

令和 4 年 5 月 31 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05327

研究課題名(和文)バックグラウンド低減とタイムスタンプ測定による微量核分裂生成物の崩壊特性の研究

研究課題名(英文) Decay study of rare fission products with background reduction and time-stamped list mode data acquisition

研究代表者

柴田 理尋 (Shibata, Michihiro)

名古屋大学・アイソトープ総合センター・教授

研究者番号：30262885

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：質量数150以上の短半減期中性子過剰核の崩壊核データは $^{235}\text{U}$ の核分裂収率が小さいため詳しく調べられていない。京都大学原子炉附属オンライン同位体分離装置(KUR-ISOL)は、核分裂生成物を高強度で分離することができる装置である。高立体角Ge検出器(クローバー検出器)の貫通孔に線検出器を設置して、時間情報を取り込める高速データ収集装置を用いて、同時計数を行い、炉室内のバックグラウンドを低減して測定し、崩壊図式を作成した。 $^{153}\text{Pr}$ 、 $^{154}\text{Pr}$ について、より詳細な崩壊図式を作成した一方、 $^{155}\text{Pr}$ の崩壊線は同定できなかった。核分裂収率および半減期の報告値よりも小さい可能性が示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

$^{235}\text{U}$ の核分裂生成物の崩壊核データは、原子力の分野では崩壊熱の評価に重要であり、核物理の観点からは、原子核が変形する様子を知るのに興味深い領域である。本研究では、崩壊データが十分でない $^{153}\text{Pr}$ ～ $^{155}\text{Pr}$ を対象に京大原子炉附属のオンライン同位体分離装置(KUR-ISOL)で、高効率クローバー型Ge検出器に線検出器を組み合わせ、炉室内のバックグラウンドの影響を低減させて、時間情報を含む高速データ収集系を用いて、同時計数測定を行った。 $^{153}\text{Pr}$ 、 $^{154}\text{Pr}$ については、より詳しい崩壊図式を作成することができた。一方、 $^{155}\text{Pr}$ については、崩壊線は確認には至らなかった。

研究成果の概要(英文)：The nuclear decay data of a short-lived neutron-rich nuclei with a mass number around 150 have not been investigated in detail due to the small fission yield of  $^{235}\text{U}$ . The on-line isotope separator (KUR-ISOL) installed at the Kyoto University Reactor is an effective device can separate the nuclei of interests from fission products with high intensity.  $\gamma$ -ray detectors which can installed in the through hole of the high solid angle Ge detector (clover detector) were developed, and coincidence measurements were performed using a time-stamped high-speed list mode data acquisition system. By reducing the background radiation in the reactor room, the nuclei of interests were measured. More detailed decay schemes of  $^{153}\text{Pr}$ 、 $^{154}\text{Pr}$  were proposed, but, the  $\gamma$ -rays in the decay of  $^{155}\text{Pr}$  could not be identified. It was suggested that the fission yield and/or half-life of  $^{155}\text{Pr}$  may be smaller than the reported ones.

研究分野：応用核物理学

キーワード：崩壊核分光 オンライン同位体分離 核分裂生成物

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 質量数 150 近傍の原子核(図 1)は、球形から回転楕円体へと変形する遷移領域と呼ばれる。核構造の観点からは Nilsson 模型で表されるように、核子数の増加に伴ってポテンシャルが変形し、それに伴って殻模型の陽子と中性子の軌道エネルギーが変化するので、陽子数あるいは中性子数が奇数の核の励起構造を調べることによって、核構造の系統的な変化を調べることができる。一方、崩壊図式として整理される崩壊核データは、崩壊熱の評価に重要であるため、系統的に測定することが必要である。質量数 150 近傍の原子核は、<sup>235</sup>U の核分裂生成物から得られるが、半減期が短い核種は核分裂収率が小さいため、詳しい崩壊図式が決まっていない核種が多い。

報告者は、京大原子炉に附置したオンライン同位体分離装置 (KUR - ISOL) を用いて、数秒の半減期の核種の崩壊核分光実験を行ってきた。特に、中心部分に貫通孔を持つクローバー検出器は 4 つの大きなゲルマニウム結晶を四つ葉クローバー状に組み合わせた検出器で、貫通孔中心の線源を見込む立体角は 98% 程度と、非常に大きな検出効率を持つ。その検出器を用いて <sup>144</sup>Ba、<sup>145</sup>La、<sup>147</sup>Pr などを対象に、高エネルギー励起準位を含む詳しい崩壊図式を作成した。この検出器では、過去の測定系に対して 10 倍以上の効率が期待されるために、過去の実験では十分な統計精度が得られなかった核種に対してより詳細な崩壊図式を作成できる可能性がある。また、4 つの結晶の時間信号を取り込める高速データ収集系を利用することで、通常の  $\beta$  -  $\gamma$  遅延同時計数法では測定することができず見逃している核異性体を探索できる可能性がある。核異性体の寿命決定は、そこで中性子捕獲の確率が高まるために崩壊熱評価にも重要であるし、核物理上では核異性体から先の核種生成過程の定量的評価に大きく影響する可能性がある重要な核データである。また、この領域には、他の実験で  $\beta$  線の測定のみから半減期を決定し、未だ、崩壊  $\gamma$  線が確認されていない <sup>155</sup>Pr、<sup>157</sup>Nd という核種があり、その崩壊  $\gamma$  線を測定して崩壊図式を作成することは、詳細な崩壊核データ決定するという点で重要である。

|    |                                     |   |  |                             |   |                            |                                     |                             |                            |                           |
|----|-------------------------------------|---|--|-----------------------------|---|----------------------------|-------------------------------------|-----------------------------|----------------------------|---------------------------|
| 61 | <sup>150</sup> Pm<br>2.70d          | <sup>151</sup> Pm<br>1.18d                  | <sup>152</sup> Pm<br><sup>15.8s</sup><br><sup>73ms</sup><br><sup>4.6ms</sup> | <sup>153</sup> Pm<br>5.25m  | <sup>154</sup> Pm<br>2.68m<br>1.73m       | <sup>155</sup> Pm<br>41.5s | <sup>156</sup> Pm<br>26.70s<br>< 5s | <sup>157</sup> Pm<br>10.56s | <sup>158</sup> Pm<br>4.8s  | <sup>159</sup> Pm<br>1.5s |
| 60 | <sup>149</sup> Nd<br>1.73h          | <sup>150</sup> Nd<br>8.1・10 <sup>10</sup> y | <sup>151</sup> Nd<br>12.44m  | <sup>152</sup> Nd<br>11.4m  | <sup>153</sup> Nd<br>31.6s                | <sup>154</sup> Nd<br>25.9s | <sup>155</sup> Nd<br>8.9s           | <sup>156</sup> Nd<br>5.26s  | <sup>157</sup> Nd<br>5.43s |                           |
| 59 | <sup>149</sup> Pr<br>2.29m<br>2.01m | <sup>149</sup> Pr<br>2.26m                  | <b><sup>150</sup>Pr<br/>6.19s</b>  | <sup>151</sup> Pr<br>18.90s | <sup>152</sup> Pr<br>3.57s<br>4.1 $\mu$ s | <sup>153</sup> Pr<br>4.28s | <b><sup>154</sup>Pr<br/>2.3s</b>    | <sup>155</sup> Pr<br>2.59s  | <sup>156</sup> Pr<br>1.22s |                           |
| 58 | <sup>147</sup> Ce<br>56.4s          | <sup>148</sup> Ce<br>56.8s                  | <sup>149</sup> Ce<br>5.3s  | <sup>150</sup> Ce<br>4.0s   | <sup>151</sup> Ce<br>1.72s<br>1.02s       | <sup>152</sup> Ce<br>1.4s  | <sup>153</sup> Ce<br>2.36s          | <sup>154</sup> Ce<br>974ms  | <sup>155</sup> Ce<br>445ms |                           |
| 57 | <sup>148</sup> La<br>10.6s<br>6.27s | <sup>147</sup> La<br>4.06s                  | <b><sup>148</sup>La<br/>1.26s</b>  | <sup>149</sup> La<br>1.05s  | <sup>150</sup> La<br>590ms                | <sup>151</sup> La<br>982ms | <sup>152</sup> La<br>390ms          | <sup>153</sup> La<br>206ms  |                            |                           |
| 56 | <sup>145</sup> Ba<br>4.31s          | <sup>146</sup> Ba<br>2.22s                  | <sup>147</sup> Ba<br>894ms   | <sup>148</sup> Ba<br>612ms  | <sup>150</sup> Ba<br>344ms                | <sup>150</sup> Ba<br>300ms | <sup>151</sup> Ba<br>179ms          | <sup>152</sup> Ba<br>123ms  |                            |                           |

図 1 質量数 150 近傍の核分裂生成物

2. 研究の目的

(1) 本研究では、高効率クローバー検出器を用いて、KUR - ISOL で質量数 150 近傍の半減期が数秒の核分裂生成物の崩壊核分光実験を行い、詳しい崩壊図式を作成することを目的とした。黒バー検出器は、大きな 4 つの結晶の中心部分に放射線源を導入できるようになっているので、高い立体角と高エネルギーまでの高い検出効率を持つ。過去の実験よりも線源を囲む立体角が大きいため、より高精度な実験が可能である。このクローバー検出器に、時間情報とエネルギー情報の両方を記録できるタイムスタンプ式の高速度データ収集系を適用して、データ収集を行った。高速データ収集系は、収率の小さい核種を対象とした場合、娘核、孫核による放射線に加えて炉室内の高いバックグラウンドが存在する環境下では有効であると考えられる。また、本データ収集系では、複数の時間情報解析用の NIM 回路を用いずに、結晶間に入射する  $\gamma$  線の時間差を導出することができるため、核異性体を探索することができる。本測定系を <sup>153,154</sup>Pr について再測定を行い詳細な崩壊図式を作成するとともに、その他の核分裂生成物の核異性体の探索の可能性を目的とした。

(2) 本測定器では、従来、中心部分の線源に対して  $\beta$  線吸収用にプラスチック棒で線源を挟んでいたが、今回は、それをプラスチックシンチレーターに置き換え、 $\beta$  -  $\gamma$  同時計数測定ができるような  $\beta$  線検出器を作成した。それによって、炉室内の高いバックグラウンドの影響を排除して、収率の少ない核種 <sup>155</sup>Pr の崩壊  $\gamma$  線測定を目指した。<sup>155</sup>Pr は他の実験では、 $\beta$  線測定からその半減期が 1.49 秒 [1] と報告されているが、崩壊  $\gamma$  線が報告されておらず、KUR - ISOL での <sup>153,154</sup>Pr の実験結果に基づくと、崩壊  $\gamma$  線の確認と崩壊図式の作成が期待できる核種である。

以上のように、高効率の検出器に機能を追加して、微量核分裂生成物の崩壊核データを実験的に決定することを目的とした。

3. 研究の方法

(1)  $\beta$  線検出器の製作：検出器は京大原子炉の炉室内に配置するが、炉室内は中性子による高工

エネルギーの捕獲 $\gamma$ 線によるバックグラウンドが高い。収率の低い短半減期の核分裂生成物を測定対象とした場合、イオン源からガス搬送するエアロゾルの強度を上げ、さらに質量分離したビーム強度が十分に高くないと目的核種が搬送されてこない。一方、エアロゾル量を増やすと搬送量が増加し目的核種以外の強度も上がり、その結果、測定場所の周りのバックグラウンド $\gamma$ 線が上昇してしまう上に、ビーム強度を上げると娘核種の強度も上昇してしまい、結果として検出器の不感時間が増え効率よい測定ができないと言うジレンマがあった。そこで、 $\beta$ - $\gamma$ コインシデンス測定でバックグラウンドを落とすために、クローバー検出器の中心部の直径 15mm の貫通孔内に、不安定核捕集用のマイラーテープが通る 1mm の隙間を持つ半円筒状のプラスチック検出器を向かい合わせた $\beta$ 線検出器を設置した(図 2)。 $\beta$ 線検出器は、何度か試作し、図 3 は、そのうちの一つである。半径 6mm の半円柱型ライトガイドに、厚さ 1.0 mm のプラスチックシンチレーターを貼り付け、ライトガイドの片方に  $3 \times 3 \text{ mm}^2$  受光面を持つ光電変換素子 Multi-Pixel Photon Counter(MPPC)モジュール(浜松ホトニクス社製)を取り付け、高速プリアンプ(テクノ AP 社製)を介してデータ収集系に入力した。シンチレーターとライトガイドは、核異性体の可能性を排除するために 300keV 程度までの内部転換電子を止めることを考慮して、厚さ 0.4 mm の白色テフロンシート反射材と厚さ 0.4 mm の黒色ポリエチレンシートの遮光材で全面を覆った。

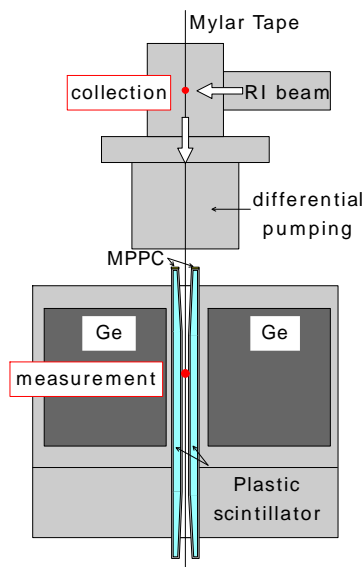


図 2 KUR - ISOL のビームポートと測定器配置図。

(2) 高速データ収集系：測定系には、 $\beta$ 線検出器とクローバー検出器及びテープ駆動装置からのテープ移動時の信号を入力した。クローバー検出器は 4 つの Ge 検出器からなる立体角 98%の検出器で、それぞれの信号を個別に取得することができる。全ての信号は処理速度が早いデジタル信号処理(Digital Signal Processing)データ収集系 APV8008 と APV8016(テクノ AP 社製)を用いて、時間情報を含むリストモードで測定した。クローバー検出器はそれぞれの Ge のシングルスペクトル(シングル測定)と、同時と判定される時間内に入射したエネルギー情報をすべて足し合わせたエネルギーサムスペクトル(add-back 測定)を得た。また、長い半減期を持つ核異性体間遷移は他の $\gamma$ 線とカスケードしないため、シングルモードと add-back モードでの $\gamma$ 線強度に変化が生じないことを利用し、核異性体を探索した。一方、add-back スペクトル中のエネルギーサムピークについて、それを構成するイベントを抽出する解析をすることで、カスケード関係にある $\gamma$ 線を同定することができる。テープ装置からの信号を基準に取った $\gamma$ 線スペクトルの時間変化の様子(スペクトルマルチスケール測定)から、半減期を決定した。以上の手法を用いて、崩壊図式を作成した。

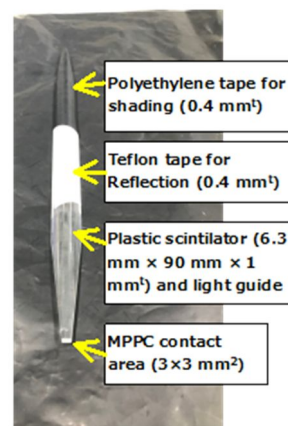


図 3  $\beta$ 線検出器。これを 2 台、向かい合わせる。

(3) 実験：KUR-ISOL を用いて  $^{235}\text{U}$  の核分裂生成物から、 $^{153,154}\text{Pr}$  を質量分離して測定を行った。また、 $\beta$ 線検出器の特性を評価するための核種として  $^{94}\text{Rb}$ ,  $^{94}\text{Sr}$ ,  $^{94}\text{Y}$ ,  $^{95}\text{Sr}$ ,  $^{146}\text{La}$  を質量分離して測定した。目的核種は、熱中性子束( $3 \times 10^{12} \text{ n}_{\text{th}} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ )を 72 mg の 93%濃縮  $^{235}\text{UF}_4$  ターゲットに照射し、核分裂生成物をヘリウム、窒素、酸素の混合ガスジェットで搬送し、表面電離型イオン源によってイオン化したのち、30 kV の電圧で加速させ質量分離した。取り出した目的核種をテープ式捕集装置を用いてマイラーテープに打ち込んで捕集し、検出器の貫通孔の中心に周期的に移動させて、崩壊に伴う $\beta$ 線および $\gamma$ 線を測定した。捕集 - 測定サイクルは各核種の 2 半減期程度に設定し、 $^{153}\text{Pr}$  は 6 時間程度、 $^{154}\text{Pr}$  は 5kcps で 15 時間測定した。 $^{153}\text{Pr}$  および効率測定用の核種は 1~2kcps 程度、 $^{154}\text{Pr}$  は 5kcps まで計数率を上げて測定した。

$^{155}\text{Pr}$  の崩壊 $\gamma$ 線探索実験では、まず、ISOL の質量分離ビームに質量数 154 が混じらないことを確認した後、捕集テープに打ち込まれる量と親核と娘核の崩壊連鎖による存在割合から、 $^{155}\text{Pr}$  の半減期の報告値(1.49s)に対して、捕集 - 測定を 2.5s-2.5s と 5s-5s の 2 つのサイクルで行った。そのときの計数率はいずれも 0.3~0.5kcps、測定時間は、それぞれ、16.5 時間、11 時間であった。

本測定系での核異性体測定可能性の検証のために、マイクロ秒から数十マイクロ秒の核異性体が報告されている  $^{95}\text{Sr}$  ( $T_{1/2}=23.9 \text{ s}$ )について 5 時間程度測定した。測定系全体を、鉛 10cm とホウ素入りポリエチレン 5cm で中性子および中性子捕獲 $\gamma$ 線を遮蔽したところ、バックグラウンドの計数率を 0.1kcps 以下に下げることができた。

#### 4. 研究成果

(1)  $^{153}\text{Pr}$  の崩壊： $^{153}\text{Pr}$  については、25 個の励起準位と 72 本の  $\gamma$  線を含む 3436keV までの崩壊図式を決定した。X- $\gamma$  同時計数の解析から、50keV と同時計数する 141.7 keV の  $\gamma$  線にゲートをかけたスペクトル中の 50.0keV の  $\gamma$  線と KX 線のピークカウンットの比から、K 内部転換係数  $\alpha_K$  を求めたところ、50keV の遷移は、M1/E2 となり、50keV の準位のパリティは奇となった。これは、[2]ではなく[3]の結果を支持する結果となった。1.06 $\mu\text{s}$  と報告されている 191keV の核異性体準位の寿命は、クローバー検出器による  $\gamma$ - $\gamma$  同時計数の時間差スペクトル解析の結果、1.13(10) $\mu\text{s}$ (図 4)と決まり、誤差の範囲で一致する結果を得た。一方、50ns 程度と予想されていた 50keV の励起準位の半減期は、本データ収集系の測定限界(30ns 程度)以下であることがわかった。今後、別の方法で測定する必要がある。

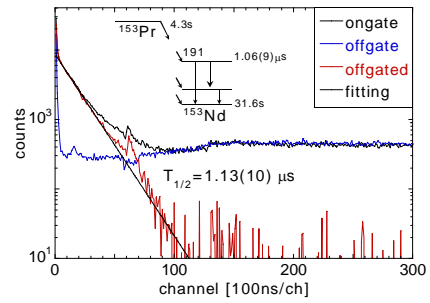


図4 191.7keV の $\gamma$ 線の時間分布曲線

(2)  $^{154}\text{Pr}$  の崩壊：図 5 に貫通孔内に設置した $\beta$ 線検出器の検出効率を示す。これを用いた $\beta$ - $\gamma$  同時計数のスペクトルから、放射化した空気中の  $^{41}\text{Ar}$  の $\beta$ 崩壊に伴う 1293.6 keV の  $\gamma$  線、放射化したクローバー検出器の表面の  $^{28}\text{Al}$  の $\beta$ 崩壊に伴う 1778.9 keV の  $\gamma$  線、Ge 結晶の中性子捕獲反応  $^{73}\text{Ge}(n,\gamma)^{74}\text{Ge}$  による即発 $\gamma$ 線などの炉室内にある KUR-ISOL 特有の BG が落ちていることが確認でき、 $\beta$ 線検出器が有効であることが判った。過去に本 ISOL で行われた研究[4]と比較すると、ISOL の性能向上によるビーム強度の増加および $\beta$ 線検出器による S/N の向上によって、約 60 倍の効率になっていることが判った。また、 $\gamma$ 線の半減期解析(図 6)から過去の値 2.3(1)s [5]を指示する結果となった。図7には、 $\beta$ 線と同時計数した $\gamma$ 線スペクトルを示す。クローバー検出器の  $\gamma$ - $\gamma$ 、 $x$ - $\gamma$  同時計数の解析から、先行研究[4]に対して新たに 18 個の励起準位と 43 本の $\gamma$ 線を組み込んだ  $^{154}\text{Pr}$  の崩壊図式を作成した。

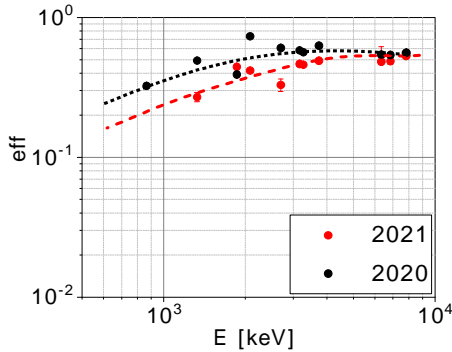


図 5  $^{94}\text{Rb}$ ,  $^{94}\text{Sr}$ ,  $^{94}\text{Y}$ ,  $^{95}\text{Sr}$ ,  $^{146}\text{La}$  を測定して決定した $\beta$ 線検出器の効率。

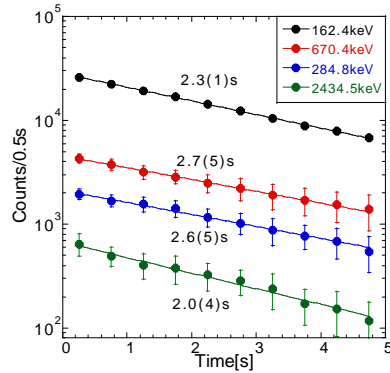


図 6  $^{154}\text{Pr}$  の崩壊曲線。

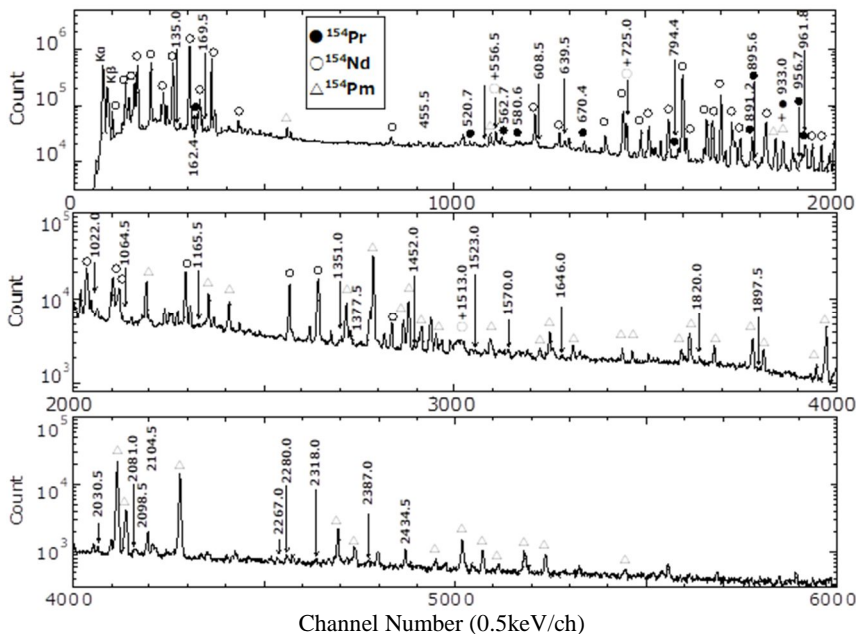


図 7  $^{154}\text{Pr}$  の  $\beta$ - $\gamma$  同時計数スペクトル。

(3)  $^{155}\text{Pr}$  の崩壊 $\gamma$ 線の探索： $\beta - \gamma$ 同時計数をすることで BG を低減させ、強度の弱い $\beta$ 崩壊に伴う $\gamma$ 線を強調させることができたことから、 $\beta$ 崩壊に伴う $\gamma$ 線かどうかを確認するために $\beta - \gamma$ 同時計数スペクトルを解析した。娘核  $^{155}\text{Nd}$  の崩壊 $\gamma$ 線では、報告されている $\gamma$ 線のうち最も放出率が小さいものまで同定することができたが、 $^{155}\text{Pr}$  の $\gamma$ 線については、文献[6]から期待される低エネルギー準位 59.8 keV の $\gamma$ 線を含めて、同定には至らなかった。一方、低エネルギーの $\gamma$ 線の場合は、内部転換による KX 線のほうが強く確認される場合があることから、特性 X 線領域を 1 keV ごとにゲートをかけてコインシデンス関係にあると考えられる $\gamma$ 線ピークを解析したが、娘核と孫核については同定することができたが、Nd の KX 線と同時計数する  $^{155}\text{Pr}$  の崩壊に伴うと見られる $\gamma$ 線は確認できなかった。また、 $^{155}\text{Pr}$  の壊変の可能性を示す Nd の KX 線領域の時間変化を追うスペクトルマルチスケーリング解析からも、時間とともに KX 線が減衰する様子は確認できなかった。加えて、可能性は低いが、 $^{155}\text{Pr}$  は遅発中性子を放出する可能性もあることから、 $^{154}\text{Pr}$  の $\gamma$ 線についても調べたが、確認できなかった。以上のことから、質量数 155 のビーム中にはほとんど  $^{155}\text{Pr}$  が含まれていない可能性があり、 $^{155}\text{Pr}$  については、報告されている半減期が、より短いか、あるいは、 $^{153,154}\text{Pr}$  から予想される核分裂収率より小さいか、その両方、ということが予想されるが、本実験では、その要因までは解明できなかった。一方、娘、孫核  $^{155}\text{Nd}$ 、 $\text{Pm}$  については、新たに $\gamma$ 線が確認できた。特に、 $^{155}\text{Nd}$  については、新たに 7 本の $\gamma$ 線と 1 個の励起準位を同定した。

(4) クローバー検出器を用いた核異性体の寿命測定：本データ収集系を用いて、クローバー検出器に入射した $\beta$ 線事象と、目的とする準位から脱励起する $\gamma$ 線事象の時間差から、核異性体の測定が可能であるかどうか検証した。 $^{95}\text{Sr}$  の崩壊から娘核  $^{95}\text{Y}$  の 1087keV の  $52.6(15)\mu\text{s}$ [7]の核異性体を、全計数率を 5kcps 以下、5~10kcps、10kcps 以上に変えて測定した結果、この手法では計数率が高くなると余分な事象が増えることによって半減期が短くなる傾向を示した。クローバー検出器では、有効な手法であるが計数率を下げる必要があることが判った。

#### < 引用文献 >

- [1] J. Wu *et al.*, Phys. Rev. Lett. 118, 072701 (2017).
- [2] S. Yamada *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. 65, 3390 (1996).
- [3] G. S. Simpson *et al.*, Phys. Rev. C81, 024313 (2010).
- [4] Y. Toh *et al.*, Z. Phys. A 355, 345-346 (1996).
- [5] Y. Kawase *et al.*, Z. Phys. A 330, 231 (1988).
- [6] J. K. Hwang *et al.*, Phys. Rev. C78, 014309 (2008).
- [7] W. Urban *et al.*, Phys. Rev. C 79, 044304 (2009).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

|  | 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号) | 所属研究機関・部局・職<br>(機関番号) | 備考 |
|--|---------------------------|-----------------------|----|
|--|---------------------------|-----------------------|----|

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|---------|---------|