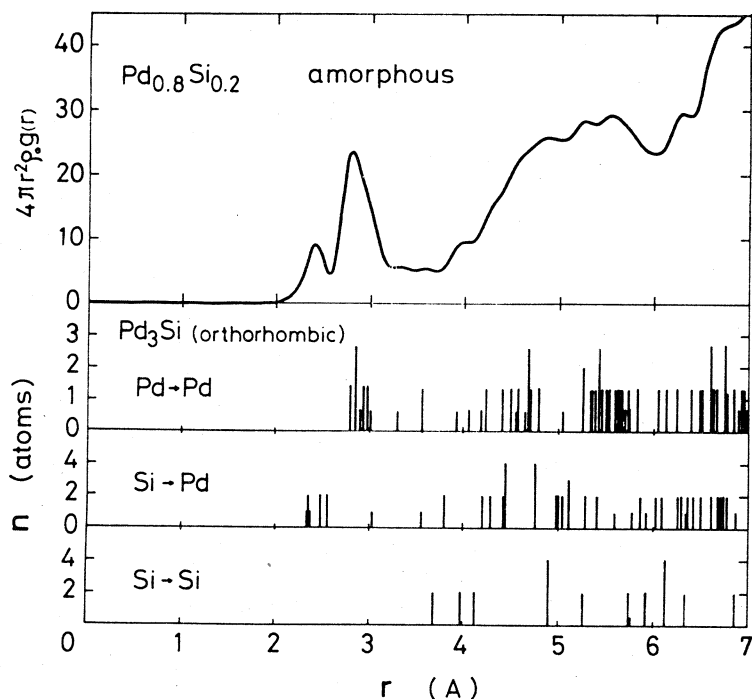


Fig. 4 Comparison between RDF of amorphous  $\text{Pd}_{0.8}\text{-Si}_{0.2}$  alloy and Pd-Pd, Pd-Si, Si-Si correlations in  $\text{Pd}_3\text{Si}$  crystalline compound.

Table 1 Bond lengths and coordination numbers of Pd-Si and Pd-Pd correlations in Pd<sub>3</sub>Si crystalline compound and Pd<sub>0.8</sub>-Si<sub>0.2</sub> amorphous alloy

	Pd <sub>0.8</sub> -Si <sub>0.2</sub> amorphous alloy		Pd <sub>3</sub> Si crystalline compound	
	Bond length	Coordination number	Bond length	Coordination number
Pd-Si	2.42 A	1.8*	2.44 A	2*
Pd-Pd	2.81 A	10.4	2.9 3.0 A	10 11

\* average number of Si atoms around a Pd atom

structure of Pd<sub>3</sub>Si compound(orthorhombic)<sup>6)</sup> and the observed RDF of amorphous Pd<sub>0.8</sub>-Si<sub>0.2</sub> alloy. The nearest neighbour Pd-Pd and Pd-Si separations contained in Pd<sub>3</sub>Si crystalline structure are very close to the positions of two subpeaks split from the 1st peak in Pd<sub>0.8</sub>-Si<sub>0.2</sub> amorphous alloy. As shown in Table 1, the coordination numbers for the nearest neighbour Pd-Pd and Pd-Si correlations are also closely related between amorphous Pd<sub>0.8</sub>-Si<sub>0.2</sub> alloy and Pd<sub>3</sub>Si crystalline compound. The nearest neighbour Si-Si separation in Pd<sub>3</sub>Si crystalline structure is not found in the range less than 3.68 A. This fact indicates that Si atoms never occupy the adjacent lattice sites in the close contact in Pd<sub>3</sub>Si crystalline compound. A small hump appearing at near 4 A in the observed RDF may suggest that the close contact of Si atoms is also prohibited in the Si-Si correlation in amorphous Pd<sub>0.8</sub>-Si<sub>0.2</sub> alloy as pointed out by Sadoc and Dixmier<sup>7)</sup> in amorphous Co-P alloys.

#### References

- 1) H. S. Chen and B. K. Park, Acta Met., **21** (1973) 395.
- 2) M. Misawa, Y. Fukushima, K. Suzuki and S. Takeuchi, Res. Report Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ., **6** (1973) 88.
- 3) K. Suzuki, M. Misawa and Y. Fukushima, Trans. JIM, **16** (1975)

295.

- 4) M. Misawa, K. Kai, K. Suzuki and S. Takeuchi, Res. Report Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ., **5**(2) (1972) 73.
- 5) D.E. Polk and D.S. Boudreaux: J. Physique Colloq., **36** (1975) C2-56.
- 6) B. Aronson and Anna Nylund: Acta Chem. Scand., **14** (1960) 1011.
- 7) J.F. Sadoc and J. Dixmier: D-3 presentation in Second International Conference on Rapidly Quenched Metals, Nov. 17-19, 1975, MIT, Cambridge, Massachusetts, U.S.A.

## II - 3 Structure of Molten $\text{NaNO}_2$ and $\text{KNO}_2$ by T-O-F Pulsed Neutron Diffraction

Y. Fukushima and K. Suzuki

*The Research Institute for Iron, Steel, and Other Metals,  
Tohoku University*

### § 1. Introduction

Near the melting point liquids often show a short-range structure having quite high degree of ordering among nearest neighbours like in the crystalline state. Since crystalline sodium nitrite  $\text{NaNO}_2$  is one of typical dielectric substances, it is very interesting to explore what kinds of structural correlations exist between  $\text{Na}^+$  and  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Na}^+$  and  $\text{NO}_2^-$  and  $\text{NO}_2^-$  and  $\text{NO}_2^-$  in molten  $\text{NaNO}_2$ .

Intra-radical structures of  $\text{NO}_3^-$  in various molten mono-valent metal niterates ( $\text{MNO}_3$ ) have been reported in a previous paper<sup>1)</sup>, and three types of inter-ionic correlations, i.e.  $\text{M}^+$ - $\text{M}^+$ ,  $\text{M}^+$ - $\text{NO}_3^-$  and  $\text{NO}_3^-$ - $\text{NO}_3^-$  correlations are under analysis. Therefore, comparison of the structure between molten nitrites and nitrates is also a problem to attract attentions.

Based on such points of view, T-O-F pulsed neutron diffraction experiments were carried out on molten  $\text{NaNO}_2$  and  $\text{KNO}_2$ .

### § 2. Experimental

To increase counting rates in high  $Q (=4\pi\sin\theta/\lambda)$  region, the arrangement of counters at backward-scattering angles was remodeled based on "time-focus" method.<sup>2)</sup> Counters were located around the scattering angle  $2\theta=145.25^\circ$  with variable flight paths. Counter layout is shown in Fig. 1. In addition,  $Q$  resolution was improved by using variable width in time



analysis. The procedures about the spectrometer layout and data processing are same with those described in a previous report.<sup>3)</sup>

Samples were sealed in vacua in a silica tube with 0.3 mm thick wall and 10 mm inner diameter. Before sealing, samples were dried at temperatures 120 to 150°C in vacua for 24 to 48 hours. During the measurement the temperature of liquid samples was kept by electric furnace.<sup>4)</sup>

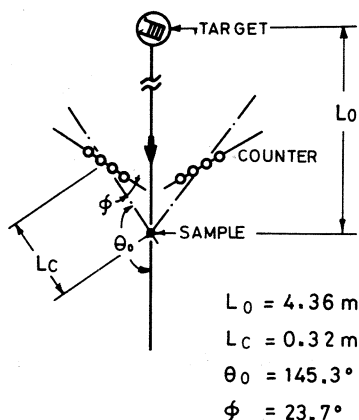


Fig. 1 Counter layout at backward-scattering angles.

### §3. Experimental results

#### 3.1 Structure factors

Fig. 2 shows the structure factors  $S_m(Q)$  observed for molten  $\text{NaNO}_2$  at 290°C and  $\text{KNO}_2$  at 480°C. In high  $Q$  region,  $S_m(Q)$ 's are very similar with each other. Therefore, the intra-radical structure of  $\text{NO}_2^-$  in molten nitrites can be derived from the data in high  $Q$  region. On the other hand, there are differences between the  $S_m(Q)$ 's in the range of  $Q < 5 \text{ \AA}^{-1}$ . The behaviours of  $S_m(Q)$ 's in this region for molten  $\text{NaNO}_2$  and

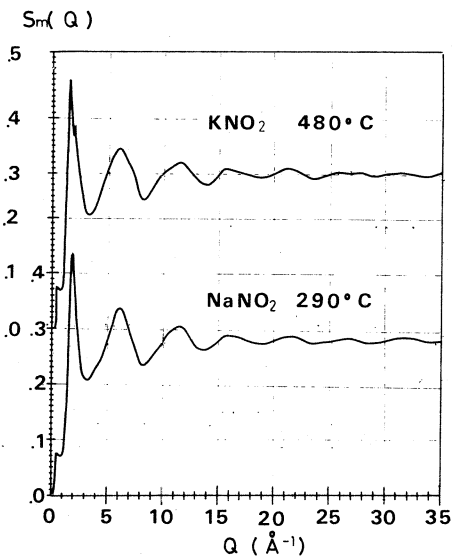


Fig. 2 Structure factors observed for molten  $\text{NaNO}_2$  and  $\text{KNO}_2$ .

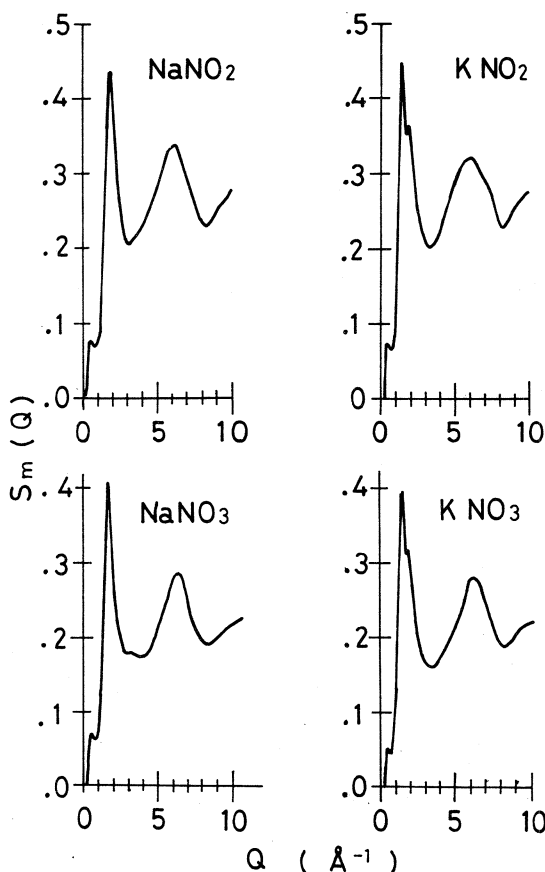


Fig. 3 Structure factors in low  $Q$  region observed for  $\text{NaNO}_2$ ,  $\text{KNO}_2$ ,  $\text{NaNO}_3$  and  $\text{KNO}_3$ .

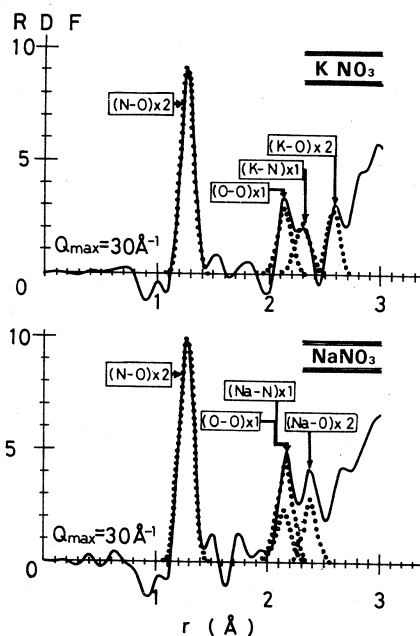


Fig. 4 Radial distribution functions for molten  $\text{NaNO}_2$  and  $\text{KNO}_2$ .

$\text{KNO}_2$  are very similar to those for molten  $\text{NaNO}_3$  and  $\text{KNO}_3$  respectively, as shown in Fig. 3.

### 3.2 Radial distribution functions

Fig. 4 shows the radial distribution functions (RDF) for molten nitrites Fourier-transformed from the observed  $S_m(Q)$ 's. Both nitrites have a sharp peak in the RDF at  $r \sim 1.26 \text{ \AA}$ , which corresponds to the N-O bond in a  $\text{NO}_2^-$  radical. The second and third peaks near  $r = 2.0 \sim 2.5 \text{ \AA}$  are assumed to display the O-O separation in a  $\text{NO}_2^-$  radical and  $\text{M}^+ \text{-N}$  or  $\text{M}^+ \text{-O}$  separation.

## § 4. Discussions

### 4.1 Intra-radical structures of a $\text{NO}_2^-$

Observed structure factors  $S_m(Q)$  were analysed in the range of  $Q > 7\text{\AA}^{-1}$  to determine the structure of a  $\text{NO}_2^-$  radical in molten nitrites. The  $S_m(Q)$ 's were fitted by least squares method with the form factor  $F_1^R(Q)$  for a  $\text{NO}_2^-$  radical

$$F_1^R(Q) = \frac{1}{(b_M + b_N + 2b_O)^2} \left[ b_M^2 + b_N^2 + 2b_O^2 + 4 \cdot b_N \cdot b_O \cdot \frac{\sin(Q \cdot r_{NO})}{Q \cdot r_{NO}} \cdot \exp\left(-\frac{\langle \Delta_{NO}^2 \rangle}{2} \cdot Q^2\right) + 2 \cdot b_O^2 \cdot \frac{\sin(Q \cdot r_{OO})}{Q \cdot r_{OO}} \cdot \exp\left(-\frac{\langle \Delta_{OO}^2 \rangle}{2} \cdot Q^2\right) \right], \dots\dots\dots(1)$$

where  $b_M$ ,  $b_N$  and  $b_O$  are the coherent scattering lengths of nuclei of M (Na and K), N and O atom,  $r_{NO}$  and  $r_{OO}$  are atomic spacings in N-O and O-O pair, and  $\langle \Delta_{NO}^2 \rangle$  and  $\langle \Delta_{OO}^2 \rangle$  mean average square amplitudes of fluctuations of atomic spacings in N-O and O-O pair. Numerical values of parameters used for the best fitting are listed in Table 1.

Table 1. Structure of  $M^+-\text{NO}_2^-$  unit in molten  $\text{NaNO}_2$  and  $\text{KNO}_2$

	N-O	O-O	$M^+-N$	$M^+-O$
$\text{NaNO}_2$	1.261	2.178	2.178	2.380
$\text{KNO}_2$	1.263	2.171	2.295	2.580

(Å)

### 4.2 Metal - $\text{NO}_2^-$ correlations

As shown in Fig. 4, nearest neighbour distances in  $K^+-N$  and  $K^+-O$  correlations can be observed separately in the RDF. On the other hand, the  $\text{Na}^+-N$  distance are nearly equal to the O-O distance in  $\text{NO}_2^-$  radical, but the  $\text{Na}^+-O$  pair can be found separately.  $M^+-N$  and  $M^+-O$  distances are also listed in Table

1. These results may suggest that a  $M^+-NO_2^-$  unit in molten nitrites behaves, as shown in Fig. 5, as like a molecule. Calculated form factors  $F_1(Q)$  for this  $M^+-NO_2^-$  unit are shown in Fig. 6 and Fig. 7, respectively.

4.3 Inter-unit ( $M^+-NO_2^-$ ) correlations

Inter-unit correlation functions

$S_{inter}(Q)$ 's can be derived from the relation,  $S_{inter}(Q) = S_m(Q) - F_1(Q)$  and are also shown in Fig. 6 and Fig. 7. Fig.

6 and Fig. 7 shows that the  $S_{inter}(Q)$ 's in molten nitrites are similar to that of inter-radical correlation in molten  $LiNO_3$ .<sup>1)</sup>

$S_{inter}(Q)$  is described as follows<sup>5)</sup>

$$S_{inter}(Q) = F_2(Q) \cdot (S_c(Q) - 1), \dots\dots\dots (2)$$

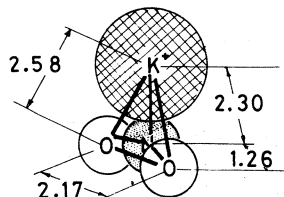
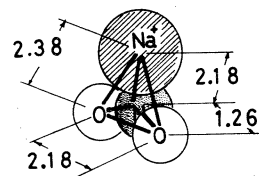


Fig. 5  $M^+-NO_2^-$  unit structure

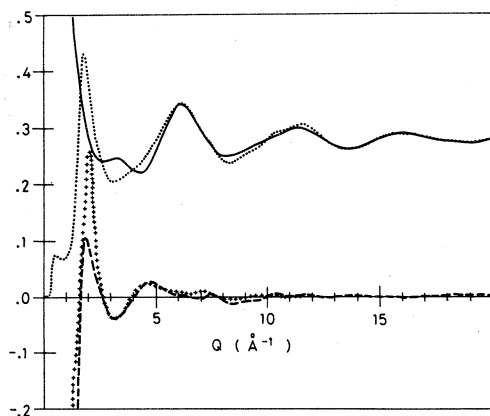


Fig. 6 Calculated form factor  $F_1(Q)$  for  $Na^+-NO_2^-$  unit in molten  $NaNO_2$  (—), observed  $S_m(Q)$  (···),  $S_{inter}(Q)$  (---) in  $NaNO_2$  and  $S_{inter}(Q)$  in  $LiNO_3$  (++++). [ $S_{inter}(Q)$  in  $LiNO_3$  is normalized at the position of the 1st peak to  $S_{inter}(Q)$  in  $NaNO_2$ .]

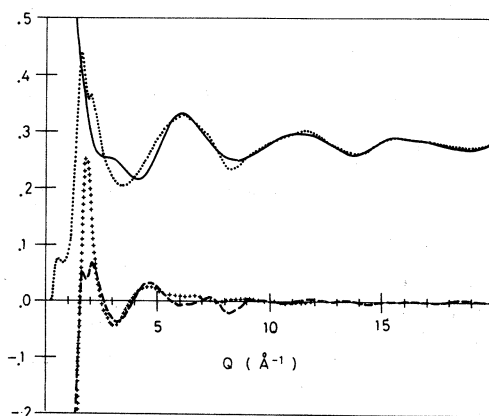


Fig. 7 Calculated form factor  $F_1(Q)$  for  $K^+-NO_2^-$  unit in molten  $KNO_2$  (—), observed  $S_m(Q)$  (···),  $S_{inter}(Q)$  (---) in  $KNO_2$  and  $S_{inter}(Q)$  in  $LiNO_3$  (++++).

where  $F_2(Q)$  is the form factor related to the orientational correlation between the units, and  $S_c(Q)$  is the structure factor for the center of units. If it is assumed whether the orientation of units are uncorrelated or parallel,  $F_2(Q)$  are given as follows,

$$F_2^u(Q) = \left[ b_N + 2 \cdot b_o \frac{\sin(Q \cdot r_{NO})}{Q \cdot r_{NO}} \exp\left(-\frac{\langle \Delta_{NO}^2 \rangle}{2} \cdot Q^2\right) + b_M \cdot \frac{\sin(Q \cdot r_{MN})}{Q \cdot r_{MN}} \exp\left(-\frac{\langle \Delta_{MN}^2 \rangle}{2} \cdot Q^2\right) \right]^2 \text{ (uncorrelated)} \dots \dots \dots (3)$$

$$F_2^p(Q) = F_1(Q) \dots \dots \dots \text{ (parallel)} \dots \dots \dots (4)$$

Using eqs. (2) to (4), the  $S_c(Q)$ 's for the both cases were calculated. Fig. 8 and Fig. 9 show the results of the calculations together with the calculated  $S_c(Q)$  for  $NO_3^-$  in molten  $LiNO_3$ .  $S_c(Q)$ 's for  $M^+-NO_2^-$  units in parallel arrangements are more similar to  $S_c(Q)$  for  $NO_3^-$ , than those in uncorrelated configurations.

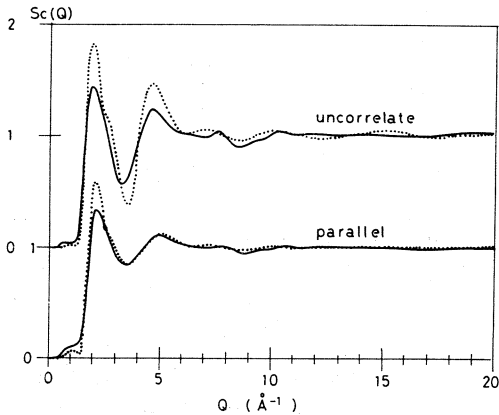


Fig. 8 Calculated  $S_c(Q)$  for  $Na^+-NO_2^-$  unit in molten  $NaNO_2$  (—) and  $S_c(Q)$  for  $NO_3^-$  radical in molten  $LiNO_3$  (····). [ $S_c(Q)$  in  $LiNO_3$  is normalized at the position of the 1st peak to  $S_c(Q)$  in  $NaNO_2$ .]

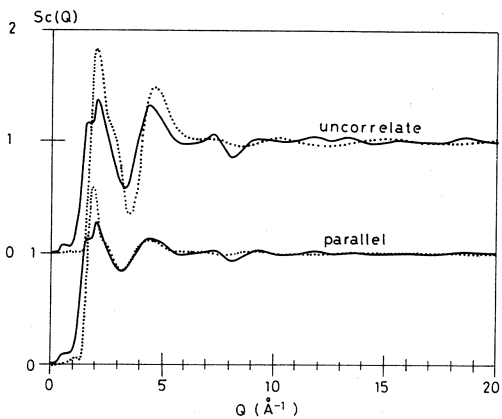


Fig. 9 Calculated  $S_c(Q)$  for  $K^+-NO_2^-$  units in molten  $KNO_2$  (—) and  $S_c(Q)$  for  $NO_3^-$  radical in molten  $LiNO_3$  (····).

### References

1. Y. Fukushima and K. Suzuki: Res. Reports Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ., **8** (1975) 288.
2. R. N. Sinclair, D. A. Johnson, J. C. Dore, J. H. Clerke and A. C. Wright: Nucl. Inst. and Methods, **117** (1974) 445.
3. M. Misawa, Y. Fukushima, K. Suzuki and S. Takeuchi: Res. Reports Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ., **6** (1973) 88.
4. K. Suzuki, M. Misawa and Y. Fukushima: Trans. JIM, **16** (1975) 297.
5. P. A. Egelstaff, D. I. Page and J. G. Powles: Molecular Phys., **20** (1971) 881.

## II-4 パルス中性子による反強誘電体 蟻酸銅四水和物の研究 I

名工大, 核理研\* 岡田健吉・鈴木昱雄  
杉江 紘・新村信雄\*

### §1. まえがき

外部電場とその応答として電気分極を考える場合に, ある結晶が強誘電体であるある条件は正の外部電場により, -polarより+polarの相への転移とその逆過程とがあることで, 又多くの場合温度変化によるnonpolarからpolar相への転移もある。一方反強誘電体では温度変化によるnonpolarよりpolarへの転移があると同時に, 低温相で外部電場によるanti-polarより±polarへの転移がなければならない。このsublatticeの反転によるpolar相への転移は, 多くの場合誘電的E-P曲線でのdouble-loopの出現で立証されるとしているが, しかしこれはE-P関係の非線形性を観ているもので, 相転移との関係が明瞭でない。分極の担い手の構造変化として直接観測されなければ充分とは言えないだろう。

本研究の目的の一つは蟻酸銅四水和物(CFT)にパルス強電場を印加し, それに同期したパルス中性子により効率的にantipolar→polarの構造変化を求め構造的に反強誘電性を立証することである。パルス電場を用いるのは, 直流強電場での誘電破壊をさけるためである。次に本結晶は後述するように典型的二次元水素結合網をもち, 又その応答の緩和時間が非常に長い<sup>1)</sup>という特徴がある。転移温度近傍の臨界緩和を構造的に研究することを目的としている。又二次元の秩序-無秩序転移としての特異な臨界散乱とその電場効果をも測定をする。

本報告では, §2でKittel<sup>2)</sup>の理論を発展させた反強誘電体の現象論<sup>3)</sup>の結果を簡単にまとめ外場のある場合の相図についてのべる。§3では, 外場のないときの構造<sup>4-7)</sup>と, それから考えられる他の相の構造を述べる。§4以下では, 実験の準備と超格子線の測定の追試の結果を述べて, 本研究の第一報とする。

### §2. 反強誘電体の現象論

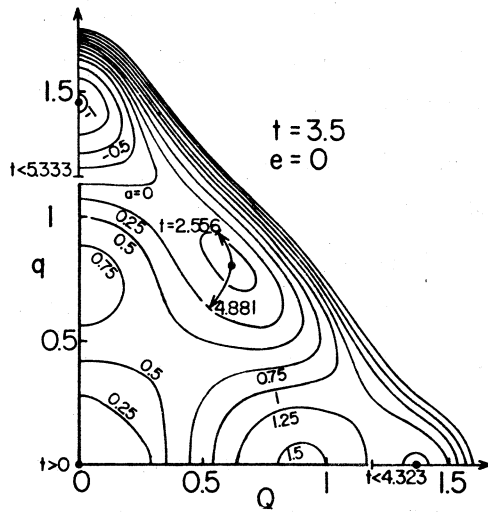
一軸性反強誘電体の二つのSublatticeの分極を $P_a, P_b$ として, 自由エネルギーを,  
 $A = f(P_a^2 + P_b^2) + gP_aP_b + h(P_a^4 + P_b^4) + j(P_a^6 + P_b^6) - E(P_a + P_b)$ とする。 $Q \propto (P_a + P_b)$ ,  
 $q \propto (-P_a + P_b)$ とし, 変数を無次元化することにより, 各係数を消去することができる。上式は  
 $a = (1+t)Q^2 + tq^2 - m(Q^4 + q^4 + 6Q^2q^2) + Q^6 + q^6 + 15Q^2q^2(Q^2 + q^2) - eQ$ となる。 $t, e$ は無次元化温度および外場,  $m$ は結晶により決まる定数である。外場のある場合には, 常誘電相, 強誘電相等というの是不適当であると思われるので, 前節から次のようなterminologyを用いた。

- non polar 相 :  $Q \approx 0, q \approx 0$ .
- polar 相 :  $Q \neq 0, q \approx 0$ .
- anti polar 相 :  $Q \approx 0, q \neq 0$ .
- semi polar 相 :  $Q \neq 0, q \neq 0$ .

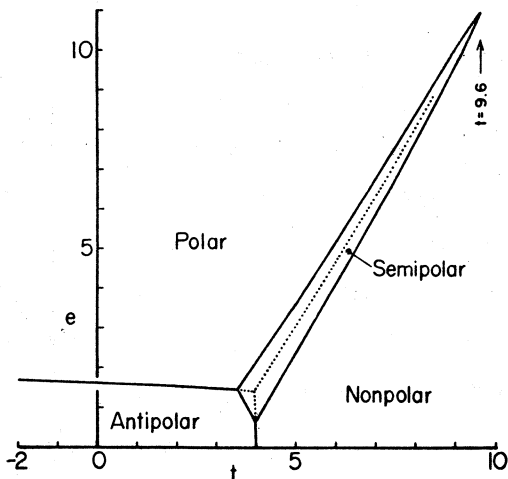
ここで $\approx 0$ は誘起量を含んでいてもよいという意味である。例えば、第1図のように、 $e = 0$   $t = 3.5$ で $a$ のmapを作れば、この四つの安定相が同時に出て来る。この場合、antipolarが最安定である。これらの安定点の自由エネルギーを数値的に比較することにより、第2図のように $e-t$ 平面での相図が得られる。二つの三重点を含み、各相境界は一次転移を与える。臨界点 $t = 9.6$ 近くは、まだ十分な考察がされていない。

Ishibashi<sup>8)</sup>はCFTをDimer Statisticsで扱い、この層状二次元水素網のinter layer interactionはintra layer interactionよりも非常に小さいことを実験との比較から結論している。さらにAllenら<sup>9)</sup>は外場を考慮して、第2図と同様な相図をCFTに対して得ている。

この相図を水平又は垂直に切れれば、それぞれ外場、温度一定での逐次相転移が得られる。CFTの外場一定のもとでの誘電率温度特性はantipolar $\rightarrow$ polar $\rightarrow$ nonpolarの転移を明瞭に示している。<sup>10)</sup>低温での温度一定での $E-P$ 曲線はよく知られたdouble loopでこれはantipolar $\rightarrow$ polarの転移と考えられる。<sup>11)</sup> $T_c$  ( $t = 4$ )近くでの多重履歴曲線については現在までのところ確定的な結果は出ていない。このsemipolarの出現は誘電的には困難のようである。



第1図 反強誘電体の $Q-q$ 平面の自由エネルギー。nonpolar相：原点，polar相： $a$ 軸上，antipolar相： $q$ 軸上，semipolar相：面内。



第2図 反強誘電体の電場-温度平面の相図

### § 3. CFTの各相の水素網構造

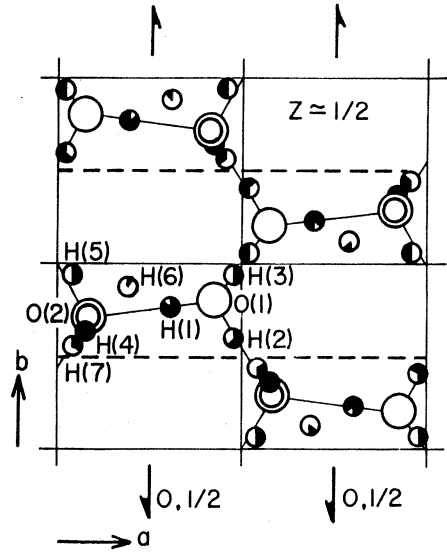
高温相 nonpolar での空間群はmonoclinic  $P2_1/a$ でC面に平行な $Cu(HCOO)_2$ の層と $4H_2O$ の層が交互に配列する層状構造である。<sup>12)</sup>この二次元氷の水素網構造は中性子回折により第3



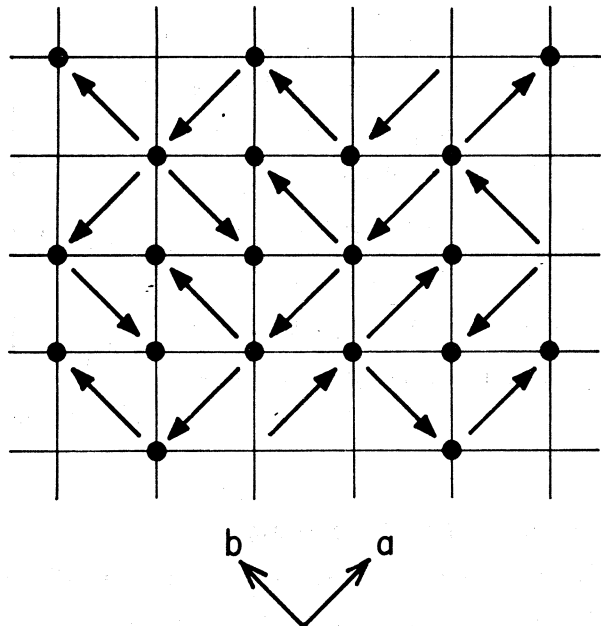
図のように得られている。<sup>4-7)</sup> nonpolar相でのH(4)以外の水素はすべて無秩序で、図には記号で占拠率が示されている。H(4)は二種類の層間の水素結合で常に秩序である。この水素網ではすべてのところでice rule-1本の結合には必ず1個の水素が、又1個の酸素の近くには必ず2個の水素がある一を満していなければならない。第3図の占拠率もそれを満している。

このice ruleを考慮すると、図のO(2)の対O(2)-O(2)の近くにあるH(4)以外の1個の水素の配置は四通りしかない。この水素の配置を $\pm a, \pm b$ の四通りの向きをとる矢印に置きかえて、このO(2)-O(2)対の代りに置く。この矢印はO(2)-O(2)対を含む原子団の双極子能率の大略の方向を示している。又エネルギーは異なり4方向は等確率ではない。中心にあるO(1)-O(1)対近くでの水素の位置は、その周囲にある4対のO(2)-O(2)の水素配置により一意的に

決ってしまうので、水素配置に関するかぎりO(1)は考える必要がない。又4対のO(2)-O(2)を代表する4つの矢印は、その内の1つが必ず中心のO(1)-O(1)対の方向を向いていなければならない。このようにして水素網構造をcheckerboardに置いた矢印でおきかえることができる。第4図はこのようにして示した無秩序相を示す。交点には必ずただ一つの矢印が向いていなければならない。以上の詳細は文献<sup>13)</sup>を参照されたい。



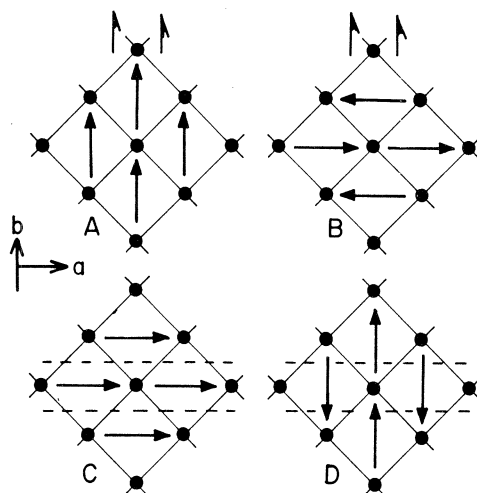
第3図 CFTの無秩序相(nonpolar)の水素網構造。●：酸素O(1)。◎：酸素O(2)水素位置の○等は、それぞれ1/6, 1/3, 1/2, 2/3, 5/6, 1の占拠率を示す。



第4図 無秩序相の checkerboard

低温相においてc方向の二倍の長周期構造が観測されている。<sup>14)</sup>しかしa, b方向には長周期構造はないものと考えられるので, 前述の矢印の模型で秩序相でのこの面内の構造を推定することができる。第5図のA, B, C, Dおよびその中心対称 $\bar{A}, \bar{B}, \bar{C}, \bar{D}$ である。これをもとの水素網構造にもどすと第6図のようになる。すでに決定しているnonpolarおよびantipolar相<sup>4-7)</sup>をも含めて, polar, semipolarの構造と空間群の推定は第1表のようになる。

A +  $\bar{A}$ はAと $\bar{A}$ 層のc方向の交互配列を意味する。外場による転移により, 長周期構造はなくなりpolar相はAとなると考えられる。semipolarの推定は困難であるが, 一応表の三つが可能であろう。何れも§2において $P_a = 0, P_b \neq 0, Q = q$ に相当する。



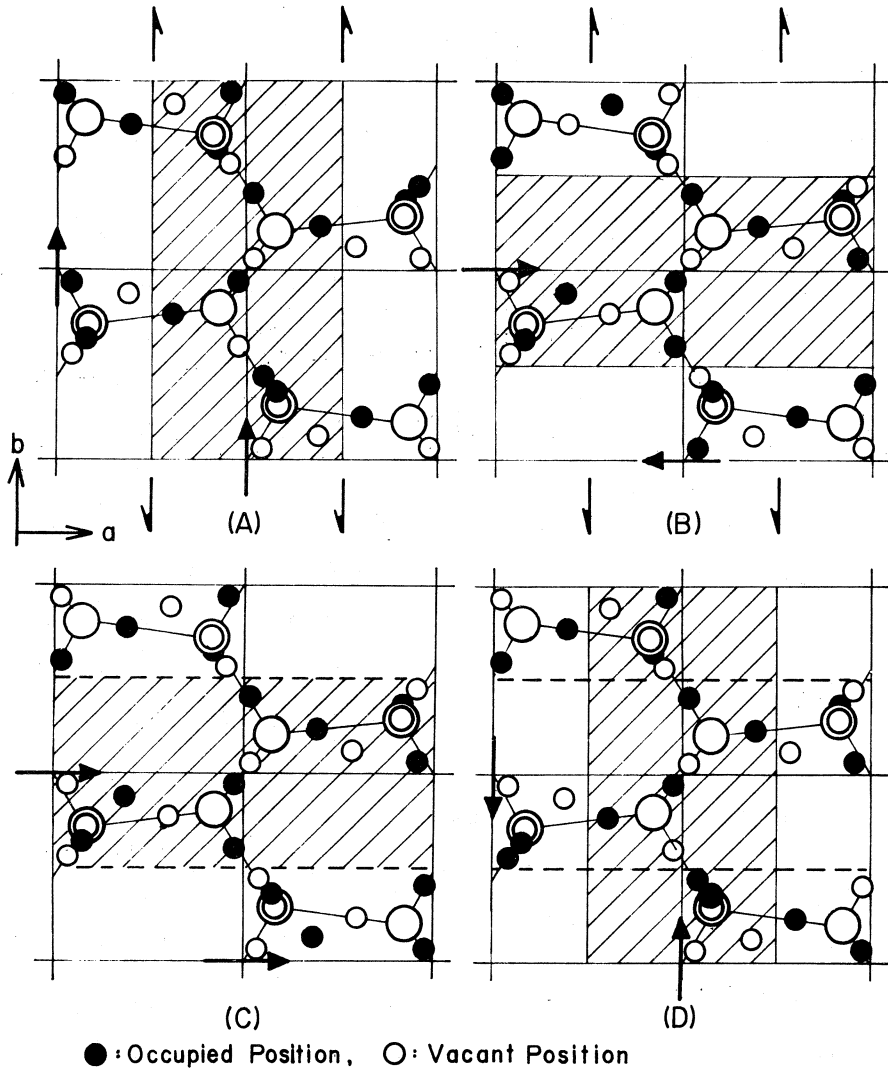
第5図 秩序相のcheckerboard

第1表 Space Groups of 4 Phases in Cu-Formate Tetrahydrate

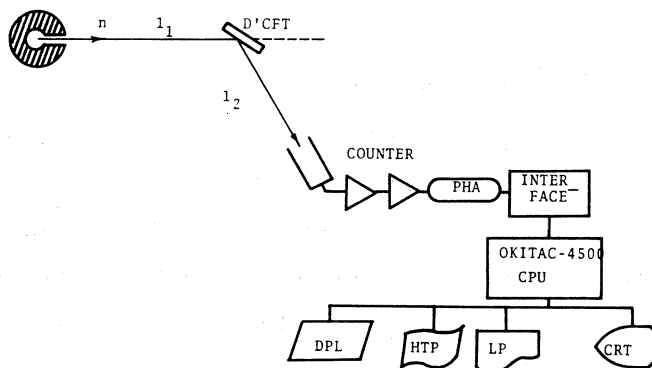
Nonpolar	disorder	monoclinic	$p2_1/a$
Antipolar	A + $\bar{A}$	monoclinic(doubled c)	$P2_1/n$
Polar	A	monoclinic	$p2_1$
semipolar	A + disorder	monoclinic(doubled c)	$p2_1$
	A + B	monoclinic(doubled c)	$p2_1$
	A + D	triclinic (doubled c)	$p1$

#### §4. TOF 中性子回折実験結果

SN比を上げる目的で, 今回の実験では結晶水を重水に置換した重蟻酸 $\text{Cu}(\text{HCO}_2)_2 \cdot 4\text{D}_2\text{O}$  (D' CFTと以下略す)を用い, 温度変化は液体窒素のデワー中に挿入したヒーターの電圧をスライダックで調整した。霜の防止のため二重管の外側に乾燥した窒素ガスを約20l/min程の流量で吹きつけた。蟻酸銅は容易に脱水されるので最初アルミの容器の一面に石英板で「ふた」をした試料ホルダーを用いたが, 最近ハローグリースを試料に塗付しているのみである。実験全体のブロックダイアグラムは第7図のようである。

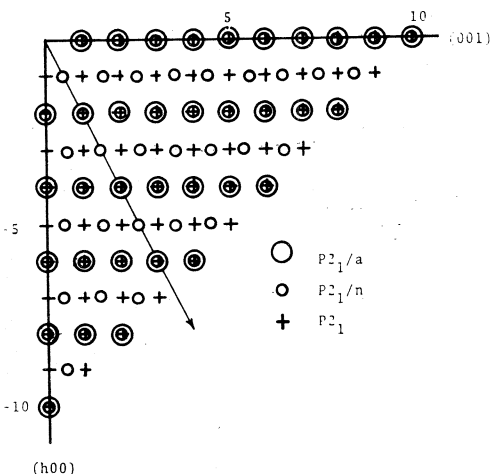


第 6 図 秩序相の水素網構造



第 7 図 実験のブロック図

D/CFT は  $-27.7^{\circ}\text{C}$  で nonpolar 相 ( $P2_1/a$ ) から antipolar 相 ( $P2_1/n$ ) へ相転移を起す。空間群から観測される Bragg 反射に対する消滅則を模式的に示したのが第 8 図である。我々は相転移に伴う超格子線が得られる方向として  $\langle \bar{2}01 \rangle$  方向を選んだ。第 9 図に観測結果を示す。これによると明確に超格子線が観測されていることが解る。これらの超格子線の大略の温度変化を図示したのが第 10 図である。温度の制御は、今回は略式であるため超格子線の温度変化を精密に論じることは出来ない。従ってまた秩序度の温度変化についても次回以後の課題である。



第 8 図 Bragg 反射に対する消滅則

### § 5. 空間群と結晶構造因子の計算

antipolar 相と polar 相の主な結晶構造因子の計算値が第 3 表に示されている。ここで polar 相での格子座標は不明であるので nonpolar 相のものを第一次近似として用いている。今回行った実験の  $\langle 201 \rangle$  方向について、実測値との大略の比較を第 2 表に示してある。

第 2 表 Observed and calculated structure factors

hol	Obs	Cal	CFT	DCFT
(202)	—	23.0	7.2	66.3
( $\bar{3}$ 03)	0.2	0.2	0.6	0.2
( $\bar{4}$ 04)	7.9	139.0	2.6	56.3
( $\bar{5}$ 05)	0.6	1.6	2.3	1.6
( $\bar{6}$ 06)	12.1	67.5	45.6	10.1
( $\bar{7}$ 07)	0.7	14.3	2.2	14.3
( $\bar{8}$ 08)	6.9	50.8	41.1	41.6
( $\bar{9}$ 09)	—	15.0	3.1	15.0

第 2 表の計算値と実測値の差について、次の二つの可能性—①結晶水の重水置換の不完全性、②原子座標、格子定数等の変化—が考えられる。低温相での格子定数の値については、測定者によってばらつきがあり、また DCFT (完全重水置換蟻酸銅  $\text{Cu}(\text{DCO}_2)_2\text{D}_2\text{O}$ )、D/CFT の構造回折はなされていないので、詳細について論じることはできない。また、後述する散漫散乱と、実験データのバックグラウンドを減じるために、試料の完全重水素化の必要性がある

第3表 Calculated structure factors. (a) D'CF $\Gamma$  (b) DCFT.

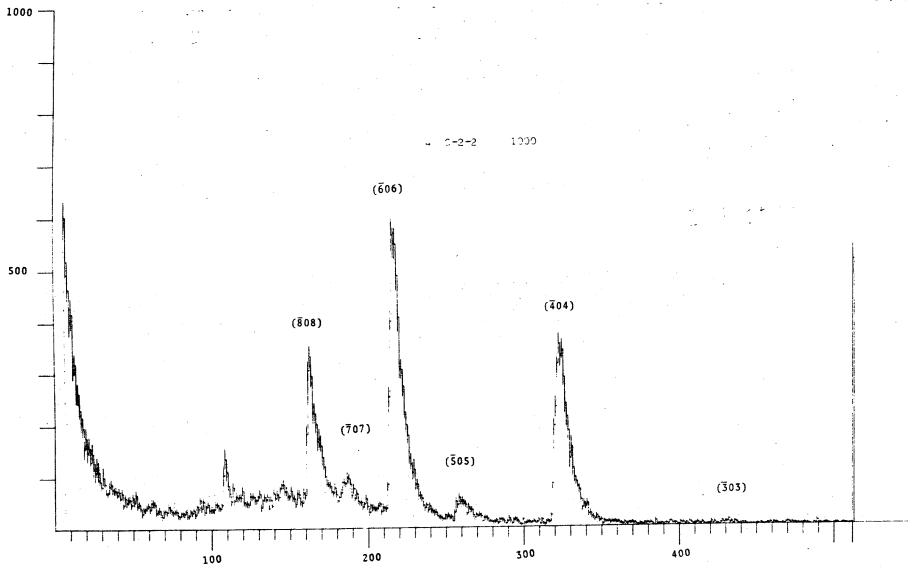
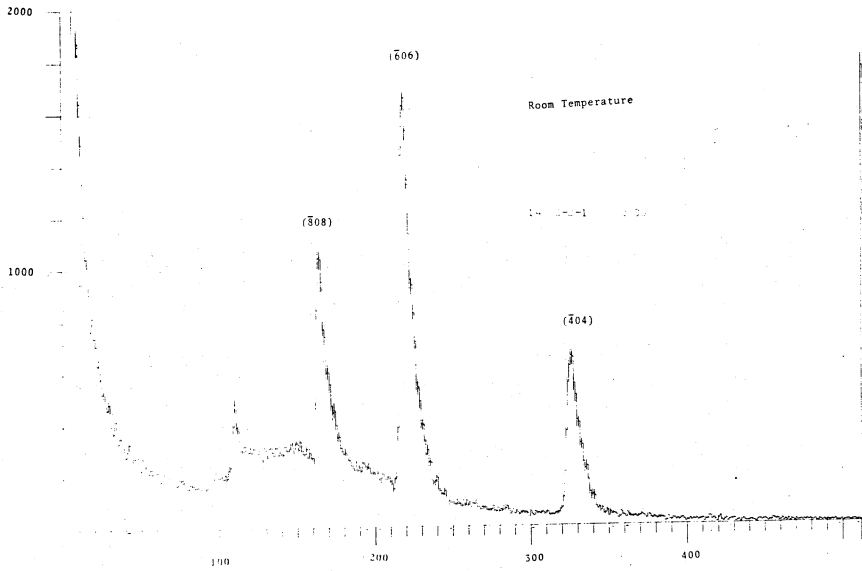
Antipolar (P $_2$ /n) Polar (P $_2$ /1)

Antipolar (P $_2$ /n)				Polar (P $_2$ /1)									
H	K	L	SIN/LAMDA	A	B	F#2	F#2						
-2.0	0.0	2.0	0.13486	-4.61230	-0.00001	21.27330	-2.0	0.0	2.0	0.18324	-3.35526	-0.00001	11.25779
-3.0	0.0	3.0	0.20228	-0.42824	-0.00001	0.18339	-3.0	0.0	3.0	0.27486	-0.00001	1.12385	1.26258
-4.0	0.0	4.0	0.26971	12.02123	0.00000	144.50987	-4.0	0.0	4.0	0.36648	10.16172	0.00002	103.26053
-5.0	0.0	5.0	0.33714	1.28269	0.00002	1.64529	-5.0	0.0	5.0	0.45810	-0.00002	3.18036	10.11466
-6.0	0.0	6.0	0.40457	-8.08969	0.00003	65.43979	-6.0	0.0	6.0	0.54972	1.34456	0.00000	1.80785
-7.0	0.0	7.0	0.47199	-3.83584	-0.00001	14.71363	-7.0	0.0	7.0	0.64134	-0.00001	1.98432	3.85856
-8.0	0.0	8.0	0.53942	7.35340	0.00001	53.79193	-8.0	0.0	8.0	0.73296	1.38340	0.00000	1.91579
-9.0	0.0	9.0	0.60685	3.92931	-0.00000	15.43945	-9.0	0.0	9.0	0.82458	-0.00000	0.15076	0.03273
-10.0	0.0	10.0	0.67428	-0.31842	-0.00000	0.10139	-10.0	0.0	10.0	0.91620	4.89131	0.00001	23.92488
3.0	0.0	-5.0	0.24720	1.39798	-0.00001	1.95335	3.0	0.0	-5.0	0.40868	-0.00002	-3.23938	10.49361
3.0	0.0	-9.0	0.37482	5.50603	-0.00002	30.31636	3.0	0.0	-9.0	0.81736	3.92923	-0.00002	15.43885
3.0	0.0	-9.0	0.37482	5.50603	-0.00002	30.31636	3.0	0.0	-9.0	0.71027	-0.00000	1.09544	1.19999
2.0	0.0	2.0	0.08051	-0.16883	0.00000	0.00000	2.0	0.0	2.0	0.11065	0.00000	-0.06702	0.00449
2.0	0.0	2.0	0.16103	-22.39551	0.00000	501.55859	2.0	0.0	2.0	0.22130	6.47313	-0.00001	41.90141
4.0	0.0	4.0	0.24154	1.37380	-0.00001	24.47462	4.0	0.0	4.0	0.33195	0.00001	-1.06229	1.18346
5.0	0.0	5.0	0.32027	0.29099	-0.00001	0.08468	5.0	0.0	5.0	0.44260	0.00000	0.89295	0.129300
6.0	0.0	6.0	0.40509	-0.32184	-0.00001	86.84297	6.0	0.0	6.0	0.55325	0.00000	-0.05312	1.06735
7.0	0.0	7.0	0.48360	-1.16228	0.00001	1.35084	7.0	0.0	7.0	0.66399	-4.14435	0.00001	17.17545
8.0	0.0	8.0	0.56411	8.22419	-0.00004	67.63725	8.0	0.0	8.0	0.77454	-0.00001	0.56988	0.32477
1.0	0.0	2.0	0.11102	-0.00001	0.00000	0.00000	1.0	0.0	2.0	0.18999	0.00001	0.05208	0.00271
1.0	0.0	3.0	0.14835	0.10441	-0.00000	0.01090	1.0	0.0	3.0	0.26000	0.00000	-0.12251	0.01501
1.0	0.0	4.0	0.18374	-0.00001	0.00003	0.00000	1.0	0.0	4.0	0.33852	-0.00000	0.25215	0.06358
1.0	0.0	5.0	0.22216	-0.15281	-0.00001	0.02335	1.0	0.0	5.0	0.41769	0.00000	-0.33108	0.10961
1.0	0.0	6.0	0.26115	-0.00000	0.00001	0.00000	1.0	0.0	6.0	0.49721	0.00001	0.29067	0.08449
1.0	0.0	7.0	0.30048	0.37606	-0.00003	0.14142	1.0	0.0	7.0	0.57693	0.00001	-0.21010	0.04414
1.0	0.0	8.0	0.34005	-0.00002	-0.00001	0.00000	1.0	0.0	8.0	0.65677	-0.00001	0.27063	0.07324
1.0	0.0	9.0	0.37977	-0.61564	0.00000	0.37901	1.0	0.0	9.0	0.73670	-0.00001	-0.57781	0.33587
1.0	0.0	10.0	0.41960	-0.00002	-0.00007	0.00000	1.0	0.0	10.0	0.81669	0.00000	1.02888	1.05859
2.0	0.0	1.0	0.13827	0.00002	-0.00001	0.00000	2.0	0.0	1.0	0.16065	-11.19978	0.00002	125.43501
2.0	0.0	2.0	0.16103	-22.39551	0.00006	501.55859	2.0	0.0	2.0	0.22130	6.47313	-0.00001	41.90141
2.0	0.0	3.0	0.18971	0.00002	-0.00003	0.00000	2.0	0.0	3.0	0.29157	-5.66066	0.00000	32.04301
2.0	0.0	4.0	0.22204	12.93501	-0.00004	167.32494	2.0	0.0	4.0	0.36957	0.00181	0.00000	0.00000
2.0	0.0	5.0	0.25664	0.00001	-0.00001	0.00000	2.0	0.0	5.0	0.44242	0.00564	0.00000	0.00000
2.0	0.0	6.0	0.29270	-11.31112	0.00001	127.95311	2.0	0.0	6.0	0.52001	2.64987	-0.00000	0.00000
2.0	0.0	7.0	0.32373	-0.00001	0.00001	0.00000	2.0	0.0	7.0	0.59830	-1.18929	0.00000	6.00186
2.0	0.0	8.0	0.36749	0.00341	0.00002	0.00001	2.0	0.0	8.0	0.67704	4.65747	-0.00000	21.69203
2.0	0.0	9.0	0.40572	-0.00002	0.00003	0.00000	2.0	0.0	9.0	0.75950	1.10135	-0.00000	1.12197
3.0	0.0	1.0	0.14832	0.16661	0.00002	0.00028	3.0	0.0	1.0	0.16065	-11.19978	0.00000	1.99378
3.0	0.0	1.0	0.19883	-0.92772	-0.00002	0.79695	3.0	0.0	1.0	0.21710	0.00000	-0.61946	0.38373
3.0	0.0	2.0	0.21752	0.00000	-0.00006	0.00000	3.0	0.0	2.0	0.26874	0.00000	0.92705	0.85942
3.0	0.0	3.0	0.24154	1.37380	-0.00001	2.47462	3.0	0.0	3.0	0.33195	0.00001	-1.06229	1.12846
3.0	0.0	4.0	0.26948	0.00001	-0.00004	0.00000	3.0	0.0	4.0	0.40129	0.00000	0.94252	0.88834
3.0	0.0	5.0	0.30048	-0.00003	-0.00004	0.00000	3.0	0.0	5.0	0.48129	0.00000	-0.00792	0.00006
3.0	0.0	6.0	0.33306	-0.00003	-0.00002	0.00000	3.0	0.0	6.0	0.56358	0.00000	-0.70227	0.64462
3.0	0.0	7.0	0.37027	-0.00003	-0.00002	0.00000	3.0	0.0	7.0	0.64693	0.00001	-0.80288	0.64462
3.0	0.0	8.0	0.40279	-0.00002	-0.00000	0.00000	3.0	0.0	8.0	0.73296	0.00000	0.15076	0.03273
3.0	0.0	9.0	0.44134	0.00000	0.00000	0.00000	3.0	0.0	9.0	0.81736	0.00000	0.00000	0.00000
3.0	0.0	10.0	0.47597	-0.00002	0.00000	0.00000	3.0	0.0	10.0	0.89131	0.00000	0.00000	0.00000

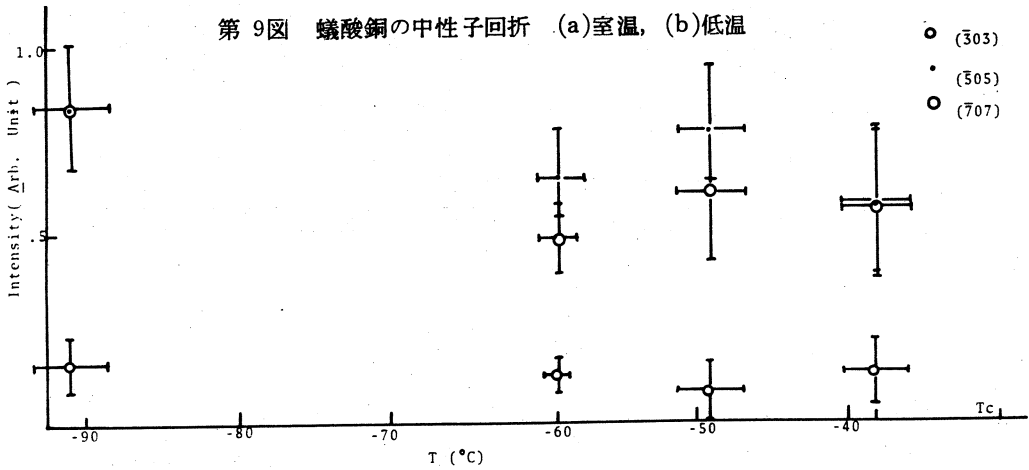
Antipolar (P<sub>2</sub><sub>1</sub>/n)

Polar (P<sub>2</sub><sub>1</sub>)

Antipolar (P <sub>2</sub> <sub>1</sub> /n)				Polar (P <sub>2</sub> <sub>1</sub> )									
H	K	L SIN/LAMBDA	A	B	FRR2	H	K	L SIN/LAMBDA	A	B	FRR2		
-2.0	0.0	2.0	0.13486	-7.97244	-0.00001	63.55975	-2.0	0.0	2.0	0.18324	-2.87213	-0.00001	8.24915
-3.0	0.0	3.0	0.20238	-0.42824	-0.00000	0.00000	-3.0	0.0	3.0	0.12366	-0.00000	1.12366	1.26257
-4.0	0.0	4.0	0.25971	7.70349	-0.00001	59.54377	-4.0	0.0	4.0	0.36648	7.40427	0.00001	54.82318
-5.0	0.0	5.0	0.35714	1.28267	-0.00002	1.64564	-5.0	0.0	5.0	0.48810	-0.00000	3.18835	10.11441
-6.0	0.0	6.0	0.40457	-8.09350	-0.00000	2.01951	-6.0	0.0	6.0	0.54972	-2.01285	0.00000	4.15156
-7.0	0.0	7.0	0.47199	-3.85582	-0.00000	14.71352	-7.0	0.0	7.0	0.61134	-0.00001	1.96322	2.58836
-8.0	0.0	8.0	0.53942	6.64534	-0.00001	44.16050	-8.0	0.0	8.0	0.84458	-0.00000	0.15076	0.02213
-9.0	0.0	9.0	0.60685	-3.92932	-0.00001	15.43953	-9.0	0.0	9.0	0.91620	5.12798	-0.00001	26.29616
-10.0	0.0	10.0	0.67428	-2.19938	-0.00001	4.83727	-10.0	0.0	10.0	0.40688	-0.00002	-3.43939	10.49362
3.0	0.0	-3.0	0.24720	1.39801	-0.00000	1.95442	3.0	0.0	-3.0	0.81736	3.63105	-0.00002	13.18449
4.0	0.0	-4.0	0.49441	4.48191	-0.00001	20.08751	4.0	0.0	-4.0	0.71027	0.00000	1.09544	1.19999
5.0	0.0	-5.0	0.7482	5.50609	-0.00001	30.31659	5.0	0.0	-5.0	0.17027	0.00000	-1.09544	1.19999
6.0	0.0	-6.0	0.37482	-0.16864	-0.00001	30.31659	6.0	0.0	-6.0	1.11065	0.00001	-0.06702	0.00449
7.0	0.0	-7.0	0.08051	-0.16864	-0.00001	0.02844	7.0	0.0	-7.0	0.22130	3.43142	-0.00000	11.77464
8.0	0.0	-8.0	0.16103	-30.11783	-0.00008	907.08350	8.0	0.0	-8.0	0.31195	0.00000	-1.06230	1.12848
9.0	0.0	-9.0	0.24154	1.57312	-0.00001	2.47469	9.0	0.0	-9.0	0.44260	1.48154	0.00001	2.19497
10.0	0.0	-10.0	0.32266	15.52963	-0.00006	241.16927	10.0	0.0	-10.0	0.53225	0.00000	-1.03312	1.06734
1.0	0.0	1.0	0.40257	0.29096	-0.00001	0.08466	1.0	0.0	1.0	0.77454	-0.00001	0.56868	0.32477
2.0	0.0	2.0	0.48389	-5.24133	-0.00002	27.47150	2.0	0.0	2.0	0.86519	1.04196	-0.00001	1.08568
3.0	0.0	3.0	0.56500	-1.74224	-0.00001	117.12665	3.0	0.0	3.0	0.18299	0.00001	0.05208	0.00211
4.0	0.0	4.0	0.64441	10.82251	-0.00006	117.12665	4.0	0.0	4.0	0.28002	0.00000	-0.12251	0.01511
5.0	0.0	5.0	0.11102	-0.00001	-0.00001	0.00000	5.0	0.0	5.0	0.38052	-0.00000	0.5218	0.06359
6.0	0.0	6.0	0.14635	-0.10437	-0.00001	0.01089	6.0	0.0	6.0	0.44721	0.00001	-0.25109	0.10951
7.0	0.0	7.0	0.18374	-0.00005	-0.00001	0.00000	7.0	0.0	7.0	0.49721	0.00001	0.29067	0.08449
8.0	0.0	8.0	0.22216	-0.15283	-0.00001	0.02336	8.0	0.0	8.0	0.52695	0.00000	-0.21010	0.04414
9.0	0.0	9.0	0.26115	-0.00000	-0.00006	0.00000	9.0	0.0	9.0	0.65677	-0.00001	0.27063	0.07324
10.0	0.0	10.0	0.30048	0.37607	-0.00003	0.14143	10.0	0.0	10.0	0.73670	-0.00000	-0.57781	0.33357
1.0	0.0	1.0	0.34005	-0.00001	-0.00005	0.00000	1.0	0.0	1.0	0.81669	0.00001	1.02868	1.05259
2.0	0.0	2.0	0.37977	-0.61560	-0.00001	0.37896	2.0	0.0	2.0	0.15065	-15.06228	0.00003	226.67224
3.0	0.0	3.0	0.41960	0.00000	-0.00010	0.00000	3.0	0.0	3.0	0.22130	3.43142	-0.00000	11.77464
4.0	0.0	4.0	0.45943	0.00002	-0.00002	0.00000	4.0	0.0	4.0	0.29157	-7.02415	0.00000	49.33868
5.0	0.0	5.0	0.50000	-0.00002	-0.00003	0.00000	5.0	0.0	5.0	0.36597	1.56309	0.00000	0.15606
6.0	0.0	6.0	0.54125	6.85753	-0.00001	47.02574	6.0	0.0	6.0	0.44242	1.56309	0.00000	2.44324
7.0	0.0	7.0	0.58278	-14.03378	-0.00005	196.94708	7.0	0.0	7.0	0.52001	4.31219	-0.00000	18.59426
8.0	0.0	8.0	0.39275	-0.00001	0.00001	0.00000	8.0	0.0	8.0	0.59830	0.27886	0.00000	0.07776
9.0	0.0	9.0	0.36572	0.78732	-0.00001	0.61968	9.0	0.0	9.0	0.67704	5.42580	-0.00000	29.43929
10.0	0.0	10.0	0.40572	-0.00003	-0.00003	0.00000	10.0	0.0	10.0	0.75610	-0.96512	-0.00000	0.93146
1.0	0.0	1.0	0.44532	3.11720	-0.00000	9.17692	1.0	0.0	1.0	0.83539	1.13039	-0.00000	1.39312
2.0	0.0	2.0	0.49885	-0.89271	-0.00002	0.79695	2.0	0.0	2.0	0.92170	0.00002	-0.01946	0.38323
3.0	0.0	3.0	0.21752	0.00002	-0.00007	0.00000	3.0	0.0	3.0	0.26874	0.00000	0.00000	0.82104
4.0	0.0	4.0	0.24154	1.57312	-0.00001	2.47469	4.0	0.0	4.0	0.31195	0.00000	-1.06230	1.12848
5.0	0.0	5.0	0.26948	-0.00001	-0.00003	0.00000	5.0	0.0	5.0	0.40129	0.00000	0.94252	0.88855
6.0	0.0	6.0	0.33306	-0.00002	-0.00001	0.00000	6.0	0.0	6.0	0.54866	-0.00001	0.00792	0.00006
7.0	0.0	7.0	0.40279	0.00003	-0.00001	0.00000	7.0	0.0	7.0	0.70227	0.00000	0.80268	0.64462
8.0	0.0	8.0	0.47597	-0.00002	0.00003	0.00000	8.0	0.0	8.0	0.85921	-0.00001	-0.05927	0.00154



第 9 図 蟻酸銅の中性子回折 (a)室温, (b)低温

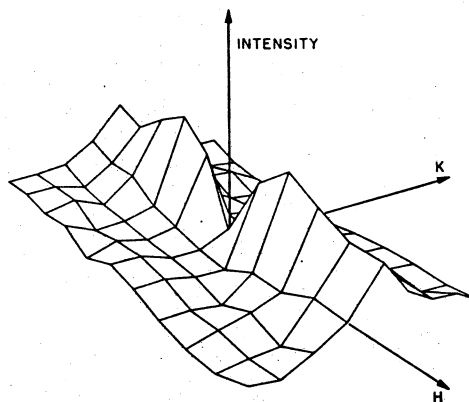


第 10 図 超格子線の温度変化

が、それによる構造因子の変化を第3表から求めると、DCFTで最も強い(201)は、D' CFTにくらべて80%程度強度を増していることがわかる。散漫散乱を精密に測定するには、この試料の完全重水素置換が有用であることがわかる。

## § 6. 臨界散漫散乱

ブルックヘブンの Young blood と Axe<sup>15)</sup> は熱中性子の散漫散乱によってキュリー点以下で超格子の Bragg peak を示す点で、幅の広い「臨界散漫(critical scattering)による散漫ピークを観測した。そのピークは L の依存性はなく H と K の関数として、第 11 図のような強度分布を示した。T<sub>c</sub> に近づくと、強度は増加するが、q = 0 の点の外側のピークは少し動く。T<sub>c</sub> 以下では、はっきりした超格子



第 11 図 散漫散乱ピーク。(Young blood, Axe による)

子 Bragg 点となる。彼らは、この結果を Allen<sup>9)</sup> の dimer theory との関連から dimer-dimer の相関として試みている。我々もこの点に関し、TOF 法でこの散漫散乱を観測するための予備テストを完全重水素化蟻酸銅(DCFT)で試みているが、未だ準備の段階である。

この散漫散乱は、電場による強制転移とは異なるテーマであるが、蟻酸銅の non polar 相から antipolar 相への転移をミクロに論じる場合に有用なデータを提供する重要な問題であるので、TOF 法で観測すべく努力を続けている。

## 参 考 文 献

- 1) Y.Makita and I.Seo : J.chem. Phys. **51** (1969) 3058.
- 2) C.Kittel : Phys. Rev. **82** (1951) 729.
- 3) K.Okada : J. Phys. Soc. Japan **37** (1974) 1226.
- 4) K.Okada, M.I.Kay, D.T.Cromer, and I. Almodovar : J.chem. Phys. **44** (1966) 1648.
- 5) M.I.Kay and R. Kleinberg : Ferroelectrics **4** (1972) 147.
- 6) Y.Makita and S.Suzuki : J. Phys. Soc. Japan **34** (1973) 278.
- 7) M.I.Kay : Ferroelectrics **9** (1975) 171.
- 8) Y.Ishibashi and S.Ohya : J. Phys. Soc. Japan **34** (1973) 888.
- 9) G.R. Allen : J.chem. Phys. **60** (1974) 3299, G.R.Allen and J. F.Nagle : J. Phys. C, Solid State Phys. **8** (1975) 2788.



- 10) 多田・神野・岡田 : 物理学会年会 1975 春 5pU2.
- 11) K.Okada and H.Sugie : J.Phys. Soc. Japan **25** ( 1968) 1128.
- 12) R.Kiriyama, H.Ibamoto, and K.Matsuo : Acta Cryst. **7** ( 1954) 482.
- 13) K.Okada : Phys. Rev. **164** ( 1967) 683.
- 14) K.C.Turberfield : Solid State Comm. **5**( 1967) 887.
- 15) R.Youngblood and J.D.Axe : Int. Conf. Puerto Rico 1975.

## II - 5 Time-Dependent Perturbed Angular Correlations of $^{111}\text{Cd}$ in Liquid $\text{In}_2\text{Bi}$

Y. Tsuchiya, S. Tamaki, A. Furusawa and H. Okazaki<sup>†</sup>

*Department of Physics, Faculty of Science,  
Niigata University*

*†The College of General Education,  
Niigata University*

### Abstract

The time differential perturbed angular correlations of liquid  $\text{In}_2\text{Bi}$  at temperatures  $200^\circ\text{C}$  and  $445^\circ\text{C}$  have been measured.

The time-dependent attenuation factors oscillate with time as much the same as those in the solid state. The obtained quadrupole frequencies are a few times larger than that of solid one. Using only the smallest non-vanishing energy difference, the estimated correlation time  $\tau_c$  are  $(1.31 \pm 0.1) 10^{-6}$  sec. for  $200^\circ\text{C}$  and  $(0.9 \pm 0.07) 10^{-6}$  sec. for  $445^\circ\text{C}$ , respectively.

Recently, the interest in angular correlations perturbed by the field gradient has greatly increased<sup>1)</sup> and there has been reported that the nucleus in liquid metals undergoes no observable disturbance of the field gradient.<sup>2,3)</sup> However, in a previous paper<sup>4)</sup> in which the time integration method is used, we have reported that the excited  $^{111}\text{Cd}$  states of liquid  $\text{In}_2\text{Bi}$  and  $\text{InBi}$  suffer the disturbance of the field gradient by surrounding atoms. Particularly, the attenuation factor of liquid  $\text{In}_2\text{Bi}$  gives rise to a considerable deviation from the "unper-

turbed" state and has a minimum value near 445°C.

In order to certify the above fact, we have measured the time differential perturbed angular correlations (TDPAC) of liquid In<sub>2</sub>Bi at temperatures 200°C and 445°C. The obtained results for the attenuation factor are shown in Figs. 1 and 2. The channel unit is equivalent to 60/73 nsec and the time resolution of the apparatus was about 10 nsec.

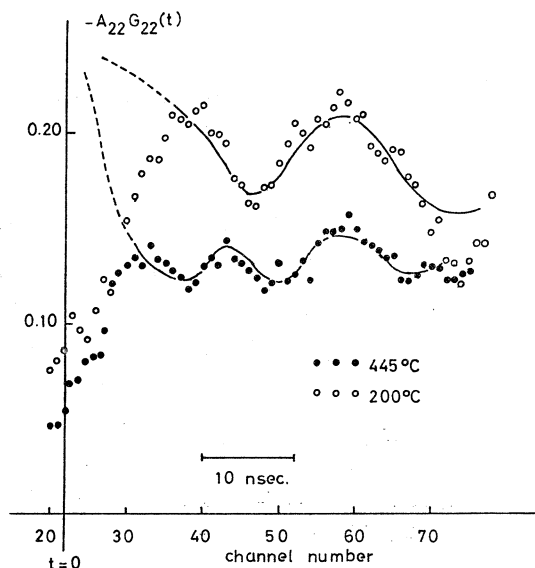


Fig. 1 The time dependent attenuation factors at the time less than 60 nsec, the solid circles; 200°C, the black points; 445°C.

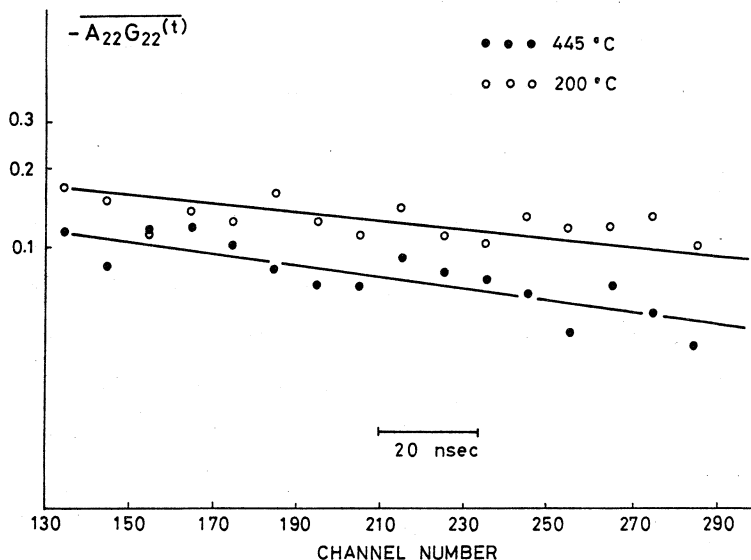


Fig. 2 The time-dependent attenuation factors in logarithmic plot (data represents the arithmetical mean of data in every 10 channels) at the long time, the solid circles; 200°C, the black points; 445°C.

As seen in Fig. 1, the time-dependent attenuation factors oscillate with time as much the same as in the case of the TDPAC in the solid state. It seems that this fact may be a new aspect in contrast with that in pure liquid metals.

It is therefore possible to estimate the magnitude of the field gradient from the oscillation period of the attenuation factors. Introducing an approximation that the smallest non-vanishing energy difference is only dominant, the quadrupole frequency ( $\omega_q = -eQV_{zz}/4I(2I-1)$ ) is obtained and is listed in Table II. We have ignored the effect of asymmetry of field gradient, as its inclusion cannot affect the order of magnitude of the results. The field gradient of liquid  $\text{In}_2\text{Bi}$  is a little larger than that of solid one.<sup>6)</sup>

The theoretical form<sup>1)</sup> of the perturbed angular correlation in liquid, in which the nucleus undergoes time-dependent quadrupole interactions, is given by,

$$W(\theta, t) = 1 + \sum_{\mathbf{k}} G_{\mathbf{k}\mathbf{k}}(t) A_{\mathbf{k}\mathbf{k}} P_{\mathbf{k}}(\cos \theta), \quad (1)$$

where the  $A_{\mathbf{k}\mathbf{k}}$ 's are the angular correlation parameters. According to Abragam and Pound,<sup>5)</sup> the time-dependent attenuation factor  $G_{\mathbf{k}\mathbf{k}}(t)$  is assumed to be the following form with the decay constant  $\lambda_{\mathbf{k}\mathbf{k}}$ .

$$G_{\mathbf{k}\mathbf{k}}(t) = e^{-\lambda_{\mathbf{k}\mathbf{k}}t}. \quad (2)$$

In the case of excited state of  $^{111}\text{Cd}$ , only the parameter at  $k = 2$  is required in effect.

Eq. (2) has no oscillatory character, therefore it is inappropriate to analyze the data with eq. (2). Abragam and Pound have established the theory of time-dependent perturbing field under the assumption that the time  $t$  in question is large compared with the correlation time  $\tau_c$ , and they have derived eq. (2). In the present situation, however, we had prefer to take into account the last term of eq. (56) in their

paper.<sup>5)</sup>

The quadrupole interaction  $Q_{ab}$  is exactly written as follows,

$$Q_{ab} = \frac{2b^2}{\hbar^2} \begin{pmatrix} I & 2 & I \\ -mb & q & ma \end{pmatrix}^2 \frac{1}{\lambda_c^2 + \omega_{ab}^2} \left( \lambda_c - \sqrt{\omega_{ab}^2 + \lambda_c^2} \cdot \cos(\omega_{ab}t + \delta) e^{-\lambda_c t} \right)$$

$$\delta = \tan^{-1} \frac{\omega_{ab}}{\lambda_c}, \quad (3)$$

where the notations are the same as in the text book by Steffen and Frauenfelder.<sup>7)</sup> Using only the smallest non-vanishing energy difference,  $G_{kk}(t)$  with odd  $I$  becomes

$$G_{kk}(t) = \exp \left( -\frac{3}{5} \omega_Q^2 k(k+1) \{4I(I+1) - k(k+1) - 1\} \frac{1}{\lambda_c^2 + (6\omega_Q)^2} \right. \\ \left. \times \left\{ \lambda_c t + \cos(6\omega_Q t + 2\delta) e^{-\lambda_c t} - \cos 2\delta \right\} \right) \quad (4)$$

If  $\tau_c = \frac{1}{\lambda_c}$  is considerably small, eq. (4) approaches to the result of Abragam and Pound. At small time compared with  $\tau_c$ ,  $G_{kk}(t)$  goes to decay as

$$\exp \left( -\frac{3}{5} \omega_Q^2 k(k+1) \{4I(I+1) - k(k+1) - 1\} \frac{1 - \cos 2\delta}{\lambda_c^2 + (6\omega_Q)^2} \frac{t}{\lambda_c} \right) \quad (5)$$

Fig. 2 shows the logarithmic plots of the time-dependent attenuation factors in the range of long time. These plots look to obey eq. (5). The decay constants are shown in Table I. Neglecting the effect of oscillation, the rough estimation of the attenuation factor at the infinite time  $G_{22}(\infty)$ 's may be obtained, which are consistently agreed with those obtained from the previous data by the time intergration method (TIPAC). Both results are also shown in Table 1.

Putting our results into eq. (5), the correlation time

Table I.  $G_{22}(\infty)$  obtained by both TDPAC and TIPAC method.

Temperature	$\lambda_{22}$ (TDPAC)	$G_{22}(\infty)$ (TDPAC)	$G_{22}(\infty)$ (TIPAC)
200 °C	$(4.2 \pm 0.3) \times 10^6/\text{sec}$	$0.67 \pm 0.03$	$0.90 \pm 0.05$
445 °C	$(6.2 \pm 0.4) \times 10^6/\text{sec}$	$0.57 \pm 0.01$	$0.6 \pm 0.05$

Table II. The quadrupole frequency  $\omega_Q$  in In Bs alloy.

Table 2	$\omega_Q$ ( $10^6$ rad/sec)
In (solid)	$16.8 \pm 0.1^*$
InBi (solid)	$10.4 \pm 0.1^*$
In <sub>2</sub> Bi (solid)	$9.7 \pm 0.1^*$
	$35.6 \pm 0.1^*$
In <sub>2</sub> Bi (liquid)    200 °C	$33.4 \pm 5$
	44.5 °C $65.4 \pm 5$

\*Data are taken from Budtz Jørgensen et al.<sup>6)</sup>

are obtained as  $(1.31 + 0.2) \times 10^{-6}$  sec. for 200°C and  $(0.903 + 0.015) \times 10^{-6}$  sec. for 445°C, respectively, which are consistent with the previous estimation of Seymour and Styles.<sup>8)</sup>

No observable disturbance of the field gradient might be resulted from the following two reasons: one is that the field gradient itself is too small to give a perturbation for the excited nuclear state and the other is that the correlation time is very short. The latter reason has ever been thought to be a main cause for the unperturbed state in liquid metals, however our obtained correlation times are not so short and subsequently the former reason should be a main cause because the correlation time in liquid metals seems to be of same order of the present liquid alloy. Thus no observable disturbance of the field gradient may be due to a very good symmetrical arrangement of atoms to give the following relation,

$$\tau_c \omega_Q \ll 1. \quad (5)$$

A detailed extension<sup>9)</sup> of the Abragam and Pound theory will soon report in elsewhere.

We would like to our thanks to Prof. S. Hayashibe and mem-

bers of the Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University and members of The Institute of Physical and Chemical Research for their helpful supports on bombardments. One of us (A. F.) expresses his cordial thank to Prof. N. Mutsuro for his support and encouragement.

#### References

1. H. Frauenfelder and R. M. Steffen: *Alpha -, Beta - and Gamma - Ray Spectroscopy* edited by Siegbahn (North-Holland, Amsterdam, 1965) Vol. 2.
2. R. M. Steffen: Phys. Rev. **103** (1956), 116.
3. W. A. Edelman and R. V. Pound: Phys. Rev. **B11** (1975) 985.
4. S. Tamaki, A. Furusawa, Y. Watase and H. Okazaki: Phys. Lett. **49A**(1974) 121.
5. A. Abragam and R. V. Pound: Phys. Rev. **92** (1953) 943.
6. C. Budts-Jørgensen, F. Abildskov, K. Bonde Nielsen, H. Ravn and U. Willumsen: Phys. Rev. **B8** (1973) 5411.
7. R. M. Steffen and H. Frauenfelder: *Perturbed Angular Correlations* (North-Holland, Amsterdam 1964).
8. E. F. W. Seymour and G. A. Styles: Proc. Phys. Soc., **87** (1966) 473.
9. Y. Tsuchiya and S. Tamaki: in preparation.

## II - 6 Inner-Shell Ionization by Relativistic Electrons

S. Morita, K. Ishii, M. Kamiya, K. Sera, H. Tawara,<sup>†</sup>  
M. Oyamada,<sup>††</sup> H. Kaji<sup>†††</sup> and T. C. Chu<sup>†††</sup>

*Department of Physics, Tohoku University*

<sup>†</sup>*Faculty of Engineering, Kyushu University*

<sup>††</sup>*Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University*

<sup>†††</sup>*Department of Chemistry, Tohoku University*

### § 1. Theoretical

Theoretical studies on inner-shell ionization by electron impact have been worked for these forty years. An earlier representative work is that of Burhop (1940),<sup>1)</sup> who carried out nonrelativistic calculations on K- and L- shell ionization cross sections. His calculation gives cross sections substantially smaller than the experimental as the atomic number  $Z$  becomes larger and the incident electron energy  $E_e$  gets higher, showing clearly the contribution from relativistic effects. For example, the kinetic energy of K electrons is about 80 keV for  ${}_{80}\text{Hg}$  ( $v/c \approx 1/2$ ) and about 100 keV for  $Z = 87$  ( $v/c \approx 1$ ).

For a fully relativistic calculation, relativistic wave functions should be taken for incident, outgoing, bound and ejected electrons with relativistic form of the interaction and the calculation becomes very complicated, practically impossible.

The first semirelativistic calculation was done by Arthurs and Moiseiwitsch (A & M) (1958).<sup>2)</sup> They used semirelativistic wave function, or the Darwin wave function, and the relativistic Møller interaction. As the results their calculations are valid only for  $Z \leq 30$ , i.e.  $(Z/137)^2 \ll 1$  and for  $E_e < 22 \times I$ , i.e.  $q/137a_0 \ll 1$ , where  $I$  is the ionization energy of bound electrons,



$q$  is the momentum transfer and  $a_0$  is the first Bohr-orbit radius for hydrogen. This calculation gives larger cross sections than the nonrelativistic one of Burhop for larger  $E_e$ .

Davidović and Moiseiwitsch (D & M) (1975)<sup>3)</sup> have extended the calculation of A & M to larger  $Z$  and higher  $E_e$ . They took into account the effect of outer-shell electron screening by shifting discrete energy states toward continuum with addition of a constant potential field determined from the difference of theoretical and experimental K-shell ionization energy.

Perlman (1960)<sup>4)</sup> reported a fully relativistic calculation for K-shell ionization of  $_{80}\text{Hg}$  by using the relativistic Dirac wave function and semirelativistic calculation for Ni using the Darwin wave function for the bound K electrons and also made a rough estimation of the contribution from the exchange effect. Here the contribution from outer-shell electron screening has also taken into account as in the case of D & M.

Kolbenstvedt (1967)<sup>5)</sup> developed an impact parameter method. In this method, the ionization cross section is divided into the contribution from close collisions and that from distant collisions. Close collisions are treated as those between free electrons with the relativistic Møller interaction and the cross section is added to that for distant collisions, where an incident electron is expressed by an equivalent virtual photon spectrum, and the ionization cross section for distant collisions was obtained by multiplying photoelectron-emission cross section to this virtual photon spectrum. The boundary between the close and distant collisions is taken as the K-shell radius. Nonrelativistic Schrödinger wave function is used for bound electrons and plane waves are for incident. Recently, Kolbenstvedt (1975)<sup>6)</sup> reported the effect of outer-shell electron

screening by calculating the contribution from the difference between the observed and ideal ionization energies.

Dangerfield (1973)<sup>7)</sup> pointed out the density effect which shows the contribution from adjacent atoms in a condensed medium of target. This effect decreases the cross section in very high energy region.

All the theoretical works which have been done are based on the Born approximation and no calculation with more accurate bound-state wave functions such as Hartree-Fock has been performed.

## § 2 . Experimental works and comparisons with the theoretical calculations

Experimental studies on inner-shell ionization by relativistic electron impact are still scarce, especially in the energy region above 1 MeV. Moreover, almost all of the measurements are restricted only to K-shell ionizations. The studies in the region of several hundred keV, which have been done before 1967, are summarized by Motz and Placious (1964)<sup>8)</sup> and Kolbestvedt (1967)<sup>5)</sup>. Before 1947, measurements of x-ray intensity had been done mainly with ionization chambers, and after then, scintillation counters with NaI crystal had been used. Recently, high-resolution solid state detectors, such as Si(Li) or pure Ge crystals, are main instruments for the x-ray measurements.

Theories of Burhop, A & M, and Perlman generally agree with experimental results within 10% in the region  $Z \leq 30$  and  $E_e < 22 \times I$ . A typical example is shown in Fig. 1 of reference 9 for the K-shell ionization of nickel. As seen in this figure, the nonrelativistic calculation of Burhop gives the best fit to the experimental results<sup>10)</sup> in the energy region near the threshold,

but it predicts cross sections smaller than the experimental as the incident electron energy gets higher. Semirelativistic calculations of A & M and Perlman give the best fit in this range of atomic number and incident energy. As the atomic number becomes larger, the discrepancy between the theories and the experimental results gets larger. The case of gold is shown in Fig. 2 of reference 9. Though the fully relativistic calculation of Perlman gives rather good agreement with experimental results in the region  $E_e \leq 1$  MeV, the calculated cross section shows strange behavior in the region  $E_e > 1.5$  MeV, which might be due to an inadequate numerical procedure or bad convergence of the calculation in this region.

Rester and Dance (1966)<sup>11)</sup> have measured K-shell ionization cross sections of Ag, Sn, and Au over the range of incident electron energy 0.10 - 2.0 MeV.

Scholz et al.<sup>12)</sup> and Li-Scholz et al. (1973)<sup>13)</sup> systematically measured K-shell ionization cross sections on 32 elements ranging  $Z = 23 - 83$  at an impact energy of 2 MeV. In this experiment, the absolute cross section was measured only for  $_{50}\text{Sn}$ , to which the cross sections of other elements were relatively measured and normalized. Atomic ratios in the targets used have carefully measured and checked by several methods. Therefore, though the absolute cross sections have uncertainty of about 10%, errors in the relative cross sections are estimated to be less than a few percent. Their results are in good agreement with the prediction of Kolbenstvedt's theory, especially with that of the relativistic Born approximation by D & M.<sup>3)</sup> Li-Scholz et al. pointed out sudden drops in the cross sections at  $Z = 23, 33, 47,$  and  $57$ , especially at  $_{57}\text{La}$  the sudden drop amounts to 30% and the slope of cross sections against  $Z$  also changes suddenly at this point. This fact can

not be theoretically predicted at all even by considering the uncertainty of fluorescence yields.

Middleman et al. (1970)<sup>14)</sup> have measured the K-shell ionization cross sections of eight elements ranging  $Z = 29 - 83$  and also the L-shell ionization cross sections of the four higher  $Z$  elements at five incident electron energies in the range 150 - 900 MeV with the Stanford linear accelerator Mark III. In this experiment, special care was taken on the pile-up effect and bremsstrahlung correction. Overall uncertainties of the cross sections measured were generally  $\pm 6\%$  except a few cases. The experimental results were compared with the prediction from Kolbenstvedt's theory and good agreements were obtained. They also obtained the intensity ratios of  $K\alpha$  and  $K\beta$  lines and compared with Scofield's calculations. Partial x-ray production cross sections for various L transitions have not been analysed.

Recently Dangerfield and Spicer (D & S) (1975)<sup>15)</sup> have measured the K-shell ionization cross sections on Ni, Ag, and Au over the energy range of incident electrons 3 - 30 MeV with external beams from a betatron and an NaI scintillation counter. The beam current used was an order of  $10^{-12}$  A. In this experiment, there were much saturation pulses from high energy background radiations, amounting to 20 - 50% of all the recorded pulses. They compared the experimental results with calculations from approximate virtual photon method. As the photo-effect cross section used in distant collisions, values calculated by Stobbe (1954)<sup>16)</sup> and by Schmickley and Pratt (1967)<sup>17)</sup> were taken. Dangerfield and Spicer pointed out that there is no theory which can reproduce the experimental results over the whole energy range 0.1 - 900 MeV and also that no evidence on the predicted density effect is puzzling.

Lastly, the authors have measured the K- and L- ionizations

of ten elements ranging  $z = 46 - 92$  and M-shell ionizations of two heavy elements with a Si(Li) and a pure germanium detectors at four incident energies in the range 70 - 250 MeV. The electron beams were accelerated by the linear accelerator of Tohoku University. In order to minimize the pile-up effect, we were obliged to keep the beam current below several nA, corresponding to counting rates below 10 cps, and to avoid intense background radiations, the beam current was measured with a secondary

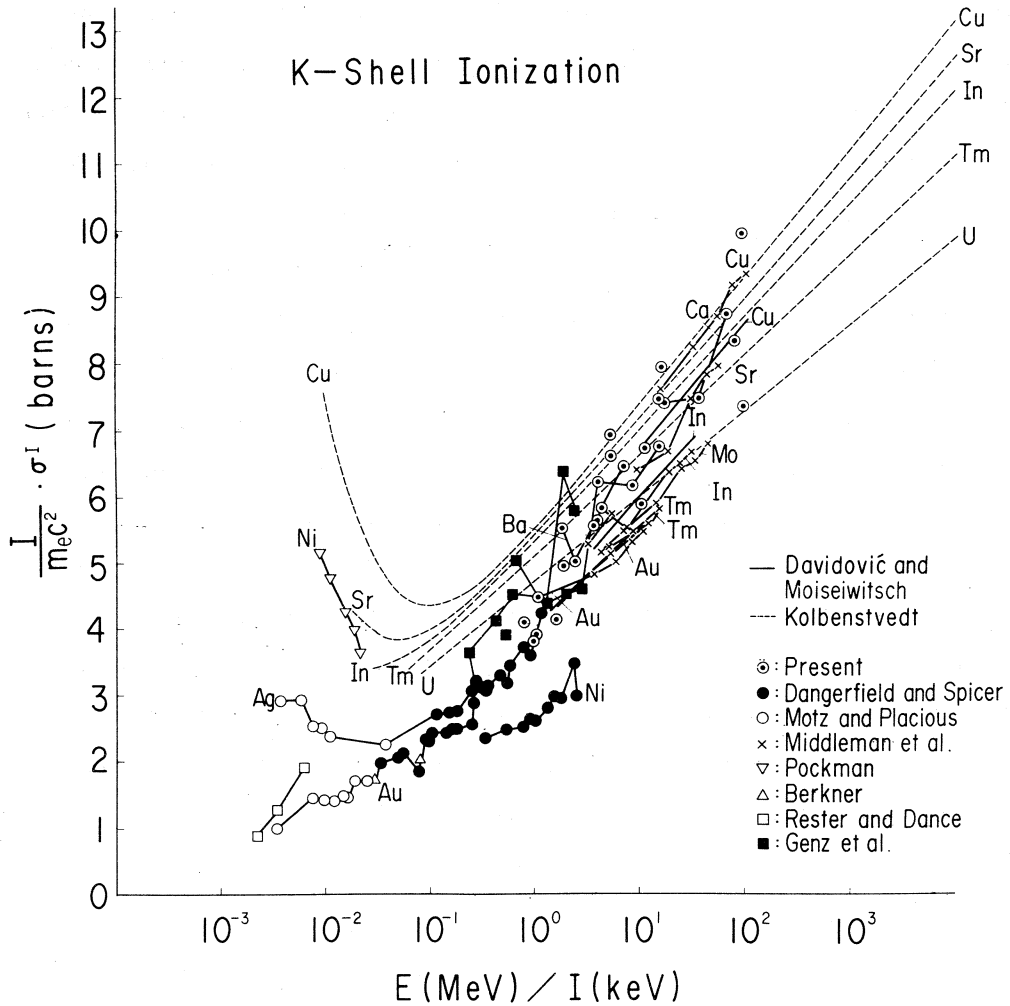


Fig. 1 Scaled universal representation of K-shell ionization by Pessa & Newell's theory.

emission monitor instead of a Faraday cup and the detector, shielded with lead blocks of about 10 cm thickness, was set at the direction of 150°.

The experimental results on the K-shell ionizations in these ultrarelativistic regions agree with the revised Kolbenstvedt theory and PWBA by D & M within 10% except for the experimental results of Dangerfield and Spicer, which are in agreement with Kolbenstvedt's theory<sup>5</sup> of  $\theta = 1$  ( $\theta$  is the

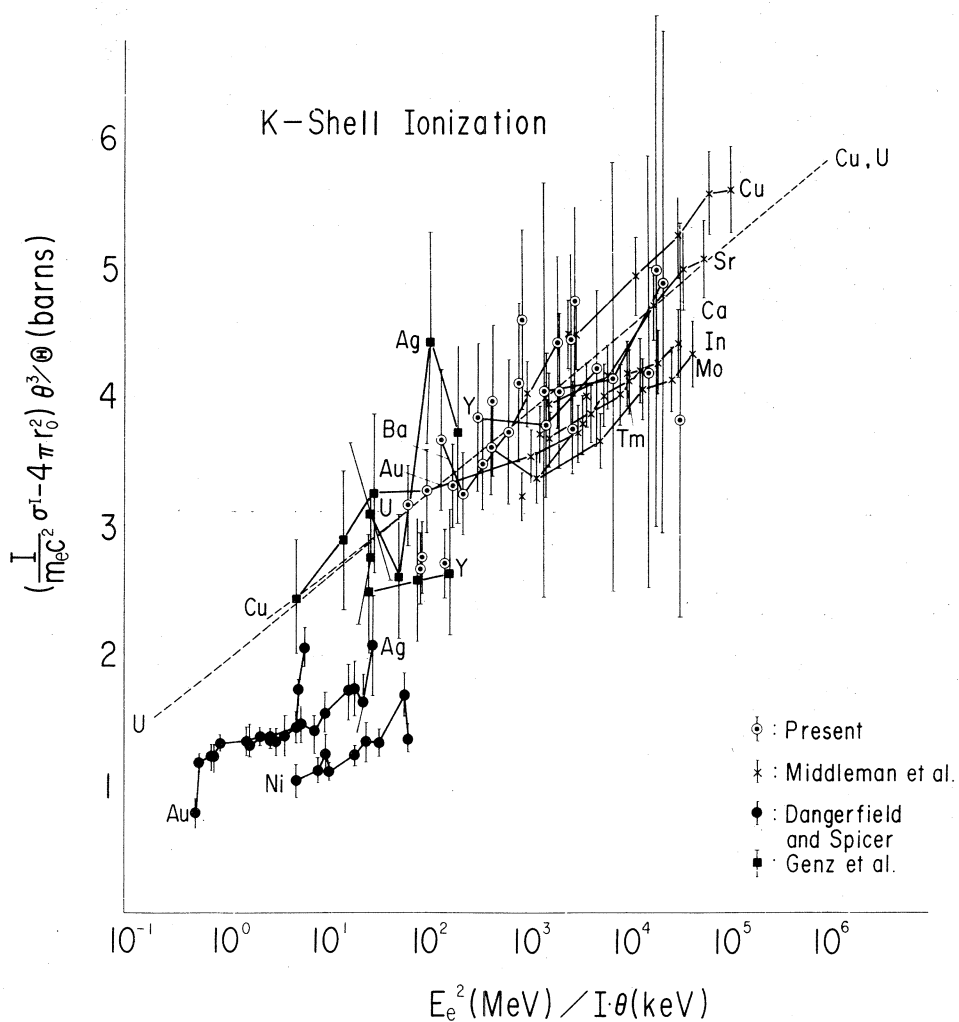


Fig. 2 Scaled universal representation of K-shell ionization by Kolbenstvedt's theory

screening number).

In order to compare the experimental results with the theoretical predictions, we tried to show them in scaled universal representations.<sup>18)</sup> Assuming  $E_e \gg mc^2$  and  $E_e \gg I_K$ , the semiempirical formula of Pessa and Newell<sup>19)</sup> gives

$$I_{ob} \sigma^I = f(E_e/I_{ob}),$$

where  $I_{ob}$  is the observed ionization energy, and  $\sigma^I$  is the ionization cross section. Thus the plots of  $I_{ob}\sigma^I$  versus  $E_e/I_{ob}$  are shown in Fig. 1, where the experimental results are rather scattered and not so well scaled. Next, following the the revised Kolbenstvedt theory at very high energy, we obtain

$$\frac{I_{ob} \theta^3 (\sigma^I - 4\pi r_0^2 / I_{ob} m_e c^2)}{\theta} = f(E_e^2 / I_{ob} \theta),$$

$$\text{with } \theta = 1 - \frac{16}{13} (1 - \theta),$$

where  $4\pi r_0^2 / I_{ob}$  is the constant cross section for close collisions, and  $r_0$  is the classical electronic radius. Therefore,

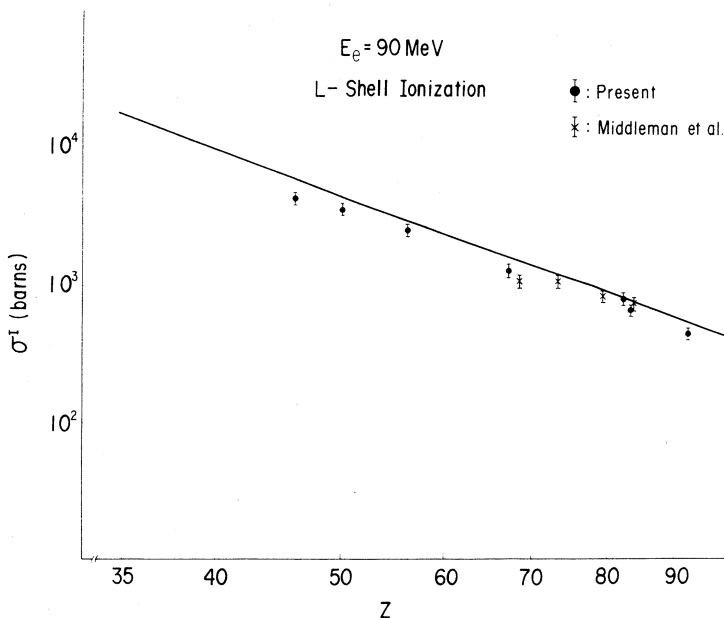


Fig. 3 L-shell ionization cross sections versus atomic number at  $E_e=90$  MeV. The solid line was calculated from impact parameter method.

the experimental values for the left term of the above equation are plotted against  $E_e^2/I_{Ob}\theta$  in Fig. 2 and are compared with the calculated curve from the theory. It is found that almost all of the data can be well scaled by the revised Kolbenstvedt theory and also that the cross section for close collisions is a constant with an order of magnitude of the theory.

In order to compare our experimental results on L- and M-shell ionizations with the theory, we

extended the Kolbenstvedt theory to these shells by using the photoelectron cross sections for  $L_I$ ,  $L_{II}$ ,  $L_{III}$  and M shells given by Hall<sup>16)</sup> and the results are shown in Figs. 3 and 4. Good agreements seen in these figures, even in the absolute cross sections, show the validity of this theory to these shells.

### § 3. Conclusions

As a whole, the calculation of D & M gives the best agreement with experimental results obtained by Rester and Dance, Li-Scholz et al. and Middleman, except for  $^{29}\text{Cu}$  in Middleman's experiment, and Kolbenstvedt's theory is similarly in excellent agreement in the energy region above 1 MeV.

Concerning the inner-shell ionization by positron impact,

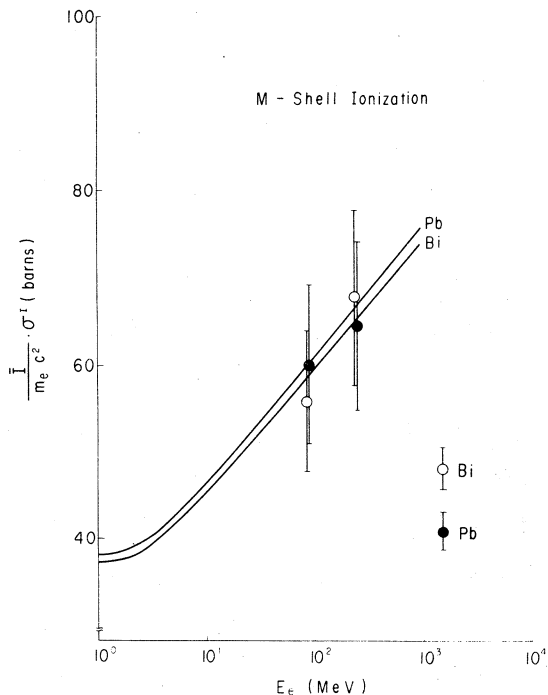


Fig. 4 M-shell ionization cross sections for Pb and Bi. The solid curves show the prediction from the impact parameter method.



theoretical and experimental studies are very few. As far as I know, Hansen et al. (1964)<sup>20)</sup> and Hansen and Flammersfeld (1966) (1966)<sup>21)</sup> have measured K-shell ionizations of six elements ranging  $Z = 40 - 82$  by negatron and positron impacts with radioactive sources, a  $\beta$ -ray spectrometer and an NaI(Tl) scintillation crystal over the impact energy range 100 - 1440 keV. According to their results, no systematic difference has been found between the cross sections measured with negatrons and positrons within the experimental errors of 10 - 20%. This result is consistent with the rough estimation of exchange effect by Perlman, which shows the effect less than 5% for the K-shell ionization of Hg at  $E_e = 10 \times I = 800$  keV and also the estimation of Das (1974)<sup>22)</sup> However, the experimental errors are large and more accurate measurements on inner-shell ionization by positron impact are desirable from the points of view of exchange effect and also of the effect of wave distortion for ejected electrons.

No description on differential inner-shell ionization cross sections has been done in this report. On this subject, there are still very few theoretical and experimental works, which are summarized in reference 9. Informations on differential cross sections are expected to provide more rigorous test of theoretical calculations such as the effect of distorted waves and will be accumulated in near future.

### References

- 1) E. H. S. Burhop, Proc. Cambridge Phil. Soc. **36** (1940) 43.
- 2) A. M. Arthurs and B. L. Moiseiwitsch, Proc. Roy. Soc. **A 247** (1957) 550.
- 3) D. M. Davidovic and B. L. Moiseiwitsch, J. Phys. **B Atom. Molec. Phys.** **8** (1975) 947.

- 4) H. S. Perlman, Proc. Roy. Soc. **76** (1960) 623.
- 5) H. Kolbenstvedt, J. Appl. Phys. **38** (1967) 4785.
- 6) H. Kolbenstvedt: J. Appl. Phys. **46** (1975) 2771.
- 7) G. Dangerfield: Phys. Letters **46 A** (1973) 19.
- 8) J. W. Motz and R. C. Placious: Phys. Rev. **A 136** (1964) 662.
- 9) D. H. Madison and E. Merzbacher: *Atomic Inner-Shell Processes*, ed, B. Crasemann (Acad. Press Inc., New York, 1975) p.11.
- 10) L. T. Pockman D. L. Webster, P. Kirkpatrick, and K. Harworth: Phys. Rev. **71** (1947) 330.
- 11) D. H. Rester and W. E. Dance: Phys. Rev. **152** (1966) 1.
- 12) W. Scholz, Angela Li-Scholz, R. Colle, and I. L. Preiss: Phys. Rev. Letters **29** (1972) 761.
- 13) Angela Li-Scholz, R. Colle, I. L. Preiss, and W. Scholz: Phys. Rev. **A 7** (1973) 1957.
- 14) L. Middleman, R. L. Ford, and R. Hofstadter: Phys. Rev. **A 2** (1970) 1429.
- 15) G. R. Dangerfield and B. M. Spicer: J. Phys. **8** Atom. Molec. Phys. **8** (1975) 1744.
- 16) H. Hall: Rev. Mod. Phys. **8** (1936) 358.
- 17) R. D. Schmickley and R. H. Pratt: Phys. Rev. **164** (1967) 104.
- 18) H. Tawara, K. Ishii, S. Morita, H. Saito, M. Oyamada, H. Kaji, and T. C. Chu: Phys. Letters **54 A** (1975) 171.
- 19) V. M. Pessa and W. R. Newell: Physica Scripta, **3** (1971) 165.
- 20) H. Hansen, H. Weigmann, and A. Flammersfeld: Nucl. Phys. **58** (1964) 241.
- 21) H. Hansen and A. Glammersfeld: Nucl. Phys. **79** (1966) 135.
- 22) J. N. Das: J. Phys. **B** Atom. Molec. Phys. **7** (1974) 923.

### Ⅲ. 放 射 化 学 部 門



## III-1 無担体スカンジウム-47の調製\*

核理研 八木益男・近藤健次郎

In order to prepare a source of high purity  $^{47}\text{Sc}$  for radio-pharmaceutical applications, the preparation of carrier-free  $^{47}\text{Sc}$  from isotopically enriched  $^{48}\text{Ti}$  target irradiated with high energy bremsstrahlung was investigated. At first, the production rate of  $^{47}\text{Sc}$  by the  $^{48}\text{Ti}(\gamma, p)$  or  $^{51}\text{V}(\gamma, \alpha)$  reaction, and those of contaminations by the other photonuclear reactions as a function of the maximum energy of bremsstrahlung up to 60 MeV were determined. Then, the chemical separation of carrier-free  $^{47}\text{Sc}$  and the recovery of isotopically enriched  $^{48}\text{Ti}$  target were studied in detail. As a result, the production rate of  $^{47}\text{Sc}$  by the  $^{48}\text{Ti}(\gamma, p)$  reaction at 60 MeV was given to be 293  $\mu\text{Ci}/100 \text{ mg}$  of  $^{48}\text{TiO}_2/\text{Coulomb}$  in the total electron beam current.

## § 1. 序

放射性スカンジウム-46は生体の代謝研究のための追跡子として極めて有効なことが立証されている<sup>1)3)</sup>しかしこれは無担体で製造することは困難であり、物理的半減期も極めて長く(83.9日)かつ高エネルギーガンマ線を壊変当り二本も放射するという欠点を有している。これに対して放射性スカンジウム-47はシンチレーション スキャンニングに適当な160 keVガンマ線を放射し、半減期も手頃な核種(3.43日)で必然的に内部被膜も極めて少なくすむという医療用放射性核種として最適の資格をそなえている。

この核種の無担体状態での製造は、サイクロトロンや原子炉等の利用では極めて困難であるが、電子直線加速器を利用すれば比較的容易におこなえる。有用な光核反応は $^{48}\text{Ti}(\gamma, p)$ 、 $^{49}\text{Ti}(\gamma, pn)$ 、 $^{50}\text{Ti}(\gamma, p2n)$ あるいは $^{51}\text{V}(\gamma, \alpha)$ 反応で、 $^{48}\text{Ti}$ の天然同位体存在比と核反応の起りやすさを考慮すれば、 $^{48}\text{Ti}(\gamma, p)$ 反応が最も有効と考えられる。既に岡ら<sup>4)</sup>はチタンおよびバナジウムの30~60 MeV制動輻射線による種々の光核反応の収率測定から、光量子放射化分析の感度を求めたが、彼等のデータ処理には若干の疑問点が含まれている。一

---

\* 本報告の詳細は Int. J. Appl. Radiation. Isotopes に投稿中。

方 Pearson<sup>3)</sup>はカルシウム-47を親としレミルキング法によってスカンジウム-47を生成させ、スカンジウム担体を加えてそれを分離し医療および生化学的研究に応用したが、無担体スカンジウム-47の調製はまだ成功していない。

そこで無担体スカンジウム-47の大量製造の基礎として、チタンおよびバナジウムにたいする種々の光核反応の生成率をあらうために検討するとともに、えられた結果を基礎にして他の放射性スカンジウムによる汚染の少ないスカンジウム-47をチタン-48濃縮ターゲットから分離製造する方法を検討した。

## § 2. 実験

### 2. 1 ターゲットおよび試案

生成率測定には純チタンおよびバナジウム金属をターゲットとして用い、無担体スカンジウム-47製造にはチタン-48(99.13%),チタン-46(0.25%),チタン-47(0.26%),チタン-49および50(0.2%以下)組成の酸化チタンを用いた。これらの一定量を直径8mmの石英管につめて試料とした。本実験に用いたその他の試薬はすべて最純品を用いた。

### 2. 2 照射

照射は3 $\mu$ 秒のパルスを毎秒300回繰返しで30~60 MeVの範囲でおこなった。試料は2mm厚の白金コンバーターのすぐ後側におき水冷した。照射条件が常に一定になるよう照射中の全ビーム電流はあらかじめFaraday cupで較正したフェライトコアモニターの電流を積算することで一定に保った。各エネルギーとも0.26クーロンの全電流積算値となるよう照射した。

### 2. 3 放射能測定

生成放射能はあらかじめ計数効率を同定した70 ml Ge(Li)検出器を4096区分波高分析器に接続し測定した。特に陽電子測定にたいしては完全に消滅ガンマ線を発生させるよう考慮しておこなった。生成核種はそれぞれ特徴あるガンマ線スペクトルおよびそれら半減期等を測ることによって同定した。

### 2. 4 生成率

生成率を求めるためには測定値にたいして検出器の計数効率、測定試料の広がり効果および放射ガンマ線の分岐比等による補正をおこなった。ついで照射終了時における生成率、すなわち $\mu$ Ci/ターゲット金属1グラム/クーロンを算出した。えられた生成率にたいする誤差は13%以下である。

### 2. 5 無担体スカンジウム-47の分離

白金ルツボ中で照射酸化チタン( $^{48}\text{Ti O}_2$ )と重硫酸カリウム1グラムを混じ、約400 $^{\circ}$ Cで10

分加熱溶解し冷却後3%硫酸に溶解する。スカンジウム-47の保持担体としてイットリウム担体10mgを加え、ポリエチレン遠心分離管に移し沸化水素酸1mlを加えて沸化イットリウムを沈殿させる。加温後遠心分離し沈殿は3%硫酸で2回洗滌する。上澄液は合してチタン-48の回収のために保存する沈殿に飽和ホウ酸水1mlを加えて攪拌し、ついで溶塩酸3mlを加えて溶解する。溶液をガラス遠心分離管に移し注意しながらアンモニア水を加えて水酸化イットリウムを沈殿させ遠心分離する。沈殿は水で洗滌し0℃で塩化水素ガスを飽和させた濃塩酸1mlにとかす。これをあらかじめ上記特製濃塩酸で処理したDowex 1×8, 100~200メッシュ、直径10mm、長さ100mmの陰イオン交換樹脂柱に0.1ml毎分の流速で通す。イットリウム担体を上記特製濃塩酸約8mlで完全に流出させ、ついで市販濃塩酸12mlで無担体スカンジウム-47を溶出分離する。最後にスカンジウムフラクションを集め、蒸発乾固し、残渣を適当な化学形にかえて医療用に供する。

### 2. 6 濃縮チタン-48の回収

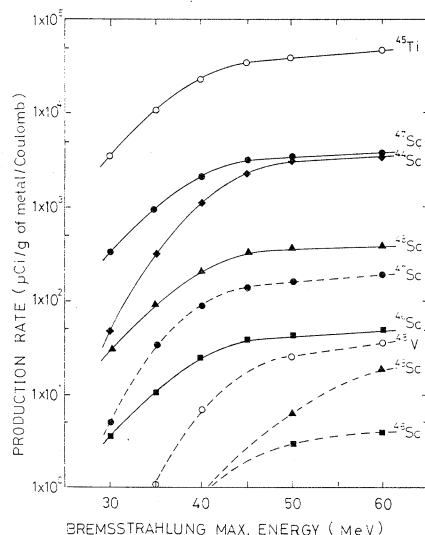
先に保存した上澄液は硫酸白煙が生じるまで濃縮して完全に過剰の沸化水素酸を除去し、再び3%硫酸溶液となるよう希釈する。これに6%クッペロン溶液を加えてチタンを沈殿させ、ついで沈殿を口別洗滌し、ルツボで灰化し酸化チタンにかえる。

## § 3. 結果と考察

天然組成のチタンおよびバナジウムをターゲットとしてえられた最大制動放射線エネルギーにたいする各生成核種の生成率は第1図に示した。

図から明らかなように各生成率は30 MeV以上で急激に増加し、45 MeV以上で除々に増加する傾向を示した。カルシウム-47が $^{49}\text{Ti}(\gamma, 2p)$ および $^{50}\text{Ti}(\gamma, 2pn)$ 反応で生成すると期待されるが、本実験ではスカンジウム-48の妨害により測定しなかった。この生成率は極めて低く、かつ娘のスカンジウム-47の生成も $^{48}\text{Ti}(\gamma, p)$ 主反応に較べれば殆んど無視できると思われる。

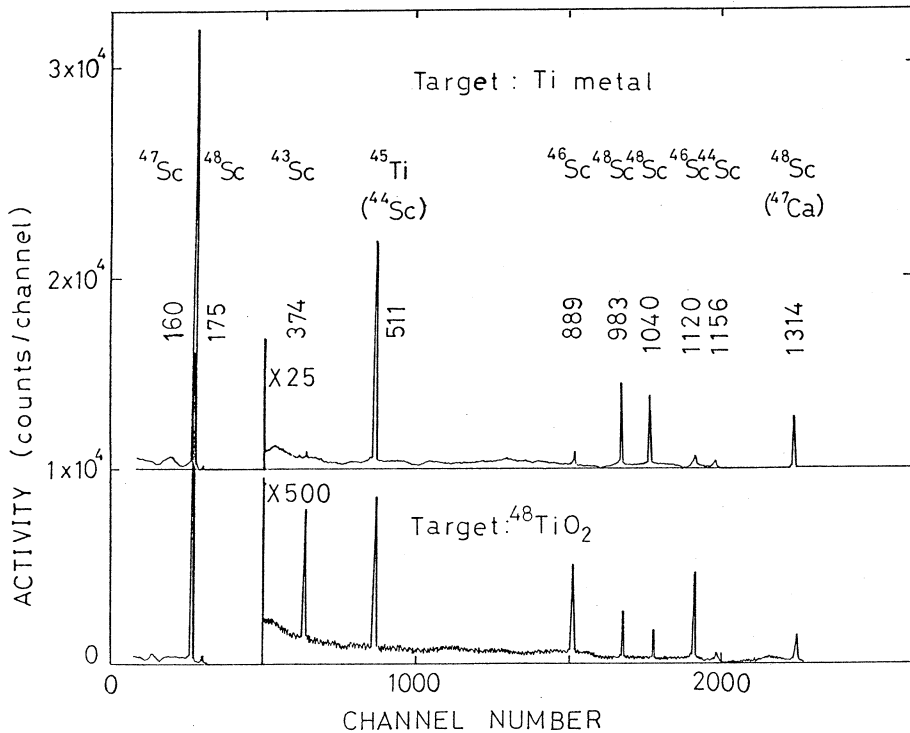
スカンジウム-47の生成率について $^{48}\text{Ti}(\gamma, p)$ と $^{51}\text{V}(\gamma, \alpha)$ 反応を比較すると、はるかに前者が優れていることがわかる。バナジウム-51は殆んど100%近い天然存在比であるにもかかわらずスカンジウム-47の生成率は極めて低く、かつスカンジウ



第1図 The production rates of radioactivities on the titanium and vanadium as a function of bremsstrahlung maximum energy.

— : Titanium target  
 - - - : Vanadium target

ウム-46 および 48による汚染もさけることができない。この両核種による汚染の問題はチタンターゲットの場合も同様であり、60 MeVでは照射終了時スカンジウム-47のそれぞれ1.3%および10.3%にもおよんでしまう。それ故たとえチタンターゲットから放射性スカンジウムが無担体分離されても医療用としては適さない。これら両核種の汚染をさけるためには、高濃縮チタン-48を使用する以外他に手段はない。そこで濃縮チタン-48を30、40、45および60 MeV制動放射線照射することを試みた。60 MeVで照射し、照射12時間後にえられたガンマ線スペクトルは同時に照射された天然組成チタン金属のそれと一緒に第2図に示した。ここで始めてスカンジウム-43(3.92時)の生成が認められたが、これはスカンジウム



第2図 Gamma-ray spectra of the isotopically enriched  $^{48}\text{TiO}_2$  and the natural titanium metal irradiated at 60 MeV.  
 $E_r$  : KeV

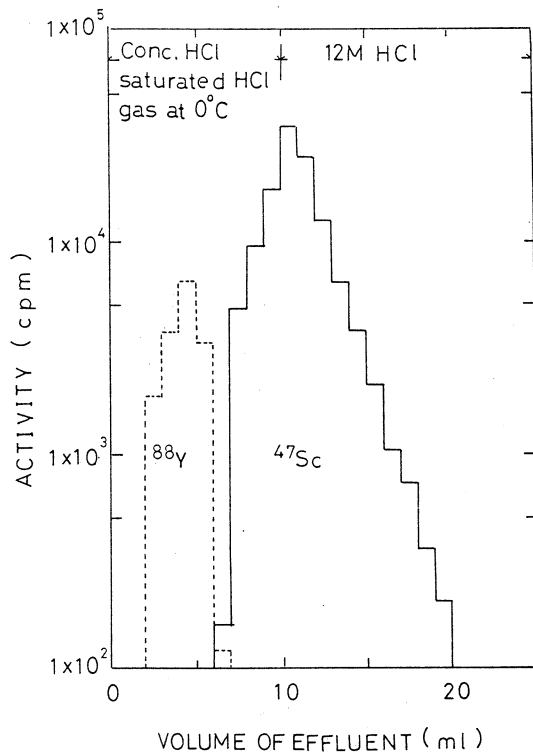
-44(3.92時)と同様極めて半減期の短いものであるから無視できる。これから濃縮チタン-48を用いればスカンジウム-46および-48の汚染は照射終了12時後にはスカンジウム-47の $5.7 \times 10^{-3}$ %および $2.6 \times 10^{-3}$ %となり全く無視できることがわかった。高濃縮チタン-48酸化物100mg当りの各エネルギーでのスカンジウム-47の生成率は第1表に示した。これから濃縮チタン-48酸化物100mgを60 MeVで、150  $\mu\text{A}$ の電流で10時間すなわち5.4クーロン

第1表 The production rates of <sup>47</sup>Sc in the isotopically enriched <sup>48</sup>Ti as TiO<sub>2</sub>.

E <sub>r</sub> (MeV)	production rate (μCi/100 mg of <sup>48</sup> TiO <sub>2</sub> /Coulomb)
30	26.6
40	171.4
45	274.7
60	293.3

照射すれば、スカンジウム-47は1.6 mCi調整できることがわかった。

濃縮チタン-48 酸化物からの無担体スカンジウム-47の分離法は放射性チタン-45、イットリウム-88および無担体スカンジウム-47をトレーサーとして用い検討された。まず無担体スカンジウム-47をトレーサーとして用い沸化イットリウムへの共沈が検討された結果、共沈は完全であり、チタン-45をトレーサーとして用いた同様検討からは、この共沈法によりスカンジウム-47は完全に多量のチタンから分離できることがわかった。チタンの除染係数は $1 \times 10^6$ 以上であった。無担体スカンジウムの保持担体として加えたイットリウムと無担体スカンジウムの分離は陰イオン交換樹脂法によっておこなったが、その分離曲線は第3図に示した。ここではイットリウム-88がトレーサーとして用いられた。両者の分離はかろうじて達成されたが化学的に純粋な無担体スカンジウム-47をうるためには、多少の損失はあっても約8 mlの特製濃塩酸でイットリウムを溶出させたあと、スカンジウムを溶出した方が安全であることがわかった。この方法によるスカンジウム-47の収率は85%以上で陽イオン交換樹脂を利用する分離よりも迅速におこなうことができた。またこの方法は、あと処理が容易に実施できる塩酸酸性溶液でえられるところに特徴があろう。最終試料における過酸化水素水添加によるチタンの発色は全く認められず、ターゲットであるチタンの汚染は全くないことがわ





かった。

一方濃縮チタン-48の回収は重量法で検討した結果、95%以上の収率で回収できることがわかった。

### 参 考 文 献

- 1) A.W. Ford-Hutchinson and D. J. Perkins and Eur. J. Biochem : 21 (1971) 55.
- 2) B. Rosoff and H. Spencer : Int. J. Appl. Radiat. Isotopes 16 (1965) 479.
- 3) J. D. Pearson : ibid. 17 (1966) 13.
- 4) Y. Oka. T. Kato and N. Sato : Bull. Chem. Soc. Japan 42 (1969) 387.

## Ⅲ-2 光量子放射化分析用照射装置\*

核理研 八木益男・近藤健次郎

A more exact and reliable irradiation system for the photon-activation analysis by the use of high-power electron linear accelerator was originally designed and tested. Applications of a simple beam position monitor and a thin beryllium-oxide ceramic disk in this system made possible to control the beam position on the center axis of sample during cause of the irradiation, and also permitted the reproducible irradiations *in situ*.

### § 1. 序

光量子放射化分析は、中性子放射化分析等では不可能か、または極めて困難な元素分析も実施できるという特徴をもっている<sup>1) 7)</sup>しかしながら、これを実施するにあたっては使用する電子直線加速器の運転および試料の照射状況、すなわち電子ビームの収斂、その変動およびビーム軸上への試料の設置が直接的に分析目的元素の分析感度に反映するため、これらを可能な限り一定に保つ必要にせまられる。放射化分析用ではないが、電子ビームの収斂およびその位置等を一定に保つための工夫は、二次電子放出モニターを加速器に設置することによって Levin<sup>8)</sup>, Pudnikov および Toropov<sup>9)</sup>らによって試みられているが、これらは光量子放射化分析用として有効なものとはいえない。

そこで光量子放射化分析の感度を一段と飛躍させるため照射中の電子ビームの収斂を簡易に観測でき、かつ電子ビーム位置を試料の中心軸上に容易に合わせられるような照射装置を新たに考案し、種々のテストを試みた。

### § 2. 照射装置

装置の概略図は第1図に示した。工業用テレビジョンモニター、ビーム電流積算計および位置モニター用マイクロアンメーターは加速器制御室に、他はすべてビームコース上に設置してある。全ビーム電流はフェライトコア誘導電流モニターをビーム取出窓外側に設置し、整流後電流積算計に接続して測定する。このフェライトコア誘導電流モニターは、あらかじめ Faraday Cup を用いて校正しておけば、高精度で全ビーム電流を測定することができる。

\* 本報告の詳細は J. Radioanal. Chem. (in press) を参照されたい。

照射中ビームのおおよその収斂状況とその位置は、上記フェライト コア モニターのすぐ後側に直径 40 mm 厚さ 0.25 mm のベリリア円板をおき、そこに現われるビーム像を工業用テレビジョンで観測することによって知ることができる。かなり鮮明なビーム像がえられる。これよりさらに正確なビーム位置を知るためには、直径 3 mm、厚さ 0.1 mm の白金円板を第 2 図に示した保持器とともに、ベリリア円板と照射試料台間につり下げておく。電子ビームがこの小円板を通過すれば二次電子放出による正の電流がアース間に流れるから、それを電流計で直読すれば極めて正確にビーム位置を知ることができる。逆にこれを照射試料の中心軸上にあらかじめ設置しておけば、これが位置指定モニターとなり、制動放射線を試料の中心に照射することが可能となる。白金の融点は 1769 °C で使用中時として融けることがあるから、この位置モニターは強制空冷する必要がある。

照射試料保持台は制動放射線が中性子線と同様に試料を貫通していくところから、多数試料が同時に照射できる構造であることが望まれる。この保持台の最先端には制動放射線発生ターゲットを設置する。制動放射線収率、熱伝導性および化学的安定性の点から白金板を強制水冷して使用しているが、薄い白金板を積重ね方式で厚くした方が発熱による融解はさけることができる。普通には全厚 2 mm のものを使用している。照射試料は石英管に封入し白金板のすぐ後側におき、白金板と同様強制水冷する。なお試料保持台は実験者の放射線被曝をできるだけ少くするためレール台の上を移動できる構造とし、かつ試料の出入れが容易におこなえるようにしておく。

### § 3. 実験

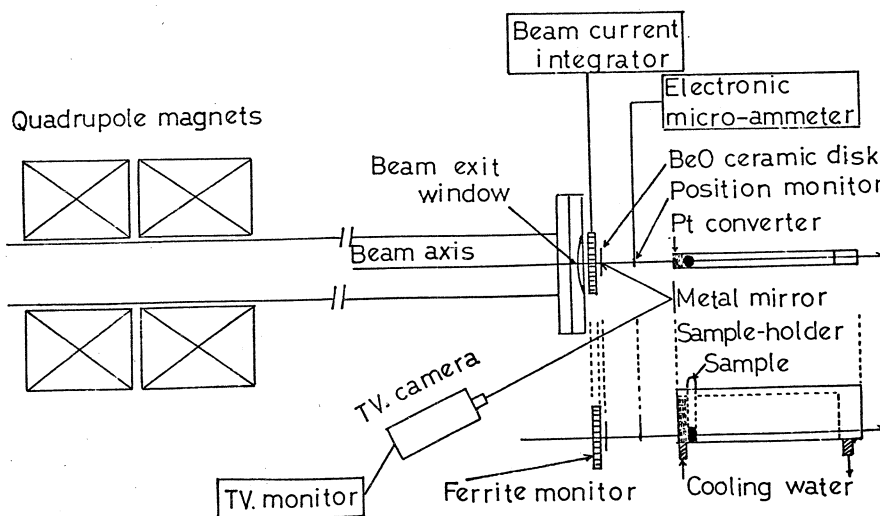
本照射装置によるビーム プロフィールの観測、位置モニターの感度および照射の再現性を検討した。

#### 3. 1 ビーム プロフィールの観測

ビーム プロフィールはベリリア円板によるテレビジョン観測、位置モニターを左右に少しづつずらしておこなう電流測定および銅薄板を放射化する方法で観測した。加速器は 30 MeV、3  $\mu$ 秒パルスを毎秒 300 回繰返しで運転し、ビームの収斂性は最上の条件の下でおこなった。えられた結果は第 3 図に示した。位置モニターおよび放射化による FWHM はよく一致し、またベリリア円板で観測したビーム直径は、それぞれの観測ビーム直径と一致した。

#### 3. 2 位置モニターの感度

試料の中心に制動放射線を有効に照射するためには位置モニターの感度が極めて重要となる。第 2 図には直径 3 mm の白金小円板を用いた場合のビーム プロフィールを示したが、これによると僅かなビームのずれにも感度よく対応することがわかる。30 MeV 加速の場合  $10^{-3} \mu\text{A}$

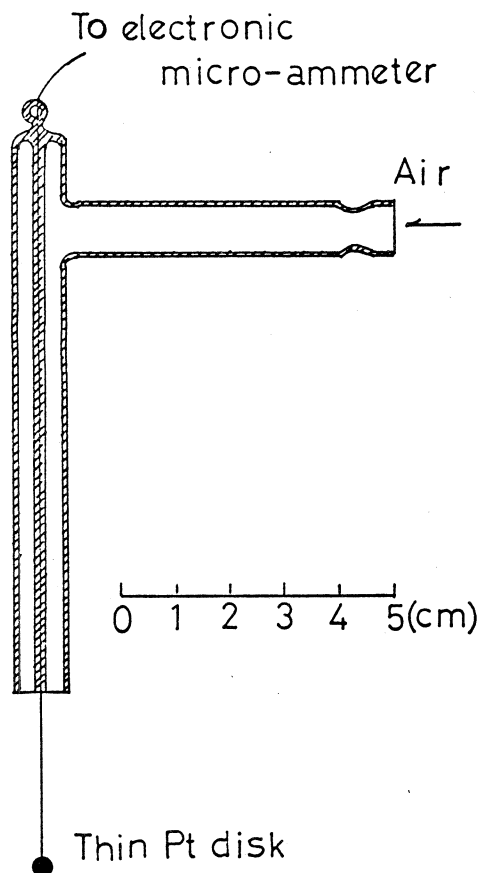


第1図 Schematic drawing of the irradiation system.

まで測定可能であった。さらに小さな直径の白金円板を用いれば感度は一層増大すると期待される。またビームエネルギーの増加に対応して二次電子放出も増大すると期待されるが、高エネルギー側になると周囲物質からくる二次電子をひろうため電流値増加の比例性は乏しくなった。

### 3. 3 照射の再現性

光量子放射化分析の感度をあげるためには制動放射線ターゲットのすぐ後側に照射試料をおいて照射する必要がある。そのためには照射の再現性が望まれる。そこで本装置による照射の再現性を検討するため沸化リチウムを試料として数回の照射をおこなってみた。加速器は 30 MeV, 3  $\mu$ 秒パルス毎秒 300回繰り返して約 1時間づつ運転し、全電流値が一定になるよう照射した。えられた結果は

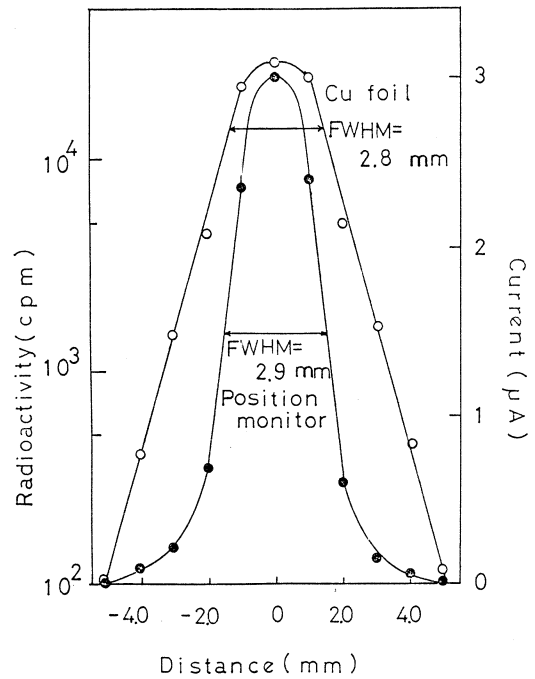


第2図 Beam position monitor

第1表に示した。これから明らかなように±5%の精度で照射の再現性が維持されることがわかった。

以上の実験からも明らかなようにビーム電流測定モニターおよび簡易な位置モニターを設置することにより、効率よく、かつ正確に制動放射線を試料に照射することができた。

この装置を利用すれば、従来よりより高感度の光量子放射化分析が実施できると期待される。



第3図 Profiles obtained by using the beam position monitor and measuring the <sup>64</sup>Cu activity from copper foil.

第1表 The reproducibility of irradiation

Run	F taken (mg)	Radioactivity (cpm)	Specific activity (cpm/mg)
1	1.93	$5.83 \times 10^5$	$3.02 \times 10^5$
2	1.94	$6.44 \times 10^5$	$3.32 \times 10^5$
3	1.89	$5.67 \times 10^5$	$3.00 \times 10^5$
4	1.96	$6.39 \times 10^5$	$3.26 \times 10^5$
5	1.94	$6.19 \times 10^5$	$3.19 \times 10^5$
		mean value	$3.16 \times 10^5$

参 考 文 献

- 1) E. Schweikert and Ph. Albert : Colloque Sur les Methods Radiochimiques d' Analyse, Salzburg, IAEA (1964) SM-SS/66.
- 2) G. H. Anderson, F. M. Graber, V. P. Guinn, H. R. Lukens and D. M.

Settle ; Proc. Symo. on Nuclear Activation Techniques in the in Life Sciences, Amsterdam. IAEA (1967 ) SM-91/63.

- 3) D. Brune : Anal. Chim. Acta: **44** (1969 ) 9.
- 4) G. T. Lutz : Anal. Chem. **41** (1969 ) 424.
- 5) Ch. Engelmann : J. Radioanal. Chem. **6** (1970 ) 399.
- 6) T. Kato and Y. Oka : Talanta **19** (1972 ) 515.
- 7) T. Kato : J. Radioanal. Chem. **16** (1973 ) 307.
- 8) V. M. Levin et al. : At. Energy **23** (1967 ) No. 6.
- 9) I. A. Prudnikov and A. S. Toropov : Nucl. Instr. Meth. **92** (1971 ) 359.

### III-3 $H^{80m}Br-CH_4$ 系における $^{80m}Br$ の核異性体転移に伴う化学的効果…… $CH_2Br^{80}Br$ の生成機構について (II)

核理研 八木益男・近藤健次郎

#### § 1. 緒言

$H^{80m}Br$  を source molecule とする  $^{80m}Br$  の核異性体転移では既報<sup>1)</sup> のように Kr 添加効果から娘核  $^{80}Br$  は thermal ionic process による再結合を行い, Kinetic process による寄与は認められない。 $H^{80m}Br-CH_4$  という比較的単純な系でありかつ, 有機生成物が  $CH_3^{80}Br$ ,  $CH_2Br^{80}Br$  のみであるにもかかわらずこれまでこれら有機生成物を与える娘核  $^{80}Br$  の再結合機構について十分な検討がなされていない。これは本研究のような高圧下の実験では反応に関与する娘核  $^{80}Br$  イオンは既報の  $^{80m}Br$ ,  $^{82m}Br$  同位体効果<sup>2,3)</sup> 及び温度効果<sup>4)</sup> で示したように自身あるいは  $^{80}Br$  イオンを含む complex ion を核とする ion-cluster を形成し再結合反応もそのような複雑な反応の場で進行することによる。とくにこのような反応の場で生成する  $CH_2Br^{80}Br$  の生成に対する HCl, HBr,  $H_2S$  などの添加効果実験でそれぞれの添加系で生成する  $CH_2^{80}BrCl$ ,  $CH_2Br^{80}Br$ ,  $CH_2^{80}BrSH$  は  $^{80}Br$  を含む precursor と添加物の direct な反応によることが示された。<sup>5)</sup>

Precursor としては  $^{80}Br^+$  イオン系に多量に存在する  $CH_4$  との反応で生成する  $CH_4^{80}Br^+$  (sticky collision complex) かあるいは  $^{80}Br^+$  を含むイオン種の中和など, なんらかの過程で生成する bromo carbene  $CH^{80}Br$  が考えられる。今回は  $H^{80m}Br-CH_4$  ( $H^{80m}Br/CH_4 = 0.1$ ) 系において thermal ionic reaction による  $CH_2Br^{80}Br$  の生成が  $CH^{80}Br$  を precursor として進行するものかどうかを,  $CH_2=CH_2$  添加系で検討した。またこれまであまり考察の対象とならなかった  $^{80m}Br$  の核異性体転移で内部転換に引きつづいて放出される平均 7 ケの Auger electron の寄与についても, electron scanner として  $SF_6$  を系に添加し, その有機物収率分布に対する影響から検討を試みた。

#### § 2. 実験

$H^{80m}Br$  は従来と同様に  $PdBr_2$  約 1.5g を 60 MeV 制動放射線 で 3~4 時間照射したのち真空ラインを用い  $PdBr_2$  の熱分解によって常法によって調製した。<sup>4)</sup> 一方  $CH_4$ ,  $CH_2=CH_2$ ,  $SF_6$  は高千穂化学 K. K. より購入したそれぞれ純度 99.995%, 99.9% のものをそのまま実験に供した。生成物同定は根本 5DH ラジオがスクロマトグラフによったが試料導入前にフェロシ

アン化カリ法及び抽出法によって無機生成物 ( $\text{HBr}$ ,  $^*\text{Br}_2$ ) を除去した。各生成物の相対収率はガスクロマトグラフに内臓されたGM放射線検出器の出力を4KPHAに入れ、マルチチャンネル法で測定し、decay補正後決定した。なお一部試料については従来どうりガスクロ出口で各生成物に相当する部分を捕集しその放射能を井戸型NaI検出器で測定し、相対収率を求めた。

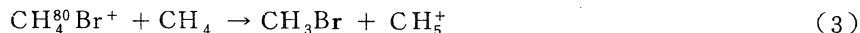
### § 3. 結果および考察

Rackら<sup>6)</sup>は $\text{CH}_4$ - $\text{Br}^{80\text{m}}$ 系においてthermal ionic reactionによる $\text{CH}_3^{82}\text{Br}$ の生成はelectronically excited stateの $^{82}\text{Br}^+$ と $\text{CH}_4$ の直接反応(1)



によるとした。しかし上記反応が39.5 Kcal/molの吸熱反応であるとともに、 $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ の収率に対する添加物効果から考え妥当とはいえない。

著者らが既報<sup>5)</sup>で示したようにthermal  $^{80}\text{Br}^+$ と $\text{CH}_4$ との反応(2)で生成する $\text{CH}_4^{80}\text{Br}^+$ (sticky collision complex)と系に多量に存在する $\text{CH}_4$ とのion-molecule反応(3)によるものと考えられる。



$^{80}\text{Br}^+$ と $\text{CH}_4$ との間のpotential energyは次式で与えられる。

$$-V = \frac{1}{2} \frac{\alpha e^2}{r^4}$$

いま $\alpha = 2.69 \times 10^{-24} \text{ cm}^3/\text{mol}$ ,  $r = 3\text{A}$ として、その値は5.5Kcal/molとなり、vibrational energyとして蓄えられる。

上記反応の $\Delta H$ (total)は $\Delta H_{\text{CH}_4} = -17.8 \text{ Kcal/mol}$ ,  $\Delta H_{\text{CH}_5^+} = 218 \text{ Kcal/mol}$ として計算すると44.3 Kcal/molの発熱反応である。このようなことからthermal ionic reactionによる $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ の生成は既にWelchら<sup>7,8)</sup>が $^{123}\text{Xe} \xrightarrow{\text{E.C. } \beta^+} ^{123}\text{I}$ 反応で生成するthermal  $^{123}\text{I}^+$ と $\text{CH}_4$ の反応で生成する $\text{CH}_3^{123}\text{I}$ 同様(3)の反応のようにH-transferを含むion-molecule反応によるものと考えられる。

一方 $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$ の生成についてはradical reaction, ion-molecule reactionおよびそれらの併合反応など考えられてきた。 $^{80}\text{Br}$ のthermal ionic (kinetic energy insensitive) reactionとして $^{80}\text{Br}^+$ イオンの他に $^{80}\text{Br}$ (thermal) radicalの寄与も当然考慮に入れなければならないがこれによる寄与は添加物(radical scavenger)濃度と $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$ の収率

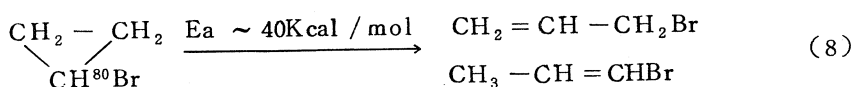
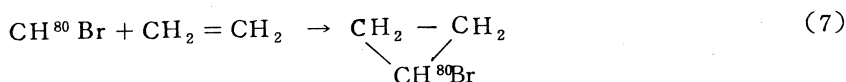


関係から否定された。同じように C- $^{80}\text{Br}$  を含むイオン種あるいは radical と系に存在する HBr との反応で Br-abstraction reaction による  $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$  の生成の可能性も考えられるがその反応が radical reaction あるいは ion molecule 反応であったとしても反応速度論的検討から、その生成は説明できない。

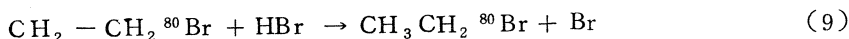
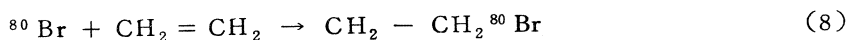
一方 Wai ら<sup>9)</sup> が recoil  $^{80}\text{Br}$  と  $\text{CH}_2\text{BrBr}$  の kinetic sensitive reaction で  $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$  が precursor として  $\text{CH}^{80}\text{Br}$  を経由して生成することを報告している。本研究において  $\text{CH}_4^{80}\text{Br}^+$ ,  $\text{CH}_2^{80}\text{Br}^+$  etc が中和に伴う高励起状態からの分解反応で  $\text{CH}^{80}\text{Br}$  の生成も充分考えられ、precursor として  $\text{CH}^{80}\text{Br}$  を考えれば HCl,  $\text{H}_2\text{S}$ , HBr 添加による  $\text{CH}_2^{80}\text{BrCl}$ ,  $\text{CH}_2^{80}\text{BrSH}$ ,  $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$  の生成も説明できる。



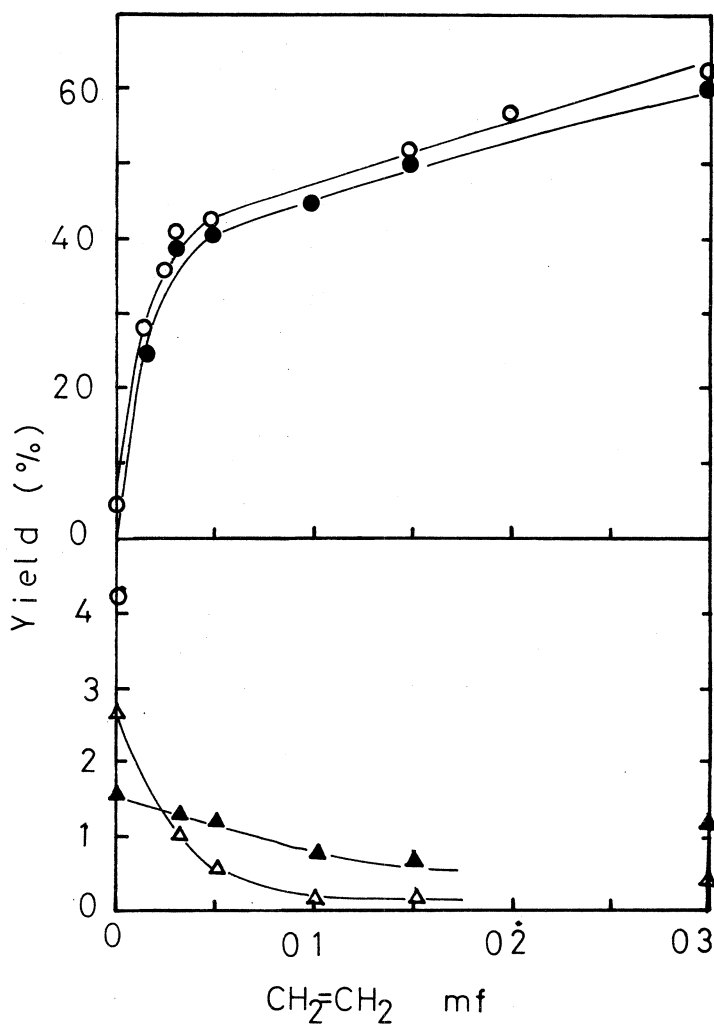
緒言で述べたように本研究では  $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$  の生成 precursor として  $\text{CH}^{80}\text{Br}$  が妥当であるかどうかを主目的としたが、その存在を確認するため、系  $\text{CH}_2 = \text{CH}_2$  を添加し  $\text{CH}^{80}\text{Br}$  との反応 (7) (8) 生成物であるアリルブロマイドの検出を試みた。



しかし HBr /  $\text{CH}_4 = 0.1$  系に対する添加実験ではそのラジオガスクロマトグラムからはアリルブロマイドに相当する retention time には放射能は認められず precursor として  $\text{CH}^{80}\text{Br}$  は妥当でないことを示した。図 1 にその実験結果を示した。 $\text{CH}_2 = \text{CH}_2$  添加によって  $\text{CH}_2\text{BrBr}$  収率は急激に減少する一方  $\text{CH}_3\text{Br}$  収率は緩やかな減少を示した。注目すべきことは  $\text{CH}_2 = \text{CH}_2$  が 0.05mf 以下の領域で  $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{Br}$  が急激な増加を示したことである。この  $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{Br}$  収率の急激な増加分の大部分は次の様に説明されるものと考えられる。すなわち Br のイオン化電圧 11.8eV より  $\text{CH}_2 = \text{CH}_2$ , HBr のそれは 10.5, 11.6eV と低く  $^{80}\text{Br}^+$  のかなりの部分は charge transfer によって thermal  $^{80}\text{Br}$  となっているものと考えられる。 $\text{CH}_2 = \text{CH}_2$  無添加の場合は  $^{80}\text{Br}$  radical は H-abstraction により無機生成物 HBr を与えるが  $\text{CH}_2 = \text{CH}_2$  添加系では反応 (8) (9) によって  $\text{CH}_3\text{CH}_2^{80}\text{Br}$  を与えるものと考えられる。



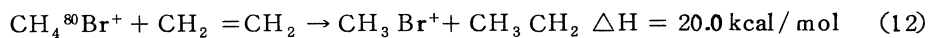
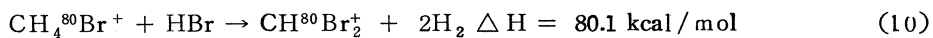
しかし  $\text{CH}_3\text{CH}_2^{80}\text{Br}$  の増加分が全てこのような  $^{80}\text{Br}$  radical を経由する process で説明



第1図 エチレン添加効果 ( $H^{80}Br/CH_4 = 0.1$ )

—○—: 有機収率      —△—:  $CH_2Br^{80}Br$   
 —●—:  $CH_3CH_2^{80}Br$       —▲—:  $CH_3^{80}Br$

されるものではなく $CH_3CH_2^{80}Br$ 収率の増加がまた $CH_2^{80}BrBr$ の急激な減少と対応していることから、これまでの考察から $^{80}Br$ を含むイオン種 $CH_2Br^{80}Br$ を与えるprecursorとの間の反応も当然あるものと推察される。Precursorとして $CH_4^{80}Br^+$ を考えその反応性を $HBr, CH_2 = CH_2$ などについて詳細に検討した結果、



上記反応で $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$ を与える反応(10)と $\text{CH}_3\text{CH}_2^{80}\text{Br}$ を与える反応(11)は競争関係にあり少量の $\text{CH}_2 = \text{CH}_2$ 添加で反応(11)が優先的に起るものと考えられる。反応(10)~(12)で生成する $\text{CH}^{80}\text{Br}_2^+$ ,  $\text{CH}_2^{80}\text{BrCH}_2^+$ ,  $\text{CH}_3\text{Br}^+$ などが果してそれぞれ本実験条件下で $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$ ,  $\text{CH}_3\text{CH}_2^{80}\text{Br}$ ,  $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ を与える次の段階のprecursorとなりうるかどうか大きな問題である。既報<sup>4,5)</sup>でのべたように本実験条件下ではこのようなイオン種のlife-timeおよび衝突頻度かお考え殆んどイオンはion-clusterを形成し、それらイオン種の中和過程も当然そのような液相に近い状態で進行するものと考えられ、中和に伴う過剰エネルギーも短時間 $10^{-11} \sim 10^{-12}$ sec以内(分子間衝突頻度を考慮して)に十分振動励起を解消しそれぞれラジカルとして引きつづくH-abstraction反応を行うものと考えられる。これまで高励起状態の反跳置換生成物の単分子分解過程については多くの研究者によって進められてきた。<sup>10)</sup>その中性励起種の分解、安定化の割合は系の圧力によって大きく支配される。しかし本実験系では既報<sup>1)</sup>のように200~1400mmHgの圧力範囲で全く収率の圧力依存性は認められず、この事実もion-clusterを考慮に入れば良く説明づけられる。

$\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ は $\text{CH}_2\text{Br}^{80}\text{Br}$ 収率に比しゆるやかに減少している。これは $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ のprecursor  $\text{CH}_4^{80}\text{Br}^+$ は反応(11)によって減少するが一方反応(12)によって $\text{CH}_2 = \text{CH}_2$ との反応で収率増加をもたらし両者の競争関係によるものと考えられる。

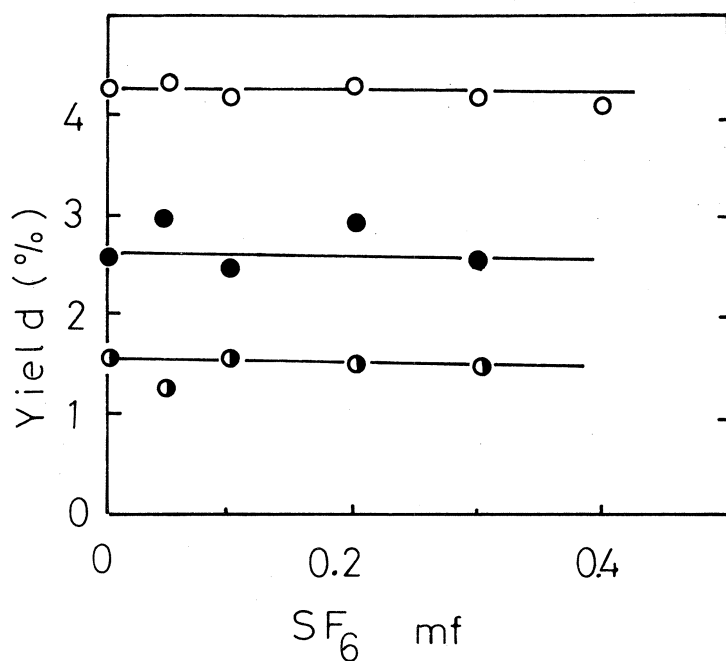
**SF<sub>6</sub>添加系:** これまで著者らは $\text{H}^{80\text{m}}\text{Br} - \text{CH}_4$ 系における核異性体転移の効果を論ずる際、内部転換にともなって放出される平均7ケのAuger electronの寄与については全く考察を加えていない。今回は $\text{CH}_3^{80}\text{Br}$ ,  $\text{CH}_2^{80}\text{BrBr}$ の生成に対するこれらAuger electronの寄与は一般に言われているようにないものかどうかを検討するためelectron scavengerとして系にSF<sub>6</sub>を添加し、実験を行った。結果を図2に示した。

SF<sub>6</sub>によってelectronは



としてscavengeされる。図から $\text{CH}_3\text{Br}$ ,  $\text{CH}_2\text{Br}_2$ 収率ともSF<sub>6</sub>添加によって殆んど変化していない。

このことはこれらの生成に対しAuger electronの寄与は無視しうること一示している。今Auger electronのenergyを10keVとし( $^{80\text{m}}\text{Br}$ の場合10keV附近のelectronが最多頻度)Betheの式から $(-dE/dx)_{\text{CH}_4}$ を計算すると(average ionization potential  $I_H = 13\text{eV}$ ,  $I_C = 67\text{eV}$  圧力1気圧, electron数 =  $2.5 \times 10^{20}/\text{cm}^3$ )その値は3.7keV/cmとなる。したがって $^{80\text{m}}\text{Br}$ からの転移に伴うAuger electronはかなり遠くまで達し確率的に言って生成した $^{80}\text{Br}$ と再び反応に関与することはないものとする事ができる。この



第2図 SF<sub>6</sub> 添加効果 (H<sup>80m</sup>Br/CH<sub>4</sub> = 0.1)  
 —○— : 有機収率 —●— : CH<sub>2</sub><sup>80</sup>BrBr  
 —◐— : CH<sub>3</sub><sup>80</sup>Br

ことはSF<sub>6</sub> 添加系において electron scavenger としての効果が CH<sub>3</sub><sup>80</sup>Br, CH<sub>2</sub>Br<sup>80</sup>Br 生成になんら影響を及ぼしていないことと良く合致している。

#### 参 考 文 献

- 1) 八木, 近藤, 小林: 核理研研究報告 6, (1973) 129
- 2) M. Yagi, K. Kondo and T. Kobayashi: Radiochem. Radioanal. Letters 7 (1971) 275
- 3) M. Yagi, K. Kondo and T. Kobayashi: ibid. 7 (1971) 275
- 4) M. Yagi and K. Kondo: ibid. 20 (1975) 299
- 5) 八木, 近藤: 核理研研究報告 7 (1974) 179
- 6) J. B. Nicholas and E. P. Rack: J. Chem. Phys. 48 (1968) 4085
- 7) M. D. Loberg and M. J. Welch: J. Amer. Chem. Soc. 95 (1973) 1075
- 8) M. D. Loberg, K. A. Kenneth and M. J. Welch: ibid. 95 (1973) 3490
- 9) J. M. Rodriguez, J. M. Lo and C. M. Wai: Radiochem. Radioanal. Letters 20 (1975) 353

- 10) C. F. Mcknight, J. W. Root : J. Phy. Chem. 74 (1970) 217

### Ⅲ—4 ゼオライトの耐酸性および天然ゼオライト 焼成体からのCsおよびSrの浸出性

選研 三村 均・菅野卓治

#### § 1 . 緒言

天然ゼオライトは、我が国では、主にグリーンタフ中に存在するクリノプロクロライトおよびモルデナイトが主であり、その鉱量は無尽蔵といわれ、安価で多量に得られている。また、高いイオン交換能を有し、Cs への選択性および耐放射性に優れていることから、最近放射性廃液への利用が注目されている。

著者らは前報において<sup>1)</sup>、合成ゼオライト焼成体中にCs およびSr を固定化すれば、その浸出性が極めて低下することを報告した。本報においては、合成ゼオライトA型およびX型に比べてSi/Al比が高い天然モルデナイトおよび天然クリノプロクロライトを用いて、その耐酸性、Cs およびSr の交換容量および焼成固化体からのCs およびSr の浸出性について検討した。

#### § 2 . 実験方法

天然ゼオライトとしては、仙台周辺産の天然モルデナイト(20~30メッシュ)と秋田県二ッ井産および山形県板谷産クリノプロクロライト(20~30メッシュ)の3種類を用いた。

ゼオライトの耐酸性については、Na型試料を種々の濃度の硝酸に一定時間接触させ、それらの構造変化をX線回折法により検討した。Cs およびSr に対する交換容量は、トレーサーとして<sup>137</sup>Cs および<sup>85</sup>Sr (核理研のLINACで製造)を用いて、カラム法により飽和時のゼオライト中の吸着量を測定してもとめた。

また浸出性については、前報と同様にCs型およびSr型のもを800°C、900°C、1000°C、1100°Cおよび1200°Cで3時間電気炉で焼成したものからのCsまたはSrの浸出量を原子吸光法で測定し、焼成温度による浸出性の変化をみた。さらに1200°Cで3時間焼成したものは、65~100メッシュの粉末としたのち、10mlの蒸留水および人工海水と25°Cで24時間接触させ、浸出したCsを原子吸光法で測定して浸出率を算出した。焼成体の表面積は、あらかじめBET法により測定しておいた。

#### § 3 . 実験結果および考察

##### 3. 1 ゼオライトの耐酸性

第1図および第2図に、A型ゼオライトおよびクリノプロクロライトの硝酸処理による構造破壊の様子を示した。A型は0.1M, 1時間程度の処理で構造破壊が始まり、1M以上では完全に構造が破壊され無定形となるが、クリノプロクロライトは、1Mで回折線強度の減少が認められるが、5Mまでゼオライト構造が一部保たれていた。

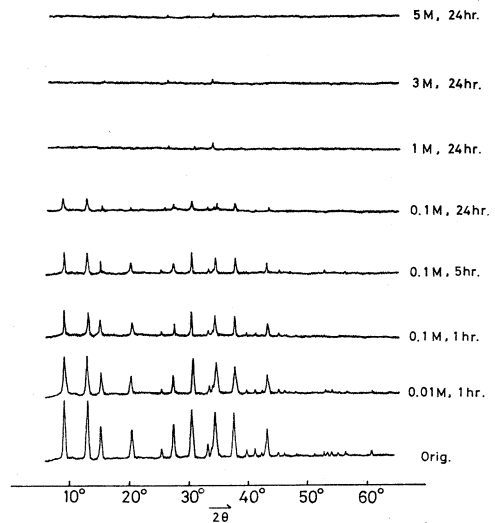
クリノプロクロライトはSi/Al比が5であり、(Si, Al) O<sub>4</sub>四面体による5員環の縮合形式を持つため、結晶構造が安定で強固であるといわれている。<sup>2)</sup>このことから、Si/Al比が1の合成ゼオライトなどに比べて、耐酸性が高いものと思われる。A型を用いて放射性廃液を処理する際には、ギ酸などにより出来るだけ硝酸を分解し、HNO<sub>3</sub>濃度を0.01M以下にしておく必要があるが、クリノプロクロライトおよびモルデナイトでは、0.1M程度でも十分用いることができる。

### 3.2 イオン交換容量

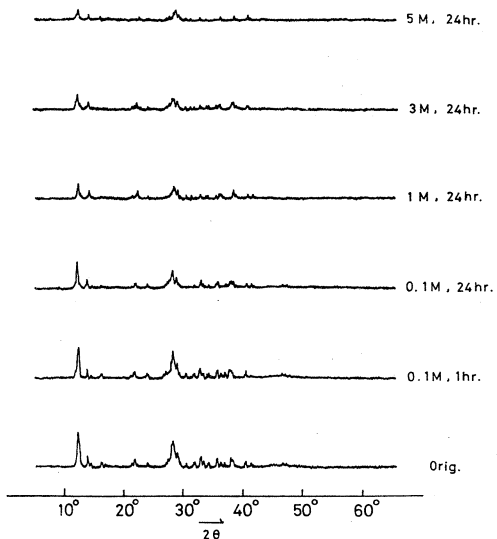
天然ゼオライトは、粘土鉱物に比べて高いイオン交換能を持つが、その交換容量は産地および共存鉱物の存在量などにより若干異なってくる。本実験での測定結果を第1表に示した。モルデナイトよりクリノプロクロライトの方が若干高いイオン交換容量を示した。

### 3.3 焼成体からのCsおよびSrの浸出性

焼成温度と浸出性の関係を第3図および第4図に示した。焼成温度を高めるにつれ、浸出量が低下し、1200°Cで3時間焼成したもの



第1図 Xray Diffraction Pattern of Zeolite A after Treatment with HNO<sub>3</sub> at 25°C



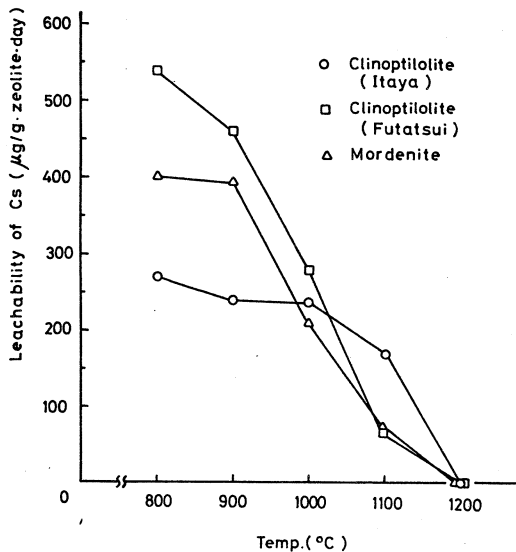
第2図 Xray Diffraction Pattern of Clinoptilolite after Treatment with HNO<sub>3</sub> at 25°C

からのCsの浸出量は原子吸光法の検出限界以下となった。Srの浸出量は、Csに比べて2桁ほど低い。これらの理由としては、高温にするにつれ、焼成体表面がより緻密なアルミノケイ酸塩で覆われるためと思われる。

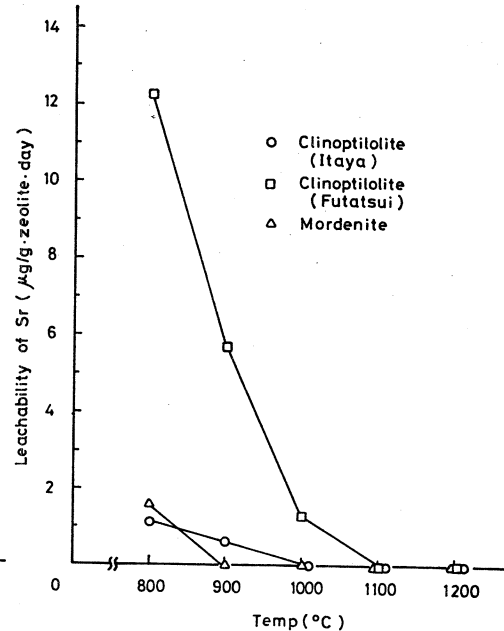
第2表には、1200°Cで3時間焼成したものからの蒸留水および人工海水中へのCsの浸出率を示した。蒸留水中に比べ、海水中では1桁ほど浸出性が高くなっている。これらの値は、従来報告された固化体の浸出率<sup>3)</sup>の中で最も低い値である。

第1表 Cation Exchange Capacity of Clinoptilolite and Mordenite for Cs and Sr.

Zeolite	Cs	Sr
	(meq./100g)	(meq./100g)
Clinoptilolite (Futatsui)	133	172
Clinoptilolite (Itaya)	146	181
Mordenite	113	160



第3図 Variation of the Leachability of Cs with Calcining Temperature (Calcining Time; 3hrs)



第4図 Variation of the Leachability of Sr with Calcining Temperature (Calcining time; 3hrs)

この実験を行なうにあたり、実験装置の御便宜を頂いた選鉱製錬研究所南部松夫教授、北村強技官、同じく共通分析室、天満元昭技官に厚く謝意を表する。



第2表 Leaching Rates of Cs from the Calcined Zeolites. (g/cm<sup>2</sup>·day, Calcining Condition; 1200 °C, 3hrs)

Zeolite	Distilled Water	Sea Water
Clinoptilolite (Futatsui)	$< 3.2 \times 10^{-9}$	$1.5 \times 10^{-8}$
Clinoptilolite (Itaya)	$< 3.8 \times 10^{-9}$	$1.3 \times 10^{-8}$
Mordenite	$< 2.3 \times 10^{-9}$	$1.1 \times 10^{-8}$

参 考 文 献

- 1) 菅野, 三村: 核理研研究報告8 (1975) 339.
- 2) W. M. Meiser : Z. Krist., 115 (1961) 439.
- 3) R. E. Isaacson, L. E. Erownell : Symposium on the Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing, Paris, 27Nov.-1Dec. OECD (1972) 791.

### III-5 Multielement Analysis of Deep-Sea Sediments by Photon Activation

Toyoaki Kato, Nobuyoshi Sato,<sup>†</sup> Nobuo Suzuki  
*Department of Chemistry, Faculty of Science,  
Tohoku University*

<sup>†</sup>*College of General Education, Iwate University*

A nondestructive photon activation procedure with 30 MeV bremsstrahlung has been applied to the multielement determination in the pelagic deep-sea sediments in a region of the Pacific Ocean. The abundances for 6 major and 10 trace elements were measured in several of the deep-sea floor and the core samples, and some discussion was given with respect to the sediment types. Determinations of trace elements such as Fe, Cr, Mn, Co and Ni are very valuable because of their considerable geochemical concern.

#### § 1. Introduction

The essential problem involved in studying the geochemistry of deep-sea sediments are to establish the distribution and original sources of a number of elements in them. Although a great deal of research has been carried out for this purpose, it seems to be insufficient to permit their geochemistry to be fully understood.

The importance of photon activation, mainly with 30 MeV bremsstrahlung, as a nondestructive multielement analytical technique has been recognized for several years. Numerous papers have been presented describing the method and a variety of applications, ranging from the measurements of a number of

the elements in round-robin materials<sup>1-3)</sup> to the environmental pollution research.<sup>4-7)</sup> The availability of a comprehensive body of basic reference data in the form of photonuclear reaction yields,<sup>8-10)</sup> sensitivities,<sup>9,10)</sup> and gamma-rays emitted from numerous products<sup>11)</sup> pertaining to 30 MeV bremsstrahlung activation with a linear electron accelerator of Tohoku University has made the method quite feasible for further application to a wide variety of materials. This paper deals with the nondestructive determination for several major and trace elements present in oceanographic samples. These included several of the pelagic deep-sea floor sediments and selected core samples in the Pacific Ocean from the Oceanographic Research Project that had been planned and carried out under the auspices of the Ocean Research Institute, The University of Tokyo (1973). Because the methodology of photon activation analysis in geochemical application has been reported in detail,<sup>1,2,10)</sup> we will describe some additional comments in individual determinations and discuss the abundance data obtained by this method.

## § 2. Materials and method

The present work was done on the pelagic sediments collected in a region of the Pacific Ocean. Table I gives the sampling sites, depths and core lengths for the samples used. The deep-sea floor sediments were sampled with the dredges. They were visually dark brown and fairly homogeneous. The core samples consisted of the piston cores about 10 m long. The core column was cut into segments each 1 cm thick along its entire length, and proper specimens were selected and subjected to analyses. The age determination based on the calcareous organisms resulted in about 2 million years at the bottom of the core. Each sample

Table I Deep-sea sediment samples analyzed

Deep-sea floor sample (dredge)				
Sample	Location	Depth, m		
KH 73-4-1	North Philippine Basin	5618~5622		
	Lat. 21°55.8'N Long. 133°02.8'E			
~	Lat. 21°51.5'N Long. 133°00.9'E			
KH 73-4-10	North Fiji Basin	5350~5375		
	Lat. 08°00.3'S Long. 172°49.4'E			
~	Lat. 07°58.3'S Long. 172°44.9'E			
KH 73-4-12	Central Basin fault in Philippine Basin	6500~6200		
	Lat. 16°09.1'N Long. 130°33.4'E			
~	Lat. 16°15.0'N Long. 130°36.6'E			
OBS-1	Mariana Basin	5600		
	Lat. 13°44.0'N Long. 151°30.5'E			
OBS-4	Mariana Basin	6030		
	Lat. 11°01.6'N Long. 149°16.7'E			
OBS-5	Mariana Basin	6000		
	Lat. 10°11.7'N Long. 149°16.7'E			
Fiji OBS	North Fiji Basin	4150		
	Lat. 15°00.0'S Long. 172°22.5'E			
Core samples				
Sample	Location	Depth, m	Core length, cm	
KH-73-4-4	Marinana Basin	5920	668	
	Lat. 12°37.8'N Long. 151°30.5'E			
KH 73-4-7	Melanesia Basin	4170	1115	
	Lat. 02°41.3'N Long. 164°50.2'E			
KH 73-4-8	Melanesia Basin	4000	1163	
	Lat. 01°33.2'S Long. 167°38.6'E			

was dried at 70°C for at least 24 hrs, crushed and mixed in an agate mortar to assure good homogeneity, and approximately 300 mg of dried sample was wrapped in a small piece of aluminum foil and then made into a disc with a diameter of 9 mm and about 4 mm high. The JB-1 basalt was used as a multielement comparative standard, because of the fairly well-characterized nature of

the matrix and the elemental composition. The abundances of the elements of interest were taken from the data compiled by Ando et al.<sup>12)</sup> An amount weighing 300-400 mg was wrapped in a small piece of aluminum foil and made into a disc with a diameter of 9 mm. The detail involving the irradiation assembly and target-sample configuration was reported earlier.<sup>8-10)</sup> After irradiation, the wrapping foil was rejected and the content of each sample was again wrapped in aluminum foil for gamma-counting. The counting equipment consisted of a 68 cm<sup>3</sup> Ge(Li) detector coupled to a 4096-channel pulse-height analyzer. Further detail involving counting, characterization of gamma-rays and quantitative treatment of the spectral data was essentially the same as reported previously.<sup>10)</sup>

### § 3. Results and discussion

The photonuclear reaction products and their gamma-rays used for quantitations were selected under the criterion reported earlier.<sup>10)</sup> Some additional comments in individual determinations are as follows.

Calcium results were the average values obtained for each of the 374 and 617 keV peaks of <sup>43</sup>K, and the 1298 keV peak of <sup>47</sup>Ca. The values obtained from these three different peaks fell within the range from the mean of  $\pm 2\%$  for all of the samples studied. The samples used were relatively high in titanium. For titanium, therefore, the 1121 keV peak of 83.9-d <sup>46</sup>Sc was given prior consideration, because of the favorable peak-to-background ratios obtained at longer decay times. The gamma-rays from <sup>47</sup>Sc and <sup>48</sup>Sc were used for confirmations. The effects of inter-element interferences were estimated and corrected, where necessary, as reported earlier.<sup>10)</sup>

All results obtained in this work are given in Tables II

Table II Elemental abundances of deep-sea floor sediments

Sample	Major element, in %									
	Ca	Fe	Mg	Mn	Na	Ti				
KH 73-4-1	0.979	4.98	1.73	0.410	3.27	0.386				
KH 73-4-10	1.81	6.49	2.20	0.614	4.96	0.508				
KH 73-4-12	1.02	6.92	2.05	0.888	3.01	0.495				
OBS-1	1.15	6.14	2.02	0.592	3.02	0.532				
OBS-4	1.25	5.84	1.93	0.556	2.74	0.521				
OBS-5	20.5	3.66	2.25	0.328	1.89	0.425				
Fiji OBS	30.1	3.79	1.14	0.413	2.26	0.172				
	Trace element, in ppm									
	Ba	Ce	Co	Cr	Nb	Ni	Rb	Sr	Y	Zr
KH 73-4-1	756	79	56	60	7.1	55	141	167	31	157
KH-73-4-10	736	64	88	39	5.3	151	60	240	78	127
KH 73-4-12	392	99	146	86	7.5	182	109	202	44	163
OBS-1	475	102	106	87	8.3	229	116	190	76	184
OBS-4	536	90	91	73	5.6	183	110	193	72	171
OBS-5	286	40	47	75	5.7	140	41	728	49	98
Fiji OBS	488	17	18	29	1.7	32	8.1	1450	28	36

Table III Elemental abundances of core samples

Sample	Depth in core, cm	Major element, in %									
		Ca	Fe	Mg	Mn	Na	Ti				
KH 73-4-4	Top of core	0.897	7.05	2.10	0.670	3.04	0.605				
	Bottom of core (668)	0.866	6.62	1.97	0.623	3.37	0.581				
KH 73-4-7	9-10	34.3	0.865	0.443	0.101	1.19	0.096				
	205-206	35.4	0.868	0.404	0.189	1.08	0.115				
	405-406	33.2	1.09	0.501	0.079	1.19	0.115				
	605-606	21.8	2.03	0.838	0.104	1.60	0.204				
	805-806	27.4	1.43	0.723	0.097	1.57	0.146				
	1005-1006	26.3	1.41	0.496	0.087	1.42	0.117				
	1105-1106	29.4	1.38	0.601	0.177	1.60	0.120				
KH 73-4-8	105-106	35.3	0.634	0.353	0.113	1.17	0.041				
	205-206	29.8	0.884	0.383	0.098	1.12	0.085				
	305-306	33.4	1.19	0.497	0.108	1.32	0.103				
	405-406	33.0	0.873	0.335	0.050	0.977	0.065				
	605-606	34.2	1.07	0.442	0.066	1.12	0.103				
	805-806	34.1	0.864	0.410	0.059	1.17	0.081				
	905-906	34.1	0.810	0.381	0.078	1.08	0.057				
	1055-1056	32.0	1.07	0.464	0.086	1.27	0.069				
	Bottom of core	31.8	0.951	0.445	0.045	1.26	0.127				
		Trace element, in ppm									
		Ba	Ce	Co	Cr	Nb	Ni	Rb	Sr	Y	Zr
KH 73-4-4	Top of core	514	109	115	84	8.8	185	131	197	80	214
	Bottom of core (668)	368	87	129	70	7.6	308	82	191	101	203
KH 73-4-7	9-10	347	25	-	26	1.2	31	14	884	18	21
	205-206	225	-	-	22	0.8	41	11	1000	17	20
	405-406	623	-	-	26	1.1	27	16	1600	23	29
	605-606	611	19	22	50	2.2	64	26	1880	42	56
	805-806	547	14	15	29	1.8	46	22	1490	35	41
	1005-1006	432	8.8	7.4	20	1.2	25	17	1340	29	31
	1105-1106	501	10	25	27	1.4	45	20	1390	34	38
KH 73-4-8	105-106	328	4.4	7.4	11	0.7	49	68	1380	18	14
	205-206	330	7.6	7.4	14	0.4	17	-	1580	22	20
	305-306	751	8.8	12	19	0.4	39	-	1520	31	27
	405-406	371	6.7	6.8	9.1	0.6	18	-	2040	20	17
	605-606	399	7.8	7.5	17	0.8	23	-	1970	24	22
	805-806	419	7.1	9.1	11	0.8	18	-	1560	27	19
	905-906	505	7.1	11	9.5	0.2	19	-	1470	25	16
	1055-1056	739	8.3	13	21	0.7	33	75	1310	31	20
	Bottom of core	712	7.8	14	8.0	0.9	29	-	1380	20	23

and III. The sodium values will be high in some extent because of sea water which was trapped within the accumulating sediments. As can be seen in Table II, the dredge samples OBS-5 and Fiji OBS are very high in calcium, and this marked difference coincides with a significant amount of calcareous shell materials found in them. These two samples were the carbonate type sediments and could be distinguished visually from the other clay type sediments. The deep-sea sediment of the carbonate type has only a relatively low content of most trace elements, while the clays are generally enriched in trace elements compared to the carbonates.<sup>13)</sup> The results in Table II show a typical pattern of this sort in the elemental compositions. Strontium is an exception to this category. Similar exception has also been reported by Turekian and Wedepohl.<sup>14)</sup> The samples KH 73-4-2, OBS-1 and OBS-4 seem to be high in some trace elements such as Co, Cr and Ni.

Of the core samples tested, KH 73-4-4 sample consists of less calcium along the core column. The elemental composition of this material can be related to the clay type sediments. In contrast, the other two core samples are highly calcareous and are characterized by their low contents of other major and trace elements except strontium. Each core sample is rather homogeneous in their elemental concentrations along the core column. No direct evidence of the early diagenesis or post-depositional migration of the elements has been provided in this work.

In conclusion, photon activation analysis with 30 MeV bremsstrahlung provides useful information on the elemental distribution in deep-sea sediments. The technique is non-destructive and can provide the reliable abundance data for at



least 6 major and 10 trace elements which are of considerable geochemical concern.

The authors would like to express their appreciation to members of linac machine and radioisotope groups at the Institute of Nuclear Science, Tohoku University, for their kind cooperation with the irradiations. We also thank Professor Yokichi Takayanagi and Michio Kato of the Institute of Geology and Paleontology, Tohoku University, for providing us the deep-sea sediments and for valuable suggestions in this work.

#### References

- 1) T. Kato, I. Morita and N. Sato: J. Radioanal. Chem. 18 (1973) 97.
- 2) N. Sato, T. Kato and N. Suzuki: Radiochim. Acta 21(1974)63.
- 3) T. Kato, N. Sato and N. Suzuki: Anal. Chim. Acta 81(1976)337.
- 4) J. S. Hislop and D. R. Williams: J. Radioanal. Chem. 16(1973) 329.
- 5) N. K. Aras, W. H. Zoller, G. E. Gordon and G. J. Lutz: Anal. Chem. 45(1973)1481
- 6) A. Chattopadhyay and R. E. Jarvis: Anal. Chem. 46(1974)1630.
- 7) T. Kato, N. Sato and N. Suzuki: Talanta, 23 (1976) in the press.
- 8) T. Kato and Y. Oka: Talanta 19(1972)515.
- 9) T. Kato: J. Radioanal. Chem. 16(1973)307.
- 10) T. Kato, K. Masumoto, N. Sato and N. Suzuki: J. Radioanal. Chem. 32(1976)51.
- 11) T. Kato: Research Report of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku Univ. 5(1972)137.
- 12) A. Ando, H. Kurasawa, T. Ohmori and E. Takeda: Geochem. J. 8(1974)175.

- 13) J. P. Riley and R. Chester: Introduction to Marine Chemistry  
(Academic Press, London, 1971) Chap. 13.
- 14) K. K. Turekian and L. H. Wedepohl: Bull. Geol. Soc. Am. 72  
(1961)195.

### III-6 $^{80m}\text{Br}$ 標識 AgBr コロイドの粒度と励起 X 線との関係

理学部 R I 中央実験室・理学部化学\*

山寺 亮・塩川孝信\*・宮田孝元

#### § 1. 緒言

AgBr ( $^{80m}\text{Br}$  で標識) のコロイド溶液を低エネルギー  $\gamma$  線測定用の Ge (Li) 検出器で測定すると,  $^{80m}\text{Br}$  からの  $\gamma$  線 (37keV, 49keV, 他) とともに, Ag からの励起 X 線が観察される。この X 線強度は,  $^{80m}\text{Br}$  の半減期とは別に経時変化を起すことがわかった。さらに, 初期に, アンモニアガスを吸収させて AgBr を可溶性の銀アンミン錯塩にすると, X 線強度は著しく減少した。これらの現象は  $^{80m}\text{Br}$  と Ag との距離の変化を考えれば容易に説明がつく。即ち,  $^{80m}\text{Br}$  によって励起される Ag の割合は, 距離の 2 乗に反比例するが,  $^{80m}\text{Br}$  と Ag が水溶液中に均一に分布している場合, 例えば, 0.05mol 濃度の AgBr をアンミンコンプレックスにした場合には, Br と Ag の平均的な距離は  $10^4 \text{Å}$  以上にもなる。一方, AgBr が溶液に溶けないでコロイドとなっている場合には, Br と Ag の距離は約  $3\text{Å}$  である, 従って, Ag Br がコロイドを形成している場合には, アンミンコンプレックスとなっている場合より, Ag は確率高く励起されるはずである。

我々は, Ag Br コロイドの粒度と励起 X 線との関係について, 実験を行ない, 理論式を導入して説明を試みた。

#### § 2. 実験方法

##### 2. 1 $^{80m}\text{Br}$ の製造

$^{80m}\text{Br}$  は, 約 5m mol の NaBr を本施設の LINAC を用いて,  $^{81}\text{Br} (r, n) ^{80m}\text{Br}$  反応で製造した。

##### 2. 2 コロイド溶液の調製

照射した NaBr を水に溶かして 100 ml (約 0.05 mol/l) とした。別に, 安定な  $\text{AgNO}_3$  の同じモル濃度の水溶液も用意した。

まず, 20ml の蒸留水を入れたビーカーを,  $25^\circ\text{C}$  の恒温水槽に入れたまま攪拌しておく。そこに, 既に用意した NaBr 水溶液と,  $\text{AgNO}_3$  水溶液を, マイクロチューブポンプによって 0.73 ml/min ずつ別々に供給した<sup>1)</sup>。供給時間は 2 分とし, 次の 2 分は供給を停止して, コロ

イド溶液の熟成を行なった。この操作をくり返して20回行なった。その間、時々コロイド溶液の微量をとり、その一部をカバーガラス上に滴下、他の一部を電子顕微鏡用のメッシュに滴下させ、両者とも乾燥した。カバーガラスの試料は、Ge(Li) 検出器にかけて、X線測定を行ない、メッシュの試料は電子顕微鏡にかけて粒子の大きさを求めた。又、溶液を直接、Ge(Li)検出器にかけられるよう、厚さ0.1~5mm で 1cm × 1cm の角セル、φ = 1~5 mm の球形セルも使用してみた。

### 2. 3 測定器

X線測定には、キャンベラ社製Ge(Li) 検出器 (1cm<sup>2</sup>) 及び東芝社製800cPHA を用いた。検出器の分解能は、22keV の光電ピークに対し、0.42keV、37keV の光電ピークに対し、0.50 keV であった。

電子顕微鏡は、金研電子顕微鏡室のHU10 型(日立)を用いた。

## § 3. 結果及び考察

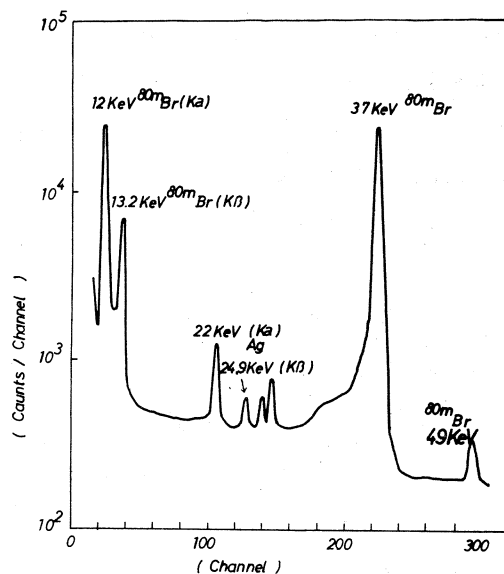
### 3. 1 AgからのK $\alpha$ -X線とAgBrコロイド粒子の大きさとの関係

<sup>80m</sup>Br は、T<sub>1/2</sub> = 4.4 h で 49keV 及び37keV の  $\gamma$ 線を放出して<sup>80</sup>Br に転移する。この内、37keV の  $\gamma$ 線は顕著に測定される (e<sub>k</sub>/ $\gamma$  ≈ 1.6) が、49keV の  $\gamma$ 線は内部転換を起し (e<sub>k</sub>/ $\gamma$  ≈ 298)  $\gamma$ 線としては、弱く測定されるだけである、生成した<sup>80</sup>Br は、T<sub>1/2</sub> = 17.6 m で  $\beta^-$ ,  $\beta^+$ , EC 崩壊を起して618keV 以上の強い  $\gamma$ 線を出す。

<sup>80m</sup>Br でラベルしたAgBr コロイド溶液を検出器で測定したスペクトルを、第1図に示す。

22keV 及び25keV のピークはAg 原子からのK $\alpha$ , K $\beta$  -X線である。Ag 原子の光電吸収の断面積は、K 電子の結合エネルギー-25.5keV に相当する  $\gamma$ 線に対して最も高く、 $\gamma$ 線のエネルギーがそれより高くなると急激に小さくなる、従って、励起されるAg は、大部分が、<sup>80m</sup>Br からの37 keVの  $\gamma$ 線によるものである。

AgBr コロイドからのAg - K $\alpha$  - X線と、AgBr のコロイド粒子の大きさ

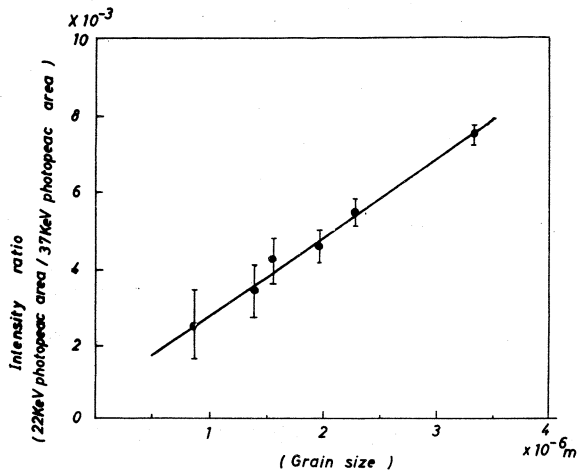


第1図 Spectrum of Ag <sup>80m</sup>Br

との関係を第2図に示す。

縦軸の $K\alpha$  - X線強度は、22 keVの光電ピーク (Agからの $K\alpha$  - X線) を、37 keVの光電ピーク ( $^{80m}\text{Br}$ からの $\gamma$ 線) に対する比で示してある。横軸はAgBrコロイド粒子の電子顕微鏡写真から求めた粒子の大きさである。

第2図は、粒子の大きさと、X線強度がほぼ比例関係にあることを示している。粒度が $3.5\mu$ 以上の部分では、AgBr粒子が凝集を起してしまい、この直線に乗らなくなった、凝集を起さない条件を検討中である。



第2図 Intensity ratio versus grain size

直線と縦軸との切辺は、 $0.5 \times 10^{-3}$  となり、原点は通らない、その理由は、我々の求めたい量は、 $^{80m}\text{Br}$ からの $\gamma$ 線がその $^{80m}\text{Br}$ の属する同じ粒子内のAgを励起する割合（以下、内部励起と言うことがある）であるのに対し、実際に得られる量は、内部励起に加えて、 $^{80m}\text{Br}$ が、離れた別の粒子内のAgを励起する割合（以下、外部励起と言うことがある）を含んでいるためである。

内部励起の割合 ( $I_{in}$ ) を求める場合、外部励起の割合 ( $I_{out}$ ) は、得られた値の精度に著しく影響を与える。 $I_{out}$ をいかに小さくするかが課題である。その方法としては、次の2点をあげることができるが、それぞれ一長一短がある、詳細は現在検討中である。

- ① 試料溶液を薄くする。
- ② 測定セルを薄くする。

### 3. 2 式の展開

X線強度と粒子の大きさとの関係について、理想的な系を仮定して式の展開を試みた。

コロイド粒子はAとBの2種類の元素より成り、Bは放射性同位元素であって、弱い $\gamma$ 線を放出し、その $\gamma$ 線によってA核は励起されて、励起X線を出すものとする（本実験にあてはめれば、AはAgに、Bは $^{80m}\text{Br}$ に相当する）。さらに、A-B粒子は、次の仮定を満足する理想的な粒子と考える。

- 1) 粒子は完全な球である。

2) 粒子は多孔質であってもかまわないが、孔径は粒子径に比べて充分小さく、かつ、粒子内に均一に分布している。

3) 粒子は小さい(約 100 μ 以下)ので、粒子内でのX線の吸収は無視できる。

まず、半径Rの粒子があり、その中心からrの距離にB(p)が存在すると考える。

p点から距離aだけ離れた位置に存在する

Aの個数(N)は

○  $R \geq r + a$  の時

$$N_{0 < a \leq R - r} = 4 \pi a^2 n d a$$

○  $R < r + a$  の時

$$N_{R - r < a \leq R + r} = 2 \pi \int_{r-a}^{\left[ \frac{R^2 + r^2 - a^2}{2r} \right]} y \sqrt{(dx)^2 + (dy)^2} n d a$$

$$= \pi a [R^2 - (r-a)^2] \frac{1}{r} n d a$$

ここで、nは粒子中の単位体積当り含まれるA元素の個数である、従って、A-Bが単結晶のような密な粒子の場合には、

$$n = N_{av} \rho / M$$

となるが、多孔質の粒子の場合には

$$n < N_{av} \rho / M$$

となる。

Aが点pから放射されるr線によって励起されて蛍光X線を放出する割合(Y)はσをそのr線に対する、Aの励起されて蛍光X線を出す断面積とすれば、

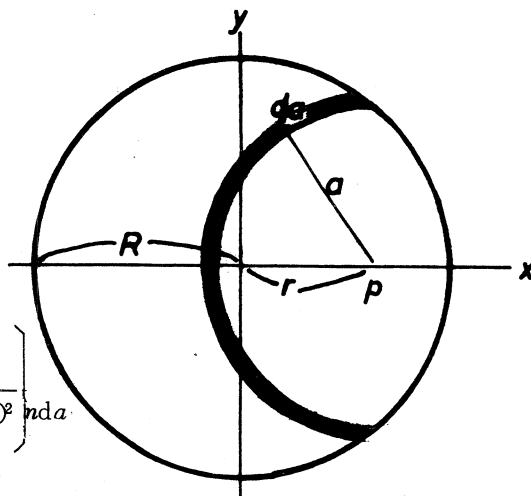
○  $R \geq r + a$  の時

$$Y_{0 < a \leq R - r} = \frac{N_{0 < a \leq R - r}}{a^2} \times \sigma$$

$$= 4 \pi n \sigma d a$$

○  $R < r + a$  の時

$$Y_{R - r < a \leq R + r} = \frac{N_{R - r < a \leq R + r}}{a^2} \times \sigma$$



第3図 Grain model

$$= \frac{\pi \sigma}{a} [R^2 - (r - a)^2] \frac{1}{r} nda$$

従がって、点  $p$  から放射される  $r$  線によって励起される球  $R$  内のすべての  $A$  元素の割合 ( $I_P$ ) は、

$$\begin{aligned} I_P &= \int_{a=0}^{R-r} 4\pi n \sigma da + \int_{R-r}^{R+r} \frac{\pi \sigma}{a} [R^2 - (r-a)^2] \frac{1}{r} nda \\ &= 4\pi n \sigma (R-r) + \frac{n\pi \sigma}{r} \int_{R-r}^{R+r} \frac{1}{a} [R^2 - (r-a)^2] da \\ &= 4\pi n \sigma (R-r) + \frac{n\pi \sigma}{r} [(R^2 - r^2) \ln \frac{R+r}{R-r} + 4r^2 - 2Rr] \\ &= n\pi \sigma [2R + \frac{(R^2 - r^2)}{r} \ln \frac{R+r}{R-r}] \end{aligned} \quad (1)$$

ここで求めた  $I_P$  は、 $B$  が点  $p$  に存在した時の、球  $R$  内にあるすべての  $A$  が励起されて蛍光  $X$  線を出す割合である。従がって、これを、 $B$  が球  $R$  内のすべての点に存在した場合について、 $A$  の励起される平均的な割合 ( $\bar{I}$ ) を求める必要がある。すなわち、球  $R$  の中心から  $r$  の位置にある  $B$  の数は、

$$(4\pi r^2 dr) \times m \quad m: \text{粒子内の単位体積中に存在する } B \text{ 元素の数}$$

従がって、粒子内のすべての位置における  $B$  によって励起される  $A$  の割合 ( $I_{total}$ ) は、

$$\begin{aligned} I_{total} &= m \int_0^R I_P \times 4\pi r^2 dr \\ &= 4\pi m \int_0^R I_P r^2 dr \end{aligned} \quad (2)$$

となる、よって、平均値 ( $\bar{I}$ ) は、 $I_{total}$  を球  $R$  内の  $B$  の個数 ( $\frac{4}{3}\pi R^3 m$ ) で割って得られ、

$$\begin{aligned} \bar{I} &= \frac{I_{total}}{\frac{4}{3}\pi R^3 m} \\ &= \frac{3}{R^3} \int_0^R I_P r^2 dr \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
&= \frac{3}{R^3} \int_0^R n \pi \sigma \left[ 2R + \frac{(R^2 - r^2)}{r} \ln \frac{R+r}{R-r} \right] r^2 dr \\
&= \frac{3 \pi n \sigma}{R^3} \left[ \int_0^R 2Rr^2 dr + \int_0^R r R^2 \ln \frac{R+r}{R-r} dr - \int_0^R r^3 \ln \frac{R+r}{R-r} dr \right] \\
&\qquad\qquad\qquad \begin{array}{ccc} \vdots & \vdots & \vdots \\ \text{第 1 項} & \text{第 2 項} & \text{第 3 項} \end{array}
\end{aligned}$$

ここで第 1 項は

$$\int_0^R 2Rr^2 dr = \frac{2}{3} R^4$$

第 2 項は

$$\int_0^R r R^2 \ln \frac{R+r}{R-r} dr = R^4$$

第 3 項は

$$\int_0^R r^3 \ln \frac{R+r}{R-r} dr = \frac{2}{3} R^4$$

よって ( $\bar{I}$ ) は

$$\begin{aligned}
\bar{I} &= \frac{3 \pi n \sigma}{R^3} \left[ \frac{2}{3} R^4 + R^4 - \frac{2}{3} R^4 \right] \\
&= 3 \pi n \sigma R \qquad\qquad\qquad (3)
\end{aligned}$$

この式は、 $n$  が一定の場合 (例えば単結晶)  $\bar{I}$  は  $R$  に比例することを示しているが、このことは実験で求めた傾向 (図 2) とよく一致している。

本実験では絶対測定を行っていないので、実験値と計算値を正確に比較することはできない、ラフな計算によれば、計算値が実験値より多少大きめな値が得られている。

### 3. 3 凝集に対するセル壁の効果

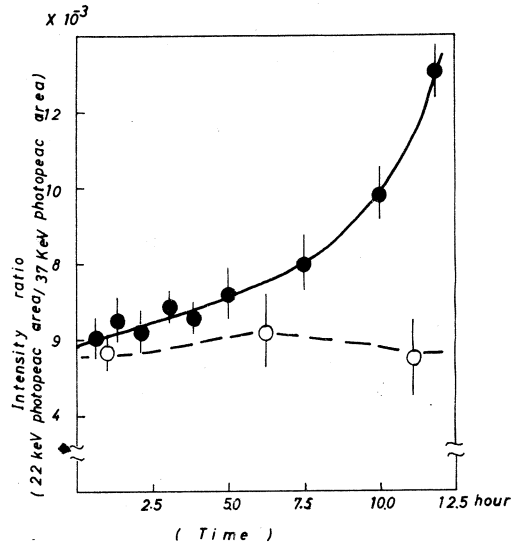
第 4 図は AgBr コロイドを球型セルに入れて K  $\alpha$ -X 線の経時変化を追ったものである。

♠ は  $\phi=2.8$  mm の球型セルに AgBr コロイドを入れ、そのまま経時変化を追ったものである、一方、♢ は  $\phi=2.5$  mm の球型セルを用い、測定の直前にコロイド原液 (100 ml のパイレックスビーカーに 40 ml のコロイド溶液) の一部をセルに移して測定したものである。 $\phi=2.8$  mm の球型セルの試料は 12h を過ぎると凝集を起し、肉眼でも凝集沈殿を確認することができるが、コロイド原液の方は 48h 後でも肉眼による変化は認められない、このことは、ガラス壁が凝集を早める何らかの作用があり、その結果は、ガラス壁との接触面積の大きい前者の実験に



大きくなってあらわれたためと推定される。

本実験にあたり、 $^{80m}\text{Br}$  の製造に御協力いただいたR1 実験室及び運転クルーの方々、さらに、 $\text{AgBr}$  コロイド製造に際し、御指導いただいた、千葉大学の入江教授に厚く御礼申し上げます。



第4図 Intensity ratio versus time

#### 参 考 文 献

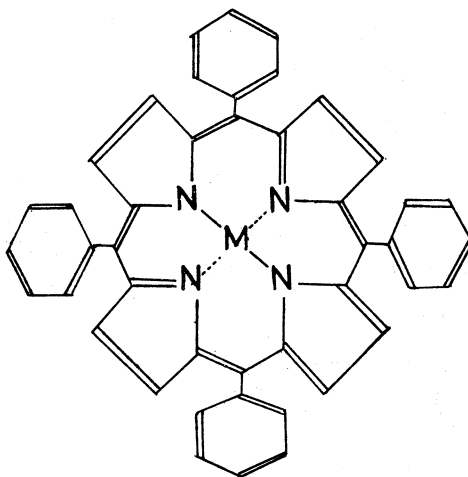
- 1) 入江春雄 (千葉大教授) 氏との私信
- 2) F. H. Claes and W. Peelaers : Photographic Science and Engineering, 12 (4), 207, (1968)

### III—7 光核反応にともなうテトラフェニルポルフィン錯体の反跳化学

東京教育大理学部 池田長生・荘司 準  
酒井陽一・中島 茂

#### § 1. 緒言

これまで筆者らはフタロシアニン錯体(以下 Pc 錯体と略記する)の固相における反跳化学について研究を重ねてきたが<sup>1-5)</sup>, 今回は第 1 図に示す構造をもつテトラフェニルポルフィン錯体(以下 TPP 錯体と略記する)の中心金属の反跳挙動について報告する。TPP 錯体は Pc 錯体と類似の構造をもつ環状キレート化合物であり, Pc 錯体と同様放射線損傷を受けにくく, 中心金属についての同位体交換反応も起らず, 反跳化学的研究に適した系と考えられる。さらに TPP 錯体は Pc 錯体と異なり, 多くの有機溶媒に可溶であり, 照射後の化学分離の際の操作も比較的簡単であるという利点をもつ。



第 1 図 Structure of M(II)tetraphenylporphine

以前, TPP 錯体の ( $n$ ,  $\gamma$ ) 反応にともなう反跳化学は Rosenberg らによりい

くつかの金属に対して研究されたが<sup>6)</sup>, 再現性, ターゲットの純度などに問題が残りに, その後この系における反跳化学の研究例は見当らない。筆者らは, その後  $H_2$ TPP の合成法が改良された<sup>7)</sup> こと, TPP 錯体について構造上での基礎的データが得られてきた<sup>8)</sup> こと, 他の有機キレート化合物の反跳化学に関しても新しい知見が得られてきた<sup>9)</sup> ことなどから, この TPP 錯体系を反跳化学の対象としてとりあげた。

本報告では, CoTPP, CuTPP の合成および精製法, 照射後の化学分離操作, ( $\gamma$ ,  $n$ ) 反応, ( $n$ ,  $\gamma$ ) 反応にともなう両者のリテンション値の比較等について報告する。

#### § 2. 実験

##### 2. 1 合成および精製

$H_2$ TPP は Adler らの改良法<sup>7)</sup> に従い, ピロールとベンズアルデヒドをプロピオン酸中で反応させて合成した。得られた粗  $H_2$ TPP は活性アルミナを用いたカラムクロマトグラフィーに

より精製した後、金属の酢酸塩と反応させ、粗 MTPP を得た。これを有機溶媒によるソックスレー抽出、真空昇華クロマトグラフィーにより精製し、得られた MTPP を照射試料とした。

## 2. 2 照射

光核反応のための制動  $\gamma$  線照射は東北大学原子核理学研究施設の電子 LINAC で行い、白金コンバーターからの制動  $\gamma$  線を利用した。なおこの際、未転換電子をスイープマグネットを用いて除去した。熱中性子照射は立教大学原子力研究所 TRIGA-II 型炉で行った。照射条件の詳細を第 1 表に示す。

第 1 表 Irradiation conditions

### 2. 3 照射後の化学分離操作

照射済みの固体試料は、担体を含むクロロホルム-メタノール混合溶媒（体積比 100 : 1）に溶かしたのち、活性アルミナカラムに通し、TPP 錯体フラクションを分取した。化学分離操作についての概略を第 2 図に示す。

### 2. 4 放射能測定

NaI (Tl) 井戸型シンチレーション検出器、あるいは Ge (Li) 検出器とマルチチャンネル波高分析器を用いて行った。

#### ( $\gamma$ , n) Reaction

Tohoku University  
LINAC  
Maximum energy of  $\gamma$  Ray 60 MeV  
Average current  $\sim 150 \mu\text{A}$   
 $\gamma$  Ray dose rate  $\sim 1.2 \times 10^7 \text{ R/hr}$   
Irradiation time  $\sim 6 \text{ hr}$   
Irradiation temperature  $-78^\circ\text{C}$

Unconverted electrons were removed by the sweep magnet.

#### (n, $\gamma$ ) Reaction

Rikkyo University  
TRIGA MARK II reactor  
Rotary specimen rack  
Neutron flux  $5 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$   
 $\gamma$  Ray dose rate  $1.4 \times 10^6 \text{ R/hr}$   
Irradiation time 2 hr  
Irradiation temperature  $\sim 30^\circ\text{C}$  or  $-78^\circ\text{C}$

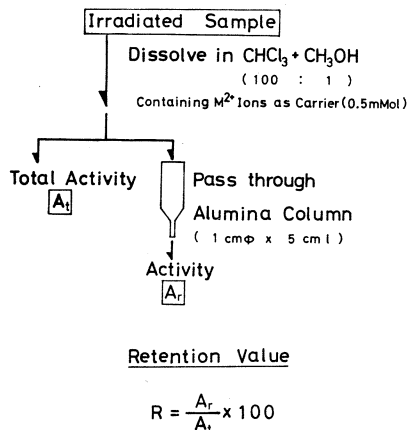
## § 3. 結果と考察

### 3. 1 合成および精製

得られた精製試料の純度、結晶形などを第 2 表に示す。

### 3. 2 化学分離操作

第 3 図は Co TPP の ( $n$ ,  $\gamma$ ) 反応の場合のリテンション値に対する担体 ( $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ) の濃度の影響を調べたものである。Co<sup>2+</sup> 担体を加えない時は、リテンション値が高くなる傾向があった。このことは Cu TPP についても同様であった。この傾向は、富永



第 2 図 Chemical separation procedure

第2表 Identification of target samples.

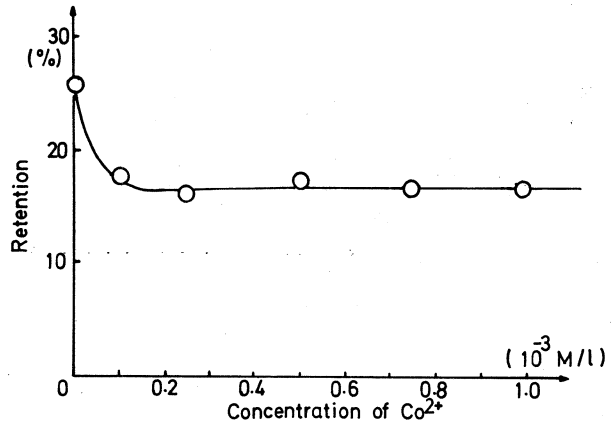
	Co TPP		Cu TPP	
	This work	Theoretical	This work	Theoretical
Elementary analysis	C 78.59 %	78.68 %	78.35 %	78.12 %
	H 4.27 %	4.20 %	4.16 %	4.18 %
	N 8.17 %	8.34 %	8.28 %	8.29 %
Absorption spectrum	412 m $\mu$	412 m $\mu$	417 m $\mu$	417 m $\mu$
	529 m $\mu$	529 m $\mu$	540 m $\mu$	540 m $\mu$
Crystal form	Tetragonal		Tetragonal	

らが提唱してきたスカベンジャー効果<sup>9)</sup>の一種であると思われる。

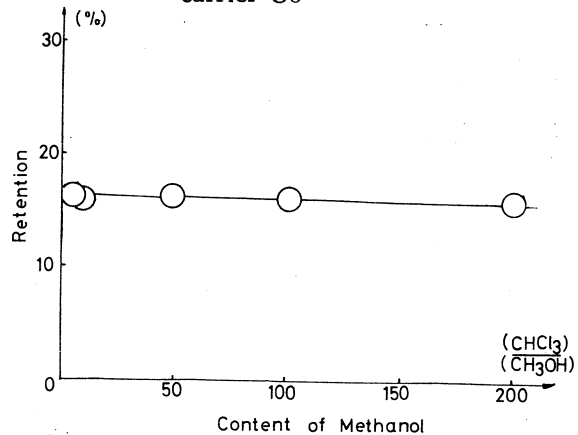
本研究では、通常は担体濃度  $0.5 \times 10^{-3}$  M で実験を行った。

第4図は溶媒中のクロロホルム-メタノールの体積比を変化させた時の、Co TPP の ( $n, \gamma$ ) 反応のリテンション値に対する影響である。顕著な効果は見られなかったが、筆者らはクロロホルム：メタノール=100：1の溶媒を使用することとした。

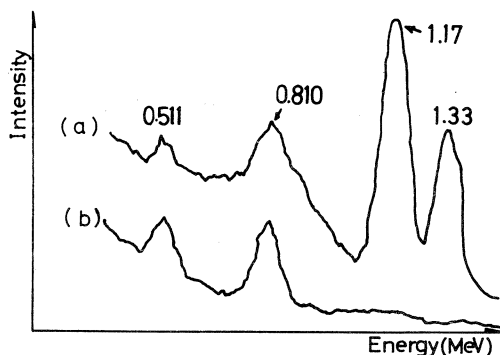
さらに分離法の確認として、第5図、第6図に示すような結果を得た。すなわち第5図に於て (a) は LINAC で制動  $\gamma$  線照射し、( $\gamma, n$ ) 反応を行わせた CoTPP を  $^{60}\text{Co}^{2+}$  を含む溶媒に溶かしたものの  $\gamma$  線スペクトルである。同じく (b) はその試料溶液を実験の項で述べたように、活



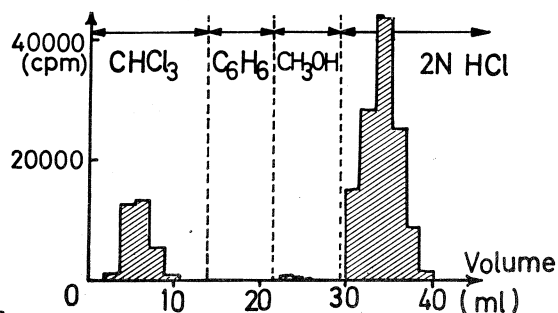
第3図 Dependence of retention value of CoTPP on concentration of carrier  $\text{Co}^{2+}$



第4図 Dependence of retention value of CoTPP on methanol Content.



第5図 Confirmation of chemical separation procedure



第6図 Elution curve of thermal neutron irradiated CuTPP

性アルミナカラムに通し、流出してきたCoTPPフラクションの $\gamma$ 線スペクトルである。この結果は、(1)流出してきたCoTPPフラクションに $^{60}\text{Co}$ の放射能、すなわち $\text{Co}^{2+}$ イオンが含まれていないこと、(2)化学分離操作中に、CoTPPと $\text{Co}^{2+}$ イオン間の同位体交換の起こらないことを示すものである。

第6図は熱中性子照射したCuTPPの活性アルミナカラムクロマトグラフィーにおける分離曲線である。クロロホルムフラクションの放射能をリテンション部分としている。塩酸フラクションには $\text{Cu}^{2+}$ イオンが溶離されるものと思われる。

### 3.3 試料の放射線分解

核反応にとまなう反跳化学の研究を行う場合、照射の際の試料の放射線分解には充分注意しなければならない。筆者らはCoTPPのLINACでの制動 $\gamma$ 線照射の際の分解について、第7図に示す方法で調べたが、本実験においてリテンション値に与える影響はないことがわかった。原子炉照射の場合は、 $\gamma$ 線の全線量がLINACによる制動 $\gamma$ 線照射の時より小さくなるので、問題にならないと思われる。

### 3.4 リテンション値

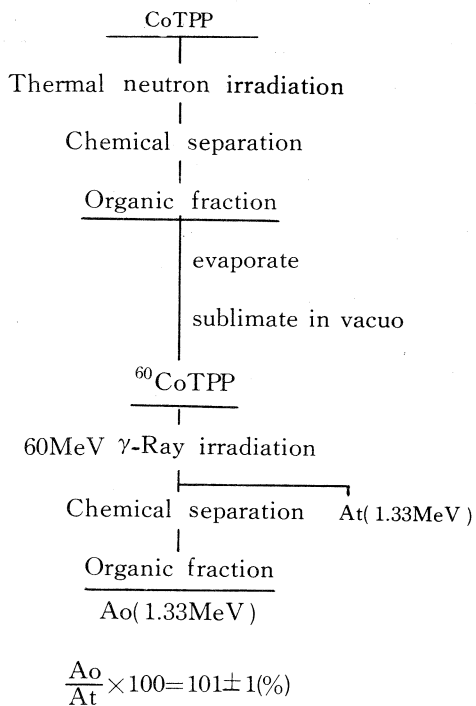
以上のようにして求めたリテンション値を第3表に示す。比較として先に報告したPc錯体のリテンション値<sup>4)</sup>も併せて示す。 $(\gamma, n)$ 反応と $(n, \gamma)$ 反応とのリテンション値の差はTPP錯体の方に顕著に見られる。反跳エネルギーの大きい $(\gamma, n)$ 反応のリテンション値の方が低くなる傾向は両錯体、両金属に見られる。同じ種類の核反応で、同じ配位子をもち、中心金属が異なる場合のリテンション値の違いを、反跳エネルギーの違いだけで説明することはむずかしいが、TPP錯体もPc錯体も、コバルト錯体の方がより小さいリテンション値を示していることは、両錯体の反跳挙動の類似性を示すものと思われる。

第3表 Retention values.

Nuclear Reaction	Irrad. Temp.	Co TPP	$\alpha - \text{Co Pc}$
(n, $\gamma$ )	$\sim 30^\circ\text{C}$	$13.7 \pm 1.5 \%$	3.4 %
(n, $\gamma$ )	$-78^\circ\text{C}$	$7.5 \pm 0.6$	3.0
( $\gamma$ , n)	$-78^\circ\text{C}$	$4.0 \pm 0.6$	2.0

Nuclear Reaction	Irrad. Temp.	Cu TPP	$\alpha - \text{Cu Pc}$
(n, $\gamma$ )	$\sim 30^\circ\text{C}$	$26.8 \pm 0.6$	—
(n, $\gamma$ )	$-78^\circ\text{C}$	$21.2 \pm 0.3$	4.5
( $\gamma$ , n)	$-78^\circ\text{C}$	$11.2 \pm 0.6$	3.5

最後に本研究にあたり、御便宜、御助力を賜った東北大学理学部塩川孝信教授、八木益男助教授、吉原賢二助教授、近藤健次郎助手に厚く感謝の意を表す。



第7図 Check of radiation damage of CoTPP during  $\gamma$ -irradiation.

### 参 考 文 献

- 1) O. Kujirai and N. Ikeda : Radiochem. Radioanal. Lett. **15** (1973) 67.
- 2) O. Kujirai and N. Ikeda : Radiochem. Radioanal. Lett. **18** (1974) 197.
- 3) N. Ikeda and O. Kujirai : Radiochem. Radioanal. Lett. **23** (1975) 125.
- 4) 池田, 鯨井, 莊司, 酒井 : 核理研研究報告 **8** (1975) 345.
- 5) O. Kujirai, N. Ikeda and H. Shoji : Radiochem. Radioanal. Lett. to be published.
- 6) H. E. Rosenberg and T. T. Sugihara : Chemical Effects of Nuclear Transformations IAEA **2** (1965) 151.
- 7) A. Adler and F. Longo : J. Org. Chem. **32** (1967) 476.
- 8) E. B. Fleischer, C. K. Miller and L. Webb : J. Amer. Chem. Soc. **86** (1964) 2342.
- 9) T. Tominaga, T. Sakai and K. Fujikawa : Bull. Chem. Soc. Japan **44** (1971) 3036.

### Ⅲ—8 $\gamma$ 線による核反応を利用する 反跳インプラントーション： 新化学種合成への応用

理学部化学 吉原賢二・佐伯 孝・奥野健二  
伊沢郡蔵・塩川孝信

A new compound promethium phthalocyanine was synthesized by recoil implantation of Pm into phthalocyanine using ( $r, p$ ) reactions in the mixture of  $\text{Sm}_2\text{O}_3$  and phthalocyanine. A novel chemical species niobium phthalocyanine of ligand deficient type was synthesized in the same way using ( $r, f$ ) and ( $r, n$ ) reactions.

#### § 1. 序

反跳インプラントーションによって新化合物あるいは新化学種を合成し、または複雑な化合物を複雑な合成ステップなしに簡単に合成することができる。Baumgärtnerら<sup>1)</sup>は酸化ウランとフェロセンの混合物に中性子照射して核分裂生成物<sup>103</sup>Ru をフェロセン中に反跳インプラントーションし、ルテノセン—<sup>103</sup>Ru を作った。また同様に酸化ウランとクロム・カーボニルの混合粉末に中性子照射し、核分裂生成物<sup>99</sup>Mo をクロム・カーボニル中に打込んでモリブデン・カーボニル—<sup>99</sup>Mo を作った。

最近著者ら<sup>2)</sup>はフタロシアニン銅とMo 金属の混合物に重陽子を照射し、 $\text{Mo}(d, xn)^* \text{Tc}$  反応によってTcをフタロシアニン銅中に打込み従来未確認の化学種であるテクネチウム・フタロシアニンを合成した。また同様な手法でフタロシアニン銅とタングステン金属の混合物の重陽子照射により、レニウム・フタロシアニンを合成した。これらの化学種は生成の初期にはリガンド欠乏型の化学種であると考えられ、イオン・インプラントーションによるインジウム・フタロシアニンのリガンド欠乏種<sup>3)</sup>あるいはカドミウム・フタロシアニンのリガンド欠乏種の生成<sup>4)</sup> などとも関連して興味ある現象である。

著者らはこのような合成法を東北大学原子核理学研究施設の300MeV 電子直線加速器の $\gamma$  線を用いる核反応によって実行することをこころみ、いくつかの化合物の合成に適用して成功したので報告する。

#### § 2. 実験



フタロシアニン銅  $C_{32}H_{16}N_8Cu$  と無金属フタロシアニン  $C_{32}H_{18}N_8$  はコダック社の精製品を使用した。金属ニオブは三津和化学の99.7%以上の純度のもの、酸化ウラン  $U_3O_8$  は三菱原子力工業精製品99.9%以上の純度のもの、酸化サマリウム  $Sm_2O_3$  は東北大学金属材料研究所希土類分離室の精製品で99%以上の純度のものであった。反跳粒子源としての粉末と捕集体としてのフタロシアニン錯体はメノウ乳鉢でよく混合して石英アンブルにつめ、照射のためのターゲットとした。

照射は原子核物理学研究施設の300MeV電子直線加速器を用いておこなった。45～60MeVの電子を白金コンバーターにあてて制動放射線を発生させ、電子をスイープ・マグネットで曲げて取り除き、 $\gamma$ 線のみをターゲットにあてて核反応を起した。

照射後の化学処理は真空昇華法と湿式法を組合わせるやり方<sup>2)</sup>と昇華クロマトグラフ法<sup>5)</sup>を採用した。前者の方法はかなりの量の試料を取扱えるが、後者では少量の試料しか取扱えないので、放射能の生成状況によっては前者のみしか実行できない場合があった。

放射能の測定は33cc または68cc の Ge (Li) 半導体検出器と1024 または4096 チャンネルの波高分析器 (TMC社, ORTEC社および東芝製) を使用しておこなった。

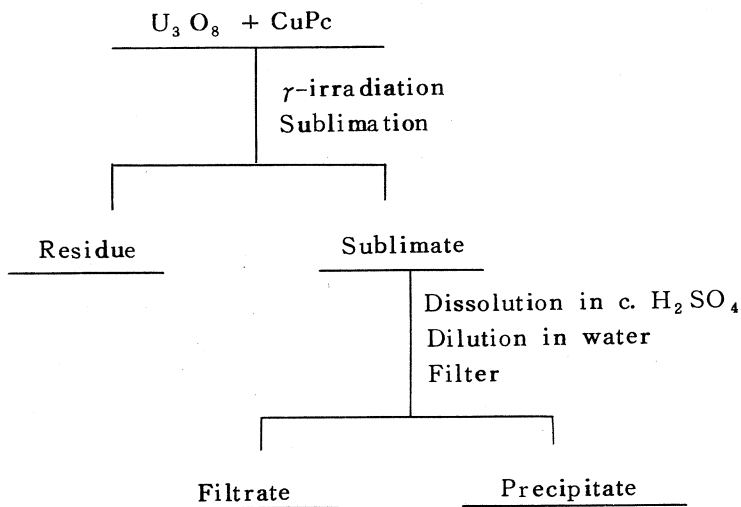


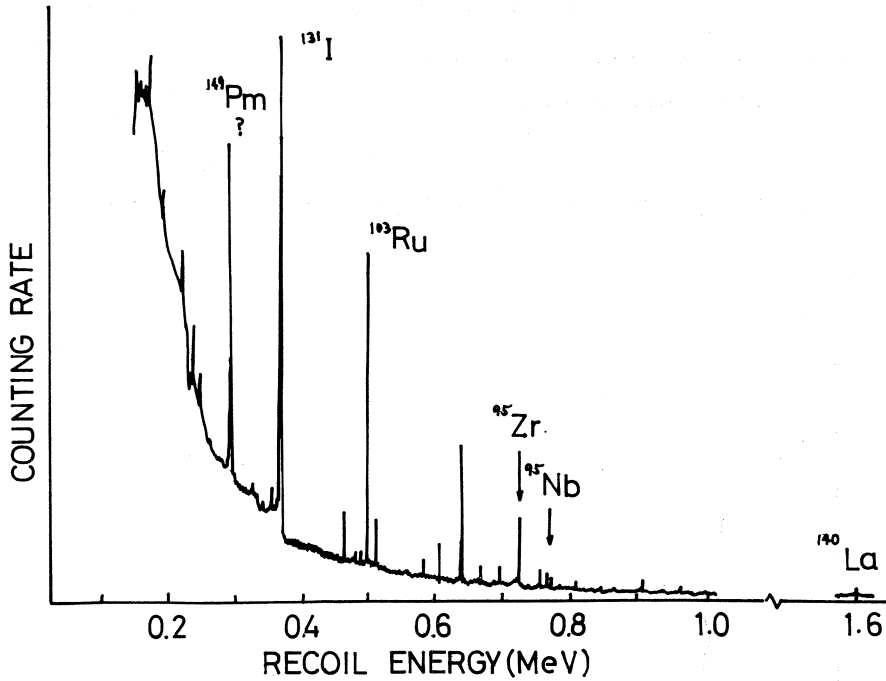
Fig. 1. Chemical procedures for the mixture of uranium oxide and copper phthalocyanine.

### § 3. 結果

#### 3. 1 $\gamma$ 線核分裂生成物のフタロシアニン錯体の生成

$U_3O_8$  とフタロシアニン銅の混合物粉末に上記のようにして電子直線加速器の $\gamma$ 線照射する

と、ウランの  $\gamma$ 線核分裂が起り、核分裂片がフタロシアニン銅中に飛込む。混合物は第1図に示すような操作でまず真空中に昇華し、昇華物は濃硫酸に溶解後、水溶液にうすめてふたたび沈殿させる。この沈殿に由来する放射能は第2図に示すように種々のものが見られる。顕著なピー



第2図  $\gamma$ -ray spectrum of the precipitate in the system  $U_3O_8 + CuPc$ .

クとしては $^{131}I$ ,  $^{103}Ru$ などがある。第1表にその例を示す。

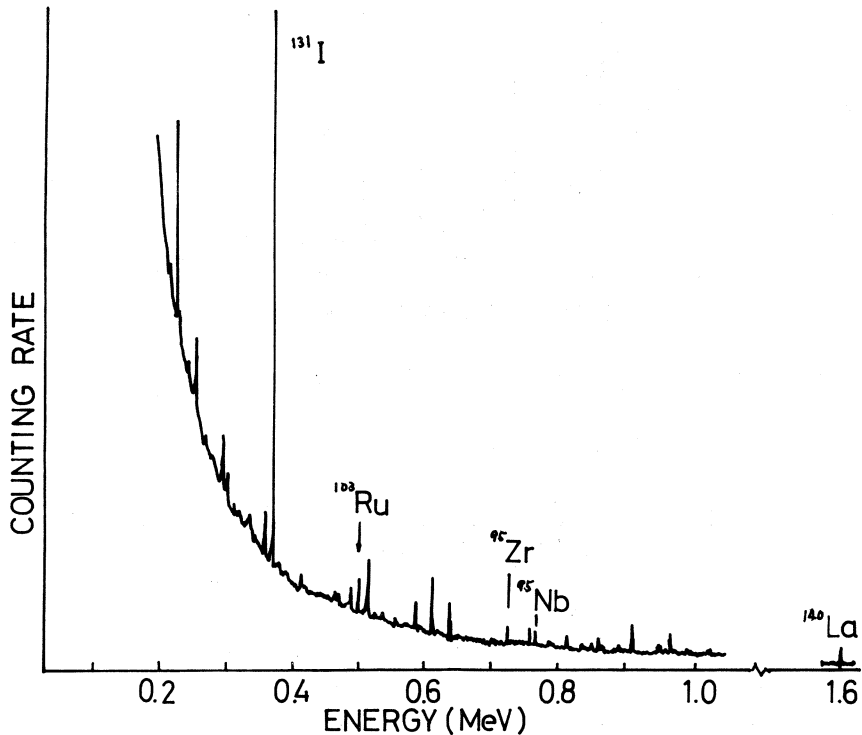
第1表 Fission products found in the precipitate. 45d after irradiation.

Nuclide	half-life	Energy of $\gamma$ -rays (keV)	
$^{131}I$	8.05d	364,	637
$^{103}Ru$	39.6d	497,	611
$^{95}Zr$	65d	724,	756
$^{95}Nb$	35d	765	
$^{140}La^*$	40.22h	328, 490, 815,	1600

\* Daughter of  $^{140}Ba$  (half-life : 12.8d)

$^{131}I$ については昇華しやすい単体状のヨウ素ではなく、フタロシアニン錯体のベンゼン環の水素を置換した化合物であることはほとんど疑いを容れない。なぜならあらかじめ比較的低温で試料を加熱してヨウ素を放出させたのち、真空昇華させても、昇華物にヨウ素の放射能が依然

として多量に得られるからである。第1表のうち $^{95}\text{Nb}$ は $^{95}\text{Zr}$ の壊変生成物または直接の核分裂片から由来するが、昇華してから測定までの時間の間の壊変生成物の寄与はきわめて少なく、問題にならない。昇華以前の壊変または核分裂による錯体生成を反映しているものと見ることができる。 $^{95}\text{Zr}$ とともに $^{95}\text{Nb}$ は珍しい化合物であり、リガンド欠乏型の化学種が反跳インプランテーションのさいにまず生成するものと思われる。 $^{140}\text{La}$ は半減期40.22時間であり、 $^{140}\text{Ba}$ の娘核種で本来 $^{140}\text{Ba}$ とともに存在していたはずであったものであるが、 $^{140}\text{Ba}$ フタロシアニンは昇華性がないため $^{140}\text{La}$ フタロシアニンのみが昇華物として検出されたものであろう。 $^{103}\text{Ru}$ のフタロシアニンの生成も原子炉照射による別の実験<sup>6)</sup>から確実である。 $\gamma$ 線核分裂の実験では生成放射能は中性子核分裂の場合よりも少ないため、昇華クロマトグラフ法は適用しなかった。



第3図  $\gamma$ -ray spectrum of the filtrate in the system  $\text{U}_3\text{O}_8 + \text{CuPc}$ .

また第1図の操作により得られた濾液の放射能は第3図に示すとおりである。沈殿の放射能は第2図に示した通りであるが、濾液の放射能もこれと似たものである。昇華のさいに若干の分解が起り、濾液に核分裂生成物が入るような化学種が生成したものと思われる。

### 3. 2 ( $\gamma, n$ ) 反応によるニオブ・フタロシアニンの生成

上に述べた核分裂の実験は生成放射能が複雑であり、 $\gamma$ 線スペクトルの解析は困難ではないにしても煩雑である。昇華のさいの挙動もかなり多様性に富む可能性がある。そこでもっと単純な核反応を用いてニオブ・フタロシアニンのような化合物の合成ができることが望ましい。そこでわれわれはLINACの $\gamma$ 線を用いて( $\gamma, n$ )反応により生成する反跳原子をフタロシアニン中に打込み、珍しい化合物であるニオブ・フタロシアニンが本当に生成しているかどうか確かめることにした。

ターゲットとして高純度の金属ニオブとフタロシアニン銅を混合し、これに $\gamma$ 線を照射した。このさい $^{93}\text{Nb}(\gamma, n)^{92\text{m}}\text{Nb}$ 反応によって生成する半減期10,16日の $^{92\text{m}}\text{Nb}$ のほかには $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$ 反応による $^{64}\text{Cu}$ の放射能がみとめられるだけで、 $^{64}\text{Cu}$ は短半減期のため放置すれば消失し、 $^{92\text{m}}\text{Nb}$ の放射能のみ残る。照射後の化学処理は第4図に示す通りである。昇華後濃硫酸に溶解し、水溶液(シュウ酸を含む)にうすめてフタロシアニン錯体を沈

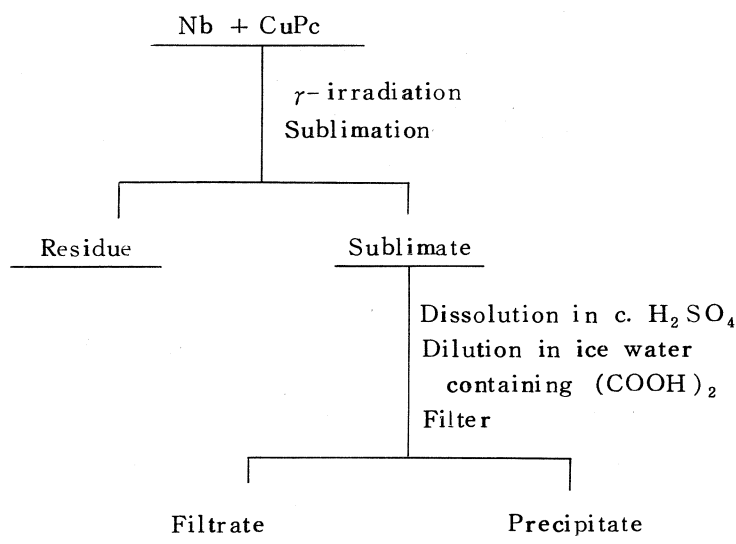
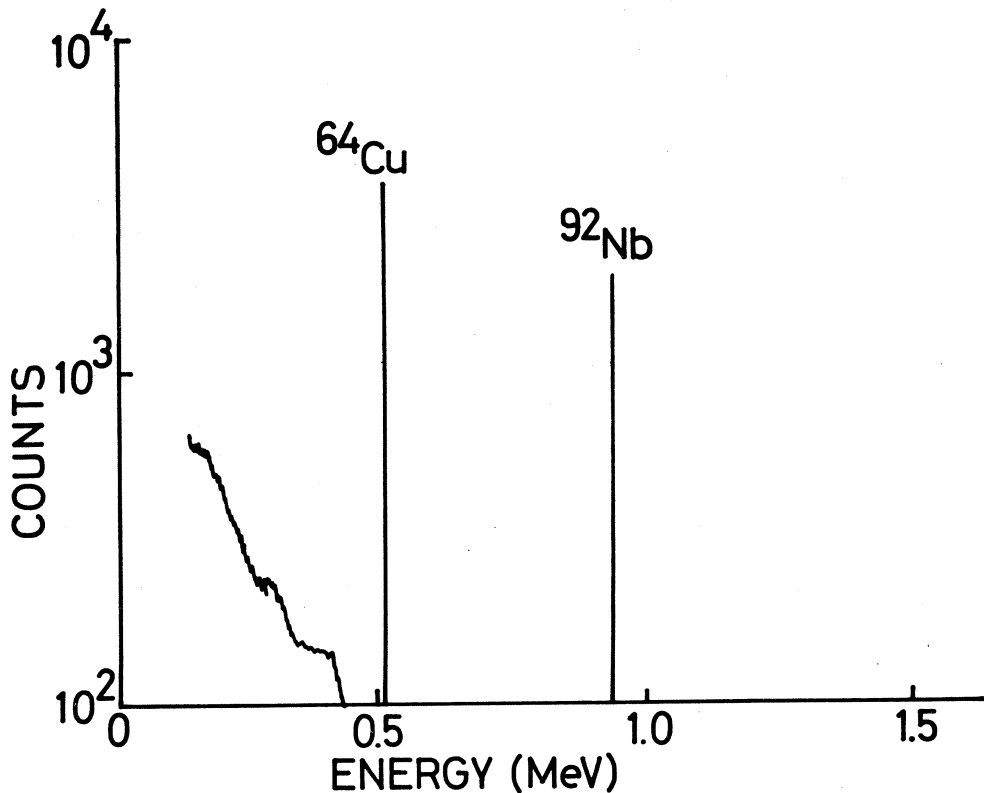


Fig. 4. Chemical procedures for the mixture of niobium and copper phthalocyanine.

殿させてその放射能を測定した。その結果は第5図に示す通り934keVの $^{92\text{m}}\text{Nb}$ の $\gamma$ 線が沈殿に検出され、ニオブのフタロシアニン錯体が生成したことを示している。このさい濾液には $^{92\text{m}}\text{Nb}$ はまったく検出されなかった。昇華クロマトグラフ法の結果については別のところで



第5図  $\gamma$ -ray spectrum of the precipitate in the system Nb+CuPc.

報告する。

### 3. 3 ( $\gamma, p$ ) 反応によるプロメチウム・フタロシアニンの生成

プロメチウム・フタロシアニンはまだ文献に見当たらない。プロメチウムは核分裂によっても生成する人工希土類元素であり、錯体はマクロ量に合成することは困難である。したがってトレーサー・スケールで合成し、その化学的挙動を確かめることが必要である。

$\gamma$ 線を照射すれば ( $\gamma, p$ ) 反応によりPmの反跳原子が生成する。これをフタロシアニン中に打込み、プロメチウム・フタロシアニンが合成されるかどうかを検討した。用いられる核反応は  $^{152}\text{Sm}(\gamma, p)^{151}\text{Pm}$  および  $^{150}\text{Sm}(\gamma, p)^{149}\text{Pm}$  反応で、半減期27・8時間の  $^{151}\text{Pm}$  および半減期53.1時間の  $^{149}\text{Pm}$  が生成する。フタロシアニン銅と酸化サマリウム  $\text{Sm}_2\text{O}_3$  との混合物に  $\gamma$ 線照射するとき、プロメチウムのほかに生成するおもな核種は  $^{153}\text{Sm}$  (半減期 46.8 時間) および  $^{64}\text{Cu}$  (半減期 12.8 時間) である。化学操作は第6図に示すとおりで 真空中で昇華後、昇華物を濃硫酸に溶解し、水にうすめ (La 担体を加えてある)、沈

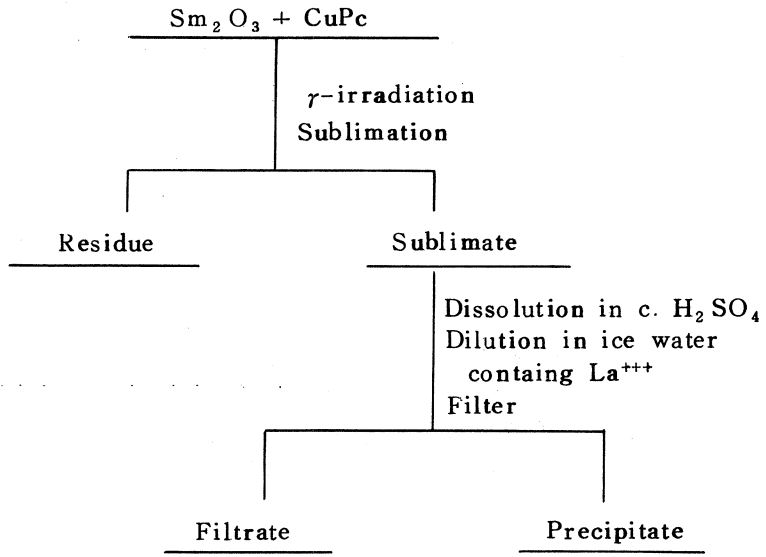
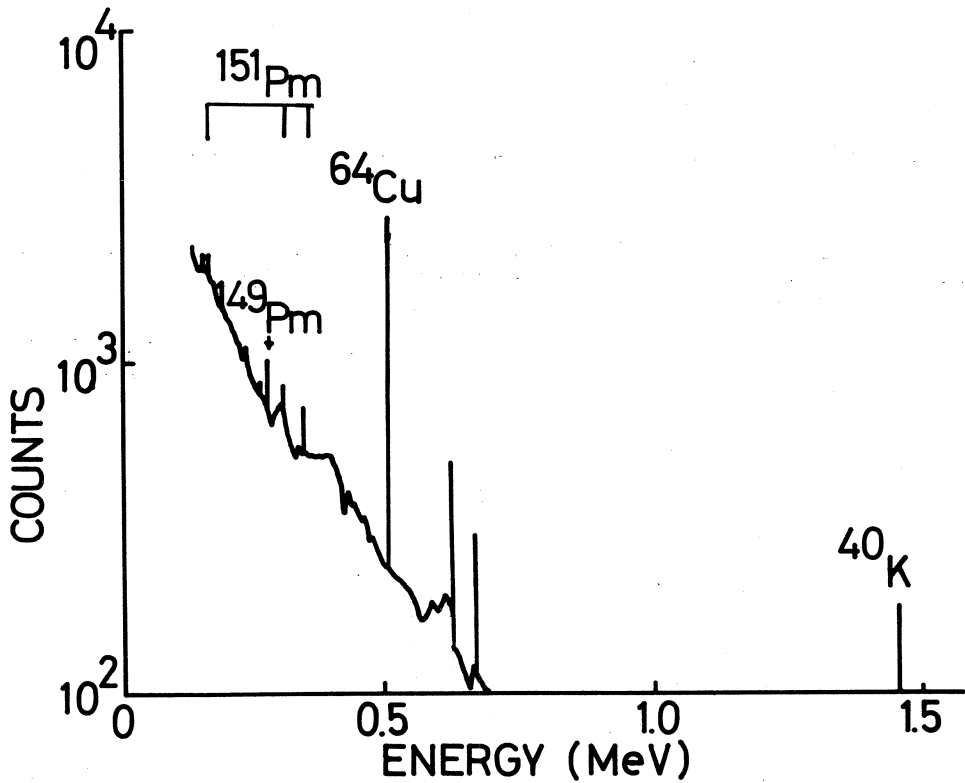


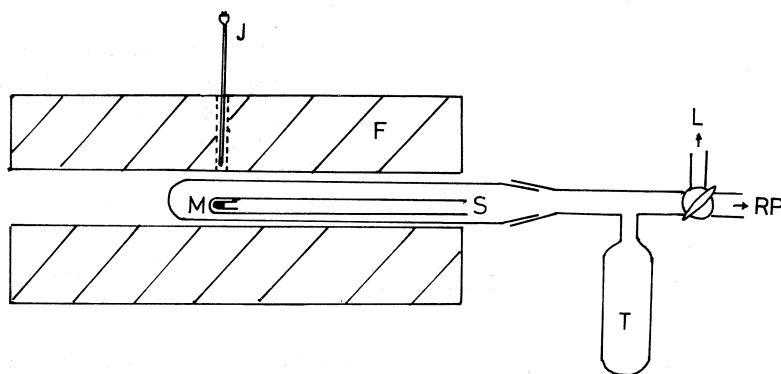
Fig. 6. Chemical procedures for the mixture of samarium oxide and copper phthalocyanine



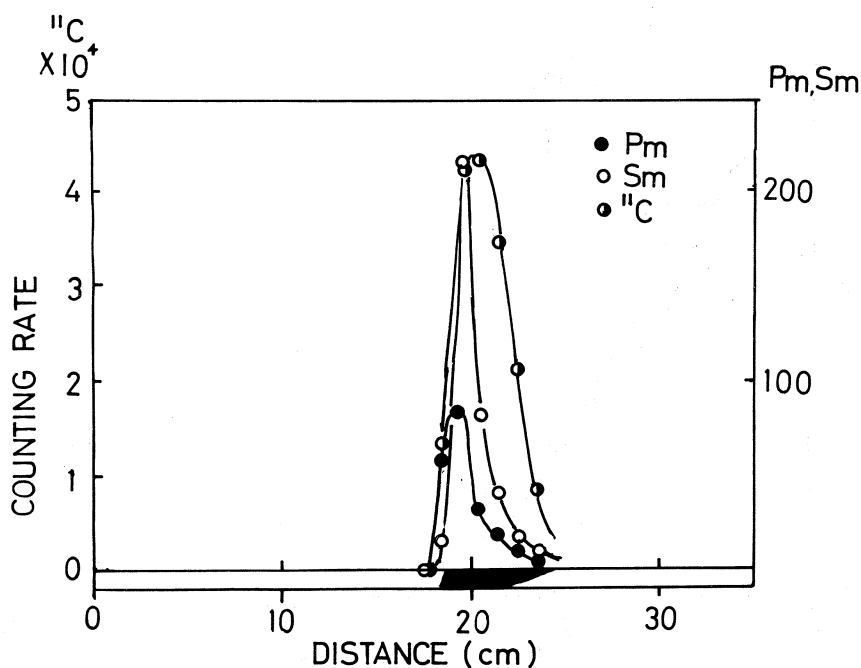
第7图  $\gamma$ -ray spectrum of the precipitate in the system  $\text{Sm}_2\text{O}_3 + \text{CuPc}$ .

殿生成させ、沈殿の放射能を測る。その測定結果を第7図に示す。あきらかに $^{151}\text{Pm}$ と $^{149}\text{Pm}$ の放射能がみとめられる。このさい溶液の方にも $^{151}\text{Pm}$ と $^{149}\text{Pm}$ の放射能がみとめられるので、昇華中の分解が若干起っていることが考えられる。

そこでプロメチウム錯体の生成の確認のためには昇華クロマトグラフ法を用いることにし、



第8図 Sublimation chromatography apparatus.  
 F : Furnace, J : Thermocouple, L : Leak, M : Sample,  
 S : Sublimation tube, T : Trap, RP : Rotary pump.



第9図 Sublimation chromatogram in the system  $\text{Sm}_2\text{O}_3 + \text{H}_2\text{Pc}$ .

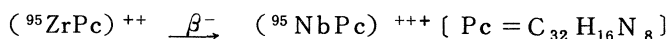
第8図に示すような装置を使って昇華をおこなった。酸化サマリウムと無金属フタロシアニンの混合粉末を $\gamma$ 線で照射し、これを昇華して昇華クロマトグラムを得た。結果は第9図に示すとおりである。Pmのピークは無金属フタロシアニンのピークよりやや高温側にずれる傾向がみとめられる。SmとPmではほとんど同一位置のように見られる。この両者についてフタロシアニン錯体の生成はまず間違いないところであろう。

この( $\gamma$ , p)反応を用いるプロメチウム錯体の合成はdpm錯体の場合にも適用でき、実際に成功したが、その結果は別に報告する。<sup>7)</sup>

#### § 4. 考察

$\gamma$ 線を利用する核反応として( $\gamma$ , f)反応は、反跳エネルギーがきわめて大きく、反跳飛程が長いので、打込みの効率がよいが、その反面生成する核種がきわめて種々雑多である。もちろん時間の経過によって短寿命の核種はすみやかに消失し、中長寿命の核種が残るので、Ge(Li)検出器によれば核種の同定はそれほど困難なものではない。核分裂生成物がフタロシアニン錯体によってどのように捕集されるかという観点でもこの研究は興味がある。(  $\gamma$ , n )あるいは( $\gamma$ , p)反応は核分裂に比べて反跳エネルギーが小さいため、打込み効率は悪くなるが、それでも微細な粉末をよく混合すれば2-3%の収率は得られる。

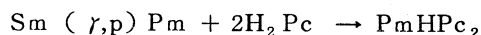
フタロシアニン錯体のうちニオブ・フタロシアニンは従来塩素リガンドの入ったものについてのみ報告がある<sup>8)</sup>この研究でできたニオブ・フタロシアニンは塩素ははじめから含まれておらず、化学種として何かしら別の新しいものと考えられる。<sup>95</sup>Nbは核分裂後の $\beta$ 壊変連鎖を経由するものが主体であり、<sup>95</sup>Zrのフタロシアニン錯体が $\beta$ 壊変によって<sup>95</sup>Nbフタロシアニン錯体を生成したと考えられる。このさい恐らく



のようなりガンド欠乏種が生成し、化学処理のさいにリガンドを周囲から取込むという反応様式をとるものと思われる。これはテクネチウム・フタロシアニン<sup>2)</sup>などの場合と同様な径路である。

<sup>92m</sup>Nbフタロシアニンでも生成時には(<sup>92m</sup>NbPc)<sup>+++</sup>のようなりガンド欠乏種ができたと考えられる。高純度のニオブ金属とフタロシアニン銅から錯体が生成する最初の段階は中心金属置換であり、リガンドはあとで補充されると考える以外に実験結果は説明できない。

昇華クロマトグラム上のプロメチウム・フタロシアニンのピークは



のようなジフタロシアニン錯体にもとづくものであろう。三角<sup>9)</sup>によれば希土類元素においてはこのような型の化合物はかなり安定に存在する。昇華にさいしても壊れずに行動する。Pm



錯体についての報告は従来なく、新化合物の生成は間違いないものと思われる。

上の研究は一部文部省科学研究費によっておこなわれた。また照射についてお世話になった原子核理学研究施設八木益男助教授、近藤健次郎助手およびU<sub>3</sub>O<sub>8</sub>試料の提供をしていただいた選鉱精錬研究所菅野卓治教授にあつく感謝申上げる。また昇華クロマトグラフィーについては金沢大学理学部阪上正信教授にご教示いただいた、記してあつく御礼申し上げる次第である。

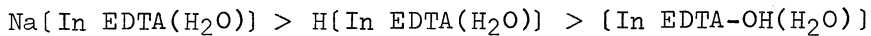
### 参 考 文 献

- 1) F. Baumgärtner and P. Reichold : *Chemical Effects of Nuclear Transformations* (IAEA, Vienna, 1961) Vol II, p. 319.
- 2) K. Yoshihara, G. K. Wolf and F. Baumgärtner : *Radiochim. Acta* 21 (1974) 96.
- 3) K. Yoshihara, M. Kishimoto, M. Takahashi, S. Suzuki and T. Shiokawa : *ibid* 21 (1974) 148.
- 4) K. Yoshihara and H. Kudo : *Nature* 222 (1969) 1060.
- 5) K. Endo and M. Sakanoue : *Radiochem. Radioanal Lett.* 9 (1972) 255.
- 6) K. Yoshihara, T. Saeki, S. Hashimoto and T. Shiokawa : *ibid.* to be published.
- 7) M. Sakanoue, Y. Shiota, H. Shimozawa and K. Yoshihara : *ibid.* to be published.
- 8) Yu. A. Buslaev, A. A. Kuznetsova and L. F. Goryachov : *Izv. Akad. Nauk SSSR. Neorg. Mater.* 3 (1967) 1701.
- 9) 三角省三, 春日邦宣 : *日本化学雑誌* 92 (1972) 335.

### III-9 In 錯体の反跳効果について： ( $\gamma$ , $\gamma'$ ) 反応による出現エネルギー測定

理学部化学 吉原賢二・藤田明久・塩川孝信

Appearance energies (AE's) of indium EDTA-OH complex and its dehydrated compound are obtained by the experiments using the ( $\gamma$ ,  $\gamma'$ ) reaction. The order of AE is concluded as follows.



The plateau value of the complex yield in the energy dependence curve shows the same tendency as the appearance energy does. A slight effect of water molecules is also pointed out.

#### § 1. 序

固体のホットアトム化学においてエネルギー依存性の問題は系統的な研究が従来あまりおこなわれておらず、とくに低エネルギー部分では適切な核反応が得られなかったこともあり、ほとんど見るべきデータがなかった。著者ら<sup>1,2)</sup>は1970年に( $\gamma$ ,  $\gamma'$ )反応を利用してインジウム錯体のホットアトム効果の反跳エネルギー依存性をとくに低エネルギー領域についてくわしく調べた。その結果低エネルギー領域に「出現エネルギー」(Appearance energy)と名付けられるしきいエネルギーがインジウムEDTA錯体に存在することを明らかにした。この「出現エネルギー」は固体物理学で放射線損傷における転位エネルギー(Displacement energy)に比べられるもので、英国ケンブリッジ大学のMaddock<sup>3)</sup>も言っているように、固体ホットアトム化学ではきわめて重要な概念の一つになった。

当然のことながら「出現エネルギー」は物質系が違えば違う値を示すであろうことが期待される。インジウムEDTA錯体に比較しルテチウムEDTA錯体の出現エネルギーはかなり低い値を示すことがその後の研究によって明らかになった<sup>4)</sup>。

しかしインジウムEDTA錯体とルテチウムEDTA錯体ではインジウムとルテチウムの( $\gamma$ ,  $\gamma'$ )反応に関する特性の違いを考慮に入れる必要があり、物質が違えば「出現エネルギー」が違うということを確証するためには、リガンドの違う同じ金属原子の錯体を研究対象として取り上げる必要もある。この研究においては同じ<sup>115</sup>In( $\gamma$ ,  $\gamma'$ )<sup>115m</sup>In反応によって、インジウムのEDTA錯体とEDTA-OH錯体がホットアトム効果による結合解裂を起すと

き、リガンドによる違いが「出現エネルギー」とエネルギー依存曲線にあらわれるかどうかを検討した。その結果、これらの錯体では「出現エネルギー」およびエネルギー依存曲線が異なることがあきらかにされ、また結晶水の有無による差異も見出された。

## § 2. 実験

### 2. 1 ターゲット $\text{In} \cdot \text{EDTA}$ 錯体

Sodium aquo ethylenediamine tetraacetatoindate (III) dihydrate  $\text{Na} [\text{In} \cdot \text{EDTA} (\text{H}_2\text{O})] \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  はエチレンジアミン四酢酸の水溶液と水酸化ナトリウムおよび水酸化インジウムの混合物を加熱して調製し、再結晶して精製した<sup>5)</sup>。

$\text{In} \cdot \text{EDTA} \cdot \text{OH}$  錯体: Aquo- N-2- hydroxyethylenediamine - N, N', N' - triacetato - indate (III) monohydrate  $[\text{In} \cdot \text{EDTA} \cdot \text{OH} (\text{H}_2\text{O})] \text{H}_2\text{O}$  は EDTA - OH 水溶液と水酸化インジウムの混合物を加熱して調製し、エタノールを加えて沈殿させ、水溶液から再結晶して精製した<sup>6)</sup>。またこの物質の無水塩は  $130^\circ\text{C}$  で脱水乾燥して調製した。

### 2. 2 照射

$\gamma$ 線照射は東北大学原子核理学研究施設の30MeV電子直線加速器によっておこなわれた。入射電子ビームのエネルギーを4~20MeVに変化させ、これを白金コンバーター(厚さ2mm)にあてて制動放射線を発生させ、これによってターゲット物質の照射をおこなった。核反応は( $\gamma$ ,  $\gamma'$ )反応および高エネルギーでは( $\gamma$ , n)反応も起り、さらに周辺で起る( $\gamma$ , n)反応による中性子がthermalizeして(n,  $\gamma$ )反応も観察される。

照射はドライアイス・エタノール中で約 $-78^\circ\text{C}$ に試料を保っておこなった。照射中のアニーリングはこの温度ではほぼ無視しうる。

### 2. 3 照射試料の化学処理

照射試料は $\text{In}^{3+}$ 担体6mgを含む冷水溶液に完全に溶かし、この溶液を陽イオン交換樹脂Dowex 50W - X8 (Na型)のカラムに固定し、錯体を通過させて分離した。 $\text{In}$ 担体の濃度の効果はそれほど顕著ではないが、無担体のときと担体を加えたときではあきらかな差が見られるため、担体はつねに加えた。

### 2. 4 放射能測定

放射能の測定は3"  $\phi \times 3"$ のNaI (Tl)クリスタル(井戸型)を検出器とし、東芝800チャンネル $\gamma$ 線スペクトロメーターによっておこなった。

### § 3. 実験結果

#### 3. 1 $\text{In}^{3+}$ 担体量の影響

照射試料を冷水溶液に溶かす場合、反跳により生成した微量の放射性インジウム・イオン  $^{115m}\text{In}^{3+}$  は溶液中ですみやかに錯体分子と交換反応を起す可能性が考えられるので<sup>6)</sup>、あらかじめ溶解する溶液中に非放射性的の  $\text{In}^{3+}$  を加えて交換反応を抑制する。このとき放射性インジウム  $\text{In}^{3+}$  の担体となる非放射性的の  $\text{In}^{3+}$  の量がホットアトム効果の分離収率にどのような影響を及ぼすかを見た。第1図にその様子を示す。

横軸は15ml の溶液に加える  $\text{InCl}_3 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  の量、縦軸は放射性インジウム・

イオン  $^{115m}\text{In}^{3+}$  の相対的収率である。ただし照射試料は200mg 用いており、担体量10mg のときの収率を100%とおいた。図によってわかる通り、無担体のときに収率はあきらかに低めの値を示すが、担体量として加えるインジウム塩の量2mg 以上ではほぼ平らな線上に乗る。したがって以後の実験ではすべて6mg のインジウム塩を加えた。

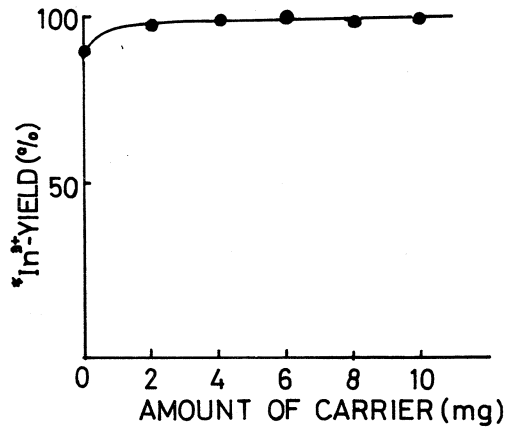
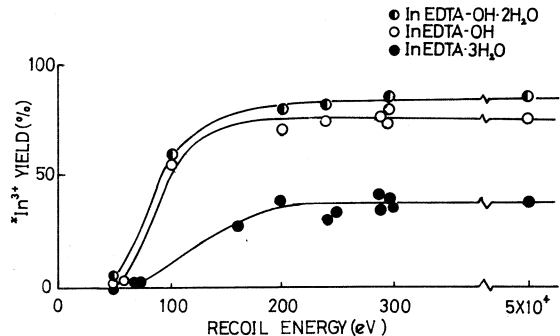


図1 Carrier effect on the yield of  $^{115m}\text{In}^{3+}$  ions.

つぎに  $\text{In} \cdot \text{EDTA} \cdot \text{OH}$  錯体含水塩および無水塩につき反跳エネルギー対  $^{115m}\text{In}^{3+}$  イオンの収率曲線を第2図に示す。比較のために  $\text{In} \cdot \text{EDTA}$  のナトリウム塩  $\text{Na} [\text{In} \cdot \text{EDTA} (\text{H}_2\text{O})] \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  のデータも示した。  $\text{In} \cdot \text{EDTA}$  のデータはプラトー値では従来 ( $\gamma$ ,  $\gamma'$ ) 反応で得られた値よりも高く、Dimotatisら<sup>7)</sup>

が ( $n$ ,  $\gamma$ ) 反応で得た値に近い、担体効果が若干寄与しているかも知れない。しかし出現エネルギーは  $\text{In} \cdot \text{EDTA}$  錯体の場合従来と同様に約60eV 付近にあることがわかる。これに対して  $\text{In} \cdot \text{EDTA} \cdot \text{OH}$  錯体での出現エネルギーはこれよりやや低めの値、40~50eV にある。含水塩は若干プラトー値が高く、出現エネルギーも低エネルギー側にシフトしている

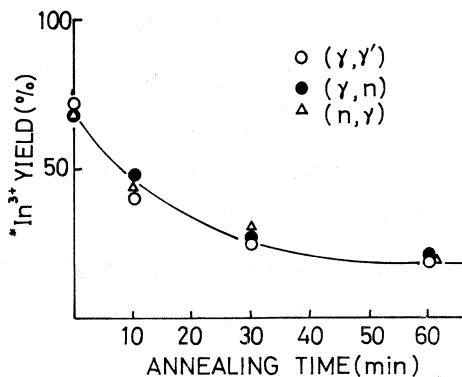


第2図 Recoil energy dependence of the  $\text{In}^{3+}$  yield.

と思われる。それは無水塩ですでに収率が事実上零になっているところで、含水塩はまだ収率が零になっていないからである。

なお第2図で約40keVの最後の一点は ( $\gamma$ , n) 反応によって得られたデータである。

また100°Cでのアニーリング曲線は第3図に示す通りである。これは20MeVの $\gamma$ 線で照射した場合のデータであり、( $\gamma$ ,  $\gamma'$ ) 反応による値のみならず、(n,  $\gamma$ ) 反応および( $\gamma$ , n) 反応のデータも得られ、図中にプロットしてある。3種の核反応によるデータは大差がなかったが、このさいの( $\gamma$ ,  $\gamma'$ ) 反応の値は第2図でのプラトー上の値であることに注意する必要がある。



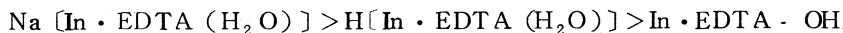
第3図 Annealing curve of In·EDTA·OH·2H<sub>2</sub>O at 100°C.

#### § 4. 考察

従来われわれが採用していた<sup>115</sup>In ( $\gamma$ ,  $\gamma'$ )<sup>115m</sup>In 反応第一励起準位は1.04 MeV<sup>8)</sup>であり、これはかなり古い文献にもとづくものである。しかし近年になってフランスのBoivinら<sup>9)</sup>がこの反応について非常にくわしい報告をしている。それによると第一励起準位は600keVであるがきわめて断面積が小さく、主な準位は1078, 1465, 1495 keVにあり、現在われわれがおこなっている実験に関していえば事実上の第一励起準位は1078 keVと見てよい。入射 $\gamma$ 線エネルギーが1040 keVから1078 keVに改訂されたことによる反跳エネルギーの変化は小さく、従来われわれが採用していたデータに対する影響は非常に小さい。

In·EDTA·OH錯体の出現エネルギーは40~50eVであり、Na [In EDTA (H<sub>2</sub>O)]·2H<sub>2</sub>Oの出現エネルギーの60eVに比べて低い値になっている。またIn<sup>3+</sup>イオンの収率は反跳エネルギーとともに増大するが、ある程度以上のエネルギー領域ではEDTA錯体に比べ配位結合が少なく、全体としての結合エネルギーが小さくなっていることに密接な関係があるものと考えられる。

プラトー値に関する吉原と工藤らの模型的解釈<sup>1)</sup>によれば、ある程度以上のエネルギーをもった反跳原子がある一定の割合で周囲の分子と反応する。反応しないままに残ったものがIn<sup>3+</sup>収率を与え、100%からこの値を差引いたものが錯体収率である。この錯体収率については



のような大小関係がある。錯体収率の内容としては、(1)反跳によって分離されたものとフラグ

メント対の再結合, (2)反跳原子による周囲の分子に対する置換反応 反跳置換反応に分類されよう。プラト一値の領域の反応はこのうち後者の反応に対応するものと考えられる。上に与えられた大小関係は錯体の結合の強さに対応しているが, 化学結合の強いものほど大きな錯体収率を与えるのは反跳置換が化学的因子によって強く支配されていることを示している。

これに対し出現エネルギー近辺の現象が(1)のフラグメント対の再結合によって支配されるであろうことは疑いを容れない。H[In・EDTA (H<sub>2</sub>O)]の出現エネルギーは正確には求められていないが, 従来データを相互に比較してみても,



のようになることが推定され, 化学結合の強いものほど, 高い出現エネルギーを与える傾向があることがうかがわれる。これは反跳によって一たん化学結合が切れても, すみやかな再結合の起る傾向があることを示しており, この再結合は化学結合の強いものほどすみやかに起ることが期待されるので, 結果として化学結合の強いものほど高い出現エネルギーを必要とすることになる。一種の化学的オリ効果 (chemical cage effect) というものの存在を考えるべきであろう。

(1)の場合でも(2)の場合でも化学結合の強さが密接な関連を持つが, (1)と(2)の反応は別の種類のものであるにもかかわらず, その起りやすさにある程度類似性があるように見える。このことの詳細は今後さらに研究を重ねる必要がある。とくに(2)の反応に関しては一種の反跳インプランテーションが起っているものと見なせるから, 今後反跳インプランテーションの実験との対比から考察できるかも知れない。

出現エネルギーが固体物理学の転位エネルギー (displacement energy) に比べ, 化学的性格 (chemical character) が強いことは上のような実験からも明らかにかがいがい知れるところである。固体ホットアトム化学にとってきわめて興味深い現象といわなければならない。

結晶水の影響はわずかではあるけれども存在する。結晶水のあるものがやや高いプラト一値 (低い錯体収率) を示し, またやや低い出現エネルギーを与えているように思われる。(1)の再結合反応に対して結晶水が何らかの妨害的な影響をもつことが考えられ, また同様に(2)の反跳置換反応に対してもやや低い収率を与えるような効果を及ぼしている。しかしこの真の原因を解明することは現在の段階ではまだ困難である。

またアニーリング反応ではIn・EDTA・OH錯体のアニーリングはIn・EDTA錯体のアニーリングに比していちじるしく早い。アニーリング反応の内容は(1)フラグメントの再結合反応, (2)置換反応あるいは交換反応と考えられるが, In・EDTA錯体とIn・EDTA・OH錯体の比較から, (2)の反応がIn・EDTA・OH錯体でIn・EDTA錯体よりも速かに起ることが知られており, (2)のような型の反応がアニーリングのさいに優勢に進行することが考えられる。も

ちろんアニーリング反応の内容はそれほど単純なものではなくいろいろの因子が関与することが考えられるが、傾向としていえば(2)のような型の反応が重要なのは第2図プラトー領域のアニーリング反応だからであろう。(1)のような反応はプラトー領域以前では重要なはずであるが、今回の実験ではこの領域についての検討はおこなえなかった。

終りに本研究にあたって照射のお世話になった東北大学原子核理学研究施設、伊藤、今野両氏にあつく御礼申し上げる。なお本研究の一部は文部省科学研究費によった。

### 参 考 文 献

- 1) K. Yoshihara and H. Kudo : J. Chem. Phys. 52 (1970) 2950.
- 2) K. Yoshihara, M. H. Yang and T. Shiokawa : Radiochem. Radioanal. Lett. 4 (1970) 143.
- 3) A. G. Maddock : *Radiochemistry* (Butterworth, London, 1975) p.277.
- 4) K. Yoshihara and T. Mizusawa : Radiochem. Radioanal. Lett. 9 (1972) 263.
- 5) K. Saito and H. Terry : J. Chem. Soc. (1956) 4701.
- 6) K. Saito and M. Tsuchimoto : Bull. Chem. Soc. Japan 35 (1962) 367.
- 7) C. P. Demetroulas and P. N. Dimotakis : J. Inorg. Nucl. Chem. 28 (1966) 2756.
- 8) W. C. Miller and B. Waldman : Phys. Rev. 75 (1949) 425.
- 9) M. Boivin., Y. Cauchois and Y. Heno : Nucl. Phys. A176 (1971) 626.



## IV. 加速器・測定器部門



## IV-1 多線比例計数管 (MWPC)

核理研 玉江忠明・菅原真澄

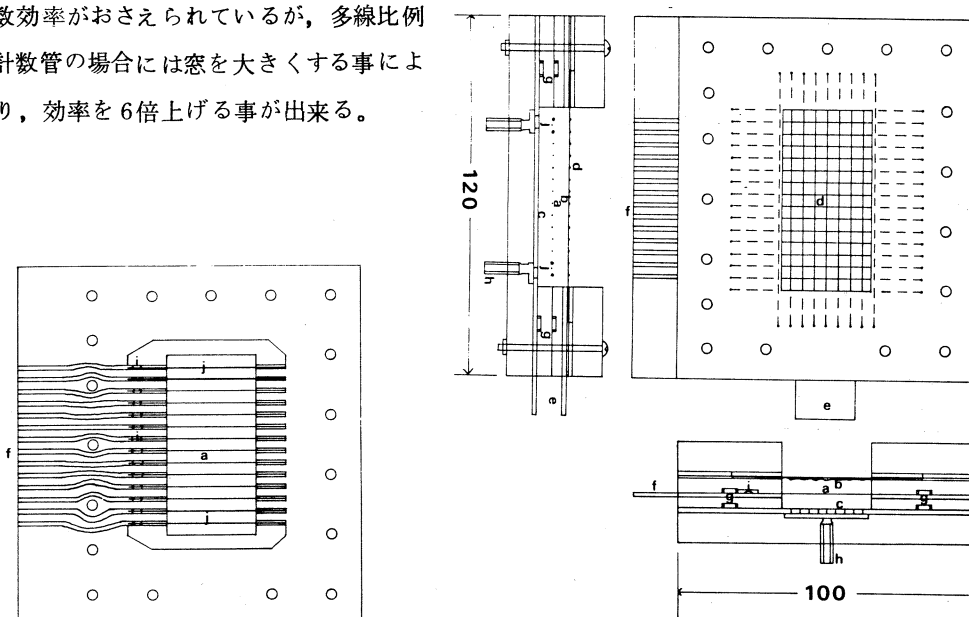
### § 1. 序論

広帯域磁気分析器 (BDM) の焦点面に現在並べられている半導体検出器に代わるものとして多線比例計数管を開発中であるが、その試作品の試験がほぼ終わったので、その結果を報告する。

多線比例計数管の開発には次のような理由がある。

1) インターフェイスの改良に伴い、全チャンネルでの波高値測定が可能になるので、粒子の種類によって比例計数管のガス中でエネルギー損失が違う事を利用して、粒子の識別を行なう事が出来る。特に現在では難しい陽子と $\alpha$ 粒子の識別が可能になる。

2) 現在、使用している半導体検出器の製造が中止されるので、それに代わる検出器が必要となる。半導体検出器は長さ1cm、幅2mmのものを使用しており、その大きさによって計数効率がおさえられているが、多線比例計数管の場合には窓を大きくする事により、効率を6倍上げる事が出来る。



(左) 信号線部分の構造

- a : 信号線 (20 $\mu\text{m}\phi$ の金メッキ・タングステン線, 張力60g)
- b : 陰極面 (厚さ12 $\mu\text{m}$ のアルミ蒸着テトロン)
- c : 陰極面 (プリント基板製)
- d : テトロン補強用タングステン線 (200 $\mu\text{m}\phi$ )

第1図 (右) 多線比例計数管の構造

- e : 高圧負電極端子
- f : 信号取り出し用電極端子
- g : Oリング
- h : ガス流入出ガラス管
- i : ハンダ
- j : 電場補正用錫メッキ線 (200 $\mu\text{m}\phi$ )

## § 2. 構造と製作

第1図に多線比例計数管試作品の構造を示す。信号を取り出す信号線は太さ  $20\ \mu\text{m}$  の金メッキしたタングステン線で、 $4\text{mm}$  間隔に10本がアロン・アルファーとハンダによってガラスエポキシ・プリント基板に張られている(第1図左)。張力は約 $60\text{g}$ であるが、かなりのばらつきが見込まれる。10本のタングステン線の外側に電場の歪みの補正用として $200\ \mu\text{m}$ の錫メッキ線を2本ずつ張り、これをアースしてある。

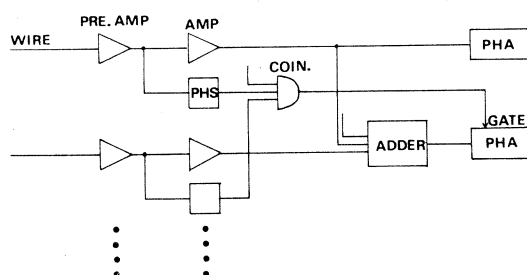
陰極面は信号線との距離が $5\text{mm}$ で、粒子入射側は厚さ $12\ \mu\text{m}$ のアルミ蒸着のテトロン、反対側はガラスエポキシ・プリント基板である。 $12\ \mu\text{m}$ の厚さでは外側を真空中に引くと窓は張力に耐え切れないが、テトロンの中の荷電粒子のエネルギー損失が大きい為にこれ以上厚い窓を使用する事が不可能である。そこで直径 $200\ \mu\text{m}$ のタングステン線を $4\text{mm}$ 間隔で餅網状に張って窓を補強してある。装置の枠にはガラスエポキシ材及びアクリル板を使用し、装置全体は三つの部分に分解する事が出来るようになっている。

ガスとしてはAr 90%  $\text{CH}_4$  10%のいわゆるPガスを用い、いずれの場合にもガスの流速は $25\text{cc}/\text{min}$ とした。高電圧は陰極面側に負の高圧をかける。

## § 3. 測定系

第2図に測定系を示す。前置増幅器はFET入力のチャージ・センシティブ増幅器を用いている。信号の大きさは信号線からの荷電量を $-Q$ 、帰還コンデンサの容量を $C$ とすれば $Q/C$ となる。

前置増幅器からの信号はさらに増幅され波高分析装置(PHA) USC-1及び2台のADC(NS-623)を接続した

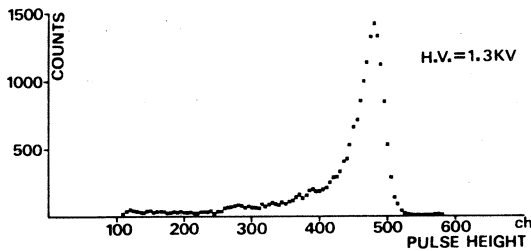


第2図 測定回路系

OKI TAC 4500 ON LINEデータ集積装置により波高分析されるが、数本の信号の和を見たい時には加算回路を通った後で波高分析される。又前置増幅器の後にはPHSを通して同時計回路が接続されており、PHAのゲート信号として使用される。

## § 4. 測定結果

第3図は $^{241}\text{Am}$ の $\alpha$ 粒子源を用いた波高分布の一例である。放出される $\alpha$ 粒子のエネルギーは $5.48\text{ MeV}$ で、真空中を飛行して、計数管に垂直に入射する。 $\alpha$ 粒子のテトロン窓中でのエネルギー損失は $2.64\text{ MeV}$ 、ガス中でのそれは $1.19\text{ MeV}$ である(計算値)。

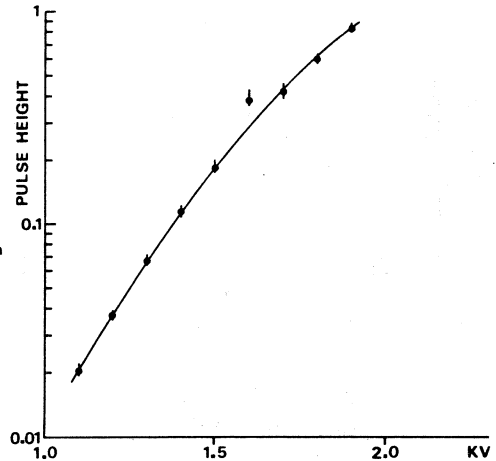


第 3 図  $^{241}\text{Am}$  からの  $\alpha$  粒子 (5.48MeV) の波高分布。高圧は1.3kV。

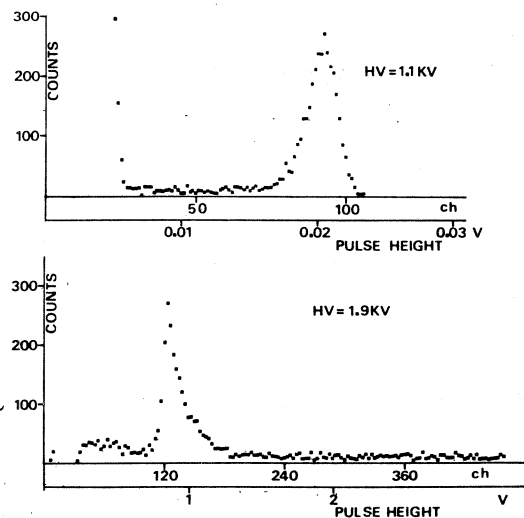
第 4 図は比例計数管にかける高電圧を変化させた時の波高値の変化で、ほぼ対数的に増加している事が分かる。第 5 図は高電圧が 1.1kV の時と 1.9kV の時の波高値分布であるが、1.9kV の時は波高値の大きな方に長い裾を引いているのが分かる。この現象は高電圧が 1.6kV を越えるあたりから始まるので以後の測定には 1.3kV 乃至 1.5kV を印加した。第 6 図は  $\alpha$  線源を平行移動させた時の計数の変化である。 $\alpha$  線束は多線比例計数管の信号線上で直径 2mm になるようにコリメートされている。図の下方の丸印が信号線の位置であって、図は中央の線による測定結果である。これを見ると、 $\alpha$  線源が信号線から 2mm 離れて次の信号線との丁度中間に来たあたりから計数が急激に減少するのが分かる。

第 7 図は各線の正面に  $\alpha$  線源を置き、計数したもので、両端の 2 本乃至 3 本つつを除くと誤差の範囲で計数は一致している。信号線

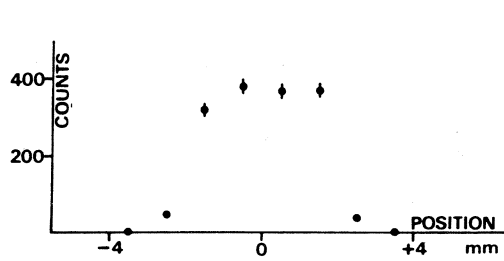
の張力及び位置のばらつきによる計数効率の差は、この結果を見る限りは大した事がない。又、この測定は電場補正用の  $200\ \mu\text{m}$  錫メッキ線を張らずに 13 本の  $20\ \mu\text{m}$  タングステンを張ったものである。以上はいずれも  $\alpha$  粒子を垂直に入射させて測定したものであるが、以後は多線比例計数管を実際に第 8 図のように BDM に取り付け、ターゲット位置に置いた  $^{241}\text{Am}$  からの  $\alpha$  線及び



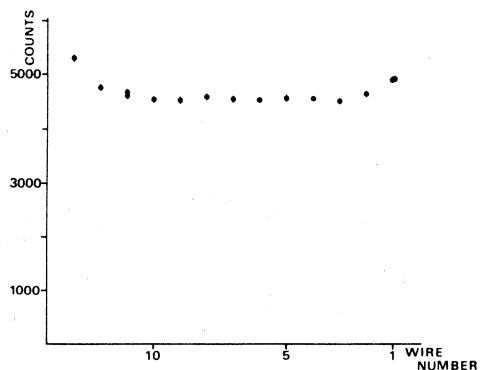
第 4 図 高電圧—波高値 (ピーク値) 関係  
高電圧の上昇に対し、波高値がほぼ対数的に大きくなっているのが分かる。波高値は前置増幅器の出力電圧



第 5 図 高電圧が 1.1kV 及び 1.9kV の時の波高分布。1.9kV の時は波高値の大きい側に長い裾を引いている



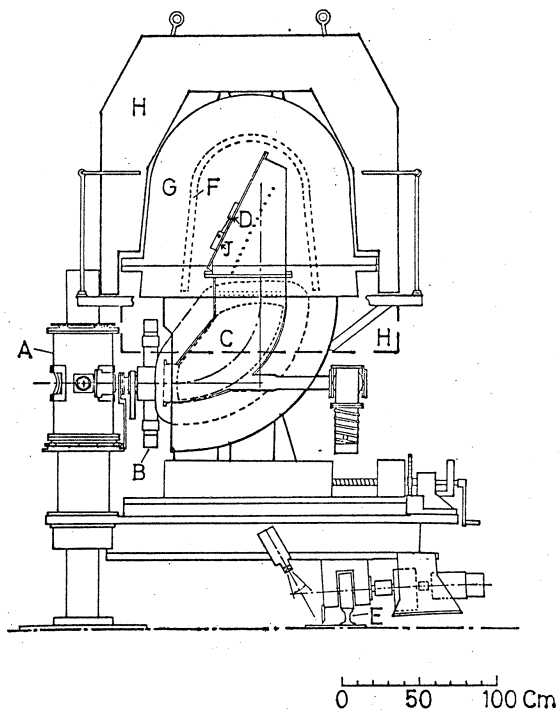
第6図  $\alpha$ 線源を平行移動させた時の計数の変化。  
 $\alpha$ 線源が信号線から2mm離れた所で、計数が急激に減少している。



第7図 各信号線の計数効率  
外側の2・3本づつを除いて統計誤差の範囲で計数効率は等しい。

実際にターゲットに電子ビームを照射した時の $\alpha$ 粒子・陽子を測定したものである。 $\alpha$ 粒子はテトロン窓に約 $37^\circ$ の角度で入射する。BDMの磁場は7100 Gで、 $^{241}\text{Am}$ からの $\alpha$ 粒子が丁度信号線的位置に入射する値である。 $\alpha$ 粒子はテトロン窓で2.85 MeV エネルギー損失し、ガス中を1.4 cm 飛んで静止する。

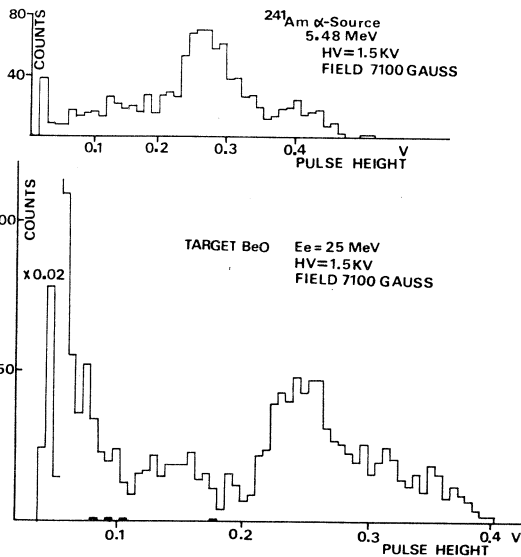
第9図(上)は、 $^{241}\text{Am}$   $\alpha$ 線源による波高値分布である、垂直入射の時の分布に比べると、かなり広がっているのが分かる。(下)はBeOの標的に25 MeVの電子を照射した時の結果である。0.25 V付近にピークを持つ山は(上)の図の山と一致するから、これが $\alpha$ 粒子によるものと思われるが、0.1 Vより低い所に上図には見られない粒子群が観測される。バックグラウンドは黒い棒線の程度であ



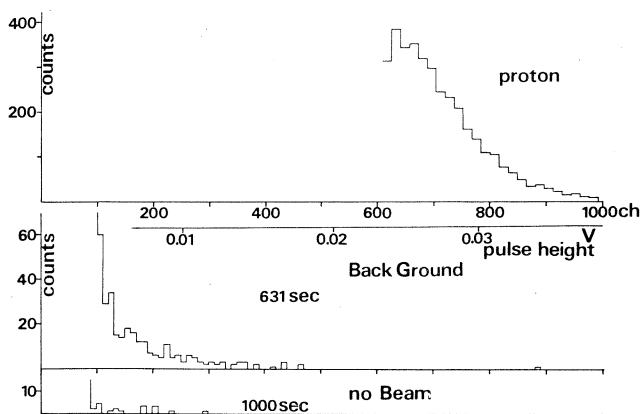
第8図 広帯域磁気分析器(BDM)に取りつけた多線比例計数管(MWPC)  
D: 多線比例計数管  
J: 前置増幅器  
B: 散乱槽とBDMの間のゲート・バルブ

るので問題にはならないから、これが陽子による信号と思われる。

この部分を書き換えたのが第10図(上)で、(下)のバックグラウンドからはっきり分離されている事が分かる。バックグラウンドの測定はBDMと散乱槽の間のゲートを閉めて電子ビームを標的に当てて行なった。ビームの出ていない時に比較して幾分増加している。第11図は2本・3本・4本の信号線に同時に信号が現われた時、それらの信号を加算器によって加え合わせたものである。PHSレベルは2本及び3本が加算の時は0.036V、4本加算の時は0.020Vである。

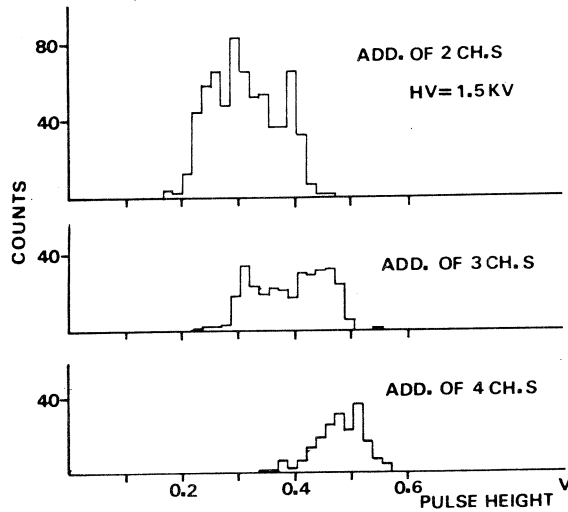


第9図 多線比例計数管をBDMに取り付けて<sup>241</sup>Amからの $\alpha$ 粒子を測定した波高分布(上)とBeOに電子ビームを照射した時の波高分布(下)。0.25V付近の山は $\alpha$ 粒子。0.1V以下は陽子で、上の図には見られない。



第10図 第9図の0.04V以下の部分を書き直した図。下図はバックグラウンド。陽子によると思われる信号はバックグラウンドより大きい波高値を持つ。

以上に見て来たように、多線比例計数管試作品による $\alpha$ 粒子の測定結果は満足出来るものであった。陽子についてはまだ試験が不充分であるが、これには理由がある。電子ビームを用いて



第 11 図 2 本・3 本・4 本の線の波高値を加え合わせた時の波高値分布。

バックグラウンドを測定している時、散乱槽とBDM の間のゲートを閉めた為にBDMの真空が1mmHg 程度まで悪化し、高圧陰極面がBDM内壁と放電をおこして、テトロン窓に穴があく事故が起った。ロータリー・ポンプのみで引いている時のBDM内の真空は通常0.5mmHg 程度であるが、角度分布測定時などには1mmHgより真空の悪くなる事がまま有り、現在の高圧印加方式では常に放電の危険性を孕んでいる。そこで、本番用装置は信号線に正の高圧を加え、コンデンサーを通して信号を取り出す方式にする予定である。又、一個の入射粒子が複数の信号線に信号を発生させる問題はインターフェイスの段階で一個と判断する仕組みとする予定で計画を立てている。

今回の実験に当り、PHS回路系は武藤氏、ONLINEプログラムは窪田氏の作成したものを使用させていただいた。又、(r, p)グループの皆様には実験の際、手伝っていただきました。最後になりましたが、感謝の意を表します。



V. 加速器・データ処理装置稼動状況  
及び放射線安全管理

## V-1 昭和50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

加速管モード変換器での整合が悪化し、全面的な再調整及び、修理を実施した。そのため、マシンタイムの期間を51年4月20日までに延長した。

## ○マシンタイム稼動状況

課題(責任者)	割 当	実 施	備 考
es(T)	13	13+2*	
es(A)	8	8	
es(H)	7	7	
es(O)	6	6	
rp(庄)	4	4+2*	
rp(Th)	9	9	
rp(宮)	2	2	
rp(齊)	3	3	
rπ(庄)	4	4	
rx	3	3	
MWPC	2	2	
高崎	3	3	
ION	8	8	
ND	22	22+3*	
RI	30	30	うち核分光 11日 生医 1日 物性 3日を含む
γα	0	0+2*	
	124	124+9*	
工事(予備日)	48	52	
定期点検	6	4	
マシン停止日	2	4	
	56	60	

\* 51年度前期分繰上実施

## ○保守

・ 11月26日 - 1月10日

加速管モード変換器の全数(40ヶ)調査及び、再調整を行った。

・ 11月18日 - 12月15日

I系真空不良のため、I系の実験を中止し真空処理及び、粗引ポンプを分子軸流ポンプに交



換した。

作業は12月中旬完了したが上記の工事のため実験再開は1月12日からとなった。

・ 4月5日～9日及び19～20日

加速管 B10 の耐圧が低下し交換を行った。一部導波管系にも不良の個所があり、再交換を行った。耐圧の低下は真空系の汚れと思われるが汚染源は現在のところ不明である。

## V-2 データ処理装置・測定器稼動状況

核理研 小山田正幸・窪田健雄・佐藤新悦  
菅原真澄・藤沢政則・武藤正勝

### 1. データ処理装置

オンラインデータ集積装置(O-4500), オンラインデータ処理装置(T-3400)の昭和50年度用途別利用実績を第1表に示す。今回より集計方法を一部変更しました。

O-4500関係ではデータ処理(データ処理, 一般計算, データステーションの合計)の時間が2100時間と前年に比して倍増した。これはT-3400の故障増によりデータ処理の移行が促進されたものと思われる。しかしオンラインが約2200時間ありデータ処理に利用出来るのはせいぜい2500時間程度なので今後とも多くは望めない。因みに過去T-3400の最高は5000時間です, 今年度予算で整備を予定していた多量データ表示装置にはSONY-TEKのストレージタイプ4014型を選定し2月に接続した。ソフトについてはサブルーチンパッケージをO-4500用に改造してディスクに登録してある。このルーチンはFORTRANでCALL出来DOS-45で利用可能です。制御用についてはドラムの容量の関係で一部分に登録してあります。説明書は計測グループに用意してありますので御利用下さい。

T-3400関係で目につくのは11月に起きた約200時間の故障です。この時間は主に作業時間で実質的には16日間約400時間使用出来ませんでした。一応復旧しましたがその後も不安定さが残り再処理等が多く実質的処理能力は著しく低下しました。しかしこの故障を機にデータ処理をT-3400からO-4500に移行した方もおり, T-3400の負荷軽減には功績(?)大でした。今年度も保守を続けますが負荷の軽減に御協力下さい。

データステーションについては現在O-4500を利用して1200BPSで計算センターに接続して居りますがセンタの機種変更に伴い51年度で中止となります。センタでは51年10月より新たに2400BPSリモートバッチ処理サービスを開始する予定です。これにより核理研でも機器の交換及びプログラムの変更が必要になります。この事について核理研データ処理懇談会等で検討を続けてきましたが, 2400BPSリモートバッチステーションをO-4500より分離独立した形で設置することが望ましいと結論が出ました。その理由は1)次期データの処理装置の実現が遅れている。2)T-3400の老朽化が進み処理能力が低下している。3)O-4500はオンライン時間が多くオフラインに使用出来る時間が少なく又センタのサービス時間とも一致しがたい。4)センタの新機種サービス能力に期待出来る等です。この結論に基づいて現在システム構成, ソフト仕様, 開設時機等技術的な検討を進めております。

(窪田)

第1表 昭和51年度用途別利用実績表 (単位:時間)

機種名	OKIATC -4500				TOSBAC -3400		
用途	オンライン*1	データ処理*2	保守、故障	月合計	データ処理*3	保守、故障	月合計
4	124	127	26	277	156	9	165
5	230	132	17	379	220	14	234
6	259	124	9	392	250	21	271
7	301	153	13	467	469	9	478
8	95	244	8	347	351	12	363
9	147	217	12	376	418	10	428
10	215	70	15	300	172	10	182
11	148	166	10	324	55	205	260
12	0	303	21	324	185	18	203
1	215	123	24	362	205	12	217
2	206	176	13	395	198	27	225
3	289	296	14	599	215	10	225
合計	2229	2131	182	4542	2894	357	3251
月平均	186	177	15	378	241	30	271
%	49.1	46.9	4.0		89.0	11.0	

\*1オンライン=LDM+BDM+ND+PHA

\*2データ処理=データ処理+一般計算+データステーション

\*3データ処理=データ処理+一般計算

## 2. 測定器

加速器制御用計算機を昨年導入し、ECS制御系も含めた加速器自動制御の仕事が本格的に開始した。CAMAC Systemと計算機を継ぐCRATE Controllerの製作はすでに完了し、現在、制御用モジュールを製作している。今年度前期はこれらの回路の製作を終えて部分的な制御のテストをしたいと考えている。なお昨年度予算化されていたRI関係のデジタルゲートは、加速器関係の仕事を優先させたため製作できなかった。関係者にお詫びすると共に測定器、実験装置、加速器制御系、放射線エリアモニタ等を2名の人員で分担している実状を御理解下さいませようお願いします。当グループで主に回路製作を担当した藤沢政則君は4月1日より工学部原子核工学科へ転勤した。核理研在職中の活躍に深く感謝します(武藤)

## V-3 核理研における個人被曝

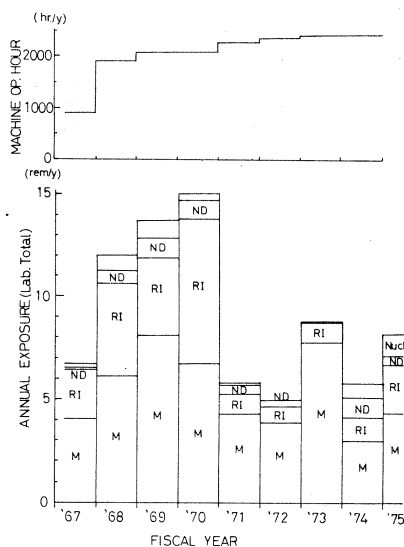
核理研放射線小委 渡辺 昇・浦沢茂一  
近藤健次郎・八木益男

核理研電子リニアックは今年で運転 10 週年を迎えるが、その間の個人被曝線量の年次経過を調べてみると、加速器の保守および利用のし方についての基本的な考え方の変遷や加速器自身のライフサイクルとの関連で興味ある事実がわかり、今後の個人被曝の管理を計画するうえで有用である。

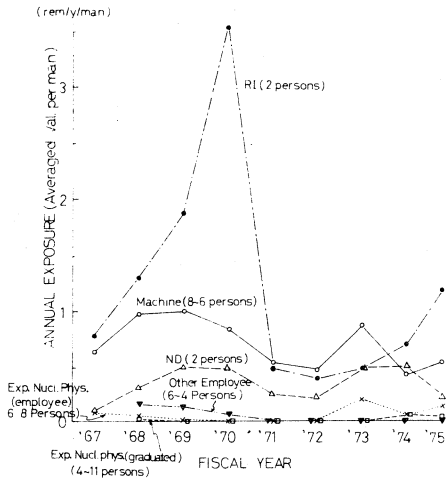
まず第 1 図は、核理研専従の放射線作業従事者が受けた年間総被曝線量の年次経過を示したグラフで、M, RI, ND はそれぞれ加速器保守, RI 照射, ND 用中性子源保守の業務別被曝を指す。参考のため、年間総運転時間の経緯をあわせて示しておく。この図から明らかな如く 1970 年までは総被曝線量が加速器の総運転時間にはほぼ比例して増加しており、この時期を仮に核理研における放射線個人管理のうえでの第 1 期と呼ぶことにする。第 1 期での年間総被曝は、我国の他の加速器施設での値と比較すると、おそらく 1 桁以上は高い値であろう。しかし、ビーム出力および運転時間で規格化し、さらに本加速器が多目的利用であるための保守の複雑さ等を考慮すると、特に高い値であるとは云えない。一方、従事者 1 人当りの被曝に直してみると、次に示すごとくかなり厳しい値であることには違いない。なお業務別には、加速器保守と RI 照射で全被曝線量をほぼ折半した形となっている。

さて第 2 図は 1 人当りの平均的年間被曝線量を業務別に示したものであるが、業務量に対し定員が少ないため、加速器グループでは年間約 1 レム、RI グループでは最高時には 3.5 レムにも達している。この値は平均値であって、個人によってはその約 2 倍近くにもなっており、年間 5 レムは超えてはいないが他の事業所と比べれば著しく高く、常識的には限界である。このような被曝をいつまでも続けるわけには行かないので、加速器保守および利用のし方について次のような基本的変更が行われた。

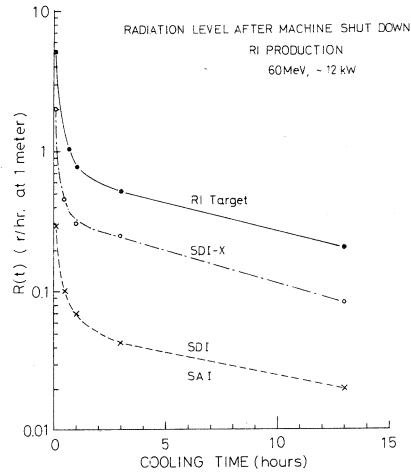
まず加速器の保守に関しては、真空リーク等の突発的事故であっても最低限翌朝まで冷却してから作業するよう基本方針を変更した点である。加速器停止後の誘導放射能によるガンマ



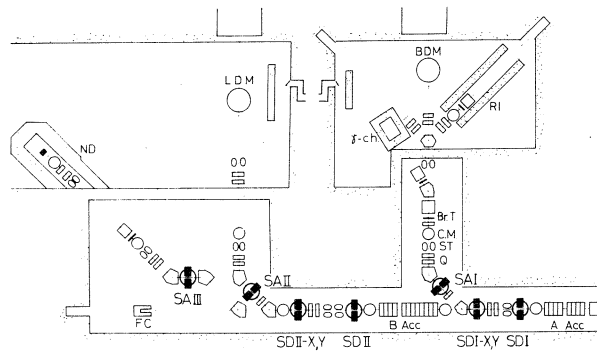
第 1 図 核理研専従放射線作業従事者の年次別総被曝線量および加速器の年間総運転時間。(M, RI, ND は加速器保守, RI 照射, 中性子源保守の各業務別被曝をさす)



第2図 核理研専従放射線作業従事者1人当りの業務グループ別年間被曝



第3図 加速器停止後の残留放射能レベルの時間変化 (RI照射8時間運転)



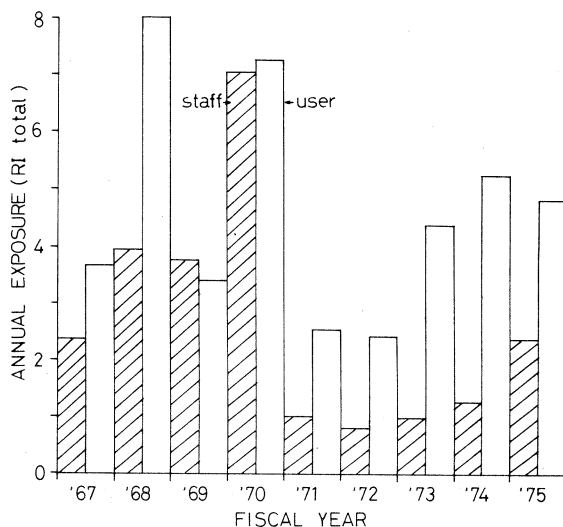
第4図 ビーム・トランスポート系

線空間線量率の時間変化の典型的な例として、第3図に60MeV、フルパワーで約8時間RI照射用の運転を行った時のRIターゲット、SDI、SAI、SDI-X周辺(第4図参照)での値を示す。真空リークが発生する場所は、一般に偏向系の後またはビーム窓の近傍が多く、第3図のような線量率の空間での作業となる。図から明らかな如く、最初の約1時間の冷却が極めて重要で、この間に線量率はほぼ1桁は減衰する。その後の減衰は、見かけの上の半減期数時間で、場所あまり依らない。真空リーク修復作業における待時間は、第1期にあっては事故発生の当日のうちに着手されることが多く、特に最初の頃は1時間の冷却があるかないかという作業もあった。これは巨額の国費を投じて建設された加速器に対する社会的責任感から、事故の拡大を未然に防ぐため、ある程度止むを得なかったと考えられる。第1図および第2図において1970年以後、加速器保守にかかわる被曝が減少しているのは、この待時間の増加によるところが最も大である。次にもう一方の大口被曝であるRI照射については、第1期における経験

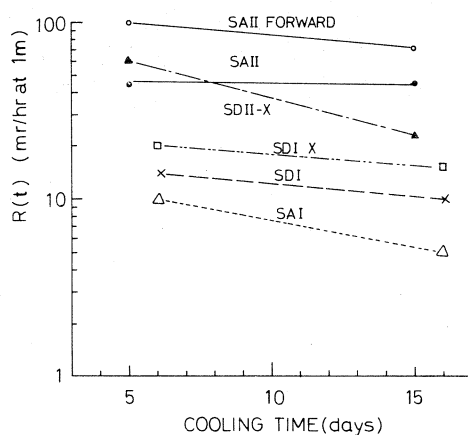
に基づき、照射装置に抜本的改善がなされた。さらに、従来、施設のRI専従者により行なわれていた照射業務のかなりの部分が利用者に肩代りされた結果、第1図および第2図において1971年以後に見られるような著しい被曝の減少が達成された。このところをもう少し詳細に示したのが第5図で、施設のRI専従者と一般RI利用者の別に年次別総被曝を示してあるが、1971年以後装置の改善により、両者に著しい減少が見られるとともに、肩代りの効果が明白にうかがえる。ほゞ同じ時期にNDに関して第2実験室に遮蔽体が完成し、被曝が減少している。

以上の如く、各分野で装置の改善や、放射線作業のやり方に大きな努力が払われた結果、年間総被曝の減少に大きな進歩が見られた。この1971年以降を第2期としておく。第2期におけるもう一つの特長は、施設の放射線作業従事者の被曝の均等化への努力である。第2図から明らかな如く、特定の業務グループに集中していた被曝をできるだけ均等化するように、大きな被曝をとまなう加速器保守の作業に、なるべく被曝の少ない業務グループから応援するようにしたことで、ある程度、その効果が現われつつある。原子核実験グループ、NDグループおよびRIグループの一部の被曝の増加はそのためである。

第1図から明らかな如く、第2期も年代とともに再び年間総被曝に増加の傾向が見られる。これは1つには加速器の老朽化のため、保守の作業が増加している現われと考えられる。たとえばⅡ系分析ダクト水冷配管ろう付け部の放射線損傷は著しく、水もれ補修もほとんど不可能な状態であるが、第6図に示す



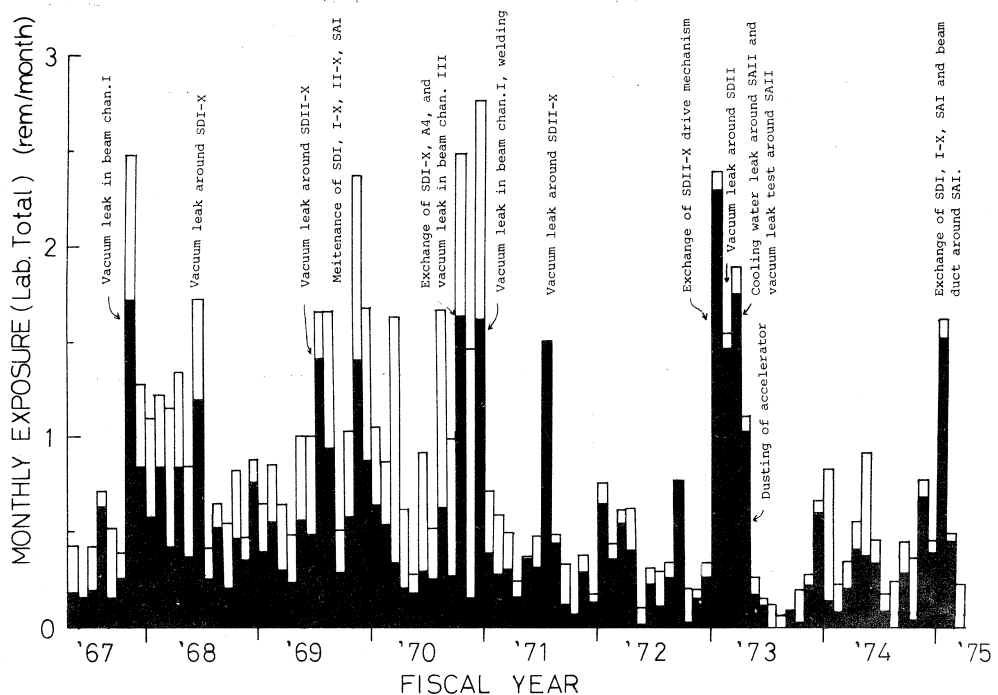
第5図 RIグループの年次別総被曝線量(斜線部は核理研専従者分、白は共同利用者分)



第6図 各スリット周辺の比較的長い残留放射能レベル

如くこのような場所 (SAⅡおよびSAⅡ前方) の残留放射能レベルは著しく、しかも比較的半減期の長い核種の蓄積のため、半月程度の冷却期間をおいてもその周辺の空間線量率は 100 mr/h 以下には下らない。したがって加速器の保守に従事する者の被曝をこれ以上増さないためにもダクトの更新を早急に考える必要がある。

年間総被曝を再上昇させているもう一つの原因は、第5図からも明らかな如くRI照射業務による被曝で、これは実質的な全国共同利用開始によるRI関係共同利用者数および放射線作業量の増加によるものである。今年よりRI照射装置の遮蔽にさらに改良がなされたため、本年度以降にはまた顕著な減少が記録されることが期待される。この改良の詳細については次の報告を参照されたい。



第7図 核理研専従放射線従事者の月間総被曝線量 (黒は加速器保守による被曝, コメントはその被曝の主な原因を示す)

最後に第7図は、施設の従事者の月間別総被曝を示した棒グラフで、うち黒の部分が加速器保守によるものである。図中の説明は、その被曝のほとんどが、そこに記載された保守作業により生じたことを意味する。この図から明らかな如く、突発的真空リークが発生すると、リーク場所の確認及び修復にほぼ1.5レムの総被曝が必要であることがわかる。スリット交換等をとともなう大規模な計画的工事の際の総被曝でさえ、せいぜい同程度の値であることを特記しておく。

## V-4 被曝線量軽減のためのRI照射装置の改良

理学部安全管理室 山寺 亮・塩川孝信・近藤健次郎\*  
核理研放射線小委\* 八木益男\*・浦沢茂一\*・渡辺 昇\*

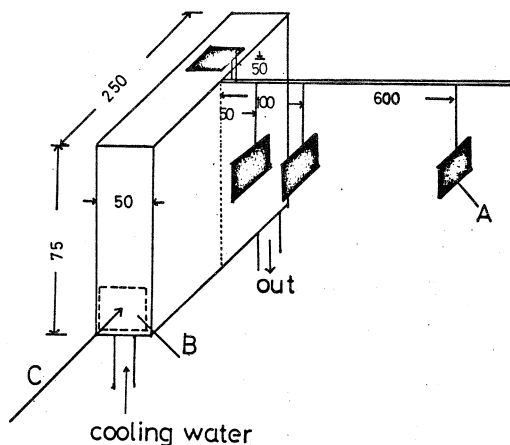
これまで施設内における作業による個人放射線被曝線量を軽減するために施設放射線安全管理小委員会および理学部安全管理室によって種々の対策が講じられてきた。各種周辺モニター関係の整備、および安全管理業務の強化など、一応最小限の安全管理のための体制を整えることが出来た。しかし従来各実験者の被曝の実態については各実験者の責任にまかされており実験グループによっては比較的放射線被曝線量の多い場合があった。そこで今回は理学部安全管理室の協力を得て実験者の作業による被曝線量軽減のための具体的方策を検討した。まずはじめに本施設でRIの製造および調製実験で被曝の機会の比較的多いRI実験グループについて実態調査を行い、それに対する種々の対策を講じた。

### § 1. 実験

まずRI照射台付近で実験者が受ける被曝線量を評価するため照射終了後一定時間経過後、所定の位置における空間線量率を測定した。

#### 1. 1 照射条件

第1図に示すように2mm厚のPtコンバーターを内蔵するステンレス製ボート型照射装置に60 MeVに加速した電子ビームを1時間照射した。平均電流値は通常時のおよそ1/2であるが、データ解析の際は全て通常時(平均電流 $\sim 200 \mu\text{A}$ )に規格化し図に表した。照射終了後直ちに第1実験室に立入り、第1図に示すような所定の位置にフィルムバッジをつけた棒を置き、フィルムバッジを照射終了から一定時間後、一定時間(30秒あるいは1分)被曝させた。



第1図 ボート型照射装置及びフィルムバッジの配置図

#### 1. 2 フィルムバッジ

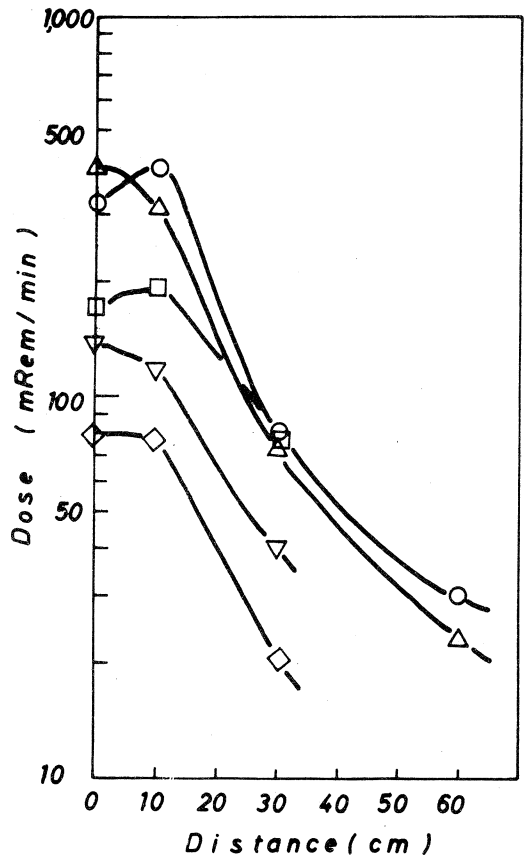
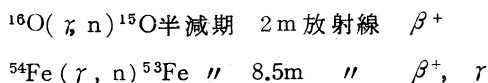
日本保安用品K.K.から取り寄せた広範囲用



フィルムパッチ (乳剤No 23002) をパッチケースに入れて用いた。用いたフィルムパッチによって測定できるエネルギーおよび線量範囲は0.12 ~ 3MeV のX,  $\gamma$ 線に対しては 10mR ~ 200R, 1.3MeVの $\beta$ 線に対しては 10mR ~ 6Rである。なお精度は 10%以下とされている, しかしこれらの値はそれぞれ $\beta$ 線およびX,  $\gamma$ 線のpure線源に対してのものであり, 両者が共存する場合の上記フィルムパッチの測定可能なエネルギー範囲は狭くなり, また線量の精度も落ちる。

## § 2. 結果

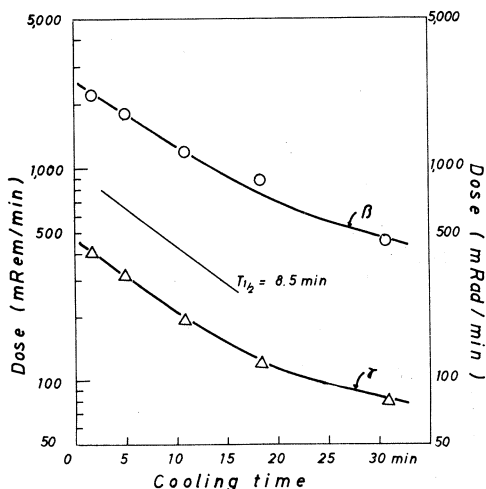
照射台からの距離とフィルムパッチの置かれた位置での空間線量率と各経過時間の関係を $\gamma$ 線について第3図に示した。X線はいずれの場合も検出限界以下であった。図から明らかなように $\beta$ ,  $\gamma$ 線ともに照射台真上よりも真横の方が高い空間線量率を示している。特に $\beta$ 線の場合10分以上経過後では装置真上における線量率より真横における線量率が2倍も大きいことが分る。照射台からの距離( $r$ )と線量率( $R$ )の間にはほぼ $R \propto 1/r^2$ の関係が成立するはずであるが本実験の場合は照射装置自体が点線源とは言えず, かつすぐ近くにあるswee magnetなどからの放射線の影響もあるためと考えられる。 $\beta$ 線と $\gamma$ 線の空間線量率の比は $\text{Rad} \approx \text{Rem}$ と近似し2.5:1 ~ 6.3:1となりかなりバラつきがありこの比について論ずることは不確定要素が多すぎるが, 一応の目安として $\beta$ 線は $\gamma$ 線の約5倍の空間線量があると考えられる。また放射線の空間線量率の減衰を照射装置から10cmの位置で測定した結果を第4図に示した。その半減期はほぼ8.5分であった。本実験で考えられる短寿命放射性核種としては



第2図 照射装置からの距離と空間線量率との関係 ( $\gamma$ 線)

- : cooling time, 2min
- △ : " 5 "
- : " 11 "
- ▽ : " 18 "
- ◇ : " 31 "

$^{14}\text{N}(\gamma, n)^{13}\text{N}$  半減期 10m 放射線  $\beta^+$  が考えられる。ここで $^{15}\text{O}$ は冷却水,  $^{53}\text{Fe}$ はステンレス製装置,  $^{13}\text{N}$ は空気より生成される。冷却水はrunning waterであることとまた空気からの $^{13}\text{N}$ の生成が少ないことなどから、被曝の主要源としては $^{53}\text{Fe}$ が考えられ、これは第4図で半減期が8.5分であることよく一致している。



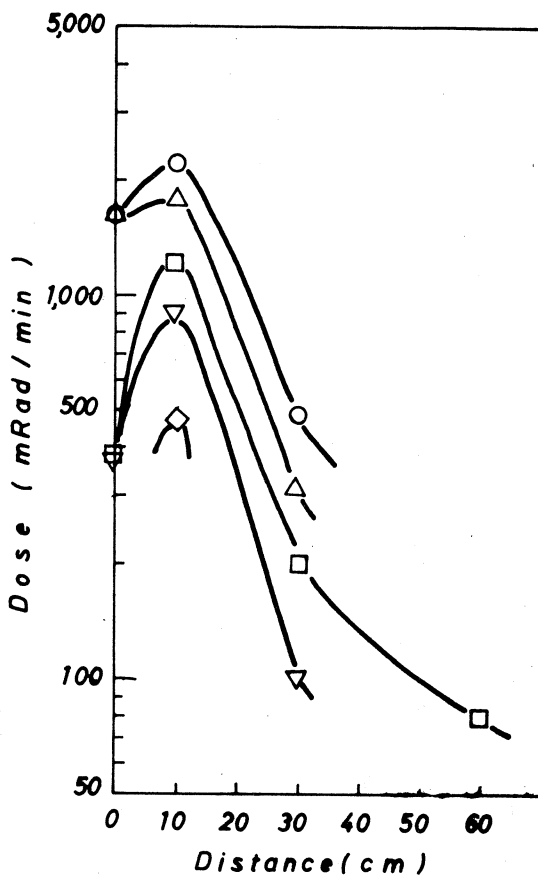
第4図 空間線量率の経時変化

### § 3. 結果の考察, 装置の改良

以上の結果から分るように本照射装置を用いた場合、安全側に見積って人体(先手)被曝線量は通常の冷却期間 20分, サンプル取出し 10秒として,  $\beta$ 線~ 60mRad, X,  $\gamma$ 線~ 20 m Remである。一方約 50 cm離れた胸部における被曝は検出限界以下であったが数mRem程度と考えられる。

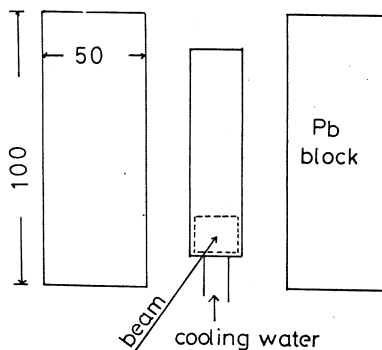
以上のことから手、指先による被曝量が比較的大きく、回数多くサンプルの取出しを行う実験者にとっては大きな問題となりうる。

そこで上記結果をふまえてとくに実験者の手先



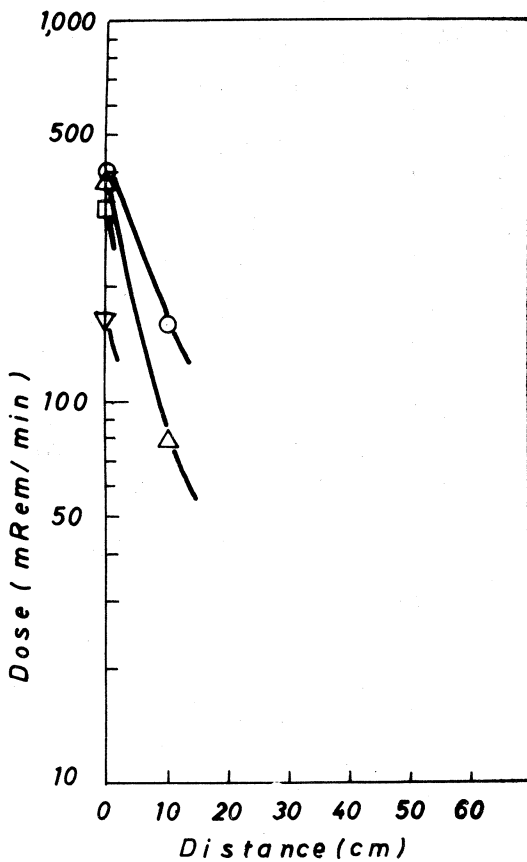
第3図 照射装置からの距離と空間線量率との関係 ( $\beta$ 線)

- : Cooling time 2
- △ : " 5
- : " 11
- ▽ : " 18
- ◇ : " 31



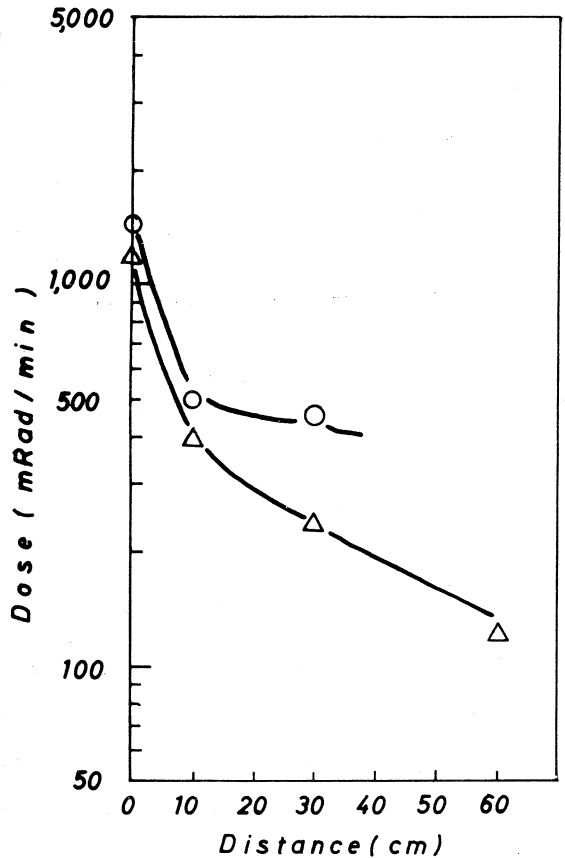
第5図 改良型照射装置の概略図 (図中の数字の単位はmm)

における被曝を出来るだけ軽減するため上記照射装置の改良を試みた。まず先に述べたように照射装置横方向の $\beta$ 線による放射線強度がとくに強いことからこれを遮蔽することを主眼とし改良を試みた。第5図に改良型照射装置の概略を示した。装置は台に固定された2ヶの鉛ブロック(5×10×20cm)で両側から遮蔽され、サンプル取出し口から、サンプルは見えるが装置自体は直視できないよう改良した。またサンプル取出し口に厚さ1cmの透明アクリル板を置き、頭部への $\beta$ 線被曝を防いだ。先にのべた照射条件で同様の実験を行い、被曝線量軽減にどの程度効果があったか検討した。結果を $\gamma$ 線について第6図に $\beta$ 線について第7図に示した。



第6図 改良型照射装置から距離と空間線量率との関係 ( $\gamma$ 線)

- : Cooling time 3min
- △ : " 7 "
- : " 12 "
- ▽ : " 22 "



第7図 改良型照射装置からの距離と空間線量率との関係 ( $\beta$ 線)

- : Cooling time 3min
- △ : " 7 "

$\beta$ 線について見れば装置横方向10cmで10分後~1000 mRad/minであったのに対して~200 mRadに、また、 $\gamma$ 線はで~200 mRem/minであったのが~50 mRem/minと大幅に空間線量率を減少することが出来た。

本装置を用い通常のサンプル取出しを行った場合（20分冷却，15cmの位置（ピンセット使用））手先の受ける被曝は $\beta$ 線について $\sim 10\text{mRad}$ ， $\gamma$ 線について数 $\text{mRad}$ 程度となり，本改良型装置は被曝線量の軽減に大きな効果があることが判明した。以上理学部安全管理室の協力のもとに種々検討してきたが次回は照射したRIの取扱い方法およびマシン回収工事の際の被曝線量軽減のための検討を計画している。



核 理 研 究 報 告 第 9 卷 第 1 号

昭和51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 山忠モノ・オフセット

仙台市日の出町2-5-14

TEL (95) 3211 (代)

Research Report of Laboratory of Nuclear Science

Tohoku University Vol. 9 No. 1 June 1976

Laboratory of Nuclear Science,

Tohoku University

1, Kanayama, Tomizawa, Sendai, Japan