

短寿命核グループ活動報告 (2019.10.2 報告からのアップデート)

短寿命核グループでは宇宙における重元素合成過程の解明を研究の柱とし、素核研・和光原子核科学センター(WNSC)を研究基盤として研究活動を進めている。WNSCは、理研 RIBF 施設内に独自の短寿命原子核研究施設 KISS を運営し国内外の研究者に対して共同利用実験環境を提供すると同時に、それを用いた短寿命原子核の分光研究と、KISS 及び他の RIBF 施設の装置において多重反射型飛行時間測定式質量分光器 (MRTOF-MS) 用いた網羅的質量測定プロジェクトを推進している。

重元素の起源の研究は、重力波や天体分光などの「観測」と、関与する原子核の特性を調べ上げる「実験」と、そのデータを演繹して元素合成ネットワークを追う「理論」の3つの柱からなり、このプロジェクトはその「実験」を担うものである。合成に関与する原子核は千種類以上あり、その多くは未知の短寿命原子核である。そのような原子核を生成・分離し、質量・半減期・励起状態・崩壊様式などの特性を網羅的に測定することを目指している。

KISS の共同利用実験および MRTOF 実験は 2019 年 11 月以降、●2019/11 NP1612-RRC45 Hirayama 2 days、●2019/12 NP1712-LINAC31 Wada 1.5days、●2020/1 NP1712-LINAC07R3 Schury 10.5 days、●2020/1 NP1612-RRC44 H. Watanabe 5 days、●2020/3 NP1712-RRC37R1 PM. Wallker 6 days、●2020/3 NP1612-RRC44 H. Watanabe 3 days が実行されたが、2020 年 3 月から 6 月に予定されていた 6 回のマシンタイムは COVID19 のためにキャンセルとなった。

この間のハイライトは、1. KISS に MRTOF が整備されレーザー分光法と $\beta\gamma$ 分光によるアイソマー研究に新しい手段を提供できたこと、2. KISS の 20keV 連続ビームをイオントラップする新しい技術としてガスセルクーラーバンチャー (GCCB) 法を開発し、荷電倍倍と分子イオン破壊という重要な複効果を発見したこと、3. MRTOF を用いて初の超重元素同位体(^{257}Db)の直接質量測定に成功したこと、4. 新しい MRTOF を整備し、その質量分解能が劇的に向上したことである。以下にその概要を報告する。

1. KISS へ MRTOF 整備とレーザー分光・アイソマー研究

図1に示すように新たに MRTOF を整備し、KISS のビームをデフレクタで分岐して MRTOF 装置に随時送れるようにした。これによって $\beta\gamma$ 分光で寿命測定時などに並行して質量測定が可能になったばかりでなく、MRTOF の高い質量分解能と多核種同時測定性を利用した新たな実験が可能になった。一つは $^{194,196}\text{Os}$ 同位体のレーザー核分光による荷電半径の測定である。この同位体は半減期がそれぞれ6年、35分と長く、従来の β 線 γ 線測定によるレーザー分光は困難であった。MRTOF を用いることで、同重体・核異性体を分離してイオン検出によりレーザー共鳴を検出することが可能になった。この研究によりオスmium同位体の形状変化の傾向が ^{196}Os で変化していることを示唆した[1]。

KISS におけるアイソマー核分光実験にも新展開があった。(β 崩壊に比べて) 長寿命のアイソマーは、元素合成過程の解明に於いても重要である。例えば ^{192}Pt は β 安定線より陽子過剰側にあるため、速い中性子捕獲過程 (r-過程) では到達できないはずだが、 ^{192}Os のアイソマー経由であれば ^{192}Ir を超えて到達できるため ^{192}Pt の存在比に r-過程が寄与することになる (図2)。 ^{192}Os のアイソマーの存在

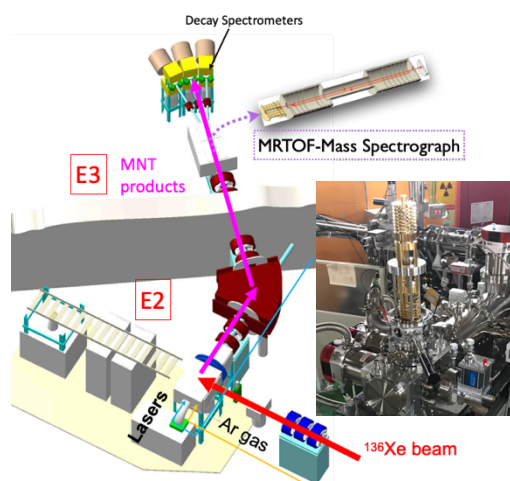


図1 KISS 装置概念図 (写真は MRTOF 電極部)

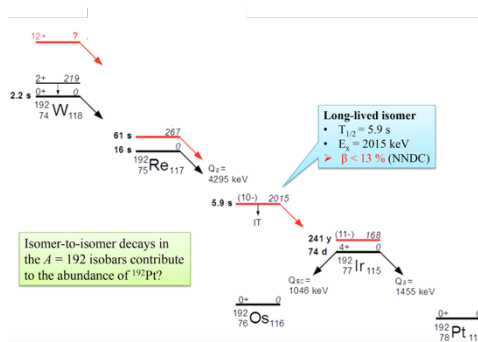


図2 A=192 同重体の β 崩壊経路

は MRTOF の質量スペクトルにおいても確認できており(図3)、 $\beta\gamma$ スペクトルと併せて解析を進めている[2]。

一方、核構造研究として ^{187}Ta の高スピン ($I^\pi=25/2^-$)アイソマー状態 $^{187\text{m}}\text{Ta}$ の実験が行われた。質量数 $A=190$ 付近の重元素領域では、中性子数が増えるに従って、原子核の形状がプロレート変形からオブレート変形に形状変化することが知られている。 Ta 同位体においては ^{187}Ta でこの原子核形状の変化が予測されており、その同定にはアイソマー状態の半減期とスピン・パリティを含む崩壊様式が不可欠である。高スピンアイソマー状態 $^{187\text{m}}\text{Ta}$ はドイツの GSI 研究所蓄積リング (ESR) 実験で初めて存在が確認されて、半減期が 22 (9) 秒と報告されているが、その崩壊様式については知見が得られていない。KISS に最近導入した多チャンネル比例計数管 (MSPGC) と Ge 検出器を用いて、 $^{187\text{m}}\text{Ta}$ の崩壊時に放出される内部転換電子または Ta の特性 X 線と崩壊ガンマ線の同時測定から、半減期および崩壊ガンマ線を精密に測定した。更に MRTOF を用いることで、 ^{187}Ta の基底状態とアイソマー状態の存在を効率よく実験中に確認でき、それにより安心して長時間の精密崩壊様式測定を実施できた。MSPGC と Ge 検出器の同時測定から 14 本のガンマ線と 2 本の Ta の特性 X 線の測定に成功し、アイソマー状態の半減期を

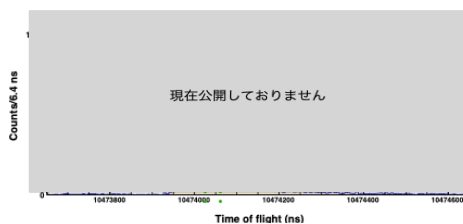


図 3 飛行時間スペクトルによるアイソマー同定



図 4 $^{187\text{m}}\text{Ta}$ アイソマーの崩壊図 [3]

秒と精度良く決定し、崩壊様式を決めることができた(図4)。それにより原子核模型計算と比較することで、E2 遷移のエネルギーとスピンの相関関係から ^{187}Ta では三軸非対称変形の影響が少し見られるが、軸対称変形していることが判明した[3]。

2020 年度の KISS 改造計画では、MRTOF でアイソマー準位に励起された原子核を選択してから $\beta\gamma$ 分光できる仕組みの導入を予定している。

2. KISS ガスセルクーラーバンチャー(GCCB)開発

KISS の短寿命核ビームは、20 keV/q に加速され双極電磁石によって質量(A/q)分離されて、分光実験に提供される。この短寿命原子核イオンを MRTOF 等で使用するために一度イオントラップに捕集して冷却しバンチャ化する必要がある。一般的には静電減速した後に線形 RFQ イオントラップに捕集する方法が採用されているが、装置全体を高電圧に浮かせる必要があることと、技術開発が飽和していると評価し、新しい独自の方法であるガスセルクーラーバンチャー法を開発した。これは、20 keV のビームをそのまま差動排気とピンホールを経て 1 mbar の He ガスセルに入射させて熱化し、高周波カーペットで引き出しイオントラップに捕集する方法である。最初のオンライン実験において、KISS の短寿命核ビームに対して MRTOF 末端の検出器まで既に 10% 程度の高い効率をもって質量測定が実行できた。

このオンライン実験において、GCCB の大変重要な二つの性能が発見された[4]。一つは、ガスセルに入射した一価イオンは高い確率で

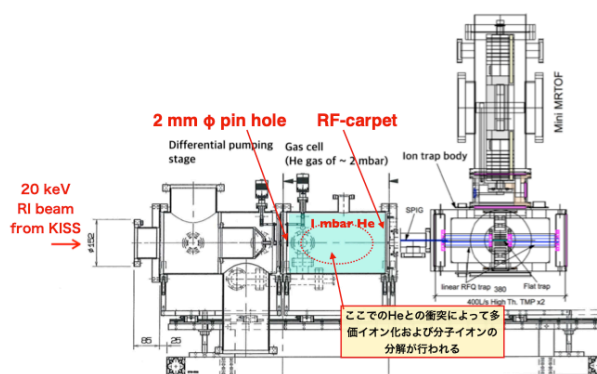


図 5 KISS-GCCB-MRTOF 概念図

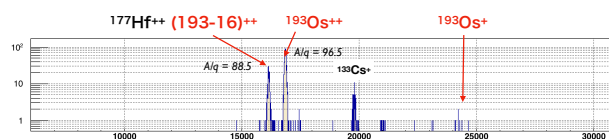


図 6 $A/q=193$ ビーム入射時の TOF (single path) スペクトル

一つは、ガスセルに入射した一価イオンは高い確率で

二価になって引き出されることであり、質量分解能の向上に大きく寄与する。もう一つは、分子イオンとして入射したイオンが分解されて単体の原子イオンとして引き出されることである。図6はKISSの質量分離器を $A/q=193$ にセットした時のMRTOFにおけるシングルパスのToFスペクトルであり、 ^{193}Os は2価イオン状態が優勢であり、 $^{177}\text{HfO}^+$ 分子イオンとして入射したビームは分解されて単体の $^{177}\text{Hf}^{++}$ イオンとして観測された。これらの現象は、20 keV/qのイオンがヘリウム原子と繰り返し衝突する過程で生じていると考えられる。分子イオンによる短寿命核ビームへの不純物混入は多くの低エネルギー短寿命核施設における実験で大きな問題となっており、本研究の成果の波及効果も大きく期待される。

3. 初の超重元素同位体 ^{257}Db の質量測定に成功

理研 RIBF の GARIS-II 施設における MRTOF (SHE-Mass-II) 装置(図7)において、超重元素ドブニウム($Z=105$)の同位体 ^{257}Db の直接質量測定に成功した。超重元素の研究は、原子番号 Z はどこまで存在できるか、現在知られている超重元素の更に先にあると期待されている「安定の島」の予測が、典型的な物理的な意義であるが、そのためには核構造的に安定な核子数(魔法数・准魔法数)における閉殻の解明が鍵であり、そのためには系統的な質量測定が最も有効である。新元素の発見は社会的に高いインパクトがあるが、その正確な同定法としても質量測定が強く期待されている。とりわけ $Z=114-118$ および未発見の $Z=119, 120$ の中性子過剰な超重核は α 崩壊連鎖が既知の原子核に繋がっていない。本研究の旗艦実験として ^{288}Mc および ^{284}Nh の質量測定による原子番号 Z と質量数 A の確定を準備しているが、その実験の照射ビームに必須の ^{48}Ca 同位体が入手困難になり中断している。そこで、まず $^{208}\text{Pb}(^{51}\text{V}, 2n)^{257}\text{Db}$ 反応で生成できるドブニウム同位体の質量測定を実行した。この同位体の検出レートは1日に2イベントと少なく、背景事象と弁別するための特別な検出器 α -ToF を開発して使用した。 α -ToF 検出器は、イオンの到来時刻を検出する ToF 検出に加えて、そこで α 崩壊する際に発生する α 線のエネルギー(E_α)とイオン飛来から崩壊までの遅延時間(DT)を記録することができる[5]。図8は、予測した ToF 事象と相関がある α 線の E_α と DT をプロットしたものであり、 ^{211}Po が起因と判定された $E_{4,7,10}$ 以外の 11 個の事象が ^{257}Db 起因であることが確定できた。図9は、 $^{257}\text{Db}^{3+}$ イオンの飛行時間スペクトルで参照イオン ($^{85}\text{Rb}^+$) との比としてプロットした。赤で示した 11 事象が相関から $^{257}\text{Db}^{3+}$ の事象であると確定したものである。このスペクトルから ^{257}Db の質量を 0.96 ppm の精度で決定した。これは、この領域の同重体において原子番号を特定するのに十分な精度である[6]。

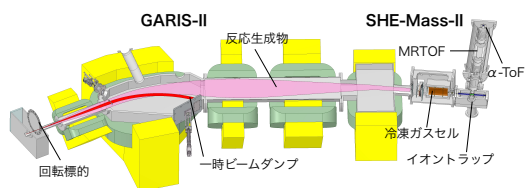


図7 GARIS-II と SHE-Mass-II 装置

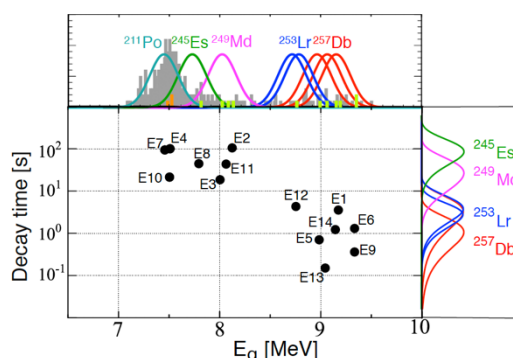


図8 α 線エネルギーと遅延時間の分布 [6]

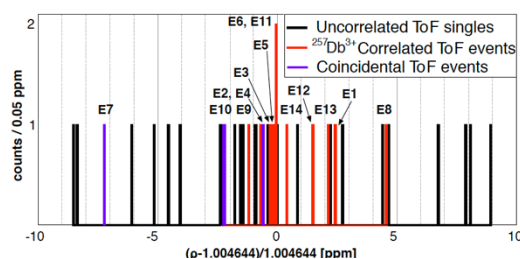


図9 $^{257}\text{Db}^{3+}$ の飛行時間スペクトル [6]

4. 新しい MRTOF 装置(ZD-MRTOF)の BigRIPS/SLOWRI への投入

重元素の起源研究において、多数の中性子過剰短寿命原子核の質量を網羅的に測定することは最も重要な実験課題であり、それに数的に最も活躍すると期待されているのが、理研 RIBF の主力装置 BigRIPS のビームを利用したパラサイトの実験である。そのための新しい MRTOF 装置 (ZD-MRTOF) を準備した。BigRIPS は入射核破砕片分離器で、ウランビームからウランより軽い原子核の大半を生成することができるが、光速の 50%程度の高速度イオンビームのため精密質

量測定には不向きである。そのため大型のヘリウムガスセルと高周波カーベットを用いた低速 RI ビーム生成装置 SLOWRI(KEK と理研で協定のもと共同開発運用を行う RIBF の機関施設の一つ)を介して MRTOF 装置で質量測定を実行する。設置場所を BigRIPS ビームラインの末端に置くことで、上流で行われる他の実験から漏れてくるビーム(実は>99%が漏れてくる)を使って効率よく質量測定を推進することが可能となる。最初のオンラインパラサイト実験が 2020 年 4 月から予定されていたが、COVID19 のためにキャンセルになっており、秋以降の再開を期待している。ZD-MRTOF 装置本体の高圧電源系を強化し、これまでの倍程度の平均運動エネルギーで飛行管中を往復するようにした結果、9 ms の飛行時間で質量分解能 570,000 というペニングトラップ等他の装置と比べても世界一の性能を達成し(図 10)、300 事象の測定で 0.1 ppm の質量決定精度が期待できることを示した[7]。

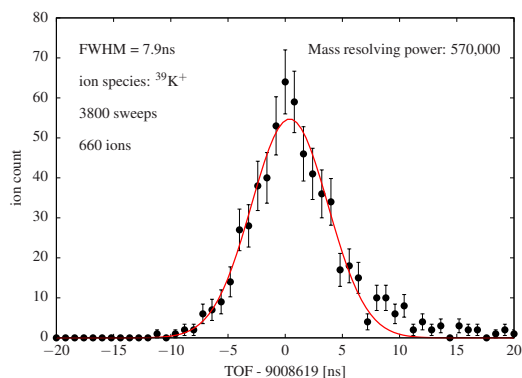


図 10 質量分解能 57 万を達成した $^{39}\text{K}^+$ の飛行時間スペクトル [7]

今後の計画

KISS 装置において、 $\beta\gamma$ 分光と MRTOF との組み合わせをより効果的にするために、MRTOF でアイソマーを質量によって選択し、純アイソマーからの崩壊分光が可能なように配置の改造を計画している。網羅的質量測定計画においては、COVID19 収束後に BigRIPS で生成される膨大な数の短寿命原子核をくまなく測定する実験を開始する予定である。図 11 は、これまで本プロジェクトで測定した原子核を示しており、220 余種の測定を終えている。これを 1000 以上に拡張していく計画である。超重元素合成に必須の Ca48 同位体をできるだけ早く入手し、旗艦実験であるモスコビウム、ニホニウムの質量測定を一刻も早く実現したい。さらに、元素合成の究極の目標であるウランの起源を目指して、KISS-II 計画の実現に向けて技術開発を滞りなく進めていきたい。

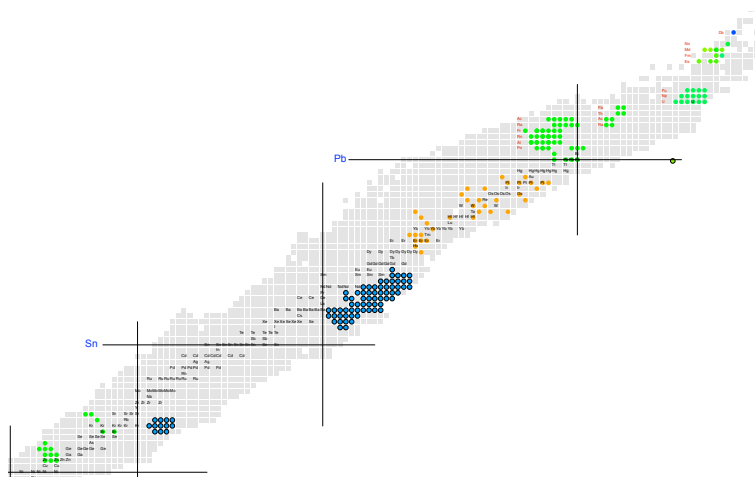


図 11 核図表に示した、これまでに本プロジェクトで測定した 220 余の原子核

- [1] H. Choi et al, submitted to Physical Review C.
- [2] H. Watanabe et al., in preparation.
- [3] PM. Walker et al, submitted to Physical Review Letters.
- [4] J. Moon et al., in preparation.
- [5] T. Niwase et al, Nucl. Inst. Meth. A 953 (2019) 163198.
- [6] P. Schury et al., submitted to Physical Review Letters, arXiv:2006.02605
- [7] M. Rosenbusch et al., in preparation.