報告番号 甲第 4154 号

β崩壊エネルギーの測定による $^{124-130}$Laの原子質量の決定

小島康明

1998年11月

名古屋大学図書
和 1284363

目 次

第1章　序論 **1**
1.1 はじめに 1
1.2 原子質量 1
1.3 原子質量の測定法 6
1.4 β崩壊エネルギーの測定 9
1.5 研究の目的 12
1.6 論文の構成 13

第2章　β線測定器としてのHPGe検出器の基礎特性 **15**
2.1 電子・陽電子線に対する応答関数の決定 15
2.1.1 応答関数の必要性 15
2.1.2 これまでの測定 16
2.1.3 電子線形加速器を利用した測定 20
2.1.4 応答関数のエネルギー依存性 24
2.1.5 EGS4による模擬計算 33
2.2 β線スペクトルの解析法 39
2.2.1 β^-線スペクトル 39
2.2.2 β^+線スペクトル 47
2.3 β崩壊エネルギーの系統誤差 53
2.4 まとめ 54

第3章　オンライン同位体分離装置を用いた中性子欠損核$^{124-130}$Laの測定 **57**
3.1 はじめに 57
3.2 中性子欠損核$^{124-130}$Laの生成 58
3.3 軌道電子捕獲崩壊エネルギーQ_{EC}の測定 62
3.4 崩壊図式作成のための測定 63

第4章　測定結果 **64**
4.1 ^{124}La 64
4.1.1 崩壊図式 64
4.1.2 軌道電子捕獲崩壊エネルギー 64
4.2 ^{125}La 72
4.3 ^{126}La 77
4.3.1 崩壊図式 77

4.3.2 軌道電子捕獲崩壊エネルギー 81
4.4 ^{127}La 91
4.5 ^{128}La 91
4.6 ^{129}La 95
4.7 ^{130}La 95
4.8 $^{124-130}$La の原子質量 95

第 5 章 考察 **101**
5.1 質量公式との比較 101
5.2 半減期の理論計算との比較 105
5.3 核構造 107

第 6 章 結論 **111**

謝辞 **115**

参考文献 **116**

付 録 A β崩壊の理論 **122**

付 録 B 高効率β線検出器の開発 **124**
B.1 BGO シンチレータを用いた全吸収型$\beta-\gamma$検出器 124
B.2 BGO 検出器によるβ線の測定 125

発表論文一覧 **134**

第1章　序論

1.1　はじめに

原子核は1911年にRutherfordのα線の散乱実験によって発見された。当初、原子核は陽子と電子から構成されると考えられたが、量子力学の発展に伴い、この組み合わせでは種々の実験事実を説明できないことが明らかになった。1932年にChadwickによって中性子が発見されると、直ちにHeisenbergとIwanenkoは原子核は陽子と中性子（両者を総称して核子と呼ぶ。）から構成されるとする考えを提案した。この考えは、その後の多くの実験によって確認され、現在では全く疑問のないこととされている。

原子核の存在が明らかになって以来、その内部構造、すなわち数個から高々250個程度の核子の集合体の運動形態について、様々な観点から研究が進められた。安定核近傍の原子核を対象に始まった実験で得られた成果は、それらを統一的に理解するために様々な原子核模型の構築へと発展していった。その代表的なものとして、MayerとJensenが提唱した殻模型 [1]、BohrとMottelsonによる統一模型 [2] が挙げられる。これらはエネルギー準位や電磁気モーメントなどの原子核の性質をかなりの程度、説明することに成功した。しかし近年の実験装置や測定機器の発達に伴い、研究対象が安定核近傍から徐々に外側、つまり不安定な原子核領域に広がってくると、従来の原子核理論では予想されていなかった中性子ハロー[1] [3] や超変形[2] [4] などの現象が次々と見つかった。このことは、これまでの原子核の性質に関する知識はまだ不十分であることを示している。安定領域から離れた原子核の研究を行うことは、核構造をより深く知る上で欠くことができない。

1.2　原子質量

原子核構造を反映する物理定数の1つとして原子質量が挙げられる。Z個の陽子及び軌道電子、N個の中性子から成る中性原子の質量$M(Z,N)$は、原子核及び電子の質量$m(Z,N), m_{\mathrm{e}}$と電子の結合エネルギー$\Delta_{\mathrm{e}}(Z)$を用いて

$$M(Z,N) = m(Z,N) + Zm_{\mathrm{e}} - \Delta_{\mathrm{e}}(Z)$$

と表せる。さらに原子核の質量$m(Z,N)$は、陽子質量m_{p}, 中性子質量m_{n}及び原子核の結合エネルギー$\Delta_{\mathrm{nucl}}(Z,N)$で

$$m(Z,N) = Zm_{\mathrm{p}} + Nm_{\mathrm{n}} - \Delta_{\mathrm{nucl}}(Z,N)$$

[1]表面に中性子のみが非常に薄い密度で広がっている現象。

[2]多くの原子核は回転楕円体状に変形しているが、その短軸、長軸の比が1:2あるいはそれ以上という極端な変形状態にある原子核。

と表せる。陽子、中性子及び電子の質量は精度良く測定されており、また軌道電子の結合エネルギーも各元素ごとに決まっている。従って原子質量を測定することは核子の結合エネルギーを決定することであると言い換えることができる。結合エネルギーは、多体系としての原子核の全般的な性質を表しており、歴史的には、これから導かれる物理量—例えば2中性子または2陽子分離エネルギー[3]—の系統性が、魔法数や原子核変形の存在を示す有力な証拠になった。例として質量数150近傍の中性子過剰核[4]の2中性子分離エネルギー S_{2n} を Fig. 1.1 に示す [5]。この図を見てまず気が付くことは、全ての元素において中性子数が82を超えると S_{2n} が急激に減少する点である。これは中性子数が82のとき、原子核が非常に安定になることを意味している。この現象は、原子における希ガスのように、原子核もある核子数（魔法数）のところで閉殻になる、と考えることで説明されている [1]。もう1つの特徴は、中性子数が90以上、陽子数が60以上の領域で、S_{2n} が大きくなっていることである。この現象は、中性子数が90になると原子核の形状が急激に回転楕円体に変形するために起きている。

このように原子核の基底状態の性質を反映している原子質量は、一体どの程度測定されているのであろうか。これを表したのが Fig. 1.2 である。この図は、白丸で表した原子核、すなわちその存在が実験的に確認されている約2700個の原子核 [6] のうち、質量が決められているのは黒丸で示したおよそ1900個 [5] の核種にすぎないことを示している。Fig. 1.2 から明らかなように、原子質量が未知の核種は、安定線[5]から遠く離れたところに位置している。これらの核種に対して原子質量の測定を行うことは、原子核に働く相互作用の性質を理解する手掛かりをもたらす。

さらに、不安定核の原子質量を実験的に決定することの工学的・物理的意義として、質量公式の検定を挙げることができる。質量公式は、陽子数と中性子数の関数で原子質量を表したもので、いくつかの研究グループから提案されている [7–16]。原子質量が未知の核種に対するその予測値は、宇宙における元素合成過程の解明、原子炉での崩壊熱の評価、あるいは長寿命核種を短寿命の別の核種へ変換する、いわゆる核消滅処理の研究など、基礎科学から応用分野まで幅広く利用されている。当然、質量公式の予測能力は高いことが要求されるが、実際には質量公式によって、その信頼性はかなり異なる。例として Fig. 1.3 に、Satpathy *et al.* [10], Tachibana *et al.* [11] 及び Spanier *et al.* [12] の質量公式が予測する $_{57}$La 同位体の陽子分離エネルギー S_p を示す。S_p は注目する原子核から1つの陽子を取り除くために必要なエネルギーであり、これが0になるところが陽子過剰側[6]の原子核の存在限界つまり陽子ドリップライン (proton drip line) である[7]。この図から明らかなように、各々の質量公式は1 MeV あるいはそれ以上異なる S_p を予測しており、ドリップラインの位置も質量数で2程度変動する。また、Satpathy *et al.* の質量公式のように、その予測値が他の公式と大きく異なる傾向を示すものもある。原子質量の実験値と予測値との比較は、質量公式の信頼性を直接評価できる方法であり、その結果は理論を改良する際に基礎データとして役立つ。

---

[3]ある原子核から2つの中性子または陽子を取り去るのに必要なエネルギー。

[4]安定な原子核に比べ中性子数の多い核種。

[5]Fig. 1.2 のように原子核を示したとき、安定な原子核はほぼ1本の線上に分布している。この仮想の線を安定線と呼ぶ。

[6]安定な原子核に比べ、陽子数が多い核種。中性子欠損核とも呼ばれる。

[7]正確には、原子核の Coulomb ポテンシャルの影響で、陽子ドリップラインの外側でも、ある程度原子核は存在できる。

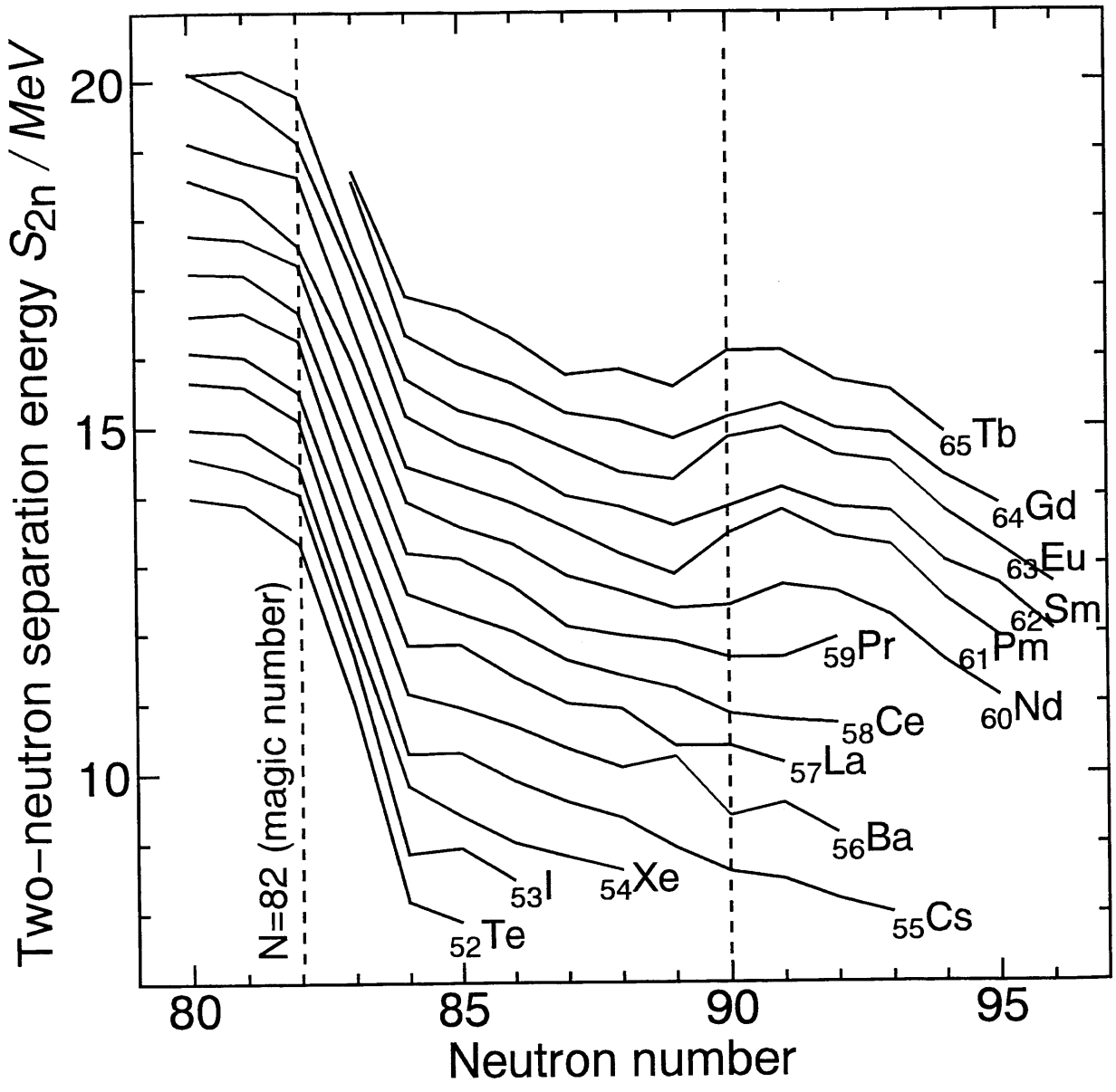

Fig. 1.1: Two-neutron separation energies S_{2n} for nuclei in an atomic region of $52 \leq Z \leq 65$.

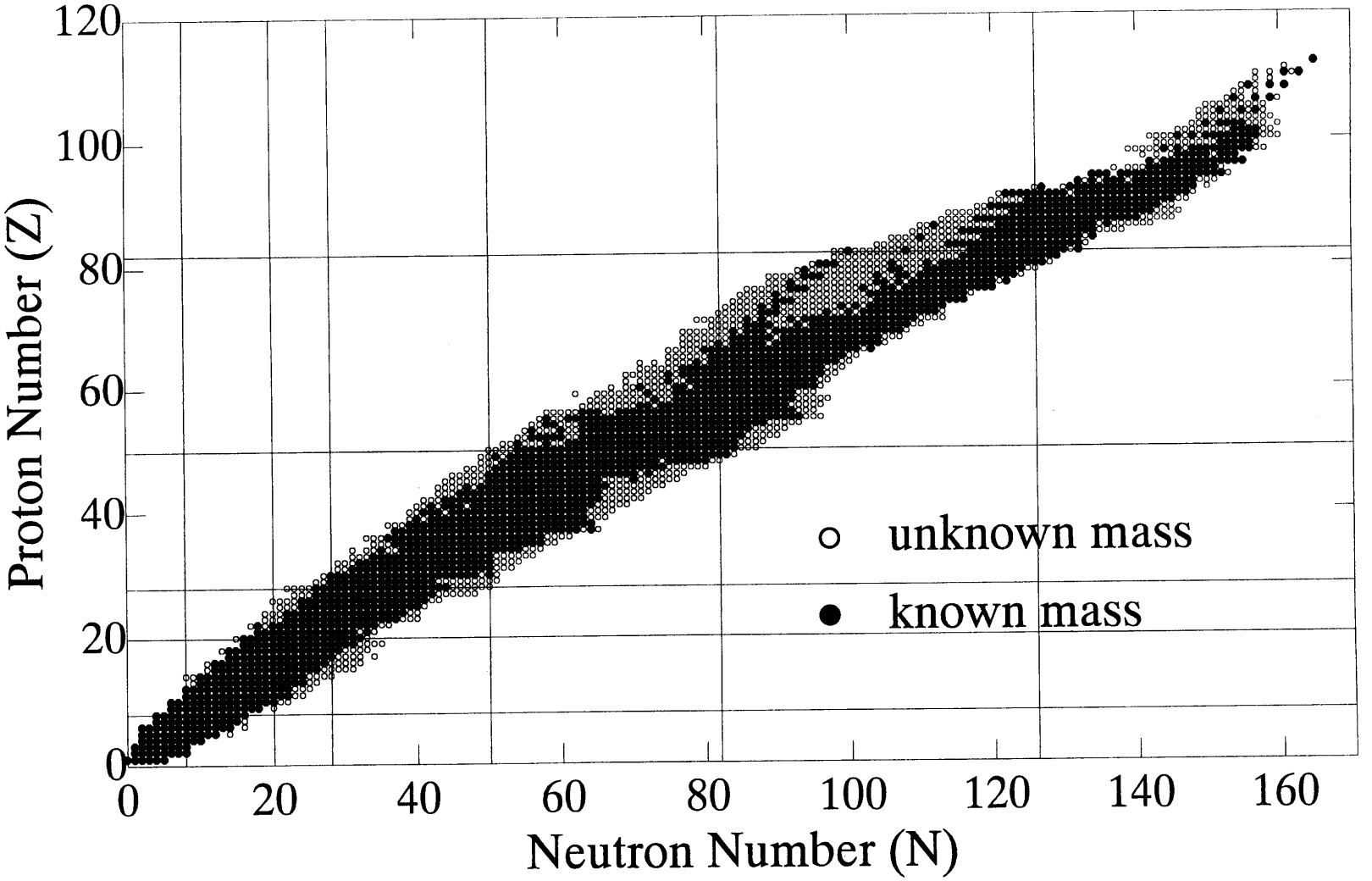

Fig. 1.2: Chart of the nuclides. Circles show nuclides synthesized. For nuclides whose masses are experimentally determined, the circles are shaded. Vertical and horizontal straight lines indicate neutron and proton magic numbers, respectively.

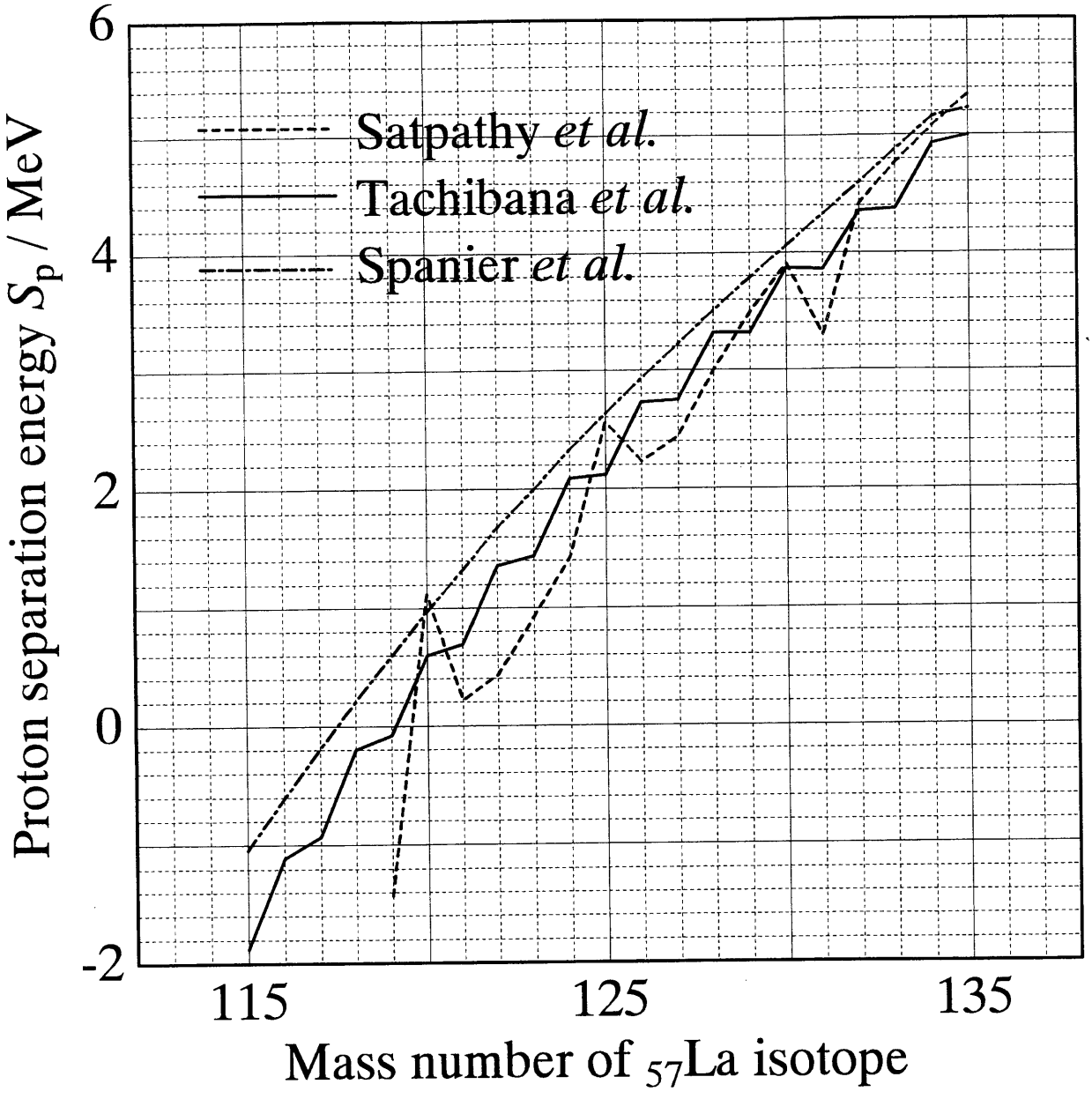

Fig. 1.3: Proton separation energies S_p of $_{57}$La isotopes predicted by mass formulas of Satpathy *et al.* [10], Tachibana *et al.* [11] and Spanier *et al.* [12].

原子質量（正確には原子質量の差、すなわちβ崩壊エネルギーQ_β[8]）は、β崩壊の半減期を理論的に計算する際にも、その入力値として必要になる。一般に半減期の理論計算値は、Q_βに強く依存する。具体例として、β崩壊の大局的理論 [17,18] で計算した^{161}Sm, ^{165}Gd 及び^{166}Tb の半減期を、その計算に用いたQ_{β^-}の関数として Fig. 1.4 に示す。計算値は実測値と 2 ~ 3 倍以内で一致しているものの[9]、500 keV のQ_{β^-}の変動で、半減期が 2 倍程度変わっていることが分かる。これらの原子核は、名古屋大学、東京都立大学及び日本原子力研究所東海研究所の共同研究で最近同定され、その半減期が実験的に初めて決定された [19,20]。その結果、計算値は実験値と比べ全般に長めの値になっていることが明らかになった。この原因として次の 2 点が考えられる。

1. 計算に用いたQ_{β^-}が真の値と大きく異なる。

2. β崩壊の理論が、何らかの点で不十分である。

上で述べた 3 核種については、原子質量またはQ_{β^-}の実験値が存在しないため、1. の問題について、その真偽を判断することができない。つまり、半減期の実測値と計算値とのずれの原因を突き止めることはできない。逆に言えば、実験によるQ_βの決定は、この問題に明確な答えを与える。質量公式と同様に半減期の理論計算値は、天体核物理や原子力工学で広く利用されている。従って、この信頼性を調べることは重要である。

1.3 原子質量の測定法

現在、不安定核の原子質量を測定する方法として大きく分けて 2 つの手段が用いられている。すなわち慣性質量を直接測定する方法と、質量とエネルギーの等価性 $E = mc^2$ を利用して原子核が崩壊（あるいは反応）する際のエネルギーの変化量から質量を間接的に決める方法である。

直接測定法はさらに飛行時間測定を行う方法、サイクロトロン (cyclotron) 振動数を測定する方法などに分けられる。

フランスの重イオン研究所 (GANIL: Grand Accélérateur National d'Ions Lourds) の反跳核分析器 SPEG [22] とアメリカのロスアラモス国立研究所 (Los Alamos National Laboratory) の飛行時間分析器 TOFI [23] は、核反応で生成・反跳した原子核を、エネルギー分析用の双極磁石を含むイオン輸送系に導き、その飛行時間を測定することで、原子質量を直接決定する。この方法で決定できる質量の精度は$\Delta M/M$ =10^{-4}程度とあまり良くはなく、また測定対象が質量数 50 程度までの軽い核に限られるという弱点がある。しかしながら、半減期が非常に短い (数 ms 程度) 核種の原子質量を測定できるほとんど唯一の方法であるため、得られる実験値の意味は大きい。

[8] β^-崩壊エネルギーをQ_{β^-}、軌道電子捕獲 (EC: orbital Electron Capture) 崩壊エネルギーを$Q_{\rm EC}$と書き表す。EC 崩壊はβ^+崩壊の競合過程であり、$Q_{\rm EC}$はβ^+崩壊エネルギーに電子・陽電子の静止質量エネルギー $2mc^2 = 1022$ keV を加えた値に等しい。本論文では両者を特に区別する必要のない場合、Q_βと表すことにする。

[9] 半減期の理論計算値の精度を表す指標の 1 つとして、実測値と計算値が 2 または 3 倍、あるいは 10 倍以内で一致する核種の割合を示すことが多い。

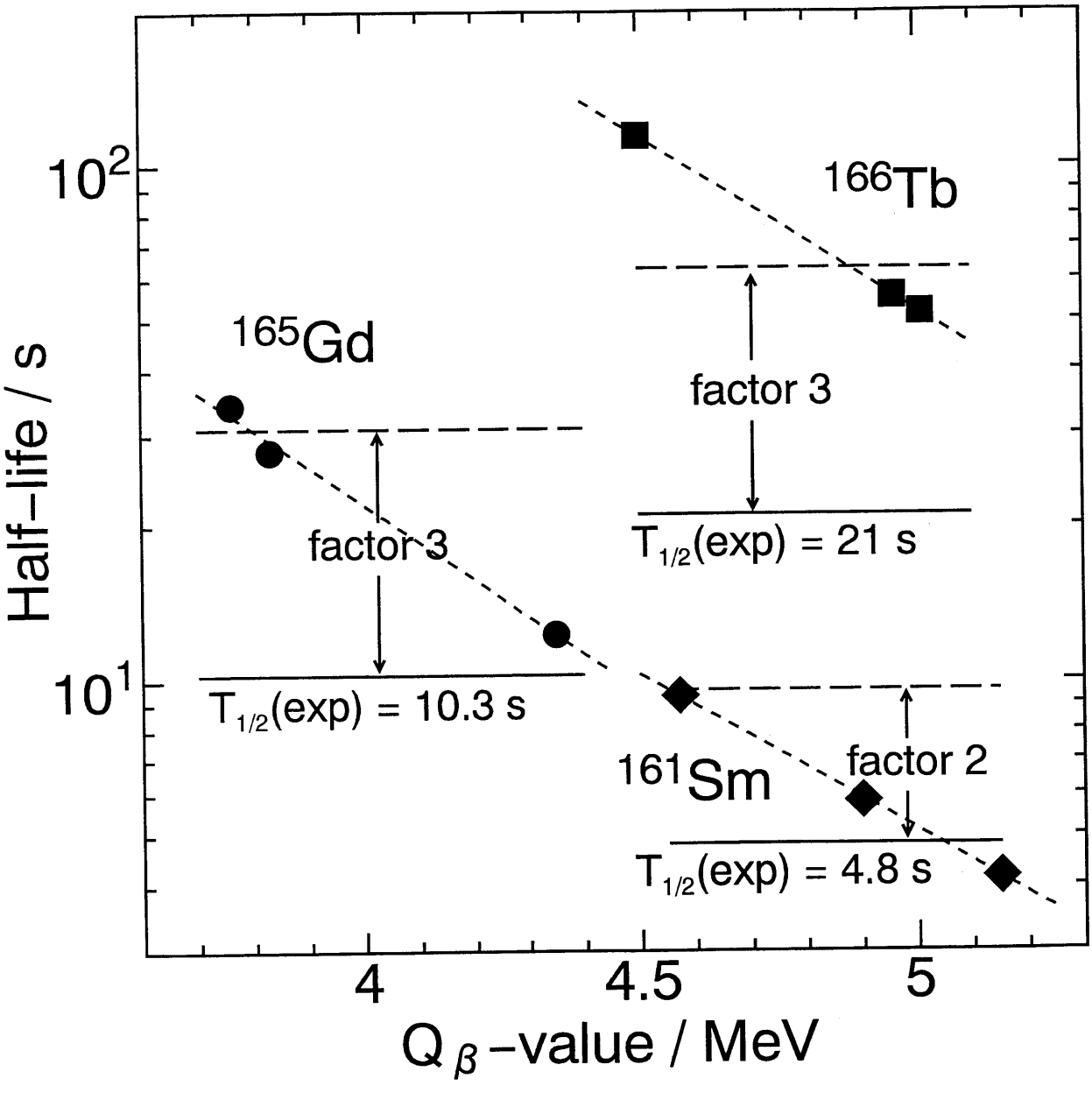

Fig. 1.4: Dependence of theoretical half-lives of ^{161}Sm, ^{165}Gd and ^{166}Tb on Q_β-values. The half-lives are calculated by the revised gross theory. [17, 18]

これとは別に最近GANILで、連結されている2台のサイクロトロンCSS1とCSS2を用いる原子質量測定が行われた[24]。この方法では、1台目のサイクロトロンCSS1のビームを利用して生成させた不安定核を2次ビームとして取り出し、2台目のサイクロトロンCSS2へ導入し、飛行時間分析を行う。彼らは質量数100近傍の原子質量を精度10^{-5}程度で決定した。同様の装置はフランスの原子核研究所(Institut des Sciences Nucléaires)のSARA (Système Accélérateur Rhône-Alpes)にも導入された[25]。

また、ドイツの重イオン科学研究所(GSI: Gesellschaft für Schwerionenforschung)では蓄積リング(ESR: Experimental Storage Ring)中を周回させたイオンの飛行時間を測定し、原子質量を決定する実験が計画されている[26,27]。1回のイオンの周回に対する質量分解能は3×10^{-4}程度であるが、これを100回程度周回させ飛行時間を測定することで、イオンの重心位置の決定精度が上がるため、質量の精度は3×10^{-7}程度になると見積もられている。

直接測定法のもう1つの方法は、磁場中に閉じ込めたイオンの固有サイクロトロン周波数から原子質量を決定する方法である。この装置としては、ヨーロッパ連合原子核研究機関(CERN: Conséil Europeen pour la Recherche Nucléaire, 現在の名称はEuropean Organization for Nuclear Research)に設置されているタンデム(tandem)型のペニングトラップ(Penning trap)質量分析器ISOLTRAPがある[28]。オンライン同位体分離装置ISOLDE (Isotope Separator On-Line DEvelopment)で質量分離された生成核は、まず1段目のトラップでパルス状のビームにされてから、2段目の高精度のペニングトラップに輸送され、電磁場によって閉じ込められる。このイオンに高周波を印加すると、固有サイクロトロン振動数に相当するところで共鳴励起が起こる。その共鳴を観測することで半減期が1 s以上の原子核の質量を精度1×10^{-7}程度で決定することが可能である。この装置には最近、1段目のトラップに分解能10^{-5}程度の質量分析の機能を持たせるなどの改良が加えられた。このことにより、今まで同重核[10]の混入が多いため測定が困難だった希土類核に対しても質量の測定が可能になった[29]。ペニングトラップを利用した原子質量測定装置は、カナダのチョークリバー研究所(Chalk River Laboratories)においても最近製作された[30]。

また、別の手法でサイクロトロン振動数を測定する装置MISTRAL (Mass measurement at ISolde using a Transmission RAdiofrequency spectrometer on-Line)がCERNに導入され、まもなく実験が開始される[31]。イオン化された測定対象核は、スリットを通って磁場内に入射し円運動し、2周してから磁場外へ抜ける。この間に高周波を印加することで、異なる固有サイクロトロン周波数を持つイオンを分離することができる。得られる質量の精度は10^{-5}から10^{-6}程度であり、ISOLTRAPと比べると1桁落ちる。しかし、測定に要する時間がおよそ100 μsと短時間であるため、ISOLTRAPと比べて短寿命の核種の質量測定が可能である。

さらにGSIではESRに閉じ込めたイオンの公転周期をSchottky法と呼ばれる手法で測定し、これから原子質量を求めることが行われている[32]。

一方、質量の間接測定法では多くの場合、原子核の崩壊エネルギーを測定する手法が採られる。これは崩壊の始状態と終状態の質量差に等しいので、いずれか一方の質量が既知であれば、他方の質量を決定できる。広い原子核領域での測定を目指す場合

[10]元素は異なるが、質量数が等しい核。例えば^{124}Laと^{124}Ceは質量数124の同重核である。

には、特にβ崩壊エネルギーの測定が適している。なぜなら、不安定核の多くはβ崩壊するということに加え、その半減期は通常1 s程度以上と長いため、オンライン同位体分離装置ISOL [11]を用いた線源調製が可能であるからである。間接法は質量の差を測定する方法であるため直接法に比べ感度が良く、一方の原子質量が高精度で決まっていれば、他方のそれを容易に精度良く決定できる。具体的には第2章で述べるが、β線検出器の基礎特性を把握することで、質量数100程度の原子核に対して精度$10^{-6} \sim 10^{-7}$で原子質量を決定することが可能である。これは直接測定法で得られる精度とほぼ同等である。また、β崩壊エネルギーを測定するために必要な装置はβ線測定器だけで良い。この手法は、高精度が得られ、しかも直接測定法に比べて極めて小規模な装置で測定が可能という特徴を持っており、大変魅力的である。

Fig. 1.5に代表的な質量測定法で得られる精度と、測定対象にすることが可能な核種の半減期をまとめて示す。この図は文献 [21] を基に作成した。

以上で述べたように不安定核の原子質量を決定することは半減期や線源強度等により種々の制約があり、工夫した実験が必要である。このような複雑な測定法では、大きな系統誤差が入り込んでしまうことがあり得る。原子質量の場合、それが最も基本的な物理定数の1つであるため、測定結果は高い信頼性を持つことが求められる。そのためには質量の決定は、異なる原理に基づいている直接測定及び間接測定双方で行い、両者の値が一致することを確認するべきである。つまり、原子質量測定においては直接法、間接法のいずれも重要であり、信頼性の面でも、測定範囲の広さの面でも、相互啓発していくことが望まれる。

1.4 β崩壊エネルギーの測定

β崩壊では電子または陽電子に加え、電子ニュートリノ (neutrino: 中性微子) が放出されるため、β線のエネルギー分布はα線やγ線と異なり連続である。β崩壊エネルギーはβ線スペクトルを測定し、その最大エネルギーから求める。この解析を行う際には、用いる検出器の種類に関わらず、β線が娘核のどのエネルギー準位に遷移しているのかを知るために、測定対象核種の詳しい崩壊図式が必要である。

β崩壊エネルギーを決定するために用いられている測定器には、磁気スペクトロメータ、プラスチックシンチレーション検出器 [33,34]、及び半導体検出器であるSi(Li) 検出器 [35] や高純度ゲルマニウム (HPGe: High-Purity Germanium) 検出器 [36–39] がある。これらの特徴をTable 1.1に示す。

β線測定器として、最もエネルギー分解能が優れているのは磁気スペクトロメータである。しかし、これはシングルチャンネル (single channel) の測定であるため、測定効率が悪い。このため、生成量が少なく、しかもマシンタイムの制約から測定に費やせる時間が限られる短寿命核のQ_β測定には向かない。

[11] ISOLで核種を質量分離するのに要する時間は1秒から数秒である。この時間はターゲット・イオン源一体型ISOLでは、主にイオン源から核種が蒸発して出て来るまでの時間で決まり、またガスジェット (gas-jet) 型ISOLでは反応槽からイオン源まで運ばれる時間により決まる。

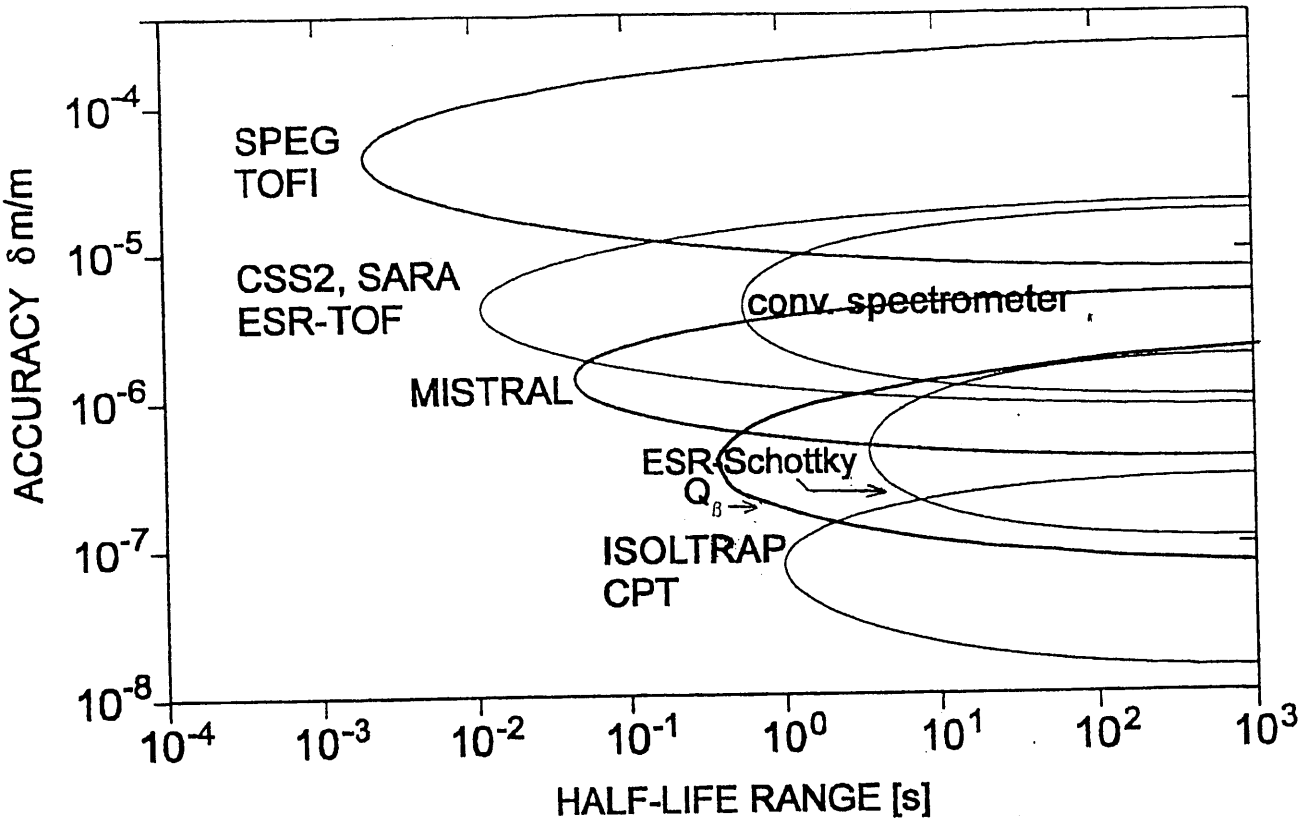

Fig. 1.5: Comparison of various approaches for mass measurements on radioactive isotopes.

プラスチックシンチレーション検出器は構成物質の原子番号が小さいためにβ線の後方散乱の割合が小さく、全エネルギー吸収効率が高い。しかしエネルギー分解能は次に述べる半導体検出器に比べて20倍程度劣る。さらにγ線に対する光電吸収確率が極めて小さいため、検出器のエネルギー較正を行うことが難しい。

Si(Li) 検出器は電子・陽電子に対するエネルギー分解能が 10 ~ 20 keV と優れている。しかし、大きな結晶を作ることが困難で、その厚さは通常 5 mm 程度、最大でも 10 mm 程度までである。10 mm という厚さは 5 MeV の電子・陽電子の飛程に相当する。このためβ線最大エネルギーが 5 MeV 以上の核種の場合、全エネルギー吸収効率が極端に低下し、測定が困難である。また、プラスチックシンチレーション検出器と同様に、エネルギー較正が困難である。さらにケイ素の原子番号が 14 とやや大きいため、β線の後方散乱[12]を含めた応答関数はかなり複雑である。

HPGe 検出器は Si(Li) 検出器と同程度のエネルギー分解能を持ち、しかも大きな結晶を作成することが可能である。またγ線の全エネルギー吸収効率はプラスチックシンチーション検出器や Si(Li) 検出器に比べて大きいため、エネルギー較正はγ線を用いて容易にかつ精密に行うことができる。ただし、あまりに大きな結晶を持つ検出器を用いると、β線測定時にγ線がバックグラウンドとして強く現れるので、測定対象とするβ線の飛程程度の厚さの検出器を使用するのが普通である。β線測定器としての HPGe 検出器の欠点は、β線を測定したときに得られるスペクトルが、真の形状と比べて歪んでしまうことである。これはゲルマニウムの原子番号が 32 と大きいため、β線の後方散乱割合及び制動放射線の発生割合[13]が大きくなるのが原因である。しかし、この歪みは適切な方法を用いることで補正でき、条件の良い場合では誤差 20 keV 程度でβ崩壊エネルギーを決定することが可能である。

Table 1.1: Typical performance of β-ray spectrometers.

Spectrometer	Energy resolution (%)	Measurable energy range (MeV)	Detection efficiency (%)	Response for β-rays[a)]	Energy calibration
Magnetic spectrometer	0.1	0 – 10	0.5	(i)	Easy
Plastic scintillator	5 – 8	0 – 10	80	(ii)	Hard
Si(Li) detector	1 – 2[b)]	0 – 5	40	(iii)	Hard
HPGe detector	1 – 2[b)]	0 – 10	10 – 20	(iv)	Easy

[a)] (i) simple, (ii) slightly complex, (iii) considerably complex, (iv) rather complex.
[b)] Taken into account of an energy straggling caused by the detector window. For γ-rays, the energy resolution is 0.1-0.5%.

[12] β線の後方散乱は、相手物質の原子番号が大きくなるほど多くなる。

[13] 運動エネルギー E (MeV) の電子を原子番号 Z の物質に入射させる場合を考える。電子は電離または制動放射によってエネルギーを失う。これらの過程によるエネルギー損失量の比は制動過程/電離過程 ~ $EZ/700$ である。

1.5 研究の目的

これまでに述べた背景の要約も含め、本研究の目的を述べる。

1. 不安定核の原子質量を精度 $\Delta M/M \sim 10^{-6}$以下で決定するために、高分解能のHPGe検出器を用いたβ崩壊エネルギーの測定法を確立する。

原子質量は原子核の安定性に関するデータを与える基本的な物理量であり、種々の核計算等において利用されている。今後超ウラン元素の核消滅処理の研究が進むに連れて益々原子質量の正確な値が要求される趨勢にある。実験データのない領域では質量公式の予測する値が利用されているが、公式間のずれは不安定核になればなるほど大きく、1 MeV以上にも達する。本研究で信頼性の高い原子質量を決定する方法が確立されれば、その実験値は質量公式の改良に寄与するとともに、核データベースの充実に貢献する。本研究では、大規模な装置を要することなく高精度が得られ、しかも広い原子核領域を測定対象にすることができるという特徴に注目し、不安定核の原子質量の決定手段として、β崩壊エネルギーの測定を採用する。

本研究で測定を目指す不安定核のβ崩壊エネルギーは9 MeV程度にまで及ぶ。信頼性の高い結果を得るためには、HPGe検出器の基礎特性として単色電子・陽電子線を測定したときに得られるスペクトル、すなわち応答関数を同程度のエネルギー領域まで決定する必要がある。応答関数はモンテカルロ計算で求める方法もあるが、計算コードの信頼性が明らかではないので、実験で決定する。このための装置を設計・製作し、京都大学原子炉実験所の電子線形加速器と組み合わせ、6 ~ 9 MeVの単色電子・陽電子線の応答関数を実測する。応答関数の測定は、市販されている種々の結晶サイズを持つHPGe検出器のうち、β線測定に適した検出器を選択するために、3種類の検出器に対して行う。別の手法で既に測定されている4.5 MeVまでの結果と合わせて、応答関数のエネルギー依存性を調べ、β線スペクトル解析に適用する。そしてこの方法で測定して得られるβ線最大エネルギーの精度を評価する。9 MeVまでの単色電子・陽電子線に対してHPGe検出器の応答関数を測定することは、線源を得るのが困難であるため、ほとんどなされていない。これまでに論文として発表されているのは、わずかにDecker *et al.*が8 MeVまでの電子に対して測定した例があるのみである [36]。

2. オンライン同位体分離装置で生成・分離する中性子欠損核$^{124-130}$Laの軌道電子捕獲崩壊エネルギーQ_{EC}を測定し、その原子質量を決定する。

β崩壊エネルギー測定による原子質量の測定法を確立した後、これを$^{124-130}$LaのQ_{EC}測定に適用する。本研究では以下の理由で$^{124-130}$Laを測定対象とした。

(i) $^{124-127,130}$Laの実験データがなく、中性子欠損軽希土類核の原子質量を評価する際に必要である。

Fig. 1.6に$^{124-130}_{57}$La近傍の原子核を、その原子質量の測定の現状も含めて示す。この図から、$_{56}$Baよりも原子番号が大きくなると、質量の実験データが極端に少な

くなることが分かる。本研究で得られる実験値、特に$^{124-127,130}$La の Q_{EC}は、貴重な基礎核データとして利用される。

(ii) 質量公式と比較することにより、理論の改良に寄与する。

新たに測定された質量の実験値を、質量公式の予測値と比較することは、その有効性を評価する最も直接的な方法である。本研究によって中性子欠損軽希土類核領域で、どの質量公式が最も良い予測能力を持っているのか知ることができる。また理論研究者に対しては、質量公式のさらなる改良を促すことになろう。

(iii) $^{124-130}_{57}$La$_{67-73}$の原子核の安定性について知見を得る。

これらの原子核は、陽子数及び中性子数がともに2つの魔法数50, 82の中間であり、原子核形状が球形から回転楕円体へと移行する遷移領域にあることが良く知られている。遷移領域の原子核は球形核、変形核双方の性質を部分的に反映していると考えられる。このため原子核構造を統一的に理解する上でこれらの原子核の研究が果たす役割は大きい。実際、インビーム[14]または崩壊核分光[15]によって得られた実験結果は、相互作用するボゾン模型 [40] や General Collective Model [41] 等の原子核模型と比較され、γ不安定核から軸対象変形核への変化過程などが明らかにされてきた [42–46]。ところが原子核の基底状態の性質を反映する原子質量に関しては、既に述べたように実験値がほとんどない。最近 Osa *et al.* [39] や Beck *et al.* [47] によって中性子欠損$_{56}$Ba 同位体の質量が測定された。その結果、いままで考えられてきたよりも、これらの原子核が安定であることが明らかになった。これが Ba 同位体だけで特異的に起きている現象なのか、あるいはその周辺の原子核でも見られるのかを調べることは、中性子欠損軽希土類の全般的な安定性を知る上で重要である。

1.6 論文の構成

第2章ではHPGe検出器をβ線測定に用いる際に必要な応答関数の決定について述べる。また、その応答関数を用いてβ線最大エネルギーを決定する際の精度についても述べる。第3章ではオンライン同位体分離装置を用いて生成・分離した$^{124-130}$La のβ線及びγ線の測定手法について述べる。第4章では測定結果と、それから導き出した原子質量の値を示す。第5章ではその結果を基に、質量公式との比較、β^+/EC 崩壊半減期の理論計算値との比較を行う。また、原子質量から導いた2中性子分離エネルギーの系統性から、この領域の原子核構造を考察する。第6章では結論を述べる。

[14]核反応直後の励起状態から放出されるγ線等を測定し、原子核に関する知見を得る実験手法。
[15]βまたはα崩壊後の励起状態から放出されるγ線等を測定し、原子核に関する知見を得る実験手法。

Nuclide half-life Q_β (keV)												
							^{130}Pm 2.2 s 10870		^{132}Pm 6.3 s 9900	^{133}Pm 12 s 7000	^{134}Pm 24 s 9170	^{135}Pm 55 s 6020
					^{127}Nd 1.9 s 9010		^{129}Nd 4.9 s 7830	^{130}Nd 28 s 5030	^{131}Nd 24 s 6560	^{132}Nd 1.8 m 3730	^{133}Nd 1.2 m 5600	^{134}Nd 8.5 m 2770
^{121}Pr 1.4 s 10890			^{124}Pr 1.2 s 11700	^{125}Pr 3.3 s 8760	^{126}Pr 3.2 s 10440	^{127}Pr 7.7 s 7530	^{128}Pr 3.2 s 9250	^{129}Pr 24 s 5760	^{130}Pr 40 s 8100	^{131}Pr 1.7m/5.7s 5250	^{132}Pr 1.6 m 7110	^{133}Pr 6.5 m 4330
			^{123}Ce 3.8 s 8640	^{124}Ce 6 s 5580	^{125}Ce 9.0 s 7330	^{126}Ce 53.1 s 4410	^{127}Ce 32 s 6140	^{128}Ce 5.5 m 3190	^{129}Ce 3.5 m 5600	^{130}Ce 25 m 2210	^{131}Ce 8.5m/5m 4020	^{132}Ce 3.5h/13ms 1290
	^{120}La 2.8 s 11220	^{121}La 5.3 s 7930	^{122}La 8.7 s 9730	^{123}La 17 s 6880	^{124}La 29 s 8790	^{125}La 1.3 m 5640	^{126}La 54 s 7570	^{127}La 3.8 m 4700	^{128}La 4.9 m 6650	^{129}La 11.6m/0.56s 3720	^{130}La 8.7 m 5600	^{131}La 59 m 2960
	^{119}Ba 5.4 s 8100	^{120}Ba 32 s 5000	^{121}Ba 30 s 6810	^{122}Ba 2.0 m 3840	^{123}Ba 2.7 m 5460	^{124}Ba 10.5 m 2646	^{125}Ba 8m/3.5m 4560	^{126}Ba 1.67 h 1673	^{127}Ba 12.7m/1.9s 3450	^{128}Ba 2.43 d 521	^{129}Ba 2.2h/2.1h 2433	^{130}Ba stable
^{117}Cs 8.4s/6.5s 7520	^{118}Cs 17s/14s 9300	^{119}Cs 38s/28s 6330	^{120}Cs 64s/57s 7920	^{121}Cs 2.6m/2.0m 5400	^{122}Cs 4.2m/21s 7050	^{123}Cs 5.9m/1.6s 4200	^{124}Cs 30.8s/6.3s 5917	^{125}Cs 45 m 3092	^{126}Cs 1.64 m 4826	^{127}Cs 6.3 h 2081	^{128}Cs 3.62 m 3930	^{129}Cs 1.34 d 1195

Fig. 1.6: The chart of the nuclides in an atomic region of $55 \leq Z \leq 61$. A nuclide whose mass or Q_β-value is experimentally determined is shown in a shaded box.

第2章　β線測定器としてのHPGe検出器の基礎特性

2.1　電子・陽電子線に対する応答関数の決定

2.1.1　応答関数の必要性

β崩壊エネルギーは、β線スペクトルの最大エネルギーから決定する。本研究ではβスペクトルを高分解能のHPGe検出器で測定するが、電子線がゲルマニウム結晶に入射すると様々な相互作用を起こし、一部は結晶内で停止し、また一部は全エネルギーを結晶に与える前に結晶外へ抜け出て行ってしまう。さらに陽電子線の場合には、結晶内で停止し電子と結合して消滅する際に発生する2本の消滅光子[1]（各消滅光子のエネルギーは電子・陽電子の静止質量に等しく、511 keVである。）が、検出器にエネルギーを付与する。このような相互作用の結果、応答関数、つまり単一のエネルギーを持った電子または陽電子線を入射させたときに検出器が出力するスペクトルは、極めて複雑になる。

これに伴い、β線をHPGe検出器で測定したときに得られるスペクトルは、入射β線のスペクトルから大きく歪んでしまう。従ってβ線スペクトルの最大エネルギーを決定する上で解決すべき最大の課題は、スペクトルの歪みの補正である。スペクトルの補正は応答関数を用いてアンフォールディング(unfolding)することにより行うため、β線最大エネルギーの実験的決定において、結果の信頼性は、応答関数の信頼性にかかっていると言って良い（Fig. 2.23, 2.33参照。この図の説明は第2.2節で述べる。）。

応答関数は実験的に決定する方が信頼性という観点からは確実であるが、現実には単色電子・陽電子線を得ることが難しいため[2]、モンテカルロ法による計算 [37] あるいは半経験的手法 [48] により決定されている場合が多い。また、応答関数の計算さえも行わず測定スペクトルから直接最大エネルギーを決定している例もある [49,50]。この応答関数の不確実さを1つの要因として、ともするとβ崩壊エネルギーから信頼できる原子質量を得ることは期待できないという見方をされることもある[3]。

---

[1] 3本以上の消滅γ線を放出する場合もあるが、その確率は小さいので無視しても本実験では差し支えない。

[2] 自然界には内部転換電子以外には単色の電子線は存在しない。容易に入手可能な長寿命の内部転換電子線源は1 MeV程度までの電子しか放出しない。また単色陽電子線源は自然界には存在しない。従って10 MeV程度までの単色電子・陽電子線を得るためには工夫した実験装置が必要となる。

[3] 例えばβ^+線最大エネルギーから決定された^{80}Y等の原子質量 [49,50] に対し、Issmer *et al.* は飛行時間分析法を用いて原子質量を直接決定し、両者に2 MeV程度の差があることを明らかにした [25]。Issmer *et al.* は、自分たちの実験値が周辺原子核の系統性と良く一致していることを1つの根拠に、β^+線最大エネルギーの測定値は誤っていると主張している。

これに対して、本研究では正しい応答関数を実験的にきちんと決定すれば、十分信頼できるβ線最大エネルギーを求めることができるはずであるという考えに立つ。すなわち、原理的に正しい基礎に立ち、きちんと実験すれば正しい結果が得られると考える。もし正しくない結果が得られたというのであれば、それは用いた原理によるのではなく、研究者の技術上の問題であろう。実際、これまで半導体検出器に対する応答関数を実験的に丁寧に決定し、これを利用してβ線最大エネルギーを測定している研究グループは、直接測定法で得られている値と矛盾のない結果を得ている [35,36]。応答関数の測定のために、単色の電子・陽電子線を得ることは、特に5 MeV以上のエネルギー領域では困難であるが、本研究では工夫した実験装置を製作することでそれを可能にし、信頼性の高い測定系を確立することを目指した。

2.1.2 これまでの測定

これまでにβ線最大エネルギーを決定する目的で、HPGe検出器の電子または陽電子に対する応答関数を測定した例としては次のような報告がある。

Decker *et al.* はフランスのラウエ-ランジュバン研究所 (ILL: Institute Laue-Langevin) の原子炉に設置されたβスペクトロメータ BILL を利用して、1.6 ~ 8.0 MeV の単色電子線に対する応答関数を測定した [36]。

Dautet *et al.* はモントリオール (Montréal) 大学の施設で 1.3 ~ 7.0 MeV の単色陽電子線の応答関数を測定したと国際会議で発表した [51]。しかし、単色陽電子の生成方法を含めて実験の詳細は報告されていない。

また、Keller *et al.* は結晶厚さ 11 mm の Si(Li) 検出器に対してではあるが、1 ~ 9 MeV の単色電子及び 2.5 MeV の陽電子線に対する応答関数を測定した [35]。第1.4節でも述べたように、この結晶厚さは 5 MeV の電子・陽電子の飛程に相当する。このため、測定された応答関数は 5 MeV を超えるとその形状が大きく変化している。彼らは 5 MeV 程度までのβ崩壊エネルギーを持つ核種を主な対象として測定を行っている。

本研究ではβ線検出器として LEPS (Low Energy Photon Spectrometer, 低エネルギー光子検出器) と呼ばれる形式の HPGe 検出器を用いた。この検出器の入射窓にはエネルギー損失をできる限り減らすために薄いベリリウム箔が用いられている。市販されているものの中で、β崩壊エネルギー測定に最も適している検出器を選択するために、3 台の異なる検出器に対して応答関数を測定した。検出器の一覧を Table 2.1 に示す。ここで 10 mm 及び 13 mm のゲルマニウム厚さは、それぞれ 8 MeV 及び 11 MeV の電子の飛程に相当する。Table 2.1 に示した検出器の中で、直径 16 mm 及び 25 mm の HPGe 検出器の結晶形状が平板型 (planar type) であるのに対し、直径 50 mm のそれはクローズドエンド同軸型 (closed ended coaxial type) の形状をしている[4]。コリメート (collimate) したγ線を用いて実測した結晶形状を Fig. 2.1 に示す。この図には HPGe 検出器全体の構造も併せて示した。

[4]ただし、検出器の特性表には平板型であると記されている。

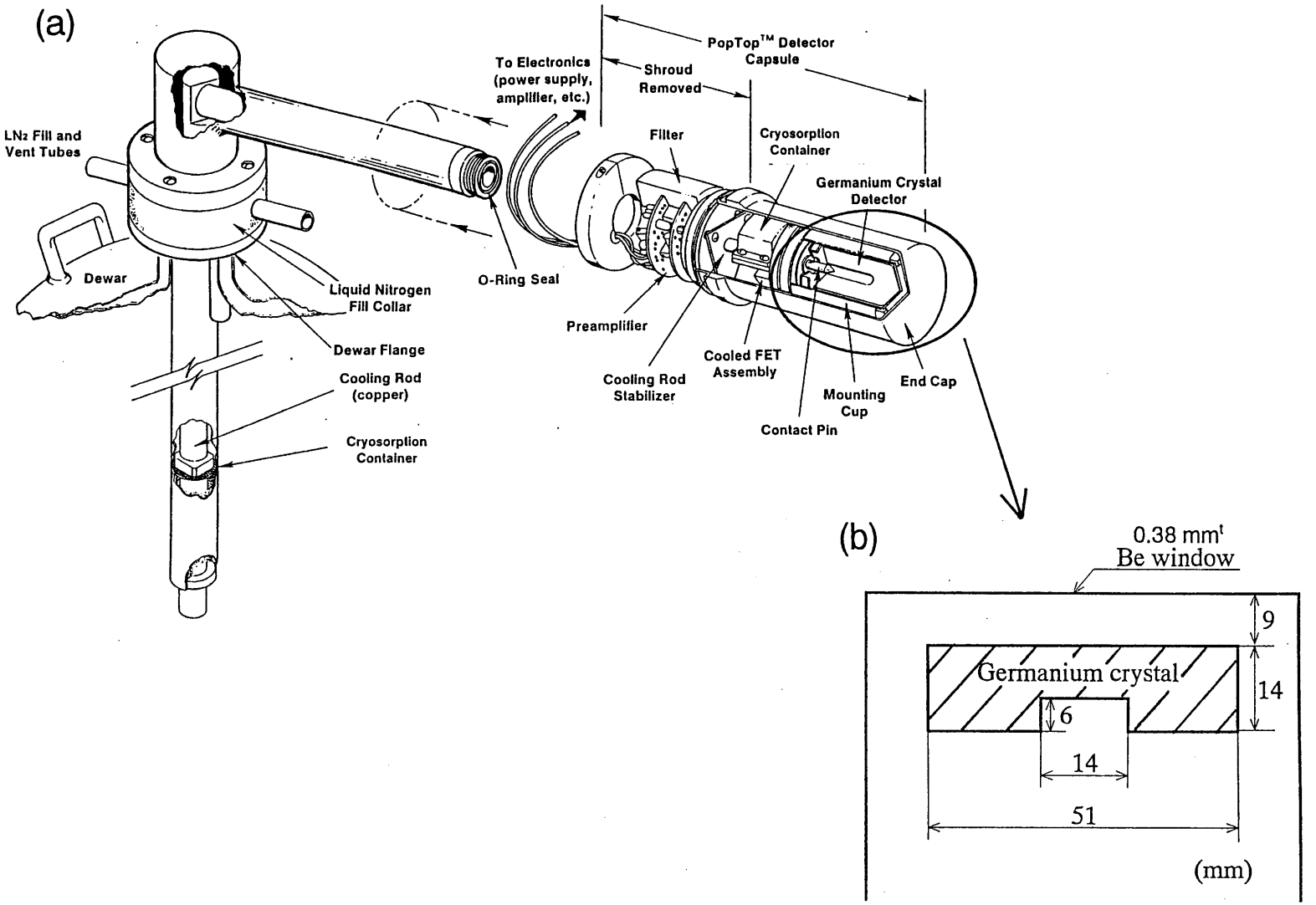

Fig. 2.1: (a) An exploded view of an HPGe detector. (Taken from ref. 52.) (b) A profile of a germanium crystal of a 50 mm$^\phi$× 10 mm^t HPGe detector.

Table 2.1: Specification of HPGe detectors used in the present study. Measurable energy range for electrons and positrons is also presented.

Crystal size		Measurable	Be window	FWHM	
Diameter (mm)	Thickness (mm)	energy range (MeV)	thickness (mm)	at 122 keV (eV)	Bias (V)
16	10	0 – 8	0.05	650	-2000
25	13	0 – 11	0.254	545	-1500
50	10	0 – 8	0.38	610	-2000

これらの検出器の応答関数は、これまで電子線に対してはIkuta *et al.*によって4.5 MeVまで [38]、陽電子線に対してはOsa *et al.*によって3.8 MeVまで [53] 実験的に決定されている。彼らはTable 2.2に示したβ線源を京都大学原子炉実験所に付置されているセクタ型二重収束β線スペクトロメータ [54] で分析することで疑似単色電子・陽電子線を得た。このスペクトロメータのエネルギー分解能はおよそ 8×10^{-4}である。測定して得られた応答関数の例をFig. 2.2に示す。

Table 2.2: Energy range of response functions obtained at a sector type double focusing β-ray spectrometer. Beta-ray sources used for the measurements are also presented.

Beta-ray source	Half-life	Beta-ray maximum energy (MeV)	Energy range (MeV)
Electrons			
^{90}Sr-^{90}Y	28.78 y	2.28	0.5 – 2.0
^{144}Ce-^{144}Pr	284.89 d	3.00	0.5 – 2.8
^{38}Cl	37.24 m	4.92	2.0 – 4.5
Positrons			
^{68}Ge-^{68}Ga	270.82 d	1.90	0.5 – 1.8
^{34m}Cl	32.00 m	4.62	2.0 – 3.8

既に述べたように、本研究の測定対象である不安定核のQ_βは最大で8 ~ 10 MeV程度にまで及ぶ。これらの核種のQ_βを決定するためには、応答関数も同程度のエネルギー領域まで求めておかなければならない。ところが上記の装置では、5 MeV以上の電子・陽電子の応答関数を測定することは不可能である。なぜなら、この方法では高エネルギーのβ線を放出し、しかも半減期の長い核種を利用する必要があるが[5]、そのような条件を満たす適当な線源が存在しないからである。そこで次節で述べるように従来とは異なる別の方法で疑似単色電子・陽電子線を生成し、応答関数を測定することにした。

[5] β線源を製造後、それを線源ホルダーに取り付け、装置の真空を引く作業を行うのに、5 ~ 10 min程度必要である。

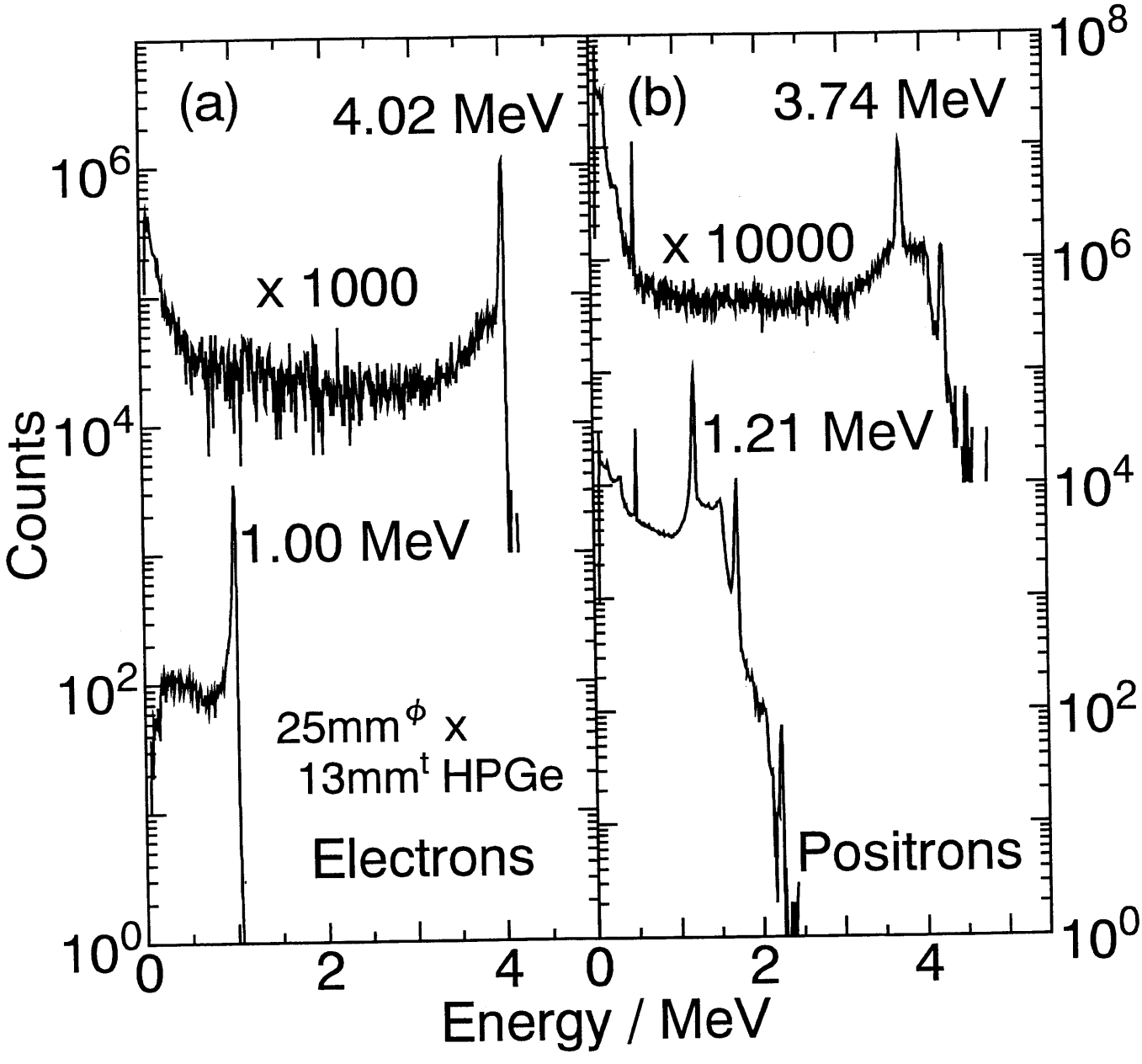

Fig. 2.2: Experimental response functions of a 25 mm$^{\phi}$× 13 mm^{t} HPGe detector for (a) monoenergetic electrons and (b) positrons. The monoenergetic beams were obtained with a sector-type double focusing β-ray spectrometer at the Research Reactor Institute, Kyoto University.

2.1.3 電子線形加速器を利用した測定

5 MeV 以上のエネルギーを持つ疑似単色電子・陽電子線を京都大学原子炉実験所の電子線形加速器 KURRI-LINAC [55] を利用して生成させた。加速器の運転条件を Table 2.3 に、自作のビーム輸送系の全体図を Fig. 2.3 に示す。

KURRI-LINAC で加速した電子線で空冷のタングステン板 (50 mm × 50 mm × 2 mm^t) を照射すると、制動放射線が発生する。電子のエネルギーがおよそ 30 MeV であるため、制動放射線のエネルギーも最大で 30 MeV まで達する。このような高いエネルギーの光子線は、タングステン内で電子対生成を引き起こす。生成された電子・陽電子も同様の相互作用を繰り返すので、結果として大量の電子・陽電子が発生する[6]。広いエネルギー範囲に分布する電子または陽電子は、空気中に置かれた磁束密度 0.11 T の 2 つの永久磁石（Fig. 2.3 における Magnet A 及び B）によって約 55°曲げられて、厚さ 50 μm のチタン箔を通って、真空導管に入射する。ここまでの配置は 6 ~ 9 MeV の電子または陽電子が通過するように設定した。油回転ポンプによっておよそ 10 Pa に保たれた真空導管内を 4 m ほど直進した後、ビームは永久磁石（Fig. 2.3 における Magnet C ）によって 90°下方に曲げられる[7]。この永久磁石の磁束密度は 0.22 T であるが、鉄板を用いてビーム輸送系の外部に磁気ループを作ることで、磁束密度を変化させた。この時点で通過する電子または陽電子のエネルギー幅は 300 keV 程度になっている。最後に、軌道半径 12 cm、最大磁束密度 0.4 T の電磁石によって、必要とする単色の電子または陽電子線を得た。ビームのエネルギー分解能は、電磁石の前後に挿入したスリットによって調整できる。

Table 2.3: Operating conditions of the KURRI-LINAC.

Electron energy	~ 30 MeV
Repeat rate	120 or 240 Hz
Pulse width	33 – 68 ns
Current	0.3 – 1.7 A

このビーム輸送系で得られる計数の見積もりを次のように行った。

タングステン板に入射する電子数 N_{induced}は、Table 2.3 に示す LINAC の運転条件から決まり、

$$\begin{aligned} N_{\mathrm{induced}} &\simeq \frac{2\ (\mu\mathrm{A})}{1.6 \times 10^{-19}\ (\mathrm{C})} \\ &\simeq 1 \times 10^{13}\ (1/\mathrm{s}) \end{aligned}$$

である。

[6] この現象はカスケードシャワー (cascade shower) と呼ばれる。

[7] 当初は下方に曲げずに応答関数を測定した。しかしながら、この位置では照射室からのバックグラウンドが極めて強く、電子や陽電子のピークが見えないほどであった。下方に曲げることで、ターゲットを直視しない配置にすることができたので、バックグラウンドが大幅に低減した。

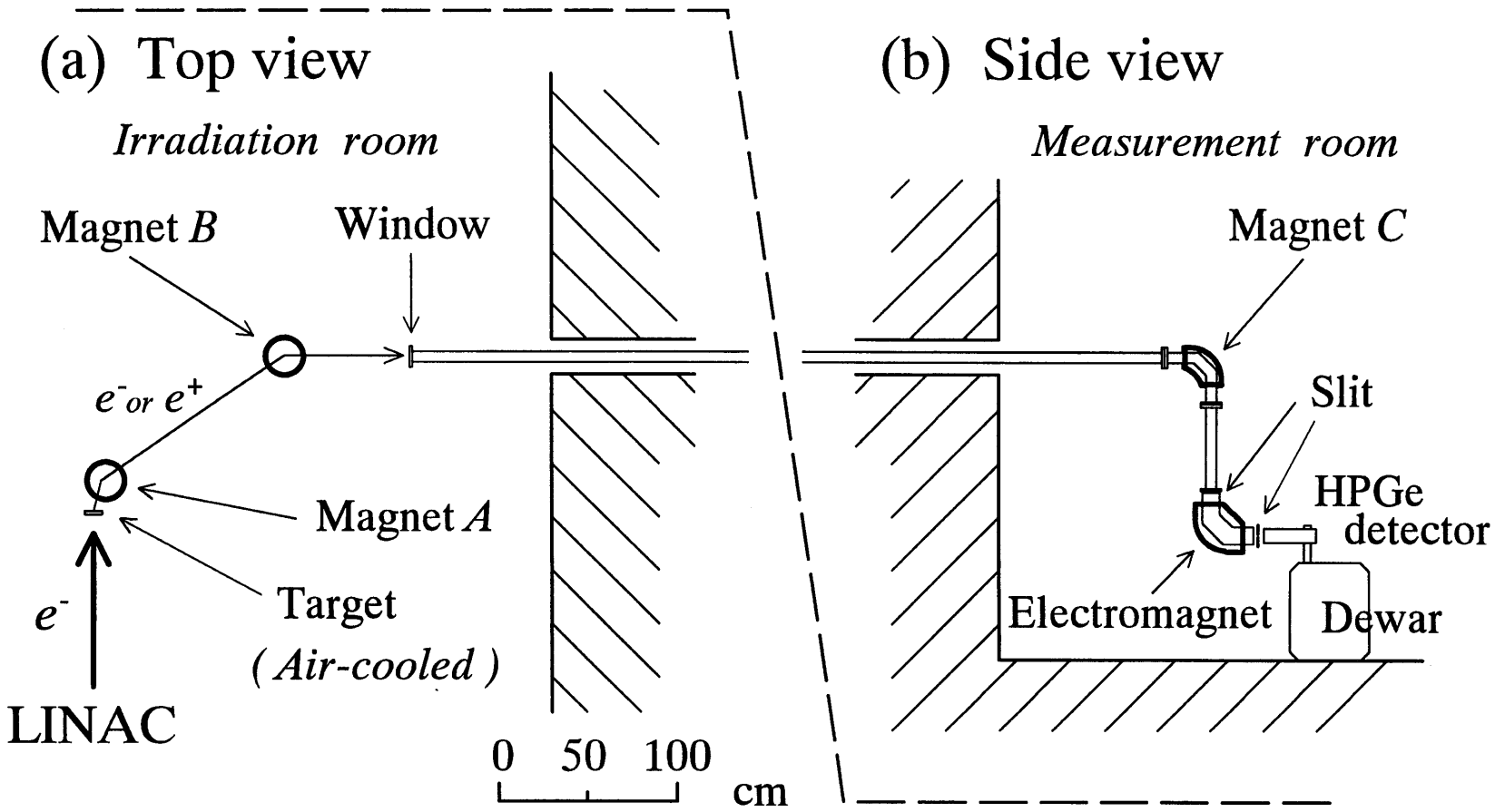

Fig. 2.3: A schematic view of the experimental setup for measurements of response functions at the KURRI-LINAC. (a) A top view of an irradiation room. (b) A side view of a measuring room. The energy resolution of the beam transport line was about 2%.

モンテカルロ計算コード EGS4 (Electron Gamma Shower version 4) [56] を用いた計算結果によると、30 MeV の電子をターゲットに入射させたときに発生する電子または陽電子は主に前方方向に放出される。Fig. 2.4 には、LINAC のビーム軸に対して±5° の円錐内に放出される電子（陽電子も同じ）のエネルギー分布を示す。縦軸には、入射電子 1 個当たりに生成される電子数（エネルギー幅 1 MeV) をプロットした。ただし、これは厚さ 8 mm のタンタル板をターゲットとした場合の計算例である。本研究では厚さ 2 mm のタングステン板を用いたので、図に示した値の 1/4 を見積もり値として用いることにした[8]。以上から 0° 方向に 8.0 ± 0.1 MeV のエネルギーを持つ電子が放出される単位立体角当たりの効率 η_eは、

$$\eta_e \simeq 7 \times 10^{-3}\ (1/\mathrm{str})$$

と評価した。ターゲットで発生した電子または陽電子は約 8 m 輸送された後に、スリットを通過する。スリットの大きさは可変であるが、1 mm × 5 mm とすると、その立体角Ωは

$$\begin{aligned}\Omega &\simeq \frac{1 \times 5\ (\mathrm{mm}^2)}{8000^2\ (\mathrm{mm}^2)} \\ &\simeq 8 \times 10^{-8}\ (\mathrm{str})\end{aligned}$$

である。検出器の効率を 100%であると仮定すると、最終的に得られる計数率 N_{measured} は

$$\begin{aligned}N_{\mathrm{measured}} &= N_{\mathrm{induced}} \times \eta_e \times \Omega \\ &= (1 \times 10^{13}) \times (7 \times 10^{-3}) \times (8 \times 10^{-8}) \\ &\simeq 5000\ (\mathrm{counts/s})\end{aligned}$$

と見積もることができる。このような高計数率ではパイルアップ (pileup) が多く発生してしまうため問題である。しかし、実際には、ビーム輸送系の不完全な軸合わせや、空気や真空導管の入射窓による散乱等の影響で、この見積もりよりも少ない計数率になると考えられる。例えば、Fig. 2.3 における Magnet B, C 及び D での輸送効率が各 10%であるとすると、1 秒当たりの計数は数カウントと、ほぼ妥当な値となる。また、LINAC の運転条件は見積もりでは 2 μA としたが、その前後数倍程度の自由度を持っている。このことから応答関数を測定する実験は可能であると判断した。

オンライン実験に先立ち、およそ 3 MBq のβ^-線源 ^{90}Sr-^{90}Y (Q_{β^-} = 2282 keV) を用いてビーム輸送系のテストを行った。電磁石の入口、出口部のスリット幅がともに 1 mm のとき、エネルギー分解能はおよそ 1.0%であった。エネルギーが 0.82, 1.0, 1.5 及び 1.9 MeV の単色電子線の応答関数を測定した結果は、過去に京都大学原子炉実験所のβ線スペクトロメータを用いて得た結果と一致した。このことから、この磁気分析系に問題はないと判断した。

オンライン実験では、Table 2.1 に示した検出器に対して応答関数を測定した。検出器のエネルギー較正は、標準線源^{152}Eu 及び^{56}Co に加えて、熱中性子捕獲反応^{35}Cl$(n,\gamma)^{36}$Cl

[8] タングステンとタンタルの違いは無視した。両者は原子番号が 1 しか違わないので、この近似は妥当であろう。

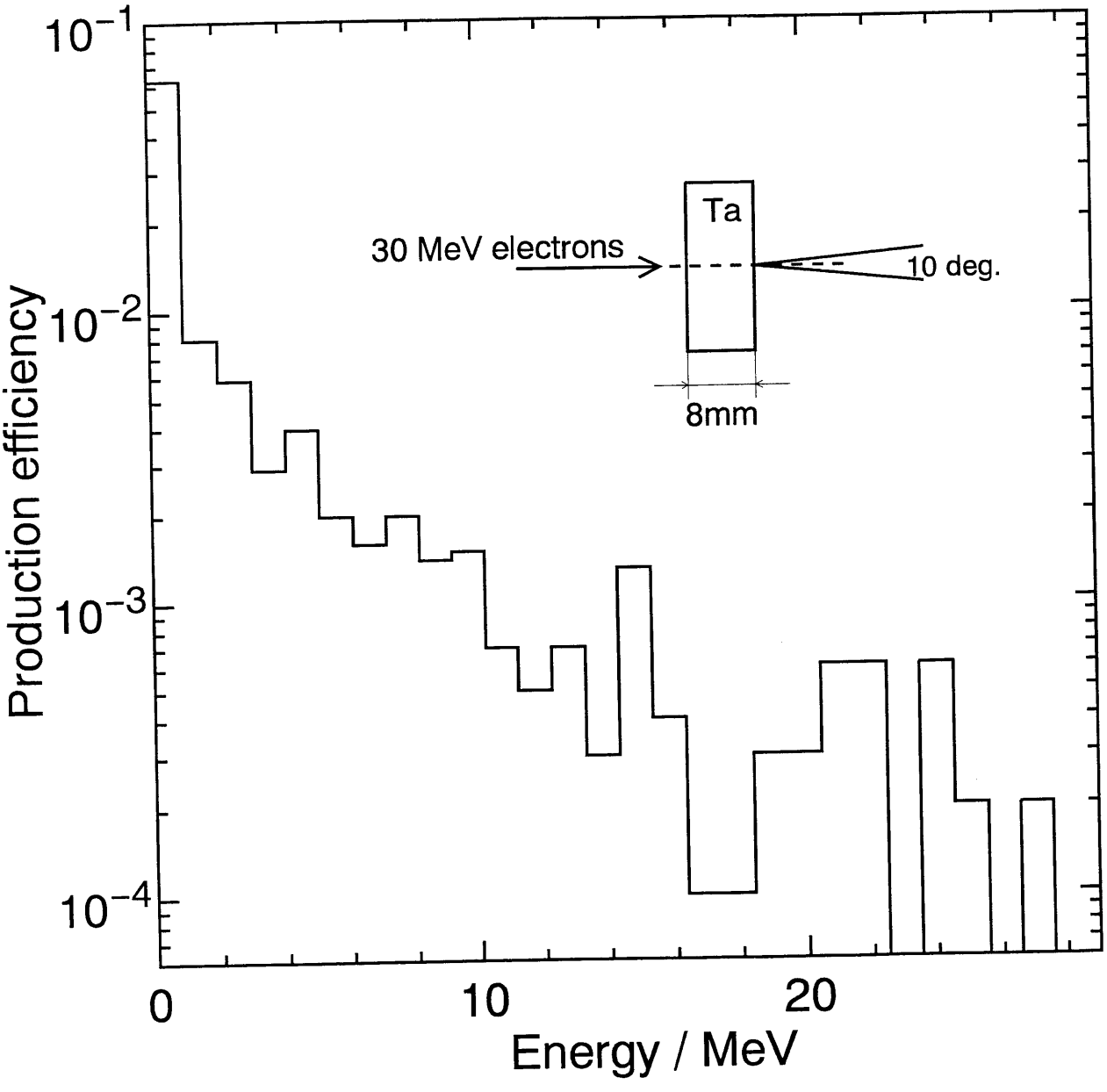

Fig. 2.4: Energy distribution of electrons calculated with the EGS4 code. Electrons produced in a 8 mm thick tantalum target are emitted in $\pm 5°$ to the direction of the primary beam.

に伴う即発γ線 [57] を用いて 8.6 MeV まで行った。中性子源としては、およそ 700 kBq の^{252}Cf 密封線源を用いた [58]。例として直径 16 mm、厚さ 10 mm の結晶を持つ HPGe 検出器で測定した塩素の即発γ線スペクトルを Fig. 2.5 に示す。

電磁石の入口部、出口部のスリット幅はそれぞれ 3 mm, 1 mm と設定することを標準とした。このときのエネルギー分解能は 1.5 ～ 2.0%であり、応答関数を測定するには十分である。

応答関数は電子・陽電子に対して、6 ～ 9 MeV の範囲で測定した。パイルアップの影響をできるだけ減らすために、計数率が 5 cps 以下になるように加速器の運転条件及びスリット幅を調整した。1 つの応答関数を測定するのに要した時間は、電子については約 10 時間、陽電子については約 15 時間であった。

検出器は厚さ 10 cm 以上の鉛で遮蔽していたにも関わらず、測定で得られたスペクトルには強いバックグラウンドが現れた。バックグラウンドの大部分は、連続成分であり、加速器の運転中のみに観測された。従って、これは照射室で発生した制動放射線が、ビーム孔を通って測定室に達したものであると考えられる。ビーム輸送系末端の電磁石の入口及び出口部に置かれたスリットを閉め、さらに磁場をずらして電子・陽電子が検出器に入射しない状態で測定したスペクトルをバックグラウンドと考え、これを電子または陽電子線のスペクトルから差し引いた。

このようにして得た応答関数を Fig. 2.6-2.8 に示す。1 つの応答関数の全計数は 10^5 程度である。応答関数は低エネルギー部分で計数が増加する傾向が見られた。これはビーム輸送系の出口スリット等で散乱され、エネルギーの一部を失った電子・陽電子が検出器に入射したものであると考えられる。第 2.2 節で詳しく述べるが、Q_βを決定する際には、スペクトルの高エネルギー部分のみを解析に用いる。従って低エネルギー部分での応答関数の形状の変化は問題にならない。ただし、直径 50 mm の HPGe 検出器ではこの形状変化が、他の検出器に比べ大きい。これは、結晶形状が単純な平板型でないためではないかと考えている。

直径 16 mm、厚さ 10 mm の HPGe 検出器に対しては、9.9 MeV 及び 10.8 MeV の電子線の応答関数も測定した。これを Fig. 2.9 に、8.0 MeV の応答関数と比較して示した。検出器の厚さが 10 MeV の電子の飛程 (12 mm) よりも薄いため、全吸収ピークの低エネルギー側の形状が大きく変化している。応答関数のこの形状変化も考慮に入れれば、10 MeV あるいはそれ以上の高エネルギー領域でもβ線スペクトルを補正し、その最大エネルギーを決定することは可能である。しかしその方法では、形状変化の取り入れ方に伴う曖昧さが生じ、結果として得られるβ線最大エネルギーの信頼性が劣ってしまうことになりかねない。本研究では、対象核種のβ崩壊エネルギーを測定するのに十分な厚さを持った検出器を選んで使用しているので、以下で述べる応答関数の詳細な解析は、その形状が変化しないエネルギー領域に限定して行った。

2.1.4 応答関数のエネルギー依存性

任意のエネルギーにおける応答関数を得るために、応答関数のエネルギー依存性を調べた。このとき、電子・陽電子の検出器内での振る舞いを考慮して、次の成分に分けて考えた。

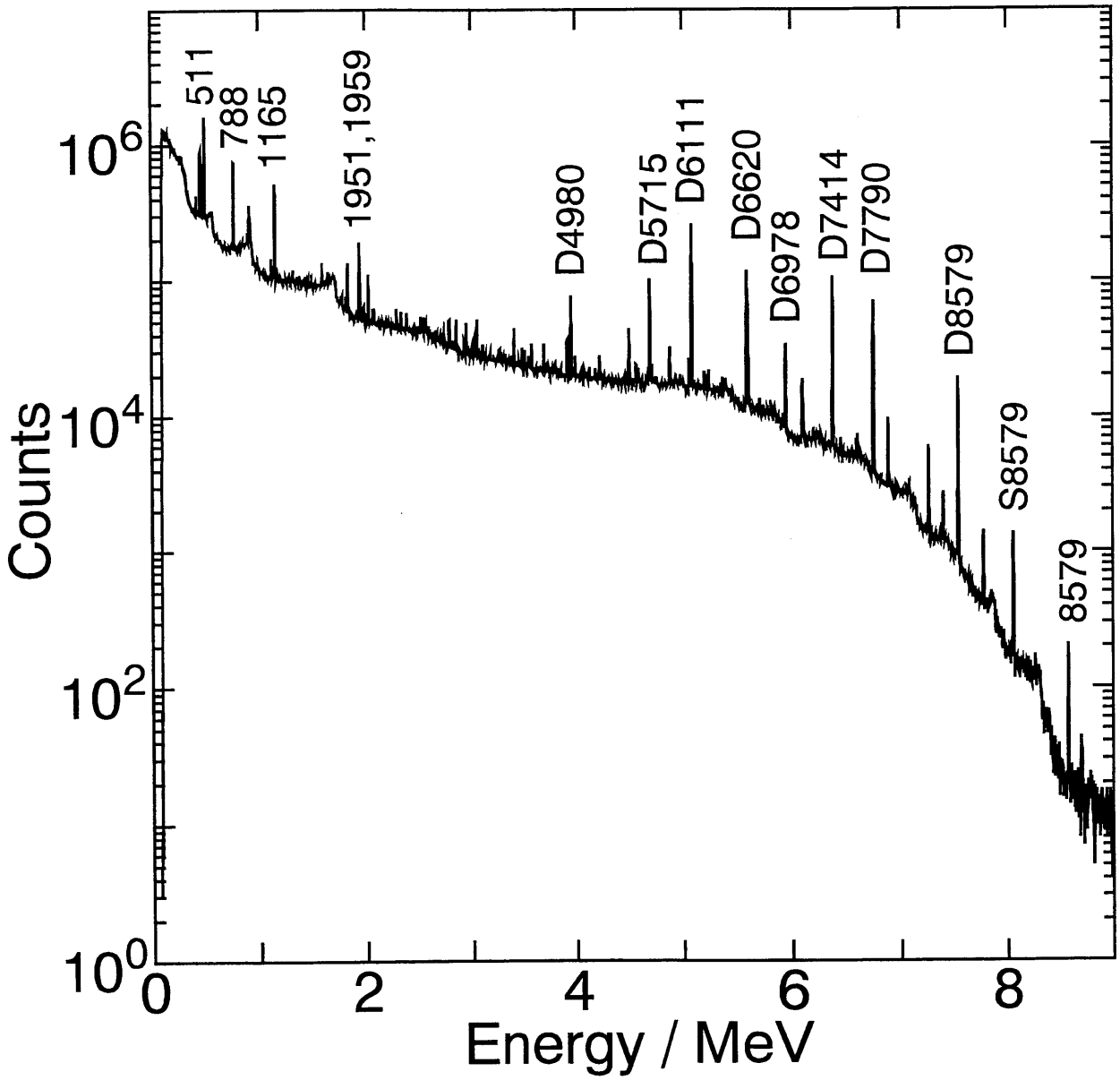

Fig. 2.5: A prompt γ-ray spectrum from the thermal neutron capture reaction of $^{35}Cl(n, \gamma)^{36}Cl$. Energies of strong γ-rays, which were used for energy calibration of β-ray detectors, are presented in keV. Single- and double-escape peaks are indicated by their initials of S and D.

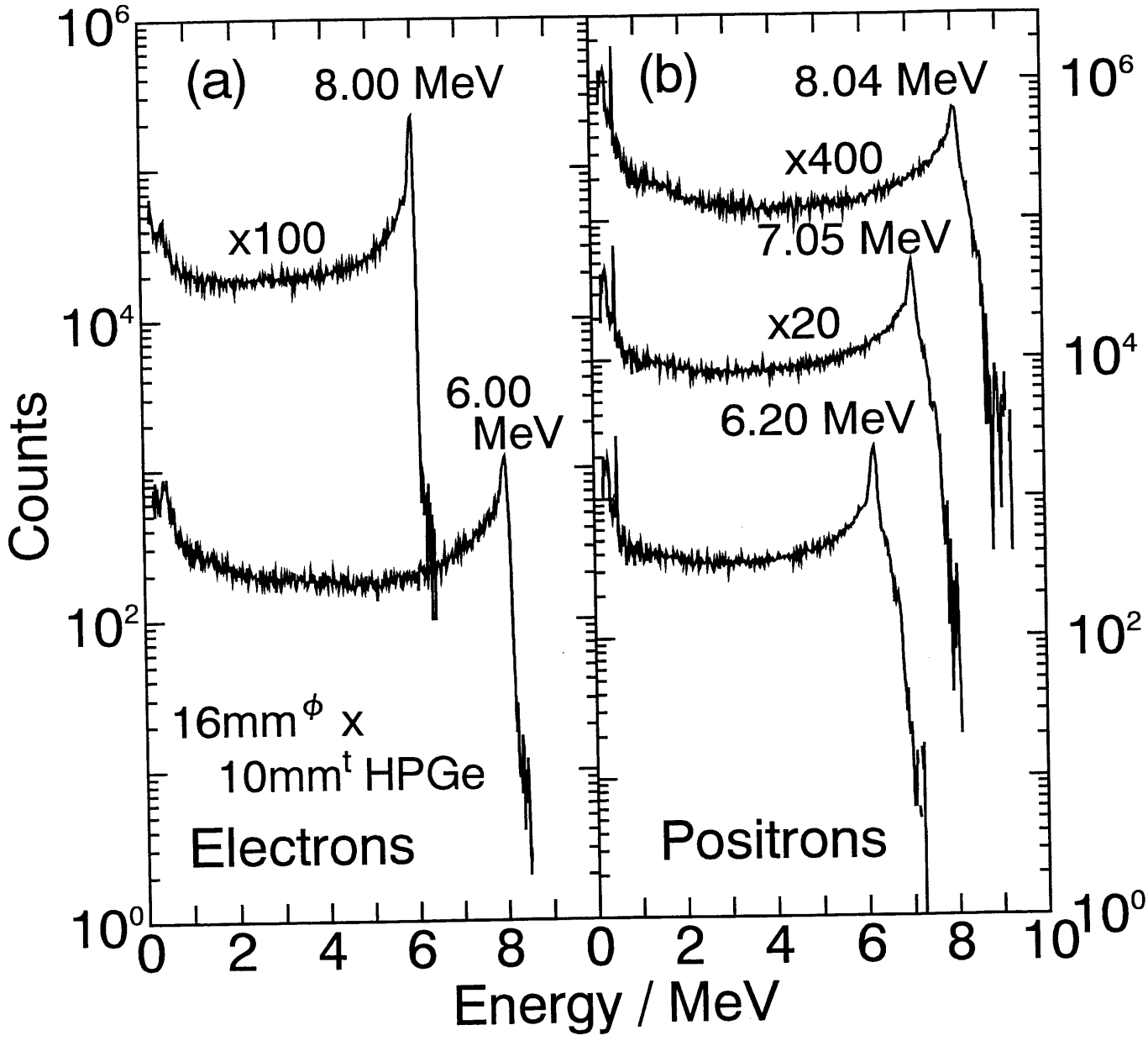

Fig. 2.6: Background-subtracted response functions of a 16 mm$^{\phi}$× 10 mm^{t} HPGe detector for (a) monoenergetic electrons and (b) positrons.

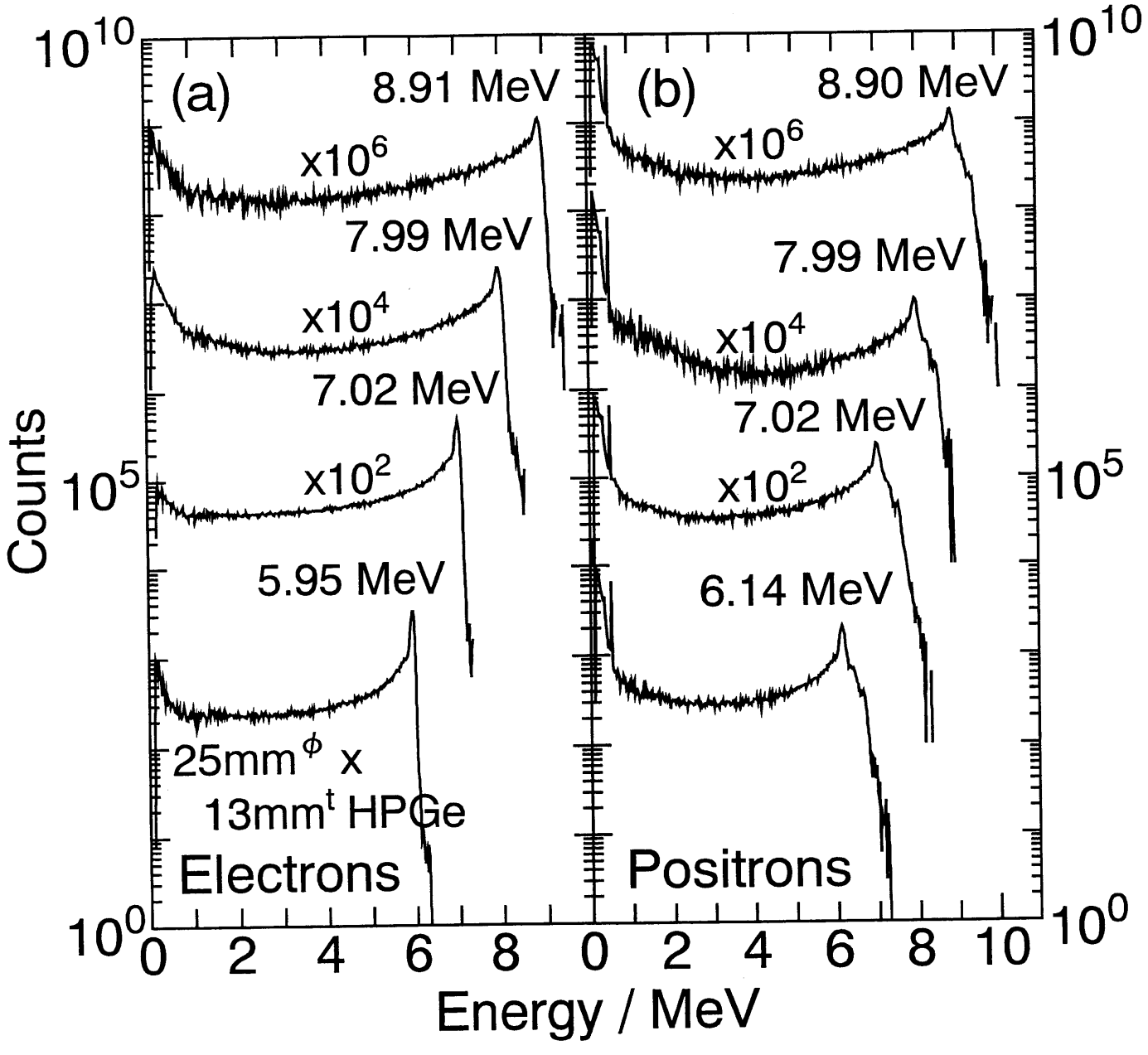

Fig. 2.7: Background-subtracted response functions of a 25 $mm^{\phi} \times$ 13 mm^{t} HPGe detector for (a) monoenergetic electrons and (b) positrons.

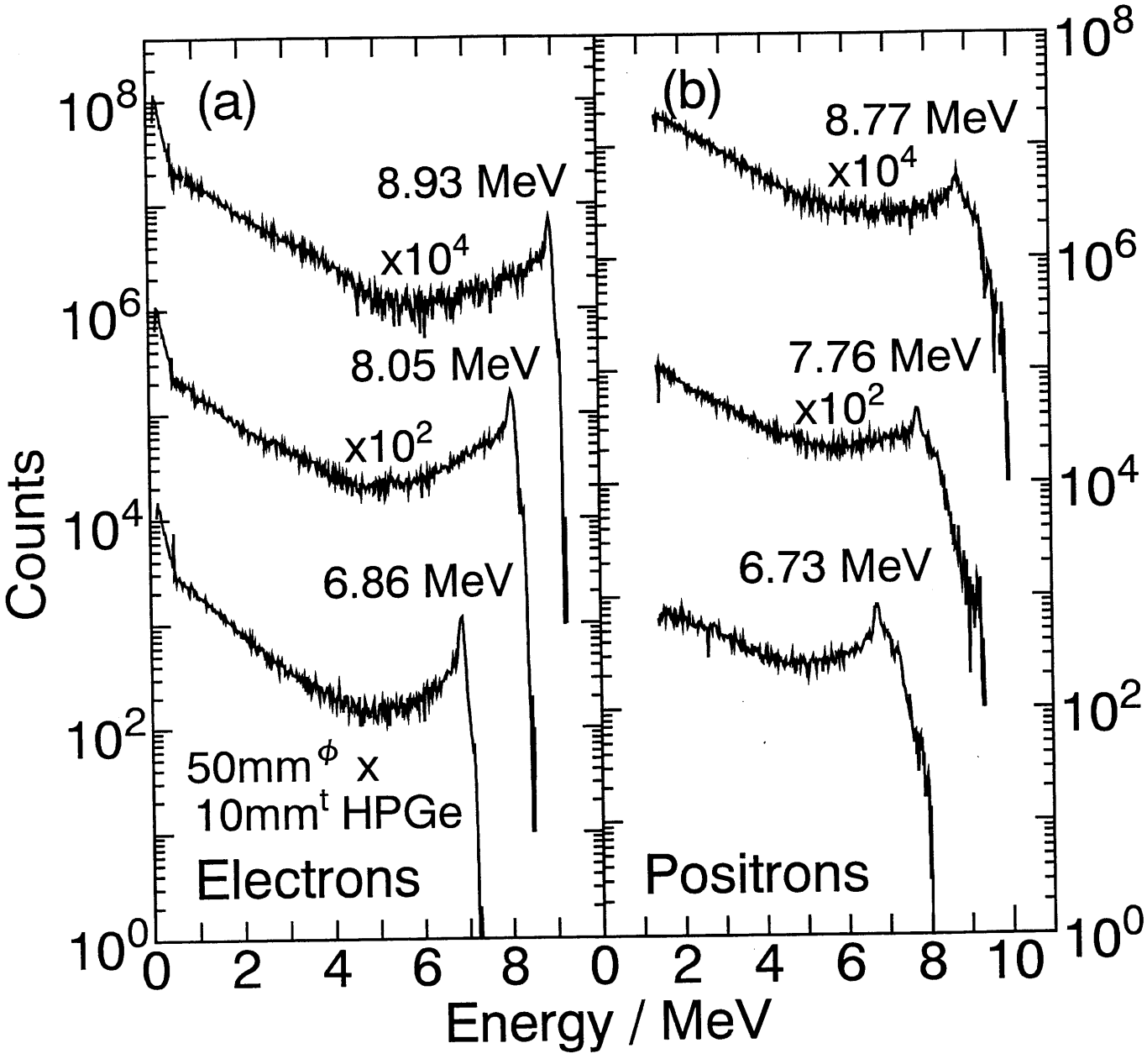

Fig. 2.8: Background-subtracted response functions of a 50 $mm^{\phi} \times$ 10 mm^{t} HPGe detector for (a) monoenergetic electrons and (b) positrons.

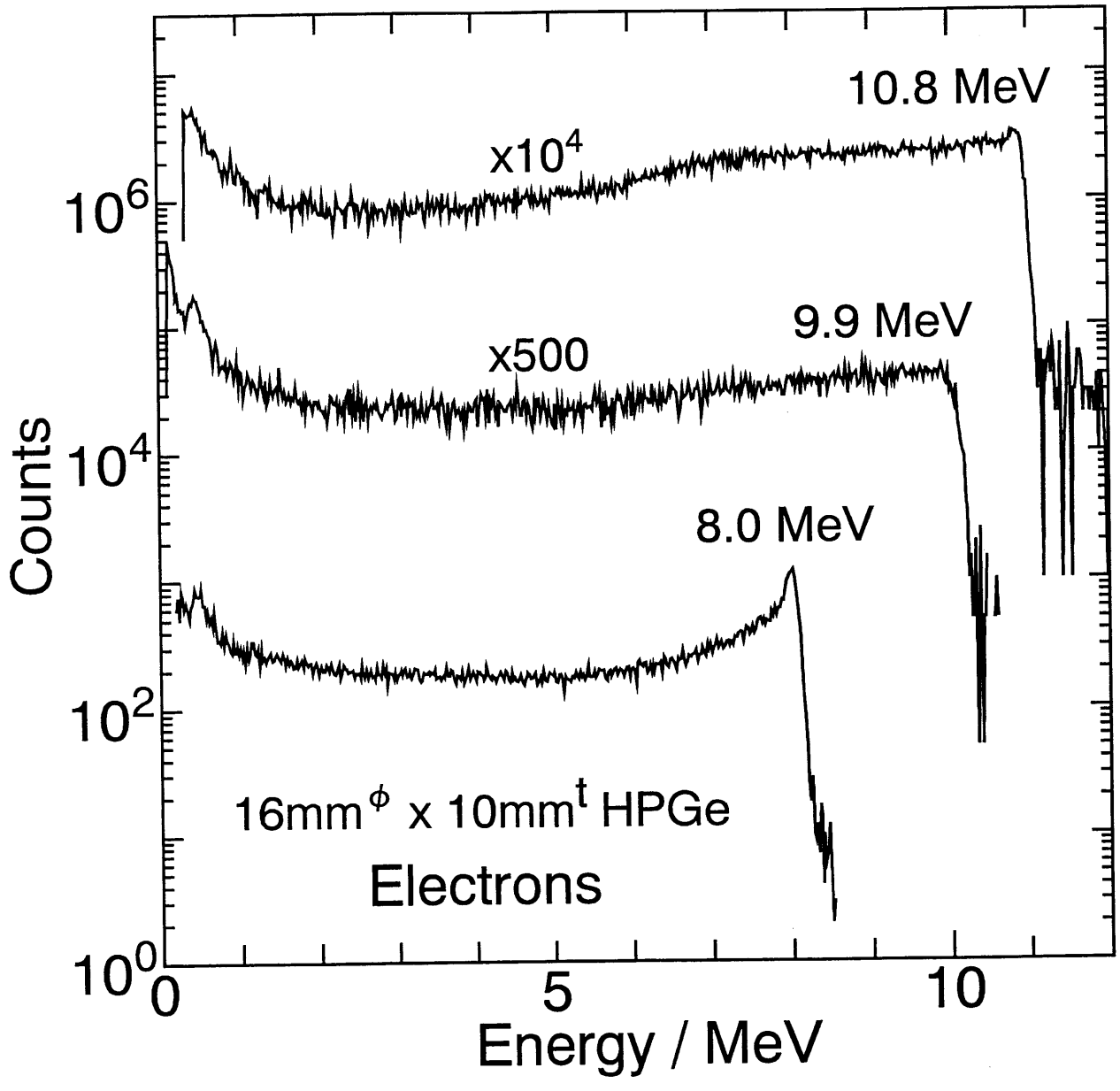

Fig. 2.9: Response functions of a 16 $mm^{\phi} \times$ 10 mm^{t} HPGe detector for monoenergetic electrons of 8.0, 9.9 and 10.8 MeV. Note that the range of electrons of an energy of 10 MeV is greater than the crystal thickness of 10 mm.

(A) 電子・陽電子がその全運動エネルギーを結晶中で失った成分。

(B) 電子・陽電子が結晶内で発生させた制動放射線が結晶外へ逃げた効果を含む成分。

(C) 電子・陽電子が側方または後方へ散乱されて結晶外へ逃げた効果を含む成分。

(D) 結晶中で停止するまでに陽電子が検出器に付与したエネルギーに、その陽電子が消滅する際に生じた光子のエネルギーの一部または全部が加算された成分。

このうち、A ～ C は電子・陽電子の応答関数に共通の成分であり、D は陽電子スペクトルのみに現れる成分である。それぞれの成分に対応する電子または陽電子のゲルマニウムとの相互作用の模式図を Fig. 2.10 に、各成分の応答関数のスペクトルへの寄与を模式的に表した図を Fig. 2.11 に示す。

バックグラウンドを差し引いた応答関数から、各成分の計数を次のように決定した。

1. 側方・後方散乱の効果を含む成分 C は、エネルギーが零の点から全エネルギー吸収ピークに対応する点 (E_0) まで、均等に分布すると考えた。単位エネルギーあたりの計数値は、エネルギー $E_0/2$ 近傍の計数を平均して求めた。

2. 制動放射線が結晶外へ逃げた効果を含む成分 B は、全エネルギー吸収ピークの低エネルギー側にテイル (tail) として現れる。この領域の計数を足し合わせた後、側方・後方散乱の効果を含む成分 C の計数を差し引いた値を、成分 B の計数とした。成分 B と考えたエネルギー幅は、Table 2.4 に示すように入射電子のエネルギーの一次関数としてフィッティングした。

3. 全エネルギー吸収ピーク A の計数は、その領域の計数を足し合わせた後、成分 C の計数を差し引いた値とした。

4. 消滅光子線との加算効果を含む成分 D は、全エネルギー吸収ピークより高いエネルギー領域の計数を足し合わせて決定した。

Table 2.4: Energy width of the base W (MeV) of the bremsstrahlung escape component of the response functions: $W = a \times E_0 + b$, where E_0 is the energy of the full absorption peak in MeV.

Crystal size (mm)	a	b
$16^{\phi} \times 10^{t}$	0.15834	0.011
$25^{\phi} \times 13^{t}$	0.16553	0.027
$50^{\phi} \times 10^{t}$	0.14944	0.011

各成分の境界位置を変化させたとき、計数がどの程度変動するか調べた。この変動と統計誤差の自乗和を各成分の誤差とした。

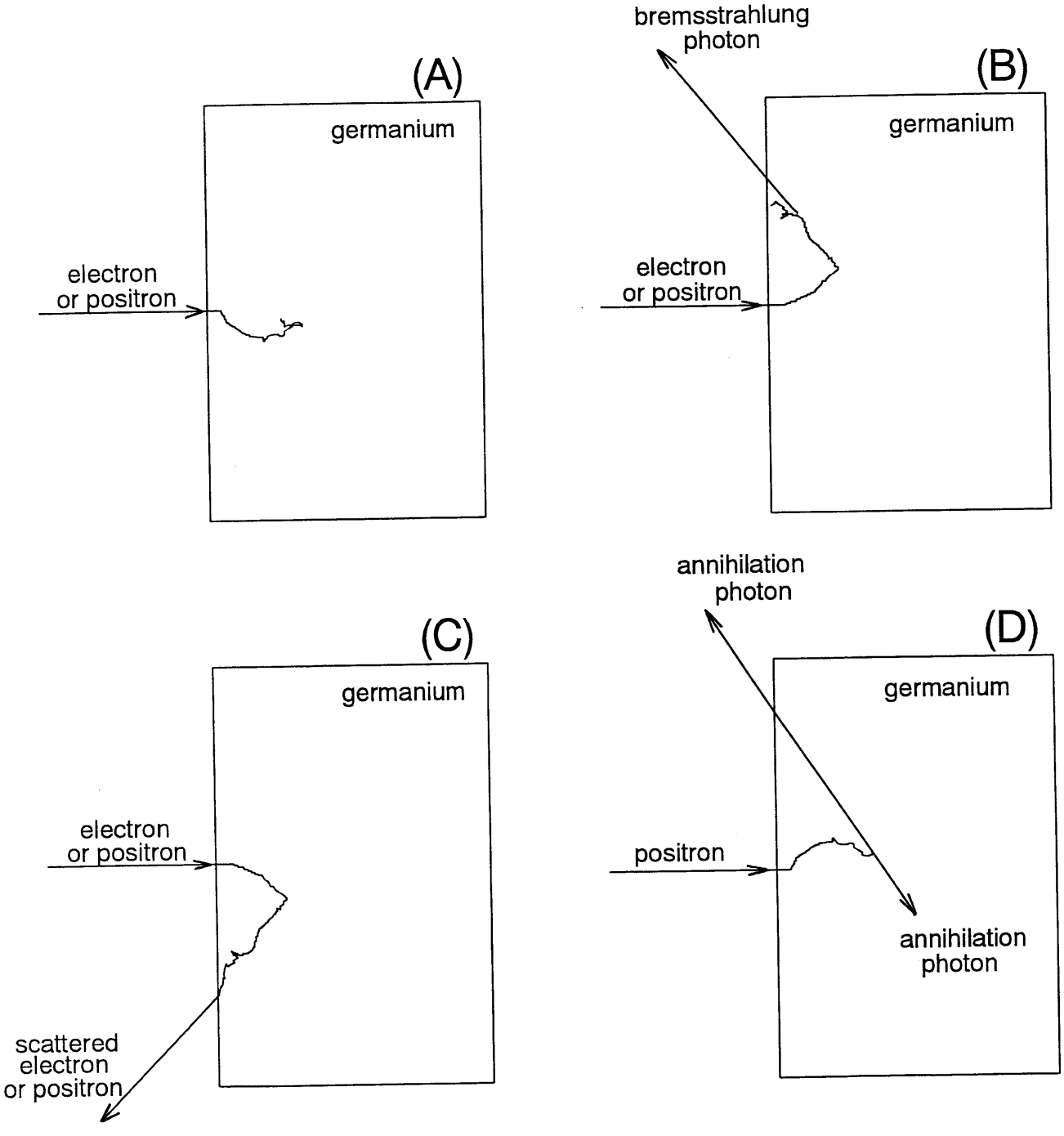

Fig. 2.10: A schematic diagram of processes of β-rays in a germanium crystal. (A) full energy absorption event, (B) escape of bremsstrahlung photons generated in the crystal, (C) back and side scattering of β-rays which escape from the surface of the crystal, (D) summing of the energy of annihilation photons and a full energy absorption event.

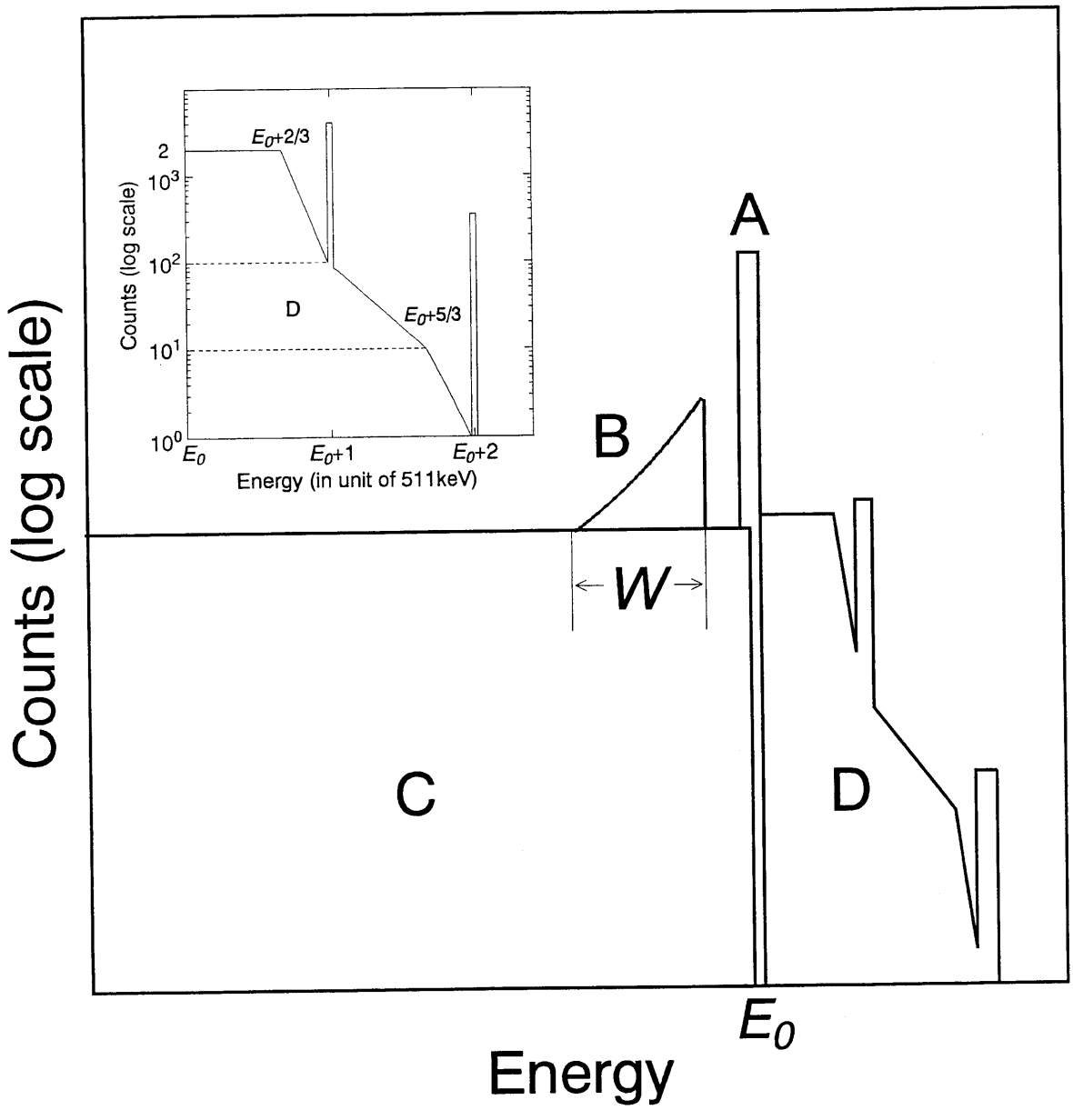

Fig. 2.11: A schematic diagram of the response function for monoenergetic electrons and positrons: (A) full energy peak; (B) bremsstrahlung escape; (C) side and back scattering; (D) summation of annihilation photons. The component of D is observed only in the positron spectrum. The energy of the full absorption peak and the width of the base of the component B are represented by E_0 and W, respectively. The detailed shape of the component D is shown in the inset.

各成分が応答関数の全計数に対して占める割合 $I_{A,B,C,D}$ を全エネルギー吸収ピークのエネルギー E_0 (MeV) の関数として表した。フィッティング関数には

$$I_i(E) = \alpha_i - \beta_i \exp(-\gamma_i E_0) \qquad (i = A, B, C \text{ and } D)$$

を用いた[9]。それぞれの検出器に対するフィッティングパラメータを Table 2.5 に示す。

以上の結果をまとめて Fig. 2.12 及び 2.13 に示す。

2.1.5 EGS4による模擬計算

電子・陽電子線に対する応答関数をモンテカルロ計算コード EGS4 [56] を用いて計算し、実験結果と比較した。EGS4 は電磁カスケードを計算するコードであり、エネルギーが数 keV から数 TeV の電子、陽電子及び光子の物質中での挙動を扱うことができる。例として直径 25 mm、厚さ 13 mm の HPGe 検出器に対して計算した応答関数を実験で得たスペクトルと比較して Fig. 2.14 に示す。ここでは、検出器は結晶とベリリウム窓のみから成るとして計算した。

全体的な形状は実験で得られた応答関数と似ている。定量的に比較するために、第 2.1.4 節で行ったように、そのエネルギー依存性を調べた。これを Fig. 2.15 に示す。明らかに実験値と比べて側方・後方散乱の効果を含む成分 C が少なく計算されている。同様の現象は別の計算コード HICOAK [59] を用いた際にも見られた [53, 60]。この原因は明らかではないが、可能性としては、

- 電子・陽電子とゲルマニウムとの相互作用は連続的に起こるが、EGS4 では多くの散乱を一まとめにしたステップに分割し、各ステップ中でのエネルギー損失量等を多重散乱模型に基づいて計算している。この取り扱い法や散乱模型が粗すぎるために、実験値を精度良く再現できない。
- ゲルマニウム結晶中で生成した電子・正孔対が完全に電極に収集されていないために、実測では全エネルギー吸収成分 A が少なくなっている。その結果、相対的に成分 C が大きくなっている。

ことが考えられる。

第 2.2.1 節で詳しく述べるが、実測した応答関数で補正した場合に比べ、計算で求めた応答関数で実測 β 線スペクトルを補正すると、Fermi-Kurie プロット—これは直線になることが理論的に保証されている— の直線性が悪くなる。このことから、本研究では実測した応答関数の方が正しいと考えて、β 線の解析に利用した。

計算と実験との食い違いの原因を追究し、それを取り入れる形で計算コードの改良が行われることが望まれる。

[9] この関数型を用いた物理的な根拠はないが、Fig. 2.12 及び 2.13 から分かるように、実測点を良く合わせることができる。

Table 2.5: Parameters for describing the energy dependence of the response functions of HPGe detectors for monoenergetic electrons and positrons. Relative intensities I of components A, B, C and D to the total counts are represented by a function of $I = \alpha - \beta \exp(-\gamma E_0)$, where E_0 is the energy of the electron or positron.

Electrons	$16\text{mm}^{\phi} \times 10\text{mm}^{t}$	$25\text{mm}^{\phi} \times 13\text{mm}^{t}$	$50\text{mm}^{\phi} \times 10\text{mm}^{t}$
(A) Peak			
α	+0.035342	−0.006250	+0.122319
β	−0.700917	−0.740129	−0.641700
γ	+0.304259	+0.223027	+0.225931
(B) Bremsstrahlung			
α	+0.420273	+7.770740	+0.198872
β	+0.410769	+7.766450	+0.174385
γ	+0.030309	+0.0028660	+0.135239
(C) Scattering			
α	+0.821377	+0.734189	+0.661793
β	+0.558939	+0.489315	+0.454631
γ	+0.372274	+0.342297	+0.284763
Positrons	$16\text{mm}^{\phi} \times 10\text{mm}^{t}$	$25\text{mm}^{\phi} \times 13\text{mm}^{t}$	$50\text{mm}^{\phi} \times 10\text{mm}^{t}$
(A) Peak			
α	+0.074217	+0.083788	−0.257620
β	−0.521931	−0.359616	−0.563483
γ	+0.492190	+0.355051	+0.080884
(B) Bremsstrahlung			
α	+0.042752	+8.692430	−1.79258
β	+0.050874	+8.694040	+1.85757
γ	+0.287174	+0.001680	+0.002340
(C) Scattering			
α	+0.850988	+0.756137	+5.006160
β	+0.684207	+0.555224	+4.779590
γ	+0.399478	+0.343645	+0.016506
(D) Annihilation summing			
α	+0.010771	−0.010293	−10.01320
β	−0.249663	−0.362486	−10.47000
γ	+0.226486	+0.192934	+0.004459

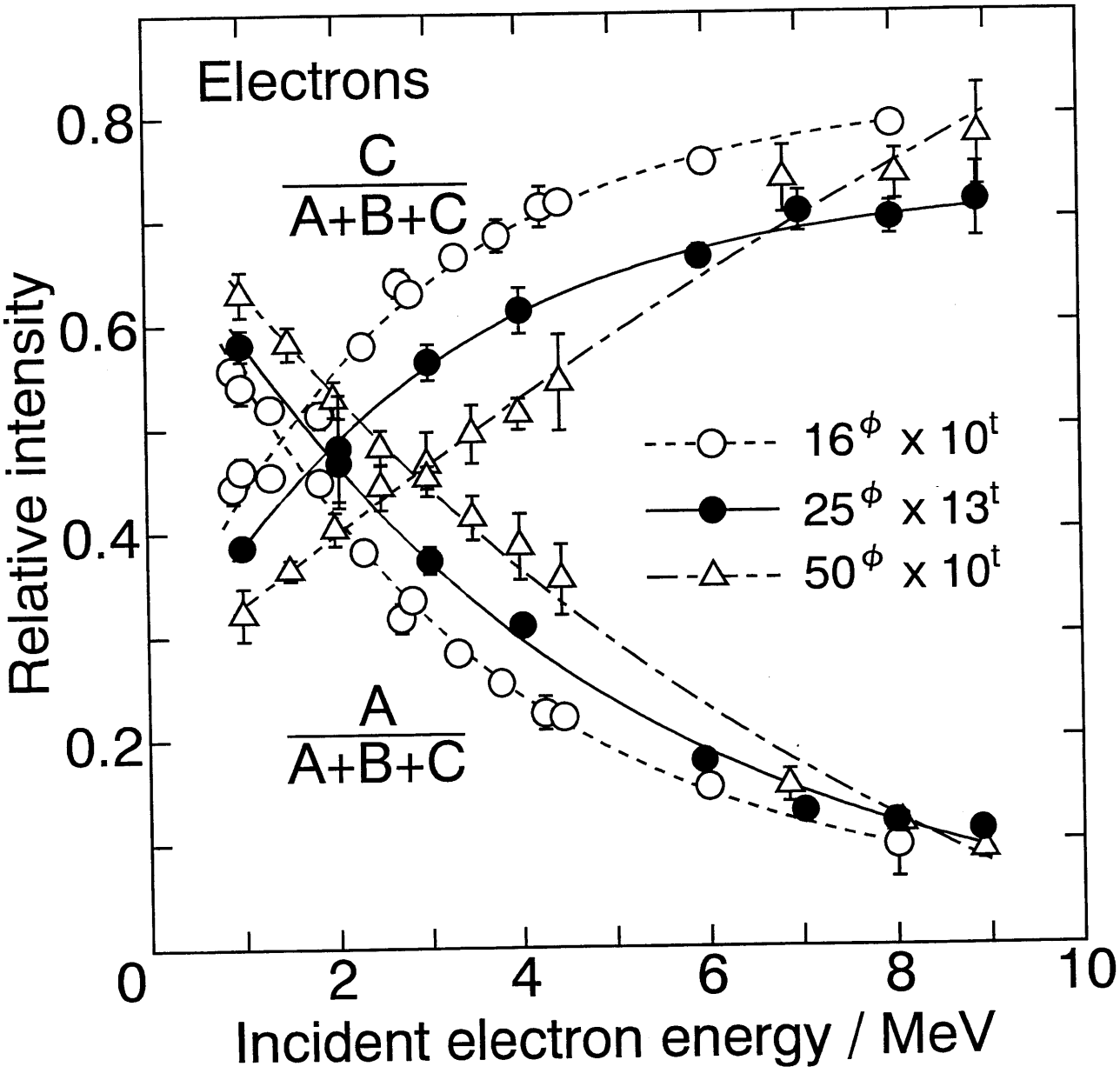

Fig. 2.12: Energy dependence of the experimental response functions for monoenergetic electrons.

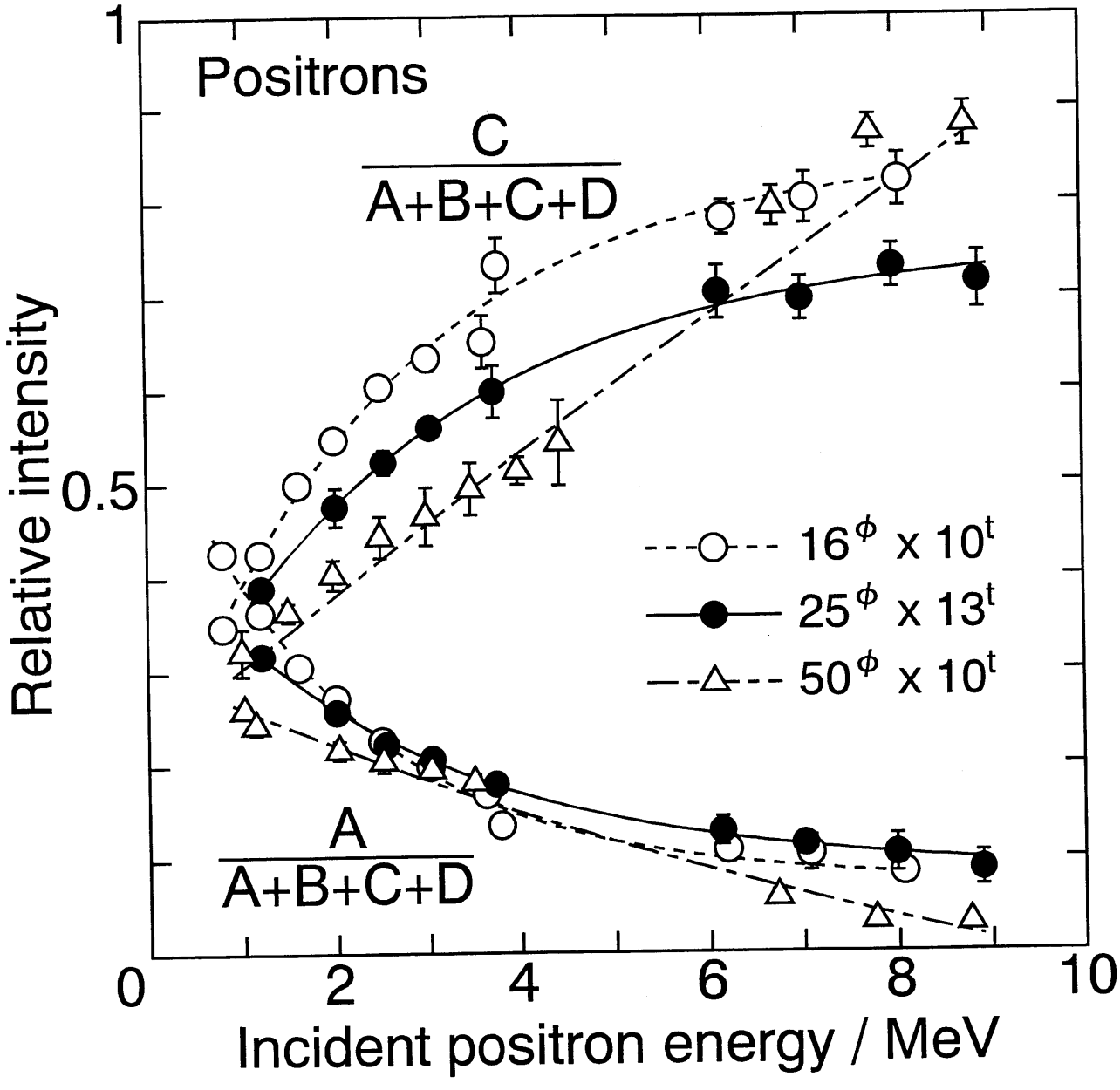

Fig. 2.13: Energy dependence of the experimental response functions for monoenergetic positrons.

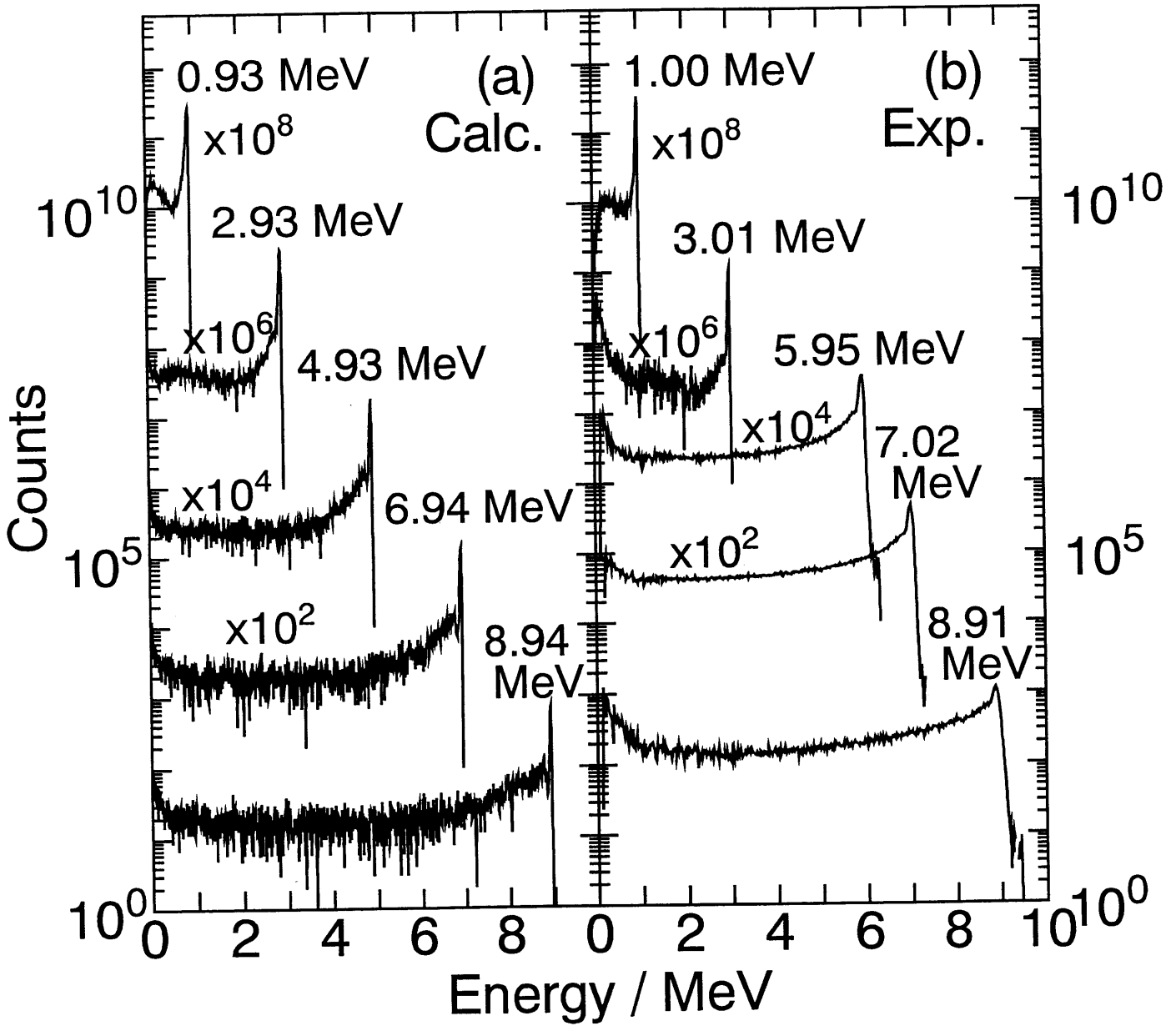

Fig. 2.14: (a) Response functions for monoenergetic electrons calculated with the EGS4 code for a 25 $mm^{\phi} \times$ 13 mm^{t} HPGe detector. (b) Experimental response functions shown for comparison.

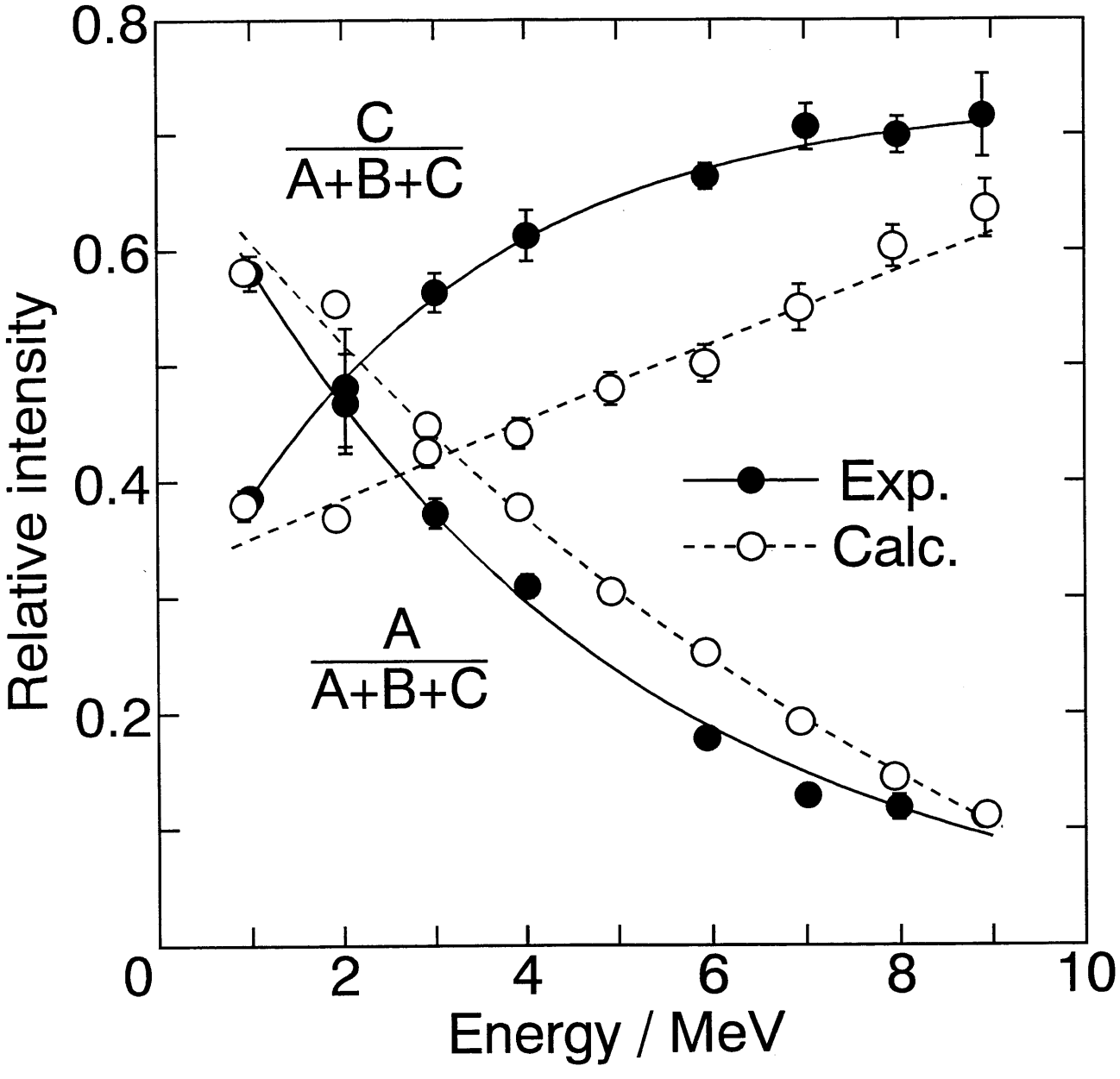

Fig. 2.15: Energy dependence of calculated response functions of a 25 mm$^{\phi}$× 13 mm^{t} HPGe detector for monoenergetic electrons. For comparison, experimental response functions are also presented.

2.2 β線スペクトルの解析法

2.2.1 β^-線スペクトル

β^-線の最大エネルギーは、測定して得られたβ^-線スペクトルを真のβ^-線スペクトルに変換し、Fermi-Kurieプロットをする方法で決定した [38]。標準線源^{90}Sr-^{90}Yを例に、以下にその手順を記す[10]。

1. チャンネルの束ね合わせ。

   測定で得られたスペクトルを数チャンネルずつ束ね合わせて、1チャンネルあたりのエネルギーが20 keV程度になるようにした。ここで20 keVという値は、HPGe検出器の電子線に対する分解能に相当するエネルギー幅である。これは、Fig. 2.11に示したような単純な応答関数形状を仮定しているために必要な手順である。Fig. 2.16に得られたスペクトルを示す。

2. パイルアップ成分の差し引き。

   パイルアップは、検出器に同時に2個以上のβ^-線が入射したときに生じる現象で、加算されたエネルギーが出力される。測定で得たβ線スペクトルを再現するような乱数を発生させ、これを2つ足し合わせることでFig. 2.17のような模擬的なパイルアップスペクトルを作成した。これに適当な係数を掛けたものを、実測スペクトルから引くことでパイルアップ成分を取り除いた。なお、ここでは3個以上のβ^-線が入射した場合を無視した。Fig. 2.18に、パイルアップ成分差し引いた後のスペクトルを示す。

3. 真のスペクトルへの変換。

   測定によって得られたスペクトルの最もエネルギーの高い点（$E_{\max}$とする。これは実際にはチャンネル数である。）での計数は、全エネルギー吸収事象のみから成っている。なぜならば、電子の場合には、全吸収以外の相互作用をした成分は、全て全吸収ピークよりも低いエネルギー領域に現れるからである。そこでエネルギー$E_{\max}$での計数及びそのエネルギーに対応する応答関数を用いて、全エネルギー吸収ピーク以外の成分を測定スペクトルから差し引いていく。同時にエネルギー$E_{\max}$での計数を全エネルギー吸収効率（第2.1.4節で示したI_A）で除する。これは上で差し引いた成分（全吸収以外の相互作用をした成分）の計数を、全吸収ピークに加えることを意味する。以上のことを1つの作業とし、次に1チャンネル低い測定点、すなわち$E_{\max}-1$チャンネルに対して同様の作業を行う。これをエネルギーが零の点まで行うことで真のスペクトルが得られる。

   以上の解析法を式で表すために、入射電子のエネルギーEに対する応答関数を表す演算子として$R_{A,B,C}(E,E')$を導入する。これは、単色電子のスペクトル

[10] ここで示した^{90}Sr-^{90}Yスペクトルは、パイルアップ成分を強調するために、高計数率（およそ7 kcps）で測定した。実際の測定では、パイルアップをできるだけ減らすために計数率が3 kcps以下になるように、線源強度や線源と検出器間の距離を調整する。

$I(E)$ に演算したとき、応答関数の成分 A, B, C を出力すると定義する。すなわち、

$$R_{\text{component}}(E, E') \cdot I(E) \qquad (\text{component} = A, B \ \text{ and } \ C)$$

は、Fig. 2.11 で示した A, B 及び C 成分の形状になる。ここで E' は、検出器の出力するエネルギー (0 から E まで分布する。) である。

測定で得られたβ^-線スペクトルを $M(E')$ とする。まず始めに

$$R_A(E_i, E')^{-1} \left\{ M(E') - [R_B(E_i, E') + R_C(E_i, E')] \frac{M(E_i)}{R_A(E_i, E')} \right\} \quad (E_i = E_{\max})$$

という演算を、スペクトルの最高エネルギーチャンネル $E_{\max}$における計数に対して行う。得られたスペクトルを改めて $M(E')$ とおいて、$E_i = E_{\max} - 1$ に対して同様の演算を行う。これをエネルギーが零のチャンネル E_0まで繰り返すことで、成分 B, C の寄与を全て差し引くことができ、入射β^-線が持っていた真のスペクトルが得られる。

Fig. 2.19 に得られたスペクトルを示す。

4. Fermi-Kurie プロットの作成。

上記の作業で得たスペクトルを Fermi 関数で補正し、Fermi-Kurie プロットを作成した (付録 A 参照。)。これを Fig. 2.20 に示す。Fermi-Kurie プロットの直線部分を一次関数でフィッティングし、エンドポイント (endpoint) を得た。

ここでフィッティングに用いた手法について述べる。Awaya は論文 [61] で、統計精度が良くない、つまり計数が少ないデータ点を含むフィッティングを行う場合について議論した。ある分布に従う乱数を計算機を用いて発生させ、それをフィッティングした結果、最小自乗法では統計精度の悪いデータ点に結果が引きずられる傾向にあるのに対し、ポアソン (Poisson) 分布に対する最尤法ではそのような現象は見られず、はじめに仮定した分布を良く再現することを明らかにした。このことを本研究に当てはめると、最小自乗法でフィッティングすると、エンドポイントが低めに出ることを意味する。実際に統計精度の悪い実測したβ線スペクトルについて解析した結果、最尤法による結果と比べ、最小自乗法による結果は統計誤差の範囲内で一致するものの最大で 100 keV 程度低めに出ることが分かった。そこで本研究では Awaya の結論に従い、最尤法を用いることにした。

次に直線フィッティングに使用するデータ領域について考える。いま考えている準位 L_0に、それよりも高いエネルギー準位 L_1から強いγ遷移があると、このγ線を通じて L_1へ遷移したβ線がスペクトルに混入し、エンドポイントが低めに出てしまう可能性がある。この影響を避けるために、フィッティング領域は 2 つの励起準位のエネルギー間隔以内に限定した。また、問題になるような強いγ遷移がない場合でも、応答関数の形状の単純化に伴う不確かさの蓄積を防ぐために、エンドポイントから 1 MeV 程度以内の領域に限定した。

Fermi-Kurie プロットの直線性を確認するために、フィッティング領域を変えたときに、得られるエンドポイントがどの程度変動するか調べた。例として、フィッ

ティング領域の終了チャンネルを 108 チャンネルに固定し、開始チャンネルを 20 から 75 チャンネルまで変動させたときの、得られるエンドポイントの変動を Fig. 2.21 に示す。この図から分かるようにエンドポイントから 1 MeV 程度の領域では、直線性が十分得られている。フィッティング領域を変化させたときの、エンドポイントの変動は統計誤差（この場合 20 keV) に比べ極めて小さく、ほとんど無視できる。

β線解析において応答関数が果たす役割の大きさを示すために、応答関数を全く使わずに、測定で得たβ^-線スペクトルに対し直接 Fermi-Kurie プロットしたものを Fig. 2.22 に示す。この図には側方・後方散乱の効果を含む成分 C のみを考慮に入れてスペクトル形状の補正を行ったときの Fermi-Kurie プロットも併せて示した。応答関数で正しく補正した場合に比べ、上記 2 つの場合では直線性が悪くなっていることが分かる。このことを定量的に見るために、フィッティング領域を変化させたときのエンドポイントの変動を Fig. 2.23 に示す。正しく補正した場合には 55 チャンネル以上の領域でエンドポイントがほぼ一定値になっている、つまり Fermi-Kurie プロットが直線になっているのに対し、成分 C のみを考慮した場合のそれは、65 チャンネル以上の領域であり、若干範囲が狭い。また、応答関数を全く使わないときは、Fermi-Kurie プロットが直線になっていないため、フィッティングに用いるデータ点を変えることで、得られるエンドポイントが 1 チャンネル（約 20 keV）以上ずれてしまっている。以上のことから、β^-線スペクトルからエンドポイントを決定する際には、結果の曖昧さを無くし信頼性を高めるために、応答関数を使うことが重要であることが分かる。

さらに、実験で得た応答関数と模擬計算で得た応答関数との違いがエンドポイントの評価に及ぼす影響について調べた。それぞれの応答関数で実測スペクトルを補正したときの Fermi-Kurie プロットと、直線フィッティングして得られたエンドポイントを Fig. 2.24 及び 2.25 に示す。計算値で補正した Fermi-Kurie プロットは、低エネルギーになればなるほど、実験で決めた応答関数で補正した場合に比べ大きな計数になっており、このことに伴って直線性が悪くなっている。これは実測に比べて計算で得た応答関数は側方・後方散乱の効果を含む成分 C を過小評価しているために、β線スペクトル中の同成分 C が引き切れていないことを意味している。その結果、計算で得た応答関数を用いた場合、20 keV 程度低めのエンドポイントになっている。実験的に決定した応答関数で補正した方が、直線性が良くなる、すなわち真のスペクトルに近づくという事実から、実測した応答関数の方が計算で得たものよりも正しい結果であると結論できる。

5. エネルギー損失の補正等。

検出器のベリリウム窓、空気等でのβ^-線のエネルギー損失を文献 [62] の数表を用いて計算した。例として厚さ 0.254 mm のベリリウム窓によるエネルギー損失量を、入射電子の運動エネルギーの関数として、Fig. 2.26 に示す。

現実の測定条件では、多くの電子は吸収体を斜めに通過する。従って実効的な吸収体の厚み t_{eff}は、本来の厚み t に比べ厚くなる。この比 f $(= t_{\mathrm{eff}}/t)$ を

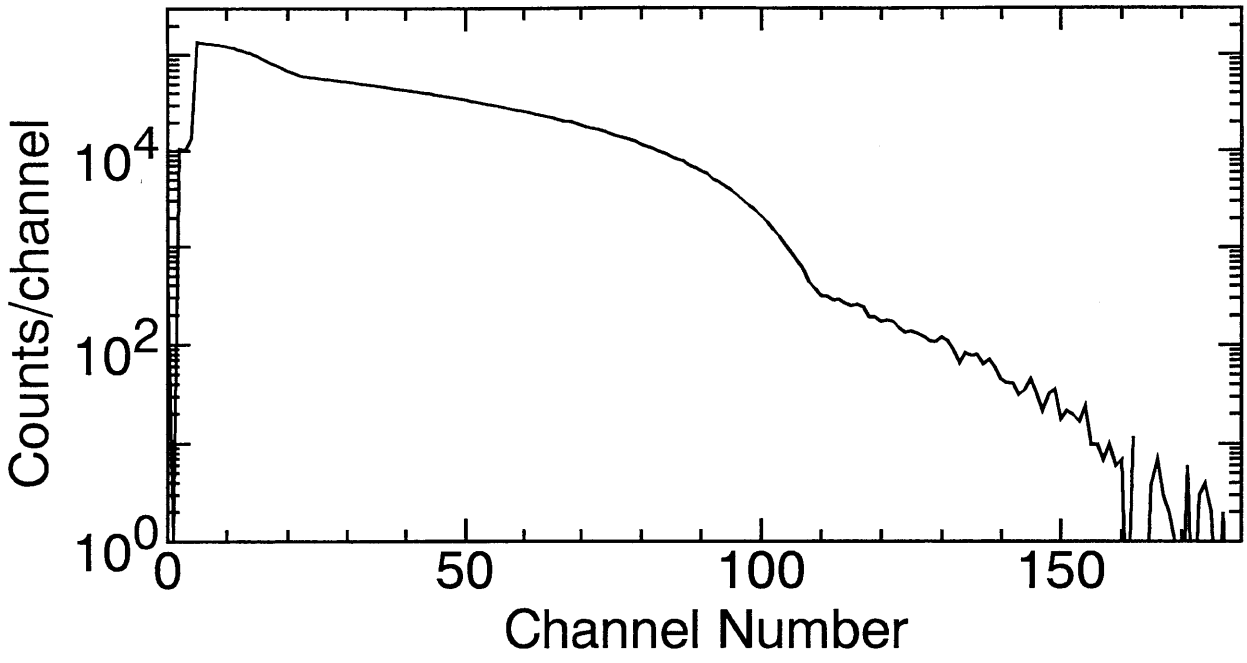

Fig. 2.16: A β^--ray spectrum of ^{90}Sr-^{90}Y observed with a 25 mm$^{\phi}$ $\times$ 13 mm^{t} HPGe detector.

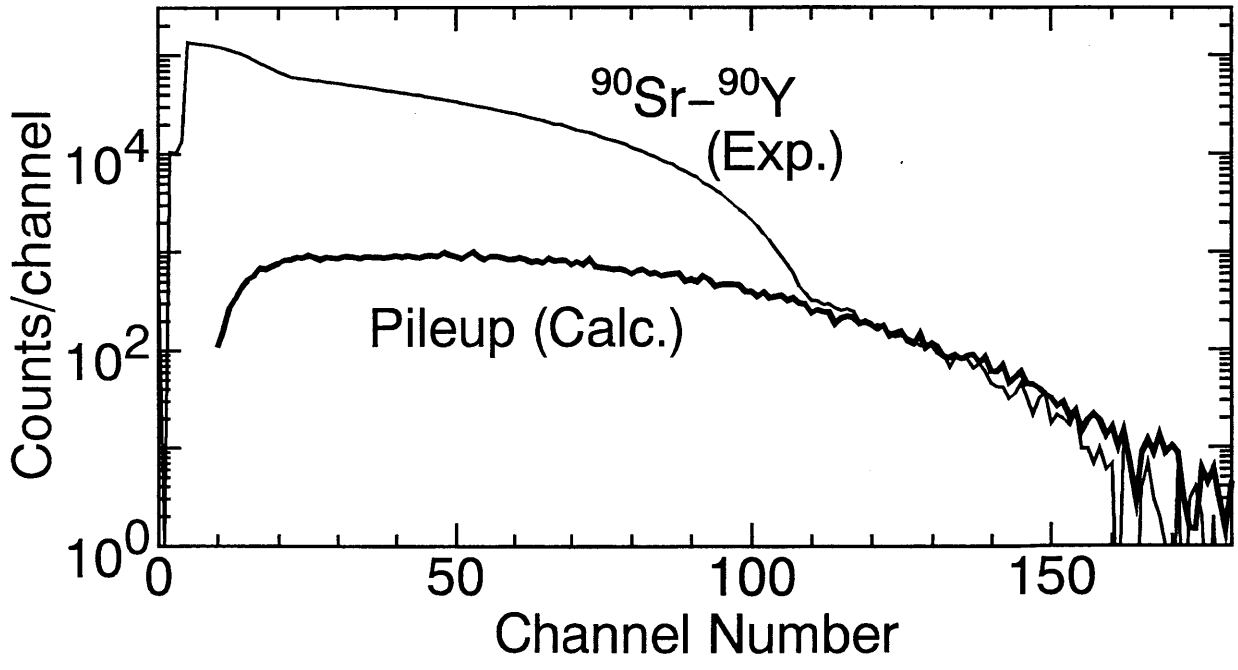

Fig. 2.17: An experimental β^--ray spectrum of ^{90}Sr-^{90}Y and the calculated pileup spectrum.

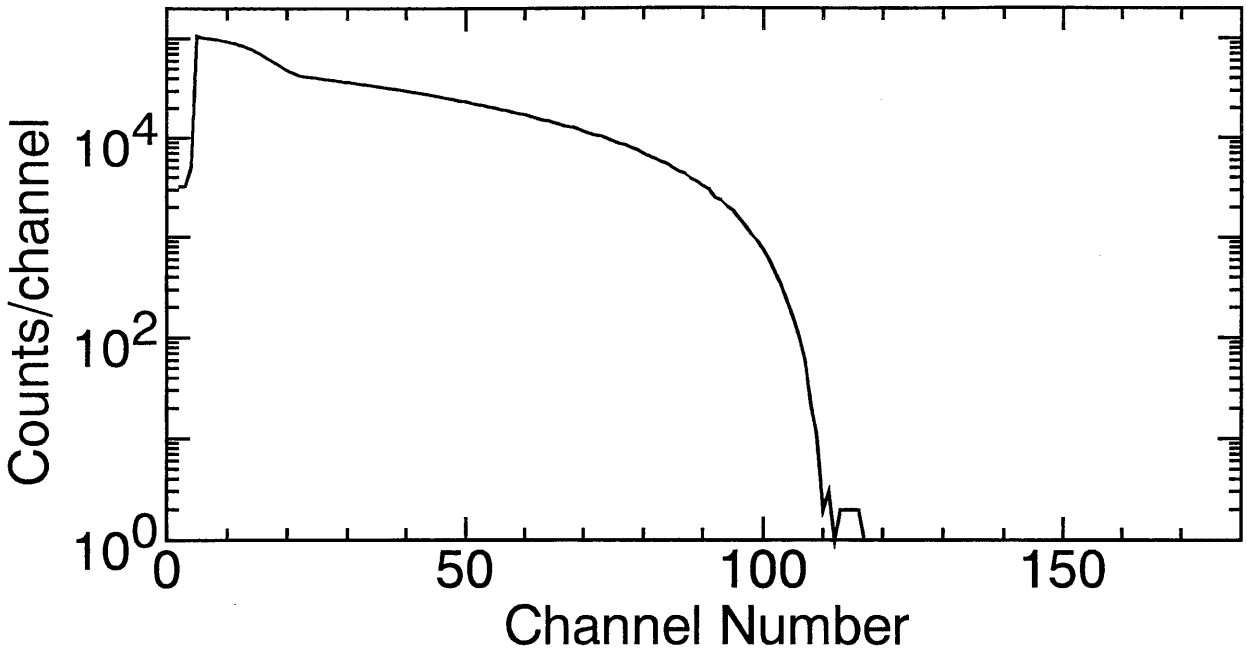

Fig. 2.18: A pileup-subtracted β^--ray spectrum of ^{90}Sr-^{90}Y.

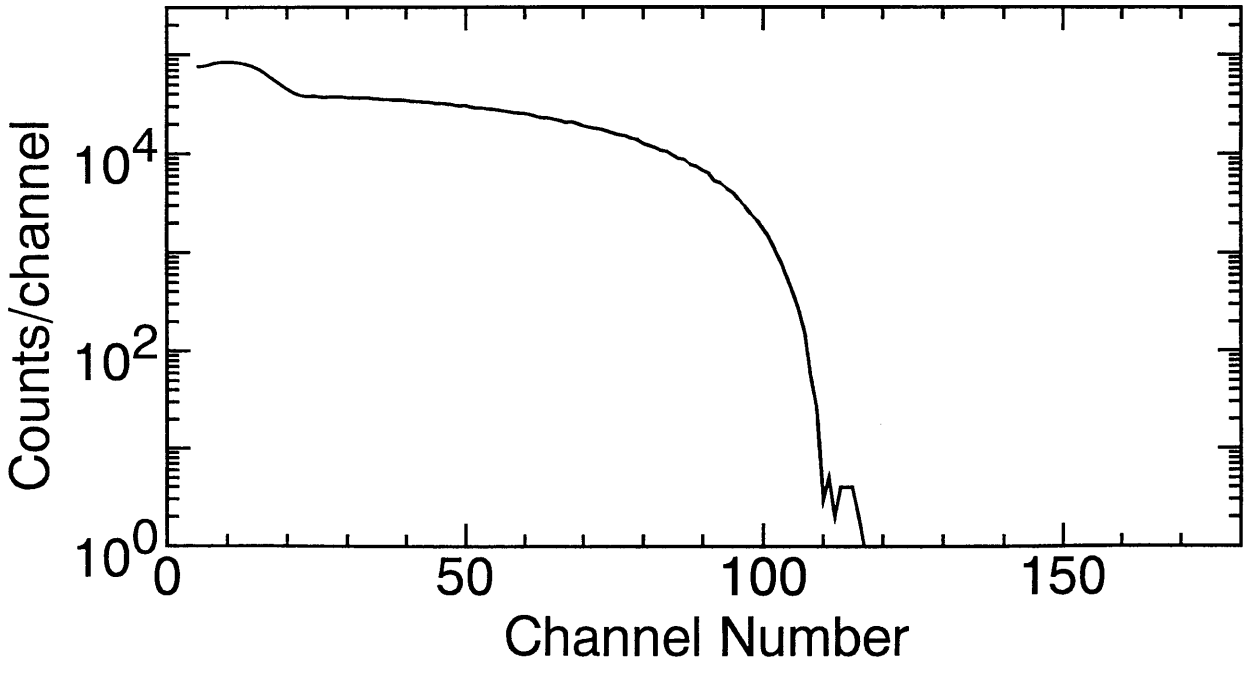

Fig. 2.19: An unfolded β^--ray spectrum of ^{90}Sr-^{90}Y.

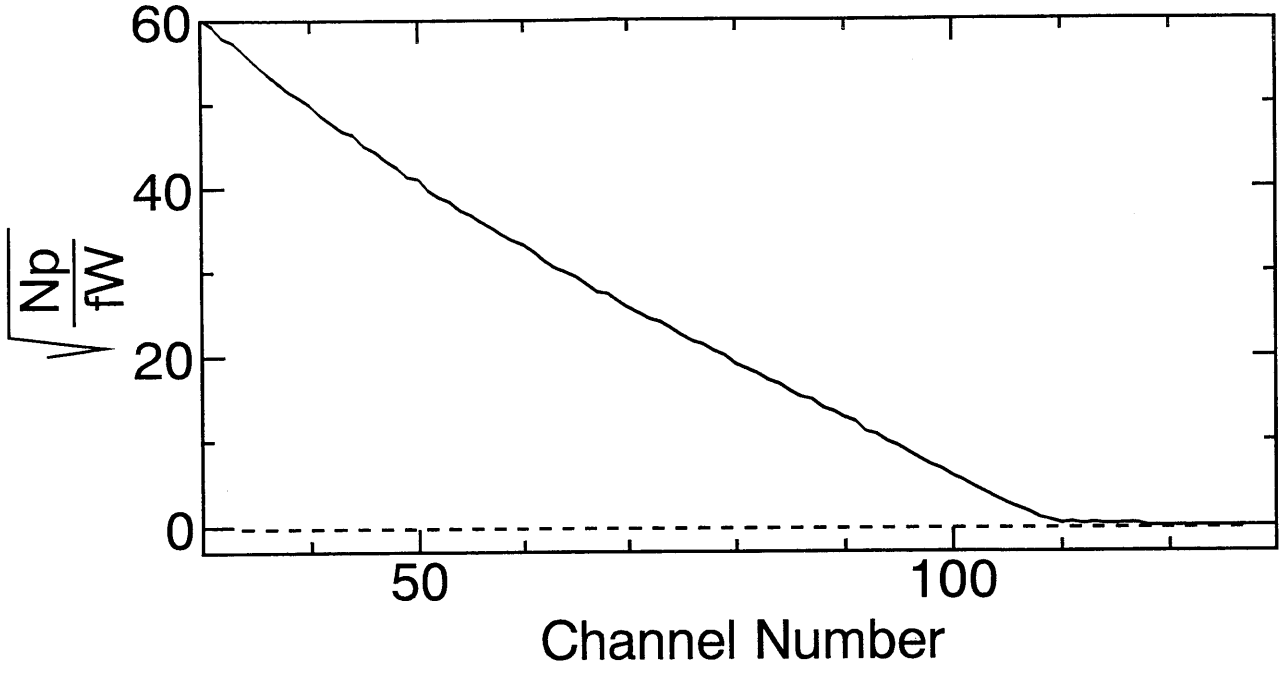

Fig. 2.20: A Fermi-Kurie plot of the unfolded β^--ray spectrum of ^{90}Sr-^{90}Y.

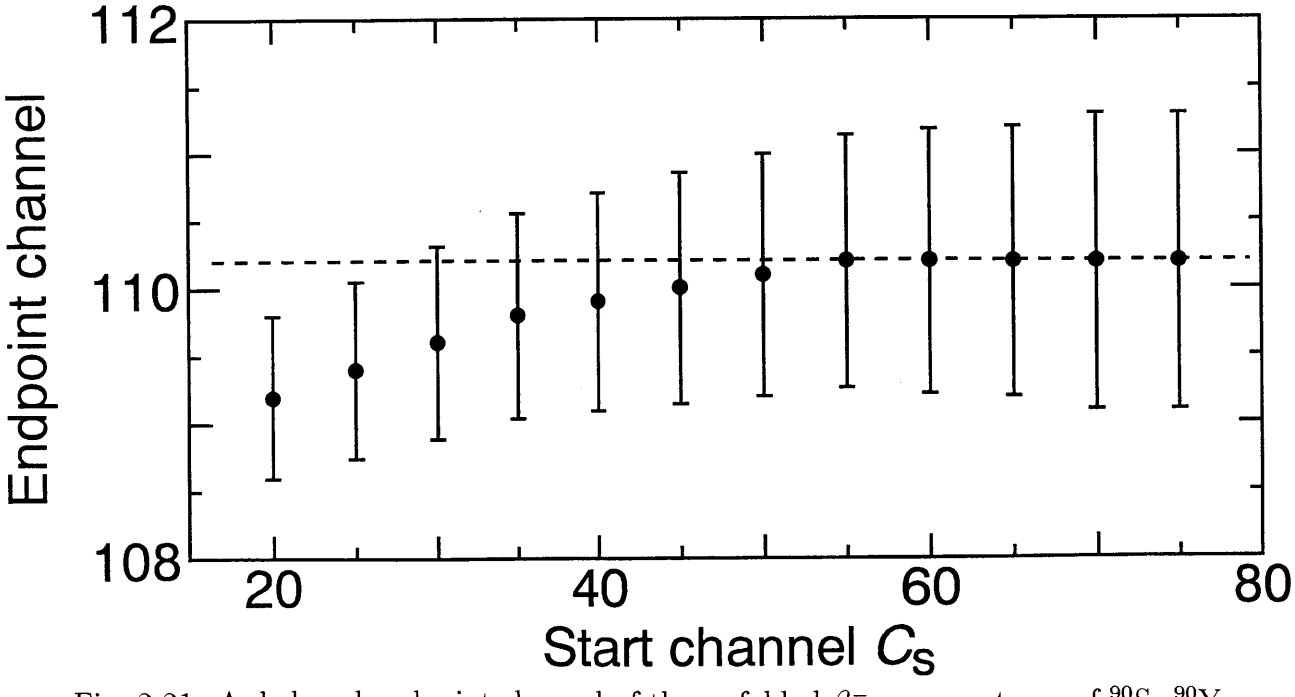

Fig. 2.21: A deduced endpoint channel of the unfolded β^--ray spectrum of ^{90}Sr-^{90}Y as a function of a fitting region. The fitting region is C_s - 108 channel, where the start channel C_s varies from 20 to 75.

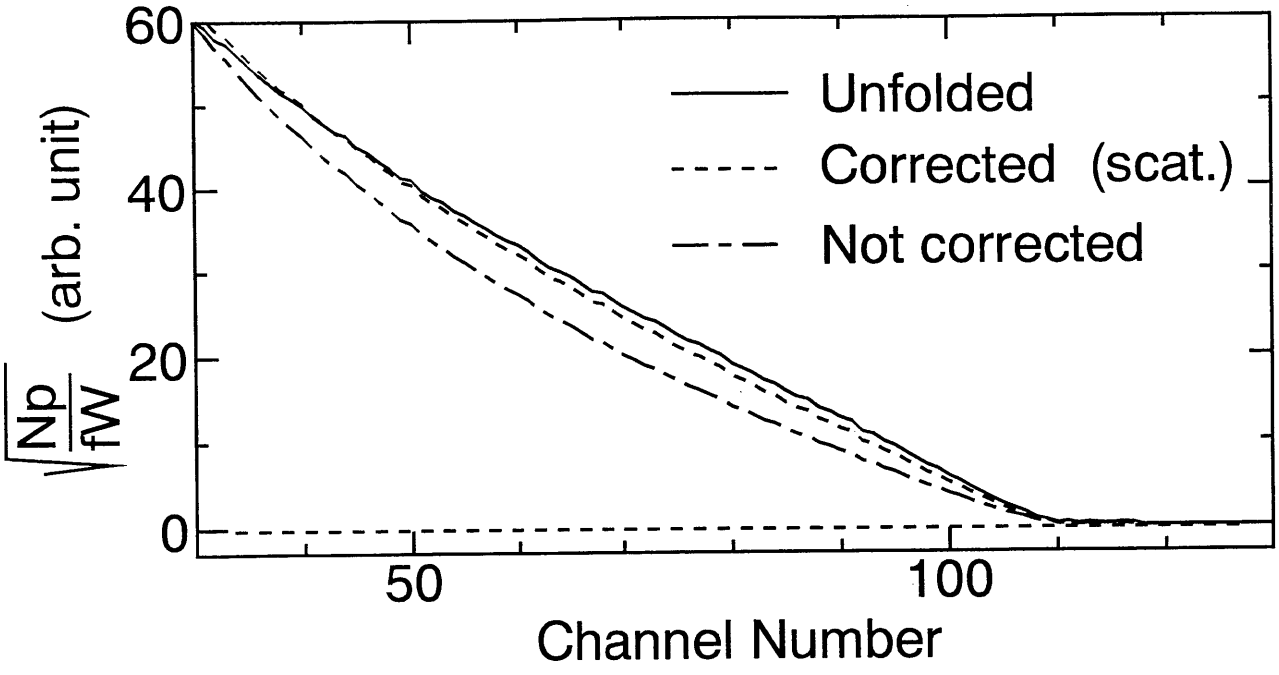

Fig. 2.22: Fermi-Kurie plots of uncorrected β^--ray spectra of ^{90}Sr-^{90}Y. For comparison, the unfolded spectrum is also shown.

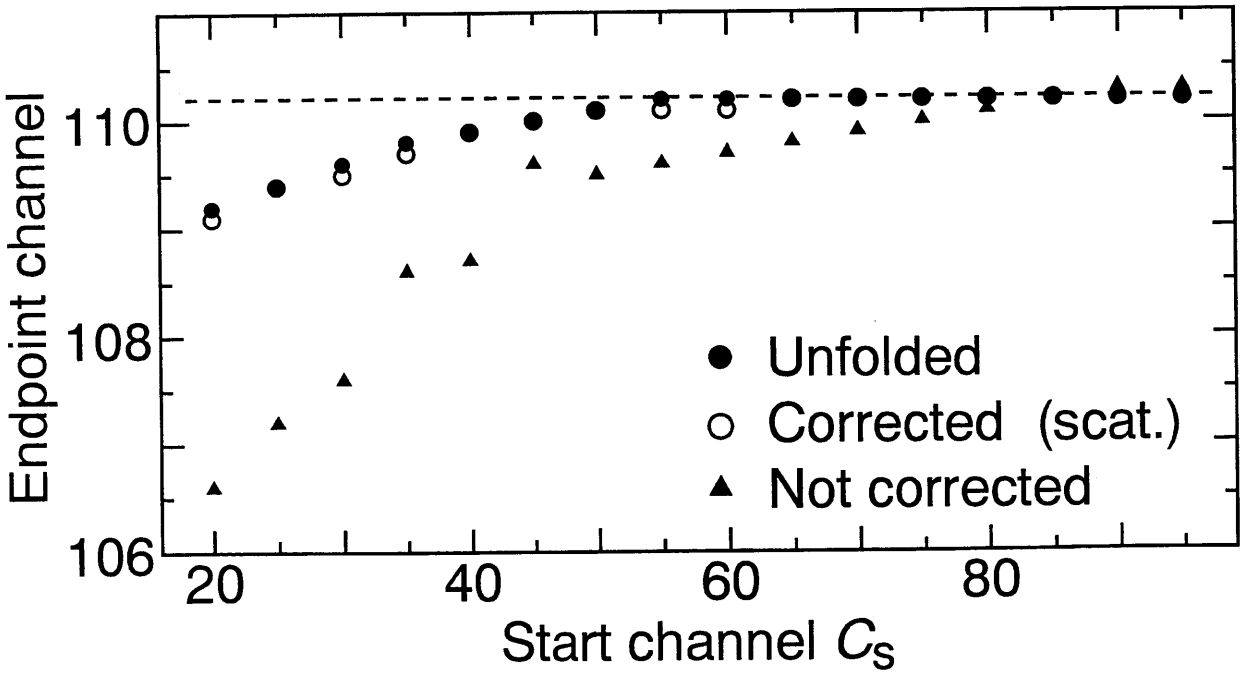

Fig. 2.23: A deduced endpoint channel of β^--ray spectra of ^{90}Sr-^{90}Y as a function of a fitting region. The fitting region is C_s - 108 channel.

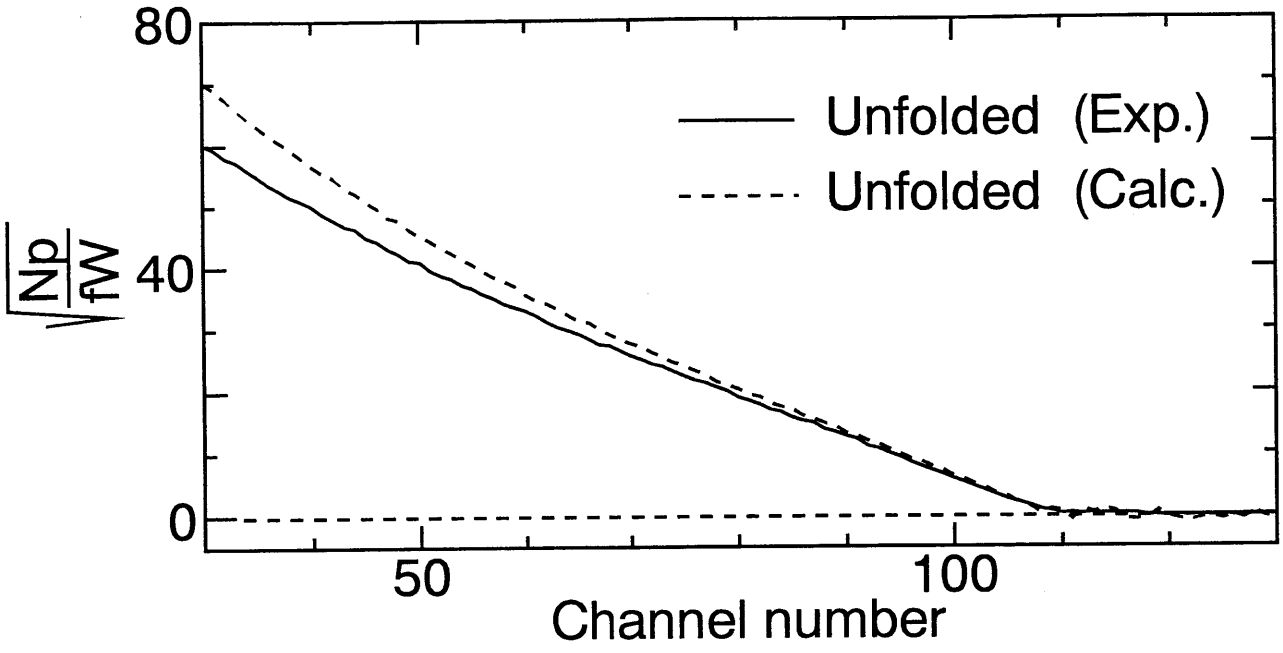

Fig. 2.24: Fermi-Kurie plots of β^--ray spectra of ^{90}Sr-^{90}Y which are unfolded with experimental and calculated response functions.

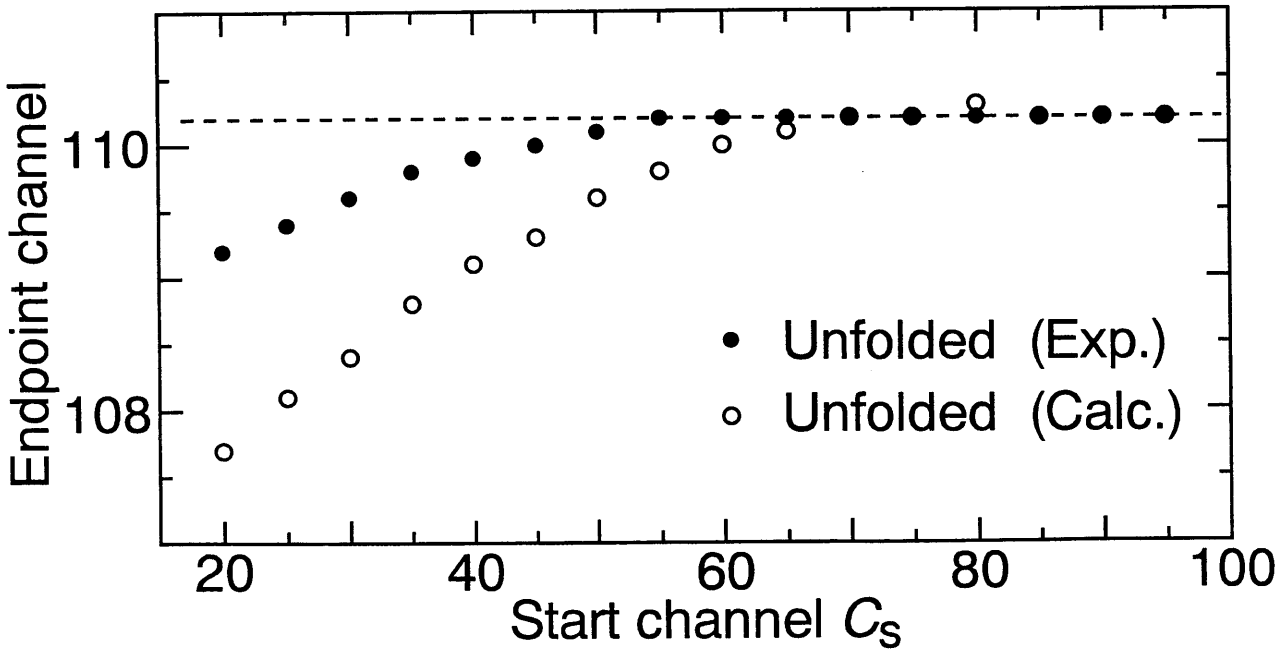

Fig. 2.25: A deduced endpoint channel of β^--ray spectra of ^{90}Sr-^{90}Y as a function of a fitting region. Beta-ray spectra are unfolded with experimental and calculated response functions. The fitting region is C_s - 108 channel.

$$t_{\mathrm{eff}} = ft = \frac{\int \frac{t}{\cos\vartheta}\, d\Omega}{\int d\Omega} = \frac{\ln(\cos\theta)}{\cos\theta - 1}\, t$$

から求め、エネルギー損失を評価した。ここで θ は線源（点状であることを仮定している。）が検出器結晶を見込む角度である。Fig. 2.27 に直径 25 mm の結晶を持つ検出器に対する斜め入射の補正係数 f を、線源と結晶間の距離の関数として示す。評価したエネルギー損失量を、4. で得たエンドポイントに加えβ^-線最大エネルギーとした。

最大エネルギーの誤差としては、統計誤差と第2.3節で述べる系統誤差の線形和を用いる場合と自乗和を用いる場合とがあるが本研究では自乗和を採用した [63]。

2.2.2 β^+線スペクトル

β^+線スペクトル解析の基本的な考えは、β^-線スペクトルの解析法と同じである [53]。しかし、β^+線スペクトルの中で最もエネルギーの高い点 E_{max}は、消滅光子線と全エネルギー吸収ピークとの加算成分であるため、その計数値はβ^-線スペクトルにおけるそれと比べ極めて少ない。例えば直径 25 mm の HPGe 検出器の場合、6 MeV の電子が全吸収される効率（すなわちスペクトルで最も高いチャンネルに計数が現れる確率）は約 20%である。これに対して、6 MeV の陽電子とそれが生じさせる 2 本の消滅光子が全吸収される効率はおよそ 0.1%と非常に小さいため、得られる統計量には大きな差がある。従ってβ^+線スペクトルの場合、E_{max}での計数を出発点とした解析を行うと、統計的な不確かさが大きくなる。この問題を避けるために、以下のような手法で解析した。例として標準β^+線源である^{68}Ge-^{68}Ga について述べる。

1. チャンネルの束ね合わせ。

   β^-線スペクトルの場合と同様である。得られたスペクトルを Fig. 2.28 に示す。

2. パイルアップ成分の差し引き。

   β^-線スペクトルの場合と同様である。ただし、Fig. 2.28 に示したスペクトルは、計数率が低い条件（およそ 1 kcps）で測定したため、パイルアップ成分は無視できる程度しか観測されていない。従って、特にパイルアップを差し引く作業は行わなかった。

3. 理論スペクトルの作成と測定スペクトルの比較。

   β^+線最大エネルギー $E_{\mathrm{m}}^{(0)}$を仮定し、β^+線の理論スペクトル $T(E, E_{\mathrm{m}}^{(0)})$ を作成した（付録 A 参照。）。これを応答関数 $R(E, E')$ で畳み込んだ。すなわち

$$S(E') = c \sum_{E=0}^{E_{\mathrm{m}}^{(0)}} R(E, E') T(E, E_{\mathrm{m}}^{(0)}).$$

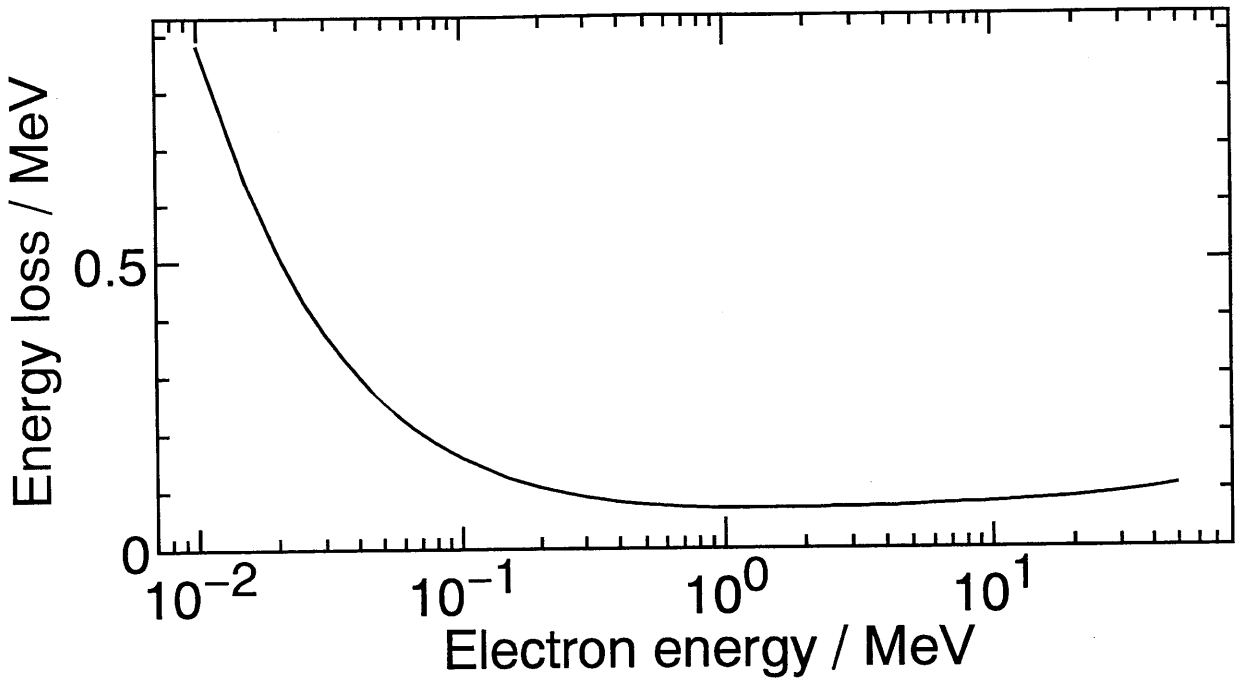

Fig. 2.26: Energy loss of electrons in a 0.254 mm^t beryllium window.

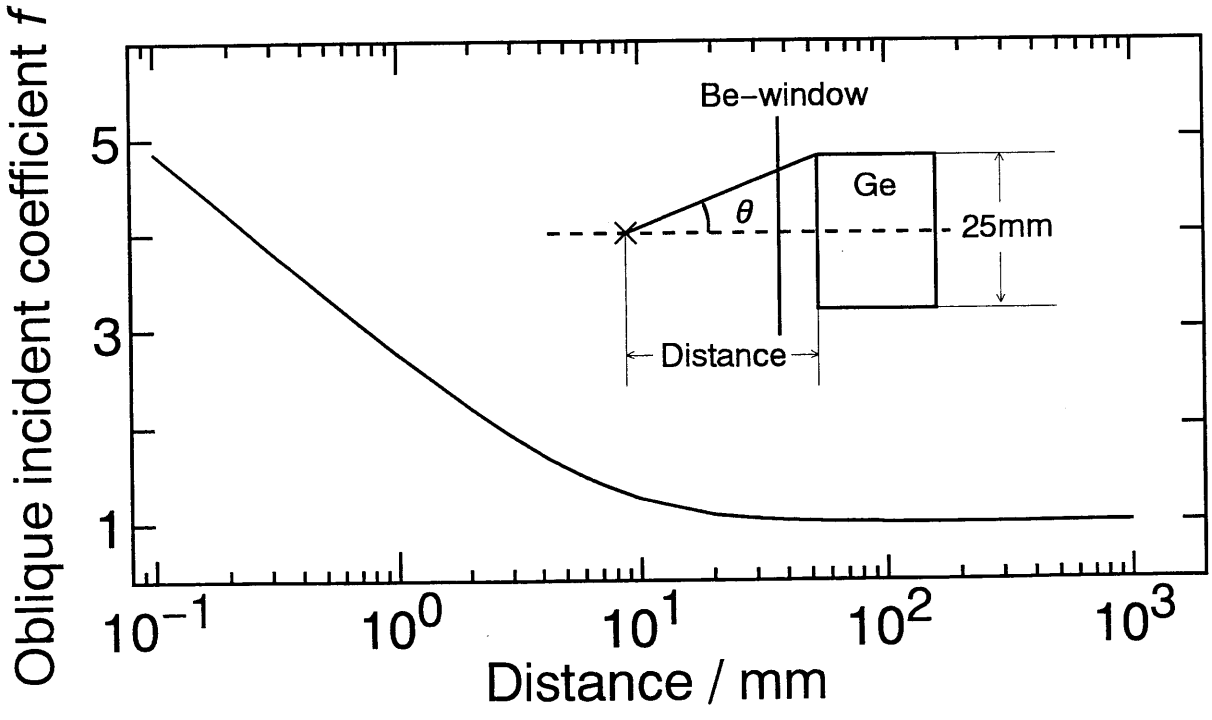

Fig. 2.27: Oblique incident coefficient f as a function of distance between a source and a surface of a 25 $mm^{\phi}\times$ 13 mm^t germanium crystal.

ここで c は定数であり、計算で得たスペクトル $S(E')$ と測定で得たスペクトル $M(E')$ を比較することで求める。また、応答関数の演算子 $R(E,E')$ は、39 ページで導入した演算子と同様のものであり、エネルギー E の単色陽電子のスペクトル $I(E)$ に対して $R(E,E')\cdot I(E)$ は、Fig. 2.11 に示したスペクトルを出力する。

Fig. 2.29 に、測定で得たスペクトルと計算で得たスペクトル $S(E')$ の比を示す。この図で比が一定と見なせる領域で、平均を取って定数 c を決定した。

4. 真のスペクトルへの変換。

3. で求めた理論スペクトルを応答関数の B, C, D 成分で畳み込んだスペクトルを作成した。このスペクトルを測定で得たβ^+線スペクトルから差し引くことで、全エネルギー吸収事象以外の寄与を除去した。その後、全エネルギー吸収効率で各チャンネルの計数を除することで、入射β^+線の持っていた真のスペクトルを得た。

これを式で表すと

$$M_c(E) = \left\{ M(E') - c\sum_{E=0}^{E_{\mathrm{m}}^{(0)}} [R_B(E,E') + R_C(E,E') + R_D(E,E')] \times T(E,E_{\mathrm{m}}^{(0)}) \right\} R_A(E,E')^{-1}$$

となる。ここで $R_{A,B,C,D}(E,E')$ は 39 ページで定義した応答関数演算子である。

Fig. 2.30 に得られた真のスペクトルを示す。

5. Fermi-Kurie プロットの作成。

β^-線の場合と同様にして、エンドポイント $E_{\mathrm{m}}^{(1)}$ を求めた。Fig. 2.31 に Fermi-Kurie プロットを示す。フィッティングして得られたエンドポイントが、始めに仮定した最大エネルギーと± 10 keV 以内で一致したときは、それを最終結果とした。一致しないときは、新たに得た $E_{\mathrm{m}}^{(1)}$を $E_{\mathrm{m}}^{(0)}$とし、3. 以降の解析を繰り返した。

β^-線の場合と同様に、応答関数を全く使わないとき、または応答関数の一部のみを利用してβ^+線スペクトルを補正したときの Fermi-Kurie プロットを Fig. 2.32 に、それらに対して直線フィッティングしたときのエンドポイントを Fig. 2.33 に示す。正しく補正した場合と比べて、そうでないときは直線性が悪い。特に全く補正せずに Fermi-Kurie プロットした場合には、β^+線に特有の消滅光子との加算成分の影響が強く現れるため、信頼できるエンドポイントを決定することは全く不可能である。その意味で、β^+線の解析では、β^-線の場合以上に応答関数の果たす役割が大きいと言える。本研究で実測した応答関数を用いることでエネルギー幅 1 MeV 程度で直線部分が得られる。このことによってエンドポイントを明確に決定できる。

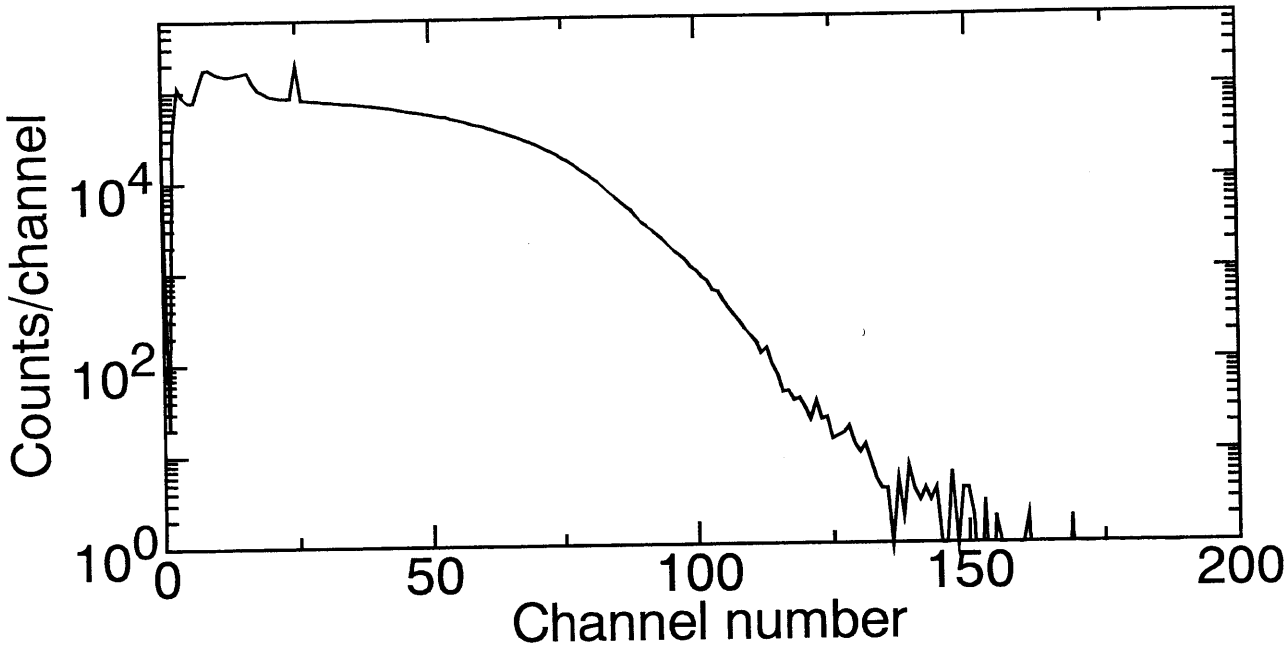

Fig. 2.28: A β^+-ray spectrum of ^{68}Ge-^{68}Ga observed with a 16 mm$^{\phi}$ $\times$ 10 mm^{t} HPGe detector.

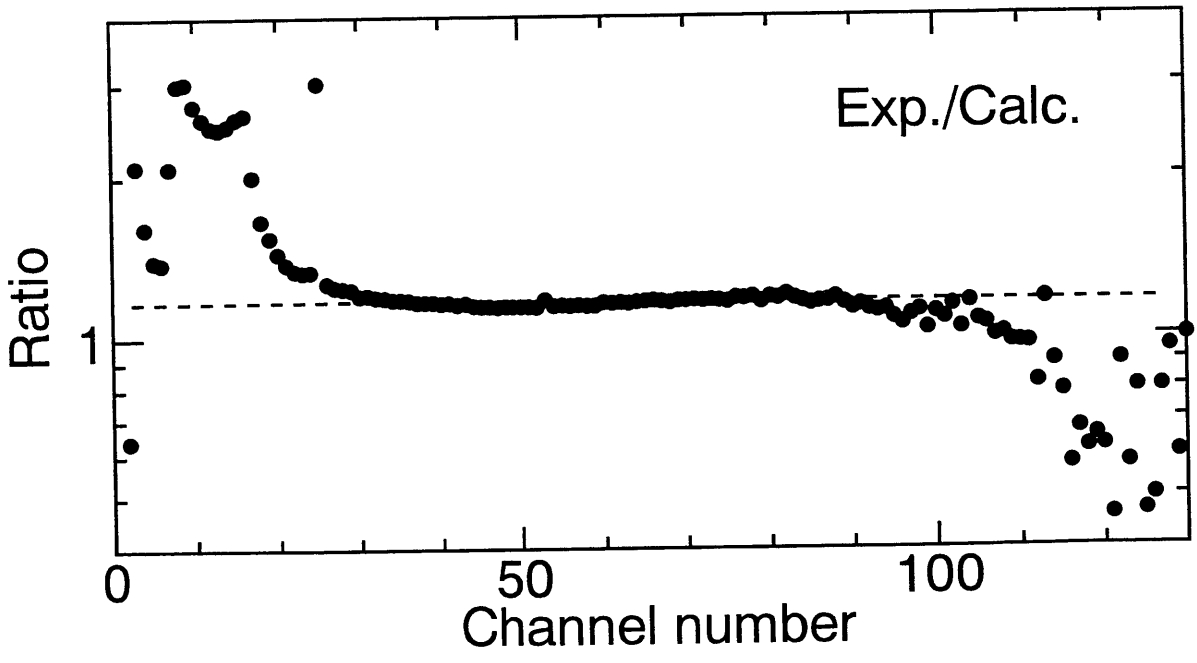

Fig. 2.29: Ratio of the experimental to the calculated β^+-ray spectrum of ^{68}Ge-^{68}Ga.

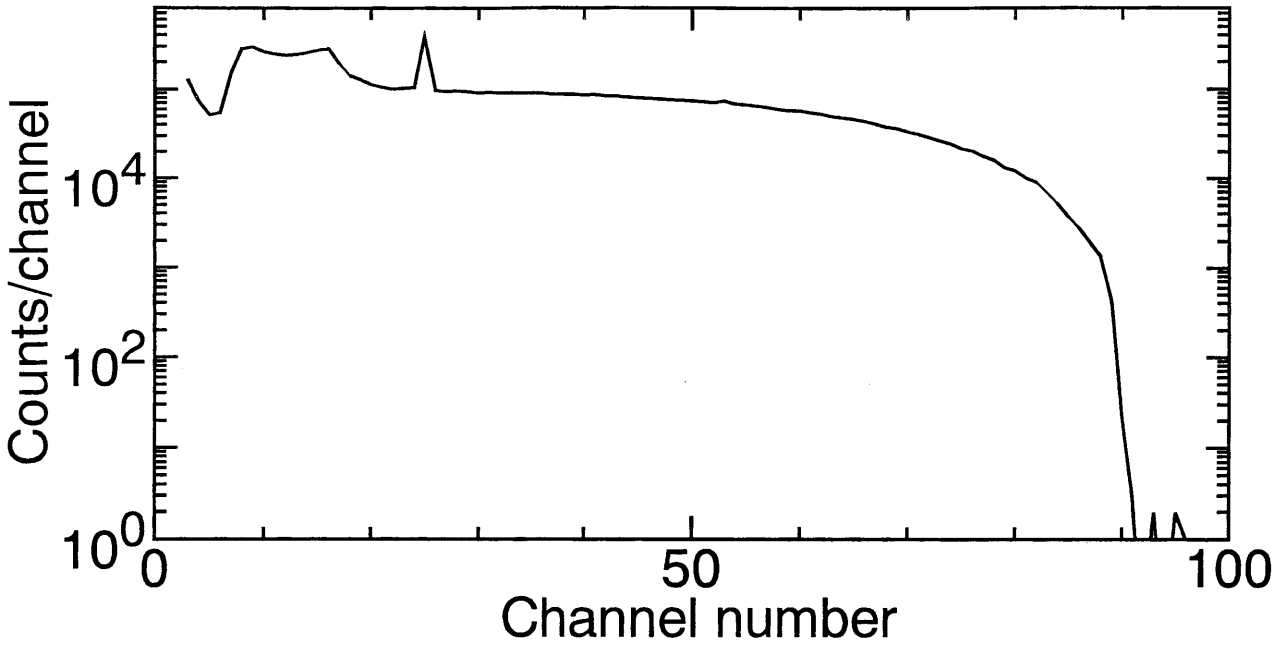

Fig. 2.30: An unfolded β^+-ray spectrum of ^{68}Ge-^{68}Ga.

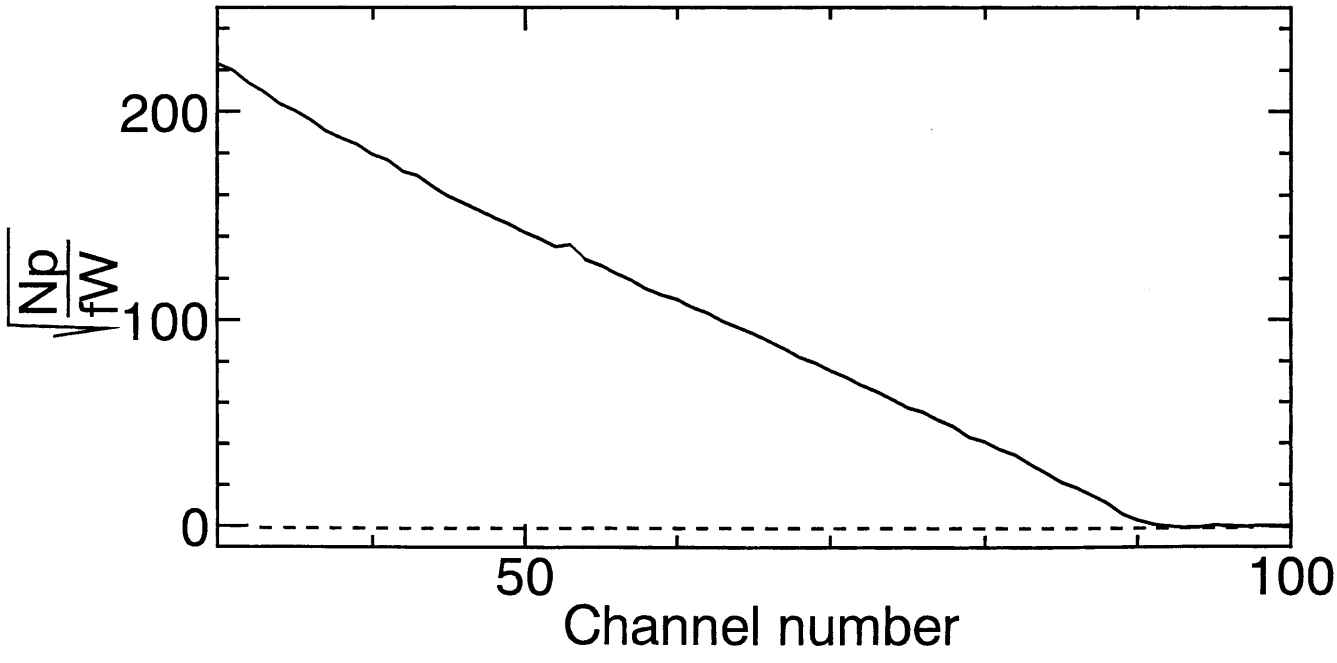

Fig. 2.31: A Fermi-Kurie plot of the unfolded β^+-ray spectrum of ^{68}Ge-^{68}Ga.

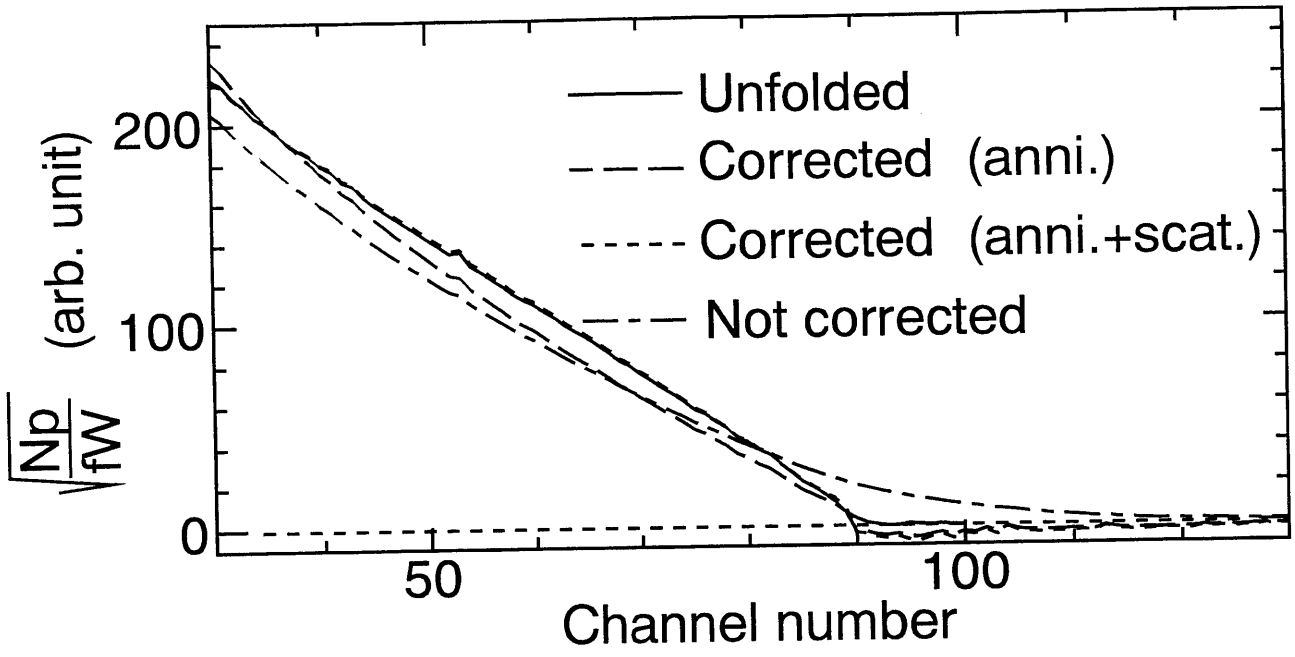

Fig. 2.32: Fermi-Kurie plots of uncorrected β^+-ray spectra of ^{68}Ge-^{68}Ga. For comparison, the unfolded spectrum is also shown.

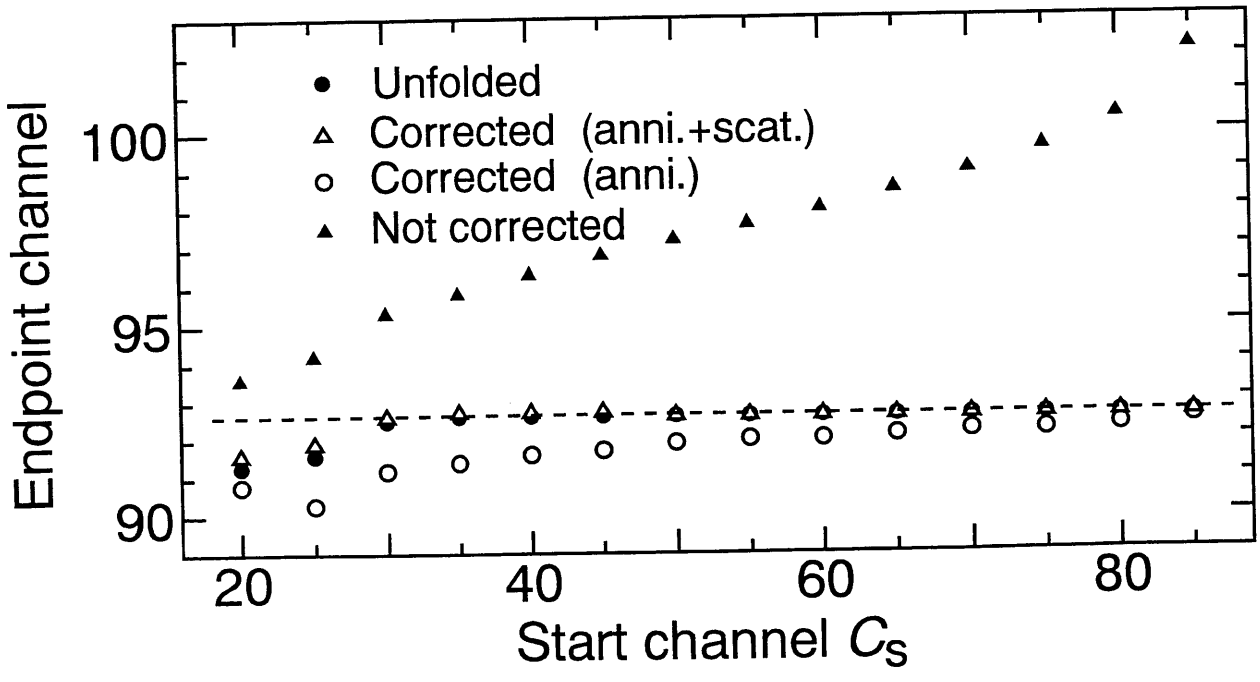

Fig. 2.33: A deduced endpoint channel of β^+-ray spectra of ^{68}Ge-^{68}Ga as a function of a fitting region.

6. エネルギー損失の補正等。

β^-線スペクトルの場合と同様である。

2.3 β崩壊エネルギーの系統誤差

4 MeV 以下の Q_βをこれまで述べてきた方法で決定する際の系統誤差は、20 keV 以下である [38,53]。この値は、Q_βが精度良く決定されている核種のβ線を測定し、それを文献値と比較することで見積もった。

新たに応答関数を決定した 4 MeV 以上のエネルギー領域での系統誤差を同様な方法で評価した。核種は Table 2.6 に示したものを使用した。^{124}Cs は、日本原子力研究所東海研究所の 20 MV タンデム静電加速器に付設された JAERI-ISOL (Japan Atomic Energy Research Institute ISOL) [64] で、それ以外の核種は京都大学原子炉実験所の研究用原子炉に付設された KUR-ISOL (Kyoto University Reactor ISOL) [65] で生成させた。一部の核種については、Ukon *et al.* によって測定されたデータ [60] を今回決定した応答関数を用いて再解析し、β線最大エネルギーを決定した。また、^{124}Cs の Q_{EC}は Osa *et al.* が決定した値を引用した [39]。解析して得られた結果を文献値とともに、Table 2.6 に示す。ただし、ここで示した実験値の誤差は統計誤差のみである。

Table 2.6: Experimental β-ray maximum energies of nuclides with well-evaluated Q_{β^-}- or Q_{EC}-values.

Nuclide	Half-life	Endpoint energy (keV)	Q_{β^-} or Q_{EC}-value (keV)	Evaluated value[a] (keV)
β^--decay				
^{139}Cs	9.27 m	4190(30)	4190(30)	4213(3)
^{142}La	1.52 h	4520(36)	4520(36)	4504(5)
^{94}Y	18.7 m	4920(40)	4920(40)	4917(7)
^{38}Cl	37.24 m	4922(14)	4922(14)	4916.8(5)
^{141}Cs	24.94 s	5180(30)	5180(30)	5251(11)
^{91}Rb	58.4 s	5770(60)	5860(60)	5861(9)
^{95}Sr	23.9 s	6100(60)	6100(60)	6087(8)
^{140}Cs	1.06 m	6210(50)	6210(50)	6220(9)
^{93}Rb	5.84 s	7450(40)	7450(40)	7462(9)
^{92}Rb	4.492 s	8100(50)	8100(50)	8100(7)
β^+-decay				
^{124}Cs	30.8 s	4880(20)	5900(20)	5917(12)

[a] Evaluated by Audi and Wapstra [5].

実験値と評価値との差をFig. 2.34に示す。β^-線とβ^+線の解析方法は、本質的に同じ手法であるので系統誤差は一致すると考え、Fig. 2.34には両者を重ねて示した。やや大きい統計誤差を含めても、実験値と評価値はほぼ50 keV以内で一致している[11]。

今後、より統計の良い測定を行い、統計誤差を小さくすることで両者の一致はさらに良くなり、おそらく20 ~ 30 keV程度になるものと推測される。しかし、現時点では安全を見て4 MeV以上のβ崩壊エネルギーを決定する際の系統誤差は50 keV以内であると考えた。

2.4 まとめ

不安定核の原子質量の測定手段として、9 MeVまでのβ崩壊エネルギーを高い信頼性で決定するために、HPGe検出器の基礎特性を実験的に調べた。

β線スペクトルを解析する際に必要となる応答関数を測定するために、電子線形加速器を利用して生成させた連続電子・陽電子線を単色化するビーム輸送系を設計・製作した。これを用いて3つの異なる結晶形状を持つHPGe検出器に対して、6 ~ 9 MeVの範囲で応答関数を測定した。これまでに得られていた4.5 MeVまでの測定結果と合わせて、応答関数のエネルギー依存性を求めた。

モンテカルロ計算コードEGS4でも応答関数を求めたが、それは実測値と一致しなかった。不一致の原因は明らかではないが、実測した応答関数でβ線スペクトルを補正した方が、理論スペクトルに近い形状になったことから、実測値の方が正しいと判断した。

既に多くの研究者によってβ崩壊エネルギーが測定され、精度良い評価値が発表されている核種に対し、β線の測定を行った。応答関数を用いてスペクトルを補正した後、Fermi-Kurieプロットをして決定したβ線最大エネルギーと文献値との比較から、4 MeV以上のエネルギー領域での系統誤差を50 keV以下と評価した。このことは、本測定法を質量数100近傍の原子核に適用した場合、$\Delta M/M = 10^{-6}$以下というほぼ世界最高水準に並ぶ精度で質量が決定できることを意味する。以上のことから、不安定核の原子質量の決定を目的としたβ崩壊エネルギーの測定手法としては、本章で述べた方法が十分な性能を持っていると結論した。

今回応答関数を測定した検出器(結晶の大きさは、16 mm$^\phi$ × 10 mm^t, 25 mm$^\phi$ × 13 mm^t, 50 mm$^\phi$ × 10 mm^t)の中で、β線測定には、25 mm$^\phi$ × 13 mm^{t}のHPGe検出器が最適であると以下の理由から判断した。

- 直径16 mmのHPGe検出器に比べて検出効率が高い。
- 直径50 mmのHPGe検出器の応答関数は、側方・後方散乱の効果を含む成分Cの形状が他の検出器と比べて異なる。すなわち5 MeV以下で、計数が大きく増加しており、成分Cのチャンネル当たりの計数は一定であるという仮定(Fig. 2.11参照。)が十分に成り立たない。信頼性の高いβ崩壊エネルギーの決定を行うために

[11] ただし^{141}Csは例外的にずれが大きい。これ以外の核種が評価値と良い一致を示している中で、^{141}Csだけがずれてしまう原因を、実験方法に求めることは不自然である。従って評価値自身がずれている可能性がある。

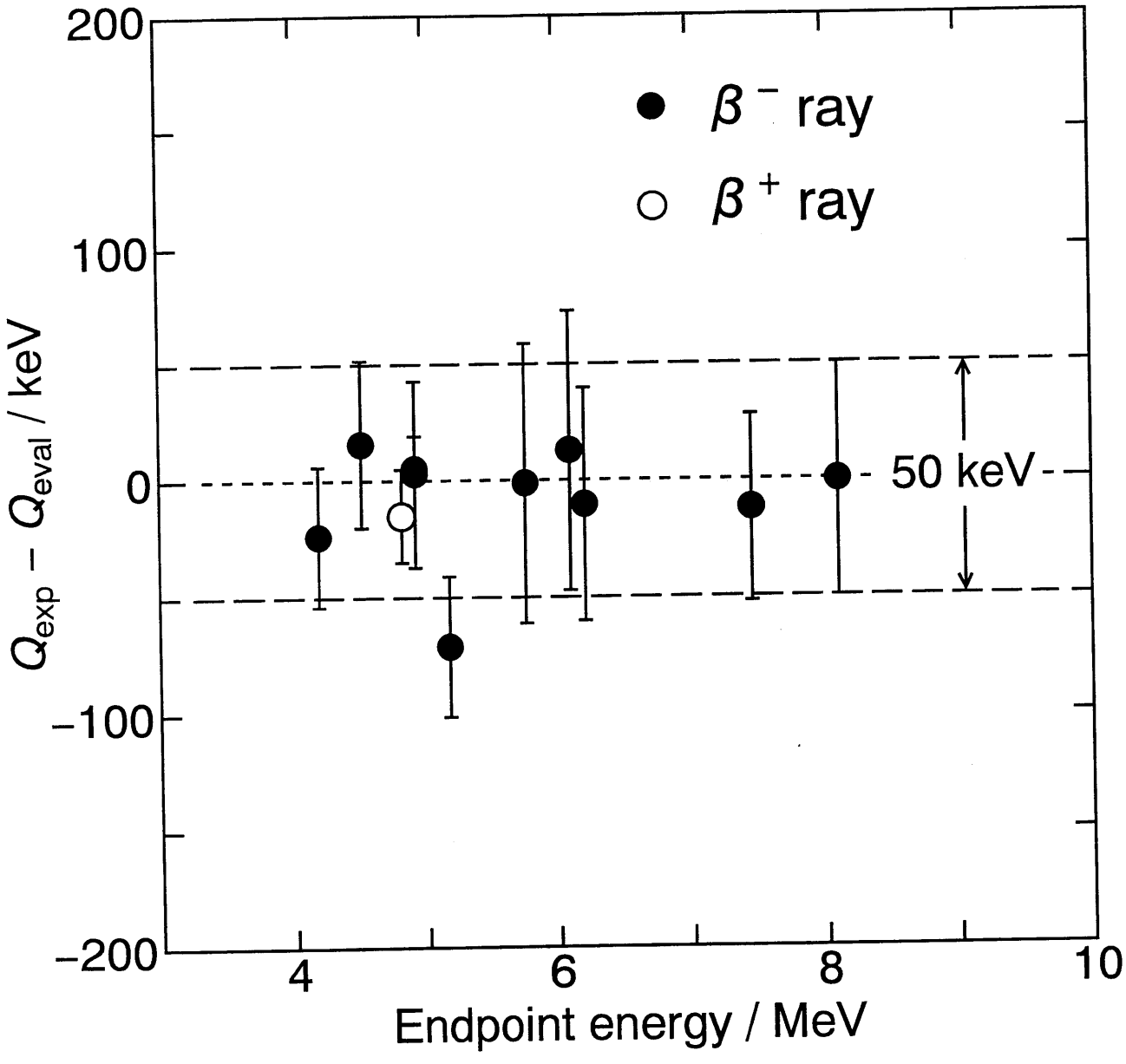

Fig. 2.34: Deviation of experimental β-decay energies, $Q_{\rm exp}$, from the evaluated values, $Q_{\rm eval}$, by Audi and Wasptra [5]. The error bar shows only the statistical uncertainty.

は、成分Cがほぼ一定の計数を示している検出器を使用する方が、曖昧さを避けられ、望ましい。

従って、第3章以下で述べる$^{124-130}$Laのβ崩壊エネルギーの測定では、直径25 mmの検出器を使うこととした。

第3章　オンライン同位体分離装置を用いた中性子欠損核$^{124-130}$Laの測定

3.1　はじめに

第2章で述べたHPGe検出器を用いたβ崩壊エネルギー測定法を$^{124-130}_{57}$Laの$Q_{\rm EC}$測定に適用した。第1.5節で述べたように、これらの核種の原子質量は、質量公式の予測能力の評価や、中性子欠損核の基底状態での核構造を議論する上で重要である。しかし、既にFig. 1.6で示したように、$_{56}$Baまでは不安定核種も含めて原子質量の測定値があるものの、これよりも原子番号が大きくなると極端に実験値が少なくなる。その主な理由としては、

- $Q_{\rm EC}$が大きいため、β^+線の全エネルギー吸収効率が低く、応答関数が極めて複雑になる。このために信頼性の高い$Q_{\rm EC}$の決定は困難であると思われていた。
- ALICEコード[66,67]で計算した、これらの核種の生成断面積は10-100 mbと小さい。さらにISOLのイオン源でのイオン化効率が数%と低いため、充分量の核種の生成が困難である。

といったことが考えられる。第2章で述べたように、本研究では実測した応答関数を用いることで9 MeVまでのβ崩壊エネルギーを系統誤差50 keV以下で決定する方法を確立し、前者の問題を解決した。また後者については、日本原子力研究所高崎研究所に設置されたTIARA-ISOL (Takasaki Ion Accelerators for advanced Radiation Application, ISOL) [1]を利用することで強い$^{124-130}$La線源を得た。

さらに中性子欠損La同位体は核反応で生成し分離するが、その場合一般にCsやBaが不純物として強く混入してしまうため、直接測定法では質量を測定することが困難な領域である[2]。β崩壊エネルギーは、$\beta-\gamma$同時計数測定法を用いることで、仮に不純物があってもその影響を受けることなく決定することができる。その意味で広範囲の原子核領域を測定対象にできる本測定法の特徴を生かせる領域であると言える。

[1]最近TIARA-ISOLでは、これまで未知核種だった$^{125,127}_{59}$Prの存在を実験的に初めて確認した[68,69]。このことはTIARA-ISOLが、質量数130近傍の中性子欠損軽希土類核の生成・分離に関しては、世界で最も優れた装置の1つであることを意味する。

[2]ただしCERNのISOLTRAPでは、つい最近装置に改良が加えられ、希土類核の測定が可能になった。しかし、La, Ce等の軽希土類核に対する実験データはまだ発表されていない。

3.2 中性子欠損核$^{124-130}$Laの生成

中性子欠損核$^{124-130}$Laは、日本原子力研究所高崎研究所イオン照射研究施設TIARAのAVFサイクロトロンに付設されているオンライン同位体分離装置TIARA-ISOL [68]で生成、分離した。ISOLは核反応で合成した原子核を一度中性原子とした後、再度イオン化し電場で引き出し、磁場を用いて質量数ごとに分離する装置である。サイクロトロンのビーム輸送系及び第1軽イオン室LE1に設置されたTIARA-ISOLの概略図をそれぞれFig. 3.1及びFig. 3.2に示す。

サイクロトロンで195 MeVに加速された$^{36}Ar^{8+}$ビームは、標的核であるモリブデンターゲットに入射し、重イオン核融合蒸発反応を起こす。ターゲット箔から反跳脱出した生成核は、Fig. 3.3に示した表面電離型の熱イオン源内 [71] のキャッチャー (catcher) 箔に打ち込まれる。キャッチャー箔から熱拡散により脱出した生成核は、イオン源内壁との衝突で表面電離の原理で正一価のイオンにイオン化され、電場によってイオン源外へ引き出される。イオンは40 kVの加速電圧で加速され、双極電磁石を用いて質量分離される。質量数140近傍での質量分解能は、$M/\Delta M \sim 1500$である。ISOLでは磁場を変化させることで質量数のみを区別するので、一般には分離後のビームには同重核の混入は避けられない。しかし、単体イオンと異なる挙動を示す化合物（例えば酸化物やフッ素化物）でイオン化するなどの工夫を加えることで、ある程度の元素選択性を持たせることが可能である [70]。今回使用した熱イオン源でLa, Ce, Prなどの軽希土類元素をイオン化する場合、単体イオンに比べて酸化物イオンの方が100倍以上効率良くイオン化される。一方同時に強く生成するBaやCs同位体は酸化物ではほとんどイオン化されないので、抑制することができる。従って本研究で測定対象としたLa同位体は酸化物イオン$^{A}La^{16}O^{+}$の化学形で取り出した。これにより、高収量で、しかも不純物の少ない状態での測定が可能になった。質量分離されたイオンはビーム輸送系によって測定室に輸送される。末端にはテープ式線源移送装置が設置してあり、イオンはアルミニウム蒸着マイラーテープに打ち込まれる。テープの厚さは15 μmであり、このうちアルミニウム層はおよそ30 nmである。テープ上に捕集された線源は、あらかじめ設定しておいた半減期の2倍程度の時間ごとに、約50 cm下方に運ばれる。以降では、質量分離されたイオンの捕集位置をインビーム (in-beam) 位置、テープで移送後の位置をオフビーム (off-beam) 位置と呼ぶことにする。

^{130}Laの測定のときにはテープ式移送装置を使用しなかった。すなわち、TIARA-ISOLの末端にアルミニウム蒸着マイラーテープを固定しておき、ここに質量分離したイオンを打ち込んで測定した。理由は、今回用いた反応系では^{130}Laよりもその親核である^{130}Ceの方が生成量が多く、しかも^{130}Ceの半減期22.9 minが^{130}Laの半減期8.7 minよりも長いので、テープ式移送装置を使わない方が^{130}Laの収量が大きいからである。なお、^{130}Laの娘核である^{130}Baは安定核なので、β線やγ線を測定する際にバックグラウンドとなることはない。

Table 3.1に、目的核種を生成するために用いた標的核種とテープ移送周期等を示す。

実験中は、質量分離されるビーム強度をモニターし、収率があるレベル以下に低下した時点で標的箔を交換した。交換の周期は20時間程度であった。

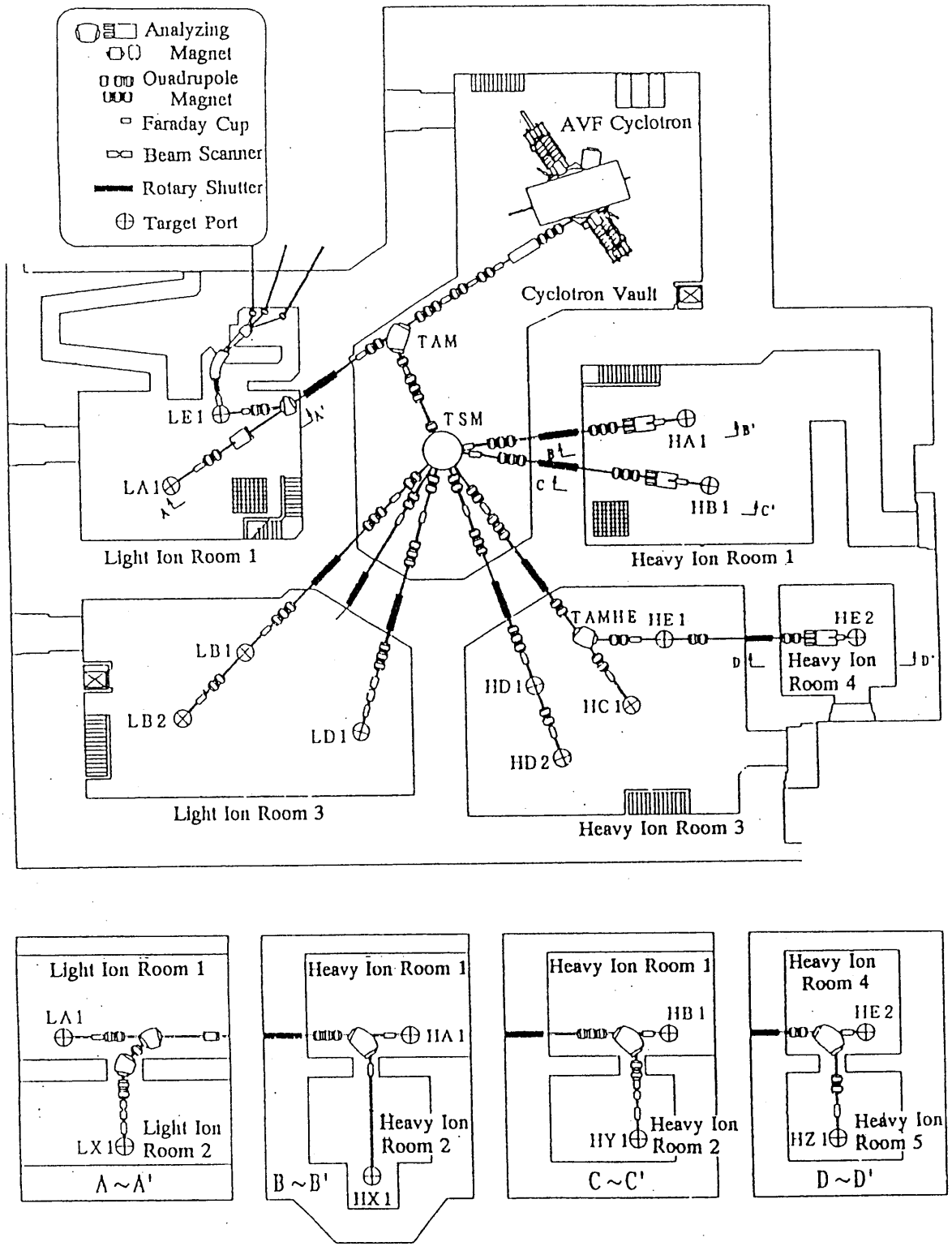

Fig. 3.1: Beam transport system of the JAERI AVF cyclotron.

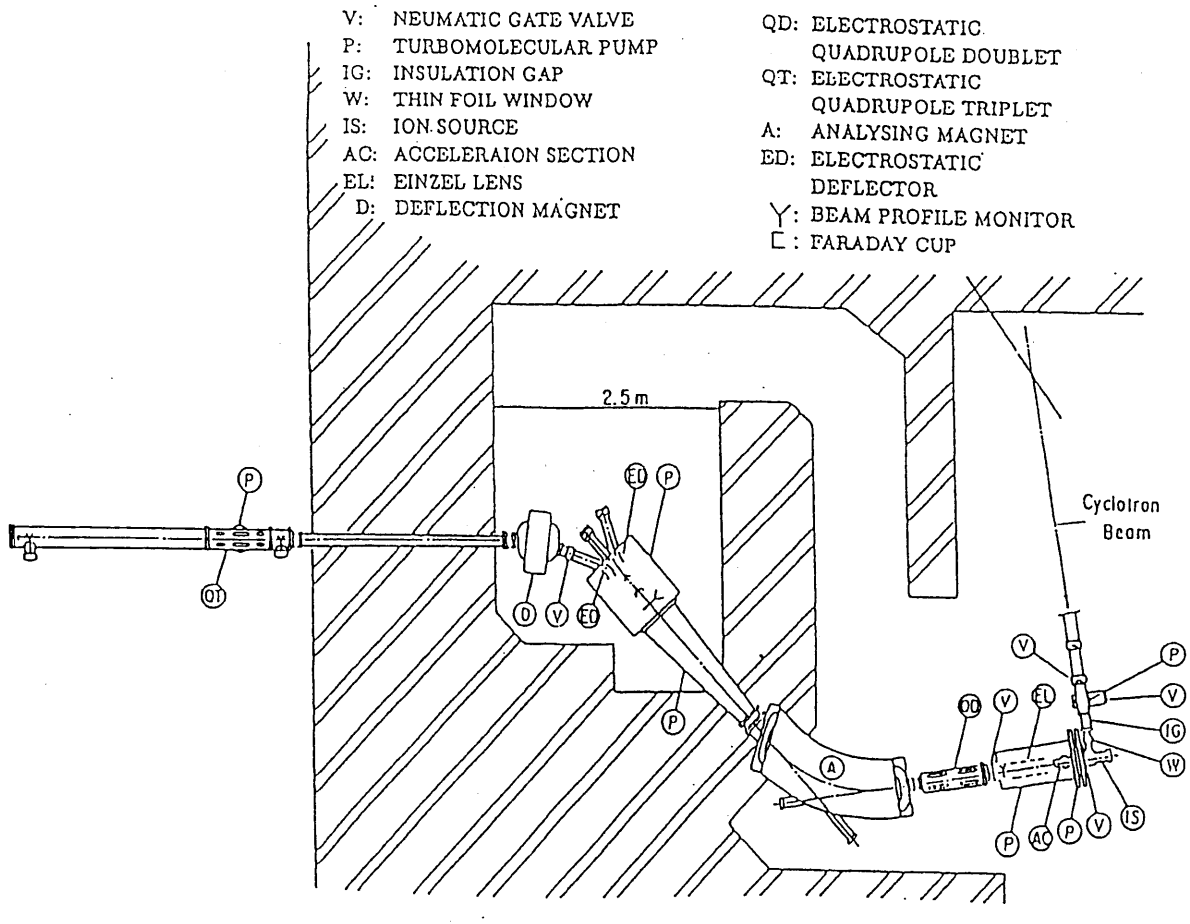

Fig. 3.2: A schematic view of the TIARA-ISOL.

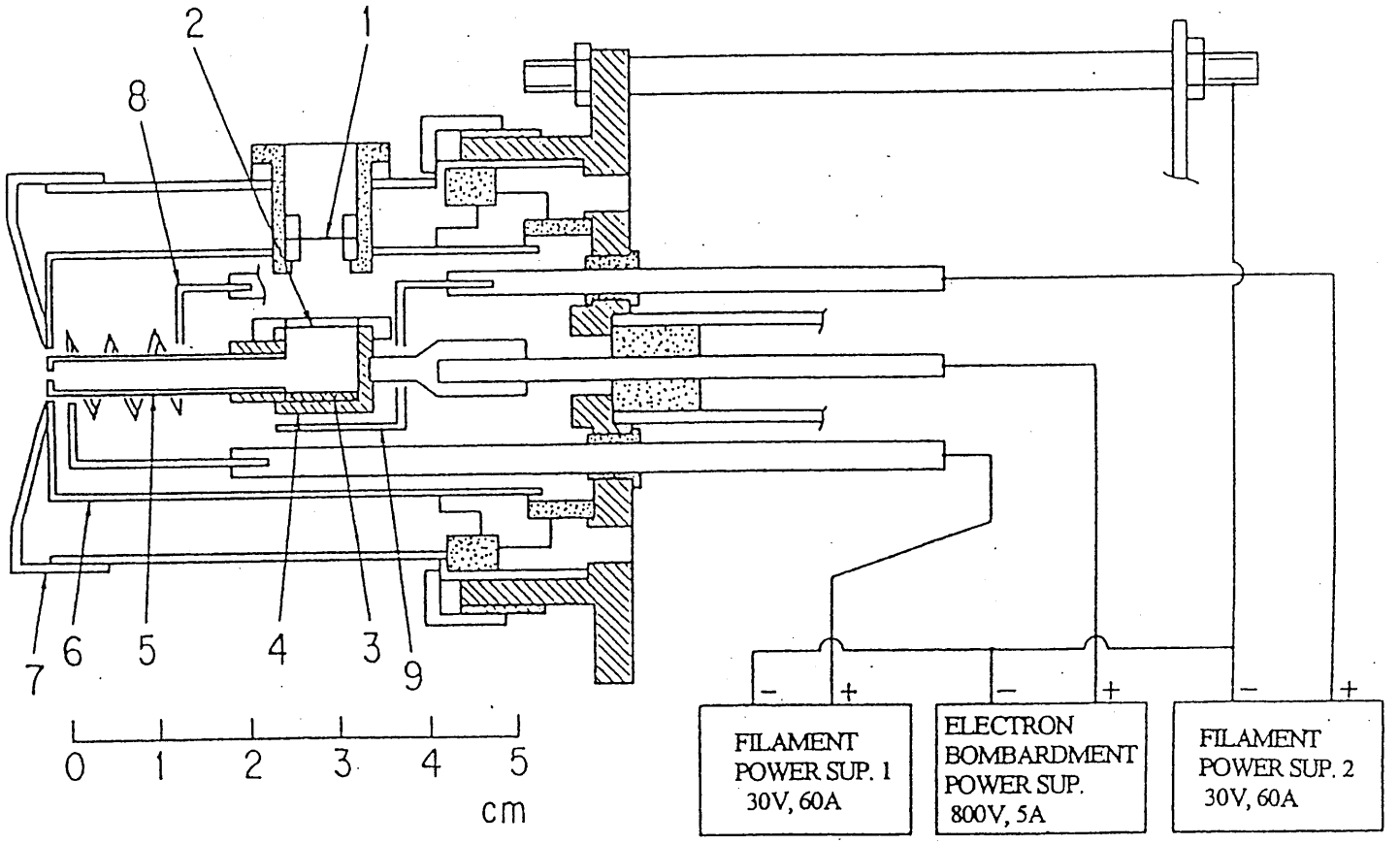

Fig. 3.3: A schematic view of the thermal ion source. (1) target, (2) thin window foil, (3) catcher foil, (4) vaporizer, (5) ionizer, (6) internal heat shield, (7) outer heat shield, (8) and (9) filament.

Table 3.1: Experimental conditions of production of $^{124-130}$La isotopes at the TIARA-ISOL. A measuring period of each nuclide is also presented.

Produced nuclide	Half-life	Projectile ($^{36}Ar^{8+}$) Energy (MeV/u)	Projectile ($^{36}Ar^{8+}$) Current (pnA)	Target Nuclide	Target Thickness (mg/cm^2)	Transport cycle (s)	Measuring period (h)
^{124}La	29 s	5.4	230	^{92}Mo	3.0	52	43
^{125}La	1.3 m	5.4	160	^{92}Mo	3.0	120	74
^{126}La	54 s	5.4	200	^{94}Mo	3.1	100	57
^{127}La	5.1 m	5.4	230	^{nat}Mo	3.0	300	58
^{128}La	5.0 m	5.4	190	^{nat}Mo	3.0	324	61
^{129}La	11.6 m	5.4	210	^{nat}Mo	3.0	722	37
^{130}La	8.7 m	5.4	220	^{nat}Mo	3.0	—	58

3.3 軌道電子捕獲崩壊エネルギーQ_{EC}の測定

β^+線の測定はインビーム位置（第3.2節参照。）で行った。

β^+線測定には、結晶の直径が25 mm$^\phi$、厚さが13 mm^{t}のHPGe検出器を用いた。パイルアップの影響をできる限り減らすために、主増幅器の波形整形時間を最短の0.5 μsに設定した[3]。同様の理由で、β^+線の計数率が最大でも3000 cpsを超えないようするために、ビーム強度及び検出器と線源との距離を調整した。その距離は、測定核種によって異なり、15 ~ 45 mmである。オンライン実験中は計数率計(ORTEC 449 Ratemeter)を用いて、計数率をモニターした。

検出器のエネルギー較正はオンライン実験の前後に、標準γ線源の^{56}Coを用いて3.5 MeVまで、塩素の熱中性子捕獲反応 ^{35}Cl(n, γ)^{36}Cl に伴う即発γ線を用いて8.6 MeVまで行った[58]。またオンライン実験中も標的箔の交換の際に、これらの線源を用いてエネルギー較正曲線の変動を調べた。変動が見られた場合には、解析時にそれを考慮に入れるとともに、β^+線最大エネルギーの誤差にも含めた。ただし、その変動は高々3 keV程度であり、本研究で目指す精度(50 ~ 100 keV程度)に対しては問題にならない。

本研究の検出器配置でのβ^+線のエネルギー損失量は文献[62]を用いて評価した。その値はβ^+線のエネルギーに依存するが、1 MeV以上のβ^+線に対してほぼ一定であり、およそ120 keVである。その内訳は、線源捕集用テープで25 keV、テープ式移送装置のマイラー窓で13 keV、空気で2 keV、検出器のベリリウム窓で80 keVである。エネルギー損失量の見積もりから入ってくる誤差は10 keV程度である。

β^+線のシングルス(singles)測定と同時に、娘核のある特定の励起準位に遷移するβ^+線スペクトルを得るために、$\beta-\gamma$同時計数測定も行った。γ線測定器には、n型同軸円筒型HPGe検出器(ORTEC社 GAMMA-X)を用いた。この検出器の相対効率[4]は28%で

[3]一般に整形時間を短くすると、パイルアップの影響は減らせるもののエネルギー分解能が悪くなる。しかし整形時間0.5 μsのときでも、γ線の分解能は10 keV以下、検出器窓の影響を受ける電子・陽電子でも20 keV程度であり、本研究では問題にならない。なお、低エネルギーγ線測定器としてのHPGe検出器の波形整形時間は、通常2 μsに設定していて、分解能は122 keVのγ線に対して0.6 keV程度である。

[4]1332 keVのγ線を76 mm$^\phi$× 76 mm^t のNaI(Tl)シンチレーション検出器で測定したときの検出効率に対する相対効率。

あり、エネルギー分解能は1332 keVのγ線に対して1.7 keVである。β^+線によるバックグラウンドの増加を防ぐために、γ線検出器前に厚さ5 mmのアクリル吸収板を置いた。同時計数測定は一般的に用いられる回路系を使用した。同時事象のTAC(Time to Amplitude Converter: 時間波高変換器）での時間幅は約400 nsであった。データはLaboratory Equipment Corporation社の多次元データ収集システムMPC-1600を用いてリスト(List)形式で128 MBの光磁気ディスクに保存した。ここでβ^+線検出器とγ線検出器からの信号が5 μs以内にADC (Anolog-to-Degital Converter) に入力されたときに、それらは同時計数していると見なした。1つの核種について収集した同時計数事象は4.0×10^7から1.1×10^8個である。

3.4 崩壊図式作成のための測定

既に述べたようにβ^+線最大エネルギーからQ_{EC}を決定するためには、崩壊図式が必要である。これまで詳しい崩壊図式が報告されていない核種について、$\gamma-\gamma$角度相関を目的とする検出器配置でγ線のシングルス測定と$\gamma-\gamma$同時計数測定をオフビーム位置（第3.2節参照。）で行った。この測定系は5台のHPGe検出器から構成されており[46,72]、崩壊図式を作る際には、このうち、2台のHPGe検出器間の同時計数データを引き出して解析した。各HPGe検出器の相対効率は28 ~ 33%であり、エネルギー分解能は1332 keVのγ線に対して1.8 keV程度である。線源と検出器表面との距離は60 mmであり、検出器表面にはβ^+線を吸収させるために厚さ5 mmのアクリル板を置いた。検出器はバックグラウンドを減らすために、鉛ブロック及び銅板を用いて遮蔽した。

検出器のエネルギー較正は標準γ線源である^{152}Euと^{56}Coを用いて3.5 MeVまで行った。$\gamma-\gamma$同時計数測定では、特性X線が測定できるようにConstant Fraction Discriminator (CFD) の調整を行った。25 keV程度以上のエネルギー領域でのCFD効率はほぼ100%であったので、軽希土類元素の特性KX線（エネルギーは30 ~ 40 keV）は十分測定できる。$\gamma-\gamma$同時計数事象のTACでの時間幅は約600 nsであった。

同時計数測定はLaboratory Equipment Corporation社製の多次元データ収集システムLN-9000を用いて制御した。TACを含む3台以上のADCに3.2 μs以内にデータが入ったときに、それらの事象を同時計数事象とみなし、リスト形式で一旦ワークステーションのハードディスクに記録し、その後8 mmテープに転送した。

1つの核種について収集した同時計数事象は4×10^8個程度であり、このうち崩壊図式の作成に使用した2台の検出器間の同時計数事象は、およそ6×10^6個であった。

^{130}La以外の核種を測定する際には半減期を決定するために、γ線のSMS (Spectrum Multi Scaling) 測定も同時に行った。この測定は1測定周期（線源捕集用テープを移送させる周期で、半減期の2倍程度）を16分割し、それぞれの時間内にシングルススペクトルを取得するものである。SMS測定はLaboratory Equipment Corporation社の測定システムSMS-48を用いて制御した。

第4章　測定結果

4.1　^{124}La

4.1.1　崩壊図式

^{124}La の崩壊は、Idrissi *et al.* によって研究された [73]。彼らは、^{124}La の崩壊に伴うγ線及び内部転換電子の測定を行い、高スピン、低スピン核異性体の存在を明らかにし、崩壊図式を作成した。これに対し、Asai *et al.* は、$\gamma-\gamma$同時計数測定の結果から、その崩壊図式の一部に誤りがあることを明らかにした [46]。本研究では、Asai *et al.* の作成した崩壊図式を基に各γ線の相対強度及び各エネルギー準位へのβ^+/EC 遷移強度を新たに決定した。検出器のγ線検出効率は、線源強度の分かっている ^{133}Ba, ^{152}Eu 線源と強度未知の ^{56}Co 線源を用いて決定した。その精度は、30 keV から 50 keV までが 3.0%、50 keV から 240 keV までが 2.0%、240 keV から 2500 keV までが 1.5%、2500 keV から 4000 keV までが 3.0%と見積もった。Fig. 4.1 に相対効率 33%の HPGe 検出器で測定したγ線スペクトルを、Fig. 4.2(a) ~ 4.2(c) に崩壊図式を示す。また、Table 4.1 に崩壊図式に組み込まれているγ線の相対強度を、Table 4.2 に^{124}Ba の各準位へのβ^+/EC 遷移強度を示す。

4.1.2　軌道電子捕獲崩壊エネルギー

質量数 124 + 16 で質量分離したときに、シングルス測定で得られたβ^+線スペクトルを Fig. 4.3 (a) に示す。第 4.1.1 節で述べた崩壊図式によると、^{124}La は^{124}Ba の多くの準位に複雑にβ^+/EC 崩壊する。信頼できる結果を得るためにQ_{EC}は同時計数測定で得たリストデータを解析して決定した。

^{124}La の高スピン核異性体は^{124}Ba の 2690.6 keV 及び 3094.9 keV の励起準位に 3.6%及び 8.6%の遷移強度でβ^+/EC 崩壊する。これらの準位のスピン・パリティはともに (7^-) である。$\beta-\gamma$同時計数データにおいて、各準位から遷移する 193.3 keV 及び 833.8 keV のγ線にゲート (gate) を設定し、それぞれの準位へのβ^+線スペクトルを作成した。得られたスペクトルを Fig. 4.3 (b) 及び (c) に示す。応答関数を用いて真のスペクトルに変換した後、Fig. 4.4 に示すように Fermi-Kurie プロットを作成した。Fermi-Kurie プロットの直線領域をフィッティングして、β^+線最大エネルギーを 5.20 ± 0.16 MeV 及び 4.83 ± 0.14 MeV と決定した。ここで示した誤差は、それぞれの統計誤差 0.15 MeV, 0.13 MeV と系統誤差 0.05 MeV の自乗和である。

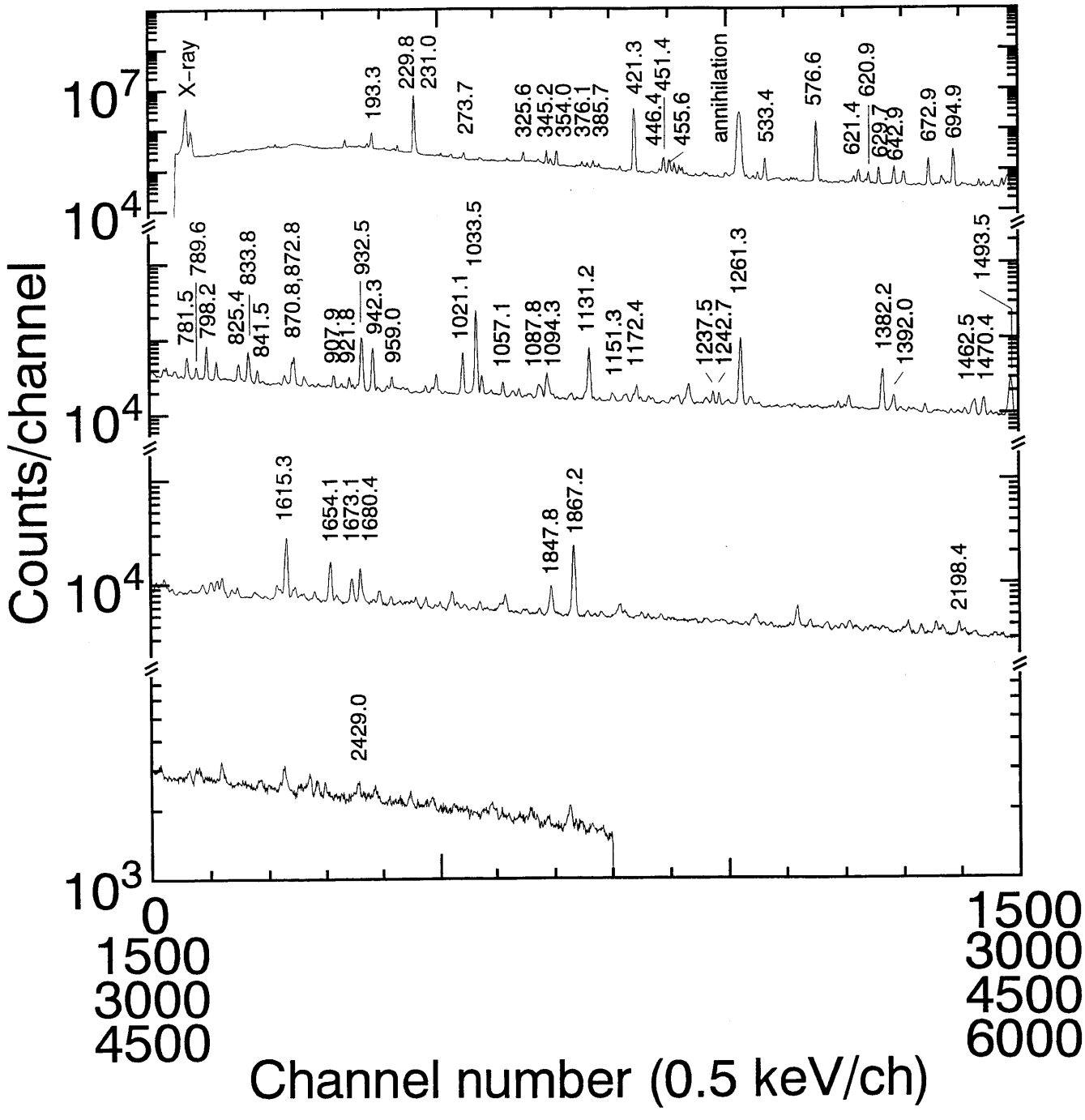

Fig. 4.1: A γ-ray spectrum observed with a 33% HPGe detector in a mass fraction of $A = 124 + 16$. Energies of strong γ-rays are presented in keV.

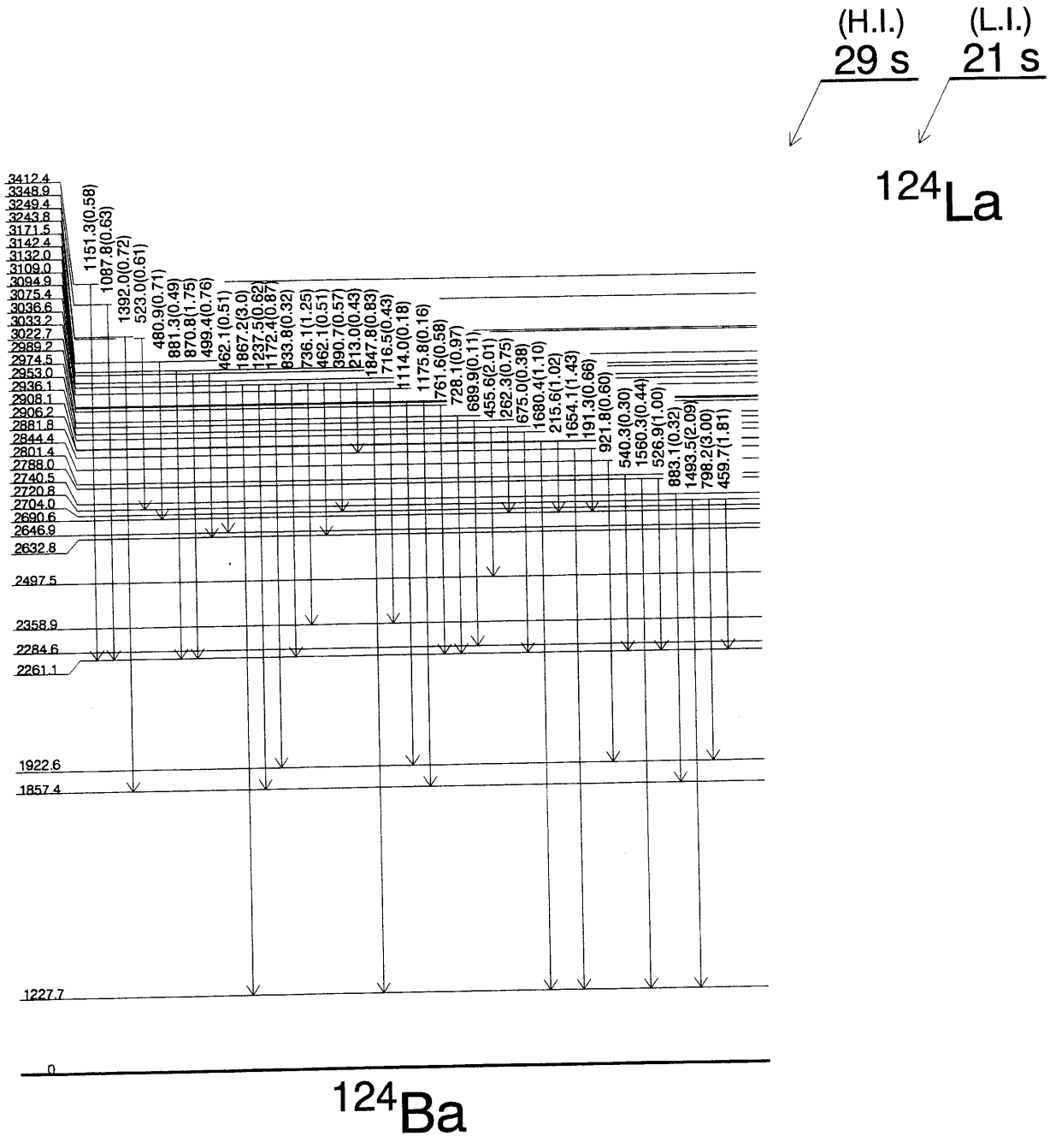

Fig. 4.2(a): A proposed decay scheme of ^{124}La, part 1 of 3. Gamma-ray energies are shown in keV and relative γ-ray intensities are given in the parenthesis. (H.I.) and (L.I.) indicate high- and low-spin isomers, respectively.

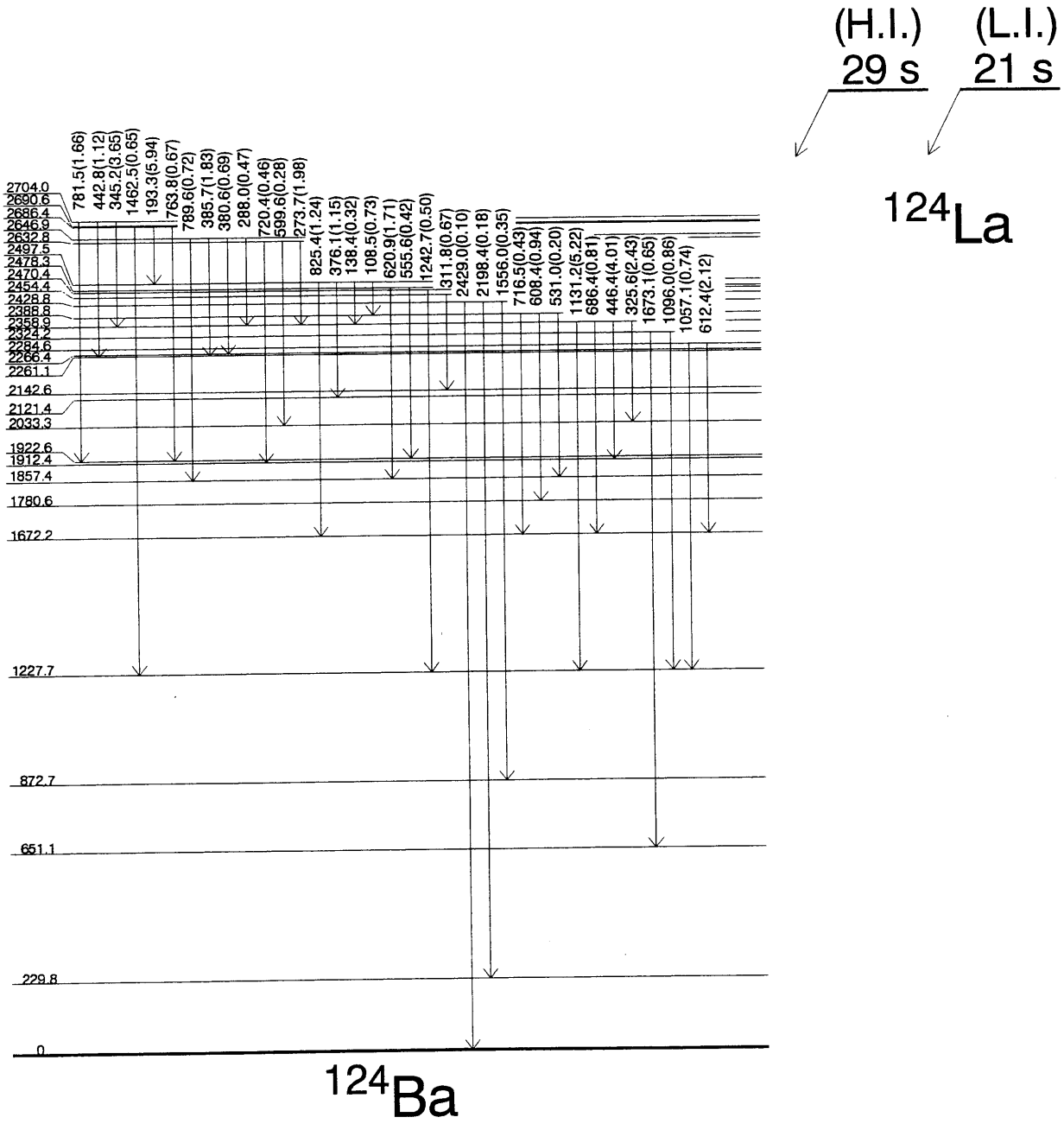

Fig. 4.2(b): A proposed decay scheme of ^{124}La, part 2 of 3.

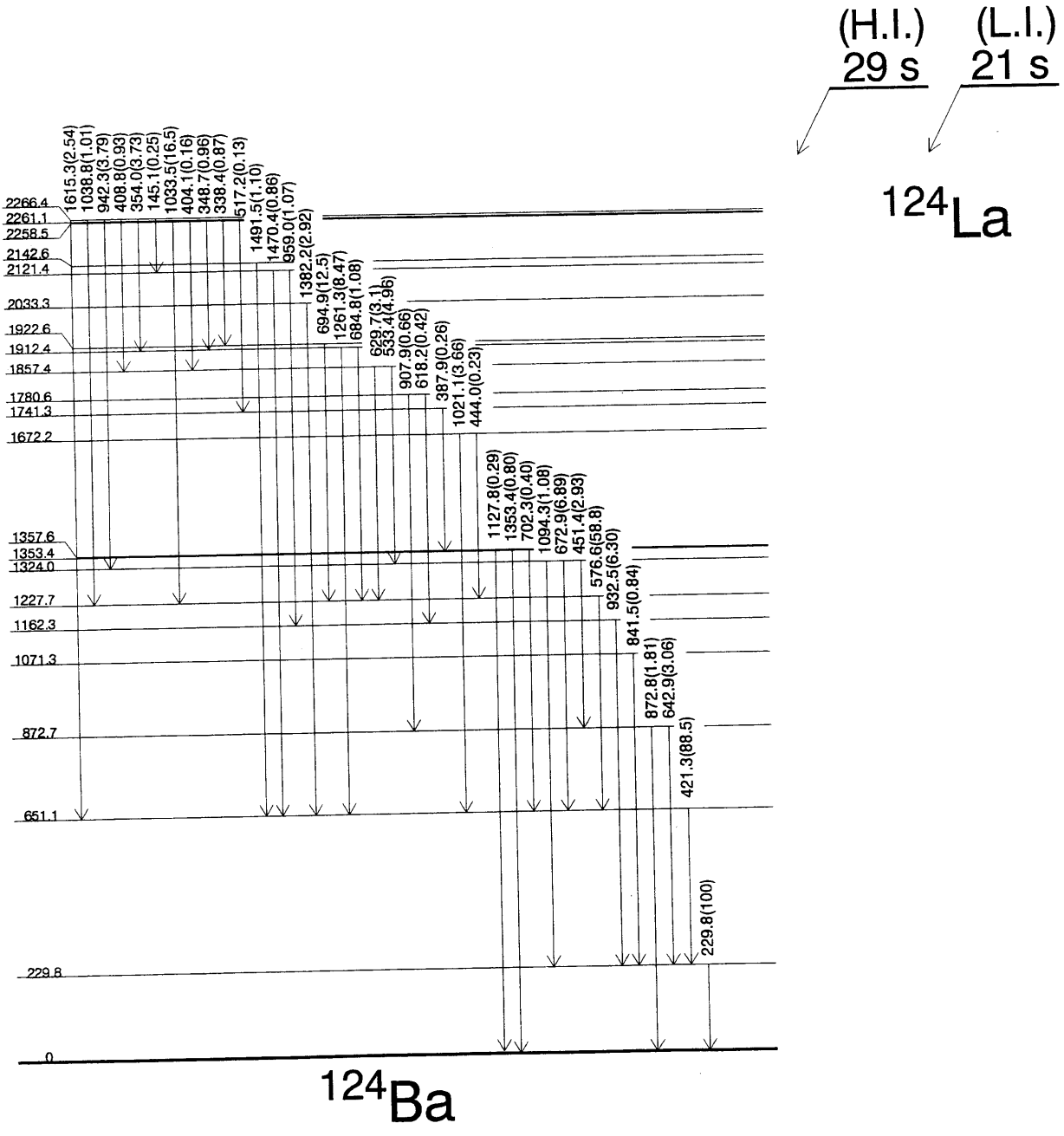

Fig. 4.2(c): A proposed decay scheme of ^{124}La, part 3 of 3.

Table 4.1: Energies, relative intensities and placements of γ-rays in the decay of ^{124}La.

Energy (keV)	Relative intensity	placement	
		from	to
108.5[a)]	0.731(22)	2497.5	2388.8
138.4[a)]	0.317(13)	2497.5	2358.9
145.1[a)]	0.253(11)	2266.4	2121.4
191.3[a)]	0.657(20)	2881.8	2690.6
193.3	5.94(16)	2690.6	2497.5
213.0[a)]	0.426(28)	3094.9	2881.8
215.6[a)]	1.019(30)	2906.2	2690.6
229.8	100.0(15)	229.8	0.0
262.3	0.751(20)	2953.0	2690.6
273.7[a)]	1.985(39)	2632.8	2358.9
288.0[a)]	0.47(5)	2646.9	2358.9
311.8[a)]	0.669(17)	2454.4	2142.6
325.6	2.43(4)	2358.9	2033.3
338.4[a)]	0.866(21)	2261.1	1922.6
345.2	3.65(7)	2704.0	2358.9
348.7	0.964(21)	2261.1	1912.4
354.0[a)]	3.73(6)	2266.4	1912.4
376.1[a)]	1.15(9)	2497.5	2121.4
380.6[a)]	0.695(20)	2646.9	2266.4
385.7	1.83(23)	2646.9	2261.1
387.9[a)]	0.256(33)	1741.3	1353.4
390.7[a)]	0.57(7)	3094.9	2704.0
404.1[a)]	0.157(12)	2261.1	1857.4
408.8[a)]	0.926(21)	2266.4	1857.4
421.3	88.5(14)	651.1	229.8
442.8	1.12(14)	2704.0	2261.1
444.0[a)]	0.225(29)	1672.2	1227.7
446.4	4.01(24)	2358.9	1912.4
451.4	2.93(4)	1324.0	872.7
455.6	2.01(4)	2953.0	2497.5
459.7[a)]	1.81(13)	2720.8	2261.1
462.1[a)]	0.511(35)	3094.9	2632.8
480.9[a)]	0.706(19)	3171.5	2690.6
499.4[a)]	0.756(20)	3132.0	2632.8
517.2[a)]	0.128(11)	2258.5	1741.3
523.0[a)]	0.609(17)	3243.8	2720.8
526.9[a)]	0.999(22)	2788.0	2261.1
531.0[a)]	0.20(4)	2388.8	1857.4
533.4	4.97(9)	1857.4	1324.0

(continued)

Energy (keV)	Relative intensity	placement	
		from	to
540.3[a)]	0.295(27)	2801.4	2261.1
555.6[a)]	0.424(12)	2478.3	1922.6
576.6	58.8(10)	1227.7	651.1
599.6[a)]	0.276(10)	2632.8	2033.3
608.4[a)]	0.936(21)	2388.8	1780.6
612.4[a)]	2.112(34)	2284.6	1672.2
618.2[a)]	0.417(13)	1780.6	1162.3
620.9	1.714(32)	2478.3	1857.4
629.7	3.08(5)	1857.4	1227.7
642.9	3.06(4)	872.7	229.8
672.9	6.89(14)	1324.0	651.1
675.0[a)]	0.38(9)	2936.1	2261.1
684.8	1.08(16)	1912.4	1227.7
686.4[a)]	0.81(15)	2358.9	1672.2
689.9[a)]	0.109(11)	2974.5	2284.6
694.9	12.53(21)	1922.6	1227.7
702.3[a)]	0.403(12)	1353.4	651.1
716.5[a)]	0.43(29)	2388.8	1672.2
716.5[a)]	0.42(28)	3075.4	2358.9
720.4[a)]	0.464(14)	2632.8	1912.4
728.1[a)]	0.967(21)	2989.2	2261.1
736.1[a)]	1.252(25)	3094.9	2358.9
761.6[a)]	0.58(4)	3022.7	2261.1
763.8[a)]	0.669(39)	2686.4	1922.6
781.5[a)]	1.664(33)	2704.0	1922.6
789.6[a)]	0.720(18)	2646.9	1857.4
798.2	3.00(6)	2720.8	1922.6
825.4[a)]	1.237(27)	2497.5	1672.2
833.8	2.94(5)	3094.9	2261.1
841.5[a)]	0.836(15)	1071.3	229.8
870.8[a)]	1.75(13)	3132.0	2261.1
872.8[a)]	1.81(11)	872.7	0.0
881.3[a)]	0.49(5)	3142.4	2261.1
883.1[a)]	0.32(6)	2740.5	1857.4
907.9[a)]	0.660(18)	1780.6	872.7
921.8[a)]	0.596(15)	2844.4	1922.6
932.5	6.30(8)	1162.3	229.8
942.3	3.79(6)	2266.4	1324.0
959.0[a)]	1.069(22)	2121.4	1162.3
1021.1	3.66(7)	1672.2	651.1
1033.5	16.49(28)	2261.1	1227.7
1038.8	1.010(21)	2266.4	1227.7
1057.1[a)]	0.736(18)	2284.6	1227.7

(*continued*)

Energy (keV)	Relative intensity	placement	
		from	to
1087.8	0.63(15)	3348.9	2261.6
1094.3	1.08(14)	1324.0	229.8
1096.0[a)]	0.86(16)	2323.7	1227.7
1114.0[a)]	0.178(11)	3036.6	1922.6
1127.8[a)]	0.29(5)	1357.6	229.8
1131.2	5.23(11)	2358.9	1227.7
1151.3[a)]	0.577(18)	3412.4	2261.1
1172.4	0.867(19)	3094.9	1922.6
1175.8[a)]	0.162(10)	3033.2	1857.4
1237.5[a)]	0.620(16)	3094.9	1857.4
1242.7[a)]	0.505(14)	2470.4	1227.7
1261.3	8.47(14)	1912.4	651.1
1353.4[a)]	0.797(14)	1353.4	0.0
1382.2	2.92(5)	2033.3	651.1
1392.0[a)]	0.715(25	3249.4	1857.4
1462.5[a)]	0.65(6)	2690.6	1227.7
1470.4[a)]	0.857(19)	2121.4	651.1
1491.5[a)]	1.10(23)	2142.6	651.1
1493.5	2.09(23)	2720.8	1227.7
1556.0[a)]	0.347(15)	2428.8	872.7
1560.3[a)]	0.436(18)	2788.0	1227.7
1615.3	2.54(8)	2266.4	651.1
1654.1[a)]	1.43(5)	2881.8	1227.7
1673.1[a)]	0.654(24)	2324.2	651.1
1680.4[a)]	1.10(5)	2908.1	1227.7
1847.8[a)]	0.834(31)	3075.4	1227.7
1867.2	2.99(10)	3094.9	1227.7
2198.4[a)]	0.179(11)	2428.8	229.8
2429.0[a)]	0.100(8)	2428.8	0.0

[a)] newly observed.

Table 4.2: Excited level energies, β^+/EC feeding intensities in the decay of ^{124}La.

Energy (keV)	$I_{\beta^+/\mathrm{EC}}$ (%)
0	—*
229.8	8.0(24)
651.1	3.1(15)
872.7	0.74(11)
1071.3[a)]	0.701(13)
1162.3	4.03(7)
1227.7	6.3(16)
1324.0	1.83(19)
1353.4[a)]	0.785(32)
1357.6[a)]	0.24(4)
1672.2	—
1741.3	0.111(29)
1780.6[a)]	0.119(26)
1857.4	2.09(12)
1912.4	0.16(16)
1922.6	3.56(19)
2033.3	0.10(6)
2121.4[a)]	0.30(8)
2142.6[a)]	0.34(19)
2258.5[a)]	0.108(9)
2261.1	3.5(4)
2266.4	9.87(10)
2284.6[a)]	2.300(53)
2323.7[a)]	0.7(7)
2324.2[a)]	0.548(25)
2358.9	3.40(36)
2388.8[a)]	—
2428.8[a)]	0.525(16)
2454.4	0.584(14)
2470.4[a)]	0.423(12)
2478.3	1.790(39)
2497.5[a)]	—
2632.8[a)]	1.32(30)

(continued)

Energy (keV)	$I_{\beta^+/\mathrm{EC}}$ (%)
2646.9	2.74(35)
2686.4[a)]	0.561(32)
2690.6[a)]	3.63(17)
2704.0	5.02(15)
2720.8	5.29(23)
2740.5[a)]	0.27(5)
2788.0[a)]	1.202(29)
2801.4[a)]	0.247(23)
2844.4[a)]	0.499(12)
2881.8[a)]	1.45(5)
2906.2[a)]	0.979(29)
2908.1[a)]	0.923(38)
2936.1[a)]	0.32(7)
2953.0[a)]	2.38(4)
2974.5[a)]	0.091(9)
2989.2[a)]	0.810(18)
3022.7[a)]	0.482(34)
3033.2[a)]	0.135(9)
3036.6[a)]	0.149(9)
3075.4[a)]	1.05(24)
3094.9	8.59(32)
3109.0[a)]	0.43(29)
3132.0[a)]	2.10(11)
3142.4[a)]	0.41(5)
3171.5[a)]	0.597(16)
3243.8[a)]	0.510(14)
3249.4[a)]	0.599(20)
3348.9[a)]	0.53(13)
3412.4[a)]	0.483(15)

* unknown.

a) newly proposed .

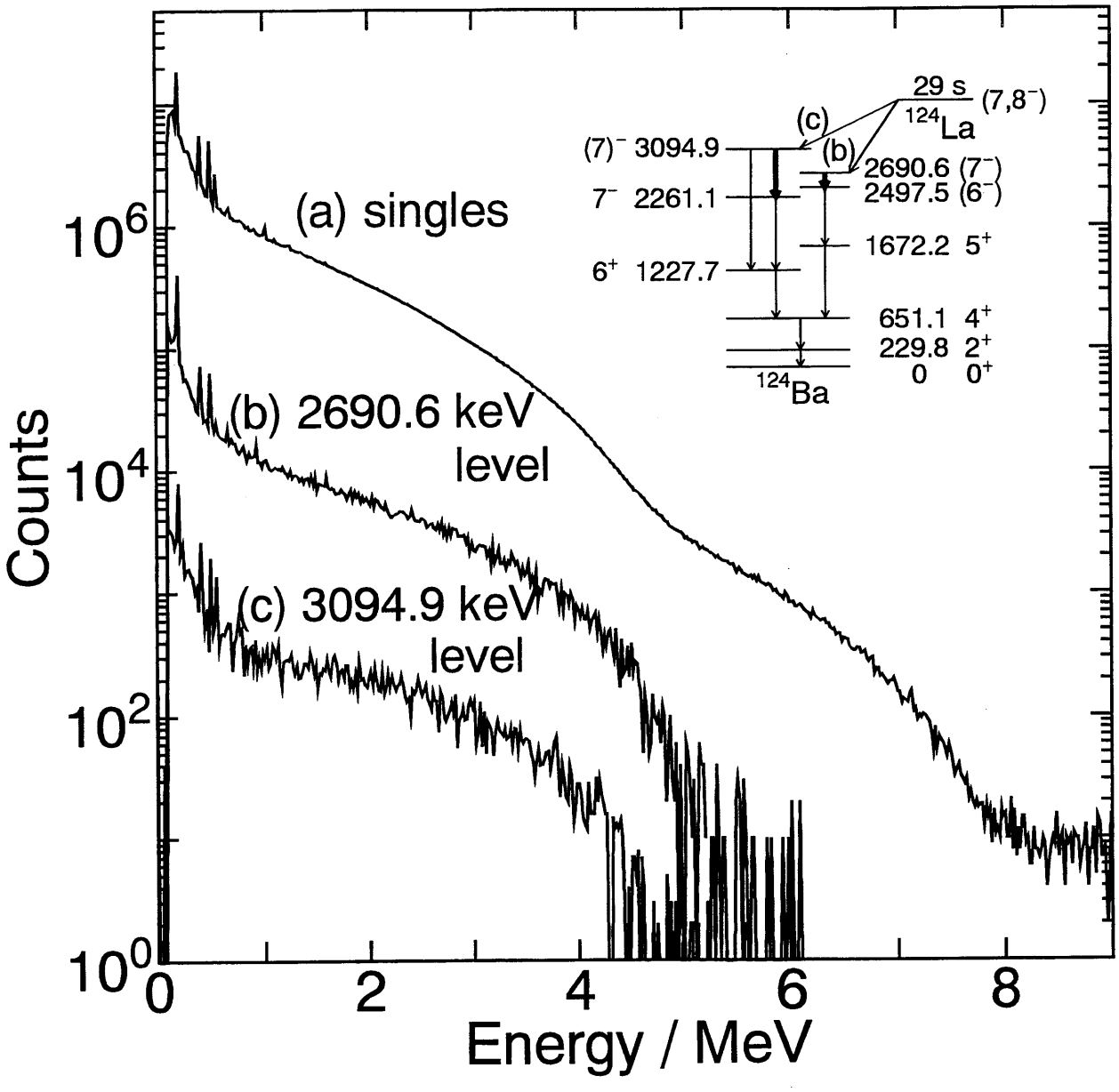

Fig. 4.3: (a) A β-ray singles spectrum observed with a 25 mm$^{\phi}$ $\times$ 13 mm^{t} HPGe detector in a mass fraction of $A = 124 + 16$. Beta-ray spectra feeding the levels of 2690.6 keV and 3094.9 keV of ^{124}Ba are also shown in (b) and (c), respectively.

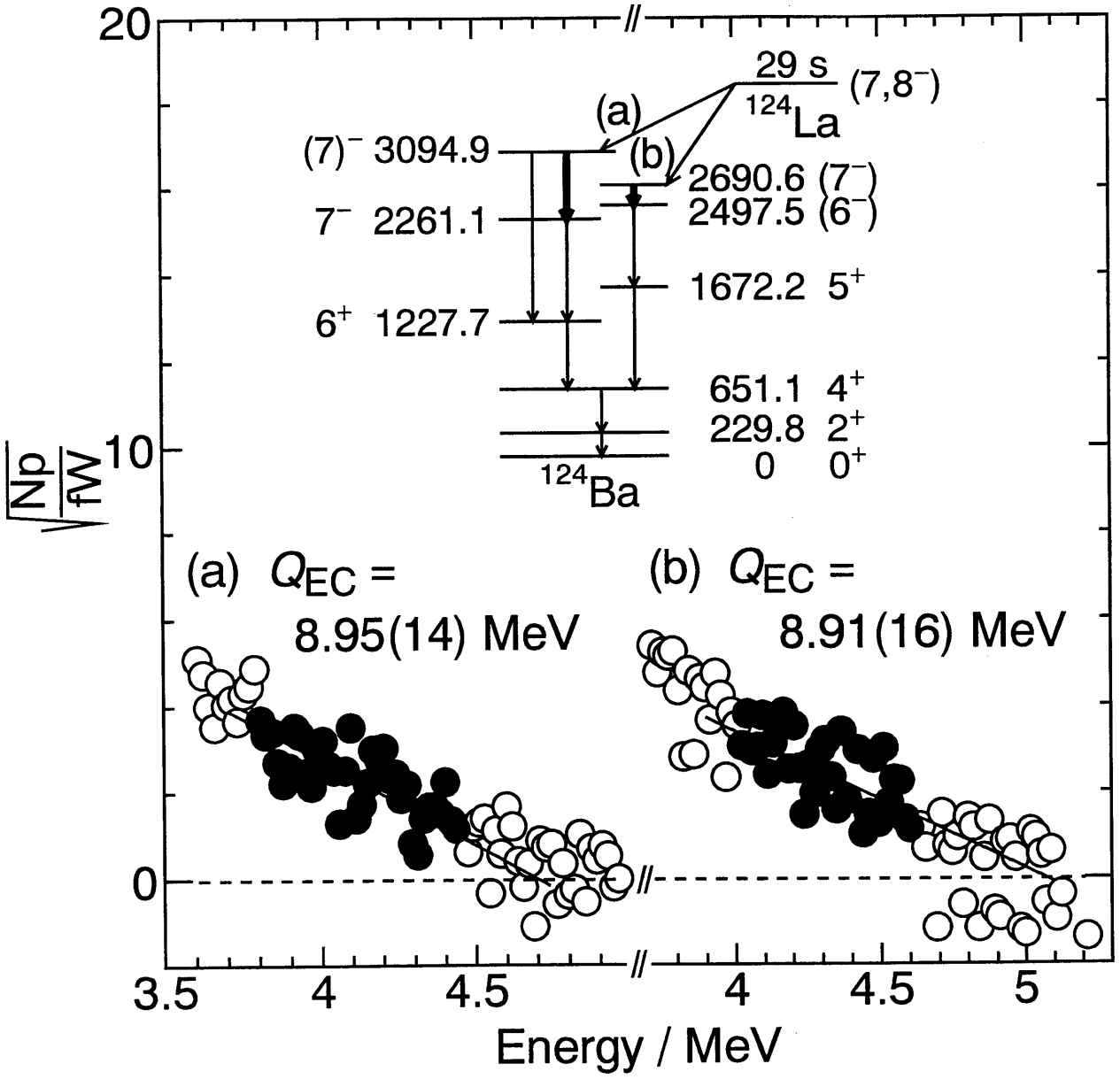

Fig. 4.4: Fermi-Kurie plots of unfolded β^+-ray spectra of ^{124}La. Fitting regions are represented by closed circles. A partial decay scheme of ^{124}La is shown in the inset. The gated γ-rays are indicated by thick lines.

フィッティング領域を変えても得られる最大エネルギーは誤差の範囲内でしか変動しないことを確認した。例としてFig. 4.5に3095 keVの準位へ遷移するβ^+線のFermi-Kurieプロットにおいて、フィッティングの終了チャンネル数を固定し、開始チャンネルを変化させたときの、エンドポイントの変動を示した。変動量は高々20 keV程度であり、統計誤差130 keVに比べ十分小さい。これまで3.8 MeVまでしか決められていなかった単色陽電子線に対する応答関数を本研究で9 MeVまで拡張したことによって初めて、4 MeV以上のβ^+線最大エネルギーを高い信頼性で決定することができた。2691 keV及び3095 keV準位へ遷移するβ^+線の最大エネルギーに各準位のエネルギー及び電子（陽電子）の静止質量エネルギーの2倍、つまり1.022 MeVを加えて、Q_{EC}をそれぞれ8.91 ± 0.16 MeV及び8.95 ± 0.14 MeVと求めた。両者は誤差の範囲内で一致している。この重み付き平均値8.93 ± 0.11 MeVを^{124}Laの高スピン核異性体のQ_{EC}とした。この値はAudi and Wapstraの評価値8.80 ± 0.30$^{\#}$ MeV [5]と誤差の範囲内で一致するが、やや大きい。

ここで、Audi and Wapstraの評価値について簡単に述べる。これは、Audiらが原子質量に関する実験値を集め、それらを比較・検討するとともに、周辺核種の質量の傾向なども考慮に入れて決定した原子質量値である。この値は現在、原子質量の推奨値として世界的に広く用いられている。この質量表には、実験値を評価して決めた質量と、それを基にして系統性から内外挿した値とが載っている。後者については、Audi and Wapstraが用いている予測手法が唯一絶対という訳ではないため、不確定さが残る。つまり、評価値には2種類あり、系統性から予測された値の信頼性は、実験値に基づいて評価された値よりも若干劣ると言える。本論文では、系統性から予測された評価値には、その右肩に#を付して表すことにする。今回得たQ_{EC}は、^{124}Laの原子質量に関する初めての実験値であり、これを取り込むことで評価値の精度の向上が見込まれる。

統計量が少なかったため、低スピン核異性体のQ_{EC}は決定できなかった。

4.2 ^{125}La

^{125}Laの崩壊図式はIimura *et al.*によって報告されている [74, 75]。彼らによると、^{125}Laは^{125}Baの1284.1 keV及び1311.0 keVの励起準位に強くβ^+/EC遷移する。

$\beta-\gamma$同時計数測定のデータからそれぞれの準位へのβ^+線スペクトルを作成した。これは1240.6 keV及び985.2 keVのγ線にゲートを設定して得た。Fermi-Kurieプロットを Fig. 4.6に示す。直線フィッティングして得られたβ^+線最大エネルギーは、それぞれの準位に対して3.65 ± 0.09 MeV及び3.61 ± 0.10 MeVである。これから求まったQ_{EC}は、5.96 ± 0.09 MeV, 5.94 ± 0.10 MeVであり、両者は誤差の範囲内で一致する。この重み付き平均から^{125}LaのQ_{EC}を5.95 ± 0.07 MeVと初めて決定した。この値はAudi and Wapstraによる評価値5.64 ± 0.39$^{\#}$ MeV [5]と誤差の範囲で一致するものの、やや大きい。

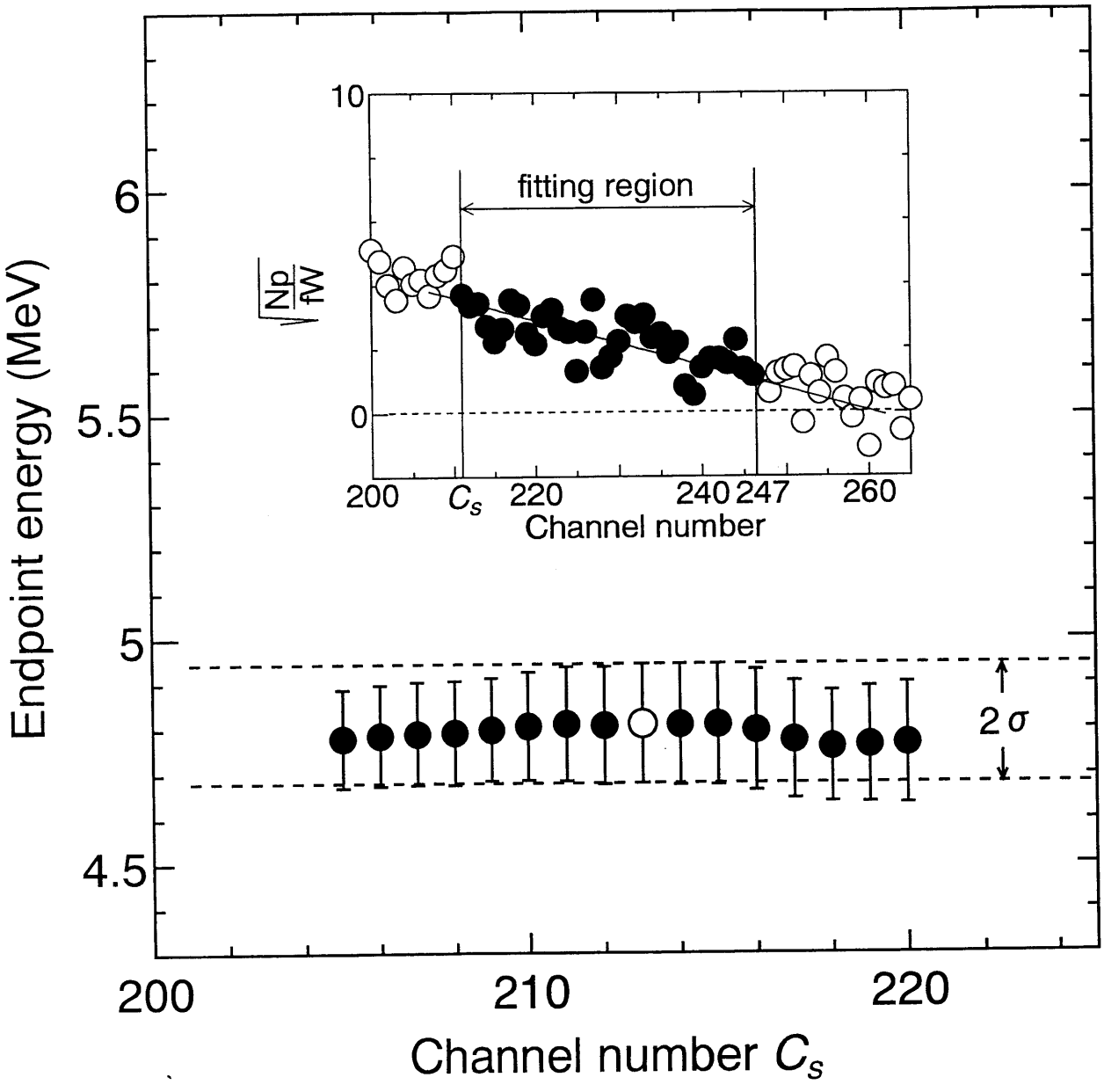

Fig. 4.5: A deduced endpoint energy as a function of a fitting region. An endpoint is derived from the fit to the Fermi-Kurie plot of the unfolded β^+-ray spectrum of ^{124}La feeding the 3095 keV level of ^{124}Ba. The fitting region is C_s - 249 channel, where the start channel C_s varies from 205 to 220. An open circle represents the endpoint energy adopted in the present study. The Fermi-Kurie plot is shown in the inset.

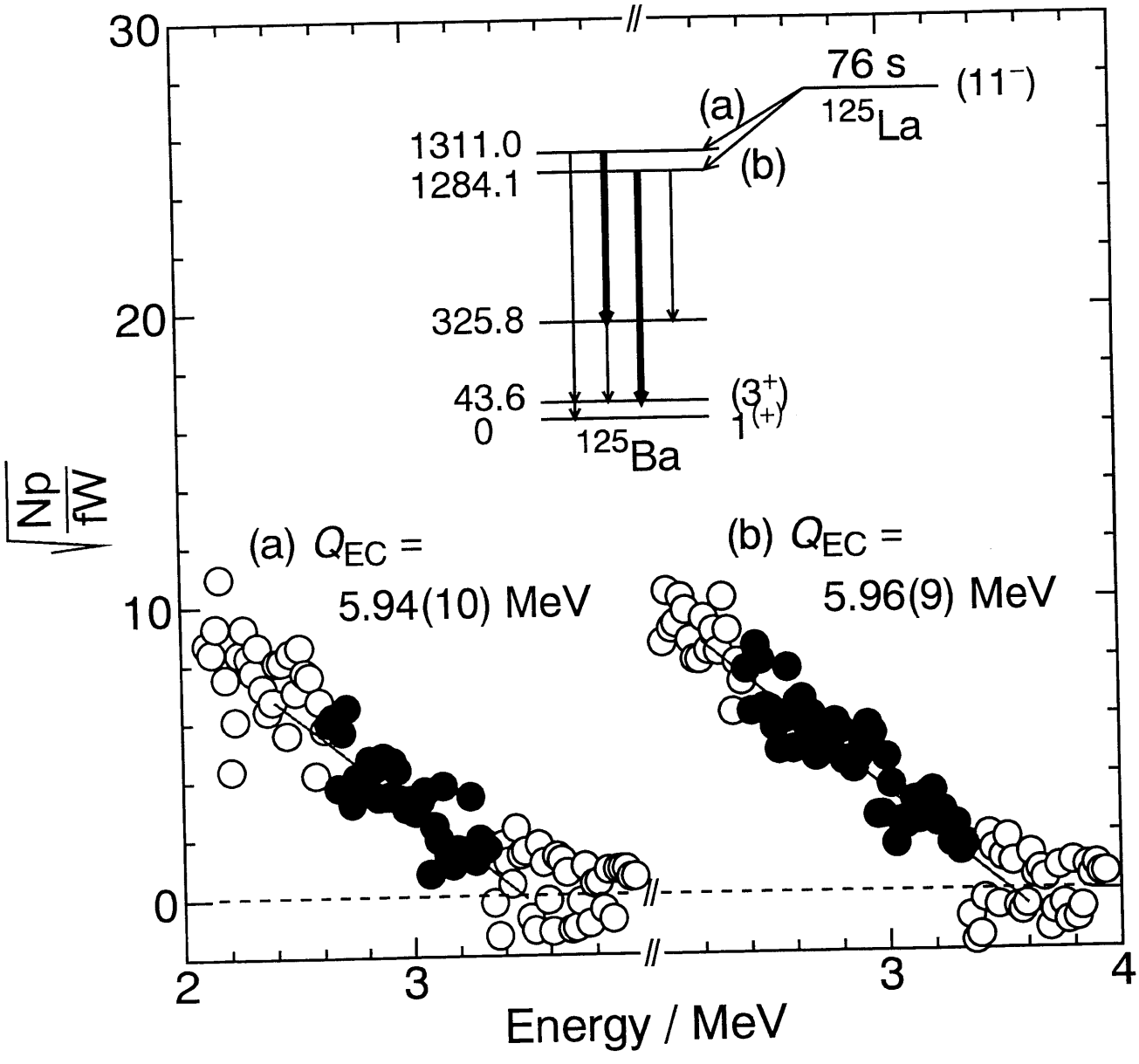

Fig. 4.6: Fermi-Kurie plots of unfolded β^+-ray spectra of ^{125}La. Fitting regions are represented by closed circles. A partial decay scheme of ^{125}La is shown in the inset. The gated γ-rays are indicated by thick lines. The spins are multiplied by 2.

4.3 ^{126}La

4.3.1 崩壊図式

^{126}La の崩壊はこれまで Genevey *et al.* [76] や Siems *et al.* [77] によって研究されている。Genevey *et al.* は広い範囲のスピンを持つ^{126}Ba の励起準位に遷移するβ^+/EC 成分があることから、^{126}La には低スピンと高スピンの核異性体があることを指摘した。しかし、崩壊図式は簡単なものしか報告されておらず、β^+線最大エネルギーの決定を行うには全く不十分である。そこでβ^+線スペクトルの解析に先立って崩壊図式の作成を行った。

β^+/EC 崩壊の半減期

測定して得られた^{126}La のγ線スペクトルを Fig. 4.7 に示す。

SMS 測定の結果から^{126}La の半減期を決定した。崩壊曲線の指数関数によるフィッティングは最小自乗法プログラム SALS [78] を用いて行った。崩壊曲線の例を Fig. 4.8 に示す。

解析の結果、ほとんどのγ線は約 66 秒の半減期を示したが、一部は約 54 s の半減期で減衰した。これは Genevey *et al.* によって指摘されていた核異性体の存在を裏付けるものである。

621.4keV, 909.7keV 及び 1227.8 keV のγ線の半減期の重み付き平均から

$$T_{1/2} = 65.9 \pm 0.4 \text{ s}$$

を、また 0^+準位から遷移する 727.4 keV 及び 1773.8 keV のγ線の半減期を重み付きで平均し、

$$T_{1/2} = 54.6 \pm 0.5 \text{ s}$$

を得た。前者は^{126}La の高スピン、後者は低スピン核異性体の崩壊による半減期である。

ところで今回^{126}La の生成に用いた反応系 ^{94}Mo(^{36}Ar, $3pn$)^{126}La では、同時に^{126}La の親核である^{126}Ce も生成する。従って上記の^{126}La の半減期は、^{126}Ce の流れ込みの寄与が含まれているために真の値に比べ長くなっていると考えられる。^{126}La の半減期に関して、他の研究グループの結果も含めて Table 4.3 にまとめた。Ichikawa *et al.* は、^{126}Ce の生成がほとんどない反応系^{nat}Mo(^{32}S, pxn) を利用して、高スピン核異性体の半減期を 54 ± 2 s と決定し [64]、また Genevey *et al.* は、^{126}Ce も同時に生成される ^{nat}Mo(^{35}Cl, $2pxn$) 反応を用いて、半減期を 64 ± 3 s と報告した。さらに今回の実験とは別に、TIARA-ISOL で^{nat}Zr(^{36}Ar, pxn) 反応を用いて行った実験では高スピン及び低スピン核異性体の半減期はそれぞれ約 56 s 及び 54 s であった。この反応系では^{126}Ce は、^{94}Mo(^{36}Ar, $3pxn$) 反応系に比べ 1/3 程度しか生成されなかった。このため親核からの流れ込みが少なく、高スピン核異性体の半減期が 54 s と 64 s の間の値 56 s を示したと理解できる。以上の事実から、^{126}La の高スピン核異性体の半減期は 54 s であると結論した。

一方、今回観測された低スピン核異性体の半減期は 54 s である。これは^{126}Ce の半減期 50.96 ± 0.34 s に非常に近い。^{126}Ce のスピン・パリティは 0^+ であるため、^{126}La の

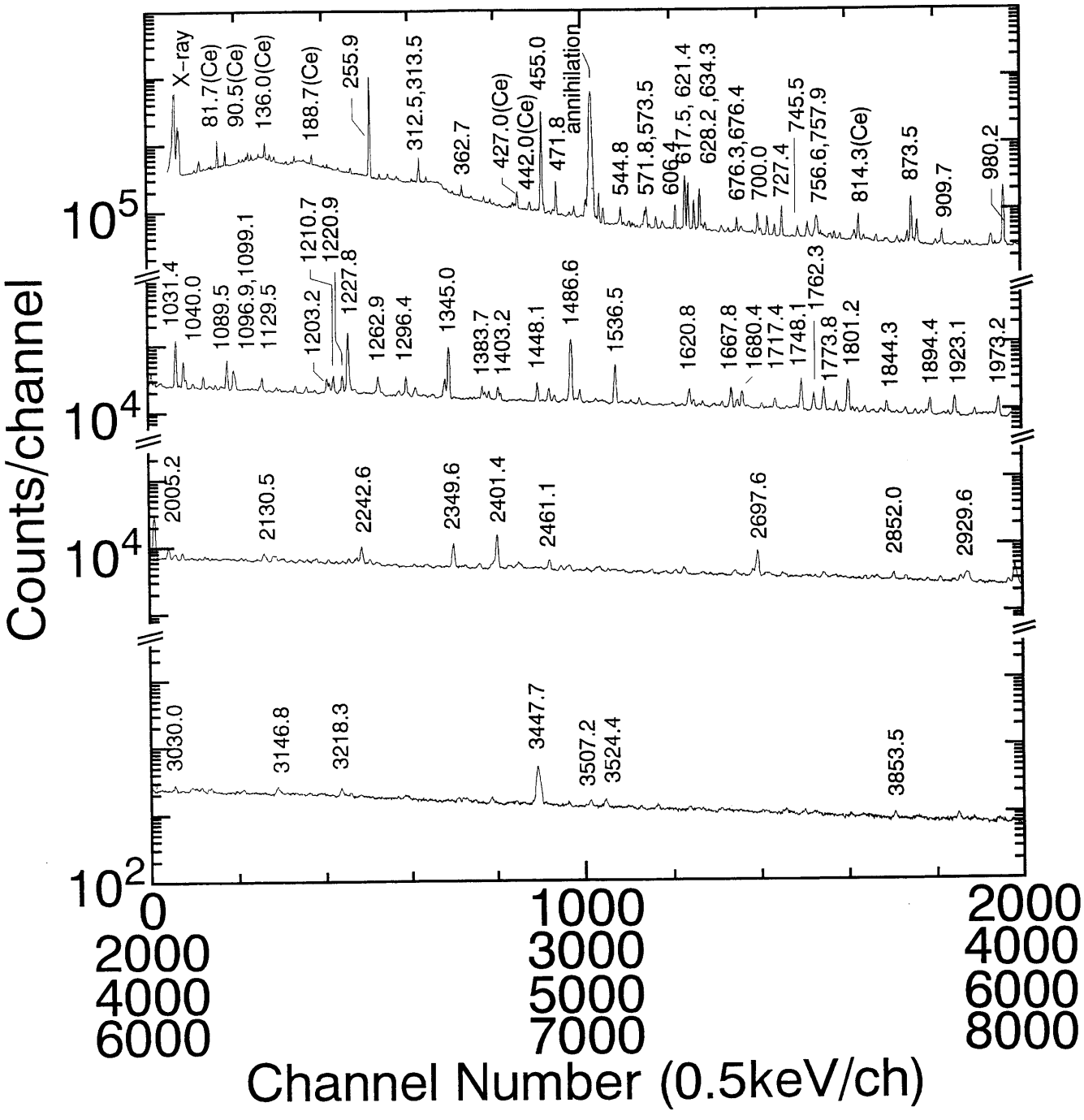

Fig. 4.7: A γ-ray spectrum observed with a 33% HPGe detector in a mass fraction of $A = 126 + 16$. Energies of strong γ-rays of ^{126}La are shown in keV.

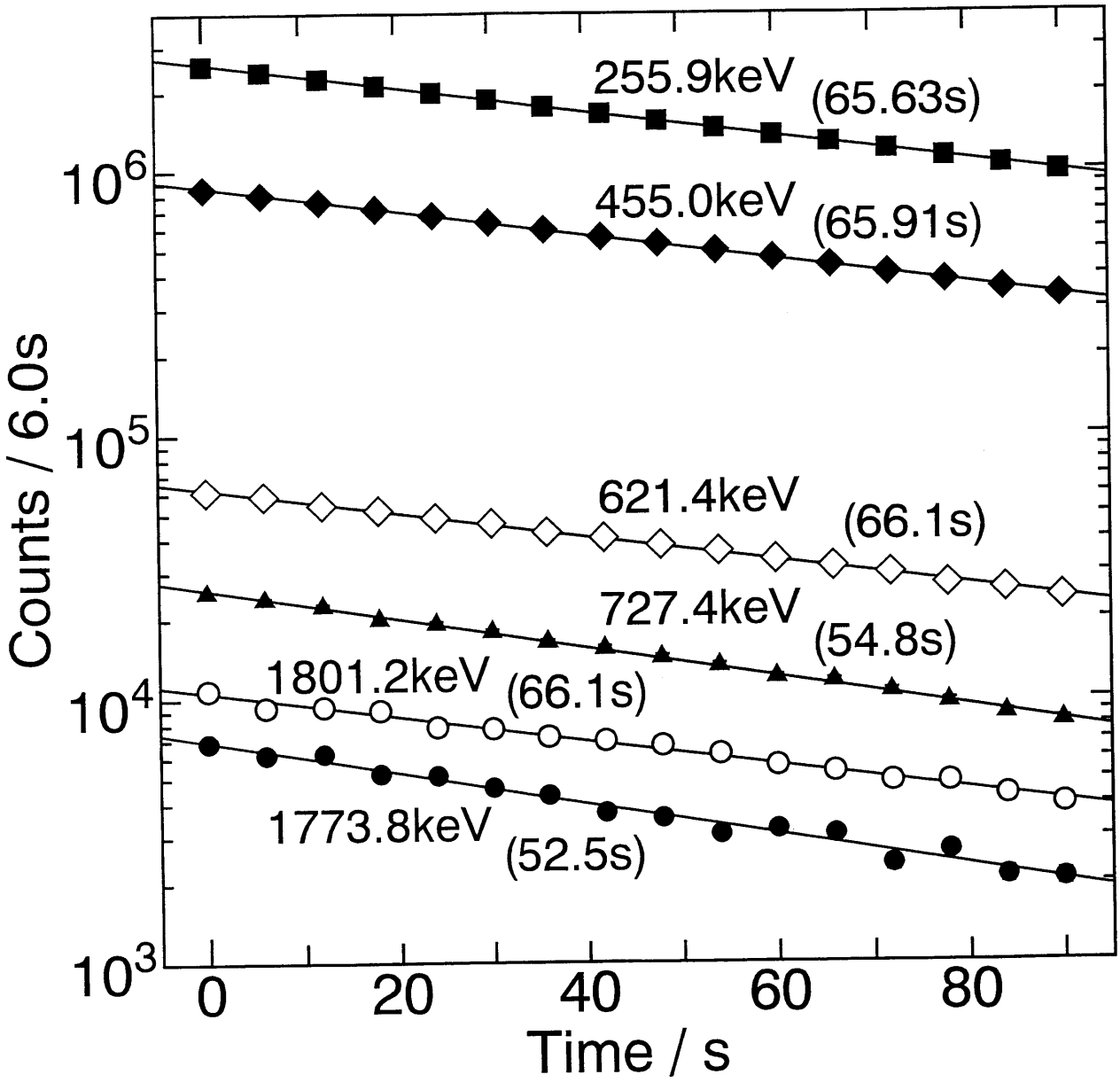

Fig. 4.8: Decay curves of strong γ-rays observed in the β^+/EC decay of ^{126}La. The half-life of each γ-ray is shown in the parenthesis.

Table 4.3: Half-lives of high- and low-spin isomers of ^{126}La produced by different reaction systems.

Reaction	Amount of ^{126}Ce	Half-life		Reference
		High-spin	Low-spin	
^{94}Mo(^{36}Ar, $3pn$)	Large	66 s	55 s	Present work
^{nat}Zr(^{36}Ar, pxn)	Small[a)]	56 s	54 s	Present work
^{nat}Mo(^{32}S, pxn)	Negligible	54 s	—	Ichikawa [64]
^{nat}Mo(^{35}Cl, $2pxn$)	Large	64 s	—	Genevey [76]

[a)] About 1/3 intensity of ^{126}Ce produced in the ^{94}Mo(^{36}Ar, $3pn$) reaction.

低スピン核異性体の多くは^{126}Ceからの流れ込みから生成する。このため、観測された半減期54 sは、^{126}Ceの半減期にほぼ近い値になっていると理解できる。低スピン核異性体の真の半減期は、54 sに比べかなり短い値であると推測できるが、今回の実験で決定することはできなかった。

γ線のエネルギーと相対強度

今回の実験では、^{126}Laに加えて^{126}Ceの崩壊に伴うγ線も観測された。測定されたスペクトルに現れているγ線が^{126}Laと^{126}Ceのいずれの崩壊に伴うものであるかの判別は、主に各γ線と特性KX線との同時計数関係の有無に基づいて行った。

また、全てのγ線の半減期も調べた。^{126}Laの半減期（66 s, 55 s）は^{126}Ceの半減期（51 s）に近い値であるため、これだけで核種を区別することは難しいが、^{126}Laの高スピンまたは低スピン核異性体の半減期と矛盾しないことを確認した。

その結果、^{126}Laの崩壊に伴うγ線と判断できたものは、206本あった。これらのγ線のエネルギーを^{152}Eu, ^{56}Coを用いて作成したエネルギー較正曲線を基に決定した。ピークの中心チャンネルは、ピーク形状がガウス(Gauss)分布であると考えて決定した。ダブレットピーク(doublet peak)など一部のγ線については、同時計数スペクトルを用いてそのエネルギーを決定した。

次に各γ線の相対強度を決定した。検出効率は第4.1.1節で述べた値を用いた。ダブレットピークになっているγ線強度は、崩壊図式を作成した後で、同時計数スペクトルとシングルススペクトルを比較して求めた。

$\gamma-\gamma$ 同時計数関係

^{126}Laの各γ線にゲートを設定して、リストデータから同時計数スペクトルを作成した。このスペクトルを解析することでγ線の同時計数関係を調べた。

同時計数スペクトルには、真に同時計数しているγ線のほかに、偶然に同時計数したγ線が含まれている可能性がある。この区別は、同時計数スペクトルに現れているピークカウントとシングルス測定から得られるカウントの比を調べることで行うことができる。すなわち、偶然同時計数によるγ線の場合は、この比が真の同時計数事象に比べ

て1桁から2桁程度小さくなることを利用して判断した。

崩壊図式

γ線のエネルギー、同時計数関係、相対強度を基に詳細な^{126}Laの崩壊図式を作成した。作成した崩壊図式には、52本の励起準位と139本のγ線が含まれる。このうち、35本の励起準位と105本のγ線が今回新たに組み込んだものである。^{126}Laの崩壊に伴うものと判断したγ線のうち、強度的には97.0%を崩壊図式に組み込むことができた。Fig. 4.9(a) ~ 4.9(d) に作成した崩壊図式を、Table 4.4に^{126}Laの崩壊に伴うものと同定した全てのγ線のエネルギー、相対強度及び遷移前後の励起準位のエネルギーをまとめて記した。ここで、相対強度は最も強い256 keVのγ線の強度を100としたときの値である。

ここでは^{126}Laの高スピン、低スピン核異性体の崩壊は区別せずに記したが、各γ線の半減期の解析結果から^{126}Baの多くの励起準位は、高スピン核異性体の崩壊によって生じていると考えられる。低スピン核異性体の崩壊のみから生じていると確認できたのは983.3 keV及び2029.7 keVの2つの励起準位のみで、これは角度相関測定から0^+であると同定されている [46]。いくつかの励起準位は両方の核異性体からの遷移が混ざっている。また、いくつかの準位は遷移強度が弱く、得られた半減期の統計誤差が大きかったため、どちらの核異性体からの遷移によるものなのか判断できなかった。

励起準位のエネルギーは、γ線のエネルギーを基に決定した。各準位への遷移強度は、その準位へ遷移するγ線とその準位から遷移するγ線の相対強度の収支関係から求めた。これらをまとめてTable 4.5に記す。

今回のγ線測定では、高スピン及び低スピン核異性体のうち、どちらが^{126}Laの基底状態であるかは決定できなかった。

4.3.2 軌道電子捕獲崩壊エネルギー

第4.3.1節で作成した崩壊図式を基にβ^+線スペクトルの解析を行った。

^{126}Laの高スピン核異性体は710.9 keV及び1938.7 keVの励起準位へ比較的強くβ^+/EC遷移する。この準位への遷移強度はそれぞれ6.2%及び4.0%であり、スピン・パリティは4^+, 5^-である。455.0 keV及び1227.8 keVのγ線にゲートを設定してこれらの準位へ遷移するβ^+線スペクトルを作成した。解析して得られたFermi-Kurieプロットを Fig. 4.10 に示す。これからそれぞれのβ^+線最大エネルギーを5.90 ± 0.15 MeV及び4.78 ± 0.12 MeVと決定し、Q_{EC}として7.63 ± 0.15 MeV及び7.74 ± 0.12 MeVを得た。これらの重み付き平均値7.70 ± 0.10 MeVを^{126}Laの高スピン核異性体のQ_{EC}とした。

^{126}Laの低スピン核異性体からのβ^+/EC遷移は、主に^{126}Baの0^+準位、すなわち983.3 keV及び2029.7 keVへ起こることがγ線の半減期から確認された。このうち統計量の多い2029.7 keVの励起準位へ遷移するβ^+線スペクトルの解析を行った。Fermi-Kurieプロットを Fig. 4.11 に示す。これからβ^+線最大エネルギー及びQ_{EC}をそれぞれ4.86 ± 0.40 MeV及び7.91 ± 0.40 MeVと決定した。

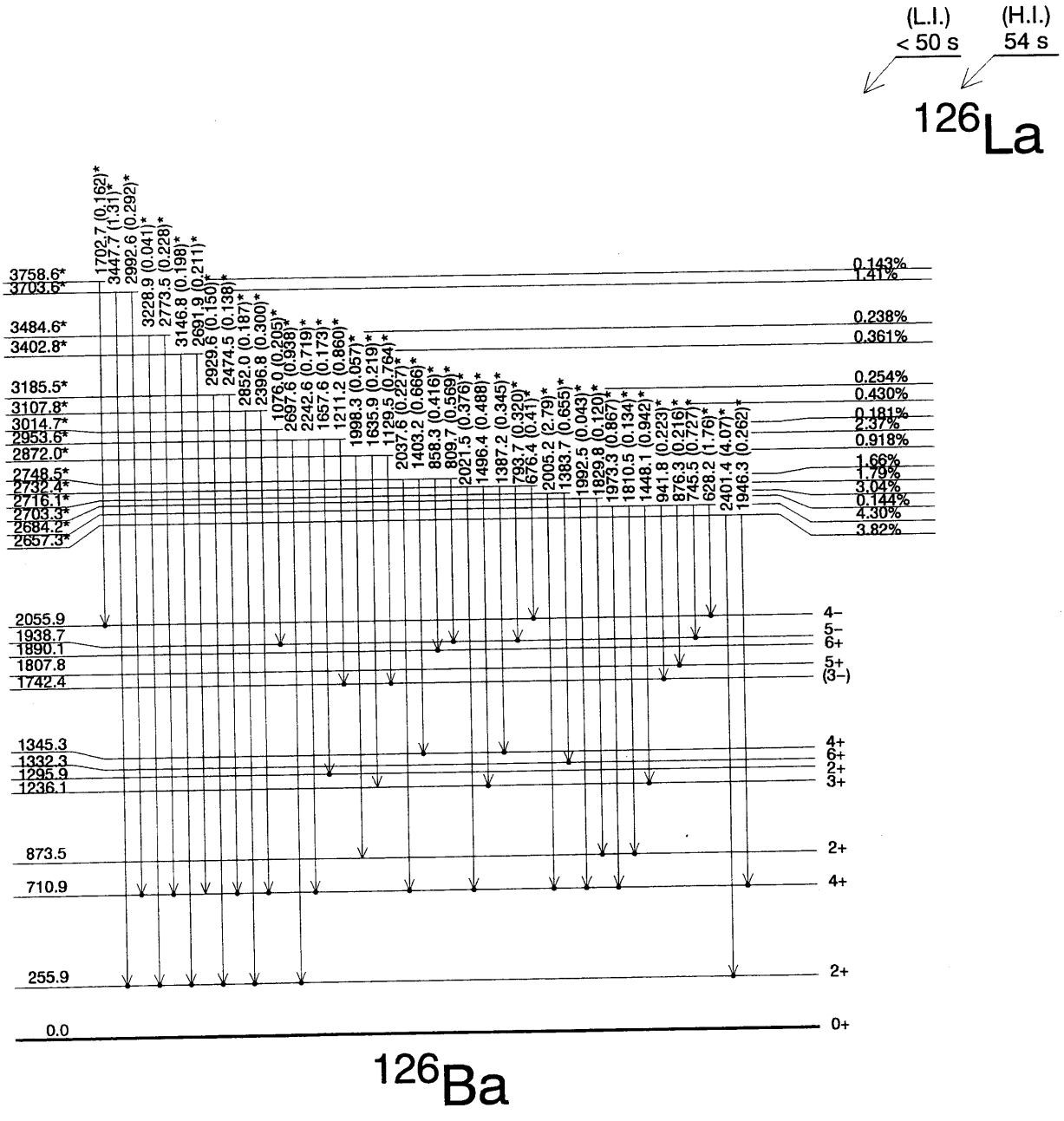

Fig. 4.9(a): A proposed decay scheme of ^{126}La, part 1 of 4. Gamma-ray energies are shown in keV and relative γ-ray intensities are given in the parenthesis. The levels and γ-rays with an asterisk (*) are newly proposed. (H.I.) and (L.I.) indicate high- and low-spin isomers, respectively. Spin and parity are taken from refs. 46 and 79.

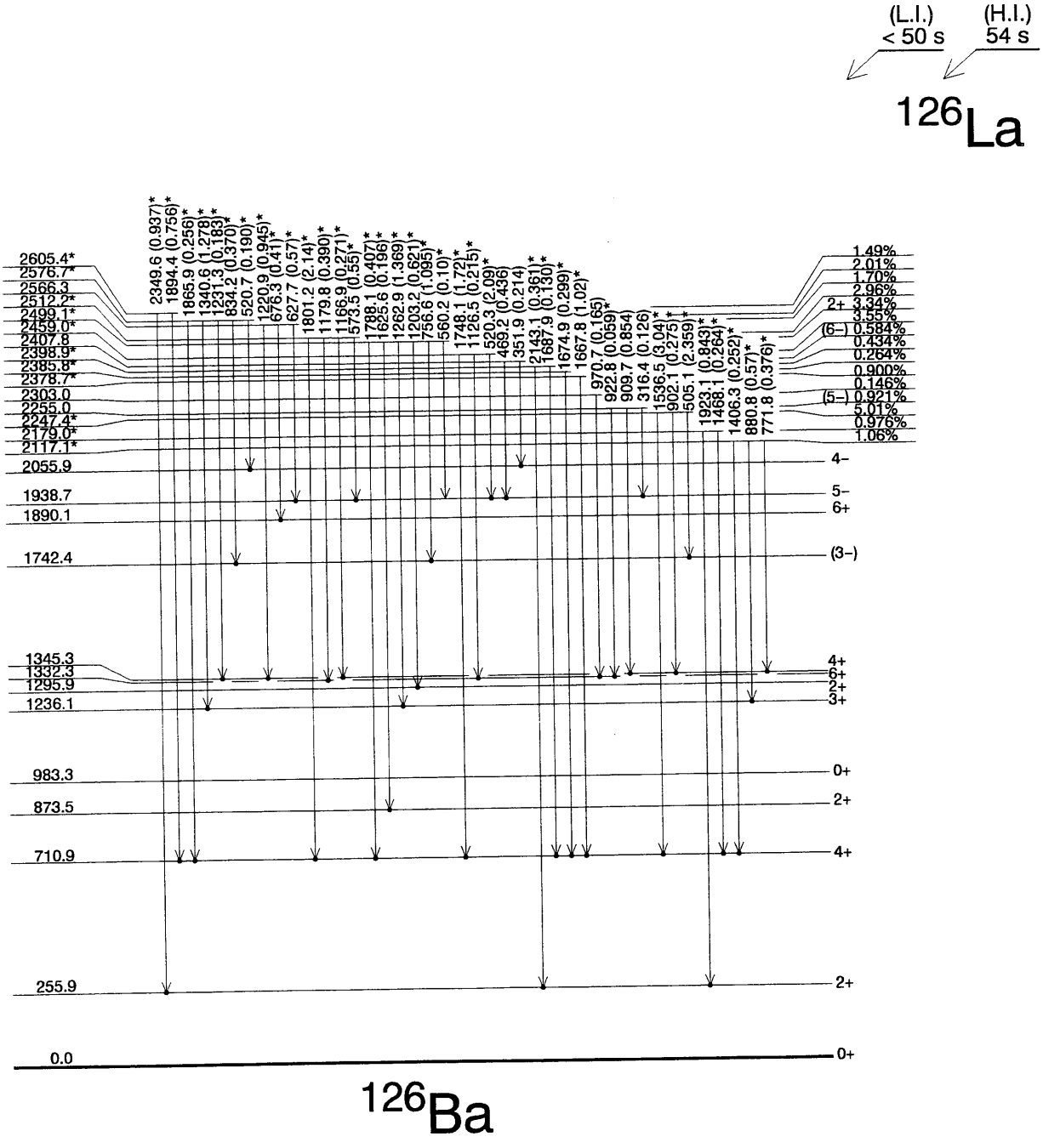

Fig. 4.9(b): A proposed decay scheme of ^{126}La, part 2 of 4.

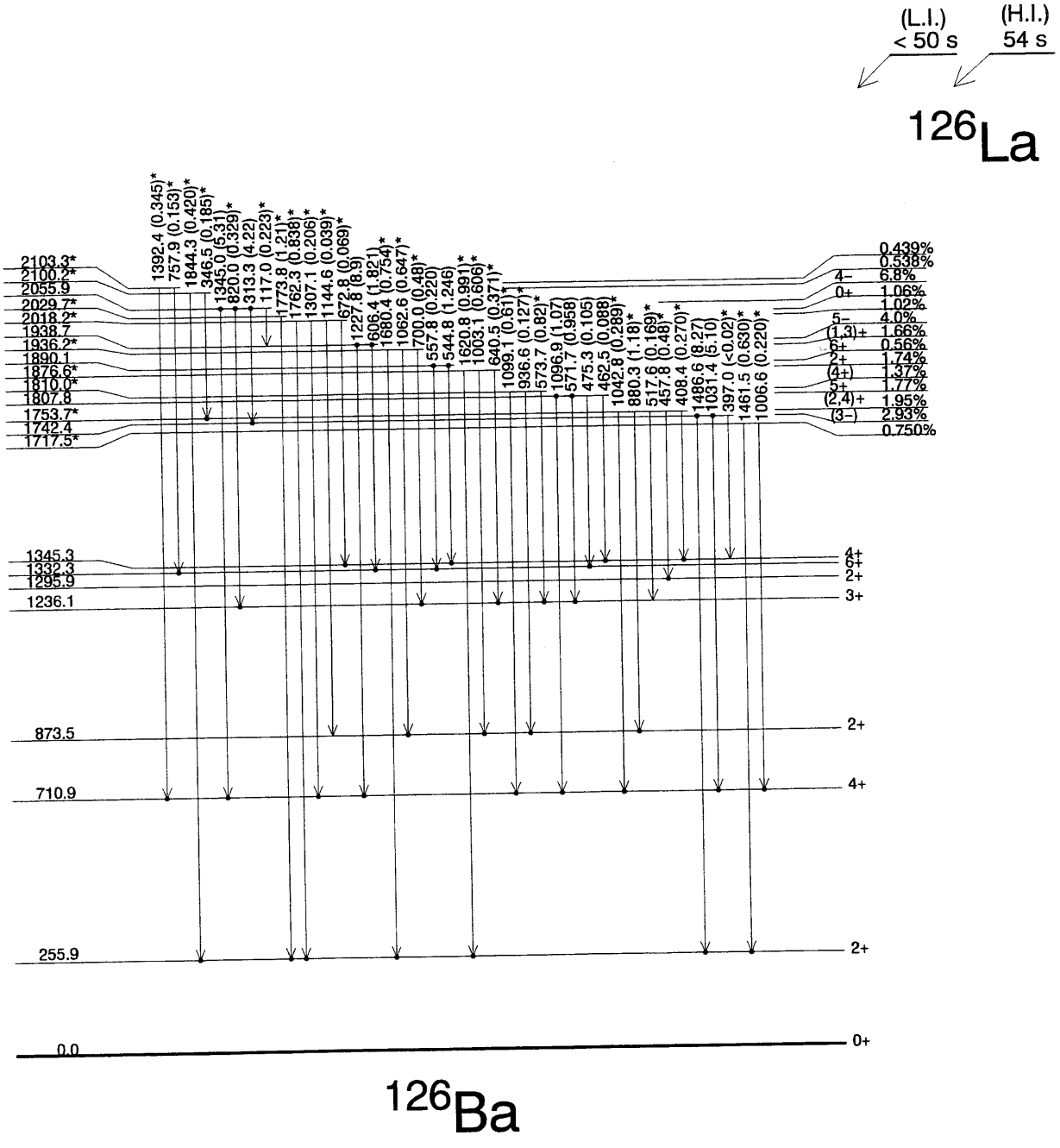

Fig. 4.9(c): A proposed decay scheme of ^{126}La, part 3 of 4.

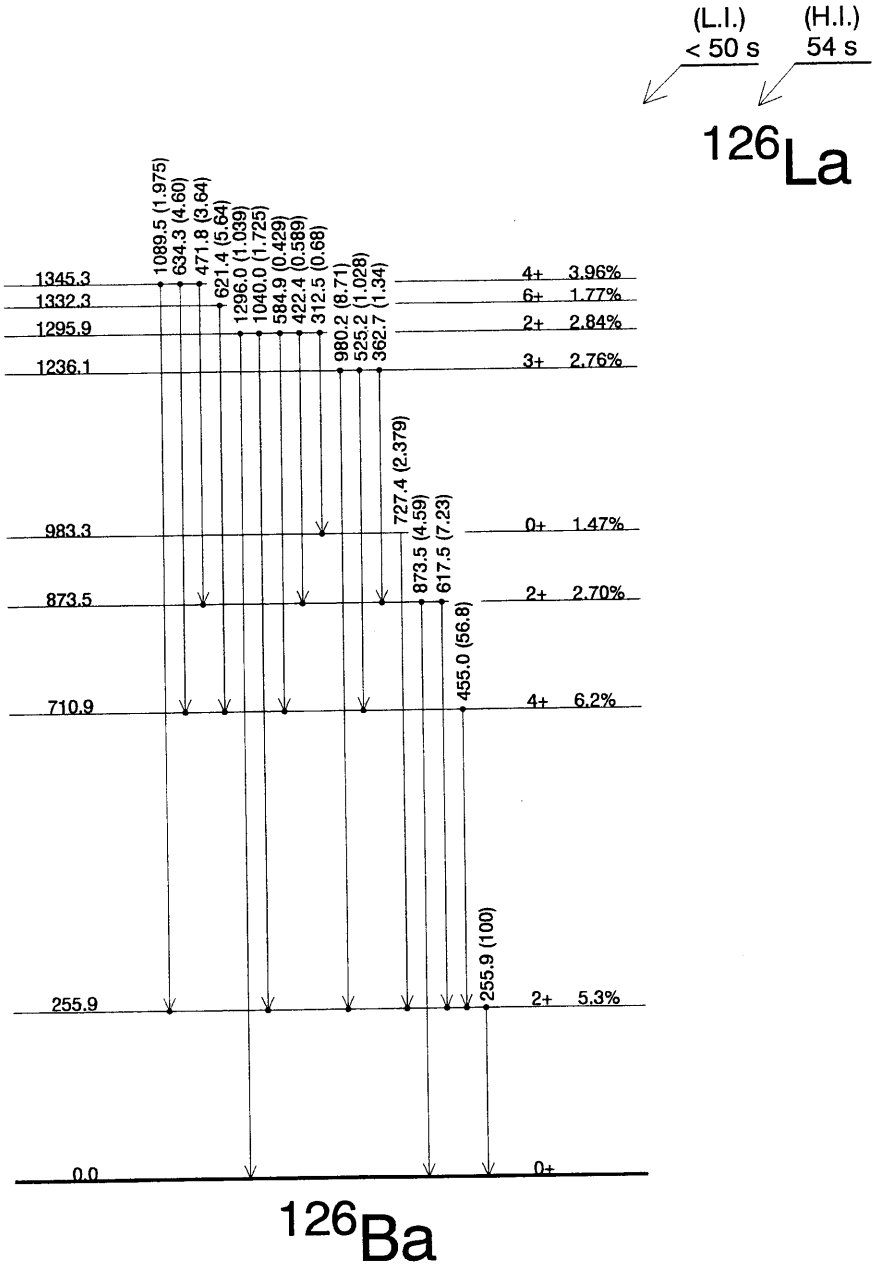

Fig. 4.9(d): A proposed decay scheme of ^{126}La, part 4 of 4.

Table 4.4: Energies, relative intensities and placements of γ-rays in the decay of ^{126}La.

Energy (keV)	Relative intensity	placement	
		from	to
117.0(5)[a] [c]	0.223(40) [d]	2056.1	1938.7
255.93(9)	100.0(15)	255.93	0.0
312.5(1)[c]	0.68(11) [d]	1296.0	983.3
313.3(1)[c]	4.22(41) [d]	2056.1	1742.4
316.4(3)	0.126(8)	2255.0	1938.7
346.5(5)[a]	0.185(9)	2100.2	1753.7
351.9(2)	0.214(10)	2407.8	2056.1
362.7(1)	1.338(22)	1236.1	873.5
397.0(5)[a] [c]	<0.02 [d]	1742.6	1345.3
408.4(5)[a]	0.270(10)	1753.7	1345.3
422.4(5)	0.589(10)	1296.0	873.5
455.0(1)	56.8(8) [d]	710.96	255.93
457.8(3)[a] [c]	0.48(10) [d]	1753.7	1295.9
462.5(3)[c]	0.088(16) [d]	1807.8	1345.3
469.2(5) [c]	0.436(10)	2407.8	1938.7
471.8(1)	3.64(5)	1345.3	873.5
475.3(5)	0.105(6)	1807.8	1332.3
505.1(2)[a] [c]	2.359(34)	2247.4	1742.4
517.6(2)[c]	0.169(6)	1753.7	1236.1
520.3(2)[a] [c]	2.09(39) [d]	2459.0	1938.7
520.7(3)[a] [c]	0.190(43) [d]	2576.7	2055.9
525.2(1)	1.028(18)	1236.1	710.96
544.8(1)	1.246(21)[d]	1889.9	1345.3
554.3(5)[b] [c]	0.195(38) [d]		
557.8(5) [c]	0.22(5) [d]	1889.9	1332.4
560.2(3)[a] [c]	0.10(5) [d]	2499.1	1938.7
571.7(2)[a]	0.958(15)	1807.8	1236.1
573.5(5)[a] [c]	0.55(9) [d]	2512.2	1938.7
573.7(5)[a] [c]	0.82(11) [d]	1810.0	1236.1
584.9(2) [c]	0.429(47) [d]	1296.0	710.96
606.4(1)	1.821(32)	1938.7	1332.4
617.5(1)	7.23(10)	873.5	255.93
621.4(1)	5.64(9)	1332.4	710.96
627.7(5)[a] [c]	0.57(12) [d]	2566.2	1938.7
628.2(1)[a] [c]	1.76(31) [d]	2684.2	2055.9
631.5(5)[b]	0.138(6)		
634.3(1)	4.60(7)	1345.3	710.96
637.2(5)[b] [c]	0.376(8)		
640.5(1)[a]	0.371(9)	1876.6	1236.1
672.8(3)[a]	0.069(7)	2018.2	1345.3
676.3(5)[a] [c]	0.41(9) [d]	2566.3	1890.1
676.4(5)[a] [c]	0.50(9) [d]	2732.4	2055.9
700.0(3)[a] [c]	0.48(14) [d]	1936.2	1236.1
727.4(1)	2.379(32)	983.3	255.93
745.5(1)[a]	0.727(16)	2684.2	1938.7
756.6(3)[a] [c]	1.095(33) [d]	2499.1	1742.4
757.9(5)[a] [c]	0.153(25) [d]	2103.3	1345.3
771.8(2)[a]	0.376(9)	2117.1	1345.3
793.7(1)[a]	0.320(10)	2732.4	1938.7
809.7(1)[a]	0.569(13) [d]	2748.5	1938.7
820.0(2)[a]	0.329(9)	2056.1	1236.1
834.2(1)[a]	0.370(10)	2576.7	1742.4
858.3(3)[a]	0.416(12)	2748.5	1890.1
873.5(1)	4.59(5)	873.5	0.0
876.3(5)[a] [c]	0.216(7)	2684.2	1807.8
880.3(5)[a] [c]	1.18(14) [d]	1753.7	873.5

(continued)

Energy (keV)	Relative Intensity	placement	
		from	to
880.8(5)[a] [c]	0.57(8) [d]	2117.1	1236.1
902.1(2)[a]	0.275(10)	2247.4	1345.3
906.6(3)[b]	0.125(7)		
909.7(1)	0.854(16)	2255.0	1345.3
922.8(5)[a] [c]	0.059(16) [d]	2255.0	1332.3
936.6(5)[a] [c]	0.127(23) [d]	1810.0	873.5
941.8(2)[a]	0.223(9)	2684.2	1742.4
970.7(3)	0.165(8)	2303.0	1332.4
974.4(5)[b] [c]	0.013(6)		
980.2(1)	8.71(11)	1236.1	255.93
1003.1(1)[a]	0.606(12)	1876.6	873.5
1006.6(1)[a]	0.220(9)	1717.5	710.9
1031.4(1)	5.10(8)	1742.6	710.9
1040.0(1)	1.73(2)	1296.0	255.93
1042.8(3)[a] [c]	0.289(9)	1753.7	710.9
1062.6(1)[a]	0.647(13)	1936.2	873.5
1076.0(5)[a]	0.205(10)	3014.7	1938.7
1082.6(10)[b]	0.241(10)		
1089.5(1)	1.975(27)	1345.3	255.93
1096.9(2)	1.07(36) [d]	1807.8	710.96
1099.1(2)[a] [c]	0.61(36) [d]	1810.0	710.96
1118.1(2)[b]	0.087(9)		
1126.5(2)[a] [c]	0.215(8)	2459.0	1332.3
1129.5(1)[a]	0.764(14)	2872.0	1742.4
1136.5(2)[b] [c]	} 0.111(10)		
1138.6(2)[b] [c]			
1144.6(3)[a] [c]	0.039(15) [d]	2018.2	873.5
1144.9(3)[b] [c]	0.07(5) [d]		
1153.4(3)	0.029(6)		
1166.9(2)[a]	0.271(10)	2512.2	1345.3
1179.8(3)[a]	0.390(12)	2512.2	1332.3
1189.3(3)[b]	0.169(9)		
1203.2(1)[a]	0.621(13)	2499.1	1295.9
1211.2(1)[a]	0.860(16)	2953.6	1742.4
1218.0(3)[b]	0.169(12)		
1220.9(1)[a]	0.945(17)	2566.3	1345.3
1227.8(1)	8.9(11) [d]	1938.7	710.96
1231.3(5)[a] [c]	0.183(33) [d]	2576.7	1345.3
1262.9(1)[a]	1.369(22)	2499.1	1236.1
1268.0(5)[b]	0.023(7)		
1287.0(7)[b]	0.291(11)		
1296.0(1)	1.039(15)	1296.0	0.0
1299.3(3)[b] [c]	0.106(8)		
1307.1(5)[a] [c]	0.206(42) [d]	2018.2	710.9
1340.6(1)[a]	1.278(20)	2576.7	1236.1
1345.0(1)	5.31(8)	2056.1	710.9
1383.7(1)[a]	0.655(14)	2716.1	1332.3
1387.2(5)[a]	0.345(9)	2732.4	1345.3
1392.4(1)[a]	0.345(10)	2103.3	710.9
1403.2(1)[a]	0.666(14)	2748.5	1345.3
1406.3(5)[a]	0.252(9)	2117.1	710.9
1448.1(1)[a]	0.942(17)	2684.2	1236.1
1461.5(1)[a]	0.630(13)	1717.5	255.93
1468.1(1)[a] [c]	0.264(10)	2179.0	710.9
1477.5(10)[b]	0.132(11)		
1486.6(1)	8.27(11)	1742.6	255.93
1491.4(5)[b]	0.033(8)		
1496.4(2)[a]	0.488(13)	2732.4	1236.1
1514.7(5)[b]	0.184(12)		
1536.5(1)[a]	3.04(10)	2247.4	710.9
1554.0(5)[b]	0.139(10)		

(continued)

Energy (keV)	Relative Intensity	placement from	placement to
1563.6(2)[b] [c]	0.274(13) [d]		
1620.8(2)[a]	0.991(32)	1876.6	255.93
1625.6(3)[a]	0.196(10)	2499.1	873.5
1631.5(5)[b]	0.082(8)		
1635.9(2)[a]	0.219(12)	2872.0	1236.1
1657.7(3)[a]	0.173(11)	2953.6	1295.9
1667.8(1)[a]	1.020(34)	2378.7	710.9
1674.9(1)[a]	0.299(13)	2385.8	710.9
1680.4(1)[a]	0.754(25)	1936.2	255.93
1687.9(5)[a] [c]	0.130(40) [d]	2398.9	710.9
1702.7(3)[a]	0.162(12)	3758.6	2055.9
1717.4(5)	0.397(17)		
1731.5(5)[b]	0.089(10) [d]		
1748.1(1)[a]	1.72(6)	2459.0	710.9
1762.3(1)[a]	0.838(29)	2018.2	255.93
1773.8(1)[a]	1.207(39)	2029.7	255.93
1788.1(1)[a]	0.407(16)	2499.1	710.9
1792.6(5)[b]	0.028(8)		
1801.2(1)[a]	2.14(7)	2512.2	710.9
1806.2(5)[b]	0.176(9)		
1810.5(5)[a]	0.134(9)	2684.2	873.5
1818.5(5)[b] [c]	0.259(14) [d]		
1829.8(3)[a]	0.120(11)	2703.3	873.5
1837.5(3)[b] [c]	0.214(12) [d]		
1844.3(2)[a]	0.420(15)	2100.2	255.93
1856.1(8)[b]	0.135(12)		
1865.9(3)[a]	0.256(14)	2576.7	710.9
1877.6(5)[b] [c]	0.14(7) [d]		
1884.0(5)[b] [c]	0.08(4) [d]		
1889.3(5)[b] [c]	0.13(6) [d]		
1894.4(1)[a]	0.756(26)	2605.4	710.9
1910.6(5)[b]	0.100(10)		
1915.5(5)[b]	0.100(9)		
1923.1(1)[a]	0.843(28)	2179.0	255.93
1927.3(5)[b]	0.093(9)		
1946.3(3)[a]	0.262(13)	2657.3	710.9
1973.3(1)[a]	0.867(29)	2684.2	710.9
1988.2(3)[b]	0.092(10)		
1992.5(3)[a]	0.043(8)	2703.3	710.9
1998.3(5)[a]	0.057(9)	2872.0	873.5
2005.2(1)[a]	2.79(9)	2716.1	710.9
2021.5(1)[a]	0.376(16)	2732.4	710.9
2037.6(5)[a]	0.227(12)	2748.5	710.9
2131.3(10)[b]	0.349(16)		
2143.1(5)[a] [c]	0.361(16)	2398.9	255.93
2151.3(10)[b]	0.176(12)		
2227.3(3)[b]	0.131(11)		
2235.9(10)[b]	0.237(12)		
2242.6(1)[a]	0.719(25)	2953.6	710.9
2349.6(1)[a]	0.937(31)	2605.4	255.93
2379.7(5)[b]	0.173(12)		
2396.8(5)[a]	0.300(13)	3107.8	710.9
2401.4(1)[a]	4.07(12)	2657.3	255.93
2461.1(2)[b]	0.339(14)		
2474.5(3)[a]	0.138(10)	3185.5	710.9
2480.4(5)[b] [c]	} 0.237(14)		
2484.2(10)[b] [c]			
2691.9(5)[a]	0.211(11)	3402.8	710.9
2697.6(1)[a]	0.938(30)	2953.6	255.93
2728.0(20)[b] [c]	0.147(12)		
2773.5(10)[a]	0.228(13)	3484.6	710.9

(continued)

Energy (keV)	Relative Intensity	placement from	placement to
2852.0(5)[a]	0.187(12)	3107.8	255.93
2865.9(5)[b]	0.096(11)		
2929.6(5)[a]	0.150(9)	3185.5	255.93
2984.8(5)[b]	0.120(10)		
2992.6(3)[a]	0.292(36) [d]	3703.6	710.9
2995.4(5)[b] [c]	0.40(5) [d]		
3028.3(5)[b]	0.110(10)		
3098.9(10)[b]	0.039(8)		
3105.9(5)[b]	0.077(10)		
3146.8(8)[a] [c]	0.198(14)	3402.8	255.93
3218.6(5)[b]	0.131(10)		
3228.9(10)[a]	0.041(8)	3484.6	255.93
3442.6(5)[b] [c]	0.15(8)		
3447.7(2)[a] [c]	1.309(43)	3703.6	255.93
3451.6(5)[b]	0.27(14)		
3507.2(10)[b]	0.096(12)		
3524.4(5)[b]	0.095(11)		
3583.1(10)[b]	0.084(12)		
3853.5(10)[b]	0.063(11)		

a) newly observed.
b) not placed in the decay scheme.
c) deduced from coincidence data.
d) deduced from singles and coincidence data.

Table 4.5: Excited level energies, β^+/EC feeding intensities in the decay of ^{126}La.

Energy (keV)	$I_{\beta^+/EC}$ (%)
0	—*
255.93	5.3(14)
710.9	6.2(13)
873.5	2.70(18)
983.3	1.47(11)
1236.1	2.76(21)
1295.9	2.84(16)
1332.3	1.77(10
1345.3	3.96(14)
1717.5[a)]	0.750(23)
1742.4	2.93(40)
1753.7[a)]	1.95(16)
1807.8	1.77(32)
1810.0[a)]	1.37(33)
1876.6[a)]	1.74(5)
1890.1	0.56(9)
1936.2[a)]	1.66(13)
1938.7	4.0(10)
2018.2[a)]	1.02(5)
2029.7[a)]	1.065(42)
2055.9	6.8(5)
2100.2[a)]	0.538(20)
2103.3[a)]	0.439(26)
2117.1[a)]	1.06(8)
2179.0[a)]	0.976(35)
2247.4[a)]	5.01(15)
2255.0	0.921(31)
2303.0	0.146(8)
2378.7[a)]	0.900(37)
2385.8[a)]	0.264(13)
2398.9[a)]	0.434(39)
2407.8	0.584(19)
2459.0[a)]	3.55(36)

(continued)

Energy (keV)	$I_{\beta^+/EC}$ (%)
2499.1[a)]	3.34(10)
2512.2[a)]	2.96(12)
2566.3	1.70(14)
2576.7[a)]	2.01(7)
2605.4[a)]	1.49(5)
2657.3[a)]	3.82(14)
2684.2[a)]	4.30(29)
2703.3[a)]	0.144(13)
2716.1[a)]	3.04(11)
2732.4[a)]	1.79(9)
2748.5[a)]	1.657(46)
2872.0[a)]	0.918(28)
2953.6[a)]	2.37(7)
3014.7[a)]	0.181(10)
3107.8[a)]	0.430(19)
3185.5[a)]	0.254(14)
3402.8[a)]	0.361(18)
3484.6[a)]	0.238(15)
3703.6[a)]	1.41(6)
3758.6[a)]	0.143(11)

a) newly proposed
* unknown

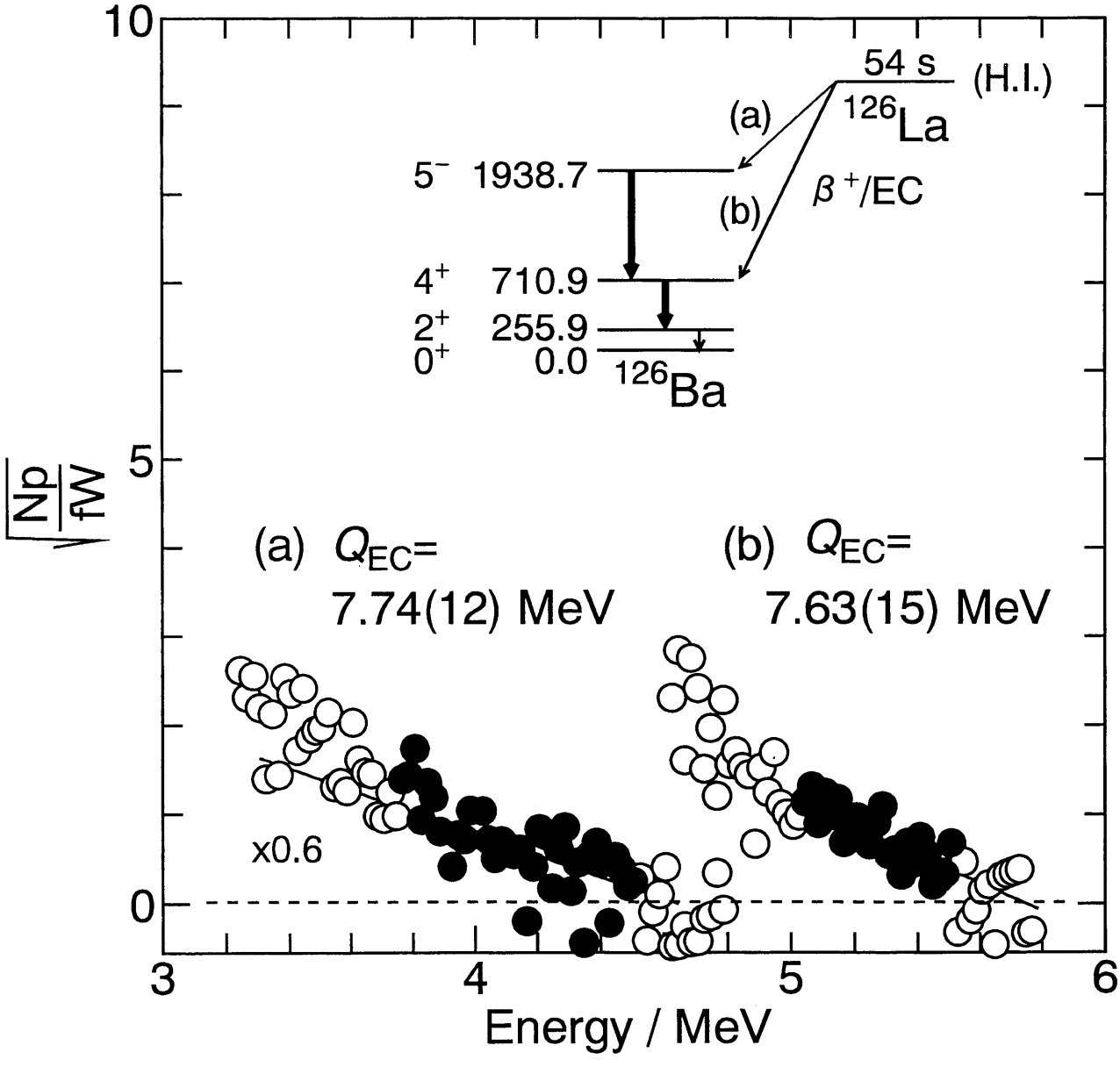

Fig. 4.10: Fermi-Kurie plots of unfolded β^+-ray spectra of the high-spin isomer of ^{126}La. Fitting regions are represented by closed circles. A partial decay scheme of ^{126}La is shown in the inset. The gated γ-rays are indicated by thick lines.

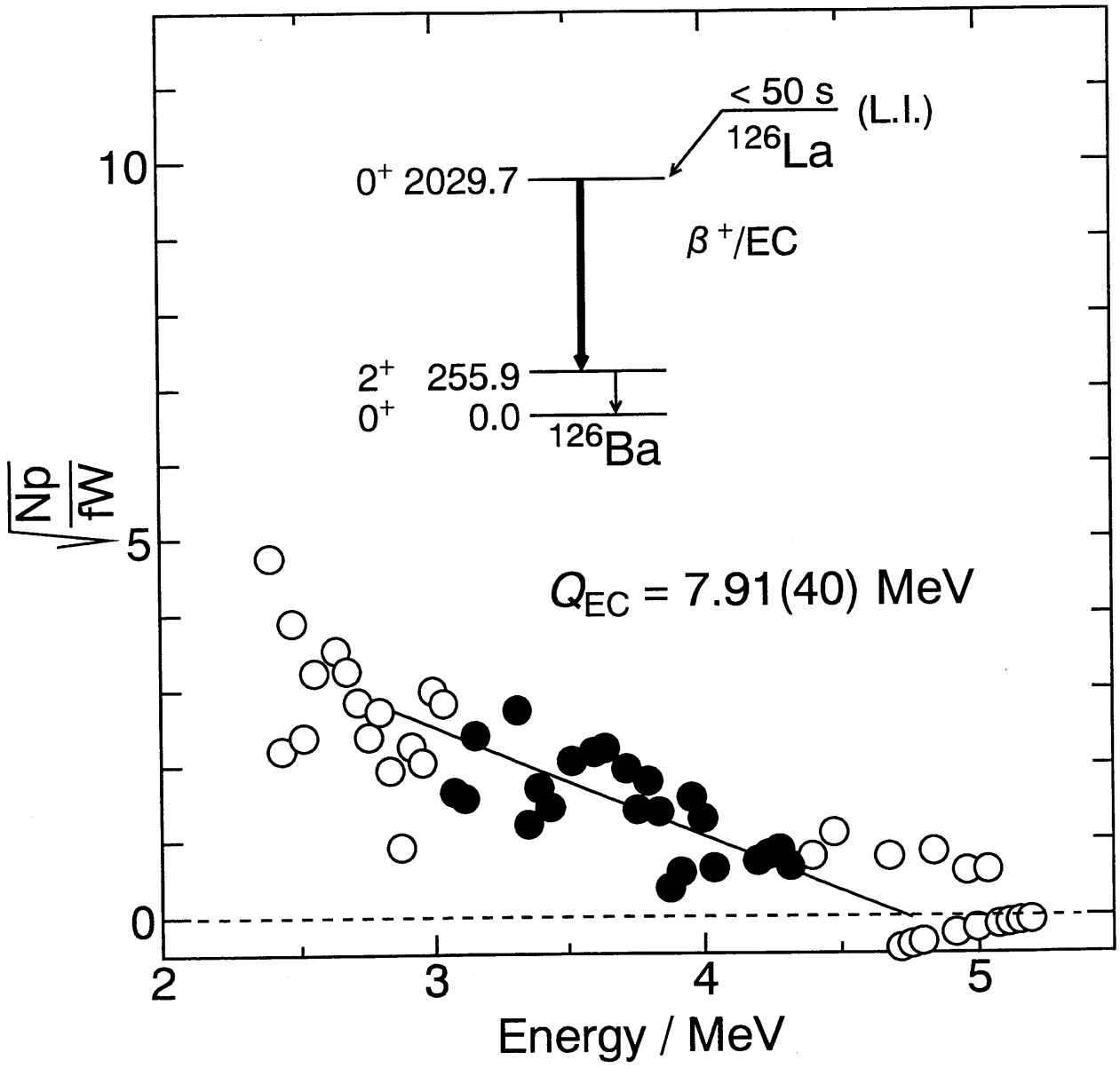

Fig. 4.11: A Fermi-Kurie plot of the unfolded β^+-ray spectrum of the low-spin isomer of ^{126}La. A fitting region is represented by closed circles. A partial decay scheme of ^{126}La is shown in the inset. The gated γ-ray is indicated by a thick line.

今回得られた低スピン核異性体のQ_{EC}は統計誤差が大きいものの高スピン核異性体のそれよりもやや大きい。このことは高スピン核異性体が^{126}Laの基底状態である可能性を示唆している。この結果はエネルギー関係が不明の核異性体がある場合、Q_{EC}測定がそれを決定する有力な方法になることを示している。

今回得た$Q_{EC} = 7.70 \pm 0.10$ MeVは、Audi and Wapstraの評価値$7.57 \pm 0.30^{\#}$ MeVに比べやや大きい。

4.4 ^{127}La

^{127}Laにはスピン・パリティが$(11/2^-)$の基底状態に加え、14.8 keVのエネルギーに$(3/2^+)$の核異性体が存在する。半減期5.1 minの基底状態の崩壊図式は、Miyachi [75]やAsai [80]らによって作成された。その一部をFig. 4.12に示す。本研究ではこの崩壊図式を基にβ^+線の解析を行った。ただし、γ線及び励起準位のエネルギーは新たに決め直した。

^{127}Laの基底状態は、^{127}Baの293.8 keV ($I^\pi = 11/2^-$) 及び1674.0 keVの励起準位に遷移強度8%及び11%でβ^+/EC崩壊する。同時計数測定データから、134.3 keVのγ線にゲートを設定し293.8 keV準位へのβ^+線スペクトルを、805.5 keV及び1299.0 keVのγ線にゲートを設定し1674.0 keV準位へのβ^+線スペクトルを作成した。各スペクトルのFermi-Kurieプロットを Fig. 4.13に示す。それぞれのβ^+線最大エネルギーを3.70 ± 0.10 MeV, 2.32 ± 0.09 MeVと決定し、これからQ_{EC}は5.02 ± 0.10 MeV, 5.01 ± 0.09 MeVと求まった。両者は良く一致しており、この重み付き平均5.01 ± 0.07 MeVを^{127}LaのQ_{EC}とした。この値はAudi and Wapstraが系統性から予測した値4.67 ± $0.25^{\#}$ MeV [5]に比べ0.32 MeV大きい。

4.5 ^{128}La

^{128}Laの崩壊図式は、最近Hayakawa *et al.* [44]によって報告された。彼らは^{103}Rh(^{28}Si, $2pn$)^{128}La及び^{115}In(^{16}O, $3n$)^{128}La反応を用いて研究を行い、^{128}Laには2つの核異性体、すなわち半減期が5.4 minの$(5^\pm, 6^+)$準位と2.0 min以下の半減期を持つ$(1^+, 2^+)$準位があることを明らかにした。しかしながら、どちらの核異性体が基底状態であるかは明らかにはなっていない。

本研究においても、半減期測定から2つの核異性体の存在が確認されたが、低スピン核異性体のβ^+線強度は弱かったため、高スピン核異性体のQ_{EC}のみを決定した。

^{128}Laの高スピン核異性体は、^{128}Baの2427.7 keV準位$(4^-, 5^+)$に約22%の強い遷移強度を持つ。626.8 keVのγ線にゲートを設定し、この準位へ遷移するβ^+線スペクトルを得た。Fermi-Kurieプロットを Fig. 4.14に示す。β^+線最大エネルギー及びQ_{EC}をそれぞれ3.37 ± 0.10 MeV及び6.82 ± 0.10 MeVと決定した。

^{128}LaのQ_{EC}は、過去にLi *et al.*によって6.65 ± 0.40 MeVと報告されている [81]。彼らはβ^+線検出器として直径51 mm、厚さ25 mmのプラスチックシンチレーション検出器を用いた。そしてβ^+線は2.4 MeVの励起準位へ遷移するものとしてQ_{EC}を導い

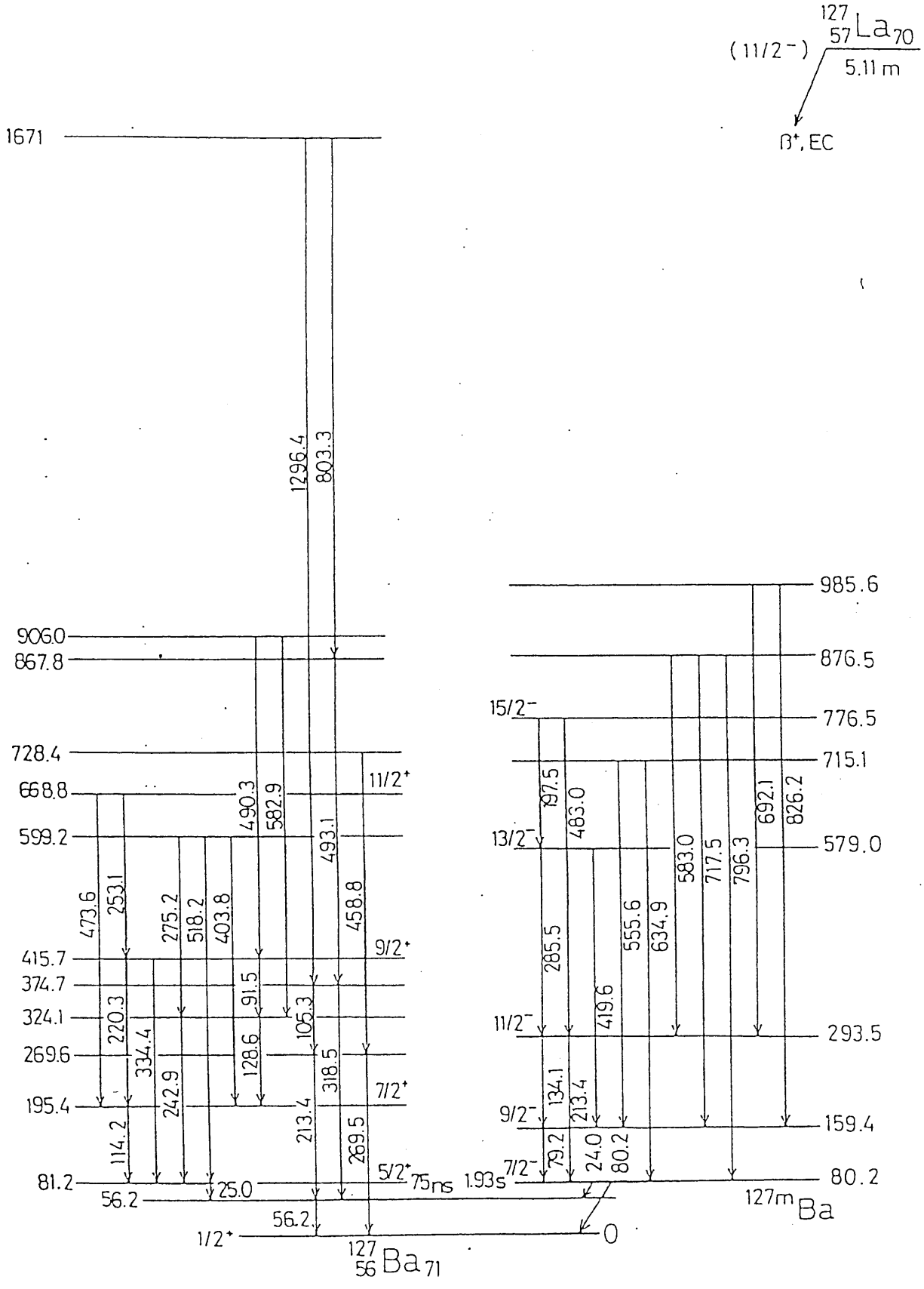

Fig. 4.12: A partial decay scheme of ^{127}La. (Taken from ref. 75.)

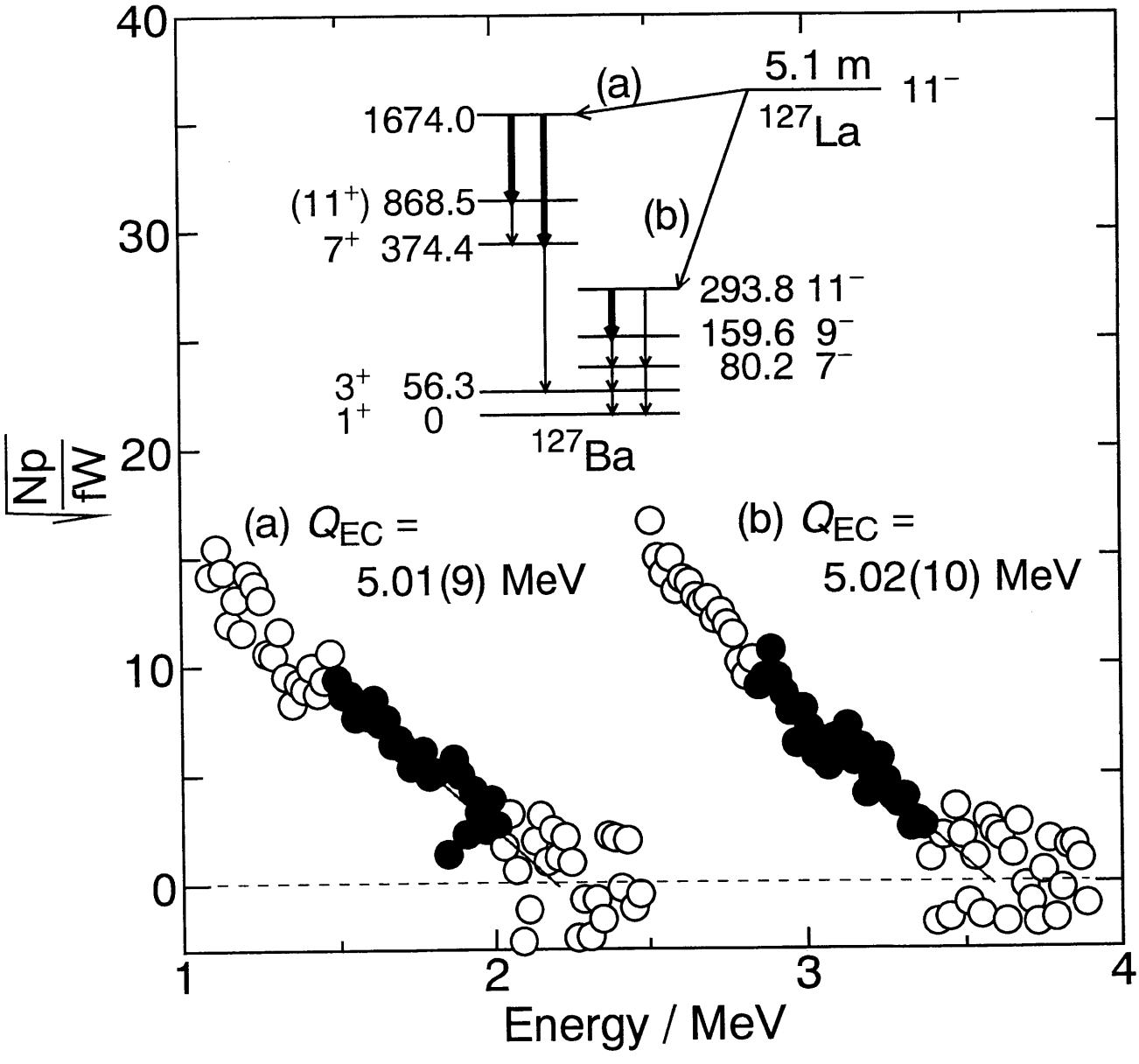

Fig. 4.13: Fermi-Kurie plots of unfolded β^+-ray spectra of ^{127}La. Fitting regions are represented by closed circles. A partial decay scheme of ^{127}La is shown in the inset. The gated γ-rays are indicated by thick lines. The spins are multiplied by 2.

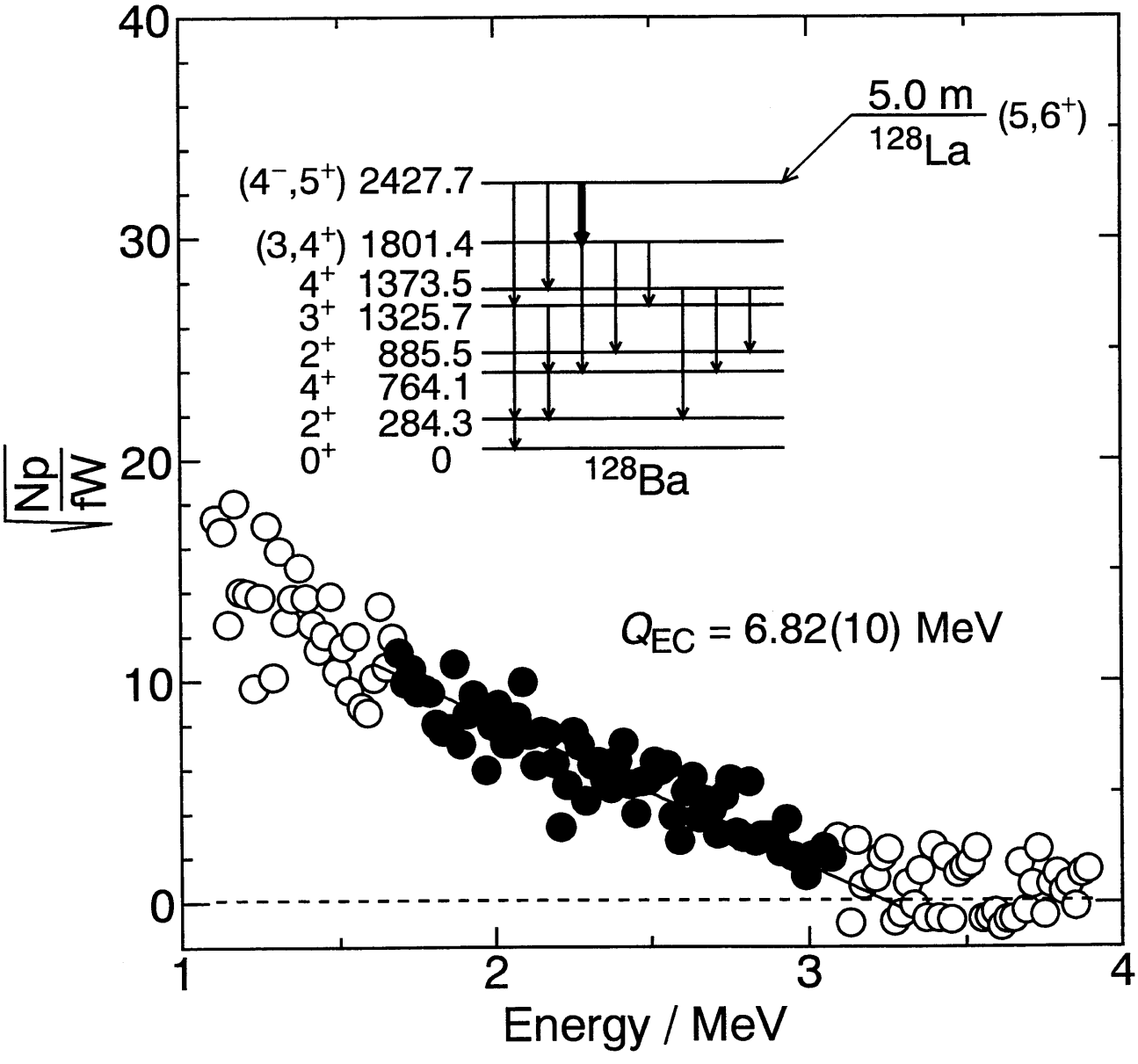

Fig. 4.14: A Fermi-Kurie plot of the unfolded β^+-ray spectrum of ^{128}La. The fitting region is represented by closed circles. A partial decay scheme of ^{128}La is shown in the inset. The gated γ-ray is indicated by a thick line.

た。本研究によって得られたQ_{EC}は彼らの値と一致しているとともに、精度を大幅に向上させた。

4.6 ^{129}La

^{129}Laには半減期が 11.6 min と 0.56 s の核異性体があり、このうち前者が$3/2^+$の基底状態である [82]。^{129}Laの基底状態の崩壊はBrodeur *et al.* によって研究された [83]。それによると、^{129}Baの 110.6 keV 及び 278.6 keV 準位にそれぞれ 14%及び 25%の遷移強度でβ^+/EC 崩壊する。これらの準位のスピン・パリティは$3/2^+$及び$(1/2^+, 3/2^+)$である。

110.6 keV 及び 278.6 keV のγ線と同時計数するデータから、各準位へのβ^+線スペクトルを作成した。これをFermi-Kurieプロットしたものを Fig. 4.15 に示す。それぞれのβ^+線最大エネルギーを 2.60 ± 0.07 MeV, 2.44 ± 0.05 MeV と決定し、これからQ_{EC}として 3.73 ± 0.07 MeV, 3.74 ± 0.05 MeV を得た。重み付き平均値 3.74 ± 0.04 MeV を^{129}LaのQ_{EC}とした。これはBrodeur *et al.* がHPGe検出器を用いて$\beta-\gamma$同時計数測定 [84] を行って得た値 3.72 ± 0.05 MeV [83] と良く一致している。

4.7 ^{130}La

文献 [85,86] に報告されている崩壊図式によると、スピン・パリティが3^+の^{130}Laの基底状態は、^{130}Baの 357.2 keV 及び 907.7 keV の励起準位へ強くβ^+/EC 崩壊する。それぞれの準位への遷移強度は 19%及び 22%であり、準位のスピン・パリティはともに2^+ である。

357.2 keV 及び 907.7 keV のγ線にゲートを設定して、各準位へ遷移するβ^+線スペクトルを作成した。解析して得られたFermi-Kurieプロットを Fig. 4.16 に示す。これを直線フィッティングしてβ^+線最大エネルギーを 4.26 ± 0.12 MeV 及び 3.74 ± 0.09 MeV と決定した。Q_{EC}は 5.64 ± 0.12 MeV 及び 5.67 ± 0.09 MeV であり、両者は誤差の範囲内で一致する。これらの重み付き平均 5.66 ± 0.07 MeV を^{130}LaのQ_{EC}とした。これはAudi and Wapstraの評価値 5.60 ± 0.21# MeV [5] と一致する。

4.8 $^{124-130}$Laの原子質量

本研究で得た軌道電子捕獲崩壊エネルギーQ_{EC}をまとめてTable 4.6に示す。比較のため、過去の文献値及びAudi and Wapstraによる評価値も併せて示した。^{128,129}LaのQ_{EC}は、過去の文献値と誤差の範囲内で一致している。また、その精度は向上した。$^{124-127,130}$LaのQ_{EC}は、本研究で初めて得られた。^{126}Laについては、高スピン及び低スピン核異性体それぞれのQ_{EC}を決定できた。統計上の問題で低スピン核異性体のQ_{EC}の誤差が 400 keV と大きいため、両者は誤差の範囲内で一致している。しかし、高スピン核異性体が^{126}Laの基底状態である可能性の方が高いと言える。

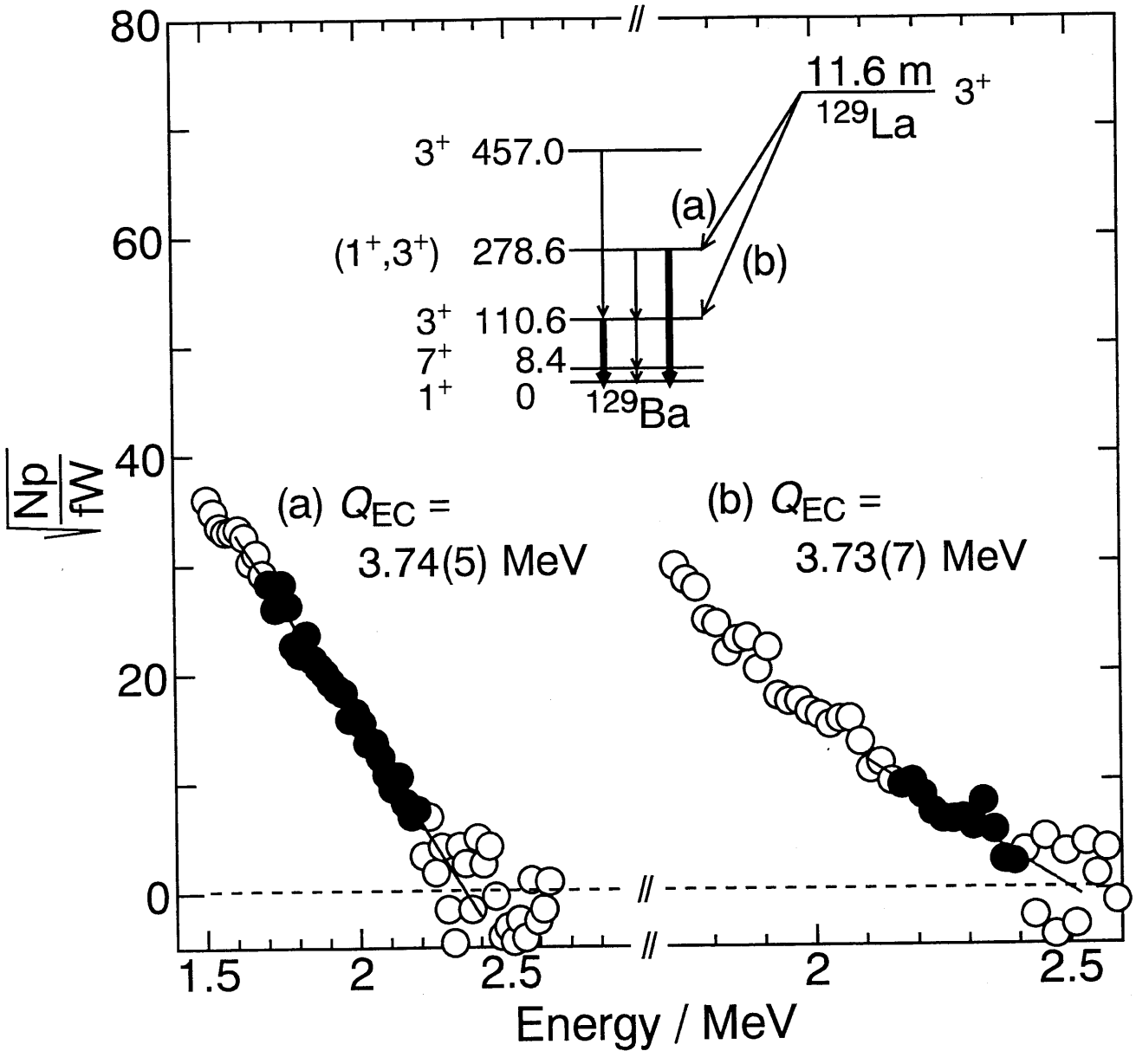

Fig. 4.15: Fermi-Kurie plots of unfolded β^+-ray spectra of ^{129}La. Fitting regions are represented by closed circles. A partial decay scheme of ^{129}La is shown in the inset. The gated γ-rays are indicated by thick lines. The spins are multiplied by 2.

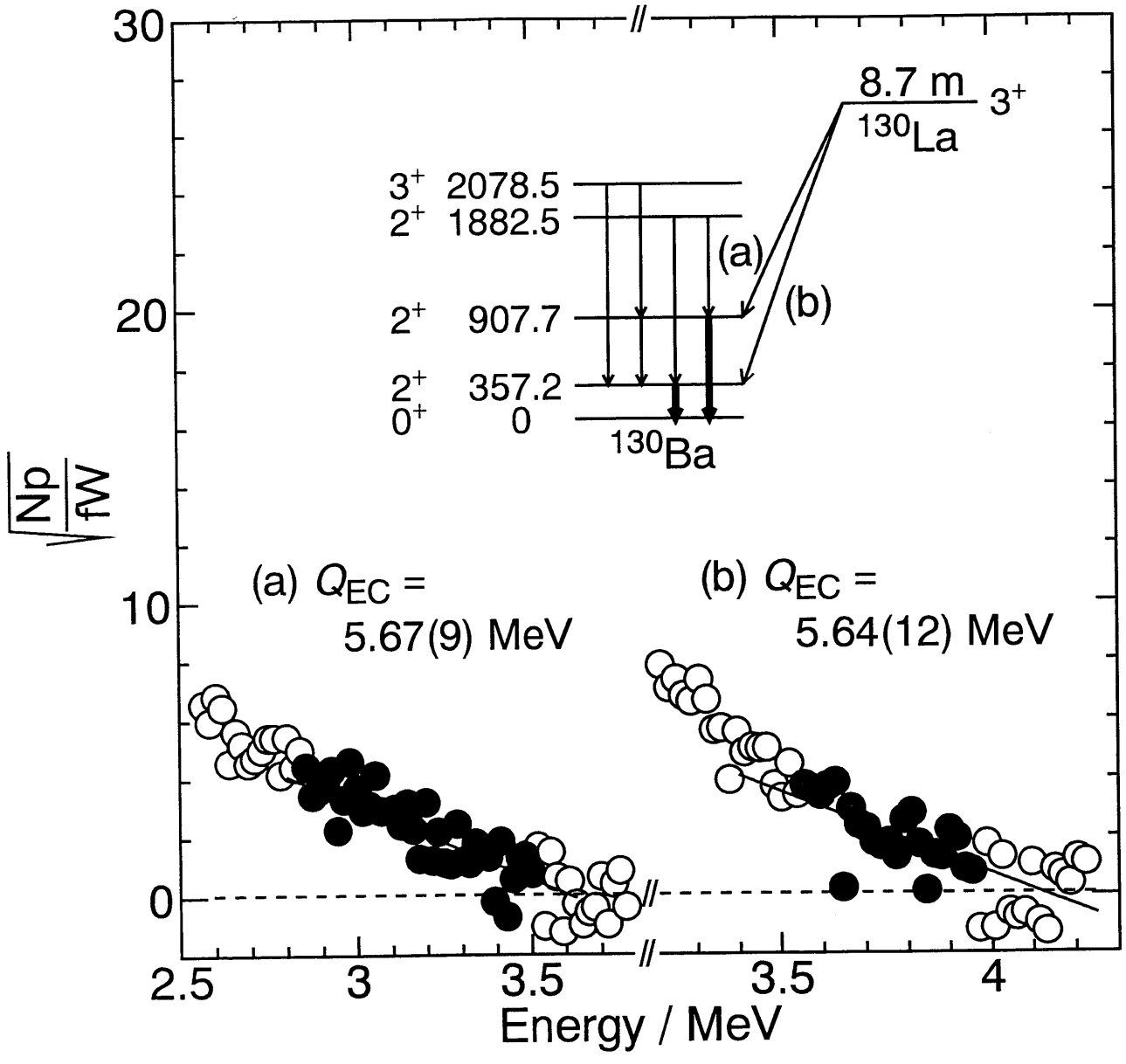

Fig. 4.16: Fermi-Kurie plots of unfolded β^+-ray spectra of ^{130}La. Fitting regions are represented by closed circles. A partial decay scheme of ^{130}La is shown in the inset. The gated γ-rays are indicated by thick lines.

本研究で得られた Q_{EC} (La $\rightarrow$ Ba) と Audi and Wapstra による$^{124-130}$Ba の原子質量 M (Ba) [5] を基に、$^{124-130}$La の原子質量 M (La) を

$$M(\mathrm{La}) = Q_{\mathrm{EC}}(\mathrm{La} \rightarrow \mathrm{Ba}) + M(\mathrm{Ba})$$

の関係を用いて導いた。ただし、^{124,126,128}La については、高スピン核異性体が基底状態であると仮定した。Table 4.7 及び Fig. 4.17 に得られた結果を評価値と比較して示す[1]。図には Osa *et al.* によって報告された^{121,123,125}Ba 及び$^{121-124,126}$Xe の原子質量 [39] も併せて示した。

評価値の誤差が大きいために、実験値と評価値は誤差の範囲内で一致している。しかし、Fig. 4.17 から明らかなように$^{124-128}$La の実験値は系統的に 100 $\sim$ 300 keV 程度高めになっている。さらに詳しく見ると、$^{124-128}$La では実験値と評価値の差が、中性子数の偶奇性により規則的に増減している。一般に原子核は、核子数が偶数のときには、対効果により結合エネルギーが増し、質量が軽くなる。中性子数が偶数である$^{125,127}_{57}$La$_{68,70}$では、評価値に比べ実験値が特に大きくなっているということは、評価値は対エネルギーを過大評価していることを意味する。

一方、比較のために示した Ba 同位体の場合は、La 同位体とは対照的に評価値より低めの値を示しており、その差は中性子数が小さくなるほど広がる傾向にある。このような傾向は、質量数が 120 $\sim$ 130 の中性子欠損軽希土類核の原子質量の評価において、何らかの問題があることを示唆している。

ところで^{125,127}La の原子質量の誤差は他の核種に比べやや大きい。これはその導出に用いた^{125,127}Ba の評価値の誤差が大きいためである。最近 Osa *et al.* [39] や Beck *et al.* [47] によって^{125,127}Ba の原子質量が再測定された。それらの値は誤差の範囲内で Audi and Wapstra の評価値に一致しており、その精度は 12 $\sim$ 50 keV に向上した。今後これらの値が原子質量の評価に取り込まれることによって、^{125,127}Ba の評価値の誤差が小さくなり、その結果^{125,127}La の原子質量の誤差も 70 keV 程度に小さくなると思われる。

本研究で^{125}La 以外の核種については精度$\Delta M/M = 10^{-6}$以下で原子質量を決定できた。^{125}La についても、^{125}Ba の評価値が最新の実験値に基づいた値になれば、10^{-6}以下の精度となる。次章では得られた結果の検討を行うが、そこでは^{125,127}La を含めて、現時点で標準値として用いられている$^{124-130}$Ba の評価値を使って求めた$^{124-130}$La の原子質量を基に議論を進める。ただし、Osa *et al.* や Beck *et al.* の値を用いても質量の精度は向上するが、本研究の結論は変わらない。

[1] Table 4.7 には質量偏差 (mass excess) Δ (MeV) を示した。原子質量 M (MeV) とは、$M = A \times 931.49 + \Delta$の関係がある。ここで A は質量数である。

Table 4.6: Experimental Q_{EC}-values of $^{124-130}$La deduced from the present study compared with the previous and the evaluated values.

Nuclide[a)]	Half-life	Level (keV)	Endpoint energy[b)] (MeV)	Q_{EC}-value Present (MeV)	Averaged (MeV)	Other (MeV)	Ref.	Evaluated[c)] (MeV)
^{124}La (HI)	29 s	2690.6	5.20(16)	8.91(16)	8.93(11)	—	—	8.80(30)#
		3094.9	4.83(14)	8.95(14)				
^{125}La	1.3 m	1284.1	3.65(9)	5.96(9)	5.95(7)	—	—	5.64(39)#
		1311.0	3.61(10)	5.94(10)				
^{126}La (HI)	54 s	710.9	5.90(15)	7.63(15)	7.70(10)	—	—	
		1938.7	4.78(12)	7.74(12)				7.57(30)#
^{126}La (LI)	$\ll$ 50 s	2029.7	4.86(40)	7.91(40)	7.91(40)	—	—	
^{127}La	5.1 m	293.8	3.70(10)	5.02(10)	5.01(7)	—	—	4.69(25)#
		1674.0	2.31(9)	5.01(9)				
^{128}La (HI)	5.0 m	2427.7	3.37(10)	6.82(10)	6.82(10)	6.65(40)	[81]	6.65(40)
^{129}La	11.6 m	110.6	2.60(7)	3.73(7)	3.74(4)	3.72(5)	[83]	3.72(5)
		278.6	2.44(5)	3.74(5)				
^{130}La	8.7 m	357.2	4.26(12)	5.64(12)	5.66(7)	—	—	5.60(21)#
		907.7	3.74(9)	5.67(9)				

a) HI and LI represent high- and low-spin isomers, respectively.
b) The experimental error of the β^+-ray endpoint energy is obtained by quadratic addition of the statistical and the systematic uncertainty.
c) Audi and Wapstra. [5] The label of # represents a value estimated from the systematic trends.

Table 4.7: Mass excesses of $_{57}$La isotopes derived from the present results and the evaluated mass excesses of their daughter $_{56}$Ba isotopes.

Nuclide	Mass excess of La Present (MeV)	Mass excess of La Evaluated[a)] (MeV)	Q_{EC}-value of La Present (MeV)	Mass excess of Ba Evaluated[a)] (MeV)
^{124}La	-70.17(11)	-70.30(30)#	8.93(11)	-79.095(14)
^{125}La	-73.58(26)	-73.90(30)#	5.95(7)	-79.53 (25)
^{126}La	-74.98(10)	-75.11(30)#	7.70(10)	-82.676(14)
^{127}La	-77.78(12)	-78.10(22)#	5.01(7)	-82.79 (10)
^{128}La	-78.59(10)	-78.76(40)	6.82(10)	-85.410(11)
^{129}La	-81.33(4)	-81.35(5)	3.74(4)	-85.070(11)
^{130}La	-81.61(7)	-81.67(21)#	5.66(7)	-87.271(7)

a) Audi and Wapstra. [5] The label of # represents a value estimated from the systematic trends.

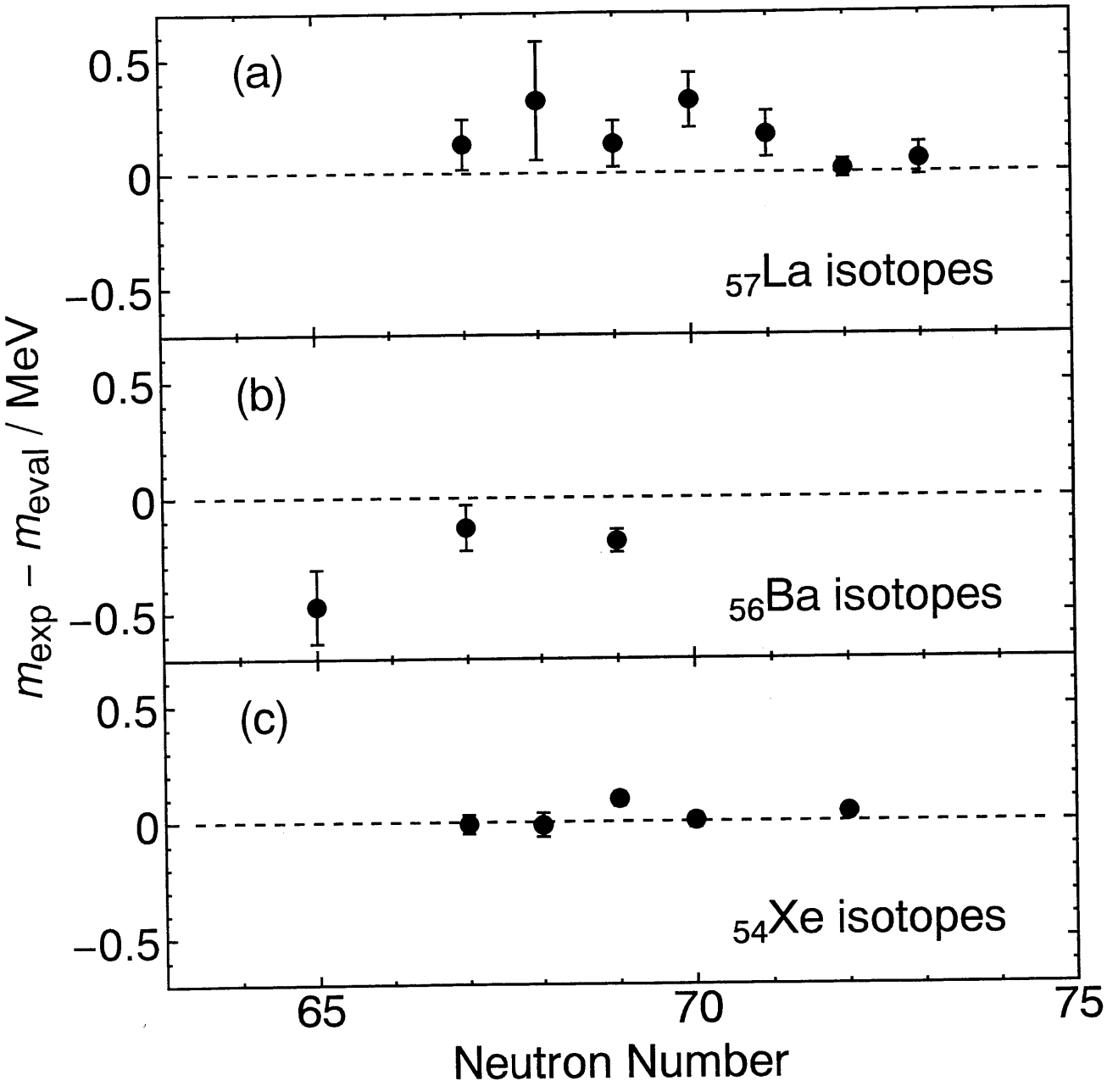

Fig. 4.17: Comparison between the experimental and the evaluated masses of (a) La, (b) Ba and (c) Xe isotopes. The error bar means the uncertainty of the experimental mass. The experimental masses of ^{121,123,125}Ba and $^{121-124,126}$Xe are taken from ref. 39.

第5章　考察

5.1　質量公式との比較

原子質量の理論的研究は質量公式の構築という形で進められてきた。質量公式は基礎にしている原理によっていくつかに分類できる [88]。

- 系統性に基づく質量公式

  原子質量に関係したある物理量が、原子番号 Z や中性子数 N などの変化に対してどのように変わるかを調べ、この傾向から原子質量を予測する。Dussel *et al.* [7] はα粒子の分離エネルギーをアイソスピン T (isospin: $T = (N - Z)/2$) の関数として表し、原子質量を予測している。

- 質量関係式に基づく質量公式

  注目している原子核とその周辺核種の原子質量間に、ある種の関係式が、少なくとも安定核の周辺では良い精度で成立することが知られている。その代表的なものに 6 つの核種の質量間に成り立つ Garvey-Kelson の式がある。Comay *et al.* [9], Jänecke and Masson [13] 及び Masson and Jänecke [14] の質量公式はいずれも上記の関係式を基に質量を予測している。この方法は一種の系統性とも見なし得るが、予測の際の任意性を小さくしたものと言えよう。

- 液滴模型に基づく質量公式

  原子核は核子から成る多体系であるが、結合エネルギーの飽和性など液滴のような性質も持っている。このことを利用して原子質量の主要部分を液滴模型で表し、さらに殻効果などの寄与を加えることで予測精度の向上を目指している。式で書けば、

  $$M\ (\text{全体}) = M(\text{液滴部分}) + M(\text{殻効果})$$

  となる。これはさらに殻効果等の導入を現象論的に行うものと、ある程度模型に基づいて行う公式とに分けられる。Satpathy and Nayak [10], Tachibana *et al.* [11] 及び Spanier and Johansson [12] の質量公式は前者に、Möller *et al.* [15] の公式は後者に属する。なお、Möller *et al.* は質量の巨視的部分（上式で M(液滴部分) に対応する。）を表す模型として 2 種類、すなわち Finite-Range Droplet Model (FRDM) と Finite-Range Liquid-Drop Model (FRLDM) を使っており、それぞれの場合について質量を計算している。

Table 5.1: Comparison of mass formulas.

Model	Parameters used	Database nuclei used	rms deviation		Type[a)]
			all exp. mass (keV)	$^{124-130}$La (keV)	
Dussel *et al.* [7]	45	1328	287	399	(a)
Satpathy and Naya [10]	238	1593	456	569	(b)
Tachibana *et al.* [11]	281	1657	538	95	(b)
Spanier *et al.* [12]	12	652	512	1090	(b)
Möller *et al.* (FRDM) [15]	16	1654	669	287	(c)
Möller *et al.* (FRLDM) [15]	15	1654	779	348	(c)
Aboussir *et al.* [16]	8	1492	736	418	(c)
Comay *et al.* [9]	*b*)	1541	431	516	(d)
Jänecke and Masson [13]	928	1535	343	169	(d)
Masson and Jänecke [14]	471	1504	346	145	(d)

a) Mass formulas are classified in four major groups: (a) semiempirical formulas, (b) liquid drop type formulas, (c) microscopic models and (d) mass relations.

b) Subsets of the known nuclei.

- 微視的模型のみに基づく質量公式

  上記の液滴模型では質量を巨視的部分（液滴模型）と微視的部分（殻効果）の和として表した。これに対し Aboussir *et al.* は、別々の物理的考察に基づいている 2 つの項の和で 1 つの物理量を表すのは、互いの整合性が不明確であるため危険であると主張し、微視的な模型のみから構築された公式 [16] を提案した。Hartree-Fock の近似計算によるこの質量公式による実験値の再現性は、現段階ではまだそれほど良くはないが、調整パラメータの数が 8 個と少ないことを特徴としている。

Table. 5.1 には上で述べた 10 種類の質量公式について、それらが発表された時点での既知質量をどの程度再現しているかを表すパラメータである標準偏差 rms (root mean square) を示した。ここで rms は下式で定義される。

$$\mathrm{rms} = \sqrt{\frac{1}{n}\sum_{i}^{n}(m^{i}_{\mathrm{exp}} - m^{i}_{\mathrm{calc}})^2}.$$

ただし、m_{exp}, m_{calc}はそれぞれ原子質量の実験値、予測値であり、n は核種総数である。表から Dussel *et al.* (rms = 287 keV), Jänecke and Masson (rms = 343 keV) 及び Masson and Jänecke (rms = 346 keV) の質量公式の再現性が良いことが分かる。しかしながら、それだけではその公式の能力が高いとは言えない。なぜなら、実験的に質量が決められていない原子核領域にまで予測の対象を広げていったときに、どの程度公式が有効であるかが、より重要な問題であるからである。外挿の信頼性を調べるに

は、いくつかの方法が考えられるが[1]、新たに測定された原子質量があれば、それと予測値を比較してみるのが最も直接的な方法である。

そこで中性子欠損La同位体での質量公式の有効性を議論するために、本研究で決定した質量と、各公式が予測する値とを比較してFig. 5.1に示す。図には$^{124-130}$Laについて計算したrmsも併せて示した。また、この図では質量公式を上で述べたように4つに分類した。ただし、Möller *et al.*の質量公式は、質量の微視的寄与を模型に基づいて評価しているので、微視的模型のみに基づくAboussir *et al.*の公式と同じ分類とした。

既知質量との一致が最も良かったDussel *et al.*の質量公式は、$^{124-130}$Laの原子質量を良く再現してはいない。両者の差は中性子数が小さくなる、つまり不安定になるに連れて広がっている。この公式の外挿能力は低い。

同様にSpanier *et al.*による質量公式も予測能力に乏しい。Fig. 5.1から、中性子数が減るに連れて、実験値と予測値の差が広がっていくのが分かる。文献[87]のFig. 8によると、他の原子核領域でも安定核から離れるに連れ、この公式による質量の再現性が急激に悪くなっている。この理由の1つとしては、調整パラメータの数が12個と少ないため、原子質量の局所的変化を公式中に充分に取り入れることができないということが考えられる。

Jänecke *et al.*及びMasson *et al.*の質量公式は、$^{124-130}$Laに対して比較的予測能力が良い。ただし、これらはAudi and Wapstraの評価値を入力値として、質量関係式を利用した予測を行っているため、その結果は評価値に近い値になっている。評価値自体の不確実さが増すと考えられる、より不安定な原子核領域での予測能力がどの程度であるかを調べるには今後の研究が必要である。

$^{124-130}$Laの実験値を最も良く再現したのはTachibana *et al.*の質量公式である。既に説明したように、この質量公式は微視的部分を特定の原子核模型を使わずに、できるだけ経験的に決定する方法を採っている。比較のために、Möller *et al.*やAboussir *et al.*の質量公式を見てみる。これらは微視的部分あるいは公式全体をある原子核模型に基づいて計算している。これらの予測値の傾向は似ており、しかも実験値を良く再現しているとは言えない。特定の核模型を使うよりも、周辺原子核の質量の傾向から予測した方が実験値と良い一致を示すという事実から、この領域の原子核では従来の核模型では考慮に入れられていなかった新しい現象が起きている可能性があると推測できる。一方、同じ系統性に基づく液滴模型でもSatpathy *et al.*やSpanier *et al.*の提案した質量公式は、Tachibana *et al.*の公式とは異なり、$^{124-130}$Laの実験値をほとんど再現していない。これは、どのような系統性に注目して、それをどのような関数型でパラメータ化するかによって、ある核構造の変化に対応しやすいものと、そうでないものとに分かれるためではないかと考えられる。

以上の議論を踏まえ、中性子欠損軽希土類核ではどの質量公式を使うのが良いのか検討してみる[2]。最良の公式を特定することは困難であるが、Tachibana *et al.*, Jänecke *et*

[1]例えば原子炉の崩壊熱や宇宙での元素合成過程の解明などの研究分野において、質量公式の予測値を基にした計算結果と実験・測定結果とを比べれば、その一致度から公式の有効性が議論できるであろう。ただし、この場合には用いる計算手法、質量公式以外の物理模型等による不確実さも含まれてしまうという問題がある。

[2]本研究で考察できる質量公式の特性や精度は、あくまでも中性子欠損核$^{124-130}$La近傍領域に限られる。なお、現時点では、全ての原子核領域で万能な質量公式は存在しない。

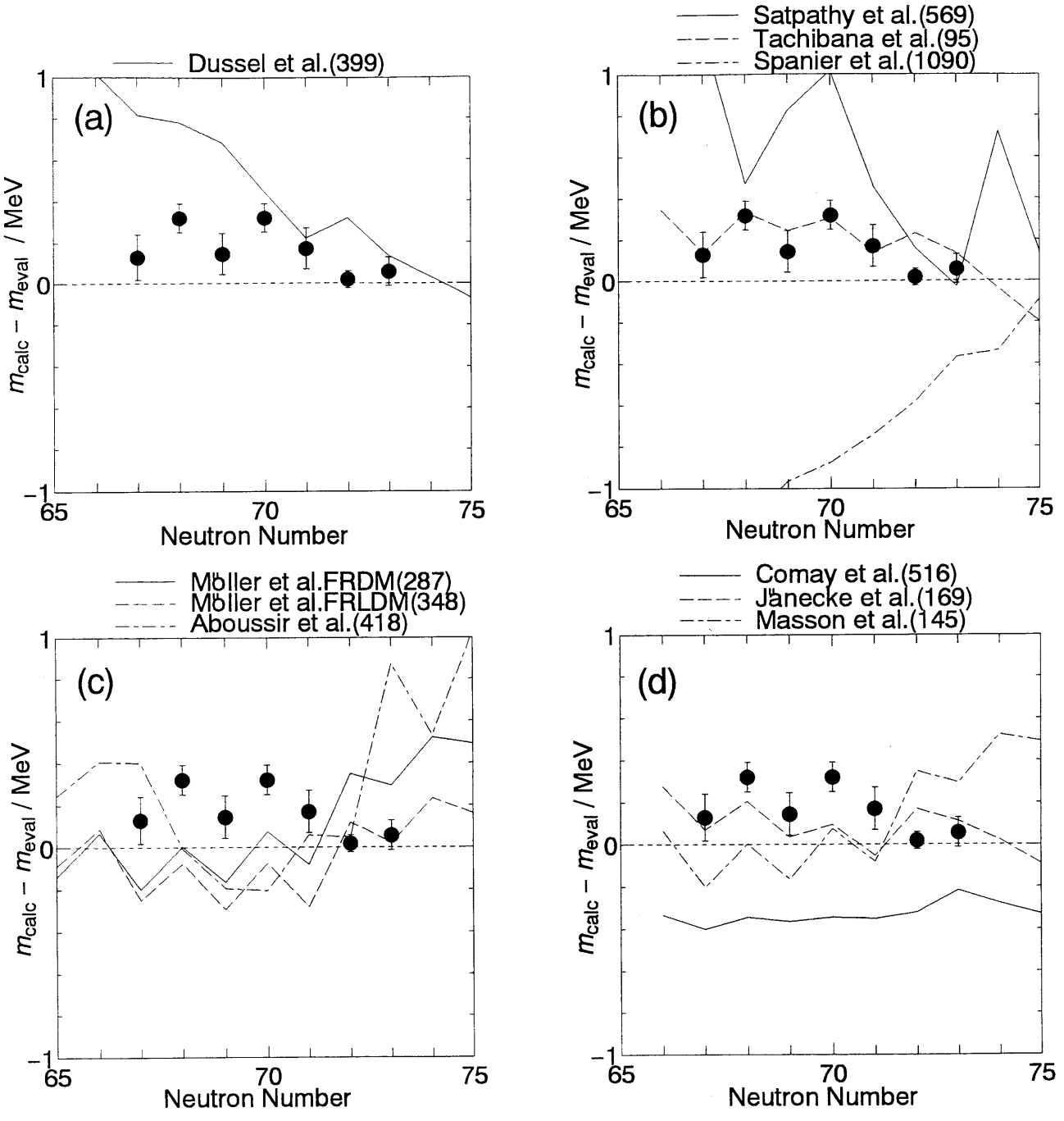

Fig. 5.1: Deviation of the experimental atomic masses, m_{exp}, and the calculated values by mass formulas, m_{calc}, from the evaluated values, m_{eval}, of $_{57}$La isotopes by Audi and Wapstra. [5] The experimental values are represented by closed circles. Mass formulas are classified in four major groups: (a) a semiempirical formula by Dussel *et al.*, [7] (b) liquid drop type formulas by Satpathy and Nayak, [10] Tachibana *et al.*, [11] and Spanier and Johansson, [12] (c) mass formulas based on the microscopic model by Möller *et al.* [15] and Aboussir *et al.*, [16] (d) mass formulas based on mass relations by Comay *et al.*, [9] Jänecke and Masson, [13] and Masson and Jänecke. [14] The root-mean-square of the mass differences of $^{124-130}$La for each formula is given in the parenthesis in keV.

Table 5.2: Comparison of experimental and calculated half-lives of $^{124-130}$La isotopes. The Q_{EC}-values used as input data are also presented.

Nuclide	Half-life				Q_{EC}		
	Exp. (s)	GT[a] (s)	GT[b] (s)	pn-QRPA[c] (s)	Exp. (MeV)	Tachibana [11] (MeV)	Möller [15] (MeV)
^{124}La	29(1)	12	17	7	8.93(11)	8.57	8.44
^{125}La	76(6)	55	62	24	5.95(7)	5.86	5.86
^{126}La	54(2)	45	60	48	7.70(10)	7.47	7.21
^{127}La	306(6)	127	166	76	5.01(7)	4.80	4.73
^{128}La	300(18)	142	229	76	6.82(10)	6.47	6.06
^{129}La	696(12)	596	514	> 100	3.74(4)	3.84	3.74
^{130}La	522(6)	471	471	> 100	5.66(7)	5.66	5.20

[a] Calculated values of the revised gross theory with the experimental Q_{EC}-values.
[b] Calculated values of the revised gross theory with the predicted Q_{EC}-values of Tachibana *et al.* [11]
[c] Taken from ref. 89. Theoretical Q_{EC}-values by Möller *et al.* [15] are used as input data.

al. 及びMasson *et al.* の質量公式が、実験値との一致が比較的良く推奨できる。$^{124-130}$La の実験値を比較的良く再現していることに加え、これらは系統性に基づいているため(質量関係式も一種の系統性とみなせる。)、$^{124-130}$La 以外でも質量数 125 近傍の希土類核では、急激にその再現能力が悪化するとは考えづらいからである。参考までに最近 Osa *et al.* によって測定された中性子欠損核$_{54}$Xe 及び$_{56}$Ba の原子質量の、質量公式との比較を Fig. 5.2 に示す。上で挙げた 3 種の質量公式は、Ba 及び Xe 領域でも、比較的良い予測をしていることが分かる。ただし、さらに不安定な領域ではその有効性は明らかではなく、今後の研究が必要である。

5.2 半減期の理論計算との比較

β崩壊エネルギーは、天体核物理学などでその結果が利用されているβ崩壊の半減期の理論計算において、入力値として用いられる。実験的に決定したQ_βを基に計算して得た値と、半減期の実測値を比較することは、β崩壊理論の検証になる。

未知原子核のβ崩壊の半減期予測に広く用いられているβ崩壊理論の 1 つに大局的理論がある [17,18]。大局的理論はβ崩壊の各終状態への平均強度関数を足しあわせることでβ崩壊の様相を表す。Table 5.2 に本研究で得た Q_{EC}を入力値として計算したときの半減期を記す。これには Tachibana *et al.* の質量公式 [11] が予測する Q_{EC}を用いたときの半減期も併せて示した。半減期 1000 s 以下の中性子欠損核に対して、大局的理論は 53%の核種の半減期を 2 倍以内で、86%の核種を 10 倍以内で再現することが知られている。$^{124-130}$La についての計算結果は 3 倍以内で実験値と一致しており、大局的理論のこの特徴と矛盾しない。しかしながら、Tachibana *et al.* の質量公式の予測する Q_{EC}を用いた場合よりも、実験値を用いたときの方が若干再現性が悪くなる傾向が見られる。計算値が実験値と比べ系統的に短めになっていることと併せて、この事実は

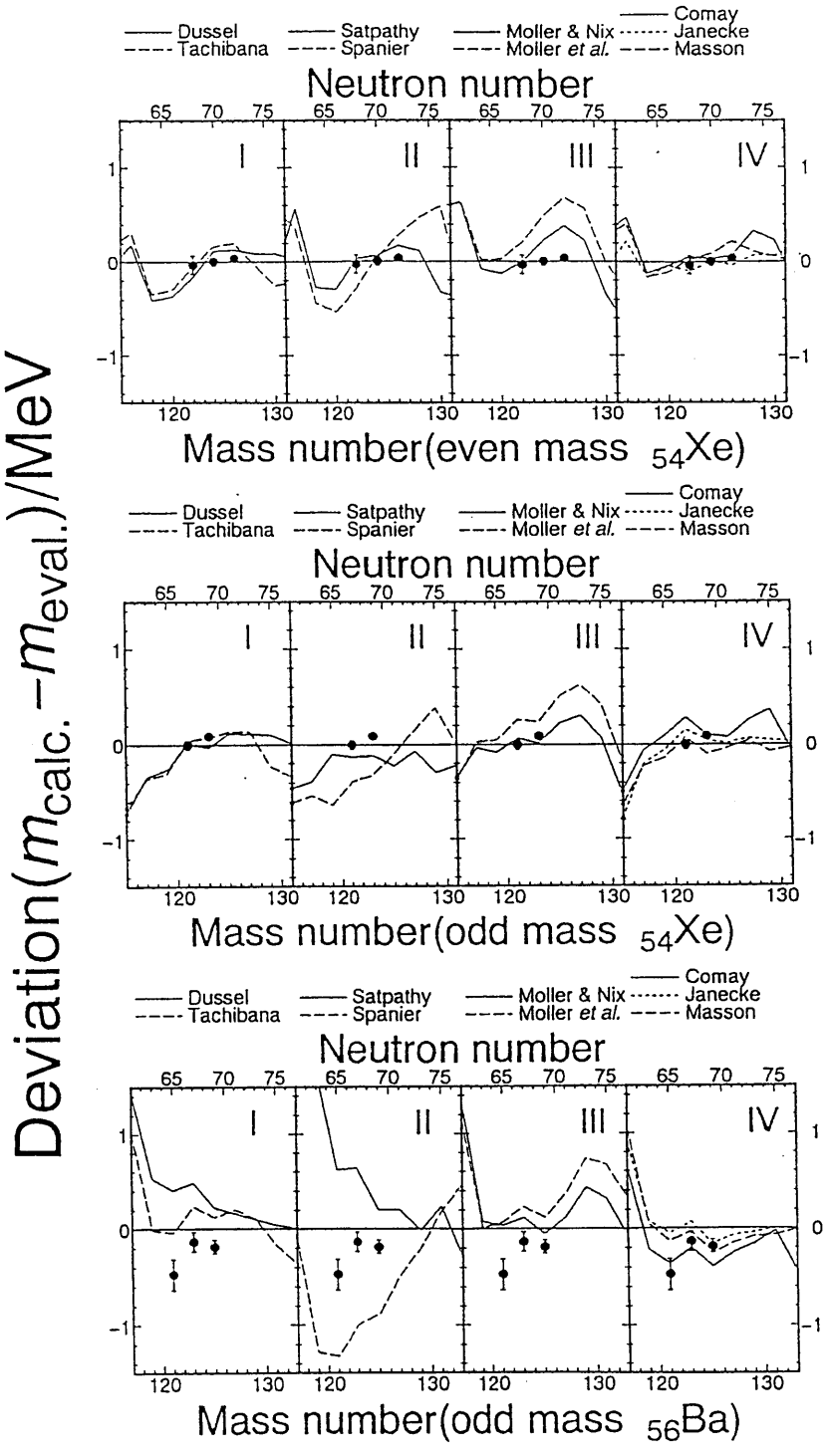

Fig. 5.2: Deviation of the experimental atomic masses, m_{exp}, and the calculated values by mass formulas, m_{calc}, from the evaluated values, m_{eval}, of $_{54}$Xe and $_{56}$Ba isotopes by Audi and Wapstra. [5] (Taken from ref. [39].)

理論に改善の余地が残っていることを示している。

ところで半減期の理論計算結果は入力値として用いるQ_{EC}に強く依存する。Fig. 5.3には、Q_{EC}を変化させたときの、$^{124-130}$La の理論半減期を示す。図から分かるように、この原子核領域では 1 MeV のQ_{EC}の変化に伴い、半減期が 3 倍程度変動する。半減期の理論計算が原子核工学や天体核物理学等で必要とされる場合、その核種の多くは極めて不安定である。このような原子核の質量すなわちQ_{β}は未知のものが多いので、入力値としては質量公式の予測値を利用することになる。ところが不安定核に対する質量公式の精度は、既に Fig. 5.1 で見たように、数 100 keV から 1 MeV、あるいはそれ以上である。従ってβ崩壊の理論を用いる際には、実験的にその信頼性が確認された質量公式の予測値を、その入力値として用いることが極めて重要である。

Table 5.2 には、微視的模型の 1 つである陽子・中性子準粒子基底における乱雑位相近似模型 (pn-QRPA: proton-neutron Quasiparticle Random-Phase Approximation) による半減期の計算値も示した [89]。この理論値も広く用いられているが、^{126}La を除いて大局的理論で計算した値よりも、さらに短い半減期になっている。この計算においては、Möller *et al.* の質量公式 [15] が予測しているQ_{EC}を、入力値として用いている。これは実験値と比べ全般的に小さい値である。従って本研究で得たQ_{EC}を基に pn-QRPA で計算すれば、半減期の再現性はさらに悪くなる。

5.3 核構造

本研究で得た$^{124-130}$La の原子質量を用いて、2 中性子分離エネルギー$S_{2\mathrm{n}}$を下式から求めた。

$$S_{2\mathrm{n}} = -M(A,Z) + M(A-2,Z) + 2m_{\mathrm{n}}$$

ここで$M(A,Z)$は質量数 A、原子番号 Z の核種の原子質量であり、m_{n}は中性子の質量である。この式から明らかなように、$S_{2\mathrm{n}}$はある原子核から 2 個の中性子を取り去るのに必要なエネルギーである。この物理量は 2 つの中性子が対になることで得るエネルギー（対エネルギー）の効果を帳消しにしているので、陽子数を一定としたときの原子質量の系統性を見るのに便利である。

Fig. 5.4 に得られた La の$S_{2\mathrm{n}}$を、その周辺核種の値とともに示す。$S_{2\mathrm{n}}$は中性子数が増加することに伴い、ほぼ滑らかに減少しているが、^{129}La で変化が見られた。滑らかな傾向からのずれは約 300 keV で、これは実験誤差の 2 倍を超える。このずれは、Fig. 4.17 で見られるように、^{129,130}La の原子質量は評価値と良く一致しているが、^{128}La で突然評価値よりも実験値が大きくなっていることに関係する。Audi and Wapstra の評価値は、周辺核種の原子質量との系統性、整合性に重点を置いて決められている。これからのずれが観測されたという事実は、^{128}La と^{129}La の間で基底状態の核構造に何らかの変化が生じている可能性を示している。このような現象は、γ線や励起準位の研究からは報告されておらず、今回Q_{EC}を測定することで初めて見い出せた。

滑らかな減少傾向からのずれは^{136}Pm の周辺でも測定されている。また^{127}Ba でもわずかではあるが、ずれが見られる。$S_{2\mathrm{n}}$の不規則な変化は、Fig. 5.4 の点線で示したような位置で起きているように見える。残念ながら、^{129}La と^{136}Pm の間の中性子欠損 Ce, Pr, Nd 同位体では、原子質量の測定値はほとんどない。質量数 130 近傍の中性子欠損

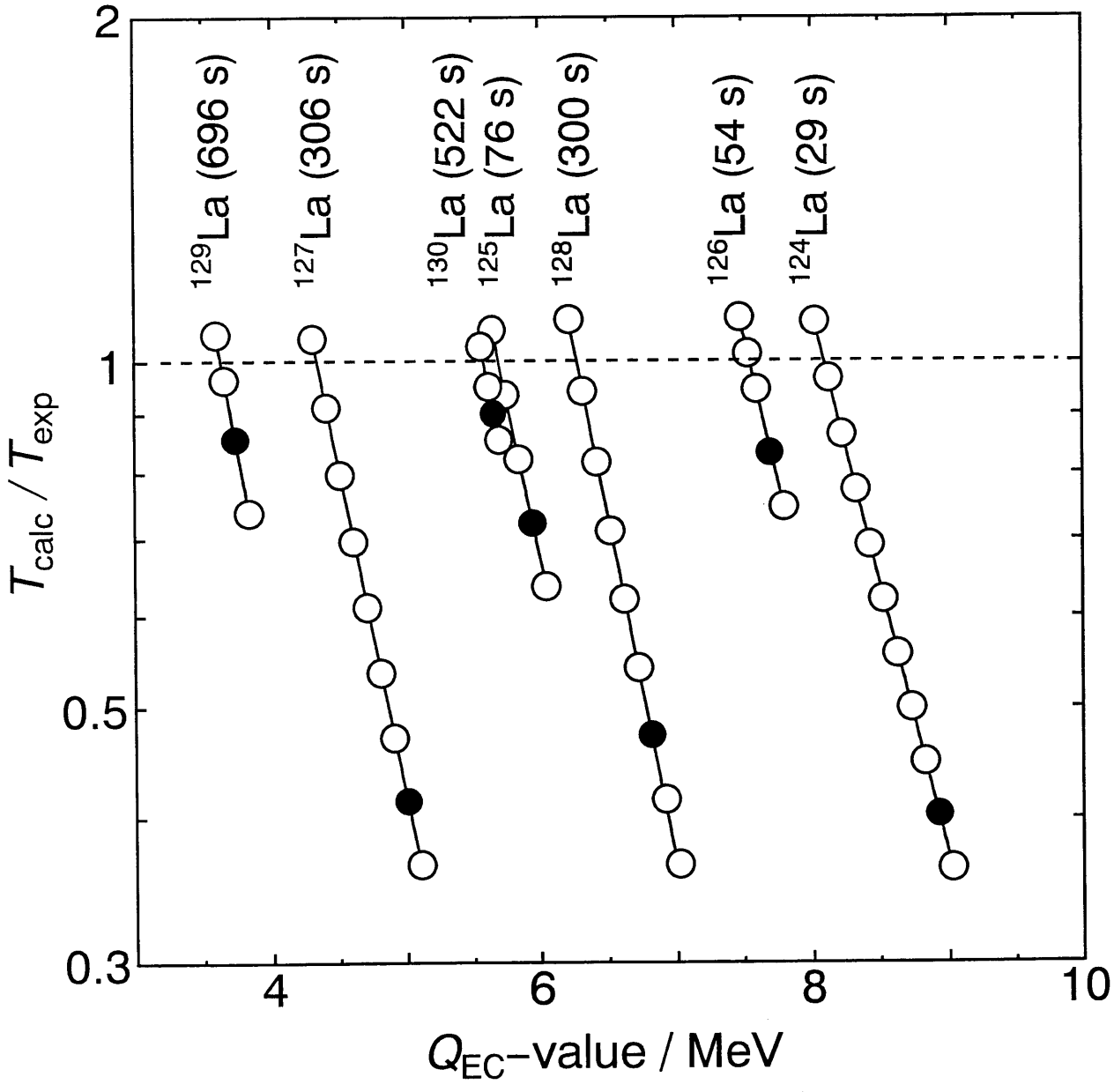

Fig. 5.3: Ratio between the half-lives calculated by the revised gross theory and the experimental values for $^{124-130}$La as a function of the Q_{EC}-values. Closed circles represent the half-lives calculated for the experimental Q_{EC}-values. The experimental half-life of each nuclide is shown in the parenthesis.

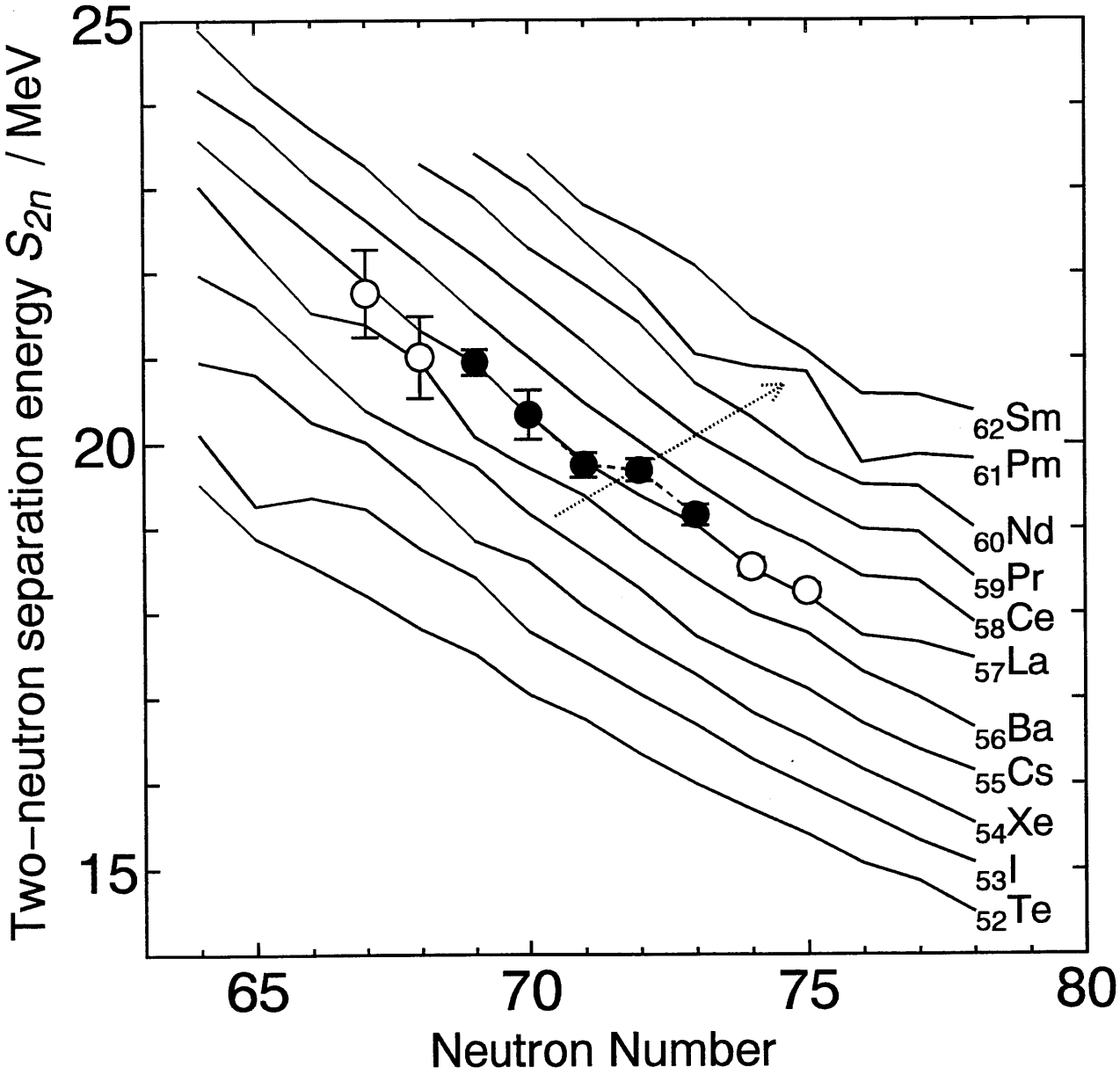

Fig. 5.4: Systematics of two-neutron separation energies S_{2n} in an atomic region of $52 \leq Z \leq 62$. Closed circles represent experimental values of $_{57}$La isotopes derived from the present study. Open circles show values obtained from the experimental and the evaluated masses of La isotopes. Solid lines are derived from the evaluated values by Audi and Wapstra. [5] The enhancement of S_{2n} may occur around a dotted arrow.

滑らかな減少傾向からのずれは^{136}Pmの周辺でも測定されている。また^{127}Baでもわずかではあるが、ずれが見られる。S_{2n}の不規則な変化は、Fig. 5.4の点線で示したような位置で起きているように見える。残念ながら、^{129}Laと^{136}Pmの間の中性子欠損Ce, Pr, Nd同位体では、原子質量の測定値はほとんどない。質量数130近傍の中性子欠損希土類核での原子核構造の変化をさらに調べ、何が起きているのかを明らかにするためには、これらの同位体のQ_{EC}を測定する必要がある。

第6章　結論

不安定核の原子質量を決定する目的で、中性子欠損核$^{124-130}$Laのβ崩壊エネルギーの測定を行った。これらの核種のβ崩壊エネルギーは9 MeV程度にまで及び、従来は精度良く決定することは困難であると考えられていた。本研究では、9 MeVまでのβ崩壊エネルギーを精度良く、しかも高い信頼性で決定するために、β線測定器としてのHPGe検出器の基礎特性を実験的に調べた。本研究で得られた成果は以下の通りである。

1. 疑似単色電子・陽電子線を発生させる装置を開発し、9 MeVまでのHPGe検出器の応答関数を実験的に決定した。

検出器の基礎特性として知っておくことが不可欠な単色電子及び陽電子線に対する応答関数を9 MeVまでのエネルギー領域で測定した。この実験を行うために、京都大学原子炉実験所の電子線形加速器を用いてカスケードシャワーによって発生させた連続電子・陽電子線から疑似単色線を得るために3台の永久磁石と1台の電磁石を含むビーム輸送系を設計・製作した。エネルギー分解能は最良の条件で1%程度であり、応答関数を測定するためには十分な性能を持つ。

6 ～ 9 MeVのエネルギー範囲で3台のHPGe検出器に対する応答関数を測定した。既に測定されていた4.5 MeVまでの結果と合わせて、応答関数のエネルギー依存性を明らかにした。得られた応答関数の形状及び検出効率の高さから、ゲルマニウム結晶の大きさが25 mm$^{\phi}$ × 13 mm^{t}の検出器が、β線測定に最も適することが分かった。さらにモンテカルロ計算コードEGS4を用いて応答関数を求めた。しかし、それは実験値と一致しなかった。原因は明らかではないが、1つの可能性として、ゲルマニウム結晶内で生成した電子・正孔対が、不十分にしか電極に収集されていないことが考えられる。

2. 実験的に求めた応答関数を用いれば、β崩壊エネルギーを系統誤差50 keV以下で決定できることを明らかにした。

実測した応答関数と、その応答関数を用いたβ線スペクトル解析法の信頼性を評価する目的で、既にその最大エネルギーが精度良く決定されている核種のβ線を測定した。応答関数を用いて実測β線スペクトルを補正した後、Fermi-Kurieプロットしてβ線最大エネルギーを決定した。統計誤差がやや大きいものの、それを考慮に入れても評価値と± 50 keV以内で一致した。また、応答関数で補正することでFermi-Kurieプロットが、エンドポイントから1 MeV程度のエネルギー範囲内では直線になる、つまり理論的なスペクトルと同一になることを確認した。以上のことから、実測した応答関数は正しいものであり、これを用いることで系

統誤差 50 keV 以内でβ崩壊エネルギーを決定可能であることが分かった。このことは、質量数 100 近傍の核種を対象とした測定に本手法を適用した場合、精度 $\Delta M/M = 10^{-6}$以内で原子質量を決定できることを意味する。この精度は現時点での世界最高水準にほぼ匹敵する値であり、装置の使い勝手の良さと併せて考えると、HPGe 検出器によるβ崩壊エネルギーの測定は不安定核の質量測定を行うための強力な手法であると結論される。

3. 中性子欠損核$^{124-127,130}$La の Q_{EC}を初めて決定し、^{128,129}La の Q_{EC}の測定精度を向上させた。

日本原子力研究所高崎研究所に設置されたオンライン同位体分離装置 TIARA-ISOL で生成・分離した短寿命中性子欠損核$^{124-130}$La のβ^+線を測定した。β^+線の解析に必要な崩壊図式を作成するためにγ線の測定も同時に行った。^{126}La では新たに 100 本以上のγ線を組み込んだ詳細な崩壊図式を作成した。新たに作成した、または既に発表されていた崩壊図式を基にβ^+線スペクトルを解析して、軌道電子捕獲崩壊エネルギー Q_{EC}を決定した。得られた値のうち、^{128,129}La の Q_{EC}は、誤差の範囲内で過去に報告された値と一致しており、しかもその精度は向上した。$^{124-127,130}$La の Q_{EC}は本研究で実験的に初めて決定された。

4. 中性子欠損$_{56}$Ba 領域とは対照的に、$^{124-128}_{57}$La の原子質量は評価値より 100-300 keV 重いことを明らかにした。

今回得られた Q_{EC}を、既に実験的に決定されていた Ba の原子質量と組み合わせて、$^{124-130}$La の原子質量を 10^{-6}程度の精度で決定した。その結果$^{124-128}$La は Audi and Wapstra が系統性を基に評価していた値に比べ、100 ~ 300 keV 程度重いことが分かった。これは、これまでに Ba 領域で観測されていたずれ方—評価値の方が 100 ~ 500 keV 重い—とは異なる傾向である。質量の評価値は多くの核データベースや核計算において基礎データとして利用されている。それらの信頼性を上げるために、本研究で得られた値を用いて再評価がなされるべきである。

5. Tachibana *et al.* の質量公式が実験値を最も良く再現しているが、半減期の予測にはβ崩壊理論の改善が必要であることを明らかにした。

$^{124-130}$La の原子質量を、10 種類の質量公式と比較しその予測能力を調べた。その結果、Tachibana *et al.*, Jänecke *et al.* 及び Masson *et al.* の質量公式の予測値が実験値と良く一致していることが分かった。一種の系統性に基づいているこれらの公式は、Ba や Cs 同位体に対しても実験値を比較的良く再現しており、不安定な中性子欠損軽希土類核の未知質量を推定する際にはこれらの予測値の使用が推奨できる。ただし、陽子ドリップライン近傍に位置する極めて不安定な核種に対する有効性は明らかではなく、今後の研究が必要である。

実験で得た Q_{EC}を入力値としてβ崩壊の大局的理論を用いて計算した$^{124-130}$La の半減期は、3 倍以内で実測値と一致したものの、全ての計算値が短めになっていることが分かった。このことは核構造の何らかの効果が理論に十分に取り入れ

られていないことを示唆している。理論の改善が望まれる。また半減期の計算値は入力値であるQ_{EC}に強く依存する。従って長寿命核種の消滅処理や宇宙での元素合成過程の解明などの分野で、半減期の理論値を利用する場合は、実験値との比較等を通じて良い予測能力を持つことが確認されている質量公式を用いるべきである。

6. 2中性子分離エネルギーの系統性から、^{128}La周辺での核構造の変化の可能性を強く示唆する結果を得た。

2中性子分離エネルギーの系統性を調べた。その結果、^{128}Laのところで滑らかな傾向からのずれが見られた。これは$^{124-128}$Laの質量が系統的に評価値からずれることに対応しており、^{128}Laの周辺で核構造に変化が起きていることを強く示唆している。このような現象はこれまで報告されておらず、基底状態の核子の結合エネルギーを反映する原子質量を測定することで、初めて見い出せた。今後、実験データのないCe, Pr, Nd等の質量測定を行いその系統性を調べることで、この変化に関連して核構造に関する新しい知見が得られる可能性があり、興味深い。

本研究は、HPGe検出器によるβ崩壊エネルギーの測定が、不安定核の原子質量測定法として、精度の点でも信頼性の点でも最も優れた方法の1つであることを示した。この方法は原理的にはβ崩壊する全ての原子核、実用上は数mb程度以上の断面積で生成が可能な核種に対して適用可能である。今後、この手法を用いて系統的なβ線測定を行うことで、基礎核データとしての原子質量の量的、質的な充実が期待できる。

本研究の発展として、次のようなことが考えられる。

7. エネルギー的に近接した励起準位に遷移するβ線スペクトルの解析を行うための手法を開発し、中性子欠損Ce同位体のQ_{EC}を測定する。

^{128}La周辺で観測された基底状態での核構造の変化の可能性をさらに調べるためには、質量数130近傍の中性子欠損Ce, Pr, Nd等の原子質量の測定が必要となる。その第1段階としては、その娘核種であるLaの原子質量が本研究で決定されたCe同位体が測定対象となろう。この場合に問題となることとしては、質量数が偶数の$_{58}$Ce同位体は、励起準位が極めて複雑な奇奇核[1]である$_{57}$La同位体にβ^+崩壊することが挙げられる。このことは、エネルギー的に近接した複数の励起準位[2]にβ^+線が遷移することを意味するので、Fermi-Kurieプロットしたときに直線部分がほとんど現れないことになり、やや深刻である。これを解決するためには複数成分のβ線が混じったスペクトルを解析する手法—多成分解析— の開発

[1]陽子数、中性子数がともに奇数の原子核

[2]核種によって異なるが、奇奇核では数10 keVあるいはそれ以下のエネルギー間隔の励起準位に、強くβ崩壊することが珍しくない。本研究で解析した$^{124-130}$Laのβ線スペクトルでは、少なくとも200 keV以上の準位間隔があったことと比べると、奇奇核が複雑であることが分かる。

が必要である。具体的にはFermi-Kurieプロットを直線ではなく、折れ線（直線が曲がる位置は崩壊図式から知ることができる。）でフィッティングする方法のほか、理論β線スペクトルを応答関数で畳み込んだスペクトルと、実測したスペクトルとを比較して、エンドポイントを決める方法が考えられる。

8. 本解析法をより精密にするために、応答関数の形状を関数フィッティングする。

応答関数の形状を詳細に分析し、全体をある関数でフィッティングすることで、β線スペクトルの形状補正をより精密化できるため、結果としてβ線最大エネルギーの精度を向上させることが可能になると思われる。このためにはスペクトルの解析法を検討するために、精度良い評価値が報告されている核種のβ線を、統計が極めて良い状態で測定する必要がある。さらにその精密な手法を生かすためには、崩壊エネルギーの決定対象核のβ線を測定する際にも同様の統計上の条件が必要になるという実用上の問題がある。

9. 実測した応答関数を再現するようにモンテカルロ計算コードを改良をする。

本研究によって、モンテカルロ計算によって求めた応答関数は、実測したものとは必ずしも一致しないことが明らかになった。この理由を明らかにし、コードに改良を加え、実測した応答関数を再現できるようにすることは意義が大きい。なぜなら、模擬計算の信頼性が向上することで、応答関数の測定という困難な実験を行う必要がなくなるので、HPGe検出器を用いたβ線最大エネルギーの決定を世界の多くの研究施設で容易に行えるようになる。これにより原子質量に関するデータベースの一層の充実が期待できる。

10. 極限領域に位置する原子核のβ崩壊エネルギーを測定するために、高効率の測定系を開発する。

HPGe検出器は高精度でβ崩壊エネルギーを決定できるが、$\beta-\gamma$同時計数での測定効率は0.1%程度であり高いとは言えない。原子核の存在が確認されている限界領域での測定を行うためには、効率の良い測定系の開発が必要である。このことについては、付録Bで詳細に述べる。

謝辞

本研究を行うに当たり、全般にわたり指導して頂きました名古屋大学大学院工学研究科エネルギー理工学専攻の河出清教授、山本洋助教授に感謝致します。名古屋大学大学院工学研究科エネルギー理工学専攻の高井吉明教授、久木田豊教授、小林敬幸助教授、上杉喜彦助教授には、本論文作成にあたり貴重な助言を頂いたことに感謝します。名古屋大学大学院工学研究科エネルギー理工学専攻の柴田理尋博士には、実験を一緒に行うとともに、研究全般について議論して頂きました。日本原子力研究所物質科学研究部核化学研究室の関根俊明室長、長明彦博士、小泉光生博士にはTIARA-ISOLでの実験において、また私の7か月間の特別研究生の期間中、指導・協力して頂きました。京都大学原子炉実験所の川瀬洋一教授、谷口秋洋博士には、KUR-ISOL及びKURRI-LINACでの実験において指導・協力して頂きました。立教大学の阮建治教授には、KUR-ISOLでの実験を一緒に行って頂きました。早稲田大学理工学総合研究センターの橘孝博助教授には、大局的理論によるβ崩壊半減期の計算結果を提供して頂いたとともに、貴重な議論をして頂きました。日本原子力研究所原子炉工学部高エネルギー中性子研究室の池田裕二郎室長、前川藤夫博士、春日井好己博士には、FNSでのBGO検出器を用いた実験において指導・協力して頂きました。京都大学総合人間学部の毛利明博教授には、カスケードシャワーで生成する電子・陽電子のエネルギー分布に関する模擬計算結果を提供して頂きました。大学院生の浅井雅人氏（現 日本原子力研究所、工学博士)、生田智彦氏（現 工学博士)、廣瀬知明氏、山内浩司氏、内野貴博氏、坂根仁氏には実験及び解析を一緒に行って頂きました。特に浅井雅人氏、生田智彦氏にはそれぞれTIARA-ISOL, KURRI-LINACでの実験に関して計画段階から助言を頂きました。大学院生の鵜野浩行氏には、EGS4によるモンテカルロ計算を一緒に行って頂きました。名古屋大学大学院工学研究科の釣田幸雄技官には、実験装置の製作において全面的に指導して頂きました。この研究の大部分は、大学・原研プロジェクト共同研究「放射線高度利用研究プロジェクト」と、京都大学原子炉実験所との共同研究「不安定核原子質量測定のための基礎研究」及び「KUR-ISOLによる短寿命核分裂生成物の研究」として行われました。日本原子力研究所高崎研究所AVFサイクロトロン、同研究所東海研究所FNS及び京都大学原子炉実験所の電子線形加速器の方々には、安定した強いビームを供給して頂きました。一部のデータ解析は名古屋大学大型計算機センターと文部省核融合科学研究所の大型計算機を使用して行いました。関係者の方々に深く感謝します。

参考文献

[1] M.G. Mayer and J.H.D. Jensen: Elementary theory of nuclear shell structure, (John Wiley & Sons, New York, 1955).

[2] A. Bohr and B.R. Mottelson: Nuclear structure, (Benjamin, New York, 1969).

[3] I. Tanihata, H. Hamagaki, O. Hashimoto, Y. Shida, N. Yoshikawa, K. Sugimoto, O. Yamakawa, T. Kobayashi and N. Takahashi: Phys. Rev. Lett. **55** (1985) 2676.

[4] P.J. Twin, B.M. Nyakó, A.H. Nelson, J. Simpson, M.A. Bentley, H.W. Cranmer-Gordon, P.D. Forsyth, D. Howe, A.R. Mokhtar, J.D. Morrison, J.F. Sharpey-Schafer, G. Sletter: Phys. Rev. Lett. **57** (1986) 811.

[5] G. Audi and A.H. Wapstra: Nucl. Phys. **A595** (1995) 409.

[6] T. Horiguchi, T. Tachibana and J. Katakura: Chart of the Nuclides 1996, (Japan Atomic Energy Research Institute, 1996).

[7] G. Dussel, E. Caurier and A.P. Zuker: Atom. Data Nucl. Data Tables **39** (1988) 205.

[8] P. Möller and J.R. Nix: Atom. Data Nucl. Data Tables **39** (1988) 213.

[9] E. Comay, I. Kelson and A. Zidon: Atom. Data Nucl. Data Tables **39** (1988) 235.

[10] L. Satpathy and R.C. Nayak: Atom. Data Nucl. Data Tables **39** (1988) 241.

[11] T. Tachibana, M. Uno, M. Yamada and S. Yamada: Atom. Data Nucl. Data Tables **39** (1988) 251.

[12] L. Spanier and S.A.E. Johansson: Atom. Data Nucl. Data Tables **39** (1988) 259.

[13] J. Jänecke and P.J. Masson: Atom. Data Nucl. Data Tables **39** (1988) 265.

[14] P.J. Masson and J. Jänecke: Atom. Data Nucl. Data Tables **39** (1988) 273.

[15] P. Möller, J.R. Nix, W.D. Myers and W.J. Swiatecki: Atom. Data Nucl. Data Tables **59** (1995) 185.

[16] Y. Aboussir, J.M. Pearson, A.K. Dutta and F. Tondeur: Atom. Data Nucl. Data Tables **61** (1995) 127.

[17] T. Tachibana, M. Yamada and Y. Yoshida: Prog. Theor. Phys. **84** (1990) 641.

[18] H. Nakata, T. Tachibana and M. Yamada: Nucl. Phys. **A594** (1995) 27.

[19] M. Asai, K. Tsukada, S. Ichikawa, A. Osa, Y. Kojima, M. Shibata, H. Yamamoto, K. Kawade, N. Shinahara, Y. Nagame, H. Iimura, Y. Hatsukawa and I. Nishinaka: J. Phys. Soc. Jpn. **65** (1996) 1135.

[20] S. Ichikawa, K. Tsukada, M. Asai, A. Osa, Y. Oura, Y. Kojima, T. Hirose, M. Shibata, I. Nishinaka, Y. Hatsukawa, H. Iimura, K. Hata, Y. Nagame and K. Kawade: Phys. Rev. **C58** (1998) 1329.

[21] G. Bollen: Nucl. Phys. **A626** (1997) 297c.

[22] A. Gillibert, L. Bianchi, A. Cunsolo, B. Fernandez, A. Foti, J. Gastebois, Ch. Gregoire, W. Mittig, A. Peghaire, Y. Schutz and C. Stephan: Phys. Lett. **176** (1986) 317.

[23] D.J. Vieira, J.M. Wouters, K. Vaziri, R.H. Kraus, Jr., H. Wollnik, G.W. Butler, F.K. Wohn and A.H. Wapstra: Phys. Rev. Lett. **57** (1986) 3253.

[24] M. Chartier, G. Auger, W. Mittig, A. Lépine-Szily, L.K. Fifield, J.M. Casandjian, M. Chabert, J. Fermé, A. Gillibert, M. Lewitowics, M. Mac Cormick, M.H. Moscatello, O.H. Odland, N. Orr, G. Politi, C. Spitaels and A.C.C. Villari: Nucl. Instrum. Methods **B126** (1997) 334.

[25] S. Issmer, M. Fruneau, J.A. Pinston, M. Asghar, D. Barnéoud, J. Genevey, Th. Kerscher and K.E.G. Löbner: Eur. Phys. J. **A2** (1998) 173.

[26] J. Trötscher, K. Balog, H. Eickhoff, B. Franczak, B. Franzke, Y. Fujita, H. Geissel, Ch. Klein, J. Knollmann, A. Kraft, K.E.G. Löbner, A. Magel, G. Münzenberg, A. Przewloka, D. Rosenauer, H. Schäfer, M. Sendor, D.J. Vieira, B. Vogel, Th. Winkelmann and H. Wollnik: Nucl. Instrum. Methods **B70** (1992) 455.

[27] H. Wollnik, K. Beckert, T. Beha, F. Bosch, A. Dolinskii, H. Eickhoff, M. Falch, B. Franzke, Y. Fujita, H. Geissel, M. Hausmann, Th. Horvath, H. Irnich, H.C. Jung, Th. Kerscher, O. Klepper, C. Kozhuharov, G. Kraus, K.E.G. Löbner, G. Münzenberg, F. Nickel, F. Nolden, Yu. Novikov, T. Radon, H. Reich, C. Scheidenberger, B. Schlitt, W. Schwab, A. Schwinn, M. Sümmerer, M. Theiss and T. Winkler: Nucl. Phys. **A626** (1997) 327c.

[28] G. Bollen and the ISOLTRAP Collaboration: Physica Scripta **T59** (1995) 165.

[29] D. Beck, F. Ames, G. Audi, G. Bollen, H.-J. Kluge, A. Kohl, M. König, I. Martel, D. Lunney, R.B. Moore, H. Raimbault-Hartmann, M. de. Saint Simon, E. Schark, S. Schwarz, J. Szerypo and the ISOLDE Collaboration: Hyperfine Interact. **108** (1997) 219.

[30] G. Savard, R.C. Barber, D. Beeching, F. Buchinger, J.E. Crawford, S. Gulick, X. Feng, E. Hagberg, J.C. Hardy, V.T. Koslowsky, J.K.P. Lee, R.B. Moore, K.S. Sharma and M. Watson: Nucl. Phys. **A626** (1997) 353c.

[31] M.D. Lunney, G. Audi, C. Borcea, M. Dedieu, H. Doubre, M. Duma, M. Jacotin, J.-F. Képinski, G. Le Scornet, M. de Saint Simon and C. Thibault: Hyperfine Interact. **99** (1996) 105.

[32] B. Schlitt, K. Beckert, F. Bosch, H. Eickhoff, B. Franzke, Y. Fujita, H. Geissel, M. Hausmann, H. Irnich, O. Klepper, H.-J. Kluge, C. Kozhuharov, G. Kraus, G. Münzenberg, F. Nickel, F. Nolden, Z. Patyk, T. Radon, H. Reich, C. Scheidenberger, W. Schwab, M. Steck, K. Sümmerer, Th. Winkler, T. Beha, M. Falch, Th. Kerscher, K.E.G. Löbner, H.C. Jung, H. Wollnik and Yu. Novikov: Nucl. Phys. **A626** (1997) 315c.

[33] H. Otto, P. Peuser, G. Nyman and E. Roeckl: Nucl. Instrum. Methods **166** (1979) 507.

[34] B.D. Foy, D.S. Brenner, C.N. Davids, D. Seweryniak, D. Blumenthal, R.L. Gill, N.V. Zamfir, D.D. Warner and C.J. Barton: Phys. Rev. **C58** (1998) 749.

[35] H. Keller, R. Kirchner, O. Klepper, E. Roeckl, D. Schardt, R.S. Simon, P. Kleinheinz, C.F. Liang and P. Paris: Nucl. Instrum. Methods **A300** (1991) 67.

[36] R. Decker, K.-D. Wünsch, H. Wollnik, G. Jung, E. Koglin and G. Siegert: Nucl. Instrum. Methods. **192** (1982) 261.

[37] R.C. Greenwood and M.H. Putnam: Nucl. Instrum. Methods **A337** (1993) 106.

[38] T. Ikuta, A. Taniguchi, H. Yamamoto, K. Kawade and Y. Kawase: J. Phys. Soc. Jpn. **64** (1995) 3244.

[39] A. Osa, T. Ikuta, K. Kawade, H. Yamamoto and S. Ichikawa: J. Phys. Soc. Jpn. **65** (1996) 928.

[40] A. Arima and F. Iachello: The interacting boson model, (Cambridge University Press, Cambridge, 1987).

[41] P. Petkov, A. Dewald and W. Andrejtscheff: Phys. Rev. **C51** (1995) 2511.

[42] B.M. Nyakó, J. Gizon, D. Barnéoud, A. Gizon, M. Józsa, W. Klamra, F.A. Beck and J.C. Merdinger: Z. Phys. **A332** (1989) 235.

[43] T. Hayakawa, J. Lu, J. Mukai, T. Saitoh, N. Hasimoto, T. Komatsubara and K. Furuno: Z. Phys. **A352** (1995) 241.

[44] T. Hayakawa, T. Komatsubara, J. Lu, J. Mukai, K. Furuno: Z. Phys. **A358** (1997) 15.

[45] A. Gizon, J. Genevey, B. Weiss, Gh. Căta-Danil, J. Gizon, D. Barnéoud, R. Béraud, D. Bucurescu, T. von Egidy, A. Emsallem, C.F. Liang, P. Paris, I. Penev, A. Plochocki: Z. Phys. **A359** (1997) 11.

[46] M. Asai, T. Sekine, A. Osa, M. Koizumi, Y. Kojima, M. Shibata, H. Yamamoto and K. Kawade: Phys. Rev. **C56** (1997) 3045.

[47] D. Beck, F. Ames, G. Audi, G. Bollen, H.-J. Kluge, A. Kohl, M. König, D. Lunney, I. Martel, R.B. Moore, H. Raimbault-Hartmann, E. Schark, S. Schwarz, M. de. Saint Simon, J. Szerypo and the ISOLDE Collaboration: Nucl. Phys. **A626** (1997) 343c.

[48] D.M. Rehfield and R.B. Moore: Nucl. Instrum. Methods **157** (1978) 365.

[49] C.J. Lister, P.E. Haustein, D.E. Alburger and J.W. Olness: Phys. Rev. **C24** (1981) 260.

[50] M. Shibata, A. Odahara, S. Mitarai, Y. Gono, M. Kidera, K. Miyazaki and T. Kuroyanagi: J. Phys. Soc. Jpn **65** (1996) 3172.

[51] H. Dautet, N. Campeau, J.K.P. Lee, C. Bourgeois, B. Roussière and A. Houdayer: *Proc. of the 7th Int. Conf. on Atomic Masses and Fundamental Constants*, Darmstadt-Seeheim, 1984, (Plenum Press, 1984) p.257.

[52] EG&G ORTEC: Modular Pulse-Processing Electronics and Semiconductor Radiation Detectors, (1997).

[53] A. Osa, T. Ikuta, M. Shibata, M. Miyachi, H. Yamamoto, K. Kawade, Y. Kawase and S. Ichikawa: Nucl. Instrum. Methods **A332** (1993) 169.

[54] H. Yamamoto, K. Takumi and H. Ikegami: Nucl. Instrum. Methods **65** (1968) 253.

[55] 京都大学原子炉実験所　中性子発生装置室: 最近の KURRI-LINAC の現状と研究・教育の成果 (1988).

[56] W.R. Nelson, H. Hirayama and D.W.O. Rogers: SLAC-Rept-265 (1985).

[57] B. Krusche, K.P. Lieb, H. Daniel, T. von Egidy, G. Barreau, H.G. Börner, R. Brissot, C. Hofmeyr and R. Rascher: Nucl. Phys. **A386** (1982) 245.

[58] T. Ikuta, A. Osa, A. Taniguchi, H. Yamamoto and K. Kawade: Nucl. Instrum. Methods **A323** (1992) 697.

[59] H. Noma, F.T. Avignome, III, D.M. Moltz and K.S. Toth: Nucl. Instrum. Methods **211** (1983) 391.

[60] H. Ukon, M. Miyachi, T. Ishii, H. Yamamoto, K. Kawade, T. Katoh, Y. Kawase, K. Okano and J.-Z. Ruan: *Proc. Nucl. Data for Science and Technology*, Mito, 1988 (Saikon, Tokyo, 1988) p.893.

[61] T. Awaya: Nucl. Instrum. Methods **165** (1979) 317.

[62] L. Pages, E. Bertel, H. Joffre and L. Sklavenitis: Atomic Data **4** (1972) 1.

[63] 吉澤康和: 新しい誤差論, 共立出版 (1989).

[64] S. Ichikawa, T. Sekine, M. Oshima, H. Iimura and Y. Nakahara: Nucl. Instrum. Methods **B70** (1992) 93.

[65] K. Okano, Y. Kawase, K. Kawade, H. Yamamoto, M. Hanada, T. Katoh and I. Fujiwara: Nucl. Instrum. Methods **186** (1981) 115.

[66] F. Plasil and M. Blann: Phys. Rev. **C75** (1975) 508.

[67] 馬場澄子, 関根俊明: 計算コード ALICE の内容と使用法, JAERI-memo 7768 (1978).

[68] T. Sekine, A. Osa, M. Koizumi, S. Ichikawa, M. Asai, H. Yamamoto and K. Kawade: Z. Phys. **A349** (1994) 143.

[69] A. Osa, M. Asai, M. Koizumi, T. Sekine, S. Ichikawa, Y. Kojima, H. Yamamoto and K. Kawade: Nucl. Phys. **A588** (1995) 185c.

[70] 市川進一: 希土類核の選択的同位体分離法の研究と未知核種探索への応用, 名古屋大学大学院工学研究科 博士学位論文 (1996).

[71] S. Ichikawa, T. Sekine, H. Iimura, M. Oshima and N. Takahashi: Nucl. Instrum. Methods **A274** (1989) 259.

[72] M. Asai, K. Kawade, H. Yamamoto, A. Osa, M. Koizumi and T. Sekine: Nucl. Instrum. Methods **A398** (1997) 265.

[73] N. Idrissi, A. Gizon, J. Genevey, P. Paris, V. Barci, D. Barnéoud, J. Blachot, D. Bucurescu, R. Duffait, J. Gizon, C.F. Liang and B. Weiss: Z. Phys. **A341** (1992) 427.

[74] H. Iimura, S. Ichikawa, T. Sekine, M. Oshima, N. Shinohara, M. Miyachi, A. Osa, M. Shibata, H. Yamamoto and K. Kawade: JAERI Tandem LINAC & V.D.G. Ann. Rept. (1988) p.136.

[75] 宮地正英: ^{125,127}La および^{127m}Ba の崩壊の研究, 名古屋大学大学院工学研究科 修士論文 (1989).

[76] J. Genevey, A. Gizon, N. Idrissi, B. Weiss, R. Bráud, A. Charvet, R. Duffait, A. Emsallem, M. Meyer, T. Ollivier and N. Redon: *Proc. of 5th. Int. Conf. on Nuclei Far From Stability*, Rosseau Lake, 1987 (AIP, New York, 1988) p.419.

[77] G. Siems, T. Fricke, U. Neuneyer, K. Schiffer, D. Lieberz, M. Eschenauer, I. Wiedenhöver and P. von Brentano: *Proc. Int. Conf. on Atomic Masses and Fundamental Constants*, Bernkastel-Kues, 1992 (IOP, London, 1993) p.675.

[78] 小柳義男, 中川徹: SALS 入門 — 実験データの解析, 東京大学出版会 (1990).

[79] D. Ward, V.P. Janzen, H.R. Andrews, D.C. Radford, G.C. Ball, D. Horn, J.C. Waddington, J.K. Johansson, F. Banville, J. Gascon, S. Monaro, N. Nadon, S. Pilotte, D. Prevost, P. Taras and R. Wyss: Nucl. Phys. **A529** (1991) 315.

[80] 浅井雅人: ^{127}La の崩壊によって放出されるγ線の相対強度の測定, 名古屋大学工学部 卒業論文 (1992).

[81] A.C. Li, I.L Preiss, P.M. Strudler and D.A. Bromley: Phys. Rev. **141** (1966) 1089.

[82] Y. Tendow: Nucl. Data Sheets **77** (1996) 631.

[83] P. Brodeur, B.P. Pathak and S.K. Mark: Z. Phys. **A289** (1979) 289.

[84] R.B. Moore, S.I. Hayakawa and D.M. Rehfield: Nucl. Instrum. Methods **133** (1976) 457.

[85] Yu.V. Sergeenkov: Nucl. Data Sheets **58** (1989) 765.

[86] K. Kirch, G. Siems, M. Eschenauer, A. Gelberg, R. Kühn, A. Mertens, U. Neuneyer, O. Vogel, I. Wiedenhöver, P. von Brentano and T. Otsuka: Nucl. Phys. **A587** (1995) 211.

[87] P.E. Haustein: Atom. Data Nucl. Data Tables **39** (1988) 185.

[88] 橘孝博, 宇野正宏: 核データニュース No.49 (1994) p.42.

[89] P. Möller J.R. Nix and K.-L. Kratz: Atom. Data Nucl. Data Tables **66** (1997) 131.

付 録A　β崩壊の理論

原子核のβ崩壊は、原子核内での弱い相互作用の結果起こる現象である。もし崩壊によって放出される粒子がβ粒子（電子または陽電子）のみであれば、エネルギー及び運動量保存則から考えて、その運動エネルギーは一定値であるはずである。ところが実際には連続なエネルギー分布を示し、最大エネルギーの場合を除いては、β粒子のエネルギーは常に質量差から計算された値よりも小さい。Pauli は、この失われたエネルギーはニュートリノ（neutrino: 中性微子）と呼ばれる質量を持たない粒子によって持ち出されるとする仮説を提案した[1]。Fermi はその仮説に基づいてβ崩壊の理論を構築した。それによるとβ線スペクトルは次のような形をしている。

$$N(W)dW \quad \propto \quad F(\pm Z, W)pW(W_{\max} - W)^2 dW \qquad \text{for} \quad \beta^{\mp}\text{decay} \tag{A.1}$$

ここで Z は娘核の原子番号、p はβ粒子の運動量、W は全エネルギー（運動エネルギーと静止質量エネルギーの和）、$W_{\max}$は最大エネルギーである。また、$F(\pm Z, W)$ は Fermi 関数と呼ばれ、放出されるβ粒子に対する原子核の Coulomb 場の影響を表す。原子核の電荷分布を点状であると近似することで Fermi 関数は

$$\begin{aligned} F(\pm Z, W) \quad &= \quad 2(1+\gamma_0)(2pR/\hbar)^{-2(1-\gamma_0)} e^{\pi\nu} |\Gamma(\gamma_0 + i\nu)|^2 [\Gamma(2\gamma_0 + 1)]^2 \\ &\gamma_0 = \sqrt{1-(\alpha Z)^2}, \qquad \nu = \pm\alpha ZW/cp \end{aligned} \tag{A.2}$$

と書ける。ここで R は原子核半径、αは微細構造定数、c は光速である。この近似は原子番号の大きい核種のβ崩壊における、低エネルギー部分のスペクトル以外では良く成り立っていることが知られている。

式 (A.1) から、

$$\sqrt{\frac{N(W)p}{f(\pm Z, W)W}} \propto E_{\max} - E \tag{A.3}$$

が得られる。ここで $f = p^2$ F であり、$E_{\max}$及び E はそれぞれβ粒子の最大運動エネルギー、運動エネルギーを表す。これから縦軸に式 (A.3) の左辺を、横軸にβ粒子の運動

[1]最近、東京大学宇宙線研究所の神岡宇宙素粒子研究施設に設置された 50000 トン水チェレンコフ光検出器 (スーパーカミオカンデ) を用いた太陽及び大気ニュートリノの測定から、ニュートリノ振動が起こっていると確認され、ニュートリノにも質量があることが明らかになった。しかし、その質量は極めて小さいため、本論文で取り扱う範囲内では影響はない。

エネルギーをプロットすると、それは直線になり、横軸との交点がβ線最大エネルギーを与えることが分かる。このような図をFermi-Kurieプロットと呼ぶ。

ところでFermiの理論(A.1)で考えたβ遷移は、崩壊前後の核スピンの変化ΔIが0で、しかもパリティ変化がない場合である。このような遷移をFermi型の許容遷移と呼ぶ。実際にはTable A.1に示すように高次の遷移が存在する。その場合、スペクトルの形は式(A.3)とは異なり、左辺の平方根の分母に補正係数(shape factorと呼ばれる。)を掛けることにより、Fermi-Kurieプロットが直線になることが、実験的にも理論的にも証明されている。例えば単一型の禁止遷移における補正係数(a_i: iは禁止度を表す。)は近似的に次のように表せる。

$$a_1 = (W^2-1)+(W_{\max}-W)^2 \tag{A.4}$$

$$a_2 = (W^2-1)^2+(W_{\max}-W)^4+\frac{10}{3}(W^2-1)(W_{\max}-W)^2 \tag{A.5}$$

$$a_3 = (W^2-1)^3+(W_{\max}-W)^2+7(W^2-1)(W_{\max}-W)^2 \times\left[(W^2-1)+(W_{\max}-W)^2\right] \tag{A.6}$$

単一型の禁止遷移であることが分かっている場合のβ線スペクトル解析は次のようにして行う。まず補正係数を用いないでFermi-Kurieプロットを行い、直線フィッティングから第0次の最大エネルギーを決定する。次にこの値を用いて補正係数を含めたFermi-Kurieプロットを作成し、再び最大エネルギーを求める。これを数回繰り返し最終的な値を得る。

一方、非単一型の第1禁止遷移では大部分のβ線スペクトルは許容遷移と同様の形、すなわち補正係数を用いなくてもFermi-Kurieプロットが直線になることが知られている。これは、この型の遷移を表す核行列要素の主要部分がβ粒子のエネルギーに依存しないからである。

Table A.1: Selection rule of β decay

Transition		Spin change	Parity change
Allowed		0, 1	No
First forbidden	non-unique	0, 1	Yes
	unique	2	Yes
Second forbidden	non-unique	2	No
	unique	3	No
Third forbidden	non-unique	3	Yes
	unique	4	Yes

付録Aは全般にわたり、下記の文献を参考にした。

[A-1] K. Siegbahn: Alpha-, beta- and gamma-ray spectroscopy, (North Holland, Amsterdam, 1968).

[A-2] 山田勝美, 森田正人, 藤井昭彦: ベータ崩壊と弱い相互作用 (培風館, 東京, 1974).

付 録B　高効率β線検出器の開発

B.1　BGOシンチレータを用いた全吸収型$\beta-\gamma$検出器

不安定核種の原子核構造の統一的理解のために、β安定線からさらに離れた領域でのQ_β測定は不可欠である。また、このような領域では原子質量の予測値が、用いる質量公式によって1 MeV程度ずれることが珍しくないため、これを検定する意味でも重要である。この場合に問題となるのは、測定対象核の生成断面積が小さいために充分なβ線の統計量を得るのが困難であるということである。例えば最近名古屋大学、東京都立大学及び日本原子力研究所東海研究所の共同研究で初めて同定された$^{166-168}$Tb, ^{165}Gd, ^{161}Sm及び^{159}Pmの^{238}U(p, f)反応での生成断面積は10 μbまたはそれ以下である。これは第4章で述べた$^{124-130}$Laを$^{92,94,\mathrm{nat}}$Mo(^{36}Ar, $3pxn$)反応で生成させるときの断面積(10 ~ 100 mb)と比べると、1/1000あるいはそれ以下と極めて小さい。HPGe検出器でβ線を測定する場合、$^{124-130}$Laの測定で得られたのとほぼ同程度の統計量が必要であることを考えると、これら極限領域に位置する原子核のQ_βを従来の方法で測定するのは事実上不可能である。

そこで、より検出効率の高い測定器である大体積BGOシンチレーション検出器を用いてβ崩壊エネルギーの測定を行うことを提案する。BGO検出器の特徴として次のようなことが挙げられる。

1. HPGe検出器に比べ大きな結晶が製作可能。このことによって線源を囲む立体角を大きくすることができ、効率の向上が望める。

2. BGO結晶($Bi_4Ge_3O_{13}$)の原子番号が大きく、しかも密度が大きい(7.3 g/cm^3)ため、単位体積あたりのγ線光電吸収確率が高い。ただし、β線に対しては原子番号が大きいため後方散乱割合が多くなる。

3. 吸湿性がないため、結晶を気密容器に封入する必要がない。これはβ線のエネルギー損失をできる限り減らすために必要な特性である。

4. エネルギー分解能がHPGe検出器に比べ劣る。良い検出器でも1 MeVのγ線に対して10%程度である（HPGe検出器では0.2%程度。）。

これらの特徴を生かすため、2つのBGO結晶で線源を挟み込み、それぞれの結晶からの出力信号を足し合わせる形式の検出器、すなわち全吸収型$\beta-\gamma$検出器をβ線最大エネルギー測定器として利用することを試みた。検出器の概略をFig. B.1に示す。これは核融合炉材料の崩壊熱を測定することを目的に日本原子力研究所東海研究所に設置されている検出器である[B-1]。BGO結晶の大きさはそれぞれ直径120 mm、厚さ

100 mm であり、2 つの結晶表面間の距離を 1 ~ 2 mm 程度にまで近づけることで線源をほぼ 4π で囲むことができる。これは単純に β 線が検出器へ入射する効率を上げるだけでなく、ある一方の結晶で後方に散乱された β 線成分を、反対側の結晶で捕捉することで β 線の全エネルギー吸収効率を上げることに繋がる。つまり、測定で得られる β 線スペクトルは、ほぼ真のスペクトルに近いものになることが期待できる。さらに、γ 線を放出する核種についてはこれも同時に足し合わせる。Table B.1 にモンテカルロ計算コード EGS4 で評価した全吸収型 BGO 検出器の検出効率を、HPGe 検出器のそれと比較して示す。これから分かるように 1000 倍程度の効率上昇が期待でき、極限領域にある原子核の β 崩壊エネルギーの測定も十分可能になる。

Table B.1: A typical detection efficiency of an HPGe detector and a total absorption spectrometer with a sum-type BGO detector.

	BGO detector	HPGe detector
β-ray	100%	10-20%
γ-ray	90%	$< 1\%^{a)}$
Total	90%	$\sim 0.1\%$

$^{a)}$ A γ-ray detection efficiency in a $\beta - \gamma$ coincidence measurement.

Fig. B.2 に測定で得られると期待される加算スペクトルを示す。図に示したような崩壊をする核種について、まず基底状態へ遷移する成分 β_1 を考える。これは既に上で述べたように歪みのない真のスペクトルが得られる。次に娘核の励起準位に遷移する成分 β_2 を考える。この場合、β_2 と励起準位から遷移する γ 線である γ_1 が足し合わされる。上で述べたように、この測定器では β 線だけではなく、γ 線に対しても 100% に近い全エネルギー吸収効率を持っている。従って得られるスペクトルは、β_2 のスペクトルが、励起準位のエネルギー E_1 だけ高い方へずれた形状になると予想される。つまり、いくつかの励起準位へ β 崩壊する核種でも、それぞれの β 遷移のスペクトルの最大エネルギーは、β 崩壊エネルギーに一致することになる。

このように全吸収型 $\beta - \gamma$ 検出器は、単に効率が良いだけでなく、応答関数がほとんど不要で、しかも崩壊図式が分かっていない核種についてさえ、β 崩壊エネルギーを決定できる強力な測定器になり得る。BGO 検出器のエネルギー分解能がそれほど良くないために、得られる β 崩壊エネルギーの精度は、HPGe 検出器を用いて得られる値より劣るが（200 ~ 300 keV 程度になるものと思われる。）、極めて不安定な原子核の質量としては充分意味のある実験データである。

B.2 BGO 検出器による β 線の測定

前節で述べた全吸収型 $\beta - \gamma$ 検出器の有効性を確かめるために、β 線の測定を実際に行った。測定した核種を Table B.2 に示す。このうち、^{32}P, ^{154}Eu 及び ^{68}Ge-^{68}Ga は、購入した液状線源を厚さ 15 μm のマイラー膜上に滴下し、乾燥させた後、テープで挟み線源として用いた。その他の核種は薄膜または粉末の安定同位体を、日本原子力研

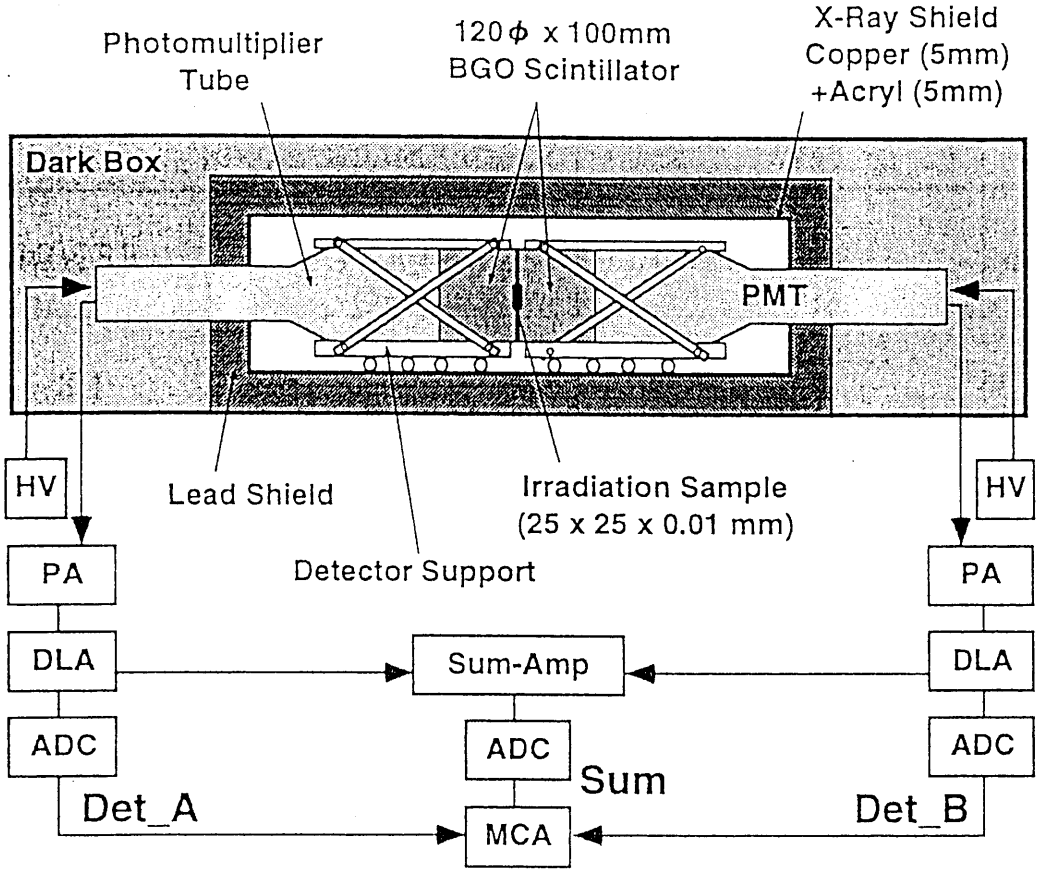

Fig. B.1: A schematic drawing of a measuring system with a total absorption $\beta - \gamma$ spectrometer.

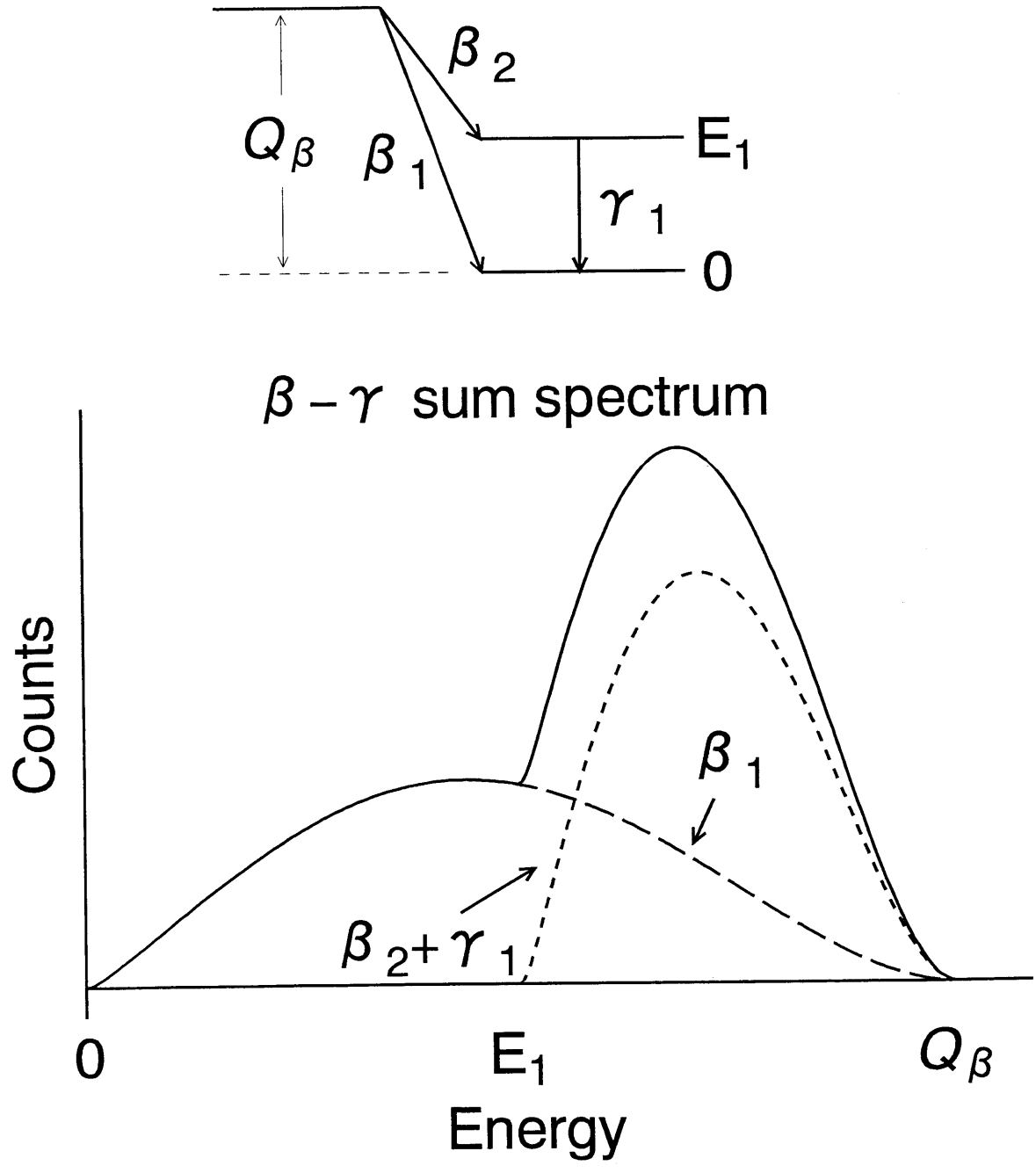

Fig. B.2: A concept of a total absorption $\beta - \gamma$ spectrometer.

究所東海研究所 FNS (Fusion Neutronics Source) で発生させた 14 MeV の中性子で照射し生成させた。中性子フラックスはおよそ 1×10^9 n/cm^{2}s であった。パイルアップをできるだけ減らすために、計数率が 1 kcps 程度になるように照射時間を決めた。測定は 1 核種について数回行い、最後にそれらを足し合わせた。用いた反応及び試料の質量等をまとめて Table B.3 に示す。検出器のエネルギー較正は、ほとんどβ線を放出しない核種のγ線を用いて行った。

Table B.2: Decay properties of measured nuclides.

Nuclide	Decay mode	Half-life	Q_{β^-} or Q_{EC} (keV)
^{32}P	β^-	14.262 d	1710.60(27)
^{154}Eu	β^-	8.593 y	1968.5(11)
^{68}Ge-^{68}Ga	β^+	270.82 d	2921.1(12)
^{27}Mg	β^-	9.458 m	2610.32(17)
^{24}Na	β^-	14.959 h	5515.79(16)
^{56}Mn	β^-	2.58 h	3695.4(3)
^{51}Ti	β^-	5.76 m	2470.7(15)
^{28}Al	β^-	2.24 m	4642.24(14)
^{62}Cu	β^+	9.74 m	3948(4)
^{34m}Cl	β^+	32.00 m	5638.56(16)

Table B.3: List of reactions and samples for production of β-ray sources.

Nuclide	Reaction	Irradiation time (s)	Number of Irradiation	Sample	
				Form	Weight (mg)
^{27}Mg	^{27}Al(n, p)	12	22	Al foil	30
^{24}Na	^{27}Al(n, α)	600	3	Al foil	30
^{56}Mn	^{56}Fe(n, p)	600	2	Fe foil	30
^{51}Ti	^{51}V(n, p)	20	15	V foil	94
^{28}Al	^{28}Si(n, p)	12	20	Si_2O powder	14
^{62}Cu	^{63}Cu(n, $2n$)	10	14	Cu foil	33
^{34m}Cl	^{35}Cl(n, $2n$)	2400	3	CH_2CCl_2 foil	33

β^-線、β^+線スペクトルの例として、^{24}Na 及び ^{34m}Cl を測定して得たスペクトルをそれぞれ Fig. B.3 及び B.4 に示す。 各図には 2 つの結晶からの信号を足し合わせる前のスペクトルも比較のために示した。加算前のスペクトルではγ線のピークが現れているが、加算することによりそれが消えて、最大エネルギー付近での計数が上がっていることが分かる。測定で得た加算スペクトルに対して Fermi-Kurie プロットしたものを Fig. B.5 及び B.6 に示す。 分解能が悪いためにエンドポイント付近で若干のテイルが見られるが、ほぼ直線になっている。フィッティングして得られたエンドポイントは、

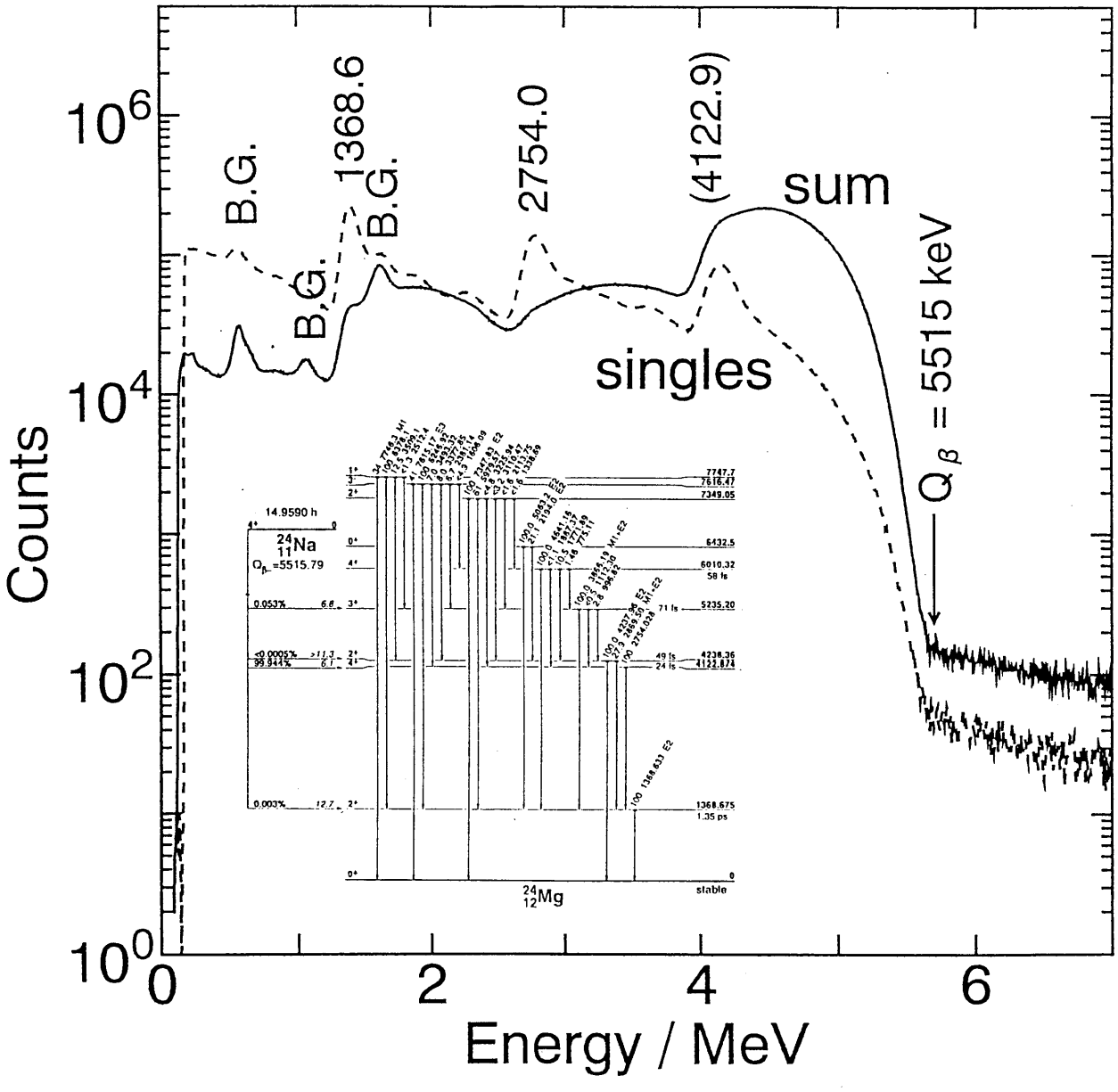

Fig. B.3: A measured spectrum of ^{24}Na with the total absorption $\beta - \gamma$ spectrometer. A label of B.G. means a background γ-ray. A partial decay scheme of ^{24}Na is shown in the inset.

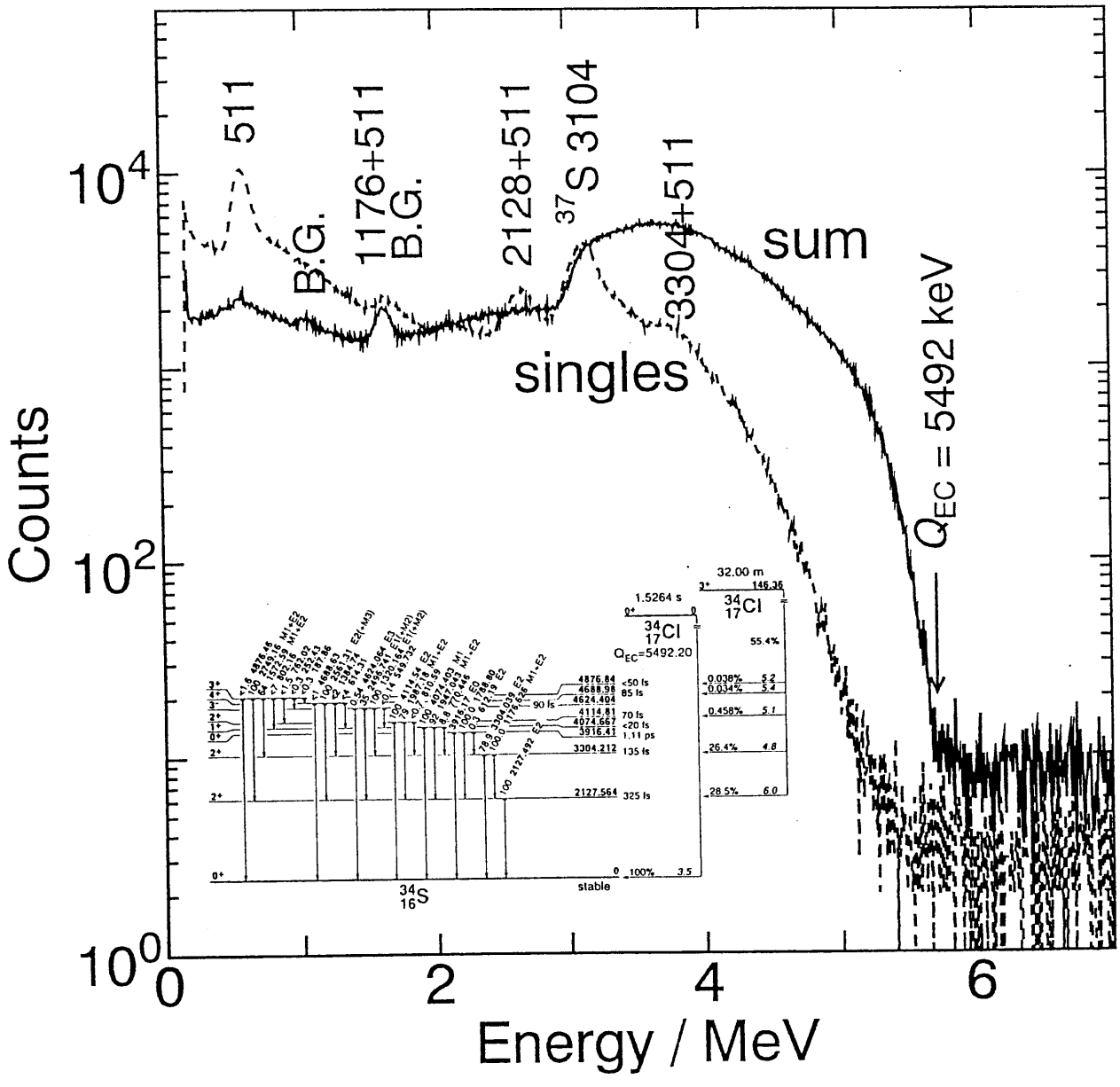

Fig. B.4: A measured spectrum of ^{34m}Cl with the total absorption $\beta - \gamma$ spectrometer. A label of B.G. means a background γ-ray. A partial decay scheme of ^{34m}Cl is shown in the inset.

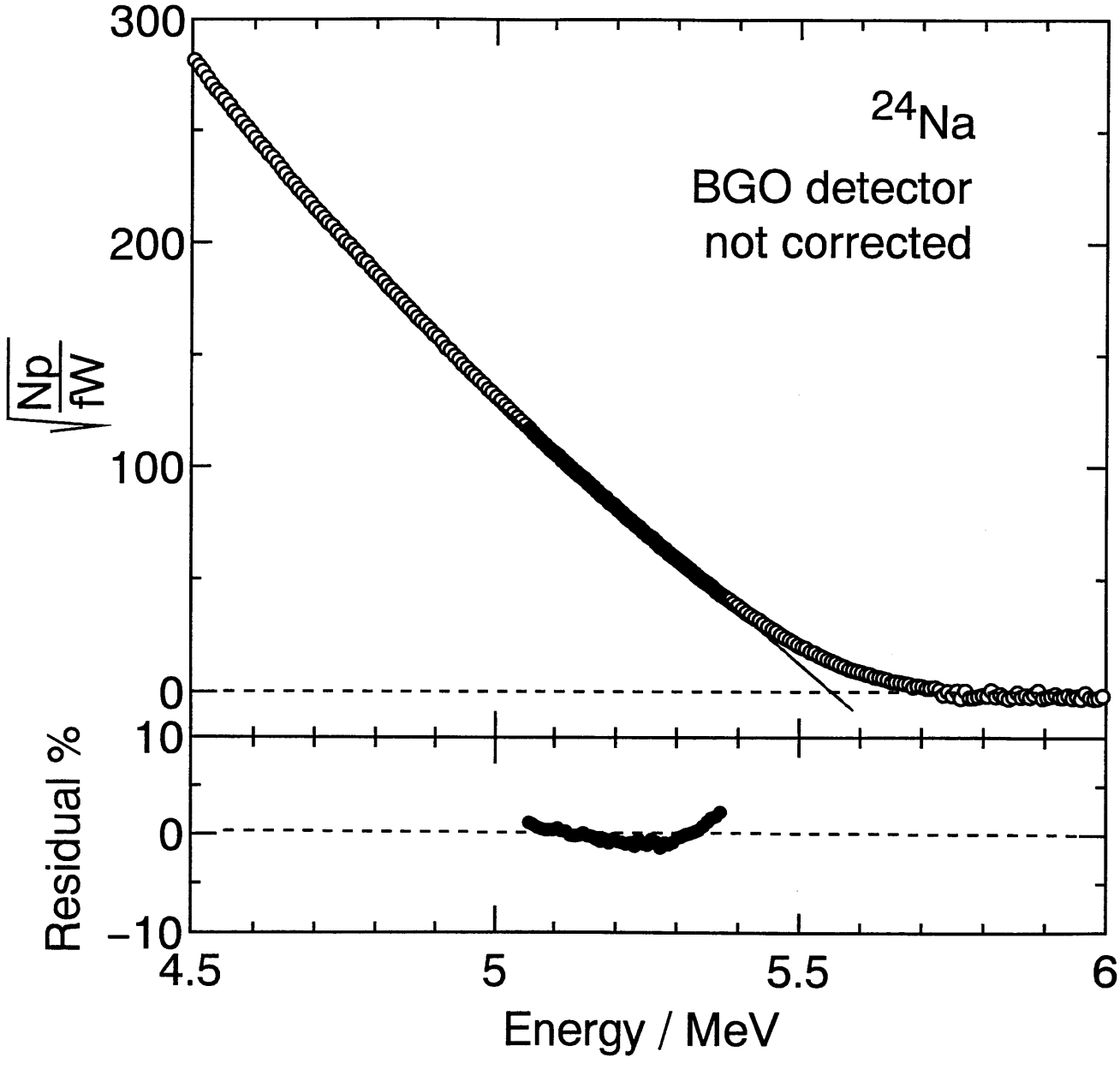

Fig. B.5: A Fermi-Kurie plot of the ^{24}Na spectrum observed with the total absorption $\beta - \gamma$ spectrometer. A fitting range is represented by closed circles.

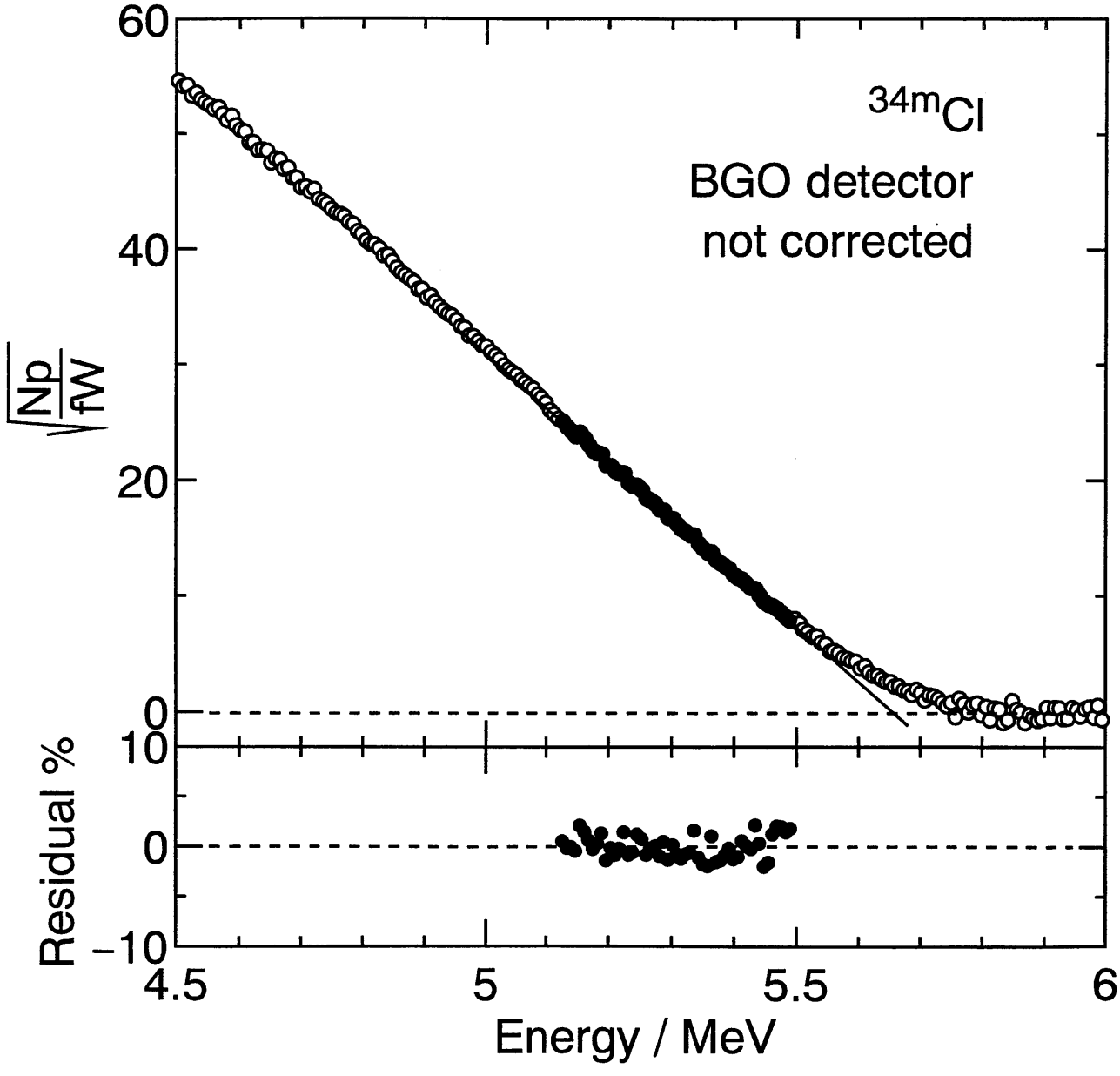

Fig. B.6: A Fermi-Kurie plot of the ^{34m}Cl spectrum observed with the total absorption $\beta - \gamma$ spectrometer. A fitting range is represented by closed circles.

文献値に比べ50 keV程度低い値であった。これはBGO結晶表面に塗布された反射材等によるエネルギー損失が原因であると考えている。

今後、電子・陽電子線及びγ線に対する応答関数の検討や、線源に混入してしまう他核種による影響評価等を行った上で、生成量の少ない不安定核種のβ崩壊エネルギー測定に適用する予定である。具体的には、はじめに述べた$^{166-168}$Tb等の新核種のほか、15ページの脚注で述べたような測定方法によって大きく異なる結果が報告されている^{80}Y等の測定を行うことが興味深い。

また、本検出器は一般に測定が困難である基底状態へのβ遷移強度の決定などへも応用できると思われ、実用化への期待は大きい。さらに将来的には複数の大型HPGe検出器で線源を囲み込んだ形状の、いわゆるクラスター(cluster)型検出器の利用が望まれる。これにより高分解能の測定が可能になる。

[B-1] F. Maekawa and Y. Ikeda: *Proc. 1996 Symp. on Nuclear Data*, 1996 (Tokai, 1996) p.182.

発表論文一覧

副論文

1) Y. Kojima, T. Ikuta, M. Asai, A. Taniguchi, M. Shibata, H. Yamamoto and K. Kawade: Measurement of response functions of HPGe detectors for monoenergetic electrons and positrons in an energy range of 6.0-9.0 MeV. Nucl. Instrum. Methods **B126** (1997) 419-422.

2) Y. Kojima, M. Asai, A. Osa, M. Koizumi, T. Sekine, M. Shibata, H. Yamamoto and K. Kawade: Measurement of Q_{EC} values of ^{126}La isomers. Appl. Radiat. Isot. **49** (1998) 829-834.

3) Y. Kojima, M. Asai, A. Osa, M. Koizumi, T. Sekine, M. Shibata, H. Yamamoto, K. Kawade and T. Tachibana: Q_{EC} measurement of $^{124,125,127-130}$La. J. Phys. Soc. Jpn. (in press).

4) T. Sekine, S. Ichikawa, A. Osa, M. Koizumi, H. Iimura, K. Tsukada, I. Nishinaka, Y. Hatsukawa, Y. Nagame, M. Asai, Y. Kojima, T. Hirose, M. Shibata, H. Yamamoto and K. Kawade: Recent studies of unstable nuclei far from stability with the on-line isotope separators of JAERI. J. Radioanal. Nucl. Chem. (in press).

本論文の第2章は副論文1)を、第3章は副論文4)を、第4章及び第5章は副論文2)及び3)を参考にしている。

参考論文

5) A. Osa, M. Asai, M. Koizumi, T. Sekine, S. Ichikawa, Y. Kojima, H. Yamamoto and K. Kawade: β^+ decay of unstable praseodymium isotopes: ^{127}Pr, ^{126}Pr and the new isotope ^{125}Pr. Nucl. Phys. **A588** (1995) 185c-190c.

6) M. Asai, K. Tsukada, S. Ichikawa, A. Osa, Y. Kojima, M. Shibata, H. Yamamoto, K. Kawade, N. Shinohara, Y. Nagame, H. Iimura, Y. Hatsukawa and I. Nishinaka: Identification of a new isotope ^{166}Tb. J. Phys. Soc. Jpn. **65** (1996) 1135-1138.

7) S. Ichikawa, M. Asai, K. Tsukada, A. Osa, T. Ikuta, N. Shinohara, H. Iimura, Y. Nagame, Y. Hatsukawa, I. Nishinaka, K. Kawade, H. Yamamoto, M. Shibata

and Y. Kojima: Mass separation of neutron-rich isotopes using a gas-jet coupled thermal ion source. Nucl. Instrum. Methods **A374** (1996) 330-334.

8) S. Ichikawa, K. Tsukada, M. Asai, A. Osa, Y. Oura, H. Iimura, Y. Kojima, T. Hirose, I. Nishinaka, Y. Hatsukawa, Y. Nagame, K. Kawade, T. Ohyama and K. Sueki: Search for unknown isotopes using the JAERI-ISOL. Nucl. Instrum. Methods **B126** (1997) 205-208.

9) M. Asai, T. Sekine, A. Osa, M. Koizumi, Y. Kojima, M. Shibata, H. Yamamoto and K. Kawade: Energy systematics of low-lying 0^+ states in neutron-deficient Ba nuclei. Phys. Rev. **C56** (1997) 3045-3053.

10) 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: Half-life of the electron capture decaying isotopes ^{236}Am. Phys. Rev. **C57** (1998) 2057-2060.

11) S. Ichikawa, K. Tsukada, M. Asai, A. Osa, Y. Oura, Y. Kojima, T. Hirose, M. Shibata, I. Nishinaka, Y. Hatsukawa, H. Iimura, K. Hata, Y. Nagame and K. Kawade: β^--decay half-lives of new neutron-rich rare-earth isotopes ^{161}Sm and ^{165}Gd. Phys. Rev. **C58** (1998) 1329-1332.