

解説

## K殻電離に伴う $^{197}\text{Au}$ 核励起現象の観測

岸本 俊二

高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所\*

### Observation of Nuclear Excitation on $^{197}\text{Au}$ in K-shell Ionization

Shunji KISHIMOTO

*Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization*

We have succeeded in observing Nuclear Excitation by Electron Transition (NEET) on  $^{197}\text{Au}$  by a new method. Monochromatic x-rays of BL09XU at the SPring-8 were used to ionize the K shell of gold atoms. Internal-conversion electrons emitted from excited nuclei were detected with time spectroscopy using a silicon avalanche photodiode detector. At a photon energy of 80.989 keV, higher than the Au K-edge, the NEET probability on  $^{197}\text{Au}$  was determined to be  $(5.0 \pm 0.6) \times 10^{-8}$  from a comparison of the event number per photon between NEET and the nuclear resonance at 77.351 keV. This is the first case of a clear positive experimental result for NEET.

#### 1. はじめに

原子の中心にある原子核が励起状態から基底状態にもどるとき、光子 ( $\gamma$  線) を放出することがある。よく知られたガンマ崩壊である。 $\gamma$  線を放出するかわりに原子の内殻軌道電子が放出されることもある。 $\gamma$  線放射に競合する現象で内部転換と呼ばれている。X線源としてよく使われる放射性同位元素の鉄55のように内殻電子が原子核内に捕獲される崩壊形式(電子捕獲)もある。このように原子核が励起されている状態から起きる変化としては原子核と原子の内殻軌道電子との相互作用は珍しくない。一方、軌道電子が状態を変えるとき、たとえば内殻電子が電離され外側の電子がその空孔を埋めるときX線が放出されたりオージェ電子として別の軌道電子が放出される。原子の中心にある原子核は影響を受けないのが普通である。ただ、ある条件がそろわずかな確率ながら原子核が励起されると予想されていた。内殻電子が電離されたあとの電子遷移によって原子核が励起される現象—「軌道電子遷移による核励起」(Nuclear Excitation by Electron Transition, 略してNEET)である。ただし、これまでの実験では誰もがNEETと認める結果は得られていなかった。最近、我々は放射光X線によって金197のNEETを観測するのに成功した<sup>1)</sup>。この結果は、NEETを実験によって証明するものとして評価をうけている。米国等の科学雑誌でも取り

上げられた<sup>2)</sup>。

放射光を利用して原子核の励起を観測する実験では核共鳴散乱がよく知られている。この分野の研究では入射したX線と共鳴励起した原子核からの $\gamma$ 線を利用して、あるいは核励起強度の入射X線エネルギーに対する変化を測定して、その核を含む物質の物性を調べる。本研究では原子に特定の状態変化(内殻電離)を起こして原子核が励起されるかどうかを見る。つまり原子核の励起そのものに興味がある。実験方法においても特徴のある研究と考えている。シリコン・アバランシェフォトダイオード(Si-APD)を電子検出器として時間分光法に利用することである。Si-APDによる電子検出は放射光利用研究においてそれほど行われていないかもしれないがエネルギー分解能を持つ時間検出器として実験に利用した。Si-APDはX線検出で示されているようにサブナノ秒の時間分解能や $10^8$  cpsに及ぶ高計数率特性を有している<sup>3)</sup>。それらを生かして励起された原子核から放出されるきわめて微弱な内部転換電子の観測に成功した。

ここでは、軌道電子と原子核との基礎過程について探るNEETの話放射光によって実現した新しい研究として紹介したい。またSi-APDによる内部転換電子線検出の方法も少し詳しく説明する。

\* 高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所 〒305-0801 茨城県つくば市大穂1-1  
TEL: 0298-79-6108 FAX: 0298-64-2801 E-mail: syunji.kishimoto@kek.jp

2. NEET と NEET 確率

X線や電子線により原子の内殻電子が電離されて空孔を生じると、外殻の電子が軌道に移り空孔を埋める。その際に、蛍光X線やオージェ電子が放出される。ある条件が満たされると原子核が励起される。これがNEETである。Figure 1にNEETの様子を模式的に示す。図では金197の場合を例にK殻に1つの空孔が生成しM<sub>1</sub>殻の電子が遷移するとき、原子核がある準位に励起される様子を示した。NEETは電子が軌道に移る際に放出する仮想光子を原子核が吸収して起こると考えられる。したがってNEETの条件は、外殻電子が内殻電子の空孔を埋める軌道電子遷移のエネルギーと原子核励起のためのエネルギーとの差(ΔE)が小さいこと、電子遷移と原子核の遷移において同じ多重極度を持つ電磁放射遷移が存在する(いいかえれば光子を介して角運動量とパリティが保存される)ことである。原子核の励起準位はMeVオーダーであることが多い。その場合はだいたい100 keV以下である軌道電子遷移エネルギーとの差が大きくNEETは考えられない。100 keV以下の低エネルギーに励起状態がある原子核もメスバウアー核種のようにそれほど少なくないが、NEET条件を満たすものは限られている。軌道電子の遷移で原子核が励起されることをはじめて指摘したのは森田である<sup>4)</sup>。森田は1973年にウラン235について理論的な検討をはじめて行った。ウラン235の第1励起準位はわずか76.8 eVにあって、当時はウラン濃縮に応用できないかと考えられた。以後、オスミウム189, 金197, ネプツニウム237などについて実験や計算が行われてきた。

NEET現象が起きる大きさは原子の内殻電子が1個電離されるとき原子核の励起確率、すなわちNEET確率(P<sub>N</sub>)として定義される。NEET確率の評価は原子の電子系と原子核の各々の状態変化を考えて行われる<sup>4-12)</sup>。NEETをファインマン・ダイアグラムで表すとFig. 2のようになる。始状態*i*として原子の内殻電離状態(たとえばK殻に1つの空孔が生成)をφ<sub>K</sub>, 原子核は基底状態ψ<sub>0</sub>にあること、終状態*f*として外殻(M殻)電子に空孔が移った状態φ<sub>M</sub>, 原子核が励起状態ψ<sub>1</sub>にあると考える。すると電子系と原子核を含めた状態として始状態|Ψ<sub>i</sub>⟩=|φ<sub>K</sub>ψ<sub>0</sub>⟩, 終状態|Ψ<sub>f</sub>⟩=|φ<sub>M</sub>ψ<sub>1</sub>⟩と表される。これらの状態に相互作用(軌道電子と原子核中の陽子との電磁相互作用)があると考えると時間に依存する全系の波動関数|Φ(t)⟩の変化を摂動論で考える。

$$|\Phi(t)\rangle = C_i(t)|\Psi_i\rangle + C_f(t)|\Psi_f\rangle, \tag{1}$$

振幅C<sub>i</sub>, C<sub>f</sub>は時間の関数で、(1)の波動関数を使って次のようなシュレジンガー方程式が得られる。

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Phi(t)\rangle = (H_0 + H') |\Phi(t)\rangle, \tag{2}$$

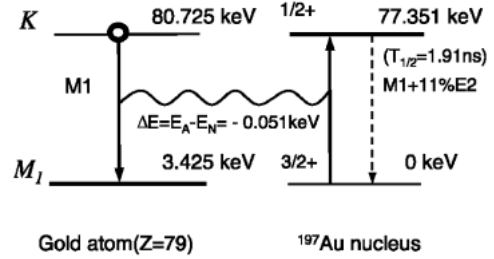


Figure 1. NEET process in <sup>197</sup>Au.

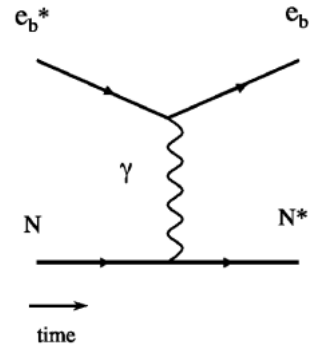


Figure 2. Feynman diagram for NEET. An electron in an excited subshell b\* deexcites to a lower-lying subshell b with excitation of the nucleus from the state N to N\*.

ここで、H<sub>0</sub>は摂動のないハミルトニアンで、H<sub>0</sub>|Ψ<sub>i,f</sub>⟩ = E<sub>i,f</sub>|Ψ<sub>i,f</sub>⟩, E<sub>i</sub>, E<sub>f</sub>は各々、始状態、終状態のエネルギーである。またH'は電子と原子核との相互作用を表す摂動ハミルトニアンである。このとき式(2)より

$$i\hbar \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} C_i \\ C_f \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_i - \frac{i}{2} \Gamma_i & H'_{if} \\ H'_{fi} & E_f - \frac{i}{2} \Gamma_f \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_i \\ C_f \end{pmatrix}. \tag{3}$$

の関係がある。ここでΓ<sub>i</sub>, Γ<sub>f</sub>は各々、始状態の幅、終状態の幅である。K殻電子空孔状態の幅をΓ<sub>K</sub>, M殻電子空孔状態の幅をΓ<sub>M</sub>, 原子核励起準位の幅をΓ<sub>N</sub>とすると、Γ<sub>i</sub> = Γ<sub>K</sub>, Γ<sub>f</sub> = Γ<sub>M</sub> + Γ<sub>N</sub>となる。またH'\_{if} = H'\_{fi} = ⟨Ψ<sub>i</sub>|H'|Ψ<sub>f</sub>⟩である。NEET確率P<sub>N</sub>は始状態(K殻空孔)から終状態(M殻空孔+原子核励起)を生成する確率なので

$$P_N = \frac{\Gamma_f}{\hbar} \int_0^\infty |C_f|^2 dt \tag{4}$$

で与えられる。|H'\_{fi}|<sup>2</sup>を含む形で解析的に解けるが<sup>11)</sup>, |H'\_{fi}|<sup>2</sup>の値を求める必要がある。この式を計算するのに様々な近似が行われ、それによって計算値に幅があったようである。例として金197について計算されたNEET確

Table 1 Calculations of the NEET probability ( $P_N$ ) for gold-197

Author	$P_N$	Year	Ref.
Pisk et al.	$3.5 \times 10^{-5}$	1989	6)
Ljubicic et al.	$2.2 \times 10^{-5}$	1991	7)
Tkalya	$1.3 \times 10^{-7}$	1992	8)
Ho et al.	$2.4 \times 10^{-7}$	1993	9)
Sumi et al.	$1.1 \times 10^{-7}$	2000	11)
Harston	$3.6 \times 10^{-8}$	2001	12)

率を **Table 1** に示す。1992年に Tkalya により NEET 確率を与える計算が量子電磁力学にもとづいて行われた<sup>8)</sup>。それ以前は $10^{-5}$  台であった値が以後 $10^{-7}$  台以下となる。Tkalya や Harston<sup>12)</sup>に従うと、 $P_N$ は

$$P_N = \left(1 + \frac{\Gamma_f}{\Gamma_i}\right) \frac{|H'_{fi}|^2}{(E_A - E_N)^2 + (\Gamma_f + \Gamma_i)^2/4} \quad (5)$$

と与えられる。ここで  $E_A (= E_K - E_M)$  は電子遷移によるエネルギー ( $E_K$  は  $K$  殻空孔状態のエネルギー、 $E_M$  は  $M$  殻空孔状態のエネルギー)、 $E_N$  は原子核励起エネルギーである。

### 3. NEET の観測

#### 3.1 オスミウム189

NEET 条件を満たす核種として70年代から計算や実験が行われたものにオスミウム189がある。オスミウム189は、69.537 keV 準位 (半減期: 1.6 ns) への遷移 ( $3/2^- \rightarrow 5/2^-$ ) と軌道電子の  $K-M_1$  遷移 ( $1S_{1/2}: 73.871 \text{ keV} \rightarrow 3S_{1/2}: 3.049 \text{ keV}$ ,  $E_A = 70.822 \text{ keV}$ ) 間で NEET が考えられる。 $10^{-3}$  ほどの分岐比ながら30.8 keV に半減期が6時間という中間準安定レベルがある。半減期がこれくらいあると測定しやすいので、このレベルから放出される  $\gamma$  線が核励起を確認する測定に利用されてきた<sup>13)</sup>。電子銃を使ったり放射性同位元素からの  $\gamma$  線照射や白色放射光の照射によって  $K$  殻電離させた後、NEET による微弱な  $\gamma$  線を検出する実験が試みられた。初期の実験では  $P_N = 1.7 \times 10^{-7}$  が報告された<sup>5)</sup>。理論計算では  $2.3 \times 10^{-7}$  との報告<sup>6)</sup> もあったがその後計算値はさらに小さくなり、 $1.1 \times 10^{-10}$  とされる<sup>8)</sup>。NEET を観測したとする実験値は計算値より2-3桁も大きくなってしまった。最近の白色放射光照射による実験でも NEET は観測できず上限値  $P_N < 9.0 \times 10^{-10}$  のみが報告されている<sup>10)</sup>。NEET 核種の中でオスミウム189についてもっとも多くの実験が行われてきたが、NEET が確かに観測されたといえない状況だった。

#### 3.2 金197-藤岡らの実験

金197 (天然存在比100%) も NEET が期待された原子核のひとつである。**Figure 1** のように金197の場合、 $K-$

$M_1$  レベル間の軌道電子遷移 ( $1S_{1/2}: 80.725 \text{ keV} \rightarrow 3S_{1/2}: 3.425 \text{ keV}$ ,  $E_A = 77.30 \text{ keV}$ ) と原子核が基底状態 ( $3/2+$ ) から第1励起準位 ( $1/2+$ ) へと遷移するエネルギー ( $E_N = 77.351 \text{ keV}$ ) との差  $\Delta E$  が51 eV と小さい。 $M_1$  (磁気双極子) 放射が共通の電磁放射遷移である。式(5)によれば NEET 確率はエネルギー差  $\Delta E$  の2乗が分母にあるので  $\Delta E$  が1.3 keV のオスミウム189と比べて NEET 確率は比較的大きいはずである。ただし、原子核励起準位の半減期は1.9 ns と短いし、オスミウム189のように半減期の長い中間レベルもない。普通の  $\gamma$  線検出器を使う方法では励起後の放射線強度がすぐに減衰してしまうので核励起現象の検出は困難であった。金の NEET についてこれまで報告された唯一の実験は藤岡らの行ったものである<sup>14)</sup>。藤岡らは100 keV に加速された電子をパルス化して金箔に照射し  $K$  殻電離によって起こる NEET を電子時間分光法で観測しようとした。NEET によって励起された核からは  $\gamma$  線だけでなく内部転換電子が放出されて基底状態にもどる。金の77.351 keV 励起準位の場合は内部転換電子がガンマ線より4倍以上放出されやすい。パルス化電子によって電離されて放出される光電子やオージェ電子は $10^{-15}$  s より短い時間で発生するので1.9 ns の半減期に従って放出される内部転換電子と時間分光法によって区別することができる。エネルギー選別する電子分光器に即発電子線を排除するための時間ゲートを加えた装置によって  $L$  内部転換電子の一部を捉え NEET を観測したと1984年に報告された。NEET 確率は  $P_N = (2.2 \pm 1.8) \times 10^{-4}$  と見積もられた。確かに詳細な解析が行われているが、原子核の脱励起による放射線強度の時間変化はそれほど明らかではない。実験で求められた NEET 確率の値は、当初から計算値と大きく異なり、1995年には同じグループがその実験データを見直して  $P_N = (5.1 \pm 3.6) \times 10^{-5}$  とより小さな値に修正している<sup>15)</sup>。しかし **Table 1** のように90年代に報告された計算値とは見直しのあとでもなお2桁以上の開きがある。

NEET を観測するとき、内殻電離をさせることによって蛍光 X 線やオージェ電子が発生する。その中でわずかな確率で生ずる原子核励起をいかにして検出するか、そして電離するために照射する電子や光子による NEET 以外の原子核励起 (クーロン核励起や核共鳴) と NEET とをどうやって区別するかが問題である。電離に対する原子核励起の大きさも正確に見積もる必要がある。このような要求に十分こたえる実験は今までなかったということになる。

### 4. 我々の実験

#### 4.1 APD 電子検出器による時間分光法

我々は新しい方法で金の NEET 観測を試みた。時間分光を行うことは藤岡らの実験と共通であるが、いくつかの特長がある。1つは、単色化した放射光 X 線を使って  $K$  殻電離による原子核の変化を選択的に調べようとしたこと

である。入射 X 線エネルギーを  $K$  吸収端前後に設定すれば、それらの状態の差が取り出せると考えた。試料近くに APD を置いて内部転換電子（主に  $L$  内部転換電子）を捕らえたことも異なる。もうひとつ、核共鳴エネルギー（77.351 keV）で金197原子核の励起現象を確認した後、 $K$  吸収端前後で時間スペクトルの測定を行ったことである。 $K$  殻電離による核励起が観測されたとき、入射光子数を考えて核共鳴でのイベントと比較することでよく知られた核共鳴の確率（断面積）から NEET 確率を評価するためである。

金197の実験は70 keV 以上のエネルギー領域で $10^{10}$ 光子/s程度のビーム強度を必要とする。またビーム強度が長時間にわたって安定であることも実験の精度をあげるために要求される。SPring-8の利用によって初めてこれらの条件を実現できた。ビームラインBL09XUにて金197のNEETを観測するための実験を行なった。Figure 3はそのときの実験装置の配置を示す。77-81 keVという高いエネルギーを得るために、シリコン(111)二結晶モノクロメータからの1次光はアルミニウム（厚さ26 mm）で $10^{-5}$ 程度に減衰させ、(333)反射を利用した。3次よりさらに次数の高い高次光の割合は数%以下と推定した。小型の真空チャンバー内に試料として厚さ $3\mu\text{m}$ の金箔がビームに対して30度傾けて保持され、金箔表面からの放射線はできる限り近づけたシリコン APD によって検出される。APD 素子は浜松ホトニクスが製作したものである（SPL1988：有感部： $\phi 3\text{ mm}$ ，厚さ $30\mu\text{m}$ ）。入射 X 線ビームの強度は NEET 確率を求める上で重要である。試料の上流および下流（真空チャンバー内）に設置された透過型シリコン・フォトダイオード（厚さ $500\mu\text{m}$ ）で X 線強度が常時モニターできるようにした。このエネルギー領域ではシリコン $500\mu\text{m}$ の吸収は2%程度である。APD からの信号は高速増幅器（Philips Scientific 社製 model 6954，周波数帯域：100 k-1.8 GHz，ゲイン：100）により増幅され、その信号はコンスタントフラクシオン・ディスクリミネータ（CFD，ORTEC935）によってタイミング信号に変えられる。その際、CFD の波高弁別レベル以下の低い波高信号を発生する低エネルギーの放射線や回路の電気雑音は時間スペクトルから除かれる。116バンチ・

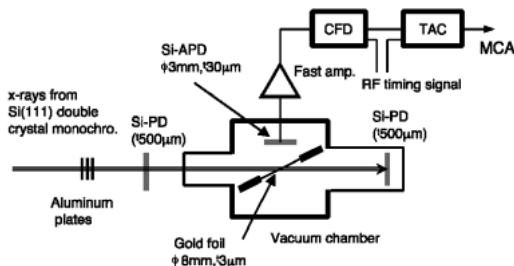


Figure 3. Experimental setup for observation of NEET in  $^{197}\text{Au}$ . The experiment was carried out at BL09XU of the SPring-8.

モード運転の下で実験が行なわれたので、電子バンチは42 nsの等間隔でリングを周回し、X線パルスもそのタイミングで入射する。検出器からの信号のタイミングは、加速器のRF周波数の信号をバンチモードにあわせて分周した時間基準信号と時間-波高変換器（TAC）によって比較され時間スペクトルが得られる。電子遷移による即発放射線ピークを使って調べたAPDの時間分解能は0.28 ns（FWHM）だった。このときX線ビームの入射スリットを十分に絞ったが、即発放射線はすべての放射線がほぼ同じタイミングで検出されるのでX線ビームをできる限り強くするNEET観測時には、増幅器出力パルスは積み重なって単一放射線パルスの波高より10倍も大きなパルスとなる。このようなパルスはその後に続く原子核脱励起に伴う微弱な時間遅れ成分検出の妨げとなる。そのため即発パルスの前後あわせて10 nsほどの時間領域はタイミング信号としてTACに入力されないように回路で処理した。理想的には原子核が励起された後に半減期1.9 nsで放出される内部転換電子の信号のみが時間スペクトル上に現れる。

実験手順としては、まず77.351 keVの核共鳴の観測を行った。核共鳴エネルギー77.351 keV周辺でモノクロメータを走査し核励起事象を計数することで核共鳴ピークを検出して正確なエネルギー値を決めた。Figure 4に結果を示す。このときモノクロメータ走査時の1ステップは5 eV程度だった。分布形状の評価を正確に行うには少し荒かったかもしれないが、核共鳴ピークから求めたX線ビームのエネルギー分布形状モデルとして三角形を仮定した。入射X線ビームのエネルギー分解能（半値幅）としては19 eVを得た。時間スペクトルは核共鳴が起きる77.351 keVと100 eVほど高いエネルギーの77.455 keVで測定した。後者の測定は核共鳴が起こらないエネルギーで時間スペクトルのバックグラウンドを測定するためである。またNEETについては $K$ 吸収端付近でフォトダイオードとAPDの即発放射線のカウントによるXAFS測定を行い、その結果から吸収端を超えて最大強度となった80.989 keVでNEET観測を狙った測定を行い、吸収端手

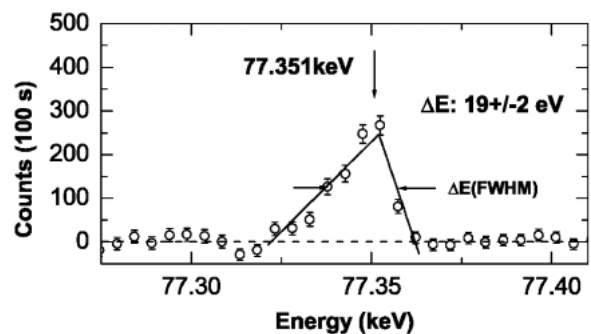


Figure 4. Nuclear resonance peak measured by the APD as a function of the monochromator energy. The background-subtracted data are shown here. The peak profile was approximated to a triangle with 19 eV (FWHM).

前の80.415 keVでNEETとの差をみるための参照用の時間スペクトル(バックグラウンドとみなせる)測定を行った。

どのような放射線をどのようにAPDが検出するかもう少し説明する。金の原子核脱励起の際に放出される内部転換電子は $L_1$ 内部転換電子が主である。そのエネルギーは原子核励起準位のエネルギーから放出される原子内殻電子の束縛エネルギーを差し引いたものなので最大63 keV(=77.35-14.35)となる。63 keV電子の飛程はシリコンでは約24  $\mu\text{m}$ なので厚さ30  $\mu\text{m}$ のAPDによって全エネルギー吸収による信号が得られるはずである。入射X線エネルギーを77.35 keVとして、 $L$ 内部転換電子検出の様子を $L$ 光電子によって模擬してスペクトルを観測した。

**Figure 5(a)**はAPDによって得られた77.35 keVでのエネルギー・スペクトルを示す。測定は放射光研究施設(PF)のBL-14Aで行った。APDの作動条件は、SPring-8で時間スペクトルを測定したときと同じである。ビーム強度毎秒約 $10^6$ 光子でAPDの信号を電荷有感型増幅器によって処理した。計数率は1 kcps程度であった。スペクトルには、主に光電子( $L$ および $M, N$ )が現れる。検出される光電子ピークは、金表面から放出されるまでに失うエネルギーの違いにより低エネルギー側に広がる形をとる。APD表面の不感層はできる限り薄く作ってあるので、

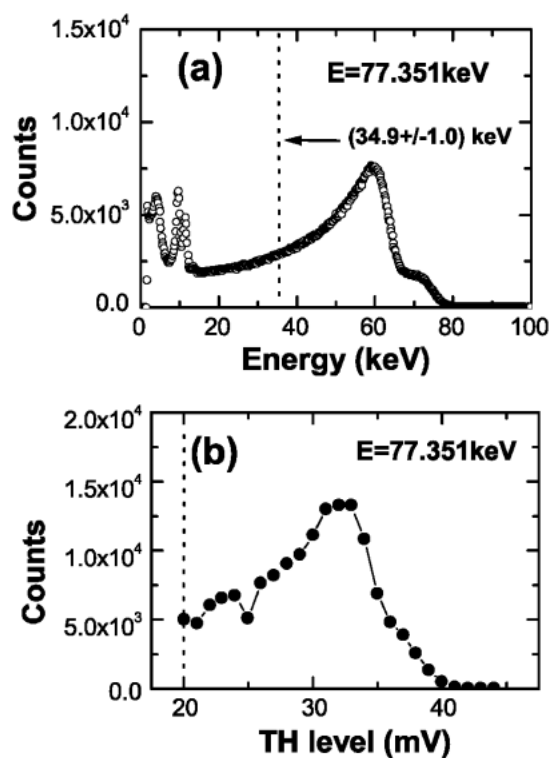


Figure 5. Energy spectra of radiations emitted from a gold target by an APD: measured (a) with a charge-sensitive preamplifier and (b) with a fast amplifier. Incident x-ray energy was 77.351 keV in each figure.

APDへの入射によるエネルギー損失の影響—高エネルギー側のピーク広がり—is小さい。時間スペクトルを測定するときは高速増幅器のナノ秒幅パルス信号を使うので、それがどのような波高分布を持つのかも調べた。CFDの波高弁別レベルを一定の大きさずつ変えながら、あるレベルより波高の大きなパルスの計数値の変化をプロットすると、ナノ秒パルスの波高分布を求めることができる。この方法により測定したのが**Fig. 5(b)**である。図の横軸はCFDの波高弁別レベル(mV単位)で示してある。入射エネルギーが77.351 keVのときと20 keV低い57.351 keVのときの $L$ 光電子ピーク位置からエネルギー・スケールを決めた。この結果から時間スペクトル測定の際のCFDレベル設定(20 mV)では35 keV以上のエネルギーをもつ放射線を検出することがわかった。APD表面での電子の後方散乱を考慮してもAPDに入射した $L$ 内部転換電子線のうちの60%ほどを検出できるはずである。

$K$ 吸収端を超えると $K$ 殻電離によって蛍光X線やオージェ電子が即発パルスとなる。そのため吸収端をはさむ測定では即発パルスの強度が大きく変化すると時間スペクトルの測定に悪い影響を及ぼす。積み重なって波高が大きくなった即発放射線パルスのせいで、単一光子の信号が即発パルスのすそに埋もれてしまったり、時間スペクトルでの不感領域が長くなってしまおうのである。金の $K$ 殻蛍光収率は0.96と高いので、吸収端を越えたときに最も増加する即発放射線は $KX$ 線と考えられる。**Figure 6**の●は80.989 keVのX線を入射したときのエネルギー・スペクトルである。80.415 keVのスペクトル(○)と比べられるように入射X線強度で規格化してある。オージェ電子( $KLL$ など)が50 keV周辺で検出されているのがわかる。 $LX$ 線も増加する。しかし $KX$ 線( $K\alpha_1$ : 68.80 keV,  $K\alpha_2$ : 66.99 keV,  $K\beta_1$ : 77.98 keVなど)ピークはスペクトル上に見られない。これは我々が用いたシリコンAPDの $KX$ 線に対する固有検出効率が小さい(0.2%)ためである。金 $KX$ 線の影響が小さいため吸収端前後のエネルギーで即発パルスの波高変化が小さくなる。NEETの時間スペ

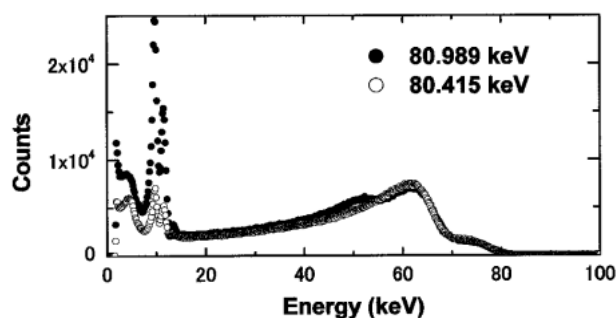


Figure 6. Energy spectra of radiations emitted from a gold target, measured by an APD. Incident x-ray energy was 80.989 keV for the closed circles and was 80.415 keV for the open circles. A charge-sensitive preamplifier was used.

クトルを測定するとき吸収端前後で極端な条件の変化なく計測することができた。 $L$  内部転換電子の大部分は検出しつつ、その測定のためとなる  $KX$  線はほとんど透過させるという実験にとって有利な計測が有感層の比較的薄いシリコン APD を検出器とすることで可能になったのである。

#### 4.2 NEET による時間スペクトル観測と NEET 確率

Figure 7, 8 に、SPring-8 で測定された核共鳴の時間スペクトルと NEET 現象の時間スペクトルを示す。各図で (a) のスペクトル測定の際の入射 X 線エネルギーは、核共鳴は 77.351 keV, NEET は  $K$  吸収端 (80.725 keV) を十分に超えた 80.989 keV である。時間  $t=0$  ns が、リングを 42 ns 間隔で周回する電子バンチ (主バンチ) による即発放射線ピーク位置である。(b) のスペクトルは、4.1 で述べたバックグラウンドの時間スペクトルである。核共鳴の場合は 77.455 keV で、NEET の場合は 80.415 keV で測定した。(a), (b) のスペクトルに 1.97 ns 間隔の小さなピークが見えている。これは、主バンチ間にサブ電子バンチがわずかな強度で存在したため、サブバンチからの X 線による即発放射線ピークである。同じ数の入射 X 線に対するスペクトルとして評価できるように考慮して (a) から (b) をさし引くと核の脱励起成分だけがのこるはずである。それが (c) スペクトルである。信号強度の時間変化を見ると 5 ns まで主バンチ即発放射線ピークの影響が残っていることがわかる。また、サブバンチ・ピークの影響も取りきれていない。それでも、5–15 ns 間のデータを使って最小 2 乗法によるフィッティングから得られた崩壊曲線の寿命は、金 197 の励起準位のもつ寿命 (2.76 ns) に誤差の範囲内でよく一致した。 $K$  殻電離による核励起現象が明瞭に捉えられたといえる。

この同じ時間領域のイベント数を核共鳴の場合と NEET の場合とで比較することで NEET 確率  $P_N$  を求めてみた。 $\sigma_N, \sigma_K$  を各々、NEET 断面積、 $K$  殻光電離断面積 ( $= (2.18 \pm 0.06) \times 10^{-21} \text{ cm}^2$ ) とすると、NEET 確率は、 $P_N = \sigma_N / \sigma_K$  で与えられる。実験配置を変えず同じ条件で測定する場合は、入射ビーム強度に対する観測された核励起事象の比が NEET と核共鳴との断面積の比に等しいという関係がある。NEET と核共鳴について各々、入射ビーム強度 (計測時間内の積分光子数) を  $I_N, I_R$ , 5–15 ns 領域で観測された核励起事象を  $N_N, N_R$  とすると、

$$\frac{\sigma_N}{\sigma_R} = \frac{(N_N/I_N)}{(N_R/I_R)} \quad (6)$$

という関係が成り立つ。ここで  $\sigma_R$  は入射する X 線ビーム強度のエネルギー分布を考慮した実効的な核共鳴断面積である。強度  $I_R$  の入射 X 線ビームは eV オーダーの幅をもつ強度分布をとるのに対して核共鳴吸収が起こるのはそのうちの 100 neV オーダーの狭い部分だけである。この点を

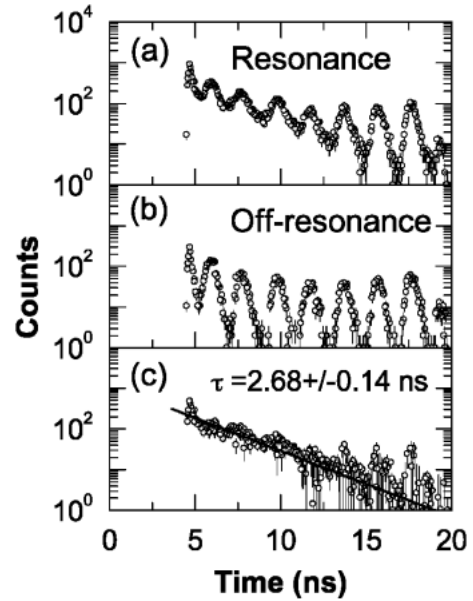


Figure 7. Time spectra (a) for nuclear resonance measured at 77.351 keV, and (b) for off-resonance measured at 77.455 keV. A spectrum (c) was obtained by subtracting (b) from (a). Photon numbers of the incident x-rays were considered.

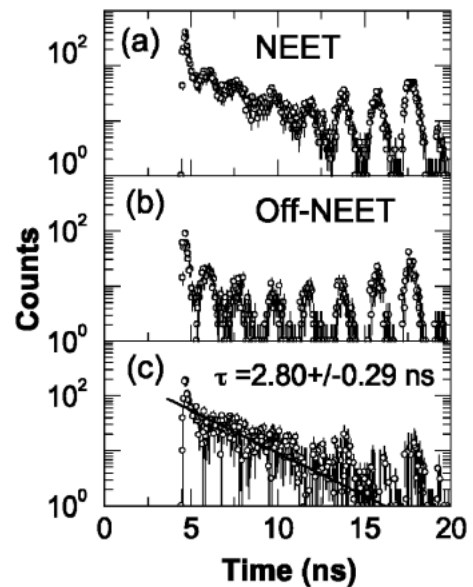


Figure 8. Time spectra (a) for NEET measured at 80.989 keV, and (b) for off-NEET measured at 80.415 keV. Spectrum (c) was obtained by subtracting (b) from (a). Photon numbers of the incident x-rays were considered.

考えて  $\sigma_R$  は次のように定義される。

$$\sigma_R = (\Gamma/W) f_p \sigma_0 \quad (7)$$

ここで  $\Gamma$  は核共鳴吸収 (ローレンツ分布をとる) の半幅,  $W$  は入射 X 線ビームのエネルギー幅 (半値幅),  $f_p$

は入射 X 線強度のエネルギー分布に依存する係数で、X 線ビームの強度分布関数と同じ大きさの半値幅とピーク値をもつローレンツ分布ピークとの面積比で与えられる。 $\sigma_0$  は金 77.351 keV 準位についての核共鳴断面積 ( $= (3.86 \pm 0.05) \times 10^{-21} \text{ cm}^2$ )<sup>17)</sup> である。ローレンツ分布に従う核共鳴吸収の  $\Gamma$  は 77.351 keV 準位の自然幅、 $(2.38 \pm 0.02) \times 10^{-7} \text{ eV}$  で与えられる<sup>18)</sup>。核共鳴ピークから求めた X 線ビームのエネルギー分布形状モデルとして三角形を仮定し半値幅  $W$  は 19 eV であった。入射 X 線ピーク形状を三角形とみなしたときは式 (7) で  $f_p = \pi/2$  となる。すなわち半値幅とピーク値が同じときローレンツ分布のほうが 1.57 倍だけピーク面積が大となる。フォトダイオードの電流値と X 線強度との関係は PF での実験により求めて換算した。その結果、NEET および核共鳴についての計測時間 16091 s, 7466 s に対して  $I_N = (10.54 \pm 0.10) \times 10^{13}$ ,  $I_R = (5.04 \pm 0.06) \times 10^{13}$  であった。また  $N_N = 2994 \pm 101$ ,  $N_R = 9878 \pm 169$  である。リング電流 50 mA 程度するとき、ビーム強度は毎秒約  $1 \times 10^{10}$  光子、観測された核共鳴および NEET について時間遅れ成分は、計数率では 2 cps, 0.3 cps 程度であった。NEET 確率として  $P_N = (5.0 \pm 0.6) \times 10^{-8}$  という値を得た<sup>1)</sup>。この値は Tkalya の計算値  $1.3 \times 10^{-7}$ <sup>8)</sup> と比べると約 3 分の 1 であるが、桁の違いはない。

我々の実験結果が発表されたあと、金 197 の NEET 確率の計算値として  $P_N = 3.57 \times 10^{-8}$  という値が Harston によって報告された<sup>12)</sup>。その論文の中で以前 Tkalya がまとめた NEET 確率を与える式では、 $|H'_{fi}|^2$  の計算で放射の多重極度 (M1 放射の場合  $L=1$ ) による項  $2L+1 (=3)$  が余分に乘じられていることが指摘されている。このことは Tkalya 自身も認めている<sup>19)</sup>。我々の実験による値がなぜ Tkalya の計算値と比べて 3 倍ほど大きかったかの第 1 の理由であろう。さらに我々自身の実験結果を振り返って言えば、入射 X 線ビームの強度分布がどんな形状であるかの再検討が必要と思われる。もし入射ビームの形状がガウス分布であれば、 $f_p = 1.48 (= (\pi \cdot \ln 2)^{1/2})$  となる。またローレンツ分布であれば  $f_p = 1$  である。半値幅が同じ 19 eV の場合、今回の実験データを使うと  $P_N$  はおおよそ  $4.76 \times 10^{-8}$ ,  $3.22 \times 10^{-8}$  となる。当然、半値幅の見直しも必要になるが傾向としては新しい計算値に近づく。入射光子数換算の正確さなど検討すべき余地は他にもあるかもしれないが、観測できた範囲では今回の実験により NEET 確率を間違いなく求めることができたと考えている。

## 5. まとめと今後の課題

APD 電子検出器と時間分光法を組み合わせた方法によって金 197 の NEET 観測に成功した。NEET 確率も求めることができた。単色化した放射光 X 線を使うことで K 吸収端前後のエネルギーを選択し原子核を励起する NEET 以外の可能性を取り除けたことはこれまでの実験

と異なり結果の信頼性を高めている。SPring-8 が順調に運転され 70 keV を超えるエネルギー領域で強力な単色 X 線ビームが使えるようになったからこそこの実験といえる。放射光を使って研究が進められてきた核共鳴散乱の手法 (少数バンチモード運転も含め) も利用させていただいた。NEET を観測したかどうか誰からも認められる結果がないなかで、放射光を使うことにより初めて確からしい NEET の実験事実を提出できたのではないかと考えている。限られた研究領域かも知れないが新しい知見をもたらす放射光利用の力が示されたのではないかと思う。NEET は“原子核と原子殻”との相互作用を示すので興味が持たれている。ただここで説明したようにその確率は小さい。当初、NEET は  $\gamma$  線レーザーへの応用も議論されたが、NEET 確率が小さいことから現実的でないと言われていた。ただし、もし原子の荷電状態を変えることができれば NEET 確率を大きくすることができるかもしれない。NEET の逆過程は励起核の寿命を短くすることにつながる。超新星のように原子が多重に電離されるような環境では NEET やその逆過程なども重い元素生成などに予想外に深く関わっているかもしれない。研究の進展が今後も期待される分野であろう。

我々としては、金 197 について NEET 確率をさらに正確に評価したい。今回報告した実験では K 吸収端を超えた 1 点でしか NEET 確率を測定していないが、入射 X 線のエネルギーに対する NEET 確率の変化、つまり原子で K 殻光電離が起こったときに NEET がどのように現れるか、NEET 確率の変化の様子に興味がある。NEET 確率の新しい計算値も提案されたので入射 X 線ビームのエネルギー分解能を上げること、時間スペクトルをより長い時間をかけて測定するなど次の機会には、精密な議論ができるようにしたい。

金 197 と同じような電子遷移による NEET 核種としてオスミウム 189 やイリジウム 193 がある。計算も行われているので信頼できる実験値を求めて比較できるようにしたい。オスミウム 189 の NEET 確率が  $1.13 \times 10^{-10}$  と計算されているように<sup>11)</sup>、金 197 と比べて 1-2 桁小さな現象を見つけなければならないだろう。これらの核種について NEET 測定を行うためには、検出器をさらに改良して検出効率の向上させることや強力な即発放射線下でも長時間安定な測定が行えるような工夫が必要である。ここでは詳しく述べなかったが APD 素子そのものにもまだ改良すべきことがある。ビームライン側の性能向上にも期待したい。

最後に感想を一言述べさせていただきたい。SPring-8 での実験は比較的順調に進んだ。それは、PF で APD 素子や PD の特性、動作条件などを事前に調べていたためである。実験後も SPring-8 での限られたビームタイムでは調べられなかったことを PF のビームラインで慎重に時間をとってチェックして理解が進むということがあった。検出器の開発もその利用研究においても、SPring-8 や PF,

PF-AR など各放射光施設とそのビームラインの特徴を生かして垣根なく研究が進められる環境を大切にしていきたいと思う。

#### 謝辞

金197のNEET観測はJASRIの依田芳卓氏, 京都大学原子炉実験所の瀬戸誠氏, 小林康浩氏, 北尾真司氏, 春木理恵氏, 東京大学生産研の岡野達雄氏, 福谷克之氏, 河内泰三氏との共同研究によるものである。SPring-8利用研究1999A026-CSD-np, およびPFの共同利用実験課題99G016のもとに行われた。本研究の一部は文部省科学研究費補助金によって行われた。APDによる電子線検出について早い段階から応援していただいた菊田惺志先生(JASRI), NEETに関する研究の状況などを教えていただいた鍛冶東海先生, 今後のNEET研究について励ましていただいた森田正人先生(城西国際大学)に感謝いたします。

#### 参考文献

- 1) S. Kishimoto, Y. Yoda, M. Seto, Y. Kobayashi, S. Kitao, R. Haruki, T. Kawauchi, K. Fukutani and T. Okano: Phys. Rev. Lett. **83**, 1831 (2000).
- 2) Physical Review Focus (on Web), **Vol. 6**, story8, 21 Aug. 2000; Science NOW (on Web), 6 September 2000; Science News, **Vol. 158/13**, p. 207; Physics Today, **Vol. 53/10**, p. 9; and New Scientist, **Vol. 1672256**, p. 15.
- 3) S. Kishimoto: J. Synchrotron Rad. **5**, 883 (1998).
- 4) M. Morita: Prog. Theor. Phys. **49**, 1574 (1973).
- 5) K. Otozai, R. Arakawa and T. Saito: Nucl. Phys. **A297**, 97 (1978).
- 6) K. Pisk, Z. Kaliman and B. A. Logan: Nucl. Phys. **A504**, 103 (1989).
- 7) A. Ljubicic, D. Kekez and B. A. Logan: Phys. Lett. **B272**, 1 (1991).
- 8) E. V. Tkalya: Nucl. Phys. **A539**, 209 (1992).
- 9) Y. Ho, Z. Yuan, B. Zhang and Z. Pan: Phys. Rev. **C48**, 2277 (1993).
- 10) I. Armad, R. W. Dunford, H. Esbensen, D. S. Gemmell, E. P. Kanter, U. Rutt and S. H. Southworth: Phys. Rev. **C61**, 051304 (2000).
- 11) Y. Sumi and S. Tanaka: Jpn. J. Appl. Phys. **39**, 1894 (2000).
- 12) M. R. Harston: Nucl. Phys. **A690**, 447 (2001).
- 13) K. Otozai, R. Arakawa and M. Morita: Prog. Theor. Phys. **50**, 1771 (1973).
- 14) H. Fujioka, K. Ura, A. Shinohara, T. Saito and K. Otozai, Z. Phys. **A315**, 121 (1984).
- 15) A. Shinohara, T. Saito, K. Otozai, H. Fujioka and K. Ura: Bull. Chem. Soc. Jpn. **68**, 566 (1995).
- 16) E. Storm and H. I. Israel: Nuclear Data Tables **A 7**, 565 (1970).
- 17) J. G. Stevens and V. E. Stevens: *Mössbauer Effect Data Index, 1969-1973* (Adam Hilger, London) p. 36.
- 18) D. J. Erickson, L. D. Roberts, J. W. Burton and J. O. Thomson: Phys. Rev. **B 3**, 2180 (1971).
- 19) E. V. Tkalya: private communication.