

2023年度 修士論文

重陽子非弾性散乱を用いた
 ^{12}C の稀ガンマ崩壊モード探索実験
のための標的開発

大阪大学大学院 理学研究科 物理学専攻
原子核実験研究室

本多祐也

概要

${}^4\text{He}$ から ${}^{12}\text{C}$ を生成するトリプルアルファ (3α) 反応は宇宙における元素合成過程において極めて重要な反応のひとつである。この反応では3つの ${}^4\text{He}$ の共鳴状態である 3α 共鳴状態を経由する。これらの 3α 共鳴状態の大半は、元の3つの ${}^4\text{He}$ へと崩壊するが、稀に γ 崩壊して ${}^{12}\text{C}$ を生成する。このため、 3α 共鳴状態の γ 崩壊確率は 3α 反応率を決定する重要なパラメータである。

10^8 K 以下の温度における 3α 反応は、主に Hoyle 状態と呼ばれる 0_2^+ (7.64 MeV) 状態を経由するが、 10^9 K 以上の高温環境下では Hoyle 状態よりも高い励起状態である 3_1^- (9.64 MeV) や 2_2^+ (9.87 MeV) 状態の寄与が大きくなることが指摘されている。しかし、これらの状態に期待される γ 崩壊確率は 10^{-8} – 10^{-6} と非常に小さく、Hoyle 状態以外の 3α 共鳴状態の γ 崩壊確率には大きな不定性が残されている。そのため、高温環境下での 3α 反応率には看過できない不定性が残されており、 3_1^- 、 2_2^+ 状態の γ 崩壊確率の値によっては νp 過程での $A > 80$ の元素合成量の計算結果が10倍以上変化することが指摘されている。

我々は過去に逆運動学反応 ${}^1\text{H}({}^{12}\text{C}, {}^{12}\text{C}^*p)$ から放出される反跳陽子と散乱 ${}^{12}\text{C}$ の同時計測による 3_1^- 状態の γ 崩壊確率測定実験を行った。世界で初めて 3_1^- 状態の γ 崩壊確率を測定したものの、バックグラウンドによる系統誤差が大きく十分な精度を得られなかった。そのバックグラウンドの原因としては、陽子標的として用いたパラ固体水素標的の窓材中の不純物による陽子ロックアウト反応が考えられる。

そこで、我々は標的を水素から重水素に変更し、 3_1^- 状態の γ 崩壊確率の再測定を計画している。この変更によりロックアウト反応に必要な分離エネルギーがおよそ2倍となるため、信号事象とバックグラウンド事象の弁別が容易になる。前回の実験では固体水素標的を使用したのが、ビームの熱による融解が問題となった。そこで本研究では、重水素標的として融解の可能性がない重水素吸蔵チタン (TiD_2) に着目した。しかし、 TiD_2 は重イオンビームの照射実績がなくビーム耐性が不明な点や、Ti によるバックグラウンドの影響などの懸念点がある。このため、我々は東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンターにて TiD_2 の性能評価実験を行った。その結果、0.4 pA のビーム強度では TiD_2 標的を重水素標的として問題なく使用できることが分かった。しかし、Ti 由来のバックグラウンドレートが非常に高く、十分な統計量の 3_1^- 状態の γ 崩壊事象を2週間のビームタイムで得ることが困難であることが分かり、 TiD_2 は不適だと判断した。

我々は、次なる候補として固体重水素標的を検討している。しかし、前回の実験と同じくビームの熱による融解が懸念されるため、本研究では熱伝導方程式を用いて標的の熱負荷の評価を行った。その結果、パラ-オルソ変換を施し、標的セルの温度を7 K にすることができれば、本番で計画している 8.4 pA のビーム強度でも融解を起こさずに実験を行うことができることが明らかになった。また、固体重水素標的の作成試験も行った。前回の実験で使用した我々の冷

却標的システムでは、熱伝導度の問題により標的セルの温度を 10 K 程度までしか冷却できなかった。さらに、本研究では、標的セルを十分に冷却できないことは、ビームの熱による標的の融解を招くだけでなく、均一な固体重水素標的の作成においても障害となることが明らかになった。このため、固体重水素標的を用いた測定を実施するためには、冷却標的システムの改良が必要である。

目次

第 1 章	序論	1
1.1	宇宙における元素合成とトリプルアルファ反応	1
1.1.1	ビッグバン元素合成	1
1.1.2	トリプルアルファ (3α) 反応	2
1.1.3	トリプルアルファ (3α) 反応率と γ 崩壊確率	3
1.1.4	高励起 3α 共鳴状態の重元素合成量への影響	4
1.2	高励起 3α 共鳴状態の γ 崩壊確率	5
1.2.1	^{12}C の高励起 3α 共鳴状態	5
1.2.2	2_2^+ 状態	6
1.2.3	3_1^- 状態	7
1.3	本研究の目的	9
第 2 章	実験計画	10
2.1	測定方法	10
2.2	前回実験の問題点	11
2.3	重水素標的	12
2.3.1	利点	12
2.3.2	標的候補	13
2.4	実験条件最適化のためのシミュレーション	13
2.5	セットアップ	15
2.5.1	反跳重陽子検出器 Gion	15
2.5.1.1	Si 検出器	16
2.5.1.2	GAGG 検出器	16
2.5.2	高分解能磁気スペクトロメータ Grand Raiden	18
2.5.3	焦点面検出器	19
2.5.3.1	MWDC	19
2.5.3.2	プラスチックシンチレータ	20
2.5.4	標的	21
2.5.5	^{12}C ビーム	21

第 3 章	重水素吸蔵チタン (TiD₂) 標的	22
3.1	水素化物	22
3.1.1	共有結合性水素化物	22
3.1.2	イオン結合性水素化物	23
3.1.3	金属結合性水素化物	23
3.2	重水素化物・三重水素化物	23
3.3	標的に求められる条件	23
3.4	吸蔵元の金属の決定	24
3.5	TiD ₂ の特性・懸念点	25
第 4 章	東北大学 CYRIC における TiD₂ 標的の性能評価実験	26
4.1	セットアップ	26
4.1.1	標的	28
4.1.2	Gion 検出器	28
4.1.3	前方 Si 検出器	29
4.1.4	ビーム	30
4.1.5	トリガー条件	31
4.1.6	データ収集回路	31
4.2	解析	32
4.2.1	Gion 検出器	32
4.2.1.1	Si 検出器	32
4.2.1.2	GAGG 検出器	34
4.2.1.3	Si 検出器のストリップ選択	37
4.2.2	前方 Si 検出器	38
4.3	結果	38
4.3.1	¹² C の励起エネルギースペクトル	38
4.3.2	各状態の微分断面積	40
4.3.3	TiD ₂ 標的のビーム耐性	41
4.3.4	Ti によるバックグラウンド	42
4.3.5	本実験の実現可能性	43
4.3.6	固体重水素標的を用いた場合のビーム強度	43
第 5 章	固体重水素標的	45
5.1	冷却標的システム	45
5.1.1	冷凍機	45

5.1.2	標的セル	46
5.1.3	Radiation Shield	47
5.2	パラ-オルソ変換	48
5.2.1	パラ・オルソ水素	48
5.2.2	パラ-オルソ重水素	50
5.2.3	パラ-オルソ比	51
5.2.4	パラ-オルソ変換	52
5.2.5	重水素の熱伝導率	53
5.3	熱負荷の評価	54
5.3.1	計算方法	54
5.3.1.1	ビームによる熱	56
5.3.1.2	輻射熱	57
5.3.2	熱負荷の計算結果	59
5.4	作成試験	60
5.4.1	固体重水素作成手順	60
5.4.2	パラ-オルソ変換器	61
5.4.3	作成試験結果	62
5.4.4	冷却標的システムの改善点	64
第6章	まとめと今後の展望	66
	謝辞	68
	参考文献	69

目次

1.1	ビッグバン元素合成の経路と $A = 5, 8$ の壁	1
1.2	トリプルアルファ反応の模式図	2
1.3	トリプルアルファ反応のエネルギーダイアグラム	3
1.4	νp 過程における重元素合成量	5
1.5	^{12}C の準位図	6
1.6	3_1^- 状態の γ 崩壊モード	8
1.7	前回実験における ^{12}C の励起エネルギースペクトル	9
2.1	逆運動学条件下における非弾性散乱	10
2.2	陽子ノックアウト反応	11
2.3	実験セットアップ	15
2.4	Si 検出器	16
2.5	GAGG 検出器	17
2.6	Gion 架台	17
2.7	Grand Raiden の概略図	18
2.8	MWDC の概略図	20
2.9	MWDC のワイヤー形状	20
3.1	元素周期表中の水素化物	22
4.1	CYRIC の施設平面図	27
4.2	TiD ₂ 性能評価実験のセットアップ	27
4.3	TiD ₂ 及び Ti 標的	28
4.4	散乱 ^{12}C と反跳重陽子の放出角度の相関	29
4.5	前方 Si 検出器	30
4.6	データ収集回路の模式図	32
4.7	Gion の Si 検出器の識別番号及び 2 つの座標系	33
4.8	3 種混合 α 線源 (^{148}Gd , ^{241}Am , ^{244}Cm) を用いて得られた典型的な α 粒子の エネルギースペクトル	34
4.9	GAGG 検出器の識別番号	35

4.10	Gion の Si 検出器と GAGG 検出器を用いた $E-\Delta E$ 相関	36
4.11	エネルギーが正しく測定できないイベント	37
4.12	解析でを使用した Gion の Si 検出器の領域	37
4.13	TiD ₂ 標的及び Ti 標的における ¹² C の励起エネルギースペクトル	39
4.14	² H(¹² C, d) ¹² C* 反応測定による ¹² C の励起エネルギースペクトル	39
4.15	0 ₁ ⁺ 状態を励起する非弾性散乱の微分断面積	41
4.16	2 ₁ ⁺ 状態を励起する非弾性散乱の微分断面積	41
4.17	3 ₁ ⁻ 状態を励起する非弾性散乱の微分断面積	41
4.18	3 ₁ ⁻ 状態に対する測定結果についてのシミュレーション結果	41
4.19	ビーム強度とトリガーレートの時間変化	42
4.20	ビーム強度あたりのトリガーレート	42
5.1	冷却標的システム	46
5.2	住友重機械工業製冷凍機 RDK-415D	46
5.3	標的ホルダー及びセル	47
5.4	Radiation Shield	48
5.5	位置及びスピンベクトルの定義	49
5.6	重水素分子及び水素分子の回転準位	51
5.7	重水素分子のパラ-オルソ比の温度依存性	52
5.8	異なるパラ-オルソ比の水素における熱伝導率の温度依存性	54
5.9	熱負荷計算における BW 及び RW の位置	56
5.10	使用したネットワークモデル	57
5.11	固体重水素標的に流入する正味の熱交換量の ϵ_{SDT} 依存性	59
5.12	標的温度の位置依存性	60
5.13	冷却標的システムのガスハンドラー	61
5.14	パラ-オルソ変換器	62
5.15	1 回目の作成結果	63
5.16	ヒーター設置後の作成結果	63
5.17	重水素ガス流入圧力調整後の作成結果	64
5.18	パラ-オルソ変換後の作成結果	64
5.19	標的ホルダー及びセルの延長部分の側面図	65

表目次

2.1	陽子・重陽子の分離エネルギー	12
2.2	NaI(Tl)、CsI(Tl)、GAGG(Ce) の特性	17
2.3	Grand Raiden の仕様	19
2.4	MWDC の仕様	20
2.5	標的の厚さ及び GR の運動量中心	21
2.6	必要なビーム強度	21
3.1	主な金属水素化物の性質	25
4.1	高分解能モードと大強度モードのビーム強度とスポットサイズ	31
4.2	3 種混合 α 粒子源に含まれる核種の α 粒子のエネルギーと相対強度	34
4.3	拡張された Briks の式のフィットパラメータ	37
4.4	解析で除外した Gion の Si 検出器の識別番号	37
4.5	^{12}C の励起エネルギー分解能	40
4.6	TiD ₂ 性能評価実験と Aspelund らの測定の実験条件の比較	41
4.7	Gion 検出器で検出した粒子の割合	43
4.8	性能評価実験と本実験におけるビーム強度及び各種計数率	43
5.1	熱負荷の計算に使用した各種パラメータ	55

第1章

序論

1.1 宇宙における元素合成とトリプルアルファ反応

1.1.1 ビッグバン元素合成

宇宙に存在する全ての元素は陽子と中性子を起点とする原子核反応によって生成された。この宇宙の始まりであるビッグバンの直後には、陽子と中性子を逐次的に捕獲するビッグバン元素合成が行われた。図 1.1 にビッグバン元素合成の経路を示す。図 1.1 に示す通り、ビッグバン元素合成においてはリチウムまでの元素が生成されたと考えられている [1]。しかし、 $A = 5, 8$ には束縛状態をもつ長寿命核が存在しないことから、元素合成が $A = 4, 7$ で停滞してしまう「 $A = 5, 8$ の壁」と呼ばれる元素合成のボトルネックが存在する。そのため、ビッグバン元素合成ではそれ以上の重元素が生成されることはなかった。その $A = 5, 8$ の壁を越え、重元素合成を行うための戸口反応こそがトリプルアルファ反応 (3α) である。

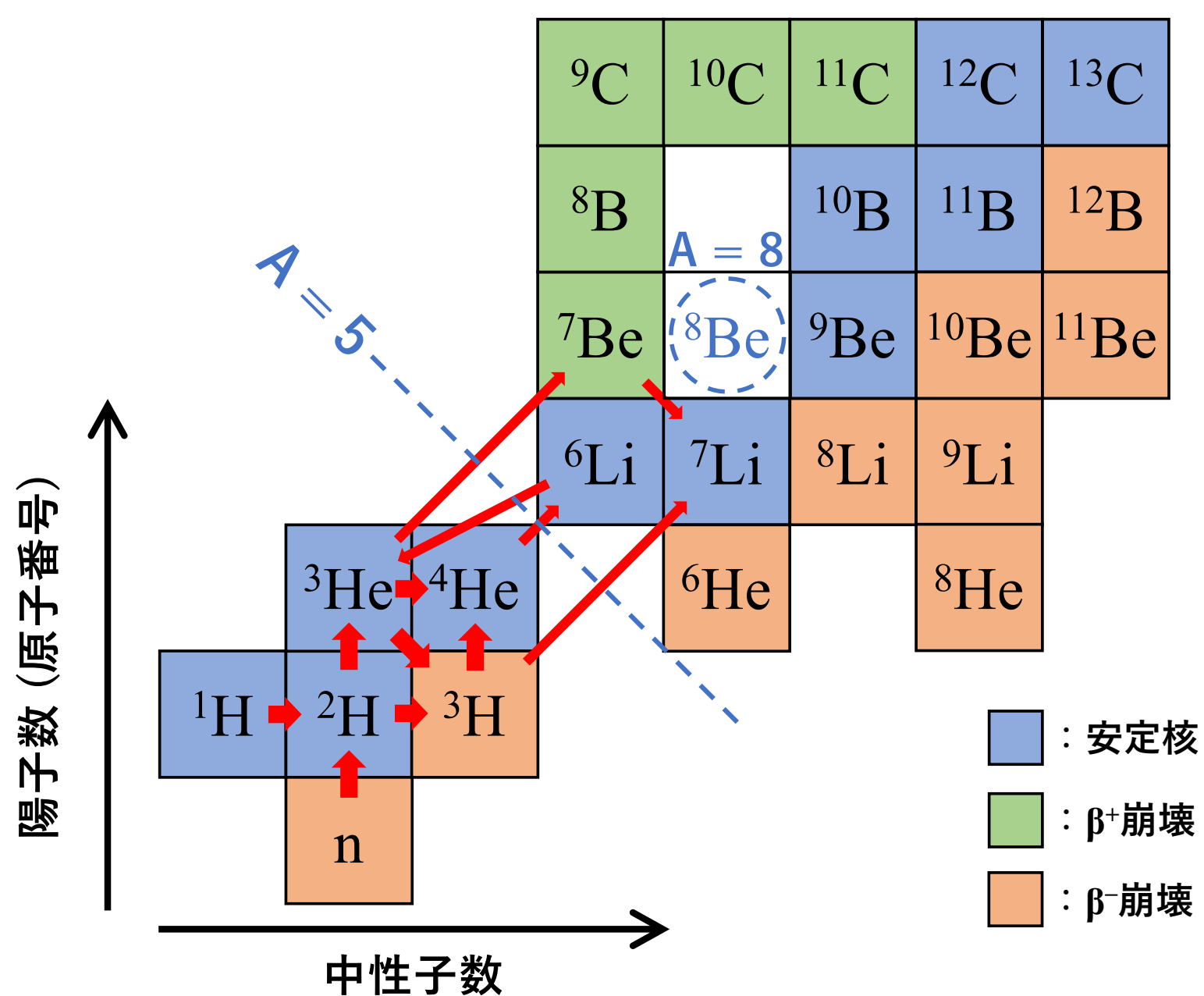


図 1.1：ビッグバン元素合成の経路と $A = 5, 8$ の壁

1.1.2 トリプルアルファ (3α) 反応

3α 反応とは3つの ${}^4\text{He}$ から ${}^{12}\text{C}$ を生成する反応であり、宇宙における元素合成過程において極めて重要な反応のひとつである。図 1.2 に 3α 反応の模式図を示す。2つの ${}^4\text{He}$ (α 粒子) の共鳴状態である ${}^8\text{Be}$ にもう1つの α 粒子が捕獲されることで、3つの α 粒子の共鳴状態 (3α 共鳴状態) が ${}^{12}\text{C}$ の励起状態として生成される。ほとんどの場合、 3α 共鳴状態は、再び3つの α 粒子へ崩壊してしまうが、稀に γ 崩壊して ${}^{12}\text{C}$ の基底状態に遷移する。そのため、 3α 共鳴状態の γ 崩壊確率は、 3α 反応による ${}^{12}\text{C}$ の生成速度に大きな影響を与える重要なパラメータである。

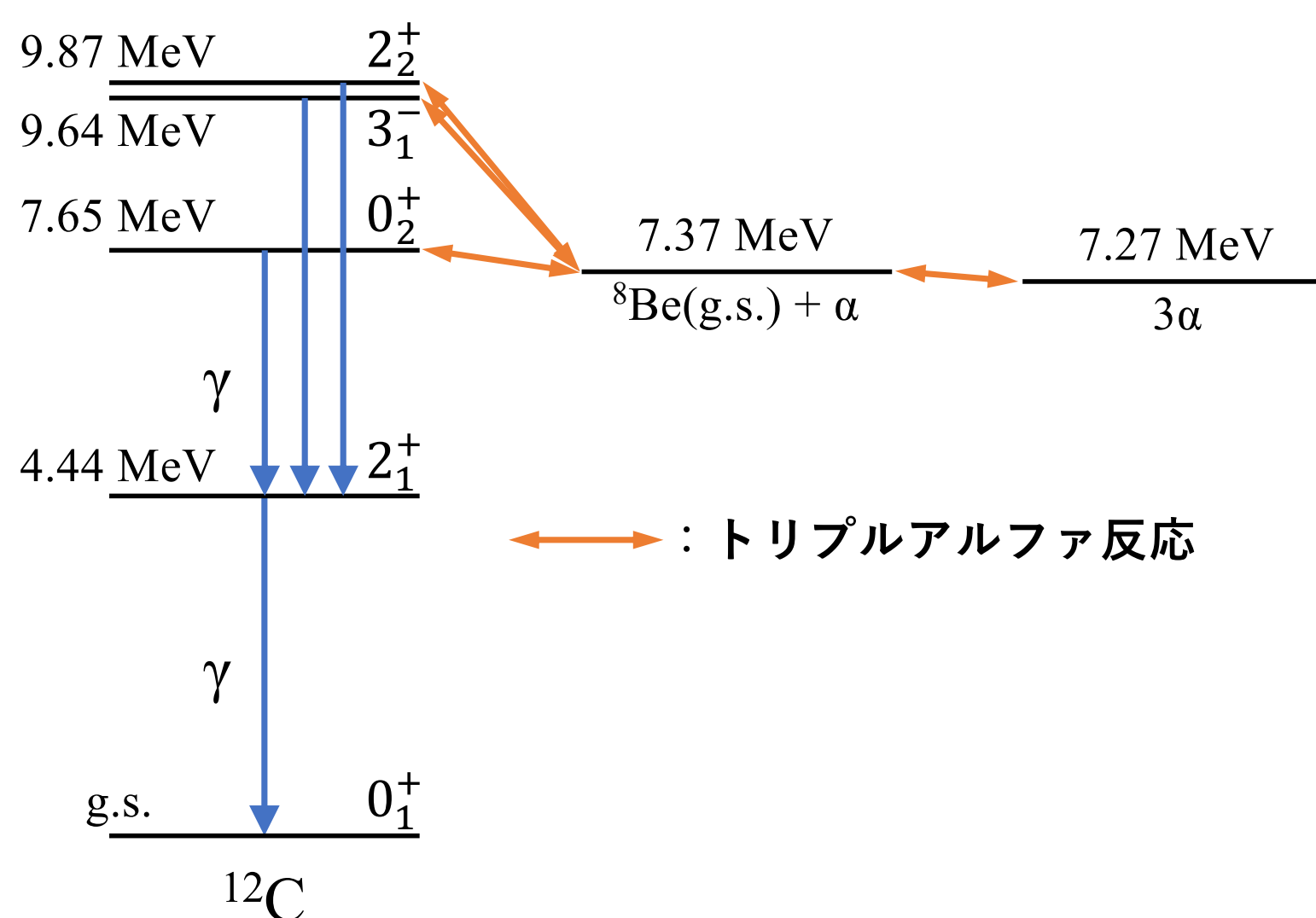


図 1.2: トリプルアルファ反応の模式図

通常为天体の温度 ($T_9 < 1$) において、 3α 反応は励起エネルギー 7.65 MeV の 0_2^+ 状態を主に経由する。この状態は、F. Hoyle が宇宙における ${}^4\text{He} : {}^{12}\text{C} : {}^{16}\text{O}$ の存在比を説明するためには、 3α 反応を媒介する 3α 共鳴状態が ${}^{12}\text{C}$ の $E_x = 7.6$ MeV 付近に存在する必要がある [2] と指摘して、その存在を予言した状態であり、Hoyle 状態と呼ばれている。Hoyle 状態は γ 崩壊崩壊の他に、基底状態へ内部電子対生成による崩壊も起こすため、Hoyle 状態を経由する 3α 反応率は γ 崩壊と内部電子対生成を合わせた電磁崩壊確率に依存する。現在では、Hoyle 状態の電磁崩壊確率は $4.16(11) \times 10^{-4}$ であると知られている [3]。

一方、超新星爆発時のような高温環境 ($T_9 > 1$) では、 3_1^- (9.64 MeV) 状態や 2_2^+ (9.87 MeV) 状態 [3] のような高励起 3α 共鳴状態による 3α 反応への影響が重要になることが指摘されている [4]。

1.1.3 トリプルアルファ (3α) 反応率と γ 崩壊確率

3α 反応の 2 段階目の過程である $\alpha + {}^8\text{Be}$ の反応速度 $\langle\sigma_v\rangle^{\alpha^8\text{Be}}$ は以下の式で表される [5]。

$$\langle\sigma_v\rangle^{\alpha^8\text{Be}} = \frac{8\pi}{\mu_{\alpha^8\text{Be}}^2} \left(\frac{\mu_{\alpha^8\text{Be}}}{2\pi k_B T} \right)^{3/2} \int_0^\infty \sigma_{\alpha^8\text{Be}}(E'; E) \exp(-E'/k_B T) E' dE' \quad (1.1)$$

ここで、 $\mu_{\alpha^8\text{Be}}$ は $\alpha + {}^8\text{Be}$ 系の換算質量、 k_B はボルツマン定数、 T は温度である。また、図 1.3 に 3α 反応のエネルギーダイアグラムを示す。 $E_{8\text{Be}}$ は $\alpha + \alpha$ 閾値に対する 2α 共鳴状態 (${}^8\text{Be}$) の中心エネルギーであり、 E は 2α 共鳴状態が実際に生成されたときのエネルギーである。一方、 E_r は $\alpha + {}^8\text{Be}$ 閾値に対する 3α 共鳴状態の中心エネルギーであり、 E' は 2α 共鳴状態が生成されたエネルギーに対する 3α 共鳴状態生成時のエネルギーである。

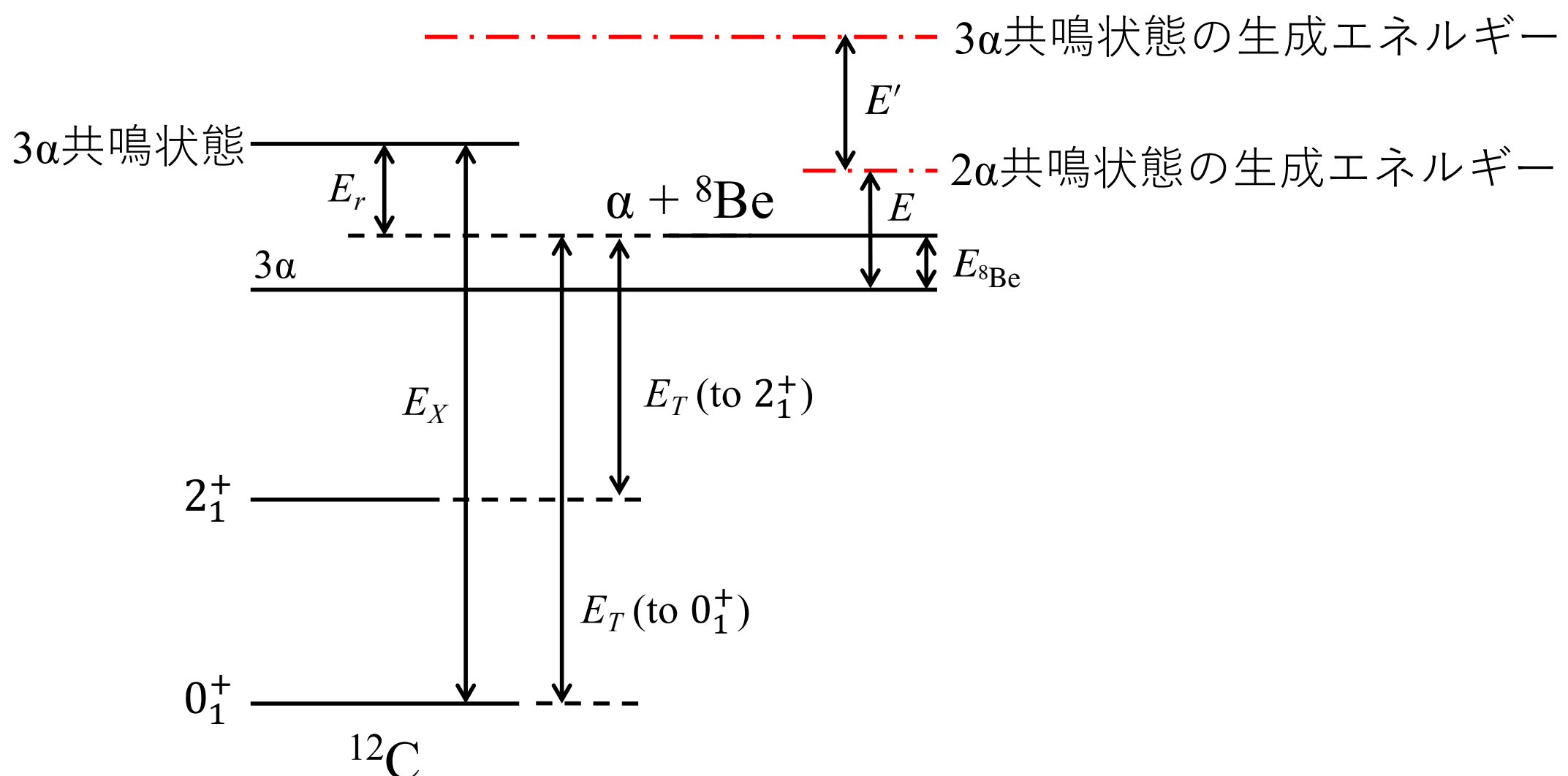


図 1.3：トリプルアルファ反応のエネルギーダイアグラム

反応断面積 $\sigma_{\alpha^8\text{Be}}(E)$ は以下の式で与えられる。

$$\sigma_{\alpha^8\text{Be}}(E'; E) = \sum_{J=0,2,3} (2J+1) \frac{\pi \hbar^2}{2\mu_{\alpha^8\text{Be}} E'} \frac{\Gamma_\alpha({}^{12}\text{C}^J, E') \Gamma_\gamma({}^{12}\text{C}^J, E' + E)}{(E' - E_r^J + E - E_{8\text{Be}})^2 + \frac{1}{4} \Gamma({}^{12}\text{C}^J, E'; E)} \quad (1.2)$$

式 (1.2) の和は、それぞれ $J = 0, 2, 3$ のスピンをもつ 0_2^+ , 3_1^- , 2_2^+ 状態について計算する。また、 Γ , Γ_α , Γ_γ はそれぞれ 3α 共鳴状態の全崩壊幅、 α 崩壊幅、 γ 崩壊幅であり、全崩壊幅は α 崩壊幅と γ 崩壊幅の和となる。

$$\Gamma = \Gamma_\alpha + \Gamma_\gamma \quad (1.3)$$

荷電粒子が原子核から放出される際には、クーロン障壁の影響を受けるため、 α 崩壊幅はエネルギー依存性をもつ。エネルギー E における α 崩壊幅 $\Gamma_\alpha({}^{12}\text{C}^J, E)$ は、共鳴中心における α 崩壊幅 $\Gamma_\alpha({}^{12}\text{C}^J)$ とエネルギー E_r を用いて以下の式で与えられる。

$$\Gamma_\alpha({}^{12}\text{C}^J, E) = \Gamma_\alpha({}^{12}\text{C}^J) \frac{P_l(E)}{P_l(E_r^J)} \quad (1.4)$$

ここで、 P_l はクーロン障壁に対する α 粒子の透過係数であり、崩壊 α 粒子の角運動量 l とチャンネル半径 $a = 1.4(4^{1/3} + 8^{1/3})$ fm により決定される係数である。一方、 γ 崩壊幅のエネルギー依存性は以下の式で与えられる。

$$\Gamma_\gamma(^{12}\text{C}^J, E) = \Gamma_\gamma(^{12}\text{C}^J) \frac{(E_T + E)^{2l+1}}{(E_T + E_r^J)^{2l+1}} \quad (1.5)$$

ここで、 E_T は γ 崩壊後の終状態からみた $\alpha + {}^8\text{Be}$ の崩壊閾値である。基底状態への直接 γ 崩壊の場合は $E_T = 7.37$ MeV であり、 2_1^+ 状態を経由するカスケード γ 崩壊の場合は $E_T = 7.37$ MeV $-$ 4.44 MeV $=$ 2.93 MeV となる。

α 崩壊幅と比べると γ 崩壊幅は非常に小さいため、式 (1.3) より $\Gamma(^{12}\text{C}^J, E) \simeq \Gamma_\alpha(^{12}\text{C}^J, E)$ と近似できる。そのため、式 (1.1) と (1.2) より 3α 反応率は 3α 共鳴状態の γ 崩壊幅に比例することが分かる。また、 3α 共鳴状態の全崩壊幅は既知であるため、 γ 崩壊幅は γ 崩壊確率 Γ_γ/Γ から求めることができる。

1.1.4 高励起 3α 共鳴状態の重元素合成量への影響

1.1.1 節で述べたように、 3α 反応は重元素を合成するための戸口反応であるため、その反応速度は重元素合成量に大きな影響を与える。図 1.4 は Wanajo らによる超新星爆発時の νp 過程における重元素合成量の計算結果 [6] である。この図では 2 つの異なる 3α 反応率を用いた計算結果を比較している。ひとつは Caughlan と Fowler によって計算された 0_2^+ , 3_1^- 状態の寄与を考慮した 3α 反応率 (CF88) [7] であり、もう一方は Angulo らによって計算された 0_2^+ , 3_1^- , 2_2^+ 状態の寄与を考慮した 3α 反応率 (Angulo99) [5] である。2 つの 3α 反応率の違いは、 2_2^+ 状態の有無だけでなく、 3_1^- 状態のパラメータが実験的に決定されていなかったことに起因しており、Wanajo らの計算結果は、 ^{12}C の高励起 3α 共鳴状態が νp 過程に極めて大きな影響を与えることを示唆している。Angulo99 を用いた場合に質量数 $A > 80$ の重元素の合成量が減少することは、 ^{12}C の高励起 3α 共鳴状態の影響により 3α 反応率が増大し ^{12}C の合成量が増加したことが原因である。 ^{12}C の合成量が増加することにより νp 過程における元素合成の種となる ^{56}Ni や ^{60}Zn の合成量が増加する。それに伴って質量数 $A \sim 70$ の中重元素の合成量が増加した結果、多くの陽子が消費されてしまい、 $A > 80$ の重元素を合成するための陽子が欠乏するからだと定性的に理解できる。

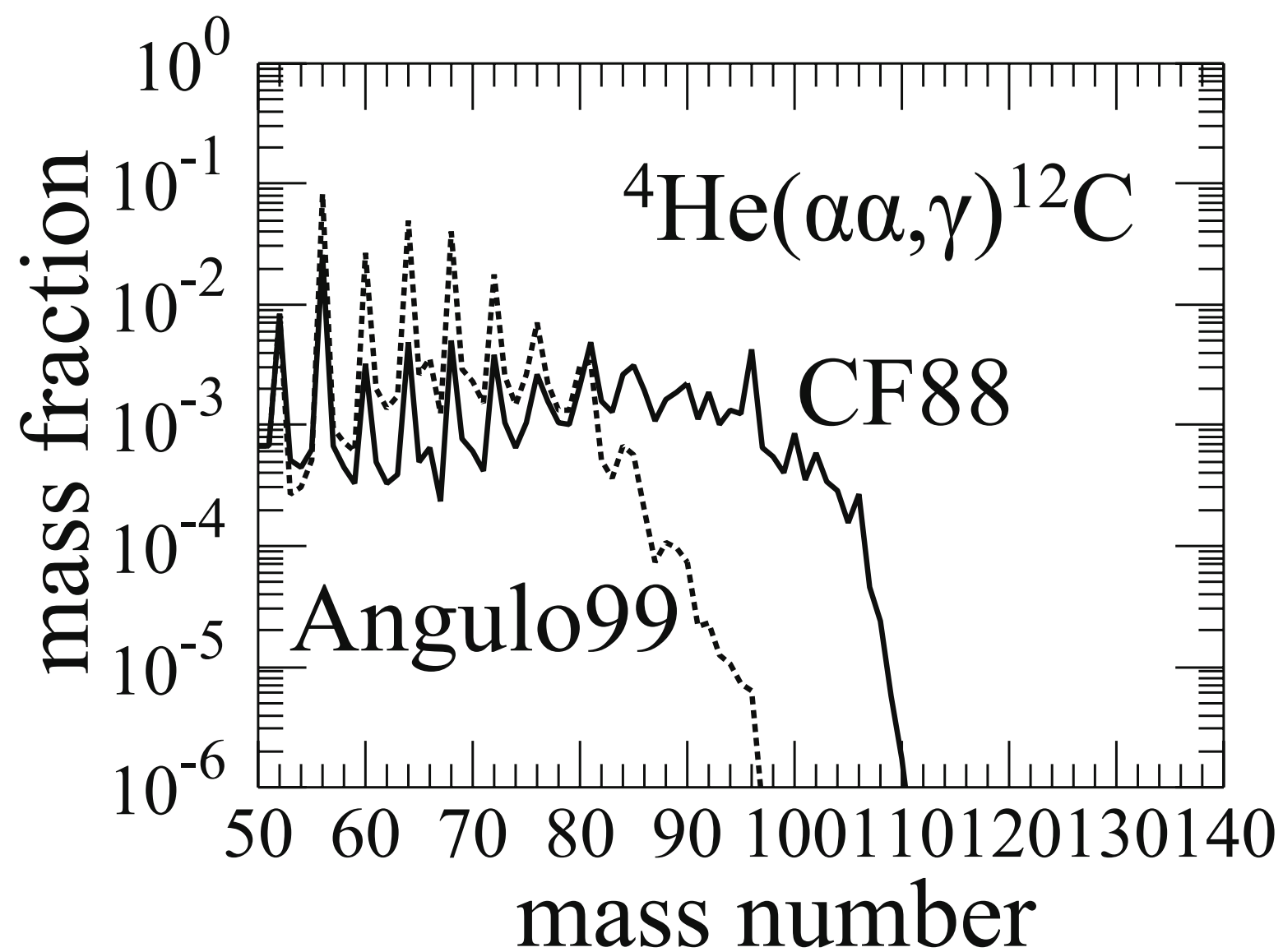


図 1.4 : νp 過程における重元素合成量 [6]

1.2 高励起 3α 共鳴状態の γ 崩壊確率

1.2.1 ^{12}C の高励起 3α 共鳴状態

図 1.5 に ^{12}C の準位図を示す。 3α 反応に寄与する状態は、Hoyle 状態を始めとする 3α 共鳴状態である。また、高温環境 ($T_9 > 1$) では高励起 3α 共鳴状態である、 3_1^- , 2_2^+ , 0_3^+ , 0_4^+ 状態の寄与が重要となる。そのため、これらの状態の γ 崩壊確率は高温環境における 3α 反応率を決定するために必要であるが、いまだに大きな不定性が残されている。たとえば、 0_3^+ , 0_4^+ 状態は、これまでの計算において 3α 反応率の計算では考慮されてこなかった。いずれの状態もおよそ 3 MeV と非常に広い全崩壊幅をもつ状態であり、部分崩壊幅の測定は行われていないため、現時点において、これらの状態が 3α 反応に与える影響は不明である。一方、 3_1^- , 2_2^+ 状態については部分崩壊幅の測定がいくつか報告されている [8, 9]。

[9] によってその存在は議論の余地のないものとして確立され、それと同時に基底状態への γ 崩壊確率が 7.5×10^{-8} と測定された。 2_2^+ 状態には 2_1^+ 状態を経由するカスケード γ 崩壊モードが存在し、その γ 崩壊確率は未だ測定されていない。しかし、 $E2$ 遷移の強度は崩壊 γ 線のエネルギーの 5 乗に比例するため、 2_1^+ 状態を経由するカスケード γ 崩壊への分岐比は、基底状態への直接 γ 崩壊のおよそ $1/20$ ($\sim [(9.87 - 4.44)/9.87]^5$) と見積もられる。そのため、基底状態への直接 γ 崩壊が支配的であり、 2_2^+ 状態の 3α 反応への寄与は直接 γ 崩壊測定から概ね理解されている。

1.2.3 3_1^- 状態

図 1.6 に示すように 3_1^- 状態から基底状態への γ 崩壊には以下の 3 つの経路が存在する。

1. 基底状態への直接 γ 崩壊

この γ 崩壊確率は電子散乱を用いて $\Gamma_\gamma/\Gamma = 6.7 \times 10^{-9}$ [8] とすでに測定されており、これが 3_1^- 状態の γ 崩壊確率の現在の下限值となっている。しかし、 $E3$ 遷移であるため強度は弱い。

2. 0_2^+ 状態を経由したカスケード γ 崩壊

0_2^+ 状態は 3_1^- 状態と同じく α 崩壊閾値よりも高いエネルギーに位置するため、大部分は再び 3 つの α 粒子へ崩壊してしまう。そのため、 0_2^+ 状態を経由して基底状態へ γ 崩壊する確率は非常に小さく無視できる。

3. 2_1^+ 状態を経由したカスケード γ 崩壊

2_1^+ 状態は α 崩壊閾値よりも低いエネルギーに位置するため、必ず γ 崩壊により基底状態へ遷移する。しかし、 3_1^- , 2_1^+ 状態は共にアイソスカラー状態であるため、アイソスピン保存則により 2_1^+ 状態を経由した $E1$ 遷移は禁止遷移となる。 $E3$ 遷移もしくは高次の $E1$ 遷移によって 3_1^- 状態が 2_1^+ 状態へ γ 崩壊することは許されているが、いずれの遷移も強度は $E3$ 遷移と同程度であるため γ 崩壊確率は低いと予想される。一方で、アイソスピン保存則の破れに伴うアイソスピン混合効果による $E1$ 遷移は可能である。 3_1^- , 2_1^+ 状態におけるアイソベクターの成分は数 % 程度と小さいが、それでも、典型的なアイソスピン禁止 $E1$ 遷移は、高次の $E1$ 遷移や $E3$ 遷移と比べて約 100 倍の強度であるため [20]、 3_1^- 状態から 2_1^+ 状態を経由するカスケード γ 崩壊は主要な γ 崩壊モードとなりえる。

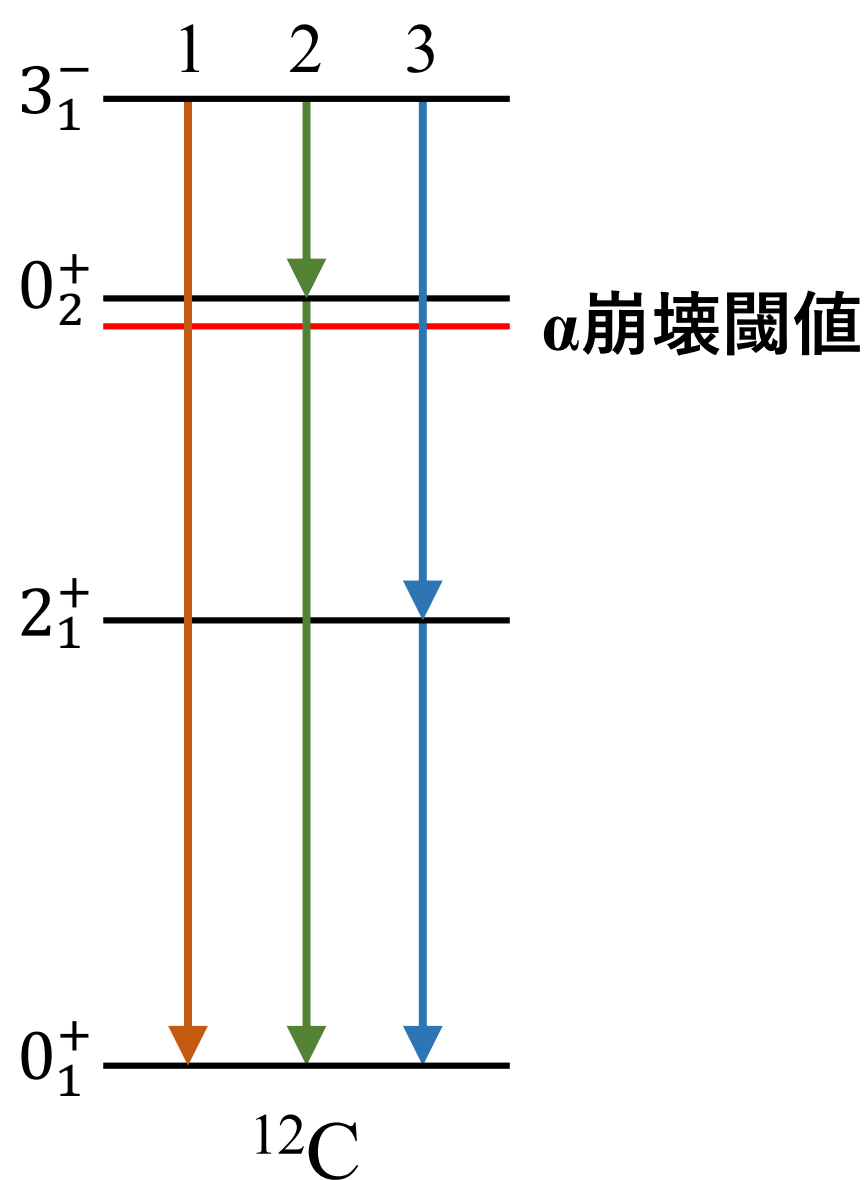


図 1.6 : 3_1^- 状態の γ 崩壊モード

1974 年に Chamberlin らによって 3_1^- 状態の γ 崩壊確率測定実験が行われた [21]。この測定では同位体濃縮された ^{12}C 標的に α 粒子ビームを照射し、反跳された ^{12}C を直接検出するという $^{12}\text{C}(\alpha, \alpha^{12}\text{C}^*)$ 反応が用いられた。しかし、 3_1^- 状態の γ 崩壊確率が非常に小さく、濃縮 ^{12}C 標的に含まれる微量の ^{13}C によるバックグラウンドにピークが埋もれてしまったことで、 γ 崩壊確率を測定することはできなかった。そのため、この実験では 3_1^- 状態の γ 崩壊確率の上限値を 1σ の信頼区間で 4.1×10^{-7} と示したにとどまった。

また、我々のグループでも 3_1^- 状態の γ 崩壊確率の測定実験を行った [22]。この実験では固体水素標的に ^{12}C ビームを照射し、逆運動学反応 $^1\text{H}(^{12}\text{C}, ^{12}\text{C}^*p)$ を用いて測定した。詳しい測定方法については 2.1 節にて説明するが、Chamberlin らの実験と異なり、ビームに ^{12}C を用いることで ^{13}C 起因のバックグラウンドを排除することができる。図 1.7 に、得られた励起エネルギースペクトルを示す。世界で初めて ^{12}C の 3_1^- 状態の γ 崩壊確率 $1.3_{-1.1}^{+1.2} \times 10^{-6}$ を測定した。しかし、 3_1^- 状態の下に連続的なバックグラウンドが存在し、そこにピークが埋もれてしまったことで系統誤差が大きく期待した精度を得ることはできなかった。

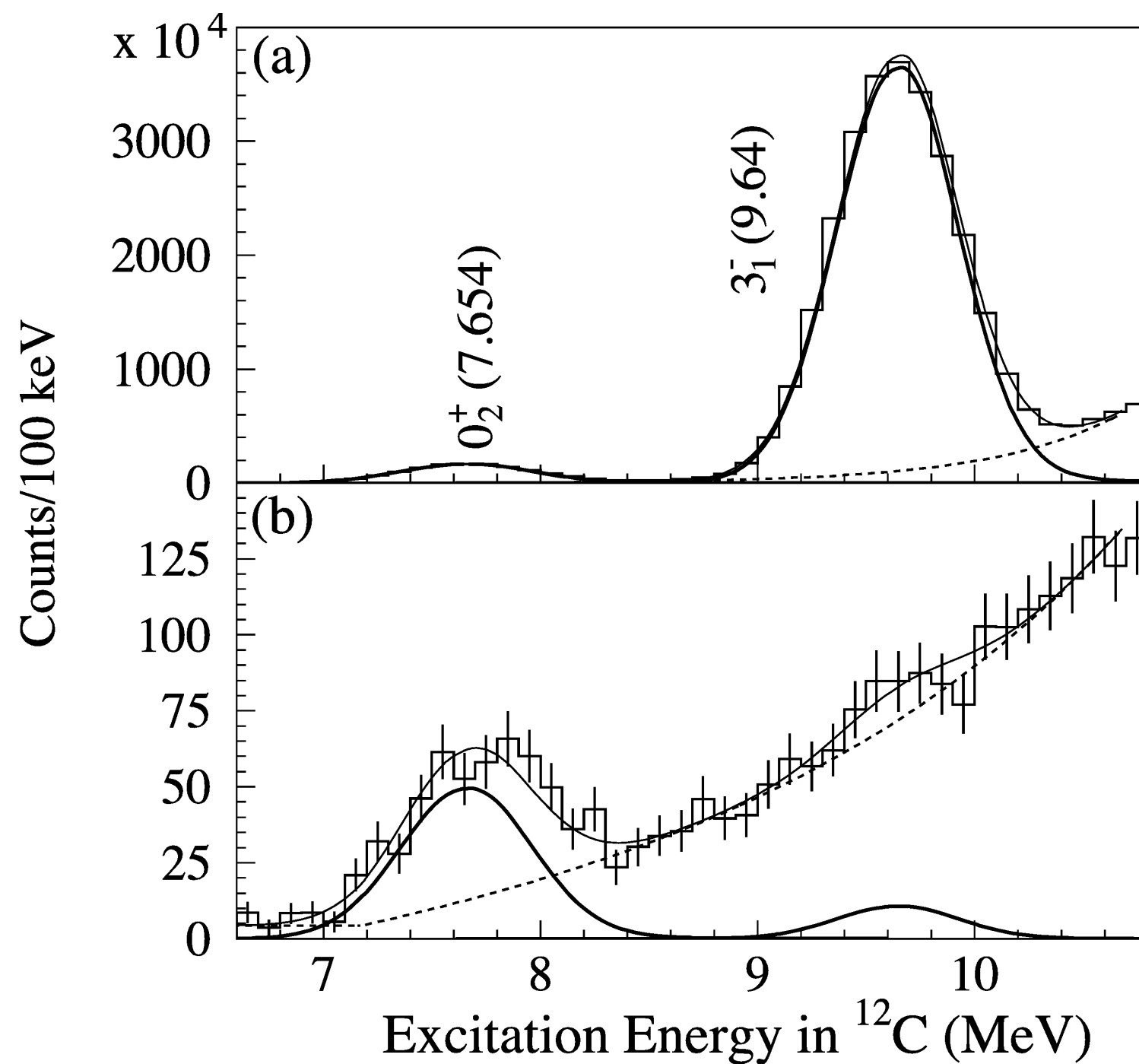


図 1.7：前回実験における ^{12}C の励起エネルギースペクトル [22]。(a) シングルイベント、(b) 反跳陽子と散乱 ^{12}C の同時計測イベント。

1.3 本研究の目的

^{12}C の 3_1^- 状態の γ 崩壊確率は高温環境下での重元素合成に非常に大きな影響を与える。しかし、測定の難しさから未だにその値は十分な精度で決定されていない。我々の固体水素標的を用いた前回の実験も系統誤差が大きく満足いく結果を得ることはできなかった。本研究の目的は、前回の実験での問題点を解決し、 3_1^- 状態の γ 崩壊確率を高精度で測定することである。前回の実験で大きな系統誤差の要因となった連続的なバックグラウンドは、陽子ノックアウト反応によるものと考えられる。そのため、我々は標的を水素から重水素に変更することでノックアウト反応の問題を解決することを着想した。本研究では重水素標的の第 1 候補を重水素吸蔵チタン (TiD_2)、第 2 候補を固体重水素とし、まず初めに TiD_2 の性能評価試験を行った。その結果から、 TiD_2 を用いた実験の実現可能性を議論した。また、固体重水素標的の作成試験及び熱負荷の計算を行った。

第2章

実験計画

2.1 測定方法

^{12}C の 3_1^- 状態の γ 崩壊確率は非常に小さいため、これを測定するために検出効率の低い γ 線計測は適していない。そこで、我々は逆運動学条件下における非弾性散乱の反跳粒子と散乱 ^{12}C を同時計測するという独自の手法を考案した。図 2.1 に示すように、 ^{12}C ビームを標的に入射し、その反跳粒子の角度とエネルギーから質量欠損分光を行って ^{12}C の共鳴状態 (励起エネルギー) を同定し、全励起事象数を決定する。生成された 3_1^- 状態の大部分は再び 3 つの α 粒子へ崩壊 [図 2.1(左)] してしまうが、ある確率で γ 崩壊して ^{12}C の基底状態に遷移する [図 2.1(右)]。そのため、反跳粒子と α 粒子もしくは ^{12}C を同時計測することで、 α 崩壊事象と γ 崩壊事象を弁別することができ、 γ 崩壊事象数を決定することができる。そして、決定した全励起事象数と γ 崩壊事象数から γ 崩壊確率を決定することができる。この手法の最大の利点は γ 線を検出することなく γ 崩壊確率を決定できることである。

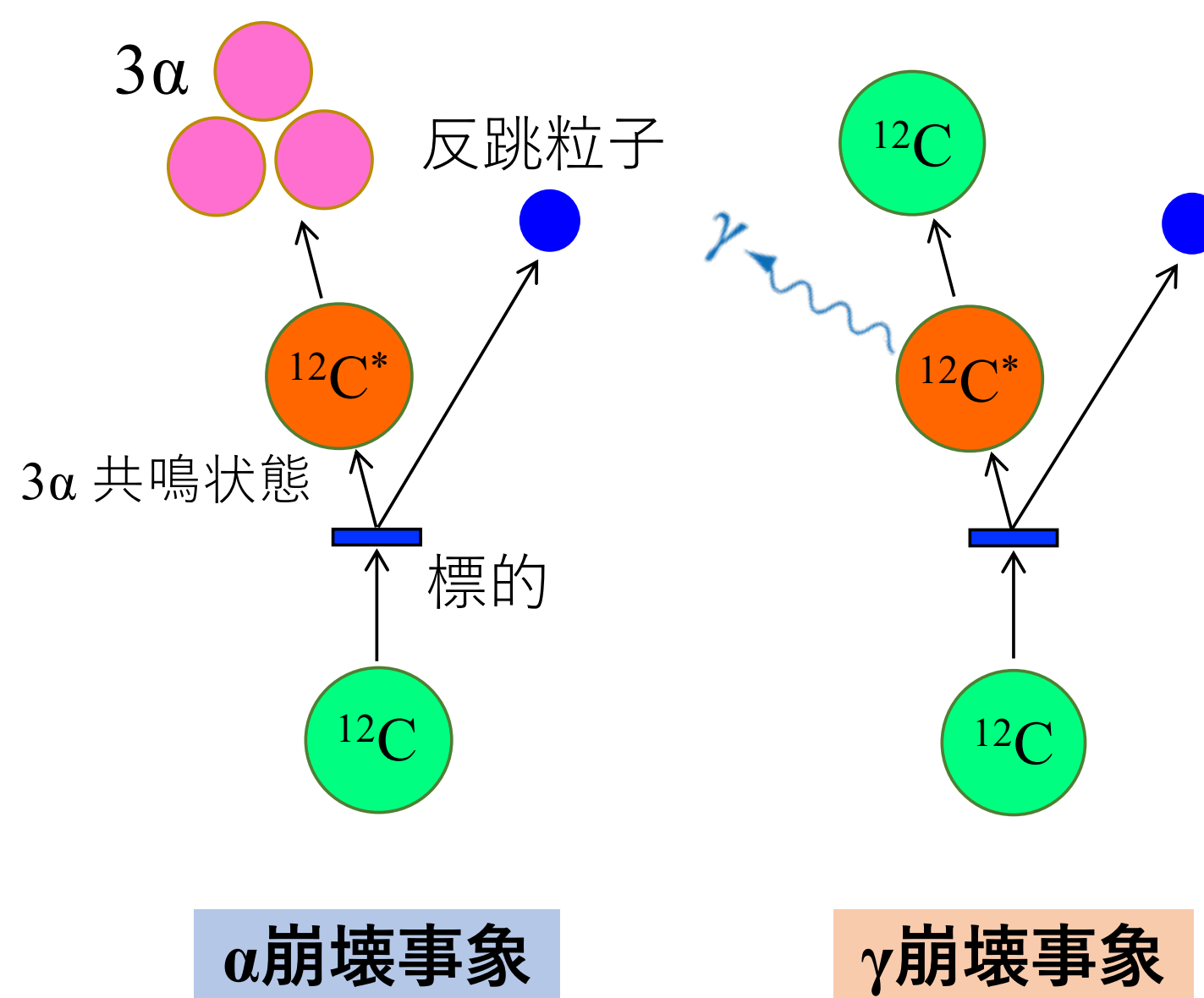
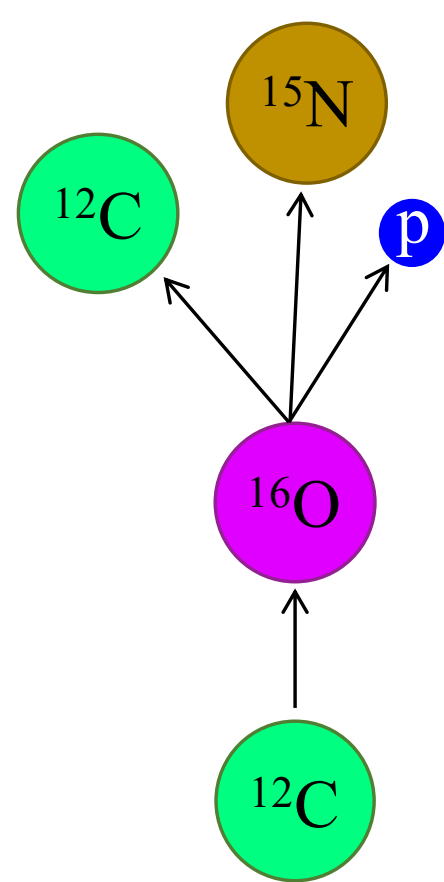


図 2.1：逆運動学条件下における非弾性散乱

2.2 前回実験の問題点

我々の固体水素標的を用いた前回の実験では 1.2.3 節で述べたように、 $3\bar{1}$ 状態の下に存在した連続的なバックグラウンドによる影響で大きな系統誤差が生じた。その原因として陽子ノックアウト反応が考えられる。図 2.2 に示すように陽子ノックアウト反応は ^{12}C ビームが標的中に含まれる不純物から陽子を叩き出す反応である。我々の測定方法では反跳粒子と散乱 ^{12}C の同時計測を γ 崩壊事象と識別しているため、反応後に陽子と ^{12}C が存在する陽子ノックアウト反応は γ 崩壊事象と誤認する可能性がある。



陽子ノックアウト反応

図 2.2：陽子ノックアウト反応

前回の実験では、反応前後のエネルギー損失 E_{loss} を用いて、陽子ノックアウト反応によるバックグラウンドの低減を試みた。 E_{loss} は、ビームのエネルギー E_{beam} 、反跳粒子のエネルギー E_{recoil} 、散乱 ^{12}C のエネルギー $E_{^{12}\text{C}}$ 、 ^{12}C が標的中で損失する平均エネルギー E_{target} を用いて式 (2.1) により定義される。

$$E_{\text{loss}} = E_{\text{beam}} - E_{\text{recoil}} - E_{^{12}\text{C}} - E_{\text{target}} \quad (2.1)$$

γ 崩壊事象の場合、 E_{loss} は放出された γ 線の合計エネルギーに等しく、ドップラー効果による影響を除けば ^{12}C の励起エネルギーと等しくなる。そのため、目的の $3\bar{1}$ 状態の場合は $E_{\text{loss}} = 9.64 \text{ MeV}$ にピークをもつ。一方、陽子ノックアウト反応の場合、 E_{loss} は陽子の分離エネルギーと陽子ノックアウト後の残留核の運動エネルギーの和と等しくなる。残留核の運動エネルギーは反応ごとに異なるため、 E_{loss} は連続分布となるが、その下限は陽子分離エネルギーによって決まる。前回の実験では、固体水素を封止するために使用したアラミドフィルム中に含まれる ^{12}C , ^{14}N , ^{16}O が不純物となった。

表 2.1 にそれぞれの核種の陽子・重陽子の分離エネルギー (S_p , S_d) を示す。 ^{14}N の陽子分離エネルギーは 3_1^- 状態の励起エネルギー 9.64 MeV よりも小さいため、2 つの E_{loss} の分布は重なってしまうことが予想される。一方、 ^{12}C と ^{16}O の陽子分離エネルギーは 9.64 MeV よりも大きいため、これらの陽子ノックアウト反応の E_{loss} は 3_1^- 状態のピークよりもエネルギーの大きい側に分布を持つことが予想される。そのため、 E_{loss} を用いることで陽子ノックアウト反応によるバックグラウンドを除去することができると期待される。しかし、前回の実験ではビームの熱によって固体水素標的が融解してしまった。この問題により標的の厚さが均一でなくなり、エネルギー分解能が悪化した。 E_{loss} の分解能は $\sigma \sim 2$ MeV であり、 ^{16}O の陽子ノックアウト反応によるバックグラウンドを除去することができなかった。

表 2.1：陽子・重陽子の分離エネルギー [23]

核種	S_p (MeV)	S_d (MeV)
^{12}C	15.96	25.19
^{14}N	7.55	10.27
^{16}O	12.13	20.74

2.3 重水素標的

2.3.1 利点

陽子ノックアウト反応によるバックグラウンドの問題を解決するため、我々は標的を水素から重水素に変更することを着想した。重水素標的の利点は以下の 3 点である。

- 分離エネルギー

表 2.1 に示すように、標的核から核子を 2 個引き剥がすため、重陽子の分離エネルギーは陽子のそれと比べて大きな値を持つ。そのため、ノックアウト反応と 3_1^- 状態の γ 崩壊事象の E_{loss} の差が大きくなり、ノックアウト反応と γ 崩壊事象の弁別が容易となる。

- ノックアウト反応の断面積

陽子と中性子の両方を叩き出す必要のある重陽子ノックアウト反応の断面積は、陽子のみを叩き出す陽子ノックアウト反応と比較して小さいことが予想される。これにより、ノックアウト反応の事象数を低減することができる。

- 標的中のエネルギー損失

反跳粒子は検出器に到達する前に、標的中でエネルギーを失う。このエネルギー損失が大きいと、検出する反跳粒子のエネルギーが小さくなり、検出が困難になる。荷電粒子の物質中でのエネルギー損失は荷電粒子の原子番号 Z の 2 乗に比例し、速度 β の 2 乗に反比例する。質量数 A 、運動エネルギー E を用いると非相対論では $\beta^2 \propto E/A$ となる。その

ため、エネルギー損失は AZ^2/E に比例し、陽子と比較すると重陽子は質量数 2 倍となるためエネルギー損失が大きい。しかし、原子番号は陽子と同じく 1 であるため、 ^4He などの他の粒子と比較するとエネルギー損失は小さく、受容できる程度である。

2.3.2 標的候補

重水素標的の候補を以下に示す。

- 重水素ガス

ビームの熱により融解する可能性がない。しかし、セルの厚さが 5 mm 程度と比較的厚く、散乱点が広がってしまう。また、気体であるため密度が小さく、物質量が少ない。

- 固体重水素

重水素を凝固点 (18.7 K) 以下に冷却することで固体化させたもの。封止するためのアルミドフィルムのみが不純物となるため、S/N 比が良い。そのため、比較的厚い標的を用いることができ、高統計量が期待できる。しかし、前回実験と同じくビームの熱により標的が融解する可能性がある。

- 重水素化ポリエチレン (CD_2)

ポリエチレン (CH_2) の水素を重水素に置き換えたもの。ビームの熱により融解する可能性がある。さらに、 ^{12}C がバックグラウンドとなる。

- 重水素吸蔵チタン (TiD_2)

TiD_2 は Ti の結晶格子中に重水素が吸蔵された化合物。Ti が用いられているため、融解の可能性がない。また、室温で安定なため取り扱いが容易。しかし、Ti によるバックグラウンドが存在し、重水素の厚さが Ti の厚さによって制限を受ける。詳細は第 3 章にて説明する。

本研究では、ビームの熱により融解しないという利点に重きを置き、重水素標的の第 1 候補を TiD_2 とした。第 2 候補は、融解する可能性はあるものの、高統計量が期待される固体重水素とした。

2.4 実験条件最適化のためのシミュレーション

実験は大阪大学核物理研究センター (RCNP) にて実施する。重水素標的に $^{12}\text{C}^{5+}$ ビームを照射し、反跳された重陽子の角度とエネルギーを反跳重陽子検出器 Gion にて測定する。反跳重陽子の角度とエネルギーから質量欠損分光を行い、励起エネルギーを決定して ^{12}C の 3α 共鳴状態を同定する。また、散乱された ^{12}C は高分解能磁気スペクトロメータ Grand Raiden で運動量分析したのち、焦点面検出器にて検出する。実験に先立って、ビームのエネルギーや検出器の設置角度などの実験条件を最適化する必要がある。そこで、モンテカルロシミュレーショ

ンを用いて実験条件の最適化を行った。以下に最適化すべきパラメータを列挙する。

- ビームエネルギー

RCNP に設置された AVF サイクロトロン¹²C⁵⁺ の最高エネルギー 262 MeV と、AVF サイクロトロンとリングサイクロトロンを組み合わせた際の最高エネルギー 1.2 GeV を検討した。

- 標的の厚さ

統計量を増やすためには厚く、励起エネルギー分解能を上げるためには薄くしなければならない。厚さ 0.5 mm の固体水素標的を用いた前回の実験での励起エネルギー分解能は σ で 280 であり、同程度もしくはそれ以上の励起エネルギー分解能を目標とする。陽子と比べて重陽子は標的中のエネルギー・角度拡がりが大きいため、前回の実験と同程度の励起エネルギー分解能が達成できるかは自明ではない。固体重水素に関しては、作成可能な最薄の厚さである 0.5 mm における励起エネルギー分解能を評価した。

- Gion 検出器及び GR の設置角度

Gion の検出可能な反跳重陽子のエネルギーを考慮しつつ、反跳重陽子と散乱された ¹²C を同時計測できるように調整する必要がある。

- 標的と Gion 検出器の間の距離

重心系における GR の立体角と Gion 検出器の立体角が同程度になる距離が望ましい。しかし、励起エネルギー分解能が十分ではない場合、統計量は減少するが、角度分解能を上げるために距離を長くする必要がある。

- Gion の Si 検出器の厚さ

既存の 520 μm の Si 検出器では、Gion 検出器が検出できる重陽子の最低エネルギーが 15 MeV と、重陽子に対しては厚い。そこで 100, 300, 500 μm の 3 通りを検討した。

- Gion の Si 検出器のストリップ幅

ビームスポットのサイズが 1 mm 程度なので、1 mm より細いストリップに分割することは、角度分解能の観点からは意味がない。現在、我々が所有する Si 検出器のストリップ幅が 1 mm であるため、これを基本にストリップ幅を検討した。複数のチャンネルを電氣的に接続させて、実効的にストリップを太くすることは可能である。角度分解能と読み出しチャンネル数のトレードオフによってストリップ幅を最適化した。

- GR の運動量アクセプタンス

3_1^- 状態の γ 崩壊確率測定において、バックグラウンドとなる弾性散乱や 2_1^+ 状態をなるべく排除するよう検討した。

この最適化を TiD₂ 標的と固体重水素標的の両方に対して行い、それぞれの標的を用いた際の ¹²C の 3_1^- 状態の励起エネルギー分解能及び目標の統計量を達成するために必要なビーム量を評価した。

2.5 セットアップ

シミュレーションによって最適化された本実験のセットアップを図 2.3 に示す。重水素標的に ^{12}C ビームを照射し、反跳された重陽子の角度とエネルギーを反跳重陽子検出器 Gion にて測定する。反跳重陽子の放出角度とエネルギーから質量欠損分光を行い、 ^{12}C の励起エネルギーを決定する。また、散乱された ^{12}C は GR で運動量分析したのち、焦点面検出器にて検出する。ビームは散乱槽直後の Q1 ファラデーカップで停止させ、電荷量を測定する。

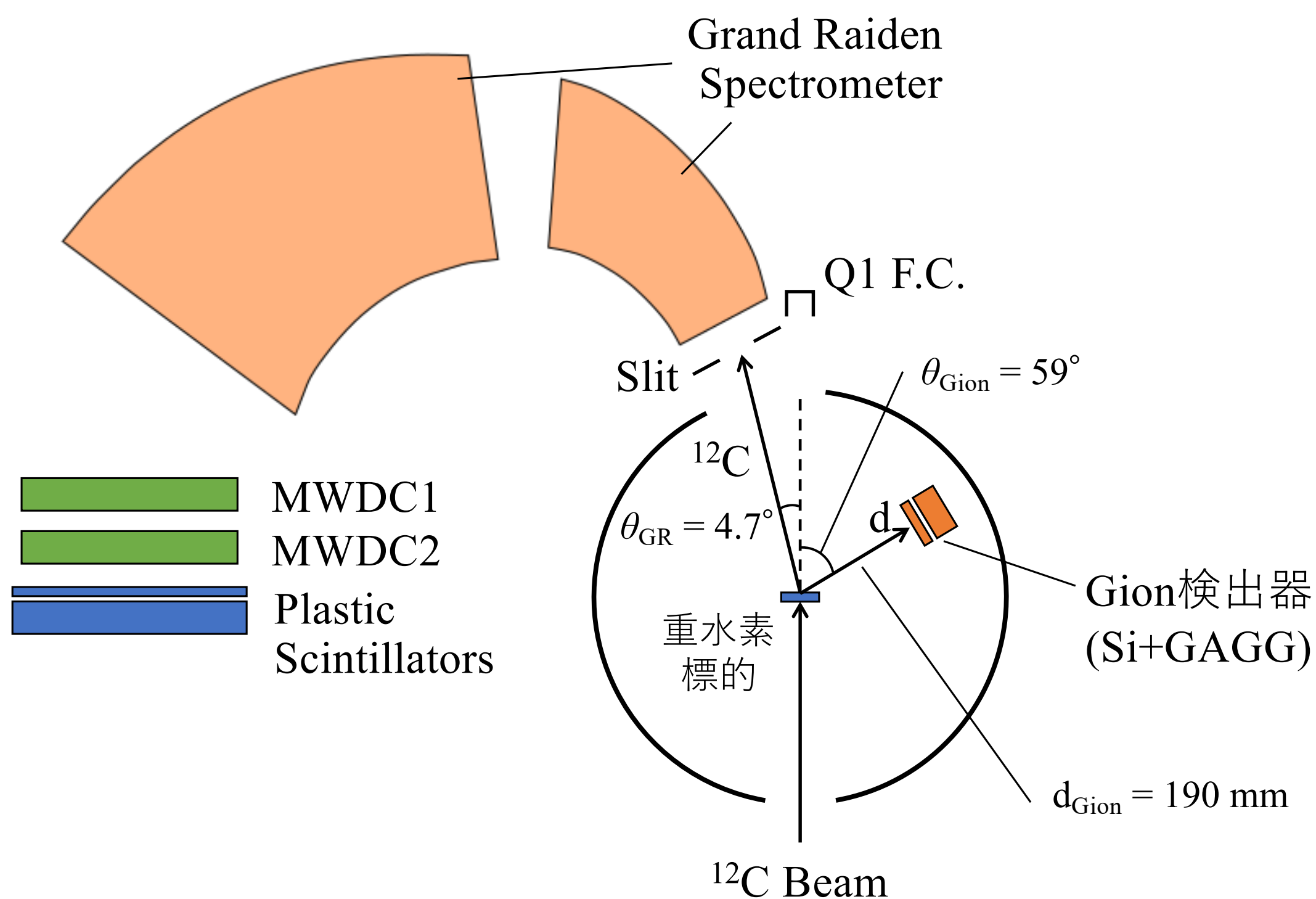


図 2.3：実験セットアップ

2.5.1 反跳重陽子検出器 Gion

Gion 検出器は透過型 Si 検出器と 24 個の GAGG 検出器を組み合わせた $E-\Delta E$ 型検出器である。前面の Si 検出器を用いて反跳重陽子のエネルギー損失 ΔE と放出角度 θ を測定する。背面の GAGG 検出器にて Si 検出器を透過した重陽子のエネルギーを測定し、 ΔE と合わせて反跳重陽子の全運動エネルギー E を決定する。また、得られた $E-\Delta E$ 相関から粒子識別を行う。重水素標的から Gion 検出器までの距離は 190 mm、Gion 検出器の設置角度は 59° である。

2.5.1.1 Si 検出器

Si 検出器 (図 2.4) の有感領域は縦 128 mm×横 48 mm、厚さは 300 μm である。表面と裏面の読み出し電極がそれぞれ縦と横に幅 1 mm のストリップに分割されている DSSD (Double-sided Silicon Strip Detector) である。また、裏面の信号は 4 本のストリップごとにまとめて読み出すことで 32 ストリップとして扱う。

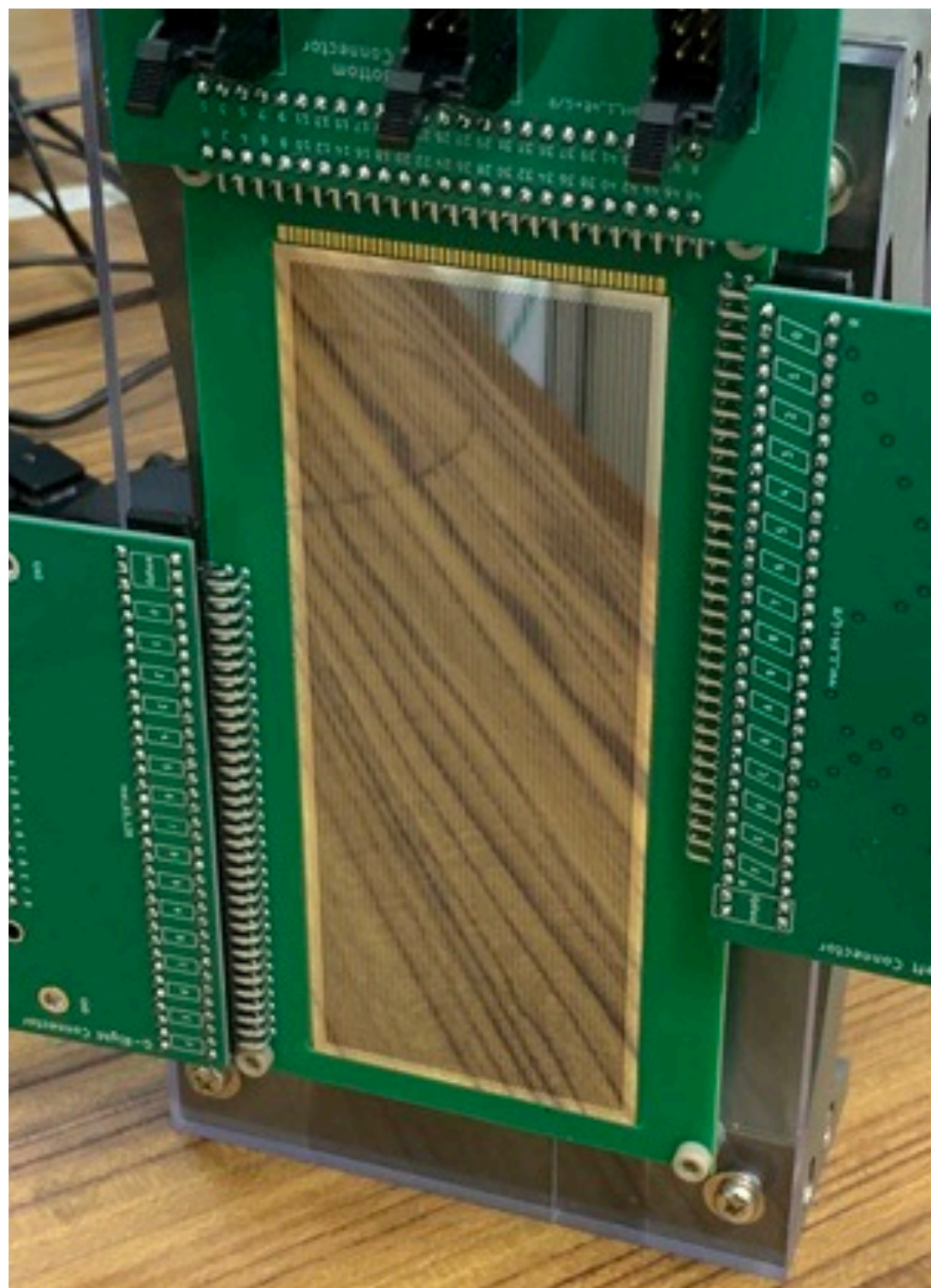


図 2.4 : Si 検出器

2.5.1.2 GAGG 検出器

GAGG [$\text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}(\text{Ce})$] シンチレータは東北大学金属材料研究所と古川機械金属グループが共同開発した無機シンチレータである [24, 25, 26]。表 2.2 に GAGG(Ce) と代表的な無機シンチレータである NaI(Tl) と CsI(Tl) の特性を示す。荷電粒子の検出には強い潮解性があり気密容器に封じる必要のある NaI(Tl) よりも、潮解性が低く取り扱いの容易な CsI(Tl) がしばしば用いられる。しかし、CsI(Tl) は減衰時間が 680 ns と長いため、高計数率での測定には不適である。一方、GAGG(Ce) は CsI(Tl) と同程度の発光量を持ちながら、非常に短い減衰時間を持つ。そのため高計数率での測定が可能である。さらに、GAGG(Ce) は潮解性がなく、密封する必要がないため、低エネルギーの荷電粒子の検出に適している。しかし、GAGG(Ce) は CsI(Tl) に比べてクエンチングの効果が大きく、 dE/dx の大きな粒子に対して発光量が少なくなることが明らかになっている [27] が、今回の測定対象は重陽子であるため大きな問題とはならない。

Gion 検出器には大きさ $18\text{ mm} \times 18\text{ mm} \times 25\text{ mm}$ の GAGG 検出器 (図 2.5) が使用されており、それぞれの結晶は反射材として厚さ $69\text{ }\mu\text{m}$ の 3M 社製の ESR フィルムで覆われている。シンチレーション光の検出には HAMAMATSU 社製の S8664-1010 Avalanche Photodiode (APD) を使用しており、GAGG(Ce) の結晶は APD との接着面が $10\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ となるようテーパ加工されている。また、Gion 架台 (図 2.6) は、GAGG 検出器の前面が鉛直方向の角度に関して反応点を向くように設計されており、1 段につき 3 個の GAGG 検出器が 8 段で合計 24 個の GAGG 検出器を設置可能である。

表 2.2 : NaI(Tl)、CsI(Tl)、GAGG(Ce) の特性 [28]

	GAGG(Ce)	NaI(Tl)	CsI(Tl)
密度 (g/cm^3)	6.63	3.67	4.53
発光波長 (nm)	530	415	540
発光量 (Photons/MeV)	46,000	40,000	50,000
減衰時間 (ns)	95 (79%), 351 (21%)	230	680
潮解性	無し	有り	やや有り

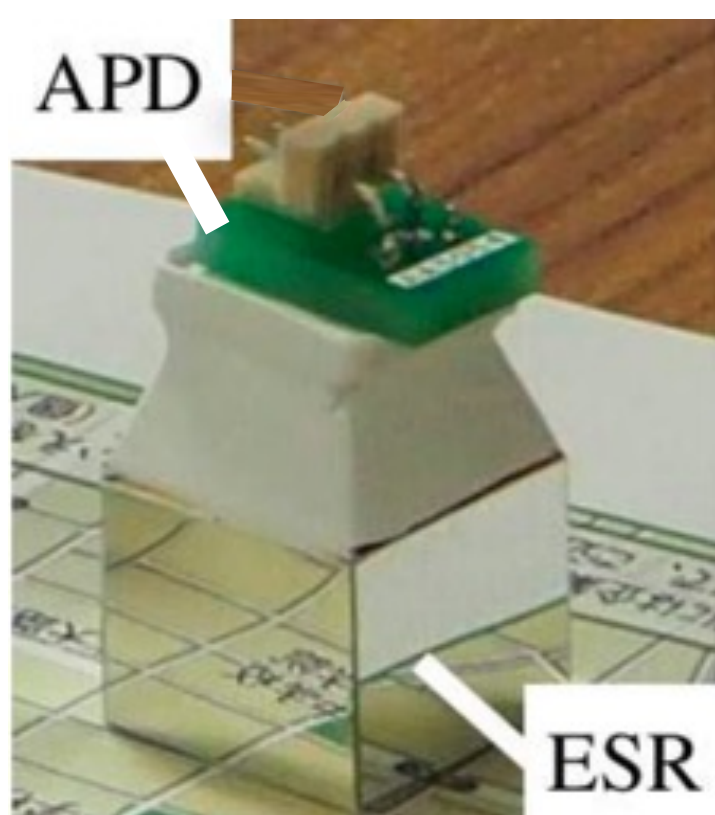


図 2.5 : GAGG 検出器



図 2.6 : Gion 架台

2.5.2 高分解能磁気スペクトロメータ Grand Raiden

Grand Raiden (GR) は RCNP 西実験室に設置されている高分解能磁気スペクトロメータである [29]。GR の概略図を図 2.7 に、主な仕様を表 2.3 に示す。磁石の構成は Q1-SX-Q2-D1-MP-D2-DSR (D：双極、Q：四重極、S：六重極、M：多重極) となっており、高次のイオン光学的収差及び運動学的効果を打ち消すように設計されている。その結果、 $p/\Delta p = 37000$ という高い運動量分解能を達成している。また、GR 全体は回転台の上に設置されており、回転台の角度を変えることで -4° から 90° での測定が可能である。

今回の測定では GR を 4.7° に設置する。実験室系における GR の角度アクセプタンスは Gion 検出器と比べて小さいが、逆運動学条件であるため重心系が前方にブーストされており、前方角度に設置する GR の $^{12}\text{C} + d$ の重心系における角度アクセプタンスは Gion 検出器と比べて大きい。そのため、スリットを用いて角度アクセプタンスを水平方向 $\pm 14 \text{ mrad}$ 、鉛直方向 $\pm 25 \text{ mrad}$ に制限する。

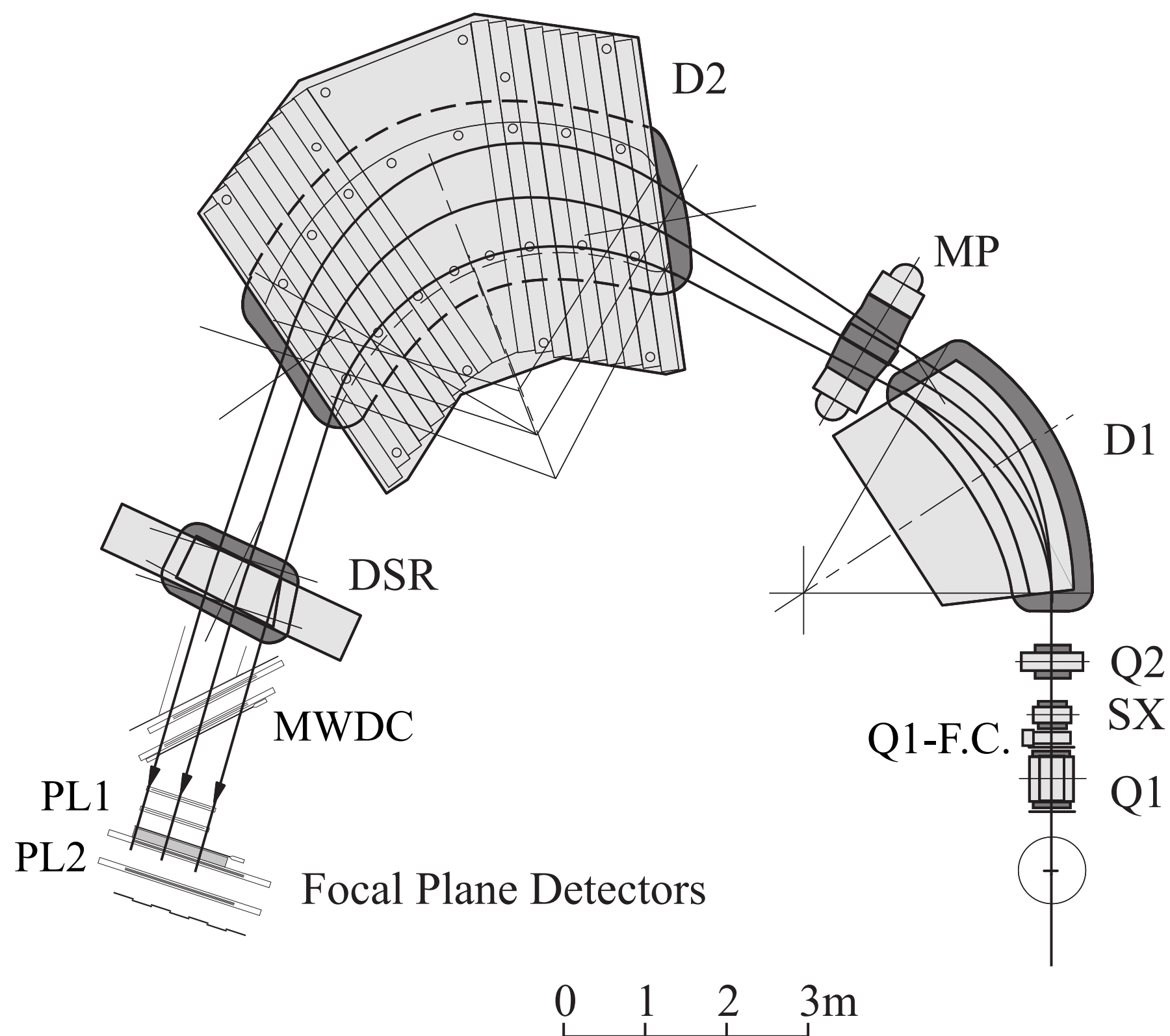


図 2.7：Grand Raiden の概略図

表 2.3 : Grand Raiden の仕様 [29]

中心軌道半径	3 m
全偏向角	162°
旋回角度	-4°-90°
焦点面傾斜	45°
焦点面長	120 cm
最大磁気剛性	5.4 T · m
最大磁場	1.8 T
最大運動量分解能 $p/\Delta p$	37000
運動量測定範囲	5%
水平方向立体角	±20 mrad
鉛直方向立体角	±70 mrad
最大立体角	5.6 msr
横倍率 ($x x$)	-0.417
縦倍率 ($y y$)	5.98
運動量分散 ($x \delta$)	15451 mm

2.5.3 焦点面検出器

GR の焦点面には、GR で運動量分析を行った ^{12}C の位置を検出するための MWDC (Multi Wire Drift Chamber) と ^{12}C と α 粒子を識別するための 2 枚のプラスチックシンチレータを設置する (図 2.7)。

2.5.3.1 MWDC

MWDC の概略図を図 2.8 に、主な使用を表 2.4 に示す。MWDC では荷電粒子が気体を電離した際に発生する電子を、電場をかけることでドリフトさせ陽極芯線で検出する。その際、電子のドリフト時間を測定することで陽極芯線からの距離も決定することができ、芯線間隔よりも細かい位置決定が可能である。MWDC は図 2.9 に示すように X 面と U 面の 2 つの面で構成されており、それぞれ鉛直方向、鉛直方向から 48.2° の方向に芯線が張られている。また、通常検出ガスには $\text{Ar}(70\%) + \text{iso-C}_4\text{H}_{10}(30\%)$ を使用するが、検出する ^{12}C に対しては物質質量が多く、MWDC 内で全エネルギーを落とし停止してしまう。そこで、物質質量を減らすために検出ガスとして $\text{He}(50\%) + \text{CH}_4(50\%)$ を使用する。さらに、焦点面検出機は大気圧環境下に設置するため、空気との多重散乱を防ぐ目的で検出器間には He バッグを設置する。

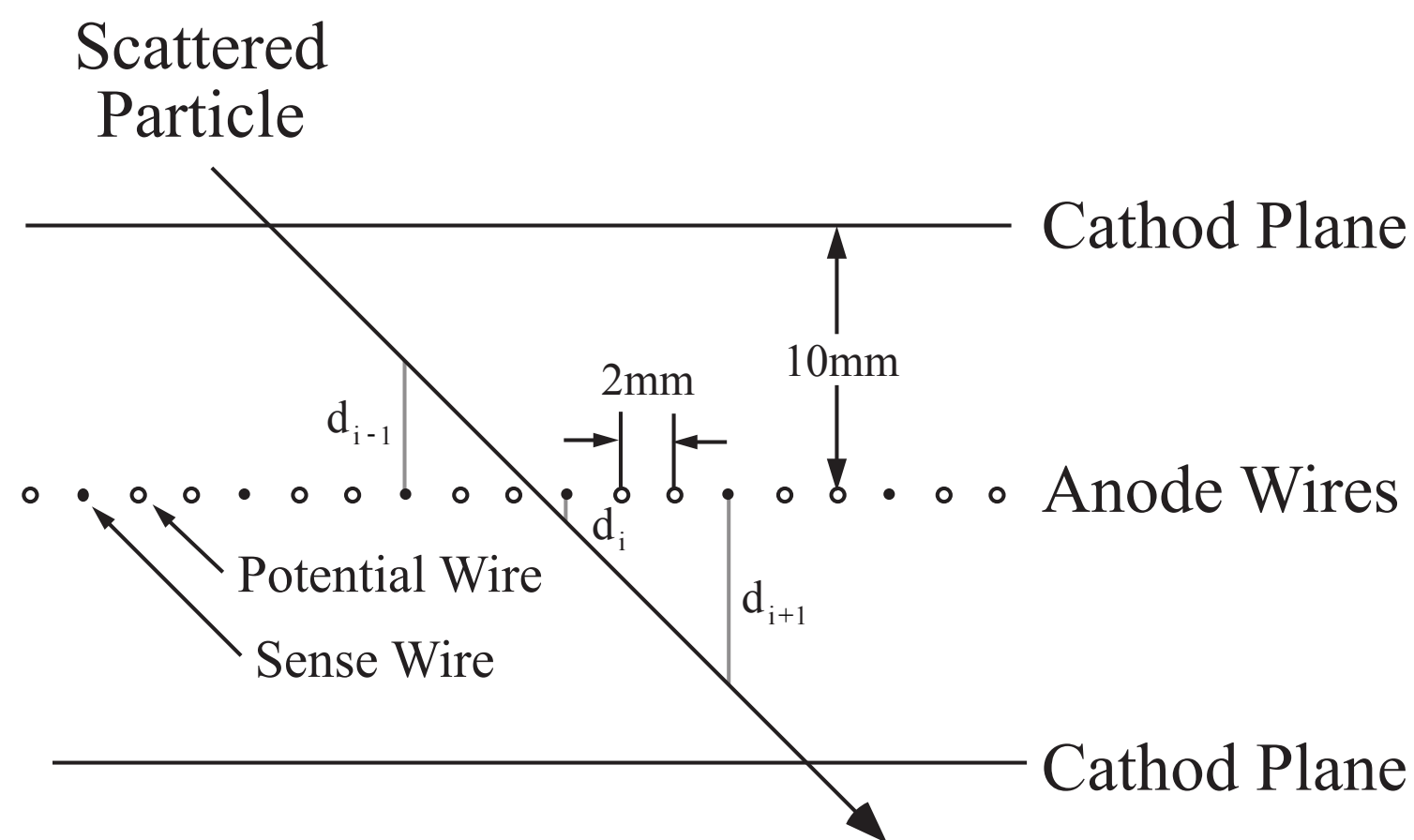


図 2.8 : MWDC の概略図

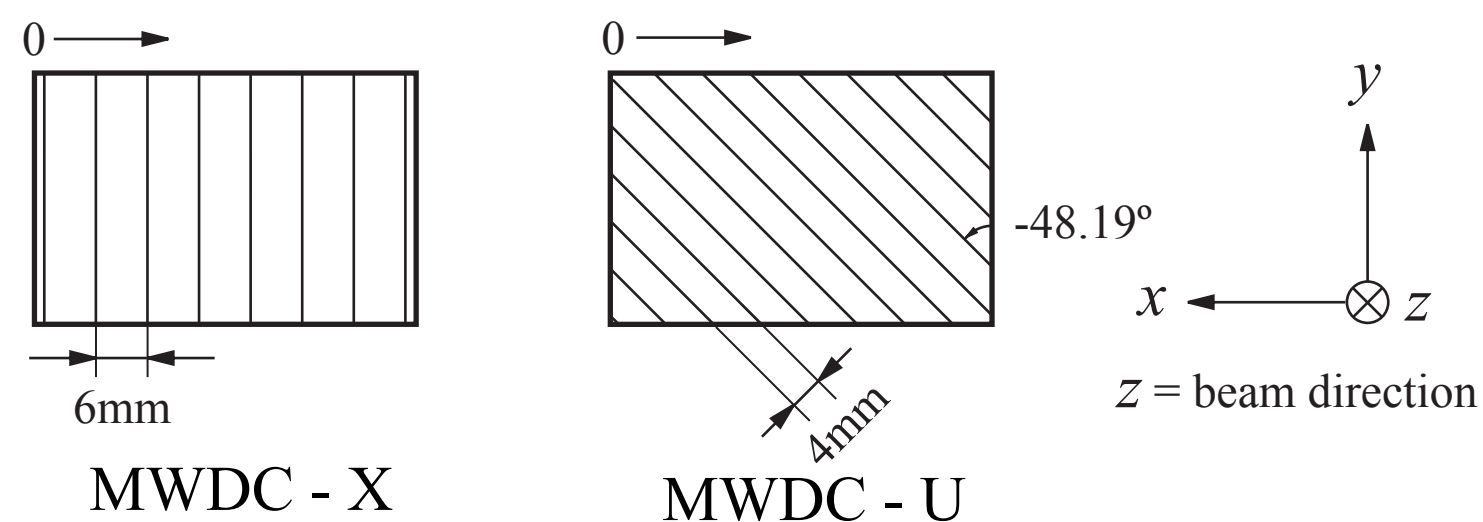


図 2.9 : MWDC のワイヤー形状

表 2.4 : MWDC の仕様

芯線構成	X 0°, U 48.2°
有感領域	W 1150 mm, H 120 mm
芯線数	X 192, U 208
陽極-陰極面間隔	10 mm
陽極面芯線間隔	2 mm
陽極芯線間隔	X 6 mm, U 4 mm
陽極芯線	20 $\mu\text{m}\phi$ 金メッキ W 芯線
ポテンシャル芯線	50 $\mu\text{m}\phi$ 金メッキ Cu/Be 芯線
陽極	6 μm 炭素アラミド膜

2.5.3.2 プラスチックシンチレータ

MWDC の後方には厚さの異なる 2 枚のプラスチックシンチレータが設置されている。1 枚目は 1 mm 厚、2 枚目は 10 mm 厚である。この厚さは飛来した粒子の種類によって、到達する枚

数が異なるように設定されている。 ^{12}C の場合は 1 枚目で停止し、 α 粒子の場合は 1 枚目を貫通し、2 枚目で停止する。したがって、1 枚目のみ検出された場合は γ 崩壊事象、2 枚とも検出された場合は α 崩壊事象と識別することができる。

2.5.4 標的

第 1 候補の TiD_2 と第 2 候補の固体重水素標的についてそれぞれ実験条件の最適化を行った。Gion 検出器の設置距離及び角度、GR の設置角度は共通である。唯一異なる点は GR の運動量中心である。表 2.5 に標的の厚さ及び GR の運動量中心を示す。 TiD_2 の Ti と重水素 D の個数比 D/Ti は 1.8 とした。固体重水素の厚さには真空を封止するための $6\ \mu\text{m} \times 2$ 枚のアラミドフィルムの厚さは含まれていない。

表 2.5：標的の厚さ及び GR の運動量中心

標的	TiD_2	固体重水素
厚さ (μm)	15	500
質量厚さ (mg/cm^2)	Ti 6.78, D 0.45	10.25
GR 運動量中心 (MeV/c)	2275	2250

2.5.5 ^{12}C ビーム

RCNP には AVF サイクロトロンとリングサイクロトロンの 2 つのサイクロトロンが設置されている。今回は AVF サイクロトロンにおける $^{12}\text{C}^{5+}$ ビームの最大エネルギー 262 MeV を用いる。また、シミュレーションにて必要なビーム量を見積もった。現実的なビームタイム期間を 2 週間と設定し、 3_1^- 状態の γ 崩壊の目標事象数を 100 とした。また、 3_1^- 状態の γ 崩壊確率 (10^{-8} – 10^{-6}) から 3_1^- 状態の目標全励起事象数を 10^{10} とした。その結果を表 2.6 に示す。 TiD_2 は重水素の物質量が固体重水素に比べると非常に少ないため、必要なビーム強度が大きくなっている。

表 2.6：必要なビーム強度

標的	必要なビーム強度 (pnA)
TiD_2	90
固体重水素	4.5

第3章

重水素吸蔵チタン (TiD₂) 標的

3.1 水素化物

水素は最も小さく、単純な構造を持つ元素であり、様々な元素と反応し水素化合物を形成する。その中でも、水素と1種類のお元素のみからなる二元化合物を水素化物と呼ぶ。図3.1に元素周期表中にみる水素化物を示す。水素化物は大きく分けると3つの種類に分類される。

1 A	2 A											3 B	4 B	5 B	6 B	7 B	
LiH 3	BeH ₂ 4											B ₂ H ₆ 5	CH ₄ 6	NH ₃ 7	H ₂ O 8	HF 9	
NaH 11	MgH ₂ 12	3 A	4 A	5 A	6 A	7 A	8 A				1 B	2 B	AlH ₃ 13	SiH ₄ 14	PH ₃ 15	H ₂ S 16	HCl 17
KH 19	CaH ₂ 20	ScH ₂ 21	TiH ₂ 22	VH VH ₂ 23	CrH 24	Mn 25	Fe 26	Co 27	NiH 28	CuH 29	ZnH ₂ 30	GaH ₃ 31	GeH ₄ 32	AsH ₃ 33	H ₂ Se 34	HBr 35	
RbH 37	SrH ₂ 38	YH ₂ YH ₃ 39	ZrH ₂ 40	NbH NbH ₂ 41	Mo 42	Tc 43	Ru 44	Rh 45	PdH 46	Ag 47	CdH ₂ 48	InH InH ₃ 49	SnH ₄ 50	SbH ₃ 51	TeH ₂ 52	HI 53	
CsH 55	BaH ₂ 56	ランタノイド 57~71	HfH ₂ 72	TaH 73	W 74	Re 75	Os 76	Ir 77	Pt 78	Au 79	HgH ₂ 80	TlH TlH ₃ 81	PbH ₄ 82	BiH ₃ 83	PoH ₂ 84	At 85	
		アクチノイド 89~92															
ランタノイド 57~71	LaH ₂ LaH ₃ 57	CeH ₂ CeH ₃ 58	PrH ₂ PrH ₃ 59	NdH ₂ NdH ₃ 60	Pm 61	SmH ₂ SmH ₃ 62	EuH ₂ 63	GdH ₂ GdH ₃ 64	TbH ₂ TbH ₃ 65	DyH ₂ DyH ₃ 66	HoH ₂ HoH ₃ 67	ErH ₂ ErH ₃ 68	TmH ₂ TmH ₃ 69	YbH ₂ YbH ₃ 70	LuH ₂ LuH ₃ 71		
アクチノイド 89~92	AcH ₂ 89	ThH ₂ Th ₄ H ₁₅ 90	PaH ₃ 91	UH ₃ 92	NpH ₂ NpH ₃ 93	PuH ₂ PuH ₃ 94	AmH ₂ AmH ₃ 95										

図 3.1 : 元素周期表中の水素化物 [30]

3.1.1 共有結合性水素化物

電気陰性度の大きな典型元素 (3B-7B 元素) が、水素と共有結合した水素化物である。そのため、分子状水素化物とも呼ばれる。一般に、共有結合した分子間に働く力は分子間力のみであるため、共有結合性水素化物は気体、揮発性の液体または融点の低い固体である。非金属と

しては水、塩化水素、アンモニア、半金属・金属としては水素化ホウ素、水素化アルミニウム、水素化スズなどが挙げられる。また、ベリリウムは2A元素であるが、電気陰性度が比較的大きいため、例外的に共有結合性水素化物を形成する。

3.1.2 イオン結合性水素化物

アルカリ金属やアルカリ土類金属などの電気陰性度の小さい陽性元素(1A, 2A元素)が、水素とイオン結合した水素化物である。共有結合性水素化物とは異なり、クーロン力によって結合しているため、高い融点・沸点をもつ。一般に、白色に近い粉末状の固体であり、外見・性質ともに塩化ナトリウムのようなハロゲン化アルカリに類似しているため、塩類似水素化物とも呼ばれる。金属イオンと水素イオン間に働くクーロン力により、格子間距離が小さくなるため、イオン結合性水素化物は元の金属より密度が大きくなる。代表例としては、水素化リチウム、水素化ナトリウム、水素化カルシウムなどが挙げられる。水素化マグネシウムは例外的に、共有結合性水素化物とイオン結合性水素化物の中間的な性質を持つ。

3.1.3 金属結合性水素化物

ランタノイド元素やアクチノイド元素を含む遷移金属(3A-8A元素)が形成する水素化物である。金属結合性と名前がついているが、実際は金属結合性からイオン結合性までかなりの幅を持つ。金属結合性水素化物は、水素化してもなお金属としての性質を保つが、非常に脆いという特徴がある。水素が金属の結晶格子中に入り込んだ状態であるために侵入型水素化物とも呼ばれ、化学組成は金属と水素の反応時の温度や水素の圧力、金属の状態によって変化する。水素を吸蔵することにより格子が膨張するため、元の金属より密度は小さくなる。代表例としては、水素化チタン、水素化バナジウム、水素化パラジウムなどが挙げられる。また、全ての金属が水素を吸蔵するわけではなく、6A-8A元素の大部分が水素を吸蔵しない。

3.2 重水素化物・三重水素化物

上記のような水素化物は、水素の同位体である重水素(D)と三重水素(T)でも同様に重水素化物・三重水素化物が形成される。密度や格子定数などの物理的特性にわずかな差異は存在するが、水素化物との非常によく似た性質を持つ。そのため、結合元の元素が不純物となるが、重水素化物を重水素標的として使用することができる。

3.3 標的に求められる条件

本研究で標的に求められる条件及び優先順位は以下の通りである。

1. 標的の厚さ

本研究では反跳重陽子の角度とエネルギーから質量欠損法を用いて ^{12}C の励起エネルギー

ギーを決定するため、重陽子の角度・エネルギー分解能が重要となる。標的が厚いほど、反跳重陽子が受ける角度・エネルギー拡がりも大きくなる。そのため、厚すぎる標的は使用できない。本研究においては、Gion 検出器の角度分解能が励起エネルギー分解能に大きな影響を与える。目標の励起エネルギー分解能は σ で280以下であり、誤差伝搬計算を用いて分解能を評価したところ、標的中における重陽子の角度拡がりを σ で4 mrad以下に抑える必要があることが分かった。

2. 重水素の物質量

励起エネルギー分解能のためには、標的の厚さを薄くする必要があるが、統計量の観点からはなるべく厚いする必要がある。励起エネルギー分解能の制限があるため厚すぎる標的は使用できないが、なるべく重水素の含有量が多い標的が望ましい。

3. 熱耐性

2.2節で述べたように、前回の実験では固体水素標的の融解が問題となった。 3_1^- 状態の γ 崩壊確率は非常に小さく、十分な統計量を確保するためにビーム強度を減らすことはできない。そのため、標的の熱耐性は重要な要素となる。

4. 化学的安定性

標的としては、化学的に安定な物質であることが望ましい。例えば、空気中の水分や光などと反応してしまう物質は取り扱いに特別の配慮が必要となる。

これらの条件を考慮すると使用できる物質は限られている。共有結合性水素化物はそもそも常温で固体でない物質が多く、耐熱性のある標的作成が困難である。イオン結合性水素化物は一般に反応性が高く、化学的安定性に乏しい。金属結合性水素化物は化学的安定性に優れ、適切な厚さを選択しつつ耐熱性のある標的作成が可能である。そのため、本研究では金属結合性水素化物を標的として検討することとした。

3.4 吸蔵元の金属の決定

標的の厚さ及び質量厚さを考慮すると、吸蔵元の金属は原子番号が小さい方が有利である。表3.1に比較的原子番号の小さい主な金属水素化物の性質を示す。金属水素化物によって水素放出温度が大きく異なることがわかる。標的はビーム照射によって加熱されるため、水素放出温度は高い方が望ましい。また、全体の物質量に対する水素の物質量の割合が大きく、水素密度が高い方が統計量の観点から有利である。そのため、本研究ではTiを吸蔵元の金属として使用することとした。

表 3.1：主な金属水素化物の性質 [30]

水素化物	密度 (g/cm ³)	水素密度 (10 ²² H/cm ³)	水素放出温度 (°C)
TiH ₂	3.75	9.1	> 600
VH ₂	4.7	10.5	40
ZrH ₂	5.6	7.3	> 600

3.5 TiD₂ の特性・懸念点

TiD₂ は空気中で安定な物質であり、水と反応しない。Ti は最大 D/Ti = 2 までの重水素を吸蔵することができる [31]。しかし、Ti に重水素を最大まで吸蔵した場合、非常に脆くなってしまい、標的として使用することができない。重水素吸蔵による Ti の脆化は、重水素の吸蔵量によって異なる。D/Ti = 1.6–1.8 程度の吸蔵量ならば、脆化は起こるものの、単独で標的として使用できる程度の強度を保つことができる。

三重水素吸蔵チタン (TiT₂) は従来から DT 反応を用いた中性子源の三重水素標的として使用されてきた [32]。また、水素吸蔵チタン・重水素吸蔵チタンを標的とした実験も行われている [33]。しかし、これらの実験で用いられているのは高々数百 keV の陽子・重陽子ビームであり、本研究で計画しているような数百 MeV の重イオンビームを用いた実験例は少ない。そのため、¹²C ビームを使用する本研究では TiD₂ を重水素標的として使用できない可能性がある。また、実験条件最適化のためのシミュレーションでは、TiD₂ のデータから Ti のバックグラウンドデータを減算することで、TiD₂ に含まれる Ti 由来のバックグラウンド事象を排除し、目的の重水素との散乱事象のみを抽出できると仮定している。しかし、Ti 由来のバックグラウンド事象が非常に多い場合、S/N 比が著しく劣化し測定上の問題となりえる。

第 4 章

東北大学 CYRIC における TiD_2 標的の性能評価実験

3.5 節で述べたように、 TiD_2 には重水素標的として使用するうえで、いくつかの懸念点が存在する。そのため、我々は東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター (CYRIC) において TiD_2 標的の性能評価実験を行った。性能評価実験の目的は、 TiD_2 のビーム耐性及び Ti 由来のバックグラウンドによる影響を確認することである。また、Gion 検出器の励起エネルギー分解能とシミュレーションに用いた $^2\text{H}(^{12}\text{C}, ^{12}\text{C}^*d)$ 反応の微分断面積も確認した。

4.1 セットアップ

実験は CYRIC の高分解能ビームコースにておいて実施した。図 4.1 に CYRIC の施設平面図を示す。同コースは一对の双極電磁石を有しており、およそ $1/12000$ の運動量分解能のビームを供給することができる。また、下流の第 4 ターゲット室には直径約 1 m、高さ 50 cm の大型散乱槽が設置されている。

図 4.2 に実験のセットアップを示す。930 型 AVF サイクロトロンにて 218 MeV まで加速した $^{12}\text{C}^{5+}$ ビームを TiD_2 及び Ti 標的に照射し、反跳された重陽子の角度とエネルギーを Gion 検出器にて測定した。標的は反跳重陽子が標的中を通過する長さが短くなるように、Gion 検出器側に 30° 傾けて設置した。また、CYRIC では ^{12}C を本実験で計画している 262 MeV まで加速することができなかつたため、ビームエネルギーは CYRIC における $^{12}\text{C}^{5+}$ の最大エネルギーを採用した。散乱 ^{12}C を検出する GR 及び焦点面検出器の代わりとして、厚さの異なる 2 枚の Si 検出器を前方角度に設置した。以降、これを前方 Si 検出器と呼称する。ビームは散乱槽後方に設置したファラデーカップで停止させ、その電荷量を測定した。

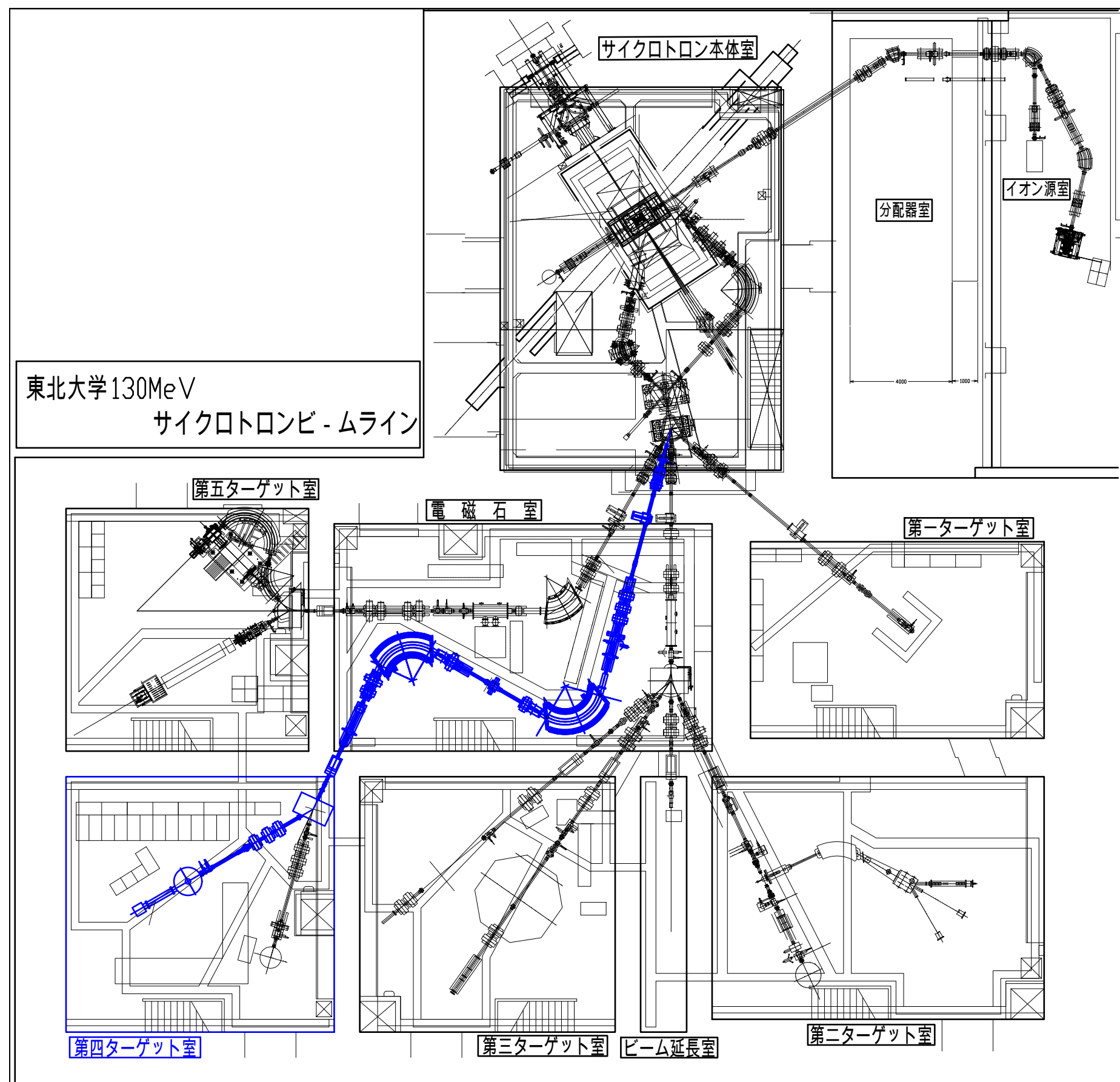


図 4.1 : CYRIC の施設平面図

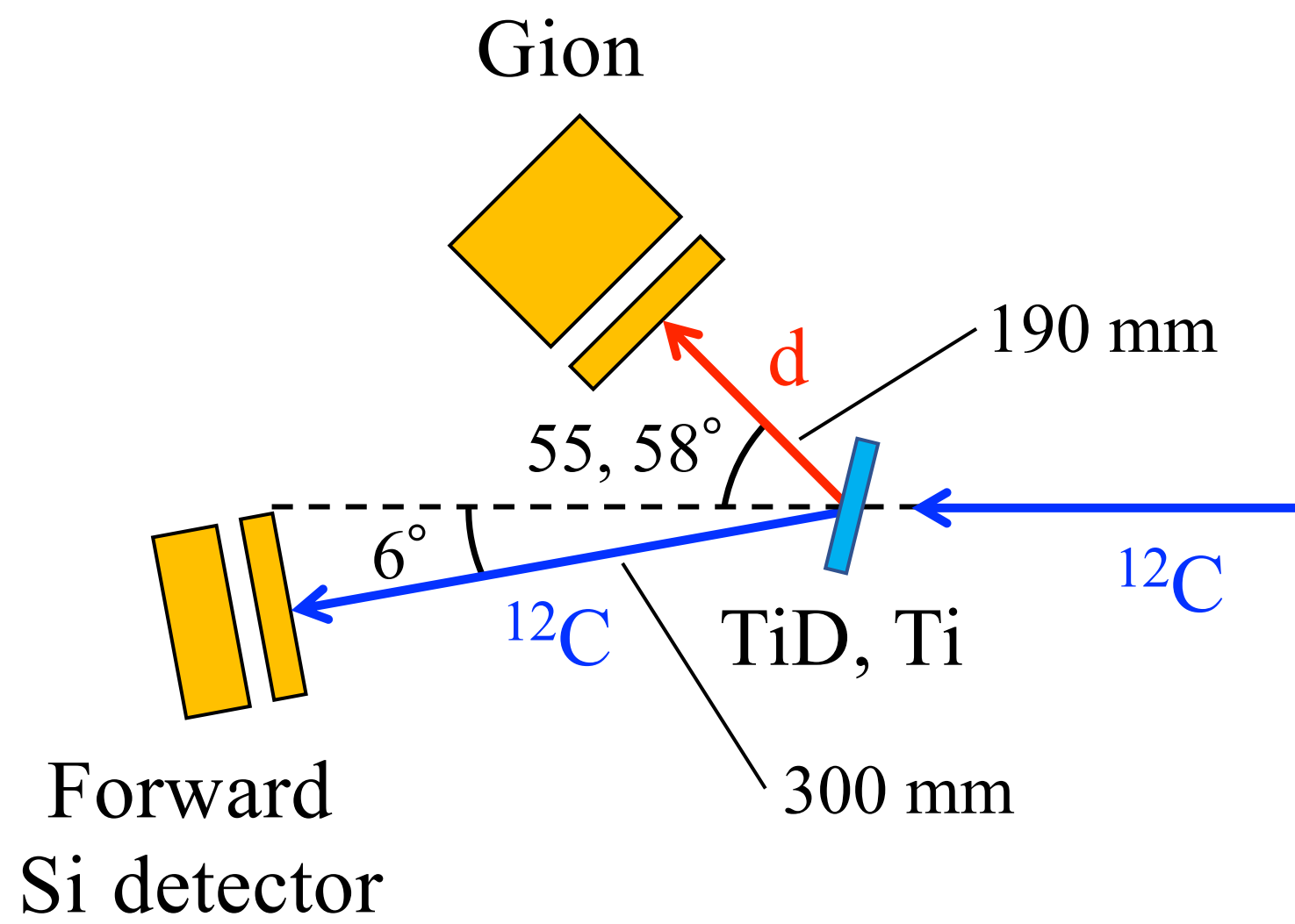


図 4.2 : TiD_2 性能評価実験のセットアップ

4.1.1 標的

TiD₂ は、三重水素標的として TiT₂ を開発している東北大学理学研究科物理学専攻の三木謙二郎助教らに作成していただいた。使用した TiD₂ 標的 [図 4.3(下)] の厚さは 15 μm、Ti と重水素 D の個数比 D/Ti はおよそ 1.6 であり、これはシミュレーションで仮定されていた 1.8 より少し小さな値である。Ti のバックグラウンドデータをとるための Ti 標的 [図 4.3(上)] の厚さは TiD₂ と同じ 15 μm である。また、TiD₂ は作成過程において加熱等の処理を行なっているが、条件を揃えるために Ti 標的にも同様の処理を行ない、重水素の吸蔵の有無のみが異なるようにした。TiD₂ は非常に脆いためターゲットラダーに抑えを用いて固定することができない。そのため、導電性テープを用いてターゲットラダーに固定した。標的はビーム軸から Gion 検出器側に 30° 傾けて設置した。

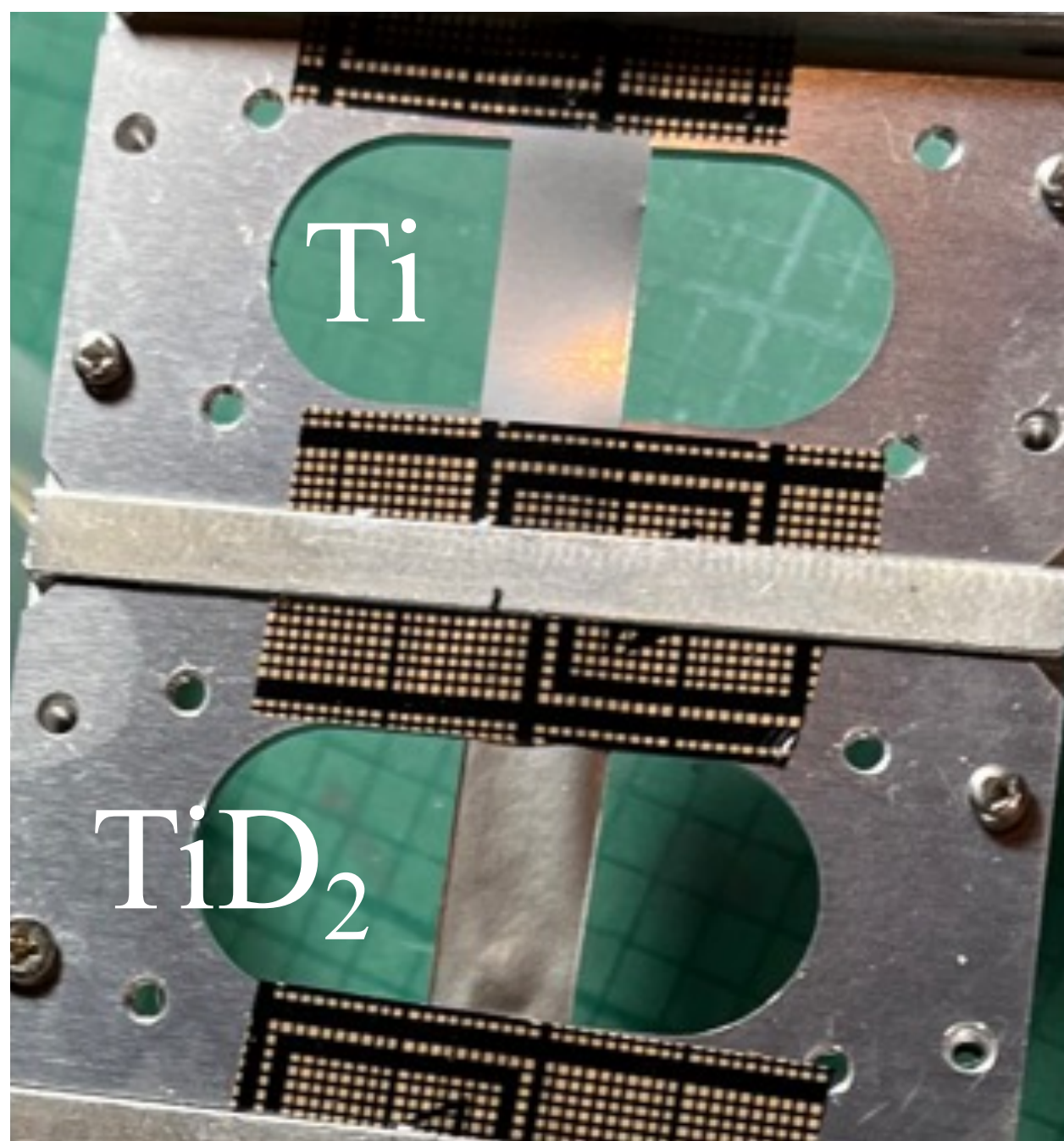


図 4.3 : TiD₂ 及び Ti 標的

4.1.2 Gion 検出器

Gion 検出器の詳細は 2.5.1 節にて述べた通りである。本実験では、前面の Si 検出器は厚さ 300 μm のものを使用する計画だが、まだ購入前のため使用できない。そのため、今回の性能評価実験では前回の実験で使用した、厚さ 520 μm の既存の Si 検出器を使用した。しかし、前面の Si 検出器の厚さが異なることにより、検出できる反跳重陽子の最低エネルギーが変化してしまう。また、ビームエネルギーが異なるため運動学の条件も異なる。そのため、本実験と同じ角度に設置することはできず、設置角度の再検討が必要であった。設置距離に関しては、散乱槽が十分な大きさだったため、本実験と同じ 190 mm とした。

図 4.4 に散乱 ^{12}C と反跳重陽子の放出角度の相関を示す。Gion 検出器は $E-\Delta E$ 型検出器であるため、反跳重陽子が GAGG 検出器にて少なくとも数 MeV のエネルギーを落とさなければ粒子識別を行うことができない。Si 検出器と GAGG 検出器の反射材である ESR フィルムの厚さを考慮すると、520 μm の Si 検出器を使用した場合、検出可能な反跳重陽子の最低エネルギーはおよそ 15 MeV と見積もられる。図 4.4 中の破線は、反跳重陽子のエネルギー E_d がそれぞれ 10, 15, 20 MeV となる角度を示している。また、一般に反応断面積は重心系前方角度の方が大きい。図 4.4 中で、重心系角度は、原点において 0° であり、実線で示された角度相関に沿って反時計回りに増加する。すなわち、 $E_d > 15$ MeV の領域では実験室系の後方角度へ進むにつれて反応断面積が大きくなる。以上の条件を考慮し、Gion 検出器の設置角度は 55° とした。また、Gion の Si 検出器のシングルレートの測定時は 58° とした。しかし、解析により実際の設置角度が少しずれていたことが判明した。予想される実際の角度は 54° と 57° であり、解析ではこれらの角度を使用した。

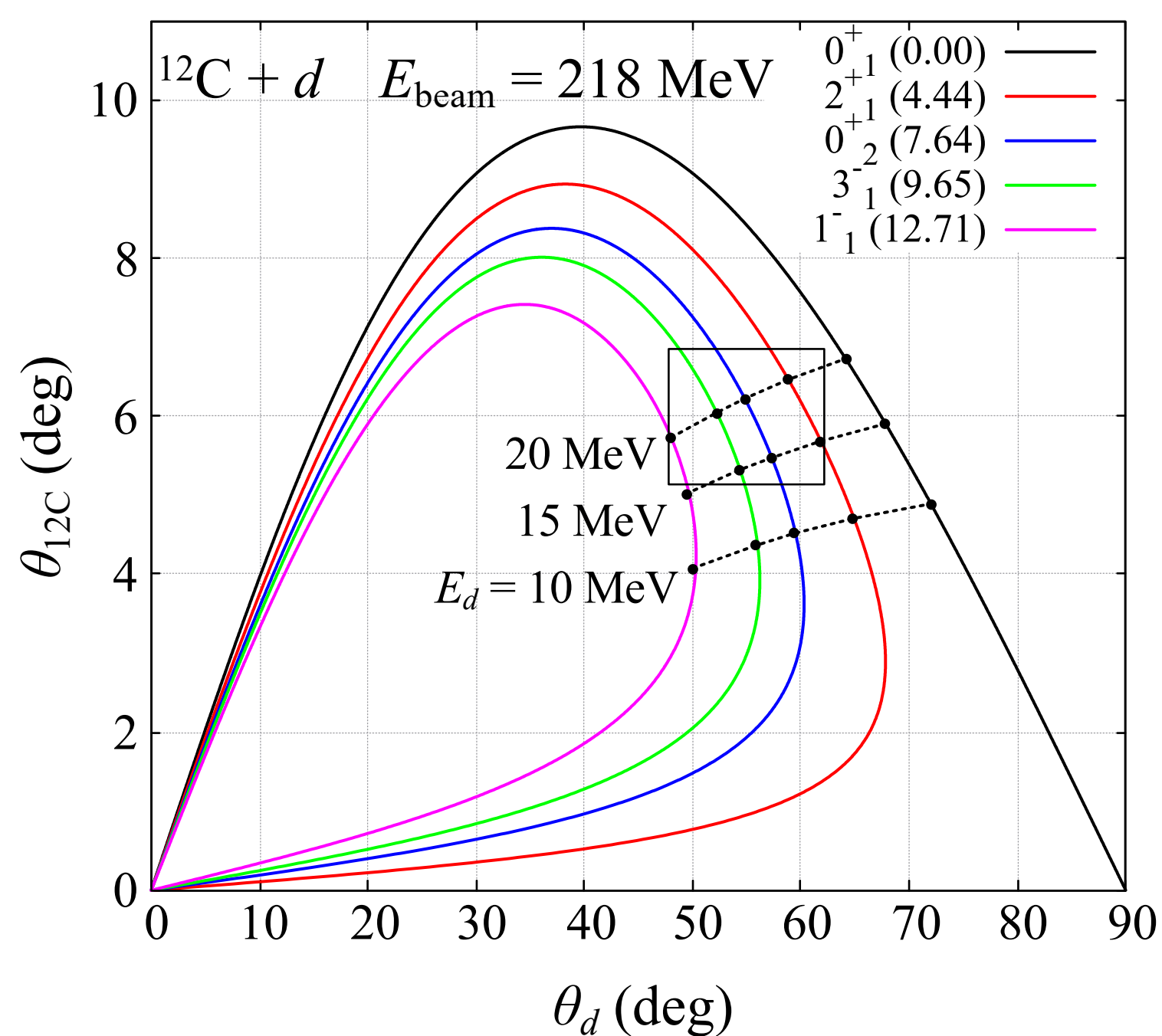


図 4.4：散乱 ^{12}C と反跳重陽子の放出角度の相関

4.1.3 前方 Si 検出器

ここでは、前方 Si 検出器に使用した 2 枚の Si 検出器のうち、 ΔE の測定に用いた 1 枚目の Si 検出器 (厚さ 325 μm) を Si1、残りのエネルギーを測定する 2 枚目の Si 検出器 (厚さ 500 μm) を Si2 と呼称する。Si1 の読み出し電極は縦長のストリップ状に 10 分割されており、Si2 の読み出し電極は分割されていない。有感領域の大きさはどちらも同じく $50 \times 50 \text{ mm}^2$ である。前方

Si 検出器が覆う角度は、標的から最大限離れた 300 mm の位置に設置した場合でも水平・鉛直方向ともに ± 83 mrad であり、本実験で使用する GR の角度アクセプタンス (水平: ± 14 mrad、鉛直: ± 25 mrad) と比べて非常に大きい。そのため、検出器前面を図 4.5 に灰色で示すように 3 mm 厚のアルミ板で遮蔽することで、有感領域を水平方向 25 mm、鉛直方向 20 mm に制限し、角度アクセプタンスを GR とほぼ同等にした。水平方向に関しては、GR の角度アクセプタンスを再現するには 10 mm 程度にする必要があるが、1 枚目の Si1 検出器の読み出し電極は 4.5 に破線で示すように 10 分割されているため、解析でチャンネルを選択することで角度アクセプタンスを小さくすることができる。そのため、水平方向の有感領域は少し大きめに設定した。前方 Si 検出器を設置する際には、図中の「 \otimes 」の位置が検出器の設置角度となるよう位置を決定した。

目的である 3_1^- 状態のイベントに対して、Gion 検出器とコインシデンスが取れるよう、設置角度は 6° とした。図 4.4 中の黒線で囲まれる領域は、Gion 検出器と前方 Si 検出器のコインシデンスが取れる角度範囲を示している。ここでは、前方 Si 検出器の水平方向の有感領域を 10 mm とした場合の角度アクセプタンスを使用している。

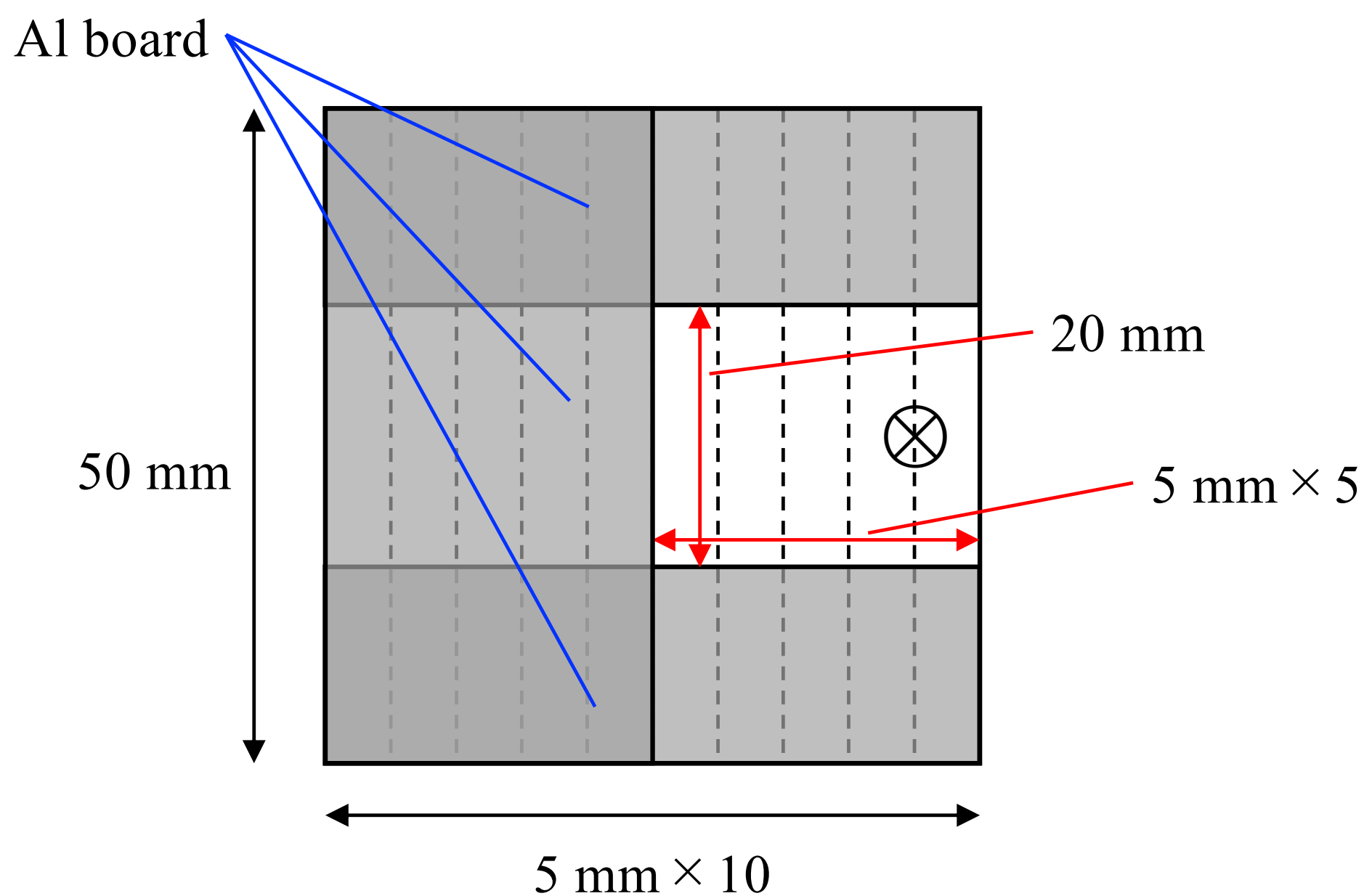


図 4.5：前方 Si 検出器

4.1.4 ビーム

今回の性能評価実験では、2つのビーム設定を用いた。1つ目は、ビームスポットを小さくすることで反跳重陽子の位置分解能を向上させたモードである。以降、このモードを高分解能モードと呼称する。2つ目は、ビームスポットの大きさを犠牲にすることで、ビーム強度を向上させることを試みたモードである。以降、このモードを大強度モードと呼称するが、残念ながら

ら、今回のビームタイムでは表 2.6 に示したビーム量を実現することができず、大強度モードにおいても最大のビーム電流は 0.4 pnA に留まった。表 4.1 に今回の実験での 2 つのビーム設定の平均的な強度とスポットサイズを示す。ただし、スポットの形は横長の長方形であり、縦方向のスポットサイズはモードによらず ± 0.5 mm 程度であった。そのため、ここで示すスポットサイズは水平方向のスポットサイズである。

表 4.1：高分解能モードと大強度モードのビーム強度とスポットサイズ

モード	強度 (pnA)	スポットサイズ (mm)
高分解能	0.1	± 1
大強度	0.4	± 5

4.1.5 トリガー条件

今回の性能評価実験では、以下の 2 つのトリガー条件を用いた。

1. Si_{Gion} \otimes GAGG
2. Si_{Gion} Single

1 つ目は、Gion の Si 検出器と GAGG 検出器のコインシデンスイベントであり、¹²C の励起エネルギーを決定するために使用した。2 つ目は、Gion の Si 検出器のみのシングルイベントであり、Si へのバックグラウンドレートを測定するために使用した。また、シングルイベントをサンプリングし、コインシデンスイベントと同時にデータを取得することはせず、Run ごとにトリガー条件を切り替えてデータを取得した。

4.1.6 データ収集回路

今回の性能評価実験で使用したデータ収集回路の模式図を図 4.6 に示す。Gionp の Si 検出器表裏 48 + 32 ch と GAGG 検出器の 24 ch の信号を、散乱槽内において Mesytech 社製の電荷積分型プリアンプ MPR-16/32 を用いて増幅した。前方 Si 検出器の Si1 の 5 ch、Si2 の 1 ch は CAEN 社製の電荷積分型プリアンプ A1442B を用いて増幅した。その後、フィードスルーを通して全ての信号を散乱槽外部に引き出した。MPR-16/32 の出力信号は差動信号のため、Gion の Si 検出器の信号は Mesytec 社製の MDU-16 を用いてシングルエンド信号に変換し、CAEN 社製の Flash Digitizer V1730 を用いて数値化した。V1730 は信号波形を取得することができるが、今回はデータ量削減のため Pulse Height Analysis (PHA) ファームウェアを使用し、波高情報のみを取得した。また、Gion の Si 検出器裏面の信号は MDU-16 の手前で 2 つに分岐させ、片方を Mesytec 社製の MSCF-16 に入力した。GAGG 検出器と前方 Si 検出器の信号も同じく MSCF-16 に入力した。MSCF-16 は整形アンプとコンスタントフラクションディスクリ

ミネータ (CFD) を内蔵しており、Shaper out と Timing out の 2 つの出力信号を持つ。それぞれの Shaper out を Mesytec 社製の MADC-32 に入力し、波高情報を取得した。Timing out は CAEN 社製の Multi-hit TDC V1190 に入力し、時間情報を取得した。また、Gion の Si 検出器シングルトリガーの場合、Gion の Si 検出器裏面の Timing out 信号の全論理和をトリガー信号とした。Gion の Si 検出器と GAGG 検出器のコインシデンストリガーの場合は、シングルトリガーと GAGG 検出器の Timing out 信号の全論理和をコインシデンスモジュールで AND を取ったものをトリガー信号とした。これらのトリガー信号を V1730、MADC-32、V1190 に入力し、データの取得を行った。

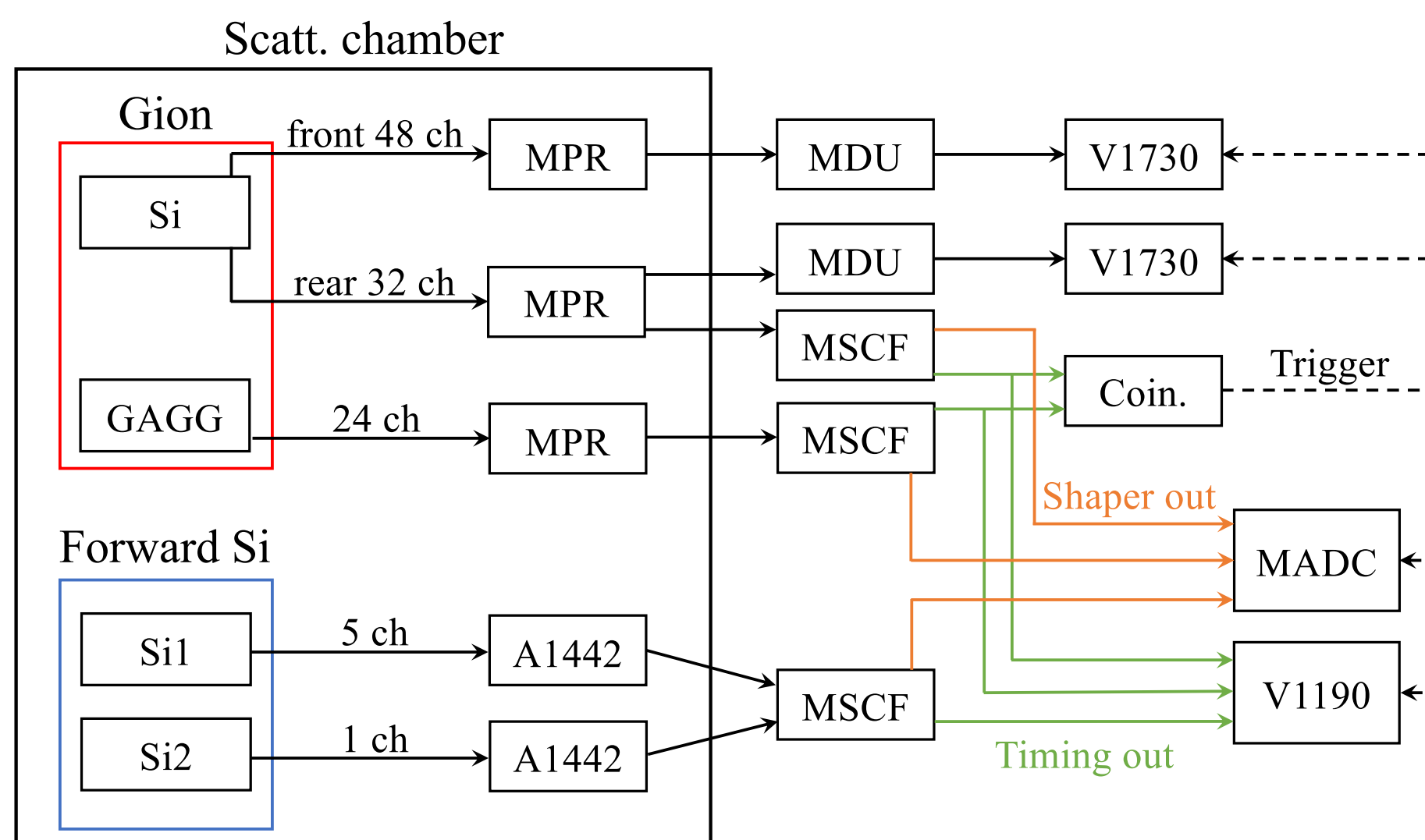


図 4.6：データ収集回路の模式図

4.2 解析

4.2.1 Gion 検出器

4.2.1.1 Si 検出器

Gion の Si 検出器におけるストリップの識別番号を図 4.7(右) に示す。ただし、実際の縮尺でストリップを描画すると細かすぎるため、図 4.7 ではストリップ間隔を広げ、かつ一部のストリップのみを描画している。

Si 検出器上の検出位置から重陽子の反跳角度を決定する方法について説明する。まず、標的中心を原点 O とし、 x 軸を水平方向、 y 軸を鉛直方向、 z 軸をビーム軸方向に取った座標系 a [図 4.7(左)] を定義する。座標系 a における各ストリップの中心を (x_i, y_j, z_i) 、原点 O から Gion の Si 検出器までの距離を d_{Gion} 、 z 軸からの Gion 検出器の角度を θ_{Gion} とする。ここで、添字の i, j はそれぞれ鉛直方向、水平方向のストリップ番号を表す。次に、Gion の Si 検出器の中心を原点 O' とし、 x', y' 軸を Gion 検出器面における水平・鉛直方向に取った座標系 b [図

4.7(右)] を定義する。また、座標系 b における各ストリップの中心を (x'_i, y'_j) とする。このとき、 (x_i, y_j, z_i) と (x'_i, y'_j) の間には以下の関係が成り立つ。

$$x_i = d_{\text{Gion}} \sin \theta_{\text{Gion}} + x'_i \cos \theta_{\text{Gion}} \quad (4.1)$$

$$y_j = y'_j \quad (4.2)$$

$$z_i = d_{\text{Gion}} \cos \theta_{\text{Gion}} - x'_i \sin \theta_{\text{Gion}} \quad (4.3)$$

これらを用いると、重陽子の反跳角度の極角 θ と方位角 ϕ は以下の式で表される。

$$\theta = \tan^{-1} \left(\frac{z_i}{\sqrt{x_i^2 + y_j^2 + z_i^2}} \right) \quad (4.4)$$

$$\phi = \tan^{-1} \left(\frac{y_j}{x_i} \right) \quad (4.5)$$

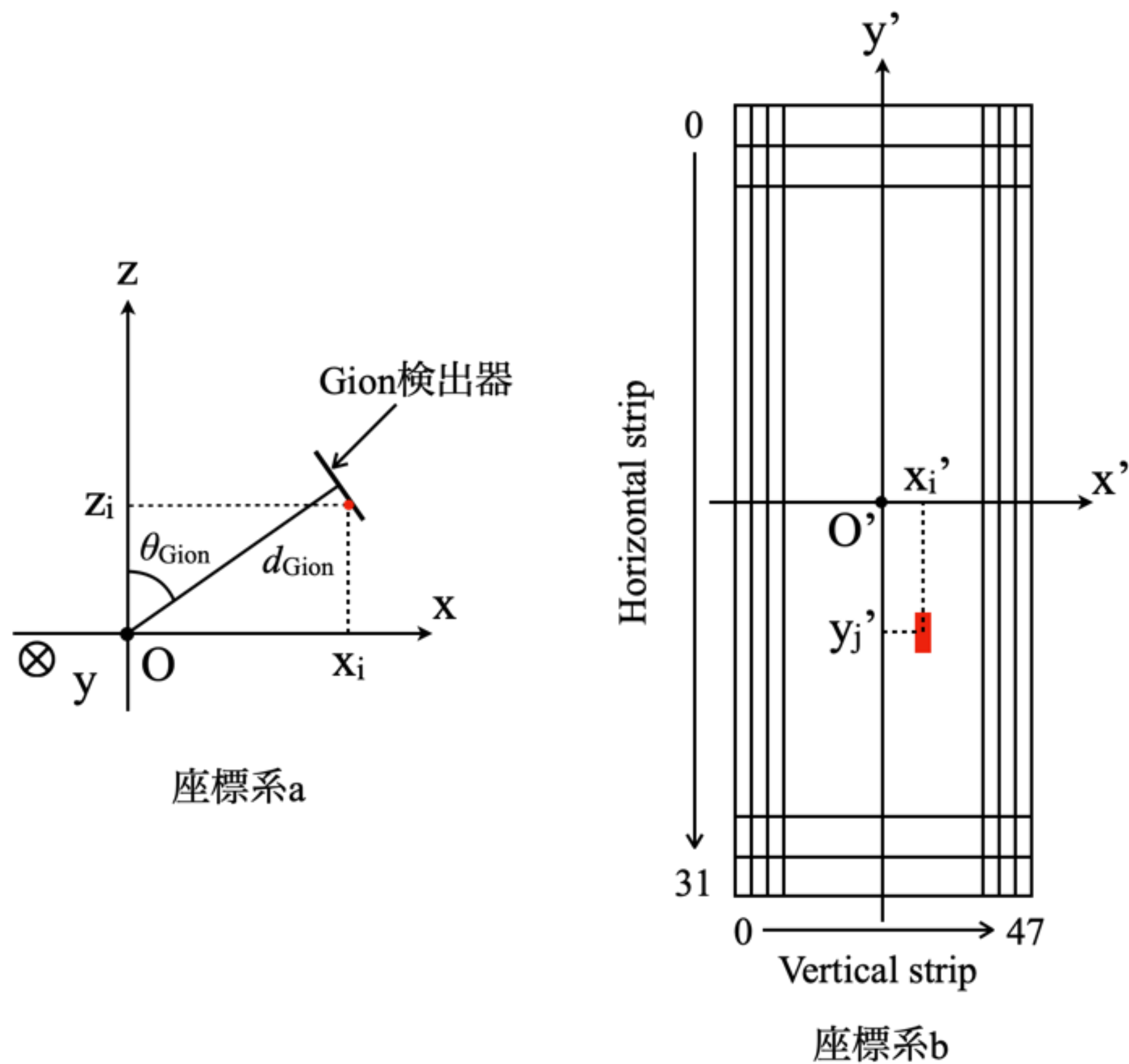


図 4.7 : Gion の Si 検出器の識別番号及び 2 つの座標系

Gion の Si 検出器のエネルギー較正には、3 種混合の α 線源 (^{148}Gd , ^{241}Am , ^{244}Cm) を用いた。表 4.2 に 3 種混合 α 線源に含まれる核種から放出される α 粒子のエネルギーとそれぞれの核種における相対強度を示す。図 4.8 に 3 種混合 α 線源の測定によって得られた典型的な α 粒子のエネルギースペクトルを示す。横軸は V1730 で測定した波高の ch 数、縦軸は 2 ch ごとの

カウント数である。このスペクトルから各ピークの ch 数を読み取り、各ピークのエネルギーと対応させる。得られたデータを用いて、エネルギーを ch 数の 1 次関数としてフィットを行い、変換係数を決定した。ただし、 ^{241}Am の 5.43 MeV と ^{244}Cm の 5.76 MeV のピークは統計量が少なかったため、エネルギー較正には使用しなかった。上記のエネルギー較正を各ストリップごとに行なった。

表 4.2：3 種混合 α 粒子源に含まれる核種の α 粒子のエネルギーと相対強度

核種	α 粒子のエネルギー (MeV)	相対強度 (%)
^{148}Gd	3.18	100
^{241}Am	5.43	13.1
^{241}Am	5.49	84.8
^{244}Cm	5.76	23.1
^{244}Cm	5.81	76.9

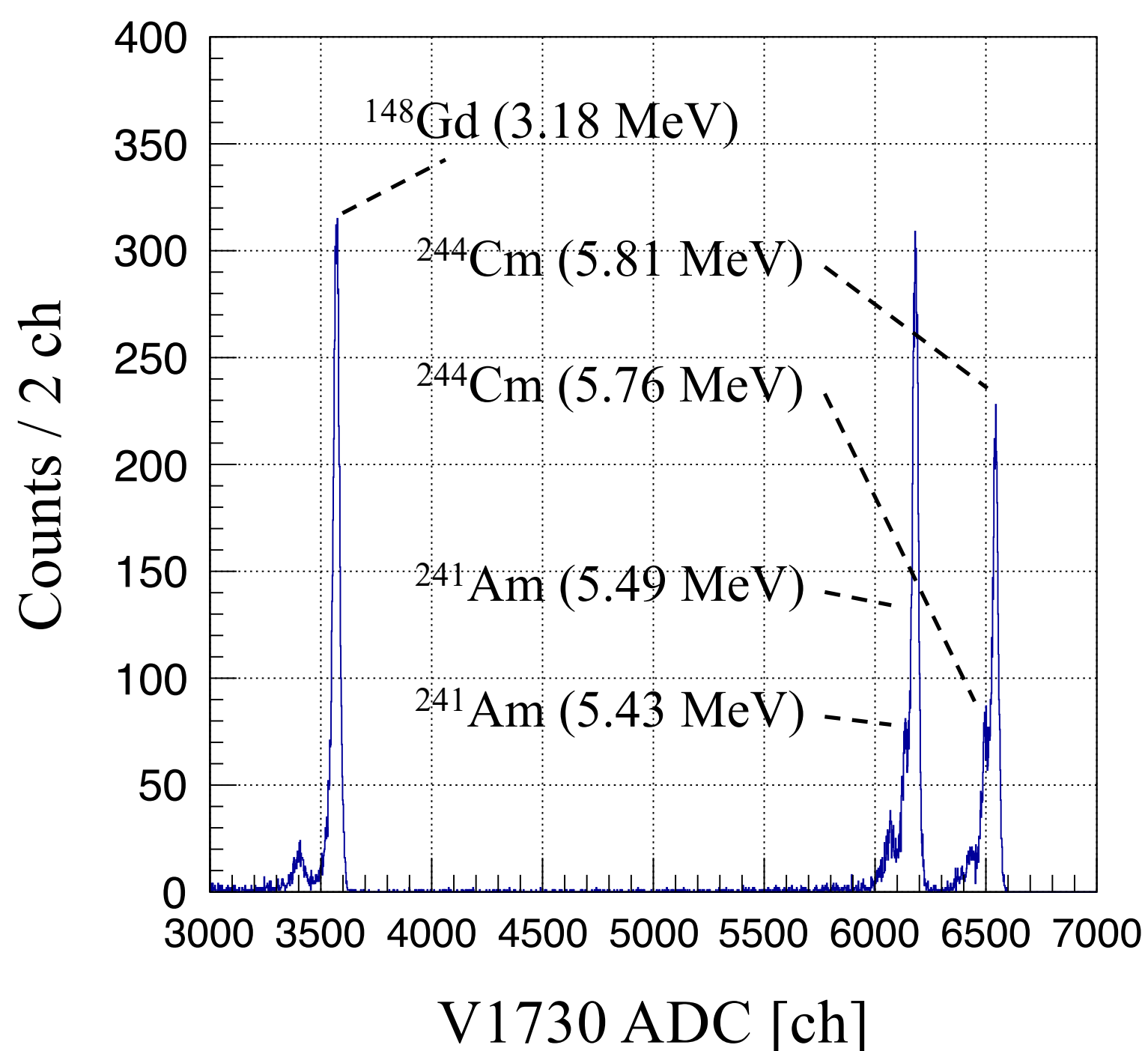


図 4.8：3 種混合 α 線源 (^{148}Gd , ^{241}Am , ^{244}Cm) を用いて得られた典型的な α 粒子のエネルギースペクトル

4.2.1.2 GAGG 検出器

図 4.9 に GAGG 検出器の識別番号を示す。ここでは、上流側から見た配置図となっている。

0	1	2
3	4	5
6	7	8
9	10	11
12	13	14
15	16	17
18	19	20
21	22	23

図 4.9 : GAGG 検出器の識別番号

GAGG の結晶は反射材の ESR フィルムに覆われているため、 α 線源を用いたエネルギー較正はできない。そのため、重陽子散乱のピークを用いてエネルギー較正を行った。

図 4.10 に、TiD₂ 標的に ¹²C ビームを入射した際に得られた E - ΔE 相関を示す。この図では、Gion の Si 検出器表裏のストリップをそれぞれ 1 つずつ選択することで、ある特定の位置に入射した粒子のみを選択している。横軸は Gion の Si 検出器で測定したエネルギーであるが、GAGG 検出器のエネルギー較正が未完であるため、縦軸は GAGG 検出器からの出力信号の波高となっている。また、GAGG 検出器のエネルギーあたりの発光量は粒子の種類によって異なるため、この図は正確な E - ΔE 相関ではないが、重陽子と陽子及び三重陽子の粒子識別は可能である。さらに、重陽子に相当するローカス上では ¹²C の重陽子との弾性散乱及び 2_1^+ , 3_1^- 状態の非弾性散乱に対応するピークも確認できる。 0_2^+ 状態に対応するピークは統計量が少なく、この図では確認できなかった。

¹²C により反跳された重陽子のエネルギー E_d は以下の式で表される。

$$E_d = \Delta E_{\text{TiD}_2} + \Delta E_{\text{Si}} + E_{\text{ESR}} + E_{\text{GAGG}} \quad (4.6)$$

E_d は重陽子の反跳角度と ¹²C の励起エネルギーから運動学計算により求めることができる。 ΔE_{Si} は Gion の Si 検出器で失ったエネルギーであり、これは Gion の Si 検出器で測定したエネルギーと等しい。 E_{ESR} は GAGG の反射材である ESR フィルムで失ったエネルギーである。ESR フィルムに入射する重陽子のエネルギーは $E_d - \Delta E_{\text{Si}} - \Delta E_{\text{TiD}_2}$ で求められるので、ここからベーテ・ブロッホの式を用いて、ESR フィルムで失うエネルギー E_{ESR} を計算することができる。 ΔE_{TiD_2} は TiD₂ 標的中で失ったエネルギーであるが、この値は TiD₂ 標的中の散乱点の深さによって変化してしまう。シミュレーションによって TiD₂ 標的中で失うエネルギーを計算したところ、平均のエネルギー損失は Ti 8 μm 相当であり、 ΔE_{TiD_2} はこの値を用いて計算した。以上から、GAGG 検出器で検出される重陽子のエネルギー E_{GAGG} は以下の式で求め

ることができる。

$$E_{\text{GAGG}} = E_d - \Delta E_{\text{TiD}_2} - \Delta E_{\text{Si}} - E_{\text{ESR}} \quad (4.7)$$

この式を用いて、 E - ΔE 相関図中の各ピークのエネルギーを評価し、MADC でデジタル化した信号波高の ch 数と対応させた。そして、これらのエネルギーを ch 数の関数としてフィットすることで変換式を決定した。GAGG 検出器は、クエンチング効果により荷電粒子のエネルギー損失に対して非線形な応答を示すことが知られているため、Si 検出器のエネルギー較正のように一次関数でフィットすることはせず、過去の測定データ [27] から得られた変換式を使用することにした。文献 [27] では、クエンチング効果によって非線形となるシンチレータのエネルギーあたりの発光量 dL/dE と放射線による線エネルギー付与 dE/dx の関係を拡張された Briks の式でフィットした。

$$\frac{dL}{dE} = \frac{a_0}{1 + a_1(dE/dx) + a_{-1}(dE/dx)^{-1}} \quad (4.8)$$

表 4.3 にフィットパラメータの値を示す。この式を用いて GAGG の発光量を重陽子の入射エネルギーの関数として計算し、全体のゲイン及び MADC のペDESTAL に由来するオフセットを与える 2 つのパラメータを追加した式を用いて、GAGG 検出器からの信号波高と重陽子のエネルギーの関係を決定した。また、上記のエネルギー較正を各 GAGG 検出器ごとに行なった。

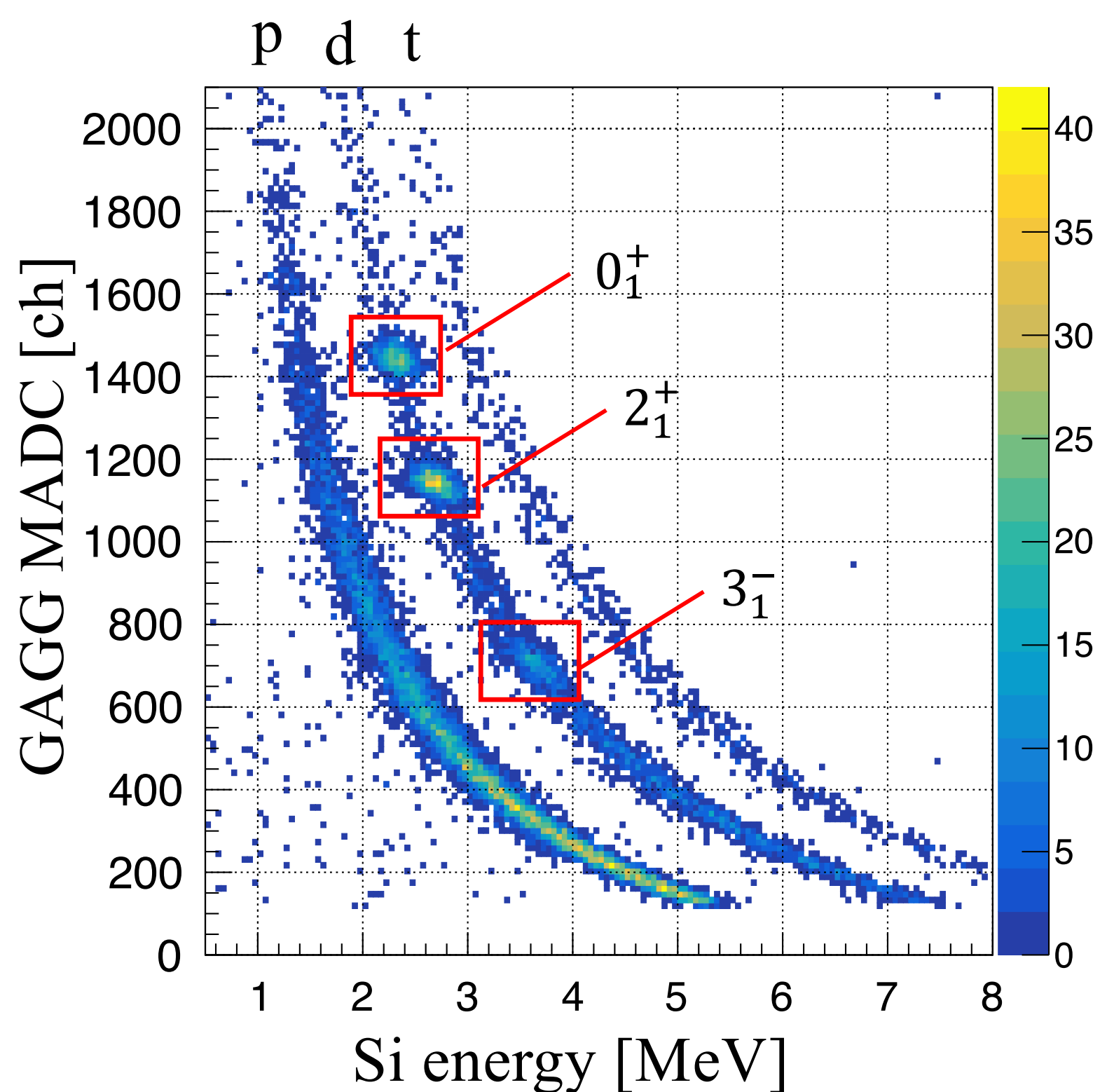


図 4.10 : Gion の Si 検出器と GAGG 検出器を用いた E - ΔE 相関

表 4.3：拡張された Briks の式のフィットパラメータ [27]

a_0	1.11
a_1	6.1×10^{-1}
a_{-1}	-3.2×10^{-1}

4.2.1.3 Si 検出器のストリップ選択

2.5.1 節で説明したように、GAGG 検出器は反応点を向くように角度をつけて設置しているため、GAGG 検出器の間には空隙が生じてしまう。そのため、図 4.11 のように GAGG 検出器の端付近に入射し、GAGG 検出器内で停止することなく、そのまま貫通してしまうイベントが存在する。これらのエネルギーが正しく測定できないイベントを排除するため、解析で使用する Gion の Si 検出器のストリップを選択した。表 4.4 に解析で除外した Gion の Si 検出器の識別番号、図 4.12 に解析でを使用した Gion の Si 検出器の領域を示す。

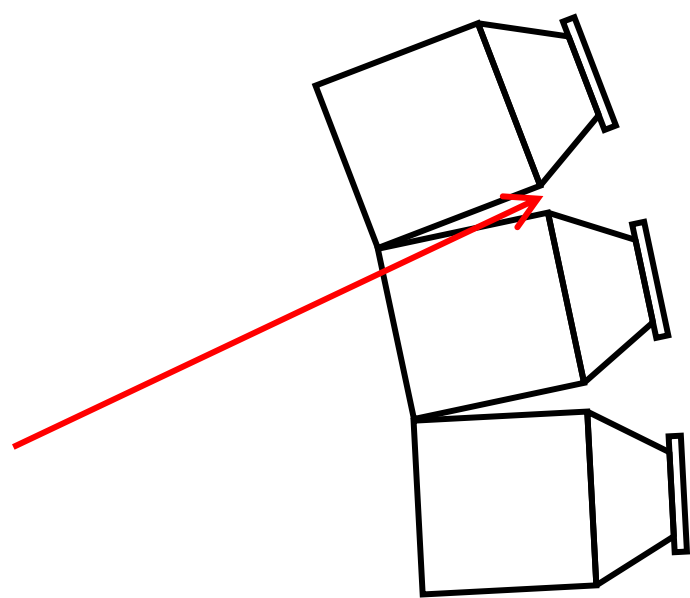


図 4.11：エネルギーが正しく測定できないイベント

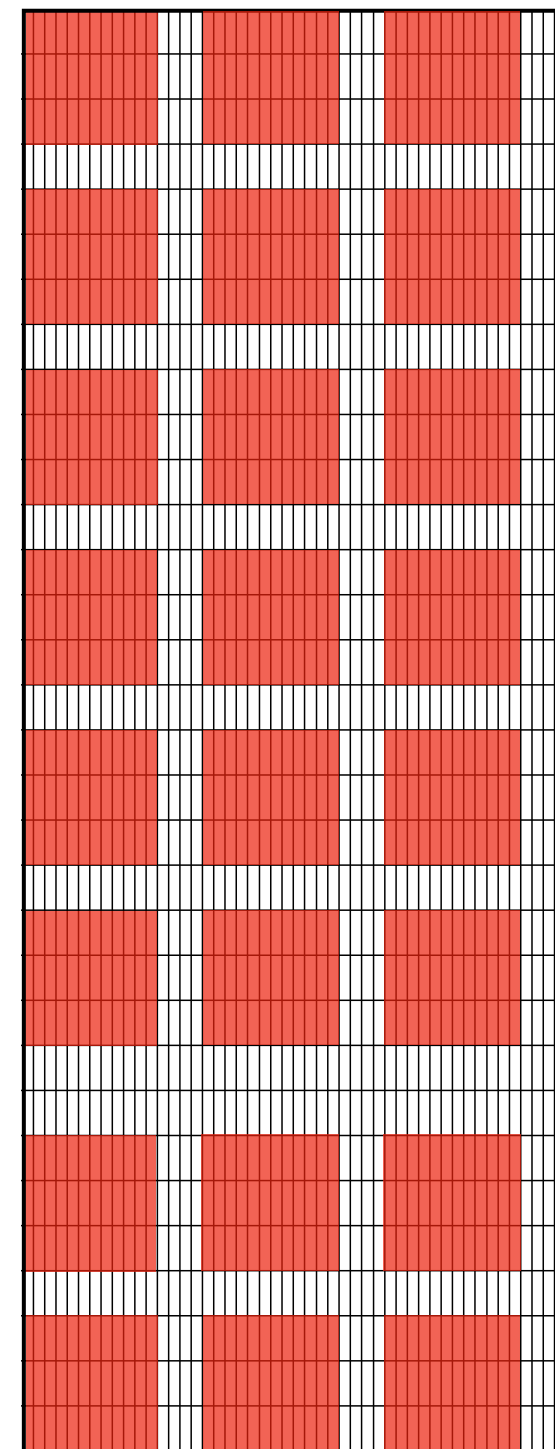


図 4.12：解析でを使用した Gion の Si 検出器の領域

表 4.4：解析で除外した Gion の Si 検出器の識別番号

	Vertical strip (front)	Horizontal strip (rear)
strip number	12–15, 28–31, 44–47	3, 7, 11, 15, 19, 23, 24, 28

4.2.2 前方 Si 検出器

前方 Si 検出器のゲインはおよそ 200 MeV のエネルギーをもつ散乱 ^{12}C に最適化しているため、 α 線源から放出される 3–6 MeV の α 線源ではエネルギー較正できない。また、前方 Si 検出器は Gion の Si 検出器と比べてストリップ幅が大きく、位置分解能が悪い。そのため、GAGG 検出器のエネルギー較正で使った ^{12}C と重陽子との散乱のピークを用いる方法も使用できない。したがって、今回は前方 Si 検出器のエネルギー較正は実施しなかった。

4.3 結果

4.3.1 ^{12}C の励起エネルギースペクトル

図 4.13 は TiD_2 標的および Ti 標的の測定で得られた ^{12}C の励起エネルギースペクトルである。これらの測定では、高分解能モードのビームを使用した。また、Ti 標的で得られたバックグラウンドスペクトルは測定時間とビーム量を考慮し、全体を定数倍している。その係数 C は TiD_2 、Ti 標的ビーム量と DAQ の live time を考慮した測定時間をそれぞれ N_{TiD_2} , N_{Ti} , t_{TiD_2} , t_{Ti} とすると、以下の式で表される。

$$C = \frac{t_{\text{TiD}_2} N_{\text{TiD}_2}}{t_{\text{Ti}} N_{\text{Ti}}} \quad (4.9)$$

しかし、この係数を使用したところ、Ti によるバックグラウンドが過大に評価されてしまった。そこで、バックグラウンド事象しか存在しない $E_X = 6.2\text{--}7$ MeV の領域の TiD_2 と Ti 標的を用いた測定の収量が同じになるように調整し、Ti によるバックグラウンドスペクトルをさらに 0.9 倍した。

図 4.14 に Ti によるバックグラウンドを除去した ^{12}C の励起エネルギースペクトルを示す。各状態に対応するピークが確認できる。これにより、 TiD_2 標的が重陽子標的として使用できることが確認できた。また、各ピークをガウシアンでフィットし、励起エネルギー分解能を評価した。ただし、 1_1^+ 状態は統計量が少なく、連続的なスペクトルの上にわずかにピークの存在を確認できる程度であったので今回は励起エネルギー分解能を評価していなかった。測定結果及びシミュレーションで評価した励起エネルギー分解能を表 4.5 に示す。シミュレーション結果は、4 つの状態の励起エネルギー分解能を再現しており、シミュレーションの妥当性が確認できた。

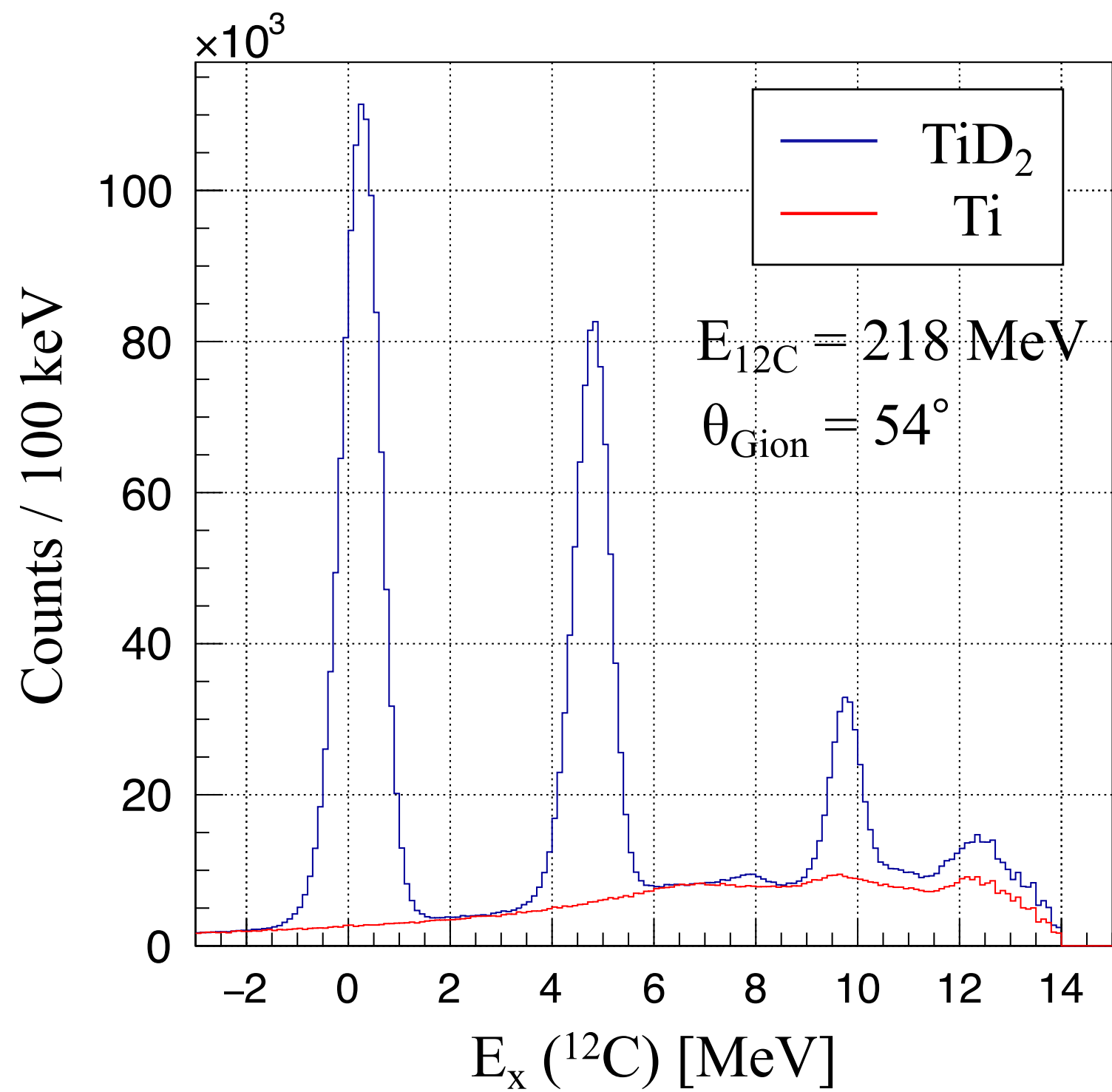


図 4.13 : TiD₂ 標的及び Ti 標的における ¹²C の励起エネルギースペクトル

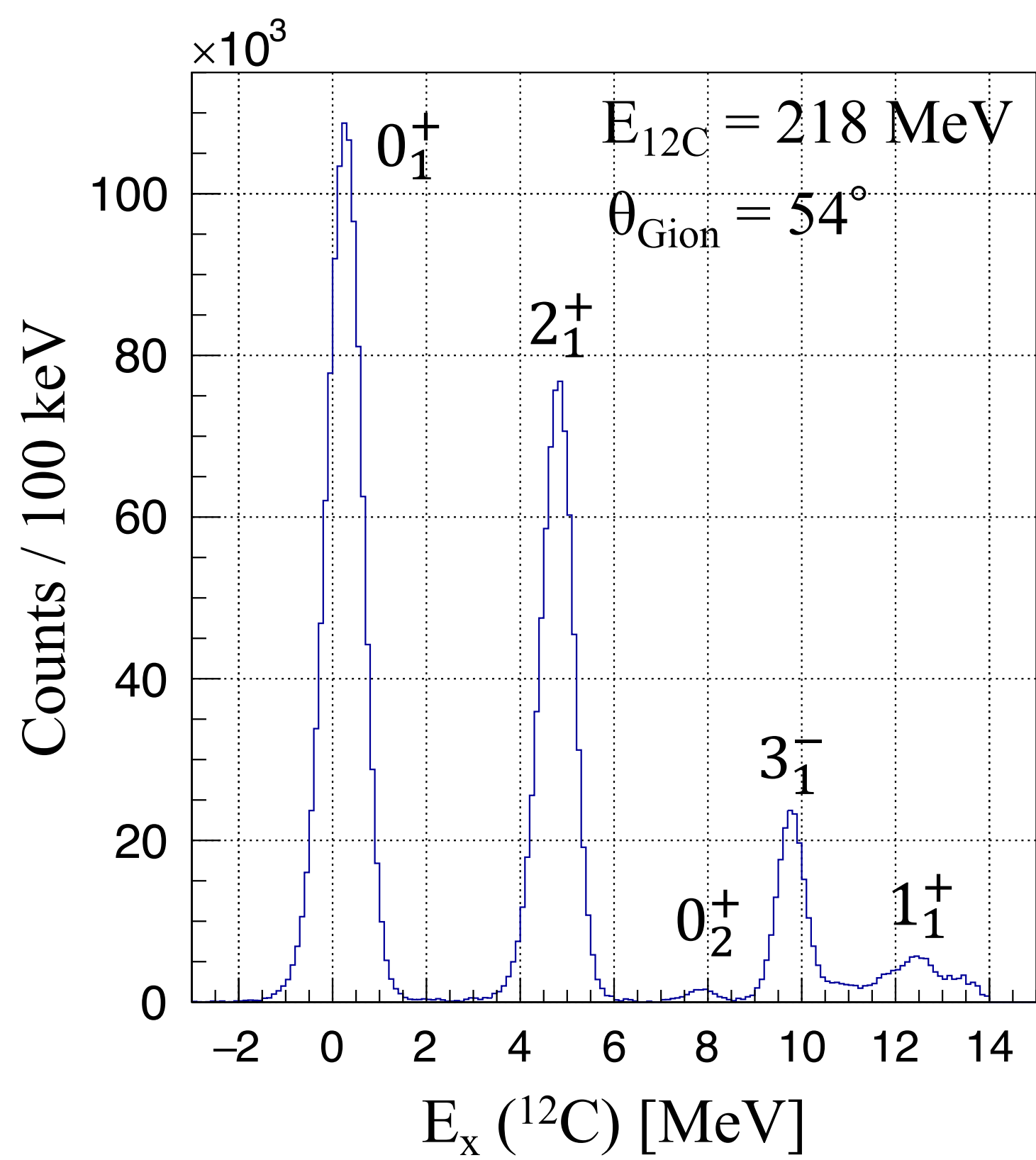


図 4.14 : ${}^2\text{H}({}^{12}\text{C}, \text{d}){}^{12}\text{C}^*$ 反応測定による ¹²C の励起エネルギースペクトル

表 4.5 : ^{12}C の励起エネルギー分解能

状態	測定結果 (keV)	シミュレーション (keV)
0_1^+	390	400
2_1^+	360	360
0_2^+	340	340
3_1^-	300	310

4.3.2 各状態の微分断面積

図 4.15、4.16、4.17 に各状態を励起する非弾性散乱の微分断面積の測定値を黒丸で示す。誤差棒は統計誤差のみを表している。 0_2^+ 状態については統計量が少なかったため、これを励起する微分断面積の評価は行わなかった。図中の赤線は Aspeland らによる $E_d = 60.8$ MeV における $^{12}\text{C}(d, d')$ 反応の測定結果 [34] を元に推定し、シミュレーションに用いた微分断面積である。表 4.6 に今回の性能評価実験と Aspeland らの測定との実験条件の比較を示す。Aspeland らの測定における d ビームのエネルギーは 60.6 MeV であり、核子あたりのエネルギーは 30.3 MeV/u である。今回の性能評価実験における核子あたりのエネルギー 18.2 MeV/u とは異なっているが、運動量移行の等しい角度における重心系での微分断面積は等しいと仮定し、 $E_d = 36.3$ MeV の実験データから $E_{^{12}\text{C}} = 218$ MeV での微分断面積を推定した。さらに離散的なデータを線形補完することで、散乱角度の連続関数としての微分断面積を得た。図から分かるように、微分断面積の推定値は実測値と大きく離れておらず、シミュレーション計算の前提となる仮定は妥当であったと考えられる。 0_1^+ 及び 2_1^+ 状態を励起する微分断面積は、全体的に Aspeland らの測定よりも小さい値だが、本研究において、これらの状態はバックグラウンドの要因であるため、想定よりも微分断面積が小さいことは、実際の測定では事前のシミュレーションに比べて S/N 比が良くなることを意味する。また、 3_1^- 状態に関しては、 $\theta_{\text{CM}} = 50^\circ$ よりも後方の角度において Aspeland らの測定とほぼ同じ値が得られた。 $\theta_{\text{CM}} = 50^\circ$ より前方角度における急激な微分断面積の減少は、Gion 検出器の検出効率の低下によるものである。重心系角度が小さくなるにしたがって、反跳重陽子のエネルギーが小さくなり、Gion の Si 検出器及び GAGG 検出器を覆う ESR フィルムを貫通できなくなるために、Gion 検出器の検出効率が低下する。 3_1^- 状態に対する測定結果についてシミュレーション計算を行った結果を図 4.18 に示す。重心系前方角度における Gion 検出器の検出効率の減少が、シミュレーション計算においても正しく再現されていることが確認できる。

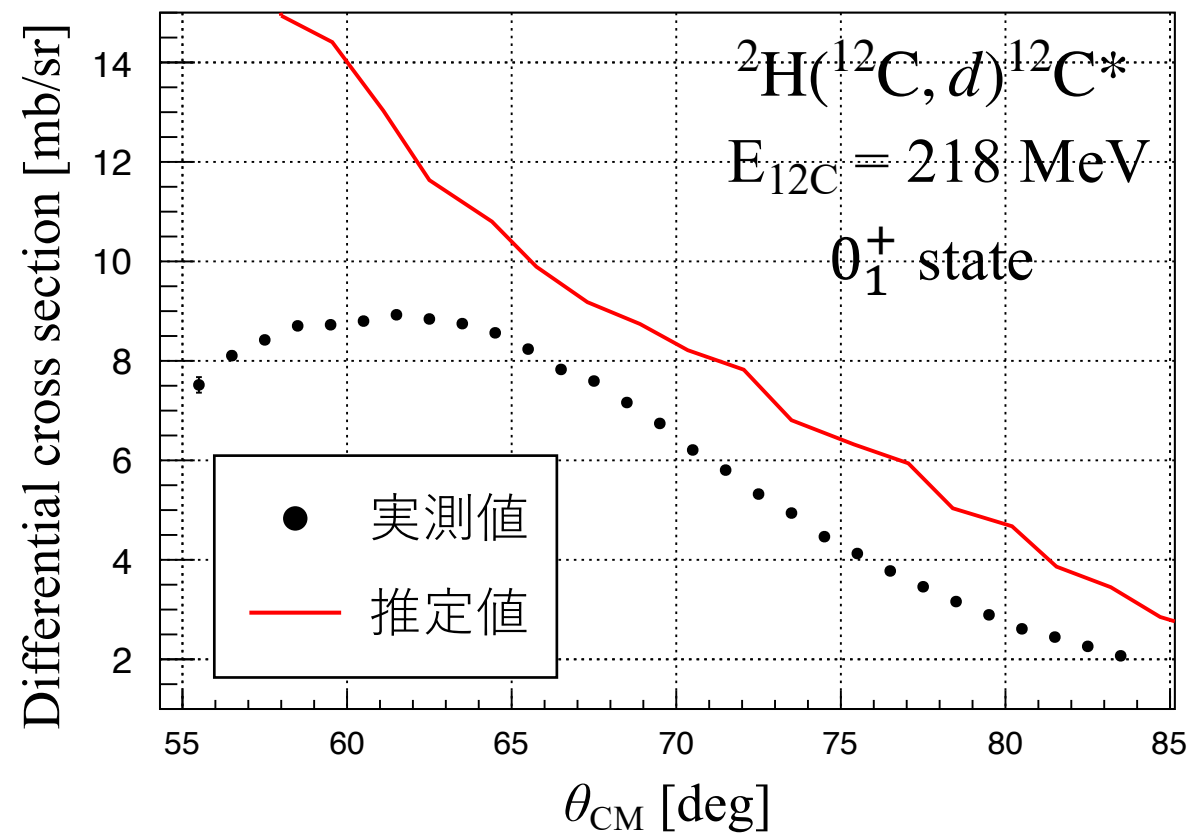


図 4.15： 0_1^+ 状態を励起する非弾性散乱の微分断面積

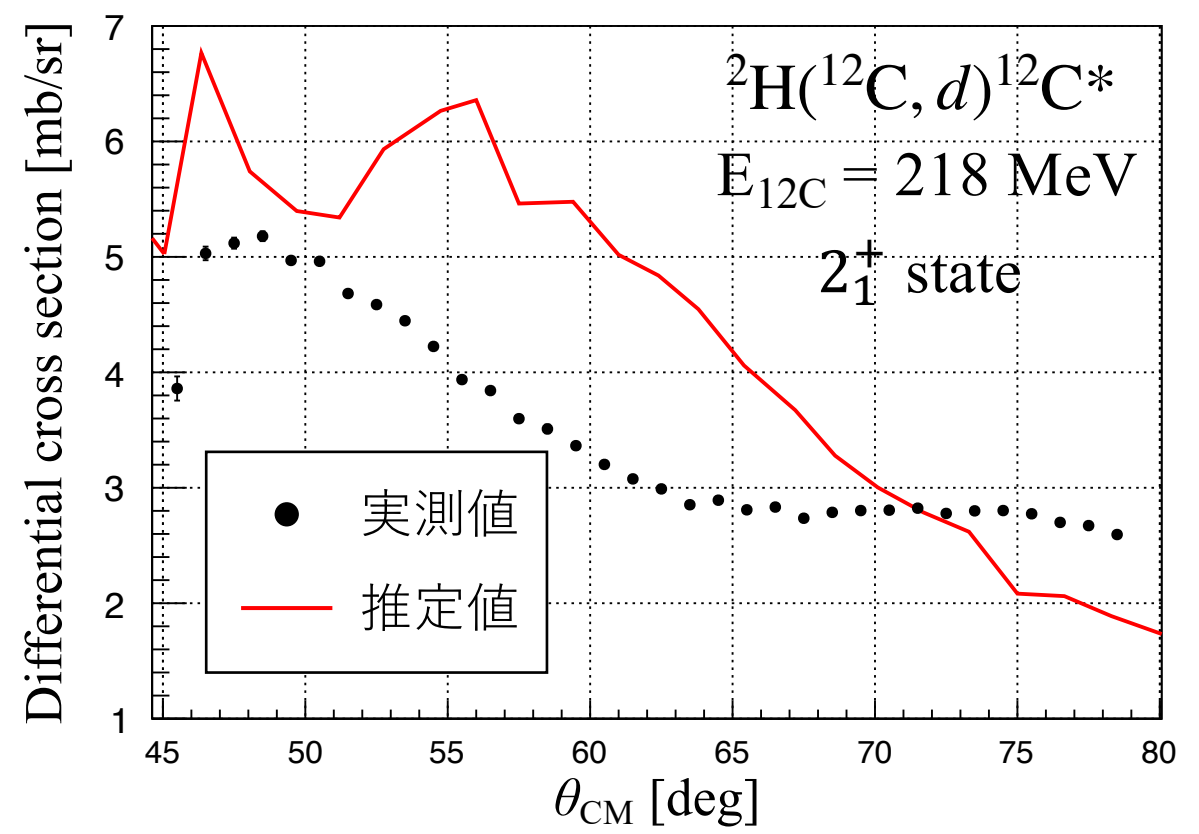


図 4.16： 2_1^+ 状態を励起する非弾性散乱の微分断面積

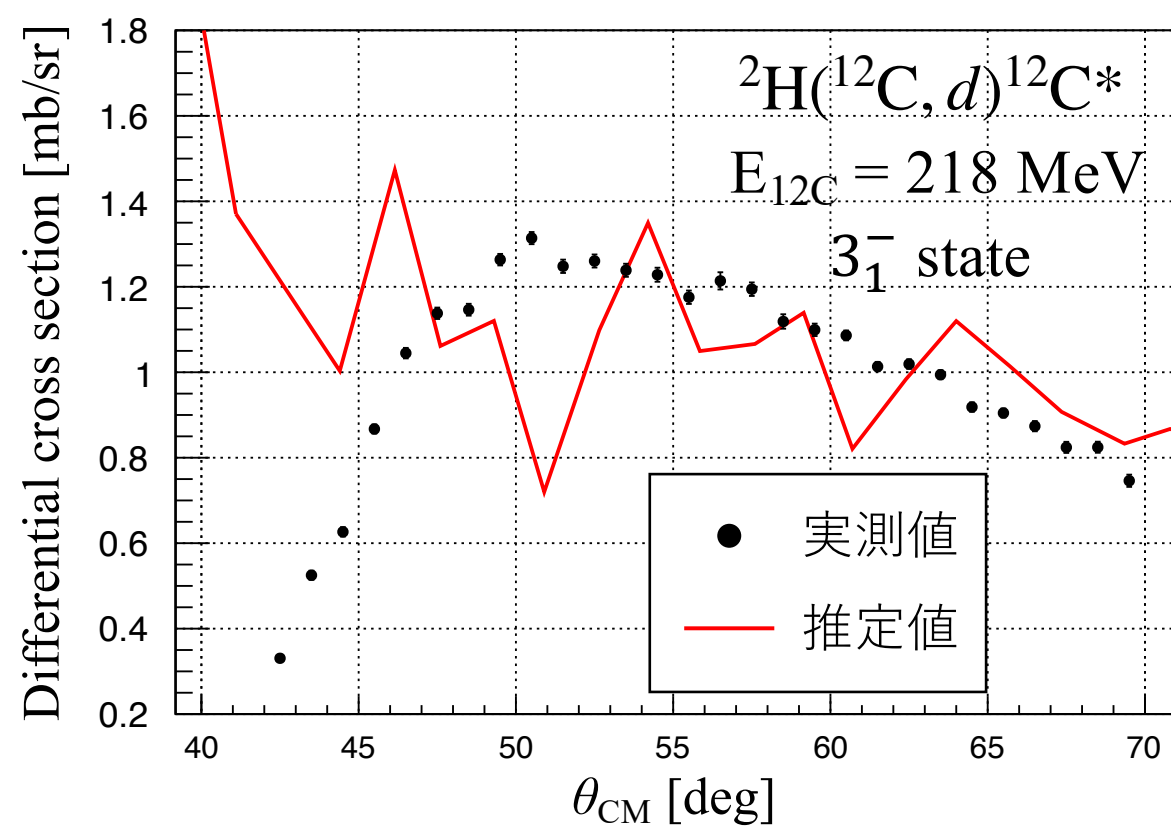


図 4.17： 3_1^- 状態を励起する非弾性散乱の微分断面積

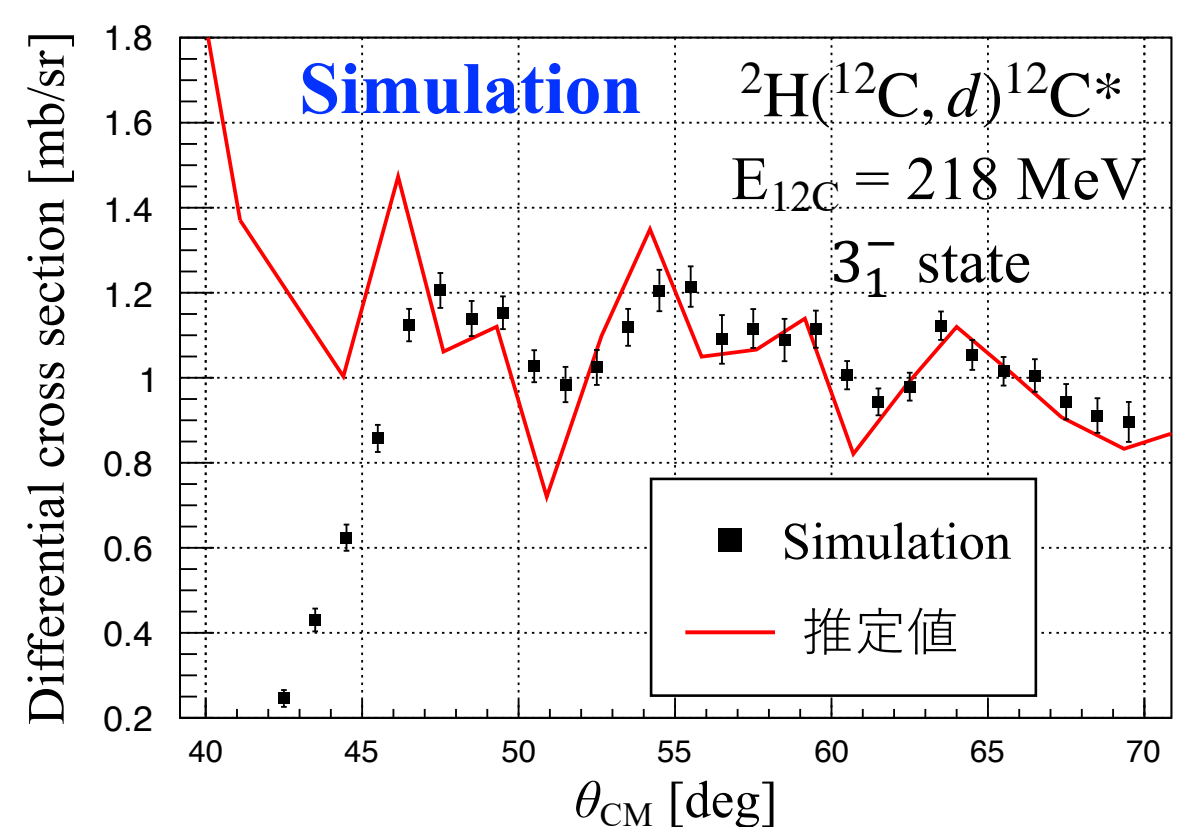


図 4.18： 3_1^- 状態に対する測定結果についてのシミュレーション結果

表 4.6：TiD₂ 性能評価実験と Aspelund らの測定の実験条件の比較

	TiD ₂ 性能評価実験	Aspelund らの測定 [34]
反応	$^2\text{H}(^{12}\text{C}, ^{12}\text{C}^*d)$	$^{12}\text{C}(d, d')$
ビーム粒子	^{12}C	d
ビームエネルギー (MeV)	218	60.6
核子あたりのエネルギー (MeV/u)	18.2	30.3

4.3.3 TiD₂ 標的のビーム耐性

TiD₂ 標的はビーム照射によって重水素が離脱し、実効的な重水素標的厚が薄くなってしまいう可能性がある。そこで、大強度モードのビームを TiD₂ 標的に入射させ、トリガーレートの時間変化を確認することで TiD₂ 標的のビーム耐性を評価した。もし、ビーム照射によって標的中の重水素が減少している場合、トリガーレートもそれに合わせて減少するはずである。図 4.19

に測定中のビーム強度及びトリガーレートの時間変化を示す。トリガーレートが測定中に変動しているが、ビーム強度もこれに連動して変化していることが分かる。図 4.20 にビーム強度あたりのトリガーレートの時間変化を示す。約 1 時間の測定を通して、ビーム強度あたりのトリガーレートが減少する傾向は見られなかった。このことから、0.4 pA のビーム強度では TiD₂ 標的のビーム耐性は問題ないことが確認できた。しかし、今回の性能評価実験では、TiD₂ 標的が本実験で計画しているビーム強度 90 pA に対して十分なビーム耐性を持っているかは、今回の性能評価実験では確認できなかった。

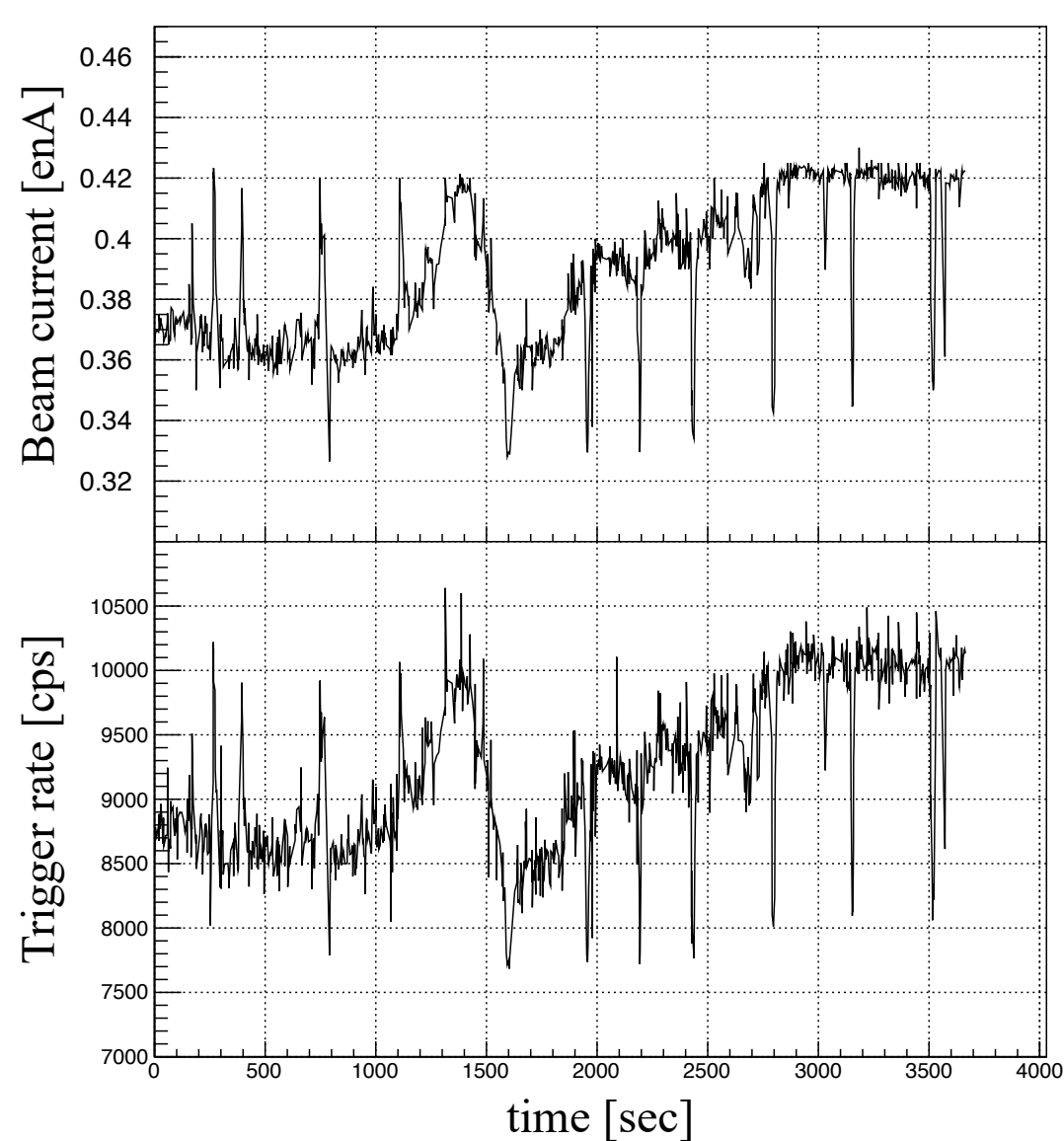


図 4.19：ビーム強度とトリガーレートの時間変化

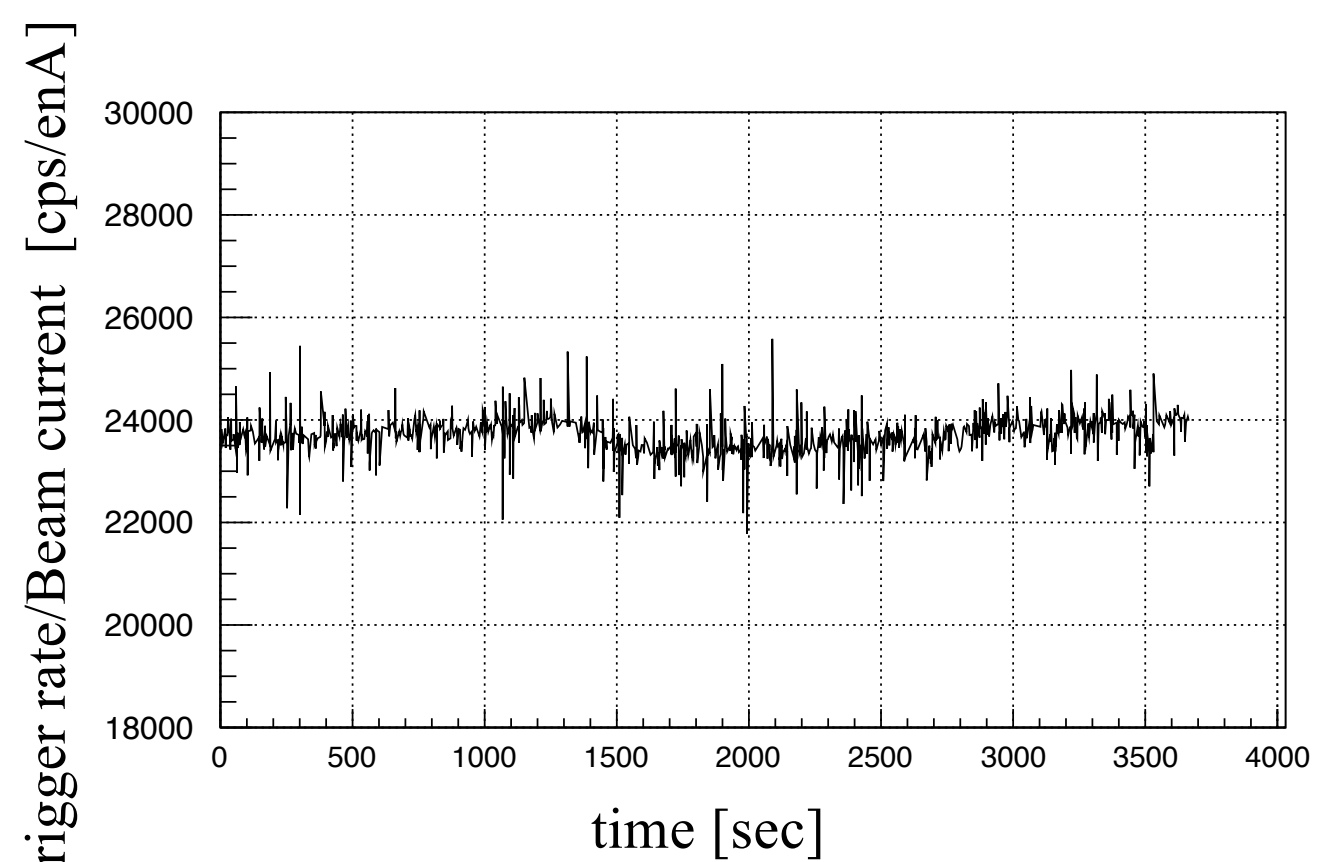


図 4.20：ビーム強度あたりのトリガーレート

4.3.4 Ti によるバックグラウンド

表 4.7 に TiD₂ 及び Ti 標的を用いた測定における Gion 検出器での陽子、重陽子及び三重陽子の検出数を TiD₂ 標的を用いた測定における重陽子の検出数に対する比として示す。Ti 標的と TiD₂ 標的を比較するにあたっては、標的への照射ビーム量が同じとなるように数値を補正した。この表から、重陽子よりも陽子が多く Gion 検出器に飛来しており、その陽子のうちおよそ 75% が Ti 由来のものであることが分かる。この表の値は、Gion 検出器で粒子識別ができたイベントのみから評価しているので、Gion の Si 検出器を貫通できなかった低エネルギーの粒子は含まれていない。

そこで、4.1.5 節に述べた Si シングルのトリガー条件を使用した測定結果から、Si シングルイベントに対する Ti 標的の寄与を評価した。その結果、Gion の Si 検出器へ入射した粒子の種類は特定できていないが、Si シングルイベントのうち 85% が Ti 由来のイベントであることが明らかとなった。これらの結果から、Ti によるバックグラウンドは ¹²C の励起エネルギー分解能

には影響しないものの、検出器のレート耐性の観点からは無視できないことが分かった。

表 4.7：Gion 検出器で検出した粒子の割合

	TiD ₂ 標的	Ti 標的
陽子	1.7	1.3
重陽子	1	0.34
三重水素	0.14	0.13

4.3.5 本実験の実現可能性

今回の測定から、本実験で必要なビーム強度及びバックグラウンドレートを評価した。表 4.8 に性能評価実験とそこから算出した本実験でのビーム強度及び各種計数率を示す。2.5.5 節において評価した値と大きく異なっている。これは測定の live time を考慮したことで 18%、解析で検出効率の低い Gion の Si 検出器のストリップを除外したことで 37% のイベントを失ったことにより、検出効率が 48% に低下したためである。また、その他の要因として、より現実に即したシミュレーションを行うために、粒子の挙動や検出エネルギーの計算方法を変更したことが挙げられる。これらの要因により、必要なビーム強度が大幅に増加してしまった。

整形増幅器を 1 μ s の Shaping time で使用することを考慮すると、Si シングルレートはストリップあたり 10 kHz 以下が望ましい。しかし、Si シングルレートの推定値は Gion の Si 検出器全体で 10 MHz、ストリップあたり 210 kHz であり、この値を大きく超えてしまっている。そのため、TiD₂ 標的を使用した場合は、本実験で計画していた 3₁⁻ 状態を 2 週間で 10¹⁰ イベント測定することは困難であり、TiD₂ 標的は本実験に不適であると結論付けた。

表 4.8：性能評価実験と本実験におけるビーム強度及び各種計数率

	性能評価実験	本実験
ビーム強度 (pnA)	0.11	150
Si シングル (kHz)	7.8	10,000
Gion トリガー (kHz)	2.8	3,600
重水素事象 (kHz)	0.23	300
3 ₁ ⁻ 事象 (kHz)	0.019	8

4.3.6 固体重水素標的を用いた場合のビーム強度

重水素標的の第 2 候補である固体重水素についても、TiD₂ 標的と同様に今回の性能評価実験で得られたデータを用いて本実験で必要なビーム強度を評価した。その結果、3₁⁻ 状態を 2 週間で 10¹⁰ イベント測定するためには、8.4 pnA のビーム強度が必要であることが分かった。測定の live time 及び Gion の Si 検出器における検出効率の低いストリップを考慮したた

め、TiD₂ 標的と同じく 2.5.5 節で評価したビーム強度と比べると大きな値となった。実際に固体重水素標的を用いた測定は行なっていないため、バックグラウンドレートの評価は行なっていないが、固体重水素標的は TiD₂ と比較して重水素の物質量が多いため、必要なビーム強度が少なく、ストリップあたりの Si シングルレートを単純なビーム強度の比で換算すると $210/150 \times 8.4 = 12$ kHz となり、目標値の 10 kHz とほぼ同程度であり、問題ないと考えられる。しかし、前回の実験では 0.2 pA の ¹²C ビームの照射によって固体水素標的が融解してしまったため、8.4 pA は固体重水素標的にとっては非常に高強度であると言える。

第5章

固体重水素標的

TiD₂ 標的は Ti 由来のバックグラウンドの影響で本実験では不適であると判断したため、第2候補である固体重水素標的を検討した。前回の実験では、固体水素標的に ¹²C ビームを照射した際、¹²C が標的中でエネルギーを失うことで標的が加熱され、固体水素標的が融解してしまった。本実験で使用する固体重水素標的も同様に、ビーム照射による標的の融解が起こりえる。そのため、熱伝導方程式を用いて、ビームを照射した際の固体重水素標的への熱負荷を評価し、本実験においてビーム照射による標的の融解が起こる可能性及び融解を防止するのに必要な実験条件を検討した。このとき、固体重水素の熱伝導率は固体水素の熱伝導率から推定した。熱伝導率は、固体重水素の熱収支を評価し、温度分布を評価する上で重要なパラメータである。また、水素と重水素は同位体であるため、化学的性質は類似しているが、固体水素と固体重水素とでは沸点・融点などの物理的性質が異なる。そのため、固体水素標的と同じ冷却標的システムでは、固体重水素を作成できない可能性がある。そこで、固体重水素標的の作成試験を行い、冷却標的システムの改善案を検討した。

5.1 冷却標的システム

図 5.1 に冷却標的システムの側面から見た概略図及び正面から見た詳細図を示す。主な構成要素は冷凍機、標的セル、Radiation Shield (RS) の3つである。ただし、正面から見た詳細図では、RS を省略している。

5.1.1 冷凍機

住友重機械工業製の冷凍機 RDK-415D (図 5.2) を使用している。図 5.1(右) に青色で示した部分が冷凍機である。RDK-415D は二段式 GM (Gifford-MacMahon) 冷凍機であり、冷媒であるヘリウムガスを断熱膨張させることで、二段ステージにおいて 4 K 以下の極低温を発生させることができる。さらに、4.2 K において約 1.5 W の安定した冷却能力を持つ。また、冷凍機への高圧ヘリウムガスは、同じく住友重機械工業製の水冷式圧縮機ユニット F-50L から供給される。

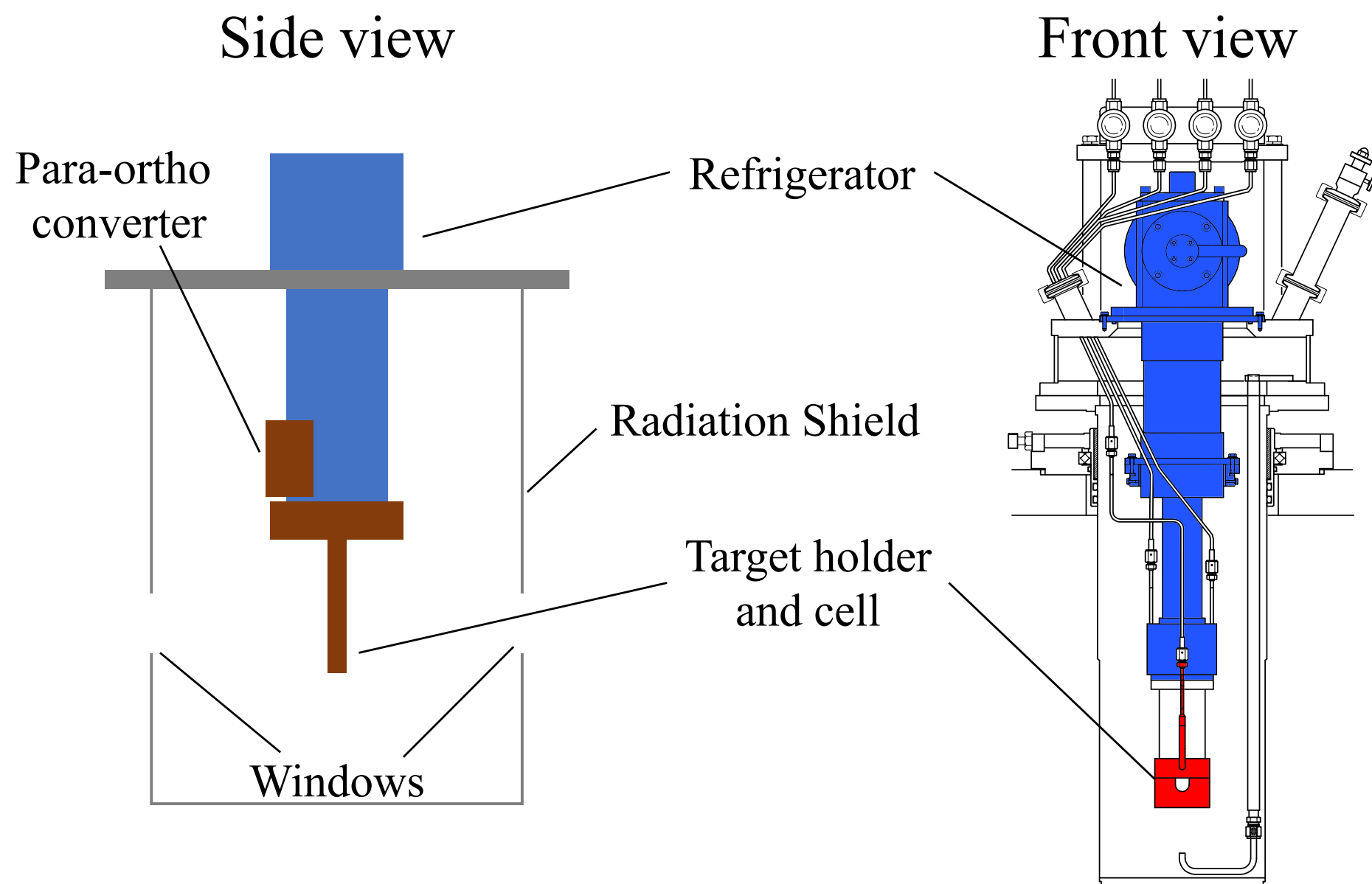


図 5.1：冷却標的システム。(左) 側面から見た概略図、(右) 正面から見た詳細図。

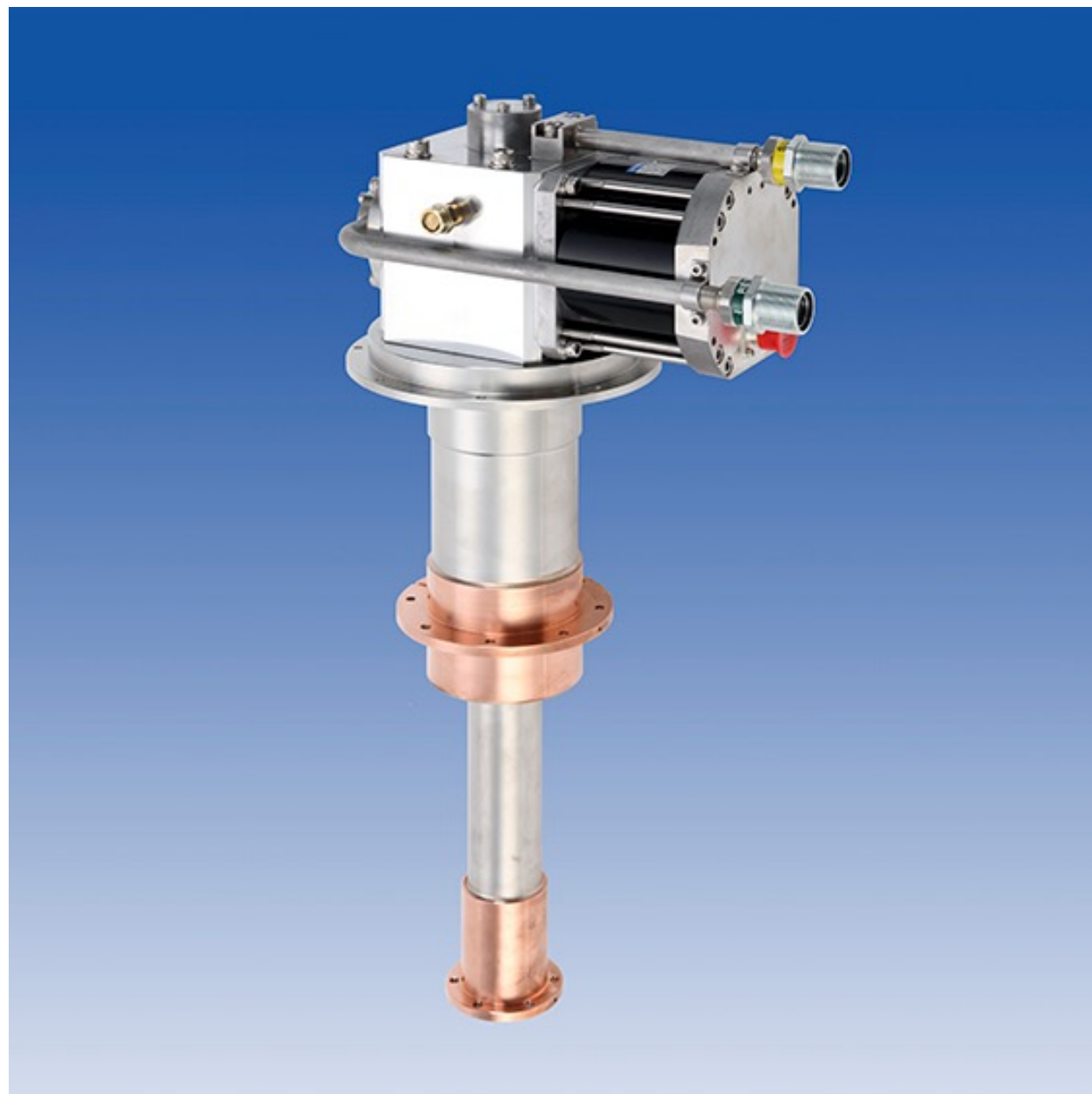


図 5.2：住友重機械工業製の冷凍機 RDK-415D[35]

5.1.2 標的セル

標的ホルダー及びセルは図 5.1(右) のように、冷凍機二段ステージの下部に設置されている。図 5.3(左)(中央) に標的ホルダー及びセルの全体図と分解図を示す。標的ホルダー・セルはどちらも銅製、セルの幅は 15 mm、厚さ 0.5 mm であり、極めて薄いセルとなっている。重水素を

封止するために厚さ $6\ \mu\text{m}$ のアラミドフィルムが両面に貼られており、図 5.3(右) の断面図に示すように重水素は標的ホルダーの配管を通り、標的ホルダー内部を經由してアラミドフィルムで封止された標的セルの内部へ流入する構造となっている。

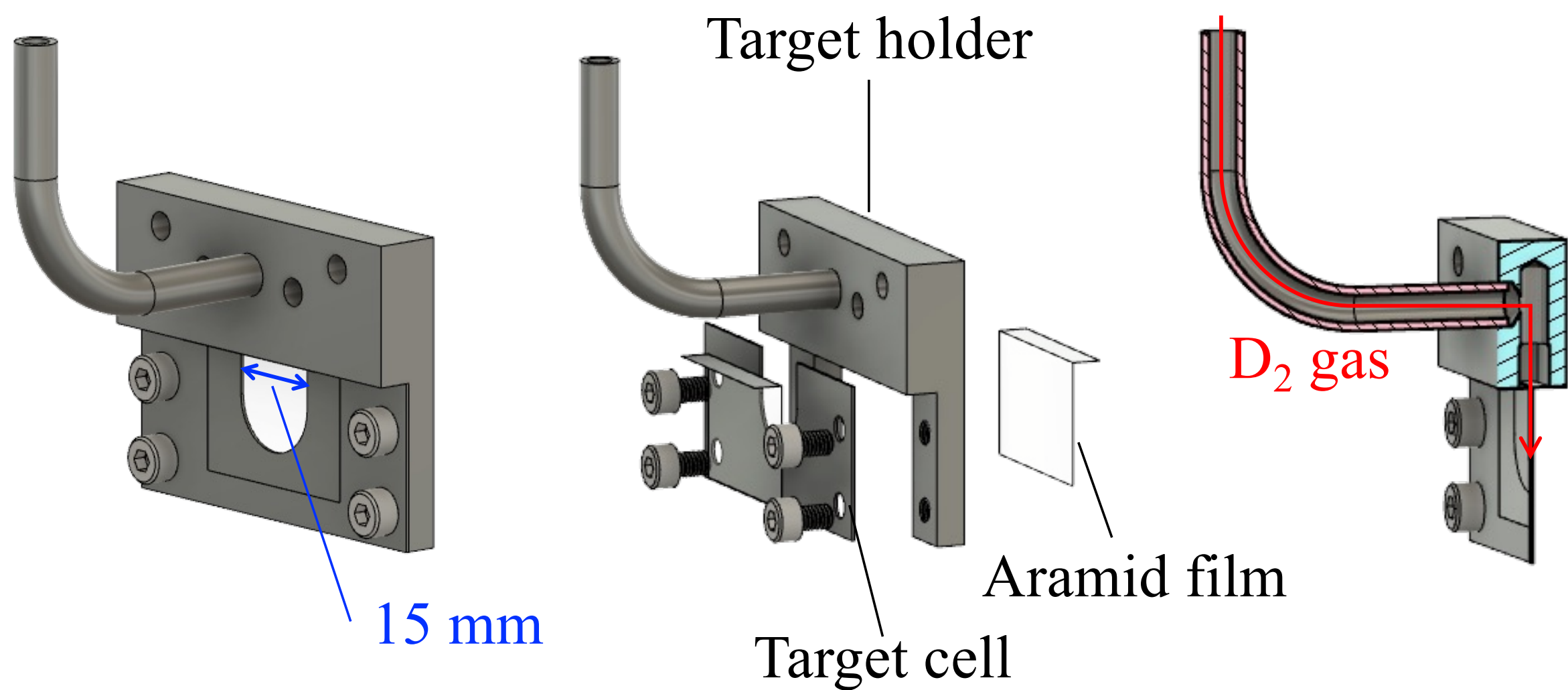


図 5.3：標的ホルダー及びセル。(左) 全体図、(中央) 分解図、(右) 断面図。

5.1.3 Radiation Shield

Radiation Shield (RS) は図 5.4 のように、標的セルを囲むように設置されており、周囲の物質から輻射を遮る役割を持つ。材質はアルミニウムで、厚さは $0.5\ \text{mm}$ である。ビーム軸上には上流下流ともに直径 $30\ \text{mm}$ の Beam window (BW) が設置されている。また、ビーム軸下流側から 45° には反跳粒子が通過するための縦 $70\ \text{mm}$ 横 $43\ \text{mm}$ の Recoil window (RW) が設置されている。ただし、図 5.4 中で RW はアルミホイルで覆われているため、BW しか見えていない。

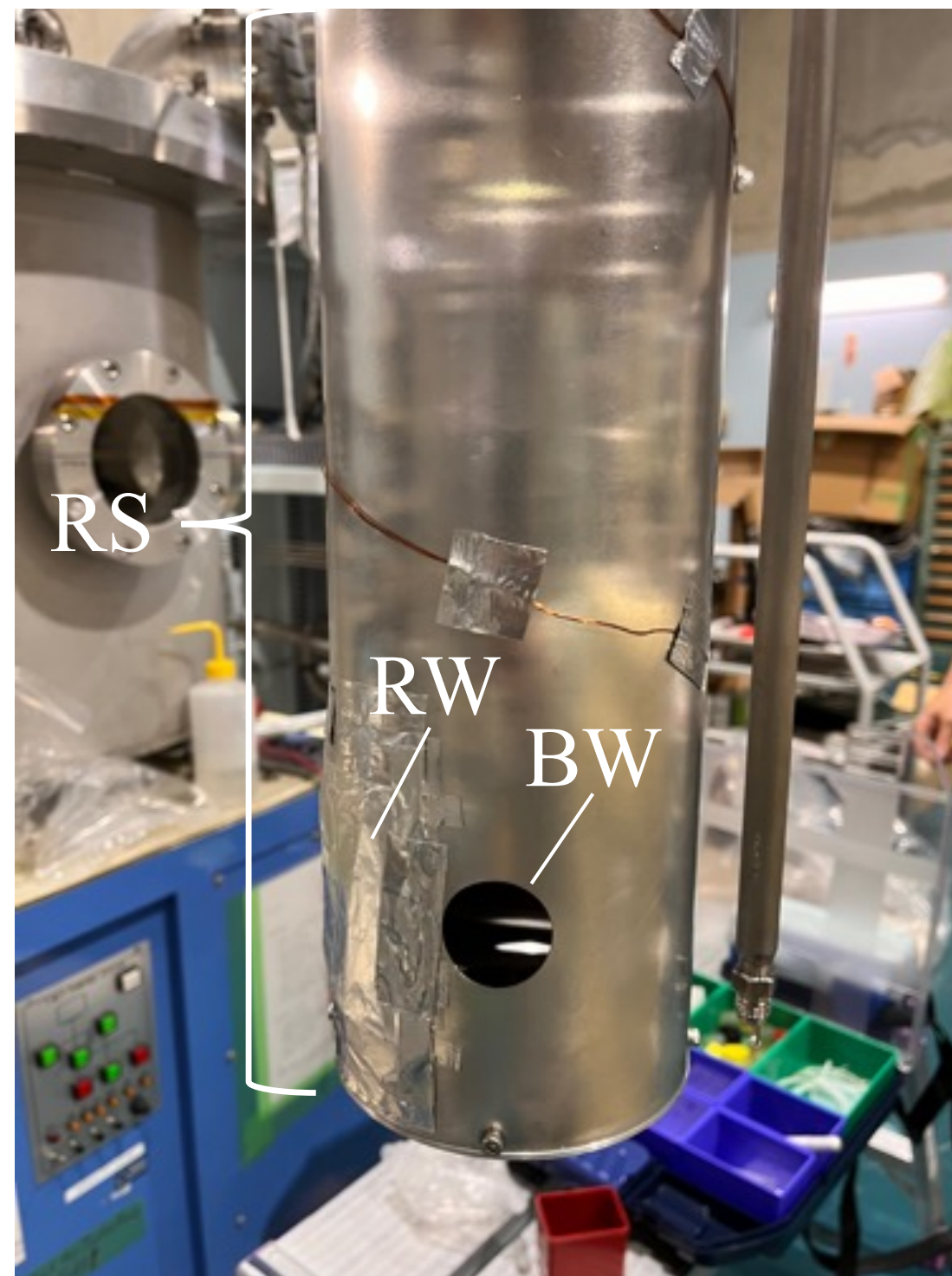


図 5.4 : Radiation Shield

5.2 パラ-オルソ変換

5.2.1 パラ・オルソ水素

水素分子の波動関数を考える。図 5.5 に位置及びスピンベクトルの定義を示す。2 つ電子の位置ベクトルを \vec{r}_1, \vec{r}_2 、電子スピンを \vec{s}_1, \vec{s}_2 、2 つの水素原子核、すなわち陽子の位置ベクトルを \vec{R}_a, \vec{R}_b 、核スピンを \vec{i}_a, \vec{i}_b とする。また、水素分子としての全電子スピンを $S = \vec{s}_1 + \vec{s}_2$ 、全核スピンを $I = \vec{i}_a + \vec{i}_b$ とする。電子と比べ原子核の質量は非常に大きく、速度も小さいため、電子は静止した原子核のまわりを運動しているとみなす断熱近似を用いると、水素分子の波動関数 Ψ は、陽子間の距離 $\vec{R} = \vec{R}_b - \vec{R}_a$ を用いて、電子の波動関数 ϕ_e と陽子の波動関数 $\chi_n \phi_n$ に分離できる。

$$\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, S, \vec{R}, I) = \phi_e(\vec{r}_1, \vec{r}_2, S; R) \chi_n(I) \phi_n(\vec{R}) \quad (5.1)$$

ϕ_n は水素分子運動の波動関数を表す。一方、 χ_n は核スピン波動関数であり、陽子は核スピン $I = 1/2$ を持つため、水素分子 H_2 は核スピンの合成によって 2 つの核スピン異性体を持つ。2 つの陽子の入れ替えに対して核スピン波動関数が対称なものをオルソ水素 (o- H_2)、反対称なも

のをパラ水素 (p-H₂) と呼ぶ。以下に水素分子の核スピン固有状態を全核スピントに示す。

$$\begin{cases} \left| \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle \\ \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle + \left| -\frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle \right) \\ \left| -\frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle \end{cases} \quad (I = 1) \quad (5.2)$$

$$\left\{ \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle - \left| -\frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle \right) \right\} \quad (I = 0) \quad (5.3)$$

ここから、オルソ水素の核スピンは $I = 1$ 、パラ水素は $I = 0$ であることが分かる。 ϕ_n はさらに、動径方向成分と角度方向成分に分離できる。これらはそれぞれ振動運動と回転運動に対応する。

$$\phi_n(\vec{R}) = L(R)Y_{j,M}(\theta, \phi) \quad (5.4)$$

ここで、 $Y_{J,M}$ は球面調和関数であり、 J は分子回転の角運動量を表す回転量子数、 M はその z 軸成分を表す磁気量子数である。

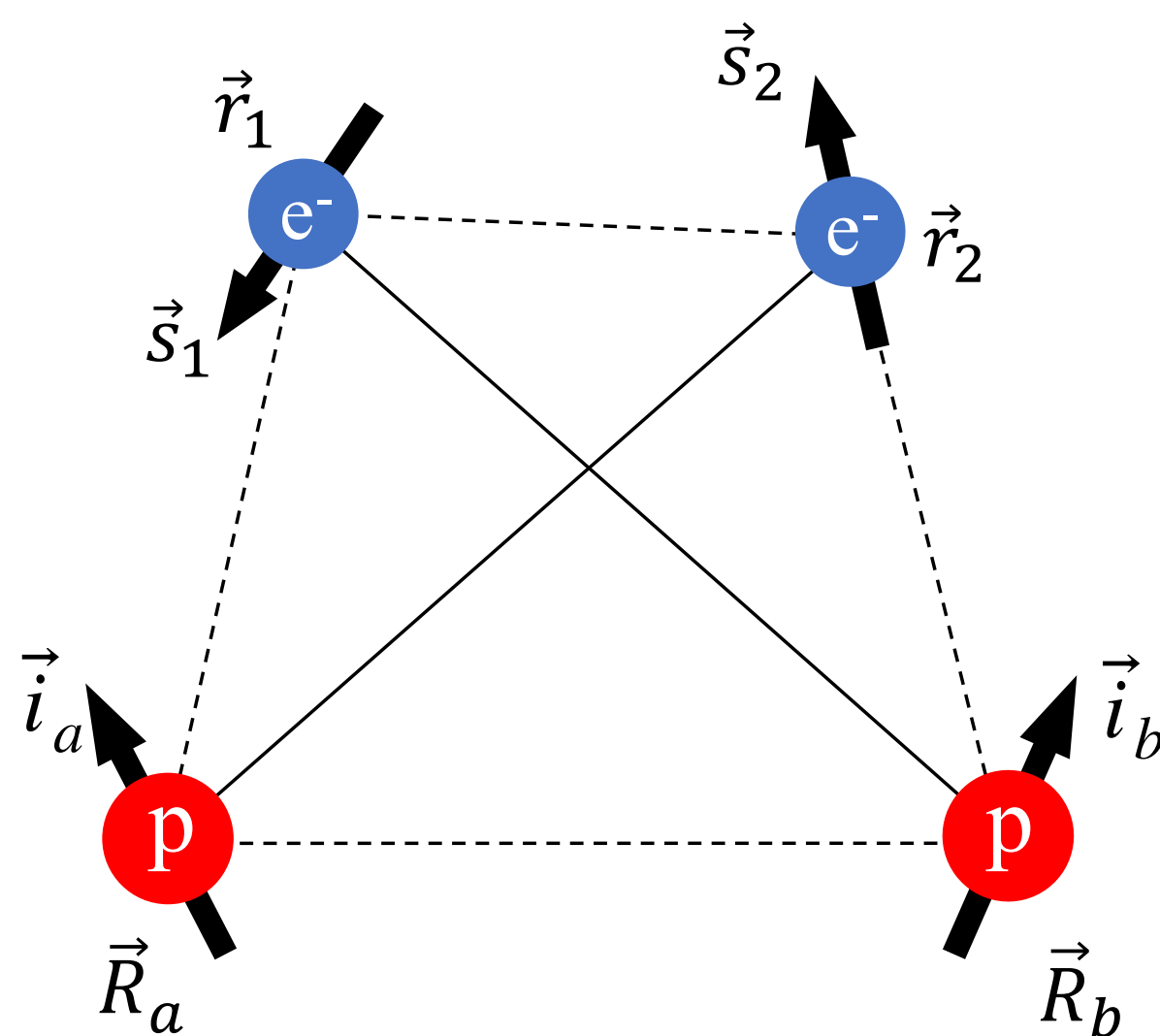


図 5.5：位置及びスピンベクトルの定義

次に、2つの陽子の入れ替えに対する水素分子の波動関数の対称性を考える。2つの陽子の入れ替えは、 $\vec{R} \rightarrow -\vec{R}$, $\theta \rightarrow \pi - \theta$, $\phi \rightarrow \pi + \phi$ 変換に対応する。

$$L(R) \rightarrow L(R) \quad (5.5)$$

$$Y_{J,M}(\theta, \phi) \rightarrow Y_{J,M}(\pi - \theta, \pi + \phi) = (-1)^J Y_{J,M}(\theta, \phi) \quad (5.6)$$

ここから、2つの陽子の入れ替えに対して動径方向成分は対称、角度方向成分は J が偶数の場合は対称、奇数の場合は反対称であることが分かる。また、電子の波動関数は、基底状態の水

素分子の場合、2つの陽子の入れ替えに対して不変であることが知られている [37]。陽子はフェルミオンであるため、水素分子の波動関数は陽子の入れ替えに対して反対称でなければならない。陽子の入れ替えに対してオルソ水素の核スピン波動関数は対称、パラ水素は反対称であるから、オルソ水素は回転量子数 J が奇数、パラ水素は偶数の状態しか取ることができない。

5.2.2 パラ-オルソ重水素

同様に、重陽子も核スピン $I = 1$ を持つため、重水素分子 D_2 は核スピンの合成によって2つの核スピン異性体を持つ。2つの重陽子の入れ替えに対して波動関数が対称なものをオルソ重水素 (o- D_2)、反対称なものをパラ重水素 (p- D_2) と呼ぶ。以下に重水素分子の核スピン固有状態を核スピンごとに示す。

$$\begin{cases} |1, 1\rangle \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(|1, 0\rangle + |0, 1\rangle) \\ \frac{1}{\sqrt{6}}(|1, -1\rangle + 2|0, 0\rangle + |-1, 1\rangle) \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(|0, -1\rangle + |-1, 0\rangle) \\ |-1, -1\rangle \end{cases} \quad (I = 2) \quad (5.7)$$

$$\begin{cases} \frac{1}{\sqrt{2}}(|1, 0\rangle - |0, 1\rangle) \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(|1, -1\rangle - |-1, 1\rangle) \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(|0, -1\rangle - |-1, 0\rangle) \end{cases} \quad (I = 1) \quad (5.8)$$

$$\frac{1}{\sqrt{3}}(|1, -1\rangle - |0, 0\rangle + |-1, 1\rangle) \quad (I = 0) \quad (5.9)$$

ここから、オルソ重水素の核スピンは $I = 0, 2$ 、パラ水素は $I = 1$ であることが分かる。また、重陽子はボソンであるため、重水素分子の波動関数は2つの重陽子の入れ替えに対して対称でなければならない。水素と同様に、2つの重陽子の入れ替えに対して電子の波動関数と重水素分子振動の波動関数は対称、重水素分子回転の波動関数は J が偶数の場合は対称、奇数の場合は反対称である。そのため、オルソ重水素は回転量子数 J が偶数、パラ重水素は奇数の状態しか取ることができない。

図 5.6 に重水素分子及び水素分子の $J = 3$ までの回転準位を示す。重水素分子と水素分子では、原子核の量子統計性が異なるため、パラ・オルソのそれぞれに許される回転量子数の偶奇が反転している。特に、回転準位の基底状態である $J = 0$ は、重水素分子の場合はオルソ重水素、水素分子の場合はパラ水素である。また、水素分子と比べると重水素分子は回転準位のエネルギーが約半分になっている。これは慣性モーメントの違いによるものである。重陽子は陽子の約2倍の質量を持つため、重水素分子の慣性モーメントも水素分子と比べて約2倍となる。

慣性モーメントを I_m とおくと、回転準位のエネルギーは以下の式で与えられる。

$$E_J = \frac{\hbar^2}{2I_m} J(J+1) \quad (5.10)$$

ここから、慣性モーメントが2倍になると回転準位のエネルギーは半分になることが分かる。

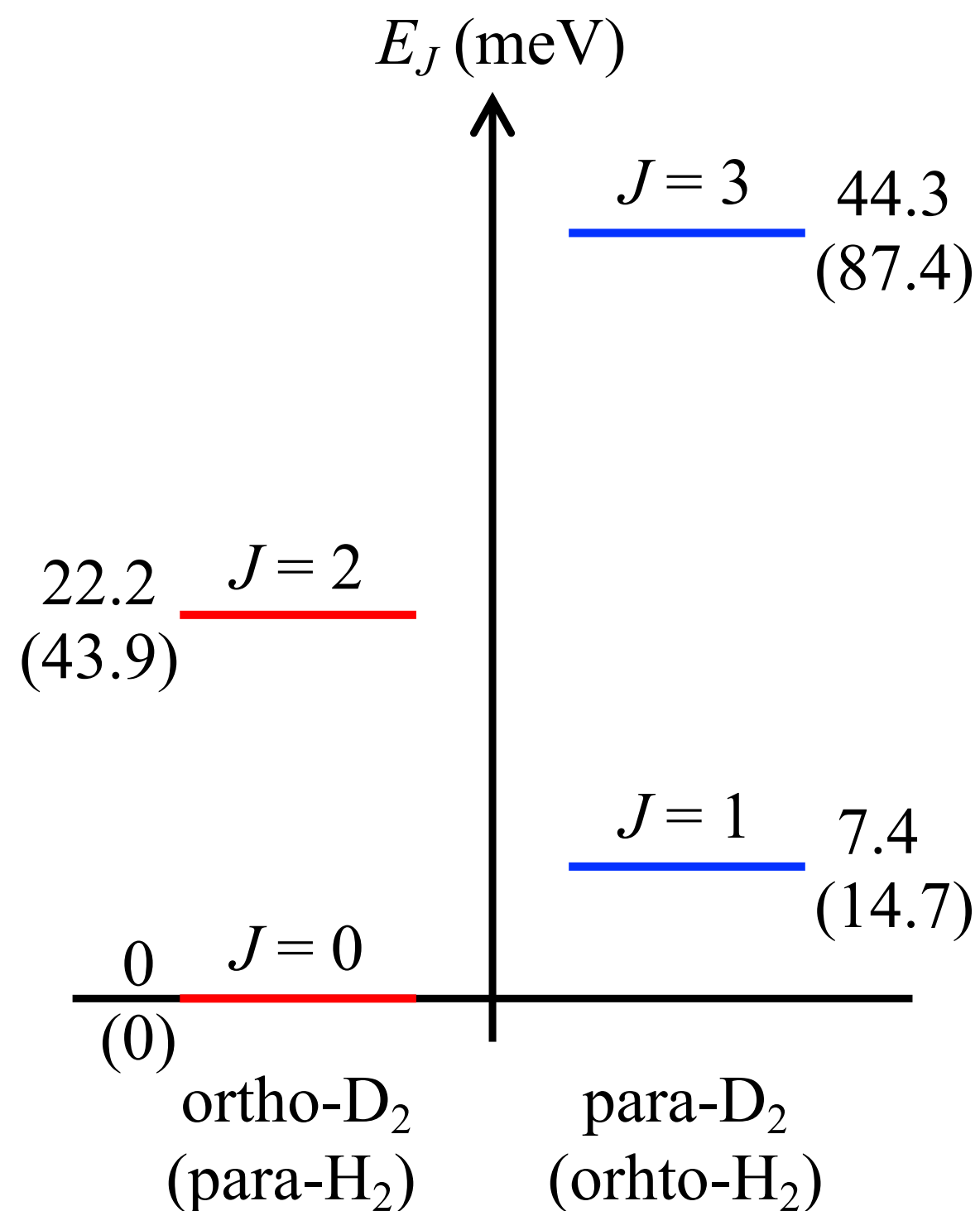


図 5.6：重水素分子及び水素分子の $J = 3$ までの回転準位。括弧内の数値は水素分子の場合。

5.2.3 パラ-オルソ比

各 J の準位エネルギーを E_J としたとき、オルソ重水素とパラ重水素の分配関数 $Z_o(T)$, $Z_p(T)$ は温度の関数として以下のように表される。

$$Z_o(T) = \sum_{J=\text{even}} g_{(I=0,2)} (2J+1) \exp\left(-\frac{E_J}{k_B T}\right) \quad (5.11)$$

$$Z_p(T) = \sum_{J=\text{odd}} g_{(I=1)} (2J+1) \exp\left(-\frac{E_J}{k_B T}\right) \quad (5.12)$$

ここで、 g は核スピン固有状態の縮退度であり、 $g_{(I=0,2)} = 1 + 5 = 6$, $g_{(I=1)} = 3$ である。 $(2J+1)$ は回転準位の縮退度であり、 k_B はボルツマン定数である。

パラ-オルソ比は $Z_p(T)/Z_o(T)$ で与えられる。室温の場合、多数の回転準位の総和を取るため、 $\sum_{J=\text{even}} (2J+1) \sim \sum_{J=\text{odd}} (2J+1)$ となる。また、 $\exp(-E_J/k_B T) \sim 1$ となるため、パラ-オルソ比は核スピン固有状態の縮退度の比に等しくなり $Z_p(T)/Z_o(T) = 1/2$ となる。こ

のパラ-オルソ比が $1/2$ の重水素をノーマル重水素 ($n\text{-D}_2$) と呼ぶ。一方、極低温においては $\exp(-E_J/k_B T) \sim 1$ の近似が成り立たず、低いエネルギーの回転準位、特に基底状態 ($J = 0$) であるオルソ重水素の存在比が大きくなる。そのため、極低温ではパラ-オルソ比は 0 に漸近する。図 5.7 に重水素分子のパラ-オルソ比の温度依存性を示す。

水素分子の場合は、回転準位の基底状態である $J = 0$ がパラ水素であるため、パラ-オルソ比ではなくオルソ-パラ比を用いる。重水素と同様の議論によって、室温の場合のオルソ-パラ比は 3 となり、極低温ではパラ水素の寄与が大きくなりオルソ-パラ比は 0 に漸近する。

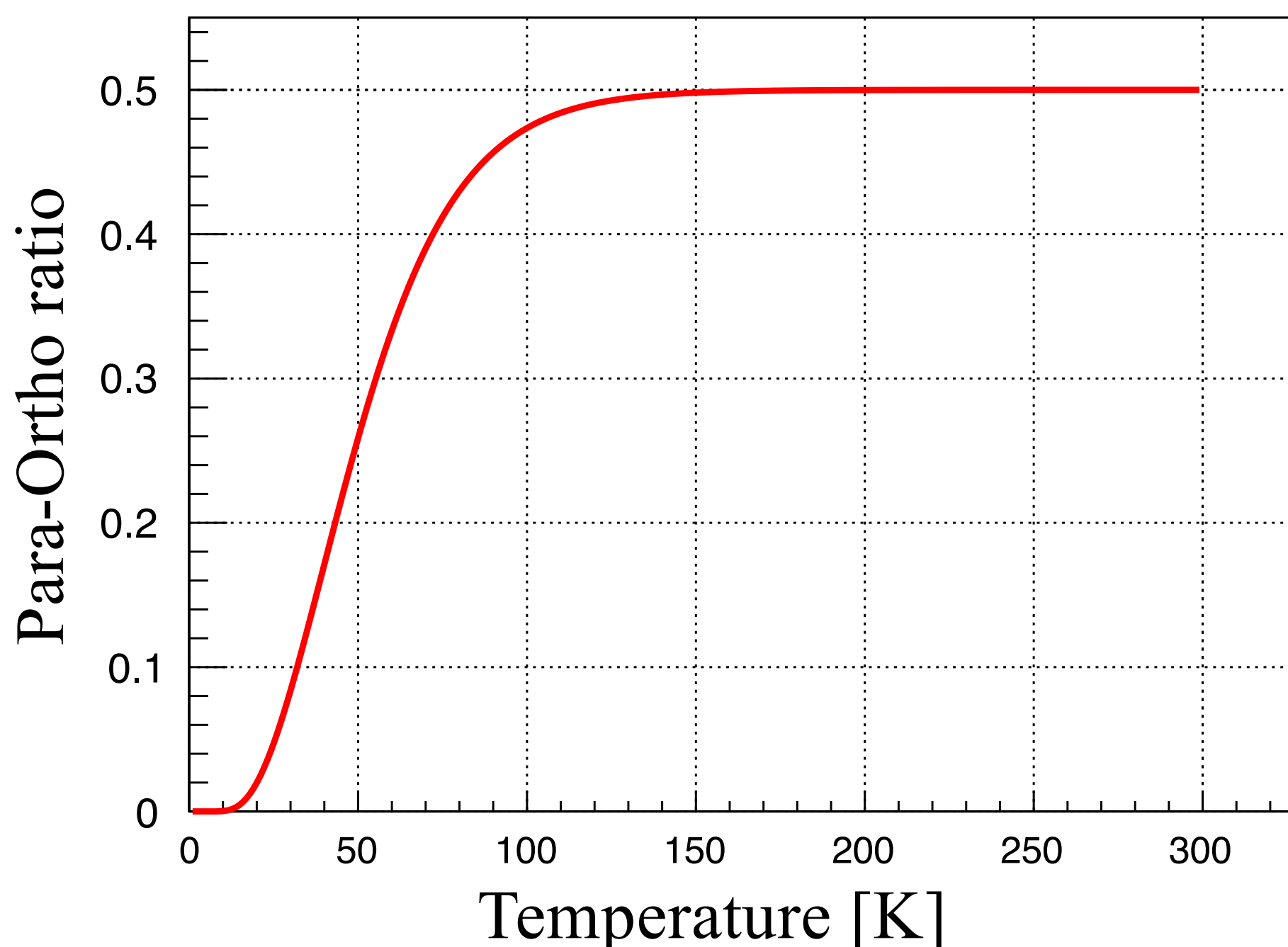


図 5.7：重水素分子のパラ-オルソ比の温度依存性

5.2.4 パラ-オルソ変換

水素分子と重水素分子における、パラからオルソまたはオルソからパラへの遷移をパラ-オルソ変換またはオルソ-パラ変換と呼ぶ。これらの変換は核スピンの変換を伴うため、孤立した分子においては禁制遷移である。そのため、水素や重水素を冷却した場合、 $J = 1$ から $J = 0$ の遷移、すなわちオルソ水素からパラ水素またはパラ重水素からオルソ重水素への変換は遅く、平衡に至るには長い時間がかかるため、水素ガスや重水素ガスを急激に冷却すると、パラ-オルソ比が 5.2.3 節で述べた温度依存性に従わず、室温でのパラ-オルソ比を保持したまま、液化及び固化してしまう。固体の場合は、周囲に存在する他の水素分子や重水素分子の磁気双極子モーメントによって変換がわずかに促進される。この効果による変換の速度は固有かつ均一なものであり、固体水素は $1.90\%/h$ 、固体重水素は $0.060\%/h$ [38] である。この値はとても小さな値で

あるため、実際に変換を行う際には触媒を用いて水素の場合は磁場勾配、重水素の場合は磁場勾配または電場勾配を与える必要がある。触媒としては酸化鉄や酸化クロムなどが用いられる。

5.2.5 重水素の熱伝導率

一般に、物質の熱伝導率は温度に依存するが、水素の場合、パラ-オルソ比にも依存する。図 5.8 に異なるパラ-オルソ比の水素における熱伝導率の温度依存性を示す。回転準位の基底状態であるパラ水素の割合が大きいほど熱伝導率が大きいことが分かる。これはオルソ水素とパラ水素が全く別の粒子のように振る舞うためである。フォノンが熱を運ぶ場合、熱伝導率はフォノンの平均自由行程が長いほど熱伝導率は大きくなる。高温ではフォノンの数が多くなるため、フォノン-フォノン散乱の影響により平均自由行程が短くなり、熱伝導率が小さくなる。一方、低温になるほどフォノンの数が減り、フォノン-フォノン散乱の影響が小さくなるため平均自由行程が長くなり、熱伝導率は大きくなる。極低温になると結晶中の不純物や格子欠陥による散乱の影響が大きくなる。オルソ水素とパラ水素が混在している場合はお互いが結晶中の不純物として働き、その結果、熱伝導率が小さくなる。一方、パラ水素の割合が大きくなる、すなわち純粋なパラ水素に近づくほど、不純物であるオルソ水素が減るため、熱伝導率が大きくなる。パラ水素ではなく、純粋なオルソ水素に近づけた場合も同様に熱伝導率は大きくなるが、通常、回転準位の基底状態であるパラ水素が用いられる。

重水素の場合も同様に、純粋なパラもしくはオルソ重水素に近づくほど熱伝導率は大きくなる。水素とは異なり、 $J = 0$ に対応するのはオルソ重水素であるため、オルソ重水素が用いられる。ビームを照射した際の固体重水素標的への熱負荷を評価するためには、極低温における重水素の熱伝導率が必要となるが、実験データが少ないため、熱伝導率の温度及びパラ-オルソ比依存性は不明である。しかし、重水素の熱伝導率の温度及びパラ-オルソ比依存性は、同位体である水素と類似していると考えられる。そのため、今回の熱負荷評価では重水素の熱伝導率として水素の熱伝導率を用いた。

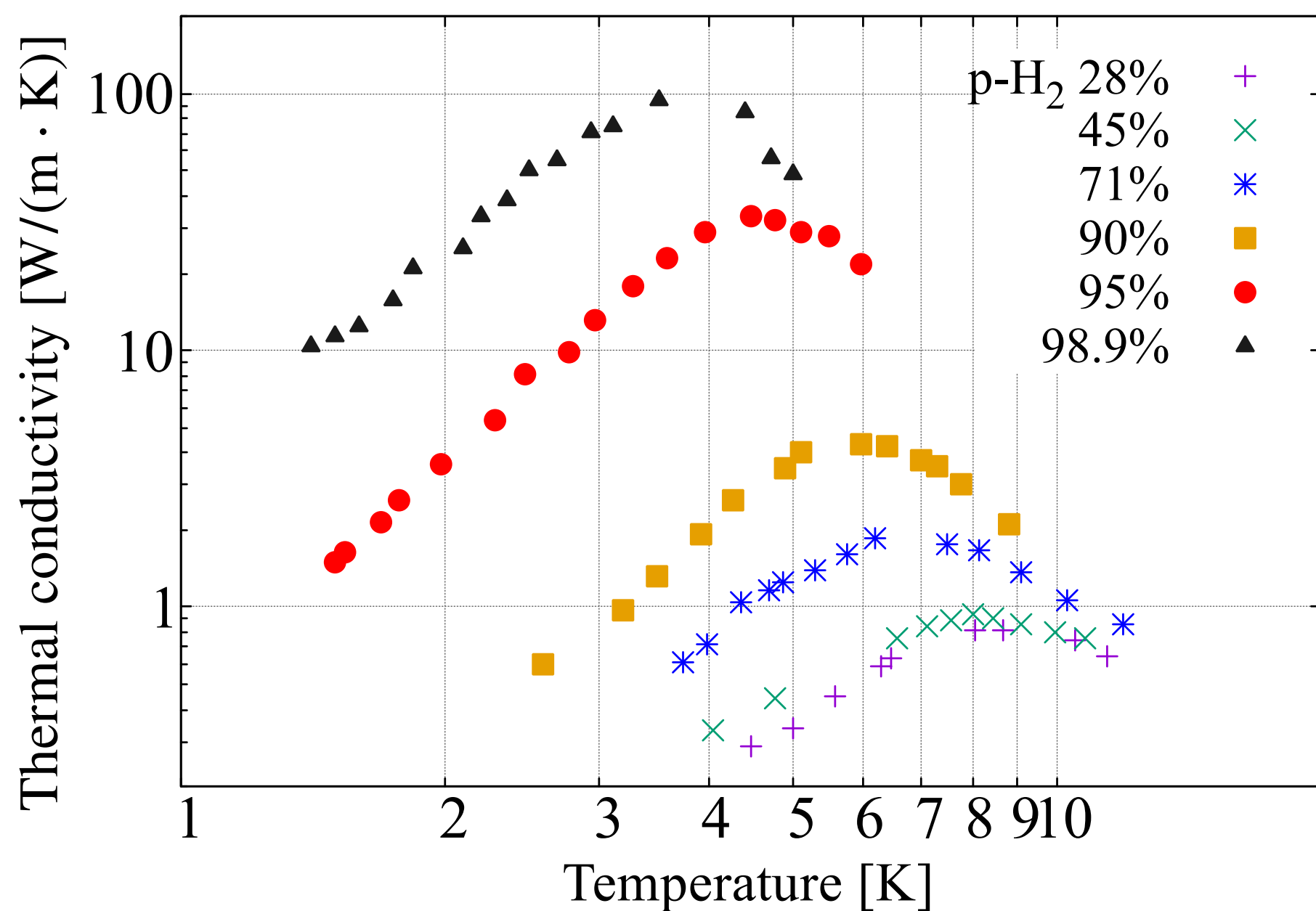


図 5.8：異なるパラ-オルソ比の水素における熱伝導率の温度依存性。p-H₂ 28, 45, 71, 90% は文献 [39]、95, 98.9% は文献 [40]。

5.3 熱負荷の評価

前回の実験では、ビーム粒子のエネルギー損失による標的の加熱によって固体水素標的が融解してしまった。本実験で使用する固体重水素標的も同様に、ビーム照射による標的の融解が起こりえる。ビーム粒子のエネルギー損失によって標的に流入する熱量は、ビームエネルギー及び強度と標的厚から計算することができる。しかし、他の熱源として周囲の物質からの熱輻射も考慮する必要がある、熱輻射は幾何学的な形状に依存するため、単純な計算では評価できない。また、冷凍機で直接に冷却されるのは標的自身ではなく標的セルであるため、標的中心に近づくほど熱浴から遠ざかり温度が上昇してしまう。さらに、ビームはある程度の拡がりを持っているため、標的の融解の可能性を議論するには、標的全体の平均温度ではなく、標的温度の位置依存性を考慮する必要がある。そのため、熱伝導方程式を数値的に解くことで、ビームを照射した際の固体重水素標的温度の位置依存性を評価し、本実験においてビーム照射による標的の融解が起こる可能性及び融解を防止するために必要な実験条件を検討した。

5.3.1 計算方法

現実に即した 3 次元の熱伝導方程式を解くことは非常に困難である。そこで、今回は簡単のため、非常に薄い標的のため厚さ方向は均一な温度分布を持ち、標的は円形で角度依存性はなく、標的温度は標的中心からの距離のみ依存すると仮定し、1 次元の熱伝導方程式を用いた。表

5.1 に計算に使用した各種パラメータを示す。標的の他には、RS、BW、RW を考慮し、RS は円筒、BW と RW は円形とした。物質が輻射を吸収する割合を放射率、反射する割合を反射率、透過する割合を透過率と呼び、これらの和は 1 となる。図 5.9 にモデル計算における BW 及び RW の位置を示す。また、標的セルの温度には前回の実験における実測値である 10 K を採用した。

表 5.1：熱負荷の計算に使用した各種パラメータ

ビーム	
エネルギー	262 MeV
強度	8.4 pA
半径 (σ)	0.5 mm
標的	
形状	円盤
半径	8 mm
厚さ	0.5 mm
温度	10 K
放射率	ε_{SDT}
透過率	$1 - \varepsilon_{\text{SDT}}$
RS	
形状	円筒
半径	57.5 mm
温度	60 K
放射率	0.1
反射率	0.9
BW	
形状	円形
半径	15 mm
温度	300 K
放射率	1
RW	
形状	円形
半径	30 mm
温度	300 K
放射率	1

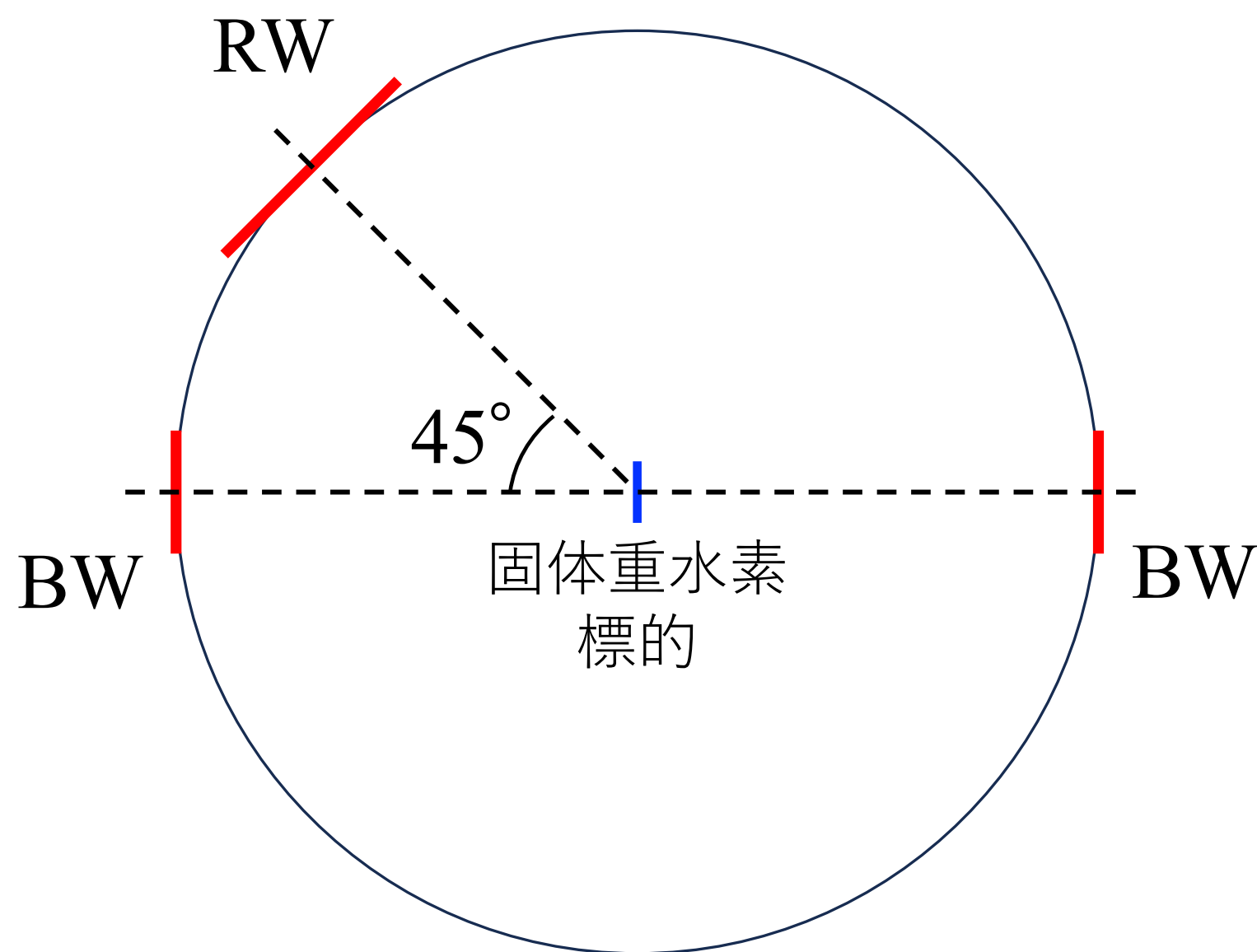


図 5.9：熱負荷計算における BW 及び RW の位置

以下に、使用した 1 次元の熱伝導方程式を示す。

$$-\lambda \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial T(r)}{\partial r} \right) = Q(r) \quad (5.13)$$

ここで、 $T(r)$ は標的セル中心を原点とした距離 r (m) における温度 (K)、 λ は固体重水素の熱伝導率 ($\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$)、 $Q(r)$ は単位体積あたりに標的に流入する熱量 (W/m^3) である。また、標的温度はビーム照射中、定常状態に達していたとの仮定のもとで時間依存の項は無視し、固体重水素の熱伝導率には温度依存性が存在するが、今回は簡単のために標的セルの温度における熱伝導率の値に固定して計算した。この式を解くことで、標的溫度 T を標的セル中心からの距離 r の関数として表すことができる。

5.3.1.1 ビームによる熱

ビームによって発生する熱の合計値 q_{btot} (W) は以下の式で与えられる。

$$q_{\text{btot}} = I \Delta E \quad (5.14)$$

ここで、 I はビーム強度 (pA)、 ΔE は標的中におけるビーム 1 粒子あたりのエネルギー損失 (eV) である。5.1 に示したビーム強度 8.4 pA とビームエネルギー 262 MeV における ^{12}C の固体重水素標的でのエネルギー損失 10 MeV を用いて計算すると、 $q_{\text{btot}} = 83$ (mW) であった。

ビームの空間分布をガウス分布と仮定すると、単位体積あたりに流入するビームによる熱 $Q_{\text{b}}(r)$ (W/m^3) は以下の式で与えられる。

$$Q_{\text{b}}(r) = A \exp^{-r^2/2\sigma^2} \quad (5.15)$$

ここで、 A は Q_b を標的全体にわたって体積積分した際に q_{btot} と等しくなるように定めた。

$$\int_0^{\infty} Q_b(r) \cdot 2\pi r \cdot 5 \times 10^{-4} dr = q_{\text{btot}} \quad (5.16)$$

5.3.1.2 輻射熱

輻射熱の評価にはネットワークモデル [41, 42] を用いた。ネットワークモデルでは、ポテンシャルノードが抵抗を介して接続されており、熱流を電流のように扱う。また、熱流に対する抵抗は、ネットワーク要素の面積、形態係数、放射率及び透過率によって決まる。ネットワークモデルは甲南大学理工学部物理学科の松田洋平准教授が、同様の冷却標的システムにおける輻射熱の評価 [43] に使用したモデルを参考に作成した。図 5.10 にそのネットワークモデルを示す。ネットワーク図において、 q , E , J , R , ε はそれぞれ正味の熱交換量 [W]、黒体射出能 [W/m²]、射度 [W/m²]、熱抵抗 [1/m²]、放射率である。黒体射出能は以下の式で与えられる。

$$E = \sigma T^4 \quad (5.17)$$

ここで $\sigma = 5.7 \times 10^{-8} \text{ W/m}^2 \cdot \text{K}^4$ はステファン・ボルツマン定数である。添字の BW+RW, SDT, RS はそれぞれ BW と RW、固体重水素標的、RS を表す。また、RS1 は BW+RW と RS 間における熱交換による影響、RS2 は RS が有限の反射率を持つことによる影響を表す。固体重水素と BW+RW の放射率は 0 であるため、 $J_{\text{BW+RW}} = E_{\text{BW+RW}}$, $J_{\text{SDT}} = \varepsilon_{\text{SDT}} E_{\text{SDT}}$ となっている。放射率は物質の温度や表面の状態に強く依存するため、これを精度良く推定することは困難である。一方で、固体重水素の放射率を測定することも容易ではない。そこで、ここでは固体重水素の放射率 ε_{SDT} を不定のパラメータとして扱い、輻射による正味の熱交換量を固体重水素の放射率 ε_{SDT} の関数として評価した。

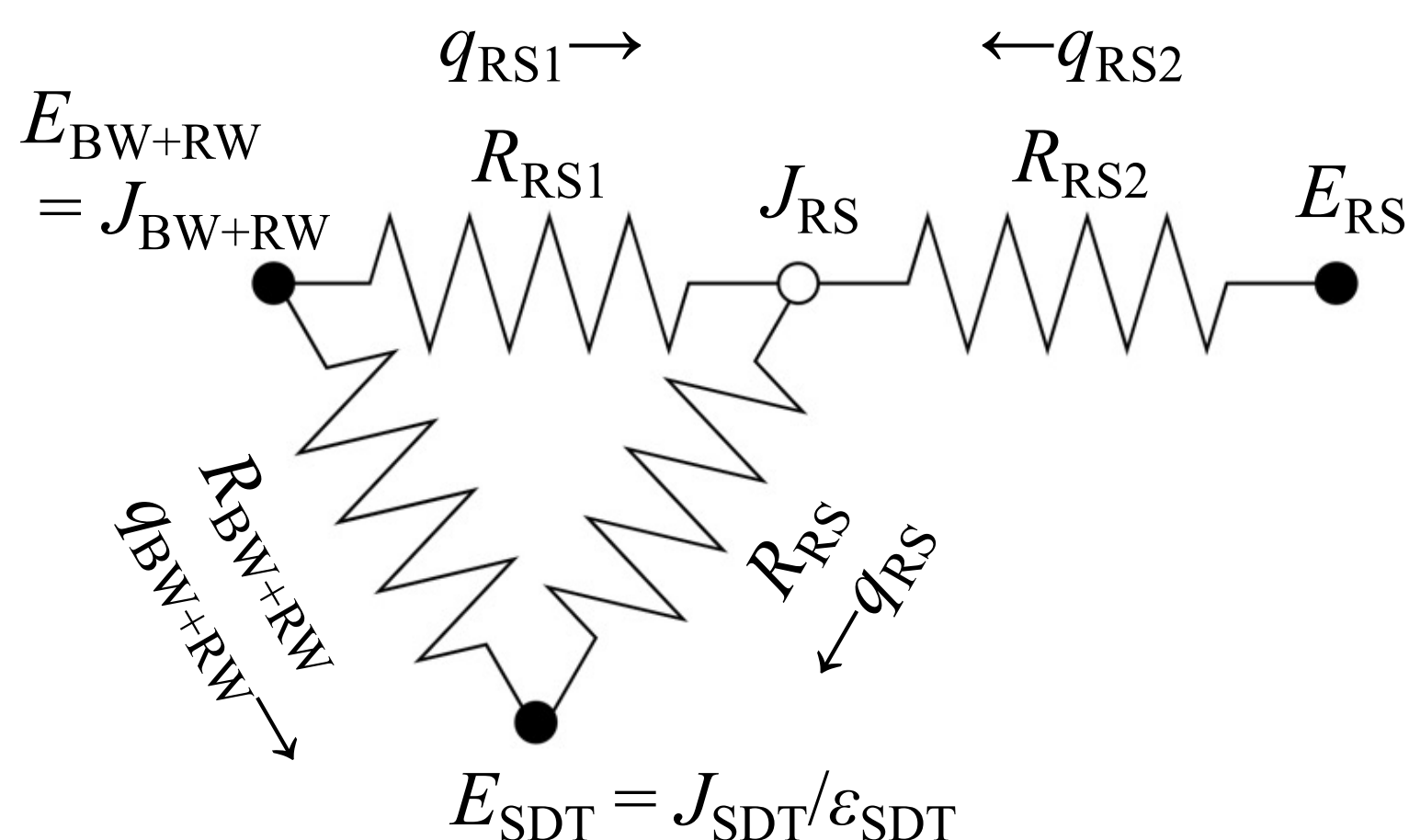


図 5.10：使用したネットワークモデル

このネットワークにおいて q , E (J), R はそれぞれ電気回路における、電流、電圧、抵抗に対応

する。そのため、たとえば BW+RW から SDT への熱流 $q_{\text{BW+RW}}$ は $(E_{\text{BW+RW}} - E_{\text{SDT}})/R_{\text{SDT}}$ と求められる。固体重水素標的が有限の透過率をもつため、実際は固体重水素標的を透過する輻射が存在するが、固体重水素標的の面積は小さいため、RS1 における固体重水素を透過する熱流は無視できると仮定した。また、BW と RW の輻射は固体重水素と RS のみならず BW と RW にも到達するが、簡単のため、固体重水素に対して平行かつお互いが隠れていると仮定した。その場合の熱抵抗は以下の式で求められる。

$$R_i = \frac{1}{\varepsilon_{\text{SDT}} A_i F_{i,\text{SDT}}} \quad (i = \text{BW} + \text{RW}, \text{RS}) \quad (5.18)$$

$$R_{\text{RS1}} = \frac{1}{A_{\text{BW+RW}} F_{\text{BW+RW,RS}}} \quad (5.19)$$

$$R_{\text{RS2}} = \frac{1 - \varepsilon_{\text{RS}}}{\varepsilon_{\text{RS}} A_{\text{RS}}} \quad (5.20)$$

ここで、 A_i , $F_{i,j}$, ε_i ($i = \text{BW} + \text{RW}, \text{RW}, \text{SDT}$) はそれぞれ、物質 i の面積 (m^2)、物質 i から物質 j への形態係数、物質 i の放射率である。形態係数はある物質 i から生じた輻射の内、物質 j に到達する割合を表す。物質の形状及び相対的な位置によって変化し、幾何学的な計算で求められる。これらの値を用いて計算した輻射による正味の熱交換量は以下の通りである。

$$q_{\text{BW}} = \frac{E_{\text{BW+RW}} - E_{\text{SDT}}}{R_{\text{BW}}} = \frac{\sigma(300^4 - 10^4)}{40000/\varepsilon_{\text{SDT}}} \quad \text{W} \quad (5.21)$$

$$q_{\text{RW}} = \frac{E_{\text{BW+RW}} - E_{\text{SDT}}}{R_{\text{RW}}} = \frac{\sigma(300^4 - 10^4)}{22000/\varepsilon_{\text{SDT}}} \quad \text{W} \quad (5.22)$$

$$\begin{aligned} q_{\text{RS}} &= \frac{1/R_{\text{RS}}}{1/R_{\text{RS}} + 1/R_{\text{RS1}} + 1/R_{\text{RS2}}} \left(\frac{E_{\text{BW+RW}} - E_{\text{SDT}}}{R_{\text{RS1}}} + \frac{E_{\text{RS}} - E_{\text{SDT}}}{R_{\text{RS2}}} \right) \\ &= \frac{\varepsilon_{\text{SDT}}/6000}{\varepsilon_{\text{SDT}}/6000 + 1/230 + 1/190} \left\{ \frac{\sigma(300^4 - 10^4)}{230} + \frac{\sigma(60^4 - 10^4)}{190} \right\} \quad \text{W} \quad (5.23) \end{aligned}$$

q_{BW} の値は 2 つの BW の合計値である。図 5.11 に固体重水素標的に流入する正味の熱交換量の ε_{SDT} 依存性を示す。RS からの寄与が一番大きいという結果が得られた。RS の温度は RW や BW と比べて低く、輻射熱は小さいが、面積が大きくかつ有限の反射率を持つため、RW や BW からの輻射を反射した結果だと考えられる。前回の実験条件における輻射による固体水素標的の温度上昇を評価したところ、輻射による熱量が 30 mW 以上の場合、輻射のみで標的が融解してしまうことが分かった。しかし、前回の実験において、輻射のみで標的が融解した事実はないため、輻射による熱量は 30 mW 以下であると考えられる。そのため、今回の熱負荷評価では少し大きめに見積もって、輻射による熱量は 20 mW として計算した。また、輻射熱は標的全体に均一に加わるため、輻射による熱量 Q_{rad} (W/m^3) は標的の体積を V (m^3) として $Q_{\text{rad}} = 0.02/V$ とした。

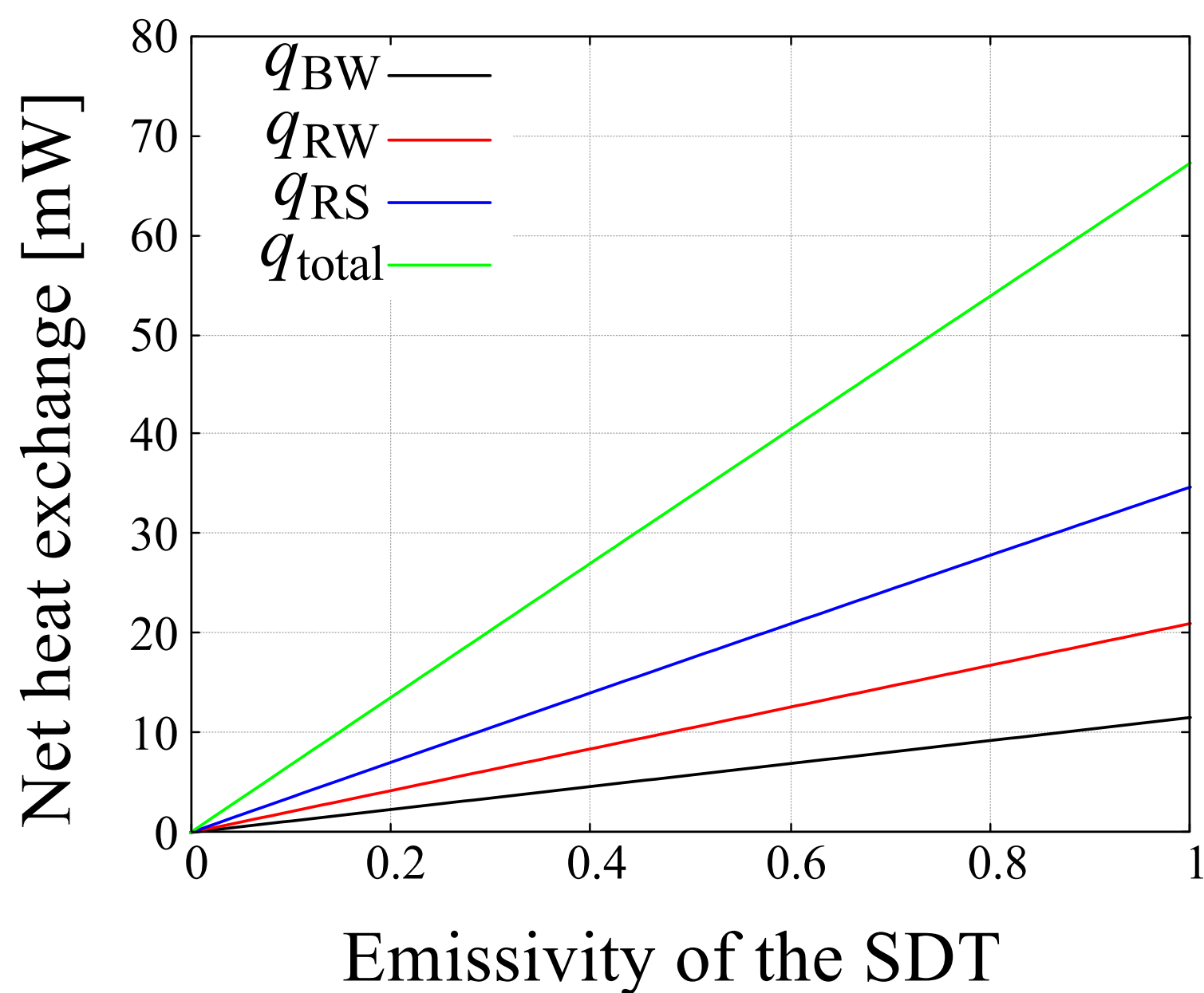


図 5.11：固体重水素標的に流入する正味の熱交換量の ε_{SDT} 依存性

5.3.2 熱負荷の計算結果

今回の熱負荷の評価では、パラ-オルソ変換後の重水素の熱伝導率を用いた。図 5.12 に標的の温度の位置依存性を示す。図中の赤線は、標的セルの温度 $T_{cell} = 10$ K の場合の計算結果である。この温度における固体重水素の熱伝導率は $\varepsilon_{SDT} = 1$ (W/(m·K)) であり、標的中心温度は 80 K 以上と、重水素の融点である 18.7 K を大きく超えており、標的が融解してしまうことが分かった。そこで、標的セルの温度を変えて同様の計算を行った。図中の青線は、標的セルの温度 $T_{cell} = 7$ K の場合の計算結果である。この温度における固体重水素の熱伝導率は $\varepsilon_{SDT} = 10$ (W/(m·K)) であり、標的中心温度が 15 K に保たれ、固体重水素は融解しないことが分かった。たった 3 K の温度差でここまでの差が生じたのは、10 K 以下の温度領域では、温度が下がると固体重水素の熱伝導率が劇的に大きくなるからである。もし $T_{cell} = 4$ K まで冷却できた場合は、標的中心温度は 4.8 K とほとんど上昇しない。この結果から、ビーム照射によって標的が融解することを防ぐためには、標的セルの温度を少なくとも 7 K 以下に冷却する必要がある、また、可能な限り標的セルの温度を低くすることが重要であることが判明した。

今回の計算では、簡単のため、固体重水素の熱伝導率を標的セルの温度における値に固定して計算した。しかし、実際は温度によって熱伝導率は変化する。実際は、温度が上昇すると、熱伝導率は小さくなり、更なる温度上昇を引き起こす。このようなフィードバックが存在するため、今回の熱伝導率を固定した熱負荷の評価結果は、実際の熱負荷よりも小さくなっている。そのため、より厳密な熱負荷の評価を行うために、今後、有限要素法を用いることで固体重水素の熱伝導度の温度依存性を考慮した熱負荷の評価が必要である。

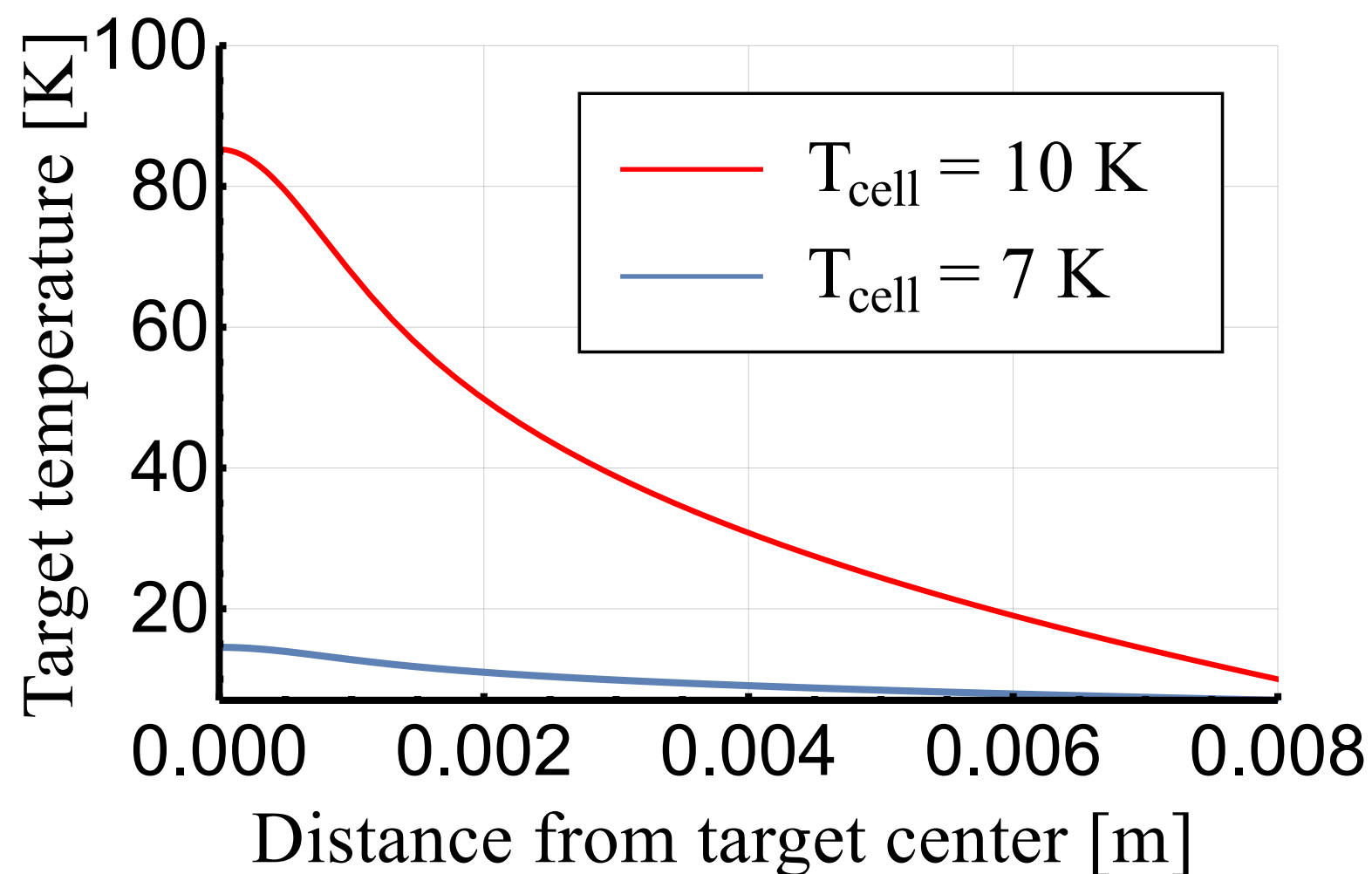


図 5.12：標的溫度の位置依存性

5.4 作成試験

水素と重水素では熱的性質が異なるため、現在の冷却標的システムにおいて固体重水素が作成可能か否かは自明ではない。そこで、固体重水素の作成試験を行った。

5.4.1 固体重水素作成手順

固体重水素の大まかな作成手順を説明する。図 5.13 に冷却標的システムのガスハンドラーの模式図を示す。

1. 重水素ガス充填

重水素ガスは事前に 20 L タンクに充填しておく。

2. 粗引き

まず 2 台のロータリーポンプ (RP1, RP3) を用いて散乱槽及び標的セルの粗引きを行う。パラ-オルソ変換を行う際は、変換器の真空引きも行う。粗引きは 10 Pa 程度まで行う。

3. 散乱槽の真空引き

標的セルと散乱槽を繋ぐバイパスラインを閉じることで、散乱槽と標的セルを別々に真空引きを行う。散乱槽はターボ分子ポンプ (TMP) を用いて真空度が 10^{-3} Pa 程度まで真空引きを行う。

4. 標的セルの冷却

標的セルの冷却を開始し、20 K 付近まで冷却する。先に真空引きを行うのは、標的セルへの残留ガスの付着を防ぐためである。

5. パラ-オルソ変換

パラ-オルソ変換を行う場合は、パラ-オルソ変換器に重水素ガスを流し込む。その後、変換器をヒーターで温めることで、変換後のオルソ重水素を取り出し、10 L タンクに充填する。行わない場合は、変換をせずに 10 L タンクに重水素をそのまま充填する。

6. 固体重水素の作成

10 L タンクから標的セルへ重水素ガスを流し込み固体重水素を作成する。10 L タンクに量り取るときの圧力によって、標的セルへの重水素ガスの流量を調整することができる。

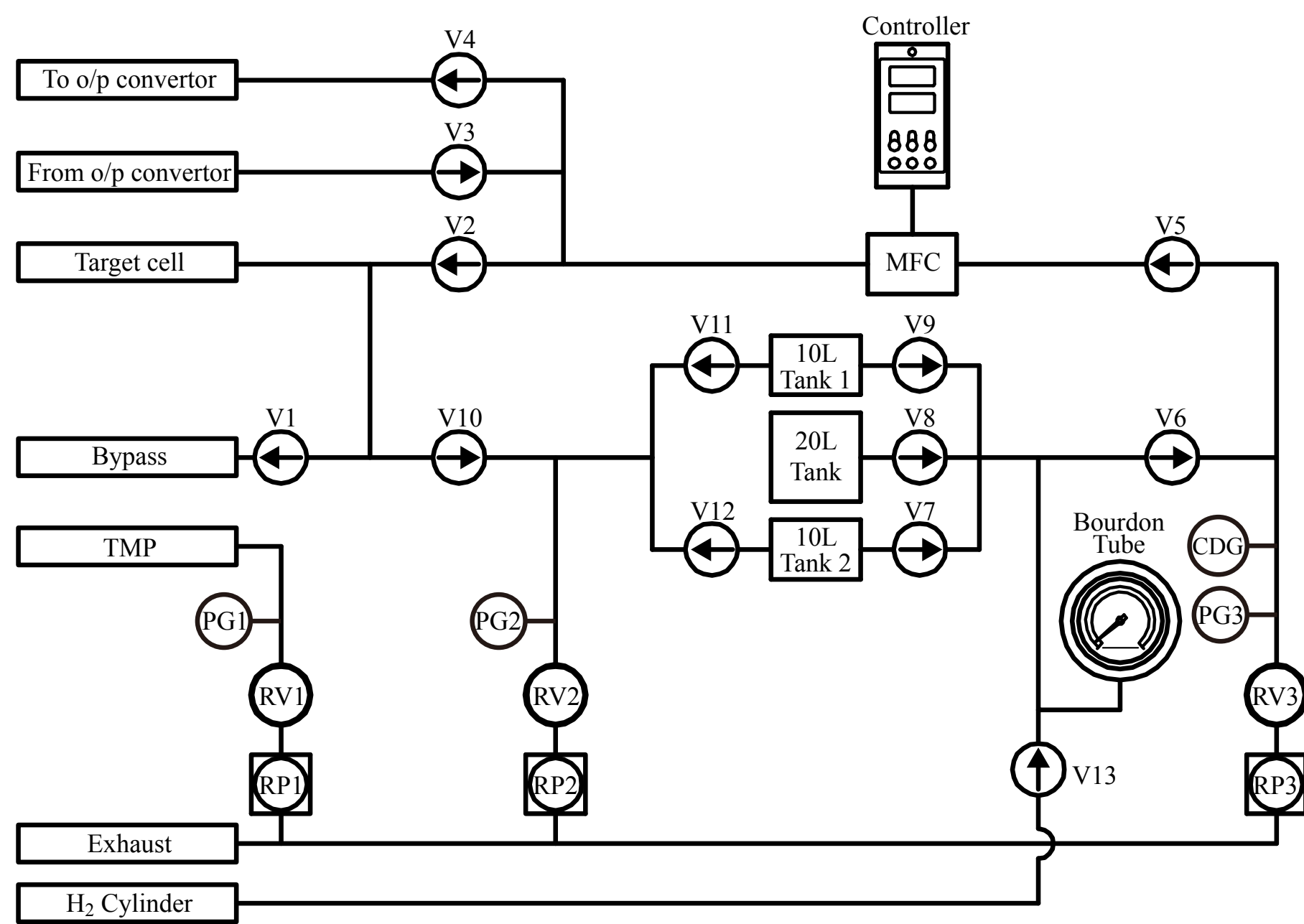


図 5.13：冷却標的システムのガスハンドラー

5.4.2 パラ-オルソ変換器

冷凍機の二段ステージにはパラ-オルソ変換器 (図 5.14) が取り付けられている。中にはパラ-オルソ変換の触媒として酸化鉄 (III) が封入されており、ここに重水素を流し込み、冷却することで重水素分子の回転準位における基底状態であるオルソ重水素に変換される。



図 5.14：パラ-オルソ変換器

5.4.3 作成試験結果

図 5.15 に 1 回目の作成結果を示す。重水素ガスの流入口は標的セル上部に設置されている。標的セルに面している U 字の箇所から固化しているが、標的セルの中心分は大きな空洞となっている。このような形状になった原因としては、重水素が配管内部で固化してしまったことが考えられる。配管は直接冷凍機には接触していないが、標的ホルダーと一体化しているため、ある程度は冷却されている。水素の凝固点 14.0 K とに対して、重水素の凝固点は 18.7 K と約 5 K 高く、重水素は水素より凍りやすい。そのため、重水素ガスが配管内部で固化し、配管を塞いでしまったために、標的セルへの重水素ガスの供給が止まってしまったと考えられる。

この問題を解決するために、配管にヒーターを設置し、配管内での固化の防止を試みた。図 5.16 にヒーター設置後の作成結果を示す。1 回目とヒーターの有無以外の条件は同じである。ヒーターを設置した結果、配管内で重水素が固化することはなくなり、標的セル内の固体重水素の量も増加した。しかし、依然として標的セルの中心部分には大きな空洞が存在している。また、図では少し確認しづらいが、赤線で囲まれたセル上部の領域に固体重水素が付着している箇所があり、重水素ガスが配管内ではなく標的セル内の流入口付近で固化してしまったことで、標的セルへの重水素ガスの供給が止まってしまったと考えられる。これは、標的セルへの重水素ガスの流入速度が不足していることを意味する。そのため、次は標的セルへの重水素ガスの流入圧力を調整する必要がある。

図 5.17 に重水素ガス流入圧力調整後の作成結果を示す。今までの結果と異なり、セル全体に固体重水素が生成されている。しかし、標的セルの中心部に黒い影のような領域が存在する。これは「鬆(す)」と呼ばれるもので、液体から固体になる際に密度が増加し、体積が減少する際に生じる。通常は、固化した際に体積が減少したとしても、その分を重水素ガスが補うため「鬆」は発生しない。しかし、固化に対して液化が速く、標的セル内が液体で一度満たされてし

まうと、固化は標的セルの周辺部分から始まるため、重水素ガスの流入口が塞がれてしまう。そのため、重水素ガスがそれ以上標的セル内に流入できなくなり、液体から固体になる際の体積の減少を補うことができず、標的セル内に「鬆」が発生してしまう。このような現象が起こるのは、重水素ガスの流入圧力が高すぎる、もしくは重水素の熱伝導率が低いため固化の速度が遅いことが原因である。もし原因が前者であれば、重水素ガスの流入圧力を調整することで解決できる。しかし、重水素ガスの流入圧力を調整してもなお「鬆」が発生したため、原因は後者であったと考えられる。そのため、次は重水素の熱伝導率を大きくするためにパラ-オルソ変換を行う必要がある。

図 5.18 にパラ-オルソ変換後の作成結果を示す。パラ-オルソ変換を行ったものの、依然「鬆」が生じており、状況は改善されなかった。固化の速度が速くなった様子も確認されず、パラ-オルソ変換によって重水素の熱伝導率が劇的に大きくなっていない。これは、標的セルの温度が問題であると考えられる。現在の冷却標的システムにおいて、標的セルの最低温度はおよそ 10 K であった。図 5.8 を確認すると、パラ-オルソ変換によって熱伝導率が 10 倍以上増加するのは 8 K 以下の温度領域であり、10 K 付近では熱伝導率のパラ-オルソ比依存性がほとんどないことが分かる。すなわち、一番の問題点は標的セルの温度が高いことであるが、現状の冷却標的システムでは、これ以上標的セルの温度を下げることはできない。そのため、標的セルをより低温に冷却できるようにするため、何らかの改善が必要である。



図 5.15：1 回目の作成結果

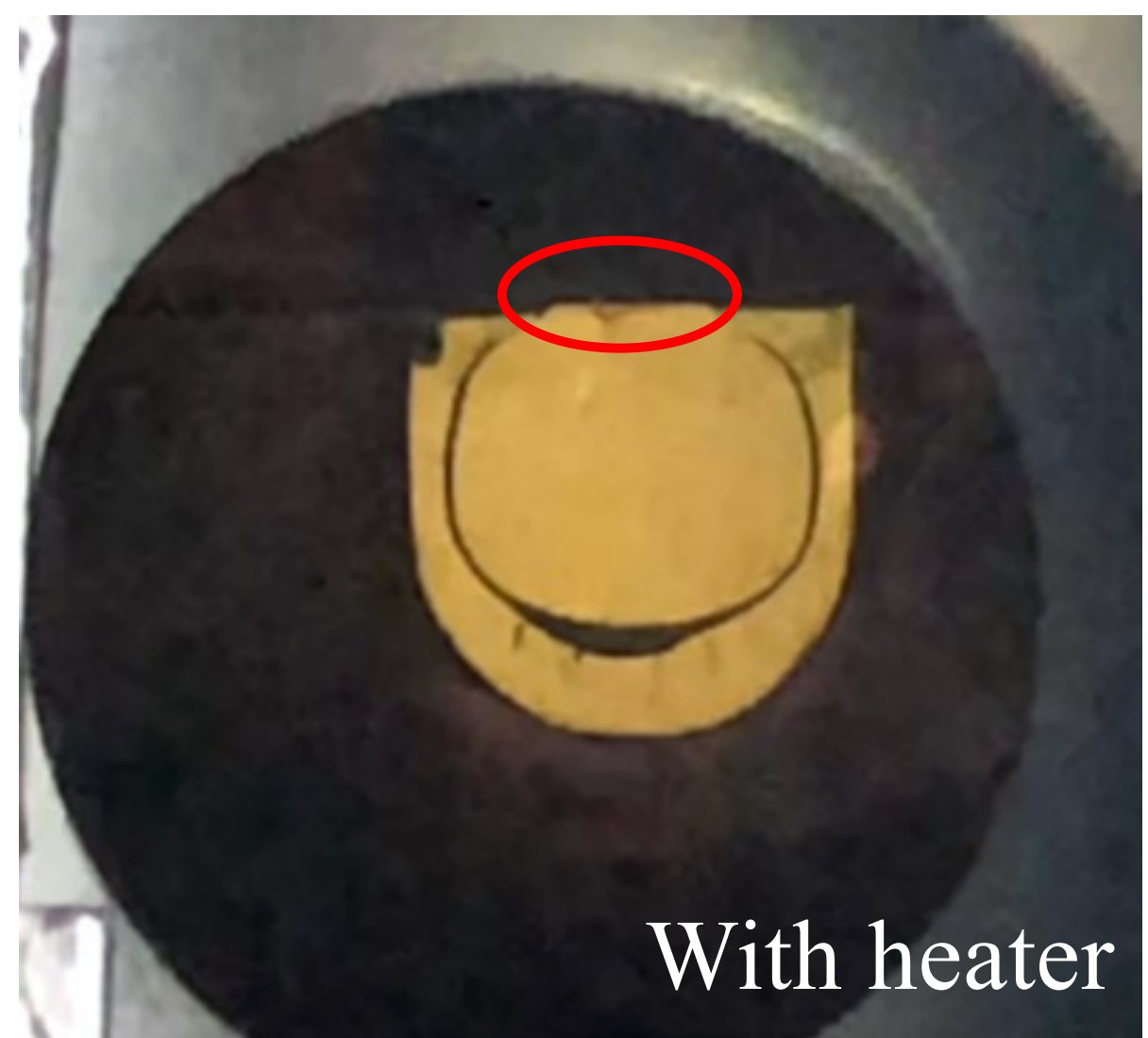


図 5.16：ヒーター設置後の作成結果

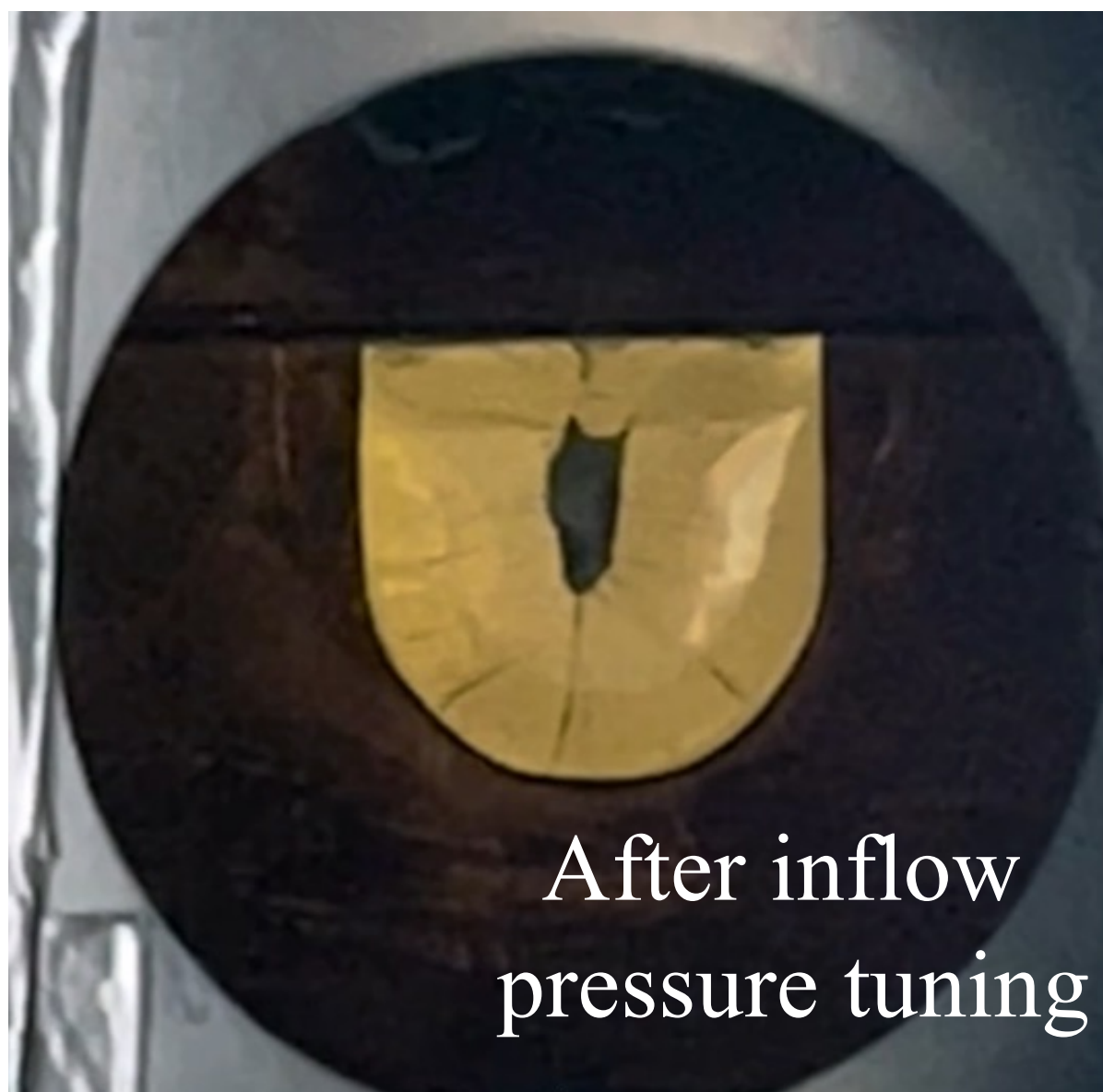


図 5.17：重水素ガス流入圧力調整後の作成結果



図 5.18：パラ-オルソ変換後の作成結果

5.4.4 冷却標的システムの改善点

冷却標的システムで使用している冷凍機は 4 K までの冷却能力を持っているにも関わらず、標的セルの温度は 10 K までしか下がらない理由は、冷却標的システム自体の熱伝導率が低いためだと考えられる。図 5.1(右) から冷凍機と標的ホルダー及びセルの間には距離が空いていることが分かる。これは冷却標的システムを散乱槽の蓋に設置した際、標的セルをビーム軸上まで降下させるために延長されている。側面から見た延長部分の実際の写真を図 5.19 に示す。延長部分は薄く、断面積は二段ステージと比べると小さいため熱抵抗が大きいと考えられる。そのため、延長部分を太くすることで冷却標的システムの熱伝導度を向上させ、標的セルの温度をより下げられる可能性がある。また、標的セルの高さ調整の機構を別の箇所、例えば散乱槽の蓋を改良するなどして、延長部分を廃止し、標的ホルダー及びセルを二段ステージに直接接続することも考えられる。

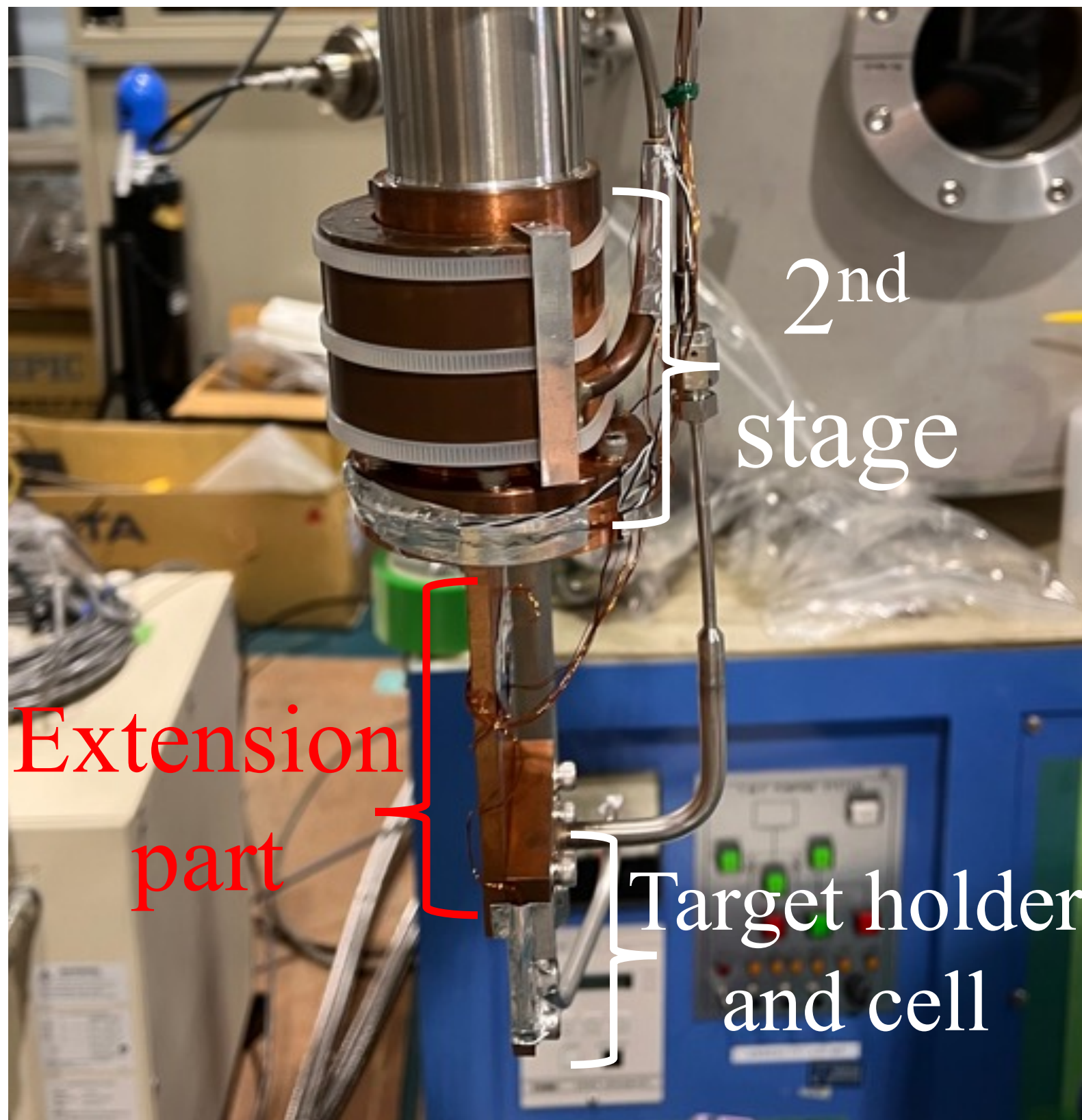


図 5.19：標的ホルダー及びセルの延長部分の側面図

第6章

まとめと今後の展望

本研究では、逆運動学反応 ${}^2\text{H}({}^{12}\text{C}, {}^{12}\text{C}^*d)$ から放出される反跳重陽子と散乱された ${}^{12}\text{C}$ の同時計測を用いた ${}^{12}\text{C}$ の 3_1^- 状態の γ 崩壊確率測定実験を計画した。前回の実験では固体重水素標的の融解が問題となったため、ビームの熱で融解しない利点に重きを置き、重水素標的の第1候補を TiD_2 標的とした。第2候補は、融解の可能性はあるものの、高統計量が期待される固体重水素とした。また、モンテカルロシミュレーションによって、2つの標的候補それぞれに対して実験条件の最適化を行った。

TiD_2 標的は数百 MeV の重イオンビームの照射実績が少なく、本研究において重水素標的として使用できるかは自明ではない。また、 TiD_2 中に含まれる Ti によるバックグラウンドの影響も不明であったが、シミュレーションではこれを無視できるものとして評価を行った。

そこで、シミュレーションの妥当性を確認するため、東北大学 CYRIC にて TiD_2 標的の性能評価実験を行った。その結果、 ${}^{12}\text{C}$ の励起エネルギースペクトルでは弾性散乱や非弾性散乱によるピークが確認できたため、 TiD_2 標的が重水素標的として使用できることが分かった。また、シミュレーション結果は各状態の励起エネルギー分解能を再現しており、シミュレーションの妥当性が確認できた。各状態を励起する非弾性散乱の微分断面積は、シミュレーションで使用している微分断面積と概ね一致し、 3_1^- 状態の重心系前方角度における検出効率の減少傾向もシミュレーションで再現できた。0.4 pnA のビーム強度においては、ビーム照射による TiD_2 からの重水素の離脱は確認されなかった。Ti によるバックグラウンドとしては、陽子が多く発生しており、Gion の Si 検出器のシングルイベントのうち 85% が Ti 由来のイベントであった。今回の TiD_2 の性能評価実験から本実験に必要なビーム強度を評価したところ、ビーム強度は 150 pnA であり、Si シングルレートが Gion の Si 検出器のストリップあたり 210 kHz であった。Si シングルレートはストリップあたり 10 kHz 以下が望ましく、これを大きく超えてしまっているため、実験計画での想定通りに 3_1^- 状態の生成を 2 週間で 10^{10} イベント測定することは困難であり、 TiD_2 標的は本実験に不適だと判断した。

次に、重水素標的の第2候補である固体重水素標的を検討した。前回の実験ではビーム照射によって標的が融解したため、熱伝導方程式を用いて固体重水素標的への熱負荷を評価し、融解の可能性を確認した。その結果、パラ-オルソ変換を行い標的セルを 7 K 以下に冷却すれば、

標的が融解しない可能性のあることが分かった。しかし、今回は簡単のため、固体重水素の熱伝導率を固定して熱負荷の評価を行っており、熱負荷を過小評価している。そのため、今後、有限要素法を用いて固体重水素の熱伝導率の温度依存性を考慮した熱負荷の評価が必要である。

また、固体重水素標的の作成試験も行った。その結果、重水素は水素と比べて凝固点が高いため、配管内で固化し、配管を塞いでしまう問題があることが分かった。そこで、配管にヒーターを設置することで、配管内での重水素の固化を防ぐことに成功した。その後、重水素ガスの流入圧力を調整し、パラ-オルソ変換による固体重水素の熱伝導率の向上を図ったものの、重水素の固化速度が足りず、均一な固体重水素標的を作成することができなかった。その原因は、現在の冷却標的システムでは標的セルが 10 K 程度までしか冷却できないため、固体重水素の熱伝導率が十分ではないことにある。そのため、冷却標的システムの熱伝導度を向上させるために、何らかの改良が必要であることが分かった。現在の冷却標的システムは散乱槽に設置した際に標的セルがビーム軸上まで降下させるために、冷凍機の第二ステージと標的セルの間には距離が空いており、これによって冷却標的システムの熱伝導度が低下していると考えられる。今後、この延長部分を太くする、または冷凍機の第二ステージを標的セルに近づけることで、標的セルをより低温に冷却することが求められる。

謝辞

本研究を行うにあたって、多くの方々にご指導・ご協力をいただきました。

指導教員である川畑貴裕教授には学部4年生の頃からお世話になり、右も左も分からない私に実験・解析等あらゆる研究の基礎を一からご指導いただきました。お忙しいにも関わらず、学会の発表資料等の添削や練習にもお付き合いいただき、また本論文の添削もしていただきました。心から感謝申し上げます。

東北大学 CYRIC にて行なった TiD_2 標的の性能評価実験にご協力いただいた、同研究室の古野達也助教、坂梨公亮さん、大阪大学 RCNP の村田求基さん、京都大学の藤川祐輝さん、岡本慎太郎さんに感謝申し上げます。初めての自分の実験で、至らぬ点が多々あったと思いますが、皆様のお力添えのおかげで無事に実験を終えることができました。本当にありがとうございました。また、 TiD_2 標的を作成していただいた、東北大学の三木謙二郎助教、亀谷晃毅さん、浦山廉さんに感謝申し上げます。東北大学 CYRIC にて実験を行うにあたって、加速器研究部の伊藤正俊教授、足立智助教、米倉章平さん、山崎峻平さん、細谷弦生さんにもお世話になりました。ありがとうございました。

また、固体重水素標的開発を行うにあたって、甲南大学の松田洋平准教授には大変お世話になりました。固体標的に関して全くの素人であった私に、初歩的なことから丁寧にご指導いただきました。ありがとうございました。

他にも、同研究室の小田原厚子准教授、吉田斉准教授、福田光順准教授、清水俊助教、三原基嗣助教には卒研・学会発表練習など多くの場面で助言をいただきました。どうもありがとうございました。同研究室の先輩方、同期、後輩の皆さんにも、日頃から解析に関する相談に乗っていただいたり、様々な議論を交わしたりするなど、研究生活を支えていただきました。ありがとうございました。

最後に、私の研究生活を支えていただいた家族に感謝申し上げます。

まだまだ道半ばではございますが、これからも研究に励んでまいりますので、皆さまどうぞよろしく願いいたします。

参考文献

- [1] R. H. Cyburt, B. D. Fields, K. A. Olive, and T.-H. Yeh, Big bang nucleosynthesis: Present status, *Reviews of Modern Physics* **88**, 015004 (2016).
- [2] F. Hoyle, D. Dunbar, W. Wenzel, and W. Whaling, The 7.68 MeV state in ^{12}C , *Physical Review* **92**, 1095 (1953).
- [3] J. Kelley, J. Purcell, and C. Sheu, Energy levels of light nuclei $A = 12$, *Nuclear Physics A* **968**, 71 (2017).
- [4] F. Hoyle and W. A. Fowler, Nucleosynthesis in Supernovae, *The Astrophysical Journal* **132**, 565 (1960).
- [5] C. Angulo, M. Arnould, M. Rayet, P. Descouvemont, D. Baye, C. Leclercq-Willain, A. Coc, S. Barhoumi, P. Aguer, C. Rolfs *et al.*, A compilation of charged-particle induced thermonuclear reaction rates, *Nuclear Physics A* **656**, 3 (1999).
- [6] S. Wanajo, H.-T. Janka, and S. Kubono, Uncertainties in the νp -process: supernova dynamics versus nuclear physics, *The Astrophysical Journal* **729**, 46 (2011).
- [7] G. R. Caughlan and W. A. Fowler, Thermonuclear reaction rates V, *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **40**, 283 (1988).
- [8] H. Crannell, T. Griffy, L. Suelzle, and M. Yearian, A determination of the transition widths of some excited states in ^{12}C , *Nuclear Physics A* **90**, 152 (1967).
- [9] W. Zimmerman, M. Ahmed, B. Bromberger, S. Stave, A. Breskin, V. Dangendorf, T. Delbar, M. Gai, S. Henshaw, J. Mueller *et al.*, Unambiguous Identification of the Second 2^+ State in ^{12}C and the Structure of the Hoyle State, *Physical review letters* **110**, 152502 (2013).
- [10] D. N. F. Dunbar, R. E. Pixley, W. A. Wenzel, and W. Whaling, The 7.68-MeV state in ^{12}C , *Physical Review* **92**, 649 (1953).

- [11] H. Morinaga, Interpretation of some of the excited states of $4n$ self-conjugate nuclei, *Physical Review* **101**, 254 (1956).
- [12] C. Cook, W. Fowler, C. Lauritsen, and T. Lauritsen, High-Energy Alpha Particles from ^{12}B , *Physical Review* **111**, 567 (1958).
- [13] C. Jacquot, Y. Sakamoto, M. Jung, and L. Girardin, SPIN-PARITY ASSIGNMENTS OF EXCITED STATES IN ^{12}C , *Nuclear Physics A* **201**, 247 (1973).
- [14] S. Brandenburg, A. Drentje, M. Harakeh, and A. van der Woude, KVI Annual Report 1985 (unpublished).
- [15] E. Uegaki, S. Okabe, Y. Abe, and H. Tanaka, Structure of the Excited States in ^{12}C . I, *Progress of Theoretical Physics* **57**, 1262 (1977).
- [16] M. Kamimura, Transition densities between the 0_1^+ , 2_1^+ , 4_1^+ , 0_2^+ , 2_2^+ , 2_1^- and 3_1^- states in ^{12}C derived from the three-alpha resonating-group wave functions, *Nuclear Physics A* **351**, 456 (1981).
- [17] A. Tohsaki, H. Horiuchi, P. Schuck, and G. Röpke, Alpha cluster condensation in ^{12}C and ^{16}O , *Physical Review Letters* **87**, 192501 (2001).
- [18] H. O. Fynbo, C. A. Diget, U. C. Bergmann, M. J. Borge, J. Cederkäll, P. Dendooven, L. M. Fraile, S. Franchoo, V. N. Fedosseev, B. R. Fulton *et al.*, Revised rates for the stellar triple- α process from measurement of ^{12}C nuclear resonances, *Nature* **433**, 136 (2005).
- [19] M. Itoh, H. Akimune, M. Fujiwara, U. Garg, N. Hashimoto, T. Kawabata, K. Kawase, S. Kishi, T. Murakami, K. Nakanishi *et al.*, Candidate for the 2^+ excited Hoyle state at $E_x \sim 10$ MeV in ^{12}C , *Physical Review C* **84**, 054308 (2011).
- [20] P. Endt, Strengths of gamma-ray transitions in $A = 5 - 44$ nuclei, IV, *Atomic data and nuclear data tables* **55**, 171 (1993).
- [21] D. Chamberlin, D. Bodansky, W. Jacobs, and D. Oberg, Upper limit on the radiative width of the 9.64-MeV state of ^{12}C , *Physical Review C* **10**, 909 (1974).
- [22] M. Tsumura, T. Kawabata, Y. Takahashi, S. Adachi, H. Akimune, S. Ashikaga, T. Baba, Y. Fujikawa, H. Fujimura, H. Fujioka *et al.*, First experimental determination of the radiative-decay probability of the 3_1^- state in ^{12}C for estimating the triple alpha reaction rate in high temperature environments, *Physics Letters B* **817**, 136283 (2021).

- [23] <https://www-nds.iaea.org/amdc/> .
- [24] K. Kamada, T. Endo, K. Tsutumi, T. Yanagida, Y. Fujimoto, A. Fukabori, A. Yoshikawa, J. Pejchal, and M. Nikl, Composition engineering in cerium-doped $(\text{Lu, Gd})_3(\text{Ga, Al})_5\text{O}_{12}$ single-crystal scintillators, *Crystal Growth & Design* **11**, 4484 (2011).
- [25] K. Kamada, T. Yanagida, T. Endo, K. Tsutumi, Y. Usuki, M. Nikl, Y. Fujimoto, A. Fukabori, and A. Yoshikawa, 2 inch diameter single crystal growth and scintillation properties of $\text{Ce} : \text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}$, *Journal of Crystal Growth* **352**, 88 (2012).
- [26] S. Kurosawa, Y. Shoji, Y. Yokota, K. Kamada, V. I. Chani, and A. Yoshikawa, Czochralski growth of $\text{Gd}_3(\text{Al}_{5-x}\text{Ga}_x)\text{O}_{12}$ (GAGG) single crystals and their scintillation properties, *Journal of crystal growth* **393**, 134 (2014).
- [27] T. Furuno, A. Koshikawa, T. Kawabata, M. Itoh, S. Kurosawa, T. Morimoto, M. Murata, K. Sakanashi, M. Tsumura, and A. Yamaji, Response of the GAGG (Ce) scintillator to charged particles compared with the CsI (Tl) scintillator, *Journal of Instrumentation* **16**, P10012 (2021).
- [28] Y. Tamagawa, Y. Inukai, I. Ogawa, and M. Kobayashi, Alpha–gamma pulse-shape discrimination in $\text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}$ (GAGG): Ce^{3+} crystal scintillator using shape indicator, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **795**, 192 (2015).
- [29] M. Fujiwara, H. Akimune, I. Daito, H. Fujimura, Y. Fujita, K. Hatanaka, H. Ikegami, I. Katayama, K. Nagayama, N. Matsuoka *et al.*, Magnetic spectrometer grand raiden, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **422**, 484 (1999).
- [30] 大角泰章, *水素吸蔵合金-その物性と応用* (株式会社アグネ 1993).
- [31] J. P. B. William M. Mueller and G. G. Libowitz, *Metal Hydrides* (Academic Press 1968).
- [32] K. Sumita, A. Takahashi, T. Iida, and J. Yamamoto, Status of OKTAVIAN I and proposal for OKTAVIAN II, *Nuclear Science and Engineering* **106**, 249 (1990).
- [33] K. Grabowski, D. Knies, R. Walker, and S. Qadri, Particle Emission from Low Energy Proton Bombardment of TiH_2 and TiD_2 , *Journal of the Physical Society of Japan* **71**, 757 (2002).
- [34] O. Aspelund, G. Hrehuss, A. Kiss, K. Knöpfle, C. Mayer-Böricke, M. Rogge, U. Schwinn, Z. Seres, and P. Turek, Elastic and inelastic deuteron scattering on ^{12}C in the energy range

- from 60 to 90 MeV, Nuclear Physics A **253**, 263 (1975).
- [35] <https://www.shi.co.jp/products/machinery/cold/index.html> .
- [36] K. Fukutani and T. Sugimoto, Physisorption and ortho–para conversion of molecular hydrogen on solid surfaces, Progress in surface science **88**, 279 (2013).
- [37] G. Herzberg, *Molecular spectra and molecular structure*, I. Spectra of diatomic molecules (D. van Nostrand 1950).
- [38] I. F. Silvera, The solid molecular hydrogens in the condensed phase: Fundamentals and static properties, Reviews of Modern Physics **52**, 393 (1980).
- [39] R. Hill and B. Schneidmesser, Heat conduction in solid hydrogen, Bull. Inst. Intern. Frold. Annex. **115**, 1956 (1956).
- [40] R. G. Bohn and C. Mate, Thermal conductivity of solid hydrogen, Physical Review B **2**, 2121 (1970).
- [41] A. Oppenheim, Trans. asme, Trans. ASME **78**, 725 (1956).
- [42] J. Holeman, *Heat Transfer* (McGraw-Hill 1956).
- [43] Y. Matsuda, H. Sakaguchi, J. Zenihiro, S. Terashima, K. Kamei, and H. Otsu, Radiation analysis for large, thin solid hydrogen target, RIKEN Accelerator Progress Report **44**, 216 (2011).