

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 究 報 告

VOL. 8 No. 2 Dec. 1975

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

刊 行 規 定

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

投 稿 規 定

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

仙台市富沢金山1 郵便番号 982

東北大学理学部原子核理学研究施設

「核理研研究報告」編集係

核理研研究報告 Vol.8 No.2 目次

I 原子核物理部門

I-1 電子散乱による原子核の研究	233
-------------------------	-----

(核理研, 教養部*, 理学部物理,** マインツ大***)

鳥塚 賀治, 斎藤悌二郎, 寺沢 辰生, 笹尾真実子

福田 茂樹, 三浦 英美, 榎本 収志, 大沢 哲

川添 良幸*, 宇井 治生,** J. Friedrich***

I-2 ^{26}Mg の電荷密度分布	251
------------------------------------	-----

(核理研, 理学部物理*)

岡崎 行男, 小山田正幸, 寺沢 辰生, 中原 和夫

斎藤 肇*, 田中 英二*

I-3 $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)$ 反応による核構造の研究 (I)	256
--	-----

(核理研) 大橋 英雄, 中原 和夫, 庄田 勝房

I-4 The (γ, p) Cross Sections of ^{42}Ca and ^{52}Cr	266
---	-----

(メルボルン大*, 教養部**, 核理研)

M. N. Thompson,* 庄田 勝房, 菅原 真澄

R. F. Pywell,* 斎藤悌二郎, 坪田 博明**

宮瀬 晴久,** 上柿 順一, 玉江 忠明,

大橋 英雄, 浦野 隆夫

I-5 ^{139}La , ^{141}Pr の $f_{7/2}$ IAR	272
---	-----

(核理研) 上柿 順一, 庄田 勝房

II 物性物理部門

II-1 Measurement of Neutron Quasielastic Scattering for Liquid VCl_4 Using Double Stationary Crystals Spectrometer	281
---	-----

(金研) 甲斐 鎌三, 鈴木 謙爾

II-2 Structure of NO_3^- Radical in Molten Monovalent Metal Nitrates	288
---	-----

(金研) 福嶋 喜章, 鈴木 謙爾

II-3	アモルファス $\text{Cu}_{57}\text{Zr}_{43}$ 合金の中性子回折	296
	(学習院大理学部, 核理研*)	
	工藤 利雄, 新村 信雄*, 溝口 正	
II-4	非晶質 Fe-Ge 合金の構造解析	299
	(理学部物理, 京大理学部*)	
	山田 和芳, 遠藤 康夫, 田村剛三郎*, 福島 淳一*	
	遠藤 裕久*	
II-5	天然 Gd の中性子散乱振巾	302
	(核理研, 理学部物理*)	
	渡辺 昇, 石川 義和*, 武井 弘次*, 鈴木三千郎*	
II-6	$\text{Gd}_{0.85}\text{Th}_{0.15}$ の熱外中性子回折	309
	(核理研, 理学部物理*, 広島大総合科学部**)	
	渡辺 昇, 石川 義和*, 武井 弘次*, 岡本 哲彦**	
	藤井 博信**	
II-7	TOF 逆フィルター法による中性子干渉性非弾性散乱の測定	314
	(金研) 富吉 昇一	
II-8	$(\text{Cu Ni})_{3-x}\text{Al}_{1+x}$ 合金の格子緩和型変態の中性子非弾性 散乱による研究(Ⅲ)	323
	(工学部金属材料)	
	梶谷 剛, 平野 賢一	
II-9	V_2O_3 , Ni S_2 の中性子常磁性散乱	334
	(理学部物理, 核理研*)	
	神木 正史, 石川 義和, 渡辺 昇*	
III 放射化学部門		
III-1	ゼオライトによるセシウムおよびストロンチウムの固定化	339
	(選研) 菅野 卓治, 三村 均	
III-2	フタロシアニン化合物の混晶系における (γ, n) 反応の化学的效果	345
	(東京教育大理学部)	
	池田 長生, 鯨井 脩, 荘司 準, 酒井 陽一	

Ⅲ-3	有機金属錯体の(γ , n)反応ホットアトム化学の昇華法による研究	351
	(金沢大理学部)	
	阪上 正信, 代田 悦章, 久松俊一, 下沢 秀夫	
Ⅲ-4	The Yields of Photonuclear Reactions for Multielement Photon-Activation Analysis	362
	(理学部化学, 岩手大教養*)	
	加藤 豊明, 榎本 和義, 鈴木 信男, 佐藤 允美*	
Ⅲ-5	リニアック電子線パルスの N ₂ O 化学線量測定	381
	(東工大理, 核理研*, 理学部化学**)	
	南波 秀樹, 新坂 恭士, 簗野 嘉彦, 八木 益男*	
	塩川 孝信**	
Ⅲ-6	Diffusion of ²⁸ Mg in Aluminum	385
	(工学部金属材料)	
	藤川辰一郎, 平野 賢一	
Ⅲ-7	Al - MgZn ₂ 擬二元系合金の α 固溶体での ²⁸ Mg の拡散	403
	(工学部金属材料)	
	藤川辰一郎, 平野 賢一	
Ⅲ-8	Al および Cu 中での ⁵⁷ Ni の拡散	408
	(工学部金属材料)	
	藤川辰一郎, 平野 賢一	
Ⅳ	加速器・データ処理装置稼動状況	
Ⅳ-1	昭和50年度前期マシン報告	417
	(核理研マシングループ)	
	浦沢 茂一, 今野 収, 一戸 隆, 栗原 亮	
	根本 重伸, 柴崎 義信	
Ⅳ-2	データ処理装置・測定器稼動状況	419
	(核理研)	
	小山田正幸, 窪田 健雄, 佐藤 新悦, 菅原 真澄	
	藤沢 政則, 武藤 正勝	
V	論文リスト	423

I. 原子核物理部門

I - 1 電子散乱による原子核の研究

核理研, 教養部*, 理学部物理,**

マインツ大***

鳥塚賀治・斎藤悌二郎・寺沢辰生

笹尾真実子・福田茂樹・三浦英美

榎本収志・大沢 哲・川添良幸*

宇井治生**・J・Friedrich***

今期においては巨大共鳴の研究に大きな飛躍があったと思っている。従来の電子散乱, ハドロン散乱による巨大共鳴の研究において共通していえる事は常にバックグラウンドを仮定して巨大共鳴の断面積を求めていたことである。この方法は直観的で新しい巨大共鳴の存在を直接抽出するものであり, その方法を評価する事ができる。しかし断面積はバックグラウンドの引き方に左右され, 断面積を正確に決定する事は困難である。そこでバックグラウンドについての理解を深める努力が行われてきた。それが ^{40}Ca におけるバックグラウンドを殻模型で計算しようという試みであり, 又 ^{116}Sn における低い q の領域における準弾性散乱を測定し, フェルミガス模型との比較である。その結果 q の低い巨大共鳴付近のスペクトラムは集団的性質のレベルの集まりと考えてもよいだろうという事がわかってきた。

一方では最近, J. Friedrich 氏や Sasao 氏の努力により radiation tail の差し引きについての研究が進み, 正確な電子散乱のスペクトルが得られるようになってきた。他方では, 宇井氏等の研究で巨大共鳴の核構造として, Tassie 模型や Goldhaber - Teller 模型が, 総和則から(即ちより一般的立場から)論じられ, model independent にこの模型と同じ結論が得られることがわかってきた。

そこで今回は特に ^{90}Zr , ^{208}Pb についてそのスペクトルを E1, E2, E3 と更に高い多重極度に多重極展開する事を行った。この方法は存在するかもしれないすべての集団励起の位置と大きさを明らかにするものである。その結果, E1 については光核反応と矛盾しない結果が得られ, E2 については従来の知識と一致する励起エネルギーの所に, $T=0$, $T=1$ の巨大共鳴が存在し, E3 は構造を示すが E4 以上は全体に一樣に, 分布する事がわかった。従来考えていたバックグラウンドは高い多重極度の成分と横成分とからなっていたことが考えられる。E2 成分の更に詳しい分析から, ^{208}Pb においては 13.5 MeV, ^{90}Zr においては 17 MeV に長い間

探して来た単極子の巨大共鳴が存在する事が、指摘できた。

⁹⁰Zr の多重極展開

§ 1. 序

東北大核理研を始めとする一連の高励起状態の実験の蓄積により多くの事柄がわかってきた。核子散乱, (p, p') , (d, d') , $(^3\text{He}, ^3\text{He}')$, (α, α') により $E_x \sim 63 A^{-1/3}$ (MeV) の共鳴状態は巨大四重極子共鳴 (GQR) である事が確認された¹⁾。又 $E_x \sim 120 A^{-1/3}$ (MeV) にある共鳴状態に対してもデータが蓄積されつつある。^{2-4, 17)} 一方で理論計算も、特に微視的視点から多くの計算が提出され、実験との比較も又可能になった⁵⁾。特に巨大単極子共鳴 ($E0$) の計算結果は他の多重極転移を調べる際、興味深いものである⁶⁾。

電子散乱の以前の解析は^{7, 8)} 現象論的に連続状態のスペクトルの形を仮定して、明瞭に見える共鳴状態のスピン、パリティ、断面積を求めた。しかしその後高励起状態における解析で輻射補正の精度が問題となり、又準弾性散乱の寄与も又、連続スペクトルとの関連で問題となった。

輻射補正に関しては J. Friedrich,⁹⁾ 及び M. Sasao¹⁰⁾ により詳細に議論がなされ、かなり精度のよい式が提出された。準弾性散乱に関しては、K. Hosoyama により $E_x \sim 100$ MeV 迄の一連の実験が ¹¹⁶Sn で行われ¹¹⁾ 運動量移行量 q が 1 fm^{-1} 程度迄で、 $E_x = 30 \sim 40$ MeV 以下では、準弾性散乱の寄与が小さく、むしろ他の多重度からの散乱の寄与が主に連続バックグラウンドの成分であることがはっきりしてきた。これらの点をふまえ、より精度よくこの領域の解析を進めるために新しい実験を追加し新に ⁹⁰Zr の高励起状態を再解析した。基本的視点は 6 及至 7 点の前方角でのスペクトルを縦方向成分と横方向成分の寄与に分解し、縦方向成分に関して、スペクトルを多重極展開する事である。実験点の制限から、スペクトルは、 $E1, E2(E0), E3$ 及び $E4$ 以上の成分に分離し、その結果を理論や他のデータとの比較を行った。

§ 2. 実験及び解析

実験は東北大核理研の 300 MeV 線型加速器を用いた。ターゲットは濃縮 (97.5%) されたメタルフォイル状のもので、厚さは実験条件に応じて、 7 mg/cm^2 , 18.9 mg/cm^2 , 49.9 mg/cm^2 , 及び 68.8 mg/cm^2 の 4 種類の厚さのものを用いている。厚さの一番厚いターゲットは後方 155° の実験に用いた。その際問題となるのは多重散乱によりビームが広がり、SEM

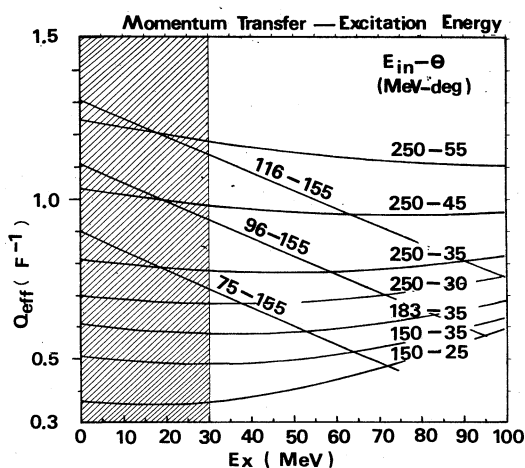
への電子の収率が変化する事であり、それを防ぐため、ターゲット通過後の入射ビームが100% SEMへ入るようにダクトをとりはずし、散乱槽のすぐあとに、SEMをおいた。薄いターゲットは前方角で q の低い場合に用いたがその場合パイルアップを防ぐ目的でビーム強度を弱くした時の current digitizer ORTEC -439 の直線性が問題となり¹⁰⁾そのために Faraday Cup を並用した。(SEMの効率が Faraday Cup の1/10なので10倍だけ両者の current digitizer に対する range が違う。) その場合でもビーム強度が 10^{-9} A以下では問題がありその時には、観測されたスペクトルで弾性散乱を規格する必要がある。又 q の低い前方実験では弾性散乱の寄与が圧倒的に大きいため、スペクトロメータ内壁による散乱(instrumental scattering)の有無が問題となる。そのチェックのためにスペクトロメータの磁場のセットを弾性散乱による散乱電子が内壁に当たるジオメトリーにして、壁からの散乱を調べ、巨大共鳴領域に対し寄与がない事を確めた。

実験解析には縦方向成分と横方向成分を分離するために、前方角7点、後方角3点を用いた。後方角(155°)の実験では入射エネルギーは $E_x = 20$ MeVで有効運動量移行量 q_{eff} が等しくなるように選んだ。但し

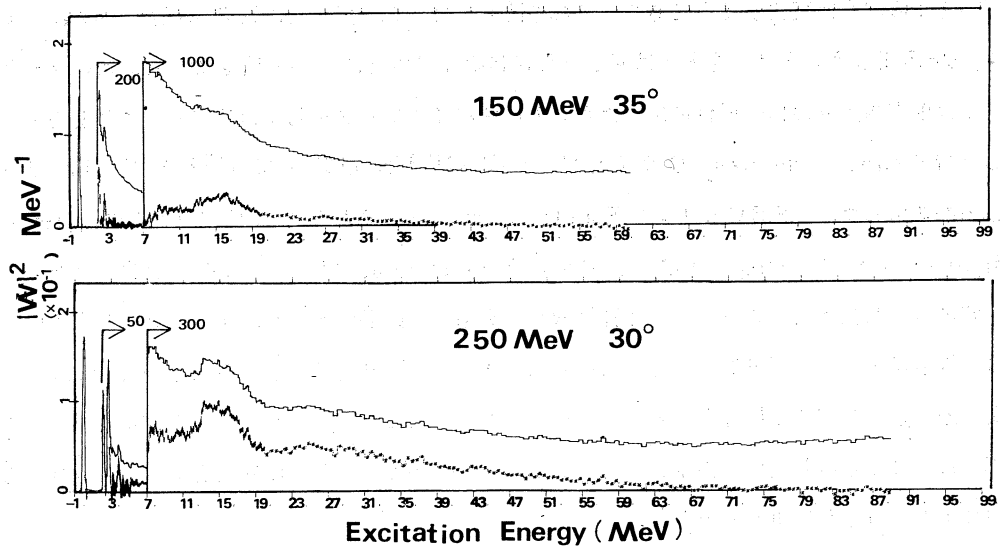
$$q_{\text{eff}} = q \left(1 + \frac{3Ze}{2ER} \right) \quad (1)$$

輻射補正は J. Friedrich 及び M. Sasao らによる式^{8,9)}を使ったプログラムにより行った。従来の式に比較すると (i)低励起準位(弾性散乱のすぐうしろ)で tail の引きすぎが改良された事 (ii)散乱槽のマイラ窓等の効

果が入っている事 (iii)高励起状態で主にきく hard photon 放出については、正確な式に近い式を用いている事等で、改良点が著しい。特に(i)の改良点はエネルギー損失の小さい所でのイオン化による正しい項と、多光子放出の効果を入れたためと思われる。⁹⁰Zrの場合、ほぼ80 MeV迄の測定点迄に関しては満足ゆく結果を示している。(第2図)



第1図 運動量移行量(q_{eff})対励起エネルギーを示した図。斜線部は今回の解析に用いた部分。



第2図 150 MeV-35°, 250 MeV-30° のデータ, 断面積の大きい方が輻射補正前, 小さい方が輻射補正後を示す。

縦方向と横方向の分離はボルン近似を仮定すると¹⁹⁾

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

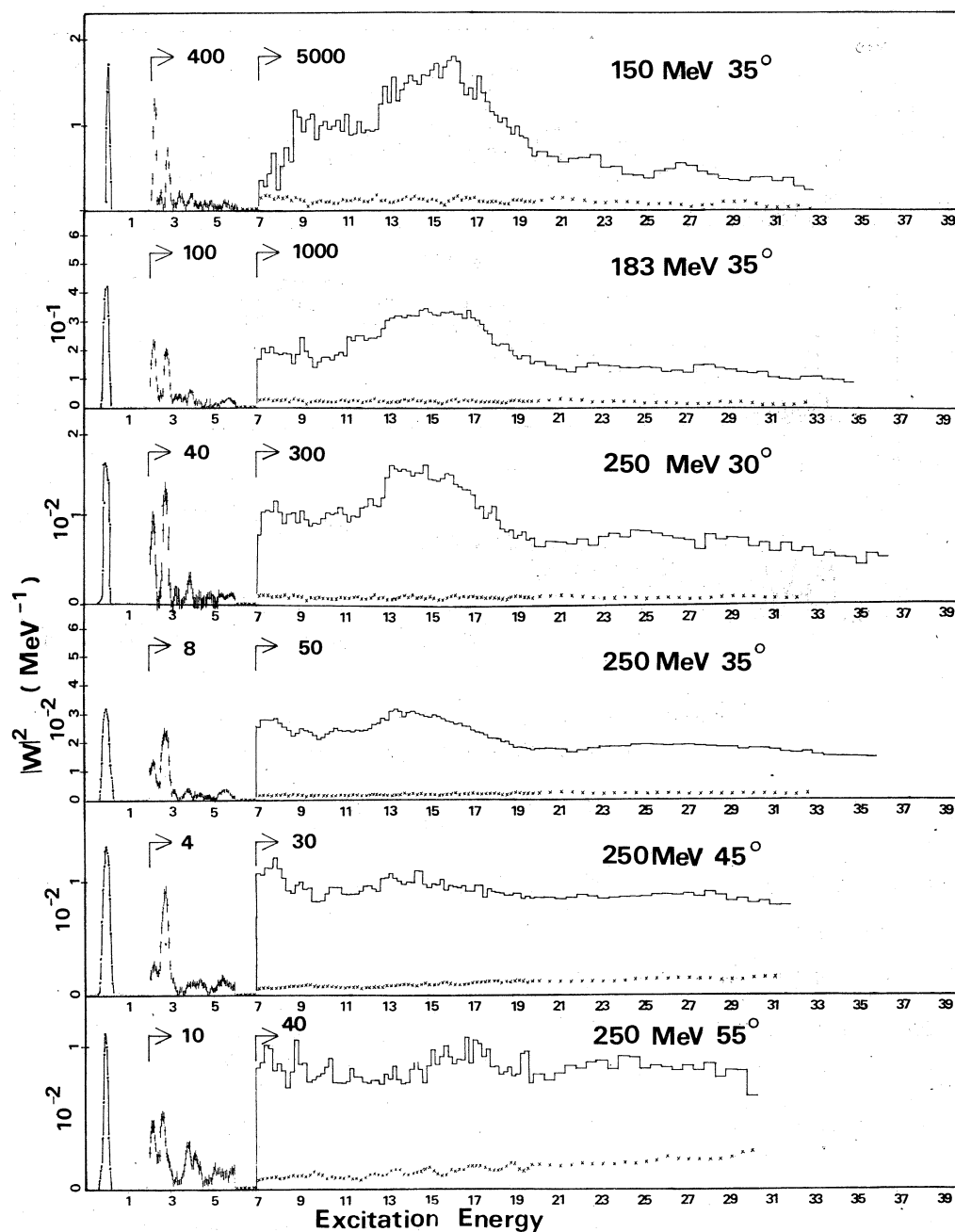
但し

$$|W(q, E_x)|^2 = \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_x} \bigg/ \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{Mott}} \quad (3)$$

$$|F(q)|^2 = \int |W(q, E_x)|^2 dE_x \quad (4)$$

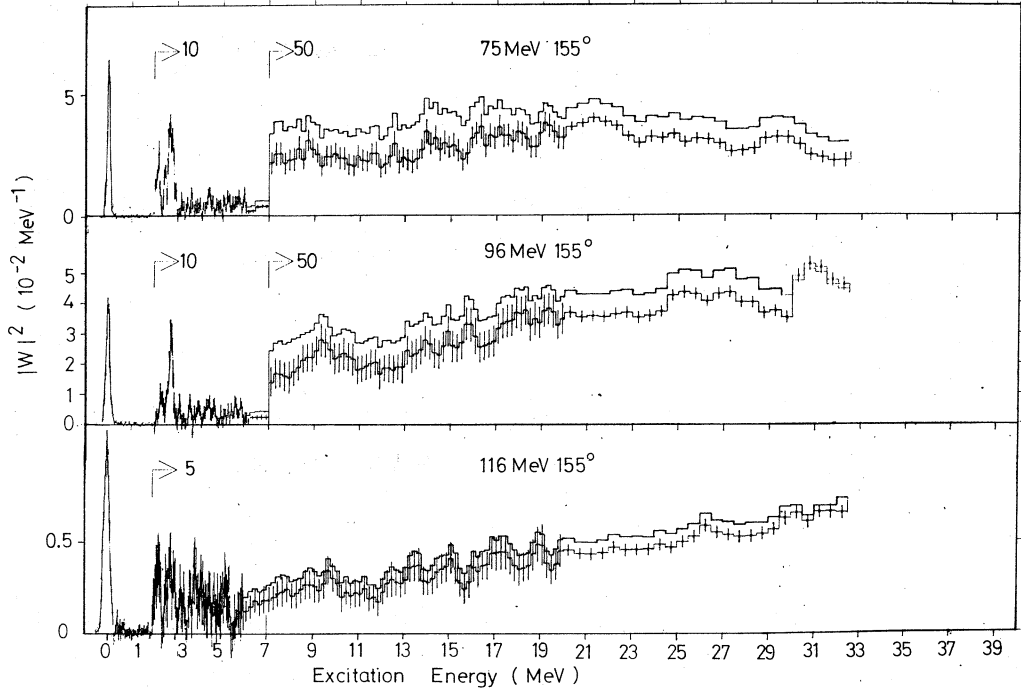
と書ける。添字 L , T は各々縦成分及び横成分である。従って q の等しい2つの角度の異なる点で分離が可能である。distortionによる影響は、式(1)を用いる事で補なっている。

第1図からわかるように、厳密には q は E_x とともに変化する。従って3つの後方データを用いて q が前方角と等しくなるように内挿又は外挿する事で分離した。この方式で問題となるのは、我々の実験では $E_{in} = 75$ MeV が事実上の限界のため、 q の低いデータに関しては外挿する点が多く、精度が悪くなる事である。第3図、第4図に、前方角及び後方角でのスペクトルと横方向成分 $|W_T|^2 \left(\frac{1}{2} + \tan^2 \frac{\theta}{2} \right)$ を図示した。



第3図 前方角での観測スペクトラム（輻射補正後）
及び×印が横成分を分離したもの、即ち

$$|W_T(q, E_X)|^2 \left(\frac{1}{2} + \tan^2 \frac{\theta}{2} \right)$$



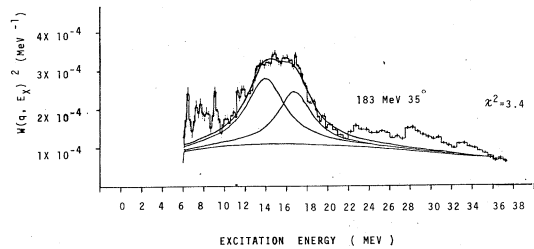
第4図 後方角での観測スペクトル（輻射補正後）
及び誤差棒は横成分を分離したもの。即ち

$$|W_T(q, E_X)|^2 \left(\frac{1}{2} + \tan^2 \frac{155^\circ}{2} \right).$$

$E_X \sim 30$ MeV 迄の解析は従来の現象論的方法及び多重極展開の2通りを行った。前者に関する一例を第5図に示してある。すべてのデータは編集段階で $E_X = 6 \sim 20$ MeV は 200 keV, $E_X = 20 \sim 30$ MeV は 500 keV 毎にまとめてあり、多重極展開を行う場合には、各対応するエネルギー間隔毎に以下の方法で行った。

$$|W_L(q, E_X)|^2 = \sum_j a_j |W_L^j(q, E_X)|^2 \quad (5)$$

とおく。 a_j は j 番目の多重度の展開係数で、 $B(E_j)$ と直接関係する量である。各スペクトルで誤差の重みが異なり、通



第5図 現象論的なピーク分離の一例。 $E_X = 10 \sim 22$ MeV の間で χ^2 をとり 14 MeV 付近の $E2$ と 16.7 MeV の GDR をフィットしたもの。共鳴状態以外の連続スペクトルの形として $|W|^2 = a\sqrt{E_X} + b + cE_X$ を用いた。

常の最小自乗法では q の低い点 (特に radiation tail の差し引き量が大きい点) の重要度が軽視されるので, a_j は

$$\frac{\partial}{\partial a_j} \sum_i^N \left\{ |W_L^{\text{exp}}(q_i, E_x)|^2 - \sum_j a_j |W_L^j(q_i, E_x)|^2 \right\}^2 = 0 \quad (6)$$

で決め誤差は

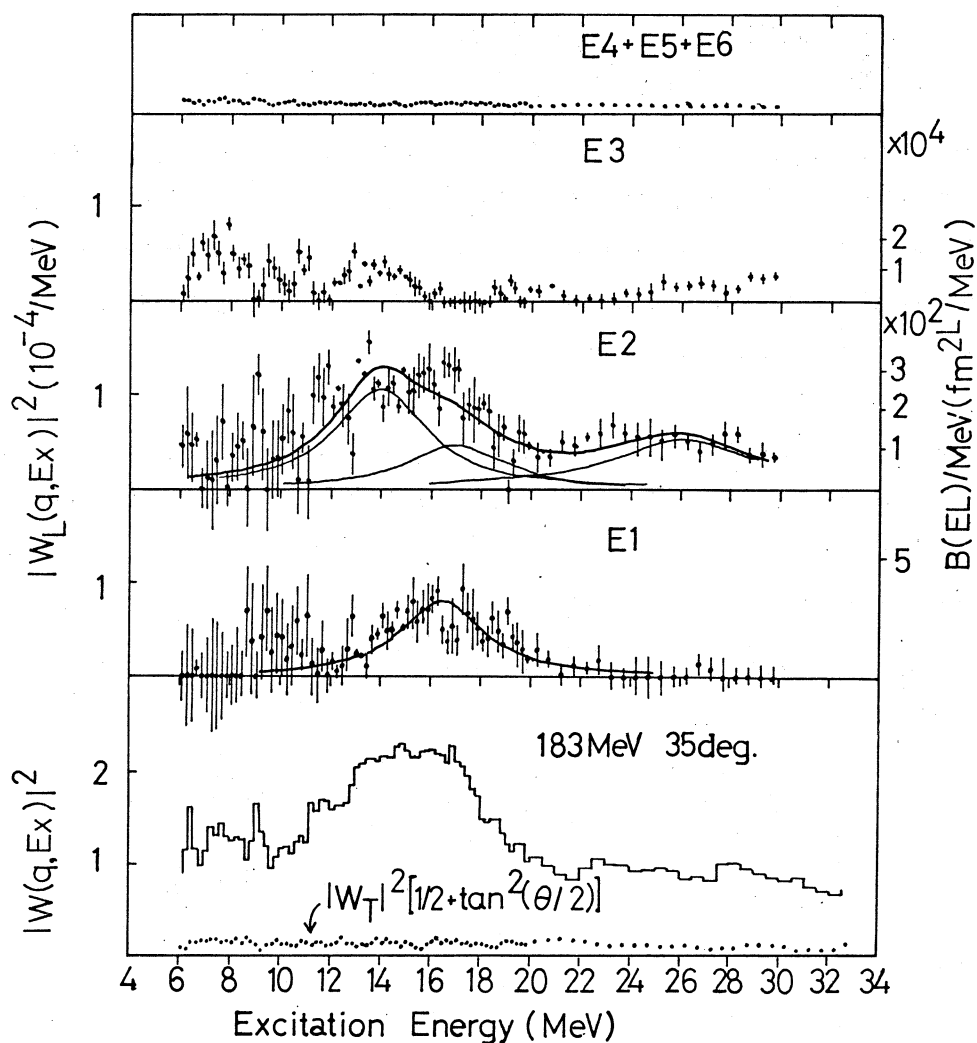
$$\chi_{\min}^2 = \sum_i^N \frac{\{ |W_L^{\text{exp}}(q_i, E_x) - \sum_j \tilde{a}_j |W_L^j(q_i, E_x)|^2 \}^2}{\Delta |W_L^{\text{exp}}(q_i, E_x)|^2} \quad (7)$$

に対して $\chi^2 \leq 2\chi_{\min}^2$ で決めた。(但し式(7)の $\tilde{a}_j$ は(6)式で決まった a_j を示す。)多重極展開で用いた $|W_L^j(q, E_x)|^2$ は原子核模型によって異なり, 展開結果も模型に依存する。ここでは総和則から合理的と思われる Goldhaber - Teller 模型 (E1) 及び Tassie 模型を用いた。¹⁹⁾ 展開結果に関しては 183 MeV 35° の場合について第 6 図に示す。又展開結果を励起エネルギー毎にまとめた結果を第 1 表に示す。

第 1 表 多重極展開の結果を各励起エネルギー範囲毎に加え, 総和則と比較したもの。() 内は総和則に占める割合 $E_x \sim 20 - 30$ MeV の範囲は E2, E3 に対し $T=1$ の総和則を用いた。

E_x (MeV)	E 1 ($B(E1)e^2 \text{fm}^2$)	E 2 ($B(E2)e^2 \text{fm}^4$)	E 3 ($B(E3)e^2 \text{fm}^6$)
0 ~ 6	0	($\sim 5\%$ $T=1$)	($\sim 11\%$ $T=0$)
6 ~ 10	2.8 ± 1.8 (8% $T=1$)	$(3.70 \pm 0.86) \times 10^3$ (11% $T=0$)	$(4.22 \pm 0.38) 10^4$ (16% $T=0$)
10 ~ 15	7.3 ± 1.1 (28% $T=1$)	$(10.87 \pm 0.60) \times 10^3$ (49% $T=0$)	$(3.85 \pm 0.27) 10^4$ (24% $T=0$)
15 ~ 20	11.8 ± 1.0 (61% $T=1$)	$(10.24 \pm 0.51) \times 10^3$ (64% $T=0$)	$(0.93 \pm 0.24) 10^4$ (4% $T=0$)
20 ~ 30	2.7 ± 1.4 (17% $T=1$)	$(12.50 \pm 0.73) 10^3$ (89% $T=1$)	$(4.37 \pm 0.42) 10^4$ (34% $T=1$)
total	24.6 (114%)	$T=0$ ($\sim 130\%$) $T=1$ ($\sim 89\%$)	$T=0$ ($\sim 55\%$) $T=1$ ($\sim 34\%$)

簡単にこの結果について考察すると E 1 成分に関しては光核反応による結果と良い一致を示した。第 6 図の E 1 にある曲線は光核反応で求めた励起エネルギー、半値幅を用いた Breit-Wigner 曲線で、総和則の 97% ($B(E1) = 19.4 \text{ fm}^2$) を占める。光核反応による結果は $B(E1) = 18.9 \text{ fm}^2$ である。 $E_x = 10 \text{ MeV}$ 付近は誤差と考えると明瞭な結論は下せない。E 2 成



第 6 図 多重極展開した結果及び元のスペクトル及び横成分を 183 MeV, 35° の場合に示した。左に $B(EL)/\text{MeV}(\text{fm}^2 L/\text{MeV})$ のスケールも示した。斜線部は E 0 と考えられるピーク ($E_x = 17 \text{ MeV}$, $\Gamma = 4 \text{ MeV}$) 他の曲線については本文参照。

分は, $E_x=10\sim 20$ MeV, $E_x=20\sim 30$ MeV に大きく 2 つの寄与が見出された。今迄の現象論的解析及び他の反応から ^{90}Zr では $E_x=14$ MeV, $\Gamma=4.5$ MeV に E 2 共鳴が存在する事がわかっている。それらを考慮すると, $E_x\sim 17$ MeV 付近に更に寄与があるのがわかる。これについては一つは模型による展開結果依存性のために E 1 成分が残っている事が考えられる。事実 E 1 に対するもう一つの代表的模型である $J-S$ 模型を用いると, この寄与が減少する。しかし一方ではその事は E 1 成分の増加となり, 光核反応の結果と一致しない結果となる。従ってここではもう一つの可能性について考える。従来連続的スペクトルに埋れていた E 2-like なスペクトルが電子散乱の多重極展開でてきたとする。 $(\alpha, \alpha')^{13)}$ で観測されない事から E 0 又は E 2 ($T=1$) が考えられる。一方で $(^3\text{He}, ^3\text{He}')^{14)}$ で観測されない事から E 2 ($T=1$) が除かれるので E 0 が可能である。又一般に核子散乱で E 0 成分の寄与は小さい。第 5 図の E 2 成分に図示した曲線は, $E_x=14$ MeV ($\Gamma=4.5$ MeV), $E_x=17$ MeV ($\Gamma=4.0$ MeV), $E_x=26$ MeV ($\Gamma=7$ MeV) の 3 本で E 2 とした場合 1594, 711, 933 fm⁴ の $B(E2)$ を与え, 総和則に対して 84% ($T=0$), 46% ($T=0$), 73% ($T=1$) を占める。一方 17 MeV を E 0 と見ると転移行列要素 $|ME|^2$ は 1698 fm⁴ で E 0 総和則の 108% を与える。これらについては次節で更に検討する。E 3 成分は $E_x=6\sim 8$ MeV, 13 $\sim$ 15 MeV, 26 $\sim$ 30 MeV に見られる。E 4 以上は余り構造のない単調な結果を示し 250 MeV 45°, 55° の連続バックグラウンドの大部分を示している。

§ 3. 議 論

ここでは他の実験及び理論と比較し, 2 節での結果を検討する。 ^{90}Zr に関するこの領域の実験は, $(r, n)^{12)}$, $(\alpha, \alpha')^{13)}$, $(^3\text{He}, ^3\text{He}')^{14)}$, $(d, d')^{15)}$ 及び ^{89}Y に関して $(p, p')^{16)}$ が行われている。前節で述べた様に, (r, n) 反応の結果は E 1 の展開結果とよい一致を示す。又他の核反応の結果の大部分は現象論的解析をした ^{90}Zr の以前の結果と首尾一貫し, $E_x=14$ MeV の共鳴が E 2 であることを強く示唆している。興味深いのは (d, d') による結果であり, これは isoscalar mode のみ励起するために, GDR は強く励起されない事から, 17 MeV に幅 4 MeV 程度の E 0 励起が存在する可能性が強いとしている。この論文では他に ^{40}Ca や ^{208}Pb でも GDR とほぼ同一の所に E 0 励起を示唆している。この結果は 2 節での結果と一致する。又他の核との比較を行うと, M. Nagao Sasao⁴⁾ による同様の解析で ^{208}Pb についても GDR と同じ位置に E 0 が存在するという結果を出している。他に E 0 に関しては Pitthan *et al.*, による $^{208}\text{Pb}(e, e')$ の結果があり¹⁷⁾ 53 $A^{-1/3}$, 195 $A^{-1/3}$ MeV の励起エネルギーに E 0

が存在するとしているが、 ^{90}Zr に対応する $E_x \sim 11 \text{ MeV}$, 43 MeV のうち前者に対応するものは得られなかった。

次に理論と比較する。数多くの多重度に対して、RPA の計算を ^{90}Zr に行ったものとして Bertsch⁵⁾ , 及び Krewald and Speth⁶⁾ の例がある。その中でも後者の計算とは特に良い一致を示す。彼らは配位としてフェルミ面に対して 2-shell 上と下をとり、連続状態も考慮した密度依存の p-h 相互作用をとった RPA 計算であり、その結果 13.5 及び 14.2 MeV に $B(E2) = 1,292 \text{ fm}^4$, 26.1 及び 27.3 MeV に $B(E2) = 632 \text{ fm}^4$ の $E2$ 転移を、又 $E_x = 16.1$ 及び 20.4 MeV に $E0$ 転移 ($B(E0) \sim 1,100 \text{ fm}^4$) を出している。これらは前節の結果とはほぼ良い一致を与える。又 $E3$ 成分も $E_x \sim 6, \sim 12, \sim 29 \text{ MeV}$ に構造を持ち、定性的には良い一致を与えている。彼らは更に 10 MeV に強い $M1$ 転移を予言している。Fagg¹⁸⁾ らの示唆によればこれは Giant Magnetic Dipole Resonance に相当するわけであるが第 3 図から判断する限り明確ではない。今後は後方のデータについてもう少しつっこんだ解析が必要と思われる。

参 考 文 献

- 1) G. R. Satchler : Phys. Rep. **C14** (1974) 97.
- 2) K. Snover *et al.* : Phys. Rev. Letters. **32** (1974) 317.
- 3) A. Schwierczinski, R. Frey, E. Spamer, H. Theissen and Th. Walcher : Phys. Letters **55B** (1975) 171.
- 4) M. Nagao Sasao and Y. Torizuka : to be published.
- 5) G. F. Bertsch and S. F. Tsai : Phys. Rep. **C18** (1975) 125.
- 6) S. Krewald and J. Speth : Phys. Letters **52B** (1974) 295.
- 7) S. Fukuda and Y. Torizuka : Phys. Rev. Letters **29** (1972) 1109.
- 8) M. Nagao and Y. Torizuka : Phys. Rev. Letters **30** (1973) 1068.
- 9) J. Friedrich : 核理研究報告 **7** (1974) 254.
- 10) M. Sasao : 核理研究報告 **8** (1975) 1.
- 11) K. Hosoyama and Y. Torizuka : Phys. Rev. Letters **35** (1975) 199.
- 12) B. L. Berman, J. T. Caldwell, R. R. Harvey, M. A. Kelly, R. L. Blamblett and S. C. Fultz : Phys. Rev. **162** (1967) 1098 ; A. Leprêtre, H. Beil, R. Bergère,

- P. Carlos, A. Veyssi re and M. Sugawara : Nucl. Phys. **A 175** (1971) 609.
- 13) J. M. Moss, C. M. Rozsa, J. D. Bronson and D. H. Youngblood : Phys. Letters **53 B** (1974) 51.
- 14) A. Moalem, W. Benenson and G. M. Crawley : Phys. Rev. Letters **31** (1973) 482.
- 15) N. Marty, M. Morlet, A. Willis, V. Comparat, R. Frascaria and J. Kallne : to be published.
- 16) N. Marty, M. Morlet, A. Willis, V. Comparat and R. Frascaria ; Nucl. Phys. **A 238** (1975) 93.
- 17) R. Pitthan, F. R. Buskisk, E. B. Dally, J. N. Dyer and X. K. Masuyama ; Phys. Rev. Letters **33** (1974) 849.
- 18) L. W. Fagg : Rev. Mod. Phys. **47** (1975) 683.
- 19) H.  berall : *Electron Scattering frow Complex Naclei* (Academic Press, New Yock, 1971).

Collective Multipole Expansion of the Electroexcitation of ^{208}Pb Continuum

The calculation using Random Phase Approximation¹⁾ shows that the sum of the theoretical cross sections for the collective multipole states reproduces reasonably the observed electron scattering continuum.²⁾ The measured spectra at low momentum transfer (q) indicate large deviation from the calculation with the Fermi-gas model.³⁾ The excess cross section at low excitation energy (E_x) implies the excitations of resonance states and involves the residual interaction which has neglected in the quasielastic knock-out model. We may regard the spectrum at low q and low E_x to be the sum of the multipole excitations and could expand the measured spectrum into these states. In this procedure of the multipole expansion the q -dependence of the multipole excitation must be known. For the giant multipole resonance (GMR) with $T=0$ the use of the Tassie model⁴⁾ has been assured from the sum rule for the form factor^{5,6)} and from the microscopic calculation.⁷⁾ The Goldhaber-Teller⁸⁾(G-T) and Jensen-Steinwedel⁹⁾(J-S) models are employed for the $T=1$ GMR.

The multipole expansion has been applied to the ^{208}Pb spectra reported previously.²⁾ The experiments were repeated and re-examined, particularly unfolding of the radiation tail has been improved using a formula folded partly the contributions of the internal and external radiations.¹⁰⁾ A series of the ^{208}Pb spectra at 150 MeV 35°, 250 MeV 25°, 183 MeV 35°, 215 MeV 35°, and 250 MeV 35° was decomposed. The spectra were divided into the successive bins of the same intervals of 210 keV in the range below 15 MeV and 500 keV beyond 15 MeV. The contribution of the transverse form factor was determined from the measurement and calculation and subtracted from the above spectra. The

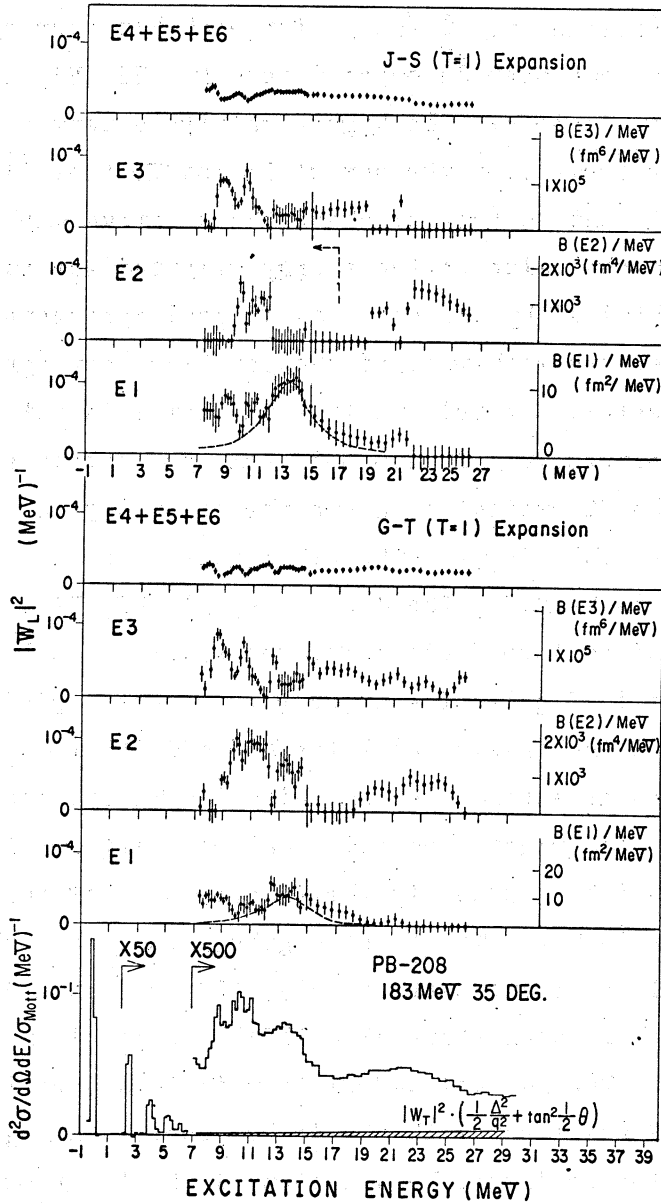


Fig.1. The inelastic electron scattering spectrum at 180 MeV and 35° is decomposed into E1, E2, E3 and E4+E5+E6 components using the DWBA calculations of the Tassie model for $T=0$ and Goldhaber-Teller model for $T=1$ (lower part) and the Tassie model for $T=0$ and Jensen-Steinwedel model for $T=1$ (upper part). $B(EL)/\text{MeV}$ at the right hand side cannot be applied to the E2 component of the J-S model expansion in the range higher than 15 MeV. The shaded part in the bottom spectrum indicates the transverse contribution.

form factor (defined by $\frac{d\sigma}{dQ} / \sigma_{\text{Mott}}$) for each bin corresponding to the same E_x has been decomposed into E1, E2, E3, and higher multipole form factors. The higher multipole term was assumed to be E4 only (set 1) or the sum of E4 and E5 (set 2) or the sum of E4, E5, and E6 (set 3) where the relative amplitude was normalized to the value of the energy weighted sum rule (EWSR). The result obtained by the set 3 is in good agreement within the fitting errors with that of the set 2 but not agrees with that of the set 1. We believe that the set 1 is not realistic. The fitting errors were determined from the contour enclosing $\chi^2 \leq 2\chi_{\text{min}}^2$. The E2 excitation above the giant dipole resonance (GDR) is presumably $T=1$ and the other multipoles except for E1 were assumed to be $T=0$. The decomposed E1, E2, E3 and the sum of E4, E5, and E6 form factors for the spectrum at 183 MeV 35° are displayed in Fig.1. The upper portion corresponds to the expansion with the Tassie model for $T=0$ and J-S model for $T=1$ and the lower corresponds to that with the Tassie for $T=0$ and G-T for $T=1$. The right hand side scale indicates $B(\text{EL})/\text{MeV}$, but this cannot be applied to the E2 component of the J-S expansion above 15 MeV. The E1 strengths extracted with the G-T and J-S models exhaust, respectively, $158 \pm 27\%$ and $145 \pm 17\%$ of the EWSR which is consistent with $117 \pm 8\%$ obtained from the (γ, n) reaction.¹¹⁾ The J-S and G-T E1 form factors normalized to the 100% EWSR are shown with the dashed curves in Fig.1. The J-S form factor is larger by a factor of about 2 than that of the G-T model. The decomposed E2 form factors are located at about 10.5 and 22.5 MeV in good agreement with the previous results.^{9,12)} The E3 form factor appears as narrow peaks at about 8.5 and 10.3 MeV and a broad bump centered at ~ 17 MeV. The latter which may correspond to $3\hbar\omega$ transitions was suggested at ~ 19 MeV in the previous analysis.²⁾ The E4+E5+E6

form factor is located uniformly in energy and has a strength comparable with the phenomenological background used in the previous analysis. It is also interesting to note that the fine structure observed near 9 MeV in the primary spectrum is not single multipole but may be complex of E1, E2, E3, and etc.

Although many models^{1, 13-17)} predict the existence of the giant monopole resonance there is little conclusive experimental evidence for the collective 0^+ state. A difficulty arises because electron scattering cannot distinguish between E0 and E2. If we assume the G-T model the sum of the isoscalar E2 strength in the region 7.5-15 MeV exhausts $133 \pm 14\%$ of the EWSR. The E2 strength¹⁸⁾ ($\sim 16\%$) of the bound states must be added to this sum. The excess E2 strength may imply the existence of the E0 resonance state at this energy region. The E2 form factor obtained by the G-T expansion shows peaks centered at 10.5 and 13.5 MeV. Inelastic hadron scattering¹⁸⁻²¹⁾ in ^{208}Pb indicates the E2 peak at 10.5 MeV with a rather narrow width of 2-3.5 MeV and no structure other than small tail is seen near 13.5 MeV. If one assumes the E0 excitation at 13.5 MeV this discrepancy may be solved because electrons can excite both E2 and E0 whereas hadrons excite E2 strongly but E0 only weakly. Marty *et al.*²¹⁾ has examined the (d,d') cross section and suggested the existence of the giant monopole excitation at 13.2 MeV. If we identify the form factor between 12.5 and 15 MeV to be E0 instead E2 the extracted E0 strength exhausts about $82 \pm 11\%$ of the $T=0$ EWSR and the remaining E2 strength between 7.5 and 12.5 MeV exhausts $80 \pm 9\%$ of the $T=0$ EWSR.

The sum rule values for ^{208}Pb in the range below 26 MeV obtained with the G-T and J-S models including those of the

bound states (16% for $T=0$ E2 and 20% for $T=0$ E3) are tabulated in Table I. The G-T and J-S expansions agree very well for

Table. I. The percentage of the EWSR in Pb below 26 MeV.

Bound states (16% for $T=0$ E2 and 20% for $T=0$ E3) are included into the corresponding EWSR.

Multipole	Mode	E_x (MeV)	G-T expansion (%)	J-S expansion (%)
E0	$T=0$	12.5 ~ 15	82 ± 11	~ 0
E1	$T=1$	7 ~ 22	158 ± 27	145 ± 17
E2	$T=0$	7.5 ~ 12.5	96 ± 9	62 ± 12
E2	$T=1$	17 ~ 26	106 ± 16	46 ± 9
E3	$T=0$	7 ~ 26	$158 \pm \begin{smallmatrix} 13 \\ 39 \end{smallmatrix}$	$94 \pm \begin{smallmatrix} 16 \\ 27 \end{smallmatrix}$
E3	$T=0+T=1$	7 ~ 26	$62 \pm \begin{smallmatrix} 5 \\ 15 \end{smallmatrix}$	$37 \pm \begin{smallmatrix} 6 \\ 11 \end{smallmatrix}$

the position of each multipole excitation whereas the multipole strengths obtained by the J-S expansion are a factor of about 2 lower than those by the G-T expansion. Many models^{1,13, 14,22)} predict E0 ($T=0$) and E2 ($T=0$ and 1) GMR in ^{208}Pb below 26 MeV, for instance Suzuki²³⁾ predicts E2 ($T=0$), E2 ($T=1$), and E0 ($T=0$) GMR at 9.7, 22, and 9.7 MeV, respectively. The G-T model expansion exhausts the sum rule values in accordance with the theoretical results. The result of the sum rule exhaustion favors the G-T model for the $T=1$ state.²³⁾

Evidence for the E0 excitation (50% of EWSR) in ^{208}Pb at 8.9 MeV has been presented by Pitthan¹²⁾ *et al.* The main reason for the E0 assignment given is that this level is excited by electron scattering but not seen in the (γ, n) reaction. However, according to the present analysis (Fig.1) the cross section at 8.9 MeV is due mainly to the E3 excitation and E2 or E0 component is small. The above experiment¹³⁾ also claimed

an E0 resonance at 33 MeV for which no such structure has been observed in our spectra.

We may conclude that electron scattering spectra measured at low q involve mainly resonance states and the GMR for E0, E1, E2, and E3 are seen concentrated into the specific region whereas higher multipole states are spreading over the wide range. The procedure of the multipole expansion²⁴⁾ is useful to indicate the detailed structure and strength of the collective multipole states. This analysis could be applied to other nuclei in particular light nuclei $A < 40$ where giant multipole resonances are not seen manifestly. (Y. Torizuka)

References

- 1) G. Bertsch and S. F. Tsai: Phys. Rep. **18C** (1975) 125.
- 2) M. Nagao and Y. Torizuka: Phys. Rev. Lett. **30** (1973) 1068.
- 3) K. Hosoyama and Y. Torizuka: Phys. Rev. Lett. **35** (1975) 199.
- 4) L. J. Tassie: Aust. J. Phys. **9** (1956) 407.
- 5) T. J. Deal and S. Fallieros: Phys. Rev. **C7** (1974) 1709.
- 6) H. Ui and T. Tsukamoto: Progr. Theor. Phys. **51** (1974) 1377.
- 7) G. Bertsch and S. F. Tsai: Phys. Lett. **50B** (1974) 319.
- 8) M. Goldhaber and E. Teller: Phys. Rev. **74** (1948) 1046.
- 9) H. Steinwedel, J. H. D. Jensen and P. Jensen: Phys. Rev. **79** (1950) 1109.
- 10) J. Friedrich: Research Rept. of Lab. of Nucl. Sci. Tohoku Univ. **7** (1974) 254 and to be published.
- 11) A. Veyssiere *et al.*: Nucl. Phys. **A159** (1970) 561.
- 12) R. Pitthan *et al.*: Phys. Rev. Lett. **33** (1974) 849.
- 13) T. Suzuki: Nucl. Phys. **A217** (1973) 182.

- 14) S. Krewald and J. Speth: Phys. Lett. **52 B** (1974) 295.
- 15) V. R. Pandharipande: Phys. Lett. **31 B** (1974) 635.
- 16) D. H. Jakubassa: Z. Physik **268** (1974) 409.
- 17) J. Speth, L. Zamick and P. Ring: Nucl. Phys. **A232** (1974) 1.
- 18) G. R. Satchler: Phys. Rep. **14 C** (1974) 98.
- 19) M. B. Lewis and E. F. Bertrand: Nucl. Phys. **A196** (1972) 337.
- 20) J. M. Moss, C. M. Rosza, J. D. Bronson and D. H. Youngblood: Phys. Lett. **53 B** (1974) 51.
- 21) N. Marty, M. Morlet, A. Willis, V. Comparat, R. Frascaria and J. Kalline: Preprint.
- 22) D. R. Bes, R. A. Broglia and B. S. Nilsson: Phys. Rep. **C16** (1975) 1.
- 23) M. Baenerd, Pe de Saintignon, P. Martin and J. M. Soiseaux: Phys. Rev. Lett. **33** (1974) 1233.
- 24) M. B. Lewis: Phys. Rep. **C9** (1974) 1878.

I - 2 ^{26}Mg の電荷密度分布

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

^{26}Mg による弾性電子散乱断面積の実験値をもとに部分波解析を行い, 3パラメーターフェルミ型電荷密度分布関数のパラメーターを求めた。

§ 1. はじめに

$s-d$ 殻領域の原子核の基底状態は $A \leq 25$ で葉巻型に変形しているのに対し, ^{28}Si ではパンケーキ型になっていると考えられている。 ^{26}Mg はその中間に位置している核であり, 回転帯構造も明瞭でない。偶々核の場合, 基底回転帯に属していると考えられている第一励起準位 ($J^\pi = 2^+$) の四重極能率の測定値から基底回転帯の変形の度合を推定することができるが, そこではあくまで 2^+ 状態の変形を見ているのであって, 基底状態そのものの変形を直接見ているわけでない。偶々核の基底状態は $J^\pi = 0^+$ であるため, 変形を直接見る手段はないが, 密度分布の球対称部分を測定できれば, 近傍核との基底状態のちがいを引き出せる。

我々は既に報告した ^{26}Mg による弾性電子散乱断面積の実験値¹⁾をもとに部分波解析を行い現象論的電荷分布のパラメーターを求めた。又, その結果を同位体 ^{24}Mg と比較した。

§ 2. 3パラメーターフェルミ型分布

あとで我々が比較しようとしている ^{24}Mg の電荷分布はスタンフォードで3パラメーターフェルミ (3 pF) 型分布について電子散乱の解析が行われているので²⁾ ここでも同じ型の次の分布関数を使う。

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

ここで ρ_0 は規格化条件

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

†現在 住友重機械工業株式会社, 新居浜市

で定まる規格化定数である。弾性電子散乱断面積の計算は、(1)式の電荷分布関数の未知のパラメーター c , t , w に適当な値を与え、部分波解析コードを使って行った。未知のパラメーター c , t , w の多数の組に対して断面積を計算し、運動量移行 $q = 0.37 - 2.18 \text{ fm}^{-1}$ の範囲の 22 点の実験値¹⁾からのずれ

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^N \left(\frac{\sigma_{\text{exp}}^i - \sigma_{\text{cal}}^i}{\Delta \sigma_{\text{exp}}^i} \right)^2 \quad (3)$$

を求めた。ここで σ_{cal} , σ_{exp} 及び $\Delta \sigma_{\text{exp}}$ はそれぞれ断面積の計算値、実験値及び実験値の統計誤差である。第 1 図には与えられた w に対

して χ^2 が最小となる点での c , t 及び χ^2 の値を示す。この図より断面積の計算値が実験値に最もよく適合するパラメーターとして

$$c = 3.03 \pm 0.04 \text{ fm}$$

$$t = 2.33 \pm 0.01 \text{ fm}$$

$$w = -0.02 \pm 0.05$$

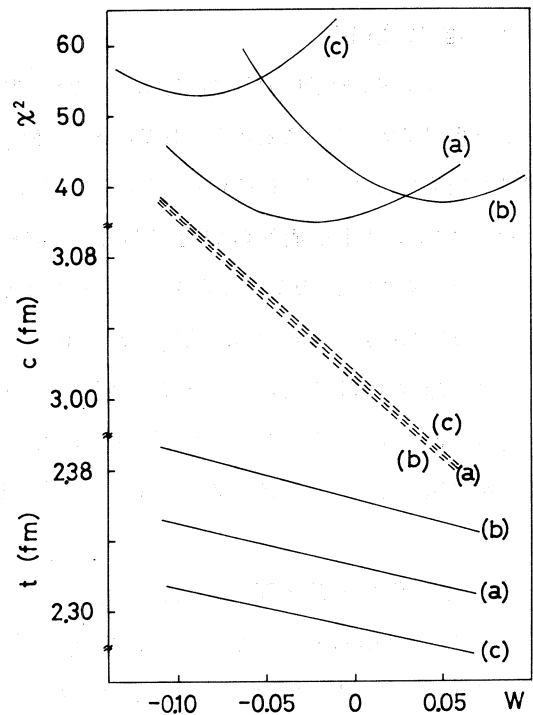
を得た。ここでの誤差は、 χ^2 の値が χ^2 の最小値 χ_{min}^2 から

$$\chi^2 = \chi_{\text{min}}^2 \left[1 + \frac{F(1, N-p)}{N-p} \right] \quad (4)$$

で与えられる値まで許されるとして求めた統計誤差である。(4)式で N は実験点の数、 p は未知のパラメーターの数(ここでは $p = 3$)である。又、 $F(\nu_1, \nu_2)$ は自由度 ν_1, ν_2 をもったスネデカーの F 変数であって、(4)式では信頼係数 0.683 を与える点での値を使う。この信頼係数は正規分布での標準偏差を与える点に相当する。

このようにして求めたパラメーター c ,

t , w の値には、上述の統計誤差の他に、断面積の実験値が含む 3.1% の系統的誤差による不確かさがある。この系統的誤差は、断面積の実験値から 3.1% ずれた値、即ち $(1 - 0.031) \times$



第 1 図 与えられた w の値に対して χ^2 が最小となる点での c , t 及び χ^2 の値の w に対する変化を示す。(a) 断面積の実験値 σ_{exp} , (b) $\sigma_{\text{exp}} \times 0.969$ 及び (c) $\sigma_{\text{exp}} \times 1.031$ に対する計算値。

σ_{exp} 及び $(1 + 0.031)\sigma_{\text{exp}}$ に対して(3)式の χ^2 の値を計算し、 χ^2 が最小になる c, t, w の組合せを求めて得られる。その時の $c, t, w, \chi^2_{\text{min}}$ の関係を第1図(b), (c)に示す。 σ_{exp} の系統的誤差による c, t, w のずれはそれぞれ

$$\Delta c = \pm 0.07 \text{ fm}$$

$$\Delta t = \pm 0.02 \text{ fm}$$

$$\Delta w = \pm 0.07$$

である。

以上のパラメーターの値を使って ^{26}Mg の電荷分布の自乗平均半径

$$\langle r^2 \rangle = 4\pi \int_0^\infty \rho(r) r^4 dr \quad (5)$$

を計算し、 $\langle r^2 \rangle^{1/2} = 3.04 \pm 0.06 \text{ fm}$ を得た。これ等の結果を第1表にまとめて示す。

第1表 ^{26}Mg の3パラメーターフェルミ(3 pF)型電荷分布のパラメーター。比較のため ^{24}Mg の3 pF分布のパラメーター(文献2)及び ^{26}Mg の2 pF分布のパラメーター(文献5)も示した。

	^{26}Mg		^{24}Mg
	Present	Glasgow	Stanford
c (fm)	3.03 ± 0.11	3.04 ± 0.05	3.192 ± 0.034
t (fm)	2.33 ± 0.03	2.31 ± 0.13	2.658 ± 0.026
w	-0.02 ± 0.12	—	-0.249 ± 0.02
$\langle r^2 \rangle^{1/2}$ (fm)	3.04 ± 0.06	3.06 ± 0.04	2.985 ± 0.03

§ 3. $^{24}\text{Mg} - ^{26}\text{Mg}$ の比較

3 pF型分布を仮定した場合、 $q \geq 1.8 \text{ fm}^{-1}$ の領域で計算値と実験値とのずれが目立ち始める。同じことが ^{24}Mg についても起っており²⁾ このずれを補正するためには、更に振動型の分布関数 $\Delta\rho(r)$ を附加する必要がある。しかし、ここでは $q < 1.8 \text{ fm}^{-1}$ の領域では断面積にきいてこないような短い周期の $\Delta\rho(r)$ を無視して、3 pF型だけで ^{24}Mg と ^{26}Mg の電荷分布を比較することにする。第2図に ^{26}Mg に対する電荷分布を ^{24}Mg とともに示す。誤差の範囲内では

とんど差は認められず、両者はほぼ同一の電荷分布を持っている。

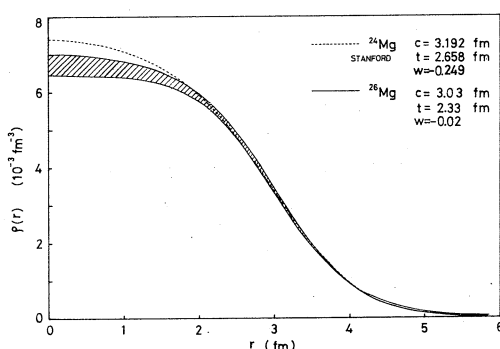
次に回転模型を仮定した場合に、核の変形の度合いのちがいによって生じる電荷分布の球対称部分のずれがどの程度のものか参考までに示しておく。(1)式の 3 pF 分布関数のパラメーター c を

$$c(\theta) = c_0 (1 + \beta Y_{20}) \quad (6)$$

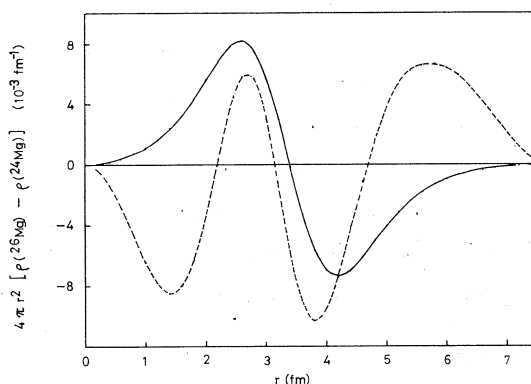
で置き換える。共通の c_0 , t , w 及び ^{24}Mg , ^{26}Mg それぞれに固有の表面変形パラメーターを与えて、変形した電荷分布関数 $\rho(r, \theta; \beta)$ の球対称部分

$$\rho(r; \beta) = 2\pi \int_0^\pi \rho(r, \theta; \beta) \sin \theta d\theta \quad (7)$$

を計算する。文献3によれば $\beta(^{24}\text{Mg}) \approx 0.45$ である。 ^{26}Mg の第一 2^+ 状態への電子散乱による励起確率は ^{24}Mg の場合の $2/3$ 倍⁴⁾ 即ち $\beta^2(^{24}\text{Mg})/\beta^2(^{26}\text{Mg}) \approx 1.5$ であるので、 ^{26}Mg に対しては $\beta \approx 0.37$ となる。他のパラメーターは $c_0 = 3.0 \text{ fm}$, $t = 2.3 \text{ fm}$, $w = 0$ として $\rho(r; \beta)$ を計算した。 $\rho(r; \beta = 0.37)$ と $\rho(r; \beta = 0.45)$ との差を第3図に示す。この二つの電荷分布の差が実験値と比較してどの程度の大きさになっているかの目やすにするため、 ^{24}Mg と ^{26}Mg の 3 pF 型分布のずれも合せて示した。この 3 pF 型分布のずれは、今問題にしていない高い振動数部分が大部分で、殆ど誤差の範囲に含まれてしまうが、ここではその振幅に注目されたい。



第2図 ^{26}Mg の3パラメーターフェルミ(3 pF)型電荷分布。斜線は誤差の範囲を示す。破線は文献2による ^{24}Mg の3 pF 分布。



第3図 ^{26}Mg と ^{24}Mg の電荷分布の差。実線は変形フェルミ型模型 $\beta(^{26}\text{Mg}) = 0.37$, $\beta(^{24}\text{Mg}) = 0.45$ 。破線は 3 pF 分布の差。

参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 **8** (1975) 46.
- 2) G. C. Li, M. R. Yearian and I. Sick: Phys. Rev. **C 9** (1974) 1861.
- 3) Y. Horikawa *et al.*: Phys. Lett. **36 B** (1971) 9.
- 4) 核理研研究報告 **5** (1972) No.2, 26.
- 5) E. W. Lees, A. Johnston, S. W. Brain, C. S. Curran, W. A. Gillespie and R. P. Singhal: J. Phys. **A 7** (1974) 936.

I - 3 $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)$ 反応による核構造の研究 (I)

核 理 研

大橋英雄・中原和夫・庄田勝房

前号¹⁾で報告したように、原子核に電子線を照射したときに発生する種々の正荷電粒子のうちから、波高選別器 (PHS) のバイアスを適当に設定することによって、 π^+ のみを分離して測定できることが予備実験で確認されたので、今期は入射電子エネルギー 195 MeV で π^+ のエネルギーを θ (π^+ の検出角) = 30° , 60° , 90° において測定し、Überall たち²⁾の理論をもとにした計算をおこない、実験値と理論値との比較をおこなった。詳しい議論は次号でおこなうことにして、今回は計算及び実験結果に関する簡単な報告のみにとどめる。

§ 1. 序

原子核からの荷電中間子光発生は理論的にも実験的にもいろいろな研究がなされているが、原子核構造研究を目的とする理論が最近 Überall たち²⁾によって報告された。しかしこれに関する実験報告はいまだになかった。

(γ, π^+) 反応は標的核の励起状態のスピントリプル成分を選択的に励起する²⁾ので、これまで 180° 電子散乱³⁾でわずかに知られていただけのこの方面の研究には特に適した実験的手段となる。さらに、この反応における標的核の基底状態のアイソスピンを $T_0 = T_<$ とすると、 (γ, p) 反応では基底状態 ($T_<$ 状態) と IAS ($T_>$ 状態) との間の転移強度を求めることになる。この場合、一般的には IAS は高い励起状態にあり近傍は $T_<$ 状態密度が大きいために $T_<$ 状態と IAS との干渉が存在し、その補正をおこなうことはむずかしい。しかし (γ, π^+) 反応においては後に示すように、核に関する転移行列要素を始状態と終状態とで直接求めることが可能と考えられ、終状態は標的核の IAS の親状態 ($T_0 + 1, T_0 + 1$) であり十分低い励起領域にあるため、干渉を生じるような $T_<$ 状態は存在しないので、転移強度の $T_>$ 成分が純粹に求められる (第1図)。

我々の行った実験は $(e, e'\pi^+)$ 反応であるが、これはよく知られているように、制動輻射と類似のスペクトルを持った仮想光子⁴⁾による (γ, π^+) 反応と同等である。したがって、これからは (γ, π^+) 反応として話を進める。

§ 2. 理論的考察

2.1 微分断面積

γ 線のエネルギーが (γ, π^+) 反応のしきい値よりもあまり高くない場合 (低すぎる場合には π^+ の波のひずみ, 高すぎる場合には相対論的效果などがきいてくるので, ここでは $160 \leq E_\gamma \leq 200$ MeV 程度を考える) には相互作用ハミルトニアンとして CGLN 振幅⁵⁾ の第1項のみを考えることができる。

$$H_{\text{int}} = -i \frac{2\sqrt{2}\pi}{(E_\pi k)^{1/2}} e f \vec{\sigma} \cdot \vec{\varepsilon} \quad (1)$$

ここで $e^2 = 1/137$, $f^2 = 0.08$, $\vec{\sigma}$ はスピン演算子で, $k = |\vec{k}|$, E_π , m_π はそれぞれ光子の運動量, π 中間子の全エネルギー及び質量, $\vec{\varepsilon}$ は光子の偏極ベクトルであ

る。この形を見てわかるように (γ, π^+) 反応はスピンフリップを選択的に励起するので, 励起状態への転移強度のうちのスピンフリップ成分研究の有効な手段となりうる。

反応の微分断面積は, 平面波 Born 近似では

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{p_\pi}{k m_\pi^2} e^2 f^2 \frac{1}{J_i^2 M_i M_f} \sum \{ |\vec{\mathcal{M}}|^2 - |\hat{k} \cdot \vec{\mathcal{M}}|^2 \} \quad (2)$$

となる²⁾ $\hat{J} \equiv (2J+1)^{1/2}$, $\hat{k} \equiv \vec{k}/k$

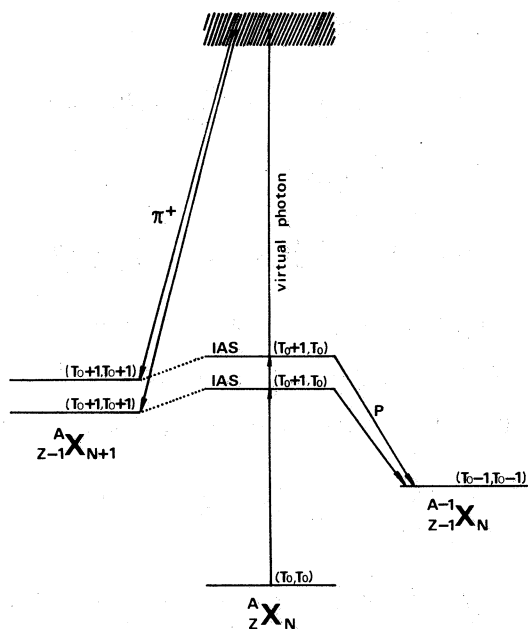
$$\vec{\mathcal{M}}(\vec{q}) = \langle J_f M_f | \sum_{i=1}^A \vec{\sigma}_i \tau_i^+ \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}_i) | J_i M_i \rangle \quad (3)$$

ここに $\vec{q}$ は核への運動量移行ベクトル, (J_i, M_i) , (J_f, M_f) はそれぞれ反応前および反応後の核の状態, $\tau^+ |p\rangle = |n\rangle$ 。アイソスピン部分の回転をおこなうと, 次の行列要素

$$\vec{\mathcal{M}}'(\vec{q}) = \frac{1}{2} \langle J_f M_f | \sum_{i=1}^A \vec{\sigma}_i \tau_i^3 \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}_i) | J_i M_i \rangle \quad (4)$$

と関係づけられる。 ^{12}C のような自己共役 ($A-Z=Z$) 核では簡単に

$$\vec{\mathcal{M}}(\vec{q}) = -\sqrt{2} \vec{\mathcal{M}}'(\vec{q}) \quad (5)$$



第1図: (γ, π^+) 反応と (γ, p) 反応との比較

となる。

(4)式を多重極展開すると

$$\vec{\mathcal{M}}'(\vec{q}) = (4\pi/\hat{J}_f) \sum_{LL'M} (J_i M_i, LM | J_f M_f) I_{LL'}(q) \vec{Y}_{LL'}^{M*}(\hat{q}) \quad (6)$$

となる。ここで形状因子

$$I_{LL'}(q) = i^{L'} \int r^2 j_{L'}(qr) \rho_{LL'}^{if}(r) dr \quad (7)$$

は模型依存量であるが、今回の計算にあたっては電子散乱実験より求められた形状因子をHelm模型⁶⁾によって解析して得られたパラメータ²⁾を用いた。

M_i と M_f とに関する和の部分は、“電気的(EL)”転移($L' = L$)については

$$\begin{aligned} \sum_{M_i M_f} |\vec{\mathcal{M}}|_{EL}^2 &= 8\pi |I_{LL}(q)|^2 \\ \sum_{M_i M_f} |\hat{k} \cdot \vec{\mathcal{M}}|_{EL} &= 8\pi |I_{LL}(q)|^2 (-1)^L \hat{L}^2 [(-1)^L / 3 \hat{L}^2 + W(LL11; 2L) \\ &\quad \times (L0, L0 | 20) (3/2)^{1/2} \{(\hat{k} \cdot \hat{q})^2 - 1/3\}] \end{aligned} \quad (8a)$$

“磁氣的(ML)”転移($L' = L \pm 1$)については

$$\begin{aligned} \sum_{M_i M_f} |\vec{\mathcal{M}}|_{ML}^2 &= 8\pi \sum_{L'=L\pm 1} |I_{LL'}(q)|^2 \\ \sum_{M_i M_f} |\hat{k} \cdot \vec{\mathcal{M}}|_{ML} &= 8\pi \sum_{L'=L\pm 1} \sum_{L''=L\pm 1} I_{LL'}^*(q) I_{LL''}(q) (-1)^L \hat{L}' \hat{L}'' \left[\{(-1)^L \delta_{L'L''} / 3 \hat{L}'^2\} \right. \\ &\quad \left. + W(L' L'' 11; 2L) (L'0, L''0 | 20) (3/2)^{1/2} \{(\hat{k} \cdot \hat{q})^2 - 1/3\} \right] \end{aligned} \quad (8b)$$

となる。これらの式を(2)式に代入すると微分断面積が求められる。

2.2 Helm 模型による転移密度

一般化Helm模型²⁾では、転移密度 $\rho_{LL'}^{if}(r)$ が“転移半径” $\bar{R}$ で幅 $\bar{g}$ のピークを持った分布をしていると仮定する。すなわち、 δ 関数的な密度

$$\rho_{LL'}^{if}(r) = \hat{J}_i i^{-L'} \bar{\gamma}_{LL'}^- r^{-2} \delta(r - \bar{R}) \quad (9)$$

を用いて(7)式の積分をおこない、その値に表面のぼやけ

$$f_g(q) = e^{-\bar{g}^{-2}q^2/2} \quad (10)$$

を掛け合わせたものである。(7)式の積分を行なうと

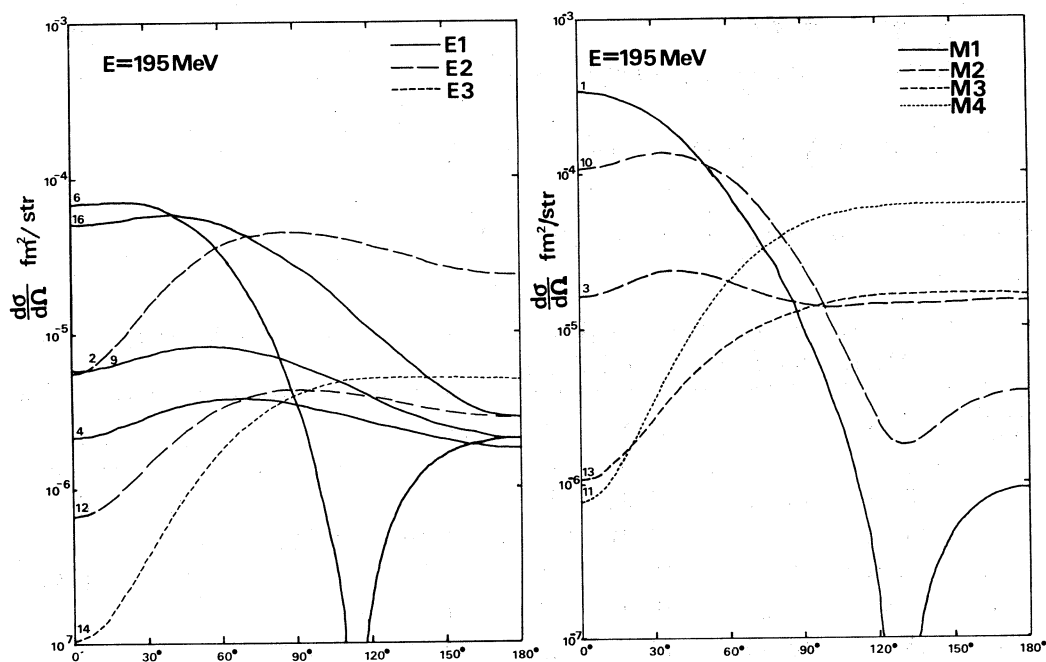
$$I_{LL'}(q) = \hat{J}_i \bar{r}_{LL'} f_g(q) J_{L'}(q\bar{R}) \quad (11)$$

ここで $\bar{r}_{LL'} = r_{LL'} / (\mu_p - \mu_n)$, $\mu_p - \mu_n = 4.70$ 。

第1表 ^{12}C の $T=1$ 準位についての Helm 模型パラメータ。 ω は ^{12}C の基底状態からの励起エネルギー (MeV)。(文献2)

Level No.	$\omega(^{12}\text{B})$	$\omega(^{12}\text{C})$	$\omega(^{12}\text{N})$	J^π	$\bar{R}(\text{fm})$	r_{LL}	r_{LL-1}	r_{LL+1}
1	13.37	15.11	17.34	1^+	2.24	—	0.97	0
2	14.32	16.11	18.31	2^+	2.60	1.290	—	—
3	15.04	16.58	18.54	2^-	2.82	—	0.65	-2.01
4	15.99	17.23	18.99	1^-	1.70	0.247	—	—
6	16.09	18.15	19.69	1^-	3.47	0.812	—	—
8	17.13	18.81	20.61	2^+	2.67	0.019	—	—
9	17.70	19.20	20.90	1^-	2.08	0.338	—	—
10	17.90	19.40	21.10	2^-	2.97	—	1.47	-0.99
11	18.40	19.60	21.30	4^-	2.82	—	2.68	2.59
12	19.00	20.00	21.70	2^+	2.50	0.421	—	—
13	19.10	20.60	22.30	3^+	2.40	—	0.72	2.22
14	20.00	21.60	23.30	3^-	2.82	0.700	—	—
16	21.10	22.70	23.40	1^-	2.60	0.829	—	—
18	19-24	21-26	23-28	1^-	2.08	2.230	—	—
19	19-35	21-37	23-39	1^-	2.08	3.860	—	—

第1表に電子散乱実験のデータを Helm 模型により解析して得られた ^{12}C の $T=1$ 準位についてのパラメータ, $\bar{R}$, $r_{LL'}$ を示す ($\bar{g} = 0.77 \text{ fm}$)²⁾。第2図にこれらのパラメータを用いた入射電子エネルギー 195 MeV における (r , π^+) 反応断面積の計算結果を示す。



第2図 $E_\gamma = 195 \text{ MeV}$ の γ 線による $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{12}\text{B}$ 反応微分断面積。

(a) 電氣的 (E L) 転移部分, (b) 磁氣的 (M L) 転移部分

2.3 (e, e' π^+) 反応による π^+ のスペクトル

(e, e' π^+) 反応によって放出される π^+ のスペクトルは

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dk} \equiv \sum_k \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_k \frac{N_e(p, \omega)}{k} \quad (12)$$

で求められる。ここで $N_e(p, \omega)/k$ は運動量 p の電子による仮想光子スペクトル (k は仮想光子の運動量) である。仮想光子には“縦成分”と“横成分”とがあるが、我々の実験のように入射電子エネルギーが十分に高い場合 ($\beta = v/c \sim 1$) には縦成分は無視できる⁸⁾ ので、種々の多重極度に関する仮想光子スペクトルの計算も横成分についてのみおこなった (附録参照)。

§ 3. 実験方法及び結果

実験は 195 MeV の電子線をグラファイトの標的に照射し、放出された π^+ を二重収束型磁気スペクトロメーター (LDM) を用いて運動量分析して、 π^+ のエネルギースペクトルを測定した。分解能をできる限りよくするために、ビームに対する標的の最良の角度を計算で求めた。

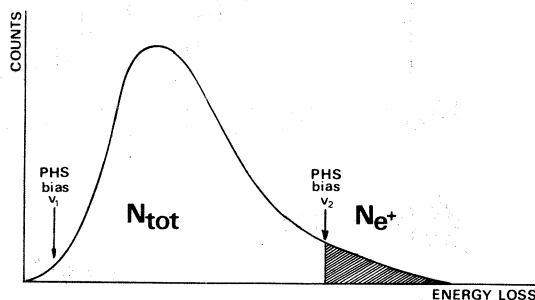
$\theta_{\text{LDM}} = 30^\circ$ ($\theta_{\text{target}} = 23.8^\circ$) の場合, 標的の厚さは 184 mg/cm^2 , ビームのエネルギー幅は 0.2% で, この場合の全分解能は約 0.47 MeV である。 $\theta_{\text{LDM}} = 60^\circ$ ($\theta_{\text{target}} = 30^\circ$), $\theta_{\text{LDM}} = 90^\circ$ ($\theta_{\text{target}} = 26.6^\circ$) では標的の厚さ 300 mg/cm^2 , ビームのエネルギー幅は 0.3% , この場合の全分解能はそれぞれ約 0.68 MeV , 0.71 MeV である。

実験結果は次の式を用いて解析した。

$$\begin{aligned} \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} \right)_i &= \frac{\alpha_i N_{\text{Raw}}^i / \eta_i}{\Delta E_i \Delta\Omega N_N N_e} \\ &= \frac{\alpha_i N_\pi^i}{\Delta E_i N_N N_e \Delta\Omega} \end{aligned} \quad (13)$$

α_i は π^+ が寿命 ($\tau_0 = 2.6 \times 10^{-8} \text{ sec}$) を持つことによる補正係数, N_π^i は生の計数 (N_{Raw}^i) をチャンネルの効率について補正した計数, η_i はその補正係数 (補正係数は電子に対する値を用いた)。 ΔE_i は i チャンネルの SSD のエネルギー幅, $\Delta\Omega$ ($= 2.6 \text{ mstr}$) は LDM の立体角, N_N はビーム方向から見た 1 cm^2 中の ^{12}C の原子核数, N_e は入射電子数である。

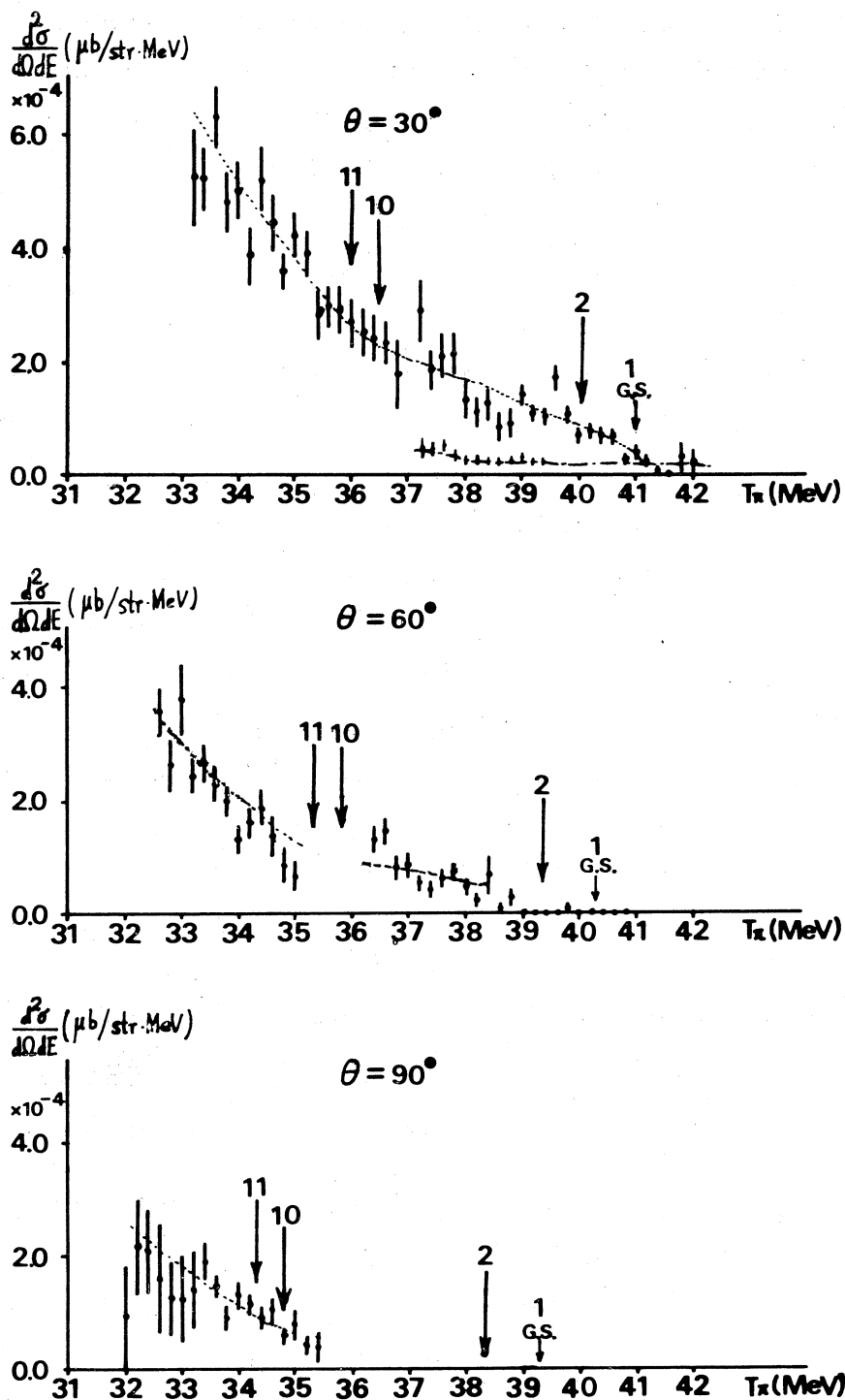
実験結果を第3図に示す。マシンタイムの関係で全角度における完全なスペクトルの測定はできなかったもので, ここに示したものは中間結果である。図中の点線はアイガイドである。 $\theta = 30^\circ$ 中の一点鎖線は陽電子によるバックグラウンドであり, 以下に示すようにして評価した (第4図参照)。中心軌道上の SSD グループ (No. 49 - 50 - 51) 中の No. 50 で電子のエネルギー損失スペクトルを測定し, これを陽電子によるエネルギー損失スペクトルとみなして以下の計算を行った。測定に電子を用いたのは, 陽電子に比べて計数率が多いため, π^- による計数は無視できるからである (電子と陽電子の違いがエネルギー損失に及ぼすわずかな差⁹⁾は無視した)。図



第4図 バックグラウンドの評価。本文参照。

中 PHS バイアス v_1 以上の全電子計数

N_{tot} と, π^+ 測定のために設定されたバイアス v_2 以上の計数 N_{e^-} との比を λ_{e^-} とする。陽電子を用いた場合のこの比を λ_{e^+} とすると, 上述の仮定により $\lambda_{e^+} = \lambda_{e^-}$ 。これは一重計数において1個の陽電子が π^+ として計数される確率を表わしているので, 三重同時計数をとった場合には, この確率は $1 \equiv \lambda_{e^+}^3$ となる。そこで π^+ 測定にあたって, PHS バイアスを v_1 としてエネルギー損失スペクトルを測定すると, 前方方向ではこれはほとんど陽電子によるものといえるので,



第3図 $E_e = 195 \text{ MeV}$ の電子による $^{12}\text{C}(e, e^1\pi^+)^{12}\text{B}$ 反応で放出された π^+ のエネルギーースペクトルの実験値。

この計数に上述の A をかけると、 π^+ の計数中に含まれる陽電子によるバックグラウンドが評価できる。こうして評価されたバックグラウンドが正当なものであることは π^+ の最高エネルギー (41 MeV) 以上の測定結果が、上述のような測定 ($37.2 \leq T_\pi \leq 39.4$ MeV) から得られたバックグラウンドと等しいことからわかる。電子対生成の角度分布¹⁰⁾ を考えると、 $\theta = 60^\circ$ 、 $\theta = 90^\circ$ における陽電子によるバックグラウンドは無視できる。

詳細な議論は次号に報告するが、(12)式を用いた計算結果と実験結果とを比較すると、立上りの位置、大きさともにより一致を示している。アイソスピンに関する議論は (r, p) 反応と比較できるような E 1 転移が弱いので、統計精度の点から言って少くとも今の段階では無理なことがわかった。

附録 仮想光子スペクトル

仮想光子スペクトルの概念については参考文献 8 に簡潔な解説があるので参照されたい。以下には種々の多重極度の仮想光子スペクトルについての計算結果を示す。

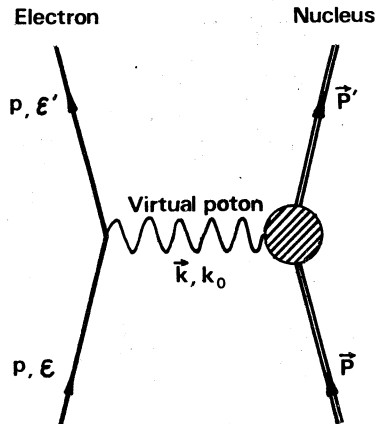
仮想光子スペクトルは以下の式で与えられる。

$$N_e(p, \omega) d\omega / \omega = \{ N_e^t(p, \omega) + N_e^l(p, \omega) \} d\omega / \omega \quad (A-1)$$

$N_e^t(p, \omega)$ 及び $N_e^l(p, \omega)$ はそれぞれ“横成分”及び“縦成分”の仮想光子の数で以下のように与えられる (p, ω 等の意味は附図参照)。

$$N_e^t(p, \omega) = \frac{\alpha}{\pi} \int_{(p-p')^2}^{(p+p')^2} \frac{\omega^2 dk^2}{(k_0^2 - k^2)^2} \left\{ \frac{[(p+p')^2 - k^2][k^2 - (p-p')^2]}{4p^2 k^2} + \frac{k^2 - k_0^2}{2p^2} \right\} \frac{\langle J_t^2(k^2) \rangle}{\langle J_t^2(\omega^2) \rangle} \quad (A-2)$$

$$N_e^l(p, \omega) = \frac{\alpha}{\pi} \int_{(p-p')^2}^{(p+p')^2} \frac{\omega^2 dk^2}{4p^2 k^2} \left\{ \frac{(p+p')^2}{k^2} - 1 \right\} \frac{\langle J_l^2(k^2) \rangle}{\langle J_l^2(\omega^2) \rangle} \quad (A-3)$$



Energy transfer

$$k_0 = E - E' \approx \omega$$

Momentum transfer

$$\vec{k} = \vec{p} - \vec{p}'$$

附図 電子散乱における仮想光子受け渡し過程の Feynman ダイアグラム。

電子のエネルギーが十分に高い ($\beta \equiv v/c \sim 1$) ときには縦成分は無視できるので横成分についてのみ計算をおこなった。 $\langle J_t^2 \rangle$ は核の始状態と終状態間の電流演算子の横成分の二

乗であり、 $\langle J_t^2(k^2) \rangle$ と $\langle J_t^2(\omega^2) \rangle$ との間には次のような関係がある。¹¹⁾

電氣的 (EL) 転移では

$$\frac{\langle J_t^2(k^2) \rangle}{\langle J_t^2(\omega^2) \rangle} = \left(\frac{k}{\omega} \right)^{2(L-1)} \quad (\text{A-4})$$

磁氣的 (ML) 転移では

$$\frac{\langle J_t^2(k^2) \rangle}{\langle J_t^2(\omega^2) \rangle} = \left(\frac{k}{\omega} \right)^{2L} \quad (\text{A-5})$$

附表

Type of transition	$\frac{J_t^2(k^2)}{J_t^2(\omega^2)}$
E 1	1
E 2 M 1	k^2/ω^2
E 3 M 2	k^4/ω^4
E 4 M 3	k^6/ω^6
E 5 M 4	k^8/ω^8

(A-2), (A-3) 式の積分を実行すると次の

結果が得られる。

1. E 1

$$N_e^t(p, \omega) = \frac{\alpha}{\pi} \left[\frac{\varepsilon^2 + \varepsilon'^2}{p^2} \ln \frac{\varepsilon \varepsilon' + p p' - m^2}{m(\varepsilon - \varepsilon')} - \frac{(\varepsilon + \varepsilon')^2}{2 p^2} \ln \frac{p + p'}{p - p'} - \frac{p'}{p} \right] \quad (\text{A-6})$$

2. E 2 及び M 1

$$N_e^t(p, \omega) = \frac{\alpha}{\pi} \frac{\varepsilon^2 + \varepsilon'^2}{p^2} \ln \frac{\varepsilon \varepsilon' + p p' - m^2}{m(\varepsilon - \varepsilon')} \quad (\text{A-7})$$

3. E 3 及び M 2

$$N_e^t(p, \omega) = \frac{\alpha}{\pi} \left[\frac{\varepsilon^2 + \varepsilon'^2}{p^2} \ln \frac{\varepsilon \varepsilon' + p p' - m^2}{m(\varepsilon - \varepsilon')} + \frac{2 p'}{p} \cdot \frac{\varepsilon^2 + \varepsilon \varepsilon' + \varepsilon'^2}{(\varepsilon - \varepsilon')^2} \right] \quad (\text{A-8})$$

4. E 4 及び M 3

$$N_e^t(p, \omega) = \frac{\alpha}{\pi} \left[\frac{\varepsilon^2 + \varepsilon'^2}{2 p^2} \ln \frac{\varepsilon \varepsilon' + p p' - m^2}{m(\varepsilon - \varepsilon')} + \frac{p'}{3 p} \cdot \frac{5 \varepsilon^2 - 2 \varepsilon \varepsilon' + 5 \varepsilon'^2}{(\varepsilon - \varepsilon')^2} + \frac{10 p'}{3 p} \cdot \frac{(\varepsilon^2 + \varepsilon'^2)^2}{(\varepsilon - \varepsilon')^4} - \frac{p'}{p} \right] \quad (\text{A-9})$$

5. E 5 及び M 4

$$N_e^t(p, \omega) = \frac{\alpha}{\pi} \left[\frac{\varepsilon^2 + \varepsilon'^2}{p^2} \ln \frac{\varepsilon \varepsilon' + p p' - m^2}{m(\varepsilon - \varepsilon')} + \frac{p'}{p} \cdot \frac{\varepsilon^2 + \varepsilon'^2}{(\varepsilon - \varepsilon')^2} + \frac{2 p'}{p} \cdot \frac{(\varepsilon^2 + \varepsilon'^2)^2}{(\varepsilon - \varepsilon')^4} + \frac{p'}{3 p} \cdot \frac{9 \varepsilon^4 + 38 \varepsilon^2 \varepsilon'^2 + 9 \varepsilon'^4}{(\varepsilon - \varepsilon')^4} - \frac{p'}{p} \right] \quad (\text{A-10})$$

ここに $\alpha = 1/137$ である。

参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 8 (1975) 58.
- 2) H. Überall *et al.* : Phys. Lett. **44B** (1973) 324 ; F. Cannata *et al.* : Can. J. Phys. **52** (1974) 1405.
- 3) L. W. Fagg : Rev. Mod. Phys. **47** (1975) 683.
- 4) R. H. Dalitz *et al.* : Phys. Rev. **105** (1957) 1598.
- 5) G. F. Chew *et al.* : Phys. Rev. **106** (1957) 1345.
- 6) R. H. Helm : Phys. Rev. **104** (1956) 1466.
- 7) M. Rosen *et al.* : Phys. Rev. **163** (1967) 927.
- 8) G. R. Bishop : *Nuclear Structure and Electromagnetic Interactions*, ed. N. MacDonald (Oliver and Boyd, Edinburgh and London, 1965) p. 211.
- 9) F. Rohrich *et al.* : Phys. Rev. **93** (1954) 38.
- 10) P. V. C. Hough : Phys. Rev. **74** (1948) 80.
- 11) J. M. Eisenberg *et al.* : *Excitation Mechanism of the Nucleus* (North - Holland, Amsterdam, 1970).

I-4 The (γ, p) Cross Sections of ^{42}Ca and ^{52}Cr .

M. N. Thompson,* K. Shoda, M. Sugawara, R. F. Pywell*
T. Saito, H. Tsubota,** H. Miyase,** J. Uegaki, T. Tamae
H. Ohashi and T. Urano

§ 1. Introduction

In an effort to observe systematic effects of isospin on photocross sections, it is planned to measure both the photoproton and photoneutron cross sections for a series of nuclei centered around ^{48}Ca . These include the even isotopes of Calcium and the even isobars with $N=28$ from ^{48}Ca to ^{54}Fe .

This range of nuclei will allow a study of the systematic effects of both deformation and isospin. Splitting of the giant resonance due to deformation was postulated some years ago¹⁾ and verified extensively (see ref. 2 and associated references). However a systematic study of the increased occupancy of a particular subshell has not previously been undertaken.

The effects of isospin on the GDR have been discussed in the literature³⁾ and considerable work has been done at this laboratory in studying the effect.⁴⁾

As discussed briefly in ref. 4 for the case of ^{45}Sc , the T_+ and T_- components of the GDR can be estimated if both the (γ, n) and (γ, p) cross sections are known. However this preliminary report covers only the determination of the photoproton

* Physics Dept., University of Melbourne, Parkville 3052
AUSTRALIA.

** College of General Education, Tohoku University, Kawauchi,
Sendai.

cross sections for ^{42}Ca and ^{52}Cr .

§ 2. Experiment

Thin, isotopically enriched targets (^{42}Ca , 94.4%, 5.06 mg/cm²; ^{52}Cr , 99%, 4.98 mg/cm².) were irradiated by electrons from the electron linac at this laboratory. The Broad Range magnetic spectrometer was used to analyze the protons following electro-disintegration. Spectra were taken at a series of electron energies from 15.4 MeV to 29 MeV, at intervals of 200 keV. The yield of protons with energies greater than 3.5 MeV, was obtained from each spectrum and a yield curve for the reaction was constructed.

The (γ, p) cross sections were derived from the yield curves by unfolding the virtual photon spectrum, using the least structure method of Cook.⁵⁾ Considerable study has been devoted to the analysis of yield curves⁶⁾ and it is clear that the derived cross section using the Cook method depends very significantly on the errors assigned to the yield curve. In the present experiments, each analysed yield curve was the result of 3 independent measurements, and the errors on each yield curve were reduced to typically 0.7% to 1%. The effect of smoothing within the assigned errors, during the analysis procedure is shown in Fig. 1, where the derived cross section for ^{52}Cr is shown for different smoothing criteria. Although the integrated cross section remains unaltered, the amount of revealed structure differs significantly. The likely validity of the fine structure is discussed below. The figures carry indications of the resolution function at several energies. These indicate the minimum width of structure that can be considered to be real.

§ 3. Discussion

This discussion must be considered to be preliminary in nature, since the relevant (γ, n) cross sections have not yet been measured.

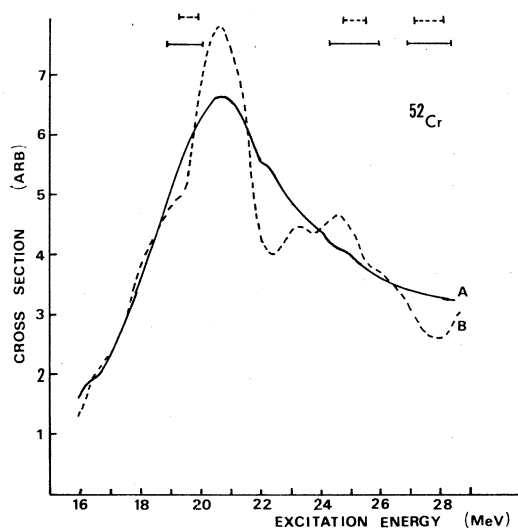


Fig.1. Cross section for $^{52}\text{Cr}(\gamma, p)$. Curve A has more severe smoothing than curve B.

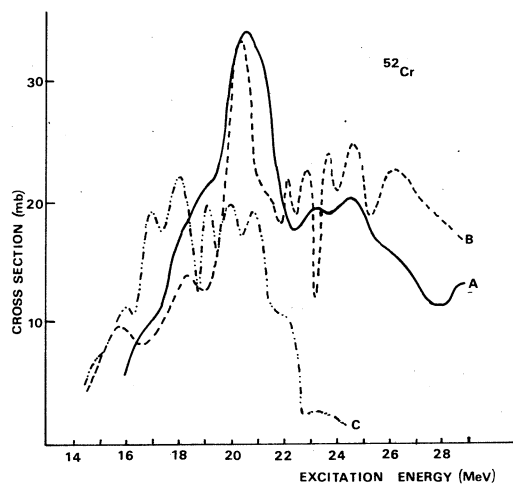


Fig.2. Various measurements of photo cross sections for ^{52}Cr .

- (A) $^{52}\text{Cr}(\gamma, p)$ (this measurement)
- (B) $^{52}\text{Cr}(\gamma, p)$ (reference 7)
- (C) $^{52}\text{Cr}(\gamma, n)$ (reference 8)

3.1 ^{52}Cr

Figure 1 shows the derived cross section for $^{52}\text{Cr}(\gamma, p)$ for two different smoothing conditions. The significant feature of curve A is a broad resonance peaking at 20.5 MeV with considerable strength extending up to 28 MeV. This strength may in fact be due to separate resonances as shown in curve B, where less smoothing is applied in the analysis. The validity of this finer structure may be clarified in a more stringent analysis.

An earlier measurement using similar techniques⁷⁾ by Ishkhanov *et al.* reveals considerable fine structure (see Fig. 2). However the credibility of this structure is questionable because the analysis procedure used to derive the cross section from the yield curve is not fully explained. None the less the agreement between the Russian work and that reported here (Fig. 2) is good, and adds weight to the credibility of curve B in Fig. 1.

Also shown in Fig. 2 is a measurement of the $^{52}\text{Cr}(\gamma, n)$ cross section⁸⁾ derived from a total neutron counting yield curve. Again considerable fine structure is evident. However the significant point to be noted is that the main strength for neutron decay is centered about 19 MeV, whereas for proton decay the strength is significantly higher at 23 MeV.

If we assume that the neutron decay is predominantly from the $T < \text{GDR}$, an apparent isospin splitting of about 4 MeV is observed. This is in good agreement with the value of 3.6 MeV calculated using the simple relationship from ref. 3:

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

In the equation above, A the mass number and T the isospin have values 52 and 2, respectively.

3.2 ^{42}Ca

This cross section is shown in Fig. 3. It has a maximum at 20.5 MeV, with considerable strength extending up to 28 MeV. There is a strong possibility of a second resonance at 24 MeV.

In this case there is no corresponding $^{42}\text{Ca}(\gamma, n)$ measurement yet available. The only experimental comparison is with the $\text{Ca}(\gamma, p_0)$ cross section derived from the $^{41}\text{K}(p, \gamma_0)$ measurement of Diener *et al.*⁹⁾ This cross section is also shown in Fig. 3.

The cross section confirms the position of the main resonance, but does not extend far enough to check the strength at higher energies.

In the absence of any experimental data to check the degree of isospin splitting, a theoretical estimate can be made. From the known systematics of the GDR, the energy of the total absorption peak can be estimated. Then using eq. (1) above, the isospin splitting can be calculated.

The estimated positions of the $T_<$ and $T_>$ are shown in Fig. 3. It need only be noted that the estimated position of the $T_>$ resonance and the maximum of the (γ, p) cross section agree quite well.

§ 4. Conclusions

These preliminary results provide interesting data on the photoproton cross section in this mass region. They are consistent with the present theory concerning isospin splitting. However additional information is needed before any systematic trends can be observed.

References

- 1) K. Okamoto: Phys. Rev. **110** (1958) 143.
- 2) R. S. Hicks, B. M. Spicer: Aust. J. Phys. **26** (1973) 585.
R. H. Sambell B. M. Spicer: Nucl. Phys. A **205** (1973) 133.
- 3) S. Fallieros *et al.*: Nucl. Phys. A **147** (1970) 593.

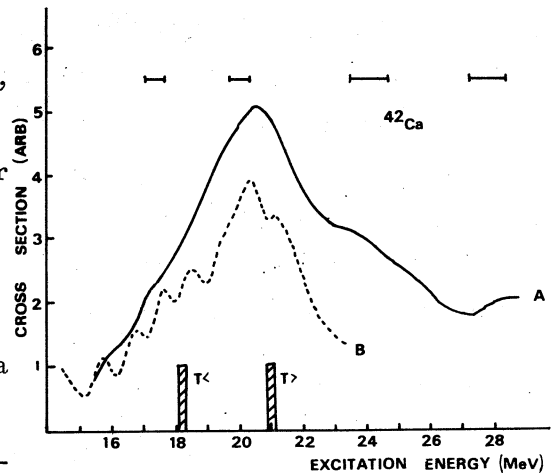


Fig.3. Curve A: $^{42}\text{Ca}(\gamma, p)$
(This work) Curve B: ^{42}Ca
 (γ, p_0) (Ref. 9)

- 4) K. Oikawa: Ph. D. Thesis, Tohoku University (1974).
- 5) B. C. Cook: Nucl. Instr. **24** (1963) 256.
- 6) E. Bramanis *et al*: Nucl. Instr. **100** (1972) 59.
- 7) S. Ishkhanov *et al*: Sov. J. Nucl. Phys. **11** (1970) 272.
- 8) B. I. Goryochev *et al*: Acad. of Sci. CCCP **33** (1969) 1736.
- 9) E. M. Diener *et al*: Phys. Rev. **C7** (1973) 705.

I - 5 ^{139}La , ^{141}Pr の $f_{7/2}$ IAR

核理研 上柿順一・庄田勝房

前回の核理研研究報告^{1,2)}において、 ^{139}La , ^{141}Pr の $(e, e' p)$ 反応陽子スペクトルから仮想光子に関するフォトン・ディファレンス法により、 $f_{7/2}$ アイソバリック・アナログ・レゾナンス (IAR) 近傍の励起状態を経由する (r, p) 反応陽子スペクトルを求め、オン・レゾナンスとオフ・レゾナンスに対するスペクトルの差から IAR を経由する放出陽子スペクトルを求めた結果を報告したが、その段階で次のことが明らかになった。

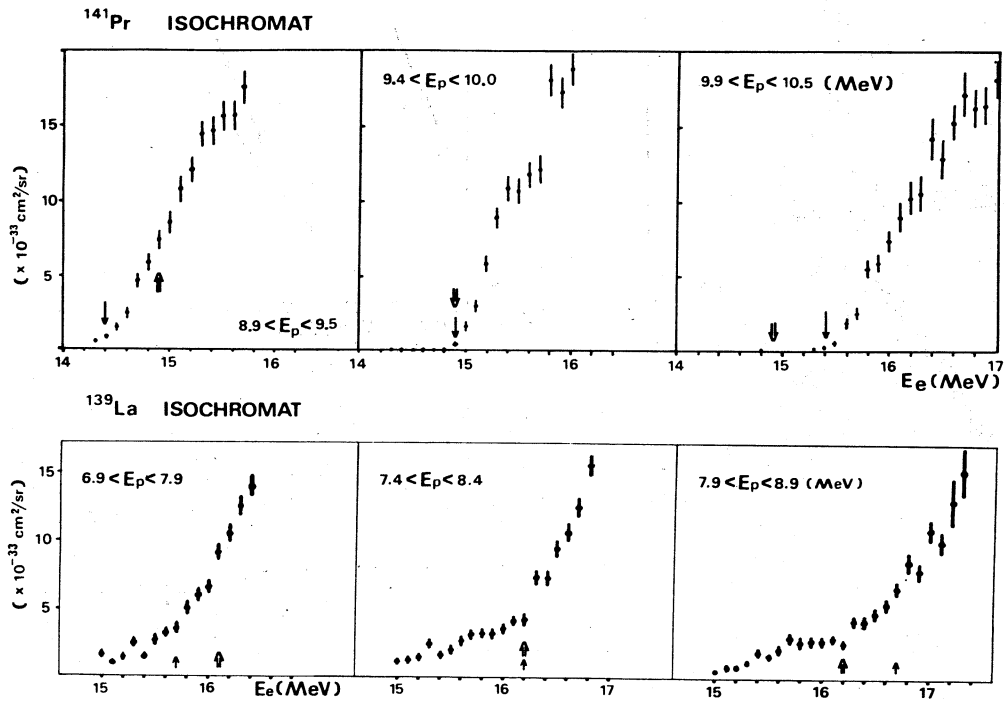
(1) ^{139}La と ^{141}Pr のオフ・レゾナンス領域は、陽子放出により残留励起エネルギー約 2.3 MeV, 幅数百 keV のかなり狭いエネルギー範囲の残留状態へ崩壊している。

(2) ^{141}Pr の $f_{7/2}$ IAR から放出される陽子のエネルギー・スペクトルは、陽子散乱実験で知られているアイソバリック・アナログ状態 (IAS) 特有の崩壊様式と一致する陽子群 (陽子群-1) と、一致しない陽子群 (陽子群-2) とから成り、後者に対応する残留状態は、オフ・レゾナンス領域の残留状態とほぼ同じである。

(3) ^{139}La の $f_{7/2}$ IAR から放出される陽子のエネルギー・スペクトルは、陽子群-1 が判別できない程度に小さく、大部分陽子群-2 から成る。

このように、我々が $f_{7/2}$ IAR と考えていたレゾナンスが、異なった崩壊様式を持つ 2 種類のレゾナンスから成る可能性が示唆されたが、この解析には、 $f_{7/2}$ IAS 近傍の幅 1 MeV の領域では、連続状態を経由する反応断面積の大きさと崩壊様式が変化しないという近似を用いた。この近似が結果に大きい誤差を生じないと思えるのは、 $(e, e' p)$ 反応断面積がオフ・レゾナンス領域で近似的にリニアに変化し、またレゾナンスによる断面積の増加が連続状態の断面積と比べて分離可能な程度に大きいことによる。しかし陽子群-2 がオフ・レゾナンス領域と同じ残留状態へ崩壊するものであること、 $f_{7/2}$ IAR 近傍の励起エネルギーでは (r, p) 反応断面積はクーロン障壁の影響を強く受けていること、 (r, n) 反応で知られる T_c の $E1$ 巨大共鳴 (GDR)³⁾ の位置が ^{139}La , ^{141}Pr について各々 15.2 MeV, 15.1 MeV であることなどから、連続状態の断面積の変化を無視する近似に予想以上に大きい誤差を生じる可能性が指摘される。この可能性を完全に否定するのは、この領域の (r, p) 反応断面積が明確でない現段階では困難であり、そのため陽子群-2 が $f_{7/2}$ IAS 近傍にあるレゾナンスから放出されることを明確に示すには、これまでの解析法では不十分である。そこで今回は、アイソクロマー

トの解析による方法を用いることにより、陽子群-2を放出するレゾナンスの存在を確認した。



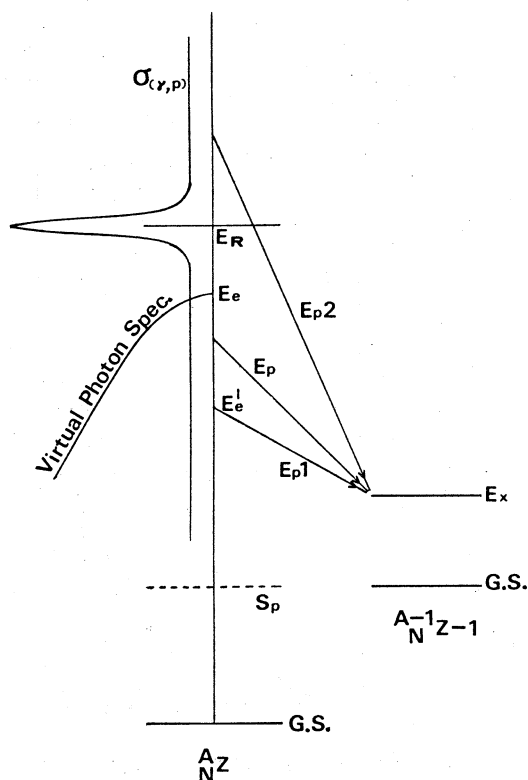
第1図 ^{141}Pr , ^{139}La のアイソクロマートの例。上図は ^{141}Pr の p_0 領域のアイソクロマート。下図は ^{139}La の陽子群-2を含む領域のアイソクロマート。1本線矢印は、 ^{141}Pr および ^{139}La の連続状態がそれぞれ ^{140}Ce の基底状態および ^{138}Ba の $E_x = 2.3$ MeV 励起状態へ強く崩壊することにより生じるアイソクロマートの立ち上がりの点を示す。2本線矢印は、 ^{141}Pr および ^{139}La の $f_{7/2}$ IARにより生じるアイソクロマートの立ち上がりの位置を示す。前者はアイソクロマートを構成する陽子エネルギー範囲に依存してシステマティックに移動し、後者は移動しない。

アイソクロマートは特定の範囲のエネルギーを持つ放出陽子 ($\bar{p}$) の数を入射電子エネルギー E_e の関数として表わしたもので、 $(e, e' \bar{p})$ 反応断面積である。第1図にアイソクロマートの例を示す。

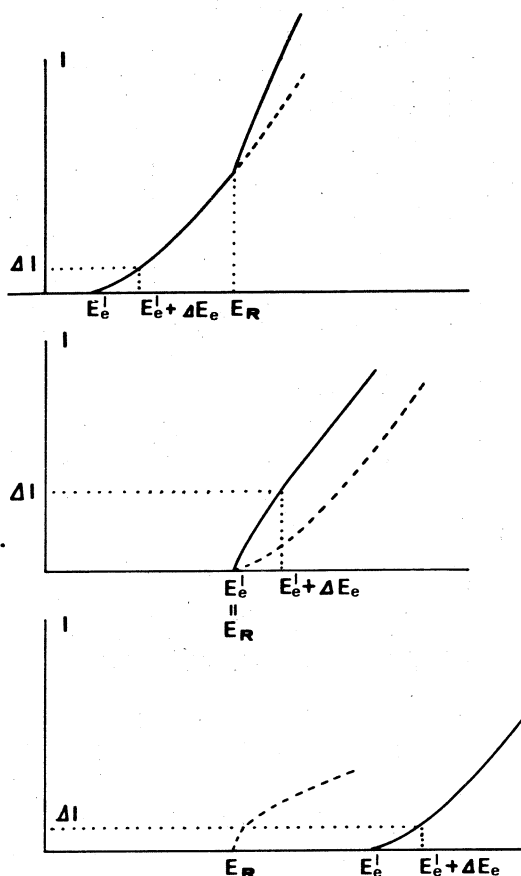
今回行ったアイソクロマートの解析法は以下の通りである。

簡単のために $(e, e' p)$ 反応の残留状態が、幅の十分小さい1本の準位のみである場合を考える(第2図)。 $E_{p1} \leq E_p \leq E_{p2}$ の範囲のエネルギー E_p を持つ陽子で構成されるアイソクロマート $I(E_e, E_{p1}, E_{p2})$ は

$$I(E_e, E_{p1}, E_{p2}) = \int_{E_{p1} + S_p + E_x}^{E_{p2} + S_p + E_x} \sigma_{(e, p)}(E) N(E_e, E) dE \quad (1)$$



第2図 (e, e'p) 反応のアイソクロマート解析に用いたパラメーター。 E_R : レゾナンス・エネルギー, E_x : 残留状態の励起エネルギー, E_e : 入射電子エネルギー, E_p : 陽子エネルギー, S_p : (γ, p) 反応のしきい値。アイソクロマートは $E_p 1 < E_p < E_p 2$ の範囲の陽子で構成される。 $(E_p 2 - E_p 1)$ を一定にとり, $E_p 1$ を変えることにより種々の範囲のアイソクロマートが得られる。 E_e^I : アイソクロマートを構成する陽子が生じる最低の電子エネルギー。残留状態は1つと仮定している。



第3図 残留状態が1つの場合のアイソクロマートの模式図。上から順にアイソクロマートを構成する陽子のエネルギー範囲が高エネルギー側へ移った場合を示す。

と表わされる。ここで S_p , E_x , $N(E_e, E)$ は、それぞれ (γ, p) 反応のしきい値, 残留状態の励起エネルギー, 仮想光子スペクトル⁴⁾に対応する。 $E_e = E_p 1 + S_p + E_x \equiv E_e^I$ の点で $I(E_e, E_p 1, E_p 2)$ が増加を始めることに着目し, E_e^I から狭いエネルギー間隔 ΔE_e ($\Delta E_e <$

$E_p 2 - E_p 1$) のアイソクロマートの増加を考える。

$$\begin{aligned} \Delta I (E_e^I, \Delta E_e) &= I (E_e^I + \Delta E_e, E_p 1, E_p 2) - I (E_e^I, E_p 1, E_p 2) \\ &= \int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e} \sigma_{(r,p)} (E) N (E_e^I + \Delta E_e, E) dE \end{aligned} \quad (2)$$

ここで $\sigma_{(r,p)} (E)$ をレゾナンス部分 $\sigma_{(r,p)}^R (E)$ と連続状態部分 $\sigma_{(r,p)}^C (E)$ とに分ける。

$$\sigma_{(r,p)} (E) = \sigma_{(r,p)}^C (E) + \sigma_{(r,p)}^R (E) \quad (3)$$

$$\begin{aligned} \Delta I (E_e^I, \Delta E_e) &= \int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e} \sigma_{(r,p)}^C (E) N (E_e^I + \Delta E_e, E) dE \\ &\quad + \int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e} \sigma_{(r,p)}^R (E) N (E_e^I + \Delta E_e, E) dE \end{aligned} \quad (4)$$

幅 ΔE_e の積分区間で $\sigma_{(r,p)}^C (E)$ が一定と近似すると

$$\begin{aligned} \Delta I (E_e^I, \Delta E_e) &= \sigma_{(r,p)}^C (E_e^I) \int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e} N (E_e^I + \Delta E_e, E) dE \\ &\quad + \int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e} \sigma_{(r,p)}^R (E) N (E_e^I + \Delta E_e, E) dE \end{aligned} \quad (5)$$

すなわち、

$$\begin{aligned} &\frac{\Delta I (E_e^I, \Delta E_e)}{\int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e} N (E_e^I + \Delta E_e, E) dE} \\ &= \sigma_{(r,p)}^C (E_e^I) + \frac{\int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e} \sigma_{(r,p)}^R (E) N (E_e^I + \Delta E_e, E) dE}{\int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e} N (E_e^I + \Delta E_e, E) dE} \end{aligned} \quad (6)$$

(6)式の第2項は積分区間にレゾナンスを含む場合正の値をとり、含まない場合はゼロである。

従って(6)式の左辺はオフ・レゾナンス領域で $\sigma_{(r,p)} (E_e^I)$ と等しく、オン・レゾナンスでは(6)式の右辺第2項の量だけ大きい値を持つので、レゾナンスの有無の判別に有用である。第2項は明らかに $\sigma_{(r,p)}^R (E_e^I)$ と等しくないため、オン・レゾナンス領域では、(6)式の左辺は $\sigma_{(r,p)} (E_e^I)$ と等しくない。

レゾナンス・エネルギーを E_R , 幅を Γ_R と表わすと $\int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e} \sigma_{(r,p)}^R(E) N(E_e^I + \Delta E_e, E) dE$ は, $\Gamma_R \ll \Delta E_e$ の場合には $E_e^I \approx E_R$ の点で最大値を持ち, $\Gamma_R \approx \Delta E_e$ の場合には $E_R - \frac{1}{2} \Delta E_e < E_e^I < E_R$ の範囲にある点で最大値を持つ。また $\int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e} N(E_e^I + \Delta E_e, E) dE$ は E_e^I に対して近似的に一定の値を持つ。従って(6)式の第2項が最大値を持つ時の E_e^I をレゾナンス・エネルギーにとると最大 $+\frac{1}{2} \Delta E_e$ の誤差を持つと考えられる。この場合の Γ_R はレゾナンス固有の幅であり, 各レゾナンスにつき近似的に一定である。(6)式ではレゾナンス部分が分離して表わされており, また第2項は $\sigma_{(r,p)}^R(E)$ とリニアな関係にあるので幅が等しいレゾナンスに対してはレゾナンス強度と第2項とは比例する。従って各々のレゾナンスの間の相対強度は知ることができる。すでに形と大きさの知られているレゾナンスに(6)式を適用して第2項を計算すれば, 未知のレゾナンスの強度も間接的に知ることができる。

残留状態が1本でない場合でも, 第1励起状態と十分エネルギー差を持つ基底状態へ崩壊する陽子 (p_0) に対するアイソクロマートでは, 上記の方法をそのまま適用できる。これは解析に使用する $E_e^I < E < E_e^I + \Delta E_e$ でのアイソクロマートが p_0 のみで構成されることによる。解析に使用したアイソクロマートの例は第1図に示す。我々の行った測定は, 1つの電子エネルギーでの ($e, e'p$) 反応断面積の測定の際に陽子を100チャンネルに分けて計数している。従って測定値の重複使用を許すなら構成陽子エネルギー範囲を1チャンネル分ずつ変化させたアイソクロマートの組が得られる。これらのアイソクロマートの E_e^I は, 変化した E_p 1 に対応してシステムティックに変化する。

実際のアイソクロマートは, E_e^I ではなく, $E_e^I + \Delta E_e^I$ で増加を始めるように観測される。これは仮想光子スペクトルの先端 ΔE_e^I 間の光子数が近似的にゼロであることによる。これを考慮の上で, $E_e^I + \Delta E_e^I - \Delta E_e < E_e < E_e^I + \Delta E_e^I + \Delta E_e$ 間で定義され, $E_e = E_e^I + \Delta E_e^I$ に屈折点を持つ線分

$$I(E_e, E_p 1, E_p 2) = A E_e + B + k C (E_e - E_e^I - \Delta E_e^I) \quad (7)$$

$$\text{ただし} \quad \begin{cases} E_e \leq E_e^I + \Delta E_e^I & \text{のとき} & k = 0 \\ E_e > E_e^I + \Delta E_e^I & \text{のとき} & k = 1 \end{cases}$$

A, B, C はパラメーター

$$E_e^I = E_p 1 + S_p \quad (8)$$

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

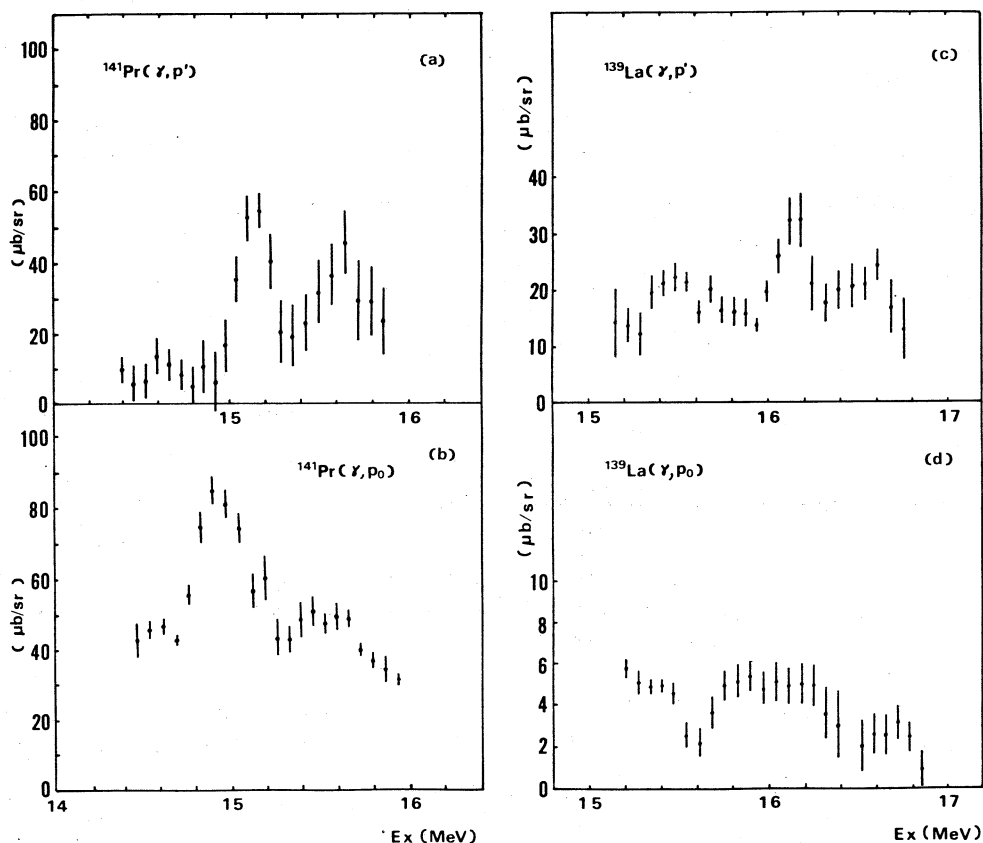
$$\Delta I(E_e^I + \Delta E_e^I, \Delta E_e) = C \cdot \Delta E_e \quad (9)$$

を計算した。この時、 $\Delta E_e^I = 0.2 \text{ MeV}$ 、 $\Delta E_e = 0.4 \text{ MeV}$ とした。

アイソクロマートから得られる近似的な断面積 $\sigma_{(r,p_0)}^I(E_e^I + \Delta E_e^I)$ は(6)式すなわち

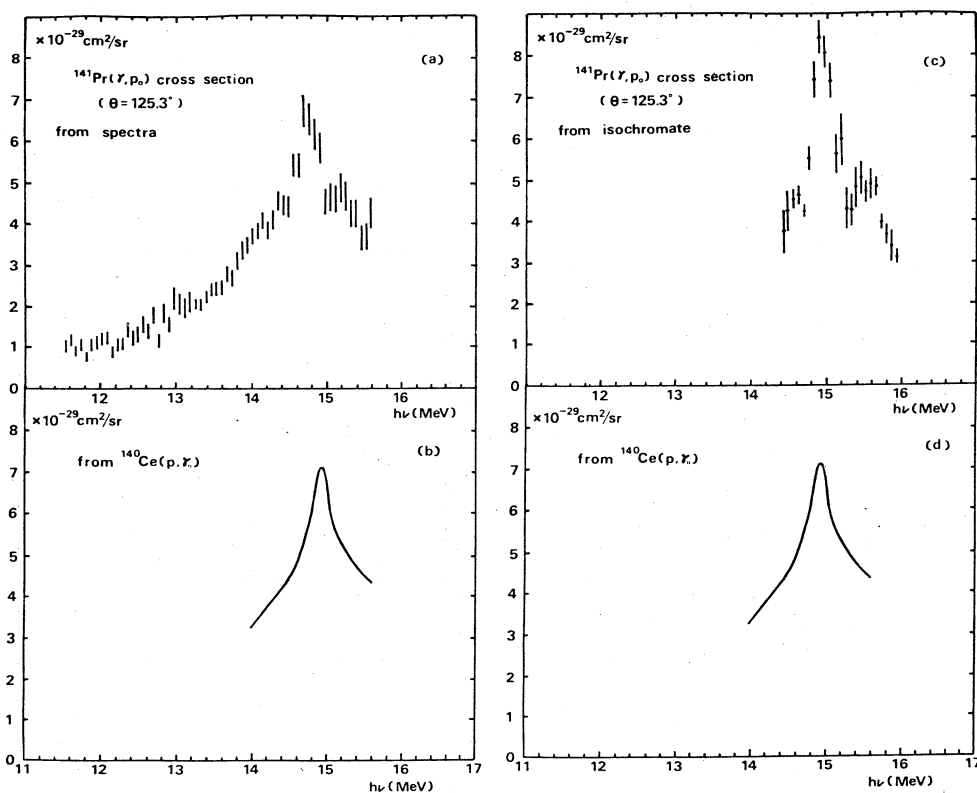
$$\sigma_{(r,p_0)}^I(E_e^I + \Delta E_e^I) = \Delta I(E_e^I + \Delta E_e^I, \Delta E_e) \left[\int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e} N(E_e^I + \Delta E_e^I + \Delta E_e, E) dE \right]^{-1} \quad (10)$$

として得られる。すでに述べたように、 $\sigma_{(r,p)}^I$ は、オン・レゾナンスでは (r, p_0) 反応断面積



第4図 アイソクロマートから得られた断面積。オフ・レゾナンスでは $\sigma_{(r,p)}^C(E)$ を表わし、オン・レゾナンスでは $\sigma_{(r,p)}^C(E) + \eta \int \sigma_{(r,p)}^R(E) dE$ を表わすと考えられる。 p_0, p' は残留状態がそれぞれ基底状態、 $E_x = 2.3 \text{ MeV}$ の励起状態に対応する陽子を表わす。

の値を正しく表わしていない。この方法で得られた $^{141}\text{Pr}(\gamma, p_0)$ および $^{139}\text{La}(\gamma, p_0)$ 反応断面積を第4図(b), (d)に示す。誤差棒は最小自乗法により計算される誤差を表す。 ^{141}Pr の断面積には $E_e = 14.9 \text{ MeV}$ の $f_{7/2}$ IARの存在が明確に現われている。 ^{139}La については断面積の絶対値が小さく、 $E = 16.15 \text{ MeV}$ の $f_{7/2}$ IARは明確でない。



第5図 $^{141}\text{Pr}(\gamma, p_0)$ 反応断面積。これらは各々(a)(e, e'p) 反応陽子スペクトルから、(b)江尻達⁵⁾の測定した $^{140}\text{Ce}(p, \gamma)$ 断面積から²⁾、(c)アイソクロマートから求めたもの。(d)は(b)と同じものである。

第5図は、 $^{141}\text{Pr}(e, e'p)$ 反応陽子スペクトルから計算された $^{141}\text{Pr}(\gamma, p_0)$ 反応断面積²⁾および江尻達⁵⁾の測定した $^{140}\text{Ce}(p, \gamma)$ 反応断面積から計算した $^{141}\text{Pr}(\gamma, p_0)$ 反応断面積²⁾と、今回の結果とを比較したものである。レゾナンス・エネルギーに関してよい一致が得られ、この方法でレゾナンスの有無の判定に有効であることを示す。

残留状態が基底状態でない時でも、特定の励起準位に非常に強く崩壊している場合には同様の解析方法が使える。この場合は他の残留状態に崩壊する際の放出陽子もアイソクロマートに

含まれるので、 $E_e < E_e^I$ の領域でも $I(E_e, E_p1, E_p2) \neq 0$ であるが、 $E_e = E_e^I + \Delta E_e^I$ におけるアイソクロマートの変曲点は同様に存在する。この変曲点は E_p1 の変化に伴い、システムティックに移動することから判別できる。レゾナンスで生じるアイソクロマートの変曲点は E_p1 に依存せず、移動しないのでこれと区別できる。 (r, p_0) の場合と同様、最小自乗法を用いて(7)式をアイソクロマートにフィットし、パラメーター C を計算すれば、(9)式から、目的とする残留状態以外に崩壊する陽子の寄与は除かれた $\Delta I(E_e^I + \Delta E_e^I, \Delta E_e)$ が求まる。この場合の(8)式に相当する式は

$$E_e^I = E_p1 + S_p + E_x \quad (8')$$

である。 (r, p') 反応断面積に関しても(10)式と同様に考える。

^{139}La および ^{141}Pr では、オフ・レゾナンス領域が残留エネルギー約 2.3 MeV に強く崩壊しているため、この方法を使って (r, p') 反応断面積を求めることができる。 p_0 の解析の場合と同じく $\Delta E_e^I = 0.2 \text{ MeV}$ とし、スペクトルの解析結果から $E_x = 2.3 \text{ MeV}$ を使用した。得られた (r, p') 反応断面積を第4図(a), (c)に示す。 ^{141}Pr , ^{139}La それぞれの $f_{7/2}$ IAS の位置、14.9 MeV と 16.15 MeV の近傍にレゾナンスが見られる。この結果から、スペクトル中に見られる陽子群-2 も $f_{7/2}$ IAS 近傍にあるレゾナンスを経由して放出されることが明確になった。

これまでの過程で、我々が $f_{7/2}$ IAR と称していたレゾナンスは、陽子群-1 を放出するレゾナンス (IAR-1) と陽子群-2 を放出するレゾナンス (IAR-2) から成ることがわかった。IAR-1 は IAS を励起するレゾナンスであると考えられる。現在は IAS は複合核状態と考えられており、励起される過程の違いにより異なった配位や崩壊チャンネルを持つとは考えられず、IAR-2 は IAS を励起するレゾナンスではないと考えるのが自然である。又 IAR-2 は陽子散乱等では見られないレゾナンスであることから、光核反応で励起される特徴的なレゾナンスであり、また IAR-1 とほぼ同じ励起エネルギーを持つことから、IAS と何らかの関係を持つレゾナンスであると考えられる。一方、IAR-2 の崩壊様式がオフ・レゾナンスの崩壊様式と p_0 を除いて一致することは、連続状態とも密接な関係があることを暗示している。IAR-2 が生じるメカニズムとして、IAR と GDR の干渉効果等も議論されている⁶⁾ が、十分に説明する理論はない。

アイソクロマートからレゾナンス強度を得るには、強度の知られているレゾナンスと比較して間接的に計算する方法の他、(6)式の第2項を

$$[(6) \text{式第2項}] = \frac{\xi \int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e} \sigma_{(r,p)}^I(E) dE}{\int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e} N(E_e^I + \Delta E_e, E) dE} \quad (11)$$

と表わして $\int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e} \sigma_{(r,p)}^I(E) dE$ を求める方法が考えられる。ここで ξ は $N(E_e^I + \Delta E_e, E_e^I) > \xi > 0$ を満たす数である。 $E_e^I > E_R$ で $\int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e} \sigma_{(r,p)}^R(E) dE$ が急速にゼロに近づくので、(11)式右辺の分子はレゾナンスが最大値を持つ点の仮想光子スペクトルの値を使って

$$\xi \int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e} \sigma_{(r,p)}^I(E) dE \approx N(E_e^I + \Delta E_e, E_R) \int_{E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e} \sigma_{(r,p)}^R(E) dE \quad (12)$$

と近似できると考えられる。すなわち(10)式の左辺の記号を使ってアイソクロマトから計算される、残留状態 X へ崩壊する (r, p_x) 断面積を表わすと

$$\sigma_{(r,p_x)}^I(E_e^I + \Delta E_e^I) \approx \sigma_{(r,p_x)}^C(E_e^I + \Delta E_e^I) + \eta \int_{E_e^I + \Delta E_e^I}^{E_e^I + \Delta E_e^I + \Delta E_e} \sigma_{(r,p_x)}^R(E) dE \quad (13)$$

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

となり、 $\sigma_{(r,p_x)}^I(E_e^I + \Delta E_e^I)$ の極大値からレゾナンス強度 $\int_{(r,p_x)} \sigma^R(E) dE$ が得られるが、これに関しては誤差も含めて検討中の段階である。

参 考 文 献

- 1) 核理研研究報告 8 (1975) 93.
- 2) 核理研研究報告 8 (1975) 99.
- 3) H. Beil *et al.* : Nucl. Phys. **A172** (1971) 426.
- 4) W. C. Barber : Phys. Rev. **111** (1958) 1642.
- 5) H. Ejiri *et al.* : Nucl. Phys. **A128** (1969) 388.
- 6) H. Ejiri *Proc. Intern. Conf. on Nucl. Structure Studies Using Electron Scattering and Photoreactions*, eds. K. Shoda and H. Ui (Tohoku Univ, 1972) 339.

II. 物 性 物 理 部 門

II-1 Measurement of Neutron Quasielastic Scattering for Liquid VCl_4 Using Double Stationary Crystals Spectrometer

金研 甲斐鎌三*・鈴木謙爾**

§1. Introduction

As far as we know, use of electron linac as a pulsed neutron source has been carried out so far in neutron inelastic scattering experiments by two research groups. Watanabe *et al*¹⁾ have used a stationary pseudo-bent pyrolytic graphite to monochromatize pulsed neutrons and measured paramagnetic scattering. On the other hand, Egelstaff *et al*²⁾ have made monochromatic pulsed neutrons by rotating an aluminium single crystal under synchronization with firing of linac and studied molecular motions in dense gases and liquids.

Their results have shown that the combination of crystal monochromator and pulsed neutrons generated from linac is quite effective and must be developed especially in the field of neutron inelastic scattering experiments for isotropic liquids and amorphous solids.

In this work, based upon the experience of pioneers mentioned above, construction of a new spectrometer was attempted using a hybrid system with stationary and rotating crystals and it was installed at the 300 MeV Tohoku University electron linac. As the first step of this experiment, our spectrometer

K. Kai* and K. Suzuki.**

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

was operated in a configuration of double stationary crystals parallel with each other. Preliminary results of instrumentations and measurements of quasi-elastic scattering for liquid VCl_4 are described below.

§2. Spectrometer

A schematic diagram of the spectrometer is illustrated in Fig.1. Specifications of the spectrometer are given in Table I. In the monochromator housing the Bragg angle $2\theta_M$ of pyrolytic graphites is allowed to be set in the range of 45° to 135° , which gives conveniently the wavelength of incident pulsed neutrons variable between 1.0 and 6.0 Å. Incident monochromatic pulsed neutrons are monitored by a fission chamber located at the outlet of collimator. Scattering angle 2θ can be continuously chosen between -20° and 90° by locating a bank of three or four He-3 counters at any angle. In this work scattered neutrons were counted simultaneously at four scattering angles using four banks of counters. The system of data acquisition used in connection with this spectrometer has been described in detail by Niimura and Kubota.³⁾

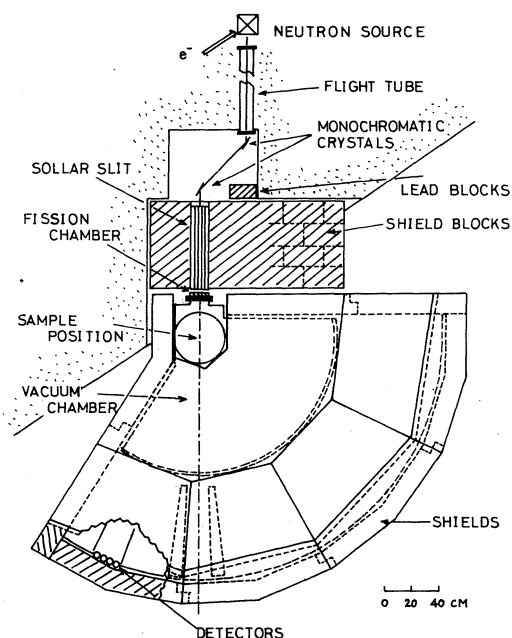


Fig.1. A drawing of the spectrometer viewed from above.

Table I. Specifications of the spectrometer

Distances;

neutron source to 1st crystal	2.67 m
1st crystal to 2nd crystal	0.46 m
2nd crystal to sampal position	1.17 m
sample position to counters	1.80 m

Monochromator - housing :	square hole in biological shield of a size, $0.66 \times 0.50 \times 0.70$ (m) and walls lined with Cd sheets .
1st crystal :	stationary, pyrolytic graphite, $10 \times 10 \times 0.3$ (cm), mosaic spread ; 2°
2nd crystal :	rotating (stationary), pyrolytic graphite, $10 \times 10 \times 0.3$ (cm), mosaic spread ; 2°
Collimator :	10 cm width $\times$ 10 cm hight $\times$ 60 cm length, set at 2° in aperture with Cd sheets.
Vacuum chamber :	A1 window of 3 mm thick with a radius of 1.0 m, and evacuated to 10^{-3} mm Hg.
Detectors :	bank of 4 atom. He-3 counters of 50 cm length and 2.54 cm diameter (Reuter - Stokes, U. S. A.).
Shield blocks :	0.6 m thick, piled with 50 pieces of borated paraffin blocks (30 cm $\times$ 30 cm $\times$ 15 cm).
Shields :	borated paraffin wall of 13 cm thick and inside of wall lined with 2 cm thick B_2O_3 powders and Cd sheets.

§3. Quasielastic Scattering of liquid VCl_4

Vanadium tetrachloride (VCl_4) is a molecular liquid at room temperature (melting point; -109°C) and its molecule has a structure that a vanadium atom is surrounded tetrahedrally by four chlorine atoms.

The liquid VCl_4 sample was sealed in vacuum in a silica tube with 0.2 mm thick wall and 10 mm ϕ diameter. Neutrons with the wavelength of 2.61 Å monochromatized by a 002 reflection of pyrolytic graphite with a Bragg angle $2\theta_M = 46^\circ$ was used as an incident pulsed neutrons. The typical T-O-F spectra of incident pulsed neutrons at the position of fission chamber and neutrons from a vanadium rod (10 mm in diameter) as a standard sample are shown in Fig.2 (A) and (B), where a channel width is 16 μsec and irradiation time is about 16 hours. 004 and 006 reflections from pyrolytic graphite are definitely observed, but such higher order reflections can be removed in rotating crystal system.

Representative data of the sample and the container run are shown also in Fig.2 (C) and (D), respectively. All data in Fig.2 have been normalized

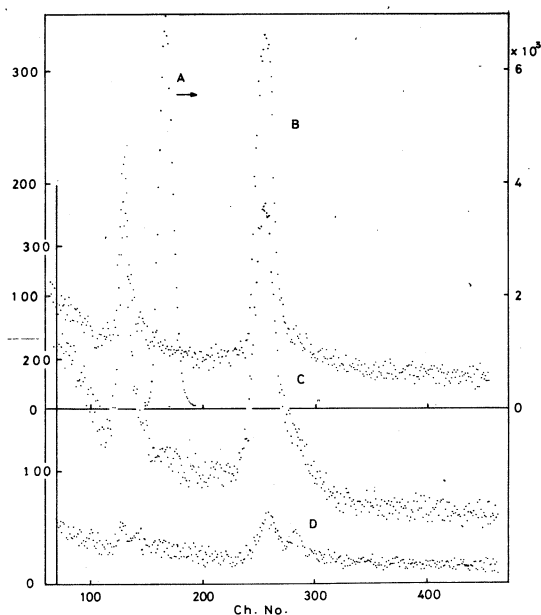


Fig.2. Raw T-O-F spectra for incident neutrons (A), vanadium run (B), sample run (C) and container run (D).

with monitor counts.

In Fig.3, profiles of the quasielastic peak are shown as a function of energy at six values of momentum transfer Q .

Gaussian or Lorentzian function was used to fit the observed profiles and to determine FWHM by least squares method. Fig.3 shows that the energy spectrum of scattered neutrons is well expressed by Lorentzian function at $Q = 0.79 \text{ \AA}^{-1}$ and Gaussian functions in the range of Q higher than $1.15 \text{ \AA}^{-1}$. Energy resolution is obtained from vanadium scattering and described well with Gaussian function at any value of Q . If it is assumed that the observed FWHM is related to the FWHM for resolution and intrinsic profile as follows,

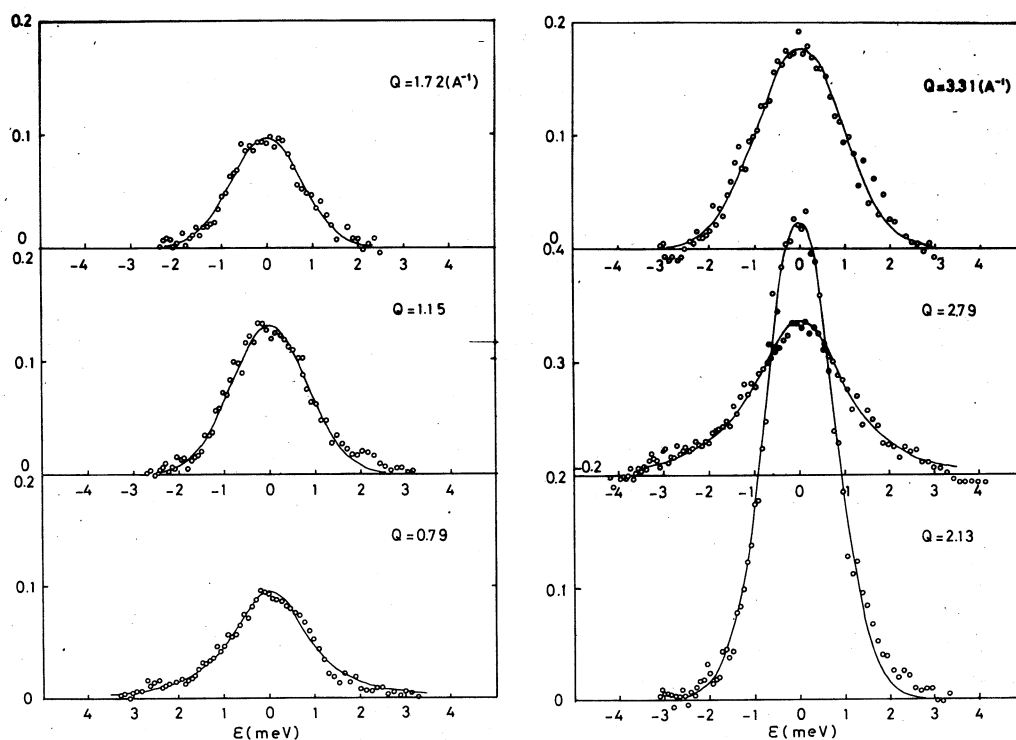


Fig.3. Profiles of the quasielastic peak at constant momentum transfer Q and fittings by least squares method.

$$\overline{\omega_m^2} = \overline{\omega^2} + \overline{\omega_0^2}, \quad (1)$$

the FWHM of aimed quasielastic scattering spectrum (as root of $\overline{\omega^2}$) can be obtained. The result of FWHM is shown in Fig. 4 (a) and 4(b), together with observed $S(Q)$.

It is found that the width becomes narrower in the vicinity of the 1st peak of $S(Q)$ ($Q = 2.1 \text{ \AA}^{-1}$), perhaps because of DeGennes narrowing from the coherent scattering effect in $S(Q, \omega)$.

At smaller values of Q observed peaks approach incoherent

scattering approximation limit

because contribution from

coherent term is very small

in $S(Q)$. Incoherent approx-

imation for molecular motions

is also available in high Q

region because intermolecular

correlations are lost. If

the FWHM of quasielastic peaks

for molecular liquids is ex-

pressed as follows,

$$\Delta\omega = 2 \left(1/\tau + 2D_r + DQ^2 \right) \quad (2)$$

, where first two terms in eq.

(2) are Q independent terms

resulting from rotational modes,

and DQ^2 is Q dependent term

corresponds to a diffusional

mode of a center of mass of

molecule. Combining the equation with Fig.4(b), results of

diffusion constant, $D = 0.13 \times 10^{-5} \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1}$ and $2(1/\tau + 2D_r) =$

$2.13 \times 10^{11} \text{ sec}^{-1}$ were obtained.

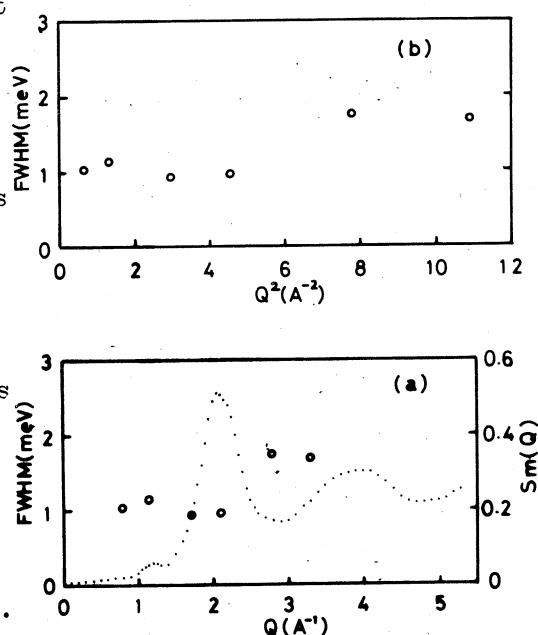


Fig.4. Full width at half-maximum of the quasielastic peak against momentum transfer Q (a) and Q^2 (b).

Acknowledgment

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

References

- 1) N. Watanabe, Y. Ishikawa and T. Tsuzuki: Nucl. Instr. **120** (1974) 293.
- 2) P. A. Egelstaff, W. G. Graham, L. Hahn, K. Suzuki and D. J. Winfield: Canad. J. Phys. **52** (1974) 2093.
- 3) N. Niimura and T. Kubota: Buturi **30** (1975) 676 (in Japanese).

II-2 Structure of NO_3^- Radical in Molten Monovalent Metal Nitrates

金研 福嶋喜章*・鈴木謙爾**

§1. Introduction

Structures of molten nitrates have been studied by many investigators using Ramman scattering^{1,4)} infra-red absorbtion⁵⁾ and X-ray diffraction⁶⁾ Although there are three types of correlations, i. e. $\text{NO}_3^- - \text{NO}_3^-$, $\text{M}^+ - \text{NO}_3^-$ and $\text{M}^+ - \text{M}^+$ in molten nitrates, a precise knowledge about intra-radical structure of NO_3^- is first needed to know the ionic correlations in molten nitrates. However, conventional experiments have not fully clarified the detailed intra-radical structure of NO_3^- in molten nitrates. To determine the intra-radical structure it is essential to observe a structure factor $S(Q)$ in high momentum transfer ($Q = 4\pi \sin\theta/\lambda$) region, because the inter-ionic or inter-radical correlations are completely lost and the intra-radical correlation only persist in high Q region.

Based on such a point of view, T-O-F pulsed neutron diffraction experiments using hot neutrons generated from the electron linac were carried out on various kinds of monovalent metal nitrates in the liquid state near the melting point.

§2. Experimental

The T-O-F neutron diffractometer⁷⁾ installed on the 300 MeV Tohoku university electron linac was used to measure total structure factors for molten MNO_3 where M is Li, Na, K, Rb and

Y. Fukushima* and K. Suzuki**:

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

Ag. An operating condition of the linac and method of data processing are same with those described in a previous work.⁸⁾

Samples were sealed in vacua in a silica tube with 0.3 mm thick wall and 10 mm inner diameter. Before sealing, all samples were dried at 120~150°C in vacua for 24~72 hours. During measurements the temperature of liquid samples was kept by an electric furnace⁹⁾ at 280, 340, 390, 350 and 260°C for Li-, Na-, K-, Rb- and AgNO₃, respectively.

§3. Experimental results

3.1 Structure factors

Fig. 1 shows the structure factors $S_m(Q)$ observed for molten LiNO₃ at 280°C, NaNO₃ at 340°C, KNO₃ at 390°C, RbNO₃ at 350°C and AgNO₃ at 260°C. There are big differences in the $S_m(Q)$'s in the range of $Q < 5\text{Å}^{-1}$. In this region there must be included a lot of informations about M⁺-NO₃⁻ and NO₃⁻-NO₃⁻ correlations. On the other hand, the $S_m(Q)$'s in high Q region still show that oscillatory behaviours are very similar with one another. Therefore, the intra-radical structure on NO₃⁻ in molten nitrates can be expected to be derived from data in high Q region in Fig. 1. In this

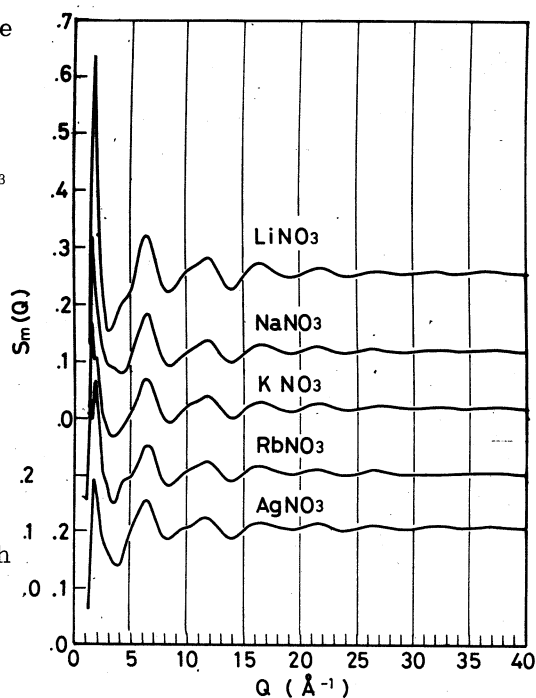


Fig.1. Observed structure factors for molten LiNO₃ (280°C), NaNO₃ (340°C), KNO₃ (390°C), RbNO₃ (350°C) and AgNO₃ (260°C).

paper discussions are focused on the behaviour of the $S_m(Q)$'s in high Q region and studies on lower Q region will be reported in another paper.

3.2 Radial distribution functions

Fig. 2 shows the radial distribution functions (RDF) for molten nitrates Fourier transformed from the observed structure factors. Numerical integration of Fourier transformation was truncated at $Q=38 \text{ \AA}^{-1}$ in each case. All nitrates have a sharp peak in the RDF at $r \sim 1.25 \text{ \AA}$, which corresponds to the N-O bond in a NO_3^- radical. The second peak near $r=2.2 \text{ \AA}$ is assumed to display the O-O separation in a NO_3^- radical, but the position and detailed profile of this peak are different according to cation species in molten nitrates.

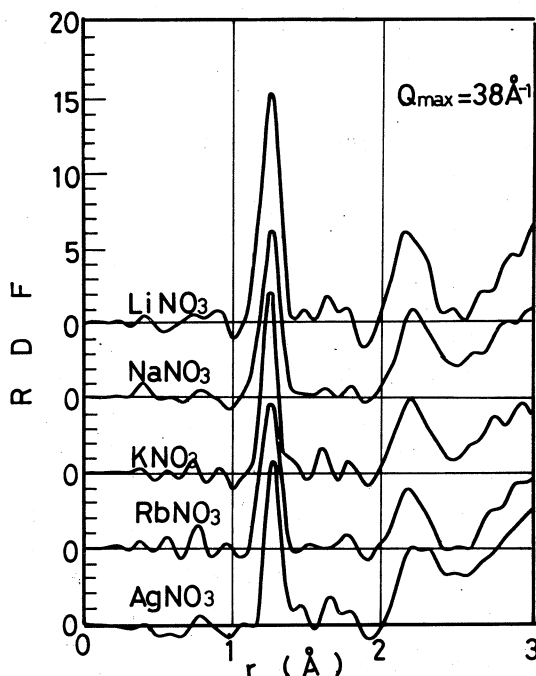


Fig.2. Radial distribution functions for molten mono-valent metal nitrates.

§4. Discussions

4.1 Least-squares analysis

All the observed structure factors $S_m(Q)$'s were analysed in the range of $Q > 7 \text{ \AA}^{-1}$ to determine the precise structure of a NO_3^- radical in molten nitrates. The $S_m(Q)$'s were fitted by least squares method to the form factor $F_1(Q)$ for a NO_3^- radical

as follows,

$$F_1(Q) = \frac{1}{(b_M + b_N + 3b_O)^2} \left[b_M^2 + b_N^2 + 3b_O^2 \right. \\ \left. + 2 \cdot n_{NO} \cdot b_N \cdot b_O \cdot \frac{\sin(Q \cdot r_{NO})}{Q \cdot r_{NO}} \cdot \exp\left(-\frac{\langle \Delta_{NO}^2 \rangle}{2} \cdot Q^2\right) \right. \\ \left. + 2 \cdot n_{OO} \cdot b_O^2 \cdot \frac{\sin(Q \cdot r_{OO})}{Q \cdot r_{OO}} \cdot \exp\left(-\frac{\langle \Delta_{OO}^2 \rangle}{2} \cdot Q^2\right) \right], \dots\dots(1)$$

where b_M , b_N and b_O are the coherent scattering length of monovalent metal (Li, Na, K, Rb and Ag), N and O nucleus, r_{NO} and r_{OO} are atomic separations in N-O and O-O pair, n_{NO} and n_{OO} are numbers of N-O and O-O pair in a NO_3^- radical, and $\langle \Delta_{NO}^2 \rangle$ and $\langle \Delta_{OO}^2 \rangle$ mean average square amplitude of fluctuation of atomic separations in N-O and O-O pair. Eq. 1 is derived assuming a tentative model that a NO_3^- radical has a regular triangle structure where three corners and center are occupied by three O atoms and one N atom, respectively. Numerical values of parameters for the best fitting are listed in Table 1.

Table I The results of least squares treatment

	N - O			O - O		
	n^*	$r(\text{\AA})$	$\langle \Delta^2 \rangle / 2(\text{\AA}^2)$	n^*	$r(\text{\AA})$	$\langle \Delta^2 \rangle / 2(\text{\AA}^2)$
LiNO ₃ (280°C)	3.0	1.252±0.001	0.00143±0.0009	3.0	2.197±0.004	0.00246±0.00034
NaNO ₃ (340°C)	3.0	1.249±0.001	0.00150±0.0011	3.0	2.198±0.005	0.00306±0.00045
KNO ₃ (390°C)	3.0	1.252±0.001	0.00171±0.0011	3.0	2.187±0.005	0.00270±0.00039
RbNO ₃ (350°C)	3.0	1.247±0.001	0.00103±0.0009	3.0	2.171±0.004	0.00180±0.00035
AgNO ₃ (260°C)	3.0	1.265±0.002	0.00155±0.0012	3.0	2.249±0.005	0.00247±0.00045

* neighbouring number(n) was fixed ($n_{NO} = n_{OO} = 3.0$)

4.2 Effect of intra-radical vibration

An intra-radical motion, such as internal rotation or puckering oscillation with a low librational frequency, is expected in a NO_3^- radical. The correction of this intraradical motion effect for bond length is necessary to get the precise intra-radical structure. The inter atomic distance averaged over the vibration (r_g) is written as¹⁰⁾

$$r_g = r'_a + \kappa \langle Q^2 \rangle + \Delta^2 / r_e, \dots\dots\dots (2)$$

where r'_a is the bond length expressed by eq. (1), κ is a parameter which is related to the cubic coefficient¹⁰⁾ of distribution function, and r_e denotes the equilibrium inter atomic distance which can be derived from detailed spectroscopic data. Parameter κ is expected to be the order of $10^{-6} \text{\AA}^3$ ¹¹⁾, and replacing r_e with r'_a , the value of r_g is approximately estimated. Calculated results are summarized in Table II.

Table II. Corrected value for N-O and O-O bond length by eq. (2)

	$r_{\text{NO}}(\text{\AA})$	$r_{\text{OO}}(\text{\AA})$
LiNO_3 (280°C)	1.255	2.200
NaNO_3 (340°C)	1.252	2.201
KNO_3 (390°C)	1.255	2.190
RbNO_3 (350°C)	1.249	2.173
AgNO_3 (260°C)	1.268	2.252

4.3 Correction of superposition of closed next peak for O-O separation

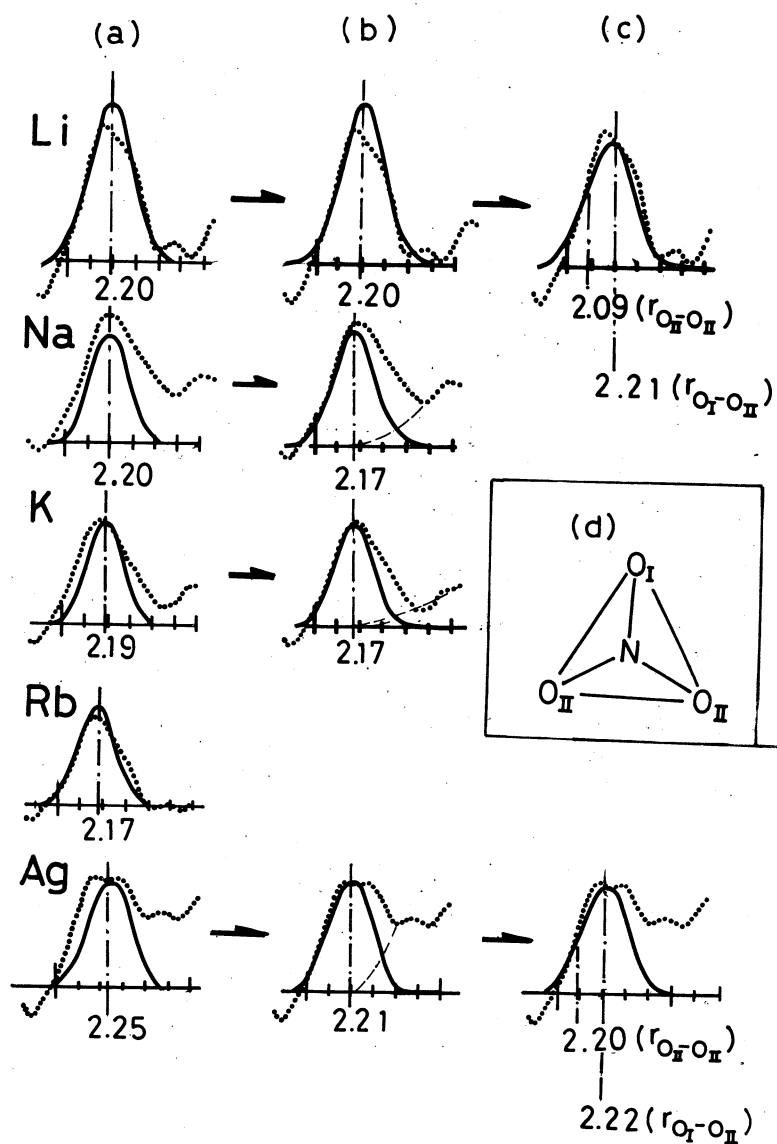


Fig.3. Correction for O-O separation, dotted line-observed and full line-calculated [(a)...after least squares treatment, (b)...after correction of superposition of next peak (c)... RDF for O-O separation in isosceles triangle NO_3^- and (d)... structure of NO_3^- radical.].

As shown in Fig. 3(a), the peak position for O-O separation in a NO₃⁻ radical is close to the next peak position in RDF of molten NaNO₃, KNO₃ and AgNO₃. The fitted O-O separation (r_{00}), of which values are shown in Table I and II, are shifted by the effect of superposition of the next peak. The correction for this effect was made schematically as shown in Fig. 3(b). A NO₃⁻ radical in molten NaNO₃, KNO₃ and RbNO₃ is regarded to have a structure of almost regular triangle. Their dimensions are listed in Table III.

Table III. N-O and O-O separation in NO₃⁻ radical in molten nitrates

	$r_{\text{N-O}}$ (Å)	$r_{\text{OII-OII}}$ (Å)	$r_{\text{OI-OII}}$ (Å)
LiNO ₃ (280 °C)	1.26	2.09	2.21
NaNO ₃ (340 °C)	1.25	2.17	2.17
KNO ₃ (390 °C)	1.26	2.17	2.17
RbNO ₃ (350 °C)	1.25	2.17	2.17
AgNO ₃ (260 °C)	1.27	2.10	2.22

The O-O separations in a NO₃⁻ radical in molten LiNO₃ and AgNO₃, however, are apparently longer than that expected from the structure of a regular triangle with its N-O bond length of 1.26 Å. Therefore, we conclude that a NO₃⁻ radical in molten LiNO₃ and AgNO₃ is distorted from a regular triangle into a isosceles triangle by the effect of coulomb force of nearest metal cation, as shown in Fig. 3(c) and (d). Numerical values of isosceles triangle for molten LiNO₃ and AgNO₃ are also summarized in Table III.

Acknowledgment

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

References

- 1) G. J. Janz and W. James: J. Chem. Phys. **35** (1961) 739.
- 2) W. Bues: Z. Phys. Chem. (Frankfurt) **10** (1957) 1.
- 3) J. R. Ferano and A. Walker: J. Chem. Phys. **42** (1965) 1273.
- 4) P. Grassman: Z. Phys. **77** (1932) 616.
- 5) J. Greenberg and L. J. Hallgren: J. Chem. Phys. **33** (1960) 900.
- 6) H. Ono and K. Furukawa: Private communication.
- 7) M. Misawa, K. Kai, K. Suzuki and S. Takeuchi: Res. Report Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **5** [2] (1972) 73.
- 8) M. Misawa, Y. Fukushima, K. Suzuki and S. Takeuchi: Res. Report Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **6** (1973) 88.
- 9) K. Suzuki, M. Misawa and Y. Fukushima: Trans. JIM **16** (1975) 297.
- 10) Y. Morino, Y. Nakamura and T. Iijima: J. Chem. Phys. **32** (1960) 643.
- 11) Y. Morino and T. Iijima: Bull. Chem. Soc. Japan **35** (1962) 1661.

Ⅱ-3 アモルファス $\text{Cu}_{57}\text{Zr}_{43}$ 合金の中性子回折

学習院大理学部・核理研*

工藤利雄・新村信雄・溝口正

§ 1. 序

splat cooling 法で得られたアモルファス $\text{Cu}_{57}\text{Zr}_{43}$ 合金中の $3d$ 不純物原子の磁氣的振舞を調べると、Mn 原子のみ局在磁気モーメントを持ち、逆帯磁率から求めた常磁性 Curie 温度は、 $T_c = -3.1 \pm 2 \text{ K}$ となり、0 K に近い値をとる。このように母合金がアモルファス状態にあるとき、局在磁気モーメントの特徴を調べるのは興味ある問題であるが、 T_c と構造との関係は W. C. Kok and P. W. Anderson¹⁾ によって理論的に議論されており、アモルファス $\text{Cu}_{57}\text{Zr}_{43}$ 合金の構造決定はそれらのために重要な情報を提供する。

本小文では、パルス中性子散乱実験により $\text{Cu}_{57}\text{Zr}_{43}$ アモルファス合金の動径分布関数を求めたので報告する。併せて W. C. Kok and P. W. Anderson の式よりアモルファス状態における Mn 原子の T_c について議論を行う。

§ 2. 実 験

東北大 300 MeV 電子ライナックに取り付けられたデバイシェラー中性子回折装置を使って実験を行った。試料 (3.25g) を細かく切り、厚さ $1.4 \mu\text{m}$ の Al 箔の円筒 ($11.2 \text{ mm}\phi \times 42.3 \text{ mm}$) に詰め込んだ。装置の測定条件は前回と同様である。²⁾

実測散乱強度 I_s とアモルファスの構造因子 $S(Q)$ は次の関係で表わせる。

$$I_s \propto I_0 A_s(Q) N_s \left[\left\{ \sum_i C_i b_i^{\text{coh}} \right\}^2 S(Q) + \sum_i C_i (b_i^{\text{inc}})^2 + \frac{\sigma_{\text{sm}}}{4\pi} \right] \quad (1)$$

ここに I_0 は入射強度、 $A_s(\lambda)$ は中性子の波長に依存する吸収係数、 b_i^{coh} 、 b_i^{inc} は合金各成分の干渉性及び非干渉性散乱長、 σ_{sm} は多重散乱断面積、 C_i は合金の各成分比率である。

I_0 はバナジウム試料による散乱強度より求めた。

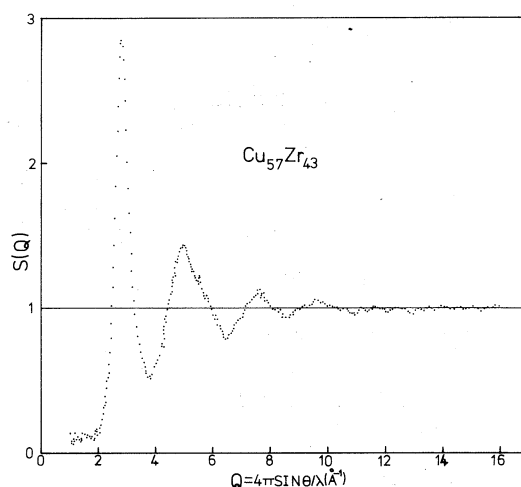
第 1 図にこのようにして求めた常温でのアモルファス $\text{Cu}_{57}\text{Zr}_{43}$ 合金の $S(Q)$ を示す。

動径分布関数は適当な damping factor $\exp(-BQ^2)$ を導入し、構造因子 $S(Q)$ をフーリエ変換することにより得られる。

$$4\pi r^2 (\rho(r) - \rho_0) = rU(r) \\ = -\frac{2r}{\pi} \int_0^\infty Q [S(Q) - 1] \\ \exp[-BQ^2] \sin QR \cdot dQ \quad (2)$$

第2図にこのようにして求められた $U(r)$ を示しておく。非晶質特有の第2ピークの分離が見られる。

遠心急冷法によって作られた同じ成分比をもつ非晶質合金の構造研究がX線回折法で $Q \approx 16 \text{ \AA}^{-1}$ までの範囲で行われているがピーク位置等我々の結果とよく一致している。³⁾



第1図 アモルファス $\text{Cu}_{57}\text{Zr}_{43}$ 合金の構造因子 $S(Q)$

§ 3. 議 論

第3図にアモルファス $(\text{Cu}_{57}\text{Zr}_{43})_{94.1}\text{Mn}_{5.9}$ 合金の帯磁率から母合金の帯磁率を引いた帯磁率の逆数と温度の関係を示してあるが、これからわかるように、約20 K以上ではよく Curie-Weiss 則に従い、常磁性 Curie 温度 T_c は0 Kに近い値を示す。

このアモルファス $\text{Cu}_{57}\text{Zr}_{43}$ 合金中の Mn

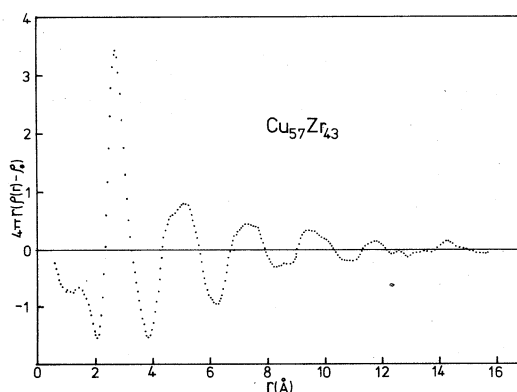
原子の局在スピ間に RKKY 相互作用を考えると、 T_c は良く知られている RKKY 関数 $F(2k_F r_{ij})$ の和に比例するとして与えられる。

$$T_c \propto \sum_{i \neq j} F(2k_F \cdot r_{ij}) \quad (3)$$

$$F(x) = \frac{x \cdot \cos x - \sin x}{x^4} \quad (4)$$

アモルファス状態では、局在スピ間の距離 r_{ij} を連続量として扱えば、 T_c は2体分布関数 $g(r)$ と $F(r)$ の積の積分で与えられる。

$$T_c \propto \int_0^\infty F(r) \cdot g(r) \cdot r^2 dr \quad (5)$$



第2図 アモルファス $\text{Cu}_{57}\text{Zr}_{43}$ 合金の動径分布関数の変動 $U(r)$

部分積分を実行すれば

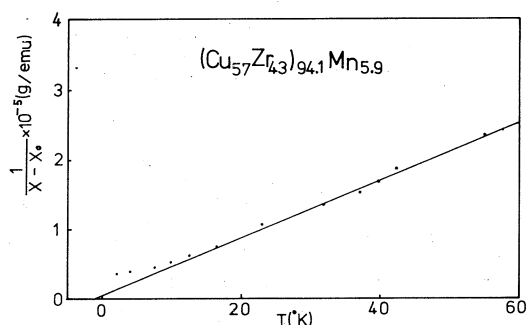
$$T_c \propto \int_0^{\infty} g'(r) \frac{\sin 2k_F r}{r} \cdot dr \quad (6)$$

となり, W. C. Kok and P. W. Anderson の結果になる。(2)式の $U(r)$ と $g(r)$ の関係を代入すると(6)式は

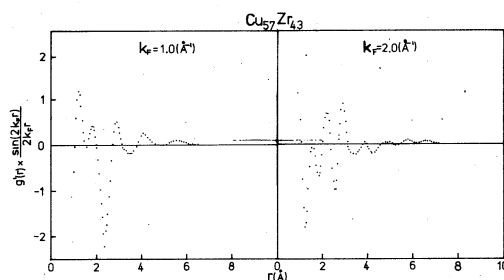
$$T_c \propto \int_0^{\infty} \frac{r \cdot U'(r) - U(r)}{r^2} \cdot \frac{\sin 2k_F r}{r} \cdot dr \quad (7)$$

実験から求めた動径分布関数 $U(r)$ を使って(7)式の積分を実行すれば T_c が求められるが、今被積分関数についてだけ考察してみる。母合金のフェルミ波数 k_F は、わかっていないのでパラメータとして扱い、被積分関数を求めてみた。第4図に $k_F = 1.0 \text{ \AA}^{-1}$ 、及び $k_F = 2.0 \text{ \AA}^{-1}$ の時の被積分関数を図示してある。これからわかるように、関数は正負に振動しそれらが積分によって互に打ち消し合うことにより、アモルファス構造をとる $\text{Cu}_{57}\text{Zr}_{43}$ 合金中では Mn 不純物の T_c が 0 K に近い値をとると考えられる。

データ解析に種々議論していただいた、鈴木謙爾教授、三沢正勝、福嶋喜章両氏に感謝致します。



第3図 $(\text{Cu}_{57}\text{Zr}_{43})_{94.1}\text{Mn}_{5.9}$ 合金の帯磁率 X から母合金の帯磁率 X_0 を差し引いた帯磁率の逆数 $1/(X - X_0)$ と温度 T の関係



第4図 動径分布関数 $U(r)$ から求められた関数 $g'(r) \cdot \frac{\sin 2k_F r}{r}$ と距離 r の関係

参 考 文 献

- 1) W. C. Kok and P. W. Anderson; Phil. Mag. **24** (1971) 1141.
- 2) 溝口正, 山内一志, 新村信雄; 核理研研究報告 **7** (1974) 323.
T. Mizoguchi, K. Yamauchi, N. Niimura; Japan J. appl. Phys. **14** (1975) 711.
- 3) 早稲田嘉夫; 固体物理 **10** (1975) 459.

Ⅱ-4 非晶質 Fe-Ge 合金の構造解析

理学部物理，京大理学部*

山田和芳・遠藤康夫・田村剛三郎*

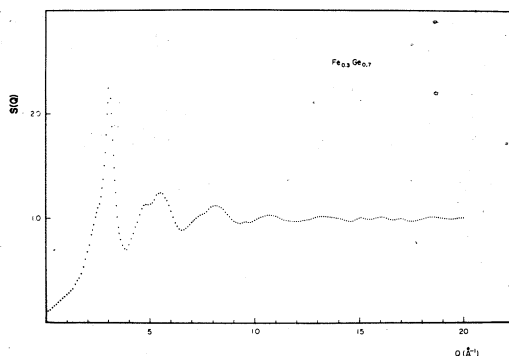
福島淳一*・遠藤裕久*

非晶質 Fe-Ge 合金は Fe の濃度が増加して約 20at. %程度になると電気抵抗は半導体的から金属的な振舞いを示す様になり，又ほとんど同じ様な組成領域で強磁性が発生する¹⁾。そしてこの臨界濃度近傍では Fe の磁気モーメントの大きさ自身が変化する遍歴電子型強磁性を示す²⁾ことから，この合金系においては電子構造が大きく物性に関与していると予想される。我々はこの様な Fe-Ge 合金の電子構造の変化についての情報を得る手段としてパルス中性子を用いた準弾性散乱による構造解析を試みた。

測定原理の詳細及び測定装置については同じ非晶質強磁性体についての報告が出ているので省略する。³⁾

用いた試料は Fe の濃度が 20 及び 30 at. %で，常温下地上に真空 ($\sim 10^{-6}$ torr) 蒸着によって作成した厚さ約 10μ の薄片状のものである。質量は $\text{Fe}_{0.3}\text{Ge}_{0.7}$ が約 3.8 g， $\text{Fe}_{0.2}\text{Ge}_{0.8}$ が約 1.6 g である。($\text{Fe}_{0.2}\text{Ge}_{0.8}$ については試料を約 4 g に増加して測定し直す予定) 試料容器はバナジウムの内径 $10\text{mm}\phi$ 厚さ 0.25mm ，高さ 50mm の円筒状のもを用いた。常温で測定し，^{注)} 測定時間は $\text{Fe}_{0.3}\text{Ge}_{0.7}$ で約 7 時間， $\text{Fe}_{0.2}\text{Ge}_{0.8}$ で約 4 時間である。

得られた生の強度から容器からの散乱及びバックグラウンドの分をさし引き，入射中性子の強度で規格化し構造因子 $S(Q)$ を得た。この際，試料及び容器内での中性子の吸収及び等方的な多重散乱を仮定した補正を行なった。



第1図 $\text{Fe}_{0.3}\text{Ge}_{0.7}$ の核構造因子 $S(Q)$

$$Q = \frac{4\pi \sin \theta}{\lambda}$$

第1図に $\text{Fe}_{0.3}\text{Ge}_{0.7}$ の $S(Q)$ を示す。第1ピークの左に肩がわずかに見られるのが特徴的である。
注) $\text{Fe}_{0.3}\text{Ge}_{0.7}$ は T_c が約 89 K の強磁性体で， $\text{Fe}_{0.2}\text{Ge}_{0.8}$ は常磁性体である。

る。これは非晶質 Ge に特徴的な $Q \approx 2 \text{ \AA}^{-1}$ の小さなピークのなごりと考えられる。(Fe_{0.2}Ge_{0.8} の場合にはわずかなピークがまだ見られる。)

この $S(Q)$ を次の様にフーリエ変換することによって、二体分布関数 $g(r)$ や動径分布関数 (RDF) $4\pi\rho_0 r^2 g(r)$ を求めることができる。

$$4\pi\rho_0 r (g(r) - 1) = \frac{2}{\pi} \int_0^\infty Q [S(Q) - 1] \sin(Q \cdot r) dQ$$

ここで ρ_0 は試料の平均の原子数密度である。実際には積分は有限の値 Q_{Max} までしか行なわれないが、その結果生じるエラーを減ずる為に次の様な収束関数を被積分関数に掛けて積分を行なった。

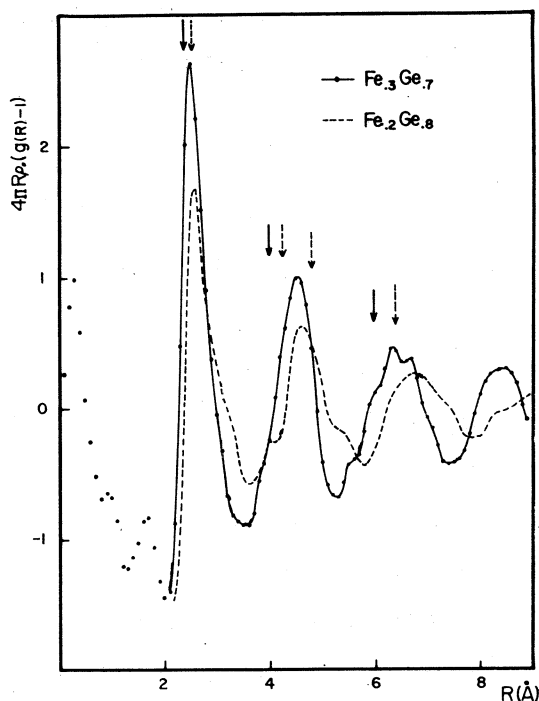
$$C(Q) = \exp(-BQ^2)$$

ここで B は $C(Q_{Max})$ が 0.1 程度になる様に定めた。この様にして得られた結果を第 2 図及び第 3 図に示す。なお第 2 図で実線及び破線の矢印はそれぞれ非晶質 Ge 及び Fe⁵⁾ のピークの位置を示している。第 2 図からもわかる様に Fe が 20 から 30at.% 入ると非晶質 Ge と比べて第 2, 第 3 ピークは r の大きいほうにずれ、むしろ非晶質 Fe のピーク位置に近づく傾向がある。しかし非晶質 Fe の様に無秩序稠密構造に特徴的と考えられている第 2 ピークの分離は見られず、又第 1 ピークの高さもかなり低い。

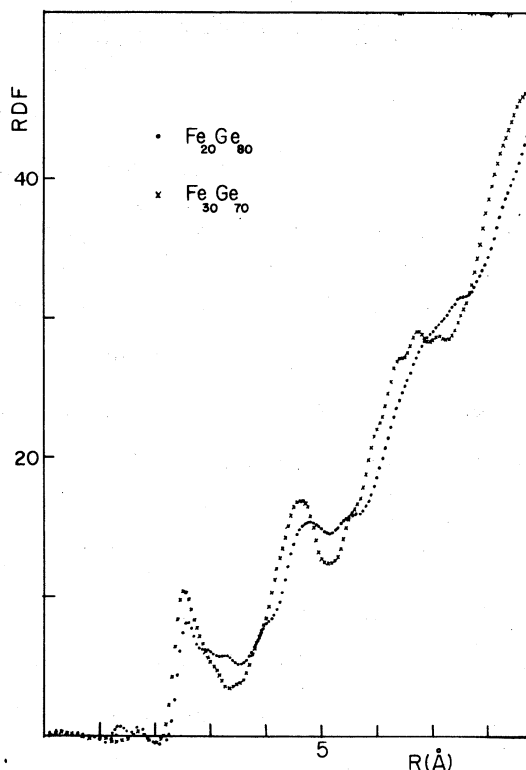
目的とした Fe_{0.2}Ge_{0.7} と Fe_{0.3}Ge_{0.7} の構造の差異は前者の測定が予備的なもので、断定するのは危険であるが、第 1 ピークの右側の肩が Fe の濃度が増すにつれて小さくなり、その代わり、第 1 ピークが高くなる、どくなっていることがあげられる。

結果として両方の非晶質 Fe - Ge 合金の

構造とも非晶質 Ge の 4 配位的な構造から非晶質 Fe の 12 配位的な構造の中間構造を示していると考えられるが、より詳細な解析と実験を行ない具体的な構造を明らかにしていくつもりである。



第 2 図 Fe_{0.3}Ge_{0.7} 及び Fe_{0.2}Ge_{0.8} の二体分布関数 $g(r)$ の平均から変動・実線及び破線の矢印はそれぞれ非晶質 Ge 及び Fe のピークの位置を示す



第3図 $\text{Fe}_{0.3}\text{Ge}_{0.7}$ 及び $\text{Fe}_{0.2}\text{Ge}_{0.8}$ の動径分布関数 (RDF)

最後に、実験及び解析のあらゆる面にわたって手取り足取り御指導下さった核理研の渡辺昇先生及び金研の鈴木謙爾研究室のスタッフの方々、そして渡辺研究室の富吉さんに心より感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) O. Massenet, H. Daver and J. Geneste : J. de Physique C 4 suppl. au no. 5, **35** (1974),
K. Tamura, J. Fukushima, H. Endo *et al.* : J. Phys. Soc. Japan **36** (1974) 565.
- 2) Y. Endoh and K. Yamada *et al.* : Solid. Stat. Comm. (1975) to be published.
- 3) 溝口正, 山内一志, 新村信雄 : 核理研研究報告 **7** (1974) 323.
- 4) M. Gandais, M. L. Theye, S. Fisson and J. Boissonade : Phys. Stat. Sol. (b) **58**
(1973) 601.
- 5) T. Ichikawa : Phys. Stat. Sol. (a) **19** (1973) 707.

II-5 天然 Gd の中性子散乱振巾

核理研, 理学部物理*

渡辺昇・石川義和*・武井弘次*

鈴木三千郎*

天然 Gd の熱外中性子領域における散乱振巾が中性子エネルギーの広い範囲にわたり測定された。共鳴領域を除く 0.3 eV 以上の領域で散乱振巾は一定値, $b_{\text{Gd}} = (0.95 \pm 0.02) \times 10^{-12} \text{ cm}$, であった。この値が天然 Gd の normal scattering amplitude である。また $E_0 = 2.64 \text{ eV}$ の共鳴近傍で中性子異常散乱による散乱振巾の変化が観測された。

§ 1. 序 言

Gd 化合物には磁気構造上興味あるものが多いが, 天然 Gd は熱中性子吸収断面積が極めて大きいので中性子回折はもっぱら ^{160}Gd を用いた実験に限られ, 系統的研究を妨げている。我々はパルス中性子源・TOF 法により熱外中性子領域でも中性子回折実験が可能で, 天然 Gd 化合物の測定も容易に行なえることをすでに示した¹⁾, ところで中性子回折により天然 Gd 化合物の磁気構造を調べるためにはまず天然 Gd の散乱振巾, b_{Gd} , を中性子エネルギーの関数として正確に知る必要がある。 b_{Gd} に関する従来の報告値としては 1.055 Å における G. Will 等²⁾ の測定値 $b_{\text{Gd}} = (1.5 \pm 0.2) \times 10^{-12} \text{ cm}$, 1.03 Å における T. R. Meguire 等³⁾ による $b_{\text{Gd}} = (2.25 \pm 0.07) \times 10^{-12} \text{ cm}$, 0.353 Å における J. W. Cable 等⁴⁾ による $b_{\text{Gd}} = 0.95 \times 10^{-12} \text{ cm}$ があるが非常にばらついており波長依存性も全く不明である。我々の 1 eV 近傍で行なった予備的測定での値は $b_{\text{Gd}} = 1.2 \pm 0.2) \times 10^{-12} \text{ cm}$ であった。

また中性子回折による巨大分子の位相問題に Gd は最も有用な核種であるが, この方面からも b_{Gd} の波長依存性の実測が待たれている。

§ 2. 実験方法

本実験では, (i) 金属 Gd 単結晶の回折線の核散乱と磁気散乱強度の比較より b_{Gd} を求める (ii) 前回同様 Gd の秩序合金 GdZn の基本格子回折線と超格子回折線の強度比より b_{Gd} を決める方法の 2 つが行われた。(i)の方法は特定の指数の反射を単に室温と低温で測定すればよいだけであるため, 吸収, extinction 等波長依存の factor に対する補正およびローレンツ因

子の補正に無関係となり、またセッティングの誤差も効かないので、少なくとも b_{Gd} の波長依存性の相対値においては精度が非常に高く、広い波長範囲での測定も容易である。一方(ii)の方法では一番問題となる吸収因子を一定にするため両回折線が同一の波長で測定できるよう θ を変えるので測定波長範囲は大きくできないが、 b_{Gd} の絶対値を(i)とは独立の方法でチェックできるため採用した。

実験装置はすでに報告した通りであるが、測定精度を改善するため、まず中性子検出器の窓が従来の $12\text{mm}\phi$ から $24\text{mm}\phi$ に変えられた。従来回折線スポットが窓より若干大きかったためローレンツ因子に不安があったが、これがほぼ解消できたとともに計数率が増加した。次に θ のみならず 2θ についても遠隔駆動測定ができるようになり測定能率が若干改善されたほか、ND インターフェースも改善されチャンネル巾を必要に応じ十分小さくとることが出来るようになった。

§ 3. 実験結果

3.1 金属 Gd

金属 Gd は $T_c = 293\text{ K}$ 以下で強磁性を示す。^{4, 5)} スピンの向きは $210 \sim 290\text{ K}$ の間では C 軸に平行であるが、 210 K 以下では C 軸から傾き、 77 K ではこの傾き角は約 40° となる。⁴⁻⁶⁾ したがって室温と低温 (77 K) の測定より b_{Gd} を求めることができる。すなわち低温での積分強度は核散乱と磁気散乱の和

$$\begin{aligned} I_{hkl}^{77K} &= I_{hkl}^N + I_{hkl}^M \\ &= C \left(\left| F_{hkl}^N \right|^2 + \left| F_{hkl}^M \right|^2 \right) \\ &= C' \left[b_{Gd}^2 + \left(\frac{e^2 r}{mc^2} \right)^2 f_m^2(Q) \left(\frac{\mu_{Gd}}{2} \right)^2 \sin^2 \alpha \right] e^{-2B_{77K}} \end{aligned} \quad (1)$$

で、また室温での積分強度は

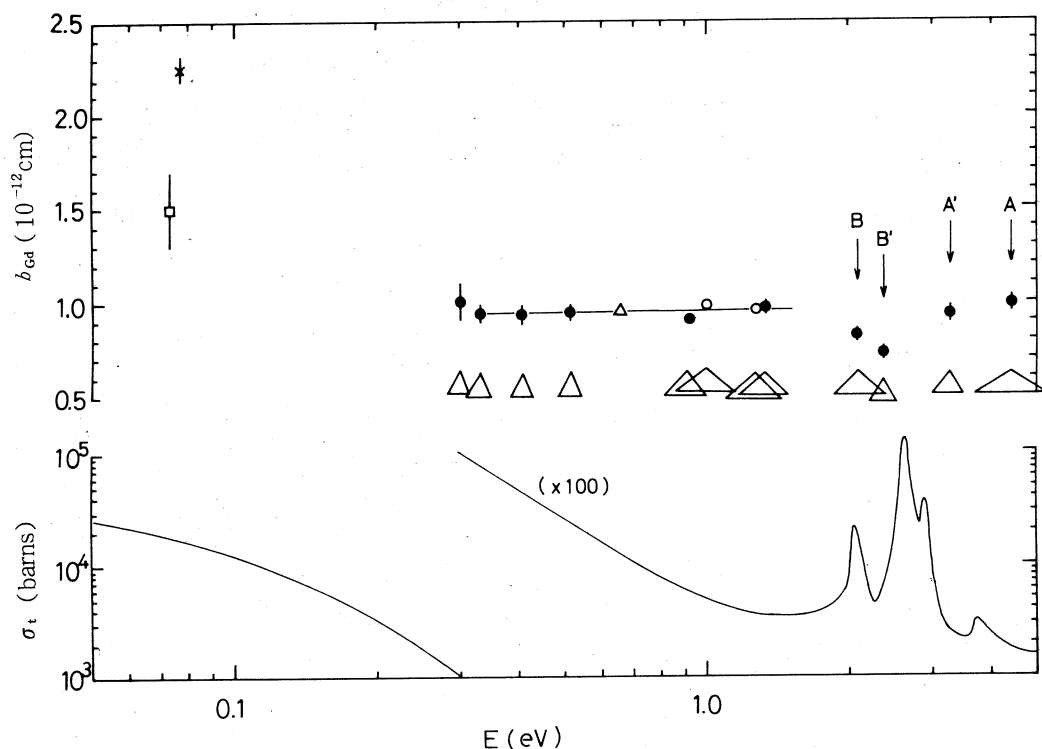
$$I_{hkl}^{RT} = C' b_{Gd}^2 e^{-2B_{RT}} \quad (2)$$

で表される。ここに C , C' は比例定数、 α は Cd のスピンの向きの C 軸からの傾き角、その他は通常定義に従う。(1), (2)より

$$b_{Gd}^2 = \frac{I_{hkl}^{RT} e^{2B_{RT}}}{I_{hkl}^{77K} e^{2B_{77K}} - I_{hkl}^{RT} e^{2B_{RT}}} \left(\frac{e^2 r}{mc^2} \right)^2 f_m^2(Q) \sin^2 \alpha$$

となり b_{Gd} を決めることができる。

測定は002反射につき行なわれた。002反射に対する磁気形状因子の値としては $f_m(Q) = 0.81^{(7)}$, 77 Kでの金属 Gd の磁気モーメントとして $\mu_m = 6.59 \mu_B^{(7)}$, スピンのC軸からの傾き角として $\alpha = 41^\circ^{(5)}$ を用いて得られた種々の中性子エネルギーでの b_{Gd} を第1図に示す。 b_{Gd} 一定領域での平均値として $b_{Gd} = (0.95 \pm 0.02) \times 10^{-12} \text{ cm}$ が得られた。この方法における b の絶対値の精度は α の精度で決まる。 α の値としては2, 3の報告があるがその値はかなりばらついており($35^\circ \sim 41^\circ$)^{4)~6)}また個々の試料により若干異なると考えられる。

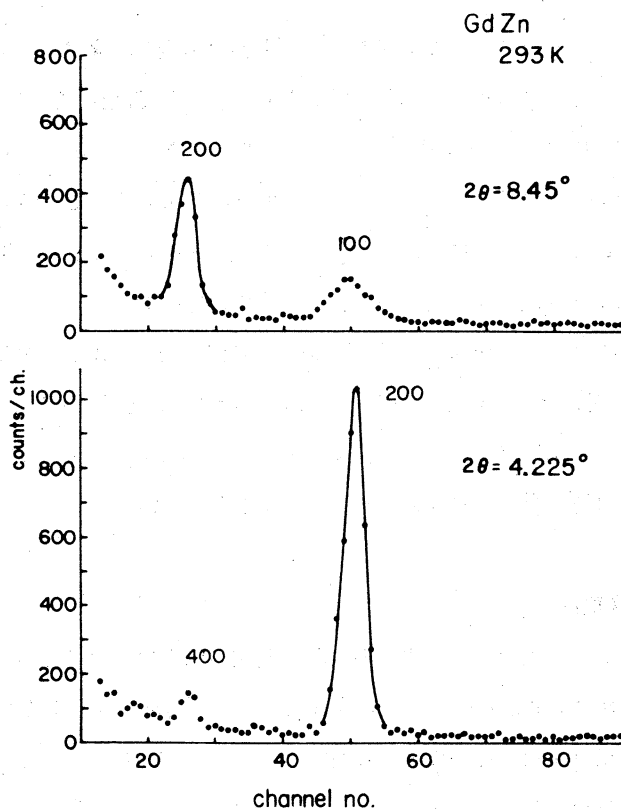


第1図 天然 Gd に対するエネルギー依存の中性子散乱振巾 (●: Gd の磁気モーメントとの比較よりの値, ○: Gd Zn の 100 反射と 200 反射の比較よりの値, △: J. W. Cable et al.⁴⁾, □: G. Will et al.²⁾, ×: T. R. McGuire et al.³⁾)。プロットの下で三角形はその底辺でエネルギー分解能 (FWHM) を表す。図の下に参考のため中性子全断面積 (BNL - 325) を示す。

3.2 Gd Zn

第2図に Gd Zn の中性子回折パターンを示す。吸収因子を同じにするため 100 反射および 200 反射が同一波長で回折するような θ , 2θ の条件で測定が行なわれた。

核散乱 (室温) の積分強度は



第2図 Gd Znの熱外中性子回折パターン

$$I_{hkl}^N = \frac{|F_{hkl}^N|^2}{\sin^2 \theta} \frac{I(\lambda) \lambda^4 e^{-2B}}{4\pi V_a^2} \delta V_c E A$$

で表される。ここに E および A は extinction および吸収の factor でその他は通常の設定による。200 と 100 の強度比は波長一定の条件の時には

$$\frac{I_{200}}{I_{100}} = \frac{(b_{Gd} + b_{Zn})^2 \sin^2 \theta_{100} \exp(-2B_{200})}{(b_{Gd} - b_{Zn})^2 \sin^2 \theta_{200} \exp(-2B_{100})}$$

となり、これより b_{Gd} を求めることが出来る。Zn の散乱振幅には $b_{Zn} = 0.59 \times 10^{-12} \text{ cm}$ 、Debye - Waller factor はリンデマンの溶解公式より推定される Debye 温度 $\theta_D = 207 \text{ K}$ が用いられた。測定は 1.0 eV および 1.27 eV において行なわれ、それぞれ $b_{Gd} = (0.98 \pm 0.02) \times 10^{-12} \text{ cm}$ および $(0.956 \pm 0.02) \times 10^{-12} \text{ cm}$ が得られた。誤差は第2図からも明らかな如く θ を変えたため線巾が変わり ($\Delta\lambda / \lambda \propto \cot \theta$ より)、吸収因子等に若干の差違が生じたことが主な原因と考えられる。

3.3 b_{Gd} のエネルギー依存性

第1図は種々のエネルギーで測られた b_{Gd} をプロットしたもので、●は3.1で述べた金属 Gd より決めた値、○は3.2で述べた GdZn による値で J. W. Cable 等⁴⁾ の値 (△), G. Will 等²⁾ (□) および T. R. McGuire 等³⁾ (×) と比較してある。参考のため天然 Gd に対する中性子全断面積が図の下に示してある。プロットの下に三角形は測定点のエネルギー分解能を示すもので、底辺の長さが FWHM に対応する。これから明らかな如く 0.3 eV 以上では、 $E_0 = 2.64$ eV の共鳴領域を除き b_{Gd} は全く一定で、この領域での値(加重平均値)は $(0.95 \pm 0.02) \times 10^{-12}$ cm となる。この値は J. W. Cable 等の値と全く一致しており、また我々の GdZn よりの値とも非常によく一致している。そして熱中性子領域における G. Will 等や T. R. McGuire 等の値に比べ明らかに小さい。熱外中性子領域にこのように b_{Gd} 一定の領域が広範囲に存在することは磁気構造の研究のためには大変都合がよい。

3.4 Gd の中性子異常散乱

第1図から明らかな如く、熱中性子領域での b_{Gd} の測定値は実験の困難さから大巾にばらついているが b_{Gd} 一定領域での値よりは明らかに大きく、中性子異常散乱によるものと考えられる。異常散乱領域では散乱振幅は複素数となり通常 $b = b_0 + b'(\lambda) + ib''(\lambda)$ の如く表される。第2および第3項は波長に依存する。

Breit-Wigner の式^{8,9)}を用いると b は

$$b = R + \frac{1}{2} \frac{g\omega\lambda_0\Gamma_n(E-E_0)}{(E-E_0)^2 + \Gamma^2/4} + i \frac{1}{4} \frac{g\omega\lambda_0\Gamma_n\Gamma}{(E-E_0)^2 + \Gamma^2/4} \quad (3)$$

で表される。ここに E_0 は共鳴エネルギーで他記号は通常定義に従う。しかし天然 Gd の場合には E_0 , Γ_n 等の共鳴パラメーターは明らかでない。

(3)式は $E \gg E_0$ なる領域では $b = R$ となり、中性子エネルギーによらず一定となるはずである。第1図に示された b_{Gd} 一定領域はまさにこの領域で、したがって天然 Gd に対する normal scattering amplitude は $(b_0)_{\text{Gd}} = 0.95 \pm 0.02 \times 10^{-12}$ cm (20.0 ± 96.0)。

中性子エネルギーをさらに低くして異常散乱を観測しようと試みたが、今回用いた Gd 単結晶は 3~4 mm とかなり厚く、0.3 eV 以下での測定は不可能であった。第1図で 0.3 eV のあたりから b が若干増加しはじめてるように見うけられるが実験精度からは明らかでない。

0.3 eV 以下については次回 0.5 mm 厚の単結晶を用い実測する予定である。

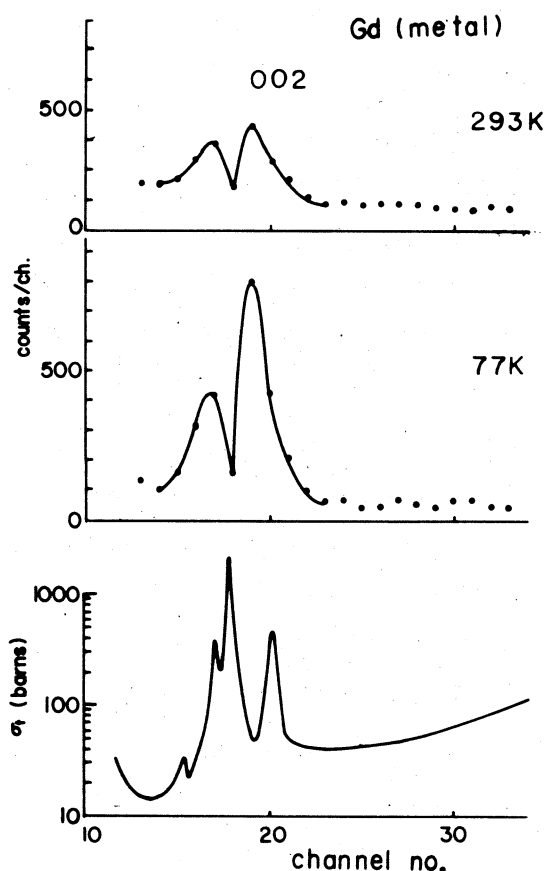
次に $E_0 = 2.64$ eV の共鳴に関して異常散乱を調べるため E_0 の両側で b の測定を行なった。

B点では明らかに b に減少が見られる。しかし eV 領域では図に示される如くエネルギー分解能がかなり悪くはっきりしないため、第3図に示す如くブラッグ反射が共鳴吸収で丁度2つにスプリットするように θ を選び、巾のせまくなった2つのピークをそれぞれ用い分解能の改善をはかった。磁気モーメントと比較する方法ではこのような方法がとれることもその特長である。第2図の A' , B' 点はその結果を示すもので、 B' 点での b の減少は顕著である。これは次の如く説明できよう。(3)式から明らかなる如く、まず $b''(\lambda)$ は E に関し Lorentzian となり、 E_0 から離れるにしたがって急速に小さくなるが、 $b'(\lambda)$ は $E < E_0$ で負となり、その絶対値は E の減少とともにゆっくり減少する。共鳴があまり大きくなく、したがって Γ_n があまり大きくない場合 E_0 の低エネルギー側では

$$|b_0 + b'(\lambda)| < b_0 \text{ になるように領域が存在し、} b^2 = (b_0 + b'(\lambda))^2 < b_0^2 \text{ となる。}$$

Gd の $E_0 \approx 2.64$ eV における共鳴はまさにこの場合に対応し、異常散乱により散乱振幅は b_0 より小さくなると考えられる。 E_0 の高エネルギー側では b は増加するはずであるが、共鳴吸収を逃がれるだけ離れると $b'(\lambda)$ および $b''(\lambda)$ はともにかなり小さくなり、エネルギー分解能が十分よくない今の場合には b の増加はあまり顕著には観測されないと考えられる。

以上の如く $E_0 \approx 2.64$ eV の共鳴に関しては明らかに中性子の異常散乱が確認できたが、巨大分子の構造解析における位相決定への応用となるとこのレベルはエネルギーが高過ぎるため分解能を考えると現実的ではない。したがって 0.3 eV 以下の領域で適当な大きさの異常散乱が得られることが必要となる。これについては次回以降測定を行なう予定である。



第3図 共鳴吸収によるブラッグピークのスプリッティング

ND インターフェースの改造に御尽力下さった核理研窪田健雄氏に深く感謝致します。

参 考 文 献

- 1) Y. Ishikawa and N. Watanabe et al. : Phys. Letters **6** (1974) 159 ; 石川義和
他 : 核理研研究報告 **6** (1973) 276, **7** (1974) 336 ; 渡辺昇他 : 核理研研究報告
8 (1975) 125.
- 2) G. Will, R. Nathans and H. A. Alperin : J. appl. Phys. **35** (1960) 1045.
- 3) T. R. Mcguire, R. J. Cambio, S. J. Pickart and H. A. Alperin : J. appl. Phys. **40**
(1969) 1009.
- 4) J. W. Cable and E. O. Wollan : Phys. Rev. **165** (1968) 733.
- 5) C. D. Graham : J. Phys. Soc. Japan **17** (1962) 1310.
- 6) W. D. Corner, W. C. Roe and K. N. R. Taylor : Proc. Phys. Soc. (London)
80 (1962) 927.
- 7) R. M. Moon and W. C. Koehler : Phys. Rev. Letters **27** (1971) 407.
- 8) G. Breit and E. Wigner : Phys. Rev. **49** (1936) 519.
- 9) S. W. Peterson and H. G. Smith : Phys. Rev. Letters **6** (1961) 7.

II-6 $\text{Gd}_{0.85}\text{Th}_{0.15}$ の熱外中性子回折

核理研，理学部物理*，広島大総合科学部**
渡辺昇・石川義和*・武井弘次*
岡本哲彦**・藤井博信**

$\text{Gd}_{0.85}\text{Th}_{0.15}$ の熱外中性子回折を行なった。低温での (00ℓ) スキャンでサテライト線が観測され、これより C 軸に沿って 6.2 枚周期に進むスピン構造をしていることがわかった。また核散乱によるブラッグピークとの強度比は、単純なプロパースクリュー構造でなく C 軸方向に進む横波正弦波、あるいはサイクロイド構造の可能性を示唆している。

§ 1. 序 言

$\text{Gd}_{0.85}\text{Th}_{0.15}$ はいわゆる Sm 型無秩序合金で、低温での磁化率はこの物質が 180 K 以下では強磁性あるいは反強磁性のいずれでもないことを示唆している。この物質の磁気構造を知るには中性子回折を行う必要があるが、天然 Gd の熱中性子吸収断面積が極めて大きく測定不可能であるため、熱外中性子による回折を行なった。その予備の結果については前報ですでに報告したが今回は回折装置も一部改善されたので、積分強度を求めるうえで種々精度の向上に留意して測定を行なった。その中間結果について報告する。

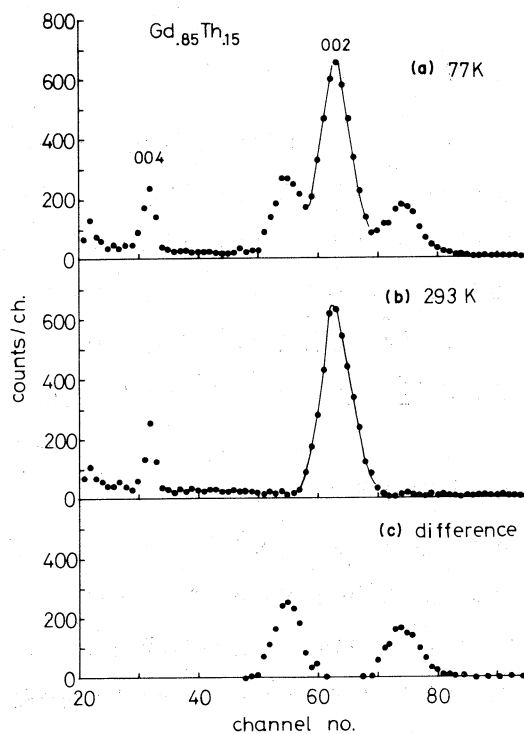
§ 2. 実験結果

熱外中性子回折は前回同様、まず $2\theta = 6.5^\circ$ で室温および 77 K で (00ℓ) スキャンを行なった。その回折像を第 1 図に示す。まず低温でのデータ（第 1 図(a)）では 002 の両側に強いサテライト線が観測され、これが室温(b) では消失することからこのサテライト線が磁氣的起因によることは明らかである。それぞれ規格化の後、低温のデータより室温のデータを差し引くと (c) に示すようにサテライト線がきれいに分離できる。これらは逆格子面上、互いに 002 の対称位置に現れ、c 軸方向に 6.2 枚の周期をもつヘリカルスピン構造であることがわかる。磁気測定で c 軸方向の ferro 成分が観測されないこと、および 002 まわりにサテライトが現れることからスピン構造はプロパースクリュー、サイクロイドあるいは横波正弦波の 3 つのモデルが考えられるが、002 まわりのサテライト線の強度よりその判別を試みてみる。まずサテライト線に対する積分強度は、

$$I_{hkl}^{\pm} = C |F_{hkl}^{\pm}|^2 \frac{I(\lambda) \lambda^4}{\sin^2 \theta} E(\lambda) A(\lambda) \quad (1)$$

で与えられる。ここで C は比例定数, $F_{hkl}^{\pm}$ はサテライト線の磁気構造因子で, 上の3つの構造に対してはそれぞれ前報¹⁾の通りである。 $I(\lambda)$ は検出器の波長依存の効率を含む入射中性子ビームの波長分布, $E(\lambda)$ および $A(\lambda)$ はそれぞれ extinction および吸収による減衰である。extinction については, この物質のモザイクの広がり大きいことと測定領域での中性子波長が非常に小さいこと ($\lambda < 0.3 \text{ \AA}$) から無視でき, $E(\lambda) \simeq 1$ となる。したがって $I(\lambda)$ および $A(\lambda)$ を正確に決定でき, かつ $|F_{hkl}^{\pm}|^2$ の中に含まれる磁気モーメントの大きさ μ_m がわかれば核散乱によるブラッグピークの積分強度との比較より容易に構造の判定がつけられる。

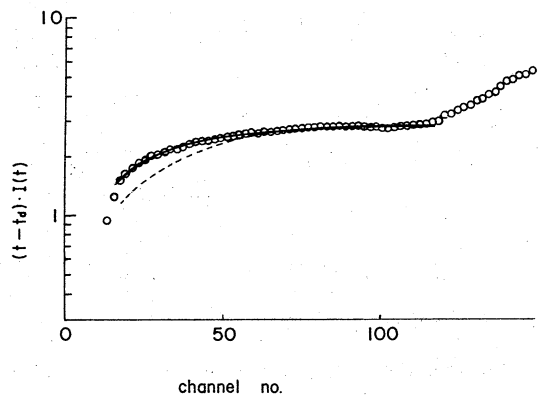
$I(\lambda)$ の決定には $2\theta = 0$ で直接, 入射ビームを測る方法, バナジウム標準サンプルよりの散乱中性子を測る方法等があるが, 前者ではガンマバーストによる ^3He カウンターの飽和のためにチャンネルの小さい領域 (eV 領域) で $I(\lambda)$ が正確に再現できず, また後者の方法では小角散乱であるため中性子検出器の立体角が小さく十分な統計が得られない。このため種々の方法が試みられたが, 前者の方法に適当な厚さの鉛フィルターを併用するのが現在のところ最も信頼度が高いことがわかった。鉛の全断面積は eV 領域では中性子エネルギーによらず一定でスペクトルの歪は無視できると考えられる。第2図は10 cm 厚の鉛フィルターを中性子検出器の前方約2.5 m の位置に置いて得られた TOF スペクトル



第1図 Epithermal neutron diffraction pattern for $\text{Gd}_{0.85}\text{Th}_{0.15}$. (a): 77 K. (b): room temp. (c): difference.

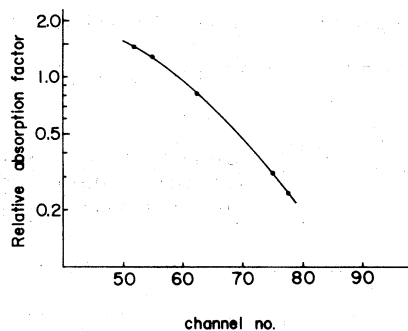
$I(t)$ を示したもので, 横軸は channel no. (channel 巾 $8 \mu\text{s}$), 縦軸は便宜上 $(t - t_d) \cdot I(t)$ の形にしてある。ここに t_d は実験系の固定遅延時間である。モデレータはターゲットを中心に囲む等価厚4~5 cm の円筒形軽水で, この寸法のモデレータから放射される

熱外中性子ビームは $E^{-0.9}$ に近いスペクトルになることが理論的に予想される。 E^{-1} の場合、中性子検出器の効率がエネルギーによらず一定なら $(t - t_a) \cdot I(t)$ は一定値となるはずである。第2図において120チャンネル以下の領域(70~120 ch)がほぼこれに対応し、さらに低チャンネル領域は中性子エネルギーが高くなるための検出器効率の低下によるものと考えられる。120 ch 以上の領域は熱化中性子による Maxwell 分布に対応している。さて ^3He ガス圧10気圧、内径1"φ、中性子ビームに対するカウンター軸の傾き角を 18° として検出器の効率を計算し、 $E^{-0.9}$ スペクトルの場合について $(t - t_a) \cdot I(t)$ を求めると第2図の実線の如くになり、実測値と非常によく一致する。 E^{-1} スペクトルに対する計算値は第2図破線の如くになり、50 channel 以下では実測値から大きくはずれる。3 cm厚×15 cm×15 cmポリエチレンモデレーターを用いた Harwell リニアックでの実測では $E^{-0.82}$ スペクトルが報告されている。我々の場合の $E^{-0.9}$ スペクトルは、モデレーターの大きさを考えると極めてよく理論的予想にも一致している。



第2図 Incident neutron spectrum $I(\lambda)$ measured by a ^3He counter with a 10cm thick Pb filter. Solid curve shows a calculated counter efficiency assuming $E^{-0.9}$ spectrum.

吸収による減衰 A は Gd のような吸収の大きい物質に対しては計算による推定の精度が悪く、特に積分強度の大きな誤差となる。そのため具体的な試料の測定条件で実験的な A を決めてやることが重要となる。第3図は θ 、 2θ を $2\theta = 6.5^\circ$ の前後で種々変えて室温の 002 強度を測定し、(1)式において A 以外の因子についての補正をほどこして得られた積分強度でこれが $A(\lambda)$ の相対変化の実験値となる。 θ 、 2θ を変化させると幾何学的条件が若干異なり、吸収効果もこれに従って変化するが、熱外中性子回折は小角散乱であるためこの変化は非常に



第3図 Measured values of absorption factor for the $\text{Gd}_{0.85}\text{Th}_{0.15}$ crystal at various wavelength.

小さく無視できるものと考えられる。

さて上で求めた $I(\lambda)$ 、 $A(\lambda)$ 等を用いてそれぞれ積分強度の補正を行ない磁気サテライト線の核散乱ブラッグピークに対する比を求めると第1表の第一行に示す値となる。一方、この比の計算値は上の3つの構造に対してそれぞれ

$$\begin{aligned} \text{proper screw} : \left(\frac{I_{hkl}^+}{I_{hkl}} \right)^{\text{prop}} &= \frac{P^2 (1 + \cos^2 \Theta)}{4 (0.85 b_{\text{Ga}} + 0.15 b_{\text{Th}})^2} \\ \text{cycloid} : \left(\frac{I_{hkl}^+}{I_{hkl}} \right)^{\text{cyc}} &= \frac{P^2 (1 + \sin^2 \Theta \cdot \cos^2 \Phi)}{4 (0.85 b_{\text{Ga}} + 0.15 b_{\text{Th}})^2} \\ \text{transvers sine} : \left(\frac{I_{hkl}^+}{I_{hkl}} \right)^{\text{t. sin}} &= \frac{P^2 (1 - \sin^2 \Theta \cdot \cos^2 \Phi)}{4 (0.85 b_{\text{Ga}} + 0.15 b_{\text{Th}})^2} \end{aligned}$$

で表わされる。但し、

$$P^2 = \left(\frac{e^2 \gamma}{2 m c^2} \right)^2 \mu_m^2 f_m^2(Q)$$

である。

Gd_{0.85}Th_{0.15} の磁気モーメント μ_m は全く不明であるが、いま近似的に磁気モーメントは Gd のみが担い、その値は金属 Gd の値³⁾ に等しいとし、 $T_N = 149$ K より分子場近似で 77 K での値を推定すると $\mu_m \cong 5.78 \mu_B$ となる。この値および金属 Gd に対する $f_m(Q)$ ³⁾ を用いて $\left(\frac{I_{002}^+}{I_{002}} \right)$ をそれぞれの場合について求めてみると第1表に示す如くなる。ここで熱外中性子に対する b_{Ga} としては我々の最近の実測値 $b_{\text{Ga}} = 0.95 \times 10^{-12} \text{ cm}$ ⁴⁾ が、また $b_{\text{Th}} = 1 \times 10^{-12} \text{ cm}$ が用いられた。強度比はサイクロイドまたは横波正弦波の場合、プロパースクリューの場合の 1/2 となるが、実測値は前者に近い。もし実測強度比をプロパースクリューで説明しようとする $\mu_m f_m(Q)$ は上の仮定より 23% 小さく、逆に後者だと 11% 大きくなければならない。 $\mu_m f_m(Q)$ の推定精度および吸収補正の精度より現時点では 11% の不一致は止むを得ず、したがって後者の可能性は高い。次はサイクロイドか横波正弦波かの判別であるがそのために

第1表 Comparison of measured values with calculated one for the intensity ratio of the magnetic satellite line to the nuclear Bragg reflection $\left(\frac{I_{002}^+}{I_{002}} \right)$

Measured	Calculated		
	P - S	Cycloid	T - S
0.336	0.559	0.279	0.279

は100 および110 まわりのサテライトを測定する必要がある。これについては現在進行中で次回報告するが、磁気ドメインの存在のため、より正確な強度の測定が必要となろう。

参 考 文 献

- 1) 渡辺昇他：核理研研究報告 8 (1975) 125.
- 2) U.S. Government : BNL - 325.
- 3) R.M.Moon et al. : Phys. Rev. Letters 27 (1971) 407.
- 4) 渡辺昇他：核理研研究報告 8 No.2掲載予定, および Y.Ishikawa *et al.* : *Proc. Neutron Diffraction Conference*, Petten, (Aug. 1975)

Ⅱ-7 TOF 逆フィルター法による中性子干渉性非弾性散乱の測定

金研 富吉昇一

§ 1. 序 論

パルス中性子源を用いて中性子非弾性散乱の測定を行う方法は大きく分けて、2種類の方法に分けられる。第1の方法は、中性子源より出て来るビームを単色のパルスビームにして試料に当て、試料より距離 L_1 離れた位置で、ある散乱角 θ に配置されている検出器で検出する方法で、非弾性散乱された中性子のエネルギーは、 L_1 を飛行する中性子の飛行時間の測定によって行われる。第2の方法は、中性子源より発生したパルスの白色中性子線を、中性子源より L_1 だけ離れた距離にある試料に、直接当て、散乱されたもののうち、ある定まったエネルギーの中性子線だけを、 L_2 だけ離れた位置に置かれた、ある散乱角 θ のエネルギー選別器系で検出する方法であり、この方法では中性子源より試料までの距離 L_1 を飛行する時間により、非弾性された中性子のエネルギー解析が行われる。この方法は、試料の後にモノクロメーターが配置されている点が第1の方法の逆になっているということから、良く inverted method といわれる。

第1の方法は、定常型原子炉の two rotors のチョッパースペクトロメーターを用いて古くから行われていた方法であり、パルス中性子源の場合には、one rotor のチョッパー、あるいは結晶モノクロメーターを用いて、単色パルスビームを得る方法が取られている。

他方、第2の方法は、パルス中性子源特有の方法であり、ある特定のエネルギーを選別する方法として、Be, BeO などのフィルターを用いる場合と、¹⁾ 結晶モノクロメーターを用いてあるエネルギーの中性子線を検出する²⁾ 2つの方法が使用されている。フィルターを用いる方法は、東北大核理研でも以前から行われており、また、IBR のパルス原子炉などでも採用されているが、これらはすべて粉末試料を用いる非干渉性非弾性散乱の測定であり、単結晶試料を用いて phonon, magnon などによる干渉性散乱の測定を行った例は、東北大核理研が最初である³⁾。我々が採用しているのは、いわゆる TOF 逆フィルター法であるが、フィルターは、良く知られているように、バンドフィルターで、フィルターの cut-off エネルギー以下のエネルギーはすべて検出器に達するので、分解能が非常に悪くなるのではないかという懸念がある。しかし、前から予測されているように⁴⁾、フィルターの cut-off エネルギーでの

中性子透過率の立ち上りは非常にシャープであるので、非弾性散乱ピークの立ち上りの位置より、phonon, magnon のエネルギーは精度良く決められると考えられる。事実、粉末試料測定用のフィルタースペクトロメーターを用いた予備的な単結晶試料の実験でも³⁾、分解能は決して悪くなく、充分実用に耐えそうであることが示されている。今回は、単結晶測定用のフィルタースペクトロメーターを用いて、分解能、S/N などについて検討を行い、この方法が、どれくらい有用な方法であるかを詳しく調べたのでその結果について報告する。

§ 2. 実験結果

第1図は単結晶用フィルタースペクトロメーターを示す。この装置は、単結晶構造解析用に使用していたものをそのまま転用したもの

であり、試料とカウンターとの間に BeO のブロックをつめて、フィルタースペクトロメーターとした。従って、装置全体としては簡単でコンパクトであるのが特徴である。第1図に於て $L_1 = 538 \text{ cm}$ 、 $L_2 = 28$

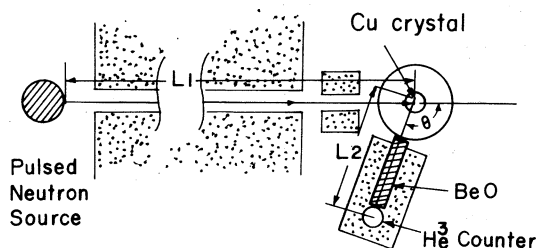
cm である。エネルギー分析用の飛行距離が第1の方法ではせいぜい 200 ~ 250 cm

であるのに対して、この場合 L_1 が 538 cm で非常に長く（従って時間分解能が上る）しかも全体の飛行距離 ($L_1 + L_2$) が 566 cm と短く出来るのが第2の方法の特徴である。（第1の方法の場合でも、全体の飛行距離は 5 m 程度取らなければならない。）

フィルターとしては Be, BeO などが考えられるが、BeOの方が cut-off エネルギー以上で、透過率が悪く、フィルターの厚さが短かく出来る点と、たまたま BeO ブロックがあった、などのことにより BeO を使用した。用いた BeO のブロックは、面積 $5 \text{ cm} \times 2.5 \text{ cm}$ で厚さ 17.5 cm である。このフィルターの中性子透過率を、パイロリティックグラファイトのブラッグ反射を用いて測定した。その結果を第2図に示す。フィルターの長さ 17.5 cm のときの透過率は、cut-off エネルギー (3.65 meV) のところで 0.40 であり、cut-off で急激に減少し 10 ~ 20 meV 以上では、ほぼ一定値 $1/10^5$ 程度になる。

検出効率を上げるためにはフィルターの長さを短く取る方が良い。しかし、そうすると S/N が悪くなるので、我々は一応 17.5 cm の長さに取った。

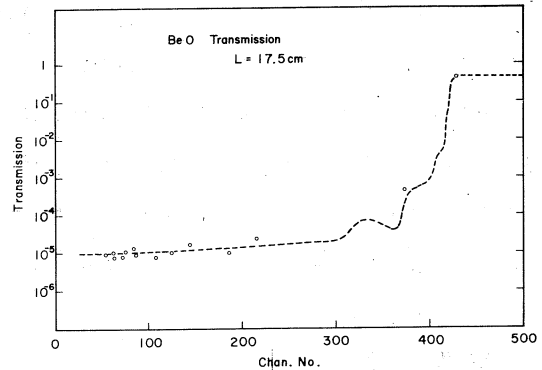
TOF 逆フィルター法の特徴は、装置全体が非常に小型になることであり、従って、シールド



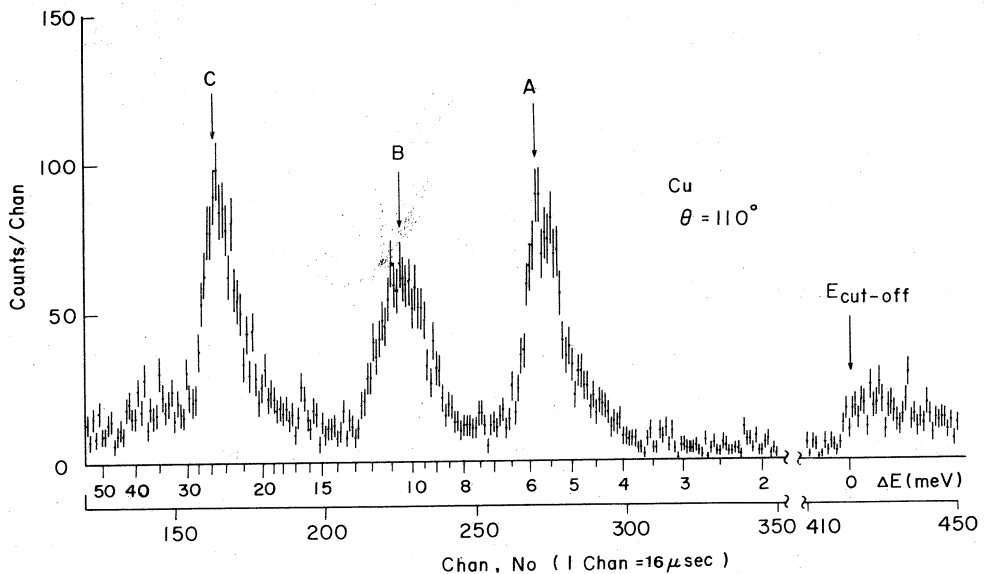
第1図 単結晶用 TOF 逆フィルター用
スペクトロメーターの概略図

もやりやすい。また、この実験に於ては、カウンター系は1ヶあるいは2ヶしか用いなかったが、多くのカウンター系を同時に配置することも可能である。

測定はまずフィルターを取り除いた状態で結晶の方位を定め、所定の結晶方位と、散乱角で、フィルターなしの測定を行い、次にフィルターをつめて測定するようにしている。フィルターなしの測定を行う理由は、単結晶試料によるブラック反射が、フィルターをつきぬけて、非弾性散乱のピークと間違える可能性があるからである。



第2図 BeO フィルターの中性子透過率特性の測定結果。パイロリテックグラファイトのブラック反射を用いてBeOブロックを置いた場合と、取り除いた場合の積分強度より求めた。また、BeOの長さは5.0 cmと10 cmで測定し、17.5 cmの長さに換算して図に示した。

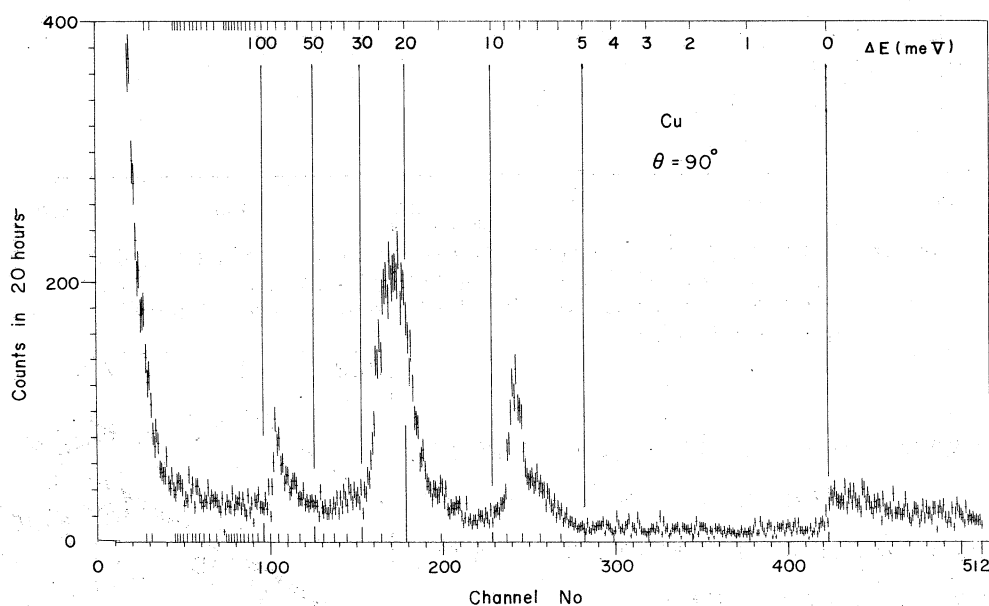


第3図 TOF 逆フィルター法により $\theta = 110^\circ$ で測定したCuのTOFパターン。横軸は、全飛行時間であり、エネルギー ΔE は、 $E_{\text{cut-off}}$ の立ち上り点を原点として定めた。A, B, Cの3ヶの山がみられた。

第3図はCuの(110)逆格子面に於ける(111)ゾーンのまわりのphononによる非弾性散乱のピークを示す。散乱角 $\theta = 110^\circ$ で測定したもので測定時間は20時間以内である。

A, B, C の3つのピークがみられ, また $E_{\text{cut-off}}$ 以下ののこぎり歯状の山は弾性散乱されたものである。A, C の山はすすどく立ち上っており B は, 立ち上りはあまりすすどくない。A, C については立ち上った位置でエネルギーを決め, A は 5.8 meV, C は 26.2 meV であり, B は山の頂点で 10.6 meV とエネルギーが定められる。いずれの山も10チャンネルくらいの半値巾を持っているのが特徴であるが, エネルギーは, 立ち上った位置で決められるので, ± 2 チャンネルくらいの精度で決まると思われる。

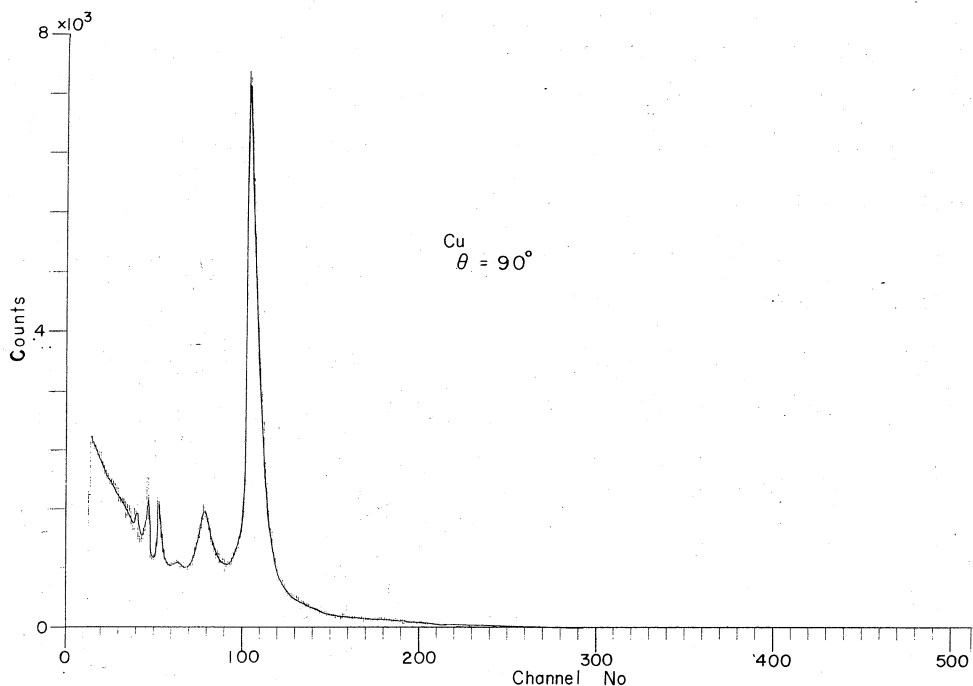
また A の山は 4.8 meV 程度の山との重なりであることが $\theta = 90^\circ$ の測定から明らかになっている。



第4図 $\theta = 90^\circ$ で測定した Cu の TOF パターン。結晶のセットは第3図の場合と同じで, 散乱角を 90° で測定した。

第4図に $\theta = 110^\circ$ と同じ結晶角度の条件で, 散乱角 $\theta = 90^\circ$ で測定した TOF パターンを示す。7.4 meV, 8.6 meV, 22 meV, 25 meV のピークが測定された。そして100チャンネル附近にみられる山は, 非弾性散乱の山ではなく, 第5図に示すように, フィルターを取り除いたときに現われる山と一致し, ブラック反射のすっぽぬけであることが容易にわかる。

第6図は (110) 逆格子空間での phonon の散乱条件の配置図を示す。 $\mathbf{k}_i$ は入射中性子線の波数ベクトルで, $\mathbf{k}_f$ は散乱された中性子線の波数ベクトルを示す。 θ は散乱角である。 $\mathbf{k}_i$ は白色中性子線であるため, 大きさが変わるが, $\mathbf{k}_f$ は cut-off エネルギーにより一定値をもつ。フィルター法では $\mathbf{k}_f$ は, $\mathbf{k}_f$ (cut-off) より小さい値のものであれば良いので $\mathbf{k}_f$ の

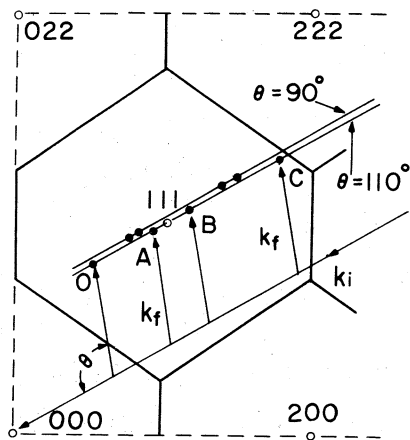


第5図 第4図の測定に於て、BeO フィルターを取り除いて、測定したもので100チャンネル当りに大きいブラッグ反射がみられるが、これは図4の100チャンネル当の小さい山に対応し、この山のブラッグ散乱のつきぬけであることがわかる。

値は大きいゆらぎをもつ。しかし、実質的に非弾性散乱のピークに寄与する部分は、 k_f (cut-off) のものが圧倒的に多いので、図3、4でも明らかなように、線巾はそんなに広くならないようである。

第6図で明らかなことは、カウンターをいくつかの角度に同時に配置することにより、だいたいある q ベクトルの方向の phonon の分散を測定することが出来ることである。しかし、ある対称軸の方向にそって測定するためには、ある程度の分散関係を予測しながら、結晶の角度と散乱角をセットして数多くの測定を行わなければならない。

第7図に、(111) ゾーンの原点から測った $|q|$ の値と中性子のエネルギーの軌跡の関係を示す。



第6図 $\theta = 110^\circ, 90^\circ$ で測定した場合の逆格子空間での図。 k_f の長さ一定で、 k_i の長さ変わるで、 k_i に平行な線上に沿ってスキャンする。 $\theta = 110^\circ$ と 90° で q の方向はほぼ同じであるがエネルギーが変わるので、散乱角を変えて測定することにより、ある q ベクトルの方向に近い方向についてデータを得ることができる。

点線は L-phonon と T-phonon の dispersion で、実線は、それぞれの散乱角 θ での中性子のエネルギーの軌跡であり、 $\circ$ 印は phonon のピークが見出された点に対応する。この軌跡は、低角度ほどエネルギーが上にずれてゆくことであり、第1の方法の場合には、散乱角が変ることにより $|\mathbf{q}|$ の大きい方向にずれてゆく。この点が第1の方法と第2の方法では異っている。 $\mathbf{k}_f$ のほけに対する軌跡への効果は、この図の実線を上にばかりずらす効果となつてあらわれ、従つて、図3のBの山は、点線と実線が浅い角度で交る場合におこり、第7図で見れば、 $\theta = 90^\circ$ の 22 meV の点と、 $\theta = 110^\circ$ の 10.6 meV の点は、立ち上りのにぶい山を与えることを示している。しかし、線巾に関するものは、まださらに複雑な要因を含んでいるようであり、今後十分に検討しなければならない問題である。

第8図は Fe (3.4 wt %Si) の単結晶で、(110) 軸を立て、(200) ゾーンのまわりを通るようにセットして、測定した TOF スペクトルである。その逆格子空間での様子を第9図に示す。第8図では非常にシャープな4本のピークが観測された。低エネルギーの2本のピークは T-、及び L-mode の phonon によるものであり、高いエネルギー側の2本のピークは spin wave によるものである。第3図及び第4図のスペクトルに比較して、線巾が狭く、分解能が非常に良いのが目立つ。半値巾は5~8チャンネルくらいであるが、これは多分、 $\theta = 130^\circ$ と大きい散乱角で測定したことに原因がありそうである。しかし、フィルターの特性から考えて、高角度散乱が、なぜ分解能を良くしているのか、現在のところよくわからない。高角度で測定した場合のもう一つの特徴は、低散乱角の場合と比較して、散乱強度が増すことである。これは cut-off エネルギーが 3.65 meV と低いために、試料による吸収が大きく、低角度散乱の透過型的な測定より、背面反射的な高角度散乱の方が大きい試料を使用しているため

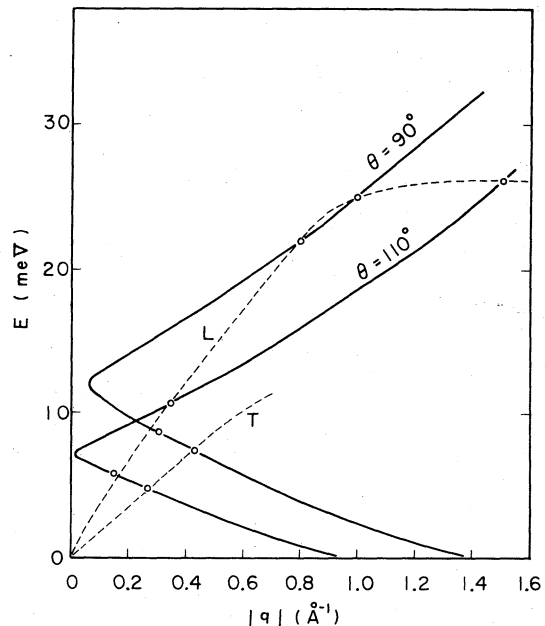
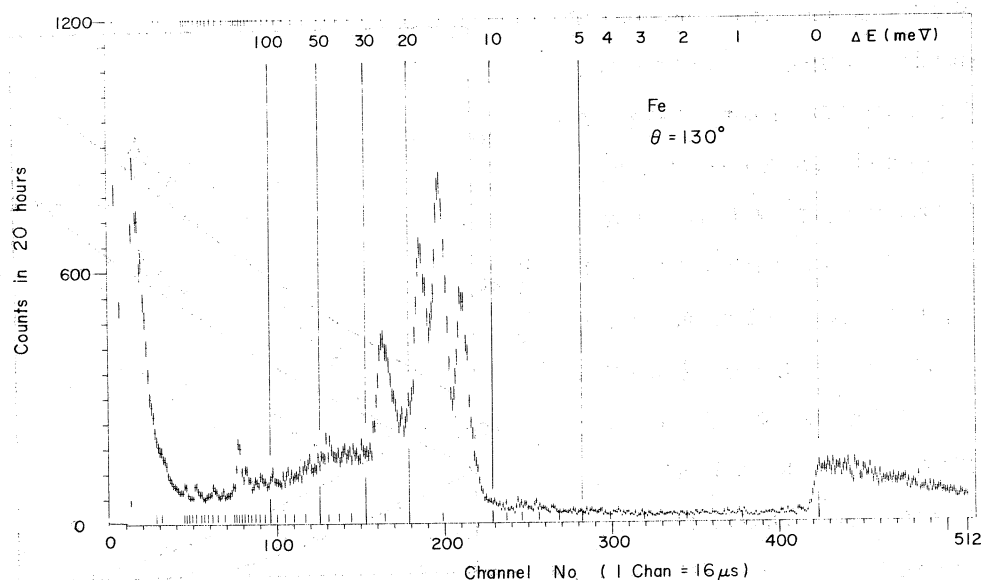


図7 (111) ゾーンの原点より測った $|\mathbf{q}|$ と中性子のエネルギーの関係の図。実線は中性子のエネルギーと $|\mathbf{q}|$ の関係、点線は、phonon の dispersion を示し、 $\circ$ 印は、測定点を示す。散乱角を低角にすることによりエネルギー曲線は下にずれてくる。



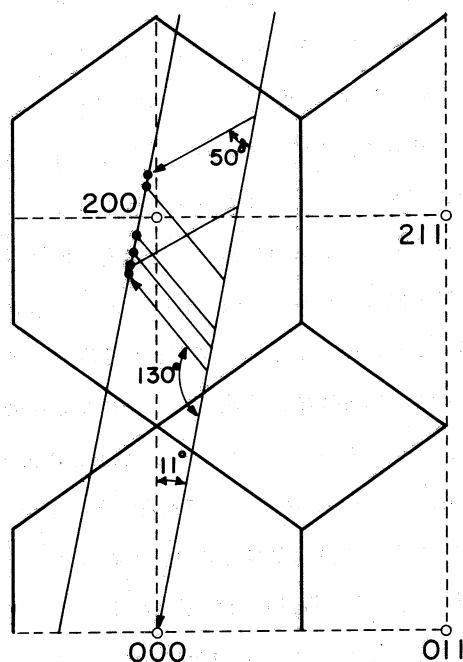
第8図 Fe (3.4 wt%Si) の TOF スペクトル。非常にシャープな4本の線が測定された。

に、吸収の効果が小さく、従って、シグナルの強度が上ることによるのではないと思われる。

なお、この実験に用いた試料の大きさは、Cu は、 $1.7\text{ cm} \times 1.7\text{ cm} \times 8\text{ cm}$ であり、Fe (Si) は $2.4\text{ cm} \phi \times 7\text{ cm}$ のものである。また測定時間は、すべて20時間以内である。

これまで測定した TOF スペクトルに共通していえることは、この方法では、低いエネルギーのピークも高いエネルギーのピークも、強度がだいたい同じ程度になっていることである。第1の方法を使用する場合、一般に高いエネルギーのピークの強度はいちじるしく弱くなるがこの方法では、高いエネルギーでもピーク強度はあまり落ちない。これは、入射中性子ビーム

として、パルスの白色中性子ビームを使用しており、そのエネルギースペクトルは、100 meV 附近に山を持つマックスウエル分布を作っているからであると考えられる。特に電子ライナッ



第9図 第8図の $\theta = 130^\circ$ と 50° の逆格子空間での図。

クのエネルギースペクトルは、高いエネルギー側で有利であり、従って、この方法は、低いエネルギーばかりでなく、高いエネルギーの測定に有効な方法ではないかと考えられる。

§ 3. 議 論

この実験に於て、単結晶試料を用いる干渉性中性子非弾性散乱の測定が、一応可能であることが証明され、また、実際の物性研究への応用が可能になったことが示されたと考えられる。特に良い点は、低いエネルギーから高いエネルギーまで、まんべんなく測定できることと、カウンタを広い散乱角に沿って配列することにより、ある限られた $\mathbf{q}$ ベクトルの方向にそっての分散関係が測定できそうであることであるが、しかし、三軸分光器のように、ある対称軸にそった $\mathbf{q}$ ベクトルの方向を自由に測定できるという所まではゆかなくって、対称軸に近いデータを数多く取って、それらの外捜として、ある軸方向の分散関係をきめるという方法を取らなければならないであろう。次にこの方法の有利な点として、測定装置が簡単で、場所を取らないことである。第1の方法を取った場合には、必ずエネルギー分析用の長い飛行距離を取らなければならないので、スペクトロメーターが非常に大きくなってしまう。

さらに、この方法では、白色ビームをそのまま使用するが、中性子源から試料までの飛行距離でエネルギー分析を行うので、高中性子束の中性子源で、シールドの壁を厚くしなければならないような場合に大変有利である。現在の東北大ライナックの中性子源は、中性子強度もそれほど強くないので、壁の厚さもそれほど厚くないが、厚ければ厚いほど、 L_1 が長くなり、この方法ではエネルギー分解能を上げる方向に役立てることができる。

この方法の欠点としては、3.65 meV 以下の低いエネルギーに散乱された中性子を検出しているので、吸収の大きい物質での実験が不可能であることがあげられる。また、ピークの形がのこぎり歯状になるので、ピークの形を解析する場合に、簡単な関数でおき代えることができない欠点がある。さらに、 $\mathbf{k}_f$ の大きさが小さいので、希望する逆格子空間内の点を測定できない場合が起る可能性がある。もう一つの欠点は、バックグラウンドが平らでないことである。また、現在は中性子源の強度があまり強くないので、通常行われている非弾性散乱に用いられている試料の2倍以上大きい試料を用いている。しかし、現在でも、良いデーターが得られているので、中性子源の強いものが出来れば、この方法でも、小さい試料を用いて、分解能も現在の数倍に上げた実験が行えると考えられる。

中性子非弾性散乱測定法として三軸分光器は単結晶研究用として最もすぐれている方法であり、数多くのスペクトロメーターが研究用に使われており、技術的にはほぼ完成されたと考え

てもよく、それ以上改良するのは困難であろう。第1の方法も、これまで良く用いられて、ほぼ完成されたと考えてよいであろう。しかし、inverted method の場合については、これまで、ほとんど試みられておらず今後さらに色々な点で改良される可能性があり三軸分光器及び第1の方法のスペクトロメーターでは補いきれない、新しい応用分野が開かれるかも知れない。

最後に、この研究に対してご協力していただいた核理研の方々、及び金研の方々に感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) A. Bajorek et al.: *Proc. Symposium on Inelastic Scattering of Neutron* (IAEA, Vienna 1965) Vol II, p 519.
- 2) D. H. Day and R. N. Sinclair: *J. Chem. Phys.* **55** (1971) 2807.
- 3) 富吉昇一, 渡辺浩, 渡辺昇, 新村信雄: 核理研研究報告 **6** (1973) 116.
- 4) S. Tomiyoshi: *J. Phys. Soc. Japan* **27** (1969) 1694.

II-8 (Cu Ni)_{3-x}Al_{1+x}合金の格子緩和型変態 の中性子非弾性散乱による研究(Ⅲ)

工学部金属材料

梶谷 剛・平野 賢一

本研究は表題合金のマルテンサイト変態の前駆現象をフォノンのソフト化の可能性という側面から研究するために行っているものである。すでに第1報⁷⁾および第2報⁸⁾で報告した(110)逆格子面での室温における非弾性散乱実験のデータと、その後引き続き実施した実験結果をフーリエ分解法を用いて精密に解析した。その結果111逆格子点(超格子反射)近傍のQuasi-Elastic-Peakの存在はほぼ確定的となり、また第1ブリルアン帯域の境界近傍に現れたDiffuse Peakは離散レベルの重畳として分解できた。比熱測定および粉末X線回折実験により本合金の室温安定相は同じDO₃構造でもHeusler型に属していること、および応力誘起あるいは低温(-35℃以下)冷却によって生じるマルテンサイト相(Ordered Orthorhombic)と結晶学的に相似した γ 相が焼入れ試料の時効によって析出する以前に別種の間析出物が形成されることがわかった。この中間析出物が安定化する温度範囲は約120℃から170℃である。

§ 1. 緒 言

本実験に用いた(Cu Ni)_{3-x}Al_{1+x}($x=0.12$)合金は900℃から水中に焼入れることにより、形状記憶効果のある β_1 相(DO₃構造)とすることができる。この相の結晶学的研究は大塚と清水¹⁻⁴⁾によって、主に透過型電顕を用いて行われている。それによると、本合金の焼入れ相 β_1 の格子定数は $5.836 \pm 0.008 \text{ \AA}$ であり、Fe₃Al型規則構造を有する。¹¹⁾ -35℃以下に冷却するか、応力を加えることにより出現するマルテンサイト相 γ' はOrdered Orthorhombicでありorderを無視するとh.c.p.構造である。この構造はCu₃Ti合金の γ' 相¹²⁾と同型である。格子定数は次の通りである。

$$\begin{aligned} a &= 4.382 \pm 0.007 \text{ \AA} \\ b &= 5.356 \pm 0.011 \text{ \AA} \\ c &= 4.222 \pm 0.004 \text{ \AA} \end{aligned}$$

本合金からNi原子を取り出した組成をもつCu₃Al合金は、高温焼入れ相 β_1' はABCB CACABの積層周期をもつ9R構造であり、応力を加えることにより,f.c.c.ないしh.c.p.

構造あるいはその中間の長周期稠密構造となることが梶原⁵⁾と Tas.ら⁶⁾によって報告されている。

応力誘起マルテンサイト変態を起こす合金は第1報⁷⁾に表示した通りであるが、すべての場合、規則相が母相となっている。規則化した合金結晶は均一固溶体結晶に比較して化合物的性質が強く諸物性（磁化率、弾性率、ホール係数、等）の結晶方位依存性が強くなる。本合金においても、第2報⁸⁾に示したように、規則度の変化に伴ってマルテンサイト変態の開始および終了温度が変化しており、規則度と結晶構造の安定性が密接な関係を持っている。

本報告では、粉末試料のX線回折と比熱測定の実験結果をも含めて、前報で見出した中性子の擬弾性的な散乱の存在する原因について考察する。

§ 2. 実験方法および実験結果の解析

2.1 中性子回折

今回用いた中性子非弾性散乱実験装置は渡辺および都築⁹⁾らが製作した固定 2 θ 単色中性子分光器である。非弾性散乱の実験は(1 1 0) 結晶面について行い、主に1 1 1 逆格子点を中心とする第1ブリルアン帯域についてフォノンのエネルギー固有値を求めた。今回の実験は前回のデータを補完する形で行った。試料は900℃から水焼入れしたものである。

データの解析には東北大学大型計算機センターの NEAC 2200 - 500, 700 システムを用いた。計算の手順は次の通りである。

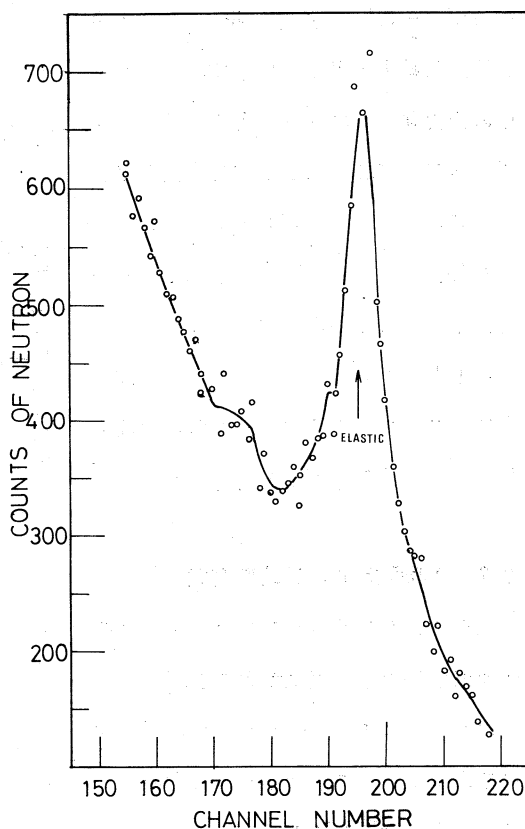
1. カウント対チャンネル曲線を滑らかにするため、2回スムージングを行なう。
2. カウント対チャンネル関係に2次関数を仮定し、7チャンネル毎に最小自乗法をくり返す。ただし、実際にデータとして用いるのは中央の3チャンネル分だけで他の部分は前回と今回の近似曲線にもちいる。(90%信頼区間の計算)
3. Atkin 法を用い、横軸をチャンネル番号からエネルギー値に変えた曲線を引く。その際バックグラウンドを引き去る。
4. カウント値に $\cos kx$ を掛け Simpson 法で数値積分する。
5. 分解能関数の近似式であるガウス関数とローレンツ関数をフーリエ変換した関数で積分値対波数関数を割る。
6. さらにこれを $\cos kx$ を掛けて数値積分する。

第1図はブリルアン帯域の境界をスキャンした場合の中性子の TOF スペクトルである。実線は最小自乗法で求めたものである。第2図は第1図の横軸をエネルギー値に変換したものであ

り、各々の縦棒は90%信頼区間を示している。第3図は単一の非弾性散乱ピークに対応したガウス関数、ローレンツ関数の存在確率を縦軸に取り、横軸にエネルギー値を取ったものである。

第3図において示した曲線の計算には弾性散乱ピークを除外してあるため、弾性散乱に対応する巨大ピークは表われていない。

図から明らかなように分解能関数がローレンツ関数の場合の方がS/N比の良い結果が出ている。その原因はローレンツ関数の方がスズが広く、カウント数の低い曲線部分のバラつきを無視できるからである。これらの計算は横軸を0.1~0.3 meVに分割して数値計算したが、これ以上細かく分割して数値計算しても、元のカウント-エネルギー曲線の形はそれ程良くないので意味がなかった。見掛けのエネルギー固有値の分解能は約2 meVであり、1つのスペクトル曲線に関する演算時間は1分以内である。入射中性子は14.5 meVである。



第1図 $(\text{CuNi})_{3-x}\text{Al}_{1+x}$ ($x=0.12$)合金の(110)面上の $\langle 11\bar{2} \rangle$ 方向における111逆格子点周囲の単色中性子(14.5 meV)回折線のT.O.F.スペクトル。実線は最小自乗法で求めたもの。

第4図は111逆格子点近傍をスキャンした場合の、ローレンツ関数を仮定したフーリエ分解後の存在確率-エネルギー曲線を示したものである。

分解能関数の半値巾に対応する定数(C)を若干変化してもエネルギー固有値がほとんど変化しないものと大きく変化するもの(Energy gain側の18.8→19.6 meVのピーク)がある。

この原因は、本来この範囲の曲線の形が仮定したような分解能関数の重畳としては分解できないことによると考えられる。分解能関数にガウス関数を仮定した場合も同様である。

従って、この部分のフォノンのエネルギー準位は離散的でなく、連続的な値を取っていると考えられる。

以上の結果に沿って、前報で示した逆格子空間内のフォノンのエネルギー分布図中に Qusai-

Elastic-Peak と考えた部分について再計算した結果を第5図に示す。

その後実験した結果も加えてある。第1ブリルアン帯域の $\langle 110 \rangle$ 方位の境界(X点)のフォノンのエネルギーである5.3 meVという値は星埜ら¹⁰⁾が測定した値と良く一致している。

$\langle 112 \rangle$ 方向には $\langle 110 \rangle$ 方向と同様にエネルギー固有値の大変低い分枝が存在していることが示されている。

2.2 X線回折および比熱測定

本合金の熱弾性マルテンサイト変態の変態温度に対する規則度および析出物介在の影響は大きく、これらについての知見を得ることは本合金の格子緩和現象を解明する上で重要である。

2.2.1 X線回折

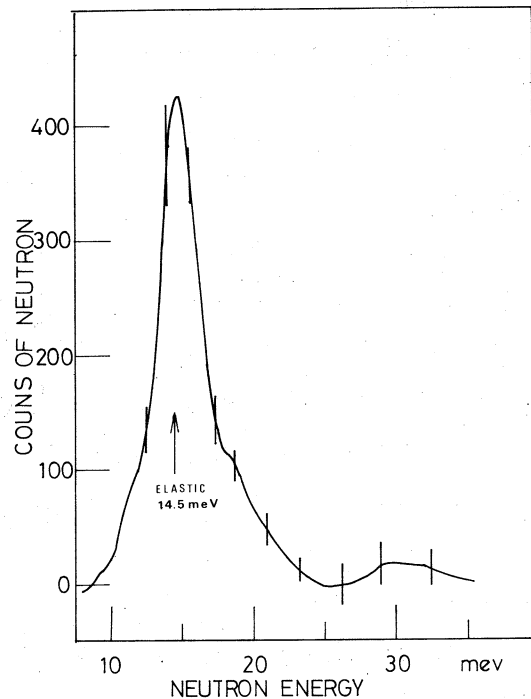
中性子線回折で示された111逆格子点近傍の異常性について、粉末試料によるX線回折実験から研究を進めた。試料はヤスリがけした粉末を篩い分けたものを用い、900℃にて1時間焼鈍した後氷水中に焼入れ、65℃から230℃の間で各14時間時効した。

X線回折実験には島津製自記X線回折装置(VD-1形)を用い、スキャン速度 $1/8 \sim 1/16$ deg./min. で連続スキャンをした。用いたX線はNiフィルターで単色化したCu K_{α} 線である。X線回折実験は同一試料について2回ないし3回実施し、データのバラつきを減少させた。X線回折データからピーク角度、半値巾および積分強度を測定した。

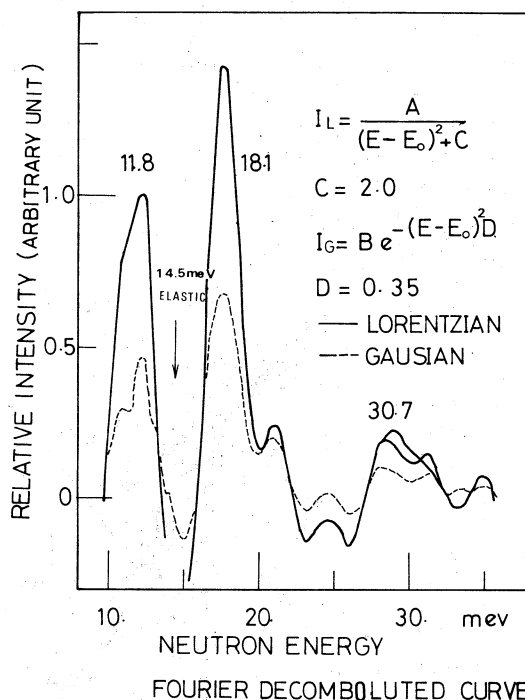
1) 積分強度

まず、通常用いられているX線弾性散乱強度についての理論式を用い、第6図に示す3種の原子配列のモデルについて長範囲規則度の関数として相対積分強度を求め、第1表に示すような結果を得た。

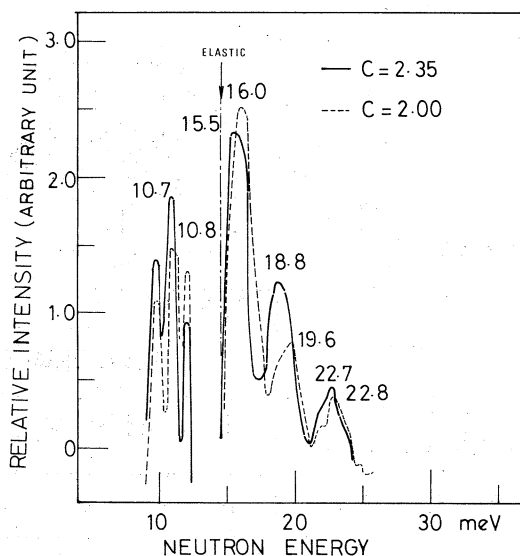
各数値は220反射の積分強度を基準にした時の値であり、表中の hkl 逆格子点は全て規



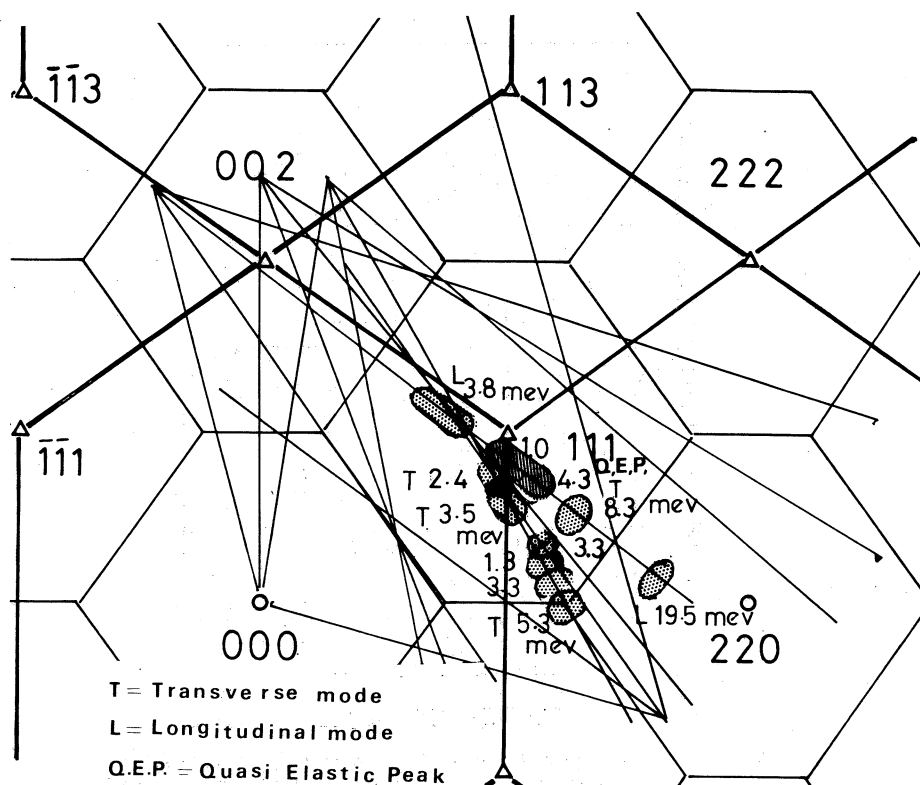
第2図 前図の曲線から適当なベースラインを引き去り、横軸をエネルギー値に換算したもの。縦棒は90%信頼区間を示す。



第3図 フーリエ分解法によって得られた曲線。分解能関数はガウス関数とローレンツ関数の両方を用いた。フーリエ積分には分解能関数の対称性から $\cos kx$ のみを用いた。 E はエネルギー、 E_0 は中心のエネルギー、 A, B, C, D は定数である。



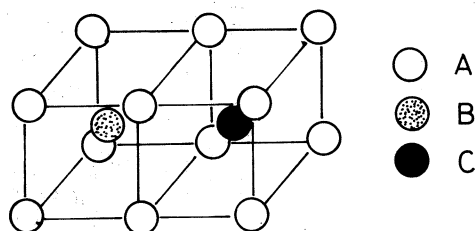
第4図 $(\text{CuNi})_{3+x}\text{Al}_{1-x}$ ($x=0.12$)合金の中性子非弾性散乱実験の結果(110)面上の $\langle 111 \rangle$ 方向における111点近傍の回折線のT.O.F.スペクトルをフーリエ分解した。 C は第3図の図中に示したものと同義である。 C に大きく影響されるピークがあることがわかる。



第5図 擬弾性散乱の存在が予想された中性子散乱スペクトルを再計算した結果、X点に近い所は離散レベルであるが $\langle 112 \rangle$ 方向に低いエネルギーのフォノンがある。 111 点に近い所では連続エネルギー準位のフォノンが存在する。

則格子による超格子反射である。原子配列モデルの差による積分強度の変化は 111 反射強度と 311 反射強度が同一傾向、他の反射が同一傾向にある。モデルⅠでは 111 反射強度と 200 反射強度を比べると強度比が約2:1なのに対しモデルⅡでは約10:8、モデルⅢでは約10:8.5である。このように強度比が1.0に近づく傾向は 111 反射と 311 反射強度の和と 200 反射と 420 反射強度の和同士で比較しても見られる。

第7図は本研究の結果であるが、明らかに時効温度の上昇と共にモデルⅠ(Fe_3Al)



MODEL	A	B	C
I	$68\text{Cu}4\text{Ni}3\text{Al}$	$68\text{Cu}4\text{Ni}3\text{Al}$	Al
II	$68\text{Cu}4\text{Ni}$	$20.7\text{Cu}1.2\text{Ni}3\text{Al}$	Al
III	Cu	$18\text{Cu}4\text{Ni}3\text{Al}$	Al

第6図 本合金の DO_3 構造として考えられる3種の原子配列モデル。Ⅰは Fe_3Al 構造ⅡおよびⅢはHeusler構造である。Ⅲでは原子半径の大きいAl原子が体心位置のみ位置している。

				RELATIVE INTENSITY, I		
<i>h</i>	<i>k</i>	<i>l</i>	<i>S</i>	Model I	Model II	Model III
1	1	1	0.5 1.0	2.60 7.98	1.68 6.75	1.65 6.62
2	0	0	0.5 1.0	1.01 4.04	1.37 5.49	1.44 5.63
3	1	1	0.5 1.0	0.78 3.10	0.65 2.61	0.64 2.57
2	2	2	0.5 1.0	0.14 0.88	0.30 1.20	0.31 1.22
4	2	0	0.5 1.0	0.25 1.05	0.36 1.43	0.37 1.47

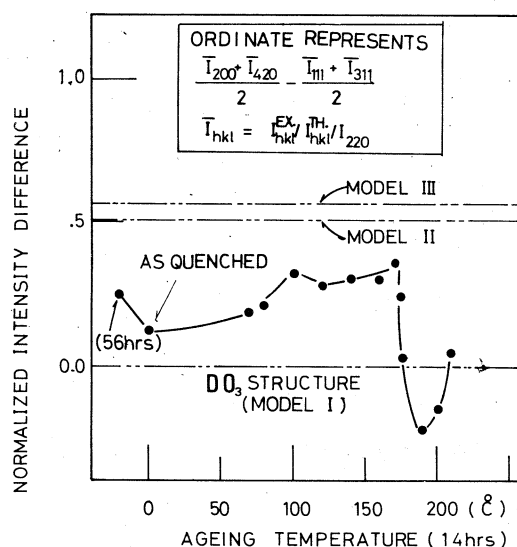
$h\ k\ l$ MILLER INDEX
 S DEGREE OF LONG RANGE ORDER
 I RELATIVE INTENSITY (I_{200} normalized)
 I, II, III MODEL OF ATOMIC ARRANGEMENT (see Fig. 6)

第1表 長範囲規則度と各々の原子配列モデルに対する相対X線積分強度の関係。 S は長範囲規則度, I, II および III はモデルの番号である(第6図参照)表中の値は220反射強度を100とした時の値である。

構造の DO_3 結晶構造)からモデルIIおよびモデルIIIで示したHeusler構造に変化していくことがわかる。図中の縦軸は実験から得られた相対強度を第1表のモデルIの相対強度値で割り、上述の2組(I_{111} と I_{311} の組, I_{200} と I_{420} の組)の値の平均値の差を取ったものを示している。この値はモデルIを基本構造と仮定した時の長範囲規則度の測定であり、完全に Fe_3Al 構造の時に零になり、図中横線で示した値の時、完全にモデルII、あるいはモデルIIIの構造になる。

2) 半値巾

積分強度測定を行なったX線回折ピークの半値巾を測定した結果を第8図に示す。焼入れ試料の111ピークの半値巾が他の2つのピークの半値巾よりかなり



第7図 $(CuNi)_{3-x}Al_{1+x}$ 合金を焼入れ後14時間時効した場合の相対X線積分強度比。縦軸は111と311反射強度から求めたモデルIに関する長範囲規則度の自乗と200と420反射強度から求めたモデルIに関する長範囲規則度の自乗の差である。横軸は時効温度。図中の I_{hkl}^{EX} は実験値, I_{hkl}^{TH} はモデルIによる相対強度の計算値($S=1$ とする), I_{200} は実験値の220反射強度である。

大きいことがわかる。焼入れ後80℃にて14時間時効した試料では、半値巾が全体的に上昇しているが150℃時効試料まで半値巾は大きくならない。しかし、200℃220および422ピークの分裂が始まる温度では、半値巾は急激に増加し、200℃以上では異った安定状態になることがわかった。

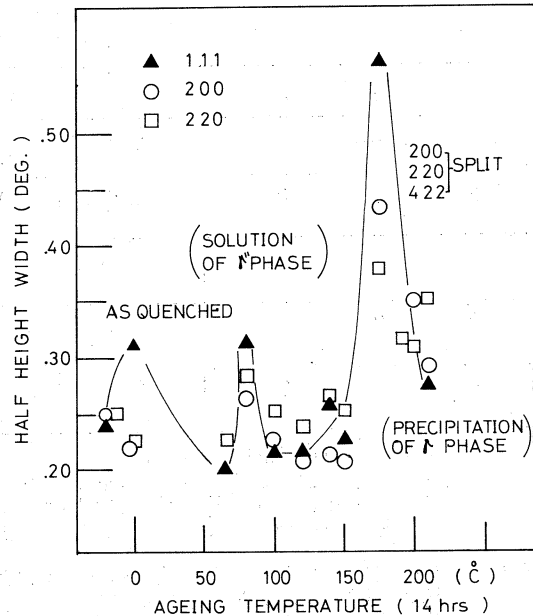
3) 格子定数

第9図は通常の外挿関数 (Nelson - Riley 外挿関数) を用いた最小自乗法による外挿法によって求めた格子定数の値である。大塚²⁾らによる結果とは一致しているが、本研究ではX線を用いたのでデータのバラつきは若干小さく±0.0005Å程度である。焼入れ試料の格子定数は5.840Åと大きい。低温時効によって、一旦減少し、時効温度の上昇と共に再度増加する。第7図に示した積分強度：時効温度曲線の急に落ち込む温度(175℃)で格子は最大限膨張し、後に急激に収縮することがわかった。

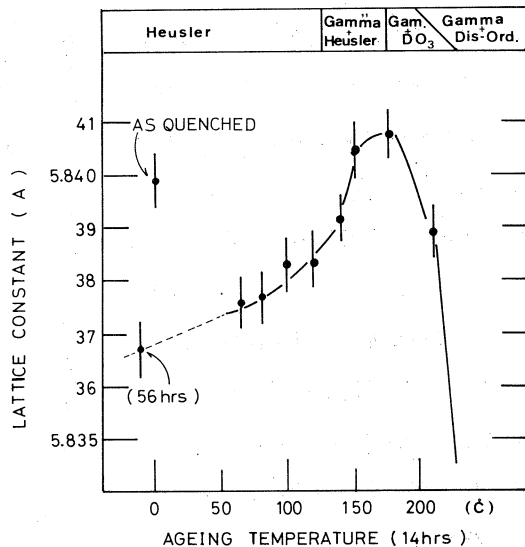
4) X線回折実験の総括

格子定数が急激に上昇する以前に、確かにFe₃Al構造からHeusler構造に変化してゆくことが確かめられたが、-5℃にて56時間の時効をした試料についての積分強度と格子定数のデータからこのことが裏付けられた。

しかし、半値巾の測定結果から、100



第8図 (CuNi)_{3-x}Al_{1+x}合金のX線回折ピークの半値巾と時効温度の関係。175℃試料のピークは分裂したものとしえないものがある。



第9図 (CuNi)_{3-x}Al_{1+x}合金を焼入れ後各温度で時効した場合の格子定数。焼入れ直後の試料は膨張しているが温度上昇に従い、一時格子定数が下がり、再度上昇する。室温以下の時効によっても格子は収縮することが示された。測定は室温で行った。

℃近傍に規則化と余り関係のない析出反応が起こること、また 175℃以上 200℃以下では規則度の変化を伴う析出（拡散を伴う反応であるかどうかは不明）が起き、200、220 および 422 の各回折ピークが分裂することが示されている。これは母相と格子対応のある析出物が形成されるため、母相格子が応力を受けるためであると考えられる。

2.2.2 比熱測定

この実験は現在進行中であり、未完であるが現在までに得られている結果を第10図に示す。

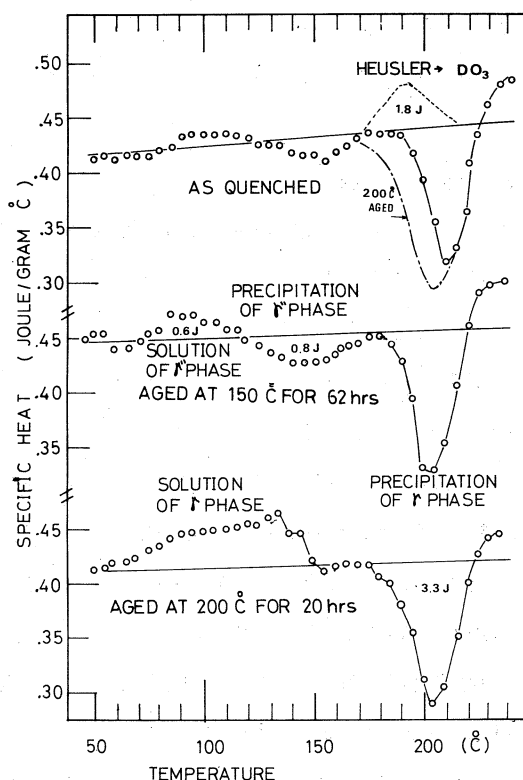
測定装置はアグネ社製長崎－高木式断熱型比熱測定装置を用いた。

焼入れ試料には90℃から120℃に小さい吸熱ピーク、引き続いて170℃まで約0.8 J/gr.の発熱、続く190℃から220℃に約2 J/gr.の発熱がある。一方200℃20時間時効試料には50℃から150℃まで約3 J/gr.の吸熱があり、175℃から220℃までの発熱と対応している。

X線回折実験から、焼入れ試料はほぼ均一であることがわかったが90℃から120℃に小さい吸熱ピークがあることから、何らかの析出物（ r'' 相と考える）が存在しているものと思われる。120℃～170℃の発熱の箇所ですれがさらに析出し、190℃から220℃の発熱で r 相が析出するものと考えられる。

200℃にて時効した試料には Fe_3Al 構造の母相と、それに格子対応のある析出物が存在する。50℃から150℃に現れる吸

熱現象は200℃で2相共存していた r 相と Fe_3Al 構造の結晶のうち r 相が不安定化し、 Fe_3Al 構造への単相化が起こる過程で見られるものと考えられる。焼入れ試料、および150℃時効試料に見られる小さい、90℃から170℃までの吸熱と発熱はX線回折線の半値巾には影響を余り与えないことから、母相に格子対応のない準安定中間相の析出物であると考え、 r'' 相による



第10図 $(\text{Cu Ni})_{3-x}\text{Al}_{1+x}$ 合金の比熱－温度曲線。測定のための温度上昇速度は約 0.5℃/分。母相が Heusler 構造である場合には 120℃～190℃に準安定相が析出する。準安定相を便宜的に r'' 相と名付けた。

ものと考えた。X線回折実験の半値巾測定結果によれば、80℃にて時効した試料の半値巾が上昇する。これは r'' 相の溶解と思われる比熱のピークが出現することに対応している。200℃にて時効処理した試料と焼入れ試料とを比較すると、 r 相の析出について見ると、析出開始温度と発熱量およびピークの形が異っている。この原因は r 相が析出する母相が焼入れ試料ではHeusler型構造なのに対し、200℃時効試料では Fe_3Al 型であることによる。従って r 相の析出に要するエンタルピー変化の差が Fe_3Al 構造とHeusler構造のエンタルピーの差であると考えられる。

この量は約 1.8 J/g.r. (23 cal/mol)である。

§ 3. 結 論

焼入れした本合金試料の中性子非弾性散乱実験の結果をフーリエ分解法によって精密に解析した所、次の事が明らかになった。

1. 111 逆格子点近傍にはフォノンのエネルギー固有値が離散的にならない部分がある。
2. 第1ブリルアン帯域のX点に近い所のフォノンのうち $\langle 112 \rangle$ 方向には低エネルギーのもの(分枝?)がある。

焼入れ後-5℃から230℃まで各14時間から56時間まで時効した試料についてのX線回折実験と比熱測定から次のような知見が得られた。

1. 焼入れによって β_1 相単相になった試料の安定結晶構造は DO_3 構造であるが、Heusler構造が Fe_3Al 構造より安定である。
2. 80℃から170℃までは準安定析出相(r'' 相と考えられる)の析出過程がみられるが、母相はHeusler構造のみである。
3. r 相は175℃以上で安定析出相として形成されるが、それ以下の温度では不安定化する。この相の析出に伴い422回折ピークが分裂したり、試料表面にミッドリブ状のレリーフが出現するので、この相は (211) 面を双晶面とする r' 相に似た構造を有するものと考えられる。
4. 母相がHeusler構造である場合には120℃から180℃には何らかの析出過程があり、それに伴うエンタルピー変化は約 0.8 J/g.r. である。
5. 焼入れ試料の 111 X線回折ピークの半値巾は他の回折ピークに比較して広がっている。

以上のようにして、中性子非弾性散乱実験で示された 111 逆格子点の異常性は逆格子の若干の拡張と、格子の結合力の異常性との双方に原因がある事が明らかになった。

今後、中性子回折実験も測定温度を変化させて実施する予定である。

参 考 文 献

- 1) K.Otsuka and K.Shimizu : Phil. Mag. **24** (1971) 481.
- 2) K.Otsuka : Japan J. Appl. Phys. **5** (1971) 571.
- 3) K.Otsuka and K. Shimizu : Trans. JIM **15** (1974) 103.
- 4) K.Otsuka and K.Shimizu : Trans. JIM **15** (1974) 109.
- 5) S. Kajiware : J. Phys. Soc. Japan **27** (1969) 712.
- 6) H. Tas, L. Delaey and A. Deruyttere : Scripta Met. **5** (1971) 1117.
- 7) 梶谷剛, 平野賢一 : 核理研研究報告 **7** (1974) 342.
- 8) 梶谷剛, 平野賢一 : 核理研研究報告 **8** (1975) 129.
- 9) N. Watanabe, Y. Ishikawa and R. Tsuzuki : Nucl. Instr. **120** (1974) 293.
- 10) S. Hoshino, G. Shirane, M. Suezawa and T. Kajitani : Japan J. Appl. Phys. **14** (1975) 1233.
- 11) R. W. Cahn and J. A. Coll : Acta Met. **9** (1961) 138.
- 12) M. J. Duggin and W. A. Rachinger : Acta Met. **12** (1964) 529.

II-9 V_2O_3, NiS_2 の中性子常磁性散乱理学部物理 神木正史・石川義和
核理研* 渡辺 昇*

§ 1. 序

これまで中性子常磁性散乱が測定された物質の多くは、スピンの5/2程度のハイゼンベルグ系であったが、 d 電子が局在一非局在の境界附近にあるとして興味をもたれている物質は、おおむね $S < 1$ 程度と考えられており実験的にはまだほとんどとりくまれていない。これは系がたとえハイゼンベルグ系であっても、常磁性散乱の強度が $S(S+1)$ に比例する為 S が小さくなると急激に弱くなること、及び系の交換相互作用がある一定値以下になると分解能的に非弾性散乱の測定が困難になるからである。

本実験では、核理研の中性子源によって観測可能な下限を調べることも含めて、特に興味ある物質である V_2O_3 , NiS_2 について常磁性散乱の測定を行った。

V_2O_3 は低温では反強磁性絶縁体であるが、約 $150^\circ K$ で一次的に結晶構造の変化を伴って常磁性金属となる。さらに約 $500^\circ K$ 近傍で電気抵抗、磁化等にブロードな異常があらわれ、それより高い温度では再び絶縁体的になる。これは $(V_{1-x}Cr_x)_2O_3$ 系において見出された一次的な金属-絶縁体転移の延長線上にあり、これらの高温における転移は結晶構造の転移を伴っていないことからモット転移ではないかと言われている。¹⁾ 従って、常温における磁化率が $S \sim 1$ のキューリー・ワイス則にはほぼ従っていることも含めて、 V_2O_3 がモット転移の境界線に非常に近い物質として興味をもたれている。

NiS_2 は約 $40^\circ K$ にネール点をもち高温における磁化率がほぼ $S \sim 1$ のキューリー・ワイス則に従う反強磁性絶縁体であるが、わずか数% CoS_2 あるいは CuS_2 を固溶させるだけで金属的になること、及び約 $30 Kb$ の圧力を加えることによって金属的になること等から、やはりモット転移の境界線に非常に近い物質として興味をもたれている。

上に述べたように、これら二つの物質は常温において $S \simeq 1$ のキューリー・ワイス則にはほぼ従い、しかもモット転移の境界線に近いと考えられること (V_2O_3 はその金属側、 NiS_2 はその絶縁体側) から、そのスピン動特性がどのようなものであるかが、我々の興味の対象である。これを調べる際に、 $S = 1$ のハイゼンベルグ系の動特性との対比を行うことが必要である。我々はそのために $NiTiO_3$ についても常磁性散乱の測定を行った。この物質は $T_N = 20^\circ K$ の

反強磁性絶縁体であり、 $S = 1$ のハイゼンベルグ系のよい例と考えられるからである。

§ 2. ハイゼンベルグスピン系による中性子常磁性散乱

キューリー点あるいはネール点より十分高温における散乱中性子の強度は、ハイゼンベルグスピン系の常磁性散乱に関しては次の式で与えられる。

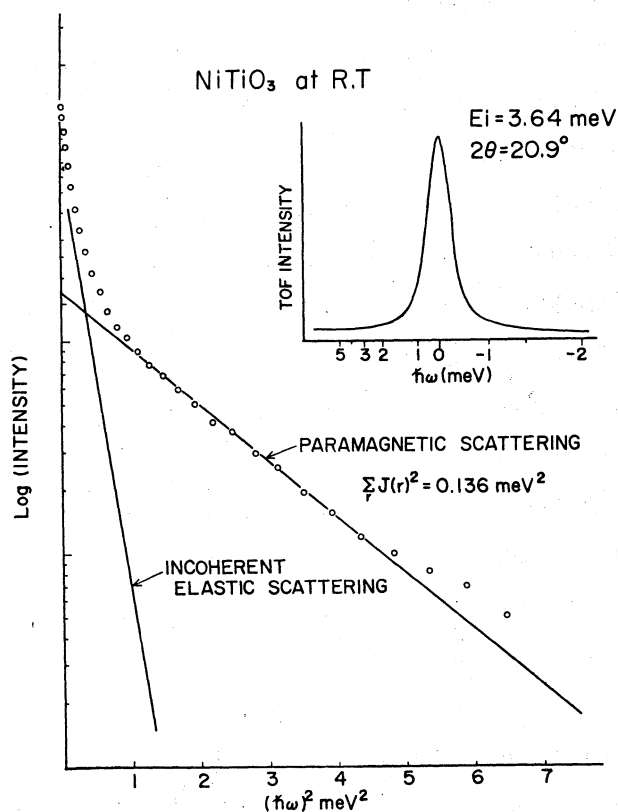
$$I \propto S(S+1) |f(\kappa)|^2 \exp[-\omega^2 / 2 \langle \omega_0^2 \rangle] \quad (1)$$

ここに S は磁性イオンのスピン量子数、 κ は散乱ベクトル、 $f(\kappa)$ はイオンの磁氣的形状因子、 ω は中性子のエネルギー変化分、 $\langle \omega_0^2 \rangle$ はイオンのスピン角運動量の2乗平均で交換相互作用パラメータ J_l と、 $\langle \omega_0^2 \rangle = \frac{8}{3} S(S+1) \sum_l J_l^2$ なる関係で結びつけられている。

従ってハイゼンベルグスピン系の場合は、中性子のエネルギー変化に対してガウス型の強度分布を示し、その中から交換相互作用の大きさが求まり、エネルギーに対する種分強度からスピン量子数が求まる。

§ 3. 実験結果

測定は核理研の常磁性散乱用スペクトロメーター³⁾を用い、TOF法で行った。測定温度は室温である。第1図に NiTiO_3 についての測定結果を示す。 $\log I - (\hbar\omega)^2$ プロットから明らかなように、散乱中性子強度は2つのガウス分布の重ねあわせであらわされる。これは、常磁性散乱に、核スピン及び同位体の存在による非干渉性弾性散乱が加わっている為で、後者も装置の分解能を考慮するとガウス型となるからである。従って第1図において勾配の急な直線に対応する部分が非干渉性核散乱に対応し、勾配のゆるやかな部分が常磁性散

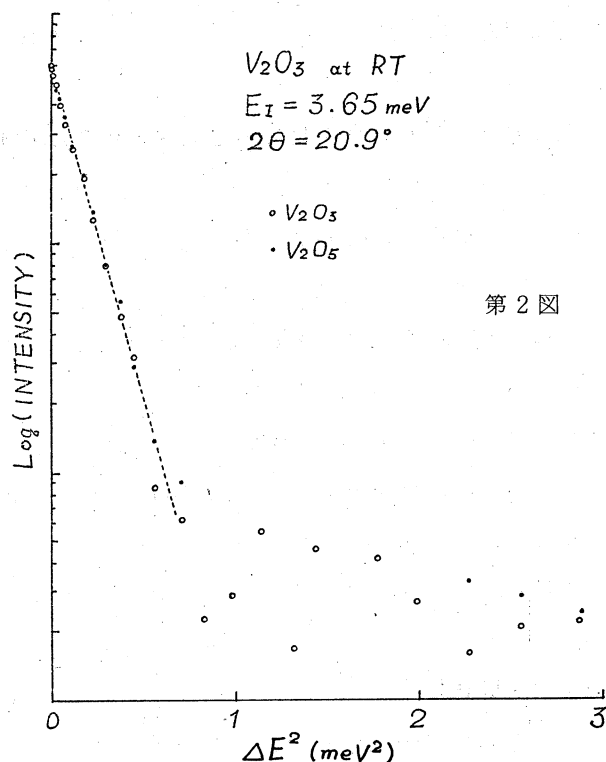


第1図

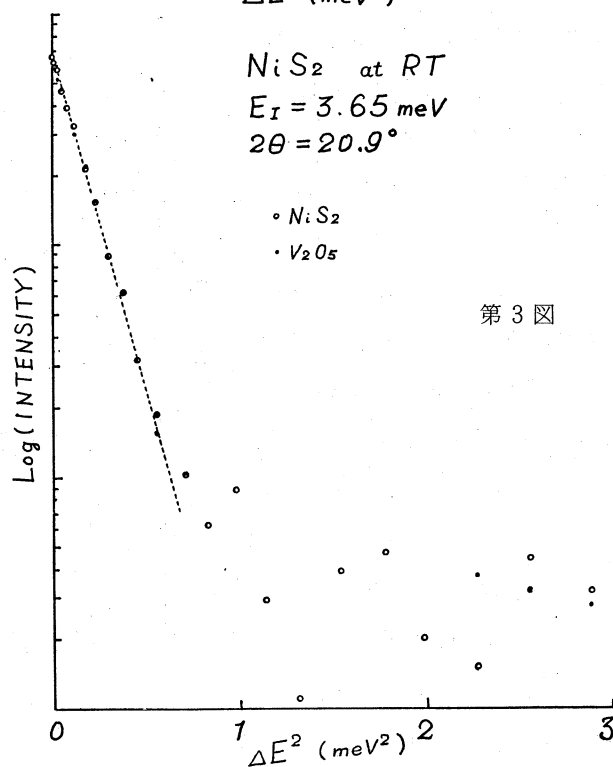
乱に対応していることがわかる。この勾配から、 $S = 1$ とすると NiTiO_3 に対して $\sum I_i^2 = 0.136 \text{ meV}^2$ となる。この測定結果は、 $S \sim 1$ 、 $T_N \sim 20^\circ\text{K}$ 程度のハイゼンベルグ系なら、現在の中性子強度、分解能でも常磁性散乱が十分測定可能であることを示している。

次に、第2図、第3図にそれぞれ V_2O_3 、 NiS_2 についての測定結果を示す。図中に同時に V_2O_5 についての測定結果を示してあるのは、この物質が反磁性体であり、また非干渉性核散乱断面積が V_2O_3 、 NiS_2 とほぼ同じであるので、常磁性散乱の寄与を含まず、非干渉性核散乱の成分を考える際のよい参照物質と考えられるからである。第2図、第3図から明らかなように、 V_2O_3 、 NiS_2 のいずれの場合も、測定の精度の範囲内で V_2O_5 とまったく重なり、ハイゼンベルグ型の常磁性散乱からの寄与は見られない。もしも、常磁性散乱は存在するが分解能的に見えなかったと仮定すると、 $S \ll 1$ であるかあるいは、 $S \sim 1$ ではあるが交換相互作用の大きさが NiTiO_3 程度より十分小さいかのいずれかであろう。

前者の場合はむしろ系がハイゼン



第2図



第3図

ベルグ型の局在モーメントをもっていないといっただろう。後者の場合は V_2O_3 と NiS_2 で少し事情が異なる。 V_2O_3 の場合は金属相では $4.2^\circ K$ まで磁氣的秩序が存在しないことが高圧下の実験で確かめられているので、⁴⁾ もし $S \sim 1$ の局在モーメント的なスピン揺動があると仮定すれば、交換相互作用の大きさが非常に小さい可能性はある。しかし金属相ではスピンの揺動はバンド電子の揺動と考えなければならないので、これがハイゼンベルグ型のスピン揺動に近い振舞いを示すかどうかについては理論的にも未知であり、今回の実験結果も分解能的にその可能性を否定できないというにすぎない。 NiS_2 の場合は絶縁体であり約 $40^\circ K$ 以下で反強磁性秩序を示すことから、もしも $S \sim 1$ とするならば、スピン間の相互作用エネルギーが $NiTiO_3$ ($T_N \sim 20^\circ K$) より非常に小さいということは大変考えにくい。従って $S \ll 1$ である可能性の方が大きいと考えられる。

従って今回の実験結果は次のようにまとめることができる。 V_2O_3 も NiS_2 も $S \sim 1$ のキューリー・ワイス則に従うにもかかわらず、ハイゼンベルグ型のスピン動特性は実験精度内では観測されなかった。特に NiS_2 に関しては、 $NiTiO_3$ の結果との比較から、 $S \sim 1$ の局在スピンをもっている可能性は非常に小さいといえる。

参 考 文 献

- 1) D.B. Mcwhan and J.P. Remeika : Phys. Rev. **B 2** (1970) 3734.
- 2) 小川信二 : 日本物理学会誌 **29** (1974) 688.
- 3) 渡辺昇, 石川義和, 都筑一雄, 神木正史, 野田泰久 : 核理研研究報告 **6** (1973) 284.
- 4) A. C. Gossard, D. B. Mcwhan and J. P. Remeika : Phys. Rev. **B 2** (1970) 3762.

III. 放 射 化 学 部 門

Ⅲ－１ ゼオライトによるセシウムおよび ストロンチウムの固定化

選研 菅野卓治・三村均

§ 1. 緒 言

放射性廃液の処理処分法としては、セメント固化法、ガラス化法などが行なわれているが、セメント固化法では浸出性が高く、ガラス化法では放射性核種の揮発などの点に難点がある。¹⁾ゼオライトは、三次元のカゴ型構造を持つアルミノケイ酸塩で、強いイオン交換性を持っている。著者らは、これに放射性廃液中の核種を交換させ、高温で焼成することにより核種を固定し、浸出性の低い固化体を作することを目的として、ゼオライトの加熱変化および焼成物からの核種の浸出性などについて実験を行い、興味ある結果を得た。

§ 2. 実験方法

2.1 熱 分 析

ゼオライトとしては、合成ゼオライト A 型、X 型、Y 型、モルデナイト (Zeolon, 以下 S. M. と記す) および天然モルデナイト (以下 SA と記す) を用い、それらの Na 型、Cs 型および Sr 型について、示差熱分析 (DTA)、熱重量分析 (TGA) および X 線回折を行い、高温での再結晶の有無などについて検討した。

2.2 イオン交換容量の測定

2.1 に示したゼオライトを用いて、Cs および Sr に対するイオン交換容量を測定した。トレーサーとしては、¹³⁷Cs および ⁸⁵Sr (核理研の LINAC で製造) を用いて、カラム法により、平衡時のゼオライト中の吸着量を測定してもとめた。

2.3 浸出試験

Cs 型および Sr 型ゼオライトを 800℃、900℃、1,000℃、および 1,100℃ で 3 時間電気炉で焼成したものからの Cs または Sr の浸出量を、原子吸光法で測定し焼成温度による浸出性の変化をみた。

次に、Cs 型および Sr 型ゼオライトを 1,100℃ で 3 時間焼成し、それらを 65～100 メッシュの粉末としたものを、10ml の蒸留水および人工海水と、25℃ で 24 時間接触させ、浸出した Cs および Sr を原子吸光法で測定し、浸出率を算出した。なお、30 日間の長期連続浸出試験も行

った。焼成体の表面積は、あらかじめBET法により測定しておいた。

また、IAEAの「浸出試験検定法」²⁾にのっとり、最初の1週間は毎日、次の8週間は週1回と浸出液を交換してサンプリングを行ない、浸出率の経日的な変化をみた。

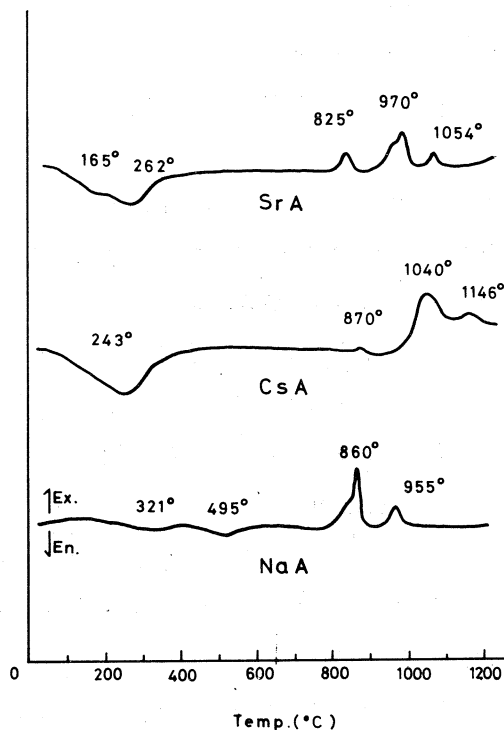
§ 3. 結果および考察

3.1 ゼオライトの加熱変化

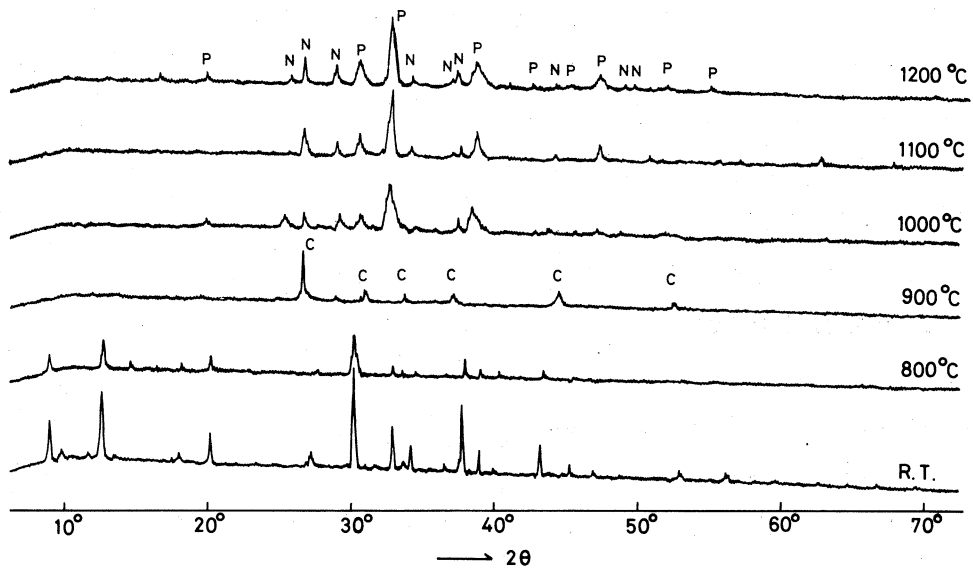
第1図に、A型ゼオライト ($\text{Si}/\text{Al}=1$) のDTA曲線を示した。Naを飽和したA型 (NaA) では、DTAで860°Cと955°Cに発熱ピークを示したが、X線回折により、これらはゼオライトの構造破壊と再結晶によるカーネギー石 (Carnegieite, NaAlSiO_4) からカスミ石 (Nepheline, NaAlSiO_4) への変化によるものであることが確認された。

Breckらは、800°Cで β -クリストバライトになると報告している³⁾。Csを飽和したA型 (CsA) では870°C、1,040°C、1,146°Cに発熱ピークが認められ、第2図に示したX線回折の結果により、800°C付近で構造破壊を起し、次いで、カーネギー石を経てポルサイト

(Pollucite, $\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$) とカスミ石の混合物へ変化することが確認された。Srを飽和したA型 (SrA) では、800°C付近で構造破壊を起し、次いで、アルミノケイ酸ストロンチウム ($\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$) に再結晶した。X型 ($\text{Si}/\text{Al}=1.25$) もA型と似た挙動を示した。これに対して、 Si/Al 比が2.5以上のY型およびモルデナイトは、いずれも構造破壊を示すだけで、1,200°Cまでは再結晶は明確には認められない。CsAは1,100°Cで数分間加熱することによって、再結晶はほとんど終了し、X線回折像および密度も3時間加熱したものと大きな差は認められなかった。



第1図 A型ゼオライトのDTA曲線



C: Carnegieite, N: Nepheline, P: Pollucite

第2図 CsAの焼成温度によるX線回折像の変化

3.2 CsおよびSrのイオン交換容量

第1表 CsおよびSrのイオン交換容量

	Cs		Sr	
	$E_{Cs}^{b)}$ (meq./100g)	$E_{Cs}/E_{Na}^{c)}$	$E_{Sr}^{d)}$ (meq./100g)	E_{Sr}/E_{Na}
A	178	1/3	510	9/10
X	185	2/5	470	1
Y	185	1/2	290	4/5
S. M. ^{a)}	196	6/7	218	9/10

a) S.M: Synthetic Mordenite (Zeolon)

b) E_{Cs} : Cation Exchange Capacity for Cs

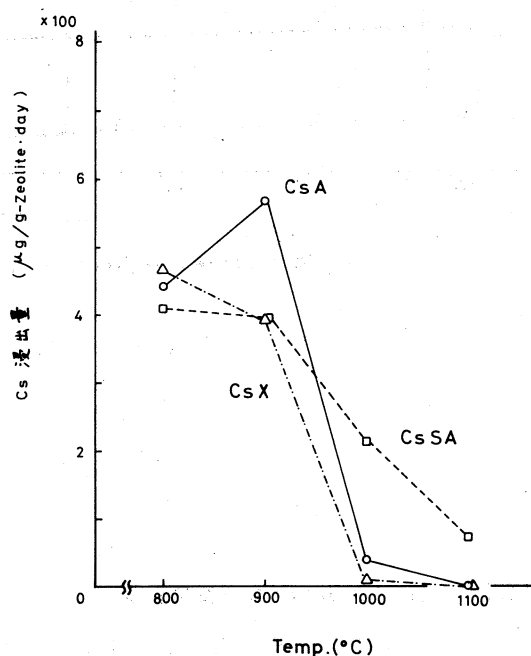
c) E_{Na} : Cation Exchange Capacity for Na

d) E_{Sr} : Cation Exchange Capacity for Sr

測定結果を第1表に示したが、いずれも無機イオン交換体としては高い値を示した。ゼオライトは“イオンふるい”としての性質を有するため、半径の大きなイオンでは完全な交換はできない。つまり、Csについては、 $E_{Cs}/E_{Na} = 1/3$ であり、A型ゼオライトの単位セル中の12個のNaのうち、8員環に近接して存在する4個のNaだけが交換され、6員環に近接して存在する8個のNaは交換されない結果となっている。Srについては、ほとんどが90%以上のNaと交換する。なお、A型ゼオライトに無担体 ^{137}Cs または ^{90}Sr を飽和させたと仮定すると、 $1,100^{\circ}\text{C}$ に焼成したものの比放射能は、それぞれ21, 33 Ci/gとなる。

3.3 焼成物からの浸出性

CsA, CsXおよびCsSAについて、焼成温度と浸出性との関係を第3図に示した。CsAおよびCsXでは、再結晶の起る $1,000^{\circ}\text{C}$ 以上で、蒸留水に対する浸出性が急激に減少し、 $1,100^{\circ}\text{C}$ ではいずれも極微量のCsしか検出されなかった。これに対し、再結晶しないモルデナイトでは、 $1,100^{\circ}\text{C}$ に焼成したものでかなり浸出することが認められた。CsAでは、5分間の焼成でも3時間焼成したものとはほとんど差がなかった。



第3図 焼成温度によるCsの浸出量の変化

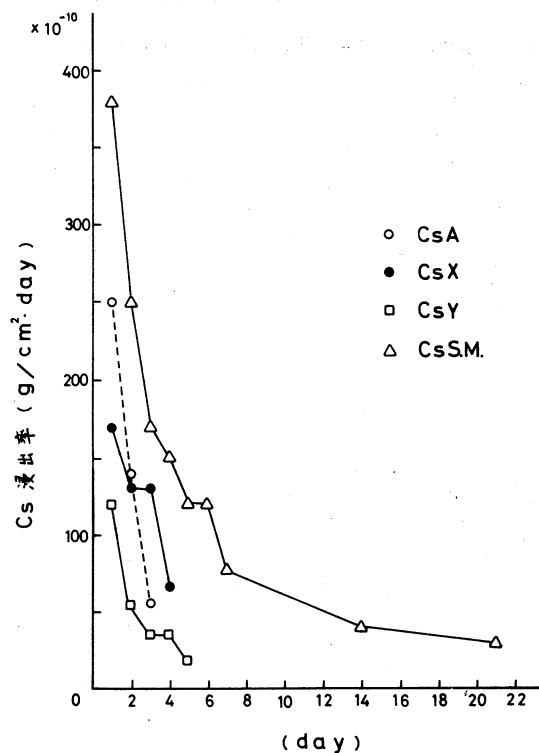
次に、第2表に、蒸留水および人工海水への焼成物からのCsおよびSrの浸出率を示した。本研究で得られた、CsY焼成物の 1.3×10^{-8} (g/cm²·day)という値は、他の固化法、例えば、セメント固化法⁴⁾の $10^{-3} \sim 10^{-4}$ やガラス化法¹⁾の $10^{-4} \sim 10^{-6}$ などの値に比べて極めて低い。なお、海水への浸出率は蒸留水のそれに比べて5倍程度高いことがわかる。

第2表 焼成体からのCsおよびSrの浸出率 (g/cm²・day)

Zeolite	Cs		Sr	
	蒸留水	海水	蒸留水	海水
A	2.5×10^{-8}	1.2×10^{-7}	$< 2.6 \times 10^{-10}$	1.8×10^{-8}
X	1.7×10^{-8}	6.0×10^{-8}	$< 2.6 \times 10^{-10}$	1.8×10^{-8}
Y	1.3×10^{-8}	1.1×10^{-7}	2.8×10^{-9}	9.7×10^{-9}
Mordenite	7.4×10^{-8}	8.5×10^{-8}	5.0×10^{-9}	1.6×10^{-8}

第4図には、Csの浸出率の経日的な変化を示した。このように、浸出率は経日的に急激に減少し、Csの浸出率は、モデルナイト焼成物以外は、数日以内に検出が不能となった。なお、Srの浸出率は、AおよびX型の焼成物からは、第1日目から検出不能であった。さらに、1ヶ月の長期連続浸出試験を行ない、その平均浸出率をもとめると、浸出率が時間的に急減するので、24時間で測定した第2表の値に比べて、1桁以上低い値が得られた。

実用化しようとする場合には、コストの面を考慮に入れなければならない。天然ゼオライトは、東北地方などに広く産出し、資源的には無尽蔵といってよいほ



第4図 Csの浸出率の経日的変化

ど豊富であり、また、短時間の熱処理により鉱物化が可能であるなど、コストの面で有利な点が多い。しかし本法は、ゼオライトのイオン交換吸着性を利用するため、イオン交換を行なう核種以外は固定できない欠点があり、交換しない核種については別のプロセスを考える必要がある。しかし、核分裂生成物中、最も半減期の長い¹³⁷Csおよび⁹⁰Srには選択性が高く、極めて有効である。

この実験を行なうにあたり、実験装置の御便宜を頂いた選鉱製錬研究所、南部松夫教授に、
また、X線回折などの測定に協力された同研究室、北村強技官に感謝の意を表する。

参 考 文 献

- 1) 田代晋吾：JAERI-M 5615 (1974).
- 2) IAEA, Technical Report Series No. 82 (1968) 101.
- 3) D. W. Breck : J. Amer. Chem. Soc. 78 (1956) 5693.
- 4) 江村悟他：JAERI-M 5779 (1974).

Ⅲ－２ フタロシアニン化合物の混晶系における (γ, n) 反応の化学的效果*

東京教育大 理学部 池田長生・鯨井脩[†]・荘司準
酒井陽一

The chemical behavior of hot atoms produced by (γ, n) reactions was studied in the mixed crystals of cobalt phthalocyanine and copper phthalocyanine. The initial retentions of ^{58}Co and ^{64}Cu increase with increasing mole fraction of copper phthalocyanine.

The relation between initial retention and mole fraction of copper phthalocyanine is linear in α -mixed crystals. When mole fraction of copper phthalocyanine is extrapolated to zero, the initial retention of ^{58}Co accords with that of ^{64}Cu . In α -mixed crystals, the initial retention for (γ, n) reaction is lower than that for (n, γ) reaction and the initial retention curves are parallel to each other.

§ 1. 緒 言

これまでのフタロシアニン化合物の混晶系におけるホットアトムの反跳挙動の研究は (n, γ) 反応を用いて行われてきた。しかしながら、 (n, γ) 反応だけで反跳機構を解明するには限界があり、他の核反応や核壊変に伴う効果もあわせて検討する必要がある。今回、共同利用計画により、東北大学原子核理学研究施設の電子リニアックを利用する機会を得たので、 (γ, n) 反応によるホットアトムの反跳挙動を検討した。実験に用いた系は、さきに (n, γ) 反応の実験に使用したコバルトフタロシアニン(CoPc)と銅フタロシアニン(CuPc)の α 形および β 形混晶である。この混晶において、 (γ, n) 反応で生じる ^{58}Co と ^{64}Cu の初期リテンシ

* Chemical Effects of (γ, n) Reactions in the Mixed Crystals of Phthalocyanine Compounds.

[†] 現在：金属材料技術研究所

ヨ (R_0) について検討し, (n, γ) 反応で生じる ^{60}Co と ^{64}Cu の反跳挙動との比較, 検討を行った。

§ 2. 実 験

試料の混晶は, (n, γ) 反応の実験に用いたもの¹⁾と同じものをそのまま使用した。合成したのちにさらに精製した CoPc と CuPc の結晶は, 元素分析や放射化分析を行って純度を確認した。混晶は精製した CoPc と CuPc の適当量を, あらかじめ機械的に混合した後, 濃硫酸に溶解して十分に攪拌し, 氷冷水に注いで調製した。この混晶を 110°C で1日乾燥して α 形混晶試料とし, さらに真空, 300°C で13時間加熱して β 形混晶試料とした。混晶の結晶形については, X線粉末回折法で確認した。

(γ, n) 反応には, 電子リニアックからの 45MeV の電子を, 白金コンバーターにより制動放射線に転換して用いた。未転換電子はスウィープマグネットにより除去し, さらに照射中試料はドライアイスで冷却して, 放射線分解や熱アニーリングを防止した。照射時間は約4時間であり, 平均電流は α 形混晶では $100\mu\text{A}$, β 形混晶では $220\mu\text{A}$ ほどであった。

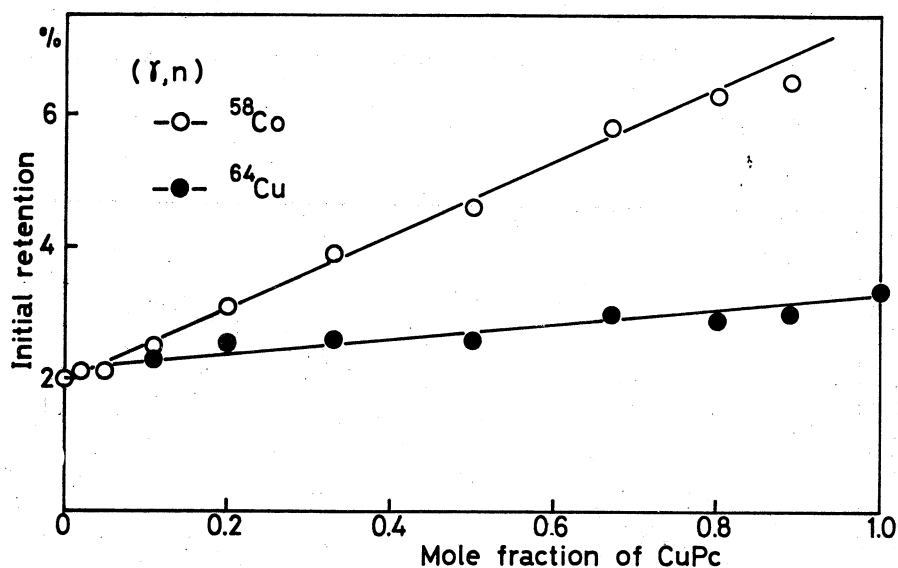
照射試料は, 担体として硫酸コバルトと硫酸銅を含む氷冷濃硫酸に溶解後, 細氷上に注ぎ, 生じたフタロシニアン化合物の沈澱を濾別した。沈澱と濾液の放射能測定には 33ml または 68ml の $\text{Ge}(\text{Li})$ 半導体検出器と 4096 チャンネル波高分析器を用いた。 ^{58}Co は ^{64}Cu の壊変後に, 井戸型 $\text{NaI}(\text{Tl})$ 検出器と 400 チャンネル波高分析器で測定した。 ^{58}Co は 810keV の γ 線を, ^{64}Cu は 511keV の消滅 γ 線を用いて定量した。

§ 3. 結果と考察

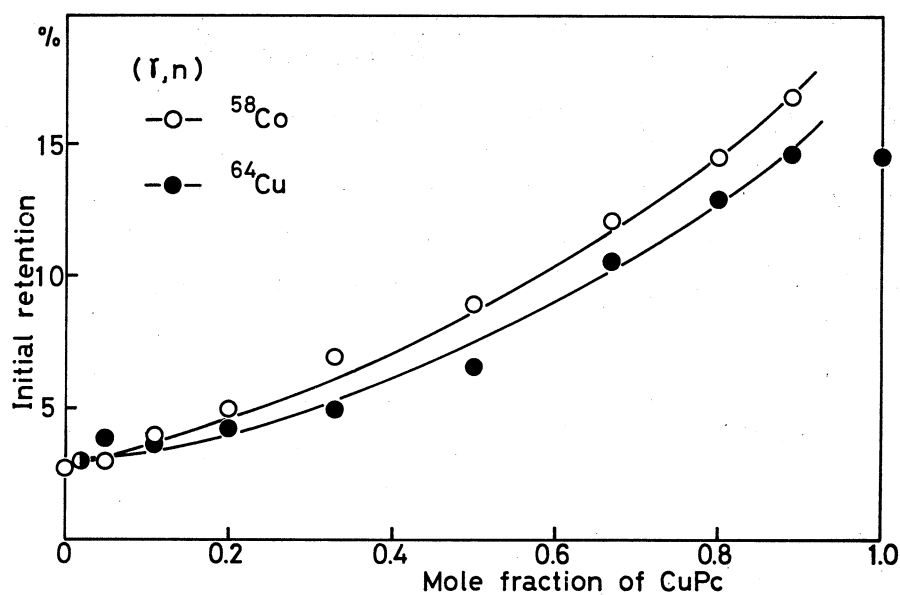
α 形混晶の (γ, n) 反応の結果は第1図に示す通りである。 ^{58}Co の R_0 は CuPc のモル分率の増加とともに増し, 逆に ^{64}Cu の R_0 は CoPc のモル分率の増加 (CuPc のモル分率の減少) とともに減少した。混晶中では, ^{58}Co の R_0 は ^{64}Cu の R_0 よりも高くなっている。この R_0 とモル分率の関係は, α 形混晶では一次であり, しかも CuPc のモル分率をゼロに外挿すると, ^{58}Co と ^{64}Cu の R_0 が一致する。これらの結果は, (n, γ) 反応の場合の ^{60}Co と ^{64}Cu の反跳挙動¹⁾と同様の傾向である。

β 形混晶の (γ, n) 反応の結果は第2図に示す通りである。 ^{58}Co , ^{64}Cu の R_0 はいずれも CuPc のモル分率の増加とともに増す。また β 形混晶中でも, CuPc のモル分率をゼロに外挿すると, ^{58}Co と ^{64}Cu の R_0 は一致する。

(r, n) 反応の結果を (n, r) 反応の結果と比較すると, 次のようなことがわかる。ただし (n, r) 反応の実験では, JRR-2 の気送管を用いて, ドライアイス温度で, 30 秒間熱中性子照射を行っている。第3図は α 形混晶における ^{58}Co と ^{60}Co の R_0 を比較したものである。 ^{58}Co の R_0 は

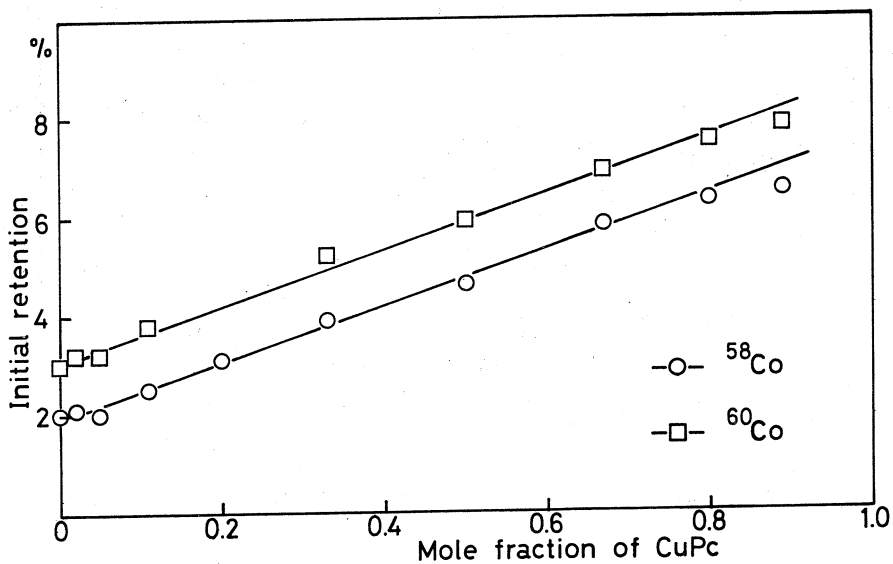


第1図 Initial retentions of ^{58}Co and ^{64}Cu in α -mixed crystals.



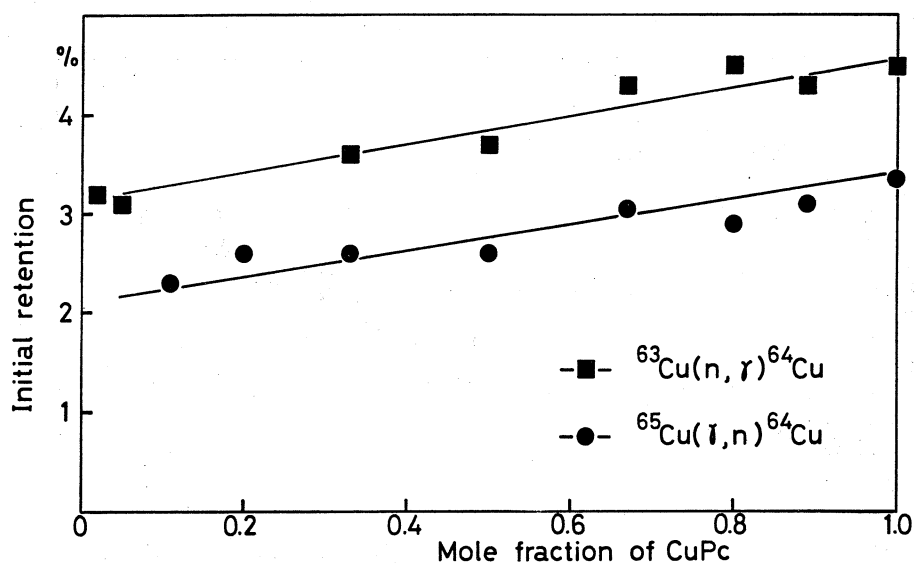
第2図 Initial retentions of ^{58}Co and ^{64}Cu in β -mixed crystals.

^{60}Co のそれよりも低く、しかも ^{58}Co と ^{60}Co の R_0 の直線が平行であることがわかる。 ^{58}Co の R_0 が低いことは、 (γ, n) 反応の方が反跳エネルギーが大きいために飛程が大きく、もとの反跳位置へもどって再結合する確率が小さいためか、または (γ, n) 反応の方がエネルギーが大きいために分子の損傷が大きく、再結合などの確率が小さくなったためと考えられる。 (γ, n) 反応と (n, γ) の反応の R_0 の直線が平行になったことは、両反応における R_0 生成の機構が似ていることを示しているものと考えられる。



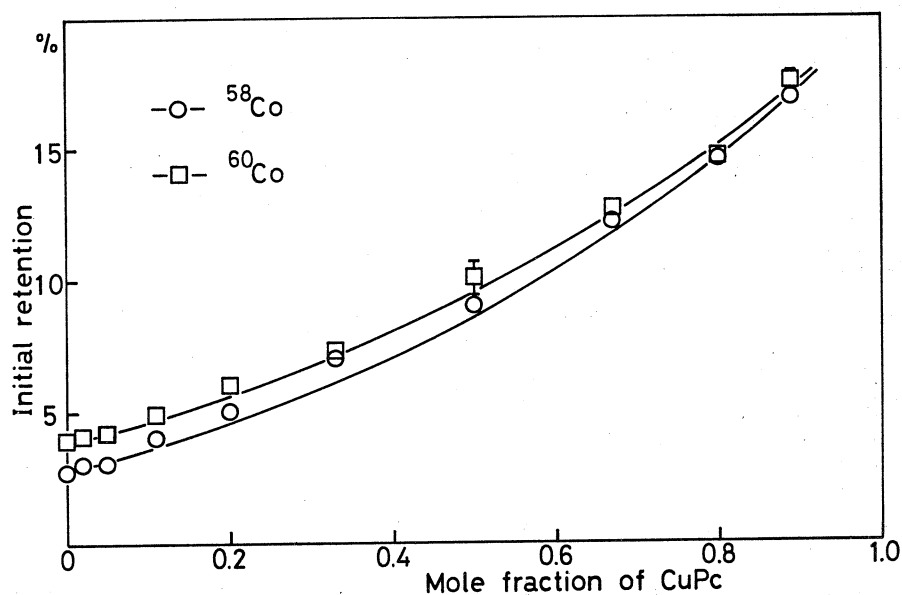
第3図 Initial retentions of ^{58}Co and ^{60}Co in α -mixed crystals.

第4図は α 形混晶において、 (γ, n) 反応で生じた ^{64}Cu と (n, γ) 反応で生じた ^{64}Cu の R_0 を示す。銅のホットアトムの場合にも (γ, n) 反応の方が R_0 が低く、両者の R_0 の直線はほぼ平行になっている。この場合にもコバルトのホットアトムと同様の解釈ができると考えられる。



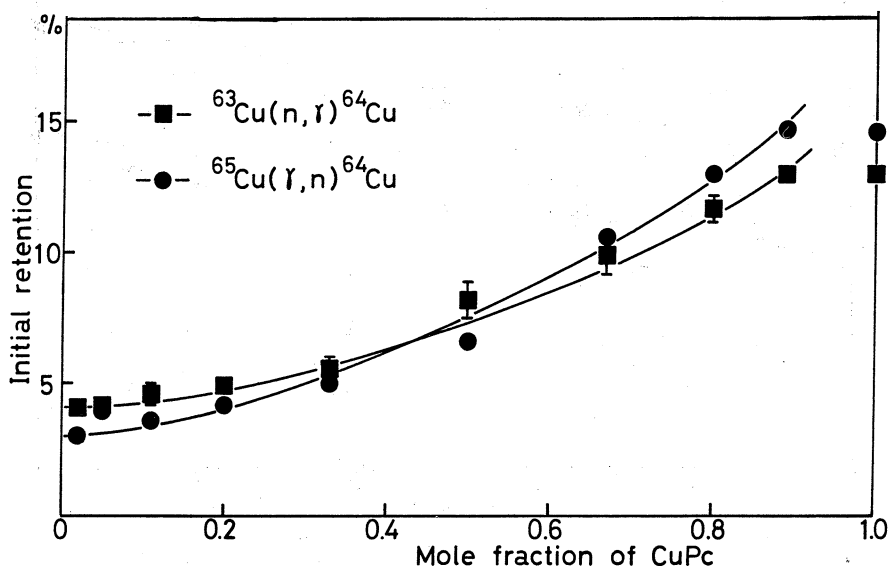
第4図 Initial retentions of ^{64}Cu in α -mixed crystals.

第5図には β 形混晶における ^{58}Co と ^{60}Co の R_0 を示す。 β 形混晶の場合には R_0 の曲線は平行にはならず、CuPcのモル分率が増すにつれて (r, n) 反応と (n, r) 反応の R_0 の差が小さくなって来る。



第5図 Initial retentions of ^{58}Co and ^{60}Co in β -mixed crystals.

第6図には β 形混晶において、 (r, n) 反応と (n, r) 反応で生じた ^{64}Cu の R_0 を示す。



第6図 Initial retentions of ^{64}Cu in β -mixed crystals.

CuPc のモル分率の小さい混晶では、 (r, n) 反応の R_0 の方が低い、モル分率の大きい混晶では逆に (r, n) 反応の R_0 が (n, r) 反応の値よりも高くなることからわかる。このことは、 β 形混晶が一般的に熱アニーリングを受けやすいということのほか、今回の制動放射線照射の際の発熱が大きいため、ドライアイスで冷却したにもかかわらず、熱アニーリングが起きてしまったことを示していると考えられる。

この β 形混晶の実験結果から、同じ種類のホットアトムではCuPcのモル分率の大きい混晶で熱アニーリングを受けやすいこと、および ^{58}Co よりも ^{64}Cu の方が熱アニーリングを受けやすいことがわかる。 ^{58}Co よりも ^{64}Cu の方が熱アニーリングによるリテンションの増加が大きいことは R_0 とは逆の傾向である。このことから、 R_0 を決定する反応と熱アニーリング反応はその機構を異にするものと考えられる。

本実験を行うにあたり御便宜と御助言を賜った東北大学理学部塩川孝信教授、八木益男助教授、吉原賢二助教授に厚く感謝の意を表す。

参 考 文 献

- 1) O. Kujirai and N. Ikeda: Radiochem. Radioanal. Letters **15** (1973) 67.

Ⅲ-3 有機金属錯体の(γ , n)反応ホットアトム化学の昇華法による研究

金沢大理学部 阪上正信・代田悦章
久松俊一・下沢秀夫

§ 1. 緒 言

我々はこれまで原子炉照射によって種々の遷移金属の有機金属化合物(Phthalocyanine, acetylacetone, dipivaloylmethane 錯体)の(n , γ)反応のさいの固相ホットアトム化学を真空昇華法によって研究を行っており、興味ある知見を得て来た。¹⁻⁹⁾ 今回は核理研電子ライナックからの制動放射線照射によって有機金属錯体, dipivaloylmethanate (以下 dpm 錯体と略記, $M(dpm)_n$)の(r , n)反応, それにひきつづく壊変のさいのホットアトム効果を昇華法によって研究し, 生成核種の濃縮効果について次の3点を検討した。¹⁰⁾ 第1にホットアトム反応による濃縮度に影響するターゲット化合物の照射中の分解を原子炉とライナックの場合について比較する。第2に核反応の違いや壊変効果による濃縮効果の基礎研究として, 原子炉やライナックによる照射の場合について研究する。第3に化学分離中に起りうる熱的反応によって生成核種のリテンション値が変化するかどうかについての検討である。さらに実際の濃縮効果を長時間照射の場合について, $^{168}\text{Yb}(dpm)_3$ (濃縮度 18%, 22%)を用いて調べた。なおこの研究は, 48年,¹¹⁾ 49年¹²⁾の実験において $^{168}\text{Yb}_2\text{O}_3$ を40~100mg照射し, 生成した ^{167}Tm を陽イオン交換カラムで分離することを行なったが, そのさい多量の溶離液と時間を必要としたので, その前段階分離としてのホットアトム効果利用を導入する可能性があるかどうかの基礎研究として行なったのである。

§ 2. ターゲット化合物 $[\text{Yb}(dpm)_3]$ の照射による分解

ターゲットは以下の実験において ^{167}Tm の濃縮を念頭にすべて $\text{Yb}(dpm)_3$ を用いた。

$\text{Yb}(dpm)_3$ は Yb_2O_3 から合成を行い昇華精製を行なったもの約10mgをアルミ箔にくるみ適当な照射容器(ポリエチレンチューブまたは石英管)に入れて種々の条件(第1表)で原子炉(立教大原子炉・京大原子炉)と東北大ライナックで行った。原子炉照射は炉内温度で行った。ライナック照射ではRIコース電子掃引除去電磁石の後方, ベークライト製照射容器中(9cm×6cm×35cm)中央に1列にならべ, ビームモニターのCu板(~30mg)とともに

ドライアイス冷却または室温で行った。

第1表 The irradiation conditions of $\text{Yb}(\text{dpm})_3$ in the different radiation field.

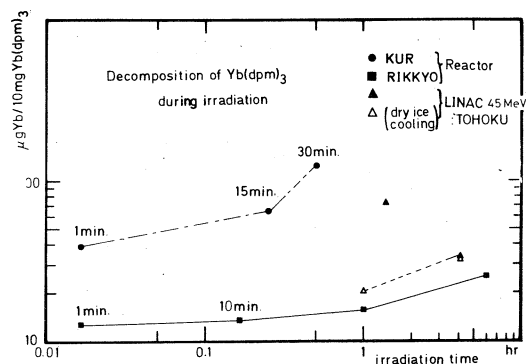
Radiation field	Thermal neutron flux $\phi n/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$	gamma-ray dose rate roentgen/h
KUR (pn-2) REACTOR RIKKYO * (RSR)	2.75×10^{13} 4.9×10^{11}	1.2×10^8 1.4×10^6
LINAC TOHOKU 45, 60 MeV **		$\approx 10^8$

* Irradiation was performed at reactor temperature.

** at dryice temperature.

ビーム最大エネルギーは、45 MeV または 60 MeV で、平均ビーム電流 120 ~ 180 μA である (以下の照射はすべてこれと同様の条件にて行った)。照射後各々の試料は適当時間冷却の後、約 10 mg を化学天秤にて、アルミ製容器 (ボート) 上に、秤量後、真空昇華装置により約 180 $^{\circ}\text{C}$ 、約 10^{-3} torr. で 2 時間昇華を続けた後、分解物残渣と昇華物とに分けた。これらは照射生成核 ^{175}Yb (4.2 day) の減衰をまち、Yb の標準試料 (6 個) とともに立教大原子炉 RSR で 6 時間照射した。その後、 $\text{Ge}(\text{Li})-4\text{KPHA}$ で γ スペクトルを測定して、 ^{175}Yb の生成量の比較から各試料の分解量を算出した。

これらの結果は照射時間に対する $\text{Yb}(\text{dpm})_3$ 10 mg 当りの分解物 Yb μg 量として第 1 図に示した。これより原子炉・ライナックとも時間の増加に伴った分解量の増加がある事が示された。またライナックでは 45 MeV の場合常温照射 (図中 $\blacktriangle$ で示す) では、ドライアイス冷却 ($\triangle$ で示す) よりも相等分解量の多い事がわかった。60 MeV の場合は図上には示さぬが時間の増加に伴う分解の直線的増加が 45 MeV よりやや大きいことがわかった。



第1図 The decomposition of $\text{Yb}(\text{dpm})_3$ during irradiation

§ 3. $\text{Yb}(\text{dpm})_3$ の照射のさいのホットアトム効果および昇華分離中の効果

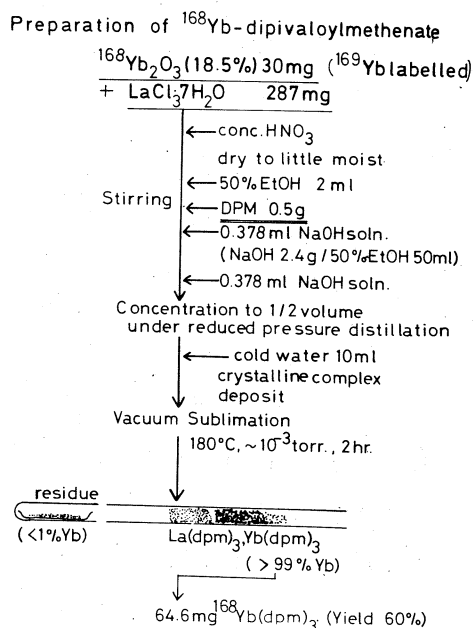
3.1 $\text{Yb}(\text{dpm})_3$ の照射による生成核種濃縮効果

$\text{Yb}(\text{dpm})_3$ の照射により生成する核種の濃縮効果について、核反応の違いによる基礎的研究を原子炉およびライナック照射について比較検討した。原子炉照射による生成核種の濃縮効果についてはすでに報告した。^{7,9)}

ライナック照射により生成する興味ある核種として ^{167}Tm があるが、それは $^{168}\text{Yb}(\gamma, n)$ $^{167}\text{Yb} \xrightarrow[17.7 \text{分}]{\text{E.C. 99\%}} ^{167}\text{Tm}$ により生成する。しかし ^{168}Yb は同位体存在比が 0.13 % と極めて低く ^{167}Yb の生成量の少ないため、 ^{168}Yb の 18 % および 22 % 濃縮同位体を用いての実験を以下のように行った。

$^{168}\text{Yb}(\text{dpm})_3$ の合成は 18 % $^{168}\text{Yb}_2\text{O}_3$ の場合について第 2 図に示す。

22 % の場合も同様である。ここで La は Yb に比べてその dpm 錯体の安定度定数が低く、サブリマトグラフィーにより $\text{Yb}(\text{dpm})_3$ 錯体と昇華分離することがあとでできるため⁸⁾、少量の ^{168}Yb を用いた合成の担体として添加した。合成ならびに昇華精製の収率は ^{169}Yb の放射能 (濃縮同位体は前の実験で数回使用したので、すでに ^{169}Yb が存在している。) より求めた。照射は $^{168}\text{Yb}(\text{dpm})_3$ (22 %) 約 10 mg を 60 MeV, 170 分ドライアイス温度で照射後、約 2 時間後昇華分離を行ない γ スペクトル測定を行った。



第2図 The preparation of $^{168}\text{Yb}(\text{dpm})_3$ and its purification.

残渣, 昇華物の r スペクトルを第3図に, その peak 面積からの計算結果を第2表に示す。ここで ^{169}Yb は各フラクション中のマクロ量 Yb をも表わし, ^{175}Yb は照射によって生じたものである。これより ^{175}Yb のリテンション値は85%であるが一方, ^{167}Tm の残渣での収率63.5%よりリテンション値は約36.5%となり, ^{175}Yb に比較してかなり低く, 濃縮係数12.5であった。

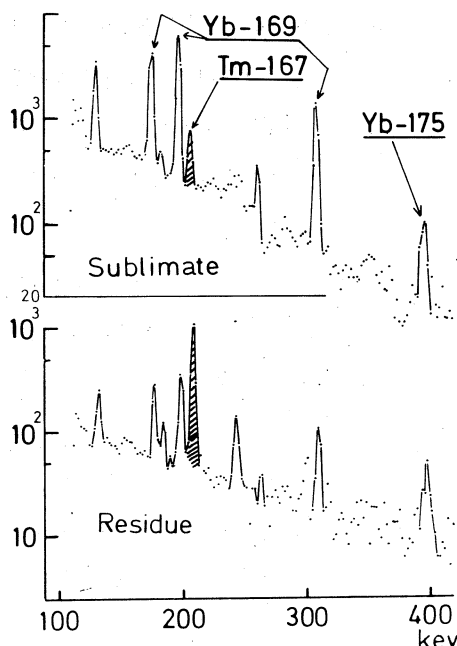
第2表 The distribution of radioactivities between sublimate and residue from the irradiated $^{168}\text{Yb}(\text{dpm})_3$

	peak counts/10min		activity ratio
	Tm-167 (208 keV)	Yb-169 (198 keV)	Tm/Yb
Sublimate	853±61	10438±122	0.0817±0.0059
Residue	1537±47	568±35	2.71±0.19
radiochemical yield (%)			
	64.3±2.9	5.16±0.32	

3.2. ^{167}Tm リテンション値への ^{167}Yb の E.C. 壊変効果の寄与

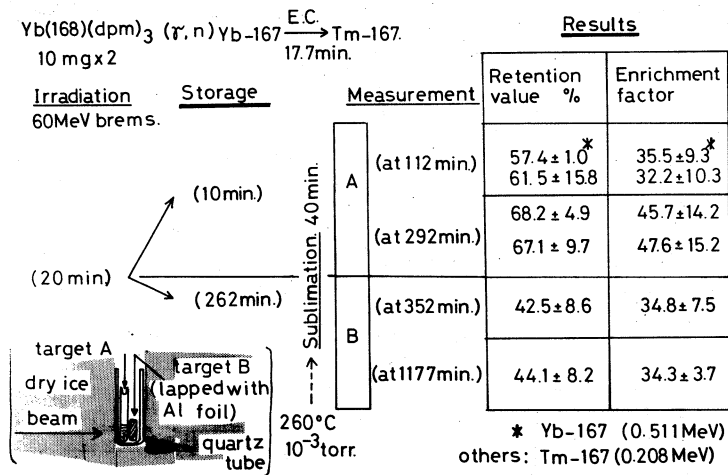
^{175}Yb より ^{167}Tm のリテンション値の低い原因として ^{167}Yb の E.C. 壊変が考えられるのでこれを確かめる実験を行った。

ターゲットには先の $^{168}\text{Yb}(\text{dpm})_3$ 18%のもの A, B 各 10 mg を用いた。 ^{167}Yb は 17.7 分と半減期が短かいので照射を 20 分間 (60 MeV, ドライアイス温度) 行い, A はなるべく早急に昇華を行い, B は ^{167}Yb を減衰させてから昇華を行なった。測定は残渣, 昇華物の r スペクトルをそれぞれ取り, リテンション値, 濃縮係数を求めた。結果は実験条件の詳細とともに, 第3表に示す。A は B より ^{167}Tm のリテンション値は約 20% 大きく, このようなリテンション値の差は E.C. 壊変の効果を示唆している。なお濃縮係数は本実験では誤差の範囲内で A, B 間で有意の差はとくにみとめられなかった。



第3図 The gamma-ray spectrum of residue and sublimate, target; $^{168}\text{Yb}(\text{dpm})_3$ 22%, 10 mg irradiation conditions; 60 MeV, 170 min, dryice temperature.

第3表 The experiments with their results to examine the E C decay effects.



3.3 複合錯体の照射による効果

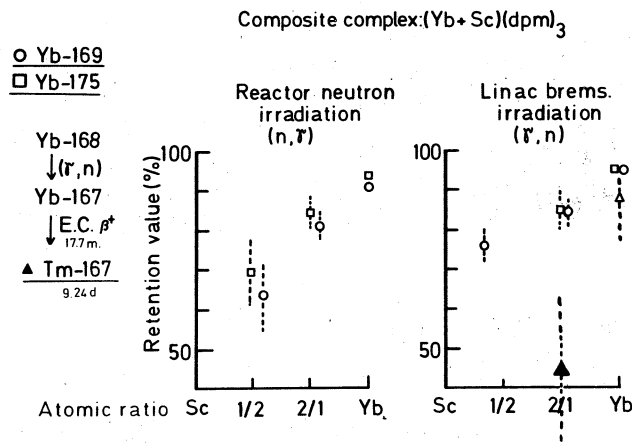
照射による生成核種の濃縮の基礎として、以前われわれは複合錯体の照射によるリテンション値の低下の効果を知った。⁹⁾ このことをここでは Yb と Sc の複合錯体について、原子炉、ライナック照射において比較検討した。またつぎにこのような効果にも関連することとして、複合錯体の混合の方法や混合と照射の順序などをかえた場合について調べた。

複合錯体の調製は別々に合成し、昇華精製した Yb (dpm)₃ と Sc (dpm)₃ を、モル比 1 : 2, 2 : 1 になるように混合し、これを一度ベンゼンに溶解後再び乾燥 (赤外ランプ下にて加熱) して得た。照射は原子炉およびライナックで 1 時間行ったが、原子炉は立教大炉を利用し、ライナックでは 60 MeV, ドライアイス温度での照射を行った。照射後の化学分離には昇華法を適用し、残渣と昇華物の r スペクトルを測定して、リテンション値を算出した。また熱効果を調べる実験では、Yb : Sc = 1 : 2 と同じ組成の錯体について、ベンゼン溶解法、単なる機械的混合によって調製した複合錯体を照射した。なおそのさいには他の組成つまり Yb : Sc = 2 : 1 のものや Yb のみのものも同時に照射した。

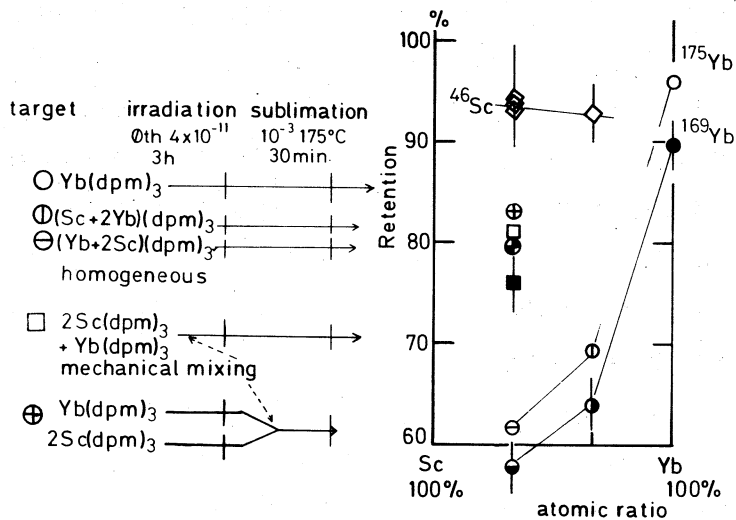
また Yb (dpm)₃ と Sc (dpm)₃ を別々に照射し、照射後同じ組成になるように機械的混合した場合についても検討した。この場合の照射はすべて立教大原子炉で 3 時間行ない、数時間冷却後に昇華分離を行い、残渣、昇華物の r スペクトルを測定してリテンション値を求めた。

始めの実験の結果は第 4 図、つぎの実験の結果は第 5 図に示す。第 4 図からは Yb (dpm)₃ のみではリテンション値は原子炉およびライナックいずれの照射の場合も 80 ~ 90 % とかなり

高いが, $\text{Sc}(\text{dpm})_3$ の添加とともにリテンション値は下がっている。その様子は生成 Yb 核種が異っても, 本質的な相違はみられなかった。ライナック照射の場合 E. C. 壊変で生じた ^{167}Tm については, この場合通常同位体組成の Yb であるため, ^{167}Tm の生成量が低く計数誤差が多く, はっきりしたことはいいにくい, $\text{Se}(\text{dpm})_3$ 混合によりリテンション値が低下することはみとめた。



第4図 The variation of retention values in the irradiation of composite complex; $(\text{Yb} + \text{Sc})(\text{dpm})_3$.



第5図 The variation of retention values in different conditions for target preparation and sublimated samples.

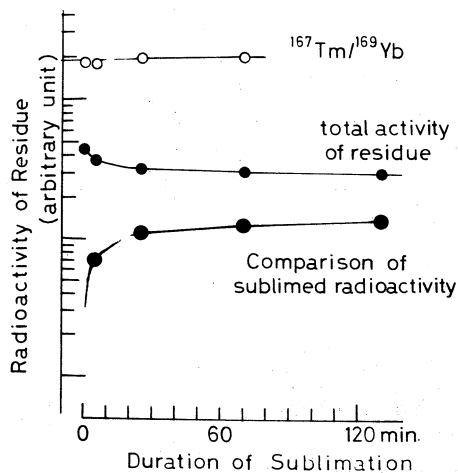
$\text{Sc}(\text{dpm})_3$ の添加効果によるリテンション値変化はつぎの第5図の示す結果により種々の条件に左右されることがわかる。すなわち均一混合で照射したものが一番リテンション値が低くなり、つぎに機械的混合して照射したものとなり、照射してから機械的混合したもののリテンション値低下の効果は少い。しかもこれらはみな $\text{Yb}(\text{dpm})_3$ 単独のものより低いリテンション値を示している。このような原因として照射中および昇華中の熱反応により、反跳生成した無機形 Yb と有機形のものとの間の交換反応あるいは dpm 片との間の再結合反応が起り、その難易が諸条件により影響されるのであらうということが示唆される。

3.4 加熱昇華中の無機形 Yb と有機形錯体との交換反応

前の実験結果の示唆する所を確認するためにつぎのような実験を行った。

$\text{YbCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ を石英管に封入して 60 MeV ライナックで 6 時間照射して、 ^{167}Tm 、 ^{169}Yb を生成させたものを 20 mg とり、それと $\text{La}(\text{dpm})_3$ 100 mg ($\text{Yb}:\text{La}$ のモル比にして約 1:3) とを「めのう乳ばち」中で機械的に混合する。それを温度約 220°C で 5 分、25 分、45 分、60 分とつぎつぎに一定時間昇華する。昇華の前後での残渣の r スペクトル測定および $\text{NaI}(\text{TI})$ での全放射能計数を行う。この結果より昇華量を求めた。

第6図の結果は、残渣残存量と昇華量および残渣中の $^{167}\text{Tm}/^{169}\text{Yb}$ 比を、時間に対して示したものである。全放射能との比較により始めの約 30 分間程度の昇華でもラベルされた Yb ($\text{dpm})_3$ および $^{167}\text{Tm}(\text{dpm})_3$ が約 30% 程度昇華している。すなわち熱的交換反応が単なる機械的混合物の場合でもたやすく起ることがわかった。これらはおそらく加熱中有機錯体の溶解も起っていることを示唆している。また ^{169}Yb と ^{167}Tm の比はほとんど変化していないので、原子番号の1つちがう Tm と Yb ではこのような交換反応や昇華速度にほとんど差がないことがわかった。このことは 3.2 にのべた Yb に比しての ^{167}Tm の濃縮効果は E.C. 壊変の効果に主としてもとづくと考えてよいことを示す。



第6図 The exchange reaction induced by heating during sublimation. materials; $\text{YbCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 20mg (0.05 m mole), $\text{La}(\text{dpm})_3$ 100mg (0.15 m mole). sublimation conditions; $\approx 10^{-3}$ torr., 220°C .

4. 濃縮 $^{168}\text{Yb}(\text{dpm})_3$ の照射効果

以上の結果をもとに $^{168}\text{Yb}(\text{dpm})_3$ の照射により ^{167}Tm の濃縮効果を調べた。

ターゲットとして単独の $^{168}\text{Yb}(\text{dpm})_3$ のほか、 $^{168}\text{Yb}(\text{dpm})_3$ と $\text{Sc}(\text{dpm})_3$ を 1 : 2 の比に均一に混合したもの、また機械的に混合したものを用いた。なお $^{168}\text{Yb}(\text{dpm})_3$ のみを照射した後 $\text{Sc}(\text{dpm})_3$ を機械的に混合したものについても昇華実験を行い比較した。照射は 60 MeV ライナックで、ドライアイス温度に冷却して約 170 ~ 355 分間行った。照射後約 20 時間ドライアイス温度で保存した試料について昇華分離を行う。その条件は 10^{-3} torr, 180°C , 2 ~ 3 時間である。その後残渣と昇華物のアスペクトルを測定してリテンション値および濃縮係数を求め比較した。第 4 表にまとめて示した結果によりつぎのことがわかる。 $^{168}\text{Yb}(\text{dpm})_3$ のみではリテンション値はおおよそ 35% で、濃縮係数は照射時間のちがいにより少し差がある。これはおそらく照射中の分解によるものであろう。

第 4 表 The results of irradiation of $^{168}\text{Yb}(\text{dpm})_3$ at the various conditions.

*Irradiation was performed at dryice temperature and beam energy
max. 60 MeV.

Target	Irradiation time (min)	Retention value (%)	Enrichment factor
$^{168}\text{Yb}(\text{dpm})_3$ enrichment 22 %	170	35.7 ± 1.6	12.5 ± 1.0
18 %	238	35.5 ± 7.0	5.14 ± 0.71
$(^{168}\text{Yb} + 2\text{Sc})(\text{dpm})_3$ • homogeneous mixture • mechanical mixture	355	35.9 ± 4.0	3.96 ± 0.41
		41.6 ± 3.7	3.05 ± 0.34
$^{168}\text{Yb}(\text{dpm})_3$ (irradiated) + $2\text{Sc}(\text{dpm})_3$ • mechanical mixture		41.8 ± 2.0	8.28 ± 0.58

Sc(dpm)_3 を加えたものでは、均一混合物の方が機械的混合物より濃縮がよい。またこれらのリテンション値は単独 $^{168}\text{Yb(dpm)}_3$ 照射の場合とあまり差がなくまた濃縮係数はむしろ低くなったが、これはおそらく照射時間が約2倍と長いことにもよるのだろう。このような場合、 Sc(dpm)_3 の添加による効果はあまりない。最後に Sc(dpm)_3 をあとから添加したものでは ^{167}Tm の濃縮係数が約2倍になったことは興味がある。これはおそらく昇華中の再結合反応が、安定度定数の大きい Sc(dpm)_3 の存在により阻止されたと考えられる。

§ 5. 考 察

以上の実験は、 ^{167}Tm のホットアトム挙動を利用した濃縮を目的に、そのさいの化学的諸問題を、固相のホットアトム化学研究の立場からいろいろと検討してきたものである。

第1の問題点としては照射中の被照射化合物の分解がある。これは照射場における強い電離性放射線により誘起される複雑な反応の総体の結果によるものである。われわれは分解された化合物について昇華分離操作を行ったが、このさい昇華せぬ部分を分解物とし、昇華する物質をもとの形である分解せぬ部分とした。ここでは、昇華物は、昇華中の熱反応により放射線損傷がある程度修履された部分を含む可能性もある。また分解物はいろいろな分解生成物を有しているが、それらは種々の過程により生じたものの総体である。原子炉およびライナックの照射場での実際の結果は、時間の経過とともに分解量の増加があることを示している。原子炉とライナックの両者において、いずれも複雑な過程があるがここでは単に照射場に存在する γ 線照射線量率のみに注目して考察してみる。ライナックでの線量率は、照射試料と同じ状況（空气中でドライアイス冷却）においたCuの生成放射能をもとに^{13,14}推算し、およそ線量率 $\sim 10^8$ R/hとなった。第1図にみるように、 γ 線量率約 10^6 R/hである立教大原子炉よりライナック照射の方が分解量は大きいがそれほど大きくは変わらない。しかし γ 線量率 10^8 R/hと同程度のKUR照射よりは小さい。これは原子炉照射では γ 線量率が同じ程度でも速中性子その他の照射効果によるさらに複雑な他の過程が分解に大きく寄与するためであろう。またライナックでドライアイス冷却をせぬ場合は γ 線により二次的に誘起される反応が分解に大きく寄与していることもわかる。こうした錯体の分解に関する放射線化学的考察は、もっと単純な照射方法によりなされるべきであり、これは以後の研究課題である。第2にホットアトム反応における反跳生成核種濃縮の問題である。固相における反跳原子の純粋なホット反応の可能性は少ないので、そのみならばリテンションは $\sim 0\%$ に近い筈である。しかし3.2にのべた本実験の結果が示すように、Ybより生じた ^{169}Yb ， ^{175}Yb ともにリテンション値は80～90%と非常に高い。これ

はホットアトムのエネルギー減速の終末過程における熱反応が大きな寄与をなし、また昇華中の熱反応の寄与も考慮すべきことは、明らかである。反跳原子の終末の化学反応過程は、通常の化学元素としての性質により決定される。これは以前の同じような β ジケトン錯体のTh(acac)₄²⁾やZr(acac)₄³⁾についての実験ではリテンション値が約32%, 30%と低いのに対し、Yb(dpm)₃や他の希土類dpm錯体^{8,9)}のリテンション値が80~90%と高いことなどからもうかがえる。ここでは元素の違いのほかに配位子acacとdpmの差による錯体の生成定数のちがいの効果も考えられる。なお同じdpm錯体については第4図の示すように核反応の違いによる本質的な差はないことは注目すべきことで、熱反応の効果のみが考えられる。その上Sc(dpm)₃の添加効果は、最終的なリテンション値がScとYbの化学的な性質の差、すなわちdpm錯体をScがより生成しやすいことに基ざっていることを示唆する。このような熱反応は照射中でも起こるとともに第5図の実験からもわかるように昇華中でも起こっている。なお昇華中の反応については、機械的混合物についてもみられるので、このさいは固相のままで反応としては考えにくく一度熱により溶融した状態で反応が進んでいると考えられる。このことは第6図の結果からも明らかである。このような熱反応過程の実質は昇華中でも照射中でも本質的には同じとみなされ、ただホットゾーンモデルのような局部的溶融状態であるか昇華のさいのような全般的溶融状態であるかの差にすぎないと考えられる。さらにつぎに問題となるのはライナック照射のさいに生成する¹⁶⁷Tmの低いリテンション値である。Yb, Tmのほとんど等しい化学的性質からすれば上の熱反応的考察だけではリテンション値はほぼ同じになると考えられ、このことは第6図に示す実験結果からもわかる。ところが¹⁶⁷TmがYbより40%近く低いリテンション値を示すのは、¹⁶⁷Tmが¹⁶⁷Ybの反跳効果に加えて、さらにその後におこる壊変(E.C.)による異常な化学状態を有機性分子結晶中で照射後ずっと保持し続けるため、全体としての熱反応再結合が相対的に少なくなる結果によるものと解釈すべきであろう。なお最後の実験の¹⁶⁸Yb(dpm)₃の照射でSc(dpm)₃添加物355分照射の結果からもこれらの考察は裏付けられるものと考えられる。こうしたE.C.壊変の効果は、核壊変の効果が有機性分子結晶中での残ることによるホットアトム効果のひとつの例であろう。これと同様なことはYb(dpm)₃の原子炉照射のさい生成するYbの諸放射性同位体のリテンション値の差という効果⁷⁾にもうかがえる。このさいは生成核種のうち¹⁶⁹Ybと¹⁷⁷Ybが低い核異性体レベルを有し、¹⁷⁵Ybはそうしたレベルを有さないという核的過程の差が反映したものとして考察された。これらのことは昇華分離法と適用して見出された注目すべき結果であるが、さらに溶液分離法の慎重な応用とそれらより得られる結果との比較により詳しい知見が得られるものと期待され、さらに昇華分離

のさいの昇華温度，溶融状態およびその時間的關係の詳しい検討とともに，これらは今後の課題と考える。

最後に本研究について，とくに核理研の実験において，多大の御助力ならびに協力をいただいた核理研，八木助教授その他の方々，ならびに東北大理学部吉原助教授に深く感謝致します。

参 考 文 献

- 1) K. Endo and M. Sakanoue : Radiochem Radioanal Letters, **9** (1972) 255.
- 2) H. Kawazu and M. Sakanoue : *ibid.*, **16** (1974) 363.
- 3) H. Kawazu and M. Sakanoue : *ibid.*, **16** (1974) 373.
- 4) R. Amano and M. Sakanoue : *ibid.*, **16** (1974) 381.
- 5) R. Amano and M. Sakanoue : *ibid.*, **19** (1974) 197.
- 6) R. Amano, H. Nio and M. Sakanoue : *ibid.*, **23** (1975) 63.
- 7) Y. Shiota, M. Sakanoue : *ibid.*, to be published.
- 8) 天野良平，丹尾広樹，阪上正信：第17回放射化学討論会講演要旨集2 B 2.
- 9) 天野良平，丹尾広樹，代田悦章，阪上正信：
第18回放射化学討論会講演要旨集4 Q 16.
- 10) 代田悦章，阪上正信：第19回放射化学討論会講演要旨集2 M 15.
- 11) 坂本，代田，安東，久田：核理研研究報告 **7** (1974) 204.
- 12) 安東，久田，代田，坂本： *ibid.*, **8** (1974) 193.
- 13) 加藤： *ibid.*, **5** (1972) 133.
- 14) L. Katz, A. G. W. Cameron : Canad, Jour Phys, **29** (1951) 518.

III-4 The Yields of Photonuclear Reactions for Multielement Photon-Activation Analysis

理学部化学 加 藤 豊 明 *¹
理学部化学 梶 本 和 義 *²
岩手大教養 佐 藤 允 美 *³
理学部化学 鈴 木 信 男 *⁴

A comprehensive study on the yields of photonuclear reactions of various types has been performed, and sensitivities and the effects of interferences in multielement photon-activation analysis have been evaluated by bremsstrahlung activation of many elements with maximum energies ranging from 30 to 60 MeV. The applicability and reliability of the method were demonstrated by analyzing standard round-robin samples and then by presenting the elemental abundances in several geological and biological materials. The method was almost insensitive to matrix effects and was assessed to be promising for non-destructive multielement determination of the materials of wide variety, giving good reproducible results for 20 or more elements.

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

*2 Kazuyoshi Masumoto: Department of Chemistry, Faculty of Science, Tohoku University.

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

*4 Nobuo Suzuki: Department of Chemistry, Faculty of Science, Tohoku University.

§ 1. Introduction

In view of the increasing concern regarding trace element material balances in environment, much effort has so far been paid to develop improved techniques for the measurement of concentrations of many elements in a complex multielement material. Because of its high sensitivity and the multi-element capability, instrumental neutron activation analysis has successfully been applied for this purpose, but this method is plagued with very high induced activities from abundant elements or trace species with high neutron capture cross sections, and is not capable of analyzing all of the elements of interest. Similar advantages are offered also by the photon and particle excited X-ray fluorescence techniques, which are of particular significance in analysis of environmental materials.^{1,2)} This method is, however, subject often to suffer from potential matrix effects for which careful correction or standardization will be necessary.

An alternative nuclear method which can meet various requirements of the problem is photon-activation analysis. A substantial feature offered by this method has been summarized by several reviews,³⁻⁶⁾ and the reports concerning the application of instrumental photon-activation technique to the analysis of geological,⁷⁻¹⁰⁾ biological¹¹⁻¹⁴⁾ and environmental materials^{15,16)} have also been published previously. Most of these work involved the use of electron energies below 45 MeV. The success of the method appeared strongly to depend on the energy-dependent photonuclear cross section for the reaction, the photon flux and the duration of exposure. In multielement analysis of a complex material by nondestructive means, however, the inter-element interference problems should also be taken into account. Thus, studies on the reaction yields given at an

electron energy and their dependences on excitation energies should provide useful information in designing multielement photon activation procedure with high-energy bremsstrahlung. A considerable amount of work of this sort with 30 MeV bremsstrahlung has previously been presented along with the sensitivity data derived from irradiations of each pure element from carbon to bismuth.¹⁷⁾ The photon-activation method has also been applied to the multielement determinations in several silicate rocks^{9,10)} and biological materials.¹⁴⁾

This paper deals with further study on the yields of photonuclear reactions, mainly with 60 MeV bremsstrahlung, using a linear electron accelerator of Tohoku University. The relative probability of forming a nuclide from various target elements was discussed from standpoints of sensitivity and interference in multielement photon-activation analysis. Finally, the procedure with 30 MeV bremsstrahlung was applied to the multielement determination in various specimens involving geological and biological materials. From the data thus obtained, applicability, reliability and versatility of the method were discussed.

§ 2. Experimental

2.1 Sample materials

For the determination of individual reaction yields, samples were prepared from either pure elements or simple compounds from beryllium to bismuth. The metallic samples were small discs 6 mm in diameter with a thickness of about 0.1 mm. The powdered samples were individually wrapped in small pieces of aluminum foil and made into small discs 6 mm in diameter with thickness less than 2 mm. In order to monitor the bremsstrahlung flux, accurately weighed discs of copper,

0.1 mm thick, were placed on the front and back of each sample and irradiated together with the sample. The ^{64}Cu activities produced by the $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$ processes were used for comparisons. A mean specific activity was used to determine the dose rate of bremsstrahlung to which the sample was exposed. The samples and copper monitors were encapsulated into a silica tube and this unit was placed in a water-cooled sample holder on the bremsstrahlung beam axis directly behind the photon-producing converter for irradiation.

Several of the intercomparison standard materials were used to check the accuracy and precision of the method. They were the USGS G-1 granite, GSJ JB-1 basalt and NBS SRM-1571 Orchard Leaves. The JB-1 and Orchard Leaves were also used as the multielement comparative standards in the later real analyses. Comparative standards used for round-robin materials were the synthetic multielement discs or pellets which were prepared by adding known amounts of trace elements (up to 33) to the matrices of similar compositions and were made into discs or pellets with the same size as the sample to be analyzed. The detail involving elemental composition and preparation of the standards for geological materials was essentially the same as described in our previous reports.^{9,10} Cellulose powder was used as a matrix material for Orchard Leaves, and, after mixing with the elements of interest, each 1 g portions of these mixtures were compressed into cylindrical pellets with a diameter of 13 mm.

Samples subjected to real analysis in this work were Bruderheim meteorite, Indochinite tektite and several brands of cigarette tobaccos. The meteorite and tektite were finely powdered in an agate mortar, each wrapped in a small pieces of aluminum foil and then made into discs with a diameter of

9 mm and about 4 mm high. The cigarette samples were taken from commercial cigarette packets available on the open markets. The wrapping paper and filters were rejected, and the tobaccos were individually powdered in an agate mortar. They were dried at 90°C for 24 h as recommended by NBS for Orchard Leaves.¹⁸⁾ Portions each weighing 1 g were pelletized for irradiation. In all cases, the sample and the comparative standards were stacked in a silica tube so that the standards were placed on the front and back of the sample for simultaneous irradiation.

2.2 Irradiation

A linear electron accelerator of Tohoku University was the bremsstrahlung source. All irradiations were performed with the high-current accelerating section of the machine, which provided a high-intensity electron current, the peak current being at least 100 mA, with energies up to 75 MeV. The pulse repetition rate was mostly 200 pps with a pulse width of 3 μ sec. The electrons were made to impinge on a 3-mm thick platinum target located 3 cm from the beam exit window. The average beam current was measured at the converter using a current monitor, and found, for typical operating conditions, to be 70 - 100 and 150 - 200 μ A at 30 and 60 MeV, respectively. The tube containing the samples was aligned along the beam axis with the front face of the tube. Further detail involving the operation characteristics and the target-sample configuration used for activation was reported earlier.¹⁷⁾ In order to prevent chemical decomposition of organic materials during irradiation, these samples were positioned far from the converter. Under the typical irradiation conditions with a 70 μ A beam (on the average) of 30 MeV electrons, no significant

damage was observed for a period of up to 2 h at 10 cm, or up to 6 h at 15 cm, downstream from the converter. Irradiations lasted 1 - 6 h.

2.3 Radioactivity measurement

The counting equipment consisted of a lithium-drifted germanium detector with a sensitive volume of 33 cm³, ORTEC Model 8101-0525, and its associated electronics coupled to a 4096-channel pulse-height analyzer made by Toshiba Electric Co. Ltd., Japan. The counting system had a resolution of 2.4 keV for the 1332 keV gamma-line of ⁶⁰Co. Additionally, a 68-cm³ Ge(Li) detector, Camberra Model 7200-7600-1423, coupled to a 4096-channel pulse-height analyzer was also used. In the case of a sample in an aluminum wrapper, the wrapping foil was rejected and the content was again wrapped in aluminum foil for gamma-counting. Counting has been made consecutively for increasing intervals over a period of one month or longer. To absorb positrons from a number of positron emitting nuclides, if needed, lucite plates with proper thickness were placed on the front and back of the sample to be measured. Characterization of gamma-rays was obtained from a knowledge of the gamma-ray spectra gained by irradiating pure elements and nuclear data listed in the Table of Isotopes.¹⁹⁾ In obtaining full-energy peak areas, total peak counts were computed and background contributions were subtracted, assuming linear variation of background over the peak of interest. Decay curve analyses were made to check for interferences. To the initial decay rates of the various products, normalizations were applied for dose rate and sample weight.

2.4 Yield determination

A yield was defined as the rate of production of a nuclide

due to a certain photonuclear reaction in dps at the end of irradiation of one mole of a parent nucleus. This was converted to the corresponding saturation rate. With 30 MeV bremsstrahlung, the dose rate was determined in the same manner as reported earlier,¹⁷⁾ and the yield was expressed in the form of dps/mole · R. In obtaining the yield values at much higher excitation energies, those values for both the $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$ and the $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ reactions were calculated as functions of bremsstrahlung maximum energy by using the tables of the bremsstrahlung spectrum for a thin platinum radiator,²⁰⁾ energy flux required to produce unit roentgen vs. the photon energy,²¹⁾ and excitation functions for the above reactions.^{22, 23)} For instance, the yield values used as reference at 60 MeV were 2.99×10^6 / mole · R for the $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$ reaction and 1.00×10^5 / mole · R for the $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ reaction. In a typical operating condition at 60 MeV, a dose rate of 1.37×10^7 R/min was obtained at the sample position. This dose rate corresponds to about three times higher than that obtained at 30 MeV. In some cases, proper wet-chemical steps were introduced to separate much lower activities of interest from an irradiated sample.

2.5 Abundance determination

The concentrations of each element in 12 samples subjected to analyses were calculated by means of the comparative method. A mean specific activity in terms of the peak areas for any specified gamma-rays from the comparative standards on both sides was used for calculating the abundance of an element in question. In order to provide information on the reproducibility of the method, analyses were performed in duplicate for each of the sample materials.

§ 3. Results and discussion

3.1 Reaction yield

Yields of various photonuclear reactions determined with 60 MeV bremsstrahlung were plotted against the atomic number of the elements as shown in Fig. 1. Figure 1 covers the yields of the reactions of the types (γ, n) , $(\gamma, 2n)$, $(\gamma, 3n)$, $(\gamma, 4n)$, (γ, p) , $(\gamma, 2p)$, (γ, pn) , (γ, α) and $(\gamma, \alpha n)$. In many cases, a radioactive end-product can be formed through several different reaction paths in an irradiated element. The main reaction path was assumed by considering natural isotopic abundances, mass-thresholds, potential barrier heights and other nuclear effects. In comparing the yield curves obtained here with those obtained previously with 30 MeV bremsstrahlung,¹⁷⁾ the shapes and the magnitude of the yield values for (γ, n) and (γ, p) reactions are almost similar each other. As have been observed and discussed earlier with 30 MeV bremsstrahlung, anomalously small

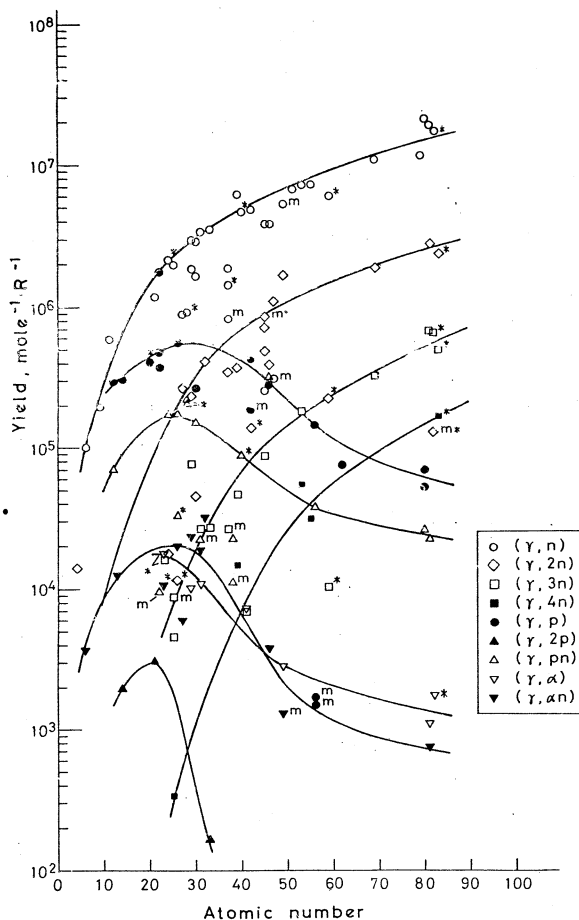


Fig.1. The reaction yields as a function of atomic number with 60MeV bremsstrahlung
 m: yields of metastable isomers,
 *: yields for the reactions on target nuclides of neutron or proton magic

yield values were obtained for the reactions on parent nuclides with magic neutron or proton numbers. The yields of metastable state isomers having the large spin differences from the target nuclei are also low in general. The yield of a reaction with the emission of more than one neutron or one proton appears to be strongly energy-dependent. As seen in Fig. 1, the yields for the (γ, xn) reactions appear likely to show almost an order of magnitude decrease with each unit increasing in x . The $(\gamma, 5n)$ reactions could occur even with 60 MeV bremsstrahlung in certain heavier elements e. g. bismuth. The marked enhancements of the yield values were also recognized for the (γ, pn) and $(\gamma, \alpha n)$ reactions which would involve the direct emissions of more energetic photoprotons or photo-alpha particles. For several lighter elements, the $(\gamma, 2p)$ reaction products were measured. Besides the reactions discussed above, several of the other complex reactions with the emission of more particles, up to 9, were observed. The yields for the reactions of such types are, however, very small, and usually found to be less than $10^3/\text{mole}\cdot\text{R}$. These reactions are generally of little practical use, but may cause severe interference problems in multielement photon-activation analysis.

3.2 Sensitivity and interference

Since a yield of photonuclear reaction is strongly energy-dependent, much higher sensitivity can be expected with much higher electron energy. With our accelerator, it can be improved by a factor of 3 for many elements. In nondestructive multielement analysis, however, severe interference problems have often be accompanied with higher electron energies. In our previous work,^{9,10,14} therefore, an electron energy of 30 MeV was selected. In Table I, the elements determinable by

Table I Pertinent nuclear data and detectability of the products

Element	Process	Product nuclide	Half-life	γ ray used for determination, keV	Other γ -rays observed**	Suitable decay time for measurement	Practical detection limit*		
							JB-1, μg	Orchard Leaves, μg	Air filter sample, ng/m ³
As	(r, n)	⁷⁴ As	17.9 d	596	634, 1204	10 - 15d	-	0.3	0.4
Ba	(r, n)	^{135m} Ba	28.7 h	268		1 - 2d	37	-	-
Br	(r, r')	⁷⁷ Br	57 h	521	239, 297, 579 219, 394, 593, 990, 1021, 1524 (⁴² K)	2 - 3d	-	36	120
Ca	(r, p)	⁴³ K	22.4 h	374		1 - 2d	123	140	85
Ca	(r, p)	⁴³ K	22.4 h	617		1 - 2d	200	190	110
Ca	(r, n)	⁴⁷ Ca	4.53 d	1298	160 (⁴⁷ Sc), 488 808	10 - 15d	470	130	140
Ce	(r, n)	¹³⁹ Ce	140 d	166	2280 (DE), 2793 (SE), 3320	30 - 40d	1.0	-	0.5
Cl	(r, n)	^{34m} Cl	32.0 m	2130		30 - 60m	-	200	90
Co	(r, n)	⁵⁸ Co	71.3 d	811	1811, 2110	30 - 40d	2.1	-	0.6
Cr	(r, n)	⁵¹ Cr	27.8 d	319		10 - 15d	13	-	3.6
Fe	(r, p)	⁵⁶ Mn	2.576h	847	386	2 - 5h	400	170	85
I	(r, n)	¹²⁶ I	13 d	667		10 - 15d	-	0.7	0.5
K	(r, n)	³⁸ K	7.71m	2170	1732 (DE), 2243 (SE), 2754	10 - 30m	130	2400	280
Mg	(r, p)	²⁴ Na	15.0 h	1368		1 - 2d	37	41	13
Mn	(r, n)	⁵⁴ Mn	303 d	835	1786 (sum)	>10d	5.2	2.5	2.5
Na	(r, n)	²² Na	2.60y	1275		>10d	82	6.9	31
Nb	(r, n)	^{92m} Nb	10.16d	934	1757, 1918	10 - 15d	0.5	-	-
Ni	(r, n)	⁵⁷ Ni	36.0 h	1378		1 - 2d	19	1.1	2.9
Pb	(r, n)	²⁰³ Pb	52 h	279	401	1 - 2d	-	7.5	12
Rb	(r, n)	⁸⁴ Rb	33.0 d	881	1076, 1897	10 - 15d	2.6	0.9	0.6
Sb	(r, n)	¹²² Sb	280d	564	1171 (^{120m} Sb)	1 - 2d	-	0.4	1.1
Sr	(r, n)	^{87m} Sr	2.83h	388	983, 1040	2 - 5h	3.9	0.5	0.04
Ti	(r, p)	⁴⁷ Sc	3.43d	160		2 - 5h	3.8	-	5.6
Ti	(r, p)	⁴⁸ Sc	1.83d	1314	898	1 - 2d	130	-	72
Y	(r, n)	⁸⁸ Y	108 d	1836		>10d	1.0	-	0.3
Zn	(r, p)	⁶⁷ Cu	59 h	185	93.3, 1115 (⁶⁵ Zn)	2 - 3d	-	18	20
Zr	(r, n)	⁸⁹ Zr	78.4 h	910		10 - 15d	1.1	0.1	1.4

* See the text for definition.

** SE and DE designate single and double escape peaks, respectively.

multielement photon-activation analysis are given together with the pertinent nuclear data, suitable decay times for measurements and practical detection limits. It is difficult to define the detection limits uniquely, since they strongly depend on the experimental conditions and the matrix nature. In this work, three different standard matrices were selected

and the estimation of the detection limits was based on the spectral data of these samples. They were measured at the time intervals shown in Table I and were calculated under the criterion in order to validate the peaks. They were the amounts of the elements to give a full-energy peak area which corresponded to three-sigmas of the area under the peak of interest, assuming 30 MeV bremsstrahlung activation for periods of 5 h for JB-1, 2 h for Orchard Leaves and 6 h for air-filter sample, 500 mg of JB-1, 1 g of Orchard Leaves and 500 m³ of urban air, and detection with a 33-cm³ Ge(Li) detector. The air-filter sample used for the present sensitivity estimation was the same sample subjected to analysis in our previous work.²⁴⁾ In selecting gamma-rays to be used for determinations, those of intense and free from spectral interferences were given prior consideration. The other peaks from same element, where available, were used for confirmations. For several elements, such as calcium and titanium, it was possible to select more than one gamma-ray to obtain precise abundance data. The spectral overlapping problems, where occurred, could normally be resolved by decay analyses. In certain instances, its contribution was calculated and subtracted from the photopeak under consideration. Some comments on these problems will be given later.

When the simultaneous determination of the elements in Table I are undertaken, a number of competing reactions can also take place, and, even in the energy region of 30 MeV bremsstrahlung, some of these contributions are serious depending on the matrix nature of the sample. These problems are demonstrated in Table II in which major competing reactions yielding the nuclides identical to those used for abundance determinations are listed. Degrees of their contributions were

Table II Interferences in multielement photon activation analysis
with 30 MeV bremsstrahlung

Element to be determined	Nuclide measured	Major competing reaction	-Q, MeV	Effect of interference *
As	⁷⁴ As	⁷⁶ Se (γ , pn) ⁷⁴ As	19.72	Se/As = 5.5×10^3
		⁷⁷ Se (γ , p2n) ⁷⁴ As	27.14	
Ba	^{135m} Ba	¹³⁹ La (γ , d2n) ^{135m} Ba	29.08	ND**
		¹⁴⁰ Ce (γ , α n) ^{135m} Ba	11.06	ND**
Br	⁷⁷ Br	⁷⁸ Kr (γ , p) ⁷⁷ Br	8.25	—
Ca	⁴³ K	⁴⁵ Sc (γ , 2p) ⁴³ K	19.06	Sc/Ca = 7.2×10^1
		⁴⁶ Ti (γ , 3p) ⁴³ K	29.41	ND**
Ca	⁴⁷ Ca	⁴⁹ Ti (γ , 2p) ⁴⁷ Ca	20.77	ND**
Ce	¹³⁹ Ce	¹⁴¹ Pr (γ , pn) ¹³⁹ Ce	14.34	ND**
Cl	^{34m} Cl	³⁹ K (γ , α n) ^{34m} Cl	20.00	K/Cl = 3.9×10^1
Co	⁵⁸ Co	⁶⁰ Ni (γ , pn) ⁵⁸ Co	20.02	Ni/Co = 7.2×10^1
Cr	⁵¹ Cr	⁵⁶ Fe (γ , α n) ⁵¹ Cr	19.74	Fe/Cr = 1.6×10^4
Fe	⁵⁶ Mn	⁵⁹ Co (γ , 2pn) ⁵⁶ Mn	28.12	ND**
		⁵⁵ Mn (n, γ) ⁵⁶ Mn	—	Mn/Fe = 2.8
I	¹²⁶ I	¹²⁸ Xe (γ , pn) ¹²⁶ I	17.32	—
		¹²⁹ Xe (γ , p2n) ¹²⁶ I	24.22	—
K	³⁸ K	⁴⁰ Ca (γ , pn) ³⁸ K	21.42	Ca/K = 4.9
Mg	²⁴ Na	²⁷ Al (γ , ³ He) ²⁴ Na	23.72	Al/Mg = 2.1×10^2
		²⁷ Al (n, α) ²⁴ Na	—	
Mn	⁵⁴ Mn	⁵⁶ Fe (γ , pn) ⁵⁴ Mn	20.48	Fe/Mn = 1.2×10^2
Na	²² Na	²⁴ Mg (γ , pn) ²² Na	24.11	Mg/Na = 7.7×10^1
		²⁷ Al (γ , α n) ²² Na	22.51	Al/Na = 1.3×10^3
Nb	^{92m} Nb	⁹⁴ Mo (γ , pn) ^{92m} Nb	17.46	Mo/Nb = 1.7×10^3
		⁹⁵ Mo (γ , p2n) ^{92m} Nb	24.60	
Ni	⁵⁷ Ni	None		
Pb	²⁰³ Pb	None		
Rb	⁸⁴ Rb	⁸⁶ Sr (γ , pn) ⁸⁴ Rb	20.06	Sr/Rb = 1.1×10^4
Sb	¹²² Sb	¹²³ Te (γ , p) ¹²² Sb	8.14	Te/Sb = 2.4×10^3
		¹²⁴ Te (γ , pn) ¹²² Sb	17.56	
Sr	^{87m} Sr	⁸⁹ Y (γ , pn) ^{87m} Sr	19.01	Y/Sr = 5.9×10^2
		⁹² Zr (γ , α n) ^{87m} Sr	14.89	ND**
		⁹⁰ Zr (γ , 2pn) ^{87m} Sr	27.32	
Ti	⁴⁷ Sc	⁵¹ V (γ , α) ⁴⁷ Sc	10.26	V/Ti = 2.4×10^1
		⁴⁸ Ca (γ , n; β^-) ⁴⁷ Sc	8.11	Ca/Ti = 6.8×10^1 (after 136 h)
Ti	⁴⁸ Sc	⁵¹ V (γ , ³ He) ⁴⁸ Sc	22.62	V/Ti = 1.7×10^3
		⁵¹ V (γ , pd) ⁴⁸ Sc	28.10	
Y	⁸⁸ Y	⁹⁰ Zr (γ , pn) ⁸⁸ Y	20.20	Zr/Y = 4.3×10^2
		⁹³ Nb (γ , α n) ⁸⁸ Y	13.76	ND**
Zn	⁶⁷ Cu	⁷¹ Ga (γ , α) ⁶⁷ Cu	5.14	Ca/Zn = 1.5×10^1
Zn	⁶⁵ Zn	None		
Zr	⁸⁹ Zr	⁹⁴ Mo (γ , α n) ⁸⁹ Zr	14.04	Mo/Zr = 2.3×10^4
		⁹² Mo (γ , 2pn) ⁸⁹ Zr	24.70	

* See the text for definition.

** Not detected.

also determined experimentally by irradiating each pure element with 30 MeV bremsstrahlung. These effects of interferences are given in the last column in Table II. They were expressed as a ratio of the weights of the elements to produce same amounts of the nuclide under consideration. In some cases, neutron-induced reactions other than the photonuclear processes are the major source of interferences. These interferences will be considered in detail in the later real analyses.

For nickel and lead, competing reactions can not occur energetically with 30 MeV bremsstrahlung activation. The ^{65}Zn activity is also free from competing reactions, but the 1115 keV peak of ^{65}Zn overlaps with nearby 1121 keV peak of ^{46}Sc from titanium. Hence, the interference-free zinc analysis using ^{65}Zn can be performed only for a sample of low titanium content like biological materials.

3.3 Multielement determination

3.3.1 Geological materials. In this work, the applicability and reliability of the method in this application with 30 MeV bremsstrahlung were demonstrated by analyzing 4 kinds of geological materials of different rock types, USGS G-1 granite, GSJ JB-1 basalt, Bruderheim meteorite and Indochinite tektite. The results obtained are shown in Table III. The analyses were made in duplicate and the results for the standard rocks are the averages with deviations from these values. The average relative deviation for all of the elements determined here based on duplicate samples was $\pm 4\%$. In comparing our results for G-1 and JB-1 rocks with those reported by Fleischer²⁵⁾ for the G-1 rock and by Ando et al.²⁶⁾ for the JB-1 rock, the average of the ranges between them was 8%. Repro-

Table III Elemental abundances of geological materials

Major constituent, %	USGS G-1 rock		GSJ JB-1 rock		Bruderheim meteorite* ⁴		Indochinite tektite* ⁴
	This work* ¹	Recommended Value* ²	This work* ¹	Literature* ³			
CaO	1.24 ± 0.07	1.39	9.35 ± 0.27	9.24	1.77, 1.90		1.98, 2.07
Fe ₂ O ₃	1.83 ± 0.05	1.94	8.74 ± 0.04	8.96	33.7, 33.6		5.19, 5.32
(Total Fe as)							
MgO	0.41 ± 0.02	0.38	7.96 ± 0.08	7.74	15.7, 16.2		2.06, 2.14
MnO	0.034 ± 0.002	0.03	0.14 ± 0.01	0.15	0.314, 0.295		0.093, 0.094
Na ₂ O	3.35 ± 0.02	3.32	2.73 ± 0.01	2.80	1.09, 1.09		1.32, 1.36
TiO ₂	0.26 ± 0.01	0.26	1.21 ± 0.01	1.34	0.11, 0.12		0.82, 0.83
Trace element, ppm							
Ba	1050 ± 5	1200	534 ± 50	490	345, 319		413, 440
Ce	207 ± 6	170	70 ± 2	67.3	1.2, 3.8		88, 89
Cr	ND	22	424 ± 10	405	3050, 3545		84, 72
Co	2.5 ± 0.1	2.4	42 ± 1	39.1	748, 731		12, 16
Ni	ND	1-2	129 ± 11	135	14800, 14400		30, 33
Nb	18 ± 1	20	15 ± 1	21	1.5, 1.1		11, 11
Rb	203 ± 7	220	46 ± 2	41.2	1.7, 1.7		124, 123
Sr	271 ± 6	250	448 ± 1	435.2	9.2, 7.1		132, 130
Y	15 ± 1	13	27 ± 1	25.5	3.5, 3.6		3.5, 3.6
Zr	209 ± 2	210	144 ± 3	153	6.9, 6.3		333, 336

* 1 Average of duplicate analyses. Range is the deviation from the mean.

* 2 M. Fleischer (1969).

* 3 A. Ando et al. (1974). Consensus averages.

* 4 Results of duplicate analyses.

ducible results were also obtained for 16 elements in Bruderheim and tektite. The elemental abundances in Bruderheim determined by this method are found to be quite similar to those for olivine-hypersthene meteorites reported by Greenland and Lovering.²⁷⁾ The results for the tektite are also compatible with the general composition of similar materials.²⁸⁾ Trace amounts of niobium in geological materials can successfully be determined by measuring the 934 keV peak of ^{92m}Nb, but the spectral overlapping with the 934 keV peak of ⁵²Mn produced by the reaction ⁵⁴Fe(γ, pn) ⁵²Mn required the correction for this contribution. This contribution could be estimated and subtracted from combined photopeak by using the 1432 keV peak of ⁵²Mn. It turned out to be 50% for Bruderheim meteorite

with very high iron content.

Calcium results in Table III are the average values obtained for each of the 374, 617 and 1298 keV peaks. The values obtained from these three different peaks fell within the range from the mean of $\pm 2\%$ for all of the samples studied. For titanium, both the 160 keV peak of ^{47}Ti and the 1314 keV peak of ^{48}Ti were used for quantitations, and the results were given as the average of the values from these two peaks. For most of the geological materials, major interference problems due to competing reactions are the $^{56}\text{Fe}(\gamma, \text{pn})$ ^{54}Mn contribution to the total ^{54}Mn activity in the manganese determination and the $^{27}\text{Al}(\text{n}, \alpha)$ ^{24}Na contribution to the total ^{24}Na activity in the magnesium determination. The ^{54}Mn activity due to the $^{55}\text{Mn}(\gamma, \text{n})$ ^{54}Mn reaction for a given sample was calculated as reported earlier.⁹⁾ A correction of 45% was required for the Bruderheim meteorite, which had the highest iron-to-manganese ratio among the rocks studied. The effects of interferences due to the $^{27}\text{Al}(\text{n}, \alpha)$ ^{24}Na reaction were corrected by using the value in Table II and the literature values for aluminum. A correction of 14.7% was required for G-1 rock which had the highest aluminum-to-magnesium ratio. Interferences from the sources other than the above were also considered and found to be negligible in all of the materials.

3.3.2 Biological materials. The NBS SRM-1571 Orchard Leaf sample was used to check the accuracy and precision of the method. This standard material was also used as the comparative standard for analysis of tobaccos. The results of elemental abundances in all of the materials studied are given in Table IV. Calcium results are the average values obtained for each of the 374, 617 and 1298 keV peaks. As seen in

Table IV Elemental abundances of biological materials

Element, ppm unless indicated	NBS SRM- 1571. This work* ¹	Orchard Leaves NBS* ²	Cigarette tobacco* ⁴							
			Imported				Japanese			
			Brand A		Brand B		Brand C		Brand D	
As	11±1	11±2	0.9, 1.0	0.8, 0.9	0.4, 0.4	0.6, 0.6				
Ca, %	1.97±0.05	2.09±0.03	2.41, 2.41	3.60, 3.52	2.23, 2.15	2.71, 2.59				
Cl, %	0.072±0.014	(0.07)	0.57, 0.58	0.47, 0.44	1.05, 1.13	1.45, 1.43				
Fe	332±84	300±20	466, 446	851, 806	330, 350	540, 500				
K, %	1.45±0.08	1.47±0.03	4.86, 4.92	2.89, 2.87	3.25, 3.33	4.04, 3.97				
Mg, %	0.615±0.007	0.62±0.02	0.483, 0.482	0.546, 0.553	0.458, 0.444	0.545, 0.539				
Mn	95±4	91±4	176, 178	134, 150	166, 163	227, 216				
Na	87±11	82±6	295, 283	119, 202	212, 207	251, 257				
Rb	13±1	12±1	14, 14	15, 18	20, 19	30, 30				
Sb	3.3±0.2	3.0* ³	<0.4	<0.4	<0.4	0.6, 0.5				
Sr	37±1	(37)	55, 52	81, 81	84, 80	106, 102				
Zn	27±3	25±3	32, 34	26, 30	96, 130	16, 21				

*1 Average of duplicate analyses. Error limits are standard deviations based on counting statistics of sample and standards.

*2 Certified values. Values in parentheses are NBS noncertified values.

*3 G. H. Morrison, N. M. Potter, Anal. Chem., 44 (1972) 839.

*4 Results of duplicate analyses.

Table IV, reproducibility of the method was again satisfactorily good. Our values in Orchard Leaves are also quite compatible with the NBS certified values.²⁹⁾ When the values from duplicate analyses were averaged and compared with those certified by NBS, the relative deviations from the means based on 9 elements were within 11%. When considering the low aluminum-to-magnesium ratios in ordinary plant materials, the $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$ interference does not cause a serious problem, normally less than 0.1%. As to the $^{56}\text{Fe}(\gamma, pn)^{54}\text{Mn}$ interference in the manganese analysis, a correction of 3.4% was required for Orchard Leaves. The elements determined here include essential minor elements such as Ca, Cl, K, Na and Mg, essential trace elements such as Fe, Mn and Zn, and possibly toxic elements such as As and Sb. This method appears likely to provide accurate and precise results for Rb and Sr in biological materials. As seen in the analytical results for cigarette tobaccos, there are considerable variations of the concentrations of the elements from one brand to another.

Since minor elements are usually in a highly mobile form, their levels would depend on differences in growing conditions and on different sources including the soil, fertilizers and agricultural sprays. The levels could also have varied by handling processes in the cigarette manufacture.

§ 4. Conclusion

Because of the multielement capability and reasonable sensitivity and reliability, photon-activation analysis can be applied to the multielement determination in materials of a broader range as a useful complement to other analytical method. The amount of activation, or sensitivity, is very dependent on electron energy, but the interference problems become serious under such conditions. The yield data for various photonuclear reactions presented in this work should, therefore, be valuable in estimating the relative probability of forming a nuclide of interest from adjacent elements in the periodic table. Of the elements determinable by this method, Pb, Y and Zr are the elements to which the instrumental thermal-neutron activation analysis can hardly be applied. Because of a number of elements to be determined, the use of a multielement material with the similar nature of the matrix and the elemental abundances is desired as the comparative standard. The JB-1 basalt and Orchard Leaves can be used better as the comparative standards than the synthetic materials in multielement photon-activation analysis of geological and biological materials, respectively.

The authors would like to express their appreciation to members of linac machine and radioisotope groups at the Institute of Nuclear Science, Tohoku University, for their kind cooperation with the irradiations.

References

- 1) J. A. Cooper: Nucl. Instr. **106** (1973) 525.
- 2) J. V. Gilfrich, P. G. Burkhalter and L. S. Birks: Anal. Chem. **45** (1973) 2002.
- 3) C. Engelmann: *Advance in Activation Analysis* ed. J. M. A. Lenihan, S. J. Thomson and V. P. Guinn (Academic Press, London, 1972) Chap. 1.
- 4) J. Hoste, J. Op de Beeck, R. Gijbels, F. Adams, P. Van den Winkel and D. De Soete: *Instrumental and Radiochemical Activation Analysis* (Butterworths, London, 1971) p.87.
- 5) G. J. Jutz: Anal. Chem. **41** (1969) 424.
- 6) L. Kosta, M. Dermelj and J. Slunečko: Pure & Appl. Chem. **37** (1974) 251.
- 7) R. A. Schmitt, T. A. Linn Jr. and H. Wakita: Radiochim. Acta **13** (1970) 200.
- 8) J. S. Hislop and D. R. Williams: Rept. U. K. Atom. Energy Auth., AERE-R 6910 (1971).
- 9) T. Kato, I. Morita and N. Sato: J. Radioanal. Chem. **18** (1973) 97.
- 10) N. Sato, T. Kato and N. Suzuki: Radiochim. Acta **21** (1974) 63.
- 11) G. H. Anderson, F. M. Graber, V. P. Guinn, H. R. Lukens and D. M. Settle: *Nuclear Activation Techniques in the Life Sciences* (Amsterdam, IAEA, Vienna, 1967) p.99.
- 12) J. S. Hislop and D. R. Williams: J. Radioanal. Chem. **16** (1973) 329.
- 13) R. D. Cooper, D. M. Kinekin and G. L. Brownell: *Nuclear Activation Techniques in the Life Sciences* (Amsterdam, Vienna, 1967) p.65.
- 14) T. Kato, N. Sato and N. Suzuki: Anal. Chim. Acta, in the press.

- 15) N. K. Aras, W. H. Zoller, G. E. Gordon and G. J. Lutz:
Anal. Chem. **45** (1973) 1481.
- 16) A. Chattopadhyay and R. E. Jervis: Anal. Chem. **46** (1974)
1630.
- 17) T. Kato: J. Radioanal. Chem. **16** (1973) 307.
- 18) Provisional certificate of analysis, SRM-1571, Orchard
Leaves, National Bureau of Standards, Washington, D. C.,
January, 1971.
- 19) C. M. Lederer, J. M. Hollander and I. Perlman: *Table
of Isotopes* (Wiley, New York, 1967) 6th ed.
- 20) A. S. Penfold, J. E. Leiss: *Analysis of Photo Cross
Sections* Rept. Physics Res. Lab., Univ. Illinois, (1958).
- 21) H. E. Johns, L. Katz, R. A. Douglas and R. N. H. Haslam:
Phys. Rev. **80** (1950) 1062.
- 22) L. Katz and A. G. W. Cameron: Canad. J. Phys. **29** (1955)
73.
- 23) W. C. Barber, W. D. George and D. D. Reagan: Phys. Rev.
98 (1955) 73.
- 24) T. Kato and N. Sato: Research Report of Laboratory of
Nuclear Science, Tohoku Univ. **7** (1974) 164.
- 25) M. Fleischer: Geochim. Cosmochim. Acta **33** (1969) 65.
- 26) A. Ando, H. Kurasawa, T. Ohmori and E. Takeda: Geochem.
J. **8** (1974) 175.
- 27) L. Greenland and J. F. Lovering: Geochim. Cosmochim.
Acta **29** (1965) 821.
- 28) C. C. Schnetzler and W. H. Pinson, Jr.: *Tektite* ed. J.
A. O'Keefe (Univ. Chicago Publ., 1963) p.95.
- 29) P. D. LaFleur: J. Radioanal. Chem. **19** (1974) 227.

Ⅲ－５ リニアック電子線パルスの N_2O 化学線量測定

東工大理，核理研* 理学部化学**

南波秀樹・新坂恭士・旗野嘉彦

八木益男*・塩川孝信**

本研究は，核理研リニアックによって放射線化学的研究を行う場合に必要の基礎データを得るために行われたもので，リニアックからの電子線パルス（42 MeV， $3\mu\text{sec}$ ）について， N_2O 化学線量測定法を適用して，吸収線量，線量率およびパルス毎の強度再現性を求めた。吸収線量は $1 \times 10^{16} \text{ eV/g} \cdot \text{pulse}$ ，線量率は $3 \times 10^{21} \text{ eV/g} \cdot \text{sec}$ ，強度再現性は $\pm 20\%$ であった。

§ 1. 序 論

放射線化学反応を研究するにあたっては，試料に吸収された放射線エネルギーの量（吸収線量）と単位時間あたりの吸収線量（線量率）を，まず知っておく必要がある。さらにその放射線がパルスの場合には，パルス毎の線量率の再現性・安定性を確認しておく必要がある。

さて，亜酸化窒素（ N_2O ）は放射線照射により分解し，その分解主生成物 N_2 が安定でしかも容易に検出定量でき，さらにその生成量と吸収線量が後に述べるように各種放射線の幅広い線量率範囲にわたって直線関係にあることが知られていることから，低線量率下¹⁾，超高線量率下^{2,3)}のいずれの場合も化学線量計として用いられている。

本研究はリニアック電子線加速器を線源として放射線化学反応を研究するための基礎的データを得るために， N_2O を用いて，吸収線量，線量率，およびパルス毎の強度再現性を求めることを目的として行った。

§ 2. 実 験

2.1 試 料

高純度 N_2O （高千穂商事製；純度 99.95%以上）を，液体窒素を用いてくり返し脱ガスし，主要不純物である N_2 ， O_2 を十分除去し，試料として用いた。

2.2 照射用セル

硬質ポリブデンガラス製の円筒状セル（外径 24 mm，内径 22～23 mm，高さ 130 mm，体積 50cm^3 ）に，外径 10 mm のブレイカブルシールをつけたものを用いた。

2.3 試料採取

2.2のセルにテスラーコイルならびに加熱処理をして脱ガスを行い、 10^{-5} torr 以下に長時間排気し、これに2.1の試料を 900 torr 採取し、熔封した。

2.4 照 射

核理研のリニアック(42 MeV)のビームダクトからビーム軸上2 m離れた位置にセルを固定し、照射した。なお照射に先だって、セルと同じ位置に置いたアクリル板で電子線ビームの中心とセルの軸あわせを行い、さらにアクリル板に貼付したプラスチックカラードシメーターで概略の線量を見つもった上でパルス照射を行った。パルス数は計数器で記録させ、5個のセルについてそれぞれ845, 2451, 4526, 7459, 11815パルスであった。照射直後ガラスおよび試料は多少の放射能を帯びたが、その半減期は短いものであり、またG(N₂)に対するその効果は無視しうと思われる。

2.5 生成物の分析

照射した試料を液体窒素を用いて分留し、N₂とO₂をN₂Oから分別し、テフラポンプを用いてすべてくみとり、ガスクロマトグラフ(モレキュラシーブ5Aカラム, He キャリヤー)により分離・定量した。

§ 3. 実験結果及び考察

パルス数に対してN₂の生成量をプロットしたのが、第1図である。この直線の傾きは $(1.0 \pm 0.2) \times 10^{15}$ molecule / g · pulse となる。試料採取・分析に伴う誤差は数%以内であるからこの誤差はほぼパルス毎の線量の再現性を表わしていると考えられる。この誤差はかなり大きいので、生成物分析による化学的な研究の場合も、またパルスラジオリシスなどの場合も、より精確なたとえばパルスごとの電流値のモニターを行う等の手段を講ずるのが望ましいと思われる。

誤差が大きいためには明白ではないが、N₂生成量の切片が正の値を示しているようである。 $[(0.23 \pm 0.93) \times 10^{18}$ molecule / g]。これは、連続運転時のパルスの尖頭電流値が最初の一発目で約200 mA という大きな値を示し、ついで約200 μ Aの程度まで落ちるという、このリニアックについてすでに知られている事実と対応するものと思われる。

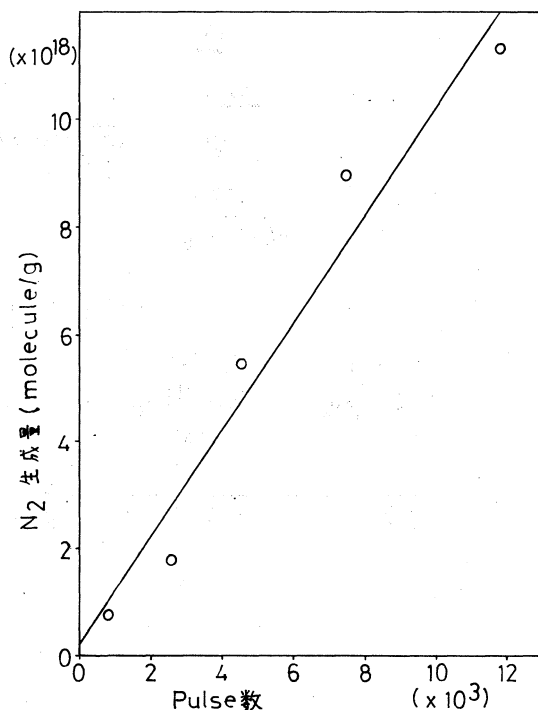
さて、⁶⁰Co γ 線のような低線量率($10^{14} \sim 10^{16}$ eV / g · sec) 下でのN₂生成のG値は、 $G(N_2) = 10.0^{1,4)}$ と求められており、 $G(N_2)$ 値に及ぼすこの範囲での線量率の効果はほとんどないとされている。^{1,4,5)}一方、Febetron の場合のような超高線量率($10^{27} \sim 10^{28}$ eV / g · sec) 下では

$G(N_2) = 12.3^{2,6)}$ と求められている。本研究に対応すると予想される線量率下での $G(N_2)$ を求めた研究はまだほとんどなされていない。しかし、上に述べたような広い線量率範囲においてさえも、 $G(N_2)$ の値は 10.0 から 12.3 に変化したのみであり、本研究におけるリニアック電子線パルスの場合これらの範囲に線量率があるのは確実であるので、ここでは $G(N_2) = 10$ を用いることにする。 $G(N_2) = 10$ を第 1 図の勾配の値に代入すると、線量は $1 \times 10^{16} \text{ eV/g} \cdot \text{pulse}$ となる。プラスチックカロードシメーターによる結果も同程度の値を示した。パルス半値幅は $3 \mu\text{sec}$ であるから、線量率はほぼ $3 \times 10^{21} \text{ eV/g} \cdot \text{sec}$ となる。

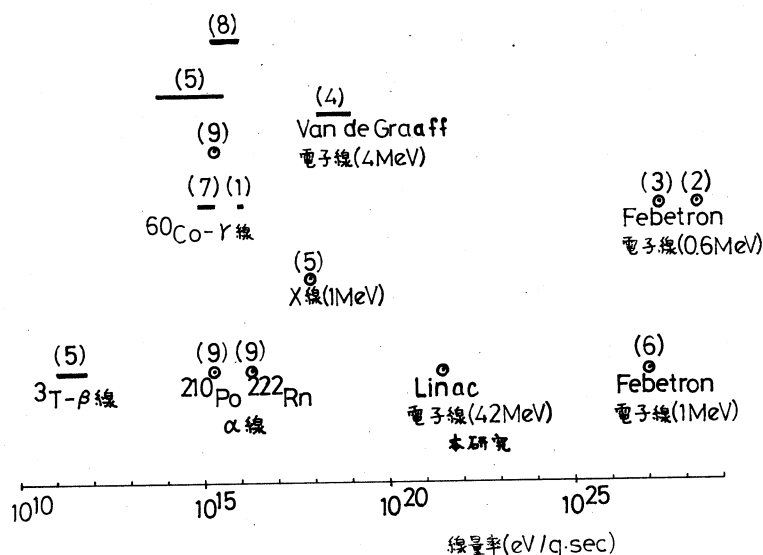
ここでこれまでに報告されている結果のうち主なものについて、放射線の種類

とその線量率をまとめると第 2 図のようになる。ここで () で示された数字は、それぞれ参考文献の数字に対応する。●印もしくは線で示された領域が対応する線量率を示し、その下の文字が放射線の種類を示している。中央のリニアック電子線とあるのが本研究の結果である。線量率の値は、すべて $N_2 O 1 \text{ g}$ あたりの吸収率に換算しなおしてある。

核理研リニアック電子線パルスに関する以上の結果を、生成物分析に基づく放射線化学的研究の場合とパルスラジオリシスの場合について考察してみると次のようになる。生成物分析の場合、たとえば、炭化水素等の放射線分解を行い、生成物の分析をガスクロマトグラフィーおよび PVT 測定によるとすれば通常全吸収線量として最小 10^{19} eV/g は必要である。したがって、このリニアックの場合、少なくとも 10^3 パルスの照射を行う必要があることがわかる。一方、パルスラジオリシスの場合、測定法（光吸収、発光あるいは電気伝導度など）および対象物質の相によって異なるので、一概に結論することはむずかしい。しかしきわめて大ざっぱに考察すれば、まず気相の場合、1 パルスあたりの線量 (10^{16} eV/g) の値から判断すると、測定



第 1 図 リニアック電子線の照射パルス数と N_2 生成量との関係



第2図 N_2O 化学線量測定法による従来の結果との比較

法はかなり限られたものになることが予想され、たとえ可能であっても S/N 増大に相当の工夫を要すると思われる。凝縮相の場合は電子線エネルギー (42 MeV) の大きさから判断して、すでに例があるように、実施は十分可能であると思われる。

参 考 文 献

- 1) S. Takao, S. Shida, Y. Hatano and H. Yamazaki: Bull. Chem. Soc. Japan **41** (1968) 2221; S. Takao, Y. Hatano and S. Shida: J. Phys. Chem. **75** (1971) 3178.
- 2) C. Willis, A. W. Boyd and O. A. Miller: Radiat. Res. **46** (1971) 428.
- 3) Y. Hatano, S. Takao, H. Namba, T. Ueno and S. Shida: Bull. Chem. Soc. Japan **47** (1974) 741.
- 4) F. T. A. Jones and T. J. Sworski: J. Phys. Chem. **70** (1966) 1546.
- 5) J. A. Hearne and R. W. Hummel: Radiat. Res. **15** (1961) 254.
- 6) C. Willis, A. W. Boyd and D. A. Armstrong: Can. J. Chem. **47** (1969) 3783.
- 7) G. R. A. Johnson: J. Inorg. Nuc. Chem. **24** (1962) 461.
- 8) K. Okazaki, R. Yugeta and S. Sato: Bull. Chem. Soc. Japan **46** (1973) 2066.
- 9) J. T. Sears: J. Phys. Chem. **73** (1969) 1143.

III-6 Diffusion of ^{28}Mg in Aluminum*

工学部金属材料 藤川辰一郎・平野賢一**

§ 1. Introduction

The impurity diffusion in Al has attracted attention of many workers, because such an investigation gives fundamental information to clarify the interaction of vacancies with impurities and the effect of impurities or alloying elements on many important phenomena, such as precipitation, recrystallization and grain boundary migration, in Al alloys.

Investigation fo the impurity diffusion of Mg in Al by means of the radioactive tracer of Mg is interesting from the following aspects. (1)Mg is one of the most important alloying elements in commercial Al alloys. The diffusion data are useful to analyse the fundamental behaviors of Mg in Al alloys. There are many investigations regarding the interdiffusion of Al-Mg system, but the results differs significantly among workers. (2)Recently, several theoretical works have been carried out for the impurity diffusion of Mg in Al by using the pseudopotential methods. It is interesting to make a comparison between the experimental results and theoretical results obtained by using the pseudopotential methods or Le Claire' theory. (3)The study of the impurity diffusion of Mg

* A preliminary result was published in Reference (2).

** Shinichiro Fujikawa and Ken-ichi Hirano: Department of Materials Science, Faculty of Engineering, Tohoku University, Sendai, Japan

in Al can provide useful informations to decide whether the Mg atom-vacancy binding energy is small (< 0.01 eV) or large (> 0.2 eV). No data have not been available for the diffusion of Mg in Al when the present work has been started. Recently, Rothman et al.¹⁾ have measured the impurity diffusion coefficients of Mg using ^{28}Mg produced by $^{26}\text{Mg}(\text{t},\text{p})^{28}\text{Mg}$ reaction.

In the present work, the impurity diffusion coefficient of Mg in Al in the temperature range between 325° and 650°C were determined using carrier-free ^{28}Mg prepared by means of $^{30}\text{Si}(\gamma, 2\text{p})^{28}\text{Mg}$ reaction.²⁻⁴⁾ The results are discussed in view of the above mentioned aspects.

§ 2. Experimental procedures

2.1 The preparation of carrier-free ^{28}Mg

Fine powder to highly pure Si metal (purity: more than 99.999%) was used as the target and 1.2 g Si was sealed in a quartz tube 10 mm in diameter.

The irradiations were carried out by using the bremsstrahlung of the Tohoku University 300 MeV Electron Linear Accelerator. The Linac was operated at electron energies of 60 MeV for 7~40 hours. The pulse width of the electron beam was 3.0 μsec , and the repetition rate was 300 pulses per sec. The sample tube was placed horizontally on the axis of the electron beam in close contact with the back of a platinum converter 2 mm thick and cooled by running tap water. At the converter position, the collimated electron beam had a diameter of about 5 mm. The beam intensity was kept constant throughout the irradiation by means of a feed-back loop involving a core monitor. The intensity in the average beam current at 60 MeV was 220 μA .

The chemical separation procedures for carrier-free ^{28}Mg and the nuclide identification were already described in the elsewhere.²⁻⁴⁾

2.2 Diffusion experiment

Highly pure Al rods* (purity: more than 99.999%) were machined to prepare specimens in the form of a column 13 mm in diameter and 13 mm in height. The specimens were annealed in a high vacuum furnace at 600 °C for 1 month and then furnace-cooled. The resultant specimens contained only two or three grains per section. One face of each specimen was carefully ground with Si carbide paper, then polishing by buffing. To remove Al oxide layer, the specimens were electropolished in a solution of ethylalcohol and perchloric acid. ^{28}Mg in the form of chloride was dried on the flat surface of specimens. Then, a small amount of methylalcohol was added to the solution containing ^{28}Mg to avoid inhomogeneous distribution of ^{28}Mg on the surface. The metallic tracer was produced by the reaction of the chloride with Al in the very early stage of diffusion annealing. The specimens were then annealed for diffusion in a silica tube containing about 200 mm Hg purified helium. Annealing temperature for the diffusion of ^{28}Mg varied in the temperature range between 325° and 650 °C. The diffusion annealing was carried out in a resistance furnace controlled to ± 1 °C. Annealing time was made as long as possible.

After the diffusion annealing, the cylindrical surface and the bottom of the specimen was reduced by a depth of about 1 mm using a precision lathe. This procedure eliminated the

* prepared from 99.99% Al by repetition (10 pass) of zone refining .

possible effects of surface diffusion and vaporization of ^{28}Mg from the deposited layer. Each specimen was analysed by the residual-activity technique where thin layers from the specimen surface were removed successively by grinding them parallel to a flat surface. To count the total residual-activity on the surface of the specimens after each grinding, a well-type NaI (Tl) scintillation counter and 400-channel pulse-height analyser were used. The channel width of the latter was adjusted to count the γ -radiation of energies 0.942 and 1.34 MeV. The thickness of the layer removed was measured by the weight loss method using Shimadzu microbalance with the precision of ± 0.005 mg.

The solution of Fick's second equation for a very thin radioactive layer at the end of a sufficiently long rod, analysed by the residual-activity technique⁵⁾ is given by

$$\begin{aligned}\mu I_n - \frac{dI_n}{dX_n} &= k_1 \cdot c(X_n) \\ &= k_2 \cdot \exp(-X_n^2/4Dt),\end{aligned}\tag{1}$$

where μ is the linear absorption coefficient of the γ -radiation of ^{28}Mg in Al in cm^{-1} , I_n is the surface activity in counts per unit time after a thickness X_n (cm) is removed, $k_1 + k_2$ is constant and $c(X_n)$ is the radioactive concentration at a distance X_n from the original surface. D is the diffusion coefficient in cm^2/sec , and t is annealing time in sec. For the obtained diffusivity, correction of the thermal expansion of pure Al was carried out. The mean value $\mu^{(6)}$ is 0.157 cm^{-1} for the energy of the γ -radiation used in the present investigation.

§ 3. Results

Fig. 1 and Fig. 2 shows the penetration plots of $\ln(\mu I_n - \frac{dI_n}{dX_n})$ vs. X_n^2 for the diffusion of Mg in Al in the temperature range between 350° and 650°C . Within experimental error, a

good linear relationship is obtained. Usually, the penetration curve consists of three regions; namely, the region I (near-surface region with steep slope), the region II (situated between the region I and the region III) and the region III (region penetrated deeper with gentle slope). The region I on the penetration plot is nearly absent in the whole temperature range. On the other hand, the region III is observed in the present work, when the sectioning is carried out to a sufficient depth. In Fig. 1 and Fig. 2, only the region II is shown. Generally, the diffusion coefficient obtained from the region II corresponds to true volume (lattice) diffusivities. Therefore, in the present work diffusivities were determined only from the region II using eqn.(1). The diffusivities determined in such a way are listed in Table I. Fig. 3 shows the temperature dependence of diffusivities

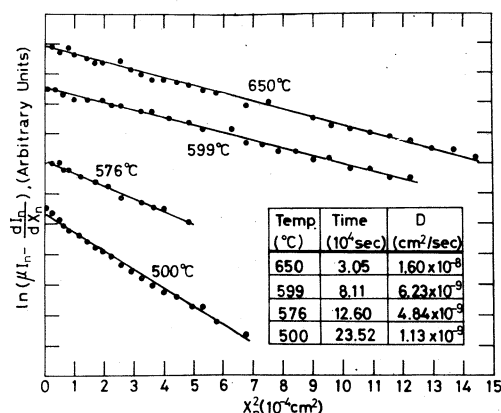


Fig.1. $\ln(\mu I_n - \frac{dI_n}{dX_n})$ vs. X_n^2 plots for the diffusion of ^{28}Mg in Al in the temperature range 500° and 650 °C.

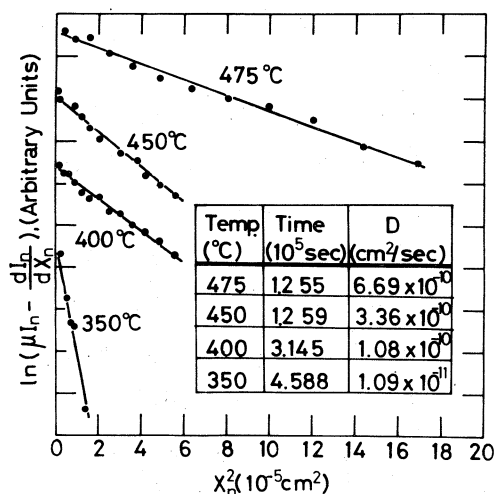


Fig.2. $\ln(\mu I_n - \frac{dI_n}{dX_n})$ vs. X_n^2 plots for the diffusion of ^{28}Mg in Al in the temperature range 350° and 475 °C.

compared with other works. The values obtained by Takada and Moreau *et al.* in Fig. 3 are the inter-diffusion coefficients ($\tilde{D}$) extrapolated to infinitesimal Mg concentration. The diffusivities of Mg in Al obtained by present work does not agree with those by Rothman *et al.*, especially, at higher temperatures. In the whole temperature range of the present investigation, the temperature dependence of the diffusivity could be indicated by a single straight line. The least-squares values for the temperature dependence of the diffusivity is given by

Table I Diffusivity of Mg in Al

Temperature (°C)	Time (10 ⁴ sec)	D (cm ² /sec)
650	3.05	2.10×10^{-8}
650	3.05	1.60×10^{-8}
650	2.34	1.84×10^{-8}
640	3.65	1.89×10^{-8}
630	5.06	1.87×10^{-8}
630	4.68	1.79×10^{-8}
615	3.60	9.32×10^{-9}
615	3.60	8.09×10^{-9}
599	8.11	6.23×10^{-9}
599	8.11	6.43×10^{-9}
576	12.60	4.84×10^{-9}
525	8.51	1.85×10^{-9}
525	8.51	2.14×10^{-9}
500	23.69	1.13×10^{-9}
500	23.52	1.09×10^{-9}
475	12.55	6.69×10^{-10}
450	12.59	3.36×10^{-10}
425	30.59	1.75×10^{-10}
400	31.45	1.08×10^{-10}
375	40.39	3.23×10^{-11}
350	45.88	1.18×10^{-11}
350	45.88	1.09×10^{-11}
325	41.08	5.57×10^{-12}

$$D_{\text{Mg/Al}} = \left(0.0623 \begin{smallmatrix} +0.0126 \\ -0.0103 \end{smallmatrix} \right) \exp \{ - (27.5 \pm 0.28) \text{ kcal/mol/RT} \} \text{ cm}^2/\text{sec}. \quad (2)$$

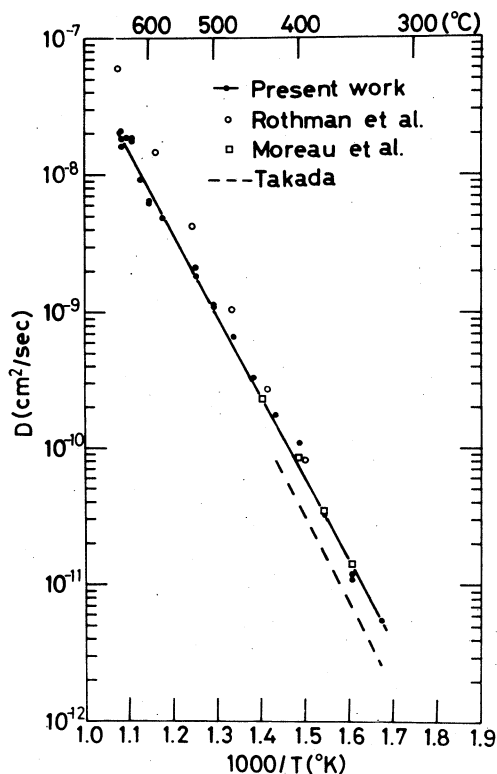


Fig.3. Temperature dependence of the diffusivities of ^{28}Mg in Al, along with the interdiffusion coefficients.

§ 4. Disussion

4.1 Comparison of present results with those of other workers

Table II summarizes values of the pre-exponential factor (D_0) and activation energy (Q) for the diffusion of Mg in Al, obtained by the present work along with the values of the self-diffusivity and the diffusivity of Mg and other in Al by the previous investigators. It is noted that our values of D_0 and Q for the diffusion of Mg in Al are rather smaller than

Table II Diffusion parameters for the diffusion of in Al, Mg, Zn, Cd and Al

Diffusion atom	D_0 (cm^2/sec)	Q (kcal/mol)	Temp. range ($^{\circ}\text{C}$)	Worker
Mg	$0.0623^{+0.0126}_{-0.0103}$	27.5 ± 0.28	325 – 650	Present work
	$1.24^{+0.23}_{-0.21}$	31.15 ± 0.28	394 – 655	Rothman <i>et al.</i> ¹⁾
	1 *	$31.0 \pm 1.2^*$	250 – 440	Moreau <i>et al.</i> ⁸⁾
	0.1 *	29.0 *	325 – 425	Takada ⁷⁾
Zn	$0.177^{+0.047}_{-0.037}$	28.0 ± 0.3	165 – 645	Fujikawa <i>et al.</i> ⁹⁾
Cd	1.04	29.7 ± 0.26	441 – 634	Alexander <i>et al.</i> ¹⁰⁾
Al	2.25	34.6	400 – 610	Beyeler <i>et al.</i> ¹¹⁾
	0.045	29.3 ± 0.23	250 – 648	Sun, Seeger ¹²⁾

* calculated from temperature dependence of the interdiffusion coefficients at the infinitesimal Mg concentration.

those of Rothman *et al.*, but nearly equal to those of Takada. As shown in Fig. 3, the straight line calculated by the least squares method fitted the values of $\tilde{D}$ of Moreau *et al.* Using their values above 350 $^{\circ}\text{C}$, $\tilde{D}_0$ and $\tilde{Q}$ are calculated as follows: $\tilde{D}_0 = 0.0728 \text{ cm}^2/\text{sec}$ and $\tilde{Q} = 27.6 \text{ kcal/mol}$. The values are in good agreement with D_0 and Q of present work.

Here, we discuss causes why the present results and those of Rothman *et al.*¹⁾ differ from each other. The following differences can be found in the diffusion condition and analytical method of the two investigators. (1) The diffusion annealing in Rothman *et al.*' work took place under high vacuum. Their penetration plots show an evaporation region over deeper range from the flat surface, namely, about 70 μm at 394 $^{\circ}\text{C}$ and about 220 μm at 655 $^{\circ}\text{C}$. On the other hand, in the present work, the

diffusion annealing took place under helium atmosphere and evaporation of Mg from diffusion layer has not been observed. (2) The annealing in the present work is longer about one order than in Rothman *et al.*' work. (3) ^{28}Mg used in the present work is carrier-free. On the other hand, the specific activity of ^{28}Mg used in Rothman *et al.*' work is not high. (4) The range of diffusion temperature in the present work is wider than in Rothman *et al.*' work. Rothman *et al.* calculated the values of D from the deeper region than an evaporation region. Judging from the shorter annealing time, they probably determined diffusivity from the region considerably affected by the region III. It seems that the true region II, corresponding to only volume diffusion is included in the diffusion distance nearly equal to an evaporation region. In the present work, the specimens are diffused sufficiently and diffusivities have been determined from the region II. Taking the above described differences of both investigators into account, it may be concluded that the values of diffusivities, D_0 and Q obtained in the present work are more reasonable than those of Rothman *et al.*

Fig. 4 shows the temperature dependence of the diffusivities of Al, Cd, Mg and Zn in Al in the temperature range above about 300°C. Each straight line in Fig. 4 is drawn for the respective temperature range of experiment. The diffusivities of Mg in Al are larger than the self-diffusion of Al, but rather smaller than the diffusivity of Cd and Zn in Al. From the results shown in Fig. 4 and Table II, it can be said that though Cd, Mg and Zn have the same valence, the diffusion rate of the three elements in Al differs a little from each other and correlates the sequence of atomic number.

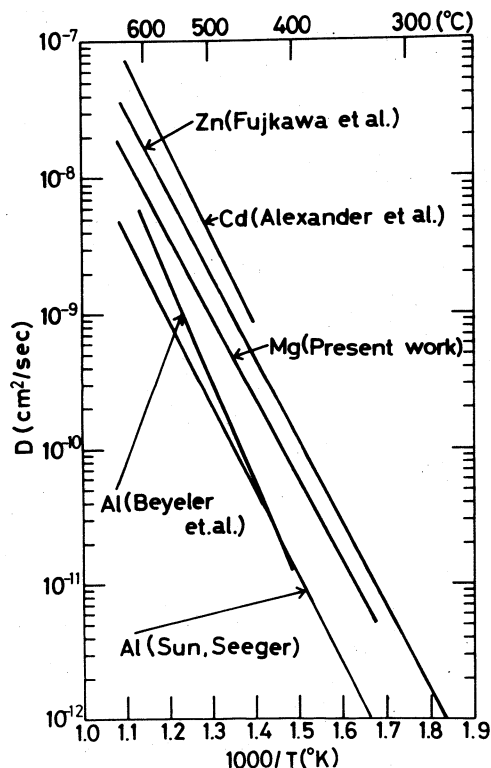


Fig.4. Comparison of the diffusivities of Mg in Al with those of Cd, Zn and Al in the same host metal.

4.2 Application of the electrostatic theory to the diffusion of Mg in Al, and Mg atom-vacancy binding energy

Here, we have calculated the screening potential about a Mg atom in a dilute Al-Mg alloy by a semiempirical method where the partial wave phase shifts are obtained from impurity resistivity per atomic percentage of the impurity in alloy and evaluated the difference in activation energy (ΔQ) between the impurity diffusion and self-diffusion of Al by Le Claire'

theory.¹³⁾ Moreover, the result was compared with the experimental results.

The screening potential¹⁴⁾ of Friedel type used in the present work is given by

$$V(r) = \frac{\alpha e}{4\pi K_F^2} \cdot \frac{\cos(2K_F \cdot r + \Phi)}{r^3} \quad (3)$$

where $V(r)$ is the electrostatic potential at a distance (r) from the impurity atom and K_F is the Fermi wave number for the solvent, α is constant and Φ is a phase angle. They are connected with the phase shifts by the following equations,

$$\left. \begin{aligned} \alpha \cos \Phi &= \frac{1}{2} \sum_{l=0}^{\infty} (-1)^l (2l+1) \sin 2\eta_l(E_F) \\ \alpha \sin \Phi &= \sum_{l=0}^{\infty} (-1)^l (2l+1) \sin^2 \eta_l(E_F) \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

where $\eta_l(E_F)$ is the phase shift corresponding to the l th partial wave evaluated at the Fermi surface. The impurity resistivity per atomic percentage of a Mg atom in a dilute Al-Mg alloy is given by

$$\Delta\rho = \left(\frac{\hbar K_F c}{Z_A e^2} \right) Q \quad (5)$$

where $\hbar$ is Planck constant, c is atomic fraction of Mg solute, Z_A is the valence of Al and Q is the total scattering cross section of a Mg atom for electrons at the Fermi surface of Al. Q can be related to the phase shifts of the l th partial wave (η_l) in the following.

$$Q = \frac{4\pi}{K_F} \sum_{l=1}^{\infty} l \sin^2(\eta_{l-1} - \eta_l) \quad (6)$$

The η_l is required to satisfy the Friedel sum rule

$$\Delta Z = \frac{2}{\pi} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) \eta_l(E_F) \quad (7)$$

where ΔZ is the valence difference between Mg and Al, viz. in units of $|e|$.

Blatt¹⁵⁾ has made the suggestion that if the impurity causes a significant lattice dilation (positive or negative), the Friedel sum rule should be modified by replacing ΔZ in eqn.

(7) by ΔZ_{eff} in the following.

$$\Delta Z_{\text{eff}} = \Delta Z - \frac{3}{r_E} \cdot \frac{\partial a}{a} \cdot Z_0 \quad (8)$$

where γ_E is given in terms of Poisson's ratio σ by $\gamma_E = 3(1-\sigma)/(1+\sigma)$, $(\delta a/a)$ is the fractional change of the lattice constant per atomic fraction of the solute, and Z_0 is the charge of the solvent. As it has been generally shown that in the calculation of α and Φ for the non-transition impurities only η_0 and η_I are the most significant, we ignored η_l ($l > 1$). ΔZ_{eff} , η_0 , η_I , α and Φ are calculated by inserting following reliable values in the eqs. (3), (4), (5), (6), (7) and (8): $\sigma^{16} = 0.349$ (at 297°K), $(\frac{1}{a}) \cdot (\frac{da}{dc})^{17} = + 0.0937$ per atomic fraction of Mg in Al, $\Delta \rho^{18} = + 0.36 \mu\Omega \text{ cm/at.}\%$ Mg and $K_F = 0.927$ (atomic units)¹. The calculated values in the present work are shown in Table III.

Table III Values of α and Φ for Mg in Al

$\frac{1}{a} \cdot \frac{da}{dc}$	ΔZ_{eff}	$\Delta \rho$ ($\mu\Omega \cdot \text{cm/at.}\%$)	η_0	η_I	α	Φ (radians)
+0.0937	-1.58	+0.36	-2.48	~ 0	+0.609	+0.656

The difference in activation energy between the impurity diffusion and the self-diffusion (ΔQ) is given by

$$\begin{aligned} \Delta Q &= Q_i - Q \\ &= \Delta H_f + \Delta H_2 - k \frac{\partial \ln f_i}{\partial (1/T)} \\ &= -\Delta E + \Delta H_2 - C \end{aligned} \quad (9)$$

where ΔH_f is the difference in the energy required to form vacancy next to an isolated solute in the solvent and in the pure solvent, and ΔH_2 is the difference in the jump energy between a vacancy-solute exchange and a vacancy-solvent

exchange in the pure solvent. The last term is the correlation factor term which arises due to the temperature dependence of the correlation factor f_i for the impurity diffusion. ΔE is the impurity-vacancy binding energy. f_i is given by

$$f_i = \frac{w_1 + (7/2)w_3}{w_1 + w_2 + (7/2)w_3} \quad (10)$$

here w_i have their usual meaning in the so-called five-frequency model.

Expressions for ΔH_f , ΔH_2 and C are obtained from the electrostatic-potential in terms of the charge on a vacancy $Z_v e$ and the potential $V(r)$ arising from the screened point charge Ze on the impurity atom.

The expressions for ΔH_f and ΔH_2 are

$$\Delta H_f = Z_v e V(r=a) \quad (11)$$

where V is evaluated at the nearest-neighbor distance a , and

$$\Delta H_2 = Z_v e V(r = \frac{11}{16}a) \quad (12)$$

where V is evaluated at $11/16 a$ which is the distance between the impurity and the centroids of the half-vacancy hemispheres that flank the impurity at the saddle point. ΔH_1 and ΔH_3 may be calculated in the same manner.

ΔH_1 is given by

$$\Delta H_1 = Z_v e V(r = 1.106a) \quad (13)$$

Each of the three types of w_3 jumps are associated with a different ΔH_3 . An average ΔH_3 may be obtained by taking a weighted mean of the three values of $\exp(-\Delta H_3/kT)$ $\exp(-\Delta H_3^{av}/kT)$

$$= \frac{1}{7} [2 \exp(-\Delta H_3^I/kT) + 4 \exp(-\Delta H_3^{II}/kT) + \exp(\Delta H_3^{IV}/kT)] \quad (14)$$

where $\Delta H_3^I = Z_v e V(r=1.017a) + Z_v e V(r=1.552a) - \Delta H_f$

$\Delta H_3^{II} = Z_v e V(r=0.921a) + Z_v e V(r=1.897a) - \Delta H_f$ and $\Delta H_3^{IV} = Z_v e V$

($r = \frac{13}{16}a$) + $Z_v eV(r = \frac{35}{16}a) - \Delta H_f$. The superscripts II, III and IV refer to vacancy jumps to second, third, and fourth nearest-neighbor positions relative to the impurity, respectively.

Table 4 shows the values of Q_{exp} , Q_{the} , ΔH_f , ΔH_2 , ΔH_3 and C obtained in the present work by using eqs. (9), (10), (11),

Table IV Comparison of theoretical and experimental values of ΔH_f , ΔH_i and ΔQ for diffusion of Mg in Al. All values are given in eV.

ΔH_f^{exp}	ΔH_f^{the}	ΔH_2	ΔH_1	ΔH_3^{II}	ΔH_3^{III}	ΔH_3^{IV}	ΔH_3	C	ΔQ_{the}	ΔQ_{exp}	Worker
	+0.018	-0.071	-0.047	-0.0071	+0.013	+0.029	+0.0084 ^{a)}	-0.0006 ^{a,b)}	-0.053 ^{a,b)}	-0.31 ^{b)}	Present work
								-0.021 ^{a,b)}	-0.032 ^{a,b)}	-0.078 ^{c)}	Present work
										-0.15 ^{b)}	Rothman <i>et al.</i> ¹⁾
										+0.08 ^{c)}	Rothman <i>et al.</i> ¹⁾
	-0.03	+0.24						+0.03 ^{d)}	+0.18		Du Chame <i>et al.</i> ¹⁹⁾
	-0.008			-0.007	+0.009	-0.001	+0.003 ^{e)}				Takai <i>et al.</i> ²⁰⁾
	+0.064 ^{f)}										Takai <i>et al.</i> ²¹⁾
	-0.042 ^{g)}										Takai <i>et al.</i> ²¹⁾
	-0.009 ^{h)}										Takai <i>et al.</i> ²¹⁾
		+0.336 ^{h)}	+0.0856 ^{h)}	-0.0066 ^{h)}	+0.0092	-0.0009					Takai <i>et al.</i> ²²⁾
-0.01 ⁱ⁾											Bedman <i>et al.</i> ²³⁾
<-0.05 ^{j)}											McKee <i>et al.</i> ²⁴⁾
-0.20 ^{k)}											Takamura <i>et al.</i> ²⁵⁾

a) calculated at 500°C, b) taking $D_0^{\text{self}} = 2.25 \text{ cm}^2/\text{sec}$, $Q^{\text{self}} = 1.50 \text{ eV}$, c) taking $D_0^{\text{self}} = 0.045 \text{ cm}^2/\text{sec}$, $Q^{\text{self}} = 1.27 \text{ eV}$, d) calculated at 533°C, e) calculated at 600°C, f) calculated by using RPA approximation, g) calculated by using HS approximation, h) calculated by using SSTL approximation, i) obtained from the equilibrium method combined length and lattice parameter expansion, j) obtained from positron annihilation method, and k) obtained from quenching experiment.

(12), (13) and (14), along with the theoretical values and the experimental values by other workers. The values of D_0 and Q for the self-diffusion of Al is still in a little dispute and Table IV shows two extreme possibilities. However, in any

case the values of ΔQ_{the} and ΔQ_{exp} obtained in the present work are always negative, and moreover, both numerically agree with each other. The value of ΔQ_{exp} obtained in the present work is different from the value of $Q_{\text{the}}^{19)}$ calculated by using pseudopotential method in the sign and magnitude. Therefore, it can be said that the semiempirical method used in the present work can explain the value of ΔQ_{exp} more satisfactorily than the pseudopotential method.

We discuss in detail each of right-hand terms of eqn. (9) and moreover, deduce the Mg atom-vacancy binding energy. The experimental value of correlation term C for the diffusion of Mg in Al has not yet been reported. Recently, the value of C for the diffusion of Ag in Al has been determined from the temperature dependence of the isotope effect and found to be $C = -(0.069 \pm 0.008) \text{ eV}$.²⁶⁾ As the values^{*27)} of D_0 and Q for the diffusion of Ag in Al is nearly equal to those of present work, and the theoretical value of C obtained in the present work is nearly equal to the above described value, -0.069 eV may be taken as an approximate value for the diffusion of Mg in Al. Thus, in order to explain the negative numerically small value of ΔQ_{exp} obtained in the present work, the following approximations for ΔH_f and ΔH_2 must be realized: (1) both ΔH_f and ΔH_2 are small and negative, (2) ΔH_2 is small and negative, and ΔH_2 is large and negative, and ΔH_2 is positive or near-zero. The value of ΔE comes to be larger than 0.14 eV in the approximation (3), when -0.078 and -0.069 eV is substituted into ΔQ and C of eqn. (9), respectively. However, such a large value is inconsistent with ΔH_f^{the} in Table IV and $\Delta H_f^{\text{exp } 23), 24)}$ determined by equilibrium technique. Therefore,

* $D_0 = 0.118 \text{ cm}^2/\text{sec}$, $Q = (27.83 \pm 0.14) \text{ kcal/mol}$

the approximation (3) may be ruled out. In conclusion, it may be more probable that both ΔH_1 and ΔH_2 are small and negative. In addition, the large value of ΔH_2^{the} obtained by using the pseudopotential method can not be expected from the diffusion result obtained in the present work.

§ 5. Conclusions

The impurity diffusion coefficients of Mg in Al were determined by the residual-activity method with radioactive tracer, ^{28}Mg , in the temperature range between 325° and 650°C . In the present work, carrier-free ^{28}Mg was prepared by using the photo-nuclear reaction, $^{30}\text{Si}(\gamma, 2p)^{28}\text{Mg}$.

The dependence of the diffusivities of Mg in Al on temperature is given by the following equation:

$$D_{\text{Mg/Al}} = (0.0623^{+0.0126}_{-0.0103}) \exp\{-(27.5 \pm 0.280) \text{ kcal/mol/RT}\} \text{ cm}^2/\text{sec}.$$

We evaluated the difference in activation energy (ΔQ) between the impurity diffusion of Mg in Al and the self-diffusion of Al by the screening potential of Friedel type and Le Claire' theory. The theoretical value of ΔQ is in good agreement with the experimental value. Moreover, it was deduced that Mg atom-vacancy binding energy in Al was small ($< 0.01 \text{ eV}$).

Acknowledgements

The authors are grateful to members of the linac machine and radioisotope groups at the Institute of Nuclear Science, Tohoku University, for the facilities of the irradiations and the measurement with radioisotopes. This work was supported partly by the Light Metals Educational Foundation and Research and Development of Sumitomo Electrical Industry Co. Ltd.

References

- 1) S. J. Rothman, N. L. Peterson, L. J. Nowicki and L. C. Robinson: *phys. stat. sol. (b)* **63** (1974) K29.
- 2) S. Fujikawa, K. Hirano, Y. Masuo and K. Kondo: *Research Report of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University* **7** (1974) 361.
- 3) M. Yagi, A. Yamadera, S. Fujikawa and T. Shiokawa: *Research Report of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University* **8** (1975) 189.
- 4) M. Yagi, A. Yamadera, S. Fujikawa and T. Shiokawa: *Inter. J. Appl. Radiation Isotopes* **26** (1975) 637.
- 5) P. L. Gruzin: *Dokl. Akad. Nauk. SSSR* **86** (1952) 289.
- 6) A. L. Conner, H. F. Atwater and E. H. Plassmann: *Phys. Rev. A* **1** (1970) 539.
- 7) Y. Takada: *Master thesis*, 1973, Tohoku University.
- 8) G. Moreau, J. A. Cornet and D. Calais: *J. Nuclear Materials* **38** (1971) 197.
- 9) S. Fujikawa and K. Hirano: *to be published*.
- 10) W. B. Alexander and L. M. Slifkin: *Phys. Rev.* **B1** (1970) 3274.
- 11) M. Beyeler and Y. Adda: *J. de Phys.* **29** (1968) 345.
- 12) A. Seeger: *J. Phys. F: Metal Phys.* **3** (1973) 248.
- 13) A. D. Le Claire: *Phil. Mag.* **7** (1962) 141.
- 14) A. P. Blandin and J. L. Déplante: *J. Phys. Chem. Solids* **26** (1965) 381.
- 15) F. J. Blatt: *Phys. Rev.* **108** (1957) 285.
- 16) R. P. Reed: *Cryogenics* **12** (1972) 259.
- 17) J. E. Dorn, P. Pietrokowsky and T. E. Tietz: *J. Metals* **2** (1950) 933.
- 18) J. Takamura: *Lattice Defects in Quenched Metals* (Academic Press Inc., New York, 1965) p.521.

- 19) A. R. Du Charmé and G. K. Straub: *phys. stat. sol. (b)* **69** (1975) K23.
- 20) O. Takai, R. Yamamoto, M. Doyama and Y. Hisamatsu: *phys. stat. sol. (b)* **69** (1975) K5.
- 21) O. Takai, R. Yamamoto, M. Doyama and Y. Hisamatsu: *Phys. Rev. B* **10** (1974) 3113.
- 22) O. Takai, R. Yamamoto, M. Doyama and Y. Hisamatsu: Read at the 75th Annual Meeting of the Japan Institute of Metals, November, 1974.
- 23) D. R. Beaman, R. W. Balluffi and R. O. Simons: *Phys. Rev.* **137** (1965) A917.
- 24) B. T. A. McKee, A. T. Stewart and M. J. Stott: cited in "*Diffusion*" edited by ASM (1973).
- 25) J. Takamura, K. Okazaki and I. G. Greenfield: *J. Phys. Soc. Japan* **18**, Suppl. III (1963) 78.
- 26) D. Bartdorff and P. Reimers: *phys. stat. sol. (a)* **28** (1975) 433.
- 27) N. L. Peterson and S. J. Rothman: *Phys. Rev. B* **1** (1970) 3264.

Ⅲ - 7 Al-MgZn₂擬二元系合金の α 固溶体での²⁸Mgの拡散

工学部金属材料

藤川辰一郎・平野賢一

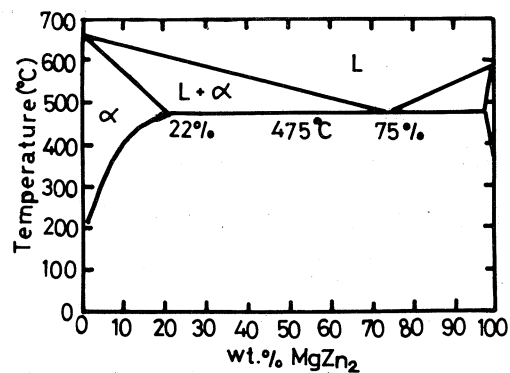
§ 1. 序 論

純Al中における種々の元素の不純物拡散に関しては、最近、多くの研究がなされている。しかし、Al合金における信頼できる不純物拡散および相互拡散の結果は極めて少ない。Al合金の溶体化および析出を運動論的に解析する上で、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-Zn-Mg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。従来、擬二元系合金での不純物拡散の研究は全くなされていない。そのような研究は、複雑な多元系合金中での拡散挙動を解明する上でも重要な知見を与えるものと思われる。

§ 2. 実験方法

本研究で用いた試料の組成は、第1図に示した状態図を参考にして、最大20 wt.% MgZn₂を含む試料を作成した。その化学分析結果は第1表に示した。試料の形状は円柱状でその寸法は高さ13mm、直径13mmである。拡散焼鈍の前に、溶体化処理および結晶粒成長処理のため、約470°Cで2週間の予備焼鈍を行なった後水焼入れした。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液（その比、1：7）で電解研磨した。

その試料表面上に塩化物の形で、²⁸Mgを付着した。²⁸Mgは³⁰Si(γ , 2p)²⁸Mg反応を用いて作製した¹⁻³。拡散温度は第1図に示した状態図の α 固溶体の範囲に限定した。拡散焼鈍は約200 mmHgのヘリウムガスを満たしたパイレックス管中に試料を封入して行った。拡散焼鈍後、耐水性エメリー紙でsectioningを行い、bulk試料の放射能強度（0.942および1.34



第1図 The phase diagram of pseudobinary Al-MgZn₂ system

MeV の γ -線の強度)を井戸型NaI検出器および400チャンネルPHAで測定した。拡散距離は島津製精密天秤($\pm 0.005\text{mg}$ の精度)を用いての重さの測定から計算した。拡散係数は residual activity 法 (Gruzin 法)で決定した。その場合必要となる線吸収係数(μ)はAl, Mg およびZnの $\mu^{4)}$ から計算し,第1表に示した。

第1表 Chemical composition, density and linear absorption coefficient of Al-MgZn₂ alloys

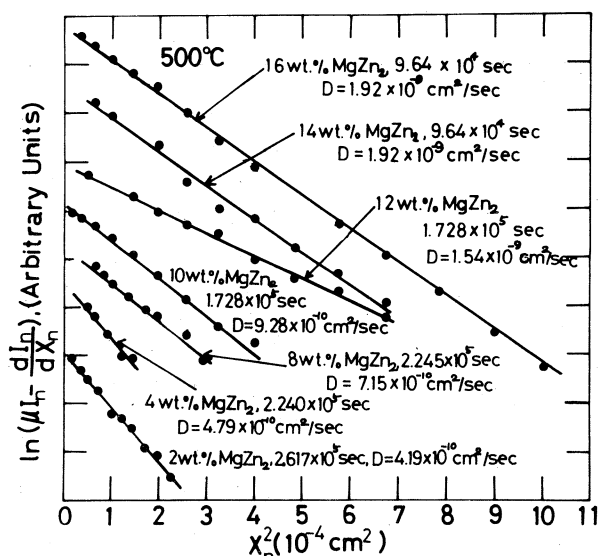
MgZn ₂ (wt. %)	wt. %		at. %		Density (g/cm ³)	μ (cm ⁻¹)
	Zn	Mg	Zn	Mg		
2	1.89	0.23	0.79	0.26	2.73	0.158
4	3.28	0.51	1.38	0.58	2.75	0.160
6	5.21	0.80	2.22	0.92	2.79	0.162
8	6.50	1.20	2.79	1.38	2.81	0.163
10	8.10	1.49	3.50	1.73	2.84	0.164
12	10.2	1.87	4.47	2.20	2.87	0.166
14	11.4	2.06	5.03	2.45	2.90	0.168
16	13.0	2.42	5.79	2.90	2.93	0.169
18	14.7	2.65	6.63	3.21	2.96	0.171
20	16.6	3.08	7.56	3.73	3.00	0.173

§ 3. 実験結果および考察

拡散浸透プロフィル・プロットの結果の一例を第2図に示す。これは異なる組成の合金を500°Cで拡散焼鈍した場合の結果である。これらの直線の傾きから拡散係数を計算した。そのようにして求めた拡散係数の値を第2表に示した。第3図は, Al-MgZn₂合金における²⁸Mgの拡散係数の温度依存性を同一合金での⁶⁵Znの結果⁵⁾およびAl中での⁶⁵Zn⁶⁾, ²⁸Mg⁷⁾の結果と比較して示す。第3図から, Al-MgZn₂合金におけるMgの拡散係数は, 10wt. %以下では純Alにおけるそれよりもかえって小さいことがわかる。その結果は, ⁶⁵Znの拡散係数はいずれの組成の合金でも純Al中での⁶⁵Znのそれよりも大きいことと顕著な対称を示している。同一温度, 同一組成で比較すると, Mgの拡散係数はZnのそれよりも約50%以上も小さい。これらの結果は, Al-Zn-Mg合金の析出過程の運動論を解析する上で興味ある結果といえる。拡散データをさらに充実させ, 各組成の合金での拡散のための活性化エネルギーおよび振動数項を決定した上で, 詳細な考察を行ないたい。

第2表 Diffusivity of ^{28}Mg in $\text{Al}-\text{MgZn}_2$ alloys

MgZn_2 (wt. %)	Temperature ($^{\circ}\text{C}$)	Time (10^5 sec)	D (cm^2 / sec)
2	500	2.617	4.19×10^{-10}
	530	0.697	7.83×10^{-10}
	560	1.385	9.90×10^{-10}
4	500	2.240	4.79×10^{-10}
	530	3.004	9.93×10^{-10}
	560	1.385	1.52×10^{-9}
8	470	3.221	3.78×10^{-10}
	500	2.245	7.15×10^{-10}
	530	1.643	1.51×10^{-9}
	560	0.874	2.15×10^{-9}
10	470	1.260	7.70×10^{-10}
	500	1.728	9.28×10^{-10}
	530	1.643	2.07×10^{-9}
	560	0.512	4.93×10^{-9}
12	470	2.336	8.30×10^{-10}
	500	1.728	1.54×10^{-9}
	530	0.741	3.93×10^{-9}
	560	0.512	7.68×10^{-9}
14	500	0.964	1.92×10^{-9}
16	470	0.460	1.15×10^{-9}
	500	0.964	1.92×10^{-9}
	620	0.576	3.17×10^{-9}
18	480	0.578	3.06×10^{-9}
	490	0.582	3.34×10^{-9}
20	480	0.578	4.11×10^{-9}
	490	0.582	6.83×10^{-9}

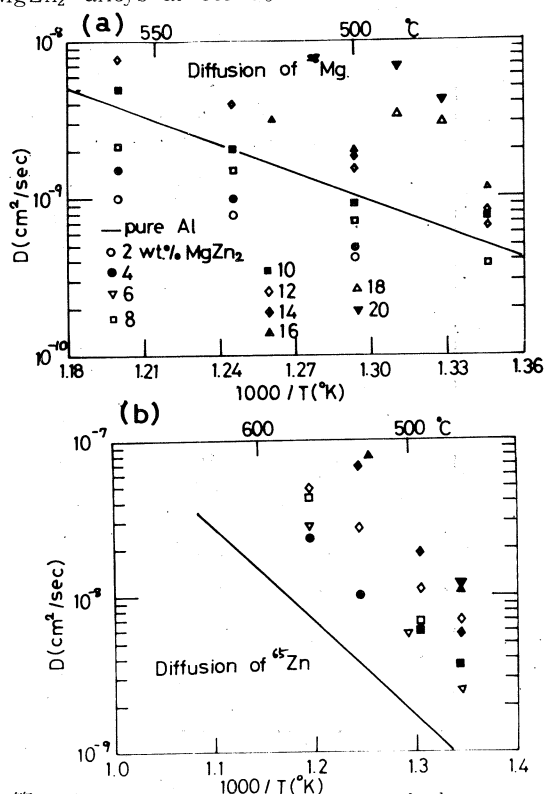


第2図 $\ln(\mu I_n - \frac{dI_n}{dX_n})$ vs. X_n^2 plot for the diffusion of ^{28}Mg in $\text{Al}-\text{MgZn}_2$ alloys at 500°C .

§ 4. 結 論

^{28}Mg を $^{30}\text{Si}(\gamma, 2p)^{28}\text{Mg}$ 反応を用いて製造し、広い濃度範囲にわたって、 $\text{Al}-\text{MgZn}_2$ 擬二元系合金の α 固溶体での ^{28}Mg の拡散係数を決定した。その拡散の顕著な特徴は、低濃度の合金での Mg の拡散係数は純 Al 中でのそれよりも小さいことおよびすべての合金で、 Mg の拡散係数は Zn のそれよりも小さいことである。

試料の作製および分析をして下さった神戸製鋼所浅野和彦氏に感謝する。なお、本研究に御援助をいただいた軽金属奨学会および軽金属協会アルミニウム科学技術振興委員会に厚く感謝する。



第3図 Temperature dependence of the diffusivities of ^{28}Mg and ^{65}Zn in $\text{Al}-\text{MgZn}_2$ alloy and Al
(a) ^{28}Mg (b) ^{65}Zn

参 考 文 献

- 1) 藤川辰一郎, 平野賢一, 八木益男, 近藤建次郎: 核理研報告, **7** (1974) 361.
- 2) 八木益男, 山寺亮, 藤川辰一郎, 塩川孝信: 核理研報告 **8** (1975) 189.
- 3) M. Yagi, A. Yamadera, S. Fujikawa and T. Shiokawa: Inter. J. Appl. Radiation Isotopes, **26** (1975) 637.
- 4) A. L. Conner, H. F. Atwater and E. H. Plassmann: Phys. Rev. **A 1** (1970) 539.
- 5) 藤川辰一郎, 溝口幸美, 平野賢一, 未発表.
- 6) 藤川辰一郎, 平野賢一, to be published.
- 7) 藤川辰一郎, 平野賢一: 核理研報告に投稿中.

Ⅲ - 8 Al および Cu 中での ^{57}Ni の拡散

工学部金属材料

藤川辰一郎・平野賢一

§ 1. 序 論

従来、純金属および合金における Ni の自己拡散および不純物拡散のほとんどすべての研究は (n, γ) 反応で容易に得られる放射性同位元素 ^{63}Ni ($T_{1/2}$: 92 年; β^- : 0.067 MeV (100%)) を用いて行なわれてきた。しかし、 ^{63}Ni の β 線のエネルギーがかなり低いために、測定に手間がかかり、再現性のある正確なデータを得ることが困難であることはよく知られている。したがって、拡散実験に適した γ 線放出型の Ni の放射性同位元素を用いて拡散研究を行うことは、Ni の合金元素としての重要性を考慮すると、十分な意義があると思われる。

Cu 中の Ni の不純物拡散に関しては、主に、 ^{63}Ni を用いて数多くの研究があるが、研究者間でわずかながら異なっており、その実験結果の詳細な理論的考察はほとんど行われていない。Al 中の Ni の拡散に関しては、現在まで Agarwala ら¹⁾ による研究があるのみである。しかし、彼らが決定した拡散係数、拡散の活性化エネルギー (Q) および振動数項 (D_0) が Al の自己拡散に比較して異常に小さいことから、その実験法に問題があることが予想されており、再測定することが望まれている。Al および Cu 中での Ni の不純物抵抗は他の遷移金属のそれよりもかなり小さく、不純物拡散に対する不純物の遮蔽効果の影響を検討する上でも本研究は興味がある。

本研究では、 ^{57}Ni ($T_{1/2}$: 35.7 時間; β^+ : 0.85 MeV; γ : 0.127 (14%), 0.511 (92%), 1.37 (86%), 1.89 (14%)) に注目し、 $^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$ 反応によって ^{57}Ni を製造し、それを用いて Al および Cu 中での Ni の不純物拡散係数をいくつかの温度で決定した。

§ 2. 実験方法

2.1 ターゲット、照射条件、化学操作および測定

ターゲット物質として、帯溶融精製した natural Ni metal (^{58}Ni の存在比: 67.76%) を用いた。その薄板数 10 mg を石英管に封入して、核理研 LINAC RI コース水冷プールに入れて照射した。60 MeV の制動輻射で 1 ~ 40 時間の照射を行なった。電子線強度は約 300 μA である。照射によって放射性元素を生ずる主な核反応は次の通りである: $^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$,

$^{58}\text{Ni}(\gamma, 2n)^{56}\text{Ni}$, $^{58}\text{Ni}(\gamma, p)^{57}\text{Co}$, $^{61}\text{Ni}(\gamma, p)^{60}\text{Co}$, $^{62}\text{Ni}(\gamma, p)^{61}\text{Co}$, $^{64}\text{Ni}(\gamma, p)^{63}\text{Co}$, $^{59}\text{Co}^*(\gamma, n)^{58}\text{Co}$ および $^{59}\text{Co}^*(\gamma, 2n)^{57}\text{Co}$. 照射した Ni を王水で溶解し, その後陰イオン交換樹脂(ダウエックス 1-X 8, 50-100 mesh, Cl 型)を用いて, Ni と Co とを分離した。

分離した溶液の γ -線測定は 33 cc Ge(Li) 検出器および東芝 4096 channel PHA を用いて行なった。標準点線を用いてエネルギー較正を行なった。

2.2 拡散方法および解析方法

高純度 Al 棒** (純度: 99.999%以上) および Cu 棒*** (純度: 99.999%以上) から, 機械加工によって円柱状の試料を作製した。その寸法は, Al および Cu に対して, それぞれ, 直径 13 mm, 高さ 13 mm として直径 10 mm, 高さ 13 mm である。粒界および転位を通っての短回路拡散の寄与を少なくするために, 予備焼鈍を行なった。その焼鈍は, 真空中で, Al は 600°C で 1 か月間そして Cu は 900°C で 2 週間の条件で行なった。その結果として, Al の試料断面には 2 つまたは 3 つの結晶粒が見える粗大結晶粒の試料および平均結晶粒径が 3 mm 以上の Cu 試料がえられた。試料の片面を耐水性エメリー紙および電解研磨の順序で研磨し, 平らで清浄な面にした。Al および Cu の電解研磨液は, それぞれ, 過塩素酸-エチルアルコール混合液(その比, 1:7) およびリン酸-水混合液(その比, 1:2) である。

2.3 ^{57}Ni の試料表面への付着

最初, ^{57}Ni を塩化物, 硫化物および硝化物の形で試料表面に付着する試みを行なったが, 成功しなかった。そのため電気メッキ法を採用した。付着した ^{57}Ni の比放射能を上げ, その密着性をよくするために以下に述べる条件でメッキした。メッキ液は, 蒸留水 50 ml に H_3BO_3 1.5 g およびイオン交換樹脂で分離溶出した塩酸溶液を dry up して作製した $^{57}\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ を数 10 mg 添加したものである。陽極は照射した Ni 小片を Al 線でつるしたものであり, 電圧は 6~7 V, 電流密度は約 0.01 A/cm^2 および温度は室温である。酸化膜の生成を極力抑制するために, 電解研磨後エチルアルコールに浸した試料を取出し後, メッキ液に入れるとただち

* 不純物として Ni 中に含まれる Co。

** 99.99% Al に 10パスの帯溶融精製処理をほどこしたものの。

*** Hoboken (ベルギー) 製, 不純物は次の通り。Ag: 0.3 ppm, Pb: < 0.25 ppm, As < 2 ppm そして Te: 0.1 ppm, 他の不純物は分光学的に検出されなかった。

にメッキが進行し、短時間で完了するようにした。

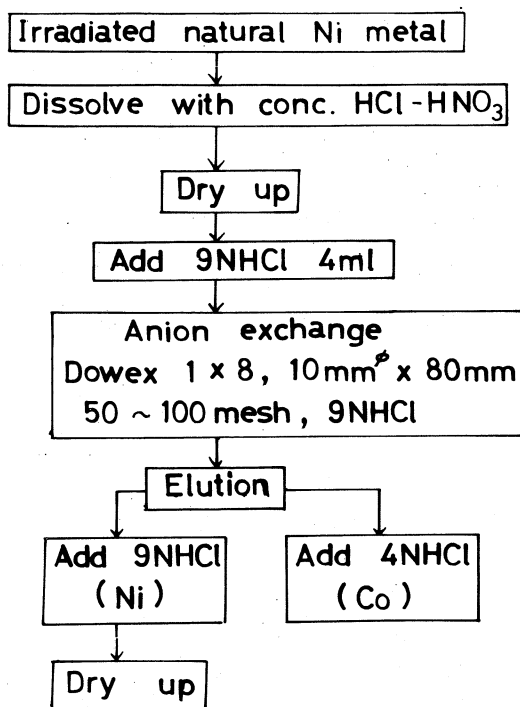
2.4 拡散焼鈍および拡散係数の測定

^{57}Ni を付着した試料を石英管に入れ、 10^{-4} torr 以下の真空にした後、ヘリウムガスを約 100 mmHg 入れて封入した。Cu は 800°C から $1,066^{\circ}\text{C}$ までの温度範囲および Al は 640°C で拡散焼鈍した。拡散用電気炉は全温度範囲で $\pm 1^{\circ}\text{C}$ の誤差範囲内で制御した。拡散焼鈍を終了した試料では、拡散焼鈍中にトレーサーの一部が表面拡散あるいは蒸発などによって試料側面および底に移動している可能性があるため、それらを約 1 mm 削りとった。大部分の sectioning は拡散方向に垂直に耐水性エメリー紙で少しずつ削りとる方法によって行った。一部の試料については拡散試料用に特別に設計したマイクロトームを用いて、sectioning を行った。削りとった層の厚さは島津製精密自動天秤（精度： ± 0.005 mg）を用いて質量の減少量を測定し、さらに試料の直径をミクロンマイクロメーター（精度： $\pm 1\ \mu\text{m}$ ）で直径を測定し、それらの結果を用いて計算した。拡散係数は residual activity 法（Gruzin 法）および serial sectioning 法で決定した。 γ -線の強度の測定は井戸型 NaI（Tl）検出器および日立製 400 チャンネル PHA によって行い、削り片または bulk 試料の放射能強度（1.37 MeV の γ -線）を求めた。residual 法での解析に必要な 1.37 MeV のエネルギーに対する線吸収係数（ μ ）の値²⁾は、Al および Cu に対して、それぞれ、0.142 および 0.445 cm^{-1} である。

§ 3. 実験結果および考察

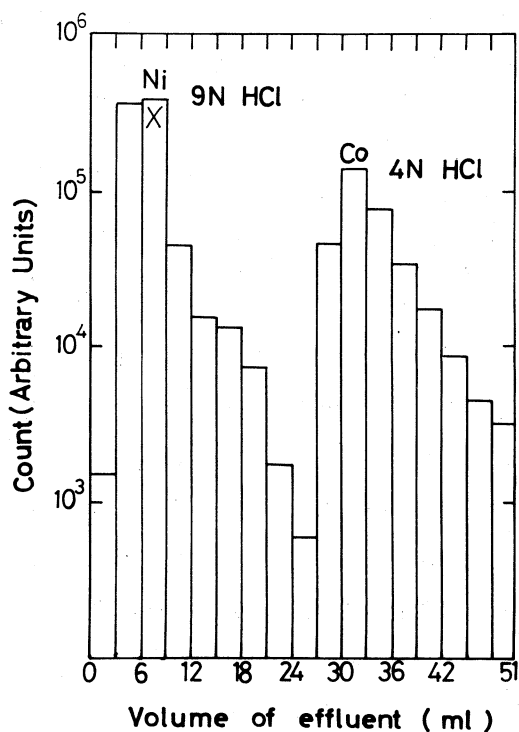
3.1 ^{57}Ni の製造

第 1 図は ^{57}Ni の製造法の系統図を示したものである。短時間で Ni および Co を分離するための最適条件は、Ni は 9 N HCl そして Co は 4 N HCl を用いての溶離である。第 2 図は溶離曲線を示しているが、溶離が急速でかつ Ni および Co のピークの重

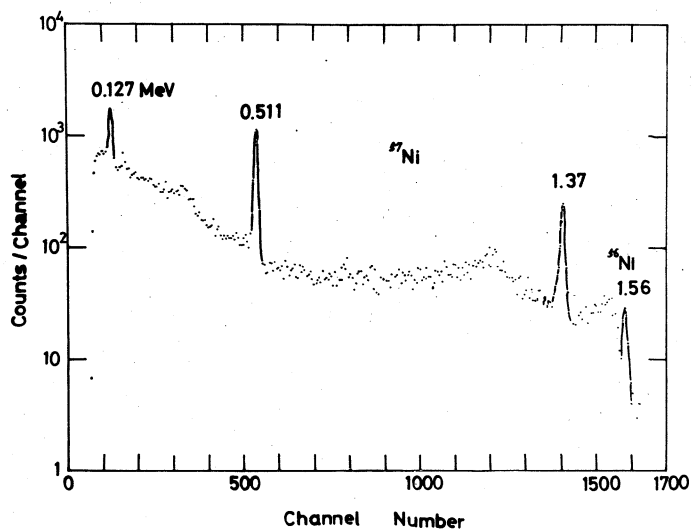


第 1 図 The chemical separation procedure for ^{57}Ni .

さなりがなく、良好な分離ができることがわかる。なお、この場合のNiは60 MeVで1時間照射後5日間放置したものである。第3図は第2図の最初のピークの最高強度を示す溶液Xの γ -線スペクトルを示した。 ^{57}Ni が確かに対応することおよび ^{57}Co および ^{58}Co などの混入がみられないことがわかる。なお、本研究で得られる ^{57}Ni は無担体でなく、半減期が短いので、拡散実験に使用するためには照射時間を出来るだけ長くして比放射能を高める必要がある。



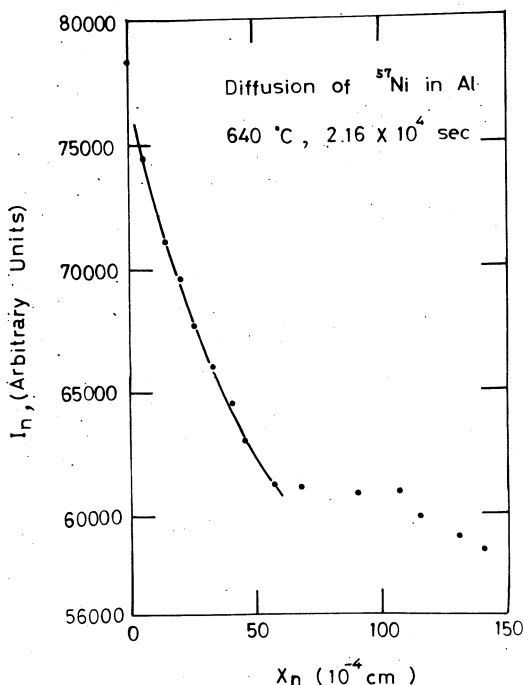
第2図 The elution curve of ^{57}Ni and $^{57}\text{Co} + ^{58}\text{Co}$.



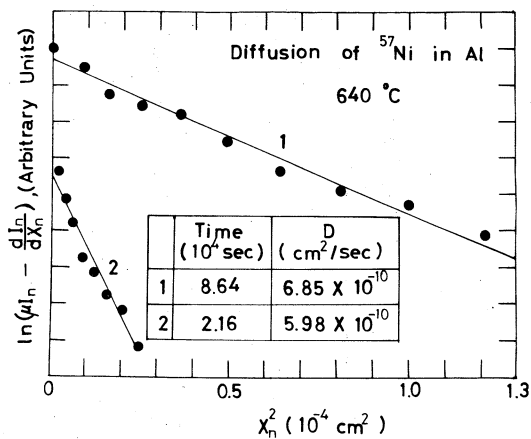
第3図 γ -ray spectrum of the solution X in Fig. 2 (γ -ray spectrum of ^{57}Ni).

3.2 Al中での ^{57}Ni の拡散

第4図は 640°C で6時間の拡散焼鈍した場合の、 I_n 対 X_n プロットである。ここで I_n は試料の最初の面から X_n (cm)だけ削りとった場合に、残りの bulk 試料からの放射線の強度である。 I_n は ^{57}Ni の半減期の値(35.7時間)で補正した。拡散係数は表面から約 $50\mu\text{m}$ の範囲で求めた。第4図から、表面近くでの I_n の急激な低下がみられず、Alの酸化膜に妨害されずに、 ^{57}Ni がbulk試料内にめらかに拡散していることがわかる。第5図は I_n 対 X_n 曲線から決定した拡散浸透プロファイル・プロットを示している。異なる拡散時間でのその直線の傾きから決定した拡散係数はほぼ一致し、 ^{57}Ni の付着条件が良好であることを示唆している。第6図は本研究で決定したNiの拡散係数の値をAgarwalaらの結果¹⁾、Alの自己拡散係数³⁾およびAl中での他の遷移金属元素の拡散係数の温度依存性と比較して示してある。本研究で得られたNiの拡散係数はAgarwalaの値よりも約2桁も大きい。彼らの拡散浸透曲線では大部分のトレーサーが表面にとどまり、表面近くで I_n の急激な低下がみられる。したがって、 ^{63}Ni の付着法などに問題があり、みかけ上低い拡散係数がえられたためと思われる。第6図から、Al中のNiの拡散係数はMnおよびZrよりも大きく、不純物抵



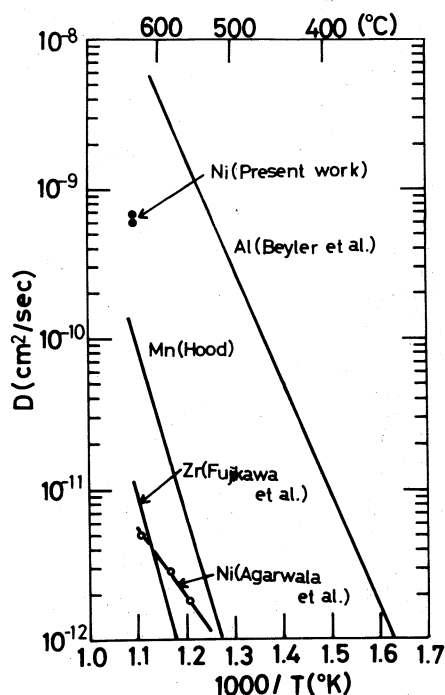
第4図 I_n vs. X_n plot for the diffusion of ^{57}Ni in Al at 640°C . I_n and X_n are the residual activity and penetration distance, respectively.



第5図 $\ln(\mu I_n - \frac{dI_n}{dX_n})$ vs. X_n^2 plot for the diffusion of ^{57}Ni in Al at 640°C . μ is linear absorption coefficient.

抗の大小と拡散速度のそれとが対応していることを示し、興味深い結果といえる。

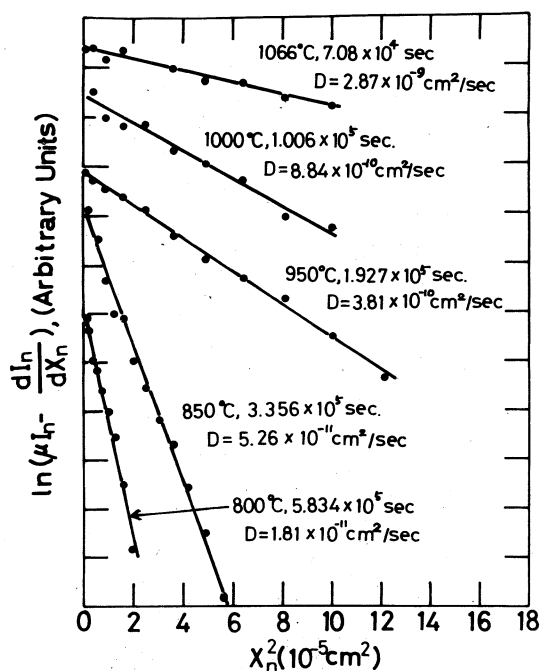
Al 中の Ni の拡散の詳しい考察は、広い温度範囲で正確な拡散係数を決定した上で行いたい。



第6図 Comparison of the diffusivities of ^{57}Ni in Al with those of Zr, Mn and in the same host metal.

3.3 Cu中での ^{57}Ni の拡散

第7図は異なる温度で求めたCu中での拡散浸透プロファイル・プロットである。第8図はマイクロトームで sectioning を行ない、削り片の放射能強度の測定から求めた拡散浸透プロファイル・プロットである。深くけずっていくと、こう配のゆるやかないわゆる region III があらわれる。本研究では、表面から $220\mu\text{m}$ までの範囲で拡散係数を決定した。このようにして求めた拡散係数の値を第1表に、その温度依存性を第9図に示した。しかし、得られた拡散係数に熱膨張の補正を行っていない。その温度依存性から、 D_0 および Q を計算すると、 $D_0 = 1.06\text{ cm}^2/\text{sec}$ および $Q = 53.0\text{ kcal/mol}$ なる値が得られた。しかし、これらの値は最終的な値ではないので、他の研究者との比較および理論的な考察はここでは行わない。

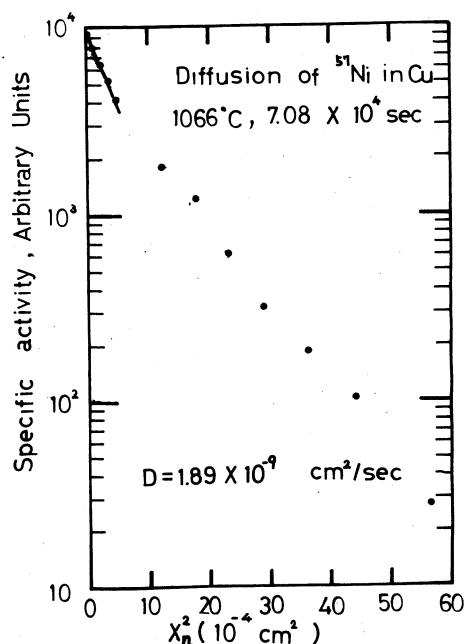


第7图 $\ln(\mu I_n - \frac{dI_n}{dX_n})$ vs. X_n^2 plot for the diffusion of ^{57}Ni in Cu.

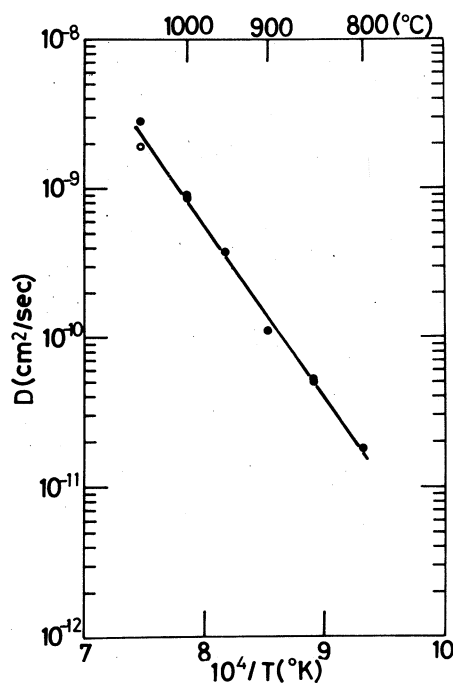
第1表 Diffusivity of ^{57}Ni in Cu.

Temperature (°C)	Time ($10^5/\text{sec}$)	D (cm^2/sec)
1066	0.708	2.87×10^{-9}
1066	0.708	1.89×10^{-9} *
1000	1.006	8.84×10^{-10}
1000	1.006	9.02×10^{-10}
950	1.927	3.81×10^{-11}
900	4.682	1.11×10^{-11}
850	3.356	5.26×10^{-11}
850	3.356	5.22×10^{-11}
800	5.836	1.81×10^{-11}

* The diffusion specimen was sectioned on a microtome and the diffusivity was determined by using serial sectioning technique.



第8图 Log specific activity vs. X_n^2 plot for the diffusion of ^{57}Ni in Cu at 1066°C . In this case, the diffusion specimen was sectioned on a microtome.



第9图 Temperature dependence of the diffusivities of ^{57}Ni in Al.

§ 4. 結 論

$^{58}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$ 反応を利用して, ^{57}Ni を製造する方法を確立した。この ^{57}Ni を拡散実験のトレーサーとして利用するためには, 半減期も短いこともあって, 照射時間を出来るだけ長くして比放射能を高める必要がある。 ^{57}Ni を用いて, Al および Cu で Ni の拡散係数をいくつかの温度で決定した。

この実験を行なうにあたり, ^{57}Ni の分離法について有益な議論をして下さった核理研八木益男助教授に感謝の意を表する。本研究を御援助された住友電気工業株式会社研究部に深く感謝する。なお, 本研究の一部は軽金属奨学会の助成金によったものであり, 同会に感謝する。

参 考 文 献

- 1) Ken-ichi Hirano, R. P. Agarwala and M. Cohen : Acta Met. **10** (1962) 857.
- 2) A. L. Conner, H. F. Atwater and E. H. Plassmann : Phys. Rev. **A1** (1970) 539.
- 3) M. Beyeler and Y. Adda : J. de Phys. **29** (1968) 345.
- 4) G. M. Hood : Phil. Mag. **21** (1970) 305.
- 5) 丸茂皓生, 藤川辰一郎, 平野賢一 : 軽金属 **23** (1973) 17.

IV. 加速器・データ処理装置稼動状況

IV - 1 昭和50年度前期マシン報告

核理研マシングループ

浦 沢 茂 一・今 野 収

一 戸 隆・栗 原 亮

根 本 重 伸・柴 崎 義 信

○概況

4月工事にI系分析ダクトの更新を行った。工事は研究者、院生の協力を得て予定通り完成、組立時及びその後の運転では無故障である。

マシンタイムの消化はRIが未実施1日が出た。他に加速器研究会のため3日、運転を停止した。

マシンタイム実施状況

課 題 (責任者)	割 当	実 施	増 減
es (鳥 塚)	16	16	0
es (小山田)	7	7	0
es (Friedrich)	9	9	0
$\gamma\pi$ (庄 田)	6	6	0
γp (庄 田)	8	8	0
γp (坪 田)	3	3	0
γp (Thompson)	9	9	0
γp (斎 藤)	4	4	0
$\gamma\alpha$ (宮 瀬)	4	4	0
γX (種 市)	4	4	0
$\gamma\pi$ (高 崎)	2	2	0
ION (塩 川)	4	4	0
ND	24	24	0
RI	23	21	-2 *
計	123	121	-2
工 事	34	44	+ 10
定 期 点 検	6	6	0
予 備 (修理)	20	10	- 10
マ シ ン 停 止	4	6	+2
計	64	66	+2
合 計	187	187	0

* うち1日は利用者の都合により中止

○保守

加速管に関連した故障が4件あった。

1. 5月27日B部に真空リークが発生、ただちに粗引きを開始したところ、ロータリーポンプの油が白濁した。これは真空系に水漏れが発生したことを示すので、粗引き系のバルブを閉じ、可能性のありそうな個所に手を触れてまわったところ、B3加速管の入口側モード変換器が冷めたくなくなっていた。真空をすぐ破り、解体し導波管気密窓であることをつきとめ、これと加速管を交換し旧に復した。(約4日間)
2. モード変換器の電子ビームによる溶解事故が2件発生した。A2とB1でそれぞれモード変換器を交換した。尚B1入口にはコリメータを付け(7月工事)溶解の防止を行った。
3. B12加速管の内部放電があり、この加速管を交換した。

○今後の予定

1. I系粗引き系及びI系RIGHTの改修を12月に行う予定である。
粗引き系は主ポンプを油拡散ポンプから分子軸流ポンプに変更、同時配管系の交換等も行う。
I系RIGHTはダクトの交換及びビーム取出窓の保護のためコリメータを新設する。
2. エネルギー圧縮装置¹⁾の第1期工事を来年4月に行う予定である。
3. マシンのデータ等の処理をする、「リニアック運転監視装置」を11月から取付を開始する。

尚マシンの保守等に関して最近発行又は発行予定の文献を示す。

- 1) 第1回加速器科学研究発表会、プロシーディング 発行予定。
- 2) Proc. of the Meeting on Linear Accelerator in Japan KEK-75-2 (1975).
(in Japanese)
- 3) 加速器ストレージリングにおける超高真空技術研究会 プロシーディング 発行予定。

IV - 2 データ処理装置・測定器稼動状況

核 理 研

小山田正幸・窪田健雄・佐藤新悦

菅原真澄・藤沢政則・武藤正勝

1. データ処理装置

オンラインデータ処理装置、オンラインデータ集積装置の用途別利用実績を第1, 2表に示す。参考まで前年の月平均時間をつけ加えておきます。

O-4500についてはオンライン1158時間、オフライン1000時間(データステーションを含む)と順調に稼動しました。内容的には前年に比べてオンライン関係は変わらず、オフラインの月平均で100時間の増加となっています。これはデータ処理がT-3400より移行したものとされます。しかし月平均の利用時間は370時間となっていますのでこれ以上大巾なデータ処理の移行は望みうすです。故障については4月に今までの問題点を修理しましたので前年に比べて増加しています。

T-3400については故障も少なく一応小康状態です。利用時間からみるとデータ処理の月平均が前年の54時間に対して152時間と3倍増となり、合計でも197時間に対して323時間と大巾な増加となりました。機器(特に入出力関係)で特に故障が目立ってはいませんが、カーブプロッターの画描性の劣化が目につきます。これは機構部品等の摩耗によるもので回復の見込みはありません(旧型の為に部品がない)ので御了承下さい。

現在のオンラインデータ集積装置の弱点であった、多量データ(4000点以上)のディスプレイについては今年度充実すべくストレージタイプのを検討中です。これにより来期よりはデータ量の多いものについてもそのディスプレイが簡単になると思います。(窪田)

第1表 昭和50年上期オンラインデータ集積装置用途別利用実績表（OKITAC-4500）

（単位：時間）

用途 月	LDM	BDM	N D	オンライン 合計	データ ステーション	一般 計算	保守	故障	月合計
4	50	48	26	124	18	109	7	11	269
5	126	68	36	230	1	133	7	4	375
6	105	67	87	259	1	124	6	0	390
7	102	94	105	301	4	149	5	7	466
8	31	52	14	97	25	219	6	0	347
9	60	35	52	147	9	208	8	0	372
合計	474	364	320	1,158	58	942	39	22	2,219
月平均	79	61	53	193	10	157	6	4	370
%	21.4	16.4	14.4	52.2	2.6	42.4	1.8	1.0	
前年月平均	77	70	50	199	5	73	13	1	289

第2表 昭和50年上期オンラインデータ処理装置用途別利用実績表（TOSBAC-3400）

（単位：時間）

用途 月	データ処理	一般計算	保守	故障	月合計
4	93	63	9	0	165
5	126	94	11	3	234
6	123	127	13	8	271
7	129	340	9	0	478
8	151	200	9	3	363
9	289	129	9	1	428
合計	911	953	60	15	1,939
月平均	152	158	10	3	323
%	47.0	49.1	3.1	0.8	
前年月平均	54	127	10	6	197

2. 測定器

従来実験装置，測定器の製作を中心に仕事をしてきたが，今年度から拡大マシングループの一員として，加速器制御系の改造も一部担当することになった。そのため今年度前半は，加速器制御用計算機導入に伴う準備に追われ，前年度より繰越した加速器トリガシステムの製作は中断する結果になってしまった。懸案になっていたCAMACのManual controllerは一応出来上り，Moduleのテスト等に使用できるようになっている。

今年度後期はECS制御系を含めた加速器自動制御の仕事に主力を注ぎたいと考えている。

（武藤）

V. 論文リスト

V 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49年1月～昭和49年12月）の題目を集録しました。

I 原子核物理部門

1. Electroexcitation of the Giant Resonances in ^{16}O .
A. Hotta, K. Itoh and T. Saito : Phys. Rev. Letters **33** (1974) 790.
2. Elastic Electron Scattering from the M7 Magnetization Density of ^{51}V .
I. C. Nascimento, J. R. Moreira, J. Goldemberg, S. Fukuda, T. Terasawa, T. Saito, K. Hosoyama and Y. Torizuka : Phys. Letters **53B** (1974) 168.
3. $^{90,91}\text{Zr}$ Photoproton Spectra and the Core - Excitation Model.
H. J. Askin, K. J. F. Allen, M. N. Thompson, K. Shoda, M. Sugawara, H. Miyase and B. N. Sung : Nucl. Phys. **A220** (1974) 241.
4. Photoprotons from ^{27}Al .
H. Tsubota, N. Kawamura, S. Oikawa and K. Shoda : J. Phys. Soc. Japan **37** (1974) 17.
5. Isobaric Analogue Resonances in $(e, e'p)$ on ^{90}Zr , ^{89}Y and ^{88}Sr .
K. Shoda, M. Sugawara, T. Saito and H. Miyase : Nucl. Phys. **A221** (1974) 125.

II 物性物理部門

1. Neutron Paramagnetic Scattering with a Pulsed Neutron Source of an Electron Linac.
N. Watanabe, Y. Ishikawa and K. Tsuzuki : Nucl. Instr. **120** (1974) 293.
2. Neutron Diffraction and Paramagnetic Scattering from a High Pressure Phase of MnGeO_3 (Ilmenite).
K. Tsuzuki, Y. Ishikawa, N. Watanabe and S. Akimoto : J. Phys. Soc. Japan **37** (1974) 1242.
3. Epithermal Neutron Diffraction from a Gadolinium Alloy ($\text{GD}_{0.9}\text{Y}_{0.1}$).
Y. Ishikawa, N. Watanabe, K. Tajima and H. Sekine : Phys. Letters **48A** (1974)

195.

4. Neutron Diffraction from Nematic Liquid Crystal.

N. Niimura : Phys. Letters **48A** (1974) 375.

5. The Liquid Structure of Bromine.

N. Niimura : Phys. Letters **48A** (1974) 337.

Ⅲ 放射化学部門

1. Chemical Effects of Nuclear Decay.

T. Shiokawa, K. Yoshihara, M. Yagi and T. Omori : J. At. Energy Soc. Japan

16 (1974) 507.

2. Thermal Annealing Behavior of Recoil ^{57}Co Formed by the Decay of ^{57}Ni - Labeled Tris (ethylenediamine) nickel (**II**) Complexes.

S. C. Wu, T. Omori and T. Shiokawa : Sci. Rept. Tohoku Univ. Ser. I, LVII
(1974) 5.

3. The Yield Distribution of Radioactive Nuclides Produced by Photospallation Reactions in ^{133}Cs and ^{139}La with 250 MeV Bremsstrahlung.

T. Kato and H. T. Tsai : J. Inorg. Nucl. Chem. **36** (1974) 1.

4. Multielement Photon Activation Analysis of Rock Materials with 30 MeV Bremsstrahlung.

N. Sato, T. Kato and N. Suzuki : Radiochem. Acta **21** (1974) 63.

核理研研究報告 第8巻 第2号

昭和50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. 8 No.2 Dec.1975
Laboratory of Nuclear Science,
Tohoku University
1, Kanayama, Tomizawa, Sendai, Japan