

短寿命核グループ活動報告

KISS プロジェクト

2015年2月20日にKEK素核研-理研仁科センター-東大CNS三者合同の連絡協議会が開催された。来年度末からのKISS共同利用開始に向け、三者共催の課題審査会(RIBF-PAC)に向けた準備が進んでいる。共同利用における研究者の安全を担保するため理研和光キャンパスにおけるKEK「和光原子核科学センター」の設置を予定している。

KISS開発では、多核子移行反応(^{136}Xe ビームと ^{198}Pt 標的)を用いた、KISS装置のガスセルの性能試験(実験課題(NP1312-RRC29))を行った。弾性散乱された ^{198}Pt をレーザーで共鳴イオン化し、最も強度の強い $^{198}\text{PtAr}_2^+$ のイオン化効率を測定した。図1に引出効率のビーム強度依存性を示した。20pnAのビームでも引出し効率は一定で、予定より10倍強いビームの利用可能性が示された。イオンの純度は99.7%以上でN=126近傍核のベータ崩壊の寿命測定に十分である。生成イオンの平均引出し時間は370msで推定値260msより遅いが、対象未知核(予測崩壊寿命500ms程度)の測定では問題にならない。引き続き $^{199}\text{PtAr}_2^+$ (半減期 $t_{1/2}=30.8$ min.) の寿命測定を行い、レーザーイオン化した ^{199}Pt の最終確認を行った。

現在、ガスセルからイオンを引出し輸送するRF六極イオンガイド(SPIG)を2分割化し、引出効率向上を目指している。1段目と2段目のSPIG間にかけたDC電圧で分子状イオンを加速し、単独イオンに分解する。ガスセル内のフィラメントから放出したイリジウム原子($^{191}, ^{193}\text{Ir}$)による分解試験では、図3に示したようにDC電圧-30Vで $\text{Ar}(\text{H}_2\text{O})$, Ar_2 が解離し、90%以上の割合で単体のIrイオン引出しに成功した。これは約3倍の効率向上を意味する。

多核子移行反応実験解析状況

2012年にフランスGANIL研究所で行った $^{136}\text{Xe}+^{198}\text{Pt}$ の多核子移行反応の断面積測定実験の解析が進んでいる。生成・散乱された入射散乱核の生成断面積を導出するため、測定に用いたスペクトログラフのアクセプタンス補正を行い、断面積の絶対値導出のための規格化を行った。検出粒子のエネルギー分布を弾性散乱、準弾性散乱および深部非弾性散乱に対応する三つのガウス分布でフィッティングをして弾性散乱成分を抽出し規格化因子を導出したところ、全反応断面積の測定値が光学ポテンシャル模型のそれと誤差範囲で一致し

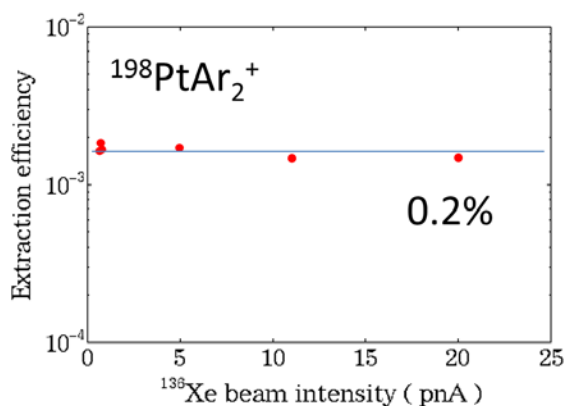


図1 $^{198}\text{PtAr}_2^+$ イオン引出効率の一次ビーム ^{136}Xe (10.75 MeV/核子)の強度依存性。

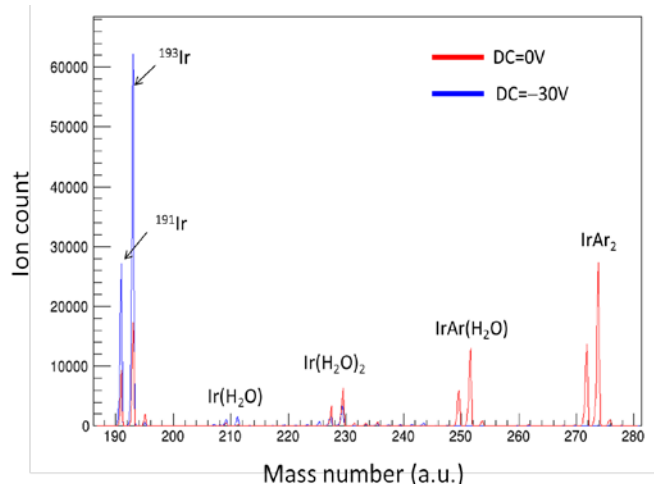


図2 イリジウムの共鳴イオン質量スペクトル。赤(青)線が加速電場なし(あり)。電場によって分子状イオンが分解している。

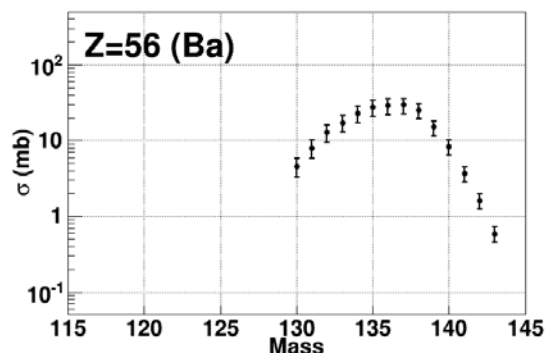


図3 入射散乱核 (Ba) の生成断面積

た。最終的な誤差評価を加えた入射散乱核に対する断面積の一部が図1である。

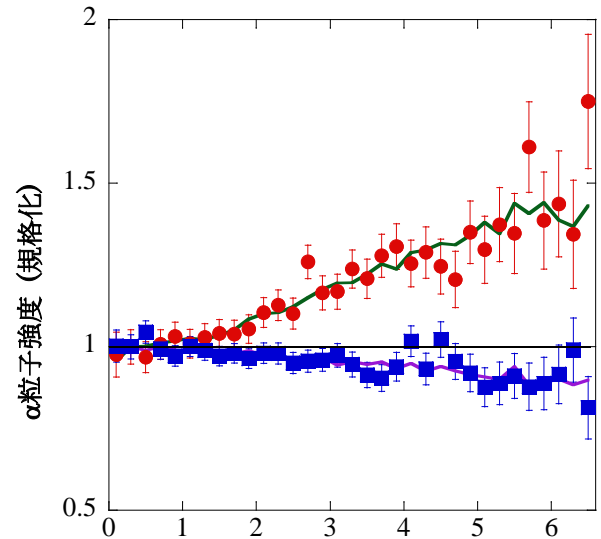
現在、上記測定結果を元に標的散乱核の断面積推定を行っている。多核子移行反応で生成される入射散乱核と標的散乱核は励起状態にあるので、反応の全運動エネルギー損失が粒子蒸発前の入射散乱核と標的散乱核に質量に比例して分配されると仮定し、励起された散乱核からの蒸発粒子をカスケード計算により求め、検出された蒸発後の入射核の同位体分布から標的核の同位体分布を反復法により導出する。全運動エネルギー損失や質量分布の整合性をチェックした後に公表の予定である。

リチウム電池材料中でのナノメートルスケールのリチウム拡散直接測定

リチウムイオン2次電池ではリチウムが電流の担い手であり、電池材料内部のその動的挙動（拡散現象）が電池性能改善の鍵を握る。電池材料中のリチウム拡散係数は、電気化学的手法、NMR、 μ +SR など様々な間接的手法で測定されているが、ばらつきが大きく、特に電極材料では手法間で6-7桁の違いを生む。直接かつ非破壊で拡散係数を導出する手法として、東海キャンパスに設置されていた TRIAC では、短寿命核 ^8Li （半減期 0.8 秒で β 崩壊した後 2 α 粒子を放出する）によるリチウム拡散の非破壊的直接観測手法を確立した。いわゆるトレーサー拡散係数の導出である。他方、開発した手法では、1 μm /秒程度 ($10^{-9}\text{cm}^2/\text{秒}$ の拡散係数に対応)の拡散現象が観測下限であったため、さらにナノメートルスケール（数 10 nm/秒、 $10^{-12}\text{cm}^2/\text{秒}$ 程度）の拡散係数を持つリチウム電池電極材料中でのリチウム拡散を捉えるため、手法の改良を進めてきた。

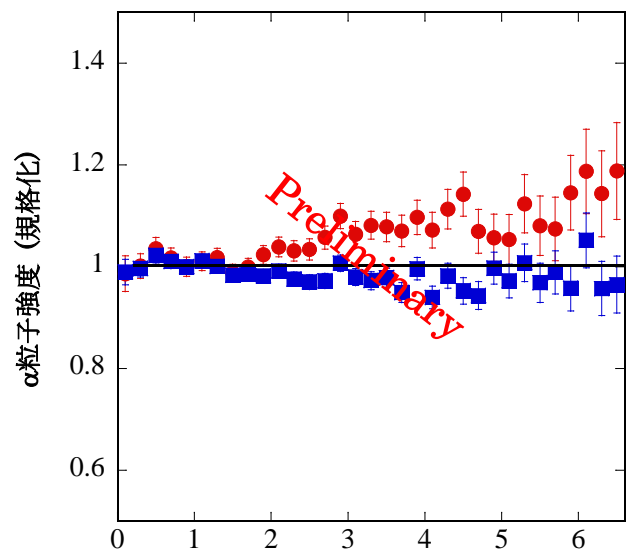
新手法では、低速（ $\sim 8\text{keV}$ ）の ^8Li を対象試料中数 10 nm の深さに打ち込む。試料表面に対し小角度（10 度）で放出された α 粒子を検出することで、崩壊時の ^8Li 深さに対する測定感度を増幅させる。この着想に基づいた拡散係数測定を JAEA 東海タンデム加速器施設で行った。試料はリチウム薄膜電池固体電解質の $\text{Li}_4\text{SiO}_4\text{-Li}_3\text{VO}_4$ (LVSO)。図4は 100°C の試料温度で測定した ^8Li からの α 粒子強度の時間スペクトル (^8Li の半減期で規格化)。 α 粒子は、1.6 MeV を中心にしたエネルギー分布を持つが、図中の赤点は 1.6 MeV より低いエネルギー領域、青点は高い領域での時間分布である。測定結果と拡散シミュレーションとの比較解析（図中の緑、紫線）から、ナノスケールの拡散係数 ($9.2 \times 10^{-12}\text{cm}^2/\text{秒}$) が導かれた。本結果は、*Japanese Journal of Applied Physics* 誌より出版した。

引き続き、典型的な正極材料であるスピネル型リチウム化合物 LiMn_2O_4 (LMO) の拡散係数測定を行っている。図5に、試料温度 390°C で測定された暫定的な結果を示す。リチウム拡散による α 粒子強度の変化が確認できる。LMO 試料のリチウム拡散係数の試料温度依存性導出のため、来年度も測定を続行する。



ビーム照射後の測定時間(秒、6.6秒周期)

図4: α 粒子強度の時間分布。緑と紫線は、シミュレーション結果 ($D=9.2 \times 10^{-12}\text{cm}^2/\text{秒}$)。



ビーム照射後の測定時間(秒、6.6秒周期)

図5: LMO 試料(390°C)の α 粒子強度の時間分布。