

素粒子原子核研究所活動報告 和光原子核科学センター 2022年9月12日  
 短寿命核グループ活動報告（2021.12.8 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 (GARIS, BigRIPS-SLOWRI)において多重反射型飛行時間測定式質量分光器 (MRTOF-MS) を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において、実験原子核からの寄与は、合成に関与する千種類以上の原子核（その多くは未知の短寿命原子核である）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である。

KISS(KEK Isotope Separator System)は、多核子移行反応(MNT)を用いた世界で唯一の低エネルギー短寿命核ビーム施設であり、CERN や TRIUMF 等の施設では困難な高融点元素の中性子過剰核を精密分光実験に提供している。多核子移行反応は、核子の“足し算”と“引き算”的両方が同時に起こる反応なので、標的核およびビーム核の周辺の全方向の原子核を満遍なく生成できるが、その取扱が困難なため、特別な技術開発が必要だった。KISS は、生成した短寿命核イオンをアルゴンガス中で一旦中性化し、レーザーによる共鳴イオン化により元素を選択する。そのイオンを 20 keV に加速し、電磁同位体分離器で分離することで、高純度の短寿命核ビームを生成することができる。その比類のない優位性を活かし、継続的に良い物理の成果が上げられている（図 1）。その性能をさらに 1 万倍に向上させる KISS-II が提案されており、それを段階的に実現するべく努力を継続している。

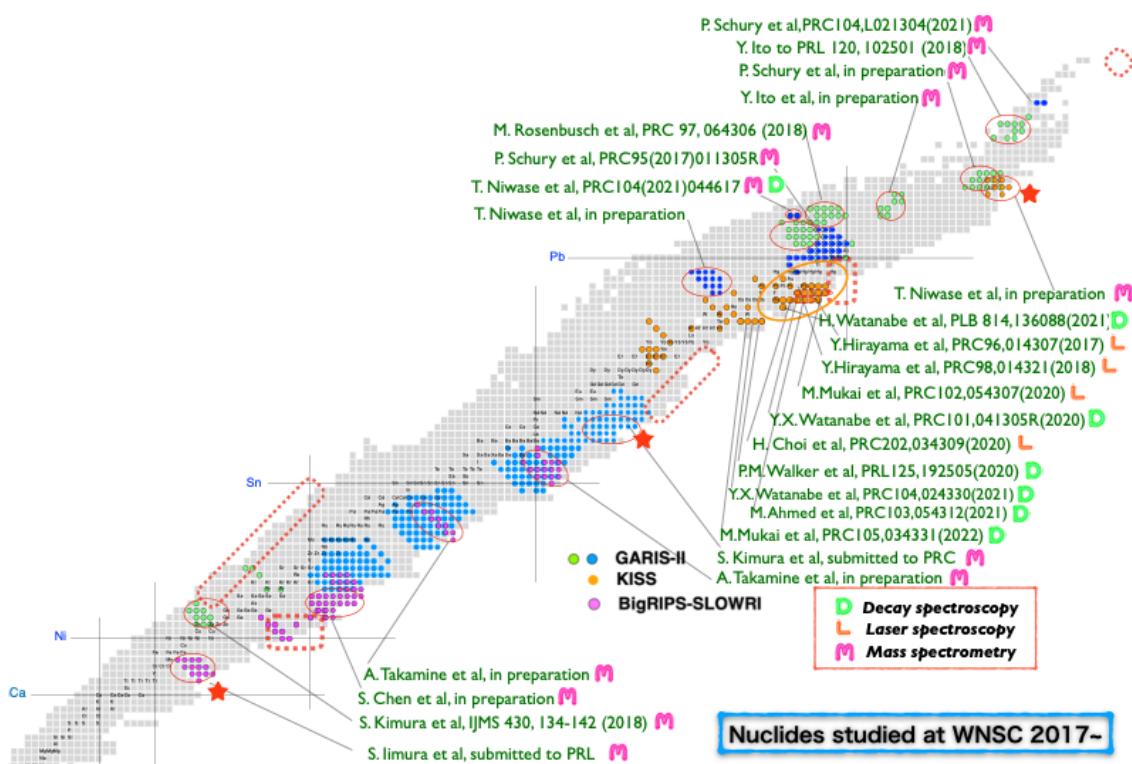


図 1 KISS, GARIS-II, BigRIPS-SLOWRI における WNSC の主な研究成果(星印は本報告で記述)

## ウランの新同位体の発見

KISSにおいて最初のウランビームを使用したテスト実験で、中性子過剰の新同位体<sup>241</sup>Uの発見に成功した。しかも精密質量測定を伴うものであり画期的である。近年の新同位体発見の多くは、高速イオンビームの検出器中のエネルギーロスと飛行時間によるもので、陽子数と中性子数の確認に留まるのに対して、原子核の最も基本的な特性である質量を精密に決定した発見は価値が高い。

ウランの中性子過剰同位体は元素の起源研究に極めて重要にもかかわらず、通常の融合反応では生成することが困難で、原子炉中等での中性子捕獲反応で生成された物質を化学分離して同定できるものしか発見されていなかった。

KISSでは、<sup>238</sup>Uビームを<sup>198</sup>Pt標的に照射し、多核子移行反応によって<sup>238</sup>Uに中性子を加えることができる。多種多様の反応生成物からレーザーによる共鳴イオン化でウラン元素を選択的に取り出し、質量分離器で質量数の分離をしたあと、更にMRTOF質量分光器で同重体を分離できるので、確実に新同位体の同定と質量測定が可能になる。図2に示したのは、KISS-MRTOFで測定した飛行時間スペクトルで、上がレーザーをウランの共鳴波長にセットし、下はネプツニウムの波長にセットしたものである。これらのデータから、ウランの新同位体<sup>241</sup>Uの発見と、その質量を45 keVの誤差で決定し、ネプツニウムの既知同位体<sup>241</sup>Npの質量を31 keVの誤差で初めて決定した。

この実験結果は、ウラン周辺の中性子過剰核の研究に先鞭をつけたものであり、今後の進展を大いに期待させるものである。

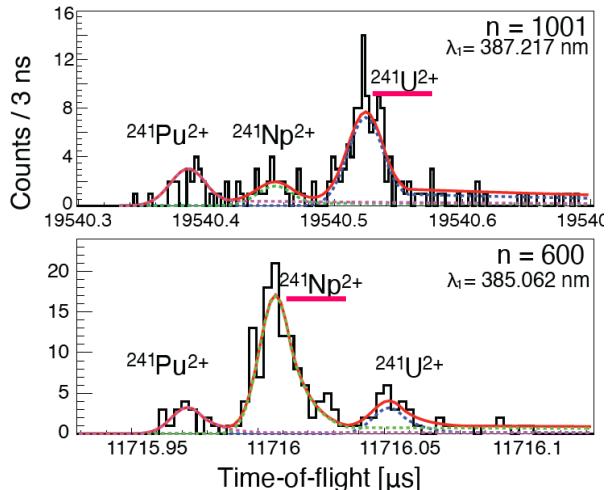


図2 <sup>241</sup>U<sup>2+</sup>及び<sup>241</sup>Np<sup>2+</sup>のTOFスペクトル

## カリфорニウム核分裂片による質量測定

RIBFのGARIS装置におけるMRTOF装置(SHE-Mass)で超重元素の質量測定実験が順調に進行しているが、当初その試験のために導入した<sup>252</sup>Cf線源(9.4 MBq)の核分裂片の質量測定実験も順調に進んでいる。<sup>252</sup>Cfは核分裂の分岐比が3%と小さく、97%は $\alpha$ 崩壊する。この強力な $\alpha$ 線によってガスセル内の不純物がイオン化し、強大的なバックグランド事象を生むため、初期段階では一切核分裂片の測定が出来なかった。ガスセルの冷凍温度を下げ、イオントラップによる粗質量分離機能、In-MRTOF

質量フィルター機能を導入することによって見事に核分裂片の測定が可能になった。このような線源を用いた測定では、供給量が常に一定に保たれているため、装置の性能向上や、ビームタイムでのオンライン測定時の装置の調整・確認のための強力な武器となっている。さらに時間制限無く測定できるため、既に300核種以上の精密質量測定を実施しており、それには複数個の初測定核種も含まれている。

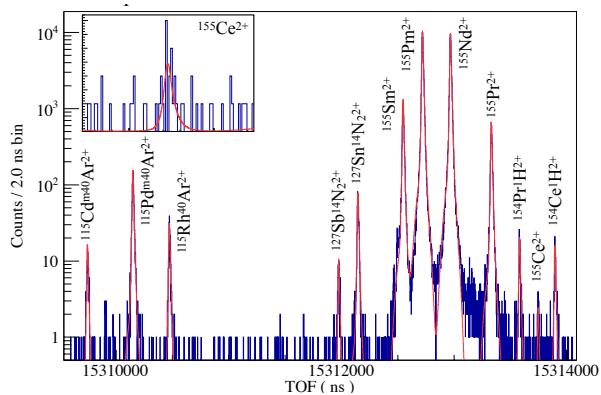


図3 <sup>252</sup>Cfの核分裂片(A/q = 75.5)のToFスペクトル

図3は、質量荷電比  $A/q=75.5$  の MRTOF における飛行時間スペクトルで、 $^{155}\text{Ce}$  は初質量測定に相当する。このスペクトルには、 $A=155$  の同重体の2価イオンに加えて、水素付着の  $A=154$  同重体、 $\text{N}_2$  付着の  $A=127$  同重体、Ar 付着の  $A=115$  同位体の2価分子イオンが全く同じ条件で同時に測定できており、その相互比較から高い確度で質量を決定できている。この高確度性から、高精度で報告されている文献値の中に、明らかな誤りも複数個見出している。

現在、ToF 検出器に  $\beta$  崩壊を同時に測定できる機能を組み込んだ  $\beta$  ToF を MRTOF に仕込んでおり、 $\beta$  崩壊との相関測定をすることで S/N 比を上げ、現在の測定限界を 1-2 層、より中性子過剰な短寿命原子核の測定が可能になることが期待されている。

### 中性子過剰 Ti, V 同位体質量測定の解析

RIBF の BigRIPS-SLOWRI 施設の末端に整備した ZD-MRTOF 装置では、主実験においてビームダンプに導かれるパラサイトビームを利用した質量測定実験が進行している。2020 年の暮から 2021 年にかけて実施した実験では、約 70 核種の精密質量測定を実施し、3 核種の初質量測定と 10 数核種の質量測定精度の大幅向上が実現できた（図1の紫印の原子核）。それぞれの解析は順調に進んでおり、順次出版される予定である。

図4 は、 $^{58}\text{Ti}$ ,  $^{58}\text{V}$  の水酸化物イオンの飛行時間スペクトルであり、それぞれ 3.7 keV, 5.6 keV の誤差で質量が決定できた。これは従来の測定データを 50 倍、20 倍高精度化したことと相当する。同様の結果が  $^{55}\text{Sc}$ ,  $^{56,58}\text{Ti}$ ,  $^{56-59}\text{V}$  において得られており、この領域の殻構造の理解を大きく変える結果となった。図5 に示すのは、質量の 2 階差分から得られる現象論的殻空隙エネルギー  $\Delta_{2n}$  を魔法数および準魔法数である中性子数  $N=28, 32, 34$  について、陽子数 18-26 の範囲でプロットしたものである。 $\Delta_{2n}$  は、閉殻構造を示す良い指標とされており、従来の理解では、Ca 同位体において見られていた  $N=34$  の準魔法数性が Ti, V 同位体でも存在するとされていたことを完全に覆す結果が得られた。

この結果は、高い中性子軌道  $v\ d5/2$ ,  $v\ g9/2$  を含めたモンテカルロ殻模型計算によって支持され、Ti, V 同位体で  $N=34$  の魔法数性が消えるのは、これらの高い軌道への存在比が高くなっていることに起因することが示唆された。

(S. Iimura, M. Rosenbusch et al., arXive :2208.06621)

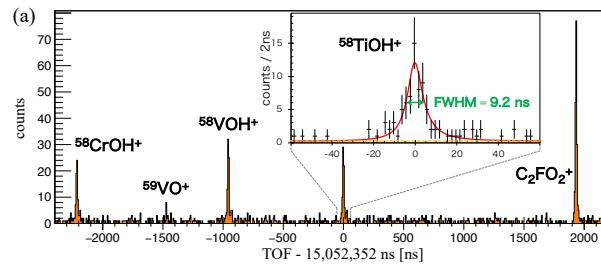


図 4  $A=75$  同重体分子イオンの TOF スペクトル

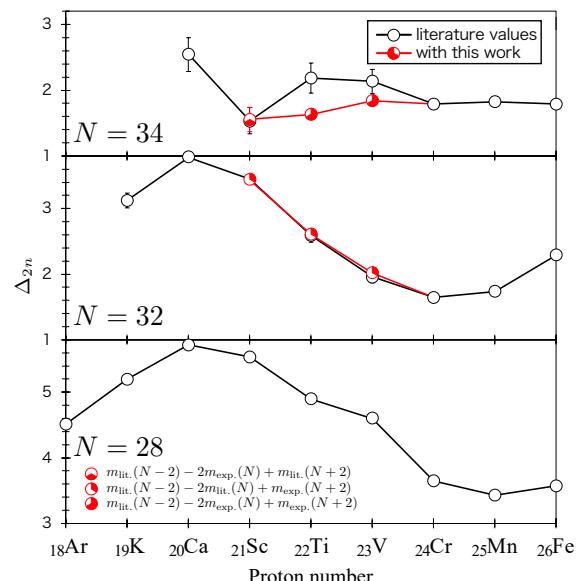


図 5 現象論的殻空隙エネルギー  $\Delta_{2n}$

### KISS の段階的アップグレードへ向けて

KISS の性能を 1 万倍に向上させて、前人未到のウランの起源の解明に向かうべく、KISS-II 計画を立案した。詳細なデザインレポート(KEK-Report 2022-2 で出版予定)を 2021 年 12 月に完成させ、この分野の実験・理論の世界的権威による評価委員会による審査を 2022 年 1 月 12 日、21 日に開催し、高い評価を得、技術的にも「found no shortfalls in it」と高い実現性が担保され

た。国際競争においても「KISS-II is the only realistic project in the world to access to the unknown regions of nuclei in the actinide region responsible for creating heavy natural elements including uranium.」と、優位性が認められた。

これを受けて KEK の SAC(2022 年 3 月 7,8)に計画を提案し、同じく高い評価を得たものの「The SAC recommends KEK search for all funding possibilities in order to keep its leadership in this research area and to reinforce further the collaboration with RIKEN for their mutual benefit.」という結語をもって Category-III に位置付けされた。これを基に策定された KEK-PIP2022 では、優先順位をもって予算獲得を進める 4 件のプロジェクトには選出されなかった。

KISS-II は、初段の気体充填形ソレノイド磁石によって一次ビーム強度を 100 倍 ( $1 \text{ p}\mu\text{A}$ ) に増強する計画であったが、その経費が建設経費の半分近くを占める。外部資金等を利用して段階的にアップグレードを進めるために、ソレノイド以降の部分（大型高周波ガスセル、MRTOF、複数質量数選択形同位体分離器、分光用装置）の整備を先に実現させ、KISS の 100 倍以上の性能を持つ KISS-1.5 計画を一刻も早く実施できるよう準備を進めている。