

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 究 報 告

VOL. 9 No. 2 Dec. 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.2 目次

I 原子核物理部門

- I-1 電子散乱による ^{23}Na の低励起準位の研究(II)..... 219
 (核理研) 岡崎 行男
- I-2 $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)$ 反応による核構造の研究(III)..... 226
 (核理研) 大橋 英雄, 山崎 正晴, 中原 和夫, 庄田 勝房
- I-3 $^{16}\text{O}(\gamma, \pi^+)^{16}\text{N}$ 反応 230
 (ソウル大,* 核理研)
 成 百能,* 山崎 正晴, 大橋 英雄, 中原 和夫,
 庄田 勝房

II 物性物理部門

- II-1 T-O-F Pulsed Neutron Diffraction of Molten Bismuthtrihalides. 235
 (金研) 福嶋 喜章, 鈴木 謙爾
- II-2 パルス中性子による反強誘電体蟻酸銅四水和物の研究(II)..... 241
 (名工大, 核理研*)
 岡田 健吉, 鈴木 昱雄, 杉江 紘, 新村 信雄*
- II-3 Pr Ni_2 の中性子散乱..... 248
 (理学部物理)
 森 宏, 大塚泰一郎, 神木 正史, 遠藤 康夫

III 放射化学部門

- III-1 コバルトテトラフェニルポルフィン錯体における自発核壊変に伴う
 化学的效果..... 253
 (東京教育大理学部)
 池田 長生, 荘司 準, 酒井 陽一, 中島 茂
- III-2 $^{71}\text{Ga}(\gamma, pn)$ 反応による無担体 $^{69\text{m}}\text{Zn}$ の調製..... 263
 (核理研) 八木 益男, 近藤健次郎
- III-3 光核反応断面積の積分評価..... 266
 (高工研, 東大核研,* 京大工学部**)
 平山 英夫, 中村 尚司,* 斎藤 孝次**

III - 4	TOPO液-液分配係数	272
	(選研) 秋葉 健一, 菅野 卓治	
III - 5	光核反応収率の励起エネルギー依存性	277
	-光量子放射化分析の感度と妨害-	
	(理学部化学) 加藤 豊明, 榎本 和義, 鈴木 信男	
III - 6	Impurity Diffusion in Aluminum	291
	(工学部金属材料)	
	藤川辰一郎, 平野 賢一	
III - 7	Al-Mg ₂ Si擬2元素合金での ²⁸ Mgの拡散	297
	(工学部金属材料)	
	藤川辰一郎, 平野 賢一	
III - 8	Mg中の ⁵⁴ Mnの拡散	301
	(工学部金属材料)	
	藤川辰一郎, 村松 俊樹, 平野 賢一	
IV 生物医学部門		
IV - 1	¹⁶⁷ Tmによる悪性腫瘍親和性の研究	307
	-動物実験を中心として-	
	(金沢大医療短大, 金沢大医学部,* 金沢大理学部**)	
	安東 醇, 坂本 浩,** 安東 逸子,* 中園 薫,**	
	竹下 正純, 平木辰之助, 久田 欣一*	
V 加速器・測定器部門		
V - 1	エネルギー幅圧縮装置の電磁石系	313
	(核理研) 菅原 真澄, 寺沢 辰生	
V - 2	多線比例計数管(MWPC)	321
	(核理研) 玉江 忠明, 窪田 健雄, 浦野 隆夫, 菅原 真澄	
V - 3	BDM用粒子検出系の改良	330
	(核理研) 浦野 隆夫, 菅原 真澄, 窪田 健雄, 庄田 勝房	

VI 加速器稼働状況

VI-1 昭和51年度前期マシン報告 337

(核理研マシングループ)

浦澤 茂一, 今野 収, 一戸 隆, 栗原 亮,

根本 重伸, 柴崎 義信

VII 論文リスト 339

I. 原子核物理部門

I - 1 電子散乱による ^{23}Na の低励起準位の研究(II)

核理研 岡崎行男

前回の報告¹⁾に引き続き、今回は、入射電子エネルギー $E_0 = 250 \text{ MeV}$ の実験データ 8 点を加えた現象論的な解析について報告する。形状因子の縦成分と横成分を分離する実験も行ったが、解析が十分に終わっていないので、これについての報告は次回にまわす。

§ 1. 実 験

標的として、厚さ 40.3 mg/cm^2 の天然の金属ナトリウムを用いた。標的は前号で報告した方法により作成した。金属ナトリウムの酸化により入ってくる ^{16}O の量は、散乱電子エネルギースペクトルの ^{16}O の弾性散乱ピークから推定し、次のような値である。

$$6.10 \pm 0.40 \text{ mg/cm}^2 \quad (\text{8月13日実験})$$

$$12.81 \pm 0.67 \text{ mg/cm}^2 \quad (\text{8月17日実験})$$

入射電子エネルギー $E_0 = 250 \text{ MeV}$ 散乱角 $50^\circ, 55^\circ, 60^\circ, 65^\circ, 70^\circ, 75^\circ, 80^\circ, 90^\circ$ の 8 点で散乱電子エネルギースペクトルを分解能約 0.1% で測定した。電子線の平均電流は約 $2 \mu\text{A}$ (エネルギー幅圧縮装置作動) で、線量モニターとして二次電子モニターを使用した。

以前に得られた形状因子の測定値に、今回新たに得られた測定値を付け加えて、前回と同様に Helm の現象論的模型による解析を行い基底状態 J_i から励起状態 J_f への換算転移確率 $B(E\lambda: J_i \rightarrow J_f)$ を求めた。又、基底状態への r 線転移確率についても、他の r 線崩壊等の実験値²⁻⁴⁾ と比較し、第 1 表に掲げる。ここで用いた Helm 模型のパラメーター R , g は、 $2.08 \text{ MeV } 7/2^+$ 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決めた ($R = 3.04 \text{ fm}$, $g = 0.98 \text{ fm}$)。なお、この段階では、形状因子の横成分は無視して解析を行ったが、横成分を分離した純粹の縦成分のデータによる解析の結果では、E 4 転移強度は第 1 表に示した値より幾分小さくなると思われる。

第1表 実験で得られた形状因子から求めた換算転移確率〔 $e^2 \text{fm}^{2\lambda}$ 〕および基底状態への
 r 線転移確率〔Weisskopf unit〕。用いたHelm 模型のパラメーターは $R=3.04 \text{ fm}$,
 $g=0.98 \text{ fm}$ 。 a) 文献2 b) 文献3 c) 文献4 d) 文献3, 5

E_x 〔MeV〕	$J_f^{d)}$	転移 $E\lambda$	$B(E\lambda: J_i \rightarrow J_f)$ 〔 $e^2 \text{fm}^{2\lambda}$ 〕	$B(E\lambda: J_f \rightarrow J_i)$ 〔W. u.〕	
				実 験 値	他の実験値
0.44	$5/2^+$	E 2	125 ± 19	21.4 ± 3.3	$18.4 \pm 3.9^a)$ $20 \pm 3^b)$ $23.2 \pm 2.6^c)$
		E 4	$< 13.2 \times 10^2$	< 3.27	
2.08	$7/2^+$	E 2	66.3 ± 7.3	8.53 ± 0.94	$13 \pm 2^b)$
		E 4	$(17.6 \pm 3.3) \times 10^2$	3.27 ± 0.61	
2.70	$9/2^+$	E 4	$(40.3 \pm 20.4) \times 10^2$	6.00 ± 3.04	
2.98	$3/2^+$	E 2	6.43 ± 0.88	1.65 ± 0.23	$0.9 \pm 0.3^c)$
3.68	$3/2^-$	E 2	2.56 ± 1.81	0.44 ± 0.31	$0.91 \pm 0.29^b)$
3.85	$5/2^-$	E 3	< 74.5	—	
3.91	$5/2^+$	E 4	$(80.3 \pm 46.6) \times 10^2$	19.9 ± 11.5	
4.78	$7/2^+$	E 2	< 0.25	< 0.032	
		E 4	$(52.4 \pm 24.9) \times 10^2$	9.74 ± 4.63	
5.38	$(5/2)^+$	E 2	3.59 ± 0.43	0.62 ± 0.07	
		E 4	$(12.7 \pm 5.3) \times 10^2$	3.15 ± 1.32	
5.54	$(11/2^+)$	E 2	5.96 ± 0.63	—	
5.74	$(3/2-5/2)^+$	E 4	$(20.3 \pm 9.1) \times 10^2$	—	
5.97	$(3/2)^-$	E 3	187 ± 51	5.95 ± 1.62	

§ 2. 結 果

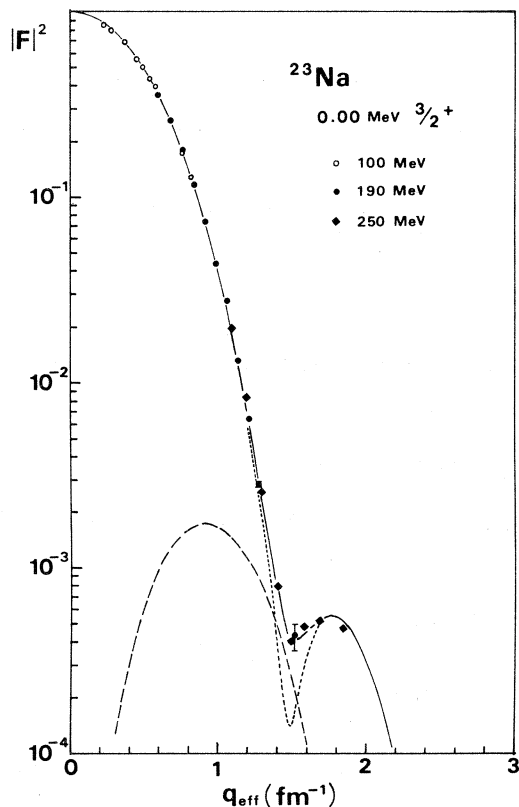
^{23}Na 回転準位の分類は文献5に従った。以下、この分類に従って話を進める。

(1) 基底回転帯 ($K^\pi = 3/2^+$)

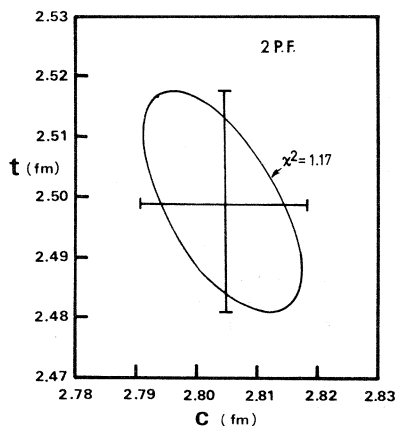
弾性散乱形状因子を第1図に示す。 ^{23}Na の基底状態は $J^\pi = 3/2^+$ であるので、弾性散乱に

はC 0以外にM 1, C 2, M 3の寄与がある。しかし、前方散乱が主であるのでM 1, M 3は、C 0, C 2に較べて十分小さいので無視する。

第1図の点線はC 0成分で、C 2成分が比較的小さいと考えられる $E_0 = 100$ MeV ($25^\circ, 30^\circ, 40^\circ, 50^\circ, 55^\circ, 65^\circ, 90^\circ, 100^\circ$), 190 MeV (35° から 65° まで 5° おき6点) および250 MeV ($80^\circ, 90^\circ$)の計17点のデータを用いた部分波解析法による最適曲線である。この時の核の電荷分布としては、2パラメーターフェルミ型を仮定した。第2図に χ^2 図を示す。その結果と、近傍核 ^{22}Ne ⁶⁾, ^{24}Mg ⁷⁾の結果を比較のため第2表にのせた。これによると c の値は ^{22}Ne と ^{24}Mg の中間の値であるが、 t の値は ^{22}Ne , ^{24}Mg に較べて大きい。基底状態のC 2成分の大きさは、C 0成分の残りから、C 2の q 依存性に前に述べたHelm模型($R = 3.04$ fm, $g = 0.98$ fm)の q 依存性を仮定して推定した(第1図の破線)。



第1図 ^{23}Na の弾性散乱形状因子。点線は部分波解析によるC 0成分である。 ^{23}Na の電荷分布としては2パラメーターフェルミ型を採用した($c=2.805$ fm, $t=2.500$ fm)。又、破線は、C 0の残りの部分から推定したC 2成分である。実線はC 0およびC 2の和である。



第2図 弾性散乱の2パラメーターフェルミ型電荷分布による部分波解析の際の χ^2 図である。実線で囲んだ曲線は、パラメーターのとり誤差の範囲を表わす。

第2表 弾性散乱の部分波解析による²³Na基底状態の電荷分布(2パラメーターフェルミ型を仮定)。比較のため²²Ne, ²⁴Mgの電荷分布も掲げる。

a) 文献6 b) 文献7

	²³ Na	²² Ne ^{a)}	²⁴ Mg ^{b)}
c [fm]	2.805 ± 0.015	2.782 ± 0.012	2.981 ± 0.024
t [fm]	2.500 ± 0.020	2.412 ± 0.018	2.296 ± 0.061

第3図には, 0.44 MeV $5/2^+$ 準位と2.08 MeV $7/2^+$ 準位の形状因子を示す。

又, 第4図には, 2.70 MeV $9/2^+$ 準位, 5.54 MeV ($11/2^+$)準位の形状因子を示す。
5.54 MeV ($11/2^+$)準位は, 5.74 MeV ($3/2^- - 5/2^-$)準位と分離できなかったためいっしょに示したので, 後者からのC2の寄与が見られる。

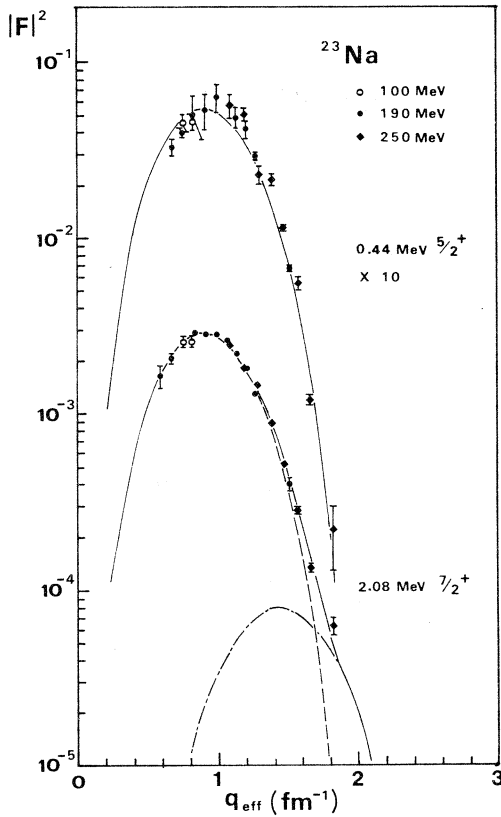
単純な回転模型によると, 回転帯 K に属する準位の形状因子 $|F(q, C2; J_i K \rightarrow J_f K)|^2$ と固有四重極能率 Q_0 の間に(1)式の関係がある。

$$Q_0^2 = \frac{180 Z^2}{(J_i 2K0 | J_f K)^2} \lim_{q \rightarrow 0} \frac{1}{q^4} |F(q, C2; J_i K \rightarrow J_f K)|^2 \quad (1)$$

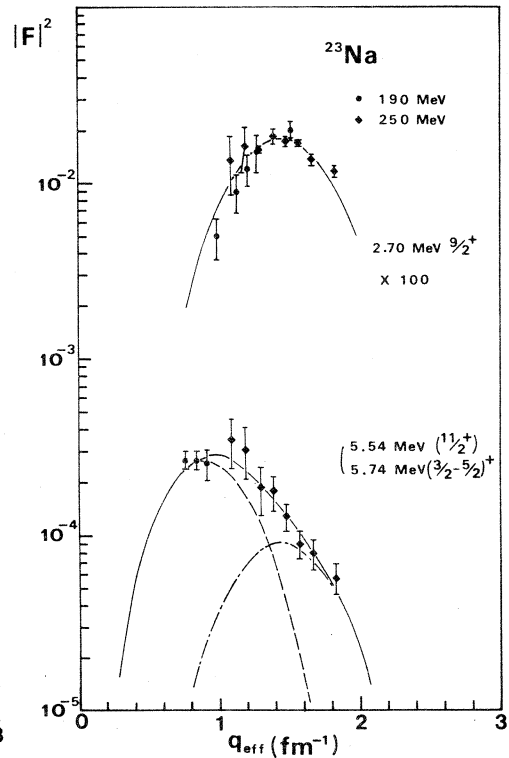
(1)式を用い基底回転帯0.00 MeV $3/2^+$, 0.44 MeV $5/2^+$, 2.08 MeV $7/2^+$ 準位に対して $|Q_0|$ を求めると第3表のようほぼ同じ値になり回転模型が良く合うことを示している。因みに近傍偶核の $|Q_0|$ は, ²²Neで $51.1 \pm 0.2 \text{ efm}^2$,⁶⁾ ²⁴Mgで $57.3 \pm 3.1 \text{ efm}^2$ ⁷⁾であり, ²³Naの固有四重極能率は²²Neに近いことがわかる。

第3表 基底回転帯($K^\pi = 3/2^+$)に属する0.00 MeV $3/2^+$, 0.44 MeV $5/2^+$ および2.08 MeV $7/2^+$ 準位の形状因子のC2成分から(1)式を用いて求めた, 固有四重極能率 $|Q_0|$ [efm^2]の値。

E_x [MeV]	J^π	$ Q_0 $ [efm^2]
0.00	$3/2^+$	44.4 ± 3.0
0.44	$5/2^+$	49.4 ± 4.0
2.08	$7/2^+$	48.3 ± 2.8



第3図 0.44 MeV $5/2^+$ および 2.08 MeV $7/2^+$ 準位の形状因子。実線は、第1表の r 線転移確率を求める際の C 2 (破線), C 4 (一点鎖線) 形状因子の和である。



第4図 2.70 MeV $9/2^+$ 準位および 5.54 MeV ($11/2^+$) 準位の形状因子。5.54 MeV 準位は 5.74 MeV 準位と分離不可能のためいっしょに表わしてある。実線、破線、一点鎖線の説明は第3図の説明に同じ。

(2) $K^\pi = 1/2^+$ 回転帯

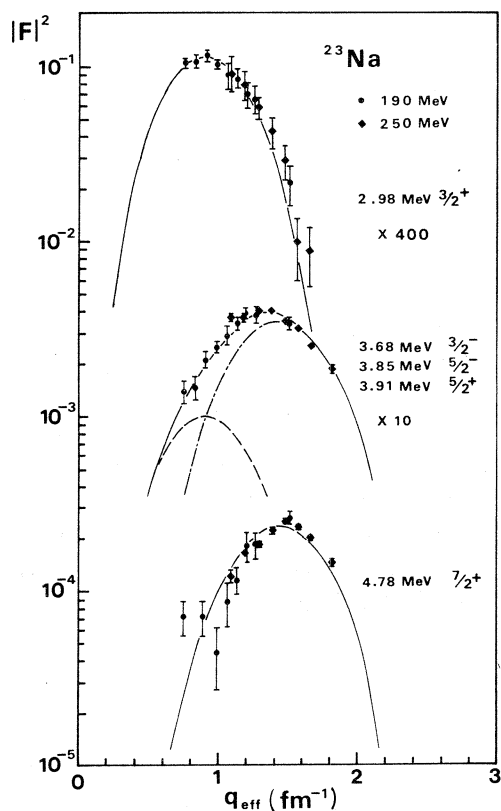
2.39 MeV $1/2^+$ 準位から始まる $K^\pi = 1/2^+$ 回転帯に属する準位の形状因子を第5図に示す。2.39 MeV $1/2^+$ 準位は、弱くて観測されなかった。3.91 MeV $5/2^+$ 準位は、3.68 MeV $3/2^-$ 、3.85 MeV $5/2^-$ 準位と分離が困難であるので、いっしょにしてあるが、スペクトルのピーク位置の移動から、3.68 MeV $3/2^-$ 、3.85 MeV $5/2^-$ 準位による C 3 の寄与は、かなり大きいように思われる。

(3) その他の準位

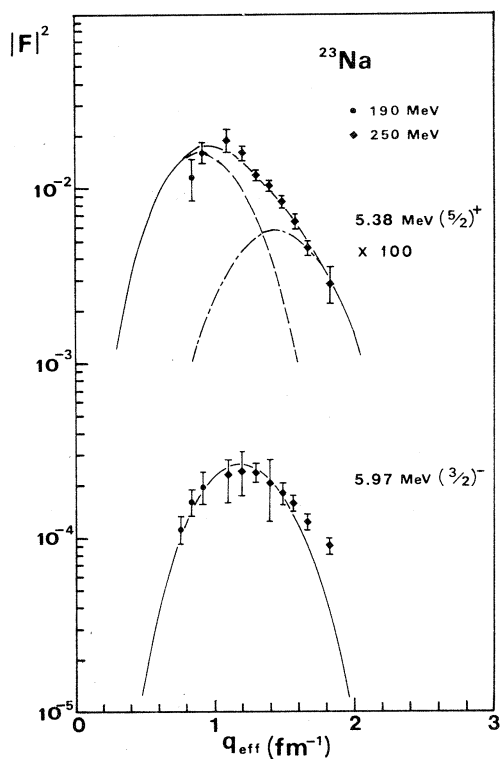
第 6 図に 5.38 MeV ($5/2$)⁺ 準位と 5.97 MeV ($3/2$)⁻ 準位の形状因子を示す。

5.38 MeV 準位のスピンのパリティは文献 3 によると ($3/2$, $5/2$)⁺ となっているが、形状因子に C 4 成分の寄与が見られることから $5/2$ ⁺ と考えられる。

同様に、5.97 MeV 準位のスピンのパリティは ($1/2$, $3/2$)⁻ となっているが、形状因子が C 3 の q 依存性を示すことから $3/2$ ⁻ と同定するのが適当と思われる。



第 5 図 $K^\pi=1/2^+$ 回転帯に属する 2.98 MeV $3/2^+$, 3.91 MeV $5/2^+$ および 4.78 MeV $7/2^+$ 準位の形状因子。3.91 MeV 準位は、3.68 MeV $3/2^-$, 3.85 MeV $5/2^-$ 準位と一っしょにした形状因子である。図中の実線、破線、一点鎖線の説明は第 3 図に同じ。



第 6 図 5.38 MeV ($5/2$)⁺ 準位および 5.97 MeV ($3/2$)⁻ 準位の形状因子。5.38 MeV 準位の実線、破線、一点鎖線の説明は第 3 図に同じ。5.97 MeV 準位に対しては C 3 成分だけである。

参 考 文 献

- 1) 核理研究報告 **9** (1976) 1.
- 2) G. A. Savitskii *et al.* : Izv. Akad. Nauk (ser. fiz.) **33** (1969) 60.
- 3) P. M. Endt and van der Leun : Nucl. Phys. **A 214** (1973) ; Atomic Data and Nuclear Data Tables **13** (1974) 67.
- 4) S. J. Skorka, J. Hertel and T. W. Retz-Schmidt : Nucl. Data **A2** (1966) 347.
- 5) R. A. Lindgren *et al.* : Nucl. Phys. **A180** (1972) 1.
- 6) R. P. Singhal, H. S. Caplan, J. R. Moreira and T. E. Drake : Can. J. Phys. **51** (1973) 2125.
- 7) A. Nakada and Y. Torizuka : J. Phys. Soc. Japan **32** (1972) 1.

I-2 $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)$ 反応による核構造の研究(III)

核理研 大橋英雄・山崎正晴
 中原和夫・庄田勝房

今期で $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{12}\text{B}$ 反応に関する実験が終了したのでその結果について報告する。エネルギー幅圧縮装置の完成によりビーム強度が以前の約10倍に増加したため、前期までの $\theta = 30^\circ, 60^\circ, 90^\circ$ に加えて新たに $30^\circ, 40^\circ, 50^\circ, 60^\circ, 70^\circ, 80^\circ, 90^\circ, 110^\circ, 130^\circ, 150^\circ$ の10点で $(e, e'\pi^+)$ 反応断面積の角度分布を測定し、それから以下に述べる方法で (γ, π^+) 反応断面積を求めて Helm 模型による計算値と比較した。実験方法および記号については参考文献1を参照されたい。

$(e, e'\pi^+)$ 反応のスペクトルから (γ, π^+) 反応の断面積を求めるために次の関係式を用いる(残留単位は1本だけとする)

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

次に我々が測定した領域は π^+ の最高エネルギーから 3 MeV 程度なので、 (γ, π^+) 反応の断面積はほぼ一定であると仮定して積分の外に出すと

$$\int dT \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} \right)_{(e, e'\pi^+)} \approx \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{(\gamma, \pi^+)} \int dk N_{h\nu}(E_e, k) \quad (2)$$

結局

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{(\gamma, \pi^+)} \approx \int dT \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} \right)_{(e, e'\pi^+)} \Bigg/ \int dk N_{h\nu}(E_e, k) \quad (3)$$

という関係式が得られる。

次に、スペクトロメーターの検出器の i チャンネルの π^+ の計数を $N_\pi^{(i)}$ とすると、

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} \right)_{(e, e'\pi^+)}^{(i)} = \frac{\alpha_i N_\pi^{(i)} / \eta_i}{\Delta\Omega \Delta E_i N_e N_N} \quad (4)$$

だから積分を和に置き換えると

$$\int dT \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} \right)_{(e, e'\pi^+)} = \sum_i \frac{\alpha_i N_\pi^{(i)} / \eta_i}{\Delta\Omega \Delta E_i N_e N_N} \Delta T_i \quad (5)$$

となる。ここに α は π^+ が寿命を持つことによる補正係数、 $\Delta\Omega$ は二重収束電磁スペクトロメー

ター (LDM) の立体角, N_e は入射電子数, N_N はビーム入射方向から見た 1 cm^2 あたりの標的中の原子核数, η は π^+ 検出器 (SSD) の効率, T は π^+ の運動エネルギーである。

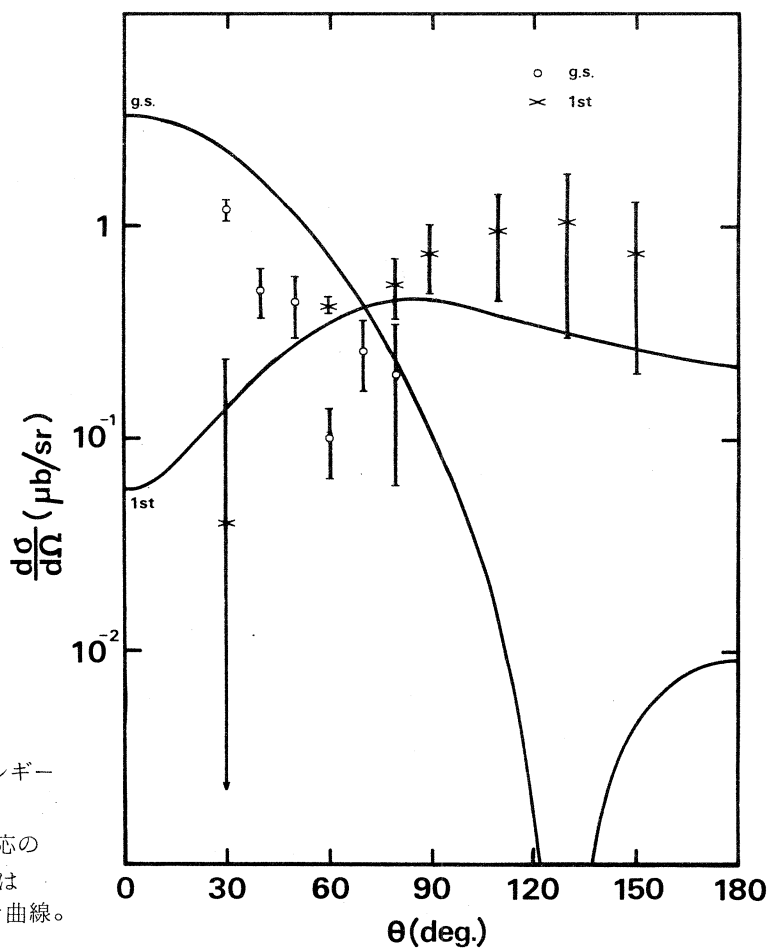
η は次のようにして求めた。SSDの幾何学的な配列による系統的なずれは電子散乱のデータを用いて補正した。さらに入射電子エネルギー 250 MeV で π^+ のエネルギーが約 50 MeV (π^+ の最高エネルギーは約 100 MeV) の π^+ のスペクトルを測定し, このスペクトルに上述の系統的なずれの補正をおこなったものを T_e の一次式で近似してチャンネル補正をおこなった。

SSDはLDMの焦点面上に 4 mm 間隔で並べられており, SSDの幅は 2 mm^2 であるから, (5)式における ΔE_i と ΔT_i との関係として

$$\Delta T_i = 2\Delta E_i \quad (6)$$

が得られる。

このようにして求めた $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{12}\text{B}$ 反応の断面積を第 1 図および第 1 表に示す。



第 1 図 入射電子エネルギー 195 MeV における $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{12}\text{B}$ 反応の断面積, 図中の計算は Helm 模型による理論曲線。

ただし実験条件は入射電子エネルギー $E_e = 195 \text{ MeV}$, ビームのエネルギー幅 0.2%, 標的のグラファイトの厚さは 184 mg/cm^2 である。

第1表 $\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{(r, \pi^+)}$ の実験値

Level No	1	2	
E_x in ^{12}B (MeV)	0	0.95	
J^π (Transition)	1^+ (M1)	2^+ (E2)	
$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{(r, \pi^+)}$ ($\mu\text{b/sr}$)	θ (deg.)		
	30	1.18 ± 0.13	0.04 ± 0.2
	40	0.50 ± 0.13	—
	50	0.44 ± 0.14	—
	60	0.10 ± 0.04	0.43 ± 0.04
	70	0.27 ± 0.10	—
	80	0.24 ± 0.17	0.53 ± 0.19
	90	—	0.74 ± 0.27
	110	—	0.94 ± 0.49
130	—	1.04 ± 0.73	
150	—	0.75 ± 0.54	

第1図からわかるように、基底状態の断面積は相互作用ハミルトニアンとしてCGLN振幅³⁾の第一項のみを考慮して、アイソスピンを良い量子数であると仮定して (r, π^+) 反応の行列要素を電子散乱の行列要素と関係づけ、⁴⁾ 電子散乱実験で得られた形状因子に Helm 模型⁵⁾ による曲線をフィットさせることによって得られたパラメーターを用いた近似計算の結果ではほぼ説明できるが、絶対値は理論値よりも約4割小さい。このことは反応機構の違いのためと解釈できるが、詳しいことは近似の改良をまたねばならない。

第一励起状態 ($E_x = 0.95 \text{ MeV}$) の断面積は前方においては理論値よりも小さく、後方では大きくなっており、これまでのような近似計算では結果を良く説明できないため、さらに近似を改良した計算をおこなう必要がある。

以上3期にわたって $^{12}\text{C}(e, e' \pi^+)^{12}\text{B}$ 反応の実験結果について報告してきたが、この実験はこれまでおこなわれてきた^{6,7)} 残留核から放出される β 線を測定することによって全断面積を求めるのではなく、反応の結果放出された π^+ を電磁スペクトロメーターで運動量分析し、残

留核の各準位にフィードする π^+ を分離測定してその微分断面積を求めたものであり、核構造および反応機構に関するより有効な情報が得られる。

参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 **8** (1975) 256.
- 2) M. Kimura *et al.* : Nucl. Instr. **95** (1971) 403.
- 3) G. F. Chew, M. L. Goldberger, F. E. Low and Y. Nambu : Phys. Rev. **106** (1957) 1345.
- 4) F. Cannata, B. A. Lamers, C. W. Lucas, A. Nagl, H. Überall and C. Werntz : Can. J. Phys. **52** (1974) 1405.
- 5) R. H. Helm : Phys. Rev. **104** (1956) 1466.
- 6) V. D. Epaneshnikov, V. M. Kuznetsov and O. I. Stukov : Sov. J. Nucl. Phys. **19** (1974) 242.
- 7) A. M. Bernstein, N. Paras, W. Turchinez, B. Chasan and E. C. Booth : Phys. Rev. Lett. **37** (1976) 819.

I - 3 $^{16}\text{O}(\gamma, \pi^+)^{16}\text{N}$ 反応

ソウル大*, 核理研

成 百能*・山崎正晴・大橋英雄

中原和夫・庄田勝房

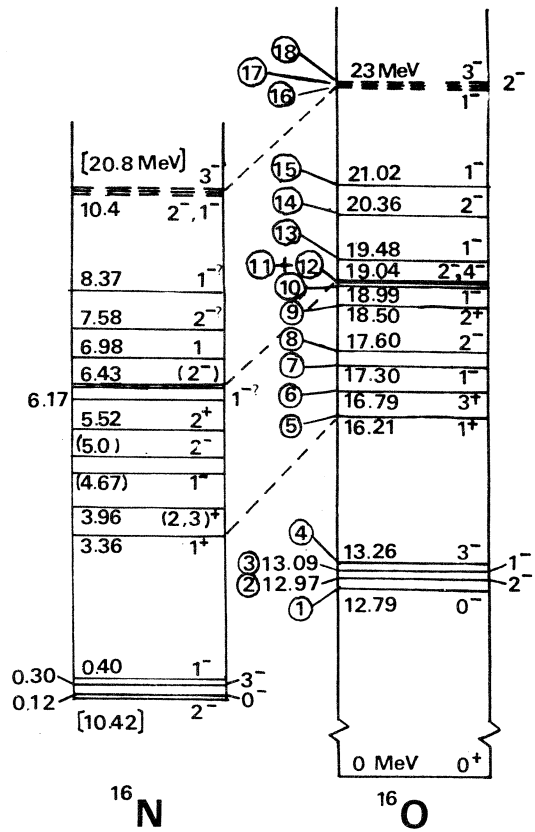
$^{16}\text{O}(e, e' \pi^+)$ 反応の角度分布を入射電子エネルギー $E_e = 180 \text{ MeV}$ および 200 MeV で測定した。得られた結果から仮想光子数の計算により $^{16}\text{O}(\gamma, \pi^+)$ 反応の微分断面積を求めて、一般化Helm模型を用いた理論値との比較を行なった。

§ 1. Helm 模型による微分断面積

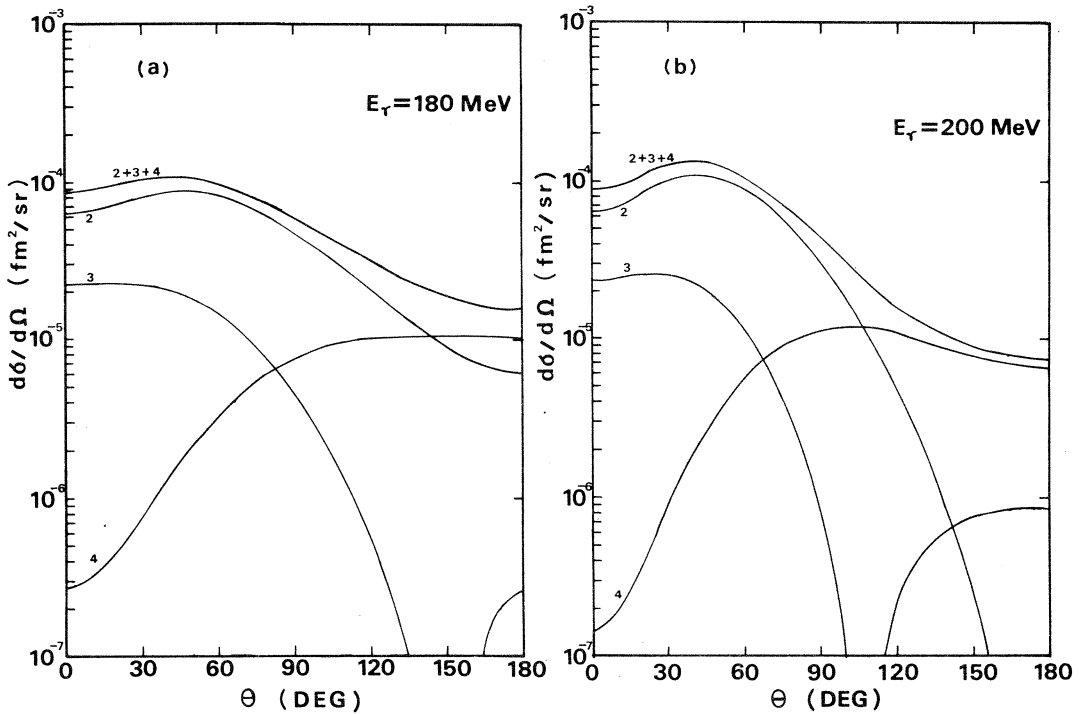
^{12}C などについて、電子散乱実験より得られた形状因子から各準位に対する一般化Helm模型のパラメーターを決定し、それをを用いてそれらの準位 (IAS) の親状態への (γ, π) 反応や (π, γ) 反応による転移の微分断面積を計算することが行なわれている。¹⁾ これらの計算では、しきいエネルギーよりあまり高くない適当な入射光子 (あるいは π 中間子) エネルギーでは、平面波ボルン近似が有効で、相互作用ハミルトニアンは Kroll - Ruderman 項のみで表わされるとし、インパルス近似による計算が行なわれている。Graves ら²⁾ は、 ^{16}O について同様の手続きによって (γ, π) 反応の微分断面積を計算した。第 1 図に示す ^{16}O の $T = 1$ 準位に対して決定した一般化Helm模型のパラメーターを第 1 表に示す。

これらのパラメーターの値から求められた ^{16}N の No. 2 - 4 の準位へフィードする $^{16}\text{O}(\gamma, \pi^+)$ 反応の微分断面積を $E_\gamma = 180 \text{ MeV}$ および 200 MeV について第 2 図に示す。

第1図 ^{16}O および ^{16}N 中の $T=1$ 準位。
円内の数字は各準位の番号(第1表参照)。



第2図 一般化Helm模型より計算した $E_r = 180\text{ MeV}$ (a)および 200 MeV (b)における微分断面積。図中の数字は残留核の準位の番号。



第1表 ^{16}O の $T=1$ 準位に対する一般化Helm模型パラメータ²⁾ No.1の準位の電子による励起は無視できるほど小さい。

Level No.	ω [MeV]	J^π	σL	\bar{g} [fm]	\bar{R} [fm]	r_{LL}	r_{LL-1}	r_{LL+1}
2	12.967	2^-	M2	0.771	2.65	—	-1.243	0.313
3	13.093	1^-	E1	0.782	3.40	0.485	—	—
4	13.258	3^-	E3	0.577	3.36	0.710	—	—
5	16.21	1^+	M1	0.672	3.22	—	0.325	-0.160
6	16.79	3^+	M3	0.942	2.40	—	2.265	-1.940
7	17.30	1^-	E1	0.520	3.39	0.401	—	—
8	17.60	2^-	M2	0.520	2.26	—	0.480	1.090
9	18.50	2^+	E2	0.482	2.22	1.11	—	—
10	18.99	1^-	E1	0.593	2.75	-1.067	—	—
11	19.04	2^-	M2	1.09	3.90	—	1.530	-4.350
12	19.04	4^-	M4	0.723	3.21	—	3.820	1.640
13	19.48	1^-	E1	0.613	2.75	-1.058	—	—
14	20.36	2^-	M2	0.920	2.31	—	-2.50	4.24
15	21.02	1^-	E1	0.920	4.23	0.998	—	—
16	23	1^-	E1	0.824	2.35	0.747	—	—
17	23	2^-	M2	0.928	3.12	—	3.57	2.32
18	23	3^-	E3	0.548	2.60	2.539	—	—

§ 2. 実験および結果

標的にはBeOを用いた。 $^9\text{Be}(r, \pi^+)^9\text{Li}_{(g.s.)}$ 反応で発生する π^+ 中間子の運動エネルギーは $^{16}\text{O}(r, \pi^+)^{16}\text{N}_{(g.s.)}$ 反応でのそれよりも3MeV以上も小さいので、 $^{16}\text{O}(r, \pi^+)$ で残留核の $E_x = 0.40$ MeVの準位にフィードする過程まで十分分離して測定することができる。標的の厚さは、 $\theta = 30^\circ - 110^\circ$ に対しては234 mg/cm²、 $\theta = 130^\circ - 150^\circ$ に対しては65.8 mg/cm²である。測定はII系付属の二重収束型磁気スペクトロメータ(LDM)で行なった。電子ビームのエネルギー幅は0.2%である。詳しい測定方法については文献3を参照されたい。

(r, π^+)反応の微分断面積は次の式で算出した。

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{\sum_i N_i^T \alpha_i / \eta_i}{\Delta\Omega N_N N_e} \right) / \left(\sum_i N_i^T \right)$$

ここに、 N_i^T : LDMの i 番目のチャンネルの π^+ の計数

η_i : LDMの i 番目のチャンネルの π^+ に対する効率

α_i : π^+ が寿命をもつことによる補正係数

N_i^T : LDMの i 番目のチャンネルに対応するエネルギーをもつ仮想光子数

$\Delta\Omega$: LDMののぞむ立体角

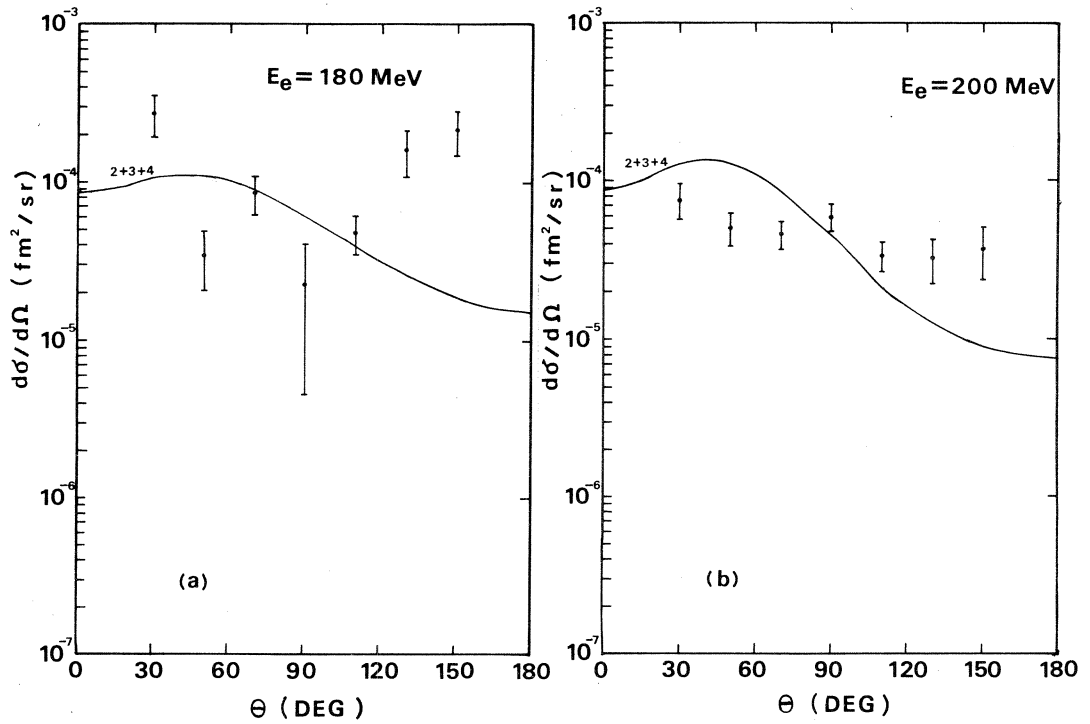
N_N : ビーム方向から見た標的単位面積当りの原子核数

N_e : 入射電子数

である。生の計数からのバックグラウンドの除去は、 π^+ のもつ最大運動量より大きな運動量に対応するLDMのチャンネルにおける計数の平均値を算出し、それを生の計数から差し引くことによって行なった。このようにして得られたバックグラウンドの値は、 $E_e = 200$ MeVでは $\theta = 30^\circ$ で32%、 $\theta = 50^\circ - 150^\circ$ で3.5%以下であるが、 $E_e = 180$ MeVでは50%に及ぶ測定点も含まれる。 π^+ に対する効率 η_i は $E_e = 250$ MeVの $T_\pi = 46$ MeV付近の計数から π^+ スペクトルの形を直線と仮定して算出した。

ビームのもつエネルギー幅、標的中の π^+ のエネルギー損失のひろがりなどによる全分解能は、0.6 MeV程度なのでNo. 2-4の単位(第1図)は分解できずまとめて測定したことになる。仮想光子のスペクトルはE3(M2)転移とE1転移とは異なる³⁾が、その差を無視して N_i^T にはE3(M2)転移のものを用いた。

得られた結果を一般化Helm模型による計算値とともに第3図に示す。両者のオーダーはよく合っているが、 $E_e = 200$ MeVについては計算値は前方では大きすぎ、後方では小さすぎる。 $E_e = 180$ MeVについても同様の傾向が見られるようだが、統計が悪いためはっきりしたことはわからない。今後ともこの実験を続けてより高い精度の測定を行なう必要がある。特にバックグラウンドの軽減をはかり、統計を上げることが重要であろう。



第3図 $E_e = 180 \text{ MeV}$ (a) および 200 MeV (b) における実験値と理論値との比較。理論値の方は $E_\gamma = 180 \text{ MeV}$ および 200 MeV のものを示してある。

参 考 文 献

- 1) F. Cannata, B. A. Lamers, C. W. Lucas, A. Nagl, H. Überall and C. Werntz :
Can. J. Phys. **52** (1974) 1405.
- 2) R. D. Graves, B. A. Lamers, A. Nagl and H. Überall : preprint.
- 3) 核理研研究報告 **8** (1975) 256.

II. 物 性 物 理 部 門

II-1 T-O-F Pulsed Neutron Diffraction of Molten Bismuthtrihalides

Y. Fukushima and K. Suzuki

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

§ 1. Introduction

The structure of molten salts is mainly controlled by the coulomb force between constituent ionic species. A typical molten salt like NaCl has the ionic character of nearly 100 % and its structure can be understood by considering only the coulomb interaction. On the other hand, the nature of chemical bonds in more complicated salts like bismuthtrihalides is not only ionic but also covalent and these salts show sometimes strong short-range order in both the intra- and inter-species in the liquid state.

In order to understand fully the structure of multicomponent liquids with complicated chemical bonds, it is essential to obtain partial structure factors between constituent species. As an usual way to obtain the partial structure factors between constituent species. As an usual way to obtain the partial structure factor, the combination of different diffraction experiments, i.e. X-ray, neutron and electron diffraction, and isotope substitution for neutron diffraction have been adopted so far. Instead of the isotope substitution, however, it can be proposed to change constituent elements in a liquid, if the ionic structure is influenced very little by this chemical substitution.

Based on these points of view, pulsed neutron diffraction of molten bismuthtrihalides BiCl_3 , BiBr_3 and BiI_3 was measured by the Time-Of-Flight method using a pulsed neutron source generated by an electron linac. Then, three partial structure factors for

bismuth-bismuth, bismuth-halogen and halogen-halogen were derived from the observed three total structure factors by applying the chemical substitution method.

§ 2. Experiment

Measurements were carried out by using the liquid T-O-F neutron diffractometer installed on the 300 MeV Tohoku University electron linac. The operating condition of the linac is entirely same with that in previous works.¹⁾ Powders of bismuthtrihalides were sealed in vacua in a silica tube with 10 mm inner diameter and 0.2 mm thick wall, after evacuating water from the sample powders at 150°C for more 24 hours. Temperature of the sample was kept by an electric heating furnace at any desired temperatures and the temperature dependences of the structure factor in the liquid state were observed too. The correction of observed intensity with background, silica tube, multiple scattering and so on, and derivation of structure factor from the observed intensity were made following the procedures described in a previous report.²⁾

§ 3. Experimental Results

The experimental results of structure factors $S(Q)$, where $Q=(4\pi/\lambda) \sin \theta$ (2θ : scattering angle and λ : wavelength), are shown for molten BiCl_3 , BiBr_3 and BiI_3 at several temperatures in Fig. 1. The $S(Q)$ seem to be temperature-insensitive compared with those of simple liquids. Fig. 2 shows pair correlation functions $g(r)$ for molten bismuthtrihalides, which are Fourier-transforms of the observed $S(Q)$. Every $g(r)$ has a sharp first peak at $r=2.50\text{\AA}$, $r=2.69\text{\AA}$ and $r=2.88\text{\AA}$ for molten BiCl_3 , BiBr_3 and BiI_3 respectively. This behaviour indicates that a strong atomic short-range ordering exists between nearest neighbours in molten

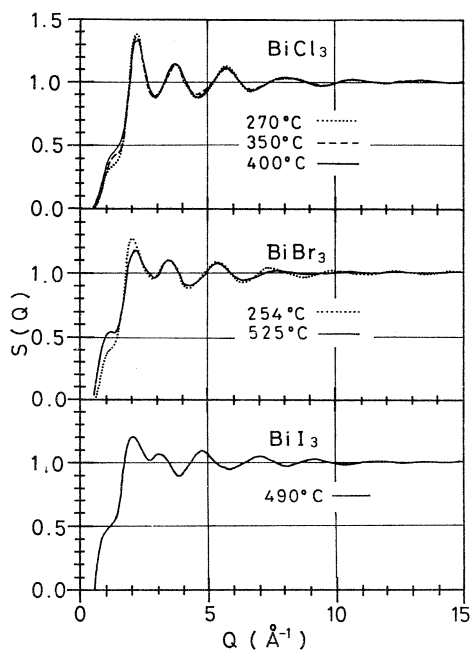


Fig.1. Observed structure factors of molten bismuthtrihalides.

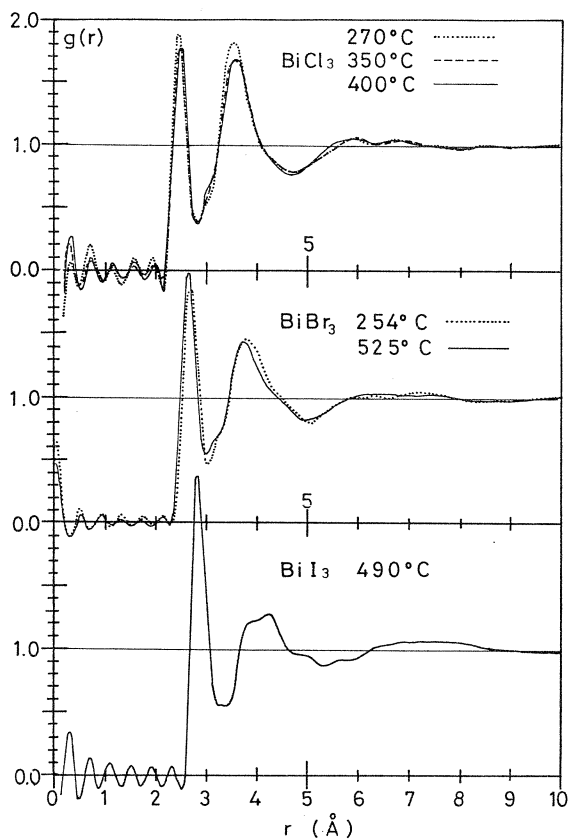


Fig.2. Pair correlation functions of molten bismuthtrihalides.

bismuthtrihalides. The coordination number estimated from the area under the first peak maximum suggests that there are three halogen ions around a bismuth ion.

§ 4. Partial Structure Factors

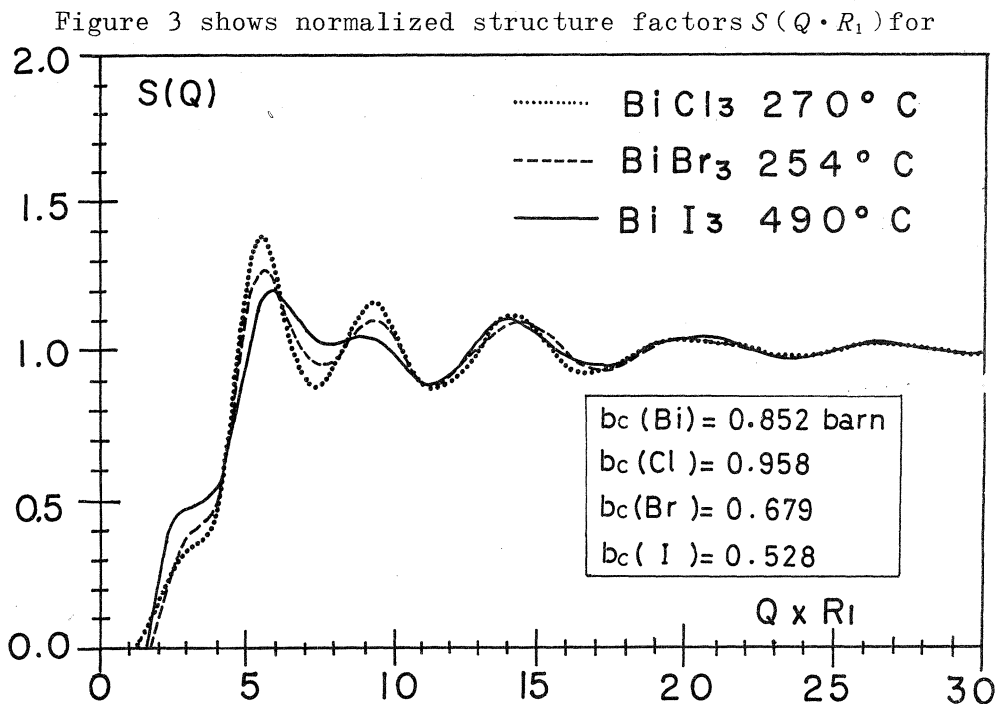


Fig.3. Normalized structure factors of molten BiCl₃, BiBr₃ and BiI₃. BiCl₃ at 270°C, BiBr₃ at 254°C and BiI₃ at 490°C, where R_1 is the first peak position in $g(r)$. The maximum and minimum heights in $S(Q \cdot R_1)$ depend on the species in molten bismuthtrihalides, whereas every $S(Q \cdot R_1)$ coincides in the maximum and minimum positions. Using these normalized $S(Q \cdot R_1)$, three partial structure factors, i.e. $S_{B_i-B_j}(Q)$, $S_{X-X}(Q)$ and $S_{B_i-X}(Q)$ were calculated, where X means a halogen ion. The results are shown in Fig. 4. Three partial pair correlation functions $g_{B_i-B_j}(r)$, $g_{X-X}(r)$ and $g_{B_i-X}(r)$, which are Fourier-transforms of three partial structure factors, are shown in Fig. 5. The Bi-Bi pair correlation is weak, but the X-X pair correlation persists strongly in liquid BiX₃. The Bi-X

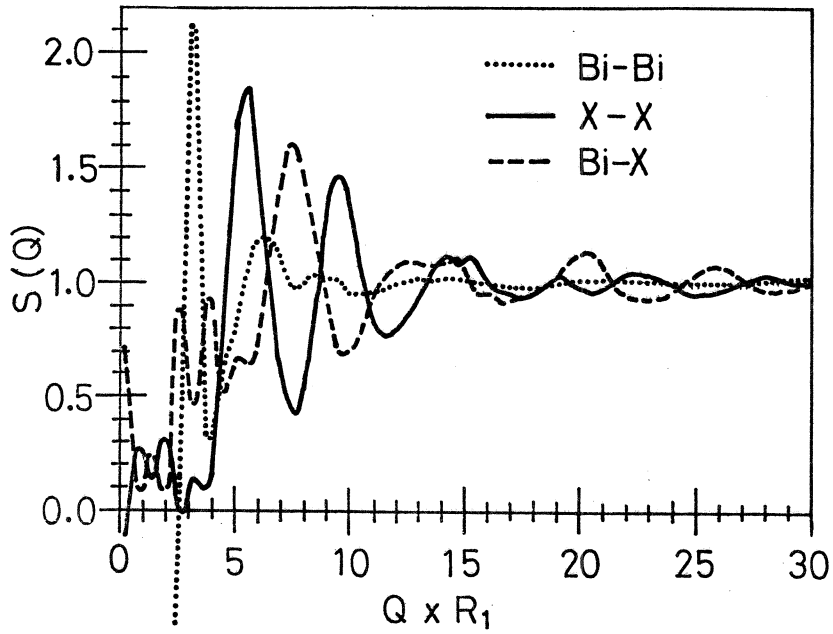


Fig.4. Partial structure factors of molten bismuthtrihalides.

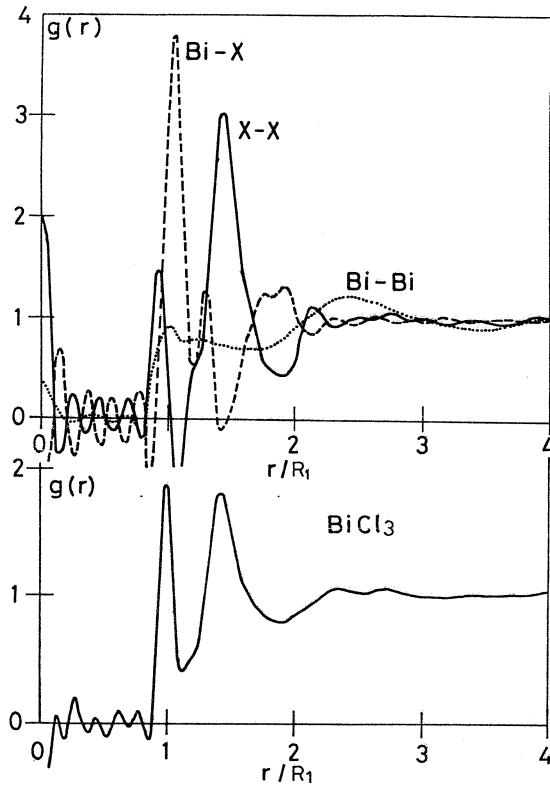


Fig.5. Partial pair correlation functions of molten bismuthtrihalides.

pair correlation has a sharp first peak that is completely separated from the broad second peak.

These observations may suggest that molten bismuthtrihalides have a covalent nearest neighbour interaction between bismuth and halogen, while the halogen-halogen interaction is ionic and like an arrangement in simple liquid. The correlation between bismuth atoms is rather uniform like in the gaseous state.

References

- 1) K. Suzuki, M. Misawa and Y. Fukushima: Trans. Japan Inst. Metals **16** (1975) 297.
- 2) M. Misawa, K. Kai, K. Suzuki and S. Takeuchi: Res. Report Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ., **52** (1972) 73.

II-2 パルス中性子による反強誘電体 蟻酸銅四水和物の研究(II)

名工大, 核理研* 岡田健吉・鈴木昱雄
杉江 紘・新村信雄*

前回の報告では、反強誘電体の現象論と蟻酸銅四水和物(CFT)の水素網構造を中心にして、パルス中性子によるAP相から、P相への構造変化からの反強誘電性の立証についての意義を議論し、又予備的な実験データを報告した。今回は、その後得られた超格子線の詳しい温度変化とブラッグピークよりも強い他の超格子線の観測について報告する。また、臨界散慢散乱の予備実験の結果と完全重水素化蟻酸銅四重水和物の結晶作成の結果についても議論する。

なお本研究中に用いる蟻酸銅について、次の略号を用いる。

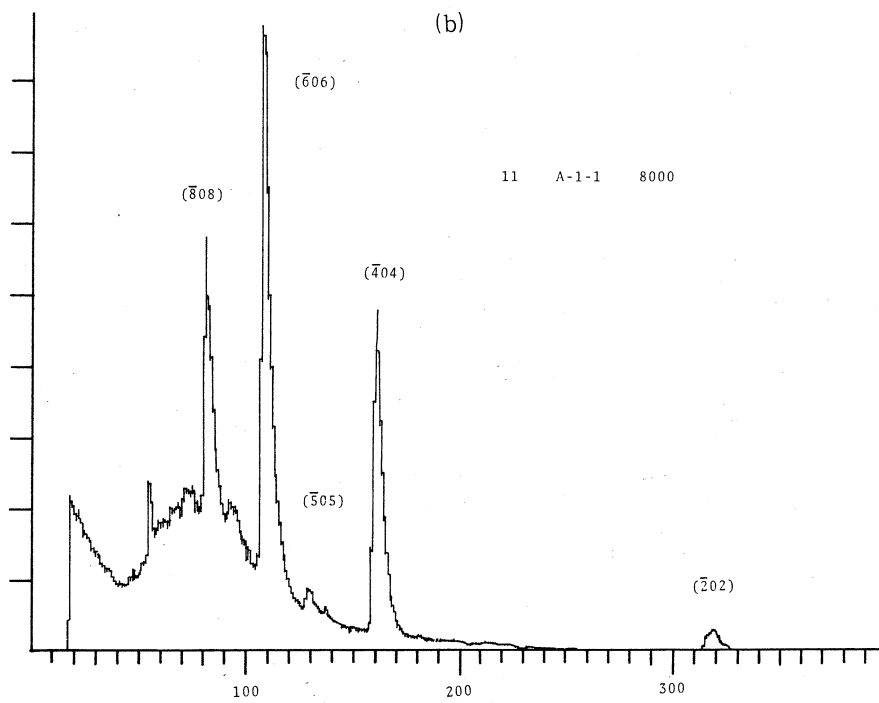
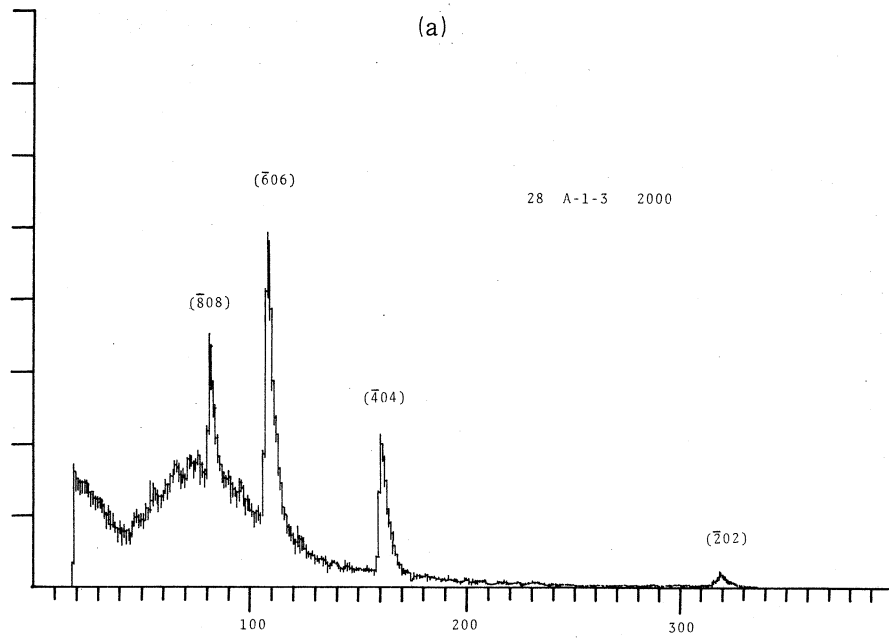
CFT : $\text{Cu}(\text{HCOO})_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ (蟻酸銅四水和物)

D'CFT : $\text{Cu}(\text{HCOO})_2 \cdot 4\text{D}_2\text{O}$ (蟻酸銅四重水和物)

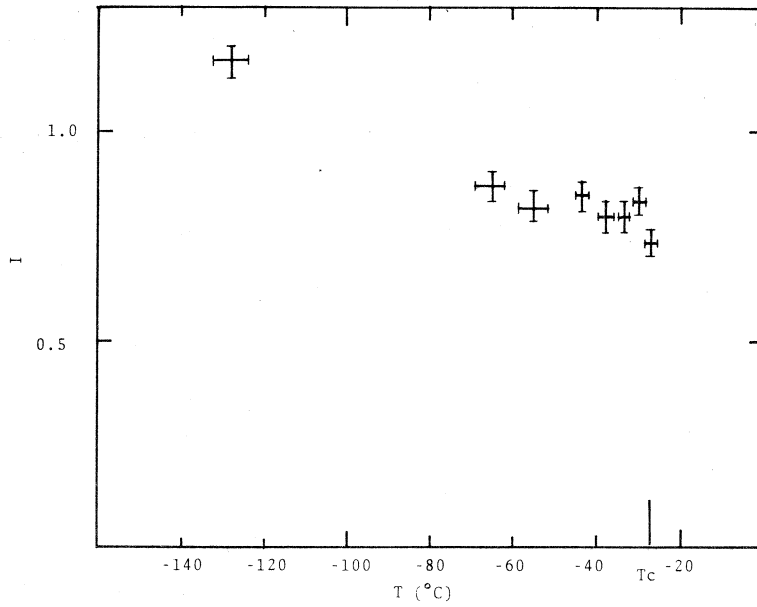
DCFT : $\text{Cu}(\text{DCOO})_2 \cdot 4\text{D}_2\text{O}$ (完全重水素化蟻酸銅四重水和物)

§ 1. 反強誘電相での超格子線の温度変化

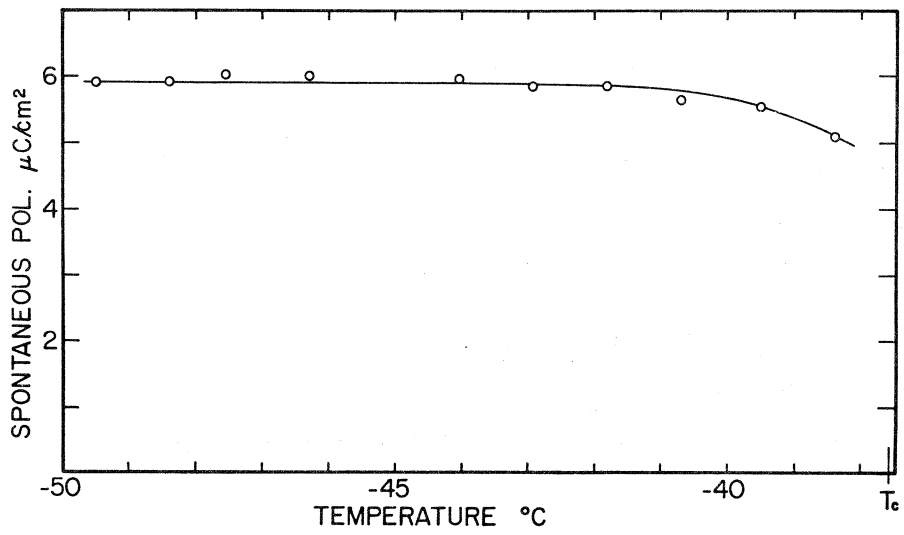
今回は、重水置換蟻酸銅 [$\text{Cu}(\text{HCOO})_2 \cdot 4\text{D}_2\text{O}$: D'CFT] の新しい試料を用い、電界印加用のクライオスタットを使用して、 -100°C からキュリー点までの温度変化を詳しく調べた。前回と同様、 $\langle 201 \rangle$ 方向についての超格子線を観測したのは、①前回の結果¹⁾との比較と、②ブラッグピークの間規則的に超格子線が観測されるためである。第1図に得られた中性子回折のピークを示す。(a)は室温で、(b)は反強誘電相のものである。今回の実験はチャンネル幅に $16\ \mu\text{sec}$ を用いたため、多くのブラッグピークを観測でき、超格子線についても計算された格子間隔から得られる時間(波長)のチャンネルの所に観測できた。しかし分解能については、前回より悪くなっている。温度変化は(505)についてのみ、精密な解析を行った。この超格子線の温度変化を第2図に示す。参考のために、試料は異なるが、CFTについての二重履歴曲線から求めたPs(sublatticeについて)の温度変化を第3図に示してある。²⁾



第1図 蟻酸銅四重水和物(D'CFT)の中性子回折(a)室温, (b)低温



第2図 超格子線の温度変化

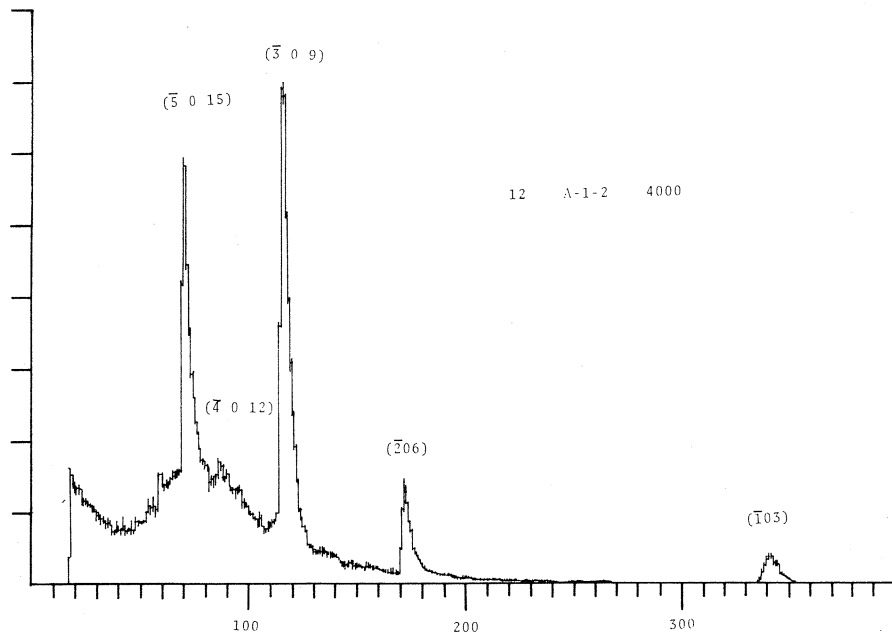


第3図 副格子の自発分極の温度変化

§ 2. ($\bar{3}09$)の観測

1967年のTurberfield³⁾によるD'CFOTの超格子線についてのショートノートによると、超格子線の温度変化は4.2 Kから測定したとき、 -38°C で5%の強度減があり、 -28°C で鋭く消滅し、一次転移を反映している。この2つの温度が減少するのは、 $\text{Cu}(\text{HCOO})_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ と $\text{Cu}(\text{HCOO})_2 \cdot 4\text{D}_2\text{O}$ の相転移に関連していると述べている。

今回、我々も($\bar{3}09$)の反射の観測を低温で試みた。構造因子の計算からは、確かに強い反射強度が期待されるので、($\bar{2}01$)の観測に用いたと同一の試料(D'CFOT)について、試みた。第4図に実験結果を示す。この結果によるとブラックピークよりも強く観測されることがわかる。第1表にこれらの反射強度についての構造因子と実測値とを示してある。この表で実測値についてのくい違いがみられるが、これらについては前回の報告でも議論したが、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重水置換による変化が考えられる。これらに関しては、D'CFOT及びDCFTの詳しい中性子回折による構造解析が必要である。この($\bar{3}09$)について次回以後、詳しい温度変化の観測を行い、第3図の自発分極の温度変化と比較する。



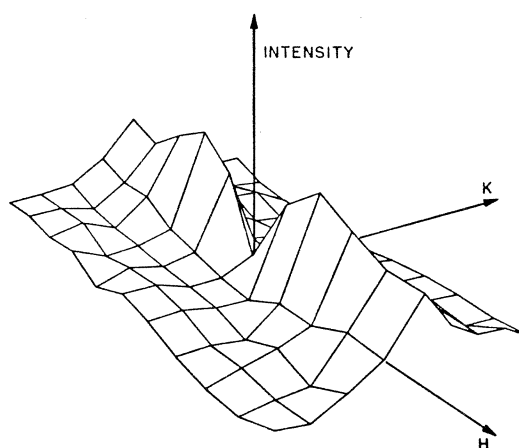
第4図 超格子線 $\langle \bar{3}09 \rangle$ の観測(低温)

第1表 Observed and calculated structure factors

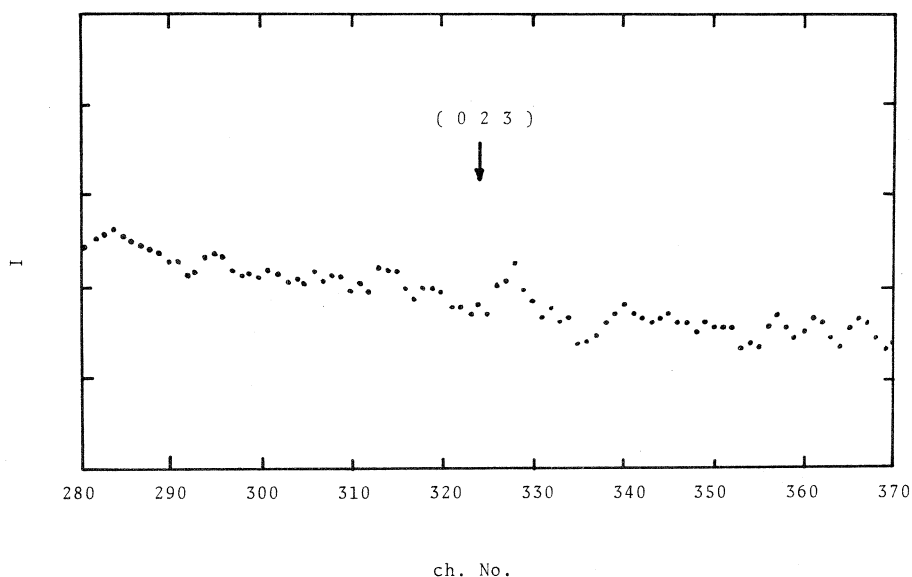
	$ F ^2$ obs	$ F ^2$ cal
($\bar{1}$ 03)	0.9	0.005
($\bar{2}$ 06)	13	14.2
($\bar{3}$ 09)	6	30.3
($\bar{4}$ 012)	—	25.8
($\bar{5}$ 015)	14	17.4
($\bar{6}$ 018)	7	91.8

§ 3. 臨界散慢散乱

Youngblood と Axe らが熱中性子の散慢散乱を、超格子のブラッグピークを示す点で観測している。⁴⁾ このことに関して、前回大略を紹介したが、我々もキュリー点の近くでの観測を試みた。室温および -20°C 付近で測定を行った。中性子をスキャンした方向は(023)である。Youngblood らによる散慢散乱ピークは第5図に与えられているが、実際我々も(023)では散慢散乱は観測されなかった(第6図)。第5図は転移の低次元性を示しており、大変興味ある問題である。次回以後、この点について、①観測すべき超格子点の適切な選択、および②完全重水置換などによるSN比の改善などに留意して行う予定である。



第5図 超格子点における散慢散乱強度

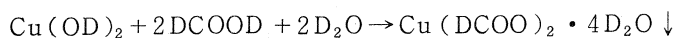
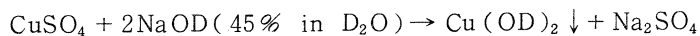


第6図 (023)の観測

§ 4. 完全重水素化蟻酸銅四重水和物(DCFT)の結晶成長

中性子回折の実験を容易にする目的で、我々は蟻酸銅の完全重水素化を試み、結晶を作成した。結晶水のみの重水素化は比較的容易で、我々は中性子回折に用いて来たが、散漫散乱の観測および高電圧パルスの印加によるAP相からP相への動的過程を観測するためには、蟻酸HCOOHも重水素化する必要があると考えた。結晶作成は、次の方法により、乾燥窒素ガスを常時流した中で反応させ、窒素ガスにより蒸発量を調整して成長させた。大きい結晶は約10mm × 10 mm × 10 mmの大きさのものを得た。

反応：



CuOからの反応は良くなく、このCu(OD)₂を作成し、重蟻酸と反応させるものはほとんど完全に反応が進行し、青色の蟻酸銅が容易に得られる。NaODとDCOODはメルクの試薬を

用いた。

このDCFTについての誘電的特性についての報告は未だなされていないので、我々は中性子回折と平行して解析を進めている。蟻酸銅の熱力学的議論から、蟻酸銅と結晶水の層間の相互作用力がこの結晶の反強誘電性に重要な働きをしていることが予想されているので⁵⁾、早く解析を完了する予定である。

参 考 文 献

- 1) 岡田, 鈴木, 杉江, 新村: 核理研研究報告 **9** (1976) 110.
- 2) K. Okada and H. Sugie: J. Phys. Soc. Japan **25** (1968) 110.
- 3) K. C. Turberfield: Solid State Comm. **5** (1967) 887.
- 4) R. Youngblood and J. D. Axe: Int. Conf. (Puerto Rico 1975)
- 5) Y. Ishibashi and S. Ohya: J. Phys. Soc. Japan **34** (1973) 888.

II - 3 PrNi₂ の中性子散乱

理学部物理 森 宏・大塚泰一郎
神木正史・遠藤康夫

§ 1. 序 論

希土類金属間化合物の結晶場レベルの決定に対し、中性子分光学が極めて有効であることが、Birgeneau *et al.*¹⁾ によって見出されている。我々は、核理研リニアックの中性子源を利用し PrNi₂ についての飛行時間法 (TOF 法) の予備的実験を行った。それについて中間報告し、また問題点を議論したい。

我々は、これまで、熱的測定を中心として、PrNi₂ の磁性を調べてきた。約 0.1 K の極低温まで、磁氣的秩序は見られず、4f 電子に対する結晶場の効果が重要であることは、疑う余地がない。中性子散乱は、このような物質に対し強力な実験手段と考えられる。

§ 2. 結晶場準位による中性子散乱

ある J 多重項の中に限れば、一個のイオンの散乱断面積は、

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \left(\frac{1.91 e^2}{2 m c^2} g_J \right)^2 \frac{k_f}{k_i} f^2(Q) \sum_{nm} \rho_n |\langle n | J_{\perp} | m \rangle| \times \delta \left(\frac{E_n - E_m}{\hbar} - \omega \right) \quad (1)$$

で表わされる。但し、 $|n\rangle$ 、 $|m\rangle$ は、ある J 多重項に属する状態、 \vec{Q} は散乱ベクトル、 J_{\perp} は、全角運動量の \vec{Q} に直交する成分である。 $f(Q)$ は、4f 電子の形状因子である。又、 ρ_n は、初期状態の熱的占有因子である。他の記号は通常の意味を持つ。

一般に、このエネルギー領域 (≈ 100 K) では、結晶場準位による散乱の他に、フォノンによる散乱も大きい。これらの分離には、散乱強度の (1) 温度依存性、(2) Q 依存性をチェックせねばならない。後者については、

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{結 晶 場} \quad \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} \propto f^2(Q) \\ \text{フ ォ ノ ン} \quad \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} \propto Q^2 \end{array} \right. \quad (2)$$

であり、 $f(Q)$ は Q の減少関数となる。

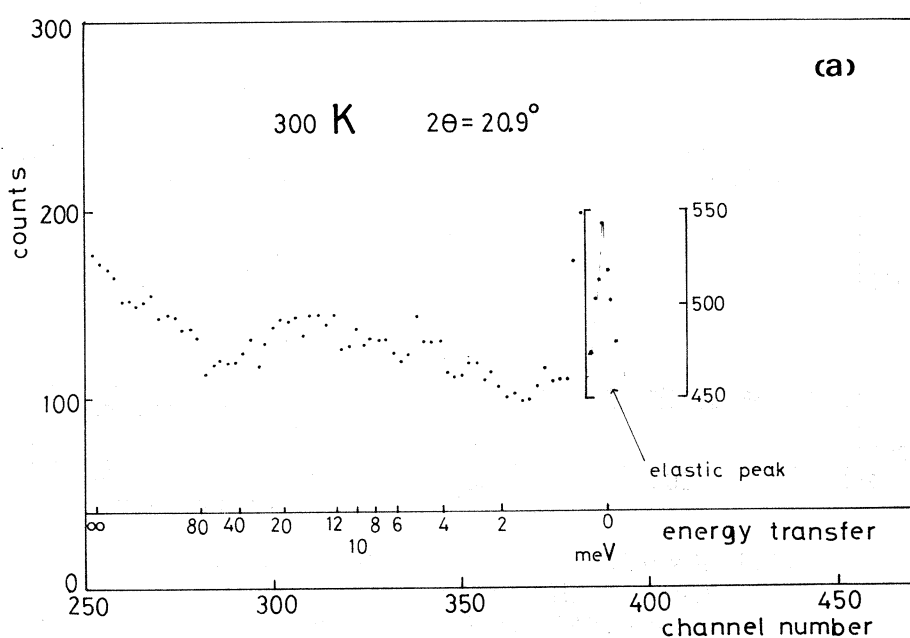
§ 3. 実験結果と検討

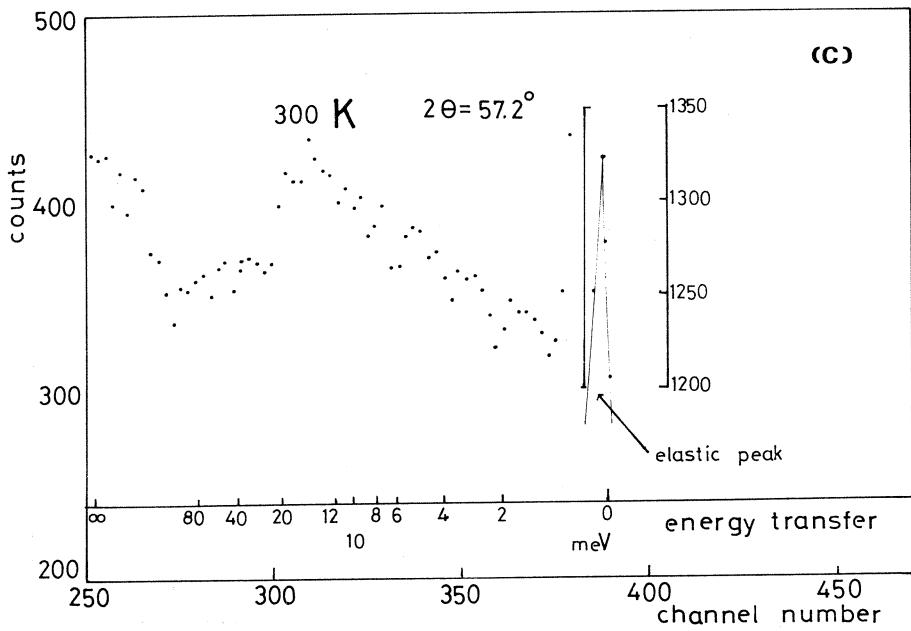
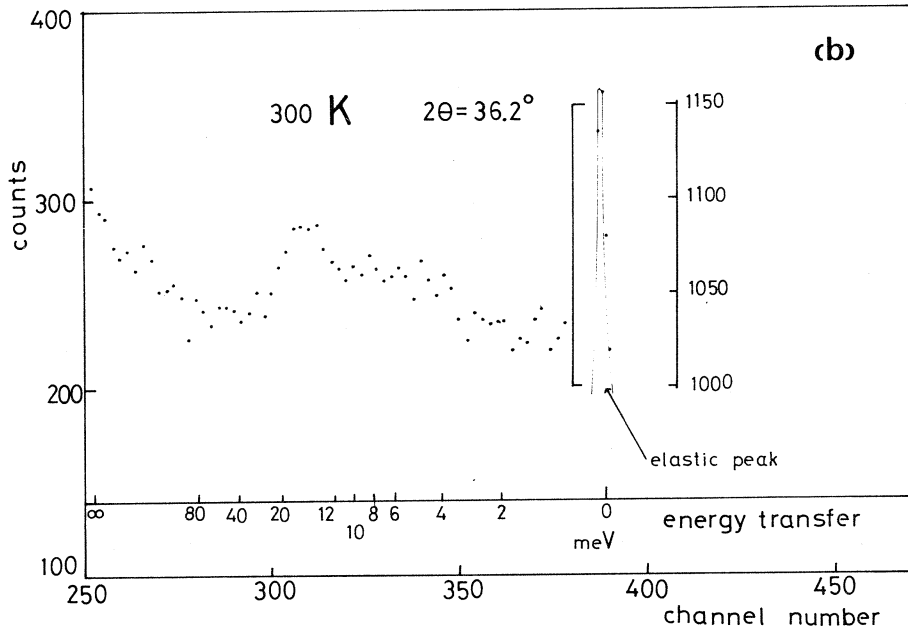
試料は 63 g の粉末をアルミ・カプセルに封入したものである。アーク溶解法によって作製した塊状のものを、アルゴン雰囲気中で粉末にした。熱処理として、720 °C、一週間焼鈍した。装置は Pyrolytic graphite を用いた TOF スペクトロメーターである。初期エネルギー 3.43 meV の中性子を用い、3 ケ所のカウンターで散乱中性子を検出している。第 1 図は、2 日間照射の結果である。但し、近接する 3 つのチャンネルの値を平均して、偶数チャンネルについてのみプロットした。実験温度は 300 K である。

まず、310 チャンネル近傍にブロードなピークが見られる。これについては、ほぼ、強度が Q^2 に比例している。従って、フォノンによる散乱が支配的と考えられる。一方、340 チャンネル近傍では、そのような比例関係はなく、結晶場遷移に起因すると考えられる。比熱測定の結果から期待される散乱強度を第 2 図に示す。 $E(\Gamma_1 - \Gamma_4) = 70$ K を用いて、300 K における散乱強度を計算した。比較的大きな強度を有する。 $\Gamma_1 - \Gamma_4$, $\Gamma_3 - \Gamma_4$ 遷移が 340 チャンネル付近に現われ、前述の考察と定性的に合う。 $\Gamma_4 - \Gamma_5$, $\Gamma_3 - \Gamma_5$ 遷移は、フォノンが支配的な領域にあたり、実験条件を余程改善せねば、分離が難かしそうである。

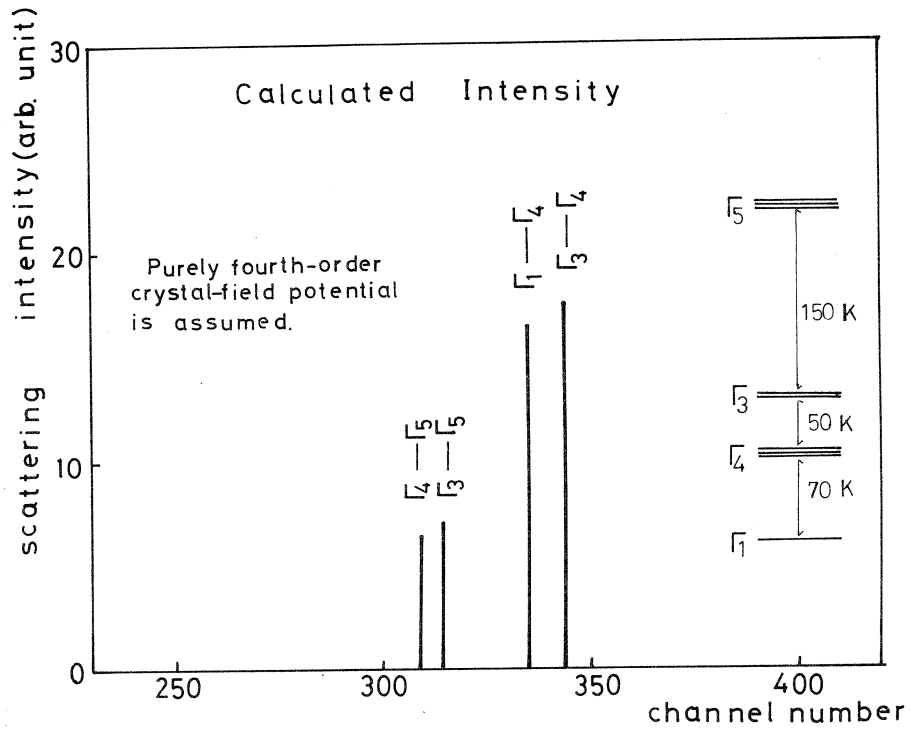
試料の量を、現在の約 2 倍にすることによって S - N 比を上げ、また、温度変化を見ることによって、結晶場準位による散乱を分離することを当面の課題と考えている。

この実験に協力して下さった渡辺昇助教授に感謝します。





第1図 各々の散乱角に於けるカウント数。弾性散乱のピーク近傍は、特別挿入したスケールに従う。
 (a) $2\theta = 20.9^\circ$ (b) $2\theta = 36.2^\circ$ (c) $2\theta = 57.2^\circ$



第2図 比熱の結果から期待される 300 K に於ける散乱強度

参 考 文 献

- 1) K. C. Turberfield, L. Passel, R. J. Birgeneu and E. Bucher :
 J. appl. Phys. **42** (1971) 1746.

III. 放 射 化 学 部 門

Ⅲ-1 コバルトテトラフェニルポルフィン錯体 における自発核壊変に伴う化学的効果

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

これまで筆者らは固相におけるコバルト、銅テトラフェニルポルフィン錯体 (CoTPP, CuTPP) の中心金属の、光核反応 (γ, n), 熱中性子捕獲反応 (n, γ) に伴う反跳効果を研究し、報告した。¹⁾

(γ, n), (n, γ) 反応のような核反応過程の反跳効果では、反跳エネルギーがそれぞれ 10^5 eV, 10^2 eV のオーダーと大きいため、その反跳エネルギーからの力学的な寄与が大きいことが予想される。

一方、自発核壊変に伴う挙動では、核反応の場合とは異なり、反跳エネルギーは小さく、力学的寄与は小さいと思われる。しかしながら、内部転換率の大きい核異性体転移、あるいは核外電子捕獲プロセスにおいては、オージェ電子放出を伴い、壊変原子 (ホットアトム) は一時的に高電荷を持つことが知られている。

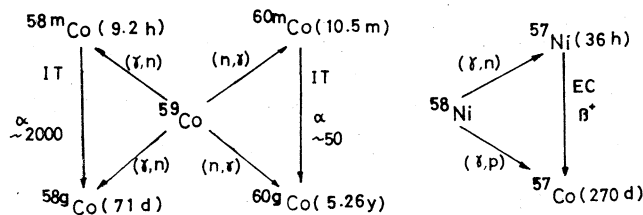
自発核壊変に伴う化学的効果については、気相系におけるチャージスペクトロメーターを用いた Wexler らや、Carlson らの先駆的な研究^{2,3)} がある。彼らは比較的簡単な化合物 (CH_3I , CCl_3Br など) を ^{131}I , $^{80\text{m}}\text{Br}$, ^{82}Br で標識し、その EC 壊変, IT 壊変, β^- 壊変の結果生じるフラグメントイオンを検出した。内部転換電子放出を伴う IT 壊変や EC 壊変では、分子のかなりのフラグメンテーションが起こることが見出され、分子が正に帯電した、いわゆる静電爆発モデルにより説明がなされている。

固相においては、Müller ら⁴⁾ の KBrO_3 や K_2ReBr_6 における $^{80\text{m}}\text{Br}$ (IT) $^{80\text{g}}\text{Br}$ 反応の化学的効果の報告があるが、結果は高いリテンション値を示した。また斎藤ら⁵⁾ は $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{X}]\text{Br}_2$ ($\text{X} = \text{NCS}, \text{NO}_2, \text{F}, \text{Cl}, \text{Br}, \text{I}$) の第二配位圏の臭素を $^{80\text{m}}\text{Br}$ で標識し、第一配位圏として得られる $^{80\text{g}}\text{Br}$ の“配位子収率”を求めた。(n, γ) 反応の効果とこの核異性体転移の結果には同じ傾向がみられ、最終的に配位子収率を決定する因子は、ホット反応後の化学的性質であると結論された。吉原⁶⁾ は、 ^{57}Ni で標識した $[\text{Ni}(\text{NH}_3)_6]\text{Cl}_2$

の EC, β^+ 壊変と, $[\text{Ni}(\text{NH}_3)_6]\text{Cl}_2$ の $^{58}\text{Ni}(\gamma, p)$ ^{57}Co の反跳効果を比較したが, アニッキングにおいて差があり, 壊変の場合には $[\text{Co}(\text{NH}_3)_6]^{3+}$ が, 核反応では $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Cl}]^{2+}$, $[\text{Co}(\text{NH}_3)_6]^{3+}$ が生成されることが見出された。このことは固相における EC 壊変によるフラグメンテーションが, (γ, p) 反応のものよりは局所的であると説明された。フタロシアニン錯体においては, $^{69\text{m}}\text{Zn}(\text{IT})$ $^{69\text{g}}\text{Zn}$, $^{57}\text{Ni}(\text{EC}, \beta^+)$ ^{57}Co の化学的効果が, Yang ら⁷⁾により研究されたが, 内部転換をほとんどしない $^{69\text{m}}\text{Zn}(\text{IT})$ $^{69\text{g}}\text{Zn}$ の場合には, リテンション値 100%, EC, β^+ 壊変の場合には 37%であった。

このように, 固相における核壊変の反跳効果について, 種々の報告があるが, 静電的效果が固相においてどのような役割を演ずるかについては, まだあまり明確な実験的証明はなされていない。そこで静電的效果が筆者らが以前から研究対象としている TPP 錯体のリテンション値に与える影響を調べることを試みた。

今回は Co TPP について自発核壊変に伴う化学的効果についての結果を得たので報告する。図 1 は研究しているコバルト(一部はニッケル)の核プロセスの概略を示したものである。筆



第 1 図 Nuclear processes of cobalt and nickel concerned.

者らの研究の目的は, 第 1 図に示されるすべてのプロセス(矢印で示されている)を, それぞれ個々に解明し, そしてその結果を総合的に解釈することにある。本報では $^{58\text{m}}\text{Co}(\text{IT})$ $^{58\text{g}}\text{Co}$, $^{57}\text{Ni}(\text{EC}, \beta^+)$ ^{57}Co , $^{60\text{m}}\text{Co}(\text{IT})$ $^{60\text{g}}\text{Co}$ のプロセスにおける TPP 錯体のリテンション値を求め, その結果を以前報告した¹⁾核反応 (γ, n) , (n, γ) プロセスの結果と比較, 検討した。

§ 2 実 験

2.1 $^{58\text{m}}\text{CoTPP}(\text{IT})$ $^{58\text{g}}\text{CoTPP}$

純度 99.9%の金属コバルトを東北大学原子核研究施設の電子ライナックにより, 60 MeV の電子を使って制動 γ 線照射し, (γ, n) 反応で $^{58\text{m}}\text{Co}$ を得た。6 時間または 8 時間照射

した Co を氷酢酸に溶かしたのち、前報¹⁾と同じく H₂ TPP のクロロホルム溶液と還流して標識 Co TPP を合成し、真空昇華クロマトグラフィーにより精製した。得られた標識 Co TPP をドライアイス中に保存し、^{58m}Co (半減期 9 時間) の壊変を待った。化学分離はキャリアー入りのクロロホルム・メタノール溶液での活性アルミナカラムクロマトグラフィーで行った。放射能測定は Ge (Li) 半導体検出器 + 1024 ch PHA で ^{58g}Co の 810 keV の光電ピークを測定し、化学形の分布を求め、それを ^{58g}Co の放射能の生成曲線を用いて解析し、このプロセスのリテンション値を求めた。

2.2 ⁵⁷Ni TPP (EC, β⁺) ⁵⁷Co TPP

粉末ニッケル (純度 99.99 %) を 8 時間もしくは 24 時間、同様に制動 γ 線照射した。この場合は ⁵⁷Ni (EC, β⁺) ⁵⁷Co プロセスだけの効果を見たい。ところが第 1 図に示す通り、別に ⁵⁸Ni (γ, p) ⁵⁷Co 反応で ⁵⁷Co が生成するので、標識 Ni TPP 合成の前にコバルトをニッケルから分離しておかなければならない。分離法として、後に続く Ni TPP 合成を迅速に行うために、酢酸系の陰イオン交換法⁸⁾を選んだ。すなわち、照射したニッケル粉末を少量の硝酸を含む氷酢酸に溶かしたのち、陰イオン交換樹脂カラム (Dowex 1 X 8, 100 ~ 200 mesh, 酢酸形) につけ、16 N 酢酸でニッケルを、14.5 N 以下の酢酸でコバルトを溶離した。分取したニッケルフラクション (酢酸溶液) は H₂ TPP のクロロホルム溶液と反応させ、生じた粗 Ni TPP を漏取したのち、昇華精製して ⁵⁷Ni TPP を得た。ドライアイス中で半減期 36 時間の ⁵⁷Ni の壊変を待ち、化学分離をアルミナカラム法で行い、⁵⁷Co の 122 keV の光電ピークを Ge (Li) 半導体検出器 + 4096 ch PHA で測定し、⁵⁷Co の化学的分布を求めた。

2.3 ^{60m}Co TPP (IT) ^{60g}Co TPP

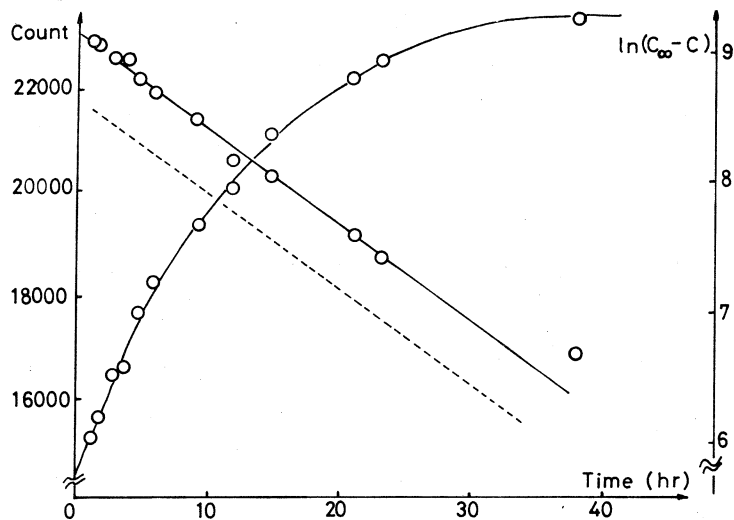
Co TPP を立教大学原子力研究所 TRIGA II 型炉 F 24 孔で 5 分間、熱中性子照射した。照射後直ちに真空昇華法により Co TPP フラクションを分取した。この時、照射終了時から標識 Co TPP を得るまでの時間は 13 分であった。得られた ^{60m}Co TPP をドライアイス中に保存した。半減期 10.5 分の ^{60m}Co の壊変を待ったのち、アルミナカラムクロマトグラフィーで Co TPP フラクションを分取し、Ge (Li) 半導体検出器 + 4096 ch PHA, あるいは NaI (Tl) 井戸型シンチレーションカウンター + 1024 ch PHA で ^{60g}Co の 1172 keV, 1333 keV の光電ピークを測定し、化学的分布を求めた。このとき、標識 Co TPP は合成終了時点で ^{60m}Co のみでなく ^{60g}Co をも含んでいる。その解析は 1333 keV の光電ピークが照射直後では ^{60m}Co と ^{60g}Co の両者からフィードされる (第 7 図参照) ことを利用して行っ

た。

§ 3 結果と考察

3.1 ^{58m}Co (IT) ^{58g}Co プロセス

第2図はコバルトを制動 γ 線照射して生成した ^{58g}Co の810 keVの光電ピークの放射能の経時変化(生成曲線)である。照射終了時を $t=0$ とした。 ^{58m}Co (IT) ^{58g}Co プロセスによる指数関数的な顕著な増加がみられる。直線は縦軸を $\log(C_\infty - C)$ としたもので ^{58m}Co



第2図 Growth curve of ^{58g}Co - activity

の9時間の半減期とよく一致している。筆者らはこの生成曲線を用い、最大エネルギー60MeVの γ 線照射のさいの $^{59}\text{Co}(r, n)^{58g}\text{Co}$, $^{59}\text{Co}(r, n)^{58m}\text{Co}$ の反応断面積 σ_g , σ_m の比を求めた。第3図にその原理を示す。最終的に ^{58g}Co になった放射能(A_0)はつぎの3成分に分類することができる。1)照射中、直接 $^{59}\text{Co}(r, n)^{58g}\text{Co}$ 反応により生成したもの(A_1)。2)照射中に $^{59}\text{Co}(r, n)^{58m}\text{Co}$ (IT) ^{58g}Co のプロセスで生成したもの(A_2)。3)照射終了後に ^{58m}Co (IT) ^{58g}Co プロセスで生成したもの(A_3)。

A_0 , A_1 , A_2 はそれぞれ次の式で表わされる。

$$A_0 = Nf(\sigma_g + \sigma_m)(1 - e^{-\lambda_g T}) \quad (1)$$

$$A_1 = Nf \sigma_g (1 - e^{-\lambda_g T}) \quad (2)$$

$$A_2 = Nf \sigma_m \left[\left(1 - \frac{\lambda_g e^{-\lambda_m T}}{\lambda_g - \lambda_m}\right) - \left(1 - \frac{\lambda_g}{\lambda_g - \lambda_m}\right) e^{-\lambda_g T} \right] \quad (3)$$

N : ターゲットの Co の
原子数

f : r 線線束密度

λ_g : ^{58}Co の壊変定数

λ_m : ^{58m}Co の壊変定数

T : 照射時間

第3図からわかるように

$$k(A_1 + A_2) = a \quad (4)$$

$$k A_0 = b \quad (5)$$

但し, k は使用した測定器の 810 keV における計数効率を示す。

(1), (2), (3)式を, 定数部分を

$$(1 - e^{-\lambda_g T}) = \alpha$$

$$\left[\left(1 - \frac{\lambda_g}{\lambda_g - \lambda_m} e^{-\lambda_m T}\right) - \left(1 - \frac{\lambda_g}{\lambda_g - \lambda_m} e^{-\lambda_g T}\right) \right] = \beta$$

とにおいて, (4), (5)式に代入すれば,

$$kNf(\alpha\sigma_g + \beta\sigma_m) = a \quad (6)$$

$$kNf\alpha(\sigma_g + \sigma_m) = b \quad (7)$$

(6)/(7)をとり σ_m/σ_g について解けば

$$\frac{\sigma_m}{\sigma_g} = \frac{\alpha(a-b)}{\beta b - \alpha a} \quad (8)$$

定数 α , β , 測定値 a , b を代入して

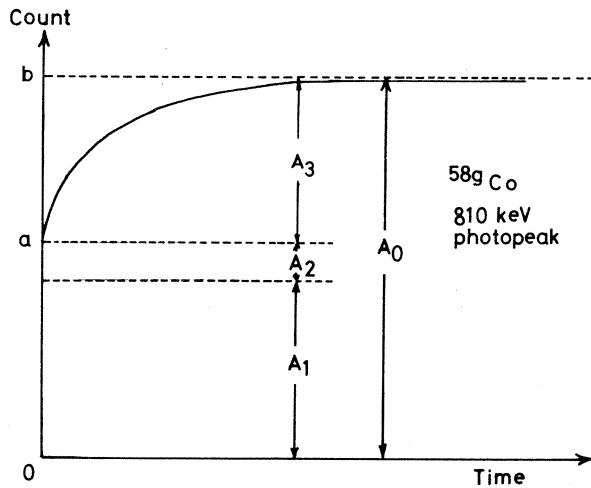
$$\frac{\sigma_m}{\sigma_g} = 1.0 \quad (9)$$

したがって筆者らの行った照射条件では,

$$\sigma_g = \sigma_m \quad (10)$$

である。

この $\sigma_g = \sigma_m$ という結果と第4図に示される結果を合わせて考える。第4図は Co TPP をドライアイス冷却して制動 r 線照射したものをドライアイス中に保存し, その分析時までの放置時間と (r , n) 反応と核異性体転移の “over-all” のリテンション値の関係をみたものである。結果は放置時間に依存せず, 4%のほば一定値であった。 $\sigma_g = \sigma_m$ であるこ

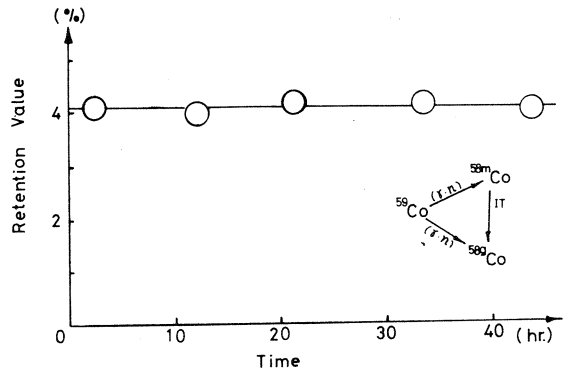


第3図 Determination of σ_m/σ_g for ^{58}Co .

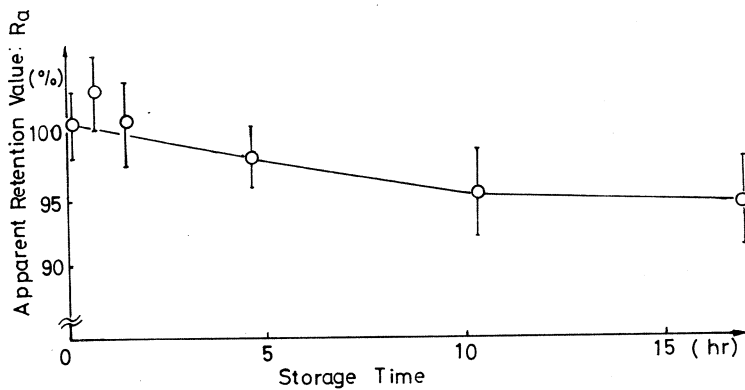
とを考えると、放置時間を十分長くしたときの ^{58g}Co の半数は ^{58m}Co (IT) ^{58g}Co プロセスを経たものである。それにもかかわらず、第4図に示されるようにリテンション値が一定であるということは ^{58m}Co (IT) ^{58g}Co によるフラグメンテーションが比較的小さいことを予想させる。

このことをさらにはっきり確かめるために、 ^{58m}Co で標識 CoTPP を合成し、実験を進めた。

第5図は標識 CoTPP をドライアイス中に放置後、化学分離、放射能測定して得たリテンション値である。t = 0 (合成完了時点) のところで100%であることは、標識 CoTPP の合成がうまくいっていることを示している。時間が経過するにつれて、結合解裂のためにリテンション値が低くなる傾向が見られ、これは放射能の測定誤差による変動の範囲を十分越えていると判定できる。但し、これは未解析の生のデータであり、このリテンション値を「見かけのリテンション値、 R_a 」と呼ぶ。というのは、標識された CoTPP は ^{58m}Co のみでなく ^{58g}Co



第4図 Dependence of retention of CoTPP following γ -irradiation on storage time



第5図 Apparent retention of CoTPP following ^{58m}Co (IT) ^{58g}Co process.

を必ず含んでいるからである。したがって R_a のうちで真に核異性体転移の寄与によるものを解析しなければならない。その解析の原理を示すのが第6図である。これは第2図で示した

^{58}gCo の 810 keV の放射能の生成曲線と同じものである。ある時点 t_1 で標識 Co TPP の合成が完了し、その時の放射能を a とし、時点 t_2 で化学分離を行ったとし、その時の t_1 からの放射能の増加分を b とする。化学分離の結果、 x という部分が Co TPP として分取されたとすれば、見かけのリテンション値 R_a 、真に核異性体転移によるリテンション値 R はそれぞれ

$$R_a = \frac{x}{a + b} \quad (11)$$

$$R = \frac{x - a}{b} \quad (12)$$

である。(11), (12)式から x を消去すれば、

$$R = \frac{R_a (a + b) - a}{b} \quad (13)$$

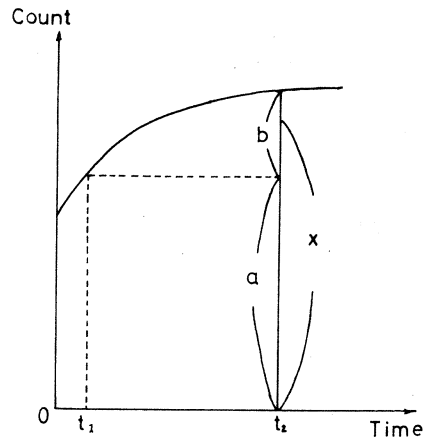
(13)式の右辺はすべて測定値であるので、これより R が求められる。(13)式により、 ^{58}mCo TPP (IT) ^{58}gCo TPP の固相におけるリテンション値、77%, 88%を得た。

3.2 ^{57}Ni (EC, β^+) ^{57}Co プロセス

Ni TPPにおける ^{57}Ni (EC, β^+) ^{57}Co プロセスのリテンション値は、(r, p) 反応から生成する ^{57}Co を Ni TPP 合成の前に分離してあるので、簡単に、着目しているプロセスから生じる ^{57}Co の 122 keV の放射能を測定して求めた。その結果、77%, 80%, 82% のリテンション値を得た。

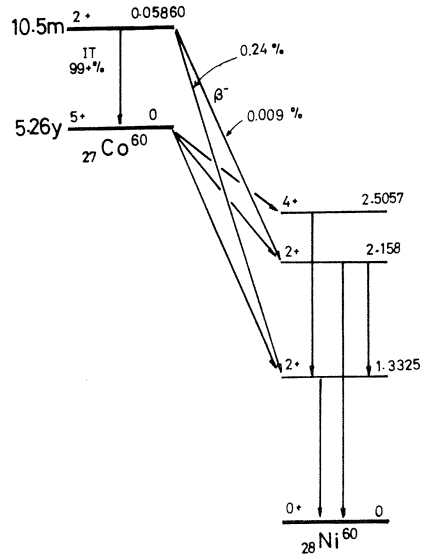
3.3 $^{60\text{m}}\text{Co}$ (IT) $^{60\text{g}}\text{Co}$ プロセス

このプロセスは $^{58\text{m}}\text{Co}$ (IT) $^{58\text{g}}\text{Co}$ プロセスの場合と全く同じ方法、同じ解析法で研究できるはずである。しかし実際には、 $^{60\text{m}}\text{Co}$ の半減期が 10.5 分であるため、 $^{58\text{m}}\text{Co}$ TPP を合成したときのような方法をとることができない。そこで筆者らは熱中性子照射した Co TPP を直ちに真空昇華することにより、リテンション部分を分取して標識 Co TPP を得るという手段をとらざるをえなかった。照射時間も $^{60\text{m}}\text{Co}$ の半減期 10.5 分から考えて、短い方が有利であるので 5 分間とした。このように照射時間が短いため、 $^{60\text{g}}\text{Co}$ の 1172 keV の光電ピークの生成曲線を得ることはできなかった。そこで 1333 keV の光電ピークが $^{60\text{m}}\text{Co}$ が存在する時は、 $^{60\text{m}}\text{Co}$, $^{60\text{g}}\text{Co}$ の両方からフィードされることを使い、間接的に $^{60\text{g}}\text{Co}$ の生成曲線



第 6 図 Determination of true retention of CoTPP following $^{58\text{m}}\text{Co}$ (IT) $^{58\text{g}}\text{Co}$ process.

を求めた。第7図は $Co-60$ の壊変図⁹⁾である。
 ^{60m}Co はほとんど ^{60g}Co へフィードされるが、0.24%が β^- 壊変で直接 ^{60}Ni の 1333 keV の励起レベルにフィードされる。第8図は上述の実験方法で得られた ($^{60m}Co + ^{60g}Co$) TPP の 1333 keV の光電ピークの経時変化である。標識化合物合成完了時点を $t = 0$ としている。白丸は生のデータで、黒丸は ^{60m}Co の壊変が完了したときのテール部を差し引いたものであり、 ^{60m}Co の 10.5分の半減期とよく一致している。この壊変曲線から $t = 0$ における ^{60m}Co と ^{60g}Co の原子数比を求める。第8図において $t = 0$ における 1333 keV の放射能を a 、充分時間が過ぎ ^{60m}Co が壊変してしまったときのテール部の放射能を b とすると、 a 、 b に対して次の2式が成立する。



第7図 Decay scheme of ^{60}Co

$$k (\lambda_m N_{m0} \times 0.24 \times 10^{-2} + \lambda_g N_{g0}) = a \tag{14}$$

$$k \lambda_g \{ N_{m0} (1 - 0.25 \times 10^{-2}) + N_{g0} \} = b \tag{15}$$

N_{g0} : $t = 0$ での ^{60g}Co の原子数

N_{m0} : $t = 0$ での ^{60m}Co の原子数

λ_g : ^{60g}Co の壊変定数

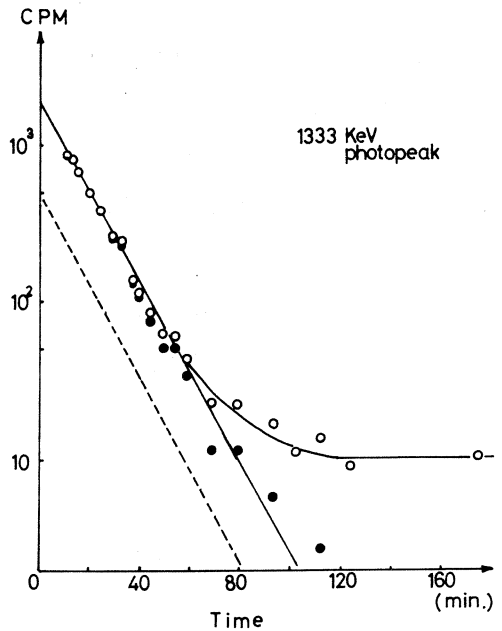
λ_m : ^{60m}Co の壊変定数

k : 使用した測定器の 1333 keV での
計数効率

(14)/(15) をとり N_{g0}/N_{m0} について解くと、

$$\frac{N_{g0}}{N_{m0}} = \frac{b \lambda_m \times 0.24 \times 10^{-2} - a \lambda_g (1 - 0.25 \times 10^{-2})}{\lambda_g (a - b)} \tag{16}$$

(16) 式の右辺に測定値およびその外挿値を代入



第8図 Decay curve of 1333 keV photopeak.

して、

$$\frac{N_{g0}}{N_{m0}} = 2.8 \quad (17)$$

(17)式は間接的に ^{60g}Co の生成曲線が第9図のようであることを示す。そこでこの曲線を使い ^{58m}Co (IT) ^{58g}Co プロセスで行ったと同じ原理で ^{60m}Co (IT) ^{60g}Co プロセスにおいても、見かけのリテンション値から真のリテンション値を求めることが可能になる。上記の解析をした結果、リテンション値として約90%という値を得た。

以上の結果を総合的に見ると ^{58m}Co (IT) ^{58g}Co , ^{57}Ni (EC, β^+) ^{57}Co , ^{60m}Co (IT) ^{60g}Co の各プロセスにおける CoTPP の結合解裂の確率は(湿式化学分析をした結果であるが)小さい。これらの3プロセスは、

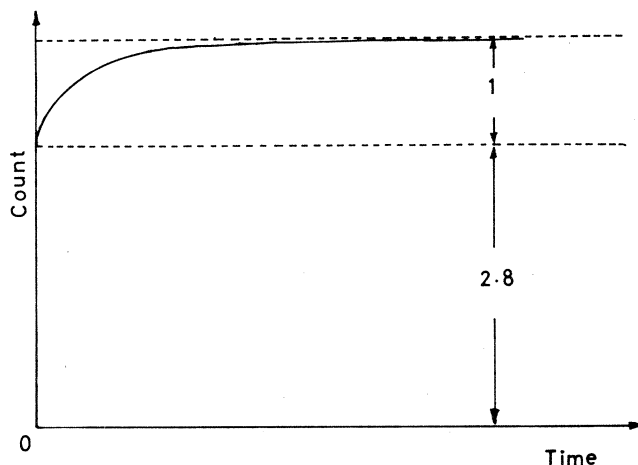
核異性体転移の場合には内部転換率も大きく(第1図参照)、壊変直後にはオージェ電子放出が予想される。筆者らの得た結果はフラグメンテーションは少ないことを示しているが、それについて、3つの可能性を考えた。

1)固相のため、また π 電子を多くもっている CoTPP の環状分子としての性質から、高電荷からの緩和が固相中で速やかなため、フラグメンテーションがあまり起こらない。

2)フラグメンテーションは起きてはいるが固相であるため、フラグメントは元の位置から比較的近くに存在し速やかに再結合をする。

3)フラグメンテーションが起こっていて固相で結合は解裂しているが、その程度は試料を有機溶媒で溶液としたときに、速やかに再結合しうる程度である。スカベンジャー効果が起こらない程度のゆるいフラグメンテーションである。

以上見てきたように、核壊変に伴う結合解裂は、TPP 錯体で固相の場合には比較的少ない。しかしながら核反応に伴うリテンション値は CoTPP において、(r , n) 反応で4%、(n , r) 反応で7%と低い。このことから、筆者らが研究している固相 TPP 錯体においては反跳効果による中心金属の離脱に対しては、反跳エネルギーの寄与すなわち力学的寄与が大きく、



第9図 Growth curve of ^{60g}Co - activity.

静電的寄与は比較的小さいものであるといえよう。これは吉原⁶⁾の報告したヘキサンアンミンニッケル錯体における EC 壊変と (r , p) 反応の効果を比較した研究の結果と類似の傾向を示すものである。

最後に、本研究にあたり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、近藤健次郎助手に厚く感謝の意を表す。

参 考 文 献

- 1) 池田, 莊司, 酒井, 中島 : 核理研研究報告 **9** (1976) 177.
- 2) S. Wexler : J. Chem. Phys. **36** (1962) 1992.
- 3) T. A. Carlson, and R. M. White : *ibid.* **36** (1962) 2883.
- 4) H. Müller and D. Cramer : Radiochimica Acta **14** (1970) 78.
- 5) N. Saito, S. Ito and T. Tominaga : Bull. Chem. Soc. Japan **38** (1965) 504.
- 6) K. Yoshihara : Nature **204** (1964) 1296.
- 7) M. H. Yang, K. Yoshihara and N. Shibata : Radiochimica Acta **14** (1970) 16.
- 8) P. Van Den Winkel, F. De Corte and J. Hoste : Analytica Chimica Acta **56** (1971) 241.
- 9) C. M. Lederer, J. M. Hollander and I. Perlman : *Table of Isotopes, 6th edition* (John Wiley & Sons, Inc. 1968)

Ⅲ-2 $^{71}\text{Ga}(\gamma, pn)$ 反応による無担体 $^{69\text{m}}\text{Zn}$ の調製

核 理 研

八木益男・近藤健次郎

In order to prepare the carrier-free $^{69\text{m}}\text{Zn}$ for radiopharmaceutical applications, the production rate of $^{69\text{m}}\text{Zn}$ by the $^{71}\text{Ga}(\gamma, pn)$ reaction and the 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 $^{69\text{m}}\text{Zn}$ from irradiated target was studied in detail. As a result, the production rate of $^{69\text{m}}\text{Zn}$ at 60 MeV was given to be 0.5 mCi/Coulomb for one gram of galium metal.

§1 序

半減期 14 時間で 0.439 MeV のガンマ線壊変をおこなう $^{69\text{m}}\text{Zn}$ は、半減期 55.6 分でベータ壊変をおこなう娘核、 ^{69}Zn と放射平衡になるが、単色のガンマ線を放射する核種として、各分野でのトレーサー実験に広く活用されている。この核種が無担体でえられれば、シンチスキャンニングに適した単色ガンマ線放射体であること、生体内放射線被曝をできるだけさけるのに適した半減期をもっていること等で、医療用放射性同位素として極めて有用なものとなる。

この無担体 $^{69\text{m}}\text{Ga}$ は従来、高速中性子炉で $^{69}\text{Ga}(n, p)$ 反応により製造されていたが、¹⁻⁴⁾ 半減期が短いため輸送時間を要する処では入手が極めて困難であった。それ故加速器のあるところでは、ある程度の生成収率が期待されるならば、その場で製造するのが最適の入手方法となる。

無担体 $^{69\text{m}}\text{Zn}$ は制動輻射線照射による $^{71}\text{Ga}(\gamma, pn)$ 反応を利用して調製できると期待されるが、まだ全く検討されていない。そこでここでは酸化ガリウムターゲットを用い 30 ~ 60 MeV 制動輻射線照射による無担体 $^{69\text{m}}\text{Zn}$ の生成率を測定することを試み、あわせて照射ガリウムターゲットから無担体でそれを分離し、医療用のトレーサーを調製することを検討した。

§2 実 験

2.1 試 薬

ターゲットとしては高純度ガリウム酸化物を用いた。この一定量を直径 8 mm の石英管に封入し照射試料とした。本実験に用いたその他の試薬はすべて最純品を使用した。

2.2 照 射

照射は 3μ 秒の電子線パルスを毎秒 300 回繰返して、30 ~ 60 MeV の範囲でおこなった。試料は 2 mm 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 で校正したフェライト コア モニターの電流を整流後積算することで一定に保った。各エネルギーとも 0.325 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。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の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 $\mu\text{Ci}/\text{ターゲット金属 1 グラム}/\text{クーロン}$ を算出した。えられた生成率にたいする誤差は約 15 % 以下である。

2.5 無担体 $^{69\text{m}}\text{Zn}$ の分離，調製

白金ルツボ中で照射酸化ガリウムと約 10 倍量の炭酸ナトリウムを混じ、通常の方法で加熱溶融し、冷却後水と 6 規定塩酸の少量を注意しながら加え、固形物を溶かした。ついで溶液を蒸発乾固し、残渣を少量の 1 規定塩酸に溶かし、あらかじめ 1 規定塩酸で処理した陰イオン交換樹脂柱、Dowex 1×8 (直径 1 cm，長さ 6.5 cm，50 ~ 100 メッシュ)，に 0.5 ml 毎分の流速で通した。この条件のもとでは亜鉛イオンは樹脂柱に強力に捕捉され、銅およびガリウムイオンは通過する。それ故約 3 倍の樹脂柱容積の 1 規定塩酸を流して完全に銅、ガリウムイオンを流下させ、ついで約 4 倍の樹脂柱容積の 0.005 規定塩酸⁵⁾ で亜鉛イオンを流下させた。0.005 規定塩酸フラクションを集めて蒸発濃縮し、重炭酸ナトリウムを加えて pH 5 に調節し、普通塩溶液として医療用に供した。

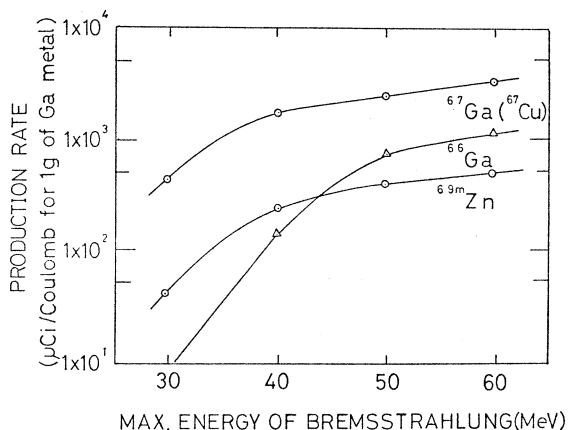
§ 3 結果と考察

最大制動放射線エネルギーにたいする生成核種の生成率は第1図に示した。 ^{69m}Zn の他には $^{69}\text{Ga}(\gamma, 3n)$ 反応による ^{66}Ga (9.4時間), $^{69}\text{Ga}(\gamma, 2n)$ 反応による ^{67}Ga (78.3時間) および $^{71}\text{Ga}(\gamma, \alpha)$ 反応による ^{67}Cu (62時間) が生成され, ^{69m}Zn 以外の垂鉛放射性同位体の生成は殆んど無視できることがわかった。一方図から明らかなように各生成率は30MeV以上で急激に増加し, 40MeV以上で徐々に増加する傾向を示した。

これらの結果からガリウム金属1グラムを60MeV, 150 μA の電流で5時間照射すれば, ^{69m}Zn は1.4mCi調製できることがわかった。

無担体 ^{69m}Zn の化学分離法は従来溶媒抽出法^{1,3)}あるいはイオン交換樹脂法^{1,6)}によって試みられているが, ここでは共存不純物放射性同位元素が ^{67}Cu , ^{66}Ga および ^{67}Ga であることからイオン交換樹脂法を採用し

た。全分離, 調製操作には約4時間を要し, ^{69m}Zn の収率は95%以上であることが確められた。えられた最終無担体 ^{69m}Zn 塩溶液のガンマ線スペクトロメトリーでは0.439MeVガンマ線のみが検出され, 放射化学的純度は極めて高いことが証明された。このことにより本分離操作は極めて良好な結果を与えることが明らかになった。



第1図 The production rates of radio-nuclides on the gallium target as a function of the maximum energy of bremsstrahlung.

参 考 文 献

- 1) H. B. Hupf : J. Nucl. Med. **7** (1966) 798.
- 2) J. H. Gillette : ORNL Rept. No. 4155 (1967).
- 3) H. B. Hupf : Int. J. Appl. Radiat. Isotopes. **19** (1968) 835.
- 4) H. B. Hupf and R.E. Lewis : Trans. Amer. Nucl. Soc. **11** (1968) 475.
- 5) K. A. Kraus and G. E. Moore : J. Am. Chem. Soc. **75** (1953) 1460.
- 6) M. L. Thakur and A. D. Munn : Radiochem. Radioanal. Lett. **2** (1969) 301.

III-3 光核反応断面積の積分評価

高工研, 東大核研*, 京大工学部**

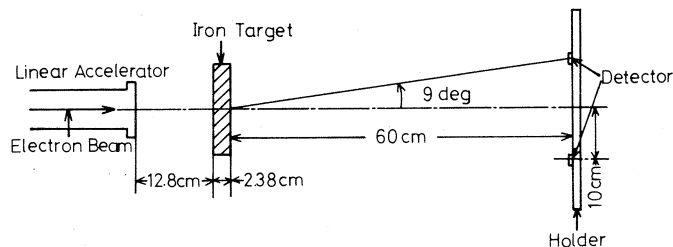
平山英夫・中村尚司*・斎藤孝次**

§1. まえがき

私達は、最近、光核反応を利用して制動放射スペクトルを測定する方法について報告を出した。^{1,2)} この方法は、中性子スペクトルの測定に使用されてきた直交級数展開法を応用したものであるが、当然のことながら得られる精度は使用する断面積の精度に大きく依存する。ところが、光核反応断面積データは、中性子反応断面積データに較べると、データ量も少く、又データ間のばらつきも大きい。従って、測定で得られた反応率から、unfoldingによってスペクトルを求める際には、どのデータを使用するかを決定する必要がある。この判定に中性子反応でよく使用されている積分評価法 — スペクトルが既知である場で試料を照射し、得られた反応率と断面積データを使って計算した反応率を比較する — が適用できることは前論文²⁾でもふれている。本論文では、この積分評価をより精度よく行う為に、核理研の電子リニャックを使用し、C, Mn, Fe, In, Au の光核反応について行った結果を報告する。

§2. 実 験

実験は核理研の電子リニャックの r チャンネルを使用して行った。実験配置を第1図に示す。単色の電子ビームを厚さ 2.38 cm の鉄ターゲットに照射し、発生した制動放射で、ターゲット後面から 60 cm の位置に置かれた試料に照射する。使用した電子ビームは、エネルギーが 18-, 22-, 26-, 30- MeV で $\Delta E = 1.4\%$ 、ビーム径 3 mm のビームである。試料としては、C, Mn, Fe, In, Au を使用した。これら試料及び、その光核反応に関する物理的情報は第1表



第1図 実験配置

第1表 放射化検出器の物理的情報

Detector	Thickness (cm)	Diameter (cm)	Reaction	Isotopic Abundance (%)	Threshold Energy (MeV)	Half-Life	Gamma-Ray Energy (MeV)	Branching Ratio
C	0.67	2.05	$^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$	98.89	18.7	20.4 min	0.511	2.0
Mn	0.17	2.50	$^{55}\text{Mn}(\gamma, n)^{54}\text{Mn}$	100	10.2	300 day	0.835	1.0
Fe	0.30	2.00	$^{54}\text{Fe}(\gamma, n)^{53}\text{Fe}$	5.84	13.6	8.51min	0.511	1.96
In	0.25	1.00	$^{115}\text{In}(\gamma, n)^{114\text{m}}\text{In}$	95.57	9.0	50 day	0.192	0.17
			$^{115}\text{In}(\gamma, \gamma')^{115\text{m}}\text{In}$	95.57	1.0	4.5 h	0.335	0.50
Au	0.01	1.00	$^{197}\text{Au}(\gamma, n)^{196}\text{Au}$	100	8.1	6.18day	0.356	0.94

に示されている。各試料は、ビーム軸に垂直に置かれた支持台上に、ビーム軸から半径 10 cm の同心円上に配置した。

試料中に生じた核種から出る γ 線は、24.1 cm³ の Ge(Li) 検出器及び波高分析器で測定した。飽和放射能は次式によって求められる。

$$A_i = \frac{\lambda_i C_p^i}{N_T \eta_i \epsilon_p^i \exp(-\lambda_i T_w) [1 - \exp(-\lambda_i T_{ir})] [1 - \exp(-\lambda_i T_c)]} \quad (1)$$

ここで、 λ_i は注目核種の崩壊定数、 η_i は崩壊あたりに放出される γ 線数(分岐比)、 N_T は試料中の注目する反応を起こすアイソトープの数、 C_p^i はピークカウント数、 ϵ_p^i は Ge(Li) 検出器のピーク検出効率、 T_w は待ち時間、 T_{ir} は照射時間、 T_c は測定時間をあらわす。 η_i は第1表に示されており、 λ_i は第1表に示された半減期から求められる。Ge(Li) 検出効率 η_p^i は、モンテカルロ計算コード REFUM-GE³⁾ によって計算した結果を使用した。(1)式から求めた飽和放射能 A_i^{exp} を、入射電子1個当りに規格化した形で第2表に示す。毎秒当りに入射した平均の電子数はファラディカップによって測定した。

試料を置いた位置の制御放射スペクトルは解析的な計算によって求めた。使用した計算コード DIBRE⁴⁾ の精度は文献^{2),5)} にモンテカルロ計算の結果及び実験値との比較の形で示しているが、ターゲットの厚さが厚くて、角度の大きい場合に DIBRE の結果が多少小さめに出ることを除けば非常によく一致しており、積分評価のための基準計算として十分使用できる。DIBRE コードによって計算された制動スペクトル $\phi(E)$ と、対象となる光核反応の断面積データ $\sigma_i(E)$ を使用して、飽和放射能 A_i^{cal} は次式で与えられる。

第2表 入射電子1個あたりの飽和放射能の測定値

Iron Target ($\times 10^{32}$ electron $^{-1}$)				
Electron Energy	18 MeV	22 MeV	26 MeV	30 MeV
$^{12}\text{C} (r, n) ^{11}\text{C}$	—	$0.0404 \pm 0.4\%$	$1.07 \pm 0.1\%$	$2.38 \pm 0.1\%$
$^{55}\text{Mn} (r, n) ^{54}\text{Mn}$	$9.74 \pm 5.6\%$	44.3 ± 2.6	74.8 ± 1.4	105 ± 1.2
$^{54}\text{Fe} (r, n) ^{53}\text{Fe}$	0.968 ± 2.5	10.5 ± 1.0	28.2 ± 0.9	75.2 ± 0.6
$^{115}\text{In} (r, n) ^{114\text{m}}\text{In}$	58.2 ± 3.1	198 ± 1.3	295 ± 1.1	656 ± 0.7
$^{115}\text{In} (r, r') ^{115\text{m}}\text{In}$	2.74 ± 0.6	5.77 ± 0.6	8.02 ± 0.5	15.6 ± 0.5
$^{197}\text{Au} (r, n) ^{196}\text{Au}$	294 ± 0.8	446 ± 0.6	653 ± 0.5	665 ± 0.5

$$A_i^{\text{cal}} = \int_{E_{\text{th}}}^{E_0} \sigma_i(E) \phi(E) dE \quad (2)$$

各断面積データの精度は、 A_i^{exp} と A_i^{cal} の比、 R_i によって検討することができる。

$$R_i = A_i^{\text{exp}} / A_i^{\text{cal}} \quad (3)$$

§3. 結果と検討

上に述べた方法によって求めた R_i の値を $^{12}\text{C} (r, n) ^{11}\text{C}$, $^{55}\text{Mn} (r, n) ^{54}\text{Mn}$, $^{54}\text{Fe} (r, n) ^{53}\text{Fe}$, $^{115}\text{In} (r, n) ^{114\text{m}}\text{In}$, $^{115}\text{In} (r, r') ^{115\text{m}}\text{In}$, $^{197}\text{Au} (r, n) ^{196}\text{Au}$ について、第3表に示す。表中で Detector の欄に示されているのは文献中で使用された測定法を示すもので、ACTの場合には、光核反応によって生じた放射能を測定することによって求められており、BF3の場合には、光核反応に際して生じる中性子の測定から求められたものであることをあらわしている。

2種類以上の断面積データを比較している反応では、新しいデータの方が相対的に良い結果を示していることがわかる。又、中性子を測定する方法で得られたデータについては、電子エネルギーが高くなるにつれて R_i の値が小さくなり、精度が悪くなるという傾向を示しているが、これはこの測定方法では (r, n) 反応と (r, np) 反応を区別することができない為、 (r, np) 反応の閾エネルギー以上の制動放射に対しては $\{ (r, n) + (r, np) \}$ 反応の断面積が (r, n) 反応断面積として用いられたことによるものと考えられる。又、 $^{115}\text{In} (r, n) ^{114\text{m}}\text{In}$ 反応の場合には、電子エネルギーが 30MeV の時に R_i が大きくなり見かけ上精度が良い様にみえるが、これは、入射エネルギーの増大と共に熱中性子が増加し、 $^{113}\text{In}(n,$

第3表 飽和放射能の計算値と実験値の比, $R_i = A_i^{\text{exp}}/A_i^{\text{cal}}$

Reaction	Reference	Detector	Electron Energy				(γ, np) Separation energy (MeV)
			18MeV	22MeV	26MeV	30MeV	
$^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$	6	ACT*	—	1.205	1.09	0.824	27.4
	7	BF3**	—	0.757	0.931	—	
	8	BF3	—	1.492	1.189	0.914	
	9	BF3	—	1.418	1.156	—	
$^{55}\text{Mn}(\gamma, n)^{54}\text{Mn}$	10	BF3	0.575	0.810	0.598	—	17.8
	11		0.595	0.875	0.654	0.609	
$^{54}\text{Fe}(\gamma, n)^{53}\text{Fe}$	12	ACT	0.542	0.783	0.722	1.12	20.9
$^{115}\text{In}(\gamma, n)^{115\text{m}}\text{In}$	13	BF3	0.448	0.511	—	—	15.9
	14	BF3	0.603	0.672	0.586	1.00	
$^{115}\text{In}(\gamma, \gamma')^{115\text{m}}\text{In}$	15	ACT	0.829	1.00	0.852	0.995	
$^{197}\text{Au}(\gamma, n)^{196}\text{Au}$	16	BF3	0.743	0.553	0.529	—	13.7
	17	BF3	0.842	0.628	0.608	0.476	

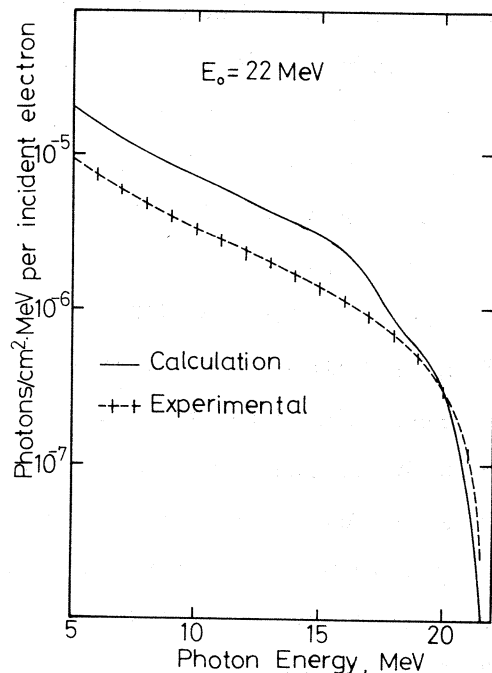
* ACT : Measurement of radioactivity of the target

** BF3 : FF₃ neutron counter with moderator

γ) $^{114\text{m}}\text{In}$ による影響が無視できなくなる為である。このことは、 $^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116}\text{In}$ 反応の飽和放射能が入射エネルギーが 26MeV から 30 MeV に変わると約 1.8 倍になっていることによってわかる。

第2図に、この評価の結果、比較的良い精度を示している断面積データを使用して直交級数展開法によって求めたスペクトルと、DIBRE による計算値との入射電子エネルギーが 22 MeV の場合の比較を示す。積分評価の結果から予想された様に、断面積データが過大評価されていることから、実験値は計算値よりも小さくなっている。

今回の積分評価の結果から、光核反応断面



第2図 22MeVの電子が入射した時、検出器の位置での制動放射スペクトルの実験値と計算値の比較

積の評価を行う場合には、 (r, np) 等の影響のない形で測定された断面積データについて行わなければ正確な評価ができないこと、光核反応をスペクトル展開に使用する立場から見た場合には、準安定レベルの同位元素を生じる確率があることから、 (r, n) 反応の断面積だけでなく、注目する核種を生じる断面積を求める必要があることが明らかになった。従って、Activation法によって光核反応断面積を精度よく測定することが必要である。

本実験を行うにあたり、協力していただいた東北大学原子核理学研究施設の斎藤悌二郎氏及び近藤健次郎氏に深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) H. Hirayama and T. Nakamura : Nucl. Sci. Eng. **50** (1973) 248.
- 2) T. Nakamura and H. Hirayama : Nucl. Sci. Eng. **59** (1976) 237.
- 3) T. Nakamura : Nucl. Instrum. Methods **131** (1975) 521.
- 4) T. Nakamura, M. Takemura, H. Hirayama and T. Hyodo : J. appl. Phys. **43** (1972) 5189.
- 5) H. Hirayama : Doctor Thesis, Faculty of Engineering, Kyoto Univ., September (1976).
- 6) J. H. Carver and K. H. Lokan : Australian J. Phys. **10** (1957) 312.
- 7) E. B. Bazhanov, A. P. Komar, A. V. Kulikov and V. I. Ogurtsov : Sov. J. Nucl. phys. **3** (1966) 522.
- 8) S. C. Fultz, J. T. Caldwell, B. L. Berman, R. L. Bramblett and R. R. Harvey : Phys. Rev. **143** (1966) 790.
- 9) B. S. Ishkanov, I. M. Kapitonov, I. M. Piskarev and V. G. Shevchenko : Sov. J. Nucl. Phys. **14** (1972) 142.
- 10) R. W. Parsons : Can. J. Phys. **37** (1959) 1344.
- 11) R. A. Alvarez, B. L. Berman, F. H. Lewis and P. Meyer : UCRL-74461, *Proc. Intern Conf. Photoneuclear Reactions and Applications* (1973).
- 12) J. H. Carver and K. H. Lokan : Australian J. Phys. **10** (1957) 312.
- 13) O. V. Bogdankevich, B. I. Goryachev and V. A. Zapevalov : Soviet Phys. JETP **15** (1962) 1044.

- 14) S. C. Fultz, B. L. Berman, J. T. Caldwell, R. L. Bramblett and M. A. Kelly : Phys. Rev. **186** (1969) 1255.
- 15) O. V. Bogdankevich, L. E. Lazareva and F. A. Nikolacv : Soviet Phys. JETP **4** (1957) 320.
- 16) S. C. Fultz, R. L. Bramblett, J. T. Caldwell and N. A. Kerr : Phys. Rev. **127** (1962) 1273.
- 17) A. Veyssiere, H. Beil, R. Bergere, P. Carlos and A. Lepretre : Nucl. Phys. **A159** (1970) 561.

III-4 TOPOの液-液分配係数

選研 秋葉健一・菅野卓治

§ 1. 緒 言

trioctyl phosphine oxide (TOPO) は強い配位能を有することから特に大きな協同効果をもたらし、その平衡定数は溶媒の種類により大きく変わることを見つけた¹⁾。溶媒の影響を検討するにあたって、TOPO自身の有機相-水相間の分配挙動を知ることが必要である。

水相へ分配した微量のTOPOを協同効果を利用して付加錯体として有機相に抽出し、その放射能測定によるTOPOの定量法を検討する。

種々の有機溶媒-水溶液間のTOPOの分配係数を求めて、溶解度パラメーターによる整理を試みる。

§ 2. 実 験

i) TOPOの分配(平衡I)

実験の概要を第1図に示す。濃度既知のTOPO有機溶液と過塩素酸水溶液($\mu = 0.1$)を平衡させた後、遠心分離し、水相の一定容をとり、TOPO定量の試料とする。

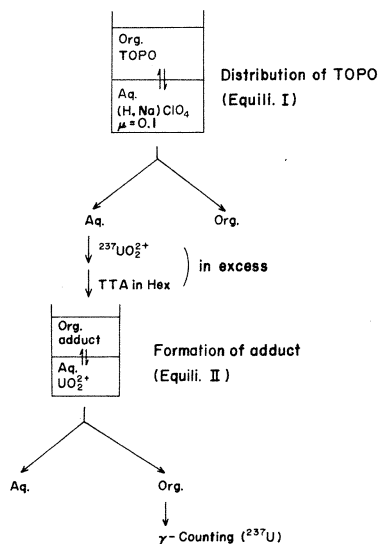
ii) TOPOの定量

平衡Iの試料に ^{237}U をふくむ過剰のウラニルを加えTTA-ヘキサン溶液とふりませる(平衡II)。

有機相の一定容をとり、井戸型シンチレーションカウンタで ^{237}U の γ -放射能を測定する。濃度既知のウラニルの標準溶液と比較してTOPO濃度を求める。

この際TOPOをふくまないTTAのみによるブランク抽出を補正する。

なお、TOPOの分配は約5時間、また付加体の抽出は約1時間のふりませで平衡に到達する。



第1図 Experimental procedures.

§ 3. 結果と考察

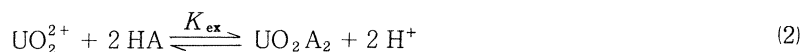
3.1 協同効果の利用

TOPO の二相間分配は、

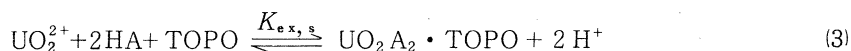


P_{TOPO} は TOPO の分配係数である。

一方、ウラニル-TTA キレート抽出は、



また、協同効果による抽出平衡は、



協同効果を利用して TOPO を定量するためには、i) たゞ一種の付加錯体が支配的でその組成が明らかなこと、ii) 付加錯体の安定度が大きく定量的に反応が進行すること、iii) 付加錯体のみ抽出され、それ以外の化学種の抽出は起らないことが必要となる。

TOPO はウラニル-TTA キレートとは 1 : 1 付加錯体 $\text{UO}_2\text{A}_2 \cdot \text{TOPO}$ のみ生成し、その安定度も十分大きく、上記の i) および ii) の条件は満たされる。安定度の最も大きいヘキサン ($\log K_s = 9.58$) を溶媒とすれば、 $\log K_{\text{ex}} = -3.18$ および $\log K_{\text{ex},s} = 6.36$ であり、¹⁾ iii) を満たす実験条件の設定が可能であり、TOPO を付加錯体として有機相に抽出出来ると予想される。

3.2 定量条件

TTA の低濃度あるいは低 pH 領域では付加体の抽出は不完全となり、また TTA の高濃度あるいは高 pH では TTA のみによるブランク抽出が無視できなくなる。通常の抽出条件として、0.01 M TTA および pH は約 2 とし大過剰 (約 10^{-4} M) のウラニル濃度とした。

水相の TOPO をウラニルの付加錯体として有機相に抽出した結果を第 2 図に示す。TOPO は水に溶けにくいことから、あらかじめエタノールに溶解後所定の濃度に希釈した。1% 以下のエタノールの共存はウランの抽出に影響しない。

$10^{-5} \sim 10^{-7}$ M TOPO の実験領域で、第 2 図に示すような勾配 1 の直線となり、水相の TOPO と有機相中のウランの定量値は当量関係にあり、1 : 1 付加錯体として完全に抽出されていることが確かめられた。したがってこの領域で TOPO の定量が可能である。なお、TOPO のみによるウランの抽出は無視できる。

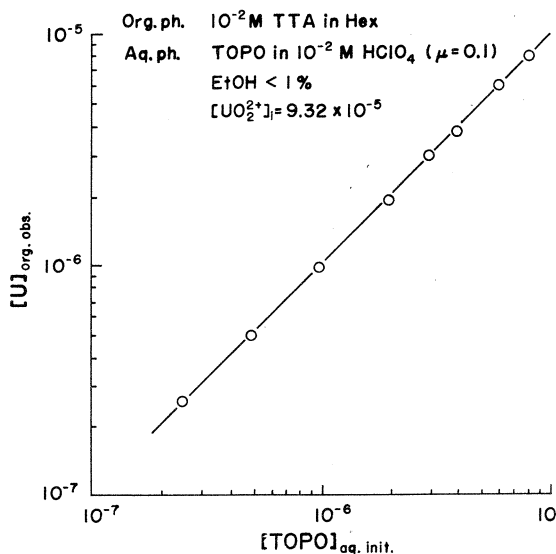
3.3 TOPOの分配

水相の pH (1 ~ 3) をかえて、
0.1 M TOPO 有機溶液と平衡させた
場合の分配比を第 3 図に示す。

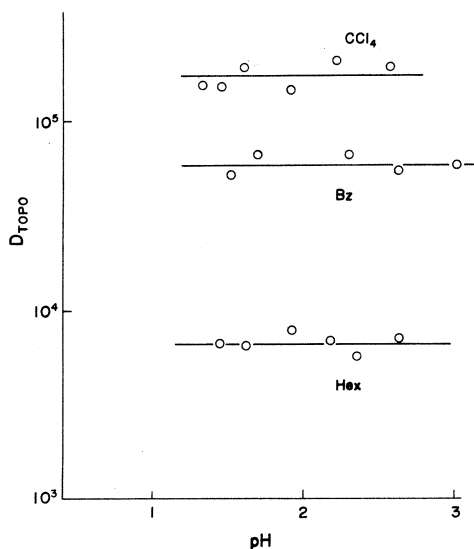
TOPO の分配比は pH の影響を受け
ずは一定値となる。

分配比の濃度依存性を調べた結果
を第 4 図に示す。各溶媒で TOPO
濃度に無関係には一定となり、
TOPO の自己会合などの副反応はな
く、TOPO のみが分配に関与してい
るとみられ、分配比は分配係数に等
しいとみなすことが出来る。

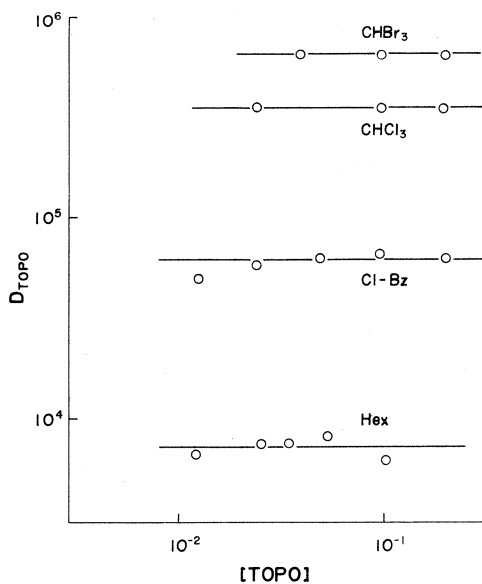
水相の TOPO 濃度が低下する程、



第 2 図 Determination of TOPO as the adduct complex.



第 3 図 Effect of pH on the distribution ratios of TOPO.
[TOPO]_{org, init} = 0.1 M



第 4 図 Effect of TOPO concentration on the distribution ratios.
pH = 2

定量誤差が大きくなることから、原則として 0.1 M TOPO 有機溶液と 10^{-2} M HClO_4 ($\mu =$

0.1) 水溶液との間の分配比を数個の試料について測定し、その平均値より分配係数を求め第1表に示す。log P_{TOPO} の値は最少のペンタンでの3.72から最大のプロモホルムでの5.77まで溶媒によって大きく変化することが認められる。

第1表 Distribution coefficient of TOPO.
25°C ; $\mu = 0.1$ (H, Na) ClO_4

Solvent	δ	log P_{TOPO}
Pentane	7.05	3.72
Hexane	7.3	3.83
Heptane	7.4	4.20
Cyclohexane	8.2	4.38
Methylene chloride	9.7	5.56
Chloroform	9.3	5.51
Carbon tetrachloride	8.6	5.24
Bromoform	10.5	5.77
Benzene	9.15	4.78
Toluene	8.9	4.38
Isopropylbenzene	8.5	4.48
Chlorobenzene	9.5	4.81
o-Dichlorobenzene	10.0	5.15

3.4 溶解度パラメーターによる整理

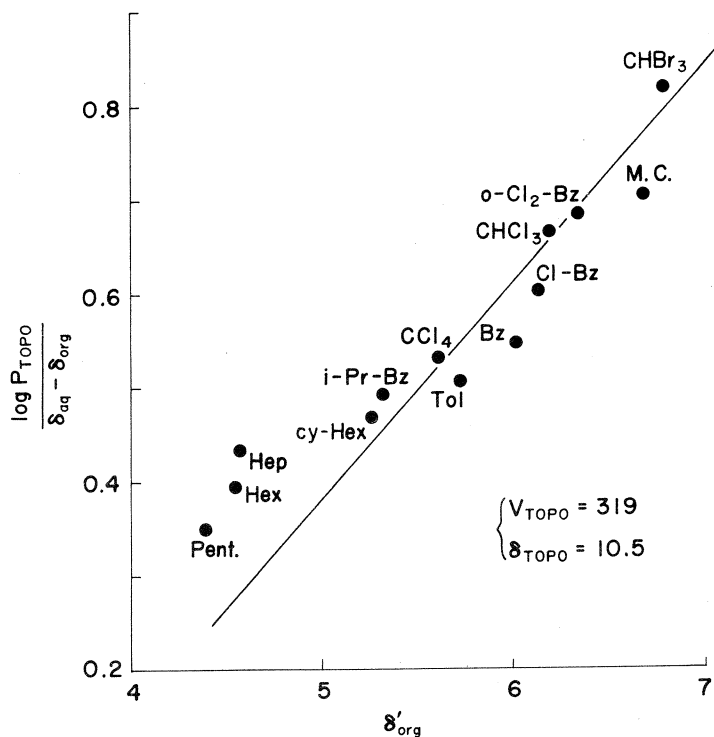
TOPOの分配係数に対して正則溶液で近似した取扱いが可能ならば、 β -ジケトンの場合と同様に次式にしたがって溶解度パラメーター(δ)を用いて整理できると考えられる。²⁾

$$\frac{\log P_{\text{TOPO}}}{\delta_{\text{aq}} - \delta_{\text{org}}} = \frac{V_{\text{TOPO}}}{2.303RT} (\delta_{\text{aq}} + \delta'_{\text{org}} - 2\delta_{\text{TOPO}}) \quad (4)$$

$$\delta'_{\text{org}} = \delta_{\text{org}} + \frac{RT}{\delta_{\text{aq}} - \delta_{\text{org}}} \left(\frac{1}{V_{\text{org}}} - \frac{1}{V_{\text{aq}}} \right)$$

V は分子容で添字aq, orgはそれぞれ水相および有機相を示す。

測定された分配係数を(4)式にしたがって整理し、 δ'_{org} に対してプロットすると第5図に示す結果が得られる。ここで直線の勾配はTOPOの密度から求めた分子容($V_{\text{TOPO}} = 319 \text{ ml}$)によった。測定値はほぼ直線に近い値を示し、近似的に(4)式によって溶媒による分配係数の変化は説明できる。この直線の切片からTOPOの溶解度パラメーターは $\delta_{\text{TOPO}} = 10.5$ と見積られる。



第5図 Correlation between the distribution coefficients and solubility parameters.

る。第5図においてヘプタン等で正のずれが認められ、これらの溶媒中でのTOPOの水和の少ないことを示していると推測されるが、TOPOの存在状態は必ずしも明確ではない。

参 考 文 献

- 1) 秋葉健一：核理研研究報告 **4** (No. 2) (1972) 143.
- 2) T. Wakahayashi, S. Oki, T. Omori and N. Suzuki : J. Inorg. Nucl. Chem. **26** (1964) 2255.

III-5 光核反応収率の励起エネルギー依存性 ——光量子放射化分析の感度と妨害

理学部化学

加藤豊明・榎本和義・鈴木信男

§ 1. 序 論

高エネルギーガンマ線による放射化分析は多元素同時定量法のひとつの有効な手段であり、既に岩石¹⁾、生物体²⁾、エアロゾル³⁾などの分析に利用されてきている。

電子ライナックによる加速電子の制動輻射を線源として利用する際、加速エネルギーなどの照射条件は定量目的元素についてなるべく高感度でかつ副反応による妨害が少なくなるように設定すべきであり、副反応の寄与についてあらかじめ知っておくことが必要である。

東北大学のライナックは20～300 MeVの可変エネルギー電子ビームの加速装置として設置されたものであるが、50～60 MeVのエネルギー領域でビーム発生効率は最大となり、高い電流値を与え、感度の点からはこの附近のエネルギーを選ぶのが良い。しかし、同時に他の元素からの多粒子放出反応により分析目的とする核種と同一の核種が生成し、その生成量はエネルギーが高くなるとともに著しく増加するから、これを精密に補正する方法が検討されない限り実試料への適用が難しくなる場合が考えられる。

光核反応で生じる残留核の核データを中性子や荷電粒子によるものと比較すれば、本法により特異的に定量できる幾つかの元素をあげることができる。そこで本研究では多元素分析の基礎条件を検討する目的で、これらの元素とその近傍の諸元素をいくつか選び、それらについて各種光核反応収率の励起エネルギー依存性を残留核法で調べ、その結果をもとに、感度と妨害を考察する基礎となる主反応と副反応の相対生成量を論じ、2・3の組成の異なる実試料におけるそれらの妨害の程度を検討した。また、光中性子による二次反応の寄与についても若干の考察を行なった。

残留核法による光核反応収率の測定は、通常収率値既知の反応をモニターとしてそれとの相対収率から絶対値に換算する方法がとられる。最初に光核反応収率の算出の基礎となる基準反応について検討を行なった。従来、光核反応に関する研究は20 MeV付近の巨大共鳴領域と数100 MeVでの破砕反応、(τ , π)反応などに比較的集中しており、本研究で着目している中間エネルギー領域における光核反応収率の絶対値の測定に関する文献はあまりみられない。そ

ここで炭素と銅の(γ , n)反応についての若干の文献値を基に, 基準となる収率値を算出し, 以後の実験において求めた個々の核反応については相対収率から絶対値への換算を行なった。

実験で検討した核反応のうち主なものを第1表に示す。右欄には実際の分析で副反応として妨害となると考えられる光核反応や中性子による反応の例をあげている。

第1表 Pertinent nuclear data.

Element	Reaction	(-Q, MeV)	$T_{1/2}$	Principal γ -ray (keV)	Major competing reaction	
					photon (-Q, MeV)	neutron
Mg	$^{25}\text{Mg}(\gamma, p)^{24}\text{Na}$	(12.06)	15.0h	1369	$^{27}\text{Al}(\gamma, 2pn)^{24}\text{Na}$ (31.45)	$^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$
Ti	$^{48}\text{Ti}(\gamma, p)^{47}\text{Sc}$	(11.44)	3.43d	160	$^{51}\text{V}(\gamma, \alpha)^{47}\text{Sc}$ (10.27) $^{48}\text{Ca}\left[\begin{matrix} (\gamma, n) \\ (\gamma, p) \end{matrix}\right]^{47}\text{K} \xrightarrow{\beta^-} ^{47}\text{Ca} \xrightarrow{\beta^-} ^{47}\text{Sc}$ (10.07)	
Cr	$^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$	(12.05)	27.8d	319	$^{56}\text{Fe}(\gamma, \alpha n)^{51}\text{Cr}$ (19.68)	$^{54}\text{Fe}(n, \alpha)^{51}\text{Cr}$
Mn	$^{55}\text{Mn}(\gamma, n)^{54}\text{Mn}$	(10.22)	30.3d	835	$^{56}\text{Fe}(\gamma, pn)^{54}\text{Mn}$ (20.42)	$^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$
Fe	$^{57}\text{Fe}(\gamma, p)^{56}\text{Mn}$	(10.57)	2.576h	847	$^{59}\text{Co}(\gamma, 2pn)^{56}\text{Mn}$ (27.98)	$^{55}\text{Mn}(n, \gamma)^{56}\text{Mn}$
Zr	$^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr}$	(11.98)	78.4h	913	$^{94}\text{Mo}(\gamma, \alpha n)^{89}\text{Zr}$ (14.04)	$^{92}\text{Mo}(n, \alpha)^{89}\text{Zr}$
Nb	$^{93}\text{Nb}(\gamma, n)^{92\text{m}}\text{Nb}$	(8.82)	10.16d	934	$^{94}\text{Mo}(\gamma, pn)^{92\text{m}}\text{Nb}$ (17.32)	$^{92}\text{Mo}(n, p)^{92\text{m}}\text{Nb}$
Hg	$^{204}\text{Hg}(\gamma, n)^{203}\text{Hg}$	(7.84)	46.9d	$\beta^- \rightarrow 279$	$^{207}\text{Pb}(\gamma, \alpha)^{203}\text{Hg}$ (-0.42)	
Tl	$^{203}\text{Tl}(\gamma, n)^{202}\text{Tl}$	(7.86)	12d	439	$^{204}\text{Pb}(\gamma, pn)^{202}\text{Tl}$ (14.46)	
Pb	$^{204}\text{Pb}(\gamma, n)^{203}\text{Pb}$	(8.20)	52.1h	$\text{EC} \rightarrow 279$	$^{209}\text{Bi}(\gamma, p5n)^{203}\text{Pb}$ (40.93)	

§ 2. 収率計算

光核反応収率は反応断面積および制動放射のエネルギースペクトルを用いて次式のように表わされる。

$$Y_{R^{-1}\text{mole}^{-1}} = N_0 \int_0^{E_{\max}} \frac{\sigma \Phi}{k} dk \quad (1)$$

ここで N_0 : アボガドロ数

σ : 光核反応断面積 (cm²/atom)

$\int_0^{E_{\max}} \Phi(k, E_{\max}) dk$ は単位レントゲンあたりに規格化

当量光子当りの収率で表わせば,

$$\sigma_{\text{equiv. quanta}} = \int_0^{E_{\text{max}}} \frac{\sigma \phi}{k} dk / Q \quad (2)$$

$$\text{ここで } Q = \int_0^{E_{\text{max}}} \phi dk / E_{\text{max}}$$

制動輻射のスペクトルは Penfold - Leiss⁴⁾ が Schiff のエネルギー分布関数に基づいて作製した表を用いることができ、基準反応に選んだ $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)$ ^{64}Cu , $^{63}\text{Cu}(\gamma, n)$ ^{62}Cu および $^{12}\text{C}(\gamma, n)$ ^{11}C 反応の励起関数は Katz⁵⁾ および Barber⁶⁾ らの文献が利用できるから、これらの反応については(1)または(2)式により収率計算が可能である。

光核反応収率は、従来、単位レントゲンあたり、加速電子1ヶあたり、あるいは当量光子あたりの値として表示されてきた。電子1ヶあたりの場合、制動輻射に変換後のスペクトルは加速エネルギーやコンバーターの種類・形状により変化し、特に照射系の幾何学的配置により収率が異なることになるという点で光核反応を論じるとき一般的とはいえない。また $\text{mole}^{-1}\text{R}^{-1}$ の表示による場合、高エネルギー領域での“Röntgen”として測定される物理量の意味に疑問が残り、更に高エネルギー領域における種々の過程に起因する光核反応の寄与が収率値にただちに反映しにくく、後述のように巨大共鳴ピークから約7 MeV を越えたところで収率値は減少をはじめめる。現在では高エネルギー領域において光核反応の収率として当量光子あたりで表示することが一般的になってきており、我々はその後の収率については当量光子あたりを用いて表わすことにした。又、計算でそれぞれの定義による値を求めておけば、収率値の相互変換は容易であり、従来得られていた種々の反応収率の相互比較も容易となる。

残留核を測定し、収率を算出する方法は、同時に競合して起こる種々の反応についての情報をただちに求めうるという点で優れているが、本実験では放射化分析の基礎条件を検討する目的で行っており、単一同位体組成の元素や濃縮ターゲットを用いていない。天然同位体組成のターゲットを用い、残留核法で個々の反応収率を求めようとする場合には、異なる親核から同一の残留核が生じることが考えられ主反応の選定に留意しなければならない。

すなわち、残留放射能の測定により収率は、

$$Y = \frac{D}{N \cdot I (1 - e^{-\lambda t})} \quad (3)$$

ただし、 D : 照射終了時での壊変率、 N : ターゲット親核の数、 I : 単位時間あたりのビーム強度、 t : 照射時間

本研究では着目した主反応のみから残留核が生成したとして収率を算出しているが、この場

合、実験値 (Y'_0) と真の光核反応収率の間には

$$Y'_0 = Y_0 \left\{ 1 + \sum \left(\frac{Y_i}{Y_0} \right) \left(\frac{\theta_i}{\theta_0} \right) \right\} \quad (4)$$

の関係がある。 Y'_0 は副反応 (Y_i) の寄与により、真の値 Y_0 にくらべて大きな値を示すことになる。その増加率 $\sum \left(\frac{Y_i}{Y_0} \right) \left(\frac{\theta_i}{\theta_0} \right)$ は副反応と主反応との相対収率 (Y_i / Y_0) と、それら反応の親核の同位体存在度の比 (θ_i / θ_0) を考慮することによりある程度見積もることができる。今回の一連の収率値の算出においては一般に副反応が著しい誤差をもたらす例は少なかった。また、同じ質量数系列の残留核からの流れこみの寄与については、測定や計算の際に留意して補正した。

§ 3. 実 験

3.1 照 射

東北大学電子ライナックの I 系加速を利用し、電子加速エネルギーを 30~70 MeV まで約 10 MeV 毎に変化させて行なった。加速電子は水冷ターゲットホルダー内の厚さ 2 mm の白金板によって制動輻射に変換し、直後に試料をおいて照射した。

3.2 試 料

試料は高純度の金属又は酸化物の一定量を用いた。金属板は直径 6 mm に打ち抜いたディスク状のものであり、粉末試料はアルミフォイルで 2 重に包んで直径 6 mm のペレット状に成型した。それらターゲット試料は両側を線量モニターとして銅の薄片 (約 10 mg, 直径 6 mm) ではさみ石英管に封じ込み照射に供した。

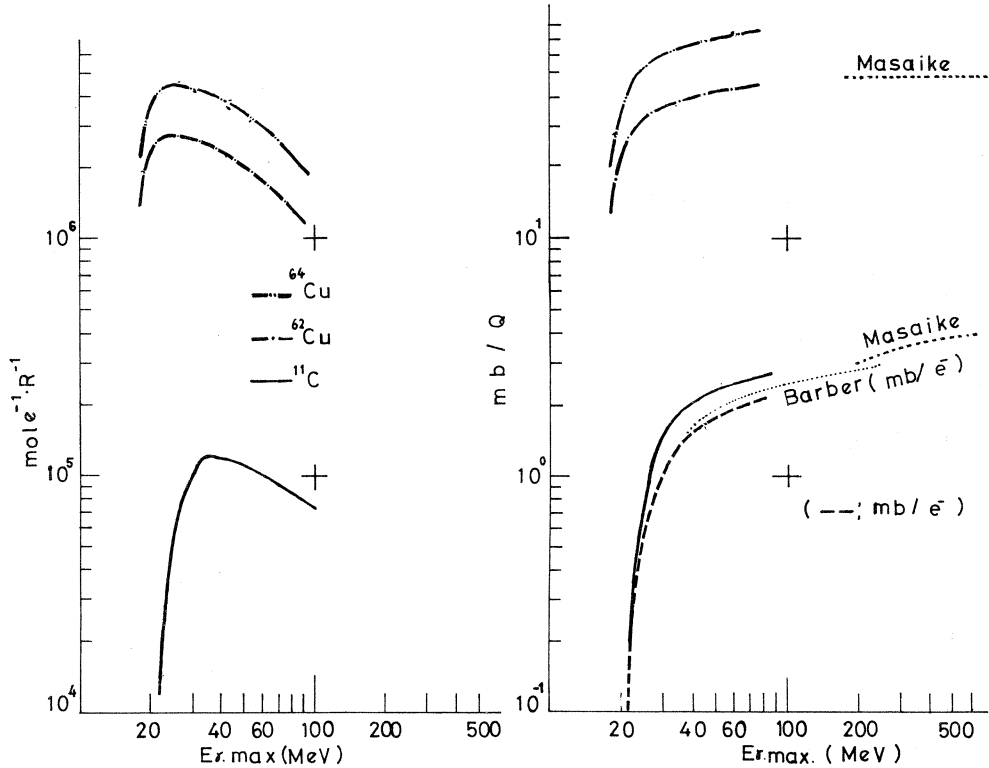
3.3 測 定

測定は 33 cm^3 又は 68 cm^3 Ge (Li) 半導体検出器と 1024 チャンネル、4096 チャンネル波高分析器を適宜組み合わせて行なった。試料の両側を厚さ 10 mm のルサイト板ではさんだ状態でガンマ線スペクトロメトリーした。核データ⁷⁾を参考に γ 線光電ピークのエネルギー、相対強度、半減期を求め核種の確認を行なったのち、最適ピークにより比放射能を求めた。

§ 4. 結果と考察

4.1 基準反応の収率

前述の基準反応について収率の計算結果を制動放射の最大エネルギーに対してプロットすると第1図のようになる。計算には Johns⁸⁾ らの方法も参考にし、1 MeV 毎の数値積分を行なっ



第1図 Yield curves for the $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$, $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$ and $^{63}\text{Cu}(\gamma, n)^{62}\text{Cu}$ reactions.

た。また Barber⁶⁾ らの実験値との比較のため $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ については Ta コンバータで1電子あたりについても計算を行なった。

mole⁻¹ R⁻¹ 表示による $^{63}\text{Cu}(\gamma, n)^{62}\text{Cu}$ 反応の収率は30MeV以下で Katz⁵⁾ らの文献結果をよく再現した。またその当量光子あたりの収率は高エネルギー側へ外挿すると正池⁹⁾ による200 MeV以上の値に良く一致すると思われ、以上から30~70 MeVの中間領域においてもその計算値は妥当であると考えられる。 $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ 反応の計算値は60 MeVで Barber⁶⁾ らの実験値より10%小さい値を示し、又、正池⁹⁾ の実験値ともそれほどのずれはみられなかった。

現在、各種の基準反応の相対収率について詳しく検討しており、これにより計算結果の妥当性を更に検討中である。また、線量の直接測定により収率値を求めることは今後の課題といえ

る。

4.2 各種光核反応収率

本実験で求めた収率値と制動輻射最大エネルギーとの関係(収率曲線)を以下に挙げ、その挙動を考察する。なお収率値は $^{65}\text{Cu}(r, n)^{64}\text{Cu}$ 反応との相対値として求め、第1図を用いて、当量光子あたりの収率値に換算したものである。

4.2.1 Na, Mg, Al (第2図)

比較的軽い核では (r, n) 、 (r, p) ともほぼ同程度の反応収率とエネルギー依存性を示す。 (r, pn) 、 $(r, \alpha n)$ はそれぞれ約一桁ずつ低い値を示し、この領域でのエネルギー依存性は顕著である。

^{27}Al からの ^{24}Na の生成は (n, α) 反応と光核反応の両方の寄与によるが、 $(r, 2pn)$ 反応のしきいエネルギー31.45 MeV以下では (n, α) 反応のみと考えると予想される $(r, 2pn)$ 反応の分は点線で示される。

4.2.2 Ca, Ti, V (第3図)

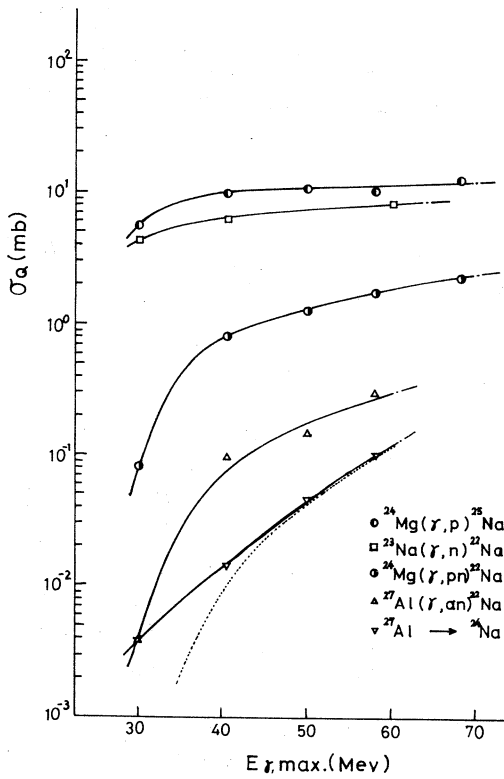
$^{48}\text{Ca}(r, n)^{47}\text{Ca}$ の収率は $^{48}\text{Ca}(r, p)^{47}\text{K} \xrightarrow{\beta^-} ^{47}\text{Ca}$ との和として求められる。後者の寄与はTiの (r, n) 、 (r, p) の相対収率から考えると30%程度あると思われるが、それを考慮しても高い。この反応は親核が陽子数・中性子数についてマジックであることから起こり難いと予想されたが、 ^{48}Ca が軽核では異常に中性子過剰で中性子の結合エネルギーが低いためと考えられる。

$^{47}\text{Ti}(r, p)^{46}\text{Sc}$ の場合、親核の存在度の高い ^{48}Ti から (r, pn) 反応により ^{46}Sc が生成するため、みかけ上、他の (r, p) 反応より特に高い値を示した。 ^{48}Ti と ^{49}Ti でみられるように (r, p) 反応は中性子過剰核になるほどおさえられている。 $^{47}\text{Ti}(r, p)^{46}\text{Sc}$ を他の (r, p) 反応収率と同程度と仮定して、この近傍で観測できない (r, pn) 反応を見積もると破線の様であり、30 MeVでやや高いと思われる他は傾向としてはほぼ妥当といえる。

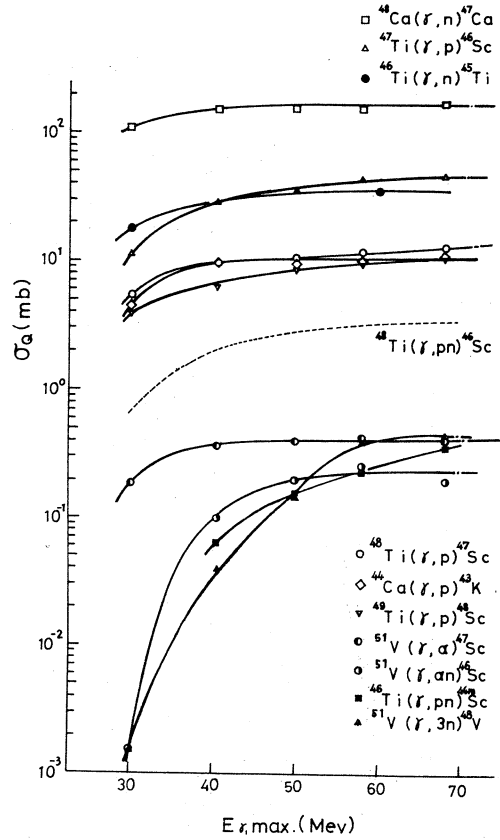
Tiの定量にはこれら (r, p) 反応を利用するが、Vからも同様に ^{46}Sc 、 ^{47}Sc が生成している。

4.2.3 Cr, Mn, Fe (第4図)

(r, n) 反応の収率は質量数依存性、エネルギー依存性ともに、この領域では顕著でなくなる。 ^{54}Mn 、 ^{51}Cr をそれぞれMn、Crの定量に用いるとき、天然に存在度の高いFeからそれぞれ (r, pn) 、 $(r, \alpha n)$ で ^{54}Mn 、 ^{51}Cr が生じて妨害となり、そのエネルギー依存性は大きい、また収率は (r, n) に対し (r, pn) 、 $(r, \alpha n)$ と各エネルギーで指数関数的に減少し



第 2 図 Reaction yields vs bremsstrahlung maximum energy
- Na, Mg and Al targets.



第 3 図 Reaction yields vs bremsstrahlung maximum energy
- Ca, Ti and V targets.

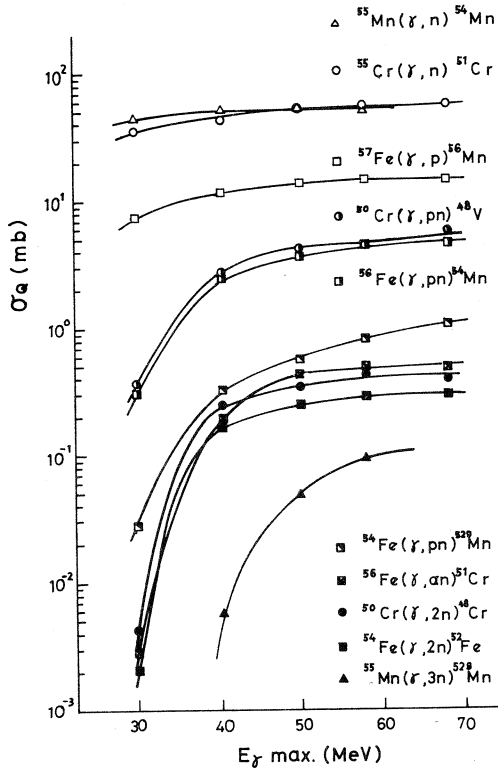
ている。

($r, 2n$) の収率曲線は ($r, \alpha n$) とほぼ同じ傾向を示している。

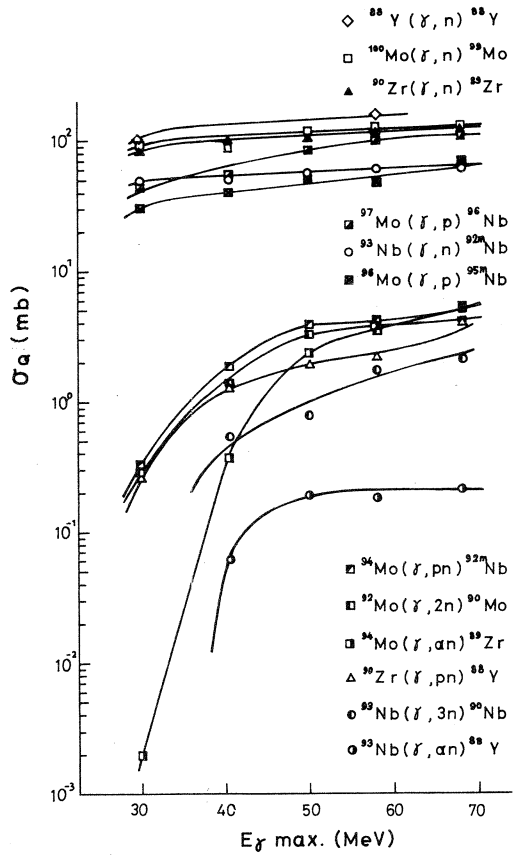
4.2.4 Zr, Nb, Mo (第 5 図)

荷電粒子放出反応の収率は、この領域でも依然として高く、クーロン障壁をこえる高エネルギーの荷電粒子の放出反応すなわち直接過程の寄与が増大するためと考えられる。一般に (r, xn) 型の多粒子放出反応の生成量が増加し、($r, 2n$) は (r, pn) とほぼ同じ収率を示している。

なお $^{94}\text{Mo}(r, \alpha n)^{89}\text{Zr}$ 反応には、副反応として ^{92}Mo からの (n, α) ($r, 2pn$) 反応、ならびに ($r, p2n$) ($r, 3n$) 反応残留核の壊変による流れこみの寄与が加算されたため、やや高い傾向を示したと考えられる。



第4図 Reaction yields vs bremsstrahlung maximum energy - Cr, Mn and Fe targets.

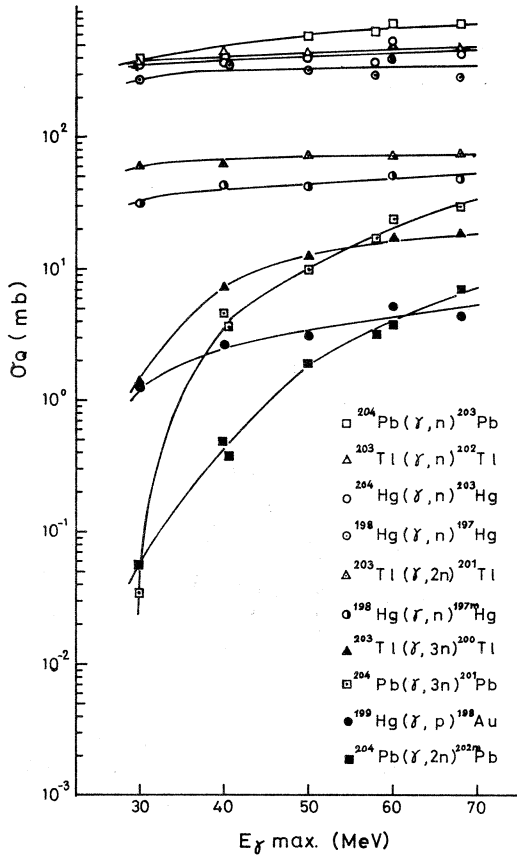


第5図 Reaction yields vs bremsstrahlung maximum energy - Zr, Nb and Mo targets.

4.2.5 Hg, Tl, Pb (第6図)

(r, xn) 型の多粒子放出反応にはさらに顕著な増加傾向がみられ、(r, n) に対して ($r, 2n$) は約10%, ($r, 3n$) は30 MeVで0.5%, 60 MeVで2%の相対収率を示す。したがって $^{204}\text{Pb}(r, n)^{203}\text{Pb}$ の場合、存在量の多い ^{206}Pb から ($r, 3n$) による ^{203}Pb 生成の寄与が60 MeVで約50%あると考えられ、収率曲線は他の (r, n) 反応よりみかけ上若干の上昇傾向を示している。同様に ^{204}Pb を親核とする場合の反応は、 ^{206}Pb からの寄与が考えられ、それが高エネルギー側での収率の上昇として現われている。

荷電粒子放出反応はクーロン障壁のためにおさえられ、直接的に妨害となる副反応は生じていない。



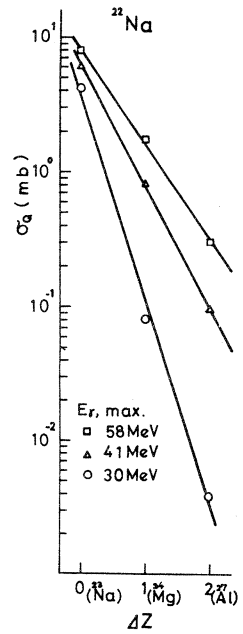
第6図 Reaction yields vs bremsstrahlung maximum energy
- Hg, Tl and Pb targets.

4.3 相対生成量および放射化分析での妨害の程度

以上の様に分析対象となる元素とその近傍元素でみられる種々の核反応について概観してきたが、とくに放射化分析を行なう際に妨害となる例に着目して考察する。

まず ^{22}Na を生成する反応について各エネルギーでの収率を原子番号の差を横軸にプロットしてみると、第7図のように収率は指数関数的に減少していることがわかる。この関係は経験的なものであるが、他の例¹⁰⁾にも認められており、未知の収率の予測にも役立つと思われる。

次に妨害量であるが、天然同位体組成の元素において、分析対象



第7図 Yields of ^{22}Na vs difference in atomic number

元素から生じる定量に利用する残留核の比放射能に対し、何倍量の妨害元素が存在すれば同一強度の放射能を与えることになるかを重量比として求めた。重量比が小さい程妨害の程度は大きいことを意味する。式で示すと

$$\text{重量比} = \frac{D_0}{D_i} = \frac{Y_0 \theta_0}{A_0} \bigg/ \frac{Y_i \theta_i}{A_i}$$

ここで o : 分析対象元素, i : 妨害元素, D : 比放射能, A : 原子量

θ : 親核の同位体存在度, Y : 核反応収率

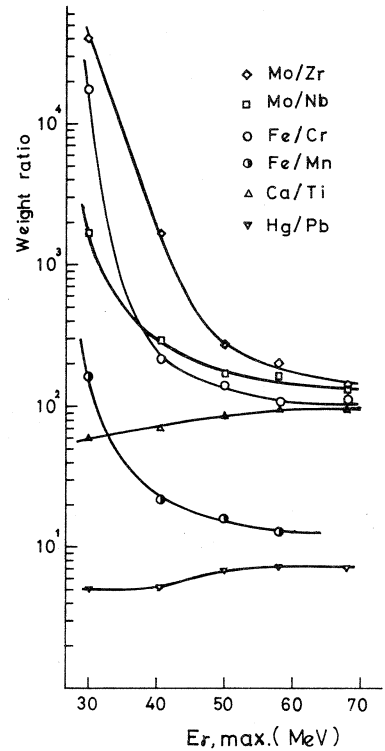
結果の一部を第8図に示した。一般にエネルギーが高くなると妨害の程度は大きくなることを示している。例外としてTiとPbの場合がある。Tiへの ^{48}Ca (r, n) $^{47}\text{Ca} \xrightarrow{\beta^-} ^{47}\text{Sc}$ による妨害は ^{47}Sc が放射平衡で最大放射能を示す時点の値を示したが、時間の経過とともにそれ以前では急激に、以後ではゆるやかに妨害の程度は増加する。(r, p)反応を利用するとき、妨害となる副反応が(r, n)であるため、エネルギーが高い方が妨害の程度はやや減少傾向を示している。

重核では競合反応による直接的妨害はクーロン障壁が高いために小さくおさえられているが、 ^{203}Hg は β^- 壊変し ^{203}Pb と同じ279 keVの準位におちるために相互妨害となる特殊な例である。妨害量は照射終了時で求めているが、時間の経過とともにより長寿命の ^{203}Hg の ^{203}Pb に対する妨害は大きくなる。又、 ^{203}Pb は ^{206}Pb からも生じるためエネルギーの高い方が妨害の程度は減少する。

図のような関係を各妨害例について求めておくことは、直ちに妨害の程度を知ることができ便利である。

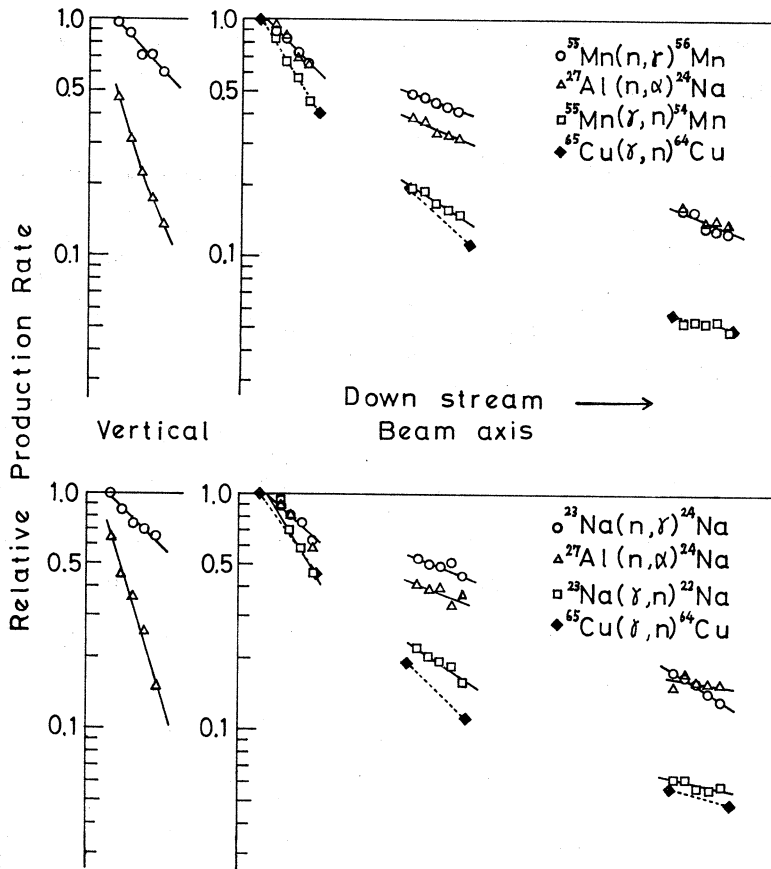
4.4 中性子反応の競合

以上の光核反応以外に、ターゲット系内に生じた光中性子に起因する(n, r)(n, α)(n, p)などの二次反応も考慮すべき場合がある。



第8図 Energy dependence of interference

ビーム軸方向およびコンバーターに垂直方向における中性子束の変化をみるため、30 MeV 1時間照射でのMn, Naの (n, γ) , Alの (n, α) 反応の生成量の変化を、ビーム軸先端(コンバーター直後)での比放射能を1としたときの相対値として、コンバーターからの距離を横軸にして示したのが第9図である。白金コンバーターに起因する中性子束はコンバーターに



第9図 Relative production rate of neutron reactions

垂直においたターゲットの中性子反応からみることができ、 (n, γ) についてはビーム軸方向のコンバーター直後と同じ比放射能を示しその減少傾向も類似している。このことは主な中性子発生源が白金コンバーターであり、また中性子はほぼ等方的に発生していることを意味している。又、ビーム軸方向ではガンマ線束の減少よりも中性子束の変化はゆるやかで、より遠距離的傾向を示しており、この傾向はMn, Naの場合とも同じである。このようにターゲットホルダー内の照射位置によって中性子反応の寄与が光核反応の場合と異なるために、実際の実験の場合には分析試料の位置で同時に中性子をモニターすることが必要である。40, 50, 60

MeV においても以上の結果と同様のことがいえ、電子加速エネルギーのちがいによる差はみられず、ビーム強度と中性子反応の相関性は顕著ではなかった。

4.5 多元素分析における妨害量

これまでの実験データをもとに実際の多元素共存試料に適用した場合について感度と妨害の程度を求めると第2表に示したようになる。

第2表 Sensitivity and interference in multielement photonactivation analysis.

(1) Orchard Leaves

Element to be detnd	Sensitivity ^a (μg) 30 MeV	Abundance Ratio ^b	Magnitude of Interference (%)		
			30MeV	40MeV	60MeV
Na	6.9	Mg/Na = 7.56×10^1	51.9	88.7	92.5
		Al/Na = 4.99	0.38	6.2	13.9
Mg	41	Al/Mg = 6.60×10^{-2}	3.1×10^{-2}	9.0×10^{-2}	5.6×10^{-1}
Mn	2.5	Fe/Mn = 3.30	2.0	13.0	20.2
Cr	—	Fe/Cr = 1.30×10^2	0.76	37.3	54.2
Zr	0.1	Mo/Zr = 1.54×10	7.3×10^{-2}	0.95	7.1
Pb	7.5	Hg/Pb = 3.4×10^{-3}	6.9×10^{-2}	6.7×10^{-2}	4.7×10^{-2}
Fe	170	Mn/Fe = 3.03×10^{-1}	9.77		
Mg	41	Na/Mg = 1.32×10^{-2}	5.9×10^{-5}		

a : $\geq 3\sqrt{\text{BG}}$, Irradiation Time: O. L. 2 hr, JB-1 5 hr, $33 \text{ cm}^3 \text{ Ge(Li)}$ detector

b : P. D. LaFleur¹¹⁾

A. Chattopadhyay, R. E. Jervis¹²⁾

c : A. Ando *et. al*¹³⁾

N. Sato *et. al*¹⁴⁾

第2表(続)

(2) JB-1

Element to be detnd.	Sensitivity ^a (μg) 30 MeV	Abundance Ratio ^c	Magnitude of Interference (%)		
			30 MeV	40 MeV	60 MeV
Na	82	Mg / Na = 2.25	2.83	17.7	26.7
		Al / Na = 3.70	0.28	4.69	10.7
Mg	37	Al / Mg = 1.65	0.78	2.2	12.1
Ti	3.8	Ca / Ti = 8.32	12.2	10.8	8.1
		V / Ti = 2.66×10^{-2}	1.2×10^{-1}	1.3×10^{-1}	1.3×10^{-1}
Mn	5.2	Fe / Mn = 5.41×10	31.1	71.1	80.6
Cr	13	Fe / Cr = 1.55×10^2	0.96	41.3	58.5
Zr	1.1	Mo / Zr = 1.5×10^{-1}	7.1×10^{-4}	9.4×10^{-3}	7.5×10^{-2}
Nb	0.5	Mo / Nb = 1.5	9.6×10^{-2}	0.53	0.95
Pb	-	Hg / Pb = 1.3×10^{-3}	2.6×10^{-2}	2.6×10^{-2}	1.7×10^{-2}
Y	1.0	Zr / Y = 6.00	0.83	-	4.1
		Nb / Y = 5.9×10^{-1}	-	-	6.7×10^{-2}
Fe	400	Mn / Fe = 1.85×10^{-2}	0.66		
Mg	37	Na / Mg = 4.45×10^{-1}	0.20		

実試料としては、元素存在量が既知の標準物質をえらび、生物体の例として NBS - Orchard Leaves¹¹⁻¹²⁾ 岩石の例として JB-1¹³⁻¹⁴⁾ について求めてみた。妨害の大きさは目的とする残留核放射能のうち何%が共存する妨害元素によるものかについて、30, 40, 60 MeVのそれぞれの場合での値を示した。30 MeV でも妨害が無視できない場合がみられ、正確な定量をするためには妨害の補正を施す必要がある。中性子による妨害は30 MeV の典型的な場合について求めた。また感度は60 MeV で30 MeV にくらべ一般に約3倍向上する。

§ 5. 結 語

放射化分析においては一般に競合核反応の妨害は重要な問題の一つであるが、光量子放射化

分析においてもこの問題は特に慎重な基礎的検討が必要であることは以上の研究結果から明らかである。利用する加速器と照射条件でいかなる競合反応がどの程度起こるかを正しく予知できなければ正確な分析結果は期待できない。この問題解決には本研究のような光核反応収率の励起エネルギー依存性の検討が不可欠であり、その結果を妨害曲線として求めておけば、実際の多元素共存試料の分析を実施する時に個々の妨害量の算定や補正が可能であるから極めて重要な資料とすることができる。

制動輻射による多元素放射化分析の報告は今までに数多くみられるが、この点に重点をおいた研究は少なく、本研究はこの分野のひとつの重要な指針を与えるものとする。

本研究にあたり、御助力を賜った東北大学原子核理学研究施設、八木益男助教授および近藤健次郎助手に厚く御礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) T. Kato, I. Morita and N. Sato : J. Radioanal. Chem. **18** (1973) 97.
- 2) T. Kato, N. Sato and N. Suzuki : Anal. Chim. Acta **81** (1976) 337.
- 3) T. Kato, N. Sato and N. Suzuki : Talanta **23** (1976) 517.
- 4) A. S. Penfold and J. E. Leiss : *Analysis of Photo Cross Sections* (Rept. Physics Res. Lab., Univ. Illinois, 1958).
- 5) L. Katz and A. G. W. Cameron : Canad. J. Phys. **29** (1951) 518.
- 6) W. C. Barber, W. D. George and D. D. Reagan : Phys. Rev. **98** (1955) 73.
- 7) C. M. Lederer, J. M. Hollander and I. Perlman : *Table of Isotopes* (Wiley, New York, 1967) 6th ed.
- 8) H. E. Johns, L. Katz, R. A. Douglas and R. N. H. Haslam : Phys. Rev. **80** (1950) 1062.
- 9) A. Masaïke : J. Phys. Soc. Japan **19** (1964) 427.
- 10) T. Kato, K. Masumoto, N. Sato and N. Suzuki : J. Radioanal. Chem. **32** (1976) 51.
- 11) P. D. LaFleur : J. Radioanal. Chem. **19** (1974) 227.
- 12) A. Chattopadhyay, R. E. Jervis : Anal. Chem. **46** (1974) 1630.
- 13) A. Ando, H. Kurasawa, T. Ohmori and E. Takeda : Geochem. J. **8** (1974) 175.
- 14) N. Sato, T. Kato and N. Suzuki : Radiochim. Acta **21** (1974) 63.

III-6 Impurity Diffusion in Aluminum*

K. Hirano and S. Fujikawa

*Department of Materials Science, Faculty of Engineering,
Tohoku University, Sendai, Japan.*

The diffusion of ^{198}Au , ^{64}Cu , ^{28}Mg , ^{65}Zn and ^{95}Zr in polycrystalline specimens of 99.999 % Al was studied by the residual-activity method. The impurity diffusion of Si in Al was investigated by means of interdiffusion. The activation energies for Au, Cu, Mg, Zn, Si and Zr are 1.39 ± 0.04 , 1.43 ± 0.05 , 1.19 ± 0.01 , 1.22 ± 0.01 , 1.42 ± 0.03 and 2.51 ± 0.07 eV, respectively. The pre-exponential factors are 2.20, 1.30, 0.0623, 0.177, 2.48 and 728 cm^2/sec , respectively.

The Arrhenius plot of the diffusivities of Zn in Al is linear over a wide temperature range between 165° and 645°C , showing no significant divacancy contribution to the volume diffusion in Al.

The difference in activation energy (ΔQ) between the impurity diffusion and the self-diffusion of Al was estimated by means of Le Claire's theory and the asymptotical screening potential. The theoretical values of ΔQ for non-transition elements reasonably agree in both sign and the order of magnitude with the experimental values.

§ 1. Introduction

The purposes of the present paper are to determine the dif-

* Read at the Int. Conf. *Properties of Atomic Defects in Metals*, in Argonne, on October 18-22, 1976, to be published in *J. Nucl. Mat.* (1977).

fusivities of various elements in Al and to estimate the difference in the activation energy (ΔQ) between the impurity diffusion and the self-diffusion of Al by means of Le Claire's theory¹⁾ and the asymptotical screening potential of the Blandin-Déplanté type.²⁾ Moreover, the theoretical values (ΔQ_{the}) were discussed in comparison with the experimental values (ΔQ_{exp}) and the values obtained by using the pseudopotential theory.^{3,4)}

§ 2. Experimental procedure

The experimental procedure was already described in detail elsewhere.⁵⁻⁹⁾ The diffusivities of ¹⁹⁸Au, ⁶⁴Cu, ²⁸Mg, ⁶⁵Zn and ⁹⁵Zr in polycrystalline specimens of 99.999 % Al were determined by the residual-activity method. The diffusivities of Si in Al were determined by means of interdiffusion. Carrier-free ²⁸Mg was prepared at our laboratory by using an electron linear accelerator.¹⁰⁾ The diffusion annealings of Au, Cu, Mg, Si, Zn and Zr in Al were carried out in the temperature ranges of 290°- 650°C, 375°- 619°C, 325°- 650°C, 480°- 620°C, 165°- 645°C and 531°- 640°C, respectively.

§ 3. Results and discussion

Fig. 1 shows the temperature dependences of the diffusivities obtained by the present authors and other workers. In this investigation, the activation energies for Au, Cu, Mg, Zn, Si and Zr are 1.39 ± 0.04 , 1.43 ± 0.05 , 1.19 ± 0.01 , 1.22 ± 0.01 , 1.42 ± 0.03 and 2.51 ± 0.07 eV, respectively, while the pre-exponential factors are $2.20^{+1.0}_{-0.7}$, $1.30^{+1.0}_{-0.8}$, $0.0623^{+0.0126}_{-0.0103}$, $0.177^{+0.047}_{-0.037}$, $2.48^{+0.88}_{-0.65}$ and 728^{+1040}_{-430} cm²/sec, respectively.

The Arrhenius plot of the diffusivities of Zn in Al was found to be linear over a wide temperature range, suggesting that the divacancy contribution to the volume diffusion in Al was insignificant.

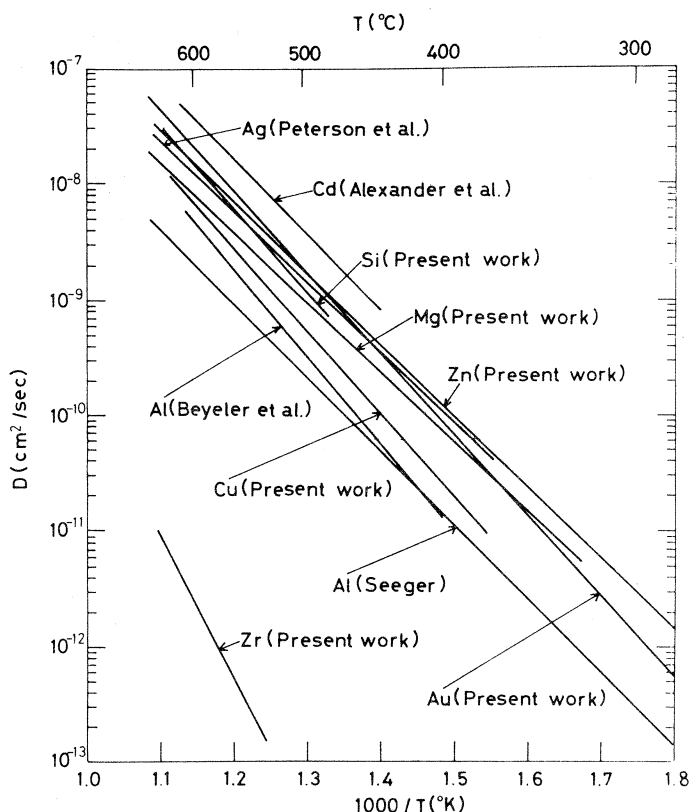


Fig.1. Comparison of diffusivities of Au, Cu, Mg, Si, Zn and Zr in aluminum with those of Ag, Cd and Al in Al.

The screening potential in the vicinity of each of various solute atoms in dilute Al alloys was calculated from the partial wave phase shifts (η_l) that were obtained from data on the impurity resistivity (ρ_{exp}).

In Table 1 the calculated values of η_0 , η_1 , α_0 , Φ , ΔH_f , ΔH_2 , ΔH_1 , ΔH_3^{av} , C and ΔQ_{the} (at 500°C) are shown for comparison with the values of ΔQ_{exp} obtained by the present authors and other workers. The value of ΔZ_{eff} represents the valence difference between the solute atom and the Al atom as modified for lattice dilation.²⁰⁾ The values of ΔQ_{the} in the table reasonably agree in sign and the order of magnitude with the values of ΔQ_{exp} . The values of ΔQ_{the} for the diffusion of Cd and Zn in Al are close to the values of

Table 1. Comparison of theoretical and experimental values of ΔQ for diffusion of Ag, Au, Cu, Mg, Zn, Cd and Si in aluminum.

	Ag	Au	Cu	Mg	Zn	Cd	Si
$(1/a) \cdot (da/dc)$	0.023 ^{a)}	—	-0.092 ^{a)}	0.094 ^{a)}	-0.017 ^{a)}	-0.15 ^{a)}	-0.042 ^{a)}
ρ_{exp} ($\mu\Omega \cdot \text{cm/at.}\%$)	1.0 ^{b)}	2.0 ^{c)}	0.83 ^{b)}	0.36 ^{d)}	0.24 ^{d)}	0.57 ^{b)}	0.72 ^{b)}
ΔZ_{eff}	-2.1	-2	-1.4	-1.6	-0.90	-0.068	1.3
η_0	-2.4	-0.11	3.5	-2.5	-0.59	0.55	3.3
η_1	-0.34	1.0	-0.43	≈ 0	-0.27	-0.22	-0.45
α_0	2.8	5.0	2.0	1.2	0.66	2.2	3.0
Φ (radians)	0.12	-1.1	-0.38	0.66	0.30	0.12	-0.37
ΔH_f (eV)	0.10	0.21	0.094	0.018	0.019	0.077	0.14
ΔH_2 (eV)	-0.42	-0.87	-0.38	-0.071	-0.077	-0.31	-0.15
ΔH_1 (eV)	-0.13	-0.072	-0.16	-0.047	-0.028	-0.15	-0.11
ΔH_3^{av} (eV) ^{e)}	-0.034	-0.16	-0.056	0.008	-0.005	-0.025	-0.085
$C^{\text{e)}$ (eV)	-0.11 ^{f, h)} -0.31 ^{g, h)}	-0.62 ^{f)} -0.86 ^{g)} -0.45 ^{f, i)} -0.68 ^{g, i)}	-0.18 ^{f)} -0.39 ^{g)} -0.15 ^{f, j)} -0.35 ^{g, j)}	-0.001 ^{f)} -0.021 ^{g)}	-0.002 ^{f)} -0.053 ^{g)}	-0.11 ^{f, k)} -0.30 ^{g, k)}	-0.04 ^{f)} -0.20 ^{g)} -0.009 ^{f, m)} -0.11 ^{g, m)}
$\Delta Q_{\text{the}}^{\text{e)}$ (eV)	-0.21 ^{f, h)} -0.010 ^{g, h)}	-0.044 ^{f)} 0.20 ^{g)} -0.21 ^{f, i)} 0.021 ^{g, i)}	-0.11 ^{f)} 0.10 ^{g)} -0.14 ^{f, j)} 0.064 ^{g, j)}	-0.052 ^{f)} -0.032 ^{g)}	-0.056 ^{f)} -0.005 ^{g)}	-0.12 ^{f, k)} 0.067 ^{g, k)}	0.030 ^{f)} 0.19 ^{g)} 0.005 ^{f, m)} 0.10 ^{g, m)}
ΔQ_{exp} (eV)	-0.29 ^{f, h)} -0.06 ^{g, h)}	-0.11 ^{f)} 0.12 ^{g)} -0.29 ^{f, i)} -0.06 ^{g, i)}	-0.070 ^{f)} 0.16 ^{g)} -0.10 ^{f, j)} 0.13 ^{g, j)}	-0.31 ^{f)} -0.08 ^{g)}	-0.28 ^{f)} -0.05 ^{g)}	-0.21 ^{f, k)} 0.02 ^{g, k)}	-0.08 ^{f)} 0.15 ^{g)} -0.22 ^{f, m)} 0.01 ^{g, m)}

a) Pearson¹¹⁾; b) Fickett¹²⁾; c) Fujikawa¹³⁾; d) Takamura¹⁴⁾; e) The value was calculated at 500°C; f) using $D_0^{\text{self}} = 2.25 \text{ cm}^2/\text{sec}$ and $Q_{\text{self}} = 1.50 \text{ eV}^{15)}$; g) $D_0^{\text{self}} = 0.045 \text{ cm}^2/\text{sec}$ and $Q_{\text{self}} = 1.27 \text{ eV}^{16)}$; h) using $D_0^{\text{Ag}} = 0.118 \text{ cm}^2/\text{sec}$ and $Q_{\text{Ag}} = 1.21 \text{ eV}^{17)}$; i) using $Q_0^{\text{Au}} = 0.131 \text{ cm}^2/\text{sec}$ and $Q_{\text{Au}} = 1.21 \text{ eV}^{17)}$; j) using $D_0^{\text{Cu}} = 0.647 \text{ cm}^2/\text{sec}$ and $Q_{\text{Cu}} = 1.40 \text{ eV}^{17)}$; k) using $D_0^{\text{Cd}} = 1.04 \text{ cm}^2/\text{sec}$ and $Q_{\text{Cd}} = 1.29 \text{ eV}^{18)}$ and m) using $D_0^{\text{Si}} = 0.346 \text{ cm}^2/\text{sec}$ and $Q_{\text{Si}} = 1.28 \text{ eV}^{19)}$.

ΔQ_{the} obtained according to the pseudopotential theory.^{3,4)} However, the values of ΔQ_{the} and ΔQ_{exp} for the diffusion of Mg in Al in this work are different in sign and order of magnitude from the value of ΔQ_{the} .³⁾ Moreover, the calculated value of C for the diffusion of Ag in Al agrees with the experimental value of C (-0.069 eV).²¹⁾

From our extensive studies, it is expected that the impurity-vacancy binding energy for non-transition elements in the present work in Al would be small.

The values of Q and D_0 for the diffusion of Zr in Al are much larger than those of non-transition elements in Al. The values of diffusivity for Zr in Al are about three orders of magnitude lower than those of the self-diffusion of Al. To explain such abnormal behavior of Zr in Al, it is essential to obtain a reliable parameter for determining the screening potential in the vicinity of the Zr atom impurity in Al. The origin of the large values of D_0 for the diffusion of Zr in Al is still unknown, which should be an interesting subject of future study.

Acknowledgements

The authors acknowledge Mr. Y. Fukushima for his help of the experimental work of interdiffusion. The authors would like to express their thanks to the Linac machine and radioisotope groups at the laboratory of Nuclear Science, Tohoku University for the facilities of the preparation of ²⁸Mg. This work was supported partly by the Light Metals Educational Foundation and Sumitomo Electrical Industry Co. One of the authors (S. F.) is grateful to Fujikawagumi Co. for a research grant.

References

- 1) A. D. Le Claire: *Phil. Mag.* **7** (1962) 141.
- 2) A. P. Blandin and J. L. Déplanté: *J. Phys. Chem. Solids.*

- 26** (1965) 381.
- 3) A. R. Du Charme and G. K. Straub: *phys. stat. sol.* (b) **69** (1974).
(1975) K23.
 - 4) P. S. Ho and R. Benedeck: IBM Research Report (b) **69** (1974).
 - 5) S. Fujikawa and K. Hirano: in press, *Trans. JIM.* (1976).
 - 6) S. Fujikawa and K. Hirano: in press, *Mat. Sci. Eng.* (1977).
 - 7) S. Fujikawa and K. Hirano: *Trans. JIM*, **12** (1974) 434.
 - 8) S. Fujikawa and K. Hirano: *Res. Lab. Nuc. Sci. Tohoku Uni.*
8 (1975) 385 and *ibid.* **7** (1974) 361.
 - 9) T. Marumo, S. Fujikawa and K. Hirano: *J. Japan Inst. Light Metals* **23** (1973) 17.
 - 10) M. Yagi, A. Yamadera, S. Fujikawa and T. Shiokawa: *Inter. J. Appl. Radiation Isotopes* **26** (1975) 637.
 - 11) W. B. Pearson: *A Handbook of Lattice Spacings and Structure of Metals and Alloys* (Pergamon Press, New York, 1958).
 - 12) F. R. Fickett: *Cryogenics* **11** (1971) 349.
 - 13) S. Fujikawa and K. Hirano: *J. Japan Inst. Metals* **38** (1974) 829.
 - 14) J. Takamura: *Lattice Defects in Quenched Metals* (Akademic Press, New York, 1965) p.521.
 - 15) M. Beyler and Y. Adda: *J. de Phys.* **29** (1968) 345.
 - 16) A. Seeger: *J. Phys. F: Metal Phys.* **3** (1973) 248.
 - 17) N. L. Peterson and S. J. Rothman: *Phys. Rev. B* **1** (1970) 3264.
 - 18) W. B. Alexander and L. M. Slifkin: *Phys. Rev. B* **1** (1970) 3274.
 - 19) D. Bergner and E. Cyrener: *Neue Huette.* **18** (1973) 356.
 - 20) F. J. Blatt: *Phys. Rev.* **108** (1957) 285.
 - 21) D. Bartdorff and P. Reimers: *phys. stat. sol.* (a) **28** (1975) 433.

III-7 Al-Mg₂Si擬二元系合金での²⁸Mgの拡散

工学部金属材料

藤川辰一郎・K. G. Satyanarayana・平野賢一

§ 1. 序 論

従来、Al合金における自己拡散および相互拡散に関する信頼できる実験結果は極めて少ない。Al合金での析出および溶体化などの運動論を解析する上で、Al合金での拡散のデータの蓄積が望まれている。

本研究では、代表的な時効性合金であるAl-Mg-Si合金をとりあげ、解析を容易にするため、その擬二元系合金の α -固溶体での²⁸Mgの拡散係数を決定した。なお、現在まで、Al-Mg-Si合金における拡散の研究は全く行なわれていない。

§ 2. 実験法方

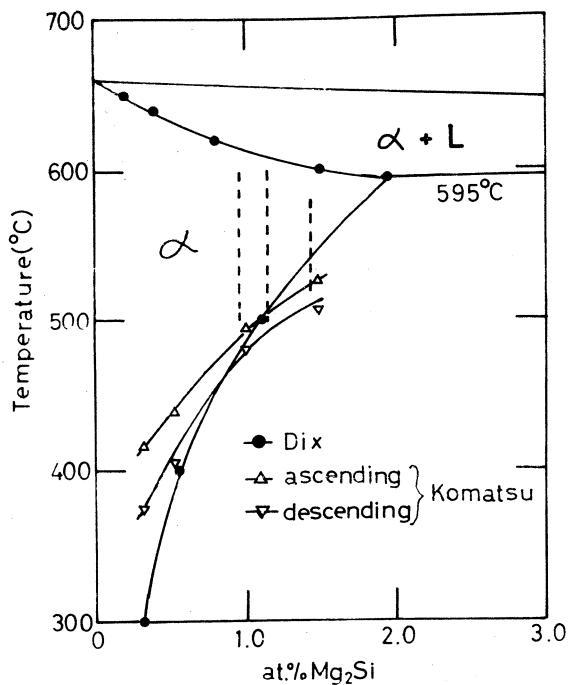
本研究で用いた試料は、0.97, 1.15 および 1.44 at. % Mg₂Siを含むAl-Mg₂Si擬二元系合金である。合金組成および密度は第1表に示した。

第1表 Chemical composition and density of Al-Mg₂Si alloys.

Specimen	Mg (wt.%)	Si (wt.%)	Density (g/cm ³)
A	0.58	0.34	2.69
B	0.70	0.40	2.68
C	0.89	0.50	2.68

密度は、拡散試料の重さおよび体積の測定から求めた。試料の形状は円柱状で、その寸法は高さ13mm、直径13mmである。溶体化処理および結晶粒成長処理のため、500°Cで15日間の予備焼なましを行なった後、水焼入れした。結晶粒径は約3mmであった。耐水性エメリー紙による研磨後、過塩素酸-エチルアルコール混合溶液で電解研磨した。その研磨表面上に塩化物の形で、²⁸Mgを付着した。²⁸MgはSiをターゲットとして、(r, 2p)反応によって調製した。^{1, 2)}

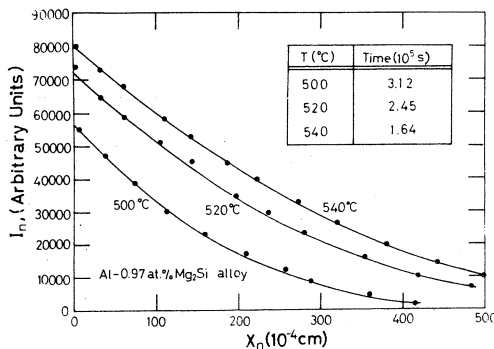
拡散温度範囲は第1図に矢印で示したように、Al-Mg₂Si擬二元系状態図のα-固溶体の範囲に限定した。拡散焼なましは、Mg小片を入れたパイレックス管中に室温で約200 mm Hgのヘリウムを入れ、試料を封入して行なった。拡散焼なまし後、耐水性エメリー紙でセクションニングを行ない。バルク試料の放射能強度を井戸型NaI(Tl)検出器および4096ch PHAを用いて測定した。拡散距離は島津製精密天秤(±0.005 mgの精度)を用いて重さの測定から計算した。拡散係数はresidual activity法(Gruzin法)によって決定した。その際必要となる線吸収係数の値(μ)はAl, MgおよびSiの値³⁾から計算した。



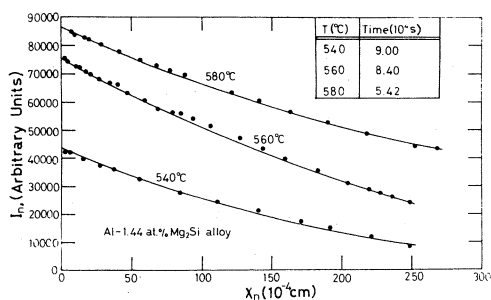
第1図 The phase diagram of pseudo-binary Al-Mg₂Si system.

§ 3. 実験結果および考察

第2図および第3図は、それぞれ、Al 0.97 at. % Mg₂Si合金およびAl-1.44 at. % Mg₂Si合金におけるI_n対X_nプロットである。



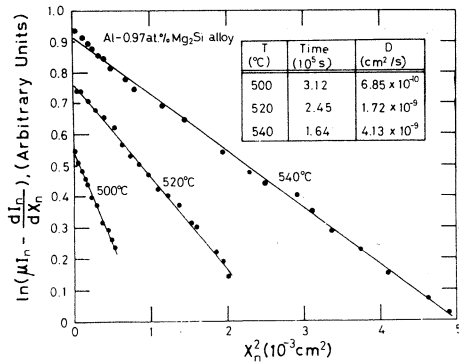
第2図 I_n vs. X_n plots for the diffusion of ²⁸Mg in Al-0.97 at. % Mg₂Si alloys.



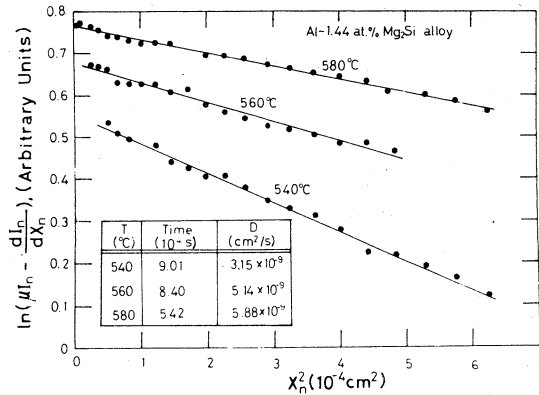
第3図 I_n vs. X_n plots for the diffusion of ²⁸Mg in Al-1.44 at. % Mg₂Si alloys.

ここで、 I_n は X_n だけ削った場合のバルク試料の放射能強度である。表面近傍でいわゆる Near - Surface 効果が見られず、なめらかに ^{28}Mg が拡散浸透していることがわかる。

第4図および第5図は、第2図および第3図から計算した dI_n/dX_n を用いて、 $\ln(\mu I_n - dI_n/dX_n)$ を X_n^2 に対してプロットしたものである。



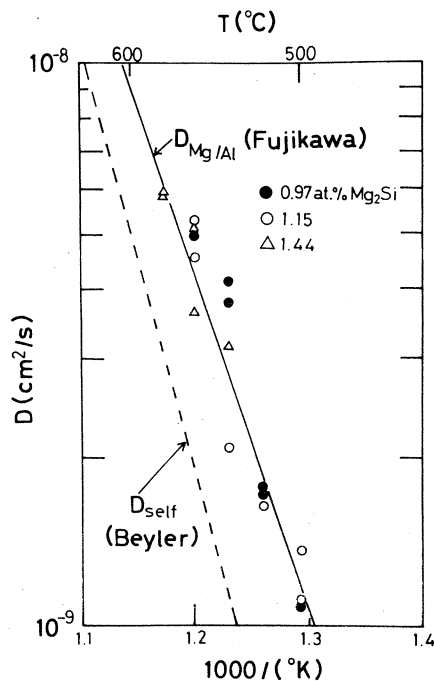
第4図 $\ln\left(\mu I_n - \frac{dI_n}{dX_n}\right)$ vs. X_n^2 plots for the diffusion of ^{28}Mg in Al-0.97 at. % Mg_2Si alloys.



第5図 $\ln\left(\mu I_n - \frac{dI_n}{dX_n}\right)$ vs. X_n^2 plots for the diffusion of ^{28}Mg in Al-1.44 at. % Mg_2Si alloys.

ほぼよい直線関係が得られ、この直線の傾きから計算した拡散係数を図中に示してある。

第6図は本研究で得られた拡散係数をAlの自己拡散係数⁴⁾およびAl中の ^{28}Mg の拡散係数^{5,6)}と比較して示している。この結果から、Al- Mg_2Si 合金中の ^{28}Mg の拡散係数は、Alの自己拡散係数よりも大きく、Al中のMgの拡散係数とほぼ等しいことがわかる。また、はっきりした Mg_2Si 濃度依存性はみられない。今回得られた拡散係数



第6図 Temperature dependence of the diffusivities of ^{28}Mg in Al- Mg_2Si alloys and aluminum.

にかなりのばらつきがみられるので、今後、より詳しい研究が必要と思われる。

参 考 文 献

- 1) 藤川, 平野, 八木, 近藤 : 核理研研究報告 **7** (1974) 361.
- 2) M. Yagi, A. Yamadera, S. Fujikawa and T. Shiokawa. : Inter. J. Appl. Radiation Isotopes. **26** (1975) 637.
- 3) A. L. Conner, H. F. Atwater and E. H. Plassmann : Phys. Rev. **A 1** (1970) 539.
- 4) M. Beyler and Y. Adda : J. de Phys. **29** (1968) 345.
- 5) S. Fujikawa and K. Hirano : 核理研研究報告 **8** (1975) 385.
- 6) S. Fujikawa and K. Hirano : in press, Mat. Sci. Eng. (1977).

III-8 Mg中の ^{54}Mn の拡散

工学部金属材料

藤川辰一郎・村松俊樹・平野賢一

§ 1. 序 論

従来, Mg中の不純物拡散については, あまり多くの研究がなされていない。現在まで, Mg中の不純物拡散の研究がなされている溶質元素は, Ag, Cd, In, Sn, Sb, Zn, Fe, Mn, Ni, およびUだけである。その中で, Mg中の遷移金属元素の拡散に対する活性化エネルギー(Q)およびpre-exponential項(D_0)は, Mgの自己拡散のそれに比較して異常に小さく, 再測定が必要と思われる。

Mgは, Alと同じように, 拡散の理論的取扱いが容易な元素であり, さらに構造材として今後の利用が期待される元素であることから, より詳しい不純物拡散の研究が望まれている。

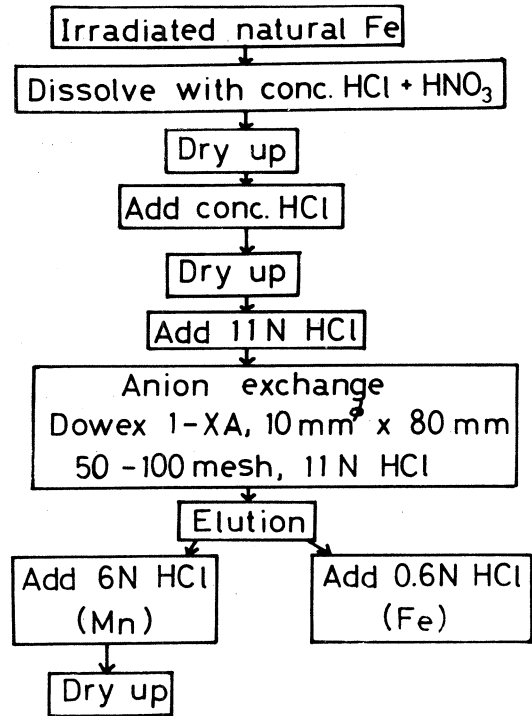
Mg中のMnの不純物拡散の研究は, 従来, 全くなされていない。そのような研究は, Mg中の3d-遷移金属元素の拡散を系統的に研究する上で重要であるばかりでなく, 実用合金であるMg-Mn合金の時効析出挙動を解明する上でも有用であると思われる。本研究では, 無担体の ^{54}Mn を電子ライナックを用いて調製し, いくつかの温度でのMg多結晶中のMnの不純物拡散係数を決定した。

§ 2. 実験方法

2.1 ^{54}Mn の調製

電子ライナックを用いて ^{54}Mn を調製する場合, Mnを照射し, (r, n)反応によっても得られるが, その方法では拡散実験に適した比放射能の高い ^{54}Mn を得ることができないことがわかった。したがって, 本研究では, Feをターゲットとして(r, pn)反応によって ^{54}Mn を調製した。なお, その場合, Fe^{54} (5.84%)から(r, pn)反応によって ^{52}Mn (半減期5.6日)が同時に形成される。帯溶融精製した高純度Feをターゲットとして用い, 約0.2gを石英管中に封入して照射した。60 MeVのエネルギーで約7時間照射した。第1図は, 無担体 ^{54}Mn の調製法の系統図を示したものである。 r -線スペクトルはORTEC製24cc Ge(Li)検出器および東芝製4096ch PHAを用いて測定した。

第1図 The chemical separation procedure for ^{54}Mn .



2.2 拡散方法

Mgの拡散試料は99.9% Mgのインゴットから、直径13mm、長さ13mmの円柱状に切り出したものである。結晶粒成長処理のため、550°Cで10日間の予備焼なましを行なった。その際、試料表面のMgの蒸発を防ぐために、Mgリボンを巻いて焼なましを行なった。結晶粒の大きさは約3mmであった。耐水性エメリー紙による研磨後、電解研磨した。その研磨した面に塩化物の形で ^{54}Mn を付

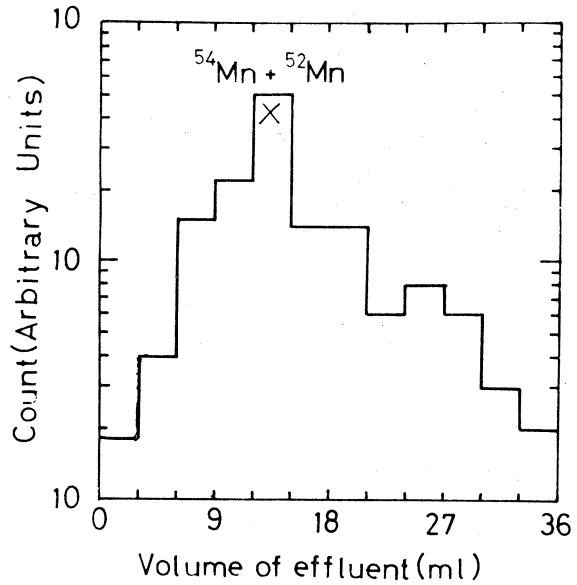
着した。今回の拡散温度は570°および630°Cである。拡散焼なましは2個の試料をMgリボンで巻いて、室温で約200mm Hgのヘリウムガスを満たした石英管中に封入して行なった。拡散焼なまし後、耐水性エメリー紙を用いてセクションングを行ない、バルク試料の放射能強度を井戸型NaI(Tl)検出器および400ch PHAで測定した。拡散距離は島津製精密天秤(±0.005mgの精度)を用いて重さの測定から計算した。拡散係数はresidual activity法(Gruzina法)で決定した。その場合、必要となる線吸収係数(μ)は 0.12 cm^{-1} である。¹⁾

§ 3. 実験結果および考察

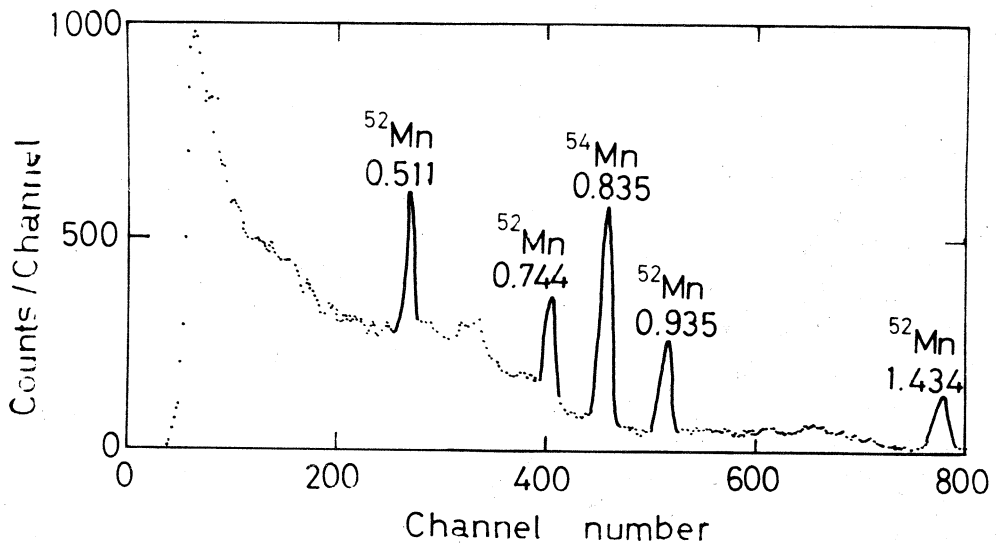
3.1 無担体 ^{54}Mn の調製

第2図は第1図に示した条件で行なった溶離曲線である。MnはFe溶液から容易に分離できることがわかった。第3図は第2図のピークに相当する溶液の γ -線スペクトルを示している。 ^{54}Mn および ^{52}Mn が生成していることがわかる。

第2図 The elution curve of ^{54}Mn .



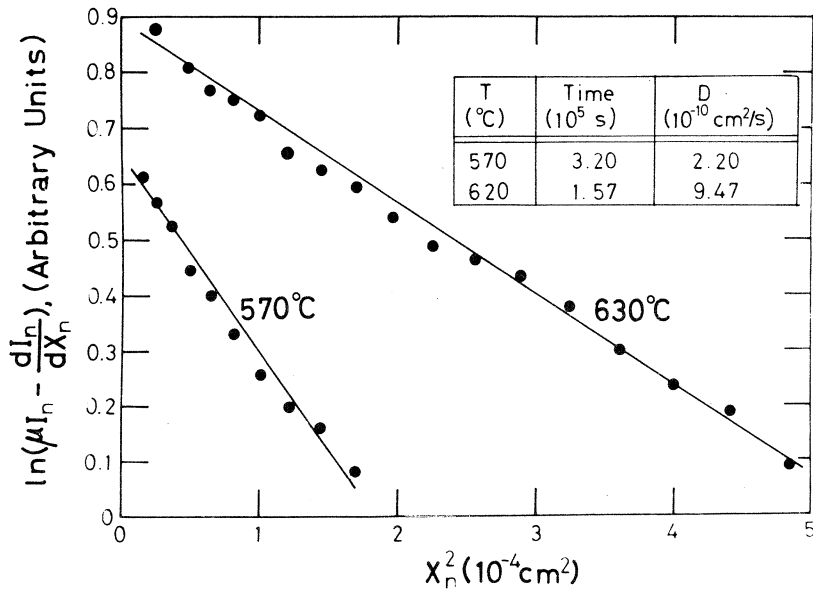
第3図 γ -ray spectrum of the solution X in Fig. 2.



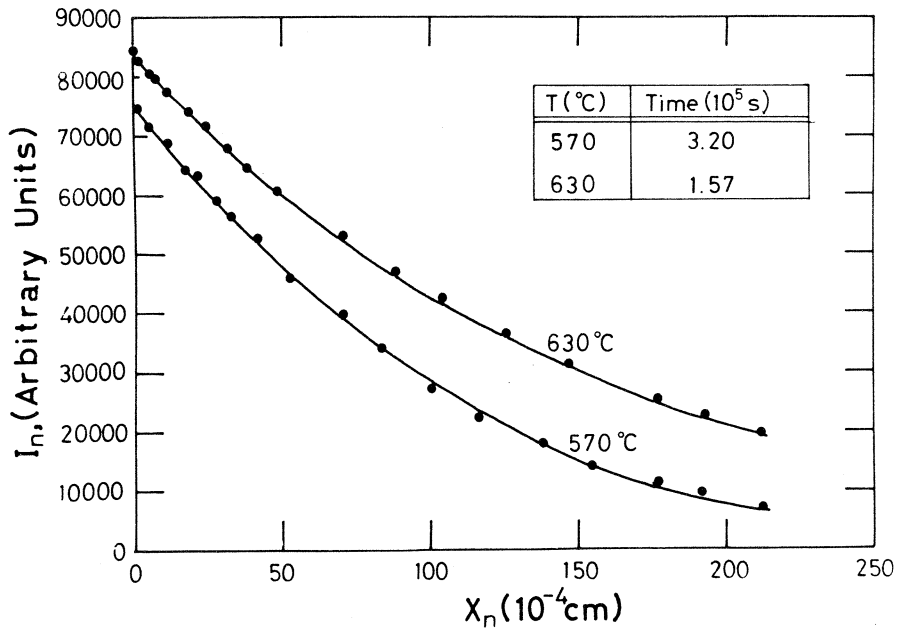
3.2 Mg 中の ^{54}Mn の拡散係数

第4図は 570° および 630°C での I_n 対 X_n プロットを示している。ここで、 I_n は試料の最初の面から X_n (cm) だけ削り取った場合のバルクの放射能強度 (単位時間当りのカウント数) である。第5図は、第4図から dI_n/dX_n を求め、 $\ln\left(\mu I_n - \frac{dI_n}{dX_n}\right)$ を X_n^2 に対してプロットし

たものである。すなわち、拡散浸透曲線である。これらの直線の傾きから拡散係数を求め、第5図中に示した。

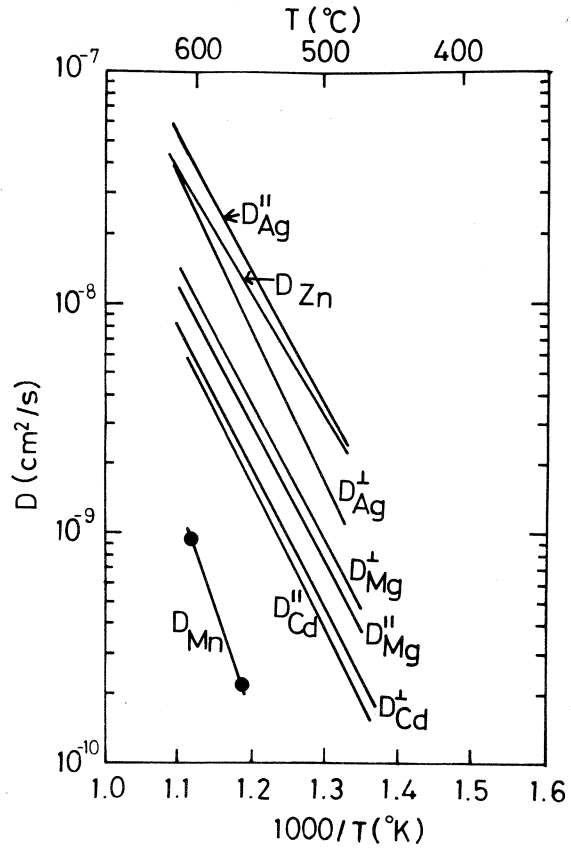


第4図 I_n vs. X_n plots for the diffusion of ^{54}Mn in magnesium.



第5図 $\ln\left(\mu I_n - \frac{dI_n}{dX_n}\right)$ vs. X_n^2 plots for the diffusion of ^{54}Mn in magnesium.

その温度依存性から D_0 および Q を計算すると $D_0 = 34 \text{ cm}^2/\text{s}$, $Q = 1.6 \text{ eV}$ になった。この値は Mg の自己拡散の値 ($D_0 = 1.8 \text{ cm}^2/\text{sec}$, $Q = 1.4 \text{ eV}$)²⁾ よりも大きい。第 6 図は、本研究の結果を Mg の自己拡散²⁾ および Mg 中の他元素の不純物拡散の結果²⁾ と比較して示したものである。Mg 中の Mn の拡散係数は Mg の自己拡散係数および Mg 中の非遷移金属元素の拡散係数よりも約 1 ~ 2 桁小さい。この結果は Mg - Mn 合金の析出の結果から推察されている Mn の拡散速度とも一致する。詳しい結果の解析は正確な拡散係数を決定した上で行ないたい。



第 6 図 Comparison of the diffusivities of ^{54}Mn in magnesium with those of Ag, Zn, Cd and Mg in Mg.

参 考 文 献

- 1) A. L. Conner, H. F. Atwater and E. H. Plassmann: Phys. Rev. **A 1** (1970) 539.
- 2) J. Combronde and G. Brebec: Acta Met. **20** (1972) 37.

IV. 生 物 医 学 部 門

IV - 1 ^{167}Tm による悪性腫瘍親和性の研究 ——動物実験を中心にして——

金沢大学医療短大部, 金沢大学医学部*, 金沢大学理学部**

安東 醇・坂本 浩**・安東逸子*・中園 薫**
竹下正純・平木辰之助・久田欣一*

§ 1. 緒 言

われわれは前報等^{1~3)}において ^{167}Tm のライナックによる ^{167}Tm の製造, 分離ならびに悪性腫瘍および炎症をもった動物における体内分布を詳しく検討し, 報告してきた。その後 ^{167}Tm の腫瘍細胞内取込部位の解明のための実験, ^{167}Tm の有効半減期の測定ならびにこのようにして製造した ^{167}Tm がはたして予想通り, シンチレーションカメラで悪性腫瘍を明瞭に陽性描画できるかどうかを試みてみたので, これらの結果をとりまとめて報告する。

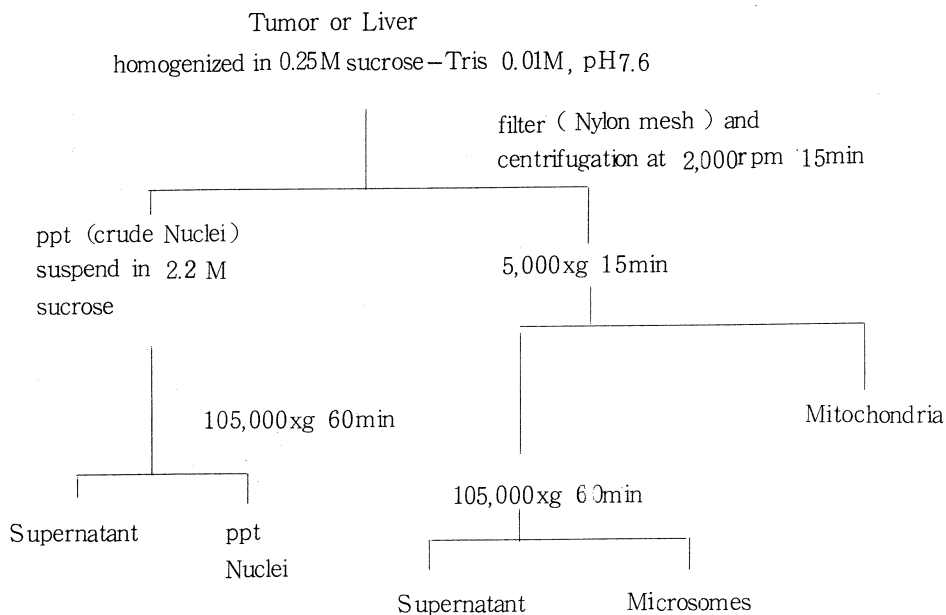
§ 2. ^{167}Tm の腫瘍細胞内分布

^{67}Ga の腫瘍細胞内分布については腫瘍細胞のライソゾームに ^{67}Ga の大部分が集積しているという説^{4~6)}と腫瘍細胞の可溶性分画に多く存在するという説^{7, 8)}がある。 ^{167}Tm は ^{67}Ga と同じく周期律第Ⅲ族の元素であり, 担癌動物における体内分布が多くの面で ^{67}Ga に類似しているので, 腫瘍細胞への取り込み機序も ^{67}Ga と類似していることが予想されるが, このことについての報告はまだない。今回, われわれはこの点を明らかにするための実験を行ない, 以下のごとき結果を得た。

2.1 実験材料と方法

前報^{1, 2)}で述べたと同様な体重約150gの担吉田肉腫結節ラットに前報^{1, 2)}で述べた方法で調製した ^{167}Tm -citrate注射液(carrier free)を約2 μCi (0.4ml)静注し, 静注10分, 1時間, 3時間, 24時間, 48時間後に屠殺して腫瘍結節および肝臓を摘出し, この両者をそれぞれHogeboom and Schneider法(第1図)に準じてホモゲナイズし, 核, ミトコンドリア, ミクロソームおよび可溶性分画の各フラクションに分画した。また同様に体重約25gのddY系マウスにエールリッヒ癌腹水細胞を移植し, 約10日間市販の固型飼料で飼育し, 腫瘍結節が約1cmの大きさとなったときに上記 ^{167}Tm -citrate注射液を約1 μCi (0.2ml)腹腔内注射し, ラットの場合と同様に注射後10分, 1時間, 3時間, 24時間, 48時間に屠殺して腫瘍および

第1図 Preparation of subcellular fractions



肝臓を摘出し、ラットの場合と同様にHogeboom and Shneider 法に準じて各フラクションに分画した。

2.2 実験結果と考察

結果は第1表に示したごとく、吉田肉腫結節の場合、核分画への取り込みは時間によらず10%強であった。ミトコンドリア分画への取込率はやや多く15~22%であり、ミクロソーム分画への取込率は30%弱、上清(可溶性分画)への存在率は40%強であり、各分画への ^{167}Tm の取込率は ^{167}Tm の静注後の時間による差異が認められず、また ^{167}Tm は可溶性分画中へ最も多く存在していた。一方エールリッヒ癌でも結果は吉田肉腫によく類似しており、核分画が吉田肉腫の場合よりやや多く20%前後であるが、ミトコンドリア分画は10~17%、ミクロソーム分画は20%前後、上清は40~50%で最も多く、エールリッヒ癌においても吉田肉腫の場合と同様に経時的变化がないのみならず、可溶性分画が最も多かった。しかしながら、宿主であるラットまたはマウスの肝臓ではバラツキはあるにしても両者とも核分画はほぼ5~18%、ミクロソーム分画は9~22%であり、時間による一定した傾向はなかったが、ミトコンドリア分画は経時的に増大し、ことに24時間までは急速な増大を示した。これに対し上清(可溶性分画)は経時的に減少し、注射10分後には70~80%あったものが、48時間後には20%前後に減少した。このように肝細胞中での ^{167}Tm の分布はラットおよびマウスで極めてよく類似してい

第1表 Subcellular distribution of ^{167}Tm -citrate
in tumor and liver

		Tumor				Liver			
		Nuclear fraction	Mitochondrial fraction	Microsomal fraction	Supernatant fluid	Nuclear fraction	Mitochondrial fraction	Microsomal fraction	Supernatant fluid
Yoshida sarcoma	10 min	11.5 %	15.9 %	28.0 %	44.6 %	4.8 %	7.0 %	15.8 %	72.4 %
	60 min	12.5	17.3	25.9	44.3	15.1	13.5	14.2	57.2
	3 hr	14.8	15.5	23.9	45.8	19.4	22.5	12.5	45.6
	24 hr	12.3	18.2	27.0	42.5	16.2	40.7	12.4	30.7
	48 hr	13.6	21.6	24.5	40.3	18.2	47.0	17.6	17.2
Ehrlich tumor	10 min	21.1	11.4	24.2	43.3	7.0	4.9	9.2	78.9
	60 min	19.5	9.6	28.6	42.3	17.4	10.9	15.9	55.8
	3 hr	16.0	17.2	15.1	51.7	13.0	15.2	10.8	61.0
	24 hr	18.0	16.2	20.5	45.3	18.2	37.2	19.2	25.4
	48 hr	18.9	13.5	27.1	40.5	4.7	46.6	22.6	26.1

た。吉田肉腫とエールリッヒ癌という腫瘍の種類の違いはあっても核、ミトコンドリア、ミクロソームの各分画への取込率は少なく、上清が最も多かった。この方法で分画した場合にはライソゾームはミトコンドリア分画に存在するが、この分画は20%以下であることより、ライソゾームにはあまり集積しないことが明らかとなった。一方肝臓はラット (^{167}Tm -citrate を静注) の場合もマウス (^{167}Tm -citrate を腹腔内注射) の場合も全く同様な傾向を示し、ミトコンドリア分画への取込率は経時的に増大したが、上清からは経時的に減少していった。このことは可溶性分画中に存在していた ^{167}Tm が経時的にミトコンドリア分画へ集積したことを意味するものであり、ライソゾームはミトコンドリア分画に存在することより、おそらくライソゾーム中へ ^{167}Tm が集積したことを意味するものであろう。このように投与法は静注と腹腔内注射というように異なっても、腫瘍の種類を問わず、同様の細胞内分布を示し、また正常細胞である肝臓とは全く異なる分布を示した。

§ 3. ^{167}Tm -citrate の有効半減期

^{167}Tm は腫瘍のみならず骨に多く集積し、排出され難いことは既に報告¹⁻³⁾したが、この元素の人における有効半減期を推定するために、ラットを使用してその有効半減期を測定した。

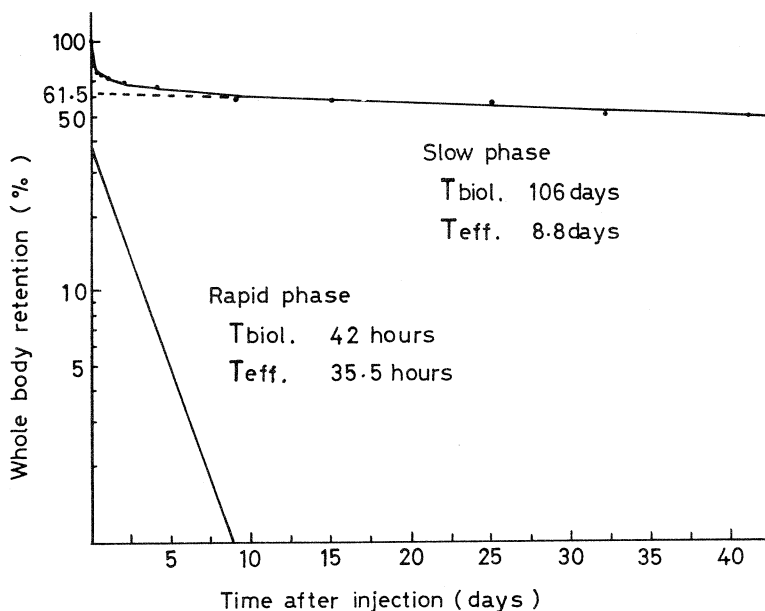
3.1 実験方法

平均体重約 161g の正常ウイスター系ラット (生後 42 日目) に、上記の ^{167}Tm -citrate 注射

液を約 $1 \mu\text{Ci}$ (0.1 ml) ずつ静注し、静注直後および6時間、12時間、24時間、48時間、4日、9日、15日、25日、32日、40日後に日本無線医理学研究所製のユニバーサルガンマカウンターを使用し、208 keVを中心としてウインドウ幅を $\pm 5\%$ で測定した。また正確を期するためにラットのファントムを作り、注射量と同量をファントム中に均一に押入してラットの測定のとど同一条件で測定して、これを標準値として生物学的半減期を計算した。

3.2 実験結果と考察

3匹のラットにおける ^{167}Tm の残存率(減衰を補正した場合)の平均値は第2図に示すごと

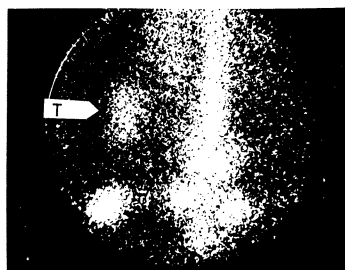


第2図 Whole body retention curve of ^{167}Tm -citrate

く、静注後数日間は比較的速やかに排出されるが、それを過ぎると排出は非常にゆっくりとしてきた。この曲線はfast phaseとslow phaseの2つのcomponentよりなり、fast phaseおよびslow phaseの半減期は各々42時間、106日であった。 ^{167}Tm の物理的半減期は9.6日であるので、各phaseの有効半減期は35.5時間、8.8日となる。おそらくこのfast phaseは軟組織からの排出によるものであり、slow phaseは骨からの排出によるためにこのように長いのであろうが、 ^{167}Tm は物理的半減期が長くないため、有効半減期は比較的短かく、そのため内部被曝も多くならない長所がある。

§ 4. シンチレーションカメラによる撮像

^{167}Tm が悪性腫瘍および骨に選択的に集積することは明らかとなったが、臨床的に悪性腫瘍の検出に使用できるためには、シンチレーションカメラで明瞭に描画できることが必要である。現在使用されているシンチレーションカメラは 100~200keV のガンマ線放射体を描画するのに適していると言われている。 ^{167}Tm の主なガンマ線は 208 keV であるので、ほぼ理想的なエネルギーといえるが、はたして予想通りに描画できるかどうかを試みた。すなわち、右横腹に吉田肉腫結節をもった体重約 150 g のドンリウ系ラットに、上記の方法により調製した ^{167}Tm -citrate (carrier free) 注射液を約 40 μCi (0.4 ml) 静注し、24 時間後に Nuclear Chicago 社製シンチレーションカメラにピンホールコリメーターを付けて、ラットの下半身を 30,000 count (905.4 秒) 撮像した。結果は第 3 図に示すごとく、腫瘍部 (T) は骨部とならんで明瞭に描画されており、シンチレーションカメラでの撮像にも非常に適した核種であることが証明された。



第 3 図 Scintiphoto of Yoshida sarcoma-bearing rat at 24 hours after the injection of ^{167}Tm -citrate solution. ^{167}Tm -citrate distributed in tumor tissue (T) as well as in bone tissue

§ 5. まとめ

^{167}Tm を取り込んだ腫瘍組織を Hogeboom and Schneider 法で細胞分画したところ、 ^{167}Tm を特別に多く取り込んでいる分画はなく、可溶性分画に最も多く存在していた。しかし、肝臓中ではミトコンドリア分画 (多分ライソゾームであろう) への集積が時間がたつほど増加し、この分画中に存在するものが ^{167}Tm の集積に重要な役割をしていると予想できた。

^{167}Tm -citrate のラットでの retention curve は 2 相性をなし、fast phase および slow phase の生物学的半減期は各々 42 時間、106 日であった。

^{167}Tm は吉田肉腫結節をもったラットの腫瘍部をシンチレーションカメラで明瞭に描画することができ、現在臨床的に使用されている測定器での描画に非常に適した核種であることが証明された。

おわりにシンチカメラによる撮像で御協力戴いた金沢大学医学部附属病院中央放射線部松平正道技師に感謝します。

参 考 文 献

- 1) 坂本 浩, 代田悦章, 安東 醇, 久田欣一: 核理研研究報告 **7** (1974) 204.
- 2) 安東 醇, 久田欣一, 代田悦章, 坂本 浩: 核理研研究報告 **8** (1975) 193.
- 3) 安東 醇, 久田欣一, 坂本 浩, 代田悦章: Radioisotopes **24** (1975) 109.
- 4) D.C. Swartzendruber, B. Nelson and R.L. Hayes: J. Nat Cancer Inst **46** (1971) 941.
- 5) D.H. Brown, D.C. Swartzendruber, J.E. Carlton, B.L. Byrd and R.L. Hayes: Cancer Research **33** (1973) 2063.
- 6) 東 与光, 他 6 名: 核医学 **8** (1971) 155.
- 7) K. Deckner, G. Becker, U. Langowski, H. Schwering, G. Hornung and C.G. Schmidt: Z. Krebsforsch **76** (1971) 293.
- 8) H. Orii: Strahlentherapie **144** (1972) 192.

V. 加速器・測定器部門

V-1 エネルギー幅圧縮装置の電磁石系

核理研 菅原真澄・寺沢辰生

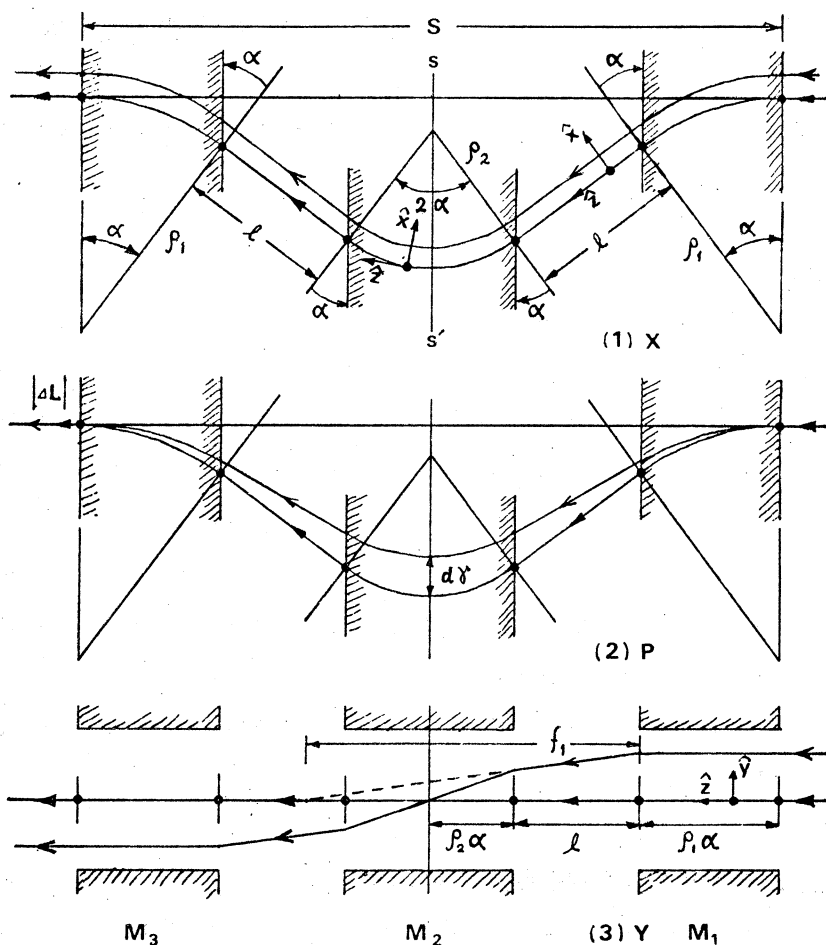
§ 1. はじめに

核理研 300 MeV リニアックに設置されたエネルギー幅圧縮装置 (ECS) は順調に稼動している。ECS 全体の構成、そのテスト結果等については以前に報告¹⁾したので、ここでは、そのうち電磁石系について詳述することにする。ECS の電磁石系は所要のデバンチング係数をもち、しかも系全体としては、エネルギー分析系、ビーム伝送系との関係上、非色収差系、非集束系でなければならない。又設置場所がエネルギー分析系の内部に当るので、分析系全体との関連についても考察しておかなければならない。この報告は §5 から成り、§2 では 1 次近似の軌道方程式による基本設計、§3 では漏洩磁場分布による補正、§4 では製作された電磁石の磁場測定その他、§5 では、測定結果に従った数値計算による最終寸法値について述べ、更に鉛直方向の色収差について若干の考察を行った。エネルギー分析系に対する影響は §2 に述べてある。

§ 2. 1 次近似軌道による電磁石系の基本設計

非色収差、非集束の条件をみたま系としては、普通 3 電磁石方式が使われるので、ここでもこの方式を採用することにした。²⁾ 第 1 図にこの系の配置を示してある。系は中心軸 ss' に対して左右対称で黒い矢印のついた実線は中心軌道を示す。斜線で示した各電磁石の磁場端は全て平行になっている。したがって第 1(3) 電磁石 ($M_{1(3)}$) の出口 (入口) の磁場端は中心軌道に対して、軌道の偏向角 α に等しい角だけ回転している。第 2 電磁石 (M_2) の入口、出口も同様に中心軌道に対して α だけ回転している。

このような場合には紙面に含まれるような平面 (水平面) で非集束、非色収差の条件をみたまことは明らかである。つまり中心軌道に平行に入射したビームは第 1 図(1)に示すように、系内至る所で中心軌道に平行な軌道を取り、系外にも平行のままで行くことになる。又、中心軌道上を入射して来た運動量が r ($r = (p - p_0) / p_0$ 、 p_0 は中心軌道を通る電子の運動量) だけ異なる電子の軌道は第 1 図(2)に示すように系内では中心軌道と異なるが、系を出た後では一致する。これは軌道の曲率半径 ρ と運動量 p の関係が、磁束密度を B とすると $p = eB\rho$ で



第1図 ECS 電磁石系の構成

図(1)は電磁石の磁極中心面（水平面）内の軌道を示す。黒い矢印のついた実線が中心軌道を示す。中心軌道に平行に入射したビームは、平行にでて行く（非集束）ことを、もう一本の実線で示してある。

図(2)は r だけ運動量の違うビームの軌道も系をでた後では再び中心軌道に一致する（非色収差）ことを示す。 dr は分散、 ΔL は軌道長差である。図(3)は鉛直方向の非集束性を示す。

表わされ、 p と ρ が比例関係にあることから容易に求めることができる。中心軸を含む紙面に直角な面（鉛直面）内については色収差はないから非集束条件をみたせばよい。（高次の収差については後で述べる。）このためには第1図(3)に示すように鉛直面内の平行入射ビームが系の中心軸 ss' で中心軌道と一致するように M_1 と M_2 の間隔 l を選ばばよい。軌道の1次近似

では、電磁石の回転磁場端は $f = \rho / \tan \alpha$ なる焦点距離をもつ、レンズとみなすことができるから、レンズの公式

$$\frac{1}{\rho_2 \alpha} + \frac{1}{f_1 - l} = \frac{1}{f_2}$$

を使って、 l は次の式で与えられる。

$$l = \left(\frac{1}{\tan \alpha} - \frac{\alpha}{1 - \alpha \tan \alpha} \cdot \frac{\rho_2}{\rho_1} \right) \rho_1$$

l が決まれば系の全長 S は簡単に次のように求まる。

$$S = 2 \left[\left(1 + \frac{\rho_2}{\rho_1} \right) \sin \alpha + \frac{l}{\rho_1} \cos \alpha \right] \rho_1$$

r だけ運動量が異なった粒子の軌道と中心軌道の長さの差 ΔL は簡単な幾何学的な計算から

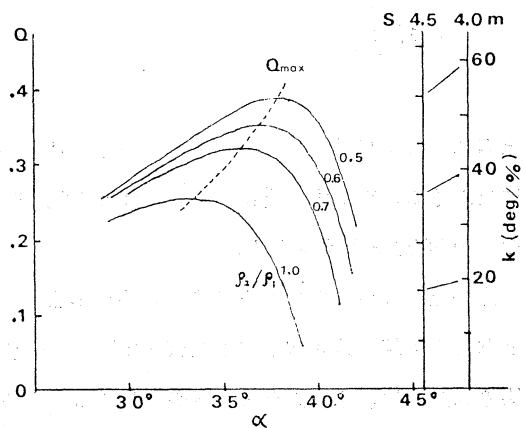
$$\Delta L = 2 \left[(\alpha - \tan \alpha) \left(1 + \frac{\rho_2}{\rho_1} \right) - \frac{l}{\rho_1} \tan^2 \alpha \right] \rho_1 r$$

となる。ECS で取り扱われる電子の速度は運動量によらず殆ど光速に等しいから、軌道長さ ΔL は、系に同時に入射した電子の系を通過する時刻差 $\Delta t (= \Delta L / c)$ を与える。これから後続するエネルギー補償用加速管内での位相差 $\Delta \theta (= 2\pi \nu \Delta t)$ を求めることができる。デバンチング係数 $k = \Delta \theta / r$ が 50% のときには、 $\Delta L / r$ は、 $1.46 \text{ cm} / \%$ であればよい。

さて上記の非集束、非色収差性をみたし必要なデバンチング係数をもつ系を作るには偏向角 α 、 M_2 と $M_{1,3}$ の曲率半径比 ρ_2 / ρ_1 を決め S を適当にとればよい訳であるが、実際には設置場所の広さ等から考えて、なるべく系全体

を小型のものにしなければならない。そのためには比 $Q = |\Delta L / r| / S$ を最大にするような偏向角 α を ρ_2 / ρ_1 をパラメータとして求めればよい。これらの関係を第 2 図に示した。図から ρ_2 / ρ_1 を小さくとればとる程 Q の最大値 Q_{\max} は大きくなり、小さい S で大きいデバンチング係数が得られることが分る。しかし $\rho_2 / \rho_1 = B_1 / B_2$

($B_{1,2}$ は $M_{1,2}$ の磁束密度) の関係があるので、 ρ_2 / ρ_1 の値をあまり小さくすることは B_1 、 B_2 の差が大きくなり過ぎ電磁



第 2 図 電磁石系の Q 特性
デバンチング係数と系の全長の比 $Q = |\Delta L / r| / S$ を偏向角 α 、中心軌道の曲率半径比 ρ_2 / ρ_1 の関数として表わした。右軸は $S = 4.5$ 、 4.0 m としたときのデバンチング係数を示す。

石の設計上、得策ではない。設置場所の広さから考えて電磁石系の長さ S は 4 m 前後までとってよいので、磁束密度も考慮して $\rho_2 / \rho_1 = 0.6$ を採用することにした。

この結果 1 次近似での諸パラメータを次のように決定した。

$\rho_2 / \rho_1 = 0.6$, $\alpha = 37^\circ$, $S = 4.26$ m, $\rho_1 = 1.5$ m, $\rho_2 = 0.9$ m, $k = 51.2^\circ / \%$, M_2 内, ss' 面での運動量差によるビーム偏位 (分散) d は, 1.42 cm / %, 最大磁束密度は, $B_1 = 0.666$ T, $B_2 = 1.111$ T (電子エネルギー 300 MeV のとき) になる。

軌道を示す変換マトリクスは第 1 図(1)のように座標軸 (\hat{x} , \hat{y} , \hat{z}) を定めれば, 系の入口から ss' までの分は

$$\begin{pmatrix} x_s \\ x'_s \\ r \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 2.103 \rho_1 & 0.943 \rho_1 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_0 \\ x'_0 \\ r \end{pmatrix}$$

$$\begin{pmatrix} y_s \\ y'_s \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 0.681 \rho_1 \\ -1.468 \frac{1}{\rho_1} & -0.666 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} y_0 \\ y'_0 \end{pmatrix}$$

全系では

$$\begin{pmatrix} x_f \\ x'_f \\ r \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 4.206 \rho_1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_0 \\ x'_0 \\ r \end{pmatrix}$$

$$\begin{pmatrix} y_f \\ y'_f \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -1 & -0.908 \rho_1 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} y_0 \\ y'_0 \end{pmatrix}$$

となる。ここに(')は z についての微分を, 添字 o, s, f は系入口, ss' 面, 系出口での偏位であることを示す。更に $l / \rho_1 = 0.5723$, $S / \rho_1 = 2.840$, $\Delta L / \rho_1 r = -0.9949$
 $Q = 0.3503$ と与えられた。

上の全系についてのマトリクスから分るように系の実効長は水平方向で $4.206 \rho_1 = 6.309$ m となって実際の長さ S よりも 2.05 m 長い。一方鉛直方向では $0.908 \rho_1 = 1.363$ m で 2.90 m 実際より短い。水平方向の実効長が長くなった事はエネルギー分析系 (Ⅱ系) 入射側のビーム限定スリット (SD Ⅱ) と分析電磁石 (M_6) までの距離が長くなったことに対応する。したがって M_6 出口から像点までの距離は短くなり, 既設のエネルギー分析スリット (SA Ⅱ) は像点から相対的に 190 mm ずれたことになる。この差は入射側のビーム広がりをも 10 mm とした

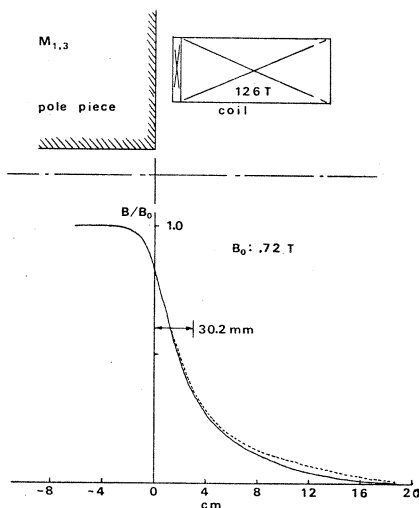
とき約 0.04 % 分解能を悪化させることになる。高分解能の実験を行う場合には、この値は無視できない量であると思われるので、今後の改造を考慮して置く必要がある。

§ 3. 漏洩磁場分布による補正

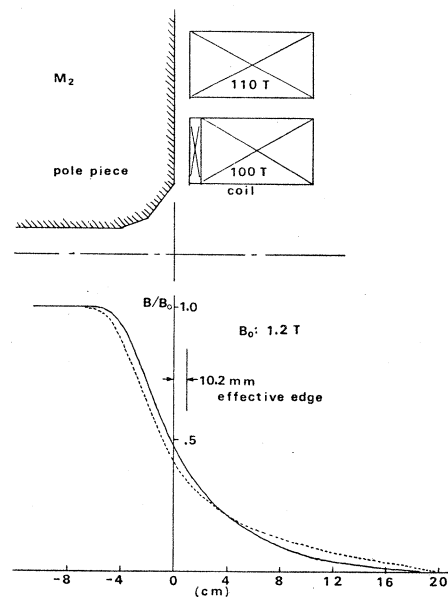
実際の電磁石の磁場分布は 1 次近似で仮定されたような磁場分布、つまり磁極内から磁場端までは一様で、磁場端から外では完全に零になるようなものではない。磁極内からゆるやかに減少しながら磁極端から外まで広がっていて、はっきりした境界がある訳ではない。1 次近似の場合は、実際の磁場で受ける中心軌道の偏向角と等しい偏向角を与える一様磁場を仮定してその端を磁場端と定義して軌道計算を行っている。この仮定では、特に回転磁場端のレンズ作用を実際より強く見積もる。したがって M_1 と M_2 間の距離はこのことを考慮して補正しておかなければならない。

このためには、想定される漏洩磁場によって数値計算を行い、電磁石を設計し、電磁石完成後に磁場分布の測定を行い、若干の補正を行うようにすればよい。

M_1 は最高磁束密度がそれ程大きくないので磁極端を磁極面に直角に切ることとし、 M_2 の最大磁束密度は 1.0 T をこえることになるので飽和を避けるために Rogowsky 曲線³⁾ に合せて角を落すことにした。第 3 図、第 4 図の点線は想定した磁場分布を示す。軌道方程式は Runge -



第 3 図 $M_{1,3}$ の磁極端に於ける磁場分布、磁極中心面上で磁極端に直角に測定した磁場分布を示す。実線は測定値、点線は設計に使用した磁場分布である。図上部には磁極の形を示した。



第 4 図 M_2 の磁極端に於ける磁場分布
説明は第 3 図に同じ

Kutta Gill⁴⁾法で解いた。この結果、偏向角 37° では1次近似で求めたような集束条件を得ることはできず、 38° に変更することになった。数値計算の結果は第6図に括弧内の数字で示してあるが、 ρ_1 、 ρ_2 もそれぞれ1390、834mmに変更された。これに従って最大磁束密度も0.72、1.20 Tになる。電磁石の大きさは磁極間隔、磁極幅によって大きく左右される。リニアックからのビームは加速管の穴径が約20mmでありビームの広がり角度は1 mradをこえないと考えられるから、系内で鉛直方向に30mm以上に広がることはない。これから分析管の厚さ、工作精度を考慮して磁極間隔を40mmにした。水平方向の広がり M_1 、 M_3 内ではエネルギーによる分散を無視できるから、入射ビーム最大幅20mmと角度による広がり20mmを加えて、一様磁場の幅は40mmあればよい。 M_2 では更にエネルギー分散を考慮する必要がある。エネルギー補償用加速管の受容位相幅を $\pm 90^\circ$ までとすると、デバンチング係数から電磁石系を通過する運動量幅は $\pm 1.8\%$ になる。これから対応する ss' 面での分散幅は51mmとなる。これに M_1 、 M_3 で必要とした幅、40mmを加えれば91mmとなるので一様磁場の幅は100mmあれば充分であろう。これらに一様磁場を得るための附加幅として片側に磁極間隔の倍80mm、両側にして160mmを加えれば、最終的な磁極幅は $M_{1,3}$ で200mm、 M_2 で260mmになる。

§ 4. 磁場分布、励磁特性の測定

磁極端に於ける磁場分布の測定は磁極端を基準として、中心軸及びそれに平行な中心面内の2軸に沿って測定された。これを磁極端に垂直に測定して行った場合に換算したものを第3、第4図の実線で示した。同図には対応する磁極端の型及びコイルの位置も示してある。 $M_{1,3}$ では磁極内磁束密度 B_0 が0.144、0.48、0.72 Tの3点、 M_2 では0.24、0.8、1.2 Tの3点で測定を行ったが、各磁場分布は測定の精度内でよく一致しており磁極の飽和の影響は認められなかった。又磁極幅方向の磁場の一様度を磁極面の中心で測定したものを第5図に示した。 $M_{1,3}$ は0.72 T、 M_2 は1.2 Tのときの測定値である。一様度 2×10^{-4} を充分満たしているが、 $M_{1,3}$ では明らかに磁極の外側ほど、磁束密度が高くなっている。これはヨークがC型のため吸引力によって変形するためと思われる。

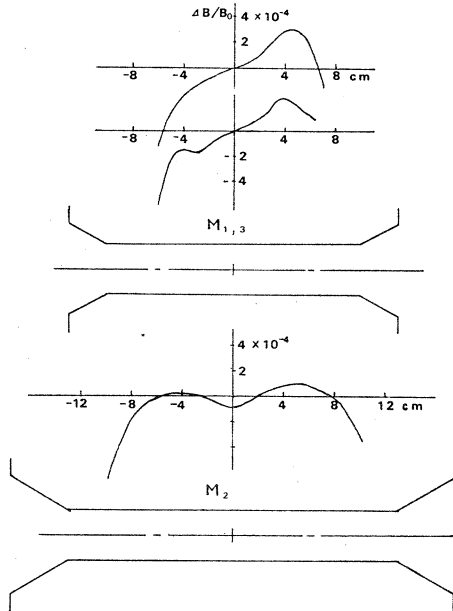
3個の電磁石は主電源により直列に励磁されるので励磁特性は補正コイルの補正範囲内でそろっていなければならない。測定の結果は、使用範囲内($M_{1,3}$ で0.72 T、 M_2 で1.2 T以下)で2.7%以内の精度で一致しており、充分仕様を満足していることが分かった。但し、 M_2 の場合1.2 T以上で急激な飽和の影響がみられる。

コイルの温度上昇の測定結果では通電開始後約40分で定常状態になることが分かったが、 M_3 の上側コイルの温度上昇が大きく、冷却板とコイルの熱的接触が他に比してよくないのではないかとと思われる。

§ 5. 実測磁場分布による諸寸法の決定

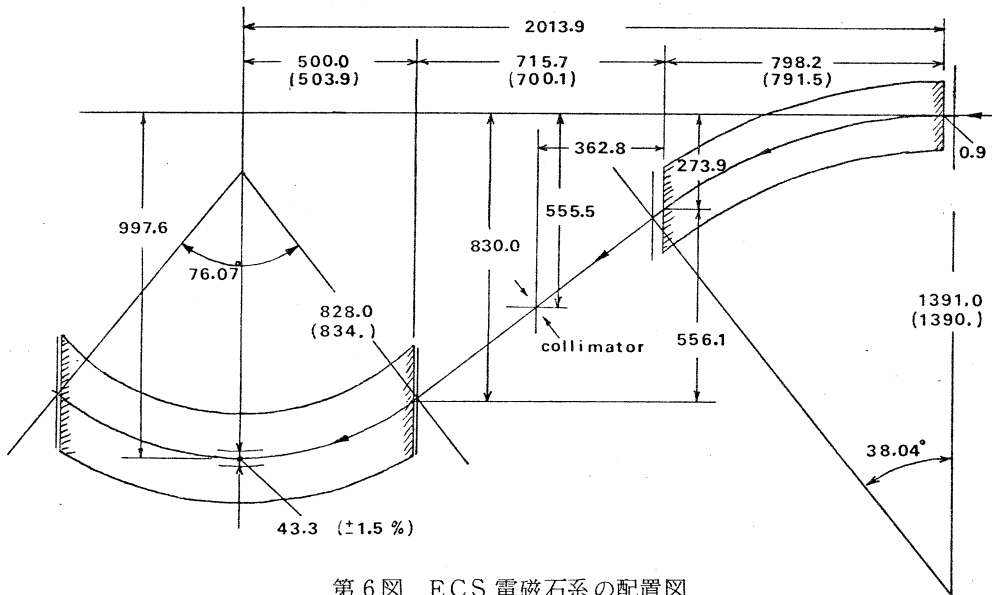
前章で述べた磁場分布の測定値を使用して数値計算を行い、最終寸法を決定した。結果を第6図に示す。括弧で示した想定磁場による設計値との一致は比較的よい。偏向角、曲率半径に若干の変更があったが、これは電磁石の位置を適当に移動して、実際の中心軌道が磁極面の中心にくるように調整することができた。

電磁石に入れるビーム・ダクトの寸法を決定するためにはビームの各部分での広がりを求めなければならない。入射条件を $x_{0max} = 2.5\text{mm}$



第5図 各電磁石の磁場一様度

磁極中心面上で、磁極幅方向に測定した磁束密度、図には同時に磁極の幅も示してある。

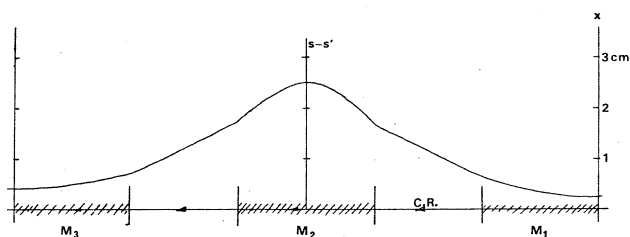


第6図 ECS電磁石系の配置図

数値はmm単位、括弧内は設計寸法を示す。

$x'_{0\max} = 0.5 \text{ mrad}$, $r = \pm 1.5\%$, エミッタンス $\epsilon = 1.25 \pi \text{ mm}$, mrad としたときの様子を第 7 図に示した。

完成した系についての収差の検討は特に行わなかったが、この系で問題になるのは、エネルギー偏差 ($r \neq 0$) がある場合、鉛直方向で、完全には非集束系にならないことである。これは鉛直方向の焦点面が中心面 ss' に一致せず、ある傾きをもって交わっていることによる。つまりエネルギーの高い



第 7 図 電磁石系内のビーム・プロフィール
入射条件は $x_{0\max} = 2.5 \text{ mm}$, $x'_{0\max} = 0.5 \text{ mrad}$, $r = \pm 1.5\%$, $\epsilon = 1.25 \pi \text{ mm}$, mrad,

ビームは ss' より遠くで中心面と交叉し、低いものは手前で交叉する。1次近似による計算の結果は系の入口で $y_0 = 5 \text{ mm}$, $r = \pm 1\%$ の偏差をもっていた粒子は系の出口で $y_f = -5.13 \text{ mm}$, $y'_f = \mp 0.21 \text{ mrad}$ の偏差をもつことになり、ビームの広がり角度が約 0.4 mrad 大きくなることを示している。この値はリニアック出口でのビームの変動に比して大きい値ではないので、今回は特別の対策を講じてはいない。しかし将来より高分解の実験を行う場合には再検討の必要があると思われる。

非色収差、非集束性を確認するために、実際のビームによる測定が行われた。ビーム位置の確認は系内ではシンクロトン放射光、系をでた後は約 10 m の自由空間を通過させた後に、BeO板の蛍光をITVで観測して行われ、観測精度内では充分設計性能をみたしていることが分かった。

参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 9 増刊号 (1976) 32 (リニアック技術研究会報告集, 昭和 51 年 7 月).
- 2) H. Herminghaus and K. H. Kaiser: Nucl. Instr. 113 (1973) 189.
- 3) C. M. Braams: Nucl. Instr. 26 (1964) 83.
- 4) 氏家慧一: 東北大学大型計算機センター, ライブラリー・プログラム, D 2/CTU 0029F/TDFRKG

V-2 多線比例計数管 (MWPC)

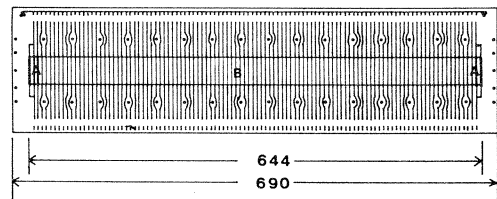
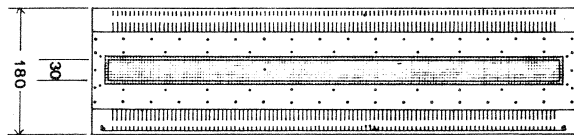
核理研 玉江忠明・窪田健雄
浦野隆夫・菅原真澄

§ 1. 序 論

前回の核理研研究報告に多線比例計数管 (MWPC) の試作品について述べたが¹⁾, その後本番用の計数管が完成したので, 今回はその構造やテスト結果について報告する。

§ 2. 構造と製作

第1図と第2図に多線比例計数管の構造を示す。長さは69 cm, 窓の長さが64.4 cm, 窓の幅は3 cmである。枠材にはガラスエポキシ板及びステンレスを用いてある。窓は12 μm のアルミ蒸着テトロンで, 外側に太さ200 μm のタングステン線を4 mm間隔で張って補強してある。1図(下)は信号線を張ってある面である。これはあらかじめエッチングしたガラスエポキシ・プリント基板に太さ30 μm の金メッキ・タングステン線を6 mm間隔に104本張り, その外側に2本ずつの錫メッキ線を張ったもので, 104本の金メッキタングステン線の内側100本が信号線である。張力は約60gである。



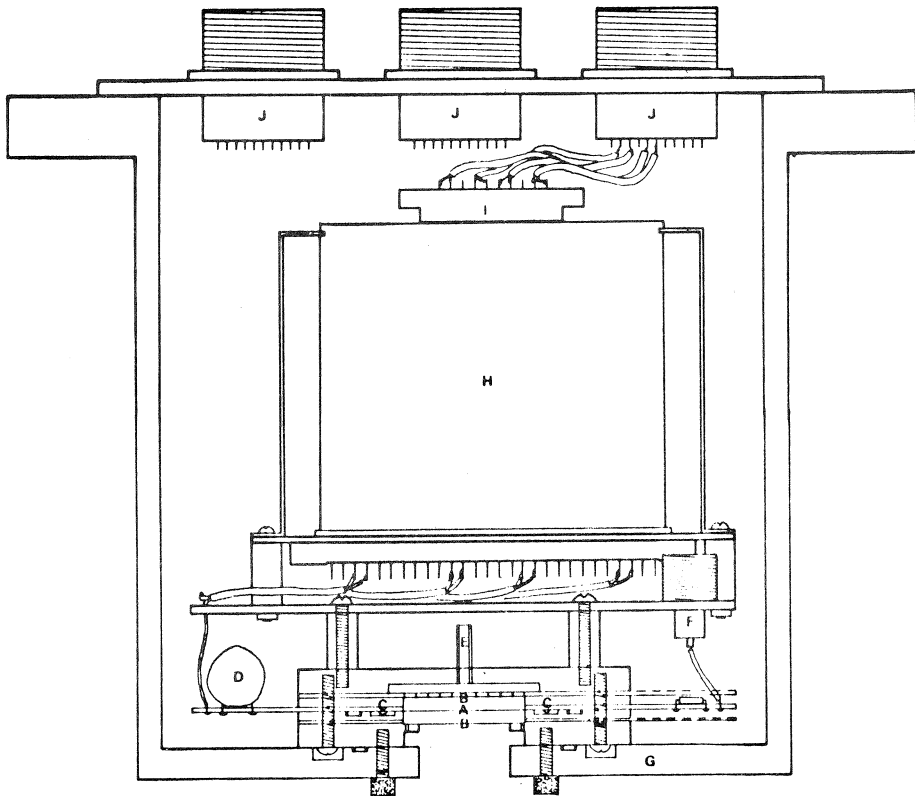
第1図(上) 多線比例計数管正面図。窓は太さ200 μm のタングステン線で補強されている。

(下) 信号線を張った面の構造

A: 電場補正用錫メッキ線 (200 μm ϕ)

B: 信号線 (30 μm ϕ の金メッキ, タングステン線, 張力60g)

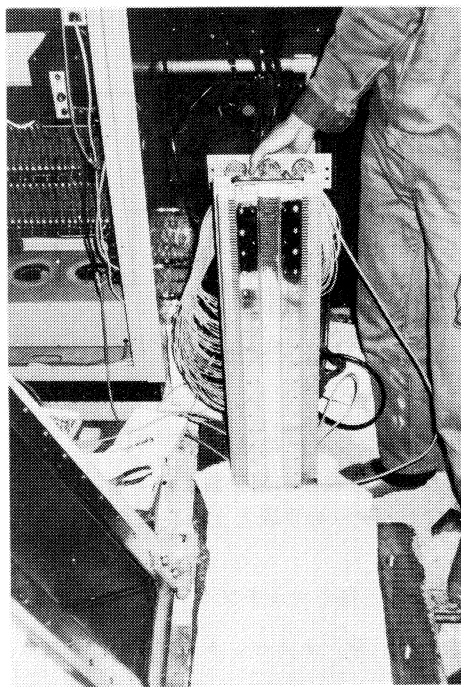
第2図は断面図。計数管はステンレス製ケースに取り付けられてBDMの焦点面にセットされる。信号線と陰極面との距離は5 mmで, 高電圧は信号線側に正電圧をかけて, コンデンサーを通して信号を取り出す。高電圧印加方式には陰極面側に負電圧をかける方式と, 信号線側に正電圧をかける方式とがある。一般には, 陰極面側に高電圧をかける方式の方が扱いやすく, 試作品でもこの方式を用いていた。しかしBDM内部の真空悪化の際にアルミ蒸着テトロンの窓が近くの金属壁と放電を起こし破損する事故が起り, この方式ではそのような事故の危険



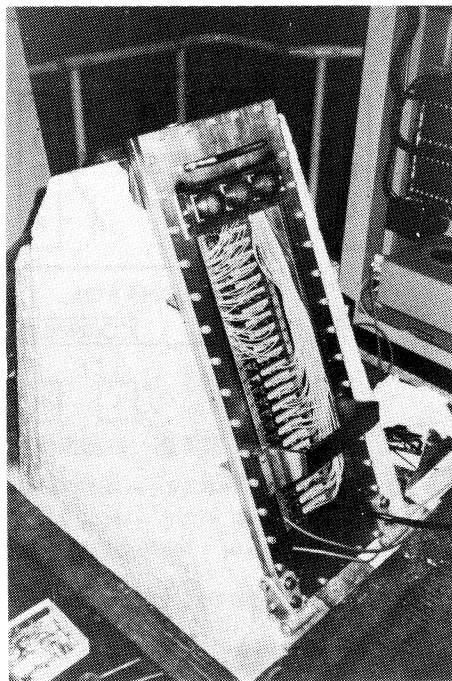
第2図 多線比例計数管断面図

- A : 信号線
- B : 陰極面
- C : ハンド
- D : 信号取り出し用コンデンサー
- E : ガス流入出管
- F : 高電圧用コネクタ
- G : ステンレス製ケース (外部は真空, 内部は1気圧)
- H : プレ・アンプ
- I : 信号取り出し用コネクタ
- J : 信号取り出し用丸形コネクタ

性の高い事が分ったので、本番用計数管では、信号線に正電圧をかける方式にかえたのである。高電圧は可変であるが、 α 粒子の測定の際は1.2 kV、陽子測定の際は1.5 kVを標準としている。ガスはアルゴン90%、メタン10%のPRガスを毎分15 cm³ ずつ流している。ガス圧は1気圧である。プレアンプはFET入力のチャージ・センシティブ・プレアンプで、1枚の基板に4チャンネル組み込んだものを25枚、計数管本体のすぐ上に並べてある。出力は入力と遠ざける為に上から取り出している。第3図は多線比例計数管本体の写真。第4図はそれをBDMに取り付けた時の写真である。



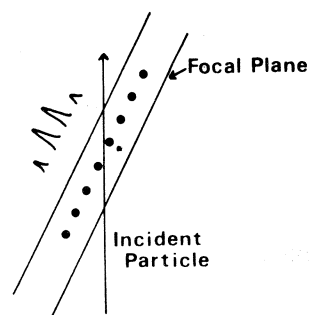
第3図 多線比例計数管本体の写真



第4図 BDMに取り付けられた多線比例計数管

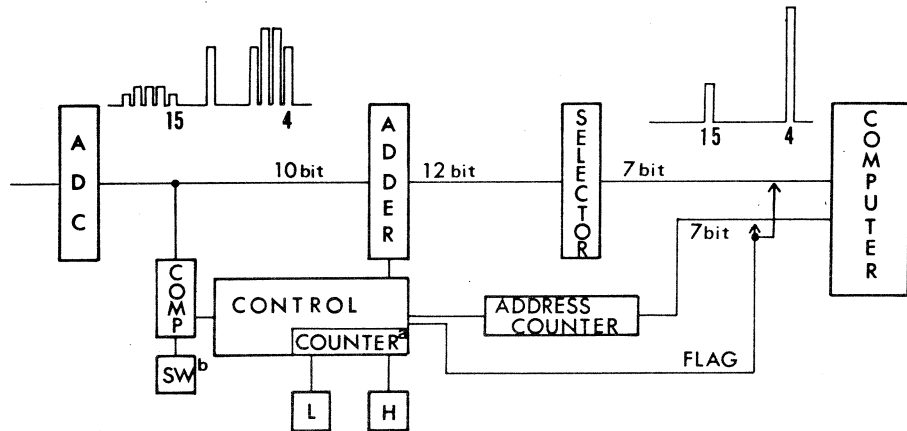
§ 3. 測定系

粒子は計数管にかなり斜めに入ってくるので、いわゆる斜め入射が問題になる。第5図のように斜めに粒子が入射すると、一般に連続する数本の信号線に信号が出る。これを一つの粒子と判定するのは次のようにして行なう。入射側の窓をBDMの焦点面と一致させておくと、信号の現れた最初の信号線の位置で、粒子が焦点面を横切った事となり、それによって粒子の運動量を知る事が出来る。又、連続する信号線に現れる信号の和は粒子がガス中で失なったエネルギーに比例



第5図 計数管に対する斜め入射問題の解決、粒子入射側の窓を焦点面と一致させる。

するから、その大きさを測定する事により粒子の種類を識別する事が出来る。我々が採用した方式ではADCで信号をデジタル化した後で、先頭の信号線に後続する信号も加え込んでやっている。第6図は多線比例計数管用インターフェイスの流れを大雑把に書いたものであり、SSD用インターフェイスの一部を改造して、スイッチの切換えでどちらにでも使えるよう



第6図 多線比例計数管用インターフェイスの流れ図

COUNTER (a) : 連続して信号の現われる信号線の本数を数える。

マイクロ・スイッチ (L, H) : 有用なデータの下限と上限を設定

SW (b) : 信号の閾値を設定

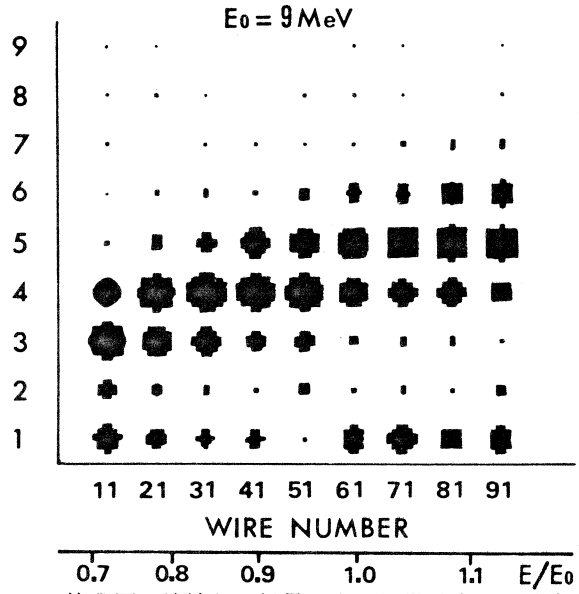
になっている。100本の信号線からの信号はバーストの終了毎にマルチプレクサーの切換えによって次々と送り込まれADCによってデジタル化される。今、オフセット・スイッチbにセットされた値より大きな信号が来ると、その信号線の番号がアドレス・カウンタに記憶され、連続して次の線にも信号があれば、それは加算器によって前の信号に加えられる。カウンタaは連続して信号のあった線の本数を数えている。以下、スイッチbの値よりも大きな信号が連続して入ってくるあいだは、同様の処理がなされる。結局ある線で信号が途切れた時には、アドレス・カウンタには信号の現れ始めた最初の信号線の番号、カウンタaには連続して信号のあった信号線の本数、加算器にはその波高値の総和が記憶されている。一個の入射粒子があったと判定する連続信号線数はあらかじめ、マイクロスイッチに上限 (H) と、下限 (L) をセットしておき、カウンタaの内容がその範囲に入っていれば、アドレス・カウンタの内容と加算器の内容が計算機に送られる。もしカウンタaの内容が L より小さければアドレス・カウンタ、カウンタa、加算器の内容は消去され、そのデータは捨てられる。一方カウンタaの内容が H より大きければ、アドレス・カウンタの内容と共に、ワイヤ・オーバーフローに対応する信号が計算機に送られる。このような現象は入射粒子の数が測定限界を越えて多すぎる時に起こるので、ワイヤ・オーバーフローの多い時には電子ビームの強度を落とさなければならない。ADC出力は10ビットで、12ビットの加算器に加えこまれる。その12ビットのうちの適当な7ビットが2段の選別器によって選択され、計算機に送られる。今、例として第6図の左上の様な信号が入って来るとする。4、15などの数字は信号線の番号で、信号は実際にはデジタルであるが簡単の為にヒストグラムで書いてある。これが計算機

に送られる時には右上のようになるわけである。この測定回路系では不規則な雑音やバックグラウンドもある程度除く事が出来る。

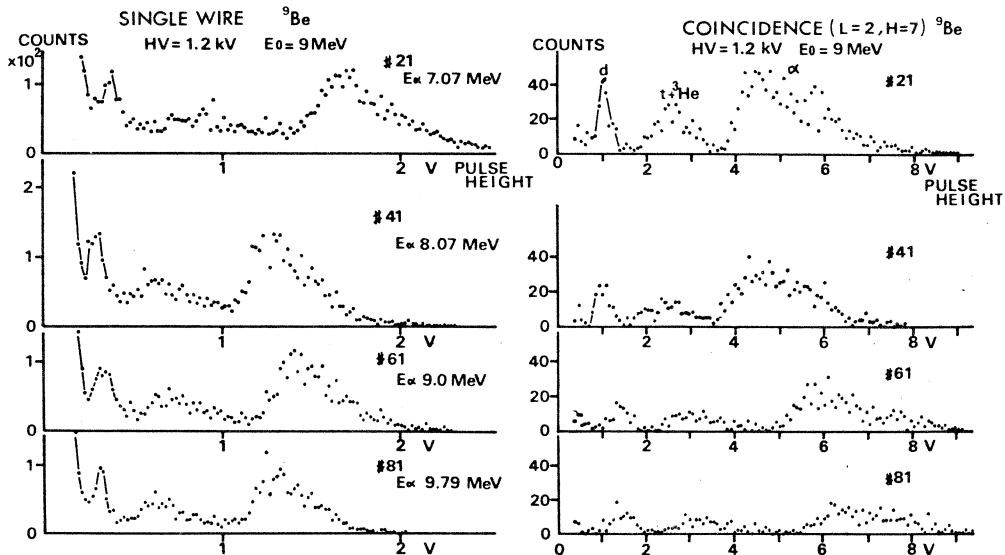
§ 4. 測定結果

第7図は連続して信号の出る信号線数の分布である。横軸は先頭の信号線番号。61本目の線の α 粒子エネルギーが9 MeVである。

これは ${}^9\text{Be}$ の標的に60 MeVの電子線をビーム強度を下げて照射した時、放出される α 粒子の分布であるが他の粒子の分布も大差ないと思われる。この分布を見てインターフェイスのマイクロスイッチ(L, H)の値を決めるのである。第8図の左側は、一本の信号線に現われる波高値の分布、右側は二本乃至七本の連続する信号線に信号が出た場合、それを一個の粒子と判定するようにセットした時(L=2, H=7)の波高値分布である。これは61本目の信号線に入射する α 粒子

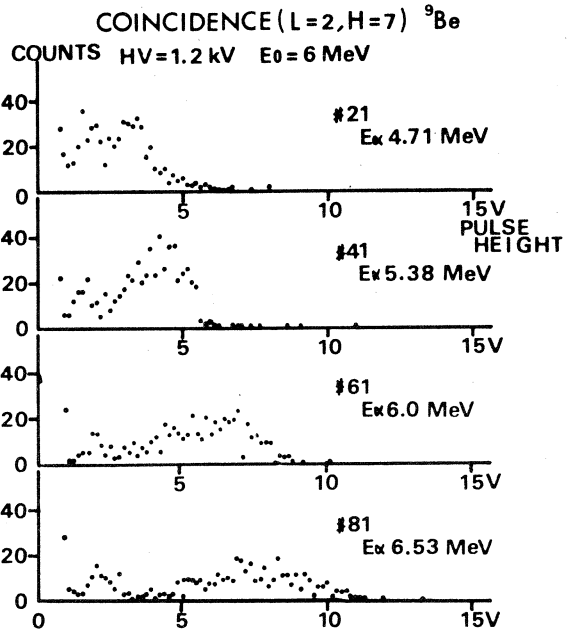


第7図 連続して信号の出る信号線本数の分布。横軸は先頭の信号線の番号。

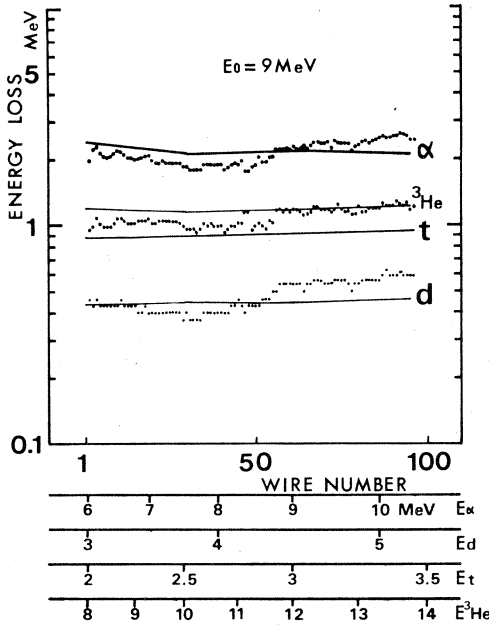


第8図 (左)：一本の信号線に現われる波高値分布。
(右)：多線比例計数管用インターフェイスで処理された波高値分布(L=2, H=7)。E₀=9 MeV。3つの山に分かれている。

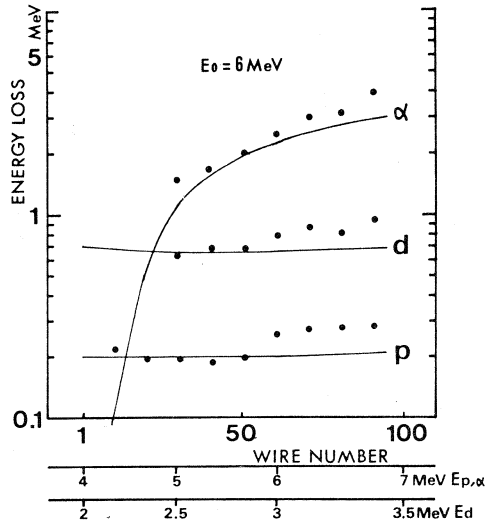
のエネルギーが9.0 MeVとなるようにBDMの磁場を設定した時の波高値分布で、三つの山に分かれている事が分かる。第10図はガス中でのエネルギー損失の計算値を縦軸に対数目盛を取って書いたもので横軸は信号線の番号である。プロットした点は三つの山の重心位置で、一番上が α 粒子、一番下が重陽子、真中はトリトンと ^3He の重なったものだと云う事が分る。但し、計算値と測定値は61本目の線の α 粒子に対する値でノーマライズしてある。第9図はBDMの磁場を下げ、より低いエネルギー領域を見たもので、61



第9図 低いエネルギー領域 ($E_0=6\text{ MeV}$)での波高値分布。5 MeV以下の α 粒子の分離は不可能である。

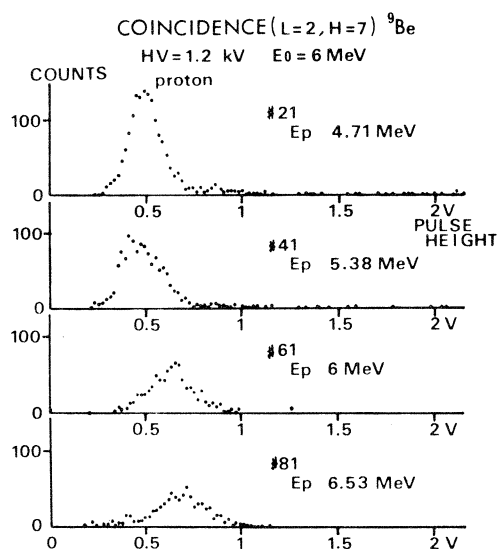


第10図 種々の粒子のガス中でのエネルギー損失(計算値)と波高値分布に見られた山の重心位置。三つの山が α 粒子・重陽子・三重陽子と ^3He の混合に対応するのが分かる。

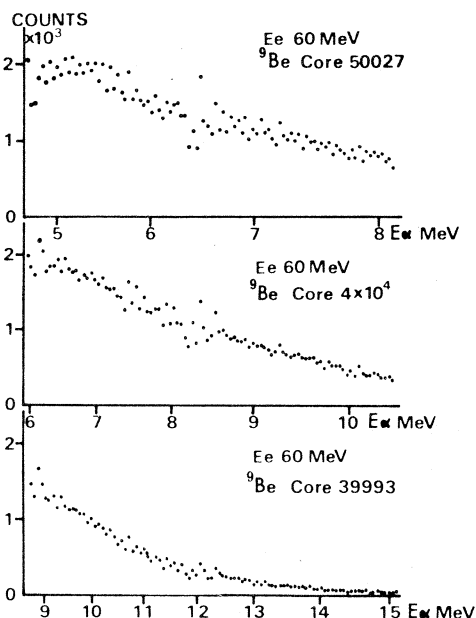


第11図 低いエネルギー領域 ($E_0=6\text{ MeV}$)での波高値と粒子のガス中でのエネルギー損失との比較

本目の信号線で α 粒子エネルギー6.0 MeVである。21本目の信号線の波高値分布を見ると、もはや山を分離する事は不可能である。第11図の計算値を見ても分かるように、5 MeV以下の α 粒子は窓の通過の際にはほとんどエネルギーを失ってしまう為に測定が困難になる。陽子の波高値は α 粒子の十分の一程度で、多線比例計数管にかける高電圧を上げるか、インターフェイスの選別器のレンジを変える事によって測る事が出来る。第12図に陽子の波高値分布を示した。これらの山の重心の位置も第11図にプロットしてあるが、概ね合っている。



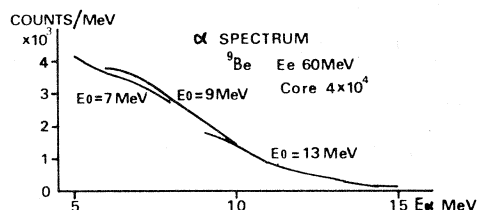
第12図 陽子による波高値分布



第13図 α 粒子スペクトル ($E_e = 60$ MeV, 標的 11.7 mg/cm^2 の ^9Be)

第13図は厚い ^9Be の標的を60 MeVの電子線で照射した時の α 粒子スペクトルである。3通りの磁場設定で測定したスペクトルを滑らかにした後、立体角補正・タングステン線の影の補正等を施してつないだのが第14図でつながり具合の良さは種々の補正計算が誤っていない事を示している。

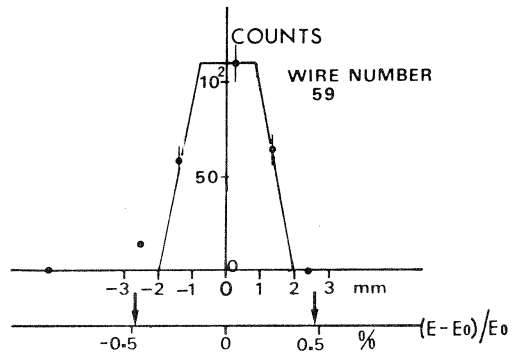
計数効率はSSDの約3倍であった。現在、



第14図 種々の補正を施してつないだ α 粒子スペクトル ($E_e = 60$ MeV, 標的 11.7 mg/cm^2 の ^9Be)。つながり具合の良さは補正に誤りがない事を示している。

BDM 出口のバフフル・スリットはまだ全開ではなく、これを全開にした場合の計数効率は、SSD の約 5 倍になると見込まれている。

第15図は散乱槽の標的の位置に 1 mm のスリットでコリメートした ^{241}Am の α 源 (5.48 MeV) を置き、BDM の磁場を少しずつ変化させながら 59 本目の信号線での計数を測ったものである。信号線は 6 mm 間隔で張られているが粒子入射の方向から見た時の間隔は 2.6 mm である。矢印の位置が隣の信号線位置を示している。図中の実線は隣の信号線との丁度中間位置までが有効領域であると仮定した時の計算値で、測定点の数はまだ充分ではないがほぼこの線の上に乗っている。上の仮定によると 59 番目の信号線位置でエネルギーの分解能は 0.6 % となるが、実際にもこの値の得られている事が分かる。



第15図 BDMの磁場を少しずつ変化させた時の計数の変化

§ 5. 結 び

BDM 系のインターフェイスの改良によって波高値の同時測定が可能となり、SSD を用いた場合にも SSD 前面に適当な厚さの吸収体を置いて粒子の種類を識別する事は可能である。この場合と多線比例計数管を用いた場合とを比較してみると、多線比例計数管の長所は、

- (1) 立体角を大きく取れて計数効率が良い。
- (2) 陽子から α 粒子を分離するのが容易。

などであり

- (1) 三重陽子と ^3He の分離が不可能
- (2) SSD に比べてパイルアップの危険度が大きい。

などが欠点となる。

今後しばらくは SSD と多線比例計数管を併用しながら、それぞれの特性をより詳しく比較し、実験の種類に応じてこの二つの測定器を使い分けるようにする必要があると思う。

最後になりましたが、回路系の製作を手伝っていただきました佐藤新悦さん、佐藤正幸さん実験を手伝っていただきました (r, p) グループ、マシングループの皆様へ感謝致します。

参 考 文 献

- 1) 核理研究報告 **9** (1976) 199.

V-3 BDM用粒子検出系の改良

核理研 浦野隆夫・菅原真澄
窪田健雄・庄田勝房

§ 1. 序

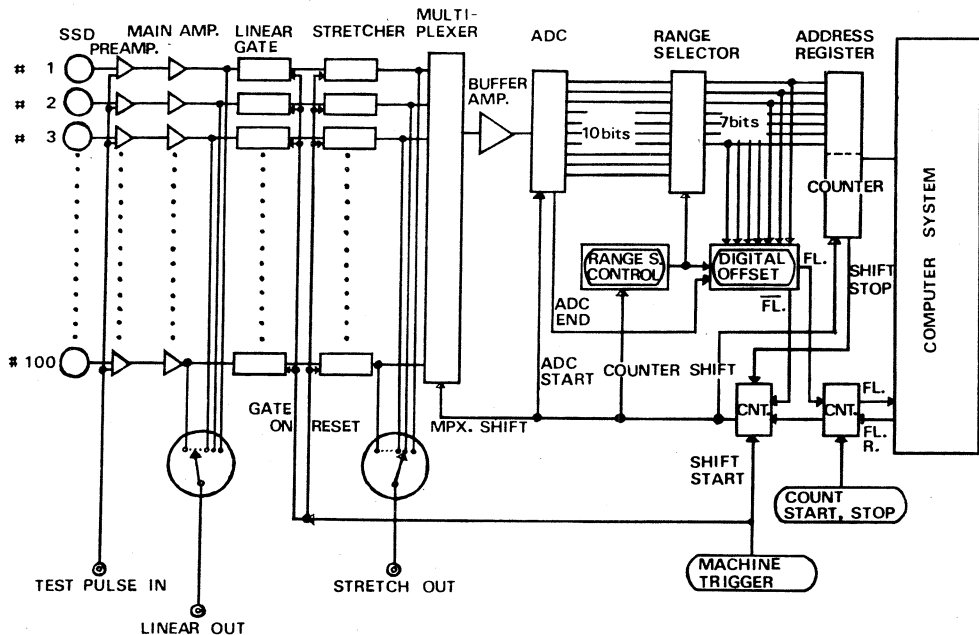
光核反応において、 (r, n) 、 (r, p) 反応以外の研究は遅れており、 (r, α) 、 (r, d) 、 (r, t) 、 $(r, {}^3\text{He})$ 反応等の研究が期待されている。

核理研第一実験室の広帯域磁気分析器 (BDM) の粒子検出系は、従来、焦点面に並べた100個のSSD (リチウムドリフト型シリコン検出器) からの信号について、ある波高以上を1カウントとして計数していた。そのため、2種類以上の正荷電粒子の識別はできなかった。

今回、2種類以上の正荷電粒子の識別を可能とするため、SSDからの信号をすべて波高分析して記録するよう、回路系とオンラインプログラムの改良を行なった。

§ 2. 回路系

第1図に回路系のブロック図を示す。リニアゲート以後が、今回新しく取り付けられた回路であ



第1図 回路系のブロック図

る。

メインアンプを出た100個のパルス信号は、リニアゲートが開いていれば、100個のパルスストレッチャーによりそれぞれ波高が保持される。後に述べるように、100個の信号についてのデータ処理は500マイクロ秒で終了するが、ストレッチャーはこの間完全に波高を保持する。

マルチプレクサーは、100個のストレッチャー出力信号の中から、付属のカウンターで指定した1個の信号を順次選択する。これには、8チャンネル入力のマルチプレクサーを13個用いた。マルチプレクサー13個の入力104チャンネルのうち、100チャンネルがストレッチャー出力に接続されている。マルチプレクサーの切り換え時間は250ナノ秒である。

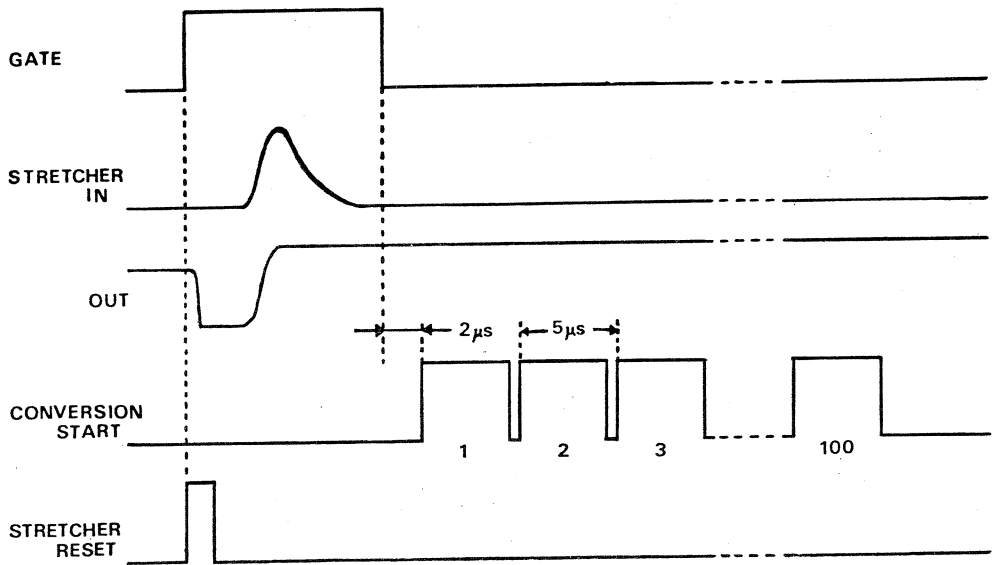
マルチプレクサーで選択された信号は、バッファアンプを通ったあと、ADコンバーター(ADC)に入力する。これは10ビットの逐次比較型汎用ADCで、変換速度が1マイクロ秒と速いものである。

AD変換、その後のデジタルデータ処理、計算機へのデータ格納に要する時間は全体で5マイクロ秒で充分である。したがって、マルチプレクサー付属のカウンターの内容を5マイクロ秒間隔で1つずつ増加させ、それによってマルチプレクサーを次々と切り換えている。100個の信号の処理に要する時間は500マイクロ秒となるが、ライナックが毎秒300サイクルで運転される場合、バースト間は3.3ミリ秒あるから、これで充分である。以上、ADCまでが実験室に置かれている。

測定室ではまず、ADC出力10ビットのうち、上又は下の7ビットをレンジセクターで選択する。そして設定されたオフセットレベルより大きい場合にだけデータ格納信号を出して7ビットのデータを格納する。10ビット中7ビットの選択は4種類あり、SSD 8個ずつまとめて切り換えるようにした。オフセットレベルの設定は、4種類のレンジごとに行なう。7ビット(128チャンネル)というのは、計算機のコアメモリーの容量から決定したが、10ビットのADCを選んだのは、ADCの誤差の影響を小さくするためである。

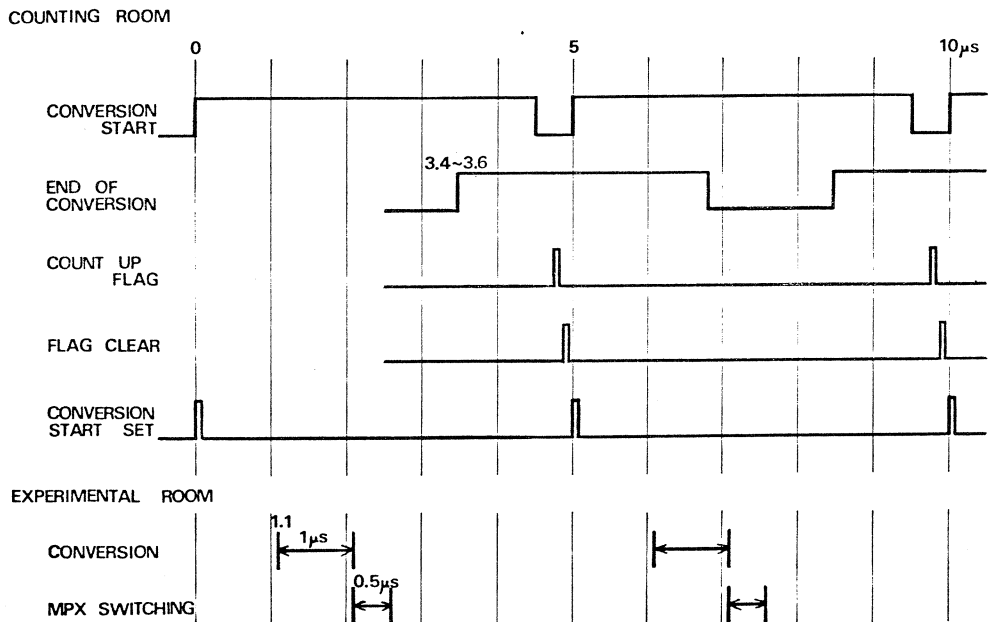
オンライン計算機(OKI TAC 4500, 32 kword)へのデータ格納は、アドワンチャンネルを通して行なう。なお、デジタルデータ処理回路はIC化され、コンパクトになっている。

第2図にリニアゲートからADCまでのタイムチャートを示す。バースト毎に出力パルスのタイミングに合わせてゲートをかける。出力パルスが来れば、ストレッチャーにより波高が保持される。ゲートの終りから2マイクロ秒遅れてAD変換開始信号が出され、5マイクロ秒間隔で100回の変換を繰り返して変換を停止する。ストレッチャーのリセットは、次のゲートの初めのところで行なう。



第2図 リニアゲートからADCまでのタイムチャート

第3図は、1回のAD変換に関するタイムチャートである。AD変換開始信号（CONVERSION START）は測定室から出されるが、測定室と実験室間の信号遅延が1.1マイクロ秒あるのでそれだけ遅れて実験室でAD変換が始まる。1マイクロ秒かけてAD変換が終ると、マルチプ



第3図 1回のAD変換に関するタイムチャート

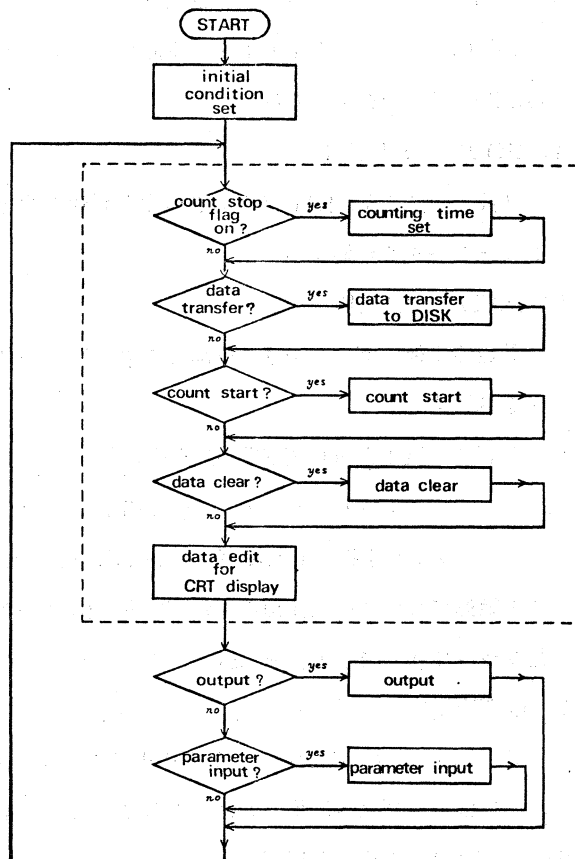
レクサー切り換え信号が出されると同時に、測定室へは変換終了信号（END OF CONVERSION）を送る。測定室では、デジタルデータの処理をしたあと5マイクロ秒の最後のところで計算機へのデータ格納信号（COUNT UP FLAG）を出し格納する。

§ 3. オンライン用プログラム

アドワンチャンネルを通してコアメモリーに格納されたデータは、そのままかあるいは編集されて、CRTで表示される。データは1回の測定ごとに1.2Mwordの磁気ディスクに転送され、実験終了後のオフライン処理ができるようにした。実験中にオンライン用プログラムで編集されたデータは、紙テープ、ラインプリンターで出力される。

第4図にオンライン用プログラムの流れ図を示す。このプログラムの特徴は、割り込み処理等を除いて、可能な範囲で多くの部分をフォートランを用いて書いた事である。これは今後のプログラム変更が簡単にできるようにという意図にもとづいている。また、フォートランで入出力処理を行なっている間、一定時間ごとにタイマーによる割り込みが掛かり、他の処理ルーチンを回るようになっている。第4図中の点線で囲んだ部分が、タイマーによる割り込みで回るルーチンである。

プログラムの制御は、コントロールパネル、CRTパネル、ディスプレイ装置、タイプライタ上の押しボタンで行なう。この場合、押しボタンを押す事により、CPUに割り込みをし、割り込み処理ルーチンで対応する処理のフラグを立てるとともに帰る（ただしCOUNT STOPは2）参照）。一連の処理プログラムの中では



第4図 オンライン用プログラムの流れ図。点線で囲んだ部分は、入出力処理中にタイマーによる割り込みで回るルーチンである。

これらのフラグを調べてゆきセットされている処理のルーチンへとぶというやり方をとっている。

各々の処理の内容は次の通りである。

1) INITIAL CONDITION SET

パラメータの初期値設定、割り込み飛び先番地の設定、タイマーの起動等を行なう。

2) COUNTING TIME SET

STOP ボタンを押すと、割り込み処理ルーチンの中で計数が停止されると同時に、COUNT STOPフラグを立てる。このフラグによりとぶルーチン中では、計数時間算出等の処理をしている。

3) DATA TRANSFER to DISK

計数停止後、データ出力ボタンを押すとコアメモリー中のデータを磁気ディスクに転送しOUTPUTフラグを立てる。

4) COUNT START

計数停止後、START ボタンを押すと計数を開始し、コアメモリー中の指定したエリアに次々とデータを格納する。

5) DATA CLEAR

計数停止後、データ保護を解除した後にCLEAR ボタンを押すと、コアメモリー中のデータを抹消する。

6) DATA EDIT for CRT DISPLAY

コントロールパネル上のスイッチで指定したSSD 1個ごとのスペクトルを表示する。また、スペクトル中指定した範囲について和をとった値をSSD 番号を横軸として表示する。和の範囲については三種類の指定ができ、両端の値はコントロールパネル上から割り込み機能を使って入力できる。また紙テープでの入力もできる。(8) 参照)。

7) OUTPUT

3) で述べた OUTPUT フラグによりこのルーチンに入る。出力機器は、ラインプリンター、紙テープ(高速及び低速)であり、別々に選択できる。

8) PARAMETER INPUT

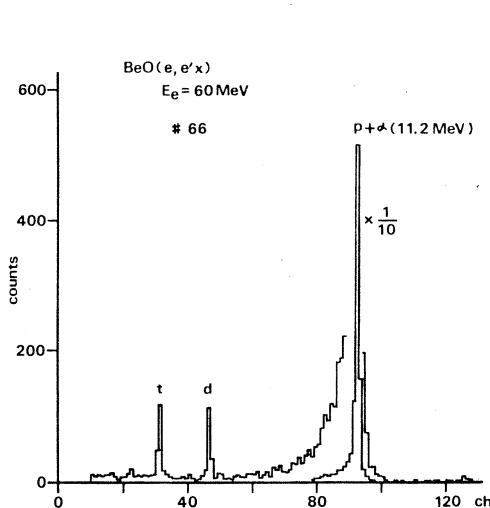
日付、データ番号等をディスプレイ装置から入力する。スペクトル中の和をとる両端の値と、計数の補正係数をPTR から紙テープで入力する。

§ 4. 測定例

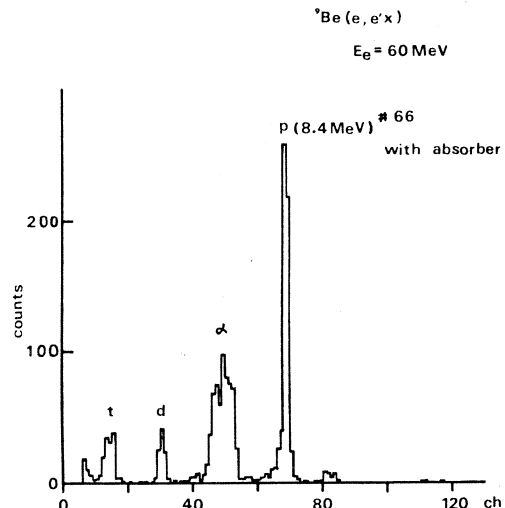
改良された粒子検出系を用いて測定した例を示す。これはADC 10ビット中、上の7ビットをとったものである。

第5図は、11.2 MeVの陽子が入射するSSDについてのスペクトルである。陽子と α 粒子とを含むピークの半値幅は約200 KeVである。このピークの2分の1のところには重陽子、3分の1のところには三重陽子のピークが見られる。

陽子と α 粒子の分離にはSSDの直前に適当な吸収体を置いて、吸収体中でのエネルギー損失の差を利用する。12 μm (1.7 mg/cm^2) のテトロンを用いて、8.4 MeVの陽子と α 粒



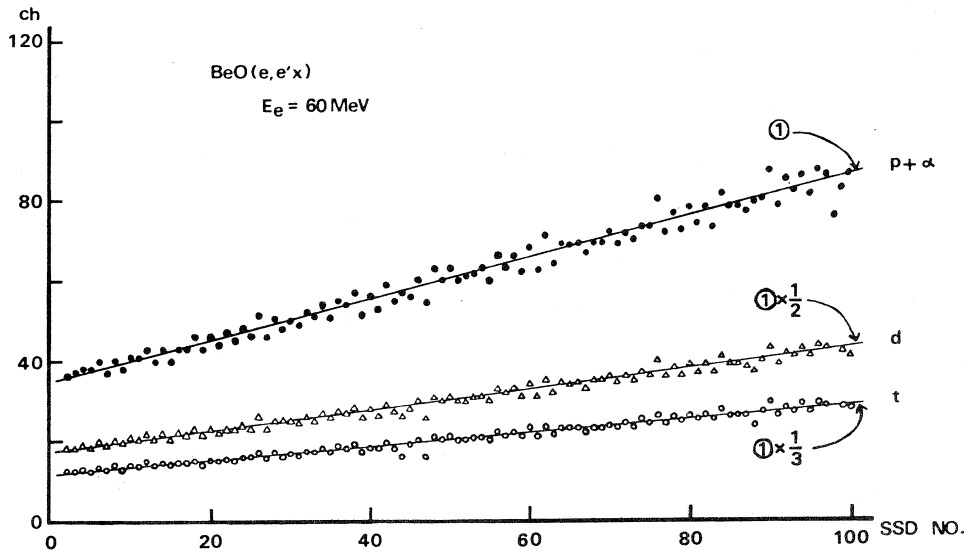
第5図 11.2 MeVの陽子が入射するSSDについてのスペクトル。9チャンネル以下はデジタルオフセットでカットしている。



第6図 8.4 MeVの陽子と α 粒子を、SSDの直前に吸収体(12 μm のテトロン)を置いて分離したスペクトル。陽子と α 粒子のピーク間には約2.3 MeVの差が生じている。5チャンネル以下はデジタルオフセットでカットしている。

子を分離したのが第6図である。この場合、陽子と α 粒子のピーク間には約2.3 MeVの差が生じ、 α 粒子のピークは半値幅が約1 MeVと広がっている。陽子は約200 KeVエネルギーが低くなり、ピークはそれほど広がっていない。重陽子、三重陽子は陽子以上にエネルギーを失ない、陽子の2分の1、3分の1よりそれぞれ低いところにピークが見られる。

第7図は、陽子と α 粒子、重陽子、三重陽子についてSSD波高分布におけるピークの位置を示したものである。吸収体は用いていない。実線①は陽子と α 粒子の測定値に合わせた計算値であるが、実線①の2分の1、3分の1の線上に重陽子、三重陽子がきれいに並んでいるの



第7図 SSD波高分布における陽子と α 粒子、重陽子、三重陽子のピーク的位置。吸収体は用いていない。●：陽子、 α 粒子 △：重陽子 ○：三重陽子 実線①は陽子と α 粒子の測定値に合わせた計算値であり、1番目のSSDでは4.3 MeV、100番目のSSDでは10.5 MeVに対応している。

がわかる。SSDによってピーク的位置にばらつきがあるのは、主にアンプの性能の差によるものである。

このように、新しい粒子検出系は期待通りの性能を発揮する事がわかった。

最後に、今回の改良と測定に協力していただいた計測グループ、マシングループ、(r,p)グループの皆さんに感謝いたします。また、オンライン用プログラムに多くのサブルーチンを提供していただいた中原さん、プログラム作製に多くの助言をいただいた早川さんに感謝の意を表します。

なお、今回の製作費用の一部は50年度科研費によるものです。

VI. 加速器稼働状況

VI-1 昭和51年度前期マシン報告

核理研マシングループ

浦澤茂一・今野 収・一戸 隆

栗原 亮・根本重伸・柴崎義信

○ 概 況

エネルギー幅圧縮装置 (ECS)¹⁾の完成。昭和49年後半に計画を立案し、同時にECS建設グループを結成した。各部品の設計、発注を行い本年4月30日から組立工事を開始した。工事は予定より2週間遅れ、6月26日に完成、3日間の試験運転の結果、設計通り動作しビーム強度は以前の約10倍になった。

リニアック技術研究会の開催。7月22日から3日間、上記の研究会を核理研主催で行い、我がグループ関係からも6件²⁾の報告を行った。

○ マシントイム実施状況

課 題 (責任者)	割 当	実 施	備 考
es (鳥塚)	9	9	
es (有田)	5	5	
es (小山田)	7	7	
rp (庄田)	3	3	うち2日は50年後期で実施
rp (坪田・宮瀬)	4	4	
$r\pi^+$ (庄田)	5	5	
$r\pi^+$ (成)	0	4	前期途中で課題を採択した
$r\alpha$ (菅原)	7	7	
rx (種市)	2	2	
rch (中村)	1	1	
rn (阿部)	3	0	51年後期で実施予定
ION (森田)	2	2	
中性子グループ	17	17	
RI グループ	22	22	うち核分光6日生医1日物性1日を含む
BDM (庄田)	4	4	
ECS テスト (鳥塚)	0	3	
	91	95	

○ 保 守

	予 定	実 施	備 考
工 事 及 故 障	36	24	7月工事 5日 9月工事 7日
E C S 工 事	36	48	
定 期 点 検	3	3	
マ シ ン 停 止 日	7	9	
計	82	84	

7月工事 クライストロンNo.5系統の耐電力低下の改修工事が主で、原因はSF₆ガスの分解による放電であった。尚誘因はモード変換器のミスマッチングと考えられる。

9月工事 電子銃カソード交換（加熱4,500時間）及びA部加速管系の真空リーク修理を行った。導波管冷却系を試運転中B-9の導波管気密窓の冷却部が破損し真空系に冷却水が流入した。このためB部加速管12本及び導波管、ECS系、Ⅱ、Ⅲ、Ⅳ系ビームダクト系が完全に浸水した。ただちに復旧作業を行い、3週間後の10月18日より共同利用業務が再開された。古い部品の劣化がクローズアップされた。

- 1) 菅原他 : 第1回加速器科学研究発表会報告集(1975) 90 .
 菅原他 : リニアック技術研究会報告集(1976) 32 .
 浦澤他 : 物理学会分科会予稿集(1976) 44 .
- 2) 今野他 : リニアック技術研究会報告集(1976) 8 .
 浦澤他 : 同 上 22 .
 一戸他 : 同 上 25 .
 栗原他 : 同 上 27 .
 阿部他 : 同 上 29 .
 根本他 : 同 上 30 .

Ⅶ. 論 文 リ ス ト

VII 論文リスト

核理研共同利用の成果を核理研研究報告以外の学術雑誌に掲載された論文（昭和50年1月～昭和50年12月）の題目を集録しました。

I 原子核物理部門

1. Electroexcitation of Rotational Bands in ^{25}Mg .
Y. Okazaki, K. Hayakawa, K. Nakahara, M. Oyamada,
T. Terasawa and H. Saito: Phys. Lett. **55B** (1975) 373.
2. Electroexcitation of Low-Lying States in ^{19}F .
M. Oyamada, T. Terasawa, K. Nakahara, Y. Endo, H. Saito and
E. Tanaka: Phys. Rev. **C 11** (1975) 1578.
3. Electroexcitation of Giant Multipole Resonances in ^{40}Ca .
Y. Torizuka, K. Itoh, Y. M. Shin, Y. Kawazoe, H. Matsuzaki
and G. Takeda: Phys. Rev. **C 11** (1975) 1174.
4. Quasielastic Electron Scattering and Giant Multipole
Resonances in ^{116}Sn .
K. Hosoyama and Y. Torizuka: Phys. Rev. Lett. **35** (1975) 199.
5. (r, p) Cross Sections and Isospin Splitting of the Giant
Dipole Resonance in $N=50$ Nuclei.
K. Shoda, H. Miyase, M. Sugawara, T. Saito, S. Oikawa,
A. Suzuki and J. Uegaki: Nucl. Phys. **A 239** (1975) 397.
6. Angular Distributions of Photoprotons from ^{208}Pb .
K. Shoda, M. Sugawara, T. Saito and H. Miyase: Nucl. Phys.
A 246 (1975) 357.
7. Photoproton Reactions on ^{208}Pb .
K. Shoda, S. Oikawa, T. Saito, H. Miyase and A. Suzuki:
Nucl. Phys. **A 246** (1975) 365.
8. The Giant Dipole Resonance in ^{26}Mg .
M. Sugawara, T. Terasawa, T. Tamae, K. Kawamura, H. Saito
and H. Tsubota: Nucl. Phys. **A 248** (1975) 477.

9. Photoproton Cross Section for ^{19}F .
H. Tsubota, N. Kawamura, S. Oikawa and J. Uegaki: *J. Phys. Soc. Japan* **38** (1975) 299.
10. Energy Spectrum of Delayed Neutrons from Photo-fission of ^{238}U .
S. Iwasaki, K. Yane, S. Sato, M. Hagiwara and K. Sugiyama:
Pro. Intern. Conf. on Nuclear Cross Sections and Technology
(NBS SP-425, 1975) p.611.

II 物性物理部門

1. Structure of Liquid Gallium and Rubidium by Pulsed Neutron Diffraction Using Electron Linac.
K. Suzuki, M. Misawa and Y. Fukushima: *Trans. JIM* **16** (1975) 297.
2. Analysis of Transient Crystal and Liquid Structure Phenomena Using Neutron Time-of-Flight Techniques.
N. Niimura and M. Muto: *Nucl. Instru.* **126** (1975) 87.
3. Neutron Time-of-Flight Techniques for Investigation of the Extinction Effect.
N. Niimura, S. Tomiyoshi, J. Takahashi and J. Harada:
J. appl. Cryst. **8** (1975) 560.
4. Neutron Diffraction Study of an Amorphous $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ Alloy with TOF Technique.
T. Mizoguchi, K. Yamauchi and N. Niimura: *Japan J. appl. Phys.* **14** (1975) 711.
5. Neutron Diffraction from Nematic Liquid Crystalline Phase and Isotropic Phase of Paraazoxyanisole.
N. Niimura: *Molecular Cryst. and Liquid Cryst.* **31** (1975) 123.
6. Helical Spin Structure of Mn_3Si .
S. Tomiyoshi and H. Watanabe: *J. Phys. Soc. Japan* **39** (1975) 295.
7. Epithermal Neutron Diffraction from Natural Gd Compounds.
Y. Ishikawa, N. Watanabe, H. Sekine, K. Tajima and K. Takei:

Proc. Neutron Diffraction Conf. (Petten, 1975).

8. Time of Flight Pulsed Neutron Diffraction of Pd_{0.8}Si_{0.2} Amorphous Alloy Using the Electron Linac.
K. Suzuki, T. Fukushima, M. Misawa and T. Masumoto:
Proc. 2nd Intern. Conf. Rapidly Quenched Metals. (MIT Cambridge Massachusetts, Nov. 17-19, 1975).
9. Neutron Inelastic Scattering Spectra and Lattice Vibrations of 9, 10-Anthraquinone Crystal.
Y. Miyazaki and M. Ito: *Chem. Phys. Lett.* **33** (1975) 121.
10. K-shell Ionization by Relativistic Electron Impact.
H. Tawara, K. Ishii, S. Morita, H. Saito, M. Oyamada, H. Kaji and T. C. Chu: *Phys. Lett.* **54 A** (1975) 171.

III 放射化学部門

1. Evidences of Ion-Cluster Formation on the Reaction of I.T.-Activated ⁸⁰Br in H^{80m}Br-CH₄ System.
M. Yagi and K. Kondo: *Radiochem. Radioanal. Lett.* **20** (1975) 299.
2. Chemical Effect of the K_β/K_α Intensity Ratios in the ⁵¹Cr-Labeled Chromium Compounds.
Y. Tamaki, T. Omori and T. Shiokawa: *Radiochem. Radioanal. Lett.* **20** (1975) 255.
3. Beta Decay and Isomeric Transition.
T. Shiokawa: *Hot Atom Chemistry Report*, IAEA Vienna (1975).
4. Determination of Nickel in Standard Rocks and Glasses by Photon Activation Analysis with 30 MeV Bremsstrahlung.
K. Kato, E. Kitazume and N. Suzuki: *Anal. Chim. Acta.* **77** (1975) 117.
5. Preparation of Carrier-Free ²⁸Mg by means of Photoneuclear Reaction.
M. Yagi, A. Yamadera, S. Fujikawa and T. Shiokawa: *Int. J. Radiation and Isotopes* **26** (1975) 637.

6. Photoproduction of High Specific Activity of Thulium-167 for Medical Use.

K. Sakamoto, Y. Shirota, A. Ando and K. Hisada: Japanese J. Nucl. Med. **12** (2) (1975) 128.

IV 生物学部門

1. Affinity of ^{167}Tm for Malignant Tumor and Bone.

A. Ando, K. Hisada, K. Sakamoto and Y. Shirota: Radio-isotopes **24** (1975) 109.

2. Affinity for a Malignant Tumor and Bone of Thulium-167.

A. Ando, K. Hisada, K. Sakamoto and Y. Shirota: Japanese J. Nucl. Med. **12** (2) (1975) 143.

核理研研究報告 第9巻 第2号

昭和51年12月発行

発行所 東北大学理学部附属原子核理学研究施設
仙台市富沢金山1 (郵便番号982)

印刷所 株式会社 東北プリント
仙台市立町24番24号
TEL (25) 6466 (代)

Research Report of Laboratory of Nuclear
Science Tohoku University Vol. 9 No.2 Dec.1976
Laboratory of Nuclear Science,
Tohoku University
1, Kanayama, Tomizawa, Sendai, Japan