

第2回ジュネーブ会議総合報告
物理編

調査報告 No. 8

1959年10月

日本原子力研究所

Japan Atomic Energy Research Institute

第2回ジュネーブ会議総合報告

物 理 編

ま え が き

この総合報告は、第2回ジュネーブ原子力平和利用会議において報告された多くの論文を基礎にし、さらに入手しうる最近の資料を参照して日本原子力研究所が責任編集したものである。部門別分類および担当執筆はつぎのようにおこなわれた。

- 1 原子炉編 (原子炉設計研究室, 原子炉開発試験室)
- 2 物 理 編 (固体物理研究室, 原子核物理研究室)
- 3 原子力工学編 (機械装置研究室, 計測制御研究室, 化学工学研究室)
- 4 金 属 編 (金属研究室)
- 5 化 学 編 (分析化学研究室, 物理化学研究室, 放射化学研究室)
- 6 保健物理編 (保健物理部)

編集の方針としては論文の単なるよせ集めという形ではなく、それぞれの論文を十分消化し各部門の連関にも配慮を加え、一つのまとまった著作としての内容をもつように努力した。

原子力平和利用会議は1956年に開催された第1回の成功につづいて、今回も世界各国から約6,000人が参加し、発表された論文も2,400編の多きに達した。本報告に収めたこれらの論文は、過去2カ年間に各国が原子力平和利用にかたむけた努力の結晶であって、いずれも貴重な成果である。

これらの業績を十分にそしゃくすることこそ、つぎの発展の原動力であると信ずる。

本報告刊行の意義もまたまさにこの点につきるのである。

昭和34年9月30日

日本原子力研究所理事

杉 本 朝 雄

物理編の執筆者はつぎのとおりである。

基礎粒子の物理的性質（杉江淳）原子核の理論（原田吉之助・森口欽一）高速中性子の実験（塚田甲子男・西村和明・田中正俊・丸山倫夫・菊地士郎）熱中性子吸収断面積（更田豊治郎）低速中性子実験（竹腰英邦・岡本浩一・鹿園直基）核分裂（竹腰英子・森口欽一）拡散（坂本正誠）原子炉用黒鉛（久保和子）照射損傷の基礎的研究（藤田英一）中性子線回折（浜口由和）

第2回ジュネーブ会議総合報告・物理編

目 次

基礎粒子の物理的性質

1. 概 説..... 1	3. 1 K ⁺ 中間子 3
2. 弱い相互作用におけるパリティ非保存..... 1	3. 2 K ⁻ 中間子 4
2. 1 パリティ非保存の実験..... 1	4. その他..... 5
2. 2 パリティ非保存の理論..... 2	4. 1 中性微子の吸収面積..... 5
2. 3 β 崩壊のタイプ..... 2	4. 2 核子の構造..... 5
2. 4 弱い相互作用の一般論..... 2	4. 3 反核子..... 5
3. K-中間子 3	文 献..... 5

原子核の理論

1. 概 説..... 7	6. 高速中性子の中性子吸収の理論.....11
2. 基礎部門..... 7	7. その他.....13
3. 核 構 造..... 8	7. 1 共鳴準位のスピンの分布.....13
4. 核 反 応..... 9	7. 2 整列された ²³⁷ Np, ²³³ U から
5. 高い励起状態の準位密度に対する	の α 崩壊の角分布.....13
殻構造の影響.....10	文 献.....13

高速中性子の実験

1. 概 説.....15	6. 2 14 MeV 中性子の核による
2. 高速中性子の捕獲放射.....15	非弾性中性子.....21
3. 高速中性子の捕獲断面積の測定.....16	6. 3 14 MeV 近くの全断面積.....21
4. 中間エネルギー領域における中性子の吸収.....18	6. 4 Be の弾性および非弾性中性子断面積.....21
4. 1 25 keV における	6. 5 ⁶ Li(n, t) ⁴ He 反応の角分布.....21
activation measurements.....18	6. 6 ¹¹ B(α , n) ¹⁴ N 反応の研究.....21
4. 2 5~50 keV 範囲における吸収の測定.....18	7. 中性子散乱に対する共鳴準位の
5. 原子核による高速中性子の散乱と捕獲.....19	角運動量分布.....21
5. 1 弾 性 散 乱.....19	7. 1 実 験 方 法.....21
5. 2 非弾性散乱.....19	7. 2 実 験 結 果.....21
5. 3 高速中性子の捕獲.....20	7. 3 核の準位間の角運動量分布.....22
6. 高速中性子断面積に関する最近の結果.....20	7. 4 Strength Function.....22
6. 1 14.5 MeV 中性子の核による弾性散乱.....20	文 献.....22

熱中性子吸収断面積

1. 概 説.....23	3. 測 定.....24
2. 測定値に対する一般的问题.....23	文 献.....24

低速中性子実験

1. 概 説	26	3. 4 解析のみとおし	31
2. 低速中性子実験装置について	26	4. 中性子捕獲 γ 線について	31
3. ^{235}U の低いエネルギーにおける 中性子断面積について	28	4. 1 γ 線スペクトルから わかる共鳴準位のスピンの	31
3. 1 概 説	28	4. 2 γ 線の全スペクトル	33
3. 2 データの解析について	29	文 献	35
3. 3 核分裂断面積および Γ_{α} と $\bar{\Gamma}_{n^0}/D$ について	30		

核 分 裂

1. 核分裂の理論	36	5. 中性子核分裂における質量収量曲線	43
1. 1 しきい値付近の核分裂断面積の解釈	36	5. 1 質量分析器による直接測定	43
1. 2 高エネルギーの核分裂の解釈	36	5. 2 放射化学的分析による方法	43
1. 3 そ の 他	37	5. 3 核分裂破片のエネルギー測定 による方法	44
2. 中性子による核分裂の断面積	37	6. 核分裂の際の即発荷電粒子, 即発 γ 線, 即発中性子	44
3. 光核分裂	38	6. 1 即発荷電粒子	44
4. 荷電粒子による核分裂	41	6. 2 即発 γ 線	44
4. 1 Pb あたりの核分裂	41	6. 3 即発中性子	48
4. 2 ^{226}Ra の核分裂	41	文 献	49
4. 3 重い核の対称分裂	42		
4. 4 非対称分裂	43		

拡 散

1. 概 説	51	5. 液体および固体結晶中での自己拡散	54
2. 規則格子 β 黄銅中の自己拡散	51	6. 金属内拡散の研究	54
3. 金属酸化物中での自己拡散	52	文 献	56
4. γ 相ウランにおける自己拡散	53		

原 子 炉 用 黒 鉛

1. 概 説	57	2. 7 ウランを分散包含する黒鉛	60
2. 原子炉用黒鉛の条件と製法	58	3. 黒鉛の照射効果およびその回復	60
2. 1 高 純 度	58	3. 1 長さ変化	60
2. 2 高 密 度	58	3. 2 機械的性質	61
2. 3 機械加工その他	58	3. 3 C_0 変化	62
2. 4 等 方 性	58	3. 4 蓄積エネルギー	62
2. 5 不浸透性	58	3. 5 酸 化	63
2. 6 高温における機械的強度	59	文 献	64

照射損傷の基礎的研究

1. 概 説	65	3. 2, 3 の顕著な実験	67
2. 金属の照射損傷に関する一般的理論	65	文 献	68

中 性 子 線 回 折

1. 概 説	70	2. 装置の概略	71
1. 1 軽元素, 重元素を含む物質の構造解析	70	3. 軽元素, 重元素を含む物質の構造解析	71
1. 2 隣接元素を含む合金, 化合物 などの構造解析	70	4. 隣接元素を含む合金および 格子振動の研究	71
1. 3 格子の熱振動の研究	70	5. 磁気構造の研究	71
1. 4 磁気構造の研究	70	文 献	72

基礎粒子の物理的性質

1. 概 説

ジュネーブの会議で原子核を構成している、または原子核からつりだされるいくつかの自然界における基本的粒子についての報告があった。これらの問題は原子力の利用とは今のところ関係はないが、原子核についての最も基本的な知識として常識程度には知っておくことが好ましいと考えられるので、あまり深入りはせずにとめておく。

内容を大分すると

- (1) 粒子の崩壊におけるパリティ非保存に関するもの
- (2) K -中間子に関するもの
- (3) その他

- (i) 中性微子による β -崩壊の逆反応
- (ii) 陽子および中性子の構造
- (iii) 反核子
- (iv) 重粒子 (hyperon)
- (v) π -中間子

となる。(iv)については主要論文[2465]がまだきていないので一部を3でふれるに止め、(v)はわずか二編[732], [734]で特に興味ある点もないので略す。

これらの分野に関しては学術雑誌に多くの論文が出されているが、ここではジュネーブ会議に提出されたものだけについてまとめる。

2. 弱い相互作用におけるパリティ非保存

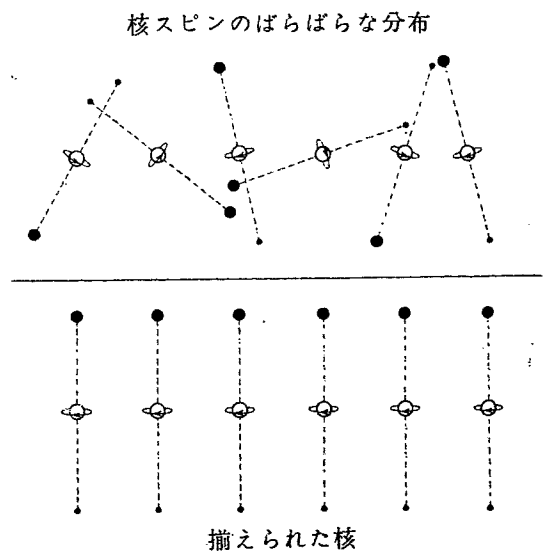
自然界には中間子と核子との間におけるように相互作用のかなり強いもの(結合の強さが1の程度)と、核子と電子・中性微子との間における β -崩壊の相互作用のように非常に弱いもの(結合の強さが 10^{-14} の程度)とがある。強い相互作用はこのほか K -中間子と核子、いろいろな新粒子の生成のときの相互作用にみられる。弱い相互作用はこのほか π -, μ -中間子その他の新粒子の崩壊のときにみられる。強い相互作用ではパリティはほとんど保存されるが、弱い相互作用ではほとんど完全に保存が破れる。

弱い相互作用についてはWUとLEDERMANのたいへんよい総合報告[2459]があるので、これを紹介する。

2.1 パリティ非保存の実験

弱い相互作用におけるパリティ非保存についての最初の実験は、コロンビア大学とNational Bureau of Standardsの共同でなされたWUらの有名な ^{60}Co の

実験である。 ^{60}Co を 0.01°K まで冷やして磁場の中でスピンを揃え、スピンの向きにたいする β -線の強度



第1図 ばらばらに向いた核、および揃えられた核からの崩壊

分布をはかった(第1図)。右まわりのスピンを鏡に映すと左まわりになる。ところが β -線の出る向きは変わらない。したがってもし上下いずれかにより強く出たとすると、現実の世界と鏡の中の世界では法則が逆になり、パリティが保存されないことになる。実験は右まわりにたいして下に多く出、パリティ非保存を決定的なものとした。またこの上下非対称の大きさから、パリティばかりでなく荷電反転 (charge conjugation) にたいする不変性も破れていることがわかった。これは粒子と反粒子の世界とで法則が変わることを意味する。

同じころコロムビア大学でなされた π - μ - e 崩壊でも同様な非対称が見出された。

2.2 パリティ非保存の理論

これらの実験が出るとすぐLEEとYANG, LANDAU, SALAMなどにより、これは中性微子のせいだという理論が出された。中性微子はその質量が零のために、パリティ(P)や荷電反転(C)にたいして不変でないような基礎方程式をとることができる。普通ディラック粒子は4つの成分をもつが、このような中性微子は2成分である。それでこれは2成分理論とよばれる。これによると中性微子のスピンは、進行方向に平行か反平行かのいずれか一方にきまってしまう。

ここで崩壊における一つの重要な法則として軽粒子数の保存の法則をのべる。これは

$$e^-, \mu^-, \nu \text{ を } 1 \quad (\nu: \text{中性微子})$$

$$e^+, \mu^+, \bar{\nu} \text{ を } -1 \quad (\bar{\nu}: \text{反中性微子})$$

$$\gamma, \pi, K, \text{重粒子} \text{ を } 0$$

と数えると崩壊の前後で数が一定だということである。たとえば、

$$n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}, \quad p + e^- \rightarrow n + \nu, \quad p + \bar{\nu} \rightarrow n + e^+$$

$$\pi^+ \rightarrow \mu^+ + \nu, \quad \pi^- \rightarrow \mu^- + \bar{\nu}, \quad \mu^+ \rightarrow e^+ + \nu + \bar{\nu}$$

などとなる。これは ν と $\bar{\nu}$ とで進行方向にたいするスピンの向きが逆なので重要である。

2.3 β -崩壊のタイプ

β -崩壊には、S, T, V, Aの4つの相互作用の型があることはよく知られている。2成分理論によると相互作用の型によって ν や $\bar{\nu}$ のスピンの向きが第1表のようにきまってしまう。これから ν や $\bar{\nu}$ のスピンの向きが測れば型が決定される。

それをのべる前に、古典的な実験として(β - ν)の角相関からも型の決定ができるので、これについて記す。じっさいには β と反跳核の相関をはかる。はじめ ${}^6\text{He}$ でなされたときはTがあるとされたが、のち

第1表 β -崩壊の型と軽粒子のスピンの向き
(進行方向にたいする)

	ν	$\bar{\nu}$	β^-	β^+
S, T	+1	-1	$-v/c$	$+v/c$
V, A	-1	+1	$-v/c$	$+v/c$

これは誤りであることがわかり、イリノイ大学でなされた ${}^{35}\text{Ar}$ の実験からはVのあることがわかった。 ${}^6\text{He}$ もやり直してみるとVのあることがわかった。[1732]では ${}^6\text{He}$ でTがあると述べているがこれはあやしい。

つぎに ν のスピンの向きを測定したが、これは電子捕獲のあとに出る γ -線の偏光をはかって、これから電子捕獲にさいして出た ν のスピンの向きが決定された。これはBrookhaven National Laboratoryで ${}^{152}\text{Eu}$ の電子捕獲を使ってなされた。結果は ν の負の回転を示し、V-Aを支持した。

またArgonne National Laboratoryでは偏極した中性子の β -崩壊における(β - ν)角相関を測って、VとAとが逆符号で混っていることを見出した。

さらにシカゴ大学では π - μ - e 崩壊の電子の偏極を測って、これから ν のスピンの向きをきめた。結果は β -崩壊と一致し、 $\pi^+ \rightarrow \mu^+ + e^+$ から ν のスピンの向きが負、 $\pi^- \rightarrow \mu^- + e^-$ から $\bar{\nu}$ のスピンの向きが正であることが分った。

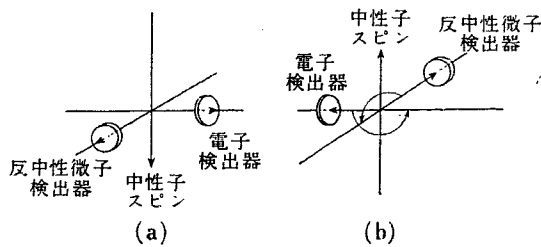
2.4 弱い相互作用の一般論

β -崩壊でも μ の崩壊でもV-Aであることがわかったので、一般に崩壊は全部同一の型でおこるのではないかと考えられる。これはUniversal Fermi相互作用の理論とよばれている。これについては今後に残された問題が多い。

ν の関係している崩壊ではパリティ非保存は ν のせいであることがわかったが、K-中間子やA-粒子の崩壊では ν が関係してないにもかかわらずパリティ保存は破れる。これをどう解釈すべきかという問題が残る。

さて最後にパリティ(P)と荷電反転(C)とではいずれも対称性が破れていることがわかったが、本当に自然は右左を区別しているであろうか? これはそうでないらしい。

というのはPとCの両方の変換をするとまた不変性が保たれるらしいのである。ということは鏡に映すと同時に粒子-反粒子を入れかえるとまた左右の区別がなくなるというのである。これは時間反転(T)にたいする不変性から結論される。場の理論からごく一般



第2図 時間反転不変性を調べる実験の原理図
(b) は (a) の時間的反転をした図、
(b) で図に示したようにスピン軸のまわり
に回転をすると、電子、中性微子
に関しては (a) と同じになる。

的に PCT 三つ全部おこなえば完全に不変なことがわ
かっているから、T 不変が成立てば PC 不変も成立
つ。

T 不変性の実験は Argonne National Laboratory
と Chalk River とで独立に、偏極中性子の β -崩壊を
使っておこなわれた[196] [692].

第2図に示すように時間を反転するとスピンも運動
方向も逆になる。さらに空間的に 180° だけ回転する
と中性子のスピンが逆転しただけになる。それで電子
と反跳陽子の検出器を 90° の角にして中性子のスピン
を逆転したときに強度が変わらなければ T 不変が成立
つ。実験は $1/10$ の精度で不変性を示した。

以上のようにしてわれわれは現在

- (1) 軽粒子数保存の法則
- (2) 中性微子の二成分理論
- (3) β -崩壊や μ の崩壊は V-A 型
- (4) PC 不変性および T 不変性

ということを知っている。

なおジュネーブの文献ではパリティ非保存について
の諸事実は β -崩壊に続く γ 線の偏光をはかることか
らも十分よくわかるという西独の論文 [965] が興味
あろう。

3. K-中間子

π -中間子より重く核子より軽い粒子を K-中間子と
よぶ。現在正負に荷電したものがそれぞれ1つ、中性の
もの2つが知られているが、これらはいずれも同一の
族に属するものとみなされる。K-中間子は強い相互
作用をもつ。ここで K-中間子についてのべる前に強
い相互作用をもつ粒子 (strongly interacting particles,
SIP) の分類法についてのべる必要がある。

各粒子はきまった電荷、質量、スピンのほかに、イ
ソスピン (I) とよばれる量をもつ。 I の大きさは
電荷の種類に関係する。電荷は粒子と反粒子とでは逆
になるので、さらに各粒子に、軽粒子でやったように
重粒子数 (n) というものを与える。これは重粒子 (ba-
rion, 核子およびそれより重い粒子) にたいして1,
反重粒子にたいして -1 とする。重粒子数は反応の
前後で保存される (重粒子数保存則)。さらに各粒子
に strangeness (S) という量が与えられる (NISHIJIMA-
GELLMAN の理論)。すなわち

π, n, p	$S=0$
K, Λ, Σ	$ S =1$
Ξ	$ S =2$

粒子の電荷 Q は

$$Q/e = I_z + (\frac{1}{2})n + (\frac{1}{2})S$$

とあらわされる。 I_z は I の z 成分で、 $-I$ から $+I$

までの値をとりうる。

これだけの量で SIP の組分けをすると第3図のよ
うになる。この中 Ξ^0 は最近まで理論上の存在であっ
たが、1958 年末にカリフォルニア大学で人工創造さ
れてその存在が実証された。

Strangeness の主な働きは創造、崩壊の選択則を与
えることにある。創造のときは S は保存される。し
たがって $N+N \rightarrow 2\Lambda$ というような過程はおこらない。
これは実験的に確かめられた [737]。逆に崩壊のとき
は $\Delta S = \pm 1$ となっている。それで崩壊の寿命は創造
の断面積に比べて非常に長くなっているのである (と
いっても $10^{-6} \sim 10^{-10}$ sec)。

3.1 K^+ 中間子 [1371] [1090]

K^+ -中間子は $n=0, S=1$ だから

$$N+N \rightarrow K^++N+\Sigma \text{ (or } \Lambda)$$

$$\pi+N \rightarrow K^++\Sigma \text{ (or } \Lambda) \quad N: \text{核子}$$

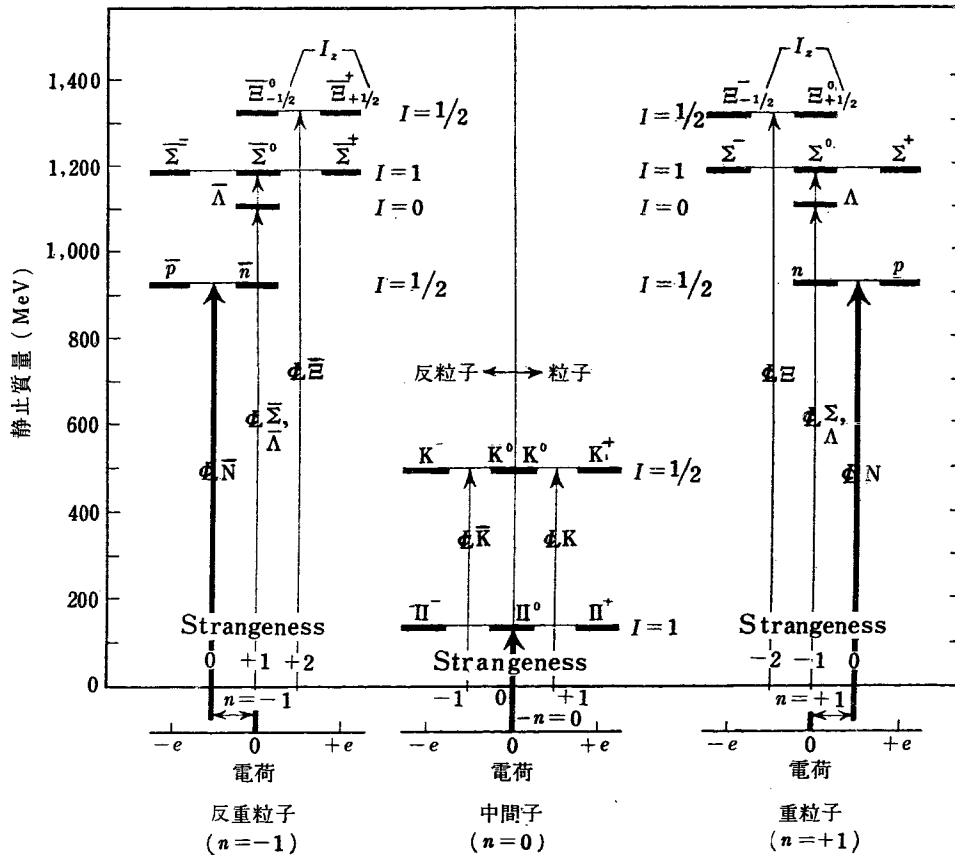
という機構でつくられる [737]。そして核子との相互
作用では

$$(I) \quad K^++p \rightarrow K^++p$$

$$(II) \quad K^++n \rightarrow K^++n$$

$$(III) \quad K^++n \rightarrow K^0+p$$

という三つの型しかない。(重粒子は $S \leq 0$ に注意)



第3図 強い相互作用をもつ粒子の分類

K-中間子の性質はエマルジョンで K の飛跡を追ってゆくことで調べられる。じっさい K^+ と核子との相互作用は散乱以外になく、吸収は見出されてない。

(a) $K^+ - p$ の断面積: 220 MeV ぐらいまで $14.5 \pm 2 \text{mb}$ で一定, また角分布もほぼ平らで, s-波の phase-shift だけですべて説明される。

(b) K^+ と原子核の相互作用: これは光学ポテンシャルで記述される。弾性散乱の断面積と, 前方での Coulomb 散乱との干渉から, 光学ポテンシャルの実部は 15 MeV ぐらいの斥力であることがわかった。これから $K^+ - p$ の s 波の phase-shift は負でなければならないことになる。虚部は 3 MeV ぐらいで, 比較的小さい。

(c) $K^+ - n$ の断面積: K^+ と原子核の非弾性散乱から $K^+ - n$ の断面積は 200 MeV まで大体 7 mb, それ以上で急にふえることがわかった。また角分布も後方が少し上るらしい。これから $K^+ - n$ では正の p-波の phase-shift がなければならないことになる。

$\sigma(\text{III})/\sigma(\text{II})$ は 200 MeV まで 0.2, それ以上では 0.55 ぐらいにまでふえた。

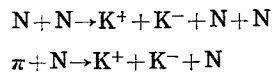
(d) 理論的解釈: K^+ も p, n も $I=1/2$ だから $K^+ + N$ では $I=0, 1$ の二つが可能である。上記の実験事実は

- (1) $I=1$ では負の s-波の phase-shift がある
- (2) $I=0$ では小さな正の p-波の phase-shift があることを仮定すればすべて説明される。

$K^+ - N$ の相互作用は $\pi - N$ のばあいと比べてはるかに弱く, これを摂動論で扱える。しかし場の理論にもとづく根本的議論にはまだ多くの難点があり, これに関連してもっと実験データが望まれている。

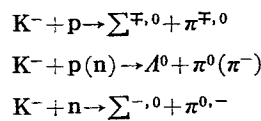
3.2 K^- -中間子 [256]

K^- は $S=-1$ だから



という工合に K^+ と対にならないとできない。このために K^+ よりつくられにくい [737]。

これに反し相互作用としては K^+ のときの I, II, III のほかに,



などの反応がおこる。したがって $K^- - N$ の相互作用は $K^+ - N$ にくらべて大分強い。しかし $K^- - N$ についてはほとんど定量的なデータもなく, ただ K^- と原子核の相互作用の光学ポテンシャルは虚部をもつ引力だとい

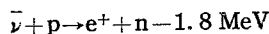
うことがほのかに知られている程度であるらしい。
K-中間子の問題としてはこのほか崩壊の様相のこ

とがあるが、これは略す。

4. そ の 他

4.1 中性微子の吸収断面積 [1026]

カリフォルニア大学で



という反応の断面積を、原子炉から出る $\bar{\nu}$ を使って求めた。原子炉の近くに約 10^6 cm^3 の大きなトリエチルベンゼン液をおき、中性子が減速されて吸収されたとき出る γ と e^+ との coincidence をとって測った。宇宙線にたいする大きなシールドをおき、また宇宙線との anti-coincidence をとった。さらに noise による偶然の coincidence は波形をオシロスコープにとって見分けた。結果として

$$\bar{\sigma}N = (6.7 \pm 2.4) \times 10^{-43} \text{ cm}^2/\text{fission}$$

をえた。N は核分裂一つあたりに出る反中性微子の数(反応の threshold 1.8 MeV 以上のもの)で、 $\bar{\sigma}$ は反中性微子のエネルギースペクトルにつき平均したという意味である。

この断面積は ν の 4 成分理論と 2 成分理論で因子 2 だけ違うので重要である。2 成分理論では $\bar{\sigma}N = (6.0 \pm 1) \times 10^{-43} \text{ cm}^2/\text{fission}$ となるので、2 成分理論に支持を与える。この計算では $\bar{\nu}$ のスペクトルについても詳しい研究がなされた。

4.2 核子の構造 [1427]

スタンフォード大学の 600 MeV エレクトロン・リニアックを使って、まず陽子による電子の散乱角分布を測り、これによって陽子の構造を調べた。いわばきわめて分解能のよい電子顕微鏡で陽子を見たわけである。それによると陽子は点電荷ではなく、 $0.8 \times 10^{-13} \text{ cm}$ ぐらいまで広がった電荷の雲になっているという。分布の形はだいたいガウス型である。磁気能率も同じぐらい広がっている。

これにたいして中性子はどうか。自由な中性子は十分な密度でえられないので、重陽子と電子の散乱から、わかっている陽子と電子の散乱の影響をとり除くことによって調べられた。弾性散乱からも非弾性散乱からも、中性子の磁気能率はほとんど空間的な広がりをもち、一点に集まっていることがわかった。

陽子と中性子の構造のこのような違いは普通の中間子論では説明できず、大きな問題になっている。こんな小さなところでは時空の概念をかえなければならないのかもしれない。こういう点をもっと詳しく知るためにさらに高いエネルギーでの実験が計画されているという。

4.3 反核子 [2393, 721-未着]

反核子が人工創造されるようになって、反粒子と核子の相互作用がかなりわかってきた。核子と核子の相互作用では

(1) 交換力がかなり強くて 3P -状態での力は非常に弱い。

(2) 遠距離では引力だが近距離では強い斥力になる。

という 2 つのことが特徴であった。一方反核子と核子の間では

(1') 交換力が弱く、 3P 状態での力がかなり強い。

(2') 遠距離では引力なことは前と同様だが、近距離では強い斥力の代わりに、反核子-核子の消滅に対応して強い吸収がおこる、

ということが特徴になる。このため \bar{p} (反陽子) と p の断面積は p - p のそれに比べて数倍大きい。また角分布も p - p はほとんど平らなのに \bar{p} - p では前方に大きい。 p - p と \bar{p} - p における(1)と(1')の違いは、核力の中間子論で定性的によく説明できるという。

文 献

第 2 回ジュネーブ会議報文
[256] Y. EISENBERG, F. G. HOUTERMANS, W. KOCH,

E. LOHRMANN, M. NIKOLIE, M. SCHNEEBERGER,
P. WALOSCHEK, H. WINZELER: Physics of K-

particles.

- [692] M. T. BUNGY, V. E. KROHN, T. B. NOVEY, G. R. RINGO, V. L. TELEGDI: Symmetry properties in the decay of polarized neutrons.
- [737] R. SERBER: The production and properties of strange particles and pions at the Brookhaven Cosmotron.
- [965] HERWIG, SCHOPPER: Experimental proof for the violation of parity conservation by measuring the circular polarization of γ -rays.
- [1026] F. REINES, C. L. COWAN, R. E. CARTER, J. J. WAGNER, M. E. WYMAN: The free antineutrino absorption cross section.
- [1090] G. ALEXANDER, F. ANDERSON, R. H. W. JOHNSTON, D. KEEFE, A. KERNAN, J. LOSTY, A. MONTWILL, C. O'CEALLAIGH, M. O'CONNELL: Investi-

gation of the strong and weak interactions of positive heavy mesons.

- [1371] N. DALLAPORTA: K^+ について(原題名なし)
- [1427] R. HOFSTADTER: Structure in the proton and the neutron.
- [1732] J. CSIKAI, A. SZALAY: The electron-neutrino angular correlation in the decay of ${}^6\text{He}$.
- [2393] GEOFFREY F. CHEW: Pions and Antinucleons-
- [2459] C. S. WU, L. LEDERMAN: Weak interactions.
- [196] M. A. CLARK, J. M. ROBSON, R. NATHANS: An investigation of time-reversal invariance in the beta decay of the neutron.

その他

- 1) GELL-MANN, ROSENFELD: *Annual Review of Nuclear Science*, vol. 7 p, 407 (1957).
J. G. BECKERLEY (ed.) Annual, INK.

原子核の理論

1. 概 説

原子核の理論の分野でジュネーブの会議に報告されたものでは、最も応用範囲の広い問題としては、核子と原子核の相互作用の光学ポテンシャルの問題がある。これにはスピン-軌道力まで含めた広いエネルギー範囲にわたっての詳しい報告がなされた。これは永年にわたって使われていた複合核という概念に代わるものとして重要である。さらになぜ複合核模型より光学ポテンシャル模型のほうが実験とよく合うかということの基礎づけを WEISSKOPF がのべている。また複合核を通らないでおこる反応の問題では、高速中性子の捕獲における直接過程が詳しく調べられた。

いっぽう原子核の殻模型による基底状態付近の励起準位の解析についてもいくつか報告された。この理論

は計算がたいへん複雑になるのだが、それを単純化する1つの新しい方法についての論文がやや注目をひく。

このほか高い励起状態 (~ 10 MeV) での準位密度についても興味ある分析がなされた。準位密度は中性子の吸収をはじめ多くの反応に関係するから重要である。

核分裂についての理論は核分裂のセクションにまとめて出すことにする。

全体として原子核理論の分野では画期的な仕事はないようだが、高速中性子の捕獲、スピン・オービット力を含む光学ポテンシャルなどの面で着実な進歩は続いているという感じである。

2. 基礎部門

原子核を構成する核子間に働く力、すなわち核力は非常に強い短距離力である。低エネルギーの核力の実験データは、理論的には中間子1個の交換過程から導かれるメソンポテンシャルで十分よく再現できるがかたい斥力の芯(repulsive core)がある内部領域はまだ現象論的に取扱わざるを得ない [1334]。他方、原子核には独立粒子模型が非常によい近似で成立つことはよく知られている。一見両立しないようにみえる両者一強い2体の核力と核全体の独立粒子的な振舞いを結びつける努力が BRUECKNER, EDEN, BETHE, GOLDSTONE らによってなされたが WEISSKOPF [2399] がここで概念的に簡単で、直観的にわかるような説明を与えている。彼は核子として Serber 型の中心力を取り、半径 $C=0.4 \times 10^{-13}$ cm の repulsive core と、その外に径 $b=1.9 \times 10^{-13}$ cm の引力の井戸 (強さ $V_0 \sim 25$ MeV) をもったものをとる。ある2粒子の相互作用を考える時、それら以外の粒子との相互作用は無視するが、考えている対の相互作用は正確にとり入れる。これはい

わば独立粒子対模型である。このモデルでは他の粒子は pair と相互作用しないが PAULI 原理をとおして pair 間の相互作用に重要な影響を与える。すなわち終状態が他の粒子で占められているとき散乱は禁止される点で孤立した粒子の相互作用と違ってくる。フェルミガス中での pair の波動関数 $\phi_{\alpha\beta}$ は

$$|r_1 - r_2| \rightarrow \infty \quad \text{で} \quad \phi_{\alpha\beta} \rightarrow \phi_{\alpha}(r_1)\phi_{\beta}(r_2) \quad (\text{非摂動解})$$

$$|r_1 - r_2| \ll \lambda_F \quad \text{で} \quad \phi_{\alpha\beta} \rightarrow \text{pair の散乱解}$$

λ_F : フェルミ波長

となり、pair の波動関数の非摂動な波からのずれ ("wound" と呼ぶ) は2粒子が接近したときだけ起る。数値計算で当たってみると波動関数の相互作用による "wound" は $r \approx d$ (平均核子間距離) でなおってしまう ("heal" する)。これを波動関数の "stiffness" とよんでいるが、これは PAULI 原理からくる。原子核では引力のポテンシャルが $d \gg c$ であるという意味で弱いと考えられ、平均核子間距離で波動関数がよく heal

するので2粒子の接近した衝突が本質的な役割を果さない低エネルギーの問題では自由粒子の波動関数がよい近似になる。 $V_0 = f(\hbar^2/m)k_p^2$ とかいたとき $f < 1$ なら独立粒子模型が成立ち、 $f \gg 1$ ならだめになる。同じフェルミオンの集合でも窒素原子の集合は基底状態は結晶で $f \approx 4,000$ となり引力部分は強いといわねばならない。また以上のような議論でエネルギーを最小にする密度をきめると粒子1個当りのエネルギーおよび密度(いずれも原子核の飽和の性質と関連ある量)が実験値と余り違わない値で得られる。注意すべき点は上の議論はすべて無限に広がった核物質に対するもので実際の有限の大きさの核にはそのままの形では適

用されないことである。これと関連して GREEN [662] が WEISZÄCKER の半経験的質量公式の中の色々な係数、たとえば対称因子 $(N-Z)/A$ の係数を2体の核力からだそうと試みているが、最終的な結果にまでは達していない。

超流動、超電導の多体問題の研究は一昨年あたりから急速に進歩しており、この方面の簡単なレビューが BOGOLUBOV [2249] によってなされている。力の性質が違う点などから金属の場合に発展した方法論がそのまま核物質の場合に応用されるかどうかはまだはっきりわからないが、この方面の今後の発展に注意を怠ってはならない。

3. 核 構 造

もし核力の range が核半径より長ければマトリックス要素の計算で Slater 係数は F^0 だけが重要となり、計算は簡単であるが、短距離力のときはすべての Slater 係数が同じ大きさの程度になり計算は複雑になる。しかし短距離力に対しても簡単に結果を与えるような手続が MOSHINSKY により提唱された [1087]。Non-zero range のポテンシャルを $V(x)$ とすると(いま1次元のばあいを簡単のために考える)、運動量表示では

$$v(p' - p'') = (2\pi\hbar)^{-1} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp(-ip'x/\hbar) \cdot V(x) \exp(ip''x/\hbar) dx \quad (1)$$

である。指数関数を展開して

$$v(p' - p'') = (2\pi\hbar)^{-1} \sum_{n'=0}^{\infty} \sum_{n''=0}^{\infty} i^{n''-n'} [n'!n''! \hbar^{n'+n''}]^{-1} I_{n'+n''}(p')^{n'} (p'')^{n''} \quad (2)$$

$$I_{n'+n''} = \int_{-\infty}^{+\infty} V(x) x^{n'+n''} dx \quad (3)$$

と書く。さて位相空間でつぎのような zero range velocity dependent potential を作る。

$$\sum_{n'=0}^{\infty} \sum_{n''=0}^{\infty} i^{n''-n'} [n'!n''! \hbar^{n'+n''}]^{-1} I_{n'+n''} p^{n'} \delta(x) p^{n''} \quad (4)$$

ここで p は演算子で

$$p = (\hbar/i)(\partial/\partial x) \quad (5)$$

である。 $V(x)$ と (4) とは運動量空間で同じ表示をもつ。したがって他の表示でも同じになり、このことは短距離ポテンシャルは原理的に zero range の p の昇降の velocity dependences をもつポテンシャルに展開されうることを示している。また $V(x)$ が短距離力であるから(4)の級数の始めの2,3項のみが重要である。この方法で中心力、 \vec{L} , \vec{S} 力、テンソル力(いずれも短距離力)の場合につきマトリックス要素を計算している。

中位の重さの偶-偶核の励起準位 (0, 2, 4) は vibration state として解釈されることはよく知られている。これを外側の粒子の残留相互作用を摂動として取扱う orthodox な計算法で説明できるかどうかの試みが SZYMANSKI [1590] によってなされている。 ^{66}Zn について数値計算をして、一応の結果は出しているが、電磁的遷移確率の評価までやらなければはっきりした結論は下せない。

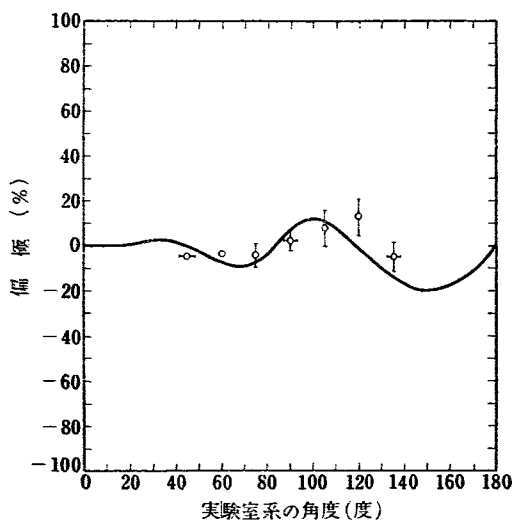
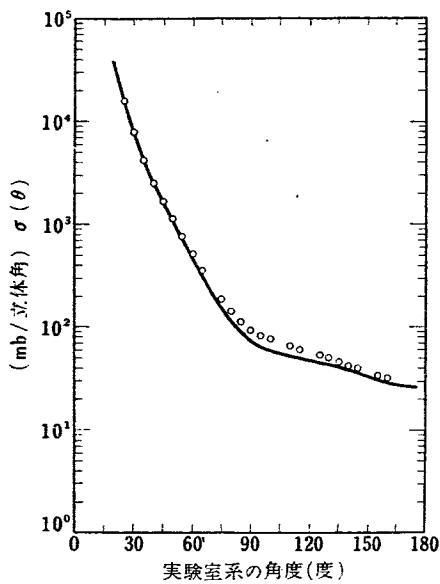
また1958年3月までのデータを使って $40 \leq A \leq 154$ および $180 \leq A \leq 226$ の偶-偶核の励起状態 (vibration state) の整理と、 $21 \leq N \leq 81$ の奇-奇核の weak Nordheim rule ($j_P + j_N + l_P + l_N = \text{odd}$ なら $|j_P - j_N| \leq J \leq j_P + j_N$) の検証が MALLMANN [1971] [1927] によってなされている。

4. 核 反 応

代表的なものは BJORKLUND, FERNBACH [649] の光学模型によるパラメーター解析である。核子-核散乱の記述に光学模型が非常に有効であり、今までに多くの解析がなされたが、彼らはポテンシャルとして

$$V(r, E) = V_{cr}(E) / [1 + \exp(r - R_0)/a] + iV_{ci}(E) \exp[-(r - R_0)^2/b^2] + [V_{sr}(E) + iV_{si}(E)] (\hbar/\mu c)^2 \frac{1}{r} \frac{d\rho(r)}{dr} (\vec{\sigma}, \vec{L}) \quad (6)$$

ただし、



第1図 コバルト, ニッケルによる 5 MeV陽子の弾性散乱
(上) 5.18 MeV 陽子のコバルトによる (弾性) 微分断面積
(下) 5.8 MeV 陽子のニッケルによる偏極

V_{cr} : central real potential

V_{ci} : central imaginary potential

V_{sr} : real spin-orbit potential

V_{si} : imaginary spin-orbit potential

$$R_0 = 1.25 A^{1/3} \times 10^{-13} \text{ cm}$$

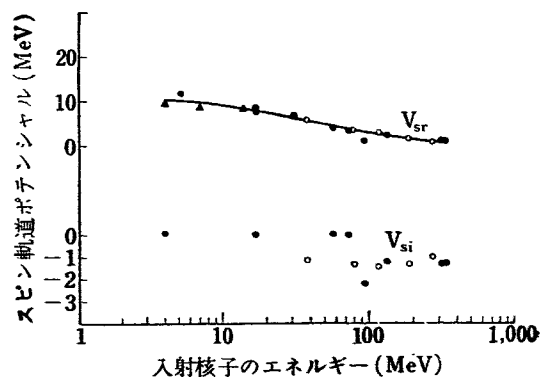
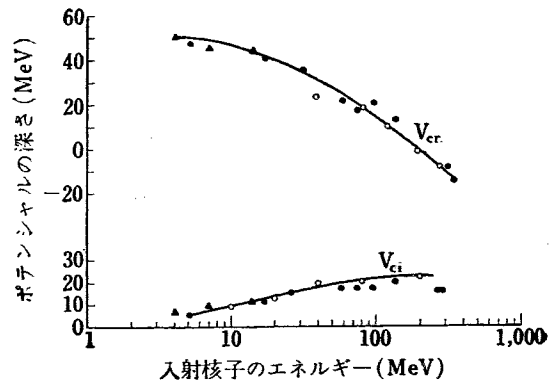
$$a = 0.65 \times 10^{-13} \text{ cm}, \quad b = 0.98 \times 10^{-13} \text{ cm}$$

$$\rho(r) = [1 + \exp(r - R_0)/a]^{-1}$$

ととり、散乱と偏極の実験データをよく合わせている。

注意すべきことは吸収部分をガウス型にとったこと、スピン軌道力の項を入れたことである。これは従来の Wood-Saxon 型より実験との一致がよい。代表的な例を第1図に掲げる (中性子に関するものは *Phys. Rev.*, 109(1958), 1295 参照)。

中性子と陽子のパラメーターについては、陽子の場合 b を少し大きくまた V_{cr} をクーロンポテンシャル



(▲: 中性子 ●: 陽子 ○: RIESENFELD-WATSON の計算値)

第2図 (上) 入射核子のエネルギーによる光学模型中心ポテンシャルの変化
(下) 入射核子のエネルギーによる光学模型スピン軌道ポテンシャルの変化

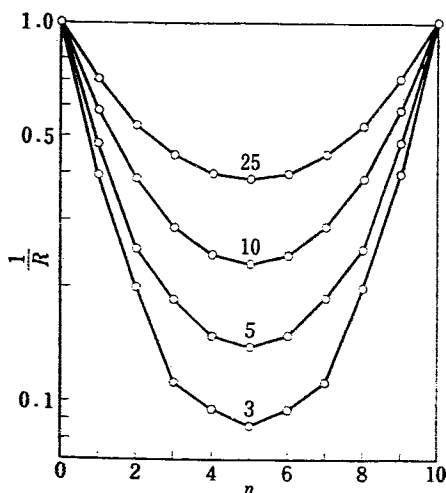
を打消すだけ深くとっている。低エネルギーでは虚のスピ軌道ポテンシャルを導入する必要がない。入射核子のエネルギーの関数としてのポテンシャルの変化を第2図に示す。

スピ軌道のポテンシャルはまだはっきり決められないが、 V_{sr} はすべてのエネルギーで正で数 MeV 程度で、 V_{si} は負で 100 MeV 以下では非常に小さい。

5. 高い励起状態の準位密度にたいする殻構造の影響 [693]

5~10 MeV 励起された核の準位密度は過去 2, 3 年の間に週期律表のすべての領域にわたって調べられた。その結果、準位密度の質量数 A 、励起エネルギー Q についての変化の大雑把な振舞は FERMI ガス模型でもよく説明されるが、よくみると個々の核の構造の違いによる変化 (shell effect) があらわれていることがわかった。これの一つの原因として彼らはここで Margenau effect を取り上げ、これの実験的検証をおこなっている。Margenau effect とは、もし励起状態においても shell model に基づいた状態数の勘定法が正しいものとすれば完全に満たされていない shell をもつ核の方が closed shell の核より準位密度が大きいことをいう。たとえば g を縮退度、 p を unfilled shell にある粒子の個数とすれば基底状態付近では $g! / p!(g-p)!$ だけ unfilled 核が filled 核より準位密度が大きい。簡単のために粒子は 1 種類とし準位は一定の間隔 d で一様に分布し、 g を縮退度、 n を基底状態で最上位の準位 (FERMI レベルと呼ぶ) にある粒子数、励起エネルギーを Q とすると状態密度は

$$C(g, n, Q, d) = \exp\left(\pi\sqrt{\frac{2}{3}gx}\right) / \sqrt{48x}d \quad (7)$$



第3図 $g=10$ とした時の準位間隔とフェルミ準位の占拠数 n との関係。曲線上の数字は Q/d の値を示す。

ただし、

$$x = \frac{Q}{d} + \frac{g}{12} - \frac{1}{2g}\left(n - \frac{g}{2}\right)^2 \quad (8)$$

となる。Cの代りに以下の議論に便利な量 R を定義する。これはフェルミレベルに粒子が完全につまったとき、まだ完全につまっていないときとの C の比で、

$$R(g, n, Q/d) = C(g, n, Q, d) / C(g, g, Q, d) \quad (9)$$

である。

次の諸点は注意すべきである。(第3図参照)

- 1) $g, Q/d$ を固定したとき R は $n=g/2$ で最大、 $n=g$ で最小となる。
- 2) n を $(g-n)$ に置換えても R は変わらない。粒子と孔とは対称関係にある。
- 3) R の n による変化は Q が小さいほど大きい。実際の核でも大きな g と d とが期待されるならこの効果は顕著に表われると思われるので特に $N=28$ ($f_{7/2}$ で $g=8$) と $Z=50$ ($g_{9/2}$ で $g=10$) の近傍の核について調べる。

励起エネルギーが Q で、スピン J をもつ準位密度 $N(Q, J)$ は $J/\sigma^2 \ll 1$ なら (σ はある定数)

$$N(Q, J) = \frac{(2J+1)}{2\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp\left(-\left(J + \frac{1}{2}\right)^2 / 2\sigma^2\right) \rho(Q) \quad (10)$$

$\rho(Q)$: すべての状態の密度

で与えられる。もし $(J + \frac{1}{2})^2 / 2\sigma^2 \ll 1$ ならば ($A \geq 40$)

の核の基底状態のスピンは一般に σ より小さい)

$$N(Q, J) \propto (2J+1) \quad (11)$$

となる。遅い中性子による共鳴準位密度の場合は平均のレベル間隔を S とすると、

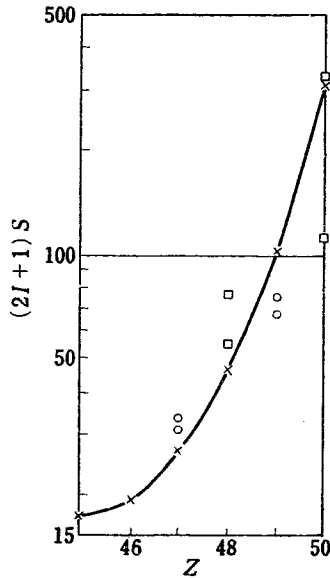
$$\frac{1}{S} = \frac{1}{2} \left[N(Q, I + \frac{1}{2}) + N(Q, I - \frac{1}{2}) \right] \quad (12)$$

$$\propto (2I+1)\rho(Q) \propto (2I+1)C \propto (2I+1)R \quad (13)$$

したがって

$$(2I+1) \propto \frac{1}{C} \propto \frac{1}{R} \tag{14}$$

となり、これをテストの式とする。Ag, Cd, In, Sn の 4 組の同位元素について $g_{\frac{1}{2}}$ shell の Margenau effect を調べた結果が第 4 図と第 1 表である。中性子数が一定でない欠点はあるが、次の理由からこれは Margenau effect であることが結論される。



第 4 図 Shell 効果の図表的表示。□, ○はそれぞれ偶, 奇, N 複合核の $(2I+1)S$ の観測値を示す。× は $g=10, Q/d=3$ の時の計算値

第 1 表 $Z=50$ の近傍での Margenau shell 効果 を表明するために使用した中性子の共鳴資料

標的核	複合核		標的の スピン	B_n (MeV)	観測された S (eV)	間隔の数
	Z	N				
^{107}Ag	47	61	1/2	7.27 ± 0.02	15.3d	3
^{109}Ag	47	63	1/2	6.16 ± 0.33	16.3d	5
^{113}Cd	48	64	1/2	8.97 ± 0.17	27.4f	5
^{115}Cd	48	66	1/2	9.05 ± 0.01	38.4f	5
^{115}In	49	65	9/2	7.31 ± 0.20	7.30	6
^{115}In	49	67	9/2	6.59 ± 0.20	6.75	7
^{117}Sn	50	68	1/2	9.24 ± 0.20	55	4
^{119}Sn	50	70	1/2	8.98 ± 0.25	160	2

1) $Z=47 \rightarrow 50$ につれて $\rho \rightarrow$ 小。これは Margenau effect と一致する。

2) 有効励起エネルギー (中性子の結合エネルギーが必ずしも励起エネルギーに等しくなく、励起エネルギーとしては実際の基底状態とは異なるある基準点から測ったものをとる) の考えだけでは説明できない。

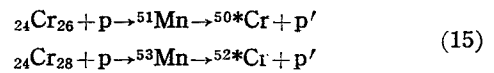
従来準位密度の式は、多く独立粒子模型でだされておき、これに残りの相互作用、とくに pairing interaction をとり入れるため幾つかの補正をする提案がなされてきた。

a) 複合核が偶-偶の時 B_n は大きい ρ は大きくない事実などから BETHE も HURWITZ は有効励起エネルギーは半経験的質量公式で偶-奇項をとったもので与えられる点から測るべきとした。

b) NEWTON, ERICSON は奇-奇核には B_n を、奇質量核には $B_n - 1$ (対エネルギー)、偶-偶核には $B_n - 2$ (対エネルギー) を有効励起エネルギーとした。

a) によればいま問題にしている核はすべて同じ励起エネルギーを与えられるし、b) では Ag, In (奇-奇) と、Cd, Sn (偶-偶) とは同じ補正をうけるので実験を説明できない。

$N=28, f_{\frac{1}{2}}$ shell の検証としては次の (p, p') 反応をやる。



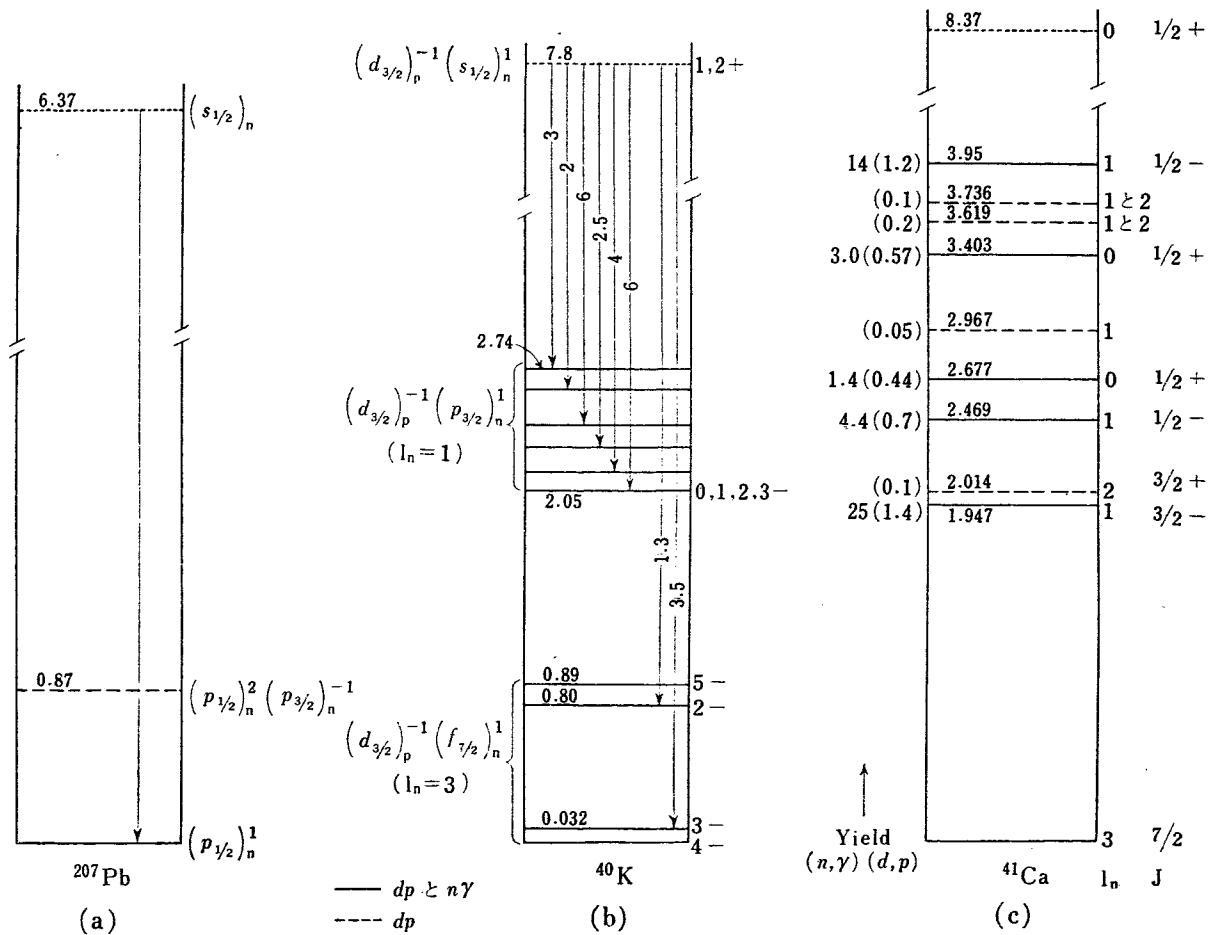
Cr の第一励起準位から出る r 線の収量曲線から共鳴準位を勘定する。実験はアルゴンヌのヴェン・ド・グラーフで入射陽子のエネルギーは 3~3.5 MeV の間で 0.4 keV ごとにデーターをとっておこなわれた。理論の予想では約 3~5 倍だけ $S(^{53}\text{Mn})$ が $S(^{51}\text{Mn})$ より大きいはずなのに、実験の結果は共に $S \approx 5 \text{ keV}$ となり否定的である。これは遅い中性子の場合と異なりスピン J の依存性に不正確さがあるのと、 $f_{\frac{1}{2}}$ レベルの d はそれほど大きくないためと考えられる。

6. 高速中性子の中性子吸収の理論

捕獲 r 線が直接過程を通しておこると考え、中間結合の理論を用いた解釈を文献 [4] に展開している。前にバックが現象論的に導いた直接捕獲による断面積の式

$$\sigma(E) = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_b |\langle u(E) | \mathcal{V} | \psi_b \rangle|^2 \rho$$

$u(E)$: 標的核の複素ポテンシャルより散乱されたエネルギー E の入射波の単位フラックスに正規化さ



第5図 14 MeV 中性子の捕獲断面積の実験値と直接過程および複合核過程による計算値との比較
横軸は複合核の中性子の数

れた波動関数, ϕ_b : 同じポテンシャルの実部による束縛状態の波動関数, 和はすべての束縛状態にわたってとる. ρ は状態の密度, \mathcal{H} は放射場と核子の相互作用のハミルトニアン. この計算はブロックおよびブラウン・ドミニシスの方法を用いて一般的に導いた.

今までは捕獲 γ の断面積は複合核モデルで扱われてきたが複合核モデルのよく成り立つのは 4 MeV 以下の中性子による現象に対してである.

筆者らの見積りでは複合核過程と直接過程とが同じくらいになるのは中性子のエネルギーが 10 MeV 付近においてである. 重い核になるともう少し低いエネルギーで両者が等しくなる. 10 MeV 以上になると複合核過程を通る断面積の理論値は急速に小さくなり実験値より数オーダーも少なくなる. ほかに複合核過程による説明で困る問題としては, 断面積の絶対値のほか

に理論値が閉殻の所で大きくなることもある. (第5図参照).

また ^{206}Pb の中性子捕獲のごとく ^{207}Pb の基底状態に強く落ち, 0.87 MeV の励起状態に行く吸収が見つけられない例では, 複合核の理論によると2つの状態への E_1 による遷移マトリックスの偶然的なゆらぎのため 0.87 MeV の状態への遷移がおこらないとされていたが, 直接過程のモデルでは捕獲状態 $(s_{1/2})_n^1$ から 0.87 MeV の状態の $(p_{1/2})_n^2 (p_{3/2})_n^{-1}$ へ遷移するには1箇以上の粒子の配置の変化が必要となり, このような変り方が禁止されるため 0.87 MeV への遷移が起らないということになり, ごく自然に説明される.

第5図は 14 MeV 中性子の捕獲断面積の実験値と直接過程および複合核過程による計算値とを複合核の中性子の数の関数として示したものである.

7. その他

7.1 共鳴準位のスピンの分布

^{27}Al に 1~450 keV の中性子をあて全断面積をブライトウィグナーの多準位公式によって解析し、 ^{28}Al の 50 箇ほどの準位のスピンをきめた。

単粒子モデルに対しスピン J の関数として与えられる準位密度の理論式

$$\rho(u, J) = \rho(u) [\exp\{-J^2/2c\tau\} - \exp\{-(J+1)^2/2c\tau\}]$$

と実験から得た準位のスピンの分布とはきわめて良い一致をした。

$\rho(u)$: 問題としているエネルギー範囲内のすべての準位の密度

u : 励起エネルギー

τ : 核温度によりエネルギーと共にゆっくり変る量

C : 核半径を $R=0.14A^{1/3} \times 10^{-12}$ と取れば $\frac{1}{55} B^2 A^{5/6}$

MeV^{-1} で与えられる常数 ($B=0.55$).

$2c\tau=6$ と取ったとき実験と最も良く合った。このときの τ は 2.1 MeV で他の実験から知られている値に近い。またここで得られた $\rho(u)=145 \text{ MeV}^{-1}$ と、ブロックにより与えられた

$$\rho(u) = (96\sqrt{\pi c \tau u})^{-1} \exp\left(\pi \left(\frac{2u}{3\delta}\right)^{1/2}\right)$$

ただし $\frac{1}{\delta} = \frac{1}{\delta_n} + \frac{1}{\delta_p}$

δ : 核内核子の平均の準位間隔

$\delta_n(\delta_p)$: 核内の中性子(陽子)の準位間隔
とを比較して $\delta=0.48 \text{ MeV}$ を得た。理論値は $\delta=0.45 \text{ MeV}$ である。

換算中性子幅の大きさの分布はポーター・トーマス分布の $\nu=1$ のカーブにかなり良く合っている。

7.2 整列された ^{237}Np , ^{233}U からの α 崩壊の角分布

変形の著しい重い核からの α 崩壊の角分布はクーロン障壁が核表面の位置により異なるため非等方になると考えられる。

ウラン付近の核は正の4重核能率を持つ葉巻き型回転楕円体であるため先端部に多く α が出ると予想される。

$\text{NpO}_2\text{Rb}(\text{NO}_3)_3$ および $\text{UO}_2\text{Rb}(\text{NO}_3)_3$ の結晶を極低温に冷やし結晶の c 軸に関する α の角分布を測定した。

1.16°K における ^{237}Np の α 崩壊の角分布は c 軸と α の出る方向がなす角を θ とする。

$$W(\theta) = 1 + A_2 P_2(\cos \theta), \quad A_2 = -0.068$$

となった。

^{233}U については 1.14°K において $A_2 = -0.055$ を得た。

この曲線は 0° で極小、90° で極大を示す。

結晶構造の方から ^{233}U , ^{237}Pu の長軸は c 軸に平行であることがわかっている。この結果は理論の予想¹⁾と逆である。

文 献

第2回ジュネーブ会議報文

- [4] A. M. LANE, J. E. LYNN: Direct radiative capture in nuclear reactions.
[649] F. BJORKLUND, S. FERNBACH: Exact phase-shift calculation for nucleon-nuclear scattering.
[662] A. E. S. GREEN: The Weizsäcker mass formula and nuclear sizes and forces.
[693] N. ROSENZWEIG, L. M. BOLLINGER, L. L. LEE, JR., J. P. SCHIFFER: An effect of shell structure in the level density of highly excited nuclei.
[725] L. D. ROBERTS *et al.*: Alpha-particle emission

from oriented ^{237}Np & ^{233}U nuclei.

- [1087] M. MOSHINSKY: Short range forces and nuclear shell theory.
[1334] S. OTSUKI, R. TAMAGAKI, W. WATARI: On the applicability of pion-theoretical nuclear potential.
[1590] Z. SZYMANSKI: Mixed configurations in spherical nuclei.
[1971] C. A. MALLMANN: Excited states in even-even nuclei with $40 \leq A \leq 154$ and $180 \leq A \leq 226$.
[1972] C. A. MALLMANN: Observation on the weak Nordheim rule and on isomerism in odd-odd nuclei.

[2249] N. N. BOGOLUBOV: Investigations of the many-body problem and their application to the theory of nuclear matter.

[2399] V. F. WEISSKOPF: The properties of nuclear matter.

[2426] C. T. HIBDON: Distribution of angular mo-

menta of resonance levels for neutron scattering.

その他

1) D. L. HILL, J. A. WHEELER: *Phys. Rev.*, **89**, 1102 (1953)

高速中性子の実験

1. 概 説

今回の会議に提出された高速中性子関係の論文にはとくに目新しいものは見られない。ただ目立つことは中性子捕獲に関する仕事が多いことで、ここに紹介する6編の論文中4編までがこの問題を扱っている。これは高速増殖炉などからの必要性が増したことによるのであろう。実験方法としては activation method が多くのばあい用いられるが、特に注目に値する方法としては、ロス・アラモス研究所でおこなわれている大型液体シンチレーターを使用して、捕獲 γ 線を観測する方法である。

数 MeV~十数 MeV 領域での中性子断面積の測定に関するロス・アラモス研究所の結果の総合報告を Coon がおこなっている。keV 範囲での中性子全断面積の測定はしだいに高い分解能での測定の方角に進んでいるが、ここではアルゴン国立研究所の Hibdon の Al に関する論文が出されている。中性子エネルギーは 10~450 keV、エネルギーの拡がりは 300~400 eV で、多くの共鳴について統計的議論をおこなっている。

2. 高速中性子の捕獲放射 [667]

高速中性子のいろいろな元素による捕獲断面積を得るために、B. C. DIVEN の実験 [667] では、中性子の捕獲に伴う即発 γ 線を、液体シンチレータを用いて測定している。

まず、サンプルを、中心においた直径 1 m、長さ 1 m の円筒形の液体シンチレータのタンクの表面に、軸と平行に、直径 5 in の光電子増倍管を 28 箇所つける。シンチレーターからのパルスは、さらに 5 箇所の hp Model 460 増幅器によって増幅され、Los Alamos Model 12 の time-to-pulse-height converter に入る。

中性子の平行束を、シンチレータの軸に沿って、円筒形の通路を通して入れる。このビームは、 $3/4 \mu\text{sec}$ から $100 \mu\text{sec}$ の間隔で、照射時間が、 $2 \sim 10^{-8} \text{sec}$ になるように脈動化されている。

いろいろなサンプルは、すべて直径 3.8 cm のうすい円板で、これを軽いアルミニウムの枠の上に、3mm づつはなして、シンチレータの軸にそって一列にならべる。測定は、中性子の各エネルギーについて、サンプルの他にビスマスを同様にセットしたもの、および枠の上には何もせない状態の 3 とおりについておこなわれた。ビスマスは中性子の散乱による影響を調

べるものである。サンプルについて測定したデータから、これらのバックグラウンドのカウントをさし引いたものが、サンプルによる捕獲からのカウントとしてとられるわけである。

核分裂を起すようなサンプルの場合には、Cd をふくんだ溶液をもった直径 48 cm の小さいシンチレーターを用いた。この場合、核分裂に伴う即発中性子が Cd に捕獲され、その結果生じる γ 線を全体の γ 線からさしひいたものが、求める捕獲 γ 線である。

なお、中性子束については、すでに知られた ^{235}U の捕獲および核分裂の断面積から決定された。

これらの測定の結果の一部を、第 1 表に示す。中性

第 1 表 種々の元素の高速中性子捕獲断面積

Z	元素	σ_c : 48 cm シンチレーターによる	σ_c : 100 cm シンチレーターによる
42	Mo	$52 \pm 7 \times 10^{-27} \text{cm}^2$	$65 \pm 6 \times 10^{-27} \text{cm}^2$
49	In	333 ± 33 "	363 ± 36 "
51	Sb	159 ± 16 "	142 ± 14 "
73	Ta	231 ± 23 "	234 ± 23 "
79	Au	155 ± 11 "	204 ± 20 "
92	^{235}U	104 ± 16 "	128 ± 13 "

子のエネルギーは、400 keV である。核分裂を起さない元素のうちの数個についても、小さいシンチレータ

ーを用いたので、大きいシンチレータによるものと比較して表示してある。

3. 高速中性子の捕獲断面積の測定 [2219]

高速増殖炉を精密に完成するためには、構成材料、冷却材および希釈材 (^{238}U と ^{232}Th を含む) の捕獲放射の有効断面積を測定することが問題になる。

とくに増殖炉の観点からすると、中性子の捕獲は分裂性同位元素をつくり出すときの中性子損失となり、また ^{238}U や ^{232}Th による捕獲放射は新しい分裂性物質を生じ、したがって分裂性物質をつくり出す場合の可能なサイクルの基礎となるからである。

この実験が始められた 1950 年頃は高速中性子の捕獲放射断面積について非常に限られた、しかも矛盾したデータしかなかった。

その結果、原子炉を設計するのに要求される最も信頼できる常数を得るために、いろいろな中性子エネルギーで、可能な限り多くのアイソトープについて、多

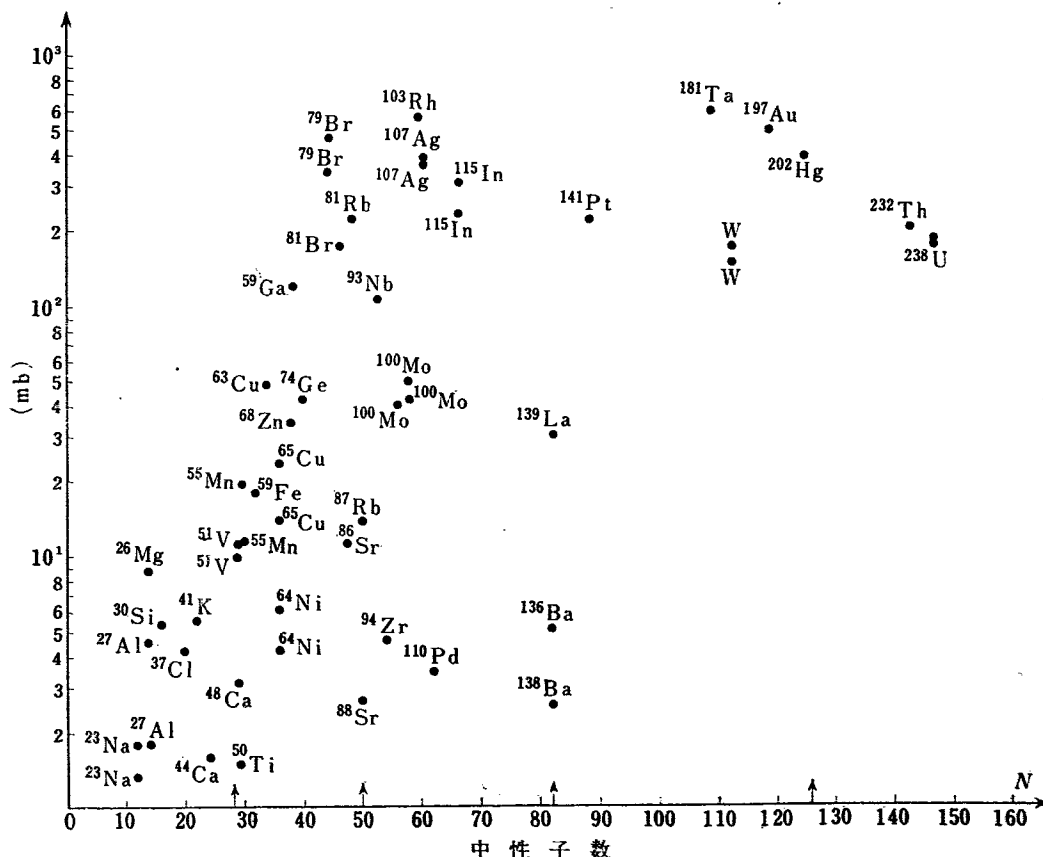
数の研究がおこなわれた。

この論文 [2219] では、中性子源は

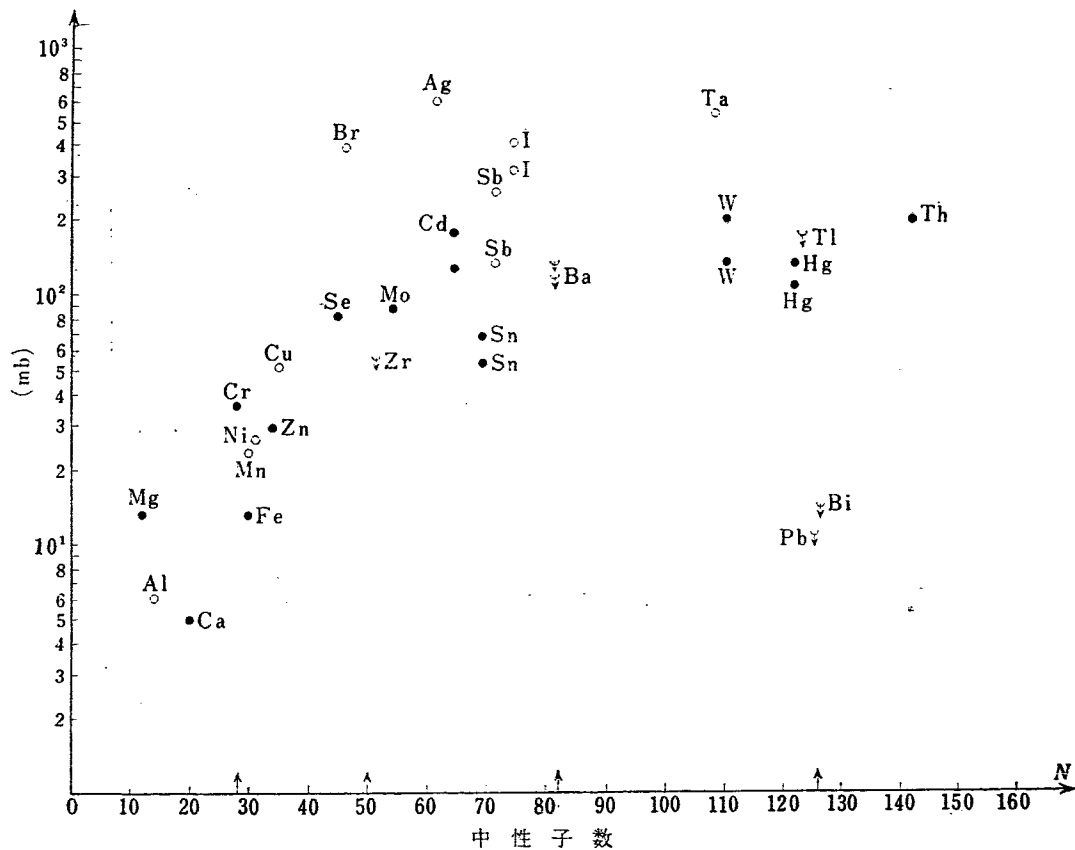
- 1) $\text{T}(p, n)^3\text{He}$: 0.2 MeV
- 2) $\text{D}(d, n)^3\text{He}$: 2.7, 4 MeV
- 3) 光反応による中性子源: Sb-Be, Na- D_2O , Na-Be
- 4) 分裂中性子源: 高速炉 Bp-2 の炉心部
高速炉 Bp-2 のブランケット部

を用い、捕獲断面積を測定する方法は

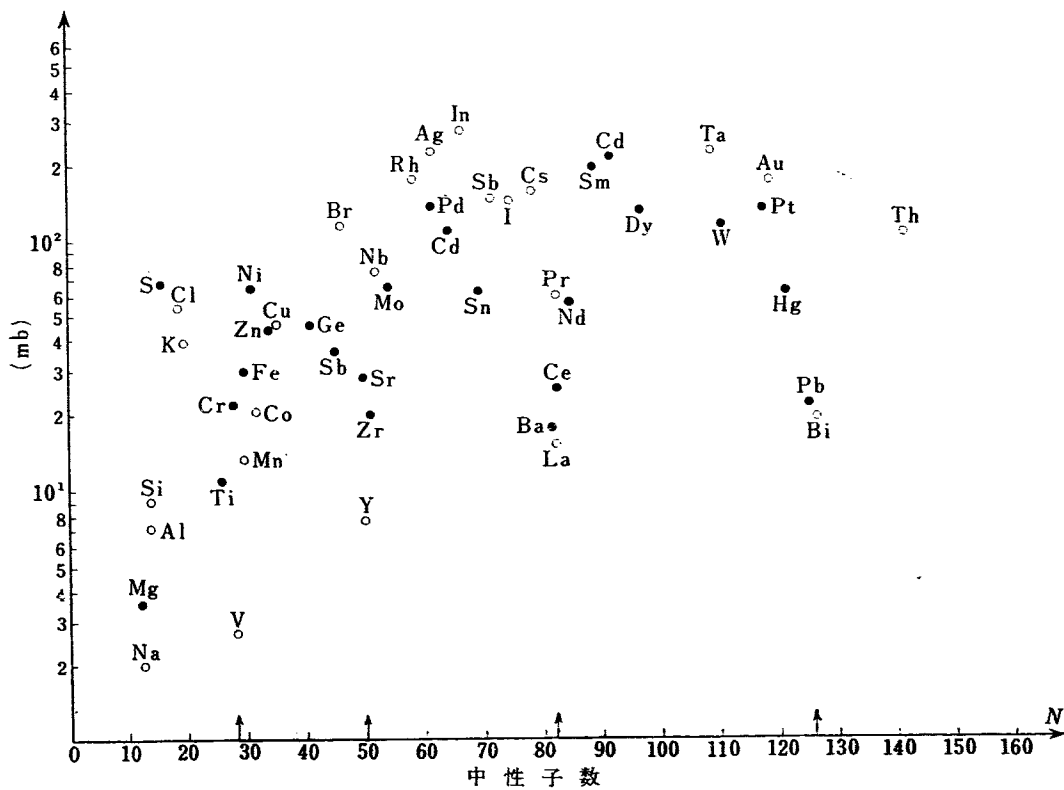
- 1) activation method
- 2) 捕獲放射の γ 線の測定
- 3) 球面状サンプルの中における中性子束の減衰
- 4) パイル・オシレーター



第1図 中性子エネルギー 0.15~0.2 MeV で、活性化の測定により得られた中性子吸収断面積 [2219] ターゲット核の中性子数による依存性を示す。



第 2 図 核内の平均の中性子数の関数としての中性子吸収断面積 [2219]. E_n は ~ 0.2 MeV (捕獲 r 線による測定結果を示す).
 ●—偶 Z の核 ○—奇 Z の核



第 3 図 核内の平均中性子数の関数としての perturbation cross section. Bp-1 原子炉の copper variant に対するパイルオシレーター法による測定.
 ●—偶 Z の核 ○—奇 Z の核

によって、1950年から1957年までの間におこなわれた捕獲放射の実験データについて述べている。

測定は主として相対測定であるが、絶対値をきめるために標準として

¹²⁷ I	24 keV	0.82 b
	200 keV	0.40 b
²³⁵ U	200 keV	1.47 b
²³⁹ Pu	Bp-2 の炉心部	1.83 b
	Bp-2 のブランケット部	1.75 b

熱中性子捕獲放射は HUGHES らの文献^{1,2)} が用いられた。

これらの結果は第 1, 2, 3 図に示してある。すなわ

ち原子核内の核子数の関数としての捕獲断面積は、HUGHES³⁾ によって観測されたように、規則性を示している。

断面積は、 A が 100 ぐらいまで系統的に増加し、それからは平均的にいって一定値になる。同時に、magic number の領域で急激に断面積が下がる。これは励起される複合核に対応するレベルの密度が低いことに関係している。

また核内の核子数の pair effect があらわれている。すなわち、偶 Z の核は、平均において奇 Z の核よりも低い値の捕獲断面積を示す。

4. 中間エネルギー領域における中性子の吸収 [671]

中性子の吸収は主に原子核による中性子捕獲 (neutron capture) によって引き起される。中間エネルギー領域 (keV 前後) においては最近までこの種の研究はほとんどおこなわれなかった。本論文は次の 2 種類の方法によって、若干の核種について測定をおこなった結果を報告している。

4.1 25 keVにおける activation measurements

中性子源としてはアンチモンの小さな球をベリリウムの薄い球殻で包んだものを使用する。アンチモンとしては ¹²⁴Sb, 半減期 60 日, γ 線エネルギー 1.7 MeV を使用, この光中性子源の中性子発生量は

1.9×10^6 n/sec · curie · 1 gram · at 1 cm である。

中性子エネルギーは 27 ± 3 keV でエネルギーの拡がりは 3~4 keV である。

この中性子源の周囲に測定する資料を置いて照射し資料の誘起された放射能は NaI(Tl) γ 線スペクトロメーターで測定する。

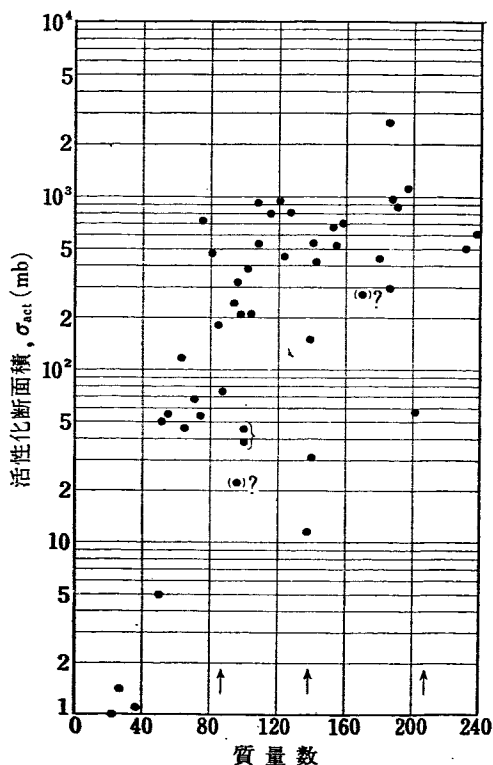
4.2 5~50 keV 範囲における吸収の測定

Spherical shell transmission 法を用いる。すなわち資料は球殻の形にして中心部に中性子検出器を置き、資料のあるときとないときの検出器のカウントの比 T を測定する。資料による中性子の吸収は $(1-T)$ と直接関係している。中性子検出器としては NaI(Tl) 結晶 (これは照射後 activation を測る) およびパラフィンで包んだ ¹⁰BF₃ カウンターを使用する。(中性子源としてははっきりかいてはないが、挿入図から判断すると前記の Sb-Be 源の外に加速器を使用して

⁵¹V(p, n)⁵¹Cr, $Q = -1.5$ MeV

反応からの中性子を利用したものと思われる)。

第 4 図に測定結果の一部を示す。横軸は質量数、縦軸は Sb-Be 中性子源からの中性子 (25 keV) に対する放射化断面積である。 $A < 100$ での断面積の急な増



第 4 図 Sb-Be 源からの中性子に対する活性化断面積 (σ_{act})
 $\sigma_{act} (^{127}\text{I}) = 0.82 \pm 0.06$ b を標準とする。

加, $A > 100$ で平になること, マジック中性子数の近くで著しく小さな値になることが一般的特長である.

すでに得られている 1 keV 以下の共鳴領域での多くの結果から, より高いエネルギー領域での平均の捕獲断面積の値が予想できる. この方法を原子炉中で有害な作用のある核分裂生成物質へ適用して, 上記の結果と比較する. (ただしより高いエネルギー領域であ

らわれる $l \geq 1$ の影響を無視する. ここで l は中性子の角運動量である). 若干の場合を除いて大体一致している. 一致していない核種では, 一部のものは核の準位間隔が中性子エネルギーの広がりより大きいことにもよるが, $l=1$ の寄与を無視した影響もあるであろう.

5. 原子核による高速中性子の散乱と捕獲 [2030]

M. V. PASECHNIC らは高速中性子の原子核による弾性散乱, 非弾性散乱, 捕獲の実験的データを発表している [2030].

内容は

1. 2.8 MeV の中性子の弾性散乱
2. 非弾性散乱のさいの γ 線スペクトル
3. 高速中性子散乱の理論
4. 高速中性子の捕獲
5. 220 keV と 900 keV 中性子の弾性散乱
6. 400 keV 中性子の弾性散乱

の 6 編の総合報告である.

5.1 弾性散乱

5.1.1 $E_n=2.8\text{MeV}$ の実験 球面状の電離箱を用いて弾性散乱と非弾性散乱の中性子を分け, 0.7~3 MeV の間で 6~8% の分解能で弾性散乱した中性子を検出した.

試料は Fe, Cu, Zn; Cd, Sn, Sb; Hg, Pb, Bi の 3 グループについて, “ring geometry” を用いて $\theta=25^\circ$ から 140° の間で, 弾性散乱の角度分布を測定した.

5.1.2 $E_n=0.22$ および 0.90MeV の実験 光反応による中性子源を用い, 比例計数管および球面状の電離箱によって, “annular geometry” で弾性散乱の角度分布を測定した.

以上の実験結果を分析するために, 光学模型で複合核を通る過程と通らぬ過程について計算し, 比較検討をおこなっている. さらにポテンシャルに鋭いかど (sharp edge) をもったポテンシャルの模型で計算し, 角度分布の最大値と最小値の位置は計算と実験結果が十分よく一致しているが, 最大値, 最小値の値自体の定量的な一致は, かどのあるポテンシャルではえられないことがわかった. しかし箱型ポテンシャルよりもゆるやかなかど (diffuse edge) をもったポテンシ

ャルにすると, 2~3 MeV で実験結果の $\sigma_{el}(\theta)$ の大部分を説明できる.

5.2 非弾性散乱

第 1 回のジュネーブ会議では, $E_n=2.5, 3, 4.3, 14\text{MeV}$ での測定を報告したが, 最近 $E_n=3.6\text{MeV}$

第 2 表 2.8 MeV 中性子の非弾性散乱による γ 線

元素	アイソトープ	γ -線エネルギー	γ -線の相対強度
Mg	²⁵ Mg	0.95±0.25	0.3
	²⁴ Mg	1.41±0.2	1.0
	²⁵ Mg	1.92±0.04	0.2
Al	²⁷ Al	0.84±0.02	0.6
	²⁷ Al	1.00±0.02	1.0
	²⁷ Al	1.80±0.02	0.8
	²⁷ Al	2.16±0.03	1.7
Fe	⁵⁶ Fe	0.84±0.02	1.0
	⁵⁶ Fe	1.25±0.04	0.1
	⁵⁴ Fe	1.46±0.04	0.1
	⁵⁶ Fe	1.70±0.04	0.1
Cu	⁶³ Cu	0.64±0.04	0.3
	⁶³ Cu	0.79±0.07	0.6
	⁶³ Cu	0.97±0.02	1.0
	⁶⁵ Cu	1.12±0.04	0.9
	⁶³ Cu	1.38±0.04	0.6
	⁶³ Cu	1.46±0.04	0.5
	⁶³ Cu	1.72±0.04	0.4
	⁶⁵ Cu	2.03±0.04	0.4
	Sn	¹¹⁶ Sn	0.84±0.02
¹¹² Sn		1.16±0.02	1.0
¹¹⁶ Sn		1.50±0.04	0.3
¹¹⁶ Sn		2.16±0.04	0.3
Sb		1.04±0.02	1.0
		1.50±0.04	0.4
		1.84±0.04	0.4
		2.16±0.04	0.2

第3表 捕獲断面積

No.	原子核	半減期	2.5MeV (mb)	3.1MeV (mb)	4MeV (mb)
1	⁵⁰ Ti	5.79 min	0.82	0.73	0.7
2	⁶⁵ Cu	5.1 min	4.2±0.32	3.9±0.31	3.5±0.3
3	⁶⁹ Ga	20.3 min	13±1.5	12.3±1.8	12. ±1.3
4	⁷⁴ Ge	82 min	10±0.7	7.5±0.6	6±0.5
5	⁸⁷ Rb	17.7 min	1.5±0.4	1.4±0.3	1.1±0.2
6	¹⁰⁰ Mo	14.6 min	6.3±1.2	5.6±1.0	4.5±0.7
7	¹⁰³ Rh	44 sec	54.6±4.5	43.5±3.2	34.6±2.7
8	¹⁰³ Rh	4.7 min	9.8±1.9	8.9±1.4	7.7±1.1
9	¹¹⁰ Pd	22.1 min	22.1±2.0	20±1.8	16.2±1.6
10	¹²² Sn	40 min	7.5	6.5	5.7
11	¹²⁸⁻¹³⁰ Te		12.4±3.3	10.1±3.0	7.2±2.1
12	¹³⁰ Ba	85 min	1.1±0.5	1.0±0.4	0.74±0.3
13	¹⁴¹ Pr	19.1 hr	8.6±0.4	7.1±0.3	6.3±0.2
14	¹⁸⁶ W	24 hr	30	24	19
15	²⁰⁵ Tl	4.2 min	5.2±0.3	5.07±0.2	5.1±0.2

で C, Na, Al, Cl, Fe, Zn, Se, Zr, Cd, Sn, Sb, Te, I, Pb, Bi, を球面状散乱体 (spherical scatterer) にして, シンチレーションカウンターを用いて精度を上げて σ_{in} を測定した。

この結果“原子炉構成物質に限って”という条件でいくつかの結論がだされている。

- 2~6 MeV の範囲で, 非弾性散乱の有効断面積は, 中性子のマジック数を除いて, $\sigma_{in} \propto A^{\%}$ である。マジック数 $A=50, 82, 126$ ではかなり小さい。
- $\sigma_{in} \propto A^{\%}$ からのずれは, $E_n=14$ MeV ではほとんどない。しかし 7~14 MeV について σ_{in} にはデータがない。
- σ_{in} の異常性は, A が大きいほど明瞭に現われる。(これは 51, 83, 127 番目の中性子の結合エネルギーのデータと一致する)。またこれは E_n が増すと減少する。

6. 高速中性子断面積に関する最近の結果 [666]

J. H. COON らは, [666] で著者ごとに6つの部分にわけた表記のテーマの報告をおこなった。一般的にいて特に新し種類のものはなく, 今までのロスアラモス研究所でおこなわれた結果の拡張にとどまっている。詳細は *Physical Review* に報告される予定である。

次に非弾性散乱の角度分布 $d\sigma_{in}(\theta)$ を測定した。

Bi と Pb についてそれぞれ 0.9 MeV および 0.8~0.9 MeV のレベルを励起するとき角度分布に非等方向性が現われた。

これは直接相互作用 (すなわち複合核を通らないで非弾性散乱をするという過程) の存在を示すものとして興味深い。

非弾性散乱の γ 線の測定 ($n, n'\gamma$) は $E_n=2.8$ MeV で Mg, Al, Fe, Ca, Sn, Sb について, NaI を用い, ring geometry で測定した。 $\theta=100^\circ$, エネルギー分解能 6.5~7% (⁶⁰Co)。結果は, 第2表に示してある。

5.3 高速中性子の捕獲(とくにマジックとその近傍の核による捕獲)

$E_n=2.5, 3.1, 4$ MeV で15元素について, activation method で ¹²⁷I を標準として, $\sigma_{capture}$ を測定した。この結果を第3表に示す。 $\sigma_{capture}$ は E_n とともに急激に減少し, 5~6 MeV で ~1 mb になる。 $\sigma_{capture}$ の誤差は 6~25% でかなり大きい。

Γ_γ は 10 MeV 程度の励起ではエネルギーに無関係であるということを考慮に入れ, Γ_γ に対して HUGHES⁴⁾ の値を用い, 次式

$$\sigma(n, \gamma) = 2\pi^2 \lambda^2 (2l+1) \Gamma_\gamma / D$$

により原子量 A の関数としてのエネルギー・レベルの間の平均の距離 D が計算される。

実験から計算されたこの D と, 統計理論によるレベル密度 $\rho \sim 1/D \sim \exp\sqrt{au}$ とを比較すると, 一般的な傾向としてレベル密度は原子量とともに増加し, 実験データは原子核の統計理論と定性的に一致している。マジック数においてはその近傍の核と比較して明らかにレベル密度が減少している。

したがって高速中性子が捕獲されるときは, かなり高い励起でも原子核の殻構造の効果が現われている。

6.1 14.5 MeV 中性子の核による弾性散乱

今までは特に後方のデータが欠乏していた。それで COON らは C, Al, Fe, Cu, Sn, Pb, U の環状散乱体を用いて, 反跳陽子シンチレーション検出器からのパルスマルチ・チャンネル波高分析器で分析して角分布を

測定した。

結果は非常に軽い核以外では, BJORKLUND & FERNBACH の光学模型からの計算 (丸みをつけたポテンシャル・スピン軌道項を加えた) とよく一致している。

6.2 14 MeV 中性子の核による非弾性中性子

入射中性子エネルギー 0.5~4 MeV で Bi, Ta, Zr を 4~13 MeV で Bi, Zr, Ta をいずれも原子核乾板を用いて測定した。また, 入射中性子エネルギー 9~13 MeV で Fe, Cu, Sn, Pb を 6.1 と同じ方法で測定した。

それによると, 85~90%は複合核を通る相互作用によるものと結論される。

6.3 14 MeV 近くの全断面積

13.1~15.6 MeV のエネルギー範囲でグッドジオメトリでトランスミッション・テクニックにより全断面積を測定した。C, Ca, Ti, Ba, La, Ce, Nd, Sm, Gd, Er, Ta, Au, Pb の全断面積の表があげられている。La 以外は 14.1 MeV での COON, GRAVES および BARSHALL の測定と一致している。

6.4 Be の弾性および非弾性中性子断面積

Time-of-flight 法により, 入射中性子のエネルギー 2.6, 3.5, 4.1, 5.6 および 6.0 MeV で微分弾性散乱断面積を精度 5% で測定した。

さらに微分非弾性散乱断面積を 3.5 および 4.1 MeV で測定した。この精度は 20% である。

高い方の中性子エネルギーでは (n, 2n) 反応がおこっている。2.6 MeV でも (n, n') のしきい値以下で (n, 2n) 反応がおこっている。この点は今までのデータとは一致しない。

6.5 ${}^6\text{Li}(n, t){}^4\text{He}$ 反応の角分布

中性子源として ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ 反応を用いて, 中性子エネルギー 150~565 keV 範囲で, カウンター・テレスコープを用い, トリチウムを測定した。

カウンター・テレスコープは 2 つの比例計数管と 1 つのシンチレーション・カウンターから成り, 3 重同時計数をとって, シンチレーション・カウンターの波高を分析した。

角分布は HUGHES および CARTER のそれと $\pm 30\%$ 以内で一致している。

6.6 ${}^{11}\text{B}(\alpha, n){}^{14}\text{N}$ 反応の研究

Time-of-flight 法を用いて, α -粒子のエネルギー 2.0~6.9 MeV で中性子群を分解した。

基底および第 1, 第 2 励起状態に対する 0° での励起曲線があげられている。これらの誤差は $\pm 12\%$ で, 従来のデータと誤差の範囲で一致している。

この実験によって, ${}^{15}\text{N}$ のいくつかの新しいレベルが見出された。基底状態の角分布の観測からは 90° 対称は得られなかった。したがって複合核のレベルを一箇だけとったのでは説明できず, またそうかといって統計モデルも使えない。

7. 中性子散乱に対する共鳴準位の角運動量分布 [2426]

CARL T. HIBDON は 1~450 keV のエネルギーをもつ中性子を ${}^{27}\text{Al}$ にあてて, これから ${}^{28}\text{Al}$ の準位間隔, 共鳴準位のパラメーター, strength function, 共鳴幅の大きさの分布, 複合核の準位の角運動量分布, などをしらべている [2426]。その実験方法と結果をまとめるとつぎのとおりである。

7.1 実験方法

中性子源としては, ${}^7\text{Li}(p, n)$ 反応を用い, 測定には transmission method を用いた。加速器は, アルゴン国立研究所のファン・デ・グラーフ加速器である。Li は, Ta に真空蒸着され, 厚さは 1 keV 以下である。計数装置は, パラフィンの円筒中に並べられた 50 本の

BF_3 比例計数管である。これらによって, 中性子の断面積について, 次の 3 つの測定を独立におこなった。

- (1) 散乱断面積の測定。
- (2) flat detection による全断面積の測定。
- (3) self detection による全断面積の測定⁵⁾。

7.2 実験結果

このエネルギーの範囲では, ${}^{27}\text{Al}(n, n'){}^{27}\text{Al}$, ${}^{27}\text{Al}(n, p){}^{27}\text{Mg}$ などの非弾性散乱⁶⁾ および捕獲放射は無視できる。その結果

- (1) s 波共鳴 (s-wave resonance) は比較的少ない。p 波および d 波共鳴が相当観測された。
- (2) peak の高さから J の分類が得られた。J と Γ_n

が直接はかれるほどに孤立した peak は少ないが、分析は可能であった。各 J についての準位の数を表示すると第4表のようになる。

中性子のエネルギーが 30 keV より下の領域では、全断面積は特に小さい。これは s 波準位の相互の干渉によるものである。

第4表

J	0	1	2	3	4
準位の数	13	21	18	10	3
相対数	0.61	1.00	0.86	0.48	0.14

7.3 核の準位間の角運動量分布

準位密度⁷⁾は、単一粒子模型(single-particle-model)により、

$$\rho(u, J) = \rho(u) [\exp\{-J^2/2c\tau\} - \exp\{-(J+1)^2/2c\tau\}]$$

である。この実験に合わせるためには、 $2c\tau=6$ とする。 $c=1.4 \text{ MeV}^{-1}$ であることがわかっているから、 $\tau=2.1 \text{ MeV}$ となる。これは、いろいろの励起核から放出される中性子のエネルギー分布から示される値に

近い。

注目したエネルギーに関するすべての準位密度は

$$\rho(u) = \sum_J \rho(u, J) = (\sigma u \sqrt{96\pi}) \exp\{\pi(2u/3\delta)\}^{1/2}$$

で $1/\delta = 1/\delta_n + 1/\delta_p$

ただし、 δ は核の中の個々の核子のエネルギー準位間隔、 δ_n は中性子の間隔、 δ_p は陽子の間隔である。この結果から、実験的にきめられるすべての準位の密度は、 $\rho(u) = 145 \text{ MeV}^{-1}$ である。また、平均値 $u = 7.95 \text{ MeV}$ および、角運動量分布からいられている $\sigma = 1.73$ を使うと、 $\delta = 0.48 \text{ MeV}$ である。(理論的には $\delta = 0.45 \text{ MeV}$ ⁸⁾。

中性子の reduced width γ^2 の分布は、PORTER および THOMAS⁹⁾ の分布にはほぼ従う。

7.4 Strength Function

与えられた l の値について、strength function $\bar{\gamma}^2/\bar{D}$ は、この実験から得られた結果は、s 波共鳴については、2つの J について平均された strength function は 0.052、p 波共鳴に関しては、すべての J について平均されたものは 0.49 である、この結果は FESHBACH, PORTER および WEISSKOPF¹⁰⁾ の複素井戸型模型(complex square well model) とよく一致する。

文 献

- 第2回ジュネーブ会議報文
- [666] J. H. COON: Recent results for the high energy neutron cross sections.
- [667] B. C. DIVEN: Radiative capture of fast neutrons.
- [671] R. L. MACKLIN: Neutron absorption at intermediate energy.
- [2030] M. V. PASECHNIK, *et al.*: The fast neutron scattering and capture by atomic nuclei.
- [2219] A. I. LEIPUNSKY: Measurements of radiation capture cross sections for fast neutrons.
- [2426] C. T. HIBDON: Distribution of angular momenta of resonance levels for neutron scattering.
- その他
- 1) D. J. HUGHES, J. A. HARWEY: BNL-325(1955)
- 2) D. J. HUGHES, R. B. SCHWARTZ: BNL-325 Sup-

- plement No. 1 (1957)
- 3) D. J. HUGHES, W. D. SPATZ, N. GOLDSTEIN: *Phys. Rev.*, **75**, 1781(1949).
- 4) J. S. LEVIN, D. J. HUGHES: *Phys. Rev.*, **101**, 1328(1956).
- 5) C. T. HIBDON: *Phys. Rev.*, **108**, 414(1957).
- 6) R. B. DAY: *Phys. Rev.*, **89**, 908(1953).
- 7) C. BLOCH: *Phys. Rev.*, **93**, 1094(1954).
- また次のものをも参照:
- H. A. BETHE; *Revs. Mod. Phys.*, **9**, 69(1937).
- J. M. B. LANG, K. J. LECOUEUR: *Proc. Phys. Soc. (London)*, **A67**, 586 (1954).
- T. D. NEWTON: *Can. J. Phys.*, **34**, 804(1956).
- 8) A. A. ROSS: *Phys. Rev.*, **108**, 720(1957).
- 9) C. E. PORTER, R. G. THOMAS: *Phys. Rev.*, **104**, 483(1956).
- 10) H. FESHBACH, C. E. PORTER, V. F. WEISSKOPF: *Phys. Rev.*, **96**, 448(1954)

熱中性子吸収断面積

1. 概 説

原子炉を設計しあるいは原子炉の特性を前もって予測するためには、多種多様な中性子断面積に対する正確なデータが必要である。これまでこの目的のためには熱中性子断面積が最初に必要なデータであったので多数の測定がおこなわれており、熱中性子炉についての概算には一応十分なデータがそろっているといえる。

しかしながら現在では、高温度で運転される原子炉の設計が必要であるばかりでなく、熱中性子炉についても共鳴中性子の影響を考慮に入れることが必要な段階となっている。また、高出力の原子炉の温度係数に関しては熱中性子に対する断面積のみならず共鳴エネルギー範囲の中性子断面積についても非常に正確なデータが必要である。さらに共鳴を逃れる確率とか減速過程での中性子の正確なエネルギー分布とかの計算には、初期に必要であったよりもずっと広い中性子エネルギー範囲に対する断面積の知識が必要である [10 36]。

このように現状では、熱中性子以上のエネルギーの中性子断面積に対するデータの集積が望まれている

が、一方、熱中性子吸収断面積についても以下に述べるように、なおデータの集積と測定精度を上げることが必要である。

分離された同位体については熱中性子吸収断面積でもまだ測定されていないものがかなりあり、広い意味で未測定の原子核についての測定がなお残されている。未測定のものが多い原子核としては、存在比の小さい同位体、放射性原子核、超ウラン元素、核分裂生成核などがあげられる。高出力の原子炉では、運転前には存在しないが、運転中にできてくる同位元素の断面積に対して考慮することがとくに重要である。また、すでに多数の測定結果があるにもかかわらず、たとえば ^{235}U のように異なる測定者による測定値間にいまだ十分な一致のないものをより正確に測定することが必要である。さらに、金やホウ素のような断面積の標準として使われるものより正確な測定が続けられなければならない [2483]。このほか、パイル・オシレータのような比較的簡便な装置によってアルミニウム合金、不銹鋼、グラファイトなど実際の原子炉構成材料を測定することがあげられる [2417]。

2. 測定値に対する一般的問題

すでに述べたようにこれまで異なる測定者による熱中性子吸収断面積の測定値がしばしば互いに一致しないことがあり、その相違が報告されている測定誤差の範囲から2倍以上も異なっている場合がある。こうした不一致の理由としては、

(a) 測定値を単に原子炉有効断面積として報告しているものがあるが、ときには有効値とすべきところを熱中性子値として報告しているもののあること、完全な $1/v$ 吸収体の場合には有効値と熱中性子値との違いは、たかだか5~10%程度であるが、共鳴吸収の大きいものでは前者は後者の数倍にもなり得る。報告に

用いた中性子束の条件を明瞭に述べてないため、エネルギー分布の異なる中性子束による結果を誤って比較する場合がある。また、中性子束のモニターの方法が異なることから、結果の相違を生むことがある。

(b) たとえ、熱中性子吸収断面積と共鳴積分というようにわけて述べられていても、熱中性子束と共鳴中性子束との間の区別の決定に疑問があること。

(c) 試料が無限に希釈されたものの積分値を測定するに十分薄いかどうかということ。

(d) 測定誤差を、測定値自体の正確さのみから概算していることが多く、誤差の起り得る可能な種々の

原因についての評価が十分でないこと。
などをあげることができる [1072].

中性子束分布と断面積値との関係については、これまで WESTCOTT¹⁾ や HUGHES²⁾ らによって取扱われているが、HAI PERIN と STOUGHTON とはカドミウム cutoff 中性子に対する断面積と 2,200 m/sec 中性子に対する断面積との関係式を導き、²³³Th, ²³³Pa, ²³³U, ²³⁴U, ²³⁶U, ²³⁸U, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu などに対するいろいろな測定者による測定値の評価をおこない、それらからの選択値の表をあげている [1072].

測定値の不一致に関する問題点は、熱中性子核分裂

断面積についても類似の事情があり、BIGHAM らは彼らの熱中性子核分裂断面積測定に関する誤差源についてくわしく述べ、測定値の報告にさいし測定条件および測定誤差の根拠などについてくわしく述べることの必要性を強調している [204].

HUGHES は原子炉に関して重要な断面積についての総括的論文の中で、熱中性子吸収断面積については、とくにホウ素、グラファイト、²³³U ²³⁵U, ²³⁹Pu および核分裂生成核に対する測定値の評価と BNL-325 (2nd edition)³⁾ に記載されているデータの導出過程について述べている [2483].

3. 測 定

熱中性子吸収断面積の測定法としては、透過度の測定、アクチベーション法、パイル・オシレーション法、中性子照射による同位体存在比の変化の質量分析による測定などをあげることができるが、この会議では実際の測定実験報告は少ない。

ROSE らは、Harwell の原子炉 DIMPLE および GLEEP に装置された2つのパイル・オシレータを用いて原子炉の構成およびキャニング材料、超ウラン原子核 ²³⁷Np, ²³⁴Pu, 核分裂生成核などの測定、および ²³⁵U, ²³³U, ²³⁹Pu の比較による η の相対値の測定をおこない、さらに GLEEP のオシレータでは多量の中性子照射による核燃料の断面積変化の測定をおこなっている。DIMPLE は重水炉で、燃料配置が自由に變更できるようにしており、非常によく熱中性子化されたスペクトル中で測定をおこなうことができる。測定値の取扱いは WESTCOTT¹⁾ および CAMPBELL ら⁴⁾ の計算によっているが、熱中性子以上のエネルギーの中性子成分とマクスウェル分布の成分との比が異なる中性子束内で測定をおこなうことから共鳴積分が計算されるので、上記のごとく2つの原子炉によってほとんど完全なマクスウェル分布をなす中性子束中での測定と

既知の熱中性子以上の成分をもつ中性子束中での測定とを並行しておこなっているわけである。測定値は一般に BNL-325 (および Supplement No. 1)⁵⁾ によく一致し、かつより高い測定精度になっている [14].

BLOMBERG は Swedish Reactor R1 のパイル・オシレータによって原子炉構成材料としての合金類の測定を純鉄および純アルミニウムを標準としておこない、試料の化学分析値と BNL-325 の断面積値とから計算した値と比較している。一般に測定値のほうがごくわずか大であって、結論として通常原子炉構成物質の選定には化学分析からの計算で十分ではあるが、原子炉の反応度に大きな影響をあたえるようなところに使われる物質については、パイル・オシレータによる検査が必要であることを述べている [2417].

BIDINOSTI らは中性子束とその照射時間とを変えて核分裂生成核の量を質量分析によって比較することから、¹³³Cs, ¹⁴⁷Pm, ¹⁴⁹Sm, ¹⁵¹Sm などの原子炉中性子吸収断面積値を測定している [201].

以上において、断面積測定値についての数値的なことは一般には BNL-325 (2nd edition) のデータで十分であるので議論をばふいた。

文 献

第2回ジュネーブ会議報文

- [14] H. ROSE, W. A. COOPER, R. B. TATTERSALL: The use of the pile oscillator in thermal reactor problems.

- [201] D. R. BIDINOSTI, H. R. FICKEL, R. H. TOMLINSON: Mass-spectrometric studies of pile poisons and their yields in the fission of U-233, U-235, and Pu-239.
[204] C. B. BIGHAM, G. C. HANNA, P. R. TUNNICLIFFE,

- P. J. CAMPION, M. LOUNSBURY, D. R. MAC KENZIE:
The slow neutron fission cross sections of the common fissile nuclides.
- [1036] D. J. HUGHES, R. L. ZIMMERMAN: Systematics of neutron resonance parameters.
- [1072] J. HALPERIN, R. W. STOUGHTON: Some cross-sections of heavy nuclides important to reactor operation.
- [2417] P. E. BLOMBERG: The effective neutron absorption properties of some reactor construction materials.
- [2483] D. J. HUGHES: Recent cross sections of interest to reactor design.

その他

- 1) C. H. WESTCOTT: *J. Nuclear Energy*, **2**, 59 (1955).
- 2) D. J. HUGHES: "Pile Neutron Research" Chap. 5, Addison-Wesley Publ. Co., Inc., Cambridge, Mass. (1953).
- 3) D. J. HUGHES, R. B. SCHWARTZ: BNL-325 (1958).
- 4) C. G. CAMPBELL, R. G. FREEMANTLE: A.E.R.E., *RP/R*, 2031 (1957).
- 5) D. J. HUGHES, J. A. HARVEY: BNL-325 (1955);
D. J. HUGHES, R. B. SCHWARTZ: BNL-325, Supplement No. 1 (1957).

低速中性子実験

1. 概 説

CP-5 や MTR のように、 $10^{13}\sim 10^{14}$ 程度の中性子束が得られる原子炉が世界各国で実用の段階になったので、低速中性子実験の精度もだんだんにあがってきた。中性子のスペクトロスコープの分解能も $0.01 \mu\text{sec/m}$ 程度出せるようになり世界のあちこちの研究所で多くの元素、とくに U, Pu などの分裂性核物質の共鳴準位の測定がおこなわれ、準位の性質もだんだんわかってきた。共鳴準位の分布の問題、各部分断面積

の問題などに対して多くの研究がなされ、いろいろの原子核の模型の適用性の議論がおこなわれた。

また中性子捕獲による γ 線の測定もこの数年来おこなわれてきて多くの実験データの集積があった。

以下、低速中性子実験装置、 ^{235}U の中性子断面積、中性子捕獲 γ 線の項目にわけて、最近の研究の紹介をする。

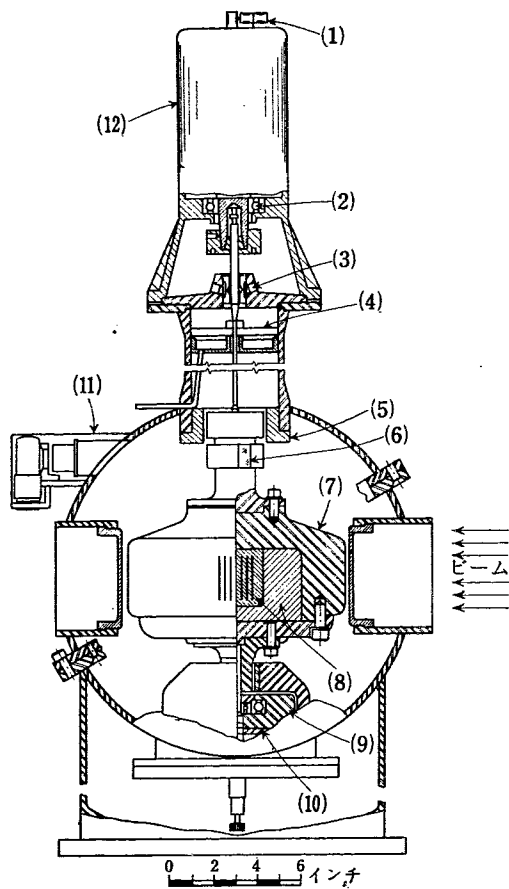
2. 低速中性子実験装置について

Time of flight 法による低速中性子のスペクトロスコピーは原子炉の中性子束の増大したことと電子線型加速装置の進歩により非常に発達し、分解能も $0.005 \mu\text{sec/m}$ 程度のものが計画されつつあり、また透過断面積の測定に止まらず各部分断面積の測定もおこなわれている。中性子チョッパーは第1表に見られるように、

アメリカ、ソ連の多くの研究所で研究が続けられている。ローターの設計には高速で回転できることと、原子炉からの放射線をなるべく遮断するような材料を選ぶことが重要である。高速に回転させたときに問題になるバランスはフレキシブル軸を使用して自己バランスをとることにより解決されたと思われる。

第1表

	研究所	原子炉	パルス幅	ローター	cps パルス周期	分解能 $\mu\text{sec/m}$
ソ	Thermotechnical Lab. of Academy of Science	重水炉	0.8	直径 24 cm (EI 437 合金)	1,000	0.02
			25 kg 磁気軸受
連	Atomic Energy Inst.	VVR	5	15 cm 15,000 rpm	500	0.5
			2.5	20 cm 20,000 rpm	660	0.1
			1.5	50 cm 15,000 rpm	500	0.02
			0.7	800	0.005
米	Glavtom Phys. Inst.	Reactor of the Atomic Power Plant	2-2.5	26 cm 12,000 rpm	400	0.02
			500	0.015
米	Argonne	CP-5	2.0	25 cm 15,000 rpm		0.035
			1.5	25 cm 15,000 rpm		0.015
国	Brookhaven	Graphite reator	0.6	75 cm 15,000 rpm		0.07
	Ork Ridge	LITR	1.0	45 cm 10,000 rpm		0.01
	Phillips Petroleum Company	MTR	3.7	52 cm 10,000 rpm		0.04



(1) 回転速度調節用磁気シグナル発生機 (2) ボールベアリング (3) 真空用オイルシール (4) オイル溜 (5) 事故用保護リング (6) "0" 時間シグナル用鏡 (7) モネル (8) ウラン・コア (9) ダンパー (10) ボールベアリング (11) "0" 時間シグナル用光源 (12) 5馬力直流電動機。回転速度: 15,000 rpm, ローターの目方: I=190 ポンド, II=150 ポンド。

第1図 アルゴンヌのファスト・チョッパー [686]

ソ連の磁気軸受によるものは、考えとしては面白いが技術的にはまだ難点があるようである。ローターの材料はニッケルを多く含んだ合金と水素を含む有機物との組合せが使われ、直径も 500 mm に及ぶものもある [2041]。アルゴンヌの、中心部にウランを入れたローターは、 γ 線の遮蔽が良いので興味がある。回転は真空中でおこなわれ最高 25,000 rpm のものも製作されているが、非常に大きな遠心力によりローターが破壊しないように設計されなければならない。スロットの幅は全吸収断面積の測定の際には、分解能をあげるためになるべく細くし、0.2 mm 程度のももある。中性子をローターのスロット中を通過させるためにスロットには適当な曲率が取られる。部分断面積を測定するときには検出器の能率が良くないのでバックグラウンドが増加する。そのために分解能を悪くしても中性子の強

度を増す必要があるのでスロットの幅もいくぶん広くし、またスロットの数も多くする [686]。

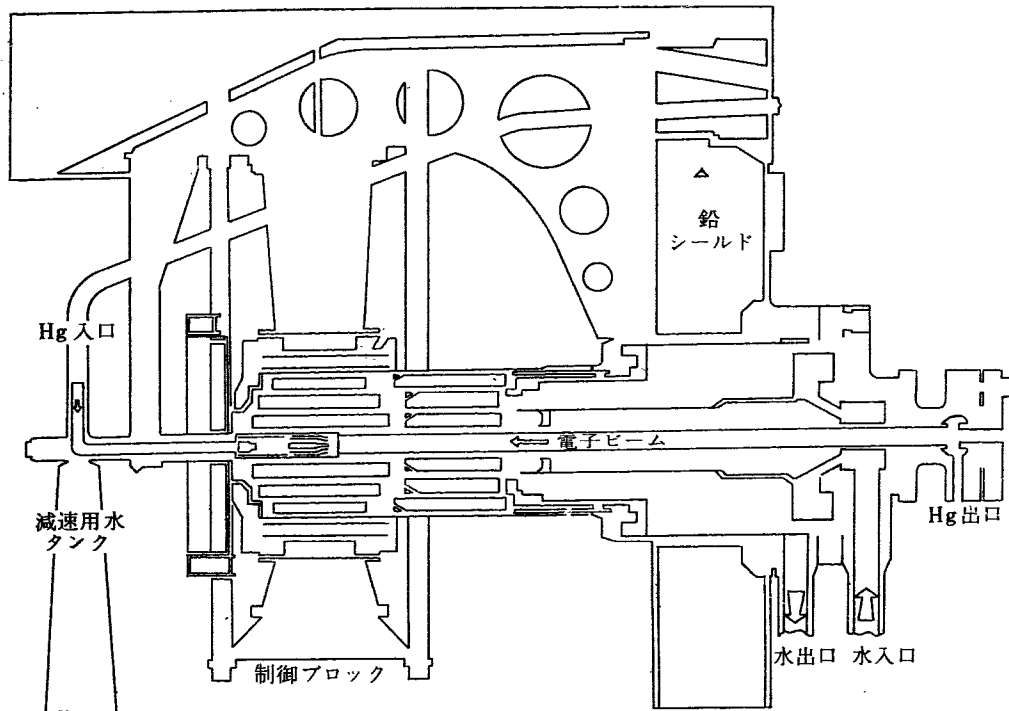
検出器は全吸収面積の際には BF_3 計数管を使うことが多いが、アルゴンヌの中性子シンチレーション計数装置は感度が高いのですぐれている。しかし γ 線に敏感なので γ 線のバックグラウンドを減らす必要がある。チョッパーの利点はエネルギー範囲を大体選別できることであり、前のバーストの遅れた中性子のバックグラウンドが重ることが少ない。keV 以下の中性子では最もすぐれた特性を示し、熱中性子の範囲でも測定することができる。

電子線型加速器による中性子スペクトロスコピーは、主に英国とソ連で研究がおこなわれている。電子エネルギー 25 MeV、強度 1 アンペア程度は必要で、この出力を出すには線型加速器にも問題がかなり残されているようである。加速された電子をなるべく重い元素のターゲットにあてて γ 線を発生させるが、1 cc 当り 20 kW にもおよぶ熱発生があるので水銀のターゲットを流動させる。この γ 線をウランの板にあてて光分裂をおこさせて、高速中性子を発生させる。この高速中性子の数を増すために準臨界集合体をターゲットに使用する。準臨界集合体の分裂物質は ^{235}U を使い、次の条件のもとに設計された。

- 中性子の増加作用がなければならぬ。
- 増加作用によりバーストの幅がひろくならない。
- この装置は安全でなければならぬ。(臨界以下であること)
- 中性子のエネルギーはなるべく 1 eV から 50 keV の範囲になければならぬ。

電子ビームの幅を 0.2 μsec 程度にしたとき 10 倍の増加が第 2 図の配置で得られた。水で中性子を減速させ、減速された中性子がウランの核にもどらないようにホウ素の吸収体をウランと水の間にに入れる。核の部分には、90%濃縮の ^{235}U が約 37 kg、反射材には約 270kg のウランが使われた。この装置で 10^{18} 箇の中性子が得られたが、特にこのウランのターゲットによる利点をあげれば、中性子が約 10 倍増えたことと、このウランにより X 線が 1/1,000 に減ったことである。

最近の中性子チョッパーと比較して見るとチョッパーでは一つのビームしか使えないが、パルス中性子源ではいくつかのビームを同時に使えるという利点がある。また原子炉の場合には γ 線が絶えず出ているので中性子捕獲 γ 線の実験が困難であり、またチョッパー



第2図 ブースターの断面図 [59]

では広がるビームを使用するので部分断面積の実験は不適である。中性子数が 10^{18} も出せると小さな試料を測定する時でも、チョッパーと比べて同じくらいの性能が出せる。10 cm × 10 cm の減速材の表面で 2×10^{13} の中性子束が得られたが、これは最近のファスト・チョッパーの強度に匹敵する [59]。

低速中性子の time-of-flight の時間測定は μ sec から数 1,000 μ sec にわたり、チャンネル幅が time-of-flight の分解能を決定するが、これは中性子のパースト幅と同じに取られ $1/10 \mu$ sec から数 10μ sec に及ぶ。中性子のエネルギーを同時に測定するためにマルチチャンネルのものが使われ、数 1,000 チャンネルのものも作られた。こういう装置になると、機械的なレジスターとマトリックスの組合せでは複雑になるので各種の記憶装置が使われる。この記憶装置には動的なものと静的なものがありいろいろな特長があるので最終的

にどれが有利かを決定することはできないが、簡単であり信頼度が高いという観点から選ばれる。

チャンネル幅が狭くなってチャンネル数が増加し、また中性子数が増加してきて処理する数も多くなったので電子計算機の技術をそのまま使うことはできない。多くの装置は二つの部分からできている。最初の部分は時間選別をおこない、次の記憶装置に入れるまでの記憶をおこなうところで、第2の部分は主記憶装置でデータを蓄積させるところである。第1の部分には最近ソ連ではポテンシャル・スコープ管を使用した分解能の高いものがいくつか作られている [2188]。

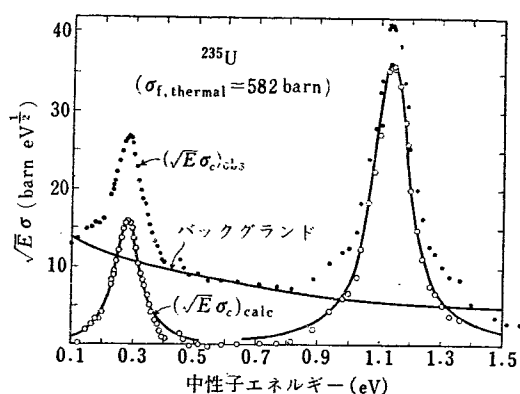
主記憶装置は最近の電子計算機の技術が多く取入れられて磁気コア、磁気ドラム、超音波遅延体などが用いられチャンネル数も 2,000, 4,000 というものも作られている。アメリカでは全回路のトランジスター化が盛んにおこなわれている。

3. ^{235}U の低いエネルギーにおける中性子断面積について

3.1 概 説

原子力エネルギーおよび核分裂過程の問題において ^{235}U の中性子に対する性質は根本的に重要であることは、誰しも認めるところである。しかし実験データを

見るといまだに多くの不一致点が実験値にもまたその解析においてもみられる。しかし、このような不一致点はあるにしても、あるものについては一般的像が描けると思うし、そしてこれらは将来さらによりよい実験をしても、その性質を持ち続けると思われる。それ

第3図 ^{235}U の捕獲断面積 $\times\sqrt{E}$ の図 [648]

0.1eVより1.5eVまで、黒丸は吸収と核分裂断面積の差を示す。-1.45eVにあると想定した強い共鳴がほとんど大体、バックグラウンド曲線の説明をする。

中空の丸は黒丸よりバックグラウンドを引いたもので単一準位のB-W式が合っている

らというのは、 ^{235}U の放射捕獲エネルギー幅 (radioactive capture width), 中性子および核分裂幅の分布 (distribution of the neutron and fission width) である。これらは一応普遍値ともいべきものが出されているが、これらの反応計算にあずかるパラメータの精度などは非常に過大評価されている。

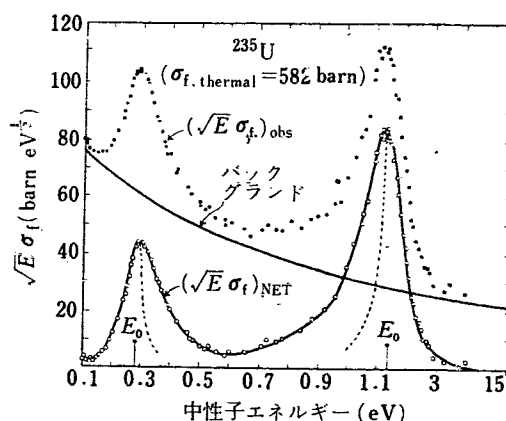
3.2 データの解析について

核分裂性でない同位元素の場合、中性子共鳴の種々のパラメータを求める際に普通とられる解析法は、実験の曲線をドップラー補正をした、単一準位に対するブライト・ウィグナ (B-W) 式に合わせるようにする法と、共鳴下の全面積あるいは部分的な面積を決定して、共鳴のパラメータ間の関係式を得る法とである。ところでこの二つの解析法には二つの仮定がある。それは、(1)断面積が二つの独立部分すなわちいま調べようという共鳴部分とポテンシャル散乱および他の共鳴準位とによる部分に分けられるということ。(2)単一準位についてのB-W式がそれぞれの共鳴部分に分けて適用できるということである。大体“銀”とか“金”，あるいは“インジウム”については、これら二つの仮定が成立つ。

ところで核分裂性である ^{235}U に適用する時には、これらの仮定があやしくなってくる。新しいSHOREとSAILER [648]のデータは、中性子エネルギーを横軸にし、捕獲断面積と核分裂断面積にそれぞれエネルギーの平方根を乗じた値を縦軸にして書いてある。

(第3図および第4図参照)

ここでわかることは、二つの大きなエネルギー準位

第4図 ^{235}U の核分裂断面積 $\times\sqrt{E}$ の図

0.1eVより1.5eVまで、バックグラウンドは主として-1.45eVの準位によるとして、観測点の黒丸より引いて中空の丸の点をつくる。

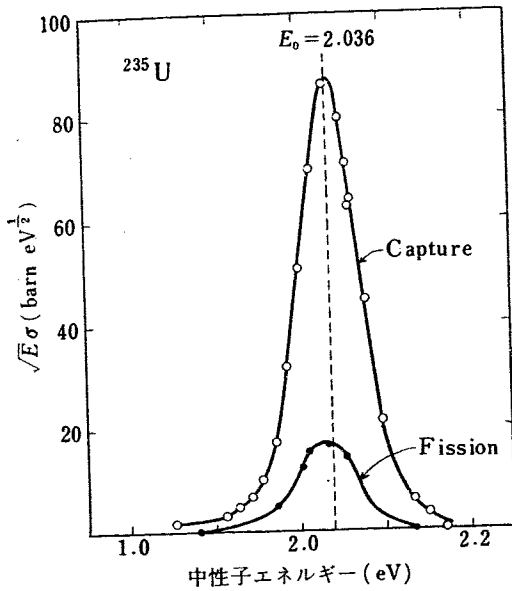
ここで点線は共鳴幅よりせまいが、曲ってピークの E_0 からずれているようにみえる。

0.282 eVと1.138 eVから生じたのではない大きなバックグラウンドがあることである。どんな正のエネルギー準位でもこれを解決できないので、二つの負のエネルギー準位 -0.02 eVと-1.45 eVをもってきてみる。(この批評については後述する)。とにかくこの二つの負のエネルギー準位を単一準位に対するB-W式に入れて引算すると第3図および第4図の“孔あき点”が得られる。

ところで単一準位に対するB-W式を用いただけでは、たとえ負のエネルギー準位をもってきても、全断面積および核分裂断面積を0.282 eVと1.138 eVについてうまく説明できない [655]。0.7 eVで比較的バックグラウンド量が高くなっている。HARVEYとSANDERS¹⁾は共鳴のピークとしては現われないが、幾つかの付加的な正のエネルギーをこの0.282 eVと1.138 eVの間に仮定してデータを合わせようと試みた。しかしこれは、一つの付加的な準位を考えるたびに、三つの新しいパラメータを導入することとなり、事からの根本的解決とも思われない。

そこで [648]と [645]においては、共鳴準位間に干渉があるとし、この考えに対してはかなりよい証拠があることを示した。これはいずれも ^{235}U に限らず、他の核分裂性同位元素についても適用してかまわない。また核分裂幅の分布についての結論もこの干渉説に対して支持を与えている。そこでVOGT²⁾、REICHとMOORE³⁾のWIGNER-EISENBUD⁴⁾理論に基づいた多準位式 (multilevel formula) が使われなくてはならなくなる。

しかし多準位式を用いることにより、簡単な単一準



第5図 2.036 eV 準位に対する核分裂および捕獲断面積 [648]

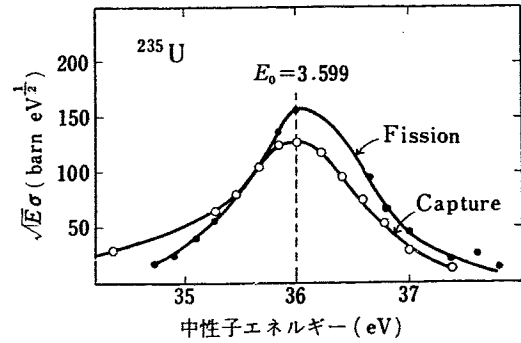
捕獲断面積は E_0 のまわりに対称だが核分裂断面積はそうでない。

位式の有用性が失われてしまうことはやむを得ない結果である。さらにこの多準位式の適用は本質的な意味よりむしろ、ただ実験曲線を合わせるためのものであるので、共鳴準位がよく分離されており、実験点それぞれが良い統計誤差内になくなくてはならない。実際この多準位式は ^{235}U の場合、低い方の 2, 3 の準位においてのみ良く成功している。

3.3 核分裂断面積および Γ_f と $\bar{\Gamma}_n^0/D$ について

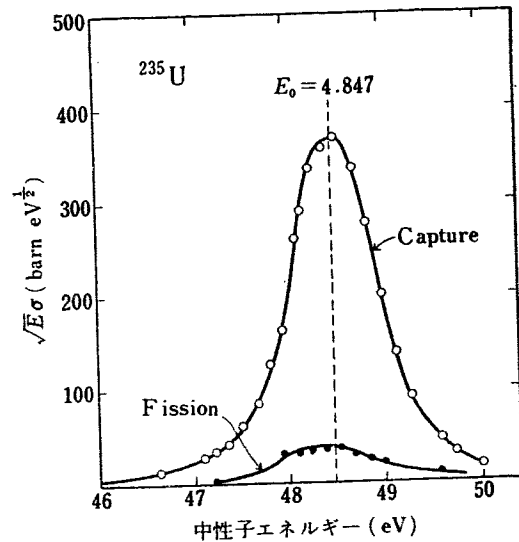
^{235}U の遅い中性子断面積の解析で起ってくる問題がある。それは相対的な核分裂断面積をある点すなわち 0.0253 eV において規格化するときのことで、絶対的核分裂断面積の誤差が核分裂幅 (fission width) Γ_f の誤差となり、また放射幅 (radiation width) Γ_r は共鳴準位幅 Γ から Γ_f を減ずることで表わされるので Γ_r の誤差ともなってくる。ところでこの重要な核分裂断面積 σ_f の 0.0253 eV の測定値がそれぞれ装置の精度以上に違った値をしめしている。最高値は RAFFLE⁵⁾ で 638 ± 14 barn, 最低値は FRIESEN ら⁶⁾ の 552 ± 6 barn である。[204] では 556 ± 6 barn で [665] などではいっている最良値 582 ± 10 barn と違っているし、BOLLINGER⁷⁾ が 606 ± 6 barn と出しているように、ずいぶん差が大きい。

ところで全断面積の共鳴点の非対称 (このさいはもちろんバック・グランドを差引いた後) は核分裂断面積の部分によるといえる [648]. HARVEY と SANDERS の説明では、0.1 eV から 1.5 eV までの共鳴準位の



第6図 3.599 eV 準位に対する核分裂および捕獲断面積 [648]

捕獲断面積は E_0 の周りに対称だが核分裂断面積はそうでない。



第7図 4.847 eV 準位に対する核分裂および捕獲断面積 [648]

捕獲断面積は E_0 のまわりに対称だが、核分裂断面積はそうでない。

まわりの全断面積の非対称は、この間に二つの分離されない 0.42 eV と 0.91 eV の共鳴準位があるためとしたが、[648] によればこの二つは完全な核分裂共鳴によるものとしている。さらに [648] は核分裂断面積の 0.0253 eV の 582 ± 10 barn なるいわゆる最良値をも確定したものではないとし、データを解析するとき 614 barn と 556 barn の2つで規格化をしている。さらにもし核分裂部分がないとすると、共鳴は対称性を示すとしている (第 5.6.7 図参照)。この非対称性については [2483] も述べている。

また [655] では、負のエネルギー準位からの寄与が捕獲断面積から差引かれ、縦軸に断面積 \times (エネルギー)² でプロットしたときは、準位が共鳴エネルギーの周りに対称のように現われ、したがって B-W 式の単一準位式が使われるとしている。このことは全部

の非対称性したがって準位間の干渉は核分裂の部分にあるということである。

また [648] は第 5 図および第 7 図の 2.036 eV と 4.847 eV ではっきりと核分裂部分が非対称であるといっているが、[655]ではこれらの核分裂の値が比較的小さいので放射幅 Γ_f が最良にきめられるとしている。

放射幅 Γ_f については、LEVIN と HUGHES⁸⁾ はある特定の同位元素の準位の Γ_f の値は、近似的に一定の値とした。彼らは Γ_f と Γ_n の広い範囲の変動をみて、この結論を出した。 Γ_f の変動は 30% 以下ではある。また LANDON⁹⁾ は ^{151}Eu についても、 ^{151}Eu の 2 つの組の Γ_f の差はたかだか 30% ではあるが、この違いは複合核における 2 つの異なったスピン状態によってらしいと述べている。 Γ_f がある特定の一定値であるということを経験できるためにはデータが不足であろう。

^{235}U の共鳴状態のありようをさらに解析すると、多分 Γ_f は 33 ± 10 mV 位として一定であり、 ± 10 mV が変化するだけである [655]。

[655] では strength function $\bar{\Gamma}_n^0/D = 1.0 \pm 0.2 \times 10^{-4}$ が小さいことから、より高い角運動量の寄与ということの一つの見方としている。普通非常に低い中性子のエネルギーの場合 $l=0$ と考える。しかし NEWSON¹⁰⁾ は s 準位に対する strength function に対しては、p 波のそれは 100 倍ぐらい高くなってよいとし、また SAPLAKOGLU¹¹⁾ は Nb の 100 eV 以下の共鳴のあるものは p 波によるものとしている。しかしこれらは、その結果は FESHBACH, PORTER, WEISSKOPF¹²⁾ の "Cloudy Crystal Ball Model" で $V_0=44$ MeV, $\zeta=0.03$, 核半径 $1.45 A^{1/3} \times 10^{-13}$ cm を用いた計算結果と同じである。この理論では 10 eV で同じ大きさの準位の幅を得るのに s 波の strength function の約 3,500 倍を p 波が持たなくてはならない。ところで LANE と LYNN は ^{238}U の場合その捕獲断面積の解析から、p 波の strength function は s 波のそれより 2 倍以上は大きくなれないとしている。 ^{235}U についても同様であると期待される。

そこで [655] では p 波による考え方を一応しりぞけ、 ^{235}U の少なくとも初めの 10 箇の準位では p 波の干渉から起っていると説明するわけにはいかないとしている。

また EGELSTAFF¹⁴⁾ は ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu で比較的長い範囲にわたっての相関が共鳴準位のパラメータの中にあるかもしれぬといっている。事実 σ_f/\sqrt{E} を中性子エネルギーを横軸にしてとると、数百 eV の周期での周期性がわかる。しかし共鳴準位のパラメータが測定された 30~40 eV までの範囲にくらべて大きすぎるから、全周期にわたって準位が分離されたとはいえない [655]。

3.4 解析のみとおし

[655] は -1.45 eV と、 -0.02 eV の 2 つの負のエネルギー準位について述べている。

^{233}U , ^{239}Pu の大きなバックグラウンドも負のエネルギー準位によって違くない。こんな大きな束縛状態(たとえば ^{235}U の -1.45 eV のとき)に対しては異論があるだろうが、現在のところ、とって代るべき説明がないから、解析のためには受け入れるべきである [655]。しかしもっと正確な散乱の実験のデータが欲しいが、散乱断面積が小さいので困難であろう。

単一準位式を用いて決定された準位は多分多準位式を用いた結果とは 30% 以上は違っていないだろうとしている。同様に [2483] も負のエネルギー準位を認めている。[648] は多準位式による取扱いを強く主張し、また負のエネルギー準位に対しての反対論もあることをのべている。それは -1.45 eV の $\bar{\Gamma}_n^0$ と Γ_f の異常な大きさを取り上げている。しかしやはり現在の解析としては負のエネルギーの存在を必要としている。

ともかく、負のエネルギー準位と、多準位式との両方ともに解析の手段としては意味があるのではなからうか。

最後に $\bar{\Gamma}_n^0/D = 1.0 \pm 0.2 \times 10^{-4}$ におけるずれが少し大きい、現在の中性子の原子核との反応の考えではちょっと説明が無理のようである。

4. 中性子捕獲 γ 線について

4.1 γ 線スペクトルからわかる共鳴準位のスピン

[35]

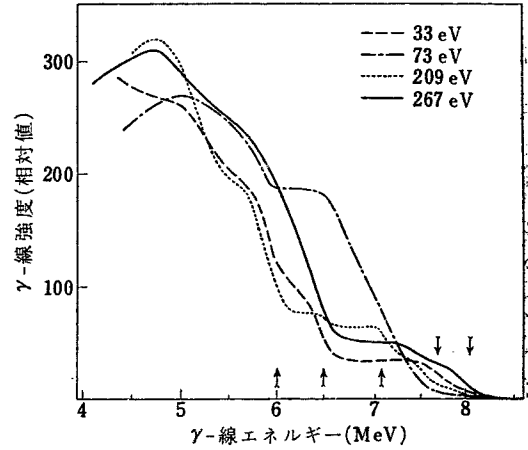
中性子分析法で、低速中性子の共鳴エネルギー準位

のスピン、パリティ、共鳴幅などについての知識¹⁵⁻¹⁷⁾ は豊かになってきた [1030] が、スピンの正確な測定や γ 線遷移の部分中についての測定はあまりおこなわ

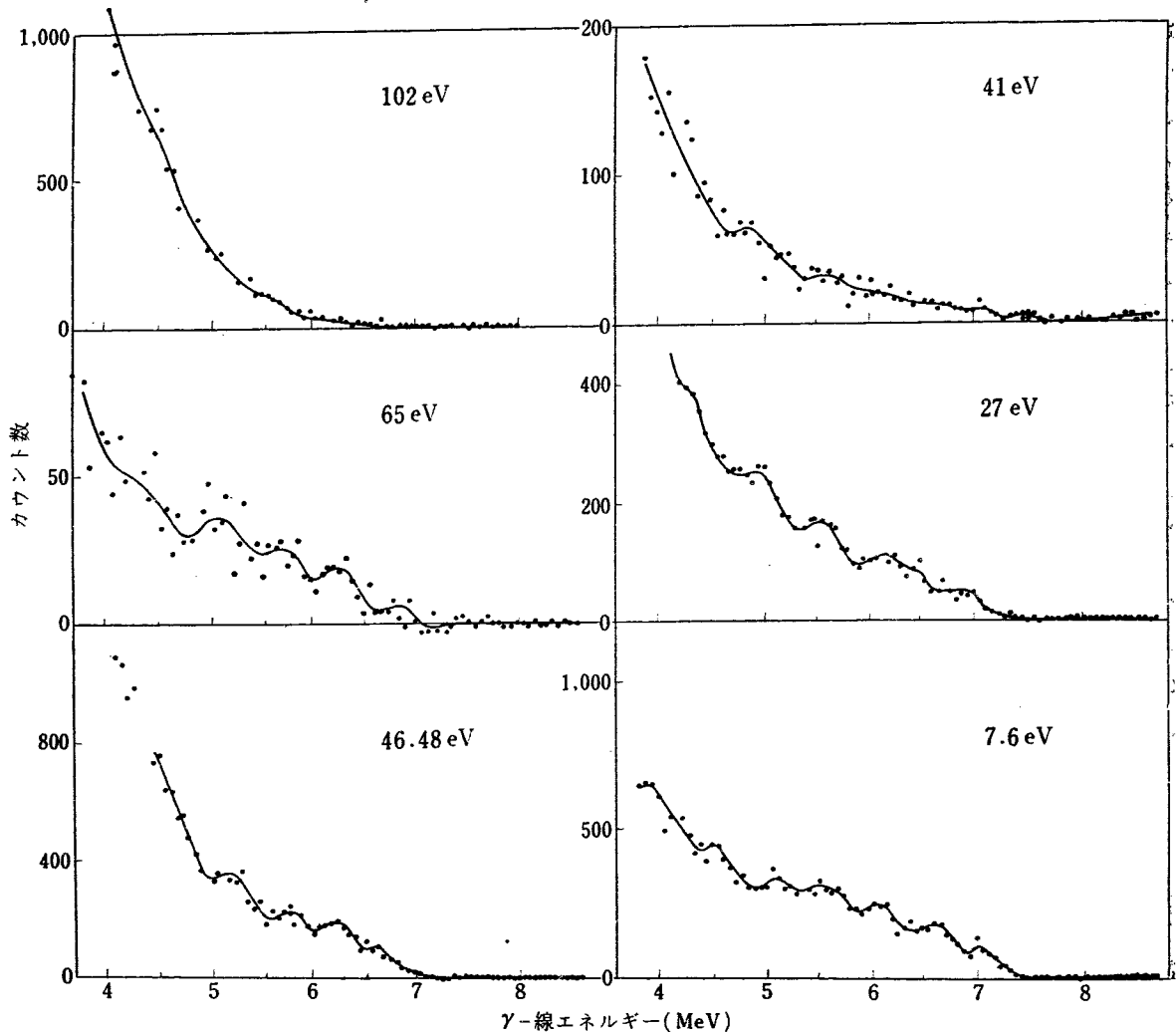
れていない。スピン 1/2 の核が低速中性子を捕獲してつくる偶-偶の複合核は 0 か 1 のスピンをもっている。もし共鳴準位がスピン 0 をもっていれば γ 線の基底状態への直接の遷移は選択則により禁止される。このことを利用して ^{183}W と ^{199}Hg の中性子捕獲から出る γ 線のスペクトルの形から、複合核の共鳴準位のスピン、パリティを決定している¹⁹⁾。

ハウエル研究所の直線加速器が中性子源として用いられ、 γ 線の検出には NaI(Tl) 結晶 (4 1/2" x 4") が用いられている。各共鳴ごとに γ 線のスペクトルをとり、特に基底状態への直接の γ 線があるかないかでその準位のスピンを決定し、その γ 線の強度の違いから、部分幅の変化について論じているが、このような NaI 結晶一つの検出器では定量的な議論はなされ得ず、ただ部分幅が準位によって明らかに違うことを論ずるに止まっている。第 8 図に ^{199}Hg の各共鳴準位からの γ 線スペクトルを示し、第 9 図に ^{183}W の γ 線スペクトルを示す。

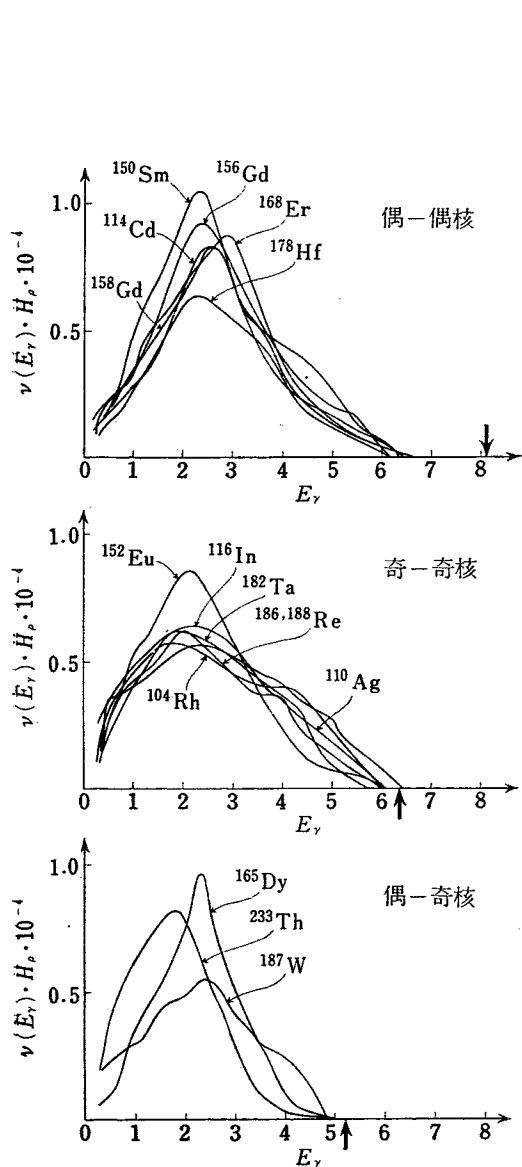
この測定で、全体でスピン 1 の準位が 11 箇、スピン 0 の準位が 3 箇見だされている。このことはエネルギー準位密度が $(2J+1)$ に比例するという仮定と一致する。



第 8 図 矢印は熱中性子捕獲から得られた γ 線を示す²⁾



第 9 図 7.6, 27, 41, 46.48, 65, 102 eV の各共鳴準位からの γ 線スペクトル



第 10 図 偶-偶核, 奇-奇核, 偶-奇核の r 線スペクトルの比較 (横軸の単位 MeV) 矢印は平均の中性子結合エネルギーを示す。

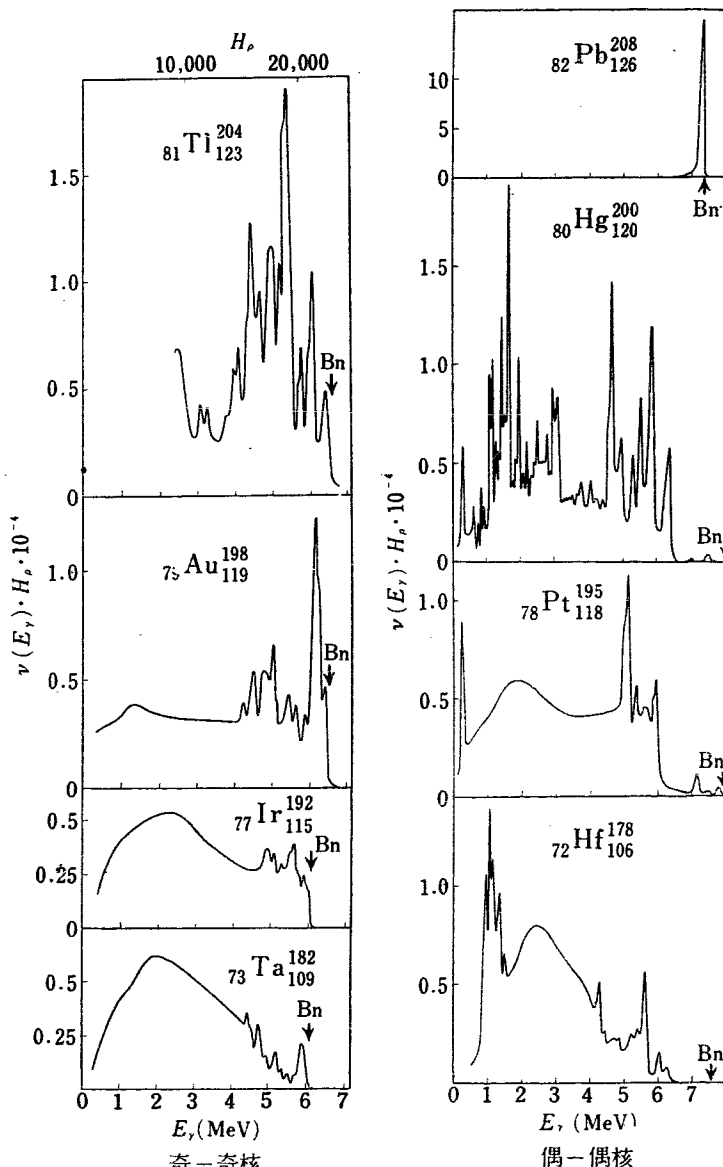
4.2 r 線の全スペクトル [2029]

マグネティック・コンプトン・スペクトロメータで約 50 箇の核種について熱中性子捕獲による r 線のスペクトルをとり, 得られた結果をもとにしてエネルギー準位の密度およびエネルギー準位の性質のスペクトルへ及ぼす影響についての議論が [2029] でなされている。

この分析器の利点は, 一つの装置で広いエネルギー範囲 (0.3~12 MeV) にわたり r 線のスペクトルをとれることにある (分解能 2%)。

4.2.1 重い核のスペクトルの形についての議論

重い核では二, 三の強い線を除いては個々の線にスペクトルを分けることができないので, 全体的な形に



第 11 図 Ta, Ir, Au, Tl の r 線スペクトルの比較 Hf, Pt, Hg, Pb の r 線スペクトルの比較

第 11 図

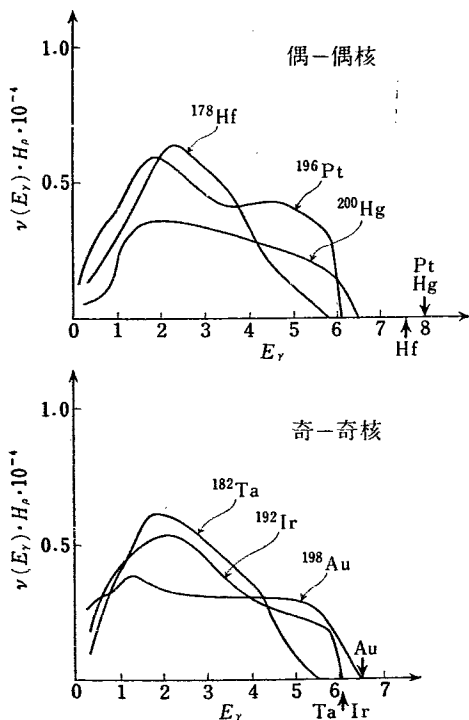
ついて議論する. 一般に r 線遷移の確率は E^{2L+1} に比例し (L は放射の multipolarity), またエネルギー準位の密度に比例するので, スペクトルの全体の形はベル型になる. L の値はわからないが, 分解できる線については E1 遷移が強いことが確かめられており^{20,21,22}, 分解できない部分も E1 遷移が多いことが予想される。

偶-偶核, 偶-奇核, 奇-奇核でのスペクトルの形が違いがあるかどうか, すなわちエネルギー準位の分布が違うか違わないか, また質量数やマジック数にどのような関係があるかをみるために, まずマジック数にそう近くない核を偶-偶核, 偶-奇核, 奇-奇核の群に分け, 各群について平均の中性子結合エネルギーをとって第 10 図に示す。

i) 中性子結合エネルギー B_n 近くのスペクトルの形は、奇-奇核では B_n からすぐ始まり、偶-偶核ではそれより 1.5 MeV 低いところから、偶-奇核* では両者の中間的な形をしていることがみられる。これは、偶-偶核の対になっている核子が分れた状態になって奇-奇核の基底状態と同様の状態になるという考え^{23,24,25)}で解釈できることである。

ii) 偶-偶核、奇-奇核、偶-奇核でスペクトルの全体の形が近似的に等しいことから、質量数が約 100 から 200 のマジック数に近くない核では励起エネルギーに伴うエネルギー準位の増加は同じであり、また核温度もほぼ一定であることがいえる。このことは s 波共鳴の実験データ²⁶⁾、 (n', n) 反応からのデータと一致する。

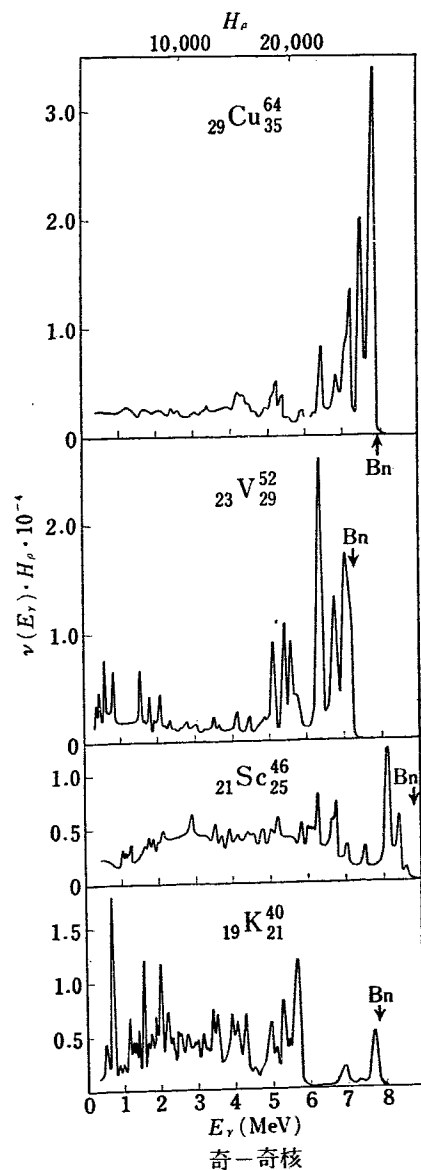
iii) $Z=82, N=126$ に近づくと、 γ 線スペクトルの高エネルギー部分が増加することが今までのデータの分析²²⁾²⁷⁾ でわかっている。この増加の有様を第 11 図と第 12 図に示す。このスペクトルの形は第 10 図のスペクトルの形と著しく異なる。この違いを説明するには、エネルギー密度の減少のみならず、エネルギーにつれての増加の割合の減少、すなわち核温度の変化を仮定しなければならないが、これは s 波共鳴の実験データ²⁶⁾ と一致しないし、他のマジック数、 $N=82$ の付近の同様の効果はエネルギー準位密度の減



第 12 図 Hf, Pt, Hg, Ta, Ir, Au の γ 線スペクトル(連続部分だけ)
矢印は結合エネルギーを一示す

少と、83番目の中性子の弱い結合エネルギーで十分説明できること、また $Z=50$ 付近ではこのような効果がほとんど現れないことからしても正しくない判断される。鉛付近で、質量数 60 の付近と同様に、単一粒子の p 状態が低い励起状態でおこることが、大きな役割を果していることが、以下のべる事実からして推論される。

4.2.2 質量数 ≤ 60 の核についての議論 この範囲の偶-奇核で、 (d, p) 反応からわかっている換算中性子幅 (reduced neutron width) γ^2 と γ 線の遷移確率 I_γ/E_γ^{3**} とを比較すると、中性子の軌道角運動量 l_n が 1 で γ^2 が大きい準位へは γ 線の遷移確率が



第 13 図
Cu, V, Sc および K の γ 線スペクトルの比較 [2029]

* 偶-奇核についてはアイソトープが多く、はっきりしたことはいえない。Th だけが唯一の例になり得る。
** I_γ は γ 線の強度、 E_γ はそのエネルギー、すべて E1 遷移と仮定している。

きいことが示される。奇-奇核でも同様のことがいえるが、この場合 r^2 の大きい $l_n=1$ の群に対応して強い遷移確率の群が現れる。これらの事実は、単一粒子の p 準位への遷移確率が強いことを意味している。この p 準位は質量数が 60 に近づくにつれ、基底状態へ近づき、このことがスペクトルにおよぼす影響は第13図に見られる。第13図と第11図とを比較すれば、

その類似は明らかであろう。

鉛に近づくにつれてのスペクトルの形の変化は、閉殻の影響のほか、単一粒子の p 準位が低くなることに関連があることが明らかである。このことは直接反応の過程と密接なつながりを持つ [4]。

文 献

- 第2回ジュネーブ会議報文
- [4] A. M. LANE, J. E. LYNN: Direct radiative capture in nuclear reaction.
- [35] J. R. BIRD: Time of flight measurements of resonance parameters using the Harwell Pulsed Neutron Source.
- [204] C. B. BIGHAM *et al.*: The slow neutron fission cross sections of the common fissile nuclides.
- [559] G. D. JAMES *et al.*: The design and operation of a high intensity pulsed neutron source using a booster target.
- [645] R. G. FLUHARTY, M. S. MOORE, J. E. EVANS: The total and fission cross sections of ^{233}U below 1 keV.
- [648] F. J. SORE, V. L. SAILOR: Fission and total cross sections of ^{235}U from 0.1 to 10 eV.
- [655] W. W. HAVENS, Jr., E. MELKONIAN: Low energy neutron cross sections of ^{235}U and their interpretation.
- [686] L. M. BOLLINGER *et al.*: A critical analysis of the design and application of the fast neutron chopper.
- [1030] D. J. HUGHES, R. L. ZIMMERMAN: Systematics of neutron resonance parameters.
- [2029] L. V. GROSHV, A. M. DEMIDOV, V. N. LUTSENKO, V. I. PELEKHOV: Thermal-neutron capture gamma-ray spectra and nuclear level distribution.
- [2041] V. V. VLADIMIRSKY, V. V. SKOLOVSKY: Review of pulsed neutron source and neutron monochrometers.
- [2188] A. P. JSITOVICH: Time analyzers for neutron spectroscopy.
- [2483] D. J. HUGHES: Recent cross section of interest to reactor design.
- その他
- 1) J. A. HARREY, J. E. SANDERS: Progress in nuclear energy series I, Vol. I, Physics and Mathematics, McGraw-Hill Co., p.1, (1956).
 - 2) E. VOGT: *Phys. Rev.*, **112**, 203 (1958).
 - 3) C. W. REICH: *Phys. Rev.*, **111**, 929 (1958).
 - 4) E. P. WIGNER, L. EISENBUD: *Phys. Rev.*, **72**, 29 (1947).
 - 5) J. F. RAFFLE: AERE NP/R 2104.
 - 6) W. J. FRIESEN: *et al.*: *Bull. Am. Phys. Soc.*, Ser. II, **1**, 249 (1956).
B. R. LEONARD: AERE NP/R 2076.
 - 7) L. M. BOLLINGER: WASH-194.
 - 8) J. S. LEVIN, D. J. HUGHES: *Phys. Rev.*, **101**, 1328 (1956).
 - 9) H. H. LANDON: *Phys. Rev.*, **100**, 1414 (1955).
 - 10) H. NEWSON: Proc. Inter. Conf. on Neutron Interaction with Nuclei, Columbia Univ. (1957).
 - 11) A. SAPLAKOGLU *et al.*: *Phys. Rev.*, **109**, 1258 (1958).
 - 12) H. FESHBACH *et al.*: *Phys. Rev.*, **96**, 448 (1954).
 - 13) A. M. LANE, E. R. LYNN: *Proc. Phys. Soc.*, **A 70**, 557 (1957).
 - 14) P. A. EGELSTAFF: Proc. Inter. Conf. on Neutron Interaction with Nuclei, Columbia Univ. (1957).
 - 15) C. E. PORTER, R. G. THOMAS: *Phys. Rev.*, **104**, 483 (1956).
 - 16) J. A. HARVEY, D. J. HUGHES: *Phys. Rev.*, **109**, 471 (1958).
 - 17) S. BLUMBERG, C. E. PORTER: *Phys. Rev.*, **110**, 786 (1958).
 - 18) H. H. LANDON, E. R. RAE: *Phys. Rev.*, **107**, 1333 (1957).
 - 19) B. P. ADYASEOICH *et al.*: Conf. Acad. Sci. USSR on the Peaceful Uses of Atomic Energy, *Phys. Math. Sci.*, 220 (1955)
 - 20) D. H. WILKINSON: *Phil. Mag.*, Ser. 8, **1**, 127, (1956).
 - 21) B. B. KINSEY, G. A. BARTHOLOMEW: *Phys. Rev.*, **93** (1954)
 - 22) G. A. BARTHOLOMEW, P. I. CAMPION, I. W. KNOWLES, G. MANNING: Studies of the (n, γ) reaction. International Conference on the Neutron Interactions with Nucleus (1957).
 - 23) S. P. HARRIS, G. O. MUELHAUSE G. E. THOMAS, *Phys. Rev.*, **79**, 11 (1950)
 - 24) H. HURWITZ, H. A. BETHE: *Phys. Rev.*, **81**, 898 (1951).
 - 25) T. D. NEWTON: *Can. J. Phys.*, **34**, 804 (1956).
 - 26) A. STOLOVY, J. A. HARVEY: *Phys. Rev.*, **108**, 353 (1957).
 - 27) Л. В. ГРОМОВ: ЦАИ, **100**, 651 (1955).

核 分 裂

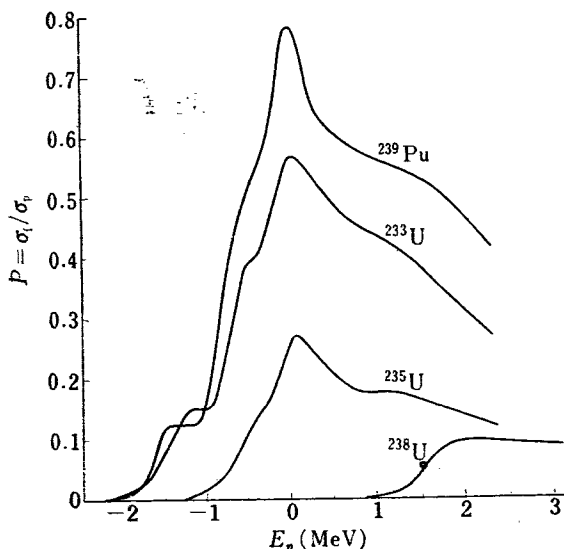
1. 核 分 裂 の 理 論

1.1 “しきい” 値付近の核分裂断面積の解釈 [659]

質量数が奇数の核 ^{239}Pu , ^{235}U , ^{233}U の中性子による核分裂の“しきい”値付近の断面積を重水素のストリッピング反応 $Z^A(d, p)Z^{A+1}$ により測定した (第1図参照)

核分裂の“しきい”値は中性子のエネルギーで大体 2MeV のところである。ここには回転準位があると考えられ、立ち上りの傾斜の大小は標的核のスピンの異なるためである。たとえば ^{239}Pu の基底状態のスピンの他二つの核に比べて最も小さく、 ^{240}Pu の $I=0$ の状態が作られやすいし、 ^{234}U , ^{236}U は多分もっと高いスピンの状態がつけられると考えられる。

“しきい”値に続いて第2の準位による立ち上りは振動の準位である。これがもし核子の対結合が壊れることによる準位とすればもっと準位がこんでくるはずである。核子の対結合がこわれるのはゼロエネルギーより少し上の鋭いこぶを作る準位がそれに対応すると思われる。



第1図 d-p 反応で複合核の形成にあずかる中性子のエネルギーを横軸にとる。 $P = \sigma_f / \sigma_p$ は d-p 反応の断面積に対する d-p 反応に続いて生じた核分裂断面積の比 [659]

“しきい”値の断面積の傾斜から核分裂の障壁の厚さはヒルホイーラーの見積りより幾分厚いことが結論される。

1.2 高エネルギーの核分裂の解釈 [642, 1513]

数十 MeV の粒子を核分裂性核にあて核分裂片の角分布、またはその非等方性 $\sigma_f(0^\circ)/\sigma_f(90^\circ)$ 、および Γ_f/Γ_n を測定した。角分布は入射粒子の方向に対して 90° 対称で前方に極大、 90° で極小であった。

43MeV の α 粒子を当てたところいろいろの核に対して $\frac{\sigma_f(0^\circ)}{\sigma_f(90^\circ)} = 1.4 \sim 2.0$ を得た。とくに ^{209}Bi のごとく核分裂しにくい核の非等方性は核分裂を起しやすい核よりもだいぶ大きい。

数十 MeV も励起された核の分裂の測定は単一の核による核分裂だけを見ているわけではなく、中性子を蒸発した残留核が核分裂の“しきい”値以上にあればそのような核からの寄与をも一緒に測定していることになる。そうすれば核分裂しにくい核、すなわち Γ_f/Γ_n の小さい核ほど中性子がさきに蒸発してから分裂をするようになる。ところで中性子の蒸発による放出の方向は空間に一樣に分布しているから、残留核は平均として初めの複合核のスピンの方向と同じ方向の高いスピンを持つことになり、中性子を放出することが非等方性を増加させるように働くと考えられる。

いまスピン $I\hbar$ の核が分裂するとし分裂片の分離する方向への $I\hbar$ の成分を $K\hbar$ とすれば $I\hbar$ の周りの頂角が $2 \cos^{-1} \frac{K}{I}$ の円錐面に沿って分裂片はとんでゆく。

標的核も入射粒子もスピン 0 とすれば $I\hbar$ は入射粒子と標的核の間の角運動量 I_n により作られる。 $I\hbar$ が入射方向と垂直な面に一樣に分布しているから、 I, K で指定された核分裂がおこって分裂片が入射方向と θ の角でとんでゆく確率は

$$W_{IK}(\theta) = \text{const}(I^2 \sin^2 \theta - K^2)^{-1/2}$$

である。

これを K^2 の分布で平均しさらに I の取りうる値

について和をとり残留核からの寄与も加えるならば角分布が与えられる。エネルギーが高く、大きい角運動量がきいてくるため計算は半古典的なり扱いが許される。

実験との比較はきわめて良好で 7.15 MeV の中性子による $^{232}\text{Th}(n, f)$ (エネルギー 7.15 MeV) 43 MeV の α 粒子による種々の核の分裂の非等方性の、 ^{232}Th の中性子による核分裂の非等性などのデータを再現している。

Γ_f/Γ_n の種々の量に関する依存性も調べられた。 Z^2/A 依存性が最も強くほとんどこれだけで決まってしまうようである。エネルギーに関しては 30 MeV ぐらいまで変化しない。すなわち角運動量 $15\hbar$ ほどまでは核分裂する核の平均の角運動量に影響されない。しかしここで得た値をもちいて 100~300 MeV の陽子による核分裂の実験値 σ_f/σ_t に合せようとする、励起エネルギー 40 MeV 中性子を放出して残留核が核分裂の“しきい”値以下に落ちるまでに蒸発される中性子の数は4個となってしまう。

少なくとも 100 MeV 以上の陽子により与えられる励起エネルギーは 80 MeV 以上でなければならないから、荷電粒子が蒸発する確率が非常に小さいことを考えれば Γ_f/Γ_n はエネルギーの増加とともに減少すると考えなければならない。

1.3 その他

文献 [660] は、核分裂は核の静力学的面よりダイナミカルな面から扱わなければならないことを指摘し、その例として中性子によっておこる分裂の収量曲線と自然分裂の収量曲線が似ている点を指摘している。また液滴モデルをもちいて対称分裂する際の核の変形を計算した。きわめて簡単なモデルによる計算ではある

が、対称分裂の際には中心にアルファ粒子ぐらいの質量が残ってしまうことがあるという結果が出され、これから逆に三体分裂をするばあいは分裂片の重い方の2つの破片の質量の比は1に近いであろうといっている。

文献 [198] は統計的方法により核分裂片の非対称な収量曲線を出している。核分裂片の軽い方の電荷、質量数をそれぞれ $Z_L A_L$, 重い方を $Z_H A_H$ とし、またそれぞれの励起エネルギーを E_L, E_H とすると、分裂片の相対波数 k と $k+dk$ の範囲に出る確率は

$$\begin{aligned} & \Gamma(Z_L, A_L, Z_H, A_H, E_L, k) dE_L dk \\ & = 2k <\beta^2> (F^2 + G^2)^{-1} \omega_L(E_L) \omega_H \\ & (E_T - E_k - E_L) dE_L k^2 dk \end{aligned}$$

で与えられる。 E_T は核分裂片が基底状態にある場合核分裂により得られる全運動エネルギーで、これはワイゼッカーの質量曲線から求められる。 E_k は分裂片の運動エネルギーである。核の準位密度 $\omega_A(E)$ はフェルミ・ガス模型から導いた実験に良く合う式を使った。 r^2 は換算幅で、核分裂のばあいは多くのチャンネルが関係するので平均として r^2 はだいたい一定であるとして平均の $<r^2>$ でおきかえた。 F と G は2つの独立なクーロン波動出数で、 $(F^2 + G^2)^{-1}$ はクーロン障壁の透過率を与える。

上式を E_k と E_L について積分してしまえば分裂片の収量の比が得られる。ただそのさいクーロン障壁の貫通率 $(F^2 + G^2)^{-1}$ にはいてくる核半径を、収量曲線に合うように質量比ごとに決めた。さらにまた核半径を分裂片の内部エネルギーにも依存させて、分裂片の収量曲線および速度分布を合わせた。この核半径のかえかたにはかなり任意性があるように思われるので、この点がもう少し調べられないと本当に有意義な実験と理論の一致であるかどうかよくわからない。

2. 中性子による裂分裂の断面積

文献 [648] では ^{235}U の核分裂および全反応断面積が $0.1\text{eV} \sim 10\text{eV}$ にわたって詳細に調べたものが報告された。またそのデータより $\sqrt{E}\sigma_a$ と $\sqrt{E}\sigma_f$ とのエネルギーに関する振舞いは、前者は共鳴準位に関して対称であり、後者が少し非対称になることもあらためて確認された。核分裂幅の分布はポーター・トーマス分布の自由度 $\nu=2$ に合っている。

論文 [645] では ^{233}U の 1 keV 以下の全反応断面積

および核分裂断面積が得られた。

このばあい核分裂幅の分布はポーター・トーマス分布の $\nu=4$ によく一致したという。

$g \cdot \bar{\Gamma}_n^0 / D$ (g は準位の平均された統計的荷重 $\bar{\Gamma}_n^0$ は中性子の共鳴幅を 1 eV のところでの値に引き直したものの平均、 D は準位の平均間隔) は大体 1.4×10^{-4} 程度になった。 $2\pi \bar{\Gamma}_f / D$ は 1.2 ± 0.4 である。

文献 [687] では ^{239}Pu の中性子による核分裂断面積

積をエネルギー範囲 0.01 eV より 43 eV まで測定した。核分裂の幅の分布はポーター・トーマス分布の $\nu=1$ に合っている。強度関数 \bar{F}_n^0/D は $(1.0 \pm 0.3) \times 10^{-4}$ であった。一つのスピンの状態についての平均の準位間隔は 5.8 ± 1.2 eV, \bar{F}_f としては 0.099 eV を得ている。

文献 [2149] において ^{232}Th , ^{238}U , ^{244}U , ^{235}U , ^{237}U , ^{239}Pu の核分裂断面積を中性子エネルギー 3~10 MeV の付近で測定しているが、6 MeV のあたりで断面積が平坦な形から急に立ち上って一段と高い平坦な部分に続いている。

第1の平坦部の断面積を $\sigma_{f1} = \sigma_c P_0$ とおく。 σ_c は複合核を作る断面積、 P_0 は核分裂する割合である。

第2の平坦部が第1の平坦部より多い部分は中性子の非弾性散乱が生じ、中性子が一つ放出されても核が核分裂の“しきい”値より上に励起されているため、さらに核分裂が生じた分と考えられる。その際の核分裂の確率を P_1 とすれば第2平坦部の断面積はつぎのように二つの部分の和になる。

$$\sigma_{f2} = \sigma_c P_0 + \sigma_c (1 - P_0) P_1$$

計算値と実験の比較は良く一致する。

文献 [2221] に ^{233}U の核分裂断面積を 0.02 eV~30 eV で、 ^{235}U を 0.02 eV~90 eV で、また ^{239}Pu を 7 eV~200 eV の範囲で測定している。

文献 [663] に ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu の中性子による核分裂断面積の 10 keV~10 MeV までのデータと、 ^{238}U , ^{237}Np , ^{226}Ra の数 MeV 近くの核分裂断面積のデータとがあげられている。

現在、熱中性子核分裂断面積については、これまで数多くの測定がおこなわれているにもかかわらず、異なる測定者による測定値間にまだ十分な一致があるとはいえない状態で、なおより正確な測定をおこなうことが望まれている。

文献 [204] では、中性子束のエネルギー分布による測定誤差をできるだけ小さくする目的で、既知温度の正確なマクスウェル分布中で測定をおこなうために、NRX の熱中性子柱に接して $76 \times 90 \times 90$ cm の重水タンクを装置しその中心に小さな核分裂電離箱を置いて測定をおこなっている。測定対象は ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu 間の核分裂断面積比および ^{233}U の核分裂断面積と Au の捕獲断面積との比較である。測定誤差源について特にくわしく述べており、測定値は ^{233}U および ^{235}U についてのわずかの違いをのぞき一般に BNL-325 Supplement No. 1¹⁾ によく一般しているが、測定誤差はより小さくなっている。

文献 [1599] は新しい測定法による ^{235}U の熱核分裂断面積測定について述べている。この方法はチョッパーを使用し、中性子が試料を透過する際の核分裂反応の計数方法および中性子束の測定法に特徴がある。測定結果は ^{235}U 核分裂断面積の 2,200 m/sec 値として 605 ± 6 バーンを与えており BNL-325 Supplement No. 1 の値より大きくなっているが、測定誤差はより小さくなっている。また、この方法を十分注意深く遂行すれば核分裂断面積を約 1% の精度で測定できることを結論している。

3. 光 核 分 裂

論文 [2037] においては ^{238}U の光核分裂の際の核分裂破片の角度分布についての実験データと、これらデータから光吸収過程を論じている。 γ 線源としては 30 MeV, シンクロトロンを用いて $E_{\gamma\text{max}} = 6.5$ MeV, 8 MeV, 9.4 MeV, 12 MeV, 24 MeV で実験をおこない、測定器としては、酢酸ウラン入原子核乾板 (200 μ 厚さ) を用いて、核分裂破片飛跡を α 線飛跡と区別しうる現象を選んでみる。角度分布式としては、

$$W(\theta) = a + b \sin^2 \theta + c \sin^4 \theta$$

を採用して各データを最小二乗法で合せている。これらのデータは第1表に示されている。第2表で見ら

れるように $c/5b = \sigma_{fq}/\sigma_{fd}$ なることより σ_{fd} (E1 吸収断面積), σ_{fq} (E2 吸収断面積) の比を求めている。

第2表より E2 混合は $7 \text{ MeV} < E_\gamma < 8 \text{ MeV}$ において著しく大きくなるのがわかる。この新しい事実を競争過程の (γ , n) 反応も合せて考えてみると、(γ , n) の“しきい”値 5.75 MeV 近くでは (γ , n) 反応は E1 吸収によっておこるので、これが (γ , f) 反応と競争して (γ , f) をへらし、このために E1 混合最少域が生じると考えられるという。

論文 [2037] と $W(\theta) = a + b \sin^2 \theta$ と仮定した WINHOLD *et al.*²⁾ のデータとを比較すると、 $E_\gamma > 8 \text{ MeV}$ では誤差内で一致しているが、 $6.5 \text{ MeV} < E_\gamma <$

第 1 表 $^{238}\text{U}(\gamma, f)$ 反応における核分裂破片の角度分布

最高 X 線エネルギー E_{max} (MeV)	角度間隔における飛跡分布 (単位立体角あたり)					
	$0^\circ - 15^\circ$ $180^\circ - 165^\circ$	$15^\circ - 30^\circ$ $165^\circ - 150^\circ$	$30^\circ - 45^\circ$ $150^\circ - 135^\circ$	$45^\circ - 60^\circ$ $135^\circ - 120^\circ$	$60^\circ - 75^\circ$ $120^\circ - 105^\circ$	$75^\circ - 90^\circ$ $105^\circ - 90^\circ$
6.5	1.00 ± 0.38	2.80 ± 0.53	2.95 ± 0.57	4.45 ± 0.70	4.56 ± 0.71	5.6 ± 0.79
8.0	1.00 ± 0.06	1.17 ± 0.06	1.42 ± 0.07	1.80 ± 0.08	1.85 ± 0.08	2.00 ± 0.08
9.4	1.00 ± 0.05	1.03 ± 0.04	1.30 ± 0.05	1.44 ± 0.05	1.38 ± 0.05	1.39 ± 0.05
12.0	1.00 ± 0.04	1.08 ± 0.04	1.13 ± 0.04	1.15 ± 0.04	1.18 ± 0.04	1.23 ± 0.04
26.5	1.00 ± 0.06	0.94 ± 0.04	1.03 ± 0.05	1.09 ± 0.05	1.00 ± 0.05	1.05 ± 0.05

第 2 表

最高 X 線エネルギー E_{max} (MeV)	b/a	c/a	c/b	$\sigma f / \sigma q$
6.5	4.2 ± 1.8	3.1 ± 3.2	0.75 ± 0.71	0.15 ± 0.14
8.0	1.12 ± 0.12	0.60 ± 0.38	0.54 ± 0.34	0.11 ± 0.07
9.4	0.54 ± 0.08	1.34 ± 0.34	2.46 ± 0.68	0.49 ± 0.14
12.0	0.20 ± 0.05	—	—	—
26.5	0.07 ± 0.6	—	—	—

第 3 表 光核分裂データ [200]

核	σ_{max} (barns)	E_{max} (MeV)	r (MeV)	$\int_0^E \sigma dE$ (MeV~barns)	E (MeV)	20 MeV における収量 (Fissions per röntgen-nucleus)	文献
Th-232	0.048	14.5	6.0	0.32	19	4.62×10^{-18}	This work
"	0.045	13.5	7.7	0.35	20		(5)
"	0.051	14.1	7.0	0.64	28		(4)
U-238	0.110	14.0	6.4	0.76	19	1.11×10^{-17}	This work
"	0.180	14.0	7.6	1.2	20		(2)
"	0.160	13.7	5.8	1.0	20		(5)
"	0.125	14.0	8.8	1.1	24		(3)
"	0.200	14.0	6.7	1.71	28		(4)
U-233	0.270	13.0	5.6	1.62	19	2.53×10^{-17}	This work
Np-237	0.205	13.0	5.7	1.26	19	2.04×10^{-17}	"
Pu-239	0.350	13.0	7.4	2.65	19	3.91×10^{-17}	"
Am-241	0.160	13.5	6.0	1.01	19	1.62×10^{-17}	"

σ_{max} : "giant resonance" の maximum における反応断面積

E_{max} : "giant resonance" の maximum におけるエネルギー

r : "giant resonance" の half maximum における幅

$\int_0^E \sigma dE$: E が 0 から E までの積分反応断面積

収量は最高エネルギー 20 MeV の bremsstrahlung スペクトルに対する röntgen-nucleus ごとの核分裂数である。

8 MeV では相当の違いが認められる。これは γ 線のスペクトルの違いによるものと思われる。 $^{238}\text{U}(\gamma, f)$ 反応の角度分布曲線を詳細に求めてある論文である。

論文 [200] では重い核 (^{232}Th , ^{233}U , ^{238}U , ^{237}Np , ^{239}Pu , ^{241}Am) の光核分裂に対しての広範囲のまとめが見られる。 γ 線源はベータートロンである。

(a) σf の測定: 電離箱により測定された $\sigma(\gamma, f) / \sigma(\gamma, n)$ の比を上各原子核についてエネルギーの関数として求めている。

(b) (γ, n) 反応の "しきい" 値近くでの (γ, f) 反応との競争: $7 \text{ MeV} < E_{\gamma\text{max}} < 10 \text{ MeV}$ では $E_{\gamma} = 1 \text{ MeV}$ の減少に対して (γ, f) 反応生成量は $\frac{1}{2}$ に落

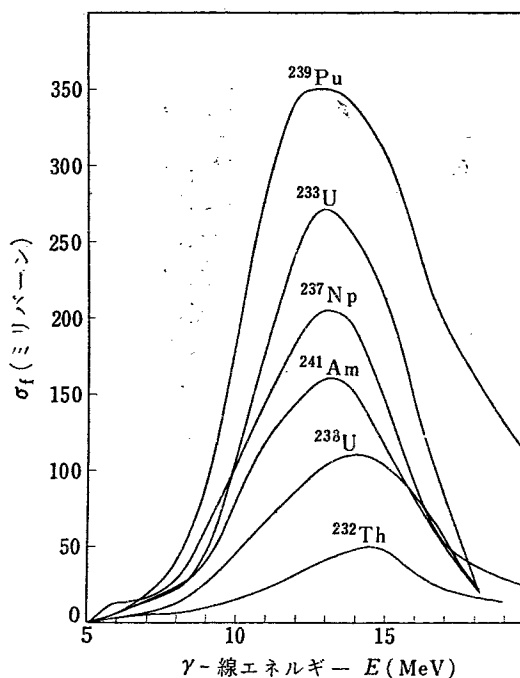
ち $4 \text{ MeV} < E_{\gamma \text{max}} < 6 \text{ MeV}$ では $E_{\gamma} = 1 \text{ MeV}$ の落下により $1/1000$ になる。 $6 \text{ MeV} < E_{\gamma \text{max}} < 7 \text{ MeV}$ では E_{γ} の増加とともに (γ, f) 反応の生成量は減少する。これらは (γ, n) 反応の競争のためである。

(c) (γ, f) 反応の角度分布は ^{233}U , ^{235}U , ^{237}Np , ^{239}Pu , ^{241}Am では等方であり ^{232}Th , ^{238}U に対しては $W(\theta) = 1 + a \sin^2 \theta$ で表わされ、非等方分布は E_{γ} の“しきい”値に近づくとき急激に増加することを示している。

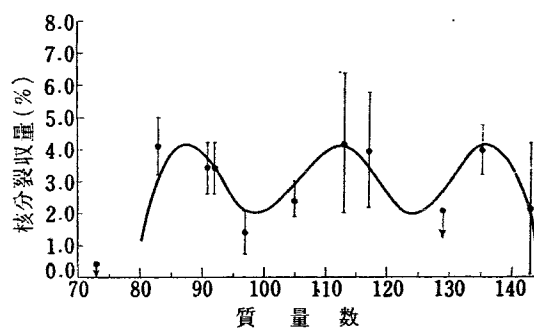
(d) 用いられた核分裂電離箱は2つの半球形コレクターをもつ型で、回路にはX線バーストによるパルスを除く工夫がされている。求められた $\sigma(\gamma, f)$ とエネルギーの関係は第3表、第2図に示される。特に今まで興味を中心とされている光核分裂の“しきい”値の少し上の吟味がしてあり $\sigma(\gamma, f)$ のエネルギーに対する曲線の変化は barrier penetration によるものであることを理論的に説明している。局所的な最大、最小は γ 線の E1, E2, 吸収過程の変化のため、また (γ, n) 反応との競争のためであるという論議はこれまでの論文と同じである。しかし (γ, f) , (γ, n) の競争過程を論じるのに実際放出される中性子数と核分裂破片数をもとにして計算がなされ、これより出た分岐比がよく実験データに合うことから、これ以外の競争過程は考える必要がないことを示している。

角度分布の測定は核分裂電離箱を用いて $I(0^\circ)/I(90^\circ)$ の比を出している。奇核に対してはこの比が誤差内で1、偶核に対しては ^{238}U , ^{232}Th に限って議論がしばらく、 “しきい” 値少し上では 90° 方向に著しくピークがあることを示した点はこれまでのデータと変りない。論文 [2037] と少し違うのはよりよい一致にするには $W(\theta) = a + b \sin^2 \theta + c \sin^4 \theta$ と考えるほうがよいかもしれないが、あえて $\sin^4 \theta$ を加えるべき理由はないと結んでいる。ただし測定点は 0° , 45° , 90° の3点だけである。最後にスピンのない核、たとえば ^{239}Pu (1/2), さらに他の偶核に対して小さい非等方性の検討の必要を暗示している。

論文 [678] は ^{226}Ra とか他の重い核の光核分裂の質量収量分布について調べた論文である。 γ 線源はベータートロンを用いている。測定は放射化学的方法である。精度は25%で、 ^{209}Bi , ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{238}U に対して山と谷(質量収量曲線において)の収量比(Y谷/Y山)を $E_{\gamma \text{max}}$ の関数として出している。一般的に核分裂性核の Z に無関係に $E_{\gamma \text{max}}$ の増大とともに収量比が上昇する定性的傾向で新しい事実はない。新しい試みとしては $^{226}\text{Ra}(\gamma, f)$ 反応の質量収量曲線であ



第2図 γ 線エネルギーに対する光核分裂断面積 [200]



第3図 予備的光核分裂収量 (\cdot) $E_{\gamma \text{max}} = 23 \text{ MeV}$
 曲線は $^{226}\text{Ra}(p, f)$ 反応時の場合の曲線,
 $E_p = 11 \text{ MeV}$ ²⁾

る。 $^{226}\text{Ra}(p, f)$ 反応, $^{226}\text{Ra}(n, f)$ 反応などでは質量収量曲線が重い核と異なった様子を指すことが指摘されてきている^{3), 4)}。これらと比較の意味で $^{226}\text{Ra}(\gamma, f)$ 反応時の質量収量曲線, 光核分裂断面積を求めることは興味あることである。論文 [678] の著者は ^{226}Ra 12mgをAlハクとサンドイッチにして γ 線照射をした。 $^{226}\text{Ra}(\gamma, f)$ の断面積はかなり小さいので $E_{\gamma} = 23 \text{ MeV}$ で $1,800 \text{ R/min}$ を用いて非常に困難な実験を行い、かなり統計誤差の大きいデータを出している。けれどもこれからいえることは $^{226}\text{Ra}(p, f)$, $^{226}\text{Ra}(n, f)$ に示されたのと同様の特徴ある質量収量曲線に3つの山が出ることを示している。これは第3図に示される。 $^{226}\text{Ra}(\gamma, f)$ 反応の断面積は $^{238}\text{U}(\gamma, f)$ 反応の断面積の $\sim 1/100$ であり Z^2/A の関数として各核の (γ, f) 反応断面積を $^{238}\text{U}(\gamma, f)$ 反応の断面積の比として図

示すると ^{226}Ra あたりで漸近的に比が0の線に近づくことが見られる。

$^{226}\text{Ra}(\gamma, f)$ 反応はまだこれからの宿題である。

4. 荷電粒子による核分裂

論文 [677] では Au, Pb (質量分離をおこなった), Bi, Ra に対して (α, f) , (d, f) , (p, f) 反応を調べている。それぞれのエネルギーは $E_\alpha < 44 \text{ MeV}$, $E_d < 22 \text{ MeV}$, $E_p = 11 \text{ MeV}$ であり質量収量曲線と近似的核分裂断面積のデータの議論がなされている。

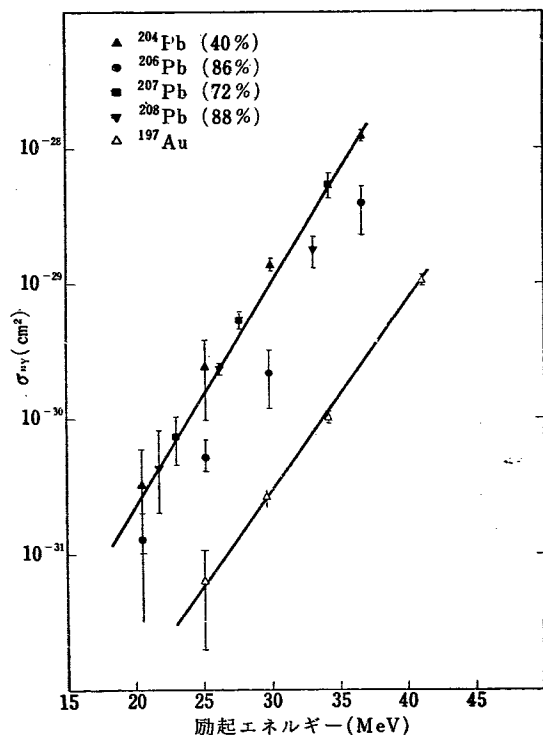
4.1 Pb あたりの核分裂

得られた結果は $E_d = 15 \text{ MeV}$, $E_d = 22 \text{ MeV}$ の Bi (d, f) 反応時の質量収量曲線である。この曲線は対称核分裂片のみであることを示し核分裂断面積は $E_d = 22 \text{ MeV}$ で $10 \mu\text{b}$ であり $E_d = 15 \text{ MeV}$ になると核分裂断面積は $E_d = 22 \text{ MeV}$ の $1/60$ になる。また $E_d < 42 \text{ MeV}$ における Pb (α, f) 反応の質量収量曲線はやはり対称モードからなるが, Pb の質量増加とともに対称軸は軽い質量側へずれる。 ^{93}Y によりとられた Pb (α, f) 反応, Au (α, f) 反応の励起曲線は第4図に

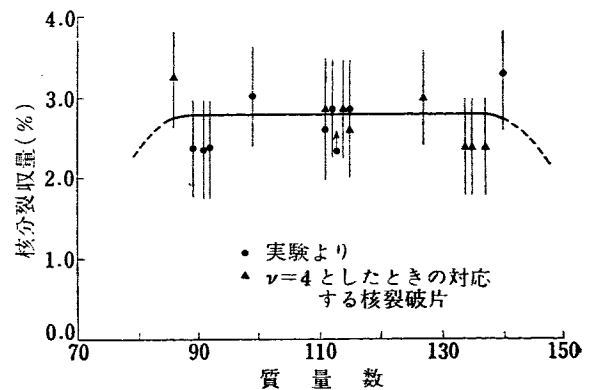
示される。図から明らかなように励起曲線は Pb の同位元素に対しては変化しないことがわかる。すなわち Z^2/A の関係はないように思われる。また分岐比 $\Gamma_i/\Gamma_{\text{total}}$ は励起エネルギーに対して急激に上昇することが示されている。上の Pb 核が Z^2/A に収量が独立であることは $(\alpha; f, n)$ 反応より説明している。また $\Gamma_i/\Gamma_{\text{total}}$ が急激に励起エネルギーとともに上昇することは Pb あたりでは中性子の蒸発が起る前に即発的に核分裂を起すからだといえる。これは重い核分裂性核 (Th より上) では $\Gamma_i/\Gamma_{\text{total}}$ は中性子蒸発の“しきい”までは一定であるのに対照的である。

4.2 ^{226}Ra の核分裂

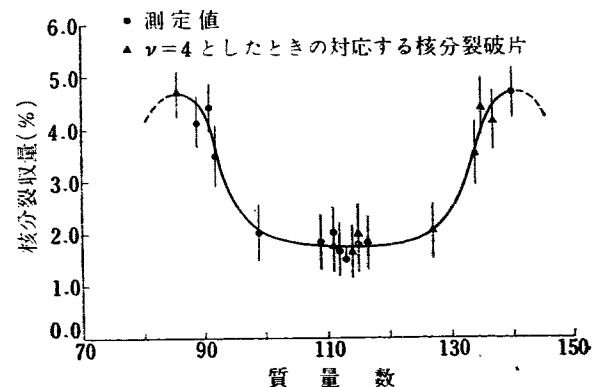
対称モードのみを示す Pb あたりの核と, 非対称分裂の2つの山を質量収量曲線に示す重い核との中間の



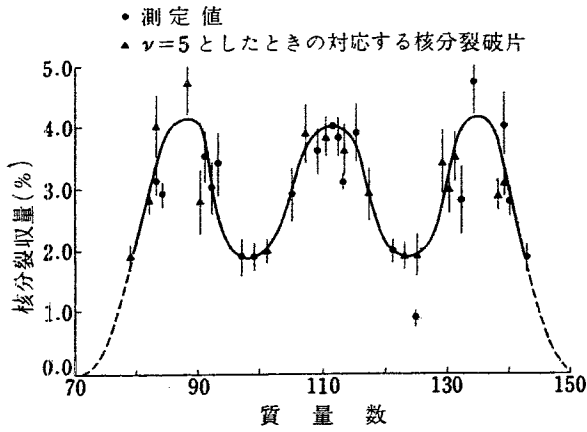
第4図 複合核の励起エネルギーに対する (α, f) の際の核分裂生成物 ^{93}Y の収量 $E_\alpha = 25 \text{ MeV}$, 42 MeV のときの (α, f) 反応からの ^{93}Y の収量に対する励起関数



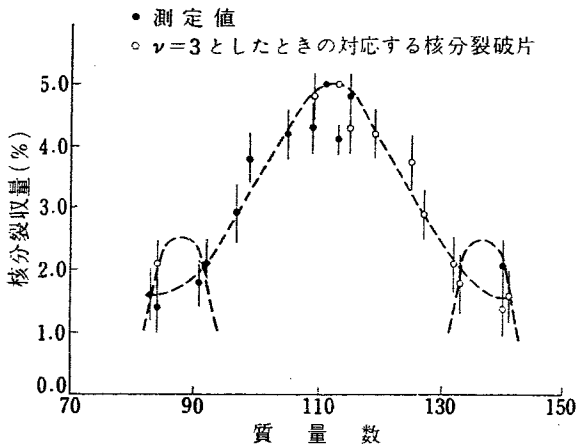
第5図 $E_\alpha = 43 \text{ MeV}$ のとき $^{226}\text{Ra}(\alpha, f)$ 反応の質量収量曲線



第6図 $E_\alpha = 23.5 \text{ MeV}$ のとき $^{226}\text{Ra}(\alpha, f)$ 反応時の質量収量曲線



第7図 $E_p=11\text{ MeV}$ のとき $^{226}\text{Ra}(p, \alpha)$ 反応時の質量収量曲線

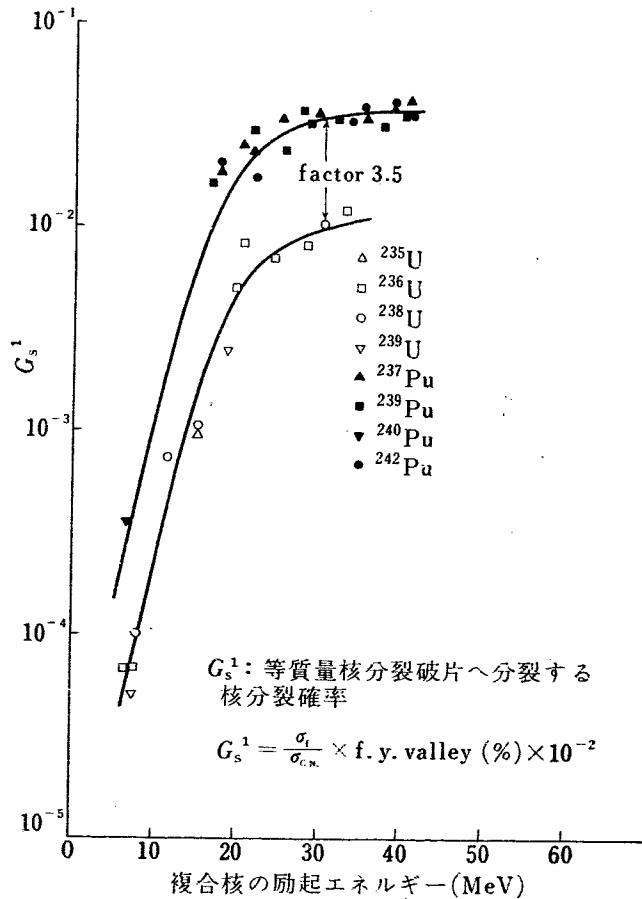


第8図 $E_d=22\text{ MeV}$ のとき $^{226}\text{Ra}(d, f)$ 反応時の質量収量曲線

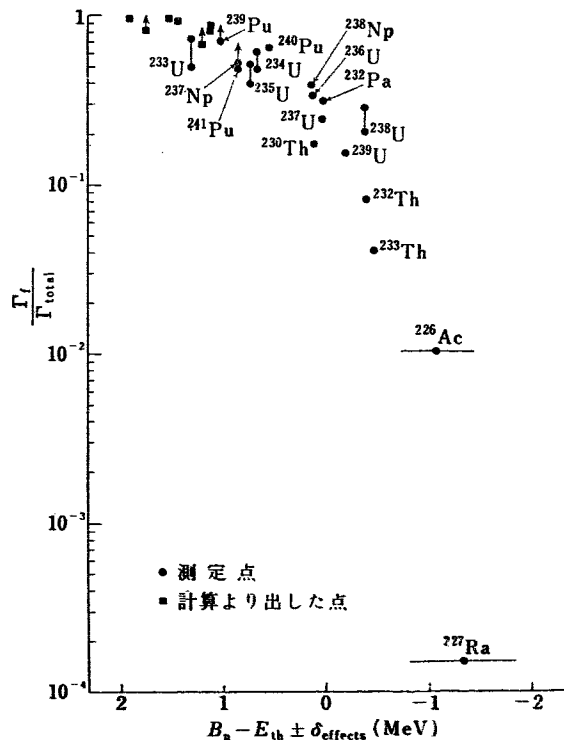
^{226}Ra は興味ある核である。 $^{226}\text{Ra}(\alpha, f)$ 反応時の質量収量曲線は第5, 6図で示される。 $E_\alpha=43\text{ MeV}$ ではほぼ平である。 $E_\alpha=23.5\text{ MeV}$ では重い核に見られる非対称の2つの山が見られる。入射粒子を陽子, 重陽子にすると質量収量曲線はがらりと変化して3つの山を示すことが第7, 8図に示される。第7図では $^{226}\text{Ra}(p, f)$ 反応時の質量収量曲線, $E_p=11\text{ MeV}$, 第8図は $^{226}\text{Ra}(d, f)$ 反応によるもの, $E_d=22\text{ MeV}$ を示してあるが, 質量収量曲線が3つの山になることは速い中性子によっても得られている⁵⁾。 ^{226}Ra 近傍での変化は, さらに陽子, 重陽子, 三重陽子で $40\text{ MeV} < E < 50\text{ MeV}$ で調べることが有効である。

4.3 重い核の対称分裂

第9図は U, Pu に対して対称分裂の分岐比を複合核の励起エネルギーに対してしらべたものである。これから強い質量に対する関連性がないこと, 励起エネルギーには強く関連をもつことがわかる。



第9図 U と Pu に対する initial compound nucleus の励起エネルギーに対する等質量核分裂破片の確率



第10図 $B_n - E_{th} \pm \delta_{\text{effect}}$ に対する $E_\alpha=12\text{ MeV}$ 以下の非対称核分裂の確率

非対称分裂に関しては第 10 図に $B_n - E_{th} \pm \delta_{effect}$ に対して非対称分裂の分岐比が示されている。

4.4 非対称分裂

5. 中性子核分裂における質量収量曲線

論文 [2040], [643], [644], [551] の要点は、質量分析器による直接測定、放射化学的分析による方法、核分裂片のエネルギー測定との 3 つである。以下順にのべる。

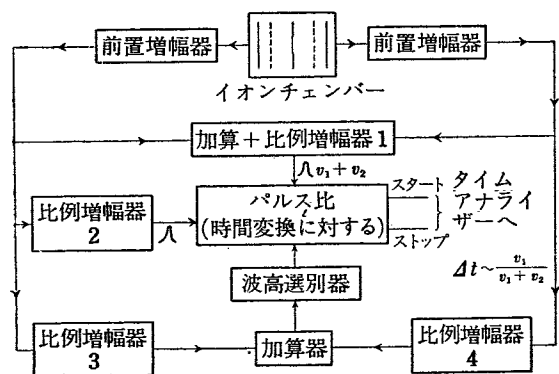
5.1 質量分析器による直接測定

論文 [2040] においては質量分析器を用いて熱中性子核分裂の際の ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu に対して $133 < M < 154$ の質量収量曲線が求められている。系統的变化として ^{235}U に対し ^{233}U は質量 1 だけ軽い方へ ^{239}Pu は質量 2~2.5 重い方へ変位している。また $140 < M < 142$ にゆらぎが見られるのは核の殻模型に結び付けて考えるのは今までと変りない。副データとして、 ^{147}Pm , ^{149}Sm , ^{151}Sm , ^{241}Pu の吸収断面積がそれぞれ 90 ± 20 バーン, $4,9000 \pm 8,000$ バーン, $8,000 \pm 15,000$

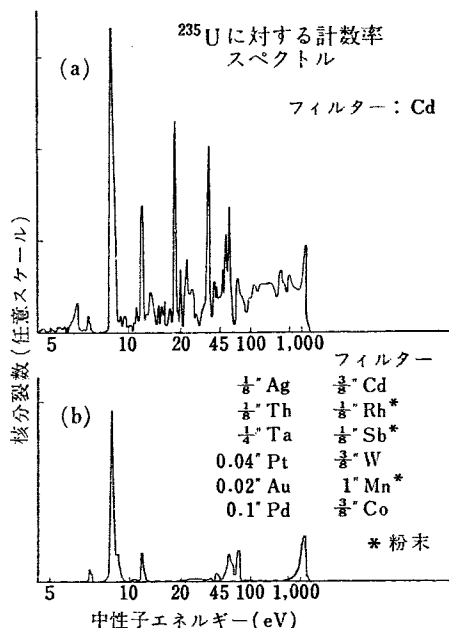
バーン, 340 ± 30 バーン, と得られさらに ^{147}Pm , ^{90}Sr の半減期が 2.4 ± 0.1 年, 29.3 ± 1.6 年と得られている。

5.2 放射化学的分析による方法

論文 [643] においては ^{235}U , ^{238}U の速中性子核分裂の放射化学的分析がなされている。得られたことは



第 11 図 電気回路のブロック図



第 12 図 (a) 原子炉中中性子ビームの Cd 3/8" フィルターに対する ^{235}U の計数率スペクトル
(b) ビーム中の上挙げられた全フィルターに対する ^{235}U の計数率スペクトル

第 4 表 ^{239}Pu 核分裂収量 (%)

Fission Product	280d	11.1d	53h	47h	15.4h	18h	6.8d	82h
Mass No.	144	147	149	153	156	159	161	166
Run No.								
1	—	2.2	1.2	0.36	0.11	0.019	0.0040	0.000065
2	3.4	2.2	1.4	0.34	0.11	0.022	0.0040	0.000067
3A	—	—	1.4	0.32	0.10	0.024	0.0036	—
3B	—	—	1.4	0.33	0.10	0.022	0.0037	—
3C	3.7	2.3	1.4	0.35	0.10	—	0.0043	0.000076
3D	3.8	2.3	1.4	0.34	0.11	—	0.0042	—
4A	—	2.2	1.3	0.31	0.10	0.019	0.0039	0.090071
4B	—	2.1	1.3	0.31	0.10	0.020	0.0037	0.000061
Ave.	3.6	2.2	1.4	0.33	0.10	0.021	0.0039	0.000068

速中性子でエネルギーが高くなると非対称分裂が実験誤差とはみなせぬほど増加することが $E_n=8\text{ MeV}$, 核分裂中性子, 熱中性子のおのおのに対して示され, また ^{238}U と ^{235}U を比べると ^{238}U のほうが質量収量曲線において幅広い分布を示すことがのべられているが, こと新しいデータではない。

また論文 [644] においてはこれまでなかった ^{239}Pu の熱中性子核分裂の際の質量 144 以上の核分裂生成物の質量収量データが放射化学的分析で測定されている。結果は前ページ第4表に示される。

5.3 核分裂破片のエネルギー測定による方法

論文 [551] では核分裂破片の速度測定から質量収量曲線を求めているが, この論文の主眼点はU核で中性子の共鳴エネルギーの点で質量収量曲線ととりそれらの比較から ^{235}U (基底状態スピン $S=7/2$) の低速中性子捕獲が 3^- 状態か, あるいは 4^- 状態かのどちらで生じているかを調べようとした。 3^- 状態では非対称集団振動のため質量収量曲線は対称分裂に対しては低収量を示すが, 4^- 状態, では 3^- 状態とは差があると思われるので, 種々の共鳴エネルギーで質量収量曲線が比較された。測定器は“back to back”ブリッシュ核分裂電離箱が用いられている。回路のプロ

ック図は, 第11図に示されるが, 電離箱の2つのコレクターからのパルスより回路的に $V_1/(V_1+V_2)$ を求めると核分裂破片の質量に比例したものを与えることになる。中性子ビームから共鳴点のエネルギーをとり出すには ^{235}U の共鳴点でないところに共鳴点をもつ物質から作ったフィルターが用いられた。このフィルターのスペクトルは第12図で示される。 ^{235}U に対しては $E_n > 1\text{ eV}$, $E_n = 8.9\text{ eV}$, ^{233}U に対しては $E_n > 3\text{ eV}$, $E_n = 1.8\text{ eV}$ で質量収量曲線を求め, 熱中性子による質量収量曲線との比の曲線が求められている。 ^{235}U の場合このような測定はロス・アラモスの放射化学グループ⁶⁾によりなされたが同じエネルギーに対する曲線においても異なり15%反対方向に向く。理由は不明である。その他 NASUHOGLU *et al.*⁷⁾ の放射化学的分析によるデータもあるが3つのデータは皆異なっている。 ^{233}U における $E_n = 1.8\text{ eV}$ に対するものは入射中性子の75%が共鳴中性子であるが熱中性子による質量収量曲線と同じになる。理論的には A. BOHR の示したように質量収量曲線は核分裂性核のスピン, パリティに関係すると思われるけれどもこの実験で用いられた方法(フィルターを用いてエネルギー選択をおこなう方法)では個々の共鳴エネルギーに対するスピンの値をきめるのは無理だと思われる。

6. 核分裂の際の即発荷電粒子, 即発 γ 線, 即発中性子

6.1 即発荷電粒子

いわゆる核の3体分裂であるが3つの中2つが同じくらいの重い核, 残る1つが多分 α 線であることが C. B. FULMER *et al.*⁸⁾ によりのべられ, かつエネルギー・スペクトルが示された(熱核分裂の際)。入射中性子のエネルギーの関数として2体分裂に対する3体分裂の比を求める試みが今まで^{9), 10)}なされてきたが, 論文 [1188] では中性子が熱中性子から数 MeV までの領域で核分裂の全断面積に対する3体分裂の断面積

の比の変化を E_n の関数として求める試をしている。分裂性核は ^{233}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu について, 測定器は原子核乾板と核分裂電離箱が用いられた。おのおのについては第13図のようである。

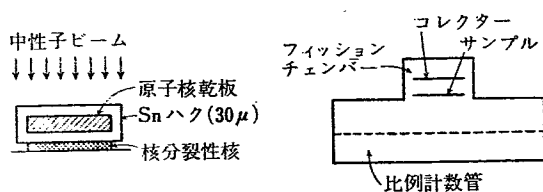
総合的結果は得られていないがたとえば ^{239}Pu に対しては $E_n = 300\text{ keV}$ では3核分裂(長飛程の荷電粒子をとまなり)は1/1500であることをのべている。

6.2 即発 γ 線

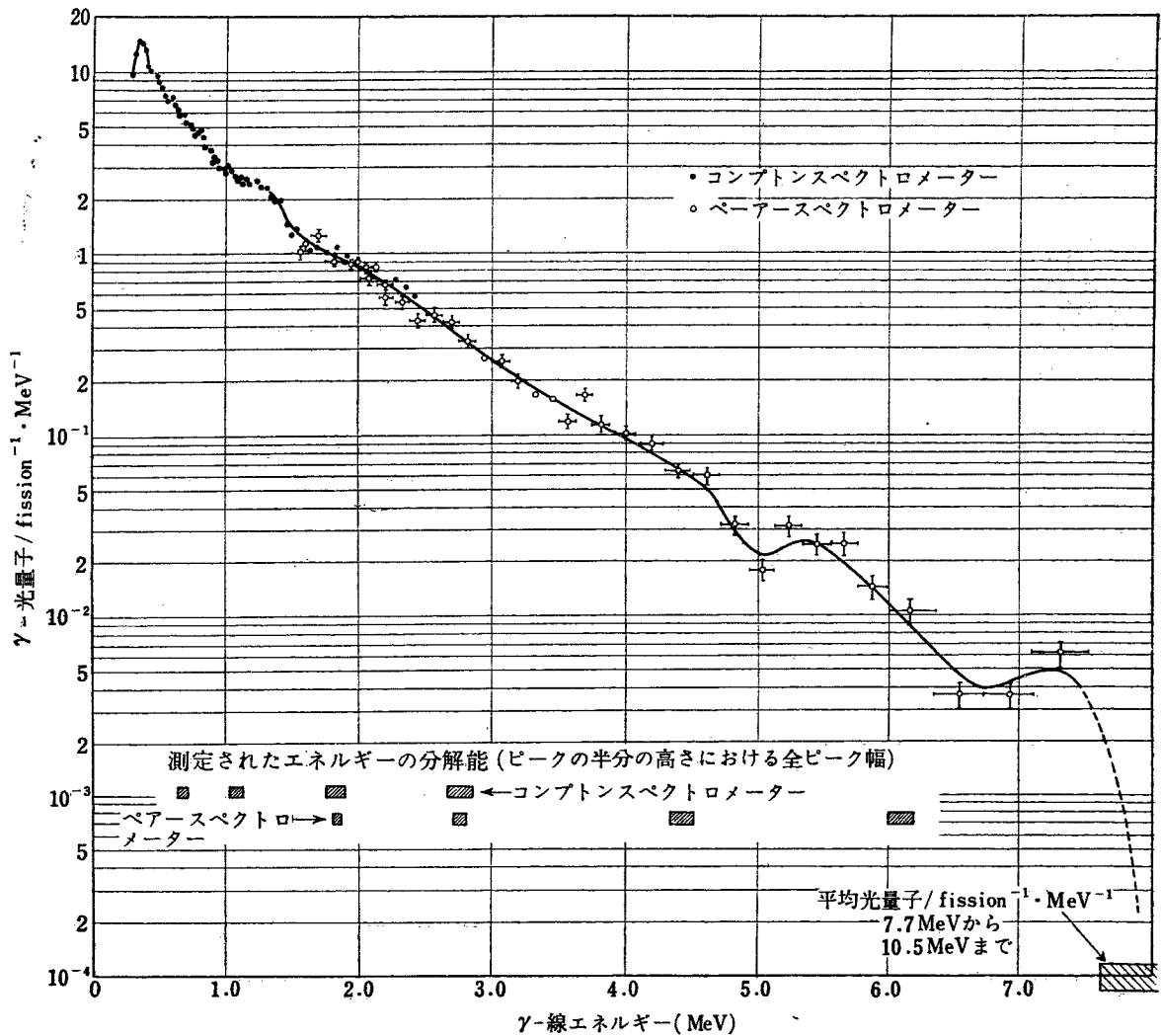
熱中性子による ^{235}U の即発 γ 線の検討は論文 [670] で扱われ, 中性子のバックグラウンドのない自発核分裂の際の即発 γ 線に対しては ^{252}Cf によるデータとして論文 [199] がある。

(a) ^{235}U の熱中性子核分裂による即発 γ 線

^{235}U の熱中性子核分裂による即発 γ 線は今までにもしらべられてきたが^{11), 12), 13)}, 論文 [670] では測定方法がだんだん洗練されてきたことがわかる。測定器



第13図 原子核乾板と核分裂電離箱



第 14 図 核分裂数 5×10^8 秒内に観測された γ 線のスペクトル [670]

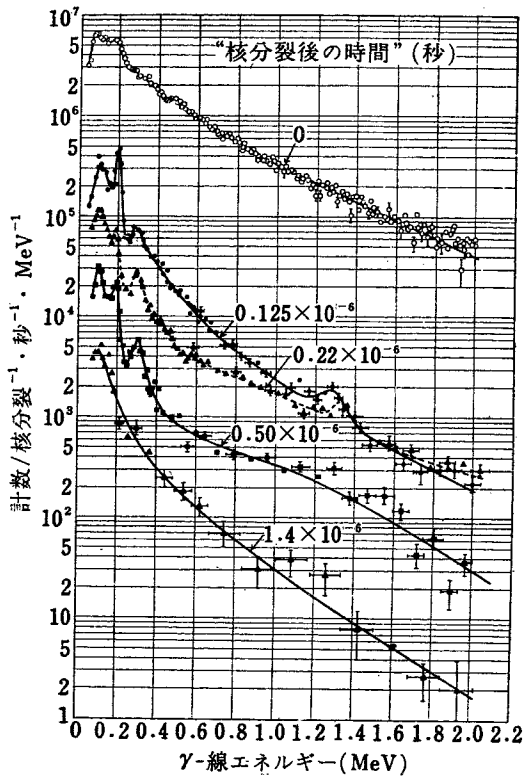
示された縦軸の誤差は統計論的のものからの計算である。示された横軸の誤差は平均されたエネルギー間隔について、示されている曲線は点をつないだものである。この点はデータの予備的な解析を示す。統計的な誤差はあるエネルギー範囲では 15% ぐらいである。

は 1" 直径, ラセン型, 核分裂電離箱と, 1"φ の NaI シンチレーションカウンターまた高エネルギー即発 γ 線の解析にはペアスペクトロメーターが用いられ, 測定に当っては特に即発中性子による影響を 4% までに減じている点に改良がなされている。なお同時測定回路の分解時間は 10^{-8} 秒を用いている。7 MeV までの即発 γ 線に対する全スペクトルは第 12 図に示される。新しいデータとしては短時間減衰をする γ 線スペクトル ($E_\gamma < 2$ MeV) の検討がなされていることである。 0.125×10^{-6} 秒, 0.22×10^{-6} 秒, 0.50×10^{-6} 秒, 1.4×10^{-6} 秒の間に減衰する γ 線は 0.19 MeV, 0.30 MeV, 1.3 MeV の点に見られる。これは第 15 図に示す。また 0.19 MeV と 1.3 MeV の γ 線は 0.3 MeV の γ 線と "Cascade" に放射されないことがのべられている。また長寿命核分裂生成物 (前者に比し) からの γ 線の測

定がなされ第 16 図に示される。 γ 線ピークを示す核の判定はなされていないが短時間寿命のものは (全体の $5.7 \pm 3\%$) ベーター崩壊の禁止則 (10^{-3} 秒より短い半減期のものに対して) より考えてこれらの γ 線は "isomeric transition" によるものと考えられる。

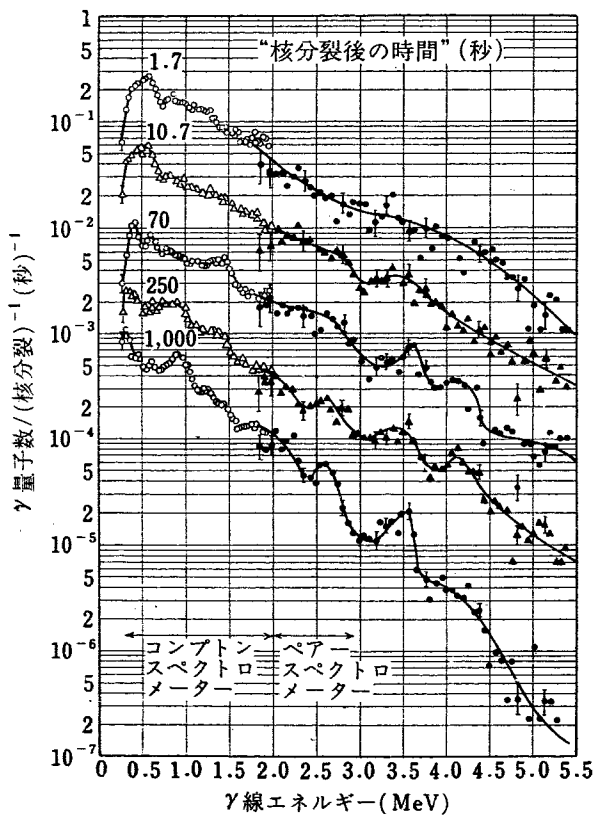
(b) ^{252}Cf の自発核分裂時の即発 γ 線

論文[199]では ^{252}Cf の自発核分裂に伴う即発 γ 線と 2つの核分裂破片の質量比との関係がのべられている。質量比を出すには "time of flight" 法を用いている。走行距離は 182.5 cm である。用いられた ^{252}Cf のターゲットは 8 μg である。質量収量曲線の放射化学的分析による方法と "time of flight" 法により出されたデータは第 17 図に示される。即発 γ 線は 4"φ NaI シンチレーションカウンターを用いて測定されている。質量比に対する平均運動エネルギー, 放出される最大エネルギー

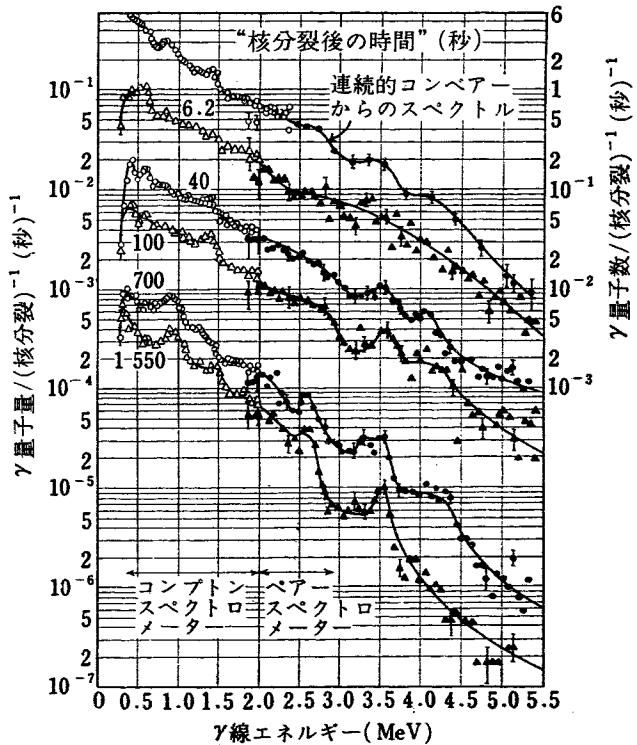


第15図 原子核分裂後短時間で観測されたスペクトル [670]

"0" は既発 γ 線のスペクトルを示す。この曲線は観測された (計数)/(核分裂⁻¹) (MeV)⁻¹ バックグラウンドは差引いてある。統計的誤差が示されている。曲線はデータの点に合わせたもの。



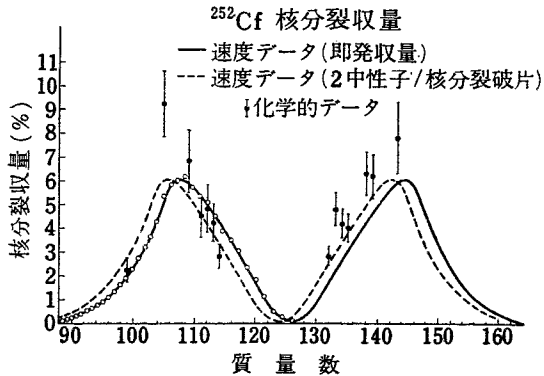
(a)



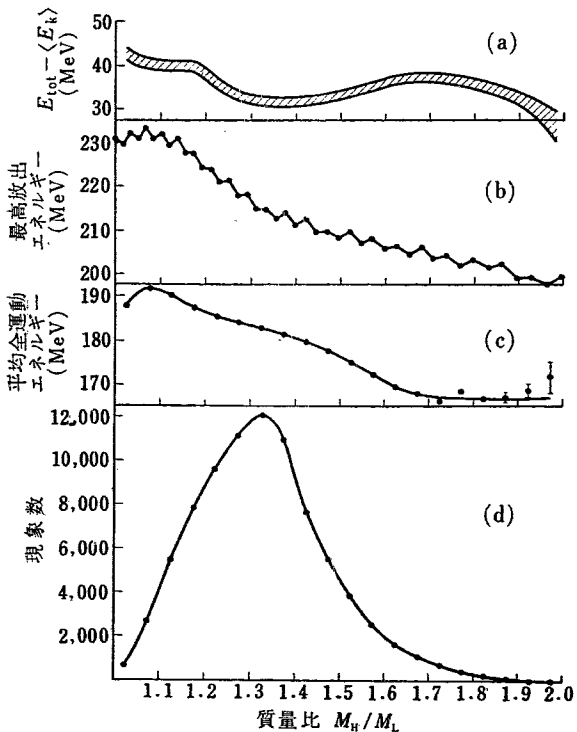
(b)

第16図 核分裂“長い”時間に観測された γ 線スペクトル。曲線は目分量で引かれたもの。b) の一番上のものを除いて核分裂後の時間を示してある。b) の一番上の曲線はベルト上の試料が照射されてのち 8×10^8 秒の間に連絡ベルトより放射されるスペクトル (スケールは右側のものを用いるスペクトルはそのままのものでシンチレーションカウンターの特性上の補正は含んでいない。)

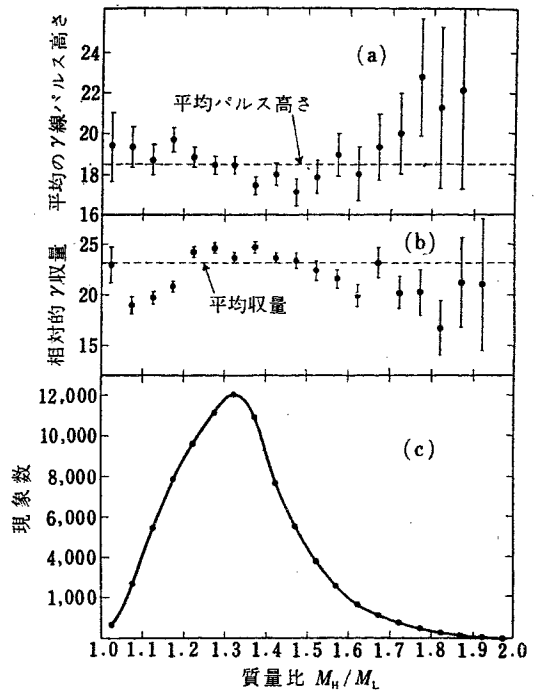
一、2つの分裂片の平均全励起エネルギーの上限との関係は第18図に示される。また質量比に対する相対的 γ 線収量、平均パルスの高さの関係は第19図に示される。また全運動エネルギーに対する N_γ/N_f 、平均 γ 線のパルスの高さの関係は第20図で示され、また全運動エネルギーに対する γ 数の関係式が示され相関関係の少ないことを示している。すなわち得られた式は



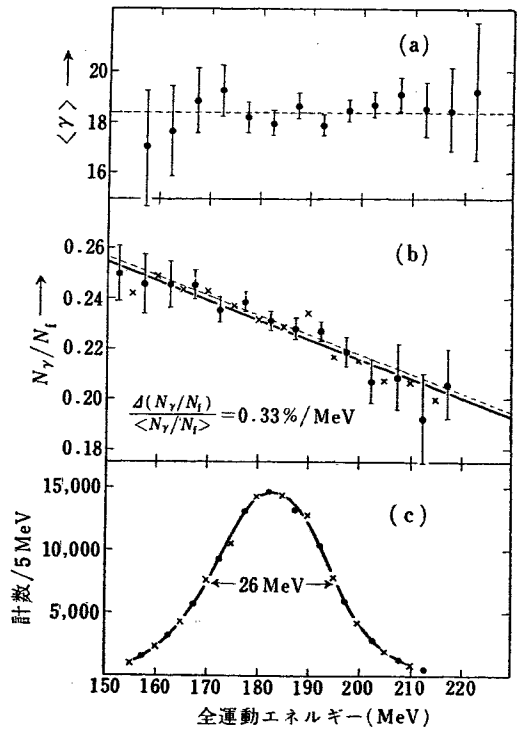
第17図 放射化学的測定よりのデータと比較される即発質量収量。点線は、おのおのの核分裂破片より2つの中性子が放射されるとしてひいたカーブ、(GLENDENIN, STEINBERGのデータ)



第18図 (a) ^{252}Cf の質量比分布曲線
(b) 平均全運動エネルギー、 $\langle E_k \rangle$ 、質量比の関数として
(c) Cameron の公式より与えられた質量を用いて計算した最高即發放出エネルギー
(d) 二つの核分裂破片の平均全励起エネルギーに対する上限



第19図 (a) 質量比分布
(b) 10.2 cm ϕ の結晶中の 200 keV より高い γ 線の収量
(c) 200 keV $< E_\gamma < 1400$ keV のすべてのパルスの平均高さ



第20図 (a) 全運動エネルギー分布
(b) $E_\gamma > 200$ keV の γ 線の収量
(c) 200 keV $< E_\gamma < 1400$ keV のすべてのパルスの平均高さ

$$\frac{1}{\langle N_r \rangle} \frac{dN_r}{dE_r} = -0.0029 \pm 0.0007 \text{ MeV}^{-1} \text{ to } -0.0011 \text{ MeV}^{-1}$$

また質量比に対する相関関係として全励起エネルギー分布は質量比 $R=1.10$ と $R=1.50$ では高くなり、 $R=1.30$ では低くなる。また γ 線収量と平均 γ 線エネルギーとの相関関係は $R=1.1$ で γ 線の収量は少なくなり、また平均 γ 線エネルギーは高くなる。 $R=1.86$ では γ 線の収量が少なくなり平均 γ 線エネルギーは高くなる。 $R=1.1$ は陽子 50, 中性子 82 の double magic である。 $R=1.86$ は中性子 50 のシェルがきく所であり一応“シェルの影響”が出ていることを示す面白いデータである。この論文のデータは測定法としては“time of flight”法のぎりぎりの精度までおこなったデータであり、また即発中性子による核分裂片の角度分散、反跳による補正をして即発中性子放射前の平均全運動エネルギーを出している。得られている値は $R=1.33$ において $181.9 \text{ MeV} \pm 17.5 \text{ MeV}$ である。

[665] に引用されているデータとして最近の興味あることとして2つのことがある。1つは即発 γ 線と核分裂破片との角度相関のデータである¹⁴⁾。HOFFMAN の測定によると即発中性子の影響を 90% 除いた角度相関として第5表のような結果を得、これより即発 γ 線は“dipole”あるいは“quadrupole”である理由づけになるかも知れないと論じている。また核分裂破片の“polarization”によるものかも知れないことが考えられる。興味あるデータとしてもう1つは核分裂破片より出るX線の測定をおこなっている CARTER *et al.*¹⁵⁾ のデータがある。測定法は比例計数管で行っている。得られたデータは第21図、第22図で示される。

6.3 即発中性子

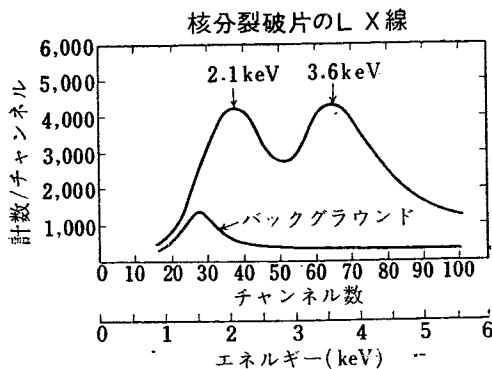
第5表 核分裂破片と γ 線の間の角の関数としての “coincidence probability c ” の HOFFMAN の結果
誤差は統計的誤差のみで系統的誤差は少ない。
C: 90° と 180° における “coincidence probability” である。

	C(180°)/C(90°)	C(180°)/C(45°)
²³⁹ Pu + thermal neutrons	1.089 ± 0.2	1.022 ± 0.25
²³⁵ U + thermal neutrons	1.054 ± 0.25	

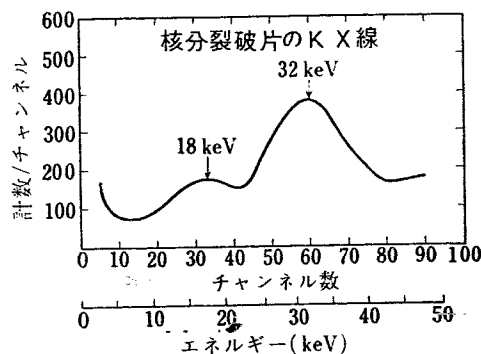
即発中性子に関して原子炉の設計計算上特に重要なものは、核分裂当りの平均数 $\bar{\nu}$ およびエネルギー分布 $N(E)$ であり、入射中性子のエネルギーによる $\bar{\nu}$ の値の変化はまた核分裂の理論の上からも重要である。

$\bar{\nu}$ の絶対測定の困難性は、中性子検出器の正確な校正にあり、これはまた現在の標準中性子源の精度があまりよくないことによっても制限されるものである。文献 [52] は、240本のBF₃カウンターと黒鉛から構成される“Boron Pile”と呼ばれる検出器によって $\bar{\nu}$ の精密測定を試み測定結果としては異なる核間の $\bar{\nu}$ の比を与えているが、一般にこれまでの測定値によく一致しかつ測定誤差はより小さくなっている。

文献 [1632] では ²³⁸U の速中性子核分裂に対する $\bar{\nu}$ の測定をおこなっており、核分裂スペクトルの中性子に対しては $\bar{\nu}=3.5 \pm 0.2$, 14 MeV の中性子に対しては $\bar{\nu}$ の他の測定値から $\sigma_t=0.96 \pm 0.28$ バーンなる値を出している。この σ_t 値は、中性子エネルギーに対する σ_t の理論的に予測される曲線の2番目の平坦部にのるものである。

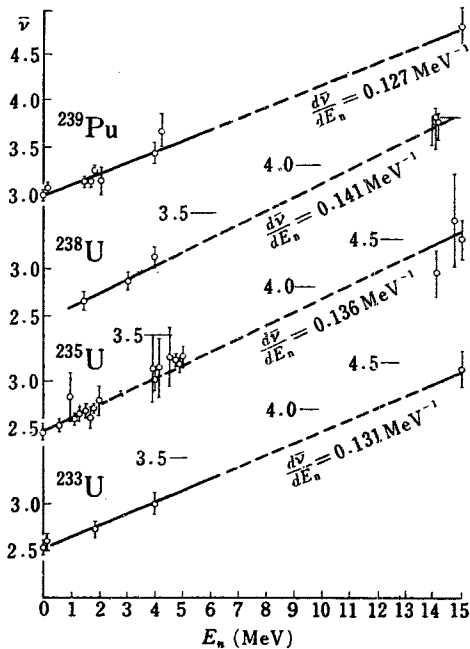


第21図 CARTER *et al.* により得られた L, X 線のエネルギースペクトル “バックグラウンド” は ²³⁵U の source を逆にしたとき, backing の Ni ハクの L, X 線である。比例計数管によるデータである。



第22図 CARTER *et al.* による K, X 線のエネルギースペクトル 0.045” NaI 結晶によるもの

文献 [2187] は速中性子核分裂における $\bar{\nu}$ および $N(E)$ について、彼等の測定値にこれまでの多くの報告からのデータを加えて論じている。その主なものを第 23 図および第 24 図にあげる。



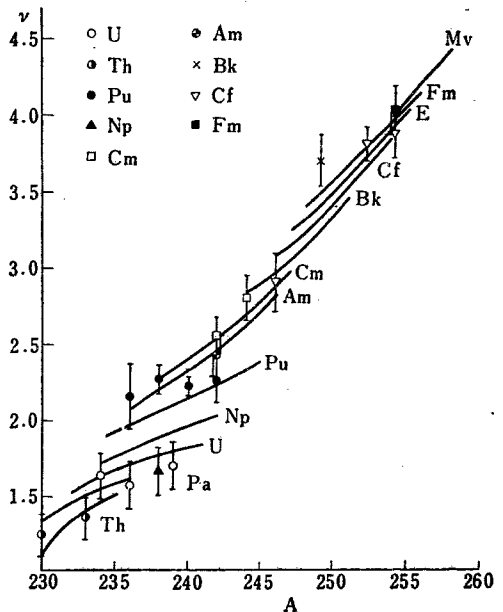
第 23 図 ^{233}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu に対する入射中性子エネルギー E_n と即発中性子の平均数 $\bar{\nu}$ との関係。

図中太線は蒸発理論にしたがって

$$\frac{d\bar{\nu}}{dE_n} = \frac{1}{E_b + 2T} f(\nu)$$

から計算されたもので、 E_b は中性子の結合エネルギー、 T は励起された核分裂片の温度、 $f(\nu)$ は励起エネルギーにわづかに関係する関数で $2.5 \leq \nu \leq 3.5$ の範囲では近似的に 0.9 に等しいと仮定されるものである。点線の部分は (n, nf) 反応のしきい値以上の範囲を示す。

なお、R. B. LEACHMAN は文献 [665] において遅発中性子、即発中性子スペクトル、即発中性子の平均数、即発 γ 線、遅発 γ 線および核分裂にともなう X 線に関する比較的最近の報告を振り返り論じている。



第 24 図 分裂性原子核の $\bar{\nu}$ の質量数 および原子番号 Z との関係

中性子による核分裂に対する $\bar{\nu}$ の値は同じ核の自発核分裂に対する $\bar{\nu}$ の値に外挿された。図中曲線は、自発核分裂に対するエネルギー関係式

$$E_f = E_k + E_x = E_k + \nu E_n + E_T$$

から、いくつかの仮定を置いて計算されたものである。ここで、 E_f は核分裂エネルギー、 E_x は核分裂片の運動エネルギー、 E_k は核分裂片の励起エネルギー、 νE_n および E_T は即発中性子およびガンマ線によって選ばれるエネルギーである。

文 献

第 2 回ジュネーブ会議報文

[52] D. W. COLVIN, M. G. SOWERBY: Precision measurements of $\bar{\nu}$ by the Boron Pile.
 [198] A. G. CAMERON: Semi-empirical correlation of fission-yield & kinetic energy distribution.
 [199] J. S. ERASER J.C.D. MILTON: Fission fragment velocity distribution and coincident gamma spectra for ^{252}Cf .
 [200] L. KATZ, A. P. BAERG, F. BPOWN: Photofission in heavy elements.
 [204] C. B. BIGHAM *et al.*: The slow neutron fission cross sections of the common fissile nuclides.

[551] L. W. ROELAND, L. M. BOLLINGER, G. E. THOMAS: Mass distribution in fission.
 [642] I. HALPEEN, C.T. COFFIN: Fission angular distributions and fissionability at moderate energy.
 [643] L. R. BUNNEY *et al.*: Radiochemical studies of the fast neutron fission of ^{235}U , ^{238}U .
 [644] L. R. BUNNEY, E. M. SCADDEN, J. O. ABRIAM, N. E. BALLOU: Extension of the fission product region and yields of heavy products in the neutron fission of ^{239}Pu .
 [645] R. G. FLUHARTY *et al.*: The total & fission cross sections of ^{233}U below 1keV.
 [648] F. J. SHORE, V. L. SAILOR: Fission and total

- cross sections of ^{235}U from 0.1 to 10 eV.
- [659] R.H. STOKES *et al.*: A measurement of fission threshold structure and its collective model interpretation.
- [660] D.L. HILL: The dynamics of nuclear fission.
- [663] A. HEMMENDINGER: Fission cross [sections at MeV excitations.
- [665] R. B. LEACHMAN: Neutrons and radiations from fission.
- [670] F. C. MAINSCHEIN, R. W. PEELLE, W. ZOBEL, T. A. LOVER: Gamma rays associated with fission.
- [677] A. W. FAIRHALL, R. C. JENSEN, E. F. NEUZIL: Fission studies of elements lighter than thorium.
- [678] R. B. DUFFIELD, R. A. SCHMITT, R. A. SHARP: Yield-mass distributions in the photofission of radium and other heavy elements.
- [687] L. M. BOLLINGER *et al.*: The slow neutron cross sections of ^{239}Pu .
- [1188] M. F. NETTER *et al.*: Comparative probabilities for fission with the emission of long-range particles for various materials irradiated by slow and fast neutrons.
- [1513] I. HALPERN, STRUTIUSKI: Angular distributions in particle induced fission at medium energies.
- [1632] V. R. NARGUNDKAR, R. B. PRABHU, R. RAMANNA, N. UMAKANTHA, P. K. KHOPKAR: Number of neutrons emitted per fission from the fast fission of U-238 (インド).
- [2037] A. I. BAZ, N. M. KULIKOVA, L. E. LAZAREVA, N. V. NIKITINA, V. A. SEMENOV: The angular distribution of fission fragments in the photofission of ^{238}U .
- [2149] S. P. KALININ, V. M. PAUKRATOV: Neutron-induced fission cross sections of ^{232}Th & ^{238}U in 3 to 11 MeV & of ^{233}U , ^{235}U , ^{237}Np & ^{239}Pu in 3 to 8 MeV.
- [2187] I. I. BONDARENKO, B. D. KUZMINOV, L. S. KUTSAYEVA, L. I. PROKHOROVA, G. N. SMIRENKIN: Average number and spectrum of prompt neutrons in fast neutron-induced fission (?).
- [2221] V. V. VLADIMIRSKY *et al.*: Some new resonance data on effective cross sections and fission process.

その他

- 1) D. J. HUGLUS, R. B. SCHWARTZ: *BNL-325*, Supplement No. 1 (1957).
- 2) E. J. WINHOLD I. HALPERN: *Phys. Rev.* **103**, 990 (1956).
- 3) R. C. JENSEN, A. W. FAIRHALL: *Phys. Rev.*, **109**, 942 (1958).
- 4) R. A. NOBLES, R. B. LEACHMAN: *Nuclear Phys.*, **5**, 211 (1958).
- 5) R. A. NOBLES, R. B. LEACHMAN; *Nuclear Phys.*, **5**, 211 (1958).
- 6) Los Alamos Radiochemistry Group: *Phys. Rev.*, **107**, 325 (1957).
- 7) R. NASUHOGLU, S. RABOY, C. R. RINGE, L. E. GLENDENIC, E. P. STEINBERG: *Phys. Rev.*, **108** 1522 (1957).
- 8) C. B. FULMER, B. L. COHEN: *Phys. Rev.*, **108**, 370 (1957).
- 9) K. W. ALLEN, J. T. DEWAN: *Phys. Rev.*, **80**, 181 (1950).
- 10) Proceeding of the Geneva International Conference, Session 7A2: 263 (1955).
- 11) E. C. MAIENSHEIN, R. W. PEELLE, T. A. LOVE: *ORNL-2389*, 99-110 (1957).
- 12) SKLIAREVSKII, *et al.*: *J. Exptl. Theoret. Phys.*, 256-62, **32** (1957).
- 13) VOITOVETSKII, *et al.*: *J. Exptl. Theoret. Phys.*, **32**, 263-8 (1957).
- 14) M. M. HOFFMAN: *Bull. Am. Phys. Soc. Series II*, 3, 6-7 (1958).
- 15) CARTER, WAGNER, WYMAN: to be published.

拡 散

1. 概 説

金属、合金あるいは金属化合物の機械的性質におよぼす種々の現象は、各種固体の中で起る原子の拡散が重要な役割を果していることは、以前から広く認められていることである。その典型的な例は溶接、焼結、腐食、硬化、再結晶、クリープ、照射効果の消滅あるいは結晶の生長など数多く見出される。また拡散の研究は結晶格子および原子間の結合力に関する種々の有益な知識を与え、格子欠陥の形成および移動エネルギーあるいは放射線照射の固体に与える影響を研究するための有力な手段でもある。

このような多方面の興味から拡散の実験的研究は数十年来広くおこなわれてきている。初期の頃の実験は2つの組成の異なる試料を溶接し拡散を進行させたのちX線によるかあるいは化学分析によって測定をおこなった。しかしこの方法は精度が悪い上にケミカルグラジエントの存在を無視することができない欠点をもっていた。これらの欠点はラジオアイソトープをトレーサーとして利用する実験技術の進歩により取り除くことができ、拡散の測定は最近10年あまりの間に非常に精度の高い結果を求めることができるようになってきている。これから報告する研究はいずれもトレーサー法を用いた実験であるので、この実験法について簡単に説明をおこない、そのあとで各論文の概要を紹介する。

一定温度、一定圧力で均質な試料中では拡散係数は一定な値を持つので、拡散現象は次の式で表わすことができる。すなわち

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \nabla^2 c$$

ここで c は拡散する原子すなわちこの場合はトレーサーとなるラジオアイソトープの濃度を示し、 D が拡散係数であり、 t は時間である。実際の実験においては、トレーサーは単位面積当り c_0 の濃度の薄い層として円筒型試料の端面に電気メッキされるので、問題は1次元の問題として考えることができ、次の解が与えられる。

$$\ln c(x, t) = \ln c_0 / \sqrt{\pi D t} - x^2 / 4 D t$$

この式から明らかなように拡散係数 D は c の対数と x^2 の関係から決定することができる。実際の測定でこの関係を求めるには、上に書いたような試料を拡散熱処理したのち電気メッキした面から精密旋盤かあるいは精密なグラインダーを使って薄く削り取り、削りくずからの放射線を測定して求めるセクショニング法が最も広く用いられている。しかしそのほかにも試料を斜めに切断し切断面に写真乾板をはりつけ、乾板の黒化度から上の関係を求めるラジオ・オートグラフ法が時には用いられることもある。このような方法で求められた拡散係数は温度により変化するが、その様子はほとんどの場合つぎの式で変化することが認められている。

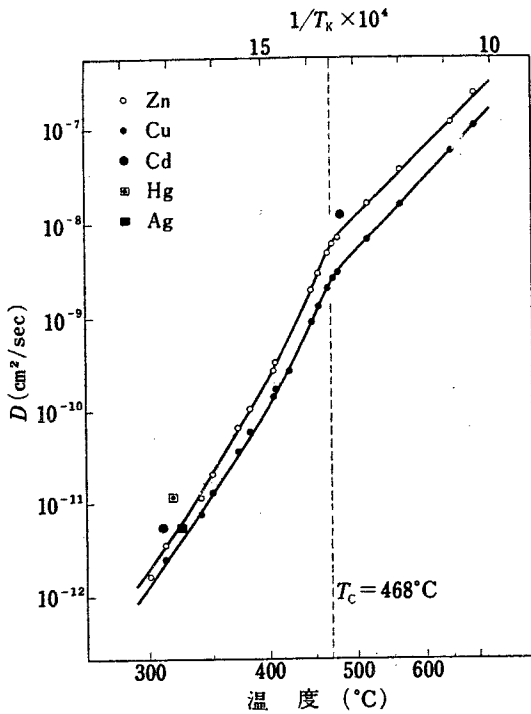
$$D = D_0 \exp(-Q/RT) \quad \text{cm}^2/\text{sec}$$

ここで R は気体定数であり、 T は絶対温度、 D_0 および Q は温度に無関係な定数で、後者はふつう活性化エネルギーと呼ばれる。活性化エネルギーは原子がある安定な位置から隣りの安定な位置に拡散するときに必要なエネルギーを示しており、拡散の問題はこの値で議論される場合が多い。

2. 規則格子 β 黄銅中の自己拡散 [1365]

亜鉛 46.7% の銅-亜鉛合金中での自己拡散係数を不規則状態と規則状態とで測定した。測定はトレーサ

ーとして銅-64、亜鉛-65 を使いセクショニング法でおこなった。結果は温度の関数として第1図に示すと



第1図 Cu-Zn 合金中での自己拡散係数と温度との関係 [1365]

おりであり、また式で示すと不規則状態に対して

$$D_{Zn} = 0.022 \exp(-22.039/RT) \text{ cm}^2/\text{sec}$$

$$D_{Cu} = 0.020 \exp(-23.419/RT) \text{ cm}^2/\text{sec}$$

また規則状態に対しては大体

$$D_{Zn} = 1.00 \exp(-32.000/RT) \text{ cm}^2/\text{sec}$$

$$D_{Cu} = 0.80 \exp(-31.000/RT) \text{ cm}^2/\text{sec}$$

で表わされる。

図で見るとおり不規則状態での拡散係数の対数と絶対温度の逆数の関係は直線関係が満足されている。このことから近距離規則状態の拡散への影響は少ないと見ることができる。規則状態においてはその関係は満されていない。すなわち活性化エネルギーおよび D_0 が規則化の程度に依存していることを示すものと考えられる。しかしこの実験だけからその関係を正確に求めることはむずかしい。また両状態において D_0 の値に非常な差のあることも注目される。また活性化エネルギーの差から規則-不規則変態の機構についての議論も可能であるが、詳細は同著者により近く出版される。

3. 金属酸化物中での自己拡散 [167]

金属酸化物では拡散の測定に使えるような単結晶を作ることがむずかしく、焼結で作った小さな結晶粒の固まりを使わねばならないので測定上種々の困難がある。したがってセクションング法のほかに物によっては放射線の吸収を利用した方法をも用いた。また酸化物中の拡散は試料周囲の気体中の酸素の量による影響が大きいので十分の注意と調節が必要である。

第1表 酸化物中の拡散係数

	D_0 ($\text{cm}^2\text{sec}^{-1}$)	Q (kcal mol^{-1})	T_m ($^{\circ}\text{C}$)	$\log D T_m$
FeO	1.4×10^{-2}	30.2	1420	-5.75
CoO	2.15×10^{-3}	34.5	1935	-6.09
Cu_2O	4.4×10^{-2}	36.1	1235	-6.61
NiO	4.4×10^{-4}	44.2	2090	-7.65
	1.7×10^{-2}	56.0	2090	-6.95
PbO	10^6	69	890	-7.00
ZnO	4.8	73	1975	-6.42
	1.3	74	1975	-7.06
MgO	0.23	78.7	2800	-6.22
CaO	0.4	81	2570	-6.62
Cr_2O_3	4×10^3	100	1990	-6.05
Fe_2O_3	4×10^5	112	1570	-7.7
SnO_2	10^6	119	1900	-5.95

測定結果は第1から第4表に集められる。

第2表 スピネル型化合物中の金属原子の拡散係数

	D_0 ($\text{cm}^2\text{sec}^{-1}$)	Q (kcal/mol)
Alminates		
Mg in MgAl_2O_4	2×10^2	86
Zn in ZnAl_2O_4	2×10^2	78
Ni in NiAl_2O_4	2.9×10^{-5}	53.3
Ferrites		
Zn in ZnFe_2O_4	10^2	86
Fe in ZnFe_2O_4	10^3	82
Fe in FeFe_2O_4	5	55
Fe in NiFe_2O_4	5×10^2	82
Chromites		
Zn in ZnCr_2O_4	60	85
Cr in ZnCr_2O_4	9	81
Co in CoCr_2O_4	10^{-3}	51
Cr in CoCr_2O_4	2	70
Ni in NiCr_2O_4	1.5×10^{-3}	61.4
Cr in NiCr_2O_4	0.75	73
Stannates		
Sn in SnZn_2O_4	2×10^5	109
Zn in SnZn_2O_4	37	76

第3表 ケイ化物中の金属原子の拡散係数

	D_0 ($\text{cm}^2\text{sec}^{-1}$)	Q (kcal/mol)
Calcium Silicates		
Ca in CaSiO_3	7×10^4 (0.2^{-2})	112 (78)
Ca in $\text{Ca}_3\text{Si}_2\text{O}_7$	10^{-2}	73
Ca in Ca_2SiO_4	3.6×10^{-2} 2×10^{-2}	65 55
Si in Ca-Silicates	not detected	
Lead Silicates		
Pb in PbSiO_3	85	59.5
Pb in PbSiO_3 (glass)	10^{-4}	25)
Pb in Pb_2SiO_4	0.2	47
Si in Pb-Silicates	not detected	

第1表は酸化物金属中の金属イオンの拡散の測定結果である。活性化エネルギーはイオン価の増加とともに増加している。また溶解温度に外挿した D の値がほぼ等しいことからこの場合の拡散は ZENER の模型により説明される。

第2表はスピネル型結晶中での測定結果である。活性化エネルギーは 70~90 kcal/mol のものと 50~60

第4表 化合物中の陽イオンの拡散係数と気体拡散係数

Gas	Q_{gas} (kcal/mol)	Q_{cation} (kcal/mol)	Q_g/Q_c	
Fe_2O_3	Em	40	112	0.36
	Em	42	112	0.38
Cr_2O_3	Em	50	100	0.50
CaCO_3	Em	20	58(C)	0.35
			ca. 60(Ca)	0.33
BaTiO_3	Em	27	88	0.31
UO_2	Xe	45	90-120	0.38-0.50
		ca. 40	90-120	0.33-0.44

kcal/mol のものとの2つに分けられる。後者は逆スピネル構造の結晶をもつものようである。

第3表はシリケート中での測定結果である。活性化エネルギーは結晶の剛性率の増加とともに増している。

第4表は自己拡散と其中での気体の拡散との比較である。気体拡散の活性化エネルギーは自己拡散の $1/3$ か $1/2$ を示し、電荷を持たないこと、あるいは気体の転位への集結が拡散の機構上大きな役割を果しているものと思われる。

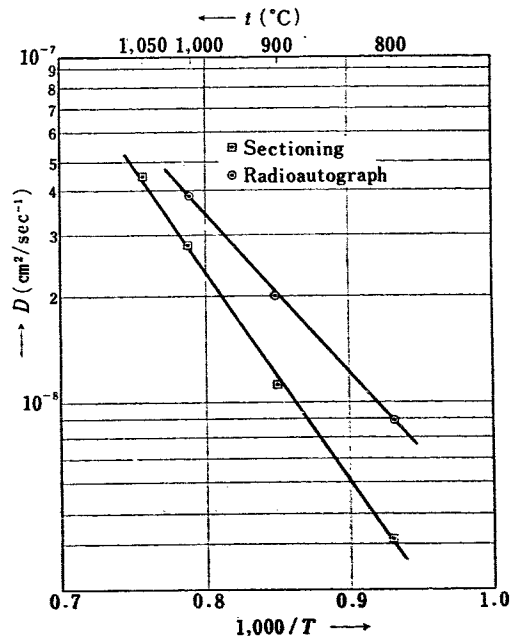
4. γ 相ウランにおける自己拡散 [2306]

トレーサーとして用いられたアイソトープは半減期 1.6×10^5 年の ^{233}U である。測定はセクションング法とラジオオートグラフ法とで天然ウランの多結晶中でおこなわれた。それぞれの方法による結果は下の式で表わされる。

Sectioning $D = 1.17 \times 10^{-3} \exp(-26.600/RT)$
cm²/sec

Radioauto. $D = 1.4 \times 10^{-4} \exp(-21.000/RT)$
cm²/sec

拡散係数の測定誤差は約 10~12% である。またこの結果のほかにモリブデンを 10% 含む試料で同様の測定をおこなったが、この場合には 1000°C での拡散係数は純ウランの場合の 1/200~1/300 であり、これはクリープ抵抗の測定結果と定性的には一致している。



第2図 ウランの自己拡散係数と温度との関係 [2306]

5. 液体および固体結晶中での自己拡散 [718]

拡散の測定は拡散係数を温度の関数として測定するが、この場合は圧力は一定としている。いま温度を一定として圧力の関数として拡散係数を測定すると、拡散係数はつぎの式で表わされる。

$$-RT \left(\frac{\partial \ln(D/\gamma a^2 v)}{\partial p} \right)_T = V_{act}$$

V_{act} を活性化体積といい、拡散係数の圧力依存性を示すもので温度に対する活性化エネルギーに相当する。ラジオアイソトープを使ってセクションング法で活性化体積を測定した結果を第5表に示す。活性化体積は1モル当りの体積の約半分を示している。拡散の圧力依存性と溶解温度の圧力依存性とを考慮すると拡散係数はつぎの式で表わされる。

$$D = D_0(p) \exp(-A\theta)$$

ここで θ は (T_m/T) に関係する量であり、 T_m は溶解温度で圧力に依存する。鉛の場合には上記の式はつぎのようになる。

$$D = 0.85 \exp(-21.3\theta)$$

圧力、温度とも θ の中に含まれている。この関係は拡散と溶解の2つの現象は密接な関係のあることを暗示している。これらは液体中での拡散の圧力依存性が固体の場合と同様であることから考えられる。第

5表に水銀およびカリウムの液体で測定した値を示す。しかし第6表に示すとおり液体の拡散における活性化エネルギーは固体に比してきわめて小さい。 D_0 についても同様のことがいえるが、これらのことから液体構造について考察を進めることはいまのところむずかしい。

第5表 種々の液体および固体の自己拡散に対する活性化体積

Element	Gram Atomic Vol. (cm ³)	Act. Vol. (cm ³)
Na	24.0	12.4
P ₄	68.2	30.0
Pb	18.2	14
Hg	14.2	0.59
Ga	11.8	0.55

第6表 液体金属の自己拡散

Element	D_0 (cm ² sec ⁻¹)	Q (cal/mol)
Na	1.10×10^{-3}	2430
In	2.89×10^{-4}	2430
Sn	1.39×10^{-3}	4000
Hg	1.26×10^{-4}	1160
Pb	0.85×10^{-4}	1005
Ga	1.07×10^{-4}	1122

6. 金属内拡散の研究 [834]

現在までアメリカ各地においておこなわれた拡散の実験結果を集めて、それらが示す一般的傾向を指摘している。

第7表は純金属中での自己拡散の結果である。第8表は純金属、銅、銀の中へ他の金属原子を拡散させた

第7表 純金属中の自己拡散

Solvent	Lattice	Tracer	D_0 cm ² /sec	Q kcal/mol	$\frac{DT-T_m}{T_m}$: melting temperature
Cu	fcc	⁶⁴ Cu	0.20	47.12	5.06×10^{-9}
Ag	fcc	¹¹⁰ Ag	0.40	44.09	6.96×10^{-9}
Au	fcc	¹⁹⁸ Au	0.03	39.36	10.8×10^{-9}
Fe	fcc	⁵⁹ Fe	0.58	67.9	3.5×10^{-9}
Fe	bcc	⁵⁹ Fe	5.8	59.7	3.5×10^{-7}
Na	bcc	²⁴ Na	0.24	10.45	1.66×10^{-7}

結果である。この結果から不純物の拡散係数は母金属の自己拡散の値よりあまり大きな差を示さないことがわかる。また活性化エネルギーについても同様のことがいえるが、ほぼ原子価あるいは原子の大きさにともなって変化している。

第9表には2元合金中での溶質原子および溶媒原子の拡散係数を示す。合金の中に溶媒原子より大きい自己拡散係数をもつ金属を不純物として入れると、溶媒、溶質原子とも拡散係数が大きくなる。溶質、溶媒原子とも拡散係数が8~10%くらいまではゆるやかに増加するがそれを越えると急激に増加する。また全濃度領域で溶媒原子は溶質原子より大きな拡散係数を示し、その差は濃度の増加とともに増加する。

これらのことからこの場合の拡散は溶質、溶媒原子

が互いに相関関係をもつと考えられ、したがって拡散の機構はそのような関係の可能な直接交換、格子間原子と通常の原子との交換、あるいは空格子点拡散によるものと思われるが、それらの中の何であるかは明らかでない。また濃度の増加とともに拡散係数の増加す

ることは、溶質原子のまわりではポテンシャルの山が低くなること、あるいは溶質原子の数が多くなることにより、最近接位置だけでなくつぎの近接位置まで溶質原子がくることにより、それらの間の相関関係を考えると説明がつくようである。

第 8 表 純金属中への不純物の拡散

Solvent	Tracer	D_0 cm ² /sec	Q kcal/mol	D_{imp} ($T=T_m$)	D_{imp} $D_{solv. T_m}$
Cu	⁶³ Ni	2.7	56.5	2.1×10^{-9}	0.41
	⁶⁰ Co	1.9	54.1	3.6×10^{-9}	0.71
	⁵⁹ Fe	1.4	51.8	6.2×10^{-9}	1.22
	¹⁹⁸ Au	0.69	49.7	6.6×10^{-9}	1.31
	⁶⁵ Zn	0.34	45.6	1.5×10^{-8}	2.90
	¹¹⁰ Ag	0.63	46.5	1.9×10^{-8}	3.75
	⁷² Ga	0.55	45.9	2.2×10^{-8}	4.29
Ag	¹¹⁵ Cd	0.44	41.7	1.8×10^{-8}	2.59
	⁶⁵ Zn	0.54	41.7	2.2×10^{-8}	3.17
	¹¹⁴ In	0.41	40.6	2.6×10^{-8}	3.76
	¹¹³ Sn	0.25	39.3	2.7×10^{-8}	3.91
	¹²¹ Sb	0.17	38.3	2.8×10^{-8}	4.05
	²¹⁰ Pb	0.22	38.1	3.9×10^{-8}	5.58

第 9 表 銀合金の 1000°K における溶媒、溶質原子の拡散係数

System	Tracer	D (1000°K) cm ² /sec	D (alloy)	
			D (pure)	D (solvent) D (solute)
Ag-6.4% Cd	¹¹⁰ Ag	1.45×10^{-10}	1.58	1.14
	¹¹⁵ Cd	4.62×10^{-10}	1.38	
Ag-14% Cd	¹¹⁰ Ag	2.54×10^{-10}	2.76	1.17
	¹¹⁵ Cd	7.97×10^{-10}	2.37	
Ag-28% Cd	¹¹⁰ Ag	1.17×10^{-9}	12.7	1.36
	¹¹⁵ Cd	3.14×10^{-9}	9.35	
Ag-4.5% In	¹¹⁰ Ag	1.72×10^{-10}	1.87	1.57
	¹¹⁴ In	6.40×10^{-10}	1.19	
Ag-13% In	¹¹⁰ Ag	7.90×10^{-10}	8.59	1.99
	¹¹⁴ In	2.32×10^{-9}	4.32	
Ag-17% In	¹¹⁰ Ag	2.34×10^{-9}	25.4	2.31
	¹¹⁴ In	5.90×10^{-9}	11.0	
Ag-0.5% Sb	¹¹⁰ Ag	1.20×10^{-10}	1.30	1.30
	¹²¹ Sb	7.10×10^{-10}	1.00	
Ag-0.9% Sb	¹¹⁰ Ag	1.42×10^{-10}	1.54	1.54
	¹²¹ Sb	7.10×10^{-10}	1.00	
Ag-1.4% Sb	¹¹⁰ Ag	1.83×10^{-10}	1.99	1.99
	¹²¹ Sb	7.10×10^{-10}	1.00	
Ag-0.2% Pb	¹¹⁰ Ag	1.12×10^{-10}	1.22	1.04
	²¹⁰ Pb	1.2×10^{-9}	1.17	
Ag-0.7% Pb	¹¹⁰ Ag	1.49×10^{-10}	1.62	1.27
	²¹⁰ Pb	1.31×10^{-9}	1.28	
Ag-1.3% Pb	¹¹⁰ Ag	2.15×10^{-10}	2.34	1.37
	²¹⁰ Pb	1.75×10^{-9}	1.71	
Ag-30% Zn	¹¹⁰ Ag	3.07×10^{-9}	33.4	1.48
	²¹⁰ Pb	9.21×10^{-9}	22.5	

文 献

第2回ジュネーブ会議報文

- [167] R. LINDER: Use of radioisotopes for the study of self diffusion in oxide systems.
- [718] N. H. NACHTRIEB: Self-diffusion in liquid and crystalline solids.

- [834] D. LAZARUS: Tracer studies of intermetallic diffusion.
- [1365] P. CAMAGNI: Self-diffusion in the ordered β -brass.
- [2306] A. A. BOCHVAR, V. G. KUZNETSOVA, V. S. SERGEEV: Self-diffusion of uranium in γ -phase.

原子炉用黒鉛

1. 概 説

黒鉛は減速材、構造材として欠くべからざるものとなっているが、その機能をよりよくし、原子炉用として使用されるための条件と、その条件を満足する製品を得る製法が研究されている。その条件としては、衝突断面積を大きくして減速効果を上げるための高密度と、黒鉛の中性子吸収断面積を大きくするような不純物を避けるための高純度が要求される。しかも原子炉の設計は減速材としての黒鉛に高精度の機械加工が可能なることを必要とする。もちろん機械的に強くなければならない。しかも発電用原子炉の開発にとともなって、高温においても機械的に強いことを必要とする。

黒鉛の性質は結晶構造によって異方性が強いことが多くの場合欠点となっているが、人造黒鉛を作るときに技術的に異方性を調節することができる。設計上熱膨張、熱伝導などが問題となり、異方性のできるだけ少ないことが要求される。つきにあるいは冷却用の流体、あるいは液体燃料(LMFR)が減速材の黒鉛に接して流れるときに、黒鉛中に浸透することは種々の問題をひき起すので、黒鉛は不浸透性であることが望ましい。黒鉛の浸透性は多孔性、孔径分布などによって支配されるため、この間の関係が調べられ、製法にくふうが施されている。さらに不浸透性を完全にするためにカーバイドなどの被覆も考えられる。以上あげた条件は中性子照射がおこなわれる前に考えられるものであるが、中性子照射下でもこれらが満足されることが必要である。

つきにウランと黒鉛とを混合した均質的な原子炉の構想がかなり古くからあって、多くの研究報告もあり、現在諸所で実現に努力されている。これについては分裂生成物の到達距離、それにより損傷される範

囲、熱伝導などが、黒鉛の密度、黒鉛中のウランの分布状態に重要な関係をもち、炉の運転温度における分裂生成物による損傷の実態、分裂生成物の拡散、吸着などが目下の研究課題である。このほかにも実際上多くの問題が生ずることであろうが、それらが解決されれば将来性のある原子炉ができると考えられる。

中性子照射下で黒鉛がどんな変化をするかについては古くから研究され、第1回原子力平和利用国際会議にもくわしい広範囲の報告が出されている。([746], [751], [442]など)原子炉用黒鉛に対する照射の効果で、実際問題に関係するのは長さの変化、熱伝導、機械的強度、蓄積エネルギーなどに集約される。一方これらの性質の変化はすべて照射によってできる格子欠陥に帰着されるから、種々の条件下でおこなった照射およびその回復の測定結果から機構を考察することができる。まず簡単な空孔と格子間原子ができ、照射が続けられるとさらに複雑な集合ができて安定になってしまうと考えられている。黒鉛の構造からくる困難もあって定性的な域を出ないが、 C_0 蓄積エネルギーの変化、回復の測定は機構の解明にも有望なものであろう。

蓄積エネルギーに関しては、その急激な解放がウィンズケールの事故をひき起したために、実際 BEPO や BNL で慎重に実験がおこなわれ、膨大な測定がなされた。このデータはそのままでは利用できないが、原理、方法などは将来動力炉としてコールドホール型の建設に当たって、当然考えなければならない蓄積エネルギーの解放に非常に参考になるであろう。

以下に上述のそれぞれについて少しくわしくのべる。

2. 原子炉用黒鉛の条件と製法

2.1 高純度

人造黒鉛中の不純物金属は 2,800~3,000°C でほとんど蒸発して除かれるが、吸着ガスとホウ素が残る問題になる。前者を取除くために吸着中心の除去が必要で、これは十分な黒鉛化でおこなう。後者は材料のコールタール、ピッチから水によって抽出し約 1/3 にすることができた。焼成または黒鉛化した段階で、高温でハライドガスで純化してホウ素を減少させることもできる。CCl₂F₂, CaF₂ は有効である [1327]。高温ハライド処理中に周囲の物質から発生する Si 蒸気にも対策を考える必要がある [1168]。

2.2 高密度

石油コークの grain (20~40 mesh), powder (20~150 μ), flour (ほとんど 10 μ 以下) および carbon black (0.2~0.3 μ) の混合比の密度におよぼす影響を調べた。大体 flour とか carbon black の割合を増加すると高密度が得られる。ただし carbon black では一様性そのほかに問題が生ずる [1327]。

このほか、あらかじめ押し出し成型したものを砕き、再加熱してから再び押し出し成型する“pre-extrusion”という方法でも密度が 0.04~0.07 g/cm³ 増加することが知られた [1168]。密度を増す普通の方法であるピッチ充てんにも適否があり、充てん前の密度が大きいほど高密度のものが得られて効果があり、充てんするピッチは炭素含有量が大き、粘性小のものがよい。この方法で 1.9 g/cm³ まで達した。

2.3 機械加工その他

炉材としての黒鉛はかなり厳しい表面仕上げを要求される。フライス盤、カッターの材質や型、切削速度、ベアリングの摩擦熱、送り速度などについて検討された結果、加工に困難は見出されなかった。

日本の報告では耐震性に関する考慮がはらわれ、黒鉛ブロックの組立て、間隙と静荷重および振動試験についてのべられている [1327]。

2.4 等方性

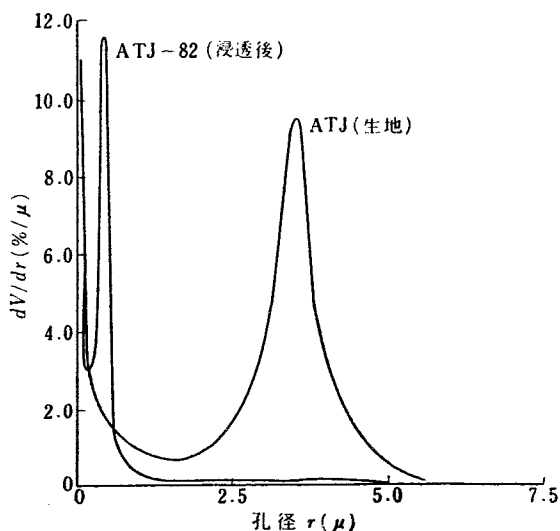
黒鉛の異方性を消すためには小結晶粒の方位をでたためにすればよい。材料、成型方法と方位の規則性と

の間の関係をしらべ、改良した結果、押し出し成型法で、100~400°C で熱膨張比が 1.3 のものが得られた。また実験室規模で3方向から加圧成型して、100~400°C で熱膨張比 0.96:0.93:1 のものが得られ、非常に等方性がよくなった [1327]。

2.5 不浸透性 (被覆)

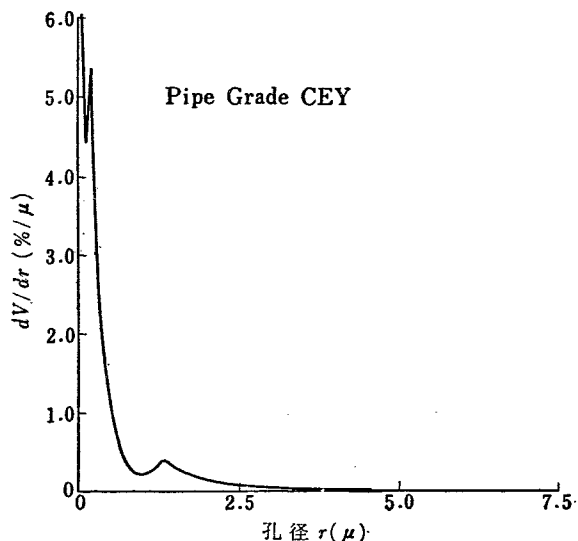
黒鉛は多孔質なためにガスや液体が浸透しやすい。この欠点を補うために、樹脂の充てん、コーク粒の選択、加圧焼成、被覆などの技術が発展したが、この基礎として、孔の状態と浸透性の関係をしらべている [708]。

2.5.1 孔径分布の測定 水銀浸透法を用いて測定をおこなった。原理は、孔が毛細管であると仮定して $r = \frac{2\gamma \cos \theta}{p}$ を用いる。ここで r は水銀の表面張力 (480 dynes/cm), θ は水銀と黒鉛の接触角 (140°), p は圧力, r は毛細管の有効半径である。圧力 p のとき試料中に浸透している水銀の体積を V とすれば、 V は p の、したがって r の関数で、 r より大きな径をもつ孔の全体積と考えられる。 r と $r+dr$ の間の孔の全体積は $|dV(r)/dr| \cdot dr$ で与えられる。浸透性の少ない試料でこれを測定した結果が第1図で、1~5 μ と 0.5 μ 以下の2つのピークがある。従来のものでは 10 μ 以上に尾を引いている。粘性の小さい浸潤性の充てん物を充てんした結果は 1~5 μ のピークが小さい方に移る。



第1図 孔径分布 [708]

充てん効果はかならずしも高密度という条件とは一致しないし、 10μ 以上に尾を引く材料では効果あまりない。パイプの場合は技術上有利なので一段と改良されている[第2図]。



第2図 孔径分布 [708]

2.5.2 浸透度 ガス流に対してはすべりをもった粘性流として

$$Q_{pV} = F \frac{A}{L} \Delta p, \quad F = F_0 + F_1 \langle p \rangle \equiv K_0 \sqrt{\frac{T}{M}} + K_1 \frac{\langle p \rangle}{\eta}$$

を用いる。ここで Q_{pV} (圧力×体積) の流れ、 A と L はそれぞれ試料の面積と長さ、 Δp は圧力差、 F はアドミッタンス、 T は絶対温度、 M はガスの分子量、 $\langle p \rangle$ は平均圧力、 η は粘性係数。 K_1/K_0 から半径 r 、長さ xL の気孔の数がわかる。ただし毛細管近似である。

液体の場合は純粋の液体流とすれば

$$Q_V = \frac{K_1}{\eta} \frac{A}{L} \Delta p$$

ここで Q_V は体積流、 η は粘性係数、 K_1 は浸透性係数、 Δp は圧力差、 A と L はそれぞれ試料の面積と長さである。 Δp が毛細管力 $2\gamma \cos \theta/r_0$ にうち勝ったとき臨界半径 r_0 の孔を通して流れが生ずる。上の定義による K_1 は試料の厚さが増すと小さくなり、平均圧力が増すと大きくなり一定でない。孔径の非常に小さいところでは粘性よりも摩擦がきくらしくもあり、浸透度についてはいまだ今後の研究にまつ段階である。

2.5.3 被覆による不浸透化 樹脂やピッチを黒鉛の孔に浸透させて不浸透性にする方法のほかに、高温

にも耐えるように表面にカーバイドの層を作る方法がある。これは金属ハライドを用いた蒸着法によるのであるが、被覆の均一性をよくするために、カーバイド層の形成速度を温度によって調節する方法が考えられた [1428]。圧力 P_1 以下では分解して金属を析出し、ハロゲンガスになるが、 P_1 以上では金属ハライドが主要成分となる限界圧力 P_1 と、 P_2 以下ではカーバイドが作られる限界圧力 P_2 との間 $P_1 < P < P_2$ では、金属の析出には不適當でカーバイド形成には好都合である。この圧力範囲ならカーバイド層形成速度は、その中の炭素の拡散速度による。したがって温度の関数である。また限界圧力と温度の間には $\log_{10} P = B - \frac{A}{T}$ の関係があって、この A 、 B の値は Nb、Ta、Zr のハライドについて Table-1 [1428] に示されている。この方法を用いた被覆は均一性がよく、気孔もない。密着性も良好で耐熱性もよく、 $2,000^\circ\text{C}$ でひび割れが生じなかった。NbC、ZrC 被覆では一度溶けて結晶していて完全な被覆になっている。

2.5.4 Bi 吸上げ量が少ない 液体 Bi 中にウランを分散させた燃料を用いる LMFR で黒鉛が減速材、構造材として用いられるとき、黒鉛の Bi 吸上げという問題が生ずる。これは設計上および分裂生成物による黒鉛の損傷などの困難を生ずる。

液体 Bi 中に黒鉛試料を入れて密度増加の測定により吸上げ量を算定した。吸上げ量は短時間で飽和する。黒鉛の密度とは相関関係が見出されないが、孔径分布に関係する。液体浸透の問題であり、加える圧力によって変化する [708]。

2.6 高温における機械的強度 [702]

20°C から $3,000^\circ\text{C}$ までの黒鉛の圧縮強さ、圧縮クリープ、引張り強さ、引張りクリープ、熱膨張、摩擦、熱伝導に対する温度、応力、異方性、ウラン含有量などの影響が調べられた。試料による差が大きいが、定性的にいて、圧縮強さも、引張り強さも (a) $2,000^\circ\text{C}$ 以上に極大があり、それより高温では急に下る。(b) 結晶粒の層面に平行な応力に対するほうが、垂直な応力に対するより強い。(c) ウラン含有量とは関係がない。圧縮クリープでも (b)、(c) の傾向はあり、クリープ速度は応力および温度に比例する。引張りクリープではウラン含有量の影響が顕著であり、クリープ速度の実験式の中にウラン含有量を含む因子が入る。

種々の面に対する摩擦係数が測られたが、応力、接触面積、異方性は摩擦係数に無関係であり、最も重要

なのは表面の状態である。温度が上がると表面にガスが吸着し摩擦係数が大きくなり、酸化によっても異なる。static な摩擦係数 μ_s のほうが kinetic な摩擦係数 μ_k より表面や温度に左右される。

熱伝導に関しては、大量生産される黒鉛のほうが一般に実験室規模で作られたものより、熱伝導ならびにその温度依存性が大きい。ウラン含有量は関係ない。

2.7 ウランを分散包含する黒鉛

燃料と減速材が混合している原子炉の構想はかなり古く、ウランを分散させた黒鉛の研究も相当おこなわれており、[708] は多くの文献を引用して総合的に報告している。

ウランを分散させる方法として黒鉛にウラン化合物(たとえば $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$) の水溶液を浸透させてのち加熱して酸化ウランまたはカーバイドにする方法がある。これは黒鉛の浸透性を利用するもので必ずしも一様性が得られない。圧力をかけるとか、他の溶媒を使うとかして割合に一樣なものを得られるようになった。しかしもっと自由度のあるものは UO_2 粉末またはこれをセラックで固めた球形の小塊と人造黒鉛の粉末をホルムアルデヒド樹脂で練って成型し、乾燥後窒素中で焼成する方法である。小塊の大きさは機械的強度に影響し、あまり大きくなると(約 500μ) 曲げ強さが少し減少する。ウランの割合が増しても同様である。この方法で UO_2 を還元しないように焼成する最高温度は、焼成時間、小塊の大きさ、密度、焼成ふん囲気などの因子で定まる。

黒鉛中に分散させるウランを酸化物にするか、カーバイドにするかは、炉の運転温度や放出される CO ガスなどを考慮してきめる。酸化物は作るのも簡単で、

貯蔵中化学的に安定である。酸化物を適当な温度、たとえば $2,400 \sim 2,800^\circ\text{C}$ で加熱するとカーバイドになって、熱伝導が増加し、熱応力に対する抵抗も強くなる。カーバイドの場合もウランの割合が多くなると曲げ強さ、圧縮強さが相当減少する。

ウランカーバイドの安定性については、(i) UC_2 は加水分解しやすく発火性、(ii) UC は加水分解に対しては UC_2 より安定、(iii) U_2C_3 は水や酸に対して安定である。 UC_2 が加水分解すると U_3O_8 に変換するが、この U_3O_8 は最初加えられた UO_2 より体積が大きいので、黒鉛中のウランの量が多い場合は力学的構造が悪くなる。

黒鉛中に分散する粒子の大きさは興味深い問題である。分裂生成物による損傷の計算では大きいほうが有利で 100μ の場合は完全均質型の 5% 以下ということになっている。炉中で照射した結果、熱伝導度は減少するが減少しかたが粒子の大きいほうが少ない。中性子による損傷は 425°C でほとんど回復するが、分裂生成物による損傷は 725°C で 12 時間なましてもかなり残っている。この点から考えれば粒子は大きい方がよい。しかし粒子が大きいと分裂生成物は粒子内に止ることが多くなり拡散に支配される。粒子が小さければ絶対値の大きな負の温度係数が得られ安全性が高いが、粒子が大きくなると安全性が減少してくる。両方からの歩み寄りが 100μ くらいといわれている。

ウランを分散包含する黒鉛の密度と照射損傷と熱伝導度の関係は重要であるにもかかわらず、報告のないのは残念である。ここにも照射損傷と熱伝導の歩み寄りの、適当な密度のあることが期待される。

3. 黒鉛の照射効果およびその回復

黒鉛が原子炉材料として用いられるためには、上にあげたような多くの条件を満足することが必要であるが、さらに重要なのは原子炉の中で照射されたときに生ずる変化ならびにその回復である。特に長さ、機械的強さ、蓄積エネルギー、酸化、熱伝導などは原子炉の運転維持に実際的な影響をおよぼす。測定される照射効果は同時に回復をもともなっているため、照射温度が問題になる。

3.1 長さ変化(成長)

[614] に 30°C , $400^\circ \sim 500^\circ\text{C}$, $600^\circ \sim 1,050^\circ\text{C}$ 照射における長さ変化について報告されている。Hanford の MTR による 30°C における $6,000 \text{ MWD/AT}$ 照射で、押出し方向に垂直な試料は 3% の伸び、平行な試料は 1% の縮みを示している。 $5,000 \text{ MWD/AT}$ ぐらいですべての性質変化が飽和し、できる欠陥の量と回復する量とが等しいことを想像させる。 $400^\circ \sim$

500°C では垂直な試料も平行な試料もともに縮んでいる。これは製造過程中に凍結された応力が高温での照射によって解放され、結晶粒が効果的なつまりかたをすと解釈される。しかしこの解釈では常温で押出し方向に平行な試料がわずかにしても縮むことの説明はできない。回復については、簡単な損傷は照射温度より高温に熱すれば回復するが、照射量が多くなると完全に回復するには黒鉛化の温度以上に熱する必要がある。また照射による回復があり、照射中の回復は炉外での回復より低温でおこなわれる。

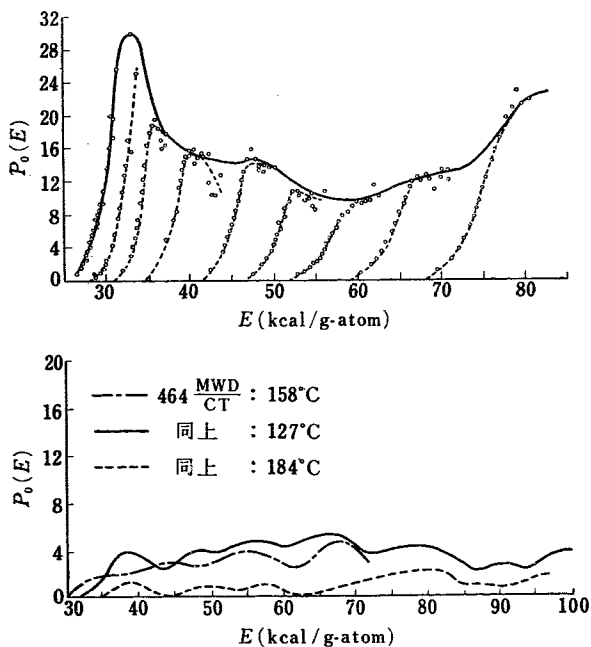
もっとも実的な照射による黒鉛の成長のデータがBNL から発表されている [462]。BNL の天然ウラン黒鉛炉の各部における黒鉛の照射による成長が測定されており、その場所における中性子スペクトルおよび温度と関連させて見ることができる。運転中の温度は250°C 以下なので300°C の照射なまし、250°C, 325°C, 400°C の熱処理がみな有効であるが、400°C 熱処理がもっともよいことがわかった。

3.2 機械的性質

黒鉛の剛性率、弾性率、引張り、曲げおよび破壊強さが照射によって増大することはすでに知られてい

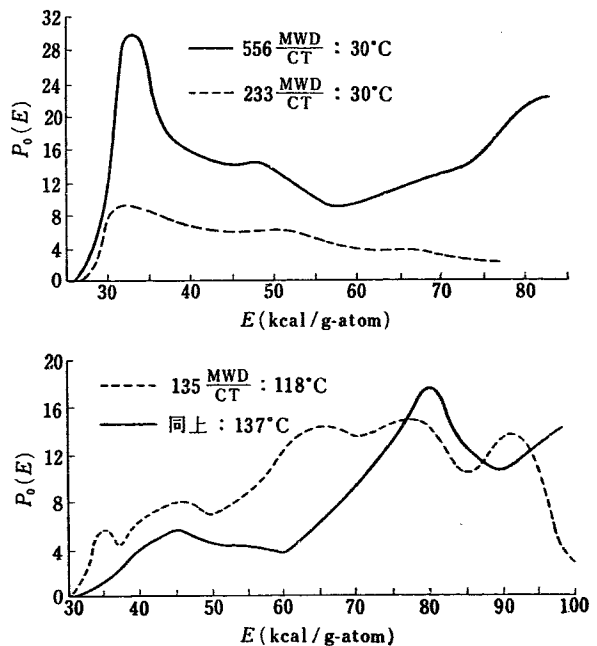
る。実際には炉材としてある応力下で照射されるということがあるので、その状態で機械的性質がどう変わるかを黒鉛と不定形炭素とで実験した結果が報告されている [28]。そのうち弾性率、stress relaxation、強さの変化に対してつぎのような説明が試みられている。

弾性率の挙動は黒鉛の結晶粒の層の相互移動によるものであり、この移動は格子欠陥などがあれば妨げられる。軽い中性子照射では単一な格子間原子ができて弾性率に大きな影響をおよぼすらしい。照射が重くなって欠陥が大きくなると単一な格子間原子の効果を消すので弾性率はあまり大きくなりなくなる。弾性率の変化は製造過程の処理温度に非常に関係するし、高温では弾性率増大が飽和していることが示されているが、これは C_0 が 3.39 \AA より大きくなると単一格子間原子の作用がきかなくなることで説明される。重照射されて複雑な損傷を受けた黒鉛は、黒鉛化されない炭素と同じような挙動を示す。stress relaxation は弾性率の変化が小さい照射温度でも起るので、単一格子間原子以外の格子欠陥によるものと考えられる。黒鉛の破壊強さについては、破壊はコーク粒の接触点での応力集中によるのであろうと考えられているが、照射によってその接触点がどのように変わって強さが3倍に



第3図 活性化エネルギースペクトル: $556 \frac{\text{MWD}}{\text{CT}}$: 30°C
(上) Fig. 7 [HW-47776 REV]

第4図 活性化エネルギースペクトル: 556, 233
(下) $\frac{\text{MWD}}{\text{CT}}$: 30°C
Fig. 8 [HW-47776 REV]



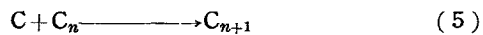
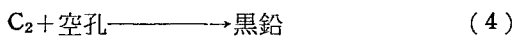
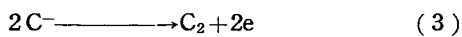
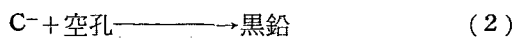
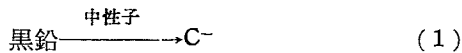
第5図 活性化エネルギースペクトル: $464 \frac{\text{MWD}}{\text{CT}}$: 127°C, 158°C, 184°C
(上) Fig. 9 [HW-47776 REV]

第6図 活性化エネルギースペクトル: $1135 \frac{\text{MWD}}{\text{CT}}$: 118°C, 137°C
(下) Fig. 10 [HW-47776 REW]

もなるのかは不明である。

3.3 C_0 変化

黒鉛の結晶粒の層平面間隔 C_0 が照射によっていちじるしく変化することはすでによく知られ、照射量のよい指標ともなるほどであるが、これを等温的に焼なまして、回復速度から格子欠陥の活性化エネルギースペクトルが得られる(多くの仮定がある)。種々の照射温度、照射量における黒鉛について欠陥生成の活性化エネルギースペクトルが実験的に得られた(HW-47776 REW)。これは損傷機構を解釈する手引きになる。HENNIG & HOVE によれば考えられるいくつかの過程のうち、つぎのような組合せで表わされるものがある。



照射された黒鉛の常磁性その他の性質から、格子内の平均運動エネルギーまで減速した炭素原子は伝導帯から電子を拾って C^- になる(1)。100~200°C で炭素イオンは格子内の原子空孔の中に入り込む、この速度は温度に依存する(2)。炭素イオンはまた結合して C_2 分子にもなる(3)。(2)と(3)の活性化エネルギーは似ている。 C_2 分子が空孔に入り込むこともある。これは少し活性化エネルギーが高い(4)。

重照射になると(5)のようなさらに複雑な損傷中心が作られ、だんだん回復が困難になる。はじき出された原子が通る路は、これにそってある、より大きな動きにくい欠陥によっ止められてしまっ、ますます(2)、(3)、(4)が起りにくくなって複雑になってゆく。

C_0 活性化エネルギースペクトルは回復速度に寄与する多くの重複した過程を示している。たとえば第3図の 33 kcal のピークは(2)と(4)のような複合反応で、これは蓄積エネルギー解放の極大 30~35 kcal に相当する。第4図で低照射では 33 kcal ピークが発達していないことから、活性化エネルギーの低い損傷がまずできるといえる。第5図から温度に関係し、高温ほど全体にわたって少ないのがみられる。第6図は重照射ではひどく損傷され、活性化エネルギーの高いほうが多。このことは(1)~(5)以外にもっと活性化エネルギーの高い結合とか集合とかがある

ことを示している。

3.4 蓄積エネルギー

速中性子が黒鉛の中で減速される時、中性子1箇について約 100 箇の炭素原子が knock out されて格子欠陥を作る。そのために結合の破壊とか格子のヒズミとかによる余分のエネルギーが蓄えられる。照射された黒鉛中の蓄積エネルギーに関する基礎的な研究は、これまでは主に照射によってできる欠陥の様相を知ろうとする目的であったが(たとえば NAA の研究: NAA-SR-1564 ほか)、最近では黒鉛を使った炉の安全性の面から注目されている。すなわち BEPO の中で 50°C 以下で3年間照射された黒鉛は約 100 cal·g⁻¹ のエネルギーを蓄積しており、ある条件の下で格子欠陥が回復されると、これは優に温度を 300°C 上昇させることができる。黒鉛の酸化は約 400°C で急速におこなわれるから、もし蓄積エネルギーの解放が上のようにして起るなら重大な結果が生ずることになる。このような見地から原子炉における黒鉛中の蓄積エネルギーの解放に関する詳細な調査がおこなわれている [2485], [1085], [462]。

蓄積エネルギーの解放は格子欠陥が消滅またはもっと安定な集合になるときに起る。そのためには結晶中を移動するが、この速度は温度 20°C 上昇につき約 10 倍になる。欠陥の型によって移動の活性化エネルギーや易動度が同じ温度でもひどく異なるし、回復される速さも違う。原子炉が 30~100°C で運転されていると、簡単な欠陥は残っていないで、100~200°C で急速に回復される欠陥の大きい集合がある。蓄積エネルギーを温度の関数として測定すると 200°C くらいに大きなピークをもっている。このピークが蓄積エネルギー解放の問題になるところである。

蓄積エネルギー解放の速度は熱による欠陥消滅の速度であって、

$$-\frac{dS}{dt} = F(S) \exp\{-A(S)/T\}$$

と仮定する。 S は蓄積エネルギー、 $F(S)$ 、 $A(S)$ は黒鉛を特性づける関数だが実際に求めるのは困難である。活性化エネルギーが一定とすると、

$$-\frac{dS}{dt} = F(S) \exp(-A/T)$$

積分して

$$-\int_{S_0}^S \frac{dS'}{F(S')} = \int_0^t dt' \exp\{-A/T(t')\} = \tau$$

を reduced time と呼ぶ。 $\frac{dS}{dt}$, T , t を実験的に測定すれば S と τ の関係が得られる。定温なましの場合には

$$\tau = \exp(-A/T) t$$

定速度で温度を上昇させる場合には

$$\tau = \int_0^t dt' \exp\{-A/(T_0 + at')\} \approx T^2 \frac{\exp(-A/T)}{Aa}$$

完全に断熱上昇させる場合には

$$-\frac{dS}{dt} = \frac{dT}{dt} S(T),$$

$$-\frac{dS}{dt} = F(S) \exp(-A/T)$$

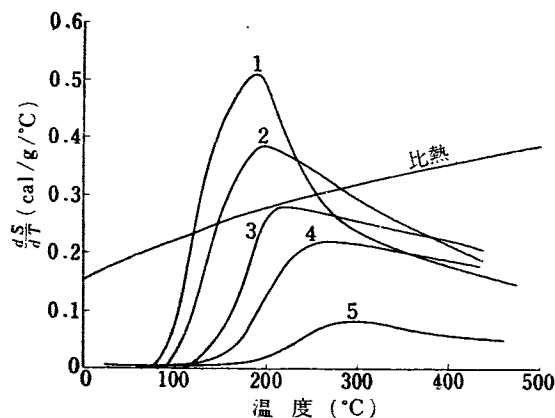
の連立になる。熱除去の条件 $H = (T - T_a)g$ が入るときは

$$-\frac{dS}{dt} = S \frac{dT}{dt} + g(T - T_a)$$

が最初の式に代る。ここで T_a は黒鉛のまわりの空気の温度、 g は熱伝導パラメーターである。

照射温度と照射量の蓄積エネルギーに対する影響が第7図に見られる。30°Cとか50°Cとかで照射された試料は200°Cピークで解放されるエネルギーを蓄積し、解放は100°Cで開始する。100°C以上で照射された試料では実際上200°Cピークがなくなってしまふ。照射量の影響は高温の熱処理の方に現われる。図から蓄積エネルギー解放は照射温度よりかなり高くないと開始しないことがわかる。

解放開始の温度と照射温度との関係はほぼ線型である。



第7図 蓄積エネルギー解放(線型温度上昇) [2485]

試料番号	中性子照射量(比較)	推定照射温度(°C)
1	0.39	30
2	0.81	50
3	1.00	80
4	0.95	105
5	0.51	145

ることが BEPO の測定から知られている([2485]Fig. 15; [1805] Fig. 24). たえば BEPO で1年間くらい照射した試料は照射温度では欠陥の集合は100日くらいの寿命を有するが、黒鉛の温度を50°C上昇させると2, 3時間で回復してしまふ。この50°Cというのは急激な解放開始の最小ともいえる。解放による温度上昇と空冷から計算して、(a) 運転温度以上の解放は完全冷却で70°C, 8%冷却で50°C上げなければ起らないこと(b) 温度上昇の平均速度は完全冷却で15°C/時, 8%で1°C/時より小さいことが分った。また前熱処理をすると最高温度が下げられる。これは100°Cくらいに熱するのであるが前熱処理10°C上げると解放の最高温度を30°C下げられる。冷却気流を徐々に120°Cに上げると原子炉の中を一樣にすることができ、遅い解放に比べて60°C, 速い解放に比べると90°Cも最高温度が下げられる。これは炉の安全性の見地から非常に有利である。

原子炉の実際の蓄積エネルギー解放は、(i) 炉によっては高温で運転してエネルギーを蓄積しないことも考えられ、(ii) ある期間ごとに低出力で運転するとか、(iii) 冷却を止めるとか、(iv) 外から熱風を送って温度を上げるとかできる。[1805]はBEPOでおこなわれた解放について非常に詳細に報告している。ウインズケールの事故以来慎重に調査がおこなわれ実験された結果であり、蓄積エネルギーの決定、原子炉の安全性の確立、できるだけ多くの有用なデータの記録を目的としている。今後の参考になる報告である。

3.5 酸化

蓄積エネルギー解放にともなう温度上昇において問題になるのが酸化である([2485], [462]). 炉内で照射中に起る酸化は、酸素のイオン化、解離、格子欠陥の集合の影響、黒鉛の推移的な表面の影響などが重なっているわけである。顕微鏡観察によれば最初滑らかな面であったへき開面に照射後酸化によりピットができる。ピット形成は格子欠陥に起因し、中でも空孔が強力であると考えられる。また酸素分子がγ線で照射されるとオゾンができ、オゾンは酸素より結晶面をおかしやすい[1778]. いずれにしても原子炉照射によって酸化は促進されるわけである。普通の大きさの気孔の黒鉛では550°Cまで酸素の拡散を許すので酸化は黒鉛ブロック全体にわたって起りうるわけであり、原子炉の安全上重要な因子である。

文 献

第2回ジュネーブ会議報文

- [28] H. W. DAVIDSON, H. H. W. LOSTY: The effect of neutron irradiation on the mechanical properties of graphite.
- [462] R. W. POWELL, R. A. MEYER, R. G. BOURDEAU: Control of radiation effects in a graphite reactor structure.
- [614] R. E. NIGHTINGALE, J. M. DAVIDSON, W. A. SNYDER: Damage effects to graphite irradiated up to 1,000°C.
- [702] P. WAGNER, A. R. DRIESNER, E. A. KMETKO: Some mechanical properties of graphite in the temperature range 20° to 3,000°C.
- [708] W. P. EATHERLY, M. JANES, R. L. MANSFIELD, R. A. BOURDEAU, R. A. MEYER: Physical properties of graphite materials for special nuclear applications.
- [1168] A. LEGENDRE, J. GUERON, H. HERING: General study on the nuclear graphites produced in France.
- [1327] T. SAWAI, M. MIZUTA, Y. KANO, S. SONODA: Some problems of manufacturing reactor graphite.
- [1428] J. M. BLOCHER, Jr., I. E. CAMPBELL: Carbide coating for graphite.
- [1778] G. R. HENNIG, G. J. DIENES, W. KOSIBA: Radiation effects on the oxidation rate and on other chemical properties of graphite.
- [1805] J. L. DICKSON, G. H. KINCHIN, R. F. JACKSON, W. M. LOMER, J. H. W. SIMMONS: BEPO Wigner energy release.
- [2485] A. H. COTTRELL, J. C. BELL, G. B. GREENOUGH, W. M. LOMER: The theory of annealing kinetics applied to release of stored energy.

その他

- 1) J. H. W. SIMMONS: Theory of annealing kinetics applied to the release of stored energy from irradiated graphite in air-cooled reactors.
- 2) HW-47776 REW R. E. NIGHTINGALE, J. F. FLETCHER: Radiation damage to graphite from 30°C to 185°C (1957).

照射損傷の基礎的研究

1. 概 説

原子炉燃料、原子炉材料の照射損傷の研究は、実際上の要求から、現在までは主として金属の照射損傷の問題に限られてきた。その固体物理的な基礎研究は当然、金属結合の物質のみを対象にせず、もっと広く、一般に結晶体（およびごく一部の非晶質）における損傷の過程を取扱ってきたのであるが、それでも理論的に金属を対象としたものが多く、また重要な基礎実験の多くは金属についておこなわれた^{1,2,3)}。今回のジュネーブ会議報告においても、金属の照射損傷の研究が主流になっているように見える。この傾向は新しい原子炉の開発とともに、幾分、移り変っていくであろう。

照射損傷の過程は、入射した高エネルギー粒子の衝突による物質構成原子の散乱および核反応に始まる。散乱によって格子点から弾き出された1次被衝突原子は物質中を高速イオンとして通過するがその間に多くの衝突によって格子欠陥をつくり出す。一方この間に入射粒子または1次高速イオンの電子励起の過程、通過径路に沿って発生する瞬間的な高温高压状態（熱スパイク）の問題がある。核反応を起こす場合は燃料物質のみで問題となり、被衝突1次イオンの代りに核分

裂片が主役を演じる。この基礎研究は数少ない。

原子炉材料の基礎研究として、上の格子欠陥形成までを取扱った一般的なものに、文献[998]、[2385]がある。過程の一部として電子励起を取扱ったのが[802]、点状格子欠陥そのものの理論的研究として[1366]がハロゲン化アルカリ中の複合格子欠陥を問題としている。また、[1712]は衝突過程を純統計的に扱って点状格子欠陥の分布を求めている。点状格子欠陥の濃度が照射によってしだいに増加するのは当然であるが[1714]はこれを熱力学的に扱って、原子炉中で過熱固体状態を作り出す可能性を論じている。

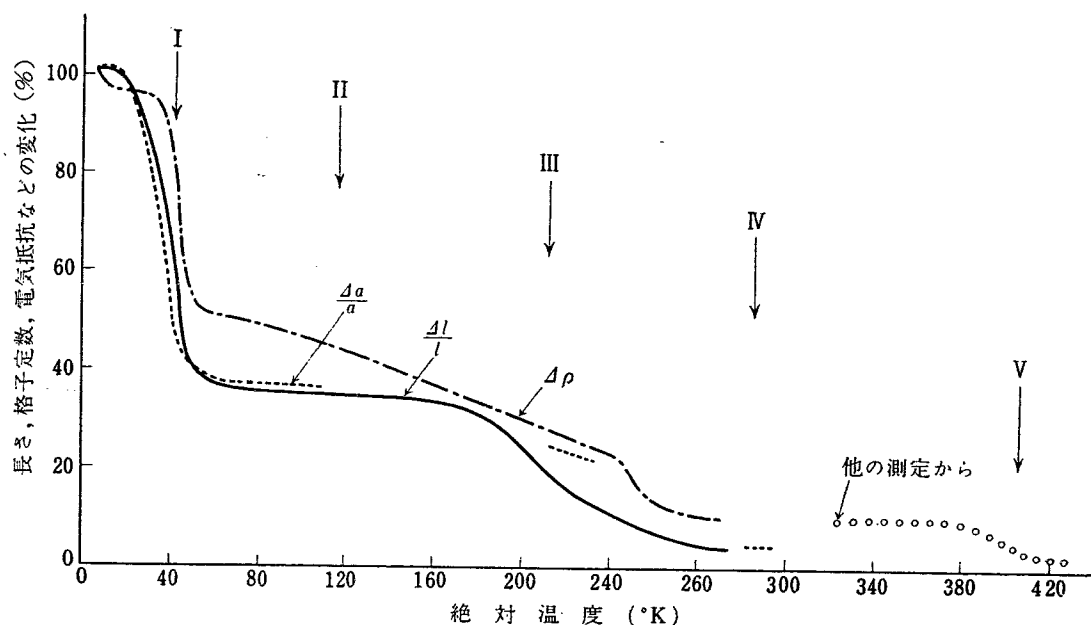
一方、原子炉燃料の照射損傷の基礎的実験が文献[1866]に示されているが、これはMg-Li合金のLiの分裂を利用した特異な模擬実験である。また、このような照射実験をおこなう原子炉中の装置の設計に関する一般的な注意が[58]に見られる。

この調査報告は照射損傷の基礎的研究を網羅したものではないが、以上の文献を総合して現在の研究の主流、ないし傾向を伝えようとするものである。

2. 金属の照射損傷に関係する一般的理論 [998][2385][1366][1712]

この問題は3つの研究段階にわけて考えることができる。第1の段階は照射によって発生する種々の格子欠陥の数の計算およびその分布状態であり、それには物質を構成する要素（原子、電子、イオン、原子核等々、照射条件あるいは衝突条件によって考える単位は異なる）の相互作用ポテンシャルが厳密に分っていないなければならない。このことはきわめて単純な物質できわめて単純な衝突過程を仮定しておこなう以外にない。たとえば半無限の単原子結晶格子で原子変位に要する最低エネルギーが E_d であるような物質に高速粒子が入射して1次被衝突原子を生み出し、これが高速イオン

として衝突をくり返し多くのフレンケル欠陥をつくると考える。入射エネルギーの大部分は格子振動に費やされ、そのきわめて一部だけが格子欠陥のエネルギーに移るのであるが、後者のエネルギー量の不確かさに加えて、従来の理論では格子欠陥の数を求める計算がきわめていいかげんで大まかなものである。たかだか試みられていることは欠陥をつくる衝突過程は剛球衝突とし、これを確率論的に扱い欠陥の数とその分散を求めようとするくらいのものである。しかもその結果は分散がポアソン分布型に近いことをえた程度で、実験との比較には遠い[1712]。



第1図 重陽子照射を受けた Cu の回復過程

第2の段階は格子欠陥ができた場合に、物質の物理的・機械的性質がどのような影響を受けるかを評価することである。それを実験と比較することによって、照射損傷の結果として発生した格子欠陥の種類・濃度・分布状態を推定することができ、したがって損傷の機構を知ることができる。測定された重要な性質は金属の極低温照射の場合、電気抵抗の変化 $\Delta\rho$ 、長さの変化 Δl 、格子常数の変化 Δa 、蓄積エネルギー U などである。そのほかに弾性常数の変化、合金の規則格子の規則度、内部摩擦の変化などがある。機械的性質としては臨界せん断応力、加工硬化曲線などが重要な結果を与えている⁴⁻¹⁰。

第3には以上のような物理的性質がどのような過程で回復してゆくかを調べて、理論と比較することである。現在までの段階では、この回復過程から、発生した格子欠陥の種類を同定することはなかなか難しく、世界中でかなり意見の相違を見ることができる [998] [2385]。

基礎的実験できわめて重要な1例を第1図に示す。これは 10°K 程度の極低温で銅単結晶を 10 MeV 程度の重陽子照射した場合の $\Delta l/l$ 、 $\Delta a/a$ 、 $\Delta\rho$ とその後の温度上昇にともなう諸量の回復を示したもので、電子照射、原子炉中での中性子照射においても同様な挙動が見られる。図に示したように回復は5段階にわけて考えられ、各段階の特長とその理論的解釈は次のようなものである。

段階 I はそれ自身が数段階にわかれた $20^\circ\text{--}50^\circ\text{K}$ にわたる最初の過程で、 0.1 eV 以下の活性化エネルギー

をもつ。とくに電子照射の場合には明確な5段階に分かれ全回復量の90%にあっているが、重陽子照射、中性子照射の場合には微細構造は判らず回復量も50%以下である。この段階は格子間原子が移動して、かなり近距離にある原子空孔に到達して消滅する過程と考える人々と [2385]、そのほかに照射によって半径 10 \AA くらいの集団的な攪乱領域ができて、この領域内での(格子間原子の移動による)回復も重要な寄与を持つと考える人々がある [998]。もしIがかなり自由な格子間原子の移動によるとすれば、Cu中の格子間原子の移動の活性化エネルギーは約 0.1 eV となり、従来の理論的予想値 ($0.2\text{--}0.3\text{ eV}$) よりもかなり低いことになる¹¹。一方、攪乱領域は従来の変位スパイクの考え方に近く、また、臨界せん断応力の変化を説明するためにきわめて有効な模型となっている [998] [2385]。

段階 II は、重陽子照射に特有で 60°K から 250°K 付近にまで拡がった単一の活性化エネルギーを持たない過程である。第1図の実験では Δa 、 Δl 、 $\Delta\rho$ の変化はI IIの段階でほとんど平行に回復する。

段階 III は $240\text{--}300^\circ\text{K}$ の範囲で 0.6 eV 近くの活性化エネルギーをもつ過程で、これを原子空孔の移動による回復と考えるか [2385]、格子間原子または複合空孔の移動によると考えるかは [998] 大問題である。格子欠陥の従来の理論の再検討^{11,13}、さらに新しい理論の発展などが必要である。

段階 IV は第1図でわかるように照射損傷の実験では現われない。低温加工・急冷などの実験でもこの段

階はそれほど明確ではないので、これの存在を認めていない人々も多いが、[998]によればこれは自由な原子空孔の移動による回復過程と思われる。この段階がほとんど現われないのは、照射によって本質的に同数の格子間原子と原子空孔が発生し、したがって後者は格子間原子の消滅過程でほとんど費やされてしまうからであると考えられる。この解釈によれば Cu の原子空孔の移動の活性化エネルギーは約 1 eV で、理論的予想とはよく合うが¹¹⁾ 実験的には何も支持がない。この段階の温度範囲は 100~200°C である。

段階 V は 300~400°C の領域にあり、この回復の活性化エネルギーは Cu で 2.1 eV、すなわち自己拡散のそれであり、強い加工の場合には再結晶をとともなうことから、この段階は熱的に発生した原子空孔の移動・消滅による（転位などの）回復過程と考えられる。

上の極低温照射の実験の複雑性と解釈の多様性によって現在では人によってかなりの意見の相違があるが他の種類の基礎理論・基礎実験をも含めた総合的な分析によって事態はしだいに明らかになっていくであろう。[998] [2385] はいずれも総合的分析の試みとみることができる。

最近の理論のもう一つの特色は点状格子欠陥の複合体・集合体などの取扱いが重要な問題となってきたことである。[998] の攪乱領域というモデルもその 1 種であるし、[2385] でも中性子照射した結晶の臨界せん断応力の変化を大きな寸法の欠陥領域の影響に帰しているのであるが、純粋に理論的な取扱いとしては [1366] を挙げることができる。これは従来までのハロゲン化アルカリ中の + イオン空孔、- イオン空孔の形成のエネルギー、移動の活性化エネルギーを総括し計算をさらに洗練したほかに、点欠陥相互の結合を考え、

第 1 表 ハロゲン化アルカリ中の点欠陥の結合エネルギー (eV)

	±イオンの結合			-イオンと Sr ²⁺ イオンの結合		
	距離	NaCl	KCl	距離	NaCl	KCl
基底状態	r_0	0.60	0.72	$\sqrt{2}r_0$	0.43	0.58
励起状態	$\sqrt{3}r_0$	0.28	0.38	$2r_0$	0.41	0.49

その結合エネルギーを計算している。第 1 表に ± イオン空孔の結合エネルギーおよび - イオンと Sr²⁺ イオンの結合エネルギーを基底状態および第 1 次励起状態について計算したものを示す。

金属の場合には複合点欠陥の計算はまだほとんど開拓されていないが、照射損傷や急冷の実験では欠陥の複合体や集合体のモデルが結果の説明のためにはどうしても必要であり、この種の理論の発展が望まれている。簡単な評価の一例として Cu の原子空孔相互の結合エネルギーが 0.3 eV 程度であろうという予想がある [998]。

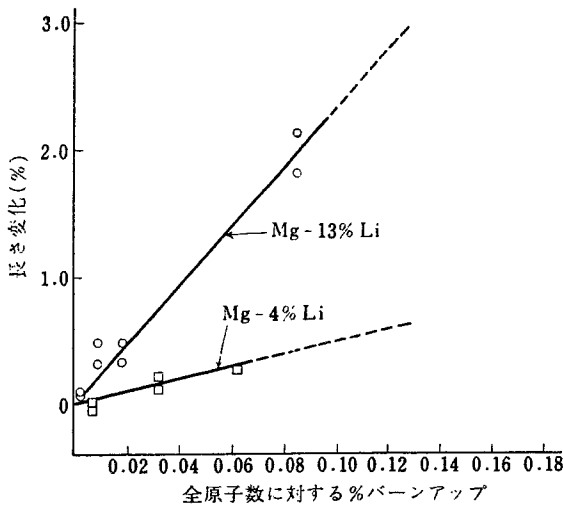
注目すべき点欠陥モデルの新しい着想としてさらにクラウディオ (crowdion) をあげることができる。これは格子間原子が特殊な準安定位置にあったとき周囲の原子配列がある結晶方向 (f.c.c の <110> 方向) にのみ大きく緩和した構造で^{14,15)}、その特色は通常の格子間原子構造に比べて形成エネルギーがほとんど同じでありながら、移動の活性化エネルギーがきわめて小さく、おそらく 0.1 eV 以下と考えられることである。照射損傷の機構の中で、あるいはこの種の準安定点欠陥が重要な役割を果しているかも知れない。とくに最近では、衝突を受けた原子がクラウディオの配置をとって急速に移動し、衝突位置から 100~1,000 Å 離れたところに格子間原子が発生するという可能性が論じられている [998]。

3. 2, 3 の 顕 著 な 実 験 [58] [802] [1866]

原子炉中の中性子照射効果を測るためには、基礎的および工学的実験を問わず膨大な装置と莫大な費用が必要であり、特にインパイル・リグ (in pile rig) とかインパイル・ループ (in pile loop) とかいわれる照射実験装置には 2,000 万円から 2 億円程度の費用と、慎重なデザイン、1 年から数年にわたる機械装置の試験・調整を要するから、このような実験をおこなうのは容易ではない [58]。

この種の大がかりな実験装置を要しない照射損傷の基礎的実験の 2, 3 の例として、入射粒子の衝突の過程中的電子励起過程を明らかにしようとする [802] の実験、燃料中のフィッション・ガス (fission gas) の影響を明らかにしようとする [1866] のモデル実験をあげることができる。

電子励起の最初の試みである [802] の実験は 7 MeV リニア・アクセラレーター (linear accelerator) を利



第2図 照射された Mg-Li 合金の長さの変化

用しておこなわれた。これは $10 \mu\text{sec}$ のパルスで 10^{13} electrons を生ずるから、適当な物質を適当な配置にした場合、物質中に 10^{21} electrons/sec·gram 程度のイオン化を起させることができる。金属においては電導電子の数が多過ぎ、励起された電子の寿命が短か過ぎるので測定は不可能であるが、絶縁物・半導体・ガス体などでは遷移的な電気伝導をオシロスコープによって測定することができる。しかし実験結果はまだ予備の段階にすぎず、カーボン抵抗体・半導体では電子励起の単純な理論と大体合うが、絶縁体の挙動は理論上の予想と全く合わない。たとえばカーボン抵抗体では電子励起による定常電流は

$$I = qN\rho\tau_t\mu VA/a \times 2 \times 10^5$$

ただし q は電子電荷、 N はリニアック電子密度、 ρ は物質密度、 τ_t は励起電子寿命、 μ は同じく易動度、 V は物質にかけた電圧、 A は試料断面積、 a は同じく密度である。測定結果から $\tau_t = 10^{-8}$ sec、したがって平均走行距離は $\lambda = 3 \times 10^{-5}$ cm 程度となり、理論的予想と大体合っている。しかしマイカ、セラミック、プラスチックなどの絶縁体では理論的予想と全く一致しない結果となり、単純な電子励起の理論が成立しな

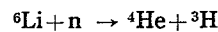
文 献

第2回ジュネーブ会議報文

- [58] H. CARTWRIGHT, B. E. ELTHAM, R. F. JACKSON: Experience in the design of irradiation experiments.
 [802] V. A. J. VAN LINT, P. H. MILLER: Electrical effects of high-intensity ionizing radiation on non-metals.

いことを示している。また、P-N ジャンクションに対する同種の実験もおこなわれたが、この理論的解釈は困難である。いずれにしても、この種の新しい試みは照射損傷の機構の研究に将来大きな寄与をもたらすことが期待される。

基礎的な理論ではあまり取扱われていないが、実用的には非常に重要な問題である核分裂をとまらう物質中の照射損傷は基礎的な実験がはなはだ難しい。[1866] は核分裂片による燃料の損傷を Mg-Li 合金を利用して模型実験化した点で注目すべきものがある。Mg 中の Li は原子炉中の中性子照射により、つぎの分裂をおこない、



発生した He と ${}^3\text{H}$ (トリチウム) はウラン燃料中の Xe や Kr ガスと同じような影響をこの合金に与えるだろうと予想される。選ばれた Li の濃度は六方晶固溶体として 4%, 体心立方固溶体として 13%, これを CP-5 原子炉で熱中性子全束 10^{20} までの照射をおこなった。測定された量は長さの変化、電気抵抗の変化、格子定数、引張強度試験、密度の変化、および顕微鏡による空洞発生の観察である。第2図に照射による長さの変化を示す。それによると試験片の照射による伸びはほとんど分裂の影響であることがわかる。前述の実験と同様に [1866] も理論的解釈と対応させるほどの結果は得られていないが、核燃料の損傷の基礎的研究に新しい方法を開いたものといえる。

今回の報告に関して、少なくとも照射損傷の問題について、一般的にいえることは、損傷の機構について理論・実験ともに世界的にかなり不明確・不一致の点があり、したがって決定的・最終的な報告がないことである。また、研究を一步進めるような新しい試みも始められたばかりで同じく決定的な結果をえていない。しかしこの分野の発展は急激であり、近い将来の成果が大いに期待される。

- [998] A. SEEGER: On the theory of radiation damage and radiation hardening.
 [1366] F. G. FUMI: Point imperfections in the alkali halides.
 [1712] L. PAL: Statistical theory of solid body lattice disturbances after bombardment by fast neutrons.
 [1714] T. A. HOFFMANN: A possibility of preparing

overheated solid state in reactors.

[1866] D. W. LILLIE: Effects of pseudo fission gases in metallic lattices.

[2385] D. K. HOLMES, J. W. CORBETT, R. M. WALKER, J. S. KOEHLER, F. SEITZ: On the interpretation of radiation effects in the noble metals.

その他

- 1) G. H. KINCHIN, R. S. PEASE: *Rept. Prog. Phys.*, **18**, 1 (1955).
- 2) J. W. GLEN: *Adv. in Phys.*, **4**, 381 (1955).
- 3) F. SEITZ, J. S. KOEHLER: *Solid State Phys.*, **2**, 305 (1956).
- 4) H. G. COOPER, J. S. KOEHLER, J. W. MARX: *Phys. Rev.*, **97**, 599 (1955).
- 5) R. O. SIMMONS, R. W. BALLUFFI: *Phys. Rev.*, **109**, 1142 (1958).
- 6) R. W. VOOK, C. A. WERT: *Phys. Rev.*, **109**, 1529

(1958).

- 7) T. H. BLEWITT: Symposium on Vacancies and Other Point Defects, Harwell (1957).
- 8) D. O. THOMPSON, D. K. HOLMES: *J. Appl. Phys.*, **27**, 713 (1956).
- 9) G. H. KINCHIN, R. S. PEASE: *J. Nucl. Energy*, **1**, 200 (1955).
- 10) T. H. BLEWITT, R. R. COLTMAN, J. K. REDMAN: Discussion meeting on radiation damage and plasticity of metals, Aachen (1958).
- 11) H. B. HUNTINGTON: *Phys. Rev.*, **91**, 1092 (1953).
- 12) J. A. BRINKMAN: *J. Appl. Phys.*, **25**, 961 (1954).
- 13) H. B. HUNTINGTON, F. SEITZ: *Phys. Rev.*, **61**, 315 (1942).
- 14) H. PANETH: *Phys. Rev.*, **80**, 708 (1950)
- 15) W. M. LOMER, A. H. COTTRELL: *Phil. Mag.*, **46**, 711 (1955).

中性子線回折

1. 概 説

中性子線回折とは主として原子炉により作られる熱中性子を利用し（その他の源もあるが強度が非常に弱いのでほとんど実用にはなっていない）これを物質にあてその回折線の方向、強度などを測定しそれによって物質の構造を明らかにしようとする研究方法である。この研究方法は最近になって強い中性子源となる原子炉が作られてから発展し、現在はこれにより種々の固体物理的研究がおこなわれている。

中性子線回折は粒子線回折の一種でX線回折、電子線回折と同じような性質の研究方法であるが、その特徴はつぎのようなものである。

1.1 軽元素、重元素を含む物質の構造解析

X線の場合その散乱は外殻電子によって起る。したがって散乱断面積は原子番号の順で大きくなってゆく。そのために軽元素と重元素を一緒に含むような物質、たとえば UH_3 をもっとも極端な例とする水化物などの水素の位置の決定などは大変困難な仕事であった。ところが中性子線回折の場合には散乱断面積は原子核により決定され、これは別に原子番号によらないので水素の位置の決定が非常に正確におこなわれるようになった。

1.2 隣接元素を含む合金、化合物などの構造解析

前にものべたようにX線の散乱断面積は原子番号の順に変化するのので週期律表で近くにある元素を含む合金、化合物などの解析は非常に困難であり、たとえば遷移金属同志の合金の研究などは、適当な波長の特長X線を使用し、その吸収係数の相異から判定する以外に方法はなかった。ところが中性子線の場合には別に週期律表とは関係がなくなったので、遷移金属合金の研究が容易におこなわれるようになった。

1.3 格子の熱振動の研究

原子は結晶の場合にはある一定の関係を保って空間

に配列している。これを結晶格子というのであるが、これがきちんとした一定の関係を保っているのは絶対0度の場合だけであって、（この場合にもゼロ点振動は存在する）温度が上ればこの平衡位置の付近を振動する。これは比熱、電気抵抗、熱伝導等固体の性質と非常に関係しているので、X線によってもその回折強度の温度変化などから格子振動の分布を求めることが研究されてきた。ところが中性子を用いると冷中性子の運動エネルギーは格子振動のエネルギーと大体同程度の大きさであるので中性子と格子振動のエネルギーの授受が散乱中性子線のエネルギー変化として測定され、この方面の研究により直接的なデータを与えることを可能にした。

1.4 磁気構造の研究

以上にのべた三つの特徴はいずれもX線を用いてもできる研究であるが、中性子を用いたほうがより正確に、または直接的におこなわれるものであった。ところが最後の磁気構造の研究は中性子の有するスピンを利用して、磁性体の磁気構造を直接的に決定しようとするもので、現在中性子線回折における最大の利点とされているものである。磁性体の磁気的性質は結晶中の原子の持つスピンの配列、およびその外部磁場による変化の仕方によって決まるものであり、いままでは磁気的性質（たとえば帯磁率）の測定や磁気共鳴の研究で間接的に推定されてきたのであるが、原子の磁気能率と中性子の磁気能率とは相互作用があるので、中性子線の磁性体による干渉効果を測定することにより磁気構造を明らかにすることができる。

以上のことは中性子線回折の大きな特徴であるが、次にそのおのおのについてやや詳しくのべることにする。

ただし本会議において報告されたのはそのごく小部分であり、多くの重要な研究は他の場所で発表されているので、参考文献その他を参照されたい。

2. 装置の概略

現在は世界各国のおもな原子力研究所にはそれぞれ一台ないし十数台の中性子線回折装置がおかれ、研究が続けられている。わが国においても近いうちに一台完成する予定である。それぞれの装置は皆特色を持っているが、一般的な装置は BNL, ORNL, ANL のも

のであり、ANL の装置は今回ジュネーブ会議にも報告された [680]。中性子遮蔽に留意すること。中性子を単色化する必要があることのほかはカウンターを用いる X 線回折装置と大差はないがスケールは大きい。

3. 軽元素・重元素を含む物質の構造解析

現在までにおこなわれた研究中一番有名なのは単結晶を用いて強誘電体中の水素の位置を決定したものであるが¹⁾、ゼロ格子法 (null-matrix) の方法もある。[680] これは散乱の位相の違う二つの物質の水化物でうまく固溶体を作るものをみつけ出し、水素による散乱のみを取出して測定しようというものである。たとえば Zr の散乱振幅 b_{Zr} は 0.62×10^{-12} であるのに対し Ti のそれは $b_{Ti} = -0.38 \times 10^{-12}$ cm であるので 62 原子% Ti, 38 原子% Zr の合金はおのおのがチ

ュウ密六方格子を作っていることもあり固溶体を作りその散乱振幅は 0 となる。これと同様に $MD_{1.99}$ (M = 62 原子% Ti, 38 原子% Zr) は CaF_2 型の結晶構造を有し、これの M による散乱はゼロであるから、この中性子線回折図を求めることにより、構造振幅を計算して実験と合わせれば、重水素の位置が求められる。同様のことが TiC と WC の固溶体についてもおこなわれ C の位置が求められる。

4. 隣接元素を含む合金および格子振動の研究

隣接元素を含む合金の研究にはまだあまり有名なものはないが、格子振動の研究は BROCKHOUSE の一連

の有名な研究²⁾が続けられている。

5. 磁気構造の研究

磁性体といっても一般には常磁性、強磁性、反強磁性と大別される。常磁性については中性子の diffuse scattering からイオンの磁気能率の値が求められる³⁾。強磁性体としてはその一例としてスピネル構造をもつフェリ磁性体の研究が有名である⁴⁾。また Ni-As 型の強磁性および反強磁性体、 $Fe_{1-x}S$ の研究もおこなわれ、Neel 温度において (001), (003) の反射が消滅することからスピンの配列は (001) 面内では同じ方向にそろい、つぎの (001) 面との間とは反対方向をとることが明らかになった [680]。ところが Cr-Sb もやは

り Ni-As 型の反強磁性体であるがそのスピン配列は c 軸に平行、すなわち (001) 面に垂直である [680]。また Cu-Mn 合金においても 31 原子% Cu-69 原子% Mn 合金はゼロ格子を作るが、15 原子% Cu-85 原子% Mn 合金には面心正方格子の反強磁性配列の存在することが中性子線回折で X 線回折には出ない (110) 反射が現れることにより認められた。反強磁性体の研究にはこのほか NiO などの酸化物⁵⁾、 MnF_2 , MnF_3 など⁶⁾ のフッ化物などの研究があるが、ジュネーブ会議には MnS の三つの結晶構造すなわち NaCl 型 (α -Mn

S), zinc blende 型 (β -MnS), wurtzite 型 (β -MnS) のおのおのスピンの配列の差違, (これは Mn-S-Mn の配列の差による) についての研究が報告されている

[1764].

このほか液体金属, K, Na, Li, Pb, Cs などの原子配列の研究などもおこなわれている [680].

文 献

第2回ジュネーブ会議報文

[680] S. S. SIDHU, L. HEATON, M. H. MUELLER: Neutron diffraction techniques and their applications.

[1764] J. M. HASTINGS, N. ELLIOTT, L. M. CORLISS, W. C. HAMILTON: Neutron diffraction studies of magnetic structure.

その他

1) G. SHIRANE, R. PEPINSKY, B. C. FRAZER: *Acta Cryst.*, **9**, 131~140 (1956).

F. JONA, G. SHIRANE, F. MAZZI, R. PEPINSKY: *Phys. Rev.*, **105**, 849~856 (1957).

2) B. N. BROCKHOUSE, A. T. STEWART: *Rev. Mod. Phys.*, **30**, 236~249 (1958).

R. S. CARTER, H. PALEVSKY, D. J. HUGHES: *Phys. Rev.*, **106**, 1168~1174 (1957).

B. N. BRACKHOUSE, P. K. IYENGAR: *Phys. Rev.*, **111**, 747~754 (1958).

3) C. G. SHULL, W. A. STRAUER, E. O. WOLLAN:

Phys. Rev., **83**, 333~345 (1951).

C. G. SHULL, M. K. WILKINSON: *Phys. Rev.*, **97**, 304~310 (1955).

4) J. M. HASTINGS, L. M. CORLISS: *Rev. Mod. Phys.*, **25**, 114~121 (1953).

L. M. CORLISS, J. M. HASTINGS, F. G. BROCKMAN: *Phys. Rev.*, **90**, 1013~1018 (1953).

A. W. McREYNOLDS, T. RISTE: *Phys. Rev.*, **95**, 1161~1167 (1954).

B. N. BROCKHOUSE, L. M. CORLISS, J. M. HASTINGS: *Phys. Rev.*, **98**, 1721~1727 (1955).

J. M. HASTINGS, L. M. CORLISS: *Phys. Rev.*, **104**, 328~331 (1956).

5) C. G. SHULL, W. A. STRAUER, E. O. WOLLAN: *Phys. Rev.*, **83**, 333~345 (1951).

W. L. ROTH: *Phys. Rev.*, **110**, 1333~1341 (1958).

W. L. ROTH: *Phys. Rev.*, **111**, 772~781 (1958).

6) R. A. ERICKSON: *Phys. Rev.*, **90**, 779~785 (1953).

E. O. WOLLAN, H. R. CHILD, W. C. KOEHLER, M. K. WILKINSON: *Phys. Rev.*, **112**, 1132~1136 (1958).