

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 12 日現在

機関番号：82118

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24740180

研究課題名(和文)r過程経路上の中性子126近傍核の高純度かつ高効率分離収集用ガスセルの開発

研究課題名(英文)Development of high efficient gas cell for collecting the r-process nuclei around N=126 and producing the high purity beam of the nuclei

研究代表者

平山 賀一 (HIRAYAMA, Yoshikazu)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核研究所・助教

研究者番号：30391733

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,500,000円、(間接経費) 750,000円

研究成果の概要(和文)：中性子数126の中性子過剰核の寿命測定することで、宇宙での早い中性子捕獲反応による重元素合成過程の謎を解明することができる。そのために必要な単一原子核分離生成用アルゴンガスセルを開発した。流体シミュレーションを元に設計したガスセルを製作し、その基本性能を、ガスセル内に設置したフィラメントを使用したオフライン試験および理化学研究所の加速器で加速されたビームを用いたオンライン試験で調べ、目標の性能を達成するように改良した。その結果、世界最速となるアルゴンガス輸送時間200ミリ秒で引出効率0.15%、純度98%以上で単一原子核ビームの生成に成功した。目的とする不安定核の寿命測定が可能となった。

研究成果の概要(英文)：By measuring the half-lives of neutron-rich radioactive nuclei with N=126, it is considered that it is possible to understand the process of nucleosynthesis of heavy elements by a rapid neutron-capture reaction in the cosmos. In order to understand the process, we have developed an argon gas-cell with laser ionization for producing an element- and mass-selected radioactive ion beam. The design of a gas cell was optimized by using a flow simulation. The basic property of the gas cell was investigated from the off-line test using a filament placed in the gas cell and from the on-line test using an accelerated beam at RIKEN facility. We have successfully produced an element- and mass-selected ion beam, whose extraction time of about 200 ms was faster than the gas cell produced so far. Owing to the gas cell, we can measure the half-lives of the radioactive nuclei with N=126 for understanding the element synthesis in the cosmos.

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：国際情報交換 ベルギー 元素合成 アルゴンガスセル レーザー共鳴イオン化

### 1. 研究開始当初の背景

元素の起源解明は天体の進化と定量的に結びつけて理解できるようになり、その結果、水素から鉄に至るまでの元素の起源となる天体環境が明らかとなった。鉄からウランに至る重い元素の半分は速い中性子捕獲過程(r過程)により合成されたと考えられているが、r過程による元素合成過程及び、それがどのような天体環境下で起こるのか、未だ解明されていない。これを解明するには、r過程時に生成される中性子過剰な重い不安定核、特に滞留核と呼ばれている中性子数  $N=50, 82, 126$  の不安定核のベータ崩壊様式、寿命、質量等の核データをベータ崩壊核分光で詳細に調べる必要がある。数十から数百ミリ秒の滞留核の寿命がr過程時間を決めており、r過程の起源である天体環境を特定する上で不可欠な情報である。特に中性子数 126 の中性子過剰な滞留核を生成する原子核反応率は小さく、ほとんどの核種が生成されておらず、未開拓領域となっている。

そこで質量数 136 の安定核キセノンビーム ( $^{136}\text{Xe}$ ) と質量数 198 の白金標的 ( $^{198}\text{Pt}$  ( $Z=78, N=120$ )) の低エネルギー ( $\sim 10\text{MeV/核子}$ ) 多核子移行反応で滞留核を生成し、アルゴンガス中で滞留核イオンを中性化・停止させて、再度レーザー共鳴イオン化法でイオン化し、低速 ( $60\text{keV}$ ) イオンビームとして引出し、ベータ崩壊特性を調べる方法に着目した。

### 2. 研究の目的

金・白金・ウラン等の重元素を合成する速い中性子捕獲過程の起源となる天体環境を解明する上で重要な中性子数  $N=126$  の希少重原子核のベータ崩壊特性とその元素合成に与える影響を、精密ベータ崩壊核分光実験により世界に先駆けて解明することを目指している。希少核反応率で生成される  $N=126$  の不安定核の研究を飛躍的に発展させるには、希少不安定核を高純度かつ高効率で分離・収集可能な単一原子核イオンビーム生成用ガスセルを開発する必要がある。

以下に述べる特徴のあるガスセルシステムを構築することが本研究の目的である。多核子移行反応による標的反応生成核は、低エネルギーで大きなエネルギー広がりや散乱角度広がりを持ち、スペクトロメータによる高効率の捕集・分離は困難である。しかし、標的をアルゴンガス中に置くことで  $400\text{cm}^3$  程度の容量内に反応生成核を 100% 捕集可能である。原子の固有励起エネルギーに相当する波長のレーザを 2 本同時に照射することで目的の元素のみをイオン化し (原子番号  $Z$  の選択)、低速イオンビームとして引き出し、磁気的質量分離器で質量数 ( $A$ ) を選択することで、単一の原子核のみを選択することがで

きる。結果、約 1000 倍の不純物の中から目的とする未知原子核の分離・収集・核分光測定が可能となり、精密実験を行う環境が整う。

### 3. 研究の方法

流体解析コードで設計したガスセル (図 1) の性能を、フィラメントから放出される安定核を使用したオフライン試験と理化学研究所の加速器で加速されたビームを用いたオンライン試験で調べ、高純度かつ高効率な単一原子核ビーム生成用ガスセルを開発する。

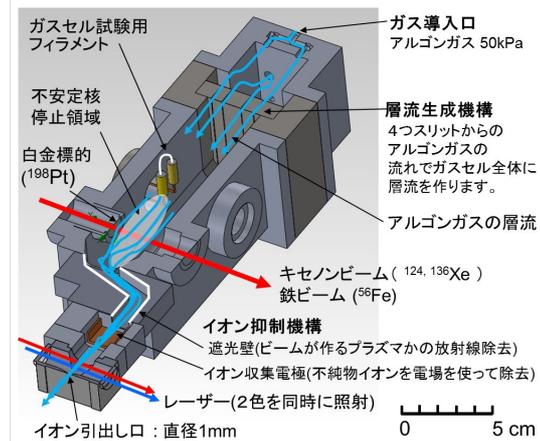


図 1: 流体解析コードで設計、製作したガスセルの断面図。

平成 24 年度は、ガスセル内に設置したフィラメントを用いて安定核ニッケル、鉄、イリジウム元素を放出させ、アルゴンガスによる輸送時間分布を測定し、層流生成機構の最適化を行う。安定核ニッケル、鉄元素を用いたオフライン試験で、ガスセルのベッキングおよびガスの純化フィルターにより水和物分子・イオンの生成確率を抑制することで、中性単原子の存在確率が飛躍的に上がるか調べる。

平成 25 年度には、加速器で  $10\text{MeV/核子}$  まで加速した鉄ビームをガスセルに照射しプラズマを発生させて、イオン抑制機構 (遮光壁) の機能と同時に高効率な層流が形成されていることを確認する。最後に、鉄ビームをガスセルに入射し、層流生成機構、イオン抑制機構が全て同時に機能しているか調べ、必要に応じて改良を加える。その後、安定核キセノンビーム ( $^{124}\text{Xe}$ ) 照射により、ガスセル中に設置した安定核  $^{198}\text{Pt}$  標的から弾性散乱で放出される  $^{198}\text{Pt}$  原子を捕集、レーザー共鳴イオン化し、重元素の引出し効率を測定する。これにより目的とする重元素領域で、単一原子核ビームを生成できていることを確認する。

### 4. 研究成果

(1) ガスセル内にシミュレーション通りのアルゴンガスの層流が形成されているかを調べた。まず鉄フィラメントから中性鉄原子を

アルゴンガスセル中に放出し、一次ビーム照射位置に沿って共鳴イオン化用レーザーを照射することで、鉄イオンを生成し、引き出される鉄イオンの時間分布からガス輸送時間を測定した。図2はレーザー照射時刻を0ミリ秒として測定した鉄イオンの引出し時間分布である。青線が実験値であり、赤線が計算値である。両方が良く一致していることから、ガスセル内部に予測したアルゴンガスセルの層流が形成されていると期待できる。引出し時間のピーク値200ミリ秒は世界最速の値であり、本研究を進める上で十分な値である。

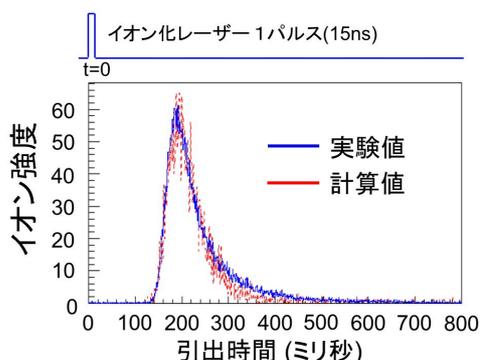


図2：鉄イオンの引出時間の実験値と計算値の比較。

(2)ガスセル内部では、レーザーイオン化された目的のイオン以外に、一次ビーム照射時に生成される不純物イオンが多数存在する。これらの不純物イオンが同時に引き出されると、引き出されたビーム純度が悪化し、ベータ崩壊核分光を行う上で精度および必要な測定時間が余計に必要となる。これらの不純物イオンを捕集するために、ガスセル内に設置したイオン収集電極(図1参照)の性能をオフライン試験で調べた。

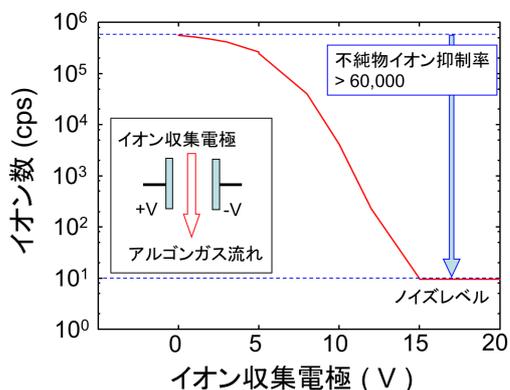


図3：不純物イオン抑制率のイオン収集電場依存性の測定。

一次ビームの代わりに線源から放出されるアルファ粒子(40kBq)をガスセル内に照射し、アルゴンのプラズマを生成することで不純物イオンをガスセル中に生成させた。図3

に示したようにイオン収集電極に15V引火することで、質量数59(ArH(H<sub>2</sub>O)分子)の不純物イオンをイオン検出器のノイズレベルとなる約10<sup>5</sup>分の1まで抑制することができた。

(3)ガスセル内に不純物が存在すると、目的の原子が不純物イオンを形成し、単体原子としての引出効率が低下する。これを防ぐためにガスセルシステムから不純物を0.1ppb程度まで取り除く必要がある。図4は、オフライン試験で調べた、ガスセルシステムの不純物イオンの質量分布を表している。図4(a)では、アルゴンガスおよびガスセルに含まれる水や炭化水素がアルゴンイオンと不純物イオンを形成している。ガスセルシステムを120度でベーキングすることで主にガスセルに含まれる炭化水素を取り除くことができた(図4(b))。しかしながら、水分子は依然としてアルゴンガス中に含まれている。これを取り除くためにゼオライトのフィルターをアルゴンガス供給ラインに設置することで、図4(c)のようにアルゴンダイマー(Ar<sub>2</sub>)ピークとその水素化合物のピークにまで不純物を除去することができた。これによりオンライン試験で引出し効率の向上率を調べたところ、約10倍向上させることに成功した。

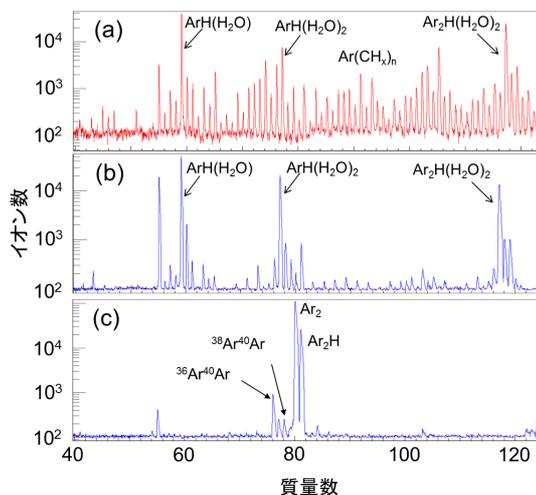


図4：ガスセルシステムの不純物イオンの質量分布。ガスセルシステムの清浄度が改善されていく過程を表している。

(4)オフライン試験でガスセルの基本的な性能が予測通りであることを確認した後、理化学研究所の加速器で90MeV/核子に加速された<sup>56</sup>Feビームを用いて、<sup>56</sup>Feの引出し効率と引出した<sup>56</sup>Feビームの純度を測定した。ガスセル中心に<sup>56</sup>Feを停止させるために、アルミ板のエネルギー減衰板でエネルギーを1.5MeV/核子に減速し、最大強度4pA打ち込んだ。打ち込んだ鉄イオンは中性化しガス輸送されて、ガスセル出口直前でレーザー共鳴イオン化されてビームとして引き出される。

図5は引出効率の $^{56}\text{Fe}$  ビーム強度依存性を測定したグラフである。引出効率の定義は、ガスセル中に停止した $^{56}\text{Fe}$  原子に対して、レーザー共鳴イオン化して引き出されたイオンの割合である。遮光壁(図1参照)をガスセルに導入することによって、打ち込みビーム強度に依存せず約0.25%の効率で引出せることを確認した。この効率であれば、白金( $Z=78$ )、イリジウム( $Z=77$ )、オスミウム( $Z=76$ )の新たな不安定同位体を20種類程度発見し、寿命を測定することが可能である。

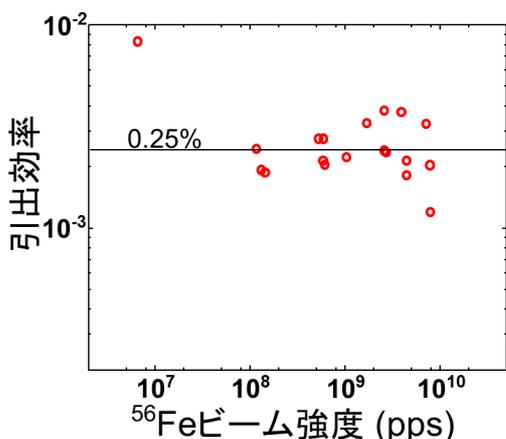


図5： $^{56}\text{Fe}$  イオンの引出効率のビーム強度依存性。

図6は引き出した $^{56}\text{Fe}$  ビーム純度の $^{56}\text{Fe}$  ビーム強度依存性を測定したものである。ビーム純度の定義は、レーザー照射時に測定した質量数56のイオン数(S+N)に対して、レーザーオフ時に測定した質量数56イオン数Nからレーザー共鳴イオン化された $^{56}\text{Fe}$  イオン数Sを評価して、 $S/(S+N)$ で得られる値である。ビーム強度に緩やかに依存して純度が低下しているが、約98%以上の純度でビームを引出すことに成功しており、ベータ崩壊核分光を行う上で十分な値を得ることができた。

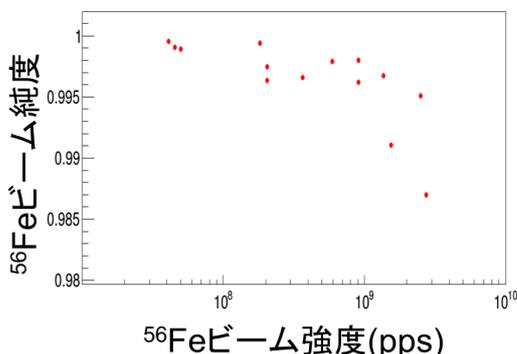


図6： $^{56}\text{Fe}$  ビーム純度の打ち込みビーム強度依存性。

(5)寿命測定で予定しているキセノンビーム $^{136}\text{Xe}$ よりも12個中性子数が少ない $^{124}\text{Xe}$ ビームを用いて、ガスセル内に設置した白金 $^{198}\text{Pt}$

標的から弾性散乱により放出される $^{198}\text{Pt}$  原子の引出し効率測定を行った。目的とする重元素領域でどの程度の引出し効率があるのか、どのような不純物イオンを形成しているか、を調べることは、寿命測定に必要なビームタイムを評価する上で不可欠である。白金の場合、単体 $^{198}\text{Pt}$ で存在する確率は $^{198}\text{PtAr}_2$ の存在確率の1/10と低いことが判明した。しかし、ベータ崩壊の寿命を測定する上ではアルゴンダイマーが付着した $^{198}\text{PtAr}_2$ でも問題は無い。

図7は $^{198}\text{PtAr}_2$  イオンの引出効率の $^{124}\text{Xe}$  ビーム強度依存性を測定した結果である。打ち込み強度に依存せず、0.15%の効率を得られた。この値でも十分に20程度の新同位体を生成し、寿命を測定することが可能である。

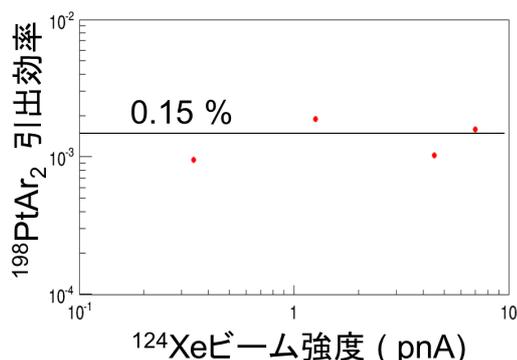


図7： $^{198}\text{PtAr}_2$  イオンの引出効率の $^{124}\text{Xe}$  ビーム強度依存性。

(6)本研究により開発したガスセルは、目的とする重元素領域で約0.15%の引出効率を有しており、白金( $Z=78$ )、イリジウム( $Z=77$ )、オスミウム( $Z=76$ )の新たな不安定同位体を20種類程度発見し、寿命を測定することが可能である。

ガスセルを改良することで一桁引出効率を改善でき、更に20種類の新同位体元素の寿命が可能となる。r過程が起こる天体環境を知る上で不可欠な核データを得ることができる。

#### 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5件)

1. Y. Hirayama, (1番目)(計11名), Ionization cross section measurements for autoionizing states of iridium and rhenium, Journal of physics B atomic molecular and optical physics, 査読有, 47巻、2014、075201 pp.1-8  
DOI: 10.1088/0953-4075/47/7/075201

2. Y. Hirayama, (1番目)(計14名), Present

Status of KEK Isotope Separation System, European Physical Journal Web conference, 査読有、66 巻、2014、11017 pp.1-4  
DOI:10.1051/epjconf/20146611017

- 3 M. Mukai, Y. Hirayama, (2 番目)(計9名), In-gas-cell laser ion source for KEK isotope separation system, Review of Scientific Instrument, 査読有、85 巻、2014、02B906 pp.1-3  
DOI:10.1063/1.4827/112
- 4 Y. Hirayama, (1 番目)(計 15 名), Off-line test of the KISS gas cell, Nuclear Instruments and Methods B, 査読有、317 巻、2013、480-483  
DOI:10.1016/j.nimb.2013.06.032
- 5 Y.X. Watanabe, Y. Hirayama, (2 番目)(計 22 名), Study of collisions of  $^{136}\text{Xe}+^{199}\text{Pt}$  for the KEK isotope separator, Nuclear Instruments and Methods B, 査読有、317 巻、2013、752-755  
DOI:10.1016/j.nimb.2013.04.036

[学会発表](計 7 件)

- 1 Y. Hirayama, beta-decay spectroscopy of r-process nuclei with N=126 at KISS(招待講演), The 12<sup>th</sup> International Symposium on Origin of Matter and Evolution of Galaxies, 2013 年 11 月 17 日 - 22 日、つくば国際会議場
- 2 平山 賀一、Development of KEK Isotope Separation System I, 日本物理学会、2013 年 9 月 20 日 - 23 日、高知大学朝倉キャンパス
- 3 Y. Hirayama, Development of the KISS gas cell, The 11<sup>th</sup> IGISOL Workshop, 2013 年 6 月 11-13 日、ユバスキュラ大学(フィンランド)
- 4 Y. Hirayama, Present status of the KEK isotope separation system, The 25<sup>th</sup> International Nuclear Physics Conference (INPC2013), 2013 年 6 月 2-7 日、フィレンツェ国際会議場(イタリア)
- 5 Y. Hirayama, On and Off-line test results of the KISS gas cell(招待講演), Workshop on low-energy radioactive isotope beam production by in-gas laser ionization for decay spectroscopy at RIKEN, 2012 年 12 月 10 - 11 日、理化学研究所
- 6 Y. Hirayama, On and Off-line test results of the KISS gas cell, The 16<sup>th</sup>

IUPAPA International conference on electromagnetic isotope separators and techniques related to their applications (EMIS2012), 2012 年 12 月 2-7 日、松江くにびきメッセ

- 7 Y. Hirayama, Spectroscopy of r-process nuclei with N=126 by KISS(招待講演), Workshop on "Gas-cell-based laser ionization spectroscopy developments", 2012 年 5 月 31 日-6 月 1 日、ルーバンカトリック大学(ベルギー)

[その他]  
ホームページ等  
<http://kekrnb.kek.jp>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

平山 賀一 (HIRAYAMA Yoshikazu)  
大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核研究所・助教  
研究者番号：30391733