科学研究費助成事業

研究成果報告書



交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 31,800,000円

研究成果の概要(和文):重元素を合成する速い中性子捕獲過程の起源天体の環境解明を目指し、中性子数N= 126近傍核のベータ崩壊核分光実験を行った。そのために三つの開発を行った。(1)ドーナツ型ガスセルを開発 し、反応生成物の収量を10倍増やすことに成功。(2)新たに色素レーザーを導入し、重元素のレーザー共鳴イオ ン化様式探索に成功。(3)希少短寿命核の寿命測定のため、高効率・低バックグラウンドガス検出器を開発。そ の結果、短寿命核199,201Pt、196,197,198,2011r,1960sの寿命測定に成功した。更にレーザー共鳴イオン化核 分光法で、核磁気モーメントと荷電半径の変化量の導出に成功した。

研究成果の概要(英文): In order to reveal the astrophysical environment for the formation of the 3rd peak in the solar r-abundance pattern produced by the r-process, we performed precise beta-decay spectroscopy of the nuclei around neutron magic number N=126. We developed the following three items to proceed with our research. (1) We developed a doughnut-shaped gas-cell and could increase the production yield by a factor of ten. (2)We installed a new dye laser and established laser resonance ionization schemes of the heavy elements with atomic number Z=73-78. (3)We developed highly efficient and low-background gas-counter for the lifetime measurement by detecting the beta-rays. As the result, we can successfully measure the lifetimes of 199,201Pt, 196,197,198,201Ir and 1960s. Moreover, we can evaluate the magnetic dipole moments and the change of the charge radii by using the in-gas-cell laser ionization spectroscopy technique successfully.

研究分野: 実験核物理

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

2版

1. 研究開始当初の背景

天体核物理学分野において主な課題のひ とつは重元素がどう合成されたのかであろ う。1957 年に既に Burbidge らによって提 唱されて以来、鉄より重い元素の半分は速い 中性子捕獲元素合成(r 過程)によって合成 されたと考えられている。r 過程は核図表上 質量数 80、130、195 近傍の中性子魔法数を 持つ超中性子過剰な原子核(夫々、N=50、 82、126 滞留核)を通る。そのため、高温、 高密度の中性子を持つ天体環境が必要とな り、大質量星が進化の末、終焉を迎えるとき の超新星爆発で発生する衝撃波に伴う過程 がその天体起源であると考えられているも のの、今後の理論・観測双方において更なる 進展が待たれている。 r 過程経路上並びにそ の近傍の超中性子過剰核の実験的研究は、星 の元素組成の天体観測と星の進化理論間の 接点となる元素合成ネットワーク計算に使 える直接的なデータを提供し、重元素起源天 体解明の掛け橋となる。4000 にも上る核種 が関わるその計算において、特に、滞留核の 崩壊寿命は、r 過程の進行と全体の時間規模、 その結果元素組成比パターンを理解する上 で不可欠である。

滞留核の中でも最も重い N=126 滞留核は、 r 過程元素合成の最後のボトルネックとし て、星の年代推定に重要な超重元素の組成 (ウラン、トリウム等)にも関わる。N=50、 82の滞留核近傍は、最近実験室での合成が可 能となり、得られた実験データを元にファク ター2以内でベータ崩壊寿命予測ができる ようになった。しかし、本研究で注目してい る N=126 滞留核近傍は未だに有力な生成手 法がなく、核図表の未到達域(ブランクスポ ットになっており、ベータ崩壊寿命は理論計 算の予測に頼るしかない。それに、この領域 では、N=50、82 滞留核近傍とは異なり、通 常であれば凡そ 100 倍も違う□崩壊様式が 競合することが考えられ、N=126 滞留核近 傍核のベータ崩壊寿命予測値は模型によっ て一桁以上のバラツキがある。ベータ崩壊様 式の競争を精度よく記述するには、N=126 近傍核の詳細な核分光的な知見が不可欠で あるが、それに先駆けて崩壊様式の競争に対 する実験的な裏付けとして理論計算の標準 となる崩壊寿命の実験値が切望されている。

2. 研究の目的

r 過程経路における最後のボトルネック である第3ピーク滞留核付近のベータ崩壊 核分光を行い、今まで最も不正確であったそ の滞留核に対する原子核理論の予見能力を 著しく改善させ、重元素の起源天体を論ずる に当たって、原子核物理学から生じる不確定 さの完全解消への突破口を開くことを目指 している。そのため、本研究では、核子当た り 10MeV 程度の¹³⁶Xe ビームと¹⁹⁸Pt 標的 を用いた多核子移行反応で、効率良くブラン クスポット領域の短寿命核を生成し、当研究 グループが開発した生成核の元素選択型質 量分離器・実験装置の性能向上させるための 開発を行い、核図表において今まで到達困難 とされた第3ピーク滞留核(質量数~195 近 傍、中性子数=126)近傍核のベータ崩壊寿命 を測定する。

3. 研究の方法

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の解明を 目指し、¹³⁶Xe ビームと¹⁹⁸Pt標的を用いた多 核子移行反応で生成した中性子数 N=126の安 定閉殻近傍核の精密ベータ崩壊核分光実験 を行った。

加速器を用いたオンライン実験で効率良 く測定を行うために、次の3項目の開発を実 施した。

(1)多核子移行反応で生成される希少原子 核を高速かつ高効率で分離、収集可能な単一 原子核ビーム生成用ガスセルの開発。

(2)高効率かつ安定したレーザー装置の開 発および重元素のレーザー共鳴イオン化様 式の確立。

(3) 寿命測定用の高効率・低バックグラウ ンドなベータ崩壊測定用検出器およびベー タ遅発ガンマ線測定用のゲルマニウム検出 器の開発。

4. 研究成果

(1) レーザー共鳴イオン化したイオンは、ア ルゴンガス中の不純物と分子イオンを形成 し、単体イオンとして存在する確率が低下し ていることが判明した。¹⁹⁸Pt 標的を使用した 加速器実験では、¹⁹⁸Pt⁺: ¹⁹⁸Pt H₂^{+:198}PtH₂0^{+:198}PtAr₂⁺=1:1:1:6の比率で分子 イオンを形成しており、¹⁹⁸Pt⁺は 1/9 しか存在 しない。



図1:安定核^{191,193}Irの分子イオンの質量分 布。SPIG1-SPIG2間に-30Vの加速電圧を印可 することで分子イオンの解離に成功。

効率を向上させるためにイオンを高周波 でトラップして輸送する六極高周波イオン ガイド(SPIG)をこれまでの1組から 2~3 組 に増やし、各 SPIG 間に印可した電場でイオ ンを加速し雰囲気中(20Pa)のアルゴンガス との衝突により、分子イオンを解離させて単 体イオンとしての存在比の改善を図った。図 1は加速器を用いないオフライン試験で、イ リジウム原子をレーザーイオン化して測定 したイオンの質量分布である。SPIG1-SPIG2 間に-30Vの電場を印可(青線の質量分布)す ることによって、分子イオンを解離し、単体 のイリジウムイオンの引き出し量増加に成 功したことを示している。その後、オンライ ン試験を行い、ほぼ¹⁹⁸Pt⁺のみを引き出すこと に成功した。

(2) これまで運用中のガスセルは一次ビーム入射用にハーバー薄膜窓(アルゴンガス1 気圧を封じるため)を有しており、その窓を 通してガスセル内部に設置した白金標的に ビームを照射し、未知核を生成していた。そ のため、ハーバー薄膜窓および白金標的が一 次ビームの熱損傷で破損しない10pnA 程度の ビーム強度しか利用できない。未知核の生成 量を飛躍的に増大するためには、大強度一次 ビームを利用できる新ガスセルシステムが 必要である。また一次ビームの作るアルゴ ンプラズマがガスセルからの引出し効率低 下の原因であり、できるだけ一次ビームが ガスセル内に入らない工夫が必要である。

この相反する要求、ガスセル内のプラズ マ効果を低減させつつ、一次ビーム増大によ る多核子移行反応生成物の収量増加を実現 させるために、一次ビームが直接ガスセル内 に入射しないドーナツ型ガスセルと回転標 的を開発した(図2参照)。その結果、引き 出し効率が5倍に増え、一次ビーム強度を増 大でき、反応生成物の収量を10倍に増やす ことに成功した(図3参照)。



図2:開発したドーナツ型ガスセル写真(右上)と、回転標的含めた実験装置の写真(全体)。一次ビームはガスセルに入ることなく、 ドーナツの穴部分を通り抜ける。一方、生成 された短寿命核は放出角度が大きいので、カ プトン薄膜窓を通してガスセル内に打ち込ま れる。



図3:短寿命核¹⁹⁹Pt イオン引き出し量の一次 ビーム強度依存性。

(3) 生成量の少ない短寿命核の核分光を行 うためには、高効率かつ長時間安定のレーザ ー装置を構築する必要がある。これまで使用 してきた色素レーザーは25年前のもので ありメーカーによる保守もなく、安定性に欠 けていた。その点において新規導入した色素 レーザーは、各段に性能が上がっている。波 長及び強度を常にモニターすることで、長時 間の安定性を容易に保てる。そのおかげで、 ガスセル内に設置したフィラメントから蒸 発した中性原子のタンタル(Z=73)、レニウム (Z=75)、オスミウム(Z=76)、イリジウム (Z=77)、白金(Z=78)を用いたオフライン試験 で、効率の良いレーザー共鳴イオン化様式の 探索に成功した (表1)。λ₁と λ₂(308nm 固定) の2色のレーザーを同時に照射してイオン 化している。波長λ」は各元素に固有であるた め、元素選択性がある。波長λ₁を 250nm 近傍 に選ぶことで実験中に引き出す元素を容易 に変更できる。短寿命核をイオン化する際に 不可欠な情報である同位体シフト量、アルゴ ンガス中での波長の圧力シフト量を定量的 に調べることができた。これらは。元素中で 最高融点を有するタングステン(Z=74)につ いては今後調べる予定である。

元素	イオン化 エネルギー (eV)	λ ₁ (nm)	イオン 化様式 の確立	同位体シフト (pm/1a.u.)	圧カシフト (pm/100kPa)
Pt (Z=78)	8.96	248.7920	0	-0.13	0.35
Ir (Z=77)	8.97	247.5871	0	0.24	0.26
Os (Z=76)	8.44	247.7583	0	-0.17	1.0
Re (Z=75)	7.83	252.0763	0	0.28	0.30
W (Z=74)	7.86	255.2115	予定		-
Ta (Z=73)	7.55	248.5706	0		1.3

表1:重元素のイオン化レーザー波長λ₁ と測 定した同位体シフト量、圧力シフト量。

(4) 生成量が少ない短寿命核のベータ崩壊 寿命測定のため、高効率かつ低バックグラウ ンドガス検出器を開発した(図4参照)。この ガス検出器は16組32チャンネルに分割され ており、検出パターンでバックグラウンドを 除去できる。用いたガスはアルゴン+メタン (10%)の混合ガスで、比例係数管として使用 する。各組の固有検出効率は 95%以上、有感 立体角は 80%ある。一般的に、低エネルギー ベータ線になるとエネルギー損失のため検 出効率が低下する。しかしながら、ガス検出 器にすることによって、1MeV 程度のベータ線 検出効率をこれまでの絶対検出効率 10% (プ ラスチックシンチレータ)から 30%に上げる ことに成功した。バッググラウンド計数率も 0.08cps まで低減させることに成功した。



図4:左はガス検出器の写真。中心部分にア ルミ蒸着マイラーテープがあり、短寿命核ビ ームはそこに打ち込まれ、放出されるβ線を ガス検出器で検出する。右図はガス検出器を 上から見た概念図である。16 組 32 チャンネ ルの検出器の信号の組み合わせから、正しい β線の信号を判断し、バックグラウンド((BG) を除去できる仕組みになっている。

上記のベータ線検出器の後ろにガンマ線 検出器として、4 台のスーパークローバーGe 検出器(SCGe, 16ch)を配置した(図5参照)。 検出効率は、これまで使用していた同軸型Ge 検出器の10倍に増大できた。ガス検出器と SCGe 用に新たなデータ取得システムを構築 し、2kHzのイベント数に対して98%以上の高 効率でデータ取得できる。



図5:開発したベータ遅発ガンマ線核分光用 の検出器の写真。上記のガス検出器の周りに ガンマ線測定用のスーパークローバーGe検出 器を4台配置している。

(5) 上記(1)-(4)の開発により、短寿命核 ^{199,201}Pt、^{196,197,198,201}Ir, ¹⁹⁶Os を引出し、ベー タ崩壊の寿命を測定することに成功した。図 6に典型例として^{197,198}Irの測定結果を示す。 測定時間 30 分から 2 時間程度で十分な精度 を達成できている。このことから、今後、よ り中性子過剰核の寿命測定を実施できるこ とが判明した。



図6:^{197,198}Irのベータ崩壊寿命測定結果。



図7:短寿命核¹⁹⁹Ptのレーザー核分光結 果。上図はアイソマー状態からの崩壊ガン マ線検出により測定した超微細相互作用構 造(HFS)。下図はベータ線検出により測定し たHFSであり、アイソマー状態と基底状態 からのベータ崩壊が混入しているため、2 成分で解析している。

(6)レーザー共鳴イオン化法でのイオン効率 を最適化するためには、短寿命核原子の超微 細相互作用による原子のエネルギー分布を 知る必要がある。この測定によって、最適化 を図ると同時に、より詳細に核構造を議論 できる磁気モーメントと荷電半径の変化 量を導出することができる。これらの物 理量から波動関数を導出でき、理論予測 の精度向上に大きく貢献できる。この領 域は、高融点元素が多いため、安定核に 1.2 個中性子が付いた短寿命核ですら、測 定結果がない。

本研究では、寿命測定に加えて、^{199, 199m}Pt, ^{196,197,198}Irのレーザー核分光を行った。ス ーパークローバーGe検出器のおかげでア イソマー^{199m}Pt(t_{1/2}=13.6s)からの崩壊ガン マ線を効率良く測定できたので、アイソマ ー状態と基底状態の磁気モーメントと荷電 半径の変化率を導出できた。現在、 ^{196,197,198}Irについても同様に解析中である (図7参照)。

本研究により、β崩壊の寿命測定、HFS 測 定を展開できる環境が整い、いくつかの測定 に成功している。

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 8件)

①<u>Y. Hirayama, Y. X. Watanabe, H. Miyatake,</u> P. Schury, M. Wada, M. Oyaizu, Y. Kakiguchi,
M. Mukai, S. Kimura, M. Ahmed, <u>S. C. Jeong</u>,
J. Y. Moon, J. H. Park, Nuclear spectroscopy of r-process nuclei around
N=126 using KISS, IL NUOVO CIMENTO 39 C
查読有、2016, 359-1, 359-5,
DOI: 10.1393/ncc/i2016-16359-9

②<u>Y. Hirayama, Y.X. Watanabe</u>, N. Imai, <u>H.</u> <u>Ishiyama</u>, <u>S.C. Jeong</u>, H.S. Jung, <u>H.</u> <u>Miyatake</u>, M. Oyaizu, S. Kimura, M. Mukai, Y.H. Kim, T. Sonoda, M. Wada, M. Huyse, Yu. Kudryavtsev, P. Van Duppen, On-line experimental results of an argon gas cell-based laser ion source (KEK Isotope Separation System), Nucl. Instrum. Methods B, 査読有、2016, 376, p52-56 doi:10.1016/j.nimb.2016.03.031

③M. Mukai, <u>Y. Hirayama</u>, <u>H. Ishiyama</u>, H. S. Jung, <u>H. Miyatake</u>, M. Oyaizu, Y. X. Watanabe, S. Kimura, A. Ozawa, <u>S. C. Jeong</u>, T. Sonoda, Search for efficient laser resonance ionization schemes of tantalum using a newly developed time-of-flight mass-spectrometer in KISS, Nucl. Instrum. Methods B, 査読有、2016, 376, p73-76, doi:10.1016/j.nimb.2016.02.017

④S. Kimura, <u>H. Ishiyama, H. Miyatake, Y.</u> <u>Hirayama</u>, <u>Y. X. Watanabe</u>, H. S. Jung, M. Oyaizu, M. Mukai, <u>S. C. Jeong</u>, A. Ozawa, Development of the detector system for image-decay spectroscopy at the KEK Isotope Separation System, Nucl. Instrum. Methods B, 査読有、2016, 376, p338-340 doi:10.1016/j.nimb.2016.01.041

⑤<u>Y. Hirayama, H. Miyatake, Y.X. Watanabe</u>, N. Imai, <u>H. Ishiyama, S.C. Jeong</u>, H.S. Jung, M. Oyaizu, M. Mukai, S. Kimura T. Sonoda, M. Wada, Y.H. Kim, M. Huyse, Yu. Kudryavtsev, P. Van Duppen, Beta-decay spectroscopy of r-process nuclei around N = 126, EPJ Web Conf. 査読有、109, 2016, 08001, p1-6

DOI: 10.1051/epjconf/201610908001

⑥<u>Y. Hirayama, Y.X. Watanabe</u>, N. Imai, <u>H.</u> <u>Ishiyama</u>, <u>S.C. Jeong</u>, <u>H. Miyatake</u>, M. Oyaizu, S. Kimura, M. Mukai, Y.H. Kim, T. Sonoda, M. Wada, M. Huyse, Yu. Kudryavtsev, P. Van Duppen, Laser ion source for multi-nucleon transfer reaction products, Nucl. Instrum. Methods B, 査読有、2015, 353, p4-15 doi:10.1016/j.nimb.2015.04.001

⑦Y.X. Watanabe, Y.H. Kim, S.C. Jeong, Y. <u>Hirayama</u>, N. Imai, <u>H. Ishiyama</u>, H.S. Jung, <u>H. Miyatake</u>, S. Choi, J.S. Song, E. Clement, G. de France, A. Navin, M. Rejmund, C. Schmitt, G. Pollarolo, L. Corradi, E. Fioretto, D. Montanari, M. Niikura, D. Suzuki, H. Nishibata, and J. Takatsu, Pathway for the Production of Neutron-Rich

Isotopes around the N=126 Shell Closure, Phys. Rev. Lett. 115, 172503, 2015, p1-5, 査読有、

DOI: 10.1103/PhysRevLett.115.172503

⑧Y. Hirayama, M. Mukai, Y.X. Watanabe, N. Imai, <u>H. Ishiyama</u>, <u>S.C. Jeong</u>, <u>H. Miyatake</u>, M. Oyaizu, Y. Matsuo, T. Sonoda and M. Wada, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 47, 2014, 075201, 査読有、 doi:10.1088/0953-4075/47/7/075201

〔学会発表〕(計19件)
 ①<u>宮武 宇也</u>、KISS, SLOWRI 施設での低エネルギー核分光研究、短寿命 RI を用いた核分光と核物性研究 III、2016 年 12 月 20-21 日、京大原子炉(大阪府、熊取町)

②<u>Y.X. Watanabe</u>, Production of N = 126 nuclei and beyond using multinucleon transfer reactions(招待講演), Sixth International conference on Fission and Properties of Neutron-rich Nuclei, 2016 年11月6-12日, Sanibel, Florida(USA)

③ <u>Y. Hirayama</u>, Recent spectroscopic activities using multi-nucleon transfer reaction products at KISS(招待講演), the La3net laser ion source and RESIST 2016 Workshop, 2016 年 10 月 24-26 日、 Paris(France)

④ <u>Y.X. Watanabe</u>, Production of radioactive nuclei relevant to r-process by multinucleon transfer reaction for KISS, 14th International symposium on Nuclei in the Cosmos XIV, 2016年6月19-24日, 朱鷺 メッセ(新潟県、新潟市)

⑤<u>Y. Hirayama</u>, Spectroscopy of multi nucleon transfer reaction products using KISS(招待講演), The 12th International Conference on Stopping and Manipulation of Ions and related topics (SMI-2016), 2016 年6月8-10日, Lanzhou(China)

⑥<u>Y.X. Watanabe</u>, Experimental study of multinucleon transfer reactions of 136Xe + 198Pt for KISS project (招待講演), Korean Physical Society 2016 Spring Meeting, 2016 年4月 20-22日, Daejeon(Korea)

⑦<u>平山 賀一</u>、KISS を用いた核分光実験、短 寿命 RI を用いた核分光と核物性研究 II、2015 年 11 月 4-5 日、京大原子炉(大阪府、熊取町)

⑧<u>H. Miyatake</u>, Beta-decay spectroscopy of r-process nuclei around N = 126, The 12th International Symposium on Origin of Matter and Evolution of Galaxies(OMEG2015), 2015年6月24-27日、 Beijing(China)

⑨ Y.X. Watanabe, Measurements of multi-nucleon transfer reactions of ¹³⁶Xe + ¹⁹⁸Pt for production of exotic nuclei, International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Related Topics (EMIS2015), 2015 年 5 月 11-15 日、Michigan(USA)

⑩ <u>Y. Hirayama</u>, On-line experimental results of an argon gas cell-based laser ion source (KEK Isotope Separation System), International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Related Topics (EMIS2015), 2015 年 5 月 11-15 日、Michigan(USA)

〔その他〕 ホームページ等 http://research.kek.jp/group/wnsc/

6.研究組織
(1)研究代表者
鄭 淳讃(JEONG, SunChan)
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・客員
教授
研究者番号:00262105

(2)研究分担者

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・研究
 機関講師
 研究者番号: 30391733

· 研究有番号: 30391733

宮武 宇也(MIYATAKE, Hiroari) 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・教授 研究者番号: 50190799

石山 博恒(ISHIYAMA, Hironobu)
 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・客員
 准教授
 研究者番号: 50321534

渡辺 裕(WATANABE, Yutaka) 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・研究 機関講師 研究者番号:50353363

(4)研究協力者
和田 道治(WADA, Michiharu)
園田 哲 (SONODA, Tetsu)
木村 創大(KIMURA, Souta)
向井 もも(MUKAI, Momo)
Y. H. Kim
M. Huyse
Yu. Kudryavtsev

P. Van Duppen