

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 28 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23740214

研究課題名(和文) 中性子魔法数126を有するアクチノイド原子核の新同位体の合成

研究課題名(英文) New isotope production of neutron-deficient actinide nucleus with N =126

研究代表者

若林 泰生 (WAKABAYASHI, Yasuo)

独立行政法人理化学研究所・仁科加速器研究センター・基礎科学特別研究員

研究者番号：80447359

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では中性子魔法数126の安定性による原子核の新たな存在領域を検証するため、中性子数N=126領域で原子番号Z=92の新同位体の合成実験を行う。実験は理化学研究所の線形加速器施設(RILAC)および気体充填型反跳分離装置(GARIS)を用いて行った。新同位体の合成には重イオン融合反応を用いた。本研究期間内において、 $^{217}\text{U}(Z=92, N=125)$ におけるアルファ崩壊の新たな遷移を発見し、また、ウラン元素において最も中性子欠損した新同位体 $^{215}\text{U}(Z=92, N=123)$ および $^{216}\text{U}(Z=92, N=124)$ の合成に成功した。これらは世界初の観測である。

研究成果の概要(英文)：In this study to evaluate new region arising from the stability of N = 126 closed shell, the production experiments of new isotopes with $Z \geq 92$ and close to N = 126 shell closure were performed.

The experiments were carried out at RIKEN using RILAC and GARIS. We used fusion reactions to produce new isotopes. During the three year study period, the new transitions for $^{217}\text{U}(Z=92, N=125)$ were observed, and two new isotopes of $^{215}\text{U}(Z=92, N=123)$ and $^{216}\text{U}(Z=92, N=124)$ which were the most lightest uranium isotopes were produced. These results are the first observation in the world.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学、素粒子・原子核・宇宙線・宇宙物理

キーワード：新同位体 核構造 核反応

1. 研究開始当初の背景

原子核は、殻構造に起因する魔法数と呼ばれる陽子または中性子数を有すると結合エネルギーが増大し、液滴モデルでは存在しないとされる領域でも原子核が存在する。超重元素と呼ばれる原子核がその例で、殻構造に起因する核分裂障壁が現れ、測定可能な寿命を持って存在できる。

ここで、殻構造を取り入れた核分裂障壁の計算を行うことにより、超重元素とは異なる領域にも原子核が存在するという理論予測がなされた[1]。その理論予測より、中性子魔法数 $N = 126$ の閉殻構造に由来した中性子欠損したアクチノイド原子核が、新たな存在領域を形成する可能性が示唆された。

この領域の原子核を合成することは、安定核で確立された殻構造が未知の領域にも適用できるかを知るうえで、超重元素と並んで重要である。しかしこれまで、原子核を合成する適当な核融合反応と生成断面積の評価が行われず、着目されていなかった。

この領域の原子核の合成断面積はピコバーン程度が予測されるが、日本では日本原子力研究開発機構、理化学研究所が狙える施設を有する。世界的にはドイツ GSI、ロシア FLNR、アメリカ Berkeley などが存在するが、これらの施設では、超重元素を対象としたプロジェクトを行っており、本テーマの $N = 126$ 領域に着目している研究グループはない。

2. 研究の目的

原子核の閉殻構造に起因する魔法数により、原子核の結合エネルギーが増大し、原子核の存在領域は変化する。本研究では特に、中性子魔法数 $N = 126$ の安定性に着目し、古典的な液滴モデルでは存在しないとされる中性子欠損したアクチノイド原子核の存在を実証するため、ネプツニウム ^{219}Np 、原子番号 $Z = 93$ およびプルトニウム ^{220}Pu 、 $Z = 94$ の合成を目的とする。そして、実験的に得られる、それらのアルファ崩壊の半減期とエネルギーをモデル計算と比較・検証し、原子核の存在範囲を調べることを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、存在領域拡大の検証を行うため、 $N = 126$ を有する新同位体 ^{219}Np ($Z = 93$) および ^{220}Pu ($Z = 94$) を、重イオン融合反応を用いて合成し、それらのアルファ崩壊の半減期やエネルギーを測定する。

その手法であるが、理研の線形加速器 (RILAC) から入射される ^{82}Kr ($Z = 36$) ビームを、 ^{139}La ($Z = 57$)、 ^{140}Ce ($Z = 58$) の回転薄膜標的

に照射し、融合反応を用いて新同位体 ^{219}Np 、 ^{220}Pu を合成する。合成された同位体を、気体充填型反跳分離装置 (GARIS) を用いて入射ビームから分離・輸送し、焦点位置に設置してある位置検出型シリコン検出器に埋め込み、その埋め込まれた位置からのアルファ崩壊連鎖を観測することで原子核を同定し[図 1]、半減期とアルファ崩壊エネルギーを決定する。

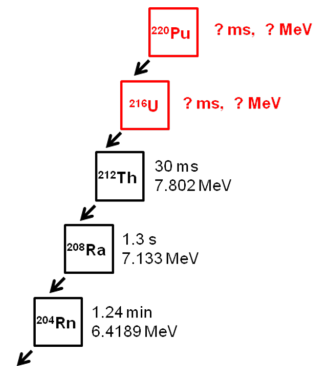


図 1: ^{220}Pu のアルファ崩壊連鎖。

赤字は新同位体、黒字は既知核を示す。既知核に関しては、半減期とアルファ崩壊エネルギーを記してある。未知核(新同位体)からの崩壊であっても、既知核を経由・到達する事により、未知核からの崩壊であると同定が可能。113 番元素など新元素の同定に際しても、同様の手法が用いられる。

そこで、 ^{219}Np および ^{220}Pu の合成実験に必要な照射日数や、その実現可能性の検証を行うため、生成断面積の計算予測がこれらよりも 1~2 桁ほど大きく、 ^{220}Pu の娘核で、自身も新同位体である ^{216}U ($Z = 92$, $N = 124$) の合成実験を上記で述べた手法により行う。得られた崩壊特性(アルファ崩壊の半減期やエネルギー)や生成断面積をモデル計算と比較・検証し、 ^{219}Np と ^{220}Pu の崩壊特性や生成断面積の予測に反映する事で効率良く実験を行う事ができる。

^{216}U の合成を確認後、 ^{219}Np および ^{220}Pu の合成実験を行い、得られた崩壊特性をモデル計算と比較・検証することで原子核の存在範囲を調べる。また、新同位体の合成の検証そのものが、 $N = 126$ 閉殻効果により原子核の存在領域が広がっていることの実証になる。

4. 研究成果

^{219}Np および ^{220}Pu の合成実験に必要な照射日数や、その実現可能性の検証を行うため、それらより計算予測による生成断面積が 1~2 桁大きく、 ^{220}Pu の娘核である ^{216}U の合成実験を行なった。この ^{216}U も未知の原子核であり、 ^{220}Pu 合成時の確かな証拠となる(図 2 参照)。

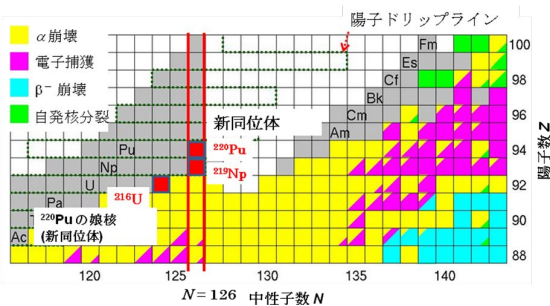


図 2: $N = 126$ 領域の核図表。

既知の原子核に関して、崩壊様式を色分けして示してある。理論予測[1]による未知の原子核に関しては、半減期が 1 マイクロ秒以上と予測される未知核、原子核が存在できない、もしくは、半減期が 1 マイクロ秒未満と予測される原子核を示す。

(1) ^{217}U の新たな遷移の観測

^{216}U 合成実験は、2011 年 10 月に理化学研究所の所有する線形加速器(RILAC)およびガス充填型反跳分離器(GARIS)を用いて行った。入射ビーム ^{82}Kr を標的 ^{138}Ba に照射する $^{82}\text{Kr} + ^{138}\text{Ba}$ 反応による合成を行った。

この実験においては、 ^{216}U の合成の確認には至らなかった。しかしながら、この反応系の生成核で、 $3n$ 反応により得られる、 ^{217}U (既知核種)に関しては、概ね予測通りの合成のイベント数を確認でき、 ^{217}Pa や ^{214}Th などの pxn 反応や xn 反応による生成核に対しても、概ね予測通りの断面積であったため、反応系を変えた実験(例えば、 ^{137}Ba 標的を用いた $3n$ 反応での合成を試みる)が ^{216}U の合成に有効である可能性がある事が分かった。

また、この実験で得られた生成核である ^{217}U のアルファ崩壊に関して、報告されている遷移以外にも、 ^{213}Th の励起状態への新たな遷移が存在する事が分かった[図 2]。 ^{217}U は中性子数 $N = 125$ の原子核であるが、 ^{216}Pa ($Z = 91$)や ^{215}Th ($Z = 90$)などのアイソトーン(中性子数が同じ原子核)のアルファ崩壊の系統性と比較する事により、矛盾のない事が分かった。(雑誌論文、 に記載)

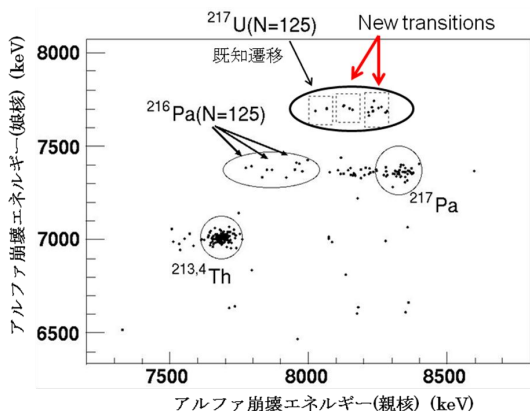


図 3: - 相関図。

横軸は親核のアルファ崩壊エネルギー、縦軸は娘核のアルファ崩壊エネルギーを示す。 ^{217}U に関して、報告されている遷移の他に、New transitionと記した、新たな遷移がある事が分かった。 ^{217}U と同じ中性子数 125 を持つ ^{216}Pa ($Z = 91$)も同様な遷移を持っている事が分かる。

(2) 新同位体 ^{215}U と ^{216}U の観測

(1)の実験結果を元に、 ^{138}Ba および、バリウムの安定同位体 ^{136}Ba と ^{137}Ba の薄膜標的も作製し、前回用いた $^{82}\text{Kr} + ^{138}\text{Ba}$ 反応に加え、異なる反応系である $^{82}\text{Kr} + ^{136}\text{Ba}$ 反応、および、 $^{82}\text{Kr} + ^{137}\text{Ba}$ 反応を用いた実験を 2013 年 10 月に行った。

その結果、新同位体 ^{215}U ($N = 123$)および新同位体 ^{216}U ($N = 124$)からのアルファ崩壊連鎖と思われる事象を観測した[図 3]。これらの新同位体はウラン元素における最も中性子欠損した同位体であり、世界初の観測である。(雑誌論文 に記載)

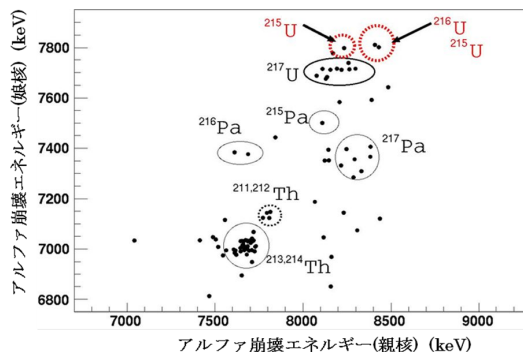


図 4: - 相関図。

図 2 にも見られる ^{217}U よりエネルギーが高い場所に、赤字で示しているように ^{215}U と ^{216}U がある事が分かる。

観測した新同位体のアルファ崩壊連鎖を図 5 に示す。得られた値より、 ^{215}U と ^{216}U のアルファ崩壊エネルギー(E_{α})と半減期($T_{1/2}$)をそれぞれ、 $8436(46)$ keV と $2.2^{+4.1}_{-0.9}$ ms、 $8408(46)$ keV と $4.8^{+23.2}_{-2.2}$ ms と決定した。また、観測した反応系は、 $^{82}\text{Kr} + ^{136}\text{Ba}$ $^{215}\text{U} + 3n$ 、 $^{82}\text{Kr} + ^{137}\text{Ba}$ $^{216}\text{U} + 3n$ であり、合成断面積はそれぞれ $0.34^{+0.45}_{-0.22}$ nb、 $0.19^{+0.44}_{-0.16}$ nb であった。この得られた断面積は、概ね計算予測通りであった。

本研究により得られた ^{215}U と ^{216}U のアルファ崩壊エネルギーと半減期を評価するため、理論計算と比較した。図 6 はウラン同位体の半減期の実験値と半経験式を用いた理論計算[2-6]による半減期との比較を示す。ここで理論計算に用いる Q_{α} 値は、既知のウラン同位体に関しては、Atomic Mass

Evaluation of 2013 および Nuclear Structure Data File (ENSDF)より引用した。本研究により得られた未知核である ^{215}U と ^{216}U の Q -alpha 値に関しては、文献[5]に記載されている式、

$$Q\text{-alpha} = E\text{-alpha} \times A_p/A_d + E_{\text{esc}}$$

$$E_{\text{esc}} = 6.5 \times 10^{-5} \times Z^{1.4}$$

を用いて算出した。ここで、 E -alpha と Z は親核のアルファ崩壊エネルギーと陽子数を、 A_p と A_d はそれぞれ親核と娘核の質量数を示す。

図7はウラン同位体の Q -alpha 値の実験値と理論計算値[1,7-9]との比較を示す。図6と図7より、用いる理論計算によっては大きな違いはあるが、本研究で得られた値は理論計算と矛盾しない事が分かった。

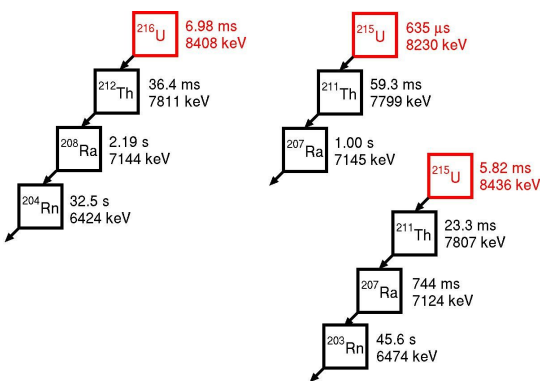


図5: 観測した新同位体のアルファ崩壊連鎖。記述している時間は、親核である新同位体がシリコン検出器に埋め込まれてからアルファ崩壊した時間差を、娘核(トリウム)以降に関しては、アルファ崩壊と次に起こったアルファ崩壊との時間差を示す。記述してあるエネルギーは、観測したアルファ崩壊エネルギーを示す。

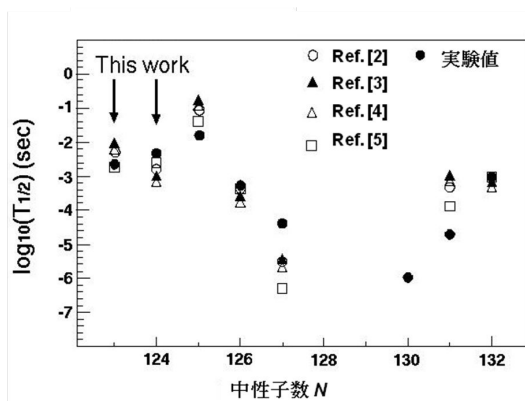


図6: ウラン同位体の半減期の実験値と理論計算値との比較。縦軸の半減期は自然対数でプロットしてある。

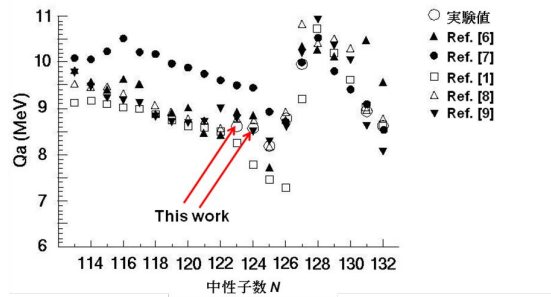


図7: ウラン同位体の Q -alpha 値の実験値との理論計算値との比較。

ここで、新同位体 ^{215}U と ^{216}U の半減期と Q -alpha 値を $N = 123 \sim 126$ において、比較的良く再現している理論計算[2,8]を用いて、 ^{219}Np および ^{220}Pu の半減期と Q -alpha を予測すると、 ^{219}Np に関しては、 Q -alpha = 8825 keV, $T_{1/2} = 2$ ms, ^{220}Pu は、 Q -alpha = 8975 keV, $T_{1/2} = 0.6$ ms となった。この予測される半減期より、 ^{219}Np および ^{220}Pu とともに、合成された場合、十分に観測可能である事が分かった。

また、概ね予測された合成断面積であった ^{215}U と ^{216}U より、 ^{219}Np および ^{220}Pu の予測合成断面積を見積もると、 $^{82}\text{Kr} + ^{139}\text{La} \rightarrow ^{219}\text{Np} + 2n$ 反応、 $^{82}\text{Kr} + ^{140}\text{Ce} \rightarrow ^{220}\text{Pu} + 2n$ 反応を用いた場合はそれぞれ 20 pb、5 pb、もしくは、 $^{83}\text{Kr} + ^{139}\text{La} \rightarrow ^{219}\text{Np} + 3n$ 反応、 $^{83}\text{Kr} + ^{140}\text{Ce} \rightarrow ^{220}\text{Pu} + 3n$ 反応を用いた場合は、1.3 pb、0.8 pb であり、十分に合成可能な事も予測される。

以上の結果、本研究で得られた新同位体 ^{215}U と ^{216}U のアルファ崩壊特性や融合反応における合成断面積は、中性子魔法数 $N = 126$ を有する ^{219}Np や ^{220}Pu の合成を行うにあたり有効なデータであり、実験遂行が可能な事が分かった。特に ^{216}U に関しては、 ^{220}Pu の娘核であるため、 ^{220}Pu の合成時の確証となる原子核である。

文献

- [1]日本物理学会誌, vol60, (2005) 717
- [2]H. Koura, J. Nucl. Sci. Tech. 49, (2012) 816
- [3]Y.T. Oganessian, et al., Phys. Rev. C70, (2004) 064609
- [4]A. Sobiczewski et al., Phys. Lett. B224, (1989) 1
- [5]Y. Hatsukawa, et al., Phys. Rev. C42, (1990) 674
- [6]P. Möller, J.R. Nix, Atomic Data and Nuclear Data Tables 39, (1988) 213
- [7]E. Comay, I. Kelson, A. Zidon, Atomic Data and Nuclear Data Tables 39, (1988) 235
- [8]S. Goriely, N. Chamel, and J. M. Pearson, Phys. Rev. C 82, (2010) 035804
- [9]P. Möller, J.R. Nix, W.D. Myers et al., Atomic Data and Nuclear Data Tables 59, (1995) 185

5. 主な発表論文等
(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 3 件)

Y. Wakabayashi, K. Morimoto, D. Kaji, H. Haba, M. Takeyama, S. Yamaki, K. Tanaka, K. Nishio, M. Asai, M. Huang, J. Kanaya, M. Murakami, A. Yoneda, K. Fujita, Y. Narikiyo, T. Tanaka, S. Yamamoto, and K. Morita,

「New isotope candidates, ^{215}U and ^{216}U 」
RIKEN Accelerator Progress Report、
査読無し(所内査読有)、47、2014、ページ未
定(2014 年発行予定)

Y. Wakabayashi, K. Nishio, S. Mitsuoka,
K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji, H. Haba,
T. Sumita, A. Yoneda, and Y. Gono、

「New α -decay transitions of ^{217}U 」
RIKEN Accelerator Progress Report、
査読無し(所内査読有)、46、2013、p.3
[http://www.nishina.riken.jp/researcher/
APR/Document/ProgressReport_vol_46.pdf](http://www.nishina.riken.jp/researcher/APR/Document/ProgressReport_vol_46.pdf)

Y. Wakabayashi, K. Nishio, S. Mitsuoka,
K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji, H. Haba,
T. Sumita, A. Yoneda, and Y. Gono、

「Attempt to synthesize a new
neutron-deficient isotope, ^{216}U 」
RIKEN Accelerator Progress Report、
査読無し(所内査読有)、45、2012、p.19
[http://www.nishina.riken.jp/researcher/
APR/Document/ProgressReport_vol_45.pdf](http://www.nishina.riken.jp/researcher/APR/Document/ProgressReport_vol_45.pdf)

〔学会発表〕(計 1 件)

若林泰生、西尾勝久、光岡真一、森本幸司、
加治大哉、羽場宏光、西中一郎、牧井宏之、
住田貴之、米田晃、森田浩介、
「中性子魔法数 126 領域の中性子欠損したア
クチノイド原子核の新同位体合成」
日本物理学会 2013 年秋季大会、
2013 年 9 月 22 日、高知大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

若林 泰生 (WAKABAYASHI, Yasuo)

独立行政法人理化学研究所・仁科加速器研
究センター・基礎科学特別研究員

研究者番号：80447359