

Radiochemical studies of photonuclear reactions at intermediate energies -Recoil studies of photospallation and photofission

メタデータ	言語: eng 出版者: 公開日: 2017-10-05 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/2297/16186

氏 名	羽 場 宏 光
生 年 月 日	
本 籍	石川県
学 位 の 種 類	博士 (理学)
学 位 記 番 号	博甲第277号
学位授与の日付	平成11年3月25日
学位授与の要件	課程博士 (学位規則第4条第1項)
学位授与の題目	Radiochemical studies of photonuclear reactions at intermediate energies -Recoil studies of photospallation and photofission- (中高エネルギー光核反応の放射化学的研究～特に、核破碎並びに核分裂反応の核反跳法による動力学的研究～)
論文審査委員	(主 査) 坂本 浩 (副 査) 小村 和久, 天野 良平, 中西 孝, 藤原 一郎

学 位 論 文 要 旨

Recoil properties of 137 radionuclides formed in the photospallation reactions on ^{27}Al , ^{51}V , $^{\text{nat}}\text{Cu}$, ^{93}Nb , $^{\text{nat}}\text{Ag}$, $^{\text{nat}}\text{Ta}$, and ^{197}Au induced by bremsstrahlung beams of end-point energies (E_0) from 60 to 1100 MeV have been investigated using the thick-target thick-catcher method based on the two-step vector analysis. The obtained recoil properties show E_0 -independence at $E_0 \geq 600$ MeV, reflecting the resonance nature in photonuclear reaction. The recoil velocities v from the first step and the mean kinetic energies T of the residual nuclei in the second step are discussed by comparing with those calculated by the PICA (Photon-Induced Intranuclear Cascade Analysis) code and also those of the proton-induced reactions. In addition the recoil properties and the reaction yields of the photofission products from ^{197}Au at $E_0=300\text{--}1100$ MeV have been measured using the thick-target thick-catcher method coupled with radiochemical separation technique. The fission characters such as charge and mass distributions are determined and compared with those from literature. Photopion reaction yields of the (γ, π^+) and $(\gamma, \pi^-xn)(x \geq 0)$ for $^{\text{nat}}\text{Fe}$, ^{59}Co , $^{\text{nat}}\text{Cu}$, ^{75}As , $^{\text{nat}}\text{Ag}$, and $^{\text{nat}}\text{In}$ targets at $E_0=50\text{--}1200$ MeV are also presented. Their results are discussed systematically in terms of target mass number (A_t) and the ratio of the number of neutrons to the number of protons in the target, $(N/Z)_t$, together with those obtained previously and also those by the PICA code.

1. 序文

波長が原子核程度かそれ以下の高エネルギーの光は原子核に共鳴的に吸収され、その結果励起した原子核が生まれる。これは様々な脱励起過程(核反応)を経て多様な放射性並びに安定核種に壊変する。このような核過程は、反応機構の観点から(1)核破碎反応、(2)軽核放出反応、(3)核分裂反応、(4) (γ, π^+) と $(\gamma, \pi^-xn)(x \geq 0)$ で表される単純なパイ放出反応の4つに大別できる。著者の所属する研究グループでは、放射化学的手法によりこれら4つのすべての過程の残留核収率分布をエネルギー、標的核に関して系統的に測定することから、光核反応機構や原子核構造に関する数々の興味深い情報を引き出してきた。本研究では、これまでの反応収率測定に加え核反跳法による動力学のアプローチの可能性を検証した。この反跳実験は、生成核の運動エネルギーや角度分布が決定できる点で反応機構の解明に非常に有力であるが、光反応の断面積が非常に小さいこともあり光子誘起反応に適用した例はほとんどない。また、光子と原子核の相互作用は電磁気力で、強い力のハドロンとはまったく異なる。この違いが、今回の動力学測定にどう現れるかも興味の一つである。本研究では、 ^{27}Al , ^{51}V , $^{\text{nat}}\text{Cu}$ (nat:天然同位体存在比), ^{93}Nb , $^{\text{nat}}\text{Ag}$, ^{181}Ta 並びに ^{197}Au の様々な標的核を選び、幅広いエ

エネルギー領域(制動放射線最大エネルギー $E_0=60\sim1100\text{MeV}$)において核反跳実験を行った。その結果、総計 137 の核破砕生成核の飛程測定に成功した。

当研究グループでは、上に述べた(1), (2), (4)の各核反応に関して既に系統的な収率測定がある。しかし、中高エネルギー光核反応の全容を理解するには重い原子核に特徴的な(3)核分裂反応の測定が不可欠である。U や Th より軽い標的核に関しては、全核分裂収率値を除けばこれまでほとんど報告がなく、未だに荷電分布や質量収率分布等の詳細は不明である。本研究では先に述べた核反跳法に放射化学分離法を取り入れ、 ^{197}Au の光核分裂生成核の反跳特性、さらに荷電並びに質量収率分布の測定を行った。

(4)のパイ放出反応は、(3, 3)共鳴で生成するパイ中間子の核内挙動や、核内核子の分布の様子に関して興味深い知見を与える。著者は、特に測定が欠けていた中重核領域で、 $^{56}\text{Fe}(\gamma, \pi^-n)^{55}\text{Co}$, $^{59}\text{Co}(\gamma, \pi^-xn)^{59-x}\text{Ni}$ ($x=2, 3$), $^{63}\text{Cu}(\gamma, \pi^-n)^{62}\text{Zn}$, $^{75}\text{As}(\gamma, \pi^-xn)^{75-x}\text{Se}$ ($x=0, 2, 3, 4, 5$), $^{75}\text{As}(\gamma, \pi^+)^{75}\text{Ge}$, $^{109}\text{Ag}(\gamma, \pi^-xn)^{109-x}\text{Cd}$ ($x=2, 4, 5$), $^{109}\text{Ag}(\gamma, \pi^+)^{109}\text{Pd}$, $^{115}\text{In}(\gamma, \pi^-xn)^{115-x}\text{Sn}$ ($x=2, 4, 5$), 並びに $^{115}\text{In}(\gamma, \pi^+)^{115m,115g}\text{Cd}$ 反応の収率測定を行った。既存の結果も踏まえつつこれまでの系統性を再評価した。

以上の諸結果を基に、中高エネルギー光核反応のかなり首尾一貫した特徴を把握できるようになり、本論文ではその全体像の議論も行う。

2. 実験

2. 1. 核破砕並びに核分裂反応の核反跳実験

高純度の Al, V, Cu, Nb, Ag, Ta 並びに Au 標的箔の前後をマイラーまたはカプトン箔で挟み、thick-target thick-catcher 法に基づいて光子照射を行った。光子源には東北大核理学研究施設 300MeV 電子ライナック並びに高エネルギー加速器研究機構田無分室の 1.3GeV 電子シンクロトロンから得られる最大エネルギー $E_0=60, 65\text{ MeV}$, 及び $250\sim1100\text{MeV}$ ($50\sim100\text{MeV}$ 間隔)の制動放射線を用いた。照射後、標的箔の前後別に集めたマイラーまたはカプトン箔、標的箔、さらに ^{197}Au 標的に関しては標的の一部から化学分離した K, Fe, Ni, Zn, Ga, As, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Mo, Ag, Ba, 並びに希土類元素の各試料について Ge 検出器による γ 線スペクトロメトリーを行った。

2. 2. パイ放出反応の収率測定

Fe, Cu, 並びに Ag の金属板と加圧整形した Co , As_2O_3 , In_2O_3 の円盤を上記の光子源を用い、 $E_0=50\sim1200\text{MeV}$ の範囲で $50\sim100\text{MeV}$ 毎に照射した。 Co , As_2O_3 , Ag , In_2O_3 標的から目的核種を化学分離後、その他は非破壊で γ 線スペクトロメトリーを行った。

3. 結果と考察

3. 1. 核破砕並びに核分裂反応の核反跳法による動力学的研究

本研究では、Al, V, Cu, Nb, Ag, Ta 並びに Au 標的から、それぞれ 1, 14, 24, 26, 31, 21, 20 の核破砕生成核について飛程測定ができた。生成核のビーム方向に対して前方(F)並びに後方(B)への平均飛程 FW 並びに BW は、何れの生成核においても $E_0\geq 600\text{MeV}$ で一定値を示し、既に当研究グループが収率測定の結果^[1,2] から見出した $E_0\geq 600\text{MeV}$ での反応機構の limiting behavior を支持した。 FW 並びに BW を、標的核質量数(A_t)と生成核質量数(A_p)の差($\Delta A=A_t-A_p$)の関数として見ると、両者とも ΔA とともにスムーズに増加する。この増加は主として巨大共鳴で起こる(γ, xn)($x\geq 1$)反応の生成核の成分と、主として準重陽子共鳴並びに(3, 3)共鳴で起こる($\gamma, xnyp$)($x\geq 1, y\geq 1$)反応による生成核の 2 成分に分解できた。また、前方対後方捕獲比 F/B は、 ΔA 並びに A_t に依存せず一定で前方優勢の運動量移行を示唆した($F/B=2\sim 3$)。

これらの実験データの動力学的解析は、Winsberg^[3]の 2-step vector velocity model に基づいて行った。ここでは核反応を 2 つの過程に分け、反跳核の運動を 2 つの速度ベクトル和で記述する。すなわち、入射粒子と標的核の相互作用(1st step)では中間生成核に速度 v が与えられ、 v は前方のみの成分をもち、次いで核子などの蒸発放出によって反応が完結するとき(2nd step)には反跳核が速度 V (等方的)を与えられると仮定する。まず、1st step における前方向への運動量移行の指標となる速度 v は、光子吸収機構を反映しながら E_0 とともに増加していき $E_0\geq 600\text{MeV}$ で一定値を示す。また、 v は原子核の励起エネルギーの増加を反映し、 ΔA とともにスムーズ

に増加した。陽子誘起反応の結果と比べて見たところ、陽子エネルギー $E_p < 3\text{GeV}$ の範囲では、光子誘起の ν は陽子誘起よりも非常に小さく、両反応の1st stepにおける反応機構の違いを明確に観測できた。ところが、この違いは $E_p \geq 3\text{GeV}$ で消え、両反応ともlimiting領域に達する。

次に、2nd stepにおける生成核の運動エネルギー(T)を、 ^{197}Au 標的核を例として○印でFig. 1に示す。核破碎生成核($\Delta A < 50$)の T は ΔA の増加とともにスムーズに増加し、この増加は、 $(\gamma, xn)(x \geq 1)$ 反応によって生成する $^{196,194,192}\text{Au}$ と $(\gamma, xnpy)(x \geq 1, y \geq 1)$ 反応による生成核の2成分に分解できた。Fig. 1にはGabriel and Alsmillerの理論計算コード(PICA)^[4]で計算した $E_0 = 400\text{MeV}$ での T を×印で示してある。PICAコードは、 $(\gamma, xn)(x \geq 1)$ 反応によって生成する $^{196,194,192}\text{Au}$ の T を再現できず過剰評価するが、これはPICAコードに巨大共鳴による光吸収過程が組み込まれていないためと考えられる。一方、 $(\gamma, xnpy)(x \geq 1, y \geq 1)$ 反応の T は実験値よりやや小さく計算されるが、 ΔA ともに増加する傾向は良く再現している。一致の様子を標的を変えて見てみると、PICAコードは、 ^{51}V 並びに ^{64}Cu に関しては誤差範囲内で T を再現できるが、それより質量数の小さい ^{27}Al に関しては実験値よりも大きく、また、質量数の大きい ^{93}Nb , ^{107}Ag , ^{181}Ta 並びに ^{197}Au 標的に関しては実験値よりも小さい。当研究グループでは、PICAコードは重核の核破碎収率を再現できないと報告しているが^[5]、この点においても今回の結果は大変興味深く、PICAコードの基としている核モデルの改良の必要性が示唆される。さらにFig. 1に陽子誘起反応の既存の結果^[6-9]を○×以外の印で示した。 $\Delta A < 50$ の核破碎の領域では陽子エネルギー E_p によらず光核破碎の結果に良く一致する。この傾向は他の標的にも見られた。また、本研究では、放出粒子の平均運動エネルギーを表すパラメータ $\varepsilon_s = T/(\Delta A/A_i)$ を導入することにより核破碎反応の2nd stepの系統化に成功した。 ε_s は各標的ごとに見れば ΔA に依存せず一定値を示す。しかし、各標的ごとの平均値は A_i の増加とともに $A_i = 100$ あたりまで増加し、その後一定(16MeV)となる。この A_i 依存性は、既存の陽子誘起反応の場合にも見られたが、その絶対値は光子誘起反応の方が小さく、2nd stepに残される励起エネルギーが光子誘起の方が小さいことが示唆された。

Fig. 1の $\Delta A > 50$ の範囲では、生成核の T (○印)は $\Delta A < 50$ の核破碎反応に比べて約1桁以上大きく、これはKomar *et al.*^[10]による $E_0 = 1000\text{MeV}$ での核分裂片の物理的エネルギー測定の結果(破線)に良く一致した。さらに、この範囲の F/B 値は、先に述べた核破碎のそれに比べて小さく、 $F/B = 1.1 \pm 0.1$ で等方的角度分布を示し核分裂による生成を支持する。一方、 $\Delta A < 50$ における陽子誘起反応の結果^[6-9]は核破碎の場合と異なり、 E_p の増加とともに T は減少する。本研究の結果は $E_p = 580\text{MeV}$ のRoss and Bächmannの結果(Δ)に良く一致した。

^{197}Au 標的核においては、広範囲の生成核質量数領域 $42 \leq A \leq 131$ で総計59核種の核分裂収率を測定できた。most probable charge(Z_p)を A_i の一次関数、分布の幅 C_Z を A_i によらず一定として、ガウス型の荷電分布を得た。 Z_p 並びに C_Z ともに $E_0 \geq 600\text{MeV}$ で変化せず核分裂機構のlimiting behaviorが見出された。ここでは、荷電分布の幅は2.2c.u.で、 $Z_p = 0.423A + 0.8$ であった。さらに、UCD仮定から、分裂前に平均10の中性子が放出されることが推測された。この荷電分布を基に、ピーク位置 A_p が93m.u.で半値幅FWHMが39m.u.の対称的質量収率分布を得た。既報のKomar *et al.*^[10]($E_0 = 1000\text{MeV}$)とAreskoug *et al.*^[11]($E_0 = 600\text{MeV}$)による相対収率分布と比較したところ A_p はKomar *et al.*より4小さくAreskoug *et al.*に一致した。ところが、FWHMはKomar *et al.*に合い、Areskoug *et al.*より10大きい。本研究の A_p 並びにFWHMは $E_0 \geq 600\text{MeV}$ 一定であった。

3. 2. パイ放出光核反応の標的核質量依存性

今回得られた $(\gamma, \pi^- xn)(x \geq 1)$ 反応の収率は、 A_i をパラメータとした既存の系統性よりも全体的に低くなった。そこで、本研究では、反応収率が核内中性子数(N)と陽子数(Z)両方に依存すると考えて、 $(N/Z)_i$ をパラメータにしてみた。 $E_0 = 400\text{MeV}$ の場合をFig. 2に■印で示す。実験値は $x = 0 \sim 9$ にわたってスムーズな曲線で近似できた。これは、核内での π^- の生成と吸収が、核内の中性子と陽子の存在比と分布に強く依存していることを示唆する。PICAコード^[4]による計算結果を○印で一緒に示した。これも $(N/Z)_i$ に関しスムーズに変化し、かつ、 $^7\text{Li} \sim ^{27}\text{Al}$ の軽核並びに $(N/Z)_i \geq 1.3$, $A_i \geq 100$ の重核域を除けば実測を良く再現する。全体としての傾向を放出中性子 x 毎に見ると、ある $(N/Z)_i$ のところで反応は急激に立ち上がり、やがて一定値を示す。いま、ある収率値を超える $(N/Z)_i$ を反応の起こり始めの値、 $(N/Z)_{\text{on}}$ とするとその $(N/Z)_i$ は x に関して規則性がある。これを用いて未知反応の収率を予測できるようになった。一方、中性子放出を伴わない (γ, π^0) 反応の場合、本研究の結果は既存の系統性に一致し、収率値は A_i に依存せず一定であった。実験で得た収率比 $(\gamma, \pi^-)/(\gamma, \pi^0)$ は約6でPICAコー

ドより 3 倍大きい。現在のところ、核内での中性子と陽子の存在比は原子核のどこでも均一と考えられている。もし、原子核表面付近で、中性子がより豊富であると考えたと理論計算との不一致は説明できるかもしれない。

3. 3. 光核反応からの核構造・光核過程に関する新発見

核破碎における T や反応収率の PICA との不一致、さらに、 $(\gamma, \pi^- xn)$ 反応における全収率の $(N/Z)_i$ 依存性及び $(N/Z)_a$ の x 依存性における PICA との不一致が、何れの場合も $A_i \geq 100$, $(N/Z)_i \geq 1.3$ の重核域で指摘された。加えて、 $(\gamma, \pi^-)/(\gamma, \pi^+)$ 収率比の PICA との不一致も指摘された。PICA コードの基としている核モデルに核子間相互作用の導入と核内核子分布の見直し等の修正が必要であることが分った。

光子誘起反応とハドロン誘起反応との間で、中間生成核の励起エネルギーの違いが ϵ_x から引き出された。これは、核内カスケードの初期過程の違い(内発カスケードと外発カスケード)の反映と見られ光子誘起反応を新しく特徴付ける。

また、 ^{197}Au については、当研究グループの他の成果と合わせることで、序文に述べた 4 つの過程を明確に区分する質量収率分布の全体をはじめて明らかにできた。

[参考文献] [1] S. Shibata *et al.*, Phys. Rev. C35, 254 (1987)., [2] S. R. Sarkar *et al.*, Radiochim. Acta 55, 113 (1991); 55, 139 (1991)., [3] L. Winsberg, Nucl. Instr. Meth., 150, 465 (1978)., [4] T. A. Gabriel and R. G. Alsmiller, Jr., Phys. Rev. 182, 1035 (1969)., [5] S. R. Sarkar *et al.*, Radiochim. Acta 62, 7 (1993)., [6] E. Ross and K. Bächmann, Radiochim. Acta 21, 13 (1974)., [7] S. B. Kaufman *et al.*, Phys. Rev. C18, 1349 (1978)., [8] J. B. Cumming and K. Bächmann, Phys. Rev. C6, 1362 (1972). [9] G. D. Cole and N. T. Porile, Phys. Rev. C25, 244 (1982). [10] A. P. Komar *et al.*, Sov. J. Nucl. Phys. 10, 30 (1970). [11] M. Areskoug *et al.*, Nucl. Phys. A226, 93 (1974).

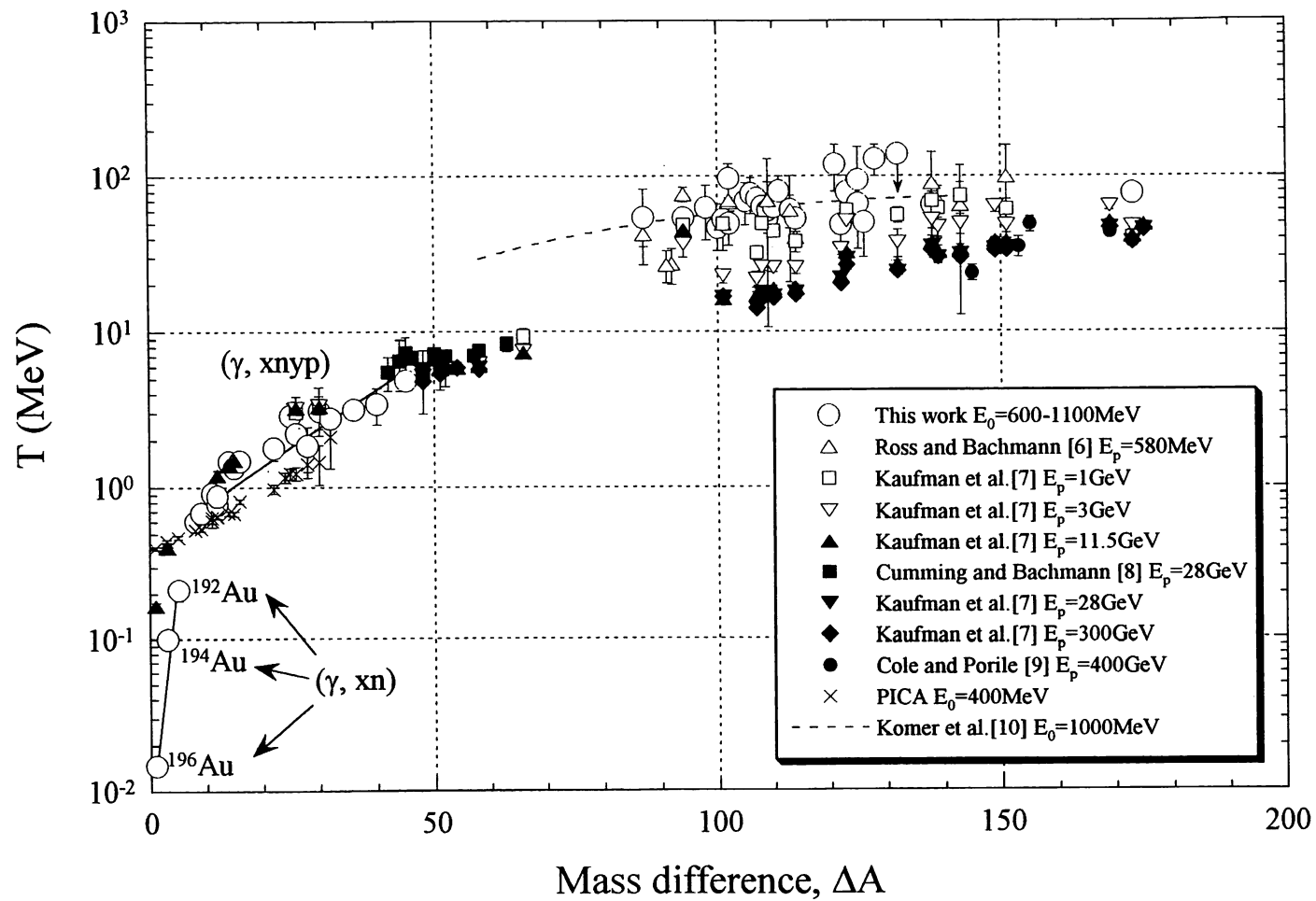


Fig. 1. Kinetic energy of the product nuclei from ^{197}Au as a function of ΔA .

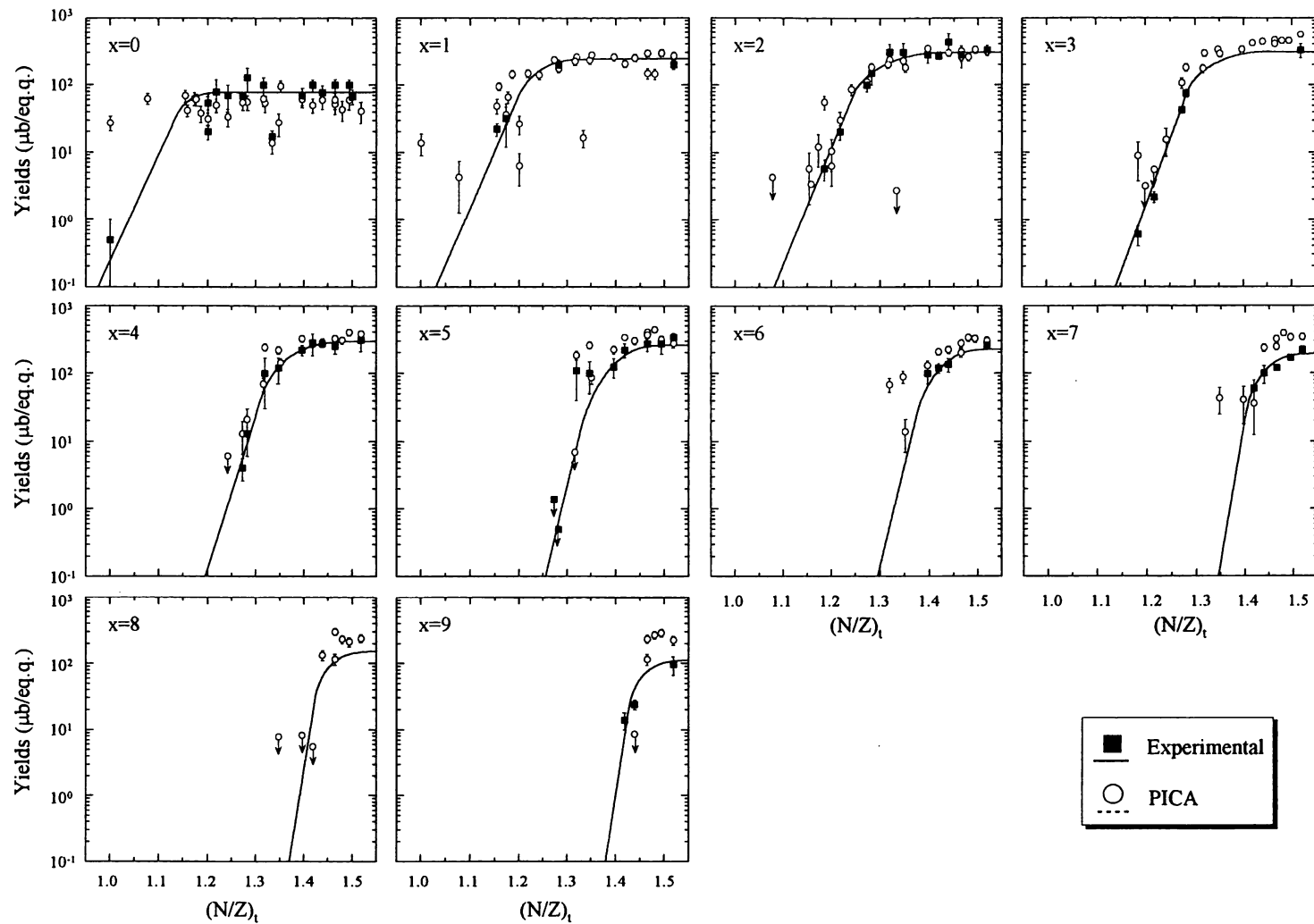


Fig. 2. Variations in the $(\gamma, \pi xn)$ reaction yields ($\mu\text{b/eq.q.}$) for $x=0-9$ as a function of the proton-to-neutron ratio of target $(N/Z)_t$ at $E_0=400$ MeV.

学位論文審査結果の要旨

羽場宏光の提出論文について、本審査委員会は、先ず各委員において個別に審査の上、1月27日に行った本人を交えた内審査及び審査委員合同の検討を経て、2月1日公聴会及び合同審査会を開催し、以下のように判定した。

本論文は、序論において提出者が参画してきた研究グループの中高エネルギー光核反応について一連の放射化学的研究の概要を述べた後、特に本人が開発的に分担してきた内容の詳細を3つの章に分けて記述している。先ず、第1章では ^{27}Al 、 ^{51}V 、 ^{nat}Cu 、 ^{93}Nb 、 ^{nat}Ag 、 ^{nat}Ta 及び ^{197}Au の光核破砕で生成する総計137の放射性核の核反跳実験に成功し、その結果を用いて二段階核反応モデルに基づく動力学的解析を行って、(3, 3)共鳴による核内核子の光吸収から核内エネルギー伝播と脱励起を経て終状態に到る過程を中高エネルギー陽子誘起反応の場合と比較しつつ、光子の場合の系統的特徴を初めて明らかにしたことを述べている。第2章は ^{197}Au について質量数42 - 131にわたる光核分裂核の収率と質量数24 - 110の26分裂生成核の反跳の綿密な測定を行い、荷電及び質量分布並びに反跳特性を陽子誘起核分裂の場合とも比較しつつ、これらの異同を明らかにしたことの記述である。第3章は、パイ中間子放出反応に関して、 ^{nat}Fe 、 ^{59}Co 、 ^{75}As 、 ^{nat}Ag 及び ^{nat}In 標的について (γ, π^+) 及び $(\gamma, \pi^- \text{xn})$ 反応の収率測定を行い、これらが標的核の(中性子/陽子)比のスムーズな関数になることを見出し、また、 $(\gamma, \pi^-)/(\gamma, \pi^+)$ 収率比がこれまでの所属グループによる結果と合わせて中重核では一定値6になることを明確にしたことの記述である。

以上の一連の結果を、理論計算と比較することにより、核内陽子・中性子の不均一分布構造をはじめて指摘し、またいずれの型の光核反応においても、質量数 $A_1 \geq 100$ 、 $(N/Z)_1 \geq 1.3$ の原子核での核内核子間相互作用の効果の重要性を見出し、核理論の再構築を促す結果となった。本論文は、本文140頁に90頁に及ぶデータ等の付録を加えた英文による纏めで、各章共に分かり易く、主要部は国際誌に受理された内容に基づいているおり、博士(理学)論文として優秀であるとの結論に達した。