



JP0150900

JAERI-Conf

2001-014



物質科学シンポジウム「タンデム領域の重イオン科学」研究会

2001年1月9日～1月10日、日本原子力研究所東海研究所

2001年11月

(編) 岩本 昭・吉田 忠・竹内 末広

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。
入手の問い合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那
珂郡東海村）あて、お申し越し下さい。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料セ
ンター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複数による実費頒布
を行っております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research
Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy
Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 〒319-1195, Japan.

物質科学シンポジウム「タンデム領域の重イオン科学」研究会

2001年1月9日～1月10日、日本原子力研究所東海研究所

日本原子力研究所東海研究所物質科学研究部

(編) 岩本 昭・吉田 忠・竹内 末広

(2001年10月5日受理)

原研タンデム加速器・ブースター施設は世界でも有数の性能を持ち、原子核物理、核化学、原子分子及び物性、材料などの広い分野で多くの研究成果を上げてきた。一昨年の研究会でも新しい試みとして、原子核分野の研究者と物性関連研究者及び境界領域の研究者等を含めた全重イオン科学研究会として研究会を開催し、活発な討論を生み出した。口頭発表に於いては新たな計画を含む発表を行うとともに、今後予想される研究分野まで講演の幅を広げ、21世紀の重イオン科学研究の出発点とした。

本研究会は、平成13年1月9日、10日の両日、原研東海研究所の先端基礎研究交流棟、大会議室に於いて、厳選した14件の口頭発表と35件のポスターによる発表が行われ、延べ190名に及ぶ出席者により活発な討論を行いつつ盛況のうちに全日程を終了した。本まとめは、研究会の報告集である。

Materials Science Symposium
“Heavy Ion Science in Tandem Energy Region”

January 9-10, 2001
Japan Atomic Energy Research Institute Tokai Research Establishment

(Eds.) Akira IWAMOTO, Tadashi YOSHIDA and Suehiro TAKEUCHI

Department of Materials Science
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received October 5, 2001)

The facility of the JAERI tandem accelerator and its booster has been contributing to obtain plenty of fruitful results in the fields of nuclear physics, nuclear chemistry, atomic and solid state physics and materials science, taking an advantage of its prominent performances of heavy ion acceleration. The previous meeting held in 1999 also offered an opportunity to scientists from all over the heavy ion science fields, including nuclear physics, solid state physics and cross-field physics to have active discussions. This meeting included oral presentations with a new plan and with a new scope of fields expected from now on, as an occasion for opening the 21st century in heavy ion science.

This meeting was held at Advanced Science Research Center in JAERI-Tokai on January 9th and 10th in 2001, having 14 oral presentations severely selected and 35 posters, and successfully carried out getting as many as 190 participants and a lot of sincere discussions. This summary is the proceedings of the meeting.

We would like to thank all staff of the accelerators section, participants, and office workers in the Department of Materials Science for their support.

Keywords : Tandem Accelerator, Heavy Ion, Nuclear physics, Nuclear Structure, Nuclear Chemistry, Material, Super conductor, Radiation Damage

目次

1. 研究会プログラム	-----	1
2. 口頭発表		
2.1 加速器管理室における加速器と現在の利用 吉田 忠	-----	3
2.2 タンデムブースターの多元利用計画 竹内 未広	-----	6
2.3 短寿命核分離加速実験装置のタンデム移設案 宮武 宇也	-----	9
2.4 タンデム施設での短寿命核ビームによる天体核実験 石山 博恒	-----	13
2.5 今まで、電気四重極相互作用 -核内核子実効電荷を求めて- 南園 忠則	-----	16
2.6 原子燃料材の核分裂照射による組織創生 木下 幹康	-----	19
2.7 結晶性固体のイオン誘起2対衝突電子分光 工藤 博	-----	24
2.8 メスバウアーフィルタやPACを用いた物性研究 那須 三郎	-----	27
2.9 超重元素領域の蒸発核残留断面積 太田 雅久	-----	30
2.10 重元素合成のための変形核の融合反応機構 池添 博、光岡 真一、西尾 勝久、佐藤 健一郎	-----	35
2.11 イオンビーム照射による緩和過程のシミュレーション 中川 幸子	-----	38
2.12 重イオン照射したQMG-YBCOのピン止め特性 岡安 悟、笠瀬 雅人、黒田 直志、岩瀬 彰宏、数又 幸生、 神原 正	-----	41
2.13 金属系物質の高速荷電粒子照射と電子励起効果 知見 康弘	-----	46
2.14 アクチノイド内包フラーレンの合成と化学 末木 啓介	-----	49
2.15 原研での超アクチノイド元素核化学 永目 諭一郎、浅井 雅人、羽場 宏光、塙田 和明、後藤 真一、 坂間 稔、西中 一郎、市川 進一	-----	54

3. ポスター発表

3.1 加速器関連

3.1.1 ターミナルE C Rイオン源の現状 -----	58
松田 誠、竹内 末広、藤井 義雄	
3.1.2 タンデム施設における短寿命核用リニアック -----	62
新井 重昭、新垣 良次、仁木 和昭、岡田 雅之、武田泰弘、 富沢 正人	

3.2 核物理関連

3.2.1 ^{58}Ni - ^{58}Ni の系で観測された強い4核子移行反応 -----	68
杉山 康治、濱田 真悟、山崎 明義	
3.2.2 $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ と $^{82}\text{Se} + ^{144}\text{Ce}$ の融合確率の測定による原子核の変形効果 -----	70
西尾 勝久、池添 博、光岡 真一、J.Lu、佐藤 健一郎	
3.2.3 $^{60,64}\text{Ni} + ^{154}\text{Sm}$ 反応におけるクーロン障壁近傍の変形核との融合反応 -----	73
光岡 真一、池添 博、西尾 勝久、佐藤 健一郎、J.Lu	
3.2.4 ^{78}Se の変形度 -----	77
早川 岳人、篠 暢輔、大島 真澄、長 明彦、小泉 光生、 初川 雄一、片倉 純一、松田 誠、宇都野 穂、森川 恒彦、 菅原 昌彦、草刈 英榮、トマス チョスニカ	
3.2.5 ^{157}Dy の回転バンド -----	80
早川 岳人、大島 真澄、篠 暢輔、初川 雄一、片倉 純一、 飯村 秀紀、松田 誠、御手洗 志郎、菅原 昌彦、草刈 英榮	
3.2.6 Ge 偶々核における完全核分光 -----	83
篠 暢輔、大島 真澄、早川 岳人、菅原 昌彦、 草刈 英榮、トマス チョスニカ	
3.2.7 多重ガンマ線検出法による新中性子放射化分析法の開発 -----	86
篠 暢輔、大島 真澄、早川 岳人、初川 雄一、篠原 伸夫	
3.2.8 ^{70}Ge ビームのクーロン励起 -----	89
菅原 昌彦、篠 暢輔、大島 真澄、早川 岳人、初川 雄一、 片倉 純一、草刈 英榮、森川 恒安	
3.2.9 多重極変形状態の電磁遷移の特異現象に関する研究 -----	92
草刈 英榮、森川 恒安、大島 真澄、篠 暢輔、早川 岳人、 菅原 昌彦、初川 雄一、片倉 純一、杉江 ミキ、佐藤 雄太	
3.2.10 陽子過剰な N=82 核における seniority isomerism -----	97
松沢 孝幸、中田 仁、小川 建吾、百木 悟郎	
3.2.11 多重ガンマ線分析による微量元素分析—応用 -----	101
初川 雄一、篠 暢輔、大島 真澄、早川 岳人、篠原 伸夫、 櫛田 浩平、上野 隆、豊田 和弘	
3.2.12 N=20 領域の魔法数の消滅とそのメカニズム -----	104
宇都野 穂、大塚 孝治、水崎 高浩、本間 道雄	

3.2.13 La イオンの同位体シフトのレーザー分光	107
飯村 秀紀、石田 佳久、小泉 光夫、篠原 伸夫、柴田 猛順、 堀口 隆良、H. A. Schuessler	
3.2.14 Theoretical Estimation for Fusion-fission Cross Section of Superheavy Elements with 3-Dim Langevin Approach	109
有友 義久	
3.3 核化学関連	
3.3.1 ウラン標的装着型イオン源の開発とその利用	112
長 明彦、松田 誠、塚田 和明、市川 進一	
3.3.2 アクチノイド陽子誘起核分裂における分裂核の同位体効果に関する研究	115
後藤 真一、西中 一郎、永目諭一郎、市川 進一、塚田 和明、 浅井 雅人、羽場 宏光、光岡 真一、西尾 勝久、阪間 稔、 趙 宇亮、末木 啓介、中原 弘道、谷川 勝至、高宮 幸一、 浜島 靖典、加治 大哉、工藤 久昭	
3.3.3 ²⁶¹ Rf および ²⁶² Db の合成	118
塚田 和明、羽場 宏光、浅井 雅人、西中 一郎、市川 進一、 永目諭一郎、阪間 稔、大浦 泰嗣、末木 啓介、後藤 真一、 金子 哲也、工藤 久昭、正司 讓、豊嶋 厚史、横山 明彦、 篠原 厚、H.W.GAEGGELER、A.TUERLER、M.SCHADEL	
3.3.4 軽アクチノイドの核分裂	121
西中 一郎、永目諭一郎、後藤 真一	
3.3.5 原研における Rf の溶液化学	124
羽場 宏光、塚田 和明、浅井 雅人、西中 一郎、平田 勝、 矢板 毅、市川 進一、永目諭一郎、後藤 真一、金子 哲也、 工藤 久昭、豊嶋 厚史、正司 讓、横山 昭彦、篠原 厚、 阪間 稔、大浦 泰嗣、末木 啓介、中原 弘道、M. SCHADEL	
3.3.6 中性子不足アメリシウム核の α 壊変	129
阪間 稔、塚田 和明、浅井 雅人、市川 進一、大浦 泰嗣、 羽場 宏光、西中 一郎、永目諭一郎、後藤 真一、柴田 理尋、 小島 康明、河出 清、海老原 充、中原 弘道	
3.3.7 ^{235,236} Am の EC 崩壊	132
浅井 雅人、阪間 稔、塚田 和明、市川 進一、羽場 宏光、 西中 一郎、永目諭一郎、後藤 真一、小島 康明、大浦 泰嗣、 中原 弘道、柴田 理尋、河出 清	
3.3.8 新核種 ²³⁷ Cm の同定と ²³⁸ Cm の α 崩壊	135
浅井 雅人、阪間 稔、塚田 和明、市川 進一、羽場 宏光、 西中 一郎、永目諭一郎、後藤 真一、小島 康明、大浦 泰嗣、 中原 弘道、柴田 理尋、河出 清	

3.4 物性・材料関連

3.4.1 重イオン衝突のスパッタリングの電子励起効果の研究	-----	138
関岡 嗣久、寺澤 優孝、左高 正雄、北澤 真一		
3.4.2 柱状欠陥を導入した $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ における臨界電流密度の照射量依存性	---	141
石川 法人、末吉 哲郎、岩瀬 彰宏、知見 康弘、藤吉 孝則、 宮原 邦弘、木須 隆暢		
3.4.3 高エネルギー重イオン照射による酸化物高温超伝導体の円柱状欠陥	-----	145
笠瀬 雅人、岡安 悟、倉田 博基、北條 喜一		
3.4.4 高エネルギーイオン照射した金ナノ結晶における欠陥の蓄積と回復	-----	148
知見 康弘、岩瀬 彰宏、石川 法人、小檜山 守、稻見 隆、 奥田 重雄		
3.4.5 ナノクリスタルにおける照射欠陥の研究	-----	150
大塚 英男、須貝 宏行、北條 喜一、前田 裕司		
3.4.6 Li_2TiO_3 セラミックスのイオン照射損傷	-----	153
中沢 哲也、V.Grismanovs、片野 吉男、有賀 武夫、八巻 大樹、 実川 資朗、岩本 昭		
3.4.7 高エネルギー粒子照射したパラジウム-水素系における水素原子の緩和	---	156
岩瀬 彰宏、知見 康弘、足立 耕一、石川 法人、山川 浩二		
3.4.8 電子線照射したステンレス鋼の損傷組織に及ぼす注入 He の深さ分布の影響	-----	158
有賀 武夫、片野 吉男		
3.4.9 高エネルギー重イオン照射を利用した圧力容器鋼照射脆化機構の研究	-----	161
長谷川忠之、森田 憲二、石野 葉、知見 康弘、石川 法人、 岩瀬 彰宏、飛田 徹、鈴木 雅秀		
3.4.10 重イオンマイクロビームを用いた半導体素子の SEU 解明に関する研究	---	164
平尾 敏雄、Jamie. S. Laird、森 英喜、小野田 忍、伊藤 久義		
3.4.11 高エネルギー重イオンを用いた半導体素子の シングルイベント現象に関する研究	-----	167
新藤 浩之、久保山智司、油谷 崇志、染河 秀治、松田 純夫、 平尾 敏雄、伊藤 久義、広瀬 孝幸、大平 秀春、永井 由紀		

Contents

1. Symposium Program	1
2. Oral Session	
2.1 JAERI Tandem Accelerator and Resent Utilization T. Yoshida	3
2.2 New Application Program of the Tandem Booster S. Takeuchi	6
2.3 RNB Facility at the Tandem Accelerator H. Miyatake	9
2.4 Nuclear Astrophysical Experiments using Radioactive Nuclear Beams at JAERI-TANDEM H. Ishiyama	13
2.5 Back to the Electric Quadrupole Interactions in Solids -Looking for the Nucleon Effective Charges in the Nucleus- T. Minamizono	16
2.6 Structural Emergence Induced by Fission Fragments in Nuclear Fuels M. Kinoshita	19
2.7 Binary Encounter Electron Spectroscopy of Crystalline Solids Bombarded by Fast Ions H. Kudo	24
2.8 Material Research using Mössbauer Spectroscopy and Perturbed Angular Correlation S. Nasu	27
2.9 Evaporation Residue Cross Section in the Superheavy Mass Region M. Ohta	30
2.10 Fusion Mechanism of Deformed Nuclei for Heavy Element Synthesis H. Ikezoe, S. Mitsuoka, K. Nishio, K. Sato	35
2.11 Computer Simulation of the Relaxation Process after Ion Impacts S. T. Nakagawa	38
2.12 Pinning Properties of QMG-YBCO Bulk Samples S. Okayasu, M. Sasase, N. Kuroda, A. Iwase, Y. Kazumata, T. Kambara	41
2.13 Swift Charged-particle Irradiation and Electronic Excitation Effects in Metals Y. Chimi	46
2.14 Synthesis and Chemical Properties of Endohedral Actinoids Metallofullerens K. Sueki	49
2.15 Nuclear Chemistry Study of Transactinide Elements in JAERI Y. Nagame, M. Asai, H. Haba, K. Tsukada, S. Goto, M. Sakama, I. Nishinaka, S. Ichikawa	54

3 Poster Session

3.1 Accelerators

3.1.1 Status Report of the In-terminal ECR Ion Source at JAERI Tandem Accelerator-----	58
M. Matsuda, S. Takeuchi, Y. Fujii	
3.1.2 Linac for Short-lived Nuclei at Tandem Facility-----	62
S. Arai, Y. Arakaki, K. Niki, M. Okada, Y. Takeda, M. Tomizawa	

3.2 Nuclear Physics

3.2.1 Strong Four-particle Transfer Reaction Observed in the $^{58}\text{Ni} + ^{58}\text{Ni}$ system -----	68
Y. Sugiyama, S. Hamada, A. Yamazaki	
3.2.2 Effects of Nuclear Deformation on Fusion Probability in the Reactions of $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ and $^{82}\text{Se} + ^{nat}\text{Ce}$ -----	70
K. Nishio, H. Ikezoe, S. Mitsuoka, J. Lu, K. Sato	
3.2.3 Sub-barrier Fusion of deformed Nuclei in the Reactions of $^{60,64}\text{Ni} + ^{154}\text{Sm}$ -----	73
S. Mitsuoka, H. Ikezoe, K. Nishio, K. Satou, J. Lu	
3.2.4 Deformation of ^{78}Se -----	77
T. Hayakawa, Y. Toh, M. Oshima, A. Osa, M. Koizumi, Y. Hatsukawa, J. Kataura, M. Matsuda, Y. Utsuno, T. Morikawa, M. Sugawara, H. Kusakari, T. Czosnyka	
3.2.5 Rotational Bands in ^{157}Dy -----	80
T. Hayakawa, M. Oshima, Y. Toh, Y. Hatsukawa, J. Kataura, H. Iimura, M. Matsuda, S. Mitarai, M. Sugawara, H. Kusakari	
3.2.6 Complete Spectroscopy of Ge Even-even Nuclei -----	83
Y. Toh, M. Oshima, T. Hayakawa, M. Sugawara, H. Kusakari, T. Czosnyka	
3.2.7 Development of New Neutron Activation Analysis with Multiple γ -ray Detection -----	86
Y. Toh, M. Oshima, T. Hayakawa, Y. Hatsukawa, N. Shinohara	
3.2.8 Coulomb Excitation of ^{70}Ge Beam -----	89
M. Sugawara, Y. Toh, M. Oshima, T. Hayakawa, Y. Hatsukawa, J. Kataura, H. Kusakari, T. Morikawa	
3.2.9 Study of Electromagnetic Transitions of Nuclei with Multipole Deformations -----	92
H. Kusakari, T. Morikawa, M. Oshima, Y. Toh, T. Hayakawa, M. Sugawara, Y. Hatsukawa, J. Kataura, M. Sugie, Y. Sato	
3.2.10 Seniority Isomerism in Proton-rich N=82 Nuclei -----	97
T. Matsuzawa, H. Nakada, K. Ogawa, G. Momoki	
3.2.11 Determination of Trace Elements by Multidimensional Gamma Ray Analysis - its Application -----	101
Y. Hatsukawa, Y. Toh, M. Oshima, T. Hayakawa, N. Shinohara, K. Kushita, T. Ueno, K. Toyota	
3.2.12 Vanishing of the N=20 Magic Number and its Mechanism -----	104
Y. Utsuno, T. Otsuka, T. Mizusaki, M. Honma	

3.2.13 Isotope Shifts of La II by Collinear Laser Spectroscopy	-----	107
H. Iimura, Y. Ishida, M. Koizumi, N. Shinohara, T. Shibata, T. Horiguchi, H. A. Schuessler		
3.2.14 Theoretical Estimation for Fusion-fission Cross Section of Superheavy Elements with 3-Dim langevin Approach	-----	109
Y. Aritomo		

3.3 Nuclear Chemistry

3.3.1 on source Development for On-line Mass Separation of Fission Products	-----	112
A. Osa, M. Matsuda, K. Tsukada, S. Ichikawa		
3.3.2 Isotope Effects of Fission Nuclei in Proton-induced Fission of Actinides	-----	115
S. Goto, I. Nishinaka, Y. Nagame, S. Ichikawa, K. Tsukada, M. Asai, H. Hababa S. Mitsuoka, K. Nishio, M. Sakama, Y. L. Zhao, K. Sueki, H. Nakahara, K. Tanigawa, K. Takamiya, Y. Hamashima, D. Kaji, H. Kudo		
3.3.3 Synthesis of ^{261}Rf and ^{262}Db	-----	118
K. Tsukada, H. Hababa, M. Asai, I. Nishinaka, S. Ichikawa, Y. Nagame, M. Sakama, Y. Oura, K. Sueki, S. Goto, T. Kaneko, H. Kudo, Y. Shoji, A. Toyoshima, A. Yokoyama, A. Shinohara, H. W. Gaeggeler, A. Tuerler, M. Schaadel		
3.3.4 Fission of Light Actinides	-----	121
I. Nishinaka, Y. Nagame, S. Goto		
3.3.5 Aqueous Chemistry of Rf in JAERI	-----	124
H. Hababa, K. Tsukada, M. Asai, I. Nishinaka, M. Hirata, T. Yaita, S. Ichikawa, Y. Nagame, S. Goto, T. Kaneko, H. Kudo, A. Toyoshima, Y. Shoji, A. Yokoyama, A. Shinohara, M. Sakama, Y. Oura, K. Sueki, H. Nakahara, M. Schaadel		
3.3.6 α Decay of the Neutron-deficient Americium Isotopes	-----	129
M. Sakama, K. Tsukada, M. Asai, S. Ichikawa, Y. Oura, H. Hababa, I. Nishinaka, Y. Nagame, S. Goto, M. Shibata, Y. Kojima, K. Kawade, M. Ebihara, H. Nakahara,		
3.3.7 EC Decay of $^{235,236}\text{Am}$	-----	132
M. Asai, M. Sakama, K. Tsukada, S. Ichikawa, H. Hababa, I. Nishinaka, Y. Nagame, S. Goto, Y. Kojima, Y. Oura, H. Nakahara, M. Shibata, K. Kawade		
3.3.8 Identification of the New Isotope ^{237}Cm and α Decay of ^{238}Cm	-----	135
M. Asai, M. Sakama, K. Tsukada, S. Ichikawa, H. Hababa, I. Nishinaka, Y. Nagame, S. Goto, Y. Kojima, Y. Oura, H. Nakahara, M. Shibata, K. Kawade		

3.4 Atomic Physics, Solidstate Physics and Radiation Effect in Materials

3.4.1 Electronic Excitation Effect in the Sputtering Induced by Heavy Ion Bombardment	----	138
T. Sekioka, M. Terasawa, M. Satake, S. Kitazawa		

3.4.2 Fluence Dependence of Critical Current Density in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Irradiated with High-energy Ions	141
N. Ishikawa, T. Sueyoshi, A. Iwase, Y. Chimi, T. Fujiyoshi, K. Miyahara, T. Kiss	
3.4.3 Columnar Defect of High-Tc Superconductor by High-energy Heavy -ion Irradiation	145
M. Sasase, S. Okayasu, H. Kurata, K. Houjou	
3.4.4 Deffect Accumulation and Recovery in Nanocrystalline Gold Irradiated with High-energy Ions	148
Y. Chimi, A. Iwase, N. Ishikawa, M. Kobiyama, T. Inami, S. Okuda	
3.4.5 Radiation Defects in Nanocrystalline Materials	150
H. Ohtsuka, H. Sugai, K. Houjou, Y. Maeda	
3.4.6 Study of Ion-induced Damage in Li_2TiO_3 Ceramics	153
T. Nakazawa, V. Grismanovs, Y. Katano, T. Aruga, D. Yamaki, S. Jitsukawa, A. Iwamoto	
3.4.7 Thermal Relaxation of Hydrogen Disordering in Pd-H System Irradiated with High-energy Particles	156
A. Iwase, Y. Chimi, K. Adachi, N. Ishikawa, K. Yamakawa	
3.4.8 Effect of Implanted-helium Depth Profile on Damage Structures in Electron-irradiated Stainless Steel	158
T. Aruga, Y. Katano	
3.4.9 Use of High Energy Heavy Ion Irradiations for the Study of Radiation Embrittlement in Pressure Vessel Steels	161
T. Hasegawa, K. Morita, S. Ishino, Y. Chimi, N. Ishikawa, A. Iwase, T. Tobita, M. Suzuki	
3.4.10 The Investigation of SEU Induced in Semiconductor Devices by Heavy Ion Microbeam	164
T. Hirao, J. S. Laird, H. Mori, S. Onoda, H. Itoh	
3.4.11 Evaluation of Single Event Effects in Semiconductor Devices Caused by High-energy Heavy Ions	167
H. Shindo, S. Kuboyama, T. Aburaya, H. Somekawa, S. Matsuda, T. Hirao, H. Itoh, T. Hirose, H. Ohira, Y. Nagai	

1. ----物質科学シンポジウム----

タンデム領域の重イオン科学研究会

-タンデムブースター多元利用に向けて-

主催 日本原子力研究所 物質科学研究部
加速器管理室

会場 日本原子力研究所東海研究所
先端基礎研究交流棟
講 演：大会議室
ポスター：ロビー

1月9日（火）

開会の挨拶 日本原子力研究所
東海研究所 副所長 田中 俊一

セッション1 加速器 座長 柴田 裕実 -東京大学-

- | | | |
|----------------|--------------------------|-----------|
| 1-1 10:15(25分) | 加速器管理室における加速器の歴史と現在の利用状況 | 吉田 忠(原研) |
| 1-2 10:40(40分) | タンデムブースターの多元利用計画 | 竹内末広(原研) |
| 1-3 11:20(40分) | 短寿命核分離加速実験装置のタンデム移設案 | 宮武宇也(KEK) |

12:00-13:00 昼食

セッション2 核構造・天体核物理 座長 佐川 弘幸 -会津大学-

- | | | |
|----------------|---------------------------------------------------|--------------|
| 2-1 13:00(40分) | Frontiers and perspectives of nuclear shell model | 大塚孝治(東大) |
| 2-2 13:40(40分) | Coulomb excitation as a nuclear microscope | Czosnyka(原研) |
| 2-3 14:20(40分) | タンデム施設での短寿命核ビームによる天体核物理実験 | 石山博恒(KEK) |

15:00-15:20 休憩

セッション3 放射線物理 I 座長 渡部 力 -科学技術振興事業団-

- | | | |
|----------------|---------------------------------------------|-----------|
| 3-1 15:20(40分) | 今まで、短寿命核の結晶中電気四重極相互作用
-- 核内核子実効電荷を求めて -- | 南園忠則(大阪大) |
| 3-2 16:00(40分) | 原子炉燃料体の核分裂照射による組織創生 | 木下幹康(大阪大) |

16:40-18:00 ポスターセッション

18:20-20:00 懇親会

1月10日（水）

セッション4 放射線物理 II 座長 奥田 重雄 -国際科学振興事業団-

- | | | |
|----------------|-----------------------------------------|-----------|
| 4-1 9:10(40分) | イオン誘起電子放出：結晶ターゲットによる
衝突径数制御実験のもたらす知見 | 工藤 博(筑波大) |
| 4-2 10:50(40分) | メスバウアー分光やP A Cを用いた物性研究 | 那須三郎(大阪大) |

10:30-10:40 休憩

セッション5 超重核物理

座長 岩本 昭 -原研-

5-1 10:40(40分) 超重元素領域の蒸発残留核断面積

太田雅久(甲南大)

5-2 11:20(40分) 重元素合成のための変形核の融合反応機構

池添 博(原研)

12:00-13:00 昼食

セッション6 固体内原子衝突

座長 石野 茉 -東海大学-

6-1 13:00(40分) イオンビーム照射と緩和過程のシミュレーション

中川幸子(岡理大)

6-2 13:40(40分) 重イオン照射したQMG-YBCOのピン止め特性

岡安 悟(原研)

6-3 14:20(30分) 金属系物質の高速荷電粒子照射と電子励起効果

知見康弘(原研)

14:50-15:00 休憩

セッション7 重元素核化学

座長 篠原 厚 -大阪大学-

7-1 15:00(40分) アクチノイド内包フラーレンの合成と化学

末木啓介(都立大)

7-2 15:40(30分) 原研での超アクチノイド元素核化学

永目諭一郎(原研)

16:10-

閉会の挨拶

日本原子力研究所
物質科学部長

岩本 昭



JP0150901

JAERI-Conf 2001-014

2. 口頭発表

2.1 加速器管理室における加速器と現在の利用

吉田 忠

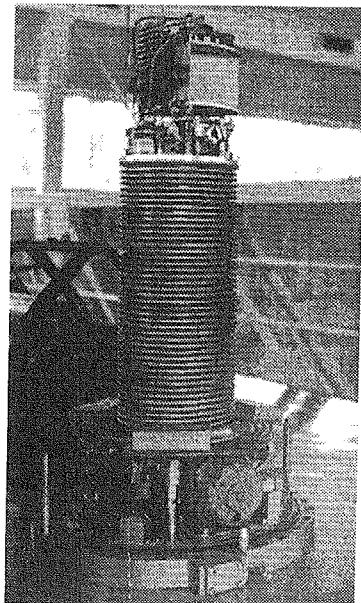
日本原子力研究所 東海研究所
加速器管理室

1. はじめに

日本原子力研究所が東海村にその本拠をおき研究活動が開始されたのは昭和32年のことであった。当時は一大松林地帯であった敷地に初めて核物理研究施設として 2MV バンデグラーフ加速器が導入され、原子核物理研究室による基礎研究施設の整備とともに原子核物理研究の拠点として出発した。昭和50年頃からは本格的に重イオン研究への転換が図られ、タンデム加速器の導入へと繋がり、加速器管理室の前身であるタンデム加速器準備室が発足し、昭和50年に建設工事が本格化した。タンデム加速器の建設後、準備室は加速器管理室となり施設開発と運転管理を行う部門へと発展した。

2. 研究室と加速器

核物理研究室の初めての実験として 2MV の加速器が設置され、最初に行った実験が中性子減速実験であった。大きな水槽に水を張り加速された陽子ビームと重水素を吸着させた標的を用い中性子を発生させ、実験を開始したのが基礎物理実験研究の始まりであった。その後 2MV バンデグラーフ加速器は別の建家に移設され、大きなスペースを持つ加速器室は次期に設置された 5.5MV バンデグラーフ加速器のターゲット室として利用されることになった。5.5MV バンデグラーフ加速器は、これまでの加速器とは規模も性能も大幅に上がり、中性子を利用した関連研究が盛んに実施され、それまで不足していた中性子核データの大幅な取得と正確性が得られ、原子炉等の遮蔽の基礎データとして利用されてきた。また、2MV バンデグラーフ加速器では電子線の加速やその後行われた重イオン加速器への改造を行い、物性関連研究も盛んに開始された。昭和40年以降の10年間に多くの中性子関連研究が進むとともに荷電粒子を利用した研究や重イオンを利用した研究のための各種開発研究も進められた。第1図に 2MV バンデグラーフ加速器の本体部を示す。



第1図 2MV バンデグラーフ加速器本体

3. タンデム加速器の建設と開発

大型タンデム加速器のメーカーは当時2社があった。1社は上記加速器を製作したハイボルテージエンジニアリング (HVEC) 社で非常に完成度の高い加速器を作る能力を持っていた。またもう1社は新鋭のメーカーで加速管と荷電装置に独自の技術を持つナショナルエレクトロスタティックスコーポレーション (NEC) 社のものであった。しかしいずれのメーカーもこの規模の加速器は初めての経験であり、特に折り返し型は両者とも経験はなかった。研究室で研究、調査を進め後者の NEC 社に決定したが加速管の優位性、荷電装置の評価の高かったことがその決め手となった。しかし、加速器の総合的な技術力ではおそらくハイボルテージ社の方が完成度の高い加速器を出荷できたと思える状態であった。

原研に搬入されてからのタンデム加速器の組立は、メーカーの技術者とともに原研職員が大いに活躍せざるを得なかつたことをみれば明らかである。

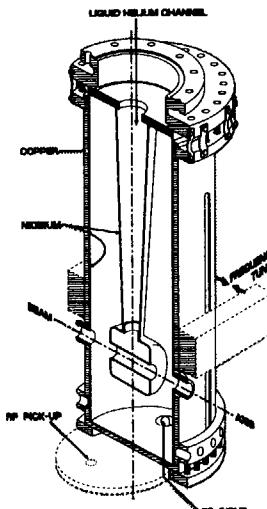
3.1 加速器構成要素の開発

加速器の電圧発生機構や加速管、構成部品のうち70%程度は良い完成度を持って納入された。しかし、細部の部品に完成度が低いものがあり、かなりの数の加速器タンク開放作業を行いざるを得ない状況であった。また原研独自で開発を進めてきた荷電変換用炭素フォイルは5.5MV加速器を使用し実験を重ねてきた結果、市販されていたこれまでのフォイルに比し格段の性能を得た。さらに、イオン源等多くの改良開発を重ね現在の安定な加速器装置に発展してきた。また、制御系開発によるシステムの入れ替えも行った。これにより制御系は遙かに安定するとともに複雑な制御にも対応し制御速度等大きな向上と安定を見せた。最も苦慮するところは、加速器電圧の放電による大きなサージに対する電子回路の健全性を確保するところである。現在でも最高電圧での放電では高電圧端子内の機器が故障する可能性は非常に大きく、できるだけ放電しない加速電圧を選択するような運転形態をとっている。

3.2 タンデムブースターの開発

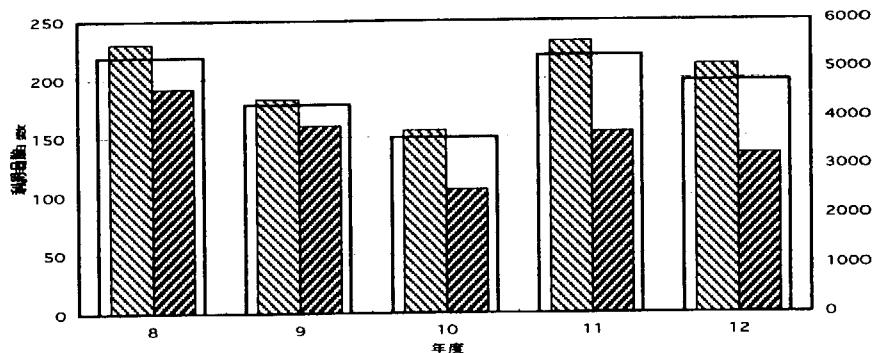
昭和55年代に入りタンデム加速器を利用した研究の新しい展開をはかるため、超伝導ブースターの開発を開始した。超伝導ブースターは40台の加速空洞により各種の重イオンビームをクーロンバリア以上のエネルギーに上げることができる性能を有するものである。加速空洞はニオブ材を用いた1/4波長型加速空洞で、高電界を発生させるため内面は電界研磨により仕上げられており、4Wの入力で約6MV/mの電界を発生させることができる世界最高性能の加速空洞を開発できた。これによりタンデム加速器及びブースターを使用する研究は大幅な展開をすることができる研究施設となった。第2図に超伝導加速空洞断面図の構造を示す。

第2図 超伝導加速空洞断面図



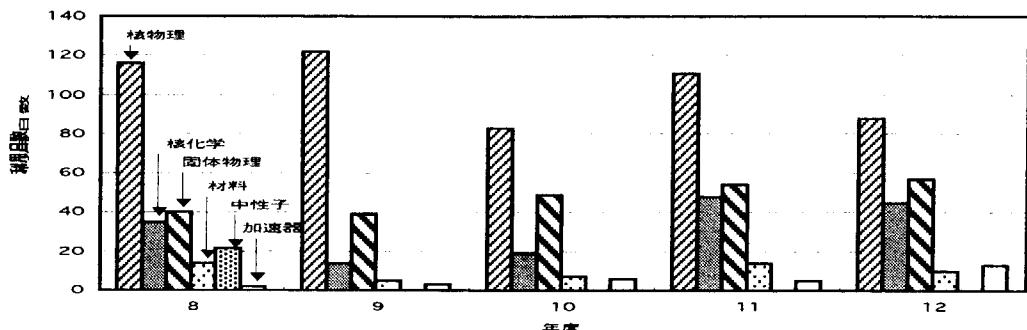
4. タンデム加速器系の利用

協力研究による利用は現在総運転時間の約70%となっており原研のみならず多くの大学、国立研究機関、産業界からの参加により活発な利用がなされている。イオン種においても各種の安定同位元素を含むイオンビームを供給でき、現在は約40種のイオンを供給している。また、複数のイオン源を使用し毎日イオン種の違う実験を可能にしている。一昨年から開発を進めてきた高電圧端子に設置した高周波イオン源(ECRイオン源)からは希ガスであるNe、Ar、



第3図 年度別加速器利用状況

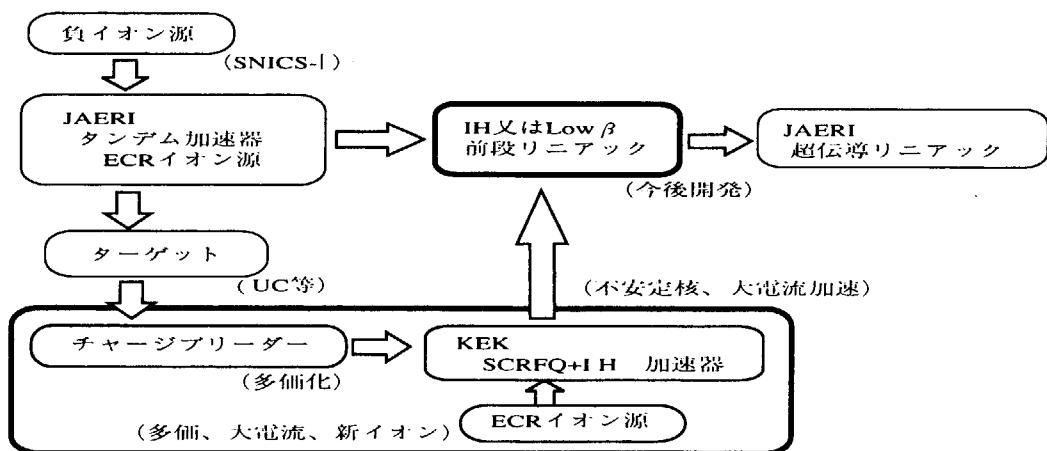
Kr、Xe をはじめ放電維持に使用する H、N、O ガスからのイオンも大量に加速できる。さらに昨年は金属イオンの加速試験も開始した。加速器運用は従来と同様の方法によるが、約 4 ヶ月連続的な運転を行い、1 ヶ月の整備を行うことの繰り返しにより、年間 200 日、5000 時間に及ぶ運転を継続している。外部の研究者数も 100 名に近い研究者が利用している。第 3 図に年度別利用状況を、第 4 図に分野別利用状況を示す。



第4図 分野別利用状況

5. 今後の計画

タンデム加速器が実験に使用されはじめてから 20 年がすぎ、ブースターの建設により新たな研究環境が生まれ、多くの原子核関連研究者により利用してきた。ブースターを使う実験は総運転時間の約 30% であり最高 1GeV の重イオンが得られることから幅の広い研究が可能となっている。しかし、今後の研究環境はこれでは間に合わず、次世代の研究環境を求めている。そのため 13 年度から KEK（高エネルギー加速器研究機構）と協力し不安定核も加速できる加速器の導入を開始する。これにより多くの不安定原子核を用いた研究とともにタンデム加速器では得られない電流値のイオンや負イオン発生の難しいイオン種の加速も可能となり、大幅な展開が可能となる。第 5 図に構成を示す。また詳細については次の報告を参照されたい。



第5図 新しい加速器系の構成



JP0150902

JAERI-Conf 2001-014

2.2 タンデム・ブースターの多元利用計画

竹内未広

日本原子力研究所東海研究所

物質科学研究部

1. はじめに

原研東海のタンデム加速器は1982年に最高加速電圧18MVの重イオン加速器として完成し、それ以来毎年200-230日のビーム供給を続け、重イオン科学研究への利用をはかってきた。また、後段加速器としての超伝導ブースターが自力開発の結果1994年完成し、タンデム加速器からのビームエネルギーを2-4倍にして質量数が70以上あるいは200近くまでの重イオンビームでもクーロン障壁エネルギー近くでの重イオン科学研究ができるようになった[1]。ブースターが付いたことによってエネルギー性能は飛躍的に向上したが、電流性能は反対に途中の荷電変換やビームパルス化の効率、ビーム透過率などによって低下し、実験の条件を悪くしており、改善課題として取り組みがなされている。高電圧端子に設置した小型ECRイオン源からの多価イオン加速はそのひとつで効果を上げている[2]。ガス、特に希ガスのイオンでタンデムで許可されている最大の電流強度(0.5pμA)までのビームが利用できる。しかし、広範なイオンに対し1pμA級のビーム強度を求めるには現在のタンデムでは無理で、大型のECRイオン源を利用できるサイクロトロンやリニアックが適している。

一方、不安定核ビームの開発・利用についてはこの施設での取り組みは遅れている。しかし、近年KEK田無でJHF計画のE-area用に開発した短寿命核分離加速実験装置[3,4]を原研タンデム加速器へ移設する計画がブースターの利用まで含めて検討された。その結果、高強度の安定核ビームを加速すること、ビーム強度は必ずしも高くないながらもエネルギーの十分な不安定核ビームを加速することをめざして、タンデム加速器と短寿命核分離加速実験装置のリニアックとブースター等を組み合わせて多元的に高度有効利用する計画がまとめられた。

この報告では、多元利用計画に至るまでの軌跡、多元利用計画案の加速器系と研究の柱、年次計画等について概要を述べた。

2. 本計画に至るまでのあゆみ

原研では、不安定核ビームの開発への取り組みは遅っていたとは言え、大強度陽子加速器の開発計画が1990年頃から検討されており、利用施設の一つとして不安定核ビーム加速施設を提案してきた。国内の不安定核ビーム加速施設計画は、既に理化学研究所では高エネルギーに加速したビームを標的で破碎して得られる不安定核を集めて利用する方式の施設建設が始まっているが、KEKでもJHF計画が1980年代後半に提案され、その中にE-areaと称する短寿命核ビームを生成・利用する施設が含まれている。

1998年にこのJHF計画と原研の中性子科学研究計画を統合することになり、両者の不安定核ビーム利用施設計画も統合することとなった。始めはタンデム加速器の近くに陽子加速器が建設される北案が検討されていたが、後に南案となりタンデム加速器を不安定核ビーム利用施設に利用する可能性はなくなった。短寿命核分離加速実験装置とブースターを移設して利用する案が提案されたが、短寿命核分離加速実験装置が再び利用できるまでには長い年月を待たなければならないので、KEKの研究の継続性が考慮され、タンデム加速器施設において短寿命核分離加速実験装置を用いた短寿命核科学の研究を進めることが考えられ、検討の結果本計画に至った。

3. 多元利用計画案

KEKと原研で検討を重ねた結果としての加速器の配置案をFig.1に示す。現在の中性子ターゲット室を拡張して短寿命核分離加速実験装置のSCRFQリニアック ($f=26\text{MHz}$, $E_{\text{out}}/A=0.17\text{MeV/u}$, $Q/A \geq 1/30$) とインターディジタル-H型(IH-1)リニアック ($f=52\text{MHz}$, $E_{\text{out}}=1\text{MeV/u}$, $Q/A \geq 1/10$) を置き、ブースター入射リニアック ($f=130\text{MHz}$, $E_{\text{out}}=2\text{MeV/u}$, $Q/A \geq 1/7$) を製作しブースターの直前

に置く。

3.1 安定核ビームの加速

高性能のECRイオン源からの高強度多価重イオン ($Q/A \geq 1/7$) をSCRFQリニアックに入射する。ブースターでさらに加速し2-5.5MeV/u(軽い重イオンでは2-14MeV/u)の重イオンビームがブースターのターゲット室のRMSなどの実験装置に導かれる。ビーム強度としては $1\text{p}\mu\text{A}$ を目指す。タンデムからのビームの10-100倍、ブースターからのビームの100-1000倍の強度増強となる。超重核合成、超アクチノイド核化学、核構造等の研究への利用が期待される。また、IH-1リニアックからの1MeV/uのビームをタンデムの既存ターゲット室に導き、物質科学研究に役立てる。

3.2 不安定核ビームの加速

短寿命核の生成には中性子過剰核の生成に効果的な陽子誘起核分裂反応を主に利用する(それ以外は核子移行反応等を利用する)。タンデムからの陽子ビーム(30-36MeV, 1-3uA)を照射室のISOLのラインに導き、ウランターゲット(UC_2)を叩き、生成する核分裂片($10^9/\text{s}$ 程度の生成率が期待できる)をターゲットから熱拡散放出させ、イオン源に導き+1価にイオン化してISOLで目的のビーム分離をし、ECRの原理を利用したチャージブリーダーで電荷を質量数の $1/7$ または $1/10$ 以上に上げ、リニアックに入射する。ビーム強度は核分裂片の生成率、イオン化効率、半減期、チャージブリーダーの荷電変換効率等によって大きく左右されるが、 $10^5-10^7/\text{s}$ のビーム強度を目指すものである。実験は第1段階としてはIH-1リニアックの出口で天体核反応の研究、物質科学への応用研究、クーロン励起による短寿命核の低い励起状態の核構造の研究等の実験ができる。ブースターでさらに加速することは技術的に難しいが、成功すれば新たな核物理研究が広く開ける。

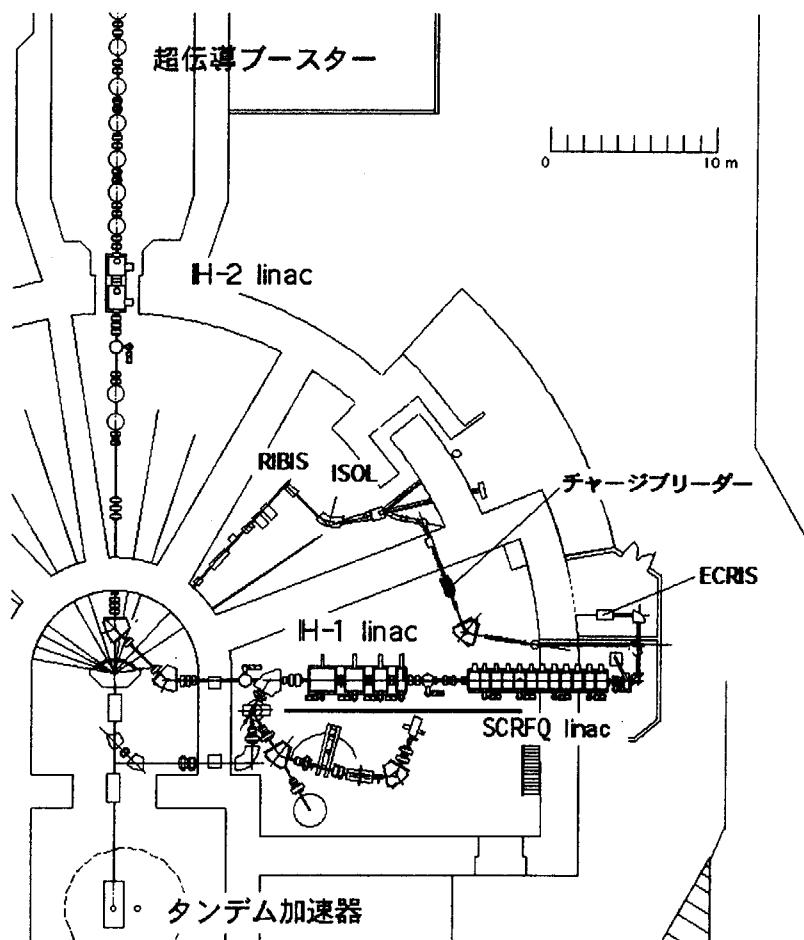


Fig.1. ブースター多元利用計画における加速器の配置案

3.3 多元利用で展開される研究

研究の柱は、超アクチノイド科学、短寿命核科学、重イオン物質科学、および核物理手法による新分析法である。超アクチノイド科学では、高強度安定核重イオンビームを用いて超重核の合成やその化学的性質の解明によって重い原子核の存在限界を突き止めようというものである。短寿命核科学では、不安定核ビームを使って、宇宙における元素合成過程の研究、核分裂片などの未知の内部構造の決定などを中心に進める。重イオン物質科学では、安定核および不安定核の重イオンビームを使って、イオン入射による物質の高エネルギー励起と時間変化の基礎研究を行い、応用として物質改質、新機能性物質の創製を研究する。核物理手法による新分析法では、多重ガンマ線測定等の核物理的手法を新分析法として開発する応用研究である。

4. 実行計画

この計画は原研東海とKEK素粒子原子核研究所の共同研究で進められる。IH-1リニアックまでの設置を第1期計画として、2001年度から3年計画で実施し、ブースター入射リニアック(IH-2)は第2期計画として2年程度の期間で製作を考えている。第1期は、KEKが加速装置の製作・据え付けそして運転までを分担し、原研が加速装置を設置するための建家、建家設備を整えることとなっている。KEKの作業としてはリニアックの周波数変更、チャージブリーダーの開発、電源や冷却系の据え付け工事などがある。原研は2001年度に先ず電源・冷却系を置く建家を新築する予定である。2年目に中性子ターゲット室の拡張工事を行い多元利用加速実験室に変える、3年目に加速実験室が第1種放射線管理区域として利用できるようにする。また、電源容量、冷却系容量の増力が必要である。そして、KEKから短寿命核分離加速実験装置を移設し、加速テストに入る予定となっている。

5. まとめ

統合計画における不安定核ビーム利用施設の提案は変わって、KEKの短寿命核分離加速実験装置をタンデム加速器やブースターと結合した多元利用計画として出発しようとしている。特徴は高強度の安定核ビームの加速利用と核分裂片ビームの加速利用を柱としている。タンデムの10-1000倍のビームの高強度化によって超重核の合成や超アクチノイド核化学などの研究で重い原子核の存在限界に挑戦でき、核分裂片生成を利用した不安定核ビーム加速によって宇宙における元素合成過程、物質のイオン照射励起の時間変化、短寿命核の核構造などの新しい研究ができる。第1期の3年計画で、KEKから短寿命核分離加速実験装置を移設し、1MeV/uの安定核・不安定核ビームの加速を実現させ、第2期計画で数MeV/uの高強度安定核・不安定核ビームを用いた研究ができるようにブースターへの接続を目指すものである。

文献

- 1] S. Takeuchi et al, "Status of the JAERI Tandem Accelerator and Its Booster", Heavy Ion Accelerator Technology: Eighth International Conference Proceedings 473, 1999 AIP 1-56396-806-1, pp152-167.
- 2] M. Matsuda, C. Kobayashi and S. Takeuchi, "Use of an ECR Ion Source in the High Voltage Terminal of the Tandem Accelerator at JAERI", Heavy Ion Accelerator Technology: Eighth International Conference Proceedings 473, 1999 AIP 1-56396-806-1, pp65-73.
- 3] S. Arai, A. Imanishi, K. Niki, M. Okada, E. Tojyo, N. Tokuda, "Construction and beam tests of a 25.5MHz split coaxial RFQ for radioactive nuclei", Nucl. Instr. and Methods, A390(1997)9-24.
- 4] M. Tomizawa, S. Arai, Y. Arakaki, A. Imanishi, M. Okada, K. Niki, Y. Tkeda and E. Tojyo, "The RB Facility at KEK-Tanashi", Heavy Ion Accelerator Technology: Eighth International Conference Proceedings 473, 1999 AIP 1-56396-806-1, pp451-465



JP0150903

JAERI-Conf 2001-014

2.3 短寿命核分離加速実験装置の タンデム移設案 RNB facility at the Tandem accelerator

宮武 宇也

H. Miyatake

高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核研究所

Institute of Nuclear and Particle Studies, High Energy Accelerator Research Organization

6000種類ともいわれる短寿命な原子核による核物理、核化学、天体核物理、物質科学等の研究分野は、近年急速に進み始めている。

これらの研究に利用される短寿命核ビーム生成法には大別すると入射核破碎反応によるインフライ特法と、ここで紹介するような生成核種の質量分離後の再加速によるISOL法の2種類がある。夫々は、得られるビームのエネルギー、質、強度の点で相補的特徴を持つため、世界的に並行して両施設の建設が進んでいる。

高エネ機構の旧田無分室E-グループでは、1997年にいち早くISOL型の短寿命核分離加速実験装置を完成させ、1999年からの分室移転直前まで開拓研究を進めてきた。この装置では、SFサイクロトロンからの陽子等の軽粒子を標的に照射して短寿命核を生成し、質量分離後に加速を行うため、イオン源、オンライン質量分離装置、低エネルギービームライン、SCRFQ型線型加速器、IH1型線型加速器および天体核反応率測定用反跳核分析器などの測定装置からなる。

	SC-RFQ	IH1
Frequency(MHz)	25.5	51
Charge-to-Mass Ratio(q/A)	≥1/30	≥1/10
Input Energy(keV/u)	2	172
Output Energy(MeV/u)	0.134-0.172	.172-1.053
Normalized Emittance	0.6 _mm•mr	
Energy Spread(%)	1.03	≤2.80
Duty Factor(%)	100% for q/A≥1/16, 270x(q/A) ² ×100% for q/A≥1/30	
Repetition Rate (Hz)		20-1000
Transmission Efficiency(%)	~95	~95
Total Length(m)	8.6	5.6

表1 短寿命核分離加速実験装置の加速器主要諸元

表1は、SCRFQ-、IH1-線型加速器の主要パラメターを示している。この表からもわかるように、我々の装置では短寿命核を高効率で加速する事が可能である。開拓研究において行った全系の整備による効率測定では、全核反応生成量の2.5%の短寿命核をビームとして利用できることを明らかにした。この値は、世界的に見ても新ルーバン大学にある同種の再加速型短寿命核ビーム施設に較べ約5-10倍高い[1]。

残念ながら装置は、分室移転にともない機構に仮置きの状態にある。そこで我々は、国内の関係者、原研東海研の物質科学部および先端基礎研究センターのスタッフと協議を重ねた結果、同装置による短寿命核科学分野の研究のすみやかな再開に向けて、原研東海研タンデム施設への移設計画を提案し、平成13年度からこの計画を進めることが両研究所において基本的に合意された。他方、この移設計画を進めるために大強度陽子加速器計画における本格的短寿命核ビーム施設としてのE-アレナ建設は、二期計画とすることになった。

移設における配置案を図1に示す。

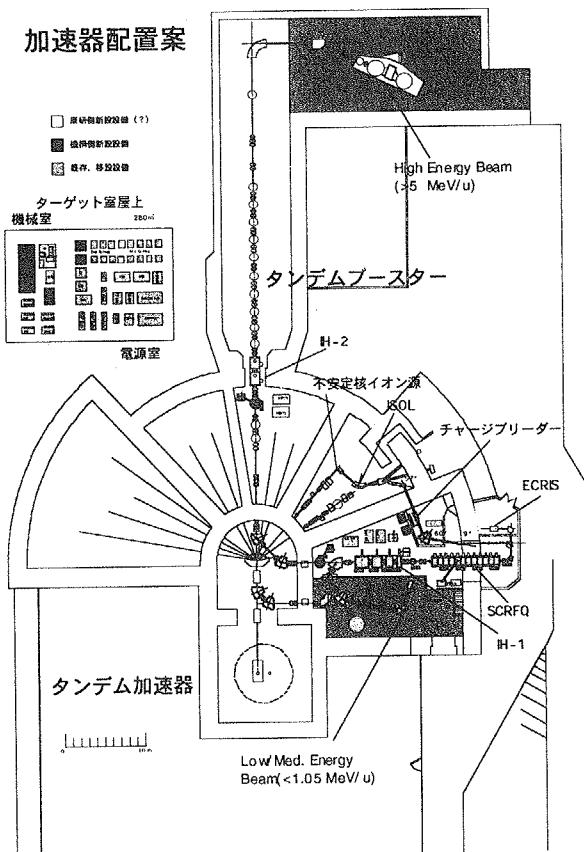


図1 短寿命核装置配置案

この移転案の持つ大きな魅力は、ウラニウム標的の使用による核分裂片の加速と、高強度安定核ビームの供給にある。期待される短寿命核種の生成強度を図2に示した[3]。前者は世界に先駆けた試みであり、中性子過剰な短寿命核ビームにより、天体核物理に加えて、物質科学への適用範囲が大きく広がるものと期待される。また、後者では、従来よりタンデム施設で進められてきた材料科学、原子物理の研究を促進するであろう。

その鍵となるのがチャージブリーダーと呼ぶ方法・装置である。チャージブリーダーは、Geller [2]らが開発を始めた方法で、多価イオン用 ECR イオン源に質量分析器からの1価のイオンを直接入射して ECR プラズマ内でトラップし、多価イオンに変換したうえで短寿命核を引きだす。この方法を用いる事によって初めて、SCRFQ (IH1)-線型加速器の加速条件である質量／電荷比が 30(10) 以下に抑えた重い短寿命核イオンを高い効率で加速することが可能となる。そこで、一価イオンのプラズマ中での効率良い減速方法を明らかにし高性能なチャージブリーダーを製作するため、2000年度より機構にテストベンチを設置して開発研究を始めている。

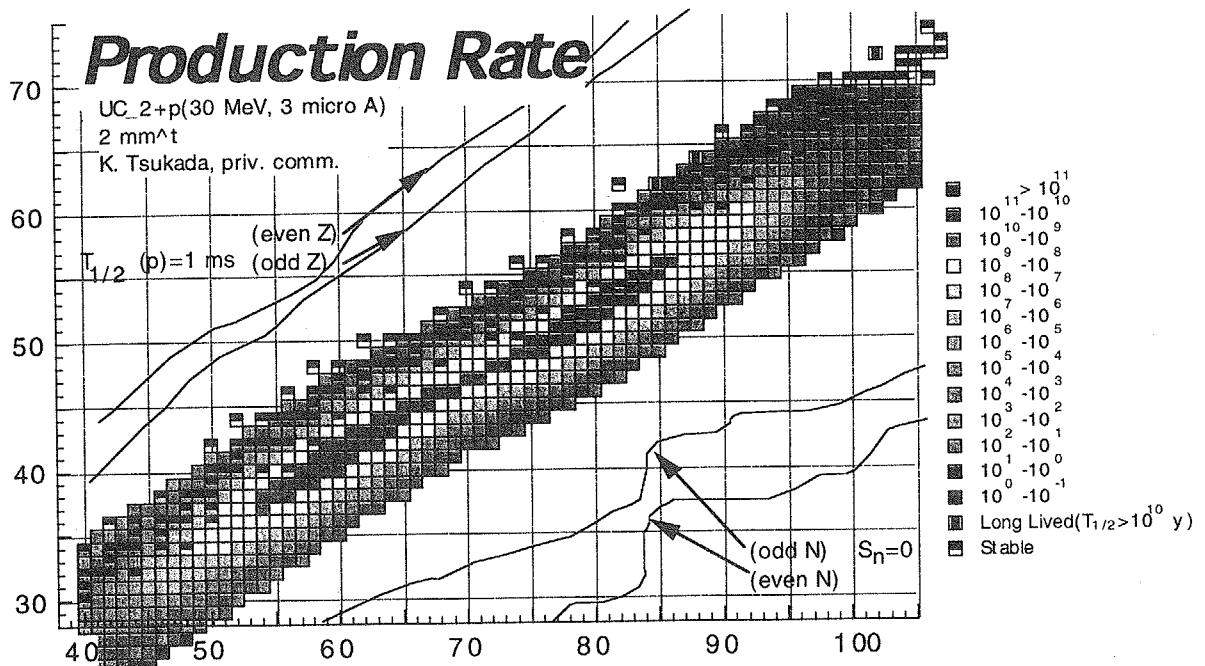


図2 UC-標的による核分裂反応での短寿命核種生成量

計画では、2003年に機構の装置移設を終了し、核子当たり 1.05 MeV までの短寿命核ビームの供給を開始する。さらに、従来の SCRFQ-及び IH-型線型加速器に加えて加速器を増強し (IH2)、既存の超電導線型加速器に入射・加速を行うことで、核子当たり 5 - 9 MeV の短寿命核ビームの供給を実現する。

5 - 9MeV/u のビームエネルギーは、殆どの標的・ビーム核種の組み合わせに対してケーロン障壁を越えられるエネルギーとなることから、上記研究分野に加えて短寿命核による核反応を用いた原子核物理、超アクチナイド元素の化学、超重元素の化学と物理分野を発展させることができるものと期待している。

この計画では、いち早く中性子過剰な短寿命核ビーム、高強度安定核ビームを供給し、各研究所、大学の研究者の要求に答えうる広範な短寿命核科学分野の研究基盤を作ることが最大の目標となっている。新たな研究テーマ、実験課題の提案に則した施設とするためにも、将来的なユーザーからの意見、要望をお寄せいただきたい。

Reference

- [1] H. Miyatake, et al., to be published in the proc. of the fifth int. conf. on radioactive nuclear beams, 3 - 8 Apr. 2000, Divonne France.
- [2] R. Geller and H. Nifenecker, Nucl. Phys. News, vol. 9, (1999)17-21.
- [3] 塚田 和明、私信



JP0150904

JAERI-Conf 2001-014

2.4 タンデム施設での短寿命核ビームによる天体核実験

Nuclear astrophysical experiments using radioactive nuclear beams at JAERI-TANDEM

石山博恒

H. ISHIYAMA

高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所

KEK-IPNS

宇宙のビッグバンや、超新星爆発の直後、恒星の内部で元素が燃焼されることで起る元素合成過程においては、安定な原子核のみならず不安定な原子核が引き起こす核反応が重要な役割を演じている。高温高密度の環境下における核反応率の測定が必要であるが、短寿命核を反応に含む場合その測定は困難であり、現在の所、系統的な実験データは存在していない。

KEK 田無分室においては短寿命核加速実験装置(1)を用いて 1999 年 9 月まで、短寿命核ビームを生成加速し天体核反応率の直接測定を行う実験を試みてきた。同施設は 2001 年度から原研東海タンデム施設に移転を開始し、2003 年度には核子あたり 1MeV までのエネルギー、2006 年度には核子あたり 7MeV までのエネルギーの短寿命核ビームの加速を開始する予定である。この移転に伴い天体核物理実験を継続し系統的な実験データの蓄積をねらいたい。移転スケジュールに従って、移転期は既設の JAERI-RMS(2) で核子移行反応を用いて短寿命核ビーム生成、IH1 までの移転が完了したら 1MeV/u の短寿命核ビームを生成加速、IH2 を新設、ブースタを用いて 7MeV/u での短寿命核ビームを加速生成、した場合の可能となる天体核物理実験の検討を行う。

JAERI-RMS での天体核反応率測定を行う実験は既に開始している。宇宙での元素合成過程のうち τ プロセスは高温高中性子密度の環境で中性子捕獲と β 崩壊が競合しながら一期に重元素までの合成が進むものと考えられており、超新星爆発時に起きたというシナリオが有力視されている。従来の τ プロセスは鉄を種核として進行するというものであったが、最近、鉄以下の軽い中性子過剰核領域での反応も重要であるという理論計算がなされている(3)。特に (α, n) 反応はより重い元素を合成する反応であると同時に中性子源となる key 反応である。従って τ プロセスの出発点ともいえる質量数が 10~20 までの不安定核の (α, n) 反応断面積を測定し、 τ プロセスの定量的議論を深める事は極めて重要である。

天体核物理が対象とするクーロン障壁近傍の反応断面積は一般に小さい。しかも、十分な強度を持った低エネルギーの不安定核ビームを得ることは未だ困難であり、反応率の直接測定はほとんど行われてこなかった。我々は強度の弱いビームを効率よく使えるように、核反応を検出するガス検出器のガス ^4He (α) を同時に核反応の標的として用いる。さらに広い立体角をもつ中性子検出器群で中性子を検出し反応の

終状態をおさえ核反応率を測定する (Fig. 1)。

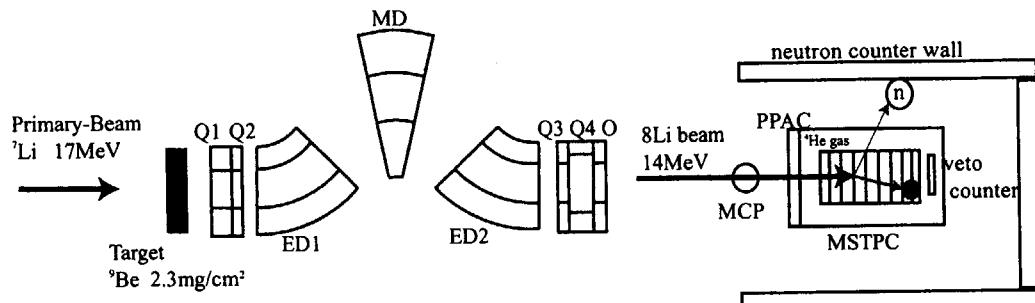


Fig. 1 ${}^8\text{Li}(\alpha, n)$ 反応率測定用のセットアップ。

ガス検出器は新しく開発した多重飛跡検出型のガスチャンバー (Multiple-Sampling and Tracking Proportional Chamber : MSTPC) を用いる (4)。MSTPC は、核反応で発生する複数の荷電粒子について、それぞれの 3 次元的な軌跡と軌跡に沿った電離損失を測定できるというユニークな特徴を生かして希にしか起こらない核反応事象を S/N 良く検出できる。

最初は ${}^8\text{Li}(a, n)$ の核反応率の測定を行う予定である。既に理化学研究所においてこの検出器系により ${}^8\text{Li}(\alpha, n)$ 反応の直接測定に成功している (5)。これは反応の終状態を押さえた世界初の測定であったが、 ${}^8\text{Li}$ ビームを高エネルギーの入射核破碎反応により生成したため、エネルギー分解能が悪質でかつ強度の低いビームしか得られず、天体核物理で必要とする環境温度に対応する重心系で 1.5 MeV 以下の測定は出来なかった。JAREI-RMS では ${}^8\text{Li}$ ビームを ${}^9\text{Be}({}^7\text{Li}, {}^8\text{Li})$ 反応で生成、1 次ビームと分離し 1~2 MeV/u エネルギーで生成する。この際問題となるのは 1 次ビーム抑制率であるが、これは窒素ビームを用いて抑制率を測定した結果、 5×10^{-10} 程度であることが判明した。これにより ${}^8\text{Li}$ ビームに対する ${}^7\text{Li}$ ビームの比は 1/10~1/100 程度と予想される。イベント数は反応断面積が 100 mb の場合、32 events/dEcm = 200 keV/ ${}^8\text{Li}$ = 3 k pps/24 hr と予想され、本実験は 2001 年度に行う予定である。JAREI-RMS では、引き続き ${}^{10}\text{Be}$ 、 ${}^{12}\text{B}$ を α (${}^7\text{Li}$, ${}^{10}\text{Be}$)、d (${}^{11}\text{B}$, ${}^{12}\text{B}$) 等の核子移行反応で生成し (α, n) の反応率測定を行う予定である。 ${}^{10}\text{Be}$ 、 ${}^{12}\text{B}$ の予想強度は上述の反応でそれぞれ 1 k pps/300 pnA ${}^7\text{Li}$ 、10 k pps/300 pnA ${}^{11}\text{B}$ である。IH1 の移設が終了すると核子あたり 1 MeV/u のエネルギーでの短寿命核ビームの加速が可能となる。 ${}^{10, 11}\text{Be}$ 、 ${}^{12}\text{B}$ 、 ${}^{15, 16}\text{C}$ の加速を 10^5 ~ 10^6 pps 程度の強度で行い軽い中性子過剰核領域の (α, n) 反応率を上記の検出器群で測定する予定である。

水素の爆発的燃焼過程として知られる r_{p} プロセスの解明のため世界各所の短寿命核実験施設で反応率測定が試みられているが、 (p, γ) 反応は反応率が極めて小さく、その直接測定は困難である。タンデム施設においては反応率の比較的高い (α, p) 反応、共鳴準位探索実験等を行う。一例としては ${}^{26m}\text{Al}(p, \gamma)$ の反応率導出のための共鳴準位探索を ${}^{26m}\text{Al}(p, p')$ 反応を用いて行い、準位の陽子放出幅、スピン、パーティティの決定を行う。 ${}^{26m}\text{Al}$ を p (${}^{26}\text{Mg}$, ${}^{26, 26m}\text{Al}$) 反応で生成し JAERI-RMS で一次ビームと分離、水素ター

ゲットで ^{26m}Al (p, p') 反応を起こし反跳陽子を測定する。セットアップを Fig. 2 に示す。

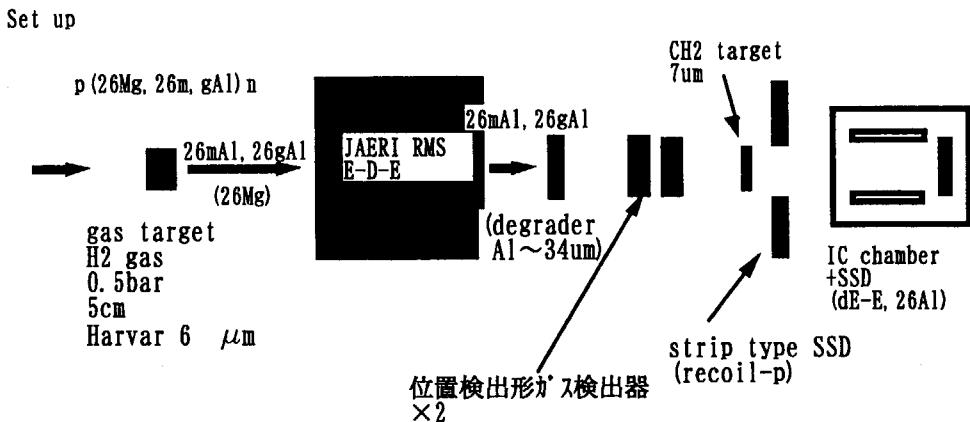


Fig. 2 ^{26m}Al (p, p') 反応測定用セットアップ。

陽子放出幅が 5keV で、 ^{26m}Al ビーム強度が 10k pps、反跳陽子用 SSD の立体角が 0.25str の場合、予想イベント数は 60events/1hr であり、比較的低いビーム強度で実験可能である。他の実験可能な反応系としては他に ^{14}O (α, p), ^{18}Ne (α, p), ^{21}Na (p, p') 等が考えられる。

IH2+ブースターの建設が終了し、7MeV/uまでの短寿命核ビームの加速が可能となった場合、ANC 法(6)を用いて反応断面積の小さい (p, γ), (n, γ) 反応率を比較的反応断面積の大きい (d, n), (d, p) 反応等で間接的に導出することが可能となる。 ^{12}B (n, γ) ^{13}B 反応を例にとると、 ^4He (^{12}B , ^{13}B) ^3He 反応断面積と角分布、始状態と終状態の光学模型ポテンシャルからその核反応率が導出可能である。その際、必要な短寿命核ビーム強度は 10^5 pps~ 10^6 pps であり、軽い中性子過剰核領域から、ウランターゲット使用により可能となる中重中性子過剰核領域の核反応率の実験データの系統的蓄積をはかりたい。

Reference

- (1) M. Tomizawa, et al., Heavy Ion Accelerator Technology: 8th International Conference, edited by Kenneth W. Shepard (AIP, New York, 1999) p.451.
- (2) T. Kuzumaki, et al., Nucl. Inst. Meth. A437(1999)107.
- (3) M. Terasawa., private communication.
- (4) Y. Mizoi, et al., Nucl. Inst. Meth. A431(1999)112.
- (5) Y. Mizoi, et al., Phys. Rev. C62(2000)065801-1
- (6) 今井伸明. ANC の有効性、KEK Proceedings 2000-6(June 2000)p.356.



JP0150905

JAERI - Conf 2001-014

2.5 Back to the Electric Quadrupole Interactions in Solids -- Looking for the Nucleon Effective Charges in the Nucleus -- 今まで電気四重極相互作用 -核内核子実効電荷を求めて-

T. MINAMISONO

南園忠則

Physics Department, Graduate School of Science, Osaka University

大阪大学大学院理学研究科物理学専攻

1-1 Machikaneyama, Toyokanaka, Osaka 560-0043, JAPAN

Nuclear moments are very effective probes to look into inside the nucleus. For example, the well studied magnetic moments of nuclear states have been very effective to disclose the configuration mixing in the wave functions. This is mainly because the moment is very much dependent on the geometry of the spins and orbital angular momenta. Naturally the small mesonic enhancement in the g-factors allowed us to look into the non nucleonic degrees of freedom in the nucleus. On the contrarily, the quadrupole moments give information on the spatial spread of nuclear matter in the nucleus as well as the interaction of the valence nucleons with the core part of the nucleus in addition to the spin coupling of the valence nucleon with the core [1 - 4]. Still though this study has been very difficult because only inaccurate moment values are known for the short-lived nuclei, which may clue the questions.

Specific interest is the effective charges of nucleons in the nucleus. The values are well known following the studies given by B.A. Brown and H. Sagawa for the nucleons in the sd-shell nuclei especially for the deeply bound ones. The definition of the effective charge $e^{\text{eff}} = Q_{\text{exp}}/Q_{\text{th}}$, i.e., the experimental value divided by the theoretical value with charge $e^{\text{eff}} = 1e$ has to be modified for the halo nucleus since the valence nucleon which mainly form a halo structure gives larger theoretical Q_{th} value while the nucleon interact less with the core part compared with the deeply bound nucleon nucleus. This allows us to use a smaller e^{eff} for the halo nucleus than the known ones. Suppose a spherical nucleus is radially extended, or several nucleons are loosely bound, as a halo nucleus because of the small separation energy, then, its single particle value of the quadrupole moment is going to be enhanced since it is proportional to mean square radius $\langle r^2 \rangle$ as the case known in the quadrupole moments of ${}^8\text{B}$ and ${}^8\text{Li}$ in which a proton halo and a neutron halo structures are known in them, respectively. The polarization effect, however, of the core nucleus caused through the overlap of the valence nucleon with the core nucleus is going to be less. Then the effective charges of the nucleons, defined by the ratio of the experimental quadrupole moment divided by the shell model value evaluated with using $Q = \int \rho(r)(3\cos^2\theta - 1)dv$, i.e., with $e^{\text{eff}} = 1e$ for protons and neutrons, in the halo nucleus is going to be very much suppressed. One of the problems arise in using effective charges $e_p^{\text{eff}} = 1.3$ for protons and $e_n^{\text{eff}} = 0.5$ for neutrons to derive theoretical values. These effective values are obtained by Sagawa and Brown by analyzing the data of sd-shell nuclei. Therefore our question is that if the effective charges for the halo nuclei the same with those for the nucleons in stable nuclei in which the balance nucleons are deeply bound.

Because of the recent great experimental developments in the production of the spin polarized β -emitting nuclei through nuclear reactions especially using high energy heavy ion collisions and the developments in the improved β -NMR technique (β -NQR) for detecting the electric quadrupole interactions of those short lived nuclei with the electric field gradients defined by q in various crystals, the electric quadrupole coupling constant eqQ/h of nuclear quadrupole moment Q with the

q can be measured with the precision better than $\delta Q/Q \sim$ a few %. The recent progress in evaluating q , i.e., the capabilities of reliable measurements or of theoretical evaluation of the field gradients in an ionic crystal in which the nuclei are forced to be imbedded to have the nuclei interact with the crystalline internal field gradient q also has been able to predict the q value with similar precision [1-3]. Therefore, Q_{exp} value can be determined with $\delta Q/Q \sim 5\%$ or better. Thus we are now reached the stage where we can look deep into the quadrupole moments of halo nuclei and nuclear structures of them studied by the quadrupole moments. Although the quadrupole moments of the deeply bound even-odd nuclei are well understood as mentioned already, strange discrepancy of the experimental data with the theoretical predictions are now disclosed. It is pointed out that even in the deeply bound nucleon nuclei, several odd-odd nuclei gives us open problems which still remain unsolved. Several examples even of the doubly closed shell ± 1 nucleon nuclei are listed in the Table 1.

Table 1 Q of doubly closed shell ± 1 nucleon nuclei in mb.

	^{41}Sc	^{41}Ca	e_p^{eff}	e_n^{eff}	
$Q_{\text{th}}(\text{Halo})$	-151.3	-56.4	1.311	0.525	(used)
Q_{exp}	156(3)	-90(1.2)			
	^{17}F	^{17}O	e_p^{eff}	e_n^{eff}	
$Q_{\text{th}}(\text{OXBASH})$	-79	-30			
$Q_{\text{th}}(\text{Halo})$	-100	-23.6	1.30	0.50	(HF+HF; H. Kitagawa)
Q_{exp}		-26(3)			
Trial I : for ^{17}F					
Q_{exp}	-58(4)	eqQ/h in MgF_2 NP A 236(74)416.			
		q by KKR full Potential; Blaha, ^{19}F in NiF_2 ; PR 48(93)12672			
			$e_p^{\text{eff}} = 0.85e$; anomalous!		
Trial II : for ^{17}F					
Q_{exp}	-100(20)	eqQ/h in MgF_2 NP A 236(74)416.			
		q Kanamori; ^{19}F in ClF ; JPSI21(66)213; contradict with Blaha's.			

The small discrepancy among the experimental and theoretical values of the $A = 41$ pairs are understood by the non spherical core, the deformation of a few % of the ^{40}Ca core. The understanding in the moments of the $A = 17$ system, however, is not straight forward since the value -58(4) derived by use of q given by Blaha in which KKR method using full Potential are employed gives effective charge of protons $e_p^{\text{eff}} = 0.85e$ which is surprisingly small from the known value of 1.3e.

However, if we adopt the q value given by Kanamori for ^{19}F in ClF , $e_p^{\text{eff}} = 1.3e$ is required. This contradiction, an open problem, has to be solved especially by taking the differences in the implantation processes of ^{19}F and ^{17}F into the implantation medium. Do the q values given now describe the ions at the real implanted sites? The experimental studies on ^{19}F is on the phenomena shorter than 100 ns after implantation, but the observation on ^{17}F is extended as long as 100 s after its implantation. Accurate hyperfine interactions studies of those ions have to be continued.

Another strange deviation of the effective charge has been found [4] in the Q_{exp} of $^{16}\text{N}(I^\pi=2^-$, $T_{1/2}=7.2$ s), a particle and a hole states added to the doubly closed ^{16}O core. Recently a measurement gave a value $Q_{\text{exp}} = (17.9 \pm 1.7)$ mb. The theoretical single particle value for the Q of the $|(\pi p_{1/2})^{-1} (\nu d_{5/2}^{+1})\rangle$ configuration which occupy 96.1% of the total configuration gives $Q(^{16}\text{N}; jj) = -23$ mb, where HO, Harmonic Oscillator Potential with the oscillator length $b = 1.76$ fm and a standard effective charges, $e_n^{\text{eff}} = +0.5e$ for neutrons in sd-shell nuclei, (Sagawa and Brown) are used. This is already $\sim 30\%$ larger than the experiment. The shell-model-code OXBASH for p- and sd-model space gives $Q_n(\text{HO}) = -47.5e^{\text{eff}}$ mb and $Q_p(\text{HO}) = -5.9e^{\text{eff}}$ using the HO wave function for proton and neutron groups respectively, i.e., without halo effect. Using the empirical effective charges $e_n^{\text{eff}}(\text{HO}) = +0.48e$ for neutrons in sd-shell and $e_p^{\text{eff}}(\text{HO}) = +1.48e$ for protons in p-shell the theory gives $Q(^{16}\text{N}; \text{HO}) = -31.5$ mb which is 70% larger than the experimental value.

This large discrepancy may indicate a crucial effect of the small binding energy on the neutron component. On the contrary, the HF wave function with halo effect, gives $Q_n(\text{HF}) = -60.4e_n^{\text{eff}}$ and $Q_p(\text{HF}) = -5.1e_p^{\text{eff}}$, to yield $Q(^{16}\text{N}; \text{HF} \& \text{halo}) = -27.3 \text{ mb}$ by using empirical $e_p^{\text{eff}}(\text{HF}) = +1.32e$ and $e_n^{\text{eff}}(\text{HF}) = +(0.34 \pm 0.04)e$. The $Q(^{16}\text{N}; \text{HF} \& \text{halo})$ is still 50% larger than the experiment. In order to reproduce the experimental value a set of new effective charges must be introduced. Since $|Q_{\text{exp}}(^{16}\text{N})| = 17.9 \text{ mb}$ must explained by the theoretical $|Q_n(\text{HF}) + Q_p(\text{HF})| = |(-60.4e_n^{\text{eff}}) + (-5.1e_p^{\text{eff}})|$, the e_n^{eff} value must be in the range of $0.19e \sim 0.21e$ for which $e_p^{\text{eff}}(\text{HF})$ is in $1.3e \sim 1.0e$. Adopting the difference of the theoretical $Q_n(\text{HF})/e_n^{\text{eff}}$ and $Q_n(\text{HO})/e_n^{\text{eff}}$ as the theoretical uncertainty for the nuclear matrix, we conclude a definitely small effective charge for the neutron in the $d_{5/2}$ state of ^{16}N , $e_n^{\text{eff}}(\text{HF}) = +(0.20 \pm 0.04)e$. The value is almost 40% of the systematic effective charges for neutrons in sd-shell. The present small $e_n^{\text{eff}}(\text{HF})$ may indicate an important effect on effective charges for loosely bound neutrons, i.e., a relatively large $\langle r^2 \rangle^{1/2}$ value of them and less perturbation to the core of the nucleus. Such a small neutron effective charge may also be found in other Halo nuclei including ^{15}B , ^{17}B , ^{18}N , and ^{19}O provided that their nuclear structures are well investigated.

Further systematic studies on the nuclear electric interaction are strongly required in clarifying the nuclear structures of the loosely bound nucleon nuclei, and odd-odd nuclei using the well developed experiment and theory .

References:

1. NMR following Nuclear Reactions; T. Minamisono: Measurement of Magnetism II (Experimental Physics No. 7 Ed. K. Kushida, & S. Kobayashi et al. ; Maruzen) (2000) pp199 - 227.
2. β -NMR of the Short-Lived β -Emitter and NMR of the Super Dilute Impurities; K. Matsuta, K.Sato, and T. Minamisono; Solid State Physics **34** (1999) 1 - 12.
3. Science with Short-Lived Nuclei I; T. Minamisono, Radiological Sciences **41** (1998) 109 - 119; Science with Short-Lived Nuclei II ; ibid. **41** (1998) 153 - 160; Science with Short-Lived Nuclei III; ibid. **41** (1998) 203- 210.
4. Electromagnetic Moments of the β -Emitting Nucleus ^{16}N ; K. Matsuta, T. Miyake, K. Minamisono, A. Morishita, S. Momota, Y. Nojiri, M. Mihara, M. Fukuda, K. Sato, S.Y. Zhu, H. Kitagawa, H. Sagawa, and T. Minamisono, *Phys. Rev. Letters* **86**, 3735-3738 (2001).



JP0150906

JAERI-Conf 2001-014

2.6 原子燃料材の核分裂照射による組織創生

木下 幹康

電力中央研究所 原子力システム部

1. はじめに

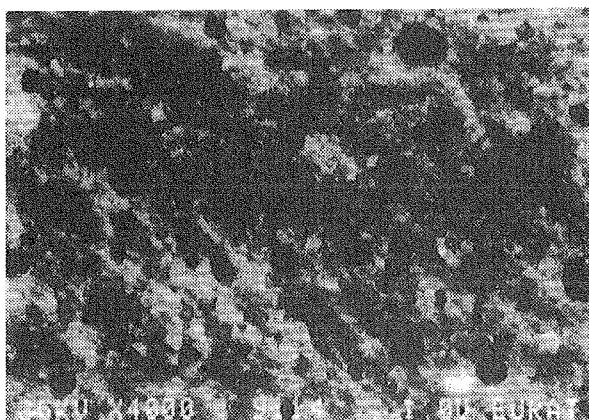
原子燃料材料は核分裂による損傷をつねに被る。その損傷強度は構造材料が受ける中性子損傷などとは桁が違うため、その挙動を理解するためにはこの違いを明確に認識する必要がある。一回の核分裂反応が燃料材料の中で放出するエネルギーは約 190 MeV であり、2 個にわかれた核分裂粒子が得る運動エネルギーは、その分布の最大値が各々約 80 と約 90 MeV にある。運動エネルギーは UO₂ 結晶格子中を走る際に、最初に電子励起(Se)として放出され、100KeV 程度まで減速してから核衝突散乱(Sn)によって放出される。核分裂により生成する欠陥の数を計算評価した結果では、まず 10⁵ の格子点数で欠陥を生じ、そのうち 27000 がウラン格子点、73000 が酸素格子点とされる。これらのうち約 80 %は短時間、約 10⁻¹⁰ sec のうちに再結合するとされる。TRIM 計算によれば、Se は初速度近傍で 10keV/nm 約 1MeV で 1KeV/nm、また Sn は 1MeV ~10KeV の間で 100KeV 付近をピークとして 2~4KeV/nm となる[1]。

軽水炉燃料での損傷率は平均的に 1 日に約 1 DPA となる。本研究で対象とする組織創生の現象は、約 2000DPA を越えた時点で生じている。このように原子燃料では DPA が桁違いに大きく、組織変化を記述するパラメータとしては役に立たない。言い換えれば、DPA が大きくなると結晶構造が変化するような物質はもともと原子燃料として使用できない。

原子燃料材料の組織変化を支配するパラメータとしてよく使われる量が燃焼度である。すなわち燃料重量（核分裂する元素の重量、ないしその化合物の重量）を分母とし核分裂燃焼エネルギー総量を分子として、単位を MWd/KgU (ここで MWd=mega-watt-day)などと表す。もうひとつの燃焼度の定義として、核分裂する元素の燃焼した割合(%FIMA = Fissions per Initial Metal Atom)で表すこともある。おおよそ 10MWd/kgU ~ 1%FIMA であり、どちらも燃えた量、すなわち核変換した巨視的な大きさの原子数ないし発生エネルギーをもって照射量のパラメータとしている。

2. 新たに見つかった組織

本論で扱う原子燃料の組織変化は、1985 年前後に軽水炉の高燃焼度先行使用燃料の照射後試験で 3 カ国（米、英、仏）のホットラボで次々に見つかった。多孔質の領域が、円筒状のセラミクス燃料ペレットの最外周に沿って発生しており、その発生場所からリム組織と呼ばれている。図 1 に破面を SEM (4000 倍) 観察した結果を示す。



第 1 図 リム組織の一例 (PWR 5 サイクル (4.2%U²³⁵)、ペレット平均 73MWd/kgU)

気孔（気泡）直径は約 $1 \mu\text{m}$ で、 UO_2 結晶粒内部の $n\text{m}$ サイズの気泡と区別するために粗大化気泡と呼ばれている。



図2. 粗大化気泡を取り巻く UO_2 微細結晶

図2にBWR燃料のリム組織をイオンエッチング後にSEMによって観察した結果を示す。このイオンエッチングで浮き上がって見えるようになる結晶粒の大きさは400nm程度である。リム組織を解明する国際共研HBRP(High Burnup Rim Project)で試験用ディスク燃料を照射して得たTEM観察写真を図3に示す[2]。組織変化後には転位がほとんど見られない。粒内気泡は若干あるが、その数は組織変化前と比較して大きく減っている。観察される組織変化後 UO_2 結晶粒径は100~200nmと小さく製造時の結晶（直径 $10 \mu\text{m}$ ）と比格すれば直径寸法が約2桁下がっている。また、観察されたほとんどの粒

界が小傾角粒界をなしていることが回折像からわかる。

このように、リム組織の形態から見た特徴は以下の2点にある。

- (1)約 $1 \mu\text{m}$ 径の粗大化気泡が多数発生し多孔質な組織となっている。
- (2)母材 UO_2 の粒径は $0.1\sim0.2 \mu\text{m}$ と小さい（細粒化）。

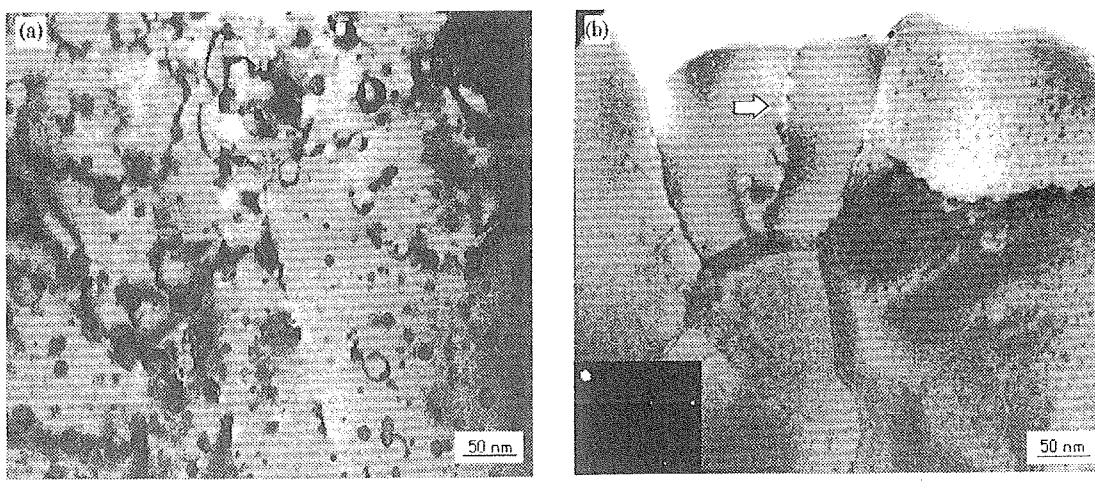
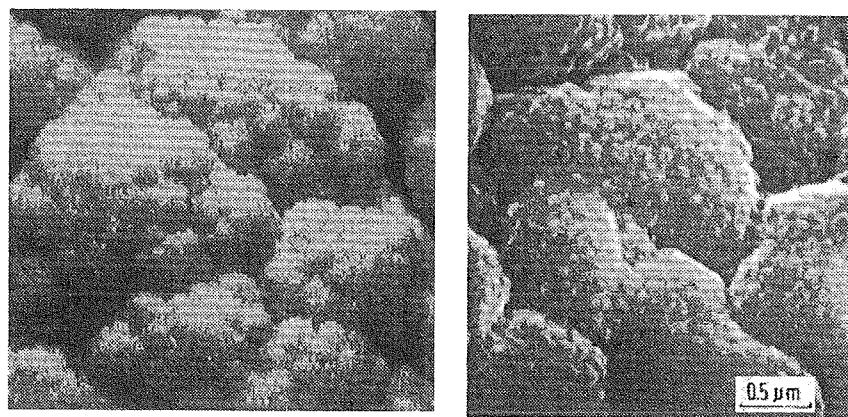


図3. 透過電子顕微鏡による観察結果

さらに、破面などに現れたポロシティの表面を高分解能の走査型電顕(FESEMないしTEM/SEM)で観察すると、その表面に微細な半球状の結晶粒が整然と並んだ構造が見ら

れる。とくに、比較的大きなポロシティの内面（直径>数 μm ）では、頻繁に2重の構造が見られる。図4にその典型を示すが、約 $1\mu\text{m}$ の盛り上がった丘に約 $0.1\mu\text{m}$ の半球状粒が敷き詰められ、その形態からカリフラワー構造と呼ばれている。



(a)カリフラワー (本物の野菜) (b)UO₂燃料 (7.9%FIMA)

図4. カリフラワー構造

細粒化・リム組織の発生条件には「しきい燃焼度」と「しきい温度」があることが知られている。燃焼度で 70 MWd/kgU (7%FIMA) 以上、照射温度で 1100°C 以下である。図5にディスク照射試験とその照射後観察から導かれたしきい条件を示す[2]。

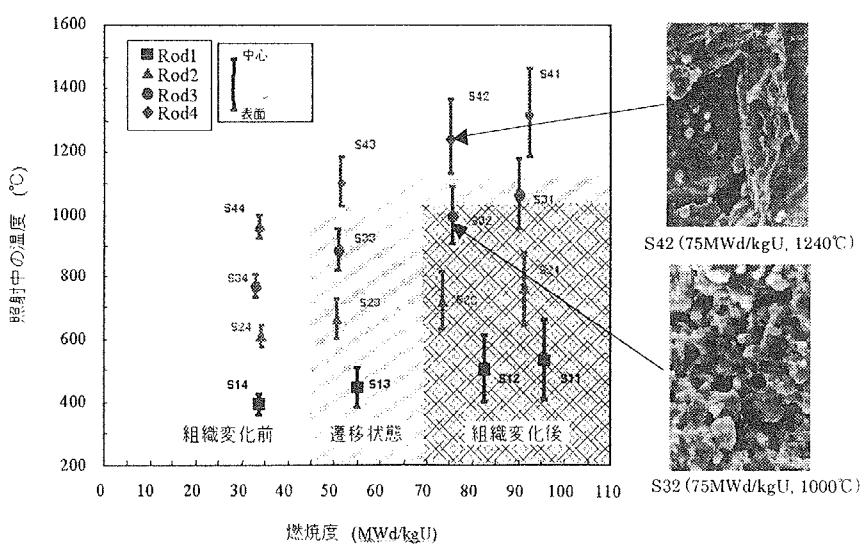


図5. 光学金相、走査型電顕(SEM)観察などから確定した細粒化組織の発生条件 [1]

3. モデル開発への取り組み

ここで述べた細粒化・リム組織の最大の特徴は低温でマクロな組織変化があることにある。まず第一にこれは熱平衡での熱活性化過程を経ないプロセスであり、核分裂照射効果の本質であるパルス状の過熱／急冷が主役となる。核分裂のエネルギーが熱以外のプロセスに消費されていく過程であるとも言える。第二には、燃料は照射による欠陥が常時供給される非平衡系である。生まれ消滅していく照射欠陥が相互反応の主役となる現象である。第三には、ウランの燃焼によって核分裂生成物や超ウラン元素などの新たな元素が発

生し蓄積する。これによって新しい物質系が生まれる。これらにより、原子炉で燃焼中の燃料セラミクスでは、多種・多様な反応が生じている。その様子を概念的に図6に示す。

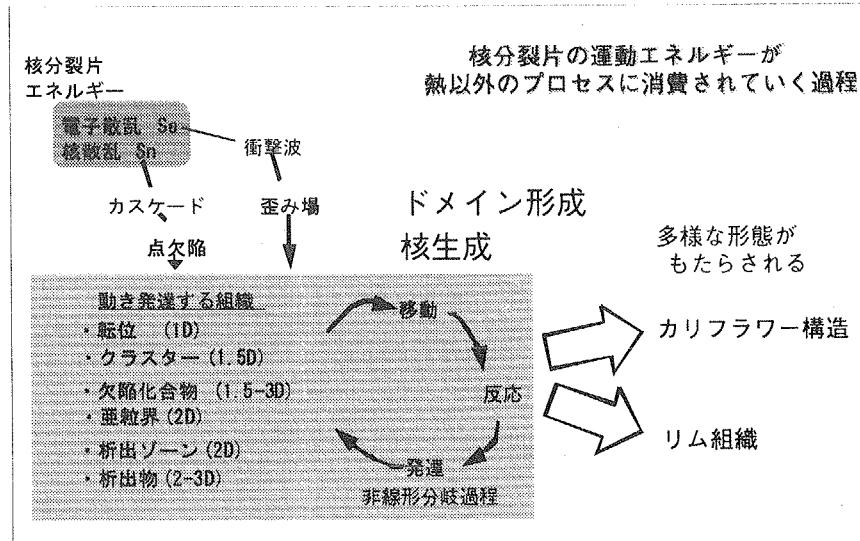


図6. 核分裂照射による組織・形態の創生

商用炉の燃料の観察から見出され詳しく調べられた細粒化・リム組織の形成はこの多様性の一部に過ぎない。これをパターン形成として見ると、その非線形性は興味深い解明課題である。

現在、形態発生は生命の発生 (genesis) と関連して非線形数学、複雑系やフラクタル理論と結びついて実り豊かな研究対象となっている。リム組織・細粒化を支配している欠陥反応拡散系にはこの非線形数学が直ちに応用できる。図7にその最初の試みを示す。細粒化は点欠陥と稀ガスが2次元状にあつまり、面状の欠陥構造を作り出していく過程と考えることが出来る。これを空孔、格子間原子、稀ガス気泡、転位（格子間原子型）からなる速度論的方程式で表した。安定性解析と数値計算の結果、本モデルは以下のような挙動を示す。すなわち転位の発達を支配する第4式により、転位密度は格子間原子を吸収して増加し、空孔を吸収して減少する。ある空間位置でゆらぎにより転位が優先的に発達するところができると、その位置でのシンク強度が強くなり、そこへ周囲から格子間原子が流れ込んでくる。同時にその位置の高密度の転位は空孔の減少をもたらし、結果として更に転位の成長が加速される。本モデルではこのようにして空間的な不均一性が増長され、新たな形態が生まれる。しかし現実の燃料でこの反応系が実現しているかどうかは定かでなく、ひとつの試みとして見ていただきたい。真の反応系の確定と検証は今後の課題として残されている。重要なことは、くりかえしになるが、原子燃料中には多様な非線形の反応が起こりうるし実際に多様な興味深い反応が起きていることである。

$$\begin{aligned} \text{空孔} \quad & \frac{\partial C_v}{\partial t} = Q_v - K_{vv} C_i C_v - K_{vh} D_v C_v + K_{hv} (C_{vh} - C_{vvh}) \\ & - K_{vh} C_{vh} C_v - K_{vd} (\rho_d) D_v C_v - D_v \nabla^2 C_v \\ \text{格子間} \quad & \frac{\partial C_i}{\partial t} = Q_i - K_{vv} C_i C_v - K_{vh} D_i C_v - K_{vd} (\rho_d) D_i C_i - D_i \nabla^2 C_i \\ \text{Xe} \quad & \frac{\partial C_{vh}}{\partial t} = Q_v + K_{vh} C_{vh} C_v - K_{hv} (C_{vh} - C_{vvh}) \\ \text{気泡} \quad & \frac{\partial \rho_d}{\partial t} = a_0 K_{vd} (\rho_d) D_i C_i - a_0 K_{vd} (\rho_d) D_v C_v \end{aligned}$$

図7. 細粒化の欠陥反応拡散方程式によるモデル化

今後の方向性

原子燃料の工学としては、リム組織や細粒化の発生条件とその材料特性は順調に解明されつつある。次のステップは発生過程の定量的な解明とその制御方法の開発である。

一方、照射の科学としてはまだ始まったばかりである。すなわち核分裂エネルギー領域の照射損傷とその非線形非平衡反応の科学はこれからの分野である。今後の研究のアプローチは以下のように考える。オーソドックスな道すじすなわち還元主義的に基礎過程から積み上げるだけでは非線形・複雑系は理解できない。なぜその形が選択されるのか、変化の中にある「分岐」の構造を明らかにすることが不可欠である。そこで、まず高倍率の電子顕微鏡で照射下で何がどのように動いているのか（転位とその集積など）を把握し、つぎにその動きを模倣するモデルを作る、作っては観察との整合性で棄却するという試行錯誤をくりかえす、という進め方をとりたいと考えている。

幸いに、現時点での複雑系の数学とコンピュータの発展はあらたな飛躍の機会をわれわれに与えている。生命の発生と同じ類の機構が原子燃料の中にあるというのは、いささか誇張だが、それを数学に引き直して研究を進めることはエキサイティングである。

参考文献

- [1] Hj. Matzke; *Radiation Effects*, 75, (1983) 317
- [2] M. Kinoshita, E. Kolstad, Hj. Matzke, V.V. Rondinella, "High Burnup Rim Project (V) - Completed scope and needs for further study -," paper F1.4, Extended Halden Program Group Meeting (EHPG), OECD Halden Project, Lillehammer Norway March 12-15, 2001.
- [3] M. Kinoshita, "Towards the mathematical model of rim structure formation," *J. Nucl. Mater.* 248(1997)185-190.
- [4] M. Kinoshita, "Mesoscopic approach to describe high burnup fuel behavior -grain subdivision and rim structure formation-," HPR-351/5 (paper No. F1.2,) EHPG, Loen, Norway, May 1999.



JP0150907

JAERI-Conf 2001-014

2.7 BINARY ENCOUNTER ELECTRON SPECTROSCOPY OF CRYSTALLINE SOLIDS BOMBARDED BY FAST IONS

H. KUDO

Institute of Applied Physics, University of Tsukuba

結晶性固体のイオン誘起 2 対衝突電子分光

筑波大学物理工学系 工藤 博

Ion-induced electron emission from solids reflects a variety of physical processes such as electronic excitation and ionization in the target material, the transport of energetic electrons through solids, and electron capture and loss of the projectile during the passage, etc. Over a hundred years many workers have studied this phenomenon not only from pure physical interest but also from practical purposes, for example, various applications to surface layer analysis of materials. These numerous experimental and theoretical studies were reviewed in a number of articles [1-5]. Also, atomic processes responsible for the ion-induced electron emission have been reviewed extensively [6,7].

While the solid targets used in most of the studies were polycrystalline, the observations using single crystal targets have been reported since the early 1960s [8-12]. In these studies, the reduced electron yields were observed when the ions were incident in transparent, i.e., channel directions of the crystal lattice. It is notable that this period overlaps the early days of ion channeling which later became a key concept in charged-particle interactions with single crystals [13-15]. Furthermore, some groups reported observations of diffraction effects of ion-induced low-energy electrons emitted from a crystal target [16-19]. At present, the diffraction and related effects should be discussed in a unified manner, for example, in connection with photoelectron diffraction which has been widely used for surface structure analysis.

The next phase of the study of ion-induced electron emission from crystal targets started from about 1980 when several groups measured ion-induced Auger electrons under channeling incidence conditions [20-22]. Their interest includes the applicability of the channeling technique to ion-induced Auger electron spectroscopy for surface structure analysis. The observed Auger energy spectra typically exhibited reduced peak height and a short low-energy tail under channeling incidence conditions. These spectra were successfully accounted for in terms of the ion beam shadowing effect. However, the reduced continuum electron yields generally observed in the experiments were explained less quantitatively [20], or attracted only minor attention [22].

The subsequent experimental studies of the continuum electron yield from crystal targets has been carried out by the research group at the University of Tsukuba. These studies rely entirely on the well established channeling technique which enables control of impact parameters in the ion-atom collision. The measurements of the continuum electron yield under channeling as well as nonchanneling incidence conditions have been continued since the late 1980s mainly at the University of Tsukuba and Japan Atomic Energy Research

Institute at Takasaki, using ion beams obtained from accelerators of the tandem or single-stage type, and from an ion implanter as well. The experimental data cover the ion energy range 0.1-10 MeV/u, ion species of atomic numbers from 1 to 17, and various charge states. Technically, the electron measurements at $\sim 180^\circ$ with respect to the ion beam direction allow practical data acquisition for solid targets. The crystal targets used include metals, semiconductors, as well as insulators.

The present understanding of the ion-induced electron emission from crystal targets is outlined as follows:

- (1) The ion-induced electron emission reflects the initial stage of ion channeling, i.e., gentle deflection of the incident ions away from the aligned atoms in the crystal, which causes reduced electron emission in a backward direction. This is clearly seen for the electrons in the keV energy range, originally produced by the binary encounter processes.
- (2) The electron emission results not only from close ion-atom collisions but also from distant collisions. Accordingly the electron emission under channeling incidence conditions is sensitive to the ion's behavior relatively far from the aligned atoms, in contrast to the close encounter phenomena such as ion backscattering or inner-shell X-ray emission.
- (3) The electron yield in the channeling case can be accounted for in terms of the effective thickness of the unshadowed surface layer and the effective escape length which characterizes the electron yield in the nonchanneling case. These quantities can be estimated from experiments, and partly from calculations. Detailed knowledge of the escape processes of the emitted electrons, including further production of energetic secondary electrons, is unnecessary in most of the applied studies.

The binary-encounter electron yield considered here results from multiple scattering of energetic ions and electrons, which would require numerical calculations in an *orthodox* approach. It has been demonstrated, however, that the electron yield under channeling as well as random incidence conditions can be explained by the model based on the useful concept, i.e., the effective surface layer responsible for production of the electron yield, which was deduced from the experimental data covering a wide ranges of the ion energy and ion species.

The analysis model of the binary-encounter electron yield established in the present work certainly enables insight into the seemingly complicated scattering and outgoing processes of energetic electrons produced in crystalline or noncrystalline solids. Also, the experimental technique developed is an example of a successful combination of the well-established experimental techniques, i.e., ion channeling and electron spectroscopy, which have so far less concerned each other.

The measurement technique, underlying physics, and several applications will be summarized in a monograph, which is to be published in the middle 2001 [23]. Evidently, the present understanding of the phenomena is more comprehensive and precise than in the earlier stage of the research. Hence several earlier papers published by the author's group are to be reviewed with adequate refinement based on the present better knowledge of the phenomena. It will provide useful knowledge especially for students and scientists working at ion-beam based research and development in various areas of atomic and solid state physics, materials

science, surface science, etc.

References

- [1] J. Schou: Scanning Microscopy, **2**, 44 (1988)
- [2] M. Rosler, W. Brauer, J. Devooght, J. -C. Dehaes, A. Debus, M. Cailler, J. -P. Ganachaud: Particle Induced Electron Emission I (Springer-Verlag, Berlin 1991)
- [3] D. Hasselkamp, H. Rotherd, K. -O. Groeneveld, J. Kemmler, P. Varga, H. Winter: Particle Induced Electron Emission II (Springer-Verlag, Berlin 1991)
- [4] R. A. Baragiola: 'Electron Emission from Slow Ion-Solid Interactions'. In: Low Energy Ion-Surface Interactions, ed. by J. W. Rabalais (John Wiley & Sons, New York 1994) pp187-262
- [5] K. Koyama: In: Ion Beam Technology, ed. by F. Fujimoto, K. Komaki (Uchida-roukakuho, Tokyo, 1995, in Jananese) Section 6.4
- [6] M. E. Rudd, Y. -K. Kim, D. H. Madison, T. J. Gay: Rev. Mod. Phys. **64**, 441 (1992)
- [7] N. Stolterfoht, R. D. DuBois, R. D. Rivarola: Electron Emission in Heavy Ion--Atom Collisions (Springer, Berlin 1997)
- [8] E. S. Mashkova, V. A. Morchanov, D. D. Odintsov: Dokl. Akad. Nauk. SSSR, **151**, 1074 (1963) [Sov. Phys. Dokl. **8**, 806 (1964)]
- [9] G. D. Magnuson, C. E. Carlson: Phys. Rev. **129**, 2409 (1963)
- [10] N. Colombie, B. Fagot, C. Fert: Radiat. Eff. **2**, 31 (1969)
- [11] B. A. Brusilovsky, V. A. Molchanov: Radiat. Eff. **23**, 135 (1974).
- [12] N. Benazeth: Nucl. Instr. and Meth. **194**, 405 (1982)
- [13] J. Lindhard: Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. **34**, No. 14, 1 (1965)
- [14] Channeling ed. by D. V. Morgan, John Wiley & Sons, London, 1973
- [15] D. S. Gemmell: Rev. Mod. Phys. **46**, 129 (1974)
- [16] V. E. Yurasova, V. M. Buchanov, M. Golo: Phys. Stat. Sol. 1 **7K**, 187 (1966)
- [17] M. Negre, J. Mischler, N. Benazeth, D. Spanjaard, Surface Sci. **78**, 174 (1978)
- [18] J. Mischler, N. Benazeth: Surface Sci. **40**, 311 (1973)
- [19] N. Benazeth, J. Agusti, C. Benazeth, J. Mischler, L. Viel: Nucl. Instr. and Meth. **132**, 477 (1976)
- [20] R. J. Macdonald, L. C. Feldman, P. J. Silverman, J. A. Davies, K. Griffiths, T. E. Jackman, P. R. Norton, W. N. Unertl: Nucl. Instr. and Meth. **218**, 765 (1983)
- [21] M. Schuster, C. Varelas: Surf. Sci. **134**, 195 (1983)
- [22] H. Kudo, D. Schneider, E. P. Kanter, P. W. Arcuni, E. A. Johnson: Phys. Rev. **B 30**, 4899 (1984)
- [23] H. Kudo: *Ion-Induced Electron Emission from Crystalline Solids* (in press as a volume of Springer Tracts in Modern Physics, Springer-Verlag, 2001)



JP0150908

JAERI-Conf 2001-014

2.8 メスバウアー分光やPACを用いた物性研究

Material Research using Mössbauer Spectroscopy and Perturbed Angular Correlation

那須三郎

Saburo NASU

大阪大学大学院基礎工学研究科、物理系専攻、物性物理科学分野

Division of Materials Physics, Department of Physical Science, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

§ 1. はじめに

放射線および放射性同位元素を用いた物性研究として、メスバウアー分光やガンマ線摂動角相関（PAC）法等が、核磁気共鳴法と同じように核物性研究手段として良く知られ、物質中に導入されたプローブ原子の詳細を核を通じて調べることを可能にしている。ここでは、⁵⁷Fe メスバウアー分光や ¹⁸¹Hf ガンマ線摂動角相関法を用いて行った以下の物性研究について述べている。

§ 2. メスバウアー分光を用いた点欠陥の研究

2.1. 強加工した Al-希薄 Fe 合金のメスバウアー効果[1]

100ppm および 50ppm の ⁵⁷Fe を不純物として含む Al-希薄 Fe 合金板状試料を液体窒素温度で、厚さ変化 50%以上の強加工を施して、加工による点欠陥を導入した。導入された点欠陥の恒時焼鈍による挙動を ⁵⁷Fe メスバウアー・スペクトルを測定することによってモニターした。点欠陥を導入する前の ⁵⁷Fe メスバウアー・スペクトルは完全なシングレットを示し、アイソマー・シフトの値からも、Fe 不純物は面心立方格子である Al の格子位置を置換型不純物原子として占有していることが明らかである。この試料を 77K で圧延強加工すると、圧延直後にすでに固溶した Fe の示すシングレットに重畠して（マイナスのドブラー速度側に）微弱ではあるがサテライトが現れる。このサテライトは強加工によって導入された点欠陥と相互作用した Fe によるものである。このサテライトすなわち点欠陥と相互作用した Fe によるスペクトルの面積強度、アイソマー・シフト、線幅の 20°/1 分の恒時焼鈍による変化を詳細に調べた結果、導入された点欠陥の恒時焼鈍による回復過程は 3 つの温度領域、77K-193K の I 段階、213K-373K の II 段階、393K 以上の III 段階、に分けられ、メスバウアー・パラメータの変化および計算機シミュレーションとの対比から II 段階は複空孔-Fe 対の生成・消滅を示し、III 段階は Fe 原子の凝集過程を示していることが明かとなった。

2.2. 電子線照射した Al-希薄 Fe 合金のメスバウアー効果[2]

Al-希薄 Fe 合金を用いて 77K の温度で電子線照射を行い、原子空孔と格子間原子を導入し、照射後、種々の温度で ⁵⁷Fe メスバウアー分光測定を行い、得られた点欠陥と対を

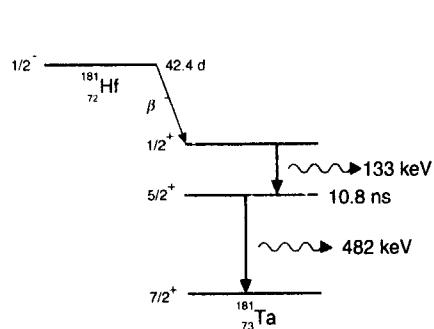
なした Fe によるスペクトルを詳細に解析した。特に、スペクトル形状の温度依存性に注目し、理論的考察も行い、以下の結論を得た。

- Al-100ppm⁵⁷Fe を用いた測定では、固溶 Fe による成分のほかに点欠陥と相互作用した Fe による defect-line が観測された。その成分は 15K~20K の温度範囲で面積強度の急激な減少を示し、そのような振る舞いは温度に対して可逆的であった。温度上昇に伴う線幅の増減、四極子分裂の急激な減少も観測され、これらの事から、Fe 原子は混合亜鉛型格子間原子を形成し、cage motion を行っていることが吸収体実験で初めて確認された。
- defect-line の線幅の温度依存性から、cage motion の活性化エネルギーは 11 ± 4 meV である。
- defect-line は 180K~200K 付近でその面積強度が減少することから、混合亜鉛型格子間原子は、この温度領域で原子空孔と結合することによって消滅する。
- Al-200ppm⁵⁷Fe においても Fe 原子の cage motion が確認された。
- cage motion による γ 線の位相変化と四極子分裂の緩和効果を考慮した γ 線の放射確率を計算し、メスバウアー・スペクトルを構築した結果、測定されたスペクトルと良い一致を示し、パラメータの温度依存性も再現することができた。
- 照射中の点欠陥の反応を明らかにする目的で、反応速度論によるシュミレーションを行った結果、照射初期から格子間原子—溶質原子複合体が形成され、その結合エネルギーは 0.2eV 以上である。

§ 3. PAC（摂動角相関）法による物質の微視構造の研究

3.-1. Hf および Hf-Zr 合金の TDPAC

γ 線摂動角相関法は、メスバウアー分光法と同じように超微細相互作用を測定する核物性法の一つである。核がエネルギーの異なる 2 つの γ 線を連続して放出する γ カスケード壊変をする場合、2 つの γ 線の間には核スピンに依存した角相関が存在し、角相関は超微細磁場や電場勾配などの摂動を受けると変化する。角相関の時間変化を測定し核位置での磁場や電場勾配を測定する方法は時間微分型摂動角相関法 (Time-Differential Perturbed Angular Correlation: TDPAC) である。本研究では ¹⁸¹Ta (\leftarrow ¹⁸¹Hf) をプローブ核とした TDPAC から Hf 原子位置での ¹⁸¹Ta 超微細相互作用の測定を行った。ここでの試料は Hf 及び Hf-10, 30, 50, 70%Zr 合金である。これらの試料を原子炉中性子照射による ¹⁸⁰Hf(n, γ)¹⁸¹Hf 反応により各試料中に ¹⁸¹Hf を生成し室温において測定を

¹⁸¹Hf 崩壊図

中間準位のパラメーター

$$\begin{aligned} I &= 5/2^+ \\ \tau_{1/2} &= 10.8 \text{ ns} \\ g_N &= +1.30 \\ Q &= +2.80 \text{ barns} \end{aligned}$$

Fig. 1 ¹⁸¹Hf の崩壊図と中間準位のパラメータ

行った。Fig. 1 に ^{181}Hf の崩壊図と中間準位のパラメータを示す。Zr と Hf は hcp 構造を持ち、全組成に亘って全率固溶体を形成する。得られた ^{181}Ta TDPAC スペクトルは全て四極子相互作用すなわち電場勾配の分布を示している。2 種類の分布が存在し、それらの量比は Zr 濃度に依存している。10%Zr 試料で分布幅は増大し、50%Zr で分布幅は最大となり 70%Zr 合金で再び減少する。これらの結果は ^{181}Ta 原子の近接サイトでの Zr 原子数の変化に対応している。

3.-2. Hf/Fe 金属多層膜の TDPAC

Hf/Fe 金属多層膜は軟磁性を示す磁性多層膜の一つとして知られ、磁気ヘッド用の磁性膜として研究されてきたが、本来非磁性の Hf 層と強磁性体である Fe 層との界面の磁気的性質が重要である。さらに、非磁性体である Hf 層の磁性を調べる方法は他になく、 $^{181}\text{Ta}(\leftarrow ^{181}\text{Hf})$ TDPAC 測定によってのみ可能である。本研究は Hf/Fe 金属多層膜の界面および Hf 非磁性層の磁気的性質を調べる目的で ^{181}Ta をプローブ核として TDPAC 測定を行った。試料は電子ビーム蒸着法で作製した $[\text{Hf} (1\text{nm}, 2\text{nm}, 4.8\text{nm}, 10\text{nm}, 200\text{nm})/\text{Fe} (200\text{nm})]_n$ である。Fig. 2 に金属 Hf および $[\text{Hf}(200\text{nm})/\text{Fe}(200\text{nm})]_n$ の ^{181}Ta TDPAC スペクトルを示す。広い電場勾配の分布が存在しているが 200nm の Hf 層は hcp 構造の Hf 金属層であることを示している。 $[\text{Hf} (1\text{nm}, 2\text{nm}, 4.8\text{nm}, 10\text{nm})/\text{Fe} (200\text{nm})]_n$ 多層膜の ^{181}Ta TDPAC スペクトルは $[\text{Hf}(200\text{nm})/\text{Fe}(200\text{nm})]_n$ 試料で得られたスペクトルとは全く異なったものであり、界面および強磁性 Fe 層による磁性、すなわちスピン分極が ^{181}Ta 核位置に超微細磁場を作っていることが判明した。ここでは示さないが、得られた磁気相互作用による周波数分布は大きく分類して 3 種類存在し、それらの強度（量比）は Hf 層の膜厚に依存している。大きな内部磁場の成分は界面で Fe 層側に入り込んだ Hf 原子、2 番目の成分はその強度が大きく膜厚保に依存しているので界面での x Hf 原子によるものであると解釈することができる。比較的小さな内部磁場を示す成分は Hf 層内の Hf 原子によるものと解釈できる。これらのことから $[\text{Hf}(2\text{nm})/\text{Fe}200\text{nm}]_n$ および $[\text{Hf}(1\text{nm})/\text{Fe}(200\text{nm})]_n$ 多層膜中の Hf 層は磁性体になっていることが判明した。

Reference

- [1] S. Nasu, R.S. Preston and U. Gonser, Mat. Science Forum, **15-18** (1987) 599-604.
- [2] S. Nasu, Radiation Effects & Defects in Solids, **148** (1999) 181-190.

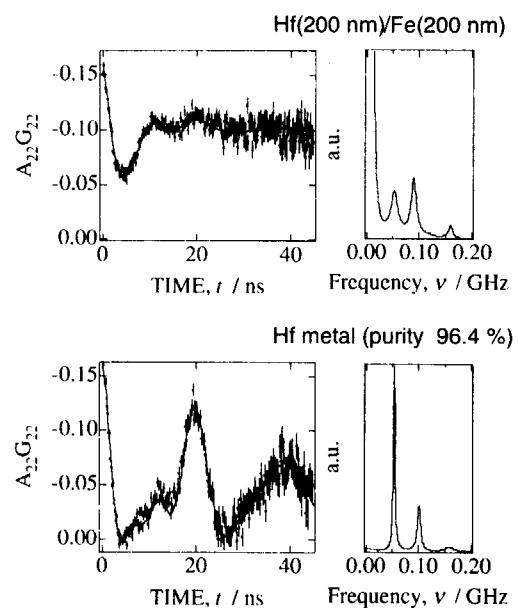


Fig. 2 Hf(200nm)Fe(200nm)金属多層膜の ^{181}Ta TDPAC (上図) 及び Hf 金属の ^{181}Ta TDPAC スペクトル。
室温測定。



JP0150909

JAERI-Conf 2001-014

2.9 超重元素領域の蒸発核残留断面積

Evaporation residue cross section in the superheavy mass region

甲南大学 理学部 物理 太田雅久

M. OHTA

Department of Physics, Konan University, Kobe, Okamoto 658-8501 Japan

In this report, on the analysis of the evaporation residue cross section in the superheavy mass region, the following items are described.

- (i) The way of thinking for the present systematic analysis
- (ii) The reliance of the present results for a new future experimental design
- (iii) The perspectives of our investigation

The synthesis of superheavy elements is carried out most likely by the fusion reaction following the measurement of the evaporation residue nucleus. The evaporation residue cross section can be described in terms of the product of the two factors: the formation probability P_{for} and the survival probability P_{sur} , and can be written as

$$\sigma_{ER} = \frac{\pi}{k^2} \sum_l (2l+1) P_{for} P_{sur},$$

where k is the wave number for the incident channel.

When we analyze the evaporation residue cross section systematically from $Z=102$ to 120 and also for the various entrance mass combination, the quantities P_{for} and P_{sur} vary from the order of 0.1 to 10^{-10} independently depending on the entrance mass asymmetry ($\alpha = |A_1 - A_2|/(A_1 + A_2)$), and the neutron number, the deformation, the excitation energy of the compound nucleus etc..

Many prediction for the synthesis of the unknown element, for example the reaction $^{76}\text{Ge} + ^{208}\text{Pb} \rightarrow 114$ which is very popular now, are reported. The value of the prediction for the above example lies between $0.12\text{pb} \sim 1.0\text{pb}$ [1] and it seems to be around a stable value, but it is supposed that the individual value of P_{for} and P_{sur} are frequently quite different in each prediction, that is to say, the physical

interpretation is different each other. For the reaction $^{86}\text{Kr}+^{208}\text{Pb}$, the prediction is unstable, i.e., $5.1\text{fb}\sim 670\text{pb}$ [1].

Why the systematic analysis is needed is to have a confirmed understanding on the new reaction mechanism expanding in the superheavy mass region. To get the absolute value itself is not the main purpose of the present systematic analysis. By using the most reliable model which can be constructed in term of the available current knowledge, we investigate the various reaction channel in the region of $Z=102\sim 120$ under the fixed model parameters and have an understandings on the general trend for the synthesis of superheavy elements. This work is inevitable for the new experimental design and this is the answer for the item (i).

The formation probability is given as the functional form $P_{for}(Z, \alpha, E^*)$ in the present analysis for the estimation of any compound nucleus with Z and E^* through the entrance channel with any mass asymmetry α . P_{for} is derived from the limited data for the formation probability calculated by 3D-Langevin equation by Aritomo *et al.*[2, 3] and Okazaki *et al.*[4, 5], and is derived from the systematic knowledge on the potential energy surface along the fission path for the compound nucleus with $Z=102\sim 120$. The guiding principle for the derivation of the functional form is the diffusion probability overcoming the barrier ΔV under the contact of the heat bath of the temperature T which is rather confirmed as the classical diffusion process.

$$P \sim \exp(-\Delta V/T)$$

In the present study, ΔV is corresponding to the potential energy difference between the value at the contact configuration of the reaction system and the value at the saddle configuration of the compound system.

We know that ΔV is roughly proportional to Z and can be expressed as a function of α as follows,

$$\Delta V \sim (Z - 100) \frac{1}{1 + \exp((\alpha - 0.5)/\Delta)},$$

The final expression for P_{for} is

$$\log_{10} P_{for}(Z, \alpha, E^*) = 0.4 - \frac{4 + (\frac{1}{\sqrt{E^* - E_B^* + 10}} + 0.085)(Z - 100)}{1 + \exp((\alpha - 0.5)/\Delta)},$$

where E_B means the interaction barrier height.

The survival probability has been estimated by the simulation code using the information on $\Gamma_n(E^*)/\Gamma_{total}(E^*)$ which is incorporated into the definition of P_{sur} as follows.

$$P_{sur} = \prod_{i=1}^N \Gamma_n^{(i)} / \Gamma_{total}^{(i)},$$

where i means the evaporation step and N the maximum number of the evaporated neutron. $\Gamma_{total}^{(i)} = \Gamma_n^{(i)} + \Gamma_f^{(i)}$. It is noted that the collective enhancement in the level density of the compound nucleus for the ground state configuration and the saddle one is very important. Here the prescription given by Junghous *et al.* is adopted.

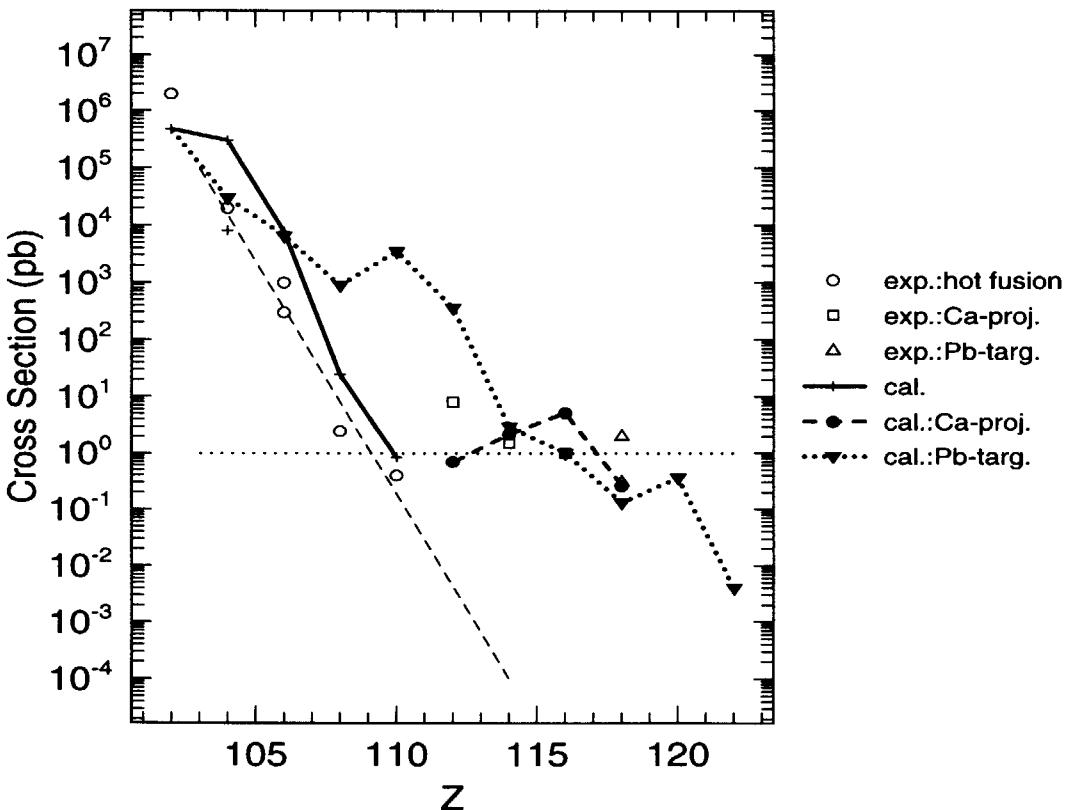


Figure 1: Maximum evaporation residue cross section in the over-barrier energy region.

It is reasonable to say that our prediction for both P_{for} and P_{sur} has an uncertainty of one order respectively, therefore σ_{ER} may contain the error of ± 1.5 orders. However, the relative trends of the experimental value over the wide range can be

reproduced as shown in Fig.1, and this theoretical trend is rather stable result under the change of the model parameters. This is the answer for the item (ii). In Fig.1, the open circles show the experimental data which is so called "hot fusion"; $^{48}\text{Ca}+^{208}\text{Pb}$ [6], $^{15}\text{N}+^{249}\text{Bk}$ [7], $^{18}\text{O}+^{249}\text{Cf}$ [8, 9], $^{34}\text{S}+^{238}\text{U}$ [10], and $^{34}\text{S}+^{244}\text{Pu}$ [11]. The open squares show the experimental data by the Ca projectile[12] and the open triangles the data for the Pb target[13]. The solid line shows the prediction by our model for the series of the hot fusion mentioned above. The dotted line is the prediction for the series of the Pb target experiment. The broken line indicates the prediction for the data of Ca projectile.

Finally, a comment on the item (iii) is presented below. The future work in this project is to reduce the uncertainty in the cross section by improving the treatment of P_{for} and P_{sur} . On the way of this study, as a by-product we may face with a lot of interesting problem connected with a new reaction mechanism in the very heavy mass region. In this sense, the present study gives a meaningful contribution to reveal the unknown physics lying in the reaction mechanism in the superheavy mass region.

References

- [1] Sammarized in S.Hofmann and G.Münzenberg, Rev. Mod. Phys. **72** (2000) 733. See the references appeared in the above paper: Adamian *et al.*, 1999/ Cherepanov, 1999a,1999b/ Denisov and Hofmann, 1999/ Giardina *et al.*, 2000/ Smolanczuk, 1999a.
- [2] Y.Aritomo *et al.*, Phys. Rev. **C55** (1997) R1011.
- [3] Y.Aritomo *et al.*, Phys. Rev. **C59** (1999) 796.
- [4] M.Ohta *et al.*, Acta Physica Hungarica Heavy Ion Physics **10** (1999) 253.
- [5] T.Wada *et al.*, Proc. of 4th Int. Conf. on Dynamical Aspect of Nuclear Fission, Slovak 1998(world Scientific 2000) p.77.
- [6] Yu.Ts.Oganessian, Phys. of Atomic Nuclei **63** (2000) 1391.
- [7] J.M.Nitschke *et al.*, Nucl. Phys. **A352** (1981) 138.

- [8] A.Ghiorso *et al.*, Phys. Rev. Lett. **33** (1974) 1490.
- [9] V.A.Druin *et al.*, Sov. J. Nucl. Phys. **29** (1979) 591.
- [10] Yu.A.Lazarev *et al.*, Phys. Rev. Lett. **75** (1995) 1903.
- [11] Yu.A.Lazarev *et al.*, Phys. Rev. **C54** (1996) 620.
- [12] Data by Dubna's group.
- [13] Data by V.Ninov *et al.*, GSI-group and RIKEN-group.



JP0150910

JAERI-Conf 2001-014

2.10 重元素合成のための変形核の融合反応機構

Fusion mechanism of deformed nuclei for heavy element synthesis

池添 博、光岡 真一、西尾 勝久、佐藤健一郎

Hiroshi IKEZOE, Shin-ichi MITSUOKA, Katsuhisa NISHIO, and Ken-ichiro SATO

原研 先端基礎研究センター

Advanced Science Research Center, JAERI

重イオンの融合反応を利用して超重元素を合成する試みが1970年代から今日まで米国、ロシア、ドイツ等で行われてきた。最近の数年間の進展は目覚しく、ドイツGSIで $Z=112$ まで合成されたのにつづき、ロシアのDubnaで $Z=114$ 、116、米国バークレーでは $Z=118$ の合成に関する報告まであった[1,2]。いずれの報告でも超重元素の生成断面積は原子番号が大きくなるにつれて急激に減少し、数pb程度である。重い原子核同士の融合反応ではクーロン障壁を越える入射エネルギーで衝突しても複合核の形成に至らないことがある。このことはエキストラプッシュ現象として知られているが、そのメカニズムは未だ完全には解明されていない。現象的にはエキストラプッシュ現象は入射核と標的核の原子番号の積 $Z_p Z_t$ に強く依存する。また入射核と標的核の殻構造にも依存することが知られている。

重イオンの融合反応では融合障壁と複合核のサドル点との相対的な位置関係が重要である。軽い核同士の融合反応では融合障壁の位置はサドル点より内部にあり、融合障壁を越えれば複合核の形成に向かう。一方、重い核同士($Z_p Z_t > 1800$)の融合反応ではサドル点が融合障壁より内部に位置する。この場合は融合障壁を越えても複合核の形成に向かうためにはさらなるエネルギーが必要になる。従って、融合障壁がサドル点にできるだけ近い反応系が融合しやすいことになる。変形核を使うと、変形の向きによって融合障壁の位置が大きく変化する。長軸側から衝突すると融合障壁の高さは低いがその位置は複合核のサドル点からは離れる。一方、短軸側では融合障壁は高いがその位置はサドル点に近づいている。この点に着目して変形核同士の融合で超重元素を合成する可能性が理論的に提案されている(密着融合)[3]。この反応では、変形核の対称軸が互いにクロスする向きで衝突すると最もコンパクトな衝突形状ができ、融合しやすいと予想されている。さらに、衝突形状が軸対称性を持たないため、反応の過程で複合核を形成しないで核分裂過程へ向かう確率も小さいと予想されている。

この密着融合の可能性を探るために、希土類核の標的核に球形の入射核を当てて重イオンの融合確率が核の変形の向きにどのように依存するかを調べた。入射核が小さいとき変形核の長軸側で衝突するとクーロン障壁が低いため、この障壁を越えるに十分な入射エネルギーがあれば、入射核は容易に内部に入り融合する。たとえば、 $^{16}\text{O} + ^{154}\text{Sm}$ [4] や $^{40}\text{Ar} + ^{154}\text{Sm}$ [5]などの場合がこれに当たる。これらの融合断面積データはサブバリアー領域で ^{154}Sm が変形していることによる融合断面積の増大を示している。ここでは入射核が重くなつて積 $Z_p Z_t$ が大きくなったとき、変形核の関与する融合反応がどうなるかに注目した。実験では $^{60}\text{Ni} + ^{154}\text{Sm}$ 融合反応(複合核 ^{214}Th)と $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ 融合反応(複合核 ^{226}U)での生成核断面積を測定した。

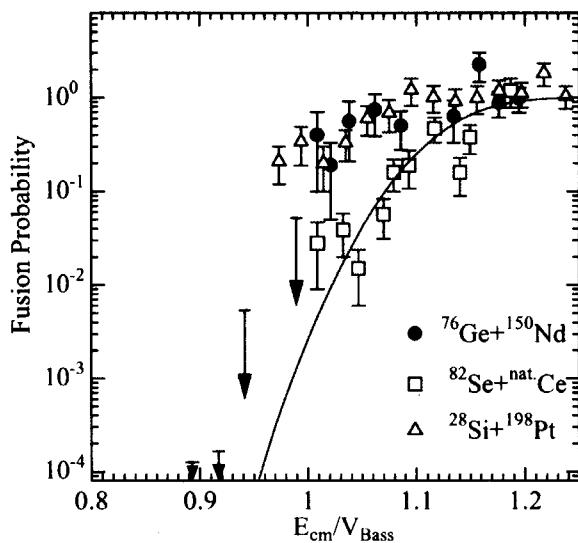


図1 融合確率の入射エネルギー依存性。横軸は重心系でのエネルギーをバス障壁で規格化してある。

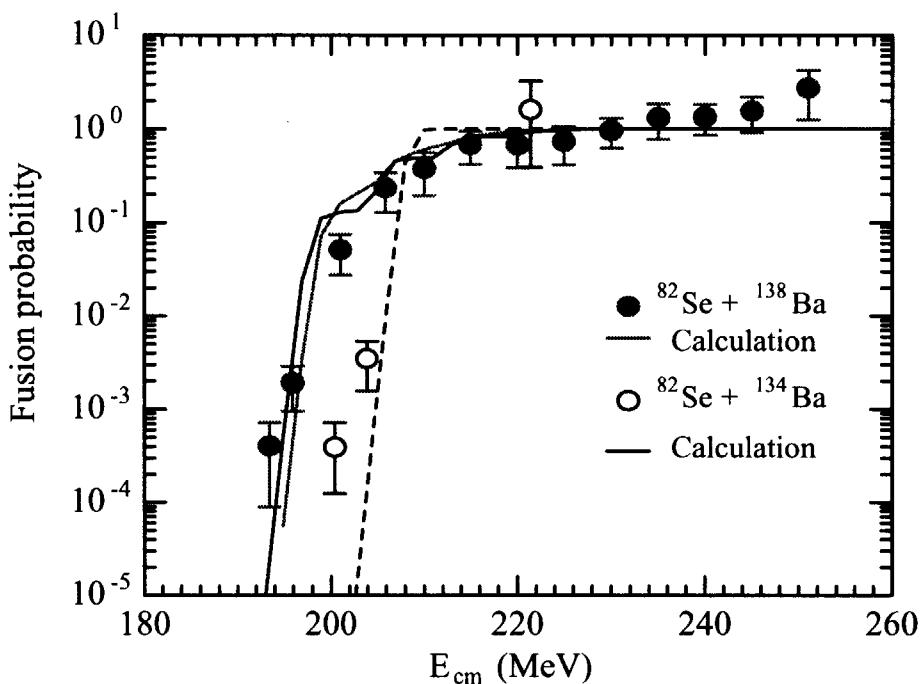
また、閉殻構造を持つ原子核同士の場合、球形を保ったまま深く進入する可能性が Möller らによって指摘されている[6]。すなわちサドル点により近づいて衝突する。このことと関連して Oganessian 等によって示された $^{86}\text{Kr} + ^{130,136}\text{Xe}$ 融合反応に見られる生成断面積の中性子数（殻構造）への強い依存性[7]は興味深い。そこで他の反応系 ($^{82}\text{Se} + ^{134,138}\text{Ba}$) でも殻構造の影響が見られるかどうかも調べた。

実験は原研タンデム・ブースター加速器と反跳生成核分離装置 [8]を使って行われた。実験の詳細は参考文献[9]に報告されているのでここでは実験結果を簡単に述べる。

$^{60}\text{Ni} + ^{154}\text{Sm}$ 融合反応と $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ 融合反応では、長軸側での衝突では融合確率が大きく減少するが、短軸側での衝突ではそのような現象は見られず理論的に予想される値になることがわかった。例えば $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ 融合反応の場合、融合確率を球形核同士の反応 $^{82}\text{Se} + ^{\text{nat}}\text{Ce}$ (複合核 $^{222,224}\text{U}$) と比較したものを図1に示した。 $^{82}\text{Se} + ^{\text{nat}}\text{Ce}$ 系の場合はエキストラプッシュエネルギーが 28MeV 程度になり通常のエキストラプッシュ現象として知られている振る舞いを示す。一方、 $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ 系ではバスバリアー以上では $^{28}\text{Si} + ^{198}\text{Pt}$ 反応と似たエネルギー依存性を示し融合確率は 1 に近いが、バスバリアー以下では融合確率の急激な現象を示している。

融合確率の中性子数依存性を調べた実験結果を図2に示す。 $^{82}\text{Se} + ^{134}\text{Ba}$ と $^{82}\text{Se} + ^{138}\text{Ba}$ 反応での融合確率を入射エネルギーの関数として示してある。 $^{82}\text{Se} + ^{134}\text{Ba}$ 反応の場合、入射エネルギー 200MeV (励起エネルギー 20MeV 程度) 付近から低エネルギー側で融合確率が大きく減少し $^{82}\text{Se} + ^{138}\text{Ba}$ 反応系の 100 分の 1 程度になることがわかった。この現象は Oganessian 等によって示された $^{86}\text{Kr} + ^{130}\text{Xe}$ 系と $^{86}\text{Kr} + ^{136}\text{Xe}$ 系の場合と類似している。 $^{222,220}\text{Th}$ では (Xe-Kr) や (Se-Ba) に非対称核分裂する確率があるが ^{216}Th ではのような非対称核分裂の可能性は小さいことが知られている。 ^{86}Kr や ^{82}Se の中性子数は 50 と 48 で閉核と閉核近辺であるので Xe や Ba の中性子数が 82 である場合、閉殻構造となり分裂点はコンパクトな形状になっていると考えられる。このような場合、核分裂とは逆の過程をたどって融合する可能性があり、このことをこれらの実験は示しているのではないか[7]。

これからはより重い反応系で変形核の効果や殻構造の影響を調べることが重要である。

図2 ${}^{82}\text{Se} + {}^{134}\text{Ba}$ と ${}^{82}\text{Se} + {}^{138}\text{Ba}$ 反応の融合確率

References

- [1] Yu. Ts. Oganessian et al., Phys. Rev. C **63** (2000) 011301(R).
- [2] V. Ninov et al., Phys. Rev. Lett. **83** (1999) 1104.
- [3] A. Iwamoto et al., Nucl. Phys. **A596** (1996) 329.
- [4] R.G. Stokstad and E.E. Gross, Phys. Rev. C **23** (1981) 281.
- [5] W. Reisdorf et al., Nucl. Phys. **A438** (1985) 212.
- [6] P. Möller et al., Z. Phys. A **359** (1997) 251.
- [7] Yu. Ts. Oganessian, 'Heavy Elements and Related New Phenomena' edited by W. Greiner and R.J. Gupta, Vol. 1, pp.43-67
- [8] H. Ikezoe et al., Nucl. Inst. And Meth. A **376** (1996) 420.
- [9] S. Mitsuoka et al., Phys. Rev. C **62** (2000) 054603; K. Nishio et al., Phys. Rev. C **62** (2000) 014602; K. Nishio et al., Phys. Rev. C **63** (to be published).



JP0150911

JAERI--Conf 2001-014

2.11 Computer Simulation of the relaxation process after ion impacts

イオンビーム照射による緩和過程のシミュレーション

S.T.NAKAGAWA：中川幸子

Graduate School of Science, Okayama Univ. of Science：岡山理科大学理学研究科

1. Introduction

We have been researching in the relaxation process after ion impacts onto materials. Such an intermediate process is a competing process among various relaxation events under a non-equilibrium situation. This should be solved using time dependent equations, e.g., the diffusion equation or the equation of motion. Here we adopted the latter, *i.e.*, we did molecular dynamic simulation (MD), using empirical interatomic potentials.

It is often observed that some implanted ions agglomerates in a host material, when their concentration exceeds a certain level. For example the critical concentration is 1~2 atomic % for cases of Au, Ag, B, in Si [1]. The agglomeration means the phase separation which has been long discussed in alloy physics. The criterion whether the alloy phase would occur or not was said to rely on the sign of the formation enthalpy[2]. This criterion supported the almost case of ion beam mixing[3].

Thus far we reproduced the B agglomeration, with keeping the heat bath temperature at RT[1] and also confirmed that the critical concentration for B clustering was 2% as was measured[4]. Nevertheless the essential point was that only electrostatic interaction could not explain the B agglomeration at RT. The ion impacts were indispensable for that.

The present inquiry concerns what is the essence of the ion impacts. Because when the calculation was done at RT, it was not clear that thermal or athermal events took place.

2. MD Simulation

The experiment was done using 35keV B with a fluence of $3 \times 10^{16} \sim 1 \times 10^{17}/\text{cm}^2$ at RT. The target was not heated more than 50 deg than RT. If the enthalpy rule is considered, strong electrostatic interaction should exert only between B ions, even farther than 10Å away. This was a strong enough reason to study the subject using MD[1].

The whole area where kinetic or dynamic disturbance occurred was too wide for MD simulation. Moreover the agglomeration will take place only close to the depth of the mean projected range, 1300Å. Therefore we took advantage of a Monte Carlo (MC) simulation that analyzed the atomic collisions over the whole area. Based on the results of the MC, we started MD[1], in order to study the relaxation process. This was a new way to connect MC with MD.

The temperature of the heat-bath was taken down to 10K, to suppress the thermal effect as much as possible. The transient temperature after an ion impact and the elapsed time for cooling was calculated.

The intermediate information of atomic locations gave us the behavior of defects. We extract three kinds of defect information. The macroscopic view is obtained by the *pixel mapping* of entire atoms. The microscopic view is obtained by the radial distribution function of each atom. The mesoscopic view is obtained by the cluster-size distribution of agglomerating atoms[1].

2. Methods of Defect Analysis

The damage will proceed along ion impacts. The degree is determined by the number of ions, in addition to the incident energy, incident direction, and incident position.

When estimating the reasonable number of the ion impacts using the MC result, the B implantation of $10^{17}/\text{cm}^2$ roughly corresponds to the entering of 150 projectiles into our MD box. Therefore the maximum number of projectiles was less than 200. Then we looked at the time line of the growth of defects, paying attention to when and how the change happened, continuously or drastically, by means of the three different views mentioned below.

2-1. Macroscopic view of defects: Pixel mapping

We propose a new method of the *pixel mapping* to analyze the defect formation in crystalline target [5]. This accounts for all the atoms in a crystalline MD cell and gives a macroscopic viewpoint.

In a crystal, stable and metastable sites exist besides various unstable sites. A Si crystal has a diamond structure, which is composed of two fcc-crystals. All lattice points are stable sites. When the crystal is perfect, the numbers of occupied sites for these two lattices are equivalent. When dividing one cubic unit of a perfect diamond structure into $4 \times 4 \times 4$ pixels, each atom is located in a pixel, and no pixel contains more than two atoms. All other pixels are classified into metastable and unstable sites.

2-2. Microscopic view of defects: Radial distribution function

The Tersoff potential for Si-Si interaction is truncated at 3\AA , whereas both B-B and B-Si potentials at 6\AA . Therefore the radial distribution function of atoms are taken up to 5\AA for cases; Si-Si, Si-B, B-B, and B-Si. These reveal the microscopic map of atomic locations.

The radial distribution function, $g(r)$, gives us different information for atomic combinations. The Si-Si combination shows how strong the damage of host crystal is. The B-Si (or Si-B) implies how impurity ions are well accommodated, and the B-B how well the clustering proceeds.

2-3. Mesoscopic view of defects: Cluster distribution

The critical concentration of B ions for clustering in Si was 2%[4]. This implies that two B ions separated by more than 10\AA cohered on average. This event resembles the fluctuation accumulation that triggers the phase transition.

In the case of (c), 100 B ions with kinetic energy below 1keV were implanted into the MD box, and 42 B ions were trapped inside.

3. Results:

We had observed how the agglomeration process progressed according to ion impacts [1]. Therefore the defect analysis focused mainly in the method 2-1) and 2-3). The following Table shows the influence of ion impact by means of pixel mapping at RT.

	Si-stable, metastable				Bi-stable, metastable				Si-unstable				B-unstable				total atoms
	(1)	(2)	(T)	(O)	(1)	(2)	(T)	(O)	(1)'	(2)'	(T)'	(O)'	(1)'	(2)'	(T)'	(O)'	
(a)	864	864	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1728
(b)	861	863	0	0	0	0	22	27	0	0	1	1	0	0	2	0	1779
(c)	137	107	124	107	0	4	1	4	308	348	329	268	7	8	8	10	1770

Table 1 Pixel mapping of Si:B : (a): perfect Si, (b): Si with 2.5% B is thermalized, (c): Si with 2.5% B produced by ion implantation. Primes denote "off-site of" corresponding site with the same label.

3-1. Initial stage of defect formation

The following Fig.1 shows the initial stage showing the change in atomic locations due to the violent ion impacts. In this case, metastable interstitial site (O) was occupied instantaneously, after some ion impacts, whereas the atomic location seemed almost invariant, moreover the agglomeration process progressed gradually.

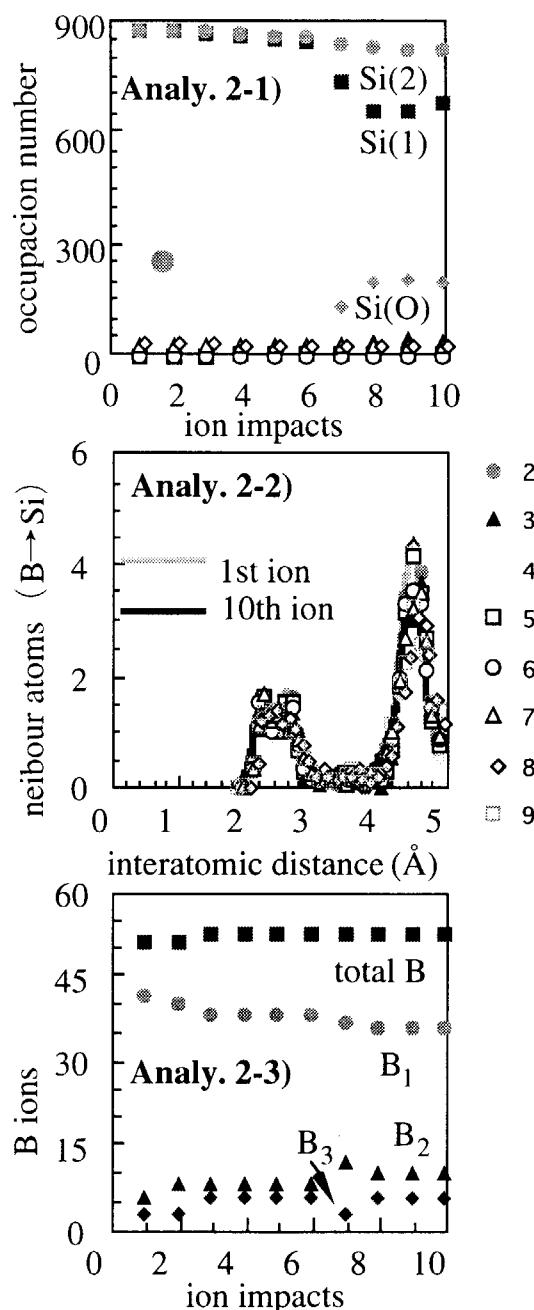


Fig.1 Defect analysis due to B ions with energy below 5keV at 200K, into Si containing 3% of B initially.

3-2. Entire stage of defect formation

As is known the target temperature is the most decisive factor to determine the behavior of the defect. In Fig.1 we show the case of 200K. At a much lower temperature, e.g. at 10K, the recovery of defects occurs very rarely. Once defects were formed they did not change. This is commonly observed in three kinds of analysis. On the other hand at a higher temperature, e.g., at RT, some defects returned to the original state, thus reset mechanism seemed to have worked, whereas the agglomeration process still continued to produce larger clusters [5].

4- Conclusions:

Making use of a Molecular Dynamics simulation for B ions implanted into crystalline Si, we analyzed the intermediate process of agglomeration associated with defect formation. When the target temperature was low enough, defects were produced greatly at the initial stages and permanent, whereas the agglomeration continued to yield larger clusters as ion impact continued. Therefore the essential parameter to govern the agglomeration process seems to be somewhat accumulative quantity, not some invariant quantity like temperature.

Acknowledgements

The author is indebted to the financial support from the Frontier project of the Ministry of Education , Culture, Sports, Science and Technology of Japan.

References

- [1] S.T.Nakagawa and G.Betz, Nucl. Instr.Meth. B, in press (2001).
- [2] D.A.Porter and K.E.Easterling, "Phase Transformations in Metals and Alloy", pp18-21, (Chapman & Hall, London, 1992).
- [3] C.J.McHargue, D.L.Joslin, and C.W.White, Nucl.Instr. Meth.B **9** 1, 549-557, (1994).
- [4] I.Mizushima et al., Materials Chemistry & Physics **5** 4, 54-59 (1998).
- [5]S.T.Nakagawa, submitted (2001).



JP0150912

JAERI-Conf 2001-014

2.12 重イオン照射した QMG-YBCO のピン止め特性

PINNING PROPERTIES OF QMG-YBCO BULK SAMPLES

原研 岡安 悟、笹瀬雅人、黒田直志、岩瀬彰宏、数又幸生

理研 神原正

S. OKAYASU^a, M. SASASW^a, N. KURODA^a, A. IWASE^a, Y. KAZUMATA^a and T. KAMBARA^b

^aJAERI, Tokai, Ibaraki 319-1195, Japan

^bRIKEN, Wako-city, Saitama 351-0198, Japan

abstract

A comparison between two different irradiation effects was accomplished on bulk YBCO samples synthesized with the quenched melt and growth method (QMG-YBCO) to investigate strong pinning properties. High-energy proton-irradiation introduces small defects comparable to unit cell size into the sample, and they act as effective pinning centers for all temperature range in low field around 1 Tesla. No enhancement, however, can be seen in higher field range. The defects introduced with the irradiation reinforce the pinning properties of pre-existing pinning centers randomly distributing in the sample. Column-like defects with 3.5GeV Xe-irradiation were introduced but the pinning properties show no significant enhancement except higher temperature region. This indicates that pre-existing pinning centers are strong enough than the columnar defects. In higher field region, the contribution of columnar defects for pinning becomes relatively large. For both irradiation cases, almost pinning properties are determined by the pre-existing pinning centers.

PACS:74. 72. Bk;74. 60. Ec;74. 60. Ge

Keyword : QMG-YBCO; ion irradiation; pinning properties

*Corresponding author. Tel: +81-29-282-5466; fax: +81-29-282-6716.

E-mail address: okayasu@popsvr.tokai.jaeri.go.jp

1. Introduction

For high-T_c superconductors, three different energies, such as pinning, vortex interaction, and thermal fluctuation, are very close. And these materials show very complicated phase diagram of mixed state. For applications of high-T_c superconductors, it is important to know the relation among the vortex matters and pinning centers. We investigated the irradiation effects on pinning introducing two different pinning centers.

2. Experiments

Samples were synthesized with the quenched and melt-growth method (the QMG-method) in Advanced Research Institute, Nippon Steel Co. They contain Y211 small inclusions ($d \sim 1 \mu m$) up to 30 mol-%. Samples were cut into small pieces for each irradiation. Ion irradiation with 30MeV-protons was accomplished at the Tandem Accelerator in JAERI. The irradiation dose was 1×10^{16} ions/cm². Irradiation with 3.5GeV-Xe ions was also carried out at the Ring Cyclotron Facility in RIKEN. The irradiation dose was 1×10^{11} ions/cm² (corresponding matching field $B_\phi = 2$ T). Pinning properties, such as magnetizations, critical current densities, long-time magnetization decays, were measured with a commercial SQUID and a usual magnetometer (MPMS and PPMS, Quantum Design).

3. Results and discussion

Critical current densities (J_c) after proton irradiation are enhanced for all temperature range at around 1T field region. Effective activation energies are also enlarged around 1T[1, 2]. On the other hand, no significant change on J_c can be observed for the Xe-irradiated sample[3]. For the Xe-irradiated case, a curious recovery of magnetization around 60 K can be observed on long-term magnetization decay measurements above the matching field region. This can be considered the change of pinning host from the inclusions to the columnar defects at that temperature range.

It is known that two empirical power-laws are valid for high-T_c superconductors[4] ; one is the relation between the irreversibility temperature and the irreversibility field, and the other is that between the irreversibility field and the maximum value of the pinning force. The former can be expressed as $H_{irr} = A (1 - T_{irr}/T_c)^\alpha$, and the latter as

$F_{p\text{-max}} = B H_{\text{irr}}^{\beta}$, where A and B are the fitting constants and α and β are the powers obtained from the fitting. Fig. 1 shows the two power-laws above 60 K. The relations mentioned above are valid for each case, un-irradiated, proton-irradiated and Xe-irradiated, respectively. Another empirical relation for field dependence of the pinning force is also known as $F_p / F_{p\text{-max}} = C b^\gamma (1-b)^\delta$, where C is a normalized constant and $b = B / \mu_0 H_{\text{irr}}$. Combining these relations, we can derive the following formula for the pinning force as $F_p = C B A^\beta (1 - T_{\text{irr}}/T_c)^{\alpha\beta} b^\gamma (1-b)^\delta$. Using the result of fig. 1 and choosing appropriate γ and δ , we can calculate the pinning forces and compare them with the data. Fig. 2 shows the result. The agreement is excellent except the regions around the second peak (for un-irradiated one). For all cases, the powers of b (field dependence below $F_{p\text{-max}}$) are almost 1. The powers of $(1-b)$ are 3~4 for unirradiated and p-irradiated case. Furthermore, agreement between measured data and fitted values are also good enough below 60K using the same fitting parameters above 60K for un-irradiated and proton-irradiated cases (fig. 3). Parameters obtained at higher temperature range are valid even at lower region. This suggests that pinning properties does not change essentially for both two cases. Randomly distributed pinning centers govern the pinning.

The sample irradiated Xe-ions shows a different property of F_p . The power of $(1-b)$ is 2 above 60K, but it changes to almost 4 below 60K. This may indicate that the dominant pinning host changes around this temperature. Pinning centers change from Y211 inclusions (dominants at lower temperature) to the columnar defects (dominant at higher temperature). This is consistent with the result of long-term decays.

Acknowledgements

The authors would like to thank to Dr. H. Teshima in Nippon Steel Co. for preparation the QMG samples. We also thank Dr. A. Nakamura in JAERI for our SQUID measurements. This work was supported by the MULTICORE project organized by the Science and Technology Agency in Japan.

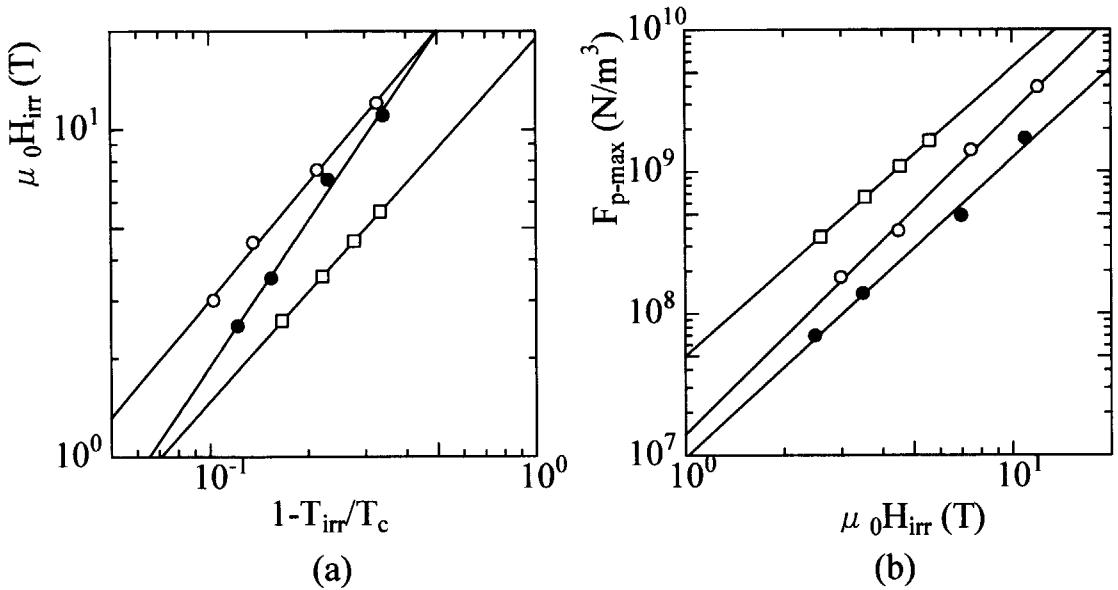


Fig. 1 Two power-law relations; (a) between the irreversibility fields (H_{irr}) and the irreversibility temperature (T_{irr}), (b) between the maximum values of pinning forces ($F_{p\text{-max}}$) and the irreversibility fields (H_{irr}). The all data were taken above 60 K. Symbols : solid circles (\bullet) are for unirradiated case, open circles (\circ) are for proton-irradiated case, and open squares (\square) are Xe-irradiated case, respectively.

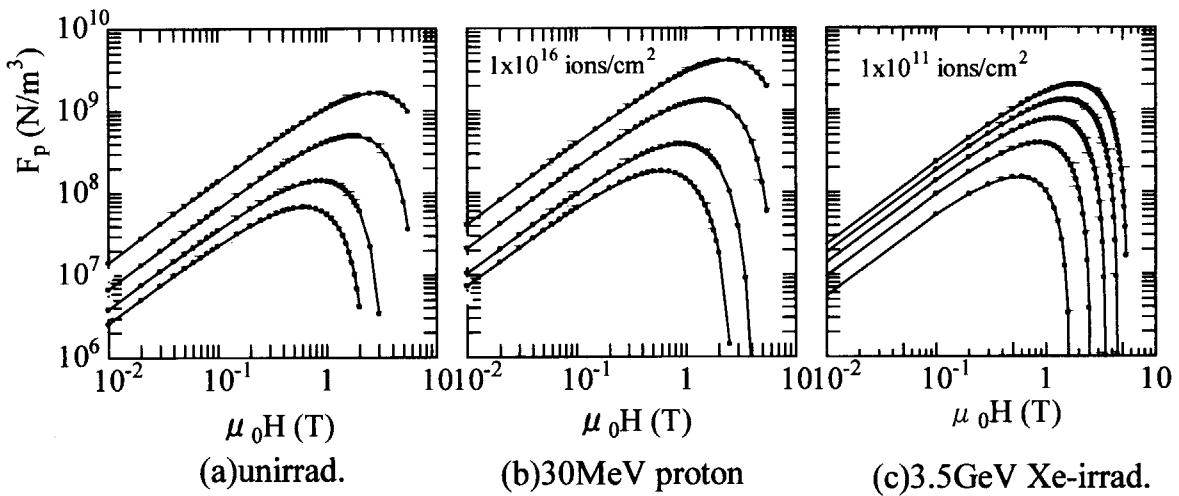


Fig. 2 Comparison between the measured data and calculated values using the formula $F_p = F_{p\max} b^\gamma (1-b)^\delta$ above 60K; (a) un-irradiated sample, (b) 30MeV proton irradiated sample, (c) 3.5GeV Xe-irradiated sample, and temperatures are 60K, 70K, 77K and 80K, respectively. Large open circles are measured data and small solid circles are the fitting results.

The fitting parameters were taken from the results of fig. 1. The value of

γ is 1 for all cases, and δ is 4 for (a) and (b), but 2 for (c). This indicates the pinning host is different at the temperature range for the Xe-irradiated sample from others.

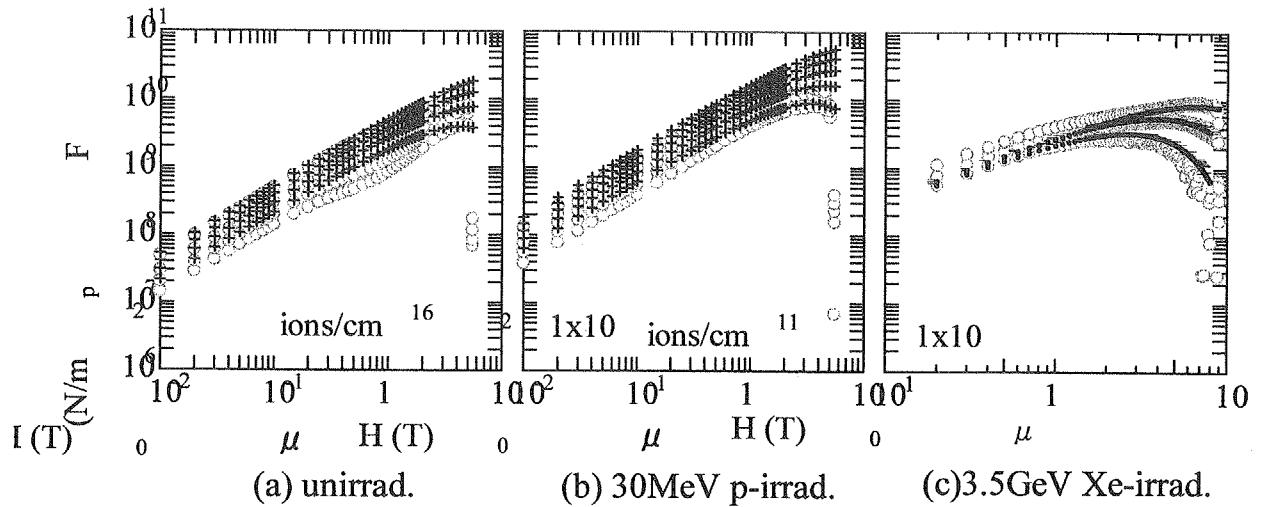


Fig. 3 For (a) and (b): an extension of the fitting below 60K using with the same parameters of fig. 2, large open circles are measured data and crosses are the fitting results at 10K, 20K, 30K, 40K, and 50K. The fittings are good for the both. For (c): other possible fittings derived from low temperature data (see ref. 2). Large open circles are measured data and small solid circles are the fitting results at 30K, 40K, and 50K. The power of (1-b) changes from 2 above 60K to 4 below 60K. This indicates that pinning properties change below and above 60K due to the change of pinning hosts.

References

- [1] S. Okayasu and Y. Kazumata, Czechoslovak J. of Phys. 46, 1645 (1996)
- [2] S. Okayasu and Y. Kazumata, Adv. in Superconductivity IX, 507 (1997)
- [3] S. Okayasu, et. al. Adv. in Superconductivity XI, 287 (1999)
- [4] T. Matsushita and N. Ihara, Adv. Superconductivity VI, 507 (1994)



JP0150913

JAERI-Conf 2001-014

2.13 金属系物質の高速荷電粒子照射と電子励起効果

**SWIFT CHARGED-PARTICLE IRRADIATION AND ELECTRONIC EXCITATION
EFFECTS IN METALS**

知見康弘

Y. CHIMI

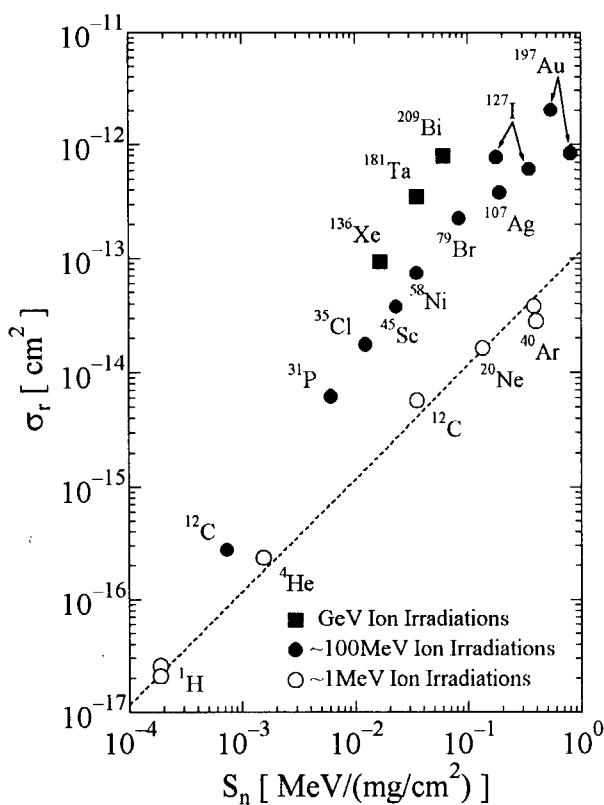
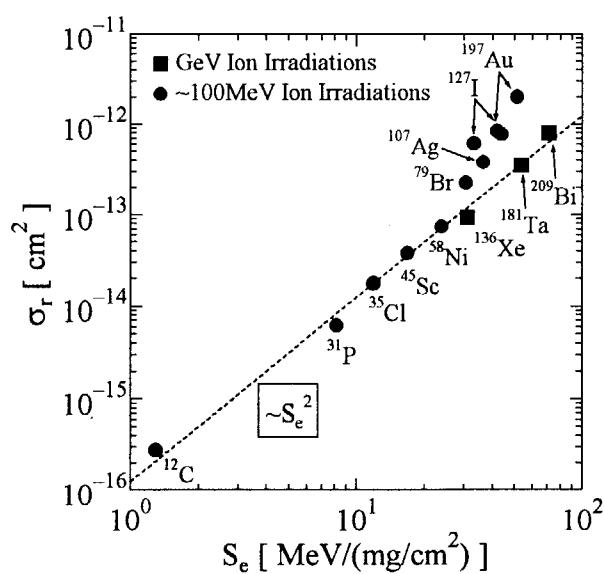
日本原子力研究所 東海研究所 物質科学研究部

Department of Materials Science, Tokai Research Establishment,
Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI)

近年、大型高エネルギー粒子線加速器が物性研究に利用されるようになり、それまでの照射実験では見られなかった新しい現象が観測されるようになった。その一つとして、『金属中での高密度電子励起による原子変位』という現象が挙げられる。従来、金属系の物質では照射粒子から電子系に与えられたエネルギーは、格子系に伝達する前に伝導電子によって拡散されてしまうため、原子変位には寄与しないと考えられてきたが、ニッケルにおいて高密度電子励起による照射アニーリングが見出された[1]。その後、いくつかの FCC 金属においても電子励起効果が確認されている[2]。従って、材料の照射損傷を評価する際に、電子励起効果を考慮しない従来の評価法を用いると、場合によっては照射損傷を過小評価し問題となる恐れがある。しかし、この現象のメカニズムは未だ明らかにされていないのが現状である。そこで我々は、この現象のメカニズムを解明するためにはさらなるデータの蓄積が必要と考え、代表的な BCC 金属であり一般的な実用材料の主要成分である鉄について調べた[3-5]。鉄に関して、イオン照射のデータが極めて少ないため、我々は電子線、低エネルギー(~1MeV)イオン、高エネルギー(~100MeV)イオン及び GeV イオンの照射を系統的に行ない、高密度電子励起効果の抽出を試みた。

鉄の多結晶薄膜(厚さ~200nm)をサファイア基板上にスパッタリング法で作製して試料とした。照射は、格子欠陥の熱拡散を凍結するために、液体窒素温度 (~77K) で行なった。照射粒子としては、電子線(2MeV)、低エネルギーイオン(^1H - ^{40}Ar , 0.5-2.0MeV)、高エネルギーイオン(^{12}C - ^{197}Au , 84-200MeV)、及び GeV イオン(^{136}Xe - ^{209}Bi , 3.1-3.8GeV)を用い、それぞれ原研高崎研 TIARA 静電加速器、原研東海研バンデグラーフ加速器、原研東海研タンデム加速器、及び理研リングサイクロotronにおいて照射を行なった。照射中、適当な照射量毎に試料の電気抵抗をその場測定し、電気抵抗率増加量の照射量依存性(すなわち欠陥蓄積曲線)を得た。この欠陥蓄積曲線の照射初期の欠陥生成率から欠陥生成断面積を、飽和挙動から欠陥消滅断面積を求めた。また、照射後、室温付近まで等速昇温法でアニールしながら電気抵抗を測定し、照射前後での電気抵抗の温度依存性の差から、照射によって導入された欠陥の回復挙動(回復スペクトル)が得られた。

各イオン種の欠陥消滅断面積(σ_r)を核的阻止能(S_n)に対してプロットすると図1のようになる。低エネルギーイオンに関しては、 σ_r はほぼ S_n に比例していることがわかる。 S_n は入射イオンから弾性的相互作用でターゲットに与えられたエネルギー線密度であるから、低エネルギーイオン照射では、欠陥消滅には弾性的相互作用が支配的であると言える。一方、高エネルギーイオン及び GeV イオンでは、同じ S_n の低エネルギーイオンに比べて σ_r は一桁程度以上大きくなっている。従って、この

図1 欠陥消滅断面積(σ_r)の核的阻止能(S_n)依存性図2 欠陥消滅断面積(σ_r)の電子的阻止能(S_e)依存性

σ_r のときと同様に dJ/dx に対してプロットしてみると図6のようになった。Ni, Br イオン辺りまでは dJ/dx の増大に伴ってステージI回復率は減少するが、それ以上 dJ/dx が大きくなると逆にステージI回復率は増加し始める。これは、高密度電子励起によって照射アニーリングだけでなく欠陥生成

差は電子励起による寄与であると考えられる。そこで、高エネルギーイオン及び GeV イオンに関する σ_r のうち弾性的相互作用の寄与は無視できると考え、改めて電子的阻止能(S_e)に対してプロットしたものが図2である。一部のイオン種 (Br, Ag, I, Au) を除いて、 $\sigma_r \propto S_e^2$ の関係が得られた。これらのイオン種で、 σ_r が S_e^2 から外れて大きくなっているのは、イオン速度の違いによるものであると考えられる（速度効果）。図3に S_e のイオン速度依存性を示す。マークで示されているのが今回用いたイオン種であるが、そのうち白丸で示されているのが Br, Ag, I, Au である。これらのイオン種は、全て S_e のイオン速度依存性のピークより低速側、すなわち Bethe-Bloch 領域から外れていることがわかる。 S_e の替わりに、これらのイオン種も含めて σ_r をスケーリングできるパラメータとして、初期イオン化率(dJ/dx)が考えられる（図4）。全てのイオン種において、 $\sigma_r \propto (dJ/dx)^2$ となっているのがわかる。 dJ/dx とは、入射イオンの飛跡に沿ってターゲット中に生成されるイオン対数の線密度であるから、この結果はイオン同士の二体間相互作用が照射アニーリングに寄与していることを示唆している。

比較的単純な格子間原子の移動による再結合を表わす回復ステージIについて、その回復率を一次はじき出し原子 (PKA) の平均的なエネルギー (PKA メディアンエネルギー, $T_{1/2}$ [6]) に対してプロットすると、図5のようになる。 $T_{1/2}$ が大きくなるにつれて、電子線及び低エネルギーイオン照射におけるステージI回復率が減少するのは、より複雑な欠陥が生成されるためであると考えられる。一方、高エネルギーイオン照射におけるステージI回復率は、低エネルギーイオンと同じ $T_{1/2}$ にもかかわらず大幅に小さくなってしまい、明らかに電子励起効果が表われている。そこで、ステージI回復率の減少量を

も起こり、生成される欠陥は比較的単純な格子間原子であることを示唆したものである。

References

- [1] A. Iwase, S. Sasaki, T. Iwata, and T. Nihira, Phys. Rev. Lett. **58** (1987) 2450.
- [2] A. Iwase and T. Iwata, Nucl. Instr. and Meth. B **90** (1994) 322.
- [3] Y. Chimi, A. Iwase, and N. Ishikawa, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. **504** (1998) 221.
- [4] Y. Chimi, A. Iwase, and N. Ishikawa, J. Nucl. Mater. **271&272** (1999) 236.
- [5] Y. Chimi, A. Iwase, N. Ishikawa, N. Kuroda, and T. Kambara, Nucl. Instr. and Meth. B **164-165** (2000) 408.
- [6] R.S. Averback, R. Benedek, and K.L. Merkle, Phys. Rev. B **18** (1978) 4156.

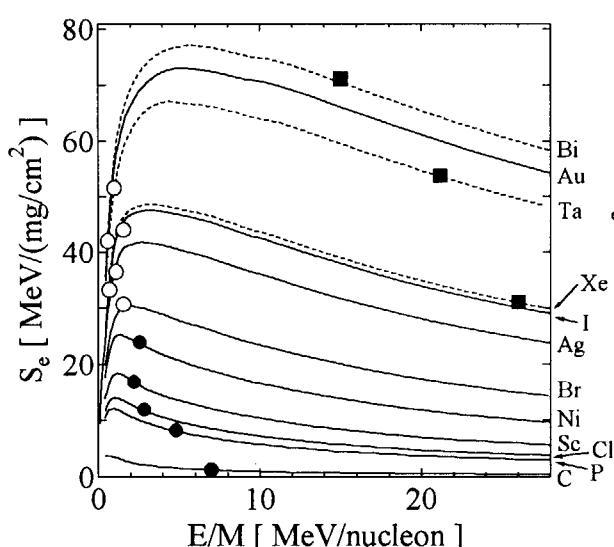


図3 電子的阻止能(S_e)のイオン速度依存性

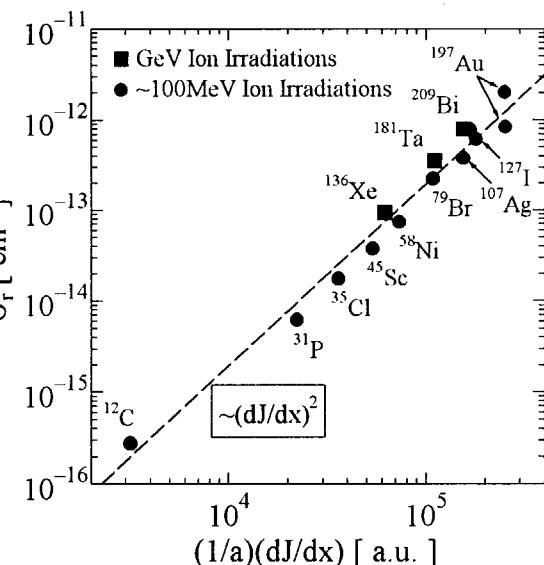


図4 欠陥消滅断面積(σ_r)の初期イオン化率(dJ/dx)依存性

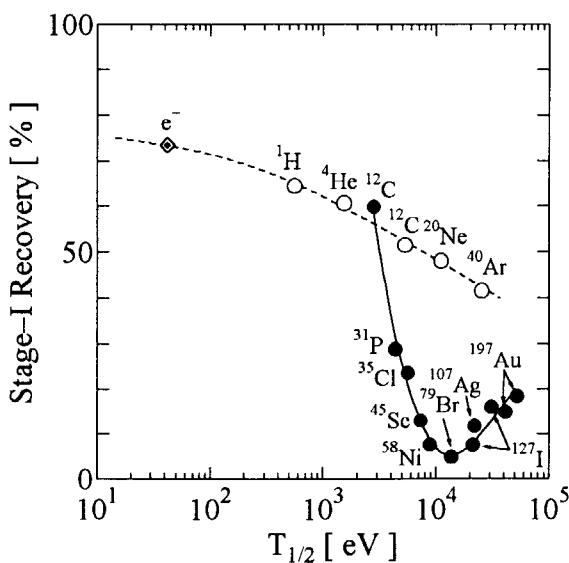


図5 ステージI回復率のPKAメディアンエネルギー($T_{1/2}$)依存性

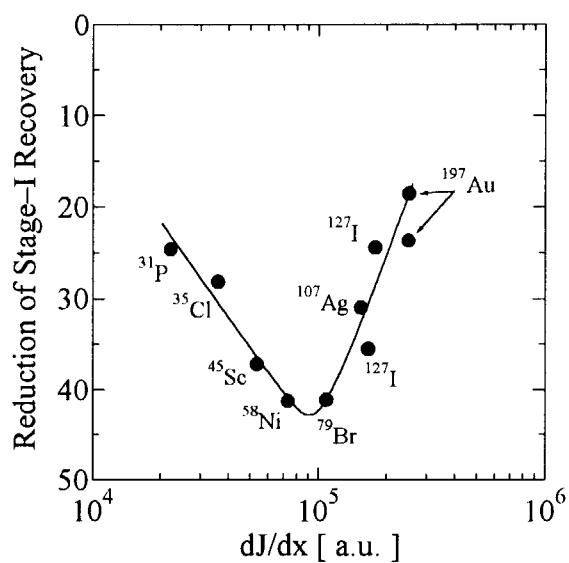


図6 ステージI回復率の減少量の初期イオン化率(dJ/dx)依存性



2.14 アクチノイド内包フラーレンの合成と化学

末木啓介

東京都立大学大学院理学研究科

Synthesis and Chemical properties of Endohedral Actinoids Metallofullerenes

Keisuke Sueki

Graduate School of Science, Tokyo Metropolitan University

Light actinoids, Th, Pa, U, Np and Am, have been successfully encapsulated in the fullerenes using the arc-discharge method and their chemical characterization were isolated. The chemical species, $U@C_{82}$ and $Th@C_{84}$, were identified by TOF/MS measurements for their mass. From the similarity of HPLC elution behaviors and UV/vis/NIR absorption spectrum, the electronic state of $U@C_{82}$ is estimated to be $U^{3+}@C_{82}^{3-}$, which is similar to that of $Ce@C_{82}$. The electronic state of the main species of Np and Am was suggested to be $M@C_{82}$ from the HPLC elution behaviors. From, and the, It is also suggested that the main species of protactinium is $Pa@C_{84}$, because the retention time of main species of protactinium had same that of $Th@C_{84}$.

Keywords: *Actinoid, Metallofullerene, HPLC, TOF/MS, UV/vis/NIR, XANES*

はじめに

C_{60}, C_{70} などの炭素原子で籠状の分子を形成しているフラーレン類の中で、金属原子をその籠の中に内包しているものがある。これらを金属内包フラーレンまたは単に金属フラーレンと呼んでいる。この金属内包フラーレンは今までにアルカリ土類と希土類元素で見出され、その性質が詳しく調べられてきている。炭素の数が 82 の場合に安定に様々な元素が入っているものが単離されているが、それ以外のケージでも見出されている。しかし、なぜか C_{60} の中にあるものは取り扱いが難しいことが分かってきた。このフラーレンケージにアクチノイド元素を内包されたときにどのようなことが見出されるのか興味を持って研究を進めてきている。

アクチノイド元素で重要な性質は軽アクチノイドで通常の化学物質としてはランタノイド元素のような類似的な性質よりも d 軌道に電子が充填されていく遷移金属のような性質の変化が見られる。特にトリウムは通常 +4 で、ウランは +4, +6 で安定な分子が見出される。ところが金属内包フラーレンの研究で内包される金属の性質として Sm, Tm 等でさえも +2 での存在が認められている。また、 $^{140}La@C_{82}$ が壊変して $^{140}Ce@C_{82}$ に変化したときに TDPAC で観測できる時間状態ですでに +3 の状態に落ち着いていることも分かって来ている。この性質はフラーレンケージ内が非常に還元状態であることを示しているものであり、この中にアクチノイド元素を閉じ込めたときにどのような酸化状態が表われるのかは非常に興味深いものである。

Guo ら Rice 大は $U@C_{28}$, $U@C_{60}$ の存在を真空中での質量分析によって報告している[1]。その後、Los Alamos でも同様な研究がなされ $U@C_{60}$, $U@C_{82}$ の存在が確認された[2]。しかし、これらの研究は空气中で安定でトルエンなどの溶媒を用いて単離されるような分子であるかは分からなかっ

た。そこで軽アクチノイド元素について安定で取り出せるアクチノイド内包フラーレンの合成とそれらの化学的な性質に迫る研究を始めた。

研究の進め方として、ラジオクロマトグラフによる金属内包フラーレンの HPLC の溶離挙動を調べることから始め、その研究成果を元にウラン、トリウムなどのマクロ量への展開を始めていく方針を立てた。この中でラジオクロマトを取るために半減期が手ごろな長さで γ 線などの検出しやすい放射線を放出する放射性同位体が必要である。今回はタンデム加速器を用いて核反応でそれらの放射性同位体を製造して用いた。ターゲットに ^{238}U で ^6Li の核反応によって ^{240}Am , ^{239}Np , ^{238}Np , ^{237}U などの核種を手に入れることができた。 ^{234}Th , ^{233}Pa は ^{238}U , ^{237}Np から生まれてくる子核種を化学分離して用いた。

実験

トレーサー実験

軽アクチノイドのトレーサーとしては、タンデム加速器の ^6Li と ^{238}U の核反応生成物を照射後、イオン交換法によって他の核分裂生成物から分離した。分離して得られたトレーサーに 0.5 g $\text{La}(\text{NO}_3)_3$ のエタノール溶液 1 ml で溶解した。多孔質炭素棒にこの溶液を浸透させた。ここで La を用いるのはフラーレンを作るアーク放電法の放電条件を通常の金属フラーレンを作る条件を合わせるためである。浸透させた炭素棒は He 気流中で 80 °C で乾燥させた後 800 °C で 3 時間焼いた。この操作で有機溶媒や NO_xなどを取り除いた。乾燥させた炭素棒を陽極にして He 400 Torr 中で 110 A の直流電流の下にアーク放電を行いフラーレンを含むススを得た。このススは CS₂ 溶媒を反応槽内に導入して攪拌してスス毎回収した。回収した CS₂ 溶媒はろ過して溶媒に可溶な成分を取り出した。この後さらに溶媒をトルエンに変えて 0.2 μm のフィルターでろ過した。この口液を 5PBB と Buckyprep の 2 種類の固定相に対して HPLC 装置でトルエン展開した。溶離してきた展開液を 1 分毎に分集した。フラクションは X 線測定のためにろ紙上で乾燥させた。X 線、 γ 線測定は LEPS、HPGe で行い溶離曲線を得た。

ウラン、トリウム実験

$\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ や $\text{Th}(\text{NO}_3)_4$ を先の方法で多孔質炭素棒に浸透させた後にアーク放電法で金属フラーレンを作った。5PBB-Buckyprep の 2 段分離で主に出来ている分子を分画した。得られたフラクションについて UV/vis/NIR と TOF/MS 測定を行い、分子の質量数などを決定した。さらに、ESR 測定や XENES 測定についても行われた。

結果と考察

$\text{Th}, \text{Pa}, \text{U}, \text{Np}, \text{Am}$ のトレーサーによる 2 つの固定相 (5PBB, Buckyprep) に対する溶離挙動をそれぞれ図 1, 2 に示す。同時に核分裂生成物である Ce, Sm の溶離挙動と HPLC にオンラインで UV 検出器による 340 nm の吸収からフラーレン類の溶離挙動も示す。5PBB 固定相では U, Np, Am は Ce と同じ C_{86} フラーレンとほぼ同じ溶出時間に一つのピークが観測された。これに対して Th, Pa はそれよりも少し遅れた場所 (C_{86} と C_{88}) に一つのピークを観測した。Buckyprep 固定相でも全く

同様な性質が観測されたが、Th, Pa は今までに観測したことがないほど溶出位置が遅れていた。これら 2 つの固定相の結果から、軽アクチノイド元素では Th, Pa と U, Np, Am で違う分子が主に出来ていることが明らかになった。また、U, Np, Am は Ce と非常に似た挙動をしているので主に出来ている分子は M@C₈₂ であることが予想された。

Th と U について単独で生成した試料について、先のトレーサー実験を下に 5PBB で分画した後に、分画試料を濃縮して Buckyprep で展開して分集した。この試料について TOF/MS で分子量を調べた結果、Th は Th@C₈₄ であり、U は U@C₈₂ であることが確認された。また、U においては U₂@C₈₀ の存在も確認された。この質量分析と先の HPLC 挙動から Np, Am は Np@C₈₂, Am@C₈₂ が出来ていると考えられる。また、Pa は Pa@C₈₄ が出来ているものと考えられてい。

U@C₈₂ と U₂@C₈₀ については UV/vis/NIR 吸収スペクトルを観測した結果、すでによく研究されているランタノイドの M@C₈₂ と M₂@C₈₀ と非常に類似したスペクトルであることが確認された。このことから、U は La, Ce 等と全く同様な分子を安定に存在できることが分かった。この結果は、KEK の XANES を用いた実験で両分子とも UCl₃ と一致した L_{III} の吸収端が観測され内包された U 原子は +3 であることと一致した。

Th@C₈₄ についても吸収スペクトルが観測されたが既知の M@C₈₄ と類似したものは無かった。HPLC 挙動とあわせて今までにあまり研究されていない分子種である事が期待される。

今後の研究

ウラン、トリウムの内包フラーレンを対象にした物性研究は重要な課題である。今までの研究結果ではウランについては期待されたようにフラーレンケージ内で +3 をとっている可能性が高く今後のウランそのものが分光学的対象になるものと期待される。また、トリウムについては生成した分子種が今までの経験ではあまり出来ていない系であることを含めて、分子全体への興味が広がっている。もう一つ興味を持つ課題として今回出来なかった元素への応用である。Ac, Pu, Cm, Bk, Cf 等のアクチノイド元素に展開していきたいと考えている。特に、Cm 以上の原子番号の元素、特に Cf では酸化状態の変化を期待して、タンデム加速器で製造した放射性同位体を用いて研究を進めたい。この研究成果の一部は既にアメリカ化学会誌に発表した[3]。

謝辞

本研究は日本原子力研究所の黎明研究推進制度のもとに行われた東京都立大学大学院理学研究科と原研先端基礎研究センター超アクチノイド元素核化学研究グループおよび物質科学部の共同研究で行われたものであることを記し、ここに謝意を表したい。

参考文献

- [1] T. Guo et al., *Science*, 257 (1992) 1661.
- [2] M.D. Diener et al., *Chem. Mater.*, 9 (1997) 1773.
- [3] K. Akiyama et al., *J. Am. Chem. Soc.*, 123 (2001) 181.

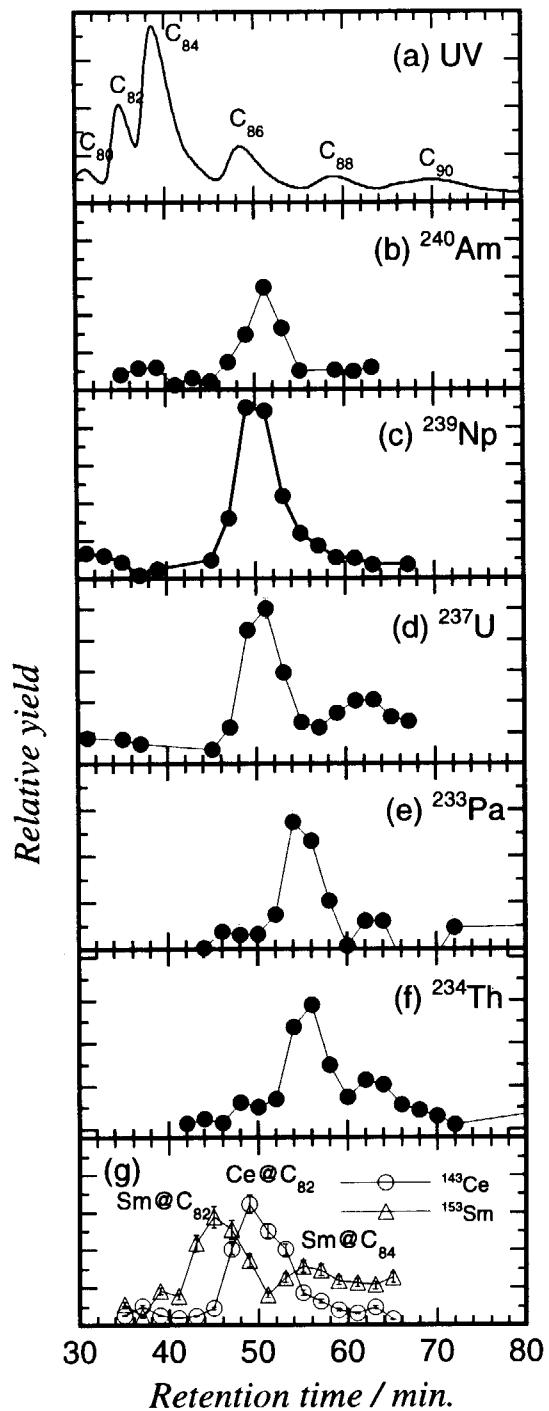


図 1 5PBB 固定相を用いた溶出曲線。a)UV, b)
 ^{240}Am , c) ^{239}Np , d) ^{237}U , e) ^{233}Pa , f) ^{234}Th , g) ^{143}Ce ,
 ^{153}Sm 。カラム：5PBB(I.D.10mm x 250mm)、展開
液：トルエン、流速：6.0 mL/min。

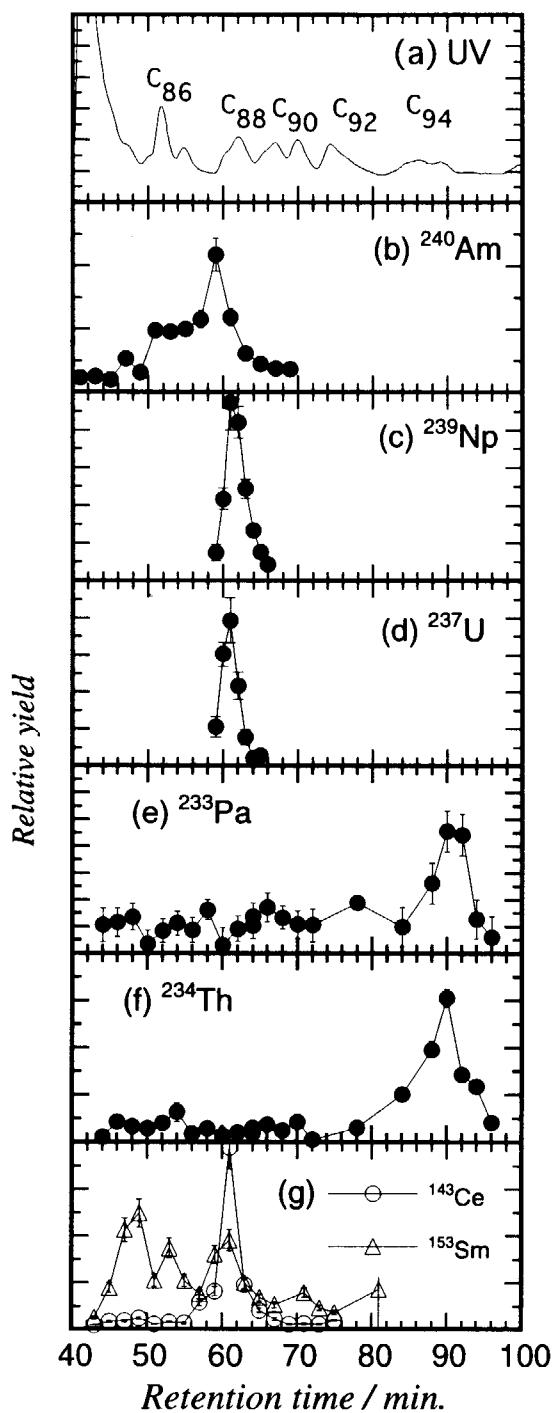


図2 Buckyprep 固定相を用いた溶出曲線。a)UV,
b) ^{240}Am , c) ^{239}Np , d) ^{237}U , e) ^{233}Pa , f) ^{234}Th , g) ^{143}Ce ,
 ^{153}Sm 。カラム：Buckyprep(I.D.10mm x 250mm)、
展開液：トルエン、流速：3.2 mL/min。



JP0150915

JAERI-Conf 2001-014

2.15 Nuclear Chemistry Study of Transactinide Elements in JAERI *

Y. Nagame, M. Asai, H. Haba, K. Tsukada, S. Goto, M. Sakama[†]
I. Nishinaka and S. Ichikawa

*Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Ibaraki 319-1195, Japan*

Nuclear chemistry study of transactinide elements in JAERI is currently being performed at the JAERI tandem accelerator facility. Recently, the transactinide nuclei ^{261}Rf and ^{262}Db have been successfully produced for the first time in Japan via the reactions of $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O},5\text{n})$ and $^{248}\text{Cm}(^{19}\text{F},5\text{n})$, respectively. In this report, the present status of nuclear chemistry studies of transactinides in JAERI is briefly summarized.

Studies of chemical properties of the transactinide elements - starting with element 104 (Rf) - offer the unique opportunity to obtain information about trends in the Periodic Table at the limits of nuclear stability and to assess the magnitude of the influence of relativistic effects on chemical properties. According to the calculations of the electron configurations of the transactinide elements, it is predicted that sudden changes in the structure of electron shells may appear due to the relativistic effects which originate from the increasing strong Coulomb field of the highly charged atomic nucleus.

Thus, it is expected that the transactinide elements show a drastic rearrangement of electrons in their atomic ground states and as the electron configuration is responsible for the chemical behavior of the element, such relativistic effects can lead to surprising chemical properties. Increasing deviations from the periodicity of chemical properties based on extrapolation from lighter homologues in the Periodic Table are predicted. The main objective of the present group is to explore experimentally the influence of the relativistic effects on the electron shell structure by studying the chemical properties of the transactinide elements. The comparison studies of such fundamental chemical properties as the most stable oxidation states, complex ability and ionic radii with those of lighter homologues, and with results of relativistic molecular orbital calculations are invaluable in evaluating the role of the relativistic effects.

The transactinide elements must be produced by bombarding heavy radioactive actinide targets with high-intensity heavy ion beams and must be identified by the measurement of their decay or that of their known daughter nuclei with unambiguous detection techniques. Detailed studies of nuclear decay properties of transactinide nuclides are also the important subject.

*In collaboration with Niigata University, Osaka University, Tokyo Metropolitan University, Gesellschaft für Schwerionenforschung (GSI), Mainz University, Paul Scherrer Institut (PSI) and Bern University

[†]Permanent address: Department of Radiological Technology, Tokushima University, Tokushima 770-8509, Japan

Since 1998, we have developed some experimental apparatus for the transactinide nuclear chemistry study, *i.e.* a beam-line safety system for the usage of the gas-jet coupled radioactive ^{248}Cm target chamber, a rotating wheel catcher apparatus for the measurement of the α and SF decays of the transactinides and an automated rapid chemical separation apparatus based on the high performance liquid chromatography.

Quite recently, we have successfully produced the transactinides, ^{261}Rf and ^{262}Db , by using the $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O},5\text{n})$ and $^{248}\text{Cm}(^{19}\text{F},5\text{n})$ reactions, respectively. Figure 1 shows the schematic of the experiment for the production and identification of ^{261}Rf and ^{262}Db : the target chamber coupled to the gas-jet transport and the rotating wheel catcher apparatus. The ^{248}Cm target of $590 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ thickness was bombarded by the ^{18}O and ^{19}F beams with the intensity of 200-300 pA. The recoiling products were stopped in He gas, attached to a KCl aerosol, and were continuously transported through a Teflon capillary to the rotating wheel catcher apparatus. The transported nuclei were deposited on polypropylene foils of $240 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ thickness and 20 mm diameter at the periphery of an 80-position stainless steel wheel of 80 cm diameter. The wheel was stepped at 30 s time intervals to position the foils between six pairs of Si PIN photodiode detectors. The details of the experimental procedures are described elsewhere [1].

The sum of α -particle spectra measured in the six top detectors in a 3.9 h irradiation for the production of ^{261}Rf is shown in Fig. 2(a). In the α energy range of 8.12-8.36 MeV, α lines from 78-s ^{262}Rf (8.28 MeV) and its daughter 26-s ^{257}No (8.22, 8.27, 8.32 MeV) are clearly shown. No contributions from other nuclides in this energy window are observed, although there exist several α lines originating from the Pb impurities in the ^{248}Cm target. A total of 98 events in the singles measurement and 28 α - α correlation events were registered. The production cross section of ^{261}Rf in this reaction was evaluated to be about 6 nb at the ^{18}O energy of 99 MeV.

Figure 2(b) shows the sum of α -particle spectra for the production of ^{262}Db in the 100 MeV ^{19}F -induced reaction of ^{248}Cm . From the mother-daughter correlation of α -energies between ^{262}Db -mother and ^{258}Lr -daughter, the cross section of this reaction was about 1 nb.

Because of the short half-lives and the low production rate of the transactinides, each atom produced decays before a new atom is synthesized. This means that any chemistry to be performed must be done on an *atom-at-a-time* basis. Therefore rapid, very efficient and selective chemical procedures are indispensable to isolate the desired transactinides.

We have developed the gas-jet coupled automated chemical separation apparatus to perform rapid, repetitive and high performance liquid chromatography separations on the second time scale. It is equipped with two magazines, each containing twenty micro-columns (1.6 mm in diameter and 8 mm long). A series of chromatographic pumps, valves, mechanical sliders, and micro-columns are all controlled by a personal computer. The performance is almost the same as that of ARCA developed by the GSI-Mainz group [2]. On-line ion exchange experiments with the above apparatus have been carried out using the Rf homologues Zr and Hf produced via the $^{89}\text{Y}(\text{p},\text{n})^{89m}\text{Zr}$ and $^{152}\text{Gd}(\text{O}_2,\text{zn})^{165,167}\text{Hf}$ reactions. The first experiment on the Rf chemistry based on the ion exchange behavior has been conducted in the beginning of 2001. The data analysis is now in progress, the results will be soon appeared.

We wish to acknowledge the crew of the JAERI tandem accelerator for providing the stable and intense ^{18}O and ^{19}F beams. This work was supported in part by the JAERI-

University Collaboration Research Project and the Program on the Scientific Cooperation between JAERI and GSI in Research and Development in the Field of Ion Beam Application.

References

- [1] Haba H. et al.: *Extended Abstracts of the 5th International Conference on Nuclear and Radiochemistry*, Pontresina, Switzerland, September 3-8, 2000, p. 195, and submitted to *Radiochim. Acta*.
- [2] Schädel M. et al.: *Radiochim. Acta* **48**, 171 (1989).

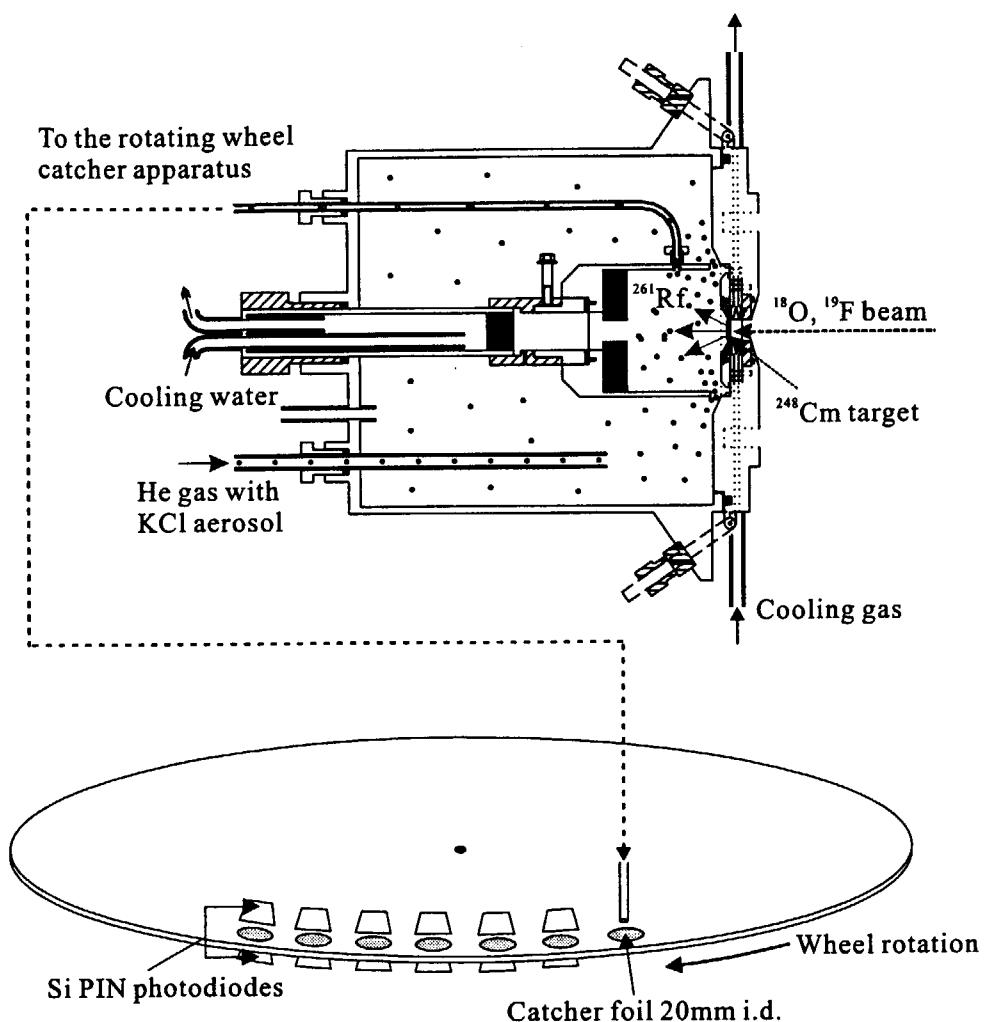


Figure 1: Schematic of the experiment for the production of ^{261}Rf and ^{262}Db .

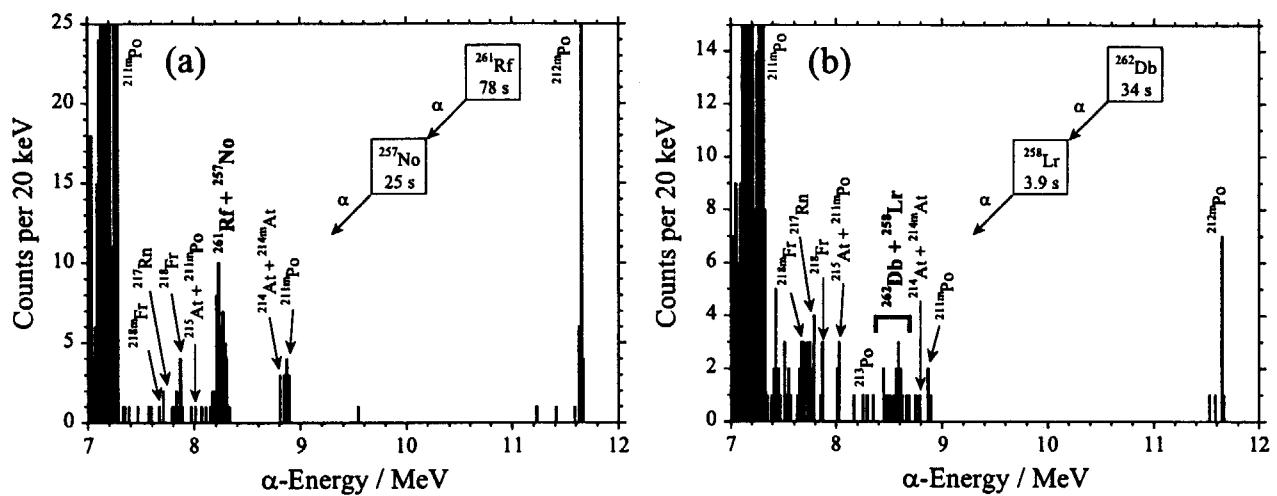


Figure 2: (a) Sum of α -particle spectra measured in the bombardment of the ^{248}Cm target with 99 MeV ^{18}O ions, and (b) that in the bombardment of the ^{248}Cm target with 100 MeV ^{19}F ions.



JP0150916

JAERI-Conf 2001-014

3. ポスター発表

3.1 加速器関連

3.1.1 ターミナル ECR イオン源の現状

松田 誠、竹内 未広、藤井 義雄
日本原子力研究所（東海） 物質科学部研究部 加速器管理室

【はじめに】

タンデム加速器の負イオン入射による従来の加速方式ではターミナルのストリッパーフォイルの寿命が問題となりビーム強度を上げることが困難であることから、ターミナル内に小型の ECR イオン源を設置し直接高多荷、大電流のビームを加速する計画を進めてきている。また正イオン源を用いることになるので、これまで不可能であった希ガスなどの加速も可能となりタンデム加速器で利用できるイオン種も拡大する。

現在搭載しているイオン源は Nanogan と呼ばれる永久磁石で構成された 10GHz、200W のイオン源である。これまでの加速試験の結果を表 1 に負イオン源からの入射とのエネルギー、ビーム強度の比較を図 1 に示す。

表 1 ターミナル ECR イオン源 加速実績データ

イオン種	エネルギー [MeV]	電流 [μA]	イオン種	エネルギー [MeV]	電流 [μA]
$^1\text{H}^+$	15	3.0*	$^{56}\text{Fe}^{8+}$	120	0.14
$^{14}\text{N}^{2+}$	30	0.5*	$^{56}\text{Fe}^{9+}$	135	0.022
$^{14}\text{N}^{3+}$	45	0.83	$^{84}\text{Kr}^{10+}$	140	0.30
$^{14}\text{N}^{4+}$	60	0.060	$^{86}\text{Kr}^{8+}$	120	0.38
$^{16}\text{O}^{3+}$	45	1.5*	$^{86}\text{Kr}^{9+}$	135	0.67
$^{16}\text{O}^{5+}$	75	0.15	$^{86}\text{Kr}^{10+}$	150	0.57
$^{22}\text{Ne}^{3+}$	42	1.5*	$^{86}\text{Kr}^{11+}$	165	0.18
$^{22}\text{Ne}^{4+}$	56	2.0*	$^{129}\text{Xe}^{14+}$	210	0.85
$^{22}\text{Ne}^{5+}$	70	1.9	$^{132}\text{Xe}^{12+}$	192	0.30
$^{22}\text{Ne}^{6+}$	84	2.9	$^{132}\text{Xe}^{13+}$	208	0.47
$^{22}\text{Ne}^{7+}$	98	0.23	$^{136}\text{Xe}^{14+}$	210	2.3
$^{22}\text{Ne}^{8+}$	114	0.037	$^{136}\text{Xe}^{15+}$	225	1.1
$^{40}\text{Ar}^{6+}$	84	2.1	$^{136}\text{Xe}^{16+}$	240	0.77
$^{40}\text{Ar}^{8+}$	112	3.7	$^{136}\text{Xe}^{18+}$	270	0.17
$^{40}\text{Ar}^{9+}$	135	0.5	$^{22}\text{Ne}^{6+,9+}$	111	0.17
$^{56}\text{Fe}^{6+}$	90	0.81	$^{22}\text{Ne}^{6+,10+}$	120	0.034
$^{56}\text{Fe}^{7+}$	105	0.20	$^{132}\text{Xe}^{12+,23+}$	306	0.067

* : 放射線管理上の上限

【真空排気系の改良】

実験ユーザーからのキセノン、クリプトンなどの重い希ガスの要求があったが、これまでのイオンポンプのみの真空排気系では長時間の使用には無理が生じた。そのため昨年 3 月に新たに磁気浮上型のターボ分子ポンプ (TMP) をターミナルイオン源 (TIS) システムに追加した。

図 2 にその概略図を示す。このとき特に重要であったのはイオンポンプ等のように密閉・

吸着式のポンプではないので、約 0.55Pa の高圧 SF₆ ガス中に設置するには停電時（ターミナル発電機休止時）の排気ガスの高真空側への逆流を防ぐことである。TMP から排気されたガスはロータリーポンプを通し、排気ガス溜め込み容器（約 25l）へ蓄積する方式とした。TMP は 450l/sec の完全磁気浮上型のポンプとしアウトガスの少ないものを採用した。TMP の引き口にはゲートバルブを付けず、排気側にソレノイド駆動のフォアラインバルブを設置し停止時の真空保持をすることにした。市販品の機器は大気圧で使用することが前提となっているので、使用機器の全体あるいは一部を耐圧容器に入れ保護した。ターミナルの発電機は 400Hz があるので TMP のコントローラーの電源はインバーターにより 60Hz に変換し供給している。

【ソースガス供給システム】

ECR イオン源のソースガスはメインガスとサポートガスをあらかじめ最適な比率で混合したものを用い、キャリブレートリークで一定流量が得られるようにした。各キャリブレートリークにソレノイドバルブが設けてありガスの選択は希望のバルブを開閉することでおこなう。バルブとキャリブレートリーク間のデッドボリュームは 0.001cc 程度であるのでガスの切り替えもすばやく行なうことが可能である。ガスボンベ、キャリブレートリーク、ソレノイドバルブを 1 つのモジュールとしてあり、最大 8 モジュール搭載可能であり、現在 6 モジュール搭載している。新たなイオンの加速はモジュールを追加・変更することで対処できる。図 3 に概略を示す。

【金属イオンの加速】

表 1 の Fe イオンの加速は室温での蒸気圧の高い有機金属を用いる MIVOC 法を行った。試料にはフェロセン Fe(C₅H₅)₂ を用い小型の容器に入れソレノイドバルブを開閉することで ECR イオン源に蒸気を導入し、Fe イオンを引き出した。約 10 時間の加速試験を行なったがその間は安定に動作した。また有機物による加速器本体に与える悪い影響は確認できなかつた。しかしながらテスト台の試験でプラズマチャンバー内の炭素による汚染でイオン源の動作が不安定・不良になることがわかつており、次回の加速器の定期整備でイオン源の点検を行なう予定である。有機金属による汚染をプラズマチャンバー内あるいはイオン源付近にどめることができればマシンタイム期間の最後に有機金属による加速が可能であろう。

【まとめと今後】

現在のシステムでは室温で気体であるものであれば加速が可能となっている。しかしガス流量の調整を行なっていないためイオン源の運転の自由度が制限されより高多荷のイオンを引き出すことが困難である。今後サーモメカニカルリークなどを用いてガス流量の調整を行なえるように改良していく予定である。また金属イオンの生成も MIVOC 法以外の方法を探査していく。

近い将来であるが、さらにより強力な 14.5GHz の永久磁石型 ECR イオン源（Super Nanogan）に置き換えていく予定である。このイオン源からの加速が実現すれば図 4 に示すようにエネルギーの倍増が可能となる。

【参考文献】

- [1] M. Matsuda et al., Proc. of the 12th Symposium on Accelerator Science and Technology, RIKEN, (1999)p278-280
- [2] T. Nakagawa et al., Nucl. Instr. And Meth. A396(1997)9
- [3] 竹内未広、松田誠、吉田忠、第 13 回タンデム加速器及びその周辺技術の研究会報告集、原研むつ、(2000)JAERI-Conf 2000-19、p105-108

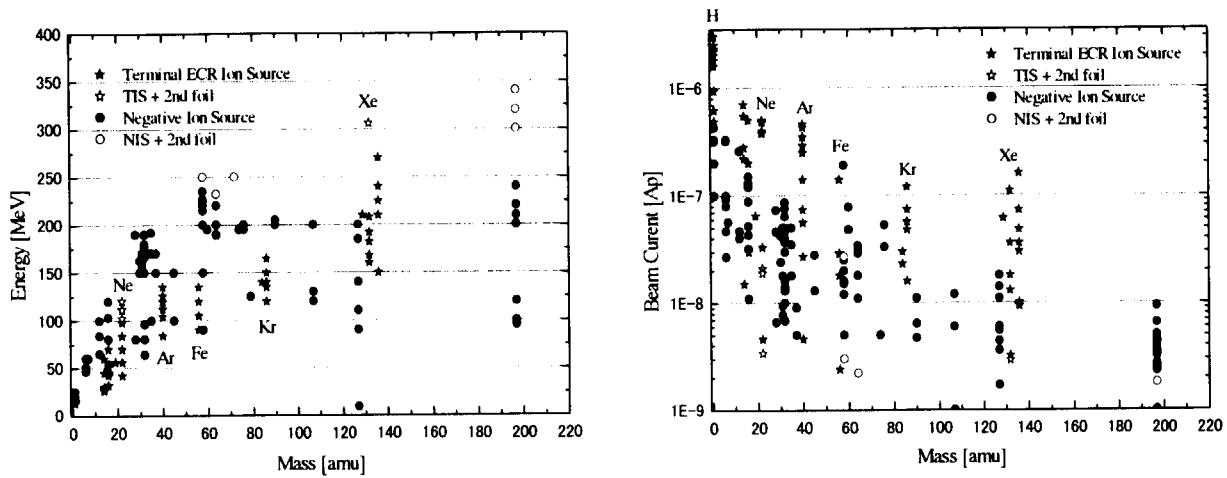


図1 負イオン入射との比較

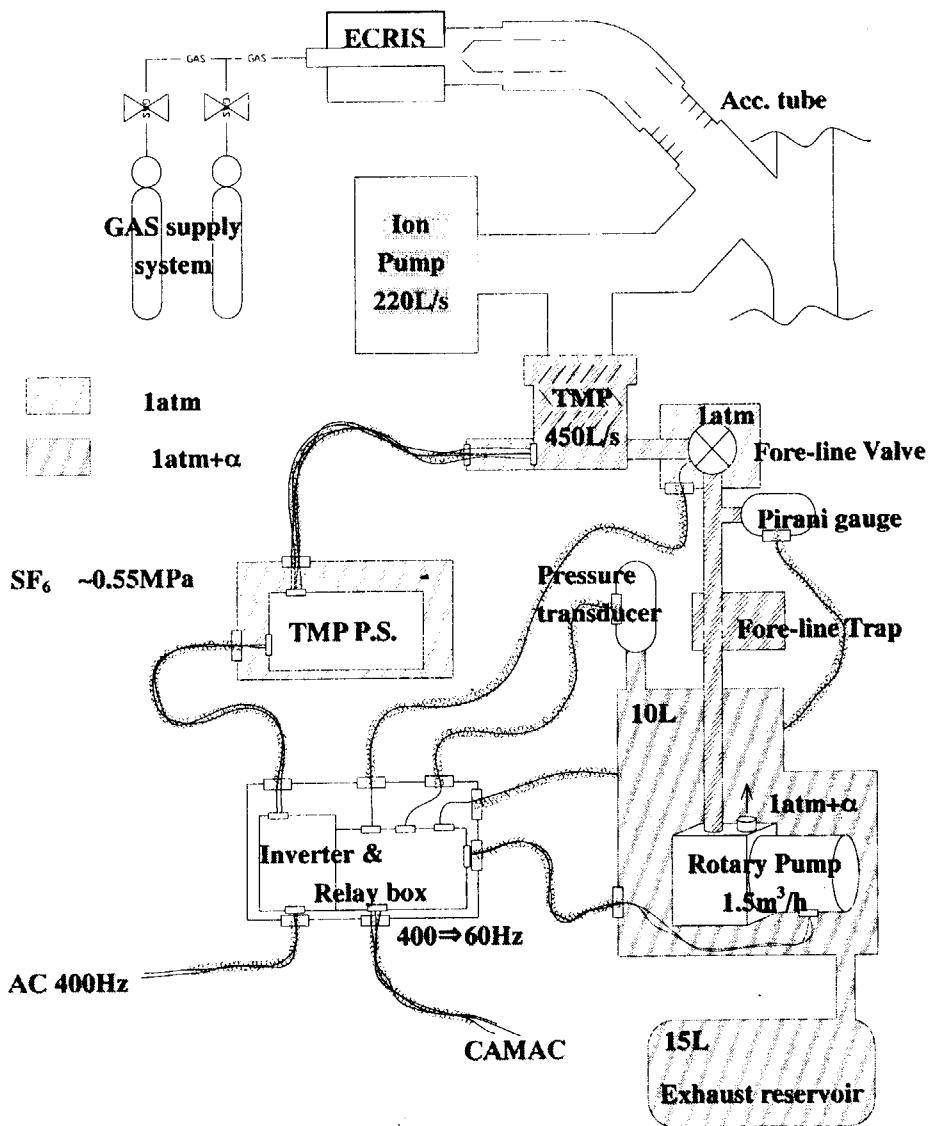


図2 TIS 真空排気系の概略

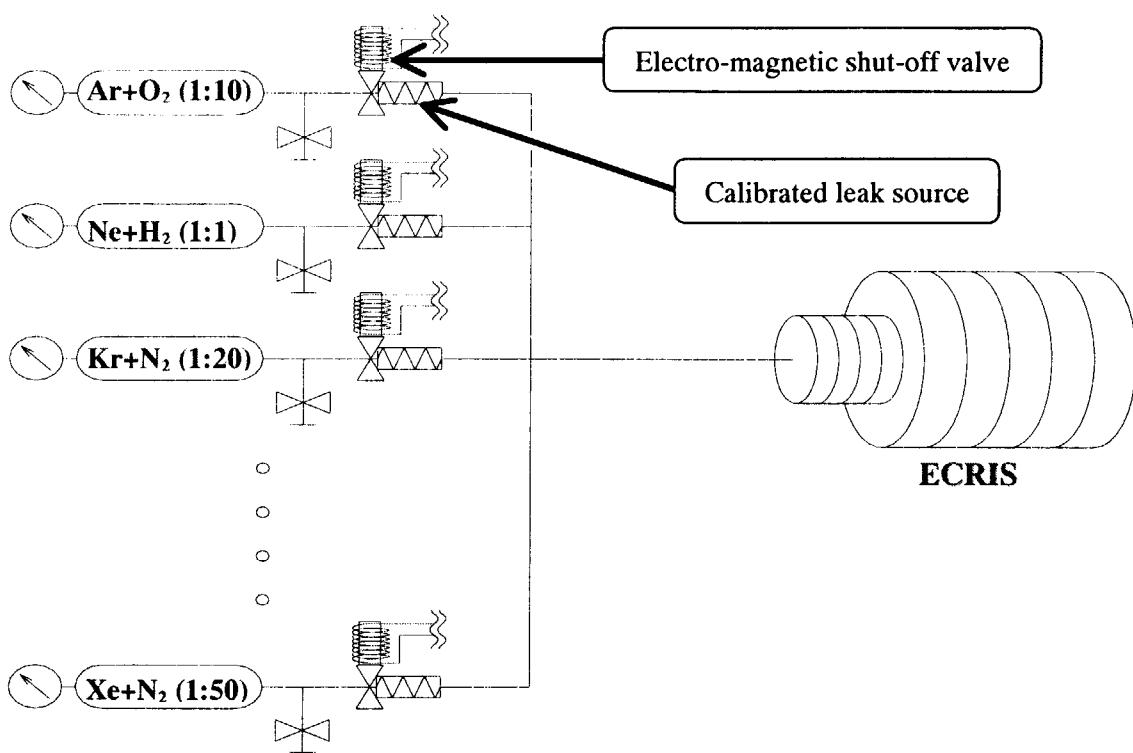


図3 ガス供給システム概略図

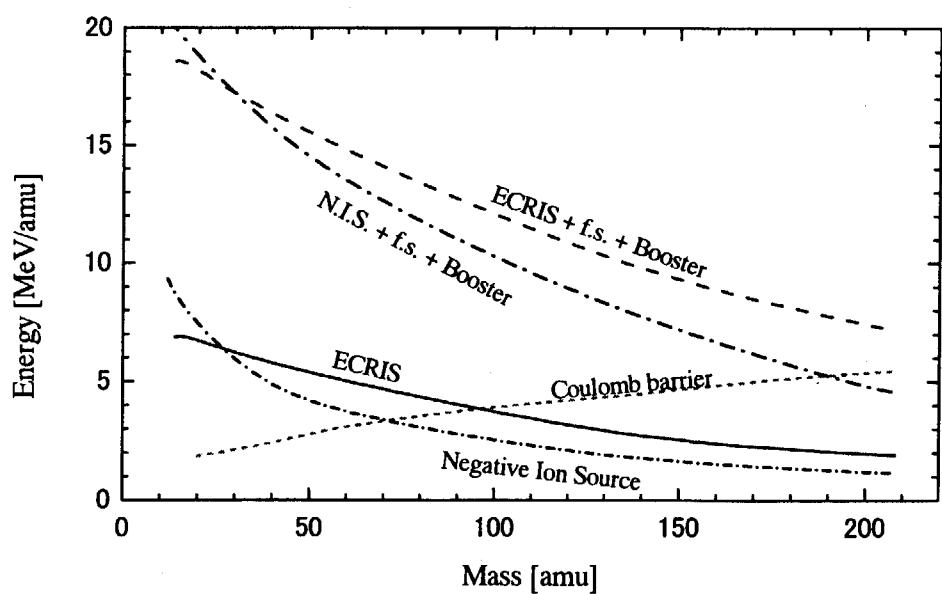


図4 14.5GHz ECR イオン源で期待されるエネルギー



JP0150917

JAERI-Conf 2001-014

3.1.2 タンデム施設に於ける短寿命核用リニアック Linac for Short-Lived Nuclei at Tandem Facility

新井重昭、新垣良次、仁木和昭、岡田雅之、武田泰弘、富沢正人

S. Arai, Y. Arakaki, K. Niki, M. Okada, Y. Takeda and M. Tomizawa

高エネルギー加速器研究機構
High Energy Accelerator Research Organization

1) はじめに

KEK の短寿命核分離加速実験装置は大型ハドロン計画 E-アレナのプロトタイプとして田無キャンパスに建設された。建設の目的は短寿命核用リニアックの R&D と短寿命核ビームによる開拓研究を推進する事であった。1999 年秋の運転停止までの間、物理の研究においては、主に天体核物理の研究が行われて来た[1]。一方、加速器の研究においては、リニアックの性能試験[2]、加速性能の改善、ビームモニターの開発、等が行われて来た。SCRFQ の高周波電源の安定化、自動位相制御システムの実用化、IH の四極電磁石の非対称励磁によるミスマライメントの補償の研究によってリニアックの性能が改善された。磁場走査型横方向エミッタス・モニターの開発によってエミッタスの測定時間が約 1/10 に短縮された。

1999 年秋の運転停止後、短寿命核施設の移転計画がいろいろ検討されて来た。その結果、原研東海研究所のタンデム施設に移転する計画が具体化し、現在、両研究所の関係者を中心に新しい施設の建設に向けた最後の詰めの作業が行われている。この計画には、将来我々のリニアックをタンデム施設の超伝導ブースター・リニアックに結合できる可能性が有り、実現すれば、短寿命核ビームのエネルギーを原子核のクーロン障壁を越えるエネルギーにまで加速できる。

2) 短寿命核用リニアックの概要

リニアックは 25.5 MHz の SCRFQ (Split Coaxial RFQ) と 51 MHz の IH (Interdigital-H) リニアックから構成されている。主な仕様が表 1 にまとめられている。長さ 8.6 m、直径 0.9 m の SCRFQ は荷電質量数比 (q/A) が 1/30 以上のイオンを 2 から 172 keV/u まで加速する。全長 5.6 m の IH は q/A が 1/10 以上のイオンを最高エネルギー 1.05 MeV/u まで加速する。SCRFQ からのビームの q/A が 1/10 以下の時には炭素箔膜で荷電変換し、 q/A を 1/10 以上にして IH リニアックで加速する。同一周波数の 4 翼型 RFQ に比べ非常にコンパクト

表 1 リニアックの主な仕様

	RFQ	IH
Frequency (f)	25.5	51 MHz
Charge-to-mass ratio (q/A)	$\geq 1/30$	$\geq 1/10$
Input energy (T_{in})	2	172 keV/u
Output energy (T_{out})	172	172-1053 keV/u
Normalized emittance (ϵ_n)	0.6π	mm•mrad
Energy spread ($\Delta T/T$)*	1.03	≤ 2.8 %
Mass number (A)	≤ 100	
RIB intensity	10^7 - 10^{10}	atoms/s
Duty factor	30	100 %
Repetition rate	20-1000	Hz
Total length	8.6	5.6 m

* ΔT is defined by 2-rms of the spectrum containing 90% ions.

トな SCRFQ は非常に重いイオンを非常に低いエネルギーから 90%以上の高い伝送効率で加速できる。一方、集束用四極電磁石を空洞タンク間に集中的に配置した、加速と集束の機能分離型リニアック(SDTL: Separated Function Drift-Tube Linac)である IH はビームのエネルギーを各空洞の RF 電圧と位相を調節する事によって連続的に変える事ができる。これらの優れた性能が加速試験によって確かめられた。ここでは、伝送効率、エネルギースペクトル、エミッタスの測定結果をそれぞれ図 1、図 2、図 3 に示す。

加速器の設計伝送効率は SCRFQ で 90%、IH で 100%である。測定の結果、加速器全体としてはほぼ設計どおりの 90%に達している。エネルギースペクトルの左上に書かれた加速器名はどの加速器からの出射スペクトルかを示している。図中の可変エネルギーは IH タンク 4 の位相と振幅を変えて得られた。

3) SCRFQ の周波数変更

将来超伝導ブースター・リニアックと結合するために、SCRFQ の周波数は 25.5 MHz からブースターの周波数の 5 分の 1 である 26.0 MHz に変更される。SCRFQ の周波数はシステムのインダクタンス又は電極間の静電容量を小さくする事によって変更できる。システムのインダクタンスはシステムに銅板を貼り付けてシステムの幅を広げる事によって小さくする事ができる。電極間の静電容量はシステムに対向して電極に取り付けられた L 型の銅板の大きさを変える事によって調整できる。システムのインダクタンスや電極間の静電容量を変更すると、電極間の軸方向の電圧分布も変わってしまう。そこで、電圧分布が平らに維持されるよう

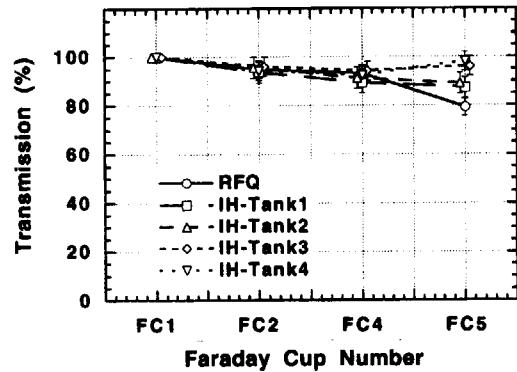


図 1 ビームの伝送効率

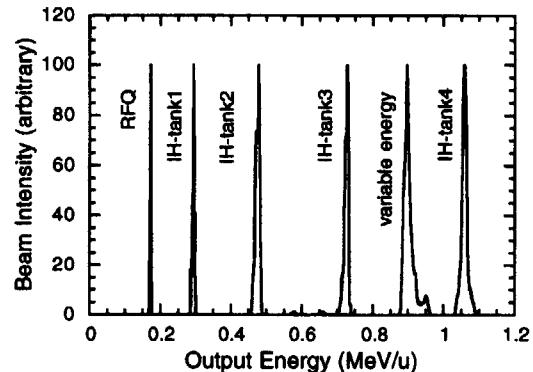


図 2 出射ビームのエネルギースペクトル

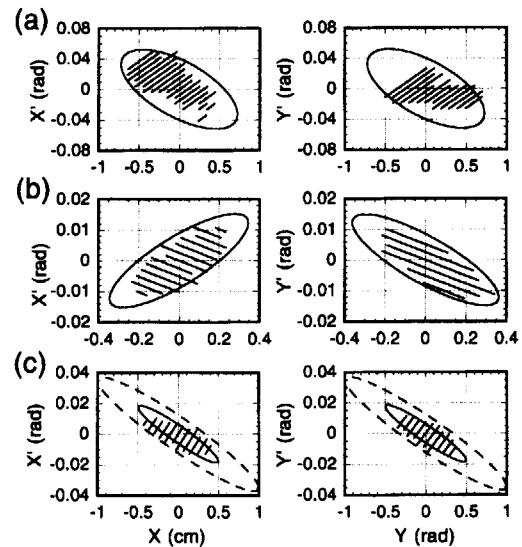


図 3 ビームのエミッタス：(a)は RFQ 入口、(b)は RFQ 出口、(c)は IH 入口での形状である。斜線が測定値、実線楕円が設計規格化エミッタス ($0.6\pi \text{ mm mrad}$)

に周波数を変更しなければならない。

周波数変更に必要なシステムのインダクタンスや電極間の静電容量は等価回路解析によって求められた。使用された等価回路は図4に示されている。計算によって求められた現状の電圧分布と周波数変更後の最適化された電圧分布が図5、図6に示されている。図6の結果を得る為には、ユニット空洞間のシステムインダクタンスを全て7nHにし、第2と第12モジュール空洞のL型静電容量をそれぞ

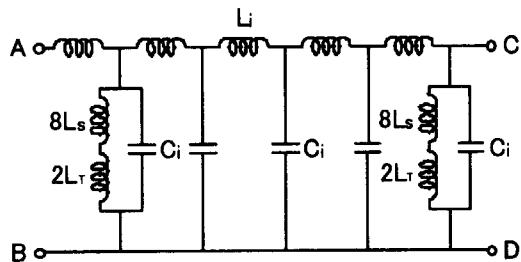


図4 モジュール空洞の等価回路

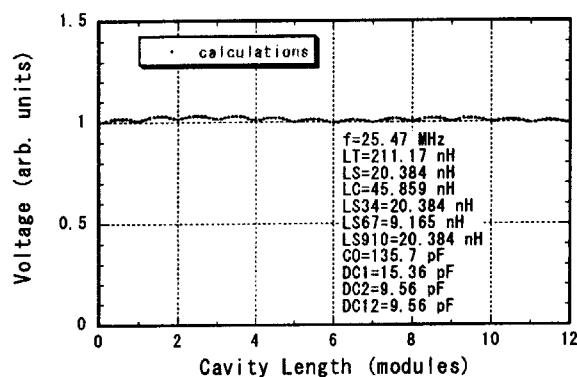


図5 現状の電圧分布

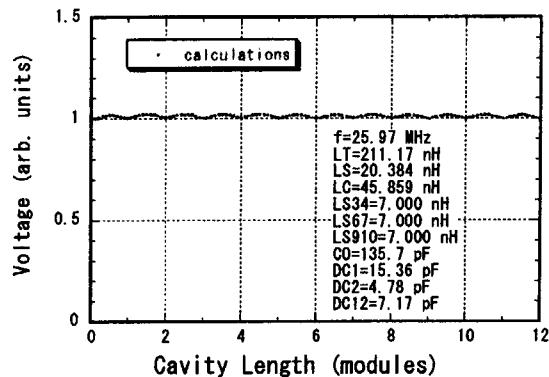


図6 周波数変更後の電圧分布

れ現状の1/2と3/4にすれば良いことが分かった。

4) IH リニアックの周波数変更

IH リニアックは4台の独立した空洞からなる。これらの空洞の共振周波数は SCRFQ の倍である 51 MHz に選ばれている。原研タンデムブースター超伝導リニアックへの接続を考慮する場合は共振周波数を 2 % 上げた 52 MHz にする必要がある。周波数変更の方法として、ドリフトチューブ間の静電容量を減らす方法を選択することにした。一般に静電容量を減らすことはシャントインピーダンスを増加させるため、インダクタンスを減らす方法より好ましいといえる。ドリフトチューブ間の静電容量を減らす方法は（1）ドリフトチューブの内径を大きくする、（2）ドリフトチューブの外径を減らす、（3）ドリフトチューブの加速ギャップを大きくするという3つの方法が考えられる。（1）の方法はアパーチャーをおおきくしアクセスタンスを増やすという長所があるが、要求される周波数変化に必要な静電容量の減少を得るために、ドリフトチューブの厚みが薄くなりすぎ非現実的である。

（2）の場合は、ドリフトチューブの外径が減るため、ドリフトチューブ表面で発生する最大電場勾配が増える可能性があり、電極端形状を慎重に選ぶ必要がある。またドリフトチューブの肉厚が薄くなりすぎると、システムをドリフトチューブに取りつけるのが難しくなる。

（3）の方法では、ギャップ間隔が大きくなるため同じ電圧で比較した場合、電場勾配は小

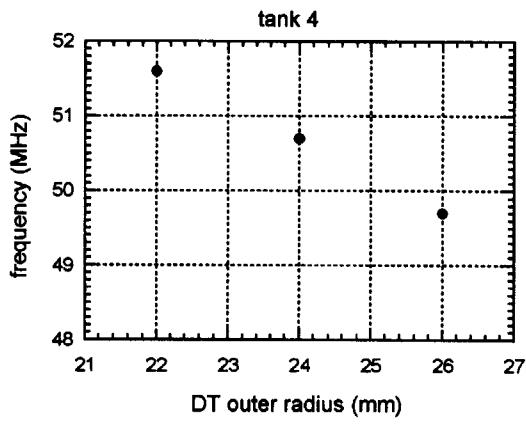


図 7 IH タンク 4 周波数の DT 外径依存性

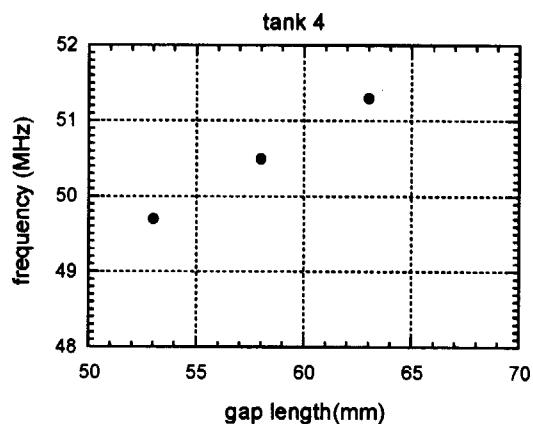


図 8 タンク 4 周波数のギャップ間隔依存性

さくなるという長所があるが、トランジットタイムファクターが減るため実効シャントインピーダンスの増加は期待できない。

(2)、(3)の方法の妥当性を確かめるために4番目のタンク(タンク4)について、MAFIAによる計算を行った。使用した計算機はCPUがDEC 21164、メモリー容量は250Mbである。典型的なメッシュサイズは200万メッシュでCPU時間はおよそ10時間であった。MAFIAによって得られる共振周波数の絶対値は、実際の値より低い値になるということに注意する必要がある。このメッシュサイズでは、実際の共振周波数51MHzに対してMAFIAによる計算値は1.3MHzほど低い結果となっている。従って、ここでMAFIAによる検討では、周波数の変化分のみに着目する。図7はギャップ長を現状の53mmに固定し、ドリフトチューブの外径を現状の26mmから減らした場合の周波数変化である。1MHz周波数をあげるためにには、およそ2mm外径を減らせばよいことがわかる。図8はDTの外径を現状の26mmに固定し、ギャップ間隔を53mmから増やした場合の共振周波数の変化をプロットしたものである。この図より1MHz周波数を上げるためにには、約6.3mmギャップを広げればよいことがわかる。(2)、(3)のいずれの場合も1MHz程度の周波数変化にたいして、ギャップ電圧分布の変化はほとんど無視できる程度に小さいことがMAFIAにより確認された。このIHリニアックは1つの空洞のセル数が少ないため、電場分布が周波数変化によって影響を受けにくいことがその理由である。(2)、(3)のどちらの方法を選択するかは、各タンクごとに、ドリフトチューブとそれを支持しているシステムの構造を考慮して決めることになる。その結果次第ではタンクによっては(2)、(3)の両方を採用する可能性もある。MAFIAにより定性的な理解を得た後、1/2スケールコールドモデルにより最終的なドリフトチューブの寸法を決定する予定である。

5) タンデム施設でのビーム輸送系

原研タンデム施設に移設するSCRFQとIHリニアック間、そして超伝導ブースターと結合するために新たに製作するIH2リニアックまでのビーム輸送系の設計を行った。SCRFQとIHリニアック間は、基本的に田無キャンパスに設置した輸送系と同じであるが、リバンチ

ヤー(RB)の周波数を SCRFQ 同様 25.5MHz から 26.0MHz に変更する必要がある。その変更はドリフトチューブの形状を変えキャパシタンスを減らすことで行うこととしている。POISSON の計算によりドリフトチューブの外径、内径、ギャップ間隔を変えてキャパシタンスの変化を調べた結果、工作上の問題もあわせて考えギャップ間隔を拡げるのがよいことが分かった。そして SUPERFISH を用いて共振周波数を計算した。SUPERFISH は 2 次元計算コードであるのでドリフトチューブのギャップ間のキャパシタンスを集中 C を持った円板に置き換えていた[3]。ギャップ間隔とリバンチャーの共振周波数の関係を図 9 に示す。26.0MHz にするためにはギャップ間隔を現在の 2cm から約 0.4cm 拡げればよいことがわかる。消費電力はトランジットタイムファクターが小さくなつたことを考慮してもあまり変わらない結果であった。今後、3 次元計算コードである MAFIA を用いてさらに検討を行う。

IH から IH2 リニアックまでのビーム輸送系について、幾つかのマッチング条件で TRACE3D による軌道計算を行つた。図 10 はその例である。IH2+ブースターのアクセプタスはビームエミッタンスの 2~3 倍程度しかなく、バンチャーや電磁石は既存のタンデム施設の遮蔽壁やビームライン等をまたいで設置する必要があるので配置はかなり制約される。軸方向のビームのアベレーションを押さえるために 2 台のバンチャー(RB2)の周波数は 26MHz とした。その結果、RB2 の仕様は 26MHz、最大加速電圧 440kV、全長約 120cm となつてい

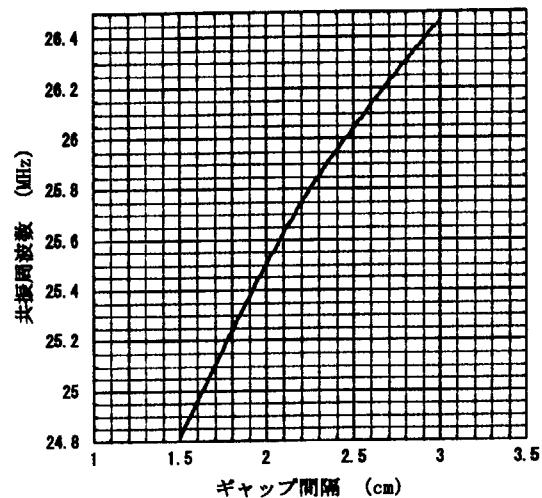


図 9 リバンチャーの共振周波数

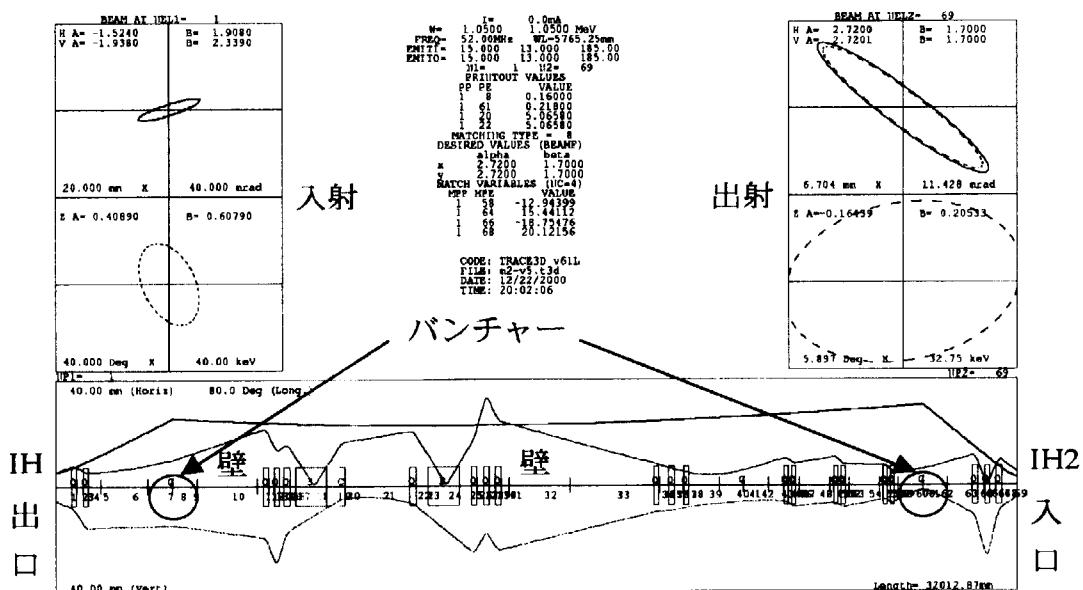


図 10 IH-IH2 間のビームトレース

る。ビームライン上にはタンデムビームをブースターに入れるためのボア径の小さな超伝導のバンチャード（IH からのビーム輸送には使わないもの）もあり、今後さらにビーム径を小さくするようにオプティクスの改善を検討する必要がある。2001 年度には上記の仕様に従って RB2 のモデルを製作する予定である。

参考文献

1. H. Miyatake *et al.*, 98 年 1 月分 SF サイクロトロン共同利用申込書、1997.
2. S. Arai *et al.*, Beam Test Results of the INS RFQ/IH Linac, Proc. of the 18th Int. Linac Conf., Geneva, 1996, p.575.
3. K. Yoshida *et al.*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A430(1999) 189-197.



JP0150918

JAERI-Conf 2001-014

3.2 核物理関連

3.2.1 $^{58}\text{Ni}+^{58}\text{Ni}$ の系で観測された強い 4 核子移行反応

杉山康治、濱田真悟、山崎明義*

原研先端基礎研究センター、*東北大学サイクロトロン R I センター

閉殻から離れた中重核の基底状態は、強い対相互作用のために超伝導状態になる。超伝導状態にある原子核同士がクーロン障壁近辺のエネルギーで衝突すると、核ジョセフソン効果と呼ばれる現象が生じ、多核子対が強く移行することが 1970 年に理論的に予測された[1]。クーロン障壁近辺のエネルギーでの核子移行反応は次のような半古典論で良く記述できる。

$$ds_{tr}(q) = ds_{el}(q) * P_{tr}(q) * F(Q) \quad (1)$$

ここで $ds_{tr}(q)$: 移行反応の断面積, $ds_{el}(q)$: 弹性散乱の断面積 $P_{tr}(q)$: 遷移確率, $F(Q)$: Q-value effect による補正

核ジョセフソン効果が存在するならば、x-pair の遷移確率 P_{2x} は one-pair の遷移確率 P_2 に比べて

$$P_{2x} \gg (P_2)^x \quad (2)$$

の関係式で示される様にかなり大きくなる事が期待される。これまで世界中で数多くの実験が行われてきたが、未だ (2) 式を満たす実験データは無かった。

実験的にこの現象を検証するためには、基底状態への移行を励起状態へのものから分離できるエネルギー分解能の良い測定器が必要となる。原研タンデム加速器に設置されている重イオン磁気分析装置「ENMA」が世界で初めてこの条件を満たした [2]。タンデム加速器で加速されたクーロン障壁近辺のエネルギーの Ni ビームによる 2 中性子移行反応の系統的実験を、種々の Ni アイソトープのターゲットを用いて行った [3]。ENMA の焦点面検出器として、位置及び時間測定用のマルチワイヤープロポーショナルカウンターを用いた。核反応で生成した Ni アイソトープの質量を同定するため、散乱槽にチャンネルプレート検出器を設置し、焦点面までの飛行時間を測定した。また詳細な角度分布を測定するため、反跳核の放出角度を Si 位置検出器で測定した。

今回は入射エネルギー 220MeV の ^{58}Ni ビームを用いて $^{58}\text{Ni}+^{58}\text{Ni}$ の実験を行った。図 1 に散乱角度 42.5 度で得られた質量分布を示す。M=54 から 62 まで明確に識別できている。

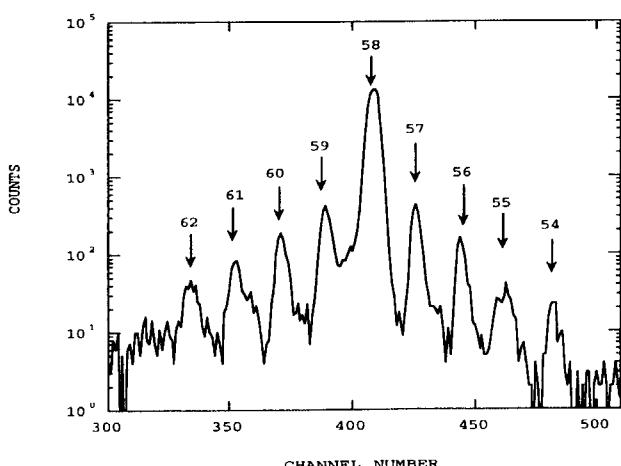


図 1. $^{58}\text{Ni}+^{58}\text{Ni}$ の系で得られた質量分布。入射エネルギーは 220MeV、散乱角度は 42.5 度である。

図2に弾性散乱の角度分布を示す。同一粒子の散乱による散乱振幅の対称化のため生じる、後方での振動がはっきりと観測されている。実線は ^{58}Ni の第一励起 2^+ と 3^- 状態の励起を取り入れたチャンネル結合法による計算結果である。用いた光学ポテンシャルは、 $V=72.0\text{MeV}$, $W=20.0\text{MeV}$, $r_0=r_{i0}=1.186\text{fm}$, $a_0=a_{i0}=0.63\text{fm}$ である。実験結果を良く説明できている。

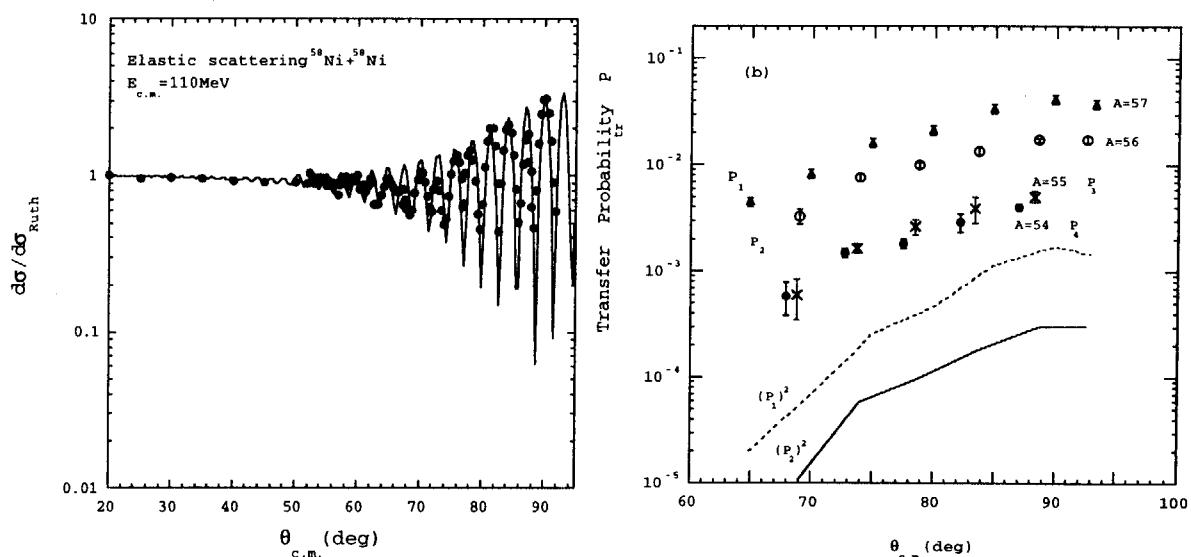


図2. $^{58}\text{Ni}+^{58}\text{Ni}$ の系での弾性散乱の角度分布のラザフォード散乱との比較。実線はチャンネル結合法による理論計算。

図3. $^{58}\text{Ni}+^{58}\text{Ni}$ の系での1-4核子移行反応の遷移確率。点線および実線は、1核子移行 P_1 および2核子移行反応 P_2 の遷移確率の二乗を示す。

図3に1核子から4核子移行反応までの遷移確率の角度分布を示す。この遷移確率は各移行反応のエネルギー積分した断面積より求めた。点線および実線は1核子移行 P_1 および2核子移行反応 P_2 の遷移確率の二乗を示す。2核子移行反応の遷移確率 P_2 は $(P_1)^2$ に比べると1桁以上も大きい。さらに4核子移行反応の遷移確率 P_4 も $(P_2)^2$ に比べると1桁以上も大きい。この大きさは、核ジョセフソン効果が存在するとき予測される関係式(2)を満たしている。4核子移行反応でこのように大きい遷移確率が観測されたのは今回が初めてである。この結果は、重イオン核反応で遷移する核子対の間に強い相関が働いていることを示しており、核ジョセフソン効果の存在の可能性を示唆している。

References

- [1] K. Dietrich, Phys. Lett. 32B, 428 (1970).
- [2] Y. Sugiyama et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A281, 512 (1989).
- [3] Y. Sugiyama et al., Phys. Rev. C55, R (1997); J. Phys. G; Nucl. Part. Phys. 23, 139 (1997).



JP0150919

JAERI-Conf 2001-014

3.2.2 Effects of nuclear deformation on fusion probability

in the reactions of $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ and $^{82}\text{Se} + ^{\text{nat}}\text{Ce}$ ($^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ と $^{82}\text{Se} + ^{\text{nat}}\text{Ce}$ の融合確率の測定による原子核の変形効果)K. Nishio¹, H. Ikezoe¹, S. Mitsuoka¹, J. Lu², K. Satou¹

西尾勝久, 池添博, 光岡真一, J. Lu, 佐藤健一郎

1. Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Research Institute

Tokai-mura, Ibaraki 319-1195, Japan

日本原子力研究所, 先端基礎研究センター

2. Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, 730000 Lanzhou, China

中国現代物理研究所

Synthesis of a super-heavy element (SHE) is one of the important topics in nuclear physics because it gives an insight into the shell-stabilization in the vicinity of the double magic nucleus of $Z=114$ and $N=184$, without which such a heavy nucleus cannot exist due to the overwhelming repulsive Coulomb force. Two types of fusions, 'hot fusion' and 'cold fusion', have been investigated so far as a possible way of synthesizing the super heavy element. Another approach implied by the theory is the 'Gentle fusion' [1] or 'Hugging fusion' [2], by using deformed nuclei. When projectile collides with a well deformed target nucleus with their symmetry axis being orthogonal, which is the most compact configuration at touching, this specific configuration would presumably result in higher fusion probability than any other touching configuration.

In order to investigate the effects of nuclear deformation on fusion process for the heavy systems ($Z_1 Z_2 > 1800$), we measured the evaporation residue (ER) cross sections of $^{82}\text{Se} + ^{\text{nat}}\text{Ce}$ and $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ as a direct evidence of complete fusion [3][4], and the excitation function of the fusion probability was obtained. The former system represents fusion of two spherical nuclei ($Z_1 Z_2 = 1972$), the latter fusion involving the prolate deformed target ^{150}Nd ($Z_1 Z_2 = 1920$) and has the similar $Z_1 Z_2$ value to $^{82}\text{Se} + ^{\text{nat}}\text{Ce}$. We also measured the ER cross sections and fission cross sections for the reaction $^{28}\text{Si} + ^{198}\text{Pt}$ leading to ^{226}U . This is the light system with $Z_1 Z_2 = 1092$, and thus we expect no fusion hindrance. Fusion cross section, which is approximated to the fission cross section, and the ER cross sections for $^{28}\text{Si} + ^{198}\text{Pt}$ allowed us to determine parameters entering in the statistical model calculation, which gives the survival probability of the highly excited neutron deficient uranium isotopes.

Measurement of evaporation residue cross sections was made by using ^{28}Si , ^{82}Se and ^{76}Ge beam supplied by the JAERI-tandem booster accelerator. The targets were made by sputtering the enriched isotopes on aluminum foil. The evaporation residues emitted in beam direction were separated in flight from the primary beam by the JAERI recoil mass separator, and implanted into a silicon detector. Since the evaporation residues produced in the present reaction are α decaying nuclei, the evaporation channels could be identified by observing α -decay energies and life-times.

Evaporation residue (ER) cross sections for $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ and $^{82}\text{Se} + ^{\text{nat}}\text{Ce}$ are shown in Fig.1 and Fig.2, respectively, as a function of c.m. energy ($E_{\text{c.m.}}$). By using the experimental ER cross sections, we obtained the fusion probability weighted by the angular momentum l

from

$$P_{\text{fus}}(E_{\text{c.m.}}) = \frac{\sum_c \sigma_{\text{er},c}(E_{\text{c.m.}})}{\pi \lambda^2 \sum_l (2l+1) \sum_c w_{\text{er},c}(E_{\text{c.m.}} + Q, l)}, \quad (1)$$

which involves in the numerator the sum of the measured evaporation residue cross section $\sigma_{\text{er},c}$ over the available channel c . The survival probability against fission for the specific evaporation channel c , $w_{\text{er},c}$, is a function of the excitation energy $E_{\text{c.m.}} + Q$ (reaction Q -value) and the angular momentum. This was calculated by the statistical model calculation (HIVAP code [5]) using parameters which can reproduce the ER cross sections for $^{28}\text{Si} + ^{198}\text{Pt}$. The results for P_{fus} for $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ and $^{82}\text{Se} + ^{\text{nat}}\text{Ce}$ are shown in Fig.3 as a function of $E_{\text{c.m.}}$ normalized to the Coulomb barrier V_B , which is determined by assuming the interacting nuclei to be spherical. We also show in this figure P_{fus} for $^{28}\text{Si} + ^{198}\text{Pt}$.

Below $E_{\text{c.m.}}/V_B = 1.1$, the P_{fus} $^{82}\text{Se} + ^{\text{nat}}\text{Ce}$ sharply decreases with lowering the bombarding energy, showing a fusion hindrance in the form of extra-extra-push energy of 27 ± 5 MeV. By assuming P_{fus} for $^{82}\text{Se} + ^{\text{nat}}\text{Ce}$ to follow the solid curve in Fig.3, we obtain the ER cross sections shown in Fig.2 by the thick solid curve. This can be compared to the cross section assuming no fusion hindrance for this system, shown by the thick dashed curve.

For $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$, there is no fusion hindrance at and above the Coulomb barrier (see Fig.3), and the excitation function of fusion probability is similar to the light system of $^{28}\text{Si} + ^{198}\text{Pt}$ in $E_{\text{c.m.}} > V_B$. Because of the deformation of ^{150}Nd ($\beta_2, \beta_3 = (0.358, 0.107)$), the $E_{\text{c.m.}}$ is constant within 5 MeV for $\theta_{\text{coll}} > 50^\circ$ and is close to V_B (209 MeV). The nearly constant $P_{\text{fus}} = 1$ above V_B shows that there is no fusion hindrance in the side collision of $\theta_{\text{coll}} > 50^\circ$ which covers the 65 % of solid angle among the configuration of the interacting two nuclei. By assuming no fusion hindrance in the side collision for $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$, we obtain the ER cross sections for $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ shown by the thick solid curve in Fig.1. This represents the experimental data well.

The phenomenon that fusion is not hindered when ^{76}Ge collides with the side of the prolate deformed target ^{150}Nd suggests that the reaction starting from the compact touching point results in higher fusion probability than the fusion from the distant touching point.

References

- [1] W. Nörenberg, Proc. Int. Workshop on Heavy-Ion Fusion, Padva, Italy (1994)
- [2] A. Iwamoto, P. Möller, J.R. Nix, and H. Sagawa, Nucl. Phys. **A596**, 329 (1996).
- [3] K. Nishio, H. Ikezoe, S. Mitsuoka, and J. Lu, Phys. Rev. C, **62**, 014602 (2000).
- [4] K. Nishio, H. Ikezoe, S. Mitsuoka, S. Satou, S.C. Jeong, Phys. Rev. C, in print.
- [5] W. Reisdorf and M. Schädel, Z. Phys. A **343** (1992) 47.

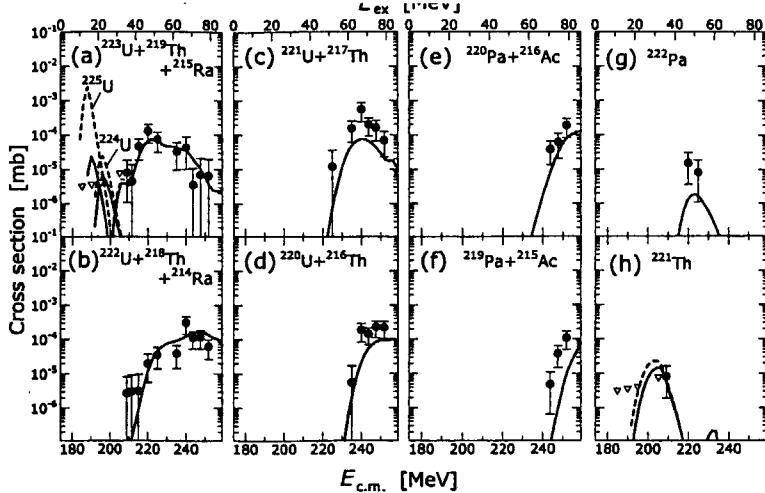


Fig.1. Evaporation residue cross sections for $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$. Excitation energy of the compound nucleus, E_{ex} , is also indicated. The thick solid curve is the results of the statistical model calculation coupled with the CCDEF code, in which we assume no fusion hindrance in the collision of ^{76}Ge on the side of ^{150}Nd .

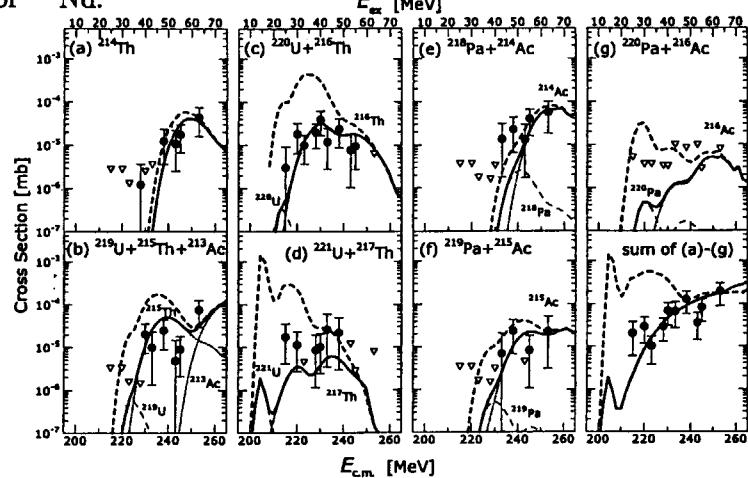


Fig.2. Evaporation residue cross sections for $^{82}\text{Se} + ^{\text{nat}}\text{Ce}$. Excitation energy of the compound nucleus, E_{ex} , is also indicated. The thick solid curve is the results of the statistical model calculation assuming extra-extra-push energy of 27 MeV for the entrance channel. The thick dashed curve is the results when we assume no fusion hindrance.

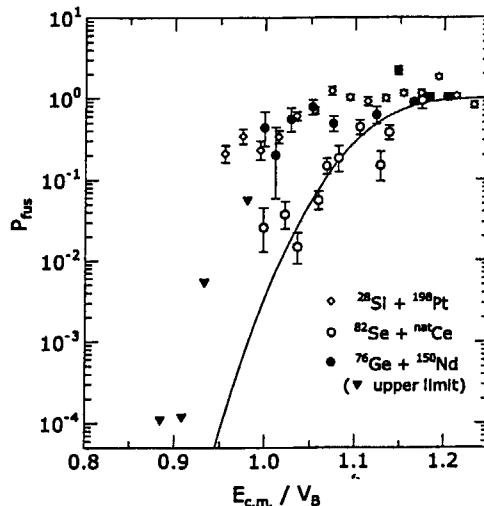


Fig.3. Fusion probability for $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$, $^{82}\text{Se} + ^{\text{nat}}\text{Ce}$ and $^{28}\text{Si} + ^{198}\text{Pt}$.



JP0150920

JAERI-Conf 2001-014

3.2.3 Sub-barrier fusion of deformed nuclei in the reactions of $^{60,64}\text{Ni} + ^{154}\text{Sm}$

S. Mitsuoka, H. Ikezoe, K. Nishio, K. Satou, and J. Lu

Advanced Science Research Center, JAERI, Tokai, Ibaraki, 319-1195 Japan

Toward the "island of stability" at or near the predicted double magic nucleus $^{298}\text{114}$, great efforts have been made to synthesize the superheavy elements by using the hot-fusion reaction with actinide targets and the cold-fusion reaction with lead-based targets of shell closed spherical nuclei. Very recently, the syntheses of good candidate for the heaviest elements of 114, 116 and 118 by these reactions have been reported. These types of the fusion reaction have been promising to produce such superheavy elements but the production cross sections are the order of 1 pb or less, which may be close to the limit of present day experimental techniques. As a new approach to the superheavy region, the gentle fusion and the hugging fusion between well-deformed nuclei have been theoretically proposed. The relative orientation of the symmetry axes of the deformed nuclei significantly changes the Coulomb barrier height and the compactness of the touching configuration. When the symmetry axes are orthogonal to each other at the contact point, the two deformed nuclei can take the most compact configuration. It is predicted that this compact configuration would have a high formation probability of the spherical compound nucleus. Furthermore, it is expected that this touching configuration with the orthogonal symmetry axes would make the fusion path far from the competing axial-symmetric fission path.

In order to check this speculation experimentally, we have investigated the sub-barrier fusion of strongly deformed nuclei ^{154}Sm ($\beta_2=0.32$), ^{182}W ($\beta_2=0.28$) and ^{150}Nd ($\beta_2=0.36$). To get the direct evidence that the projectile really fuses with the deformed target, the fusion evaporation residues (ERs) emitted to the beam direction were measured by using the JAERI recoil mass separator [1] and identified on the basis of time- and position-correlated α -decays. The angular distributions of fission fragments were also measured around the target to obtain the total fusion cross section. To obtain the absolute cross sections, we had measured beforehand the solid angle and the transmission efficiency of the RMS in several heavy-ion reactions [2]. We have recently published the experimental results in Ref. [3] for the reactions of $^{60}\text{Ni}+^{154}\text{Sm}$ and $^{32}\text{S}+^{182}\text{W}$ where the same compound nucleus ^{214}Th is formed, and also in Ref. [4] for the reactions of $^{76}\text{Ge}+^{150}\text{Nd}$ and $^{28}\text{Si}+^{198}\text{Pt}$ where the compound nucleus ^{226}U is formed. In Ref. [5], the effect of nuclear deformation in the $^{76}\text{Ge}+^{150}\text{Nd}$ reaction has been directly compared with the case of spherical projectile and target combination in the $^{82}\text{Se}+^{nat}\text{Ce}$ reaction.

In these papers, to extract the effects of the target deformation on the compound nucleus formation in the entrance channel, especially, how the heavy-ion fusion process depends on the orientation of the deformed target, we compared the obtained data with simple model calculations in two steps: First, for the fusion process (entrance channel), the fusion-fission cross sections are compared with the fusion cross section predicted by the coupled channel calculation using the code CCDEF. Here, the fusion cross section is assumed to be approximately equal to the measured fission cross section, since the heavy compound nuclei formed in the present reaction systems predominantly undergo fission. And then, for the fusion evaporation process (exit channel), the excitation functions of each ER channel are compared to the calculated cross sections by using the statistical model code HIVAP. In the light projectile systems of $^{32}\text{S}+^{182}\text{W}$ and $^{28}\text{Si}+^{198}\text{Pt}$, a good agreement between the data and the calculated results was obtained for both the entrance channel and all of the exit x_n ,

p_{xn} and α_{xn} evaporation channels. We used these reaction systems as a reference to confirm the parameters used in the HIVAP calculations for the deexcitation from the same compound nucleus in the respective heavy projectile systems.

In the systems of heavy projectile-target combination of $^{60}\text{Ni}+^{154}\text{Sm}$ and $^{76}\text{Ge}+^{150}\text{Nd}$, the ER cross sections below the Bass barrier were hindered by two to three orders of magnitude. Such fusion hindrance has been widely observed in the heavy compound systems of the actinides region, as the product Z_1Z_2 of the atomic numbers of projectile and target increases beyond ~ 1800 or the effective fissility parameter χ_{eff} beyond ~ 0.73 . This fusion hindrance is known as the extra-push phenomena, which means that colliding nuclei need an extra kinetic energy to form the compound nucleus even if the projectile energy overcomes the fusion barrier. For the synthesis of the heavy and superheavy elements, it is one of the key issues how we can reduce such huge hindrance of heavy-ion fusion probability in the entrance channel. We would get a hint to open this problem in the present experiments with well-deformed nuclei, that is, no fusion hindrance was observed above the barrier even in the heavy projectile systems having larger values of (Z_1Z_2, χ_{eff}) of $^{60}\text{Ni}+^{154}\text{Sm}$ (1736, 0.735) and $^{76}\text{Ge}+^{150}\text{Nd}$ (1920, 0.749) than those of $^{32}\text{S}+^{182}\text{W}$ (1184, 0.613) and $^{28}\text{Si}+^{198}\text{Pt}$ (1092, 0.583).

As mentioned before, the Coulomb barrier height and the compactness of the touching configuration vary depending on the relative orientation of the symmetry axes of the deformed nuclei. The Coulomb barrier height in the $^{60}\text{Ni}+^{154}\text{Sm}$ system is 172 MeV for the collisions with the tips of the deformed target (tip collision) and 198 MeV for the side collision. Although the barrier distribution becomes wider due to the additional inelastic couplings which effects are minor but important, it is considered that the ER yields at $E_{cm} \sim 180$ MeV mainly come from the tip collision. The fact that no ER was observed at $E_{cm} = 175$ and 182 MeV suggests that the fusion probability is significantly small at the near tip collision below the Bass barrier. On the contrary, the fusion hindrance was *not* observed at the higher energy than $E_{cm} \sim 200$ MeV. Though the collisions for all target orientations occur in the above-barrier energies, it is considered that the near side collisions mainly contribute to the compound nucleus formation because of their larger solid angle than that of the tip collision. These facts suggest that the near tip collision needs some extra kinetic energy to fuse each other while the side collision leads complete fusion without such extra energy.

For more detail investigation of the fusion hindrance below the barrier, we have developed the measurements [6]: (i) The statistics of the ER cross sections have gained 10 times at the $E_{cm} = 182$ MeV in $^{60}\text{Ni}+^{154}\text{Sm}$, because the previous measurements below this energy gave only the upper limit of a few nb. (ii) The excitation functions have been measured by using the ^{64}Ni beam having 4 more neutrons than ^{60}Ni , especially to see how the neutron-rich projectile acts on the fusion probability. Fig. 1 shows the obtained ER cross section for α_{xn} , p_{xn} , and α_{xn} channels in the $^{64}\text{Ni}+^{154}\text{Sm}$ system. The solid lines in the figure indicate the calculated results of HIVAP, where the level density parameters at the ground-state deformation and the saddle-point deformation were confirmed in the previous analysis in the $^{60}\text{Ni}+^{154}\text{Sm}$ and $^{32}\text{S}+^{182}\text{W}$ systems [3]. As observed in the previous $^{60}\text{Ni}+^{154}\text{Sm}$ system, the present result also shows a large hindrance below the Bass barrier $V_{Bass} = 190$ MeV. The hindrance factor is about 10^{-3} at the energy corresponding to the barrier height of the tip collision, whereas no hindrance is observed above the side collision barrier energy of 200 MeV. This is consistent with our previous conclusion that some extra-extra push energy is needed in the tip collision and nearly zero E_{xx} in the side collision.

In order to confirm this consideration, we properly modified the fusion barrier by adding E_{xx} to the original barrier height depending on the colliding angle θ of ^{64}Ni projectile with respect to the orientation of the symmetric axis of the deformed ^{154}Sm target. The

dashed lines in Fig. 1 show the calculated results of the ER cross section by assuming the E_{xx} around 15 MeV is needed at the tip collisions ($\theta = 0^\circ$) and decrease gradually to zero at the side collisions ($\theta = 90^\circ$). The fact that the dashed lines could reasonably reproduce the fusion hindrance would support our simple consideration, that is, less E_{xx} is needed in the compact configuration at the side collisions than that of much elongated shape.

Here, the present cross sections in Fig. 1 are about 100 times larger for all ER channels than those in the previous case of $^{60}\text{Ni}+^{154}\text{Sm}$. Such large cross section is considered to be mainly due to the exit channel effect, that is, the small neutron separation energy in case of the neutron-rich projectile ^{64}Ni makes the survival probability against fission to be large. As described in Ref. [5], to deduce the entrance channel effects, the fusion probability can be obtained by using the HIVAP results of the survival probability for each evaporation channel as a function of excitation energy. Fig. 2 shows the fusion probability obtained as a function of E_{cm}/V_{Bass} for the $^{60}\text{Ni}+^{154}\text{Sm}$ and $^{64}\text{Ni}+^{154}\text{Sm}$ reactions. The two reactions show the similar trend, against the expectation that the neutron excess may effect on the enhancement of the fusion probability in some extent owing to the neck formation in the entrance channel.

As shown in Fig. 2, the fusion probability gradually increases from $E_{cm}/V_{Bass} = 0.9$ (near tip collision) with the hindrance factor of about 10^{-3} to $E_{cm}/V_{Bass} = 1.1$ (near side collision) with no fusion hindrance. It is worth relating this fact to the distance R/R_0 between the mass centers of the colliding nuclei at the barrier position, where R_0 is the radius of the spherical compound nucleus. In the tip collision of the $^{60}\text{Ni}+^{154}\text{Sm}$ system, the value of $R/R_0 = 1.79$ at the contact point is larger than 1.47 corresponding to the fission saddle position. To surmount the saddle point on the potential surface towards the compound nucleus the extra energy is needed, thus the fusion probability is extremely hindered. On the other hand, the side collision, where the mass center ($R/R_0 = 1.64$) is inside the saddle point, would lead the complete fusion without any extra energy if the incident energy is above the fusion barrier. The present conclusion is consistent with the reports by Hind *et al.*; the side collisions lead to the fusion-fission whereas the tip collisions undergo the quasi-fission without forming the fully equilibrated compound nucleus. These facts support the original speculation of the proposed hugging fusion that it is of important for the compound nucleus formation to take more compact configuration than an elongated shape. In order to convince the present conclusion, further experimental studies and more realistic calculations of the fusion dynamics between deformed nuclei should be carried out at the sub-barrier region.

References

- [1] H. Ikezoe, Y. Nagame, T. Ikuta, S. Hamada, I. Nishinaka, and T. Ohtsuki, Nucl. Instrum. and Methods A **376**, 420 (1996).
- [2] T. Kuzumaki, H. Ikezoe, S. Mitsuoka, T. Ikuta, S. Hamada, Y. Nagame, I. Nishinaka, O. Hashimoto, Nucl. Instrum. and Methods A **437**, 107 (1999).
- [3] S. Mitsuoka, H. Ikezoe, K. Nishio, and J. Lu, Phys. Rev. C **62**, 054603 (2000).
- [4] K. Nishio, H. Ikezoe, S. Mitsuoka, and J. Lu, Phys. Rev. C **62**, 014602 (2000).
- [5] K. Nishio, H. Ikezoe, S. Mitsuoka, K. Satou, and S.C. Jeong, Phys. Rev. C **63**, (2000) in print.
- [6] S. Mitsuoka, H. Ikezoe, K. Nishio, and K. Satou, to be submitted to Phys. Rev. C.

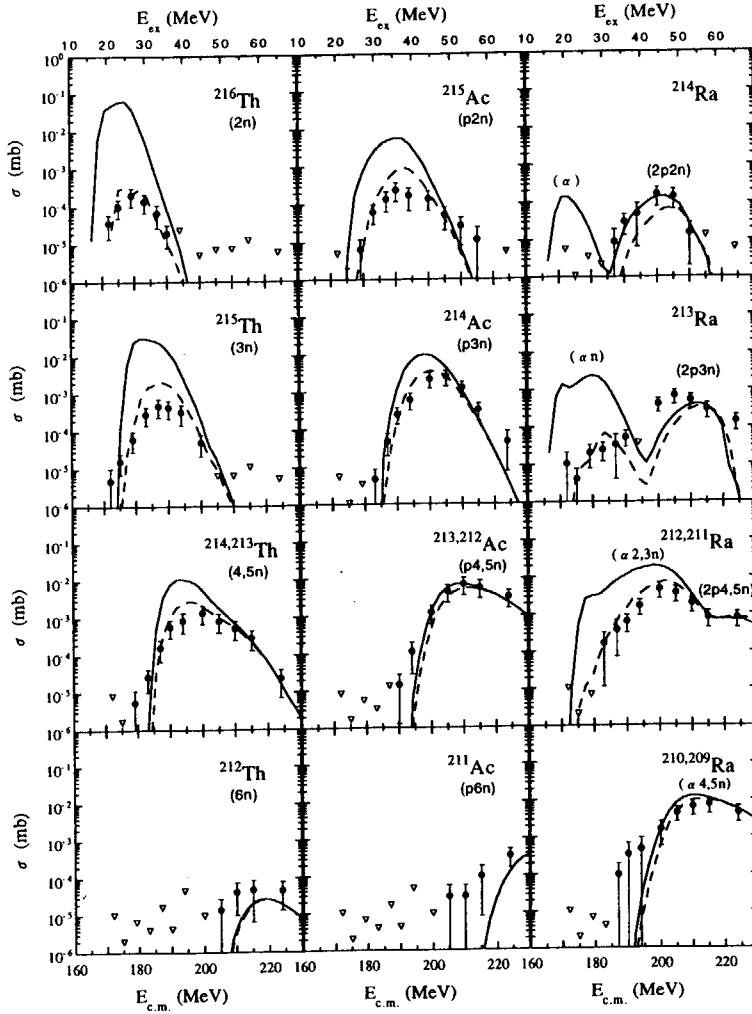


Figure 1: Measured ER cross section for xn , pxn , and αxn channels in the $^{64}\text{Ni} + ^{154}\text{Sm}$ reaction. Triangles indicate the upper limit of the measurements. The solid and dashed lines are the calculated results of HIVAP without and with the extra-extra push energy, respectively (see in text).

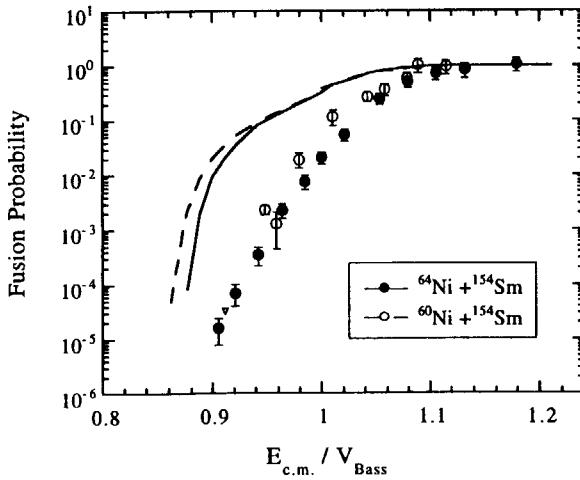


Figure 2: Fusion probability for $^{64}\text{Ni} + ^{154}\text{Sm}$ (solid circles) and $^{60}\text{Ni} + ^{154}\text{Sm}$ (open circles) determined from the experimental ER cross sections. The curves are the calculated results of CCDEF (see in Refs. [5, 6]).



JP0150921

JAERI-Conf 2001-014

3.2.4 DEFORMATION OF ^{78}Se

T. Hayakawa¹, Y. Toh¹, M. Oshima¹, A. Osa¹, M. Koizumi¹,
Y. Hatsukawa¹, J. Katakura¹, M. Matsuda¹, Y. Utsuno¹, T. Morikawa², M.
Sugawara³, H. Kusakari⁴ T. Czosnyka⁵

1 Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai, Ibaraki 319-1195, Japan

2 Kyushu University, Hakozaki, Fukuoka 812-8581, Japan

3 Chiba Institute of Technology, Narashino, Chiba 275-0023, Japan

4 Chiba University, Inage-ku, Chiba 263-8522, Japan

5 Heavy Ion Laboratory, Warsaw University, Pasteura 5a, 02-093 Warszawa, Poland

The structure of nuclei in a mass~80 region is described as resulting from an interplay of rotational and vibrational collective motions. Even-even stable selenium isotopes ($Z=34$, $N=38\text{-}48$) are located in a transition region, with proton number between magic $Z=28$ and $Z=40$ semi-magic numbers while the neutron number is contained between $N=28$ and $N=50$ closed shells. From the level schemes all Se isotopes seem to exhibit the vibrational collective mode of excitation, with closely-spaced triplet of 0_2^+ , 2_2^+ and 4_1^+ spin states, whose excitation energies are nearly equal to twice of the energy of the first excited 2^+ state. Excited states of these nuclei were studied by Coulomb excitation. The transition probabilities $B(E2)$ of the low-lying states and the quadrupole moments of the first excited 2^+ states of Se isotopes have been measured by Coulomb excitation using light-ion beams [1, 2], and it was reported that the $B(E2)$ values not support the predictions of the vibrational model. More recently the Coulomb excitation data were obtained for Se and Ge isotopes [3, 4] in a model-independent way using the least squares analysis code GOSIA [5]. The experiments included both multiple Coulomb excitation with heavy-ion beams and projectile excitation on heavy targets. The deformation of the second 0^+ state was discussed in these studies. The second 0^+ state was found to be a spherical intruder state in case of ^{72}Ge . A. K. Kavka *et al.* studied the structure of the $^{76,80,82}\text{Se}$ using multiple Coulomb excitation with ^{16}O , ^{48}Ti and ^{208}Pb beams[4]. In conclusion it was reported that the second 0^+ state of ^{76}Se can be described in terms of vibrational model, while a clear discrepancy between the predictions of this model and the measured properties of the second 0^+ states in $^{80,82}\text{Se}$ was seen. No data from heavy-ion Coulomb excitation exist for ^{78}Se . To study the systematics of even-even Se isotopes, projectile excitation of ^{78}Se was carried out followed by the GOSIA analysis.

For the projectile Coulomb excitation, a self-supporting lead target of 1.7 mg/cm^2 in thickness was bombarded by the 320 MeV ^{78}Se beam from the tandem accelerator at Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI). The γ -ray detector array, GEMINI [6], consisting of 12 HPGe detectors with BGO anti-Compton suppressors was used to detect deexcitation γ -rays. The typical energy resolution was 2.2 keV at 1.3 MeV γ -ray. The efficiencies of HPGe detectors were about 40 % relative to $3'' \times 3''$ NaI detector. The Ge detectors were placed at 32° , 58° , 90° , 122° and 148° relative to the incident beam direction. The scattered ^{78}Se beam was detected by position-sensitive

particle detector system with 4 photomultiplier tubes in combination with 2 plastic and 2 Yap Ce scintillators. Particle detector covered about 30% of 4π with positional resolution of 1.2mm FWHM near the edge of detector and 0.5mm at the center. The information on particle position was used for Doppler shift correction of the γ -ray energies, simultaneously providing the information on impact parameter dependence of γ -ray intensities. The experimental data were recorded on magnetic tapes event by event when one HPGe detector and one particle detector responded as coincident signals. About 2×10^8 events were obtained. In Fig.1, Doppler shift correction of γ -rays is shown. The energy resolution for 614 keV transition has been improved from 25 keV to 8 keV FWHM.

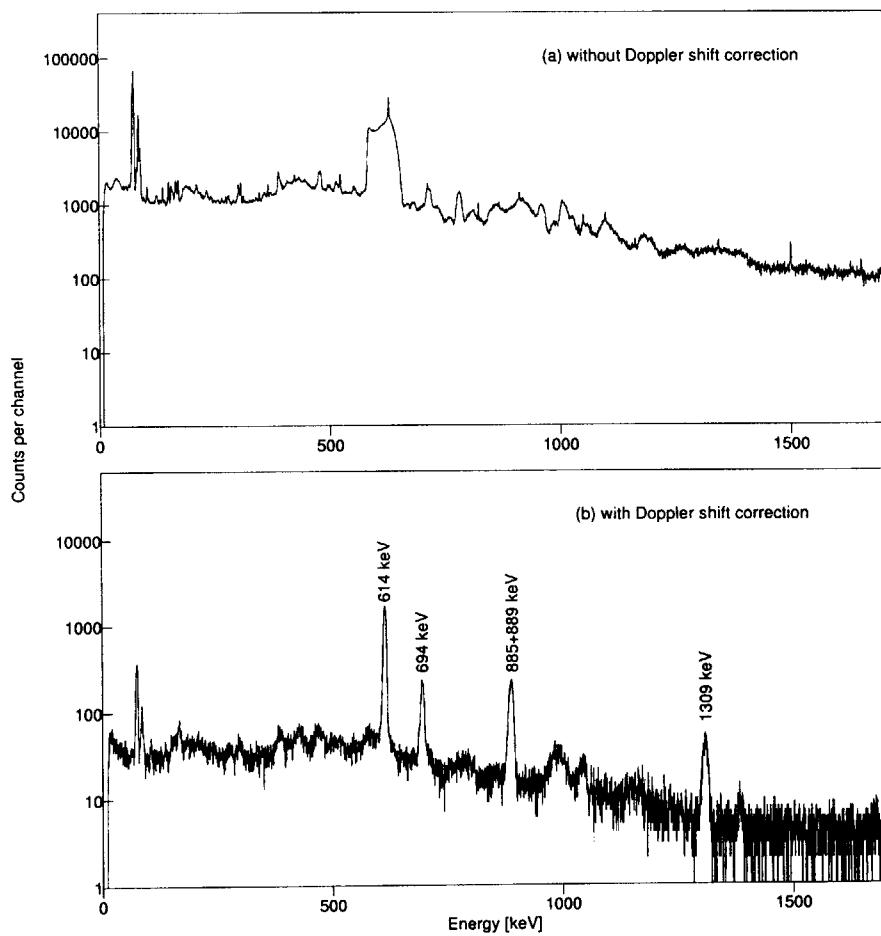


Fig. 1 Typical γ -ray spectra in coincidence with particle.

So far, the low-spin structure of ^{78}Se has been studied by the β - γ coincidence measurement and the transfer reactions. Four excited states up to 4_1^+ state and five γ -rays were observed. To determine the matrix elements measured γ yields as well as known lifetimes and $E2/M1$ mixing ratios were used as an input for GOSIA. Two transitions of 889 keV (from 4^+ to 2^+) and 885 keV (from second 0^+ to 2^+) have nearly same energies within detector resolution. The intensities of these γ -rays were analyzed assuming an unresolved doublet, handled by the GOSIA code. It was possible to derive all $E2$

matrix elements connecting the 4 low-lying excited states and the ground state of ^{78}Se . The result of least-squares fit reproduced well the γ -ray intensities and level lifetimes. Totally 10 $E2$ reduced matrix elements were determined, including 3 diagonal matrix elements.

The 4_1^+ , 2_2^+ and 0_2^+ spin levels, which are located at about twice energy the 2_1^+ state may appear to constitute a two-phonon triplet. However, the present analysis shows the $B(E2, 4_1^+ \rightarrow 2_1^+)/B(E2, 2_1^+ \rightarrow 0_1^+)$, $B(E2, 2_2^+ \rightarrow 2_1^+)/B(E2, 2_1^+ \rightarrow 0_1^+)$ and $B(E2, 0_2^+ \rightarrow 2_1^+)/B(E2, 2_1^+ \rightarrow 0_1^+)$ ratios are 0.89, 0.65 and 1.5, respectively, disclosing a deviation from those of the harmonic vibrator model, according to which all these ratios should equal 2.

References

- [1] J. Barrette, *et al.*, Nucl. Phys. **A235**, 154 (1974).
- [2] R. Lecomte, *et al.*, Nucl. Phys. **A284**, 123 (1977).
- [3] B. Kotliński, *et al.*, Nucl. Phys. **A519**, 646 (1990).
- [4] A. E. Kavka *et al.*, Nucl. Phys. **A593**, 177 (1995).
- [5] T. Czosnyka, *et al.*, Nucl. Phys. **A458**, 123 (1986).
- [6] K. Furuno *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. **A421**, 211 (1999).



JP0150922

JAERI-Conf 2001-014

3.2.5 ROTATIONAL BANDS IN ^{157}Dy

T. Hayakawa¹, M. Oshima¹, Y. Toh¹, Y. Hatsukawa¹, J. Katakura¹, H. Iimura¹,
M. Matsuda¹, S. Mitarai², M. Sugawara³ and H. Kusakari⁴

1 Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai, Ibaraki 319-1195, Japan

2 Kyushu University, Hakozaki, Fukuoka 812-8581, Japan

3 Chiba Institute of Technology, Narashino, Chiba 275-8588, Japan

4 Chiba University, Inage-ku, Chiba 263-8522, Japan

Nuclei in the mass $A \sim 150$ region have been characterized by the interplay of collective motions and single-particle excitations [1]. Nuclear deformations of Dy isotopes show a gradual transition from spherical shape in closed shell to a prolate deformation in neutron rich region. The interaction between the single-particle orbits and the collective motion can be clarified through the study of odd mass nuclei. The nucleus ^{157}Dy ($N = 91$) is located near the edge of the well deformed region, and shows a typical rotational character. The last neutron in ^{157}Dy can occupy various orbitals near the Fermi surface in the single-particle states. Assuming $\beta_2 = 0.25\sim0.28$ as an deformation parameter, the substantial Nilsson orbits for neutrons are $[505]\frac{11}{2}^-$ (originating from $h_{11/2}$), $[651]\frac{3}{2}^+$ ($i_{13/2}$) and $[521]\frac{3}{2}^-$ ($h_{9/2}$), each of which has a different effect on rotational bands depending on the Ω value; the $[505]\frac{11}{2}^-$ single-particle configuration with high- Ω quantum number leads to a strong coupling scheme, while the $[651]\frac{3}{2}^+$ and $[521]\frac{3}{2}^-$ configurations with low- Ω leads to a week-coupling scheme. Although the ground state has the $[521]\frac{3}{2}^-$ configuration, the rotational band associated with it is not the yrast band anymore above the excitation energy of 100 keV, where the $[651]\frac{3}{2}^+$ -band lies lower in excitation energy.

In our previous work, the in-bamm γ -ray spectroscopy for ^{155}Gd (N=91) has been carried out [2]. The high-spin states of the rotational bands with the $i_{13/2}$ and $h_{11/2}$ configurations have been observed, and the $B(M1)/B(E2)$ ratios in the $h_{11/2}$ band have been measured up to $(37/2)^-$. The routhians have been calculated by Cranking shell model and it did not agree with the experimental result. In order to discuss the effect of the tilting degrees of freedom of angular momentum vector in the intrinsic frame, the $B(M1)/B(E2)$ ratios and routhians have been calculated by using the tilted axis cranking (TAC) model. The TAC calculation reasonably reproduces both the routhian and the $B(M1)/B(E2)$ ratio of the $h_{11/2}$ band simultaneously. In order to study a role of interaction between single-particle configurations and collective motion in ^{157}Dy , an in-beam γ -ray spectroscopy using the $^{150}\text{Nd}(^{12}\text{C}, 5n)^{157}\text{Dy}$ reaction has been carried out. In order to discuss the possible configurations of the observed bands through the backbending and blocking effect, the standard cranked shell model calculation has been performed. The $B(M1)/B(E2)$ ratios in the $[505]\frac{11}{2}^-$ band have been measured up to $(43/2)^-$.

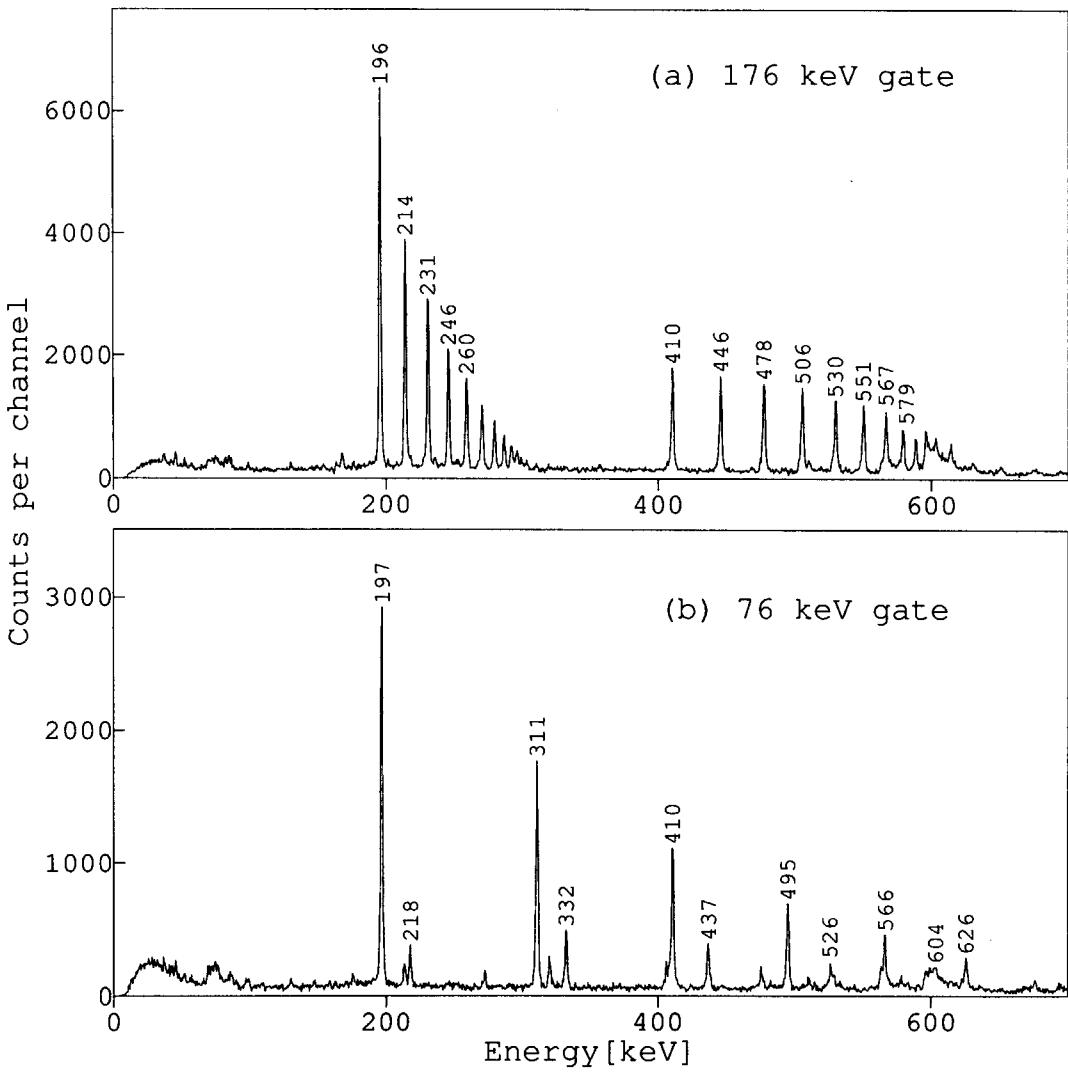


Fig. 1 Typical gated γ -ray spectra.

Before this experiment, the high-spin states of rotational bands in ^{157}Dy were studied using fusion-evaporation reactions [3]. Three bands with $h_{9/2}$, $i_{13/2}$ and $h_{11/2}$ configuration were observed up to $21/2^-$, $25/2^-$ and $81/2^-$, respectively. However, the only transition energies of the favoured band with the $i_{13/2}$ configuration are known higher than the $25/2^+$ state and the top state of the unfavoured band is $29/2^+$. The nucleus ^{157}Dy was produced with the reaction $^{150}\text{Nd} ({}^{12}\text{C}, 5n) {}^{157}\text{Dy}$ using a 65 MeV ${}^{12}\text{C}$ beam provided by the tandem accelerator at Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI). The target was a self-supporting ^{150}Nd metallic foil enriched to 96.1 % with a thickness of 2 mg/cm^2 . Gamma-rays from excited states populated after the reaction were detected with GEMINI [4] which is an array of 12 HPGe detectors with BGO Compton suppressors. The HPGe detectors were placed at angles of 32° , 58° , 90° , 122° and 148° with respect to the beam direction. The energy resolutions of HPGe detectors were 2.0–2.3 keV at 1.3 MeV. The efficiencies of typical HPGe detectors were about 40–70 % relative to $3'' \times 3''$ NaI detector. The experimental data were recorded

on magnetic tapes event by event when two or more HPGe detectors. The double or higher fold γ - γ coincidence events were sorted to E_γ - E_γ matrices. Approximately 2×10^8 γ - γ coincidence events were collected. The gated spectra were constructed from the 4096×4096 matrices. Relative intensities were derived from gated spectra. The spin assignment was made from an intensity ratio of $I(\gamma_1:32^\circ, \gamma_2:\text{all})/I(\gamma_1:90^\circ, \gamma_2:\text{all})$ gated by all of the other detectors. In order to get this ratio we sort events to two asymmetric matrices whose x-axis is the γ -ray energy in the detector at $32^\circ(90^\circ)$ and y-axis is γ -ray energy in the detector at any position. This value was nearly equal to the ratio of the ordinary angular distribution of the singles γ -rays. Therefore we assigned the quadrupole transition (dipole transition) to the ratio above 1.0 (below 1.0). Assuming dipole transitions to be pure, the $B(M1)/B(E2)$ ratios can be deduced from the relative intensities. Fig. 1 shows some gated spectra, in which E2 cascade and a set of E2 cascade and interband M1 transitions of typical rotaional bands are shown. A partial level scheme was constructed from γ - γ coincidence relationships and intensity balances. Three rotaional bands with the $i_{13/2}$, $h_{11/2}$ and $h_{9/2}$ configurations were observed up to $53/2^+$, $45/2^-$ and $(43/2^-)$, respectively. Each of these bands consists of two sequences of crossover $\Delta I = 2$ transitions, which are connected by $\Delta I = 1$ transitions. New four γ -rays are located at the top of the unfavoured band with the $i_{13/2}$ configuration. The γ decays from the band heads of the $i_{13/2}$ and $h_{11/2}$ configurations were not observed because of long half-life of the band heads which are $1.3 \mu\text{s}$ and 22 ms. In the previous experiment of ^{155}Gd [2], the $i_{13/2}$ and $h_{11/2}$ bands were reported using the same reaction, but the ground rotaional band with the $h_{9/2}$ configuration is not ovserved because of the high excitation energy from yrast band. However, the ground band in ^{157}Dy is observed up to high-spin state which is located near the top level of the other bands. The $h_{11/2}$ band shows the M1 transitions between both signature partner up to the top states of this band.

References

- [1] W. Nazarewicz, M. A. Riley, J. D. Garrett, Nucl. Phys. **A512**, 61 (1990)
- [2] T.Hayakawa, M.Oshima, Y.Hatsukawa, J.Katakura, H.Iimura, M.Matsuda, S.Mitarai, Y.R.Shimizu, S.-I.Ohtsubo, T.Shizuma, M.Sugawara, H.Kusakari Nucl. Phys. **A657**, 3 (1999)
- [3] M. A. Riley, J. Simpson, M. A. Bentley, P. Fallon, P. D. Forsyth, J. C. Lisle, J. D. Morrison, E. S. Paul, J. F. Sharpey- Schafer, P. M. Walker, Z. Phys. **A345**, 121 (1993).
- [4] K.Furuno, M.Oshima, T.Komatsubara, K.Furutaka, T.Hayakawa, M.Kidera, Y.Hatsukawa, M.Matsuda, S.Mitarai, T.Shizuma, T.Saitoh, N.Hashimoto, H.Kusakari, M.Sugawara, T.Morikawa
Nucl. Inst. & Method in Phys. Rese. A **421**, 211 (1999)



JP0150923

JAERI-Conf 2001-014

3.2.6 Ge 偶々核における完全核分光

日本原子力研究所 物質科学部、千葉工大¹、千葉大²、ワルシャワ大³
藤暢輔、大島真澄、早川岳人、菅原昌彦¹、草刈英榮²、トマス チョスニカ³

Complete spectroscopy of Ge even-even nuclei

Department of Material Science, Japan Atomic Energy Research Institute,
Chiba Institute of Technology¹,
Faculty of Education, Chiba University²,
Heavy Ion Laboratory, Warsaw University³
Y. TOH, M. OSHIMA, T. HAYAKAWA, M. SUGAWARA¹, H. KUSAKARI², T. CZOSNYKA³

1. はじめに

タンデム加速器から得られるビームをターゲットに照射すると、クーロン場により原子核が励起される。セーフエネルギー（再接近距離 5fm 以上）での多重クーロン励起では、その励起過程で核力の影響を受けない。そのため良く知られた電磁気的相互作用のみが、この励起過程に関与しているために精度良い測定を行うことが可能となる。重イオンを用いた多重クーロン励起では、2MeV 以下の殆どの励起準位を励起することが出来る。散乱核の角度毎の γ 線の強度比を χ^2 fitting code GOSIA¹⁾によって解析を行うことにより、これらの励起準位に関するマトリクスエレメントを一度に得ることが出来る。マトリクスエレメントから、換算転移確率 $B(E2)$ や、電気四重極モーメント Q などが計算され、また $\langle Q^2 \rangle, \langle \cos 3\delta \rangle$ といった励起準位の変形パラメータも得ることが出来る(図 1.)。 $\langle Q^2 \rangle$ は変形の大きさ、 $\langle \cos 3\delta \rangle$ は変形の形を表す。さらに $\sigma(Q^2)$ 、 $\sigma(\cos 3\delta)$ からはその変形の"やわらかさ"を知ることが出来る

Ge,Se 領域の偶々核の安定同位体は、⁷²Ge を除いて第一励起準位に 2^+ 、その 2 倍の励起エネルギー近傍に $0^+, 2^+, 4^+$ の 3 つの励起準位が存在している。これまでこの励起準位構造は、バイブレーション的な励起であるとされてきた。つまり、 2_1^+ が 1 フォノン、 $0_2^+, 2_2^+, 4_1^+$ が 2 フォノンのトリプレットであると見なされていた。しかし、この解釈は励起準位エネルギーと幾つかの準位間の $B(E2)$ のみからなされており、これらの励起準位構造の解明の為にはより多く

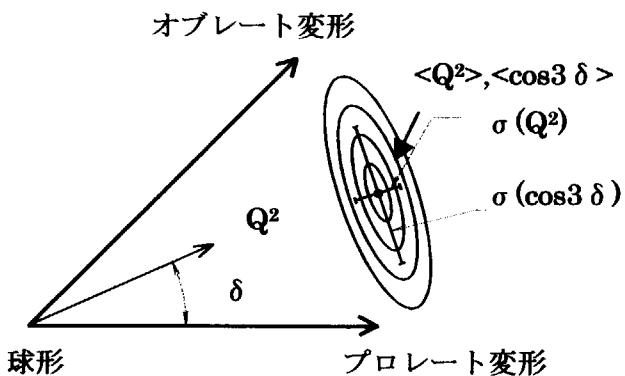


図 1. クーロン励起実験によって得られる変形パラメータ $\langle Q^2 \rangle, \langle \cos 3\delta \rangle$

の準位間の $B(E2)$ および Q モーメントを得る必要があった。

2. 多重クーロン実験

表 1 ^{74}Ge マトリクスエレメント

Ge 偶々核の Pb ターゲットを用いた多重クーロン励起を行う場合、Ge を 250MeV 程度まで加速する。ターゲットで散乱した入射核は高速の 10%程度の速度を持つためにそれから放出される γ 線はドップラーシフトを受ける。これを補正するために散乱された核を位置感応型の粒子検出器にて検出する。位置感応型粒子検出装置は 4 つの位置感応型フォトマル(R5900)によって構成され、前方散乱にはプラスチックシンチレータ、後方散乱はより発光効率の高い YAPCe シンチレータを用いている²⁾。

γ 線は 12 台のコンプトンサプレッサー付き HPGe 検出器 GEMINI³⁾によって検出される。Ge 偶々核の多重クーロン励起実験は原研タンデム+ブースター加速器を用いて行われた。ターゲットは ^{nat}Pb (1.7mg/cm²)を用いて Ge ビーム(300MeV)のクーロン励起実験を行った。得られたデータは χ^2 フィッティングコード GOSIA²⁾を用いて解析を行い、2MeV 以下の殆どの励起準位に関するマトリクスエレメントを得た。表 1 に ^{74}Ge において得られたマトリクスエレメントを示す。

a) Nuclear Data Sheets 74, 541, (1996)

3. 系統的考察

Ge 偶々核の低励起準位は ^{72}Ge の特異な 0_2^+ を除けば、 2_1^+ が 500 から 800keV 辺りにあり、その約 2 倍の励起エネルギー領域に $0_2^+, 2_2^+, 4_1^+$ が存在する。そのため以前は 2_1^+ が 1 フォノン、 $0_2^+, 2_2^+, 4_1^+$ が 2 フォノンのトリプレットと見なせるバイブレーション的な構造であると考えられてきた(図 2)。多重クーロン励起の結果から Ge の低励起準位はバイブレーションよりむしろ変形しており、バンドを形成していることが明らかになった⁴⁾。 $^{74,76}\text{Ge}$ においては 2_2^+

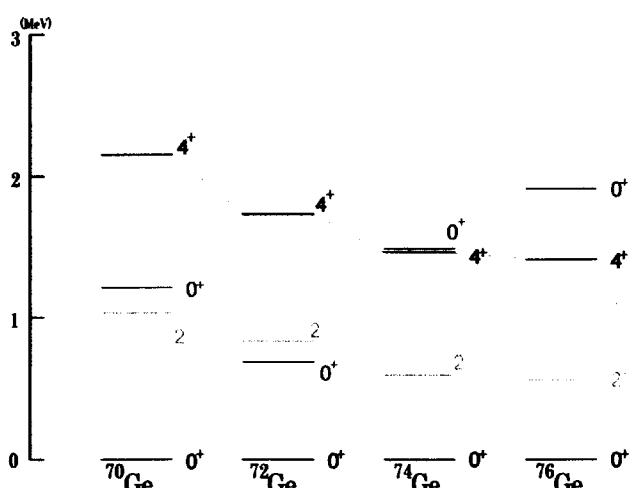


図 2. Ge 偶々核の低励起準位

は γ バンドヘッドであり、 0_2^+ は球形のイントルーダーステートであることが分かった。 ^{72}Ge の励起準位においても、これらと同じ構造を持っていると報告されている⁵⁾。Ge の低励起準位には 2 つの 0^+ 準位が存在する。その 2 つの 0^+ 準位の変形度を系統的に見てみると、 ^{70}Ge と ^{72}Ge の間で変形度が逆転していることが分かった。このことは基底準位の 0_1^+ と励起準位の 0_2^+ が ^{70}Ge と ^{72}Ge の間で逆転していることを示している(図 3)。

4. 総括

我々は ^{70}Ge , ^{74}Ge , ^{76}Ge の多重クーロン励起実験を原研タンデム+超伝導ブースターを用いて行った。得られたデータは χ^2 フィッティングコード GOSIA³⁾ を用いて解析を行い、2 MeV 以下の殆どの励起準位に関するマトリクスエレメントを得た。それらから計算された B(E2)、 $\langle Q^2 \rangle$ 等から ^{74}Ge , ^{76}Ge において、それらの 2_2^+ が γ バンドヘッド、 0_2^+ が球形と考えられる結果を得た。つまり、これらの原子核の励起準位はバンド構造を持ち、変形した基底準位と球形の 0_2^+ 準位が共存している事が明らかになった。さらに、 ^{70}Ge においては 0_2^+ が変形しており、 0_1^+ が球形である結果を得たことから、 ^{72}Ge と ^{70}Ge の間で 0_1^+ と 0_2^+ が逆転していることも判明した。また、基底準位の $\cos 3\delta$ は 0 に近い値を持ち、これらの核がトリアクシャル変形をしていることが明らかになった。

Reference

- 1) T. Czosnyka, et. al. Nucl. Phys. A 458, 123 (1986).
- 2) Y. Toh, et. al. Rev. Sci. Instr. submitted
- 3) K. Furuno, et. al. Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res. A 421, 211 (1999).
- 4) Y. Toh, et. al. Euro. Phys. J. A 9, 353 (2000)
- 5) B. Kotlinski, et. al. Nucl. Phys. A 519, 636 (1990)

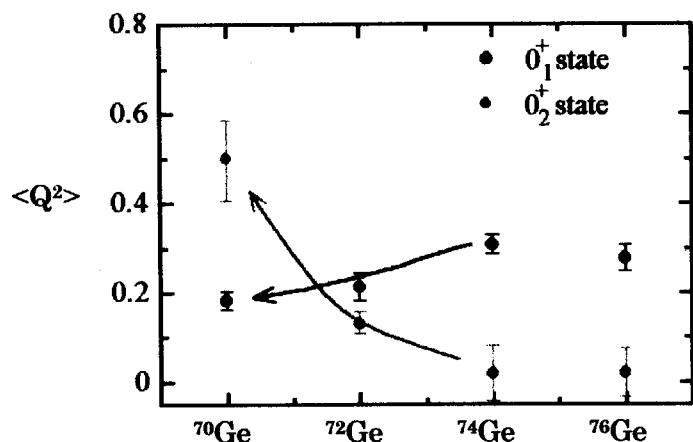


図 3. Ge 偶々核における低励起準位の 2 つの 0^+ 準位の $\langle Q^2 \rangle$



JP0150924

JAERI-Conf 2001-014

3.2.7 多重ガンマ線検出法による 新中性子放射化分析法の開発

日本原子力研究所 物質科学研究所

藤暢輔、大島真澄、初川雄一、早川岳人、篠原伸夫

Development of new neutron activation analysis with multiple γ -ray detection

Department of Material Science, Japan Atomic Energy Research Institute

Y. TOH, M. OSHIMA, Y. HATSUKAWA, T. HAYAKAWA, N. SHINOHARA

1. はじめに

γ - γ 同時計測法は核分光等の分野においてよく知られた測定法であるが、この測定法を中性子放射化分析に適用した¹⁾。従来の中性子放射化分析は多くの場合、試料を放射化したのちに化学分離を行うことによって目的とする元素だけを取り出し、 γ 線もしくはX線のシングルスペクトルを解析する。多重ガンマ線検出法を用いた微量元素分析では高分解能が得られるために化学分離を必要としない。これにより多元素同時定量が可能となり、また被曝を低減できる。1次元スペクトルを用いた解析での検出限界は、主に強い γ 線のコンプトンによるバックグラウンドの増加である。2次元スペクトルを用いた解析を行えば、コンプトンによるバックグラウンドが2次元スペクトル中で局所的に存在するために検出限界を高めることができる。さらに、 γ 線の検出器としてコンプトンサプレッサー付のGe検出器を用いることによっても検出限界を高めている。しかしながらこの検出法は2本以上の γ 線を同時に放出する核にしか適用できない為に定量可能な元素は49元素に限られる。また、高分解能を得るために γ - γ 同時計測法を適用したために絶対効率は1次元法に比べ低い。これを補う為にGe検出器を12台用いて試料を囲むことにより立体核を大きくしている。

この分析法により標準岩石試料及びAllende隕石の元素分析を求めた。

2. 標準岩石試料

通産省工業技術院地質調査所より発行されている標準岩石試料 JB-1a (カンラン石 126mg), JP-1 (玄武岩 41mg)を日本原子力研究所のJRR-3にて10分照射し、12台のコンプトンサプレッサー付のGe検出器 GEMINI²⁾にて24・100時間 γ - γ 同時計測測定を行った。照射前後でいかなる化学分離も行っていない。元素の定量結果を表1に示す。標準岩石試料は検出法の開発、校正のために世界中に配布され、様々な定量法によって既に定量データが存在する。表1に示した定量データは内部標準法によって求めた。精度良い定量データが存在する元素

表 1 標準隕石試料の定量結果。

	JP-1(ppm)	参照値(ppm)	JB-1a (ppm)	参照値(ppm)
K-42			9600±400	11600±1300
Sc-46	9.2±0.7	7.2±0.6	33.4±0.3	27.6±3.4
Ca-47			50000±4000	67800±280
Ti-48			8800±1000	8000±250
Fe-59			63300±1900	63300±1300
Co-60	204±10	116±8	53.6±2.6	38.6±5.5
Ni-65	2460±230	2460±160		
Ga-72	0.64±0.14	0.7±0.3*	18.3±0.6	17.9±2.0
As-76			3.17±0.34	2.3±0.3
Br-82	1.10±0.17	0.28±0.06*	1.00±0.10	0.40±0.01*
Ba-131			432±15	505±33
Cs-134			1.04±0.17	1.32±0.23
La-140			39.8±2.9	37.6±2.2
Ce-143			49.6±2.2	65.6±4.4
Eu-152m	0.0033±0.0003	0.0040±0.0005*	0.83±0.03	1.46±0.07
Sm-153			2.3±0.4	5.1±1.3
Tb-160			0.58±0.09	0.69±0.07
Yb-169			1.18±0.36	2.1±0.6
Lu-177			0.38±0.03	0.33±0.05
Hf-181			2.43±0.19	3.41±0.31
Ta-182			5.51±0.27	1.9±0.5
W-187	0.52±0.06	0.85±0.26*	1.99±0.13	1.8±0.6*
Th-233			19±8	9.0±1.6
U-239			1.82±0.16	1.57±0.21

JP-1 は Ni, JB-1a は Fe を基準に定量している。

*は推奨値ではない。

を基準とし、各元素の核データから計算して求めた値である。JB-1a は Ni, JP-1 は Fe をそれぞれ基準としている。多くの元素は誤差の範囲内で既に報告されている定量値と一致している。これにより、多重 γ 線検出法による多元素同時定量が可能であることが示された。参照値との差異は試料そのものの元素構成の不均一性によるものや、速中性子との反応があるものや、核データの誤りによるものが考えられる。

3. Allende 隕石の定量

Allende 隕石は標準隕石試料として配布されている。Allende 隕石を 91mg JB-1a 79mg と共に JRR-4 にて 10 分照射した。測定は GEMINI を用いて 71 時間 γ - γ 同時計測測定を行った。化学分離は行っていない。定量は JB-1a を用いた比較法によってなされた。その結果を表 2 に示す。比較法を用いれば、核データにほとんど依存しない解析が行えるため、精度良いデータを得ることが可能となる。表 2 に示された値は誤差の範囲内で参照値ほとんど一致している。適当な標準試料を用いた比較法による定量を行なえば、高精度な多元素同時定量が可能

であることが示された。

5. まとめ

γ - γ 同時計測法を中性子放射化分析に適用した新中性子放射化分析の開発を行った。この新分析法は 49 元素に適用可能であり、それらを同時に定量可能である。その検出限界を見積もった結果、最高 ppt オーダーの検出限界があることが分かった。

標準岩石試料、Allende 隕石試料を多重 γ 線検出法を用いた中性子放射化分析によって定量を行った。その結果、この方法が放射化分析において有効であり、高分解能、化学分離不要、高感度な定量が行えることが示された。

表 2 Allende 隕石の定量結果

元素	定量結果(ppm)	参照値
K	250(100)	330(10)
Sc	10.2(2)	11(1)
Ca	14000(4000)	18500(700)
Ti	1200(400)	900(10)
Fe	238000(16000)	235700(800)
Co	640(28)	600(10)
Ga	6.8(1.4)	6(1)
As	1.40(27)	1.9*
Br	2.0(4)	1.54*
La	0.480(25)	0.52(4)
Eu	0.13(4)	0.11(1)
Sm	0.280(24)	0.34(2)
Tb	0.12(4)	0.08(1)
Yb-166	0.50(14)	0.30(2)
Yb-175	0.21(4)	0.30(2)
Lu	0.046(8)	0.052(6)
Ir	1.2(3)	0.8(3)
Hf	0.31(6)	0.21(1)
W	0.41(5)	0.2*

Reference

- 1) Y. Hatsukawa, M. Oshima, T. Hayakawa, Y. Toh and N. Shinohara, Nucl. Instr. and Meth. (submitted)
- 2) K. Furuno, M. Oshima, T. Komatsubara, K. Furutaka, T. Hayakawa, M. Kidera, Y. Hatsukawa, M. Matsuda, S. Mitarai, T. Shizuma, T. Saitoh, N. Hashimoto, H. Kusakari, M. Sugawara and T. Morikawa, Nucl. Instr. and Meth. A **421** (1999) 211.

3.2.8 ^{70}Ge ビームのクーロン励起 COULOMB EXCITATION OF ^{70}Ge BEAM

菅原昌彦 M. SUGAWARA

千葉工業大学 自然系 Natural Science, Chiba Institute of Technology

藤 暢輔, 大島真澄, 早川岳人, 初川雄一, 片倉純一

Y. TOH, M. OSHIMA, T. HAYAKAWA, Y. HATSUKAWA, J. KATAKURA

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

草刈英栄 H. KUSAKARI

千葉大学 教育学部 Faculty of Education, Chiba University

森川恒安 T. MORIKAWA

九州大学 理学部 Faculty of Science, Kyushu University

Ge, Se 領域核の基底状態近傍には、粒子-空孔励起に基づく励起 0^+ 状態が存在し、intruder state と呼ばれている。例えば、N=40 の同中性子核で 0_2^+ の励起エネルギーの系統性を調べると、 ^{72}Ge , ^{74}Se の 0_2^+ は ^{76}Kr の変形した基底状態にスムーズに連続するように見えることから、deformed intruder state と考えられていた。ところが、最近のクーロン励起の実験によって、 ^{72}Ge , ^{74}Ge の 0_2^+ はむしろ基底状態より球形に近く、spherical intruder であることが明らかになった^{1,2)}。したがって、 ^{70}Ge の 0_2^+ がどちらの intruder state であるかは大変興味深い。さらに、Ge 同位体における 0_2^+ の励起エネルギーの系統性から、 0_1^+ と 0_2^+ が ^{70}Ge と ^{72}Ge の間で交差していることが示唆され、その点からも ^{70}Ge の 0_2^+ の変形度を調べることは非常に重要である。

我々は以上のような観点に基づき、 ^{70}Ge ビームの多重クーロン実験を行い、低励起状態間の遷移行列要素を求めた。実験は、原研タンデム・超伝導ブースター加速器施設で行われ、エネルギー 300MeV に加速された ^{70}Ge ビームを厚さ 1.7mg/cm² の natPb foil に照射した。Particle- γ 同時計数測定は、HPGe 検出器 11 台からなる γ 線検出器アレイ GEMINI と、プラスチックシンチレーターと位置感応型 PMT からなる散乱粒子検出器³⁾ 4 台を用いて行われた。低励起状態間の核行列要素 $\langle i || E2 || f \rangle$, $\langle i || M1 || f \rangle$ は least squares search code GOSIA を用いて、particle- γ 角度相関のデータ、及び、すでに他の実験から得られている核分光学的な情報（平均寿命、 γ 線分岐比、多重極混合比）を最も良く再現するように求められる。

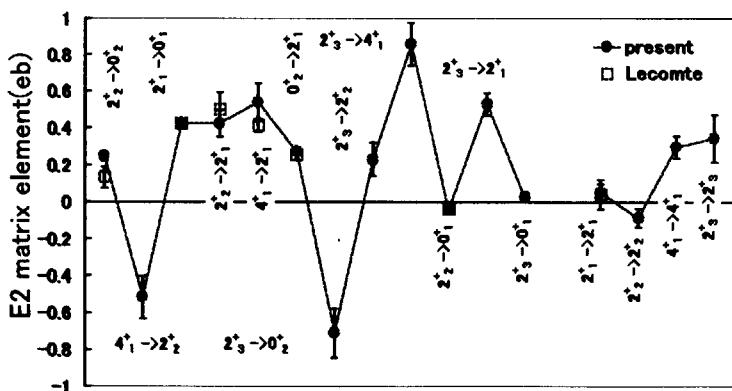


図 1. 今回得られた E2 行列要素と以前のデータの比較

図 1 に、Lecomte らが行った ^6Li , ^{160}O などの軽イオンによる多重クーロン励起実験の結果^{4,5)} と今回のデータを比較

したものを見た。データが重複している部分については consistent な結果を与えてることが分かる。また、今回 2^+_1 と 2^+_2 の間の interference term $P_3 = \text{sign}(M_{02}, M_{22}, M_{02})$ を negative

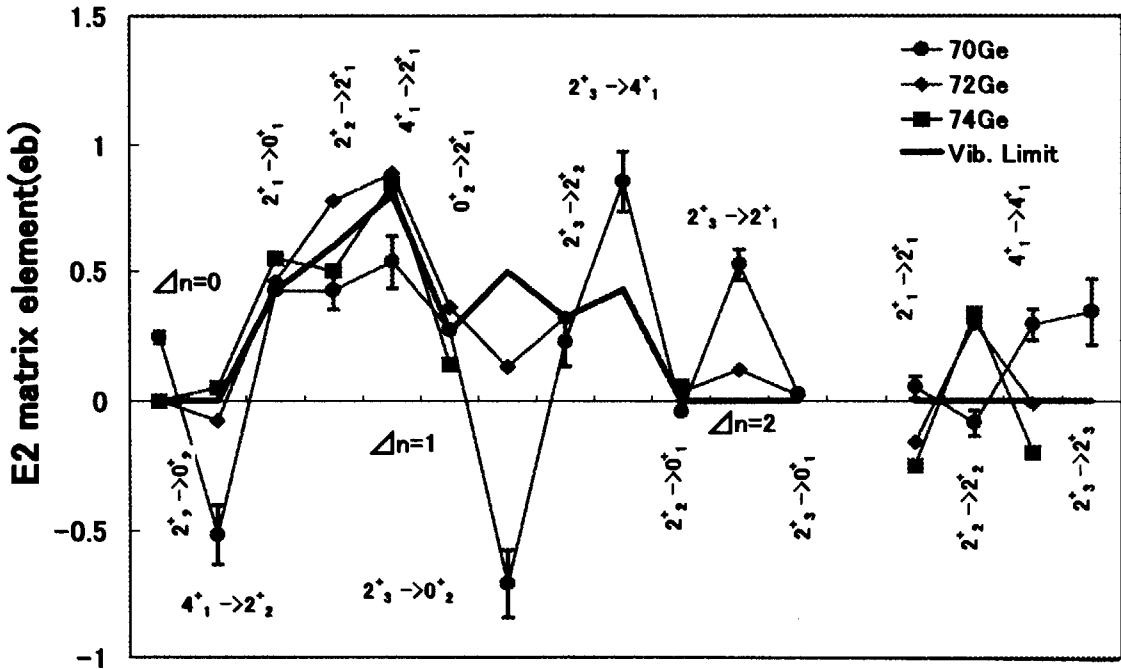


図 2. $^{70,72,74}\text{Ge}$ における matrix element の比較。参考のために、Vibrational Limit における値も示している。図中 Δn は phonon 数の変化を表す。

と決めることができた。図 2 に $^{70,72,74}\text{Ge}$ の E2 matrix element を比較したものを示す。図には参考のため vibrational limit での値も示している。この図から、 ^{70}Ge と ^{72}Ge の間で核構造が大きく異なっていることが分かる。それは ^{72}Ge , ^{74}Ge の P_3 が positive であるのに対して ^{70}Ge の P_3 が negative であることにも現れている。 0^+_1 と 0^+_2 の変形の大きさを比較するためには、今回得られた E2 matrix element から Cline, Flauger の sum rule⁶⁾を用いて、固有座標系での変形の大きさを表す量 ($\langle Q^2 \rangle$) を求める必要がある。図 3 に今回得られた $\langle Q^2 \rangle$ の値を示す。 $^{72,74}\text{Ge}$ では 0^+_2 の変形がほとんど 0 であったのに対して、 ^{70}Ge では誤差が非常に大きいものの 0^+_2 の変形は 0^+_1 と同等あるいはそれ以上である事が分かる。

これまで述べてきたように、今回の実験によって 0^+_1 と 0^+_2 が ^{70}Ge と ^{72}Ge の間で交差していることが励起エネルギーの系統性だけからではなく、 $\langle Q^2 \rangle$ の値からも明らかとなつた。今後 $^{70,72,74}\text{Ge}$ の $0^+_1, 0^+_2$ 及びその上に形成される collective state の励起エネルギーと E2 行列要素が簡単な 2 バンド混合モデルを用いて consistent に説明できるかどうか理論的な解析を進める必

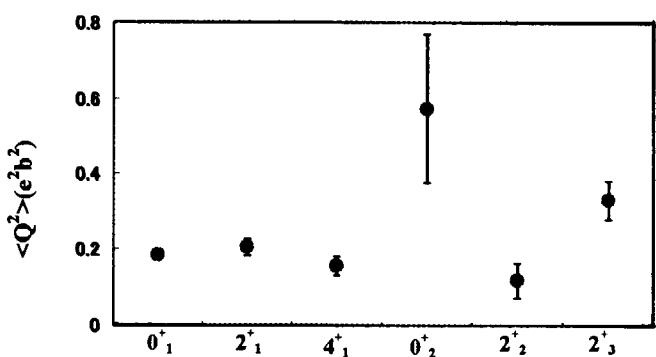


図 3. Cline, Flauger の sum rule による $\langle Q^2 \rangle$ の値

要がある。

Reference

- 1) B. Kotlinski et al.; Nucl. Phys. A519, 646(1990)
- 2) Y. Toh et al.; Eur. Phys. J. A9, 353(2000)
- 3) Y. Toh et al.; submitted to Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A.
- 4) R. Lecomte et al.; Phys. Rev. C22, 2420(1980)
- 5) R. Lecomte et al.; Phys. Rev. C22, 1530(1980)
- 6) D. Cline ; Ann. Rev. Nucl. Part. Sci. 36, 683(1986)



JP0150926

JAERI-Conf 2001-014

3.2.9 多重極変形状態の電磁遷移の特異現象に関する研究

草刈英栄¹、森川恒安²、大島真澄³、藤暢輔³、早川岳人³、菅原昌彦⁴、
初川雄一³、片倉純一³、杉江ミキ¹、佐藤雄太¹

1 千葉大、 2 九大、 3 原研、 4 千葉工大

Study of Electromagnetic Transitions of Nuclei with Multipole Deformations

H. KUSAKARI¹⁾, T. MORIKAWA²⁾, M. OSHIMA³⁾, Y. TOH³⁾, M. SUGAWARA⁴⁾, T. HAYAKAWA³⁾,
Y. HATSUKAWA³⁾, J. KATAKURA³⁾, M. SUGIE¹⁾ and Y. SATO¹⁾

1) Chiba University, Chiba 2) Kyushu University

3) JAERI 4) Chiba Institute of Technology

1) ^{154}Sm のクーロン励起

Coulomb Excitation of ^{154}Sm

◇ この研究のモチベーション

^{154}Sm 核は、Z=62、N=92に位置する安定核である。過去のクーロン励起実験(Ref. 1)で観測された ^{154}Sm 核の興味深い励起状態、とくに、 $K\pi=(6+)$ 励起バンド、 β 振動バンド(第1励起0+バンド)、第2励起0+バンドについて、これらの性質を明らかにしたい。

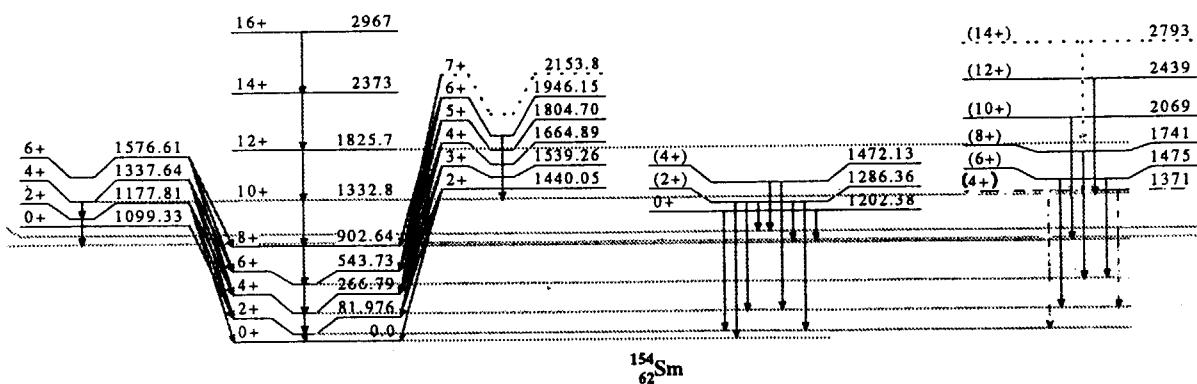


図1. ^{154}Sm のレベルスキーム

◇ $K\pi = (6+)$ 励起バンドについて

^{58}Ni ビームによるクーロン励起で、 $I\pi = (6+), (8+), (10+), (12+)$ のメンバーが観測されている(Ref. 1)。これに関して解明すべき点は、以下の点である：

Low-Spinのメンバーが見えないのは何故か？ 励起メカニズムは何か？ $K=6$ なのか？ S-バンドなどの粒子状態が励起されるとは考えにくい。より重いビームでのクーロン励起実験が必要である。他の手法では、 ^{154}Sm 核のこうした高スピン状態が生成は不可能である。今

月、実験を実施する予定である。

◇ Low-Spin サイドバンドについて

β 振動バンド（第1励起0+バンド）、第2励起0+バンド、 γ 振動バンドについて、解明すべき点は、以下の点である：

第1励起0+バンドは、ホントに β バンドか？

いくつかの原子核では、 γ バンドから第1励起0+状態への強い遷移が観測されている。

第1励起0+状態と γ バンドとの関係は？ 2フォノンと見なせるか？

^{154}Sm の場合、バンドヘッドのエネルギーは γ バンドの方が高い。第1励起0+状態は、変形した集団運動状態と考えられている。第2励起0+状態は、Collectiveではない。後者は球形をしている（変形共存）のでは？との指摘がエール大学のグループによってなされている。

第1励起0+バンド (β 振動バンド) 0+, 2+, 4+

第2励起0+バンド 0+, 2+, 4+

我々の最近の ^{90}Zr ビームによるクーロン励起実験の結果によると、たしかに第2励起0+状態はあまり励起されないようである。一方で第2励起0+バンドの2+準位が強く観測された。これは、Collectiveであることを強く示唆して、変形しているのか？ しかし、第2励起0+バンドのバンドヘッドがCollectiveでないとこれまでの報告と矛盾する。

これらのバンドの正しい理解は？ そもそもバンドなのか？

実験的には変形度は知られていない。

そこで、まずこれらの変形度、Collectivityを実験的にキチンと決める必要がある。

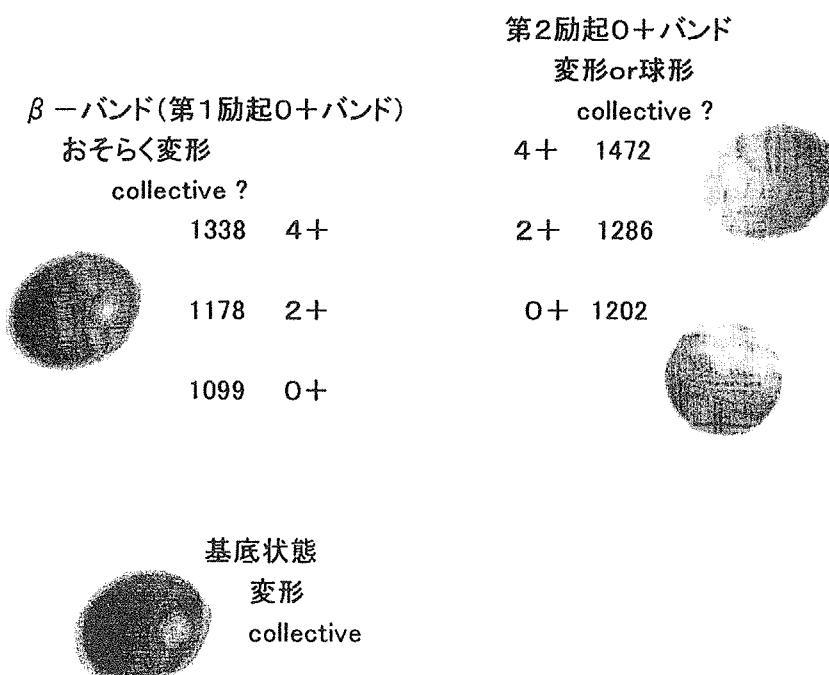


図2. 球形核と変形核の共存

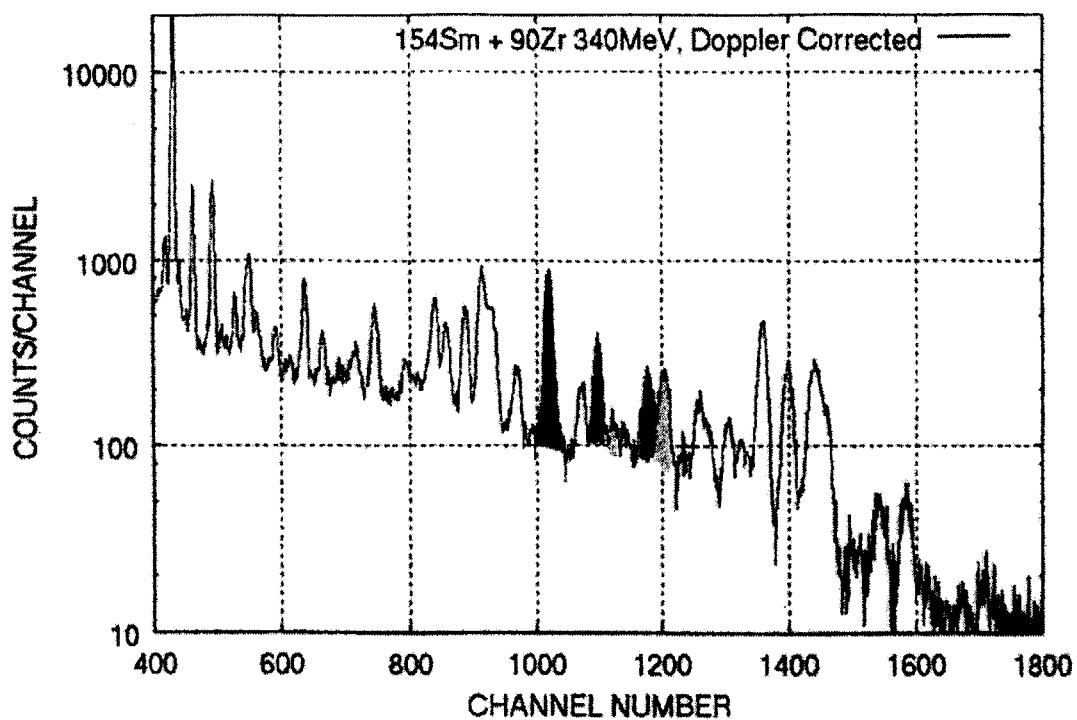


図3. Gamma-ray spectrum after Coulomb excitation of ^{154}Sm .
Peaks of side-band transitions in ^{154}Sm are marked.

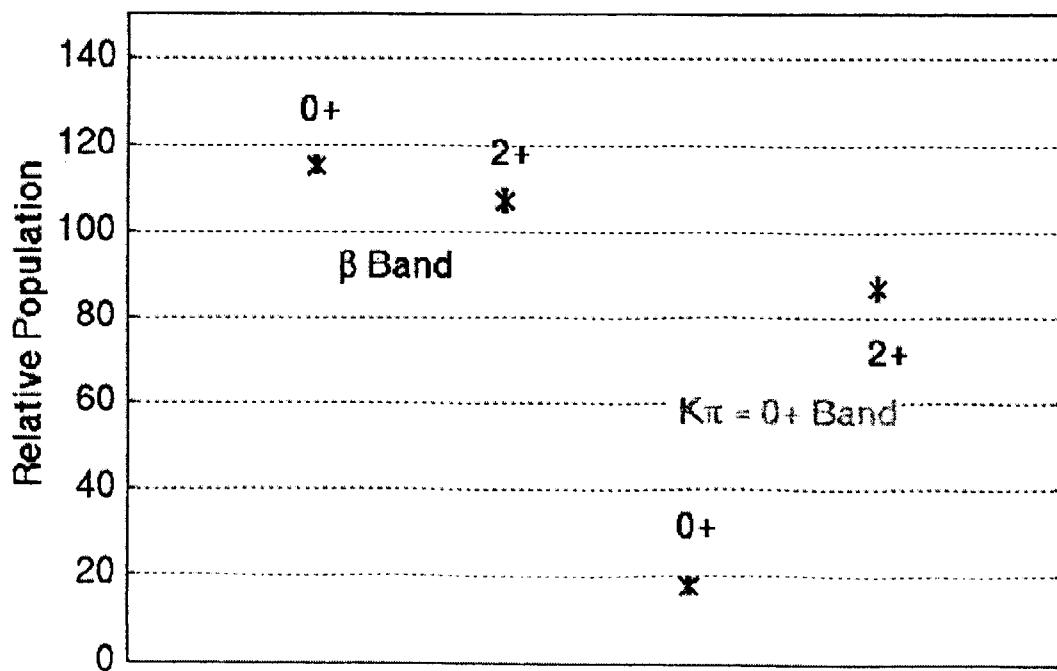


図4. Relative population of the first excited 0^+ band (β -band) and
the second excited 0^+ band of ^{154}Sm in the Coulomb excitation.

2) ^{154}Sm の寿命測定

Lifetime Measurement in ^{154}Sm

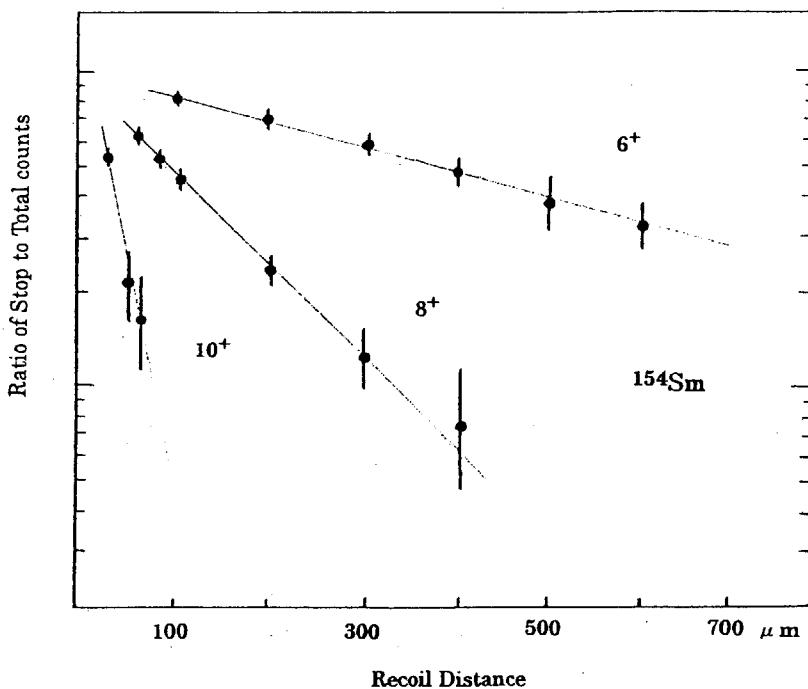
method : Recoil-Distance Method, after Coulomb Excitation

beam : 382 MeV ^{90}Zr Beam from JAERI tandem + booster

target : thin ^{154}Sm foil, 1.47mg/cm²

stopper : 10 μm Au foil

上記のような条件で、Plunger を用いて ^{154}Sm の寿命測定を行った。その結果の preliminary な解析結果を以下に紹介する。この測定実験は、高スピン状態やサイドバンドについての新しいデータの取得を目指すと共に、これまでのデータを越える精度の寿命決定を目指すものである。これにより、クーロン励起の実験結果と結合した解析を可能とするであろう。



Ratio of stopped peak counts to total counts in RDM measurements for ^{154}Sm . The value of recoil velocity was about 0.05c, and the preliminary values of lifetimes are: $T_{1/2} = 23.8\text{ps}(6^+)$, $6.8\text{ps}(8^+)$, and $2.3\text{ps}(10^+)$.

3) ^{180}Ta のアイソマー (9^-) のクーロン励起

Decay Probabilities of $^{180}\text{Ta}(9^-)$; induced by Coulomb Excitation

method : Off-line measurement of the Cross Section for the Ground-State produced after Coulomb Excitation

beam: 205, 215, 225, 235 MeV ^{58}Ni Beam from JAERI tandem
 target: Enriched $^{180}\text{Ta}(9^-)$ Isomer Target, oxide 4mg/cm²

Taの同位体 ^{180}Ta は、相対的abundanceが、たった0.012%という自然界で最も存在比が少ない同位体である。この同位体 ^{180}Ta のアイソマー 9^- 状態 $^{180}\text{Ta}^m$ は、自然界で生成され今日も存在する唯一のIsomerである。これに対して、基底状態 1^+ は、8.152時間の半減期で ^{180}Hf 及び ^{180}W へ崩壊する。 $^{180}\text{Ta}^m$ の生成のメカニズムは未だに解かれていない。また、このようなIsomerが激しく変動する輻射場を含む自然界の中でどうして今日まで存在し得たのかについても関連することであるが、このIsomer状態 $^{180}\text{Ta}^m$ のCoulomb励起による崩壊の確率（絶対値）の測定が望まれるが、今まで報告されておらず、Isomer状態 $^{180}\text{Ta}^m$ からの遷移機構についても未だ解明されていない。我々は、このような未解決の課題の解明とともに重イオンビームによるIsomer状態 9^- のCoulomb励起における遷移確率の異常現象が見られるかどうか、等の目的を持ってこの実験を行い、Isomer状態 $^{180}\text{Ta}^m$ のCoulomb励起による遷移の絶対断面積を入射粒子エネルギーの関数として得る事が出来た。（Ref.2）

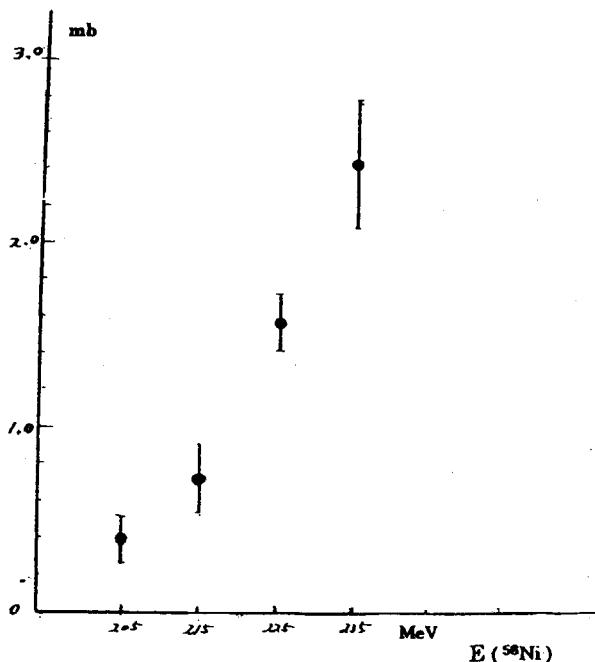


Fig. 6
 Cross sections of Coulomb
 excitation of 9^- isomer of
 ^{180}Ta with ^{58}Ni beam.

In the present Coulomb excitation, there are two possibilities for transitions from the 9^- isomer: one is the direct feeding to the ground state or the 2^+ first excited state at 40 keV, and another is the transition via intermediate state. In the latter, we have to assume the weak K mixing between the 9^- isomer and the relevant level. Farther investigation of the present experiment is in progress.[2]

References:

- 1) T. Morikawa et al., Zeitschrift fur Physik A343 (1992) 373
- 2) H. Kusakari et al., JAERI-Review 2000-018 (Nov. 2000) 25-26



JP0150927

JAERI-Conf 2001-014

3.2.10 陽子過剰な $N = 82$ 核における seniority isomerism^[1]

松澤孝幸¹, 中田仁², 小川建吾², 百木悟郎³

¹ 千葉大学自然科学研究科, ² 千葉大学理学部, ³ 日本大学生産工学部

Seniority isomerism in proton-rich $N = 82$ nuclei

T.MATSUZAWA¹, H.NAKADA², K.OGAWA², G.MOMOKI³

¹ Graduate School of Science and Technology, Chiba University, Chiba 263-8522, Japan

² Department of Physics, Chiba University, Chiba 263-8522, Japan

³ College of Industrial Technology, Nihon University, Narashino, Chiba 275-8575, Japan

1 Introduction

1979年、陽子過剰な中重核領域における submagic number $Z = 64$ の存在が、Kleinheinz の実験によって明らかとなった[2]。陽子過剰な $Z > 64$, $N = 82$ 核における低エネルギー状態では、even- Z 核に対して 10^+ 、odd- Z 核に対して $27/2^-$ 状態の high-spin isomer が systematic に観測されている[3]。Lawson によって行われた ^{146}Gd を core とする $(0h_{11/2})^n$ 配位の殻模型[4]は、energy level やこれらの isomer に関する $B(E2)$ の振る舞いを見事に再現している。しかしながら、この模型は単純すぎる。なぜなら、 ^{146}Gd を core とする $0h_{11/2}$ 軌道の周りには、隣接した $2s_{1/2}$ と $1d_{3/2}$ 軌道が存在するからである。

我々は、ある種の $E2$ hindrance の mechanism を記述する、multi- j 配位に拡張された seniority reduction formula を導くことで、 ^{146}Gd を core とする $(2s_{1/2}0h_{11/2}1d_{3/2})^n$ 配位の殻模型は、この領域における低エネルギーの物理量を記述するのに不十分であることを述べる。現実には、 ^{146}Gd core 内部の $(0g_{7/2}1d_{5/2})$ 軌道から $(2s_{1/2}0h_{11/2}1d_{3/2})$ 軌道への陽子励起を考慮することが、 $Z > 64$, $N = 82$ 核の energy や isomer に関する $B(E2)$ を再現する上で重要な役割を果たすことを論じる。

2 Extended seniority reduction formula

Single- j 配位における seniority 変化のない $E2$ strength は、seniority reduction formula

$$\langle J_f | \hat{E}2 | J_i \rangle = \frac{\Omega_j - n}{\Omega_j - v} \langle j^v, v; J_f | \hat{E}2 | j^v, v; J_i \rangle \quad (1)$$

によって記述される。ここで $\Omega_j = j + 1/2$ 、 n と v はそれぞれ valence nucleon number

と seniority を表す。 $(0h_{11/2})^n$ 配位の殻模型では、 $\Omega_j = 6$ であり、 $0h_{11/2}$ 軌道上に 6 個の陽子が占有 ($n = 6$) した ^{152}Yb において、 $B(E2) \propto (6 - n)^2 = 0$ となる。このように、 j 軌道に半数の valence nucleon が占有した状態 ($\Omega_j = n$) において、seniority 変化のない $E2$ transition が禁止されることを seniority isomerism と呼んでいる。これと関係した実験として、 ^{152}Yb の 10^+ 状態は半減期が $34\mu\text{s}$ と非常に長く、関連した $E2$ transition probability は、強く hindered される ($0.9 \pm 0.1(e^2\text{fm}^4)$)[3]。

これに対し、より現実的な multi- j 配位の殻模型では複雑な配位混合が生じるため、 $E2$ hindrance の mechanism は明確ではない。しかし、以下の仮定の下で multi- j 配位におけるより拡張された意味での $E2$ hindrance の mechanism が存在することを示すことができる。a) single-closed nucleiにおいて、seniority が十分によい量子数であるとみなせる。b) $E2$ transition に関する始状態と終状態では、high- j 軌道のみが seniority を担う。c) 始状態と終状態における pair structure が等しいとすると、Extended seniority reduction formula(ExSRF)

$$\langle J_f | \hat{E}2 | J_i \rangle = \frac{\Omega_j - \langle N_j \rangle}{\Omega_j - v} \langle j^v, v; J_f | \hat{E}2 | j^v, v; J_i \rangle \quad (2)$$

が導かれる[1]。ここで、 $\Omega_j = j + 1/2$, high- $j=0h_{11/2}$ である。この関係式は、single- j 配位の seniority reduction formula における valence nucleon number を high- j 軌道における number expectation value に置き換えたものに相等する。よって、もし $\Omega_j \simeq \langle N_j \rangle$ であるなら、multi- j 配位における $E2$ hindrance が生じることになる。他方、 ^{152}Yb の 10^+ で観測されている $E2$ の strong hindrance は、 $\langle N_{0h_{11/2}} \rangle \simeq 6$ を暗に意味しているといえる ($j = 11/2$, $\Omega_j = 6$ より)。ところで、 ^{146}Gd を core とする $(2s_{1/2}0h_{11/2}1d_{3/2})^n$ 配位の殻模型では、これらの軌道は近似的に縮退しているため、 ^{152}Yb における 6 個の valence proton は、3 軌道上にほぼ均等に分散してしまう。その結果、 $0h_{11/2}$ における number expectation value は必然的に 6 よりも小さくなってしまい $E2$ hindrance は再現されない。 $0h_{11/2}$ 軌道の減ってしまった number expectation value を回復し、 ^{152}Yb の $E2$ hindrance を記述するためには、以下のように考えなければならない。 ^{146}Gd core 内部の $(0g_{7/2}1d_{5/2})$ 軌道から $Z = 64$ gap を跨いで $(2s_{1/2}0h_{11/2}1d_{3/2})$ 軌道に向かう陽子励起を取り込んだ model space を考える。その結果、 ^{152}Yb において $\langle N_{0h_{11/2}} \rangle \simeq 6$ になる可能性が現れる[5]。我々は、 $Z > 64$, $N = 82$ 核に対して $(0g_{7/2}1d_{5/2}2s_{1/2}0h_{11/2}1d_{3/2})^n$ 配位の殻模型計算を行い、core からの陽子励起がこれらの原子核の物理量に関して、実際に重要な役割を果たしていることを次節以降で論じていく。

3 Parameter

Shell model hamiltonian は、core の energy E_0 、single particle energy ϵ_j と残留相互作用 V の和で表される。

$$H = E_0 + \sum_j \epsilon_j N_j + V \quad (3)$$

ここで、 N_j は j 軌道に対する number operator である。以下の parameter 決定では、計算時間の都合上、seniority ≤ 3 に制限し、 $Z = 64$ における large gap の影響を考え、($0g_{7/2}1d_{5/2}$) 軌道から ($2s_{1/2}0h_{11/2}1d_{3/2}$) 軌道への励起粒子数の最大値を 4 にした。Single particle energy の決定には、 $Z = 64$ における energy gap を取り込むため、 ^{146}Gd を挟んだ ^{145}Eu と ^{147}Tb の実験値を利用した。 $0g_{7/2}$ を基準とする残り 4 本の single particle energy は、これらの原子核における 1(MeV) 程度の low energy level を再現するように選んだ(表 1)。残留相互作用には MSDI

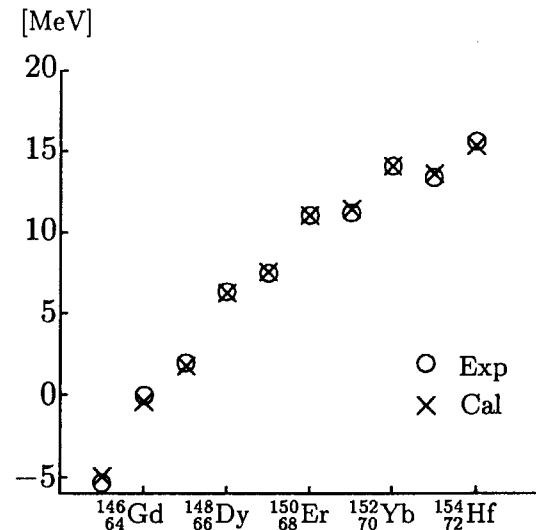
$$V = -4\pi A_{T=1} \sum_{\lambda} Y^{(\lambda)}(\hat{\mathbf{r}}_1) \cdot Y^{(\lambda)}(\hat{\mathbf{r}}_2) + B \quad (4)$$

を用い、その coupling constant は、上記の原子核の全体的な傾向が再現できるように $A_{T=1} = 0.210(\text{MeV})$ とした。Core の energy と single particle energy 全体の shift、MSDI の constant factor B は、図 1 に示すように $63 \leq Z \leq 72$ 核における実験と理論値の binding energy 差に対し、最小二乗法を適用することで $E_0 = 90.10$, $B = 0.409(\text{MeV})$ とした。

図 1. $63 \leq Z \leq 72$, $N = 82$ 核における実験と計算で得られた binding energy の比較。全ての値は ^{146}Gd の実験値を基準として示した。

表 1. ^{132}Sn を core とみなして求めた 5 本の effective single particle energy(unit in MeV).

j	$0g_{7/2}$	$1d_{5/2}$	$2s_{1/2}$	$0h_{11/2}$	$1d_{3/2}$
ϵ_j	-8.33	-7.73	-6.73	-6.88	-6.43



4 Necessity of $Z = 64$ core excitation

第2節で示した ExSRF((2)式)では、 $Z = 64$ core からの陽子励起が、ある種の isomer の $E2$ hindrance に影響を及ぼすことを述べた。以下では、submagic number $Z = 64$ の詳細を見るため、 ^{146}Gd での seniority 制限を $v \leq 4$ に緩めた。 ^{146}Gd 基底状態を形成する波動関数の 0^+ 成分は、single pair 励起からの寄与が 53%、two pair 励起が 36% となつた。Subshell closure を意味する $Z = 64$ 成分は僅か 11% で、 ^{146}Gd core からは常に 2.5 粒子の励起があることに対応する。Core 励起の影響を受けて、 $0h_{11/2}$ の期待値は、 ^{152}Yb で $\langle N_{0h_{11/2}} \rangle = 5.7$, ^{153}Lu において $\langle N_{0h_{11/2}} \rangle = 6.2$. となった。ExSRF で記述されるように、 $0h_{11/2}$ の number expectation value が、これらの原子核における $E2$ hindrance に本質的な役割を与えている。図 2 に示すように、 $B(E2)$ の計算値は ^{152}Yb と ^{153}Lu における $E2$ hindrance を非常によく再現した。Effective charge は、 $B(E2)$ 全体の傾向を合わせるように、even- Z , odd- Z 核ともに $2.3e$ を用いた。また、core 励起を含む配位混合の結

果、single- j 配位では記述できていなかった even- Z 核の ^{154}Hf に関するてもよい一致を得ている。

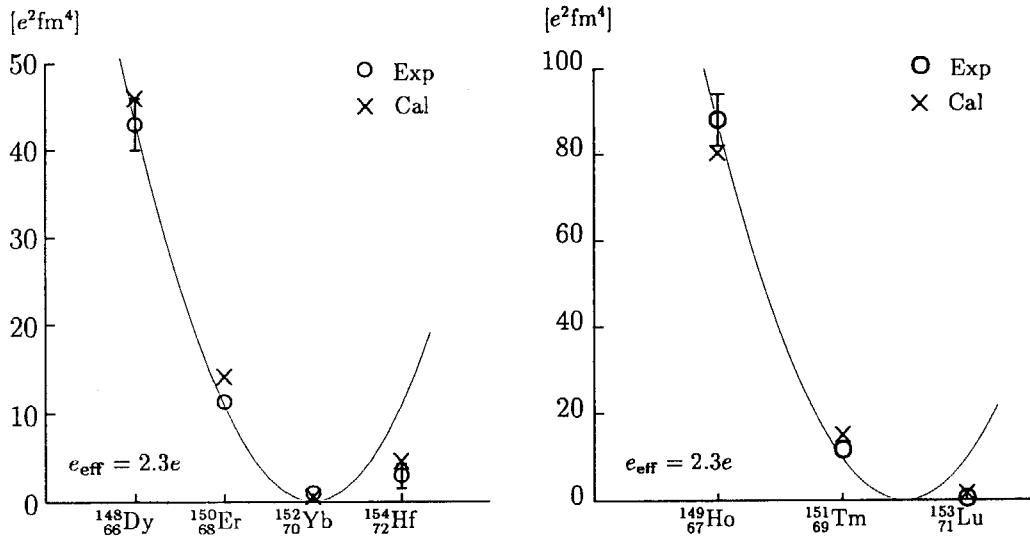


図2. Left: Even- Z , $N = 82$ 核における理論値と実験 $B(E2; 10^+ \rightarrow 8^+)$ の比較。Right: Odd- Z , $N = 82$ 核における理論値と実験 $B(E2; 27/2^- \rightarrow 23/2^-)$ の比較。

5 Summary

我々は ^{146}Gd core からの励起を考慮した $(0g_{7/2}1d_{5/2}2s_{1/2}0h_{11/2}1d_{3/2})^n$ 配位の殻模型計算を行うことにより、 $Z > 64$, $N = 82$ 核における低エネルギー領域のほぼ全ての energy level[1] と isomer に関する $B(E2)$ を統一的に記述できた。特に ^{152}Yb と ^{153}Lu における $E2$ hindrance を再現することができた。これは、従来(1)式によって理解されていた seniority reduction formula の粒子数 n を high- j 軌道における number expectation value $\langle N_j \rangle$ に置き換えた関係式(2)によって理解され、 ^{152}Yb の 10^+ と ^{153}Lu の $27/2^-$ 状態は、拡張された意味での seniority isomerism と解釈できる。また、実際の殻模型計算において、 ^{152}Yb と ^{153}Lu の $E2$ hindrance を再現できたことは、我々が導いた ExSRF の妥当性を確かめたことになる。このように、 $Z > 64$, $N = 82$ 核における isomer 形成には、 $Z = 64$ core からの陽子励起が重要な役割を果たしているといえる。

References

- [1] T. Matsuzawa *et al.*, Phys. Rev. C62(2000)054304.
- [2] P. K. Kleinheinz *et al.*, Z. Phys. A290(1979)279.
- [3] J. H. McNeill *et al.*, Z. Phys. A344(1993)369.
- [4] R. D. Lawson, Z. Phys. A303(1981)51.
- [5] J. Blomqvist, *International Review of Nuclear Physics* (World Scientific, Singapore, 1984), Vol.2, p.1.



JP0150928

JAERI-Conf 2001-014

3.2.11 多重ガンマ線分析による微量元素分析—応用 Determination of Trace elements by multidimensional gamma ray analysis—its application

初川雄一、藤暢輔、大島真澄、早川岳人
篠原伸夫、櫛田浩平、上野隆、豊田和弘⁽¹⁾

日本原子力研究所、⁽¹⁾ 北海道大学

Y. Hatsukawa, Y. Toh, M. Oshima, T. Hayakawa,
N. Shinohara, K. Kushita, T. Ueno, K. Toyota⁽¹⁾

Japan Atomic Energy Research Institute,
⁽¹⁾ Hokkaido University

筆者らはガンマ線の同時計測を行うことにより、高い検出感度を持つ多重ガンマ線分析法を用いて元素分析を行い、その有用性を示した。本研究では多重ガンマ線分析を用いた極微量分析への応用例を示す。

1. ^{129}I の分析

^{129}I は 1570 万年の半減期を持つ長半減期の放射性核種であり、その起源には大きく分けて天然起源と人工起源の 2 種類がある。天然起源には地殻中のウランの自発核分裂によるものや、大気中のキセノンと宇宙線との核反応によって生じることが知られている。一方人工起源では核実験や原子力関連施設から生じるので、近年環境中での ^{129}I の振る舞いには興味が持たれている。 ^{129}I の分析には 1962 年に Studier⁽¹⁾ らが中性子放射化分析を用いて以来、多くの研究⁽²⁾がなされており、近年では加速器質量分析⁽³⁾を用いる事により高い検出感度での分析が可能となった。しかし引き続き簡便で精度の高い分析方法である中性子放射化法に対する期待は大きい。

中性子放射化分析法では環境試料中より抽出したヨウ素を原子炉で中性子照射したのちに、 (n, γ) 反応で生成した ^{130}I ($T_{1/2} = 12 \text{ h}$) からのガンマ線を測定する。しかしヨウ素試料中に ^{129}I の含まれる割合は $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 10^{-9}$ 程度と低いため、僅かな不純物の混入により ^{130}I のガンマ線は妨害され測定ができない。特にナトリウムは容易に混入し、半減期 15 時間で高いエネルギーのガンマ線を放出する ^{24}Na を生成するので、 ^{130}I の測定は大変困難になる。この妨害を除去するためには試料を中性子放射化した後に化学分離を行うことが必要となるが、そのために測定結果に誤差を生じる恐れがあり、また作業者の被曝も問題となる。

本研究では ^{129}I の中性子放射化分析に多重ガンマ線分析を応用することにより非破壊で高精度の ^{129}I の分析法を開発した。まず ^{129}I 標準溶液から分取した 20 ng の試料をろ紙上に乾燥させて、これをポリエチレン袋に 2 重封入して原子炉にて 10 分間照射したのちに原研・多重ガンマ線分析装置 GEMINI においてガンマ線測定を行った。

図-1 に多重ガンマ線分析によって得られた 2 次元マトリクスを示す。一次元スペクトル中には ^{24}Na からのガンマ線が強く観測されており、一次元スペクトル中に ^{130}I からのガンマ線の観測は容易でないが、2 次元マトリクス中では ^{130}I からのガンマ線ペアをきれいに観測している。このガンマ線のペアの強度から ^{130}I の検出限界を見積もると $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 2 \times 10^{-11}$ を得た。さらに実際の試料に、この測定法を応用した。茨城県内の海岸で採集した海草（アラメ）約 100 g を加熱処理した後にヨウ素を有機溶媒に抽出し、これを硝酸鉛と反応させることにより

PbI₂にして原子炉にて2時間照射した。多重ガンマ線分析法により生成した¹³⁰Iを定量し、これより海草試料中の¹²⁹I/¹²⁷I比を求めた。得られた値は¹²⁹I/¹²⁷I = 8 ± 4 × 10⁻¹⁰を得た。

2. 地質学的試料中のイリジウムの分析

イリジウムは白金属に属する元素で地殻中の含有量はきわめて少なく10 ppt程度しか含まれていない。しかし原始太陽系の元素存在度を見てみると決して少なくなく(0.717; Si = 10⁶とした時の元素の割合)実際隕石中には約1 ppm程度見られる。1980年、L. AlvarezらはイタリアとデンマークにあるKT境界(白亜紀と第三紀の境界)にあたる地層中に異常にIrが濃集されていることを発見した。⁽⁴⁾彼らはこのイリジウムの起源として直径約10 kmの隕石が地球上に衝突して、その結果として多くの生物が死滅したと解釈している。この場合試料中のイリジウム濃度は最大で5.5 ppbあり比較的高濃度であるために非破壊でイリジウムの測定が可能であったが、その後の研究ではより微量のイリジウムの検出が求められており、そのためには中性子照射した試料を化学分離して同時に生成する⁴⁶Sr(半減期84日)や⁵¹Cr(半減期28日)の妨害を除いてからガンマ線測定を行うことが求められている。しかし化学操作に伴い誤差の生じる恐れがあり、また化学収率を得るために再放射化の作業も伴う。また作業者の被曝も問題となる。本研究では極微量のイリジウムの測定を多重ガンマ線分析により、試料の化学操作を行うことなく精度良く測定することに成功したので報告する。

本研究では中性子放射化によって放射化させたAllende隕石標準試料を、原研多重ガンマ線分析装置GEMINIで測定を行った。多重ガンマ線測定によって得られた2次元マトリクスの一部を図-2に示す。Allende試料中には0.74 ppmのイリジウムが含まれており、多重ガンマ線分析の結果、¹⁹¹Ir(n, γ)¹⁹²Ir反応により生じる¹⁹²Irから発せられる316-468 keVのガンマ線ペアが観測された。このガンマ線ペアの強度と照射条件を考慮し検出限界を見積もると、10 ppt程度のIrを化学分離することなく測定可能なことが示された。この分析法を用いて実際の試料中に見られるイリジウムの測定を行った。測定試料はキューバで採取したイリジウムの異常濃縮が見られると考えられる土壌試料で、地質学的調査より巨大な津波によって生じた地層であると考えられている。この津波の原因としてユカタン半島に落ちたとされる巨大隕石による衝撃が考えられており、その関連を調べるために地層中のイリジウム濃度の測定が行われた。表に測定結果を示す。モンカダの地層中には約1 ppbのイリジウムの異常濃縮が見られ、この地層の生成に隕石の関与が示唆された。一方ミナスの地層試料では最大で20 ppt程度のイリジウムが観測されたのみで、この結果からは隕石の衝突と関連付けることはできなかった。

Reference

- (1) M. H. Studier, C. Postmus, J. Mech, R. R. Walters, E. N. Sloth, J. Inorg. Nucl. Chem., 24, 755 (1962)
- (2) Y. Muramatsu, Y. Ohmomo, D. Christoffers, J. Radioanalyt. Nucl. Chem., 83/2, 353 (1984)
- (3) D. Elmore, H. E. Gove, R. Ferraro, L. R. Kilius, W. Lee, K. H. Chang, R. P. Beukens, A. E. Litherland, C. J. Russo, M. T. Murell, R. C. Finkel, Nature, 286 (1980) 138
- (5) L. W. Alvarez, W. Alvarez, F. Asaro, H. V. Michel, Science 1095, 208 (1980))

表； キューバ地層試料中のイリジウム濃度

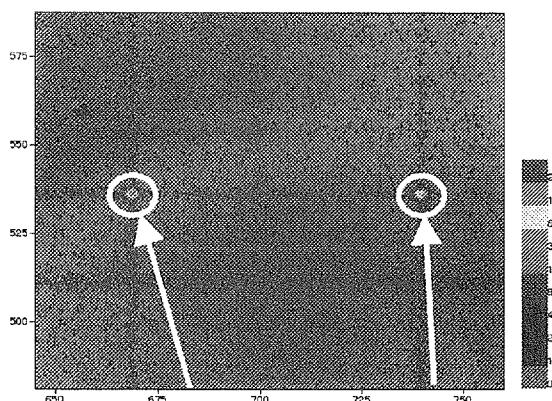
地名； モンカダ

sample #	Ir濃度
1	830(40) ppt
2	1100(100) ppt
3	90(16) ppt

地名； ミナス

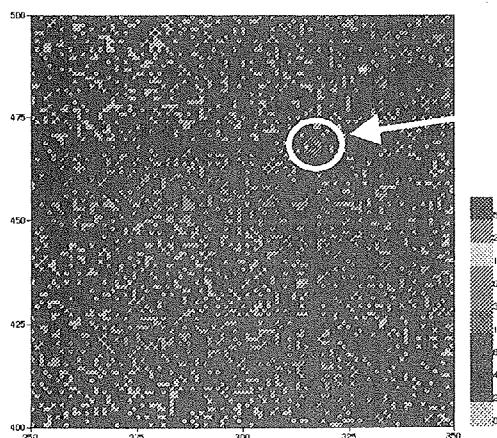
sample #	Ir濃度
1	<10 ppt
2	20(6) ppt
3	<10 ppt
4	<10 ppt
5	<10 ppt
6	<10 ppt
7	<10 ppt
8	<10 ppt
9	<10 ppt

カッコ内は誤差



図—1 中性子放射化した ^{129}I 標準試料の 2 次元マトリクス
 ^{130}I からのガンマ線ペア (536-668 keV と 536-739 keV) が観測されている。

536-668 keV 536-739 keV



図—2 Allende 標準試料の 2 次元マトリクス
試料中に 0.74 ppm 含まれている Ir からのガンマ線ペア (316-468 keV) が観測されている。



JP0150929

JAERI-Conf 2001-014

3.2.12 $N = 20$ 領域の魔法数の消滅とそのメカニズム

VANISHING OF THE $N = 20$ MAGIC NUMBER AND ITS MECHANISM

宇都野穰¹, 大塚孝治^{2,3}, 水崎高浩⁴, 本間道雄⁵

Y. UTSUNO¹, T. OTSUKA^{2,3}, T. MIZUSAKI⁴, and M. HONMA⁵

¹ 原研物質科学研究所 Department of Materials Science, Japan Atomic Energy Research Institute

² 東大理 Department of Physics, University of Tokyo

³ 理研 Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN)

⁴ 専修大法 Department of Law, Senshu University

⁵ 会津大数理セ Center for Mathematical Sciences, University of Aizu

Abstract

$N = 20$ 領域の中性子過剰核における魔法数の消滅について、モンテカルロ殻模型計算に基づき理論的に研究した。偶々核のイラスト状態のエネルギー準位と $B(E2)$ 値を計算し、実験値との良い一致を得た。 $N = 20$ 魔法数の消滅のメカニズムを有効相互作用から理解すべく、有効一粒子エネルギーを定義した。その結果、 $N = 20$ の shell-gap エネルギーは陽子数にかなり依存し、 $Z = 8$ 近傍における $N = 16$ 魔法数の出現と密接に関連していることが示された。

1 $N = 20$ 領域不安定核の魔法数の消滅

1970 年代に Na アイソトープの質量や磁気モーメントが安定核から中性子過剰核にかけて系統的に測定されて [1] 以来、 $N = 20$ 魔法数は、従来考えられてきたように陽子数に関わらず安定に存在するのではなく、不安定核領域では消滅することがわかつってきた。すなわち、この領域の $N = 20$ 近傍核は、魔法数がその機能を果していることを意味する球形核ではなく、 sd shell から pf shell への中性子の励起を伴って変形していると考えられるようになってきた。こうした変形した状態は、球形一粒子エネルギーの観点からはエネルギー的に不利なはずであるが、変形に伴う四重極エネルギーや相関エネルギーにおいては有利な可能性がある。しかしながら、なぜその不安定核領域で特異的に魔法数が消滅するのか、また魔法数の消滅しあじめる境界がどこなのかについてはまだはっきりしていない。

本研究では $N = 20$ 領域の不安定核の構造を、特に魔法数の消滅に焦点をあて、殻模型に基づき理論的に研究した。2 章に計算の概要、3 章にイラスト状態における計算結果を示す。4 章では魔法数の消滅のメカニズムを有効一粒子エネルギーの考え方を用いて解析する。

2 モンテカルロ殻模型計算

$N = 20$ 領域における不安定核の変形した状態を記述するためには、バレンス軌道として sd shell に加え、 pf shell の一部も入れる必要がある。しかし、この模型空間はあまりに大きすぎるため、従来の直接対角化法による殻模型の解法では空間の何らかの制限なしには計算不可能である。モンテカルロ殻模型 (MCSM) 計算 [2] はこの困難を非常に満足のいく程度まで解決できうる計算手法である。モンテカルロ殻模型計算では、量子モンテカルロ法のアルゴリズムによって生成された基底 (ここでは Slater 行列式)

のうち重要な基底を数十個程度選び出し、それらの基底の張る空間でハミルトニアンを対角化することにより真の固有状態に非常に近い状態が得られる。この手法の有用性は、次元数が最大 10 億を超える full pf -shell 領域などで確かめられている [2] (詳しくは本研究会、大塚氏の講演を参照のこと)。

3 イラスト状態の結果

図 1 に Ne, Mg アイソトープについてイラスト状態のエネルギー準位を示す (詳しくは Ref. [3] 参照)。 $N = 20$ 魔法数が保たれていると仮定している sd -shell 計算では Ne, Mg の $N = 20$ 核の励起エネルギーが比較的高くなるが、MCSM 計算によるとこれらは低くなり、 ^{32}Mg では実験値との良い一致が見られる。これらの核では、基底状態の波動関数は sd shell から pf shell へ 2 核子励起した配位が主となっており、魔法数の消滅を示唆する実験結果を裏付けている。

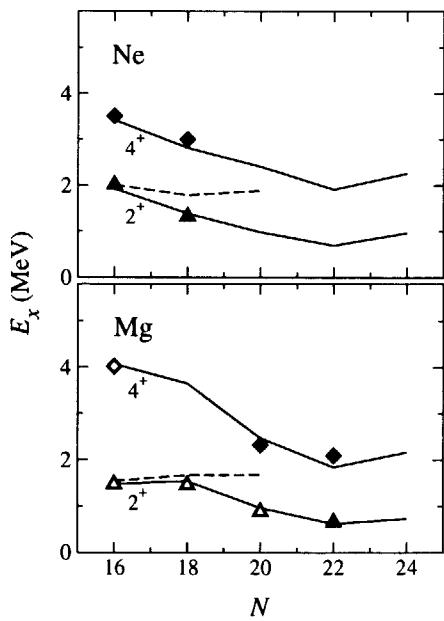


図 1: Ne, Mg アイソトープにおけるイラスト状態のエネルギー準位。シンボルは実験値、実線は MCSM 計算、破線は USD 相互作用 [4] を用いた sd -shell 計算の値を表す。MCSM 計算の後に発表された実験値を特に黒ぬきで示す。

次に、同一アイソトープ内における変形

及び魔法数消滅の程度の中性子数依存性について調べてみよう。 $N = 20$ 核の normal configuration (pf shell へ励起しない配位) は変形によってもたらされるエネルギーを稼げないために最も intruder configuration (変形を伴って中性子が pf shell へ励起する配位) の寄与が大きいと考えられる。その周囲のアイソトープでは normal configuration もある程度変形の余地があるため、 $N = 20$ を離れるに従って徐々に intruder configuration の寄与が減り、魔法数の消滅が起きにくくなるだろう。実際、 $N = 16$ 核では sd -shell 計算と MCSM 計算、実験結果がよく一致し、魔法数の消滅は見られない。 $N = 20$ の (偶々核の) 両隣である $N = 18, 22$ 核は最近になって実験結果が出てきたものであるが、これらは魔法数の消滅のメカニズムを探る上で興味深い。すなわち、これらのいわば魔法数消滅の遷移領域では normal と intruder configuration 間の混合が重要になってくると考えられ、精密な計算と良い有効相互作用が特に要求される。MCSM 計算によると、 $N = 22$ 核では Ne, Mg ともに intruder configuration が主でかつ非常に大きく変形している。 ^{34}Mg について、この予言は最近の実験 [5] によって確かめられた。 $N = 18$ 核においては、Ne では魔法数が半分程度消滅するが、Mg ではその程度は小さい。これらの核の励起エネルギーも最近測定され、MCSM 計算との良い一致が得られている [6]。

4 有効一粒子エネルギーによる解析

3 章で述べた偶々核のイラスト状態の結果は、計算に用いられた有効相互作用が妥当であることを表している。この章では魔法数消滅のメカニズムを有効相互作用に基づいて調べることにする。1 章で触れたように、魔法数の消滅では球形一粒子エネルギーと変形等の相関エネルギーとの競合が重要である。この場合考慮すべき球形一粒子エネルギーはバレンス核子の影響を受けるはずなので、 ^{16}O 周りのそれとはかなり異なってくるであろう。この質量数とともに変化しうる球形一粒子エネルギーを有効一粒子エネルギーと呼ぶことにする。これは殻模型ハミルトニアンの monopole 相互作用を用いて明確に

定義することができる [3]。

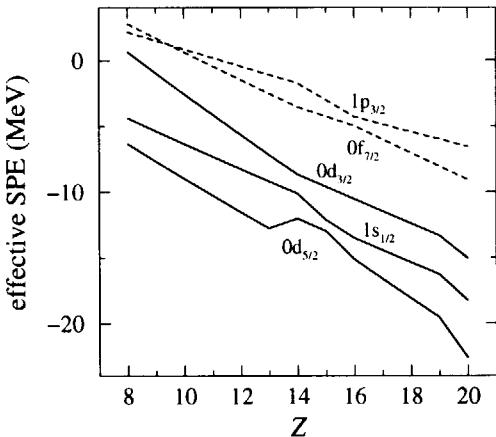


図 2: $N = 20$ アイソトーンにおける中性子の有効一粒子エネルギー。

図 2 に $N = 20$ 核における中性子の有効一粒子エネルギーを示す。 $Z = 20$ 近辺の安定核領域では sd shell と pf shell 間の shell-gap エネルギーは 6.0 MeV で、魔法数が安定して存在するに十分な大きさとなっている。一方、この gap は Mg($Z = 12$) では 4.2 MeV, Ne($Z = 10$) では 3.2 MeV と陽子数の減少とともに縮まる。この球形一粒子エネルギーの変化が、陽子数の小さな不安定核で魔法数の消滅が起きやすくなる現象に対する重要な一因を担っている。Ne と Mg 間の 1 MeV の相違は $N = 18$ 核に対する魔法数の消滅の程度に対し、決定的な役割を果たしている。

^{16}O 付近から ^{40}Ca にかけての shell gap の変遷は以下のようになる。 ^{16}O 近くでは $1s_{1/2}$ と $0d_{3/2}$ 間の gap が sd - pf 間よりもむしろ大きい。この gap は ^{17}O の励起エネルギーからも確かめられる。そこから中性子を増やしていくと、 $N = 20$ 付近に至るまでこの gap は大きいままである。 $N = 16$ 核である ^{24}O 周辺ではフェルミ面がそこまで到達するため、基底状態あるいは低励起状態において $N = 16$ 魔法数の存在 [7] が明らかに見えてくる。次に $N = 20$ 核で陽子を増やすと急激に $N = 20$ gap が現れ始め、同時に $N = 16$ gap が消えていく。これは $0d_{5/2}$ に陽子が入ると急速に $0d_{3/2}$ 中性子軌道が安定すること

とを意味し、有効相互作用の観点からは $0d_{5/2}$ と $0d_{3/2}$ 間の非常に強い $T = 0$ monopole 相互作用によりもたらされるものである。この強い $T = 0$ monopole 相互作用は不安定核の核構造全般にわたる理解に関しても重要な役割を担っている可能性があり、その起源については現在研究の途上にある。F($Z = 9$) では $N = 16$ 魔法数の性質がある程度残っているために $0d_{3/2}$ と pf shell の有効一粒子エネルギーは近く、このことが O から F にかけて drip line が $\Delta N = 6$ 延びる [8] 原因となっていると考えられる [9]。

5 まとめ

$N = 20$ 領域における魔法数の消滅のメカニズムを、実験値の励起エネルギーと $B(E2)$ 値をよく与えさらに予言能力のある殻模型有効相互作用に基づいて研究した。shell gap は安定核から不安定核へと大きく変化しており、非常に強い $0d_{5/2}$ - $0d_{3/2}$ 間 $T = 0$ monopole 相互作用が $N = 20$ 魔法数消滅および $N = 16$ 魔法数出現の双方を統一的に説明する上で重要な役割を果たしていることが示された。

References

- [1] C. Thibault *et al.*, Phys. Rev. C **12**, 644 (1975).
- [2] T. Otsuka *et al.*, Phys. Rev. Lett. **81**, 1588 (1998), and references therein.
- [3] Y. Utsuno *et al.*, Phys. Rev. C **60**, 054315 (1999).
- [4] B.A. Brown and B.H. Wildenthal, Annu. Rev. Nucl. Part. Sci. **38**, 29 (1988).
- [5] K. Yoneda *et al.*, to be published.
- [6] B.V. Pritykienko *et al.*, Phys. Lett. B **461**, 322 (1999).
- [7] A. Ozawa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 5493 (2000).
- [8] H. Sakurai *et al.*, Phys. Lett. B **448**, 180 (1999).
- [9] Y. Utsuno *et al.*, submitted to Phys. Rev. Lett.



JP0150930

JAERI-Conf 2001-014

3.2.13 La イオンの同位体シフトのレーザー分光 ISOTOPE SHIFTS OF La II BY COLLINEAR LASER SPECTROSCOPY

飯村 秀紀、石田 佳久^A、小泉 光夫、篠原 伸夫、柴田 猛順、堀口 隆良^B、
H. A. SCHUESSLER^C

日本原子力研究所 物質科学部 319-1195 茨城県那珂郡東海村

^A理化学研究所 351-0106 埼玉県和光市広沢 2-1

^B広島国際大学 724-0695 広島県黒瀬町学園台 555-36

^CTexas A&M University 77843 College Station Texas USA

H. IIMURA, Y. ISHIDA^A, M. KOIZUMI, N. SHINOHARA, T. SHIBATA,
T. HORIGUCHI^B and H. A. SCHUESSLER^C

Department of Materials Science, Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1195 Japan

^AInstitute of Physical and Chemical Research (RIKEN), Wako, Saitama 351-0106 Japan

^BHiroshima International University, Kurose-cho, Hiroshima 724-0695 Japan

^CTexas A&M University, College Station, Texas 77843 USA

1. はじめに

コリニア・レーザー分光は従来の方法に比べて高い精度で準位間のエネルギー差を測定することが出来、また同位体を分離して測定することが可能である。この手法を用いて、La 同位体 ($Z=57$) の超微細構造と同位体シフトの研究を行っている。La 同位体は、中性子数がマジックナンバーである 82 から減るのに従って原子核の形は球形から回転楕円体に急激に遷移し、核構造論上興味深い領域にある。しかしながら、これらの同位体の核電磁気モーメントや平均二乗核荷電半径の変化は、それらが核構造を調べる上で重要な物理量であるにもかかわらず、安定同位体の ^{139}La を除いて殆どデータが無い。そこで放射性 La 同位体の測定の第一段階として、長寿命の ^{138}La (半減期 $1 \times 10^{11} \text{ y}$) 及び ^{137}La ($6 \times 10^4 \text{ y}$) の幾つかの遷移の超微細構造と同位体シフトを測定した。このうち ^{138}La は非常に小さい同位体比 (0.090 %) ではあるが天然に存在する。陽子数、中性子数とも奇数の核種で天然に存在するものは数核種しかないが、 ^{138}La はそのうちの一つである。

2. 試料の作成

^{137}La は天然に存在しない放射性同位体であるので、タンデム加速器の陽子ビームで Ba ターゲットを照射することにより、 $^{137}\text{Ba}(p,n)$ 反応あるいは $^{138}\text{Ba}(p,2n)$ 反応により生成した。Ba ターゲットは、濃縮同位体の炭酸バリウムの粉末を用いた。それぞれの試料について、15 MeV あるいは 23 MeV の陽子ビームで約 1 日照射することにより、約 10^{13} atoms (2 ng) の ^{137}La が生成された。照射後 Ba ターゲットより La をイオン交換法により分離し、イオンビーム装置のイオン源に入れた。

3. 実験方法

実験はアルゴンイオンレーザー (Coherent INNOVA-100-20) 励起の色素レーザー (Coherent 699-29) を用いて行った。レーザーの出力は二分され、一方は周波数較正系、他方はイオンビーム装置へ導かれる。周波数の較正は、絶対値をヨウ素セルの偏光分光により、また相対値をファブリ・ペロ干渉計 (Burleigh CFT-500) により行った。イオンビーム装置は、表面電離型イオン源を用いており、これは La を含む希土類元素を効率よくイオン化するのに適している。イオン源から引き出されたイオンビームは 40 keV に加速され、電磁石で質量分離された後、共線上で (Collinear) レーザー光を照射された。

共鳴励起されたイオンの蛍光は、楕円ミラーにより光電子増倍管 (Hamamatsu R2256)

に集光された。光電子増倍管は暗電流を減少させるため冷却している。またレーザーの散乱光を低減するため、色ガラスフィルターを使用している。レーザーとイオンが反応する領域には、金属製のメッシュの円筒を置き、-3 kV の電圧をかけている。これによって、イオン源で生成された準安定状態にあるイオンが、測定点に来る前にレーザーと反応して無くなってしまうのを防いでいる。レーザー周波数を一定の速度で掃引して、測定点からの蛍光、ファブリ・ペロ干渉計の透過光、ヨウ素の偏光分光の透過光を同時にマルチチャンネルスケーラーで計数し、スペクトルをコンピュータに取り込んだ。

4. 放射性同位体 $^{137,138}\text{La}$ のレーザー分光

La イオンの幾つかの遷移で蛍光を観測した。Fig. 1 は例として準安定状態 $6s^2 \ ^1\text{S}_0$ より $5d6p \ ^3\text{D}_1$ 状態への 538.7 nm 遷移をレーザーで励起し、基底状態近傍に遷移する蛍光を観測したスペクトルである。ここで F 量子数は J 、 I をそれぞれ電子系スピン、核スピンとして $F = J + I$ で表される。 ^{138}La は核スピンが 5、 ^{137}La は $7/2$ であるので、それぞれ 3 本の超微細成分となる。測定された線幅は約 80 MHz である。イオンビームの強度は約 10^8 ions/s (10 pA) であった。それぞれのスペクトルに現れている F 量子数を示していないピークは ^{139}La のものである。これらは ^{139}La のイオンビームが $^{137,138}\text{La}$ に比べて非常に強いことから、イオンビームの分布の裾の部分が別の質量数に混ざってきたものである。

5. 同位体シフト

観測されたスペクトルより、超微細構造定数 A 、 B を決定した。同位体間のこれら値の比より $^{137,138}\text{La}$ のモーメントが得られた。 ^{137}La については、これまでファブリ・ペロ干渉計を用いた、ドップラーフリーでない分光法を用いた測定例がある[1]。そこで報告されている値を今回のものと比較すると、磁気双極子モーメントについては良く一致した。しかし、電気四重極子モーメントについては Fisher 達の値に比べて、今回の値はかなり小さくなかった。次に ^{138}La と ^{139}La 間のシフト、及び ^{137}La と ^{139}La 間のシフトは、同時に測定したヨウ素のスペクトルを基準として決定した。これらは同位体毎に異なるドップラーシフトを含んでいるので、同位体シフトを得るためにこれを差し引かなくてはならない。その結果、538.7 nm 遷移について ^{138}La と ^{139}La 間の同位体シフトが約 550 MHz あるのに対して、 ^{137}La と ^{139}La 間は殆ど 0 MHz であることが判明した。同位体シフトより平均二乗核荷電半径の差を求めることが出来る。現在この解析を進めている。今後、より寿命の短い La 同位体を測定し、それによってこれらの同位体のモーメント、核荷電半径の系統性を調べることを計画している。

References

- [1] W. Fischer, H. Hühnermann and K. Mandrek, Z. Physik 254, 127(1972).



JP0150931

JAERI-Conf 2001-014

3.2.14 THEORETICAL ESTIMATION FOR FUSION-FISSION CROSS SECTION OF SUPERHEAVY ELEMENTS WITH 3-DIM LANGEVIN APPROACH

Y. ARITOMO

Flerov Laboratory of Nuclear Reactions, JINR, 141980 Dubna, Russia

Recently spectacular news was reported from Dubna [1]. They announced the production of superheavy elements $Z=114$ in the reaction $^{48}\text{Ca}+^{244}\text{Pu}$ and $^{48}\text{Ca}+^{242}\text{Pu}$. Only a few months later Berkeley group reported the production of $Z=118$ elements in the reaction $^{86}\text{Kr}+^{208}\text{Pb}$ [2]. More recently also Dubna group presented the observation of the first decay event of $^{292}\text{116}$ in the reaction $^{48}\text{Ca}+^{248}\text{Cm}$ [3].

The experiments of synthesizing $Z=114$ and $Z=116$ nuclei at Dubna were done by hot fusion reaction accompanying with three or four neutron emission. [1,3]. In fusion reaction in heavy systems, it is well known that there exists a hindrance which is explained as the extra- or extra-extra-push energy due to the strong dissipation for collective motion of nuclear matter. To explain the fusion hindrance, the trajectory calculations with friction was performed. When the fusion hindrance is very large, it is necessary to solve a full dissipative dynamics, or a fluctuation-dissipation dynamics with the Fokker-Planck equation or with the Langevin equation.

Recently at Dubna the experiments on the fission of superheavy nuclei in the reactions $^{48}\text{Ca}+^{208}\text{Pb}$, $^{48}\text{Ca}+^{238}\text{U}$, $^{48}\text{Ca}+^{244}\text{Pu}$, $^{48}\text{Ca}+^{248}\text{Cm}$, $^{58}\text{Fe}+^{248}\text{Cm}$ carried out [4]. The mass and the total kinetic energy distributions of fission fragments of these reactions were measured. They present the fusion-fission cross section of compound nuclei which is derived from the mass symmetric fission fragments ($A/2 \sim \pm 20$, where A denotes the mass number of the compound nucleus). We try to reproduce the experimental data by Langevin equation over Bass barrier region.

When we deal with the fusion-fission process of superheavy mass region, we have to take into account the competition between quasi-fission and fusion [5]. Fig.1 shows the schematics of fusion-fission process. Some of the trajectory go to the fission which are called quasi-fission, and some of them go to the fusion. We deal with all trajectory. In order to treat the process precisely, we use the fluctuation-dissipation model which is described with the Langevin equation or with the Fokker-Planck equation. In this work, we employ the three-dimensional Langevin equation in the deformation space with the two-center parametrization including the elongation(z), deformation of fragments (δ) and mass asymmetry (α) [6].

For the purpose of the calibration of our model, firstly we analyze the fusion-fission cross section for the $^{48}\text{Ca} + ^{208}\text{Pb}$ reaction. In the calculation of the fusion probability, the definition of the fusion configuration is very important, because the variation of the probability is mainly coming from the definition. In order to reproduce the experimental data of fusion-fission cross section in the reaction $^{48}\text{Ca} + ^{208}\text{Pb}$, we slightly adjust the fusion region. Figure 1 shows this situation. The small box denotes the fusion box and we change this region slightly to reproduce the experimental data. In the calculation, we define the fusion region (fusion box) as $z < 0.8$, $\delta < 0.3$ and $\alpha < 0.3$. Moreover as the fusion overcoming to the B.G. point, another fusion region is defined as $\alpha > 0.8$ and $z < 1.4$. The each configurations are described in Fig.1. As we can see in Fig.1, some of the trajectory enter the fusion box and go

back to near mass symmetric fission. We take into account near mass symmetric fission from quasi-fission in our model.

The excitation function of the fusion cross section σ_{CN} for $^{48}\text{Ca}+^{208}\text{Pb}$ is shown in Fig.2. Open triangles and squares denote experimental data. The solid line denotes our calculation. The three dimensional Langevin calculation shown by solid line gives a good prediction of the general trend of the experimental data at over Bass barrier region.

We present the results for two cases, one is the *LDM* case and another is the *LDM+shell* case. When we use the *LDM* potential energy surface, we assume the both shapes of target and projectile are spherical at touching point of the system. When we use the *LDM+shell* potential energy surface, we use shell correction energy at nuclear temperature $T=0$ and take into account the static deformation of target and projectile at touching point. In each systems we use the same definition of the fusion region as $^{48}\text{Ca}+^{208}\text{Pb}$ case.

Figure 3, 4 and 5 show the fusion-fission cross section by the Langevin calculation and the experiment in the reactions $^{48}\text{Ca} + ^{238}\text{U}$, $^{48}\text{Ca} + ^{244}\text{Pu}$, $^{48}\text{Ca} + ^{248}\text{Cm}$ and $^{58}\text{Fe} + ^{248}\text{Cm}$, respectively. The solid line and dash line show the calculations in the *LDM* case and the *LDM+shell*($T=0$) case, respectively. The experimental data is denoted by symbols. The calculation results present very good agreements with the experimental data.

Actually the fusion-fission cross section is derived from the experimental data of mass symmetric fission fragments. In our calculation, we define the fusion box as fitting the experimental data for $^{48}\text{Ca}+^{208}\text{Pb}$ reaction and we calculate the fusion probability. According our calculation, however, mass symmetric fission maybe comes from not only the compound nucleus but also the quasi-fission. When we estimate fusion as the compound nucleus, the fusion box should be smaller.

The author acknowledges useful discussions with Prof. M. Ohta, Prof. T. Wada and Prof. Y. Abe. The thanks are deserved to Dr. S.Yamaji who developed the calculation code of the potential energy with two-center parametrization. The author is grateful to Prof. Yu. Ts. Oganessian for his helpful suggestion and valuable discussion through the present works.

REFERENCES

- 1) Yu.Ts.Oganessian *et al.*, Nature 400,(1999)242, Phys. Rev. Lett. 83. (1999) 2154.
- 2) V.Ninov *et al.*, Phys. Rev. Lett. 83.(1999)3154.
- 3) Yu.Ts.Oganessian *et al.*, Phys. Rev. C.63 (2001) 011301(R).
- 4) M.G. Itkis *et al*, Proc. of Fusion Dynamics at the Extremes, May 25-27, 2000, Dubna, in print.
- 5) Y. Aritomo *et al*, Phys. Rev., C59 (1999) 796.
- 6) J.Maruhn *et al*, Z. Phys. 251(1972) 431./ K.Sato *et al*, Z. Phys. A288 (1978) 383

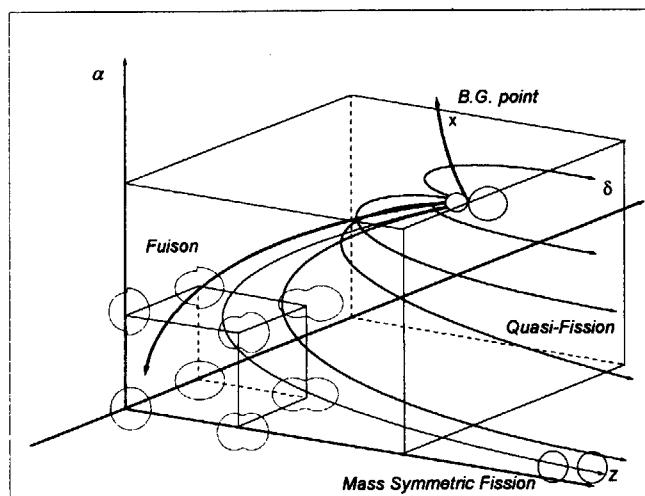


Fig.1. The overview of fusion-fission process.

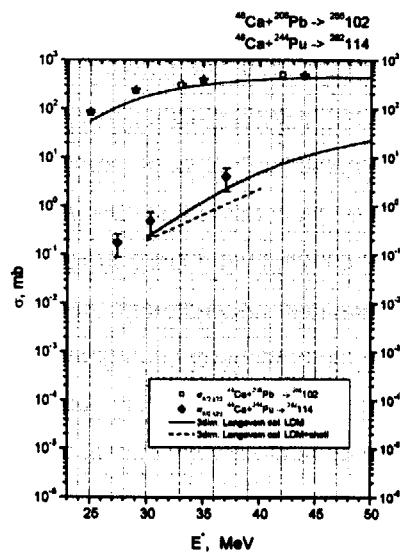


Fig.2. The fusion-fission cross section for $^{48}\text{Ca}+^{208}\text{Pb}$ and $^{48}\text{Ca}+^{244}\text{Pu}$.

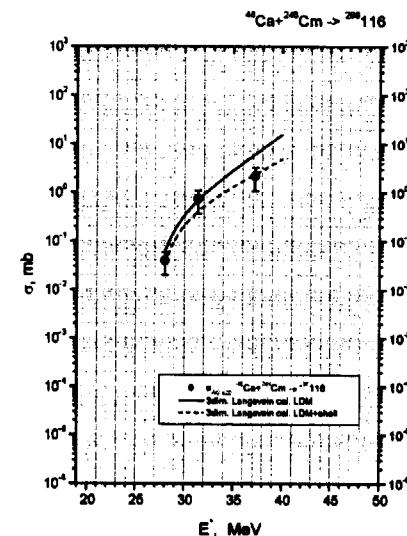


Fig.3. The fusion-fission cross section for $^{48}\text{Ca}+^{248}\text{Cm}$

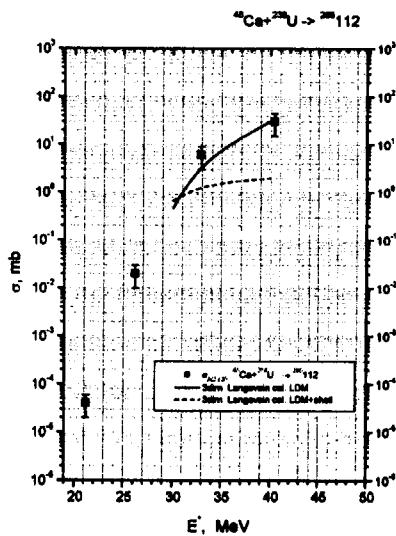


Fig.4. The fusion-fission cross section for $^{48}\text{Ca}+^{238}\text{U}$

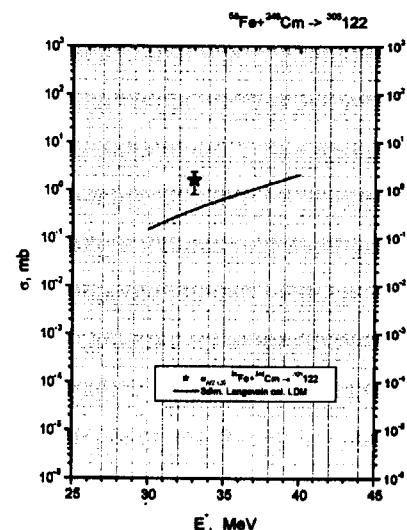


Fig.5. The fusion-fission cross section for $^{58}\text{Fe}+^{248}\text{Cm}$.



JP0150932

JAERI-Conf 2001-014

3.3 核化学関連

3.3.1 ウラン標的装着型イオン源の開発とその利用

長 明彦¹、松田 誠¹、塚田 和明²、市川 進一²

¹物質科学研究部、²先端基礎研究センター

Ion source development for on-line mass separation of fission products

Akihiko OSA¹, Makoto MATSUDA¹, Kazuaki TSUKADA² and Shin-ichi ICHIKAWA²

¹Department of Materials Science, ²Advanced Science Research Center

【はじめに】

ウランの陽子誘起核分裂で生成する中性子過剰核を、オンライン同位体分離器で分離し、核分光学的研究や2次ビーム加速に利用することを目的として、目的核種を効率よく迅速にイオン化し引き出すことが可能な標的/イオン源の開発を進めている。核分裂ではCoからTbまでの多くの核種が生成するが、元素の特性に合わせ、アルカリ・アルカリ土類並びに希土類元素のイオン化には表面電離型、希ガス・銅からシュウ素・銀からヨウ素のイオン化には低圧アーク放電型イオン源であるFEBIAD(Forced Electron Beam Induced Arc-Discharge)イオン源を設計・製作した。これらにより、核分裂で生成する39元素中30元素のイオン化が可能となる。

標的としては、ウラン炭化物をウラン換算 $1\text{g}/\text{cm}^2$ 程度装着できる構造とした。予想されるイオン化効率、タンデム加速器から得られる陽子ビーム強度 $3\mu\text{A}$ 、装着するウラン標的量 $1\text{g}/\text{cm}^2$ の条件で評価すると、中性子数82/陽子数50の二重魔法数核種¹³²Snを 10^6 pps の強度で引き出せると期待される。希土類核では、存在が確認されている既知の核種より1ないし2

個中性子過剰側の新核種を発見することが核分光学的研究で可能となる。

【予備実験】

イオン源開発の予備的実験として既存の表面電離型イオン源によるIn元素の単離オンラインテスト、及びFEBIADイオン源によるXe,Kr標準ガスを用いたオフラインテストを行った。

表面電離型イオン源ではZ=50近傍の元素のうち、

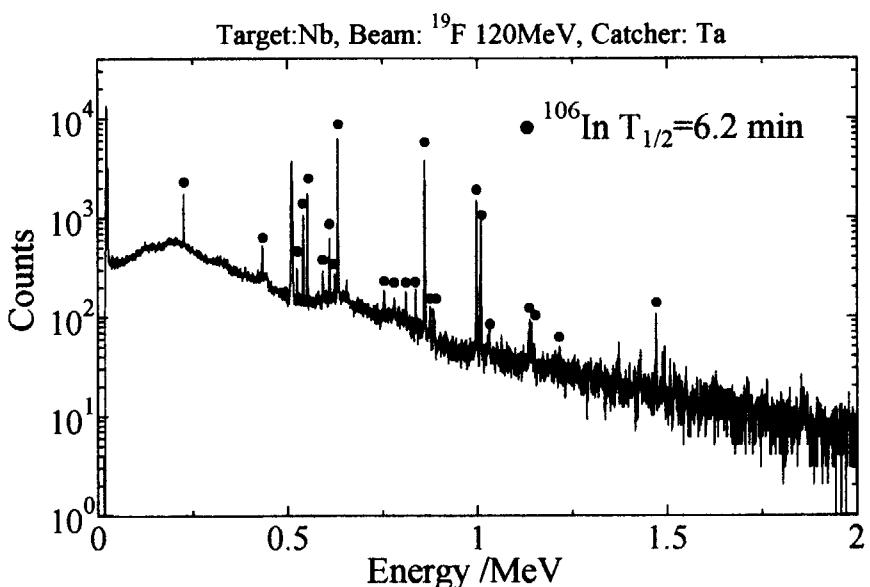


Fig.1. 表面電離型イオン源によるIn単離テスト。

イオン化電位が小さい(<6 eV)In が選択的に引き出せると期待される。そこで、¹⁹F ビームで Nb 標的を照射することで Cd, In, Sn を生成しそのイオン化効率を測定した。Fig.1.に示すように A=106 で質量分離したγ線スペクトルには ¹⁰⁶In のβ崩壊に伴うγ線のみが観測され、In が単離されていることが確認された。

In のイオン化電位は 5.785eV であり、表面電離型イオン源で予想されるイオン化効率は数%である。今回、核反応生成物の捕獲材として Ta 箔とターゲットとして検討中のウラン炭化物を模したグラファイト箔を使用して、それぞれのイオン化効率を比較した。Ta 箔を捕獲材に用いて得られた効率とイオン源温度の関係は、Langmuir の式で予測される傾向と一致した (see Fig.2)。しかしながら、期待されるイオン化効率の 1/10 程度しか得られず、グラファイト捕獲箔ではさらに低下することがわかった。これは生成核が、捕獲箔にトラップされているか、または化合物を形成し拡散し辛くなつたと推測される。

FEBIAD イオン源では、オンライン実験時に、マスマーカおよびイオン化効率測定の標準となる Xe 及び Kr の標準ガスを用い、イオン源のコンディショニング及び運転パラメータの決定を行った。最適化した条件で、それぞれ 20%, 15% 程度のイオン化効率を得た。イオン源出口近傍の真空度の向上、引き出し電極の最適化、並びにイオン源本体のコンディショニングにより効率向上が期待される。

【利用】

核分裂収率が多くかつイオン化効率が高いことで高強度($10^6 \sim 10^8$ pps)での分離が期待できる核種については、イオン注入による核をプローブとした物性研究、クロトン励起、レーザーによる原子核の研究などの実験に供することが可能である。また、ビーム自身に偏極などの機能を付加することも考えられる。安定領域から遠く離れた核分裂収率の少ない核種、イオン化効率の低い核種など低強度($10^2 \sim 10^5$ pps)と予測される核種に関しては、天体における重元素合成で興味深い ⁷⁸Ni, ¹³²Sn 近傍核の全吸収β線検出器による質量決定や、β/α崩壊核分光による新核種探索などを検討している。

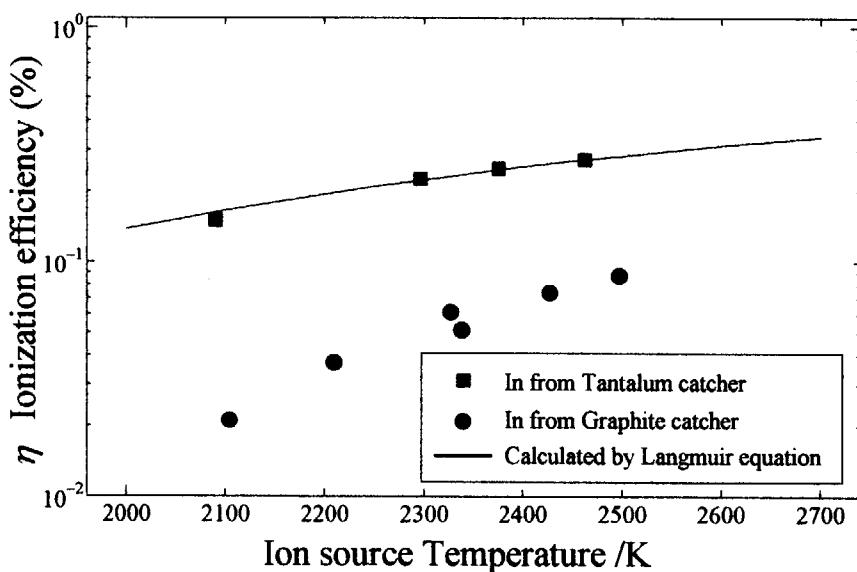


Fig. 2. 表面電離型イオン源での In のイオン化効率

【今後】

ウラン標的装着型イオン源はその最終的な運用までに、イオン源としての問題点の洗い出しと改善、ウラン標的の取扱い、照射前後のイオン源の操作/保管など様々な問題を抱えている。今後のイオン源の開発としては、①タンデム加速器からの安定核ビーム打ち込みや重イオンによる核融合蒸発反応生成物を使うことで、標的からの拡散などを含めたイオン源性能を向上させる、②少量($\sim\text{mg/cm}^2$)のウラン標的を用いたR&D、③ 1g/cm^2 規模のウラン標的を使用するためのイオン源操作/保管の検討など、段階を踏んで進めていく予定である。



JP0150933

JAERI-Conf 2001-014

3.3.2 アクチノイド陽子誘起核分裂における分裂核の同位体効果に関する研究

Isotope Effects of Fissioning Nuclei in Proton-Induced Fission of Actinides

後藤 真一^{1,6}, 西中 一朗¹, 永目 諭一郎¹, 市川 進一¹, 塚田 和明¹, 浅井 雅人¹, 羽場 宏光¹, 光岡 真一¹, 西尾 勝久¹, 阪間 稔², 趙 宇亮², 末木 啓介², 中原 弘道², 谷川 勝至³, 高宮 幸一⁴, 浜島 靖典⁵, 加治 大哉⁶, 工藤 久昭⁶
(¹ 原研先端基礎, ²都立大理, ³東大理, ⁴京大炉, ⁵金沢大理, ⁶新潟大理)

S. GOTO^{1,6}, I. NISHINAKA¹, Y. NAGAME¹, S. ICHIKAWA¹, K. TSUKADA¹, M. ASAII¹, H. HABA¹, S. MITSUOKA¹, K. NISHIO¹, M. SAKAMA², Y.L. ZHAO², K. SUEKI², H. NAKAHARA², K. TANIKAWA³, K. TAKAMIYA⁴, Y. HAMAJIMA⁵, D. KAJI⁶, H. KUDO⁶

¹Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Research Institute

²Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University

³Faculty of Science, University of Tokyo

⁴Research Reactor Institute, Kyoto University

⁵Faculty of Science, Tokyo Kanazawa University

⁶Faculty of Science, Tokyo Niigata University

1. はじめに

アクチノイドの低エネルギー核分裂では、切断時(scission)に長くのびた形状をもち対称な質量分割をする経路と、よりコンパクトな形状で非対称な質量分割をする2つの変形経路が確認されている[1]。このうち非対称質量分割についての詳細な検討の結果、重い非対称質量分布において、軽い側の壁が分裂核の質量数によらず $A = 126\text{--}128$ に収束し、重い側が分裂核の質量数とともにより重い方へ広がるという現象が確認された。この現象はそれぞれ重い核分裂片の $Z = 50$ および相補する軽い核分裂片の $N = 50$ の閉殻構造の影響であると考えられるが、分裂核の中性子-陽子比(N/Z)がほとんど同じ系でしか調べられていないため、まだ明らかではない。 $^{233,235,238}\text{U}$ および $^{239,242,244}\text{Pu}$ の陽子誘起核分裂では、分裂片の $Z = 50, N = 50$ に対応する質量数がこれまでの系とは異なるため質量分布に変化が現れると期待される。そこで、これらの系での核分裂片質量数・全運動エネルギー(TKE)分布を精密に測定し、非対称質量分割と分裂片の殻構造との関連について系統的に研究をおこなった。

2. 実験

実験はタンデム加速器施設 R2 コースにておこなった。陽子エネルギーは 13 および 15 MeV とし、ターゲットには Ni 箔上に電着した $^{233,235,238}\text{U}$ および $^{239,242,244}\text{Pu}$ を用いた。核分裂により生成した分裂片対の速度をマイクロチャンネルプレート検出器とプラスチックシンチレータからなる核分裂片二重飛行時間測定装置により測定し、一次分裂片の質量および運動エネルギーを求めた。速度の校正は 240 MeV の ^{127}I を ^{89}Y , ^{nat}Ag , ^{nat}In , ^{141}Pr および ^{159}Tb ターゲットに照射し、弾性散乱による散乱および反跳粒子の測定によりおこなった。質量および運動エネルギーの分解能はそれぞれ約 2 u, 約 2.5 MeV であった。

3. 結果と考察

観測された核分裂片対の飛行時間から、一次分裂片の質量・運動エネルギーを求めた。以下、ウラン同位体の系における結果について述べる。図1にそれぞれの系における核分裂片の質量分布を示す。これらを比較すると、分裂核の質量数が小さくなるにつれ重い分裂片の質量分布がより軽い側へとシフトしている。特に、軽い側の壁が系によって変化するという結果は、これまでの報告[2]と異なるものである。

それぞれの系の分裂核の N/Z から重い分裂片の $Z = 50$ および相補する軽い分裂片の $N = 50$ に対応した重い分裂片の質量数を計算したものが表1である。実際に観測された質量分布の壁の位置関係と求めた質量数の大小関係は相対的に一致している。

表1: ウラン同位体間での $Z = 50, N = 50$ に対応する分裂片質量数

target	compound nucleus	$(N/Z)_{CN}$	$A_{Z_H=50}$	$A_{N_L=50}$
^{233}U	^{234}Np	1.52	125.8	151.0
^{235}U	^{236}Np	1.54	126.9	153.5
^{238}U	^{239}Np	1.57	128.5	156.5

つぎに、分裂片の質量分布と TKE との相関を調べるために、10 MeV の TKE-bin ごとに質量分布を比較した(図2)。

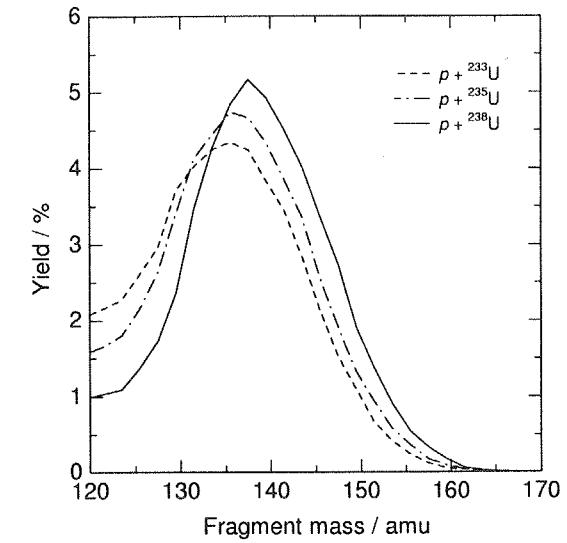
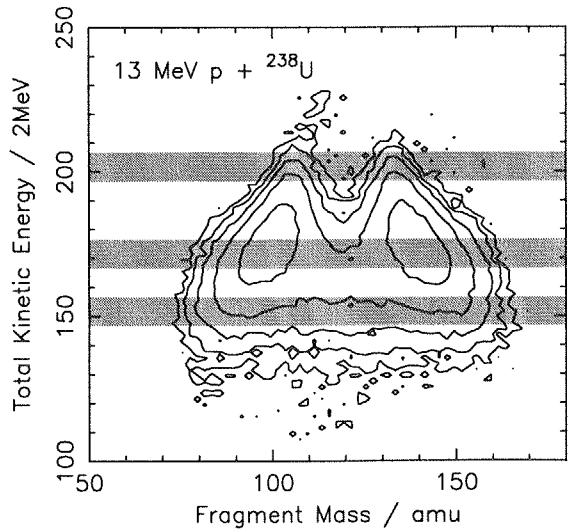


図1: ウラン同位体の陽子誘起核分裂における質量分布

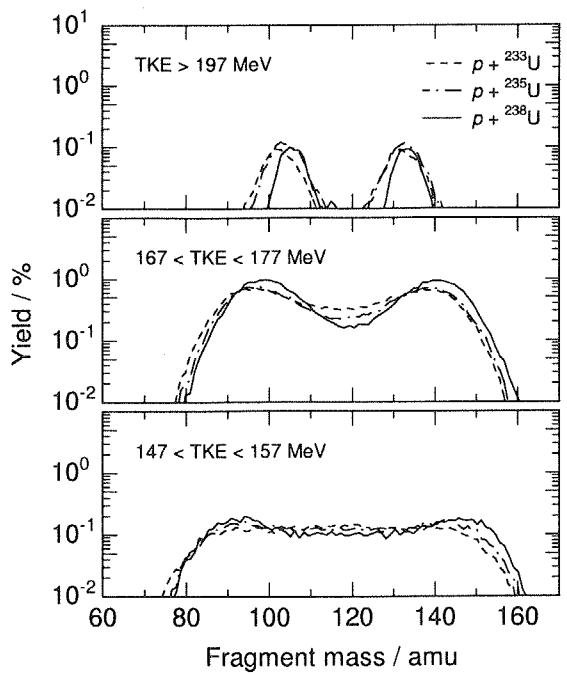


図2: TKE-bin ごとの質量分布

高いTKEでは重い分裂片質量分布の軽い側の壁のシフトがはっきりと見られる。しかし、重い側の壁のシフトは高いTKEでは見られず、より低いTKEで顕著である。また低いTKEでは、どの系でも軽い分裂片質量分布の軽い側の壁が一致している。

図3にウラン同位体の系における核分裂片対の生成Q値を示す。高いTKEでみられた質量分布の系間の相対的な位置とQ値の大小関係が非常によく似ている。一方、低いTKEでは質量分布の位置関係とQ値の大小関係との類似は見られない。これらの現象に関して、分裂片の励起エネルギーも考慮に入れ現在検討を進めているところである。

ウラン同位体を用いた核分裂片の質量分布の比較により、非対称質量分布の壁の位置が分裂片の $Z = 50$ および $N = 50$ の閉殻の影響を受けて決まるという予想を支持する結果が得られた。今後、プルトニウム同位体の系での比較や質量分布と分裂片の運動エネルギーとの相関をさらに詳細に検討していく予定である。

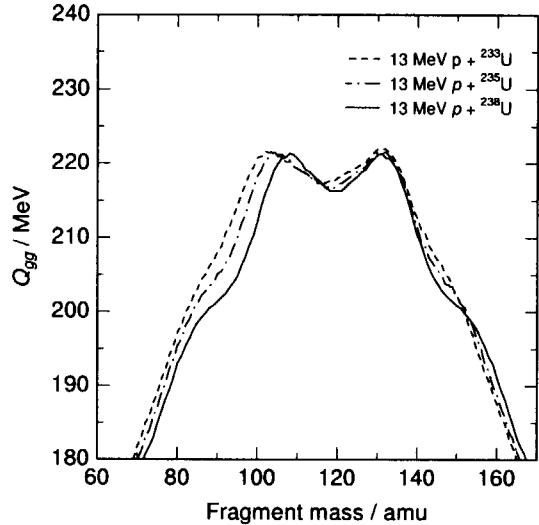


図3: ウラン同位体における核分裂片対の生成Q値

References

- [1] Y. Nagame *et al.*, Phys. Lett. B **387**, 26 (1996).
- [2] K. F. Flynn *et al.*, Phys. Rev. C **5**, 1725 (1972).



JP0150934

JAERI-Conf 2001-014

3.3.3 ^{261}Rf および ^{262}Db の合成

塚田和明¹, 羽場宏光¹, 浅井雅人¹, 西中一朗¹, 市川進一¹, 永目諭一郎¹, 阪間稔^{1,2}, 大浦泰嗣², 末木啓介², 後藤真一³, 金子哲也³, 工藤久昭³, 正司譲⁴, 豊嶋厚史⁴, 横山明彦⁴, 篠原厚⁴, H.W. GAEGGELER⁵, A. TUERLER⁵, M. SCHAEDEL⁶

原研先端基礎¹, 都立大院理², 新潟大理³, 阪大院理⁴, PSI⁵, GSI⁶

Synthesis of ^{261}Rf and ^{262}Db

K. TSUKADA¹, H. HABA¹, M. ASAI¹, I. NISHINAKA¹, S. ICHIKAWA¹, Y. NAGAME¹, M. SAKAMA^{1,2}, Y. OURAI², K. SUEKI², S. GOTO^{1,3}, T. KANEKO³, H. KUDO³, A. TOYOSHIMA⁴, Y. SHOJI⁴, A. YOKOYAMA⁴, A. SHINOHARA⁴, H.W. GAEGGELER⁵, A. TUERLER⁵, M. SCHAEDEL⁶

¹Advanced Sci. Res. Center, Japan Atomic Energy Res. Inst.

²Fac. of Sci., Tokyo Metro. Univ.

³Fac. of Sci., Niigata. Univ.

⁴Fac. of Sci., Osaka. Univ.

⁵Paul Scherrer Institute (PSI)

⁶Gesellschaft fuer Schwerionenforschung (GSI)

【はじめに】

超重元素と呼ばれる重い原子系では、電子軌道に対する相対論的效果により化学的性質が周期性からずれると理論的に予想されている[1]。超重元素の化学挙動研究は実現していないが、超アクチノイド元素を対象にして国際的な協力研究が進んでいる。いくつかの報告が周期性からのずれを指摘しているが十分な議論が進んでいるとは言い難い[2]。

本研究グループでは原研タンデム加速器を利用して超アクチノイド元素を合成し化学挙動研究を行う準備を進めている。現在、主に 104 番元素ラザホージウム (Rf) を対象としたイオン交換挙動に関する基礎実験および実験装置の開発・改良を行っている[3]。このような実験に先立ち、化学挙動研究の対象核種である ^{261}Rf (半減期 78s) および 105 番元素ドブニウム (Db) の同位体 ^{262}Db (半減期 34s) の合成を試みると共にその最適条件を求めた。

【 ^{248}Cm ターゲット中の Pb の除去】

対象とする ^{261}Rf および ^{262}Db は、 ^{248}Cm のようなアクチノイドターゲットと ^{18}O あるいは ^{19}F ビームによる「熱い」核融合反応で合成される。この際、 ^{248}Cm ターゲットの不純物として混入する鉛同位体の transfer 反応で生成する Po 同位体が大量に生成し、Po 同位体の放出する α 線が対象核種のエネルギー範囲にバックグラウンドとして影響を与える。この影響を極力避けるために ^{248}Cm ターゲット中の Pb を除く必要がある。本研究では Pb 除去のために 2 段階のイオン交換分離を行った後に、厚さ約 13 μm の Be 箔に電着しターゲットとして使用した。また、ターゲットチェンバーの構造および構造材も Pb の影響を避けるよう工夫した。この結果、Po の影響は通常の化学分離操作を行った場合の 1/100 以下にすることができた。

【 ^{261}Rf の合成】

ラザホージウム同位体の中で最も半減期が長く化学挙動実験に利用可能な ^{261}Rf を対象に、その合成条件を検討した。これまでにいくつかの報告があり、その生成断面積は 5nb[4] とされているが、 ^{18}O ビームによる照射の最適エネルギーおよび断面積の絶対値の評価は十分でない。

^{261}Rf は上記の操作を行って製作した厚さ 0.59 mg/cm² の電着 ^{248}Cm (97.3%) ターゲットに、88~98 MeV に加速した ^{18}O ビーム（強度 200 pnA）を照射し合成した。生成物はガスジェット装置によって連続回転キャッチャー装置に搬送され、薄膜上に一定時間捕集した。その後連続する 6 つの測定ポートに順次移動させ、それぞれの測定ポートで放出された α 線を両面に設置した Si 検出器を用いて測定した。

図 1 に照射エネルギー 98MeV での α 線スペクトルを示す。このように ^{261}Rf および娘核種 ^{257}No が放出する一連の α 線の検出に成功した。また、合成の最適条件を調べるために入射エネルギーを変え ^{261}Rf の励起関数測定を行った（図 2(a)）。本生成断面積は文献値[4] の約 2 倍であり、ピークでの照射エネルギーは 94MeV 程度であるが、励起関数の形状と ^{18}O ビームの有効なエネルギー範囲から、照射チェンバーの形状を工夫することにより 2 枚の ^{248}Cm ターゲットの利用が可能で、 ^{261}Rf の生成量の倍増が期待できる。

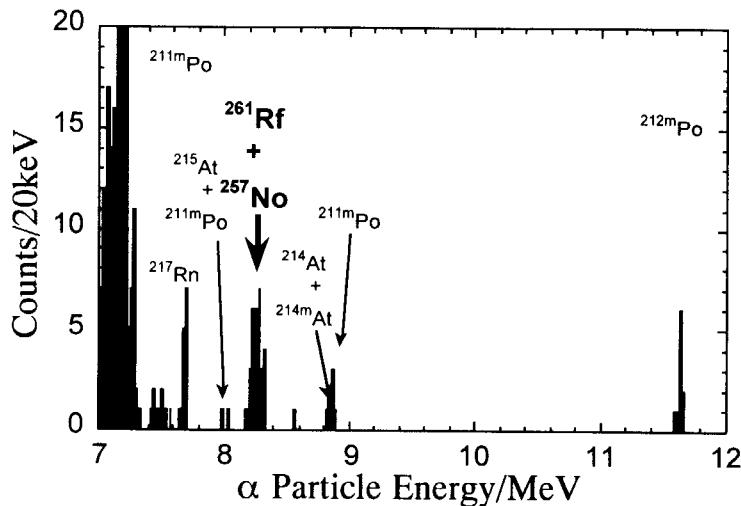


図 1 $^{248}\text{Cm}+^{18}\text{O}$ ($E_{\text{lab}}=98$ MeV) 反応で生成しガスジェット搬送装置で運ばれてきた生成物の α 線のエネルギースペクトル。

【 ^{262}Db の合成】

^{262}Db の合成には、これまで $^{249}\text{Bk}(^{18}\text{O}, 5\text{n})$ 反応が利用され、その断面積は 6 ± 3 nb と報告されている[5]。しかし、 ^{249}Bk は半減期が 320 日と短く容易には利用できない。このことが Db に関する化学挙動研究があまり行われない一因となっている。一方、 ^{248}Cm をターゲットとした ^{262}Db の合成は生成断面積が 0.26 nb であるという報告がある[5]。しかし、間接的測定ではあるが同断面積が 2 nb であるという報告もあり[7]、この反応系が十分検証されているとは言えない。もし同反応系が利用可能であれば、Db に関する化学的研究に新たな展開が期待できる。そこで $^{248}\text{Cm}(^{19}\text{F}, 5\text{n})$ 反応の断面積測定およびその最適条件の検討を行った。

上記 ^{261}Rf の合成実験と同様に、入射エネルギー 97~106 MeV の ^{19}F をビーム強度 300 pnA で ^{248}Cm ターゲットに照射し、 $^{262}\text{Db}-^{258}\text{Lr}$ の α 壊変連鎖を観測した。その結果、図 2(b) のように入射エネルギー 101~106 MeV において生成断面積が約 1.5 nb であった。また、

入射エネルギー 106 MeV で見られた $^{213,211m}\text{Po}$ などからの妨害 α 線は 101 MeV ではほとんど検出されなかった。これらの傾向から Db の化学挙動実験に上記反応が有効に利用できることがわかると同時に、 ^{19}F の入射エネルギー 101 MeV で行うことがバックグラウンドとの関係から望ましい。

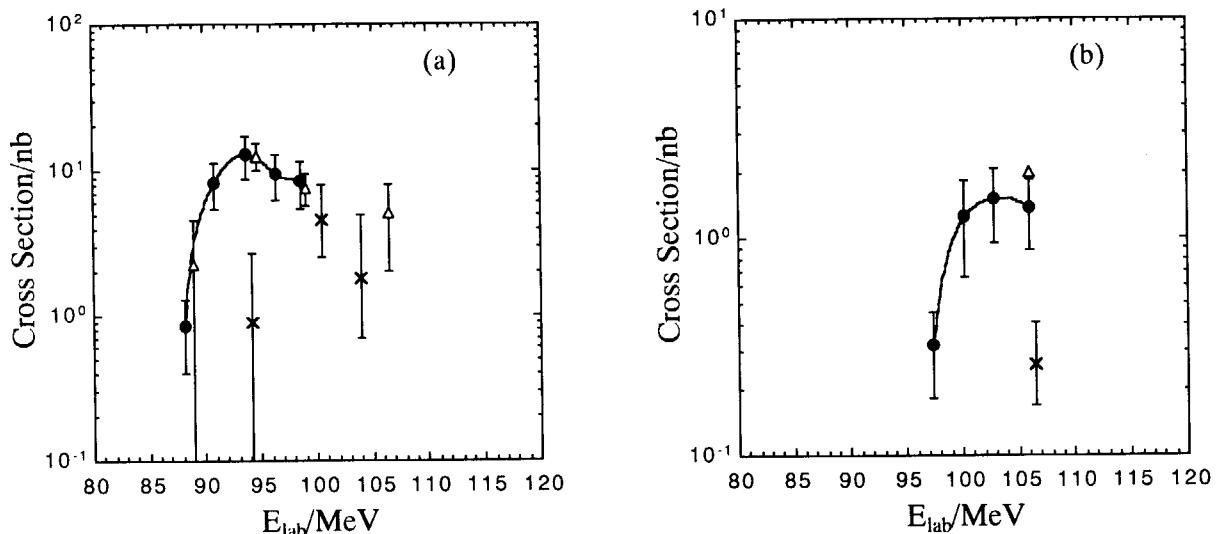


図 2 (a) ^{248}Cm ($^{18}\text{O}, 5\text{n}$) 反応で生成する ^{261}Rf の励起関数 (●は本実験結果、×は PSI による実験点[4]、△の LBL によるデータ[5]は相対値なので本実験結果に合わせた)。(b) ^{248}Cm ($^{19}\text{F}, 5\text{n}$) 反応で生成する ^{262}Db の励起関数 (●は本実験結果、×は PSI による実験点[5]、△は Orsay[7]による実験点)。

【まとめ】

上記のように化学挙動実験に利用可能な 104 および 105 番元素を原研タンデム加速器で合成可能であることがわかり、超アクチノイド元素の化学的性質に関する研究を国内で行なうことが可能となった。今後、Rf を中心に実験を進めていくと共に、Db の化学挙動実験の基礎研究を進めていきたい。

最後に、タンデム加速器の運転および大強度のビームの発生を可能にしたタンデム加速器関係者の努力に感謝すると共に、原子番号 106 番以上の元素の化学的性質に関する研究を進めるために、新 ECR イオン源の導入などによる大強度の $^{22}\text{Ne}^{10+}$ あるいは $^{26}\text{Mg}^{12+}$, $^{27}\text{Al}^{13+}$, $^{30}\text{Si}^{14+}$ ビーム等の開発に期待したい。

【References】

- [1] B. Fricke and W. Greiner, Phys. Lett. **B30**, 317 (1969).
- [2] 例えば K.R. Czerwinski et al., Radiochim. Acta **64**, 29 (1994).
- [3] H. Haba et al., Extended Abstracts of 5th Inter. Conf. On Nucl. Radiochem., Pontresina, Switzerland, September 3-8, 2000, pp. 195.
- [4] A. Tuerler, Proc. Exp. Nucl. Phys. in Eur. '99, CP495, AIP press, New York, 1999, pp. 149.
- [5] R. Dressler et al., Phys. Rev. **C59**, 3433 (1999).
- [6] R. Silva et al., Nucl. Phys. **A216**, 97 (1973).
- [7] C.L.-Naour et al., Extended Abstracts of the 1st Int. Conf. on the Chem. and Phys. of the Transactinide Elements, Seeheim, Germany, September 26-30, 1999.



JP0150935

JAERI-Conf 2001-014

3.3.4 軽アクチノイドの核分裂

西中一朗, 永目論一郎, 後藤真一
原研・超アクチノイド元素核化学研究グループ

はじめに

核分裂はアクチノイド核種の主要な崩壊特性であり, 発見以来60年以上の間, 実験および理論の面からさまざまな研究が成されている。しかし原子核が大きく2つに分裂する複雑な変形過程であるため, いまだ充分に理解できていない。特に質量分布の形状については, 半経験的な理論などが提唱されているに過ぎない。¹⁾

今回, 本講演者らが参加する実験グループの実験データ, 及び文献値から, 軽アクチノイドの非対称核分裂における質量分布幅を分裂核質量数および励起エネルギーについて系統的に調べた。球形殻効果をもたらす陽子数50, 中性子数50の魔法数を持つ分裂片と質量分布幅の相間に興味深い励起エネルギー変化を見出したので, 本研究会にて報告する。

質量分布幅の系統性

最近の質量分布の同位体効果の研究結果から分布幅がN=50, Z=50の核子数をもつ分裂片と強く関連していることがわかった²⁾。そこで, 非対称分裂について重いあるいは軽い分裂片の1/2幅および1/10幅をもとめ(図1), N=50, Z=50の核子数を持つ分裂片との関連を系統的に調べた。重い分裂片の質量分布の大きい質量数側がN=50の分裂片の対の分裂片に相当し, 小さい側がZ=50に相当する。

そこで, 式, $dA = (A_f - A(N=50)) - A(Z=50)$ からもとめたパラメーター, dA をもとに分布幅の相関を調べた。(図2) dA はUCD仮説, つまり分裂核の中性子/陽子の比を分裂片に適応して求めている。

ここで用いたデータの分裂核は中性子/陽子の比がほぼ一定値となるので, dA 値は分裂核質量数が大きくなるのに従って大きくなる。低エネルギー核分裂の幅(■: 1/2幅, □: 1/10幅)は, dA とほとんど関係なくほぼ一定値を示す。一方, 15MeVの陽子誘起核分裂の分布幅(●, ○)は dA の増加とともに増加し, 1/10幅については dA 値とほぼ比例関係(図中の直線)にあることがわかる。

このことから, 核分裂の質量分布幅に対する分裂片のN=50, Z=50の核構造の影響が, 低エネルギーよりも中励起エネルギー(20MeV)で顕著に現れていることが分かる。原子核の殻構造は励起エネルギーが大きくなるに従って減衰すると言う解釈が一般に受け入れられている。ところが本研究で得たこの系統性は, この解釈では単純に理解できない。

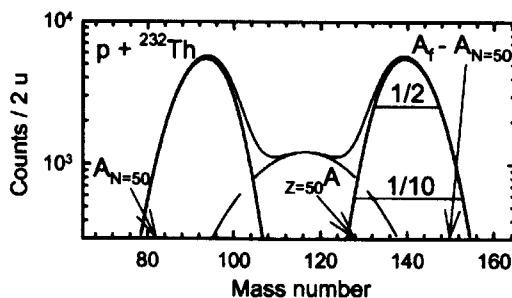


図1 質量分布と分布幅, dA の関係

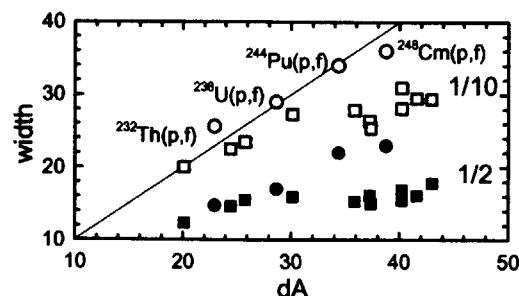


図2 dA と分布幅の関係

分裂直前の原子核の猫像についての考察

非対称核分裂における質量分布幅を再現するモデルはほとんどない。したがって、上記の現象を何らかのモデル計算によって定量的に考察することは難しい。そこで、質量分布の幅の系統性とその励起エネルギー変化を記述できるような切断点直前の原子核の猫像を次のように考察した。

図3に示すように2つのヘッドとそれをつなぐネックから形成する切断点直前の原子核を考える。このとき、ネック中央でちぎれる確立が最も大きくなりので、そのときの千切れ方が質量分布のピークを決めることになる。また、ネックの端になるほど小さな確立となるので、ネックの核子数が分布幅を与えることになる。

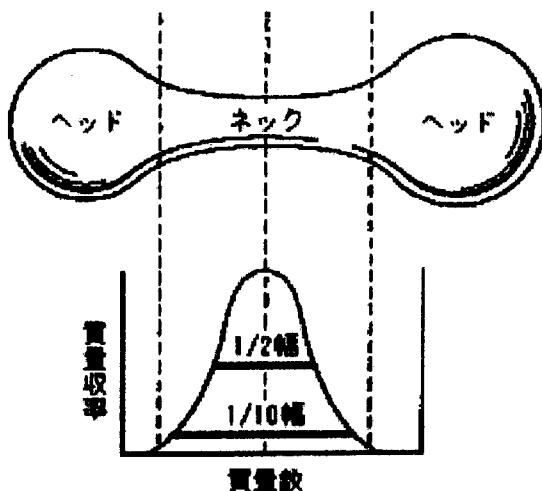


図3 分裂直前の原子核猫像と分布幅

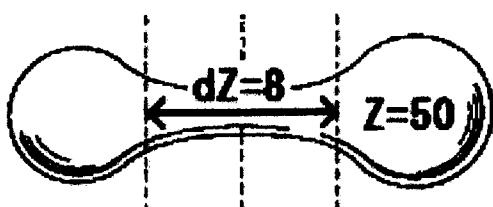


図4 低エネルギーでの切断点直前の猫像

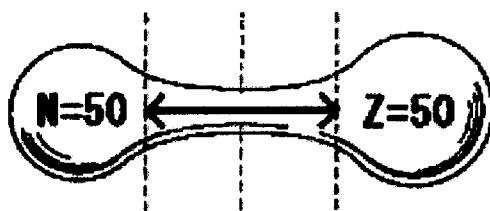


図5 中励起エネルギーの切断点直前の猫像

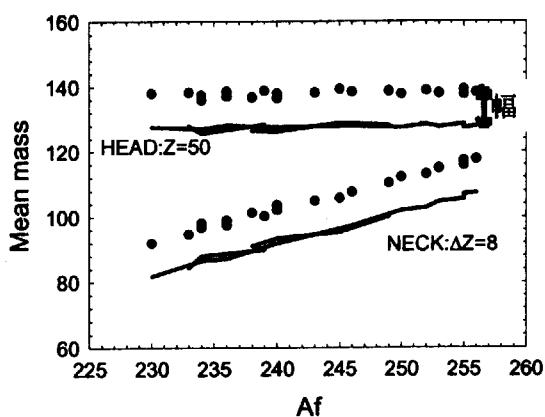


図6 低エネルギーでのピーク位置と分布幅の系統性

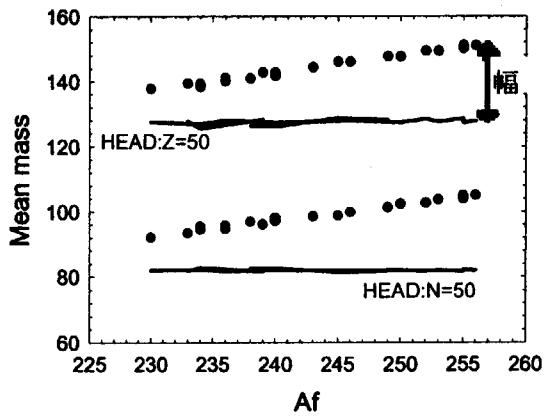


図7 中励起エネルギーでのピーク位置と分布幅の系統性

図4, 5が、低エネルギーおよび中励起エネルギーでの原子核の猫像である。低エネルギーでは、 $Z=50$ をもつ重いヘッドと $Z=8$ をもつネックで表すことができ、一方、中励起エネルギーでは、 $Z=50$ をもつ重いヘッドと $N=50$ の軽いヘッドによってよく表すことができる。ここで導き出した分布位置および分布幅の系統性を、図6, 7に示す。実験値の傾向をよく表しているのがわかる。低エネルギーでは重いピーク位置は一定値（～質量数139）を示し、分布幅も一定値を示す。一方、中励起エネルギーでは、分裂核が大きくなるにつれて分布幅が増加する。図8にdAと分布幅の相関図に計算値を示した。

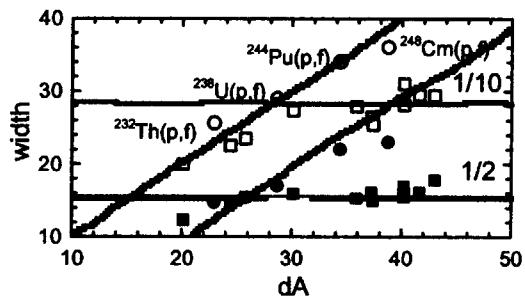


図8 dAと分布幅の相関

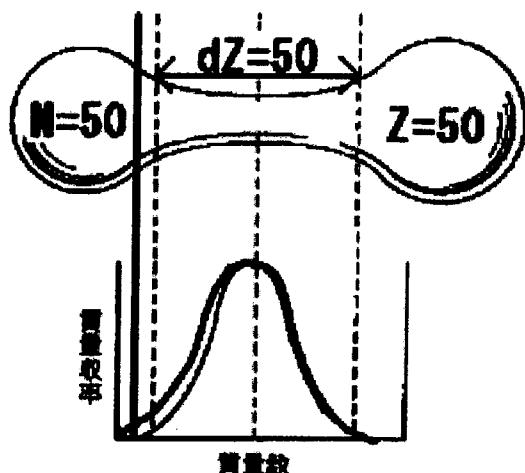


図9 切断点形状の励起エネルギー変化

まとめ

軽アクチノイドの非対称核分裂における質量分布幅を分裂核質量数および励起エネルギーについて系統に調べることによって、切断点形状が励起エネルギーとともに図9のように変化をしていることをはじめて見出すことができた。ネックの形成および分裂障壁から切断点に至る動的変形過程においてZ=50, N=50などの分裂片核構造がどのような役割を果たし、最終的な質量分布を決めているのか興味深い。この要因についての解釈はいまだない。今後もさらに分布幅に関する系統的研究を展開し、核分裂機構の解明を目指す。

Reference

- 1) Brosa *et al.*, Phys. Rep. 192, 167 (1990).
- 2) 後藤ら、本研究会



JP0150936

JAERI-Conf 2001-014

3.3.5 原研におけるRfの溶液化学

AQUEOUS CHEMISTRY OF Rf IN JAERI

羽場宏光, 塚田和明, 浅井雅人, 西中一朗, 平田 勝, 矢板 肇, 市川進一, 永目諭一郎

日本原子力研究所先端基礎研究センター超アクチノイド元素核化学研究グループ

H. HABA, K. TSUKADA, M. ASAI, I. NISHINAKA, M. HIRATA, T. YAITA, S. ICHIKAWA,
Y. NAGAME

Research Group for Nuclear Chemistry of Heavy Elements,

Japan Atomic Energy Research Institute, Advanced Science Research Center

後藤真一, 金子哲也, 工藤久昭

新潟大学理学部化学科

S. GOTO, T. KANEKO, H. KUDO

Department of Chemistry, Faculty of Science, Niigata University

豊嶋厚史, 正司 讓, 横山昭彦, 篠原 厚

大阪大学大学院理学研究科化学専攻

A. TOYOSHIMA, Y. SHOJI, A. YOKOYAMA, A. SHINOHARA

Department of Chemistry, Graduate School of Science, Osaka University

阪間 稔, 大浦泰嗣, 末木啓介, 中原弘道

東京都立大学大学院理学研究科化学専攻

M. SAKAMA, Y. OURA, K. SUEKI, H. NAKAHARA

Department of Chemistry, Graduate School of Science, Tokyo Metropolitan University

M. SCHÄDEL

Gesellschaft für Schwerionenforschung

はじめに

超アクチノイド元素のような重い原子では、大きな核電荷によって原子核近傍のsやp軌道電子が相対論速度まで加速され、結合エネルギーが増大し軌道半径の収縮が起こる。一方、外殻のdやf軌道はこの遮蔽効果によって不安定化し、化学的性質が軽い同族元素から予想される周期性に合わない可能性が指摘されている。超アクチノイド元素の化学的性質に関する実験的研究は、これまで Lawrence Berkeley National Laboratory(LBNL), Joint Institute for Nuclear Research(JINR), Gesellschaft für Schwerionenforschung(GSI)並びに Paul Scherrer Institut(PSI)などの限られた研究所を中心に国際協力研究の下で進められてきた。この中で我々の研究グループは、GSIとの国際協力に基づき、GSIのUNILAC並びにPSIのPhilips Cyclotronを用いて硝酸-フッ酸系におけるRfとSgのイオン交換実験や塩酸-TBP系におけるRfの溶媒抽出実験に参加してきた[1-5]。平行して、日本でも国内の核化学者を集め、原研タンデム加速器を用いて²⁶¹Rfを合成し、その溶液系における化学実験を行う準備を進めてきた[6]。

Rfの溶液化学の研究に関しては、3族のアクチノイド元素との比較により4族元素としての性質がほぼ確認され、近年は、相対論効果の検証を目的として同族元素間でイオン交換や溶媒抽出挙動の微妙な違いを調べる実験が行われている。最近 Schumann *et al.* [7]は、Hf, Th並びにRfの陽イオン交換挙動を塩酸(0.05-0.1M)-フッ酸(≤0.01M)系で調べ、Rfが軽い同族元素 Hfと異なり Thと似た化学挙動を示すことを報告した。さらに、Strub *et al.* [4]は、Zr, Hf, Th並びにRfの陰、陽イオン

交換挙動を硝酸(0.1M)−フッ酸(5×10^{-4} –1M)系で調べ、やはりRfがThと似た挙動を示すという興味深い結果を得ている。そこで我々のグループでは、比較的の化学種を特定し易くまた相対論分子軌道計算等の理論的アプローチを行い易い硝酸、塩酸、フッ酸等の単純な溶液系からRfのイオン交換実験を始める予定である。本報告では現時点でのその準備状況について概説する。

1. 迅速化学分離装置の開発

最近、我々の研究グループでは、原研タンデム加速器を用いて $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O}, 5\text{n})$ 反応によって ^{261}Rf の合成に成功した[6]。我々の実験条件(^{18}O ビーム強度: 200pnA, ^{248}Cm 標的厚: 0.59mg/cm², 核反応断面積: 6nb)では、2分間に1個の ^{261}Rf を製造できるが、 ^{261}Rf の半減期78sを考えると1回の化学実験には僅か1個の原子しか取り扱えない。ここでは質量作用の法則は適用できず、クロマトグラフ法を多數回繰り返す実験が必要である。我々はRfのイオン交換挙動を調べることを目的として、GSIが開発したAutomated Rapid Chemistry Apparatus (ARCA)[8]に改良を加え、迅速で繰り返し実験が可能な液体クロマトグラフの装置ARCA-JAERIを製作した。装置の概略図をFig. 1下に示す。この装置は20連のダイフロン製イオン交換マイクロカラム(1.6mm φ × 8mm)を2カートリッジ装備し、Rfの溶液化からイオン交換分離までの一連の作業をコンピュータ制御で迅速に行える。

^{261}Rf を模擬したARCAのオンラインテストは、タンデム加速器で $^{89}\text{Y}(\text{p},\text{n})$ 並びに $^{152}\text{Gd}(^{18}\text{O}, 3\text{n})$ 反応で生成されるRf同族元素の同位体 ^{89m}Zr (4.18m)並びに ^{167}Hf (2.05m)を用いて行った(Fig. 1上)。イオン交換の溶液系はGSI並びにMainz大との協力研究でこれまでデータを蓄積してきた硝酸(0.1M)−フッ酸(5×10^{-4} –0.1M)系を選んだ。Fig. 1に示したように核反応の結果反跳した生成核はHeガス中(~1atm)で止められ、KClエアロゾルとともにテフロンキャビラリー管(2mm φ, 約25m)を通じて数秒のうちに照射室から化学実験室へ輸送された。ガスジェット条件は、KCl昇華温度が640°C、He流量が2.0l/minであった。ガスジェットで輸送された ^{89m}Zr (^{167}Hf)を1分間スライダーに捕集後カラム上部にスライダー捕集部を移動させ、第1溶離液280μlで ^{89m}Zr (^{167}Hf)を溶液化しながらイオン交換カラムにチャージした。溶離液は送液ポンプで制御し、流量1ml/minでHPLC分離を行った。イオン交換樹脂には、三菱化学社製MCI GEL CA08Y並びにCK08Yをそれぞれ陰、陽イオン交換樹脂として用いた。樹脂の粒径はともに約20μmで、交換容量はそれぞれ1.9, 1.5meq/mlであった。第1溶離液を流した後、樹脂に吸着した ^{89m}Zr (^{167}Hf)を溶離するため、陰イオン交換樹脂の場合は5M HNO₃–0.01M HFを、陽イオン交換樹脂の場合は0.1M HNO₃–0.1M HFを300μlカラムに通した(第2溶離液)。第1溶離液280μl、第2溶離液300μlをそれぞれポリ容器に分取し、高純度Ge半導体検出器を用いてγ線スペクトロメトリーを行った。第1、第2溶離液に分配した ^{89m}Zr (^{167}Hf)の放射能をそれぞれ水相(樹脂から溶離)、固相(樹脂に吸着)とし、以下の式[4]に基づいて分配係数 K_d [ml/g]値を求めた。

$$K_d = \frac{A_s V_l}{A_l m_s}$$

ここで A_l , A_s はそれぞれ第1、第2溶離液の放射能(Bq), V_l は装置のデッドボリューム60μlを補正した第1溶離液量(ml), m_s は樹脂の乾燥重量(g)である。また、ARCA-JAERIによる ^{89m}Zr (^{167}Hf)の溶液化効率は、ガスジェットで輸送されたKClエアロゾルをグラスフィルター(ADVANTEC GB-100R, 孔径0.6μm)で捕集し、これを分母として算出した。溶液化効率は実験中安定して80%を超えた。

0.1M HNO₃– 5×10^{-4} –0.1M HF系での陰、陽イオン交換におけるZrとHfの K_d 値変化をそれぞれ●、■でフッ酸濃度を関数としてFig. 2に示した。Strub *et al.* [4]によるZr, Hf並びにThのバッチ法の結果をそれぞれ実線、点線、破線で、さらに、HfとRfのオンラインの結果をそれぞれ□、△で比較した。使用したイオン交換樹脂の性能が異なるため本研究で得た K_d 値の絶対値は文献値[4]と異なるが、定性的にはZr, Hfともに文献[4]の K_d 値変化を良く再現している。

2. Rfの同族元素のイオン交換挙動

4族元素Rfの電子状態に関する情報を引き出し相対論効果を検証していくには、同族元素であるZr並びにHfあるいは擬4族元素であるThの化学的性質と比較する必要がある。我々は ^{88}Zr (83.4d),

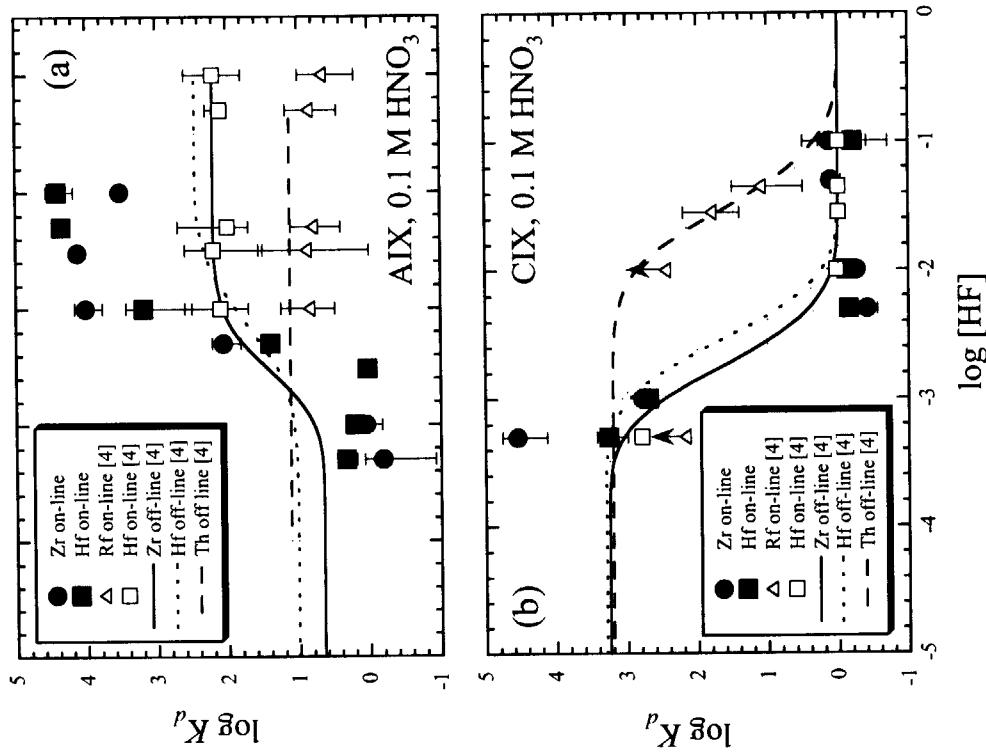
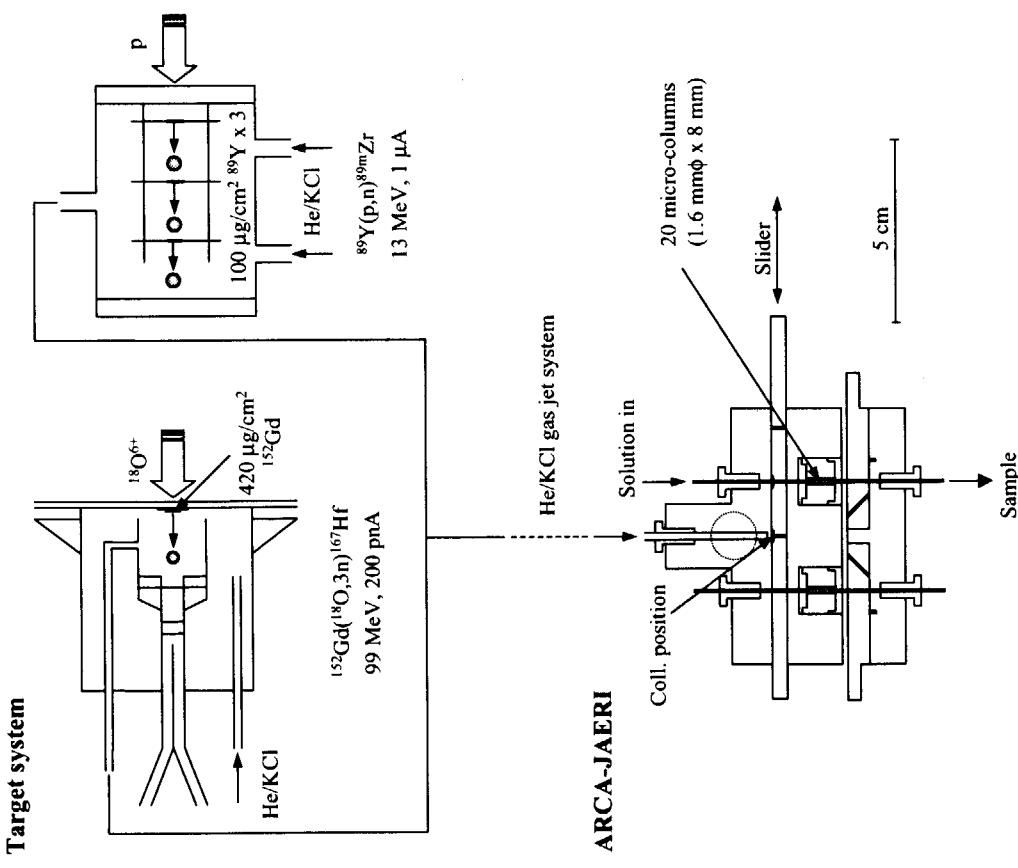


Fig. 1. Schematic representation of ARCA-JAERI in combination with the target system.

Fig. 2. Variation of the distribution coefficient (K_d) for Zr, Hf, Th, and Rf on (a) CA08Y and (b) CK08Y in 0.1 M HNO_3 as a function of the HF concentration.

¹⁷⁵Hf(70.0d)並びに²³⁴Th(24.1d)の放射性トレーサを製造し, Rf の溶液化学実験に向けて様々な基礎データを蓄積している。⁸⁸Zr 並びに¹⁷⁵Hf に関しては、市販の高純度 Y(99.99%, 440mg/cm²)並びに Lu(99.9%, 270mg/cm²)金属板に原研タンデム加速器から得られるプロトンビーム(~1 μA)を数時間照射し、⁸⁹Y(p,2n)⁸⁸Zr 並びに¹⁷⁵Lu(p,n)¹⁷⁵Hf 反応を用いてそれぞれ製造した。プロトンの各ターゲットへの入射エネルギーは、それぞれの核反応の励起関数を踏まえて Al 板で調節し、Y ターゲットは 25 MeV, Lu ターゲットは 15 MeV にした。照射後、conc. HCl で Y ターゲットを溶解し、陰イオン交換カラムに通して Y だけを流し出した。conc. HCl でカラムから十分 Y を洗い出した後、4M HCl で⁸⁸Zr を溶離した。Lu ターゲットから¹⁷⁵Hf の化学分離も⁸⁸Zr と同じ分離過程で行った。一方、²³⁴Th は天然放射性同位元素²³⁸U と放射平衡にあり、市販の硝酸ウラニル 6 水和物から化学分離した。まず硝酸ウラニル 6 水和物を 9M HCl に溶解した後、陰イオン交換カラムに通し²³⁴Th を溶離した。溶離液を蒸発乾固後、8M HNO₃ に溶解し、別の陰イオン交換カラムに通して²³⁴Th を吸着させた。カラムを良く 8M HNO₃ で洗浄した後、9M HCl で²³⁴Th を溶離した。

これらのトレーサを用いて、ARCA-JAERI マイクロカラム充填用陰イオン並びに陽イオン交換樹脂(三菱化学社製 MCI GEL CA08Y, CK08Y)の硝酸(1-14M)並びに塩酸(1-11M)系における K_d 値をバッチ法により系統的に測定した。まず、ポリプロピレン製遠心管に、乾燥秤量した陽(陰)イオン交換樹脂と既知濃度の酸溶液 2.95ml とトレーサ溶液 50 μl を加えて全量を 3ml とした。これを振とう、遠心分離した後、上清 1ml を分取して測定試料とした。また、トレーサ溶液 50 μl に適当な酸溶液 0.95ml を加えて 1ml とし標準試料とした。これらの試料を高純度 Ge 半導体検出器を用いて γ 線スペクトロメリーを行った。

硝酸系における Zr, Hf, Th の(a)陰、(b)陽イオン交換分配係数(K_d 値)を硝酸濃度を関数として Fig. 3 に示す。Fig. 3a で、Zr, Hf の K_d 値は 1-14M の範囲でほとんどかわらず一定であるが、Th の K_d 値は硝酸濃度とともに増加していく 7M 以上でほぼ一定となる。特に 8M HNO₃ 系では Th の K_d 値(540ml/g)は Zr(8.4ml/g) 並びに Hf(14ml/g) の K_d 値に比べて 1 衡以上大きい。これは、8M HNO₃ 系において Th が $[M(NO_3)_x]^{4-x}$ で表される錯体を形成し中性若しくは陰イオンとなるのに対し、イオン半径の小さな Zr 並びに Hf は $[MO(NO_3)_x]^{(2-x)+}$ で表される陽イオンとなっているためと考えられる。また、我々のグループでは相対論密度汎関数法による Zr, Hf, Rf の 4 価硝酸塩化合物 $M(NO_3)_4(H_2O)_4$ の電子状態計算も行っており、Rf が Zr や Hf よりも $M(NO_3)_4$ の錯体構造をとりやすいという興味深い結果も得ている[9]。塩酸系における Zr, Hf, Th の陰、陽イオン交換挙動をそれぞれ Figs. 4a, 4b に示す。陰イオン交換挙動に関して、Zr, Hf の K_d 値は低塩酸濃度では一定で変化しないが、7M から急激に増加する。一方 Th は緩やかに減少する。特に 9.5M では、Th, Hf, Zr の順に K_d 値は 1 衡ずつ大きくなる(0.56, 50, 640ml/g)。今後、8M HNO₃, 9.5M HCl の両系で Rf の K_d 値を測定し同族元素と比較することから、Rf の化学種やイオン半径に関する重要な情報を引き出せると期待している。

参考文献

- [1] M. Schädel et al., Radiochim. Acta 77, 149 (1997).
- [2] M. Schädel et al., Radiochim. Acta 83, 163 (1998).
- [3] E. Strub et al., Extended Abstract of the 1st International Conference on the Chemistry and Physics of the Transactinide Elements, 1999, O-11.
- [4] E. Strub et al., Radiochim. Acta 88, 265 (2000).
- [5] W. Brückle et al., Extended Abstract of the 1st International Conference on the Chemistry and Physics of the Transactinide Elements, Seeheim, Germany, 1999, P-W-23.
- [6] H. Haba et al., Extended Abstracts of 5th International Conference on Nuclear and Radiochemistry, Pontresina, Switzerland, Vol. 1, 195 (2000).
- [7] D. Schumann et al., J. Alloys Comp. 271-273, 307 (1998).
- [8] M. Schädel et al., Radiochim. Acta 48, 171 (1989).
- [9] M. Hirata et al., Extended Abstract of the 1st International Conference on the Chemistry and Physics of the Transactinide Elements, Seeheim, Germany, 1999, O-24.

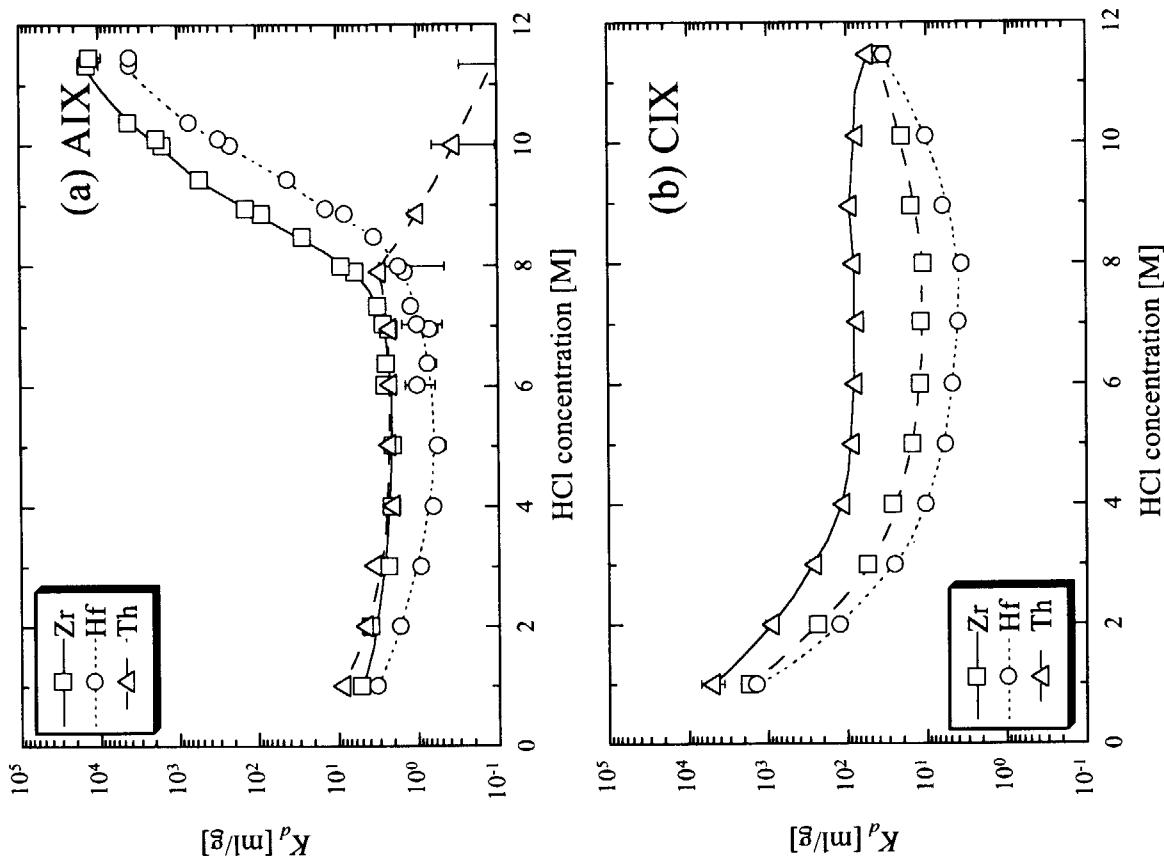


Fig. 3. K_d values for Zr, Hf, and Th on (a) CA08Y and (b) CK08Y as a function of HNO_3 concentration.

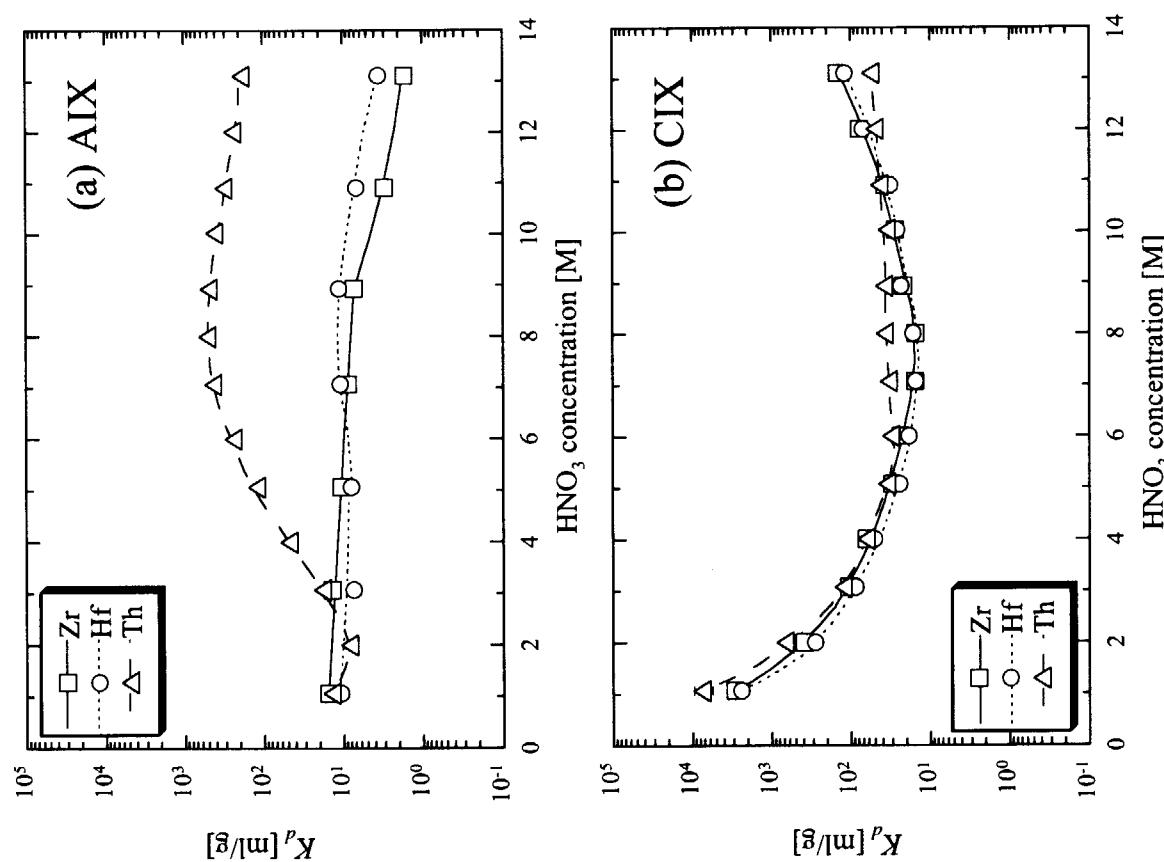


Fig. 4. K_d values for Zr, Hf, and Th on (a) CA08Y and (b) CK08Y as a function of HCl concentration.



JP0150937

JAERI-Conf 2001-014

3.3.6 中性子不足アメリシウム核の α 壊変

α decay of the neutron-deficient americium isotopes

阪間 稔^{1,2} 塚田和明¹ 浅井雅人¹ 市川進一¹ 大浦泰嗣² 羽場宏光¹ 西中一朗¹ 永目諭一郎¹
後藤真一^{1,3} 柴田理尋⁴ 小島康明⁵ 河出清⁴ 海老原充² 中原弘道²

¹ 原研先端基礎セ ²都立大院理 ³新潟大院自然 ⁴名大院工 ⁵広島大院工
M. SAKAMA^{1,2}, K. TSUKADA¹, M. ASAII¹, S. ICHIKAWA¹, Y. OURAI², H. HABA¹,
I. NISHINAKA¹, Y. NAGAME¹, S. GOTO^{1,3}, M. SHIBATA⁴,
Y. KOJIMA⁵, K. KAWADE⁴, M. EBIHARA² and H. NAKAHARA²

¹ Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Research Institute

² Department of Chemistry, Tokyo Metropolitan University

³ Department of Chemistry, Niigata University

⁴ Department of Energy Engineering and Science, Nagoya University

⁵ Applied Nuclear Physics, Faculty of Engineering, Hiroshima University

1 はじめに

これまで我々のグループでは、ガスジェット-オンライン同位体分離器[1]を用いて、中性子不足アメリシウム核種²³⁵, ²³⁶Am の電子捕獲 (Electron Capture : EC) 壊変の観測および半減期測定実験など行ってきた[2, 3]。今回、新たに開発した微弱 α 線検出システムによる新核種²³³Am の同定と²³⁴Am, ²³⁵Am, ²³⁶Am の α 線測定実験の結果に関する報告する。

中性子不足アクチノイド核種領域の主たる壊変形式は電子捕獲壊変であり、 α 壊変の分岐比は非常に小さい。このためこれまで α 壊変特性に関する核情報が乏しかった。その α 壊変特性を調べることは、安定領域から離れた原子核の安定性や準位構造を解明する上で重要な情報を与えてくれる。

2 実験

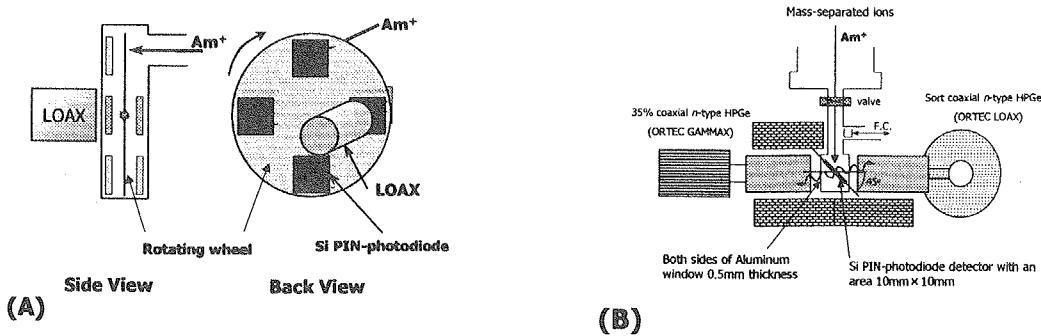
原研タンデム加速器により加速された⁶Liビームをマルチターゲットチャンバー内のそれぞれ 21 枚の²³³U (1 枚あたりの平均ターゲット厚: 約 100 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$) 及び²³⁵U ターゲット (同上 約 280 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$) に照射し、重イオン核融合反応によって中性子不足アメリシウム核^{233,234,235,236}Am を合成した。それぞれ反応系と入射ビームエネルギーを表 1 に示す。

生成核種	反応系	ビームエネルギー (MeV)	生成断面積 (実験値) (μb)
²³³ Am	²³³ U(⁶ Li, 6n)	63.0	0.03-0.9
²³⁴ Am	²³³ U(⁶ Li, 5n)	51.0	>10
²³⁵ Am	²³³ U(⁶ Li, 4n)	45.5	32
	²³⁵ U(⁶ Li, 6n)	60.0	10
²³⁶ Am	²³⁵ U(⁶ Li, 5n)	51.0	70-110

表 1. 実験条件及び実験で得られたアメリシウム核の生成断面積

合成された核反応生成物は、ヨウ化鉛 (PbI_2) をエアロゾルクラスターとするヘリウムガスジェット搬送装置により迅速に ISOL イオン源に導き、イオン化、質量分離して目的とするアメリシウムの微弱な α 崩壊を観測した。ISOL イオン源の劣化を確認するため、実験途中に¹⁴¹Pr(⁶Li, 4n) 反応で生成する^{143m}Sm の搬送分離効率のモニタリングを行った。質量数の較正には、質量数 143 の^{143m}Sm と PbI_2 エアロゾルクラスター起源の質量数 208 の²⁰⁸Pb を用いた。

分岐比の小さい α 壊変の観測及びその α - γ の同時計数測定を行うために、新しく検出システムの開発を行った。図 1 に高効率 α 線検出器及び α - γ 同時計数測定システムの概略図を示す。双方のシステムにおける α 線検出器として、シリコン PIN-photodiode (浜松ホトニクス製 S3204-09, 有効検出面積 $18 \times 18 \text{ mm}^2$) を用いた。また、壊変に伴って放出される特性 X 線及び γ 線を HPGe 検出器 (LOAX, GMX) で測定した。それぞれ壊変で観測した信号は、時間情報を付加するリストモードで磁気ディスクに記録した。

図 1 検出器系の概略図. (A) 高効率 α 線検出器 と (B) α - γ 同時計数測定システム

3 結果

3.1 ^{233}Am

これまで未発見である ^{233}Am を今回の実験により初めて観測することに成功した [4]. 質量数 233 で分離された α 線スペクトルより ^{229}Np ($T_{1/2} = 4.0 \text{ min}$) $\rightarrow ^{225}\text{Pa}$ (1.7 s) $\rightarrow ^{221}\text{Ac}$ (52 ms) $\rightarrow ^{217}\text{Fr}$ ($22 \mu\text{s}$) $\rightarrow ^{213}\text{At}$ (125 ns) の α - α 相互事象の壊変連鎖を観測することができた. この α 壊変連鎖に相互事象する $6780 \pm 17 \text{ keV}$ の α 線ピークを ^{233}Am の α 壊変で放出された α 線であると同定した. その α 線ピークの半減期解析より ^{233}Am の半減期を $3.2 \pm 0.8 \text{ min}$ と決定した. 一方, EC 壊変に伴う Pu KX 線は, 検出器の検出限界以下そのため観測することができなかつた. このことから α 壊変分岐比は, 下限値として 3% であった. この値より生成断面積は, 上限値 $0.9 \mu\text{b}$ (α 壊変分岐比: 3%), 下限値 $0.03 \mu\text{b}$ (100%) と求まった.

3.2 ^{234}Am

今回得られた質量数 234 の α 線スペクトルにおいて, これまで Hall ら [5] が報告した 6.46 MeV の ^{234}Am の α 線ピークを観測することができなかつた. 一方, その EC 壊変に伴う Pu KX 線は, 質量数 234 の X/ γ 線スペクトルで観測することができた. その Pu KX 線の半減期解析から $3.5 \pm 1.3 \text{ min}$ が得られ, Hall らが報告している EC 壊変後の核分裂の観測から得られる $2.32 \pm 0.08 \text{ min}$ とほぼ同程度であることが確認できた. 以上のことから ^{234}Am の α 線エネルギーを 6.46 MeV と仮定すると, α 壊変分岐比は上限値として 0.04% が得られ, 生成断面積は下限値 $10 \mu\text{b}$ と求まった. この α 壊変分岐比の上限値は, Hall らが報告している $0.039 \pm 0.012\%$ と一致していた.

3.3 ^{235}Am

質量数 235 の α 線スペクトルにおいて, $6457 \pm 14 \text{ keV}$ の強い α 線ピークを観測した. 一方, 同質量数の X/ γ 線スペクトルに ^{235}Am の EC 壊変に伴う Pu KX 線を観測した. その α 線ピークの半減期解析の結果, 観測した Pu KX 線の半減期及び, これまで我々が報告してきた半減期と良く一致することが確かめられた. このことから観測した $6457 \pm 14 \text{ keV}$ の α 線ピークを ^{235}Am の α 壊変と同定することができた. さらに ^{235}Am の半減期を $10.3 \pm 0.6 \text{ min}$ と決定した. この値は, Guo ら [6] の報告した値とほぼ一致している. そして, 観測した α 線と Pu KX 線のそれぞれのピーク強度から ^{235}Am の α 壊変分岐比を $0.40 \pm 0.05\%$ と決定した. 次に α 壊変娘核種 ^{231}Np の準位構造決定に関する α - γ 同時計数測定実験を行った. その結果, 230 の全 α 壊変事象に対して α - γ の相互事象を観測することができなかつた. この結果から, ^{231}Np の準位構造における $5/2+[633]$ の基底状態と ^{235}Am の $5/2-[523]$ の基底状態から主 α 遷移する $5/2-[523]$ の励起状態間で, 期待される $E1$ 遷移の γ 線エネルギーが 15 keV 以下であると推定できた.

3.4 ^{236}Am

上記の ^{234}Am と同様, これまで ^{236}Am の α 壊変に関する情報も Hall ら [7] が報告している. 彼らの報告によると ^{236}Am の α 線エネルギーと α 壊変分岐比は, それぞれ 6410 keV と $0.042 \pm 0.006\%$ として値を出している. しかしながら, 今回得られた質量数 236 の α 線スペクトルでは, その α 線エネルギー領域に相当する有意なピークを観測することができなかつた. 報告されている α 線エネルギー領域の稀少のイベント数から α 壊変分岐比を求めると 0.0021% 以下の非常に小さい値になることから, 彼らは, おそらく ^{235}Am の α 壊変のそれと誤って判断したのものと思われる. 一方, 6150 keV 近傍に, 予測される他の既知核種からの α 壊変として同定できないピークを観測した. このピーク

表 2 本研究で得られた中性子不足アメリシウム核の α 壊変特性

核種	半減期 (min)		α 壊変エネルギー (keV)		α 壊変分岐比 (%)	
	今回	文献値 [Ref.]	今回	文献値 [Ref.]	今回	文献値 [Ref.]
^{233}Am	3.2 ± 0.8	-	6780 ± 17	-	> 3	-
^{234}Am	3.5 ± 1.3	$2.32 \pm 0.08[5]$	-	$6460[5]$	< 0.04	$0.039 \pm 0.012[5]$
^{235}Am	10.3 ± 0.6	$15 \pm 5[6]$	6457 ± 14	-	0.40 ± 0.05	-
^{236g}Am	3.6 ± 0.2	$4.4 \pm 0.8[2]$	6150 ± 30	$6410[7]$	< 0.004 ± 0.001	$0.042 \pm 0.006[7]$
^{236m}Am	2.9 ± 0.2					

に対して半減期解析を行ったところ、 ^{236}Am の γ - γ 同時計数測定実験で決定した半減期の値 [8] にほぼ一致していた。そこで、我々はこのピークを ^{236}Am の α 壊変であると同定し、 α 壊変分岐比を $0.004 \pm 0.001\%$ と決定した。

4 考察

本研究で得られてた中性子不足アメリシウム核の α 壊変特性に関するデータとそれらの文献値を表2に示す。新しく得られた奇偶核の ^{233}Am , ^{235}Am の α 壊変について、偶偶核の主 α 遷移でみられる α 壊変エネルギーと α 壊変部分半減期の系統性 [9] を適用した。その系統性の検討には、既知アメリシウム核の ^{237}Am , ^{239}Am , ^{241}Am , ^{243}Am ならびに近傍の偶偶核である 234 – ^{244}Pu と 240 – ^{248}Cm の主 α 遷移のデータ [10] を用いた。図2に、その関係を示す。この図より、 ^{233}Am と ^{235}Am の α 壊変は、他の既知アメリシウム核の主 α 遷移と同様な系統性を示し、かつその遷移が主 α 遷移であることが確認できた。

5 まとめ

原研ガスジェット-オンライン同位体分離器に接続した高効率 α 線検出器ならびに α - γ 同時計数システムの開発により、新核種 ^{233}Am の発見と ^{235}Am の α 壊変の観測に初めて成功した。その結果、観測した α 壊変は、 α 壊変エネルギーと α 壊変部分半減期との関係より主 α 遷移であることがわかった。また、これまで報告されている ^{236}Am と ^{234}Am の α 壊変特性と今回の実験データの検証を行い、 ^{236}Am について正しい値を与えることができた。

参考文献

- [1] S. Ichikawa *et al.*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A **374**, 330 (1996).
- [2] K. Tsukada *et al.*, Phys. Rev. C **57**, 2057 (1998).
- [3] M. Sakama *et al.*, Extended Abstracts of the 1st International Conference on the Chemistry and Physics of the Transactinide Elements, Seeheim, Germany, September 26-30, 1999, P-W-4.
- [4] M. Sakama *et al.*, Eur. Phys. J. A **9**, 303 (2000).
- [5] H. Hall *et al.*, Phys. Rev. C **41**, 618 (1990).
- [6] J. Guo *et al.*, Z. Phys. A **335**, 111 (1996).
- [7] H. Hall *et al.*, Ph.D. thesis, University of California, Report No. LBL-27878 (1989).
- [8] M. Asai *et al.*, to be published.
- [9] J.O. Rasmussen, *Alpha-, Beta-, and Gamma-ray Spectroscopy*, edited by K. Siegbahn (North-Holland, Amsterdam, 1965) p. 701.
- [10] *Table of Isotopes*, edited by R.B. Firestone and V.S. Shirley, 8th ed., (Wiley, New York, 1996).

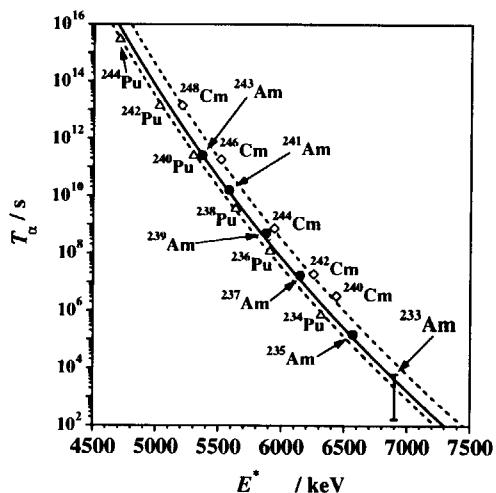


図 2. アメリシウム奇偶核に対する α 壊変エネルギー (E_α^*) と α 壊変部分半減期 (T_α) の関係



JP0150938

JAERI-Conf 2001-014

3.3.7 $^{235,236}\text{Am}$ の EC 崩壊

EC DECAY OF $^{235,236}\text{Am}$

浅井雅人,¹ 阪間 稔,^{1,2} 塚田和明,¹ 市川進一,¹ 羽場宏光,¹ 西中一朗,¹ 永目諭一郎,¹ 後藤真一,^{1,3} 小島康明,⁴ 大浦泰嗣,² 中原弘道,² 柴田理尋,⁵ 河出 清⁵
原研先端基礎セ,¹ 都立大院理,² 新潟大院自然,³ 広島大工,⁴ 名大院工⁵
M. ASAI,¹ M. SAKAMA,^{1,2} K. TSUKADA,¹ S. ICHIKAWA,¹ I. NISHINAKA,¹
Y. NAGAME,¹ S. GOTO,^{1,3} Y. KOJIMA,⁴ Y. OURAI,² H. NAKAHARA,²
M. SHIBATA,⁵ K. KAWADE⁵

¹ Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Research Institute

² Department of Chemistry, Tokyo Metropolitan University

³ Department of Chemistry, Niigata University

⁴ Applied Nuclear Physics, Faculty of Engineering, Hiroshima University

⁵ Department of Energy Engineering and Science, Nagoya University

1. はじめに

重元素領域の短寿命核の核分光実験は主に α 線を観測することで行われてきた。 α 線測定が非常に高感度な検出手法であるため、核反応で合成される大量の核反応生成物の中から目的とする核種を観測・同定することが可能であり、その検出限界は1ナノバーンを下回る。一方EC崩壊核種あるいは β^- 崩壊核種の測定では崩壊に伴う γ 線を観測する必要があり、同時に合成される大量の核反応生成物から目的とする原子核を分離し妨害核種の少ない環境下で測定することが不可欠である。半減期が30分から1時間以上の核種に関しては化学分離をすることで比較的感度良く測定することができるが、半減期が数分以下の核種の観測は難しい。本研究ではオンライン同位体分離装置(ISOL)を用いて核反応で合成される短寿命核を迅速にイオン化・同位体分離することで、EC崩壊核種 $^{235,236}\text{Am}$ の核分光実験を行った。

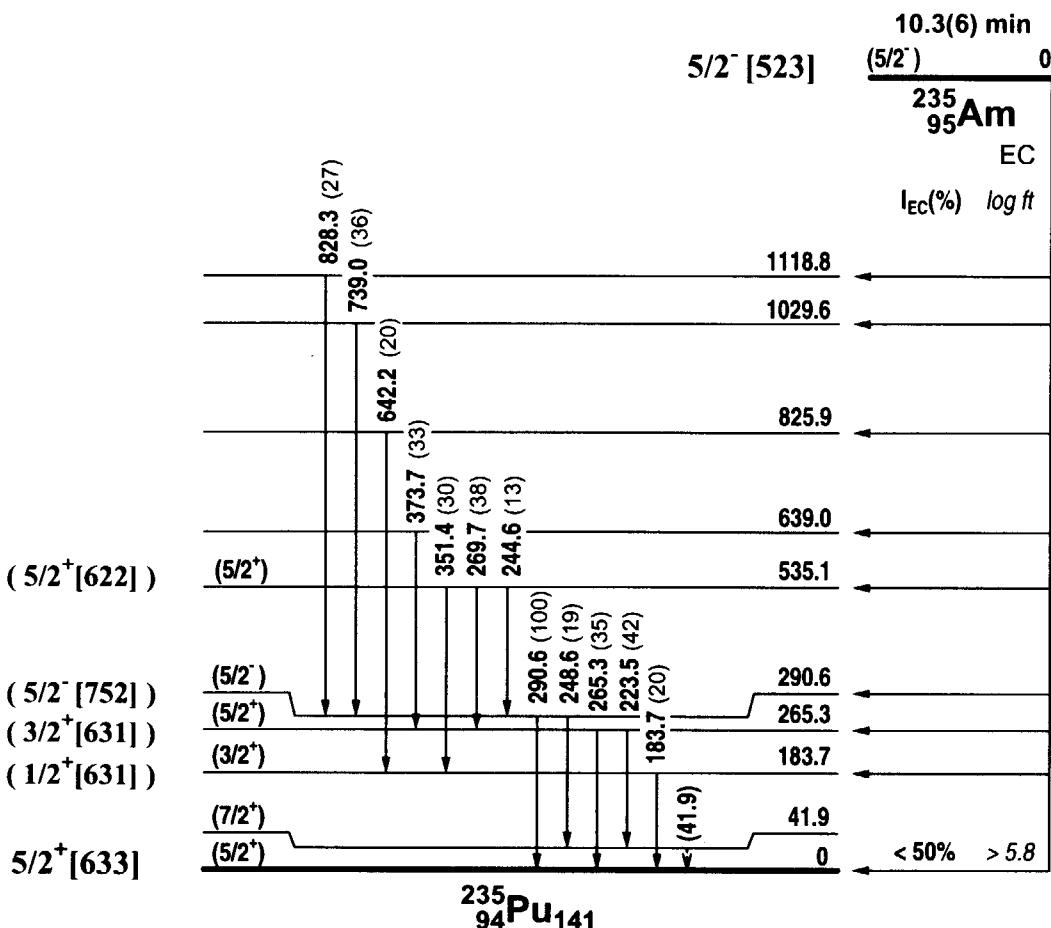
$^{235,236}\text{Am}$ はこれまでEC崩壊に伴うX線の観測あるいは娘核の成長-減衰曲線から得られた半減期のみが報告されている[1,2]。 ^{236}Am の娘核 ^{236}Pu の準位構造は、 ^{236}Np の β^- 崩壊、 ^{240}Cm の α 崩壊及び $^{235}\text{U}(\alpha, 3n)^{236}\text{Pu}$ 反応を用いたインビーム γ 線、内部転換電子測定[3]によって基底状態回転バンドのみが報告されている。 ^{235}Am の娘核 ^{235}Pu の励起準位に関する実験データはこれまで報告されていない。

2. 実験

$^{235,236}\text{Am}$ はタンデム加速器からの ^6Li ビームを用いて $^{233}\text{U}(^6\text{Li}, 4n)^{235}\text{Am}$, $^{235}\text{U}(^6\text{Li}, 5n)^{236}\text{Am}$ 反応で合成し、ターゲットから反跳脱出した生成核をガスジェット搬送装置で迅速にISOLイオン源まで導き、イオン化・質量分離した[4]。質量分離されたイオンは測定室に導かれ、EC崩壊に伴うX線及び γ 線を2台のGe検出器で測定した。 γ 線シングルス、 γ - γ 同時計数、 γ - γ 遅延同時計数及び γ 線の時間減衰をリストモードで同時に測定した。

3. 結果及び考察

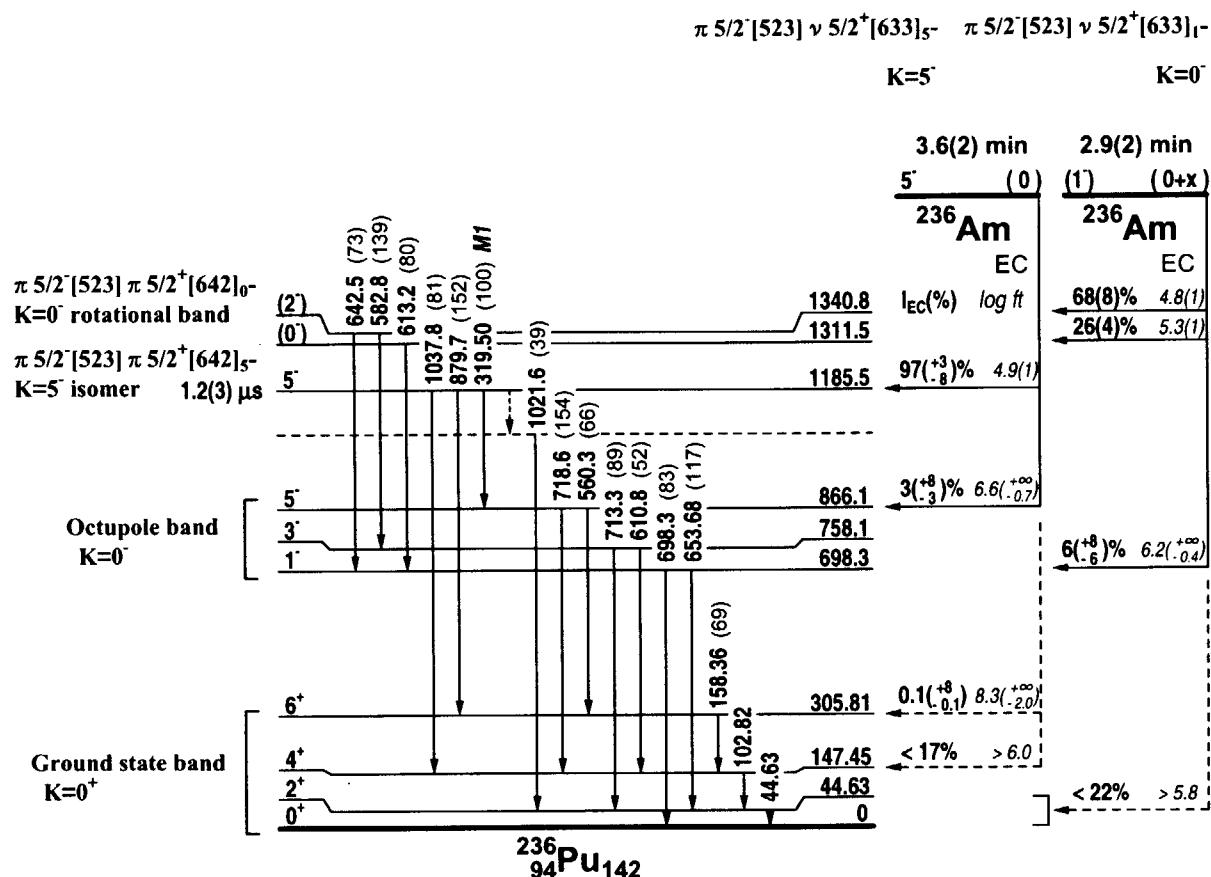
Fig. 1に γ - γ 同時計数測定の結果得られた ^{235}Am のEC崩壊に関する崩壊図式を示す。娘核 ^{235}Pu の励起準位を初めて観測し、 γ 線強度比などから各準位のNilsson軌道を推定した。また $\log ft$ 値から ^{235}Am の基底状態のNilsson軌道は $\pi 5/2^-$ [523]と推定された。

Fig. 1. Proposed decay scheme of ^{235}Am .

^{236}Am の測定からは Fig. 2 のような崩壊図式が得られた。娘核 ^{236}Pu の励起状態に $K^\pi = 0^-$ の八重極振動バンドを観測し、その 1^- バンドヘッドのエネルギーが周辺の ^{238}Pu , ^{240}Pu のそれらよりも高いことから、 ^{236}Pu では八重極相関が弱いことを確認した [5]。また ^{236}Pu の励起状態に $\pi 5/2^- [523]\pi 5/2^+ [642]$ の軌道配位を持つ 2 準粒子状態を観測、同定し、 $K^\pi = 5^-$ のバンドヘッドが半減期 $1.2(3)\ \mu\text{s}$ の K アイソマーとなることを明らかにした。 γ 線の崩壊曲線から ^{236}Am には半減期 $3.6(2)$ 分と $2.9(2)$ 分の EC 崩壊する 2 つの状態が存在することを明らかにし、 $\log ft$ 値からそれらの陽子中性子軌道配位は $\pi 5/2^- [523]\nu 5/2^+ [633]$ であり、ひとつは $K^\pi = 5^-$ の 5^- 状態、もう一方は $K^\pi = 0^-$ の 1^- 状態と同定した。

4. まとめ

$^{235}, ^{236}\text{Am}$ の EC 崩壊を初めて観測し、親核及び娘核の準位構造や陽子中性子配位を決定した。

Fig. 2. Proposed decay scheme of $^{236g,m}\text{Am}$.

References

- [1] H. L. Hall, Ph. D. thesis, University of California, Report No. LBL-27878 (1989).
- [2] J. Guo, Z. Gan, H. Liu, W. Yang, L. Shi, W. Mu, T. Guo, K. Fang, S. Shen, S. Yuan, X. Zhang, Z. Qin, R. Ma, J. Zhong, S. Wang, D. Kong, and J. Qiao, Z. Phys. A **355**, 111 (1996).
- [3] K. Hardt, P. Schüller, C. Günther, J. Recht, and K. P. Blume, Nucl. Phys. **A407**, 127 (1983).
- [4] K. Tsukada, S. Ichikawa, Y. Hatsukawa, I. Nishinaka, K. Hata, Y. Nagame, Y. Oura, T. Ohyama, K. Sueki, H. Nakahara, M. Asai, Y. Kojima, T. Hirose, H. Yamamoto, and K. Kawade, Phys. Rev. C **57**, 2057 (1998).
- [5] R. K. Sheline and M. A. Riley, Phys. Rev. C **61**, 057301 (2000).



JP0150939

JAERI-Conf 2001-014

3.3.8 新核種 ^{237}Cm の同定と ^{238}Cm の α 崩壊

IDENTIFICATION OF THE NEW ISOTOPE ^{237}Cm and α DECAY OF ^{238}Cm

浅井雅人,¹ 阪間 稔,^{1,2} 塚田和明,¹ 市川進一,¹ 羽場宏光,¹ 西中一朗,¹ 永目諭一郎,¹ 後藤真一,^{1,3} 小島康明,⁴ 大浦泰嗣,² 中原弘道,² 柴田理尋,⁵ 河出 清⁵
原研先端基礎セ,¹ 都立大院理,² 新潟大院自然,³ 広島大工,⁴ 名大院工⁵
M. ASAI,¹ M. SAKAMA,^{1,2} K. TSUKADA,¹ S. ICHIKAWA,¹ I. NISHINAKA,¹
Y. NAGAME,¹ S. GOTO,^{1,3} Y. KOJIMA,⁴ Y. OURAY,² H. NAKAHARA,²
M. SHIBATA,⁵ K. KAWADE⁵

¹ Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Research Institute

² Department of Chemistry, Tokyo Metropolitan University

³ Department of Chemistry, Niigata University

⁴ Applied Nuclear Physics, Faculty of Engineering, Hiroshima University

⁵ Department of Energy Engineering and Science, Nagoya University

1. はじめに

中性子欠損領域のCm同位体は1950年代に $^{238}, ^{239}\text{Cm}$ が同定されたあと実験的研究が行われていない。これら2核種は $^{239}\text{Pu}(\alpha, xn)$ 反応によって合成され、Cm同位体を化学分離することで観測されている[1]。半減期はproportional counterを用いてEC崩壊に伴うX線等を観測することで ^{238}Cm : 2.4(1) h, ^{239}Cm : 2.9 hと決定されており、 ^{238}Cm に関しては6.52(5) MeVの α 線も観測されている。 ^{237}Cm は半減期が5分程度、 α 崩壊分岐比が数%程度と予想され、化学分離を用いた方法では比較的観測が難しく、これまで同定されたことはない。

本研究ではオンライン同位体分離装置(ISOL)を用いて核反応で合成されたAm, Cm等の短寿命核を迅速に質量分離することで、中性子欠損アクチノイド核の研究を可能にした。新核種 ^{237}Cm を初めて同定し、 ^{238}Cm の α 崩壊の再測定を行ったのでその結果を報告する。

2. 実験

$^{237}, ^{238}\text{Cm}$ は $^{237}\text{Np}(^6\text{Li}, xn)$ 反応で合成した。21枚の ^{237}Np ターゲット(1枚当たり約100 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$)に ^6Li ビームを照射し、ターゲットから反跳脱出した生成核を PbI_2 をクラスターとしたヘリウムガスジェット搬送法によってISOLイオン源まで導き、イオン化、質量分離した[2]。 ^{237}Cm に関しては、質量分離されたイオンをSi検出器に直接打ち込み、 α 線を測定した。 ^{238}Cm に関しては、直接Si検出器に打ち込む他に、テープ装置と7台のSi検出器を用いた測定も行った。質量分離されたイオンを一定時間テープに捕集した後一定距離テープを送るというサイクルを繰り返し、7台のSi検出器で順々に α 線を測定し時間減衰を観測した。 ^{237}Cm についても同様の測定を行ったが、統計が少なく半減期を決定することはできなかった。

3. 結果及び考察

Fig. 1に質量数237及び238で観測された α 線スペクトルを示す。質量数237では3本の α 線ピークが観測された。6660(10) keVのピークを ^{237}Cm の α 線と同定した。6047(10) keVのピークは ^{237}Am の α 崩壊に起因するものであり、別に行ったX線測定でも ^{237}Am が強く

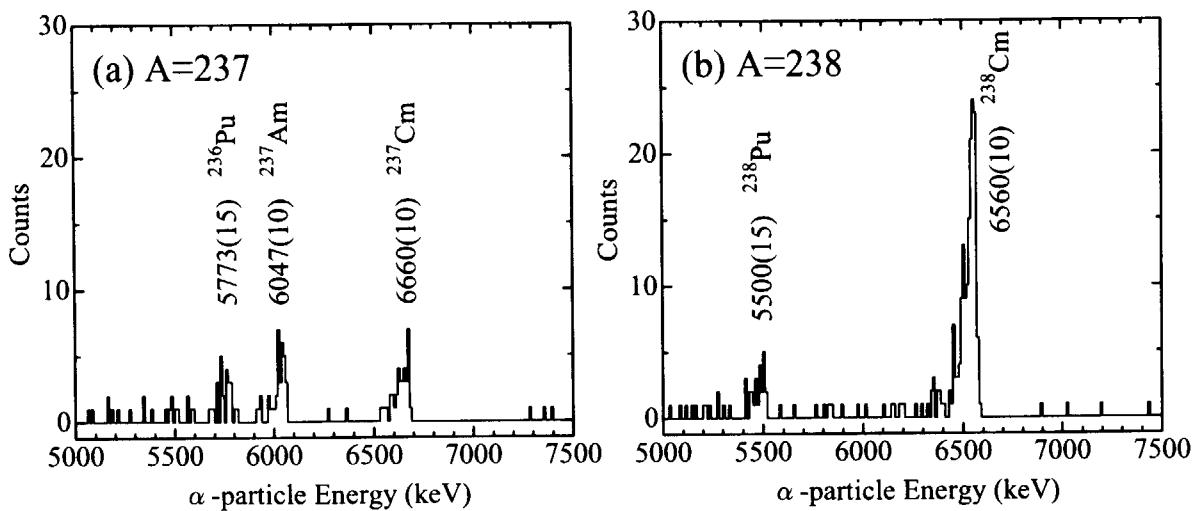


Fig. 1. α -particle spectra observed at (a) mass-237 and (b) mass-238 fraction.

観測された。5773 keV 付近のピークは ^{236}Pu の α 線と考えられる。本研究で使用したISOLの質量分解能は $M/\Delta M = 850$ 程度であり、輸送効率を上げるためにスリット幅を広めに設定しているので、隣の質量数の核種が僅かな量混入する可能性がある。 ^{236}Pu は核子移行反応によって合成される ^{236}Np の β^- 崩壊によって大量に生成し、また100% α 崩壊することから、わずかな量の混入でも質量数237の α 線スペクトルに現れると考えられる。確認のため質量数236, 238でも同様に α 線測定を行ったが、6660 keVには α 線は観測されなかった。よってこの α 線は確かに質量数237に起因する α 線と同定され、このエネルギーの α 線を放出する質量数237起源の他の核種が存在しないことから、 ^{237}Cm の α 線と同定された。

質量数238では6560(10) keVに強い α 線ピークが観測され、5500 keV付近にもピークが観測された。5500 keV ピークは ^{238}Pu の α 線である。 ^{238}Am は5940 keVの α 線を放出するが、 α 崩壊分岐比が0.01%と小さいため観測されなかった。質量数239にも6560 keVの α 線を放出する核種は存在せず、よって6560 keV ピークは ^{238}Cm の α 線と同定された。 ^{238}Cm の α 線エネルギーは過去に6.52(5) MeVと報告されており、今回の値と誤差の範囲内で一致するものの、40 keVも小さかったことが明らかになった。この α 線の崩壊曲線をFig. 2に示す。最小自乗フィッティングにより半減期2.2(4) hと決定された。文献値は2.4(1) hであり、誤差の範囲内で一致した。 α /EC分岐比を決定するためX線の測定も行ったが、 ^{238}Am 及び ^{238}Np の崩壊に伴うPu KX線が強く、強度の弱いAm KX線のピークを確認することはできなかった。

Nilsson軌道の系統性から推測すると、観測された ^{237}Cm の α 線は ^{233}Pu の基底状態にごく近い準位への遷移と考えられる。仮にこの準位のエネルギーを0 keVとすると、 ^{237}Cm の Q_α 値は6774(10) keVとなる。Audi等[3]が質量の系統性から予測した値は6805(220) keVであり、励起準位のエネルギーを考えれば良く一致していると言える。

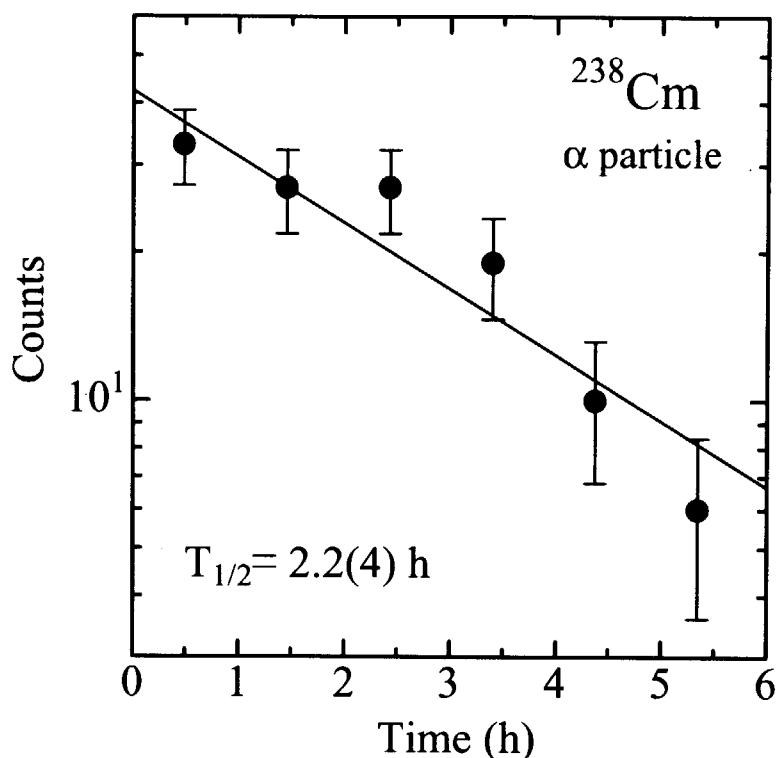


Fig. 2. Decay curve of 6560 keV α line originating from the α decay of ^{238}Cm .

4. まとめ

新核種 ^{237}Cm を初めて同定し、その α 線エネルギーを 6660(10) keV と決定した。また ^{238}Cm の α 崩壊についても測定を行い、 α 線エネルギー 6560(10) keV、半減期 2.2(4) h と決定した。

References

- [1] G. H. Higgins, Ph. D. thesis, University of California, UCRL 1796 (1952).
- [2] K. Tsukada, S. Ichikawa, Y. Hatsukawa, I. Nishinaka, K. Hata, Y. Nagame, Y. Oura, T. Ohyama, K. Sueki, H. Nakahara, M. Asai, Y. Kojima, T. Hirose, H. Yamamoto, and K. Kawade, Phys. Rev. C **57**, 2057 (1998).
- [3] G. Audi, O. Bersillon, J. Blachot, and A. H. Wapstra, Nucl. Phys. A **624**, 1 (1997).



JP0150940

JAERI-Conf 2001-014

3.4 物性・材料関連

3.4.1 重イオン衝突のスパッタリングの電子励起効果の研究

ELECTRONIC EXCITATION EFFECT IN THE SPUTTERING INDUCED BY HEAVY ION BOMBARDMENT

関岡嗣久, 寺澤倫孝, 左高正雄^A, 北澤真一^A
姫路工大工, 原研^A

T. SEKIOKA, M. TERASAWA, M. SATAKA^A, S. KITAZAWA^A
Himeji Institute of Technology,
Japan Atomic Energy Research Institute^A

1. はじめに

高エネルギー粒子(イオン)照射による金属における原子のはじき出しや照射アニーリングは、専ら照射粒子との核的弾性衝突によって起こされ、そこでは照射イオンによる電子励起は無視できると考えられてきた。これは一般に電子励起過程によって格子原子へエネルギー及び運動量を与える、直接にはじき出しを起こすことは少なく、そのうえ、とくに金属においては自由電子間の緩和がきわめて早く起こるからである。しかし、最近になって、高エネルギー重イオン照射による照射アニーリングや酸化物超伝導体の欠陥生成の研究によって電子励起過程が原子のはじき出し及び照射損傷に顕著な効果を示すことが判ってきた。

我々は原研タンデム加速器を用いて高エネルギー重イオン照射によって放出(スパッタリング)される2次イオンを測定することにより固体表面近傍での電子励起を調べている。スパッタリングは本来、イオン衝撃により固体ターゲット内でおこる多重核的衝突の結果、ターゲット原子がはじき出される現象であり、素過程は照射損傷における原子のはじき出しと同一である。スパッタリングに電子励起効果が現れるることは今まで知られていない。先に述べた通り、照射損傷過程において電子励起効果が存在することが明らかになってきた。しかしこれらの実験結果を説明できる電子系から格子系へのエネルギー伝達メカニズムについては、熱スパイクによるとするもの、高密度の電子励起の結果、正に帶電した原子同志の反発によるクーロン爆発によるとするものがあるが、まだ確立されていない。

2. 実験方法

図1に実験方法を示す。

原研タンデム加速器からの重イオンビームを薄膜ターゲットに入射し、背面に放出される2次電子をスタート信号として、薄膜の前面に放出される2次イオンをTOF(Time of Flight、飛行時間法)で測定した。

重イオンビームとして I^{7+} -80,100MeV, Au^{12+} -100,120,150,200MeV, Au^{25+} -300,320MeV を用いた。

ターゲットとして C 薄膜および C 薄膜に Au または Cu を蒸着したものを用いた。

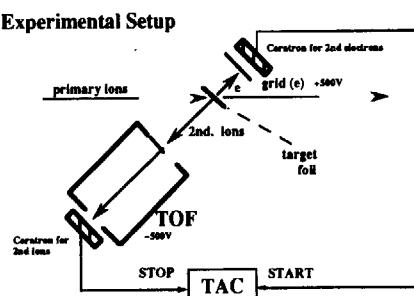


図1. 実験方法

3. 実験結果

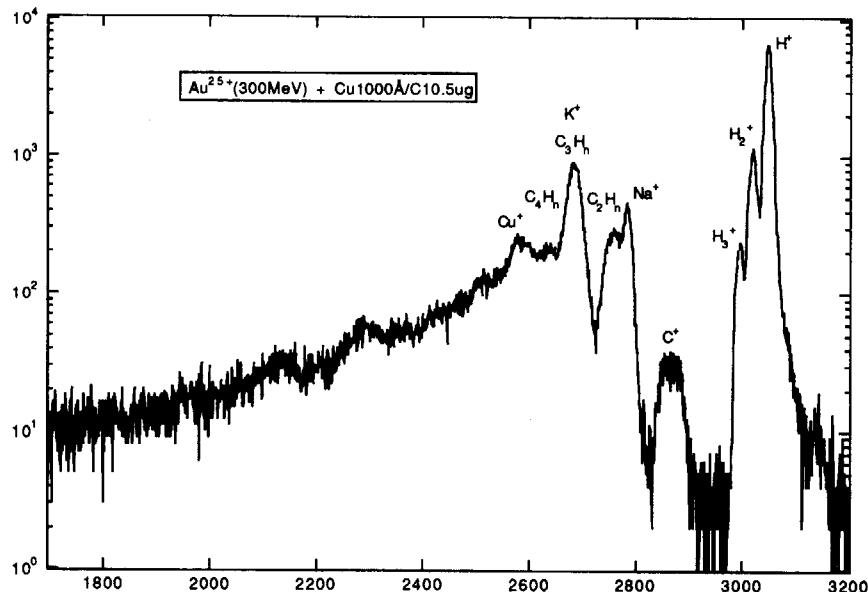


図2. 二次イオンのスペクトル例

図2に Au^{25+} (300MeV) 照射によって、C 薄膜 $10.5\mu\text{g}/\text{cm}^2$ に 1000\AA まで蒸着した Cu 薄膜から放出される2次イオンのスペクトルを示す。hydro carbon や ^{23}Na 等の不純物ピークがいくつか見られるが Cu のピークを確認する事ができる。スペクトルの中にクーロン爆発の直接証拠となるような高エネルギー多価イオンの存在は確認できなかった。2次イオンのスペクトルにおいてバックグラウンドを差し引いたあと標的2次イオンのピークについて fitting を行い yield を求めた。

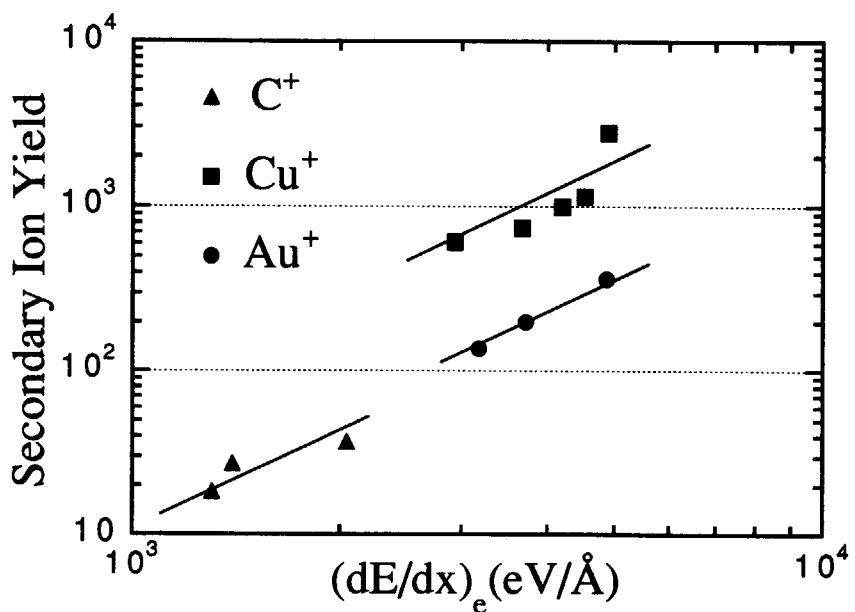
図3. C^+ , Cu^+ , Au^+ 2次イオン yield の電子的阻止能依存性

図3に2次電子のカウントで normalize した C^+ , Cu^+ , Au^+ 2次イオン yield の電子的阻止能依存性を示す。

図3より金属ターゲットからの2次イオンのスペッタ収率においても顕著な電子的阻止能(dE/dx)依存性が見られる。このことは2次イオン放出においても電子励起の重要性を示している。図中の実線は $[(dE/dx)_e]^2$ 依存性を示す。実験結果をかなりよく再現している。電子的相互作用により標的物質に付与されるエネルギーは、標的原子の励起、イオン化に寄与するはずであるから $[(dE/dx)_e]^2$ に比例する事実は、高密度にイオン化された標的原子同士のクーロン反発がスペッタリングの主な機構であることを示唆している。

4. ターゲットクリーニング方法の開発

図2よりわかるとおり、Hydro carbon の不純物が多いため、スペクトル分解の誤差の大きな原因になっている。 C^+ , Au^+ あるいは Cu^+ の $(dE/dx)_e$ の小さい領域での2次イオンのように、収量が少ないとときは特に問題となる。そのためターゲットクリーニングの方法を開発中である。

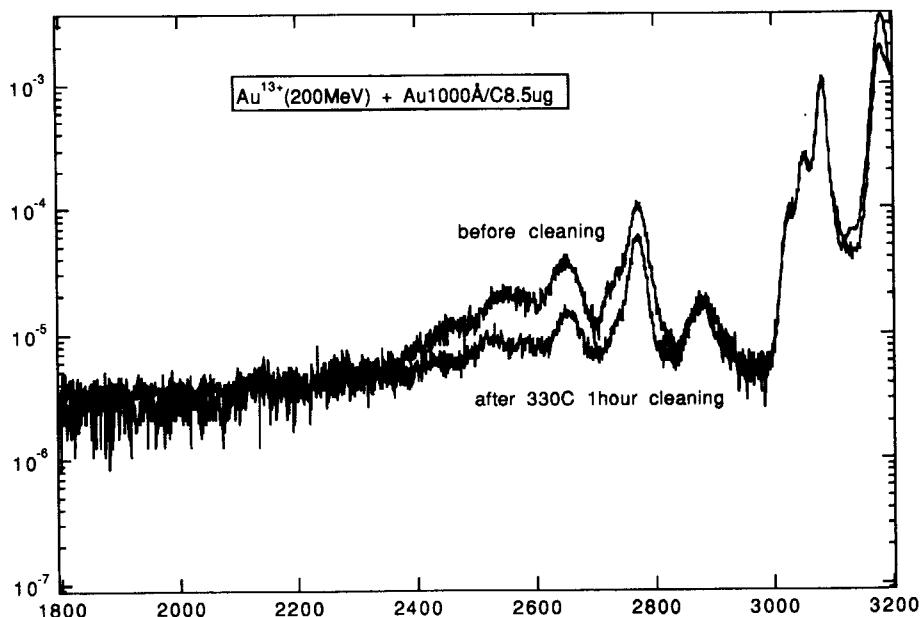


図4. クリーニング効果の例

図4に $Au^{13+}(200MeV)$ 照射によって、C 薄膜 $8.5\mu g/cm^2$ に 1000\AA まで蒸着した Au 薄膜から放出される2次イオンのスペクトルについて、クリーニング前ととのスペクトルを比較している。クリーニングは赤外線により、 $330^\circ C$ 加熱を1時間行った。hydro carbon や ^{23}Na 等の不純物ピークや、連続的なバックグラウンドが著しく減少していることがわかる。

今後、バックグラウンドの低減を計り、二次イオン収率の少ない薄膜試料について測定を行う予定である。

5. これからの課題

現在のところ、標的試料は蒸着の容易なものに限られているが、solid 標的からの2次イオンの測定が可能になれば、絶縁物や高温超伝導体などの様々な物性をもつ物質についても、電子励起効果を調べることができる。そのため磁石による質量分析、またはスタート信号として2次電子ではなく、ビームのタイミングを利用する方法など検討中である。



JP0150941

JAERI-Conf 2001-014

3.4.2 柱状欠陥を導入した $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ における 臨界電流密度の照射量依存性

Fluence Dependence of Critical Current Density in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Irradiated with High-Energy Heavy Ions

石川法人^a, 末吉哲郎^b, 岩瀬彰宏^a, 知見康弘^a, 藤吉孝則^b, 宮原邦弘^b, 木須隆暢^c

N. Ishikawa^a, T. Sueyoshi^b, A. Iwase^a, Y. Chimi^a, T. Fujiyoshi^b, K. Miyahara^b, and T.
Kiss^c

^a 日本原子力研究所, ^b 熊本大学, ^c 九州大学

^a Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI), ^b Kumamoto University,

^c Kyushu University

It is well known that columnar defects produced by swift heavy ion irradiation enhance the pinning of vortices in the mixed state of oxide superconductors. There have been many studies on the change in the pinning properties by changing the density of vortices in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (YBCO) containing the columnar defects, while there have been only a limited number of systematic studies on the effect of changing the dose equivalent field, B_ϕ , on the pinning properties. The difficulty of measuring the B_ϕ -dependence of the pinning properties is originated from the fact that the pinning properties strongly depend on samples. In order to avoid the sample dependence and to precisely measure the effect of changing B_ϕ , *in-situ* measurement of the irradiation effect using one sample is indispensable.

A c-axis oriented $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ epitaxial thin film was prepared by a laser ablation technique. The thickness of the film was $0.3 \mu\text{m}$. The zero-resistivity critical temperature, T_c , was 89K. The film was irradiated with 200MeV ^{197}Au ions from a tandem accelerator at JAERI-Tokai (Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai

Research Establishment). Inclined columnar defects were produced in the film by ion irradiation from the angle of $\theta_{\text{irr}}=45^\circ$ off the c-axis. Irradiation doses are expressed in terms of the dose equivalent field, B_ϕ , which is defined so that the average spacing between the columnar defects are equal to the spacing of vortex lattice under the magnetic field of $B=B_\phi$. The columnar defects were expected to be continuous throughout the thickness of the sample because the energy loss of ions during passing through the sample was very small (<5%). The irradiation temperature was about 80K. The *in-situ* measurements of transport critical current density, J_c , as a function of B and B_ϕ were performed at $T=80 \sim 82$ K without warming the sample above 83K. The critical current density was estimated from the current-voltage characteristics using an electric field criterion of 10^{-3} V/m. The transport current was always applied in the direction perpendicular to the magnetic field direction and c-axis direction.

Figure 1 shows the B_ϕ -dependence of J_c for various magnetic fields parallel to the columnar defects ($\theta_{\text{mag}}=45^\circ$) and that for the magnetic fields perpendicular to the columnar defects ($\theta_{\text{mag}}=-45^\circ$). $J_c(\theta_{\text{mag}}=-45^\circ)$ decreased monotonically with increasing B_ϕ due to the increase in $t_{\text{meas}}=T_{\text{meas}}/T_c$, where T_{meas} is the measuring temperature. The behavior of $J_c(\theta_{\text{mag}}=45^\circ)$ as a function of B_ϕ is rather complicated but can be explained by the competition of the enhancement of pinning due to introduction of the columnar defects and the decrease in the superconducting condensation energy accompanied by the increase in t_{meas} . The effect of columnar defects as pinning centers can be extracted by defining $\Delta J_c=J_c(\theta_{\text{mag}}=45^\circ)-J_c(\theta_{\text{mag}}=-45^\circ)$. Assuming a direct sum of pinning force, the contribution of the columnar defects to the pinning force density is estimated as $\Delta F_p=\Delta J_c \times B$. Figure 2 shows ΔF_p as a function of B_ϕ . Monotonic increase in ΔF_p with increasing B_ϕ is observed up to $B_\phi=2.3$ T, although B is varied from 1T to 3T.

In Fig.3, ΔF_p as a function of B is plotted for the sample irradiated up to $B_\phi=1.6$ T. It appears that the broad peak is observed at $B \approx B_\phi$. The result is almost the same as

that of Holzapfel et al. [1]. They have concluded that the maximum of ΔF_p at $B \approx B_\phi$ is attributed to the matching between the density of vortices and that of the columnar defects. However, as shown in Fig.4, although B_ϕ is varied in the wide range from $B_\phi = 0.6\text{T}$ to 2.3T , ΔF_p exhibits a peak at around $B = 1.5 \pm 0.2\text{T}$ irrespective of the values of B_ϕ , i.e. the peak field for ΔF_p seems to be almost independent on B_ϕ . To clarify whether or not a maximum of ΔF_p vs B curve is attributed to the effect of matching between B and B_ϕ , it is necessary to precisely measure the change in the behavior of ΔF_p vs B curve by varying wide range of B_ϕ .

Reference

- [1]B. Holzapfel, G. Kreiselmeyer, M. Kraus, G. Saemann-Ischenko, S. Bouffard, S. Klaumünzer and L. Schultz, Phys. Rev. B48 (1993) 600

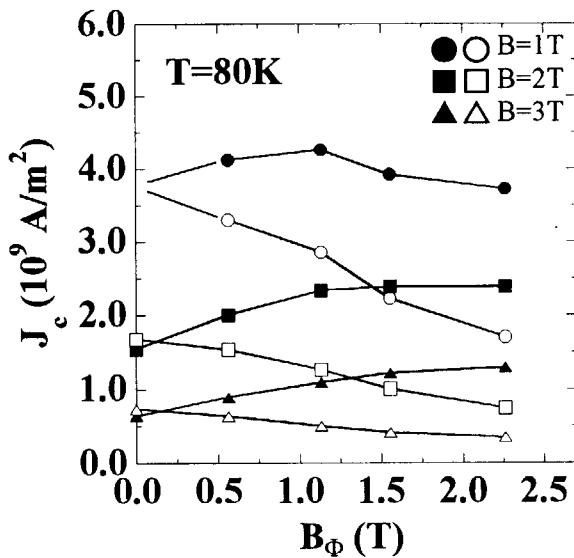


Fig.1 The B_ϕ -dependence of J_c measured for the magnetic field parallel to the columnar defects ($\theta_{\text{mag}}=45^\circ$) and for the magnetic field perpendicular to the columnar defects ($\theta_{\text{mag}}=-45^\circ$). $J_c(\theta_{\text{mag}}=45^\circ)$ is shown as closed symbols, and $J_c(\theta_{\text{mag}}=-45^\circ)$ as open symbols.

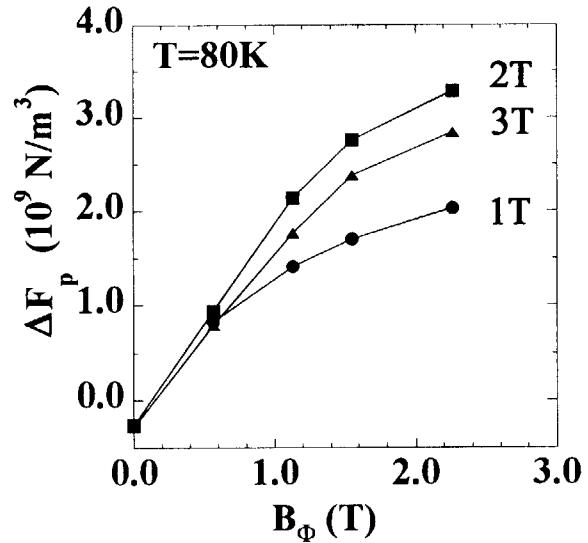


Fig.2 ΔF_p as a function of B_ϕ for various values of B .

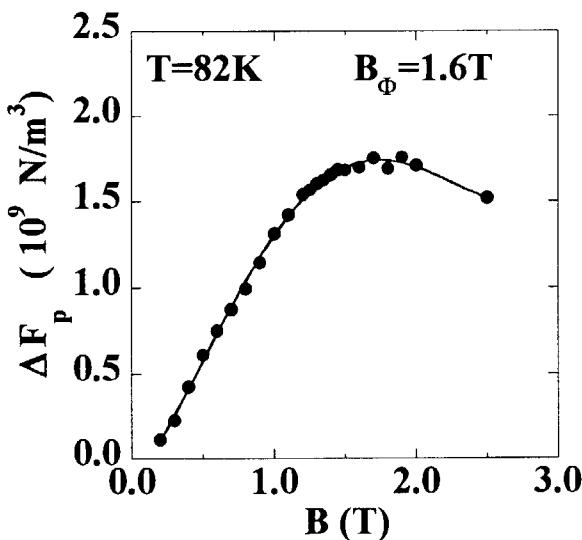


Fig.3 ΔF_p as a function of B for the sample irradiated up to $B_\phi=1.6$ T. The measuring temperature is $T=82$ K.

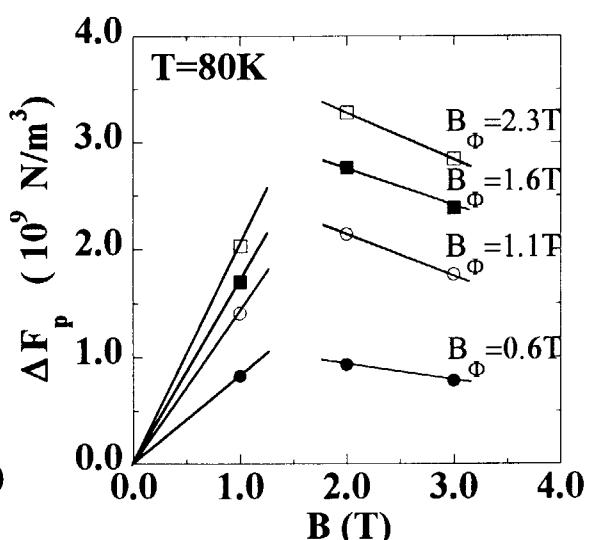


Fig.4 ΔF_p plotted against the magnetic field measured at $T=80$ K. The solid lines are the guides for the eyes.



JP0150942

JAERI-Conf 2001-014

3.4.3 高エネルギー重イオン照射による酸化物高温超伝導体の円柱状欠陥 Columnar defect of high-T_c superconductor by high-energy heavy-ion irradiation

笹瀬雅人、岡安悟、倉田博基、北條喜一

日本原子力研究所

M. SASASE, S. OKAYASU, H. KURATA and K. HOJOU

Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI)

1. はじめに

高エネルギー重イオンは、固体中で高密度の電子励起を起こし、円柱状欠陥を形成する。酸化物高温超伝導体の場合、この円柱状欠陥が磁束のピン止め点として有効に作用し、実用化にあたり重要な特性である臨界電流密度の向上を促すことが知られている[1,2]。それゆえ、最適なサイズの円柱状欠陥を安定に供給するために照射条件の制御が必要である。

従来まで、電子励起を介した円柱状欠陥生成は、電子的阻止能 (S_e)に支配されていると考えられてきた。一方、石川[3]や Meftah [4]らは、 S_e だけでは欠陥生成を記述することができず、同じ S_e でも速度が遅いイオンほど、欠陥生成率が大きい傾向にあると述べている。

本研究では、酸化物超伝導体中に形成した円柱状欠陥におよぼす照射イオンの速度効果を明らかにするために、 S_e を一定にしてイオン速度を変化させた際の円柱状欠陥の形状及び微細構造変化を透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いて直接観察し、イオン速度との関係を検討した。

2. 実験方法

試料には、 $T_c = 90$ K の $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ (Bi-2212) 単結晶を用いた。厚さは、TEM 観察可能な厚みまで剥離を繰り返し、およそ 50 nm とした。

薄膜試料に対し原研東海研・タンデム加速器を用いて 60 MeV Au^+ 、180 MeV Au^{12+} 、90 MeV I^{8+} 、600 MeV I^{29+} 、180 MeV Ni^{11+} 、190 MeV Br^{12+} の各イオンを、照射量 (6.3×10^{10} ions/cm²) を一定として、室温で c 軸に平行に照射した。また、電子的阻止能 S_e を TRIM コード[5]を用いて計算した。さらに照射により導入された円柱状欠陥の形状及び欠陥構造を透過型電子顕微鏡 (TEM : JEOL JEM-2000F) を用いて観察した。

3. 実験結果及び考察

円柱状欠陥の形状に及ぼす照射イオンの速度効果を明らかにするため、 S_e を 11.5 keV/nm、14.5 keV/nm、23.0 keV/nm にそれぞれ一定とし、速度を変化した 3 種類の照射条件による円柱状欠陥の TEM 観察を行った。その結果、イオン速度の違いによる円柱状欠陥内部の微細構造には変化が認められず、すべてアモルファス状態を示し、内部に結晶化した部分は観察されなかった。

さらに、円柱状欠陥の直径を TEM で観測したアモルファス領域とし、各々の照射条件におけるサイズ分布から、円柱状欠陥の平均直径を見積もった。

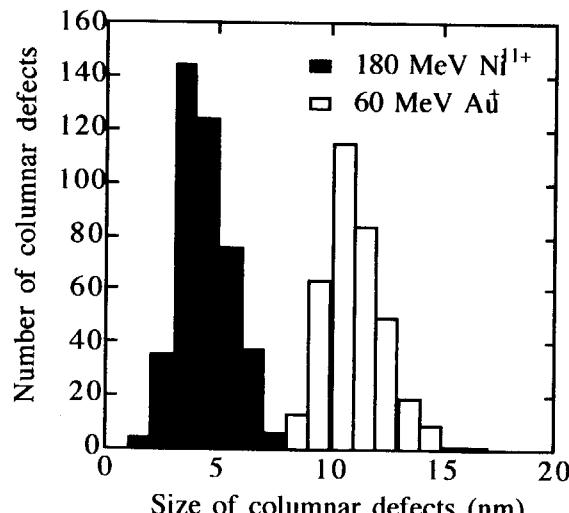


Fig. 1 (a) Statistical distribution of the columnar defect diameters for 60 MeV Au^+ and 180 MeV Ni^{11+} ($S_e = 11.5$ keV/nm)

Fig. 1 (a) ~ (c)に同じ S_e を示すが、異なる速度を持つイオンを照射した時の円柱状欠陥のサイズ分布を示す。その結果をまとめて Table 1 に示す。これらの結果から S_e が等しい場合、イオン速度が遅いほど円柱状欠陥の平均直径が大きくなることが分かった。これらのイオン速度効果は、石川らの高エネルギー一重イオン照射による電気抵抗変化やc軸長変化の実験結果[4]や、Toulmonde らが絶縁体 $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ [3]や半金属 Bi[6]について観測した結果と同じ傾向となつた。

円柱状欠陥生成に及ぼすイオン速度効果は、円柱状欠陥の平均直径をイオン速度に対して整理すると、さらに顕著となる。Fig. 2 に円柱状欠陥の平均直径に対するイオン速度依存性を示す。この中に参考として我々が以前得た結果[7]と Huang[8]らの研究成果を合わせて引用した。円柱状欠陥の平均直径に及ぼす照射イオン速度の影響は、 $2.0 \times 10^9 \text{ cm/sec}$ 付近を境に大きく変化する。この速度以下では、イオン速度とともに円柱状欠陥の平均直径は直線的に増加する。一方これ以上の速度では、欠陥の直径はイオン速度に関わらず一定となり、イオン速度依存性は確認できなかった。このイオン速度効果について、Huang らは損傷効率(= 円柱状欠陥の直径 / S_e)に対するイオン速度依存性を調べ、損傷効率はイオン速度 $2.0 \times 10^9 \text{ cm/sec}$ 付近で最大となる結果を得ている[8]。しかし彼らは、ピーク付近についての測定データが十分ではなく、この付近の傾向が明確ではなかった。これに対し我々はピーク付近の効率を詳細に検討することにより、イオン速度 $2.0 \times 10^9 \text{ cm/sec}$ を境に、円柱状欠陥の平均直径が急激に減少することを実験的に確認した。すなわち $2.0 \times 10^9 \text{ cm/sec}$ 付近のイオン速度を境に円柱状欠陥の形成過程が異なることを明らかにした。

4. まとめ

円柱状欠陥の欠陥構造に及ぼすイオン速度効果を明らかにするために、 S_e を一定にし、照射イオンの速度を変化して生成した円柱状欠陥の形状及び微細構造をTEM観察した。

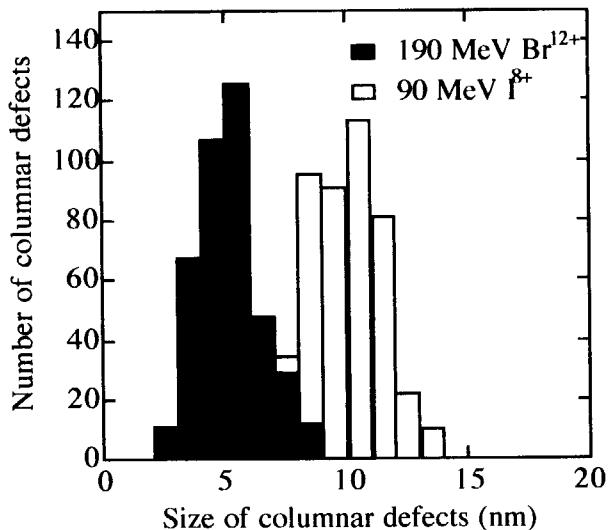


Fig. 1 (b) Statistical distribution of the columnar defect diameters for 90 MeV I⁸⁺ and 190 MeV Br¹²⁺ ($S_e = 14.5 \text{ keV/nm}$)

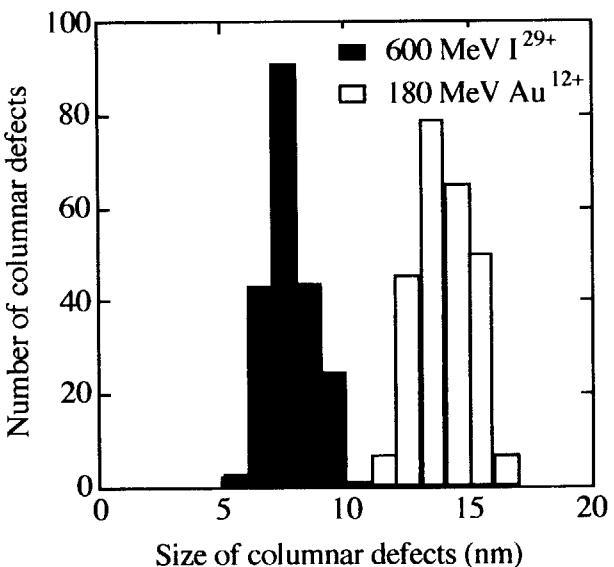


Fig. 1 (c) Statistical distribution of the columnar defect diameters for 180 MeV Au¹²⁺ and 600 MeV I²⁹⁺ ($S_e = 23 \text{ keV/nm}$)

Table 1 The ion species, energy and ion velocity of various ions used in the present study and estimated electronic stopping power for Bi-2212. D is the diameter of columnar defects.

Ion	Energy (MeV)	velocity ($\times 10^9 \text{ cm/sec}$)	S_e (keV/nm)	D (nm)
Au ⁺	60	0.76629	11.5	9.0
Ni ¹¹⁺	180	2.43242	11.5	4.0
I ⁸⁺	90	1.16934	14.5	9.0
Br ¹²⁺	190	2.14203	14.5	5.0
Au ¹²⁺	180	1.32776	23.0	12.0
I ²⁹⁺	600	3.0192	23.0	6.5

その結果、同じ S_c の場合、イオン速度が遅いほど円柱状欠陥の直径が大きくなることを明らかとした。さらに照射イオンの速度依存性を調べた結果、 $2.0 \times 10^9 \text{ cm/sec}$ を境に欠陥形成過程が異なることを見出した。すなわち、円柱状欠陥の平均直径に与えるイオン速度の影響は、従来までの電子励起過程による円柱状欠陥の形成機構では十分に説明できないことを明らかにした。

謝辞

イオン照射実験を行うにあたり、原研加速器管理室の方々にお世話になりました。ここに感謝いたします。

References

- [1] J. R. Thompson, Y. R. Sun, H. R. Kerchner, D. K. Christen, B. C. Sales, B. C. Chakoumakos, A. D. Marwick, L. Civale and J. O. Thomson, Appl. Phys. Lett., 60(1992)2306.
- [2] W. Jiang, N.-C. Yeh, S. Reed, U. Kriplani, D. A. Bean, M. Konczykowski, T. A. Tombrello and F. Holtzberg, Phys. Rev. Lett. 72(1994)550.
- [3] N. Ishikawa, A. Iwase, Y. Chimi, H. Wakana, O. Michigami and T. Kambara, J. Phys. Soc. Jpn., 69(2000)pp. 3563-3575.
- [4] A. Meftah, F. Brizard, J. M. Costantini, M. Hage-Ali, J. P. Stoquet, F. Studer and M. Toulemonde Phys. Rev. B48(1993)920.
- [5] J. F. Ziegler : Handbook of Stopping Cross Section for Energetic Ions in All Elements (Pergamon, New York, 1980).
- [6] Z. G. Wang, Ch. Dufour, B. Cabeau, J. Dural, G. Fuchs, E. Paumier, F. Pawlak and M. Toulemonde, Nucl. Instrum. Methods B107(1996)175.
- [7] M. Sasase, T. Satou, S. Okayasu, H. Kurata and K. Hojou, International Symposium on Superconductor (ISS'99) Proceedings (2000)314-316.
- [8] D. X. Huang, Y. Sasaki and Y. Ikuhara, Phys. Rev. B59(1993)3862.

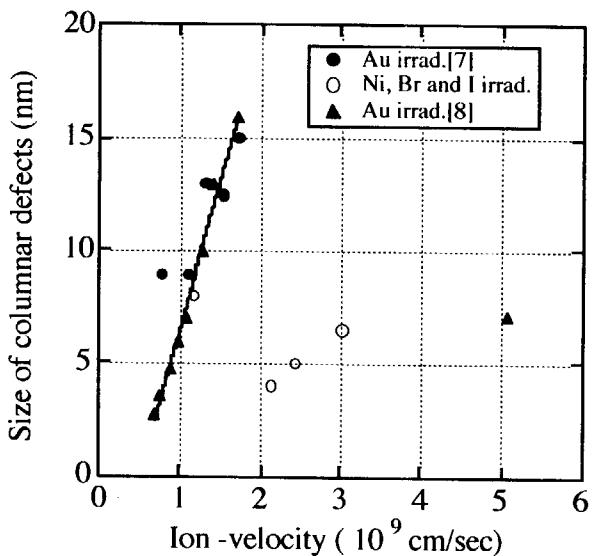


Fig. 2 Dependence of the columnar defect diameters on the ion velocity in the Bi-2212. All solid circles are for the Au^+ ion irradiation and all circles are for the I^+ , Br^+ and Ni^+ ion irradiations.



JP0150943

JAERI-Conf 2001-014

3.4.4 高エネルギーイオン照射した金ナノ結晶における欠陥の蓄積と回復 DEFECT ACCUMULATION AND RECOVERY IN NANOCRYSTALLINE GOLD IRRADIATED WITH HIGH-ENERGY IONS

知見康弘¹, 岩瀬彰宏¹, 石川法人¹, 小檜山守², 稲見隆², 奥田重雄³
Y. CHIMI¹, A. IWASE¹, N. ISHIKAWA¹, M. KOBIYAMA², T. INAMI², and S. OKUDA³

¹日本原子力研究所 東海研究所 物質科学研究部; ²茨城大学工学部; ³筑波研究学園

¹Department of Materials Science, Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI); ²Faculty of Engineering, Ibaraki University; ³Tsukuba Institute of Science and Technology

数 $10\mu\text{m}$ の結晶粒径を持つ多結晶体のことをナノ結晶という。これまでに、ナノ結晶における特徴的な性質として、高機械的強度、高拡散能、高熱容量といったものや低保磁力、高透磁率といった優れた軟磁性を持つことが知られており[1]、実用的に非常に興味深い材料として注目されている。また、超微粒子の表面に相当する結晶粒界が多く存在し、放射線照射で生成する格子欠陥が蓄積しにくいと考えられるため、耐照射性を持つ材料としての利用の可能性も期待できる。しかし、これまでナノ結晶の照射挙動はほとんど調べられていなかった。そこで我々は、金ナノ結晶に高エネルギーイオン照射で格子欠陥を導入し、そのときの欠陥の蓄積及び回復挙動について調べた。金を選んだのは、試料の表面酸化の恐れがなく純粋にナノ結晶の性質について調べられるためである。

試料としては、ガスデポジション法[2]で作製した金ナノ結晶箔（厚さ $5.3\mu\text{m}$ ）を用いた。平均結晶粒径は、X線回折測定[3]により決定され、 23nm であった。まず、試料には~ 15K において $60\text{MeV}^{12}\text{C}$ イオンが照射された。照射中、適当な照射量毎に電気抵抗率をその場測定し、欠陥の蓄積挙動が得られた。照射後、試料を室温付近まで昇温して、欠陥回復の様子が観測された。その後、同じ試料を 300K でイオン照射し、~ 15K と同様に欠陥蓄積挙動を測定した。比較のため、真空中、 600°C で 1 時間熱処理した金多結晶箔（厚さ~ $10\mu\text{m}$ ）をナノ結晶箔と同時にイオン照射・電気抵抗測定した。

300K 照射での欠陥蓄積挙動は図 1 のようになった。ナノ結晶(nano-Au)の欠陥蓄積率 ($d(\Delta\rho)/d\Phi$) は、多結晶(poly-Au)よりずっと小さくなつた。すなわち、照射によって導入された欠陥は、 300K のナノ結晶中にはほとんど蓄積されなかつた。これは、期待通りの結果であり、高い比率で存在する結晶粒界が欠陥の有効なシンクとして働くために、ナノ結晶中の照射欠陥は熱的に不安定になつてゐることを表わしている。また、このことはナノ結晶材料が耐照射材料として用いられる可能性を示唆するものである。次に、~ 15K 照射での欠陥蓄積挙動を図 2 に示す。今度は逆に、ナノ結晶の欠陥蓄積率が多結晶より大きくなつた。また、図 3 に~ 15K 照射後の欠陥回復挙動を示す。ナノ結晶における欠陥回復は、多結晶に比べてかなり大きく、より低温から起ることがわかつた。このことは、 300K 照射での欠陥蓄積挙動の結果（図 1）と矛盾しない。 $\sim 15\text{K}$ 照射におけるナノ結晶の欠陥蓄積率が多結晶より大きくなつた原因として、(a) 照射欠陥生成のしきいエネルギーが結晶粒界近傍では低くなるために欠陥生成が増える、(b) 集束衝突連鎖が結晶粒径程度の短さで切られてしまうために欠陥生成が増える、(c) 金の結晶中においては 4.2K 以下でも存在できないような単独の格子間原子（ステージ I 欠陥）[4]が結晶粒界近傍でトラップされるために欠陥の消滅が抑制さ

れる、という3つが考えられる。この現象のメカニズムについては明らかではないが、結晶粒径を変化させた試料に関しても欠陥蓄積挙動を詳細に解析することで、その手掛かりが得られると期待できる。

References

- [1] K. Lu, Mater. Sci. Eng. R **161** (1996) 161.
- [2] S. Kashu, E. Fuchita, T. Manabe, and C. Hayashi, Jpn. J. Appl. Phys. **23** (1984) L910.
- [3] T. Inami, S. Okuda, H. Maeta, and H. Ohtsuka, Mater. Trans., JIM, **39** (1998) 1029.
- [4] P. Ehrhart, P. Jung, H. Schultz, and H. Ullmaier, in *Atomic Defects in Metals, Landolt-Bornstein, Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology*, edited by H. Ullmaier (Springer-Verlag, Berlin, 1991), Group III, Vol. 25.

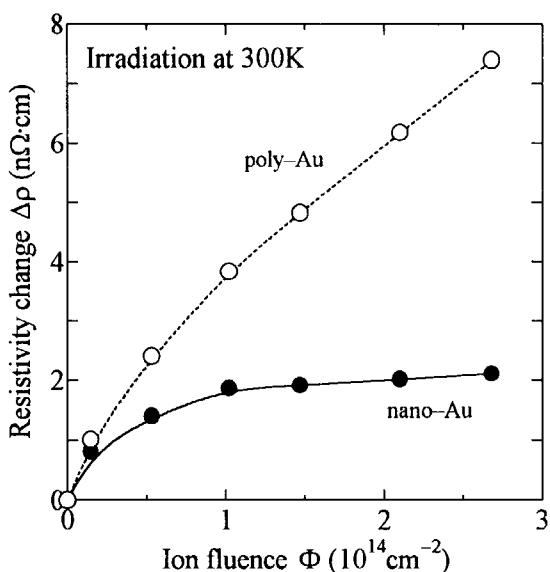


図1 300K 照射での欠陥蓄積挙動

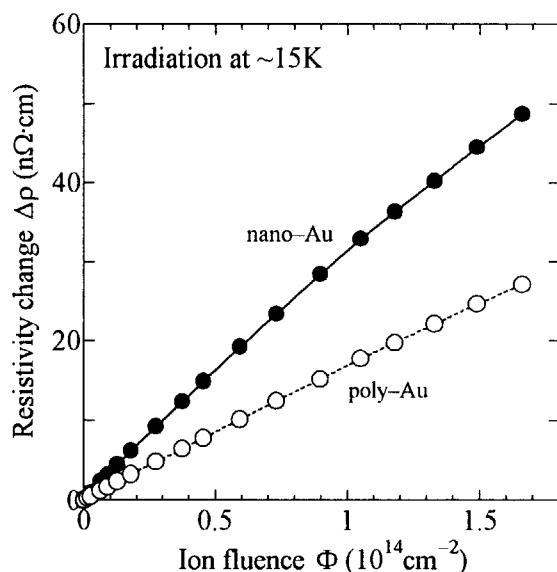


図2 ~15K での欠陥蓄積挙動

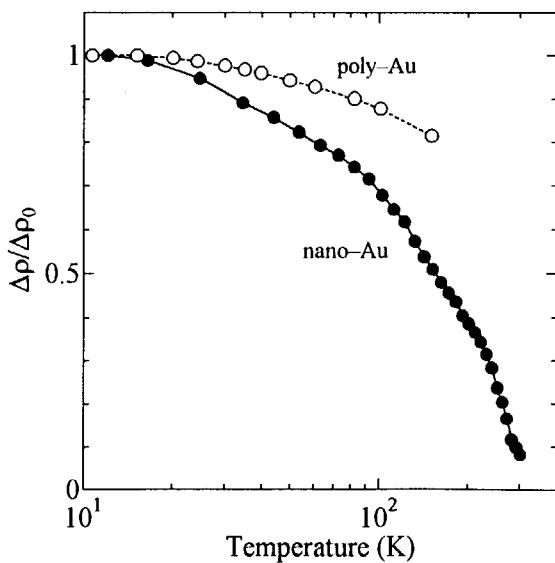


図3 ~15K 照射後の欠陥回復挙動



JP0150944

JAERI-Conf 2001-014

3.4.5 ナノクリスタルにおける照射欠陥の研究

大塚 英男¹、須貝 宏行、北條 喜一、前田 裕司^A
広島国際学院大^A

Radiation Defects in Nanocrystalline Materials

H.OHTSUKA, H.SUGAI, H.HOJOU, H.META^A
Hiroshima Kokusaigakuin Univ.^A

この研究は、放射線の照射に遭っても発生する損傷が従来の材料より少ない（耐照射性を持つ）新しい材料の開発を目的としている。照射欠陥の要素である空孔あるいははじき出された原子は、発生した後、環境（温度など）に応じて、ランダムに動き回る。この動きによって結晶の表面（粒界）に達すると、欠陥はそこで消滅する。このことから、表面の近傍では欠陥のほとんど無い領域が存在することになる。よって、この欠陥の無い領域程度の大きさの結晶においては、上述の効果によって内部に欠陥は存在し難いので、照射にあっても欠陥のほとんど無い状態が期待できる。本研究では実際に微粒子を作つてイオン照射を行い、この効果を確認する。将来的には新しい耐照射性材料の素材として提案する。

実験

この研究では当初は微粒子（ナノクリスタル）単体を対象にする。金の微粒子を電顕観察用の支持膜上に生成し、タンデムビームラインにセット。重イオンビームを照射した後、透過型電子顕微鏡を用いて内部に生じた欠陥を直接観察した。実験はタンデムのH 1およびL 2ビームラインを使い、沃素あるいはニッケルなどの重イオンビームを照射した（エネルギーは 100~200MeV）。この実験では欠陥形成における拡散過程に注目しているので照射中の温度を主たるパラメータとした。

実験結果

照射前の微粒子の様子は、透過型電子顕微鏡（TEM）で図1-a のように観察される。すなわちほとんど影（欠陥）のような物は見えずすっきりとしている。図1-b は室温で重イオン照射をした後の様子である。黒い斑点が多数発生しているのが見える。これらは照射前には見えなかった物なので照射欠陥であることは明らかである。よく見ると三角形に見えるものがある、これはよく知られた積層欠陥四面体である。照射量は、計算コード（TRIM）を利用して見積もったdpaに換算して、約0.6dpaである。図1-c は試料を 300 °C に保ちながら重イオン照射した微粒子のTEM像である。図1-b（室温照射）と比較すると欠陥集合体（黒斑）の大きさが大きめになり数が少なくなっているのが見える。照射量は図1-b の場合とほぼ同じである。

コンピュータシミュレーション

実験結果は、欠陥集合体のパターン形成の温度依存性が得られたと見ることが出来る。観察結果の解釈をサポートするためにシミュレーションプログラムを開発した。

1 e-mail: ohtsuka@popsvr.tokai.jaeri.go.jp

プログラム要旨

2次元格子上で要素（この場合は vacancy）がランダムウォークしながら集合体を作る。計算は Cellular Automata 法を IBM PC用の Mathematica を利用して適用。

主な計算ルール：

- ・ 100×100 格子上をランダムウォーク
- ・ある時間間隔で格子上のランダムの位置に single-vacancy を発生させる
- ・別の時間間隔で全ての single/di-vacancy を 1 格子分ランダムな方向に移動させる
- ・要素同士が遭遇したら (Von Neumann 近傍) 結合する、以後離れない
- ・di-vacancy は動く、3-vacancy は動かず集合体の核となる
- ・境界に接した single/di-vacancy は消滅する

なお、同時に生成される格子間原子は、vacancy に比べてはるかに移動度が大きく、すぐに境界で消滅してしまうとしてよいのでこのモデルでは考慮していない。

計算結果

図 2 に計算結果を示す。周囲の四角のフレームが結晶の境界に相当している。黒い斑点が欠陥の集合体である。図 2-a は拡散計数の小さいケース。このケースでは小さな集合体が多数、ほぼ一様に分布した。一方、図 2-b は図 2-a に比べて拡散係数を 4000 倍にとったケースである。欠陥の生成量は同じ。欠陥集合体のパターンが変わって、図 2-b に比べて大きな集合体が疎に分布していることがわかる。この結果は定性的には実験での観察結果（図 1-b と図 1-c）と良い一致を示している。図 2-c は、図 2-b と同じ条件のもとで、内部に境界を挿入して領域を分割し、小さなサイズの粒子である場合を模擬したケースである。図 2-b と比して欠陥が生成しにくい事が示されている。これは境界における欠陥の消滅効果があらわれた結果である（=表面効果、サイズ効果）。

まとめ

照射温度を変えると欠陥形成のパターンが変わることをここで観察した。コンピュータシミュレーションの結果を援用すれば拡散係数が支配している（拡散律則）現象であることは明らかである。微粒子の特徴は温度を上げたケース（図 1-c）で、欠陥の集合体（黒斑）が表面近くではなくむしろ中心寄りに見られることに現れている。これから類推では、もっと小さな粒子ではクラスターの形成がされにくく期待される。実際、温度を上げたケースでは小さな粒子にクラスターを見いだすのは困難である（シミュレーションではまさしく図 2-c に示されている）。実験とシミュレーションが良い一致を示したことから、このシミュレーションコードを発展させれば（3 次元化）、照射損傷を回避できる条件を求めるために使えそうである。その主要な条件とは、欠陥の発生率（照射条件）、拡散係数、微粒子の粒径である。以上から明らかなように、この研究の当初の目的である耐照射性を持つ材料の開発にとって望ましい結果を得た。

人が自然を見るとき、そこに必ずなんらかの構造（形、パターン）を見る。何故そのような形になるのかと言う興味は、太古の昔からあったはずである。近年これはパターン形成というカテゴリーで盛んに研究が行われる分野になった。今回のシミュレーションで用いたセルラオートマタ法は、パターン形成のモデルを作るのによく使われている。この考えの面白いところは、全体の設計図が有るのではなく、要素どうしの近隣関係（ローカルなルール）で全体の形が決まるというものである。我々の結果もこのようになっていて、拡散律則によるパターン形成の例題だったのである。材料の開発を正面とすると、側面で自然界の造形の妙につながっている。

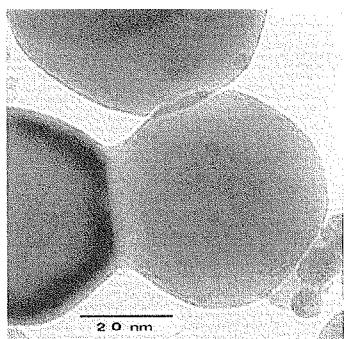


図 1-a
透過型電子顕微鏡 (TEM)
で見た、照射前の微粒子の
様子。欠陥（の集合体）ら
しき物は全く見えていない。
試料は金

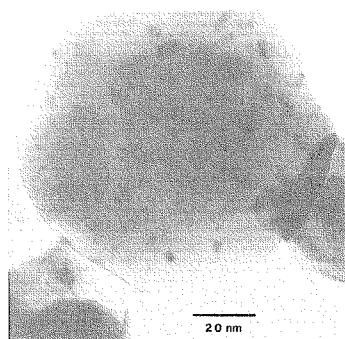


図 1-b
試料が室温で重イオン照射
した金微粒子の TEM 像。
黒い斑点は欠陥の集合体で
ある。よく見ると三角形に
見える（と思う）が、これ
らはよく知られた積層欠陥
四面体である。

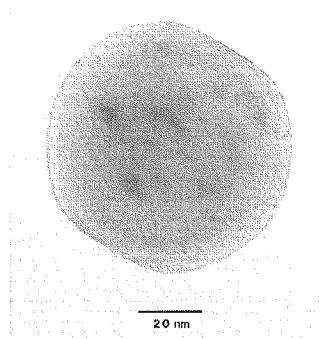


図 1-c
試料を 300°C にして重イ
オン照射した金微粒子の T
EM 像。図 1-b (室温照射)
と比較すると欠陥集合体
(黒斑) の大きさが大きくな
り数が少なくなっている
と見える。

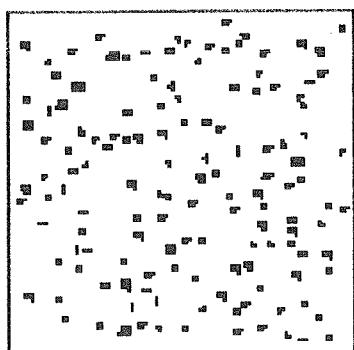


図 2-a
シミュレーションの結果
拡散係数小さいケース
四角枠は粒子境界を表す。
黒斑が 3-vacancy 以上の
クラスターである。数多く
の小さなクラスターが一様
に分布しているのが特徴。

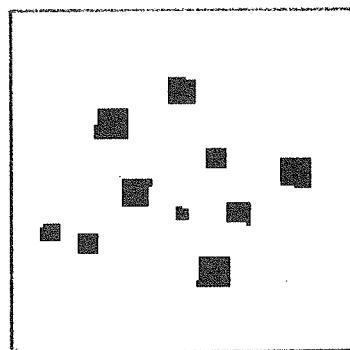


図 2-b
図 2-a に比べて拡散係数を
4000 倍にしたケース。
生成欠陥数は同じ。大きな
クラスターが疎に、中心寄
りに分布している。

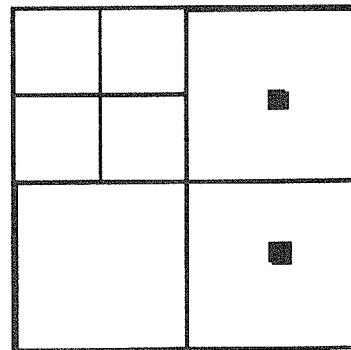


図 2-c
図 2-b の中にさらに境界
をつけて小さな粒子を模
擬。計算条件は図 2-b と
同じ。境界での消滅効果が
表れている、すなわちサイ
ズ効果。



JP0150945

JAERI-Conf 2001-014

3.4.6 Li_2TiO_3 セラミックスのイオン照射損傷

中沢哲也^a, V. Grismanov^b, 片野吉男^a, 有賀武夫^a, 八巻大樹^a, 実川資朗^a, 岩本昭^a

^a 日本原子力研究所 東海研究所 物質科学研究部

^b OECD Halden Reactor Project

1. はじめに

Li_2TiO_3 セラミックスは核融合炉における固体トリチウム増殖材料の候補材料である[1]。核融合炉稼働下, ${}^6\text{Li}(\text{n},\alpha){}^3\text{H}$ 反応によって生成する高速中性子, 高エネルギートリチウム(2.7MeV)及び高エネルギーヘリウム(2.1MeV)は Li_2TiO_3 内に照射損傷を引き起こす。その照射損傷によって材料内に生じた微細構造変化はトリチウム放出挙動や熱的及び機械的特性に大きな影響を与える。従って, Li_2TiO_3 の照射欠陥や微細構造変化を調べることはこの材料特性を評価するうえで必要である。

2. 実験方法

円板状 Li_2TiO_3 セラミックス ($10\text{mm}^\phi \times 1.0\text{mm}^t$) を種々の温度 (343-873K) でトリプルイオン照射 (0.25MeV H^+ , 0.6MeV He^+ , 2.4MeV O^{2+}) した。照射量が $1.0 \times 10^{21} \text{ ion/m}^2$ に達するまで各イオンを同時に照射した。一方、高速中性子による損傷を模擬するため, Li_2TiO_3 にタンデム加速器を用いて高エネルギー酸素イオン(30MeV)を $1.2 \times 10^{19} \text{ ions/m}^2$ まで室温で照射した。照射試料はラマン分光法, X 線回折法, そして走査型電子顕微鏡(SEM)を用いてそれぞれ調べた。

3. 結果及び考察

3.1 トリプルイオン照射

トリプルイオン照射した Li_2TiO_3 の表面に TiO_2 (アナターゼ)の生成をラマン分光法と X 線回折法で確認した。照射した Li_2TiO_3 の X 線回折パターン(C,D,E)と TiO_2 粉末及び未照射 Li_2TiO_3 の X 線回折パターン(A, B)を図 1 に示した。回折パターン(B)に観察されないピーク ($2\theta=25.2^\circ$) を回折パターン(C,D,E)は含んでいる。このピークは回折パターン(A)のもっとも大きなピークに相当する。この結果は照射によって試料表面に TiO_2 が生成したことを示している。トリプルイオン照射した Li_2TiO_3 のラマンスペクトルを図 2 に示した。未照射の Li_2TiO_3 と TiO_2 (アナターゼ)のラマンスペクトルを図 3 に示した。603K と 873K の温度で照射した Li_2TiO_3 のラマンスペクトルは TiO_2 のラマンスペクトルに酷似している。一方、343K の温度で照射した試料のラマンスペクトルは Li_2TiO_3 と TiO_2 のラマンスペクトルを重ねた形状に相当する。これらの結果からトリプルイオン照射下における Li_2TiO_3 表面での TiO_2 の生成に対する温度の効果はかなり大きいことがわかる。すなわち、照射中の温度が高ければ高いほど TiO_2 の生成はより効率的であると考えられる [2]。同様の傾向が X 線回折パターン(図 1)からも知ることができる。

温度の上昇は材料を構成する原子の格子振動を強める。そのため、照射の際の加熱は入射イオンによる原子のはじき出しを助長し、はじき出された原子の拡散を促進する[3]。このような温度の効果が TiO_2 の生成を増加したと考えられる。そこで、 Li_2TiO_3 に対するトリプルイオン照射の損傷パラメータを TRIM コード[4]を用いて評価した。各原子のはじき出しエネルギーを 40eV と仮定して計算を行った。 $1.0 \times 10^{21} \text{ ion/m}^2$ まで照射したときの損傷ピークの最大値は $2.2\mu\text{m}$ の深さで約 9dpa であった。照射による電子的阻止能(Se)によって付与されたエネルギーの積分値は表面近傍の約 $0.5 \mu\text{m}$ で 1000 Gy と計算された(図 4, 5)。今後、照射による TiO_2 の生成挙動と損傷パラメータの関係について系統的に調べる必要がある。

3.2 30MeV 酸素イオンによる照射

30MeV 酸素イオンを照射した Li_2TiO_3 セラミックスの断面 SEM 写真を図 6 に示した。照射した試料の表面層における粒界の消失が確認できる。この粒界の消失からあたかも結晶粒が照射によって溶けた様子がうかがえる。この現象は表面から約 $15-20\mu\text{m}$ の範囲で観察され、損傷領域が TRIM の計算結果とよく一致している(図 4, 5 参照)。

酸素イオン照射した Li_2TiO_3 のラマンスペクトルと X 線回折プロファイルのピーク強度の減少がそれぞれ観察された。この結果は照射した Li_2TiO_3 の表面層で結晶格子の無秩序化が起きたことを示している。しかしながら、 $1.2 \times 10^{19} \text{ ion/m}^2$ まで照射した Li_2TiO_3 のラマンスペクトルと X 線回折プロファイルのピークが完全に消滅していないことから、照射によるこの無秩序化は完全な非晶質化に達していないと考えられる。また、この表面付近の非晶質化は Se によって付与されたエネルギーが引き起したものと考えられる[5]。

一方、酸素イオン照射した Li_2TiO_3 のラマンスペクトルと X 線回折プロファイルからはトリプルイオン照射では生成した TiO_2 を確認することはできなかった。TRIM の計算結果（図 4, 5）からトリプルイオン照射によって Li_2TiO_3 内に付与した電子的阻止能とはじき出し損傷(Sn)は酸素イオン照射によってもたらされたそれらの量のそれぞれ約 150 倍、約 60 倍とかなり大きい。おそらく、照射による TiO_2 の生成は材料内に付与する Se と Sn の量と密接に関連していると考えられる。このことから、 Li_2TiO_3 表面層での照射による TiO_2 の生成には、高密度 Se の付与と Sn が必要と推察される。

4. 結論

H^+ , He^+ , O^{2-} イオンの同時照射は Li_2TiO_3 表面を改質することがわかった。ラマン分光分析と X 線回折から Li_2TiO_3 表面にアナターゼ構造の TiO_2 が照射によって生成することを確認した。 TiO_2 の生成は入射イオンによる Se と Sn の相乗効果に起因していると考えられた。

酸素イオン（エネルギー：~MeV）を照射した Li_2TiO_3 のラマン分光分析と X 線回折から Li_2TiO_3 結晶構造は照射によって無秩序化することがわかった。さらに、SEM 観察から Li_2TiO_3 表面層での粒界構造の消失を確認した。

参考文献

- [1] P. Gierszewski, *Review of properties of lithium metatitanate*, Report no. CFTP G-9561, 1995.
- [2] T. Nakazawa, V. Grismanovs, D. Yamaki, Y. Katano, T. Aruga and A. Iwamoto, IEEE Trans. Nucl. Sci. (2001) in press.
- [3] T. Iwata and T. Nihira, *J. Phys. Soc. Japan*, vol. 31, pp. 1761-1783, 1971.
- [4] J.F. Ziegler, J.P. Biersack and U. Littmark, *The Stopping and Range of Ions in Solids*, Pergamon, Oxford, 1985.
- [5] T. Aruga, Y. Katano, T. Ohmichi, S. Okayasu and Y. Kazumata, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B*, 166-167 (2000) 913.

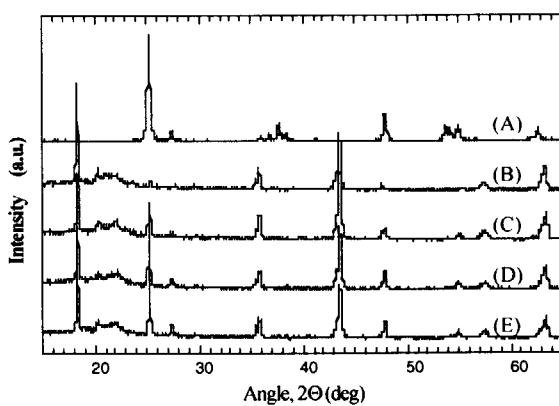


図1. 種々の温度でトリプルイオン照射した Li_2TiO_3 の X 線回折プロファイル。 (A): TiO_2 アナターゼ, (B): 未照射 Li_2TiO_3 , (C): 343K, (D): 603K, (E): 873K

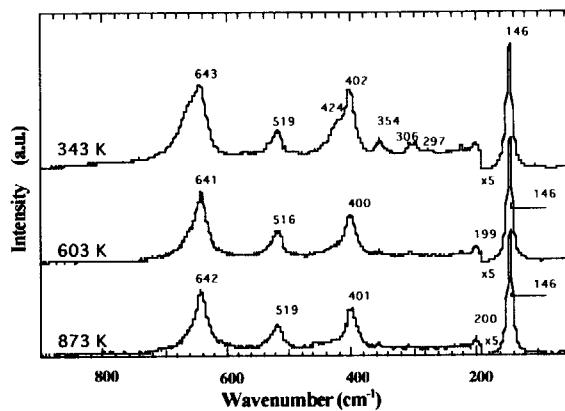


図2. 種々の温度でトリプルイオン照射した Li_2TiO_3 のラマンスペクトル。 190cm^{-1} 以上に観察されるピークの強度は 5 倍してある。

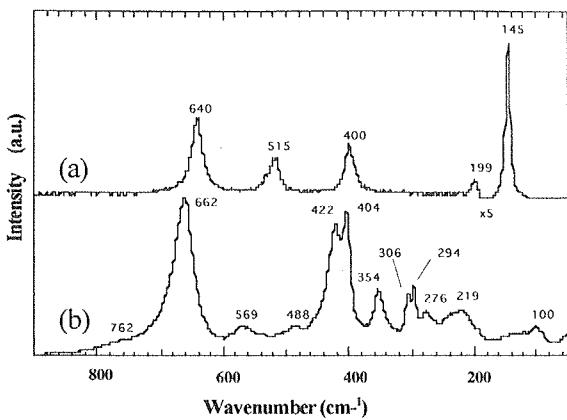


図3. TiO_2 アナターゼ(a)と未照射 Li_2TiO_3 (b)のラマンスペクトル。
190 cm^{-1} 以上に観察されるピークの強度は5倍してある。

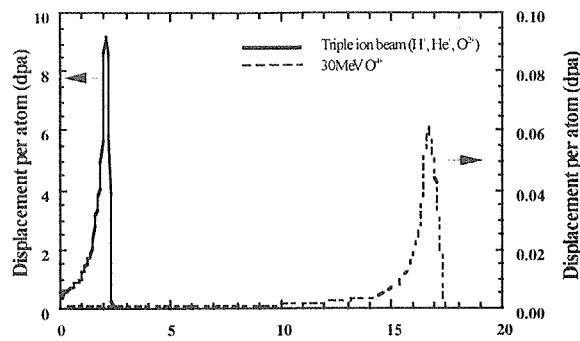


図4. トリプルイオン照射($1.0 \times 10^{21}\text{ions/m}^2$)と酸素イオン照射($1.2 \times 10^{19}\text{ions/m}^2$)におけるはじき出し損傷(Sn)の深さ分布。

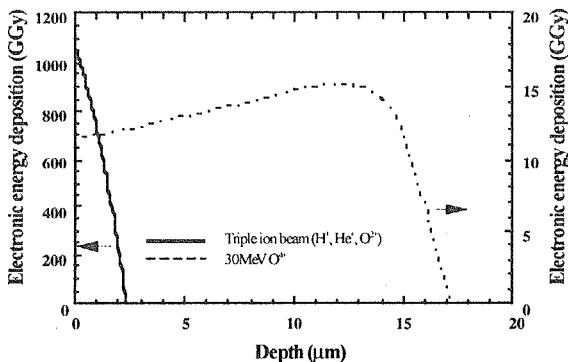


図5. トリプルイオン照射($1.0 \times 10^{21}\text{ions/m}^2$)と酸素イオン照射($1.2 \times 10^{19}\text{ions/m}^2$)における電子の阻止能(Se)によって付与されたエネルギーの積分値の深さ分布。

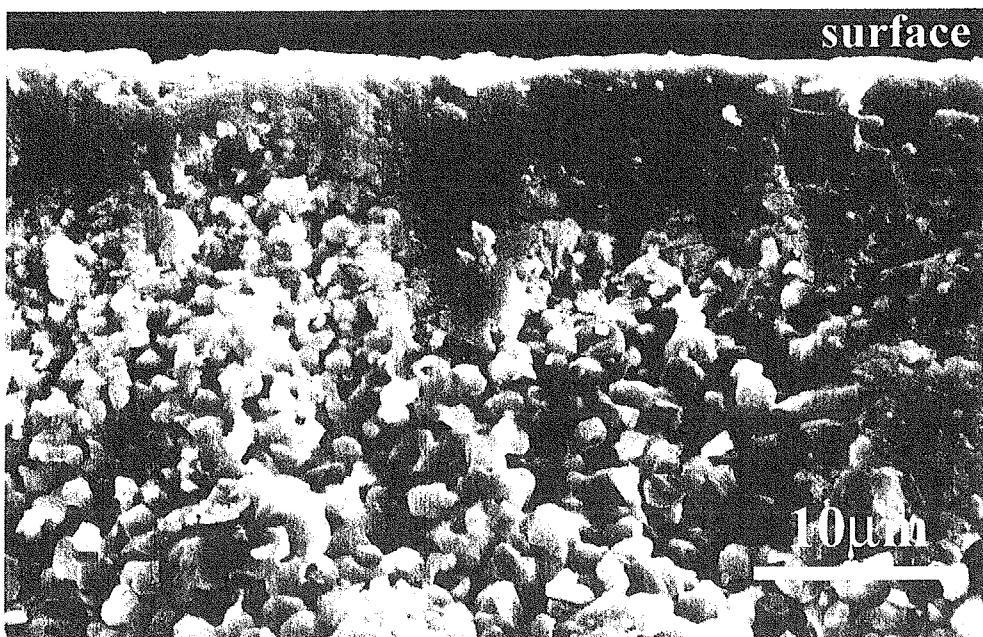


図6. 30MeVの酸素イオン照射した Li_2TiO_3 の断面SEM写真。照射量: $1.2 \times 10^{19}\text{ions/m}^2$ 。



JP0150946

JAERI-Conf 2001-014

3.4.7 高エネルギー粒子照射したパラジウム-水素系における水素原子の緩和 THERMAL RELAXATION OF HYDROGEN DISORDERING IN Pd-H SYSTEM IRRADIATED WITH HIGH-ENERGY PARTICLES

岩瀬彰宏¹、知見康弘¹、足立耕一^{1, 2}、石川法¹、山川浩二²
A. IWASE¹, Y. CHIMI¹, K. ADACHI^{1,2}, N. ISHIKAWA¹, K. YAMAKAWA²
¹日本原子力研究所 物質科学部研究部; ²愛媛大学 工学部

¹Department of Materials Science, Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI); ²Faculty of Engineering, Ehime University

水素を大量に含むパラジウム（Pd-H 系）では、いろいろな物性（比熱、内部摩擦、電気抵抗等）が50K付近で奇妙な振る舞いをすることが見出されている。これは50K異常(50K anomaly)と呼ばれる現象であり、その後の中性子回折の実験などにより、Pd 原子で形成される八面体の中心の格子間位置にある水素原子の配置が、低温になるに従い不規則な状態から長距離秩序を持つ状態に移るためであることが判った[1]。また、水素を Ni 原子に、そして水素で占められない八面体格子間位置（水素の「空孔」）を Mo 原子に対応させることにより、この長距離秩序状態は Ni_nMo 合金の規則相と類似することも知られている。Pd-H 系でみられる規則-不規則転移は水素の熱運動に伴うものであるから、試料を高温から急冷すると高温の状態が凍結され、低温でも水素の不規則化状態を得ることができる。一方、高温から徐冷した場合、水素は低温での熱平衡状態である長距離秩序状態になる。この状態で試料を高エネルギー粒子照射すると、主に水素原子が熱平衡位置から弾き出され、長距離秩序は破壊されるであろう。しかし、低温において実現したこれら水素の不規則化状態は、試料温度を上昇させるにつれて水素が熱拡散し長距離秩序を取り戻すと考えられる。急冷によって得られた不規則化状態から規則化状態への水素の緩和過程と、低温照射によって得られた不規則化状態からの緩和過程の違いを見るのが本研究の目的である。

実験は、以下のように行った。電解法によって得られた PdH_{0.6} 薄膜を 10K に徐冷し、その温度で 60 MeV の炭素イオンを照射して、電気抵抗を照射量の関数として測定した。比較の為に、水素をドープしない Pd においても、同時に照射・測定を行った。照射後、試料の温度を一定速度で上昇させることにより、水素が不規則化状態から熱平衡状態へと緩和していく様子を電気抵抗測定により調べた。また、高温からの急冷によって水素の不規則化状態を実現した試料における緩和過程も調べた。

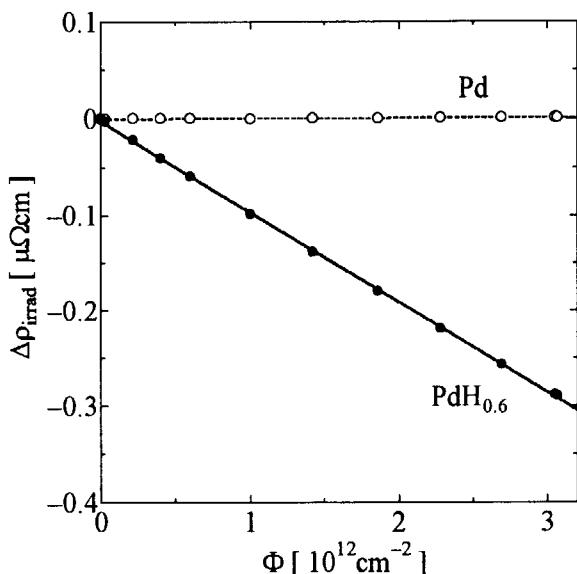


図 1 10K における電気抵抗率変化量の照射量依存性

図 1 は、10K における電気抵抗率変化量の照射量依存性を示す。Pd 試料では、照射により抵抗率はほとんど変化しない。これは、本実験の照射量では、照射による Pd 格子への損傷生成は無視できることを意味する。それに対して、Pd-H 試料では照射と共に抵抗率が減少する。Pd-H 系の場合、水素が不規則化したほうが、規則化した場合よりも電気抵抗が小さくなることが良く知られている。従って、図 1 は、炭素イオン照射によって水素が不規則化することを示すことになる。図 2 は、照射後及び急冷後の昇

温過程において、水素が不規則化状態から熱平衡状態（規則化状態）へ緩和していく様子を試料温度の関数として示す。図には、3種類の昇温速度(2度/分、5度/分、10度/分)において得られたデータを同時にプロットしてある。昇温速度の大きい方が緩和過程は高温側にシフトしているが、この緩和現象が水素の熱運動によるものであることを考えると、これは当然の結果である。

図から判るように、急冷による不規則化状態の緩和過程と照射による不規則化状態の緩和過程は大きく異なる。前者は55-60Kを中心に緩和が起こるのに対し、後者では、それに加えて、より低温(35-40K付近)での緩和も生じている。この違いが何であるかは未だ明確ではないが、電子線照射したNi₄Mo合金でみられる構造変化[2]からの類推により、次のような可能性が考えられる；高温からの急冷で得られた水素の不規則化状態は完全な不規則化状態ではなく、短距離秩序を持っていると考えられる。55-60K付近で見られる緩和過程は、この短距離秩序状態から熱平衡状態である長距離秩序状態への緩和過程であろう。一方、低温でのイオン照射は水素原子をランダムに弾き出し、しかも弾き出された水素は低温では熱運動できない。つまり、低温照射は、長距離秩序だけでなく短距離秩序をも破壊する。従って、35-40Kでの緩和は完全な不規則化状態から短距離秩序状態への緩和、続く55-60K付近の緩和は、急冷した場合と同じく、短距離秩序状態から長距離秩序状態への緩和であろう。

実験およびデータ解析方法の詳細については、文献[3]を参照されたい。

References

- [1] O. Blaschko, J. Less-Common Met. 100(1984) 307.
- [2] S. Banerjee, K. Urban, M. Wilkens, Acta Metall. 32(1984) 299.
- [3] Y. Chimi, K. Adachi, A. Iwase, N. Ishikawa, K. Yamakawa, J. Alloys Compounds (2001) in press.

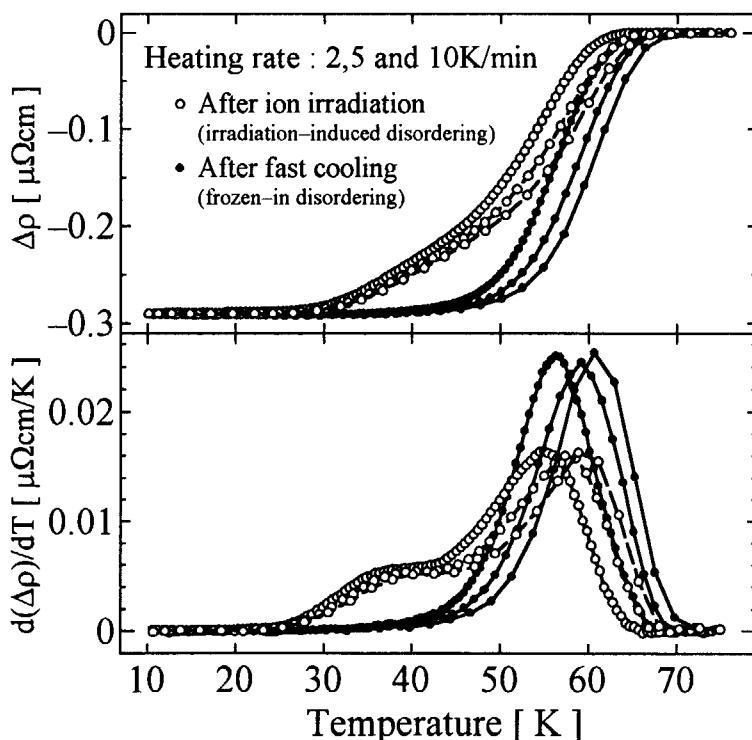


図2 水素の不規則化状態の熱的緩和過程



JP0150947

JAERI-Conf 2001-014

3.4.8 電子線照射したステンレス鋼の損傷組織に及ぼす注入 He の深さ分布の影響

Effect of implanted-helium depth profile on damage structures
in electron-irradiated stainless steel

有賀 武夫、片野 吉男
Takeo Aruga and Yoshio Katano

原研 物質科学研究所部
Department of Materials Science, Japan Atomic Energy Research Institute,

1. はじめに

金属材料中のヘリウム(He)は、材料の強度を低下させたり気泡の形成を促し材料の寸法変化を引き起こすことが知られている。また、ステンレス鋼中の He 気泡の形成は溶質原子の偏析や相の不安定性と密接に関係するがこと報告されている [1,2]。一方、室温で約 110at.ppm の He を予注入したステンレス鋼を Ni イオンで 823K の高温で照射した場合、He 気泡の形成が著しく抑制されることが知られている[1]。最近、核破碎中性子源で使用される材料の健全性に対する理解の必要性から、より高い濃度の He を含む材料の照射挙動に興味がむけられるようになった[3]。核破碎中性子源のターゲット材料では、He の生成率は 260 at.ppm/dpa と予測されている[4] (dpa は displacement per atom, 格子位置からの平均のはじき出し回数で、照射損傷の単位)。

ここでは、室温で He を予注入した 316 ステンレス鋼試料を超高压電子顕微鏡で電子線を照射しながら、損傷組織をその場観察した結果を報告する。

2. 実験方法

使用した材料は、0.06 C, 0.028 P, 0.004 N, 0.61 Si, 2.46 Mo, 1.80 Mn, 16.75 Cr, 13.52 Ni (質量 %、Fe がバランス) なる組成の 316 ステンレス鋼で、0.2 mm 厚さの試料を溶体化処理した後、原研のバンデグラフ加速器を用いて 3.0 MeV の He イオンを 433 K で 10 mA/m² の電流密度で $9 \times 10^{19}/m^2$ まで照射した。He が注入された試料の両面に ~2 mm の Ni メッキを施したあと、イオンの注入方向と平行に損傷組織が観察できる試験片を断面研磨法[5]によって作製し、加速電圧 1MeV の超高压透過電子顕微鏡 JEM-1000D を用いて 823 K で電子線を照射しながら損傷組織の変化をその場観察した。直径 5 μm の電子ビームの強度は $4 \times 10^{23}/m^2 s$ であり、ステンレス鋼では $1.8 \times 10^{-3} dpa/s$ の損傷速度に相当する。照射は約 5 h (32 dpa) 続けた。

3. 結果と考察

He を注入したままの試料で観察された、イオンの入射方向に沿った損傷組織を照射電子ビームの形状とともに Fig. 1 に示す。表面から 4.6~5.5 μm の深さに 2~5 nm の大きさの欠陥集合体が観察される。TRIM コード[6]を使用した計算の結果、Fig.2 に示すようにこの He イオン照射で 5.0~5.1 μm の平均飛程にピークで 3000 at.ppm の He が注入され最大 0.2 dpa のはじき出しが生じる。深さの巾 0.1 μm 每に測定した欠陥集合体の数密度を Fig.3 に示す。図から数密度は 4.6 μm の深さから増加し 5.1 μm 付近でピークとなった後急激に減少する。この 5.1 μm を中心とする非対称な分布形状は、He イオン注入に伴う原子のはじき出し数の深さ分布の計算結果とは対応せず、計算された注入 He の深さ分布とよく合う。原子のはじき出し数の分布に關係して集合体が形成されたとすれば、3~4 μm の深さでも、ピーク値の~1/10 の密度の集合体が観察される筈であるが、この深さの領域には集合体は形成されていない。このことは、He 注入に伴って造られた点欠陥が 433 K の注入温度で He を核として欠陥集合体を形成したこと示している。

組織変化を観察しながら、イオンのピーク飛程を中心に 1MeV の電子線を 823 K で照射したときの損傷組織の変化は、非注入材と比べて著しく遅い。電子線の照射量が 0.4 dpa では、注入したままの試料で

観察された欠陥集合体のサイズが少し大きくなつたと認められるものの、イオンのピーク飛程から $1\sim2\text{ }\mu\text{m}$ 離れた場所でも、顕著な組織変化は起きない。照射量が $7\sim19\text{ dpa}$ に増加すると微細な転位ループと認められる欠陥集合体が、分離して計測できない程度の高密度で形成される。また、イオンのピーク飛程の両側にループの数密度が周囲より低い領域が帯状に認められる。この領域の巾はピーク飛程の前側では後ろ側より大きく、それぞれ 0.7 と $0.3\text{ }\mu\text{m}$ である。ループの数密度が比較的低い領域の巾がピーク飛程の両側に非対称で出現したことは、注入 He 分布の非対称さと対応している。このことは一定の He 濃度では転位ループの形成が抑制されることを示唆している。He 原子の拡散を考えなければ、対応する He 濃度は $200\sim300\text{ at.ppm}$ である。

照射を 32 dpa まで続けると、ループの数密度が周囲より低い、帯状の領域が不鮮明になるとともに、高度に絡み合つて発達した転位組織が電子線照射領域全体に形成される。しかし、観察可能なキャビティはどこにも認められない。同じ 316 ステンレス鋼の非注入材と同じ 823 K の温度で 30 dpa まで電子線照射した場合、平均径 80 nm のボイドが $2\times10^{20}/\text{m}^3$ の高い密度で形成され、これによるスウェーリングは 5.8% である。両者の損傷組織を比較して Fig.3 に示す。He 注入材でキャビティの形成がほぼ完全に抑制されたことは、高密度に生成した He を核とする点欠陥の集合体が電子線照射で造られた点欠陥の消滅場所として有効に働きキャビティ形成に寄与すべき空格子点の過飽和度を低下させたことによるものと考えられる。さらに、電子線照射量が $\sim30\text{ dpa}$ になると Fig. 4 に示す様に、一定の晶癖面に形成された大きさ $20\sim40\text{ nm}$ で板状の析出相が、計算された注入 He の分布する領域を中心に認められる。析出物は $3.5\text{ }\mu\text{m}$ の深さから認められるが、その数密度は $4.8\text{ }\mu\text{m}$ の深さで急激に増加し $5.1\sim5.2\text{ }\mu\text{m}$ の深さで $8\times10^{21}/\text{m}^3$ のピークに達した後緩やかに減少し $\sim6\text{ }\mu\text{m}$ の深さまで分布する。深さの巾 $0.1\text{ }\mu\text{m}$ 毎に計測した、析出物の数密度を計算された注入 He の分布と比較して Fig.5 に示す。図から析出相は He と密接に関係して形成されたこと、さらに、電子線照射下では He 原子がピーク飛程を $\sim1\text{ }\mu\text{m}$ 超える深さまで、急峻な濃度勾配に沿って拡散したことを見ている。

316 鋼の類似または改良鋼に室温で $20\sim200\text{ at.ppm}$ の He を予注入後、これらの試料を $800\sim900\text{ K}$ の温度で Al-または Ni イオンを照射する[7,8]と、二重ビーム照射に比べてキャビティによるスウェーリングが著しく抑制される。さらに、室温で 110 at.ppm の He を予注入後、高速炉中性子で 8.4 dpa まで照射した場合もスウェーリングが著しく抑制されることが報告されている[9]。金属中に注入された He は照射で造られる点欠陥の対消滅場所として有効に働くことが、照射誘起逆偏析の結果から示されている[10]。今回の結果から、十数 μm 厚さのステンレス鋼に $\sim500\text{ at.ppm}$ の He を均一に予注入することは現実的に可能と考えられるので、これらを重ね合わせた材料が製作できれば、室温から 820 K の範囲で、照射量 $\sim30\text{ dpa}$ まで寸法変化せずに照射に耐えることが期待される。

透過電顕用断面研磨試験片は、濱田省三博士が作製した。記して謝意を表します。

REFERENCES

- [1] E. A. Kenik, J. Nucl. Mater., vol. **85&86**, pp. 659-663, 1979.
- [2] T. Aruga, Y. Katano, K. Shiraishi, J. Nucl. Mater., vol. **122&123**, pp. 1401-1405, 1984.
- [3] E. H. Lee, J. D. Hunn, T. S. Byun, L. K. Mansur, J. Nucl. Mater., vol. **280**, pp. 18-24, 2000.
- [4] M. S. Wechsler, et. al., J. Nucl. Mater., vol. **244**, pp. 177-184, 1997.
- [5] S. Hamada, M. Tanaka and K. Shiraishi, J. Nucl. Mater., vol. **114**, pp. 338-340, 1983.
- [6] J. F. Ziegler, et al., The stopping and Range of Ions in Solids, New York : PergamonPress, 1985.
- [7] N. H. Packan, K. Farrell, J. Nucl. Mater., vol. **85&86**, pp. 677-681, 1979.
- [8] N. Sekimura, H. Kawanishi, M. Nodaka, S. Ishino, J. Nucl. Mater., vol. **122&123**, pp. 322-326, 1984.
- [9] P. J. Maziasz, J. Nucl. Mater., vol. **108&109**, pp. 359-384, 1982.
- [10] A. Iwase, L. E. Rehen, P. M. Baldo, L. Funk, J. Nucl. Mater., vol. **271&272**, pp. 321-325, 1999

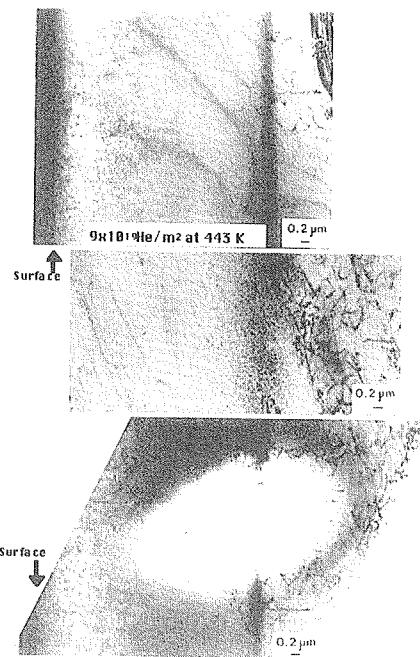


Fig. 1 Cross-sectional microstructures in the sample as-irradiated with 3.0 MeV He ions (top), defect clusters formed around the ion-ranges (middle) and the photograph showing the electron irradiation area centered on the He-damaged depths (bottom).

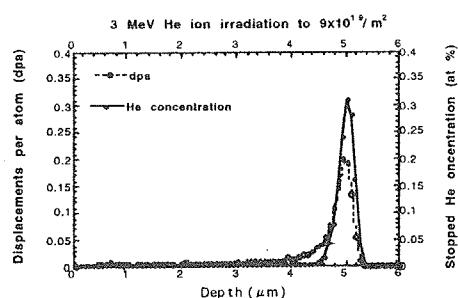


Fig. 2 Depth profile of damage parameters for 3.0 MeV He-ion irradiation to a dose of $9 \times 10^{19}/\text{m}^2$, as calculated by TRIM code.

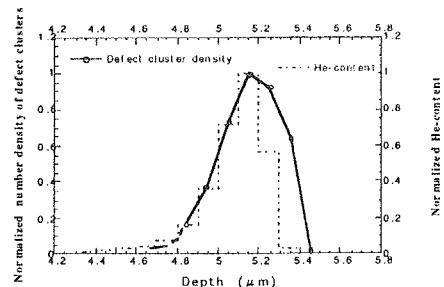


Fig. 3. Depth profile of the number densities of defect clusters formed in the sample as-irradiated with He-ions.

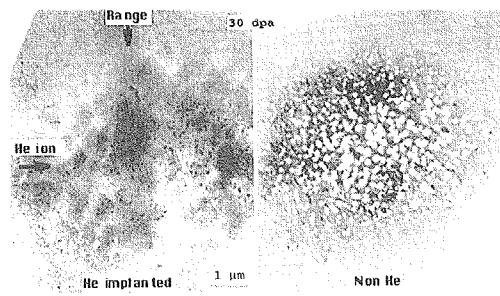


Fig. 4. Comparison of damage structures produced in the sample pre-injected with He and the one non-injected, for the electron irradiation at 823 K to ~ 30 dpa.

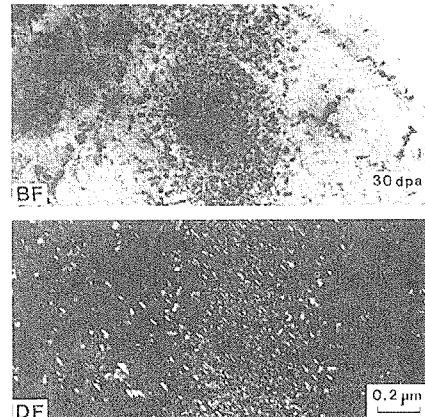


Fig. 5 Precipitates formed around the He-ion ranges in the sample irradiated with electrons at 823 K to 32 dpa..

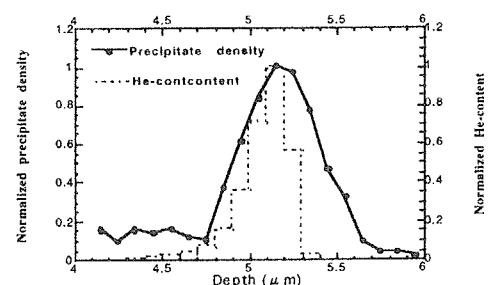


Fig. 6 Depth profile of the number densities of precipitates formed in comparison with that for calculated He-content : both normalized the peak values.



JP0150948

JAERI-Conf 2001-014

3.4.9 高エネルギー重イオン照射を利用した 圧力容器鋼照射脆化機構の研究

USE OF HIGH ENERGY HEAVY ION IRRADIATIONS FOR THE STUDY OF RADIATION EMBRITTLEMENT IN PRESSURE VESSEL STEELS

長谷川忠之^{1,2} 森田憲二^{1,2} 石野栄¹ 知見康弘² 石川法人² 岩瀬彰宏²
飛田徹³ 鈴木雅秀³

T.HASEGAWA^{1,2}, K.MORITA^{1,2}, S.ISHINO¹, Y.CHIMI², N.ISHIKAWA², A.IWASE²
T.TOBITA³ AND M.SUZUKI³

¹ 東海大学; ² 原研 物質科学研究所; ³ 原研 原子炉安全工学部

¹TOKAI UNIVERSITY; ²JAERI / DEPARTMENT OF MATERIALS SCIENCE;

³JAERI / DEPARTMENT OF REACTOR SAFETY RESEARCH

軽水炉圧力容器(RPV)は全供用期間を通じて極めて高い信頼性が要求される機器であるが、その劣化原因は多様かつ複雑である。中でも高速中性子を主とした中性子照射脆化は原子炉特有の最も重要な原因の1つであり、とりわけ鋼材中の代表的な不純物元素であるCuが関与する“中性子照射→Cu析出物の形成→降伏応力の上昇”という脆化に至るプロセスは未だにその詳細が明らかになっていない。またγ線効果のような、これまで重要視されていなかった現象の影響が近年、明らかになってきており、現行の現象論的評価ではなく物理的機構に基づく評価手法を確立することが世界的規模での命題となっている。

脆化現象を模擬する照射手段の多くは研究炉等を用いた中性子照射であるが、中性子照射は照射パラメータを独立に変化させること、或いは制御することは困難である。これに対し、イオン照射はそれらの操作性が比較的容易である。また損傷導入速度が高く、現在稼働中の実機と比較してごく短時間で同程度の損傷量を達成できる。更に、照射材の放射化を低減でき、多くの場合で照射後の特性変化の測定にホットラボといった特殊な施設を必要としない。一方、損傷分布が不均一であることは否めないが、高エネルギー重イオン照射を利用することで従来の低エネルギー重イオンの弱点であった“飛程の短さ”を克服することが可能となる。これらの特徴をよく理解して用いることで、イオン照射はその物理的機構を解明するための有効な手段と成り得る。そこで我々はCuの影響に着目しRPV鋼のモデルであるFe-Cu合金に対してCu量や照射温度、損傷量(照射量)、損傷速度をパラメータとした高エネルギー重イオン照射を行い、機械的特性変化の指標である硬さ試験から、脆化現象に関する基礎的知見を得ることを目的に実験を行った。また先述のごとく、イオン照射は損傷分布が不均一なため、イオンの入射方向に対する硬さ変化(荷重依存性)についても調べた。

用いた合金はCu量0.02~1.2wt%のFe-Cu合金であり7mm角、厚さ1mmに成形後、照射面に機械研磨を施し、温度<20°C、電圧35V、CH₃COOH:HClO₄=1:9~9.5の混合溶液中で電解研磨を行い試料とした。合金の成分を表1に示す。試料は各1種類、計4枚を試料ホルダー上に配置し、各試料毎に照射・非照射領域を設けるためステンレス製マスクで覆った。照射は原研東海のタンデム加速器を用い、200MeV Auイオンおよび200MeV Niイオンを照射した。照射後、Vickers型の圧子を用いた試験機で照射・非照射領域の硬さを測定し、その変化量△HVを評価指標とした。試験機には明石製作所製

MVK-E MICROHARDNESS TESTER および島津製作所製 DUH-201S を用いた。硬さ試験は荷重依存性については 3~100gf で、損傷量および損傷速度依存性については 3gf で、それ以外は 10gf の荷重で行った。

図 1a および 1b に Ni、Au 照射後の硬さ変化の荷重依存性を示す。硬さ試験では歪み場の影響等から、圧子は侵入深さの 3 倍[1]ないし 5 倍[2]と数倍先までの情報を拾ってしまう。本研究での Ni 照射材に関して低 Cu 試料では明瞭ではないものの、高 Cu 試料では表面から 2~3 μm 付近に $\angle HV$ の明瞭なピークが見られる。よってほぼ 5 倍先までの硬さを見ていると言える。一方、Au 照射材では 0.6Cu 試料がピーカーを持たず表面付近ほど $\angle HV$ が上昇している。照射量を更に増やした同様の実験でも同じ結果が得られたことから(図は省略)、非弾性衝突によるエネルギー損失が欠陥生成に関与[3]している可能性も考えられる。図 2 に 250°C 照射材に関する硬さ変化の Cu 量依存性を示す。低照射量では Cu 量の差異が顕著ではないが高照射量になると明瞭になり Cu 量のルートに比例する傾向が現れ Dispersed Barrier Hardening モデルと一致する。また、室温照射材ではその様な傾向が見られなかったことから、照射量と照射温度がある一定の値を越えるという条件が必要であると考えられる。つまり析出物のサイズを一定と仮定した場合、その条件では密度が増加することで硬化が進行すると考えられる。図 3 に照射温度依存性を示す。高 Cu 試料では照射温度依存性が高いが低 Cu 試料でのそれは低い。また 250°C ~ 300°C に $\angle HV$ のピークが見られる。これは室温程度では Cu の移動度が低いため $\angle HV$ が顕著になるほどに集積できず、一方 300°C を越える高温では析出物の粗大化により $\angle HV$ が減少すると考えられる。原子炉の運転温度付近で最も硬化が進行するという実験事実は興味深い。図 4 は硬さ変化の損傷量依存性である。尚、損傷量(dpa)は TRIM コード[4]を用いて計算した。 $\angle HV$ の増加傾向は電子線照射と同様であり、また高 dpa では中性子照射と同様、飽和する[5]傾向が見られる。イオン照射が同 dpa で電子線照射より $\angle HV$ が低いのは、以下の損傷速度の影響が大きいと考えられる。図 5 はその損傷速度の関数として $\angle HV$ を表したものである。高 Cu 試料かつ低損傷速度で $\angle HV$ 上昇が顕著であり、 $\angle HV$ は損傷速度の $-1/5$ ~ $-1/3$ 乗に比例する結果が得られた。また上述の損傷量依存性における Au 照射の損傷速度を、その累乗則に従って電子線照射と同程度に換算すると、 $\angle HV$ がよく一致することが判った。

References

- [1] 岩切宏友, 渡辺英雄, 吉田直亮, 「超微小押込み試験法によるイオン照射したモリブデンの硬度評価」, 九州大学応用力学研究所所報 第 82 号(平成 9 年).
- [2] 鈴木敬愛, 大村孝仁, トライボロジスト 40(1995), 205.
- [3] 例えは, Y.Chimi et al., Mat.Res.Soc.Symp.Proc.Vol.504 (1998), 221.
- [4] J.P.Biersack and L.G.Haggmark, Nucl.Instr. Meth. 174 (1980), 257.
- [5] 飛田他, 日本原子力学会 2000 年春の年会(愛媛大学), 講演予稿集第 3 分冊, 1066.

表 1 Fe-Cu 合金^{*1} の成分^{*2} (単位は wt%)

ALLOYS	Cu	C	Si	O	N	Fe
Fe-0.02Cu	0.022	0.003	0.003	0.015	0.0006	
Fe-0.1Cu	0.10	0.002	0.003	0.014	0.0005	Bal.
Fe-0.6Cu	0.61	0.002	0.002	0.015	0.0006	
Fe-1.2Cu	1.19	0.002	0.001	0.016	0.0006	

*1:850°C、2h の溶体化処理後に WQ *2:分析は(株)日立協和エンジニアリングによる

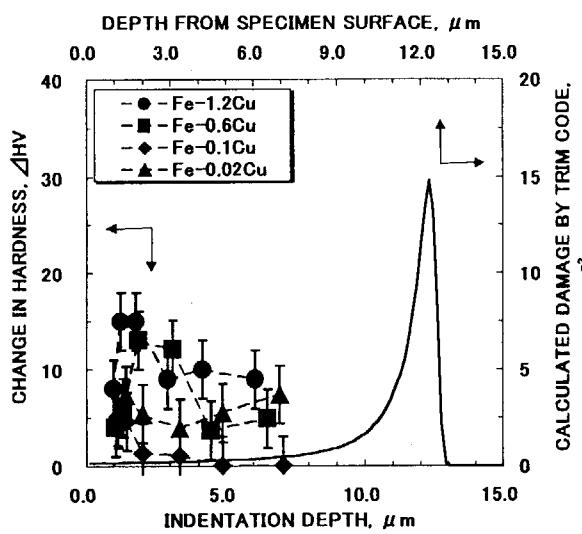


図 1 a. 硬さ変化の荷重依存性
(室温、Ni、 1.5×10^{13} IONS · cm⁻²)

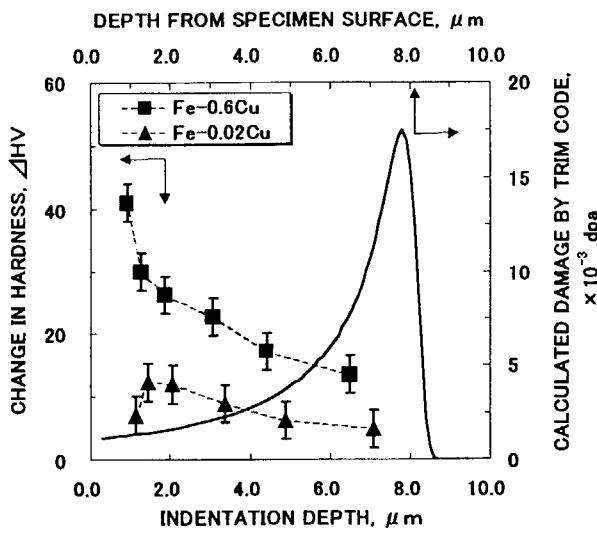


図 1 b. 硬さ変化の荷重依存性
(室温、Au、 5.7×10^{12} IONS · cm⁻²)

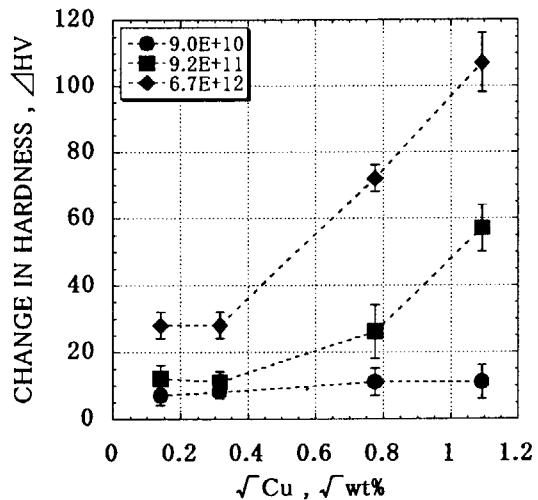


図 2. 硬さ変化のCu量依存性
(250°C、照射量の単位は IONS · cm⁻²)

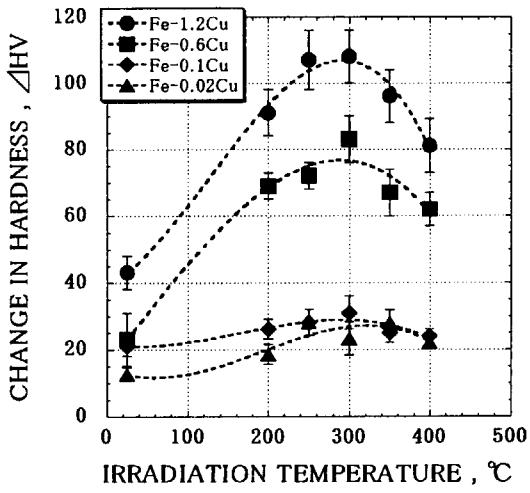


図 3. 硬さ変化の照射温度依存性
(照射量 $5.0 \sim 6.7 \times 10^{12}$ IONS · cm⁻²)

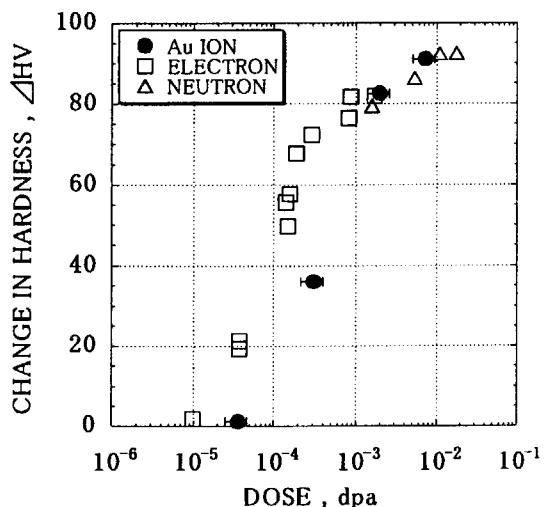


図 4. 硬さ変化の損傷量依存性
(250°C 照射)

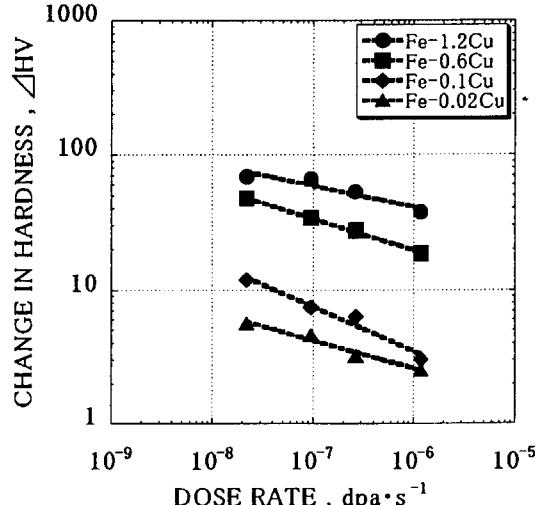


図 5. 硬さ変化の損傷速度依存性
(250°C、 4.4×10^{-5} dpa 照射)



JP0150949

JAERI-Conf 2001-014

3.4.10 重イオンマイクロビームを用いた半導体素子のSEU解明に関する研究

The investigation of SEU induced in semiconductor devices by heavy ion microbeam

平尾 敏雄、Jamie. S. Laird, 森 英喜*、小野田 忍*、伊藤 久義
原研高崎、東海大学工学科

T. Hirao, J.S. Laird, H. Mori*, S. Onoda*, H. Itoh
JAERI, Tokai University*

1. はじめに

近年、急速に発展した半導体素子は、軽量、小型高性能、低消費という特徴から、容積、重量、電力に厳しい制限のある科学衛星及び気象衛星などに使用されている。しかし、宇宙空間のような放射線環境下で使用する場合、半導体素子と放射線との相互作用により様々な影響を受けることはよく知られている。特に人工衛星に搭載されている半導体デバイスに、高エネルギーをもった粒子が通過した場合、その飛跡に沿って発生した電荷が雑音電流となり、その大きさが回路の溶断やデジタル情報の反転などの故障や誤動作を引き起こすソフトエラーやラッチアップなどのシングルイベント現象が大きな問題となっている[1,2]。

我々は、シングルイベントの発生機構の詳細な解明を目的とし半導体素子の基本構造であるp-n接合ダイオードに重イオンが入射したときに発生するピコ秒台のシングルイベント過渡電流を計測し、その時の発生電荷量とイオン種との関係から機構解明を目指している[3-6]。本報告では、この研究を行うために開発した新たな測定手法とそれらを用いた実験結果さらに今後の展開について述べる。

2. 新たな測定系の構築について

これまでシングルイベント現象の解明を目指し、シリコンおよびガリウム砒素で構成した試料に重イオンを照射して発生する電荷量を求めてきた。その結果、高LETを持ったイオンが入射した時に発生する電荷量は、入射イオンのLETの増加に伴い増加し、印加電圧に依存することなどの結果が得られている。さらにシングルイベントの耐性を強化するには、SOI構造を備えたデバイスが有効であるとの結果も得られている[7]。しかし、これらの実験の中で、重イオンが入射した際に発生するシングルイベント過渡電流波形の放射線損傷による低下も見られており、詳細な発生機構を解明する上で大きな障害となっている。そこで重イオンの入射に伴う放射線損傷を軽減する測定システムの開発が急務となっていた。

我々は、高周波帯域で構築したシングルイベント過渡電流測定システムと重イオンマイクロビームラインに設置されているシングルイオンヒットシステム[8]を組み合わせた新たな測定システム(TIBIC)を開発した[9]。このTIBICシステムは、図1に示すように、シングルイベント過渡電流測定システム、パルス発生器、高速ビームシャッターから構成されており、それらは全て測定用計算機にて制御およびデータの取り込みが行われている。またこのシステムでは、目的とした位置に入射するイオンの数を制限でき、さらに粒子1ヶでのスキャン照射を行うことができる等の特徴を備えている。したがって、入射粒子における放射線損傷の影響を軽減するとともに、イオンの入射位置におけるシングルイベント過渡電流波形と発生電荷イメージングも同時に観測できるようになった。

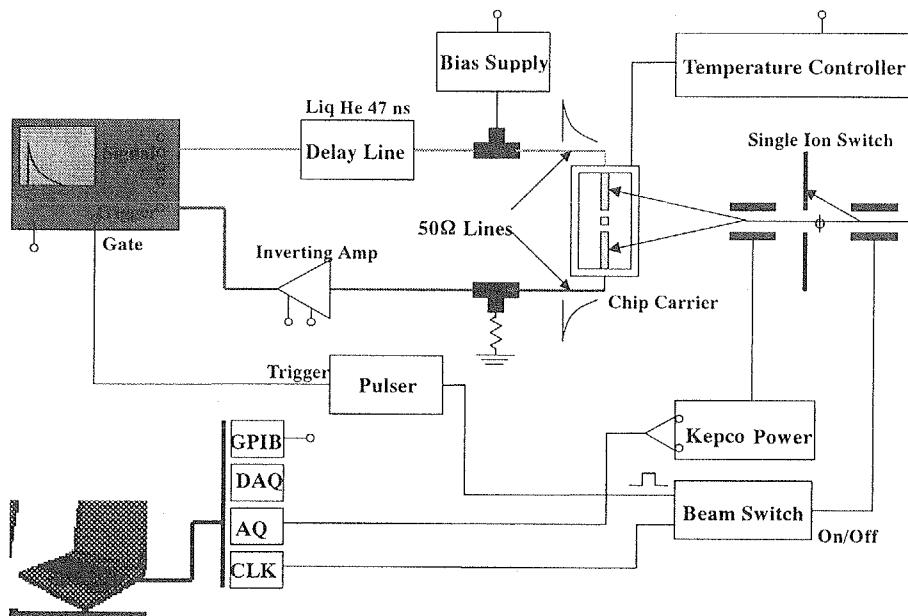


図1. 新たに構築したシングルイベント過渡電流の測定系
TIBIC : Transient Ion Beam Induced Current Measurement System

3. 結果及び考察

図2は、 $50\mu\text{m}$ 径の感応面積を有したシリコンpn接合ダイオードに対して $100\mu\text{m} \times 100\mu\text{m}$ の照射範囲で、炭素イオンを $1\mu\text{m}$ ステップにて入射したときに発生したシングルイベント過渡電流波形の測定結果を示している。

同図に見られる様に新たに開発したTIBIC測定システムを用いることで、従来から求

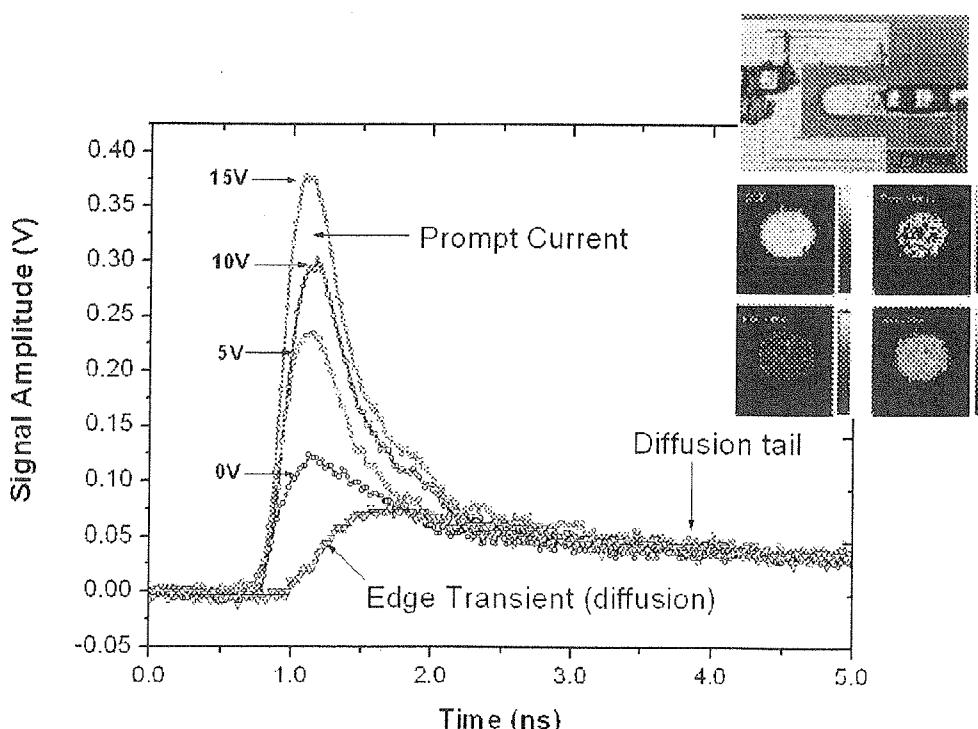


図2. 炭素イオンが入射したときのシングルイベント過渡電流波形の電圧依存性

めていた接合部一点での電荷発生挙動を示すシングルイベント過渡電流波形の他に、それぞれの照射位置における電荷発生に寄与するシングルイベント現象を連続的にかつ放射線損傷の少ない状態でデータを得ることが可能となっている。また、イオンの入射位置の違いによるシングルイベント過渡電流波形として、接合部の端では拡散成分と考えられる過渡電流波形が得られている。しかし、図中に示すようにイオンが入射した時に発生する過渡電流波形は、接合部の中央が最も高いピークをもっており、これは、本システムの特徴である IBIC から得たピーク値分布においても中央部の輝度が高く、接合部の端につれ輝度が薄くなる傾向からも説明できる。一方、シングルイベント過渡電流波形のピーク値が図中に示したように電圧の変化に伴いピーク値も高くなり、即ち収集される電荷量も増加する電圧依存性も見られている。このようにビームをスキャンすることにより、接合部全体に渡ったシングルイベント発生挙動を連続的に得ることができるところから、より詳細なシングルイベント発生機構の解明に有効な手法と言える。

従来から求めている計測装置を使用して得られているシングルイベント過渡電流と比較した場合、それぞれのピーク値で約 1.5 倍程度の大きさが現れている。これは、先に示したように、イオン損傷の軽減された結果と考えられる。今後は、このシステムを用いることでイオン 1 個が入射した時に発生する過渡電流波形を計測するとともに、過渡電流の発生に関与する様々な条件で実験を行い、シングルイベントの発生機構を解明するために必要となるシミュレーションコードの開発及び適用を図る。

4. まとめ

この新たに開発したシングルイベント測定システムは、入射粒子 1 ケによるシングルイベント現象を直接的に観察できるため、イオン損傷による影響を軽減でき、さらに発生する電荷挙動をイメージングと過渡電流波形との両方から求めることができる。従ってこのシステムを用いることで、今後のシングルイベント解明に対して詳細な解明を行うことができると言える。

Reference

- [1] T. Wallmark et al., Proceeding of IRE, (1962) 286.
- [2] D. Binder et al., IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-22, No.6 (1975) 2675.
- [3] Ronald S. Wagner et al., IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-33, No.6 (1986) 1651.
- [4] R. S. Wagner et al., IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-34, No-6, p.1240 (1987).
- [5] R. S. Wagner et al., IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-35, No.6 (1988) 1578.
- [6] I. Nashiyama et al., IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-40, No.6 (1993) 1935.
- [7] T. Hirao et al., Nucl. Instr. and Meth. B 130 (1997) 486.
- [8] T. Hirao et al., Nucl. Instr. and Meth. B 158 (1999) 260.
- [9] F. W. Sexton et al., IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-42, No.6, (1995).
- [10] T. Hirao et al., Nucl. Instr. and Meth. B 104 (1995) 508.
- [11] T. Sakai et al., Nucl. Instr. and Meth. B 130 (1997) 498.



JP0150950

JAERI-Conf 2001-014

3.4.11 高エネルギー重イオンを用いた半導体素子の シングルイベント現象に関する研究

Evaluation of Single Event Effects in Semiconductor devices
caused by High-energy Heavy Ions

新藤浩之¹、久保山智司¹、油谷崇志¹、染河秀治¹、松田純夫¹

平尾敏雄、伊藤久義、広瀬孝幸²、大平秀春²、永井由紀²

H.SHINDO¹, S.KUBOYAMA¹, T.ABURAYA¹, S.MATSUDA¹

T.HIRAO, H.ITO, T.HIROSE², H.OHIRA², Y.NAGAI²

¹宇宙開発事業団 ²菱栄テクニカ（株）

¹National Space Development Agency of Japan, ²RYOEI TECHNICA Corporation

1. はじめに

地球を取り巻く宇宙は、銀河宇宙線や太陽フレアからの高エネルギーの電子、陽子、重粒子イオン等の宇宙放射線が飛来する強い放射線環境である。このため、ロケットや人工衛星等で使用される半導体デバイスは宇宙放射線の影響を受け、誤動作や永久損傷等のさまざまな障害（シングルイベント現象）が生じる。これらの現象に関してメカニズムの解明を行い、地上での評価技術を確立し、シングルイベント耐性を有する半導体デバイスを開発することは、宇宙用機器を設計する上で必要不可欠であり、緊急の課題でもある。

本研究では、シングルイベント現象の中でも特に、バイポーラトランジスタや Power MOSFET で発生するシングルイベントバーンアウト (S E B) 現象（過電流による焼損現象）について着目し、タンデム加速器を用いた評価・メカニズム解明を進めてきた。本稿では S E B 現象に関するこれまでの研究成果について報告する。

2. S E B 現象

S E B 現象とは、イオン入射によって直接的あるいは間接的に生じる過電流によりデバイスが焼損に至る現象（図 1）であり、バイポーラトランジスタおよび PowerMOSFET において観測されている。PowerMOSFET では、逆バイアスされた pn 接合のアバランシェ増幅効果、およびプラズマコラムに沿って流れる電流が、寄生バイポーラトランジスタをターンオンさせることで S E B が発生することがこれまでの研究で判明している。バイポーラトランジスタについては、発生メカニズムの解明を進めているところである。

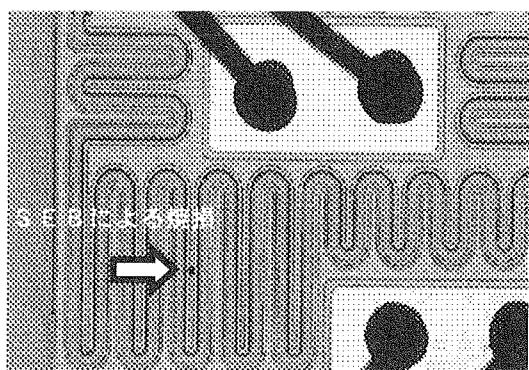


図 1 S E B 発生例 (バイポーラトランジスタ)

3. 実験方法

実験装置の概要を図 2 に示す。タンデム加速器により加速されたイオンビーム (Ni, 250MeV) は照射チャンバー内に設置された金散乱体（厚さ約 500 ）により散乱され、供試体に照射される。供試体は、チャンバー内の内側にある可変式の供試体設置テーブルに設置され、イオンビームの散乱角を変えて照射することができる。LET は、27~28MeV/(mg/cm²) 位で照射を行っている。これは、宇宙空間での支配的な LET の値である。

S E B 測定系を図 3 に示す。本測定系は、S E B 現象を非破壊で観測・評価する目的で

開発したシステムである。荷電粒子の入射によりデバイスで発生した電荷量は EPICS (Energetic Particle Induced Charge Spectroscopy)⁽¹⁾ によって電圧波高値に変換される。この分布を PHA(Pulse Height Analyzer)で測定した。発生する電荷量は、コレクタ領域の空乏層の厚さと電界強度に依存するため、 V_{CE} を測定パラメータとして試験を実施した。測定結果の一例を図4に示す。SEBが発生した場合、収集電荷量の比較的高い位置に新たにピークが発生する。

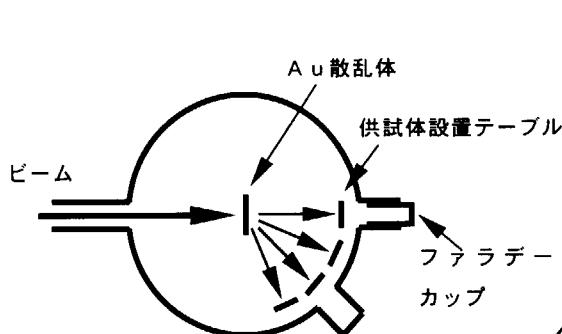


図2 真空チャンバ構成

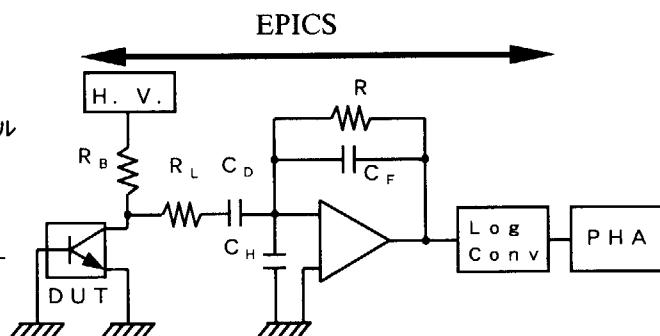
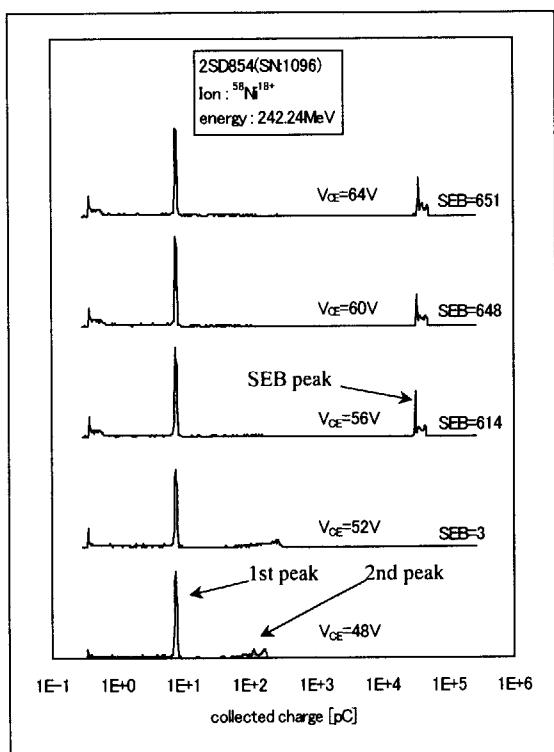
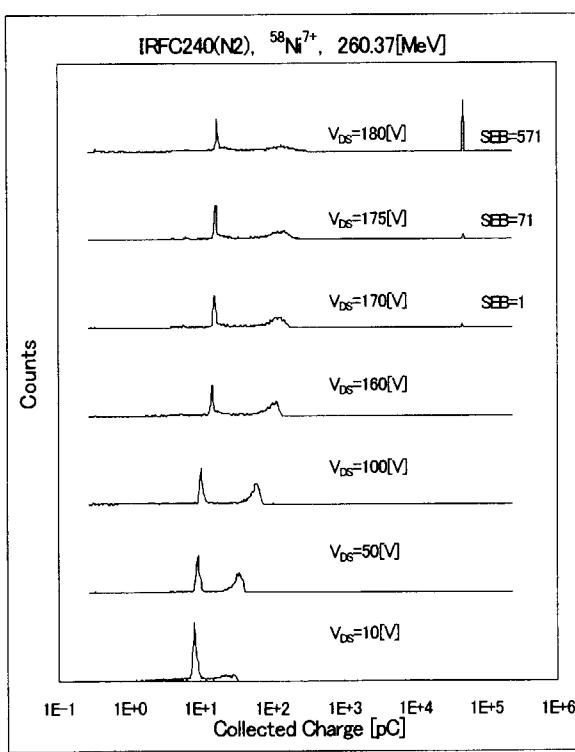


図3 SEB測定系



(a) バイポーラトランジスタ



(b) PowerMOSFET

図4 EPICSスペクトラム例

4. 実験結果

4. 1 PowerMOSFET の SEB 耐性評価

PowerMOSFET の SEB 現象に関しては、これまでの研究から入射イオンによって生じる逆バイアスされた pn 接合のアバランシェ増幅効果、およびプラズマコラムに沿って流れる電流が寄生バイポーラトランジスタをターンオンさせることで発生することが判明した。

このことは、デバイスの構造を改善することにより S E B 耐性向上が可能である事を示唆している。本研究ではデバイスの構造パラメータと S E B 耐性の相関について評価・検討を行い、次世代 PowerMOSFET の開発に資するためのデータ取得・評価を実施した。

S E B 耐性につながると考えられる幾つかのパラメータについて評価を実施した結果、デバイスの製造プロセスにおいてセルフアラインと呼ばれるプロセスを導入し、p++拡散層幅を広げることで S E B 耐性が大幅に改善されることが判明した（図 5）。

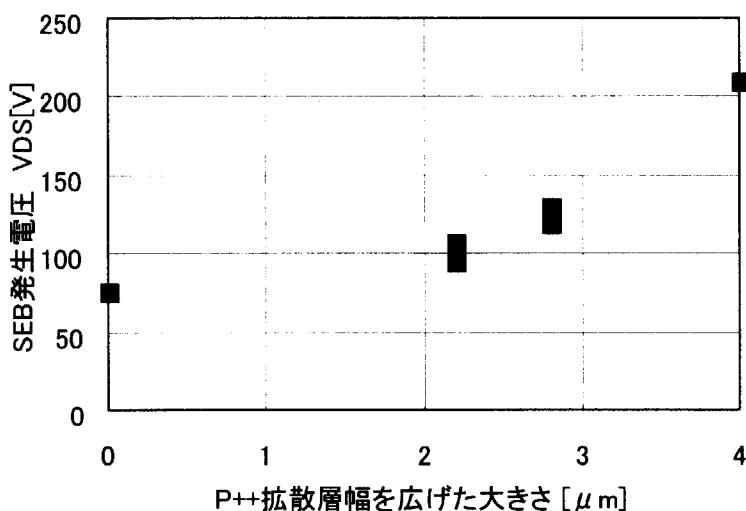


図 5 P++拡散層幅と S E B 発生電圧の関係

4. 2 バイポーラトランジスタの S E B 耐性評価

バイポーラトランジスタに関しては、これまでの評価試験結果から PowerMOSFET と同様に S E B が発生することが確認され、その発生メカニズムが PowerMOSFET とは異なることが判明した（図 4において、 V_{CE} を変化させたときの 1 s t ピーク位置が、バイポーラトランジスタでは変化しないのに対し、PowerMOSFET ではシフトしているため）。

以上のことから、S E B 発生メカニズムの解明のための S E B シミュレーションの実施と、これを検証するための実験データの取得を実施した。実験では、さまざまな品種のデバイスに関して照射試験を実施し、E P I C S スペクトラムの取得を行なった。シミュレーションに関しては現在、Monte Carlo 手法を用いたシミュレーションを開発・実施中である。

5. まとめ

PowerMOSFET およびバイポーラトランジスタの S E B 現象に関して、タンデム加速器を用いた S E B 耐性評価試験を実施した。PowerMOSFET に関しては、その構造パラメータに変更を加えることで S E B 耐性を向上させることができることが判明した。最適な構造パラメータを導出するために、現在試作を進めている評価用サンプルを用いて照射試験を実施し、得られたデータを次世代宇宙用 PowerMOSFET の開発に反映する計画である。バイポーラトランジスタに関しては、現在継続中のシミュレーション結果と実験データの突き合わせにより、S E B 発生メカニズムの解明を進めていく。

Reference

- (1) S.Kuboyama, S.Matsuda, T.Kanno and T.Ishii, "Mechanism for Single-Event Burnout of Power MOSFETs," IEEE Trans. Nucl. Sci., Vol.NS-39, No.6, pp1698-1703(1992)

物質科学シンポジウム

「タンデム領域の重イオン科学」研究会

—タンデムブースター多元利用に向けて—

平成13年1月9日、10日

日本原子力研究所 東海研究所

先端基礎研究交流棟 大会議室、ロビー

研究会編集委員

物質科学研究部長	岩本 昭
物質科学研究部事務	森 繁
物質科学研究部 加速器管理室	吉田 忠
	竹内 末広
原了核科学研究グループ	大島 真澄
	岩瀬 彰宏
	篠原 伸夫
極限物性研究グループ	左高 正雄
先端基礎センター 变形核重元素合成研究グループ	池添 博
極限ハドロン研究グループ	千葉 敏
超アクチノト 核化学研究グループ	永目諭一郎

氏名	勤務先	郵便番号	住所	(50音順)
浅井 雅人	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
阿部 信市	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
新井 重昭	高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所	305-0801	つくば市大穂1-1	
新垣 良次	高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所	305-0801	つくば市大穂1-1	
有坂 真	日本原子力研究所 機能性場アチナイト	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
有友 嘉浩				
有賀 武夫	日本原子力研究所 材料照射解析研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
飯島 明彦	日本原子力研究所 東海研究所	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
飯田 邦俊	(株)アトックス	319-1112	那珂郡東海村村松161-2	
飯村 秀紀	日本原子力研究所 原子核科学グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
池添 博	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
石井 哲朗	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
石川 法人	日本原子力研究所 原子核科学研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
石崎 暢洋	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
石野 茉	東海大学 工学部	259-1292	神奈川県平塚市北金目1117	
石山 博恒	高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所	305-0801	つくば市大穂1-1	
市川 進一	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
今井 誠	京都大学 工学部原子核工学	611-0011	京都府宇治市五ヶ庄	
岩瀬 彰宏	日本原子力研究所 原子核科学研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
岩本 昭	日本原子力研究所 物質科学研究部	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
岩本 修	日本原子力研究所 原子核データ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
宇都野 譲	日本原子力研究所 原子核科学グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
枝川 悅雄	(株)アトックス	277-0861	柏市高田1408	
大内 熱	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
大内 利勝	(株)アトックス	311-1313	東茨城郡大洗町成田町389-7	
大島 真澄	日本原子力研究所 原子核科学研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
太田 雅久	甲南大学 理学部	658-0072	神戸市東灘区岡本8-9-1	
大塚 英男	日本原子力研究所 極限物性研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	

氏名	勤務先	郵便番号	住所	(50音順)
大塚 孝治	東京大学 理学部 物理	113-0033	東京都文京区本郷7-3-1	
岡田 雅之	高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所	305-0801	つくば市大穂1-1	
岡安 悟	日本原子力研究所 極限物性研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
荻窪 光慈	東京大学	113-0033	東京都文京区本郷7-3-1	
奥 達雄	茨城大学内 放送大学センター	310-0056	水戸市文京2-1-1	
奥田 重雄	国際科学振興財団	300-1151	稻敷郡阿見町荒川沖1455-29	
長 明彦	日本原子力研究所 極限物性グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
掛谷 一弘	筑波大学 物質工学系	305-8573	つくば市天王台1-1-1	
片野 吉男	日本アドバンストテクノロジー株式会社	319-1195	那珂郡東海村船石川812-43	
片山 一郎	高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所	305-0801	つくば市大穂1-1	
加藤 輝雄	日本原子力研究所 極限物性研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
門脇 和男	筑波大学 物質工学系	305-8573	つくば市天王台1-1-1	
神沢 志保	筑波大学 物質工学研究科	305-0005	つくば市天久保4-5-32	
神田 将	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
木下 幹康	電力中央研究所 柏江研究所 原子力システム	201-8511	柏江市岩戸北2-11-1	
草刈 英栄	千葉大学 教育学部	263-8522	千葉市稲毛区弥生町1-33	
工藤 博	筑波大学	305-0006	つくば市天王台1-1-1	
後藤 真一	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
佐川 弘幸	会津大学 総合数理センター	965-8580	福島県会津若松市一箕町鶴賀	
桜井 千津子	姫路工業大学 物理	630-8263	兵庫県姫路市書写2167	
櫻山 久志	原子力エンジニアリング株式会社	319-1106	那珂郡東海村白方白根2-4	
笹瀬 雅人	原研 固体物理	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-1	
左高 正雄	日本原子力研究所 極限物性研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
佐藤 高広	茨城大学			
佐藤 学	日本原子力研究所 東海研究所	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
篠原 伸夫	日本原子力研究所 原子核科学研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
篠原 厚	京都大学	590-0494	大阪市泉南群熊取町野田	
柴田 裕実	東京大学 原子力研究総合センター	319-1106	那珂郡東海村白方白根2-22	

氏名	勤務先	郵便番号	住所	(50音順)
新藤 浩之	宇宙開発事業団	305-8505	つくば市千現2-1-1	
末木 啓介	都立大学 理学部化学無機化学第2	192-0364	東京都八王子市南大沢1-1	
須貝 宏行	日本原子力研究所 アイソトープ開発室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
菅原 昌彦	千葉工業大学 自然系物理	275-0016	千葉市習志野市芝園2-1-1	
杉山 康治	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
関岡 嗣久	姫路工業大学	671-2201	兵庫県姫路市書写2167	
竹内 末広	日本原子力研究所 加速器管理	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
竹本 宏輝	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
田中 俊一	日本原子力研究所 東海研究所	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
田山 豪一	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
千葉 敏	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
知見 康弘	日本原子力研究所 原子核科学研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
Czosnyka	日本原子力研究所 原子核科学グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
塙田 和明	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
月橋 芳広	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
富澤 正人	高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所	305-0801	つくば市大穂1-1	
内藤 明	日本原子力研究所 材料照射解析グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
中井 浩二	東京理科大学 理工学部 物理	278-0022	千葉県野田市山崎2641	
中川 幸子	岡山理科大学 理学部	700-0005	岡山市理大町1-1	
中沢 哲也	日本原子力研究所 材料照射解析グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
中村 武彦	日本原子力研究所 燃料安全研究室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
永目 諭一郎	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
那須 三郎	大阪大学 大学院基礎工学研究科	560-0043	大阪府豊中市待兼山町1-1	
仁木 和弘	高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所	305-0801	つくば市大穂1-1	
西尾 勝久	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
西中 一郎	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
仁杉 光	原子力エンジニアリング株式会社	319-1106	那珂郡東海村白方白根2-4	
根本 伝次郎	(株)アトックス	319-1112	那珂郡東海村村松161-2	

氏名	勤務先	郵便番号	住所	(50音順)
長谷川 忠之	日本原子力研究所 原子核科学グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
初川 雄一	日本原子力研究所 原子核科学研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
花島 進	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
羽場 宏光	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
早川 岳人	日本原子力研究所 自由電子レーザー研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
林 君夫	日本原子力研究所 高温照射研究室	319-1195	東茨城郡大洗町成田町3607	
平尾 敏雄	日本原子力研究所 材料開発部	370-1292	群馬県高崎市高貴町1233	
更田 豊志	日本原子力研究所 燃料安全研究室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
藤井 義雄	日本原子力研究所 東海研究所	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
藤田 正広	東北大学 サイクロotron			
布施 廣憲	(株)アトックス	289-1506	千葉県山武郡松尾町上大蔵319	
北條 喜一	日本原子力研究所 極限物性研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
堀江 活三	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
正木 信行	日本原子力研究所 アクナイト化学グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
松沢 孝幸	千葉大学	263-0022	千葉県稻毛区弥生町1-33	
松田 誠	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
光岡 真一	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
南園 忠則	大阪大学	560-0043	大阪府豊中市待兼山町1-1	
宮武 宇也	高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所	305-0801	つくば市大穂1-1	
森 繁	日本原子力研究所 物質科学研究部	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
森川 恒安	九州大学 理学部物理	812-0053	福岡市東区箱崎6-10-1	
山崎 明義	東北大学大学院理学研究科 理学部物理学科	980-0845	仙台市青葉区荒巻字青葉	
横山 明彦	大阪大学 理学部	560-0000	大阪市豊中市待兼山1-1	
吉田 忠	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
吉田 崇広	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
若井 栄一	日本原子力研究所 材料照射解析グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
渡辺 光男	日本原子力研究所 原子核科学研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
渡部 力	国際基督教大学	181-0015	東京都三鷹市大沢3-10-2	

国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	N·m
工率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	A·s
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリイ	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束度	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
ペーゼン	b
ペール	bar
ガル	Gal
キュリ	Ci
レンントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

$$1 \text{ Å} = 0.1 \text{ nm} = 10^{-10} \text{ m}$$

$$1 \text{ b} = 100 \text{ fm}^2 = 10^{-28} \text{ m}^2$$

$$1 \text{ bar} = 0.1 \text{ MPa} = 10^5 \text{ Pa}$$

$$1 \text{ Gal} = 1 \text{ cm/s}^2 = 10^{-2} \text{ m/s}^2$$

$$1 \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ Bq}$$

$$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{ C/kg}$$

$$1 \text{ rad} = 1 \text{ cGy} = 10^{-2} \text{ Gy}$$

$$1 \text{ rem} = 1 \text{ cSv} = 10^{-2} \text{ Sv}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10^{18}	エクサ	E
10^{15}	ペタ	P
10^{12}	テラ	T
10^9	ギガ	G
10^6	メガ	M
10^3	キロ	k
10^2	ヘクト	h
10^1	デカ	da
10^{-1}	デシ	d
10^{-2}	センチ	c
10^{-3}	ミリ	m
10^{-6}	マイクロ	μ
10^{-9}	ナノ	n
10^{-12}	ピコ	p
10^{-15}	フェムト	f
10^{-18}	アト	a

(注)

- 表1～5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC開発理事会指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換 算 表

力	N(=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
1	0.101972	0.224809	
9.80665	1	2.20462	
4.44822	0.453592	1	

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa}\cdot\text{s} (\text{N}\cdot\text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P} (\text{ボアズ}) (\text{g}/(\text{cm}\cdot\text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St} (\text{ストークス}) (\text{cm}^2/\text{s})$$

力	MPa(=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 ³	145.038	
0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233	
0.101325	1.03323	1	760	14.6959	
1.33322 × 10 ⁻⁴	1.35951 × 10 ⁻³	1.31579 × 10 ⁻³	1	1.93368 × 10 ⁻²	
6.89476 × 10 ⁻³	7.03070 × 10 ⁻²	6.80460 × 10 ⁻²	51.7149	1	

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft · lbf	eV	1 cal = 4.18605 J(計量法)
1	0.101972	2.77778 × 10 ⁻⁷	0.238889	9.47813 × 10 ⁻⁴	0.737562	6.24150 × 10 ¹⁸	= 4.184 J (熱化学)	
9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻⁶	2.34270	9.29487 × 10 ⁻³	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁹	= 4.1855 J (15 °C)	
3.6 × 10 ⁶	3.67098 × 10 ⁵	1	8.59999 × 10 ⁵	3412.13	2.65522 × 10 ⁶	2.24694 × 10 ²⁵	= 4.1868 J (国際蒸気表)	
4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻⁶	1	3.96759 × 10 ⁻³	3.08747	2.61272 × 10 ¹⁹	仕事率 1 PS (仏馬力)	
1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ²¹	= 75 kgf·m/s	
1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻⁷	0.323890	1.28506 × 10 ⁻³	1	8.46233 × 10 ¹⁸	= 735.499 W	
1.60218 × 10 ⁻¹⁹	1.63377 × 10 ⁻²⁰	4.45050 × 10 ⁻²⁶	3.82743 × 10 ⁻²⁰	1.51857 × 10 ⁻²²	1.18171 × 10 ⁻¹⁹	1		

放射能	Bq	Ci	吸収線量	Gy	rad
1	2.70270 × 10 ⁻¹¹	1	100	1	
3.7 × 10 ¹⁰	1	0.01	1		

照 射 線 量	C/kg	R
1	3876	
2.58 × 10 ⁻⁴	1	

線量当量	Sv	rem
1	100	
0.01	1	

(86年12月26日現在)

物質科学シンポジウム「タンデム領域の重イオン科学」研究会 2001年1月9日～1月10日、日本原子力研究所東海研究所

