

JAERI-Conf
95-018



第1回先端基礎研究シンポジウム
講演概要集

1995年3月23~24日、東海村

1995年9月

編集ワーキンググループ

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1995

編集兼発行 日本原子力研究所

印 刷 株原子力資料サービス

第1回先端基礎研究シンポジウム講演概要集

1995年3月23～24日、東海村

日本原子力研究所先端基礎研究センター
編集ワーキンググループ

(1995年8月9日受理)

第1回先端基礎研究シンポジウムは、1995年3月23～24日の2日間、所内外から260名の参加を得て東海村において開催された。本シンポジウムの目的は、先端基礎研究センターが発足して2年間に得られた成果の報告、特定課題に関する討議、及び所内外の研究者によるポスター発表を通じ、今後の研究のより一層の発展を図ることにあった。シンポジウムでは、先端基礎研究センターから6件の研究成果報告がなされるとともに、所内外から70件のポスター発表が行われた。また、特に話題性の豊富な2件の重要テーマに関して、特定課題として集中討議がなされた。本報文集は、これらの発表及び討議についてその概要を収めたものである。

Proceedings of the 1st Symposium on Advanced Science Research

March 23-24, 1995, Tokai, Japan

Editorial Working Group

Advanced Science Research Center
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received August 9, 1995)

The 1st symposium on advanced science research was held in Tokai-mura, Ibaraki-ken, on 23-24 March, 1995, under the auspices of JAERI. Two hundred and sixty scientists attended the symposium; over 40% of the attendants were from universities and laboratories outside JAERI. This proceedings consists of 6 oral presentations of the research activities in the Advanced Science Research Center, 70 poster presentations on the field of basic science from both the inside and outside of JAERI and 2 panel discussions on the actinide physics and biocrystallography.

Keywords : Radiation Field Science, Heavy Atom Science, Nuclear Science,
Molecular Science

目 次

1. 先端基礎研究センター（原研・基礎センター）の研究概要	1
伊達 宗行（原研・先端基礎研究センター長）	
2. 研究成果報告	5
2.1 スペクテータ・オージェ電子	7
佐々木貞吉（原研・基礎センター）	
2.2 超臨界二酸化炭素によるウラン分離	8
吉田 善行（原研・基礎センター）	
2.3 超原子価分子	9
工藤 博司（原研・基礎センター、東北大）	
2.4 分子動力学法で核反応はどこまで解明できるか	10
岩本 昭（原研・基礎センター）	
2.5 照射効果と電子励起	11
岩瀬 彰宏（原研・基礎センター）	
2.6 耐放射線光ファイバー	12
中沢 正治（原研・基礎センター、東大）	
3. 特定課題討論 I	13
3.1 異方的超伝導体について	15
藤田 敏三（広島大・理）	
3.2 U Pt ₃ の研究の現状	16
大貫 停睦（原研・基礎センター、阪大）	
3.3 U Pd ₂ A ₁ ₃ の 5f 電子の性質と超伝導	17
稻田 佳彦, 石黒 晶子, 木村 純子, 佐藤 審昭, 澤田 安樹, 小松原武美（東北大）	
4. 特定課題討論 II	19
4.1 タンパク質結晶中性子回折	21
B. P. Schoenborn（ロスアラモス国立研究所）	
4.2 生体物質中性子回折計の建設とそれを用いての実験	22
新村 信雄（原研・基礎センター）	
4.3 X線回折からみた中性子回折への期待	23
三木 邦夫（京大・理）	
5. ポスターセッション	25
P-01 ネプツニウムの環境動態に関する基礎研究	27
森山 裕丈（京大・原子炉）	

P-02	アクチノイド元素の原子価調整技術の開発	28
	深澤 哲生, 鴨志田 守, 河村 文雄 (日立・エネ研)	
P-03	ランタノイド-二座配位有機リン化合物錯体の配位特性	29
	矢板 豪, 館盛 勝一 (原研・燃安工)	
P-04	超臨界二酸化炭素によるウラン, 希土類元素の選択的抽出分離	30
	磯 修一, 目黒 義弘, 木村 貴海, 吉田 善行, 立川 圓造 ^A (原研・基礎センター, 原研・東海研 ^A)	
P-05	レーザー誘起蛍光寿命測定によるランタノイド(Ⅲ) 及びアクチノイド(Ⅲ) の水和構造の研究	31
	木村 貴海, 加藤 義春, G. R. Choppin ^A (原研・基礎センター, Florida State Univ. ^A)	
P-06	アクチノイドイオノンの二液相間移動反応-新しい分離法, センサー技術	32
	北辻 章浩, 青柳 寿夫, 宇野清一郎, 武藤 博, 吉田 善行 木原 壮林 ^A (原研・基礎センター, 京都工織大 ^A)	
P-07	環状化合物のサイズ選別作用によるアクチノイド(Ⅲ) の高選択的分離	33
	目黒 義弘, 北辻 章浩, 武石 秀世, 吉田 善行 (原研・基礎センター)	
P-08	メスバウアー分光法のいん石学への応用	34
	遠藤 和豊, 篠永 妙子 ^A , 孔 屏 ^B , 海老原 充 ^B , 中原 弘道 ^B (昭和薬大・薬, 理研 ^A , 都立大・理 ^B)	
P-09	¹⁵¹ Eu メスバウアー分光法による凍結溶液系での光化学に関する研究	35
	薬袋 佳孝, 山内 繁, 富永 健 (東大・理)	
P-10	酸化アメリシウム中におけるネプツニウムの酸化状態	36
	正木 信行, 中田 正美, 佐伯 正克 (原研・基礎センター)	
P-11	凍結溶液における ⁵⁷ Co の同時計数メスバウア分光	37
	中田 正美, 正木 信行, 佐伯 正克, 遠藤 和豊 ^A (原研・基礎センター, 昭和薬大・薬 ^A)	
P-12	強磁性体Niのスピン分解内殻光電子分光	38
	斎藤 純児, 菅 滋正, 柿崎 明人 ^A (阪大・基礎工, 東大・物性研 ^A)	
P-13	c (2×2) S/F e(100) 表面のスピン・角度分解光電子分光	39
	小野 寛太, 島田 賢也 ^A , 仙洞田剛士 ^B , 柿崎 明人, 福谷 博仁 ^B 田中 康一 (東大・物性研, 東大・理 ^A , 筑波大・物理 ^B)	
P-14	軟X線定在波法による半導体表面吸着原子層の構造解析	40
	杉山 宗弘, 前山 智, 尾嶋 正治 (NTT境界領域研)	
P-15	内殻励起による共鳴オージェ崩壊過程	41
	吉井 賢資, 馬場 祐治, 佐々木貞吉 (原研・基礎センター)	
P-16	内殻励起による吸着分子の表面脱離	42
	馬場 祐治, 吉井 賢資, 山本 博之, 佐々木貞吉 (原研・基礎センター)	

P-17	アンチモン及びヨウ素の超原子価化合物の構造化学	43
	竹田満洲雄, 高橋 正, 北澤 孝史(東邦大・理)	
P-18	気相反応で生成する原子分子の速度分布画像解析	44
	松見 豊, 佐藤 佳宏, 川崎 昌博(北大・電子研)	
P-19	レーザーによる化学結合の選択的解離	45
	高柳 敏幸, 藤沢 銀治, 横山 淳(原研・基礎センター)	
P-20	超原子価分子Na ₂ CNの構造と安定性	46
	橋本 雅史, 横山 啓一, 工藤 博司(原研・基礎センター)	
P-21	超リチウム化分子の電子状態	47
	横山 啓一, 橋本 雅史, 工藤 博司(原研・基礎センター)	
P-22	超高強度レーザーと荷電粒子多体系との相互作用	48
	三間 圭興(阪大・レーザー核融合)	
P-23	テーブルトップテラワットレーザーを用いたGeVウェーク場粒子加速器 の開発研究	49
	中島 一久, 有永 三洋, 中西 弘, 川久保忠通, 小方 厚(高エネ研)	
P-24	回転と速度シアを持つ天体プラズマ円盤における磁気不安定性	50
	松元 亮治, 田島 俊樹 ^A (千葉大・理, 原研・基礎センター ^A)	
P-25	加速器物理の最近の流れとT ³ レーザー	51
	田島 俊樹(原研・基礎センター)	
P-26	高出力レーザーによる高速度ビーム冷却と計測	52
	岸本 泰明, J. K. Koga, 田島 俊樹, 三間 圭興 ^A , D. L. Fisher ^B (原研・基礎センター, 阪大・レーザー核融合 ^A , Univ. Texas ^B)	
P-27	シア回転プラズマにおけるバルーニングモード不安定性の解析	53
	徳田 伸二(原研・基礎センター)	
P-28	渦層不安定化に対するせん断流の影響	54
	岡本 久, 坂上 貴之(京大・数理研)	
P-29	差分回転を行う球殻間における熱対流の解の分歧	55
	柳瀬眞一郎, 水島 二郎 ^A , 荒木 圭典 ^B (岡山大・工, 同志社大・工 ^A , 京大・理 ^B)	
P-30	流体摩擦抵抗低減法の探索	56
	秋野 詔夫, 高瀬 和之, 久保 真治, 日野竜太郎, K.-S. Choi ^A (原研・高温工学, Univ. Nottingham ^A)	
P-31	熱対流における縮退を伴う分歧	57
	藤村 薫, R. E. Kelly ^A (原研・基礎センター, Univ. California ^A)	
P-32	不安定成層ポワズイユ流における解の分歧	58
	Hsi-shang Li(原研・基礎センター)	
P-33	高融点BCC金属の低温照射	59
	谷本 久典, 水林 博, 奥田 重雄(筑波大・物質工学)	

P-34 イオン固体相互作用とそれを利用した軽元素分析	60
P. Goppelt-Langer, S. Yamamoto, Y. Aoki, H. Takeshita	
H. Naramoto (原研・材料開発)	
P-35 不可逆的輸送過程を記述するための拡張されたボルツマン方程式	61
田次 邑吉 (原研・基礎センター)	
P-36 酸化物超伝導体 ($YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$) の磁気熱量効果	62
渡辺 光男, 岩田 忠夫 (原研・基礎センター)	
P-37 $EuBa_2Cu_3O_x$ 超伝導体薄膜における粒子線照射効果	63
石川 法人 (原研・基礎センター)	
P-38 ^{121}Sb , ^{67}Fe メスバウアーフィルターによる $3d$ 遷移金属ブニクタイドの研究	64
中村 仁, 小林 義男 ^A , 浅井 吉蔵, 山田 修義, 安部 文敏 ^A (電通大・電子物性, 理研 ^A)	
P-39 $CeRu_2$ の超伝導	65
摂待 力生, 山本 悅嗣 ^A , 大貫 悅睦 ^A (阪大・理, 原研・基礎センター ^A)	
P-40 $CeRu_2Ge_2$ の物性	66
山本 悅嗣, 目時 直人 ^A , 池沢 晴久 ^B , 大貫 悅睦 (原研・基礎センター, 原研・材料 ^A , 筑波大・物質工学 ^B)	
P-41 ウラン 3 元合金の物性	67
岡安 悟, 数又 幸生, 宇賀神 光弘 (原研・材料)	
P-42 新しい還元Nb酸化物系超電導体	68
中村 彰夫 (原研・燃料)	
P-43 理研における $\alpha \times n$ 反応を用いた超重核探索実験	69
黒川 明子 (立大・理)	
P-44 高速回転・巨大変形する原子核の構造	70
清水 良文 (九大・理)	
P-45 ガスジェット結合型 ISOL を用いた中性子過剰未知希土類核種の探索	71
塚田 和明, 浅井 雅人 ^A , 市川 進一, 長 明彦, 永目諭一郎 篠原 伸夫, 飯村 秀紀, 西中 一朗, 初川 雄一, 柴田 理尋 ^A 山本 洋 ^A , 河出 清 ^A (原研・アイソトープ, 名大・工 ^A)	
P-46 相互作用するボゾン模型による集団運動の記述	72
吉永 尚孝 (埼玉大・教養)	
P-47 反跳生成核分離装置と重元素合成	73
池添 博 (原研・基礎センター)	
P-48 不安定核ビームを用いた ^{174}Hf 大変形異性体の研究	74
森川 恒安 (原研・基礎センター)	
P-49 連続状態への核子入射多段階直接反応過程の半古典的歪曲波モデル解析	75
河合 光路, 渡辺 幸信 ^A (九大・理, 九大・総理工 ^A)	

P-50 核子とフラグメントのフローのAMDによる研究	76
小野 章, 堀内 韶(京大・理)	
P-51 QMD模型の拡張と低エネルギー重イオン反応への適用	77
丸山 敏毅, 仁井田浩二, 岩本 昭(原研・基礎センター)	
P-52 QMDによる中間エネルギー核子入射核反応の研究	78
千葉 敏, 仁井田浩二, 丸山 敏毅, 深堀 智生, 高田 弘	
岩本 昭(原研・基礎センター)	
P-53 核励起He-Ne-Arレーザーの発振シミュレーション	79
中原 克彦, 林 千枝, 桑子 彰, 山中 信弘 ^A , 中沢 正治 ^A	
(東芝, 東大・工 ^A)	
P-54 光ファイバーを用いた中性子束等放射線分布の高位置分解能迅速測定法の研究	80
森 千鶴夫(名大・工)	
P-55 ニオブ系トンネル接合検出器の高エネルギーX線応答	81
石橋 健二, 野田 孝浩, 橋本 学, 前畠 京介, 仲川 博 ^A	
赤穂 博司 ^A , 高田 進 ^A , 中島 哲夫 ^B , 清水 裕彦 ^B , 吉沢 正美 ^C	
片桐 政樹 ^D	
(九大・工, 電総研 ^A , 高エネ研 ^B , 埼玉工大 ^C , 原研・基礎センター ^D)	
P-56 シンチレーション光ファイバーの放射線計測への応用	82
鳥居 建男, 江本 武彦, 野崎 達夫, 安藤 秀樹(動燃・大洗)	
P-57 He-Ne-Ar核励起レーザーの実験研究	83
中沢 正治, 山中 信弘 ^A , 片桐 政樹, 角田 恒巳, 山岸 秀志	
坂佐井 駿(原研・基礎センター, 東大・工 ^A)	
P-58 超伝導トンネル接合X線検出器の高分解能化	84
岸本 牧, 浮辺 雅宏, 片桐 政樹, 中沢 正治(原研・基礎センター)	
P-59 光ファイバーを用いた炉内計測	85
坂佐井 駿, 角田 恒巳, 片桐 政樹, 中沢 正治(原研・基礎センター)	
P-60 中性子構造生物学と生体物質結晶成長	86
新村 信雄(原研・基礎センター)	
P-61 タンパク質リゾームの中性子回折	87
峯崎 善章(原研・基礎センター)	
P-62 生体物質中性子回折計BIX(Nautilus)の建設	88
田中伊知朗(原研・基礎センター)	
P-63 中性子イメージングプレートの開発と応用	89
唐澤 裕子(原研・基礎センター)	
P-64 タバコ花粉へのイオンビーム照射による突然変異の誘起	90
井上 雅好, 西村 浩幸(京都府大)	

P-65 炭素及びネオンイオンビームによる生物効果	91
鈴木 雅雄, 金井 達明, 加瀬 陽子, 渡辺 正己 ^A , 加藤 武司 ^B	
谷田貝文夫 ^C (放医研・重粒子, 長崎大・薬 ^A , 阪大・医 ^B , 理研・R I ^C)	
P-66 重イオンによる突然変異の塩基配列レベルでの研究	92
谷田貝文夫, 香川 康浩 ^{A, B} , 鈴木 雅雄 ^B , 加瀬 陽子 ^B , 小林 晶子 ^A	
平野 昌彦 ^A , 加藤 武司 ^C , 渡辺 正己 ^D , 花岡 文雄	
(理研, 東レ・リサーチセンター ^A , 放医研・重粒子 ^B , 阪大・医 ^C	
長崎大・薬 ^D)	
P-67 シロイヌナズナのイオンビームによる突然変異	93
鹿園 直哉, 横田 幸彦, 田中 淳, 渡辺 宏, 田野 茂光	
(原研・基礎センター)	
P-68 イオンビーム照射によるシロイヌナズナの生物効果	94
田中 淳, 横田 幸彦, 鹿園 直哉, 渡辺 宏, 田野 茂光	
(原研・基礎センター)	
PDP-01 Multi-terawatt Amplification of Ultra Short Laser Pulses : Breaking the 50fs Barrier	95
山川 考一, C.P.J. Barty ^A (原研・基礎センター, U C S D ^A)	
PDP-02 金環食原子核の形成	96
丸山 智幸 (原研・基礎センター)	

Contents

1.	Overview of the Research Activities in Advanced Science Research Center(ASRC)	1
	M.Date(Director, ASRC, JAERI)	
2.	Oral Presentations	5
2.1	Spectator Auger Electron	7
	T.A.Sasaki(ASRC, JAERI)	
2.2	Separation of Uranium with Supercritical Carbon Dioxide	8
	Z.Yoshida(ASRC, JAERI)	
2.3	Hypervalent Molecules	9
	H.Kudo(ASRC, JAERI and Tohoku Univ.)	
2.4	How Well Does Molecular Dynamics Model Clarify the Nuclear Reaction Mechanism?	10
	A.Iwamoto(ASRC, JAERI)	
2.5	Radiation Effects and Electron Excitation in Metals and High-Tc Superconductors	11
	A.Iwase(ASRC, JAERI)	
2.6	Development of Radiation-resistant Fiber Optics	12
	M.Nakazawa(ASRC, JAERI and Univ. Tokyo)	
3.	Panel Discussions I	13
3.1	Anisotropic Superconductor	15
	T.Fujita(Faculty of Sci., Hiroshima Univ.)	
3.2	Present Status of UPt ₃ Research	16
	Y.Ônuki(ASRC, JAERI and Osaka Univ.)	
3.3	The 5f Electron State and Superconducting State in UPd ₂ Al ₃	17
	Y.Inada, A.Ishiguro, J.Kimura, N.Sato, Y.Sawada and T.Komatsubara (Faculty of Sci., Tohoku Univ.)	
4.	Panel Discussions II	19
4.1	Neutron Protein Crystallography	21
	B.P.Schoenborn(Los Alamos National Lab.)	
4.2	Construction and Diffraction Experiment Using a Neutron Diffractometer for Biocrystallography(BIX)	22
	N.Niimura(ASRC, JAERI)	
4.3	Neutron Diffraction in Biology from the Viewpoint of X-ray Crystallography	23
	K.Miki(Faculty of Sci., Kyoto Univ.)	

5. Poster Presentations	25
P-01 Basic Studies on Environmental Behaviour of Neptunium	27
H.Moriyama(Res.Reactor Inst., Kyoto Univ.)	
P-02 Development of Valence Control Methods for Actinoid Elements	28
T.Fukasawa, M.Kamoshida and F.Kawamura(Energy Res. Lab., Hitachi)	
P-03 Coordination Properties for Complex of Lanthanoid-bidentate Organophosphorous Compound	29
T.Yaita and S.Tachimori(Dept. of Fuel Cycle Safety Res., JAERI)	
P-04 Selective Extraction of Uranium and Lanthanides in Nitric Acid Solution into Supercritical Carbon Dioxide Fluid Containing TBP	30
S.Iso, Y.Meguro, T.Kimura and Z.Yoshida(ASRC, JAERI)	
E.Tachikawa(JAERI)	
P-05 Luminescence Study on the Hydration Sphere of Lanthanides (III) and Actinides (III)	31
T.Kimura and Y.Kato(ASRC, JAERI)	
G.R.Choppin(Florida State Univ.)	
P-06 Phase Transfer of Actinide Ions Across the Liquid/liquid Interface	32
Y.Kitatsuji, H.Aoyagi, S.Uno, H.Muto and Z.Yoshida(ASRC, JAERI)	
S.Kihara(Kyoto Inst. Tech.)	
P-07 Selective Extraction of Actinide (III) on the Basis of Size-recognition of Macrocyclic Compounds	33
Y.Meguro, Y.Kitatsuji, H.Takeishi and Z.Yoshida(ASRC, JAERI)	
P-08 Application of Mössbauer Spectroscopy to the Study of Meteorites	34
K.Endo(Showa College of Pharma. Sci.)	
T.Shinonaga(IPC)	
P.Kong, M.Ebihara and H.Nakahara(Tokyo Metropolitan Univ.)	
P-09 ^{151}Eu Mössbauer Spectroscopic Study on Photochemistry of Europium in Frozen Solution Systems	35
Y.Minai, S.Yamauchi and T.Tominaga(Faculty of Sci., Univ. Tokyo)	
P-10 Oxidation State of Np in Americium Oxide	36
N.M.Masaki, M.Nakada and M.Saeki(ASRC, JAERI)	
P-11 Coincidence Mössbauer Spectroscopy for ^{57}Co in Frozen Nitric Acid Solution	37
M.Nakada, N.M.Masaki and M.Saeki(ASRC, JAERI)	
K.Endo(Showa College of Pharma. Sci.)	
P-12 Spin Resolved Core Level Photoemission Spectra of Ferromagnetic Ni	38
Y.Saito and S.Suga(Dept. of Material Phys., Osaka Univ.)	

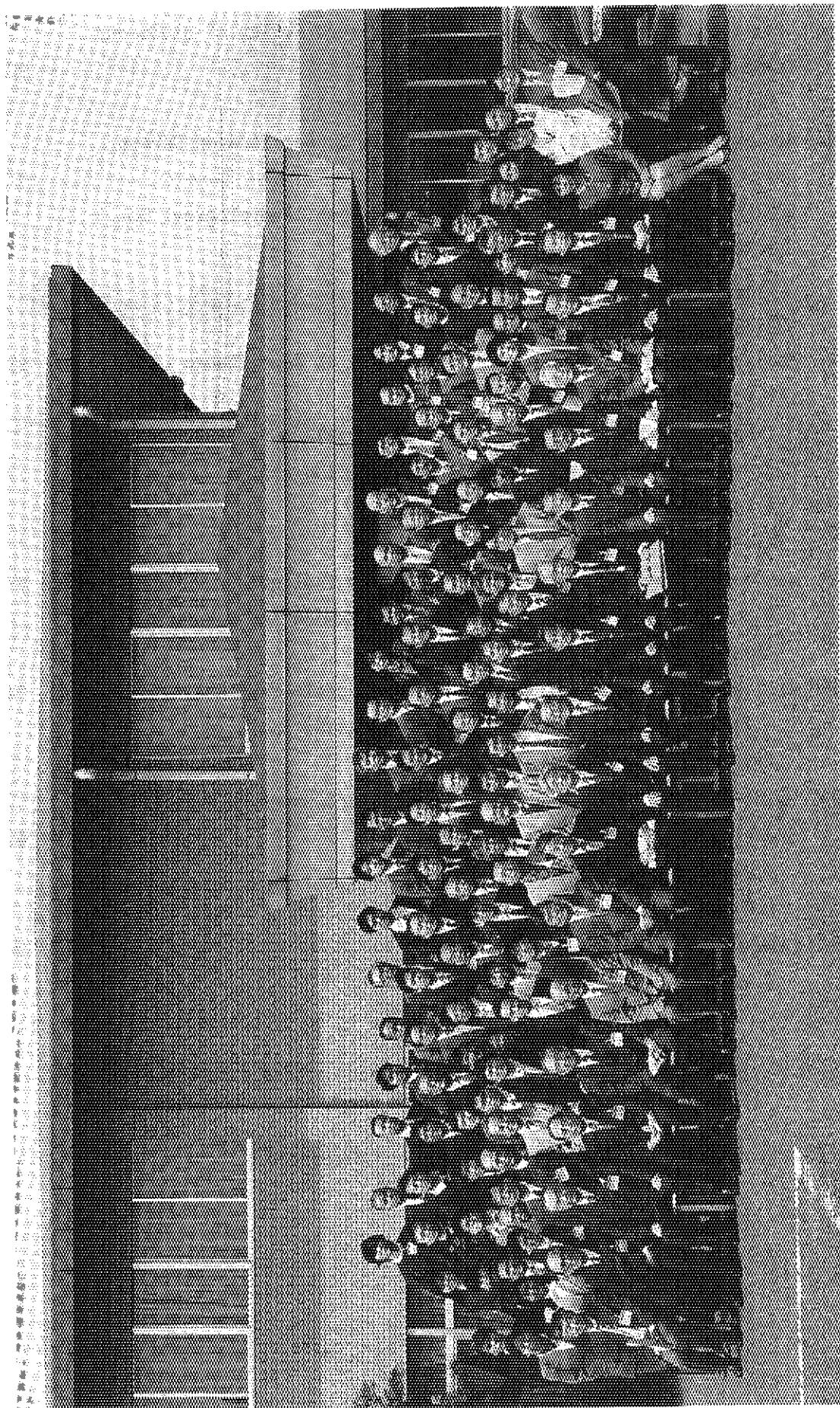
A.Kakizaki(ISSP, Univ. Tokyo)	
P-13 Spin and Angle-resolved Photoemission Study of c(2×2)S/Fe(100)	39
K.Ono, A.Kakizaki and K. Tanaka(ISSP, Univ. Tokyo)	
K.Shimada(Faculty of Sci., Univ. Tokyo)	
T.Sendohda and H.Fukutani(Univ. Tsukuba)	
P-14 Structure Analysis of Atomic Layer on Semiconductor Surface Using Soft X-ray Standing Waves	40
M.Sugiyama, S.Maeysama and M.Oshima(NTT Interdisciplinary Res. Labs.)	
P-15 Resonant Auger Decay Processes Following Inner-shell Excitations	41
K.Yoshii, Y.Baba and T.A.Sasaki(ASRC, JAERI)	
P-16 Desorption of Adsorbed Molecules by Core Excitation	42
Y.Baba, K.Yoshii, H.Yamamoto and T.A.Sasaki(ASRC, JAERI)	
P-17 Structural Chemistry of Hypervalent Compounds of Antimony and Iodine	43
M.Takeda, M.Takahashi and T.Kitazawa(Faculty of Sci., Toho Univ.)	
P-18 Photofragment Imaging Spectroscopy	44
Y.Matsumi, Y.Sato and M.Kawasaki(Hokkaido Univ.)	
P-19 Selective Dissociation of Chemical Band by Laser	45
T.Takayanagi, G.Fujisawa and A.Yokoyama(ASRC, JAERI)	
P-20 Stability and Structure of Hypervalent Molecule Na ₂ CN	46
M.Hashimoto, K.Yokoyama and H.Kudo(ASRC, JAERI)	
P-21 Electronic States of Hyperlithiated Molecules	47
K.Yokoyama, M.Hashimoto and H.Kudo(ASRC, JAERI)	
P-22 Ultra-intense Laser Interactions with a Charged Particle Many Body System	48
K.Mima(Inst. of Laser Engi., Osaka Univ.)	
P-23 The GeV Wakefield Accelerator Development Using Table-top Terawatt Laser	49
K.Nakajima, M.Arinaga, H.Nakanishi, T.Kawakubo and A.Ogata(KEK)	
P-24 Magnetic Instabilities in Astrophysical Disks with Rotation and Velocity Shear	50
R.Matsumoto(Faculty of Sci., Chiba Univ.)	
T.Tajima(ASRC, JAERI and Univ. Texas)	
P-25 The Frontier of Accelerator Physics and the T ³ Laser	51
T.Tajima(ASRC, JAERI and Univ. Texas)	
P-26 Cooling of High Energy Charge Particle Beams and Phase Space Detection Using High Power Lasers	52
Y.Kishimoto, J.K.Koga and T. Tajima(ASRC, JAERI)	

K.Mima(Inst. of Laser Engi., Osaka Univ.)	
D.L.Fisher(Univ. Texas)	
P-27 Analysis of Ballooning Mode Instabilities in a Plasma with Shear Rotation	53
S.Tokuda(ASRC, JAERI)	
P-28 Instability of a Vortex Sheet in a Shear Flow	54
H.Okamoto and T.Sakajo(RIMS, Kyoto Univ.)	
P-29 Bifurcation of the Thermal Convection between Differentially Rotating Spheres	55
S.Yanase(Faculty of Engi., Okayama Univ.)	
J.Mizushima(Faculty of Engi., Doshisha Univ.)	
K.Araki(Faculty of Sci., Kyoto Univ.)	
P-30 Experimental Investigation on New Surfaces with Turbulent Drag Reduction	56
N.Akino, K.Takase, S.Kubo and R.Hino(Dept. of High Temp. Engi., JAERI)	
K.-S.Chi(Univ. Nottingham)	
P-31 Degenerate Bifurcation in a Thermal convection	57
K.Fujimura(ASRC, JAERI)	
R.E.Kelly(UCLA)	
P-32 Nonlinear Bifurcation Study of Unstably Stratified Plane Poiseuille Flow	58
H.-S.Li(ASRC, JAERI)	
P-33 Internal Friction Measurements of Mo and W after Low-temperature Irradiation	59
H.Tanimoto, H.Mizubayashi and S.Okuda(Inst. Mat. Sci., Univ. Tsukuba)	
P-34 Ion Solid Interactions and Their Application to Light Element Analysis	60
P.Goppelt-Langer, S.Yamamoto, Y.Aoki, H.Takeshita and H.Naramoto (Dept. Mat. Development, JAERI)	
P-35 Extended Boltzmann Equation for Describing Irreversible Transport	61
Y.Taji(ASRC, JAERI)	
P-36 Magnetocaloric Effects in Oxide Superconductor($\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$)	62
M.Watanabe and T.Iwata(ASRC, JAERI)	
P-37 Ion Irradiation Effects in $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$, Thin Films	63
N.Ishikawa(ASRC, JAERI)	

P-38	¹²¹ Sb and ⁵⁷ Fe Mössbauer Spectroscopy of 3d-transition-metal Pnictides	64
	J.Nakamura, K.Asai and N.Yamada(Univ. Electro-communications)	
	Y.Kobayashi and F.Ambe(IPC)	
P-39	Superconductivity of CeRu ₂	65
	R.Settai(Faculty of Sci., Osaka Univ.)	
	E.Yamamoto and Y.Ōnuki(ASRC, JAERI)	
P-40	Solid State Properties of CeRu ₂ Ge ₂	66
	E.Yamamoto and Y.Ōnuki (ASRC, JAERI)	
	N.Metoki(Dept. Mat. Sci. Engi., JAERI)	
	H.Ikezawa(Univ. Tsukuba)	
P-41	Properties of Some Ternary Uranium Alloys	67
	S.Okayasu, Y.Kazumata and M.Ugajin(Dept. Mat. Sci. Engi., JAERI)	
P-42	New Reduced Niobate Superconductors	68
	A.Nakamura(Dept. Chem. Fuel Res., JAERI)	
P-43	Super-heavy Element Search Experiments by α xn Reaction at RIKEN ..	69
	M.Kurokawa(Faculty of Sci., Rikkyo Univ.)	
P-44	Nuclear Structure of Rapidly and Superdeformed nuclei	70
	Y.R.Shimizu(Faculty of Sci., Kyushu Univ.)	
P-45	Search for Neutron-rich Unknown Rare-earth Nuclides Using the Gas-jet Coupled JAERI-ISOL	71
	M.Tsukada, S.Ichikawa, A.Osa, Y.Nagame, N. Shinohara, H.Iimura, I.Nishinaka and Y.Hatsukawa(Dept. Radiatiosopes, JAERI)	
	M.Asai, M.Shibata, H.Yamamoto and K.Kawade(School of Engi., Nagoya Univ.)	
P-46	Description of Nuclear Collective Motion by the Interacting Boson Model	72
	N.Yoshinaga (Saitama Univ.)	
P-47	JAERI Recoil Mass Separator and Synthesis of New Heavy Nuclei	73
	H.Ikezoe(ASRC, JAERI)	
P-48	Study of Well-deformed Isomer in ¹⁷⁴ Hf by Using Unstable Nuclear Beam	74
	T.Morikawa(ASRC, JAERI)	
P-49	Semiclassical Distorted Wave Model Analysis of Nucleon-induced Multistep Direct Reactions in Continuum	75
	M.Kawai and Y.Watanabe(Kyushu Univ.)	
P-50	Study on Flows of Nucleons and Fragments by AMD	76
	A. Ono and H.Horiuchi(Faculty of Sci., Kyoto Univ.)	

P-51	Extension of QMD and Its Application to the Low Energy Heavy-ion Collisions	77
	T.Maruyama, K.Niita and A.Iwamoto(ASRC, JAERI)	
P-52	Study of the Intermediate-energy Nucleon-nucleus Reactions by the QMD	78
	S.Chiba, K.Niita, T.Maruyama, T.Fukahori, H.Takada and A.Iwamoto (ASRC, JAERI)	
P-53	Simulation of ^3He -Ne-Ar Nuclear Pumped Laser Oscillation	79
	K.Nakahara, C.Hayashi and A.Kuwako(Toshiba)	
	N.Yamanaka and M.Nakazawa(Faculty of Engi., Univ. Tokyo)	
P-54	Development of Quick Measurement Method with High Position-resolution for Neutron Flux Distribution by Using Optical Fiber	80
	C.Mori(School of Engi., Nagoya Univ.)	
P-55	High Energy X-ray Response of Nb-based STJ Detectors	81
	K.Ishibashi, T.Noda M.Hashimoto and K.Maehata(Kyushu Univ.)	
	H.Nakagawa, H.Akoh and S.Takada(ETL)	
	T.Nakashima and H.Shimizu(KEK)	
	M.Yoshizawa(SIT)	
	M.Katagiri(ASRC,JAERI)	
P-56	Application of Scintillating Optical Fiber	82
	T.Torii, T.Emoto, T.Nozaki and H.Ando(PNC-OEC)	
P-57	Experimental Study on Nuclear Pumped Laser of ^3He -Ne-Ar Gas Cells	83
	M.Nakazawa and N.Yamanaka(Univ. Tokyo)	
	M.Katagiri, T.Kakuta, H.Yamagishi and K.Sakasai(ASRC, JAERI)	
P-58	Improvement of Energy Resolution of Superconducting Tunnel Junction X-ray Detectors	84
	M.Kishimoto, M.Ukibe, M.Katagiri and M.Nakazawa(ASRC, JAERI)	
P-59	In-core Monitoring by Using Optical Fiber	85
	K.Sakasai, T.Kakuta, M.Katagiri and M.Nakazawa(ASRC, JAERI)	
P-60	Neutron Crystallography in Biology and Its Topics	86
	N.Niimura(ASRC, JAERI)	
P-61	Neutron Diffraction from HEW-lysozyme Crystal	87
	Y.Minezaki(ASRC, JAERI)	
P-62	Neutron Diffractometer for Bio-crystallography, BIX(Nautilus)	88
	I.Tanaka(ASRC, JAERI)	
P-63	The Development and Application of an Imaging Plate Neutron Detector	89
	Y.Karasawa(ASRC,JAERI)	

P-64	Mutation Induction Using Ion Beam-irradiated Pollen of Nicotiana Tabacum L	90
	M.Inoue and H.Nishimura(Kyoto Pref. Univ.)	
P-65	Biological Effects in Normal Human Cells by Accelerated Carbon- and Neon-ion Beams	91
	M.Suzuki, T.Kanai and Y.Kase(National Inst. Radiological Sci.)	
	M.Watanabe(Nagasaki Univ.)	
	T.Kato(Medical School, Osaka Univ.)	
	F.Yatagai(IPC)	
P-66	Analysis of Mutation Induced by Heavy-ion at Base Change Level	92
	F.Yatagai and F.Hanaoka(IPC)	
	Y.Kagawa, A.Kobayashi and M. Hirano(Toray)	
	M.Suzuki and Y.Kase(National Inst. Radiological Sci.)	
	T.Kato(Medical School, Osaka Univ.)	
	M.Watanabe(Nagasaki Univ.)	
P-67	Ion Beam-induced Mutations in Arabidopsis Thaliana	93
	N.Shikazono, Y. Yokota, A.Tanaka, H.Watanabe and S.Tano (ASRC, JAERI)	
P-68	Biological Effects of Ion Beams on Arabidopsis Thaliana	94
	A.Tanaka, Y.Yokota, N.Shikazono, H.Watanabe and S.Tano (ASRC, JAERI)	
PDP-1 Multi-terawatt Amplification of Ultra Short Laser Pulses:		
	Breaking 50 fs Barrier	95
	K.Yamakawa(ASRC, JAERI)	
	C.P.J.Barty(UCSD)	
PDP-2	Formation of Annular Eclipse Nuclei	96
	T.Maruyama(ASRC, JAERI)	



「第1回先端基礎研究シンポジウム」 H7.3.23

1. 先端基礎研究センターの研究概要

先端基礎研究センターの研究概要

先端基礎研究センター長 伊達 宗行

先端基礎研究センター（以下単にセンターと言う）は平成5年4月に12の研究グループをもって発足し、その後平成6年度に1グループを追加して現在13グループとなっている。また、平成7年度には更に1グループの発足を予定している。

これらの研究を大別すれば(1)放射場科学（6件）、(2)重元素科学（4件）、(3)基礎原子科学（4件、予定の1件を含む）となる。各グループの研究概要についてはセンターパンフレット等に示されているのでここでは述べないが、いずれもほぼ順調な滑り出しをもって今日に至っている。なお、これらを支援する事務機構は基礎研究推進室に集約されている。

センターの発足後約2年を経た今日、その研究成果はさまざまな形で出始めている。そこでこれを機に内外の関係する研究者にその成果を公表すべきであると考え、各方面のご了解、ご賛同を得たのでシンポジウムの形で討論の場を設けることとした。

このシンポジウムはいろいろな意味でこれまでの“原研シンポ”とは若干異なっている。まずオーラルセッションであるが、これまでの原研シンポでは総合的成果を前面に出す傾向があるのに対し、鋭角的発見にポイントをおいて述べてもらう。各テーマの主題は主としてそれらの発見に対応するキーワードで書かれている。第2の特徴はポスターセッションにある。ここではセンターメンバーの論文に加えて他大学、研究所や原研の他の部の関連研究者による招待ポスター論文が提示されている。招待講演とすればどうしても年配者が登場することが多くなるのでこれをやめ、全国の研究現場の若手に気軽に参加していただこうという配慮からである。幸いにも多数の興味ある論文が寄せられているようである。また、特定課題討論というディベートセッションを設け、注目される新しい課題についていろいろな角度から問題を見つめる、という試みを準備している。それぞれがミニシンポの形をとるであろう。

センター全体を通観すると、この2年間の主な成果は次のように要約される。工藤グループの超原子価分子、岩田（後に岩瀬）グループの放射線物性と電子励起はその成果の核心部がすでにセンター発足前に出されていたこともあって発足直後の刺激材料でもあった。センター独自の成果第一号は新村グループの中性子イメージングプレートの成功である。抜群の特性を示すこの検出器はまたセンターとしてのプレス発表第一号でもあった。

ほぼ同じころであるが放射光研究の佐々木グループは、ある種のスペクテーター・オージェ電子が常識に反して入射エネルギーに依存するという現象を発見した。スペクテーター（傍観者）のはずの電子が意外にも深入りしていた、という話は人間臭くて面白い。

昨年末、溶液化学の吉田グループから重要な発見の報告があった。それは超臨界二酸化炭素が意外にもウランを極めて高い効率で選択的に取り込むという事実であった。これは基礎科学としての面白さとともに、将来の応用分野に広い可能性を提供するものである。

1995年初頭の現在、以上がセンターにおけるビッグ3の研究成果である。なお、これ以外にも岩本グループのQMDと核反応、あるいは中沢グループの耐放射線光ファイバーなど多くの成果、あるいは新しい可能性の報告が寄せられている。その詳細は本シンポジウムにふんだんに盛り込まれている。厳しい評価も含めて関連諸兄姉のご感想をいただきたいものと思っている。

2. 研究成果報告

2.1 スペクテータ・オージェ電子

放射光表面化学研究グループリーダー 佐々木 貞吉

オージェ電子は、励起光のエネルギー($h\nu$)に依らず運動エネルギーが一定とされている。ところが深い内殻の共鳴励起実験において、オージェ電子ピークが $h\nu$ に依存したり、分裂を起こすなどの現象が次々と見い出されている[1]。現象の一端を紹介するとともに、原因を考察する。

硫酸リチウムにおける $S\ 1s \rightarrow 3p^*$ の共鳴励起に伴う KL_2, sL_2, s オージェ電子スペクトルの $h\nu$ 依存性を図1に示す。 $h\nu$ を共鳴励起(~2483 eV)に合わせると、ピーク強度は10 - 20倍にはね上がる。また、2485 eV付近の $h\nu$ において、ピーク分裂が認められる。これらは、それぞれ、スペクテータ・オージェ電子(非占軌道に励起電子を保持した状態からのオージェ電子)、ノーマル・オージェ電子に起因する。ピーク位置について $h\nu$ 依存性を調べると図2のようになり、スペクテータ・オージェ遷移では、 $h\nu$ とともにピーク位置が高エネルギー側へシフトする。また、 $h\nu$ に正比例し、オージェ崩壊でありながら光電効果やラマン散乱に似た奇妙な振る舞いを示す。金属、半導体を含め、様々な物質についてシフトエネルギーを求め、次の傾向のあることを確かめた。(1) スペクテータ・オージェシフト現象とその大きさは、元素それ自体とは無関係である。(2) 誘電体ではシフトエネルギーが大きくなる。(3) ピーク分裂は、誘電体特有の現象で、金属及び半導体など、導電性の大きい物質では起こらない。

以上のことから、スペクテータ・オージェシフトは次のように理解される。誘電体では、励起先の非占軌道が巾の広い伝導帯を形成する。共鳴励起に伴う励起電子は、バンド内遷移により直ちに伝導帯の底に落ち込むと考えられる。このときの緩和エネルギーがスペクテータ・オージェ電子に付与されると、運動エネルギーが増加する。従って、励起電子が伝導帯の天井に達するまで $h\nu$ シフトが続くことになる。一般に、誘電性が大きい物質ほどギャップ・エネルギーが大きくなるとともに、伝導帯の巾も広がる。同じタイプの共鳴励起では、誘電性が大きい物質ほどシフトエネルギーが大きくなる傾向にあり、上記の理解が正しいことを示唆する。

[1] 佐々木、原子力工業、41(3), 27(1995) 及び引用文献

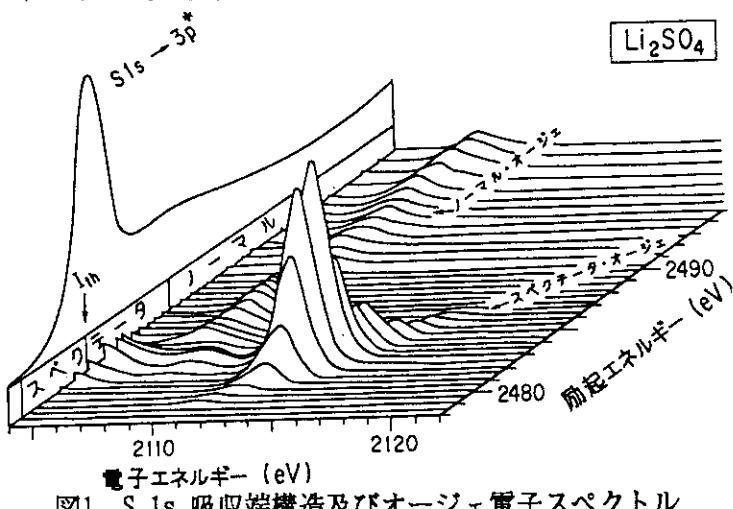


図1 S 1s 吸収端構造及びオージェ電子スペクトル

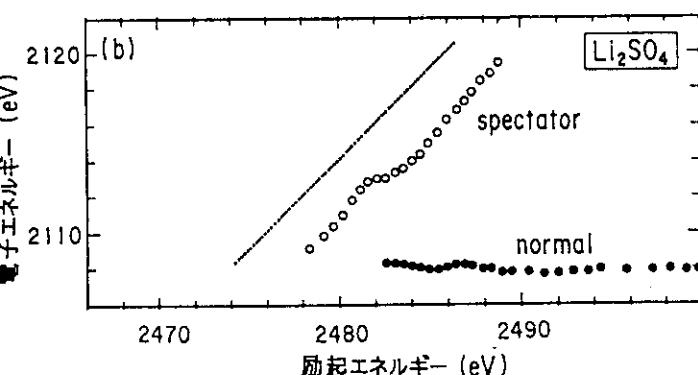


図2 $S(KL_2, sL_2, s)$ オージェ電子エネルギーの $h\nu$ 依存性

2.2 超臨界二酸化炭素によるウラン分離

アクチノイド溶液化学研究グループリーダー 吉田 善行

原子力の科学技術がさらに発展するために、より高性能なアクチノイドの分離法、検出法が待望されている。アクチノイド溶液化学研究グループでは、新しい原理に基づくアクチノイドの分離法と検出法の開発、それに必要なアクチノイドの溶液化学の基礎研究を進めている。最近、分離法に関する以下の研究において、優れた選択性を有し、原子力分野への適用性が高い幾つかの原理、手法を見出すことができた。

- (1) 超臨界二酸化炭素を媒体とする抽出分離法[1]
- (2) 水相／有機相界面での促進イオン移動反応を利用する電解分離法[2]
- (3) イオンサイズ選別機能を有する試薬を用いる選択的溶媒抽出分離法[3]

本発表ではこれらのうち、トピックスとして「超臨界二酸化炭素を用いる水溶液中からのウラン等の抽出分離」について紹介する。なお本成果の詳細についてはポスター発表P-04でも取りあげるのでその要旨も参照されたい。

二酸化炭素のような気体は、温度を下げたり圧力をかけると液体あるいは固体になるが、ある一定の温度、圧力（臨界温度、臨界圧力）以上では液化も固化もせず、ちょうど中間的な状態、つまり気体とも液体ともつかぬ状態（超臨界状態）になる。超臨界状態の流体は、気体よりも多量に、また液体よりも速やかに物質を溶解できるという特徴を持つ。二酸化炭素の臨界温度、圧力はそれぞれ31°C、73気圧であるため、比較的容易に超臨界状態を達成することができる。また二酸化炭素は常温、常圧下では安定で無毒な炭酸ガスであるので、簡便な装置を用いて液体、固体状の他の物質から分離することができる。

いま溶液中から金属イオンを分離するために汎用されている溶媒抽出法において、有機溶媒の代りに、二酸化炭素超臨界流体を用いることができれば、上記のような特色に基づく多くの利点を持った新しい分離法が期待できる。本研究では、超臨界状態の二酸化炭素を抽出媒体として用いて、硝酸水溶液からウランや希土類元素の分離挙動を調べた[1]。

その結果、硝酸溶液中のU(VI)イオンを、60°C、150～350気圧で2～3%TBP（トリ-*n*-ブチルリン酸）を含む超臨界二酸化炭素(SFCO₂)中に抽出できることを明らかにした。希土類元素(III)イオンはこの条件下では抽出されないので、ウランをこれらから分けて回収することができる。溶液中からウランを除いたのち、TBP濃度を25～30%に高めたSFCO₂を抽出媒体として用いることにより、希土類元素を水溶液中から抽出分離できた。すなわち溶液試料中の金属を選択的に逐次分離することができた。金属を抽出分離した後、抽出媒体を常温、常圧に戻すことによって、CO₂は炭酸ガスとして揮散するので、抽出物から媒体を容易かつ迅速に分離できた。溶媒抽出法で用いる有機溶媒の代りにSFCO₂を用いる本手法は、有機溶媒に起因する廃液の発生量を極力低減できるので、使用済燃料の再処理や高レベル廃液の群分離法として、高い可能性を有している。

[1] S. Iso ら, Chem. Lett., 印刷中; [2] Z. Yoshida ら, J. Alloys Comp., 213/214 (1994) 324; [3] Y. Meguro ら, Radiochim. Acta, 65(1994) 19.

2.3 超原子価分子

分子化学研究グループリーダー・東北大学教授 工藤 博司

第二、第三周期元素と水素との共有結合では、オクテット則が成り立つ。メタン (CH_4)、水 (H_2O)、硫化水素 (H_2S)などではこの基本則どおり結合軌道に8個の原子価電子が存在する。しかし、これらの水素原子をリチウムで置き換えると、事情は一変する。予想を超える数のリチウム原子が結合した CLi_6 、 Li_3O 、 Li_3S 、 Li_4S などの超リチウム化分子が生成する。これらの分子は形式的に9個あるいは10個の原子価電子をもつ。しかも、これらの過剰な原子価電子を有する超原子価分子の方がオクテット則に従う分子 CLi_4 、 Li_2O 、 Li_2S よりも熱力学的に安定である。例えば、 CLi_6 分子が解離して CLi_4 を与える反応 [$\text{CLi}_6(g) \rightarrow \text{CLi}_4(g) + \text{Li}_2(g)$] は吸熱反応 ($\Delta H_f^\circ = 274 \pm 11 \text{ kJ/mol}$) となる[1]。

超原子価化分子の探索と熱力学量の測定には分子ビーム分圧分析装置を用い、分子構造と安定性については非経験的分子軌道計算による理論的検討を加えた。これまでに、前述の超リチウム化分子に加えて、 Li_2CN および Na_2CN など新しい形式の超原子価化分子を見いだすとともに、その結合状態を明らかにした。

理論計算によると、 Li_3S の9個の原子価電子の配置は $(5a_1)^2(3e)^4(6a_1)^2(7a_2)^1$ 、 Li_4S の10個の原子価電子の配置は $(6a_1)^2(3b_1)^2(7a_1)^2(3b_2)^2(8a_1)^2$ となる。これらの原子価電子のうち8個はオクテット分子である Li_2S と同様に S-Li結合を形成する。 Li_3S 分子では $7a_2$ 軌道に1個、 Li_4S 分子では $8a_1$ 軌道に2個存在する過剰の原子価電子は Li-Li 結合を形成する。その軌道は下図に示すように分子全体を包み込むように広がり、分子の安定化に寄与する[2]。

[1] H. Kudo, Nature 355 (1992) 432.

[2] H. Kudo, K. Yokoyama and C.H. Wu, J. Chem. Phys. 101 (1994) 4190.

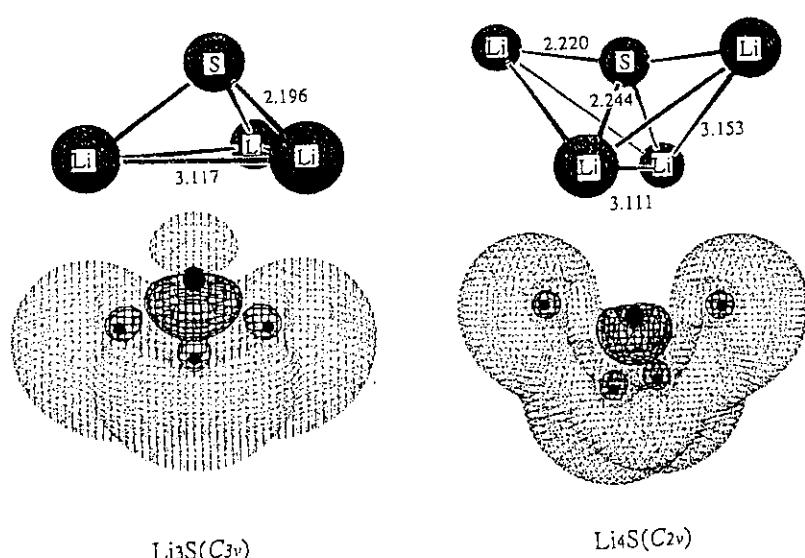


図 Li_3S および Li_4S 分子の構造と最高被占分子軌道の描写

2.4 分子動力学法で核反応はどこまで解明できるか

ハドロン輸送研究グループリーダー 岩本 昭

原子核物理学の研究の歴史は、E.Rutherfordによる α 粒子散乱の実験まで遡ると間もなく1世紀近くになるが、複雑な核反応を計算することは困難で、現在に至るも簡単な反応以外は現象論を用いるしかない。困難さの第1の原因は核子や中間子がクォークとゲルオンでできた複合粒子であることに起因する相互作用の複雑さで、第2は、原子核が有限個の核子の集合体であるまさにそのことに由来している。特に複雑な核反応のように数十、数百の粒子が同時に関与して組み替えが起きる現象を正確に計算することは大変難しい。我々は最近進展が著しい分子動力学の手法を拡張することにより、この困難な問題の解決に取り組んでいる。

原子核反応の場合に我々が用いる手法をQMD法(Quantum Molecular Dynamics:量子分子動力学法)と呼ぶ。一般の古典分子動力学との違いは、第1に各々の核子を質点や剛体球にとるのでなくガウス型の波束とすること、第2には核子間の相互作用のうち平均場の効果を表す“柔らかい”相互作用と、衝突項に対応する“硬い”相互作用の2種類を導入すること、そして第3には、衝突に際してパウリ禁止の条件を課すことである。

陽子数Z、中性子数Nの原子核の基底状態を作るのに、先ずA = Z + N個の核子の位置及び運動量を任意に与え、これをQMD法のA体連立ニュートン方程式に従い時間発展させる際に、徐々にエネルギーを減少させるという、simulated dynamical annealingの手法で求める。フェルミ粒子系の特徴であるパウリ効果を取り入れた我々の模型で、軽い4N核の基底状態を求めるところ1のようになる。ここでは、2個の陽子と2個の中性子とでアルファー粒子が作られ、そのアルファー粒子が正多面体の頂点に位置する特別な配位が実現されている。

実際に核反応の確率を計算するためには、このQMDによる計算と、それより遙かに長い時間スケールでの現象を記述する統計模型を結合して計算する。これまでに様々な標的核への陽子入射の核反応を系統的に解析し、その結果100MeVから4GeV程度までのデータを統一的に再現した。既存の模型ではうまく捉えられなかった複合核反応、前平衡反応、カスケード反応という代表的な反応機構の移り変わりの全体像が明らかにされた。さらに精密化した模型による研究も同時進行中であり、現在までに軽い核から重い核まで共通のパラメーターでその基底状態を再現することに成功した。この模型を用いて、今まで適用例がない超低エネルギー重イオン反応での核融合や核分裂過程の研究や、高エネルギーでのマルチフラグメンテーション反応の研究を進めている。

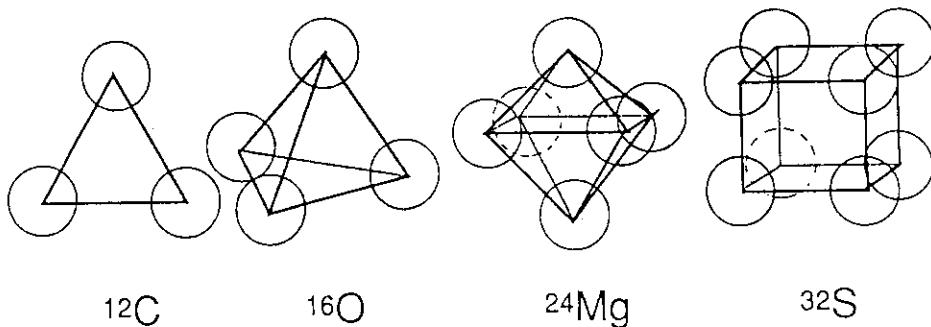


図1 軽い核のアルファー粒子構造。マルはアルファー粒子を表す。

2.5 照射効果と電子励起

極低温放射線物性研究グループリーダー 岩瀬 彰宏

イオンや電子線などの高速荷電粒子が固体に照射されると、そのエネルギーは、固体の原子との直接衝突する過程（弾性衝突）と、粒子の飛程に沿って電子を励起する過程（非弾性衝突）を通じて失われていく。金属においては、従来、放射線との相互作用は、もっぱら弾性衝突過程によってのみ議論されてきた。我々は、金属においても電子励起の密度が高い時は、電子励起による照射アニーリングが起こることを高エネルギー（～100MeV）イオンを用いた極低温照射実験により見い出した[1]。その後、いろいろな種類のターゲット金属による実験を行った結果、この現象は、金属の電子格子相互作用と密接な関係のあることが判った[2, 3]。さらに、ある種の金属では、電子励起による原子のはじき出しが起こることも見い出した[4]。この現象の断面積が電子的阻止能のほぼ2乗に比例する実験事実は、はじき出しがクーロン爆発のメカニズムによるものであることを強く示唆する。これらの結果をふまえて、我々は、95年度から、東海研タンデム加速器にあらたに設置された極低温イオン照射装置を用いた実験により研究の新展開を目指す。講演では、まず、今までに我々の研究グループにおいて得られた、金属の照射損傷における電子励起効果についてレビューを行い[5, 6]、今後の研究計画についても述べる。

我々は、また、高温超伝導体と荷電粒子との相互作用における電子励起効果の研究も行っている。これまでに、高エネルギー重イオン照射によって高温超伝導体の格子定数が異常に大きくなることが判った。この現象と、高密度電子励起によるスパイクと酸素濃度の変化との関連などについて考察中である[7]。

- [1] A. Iwase, S. Sasaki, T. Iwata and T. Nihira; Phys. Rev. Lett. 58(1987) 2450.
- [2] A. Iwase, T. Iwata, S. Sasaki and T. Nihira; J. Phys. Soc. Jpn. 59(1990) 1451.
- [3] A. Iwase, T. Iwata, T. Nihira and S. Sasaki; Mater. Sci. Forum 97-99(1992) 605.
- [4] A. Iwase, T. Iwata and T. Nihira; J. Phys. Soc. Jpn. 61(1992) 3878.
- [5] 岩瀬彰宏、岩田忠夫、仁平猛；日本物理学会誌 48(1993) 274.
- [6] A. Iwase and T. Iwata; Nucl. Instrm. Methods; B90(1994) 322.
- [7] N. Ishikawa et al. 本シンポジウム ポスターセッション
to be published.

Radiation Effects and Electron Excitation in Metals and High-Tc Superconductors.

Akihiro Iwase

2.6 耐放射線光ファイバー

量子計測研究グループリーダー・東京大学教授 中沢正治

量子計測グループでは、核励起レーザーなどの光技術や超伝導など量子現象を用いた放射線計測法の開発を進めている。光技術を放射線計測に使う場合、信号伝送の光ファイバーの耐放射線性向上が必須であり、この点で革新的な光ファイバーを開発した。従来より光ファイバーの耐放射線性の開発研究は国内外で積極的に進められてきた[1]。今回の成果を耐放射線特性の各年代毎における改良の歴史として図1に示す。結論から先に言うと、中性子照射量 10^{19}n/cm^2 、 γ 線照射量 10^4Gy まで使用でき、動力炉の炉心の厳しい環境 ($10^{14} \text{n/cm}^2 \text{s}$)においても利用可能というものであり、更に $100\sim1000$ 倍程度まで延長できそうである。

光ファイバーの放射線照射、特に中性子照射による劣化は、シリコンの反跳に伴って生じる欠陥やOH基の生成などによるものと考えられ、従来はファイバー中のOH基を制御することで回復を図っていたが、あまり効果がないことからフッ素(F)を添加し顕著な欠陥修復効果を得たものである。また、光ファイバー製造時に導入される微小欠陥を少なくする工夫も効果的であった。原研大洗のJMTR炉心で照射した結果を図2に示す。

耐放射線性の良好な光ファイバーは、放射線の強い原子炉、核融合炉、加速器、核燃料サイクル施設などの計装システムを大きく変革する可能性を有し、次のようなことが可能となる。

- (1) 光ファイバーによる分布センシングが可能。例えば長い配管系に沿った温度、圧力、流量、放射線等の強度分布測定が可能となり、安全監視性能の向上が期待される。
 - (2) Activeな計測診断が可能。光ファイバーによる炉内監視以外に外部からレーザー光を導入し照射中のサンプルの機能変化をその場で観察するなどの診断が可能となる。
- このような特徴を活かし、原子炉施設の計装システムを一変させる研究「原子炉光プロジェクト」を計画中である[2]。

[1] 例えば、矢作編、原子力学会誌、27、768(1985)

[2] 中沢編、光ファイバーの量子計測への応用、JAERI-Conf 95-002(1995)

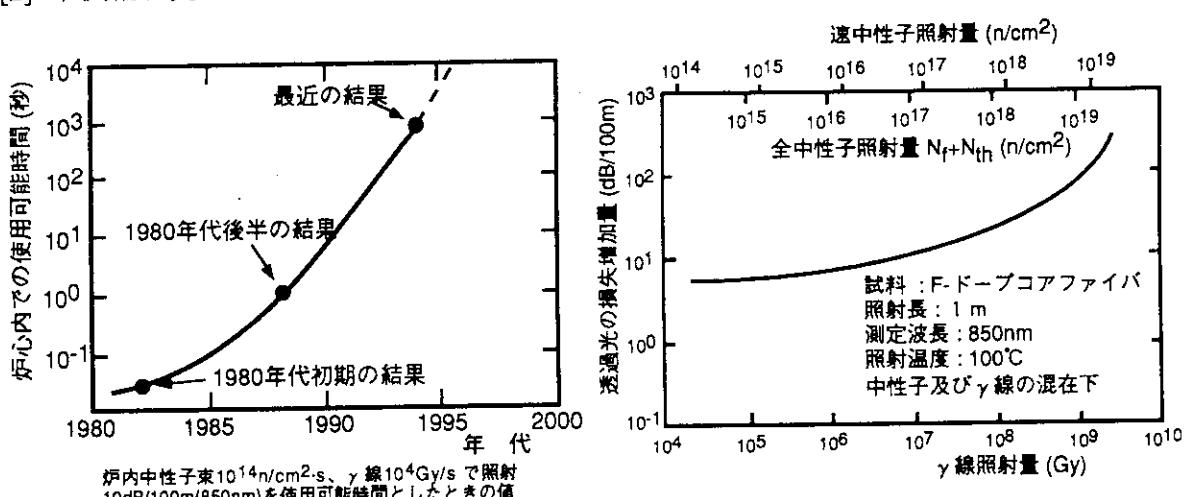


図-1 光ファイバーの耐放射線特性進展

図-2 JMTR炉心での照射結果

3. 特定課題討論 I

3.1 異方的超伝導体について

(広島大・理) 藤田敏三

CeやUの金属性の化合物では、低温になると、しばしば混成効果によって引きずり出された電子が伝導に参加し始めることがある。このような場合、伝導に与る電子の有効質量 m^* は大きくなり、「重い電子」と呼ばれる。有効質量の増大はフェルミ面における電子の状態密度 $N(0)$ の増大を意味し、電子比熱係数 γ に反映される。この重い電子系がさらに低温で超伝導を示すことがある。

BCS超伝導体では、 $N(0)$ が大きいほど超伝導に有利で転移温度 T_c も高くなる。しかし、図1で解るように、CeやUの化合物の場合、 T_c と γ は他の超伝導体とは逆の相関を示しており、これらの超伝導体の異常性を示唆している。特に超伝導電子対が、等方的なs波対称性でない可能性が、これらの化合物でしばしば指摘されてきた。

電子対がs波対称性をもつと言うことは、運動量空間でどの方向にも有限な超伝導エネルギーギャップがあり、比熱を始めとする各種の物理量の低温の振る舞いに、そのギャップを越えた励起に対応する指数関数的な温度依存性が現れる。ところが、CeCu₂Si₂、UBe₁₃、URu₂Si₂など、多くのCeやUの化合物超伝導体で、各種の物理量が低温で温度の巾乘 T^n で記述できるような振る舞いをする。これは、運動量空間で方向によりエネルギーギャップが変化し、フェルミ面上の特別な点や線上でギャップが消える、いわゆるギャップレス超伝導状態の可能性を示している。特にスピンが $S=1$ のp波対称性をもつ電子対や、 $S=0$ のd波対称性をもつ電子対による超伝導の実現している可能性が話題になっている。このような異方的超伝導は、どの系においてもまだ確定したと言える段階ではないが、銅酸化物の高温超伝導体をも含め電子相関の強い系におけるエキゾチックな超伝導の起源になっている可能性が極めて強くなっている。

異方的な電子対形成の結果と見なされる興味深い現象として、UPt₃等で見られる多重超伝導相がある。また、最近話題になっているUPd₂Al₃やCeRu₂のH_{c2}近傍で見られる異常な磁気的振る舞い（磁場方向に秩序パラメータの空間的変調を受けたFulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov状態ではないかとも言われている）も、異方的電子対と関連しているかも知れない。これらの興味深い超伝導状態についてレビューする予定である。

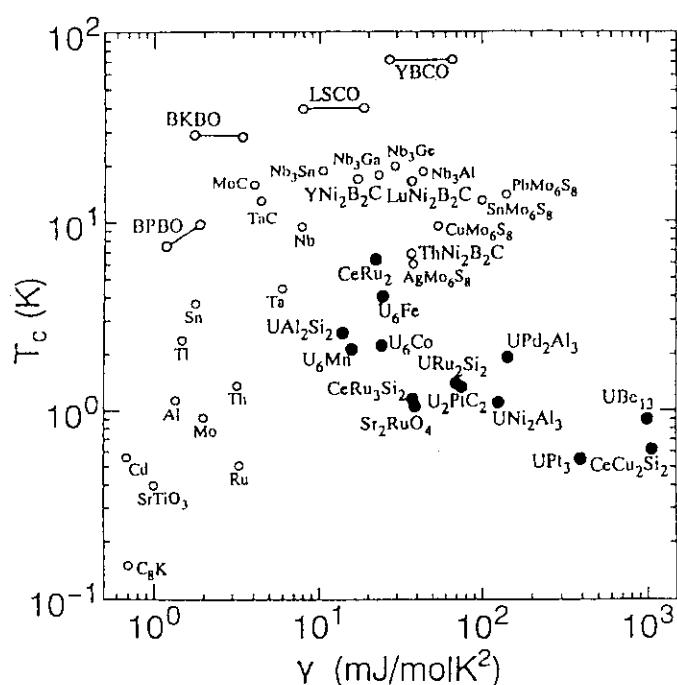


図1 超伝導転移温度 T_c と電子比熱係数 γ

Anisotropic Superconductor

Toshizo Fujita (Department of Physics, Hiroshima University)

3.2 UPt₃の研究の現状

(原研・先端研、大阪大学・理学部) 大貫惇睦

UPt₃（六方晶系）は典型的な異方的超伝導体である。すなわち、0.5K付近で2つの超伝導遷移温度を持ち、超伝導状態での諸物理量の温度依存性はBCSの指数関数型と異なり、温度のべき乗則に従う。その温度依存性から、超伝導のオーダーパラメータ、すなわち超伝導ギャップ状態にはノードが存在し、c面内に線上に、c軸方向に点状に存在すると提案されている。さらに温度と磁場の相図にはA、B、Cの3つの超伝導相が存在する。ここで、遷移温度の分裂は、5Kで発現する $0.02\mu_B/U$ という小さい磁気モーメントの反強磁性状態によって、非s波状態の縮退がとけるためである。それは加圧下でA相が消滅して2つの遷移温度が1つになったとき、反強磁性状態も消滅するからである。

最近の進展は、(1) 加圧下での超伝導状態の相図が、シバラムら（バージニア大学）によって作成された。(2) また、超伝導の上部臨界磁場 H_{c2} の異方性が測定され、底面内での角度依存性がA相とC相で逆であることが、ケラーら（グルノーブル）によって明らかにされたことである。シバラムらの相図における問題点は2.6kbar以上で遷移温度が2つ存在することである。この実験結果は本当に正しいのか、再度確認しなければならない。

このような欧米の進展の中にあって、我々は残留抵抗比が約540の純良単結晶を育成し、研究をスタートさせた。図1の比熱曲線に示すごとく、明瞭な2つの超伝導遷移温度（0.58Kと0.53K）が観測される。現在、次の6つの実験を柱として研究が進展している。(1) 精密磁化の磁場依存性（榎原俊郎 北海道大学）、(2) 加圧下でのNMR（北岡良雄 大阪大学）、(3) 磁束の直接観測（西田信彦 東京工業大学）、(4) 超音波（後藤輝孝 東北大学）、(5) 中性子散乱（遠藤康夫 東北大学）、(6) ドハース・ファンアルフェン効果によるフェルミ面の研究（大貫惇睦 大阪大学）

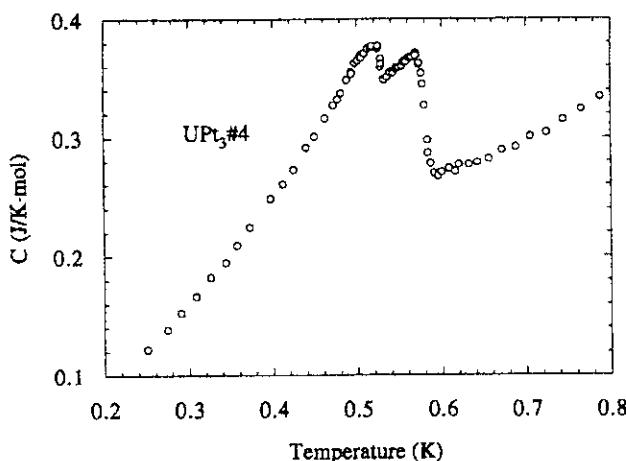


図1 UPt₃の比熱曲線

3.3 UPd₂Al₃の5f電子の性質と超伝導

(東北大学・理学部) 稲田佳彦、石黒晶子、木村純子、佐藤憲昭、澤田安樹、小松原武美

UPd₂Al₃は反強磁性長距離磁気秩序 ($T_N=14K$) と超伝導状態 ($T_c \approx 2K$) が共存し、常伝導領域から求めた電子比熱係数 γ が 145mJ/molK^2 の重い電子系化合物である[1]。

この物質の大きな特徴の1つは、秩序モーメントの大きさが $0.85\mu_B$ あることで、同様に反強磁性と超伝導が共存する重い電子系ウラン化合物の UPt₃ ($0.02\mu_B$) や URu₂Si₂ ($0.03\mu_B$) に比べ、1桁以上も大きい。 T_c 以下の比熱やNMRの $1/T_1$ の温度変化などは温度のべき乗則に乗る変化を示し、異方的な超伝導ギャップの存在を示唆する。しかし、比熱とNMRの結果が示唆するギャップの形には食い違いが存在したり、残留 γ の評価など、より進んだ超伝導状態の研究が必要とされている。

我々は、強相関系で実現される磁性超伝導状態の研究に於て基礎的な情報となることが期待されるフェルミ面の情報を得ることを目的に、常伝導状態のフェルミ面近傍の電子状態を dHvA 効果を用いて研究してきた。図1がその結果で、L.M.Sandratskiiらのバンド計算の結果[2]と合わせて示している。計算と実験の一一致度は良く、UPd₂Al₃の5f電子は遍歴し、フェルミ面を直接形成することが初めて明らかになった。また、L.M.Sandratskiiらのバンド計算は、磁気秩序もバンド磁性で記述しており、重い電子系Ce化合物には観られない、明確な長距離バンド磁性を示すことが明らかになった。

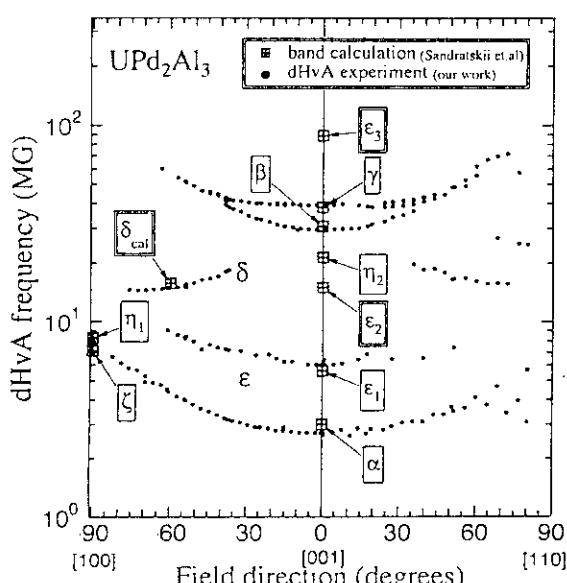


図1 dHvA効果とバンド計算の結果[2]の比較。一重四角で囲んだギリシャ文字が観測にかかっていると思われるプランチ名で二重四角は観測にかかっていないと思われるプランチ。計算と実験の一一致度は良く、UPd₂Al₃の5f電子はフェルミ面を形成する。

この結果、磁気秩序を担う5f電子が超伝導にも直接参加する可能性が非常に強くなつたが、中性子散乱実験では T_c で、モーメントの顕著な変化は観測されておらず[3]、この種の共存機構の解明は興味深い。

フェルミ面上に超伝導ギャップの大きさの地図をつくることのできる実験方法があれば、dHvA効果から得られたフェルミ面の情報との比較研究が可能である。重い電子系で観測される非BCS的超伝導の発現機構の解明には、フェルミ面の情報に基づいた研究が重要になると考えられる。これからの興味深い研究課題の一つである。

[1] C.Geibel et.al., Z.Phys.B **84**(1991)1.

[2] L.M.Sandratskii et.al.,

Phys.Rev.B, **50**(1994)15834.

[3] H.Kita et.al.,

J.Phys.Soc.Jpn., **63**(1994)726.

4. 特定課題討論 II

4.1 NEUTRON PROTEIN CRYSTALLOGRAPHY

(Los Alamos National Laboratory) Benno P. Schoenborn

The use of neutron beams for structural biology was pioneered at the Brookhaven National Laboratory in the late 1960's. From this beginning, the use of neutron techniques in biology grew rapidly. The early development of diffraction techniques for membrane and protein structure using hydrogen/deuterium exchange for phasing and contrast enhancement, was very exciting and promised to become a major tool in the analysis of membrane structures and hydrogen positions in proteins. The localisation of hydrogen bonds proved to be very valuable and led to the analysis of protein solvation. Generally, however, the number of membrane and protein structures analysed has been below expectation due in part to the lack of neutrons; lack of dedicated instrumentation; and competing priorities at the major neutron beam facilities. The often extended shutdown of research reactors and the very limited number of beam lines available for such diffraction studies, discouraged many active neutron scientists from further pursuits in this field. This was clearly discernible at the recent Neutron in Biology meeting held in Santa Fe which had a participation smaller than such a meeting ten years ago. This meeting showed, however, some major advances and prospects for new developments in Australia, Japan, UK, France and the US.

The surface of a protein is a non-trivial interface with its environment. A complete understanding of the form and function of a protein will require an evaluation of some, if not all, components of the interface. Neutron diffraction is a powerful technique in locating water molecules on a protein's surface. The evaluation of ordered water molecules within the general hydration shell will give valuable insight into the mechanisms of protein/water interactions and the interactions of a protein with its environment and substrates.

The steady progress that has been made at reactor-based sources is about to be enhanced by a quantum leap in the activity at spallation sources. Spallation sources are ideal to study protein structures and instrumentation has reached a level of sophistication that enables the unique aspects of pulsed neutron sources to be exploited.

4. 2 Construction and Diffraction Experiment Using a Neutron Diffractometer for Bio-Crystallography (BIX)

Nobuo Niimura

Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Research Institute

We have constructed a dedicated diffractometer for neutron crystallography in biology (BIX) at JRR-3M in JAERI. This paper reports the specific features of BIX and several preliminary results of diffraction experiments by the use of BIX.

Restriction for construction of BIX

The most serious restriction is to share a beam with a high resolution powder diffractometer (HRPD) which has already been equipped downstream.

Monochromator system

In order to solve the intensity problem, an intense neutron flux on a sample position becomes essential and a specially designed monochromator is indispensable. We have designed an elastically bent silicon perfect crystal which consists of 3 pieces of silicon (7mm in height, 250mm in length and 5mm in thickness, at present another piece of 15 mm in height is added). They are bent elastically by tensioned piano wires. The obtained beam divergence is 0.4 degree. The current neutron flux at the sample position is 6×10^6 n/cm²/sec.

Detector system

In order to enlarge the solid angle subtended by a sample, multiple area detectors are equipped. At the first stage, two conventional gas-filled proportional detectors (ORDELA MODEL 2250N; active area 25cm x 25cm; pixel size 2mm x 2mm) are utilized and they cover 5.5 % of the 4π effective solid angle subtended by the specimen.

As part of the project, the development of the more efficient detector such as an imaging plate (IP) for neutrons has been undertaken. We have succeeded in developing an imaging plate for neutron detector (IP-ND), where neutron converter, ⁶Li or Gd were mixed with photostimulated luminescence (PSL) material[1]. The properties are wide dynamic range 1:10⁵ and spatial resolution better than 0.2 mm. We found that the quantity of PSL created by one captured neutron depends on the kind of converters.

We have applied our IP-ND for the observation of the Bragg reflections of bio-macromolecules, a hen-egg white lysozyme single crystal, the size of which is 2x2x3 mm³. The neutron wavelength is 1.7Å. We have gotten a fine result.

[1] N.Niimura, Y.Karasawa, I.Tanaka, J.Miyahara, K.Takahashi, H.Saito, S.Koizumi and M.Hidaka, Nucl. Instr. Methods A349(1994) 521

4.3 X線回折からみた中性子回折への期待

(京大・理) 三木 邦夫

この数年来、X線結晶解析によって決定されるタンパク質立体構造の数は、飛躍的な増加を見ている。Nature誌やScience誌には、ほとんど毎号、新しい立体構造が報告されるようになつた。この原因の一つに、シンクロトロン放射光や遺伝子工学の利用などからもたらされた結晶学の方法論的進歩があげられ、NMRなど他の構造研究法の進歩と相まって、構造生物学という一分野を確立するまでに至つた。このような進展に中性子回折が含まれていいはずである。わが国においてはこれまでこの実験を行う場がなかつたが、外国の例を見れば、中性子回折は生体高分子の単結晶構造解析に、少なからぬ貢献をしてきたことは周知の事実であろう。

これまで筆者が行ってきたX線結晶解析によるタンパク質立体構造の研究との関連において、中性子回折を意識したことが少なくとも2度あった。最初のものは、化学的に修飾したヘムで再構成したミオグロビンの構造と機能を研究していたときである。ミオグロビンでは、酸素が結合するヘム鉄の周辺に極めて重要な役割をするヒスチジン残基が2つある。1つは遠位ヒスチジンと呼ばれ、自らはヘム鉄に配位しないが、鉄に結合した分子状酸素の近傍でその安定化に関与している。酸素分子に接近しているイミダゾール窒素に水素が結合していることを確認することによって、この安定化が水素結合によるものであることを直接的に証明したのが、ブルックヘブン国立研究所で行われたSchoenbornらによる中性子回折の実験であった[1]。第二の例は、光合成反応中心複合体での場合で、これは立体構造がX線結晶解析によって求められた最初の膜タンパク質である[2]。膜タンパク質を可溶化するには界面活性剤が必要で、結晶化されても界面活性剤は膜タンパク質表面に結合して存在する。しかし、正しい配向をとらないため、X線結晶解析ではこれを見ることも、また、どのくらいの量が結合しているかということを決めるることもできない。結晶内における界面活性剤の存在は、中性子回折によって直接的に立証された。RothらはグルノーブルILLにおいて、 H_2O/D_2O のコントラスト変調法による低分解能中性子回折を用いて、反応中心複合体の結晶内での界面活性剤の構造を求めている[3]。その結果、界面活性剤は膜を貫通する α -ヘリックスの周りにリング状に存在していること、結晶格子内にある結晶軸に沿って結ばれて配列していることが確かめられた。

このように、中性子回折がX線回折と相補的に用いられることによって、水素の位置に代表されるように、X線回折だけでは決定することが困難な立体構造情報を得ることができる。現在、原研のJRR-3 改造炉に建設されている生体高分子結晶構造解析用中性子回折計は、このような課題にわが国でも挑戦できる可能性を与えてくれるものである。中性子回折には結晶化などで解決すべき技術的問題も残っているが、例えば水素の位置が決定されることが、そのタンパク質の機能を理解する上でキャスティングポートを握るようなターゲットを見いだすことによって、大きなインパクトを与える研究が可能となる。そのような研究が新しい中性子回折計から生まれることを期待したい。

- [1] S.E.V. Phillips and B.P. Schoenborn, Nature, 292, 81-82 (1981).
- [2] J. Deisenhofer, O. Epp, K. Miki, R. Huber, and H. Michel, J. Mol. Biol., 180, 385-398 (1984).
- [3] M. Roth, A. Lewit-Bentley, H. Michel, J. Deisenhofer, R. Huber, and D. Oesterhelt, Nature, 340, 659-662 (1989).

5. ポスターセッション

P-01 ネプツニウムの環境動態に関する基礎研究

(京大・原子炉) 森山裕丈

ネプツニウムをはじめとする超ウラン元素の地中移行挙動は、高レベル放射性廃棄物深地層処分の安全性評価上きわめて重要な要素である。原子力先進諸国の処分開発プログラムでもこれらを重視した研究開発体制が組まれている。しかしながら、これらの元素は一般に処分環境下の水溶液中で複雑な化学挙動を示し、その解明はいまなお不十分である。超ウラン元素は、その特有の化学的な性質から、酸化還元条件に鋭敏であり、また水溶液中で加水分解反応や錯生成反応を起しやすいのである。

超ウラン元素の加水分解反応や錯生成反応に関しては、既にいくつかの溶存種の生成やそれらの熱力学データが報告されている。しかしながら、報告された熱力学データ間の一致は必ずしも良くなく、場合によっては同様の実験データでありながら互いに異なるイオン種の生成を報告していることもある。このような状況に至った原因の一つは、従来の実験のほとんどが良く制御されたとは言えない実験条件のもとで行われたことにあると考えられる。

著者らは、従来から、処分環境下の水溶液中における超ウラン元素の化学挙動を明らかにするため、特にネプツニウムについて実験的な研究を進めてきた。その際、酸化還元電位、pH、ガス雰囲気の制御に特に留意し、ネプツニウムの溶解度や吸着挙動を測定してきた。その結果、ネプツニウムの加水分解反応や炭酸イオンによる錯生成反応などについて新たな知見を見出している[1,2]。図1および図2は成果の一例である。

[1] M. I. Pratopo et al., Radiochim. Acta 51 (1990) 27.

[2] H. Moriyama et al., ibid. 66/67 (1994) 73.

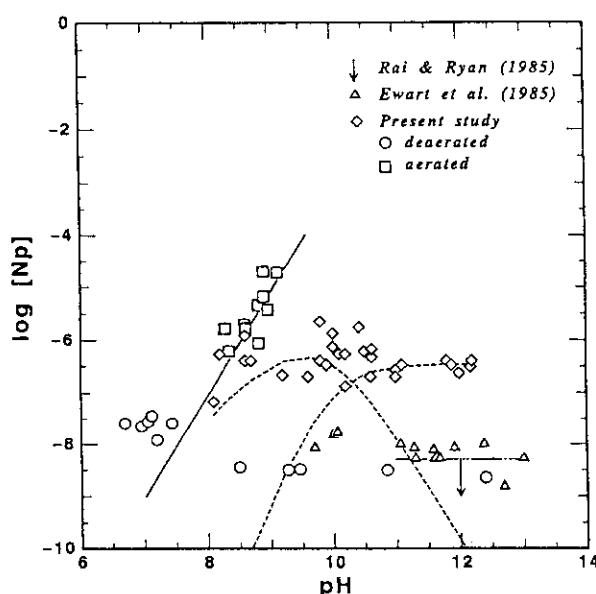


図1. Np(IV)の溶解度にみられる炭酸錯体生成の効果. □および◇印は炭酸イオン共存下、他は炭酸イオンの共存しない系での溶解度である。

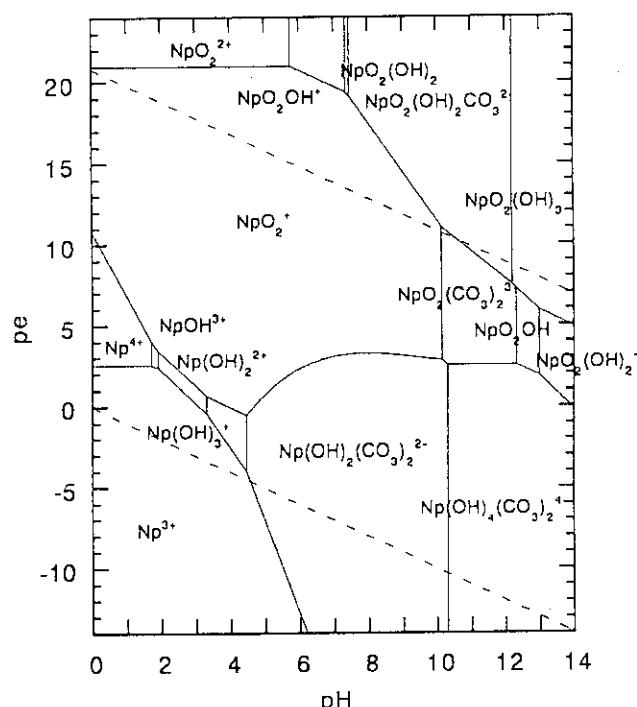


図2. NpのpH-pe図. 全炭酸濃度: 5×10^{-3} M.

P-02 アクチノイド元素の原子価調整技術の開発

(日立・エネ研) 深澤哲生、鶴志田守、河村文雄

使用済原子燃料の再処理プロセスにおいて、現在はアクチノイド元素のうちウランとプルトニウムを回収し、他のアクチノイド元素（マイナーアクチノイド：MA）は高レベル廃液として処理している。一方、高レベル廃液の管理負担軽減及び資源の有効利用を目的として、長寿命のMAを高レベル廃液からあるいは再処理プロセスで回収することも考えられている。[1] 現在の再処理ピューレックスプロセスで用いられている溶媒抽出剤TBPは、4価及び6価イオンであるU, Puを抽出し、1価、2価、3価イオンであるFPを抽出しない性質を有している。したがって、MAを4価または6価に原子価調整すれば、TBP抽出により容易にFPから分離し、U, Pu側に回収できる。

以上の観点より、筆者等は、MAの中でも比較的長半減期のNp及びAmの回収を目的に、硝酸溶液中のアクチノイド元素の原子価調整挙動について、基礎的な研究を実施している。まず、Npの原子価調整方法について示す。Npは硝酸溶液中で4価、5価、6価の原子価状態で存在し、最も安定な非抽出性の5価を4価または6価に原子価調整する方法を開発した。実験結果の一例を図1に示す。5価のNpは硝酸ヒドロキシルアミンを還元剤に、白金黒を触媒とすることにより、30分程度で99%以上4価に還元できた。また、5価のNpは尿素を亜硝酸スカベンジャーとした光化学的方法により、3時間程度で99%以上6価に酸化できることを確認した。これらの酸化還元は、純硝酸中だけでなく、模擬高レベル廃液中でも可能であった。原子価調整された4価または6価のNpは安定であり、TBP抽出によりNd (FPの代表) から分離できた。[2]

Amの場合、硝酸溶液中で3価が非常に安定であり、強力な酸化剤を必要とするが、ペルオキシ二硫酸を酸化剤に、Agを触媒とすることにより、6価に酸化できた。酸化効率は硝酸濃度の増加とともに低下するが、1N硝酸中において6価のAmはTBPに抽出され、Ndから分離可能であることを確認した（図2）。Amの酸化操作でNpも6価に酸化され、Amと同様にTBPに抽出される。

[1] 動力炉・核燃料開発事業団、第27回報告と講演の会 予稿集、平成6年10月13日。

[2] T.Fukasawa, et al., Proc. GLOBAL '93, Seattle, Sept. 12-17 (1993).

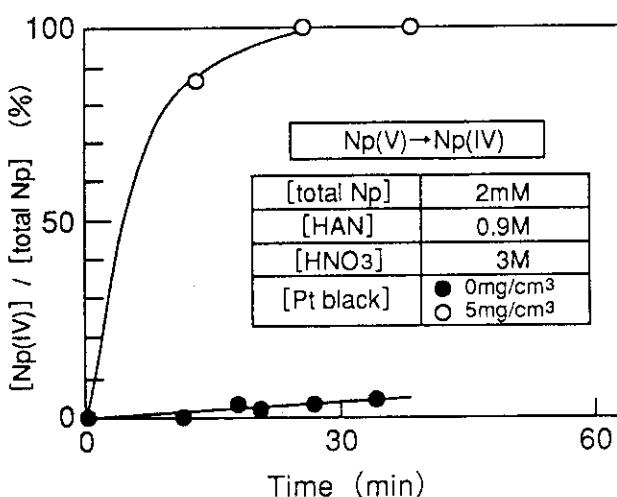


図1. Np原子価調整の実験結果

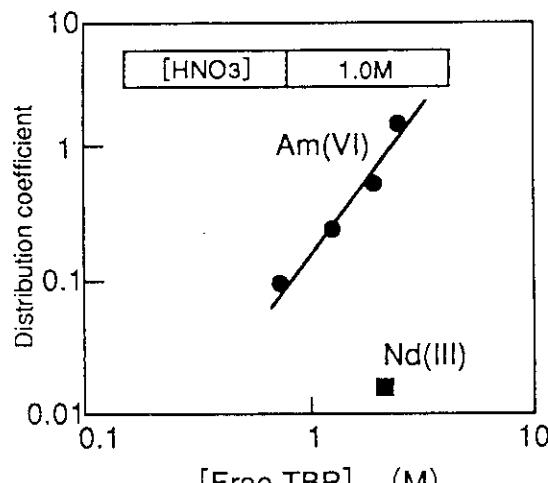


図2. 酸化後のAmの分配係数

P-03 ランタノイド-二座配位有機リン化合物錯体の配位特性

(原研・プロセス化学) 矢板 毅、館盛勝一

近年ランタノイド・アクチノイドの分離において、二座配位有機リン化合物が用いられている。分離を司るメカニズムの解明は、抽出剤の分子設計等に対して非常に有用である。我々のグループでは、このような観点に立って抽出錯体に関する構造情報や電子状態の研究を開始している。本研究は、NMR、FT-IR等によりランタノイド-二座配位有機リン化合物 (Diphosphine DioxideおよびCMPOなど) 錯体の配位特性 (配位数、結合状態) 等の知見を得ることを目的としている。

錯体合成は、クロロホルム溶媒中で、約1:3、4(硝酸ランタン:配位子)を308Kにて反応させ、目的とする錯体を得た。さらに、1M硝酸溶液からの溶媒抽出により形成される抽出錯体との比較も行った。NMR測定は、Varian·unity 400 plusにより、¹H, ¹⁵N, ³¹Pおよび¹³⁹Laについて行った。他に、FT-IRおよびラマンの測定も行った。Diphosphine dioxideの³¹PNMRスペクトルにおいて(図1) 3、4配位錯体は、金属に配位していないもののピークからそれぞれおよそ800、1200Hz低磁場側に観測された。これらに対応するFT-IRの $\nu = 0$ の伸縮振動に基づくピークは、それぞれ1153, 1160cm⁻¹に観測された(図2)。これより配位子は、3配位錯体において4配位錯体に比べ強く金属に配位していると考えられる。また硝酸イオンによるピークが、¹⁵NNMRにおいて3配位錯体で4配位錯体に比べ高磁場側に観測されること、またラマンスペクトルでは4配位錯体で1320および1450cm⁻¹に観測されることなどから、硝酸イオンは、4配位錯体では単座配位、3配位錯体では二座配位している可能性が示唆された。本抽出剤を用いたランタノイド抽出において、軽重ランタノイド間の抽出特性が大きく異なる。軽ランタノイドは主に4配位錯体、重ランタノイドは3配位錯体を形成することが明らかとなっており、今後このような配位特性と抽出特性との関連性について考察する事は非常に興味深いことであると思われる。

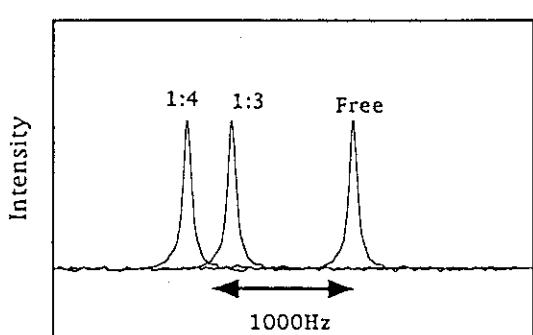


図1 ³¹PNMR spectra for the complex of lanthanum-diphosphine dioxide.

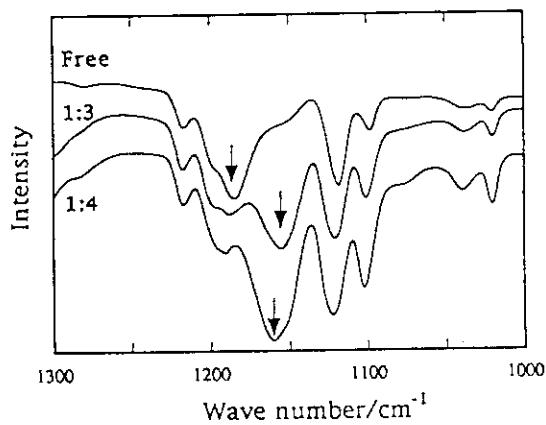


図2 FT-IR spectra for the complex of lanthanum-diphosphine dioxide.

Coordination properties for complex of lanthanoid-bidentate organophosphorous compound.
YAITA, Tsuyoshi and TACHIMORI, Shoichi

P-04 超臨界二酸化炭素によるウラン、希土類元素の選択的抽出分離

磯 修一・目黒義弘・木村貴海・○吉田善行・*立川圓造
(アクチノイド溶液化学研究グループ、*東海研究所)

ピューレックス再処理工程に代表される溶媒抽出分離工程で、媒体として用いられる n -ドデカンの代りに、超臨界二酸化炭素流体 ($SF-CO_2$) を適用することができれば、(1)常温、常圧下で気化する CO_2 を抽出物から瞬時に完全分離できる、(2)有機溶媒起源の廃液を著しく減量できる、(3)媒体に毒性や引火性がなく取扱が易しい、などの得難い特色を持った分離法が展望できる。本研究ではこの新しい分離法の開発を目的として、トリブチルリン酸 (TBP) を含む $SF-CO_2$ による、硝酸溶液中からのウラン及び希土類元素の抽出分離法を検討した。

装置の概略を図1に示す。ウラン(VI)を含む試料硝酸水溶液を抽出容器に採る。シリングポンプで加圧(例えば150気圧)することによって超臨界状態にした二酸化炭素を、少量(2~3%)のTBPを混ぜながら試料溶液中に一定流速で送り込む。ウランはTBPと強く結合し疎水性の化合物を形成するため、水溶液中から $SF-CO_2$ 相に抽出される。ウランを含んだ $SF-CO_2$ 相は、別室の捕集溶液中に導かれて常圧に戻り、そこで気体(炭酸ガス)となって系外に放出される。ウラン-TBP化合物は相分離して、容器内に捕集される。表1に各種組成の硝酸溶液からのウランの抽出率を示す。ここで%抽出率は、当初採取したウラン量と、抽出操作後の試料溶液中に残ったウラン量とから算出した値である。硝酸リチウムが共存する高濃度の硝酸溶液中からウランを効率よく分離できた。捕集されたウランとTBPとは容易に分離できるので、ウランを純粋な形で取りだせる。試料溶液中に希土類元素のユーロビウム(III)やネオジム(III)などが混在していても、これらは上記の条件下では抽出されない。なお、25~30% TBPを添加した $SF-CO_2$ を用いれば、同様な操作で希土類元素を抽出できるので、異種元素の逐次分離も可能であることが明らかになった。

今後、超ウラン元素や各種核分裂生成物の分離挙動について総合的な知見を蓄積し、再処理や群分離のための新しい分離法としての最適条件等を検討する予定である。

[1] K.E.Laintzら, Anal. Chem., 66(1994)2190, [2] S.Isoら, Chem. Lett., 印刷中.

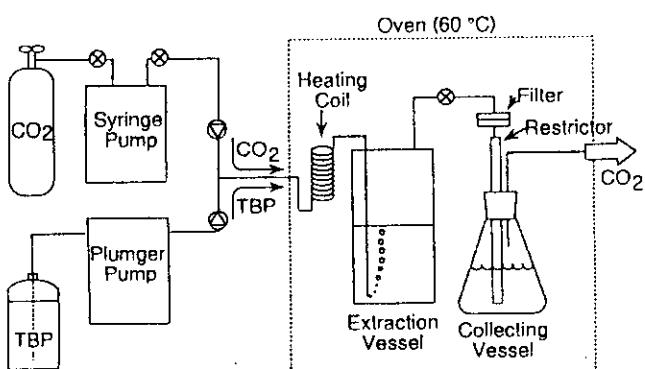


図1 超臨界流体抽出装置

表1 3% TBP/二酸化炭素超臨界流体¹⁾による硝酸+硝酸リチウム水溶液²⁾からのウラン(IV)の抽出(60°C, 150気圧)

Aqueous media	U found (μg)		% Extraction ³⁾
	extraction vessel	collection vessel	
9 M HNO ₃	43	186	82
6 M HNO ₃ + 3 M LiNO ₃	5	190	98
6 M HNO ₃	26	205	89
3 M HNO ₃ + 3 M LiNO ₃	7	227	97
3 M HNO ₃	53	171	78
1 M HNO ₃	130	101	46
0.1 M HNO ₃	220	<2	9

1) Volume of CO_2 : 32.3 ml at 150 atm, 25°C.

2) Sample solution, 5.0 ml. with 240 μg U(IV).

3) Calculated from the amount of U remained in the extraction vessel.

Selective Extraction of Uranium and Lanthanides in Nitric Acid Solution into Supercritical Carbon Dioxide Fluid Containing TBP.

Syuichi ISO, Yoshihiro MEGURO, Takaumi KIMURA, Zenko YOSHIDA, Enzo TACHIKAWA

P-05 レーザー誘起蛍光寿命測定によるランタノイド(III) 及びアクチノイド(III)の水和構造の研究

(原研先端基礎研究センター-アクチノイド溶液化学研究グループ、*フロリダ州立大化学部)
木村貴海、加藤義春、*G. R. CHOPPIN

水溶液中のイオン反応における基本単位は"水和"イオンである。これまで、イオンそのものの電子構造や性質に関してはよく研究されてきたが、水和イオンの構造についての知識はまだ少ない。我々は、第1水和圏の水分子数(水和数)の決定から水和イオン及び錯体の構造を探ることを目的に、 f 電子の逐次充填で特徴づけられるランタノイド[Ln](III)及びアクチノイド[An](III)の蛍光寿命と水和数 n_{H_2O} との関係を調べた[1,2]。

D_2O-H_2O 混合溶液中の Sm^{3+} , Eu^{3+} , Tb^{3+} , Dy^{3+} 及び Cm^{3+} をNd:YAG/色素レーザーで励起し、それらの蛍光寿命 τ_{obs} を測定した。各イオンの τ_{obs} の逆数 k_{obs} は H_2O の体積比 $[H_2O]/(D_2O+H_2O)$ に比例することから、いずれの励起エネルギーも配位した水分子のOH振動により緩和されることを明らかにした。さらに、 n_{H_2O} が9の外圏錯体、臭素酸塩 $[M(BrO_3)_3 \cdot 9H_2O]$ の k_{obs} の測定から、各イオンの H_2O 中における n_{H_2O} をつぎのように算出した。

$$\begin{array}{lll} Sm^{3+}, 9.0 \pm 0.5 & Eu^{3+}, 9.1 \pm 0.5 & Tb^{3+}, 8.3 \pm 0.4 \\ Dy^{3+}, 8.4 \pm 0.4 & Cm^{3+}, 9.1 \pm 0.5. & \end{array}$$

これらの結果をX線回折法による結果[3]とともに図1に示す。蛍光寿命により求めた n_{H_2O} はX線回折の結果よりも若干大きな値を示すが、原子番号の増加とともに n_{H_2O} が9から8に変化する傾向は一致した。また、Ln(III)とAn(III)の比較から、 n_{H_2O} はイオンの電子配置ではなく、その大きさによって支配されることが示唆された。

つぎに、 k_{obs} の測定から n_{H_2O} を決定するために、配位数が既知のアミノポリカルボン酸錯体9種 $[Sm^{3+}, Eu^{3+}, Tb^{3+}, Dy^{3+}]$ 、及び水和構造が既知の化合物5種 $[Cm^{3+}]$ を用いて、各イオンの $k_{obs}(ms^{-1})$ と n_{H_2O} の相関関係を導出した。

$$\begin{array}{ll} n_{H_2O}=0.026k_{obs}(Sm)-1.6 & n_{H_2O}=1.1k_{obs}(Eu)-0.71 \\ n_{H_2O}=4.0k_{obs}(Tb)-1.0 & n_{H_2O}=0.024k_{obs}(Dy)-1.3 \\ n_{H_2O}=0.65k_{obs}(Cm)-0.88 & \end{array}$$

これらにより、従来対象となっていた Eu^{3+} と Tb^{3+} に加え、新たに Sm^{3+} , Dy^{3+} 及び Cm^{3+} の錯体中に残存する n_{H_2O} の評価が可能となり、 Cm 錯体の水和構造の研究を行った[1]。

[1] T. Kimura and G.R. Choppin, *J. Alloys Comp.*, 213/214 (1994) 313. [2] T. Kimura and Y. Kato, *J. Alloys Comp.*, in press. [3] A. Habenschuss and F.H. Spedding, *J. Chem. Phys.*, 73 (1980) 442.

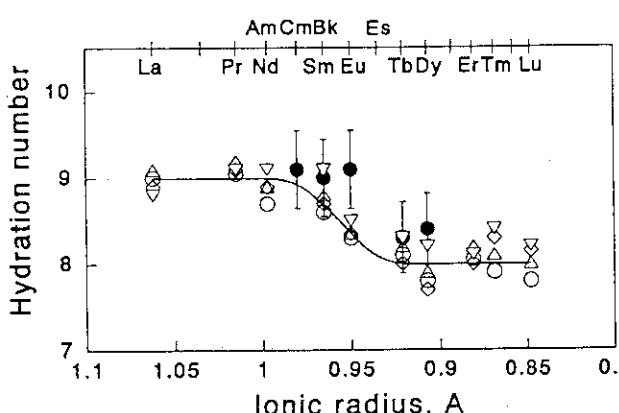


図1、蛍光寿命(●)及びX線回折(△,○,
◇,▽)[3]により測定した水和数 n_{H_2O} と
イオン半径の関係: △; $d_{H_2O-H_2O}=4.5$ Å,
 $d_{Cl-H_2O}=3.25$ Å, Cl-H₂O 6配位: ○; 4.0
Å, 3.28 Å, 9: ◇; 4.0 Å, 3.23 Å, 7: ▽;
束縛条件なし.

P-06 アクチノイドイオンの二液相間移動反応-新しい分離法、センサー技術

(原研・アクチノイド溶液化学研究グループ、・京都工芸繊維大学)

北辻章浩、青柳寿夫、宇野清一郎、武藤博、吉田善行、・木原壮林

水と有機溶媒のような相互に混じり合わない二つの溶液相が接するとき、溶存しているイオンや分子は、その両相中における化学ポテンシャルの差に基づいて両相間に分配する。あるイオンの二液相間の分配は、電気的中性則を満たすために、反対符号の対イオンの移動を伴わなければならない(図1のイオン対抽出)。しかし、水相／有機相界面に電位差を与えることによっても、水相から有機相に、あるいはその逆方向にイオンを移動させることができる(図1の電解イオン移動)。この場合、対イオンの共存は必要ではなく、電気的中性則を満たすために電極での“電子”的授受がおこる。この様な電解イオン移動反応をイオンの分離に利用できれば、(1)任意の電解電位を厳密に設定することができるのと、目的イオンの移動を制御しやすく、高い分離係数が得られる、(2)対イオンの添加を必要としない、等の他法では得難い利点を有する手法となりうる。

アクチノイドイオンのほとんどは親水性が高いため、単独では水相から有機相に移動しにくいが、イオンと強く錯形成する中性の試薬を有機相に共存させることによって、より容易に移動するようになる(図1の促進イオン移動)。この促進の度合いは、錯形成剤とイオンとの結合の強さ、生じた錯体の疎水性の強さに左右される。このことを利用すると、適した錯形成剤を選択することによってアクチノイドイオンの選択的な電解イオン移動分離が可能になる。本研究で用いた多座配位フォスフィンオキサイド(PO)誘導体(図2)は、アクチノイドイオンに対する高い錯形成能をもち、疎水的なフェニル基を有することから、イオン移動を促進する錯形成剤として有効である。また、イオンサイズ識別機能が期待できる、官能基間の距離が異なった多座配位錯形成剤であるため、イオンの選択係数の向上にも可能性を有する。これまでに、各種酸化状態のU, Np, Puの水相／有機相界面イオン移動反応を、イオン対抽出法及び液々界面イオン移動ポーラログラフィーを用いて調べ、BDPPM等の錯形成剤により6価の UO_2^{2+} , NpO_2^{2+} , PuO_2^{2+} が著しい促進効果を受けるこ

とがわかった[1]。このような促進移動反応を利用すると、新しい電解膜分離法や、液膜型アクチノイドイオン選択性電極の開発が可能であることを明らかにした。

[1] Z. Yoshida, et. al., J. Alloys Comp. 213/214, 324 (1994)

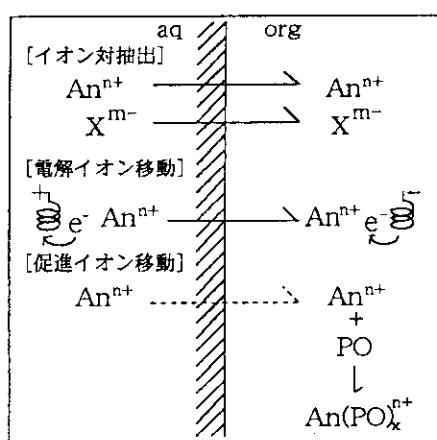


図1 二液相間イオン移動反応

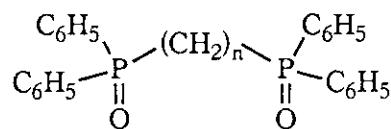


図2 本研究に用いた多座配位フォスフィンオキサイド試薬
 $n=1$; Bis(diphenylphosphoryl)methane (BDPPM)
 $n=2$; Bis(diphenylphosphoryl)ethane (BDPPE)

P-07 環状化合物のサイズ選別作用によるアクチノイド(Ⅲ)の高選択的分離

(原研、先端基礎研究センター アクチノイド溶液化学研究グループ)

目黒 義弘、北辻 章浩、武石 秀世、吉田 善行

Am^{3+} や Cm^{3+} などのアクチノイド(Ⅲ)イオン(An^{3+})はそれぞれのイオンサイズの間に大きな差がなく、化学的挙動が類似している。このためこれらの高選択的な分離は分離化学における普遍的課題であり、イオン同士のわずかな挙動の差を識別し、それを利用する分離法の研究が進められている。本研究は、環状化合物で、サイズ選別機能を持つクラウンエーテル(CE)類を抽出剤として用いる An^{3+} の高選択的抽出分離法の開発を目的とする。ここではCEとともに β -ジケトン(HA)を共抽出剤とする協同抽出反応を調べ、優れた選択性及び抽出効率が得られる新しい抽出反応、すなわち協同効果イオン対抽出(SIPE)を見いだした。なお、協同抽出は大きな配位数(通常8又は9)を持つ An^{3+} イオンに効果的である。

ベンゼンなどの非極性な有機溶媒中への抽出では、 An^{3+} は3分子の β -ジケトンイオン(A⁻)と1分子のCEからなる中性錯体($\text{AnA}_3(\text{CE})$; 図1(a))として協同抽出(SE)された[1]。一方、1,2-ジクロロエタンなどの極性の高い有機溶媒を用いると、 An^{3+} は2分子のA⁻と1分子のCEからなる1価陽イオン性錯体($\text{AnA}_2(\text{CE})^+$; 図1(b))としてSIPE機構で抽出された[2]。SIPE機構による An^{3+} の抽出では、SE機構による場合と比較して、高い抽出効率が得られると同時に、金属間の分離係数が3~20倍向上した(表1)。このようにSIPEは An^{3+} やランタノイド(Ⅲ)の高選択的分離に有力な抽出反応であることが判明した。

図1にSE及びSIPE反応で生成、抽出される錯体の構造をそれぞれ(a)、(b)に示した。(b)のような $\text{AnA}_2(\text{CE})^+$ 錯体では、CEはその環の中により深く An^{3+} を取り込んでおり、その結果、CEの環の空孔径と金属イオン半径との適合性の度合いが錯体生成、そして抽出率によりはっきりと反映される。このような $\text{AnA}_2(\text{CE})^+$ 錯体の生成におけるCEのイオンサイズ選別作用の顕著な発現が、SIPEでより高い抽出率と大きな分離係数が得られる理由である。なお図1の構造推定にあたっては、レーザー誘起蛍光分光法で中心金属(Eu^{3+} を用いた)の蛍光寿命を測定し、その結果から求めた錯体中の配位水分子数を参照した。

[1] Y. Meguro, et al., J. Radioanal. Nucl. Chem., 160, 435, 1992.

[2] Y. Meguro, et al., Radiochim. Acta, 65, 19, 1994.

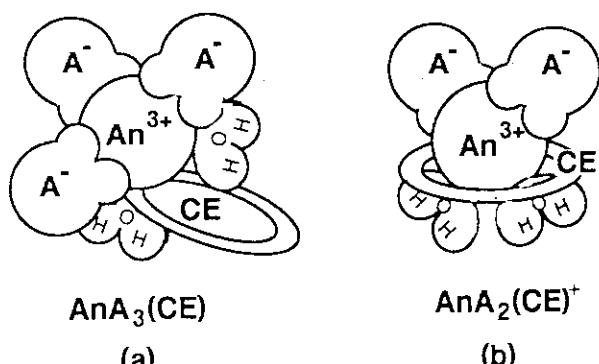


図1 中性、イオン性抽出錯体の構造

表1 Am,Cm,EuのSIPEおよびSEにおける分離係数

	SIPE	SE
Am/Cm	4.4 ± 0.4	1.3 ± 0.7
Am/Eu	39.8 ± 0.3	1.7 ± 0.7
Cm/Eu	9.1 ± 0.3	2.3 ± 0.4

HA : 2-テルペノリフロロアセトン

CE : 18-クラウン-6 エーテル

P-08 メスバウアーフォト光法のいん石学への応用

(昭和薬大薬¹、理研²、都立大理³) 遠藤和豊¹、篠永妙子²、孔 屏³、海老原 充³、中原弘道³

南極大陸で発見されたいん石は一万個を越え、地球全体で発見されたいん石の80%以上をしめている。それらのいん石は、原始太陽系の様子や進化過程を知るうえで、我々が地球で手にすることのできる唯一の物質であるために宇宙科学の研究にとって極めて重要な試料である。とくにいん石中の鉄を含む金属相の相対的な分布やその中に含まれる微量元素の分配は元素の特性、太陽星雲の凝縮過程、さらにいん石母天体の経験した熱遍歴などを強く反映するものと考えられる。また、地上に落下して発見されているものの中には 10^5 年のスケールで地球大気にさらされ、風化変質した可能性のあるいん石もあることが知られている。地球に落下した後に受けた汚染による変質を明らかにすることは、いん石に関する研究をおこなうために重要な意味をもつ。いん石中の鉄の多様な化学状態の研究はこれらの問題を解決するために極めて重要である。本研究では国立極地研より配布された16種類のH-typeコンドライトのメスバーアースペクトルよりFe(III)の相対強度とハロゲン濃度との相関を研究した。常磁性Fe(III)の存在は地球上での風化を受けたことを示すものと仮定すると、いん石中の相対強度とハロゲンとくにヨウ素の濃度との間には正の相関関係のあることがわかった(図1)。

いん石の中の鉄は、FeNi合金、トロイライトなど磁性体鉱物やシリケイト中に存在することが、明らかにされたが、いん石の種類によりそれぞれの相対存在量や化学形は異なる。相対的に存在量の少ない化学種は、試料中に含まれていても観測が難しい。この問題を解決するために磁気分離および化学分離をして、注目する化学種を部分分離あるいは濃縮することによりメスバーアースペクトルを観測した。その結果、金属相であるFeNi合金相は内部磁場の大きさからカマサイトと少量のテナイト、さらに常磁性 γ -phaseの存在が明らかになった(図2)。

- [1] K. Endo, R. Hirunuma, T. Shinonaga, M. Ebihara and H. Nakahara, Hyperfine Int., 91, 557 (1994).
- [2] T. Shinonaga, K. Endo, M. Ebihara, K.G. Heumann and H. Nakahara, Geochim. Cosmochim. Acta, 58, 3735 (1994).

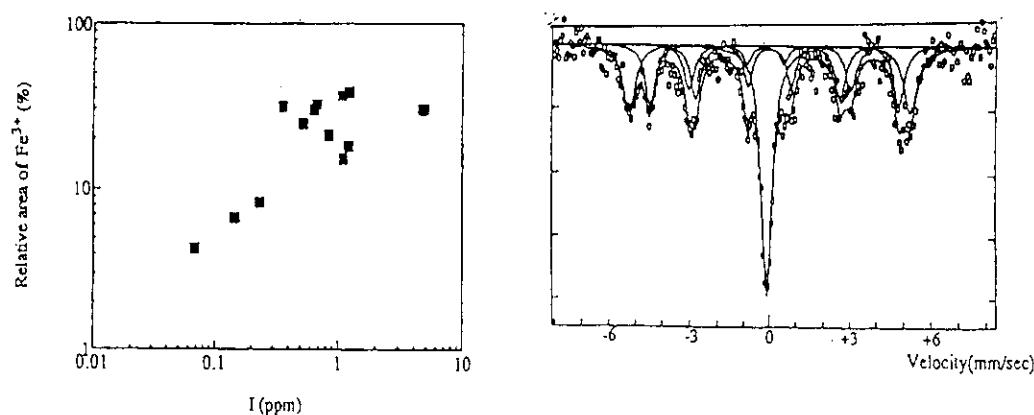


図1 ヨウ素濃度とFe(III)の相関

図2 ALH77231の磁気分離と部分的に化学濃縮した
金属相のメスバーアースペクトル

Application of Mossbauer Spectroscopy to the Study of Meteorites
Kazutoyo ENDO, Taeko SHINONAGA, Ping KONG, Mitsuru EBIIHARA and
Hiromichi NAKAHARA

P-09 ^{151}Eu メスバウアーフォト光法による凍結溶液系での光化学に関する研究[†](東京大学大学院理学系研究科) ○薬袋佳孝・山内 繁・富永 健[§]

1. メスバウアーフォト光法は固体の状態分析の手法であるが、溶液を凍結することによって、溶存化学種の存在状態に関する情報を得ることが出来る。演者らはこの点に着目して、 ^{151}Eu メスバウアーフォト光法を凍結溶液マトリックス中での光化学に関する研究に適用してきた^{1,2)}。本発表では、凍結水溶液系での Eu^{2+} の光酸化反応を中心に最近の成果を報告する。

2. テフロン製試料ホルダーに種々の組成の Eu^{2+} 水溶液をとり、液体窒素で急冷してガラス状の凍結溶液試料を得た。溶液組成によってはガラス状の凍結溶液とならない場合もあるが、以下の実験ではガラス状の試料のみを用いた。凍結溶液に対する照射には超高压水銀灯 (300–400nm) または低圧水銀灯 (254nm) を使用した。照射波長はフィルターにより選択した。メスバウアースペクトルの測定には $^{151}\text{SmF}_3$ 密封線源 (7.4GBq) を用い、試料を液体窒素温度に冷却して測定した。得られたスペクトルを最小二乗法により解析し、異性体シフト並びに面積強度を求めた。

3. 塩濃度が著しく低い場合を除いて、 Eu^{2+} 凍結溶液への照射による Eu^{3+} の生成量をメスバウアースペクトルから定量的に求めることが出来た。照射波長を変えて生成量の照射時間に対する依存性を求めた結果、 Eu^{2+} の光酸化は Eu^{2+} の 4f-5d 遷移の励起によるものであることが明らかとなった。

溶液組成に対する Eu^{3+} の異性体シフトならびに生成量の依存性についても詳細に検討した。異性体シフトの値を主な Eu^{3+} 塩と比較したところ、含水塩のパラメーターとより良好な一致がみられた。この結果は、異性体シフトの値が一次配位圈の水分子の数と関係していることを示唆している。異性体シフトの値と生成速度にも対応関係が認められ、メスバウアーパラメーターから推定される内圈配位構造が光酸化の進行と密接な関係にあることが明らかとなった。

凍結溶液中の Eu^{2+} の吸収には磁気緩和による吸収線幅の増大が認められた。混晶系における磁気緩和についての結果も考慮すると、凍結溶液マトリックス中の Eu^{2+} の分散状態についての情報がスペクトル形状から得られることが示された。

以上の結果からも明らかなように、 ^{151}Eu メスバウアーフォト光法は凍結溶液マトリックス中での化学反応の機構解明や溶存化学種のキャラクタリゼーションの手法として有力であり、今後、一層の発展が期待される。

- [1] S. Yamauchi, Y. Minai, and T. Tominaga, J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett., 93, 237–44 (1985)
- [2] S. Yamauchi, Y. Minai, T. Watanabe, and T. Tominaga, Radiochim. Acta, 61, 227–33 (1993)

[†] ^{151}Eu Mössbauer Spectroscopic Study on Photochemistry of Europium in Frozen Solution Systems[§]Yoshitaka MINAI, Shigeru YAMAUCHI, Takeshi TOMINAGA

P-10 酸化アメリシウム中におけるネプツニウムの酸化状態

原研・アクチノイドメスバウア分光研究グループ

正木信行、中田正美、佐伯正克

蛍光X線源として使用されていた二酸化アメリシウムをメスバウア線源とし、二酸化ネプツニウムを吸収体として、発光メスバウアスペクトルを低温において測定した。二酸化アメリシウム中には既報告[1]の4価と5価のNpの他に、報告に無い共鳴線が観測された[2]。この共鳴線は既報告の4価のNpとは存在状態の異なる4価であると推定される。

アクチノイド化合物中における核壊変の後遺効果は、 α 粒子が関係することが多く基礎および応用の両面から興味ある問題である。放射性壊変による欠陥生成のメカニズム、（核変換による不純物生成、壊変核の減速過程、付随する放射線の効果）を知ることは重要である。そのメカニズムは、格子定数、熱膨張係数などの物性の温度変化、時間変化を測定することにより研究されてきた。しかし、壊変核の価数分布のメカニズムなどは詳しく理解されていない。詳細な研究のために様々な分光法も適用されており、メスバウア分光法も有力な手段の1つである。後遺効果の研究には、壊変核をプローブとして用いる発光メスバウア法は有効で、壊変核の価数などの化学状態、周囲の結晶状態の知見を得ることができる。メスバウア分光法のアクチノイド系への適用例は、核的性質が非常に適している、 ^{241}Am を線源とする ^{237}Np 化合物系が多い。

用いた二酸化アメリシウムは、放射能量22.05MBqの1979年に購入された線源である。 NpO_2 粉末をエポキシ樹脂で固めたペレットを、 ^{237}Np について $34 \pm 4\text{mg/cm}^2$ の吸収体として使用した。線源、吸収体ともにクライオスタット[3]中にいれて、Wissel社製MS IIを用い、約 60mm/s の速度幅でスペクトル測定を行った。線源の温度を7-200Kの範囲で変化させた。それに従って、吸収体の温度も7-120Kの範囲で変化した。速度軸の校正は純鉄のメスバウアスペクトルを用いて行った。

85Kで得られたスペクトルには、2と27mm/sに2本の共鳴線と-10mm/sに非常に弱い共鳴線が観測された。27mm/sの共鳴線は明らかに4重極分裂していた。2本の共鳴線は文献値[1]との比較により、2mm/sを4価に、27mm/sを5価に同定した。4重極分裂を考慮したスペクトル解析から、3本の共鳴線は、シングルピークと4重極分裂したピークに分解できた。2と-10mm/sの共鳴線の強度の和と5価(27mm/s)の強度の比は、約4:6で温度変化しなかった。一方、2と-10mm/sの共鳴線の強度を比較すると、測定温度を下げるに従って-10mm/sの相対強度が大きくなつた。

-10mm/sの共鳴線は、4価の共鳴線と関係して温度変化すること、4価のアイソマーシフトの変化範囲内であることから、4価のNpであり、2mm/sのNpとは異なるサイトに存在すると考えられる。本試料は、製造されてから長期間(16年)経過した線源であるため、 10^{16} 以上の α 壊変を起こしており、二酸化アメリシウム中に多数の欠陥が存在する。本実験で見出された-10mm/sの共鳴線は、この欠陥との相互作用が大きいサイトに存在するNpと予想される。

[1] J.M. Friedt, Radiochim. Acta, 32, 105 (1983).

[2] M. Saeki, M. Nakada and N. M. Masaki, J. Nucl. Sci. Technol., 31, 864 (1994).

[3] M. Saeki, M. Nakada, N. M. Masaki, Z. Yoshida, K. Endo, Y. Minai, T. Yamashita, H.

Muto and M. Magara, Hyperfine Interact., 92, 1177 (1994).

Oxidation state of Np in Americium oxide

Research Group for Mössbauer Spectroscopy of Actinides

Nobuyuki M. Masaki, Masami Nakada, Masakatsu Saeki

P-11 凍結溶液における⁵⁷Coの同時計数メスバウア分光

(原研・基礎センター) 中田正美、正木信行、佐伯正克、(昭葉大・薬) 遠藤和豊

(序) 通常の⁵⁷Fe発光メスバウア分光法では、⁵⁷CoがEC壊変して生成した⁵⁷Fe化学種の存在状態を知ることができる。同時計数メスバウア分光法とは、⁵⁷CoがEC壊変して生成した⁵⁷Feの第2励起準位からの122keV γ 線と第1励起準位(メスバウア励起準位)からの14.4keV γ 線を同時計数することにより、生成した⁵⁷Fe化学種の時間変化をメスバウア励起準位の寿命と同程度のタイムスケール(10-300ns程度)で追うことができる方法である。本研究では、同時計数法を⁵⁷Coを加えた凍結硝酸溶液系へ応用し、生成した⁵⁷Fe化学種の検討をおこなった。

(実験) ⁵⁷Fe発光メスバウア分光法は、⁵⁷Fe濃縮(約90%) SUS310をメスバウア分光装置(Labo. Equip. Co.)で駆動させることにより測定した。同時計数メスバウアスペクトルは、新たに開発したリストモードで得た[1]。冷却は、APD製Heli-Tranを用いた。

(結果) 100Kで得られた発光メスバウアスペクトルを解析した結果、Fe(II)、Fe(III)及び磁気分裂を持つFe(III)*の3成分に帰属できた。結果を図1に示す。それぞれの相対面積強度比は、約31、37、32%であった。また、35Kで測定した結果、同様に3成分に帰属でき、それぞれ約37、16、47%であった。鉄3価の総量には、僅かな差しか見られなかつたが、Fe(III)とFe(III)*の相対量には差が見られた。Fe(III)とFe(III)*間の緩和が確認できたので、緩和速度を見積るために、同時計数メスバウアスペクトルを測定した。同時計数スペクトルでは、従来のスペクトルに加え、時間軸が加わるのでスペクトルを3次元で表すことができる(図2)。解析した結果、Fe(III)とFe(III)*間の緩和速度はメスバウアタイムスケールより速いことが明らかになった。

[1] M. Nakada, N. M. Masaki, M. Saeki, C. Sagawa, Y. Aratono and K. Endo, Hyperfine Int., 92(1994)1183.

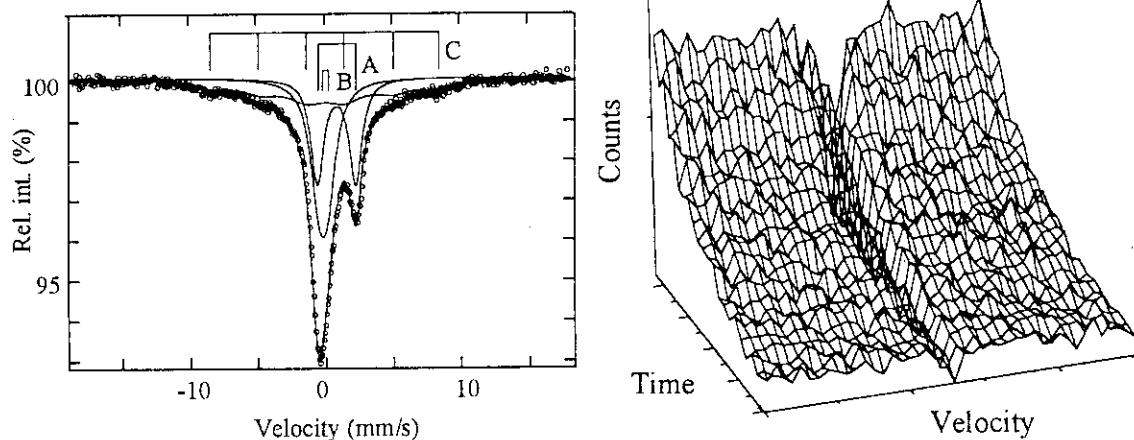


図1 約2N硝酸溶液100Kでの発光メスバウアスペクトル (A:Fe(II), B:Fe(III), C:Fe(III)*)

図2 約2N硝酸溶液100Kでの同時計数メスバウアスペクトル(3次元図)

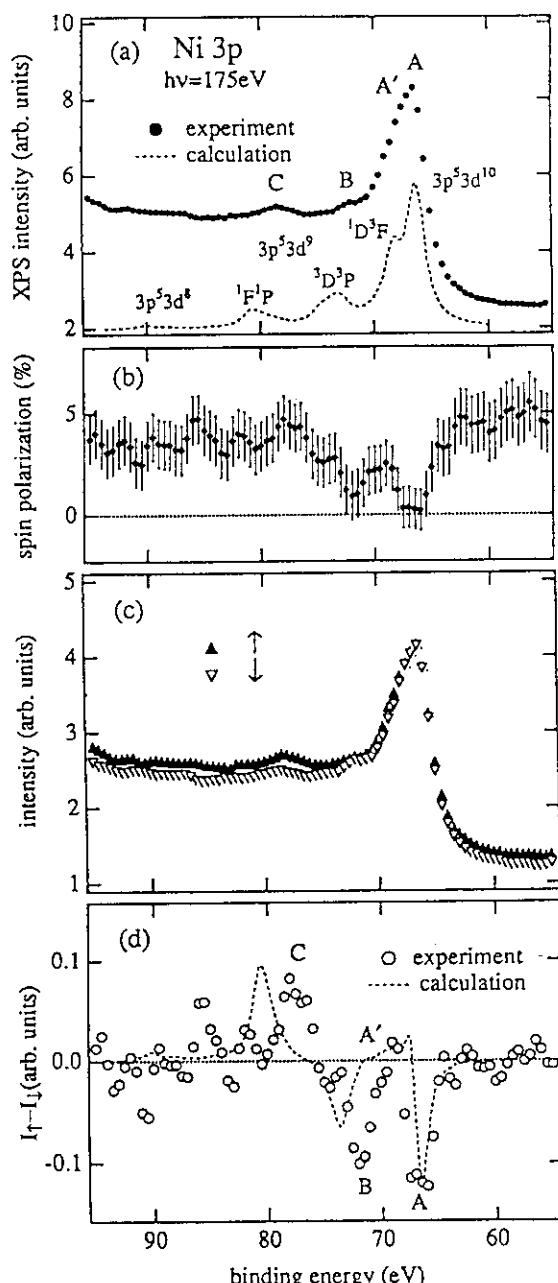
P-12 強磁性体 Niのスピン分解内殻光電子分光

(阪大基礎工、東大物性研^A) 斎藤祐児、菅滋正、柿崎明人^A

強磁性体Niの内殻光電子スペクトルが複雑なサテライト構造を示すことはよく知られているが、その起源は必ずしも明らかでない。スピン分解光電子分光は光電子のエネルギー、運動量、スピンをすべて測定する完全実験であり、スピンに依存した電子状態の知見を得ることができるので、サテライト構造の起源を直接調べることができる。実験は、KEK PF BL-19Bで、W(001)の低速電子線回折スポット強度の非対称性を利用するSPLEED detectorを用いて行った。スピン分解により測定効率が~10⁻⁴に低下するのでアンジュレーターからの高輝度放射光を利用している。試料はNi (110) 単結晶で、3p, 3s 内殻及びM₂₃VV Auger のスピン分解光電子分光スペクトルの測定を行った。有効Sherman関数は、Niからの2次電子を用いて求めた。またスピン分解に用いるLEEDスポットを増やすことにより測定効率 (figure of merit) を向上させることができた。右図にhv=175eVで測定したNi 3pの結果を例示する (図(a):スピン積分強度, (b):スピン偏極度)。いくつかのスペクトル構造 (A, A', B, C) のスピン依存が明瞭に観測された。↑スピン成分及び↓スピン成分に分離し (図(c))、それぞれの正味の強度の差分をとったものを図(d)に示す。構造A, Bは負の、Cは正のスピン偏極度を持つことが実験的に明らかとなった。とくに構造Aの負のスピン偏極は、終状態 3p⁵3d¹⁰に3p⁵3d⁹のスピン3重項成分が混ざっていることをはっきり示している。理論計算¹⁾(破線)はスピン偏極度については定性的に説明するが、3p⁵3d⁹多重項の広がりがかなり過大評価されていることがわかる。

3s 内殻 及び M₂₃VV Augerにおいてもスペクトル構造を特徴づけるスピン偏極度が観測された。スピン分解光電子分光により多体効果、混成など正確な評価が可能となった。

- 1) B.T. Thole and G. van der Laan,
Phys. Rev. Lett. 67, 3306 (1991).



Spin resolved core level photoemission spectra of ferromagnetic Ni.

Y. Saitoh, S. Suga, A. Kakizaki

P-13 c(2×2)S / Fe(100) 表面の スピン・角度分解光電子分光

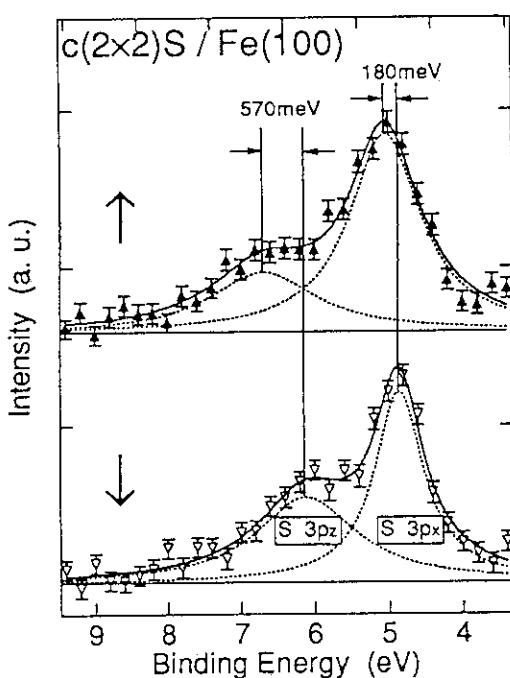
小野寛太、島田賢也^A、仙洞田剛士^B、柿崎明人、福谷博仁^B、田中慶一

東大物性研、東大理^A、筑波大物理^B

遷移金属単結晶表面上に原子・分子が化学吸着した系については、触媒機能を中心につれてこれまで数多くの研究がなされている。しかし、吸着子と基板との磁気的な相互作用については、あまり研究されているとはいえない。我々は、スピン・角度分解光電子分光(SARPES)を用いて、吸着子層と基板のそれについて、スピニ状態を含んだ電子状態を測定、解析することにより表面の示す磁気的性質を研究している。

今回は、c(2×2)S / Fe(100) 表面について測定を行った。実験は KEK PF BL-19A でモット型スピニ検出器を用い、S の表面ブリルアンゾーン (SBZ) の Γ 点で測定した。

下図に S 3p のスペクトルを示す。S 3p_z, 3p_x のどちらも交換分裂していることがわかる。また 3p_x と 3p_z のライン幅を比較すると、3p_x に比べて 3p_z の方がライン幅が広くなっている。これらはすべて、吸着子の S と下地の Fe との混成という概念によって説明できることがわかった。



Spin- and Angle-Resolved Photoemission Study of
c(2×2)S / Fe(100).

K.Ono, K.Shimada, T.Sendohda, A.Kakizaki, H.Fukutani, K.Tanaka

P-14 軟X線定在波法による半導体表面吸着原子層の構造解析

NTT境界領域研究所 杉山宗弘、前山 智、尾嶋正治

1. 研究の目的 GaAsと金属や絶縁物との界面における欠陥準位の多さが、GaAsをベースとした電子デバイスや光デバイスの特性向上の障害となっている。一方、GaAsの表面をSやSeなどの異種原子層で保護することによって、この準位密度の低減による数々のデバイス特性向上が報告されている[1]。この保護効果の機構解明を目指し、軟X線定在波法をツールとしてS/GaAs系におけるS原子層の挙動を調べることが本研究の目的である。

2. 実験方法 GaAsウエハを $(\text{NH}_4)_2\text{S}_x$ 溶液処理後に真空中に導入すると、S-Ga状態とS-As状態のS原子に覆われた表面となる。これを真空中で加熱処理するとS-Ga状態のS原子だけが残り、一原子層のS原子による規則配列した表面になる[2]。まず、GaAs(111)A, (111)B, (001)表面上のS原子位置を軟X線定在波法で解析した。次に、S/GaAs(111)Bにおいて、酸化によるS原子の挙動を新しく開発した吸収端X線定在波法で調べた。軟X線定在波実験は高エネルギー物理学研究所、放射光実験施設のNTTビームラインで行った。軟X線を入射線として用い、{111}ブレッギング反射条件の近傍で試料の角度をステップスキャンし、各点で硫黄K α 蛍光X線を収集した。

3. 結果と考察 S/GaAs(111)Aおよび、(111)Bの硫黄原子吸着サイトを、表面と平行な{111}反射面と、約70.5度傾いている{111}反射面を用いた軟X線定在波解析で調べたところ、S/GaAs(111)A表面上においてはGa原子直上のOn-top site、(111)B表面上においてはAs原子と入れ換ったExchange siteに硫黄原子が位置していることが明らかとなった(図1a,b)[3]。一方、S/GaAs(001)試料に対して、(001)表面と約54.7度傾いている2つの{111}反射面を用いて軟X線定在波解析を行ったところ、硫黄がBridge siteに吸着していることが判った(図1c)[4]。これらのモデルは理論計算結果とも良く一致する[5]。また、最表面の硫黄原子の配位数が面方位によって異なるため、その表面の化学的安定性も面方位によって違ってくる。このことは、脱離温度の違いにも現れている[6]。さらに、最も安定なS/GaAs(111)Bを酸化させたときのS原子の乱れを吸収端X線定在波法で調べたところ、多くの硫黄原子は酸化されず、ある程度の規則性を残していることが判明した[7]。

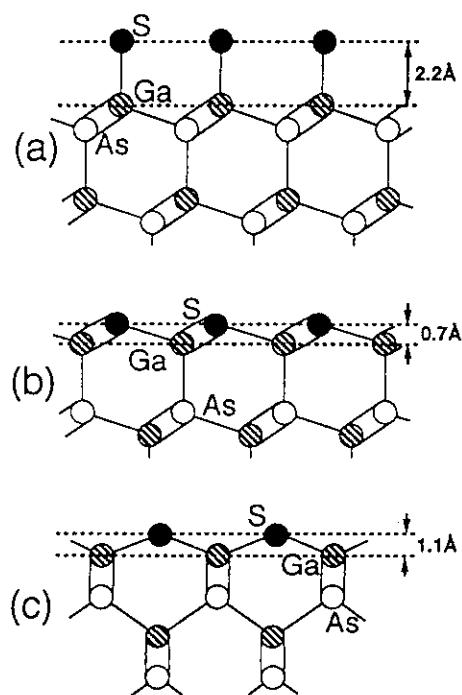


図1 軟X線定在波解析で得られたS/GaAs表面構造 (a)(111)A、(b)(111)B、(c)(001)

引用文献 [1] C.J. Sandroff et al., Appl. Phys. Lett. 51, 33 (1987).など [2] H. Sugahara et al., J. Appl. Phys. 69, 4349 (1991). [3] M. Sugiyama et al., Phys. Rev. B 48, 11037 (1993). [4] M. Sugiyama et al., Phys. Rev. B 50, 4905 (1994). [5] T. Ohno, Phys. Rev. B 44, 6306 (1991); Surf. Sci. 255, 229 (1991). [6] T. Scimeca et al., Phys. Rev. B 44, 12927 (1991). [7] M. Sugiyama et al., Phys. Rev. Lett. 71, 2611 (1993).

Structure analysis of atomic layer on semiconductor surface using soft x-ray standing waves
NTT Interdisciplinary Res. Labs. M. Sugiyama, S. Maeyama, M. Oshima

P-15 内殻励起による共鳴オージェ崩壊過程

(原研・先端研) 吉井賢資、馬場祐治、佐々木貞吉

内殻軌道電子を非占軌道へ共鳴励起した後のオージェ崩壊過程の詳細を知ることは、分光学や励起分子による光化学反応の機構解明などの観点から重要である。特に、励起する軌道として深い内殻を選べば、崩壊過程に関わる軌道のエネルギーが互いに大きく離れることになるので、異なる崩壊過程に由来するピーク構造を明瞭に分離できる利点がある。このことから本研究では、吸着系や固体化合物のP, Sの1sや4d遷移金属の2p軌道（結合エネルギー：1.6～2.5keV）を励起した後のオージェ過程について調べた。

図1はCu(100)上に多層吸着したCS₂分子において、S1s→3p*励起付近の入射光エネルギー($h\nu$)で測定したS(KL_{2,3},L_{2,3},M_{2,3})共鳴オージェスペクトルである。Aは励起電子が非占軌道にとどまるスペクトラ・オージェ過程に由来するピーク、またBは1s軌道のイオン化を始状態とするノーマル・オージェ過程に由来するピークである。ピークBのエネルギーは $h\nu$ に依らずほぼ一定であるが、ピークAのそれは $h\nu$ が大きくなるにつれ高エネルギー側にシフトしている。普通、オージェピークのエネルギーは $h\nu$ に対して一定であるため表面分析の指標として使われるが、今の場合には $h\nu$ によって変化するという興味深い挙動をしている。図2はA, Bのエネルギーを $h\nu$ に対してプロットしたもので、単層吸着系での結果も合わせて示してある。多層吸着系では、オージェピークが同一の $h\nu$ でノーマルとスペクトラ・オージェピークの2本に分裂し、しかも後者のエネルギーは $h\nu$ に対してほぼ比例したエネルギー変化をする。一方、单層吸着系では、スペクトラ・オージェピークのエネルギー変化は観測されたものの、ピークの分裂は認められなかった。

我々は他に、Si, P, Sや4d遷移金属を含む固体化合物においても共鳴オージェスペクトルを測定し、次のような傾向があることを見い出した。

- (1)多層吸着系と同様の結果は、絶縁性固体化合物(SiO₂, Y₂O₃等)においてのみ、また
- (2)单層吸着系と同様の結果は、導電性固体化合物(Nb, Mo等)においてのみ観測される。

これらの実験事実から、スペクトラ・オージェピークのエネルギー変化は共鳴ラマン散乱における同様の現象との関連で、またオージェピークの分裂の有無は伝導電子の内殻正孔遮蔽の有無と関連づけて理解される。

図1

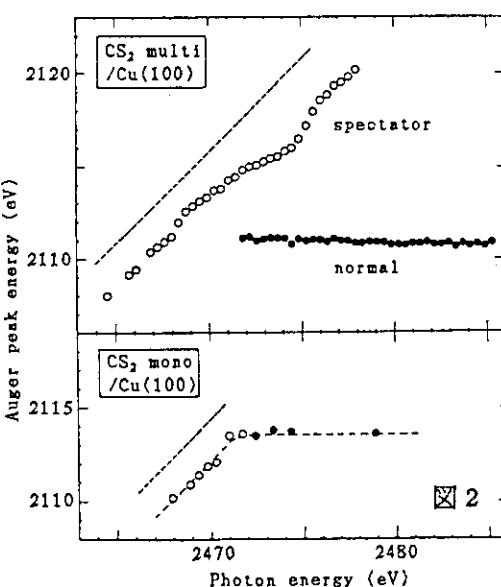
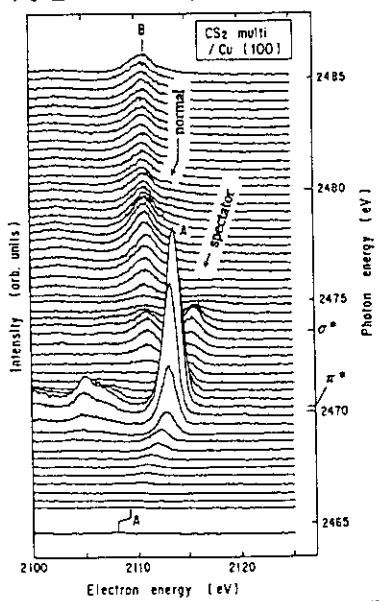


図2

P-16 内殻励起による吸着分子の表面脱離

(原研・先端研) 馬場祐治、吉井賢資、山本博之、佐々木貞吉

光化学反応は一般に可視から紫外部の光照射により価電子帯の電子を励起・イオン化することにより起こる。X線照射によっても光化学反応は起こるが、この場合は主に内殻電子の励起により反応が進むため、そのプロセスは価電子帯励起の光化学反応と大きく異なる。内殻励起による光化学反応の特徴は、内殻軌道のエネルギーが元素によって固有であり、エネルギー可変の放射光を用いれば分子内の特定の原子周辺のみを選択的に励起できる点にある。特に固体や凝縮系の光化学反応の場合、価電子帯のエネルギーレベルが気相分子に比べブロードになるため、特定の結合の解裂や選択的脱離を行うためには内殻励起が極めて有効と言える。本研究の目的は、固体表面に吸着した分子（凝縮系）を対象に、内殻励起による脱離過程を明らかにすることにより、選択的な解離および脱離の可能性を探ることにある。

図1に、固相の SiCl_4 に $\text{Si}1\text{s}$ および $\text{Cl}1\text{s}$ 軌道のエネルギーの放射光を照射したときの脱離イオンの質量分布を示す。 $\text{Cl}1\text{s}$ 励起の方が $\text{Si}1\text{s}$ 励起に比べ Cl^+ イオンの脱離強度が相対的に大きくなっている。このことは、励起された原子周辺の結合が切れやすいことを示唆しており、内殻励起による脱離に元素選択性があることの明確な証拠と言える。 $\text{Cl}1\text{s}$ 励起による Cl^+ イオンの脱離収量を放射光エネルギーの関数として図2に示す。上の曲線は二次電子の収量であり、表面層におけるX線の吸収スペクトルに対応する。吸収スペクトルには $\text{Cl}1\text{s} \rightarrow \sigma^*$ ($8a_1$)、 $\text{Cl}1\text{s} \rightarrow \sigma^*$ ($9t_2$) の共鳴励起に対応する二つのピークが存在するが、 Cl^+ イオンの脱離は主に前者で起こり、後者ではほとんど起こらない。これは $8a_1$ 軌道が主に反結合性 $\text{Cl}3\text{p}$ 軌道から成るため、 $\text{Cl}1\text{s}$ 軌道の電子が $8a_1$ 軌道へ励起されることにより $\text{Si}-\text{Cl}$ 結合が弱められた結果である。

上記以外にも $\text{Si}(\text{CH}_3)_n\text{Cl}_{4-n}$ ($0 \leq n \leq 4$)、 CS_2 、 MoO_3 （固体）などを対象に内殻励起による脱離機構を調べ、以下の結論を得た。

- 1) 分子内の特定原子の内殻を励起することにより、その原子を含むイオン種の脱離強度が強められる (SiCl_4 の $\text{Si}1\text{s}$ および $\text{Cl}1\text{s}$ 励起など)。
- 2) 多くの場合、イオンの脱離収量は表面におけるX線の吸収量に比例する。
- 3) 内殻→空軌道の共鳴励起による脱離では、励起先の空軌道の成分により脱離収率が大きく異なる場合がある (SiCl_4 の $\text{Cl}1\text{s}$ 励起、 CS_2 の $\text{S}1\text{s}$ 励起など)。

これらの事実に基づき、内殻励起による表面脱離のメカニズムと、内殻励起を利用した選択的脱離の可能性を議論する。

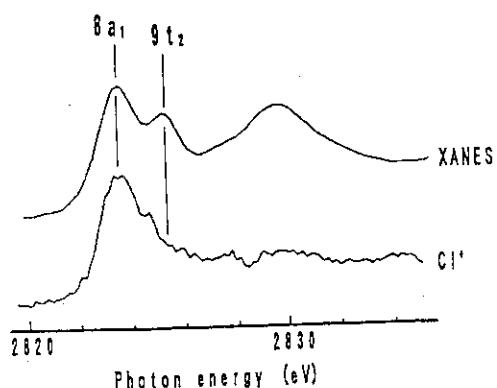
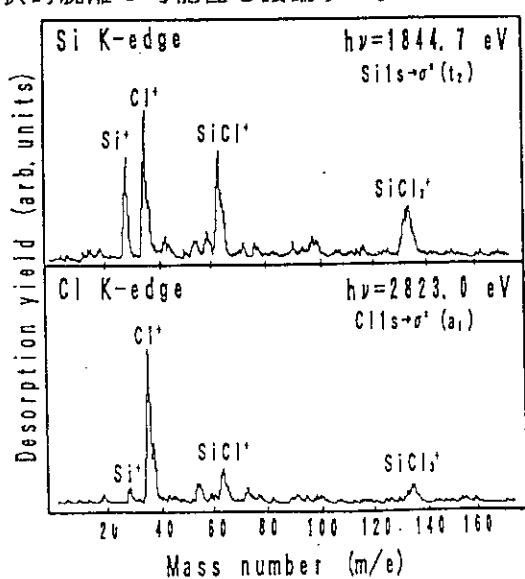


図2 固体 SiCl_4 の二次電子収量および Cl^+ イオン脱離収量の放射光エネルギー依存性

図1 固体 SiCl_4 の 1s 電子励起による脱離イオンの質量スペクトル

P-17 アンチモンおよびヨウ素の超原子価化合物の構造化学

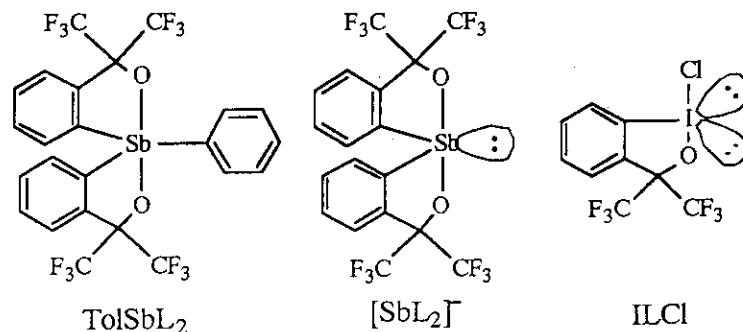
(東邦大・理) 竹田満洲雄, 高橋 正, 北澤孝史

典型元素の化合物で原子価軌道にオクテット則を超える10, 12または14個の電子が存在する化合物は超原子価化合物(hypervalent compound)と呼ばれ、その構造・結合と反応性が注目されている。元素Xの原子価軌道の電子数がN, Xのまわりの配位子(厳密には配位原子)の数がLのときの結合様式をN-X-Lで表して、多様な結合を整理、分類することが最近、提唱されるようになった。三方両錐型構造をとる10-C-5は2分子求核置換反応における遷移状態の不安定化学種と考えられているので、これを凍結した三方両錐構造が安定に得られる典型元素の化学種の構造と結合の研究は興味深い。

そこで、我々は三方両錐型の10-Sb(V)-5 [1-3], 一つの孤立電子対をもつ擬三方両錐型の10-Sb(III)-4 [2]および二つの孤立電子対をもつ擬三方両錐型の10-I(III)-3の超原子価化合物(下図の例を参照)の化学結合、特にアピカル方向の3中心4電子結合で説明されるX—Sb—X, O—Sb—X, O—Sb—O, C—O—X(Xはハロゲン)およびCl—I—Cl, Cl—I—O, O—I—O結合について、¹²¹Sbおよび¹²⁷Iメスバウアーフラフ光法と単結晶X線構造解析により研究を行った。¹²⁷Iのメスバウアーライン源の作製には、原研JRR-3の炉心照射を利用した。

その結果、つぎのことが明らかになった。Sb—Xの結合においてXの電気陰性度の増大に併ないSb核位置のs電子密度の減少と5p_z電子密度の減少が観測された。他方Sb—Oの結合においては酸素原子に隣接する炭素原子を含む官能基の種類を変えて酸素原子の電気陰性度を増大させるとアンチモン核位置のs電子密度が増大し、5p_z電子密度が減少することが観測された。この逆の傾向は、Sb—X結合にはs性とp性があるが、Sb—O結合ではp性が主であると考えるとよく説明される。R₃SbI₂, (p-CH₃-C₆H₄)₂SbLIおよびPh₄SbIのアピカル軸上のSbとIの両核種のメスバウアースペクトルから、I—Sb—I結合はアンチモンの5s, 5p_zとヨウ素の5p_z軌道により形成されること、Ph₄SbIではヨウ素の電荷が-0.8でR₃SbIの-0.6に比べ大きく、Sb—Iがかなりイオン的になっていることが明らかになった。構造解析もSb—I結合長がPh₄SbIで3.37 Å, Ph₃SbI₂で2.9 Åであり、前者の結合がイオン的であることを示した。

アピカル結合Cl—I—ClをもつX-PhICl₂(Xはパラ位置換基)について¹²⁷Iメスバウアースペクトルから求められたヨウ素(III)の電荷は+1.10～+1.23, Cl—I—Oを持つ化合物については+1.22～+1.26, O—I—O結合を持つ化合物については+1.22～+1.36であった。結合軸方向のヨウ素のp_z電子密度はこの順に減少していく(N_zの値はそれぞれ0.67～0.74, 0.60～0.63, 0.47～0.67), ヨウ素の5s軌道は結合にほとんど関与せず、もっぱら5p_z軌道が関与していることが明らかになった。



アンチモン(V), アンチモン(III)およびヨウ素(III)のヘキサフルオロクミルアルコール(H₂L)の三方両錐錯体の構造。(SbL₂⁻とILClはエクアトリアル面内のそれぞれ一つおよび二つの孤立電子対を含めて擬三方両錐である)。

- [1] M. Yanga, M. Miura, K. Endo, H. Nakahara and M. Takeda, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **59**, 3085—3089 (1986).
- [2] M. Takeda, M. Takahashi, Y. Yanagida, S. Kojima and K.-y. Akiba, *Chem. Lett.*, 1993, 2037—2040.
- [3] M. Takeda, M. Takahashi, Y. Yanagida, S. Kojima, K.-y. Akiba and Y. Ito, *Hyperfine Interactions*, **84**, 439—446 (1994).

P-18 気相反応で生成する原子分子の速度分布画像解析

(北大電子研・院地球環境) 松見 豊, 佐藤佳宏, 川崎昌博

まえがき 分子ABが光を吸収し電子励起状態AB^{*}が解離する際、各フラグメントAとBは、速度ベクトル並びに内部エネルギーを持つ。光解離分光法により、AB^{*}の対称性及び、解離性ポテンシャル上でのAB^{*}の動力学が研究されてきた。この分光法の一つが速度ベクトルの画像をとらえる方法（photofragment imaging spectroscopy）である。装置を製作し、基本的な光解離について研究したので報告する。

実験 図1に製作した装置を示す。親分子ABの分子線に紫外光レーザー光を照射して解離させる。生成したフラグメントAをレーザー光で共鳴多光子イオン化し、A⁺を平行電極により加速し、自由飛行領域を通過させた後、円板型2次元検出器(Multi Channel Plate)に導き、増幅されたイオン信号を蛍光板にて発光信号としてTVカメラでとらえる。共鳴波長λを選択することにより、フラグメントAの内部状態（振動・回転・電子）を選択することが可能である。得られる画像は、もともとの3次元速度分布を加速電極方向に2次元投影(Projection)したものである。3次元速度分布をフィルタ補正逆投影法(Filtered BackProjection method)を用い、円筒対称の条件で計算する。

結果 $(\text{CH}_3)_3\text{COCl} + \hbar\omega(235\text{nm}) \rightarrow (\text{CH}_3)_3\text{CO} + \text{Cl}(^2\text{P}_{3/2})$

$(\text{CH}_3)_3\text{COCl}$ を235nmレーザー光で光分解して、生成する基底状態塩素原子 $\text{Cl}(^2\text{P}_{3/2})$ を光解離光と同じ波長のレーザーで(2+1)共鳴多光子イオン化する。図2aは実験で得られたClの2次元投影像であり、図2bは図2aを2次元フィルターで処理した後 Backprojectionした

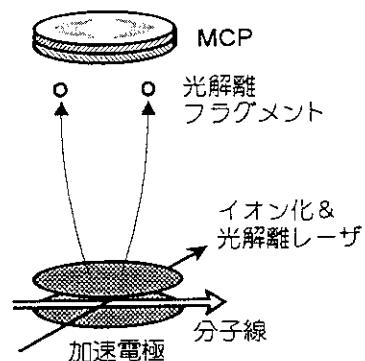
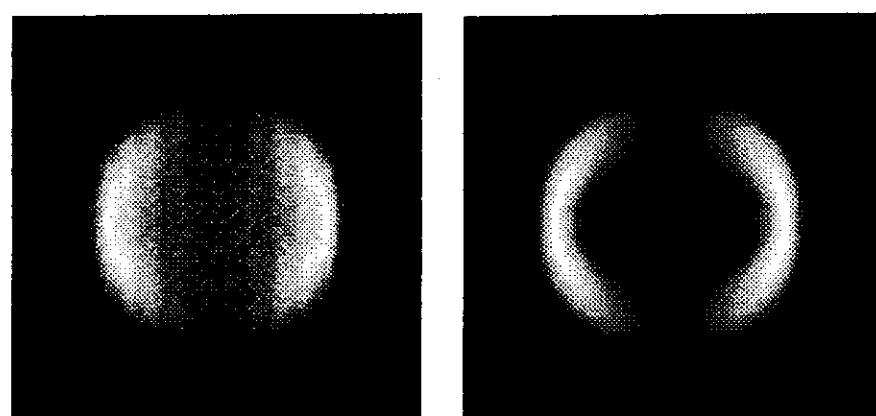


図1. 実験装置

図2a $\text{Cl}(^2\text{P}_{3/2})$ の画像 $\longleftrightarrow E_d$ 図2b $\text{Cl}(^2\text{P}_{3/2})$ の Backprojection

ものである。図2bに示される様に、Clのフラグメントは、図の左右方向に向いている光解離レーザー光の電気ベクトルに沿って分布しており、上下方向や中心部分にはあまり存在しない。これはこのClが大きな並進エネルギーを持ち、なおかつ大きな角度異方性を持つためである。光励起の遷移モーメントの方向が解離するO-Cl結合に平行であるので、Clの速度ベクトルは $\cos^2\theta$ の空間分布を有する。ここで θ は速度ベクトルと解離光の電気ベクトルとなす角である。また細い円周上のピークを示していることは、Clのもつ速度がほぼ一定であることを示している。

Photofragment imaging spectroscopy

Yutaka Matsumi, Yoshihiro Sato, and Masahiro Kawasaki

P-19 レーザーによる化学結合の選択的解離

(原研基礎セ) 高柳 敏幸、藤沢 銀治、横山 淳

化学反応や光分解反応において生成チャンネルを人工的にコントロールすることができれば、基礎科学だけでなく、応用科学にとっても有用である。分子の特定の結合を切るには、その振動モードを強く励起すればよさそうだが、そう簡単ではない。実際の分子では解離に近くなると振動モード間のエネルギー移動が非常に速く、結局エネルギー的に最も弱い結合が切断される[1]。しかし、電子的な励起状態を経由するような場合、分解反応は数十フェムト秒以下という速い速度で起こるため、振動モード間のエネルギー移動が起こる前に解離させることができるのである。このことを利用して、分子結合の選択的解離を起こさせるのが本研究グループのねらいである。これまで、Butler らは CH_2BrI という分子を用いて、C-I と C-Br 結合のそれぞれの励起状態、C-I(n- σ^*)と C-Br(n- σ^*)に励起することによって選択的解離を実現している[2]。我々は、157nm の真空紫外レーザーを用いて、C-Br と C-Cl 結合の選択的な解離について研究を行っている。157nm の光エネルギーはおおよそ C-Cl 結合の n- σ^* 励起エネルギーに相当する。

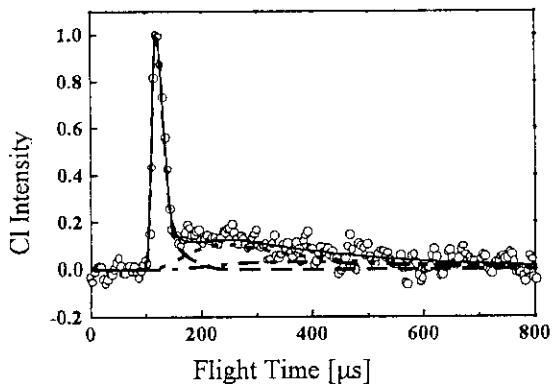
図に我々が行った $\text{CBrF}_2\text{CHClF}$ 分子の 157nm における光分解の実験結果を示す。実験には、光分解反応用分子線装置を用いている。得られた Cl 原子の飛行時間スペクトルの解析から、75% の割合で C-Cl 結合が解離していることがわかった。すなわち、結合の弱い C-Br の解離を上回って C-Cl の解離が起こっていることがわかる。同様な化合物 $\text{CF}_2\text{BrCClBrF}$ についても実験を行った。しかし、同じように C-Cl(n- σ^*)へ励起したにもかからず、結合選択的な解離は観測されなかった。

異なる分子による解離チャンネルの違いをより定量的に理解することは、他の分子への応用のためにも重要である。そこで我々は理論計算による光分解のシミュレーションも行った。2つのハロゲン原子をもつ分子の光分解は近似的に 2 自由度で表わせる。2つの励起状態、すなわち C-Cl(n- σ^*)と C-Br(n- σ^*)に相当する適当なポテンシャルエネルギー曲面を仮定する。これに適当な相互作用を仮定する

ことによって、どの程度の大きさの相互作用であれば選択的解離が可能になるかを調べるのである。その結果、2つのポテンシャルの交差する領域で相互作用がだいたい 0.1eV 以下であれば、選択的解離が可能になることがわかった。この 0.1eV という値は、一般的な分子について考えるとはかなり小さい値である。この相互作用は非経験的分子軌道法を用いて計算可能な量である。すなわち理論計算を用いて、いろいろな分子についての選択的結合解離の可能性を予測することができる。

[1] A. Yokoyama, K. Yokoyama, and G. Fujisawa, J. Chem. Phys. 101, 10602 (1994).

[2] L.J. Butler, E.J. Hintsa, S.F. Shane, and Y.T. Lee, J. Chem. Phys. 86, 2051 (1987).

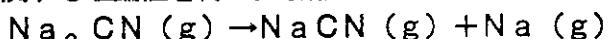


P-20 超原子価分子 Na_2CN の構造と安定性

(原研・先端研) 橋本雅史・横山啓一・工藤博司

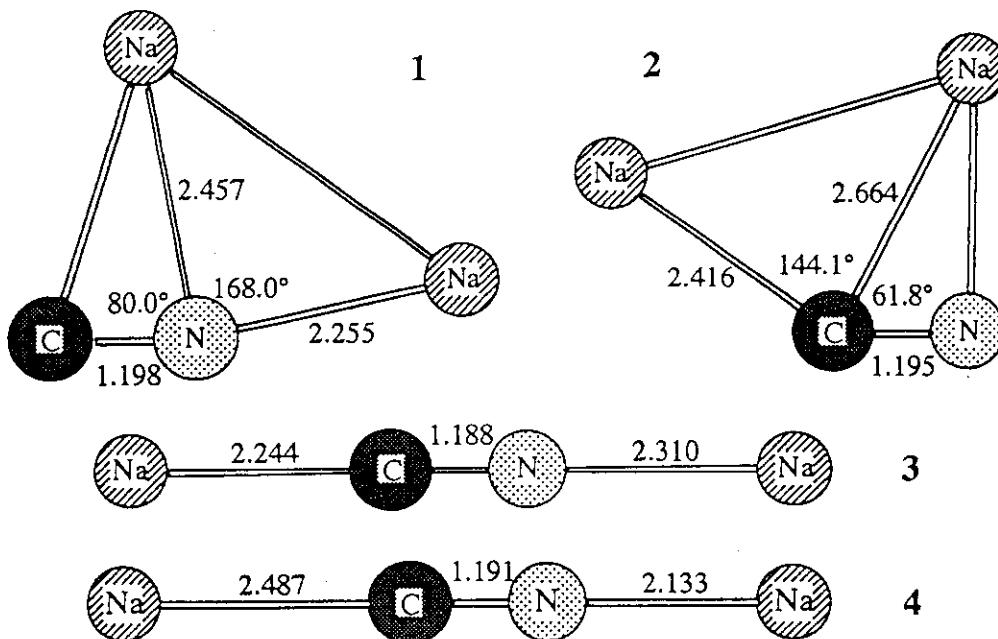
過剰の原子価電子を持つ特異な分子として、現在までに Li_3O , LiLi_6 , Li_3S , Li_4S , Li_4P といった分子を高温質量分析法により確認し、その結合状態を明らかにしてきた。これら「超リチウム化分子」と呼ばれる分子は、過剰のリチウム原子を失う反応が吸熱反応となり、オクテット分子よりも熱力学的に安定である。最近、原子団 CN に Li が結合した新しいタイプの超原子価分子 Li_2CN の存在を確認し、その安定性について報告したが、ここで Na による超原子価分子 Na_2CN の存在を予測、研究を開始した。

今回、金属ナトリウムと NaCN とからなる混合試料上の平衡蒸気中に新たな超原子価分子 Na_2CN 分子の存在を確認するとともに、*a b initio* MO計算によりその構造および安定性に関する理論値を得た。解離反応



の反応エンタルピーとして得た実測値 $106.3 \pm 6.7 \text{ kJ/mol}$ および MRCI レベルにおける理論計算値 72.7 kJ/mol は Na_2CN 分子が熱力学的に安定であることを示している。この分子のイオン化エネルギーとして、電子衝撃法により $4.92 \pm 0.20 \text{ eV}$ を得た。理論計算による垂直イオン化エネルギーは 4.66 eV である。

理論計算より、平面構造 1, 2 直線構造 3, 4 の 4 種の安定構造を得た。1 と 2 ならびに 3 と 4 はほぼ同じエネルギー状態であり、直線構造よりも平面構造の方が約 26 kJ/mol 安定である。

図 MP2(FU)/6-31+G*レベルでの計算による Na_2CN 分子の安定構造

Stability and Structure of Hypervalent
Molecule Na_2CN
Masashi Hashimoto, Keiichi Yokoyama,
Hirosi Kudo

P-21 超リチウム化分子の電子状態

(原研・先端研) 横山啓一、橋本雅史、工藤博司

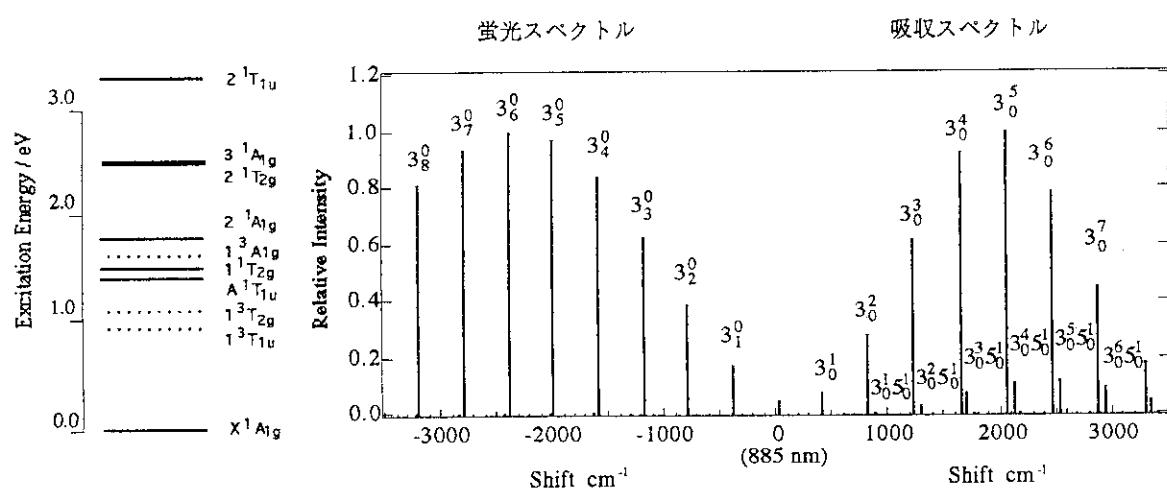
CLi_6 や Li_3O のように、いわゆるオクテット則から逸脱しているリチウム化合物の存在が確認され [1]、これを超リチウム化分子と名付けた。現在、実験および理論の両面から超リチウム化分子の結合状態の解明に向けて研究を進めている。Ab initio 分子軌道法計算によると、過剰電子は分子全体に広がった全対称軌道に存在しており、中心原子は従来通り 8 個の価電子を保持していることが示された。このような電子配置はどうして安定であるのか、電子励起するとこれらの分子はどうなるのか、超リチウム化分子の生成過程=化学反応性はどうなっているのか等々、未だ解明されることは多い。特に炭素や酸素など周期律表第 1 列の元素が中心原子の場合、結合エネルギーは 2 eV 以上にもなり金属リチウムクラスターと比べて 2 倍以上も強い結合を作る。今回はこれらの分子について、電子励起状態のエネルギー準位や電子配置等の理論計算の結果を基に、電子状態の特徴を明らかにする。加えて本年度開始する超リチウム化分子の構造決定のための分光実験に備えて分光スペクトルのシミュレーションを行う。

励起状態の計算には多配置参照型配置間相互作用 (MRCI) 法を用い、垂直励起エネルギーを計算した。スペクトルシミュレーションの基となる振動解析には CASSCF 計算を実行し、Franck-Condon 積分の計算には Kupka-Cribb の漸化式 [2] を用いた。

典型的な超リチウム化分子の一例として CLi_6 のエネルギー準位図を図 1 に示す。3 eV 以下の低いエネルギー領域に数多くの励起状態が存在している事が分かる。中でも $A^1\text{T}_{1u}$ は結合性軌道 σ から反結合性軌道 σ^* への遷移であるにもかかわらず結合の解離が起こらないほど安定である。これは多くの空軌道が極めて低い軌道エネルギーを持っていることに関連があると考えられる。この状態を利用する電子遷移スペクトルとして、蛍光及び吸収スペクトルの振動構造を図 2 に示す。分子の高い対称性を反映した比較的単純な振電スペクトルが近赤外領域の 900 nm 付近に観測される可能性を示唆している。

[1] H. Kudo, Nature, 355 (1992) 432.

[2] H. Kupka and P.H. Cribb, J. Chem. Phys., 85 (1986) 1303.

図 1 CLi_6 の電子状態準位図 2 CLi_6 (X-A) 遷移の蛍光及び吸収スペクトル

Electronic States of Hyperlithiated Molecules

Keiichi Yokoyama, Masashi Hashimoto, and Hiroshi Kudo

P-22 超高強度レーザーと荷電粒子多体系との相互作用

大阪大学レーザー核融合研究センター 三間國興

レーザーの高出力化はQスイッチ、モードロック法の技術開発により数十テラワットに達した。最近、Chirped Pulse Amplification法が提案され、到達レーザー出力はペタワット (10^{15} W/cm^2) レベルに達し、収束されたレーザー電磁場の強度は $I_L = 10^{20} \text{ W/cm}^2$ 以上となり、その時の電子のエネルギーは

$$\epsilon/mc^2 = \gamma = \sqrt{1 + I_L \lambda_L^2 / (3 \times 10^{18} \text{ W} \mu\text{m}^2/\text{cm}^2)} \geq 6$$

となる。

パルス幅が1ピコ秒より短く、強度が 10^{20} W/cm^2 をこえるレーザーは固体ターゲットと特異な相互作用を行う。図1に固体表面の電子の位相空間の速度分布を示す。電子及びイオンはレーザー電磁場及び輻射圧により発生する誘導静電場で加速され相対論的エネルギーに達する。高密度の電子・イオンのエネルギー密度は 10^{10} 気圧以上となり、MeV以上の強い高エネルギーX線を放出する。数MeVの電子及び光子は多価イオンと量子電磁気的相互作用をおこなう結果、高密度の電子・陽電子対生成をひきおこす。また、MeVに加速されたイオンは高密度プラズマと相互作用して核融合等の種々の核反応を誘起する。これらの高エネルギーによる核融合反応の誘導はレーザー核融合における爆縮プラズマの新方式核融合燃焼点火として注目を受けている（図2参照）。

このポスターでは、以上の結果以外にも超強度レーザーのプラズマ中の伝播や強磁場発生についても議論する予定である。

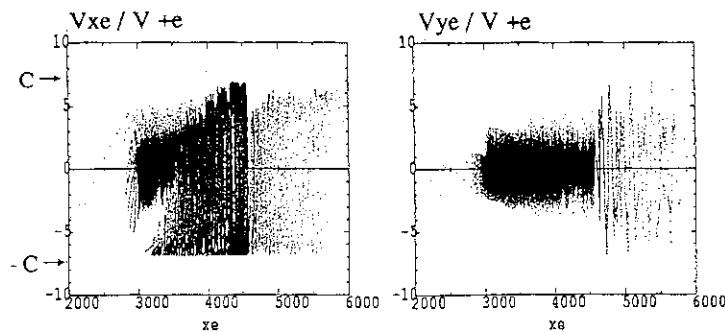
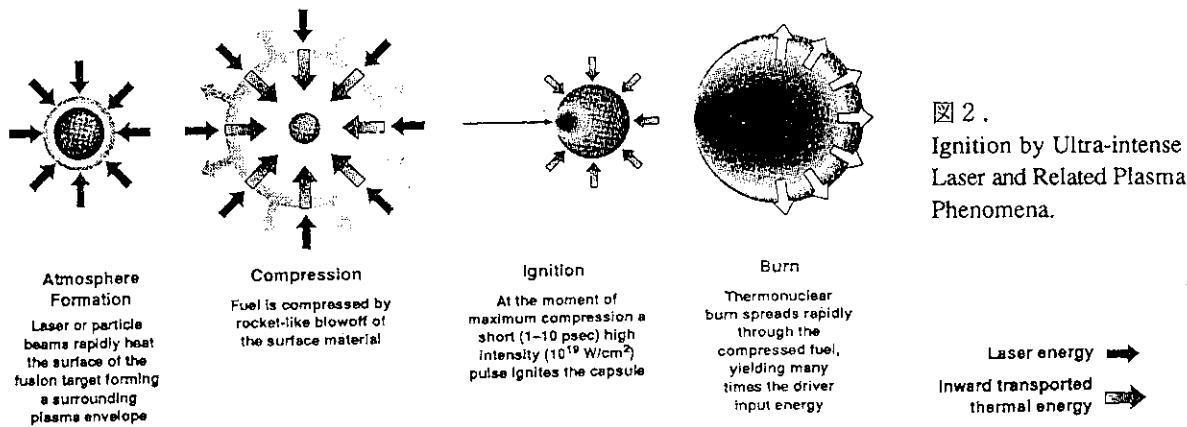


図1. Electron phase space distribution from particle simulation.
($\omega_{pe} \Delta t = 300$)



Ultra-Intense Laser Interactions with a Charged Particle Many Body System

Kunioki Mima, Institute of Laser Engineering, Osaka University

P-23 テーブルトップテラワットレーザーを用いた
GeV ウエーク場粒子加速器の開発研究

高エネルギー物理学研究所 (KEK)

中島一久、有永三洋、中西弘、川久保忠通、小方厚

レーザーを用いた加速器は、その超高電場による粒子加速を可能とする次世代加速器として 10 年以上にわたって、注目を集めている。[1] 中でもレーザープラズマ加速器は、最近～GeV/m という超高勾配の粒子加速実験が次々に報告され [2]、この加速原理による加速器の実用化への期待が高まっている。従来の加速器の主流である RF 加速法では、金属表面の放電破壊により加速勾配がほぼ 100 MV/m で制限されているのに比べ、レーザープラズマ加速法では、100 GV/m を越える加速勾配を発生させることも可能である。

レーザープラズマ加速法には、2 波長レーザー光の混合によるビート波が光速に近いプラズマ波を励起するプラズマビート波加速器 (PBWA) とプラズマ波長よりも短い高強度超短レーザーパルスがプラズマ中を伝播するとき、その動重力により後流にウエーク場を励起するレーザーウエーク場加速器 (LWFA) が提案されている。前者が、ビート波と電子プラズマ振動の共鳴によりプラズマ波を励起するため、プラズマ電子密度の高精度な制御が必要であるのに対し、後者は広帯域な電子密度プラズマに対しウエーク場を励起できる。最近では高強度レーザーパルスと高密度プラズマとの強い非線形相互作用によりレーザーパルスが自己変調を受けると共に、共鳴的に大振幅ウエーク場を発生することが数値シミュレーションにより示され、30 GV/m を越える加速勾配による電子加速が、実験によって観測され、自己変調型レーザーウエーク場加速器として注目されている。

レーザーウエーク場加速器は、最近の固体レーザーのフェムト秒領域の超短パルス発生技術とチャーブパルス増幅技術 (CPA 法) [3] により出現した、テーブルトップテラワット (T^3) レーザーを用いて小型化、高繰り返し化の達成が可能になった。我々は、波長 800 nm、ピークパワー 2 TW、パルス長 100 fs のチタンサファイア T^3 レーザーの開発を進めており、これを用いた～GeV のエネルギーゲインを数 10 cm の加速長で達成できるレーザーウエーク場加速器の開発を計画している。

レーザーを一様なプラズマ中で用いる場合、相互作用長または加速長が回折により制限されるため、エネルギーゲインは、(最大加速勾配) $\cdot \pi \cdot$ (レーリー長) で与えられ、2 TW のレーザーパルスによるウエーク場加速でも、最大エネルギーゲインは 23 MeV にすぎない。相互作用長をレーリー長よりも長くする方法は、種々提案されており、実験も報告されているが、我々は、光ファイバーのように屈折率分布が動径方向に変化するプラズマ密度チャンネルを超音波技術を用いて気体中の衝撃波により生成する方法を考案しており、実験的に検証する計画である。これにより相互作用長が、20 cm になれば、2 TW のパルスで 18 GeV/m の加速勾配が発生でき、エネルギーゲインは、3 GeV 以上となる。

[1] T. Tajima and J. M. Dawson, Phys. Rev. Lett., 43, 267 (1979).

[2] C. E. Clayton et al., Phys. Rev. Lett., 70, 37 (1993);

K. Nakajima et al., Physica Scripta, T52, 61 (1994).

[3] P. Maine et al., IEEE J. Quantum Electron., QE-24, 398 (1988)

The GeV Wakefield Accelerator Development using Table-Top Terawatt Laser

Kazuhisa Nakajima, Mitsuhiro Arinaga, Hiroshi Nakanishi,

Tadamichi Kawakubo and Atsushi Ogata

National Laboratory for High Energy Physics (KEK)

P-24 回転と速度シアを持つ天体プラズマ円盤における磁気不安定性

(先端基礎研究センター・荷電粒子多体系グループ) 松元亮治、田島俊樹

重力中心のまわりを回転するプラズマ円盤(降着円盤)における角運動量輸送機構を明らかにすることは天体物理学の最大の課題のひとつである。降着円盤はクエーサーに代表される活動銀河中心核、白鳥座X-1などのX線天体の活動性の起源と考えられ、そのエネルギー源は円盤プラズマが角運動量を失って落下するときに解放される重力エネルギーである。標準的な降着円盤モデルではストレステンソルの $r\varphi$ 成分が圧力 P に比例すると仮定し、その比例係数を α とおく。我々は、降着円盤における磁気不安定性によって生じる磁場の揺ぎから α の値を決定した。

まず、high- β ($\beta > 1$) 円盤を考える。このような円盤における磁気不安定性の中で特に成長率が大きいものは回転と速度シアによってアルフベン波が不安定になるモードである[1]。不安定性が成長すると方位角方向の磁場が卓越してくるが、このトロイダル磁場は非軸対称な摂動に関して同様の機構で不安定になる。我々は線形固有値問題を解くことにより、不安定モードはアルフベン特異点 $\omega_d = \pm k_{\parallel} v_A$ の間に局在化されていることを示した[2]。ここで ω_d は速度シアによるドッpler効果を受けた振動数である。電気抵抗 η が磁場の揺ぎに依存するというモデル[3]を採用すると揺ぎの飽和レベルは成長率 γ を散逸率 ηk^2 に等しいとおいた臨界安定条件から決まり、 $\alpha_B = -\langle \delta B_x \delta B_y \rangle / (4\pi P)$ は 0.002 と 1 の間の値をとる。次に 3 次元電磁流体シミュレーションによって飽和レベルを求めた。電気抵抗は電流密度がある臨界値を越えた領域でのみゼロでない値を取るようにした。一様なトロイダル磁場に貫かれた $\beta = 100$ のケプラー円盤を初期条件としたとき、磁場の揺ぎは指数関数的に成長したのち飽和し、飽和時の α_B の値は 0.02 程度になった。初期磁場が鉛直方向を向いている場合には α_B はこれよりも大きく 0.1 と 1 の間になる。鉛直方向の重力加速度を含めた場合、バルーニングモードと同様の機構によって磁束が円盤部から流出していく不安定性(パーカー不安定性)が起こる。この不安定性は磁場揺ぎの飽和レベルを下げる方向に働くが、回転と速度シアはパーカー不安定性を安定化する効果があるため α_B は上記の値から大きく変化することはない予想される。

ブラックホール候補天体のまわりの降着円盤は low-state と high-state のふたつの状態の間を遷移することが知られている。上述のような臨界安定状態にある high- β 円盤は X 線強度の時間変動の幅が小さく静かな high-state の特徴を再現する。他方、low-state では円盤全体が破壊されるような突発的な X 線強度変化が観測されている。最近、[4] は low-state 円盤は low- β 円盤であるというモデルを提唱した。low- β 円盤のセルフコンシスティントなモデルを作ることと low- β 円盤と high- β 円盤の間の遷移機構を明らかにすることが今後の課題である。

[1] Balbus, S.A. & Hawley, J.F., 1991, ApJ, 376, 214

[2] Matsumoto, R. & Tajima, T., 1995, ApJ in press

[3] Ichimaru, S., 1975, ApJ, 202, 528

[4] Mineshige, S., Kusunose, M. & Matsumoto, R., 1995, submitted to ApJL

P-25 The Frontier of Accelerator Physics and the T³ Laser

Toshiki Tajima

ASRC JAERI and The University of Texas at Austin

As the famous Livingston chart suggests, the past trend of the growth of the energy of accelerators has been exponential as a function of time(in years). It is however evident from the demise of the SSC and other signs that this extrapolation of growth has hit saturation based on the conventional techniques. We suggest that new excitement is brewing in the emergence of intense table top lasers and their applications of these to accelerator physics. It seems possible that this new frontier can allow us to advance the (conventional) Big Science to the (new) Table Top Science. We in collaboration with the University of Texas group spearheaded the concept of laser wakefield accelerator using the T³ laser in driving an intense accelerating gradient some three orders of magnitude stronger than the conventional methods. The other important development in recent accelerator physics is to cool the beam rapidly in optical ways. Once again the application of a T³ laser is crucial in the realization of such a concept. Through these two examples I will demonstrate the excitement of the frontier of accelerator physics and also review the latest results from the Tamura Symposium I organized which was supported in part by UT Austin, in part by JAERI and in part by SPring-8.

P-26 高出力レーザーによる高速度ビーム冷却と計測

荷電粒子多体系グループ

岸本泰明*、J.K.Koga、田島俊樹、三間國興、D.L.Fisher

ストレッジリングや線形加速器等を用いた種々の物理実験（コライダーや放射光源、FEL等のレーザー光源）においては、いずれもビームの進行方向／垂直方向のエミッタンスやエネルギー広がりを減少させ、ビームの品質改善（総称して“ビーム冷却”と呼ぶ）を図ることが電子系、イオン系を問わず不可欠である。これらビーム冷却は、電子系に対しては制動放射やシンクロトロン放射による輻射冷却が、またハミルトニアン性が強いイオン系に対しては、Van del Meer [1] によるビームの位置のピックアップとその情報を元にしたビームへのキックを用いたフィードバック制御による冷却法（Stochastic Cooling）が成功をおさめている。ここではこのようなフィードバック制御の一般化として、より高速でかつ高効率のビーム冷却法を目標に、位相空間における荷電粒子多体系の構造の操作（manipulation）の可能性を探る。Van del Meer の冷却法は、空間依存性のない電磁場によるキックを用いるのに対して、ここでは図1に示すように (X, P_x) の2次元位相空間におけるビームの構造 ($P_x(X)$; P_x のX依存性等) を計測する。そのビームの構造から系の揺動を最小化するような空間依存性のある電磁場のベクトルポテンシャル a_j と位相 ϕ_j (j は基本周波数 ω_1 に対する高調波の次数) を計算し、その電場スペクトルを持つレーザーを電子ビームに照射する。レーザー場は電子ビームをキック・冷却し、その反応としてレーザー散乱波は $(\Delta a_j, \Delta \phi_j)$ の変調を受ける。この変調量はビームの冷却情報及びビームの揺動に関する内部情報を抱き込んでおり、次のキックのレーザー場を決定するのに用いられる。

図2は、エネルギー $E_b = 200$ MeV ($\gamma_0 \sim 392$)、初期の縦方向のエネルギー広がり $\Delta \gamma / \gamma_0 \sim 3\%$ のビームが上記の冷却法で冷却される過程を示す実空間1次元の自己無撞着なシミュレーションの結果を示している。基本周波数は150 GHz で32の高調波成分まで考慮している。これらのシミュレーションをもとに、冷却時のレーザーの位相空間における統計的なふるまい（レーザー場の加熱等）を調べると共に、ビームの位相空間情報を得るためにビーム計測としてレーザー場の微小変調量を用いる手法を検討する。変調情報からビーム情報を得るためにには散乱波の逆問題を解く必要があるが、これをニューラルネットワークを用いて解く方法を検討する。

[1]. S.Van der Meer, Stochastic Damping of Betatron Oscillation in the ISR, CERN/ISR-PO/72-31(1972)

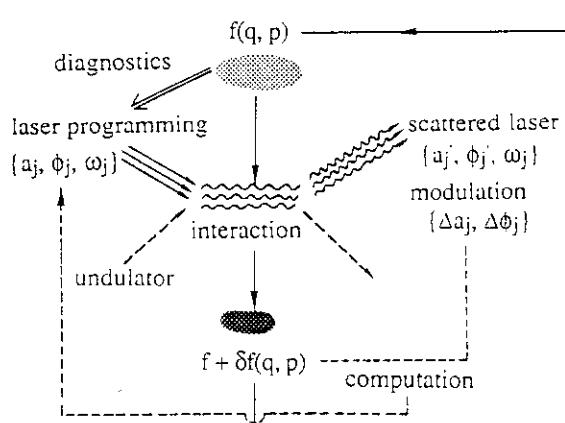


図1

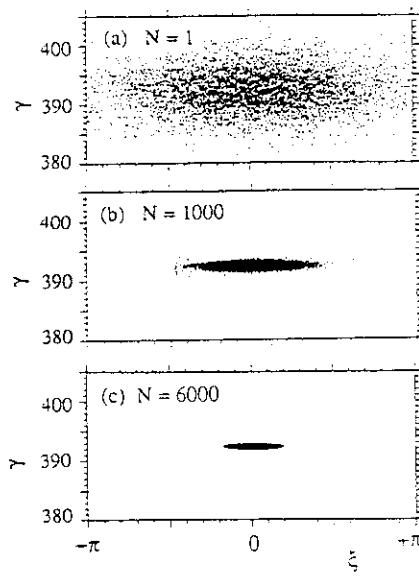


図2

Cooling of High Energy Charged Particle Beams and Phase Space Detection Using High Power Lasers

Y. Kishimoto, J.K.Koga, T.Tajima, K.Mima, D.L.Fisher

* 日本原子力研究所 那珂研究所 炉心プラズマ研究部

P-27 シア回転プラズマにおける バルーニングモード不安定性の解析

荷電粒子多体系研究グループ

徳田 伸二

現在、トカマク・プラズマの閉じ込め研究（実験および理論）においてはプラズマのシア回転の役割が注目されている。たとえば、プラズマの圧力勾配が原因で発生するバルーニング・モード不安定性は核融合炉の効率をきめるベータ値（プラズマ圧力と磁気圧の比）の上限（ベータ値限界）を与える要因となる。シア回転がある場合、不安定なモードは、運動エネルギーを最小にするためにモードの位相速度をプラズマの回転速度に一致させようとして、径方向に局在化する傾向をもつ。そのため、磁気シアだけで安定化できない場合、シア回転には新たな安定化機構、したがって、ベータ値限界の改善が期待できる。バルーニング・モードは、そのトロイダル・モード数 n によって性質が異なり、 n が低い場合、モードは大域的になり、フリーマン・ローテンベルグ方程式[1]のスペクトルを求めることによって安定性が解析できる。一方、高 n バルーニング・モードの場合には、アイコナール近似を用いることによって、拡張ポロイダル角を空間座標とする方程式を解くことによって、その安定性が解析できる。ただし、この方程式は時間の周期関数であるポテンシャルをもつため、スペクトル解析は適用できず、初期値問題として解く必要がある。

フリーマン・ローテンベルグ方程式のスペクトルを有限要素法で解析する場合、その作用素の性質を詳しく調べることが不可欠である。われわれは、ハミルトン形式で表現されたこの方程式の弱形式を導き、反エルミート形式である対流項以外のforce operatorが、すべてエルミート形式であることを明かにした。このとき、回転平衡における準中性条件が重要な役割をはたしている。また、エルミート性と両立するプラズマ変位の境界条件は静止プラズマの場合の境界条件と同じでよく、また、径方向の微分作用素は、静止プラズマの場合と同じく、径方向の変位にだけ現われ、この弱形式は数値解析に有利な構造になっている[3]ことも示した。

シア回転プラズマの高 n バルーニング・モード方程式は、時間の周期関数で、かつ、空間座標に対して動くポテンシャル井戸のなかの波動方程式の性質を持つ。この方程式の性質を調べるために、モデル方程式を作り、多時間展開法および直接数値積分によって解の安定性を調べた。その結果、ポテンシャル井戸の運動はモードの成長率を減少させることができた。さらに、ポテンシャル井戸の移動速度が局所的な音速を超えると、方程式の双曲性が失われ、そのため、バルーニング・モードの分枝が消える可能性がある。

[1] E. Friemann and M. Rotenberg, Rev. Mod. Phys. 32, 898 (1960).

[2] F. L. Waelbroeck and L. Chen, Phys. Fluids B 3 601 (1991).

[3] 徳田伸二、竹田辰興、核融合開発とMHD数値解析、応用数理 2, 2(1992).

P-28 涡層不安定化に対するせん断流の影響

(京大数理研) 岡本 久、坂上貴之

2次元流中の渦層を考える。これは複素平面の中の1本の曲線で表される。渦層は多くの乱れた流れの中に頻出するために、多くの研究がなされてきた。この曲線が時間とともにどう複雑化するかが興味の対象である。これを Chorin の Vortex Method で数値計算した結果を報告する。

流体は非圧縮非粘性で、渦層を表す曲線以外では流れは渦無しである。渦層が空間変数 x (横軸をあらわす) について周期的な場合に R. Krasny J. Comp. Phys., vol. 65 (1986), pp. 292-313 は詳細な数値計算を行い、渦層の巻き上げに関して深い理解をもたらした。本報告では同様の渦層をせん断流中において考察する。方程式で表せば、

$$\frac{\partial z(t, \Gamma)^*}{\partial t} = \frac{1}{2i} \int_0^1 \cot \pi(z(t, \Gamma) - z(t, \Gamma')) d\Gamma' + G \operatorname{Im} z(t, \Gamma) \quad (1)$$

となる。ここで、積分は Cauchy の主値であり、* は複素共役を表す。G はせん断流の強さを表す定数である。G = 0 ならば Krasny が考察した問題になる。

我々がこの問題に興味を持ったのは、渦層のより現実に近い形での運動がどうなるかを知りたかったからである。背景流と渦層の相互依存を調べればさらに一般的な問題となるが、最も簡単な状況としては、せん断流は渦層に影響を与えるが渦層は背景流としてのせん断流に影響を与えないという場合が一番単純であろう。しかし、方程式の単純さにもかかわらず、解の振舞いは相当複雑であることがわかった。

上の方程式は発展方程式と見た場合には「非適切」であることが知られている。従つて、ほんのわずかの丸め誤差が指数的に増大され、通常の数値計算では破綻する。我々の数値計算では Krasny の方法を採用し、Fourier フィルターを用いて丸め誤差を消去する。

$G = 0$ の場合と $G \neq 0$ の場合で大きく異なるのは自明解 $z \equiv \Gamma$ の安定性である。これに関して Kiya and Arie, Phys. Fluid, vol. 22 (1979), pp. 378-379 は線形化方程式を考察して、モード n の摂動が $G > \pi|n|$ のときに中立安定であることを示した。この線形解析は次のような予想を示唆しているように思われる：Krasny と同じ初期条件でも $G > \pi$ ならば一つ目の巻き上げではなく三つ目の巻き上げが発生する。当日は数値計算結果を提示し、この予想に関してわかったことを報告する。

Instability of a Vortex Sheet in a Shear Flow

by Hisashi Okamoto and Takashi Sakajo

P-29 差分回転を行う球殻間における熱対流の解の分岐

(岡山大工) 柳瀬眞一郎 (同志社大工) 水島二郎 (京大理) 荒木圭典

先端基礎研究において2重球殻中の流れは基本的な重要性を持っている。その理由は2重球殻は機械要素で普遍的に現れる形態であって、とくに潤滑問題において本質的な役割を果たしている。最近も回転2球殻間隙における磁性流体の挙動特性が調べられている[1]。一方、地球物理学で大きな興味を持たれているダイナモの問題においても2重球殻中の流れは外殻中の流れをモデル化するものとして広く研究されている。この場合では回転と熱効果が共に重要なとなる[2]。今回の我々の研究は内殻が静止し外殻が回転する(差分回転)するような2重球殻中の流れに球中心向きの重力場が働き、内殻表面の温度を外殻より高く保ったときの流れの定常解を軸対称性を仮定して求め、それらの線形搅乱に対する安定性を調べた。温度勾配を加えず差分回転のみが働くと、あまり回転角速度が大きくなきときの流れは図1に示されるようなTaylor-Couette流となる[3]。ところが内外壁間に温度差を加えるとBénard対流のような熱対流渦が発生しTaylor-Couette流と競合するようになる。熱対流渦は赤道面に関する対称性によって分類することができる。一つは対称性を持つ解の族で図2に示すように赤道面に関して対称な渦構造が現れる。また対称性を持たない解の族も存在する(図3)。図1-3に示した3つの型の流れはあるパラメータ領域ではすべて基礎方程式の定常解として存在する。しかしそれらのすべてが安定に存在するわけではなく、その存在可能性は一つの方法として線形搅乱に対する安定性によって調べることができる。

[1] 山口博司ほか: ながれ 13(1994) 462-474.

[2] Busse, F.H.: *Annual Rev. Fluid Mech.* 10(1978) 435-462.

[3] Büller, K.: *Acta Mechanica* 81(1990) 3-38.

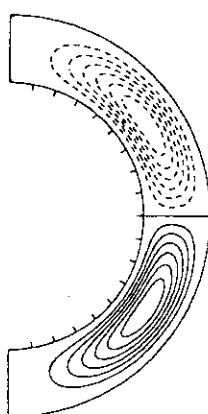


図1. Taylor-Couette 解

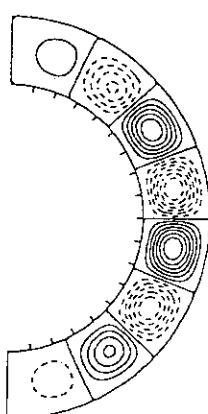


図2. 対称解

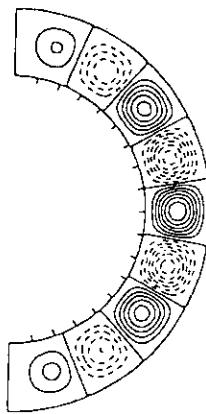


図3. 非対称解

On the bifurcation of the thermal convection between differentially rotating spheres.
by YANASE, Shinichiro, MIZUSHIMA, Jiro and ARAKI, Keisuke

P-30 流体摩擦抵抗低減法の探索

(原研・高温工学部) 秋野詔夫、高瀬和之、久保真治、日野竜太郎
 (Univ. Nottingham) K.-S. Choi

特別基礎研究において、流体摩擦抵抗（流体中を運動する物体の表面に作用するせん断力）が、平滑な面と比べて低減する現象を探査してきた。本研究の実用的意義は、流体輸送管路のポンプ動力や航空機等の省エネに結びつくところにある。摩擦損失低減現象に関する従来研究は、生物との関連が深く、液体中に鎖状高分子・「繊維」・魚の粘液等を微量添加するときに生じるトム効果、サメの肌を模擬したすじ模様を表面に付与する「リブレット」、イルカの優れた運動能力から期待される「柔軟面」などがある。しかし、トム効果には添加物による環境汚染の懼れがあり、他は効果が微少であり実用化には至っていない。そこで、本研究では、生物に学ぶ、いわゆる生物工学の視点から、新たな摩擦損失低減の可能性を抽出し、試行錯誤的に実験を進めている。新しい可能性として、まず「植毛面」を取り上げた。海獣の毛皮・鳥類の羽毛の流体力学的特性は、今だ定量的に測定されたことがない。毛という共通性に着目すると、表面近傍には常に繊維が存在し、流れに棚引いてリブレットに類似するすじ模様が形成され、さらに柔軟面の効果も期待できる。「改良D型粗面」は、流れが滑らかに流過するように形状を工夫した微細なクボミを表面に多数分布させた面であり、クボミの中で流体がペアリングのように作用して摩擦抵抗が低減することを期待するものである[1]。実験は、水循環装置に、長さ3m、高さ3cm、幅14cmの矩形流路を接続して行った。この流路の下流側1mの部分の幅14cmの二面に、各種試験面を取付け、流れ方向の圧力降下を測定し、摩擦損失を評価した。試験の結果は、まず、基準となる平滑面の摩擦損失は従来データと±2%の範囲で一致し、リブレットでは約6%の低減が確認でき、従来研究の追試ができた。今回試作した形状の「改良D型粗面」では、わずかの低

減効果しか観測できなかった[1]。「植毛面」に関しては、アザラシの毛皮の摩擦抵抗を測定し、図1に示すように、広い流量範囲で約5%の低減を測定した。毛皮の繊維の観察結果によると、低流量条件では繊維は表面に密着して動かないが、高流量条件では繊維が表面から離れ揺動するになり、対応して摩擦損失は平滑面の値より急に増大する結果を得た。以上の探索的実験的研究の結果として、二つの新しい摩擦抵抗低減効果を見い出すことができた。今後、新しい着想に基づく面を試作し特性を測定すると共に、これまでに低減効果を確認できた面の最適条件を追求したいと考えている。

[1]秋野他、「ながれ」13巻別冊、第26回乱流シンポジウム講演予稿集、pp.176-178(1994)

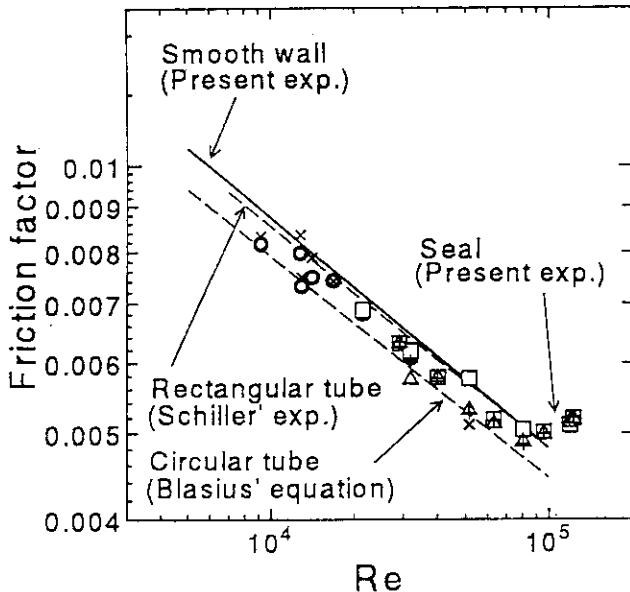


図1. 平滑面とアザラシ毛皮の摩擦抵抗

P-31 熱対流における縮退を伴う分岐

(原研・分岐研究グループ) 藤村 薫 (カリフォルニア大学) ロバート・ケリー

流れに加えられた単色波擾乱の弱非線形発展は、擾乱振幅の絶対値 $a(t)$ に対して

$$\dot{a} = \sigma a + \lambda_1 a^3 + \sum_{n=2} \lambda_n a^{2n+1},$$

という Stuart-Landau 方程式によって記述される。通常の $\lambda_1 \neq 0$ の場合、方程式の解の振舞いを定性的に記述するためには、5次以上の非線形項 ($n \geq 2$) を無視することができるのと、弱非線形平衡解として $a^2 = -\sigma/\lambda_1$ が得られる。ところが、 $\lambda_1 = 0$ という状況が生じると、Stuart-Landau 方程式を $n = 1$ で打ち切ったものは、単に $\dot{a} = \sigma a$ という線形増幅のみを記述することになるので、非線形効果による線形増幅の抑制を記述するためには、少なくとも5次の非線形項 ($n = 2$) を解析に含めなければならない。そのような状況を縮退と呼ぶ。線形臨界点における縮退として、拡大流路内の流れ、逆回転を行う Taylor-Couette 流、ならびに上下自由境界をもつ二重拡散対流における縮退が、これまでに報告されている。また、Blasius 境界層を平行主流として取り扱った場合、 $\lambda_1 \approx 0$ 、 $\lambda_2 \approx 0$ 、 $\lambda_3 \approx 0$ という超縮退と呼ばれる状況が臨界点の近傍で実現可能であることが報告され、Stuart-Landau 方程式に7次の非線形項を含めた場合の解析結果が得られている。

本報告では、当研究グループ P-32 の問題を上下逆転させて、下面を冷却、上面を加熱した2枚の水平壁間を流れる平面 Poiseuille 流を考える。この場合、温度分布は、上に行くほど高温になるので、安定成層を成す。成層の影響は、平面 Poiseuille 流に安定化効果を及ぼす。弱非線形擾動展開を用いると、擾乱を支配する方程式を Stuart-Landau 方程式に帰着することができる。幅広いパラメーターにわたって、線形臨界条件を数値的に決定し、Stuart-Landau 方程式に含まれる係数を臨界点において求めた。流体の物性値に依存する無次元パラメーターである Prandtl 数が 0.17 未満という、水銀 (= 0.025) のような液体金属を含む低 Prandtl 数流体に対しては、 $\lambda_1 = 0$ となる3次の縮退が可能であり、縮退を生じるパラメーター値を境に臨界点における分岐特性が亜臨界から超臨界へ変化することが分かった。また、Prandtl 数が 0.0028316 のとき、 λ_1 と λ_2 が同時に臨界点で 0 となり、また、 λ_3 も臨界点の非常に近傍 (臨界波数からのずれが 0.002896) で 0 となる超縮退が、臨界点において可能であることを見つけた。

3次の縮退の場合には Stuart-Landau 方程式は少なくとも5次の非線形項を含まなければならず、また、ここで見つけた超縮退の場合には9次の非線形項を含まなければならない。その結果、分岐曲線は例えば7次で打ち切った場合のように特異にはならず、Stuart-Landau 方程式では通常予測不可能な、亜臨界分岐の安定なプランチに対応する弱非線形平衡解を得ることができた。

Degenerate Bifurcation in a Thermal Convection
by K.Fujimura and R.E.Kelly

P-32 Nonlinear Bifurcation Study of
Unstably Stratified Plane Poiseuille Flow

Hsi-shang Li, *Research Group for Bifurcation in Thermal Convections*

Nonlinear interaction between a hydrodynamic transverse Tollmien-Schlichting wave and longitudinal thermal convection rolls in an unstably stratified plane Poiseuille flow is studied. Consider a horizontal layer of fluid contained between two parallel plates of infinite extent. An adverse temperature gradient is maintained by heating the lower plate. Driven by an externally imposed pressure gradient, this unstably stratified fluid then forms a plane Poiseuille flow between parallel plates. Under pertinent flow conditions, the preferred mode of each different nature can occur concurrently and show strong competition for domination. Weakly nonlinear result shows a variety of mode selections in the neighborhood of this cross-over point, e.g. $Re = 5771.759$ and $Ra = 106.735$ for $Pr = 0.71$ [1]. Current study investigates the resulting saturated states, where the weakly nonlinear analysis is no longer valid because of the subcritical nature of transverse wave and numerical solutions of the 3D fully nonlinear disturbance equation is needed. Fourier-Chebyshev Collocation (pseudospectral) method is applied to achieve high orders of accuracy of the equilibrium solutions. Starting from the lower branch of the 2D transverse wave, solutions of different nature are traced out while moving around the cross-over point. The net heat flux along with amplitudes of relevant modes is studied with special interest. Mode interaction predicted by the weakly nonlinear study is investigated. This subcritical/supercritical mode interaction produces affluent new bifurcation characteristics different from the usual ones of supercritical/supercritical nature. Though complicated by diversified parameter selection, a future global study of the interaction exploring various parameter ranges will be extremely rewarding.

- [1] K. Fujimura and R. E. Kelly, "Interaction between longitudinal convection rolls and transverse waves in unstably stratified plane Poiseuille flow", Phys. Fluids 7 (1), 1995.

P-33 高融点BCC金属の低温照射

筑波大学物質工学系 谷本久典、水林博、奥田重雄

FCC金属に比べBCC金属では自己格子間原子(SIA)の挙動についての理解が進んでいない。その原因として低温照射実験の必要性に加え、これまでの実験間で相入れない様な結果が報告されていることが挙げられる。低温照射したMoの内部摩擦(Q^{-1})測定では $\langle 110 \rangle$ 欠陥の回転で説明できる緩和ピークが観測され、このピークが転位のピン止めが観測される温度で回復を示したことから、 $\langle 110 \rangle$ 喉鉛型SIAの回転運動を伴った3次元移動が提唱されている。しかしHuang散乱の実験からはSIAの非常に大きな $\langle 110 \rangle$ 歪異方性が報告されており、先の Q^{-1} ピークをSIAの回転によるとした場合に定量的な一致が全く得られない。さらに Q^{-1} ピークの回復挙動が電気抵抗測定の実験でのSIAの回復ステージに比べ複雑であるとして、 $\langle 110 \rangle$ 分裂型SIAの回転を伴わない(110)面上の2次元移動が提唱されている。我々は Q^{-1} ピークの照射欠陥濃度(C_{FP})依存性に注目し、MoのSIAの挙動を明らかにする目的で、広範囲な C_{FP} に及ぶ低温照射及び Q^{-1} 測定の実験を行った。図1に約5Kで20MeV陽子線を照射したMoにおいて観測された Q^{-1} スペクトル及びその強度の C_{FP} 依存性を示す。ここで、41Kの緩和ピーク(41Kピーク)は中性子、陽子及び電子線照射実験で共通して観測されることから、このピークがSIAによるものである。そして我々が行った $C_{FP}=10^{-2} \sim 10^2$ ppmでの照射実験から、41Kピークの強度が C_{FP} に比例して増大せず、その C_{FP} 当たりの強度が $(C_{FP})^{-1/3}$ に比例して減少する事が判明した。また転位のピン止めの実験では、40K付近のSIAの自由移動によるピン止めステージが低温側(LTP)と高温側(HTP)成分に分離することができ、 C_{FP} の増大と共にHTP成分が増大する事が明らかになった(図2参照)。これらの結果は、MoのSIAには回転運動を行いLTPに寄与するものと回転運動を行わぬHTPに寄与するものがあり、 C_{FP} の増加とともに欠陥間の相互作用により後者の存在比が増大することを示しており、 $C_{FP}=300$ ppmで行われたHuang散乱実験では主に後者が、 Q^{-1} 実験では前者が測定対象となるために定量的な不一致が生じると説明する事ができる。これらのSIAの原子モデルや相互作用の機構は現時点で不明であり、高融点BCC金属におけるSIAの挙動の理解には低温照射実験をさらに進める必要がある。

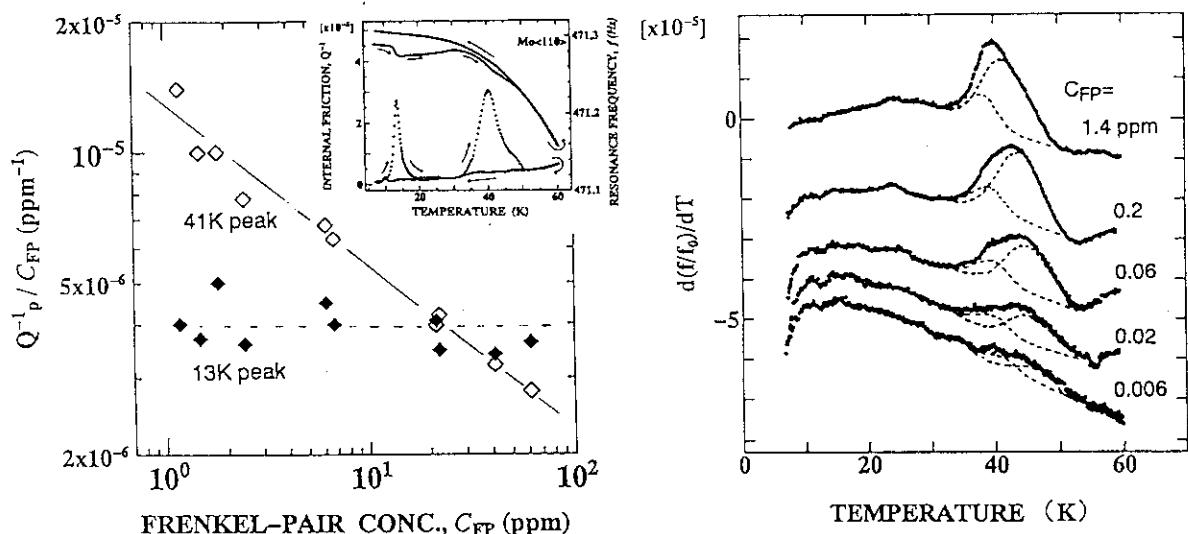


図1 5Kで20MeV p⁺照射したMoの内部摩擦スペクトル(挿入図)と各緩和ピークの欠陥量当たりの強度の欠陥量依存性。

図2 5Kで20MeV p⁺照射したMoにおける共振周波数の変化を温度微分で表す。破線はピン止めステージ(40K付近のピーク)を2成分に分離したもの。

Internal Friction Measurements of Mo and W after Low-Temperature Irradiation
H. Tanimoto, H. Mizubayashi and S. Okuda

P-34 Ion Solid Interactions and their Application to Light Element Analysis

P. Goppelt-Langer, S. Yamamoto, Y. Aoki, H. Takeshita, H. Naramoto, JAERI/Takasaki

The analysis of light elements in a heavy matrix is an important problem in ion beam analysis. Here we demonstrate the application of the elastic recoil detection technique using high energetic heavy ions (HE-ERD) for detection of light elements from hydrogen to boron. For those light elements, satisfactory element separation and resolution can be achieved using a thin absorber foil and an aperture slit in front of a solid state detector. As incident beams 8 - 16 MeV O and 30 MeV Ni from a 3 MV tandem accelerator were applied. Absorber foil thicknesses were adjusted to the incident beams and were in the range of 6 - 12 μm Mylar. Fig. 1 shows a sketch of the experimental setup of our high energy ERD system. The recoils were detected under a scattering angle of 30° while the incident beam hit the sample at 15° relative to the surface. This geometry points out to give best overall results concerning beam requirements and resolution. At more grazing incidence the beam emittance will dominate the resolution. In our experiments we could achieve a resolution of 100 \AA for H recoils in a metallic matrix (Cu/Nb multilayers) and 300 \AA for all elements in low Z materials, where the stopping power is lower. These results are depicted in Fig. 2, where H, D, He and the host B layer on an iron substrate were measured using different incident ions and energies. For the heaviest projectile ion,

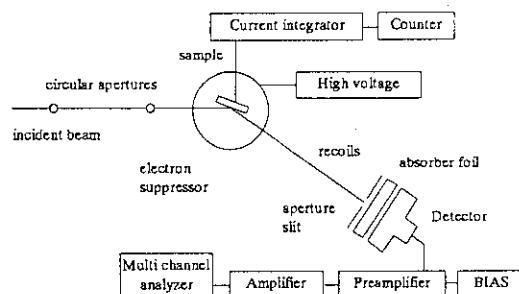


Fig. 1: Experimental setup for HE-ERD experiments using absorber foil.

30 MeV ^{58}Ni , the recoil energies after passing through the absorber foil were increasing up to B, while the energy of C recoils (from surface contaminations) were already reduced due to the energy loss in the Mylar foil. At the low energy side of the spectrum on the heavy substrate forward scattered ions were visible. In this technique the resolution is composed of the large kinematic spread of the recoils and the straggling in the absorber foil, which is larger for heavier ions. On the other side, the stopping power of the recoil and the energy transfer is also increasing with recoil mass, so that the resolution does not change much for different recoils. Straggling in the target is important in deeper regions and at extreme grazing incidence only.

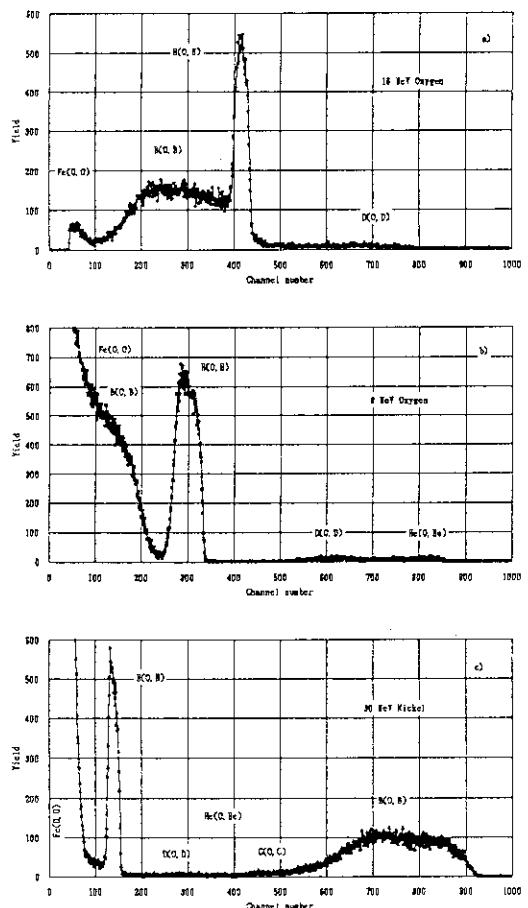


Fig. 2: Thin boron layer (2100\AA) on iron containing H, D and He. Incident beam and absorber foil for a) 16 MeV ^{16}O + $12.5 \mu\text{m}$ Mylar, b) 8 MeV ^{16}O + $6.5 \mu\text{m}$ Mylar and c) 30 MeV ^{58}Ni + $6.5 \mu\text{m}$ Mylar. Incident angle 15° , detection angle 30° , aperture slit 1 mm.

P-35 不可逆的輸送過程を記述するための拡張されたボルツマン方程式

(原研、先端研) 田次邑吉

非平衡な気体や流体は、内部で偏った運動量を分かち合い、自ずと熱平衡へ不可逆的に接近する事が知られているが、その様な過程を記述できるようにボルツマン方程式を拡張する。近年、小数自由度の力学系がカオス的な不可逆性を示す事が発見され注目されてきたが、無限自由度をもった気体や流体における不可逆性についてはエルゴード問題と関連して袋小路に阻まれてきた。ここでは、力学系のカオスに学び、熱平衡へ接近は、ミクロ的には、2体衝突による入射運動量の引き延ばしと継続した2体衝突による折り重ねの、繰り返しによってもたらされる、入射運動量のカオス的混合により達成される、と仮定して出発する。それで、気体や流体を、1コの巨大な系としてではなく、少數個の分子からなる部分系が膨大に集合したものとして扱う。そして、その様な引き延ばしと折り重ねの繰り返しの各段階を巨視的に表現するため、局所的に一時的に集合したそのような部分系の集団の上で集団平均と有限時間平均をとる、と言う手法をとる。

先ず、部分系の各粒子は識別可能であるとして、従来のように位相空間を導入して、等重率の下に部分系の一様な統計集団を設定する。その時、等重率の下においては、その統計集団のどの粒子対も、粒子交換に関する対称性が条件つけられる事が明らかにされる。これにより、2体衝突は粗視化されるが、運動量の保存則は乱され、継続した2体衝突は、必ず自己衝突を引き起こす事が明らかにされる。

結局、位相空間では継続した2体衝突を扱う事は出来ず、粒子は識別不可能であるとして進むほかない事が分かる。その様な粒子であっても、衝突が起こらない短い時間ならば、少數粒子の部分系の集団は、 μ 空間における少數個の空間セルの中に投影される分布関数として決定論的に記述できる。セルの融合（2体衝突）を上で得た粗視化法により記述するため、セルの中の空間分布を一様であると仮定する。運動量分布については実際のままおくことにより、今度はセル平均に関して運動量保存則を表現でき、等重率により乱されることはなくなる。継続した2体衝突を扱うために、その第1衝突の方向を記憶する記憶関数を、作用反作用の法則を用いて導入する。それにより第1衝突と平行な第2衝突（自己衝突）を排除する。これにより、第2衝突は、粗視化された時間の次のステップに現れる第1衝突の次のものとして扱われる。これにより、自己衝突は再会過程として表現され、運動量の折り重ねが実現する。かくして、この様な記憶関数をボルツマン方程式に導入することにより、運動量のカオス的混合が記述できるように拡張される。また、この関数により時間は平均自由時間の幅で粗視化される。

この方法においては、巨視量は、アンサンブル平均と有限時間平均との交換可能性として定義され、エルゴード仮説を必要としない。この故に、等重率が有限時間において適用されるため、非平衡系にたいしても適用出来る。このボルツマン方程式の拡張により運動量の不可逆的輸送が記述出来るようになり、流体力学の改造などに資することが出来よう。この巨視量の定義における時間の粗視化は観測量の新しい記述手法であり、自然にたいする人間の新しい目が獲得されたと言えよう。

Extended Boltzmann equation for describing irreversible transport
Yukichi Taji

P-36 酸化物超伝導体 ($\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$) の磁気熱量効果

(原研・先端研) 渡辺光男、岩田忠夫

第2種超伝導体の混合状態における磁束線の運動状態を調べることは、超伝導体のピン止め機構の解明、あるいは材料の質的向上をめざすうえで重要なことである。我々は磁気熱量効果による磁束線の運動を $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ について調べてきた^[1]ので報告する。

磁気熱量効果の測定は、試料を断熱条件下あるいはサーマルスイッチをもちいて外部磁場(H)を一定速度で変化させ、試料の温度を磁場の関数として測る方法で行った。

この測定により以下のとおり見いだした。

- ① 磁束線が周期的 (ΔH) に出入りし、それにともない発熱 (ΔQ) が起こる。図1、図2。
- ② ΔQ は $-M \cdot \Delta H$ に対応したもので $\Delta Q/\Delta H$ は磁化曲線と同様のヒステリシスを示す。図3。
- ③ ΔH は外部磁場(H)に依存し、内部磁束密度が増加するにつれて小さくなる。図4。
- ④ ΔH は温度依存性がない(1.2K~30K)。

これらの現象について討論する。

[1] M. Watanabe, T. Iwata, Phys. Rev. Lett. 72, 3429 (1994)

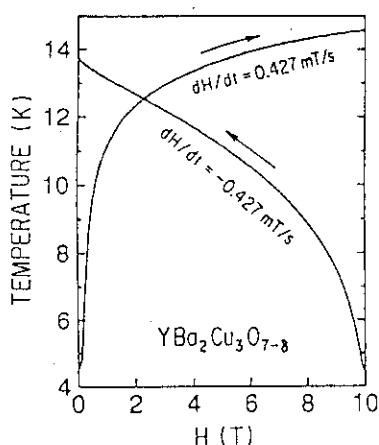


図1. 外部磁場(H)を0T→10T, 10T→0Tに変化した時の $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ の温度変化

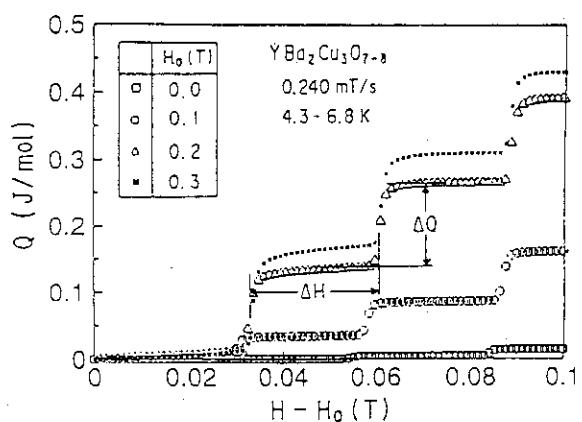


図2. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ の磁気熱量効果によるヒステリシスの測定

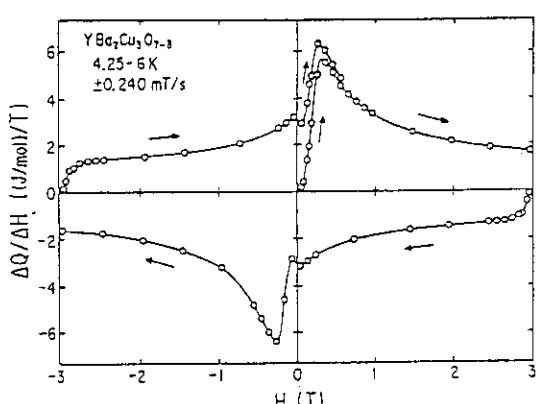


図3. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ の磁気熱量効果によるヒステリシス曲線

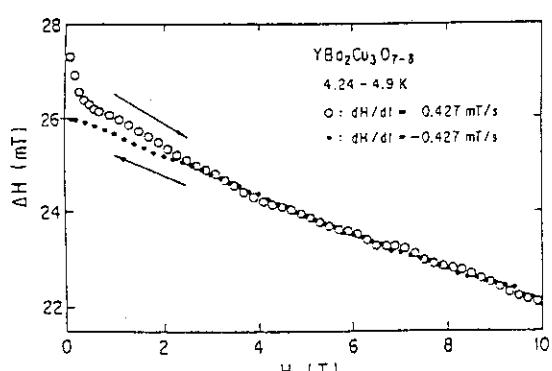


図4. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ の ΔH の外部磁場(H)依存性

P-37 $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 超伝導体薄膜における粒子線照射効果

(原研・先端研・極低温放射線物性研究グループ) 石川法入

高エネルギーイオン照射は、試料内に一様に欠陥を生成することができ、その欠陥の量を系統的にコントロールできる有力な方法である。酸化物高温超伝導体に粒子線を照射することによって、応用上重要なパラメータである臨界電流密度を増加させることができることから、さまざまな研究が行われてきた。照射粒子の種類やエネルギーによって生成される欠陥の大きさや形態は異なり、それによって超伝導特性に与える寄与も異なる。我々は、照射イオン種およびエネルギーを大きく変化させたときの照射効果の違いを、欠陥生成過程の違いを用いて説明することが出来たのでここに報告する。本研究では、酸化物超伝導体 $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ c軸配向膜について、He(1MeV)、I(200 MeV)、Au(120 MeV)の照射を2MVV.d.G.加速器、Tandem加速器を使って行い、それぞれのイオン照射について、格子定数(c軸長)のイオン照射量依存性の測定を行った。図1に、I(200MeV)を照射したときのc軸長の照射量依存性を示す。I(200MeV)の場合に限らず、Heイオン、Auイオン照射の場合もイオン照射後は、c軸長の増加が観測された。その増加は、ほぼlinearで、照射量に比例して欠陥が生成されていることを示唆している。ただし、それぞれのイオン照射の欠陥生成断面積が異なることを反映して比例定数は異なっている。欠陥生成過程の一つとして、弾性的はじき出しによる欠陥生成がある。Heイオン照射の場合は、弾性的はじきだしのみを仮定することで、実験的に求めた欠陥生成断面積を説明できる。それに対して、Auイオン照射やIイオン照射の場合は、格子定数の増加は異常に大きく、弾性的はじきだしのみでは説明できない。弾性的はじきだし以外の欠陥生成過程として、電子励起による欠陥生成が考えられる。電子励起の大きさを表わすパラメータに電子的阻止能がある。Au (120MeV)照射とI(200 MeV)照射は、電子的阻止能がほぼ等しく、それに対して単位照射量に対するc軸長の増加はほぼ等しい(下表参照) ことから、以上の2つの照射については電子励起による欠陥生成が支配的である可能性が高いことがわかった。

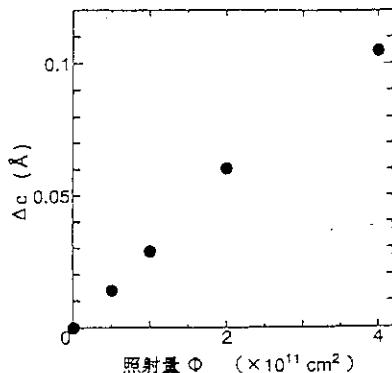


図1 120MeVのIを照射したときの
c軸長の増過分 Δc の照射量の依存性

	S_e (MeV/(mg/cm²))	$(\Delta c / c_0) / \Delta \Phi$ (cm²)
I (200MeV)	38.9	2.0×10^{-14}
Au(120MeV)	36.6	3.3×10^{-14}

表 200MeVのI と 120MeVのAuの
電子的阻止能 S_e と 単位照射量に対する
c軸長の伸びについての比較

Ion Irradiation Effects in $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Thin Films

N.Ishikawa

P-38 ^{121}Sb , ^{57}Fe メスバウアー分光による3d遷移金属 pnictides の研究(電通大電子物性、理研^A) 中村仁、小林義男^A、浅井吉蔵、山田修義、安部文敏^A

NiAs型結晶構造を持つ3d遷移金属アンチモニド中唯一の強磁性体である MnM_xSb は、格子間位置に3d遷移金属元素が入ることによりキュリー温度、自発磁化が減少する。これは格子間位置原子が隣接する正常格子位置Mn原子の磁気モーメントを減少させるとして理解されている。¹⁾ また Fe_{1+x}Sb は正常格子位置のFeのスピノンがc面内三角構造をとる反強磁性体であり、格子間位置のFeは低温でスピングラスになると考えられているが、詳細な報告はまだ無い。²⁾

我々は上記NiAs型化合物の正常格子、格子間位置原子の磁性についての知見を得る目的で格子間位置にMn、Feの入った強磁性体 MnM_xSb 、また反強磁性体 Fe_{1+x}Sb 試料について ^{121}Sb 、 ^{57}Fe メスバウアー分光測定を行なった。 ^{121}Sb メスバウアー分光の磁性研究への応用は国内外を問わずpopularではないが、非磁性原子Sbの原子核の感じる超微細磁場(H_{hf})の値を通して周囲の磁性原子についての知見が得られる。

Fig. 1に MnM_xSb の77Kでの ^{121}Sb メスバウアースペクトルを示す。 $x=0.0$ の試料ではスペクトルは $H_{hf} \sim 360\text{kOe}$ に対応した磁気分裂を示し、この H_{hf} は格子間位置Mnの濃度 x の増加に伴って減少し、かつ分布を伴うようになった。この H_{hf} の分布の x 依存性は「格子間位置Mnが非磁性でかつ隣接する正常格子位置Mn原子の磁気モーメントを減少させる」として説明された。一方格子間位置にFeの入った MnFe_xSb についても同様の議論が成り立つことがわかった。 MnFe_xSb では ^{57}Fe メスバウアー分光の結果も格子間位置のFeが非磁性であることを支持している。

Fig. 2に反強磁性体 $\text{Fe}_{1.25}\text{Sb}$ 試料についての ^{57}Fe メスバウアースペクトルを示す。観測された磁気分裂は主として反強磁性的に配列した正常格子位置のFeの成分であり、8Kでは格子間位置のFeに依ると考えられる H_{hf} の大きな成分があることもわかった。これらの H_{hf} の温度依存性から正常格子位置Feのネール温度が x の増加と共に低下し、低温では x に依らず一定の値(~110kOe)になること、またその大きさが自身の磁気モーメントの大きさ(~ $1\mu_B$)から期待される値と矛盾のないことがわかった。

【参考文献】

- 1) Yamaguchi et al.; J. Phys. Soc. Jpn., 46(1979)1138.
- 2) Yamaguchi et al.; J. Phys. Soc. Jpn., 34(1973)58.

^{121}Sb and ^{57}Fe Mössbauer Spectroscopy of 3d-Transition-Metal Pnictides

J. Nakamura, Y. Kobayashi, K. Asai, N. Yamada, and F. Ambe

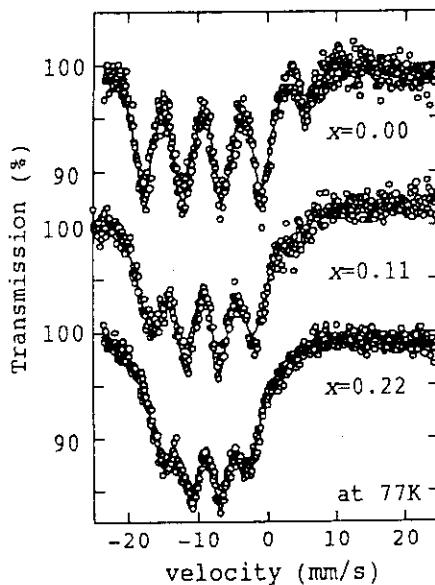


Fig. 1 ^{121}Sb Mössbauer spectra of Mn_{1+x}Sb at 77K.

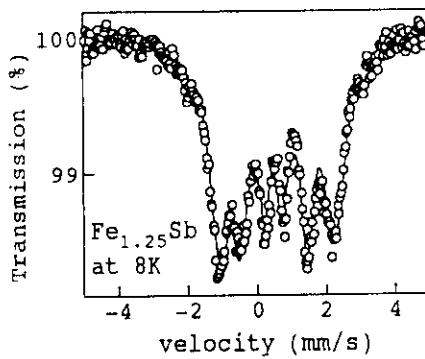
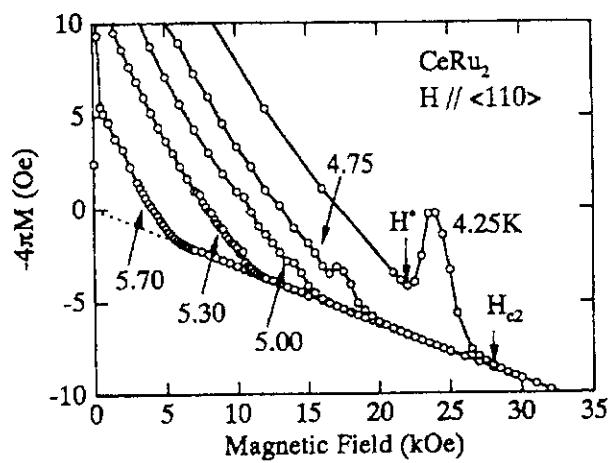
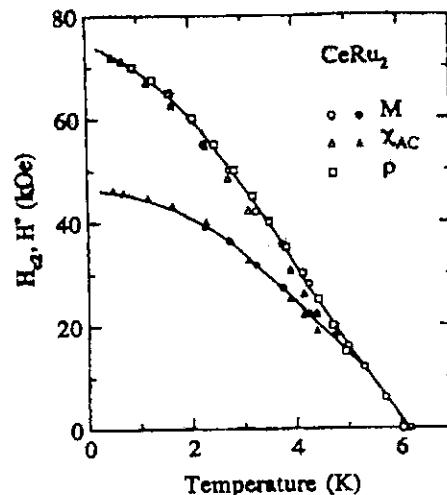


Fig. 2 ^{57}Fe Mössbauer spectrum of $\text{Fe}_{1.25}\text{Sb}$ at 8K.

P-39 CeRu₂の超伝導(大阪大学・理学部^A, 原研・先端研^B) 摂待力生, 山本悦嗣, 大貫淳睦

立法晶（ラーベス相）のCeRu₂は超伝導転移温度が約6Kの超伝導体であり、異常な超伝導相を持つ物質として最近UPd₂Al₃, UPt₃とともに注目されている。これらの物質では、超伝導状態の磁化曲線において上部臨界磁場H_{c2}近傍でピーク効果を示す。ピーク効果の原因として不純物相等による磁束のピニング機構が考えられるが、CeRu₂やUPd₂Al₃では秩序パラメータの空間的な不均一構造に起因するとするFulde-Ferrell状態が実現している可能性が議論されている。

CeRu₂はコングルエントでなく単結晶育成が難しいため、これまで多結晶試料による実験がほとんどであった。我々は超高真空炉を用いたゾーンメルティング法により単結晶の育成に成功したので、その超伝導の性質を研究した。図1は超伝導相を含む磁化曲線である。5 K以上ではH_{c2}が明瞭に定義されるが、降温とともにH_{c2}付近でピーク構造が出現する。図2はH_{c2}とピーク構造が出現する磁場H^{*}の温度依存性である。H_{c2}とH^{*}の間の超伝導がFulde-Ferrell状態であるかどうかはまだ決着をみておらず、今後の詳しい研究が必要である。

図1 CeRu₂の磁化曲線図2 CeRu₂のH_{c2}とH*の温度依存性

P-40 CeRu₂Ge₂の物性

(原研・先端研、原研・材研部^A、筑波大・物質工^B) 山本悦嗣、目時直人^A、
池沢晴久^B、大貫惇陸

希土類やウランの化合物は、そのf電子と伝導電子の混成挙動による多体効果すなわち近藤効果（重い電子系）によって、フェルミ液体としての近藤格子状態や弱い反強磁性状態そして非BCS超伝導など様々な基底状態をとり、これら特異な物性の理解は現代の固体物理の重要な課題の一つである。その代表的な物質のCeRu₂Si₂は8Tでメタ磁性転移を起こし、f電子が遍歴的に振舞う重い電子状態から局在状態に変化することが知られており、多くの研究がなされてきた。一方同じ正方晶 ThCr₂Si₂構造をとるCeRu₂Ge₂は、8K以下で強磁性秩序を示すこと、そして粉末結晶を用いた実験では、磁気転移点がいくつかに分裂し多くの強磁性相の存在を示唆していた[1]。CeRu₂Ge₂はCeRu₂Si₂とのこの対比の面でも興味が持たれる。我々はテトラアーク炉を用いた引き上げ法によって非常に高品質のCeRu₂Ge₂の単結晶を育成し、その電気抵抗の測定及び中性子散乱実験をおこなった。

電気抵抗測定では室温から8Kまで、なだらかに減少し、顕著な近藤的振舞いは見られなかった。8Kにおいて抵抗値の大きな減少が見られたが、超伝導は示さなかった。8Kにおける減少は強磁性体の磁気転移を反映したものと考えられる。図1にこの試料の中性子散乱の測定結果を示す。この図において、(101)の信号は8K以下で増大している。この増大の効果は磁気転移によるものであり、CeRu₂Ge₂は8K以下において強磁性体となっていることが確認された。8K以下では信号強度に大きな変化は見られず、他の磁気転移点はないと考えられる。この測定結果から求められる磁気モーメントは1.9μ_Bであり、高温における帯磁率測定による有効磁気モーメント2.2μ_Bがほぼあらわれているものと考えられる。

[1] M. J. Besnus et al, Phisica B 171 (1991) 350.

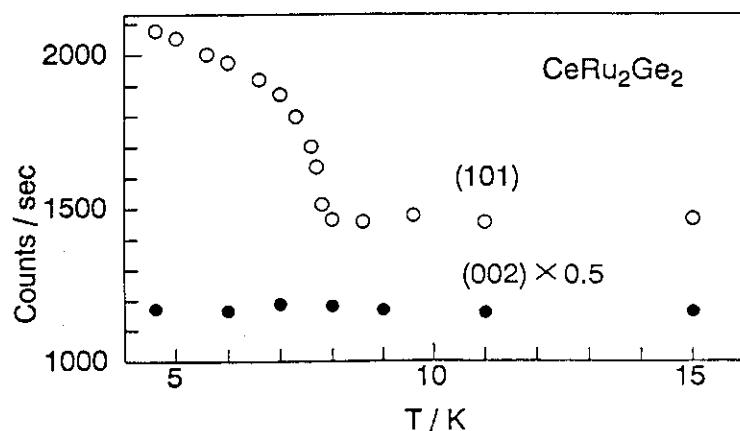


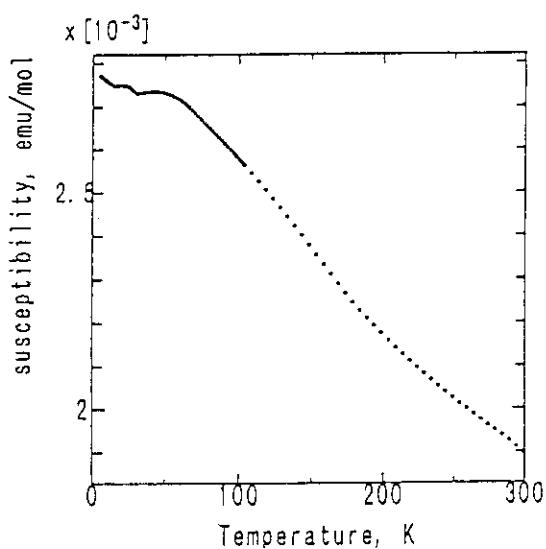
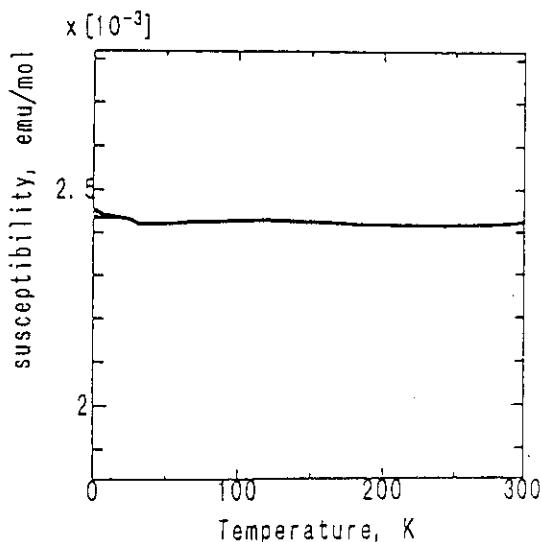
図1. CeRu₂Ge₂ の中性子散乱信号强度

P-41 ウラン3元合金の物性

原研 岡安 悟、数又幸生、宇賀神光弘

重い電子系に関して多くの研究が世界中で精力的に進められている。ウラン系については2元系に関しては主な物質での研究はかなり進んでいるが、3元系となるとその数はまだ限られている。我々はウラン系での重い電子についての更なる知見を得るために新しいウラン3元合金を合成し、その物性について調べた。今回用いた試料は次の2種類の合金で組成比がそれぞれ、 $U:Ru:Si=1:1:1$ と $U:Mo:Si=3:1:2$ の試料である。前者に関する組成比が $1:2:2$ の物質 URu_2Si_3 は $1.5K$ で超伝導を示すことが知られている[1]。試料はアークメルト法で作製した。所定の組成を得るために $1100^{\circ}C$ の温度でアニーリングを行った。結晶構造については、 $URuSi$ は $TiNiSi$ 型のオルソロンピックな $CoMnSi$ とよく似た構造を持っている。また、 U_MoSi については晶系はキューピックであることはわかっているが、具体的にどの結晶構造かについては現在解析中である。図1と2にそれぞれのdc磁化の温度依存性を示す。 $URuSi$ はウランのスピンは局在化しており、 $100K$ 以上の温度でCurie-Weiss則に従う。このときの有効磁気モーメントは $3.36\mu_B$ となる。一方、 U_MoSi の場合は室温から $1.7K$ までほぼ一定の磁化を保っており、いわゆるパウリ常磁性を示している。この場合にはウランのスピンは遍歴的となり結晶中を動き回っている。パウリ常磁性を表す式 $\chi = 3N\mu_B^2 m^2 / h^2 k_B^2$ を用いて遍歴電子の有効質量を見積もってみると ($k_B^2 = 10^8 \text{ cm}^2/\text{K}$ と仮定する)、 $m^2 = 70m_e$ という値が得られる。したがってこの系では遍歴電子は相互作用によって自由電子の70倍程度の重い電子系を形成していると考えられる。この U_MoSi の試料は $2K$ において超伝導転移を示し、新たなheavy fermion超伝導体の可能性が期待された。しかしその後の解析から、不純物として試料に析出した $U(\gamma)-Mo$ 相が超伝導を示していることがわかった。再アニールによってウランのガンマ相をアルファ相に変化させると超伝導は消滅する。 $URuSi$ および U_MoSi の双方に特徴的なこととして低温でのdc磁化の温度依存性が零磁場冷却(ZFC)と磁場中冷却(FC)とで異なるという点である。このような現象はスピングラスでしばしば観測されるが、交流磁化率の測定からはスピングラスの振る舞いはみられずどのような状態がおこっているのか興味が持たれる。

[1] T. T. M. Palstra et. al. Phys. Rev. Lett. 55, 2727 (1985)

図1 $URuSi$ の磁化の温度依存性図2 $UMoSi$ の磁化の温度依存性

P-42 新しい還元Nb酸化物系超電導体

(原研・燃料研究部) 中村彰夫

筆者等は、最近、深く還元されたNb複合酸化物系、 $A_2Nb_{1+x}O_y$ (A=Ca, Sr)において、臨界温度(T_c)8.3-9.4Kの一連の新超電導体を見出した[1]。これらの化合物は銅系酸化物超電導体と類似のペロブスカイト型構造を持っており、より高い T_c を持ったNb酸化物系超電導体の発見の可能性や高温超電導発現機構の理解といった面からも興味深い結果と思われる。

試料の合成は通常のセラミックス法により行い、 ACO_3 とNb及びその各種酸化物(NbO , Nb_2O_3 , NbO_2 , Nb_2O_5)を所定のNb/A比($=r$)及びNb原子価($=n$)に調製した混合物を、1075-1125°Cにて真空中で24-36h仮焼、本焼成することにより得た。

図1に、現在迄サ-ベイされた全組成域を、また図2に、Ca系の代表的な2試料の磁化率測定結果を示す。これら結果及び粉末X線回折法による生成相の同定から、本系は次のような特徴を持つことが明らかになった;

(1)両系共、例外的に広い組成域($0.5 < r < 3$, $1 < n < 4.3$)にわたって超電導相がひろがっている。この超電導相領域は歪んだ(欠陥)ペロブスカイト型構造相の生成領域と良く対応しており、格子の(立方晶からの)歪み(ずれ)が本系の超電導の生起に関与していると思われる。

(2)最も高い超電導体分率は $n=1-2$ といった非常に深く還元されたNb原子価域で得られる。

(3) T_c は両系共 $r=1$ の前後でNb欠乏側($r < 1$)では9.2-4K, Nb過剰側では8.3Kと変化する。

現在、高 T_c 化や発現機構の理解を目指して、ランタノイド(アクチノイド他)置換系の検討を進めている。また、ごく最近、ロシアからBa-Nb-O系で $T_c=17-23$ Kの新超電導体が報告されている[2]。これらの結果についても合わせ議論する。

[1] A. Nakamura, Jpn. J. Appl. Phys. 33(1994)L583.

[2] V. A. Gasparov, G. K. Strukova and S. S. Khassanov, JETP Lett. 60(1994)440.

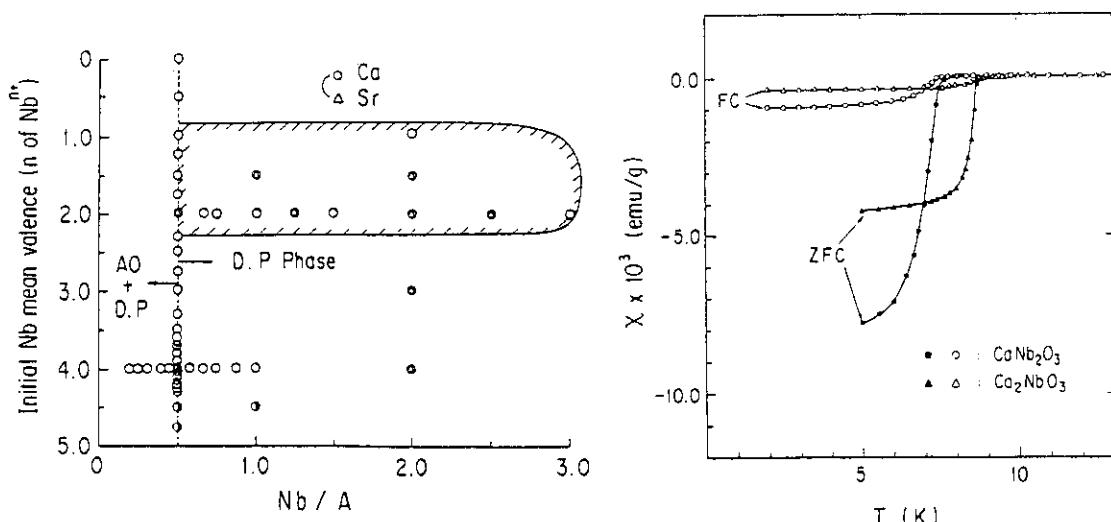


図1. 本系の超伝導組成領域；白抜き：
超伝導相、半抜き：常電導相。

図2. Ca系の代表的な2試料の磁化
測定結果

P-43 理研における α xn反応を用いた超重核探索実験

(立教大学理学部) 黒川明子

超重核は自然界には存在しない重い原子核である。生成断面積は pb から nb 程度と小さいうえに、生成されても安定ではなく、自発核分裂や α 崩壊してしまうなどの特徴をもっており、生成方法、検出方法とともに、少しでも効率を高めようと長年にわたっていろいろな試みがなされてきた。現在、最も原子番号の大きなものは、昨年の暮れにドイツの GS I で cold fusion によって生成された $Z = 111, A = 272$ の核である。

我々は理研で、励起している複合核がそのエネルギーを失う過程において、 $\alpha \times n$ 反応が、 $x n$ 反応に比べて、分裂との競合で有利であるという予想を裏付けるために、 $^{232}\text{Th} + ^{40}\text{Ar}$ 実験を行った [1]。クーロン障壁程度の入射エネルギーをもった Ar ビームが冷却されている Th ターゲットを照射し、さまざまな質量をもった反応生成物から、ガス充填型反跳イオン質量分析器(GARIS)によって、質量約 250 のものを選びだした。GARIS の焦点面には、位置感応型シリコン検出器を置き、埋め込まれた生成物からの α 崩壊チェーンを、そのエネルギーとそれが起こった絶対時間を測定することにより得た。それとともに、粒子弁別をおこなった。弁別能力を高める、すなわち検出器の位置分解能を良くするために、この実験では新しいタイプの電極構造をもった2次元シリコン検出器が使用された [2] (図1)。解析の結果、 $^{232}\text{Th} (^{40}\text{Ar}, \alpha 3n)^{265}106$ 反応が起きたと考えられる崩壊チェーンが見つけられた。このチェーンの偶然同時計数のレベル等について、目下解析中である。

[1] T. Nomura, Proc. Tours Symposium on Nuclear Physics II, France, 1994.

[2] M. Kurokawa, Proc. Tours Symposium on Nuclear Physics II, France, 1994.

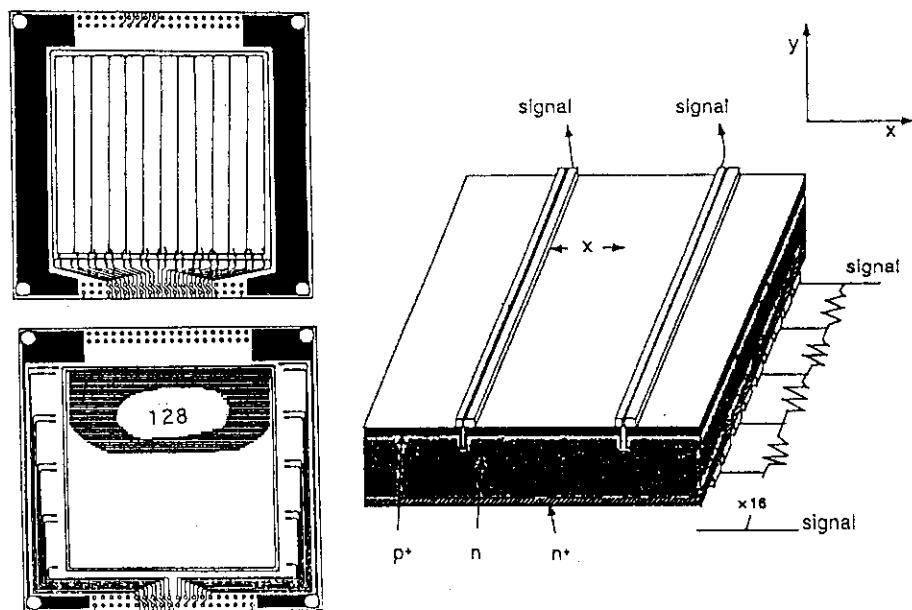


図1 位置感応型シリコン検出器の表と裏の図。右側は拡大図。

P-44 高速回転・巨大変形する原子核の構造

(九州大学・理学部) 清水良文

原子核のような有限孤立系では、物性系での温度・圧力や外場（電場・磁場）のような外から自由にコントロールでき、かつ、系を変化させることによってその性質を探ることのできるような手段はあまりない。これまでには、核子数（陽子数・中性子数）を変化させることができがその役割を果たすほとんど唯一の手段であり、それによって、原子核の基底状態が球形から変形に「相転移」することや、これに伴って集団運動の性質が振動的から回転的に変化することが明らかになったことはよく知られている。また、最近では陽子数と中性子数が大きく異なった（すなわちアイソスピンの大きな）短寿命の原子核を生成できるようになり、「中性子ハロー・中性子スキン」と呼ばれるような新しい原子核の様相が明らかになりつつある。

他方、近年重イオン加速器と γ -線測定技術の進展によって高速回転する原子核（高スピニ状態）の構造を詳細に調べることが可能になり、もう一つの新しい手段として系の持つ角運動量を自由に変化させることができるようにになってきた。核子数が粒子数保存則と結び付いているのと同様に、角運動量は系の回転対称性に関係した基本的物理量であるが、ゲージ空間での回転に比べると実空間での回転は原子核平均場中を運動する核子により直接的な影響を与える。平均場自体が核子の自己無撞着な運動から成り立っているので、このことはまた、原子核の回転運動が平均場自体に対しても大きな影響を与えることを意味する。与えられた角運動量に対する最低エネルギー状態をイラスト状態というが、実際、角運動量を増加させると、基底状態では現れなかった色々なタイプの変形場が回転の効果によって低いエネルギー状態、すなわち、イラスト状態近傍に出現することがわかってきた。

その中でも特徴的なのは巨大変形状態（基底状態近傍で普通に現れているのと比べて）の出現であり、離散 γ 線スペクトルによる「超変形回転バンド」（長軸と短軸の比がおよそ2:1のレモンが型変形した回転状態）の発見は、近年の高スピニ状態の研究における最も大きな進展の一つである。大きく変形すると一般に表面エネルギーを損するので基底状態では現れなかった巨大変形状態が、大きな慣性能率のために ($E_{\text{回転}} = I(I+1)/2J$) 回転エネルギーで得をしてイラスト近傍に下がってくるのである。実際には、巨大変形状態が安定に存在することを理解するためには、このような巨視的（「液滴模型」）の描像だけでなく、平均場中の核子の独立運動（「殻模型」）の効果を正しく考慮しなければならない。

最近では、多くの原子核での超変形状態の系統的データが蓄積されてきており、巨大変形・高速回転の極限での核構造の新しい様相が明らかになりつつあるが、本ポスター発表ではまずこれを概観する。また、このような（レモン型）超変形状態の出現の機構を説明するとともに、まだ発見されていない他のタイプの巨大変形としてはどのようなものがあるか、そしてその出現の可能性についても議論する。

また、原子核は量子多体系であり、対称軸のまわりには集団的回転運動は起こらないことからもわかるように、回転運動が原子核の変形場やその中の核子の運動に影響を与えるのと同時に、変形場や核子の運動によって回転運動そのものの性質も変化する。変形の主軸から大きくはずれた角運動量の方向を持つような回転運動の出現がその例である。このような、剛体の回転運動での歳差運動のような複雑な回転運動が存在するか、また、剛体のそれとは異なった原子核特有の回転運動が出現するか否かについても議論したい。

P-45 ガスジェット結合型 I S O L を用いた 中性子過剰未知希土類核種の探索

(原研・アイソトープ部、名古屋大・工)

塚田和明、浅井雅人、市川進一、長明彦、永目謙一郎、篠原伸夫、
飯村秀紀、西中一朗、初川雄一、柴田理尋、山本洋、河出清

中性子過剰希土類核種は、図に示すように ^{252}Cf の自発核分裂¹⁾、 ^{235}U の熱中性子核分裂^{2,3)}及び重イオン多核子移行反応⁴⁾などを用いて生成され、多くの新しい核種が発見されている。我々はオンライン質量分離（I S O L）とガスジェット輸送装置を組み合わせた系を開発し、アクチノイドの荷電粒子核分裂反応を用いて、質量数160～170の未知中性子過剰希土類核種の探索を進めている。

このガスジェット結合型のイオン源は、複数枚のターゲットの使用による生成量の増加、等方的に放出される核分裂片の収集効率の向上、加速器本体のアクチノイドターゲットからの保護やターゲットへのイオン源からの輻射熱の影響の除去など様々な利点がある。これまでに、 ^{252}Cf 核分裂線源(1.85MBq)を使用したオフライン実験で、収集効率及びガスジェット輸送系のパラメータ（チャンバーの形状及び内部ガス圧力による収率の変化、NaClの温度とガスの流量、ガス流量とスキマー効率など）の検討を行い、表に示したような最適条件を得た。この条件下で行った ^{238}U の陽子誘起核分裂によるオンライン実験では、ターゲットの形状・量及びビームの種類・量の違いにおける影響、酸化物の割合、質量分離後の収量の確認（質量数166程度まで）を行った。その結果、全効率は4～7%であり、 ^{160}Sm , ^{162}Eu , ^{164}Gd 及び ^{165}Tb などの核種を確認した。また、未知核種の可能性についても検討した。

今後は、未知中性子過剰希土類核種の探索及び崩壊の研究を行うと共に、更に収量を増やし対象領域を広げていくために、他のアクチノイドターゲットの検討、チャンバーの改良など検討していく予定である。

- 1) R. C. Greenwood et al., Phys. Rev. C35, 1965 (1987).
- 2) H. Mach et al., Phys. Rev. Lett. 56, 1547 (1986).
- 3) Y. Kawase et al., Nucl. Instr. Meth. B26, 341 (1987).
- 4) K. Becker et al., Nucl. Phys. A522, 557 (1991).

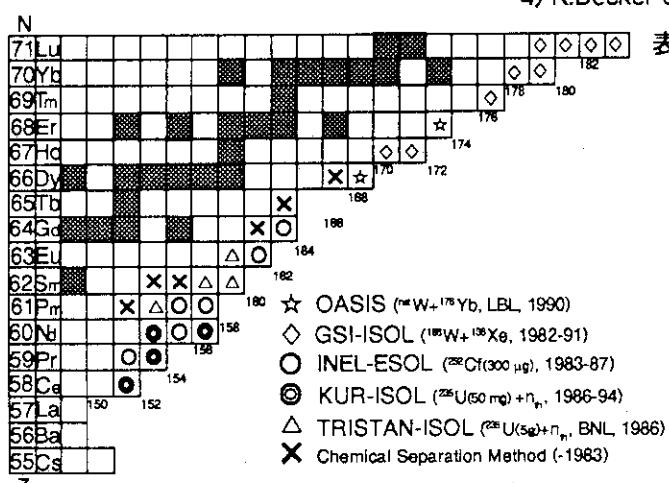


図 対象となる中性子過剰希土類核種

表 核分裂片を対象とするガスジェット結合型 I S O L のパラメータ

Aerosol material	NaCl
Heater temperature	700°C
Carrier gas	Ar
Gas flow rate	10 cm ³ /s STP
Volume of target chamber	160 cm ³
Target chamber pressure	5 × 10 ⁴ Pa
Capillary tube	1.5 mmφ × 8 m
1st-skimmer chamber pressure	<1 Pa
Ionization chamber pressure	<10 ⁻⁴ Pa
Capillary/1st-skimmer separation	5 mm
1st/2nd-skimmer separation	9 mm
Acceleration voltage	30 kV
Ion-source temperature	2450 K

- ☆ OASIS ($^{235}\text{U} + ^{178}\text{Yb}$, LBL, 1990)
- ◇ GSI-ISOL ($^{235}\text{U} + ^{136}\text{Xe}$, 1982-91)
- INEL-ESOL (^{252}Cf (300 μg), 1983-87)
- ◎ KUR-ISOL (^{235}U (50 mg) + n_p, 1986-94)
- △ TRISTAN-ISOL (^{235}U (50 mg) + n_p, BNL, 1986)
- ✗ Chemical Separation Method (-1963)

Search for neutron-rich unknown rare-earth nuclides using the gas-jet coupled JAERI-ISOL.
K. Tsukada, M. Asai, S. Ichikawa, A. Osa, Y. Nagame, N. Shinohara, H. Iimura, I. Nishinaka, Y. Hatsukawa, M. Shibata, H. Yamamoto and K. Kawade, Department of Radioisotopes, Japan Atomic Energy Research Institute and Department of Energy Engineering and Science, Nagoya University.

P-46 相互作用するボゾン模型による集団運動の記述

(埼玉大学・教養部) 吉永尚孝

相互作用するボゾン模型 (Interacting Boson Model; 以下 IBMと略称) は有馬とIachelloによって中重核の四重極集団運動を記述するために導入された現象論的なモデルである [1]。原子核中の多数の核子が揃って運動し、振動・回転などのモードとして現れる原子核の集団運動について、この模型は実験データを良く再現し、また、大変見通しのよい記述を与えてきた。最近は、この模型の拡張による高スピン状態や超変形状態の記述、原子核回転の長年の宿題であるガンマ不安定回転や、後述の陽子と中性子の混合対称状態の検証、量子カオスへの応用などが新たに話題になっている [2]。この発表では、IBMを用いた(1)変形核における2重ガンマ振動、(2)アクチナイト領域における正負バリティー状態とE1遷移の記述、(3)量子カオスへの応用、の3つを取り上げる。図1は ^{218}Ra の正負バリティー状態を理論で再現したものであるが、正負バリティー状態間のE1遷移の記述も含めて、アクチナイト領域の核では角運動量4の自由度 (gボゾン) が重要であることがわかった [3]。また、図2はIBMが群論的対称性から離れた領域でどれほどカオス的かを示した図であり、濃く描かれた部分がよりカオス度が強い。この図より、(a)集団運動のみからでもカオスは発生すること、また、(b)O(6)対称性 (ガンマ不安定核) とSU(3)対称性 (回転核) の中間に強いカオスの領域があることを発見した [4]。一方、U(5)対称性 (非調和振動核) とO(6)間ではカオス度は弱い。

- [1] F. Iachello and A. Arima, *The Interacting Boson Model* (Cambridge U. Press, 1987)
- [2] R.F. Casten et al. *Perspectives for the Interacting Boson Model* (World Scientific, 1995)
- [3] N. Yoshinaga, T. Mizusaki and T. Otsuka, Nuclear Physics A559(1993) 193
- [4] T. Mizusaki, N. Yoshinaga, T. Shigehara, T. Cheon, Physics Letters B 269(1991) 6

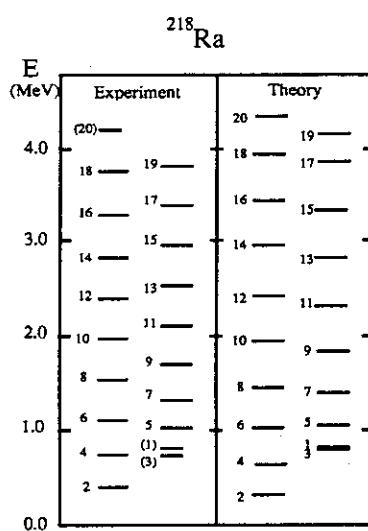


図1 ^{218}Ra 原子核の正負バリティー状態の理論・実験の比較

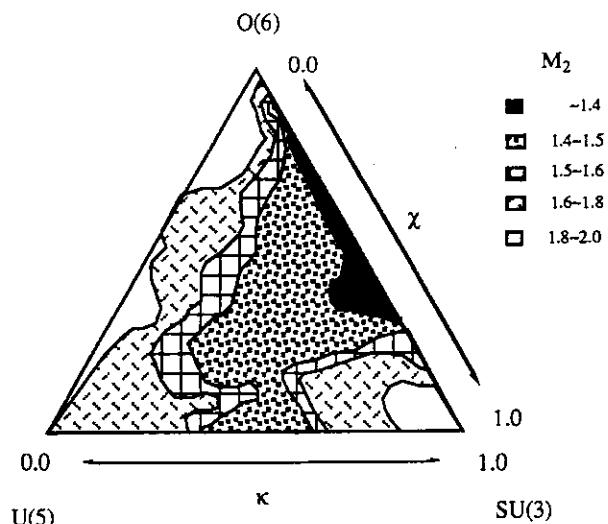


図2 3つの群論的対称性から離れた領域でのIBMのカオス度

P-47 反跳生成核分離装置と重元素合成

原研 重イオン未知重核研究グループ 池添 博

1940年代より行われてきたウランより重い元素を合成する試みは、昨年ドイツ重イオン研究所において110番と111番元素の合成が報告され飛躍的な進展があった。測定された原子核の寿命が理論値の傾向と一致して中性子数の増加とともに長くなることから、理論的に予想される114番元素で中性子数178から184を中心とした球形で安定な超重元素の存在がより確かなものになった。図1に鉛元素以上で今までに存在が確認されたか人工的に合成された元素・同位体を図示し、あわせて殻エネルギーの計算値も示した[1]。図1からわかるように、104番以上では中性子数の少ない元素が主に合成されており、中性子数の多いより安定な同位体は未発見のものが大部分である。これら未発見の同位体を系統的に合成して、その崩壊特性を調べ、殻構造を明らかにして超重元素領域に迫っていくことがこの研究の目的である。この報告では、今までに得られた重イオン間の融合メカニズムとその問題点を示し、重元素を合成する最適条件を議論する。さらに現在建設中の反跳生成核分離装置（図2及び[2]参照）を紹介し、計画しているウランにタンデム加速器からのシリコンビームを核融合させて106番元素の未知同位体262及び264を合成する試みを述べる。

[1] P. Möller and J. R. Nix, Nucl. Phys. A549, 84 (1992).

[2] 小林、池添、原子力学会誌 Vol. 36, 1111 (1994)

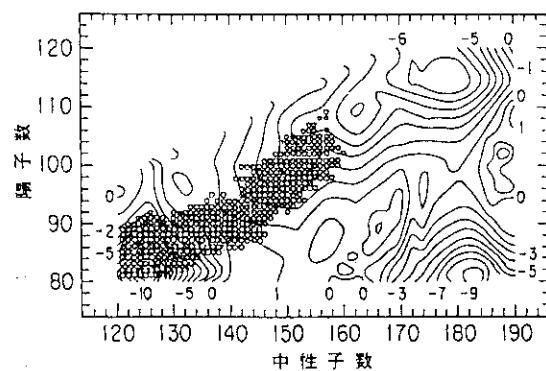


図1 殻構造エネルギーの計算値 (MeV)。
数値が負で大きくなるほど原子核は安定になる。今までに発見または合成された原子核を丸印で示した。

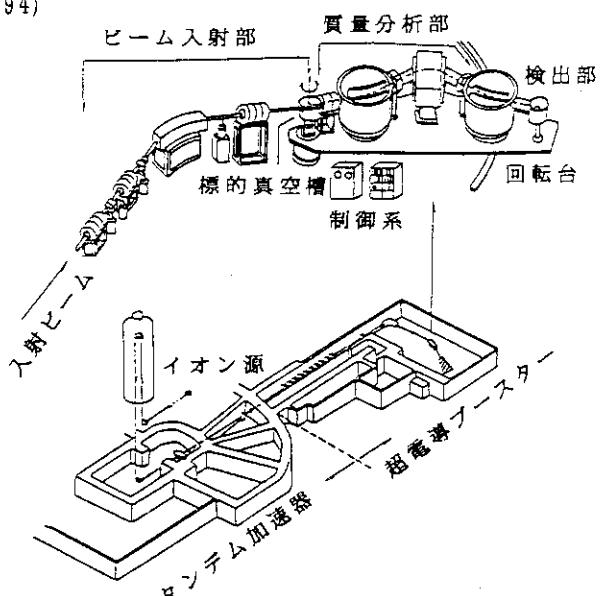


図2 反跳生成核分離装置の概略図

P-48 不安定核ビームを用いた ^{174}Hf 大変形異性体の研究

重イオン未知重核グループ 森川恒安

近年、不安定核二次ビームをもちいた実験手法が急速な進歩を遂げ、従来は到達不可能であった極端な条件下での原子核構造の研究が可能となりつつある。我々は原子核の高速回転状態(高スピン状態)の研究を目的として、高スピンの核異性体を二次ビームに用いる全く新しいタイプの実験手法の開発と、その二次反応実験への応用に取り組んできた。^[1,2]

通常、原子核の励起状態は γ 線を放出し、すみやかに基底状態へ崩壊する。しかしある種の原子核の励起状態の中には、内部状態が周りの状態と大きく異なるために γ 崩壊が量子力学的に禁止され、励起状態の寿命が長くなったものが存在する。こうした準安定な状態は核異性体と呼ばれ、とくに高スピンの核異性体はこれまでに $^{145}_{62}\text{Sm}$ $^{147}_{64}\text{Gd}$ など中性子数 83 の同調核、 ^{72}Hf ^{74}W の同位体などで見いだされている。軽いターゲット核と重いビーム核を組み合わせた核融合反応によりこれらの高スピン核異性体を生成すれば、二次反応を起こすのに充分大きな反跳エネルギーを得ることができ、大きな内部角運動量をもつユニークな二次ビームとして高スピン核分光実験へ応用することが可能である。たとえば、半減期がマイクロ秒程度以下の短寿命核異性体の励起状態について詳細な知見を得ることは、従来の実験手法では極めて困難であったが、高スピン核異性体ビームによるクーロン励起を利用すれば実現可能である。

今回我々は $^9\text{Be}(^{170}\text{Er},5n)^{174}\text{Hf}$ 反応により生成した ^{174}Hf の $J^\pi = 8^-$ の核異性体を二次ビームとして利用し、核異性体上の励起状態についてのクーロン励起実験をおこなった。この $J^\pi = 8^-$ の核異性体は核子の軌道が整列してできた非集団的な回転状態とみなすことができ、 K 選択則と呼ばれる一種の角運動量保存則によって γ 崩壊が禁止されて準安定な状態になっていると考えられている。本実験では ^{174}Hf 核異性体ビームと ^{208}Pb の第二次標的を組み合わせ、核異性体上の第一励起状態 ($J^\pi = 9^-$) の励起を試みた。 $J^\pi = 9^-$ 状態からの γ 線の収量により求めた換算遷移確率の値は単一粒子強度の約 350 倍とかなり大きく、この励起状態が基底状態とはほぼ同程度の葉巻型変形をした集団回転運動の状態であることが明らかになった。またこの励起状態では、核異性体がその内部状態を保持したまま角運動量 $J = 1$ で集団的に回転しているという描像がよく成り立っていることも判明した。しかしより高く励起するにつれて、これがどのように変化していくのかはまだわからない。

Hf や W のいくつかの同位体についての最近の実験^[3,4]によると、より高いスピンの核異性体の崩壊においては、 K 選択則の著しい破れが見いだされている。しかしこの著しい破れをこの領域の核異性体についての従来の解釈で説明することは困難である。本研究の実験手法をさらに発展させ、より高い励起状態を調べることにより、高スピン核異性体の構造についての新たな知見が得られるものと期待される。

- 参考文献 [1] Y.Gono et al., Nucl. Phys. **A557** (1993) c341.
 [2] M.Oshima et al., Nucl. Inst. Method. Phys. Res. **A312** (1992) 425.
 [3] N.L.Gjørup et al., Private Communication, (1994).
 [4] B.Crowell et al., Phys. Rev. Lett. **72** (1994) 1164.

P-49 連続状態への核子入射多段階直接反応過程の半古典的歪曲波モデル解析

(九大理) 河合光路、(九大総理工) 渡辺幸信

核子当たり十数MeV以上の核反応で観測されるスムーズな前方ピーク性を有する連続スペクトルは、主に多段階直接(MSD)過程を経由した粒子放出過程であると考えられている。著者等の九大グループ[1-3]は、歪曲波ポルン近似をベースとするMSDモデルにいくつかの半古典的近似を導入することで導出されるSemiclassical Distorted Wave(SCDW)モデルを提案し、これを数十MeV～200MeV領域における陽子入射核子放出反応の解析に応用して、その適用可能性ならびにMSD反応機構について研究を続けている。本発表では、SCDWモデル計算の最近の進展について報告する。

SCDWモデルでは、核内での入・出射波の屈折・反射・吸収の効果を歪曲波で考慮し、核内での核子核子衝突間におけるfast particleの歪曲ポテンシャル中での伝播をアイコナール近似から導出されるグリーン関数で記述する。核内での2核子散乱はG行列から計算された(密度依存の)核内核子核子散乱断面積[4]を使用する。又、入・出射核子および中間状態のfast particle、衝突前後の核内核子に及ぼす平均場の非局所性に対する補正の重要性に着目し、光学ポテンシャルから計算されるPerey因子を導入してその補正を考慮している。

(p, p')及び(p, x_n)反応の1段階および2段階直接過程の角分布をSCDWモデルを用いて計算し、実験値[5]と比較した結果の1例を下図に示す。破線および一点鎖線は各段階からの寄与を示している。高い放出エネルギーでは、全角度領域にわたり実験値とのよい一致が得られている。2つの図の比較から、エネルギー移行量の増加(放出エネルギーの減少)に伴い、2段階過程の相対的寄与が前方で大きくなってくる様子がわかる。なお、低エネルギー放出の後方角での過小評価の原因としては、現時点では3段階以上の多段階過程の寄与を無視していることが考えられる。

- [1] Y.L. Luo and M. Kawai, Phys. Rev. C43, 2367 (1991).
- [2] M. Kawai and H.A. Weidenmüller, Phys. Rev. C45, 1856 (1992).
- [3] Y. Watanabe and M. Kawai, Nucl. Phys. A 560, 43 (1993).
- [4] G.Q. Li and D. Machleidt, Phys. Rev. C48, 1702 (1993), Phys. Rev. C49, 566 (1994).
- [5] S.V. Förttsch et al., Phys. Rev. C 43, 691 (1991).

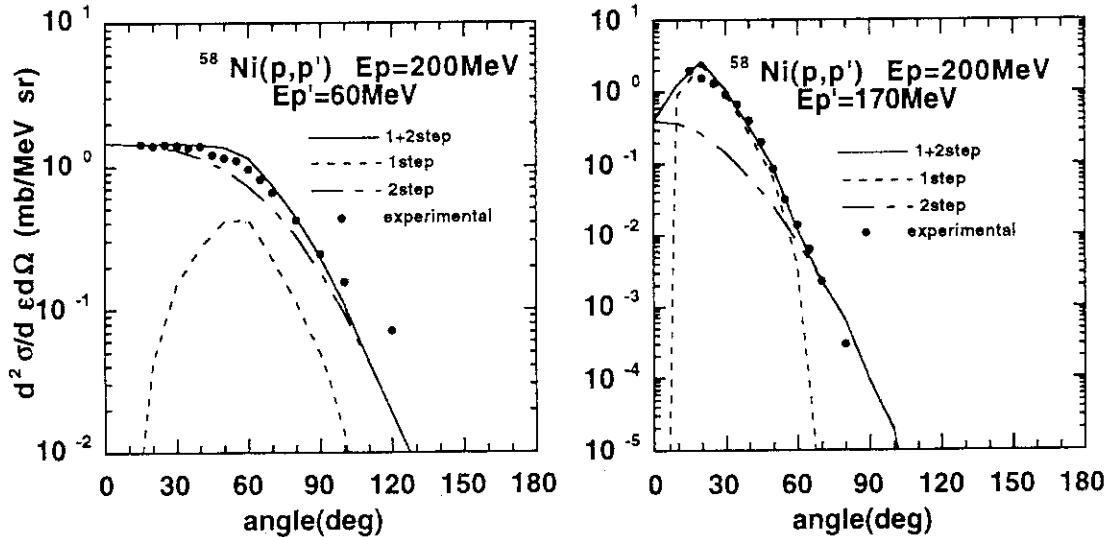


図1 200 MeV入射 $^{58}\text{Ni}(p,p')$ 反応の角分布のSCDW 計算と実験値[5]との比較

P-50 核子とフラグメントのフローの AMD による研究

(京大・理) 小野 章, 堀内 和

重イオン反応における集団的な運動量のフロー（流れ）は、核物質の状態方程式を決定する上で非常に重要な物理量として注目されてきた。最近、フラグメントの質量または電荷を同定したフローが測定されるようになってきており、核子よりもフラグメントの方が大きなフローの値が得られている。そのような exclusive なフローの解析により状態方程式の決定が期待される。本研究では、AMD（反対称化分子動力学）[1] を用いて、核子やフラグメントのフローの生成機構を明らかにした上で、有効相互作用や二核子衝突断面積に対するフローの依存性を調べ、核物質の状態方程式に関して議論する。[2,3]

入射エネルギーが数十から 150 MeV/u 程度までの中间エネルギー領域でのフローを $^{12}\text{C} + ^{12}\text{C}$ 衝突と $^{40}\text{Ar} + ^{27}\text{Al}$ 衝突に対して AMD で計算した。Gogny 力を用いた AMD の計算結果は、これらの反応に関してさまざまな実験データを再現している（図 1）。特に、核子のフローに比べてフラグメントのフローの絶対値が大きいという実験結果が再現されたが、計算結果を粒子の生成時刻によって分類することにより、この結果は、フローに二成分あるためであることが明らかになった。第一の成分は確率的衝突を経て動力学的に放出された核子のフローであり、平均場の効果が擡き消されているためにその絶対値は小さい。第二の成分は、動力学的な反応過程で生成された励起したフラグメントのもつフローであり、平均場の効果を強く残しているために絶対値が大きいのである。また、動力学的に生じた重陽子のフローの振る舞いは、 $^{12}\text{C} + ^{12}\text{C}$ の場合と $^{40}\text{Ar} + ^{27}\text{Al}$ の場合で異なることがわかったが、それは動力学的な重陽子の生成機構の違いによるものであることが判明した。すなわち、 $^{12}\text{C} + ^{12}\text{C}$ ではほとんどの重陽子が平均場の効果で生成しているのでそのフローはフローの第二成分に等しいのに対し、 $^{40}\text{Ar} + ^{27}\text{Al}$ では多くが動力学的な核子のコアレスンスによって作られたものであるのでそのフローはフローの第一成分に近いのである。次に、フローの確率的衝突断面積に対する依存性を調べた。確率的衝突断面積が大きくなると、フローの角度はほとんどかわらないが、励起したフラグメントの運動量分布の減衰した成分が増大する。その結果としてバランスエネルギー以下の入射エネルギーでは、通常の定義のフローは確率的衝突断面積に依存することになっている。しかし、バランスエネルギー程度以上になると、この依存性はかなり小さく、したがって、二核子衝突断面積の理論的不定性に結果が影響されることになる。そこで、 $^{40}\text{Ar} + ^{27}\text{Al}$ 衝突の場合に、核物質の軟らかい状態方程式（非圧縮率 $K = 228 \text{ MeV}$ ）と運動量依存性をもつ平均場を与える Gogny 力を用いたときの結果と、硬い状態方程式 ($K = 373 \text{ MeV}$) と運動量依存性のない平均場を与える SKG2 力を用いたときの結果を比較してみると、明らかに Gogny 力はフローの実験を再現しているのに対し、SKG2 力ではバランスエネルギーが大きすぎ、実験と一致していない（図 1）。すなわち、平均場の運動量依存性がない硬い状態方程式は実験と矛盾することが結論された。

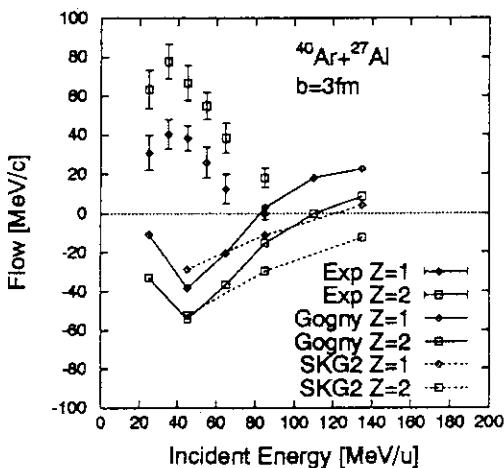


図 1 電荷 1 の粒子と電荷 2 の粒子のフローの計算値と実験値との比較。実験値は正負を反転して示している。計算値は、Gogny 力を用いたときのものを実線で、SKG2 力を用いたときのものを点線で示した。放出粒子の速度のビーム方向とそれに垂直な反応平面内の成分をそれぞれ v_z , v_x とし、一定の v_z をもつ粒子の v_x の平均値を $\langle v_x \rangle$ とすると、フローは $\langle v_x \rangle - v_z$ 曲線の重心速度付近の傾きに比例する量として定義される。

[1] A. Ono, H. Horiuchi, Toshiki Maruyama and A. Ohnishi, Prog. Theor. Phys. 87, 1185 (1992).

[2] A. Ono, H. Horiuchi and Toshishi Maruyama, Phys. Rev. C48, 2946 (1993).

[3] A. Ono and H. Horiuchi, to appear in Phys. Rev. C51 (1995).

P-51 QMD模型の拡張と低エネルギー重イオン反応への適用 (原研・先端研) 丸山 敏毅、仁井田 浩二、岩本昭

重イオン反応を記述する微視的シミュレーションであるQMD(Quantum Molecular Dynamics)は、中高エネルギーの様々な現象を反応機構を仮定せずに記述する枠組として標準的な模型となってきている。核子当たりの入射エネルギーが数MeVから10MeV以下の低エネルギー現象をQMDのような分子動力学で扱う事は低エネルギーから高エネルギーの現象を統一的に理解する上でも重要である。QMDを用いた核融合反応の解析はすでに試みられているが、初期条件が不安定なために余計に核子を放出してしまうという不都合が指摘されている。これまで分子動力学の適用例のない超低エネルギーの現象にも将来的に取り組んで行くためには、初期条件の安定性の問題をまず解決しなくてはならない。

QMD初期条件の不安定性は、それがエネルギー最低状態ではない事による。仮にエネルギー最低状態まで系を冷却するとパウリ原理の破れた状態に陥り束縛が深くなりすぎると、核子を表す波束の運動量分散項が固定されたspuriousなエネルギーとなっているために実質的な結合エネルギーが深くなってしまう為である。そこで我々は、系のエネルギー最低状態をシミュレーションの初期条件に採用する為に、現象論的なパウリポテンシャルを用いてフェルミオン系の性質を近似的に取り入れ、また、核子波束の幅を時間依存の変数とする拡張を行った。通常のQMDでは位置と運動量の全部で $6N$ 次元の運動方程式を解くのに対し、拡張したQMDでは複素数波束幅を含めた $8N$ 次元の運動方程式を解くことになる。

核反応のシミュレーションを行う為には、初期条件として採用するエネルギー最低状態が現実的な原子核の性質をある程度再現していなくてはならない。我々の模型による基底状態原子核の結合エネルギーは軽い系で多少のずれがあるものの軽イオンから質量数200程度の重イオンまでをかなりよく再現する。また原子核の密度分布も特に重い系については従来よく知られた形を再現しており、 ^{12}C の様な軽い核に特有の α クラスター構造も再現することができる。

実際の低エネルギー原子核衝突の実験との比較を行う前に、拡張した枠組の特徴である、時間依存波束幅の取り扱いがどのように原子核衝突の計算結果に影響するかを調べた。同一の初期条件を用意し、一方は波束幅を固定した $6N$ 次元の運動方程式を解き、一方は拡張したQMDの $8N$ 次元の運動方程式を解く。この両方の計算を $^{63}\text{Cu}+^{63}\text{Cu}$ (5 MeV/u)の衝突で比較したのが図1である。幅を固定した計算では核同士が接触しても融合核を作れないのに対し幅をダイナミカルに扱った計算では融合核を形成している。非常に低エネルギーの反応をシミュレートしようとする場合、波動関数の構造をどこまで精密に記述できるかが重要になり、自由度が構成粒子の個数しかない模型空間では不十分で、1粒子波動関数の変化(少なくとも波束幅の変化)まで取り入れる必要性があると思われる。

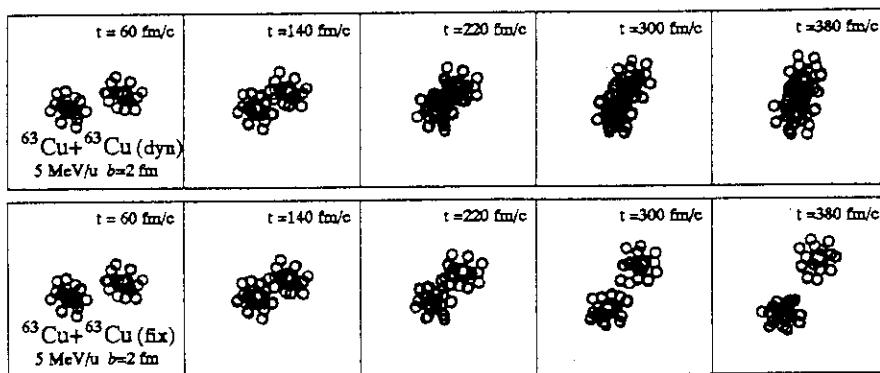


図1： $^{63}\text{Cu}+^{63}\text{Cu}$ (5 MeV/u)衝突の例。上は $8N$ 次元の拡張したQMDを解いたもので、下は核子の波束の幅を固定して $6N$ 次元の運動方程式を解いた場合。

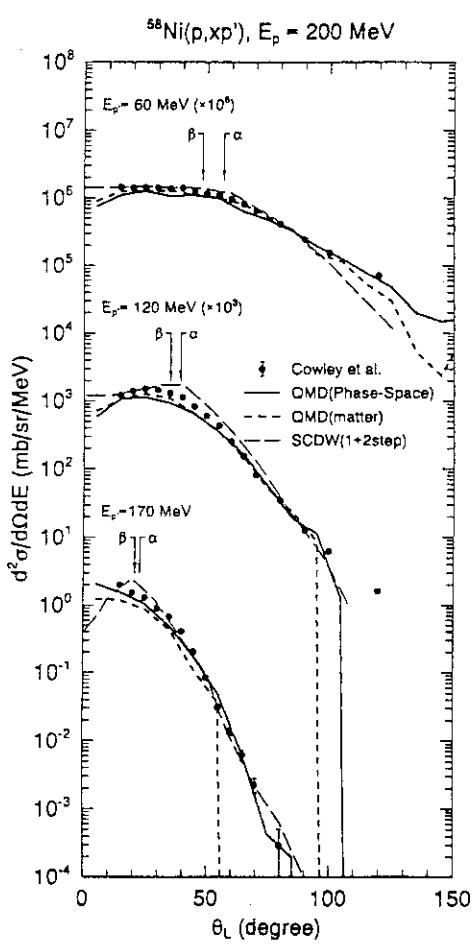
Extension of QMD and its application to the low energy heavy-ion collisions.

Toshiki Maruyama, Koji Niita, and Akira Iwamoto.

P-52 QMDによる中間エネルギー核子入射核反応の研究

(原研・先端研・ハドロン輸送研究グループ)
 千葉 敏、仁井田 浩二、丸山 敏毅、深堀 智生、高田 弘、岩本 昭

QMD (Quantum Molecular Dynamics) をはじめとする微視的シミュレーション手法は従来重イオン核物理の分野で開発され、様々な核反応の様相を統一的に記述する事に成功してきた。QMDは基本的にはカスケードモデルと同等の核子・核子衝突項とself-consistentな平均場効果により核反応を記述するモデルである。中間エネルギー(数10MeV~数GeV)の核子入射核反応により発生する核子のスペクトルは大きく分けて直接過程、前平衡過程、蒸発過程という3種類のプロセスからなることが知られている。そのうち、前平衡過程は入射粒子が核子・核子衝突により標的内核子の比較的小数個の自由度を励起した後に核子が放出される速いプロセスで、角度分布は緩い前方ピークとなる。そして入射エネルギーが高くなるにつれて、放出される核子エネルギーの大半の領域が前平衡過程から形成されるようになる。前平衡過程を記述するために従来いろいろなモデル(半古典モデルやカスケードモデルを含む)が提案されてきたが、特に最近では歪曲波理論に基づく量子力学的な理論がいくつか提案された。これら他の計算手法と異なり、QMDは微視的な理論であるため現象論的なパラメータを導入する必要がなく、不確定さの少ない解析を行うことが可能である。



本グループでは、100MeV~3GeV領域でのFe、Ni、Zrからの(p,xp)、(p,xn)反応二重微分断面積をQMDにより解析し、核子・原子核反応に対するQMD(+統計崩壊モデル)の有効性の検証を行ってきた。左図に200MeVにおける $^{58}\text{Ni}(p, xp')$ 反応の角度分布の計算値(実線)を実験値、および半古典的歪曲波理論(SCDW、長破線)と比較したものを示す。短破線は、QMD計算においてdynamicalに扱われているPauli-BlockingをSCDW理論と同様な手法でstaticに取り入れた結果を示す。この図から、QMDとSCDW理論とも実験値を基本的に再現できている事がわかるが、低運動量移行領域の角度分布、特に前方における断面積の振る舞いが両モデルで異なることやPauli Blockingの取り入れ方がこの領域の角分布に大きな影響を及ぼしていることがわかる。しかしながら全体的にはPauli Blockingの取り入れ方による違いは少なく、これはmulti-step過程の初期プロセスと大きいステップ数からの寄与が相殺しているためであることが明らかとなった。矢印 α はquasi-free散乱から期待される角度、 β はそれに平均場による加速を考慮した場合を示す。QMDによる計算は平均場による屈折の効果により β よりピークがさらに前に形成されており、低エネルギー現象における平均場効果(屈折+加速)の重要性が示された。このように、QMDの持つdynamicsと平均場効果が核子・原子核反応でも重要かつ有効であることが明らかとなった。

P-53 核励起He-Ne-Arレーザーの発振シミュレーション

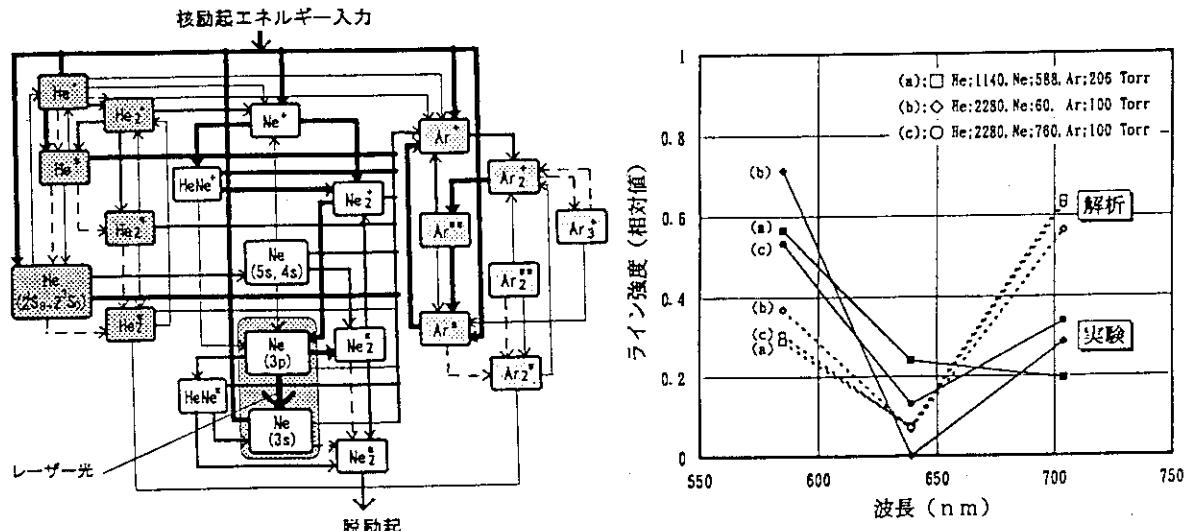
(東芝) 中原克彦, 林千枝, 桑子彰 (東大・工) 山中信弘, 中沢正治

³He-Ne-Ar混合ガスを媒質とし、³He(n, p)T反応を励起起源とした核励起レーザーの発振技術を開発している。今回、中性子照射中の³He-Ne-Ar混合ガスからの発光スペクトル[1]について、シミュレーション解析を行い、実験結果との比較検討を行った。また、この測定データに基づきレーザー発振に必要な中性子束しきい値を計算・評価した。

本解析モデルで考慮した³He(n, p)T反応による760keVのエネルギー移行反応のフローを図1に示す。レーザー発振を起こすNeI3p-3s間の反転分布形成に寄与すると考えられる反応として、³He, Ne, およびArの各基底状態原子、励起状態原子、イオンの励起、脱励起、電荷交換、等、約80の過程を考慮した。また、解析においては、ガス媒質は無限空間内に均質にあるものとし、個々の構成元素の励起レベルの密度変化をレート方程式を解くことにより評価した。これらの反応に関する反応定数についてはBatyrbekov[2]によるデータをベースとした。

図2はガス分圧が異なる場合の、Neの主要な3本の発光ラインの相対強度を示したものである。いずれの場合も実験ではNeIの3p-3s間の582nmの遷移が強く現れている。解析結果との相違は、解析で用いたNeあるいはNe分子の高励起状態からNeI3pサブレベルへの遷移割合に原因があると考えられ、そのデータベースは乏しいのが現状である。レーザー発振の中性子束しきい値はこの遷移割合に依存するため、測定されたスペクトルから、まず、3pサブレベルへの遷移割合を求め、これに基づいて発振しきい値を計算した。その結果、ガス分圧を最適化した条件下NeIの3p-3s間の反転分布は約 3×10^{13} (個/cm²s)の中性子束で生じることが予測された。

- [1] 中沢正治 等, "He-Ne-Ar核励起レーザーの実験研究", 第1回先端基礎研究シンポジウム
 [2] E.G. Batyrbekov and V.A. Danilychev, "Kinetics of the Laser Active Media on NeI 3p-3s Transitions with Pumping by a Weak Source of External Ionization", (1992) Kazakh SSR Academy of Sciences Institute of Nuclear Physics

図1 ³He-Ne-Ar混合ガス系のエネルギー移行モデル 図2 Neの主要な3発光ラインの強度比

P-54 光ファイバーを用いた中性子束等放射線分布の高位置分解能迅速測定法の研究

(名大・工) 森 千鶴夫

熱中性子束分布、高速中性子束分布の正確かつ迅速な測定は核エネルギー開発、放射線の応用計測、管理、保健物理の観点から重要である。本研究では主として、臨界集合体、研究用原子炉における中性子束分布の測定を目的として、光ファイバーを用いた簡便で有用な方法を開発している [1]。

検出器と方法：光電子増倍管に接続されている直径0.5～2mm、長さ数メートルのプラスチックファイバー(PF)の先端に、ZnS(Ag)シンチレータとLi化合物との混合物をエポキシ系接着剤で0.3～1mmの厚さに塗布し、その表面を黒色ペイントで遮光する。コンピュータ制御されたステッピングモータによりPFを必要な速度で動かし、シンチレータ部の各位置における計数率と波高分布を記録する。

この方法の特徴は、(1) 2～3mmの細隙への挿入、(2) 1mmの高い位置分解能[2]、(3) 状況に応じて最高1cm/secの迅速測定、(4) 熱中性子、速中性子、 γ 線等の分布の測定、(5) 数個の検出器をそれぞれ特定の点に配置しておき、その場所における中性子束の速い時間的変化の測定、などがそれぞれ可能であることである。

測定結果の一部：図1には、京都大学原子炉実験所臨界実験装置における燃料体近くの2ヶ所(AおよびB)の細隙における熱中性子束分布を本方法で10分間で測定した結果を示す。比較のために図2に、従来の唯一の方法である金線放射化法によって4～5時間かけて求めた結果を示す。測定時間の大幅な短縮のほかに、測定精度も向上している。

高い位置分解能を生かした実験、速中性子や γ 線の分布測定については当日報告する。

[1] C. Mori, T. Osada, et al.: J. Nucl. Sci. Technol., 31(1994)248.

[2] 森千鶴夫、他：京都大学原子炉実験所第29回学術講演会報文集(1995)p193.

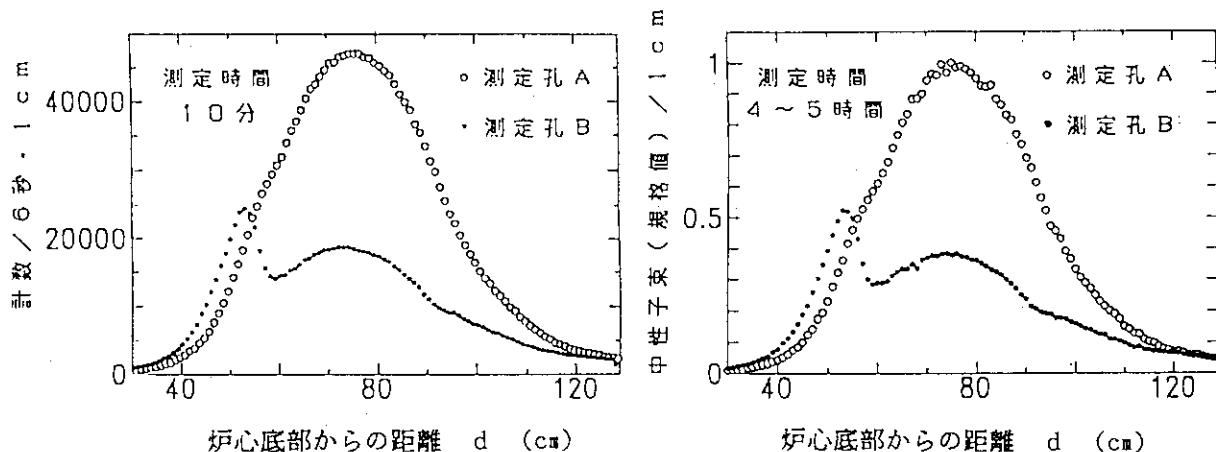


図1 シンチレータ付きプラスチックファイバーによって約10分間で測定した中性子束分布

図2 従来の金線放射化法によって約4～5時間かかるて測定した中性子束分布

Development of quick measurement method with high position-resolution for neutron flux distribution by using optical fiber

(School of Engineering, Nagoya University) Chizuo Mori,

P-55 ニオブ系トンネル接合検出器の高エネルギーX線応答

(九大・工) 石橋健二、野田孝浩、橋本 学、前畠京介
 (電総研) 仲川 博、赤穂博司、高田 進
 (高エネ研) 中島哲夫、清水裕彦、
 (埼玉工大) 吉沢正美、
 (原研・先端研) 片桐政樹

エネルギー分解能の優れた放射線検出器は物理学や、工学をはじめとして多くの分野で重要な役割を果たしている。高分解能の代表的なものが半導体検出器であるが、超伝導トンネル接合を用いた検出器は原理的に半導体検出器より優れたエネルギー分解能で放射線を検出できる可能性がある。なかでも実用化の観点から、Nb系の超伝導トンネル接合が期待されている。現在、超伝導トンネル接合は様々な角度から研究がなされているが、超伝導トンネル接合のエネルギー依存性はまだ世界的にも調べられておらず、研究例もほとんどない。今回我々は、放射光を用いて、6keVから20keVまでのエネルギーに対するNb系超伝導トンネル接合の応答を調べた。

接合のサイズは $100\mu\text{m} \times 100\mu\text{m}$ で Nb/Al/AlOx/Nb のそれぞれの厚さは 200nm/10nm/0.2nm/650nm、また配線の幅は $4\mu\text{m}$ である。常伝導抵抗値は 0.4Ω、0.4Kでのバイアス点(0.5mV)での電流値は 130nA、その点での動的抵抗値(dV/dI)は 2.5kΩ である。

放射線の測定は高エネルギー物理学研究所にある放射光実験施設の BL6C1 ビームラインで行った。このビームラインは 8keV から 30keV までのエネルギーの単色 X 線を作り出すことができる。実験では Si モノクロメーターの角度を調整して、エネルギーを下げて 4keV から 20keV までのエネルギーの範囲で測定を行った。図1に 4keV から 15keV までの X 線のスペクトルを示す。6keV では 520eV の分解能で X 線が検出された。ピークの位置がエネルギーが高くなるにつれて右側に遷移しているのがわかる。

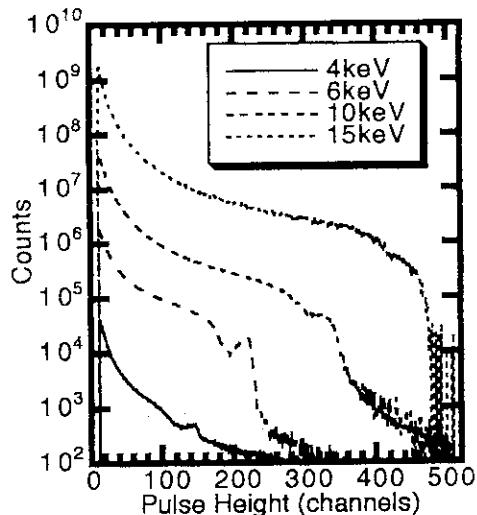


図1 6～15keVのX線の信号

High Energy X-Ray Response of Nb-based STJ detectors
 Ishibashi K., Noda T., Hashimoto M., Maehata K. (Kyushu Univ.)
 Nakagawa H., Akoh H., Takada S. (ETL)
 Nakashima T., Shimizu H. (KEK)
 Yoshizawa M. (SIT)
 Katagiri M. (JAERI)

P-56 シンチレーション光ファイバーの放射線計測への応用

(動燃・大洗) 鳥居 建男、江本 武彦、野崎 達夫、安藤 秀樹

1. はじめに

シンチレーション光ファイバー (SOF) はその長尺、細径、可塑性という特異な形状、性質により、高エネルギー物理実験をはじめ、放射線計測の様々な分野で用いられている。我々のグループでは、SOFの特質を生かし、原子力分野における放射線計測へ適用するため、 γ 線の放射線空間分布の計測、及び高感度 β 線ガスモニタの開発研究を実施している。本発表では、その概要と成果について報告する。

2. 方法

[γ 線線量率空間分布計測] 長さ 5m の SOF (1mm ϕ 、10 本束) の両端へのシンチレーション光の到達時間差を測定する飛行時間 (TOF) 法を採用し、検出器のエネルギー応答、線量率直線性等の種々の特性試験、及び原子力施設内の放射線分布を測定した [1]。さらに、得られた測定データ (波高分布) に対して逐次近似法によるアンフォールディング計算を行うことにより線量率分布を求めた。

[β 線ガスモニタ] 数 100 本の SOF をウェル状に束ね、一端を絞り光電子増倍管を取り付け、他端より放射性ガスを導入する方式とした (図 1)。これにより、検出容積を大きくすることが可能であるとともに、幾何効率が高くなるため高感度化が図れることとなる。ウェル部の容積及び直径はモンテカルロ計算により、測定対象ガス検出用に最適化した [2]。

3. 測定結果と考察

[γ 線線量率空間分布計測] エネルギー特性試験の結果、約 500keV ~ 1400keV で検出効率はほぼ一定で、エネルギー依存性がないことが分かった。また、線量率範囲 BG ~ 10mSv/h で線量率と計数率はほぼ直線性を示すが、これ以上の高線量率場では偶発同時計数により空間分布の計測が不可能となることが分かった。さらに、線量率が複雑に変化する実放射線場での測定の結果、検出器固有の位置分解能に起因して平坦化が見られるものの、アンフォールディングを行うことにより平坦化が補正され、局所的なストリーミングに対しても十分計測が可能であることが分かった (図 2)。

[β 線ガスモニタ] 点線源及び実ガスを使用した校正実験の結果、 β 線平均エネルギー 200keV 以上の核種に対して本検出器は 30% 以上の効率を示し、Kr-85 以上の放射性ガスの測定に対して有効であることが分かった [3]。しかしながら、より高感度化を図るとともに低エネルギー β 線放出核種についても検出するためには、SOF 両端に光電子増倍管を設置し、同時計数することにより BG 計数率の低減化を図る必要があることが分かった [2]。

参考文献 [1] T. Emoto, et al. ; KEK Proceedings 94-7, 119 (1994)

[2] 野崎 他 ; 原子力学会 '94 秋の大会 E17

[3] T. Torii, et al. ; KEK Proceedings 93-8, 113 (1993)

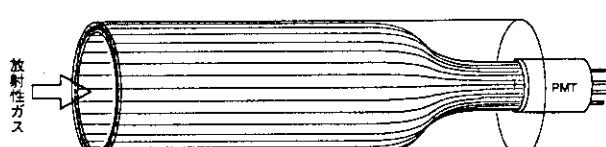


図 1 SOF を用いた β 線ガスモニタの概念図

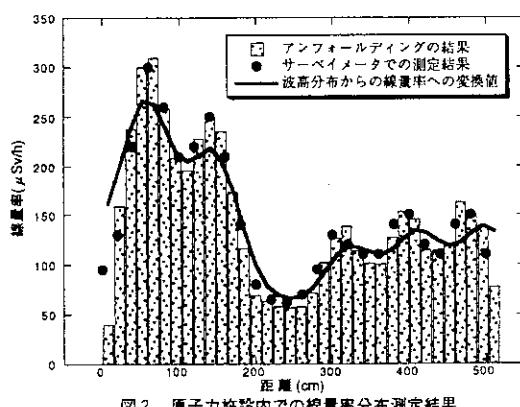


図 2 原子力施設内での線量率分布測定結果

P-57 He-Ne-Ar核励起レーザーの実験研究¹

量子計測グループ*、東大・工**、中沢正治***、山中信弘**
片桐政樹*、角田恒巳*、山岸秀志*、坂佐井馨*

中性子照射によってレーザー発振する核励起レーザーの実験研究の現状と計画を報告する。従来、東大グループが試みていた³He-Neガス系[1]はレーザー発振条件より³Heガスが数十Torr以下に制限されるため、³He(n,p)T反応によるポンピングが不十分である。そのため、我々は³He-Ne-Arガス系について研究している[2]。レーザー発振準位はHe-Neの場合Ne 5s-3p($\lambda = 632.8 \text{ nm}$)であるが、今回のHe-Ne-Arの場合Ne 3p-3s($\lambda = 585.2 \text{ nm}$)である。研究計画は次の通りである。

1. 弥生実験($10^9 \text{ n/cm}^2\text{sec}$)…最適ガス組成検索実験
また、発光スペクトルの測定と計算結果との比較による発振可能中性子束値の推定
2. JRR-4実験($10^{12} \text{ n/cm}^2\text{sec}$)…最適ガス組成の照射実験
平成6年度2月末～3月に実施予定
3. JMTR実験($10^{14} \text{ n/cm}^2\text{sec}$)…実証実験(平成7年度計画)

今回は(1)の弥生炉実験結果を示す。実験体系を図1に示す。照射セルのガス構成は(a)イリノイ大型、(b)最適型、(c)Ne増強型である。(c)のガスセルにおいて実測した発光スペクトルを図2に示す。ArIの蛍光($\lambda = 357 \sim 470 \text{ nm}$ および $750 \sim 764 \text{ nm}$)以外に、レーザー発振予定のNeI 3p-3s遷移に対応する585.2 nmの発光ピークが得られた。 $\lambda = 585.2 \text{ nm}$ 発光強度は(a):(b):(c)=1:0.57:3.6である。発光強度は励起源の強度(³Heガス圧)とNeガス圧に比例するとした簡単なモデル計算によると(a):(b):(c)=1:0.22:2.8であるので、予想通り(b)のガスセルにおいてNe原子あたりの発光量が最適化されており、Neガス圧を増加した(c)のガスセルにおいて発光量が増加することがわかる。セル(b)のガス構成の場合、シミュレーション結果よりレーザー発振に至る中性子束閾値は約 $3 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{sec}$ と推測される。そして、今年度中にJRR-4実験にて確認する予定である。なお、シミュレーションは別途の東芝グループと東大の協力研究により実施している。

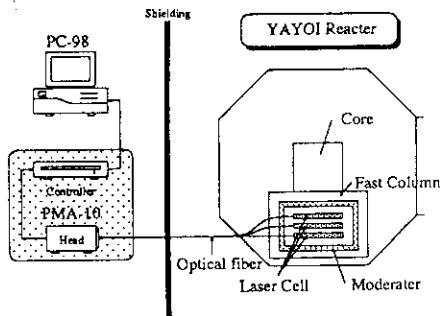


図1 弥生実験体系

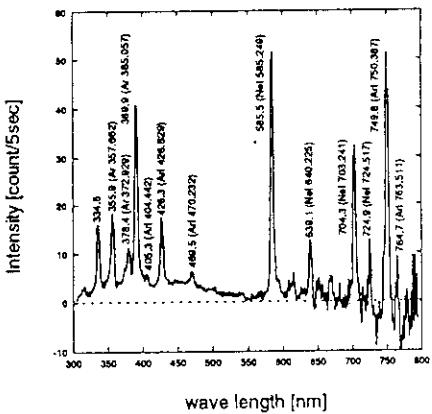


図2 測定スペクトル

文献

- [1];S.Soramoto,et al., "New neutron detection methods using laser technique", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A306(1991)524-529
 [2];G.H.Miley, "Overview of Nuclear Pumped Lasers", specialist conference on Physics of Nuclear Induced Plasmas and Problems of Nuclear Pumped Lasers, vol.I, (1992)40-53

¹Experimental Study on Nuclear Pumped Laser of ³He-Ne-Ar gas cells
M.Nakazawa,N.Yamanaka,M.Katagiri,T.Kakuta,H.Yamagishi,K.Sakasai

P-58 超伝導トンネル接合X線検出器の高分解能化

原研・量子計測研究グループ 岸本 牧、浮辺雅宏、片桐政樹、中沢正治

超伝導トンネル接合X線検出器を実験現場で実用化する上で最大の課題は、X線に対するエネルギー分解能をいかに向上させるかにある。分解能の向上には高性能検出素子の開発と共に、最適化された増幅・信号処理回路の設計が重要である。放射線検出器の前置増幅器として一般的な電荷型前置増幅器を使用した測定系のエネルギー分解能は、次式で表すことが出来る [1]。

$$E_n = E_{n0} + C_d (\Delta E_{n0} / \Delta C_{ex})$$

ここで E_{n0} は検出器を接続しないときの入力等価雑音、 $(\Delta E_{n0} / \Delta C_{ex})$ は外部入力容量の増加に対する入力等価雑音の増加量、そして C_d は素子の静電容量である。特に C_d が数万 pF にもなる超伝導素子では第2項のエネルギー分解能への影響が非常に大きい。しかし $(\Delta E_{n0} / \Delta C_{ex})$ は $(T / gm)^{1/2}$ (T : FET 駆動温度、 gm : FET の相互コンダクタンス) に比例する。これによると、前置増幅器に起因する雑音を低減するには gm が大きな FET を低温で作動させれば良い。またさらに FET を n 個並列につなぐと、第2項は $1/n^{1/2}$ にする事が出来る。しかし FET の並列個数の増大は第1項の増加をもたらし、この影響を無視することが出来なくなる。従ってエネルギー分解能の劣化をもたらす前置増幅器雑音の低減には、最適 FET 並列化数の評価とそれに基づく並列 FET 増幅回路の製作、及び FET の低温駆動化が必要になる。そこで FET の並列個数と前置増幅器雑音の関係評価を行い、それにより最適 FET 個数を 4 とし、さらに FET 増幅回路をクライオスタット内に設置し、液体窒素温度の 77 K まで冷却するようにした。その結果、新日本製鐵(株)先端技術研究所で製作した Nb/AI-AlOx/AI/Nb 素子を用い、 ^{55}Fe 線源 5.9 keV の X 線に対するエネルギー分解能が Nb 系の超伝導トンネル接合素子としてはこれまでの最良の 78 eV を達成することができた。

[1] 熊原忠士：“半導体 γ 線スペクトロメータ用高分解能増幅系の研究”、JAERI-memo 4795 (1972)

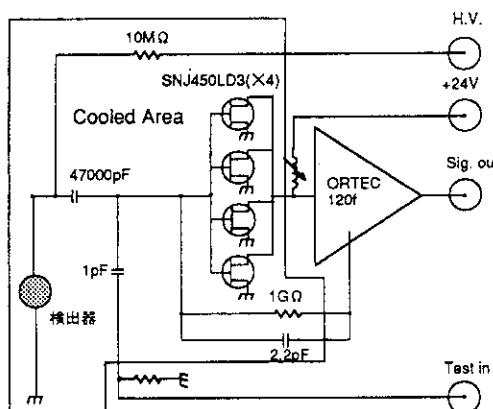


図 1 並列 FET 増幅回路図

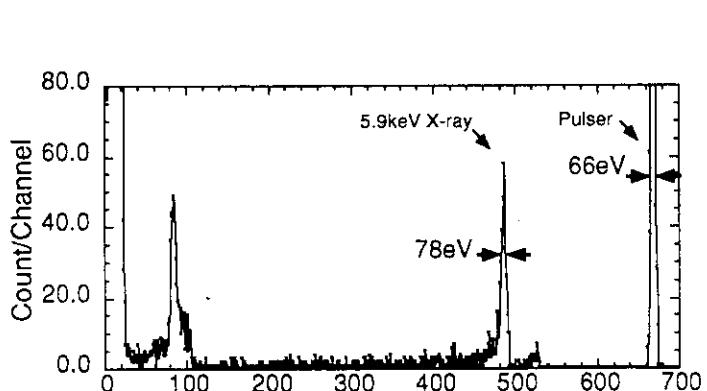


図 2 ^{55}Fe X 線スペクトル

P-59 光ファイバーを用いた炉内計測

原研・量子計測研究グループ 坂佐井馨、角田恒巳、片桐政樹、中沢正治

光ファイバーを炉心計測に応用するためには、耐線性だけでなく、中性子を含む重照射環境下にも耐えることが必要である。そこで、重照射環境用光ファイバーとして純粋石英コアファイバーのコアに少量のフッ素をドープしたものを製作し、原研大洗のJMTRで照射実験を行ったところ、全中性子(高速+熱中性子)フルエンス $3 \times 10^{23} \text{ n/m}^2$ 及び γ 線ドーズ $3 \times 10^9 \text{ Gy}$ を越える重照射(これは従来に比べて3桁以上上回る)を行っても、700nmより長波長側では良好な透光性を保持し、信号伝送用として充分実用になる結果が得られた[1]。一方、光ファイバーのもう1つの特性として発光特性があり、これが炉内情報を光学的に取り出すのに重要なカギとなる。図1に照射中に測定したファイバーの発光スペクトルを示す。1390nm付近のディップはOHによる吸収であり、したがって、発光スペクトルは、連続スペクトルと1272nm領域の鋭いピークからなっている。連続スペクトルの強度は波長の逆数の3乗にはほぼ比例しているので、チエレンコフ光と思われる[2]。1272nm領域の発光の原因としては、1)この発光強度は中性子や γ 線の照射量に依存しない、すなわち照射欠陥による発光の可能性は少ない、2)原研FNSでの14MeV高速中性子による照射実験では観測されない、3) ^{60}Co による γ 線照射で観測されることから、 γ 線によるものと考えている。そこで、この1272nmの発光ピーク値と炉出力との関係を示すと図2のようになる。原子炉出力(この場合は炉心内の γ 線線量率と考えられる)にはほぼ比例していることがわかる。このことから、製作した光ファイバーを用いて、炉心内のような重照射環境下でもその γ 線レベルを測定することが可能であり、将来の炉心内の発光計測に道を開くものと考える。なお、1272nmの発光の詳細なメカニズムについては現在調査中であり、今後の重要な課題である。

[1] T. Kakuta et al., KEK Proc., 94-7, 109(1994)

[2] J. E. Gobol et al., IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-24, 2164(1977).

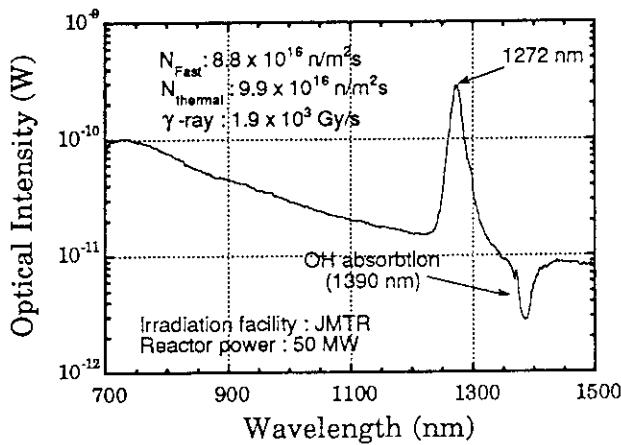


図1 照射中のファイバーの発光スペクトル

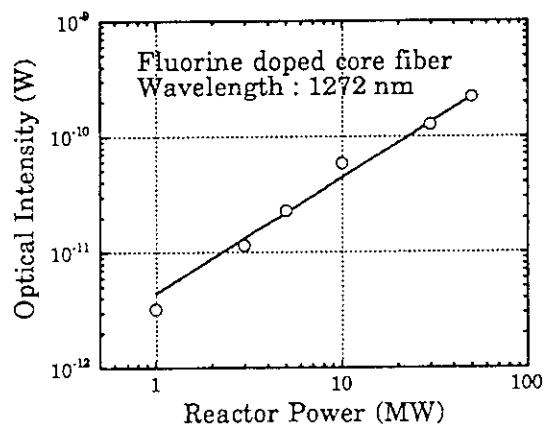


図2 1272nm発光ピーク値と炉出力の関係

P-60 中性子構造生物学と生体物質結晶成長

(原研・先端基礎研究センター) 新村信雄

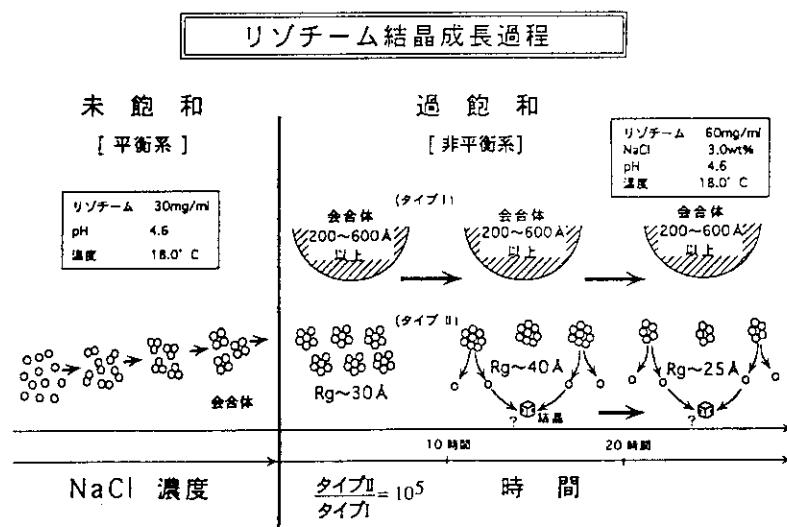
タンパク質の機能は、3次元構造を形成して発現される。そのため、タンパク質の立体構造の原子レベルでの決定は、その生理機能の理解に必須である。これは、X線結晶構造解析で実現される。生体物質は構成元素の約半分が水素原子であり、生命現象の中で水素原子の果たす役割や生体物質と水との係わりは、大変重要なものである。しかし、X線回折法ではその位置決定は困難である。一方、中性子回折法では、水素原子の中性子散乱能が炭素原子や酸素原子などと同程度であるため、水素原子の位置情報が得やすい。

このような有用な手法は、大いに利用されるべきであるが、生体物質からのブラグ反射強度は弱いので実際にはそれほど簡単な実験ではない。これをカバーするためには、(1)試料に入射する中性子強度を増し、(2)大きな単結晶を用い、(3)試料を見込む立体角の大きな中性子検出器を準備することである。(1)及び(3)は、本シンポジウムP-61～P-63で紹介してあるので、ここでは(2)について報告する。

タンパク質などの生体物質の単結晶作製は、全くの試行錯誤で行われている。一方、その結晶成長メカニズムを解明するため、種々の手法での研究は数多くされているが、分子レベルでの直接観察はほとんどされていない。我々は、通産省生命工学研との共同研究により、確実に大きな結晶を作製するための基礎として、中性子小角散乱法による生体高分子の結晶成長メカニズムの分子レベルでの解明研究を始めており、図に示すようなモデルを提案できるまでに至っている^{1, 2)}。リゾチーム分子は、未飽和水溶液でNaCl添加で会合体を形成し、NaCl濃度増につれ、会合体は大きくなる。過飽和になると、数は少ないが半径が数100Åに及ぶ会合体(Type I)と、それの10⁵倍位の多数の半径30Å程度の会合体(Type II)が共存する。時間経過と共にType IIの会合体は半径40Å位にまで大きくなり、ある時点から小さくなり始める。この時点でType IIの会合体中の分子が再折出する形で結晶となる。

1) Niimura, N., Minezaki, Y., Ataka, M. and Katsura, T.: J. Cryst. Growth 137, 671 (1994)

2) Niimura, N., Minezaki, Y., Ataka, M. and Katsura, T.: Physica B (in press)



P-61 タンパク質リゾチームの中性子回折

(原研、先端基礎研究センター) 峰崎善章

我々は中性子回折法による生体高分子結晶構造解析をする目的で、原研JRR-3Mに回折計(略称BIX、愛称NAUTILUS)を建設した。ポスターでは、BIXの性能評価を兼ねて行ったニワトリ卵白リゾチーム(HEW-lysozyme)の中性子回折を報告する。

[単結晶]

HEW-lysozymeは、生化学工業から購入したもの(6回結晶化精製)を用い、濃度勾配法¹⁾により作成した。濃度勾配法とは、20 mm φの試験管の底にNiCl₂ · 6H₂O 3 gを入れ、そこにHEW-lysozyme 1.0 g (H₂O用)又は0.3 ~ 0.5 g (D₂O用)を20 mlのH₂O又はD₂Oに溶かしpH 7.0に調整した溶液を静かに流し込む方法で、1週間程静置しておくとNiCl₂が拡散することでNiCl₂の濃度勾配ができ、結晶化条件を満たしたNiCl₂濃度の位置で単結晶の成長が始まる。温度18°Cで結晶成長させ、正方晶型(a = b = 79.1 Å, c = 37.9 Å)の4 × 4 × 4 mm³大のものを得ることができた(H₂O, D₂O共に)。中性子データ収集には吸収の効果等を考え2 × 2 × 2 mm³のD₂O母液のものを使用している。

[結晶方位決定]

結晶方位決定のために第1次近似として、低次の指数<110>, <200>に属する反射の正確な4軸角とPSD上の位置を実験で求め、2反射法を用いて結晶方位を決定した。さらに精度を高めるために、φ軸回転($\chi = 0^\circ$)で $\phi = 0 \sim 20^\circ$, $90 \sim 110^\circ$, $180 \sim 200^\circ$ 及びω軸回転($\chi = 90^\circ$)で $\omega = 12 \sim 32^\circ$ の範囲で約90点の強い反射の正確な4軸角とPSD上の位置を測定した。現在、これらを用いて結晶方位決定の精度を高めていくためのプログラムを作製中である。

[積分強度測定]

中性子回折積分強度測定では、単結晶をステップ回転させ、各ステップ毎にデータを収集する。1ステップのデータをフレームと呼ぶ。従来、中性子回折にはDynamic Mask法²⁾(特に生体高分子を用いた中性子回折の場合、反射強度が弱く、かつ水素からの非干渉性散乱でbackgroundが上がるため、各反射ごとにMaskを作りbackgroundを差引いて積分強度を計算するという方法)が用いられているが、これを改良した1 frame Dynamic Mask法(1FDM法)を用いて各指数ごとの積分強度計算をしていく予定である。すでに予備的な解析から、1FDM法を用いることでS/N比が向上することを見出している。このために1フレーム30分、0.1°ステップで、 $\chi = 0^\circ$ のφ軸回転で $\phi = 0 \sim 5^\circ$, $90 \sim 95^\circ$, $\chi = 90^\circ$ で $\phi = 12.0^\circ \sim 20.6^\circ$ の領域を測定し、約140ほどの反射が測定できた。現在、これらを用いて積分強度を計算するためのプログラムを作製中である。

¹⁾ M. Ataka and T. Katsura (1993) JAERI-M, 92-213, 61

²⁾ Lennart Sjolin and Alexander Wlodawer (1981) Acta Cryst., A37, 594-604

P-62 生体物質中性子回折計BIX (Nautilus) の建設

(原研・先端基礎研究セ) 田中伊知郎

生体物質の構成元素の約半分が水素であり、機能する環境下では、その水素と水の関わりに多くの生命現象が依存する。水素原子及び水の生体内での役割を明らかにするためには、それらの原子分子レベルでの立体構造を決めることが最も確実である。従来のX線結晶構造解析法では、相互作用の弱さから水素の位置決定が困難であるし、NMR法では、分子量の比較的小さなものしか構造が解けない。そこで水素との相互作用の大きい中性子線による結晶構造解析が期待される。今回発表する回折計BIX、愛称Nautilus(図1)は、この目的に向けて原研のJRR-3M炉室内に工夫¹⁾²⁾を凝らしながら建設してきたものである。1995年2月現在のBIXの性能をまとめると次表のようになる。

Monochromator, Wavelength	Elastically Horizontally Bent Si(111) ; 1.73 Å
Monochromator-Sample Distance	3100mm
Beam Property	Size : 5×5mm, FWHM : 0.4°, Δλ/λ : 2%
Flux at Sample Position	6×10 ⁶ n/cm ² /sec
Sample-Detector Distance	600mm
Detector (PSD)	2 units, ³ He-2D-proportional, Area : 250×250mm, Resolution~2mm
Shielding	Material : 7cm(B4C)+5cm(H), Background : 0.1 counts/cm ² /sec

1) Niimura, N., Tanaka, I., Karasawa, Y., Minakawa, N., *Physica B*, in press.

2) Karasawa, Y., Niimura, N., Tanaka, I., Miyahara, J., Takahashi K., Saito, H., Tsuruno, A., Matsubayashi, M., *Physica B*, in press.

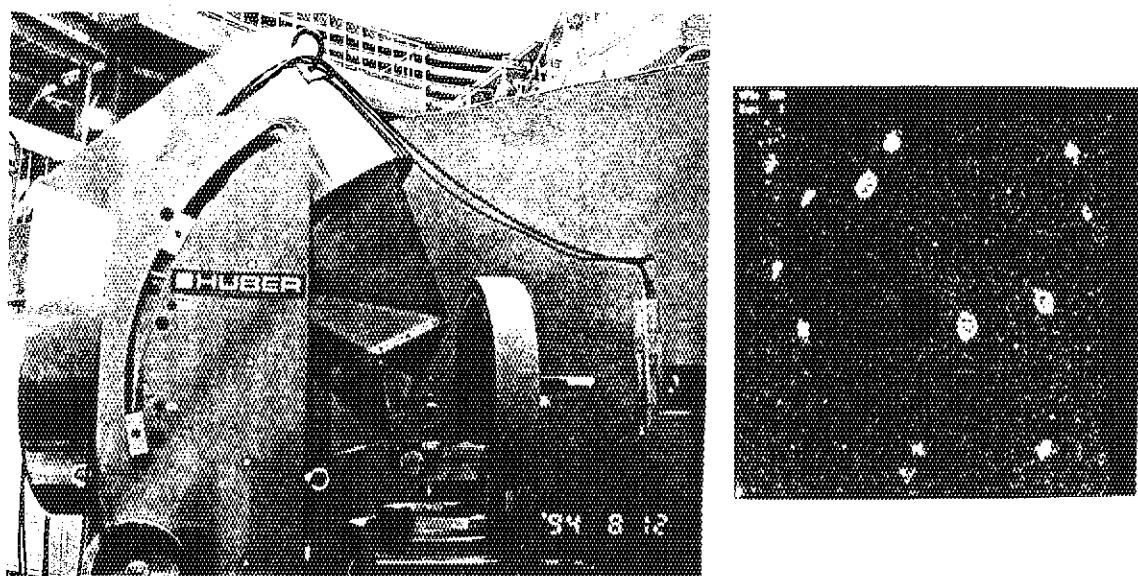


図1 (左側) : BIXの外観。PSDが縦に2台配置され、4軸+1軸のゴニオメーターになっている。単色化された中性子ビームは右から入射する。

図2 : 5分間測定で得られたLysozyme単結晶 (分子量14300、母液:D₂O Buffer、約2.5mm cube) の回折斑点。

P-63 中性子イメージングプレートの開発と応用

(原研 先端研) 唐澤裕子

イメージングプレートとは、輝尽性蛍光(Photostimulated Luminescence、以下PSL)という特殊な発光現象を利用した、繰り返し使用可能な2次元放射線検出器である。高分解能、広ダイナミックレンジ、高感度、大面積という優れた性能をもつので、特に近年のX線による生体高分子の結晶構造解析の分野の発展に大きく貢献してきた。

一方、中性子検出器は比例係数管が主流であり、我々の建設した生体高分子結晶構造解析用中性子回折計(BIX)の検出器としてはX線イメージングプレートと比較すると性能は見劣りし、不満足であった。そこで我々は、X線用イメージングプレートに匹敵する性能を持つ中性子用のイメージングプレートの開発に着手した。

中性子イメージングプレートを開発するためには、電荷をもたない中性子を、電荷をもった粒子、もしくは電磁波に変換するためのコンバーター元素を、X線イメージングプレートの本体である輝尽性蛍光物質に混合する必要がある。そのための予備計算を行い、コンバーターの特徴にあわせて試作した中性子イメージングプレートを使って様々な実験を行った結果、位置分解能が0.2mm以下、ダイナミックレンジが5桁以上というすぐれた特性をもつ検出器であることがわかった。さらにコンバーターの種類による違いも明確に表れた[1]。(図1参照)

この中性子イメージングプレートがBIXで実用可能かを実験したところ、リザーチーム単結晶の多数の回折斑点を測定することが出来、BIXへの応用の実現に弾みがついた。

そのほか、非破壊検査の手段である中性子ラジオグラフィ、中性子反射率計などへの応用の予備実験もすでに行っており、いずれも実用可能のメドが立っている。

[1] N.Niimura, Y.Karasawa, I.Tanaka, J.Miyahara, K.Takahashi, H.Saito, S.Koizumi, M.Hidaka, Nuclear Instruments & Methods in Physics Research A 349 (1994) 521-525

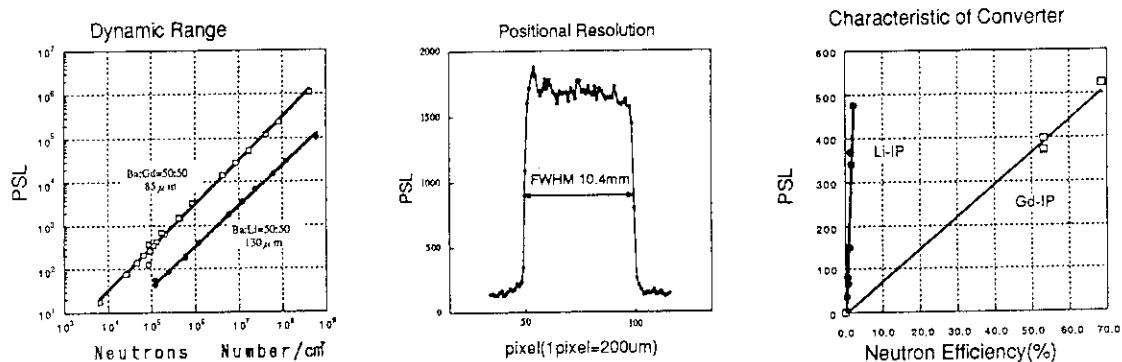


図1 中性子イメージングプレートの特性

The development and application of an imaging plate neutron detector

Yuuko Karasawa

P-64 タバコ花粉へのイオンビーム照射による突然変異の誘起

(京都府大) 井上雅好、西村浩幸

イオンビームは、 γ 線やX線に比べてLETが高く、深度制御が可能であることから、欠失型突然変異を特異的に誘起したり、細胞加工操作に利用できるのではないかと注目されている。しかし、植物におけるイオンビームの生物効果については不明な点が多い。

本研究では、タバコ (*Nicotiana tabacum* L. 品種 Bright Yellow 4、BY-4) 花粉へのイオンビーム照射を行い、照射花粉を用いて得られた種子の後代での生存率や形態異常あるいは葉緑素突然変異や形態突然変異を調査した。BY-4の完熟花粉を単層になるようにカプトン膜 (8.5 μm 厚) で挟んで、 $^4\text{He}^{2+}$ (照射エネルギー 6 MeV、打ち込み深度 30 μm 、T I A R A)、 $^4\text{He}^{2+}$ (50 MeV、1500 μm 、同)、 $^{40}\text{Ar}^{13+}$ (460 MeV、50 μm 、同) および $^{12}\text{C}^{4+}$ (15 MeV、4 ~ 7 μm 、同) ビームを照射した後、BY-4に授粉して (I₀世代)、種子を育成した。稔実さく率は $^4\text{He}^{2+}$ (6 MeV、1400 Gy) で 60%、 $^4\text{He}^{2+}$ (50 MeV、1000 Gy) で 39%、 $^{40}\text{Ar}^{13+}$ (1000 Gy) で 40% および $^{12}\text{C}^{4+}$ (1000 Gy) で 100% となり、イオンビームの打ち込み深度に対応して、種子形成が抑制された。イオンビーム照射次代 (I₁世代) での種子発芽率や幼苗生存率においても同様な照射効果が認められた (第1表)。I₁世代における照射区の植物体は草丈が低く、葉は細葉になる傾向にあり、草型や葉型、花型に関する異常個体が多数認められた。形態異常を示した個体では、花粉稔性や花粉発芽率、種子稔性が低下していた。さらに I₂植物体の自殖次代 (I₂世代) 幼苗での葉緑素突然変異体の出現頻度は低かったが、葉型に関する形態突然変異体の出現頻度は 8.7×10^{-3} であった (第2表)。これらの結果から、イオンビームが他の放射線と同程度の突然変異誘起効果をもつことが明らかとなった。

第1表 I₁世代での種子の発芽率および生存率

ion・照射エネルギー・線量 (MeV) (Gy)	播種数	発芽数	発芽率(%)	生存率(%)
$^4\text{He}^{2+}$ 6 1400	71	12	16.9	42.9
$^4\text{He}^{2+}$ 50 1000	38	0	0	0
$^{40}\text{Ar}^{13+}$ 460 1000	31	0	0	0
$^{12}\text{C}^{4+}$ 15 1000	199	72	36.2	69.8
非照射	25	23	92.0	100

第2表 I₂世代幼苗での形態突然変異体の出現頻度

ion beam	観察数	変異体数			変異体出現頻度 ($\times 10^{-3}$)
		子葉	第1本葉	計	
$^4\text{He}^{2+}$ 6 MeV	1788	11	4	15	8.4
$^{12}\text{C}^{4+}$ 15 MeV	2690	7	17	24	8.9
照射	4478	18	21	39	8.7
非照射	200	0	0	0	0

Mutation induction, using ion beam-irradiated pollen of *Nicotiana tabacum* L..

Inoue, M. and H. Nishimura (Kyoto Pref. Univ.)

P-65 炭素およびネオニオンビームによる生物効果

(放医研・重粒子) 鈴木雅雄、金井達明、加瀬陽子、(長崎大・薬) 渡辺正己
(大阪大・医) 加藤武司、(理研・R I) 谷田貝文夫

重粒子線を含む高LET放射線の生物効果は、X線やガンマ線などの低LET放射線に比べて高いことが、わかってきていている。また、これらの生物効果に対するLET依存性は、 $100\sim200\text{keV}/\mu\text{m}$ に効果のピークを持つことが報告されている[1]。しかしながら、この種の実験には大型加速器が必要不可欠であることなどの理由から、同一の加速粒子でエネルギーを変化させて得た種々のLETビームを利用した実験や、異種の加速粒子を用いてのLET依存性の研究は、重粒子線の生物影響の根本を探る上で欠くことの出来ないことでありながら、ほとんど行われていないのが現状である。本研究では、理化学研究所リングサイクロトロンで加速された炭素イオン及びネオニオンビームに対して、厚さの異なるエネルギー吸収体によって得た様々なLETのビームを用いて、ヒト正常細胞の生物効果のLET依存性を調べた。

図1には、今回我々が用いたヒト胎児由来の正常細胞(H玉20)に対する、種々のLETの炭素イオンビーム(8種のLET)及びネオニオンビーム(7種のLET)によるHprt遺伝子座の突然変異誘発率を示す。炭素イオンビームでは、ガンマ線に比べて低線量域($\sim0.5\text{Gy}$)で突然変異誘発頻度が急激に上昇し、その後緩やかに上昇するのに対し、ネオニオンビームでは、低線量域での急激な上昇は炭素イオンビームと同様であるが、 0.5Gy 以上で突然変異誘発が頭打ちとなることがわかる。同様のビームによる細胞死の効果は、炭素イオンビームとネオニオンビームの間でほとんど差がないという結果であり、突然変異誘発効果のLET依存性には、粒子種の違いによってまったく異なる応答を示すことがわかった。本シンポジウムでは、これら細胞レベルの効果に加え、突然変異クローニングについてDNAレベルでの変化の解析結果を含め、加速粒子が異なった場合の重粒子線の生物効果のLET依存性を検討したい。

[1] M. Suzuki *et al.*, *Advances in Space Research* (in press).

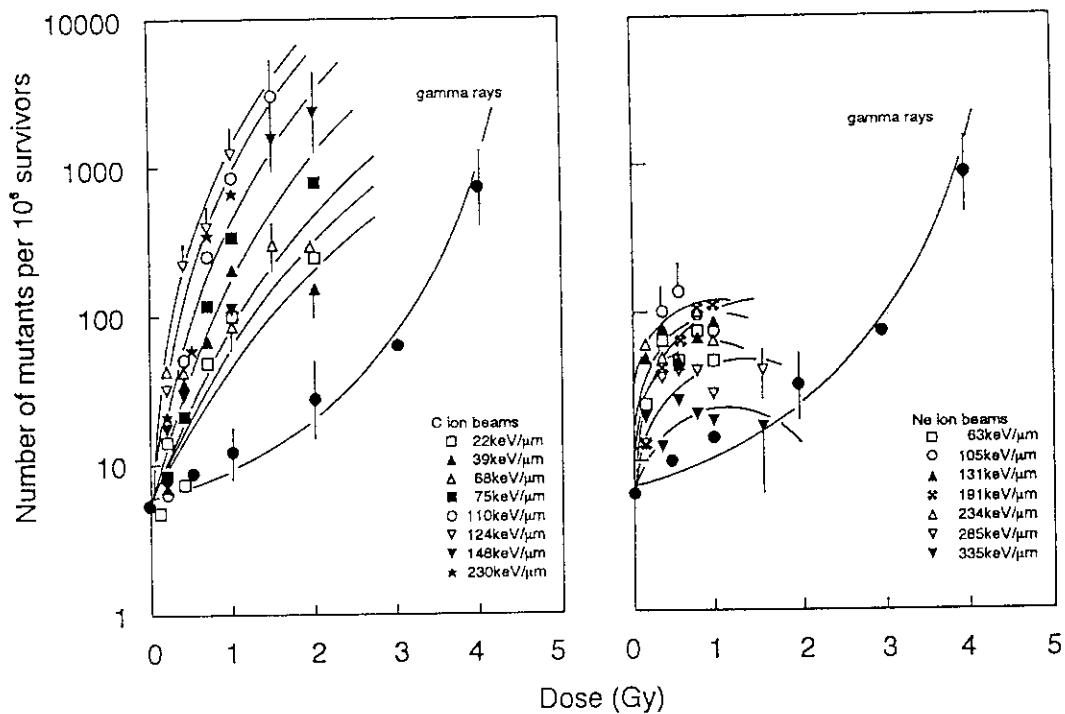


図1 炭素イオン(左) 及びネオニオンビーム(右)による突然変異誘発効果。

Biological effects in normal human cells by accelerated carbon- and neon-ion-beams.
Masao Suzuki, Masami Watanabe, Tatsuaki Kanai, Yoko Kase, Takeshi Kato and Fumio Yatagai

P-66 重イオンによる突然変異の塩基配列レベルでの研究

Analysis of Mutation Induced by Heavy-Ion at Base Change Level

谷田貝文夫¹、香川康浩^{1,2}、鈴木雅雄³、加瀬陽子³、小林晶子²、平野昌彦²、加藤武司⁴、
渡邊正己⁵、花岡文雄¹,

¹理研、²東レリサーチセンター、³放医研重粒子、⁴大阪大学医学部、⁵長崎大学薬学部

重粒子線による細胞レベルでの生物効果は、X線やガンマ線に比べて高いことが多くの研究から明らかになってきている。しかしながら、そのような現象の発生メカニズム、分子レベルでの損傷の重粒子線特異性、などの遺伝子レベルでの重粒子線影響の実体については、ほとんどわかっていないのが現状である。本研究においては、重粒子線の生体への影響を分子レベル(DNA、クロマチン、染色体レベル)で研究し、重粒子線の作用機構の解明を目的とする。

今までに、渡辺、鈴木らが中心になつてヒト胎児初代培養細胞に対して、理研リングサイクロトロンによって加速した初期エネルギー135MeV/nの炭素イオンを利用し、照射位置でLETが39, 68, 124, 230keV/μmになるように調節して照射を行ない、得られたHPRT(-)突然変異体について解析をすすめてきた。彼らの行なった、主に多重PCR法を利用した解析から、致死や突然変異のRBEピークを与えるLET124keV/μmではエキソン領域が欠損しているHPRT(-)変異体が多く得られたのに対して、LETの高い230keV/μmでは、エキソン領域が保持されているという大変興味深い結果が示された。

その後、これらLET230keV/μmで得られたHPRT(-)変異体をcDNA塩基配列決定等の分子生物学的手法で詳細に検討したところ、多くの変異体はmRNAのスプライシング異常と考えられる可能性が高まってきた(下表参照)。この可能性についてポスター発表をする。

Comparison of mutationa: events

Class of mutation	Incidence	
	C-ion (230keV/μm)	Spontaneous
Base substitution	2 (11%)	5 (50%)
Frame shift (base addition)	0	2 (20%)
Deletion	16 (89%)	2 (20%)
exon 6	10	0
exons 6 and 8	6	0
exons 2 and 3	0	2
unidentified(point mutation)	0	1 (10%)
Total	18 (100%)	10 (100%)

P-67 シロイヌナズナのイオンビームによる突然変異

(原研・先端研) 鹿園直哉、横田幸彦、田中淳、渡辺宏、田野茂光

今まで、微生物や哺乳類の培養細胞を中心にイオンビーム照射による誘発突然変異率に関する解析が行なわれてきたが、その誘発機構に関してはいまだ不明な点が多い(1)。イオンビーム照射により、細胞は局所的に大きなエネルギーを付与されるため、DNAレベルでは大きな構造変化を伴うことが考えられる。従って、誘発される突然変異は他の突然変異原によるものとは質的に異なる可能性がある。我々は、イオンビーム照射による突然変異の誘発機構の特異性を明らかにすることを目的に、低LET放射線とイオンビームによって誘発される突然変異のスペクトルの比較を行なっている。突然変異スペクトルの特異性が解明されれば、突然変異誘発機構の解析によりゲノムの多様化機構及び有用な遺伝資源の作出に関する新たな知見が得られることが期待される。

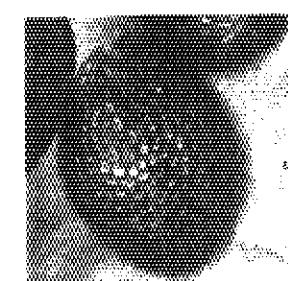
遺伝学的解析やDNAレベルでの解析に適する植物であるシロイヌナズナはイオンビームの突然変異の特異性及び突然変異誘発機構を調べるのに最も適した材料の一つであると考えられる。本研究においては種子にイオンビームとして $220\text{MeV}^{12}\text{C}^{5+}$ を、対照として 2MeV e^- を照射し、突然変異スペクトルを比較した(表1)。突然変異は照射後代2代目(M2)植物体に突然変異体が観察される系統で表した。ここで系統とは個々の照射当代(M1)植物体から得られた後代(M2)の集団である。表現型を12の型に分け、突然変異を示す形質を分類した。その結果、同じ生物効果を与える線量で比較すると、 $^{12}\text{C}^{5+}$ では矮性の突然変異が、また e^- では子葉の葉緑素変異が多く誘発される傾向がみられ、イオンビームと電子線による突然変異は異なる機構により誘発される可能性が考えられた。しかしながら、実験に供試した系統数が少ないため、今後さらに供試系統数を増やし、イオンビームによる突然変異スペクトルに違いがみられるかどうかさらに詳しく調べていく必要がある。また、突然変異スペクトルを解析している過程で幾つか既存しないと思われる突然変異体も得られた。代表的なものとして、種皮に色素の沈着がみられる突然変異体(図1)や、生長している部位でのみ色素変異がみられるという突然変異体などがある。既存しないと思われる突然変異体が得られたという結果は、イオンビームによる新しい遺伝資源を作出できる可能性を示すものなのではないかと考えられる。

以上、イオンビームによる突然変異の誘発は電子線等の低LET放射線とは質的に異なることが推察される。今後DNAレベルでの構造変化の解析を進め、イオンビームによる突然変異誘発機構に対する知見を得たいと考えている。

(1)Jürgen Kiefer (1992), Radiat. Environ. Biophys., 31, 279-288.

表1. $^{12}\text{C}^{5+}$ 及び e^- 照射による突然変異スペクトル

変異原	線量 (Gy)	突然変異形質を持つ系統数												供試 系統 数	
		子葉		ロゼット葉			花茎			花		種子			
		色	形態	色	形態	トリコーム	抽苔 時期	長さ	その 他	色	不稔	色	大き さ		
電子線	1,000	4	0	4	6	0	6	3	1	0	7	0	0	31	63
カーボン イオン	200	1	0	4	5	0	4	10	2	0	4	0	0	30	73

図1. $^{12}\text{C}^{5+}$ 照射により得られた種皮に色素の沈着がみられる突然変異体

P-68 イオンビーム照射によるシロイヌナズナの生物効果

(原研、先端研) 田中 淳、横田幸彦、鹿園直哉、渡辺 宏、田野茂光

生物に対する重イオンビームの影響は、ヒト細胞、酵母やバクテリアなどの単細胞系を用いて研究が進められてきた。その結果、細胞の不活性化は、重イオンの線エネルギー付与 (LET) に概ね依存すること、また細胞系内で不活性化の断面積(cross section)が異なるのは、主に細胞の修復能によることなどが明らかになってきた(1)。しかし、多細胞系での研究は少なく、単細胞系との比較や遺伝的な影響は明らかになっていない。植物の種子は多細胞系のモデル材料と考えられ、特にシロイヌナズナは、種子に明確な器官や組織があり、また研究用植物としての特徴から、重イオンの影響を調べるのに最も適した材料と言える。そのため幾つかの知見が得られているが、LETと反応断面積や生物学的効果比 (RBE) との比較が困難である。そこで我々は、LETの異なったイオン種を用いて種子に照射を行い、その生物効果を調べた。

照射には、2種のエネルギーのHeイオン (LET; 15, 71 keV/ μm)、Cイオン (111 keV/ μm)、Arイオン (252 keV/ μm)、Ne (504 keV/ μm) イオン及び対照となる2MeV電子線 (0.2 keV/ μm) を用い、2株 (Col, Ler) の種子の発芽率と植物体の生存率を調査した。生存率の D_{37} を指標とした RBE は、LETが 200 keV/ μm 付近で最大となり、単細胞系での結果に類似した結果が得られた(図 1)。しかし、発芽率では、RBE の極大がなく、発芽に関与した器官の放射線感受性の特徴を示すものかも知れない。発芽率では、Ler株の方が Col 株に比べ感受性が高く、系統間差があるという知見も得られた。一方、生存率の不活性化断面積(図 2)は、 $1 \mu\text{m}^2$ 前後で収束することが推測され、他のシロイヌナズナにおける報告(2,3)とほぼ一致すると考えられる。しかし、Neイオンの生存率曲線は、肩がほとんど無く、傾きが緩やかであるという、他のイオン種と異なる特徴を示した(図 3)。この結果は、いわゆる「殺しすぎ」だけでは解釈できず、イオンのトラック構造が関係すると考えられるが、さらに LET や飛程の垂直方向のエネルギー付与が異なるイオン種を用いた実験結果を集積し、検討する必要がある。

- (1) E.A. Blakely, Radiat Environ Biophys (1992) 31:181
 (2) Y. Hirono et al., Radiat. Res. (1970) 44:204

- (3) K.E. Gartenbach et al., fourth workshop on heavy charged particles in biology and medicine, GSI, Darmstadt, Germany (1991) C-3

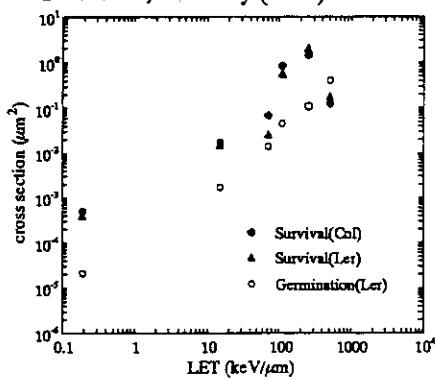


図 2 生存率、発芽率の不活性化断面積とLETとの関係

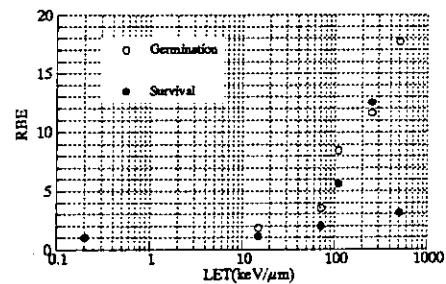


図 1 生存率、発芽率の RBE と LET の関係

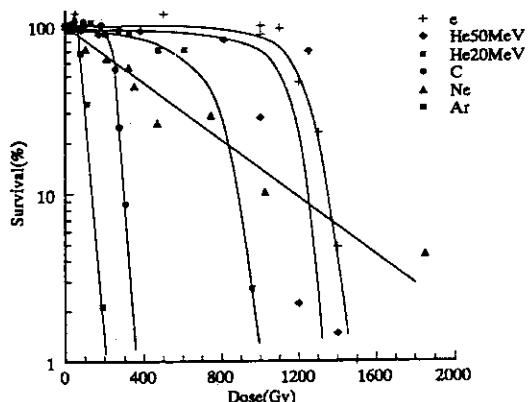


図 3 Col 株における生存率曲線

PDP-1

Multi-terawatt Amplification of Ultra Short Laser Pulses: Breaking the 50 fs Barrier

(原研・基礎センター、UCSD ^A) 山川考一、C. P. J. Barty ^A

Chirped pulse amplification (CPA) has become a common technique for circumventing optical damage and nonlinear effects during the amplification of short laser pulses in solid state laser media [1]. Terawatt level pulses with durations ranging from ~1 ps to ~100 fs have been produced by a number of systems. Although much shorter pulse oscillators exist, the implementation of terawatt level CPA with pulses of the order of 10 fs has not been accomplished. In conventional CPA systems, uncompensatable phase errors in the expansion and recompression process and distortions due to refractive optics produce broadenings which are much greater than 10 fs. In order to alleviate these problems, a novel expander/compressor design has been developed and a lens-free amplification system has been proposed.

The duration of the amplified, compressed pulse is also determined by its spectral content and thus by the spectral response of the amplifiers. Gain narrowing severely limits this spectral content. A typical amplified spectrum corresponds to a pulse of ~50 fs in duration. In order to produce shorter pulses we have proposed the technique of regenerative gain shaping. This is accomplished by placing a spatially and/or spectrally varying filter in a regenerative amplifier. The calculation result indicates that the 10 fs seed pulses could be amplified to desired energy level without gain narrowing.

This paper will review our efforts to construct the next generation, ultrashort pulse, high peak power laser driver for high field physics experiments. Generation of sub-10 fs pulses from a mirror dispersion controlled, self-mode-locked Ti:sapphire oscillator is discussed. Techniques for amplification of these pulses to peak powers of >10 TW are presented.

- [1] D. Strickland and G. Mourou, Opt. Comm., **56**, 219, (1985); P. Maine, et al., IEEE J. Quantum Electron., **QE-24**, 398 (1988).

Acknowledgement

One of the authors (K. Y.) is deeply indebted to Prof. T. Tajima and Prof. M. Date for their support.

Multi-terawatt Amplification of Ultra Short Laser Pulses: Breaking the 50 fs Barrier
Koichi Yamakawa and C. P. J. Barty

PDP-2

金環食原子核の形成

(原研・基礎センター) 丸山 智幸

多重破碎片反応は、現在の高エネルギー重（軽）イオン反応の研究において、最も注目されている題材である。この多重破碎片反応は入射重（軽）イオンと標的原子核の衝突で生成されるかなりの高励起原子核からの崩壊で起こるものと考えられる。従って、この崩壊過程を調べることにより、高温低密度核物質の状態方程式や液相気相相転移の情報が得られると期待されている。

最近、高エネルギー研究所（KEK）のグループは一核子当たり入射エネルギー 5GeV/u に加速した α 粒子を金標的に衝突させ、そこで生成される破碎片を観測するという実験を行った [1]。そして、この衝突で生成されるフッ素原子核の角度分布を調べたところ、実験室系で $\theta_{lab} = 70^\circ$ の近辺にピークが現れることがわかった。これら比較的大きな破碎片は、 α 粒子との衝突によって形成される高励起原子核からの崩壊によって生成されたと考えられるが、もしこの高励起原子核が前方にゆっくりとした速度で動きながら等方的に崩壊したと仮定すると、破碎片の角度分布は前方ピークとなるはずである。従って、衝突で形成された高励起核はビームと垂直方向に膨張していくような構造になっていなければならないはずである。また、この 70° ピークは 12GeV での陽子入射における種々の破碎片についても観測されており、この実験特有のものではなくより一般的なものと推測される。

そこで発表者は微視的数 $b = 1.5\text{ fm}$ に限ってシミュレートしてみた。図 1 は時間ステップ $t = 28 \text{ fm/c}$ での $|z| < 5 \text{ fm}$ の範囲に入るシュミレーション法の一つである QMD をローレンツ不変化した相対論的 QMD (RQMD) [2] を用いてこの入射エネルギー 5GeV/u の $\alpha + \text{Au}$ 衝突を衝突係数 $b = 1.5\text{ fm}$ に限ってシミュレートしてみた。図 1 は時間ステップ $t = 28 \text{ fm/c}$ での $|z| < 5 \text{ fm}$ の範囲に入る核子の分布を xy 平面に射影してプロットしたものである。但し、初期状態での金標的の重心を原点とし、 z 軸をビーム方向、 xz 平面を反応面と定義した。ここで衝突後の残留核が中心部分に大きな穴のある金環食型をしていることがわかる。

この状態からさらに時間発展させ、終状態の破碎片についてさらに統計崩壊を考慮して最終的な破碎片分布を求めた。図 2 に中間質量破碎片（電荷が $3 < Z < 30$ ）の角度分布を記す。確かに実験同様 70° 近辺にピークが現れている。従って、この実験で中心部分に穴のある金環食原子核が形成され、ビームと垂直な方向に膨張していったと考えることはきわめて妥当なものである。今後より詳しく研究を進めることにより、このようなエキゾティックな原子核の性質を知ることができると期待される。

[1] K. Tanaka, et al., private communication.

[2] T. Maruyama, et al., Nucl. Phys. A534 (1991) 720; Phys. Lett. 268B (1991) 160.

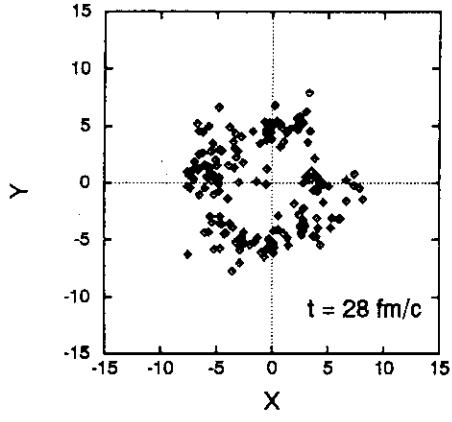


FIG. 1 : 時間ステップ $t = 28 \text{ fm/c}$ における核子分布 ($|z| < 5 \text{ fm}$)。

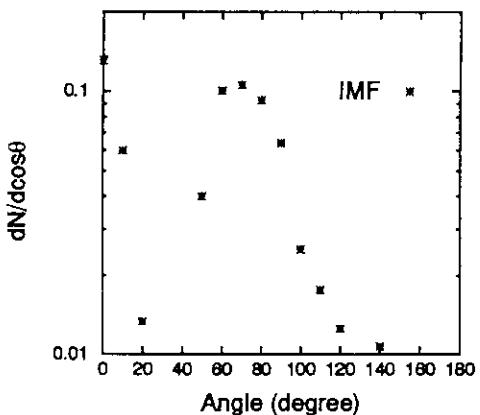


FIG. 2 : 中間質量破碎片 ($3 < Z < 30$) 数の角度分布。