

平成 21 年 6 月 18 日現在

研究種目：若手研究（スタートアップ）

研究期間：2007～2008

課題番号：19840046

研究課題名（和文）超重核弁別用の高性能固体飛跡検出器の開発と核反応断面積の高精度測定

研究課題名（英文）Development of high performance solid state track detector for the precise measurement of charge changing cross section of ultra heavy nuclei

研究代表者

小平 聡（KODAIRA SATOSHI）

独立行政法人放射線医学総合研究所・基盤技術センター・博士研究員

研究者番号：00434324

研究成果の概要：重イオンの標的物質との核電荷変換断面積を測定するためには、優れた電荷分解能が要求される。現状では、入射粒子が超重核あるいは低エネルギー領域の場合 CR-39 固体飛跡検出器の信号は飽和してしまい、十分な電荷分解能が得られていない。本研究では、CR-39 に DAP 樹脂を共重合させた新素材の開発やアルコールを添加した新しいエッチング手法の開発等の検出器の改良と、重イオン飛跡を 3 次元的に測定できる深さ顕微鏡系の検討による測定系の改良を行い、超重核あるいは低エネルギー重イオンを高精度に検出できるようになった。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	1,350,000	0	1,350,000
2008 年度	1,350,000	405,000	1,755,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,700,000	405,000	3,105,000

研究分野：宇宙線物理学、放射線物理学、放射線計測

科研費の分科・細目：数物系科学、素粒子・原子核・宇宙線・宇宙物理

キーワード： 超重核、核反応断面積、CR-39、固体飛跡検出器、宇宙線

## 1. 研究開始当初の背景

銀河内を飛び交う銀河宇宙線が、初めて観測されてからおよそ 100 年が経過しようとしている。これまでの宇宙線研究は、新粒子の発見や加速器では実現できない高エネルギー物理学実験、近年では天文学と関連して高エネルギー天体物理学として発展してきた。高エネルギー宇宙線中の原子核成分が占めるエネルギーの割合は全体の約 1/3 にも達し、宇宙で織りなす様々な高エネルギー現象と

密接な関係を持っている。これまで様々な観測手段により、宇宙線中に含まれる多様な原子核成分（原子番号  $Z \leq 30$ ）とそのエネルギースペクトルが観測され、多くの宇宙線に関する知見が得られた。しかし、宇宙線の起源がどこにあるのか、またどこでどの様にして高エネルギーにまで加速されたのか、未だ明確な解が得られてないのが現状である。本研究は、このような問題を解決する突破口となる宇宙線中の  $Z \geq 30$  の超重核成分を観測する研究と密接に関連する。

超重核 ( $Z \geq 30$ ) の原子核成分の観測は HEAO-3 衛星等の観測により、宇宙線は太陽系物質とは異なる過程を経ていることが示唆された。しかし、観測装置の電荷分解能が不十分で、超重核の偶奇核を弁別できなかったために、宇宙線の起源等の諸問題の解決に踏み込めなかつただけでなく、超重核の星間物質に対する衝突断面積のデータが殆どないために、宇宙線源域の化学組成を得るための星間空間中の宇宙線伝播計算について不確定要素が極めて大きかった。現在、南極周回気球による TIGER 実験がミッション進行中であるほか CAKE 実験計画が提案されており、宇宙線超重核の観測が世界中で活発化しているものの、超重核を明確に弁別できる高性能検出器はおろか、系統的な超重核の核反応断面積のデータすら得られていないのが現状である。

## 2. 研究の目的

高エネルギー宇宙粒子線中の原子核成分を観測し、宇宙線源での同位体を含めた元素組成を求めることで、宇宙線の起源や加速のメカニズム、局所銀河の化学的進化等を解明することができる。しかし、宇宙線は星間空間を伝播中に星間物質と核衝突を起こし、宇宙線源域の化学組成とは異なってしまふ。星間媒質の大部分は水素で占められ、宇宙線原子核と水素との衝突核変換断面積が、宇宙線源域の化学組成を導くのに極めて重要なパラメータとなる。そこで本研究では、未開拓領域 ( $\leq$  数 100 MeV/amu の重核及び超重核) の核反応断面積の精密測定を行なうための、優れた核電荷分解能を有する高性能固体飛跡検出器と高精度解析システムの開発することを目的とする。

## 3. 研究の方法

超重核あるいは低エネルギー重イオンの核反応断面積を詳細に測定するためには、優れた粒子識別能力が検出器に要求される。CR-39 プラスチック固体飛跡検出器は非常に優れた電荷分解能を有しているが、入射イオンが超重核領域あるいは低エネルギー領域になると応答が飽和してしまい粒子弁別が困難になる欠点がある。これは CR-39 検出器自身が低 Z 粒子に対して最高感度を持つように作られているという検出器の性質上の問題に起因している。これを解決するためには、超重核あるいは低エネルギー重イオン ( $Z/\beta = 30$  程度) に最も高感度であるような応答閾値を持つ個体飛跡検出器の材料開発を行う必要がある。また、検出器材料自体の問題の

ほか、解析手法も超重核あるいは低エネルギー重イオンを精度良く測ることのできない原因の一端を担っている。図 1 に示すように、固体飛跡検出器には重イオンの持つ阻止能に従ってコーン状のエッチピットと呼ばれる穴が生成される。エッチピットを検出器表面の 2 次元画像として捉えその楕円の大きさを測定するという手法が一般的であるが、この方法では入射粒子のもつ阻止能が大きくなると精度が悪くなってしまふ。しかし、エッチピットの深さ方向に伸びるコーンの長さを直接測ることができれば、阻止能が大きくなっても精度を維持することができる。そこで本研究では、超重核を含めた重イオンの系統的な核反応断面積を精密測定するための、**(1) 電荷分解能 (0.20cu 程度) に優れ、電荷検出閾値を  $Z=30$  程度に持つ高性能固体飛跡検出器の開発**と、**(2) エッチピット 3 次元情報の断層的な取得による高精度解析技術の基礎開発**、を行った。

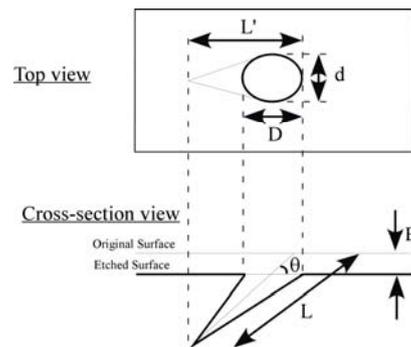


図 1. エッチピットの幾何学的模式図。

## 4. 研究成果

### (1) 高性能固体飛跡検出器の開発

高性能固体飛跡検出器の開発として、① CR-39 に DAP 樹脂を共重合させた共重合樹脂、② BP-1 (バリウムリン酸塩) ガラス、の新規材料開発と、③ KOH 溶液にエタノールを混合した新しいエッチング手法の開発を行い以下の成果を挙げた。

#### ① CR-39-DAP 共重合検出器の開発成果

CR-39 の性能を持ちながらも、電荷検出閾値を上昇させる工夫として、CR-39 に DAP 樹脂を共重合させることによって可能であることが既に確かめられている。本研究では、極めて均一性が高く、エッチング後の表面状態が良いうえに、重イオンの粒子識別能力に優れている CR-39 (BARYOTRAK) を基材として、DAP (diallyl phthalate) 樹脂を任意の割合

で重合したCR-39-DAPプラスチックを、企業の協力を得て製品製造ロットで製作を行った。BARYOTRAKを基材としてDAP樹脂の混合比率を0%から50%まで変えたCR-39-DAPプラスチックを、通常のCR-39 (BARYOTRAK)の商用品と同じロットで製作した。また製造条件として、通常のCR-39のキュアリングサイクルのほかに、DAPのガラス転移温度にシフトしたキュアリングサイクルを試行した。また、重合度を高めるために、重合促進剤 (IPP)の添加濃度の最適化を図った。

通常のキュアリングサイクル (Type A) と120°Cの高温上昇を加えたサイクル (Type B) について、幅広いZ/βレンジにわたって重イオンビームを照射することによって得たZ/βに対する応答感度の関係を図2に示す。DAPのガラス転移温度にシフトしたType Bはより低Z/β粒子検出感度を持たず、超重イオン検出に適していることが分かった。また、重合促進剤については5%の添加量が最も検出閾値を上昇することが分かった。

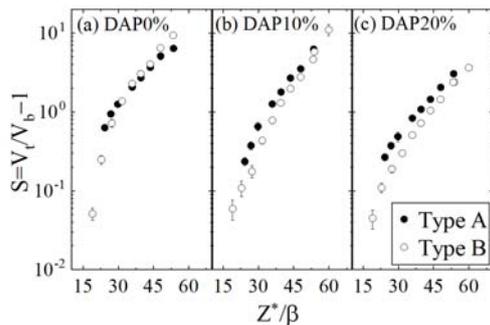


図2. 共重合体検出器の応答感度曲線。Type A: 通常CR-39キュアリングサイクル、Type B: 120°Cの高温上昇を加えたサイクル。

### ② BP-1 ガラス検出器の開発成果

ガラス材料は非常に安定な材料であり、特にBP-1 (バリウムリン酸塩ガラス)は超重核検出のために開発された個体飛跡検出器である。重イオンに対する応答はCR-39に比べて小さく、また質量分解能については、十分な結果が得られていない。そこで、BP-1のガラス構成組成(P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>: 65.2 wt%, Na<sub>2</sub>O: 4.4 wt%, SiO<sub>2</sub>: 5.0 wt%, BaO: 25.3 wt%)の最適化と品質の均一化を目指した高性能BP-1ガラスの開発を企業の協力を得て行い、HIMACによる性能実証評価を実施してきた。表1に示すような4回のR&Dの内に11種類のBP-1ガラスを製作・評価した。従来のBP-1と全く同じ組成を持ったガラスを作り出すことを目標に、R&Dを行った。オリジナルBP-1と同じ組成をもつガラスとして表1の#6というガラ

スを製作することに成功した。更に、#6の製作時のパラメータを用いて再現製作した#11についてもほぼ同じ組成を持ったガラスを作り出すことができるようになった。更に、#1から#10まで、HIMACにおいて重イオンビームを照射し、得られた応答感度の比較の結果、#6が抜き身出て応答感度が高いことが分かった。#6について幅広いZ/βレンジにわたって重イオンビームを照射し、Z/βに対する応答感度の関係を丹念に調べた結果を図3に示す。従来のCR-39に比べて、電荷閾値が高く設定でき(Z/β=50程度)、超重核を検出するのに適した応答関係を得ることができた。また、BP-1ガラスの一様性向上のためには、製造ロットの拡大・自動化が必須との結論に行き着いた。これまでは10容量を手作業で攪拌・キャストしてガラスを製作していたが、通常の光学ガラス製品の製造ロットに載せることによって、応答の一様性が著しく向上すると期待される。

表1. 蛍光X線分析による試作BP-1ガラスの組成と特徴。

No.	Size [mm <sup>2</sup> ]	Note	O	Na	Si	P	Ba	Sr	Ca	
①	#1	110-105-5	36	4.0	2.2	30	28	0.011	0.023	
	#2	135-110-5	37	3.8	2.3	30	28	0.011	0.013	
	#3	80-60-30	結晶化	36	3.9	2.3	30	28	0.010	0.013
②	#4	50-50-20	H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> 使用	38	3.4	2.1	29	28	0.011	
	#5	100-100-6	H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> 使用	38	3.3	2.2	29	28	0.012	
	#6	100-100-20	H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> 使用	39	3.2	2.1	29	28	0.011	
	#7	60-50-20	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> 使用 曇り有	38	3.3	2.1	29	28	0.012	
	#8	100-80-10	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> 使用	38	3.5	2.4	28	28	0.013	0.029
③	#9	75-60-20	Sr 添加	39	3.1	2.1	28	27	0.064	0.029
	#10	75-60-20	Sr 添加	39	3.0	2.1	28	28	0.027	0.027
④	#11	110-100-20	#6の再現	38	3.1	2.1	29	28	0.027	0.028
		オリジナルBP-1	39	3.2	2.1	29	27	0.036		

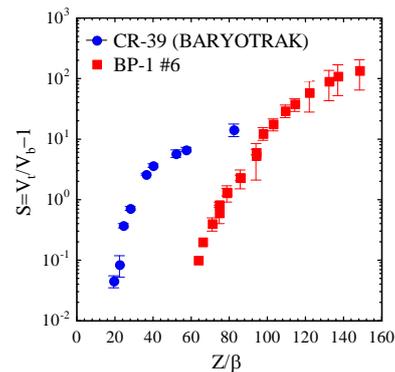


図3. BP-1ガラスのZ/βに対する応答感度の関係(■)。CR-39の応答(●)よりも検出閾値を高いことが分かる。

### ③ CR-39の新しいエッチング技術開発成果

通常、CR-39のエッチング処理にはNaOHやKOH溶液などの強アルカリ溶液を使用するが、この溶液にアルコールを加えることによ

て、バルクエッチング速度が飛躍的に増加し、応答感度を低下させる効果が期待できる。KOH 溶液にエタノールを混合した PEW (Potassium hydroxide-Ethanol-Water) 溶液に注目し、PEW 溶液のエタノール濃度や温度、時間などのエッチング条件に対する CR-39 の応答感度曲線を検討した結果、図 4(a)に示すように、CR-39 の電荷検出閾値を  $Z/\beta=39$  に制御することに成功した。また、PEW 溶液によるエッチングの後に、更に NaOH 溶液で追加エッチング処理することによって、図 4(b)のように超重イオンに対する電荷分解能を飛躍的に向上 ( $0.21\text{cu}@_{36}\text{Kr}$ ) できた。

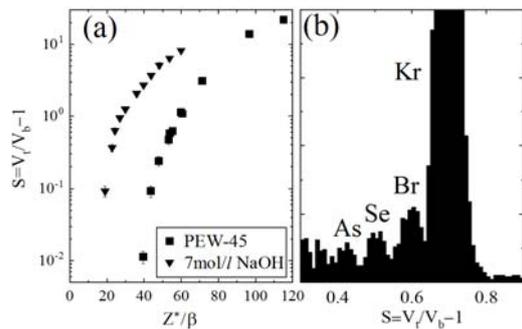


図 4. (a) CR-39 の  $Z/\beta$  に対する応答感度  $S$  の関係。■が PEW による応答感度曲線、▼が通常の NaOH による。 (b) PEW 処理後に NaOH による追加エッチングで得られた、Kr とそのフラグメント粒子の感度分布。各々の電荷が十分に分離できているのが分かる。

## (2) エッチピット 3 次元情報の断層的な取得による高精度解析技術の基礎開発

エッチピットの深さ方向への断層画像を撮像し、画像処理によってエッチピット深さを自動測定する顕微鏡系の基礎開発を行った。特に垂直入射の場合のエッチピット先端抽出のアルゴリズムについて検討を行った。ピット中央部のグレイ値をトラッキングすることによって図 5 のようにピット先端部を  $\pm 0.43 \mu\text{m}$  の精度 (焦点深度で決まる光学的な限界に相当) で抽出できることが分かった。更に 2 次元でスキャンすることによって、多数個のエッチピット深さを自動検出する系を構築した。鉄イオンの低エネルギー領域の隣り合う電荷を十分に弁別できていなかった従来のエッチピット開口部測定に対して、深さ測定では各電荷を明確に弁別できることを確認した。技術的に困難であったエッチピットの深さ測定を自動化したことにより統計精度も飛躍的に向上した。

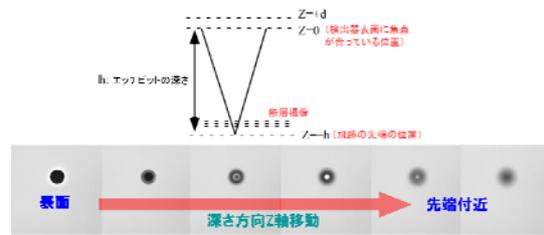


図 5. エッチピット断層撮像による垂直ピット深さ測定の模式図。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 8 件)

- (1) S. Kodaira, N. Yasuda, H. Tawara, K. Ogura, T. Doke, N. Hasebe, and T. Yamauchi, "Temperature and pressure conditions for the appropriate performance of charge and mass resolutions in balloon-borne CR-39 track detector for the heavy cosmic rays", Nucl. Instrum. & Meth., B267 (2009) 1817-1822. 【査読有】
- (2) S. Kodaira, T. Doke, N. Hasebe, M. Hareyama, T. Miyachi, M. Miyajima, K. Sakurai, S. Ota, M. Sato, Y. Shimizu, M. Takano, S. Torii, N. Yasuda, S. Nakamura, H. Tawara, K. Ogura, S. Mikado, H. Shibuya, and K. Nakazawa, "A Program for the Precise Observations of Ultra Heavy Nuclei in Galactic Cosmic Rays", J. Phys. Soc. Jpn., 78 (Suppl. A) (2009) 138-141. 【査読有】
- (3) 小平聡, 「CR-39 固体飛跡検出器による重粒子の同位体弁別」, 応用物理, 第 77 巻, 第 1 号 (2008) 36-40. 【査読有】
- (4) S. Kodaira, M. Asaeda, T. Doke, M. Hareyama, N. Hasebe, K. Ogura, N. Yasuda, T. Tsuruta and Y. Kori, "Track detector of CR-39-DAP-copolymer with variable threshold to detect trans-iron nuclei in galactic cosmic rays", Radiat. Meas., 43 (2008) S52-S55. 【査読有】
- (5) S. Ota, S. Kodaira, N. Yasuda, E.R. Benton, M. Hareyama, M. Kurano, M. Sato, D. Shu and N. Hasebe, "Tracking method for the measurement of projectile charge changing cross section using CR-39 detector with a high speed imaging microscope", Radiat. Meas., 43 (2008) S195-S198. 【査読有】

- (6) N. Hasebe, T. Doke, M. Hareyama, S. Kodaira, T. Miyachi, M. Miyajima, O. Okudaira, K. Sakurai, S. Ota, M. Sato, Y. Shimizu, M. Takano, S. Torii, N. Yamashita, N. Yasuda, S. Nakamura, T. Kamei, H. Tawara, K. Ogura, S. Mikado, H. Shibuya, K. Nakazawa and A. J. Westphal, "Large Scale Observation Program of Ultra Heavy Nuclei in Galactic Cosmic Rays", Proc. of the 30<sup>th</sup> Int. Cosmic Ray Conf., 2 (2008) 51-54. 【査読無】
- (7) S. Kodaira, T. Doke, M. Hareyama, N. Hasebe, S. Ota, K. Sakurai, M. Sato, N. Yasuda, S. Nakamura, T. Kamei, H. Tawara and K. Ogura, "High Performance Measurement System of Large Area Solid-State Track Detector Array for Ultra Heavy Cosmic Rays", Proc. of the 30<sup>th</sup> Int. Cosmic Ray Conf., 2 (2008) 429-432. 【査読無】
- (8) S. Kodaira, T. Doke, M. Hareyama, N. Hasebe, S. Ota, K. Sakurai, M. Sato, N. Yasuda, S. Nakamura, T. Kamei, H. Tawara and K. Ogura, "Development of High Resolution Solid-State Track Detector for Ultra Heavy Cosmic Ray Observation", Proc. of the 30<sup>th</sup> Int. Cosmic Ray Conf., 2 (2008) 425-428. 【査読無】

[学会発表] (計 15 件)

- (1) 小平聡, 安田仲宏, 仲秀一郎, 太田周也, 長谷部信行, 道家忠義, 小倉紘一, 「超重イオン精密測定のための新しい CR-39 の検出閾値の制御手法」, 春季第 56 回応用物理学関係連合講演, 筑波大, 2009 年 4 月.
- (2) 小平聡, 安田仲宏, 長谷部信行, 晴山慎, 太田周也, 他超重核探索実験グループ, 「超重核探索実験(1) 固体飛跡検出器の超重核観測に関する性能評価」, 日本物理学会 第 64 回年次大会, 立教大, 2009 年 3 月.
- (3) 小平聡, 安田仲宏, 本間義浩, 梅島洋介, 阿須賀拓, 太田周也, 佐藤匡, 「エッチピット深さ測定用顕微鏡系の検討」, 第 24 回固体飛跡検出器研究会, 早稲田大学, 2009 年 3 月.
- (4) 小平聡, 「新しい固体飛跡検出器による超重核観測計画」, STE 研究集会太陽権シンポジウム, 名古屋大学, 2009 年 1 月 【招待講演】.
- (5) S. Kodaira, N. Yasuda, N. Hasebe, T. Doke, S. Ota, T. Tsuruta, H. Hasegawa, S. Sakai, T. Nishi and K. Ogura, "Control of the detection threshold of CR-39 track detector for the measurement of ultra heavy nuclei in galactic cosmic rays", The 24<sup>th</sup> International Conference on Nuclear Tracks in Solids, (Bologna, Italy), Sep. 2008.
- (6) S. Kodaira, N. Yasuda, N. Hasebe, T. Doke, S. Ota, T. Tsuruta, H. Hasegawa, S. Sakai, T. Nishi and K. Ogura, "Characteristics of the copolymerized CR-39-DAP track detector for the observation of ultra heavy nuclei in galactic cosmic rays", The 24<sup>th</sup> International Conference on Nuclear Tracks in Solids, (Bologna, Italy), Sep. 2008.
- (7) 小平聡, "Improvement of mass resolution for iron isotopes in CR-39 track detector", 秋季第 69 回応用物理学関係連合講演会, 中部大学, 2008 年 9 月.
- (8) S. Kodaira, T. Doke, N. Hasebe, M. Hareyama, T. Miyachi, M. Miyajima, K. Sakurai, S. Ota, M. Sato, Y. Shimizu, M. Takano, S. Torii, N. Yasuda, S. Nakamura, H. Tawara, K. Ogura, S. Mikado, H. Shibuya, and K. Nakazawa, "Observation program of ultra heavy nuclei in galactic cosmic rays", The 26<sup>th</sup> International Symposium on Space Technology and Science, (Hamamatsu, Japan), Jun. 2008.
- (9) 小平聡, 中村正吾, 亀井拓也, 田川智博, 安田仲宏, 俵裕子, 長谷部信行, 道家忠義, 「BP-1 固体飛跡検出器の製法と応答感度に関する研究(II)」, 春季第 55 回応用物理学関係連合講演会, 日本大学, 2008 年 3 月.
- (10) 小平聡, 安田仲宏, 小倉紘一, 鶴田隆雄, 長谷川弘照, 長谷部信行, 道家忠義, 「宇宙線超重核観測のための検出電荷閾値可変型 CR-39-DAP 固体飛跡検出器の開発」, 春季第 55 回応用物理学関係連合講演会, 日本大学, 2008 年 3 月.
- (11) 小平聡, 安田仲宏, 小倉紘一, 鶴田隆雄, 長谷川弘照, 長谷部信行, 道家忠義, 「宇宙線超重核観測のための検出電荷閾値可変型 CR-39-DAP 固体飛跡検出器の開発」, 第 23 回固体飛跡検出器研究会, 早稲田大学, 2008 年 3 月.
- (12) 小平聡, 太田周也, 佐藤匡, 桜井邦朋, 清水雄輝, 鷹野正利, 道家忠義, 鳥居祥二, 長谷部信行, 晴山慎, 宮島光弘, 宮地孝, 尾崎雄一, 亀井拓也, 中村正吾, 安田仲宏, 俵裕子, 小倉紘一, 洪谷寛, 「宇宙線中の超重核観測計画 7-高性能

固体飛跡検出器の開発現状 3」, 日本物理学会 第 62 回年次大会, 北海道大学, 2007 年 9 月.

- (13) **S. Kodaira**, T. Doke, N. Hasebe, M. Hareyama, T. Miyachi, M. Miyajima, O. Okudaira, K. Sakurai, S. Ota, M. Sato, Y. Shimizu, M. Takano, S. Torii, N. Yamashita, N. Yasuda, S. Nakamura, T. Kamei, H. Tawara, K. Ogura, S. Mikado, H. Shibuya and K. Nakazawa, “Observation program of ultra heavy nuclei in galactic cosmic rays”, The 12<sup>th</sup> Workshop on the Radiation Monitoring for International Space Station, (Stillwater, United States of America), Sep. 2007.
- (14) **小平聡**, 道家忠義, 長谷部信行, 亀井拓也, 中村正吾, 俵裕子, 安田仲宏, 「BP-1 固体飛跡検出器の製法と応答感度に関する研究」, 秋季第 68 回応用物理学学術講演会, 北海道工業大学, 2007 年 9 月.
- (15) **小平聡**, 太田周也, 佐藤匡, 道家忠義, 長谷部信行, 安田仲宏, 俵裕子, 小倉絃一, 「CR-39 固体飛跡検出器を用いた鉄核に対する質量分解能の改善」, 秋季第 68 回応用物理学学術講演会, 北海道工業大学, 2007 年 9 月.

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

小平 聡 (KODAIRA SATOSHI)

独立行政法人放射線医学総合研究所・基盤技術センター・博士研究員

研究者番号：00434324