

2017 年度

学士論文

^{238}U の飛行核分裂反応における
低速 ^{77}Se および ^{107}Pd の
アイソマー比測定

東京工業大学 理学部 物理学科

学籍番号 14B13980

氏名 三木晴瑠

指導教官 中村隆司

2018/ 03/ 02

概要

原子力発電所で生成される放射性廃棄物の長寿命核分裂生成物には ^{77}Se や ^{107}Pd などがあり、これらを核変換技術によって低減化・短寿命化することにより放射性廃棄物処理の負担を軽減させることが期待されている。低減化・短寿命化を実現するためには核反応データの取得が重要である。本研究ではそうした重要な核反応の 1 つである、 ^{107}Pd の陽子・重陽子反応と $^{79}\text{Se}(n,\gamma)$ の代理反応である $^{77,79}\text{Se}(d,p)$ 反応の断面積を測定する実験を RIBF の OEDO で行った。 ^{77}Se と ^{107}Pd は、核子あたり 345 MeV の ^{238}U を Be 標的による飛行核分裂反応によって生成し、核子あたり 30 MeV まで減速して 2 次ビームとして用いる。この 2 次ビームには寿命が長い励起状態 (アイソマー状態) が含まれている。原子核の基底状態に対する核反応データを取得するためには、アイソマー比の測定を行って断面積を補正する必要がある。これらのアイソマー比導出が本研究の目的である。

アイソマー比測定は、上記の OEDO での実験と併せて行った。 ^{77}Se , ^{107}Pd ビームを一定時間ストッパーに照射し、ビームを止めた後ストッパーから放出されるアイソマー状態からの脱励起 γ 線を Ge 検出器で検出した。脱励起 γ 線の時間情報から崩壊曲線を導出することで検出された γ 線の収量を求めた。アイソマーからの γ 線の収量は Ge 検出器の検出効率によって補正し、ビーム量の解析結果と併せてアイソマー比を導出した。 ^{77}Se のアイソマー比は $87.8 \pm 7.2\%$ 、 ^{107}Pd のアイソマー比が $81.2 \pm 6.8\%$ と求められた。

本研究は、総合科学技術・イノベーション会議が主導する革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) の一環として実施したものです。

目次

第 1 章	序	1
第 2 章	実験の原理	5
2.1	飛行核分裂反応による 2 次ビームの生成	5
2.2	アイソマー比の測定方法	5
第 3 章	実験	9
3.1	BigRIPS	9
3.2	ダイヤモンド検出器	10
3.3	PPAC	10
3.4	ストッパー	11
3.5	ゲルマニウム検出器	12
3.6	測定シーケンス	13
3.7	データセット	14
第 4 章	解析結果と議論	15
4.1	2 次ビームの粒子識別	15
4.2	ゲルマニウム検出器の解析	18
4.3	アイソマー比	26
4.4	議論	35
第 5 章	まとめと今後の展望	36
Appendix		37
A.1	ゲルマニウム検出器	37
参考文献		40

目次

1.1	^{107}Pd の陽子・重陽子との反応における各原子核の生成断面積 ($40 < Z < 47$ 、核子あたり 196MeV) [6]	2
1.2	核子あたり 1 GeV の ^{238}U (上) と標的による入射角破碎反応によって得られた原子核のアイソマー比。 ^{208}Pb をビームとしたときの入射核破碎反応で生成された原子核のアイソマー比。左図の横軸はアイソマー状態の角運動量 (\hbar)、右図の横軸はアイソマー状態の励起エネルギー (MeV)、縦軸はアイソマー比 (%)。	3
2.1	ストッパーとゲルマニウム検出器	6
2.2	アイソマーからの脱励起線の時間依存性	7
2.3	^{77}Se のエネルギー準位図	8
2.4	^{107}Pd のエネルギー準位	8
3.1	BigRIPS と検出器	9
3.2	ダイヤモンド検出器	10
3.3	PPAC	11
3.4	ストッパーとゲルマニウム検出器	12
3.5	ストッパーとゲルマニウム検出器	13
3.6	ストッパーとゲルマニウム検出器	13
4.1	BigRIPS と検出器	15
4.2	β とカウント数	16
4.3	^{107}Pd の粒子識別図横軸は A/Q, 縦軸は TOF	16
4.4	F7 スリット通過前の水平方向の位置分布	17
4.5	F7 スリット通過後の水平方向の位置分布	17
4.6	1 次関数とガウス関数でフィッティングしたもの。ピークは ^{133}Ba の 276.4 keV に対応する。	20
4.7	L1 のエネルギー較正	20
4.8	エネルギー較正後の ^{133}Ba のスペクトル	21
4.9	L1 の残差分布	21

4.10	L1 の分解能	23
4.11	検出効率を求める際フィッティングの様子 (図は ^{133}Ba 線源を用いて L1 のフィッティングをしたもの) 青線:バックグラウンド、緑線:sweaked ガウシアン:低エネルギー側への広がりを表す。黒線:ガウシアン : sweaked ガウシアンとともにピークを表す。 . . .	25
4.12	R2 を除いた検出効率 [%] のエネルギー依存性	25
4.13	^{77}Se のエネルギースペクトル	26
4.14	検出された γ 線のエネルギー [keV] と時間 [sec] との関係	27
4.15	^{77}Se の時間 [sec] とカウント数の関係	28
4.16	^{77}Se アイソマーの時間依存性	29
4.17	30
4.18	30
4.19	^{107}Pd のエネルギースペクトル	31
4.20	測定されたエネルギー [keV] と時間 [sec] との関係	31
4.21	ビーム on/off でのエネルギースペクトル	32
4.22	^{107}Pd の時間 [sec] とカウント数の関係	33
4.23	^{107}Pd アイソマーの時間依存性	34
4.24	入射核破碎反応 [8] と今回の実験結果	35
A.1	絶縁体と半導体のエネルギーバンド構造	38
A.2	一般的な検出器のレイアウト	39

表目次

1.1	LLFP の半減期	1
2.1	^{77}Se アイソマーと ^{107}Pd アイソマー	7
2.2	内部転換係数と γ 崩壊の割合	8
3.1	標的厚	10
3.2	エネルギーと Al での飛程の関係	12
3.3	本研究で使用した線源と目的	14
4.1	^{107}Pd の PI を行った 1048 の run と γ 線測定を行った run との比較 [] 内は 1048 と比較または、Live time の補正により求めたもの	18
4.2	^{77}Se の PI に使用した 3010 と γ 線測定に使用した 3005 の run との比較 [] 内は 3005 と比較または、Live time の補正により求めたもの	18
4.3	エネルギー較正に用いた線源とエネルギー	19
4.4	エネルギー較正のパラメータ	20
4.5	661 keV と今回使用するエネルギーでの分解能 [keV]	22
4.6	661 keV と今回使用するエネルギーでの分解能 [keV]	25
4.7	^{107}Pd アイソマーと ^{108}Ag アイソマー	30
A.1	シリコンおよびゲルマニウムの性質	38

第 1 章

序

原子力発電所で生成される高レベル放射性廃棄物には長寿命核分裂生成物 (LLFP: Long Lived Fission Product) が含まれる。表 1.1 にある LLFP は半減期が数十万年から数百万年に及んでいる。これらはガラス固化し、地層深く処分することが計画されている。LLFP の長期間の保管に対する不安が払拭されないことから、高レベル放射性廃棄物の処分は大きな社会問題となっている。 ^{79}Se , ^{107}Pd などは寿命が長いため、1 万年以上経過しても 1/1000 程度しか減少しない。長寿命核の低減化・短寿命化を実現させる 1 つの方法として原子核反応による核変換が検討されている。核変換の方法が確立することができれば、LLFP の低減化・短寿命化により処理の負担の軽減や資源化を行うことができる。

核種	^{79}Se	^{93}Zr	^{107}Pd	^{135}Cs
半減期	650 万年	29.5 万年	230 万年	161 万年

表 1.1 LLFP の半減期

核変換に利用する反応候補として、破碎反応・中性子捕獲反応・ロックアウト反応などが考えられる。本研究ではこの中でも ^{107}Pd の破碎反応と ^{79}Se の中性子捕獲反応に着目し断面積の測定実験を行った。破碎反応やロックアウト反応は 100 MeV, 200 MeV の入射エネルギー領域で測定されている [6] (図 1.1)。一方、核子あたり 20 ~ 30 MeV の低エネルギー領域では測定されていないため、この入射エネルギーで ^{107}Pd と陽子・重陽子との反応断面積を測定する。 ^{107}Pd の低エネルギーの反応では複合核反応や核子移行反応の寄与が大きくなる。図 1.1 に核子あたり 196 MeV の ^{107}Pd と陽子・重陽子との反応によって得られた生成断面積を示す [6]。核子あたり 20 ~ 30 MeV の低エネルギー領域で同様の実験を行う。

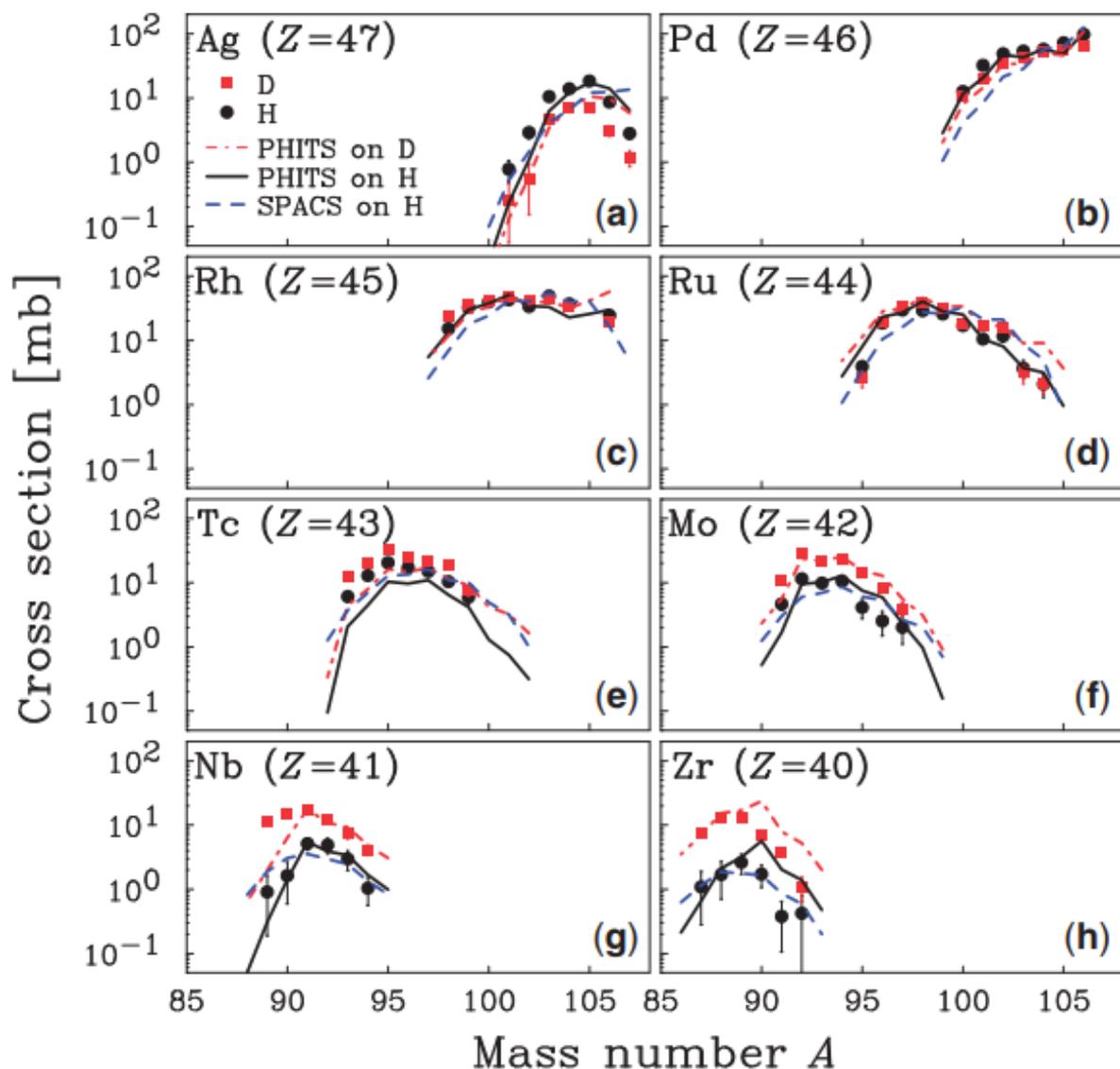


図 1.1 ^{107}Pd の陽子・重陽子との反応における各原子核の生成断面積 ($40 < Z < 47$ 、核子あたり 196MeV) [6]

また、中性子捕獲反応である $^{79}\text{Se}(n, \gamma)$ 反応 ^{79}Se と標的中性子 (n) はともに不安定であるため、直接測定するのが困難である。したがって式 1.0.1 を用いて代理反応により $^{79}\text{Se}(n, \gamma)$ 断面積の導出を行う [1, 2, 3]。今回の目的となる断面積は $\sigma(^{79}\text{Se}(n, \gamma)^{80}\text{Se})$ であり、既知なものは $\sigma(^{77}\text{Se}(n, \gamma)^{78}\text{Se})$ である。[4]。したがって、今回は $\sigma(^{79}\text{Se}(d, p)^{80}\text{Se})$ と $\sigma(^{77}\text{Se}(d, p)^{78}\text{Se})$ の断面積を測定する。

$$\frac{\sigma(^{79}\text{Se}(n, \gamma)^{80}\text{Se})}{\sigma(^{77}\text{Se}(n, \gamma)^{78}\text{Se})} \propto \frac{\sigma(^{79}\text{Se}(d, p)^{80}\text{Se})}{\sigma(^{77}\text{Se}(d, p)^{78}\text{Se})} \quad (1.0.1)$$

2 次ビームとして使用する $^{77,79}\text{Se}$ ビームと ^{107}Pd ビームは加速器により核子あたり 345 MeV に加速された ^{238}U を Be 標的に照射し飛行核分裂反応により生成される。このうち ^{77}Se , ^{79}Se , ^{107}Pd は寿

命の長い励起状態（アイソマー状態）をもちこれらがビーム中に含まれている可能性がある。核子あたり 1 GeV の ^{238}U を Be 標的と入射核破砕反応を行った先行研究では 2 次ビームを生成した際に寿命が長い励起状態であるアイソマーが観測されることが図 1.2 のように確認されている [8]（上）。 ^{208}Pb をビームとした入射核破砕反応のアイソマー比についても確認されている（下）。

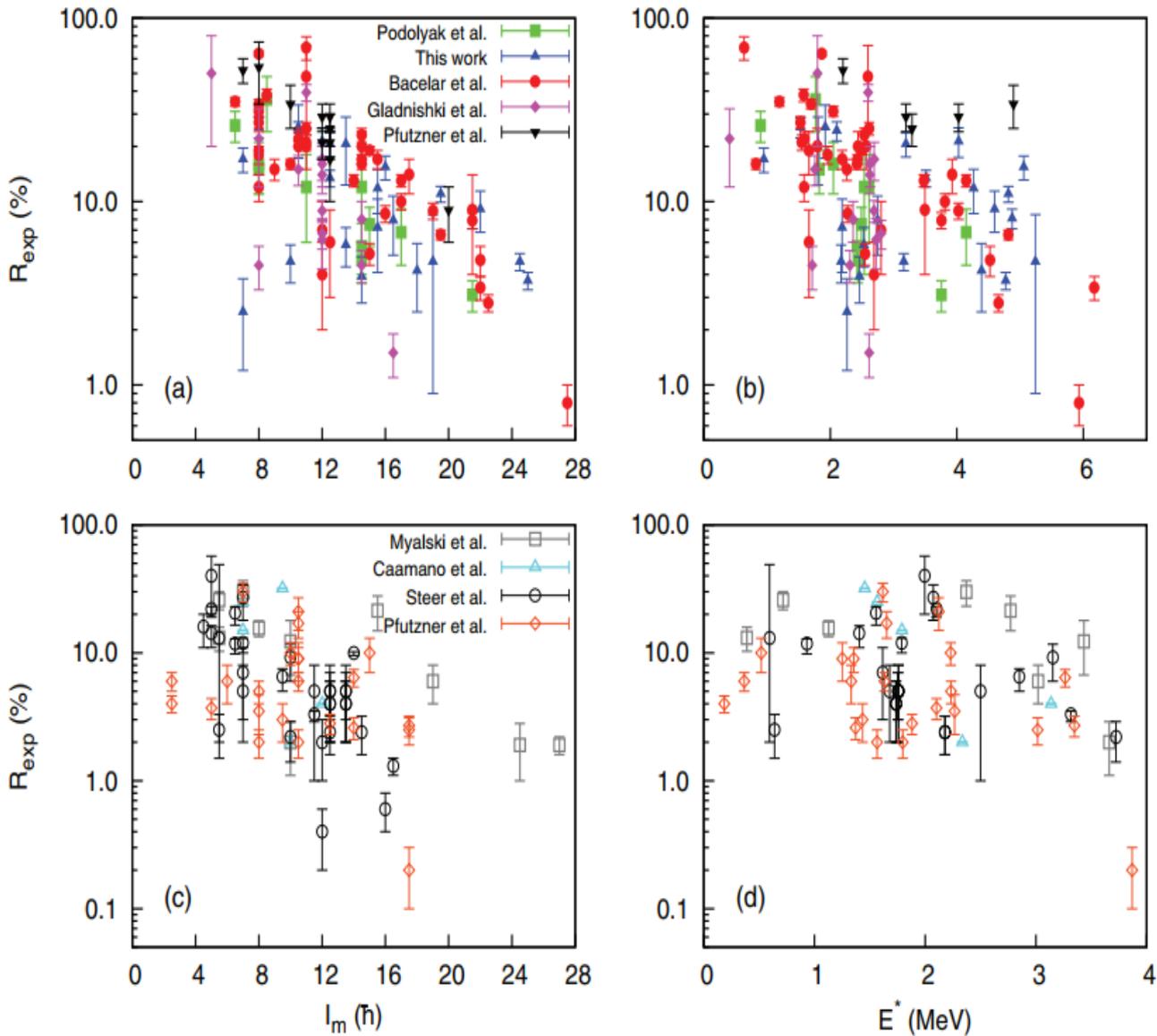


図 1.2 核子あたり 1 GeV の ^{238}U （上）と標的による入射角破砕反応によって得られた原子核のアイソマー比。 ^{208}Pb をビームとしたときの入射核破砕反応で生成された原子核のアイソマー比。左図の横軸はアイソマー状態の角運動量 (\hbar)、右図の横軸はアイソマー状態の励起エネルギー (MeV)、縦軸はアイソマー比 (%)。

飛行核分裂反応により生成されるビームにも寿命が長い励起状態であるアイソマーが含まれる。LLFP 原子核反応の基底状態に対する核反応データを取得するためにはアイソマーを用い補正が必要があるためアイソマー比測定実験は非常に重要である。したがって本研究では ^{77}Se 及び ^{107}Pd のアイ

ソマー比導出を目的とする。実験は RIBF の OEDO で行われた。 ^{77}Se と ^{107}Pd にはアイソマー状態が存在し、それぞれのアイソマー状態の励起エネルギーは 161.9 keV, 214.6 keV であり寿命は 25.1 秒、30.7 秒である [9]。

本論文では ^{77}Se および ^{107}Pd のアイソマー比測定について述べる。第 2 章では、アイソマー比導出の原理について述べる。第 3 章では理化学研究所 RIBF で行われた実験で使用された検出器の概要の紹介を行う。第 4 章ではビームの粒子識別とアイソマーからの脱励起線の解析について紹介し、議論を行う。第 5 章ではまとめと今後の展望を述べる。

第 2 章

実験の原理

本章ではアイソマー比測定の原理について説明する。

2.1 飛行核分裂反応による 2 次ビームの生成

^{238}U などの重い原子核が、同程度の質量を持つ 2 つの核に分かれることを核分裂という。 ^{238}U は天然に安定に存在する原子核で寿命は約 44 億年ある。 ^{238}U ビームを標的に入射させると、 ^{238}U の核分裂が飛行中に起こる。これは飛行核分裂と呼ばれる。核分裂で生成された原子核は一般に中性子過剰な原子核となるので、飛行核分裂反応は中性子過剰核の生成に有効である。今回は ^{238}U を Be 標的に照射することにより目的となる ^{77}Se や ^{107}Pd を作成する。その後、磁気硬度や飛行時間の違いを利用して粒子の識別を行った。

2.2 アイソマー比の測定方法

アイソマーからの脱励起 γ 線の測定方法を述べる。図 2.1 に示すようにアイソマーを含むビームをストッパーに入射し、止める。ストッパー中でアイソマー状態の γ 線が脱励起する。この脱励起 γ 線をストッパーの近くに設置した γ 線検出器で脱励起 γ 線を検出する。この測定をある時間間隔でビームの on/off を切り替えて行う。ビームを on にしてから t 秒後に検出される γ 線の数 $N(t)$ は式 2.2.1 に従う。ここで τ とはアイソマーの寿命である。一定時間後には平衡状態に達する。その後 $t = t_0$ でビームをストップすると式 2.2.2 にしたがう図 2.2 のような崩壊曲線を得る。これらの崩壊曲線からアイソマーからの脱励起 γ 線の収量や寿命を確認することができる。今回測定するアイソマーから放出される γ 線のエネルギーおよび半減期を表 2.1 に示す [9]。

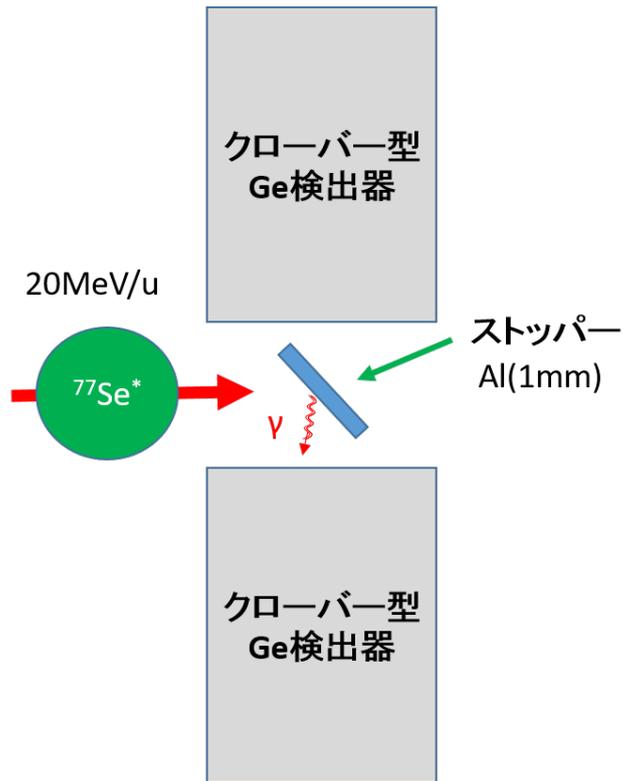


図 2.1 ストッパーとゲルマニウム検出器

$$N(t) = N_{\gamma}(1 - \exp(-\frac{t}{\tau})) \quad (2.2.1)$$

$$N(t) = N_{\gamma}(\exp(-\frac{t - t_0}{\tau})) \quad (2.2.2)$$

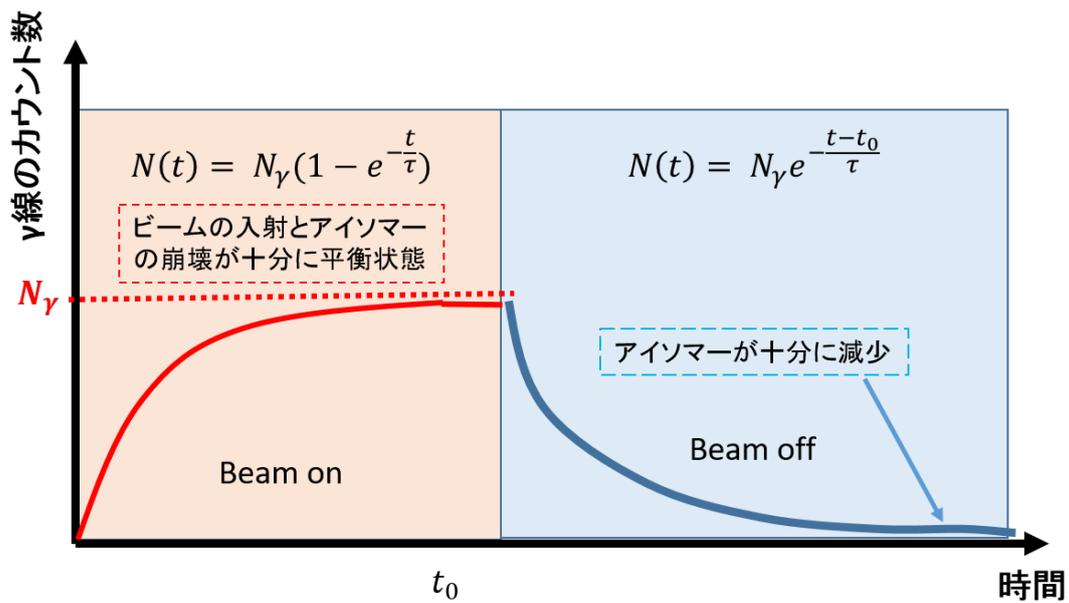


図 2.2 アイソマーからの脱励起 γ 線の時間依存性

原子核	アイソマーからの脱励起 γ 線のエネルギー E_γ [keV]	半減期
^{77}Se	161.9 keV	17.4 s
^{107}Pd	214.6 keV	21.3 s

表 2.1 ^{77}Se アイソマーと ^{107}Pd アイソマー

図 2.3, 図 2.4 に ^{77}Se と ^{107}Pd のエネルギー準位図を示す。検出されたアイソマーからの脱励起 γ 線の数に検出効率や内部転換を考慮にいれてストッパーにうちこまれたアイソマー数 N_0 を求める。内部転換とは γ 線放出の代わりにその原子核内の電子にエネルギーを与え、電子が放出される過程のことを言う。図 2.3, 図 2.4 の赤い線は γ 崩壊、青い線が内部転換を表したものである。 ^{77}Se , ^{107}Pd それぞれの内部転換係数 α とアイソマー状態からの γ 崩壊の割合 Y_γ を表 2.2 に示す [9]。式 2.2.4 のように N_0 の値と上流ビームの数から、アイソマー比を導出する。

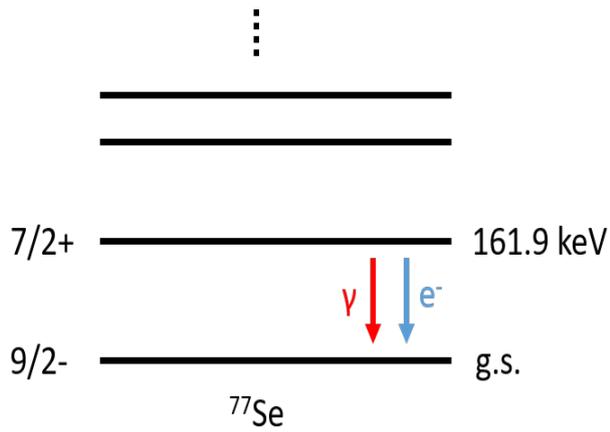


図 2.3 ^{77}Se のエネルギー準位図

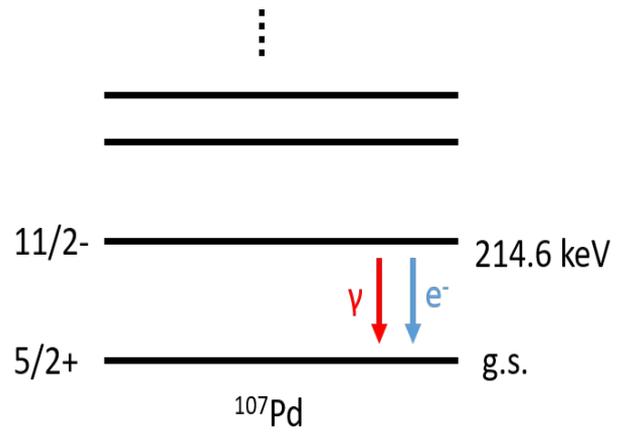


図 2.4 ^{107}Pd のエネルギー準位

原子核	内部転換係数 α	アイソマーからの γ 崩壊の割合 Y_γ
^{77}Se	0.880	53.2
^{107}Pd	0.456	68.7

表 2.2 内部転換係数と γ 崩壊の割合

$$Y_\gamma = \frac{1}{1 + \alpha} \quad (2.2.3)$$

$$\text{アイソマー比 } (^{77}\text{Se}) = \frac{^{77}\text{Se アイソマーの数}}{\text{ビームに含まれる } ^{77}\text{Se の数}} \quad (2.2.4)$$

第3章

実験

本実験は、理化学研究所の不安定核ビーム加速器施設 RIBF(RI Beam Factory) において行われた [10, 11]。本章では実験セットアップと検出器の詳細を説明する。

3.1 BigRIPS

2次ビームの生成、分離、識別は、RI ビーム生成分離装置 BigRIPS(図 3.1) を用いて行った。今回使用する ^{107}Pd は不安定核であるため自然界に存在しないので人工的に作成する必要がある。SRC などの加速器で加速した ^{238}U を Be 標的に照射させることで ^{107}Pd などの2次ビームを得る。その後磁気硬度や飛行時間・エネルギー損失を測定することで粒子の識別を行う。

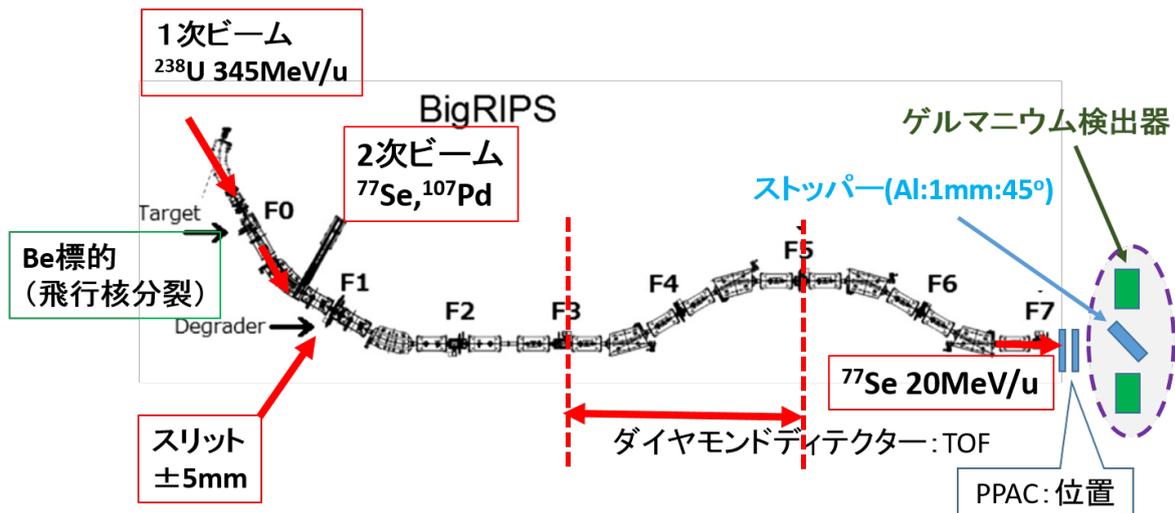


図 3.1 BigRIPS と検出器

今回2次ビームを生成するにあたり図 3.1 に示す F0 の位置に設置した Be 標的に ^{238}U を照射した。 ^{77}Se と ^{107}Pd を作成する際に使用した標的厚は表 3.1 に示す通り。

ビーム	厚さ (μm)
^{77}Se	1000
^{107}Pd	5000

表 3.1 標的厚

3.2 ダイヤモンド検出器

ダイヤモンド検出器の写真を図 3.2 に示す [12]。有感領域は $28\text{ mm} \times 28\text{ mm}$ となっている。厚さは $200\ \mu\text{m}$ となっている。ダイヤモンドに金とチタンが蒸着されている。本研究では検出効率は 100% とした。時間分解能は 27 ps である。ダイヤモンド検出器は F3 と F5 に置かれており飛行時間の測定に用いる。

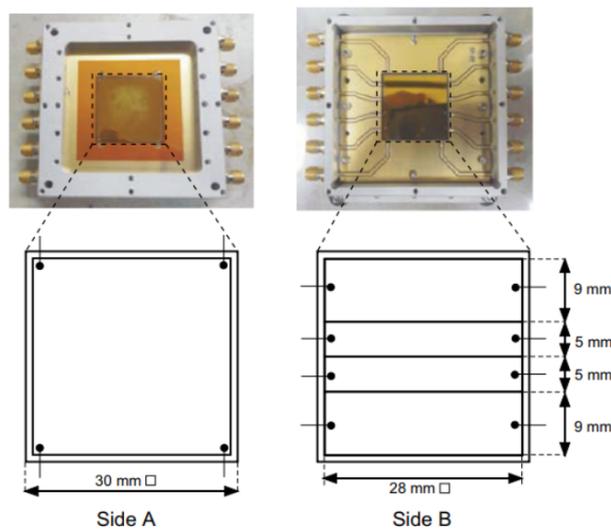


図 3.2 ダイヤモンド検出器

3.3 PPAC

PPAC の模式図を図 3.3 に示す。PPAC は各焦点面での荷電粒子の位置を検出するガス検出器である。1 つの PPAC は 3 枚の電極から構成されている。1 枚の陽極の前後に粒子位置 X, Y を検出する陰極が 1 枚ずつある。陰極は幅 2.40 mm 、間隔 0.15 mm のストリップを持つ。それぞれのストリップは delay-line でつながっており、delay-line の両端から 2 つの信号が出力される。この信号の時間差を利用し位置を測定する。本研究では、2 つの PPAC を一つの箱に入れた Double-PPAC を使用した。本研究では検出効率を 100% とした。

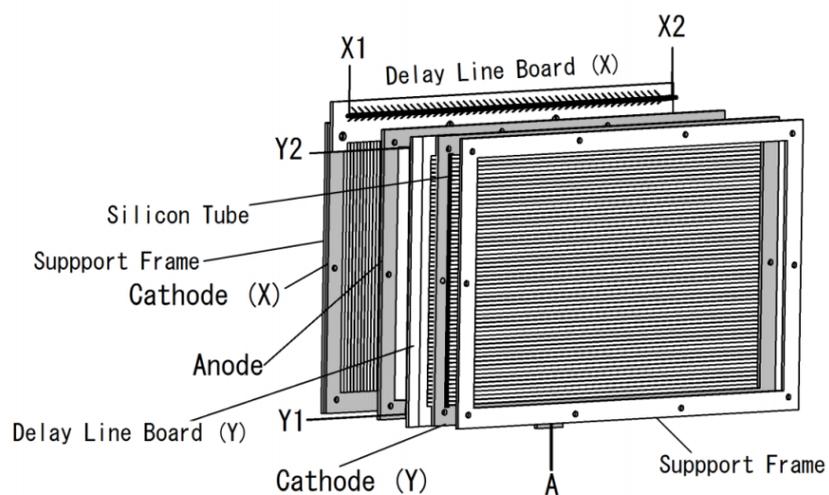


図 3.3 PPAC

3.4 ストッパー

飛行核分裂反応によって生成された ^{77}Se や ^{107}Pd のビームを図 3.4 のように F7 に置いてあるストッパーで止める。ストッパー厚は表 3.2 に示しているエネルギーと飛程の関係から十分に止まる厚さである 1mm(Al) とした。ストッパーはビームラインに対して 45 度の角度で配置した。ストッパーにビームを照射することでビームから得られる線をクローバー型ゲルマニウム検出器で検出する。

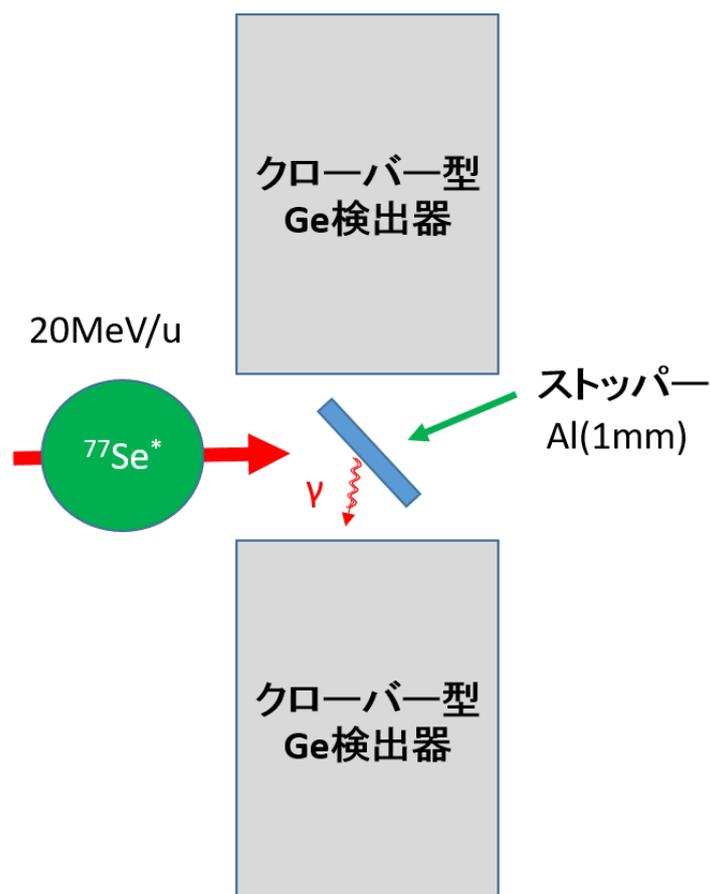


図 3.4 ストッパーとゲルマニウム検出器

線源		エネルギー (MeV/u)	飛程 (μm)
^{77}Se	最低エネルギー	27.0	349
	最大収量	29.7	402
	最高エネルギー	32.0	450
^{107}Pd	最低エネルギー	37.2	493
	最大収量	38.8	525
	最高エネルギー	40.3	554

表 3.2 エネルギーと Al での飛程の関係

3.5 ゲルマニウム検出器

アイソマーからの脱励起線の測定にゲルマニウム検出器を使用した。ゲルマニウム検出器はエネルギー分解能が非常にすぐれていることで知られている。本研究では、クローバー型ゲルマニウム検出器を2台使用した。各検出器は図 3.5 のようにストッパーの左右に配置した。以後では8つのセグメント

をそれぞれ L1,L2,L3,L4,R1,R2,R3,R4 と呼ぶことにする。

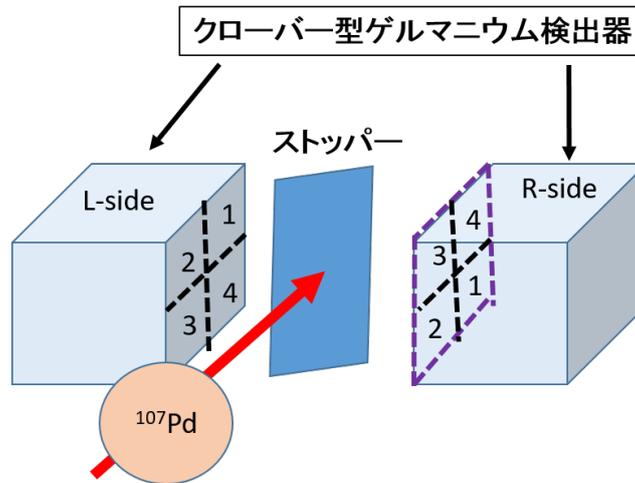


図 3.5 ストッパーとゲルマニウム検出器

3.6 測定シーケンス

本研究ではビームの on/off を繰り返し行った。 ^{77}Se は約 60 秒ごとに on/off を繰り返し、 ^{107}Pd は約 180 秒ごとにビームの on/off を繰り返した。

図 3.6 は例として ^{107}Pd のスリットとストッパーの位置を表している。ストッパー以外の箇所にはビームの像が広がらないように F7 スリットを調整している。 ^{107}Pd ビームの測定時はスリット幅 50 mm であり、 ^{77}Se ビーム測定時はスリット幅 20 mm とした。どの程度通過通過したかは前後の位置検出器 PPAC を用いて測定した。

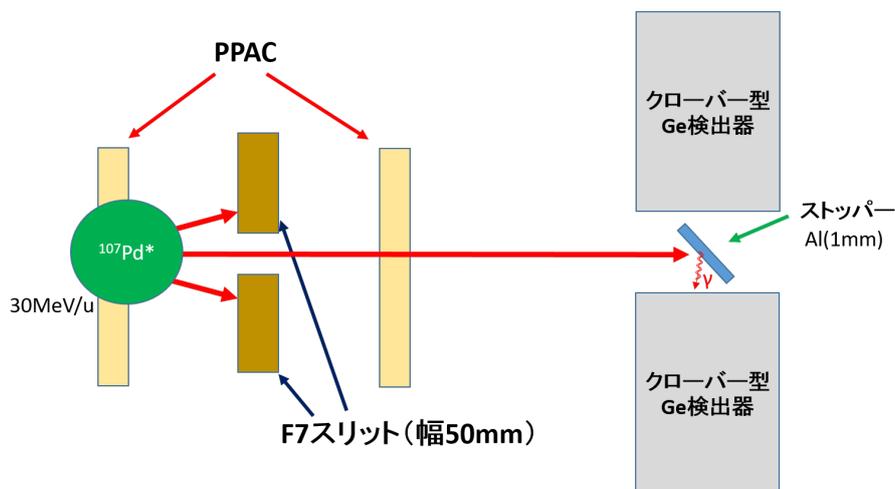


図 3.6 ストッパーとゲルマニウム検出器

3.7 データセット

run 番号	今回使用した用途
8003	ゲルマニウム検出器の解析用 線源: ^{133}Ba
8005	ゲルマニウム検出器の解析用 線源: ^{152}Eu
8006	ゲルマニウム検出器の解析用 線源: ^{137}Cs
8007	ゲルマニウム検出器の解析用 線源: ^{60}Co
3005	^{77}Se 入射ビームと粒子識別と F5 から F7 へのトランスミッション測定用
isobeam3010	^{77}Se 入射ビーム数測定用
isogamma3010	^{77}Se アイソマー状態からの γ 線測定用
1048	^{107}Pd 入射ビームと粒子識別と F5 から F7 へのトランスミッション測定用
isobeam1050	^{107}Pd 入射ビーム数測定用
isogamma1050	^{107}Pd アイソマー状態からの γ 線測定用

表 3.3 本研究で使用した線源と目的

第4章

解析結果と議論

本章ではビーム上流の粒子識別とアイソマーからの脱励起 γ 線の導出を示す。

4.1 2次ビームの粒子識別

図 4.1 のように BigRIPS の F3 と F5 に置いてあるダイヤモンド検出器から飛行時間 (TOF: Time Of Flight) を得る。 $m \propto A$ (質量数) と $q \propto Z$ (陽子数) であることから式 4.1.1 を得る。本実験では運動量がほぼ一定になるように F1 スリットを絞っているの磁気硬度 $B\rho$ はほぼ一定であることを考慮にいれると A/Z の情報が得られる。

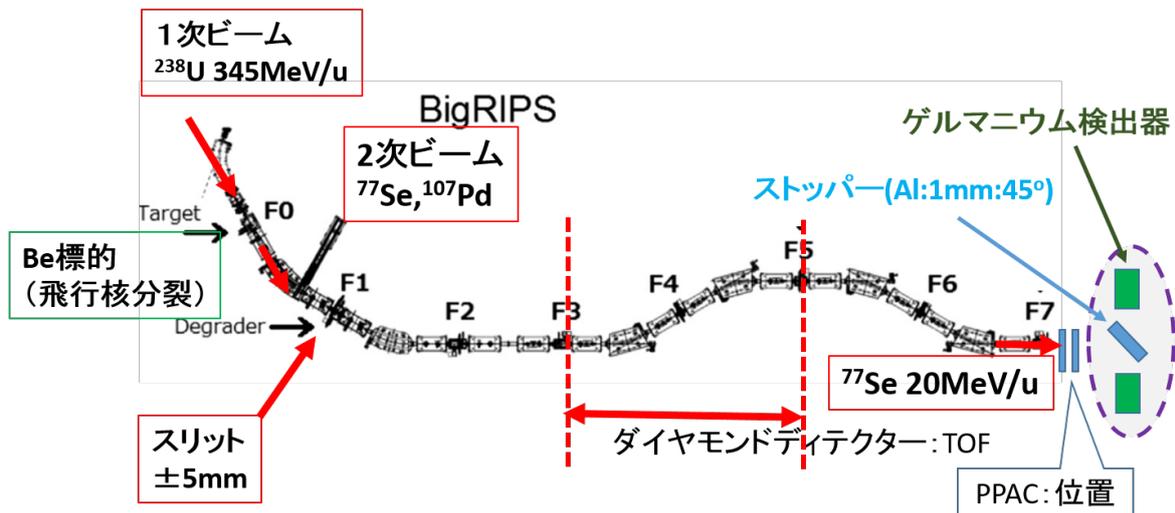


図 4.1 BigRIPS と検出器

$$B\rho = \frac{mv}{q} \propto \frac{A}{Z}v \tag{4.1.1}$$

m :原子質量単位

v : 速度
 ρ : 円軌道の半径
 q : 電荷
 A : 質量数
 Z : 陽子数

磁気硬度 $B\rho$ を測定することで式 4.1.1 より A/Q が得られる。これらを用いることで図 4.2 図 4.3 を得る。以上の解析によりビームのうち 17 % が ^{107}Pd であることがわかった。

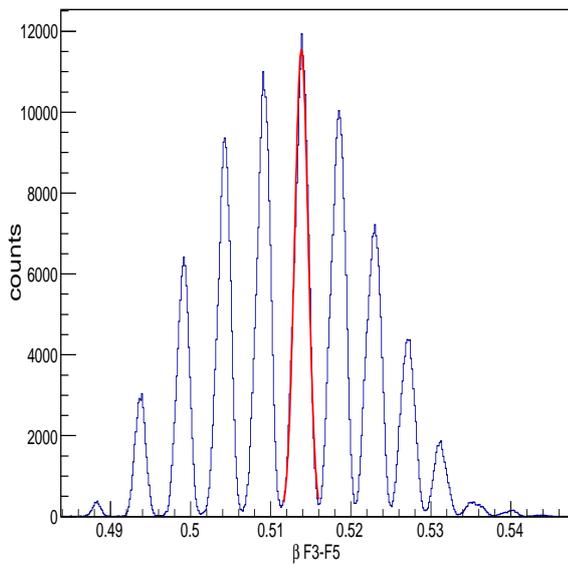


図 4.2 β とカウント数

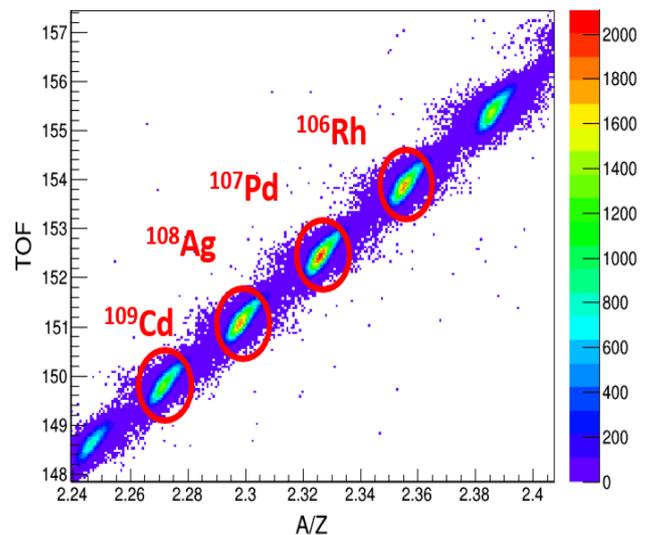


図 4.3 ^{107}Pd の粒子識別図横軸は A/Q , 縦軸は TOF

また、F7 にスリットがあるので、検出器に届いたビームの数を補正するために F7PPAC をを用い F3F5 間のビームの数と F7 でのビームの数のトランスミッションからストッパーに到達したビーム数を見積もる。図 4.4 は F7 スリット前の ^{107}Pd の水平方向の位置分布であり、図 4.5 はスリット後のものである。

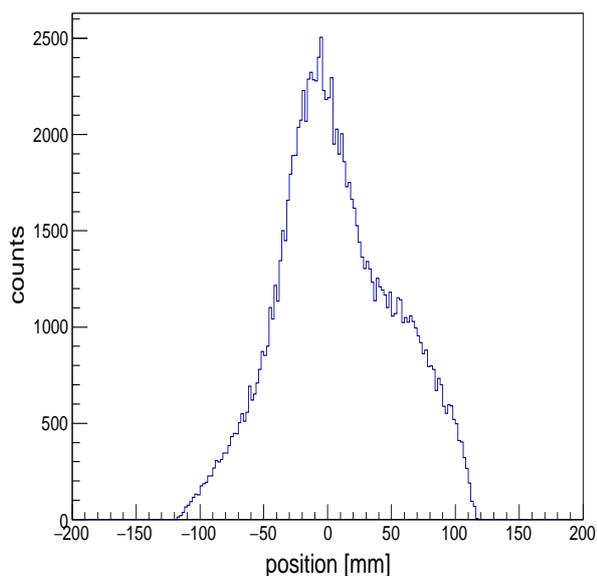


図 4.4 F7 スリット通過前の水平方向の位置分布

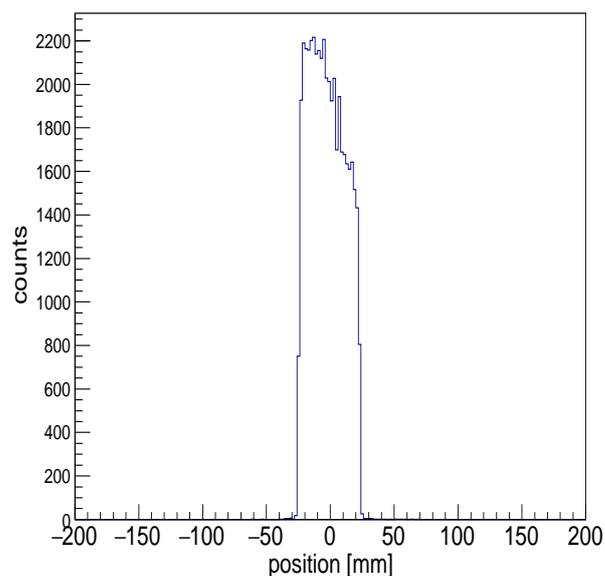


図 4.5 F7 スリット通過後の水平方向の位置分布

今回粒子識別に 2 つの run を用いて測定した。 γ 線の測定時は ^{107}Pd に陽子と重陽子を照射させる反応や $^{77}\text{Se}(d, p)^{78}\text{Se}$ 反応断面積を測定する本実験と同じ条件にするため位置検出器 PPAC を入れずに測定している。本実験ではビーム強度を強めることで PPAC などが破損する恐れがあるため使用していない。そのため、PPAC をビームラインに入れているものと比較することにより、ストッパーに到達した ^{107}Pd や ^{77}Se のビーム数を見積もる必要がある。この様に 2 つの run を比較することで、ストッパーに到達した ^{107}Pd ビーム数は 1361255、 ^{77}Se のビーム数は 158778 と導出した。比較に用いた数値を表 4.1 と表 4.2 に示す。ただし、 ^{107}Pd や ^{77}Se のビーム数を求める際に使用した PPAC やダイヤモンド検出器の検出効率を 100% として求めた。

run	2次ビームの粒子識別	γ 線測定
Live Time	0.786 \pm 0.0010	0.216 \pm 0.00009
全ビーム数	901125	5720398
^{107}Pd ビーム数 (F3-F5)	160189	996716
^{108}Ag ビーム数 (F3-F5)	146595	909436
^{107}Pd の F5-F7 間のトランスミッション		
F7 スリット前のビーム数/ ^{107}Pd ビーム数 (F3-F5)	0.760	
F7 スリット後のビーム数/ ^{107}Pd ビーム数 (F3-F5)	0.295	
F7 スリット前のビーム数/ ^{108}Ag ビーム数 (F3-F5)	0.553	
F7 スリット後のビーム数/ ^{108}Ag ビーム数 (F3-F5)	0.141	
F7 ストッパーに到達したビーム数	[60123]	[1361255]

表 4.1 ^{107}Pd の PI を行った 1048 の run と γ 線測定を行った run との比較 [] 内は 1048 と比較または、Live time の補正により求めたもの

run	2次ビーム粒子識別	γ 線測定
Live Time	0.888 \pm 0.0017	0.423 \pm 0.00037
全ビーム数	405367	1500382
^{77}Se ビーム数	200140	726831
^{77}Se の F5-F7 間のトランスミッション		
F7 スリット前のビーム数/ ^{77}Se ビーム数 (F3-F5)	0.686	
F7 スリット後のビーム数/ ^{77}Se ビーム数 (F3-F5)	0.092	
F7 ストッパーに到達したビーム数	[20827]	[158778]

表 4.2 ^{77}Se の PI に使用した 3010 と γ 線測定に使用した 3005 の run との比較 [] 内は 3005 と比較または、Live time の補正により求めたもの

4.2 ゲルマニウム検出器の解析

4.2.1 エネルギー較正

ゲルマニウム検出器のエネルギー較正を ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs , ^{152}Eu 線源を用いて行った。ADC のチャンネル値 (ch) を式 4.2.2 を用いてエネルギー値 (keV) に変換する。

$$E_{\gamma}(\text{keV}) = a \times \text{ch} + b \quad (4.2.2)$$

ここで a は係数 b はオフセットである。今回エネルギー較正に用いた線源とそのエネルギーを表 4.3 に示す。

線源	エネルギー (keV)
^{60}Co	1173.2
	1332.5
^{133}Ba	81.0
	276.4
	302.9
	356.0
^{137}Cs	661.7
	383.8
^{152}Eu	121.8
	244.7
	344.3
	778.9

表 4.3 エネルギー較正に用いた線源とエネルギー

各線源・各ピークのチャンネル数はエネルギースペクトルをガウス関数と 1 次関数でフィットすることにより求めた。一例として ^{133}Ba の 276.4 keV のピークをフィットしたものを図 4.6 に示す。エネルギー較正により得られた L1 のチャンネル値 (ch) とエネルギーの関係を図 4.7 に示す。図 4.7 のようにエネルギー較正は 1 次式でよく表されていることがわかった。今回使用したゲルマニウム検出器の各セグメントのパラメータは表 4.4 のようになった。図 4.8 はエネルギー較正後のスペクトルである。図 4.9 は各ピークの残差をプロットしたものである。残差はほぼ 1 keV 未満であったが 600 ~ 800 keV あたりに一部外れているものがある。今回測定する 161.9 keV, 214.6 keV 付近のエネルギーでは残差は 1 keV 未満であり、十分な精度が得られている。

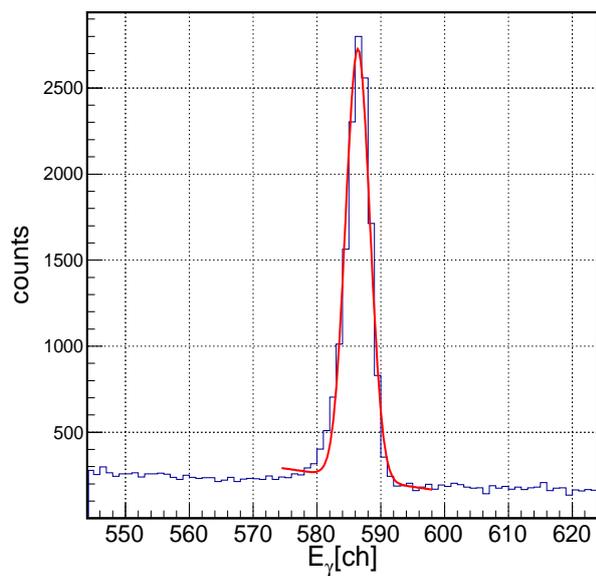


図 4.6 1 次関数とガウス関数でフィッティングしたもの。ピークは ^{133}Ba の 276.4 keV に対応する。

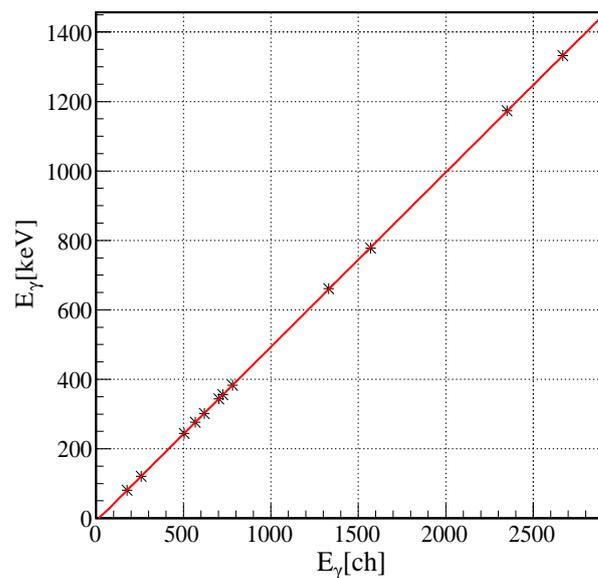


図 4.7 L1 のエネルギー較正

検出器	a	b
L1	0.5046	-20.03
L2	0.4369	-0.4219
L3	0.4989	-5.5687
L4	0.4645	-1.0207
R1	0.4741	18.444
R2	0.5121	-7.5071
R3	0.4764	0.1217
R4	0.5020	-8.8424

表 4.4 エネルギー較正のパラメータ

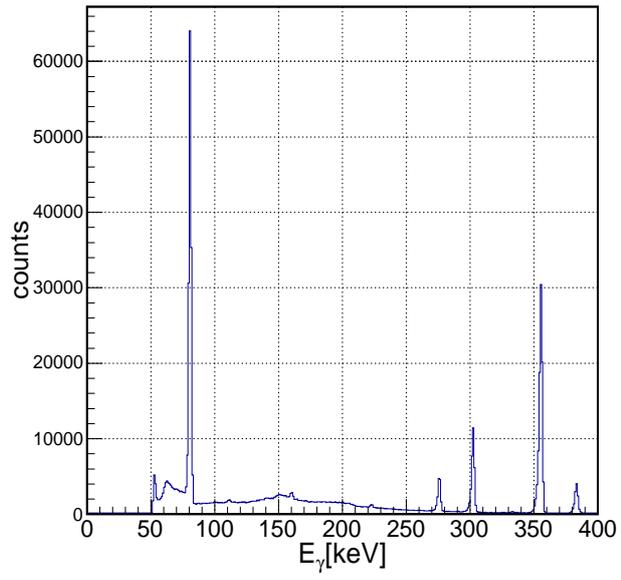


図 4.8 エネルギー較正後の ^{133}Ba のスペクトル

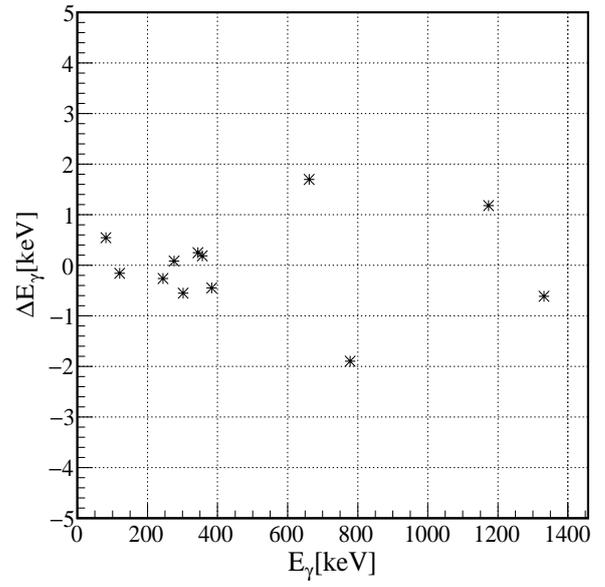


図 4.9 L1 の残差分布

4.2.2 エネルギー分解能

今回用いたクローバー型ゲルマニウム検出器の各セグメントの分解能 (FWHM) を表 4.5 に示す。161.9 keV、214.6 keV に対応するエネルギー分解能は線源のデータで得られた値からエネルギー依存性を考慮して求めた。図 4.10 は一例として L1 の分解能のエネルギー依存性を示したものである。分解能のエネルギー依存性は、エネルギーの 1 次に比例する電荷キャリアの数のゆらぎ (W_D)、エネルギーの 2 次に比例する電荷収集の不完全性による寄与 (W_X)、定数である検出器の電子回路による影響 (W_E) の和として式 4.2.3 のように表せる。今回は第 1 項と第 3 項を考慮し式 4.2.4 でフィッティングした。今回使用する E_γ が 150 keV ~ 250 keV の範囲では式 4.2.4 に従っている。表 4.5 に示すように R2 での分解能が 2.2 ~ 5.5 倍程度悪いいため、ピークの裾が重なりあっており、ピークのカウント数の誤差が大きくなるため今後の解析では R2 を除いて行う。

検出器	L1	L2	L3	L4	R1	R2	R3	R4
661 keV での分解能 [keV]	1.27	1.56	1.57	1.47	2.23	7.01	3.14	1.61
161.9 keV での分解能 [keV]	0.86	0.96	0.82	0.83	1.61	5.89	2.46	1.08
214.6 keV での分解能 [keV]	0.92	1.04	0.95	0.95	1.70	6.02	2.54	1.15

表 4.5 661 keV と今回使用するエネルギーでの分解能 [keV]

$$R^2 = (W_D)^2 + (W_X)^2 + (W_E)^2 \quad (4.2.3)$$

$$R = \sqrt{E_\gamma + \text{const.}} \quad (4.2.4)$$

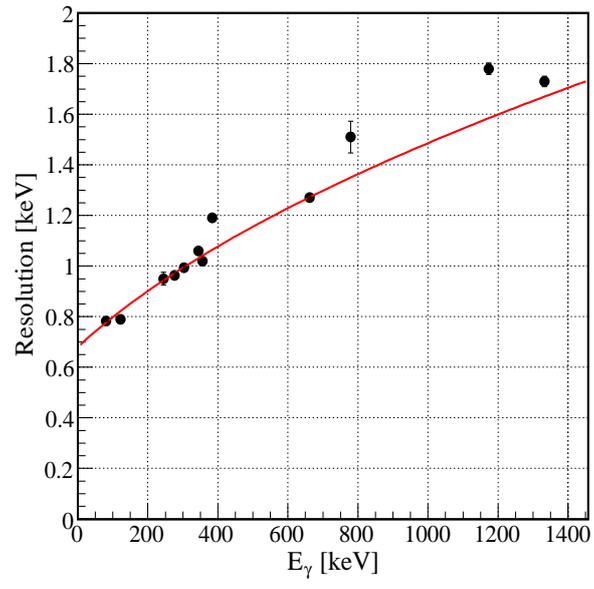


図 4.10 L1 の分解能

4.2.3 検出効率

検出効率はゲルマニウム検出器、立体角、ストッパーへの入射する位置が関係している。今回はゲルマニウム検出器の検出効率 (ϵ_0 :式 4.2.5) を ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs , ^{152}Eu 線源を用いて測定した。ピークのカウント数は式 4.2.6 の関数でフィッティングすることにより求めた。この関数は、バックグラウンドを 1 次関数、ピークは低エネルギーにテールが広がっていることを考慮してガウシアンと sweaked ガウシアンを用いて表した。ERFC は誤差関数である。例として ^{133}Ba 線源をフィッティングしたときの図を図 4.11 に示す。

表 4.3 の線源とエネルギーを用いて R2 を除いた検出効率のエネルギー依存性を求めたものが図 4.12 である。検出効率は指数関数でよく一致することが知られているが、低エネルギーでは指数関数的ではないので、今回は 100 keV 以上の点をフィッティングした。フィッティングの結果検出効率のエネルギー依存性は式 4.2.7 のようになることがわかった。式 4.2.7 から、今回用いるエネルギー帯での検出効率は表 4.6 に示すようになった。検出効率に誤差は線源の強度による誤差が支配的となっている。

$$\epsilon_0 = \frac{\text{検出された 線の数}}{\text{放出された 線の数}} = \frac{\text{測定された 線の数}}{\text{線源強度 [Bq]} \times \text{測定時間 [sec]}} \quad (4.2.5)$$

$$\frac{a_0 a_3}{\sqrt{2\pi a_1}} \exp\left(-\frac{(x - a_2)^2}{2a_1^2}\right) + (1 - a_3)a_0 \exp\left(\frac{x - a_2}{a_4}\right) \times \text{ERFC}\left(\frac{(x - a_2)}{\sqrt{2}a_1} + \frac{a_1}{\sqrt{2}a_4}\right) + a_5 + a_6 x \quad (4.2.6)$$

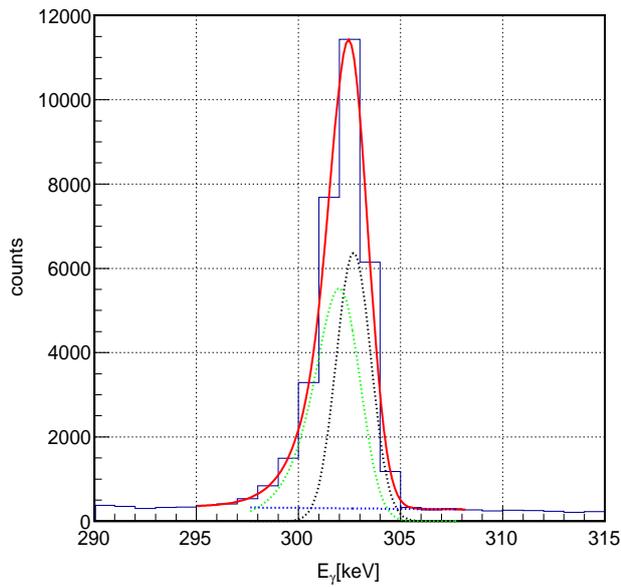


図 4.11 検出効率を求める際フィッティングの様子(図は ^{133}Ba 線源を用いて L1 のフィッティングをしたもの)青線:バックグラウンド、緑線:sweaked ガウシアン:低エネルギー側への広がりを表す。黒線:ガウシアン : sweaked ガウシアンとともにピークを表す。

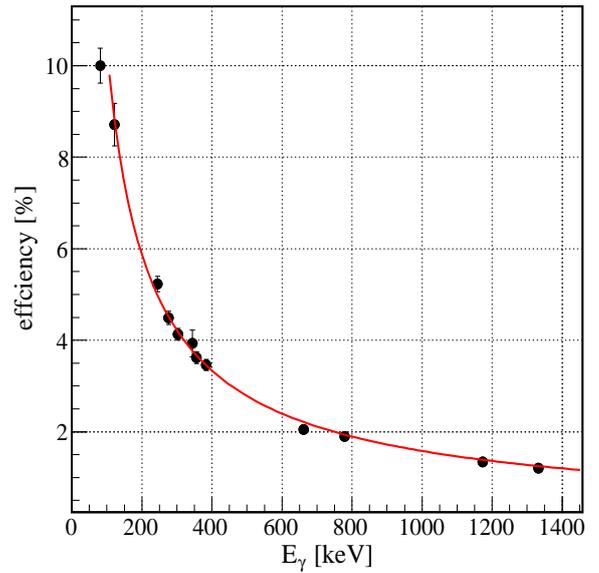


図 4.12 R2 を除いた検出効率 [%] のエネルギー依存性

$$\text{Eff} = 442E_{\gamma}^{-0.816} \quad (4.2.7)$$

161.9 keV での検出効率 [%]	$6.96 \pm 0.56 \%$
214.6 keV での検出効率 [%]	$5.53 \pm 0.46 \%$

表 4.6 661 keV と今回使用するエネルギーでの分解能 [keV]

4.3 アイソマー比

4.3.1 ^{77}Se のアイソマーと崩壊曲線

^{77}Se のエネルギースペクトルを図 4.13 に示す。このヒストグラムを 1 次関数とガウシアンでフィッティングすることで 162 keV のところにピークがあることが確認できた。これは NNDC でのアイソマーのピークとよく一致している。次に時間 [sec] とエネルギー [keV] の 2 次元プロットを図 4.14 に示す。ビーム on の時間は 線が測定され、ビーム off の状態になった瞬間に 線の数が増えたものがビーム由来の短寿命 線、時間に依存せずに検出されている 線はバックグラウンド、そして 162 keV のあたりに見られるビームストップ後徐々に減少している 線はアイソマーからの脱励起 線である。図 4.15 は縦軸に 162 keV の γ 線のカウンタ数、横軸に時間をとってプロットしたものである。図 4.15 の各点は図 4.14 を 6 秒ごとに区切って E_γ 軸に射影したものをガウシアンと 1 次関数でフィットすることにより求めた。

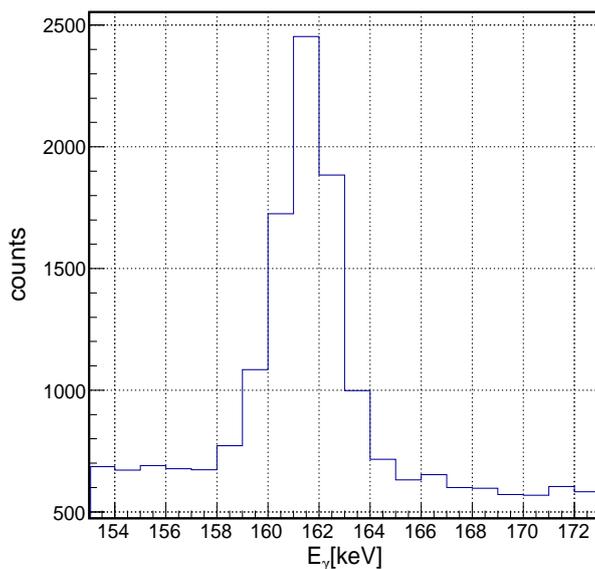


図 4.13 ^{77}Se のエネルギースペクトル

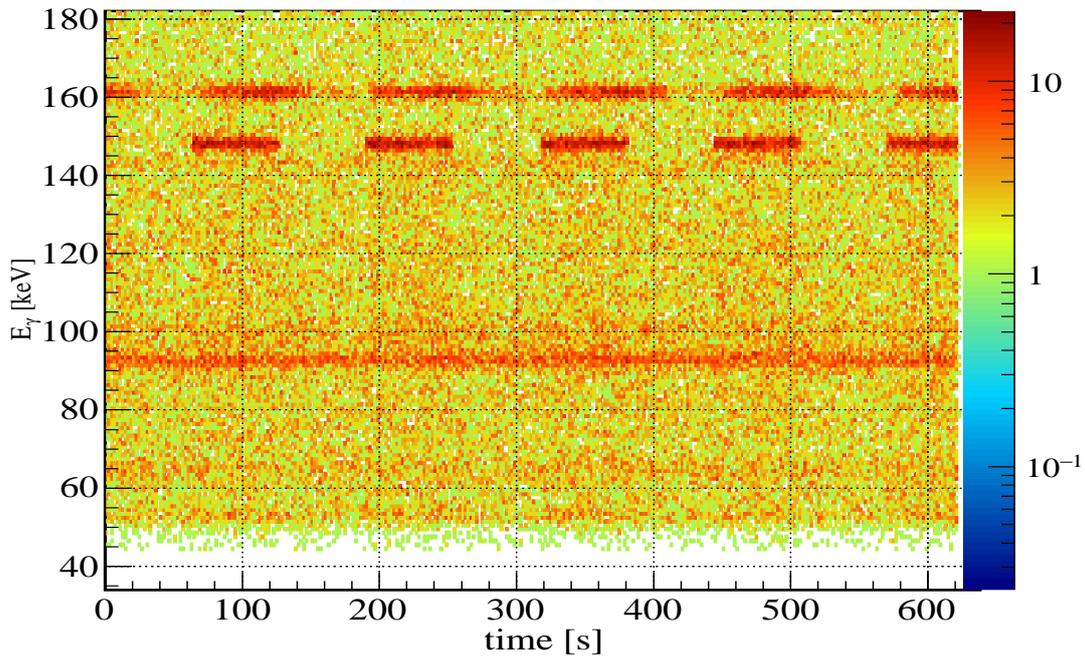


図 4.14 検出された γ 線のエネルギー [keV] と時間 [sec] との関係

今回解析に使用した run は複数のビーム on/off のサイクルを含んでおり、ビーム on の開始時間と測定の開始時間が一致していないので、測定開始前のビーム由来の γ 線も考慮に入れないといけない。そのため、図 4.15 は式 4.3.8 と式 4.3.9 のような関数の足しあわせとして考えた。ここで、 t_{is} は各サイクルのビームが on になった時間であり、 t_{i0} は各サイクルでビームの供給が止まった時間である。このことにより測定以前のビームによるアイソマー状態からの脱励起 γ 線である f_0 や測定時間内にビームが打ち込まれたが測定時間内に崩壊しきらなかったアイソマーからの γ 線を考慮に入れて計算できる。測定時間内にビームに含まれているアイソマー状態からの脱励起 γ 線は $\sum_{i=1}^5$ と表せる。

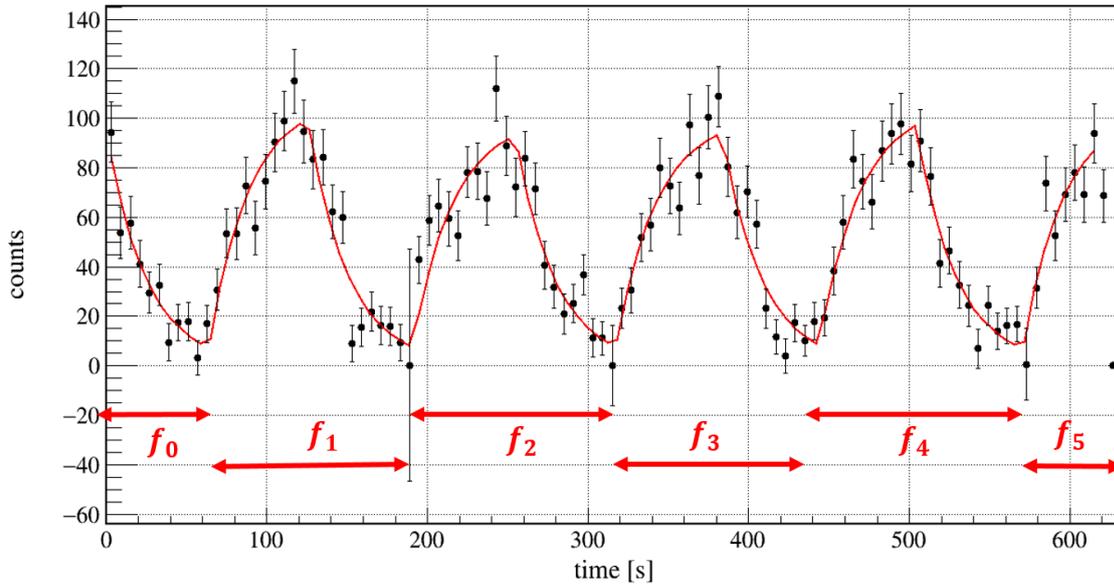


図 4.15 ^{77}Se の時間 [sec] とカウント数の関係

$$f = \sum_{i=0}^5 f_i \quad (4.3.8)$$

$$f_i = \begin{cases} N(t) = N_\gamma(1 - \exp(-\frac{t-t_{is}}{\tau})) & \text{beam on} \\ N(t) = N_\gamma(1 - \exp(-\frac{t_{i0}-t_{is}}{\tau})) \times \exp(-\frac{t-t_{i0}}{\tau}) & \text{beam off} \end{cases} \quad (4.3.9)$$

図 4.16 から検出された 線は 5161(94) カウントと求まった。式 4.3.10 よりアイソマー比は $87.8 \pm 7.2\%$ と求まった。

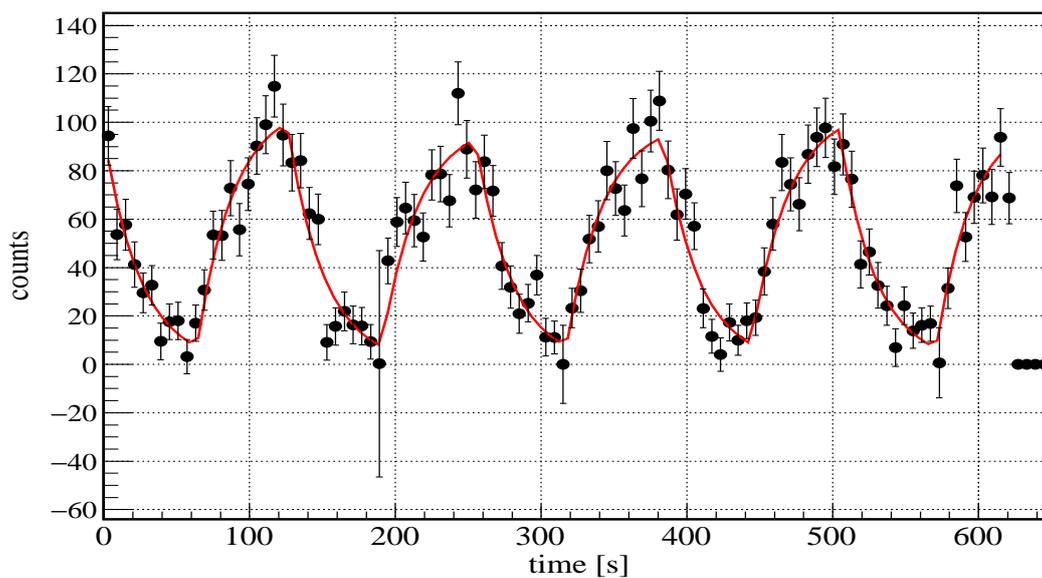


図 4.16 ^{77}Se アイソマーの時間依存性

$$\begin{aligned}
 \text{アイソマー比} &= \frac{\text{線の収量}}{\text{上流ビーム数} \times \text{検出効率} \times \text{内部転換による補正}} \\
 &= \frac{5161}{158778 \times 0.0696 \times 0.532} \sim 0.878 \pm 0.072
 \end{aligned}
 \tag{4.3.10}$$

4.3.2 ^{107}Pd のアイソマーと崩壊曲線

^{107}Pd のアイソマー比を測定する際、2 次ビームには ^{108}Ag も含まれている。この ^{108}Ag はアイソマー状態からほとんど同じエネルギーの γ 線 (表 4.7) が放出されるため区別することが難しい。図 4.17 に ^{107}Pd と ^{108}Ag の γ 線の時間依存性を示す。 ^{107}Pd の寿命 21.3 秒に対し、 ^{108}Ag は寿命 45.8 ナノ秒と約 10^{-8} 倍小さく図 4.17 に示すように長方形として表現できる。これらを足し併せた図 4.18 のようなグラフが実験で得られる。本研究では ^{107}Pd アイソマーからの γ 線の数を読み取りたいので、 ^{108}Ag を考慮に入れて求める。

原子核	E_γ [keV]	半減期
^{107}Pd	214.6 keV	21.3 s
^{108}Ag	215.4 keV	45.8 ns

表 4.7 ^{107}Pd アイソマーと ^{108}Ag アイソマー

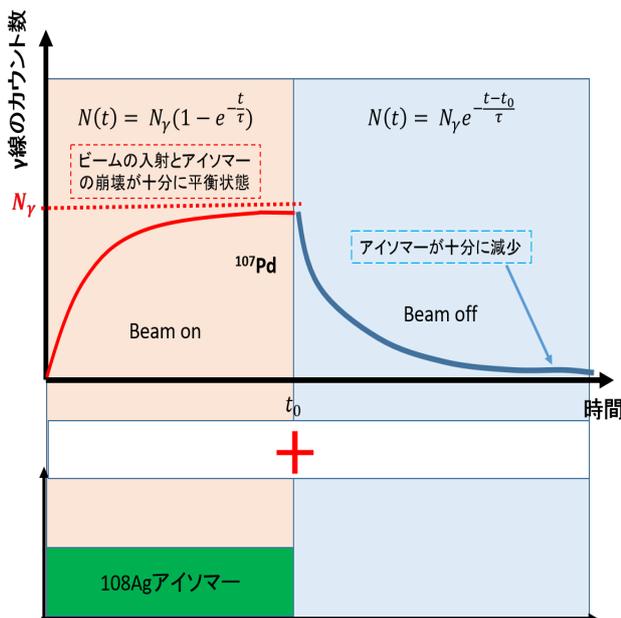


図 4.17

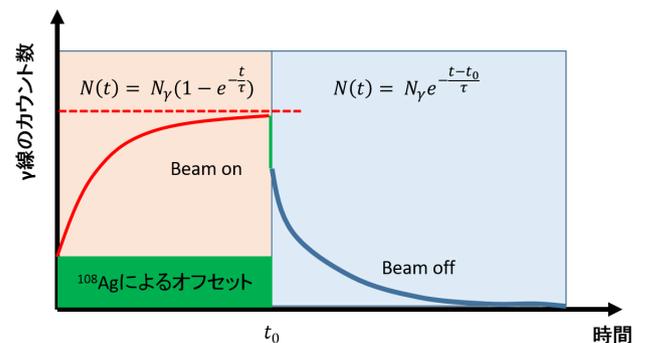


図 4.18

^{107}Pd のエネルギースペクトルを図 4.19 に示す。このヒストグラムを 1 次関数とガウシアンでフィッティングすることで 214 keV のところにピークがあることが確認できた。これは NNDC でのアイソマーのピークとよく一致している。次に時間 [sec] とエネルギー [keV] の 2 次元プロットを図 4.20 に示す。図 4.21 のようにビーム on の時間は t_0 が測定され、ビーム off の状態になった瞬間に N_γ の数が減ったものがビーム由来の短寿命 ^{108}Ag 線、そして 214.6 keV のあたりに見られるビームストップ後徐々に

減少している 線はアイソマーからの脱励起 線である。図 4.22 は 214.6 keV の γ 線のカウント数を横軸に時間をとってプロットしたものである。図 4.22 の各点は図 4.20 を 6 秒ごとに区切って、図 4.21 のように E_γ 軸に射影したものをガウシアンと 1 次関数でフィットすることにより求めた。

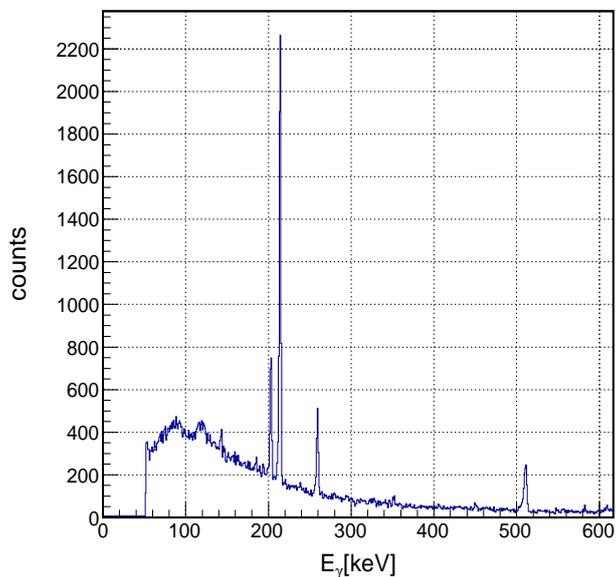


図 4.19 ^{107}Pd のエネルギースペクトル

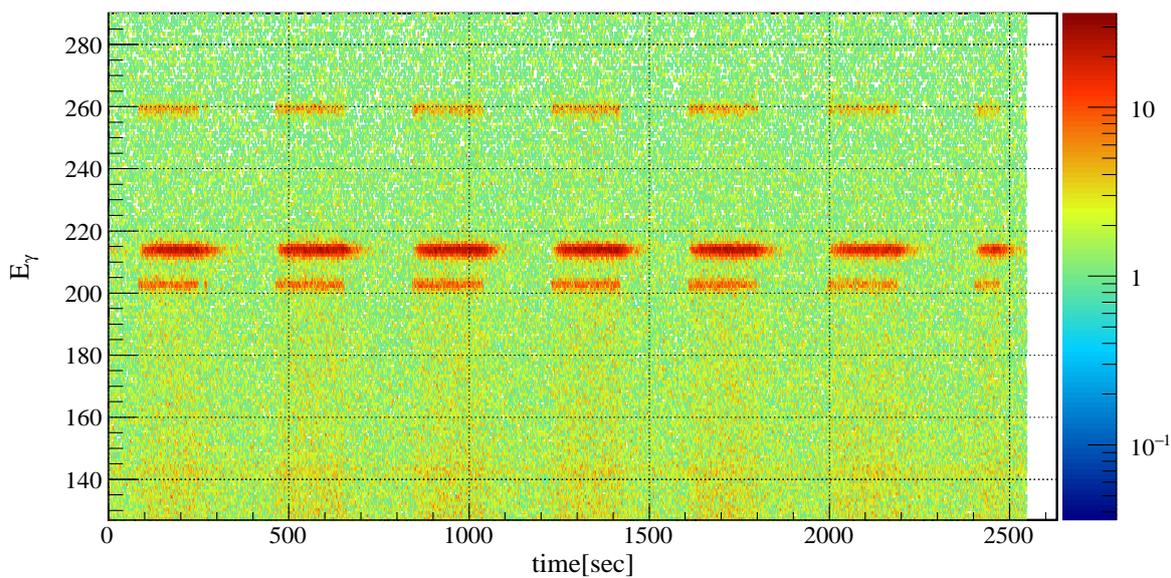


図 4.20 測定されたエネルギー [keV] と時間 [sec] との関係

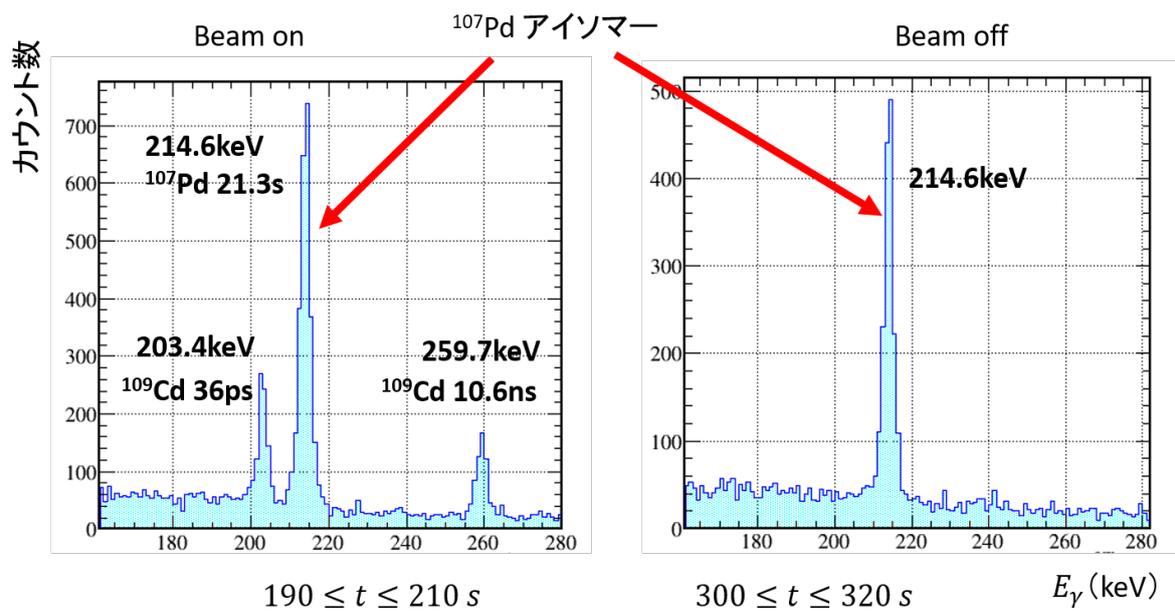


図 4.21 ビーム on/off でのエネルギースペクトル

今回解析に使用した run は複数のビーム on/off のサイクルを含んでおり、ビーム on の開始時間と測定の開始時間が一致していないので、測定開始前のビームも考慮に入れないといけない。そのため、図 4.22 は式 4.3.11 と式 4.3.12 のように関数の足しあわせとして考えた。ここで、 t_{is} は各サイクルのビームが on になった時間であり、 t_{i0} は各サイクルでビームの供給が止まった時間である。このことにより測定以前のビームによるアイソマー状態からの脱励起 γ 線である f_0 や測定時間内にビームが打ち込まれたが測定時間内に崩壊しきらなかったアイソマーからの γ 線を考慮に入れて計算できる。測定時間内にビームに含まれているアイソマー状態からの脱励起 γ 線は $\sum_{i=1}^7$ と表せる。

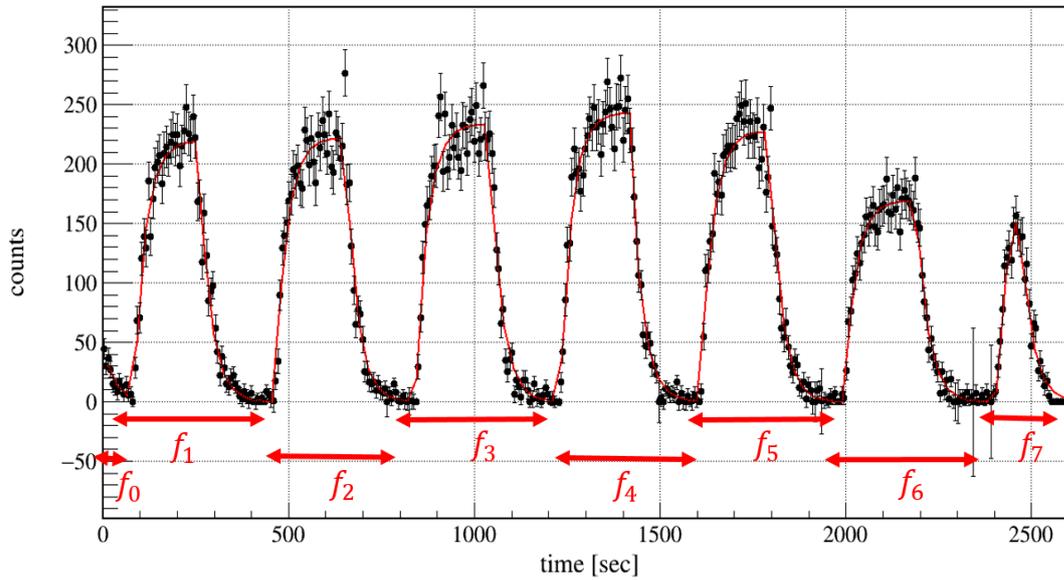


図 4.22 ^{107}Pd の時間 [sec] とカウント数の関係

$$f = \sum_{i=0}^7 f_i \quad (4.3.11)$$

$$f_i = \begin{cases} N(t) = N_\gamma(1 - \exp(-\frac{t-t_{is}}{\tau}) + \text{offset} & \text{beam on} \\ N(t) = N_\gamma(1 - \exp(-\frac{t_{i0}-t_{is}}{\tau}) \times \exp(-\frac{t-t_{i0}}{\tau}) & \text{beam off} \end{cases} \quad (4.3.12)$$

ここで beam on の時間に offset を足している理由は、今回測定したい ^{107}Pd のアイソマーからの脱励起 γ 線のエネルギーは 214.4 keV でのに対し、215.4 keV に寿命が 45.8 ns の ^{108}Ag アイソマー由来の線があるためである。200 keV 近辺での分解能は 1 keV 程度であるのでこの 2 つのピークは区別できないので、崩壊曲線のフィッティングにより求める。寿命の関係からビーム on の状態では、 ^{107}Pd と ^{108}Ag の両者とも含まれるが、ビーム off の状態になると ^{107}Pd の状態だけを考えればよい。

図 4.23 から検出された γ 線は 41974(501) カウントと求まった。式 4.3.13 よりアイソマー比は $81.2 \pm 6.8\%$ と求まった。また、フィッティングの結果から ^{107}Pd に対する ^{108}Ag の割合が 0.1% と求まった。

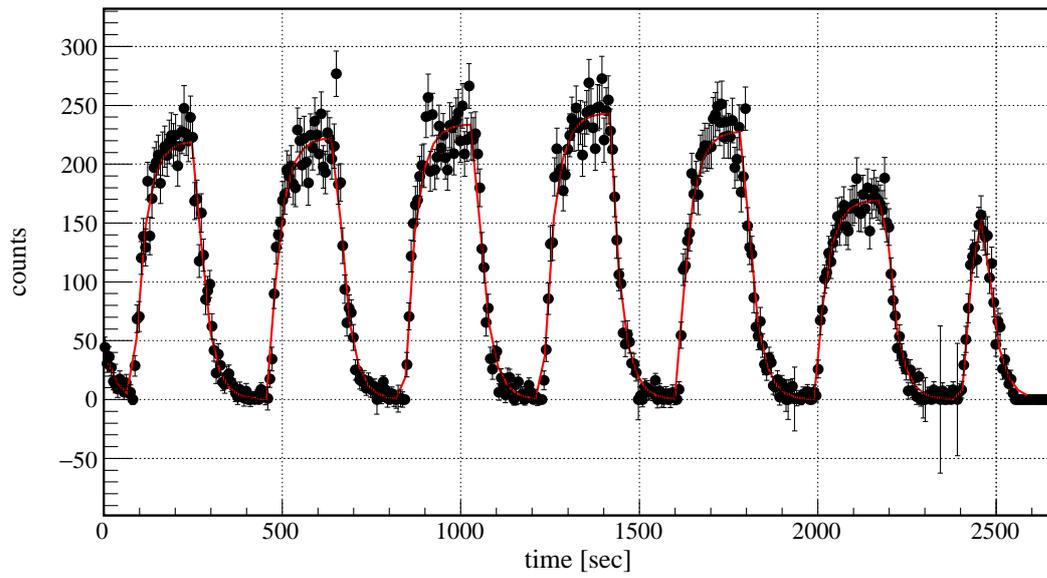


図 4.23 ^{107}Pd アイソマーの時間依存性

$$\begin{aligned}
 \text{アイソマー比} &= \frac{\text{線の収量}}{\text{上流ビーム数} \times \text{検出効率} \times \text{内部転換による補正}} \\
 &= \frac{41971}{1361255 \times 0.0553 \times 0.687} \sim 0.812 \pm 0.068
 \end{aligned}
 \tag{4.3.13}$$

4.4 議論

本研究で ^{77}Se と ^{107}Pd のアイソマー比は各々 $87.8 \pm 7.2\%$ 、 $81.2 \pm 6.8\%$ と導出された。本研究の飛行核分裂反応によるアイソマー比測定は核子あたり $20 \sim 30\text{MeV}$ のエネルギー帯で行われた。図 4.24 のように Be 標的による ^{238}U の入射核破碎反応による先行研究 [8] と比較すると、角運動量に対してアイソマー比は負の相関が見られており、今回の ^{77}Se と ^{107}Pd についても見られることが確認された。また、アイソマー比とアイソマー状態の励起エネルギーとの関係も負の相関に仕上がっていることが確認できる。

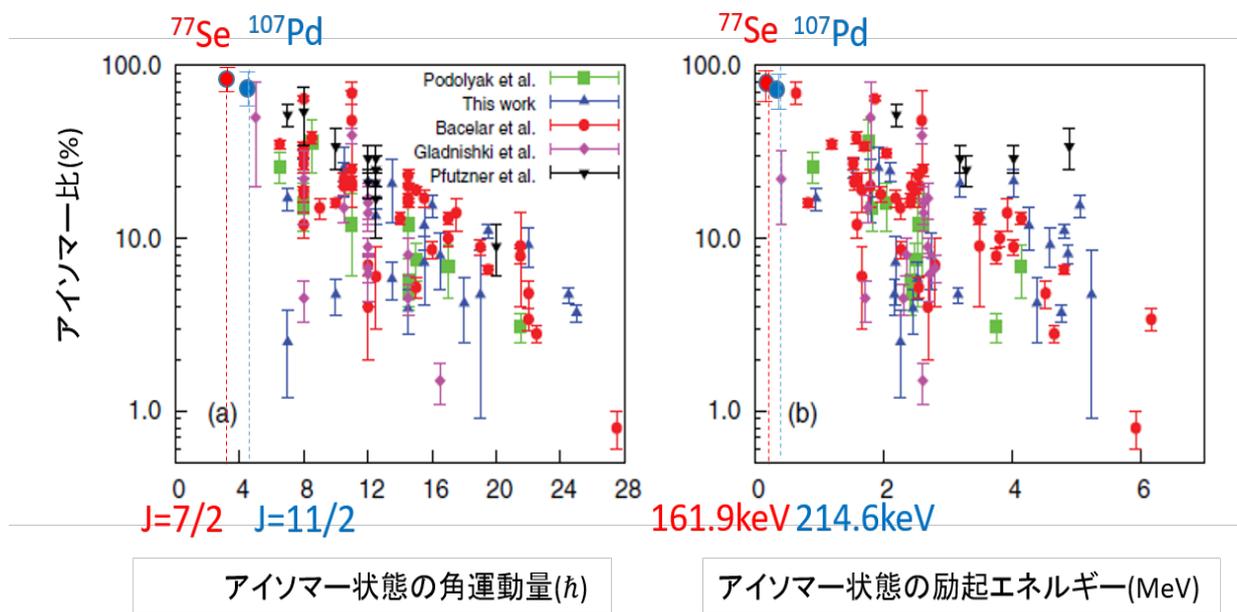


図 4.24 入射核破碎反応 [8] と今回の実験結果

第 5 章

まとめと今後の展望

本研究は理化学研究所 RIBF で ^{77}Se 及び ^{107}Pd のアイソマー比測定を行った。 ^{77}Se , ^{107}Pd ビームを一定時間ストッパーに照射し、ビームを止めた後ストッパーから放出されるアイソマー状態からの脱励起線を Ge 検出器で検出した。アイソマーからの線の収量は Ge 検出器の検出効率によって補正し、ビーム量の解析結果と併せてアイソマー比を導出した。 ^{107}Pd のアイソマー比が $81.2 \pm 6.8\%$ と求められた。また ^{77}Se のアイソマー比は $87.8 \pm 7.2\%$ となった。

本研究で検出効率を求める際、ストッパーにあたるビーム位置が一定の位置と仮定しているのでシュミレーションによりストッパーとビームの衝突位置を考慮にいれることによりビームの入射位置を考慮に入れたアイソマー比の導出が期待できる。また、本研究ではビームストップの位置をフィッティングの結果から求めたが、スケーラーの情報から正確な時間を読み取ることによる精度の向上も期待できる。

Appendix

A.1 ゲルマニウム検出器

A.1.1 半導体の性質

結晶性物質には格子に周期性があり、その個体内に許容されるエネルギーは帯状になる。絶縁物あるいは半導体中のバンドを単純化したものを図 A.1 に示す。下側のバンドは価電子帯と呼ばれ、結晶中の特定の格子位置に束縛されている外殻電子に対応する。シリコンあるいはゲルマニウムの場合この電子は結晶内の原子間力である共有結合の一部となっている。上側のバンドは伝導帯と呼ばれ結晶中を自由に移動する電子に対応している。このバンド内の電子は物質の電気伝導に寄与する。価電子帯と伝導帯はバンドギャップで分離されており、このバンドギャップの大きさが半導体あるいは絶縁体のいずれにその物質を分類するかを決める。熱による励起がなければ、絶縁体や半導体は価電子帯が完全に電子に満たされており、伝導体は完全に空席になっている。よって、このままでは半導体・絶縁体どちらも電気伝導性を示さない。絶縁体あるいは半導体では電子が伝導帯に到達するには、まずバンドギャップを越える必要があるため、電気伝導度は非常に低い。絶縁体のバンドギャップは普通 5 keV かそれ以上なのに対し、半導体のバンドギャップはずっと小さい。[13, 14]

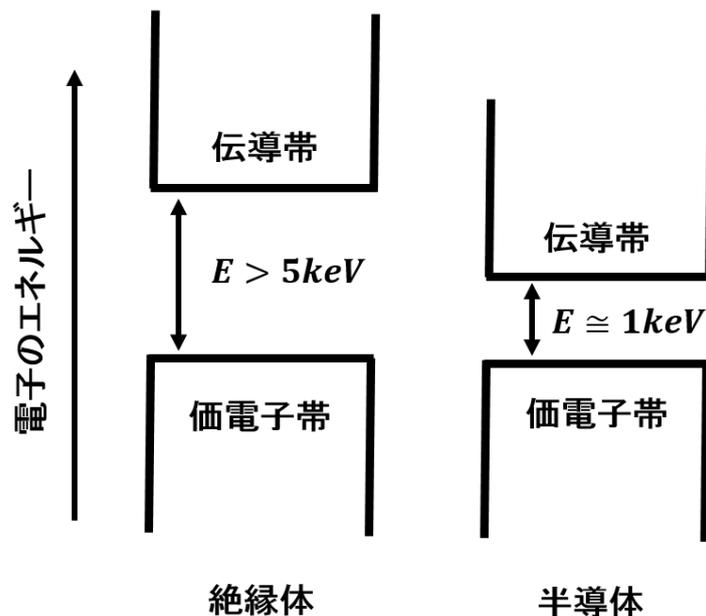


図 A.1 絶縁体と半導体のエネルギーバンド構造

A.1.2 検出原理

図 A.1 に示すようなバンド構造を持つ半導体中を γ 線が通過すると、その飛跡にしたがって多数の電子正孔対をつくる。 γ 線の相互作用は光電吸収・電子対生成・コンプトン散乱の 3 つがある。今回使用するエネルギー帯である数百 keV までは、支配的な相互作用は光電吸収であり、 Z^5 に比例することが分かっている。表 A.1 に示すようにシリコンとゲルマニウムでは Z の値の違いにより約 62 倍もの違いが生まれる。

	Si	Ge
原子番号	14	32
正孔電子対あたりのエネルギー (300K)	3.62 eV	
正孔電子対あたりのエネルギー (77K)	3.76 eV	2.96 eV

表 A.1 シリコンおよびゲルマニウムの性質

図 A.2 にゲルマニウム検出器のレイアウトを示す。半導体に逆バイアス電圧をかけることで電子は n 側電極に、正孔は p 側電極に収集される。この電子正孔対の数を電荷量として計算することでエネルギーを電気信号に変換している。

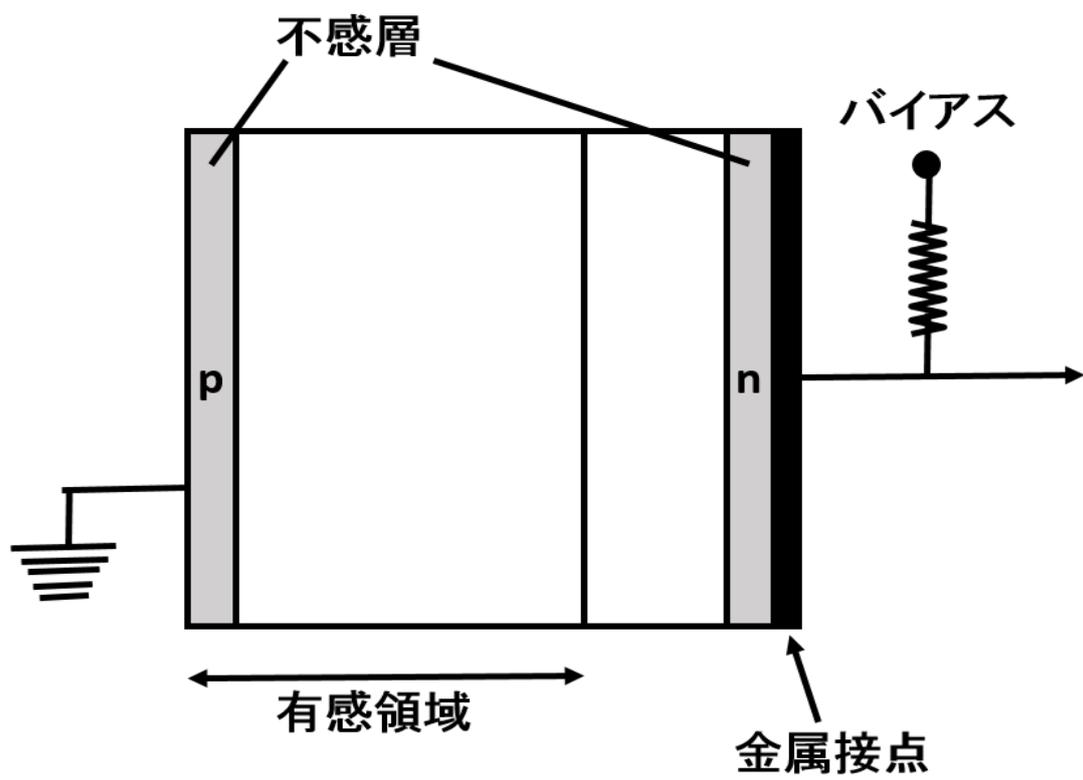


図 A.2 一般的な検出器のレイアウト

参考文献

- [1] Jutta E et al. 10.1103/RevModPhys.**84**.353
- [2] R.Hatarik et al. 10.1103/PhysRevC.**80**.011602
- [3] L.Phair et al. 10.1103/PhysRevC.**73**.054604
- [4] S.Kamada et al. 10.1081/18811248.2010.9720961
- [5] H.Wang et al. Phys.Lev.B754,104(2016)
- [6] Prog.Theor.Exp.Phys.**2017**,021DOI(2017)
- [7] Prog.Theor.Exp.Phys.**2017**,093DOI(2017)
- [8] M.Bowry et al. Physical Review C **88**, 024611(2013)
- [9] NNDC <https://www.nndc.bnl.gov/>
- [10] T.Kubo et al. Prog. Theor. Exp. Phys. 2012, 03C003
- [11] Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 261 (2007) 10091013
- [12] S.Michimasa et Al. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 317(2013)710-713
- [13] GLENN F.KNOLL 著 放射線計測ハンドブック
- [14] Synchrotron Rad.(2006).**13**,143-150

謝辞

本研究を進めるにあたり、多くのかたからご指導、助言をいただきました。指導教員の中村隆司教授には、専門的な内容に加え、物理の考え方も教えていただきました。研究員である武内聡氏には、本研究の物理的な背景や実験施設の説明、解析方法など丁寧に指導していただきました。初めての実験で何も分かっていなく不安でしたが細かく指導していただきました。助教の近藤洋介氏には見落とししていた箇所を何度も指導していただき、解析のコード作成も手伝っていただきました。

また、CNSの川田敬太氏には実験・実験準備の際に何も知らない私に丁寧にいろいろなことを指導していただきました。また、解析の際も分からないことを丁寧に指導していただきました。

中村研究室の先輩である齊藤敦美氏、斗米貴人氏、平山晃大氏、安田昌弘氏、山田啓貴氏、松本真由子氏、栗原篤志氏、同期である島田哲朗氏には解析や物理に関する内容を教えていただきました。特に山田氏には解析や研究などに関して何度も助けていただきました。また、平山氏の平日、休日を問わず深夜まで解析を行っていた姿にはこころをうたれました。

本研究は、総合科学技術・イノベーション会議が主導する革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) の一環として実施したものです。