

研究論文

007

 ^{199}Tl の崩壊について

堀部 治, 水本良彦, 河村光博*

On the Decay of ^{199}Tl

O. HORIBE, Y. MIZUMOTO and M. KAWAMURA*

(Received September 29, 1979)

Low energy transition gamma rays of ^{199}Hg following ^{199}Tl decay have been especially investigated. Some of new gamma rays are assigned as probable ones, from the energy sum rule for cascade and being doublets with the existent lines taken to be single so far, respectively, and then, a new level is tentatively proposed to accomodate these gamma rays. Also, E2/M1 mixing ratios of the 247- and 284-keV transitions are obtained as $\delta = +0.27 \pm 0.02$ and -0.24 ± 0.04 , respectively from gamma-gamma angular correlation measurements.

I. 序 論

Hg 核の研究は magic number 82の近くの核であることから理論との対比において興味ある研究としてこれまで多くの系統的な研究がなされて来た。 ^{199}Tl の decay に関する研究の主なものは, Bäckström et al. (1958),¹⁾ Nall et al. (1960)²⁾, Jung et al. (1960)³⁾ による ^{199}Tl の electron spectrum の研究, Bauer et al. (1961)⁴⁾ の ^{199}Tl と ^{199}Au に対する NaI (Tl) 検出器による decay gamma rays の singles と coincidence spectrum, および角度相関の研究, Kalish et al. (1970)⁵⁾ の ^{199}Hg の coulomb excitation による level scheme の研究等があり最近においては初めて Ge (Li) を用いた Mathews et al. (1975)⁶⁾ の singles spectrum, 4096×4096 mega channel による coincidence spectrum の測定があり, これらにより更に完全な decay scheme が報告されている。

本研究は LEPS 用 Ge, 25 cm³ と 60 cm³ Ge(Li) により ^{199}Tl の decay γ 線のエネルギーと相対強度ならびに NaI (Tl)–Ge (Li) による角度相関の測定を行い, これまでに得られた解析結果の一部について報告する。これまでの他の研究者による γ 線の測定では 150 keV 以下の低エネルギー γ 線の直接の測定

が見あたらない。それ故 LEPS 用 Ge による低エネルギー領域の γ singles spectrum の結果について特に報告し, これから見出された新しい若干の γ 線 (decay は直接求めているが) とこれにともなう新しい level の可能性について報告する。角度相関の測定からは 247- と 284-keV transition の E2/M1 mixing ratio が求められている。

II. 実 験

(1) 線源と測定装置

^{199}Tl 線源は Au foil (99.9%, 0.012mm) を京都大学化学研究所のサイクロトロンを用い 29 MeV の α 線で6時間照射し, これを小片に分割しそのまま化学処理又は熱処理を施すことなく用いられた。角度相関の測定に対しこの様な線源は extra-nuclear perturbation による attenuation が無視されることが Bauer et al. (1962)⁴⁾ により報告されている。singles spectrum の測定は LEPS 用 Ge で線源から 1 cm の位置で1回, 25 cm³ Ge (Li) で 5 cm の位置で6回, 60 cm³ Ge (Li) で 10 cm の位置で1回測定された。各検出器の測定形状における光電ピークの効率は LMRI* の標準線源 (2.5%), ^{241}Am , ^{57}Co , ^{60}Co ,

* Laboratoire de Metrologie de Rayonnements Ionisants

* 京都府立大学応用物理研究室

^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{22}Na , ^{113}Sn , ^{88}Y , ^{139}Ce を用いて求められた。但し $25\text{ cm}^3\text{ Ge(Li)}$ 検出器は以前に求めた値を用いた。エネルギー分解能 (FWHM) は LEPS で 0.8 keV (122 keV), 25 cm^3 , $60\text{ cm}^3\text{ Ge(Li)}$ では夫々 2 keV と 9 keV (1332 keV) である。角度相関の測定は gate 用に $3''\times 3''\text{ NaI(Tl)}$ (可動) と $25\text{ cm}^3\text{ Ge(Li)}$ (固定) で線源との距離は夫々 12 cm と 5 cm で 90° , 135° , 180° の位置にて、これまでに用いられた測定の標準形状を用いた。同時回路の timing は cross-over (NaI(Tl)) と time pick-off (Ge(Li)) を用い普通の fast-slow 同時測定方法で分解能 $2\tau = 50\text{ nsec}$ とした。波高分布の測定には 1024 ch PHA (Hewlett Packard) を用いた。

(2) 測定結果

(2-1) Singles spectrum

LEPS 用 Ge による ^{199}Tl の decay γ の singles spectrum を Fig. 1 に示す。約 9 keV から 500 keV までのエネルギー範囲の測定で 1 ch 約 0.5 keV となっている。若干の peak については single peak と見られていたものも接近せる doublet を形成していることが分る。照射終了約30分後の5分間の測定で、弱い peak の統計は劣っている。

$25\text{ cm}^3\text{ Ge(Li)}$ による singles の測定は6回で測定は照射後3~30時間にわたっている。その内代表的 spectrum を Fig. 2 に示す。測定エネルギー範囲は一般に約 100 keV から 1800 keV までを選んだが内2回は 20 keV から 500 keV の範囲を拡大して測定した。この場合 1 ch 約 0.6 keV に相当するが LEPS で見られた doublet の分離は一般に明らかでない。

$60\text{ cm}^3\text{ Ge(Li)}$ による spectrum は補助として求められた。

(2-2) gamma-gamma 角度相関

NaI(Tl) による 208 keV γ peak を SCA の窓巾約 29 keV で選びこれを gate にして $25\text{ cm}^3\text{ Ge(Li)}$ にて coincidence spectrum を夫々 90° , 135° , 180° の位置にて測定した。chance coincidence は測定終了後行なわれた。 208 keV γ を gate とする測定は2回実施され Fig. 3 にこれら spectrum の一例を示す。尚、同様な方法にて 247 keV γ を gate とする測定も行なわれた。

III. 結果と考察

(1) 結果

(1-1) γ energy と相対強度

LEPS 用 Ge の光電ピーク効率は ^{241}Am , ^{57}Co , ^{139}Ce , ^{113}Sn , ^{22}Na の上記標準線源を用いて求められ、用いた値の不確かさは5%以下と見積もられた。尚、これによる spectrum の peak energy の決定は小さな peak, doublet peak に対しては $\pm 0.3\text{ keV}$ で一般に大きな peak に対して $\pm 0.10\text{ keV}$ と見積もられた。Fig. 1 に示されている如く 98 ch 付近の傾斜の裾に小さな複合 peak が見られる。これが Jung et al. (1960)³⁾ の研究から得られている 51.93 keV γ に相当するものとして分解すると 51.96 keV と 51.23 keV の γ peak が得られ、この新たに得られた 51.23 keV peak は後述の如くエネルギー値からこれは新しい γ 線の可能性を与える。 371 ch に見られる peak は 195.07 keV に相当し 196.1 keV peak と doublet をなしており、他の spectrum では単一ピークと見られるものである。 205 keV に相当する peak は確認が困難であるが 204.1 keV に相当する所には明らかに peak が見られる。 245.1 keV γ peak は 247.1 keV peak の裾の上に存在し確定的な分解は困難である。 403 keV peak は 403.2 keV と 403.7 keV peak の doublet と見られ 403.2 keV が既存の γ 線に相当するものと見なした。

各 γ 線の解析結果は Table 1 に示す通りである。括弧付きの値は peak の形成が不充分乃至 back ground の評価の困難など不確定要因のあるものである。表には同様に 25 cm^3 , $60\text{ cm}^3\text{ Ge(Li)}$ による spectrum から得られた相対強度も示す。

(1-2) 404 keV の新しい準位の可能性

新しく見出された 403.7 keV , 196.1 keV γ から 404 keV の level を仮定すれば 403.7 keV γ は $404 \rightarrow 0\text{ keV}$, 196.1 keV γ は $404 \rightarrow 208.2\text{ keV}$ の transition γ として夫々対応される 更に上記(1-1)で述べた 51.96 keV と接近せる 51.23 keV の peak は $455.46 \rightarrow 404\text{ keV}$ transition γ と対応させることが可能で又 Fig. 1 で顕著な 9.63 keV peak はエネルギー的に $413.85 \rightarrow 404\text{ keV}$ transition γ に対応する。しかし、これは余りにも相対強度が大きく過ぎ、 Hg La_2 の 9.896 keV X線との複合 peak が予想される。

(1-3) gamma-gamma の角度相関

Kalish et al. (1970)⁵⁾ は ^{199}Hg の coulomb excitation による 208 keV の transition γ の角度相関からこの transition に対し E2/M1 の mixing ratio $\delta = -0.65 \pm 0.25$ を得ている。しかし余りに error が大き過ぎるきらいがある。他方、Bäckström et al.¹⁾ や Nall et al.²⁾ は conversion electron の実験から

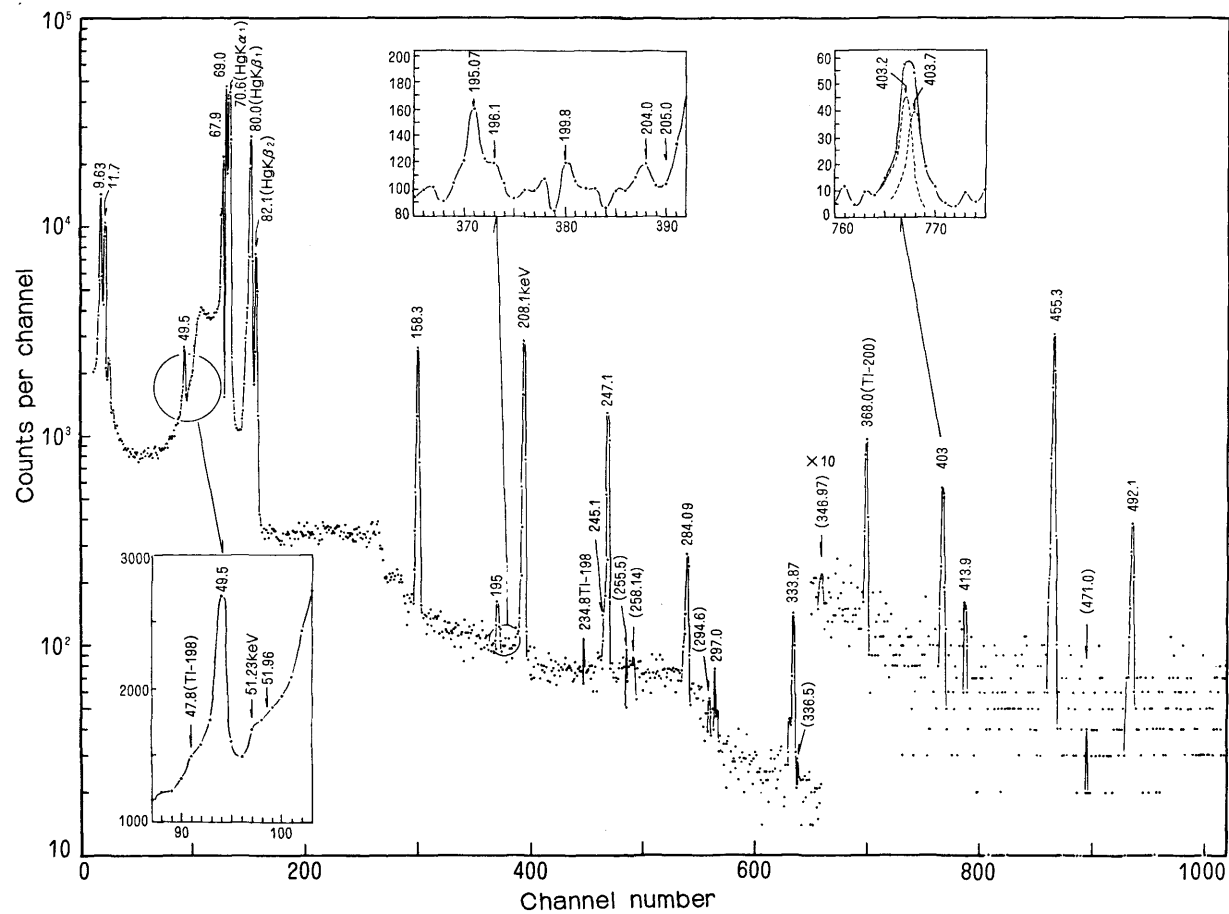


Fig. 1 Singles gamma ray spectrum of Tl-199 source produced by $^{197}\text{Au}(\alpha, 2n)^{199}\text{Tl}$.
(Low energy part measured with the LEPS detector)

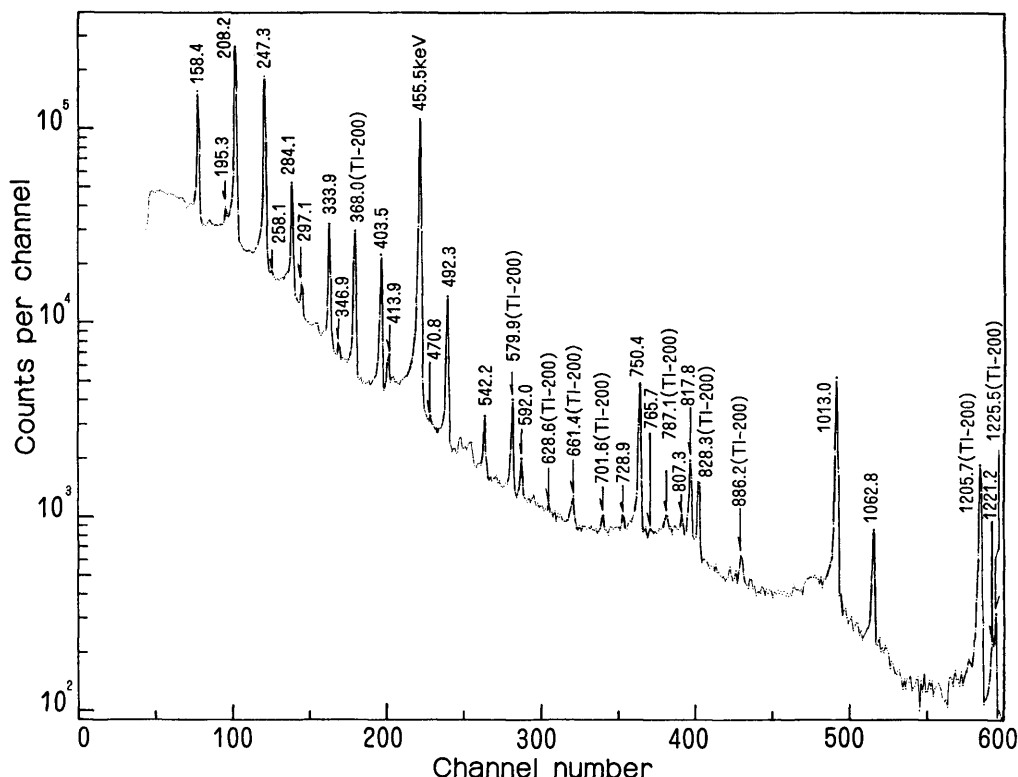


Fig. 2 Singles gamma ray spectrum of Tl-199 source.

δ^2 を求めておりそれらが互によく一致し $\delta^2 \approx (0.124 \sim 0.127)$ となっている。従って、これら 3つの結果を組合せて $\delta = -0.352 \pm 0.054$ と仮定した。この値を用い、247-と284-keV の transition は共に (E2+M1) の多重度をもつとして、これらの mixing ratio を求めた。

i) 247 keV transition の mixing ratio

247-208 keV cascade γ の角度分布を Fig. 4 (a) に示す。この分布に対し、

$$W(\theta) = 1 + A_2 P_2(\cos\theta)$$

の least squares fit を行い、実験的な A_2 を求め、finite angular resolution の補正をした A_2 は、

$$A_2 = -0.010 \pm 0.019.$$

decay scheme data⁷⁾ から 247→208 keV transition に対し、

$$\frac{1}{2}^-(E2+M1) \frac{3}{2}^-(E2+M1) \frac{1}{2}^-$$

の spin sequence を得る。

208 keV transition に対し、上述の如く、E2/M1 の mixing ratio $\delta = -0.352 \pm 0.045$ の評価値を用い、247 keV transition に対する mixing

ratio δ_1 を求めると、

$$\delta_1 = +0.27 \pm 0.02, \quad \delta_1^2 = 0.073 \pm 0.0076$$

を得る。この値を用いて 247 keV transition に対しては (93% M1+7% E2) が得られる。

尚、K/L = 5.75±0.03 となり、Jung et al.³⁾ の実験値、5.4±1.1 と誤差範囲内で一致している。

ii) 284 keV transition の mixing ratio.

284-208 keV γ の coincidence の角度分布を Fig. 4 (b) に示す。計数値の統計は不十分であるが、一応上記 i) と同様にして、補正された A_2 は、

$$A_2 = -0.026 \pm 0.056$$

を得る。

284→208 keV transition の spin sequence は

$$\frac{3}{2}^-(E2+M1) \frac{3}{2}^-(E2+M1) \frac{1}{2}^-$$

となり、mixing ratio を δ_2 とすると、

$$\delta_2 = -0.239 \pm 0.043, \quad \delta_2^2 = 0.057 \pm 0.015$$

が求まる。

この値を用い 284 keV transition の多重度の混合比を求めると (95% M1+5% E2) が得られる。尚、K/L に対しては 5.55±0.05 となり、Jung

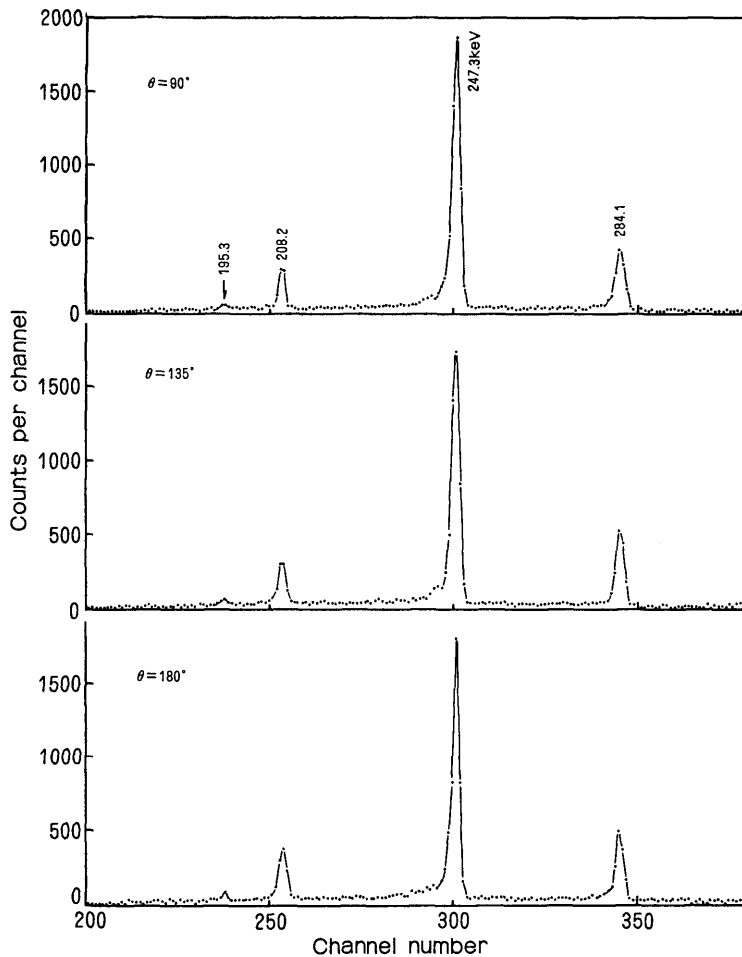


Fig. 3 Coincidence spectra of the 247-208 keV cascade gamma rays measured with $2\tau=50$ nsec at 90° , 135° and 180° .

et al¹⁹⁾ の実験値 5.8 ± 1.5 と一致している。

(2) 考 察

(2-1) γ 線の相対強度

LEPS 用 Ge による spectrum では強い 9.63 keV line が見られるが、これは今回可能性として提案せる 404 keV の level を採用すれば一応、413.85→404 keV の transition としてエネルギー値は一致するが、前述の如く近くに Hg $L\alpha_2$ X線が存在するため解析を困難にしている。何れにせよ、更に詳細な測定を行うことにより解決される問題点である。10.4 keV γ は確認不能であった。文献値⁶⁾ の 36.83 keV γ についても認められなかったが、35.2 keV における比較的大きな peak の裾に小さな 36.41 keV peak が認められ、これに対して得られた相対強度は $\sim 0.107\%$

を得、文献値の suggested value 0.11 と近い値を得る。49.5 keV γ に対しては、spectrum の急な傾斜の裾にあるため、background の見積りに任意性があり、両極端の見積りに対し 3.3 と 4.0% であった。文献値 51.93 keV γ に対しては、spectrum の急傾斜の所に doublet が見られ、background を引いた peak が正常な peak となる様求め、これに対し 51.93 keV に peak が存在する様分解し、51.23 と 51.96 keV の妥当と見られる peak を得た。これに対し夫々 ~ 0.76 , ~ 0.29 なる値を得た。文献値 195.3 keV γ は、明らかに 195.07 と 196.1 keV の doublet であった。そして夫々に対し、 1.6 ± 0.24 , 0.3 ± 0.13 を求めた。これが doublet であることは、両者の相対強度の和が文献値並に今回の他の測定値と近い値をもつことから決論される。従って、196.1 keV γ は新しい γ と見ら

Table 1 Relative intensities of gamma transitions of ^{199}Hg

energy (keV)	LEPS Ge	25cm ³ Ge(Li)	60cm ³ Ge(Li)	ref. (6)
10.4				(0.08)
36.83				(0.11)
49.5	(3.64±0.34)			3.6
(51.23)	(~0.76)			
51.96	~0.29			(0.21)
158.3	39.6±3.4	25.1±0.5	34±2	40(2)
195.07	1.6±0.24	1.8±0.1	2.3±0.2	2.1(2)
(196.1)	(0.3±0.13)			
205		0.2±0.2		0.08(3)
208.14	97.6±9.2	85±4		99(5)
245				≤0.3
247.1	75.8±6.6	65.6±0.2	80±4	75(4)
255.5		0.16±0.09	} 1.1±0.2	0.10(3)
258.14	(0.7~1.05)	0.5±0.2		0.58(6)
284.09	19.9±1.8	17.4±0.4	21±1	17.8(9)
294.6	(~0.94)	0.4±0.2		0.42(4)
297.0	(~2.0)	2.4±0.3		2.8(3)
333.87	15.3±1.5	14.3±0.6	} 16.3±0.8	14.2(7)
336.45	(~1.1)	0.8±0.2		1.14(11)
(346.97)	(~1.2)	1.15±0.09	1.2±0.2	1.07(11)
(403.2)	(6.56±0.89)	} 13.7±0.3	15.0±0.7	13.9(7)
(403.7)	(5.6±0.81)			
(413.9)	(~2.2)	1.97±0.08	2.8±0.2	1.6(2)
455.3	100	100	100	100
471.0	(~0.4)	0.24±0.08	0.3±0.2	0.31(6)
492.1	13.4±1.7	11.9±0.3	12.5±0.6	12.3(6)
542.21		1.71±0.08	2.0±0.2	2.1(2)
592.0		1.2±0.1	1.0±0.2	0.8(3)
728.86		0.37±0.08	0.7±0.2	0.36(4)
750.4		7.9±0.3	8.2±0.5	8.4(4)
765.7		0.06±0.08		~0.1
807.3		0.39±0.06		0.40(4)
817.67		2.8±0.2	2.9±0.3	3.3(2)
1012.95		13.2±0.4	13.7±0.6	14.2(7)
1062.8		2.0±0.2	1.8±0.3	2.0(2)
1221.16		0.39±0.05	0.5±0.2	0.24(3)

- (1) ○ energy の値は LEPS から得られた値を示す。但し相対強度の空欄の所は ref.(6) の値を採用。
- () の値は doublet peak を分解した場合又は相対強度が確定的に得られなかった場合。
- 誤差は相対強度に誤差が付してあるものについては ±0.10 keV , それ以外は ±0.3 keV である。
- (2) 相対強度については peak が小さく又は background の見積の困難な場合は誤差を付さず示した。尚 () 付きは doublet を分解せる値で誤差を付した。
- c.f. 若干のものについては同一 γ 線について値が違い過ぎるが、それらの原因については今後の問題として一応記載することとした。

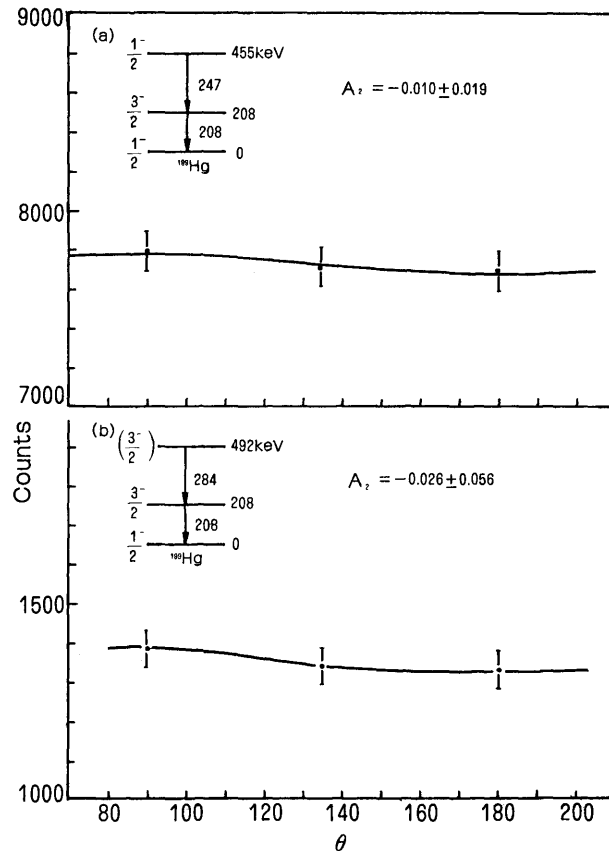


Fig. 4 Angular distribution for the 247-208 keV cascade gamma ray coincidence (a) and the 284-208 keV (b)

れる。205 keV γ は、208 keV γ の裾の谷に相当し確認は不能で background と同程度と見られる。近くに明らかな 204.1 keV peak が存在する。これは、後述の 412.26 keV peak の可能性と共に半減期の確認を要する、というのは 412.3 keV の level の可能性が生まれるからである。文献値 245.1 keV γ は、247.1 keV γ peak の裾に相当し、確認は困難であるが僅かふくらみが見られる。これに対し、 $\sim 1.5\%$ と見積った。文献値 255.5 keV γ は、丁度 255.5 keV の所で一点のみ peak が見られるのみで、peak の存在は保留した。近くの 254.0 keV に同程度の peak が見られるが後述の如く注目すべき γ である。文献値 258.14 keV γ に対しては、附近に同程度の peak が存在し、258.14 keV は丁度谷に相当し解析不能であつた。284.09 keV peak には、裾に ~ 282.4 keV の小さな peak が加っており相対強度に対する影響は無視される程度であつた。294.6, 297.0 keV peak は、peak

形成不充分であつたが、これに対する値を示した。336.45 keV は、peak 形成不充分で、これに対し $\sim 1.10\%$ を与えた。346.97 keV peak は小さく、多分 ~ 346.2 keV peak と複合しているものとして $1.05 \sim 1.24\%$ と見積った。文献値 403.50 keV に対しては、peak の形が他の single peak とわずかに異なっていて、doublet と見なして一応 403.2, 403.7 keV γ からなるものとし 夫々 6.56 ± 0.89 , 5.60 ± 0.81 に分解した。両者の和は、文献値ならびに他の測定値と殆ど違はない。このことは、403.5 keV level から 208 keV level を cross-over して落ちる強度と $195 \rightarrow 208$ keV の cascade で落ちる分岐比は、 4.10 ± 0.83 となり、これに対し、Jung et al.³⁾ では 3.6 となっており、この点では妥当な結果を与える。413.9 keV γ については、peak が小さく他の peak と複合しており、任意性が大きく影響するため ($\sim 2.2\%$) を与えてある。この peak の低エネルギー側に明らかに broad な ~ 412

keV の peak が見られる。これを分解すると 411.6, 412.3 keV の peak となり前者は Tl-198m の γ 線であり、後者は不明である。しかし、412.3 keV が ^{199}Hg の transition γ であるならば 412.3 keV の level を考えることにより上記の 204.1 keV γ (412.3 \rightarrow 208.2 keV), 254.0 keV γ (412.3 \rightarrow 158.4 keV), 336.45 keV γ peak よりわずかに小さく存在する 338.0 keV peak に対応する γ (750.4 \rightarrow 412.3 keV), 更に $^{25}\text{cm}^3\text{Ge(Li)}$ を用いた singles γ spectrum, coincidence γ spectrum で見られる 809 keV peak に対する γ (1221.2 \rightarrow 412.3 keV) として、説明することが可能である。204 keV γ は、208 keV γ を gate とする spectrum でも見られるが、energy 値の決定に任意性があり、205 keV γ との明確な区別がなされていないので何れとも言い難い。

以上の通り LEPS により若干の新しい事実と多くの可能性が見出されたが、他の singles の測定では、これまでの結果と 2, 3 の値を除いて殆んど同じであった。新しい level 404 keV の可能性については、今後 LEPS を用いた singles, coincidence spectrum の測定を行い、確定する必要がある。表 1 は以上の考察から得られたものである。

(2-2) 角度相関による 247, 284 keV transition の多重度。

Kalish et al.⁹⁾ は ^{199}Hg の coulomb excitation による 208 keV γ の角度相関の測定から、mixing ratio $\delta(E2/M1) = -0.65 \pm 0.25$ を得ているが、この値はこれまで行なわれた Bauer et al.⁴⁾ の Tl-199 decay γ を利用せる 208 \rightarrow 247, 284, 195 keV の 3 つの cascade γ に対する角度相関から得られた 208 keV transition に対する値 $\delta(E2/M1) = 0.30 \pm 0.05$ より原理的には任意性が少い。しかし、彼等の値は誤差が大きすぎるだけでなく、Bäckström et al.¹⁾ Nall et al.²⁾ が 208 keV transition の mixing ratio に対し転換電子の実験から出している値は互によく一致しており、 $\delta^2 \approx (0.124 \sim 0.127)$ で、これと余りにも違いが大きい。しかし、転換電子の実験からは δ^2 のみで δ の符号は決まらない。ところで Kalish et al. の δ はこの点で δ の符号を unique に与えていると考えられる。従って Kalish et al と Bäckström et al., Nall et al. の結果を総合的に考え Bäckström et al. の値から計算せる $\delta = -0.352 \pm 0.045$ を採用することが一番合理的と考えられ、又 Kalish et al の δ と誤差範囲内で一応一致する。現状ではこの値がそれ程不自然なものとは考えられない。上記 Bauer et al. の結果は、

Jung et al. の電子スペクトルの実験から得られている 195, 247, 284 keV のすべての transition に対する多重度 M1 を用いて求められたものである。所がこれから得られた δ の符号は正で Kalish et al. の符号と相反する。両者のそのような違いから吾々はむしろ 208 keV transition の δ として上記の値を用い 247, 284 keV transition を何れも (E2+M1) として解析することにした。

247 keV transition に対し、

$$\delta(E2/M1) = +0.27 \pm 0.02, \quad \delta^2 = 0.073 \pm 0.076$$

を得、Sliv and Baud の内部転換係数の表⁹⁾ から

$$K/L = 5.75 \pm 0.03$$

が得られ、前述の実験値 5.4 ± 1.1 とよい一致をしており、この transition は (93% M1+7% E2) 程度と考えられる。

284 keV transition に対しては計測値の統計が不充分で余り断定的なことは言えないが一応同様な取扱いから

$$\delta = -0.24 \pm 0.043, \quad \delta^2 = 0.057 \pm 0.015$$

を得、Sliv and Band の上記表から

$$K/L = 5.55 \pm 0.05$$

となり、この transition は大体 (95% M1+5% E2) と考えられる。

謝 辞

本実験の線源はすべて京都大学化学研究所のサイクロトロン照射により準備されたものであり、且つ LEPS 用 Ge 検出器を初め singles spectrum の測定装置の使用の便を賜り厚く御礼申し上げます。

柳父、竹腰両教授には終始御厚情と激励を賜り衷心より感謝致します。照射ならびに測定に際して直接援助頂いた。富士田、宮島、両氏に心から御礼申し上げます。

最後に実験に際し御協力賜った 53 年度卒研究生井上、山野両君に感謝の意を表わします。

文 献

- 1) G. Bäckström et al., Nucl. Phys. **7** (1958) 263
- 2) J. C. Nall et al., Phys. Rev. **118** (1960) 1278
- 3) B. Jung et al., Nucl. Phys. **20** (1960) 630
- 4) R. W. Bauer et al., Phys. Rev. **128** (1962) 694
- 5) R. Kalish et al., Nucl. Phys. A **161** (1970) 637
- 6) G. J. Mathews et al., Phys. Rev. **C11** (1975) 587

Vol. 16. (1979)

- 7) *Nuclear Data Sheets* Vol. 24, No. 1 May 1978
(Academic Press)
- 8) K. Siegbahn et al., in Beta- and gamma-ray

spectroscopy, ed. by K. Siegbahn (North-Holland Publishing Co., Amsterdam 1965) App.5, 1663