

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 11 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05116

研究課題名(和文)GARIS-II用アクチノイド標的照射システムとその高度利用技術の開発

研究課題名(英文)Development of actinide target system for GARIS-II and its application

研究代表者

加治 大哉 (KAJI, DAIYA)

国立研究開発法人理化学研究所・仁科加速器研究センター・仁科センター研究員

研究者番号：00391912

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：中性子過剰な超重核を生成するため、アクチノイド標的照射システムを製作した。アクチノイド標的(^{238}U)の調整のための1インチサイズのマグネトロンスパッタ装置を開発した。また、電着法によるアクチノイド標的製作の最適化も行った。調整した ^{238}U 標的を用いて、コペルニシウム同位体 ^{283}Cn の合成と崩壊特性に関する研究を行った。少ないマシンタイムを有効活用するために、Double layered rotating targetを製作し、実験の多様性をはかった。超重核実験特有の長期実験に対応するため、大強度重イオンビーム照射に対する標的の健全性を評価する標的健全性モニターシステムを開発した。

研究成果の概要(英文)：We developed gas-cooled rotating actinide-target system for gas-filled recoil ion separator GARIS-II. We developed a new sputtering system, which was installed magnetron source with 1-inch size, for preparing thick ^{238}U metallic target. And also, we tried to optimize the conditions for preparing actinide-target using electro-deposition method. The ^{238}U target was utilized for studying on production and decay properties of Cn ($Z=112$) isotopes via the reaction $^{48}\text{Ca}+^{238}\text{U} \rightarrow ^{286}\text{Cn}^*$ using a new gas-filled recoil ion separator GARIS-II. A double-layered target system and an identification method (target ID) for individual targets mounted on a rotating wheel using correlation with evaporation residues were newly developed for the study of superheavy elements (SHE). The target ID method can be utilized for masking a target, measuring an excitation function without changing the beam energy from the accelerator, and searching for SHE nuclides using multiple targets during a single irradiation.

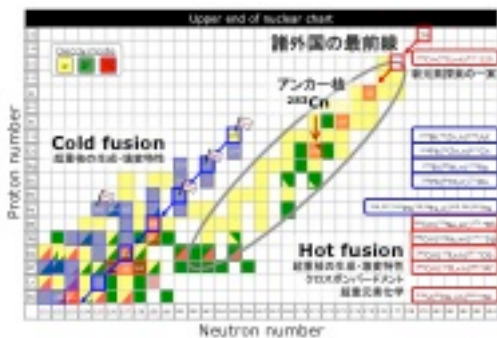
研究分野：実験核物理

キーワード：超重元素 標的 薄膜 アクチノイド

1. 研究開始当初の背景

新元素発見を目的とした超重核探索に関する研究は、化学と物理についての基本的な問いに答える一つの試みとして、科学の進歩とともに営々と続けられている。人類はこれまでに 100 を超える元素を発見し、原子番号 112 番までの元素と 114, 116 番元素の存在が国際的な新元素命名委員会組織 IUPAC-IUPAP JWP によって認められ、113 番元素以上の元素 (113, 115, 117, 118 番元素が合成されたという報告がある) については、ドイツ・ロシア・米国・日本の研究グループが中心となって熾烈な先陣争いが行われていた。

諸外国の研究動向は、アクチノイド元素を標的とした重イオン核融合反応(ホットフュージョン反応)を主に中性子過剰な超重核の合成が行われていた(図①)。その理由は、反応断面積がコールドフュージョン反応系と比較して高い値(112~118 番元素合成系のいずれも 1 pb 以上)を示しているからである。これは、超重核の安定島へ向けて融合核の核分裂障壁が高くなっていることに起因すると議論されている。ホットフュージョン反応系で合成された原子核からの α 崩壊連鎖は既知核へ到達する前に自発核分裂を起こしてしまっているため、前者の反応系と比べて核種同定に関する確度が小さい。しかし、新元素認定基準のうち励起関数測定・クロスボンバードメント・娘核の化学的性質調査に関わる試みがなされ、その結果が報告されている。加えて、他機関にて異なる実験装置を用いた追試実験もなされはじめ、ホットフュージョン反応路線の認定が徐々に始まりつつあった。そのキーは、アンカー核(^{283}Cn)への到達である(図①)。そこで、この原子核(^{283}Cn)の原子番号、質量数、壊変特性を直接測定することの科学的重要性が増している。



図①：核図表の末端領域。観測に成功した超重核と反応系。

この状況を打破するために、研究代表者らはアクチノイド標的を用いた重イオン融合反応研究に特化した新しい気体充填型反跳イオン分離装置(GARIS-II)を設計・製作し、重イオンビームを用いた核反応により GARIS-II の性能評価を行ってきた。GARIS-II の基本性能は設計仕様を満たすことを示し、

119 番元素より重い新元素の発見、超重元素化学、超重核の核分光研究ならびに精密質量測定などへの応用を目指している。

2. 研究の目的

①安定同位体標的を用いたこれまでの性能試験から進展し、中性子過剰超重核を生成するために、アクチノイド標的照射システムを構築する。放射性物質を標的材料とするため、安定同位体標的とは別に汚染防止をほどこした気密性の高い構造のチェンバー用意する必要がある。

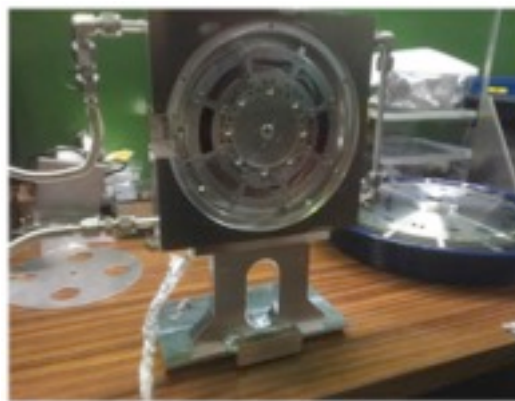
②少ないマシンタイムを有効活用するために、Double layered rotating target (研究方法欄で後述)を製作することで実験の多様性をはかる。

③超重核実験特有の長期実験に対応するため、大強度重イオンビーム照射に対する標的の健全性を評価する標的健全性モニタリングシステムを開発する。

3. 研究の方法

①アクチノイド専用ガス冷却型回転標的システムの開発

超重元素合成反応は極低反応断面積に起因して、大強度重イオン照射に耐える標的技術が必要となる。研究代表者は、これまで、GARIS および GARIS-II のための安定同位体用ガス冷却型回転標的システムを構築してきた。安定同位体は物質量を潤沢に使用できるため、直径 300 mm の大ホイールという大型標的仕様となっているが、アクチノイド標的に特化した直径 100 mm の小ホイールを設置できる標的チェンバーを設計・製作した(図②)。放射性物質であるアクチノイド標的を取り扱う都合上、安定同位体標的用と区別して用意する必要があるため、実験目的に応じて交換できる仕様とした。GARIS-II に導入する充填ガスと標的チェンバー上流に設置された差動排気システムによりガス冷却型回転標的が実現する。差動排気システムによる Windowless operation が、大強度重イオンビーム照射を可能にする鍵となる。



図②：アクチノイド標的に特化した直径 100 mm の小型標的システム。

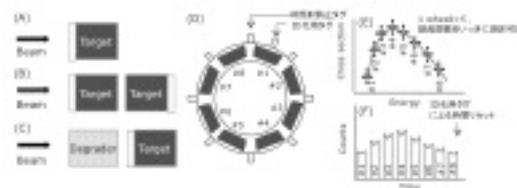
アクチノイド標的はスパッタ法や電着法により製作するが、大強度に耐えるよう大面積化に取り組む必要があり、そのための標的作成専用装置の製作(図③)、ならびに電着技術の最適化を行った。大面積化することで、単位面積あたりのエネルギー負荷を小さくすることが可能になり、さらなる大強度ビーム照射が可能になる。



図③：アクチノイド標的(^{238}U 専用)に製作した小型スパッタ装置。

② Double layered rotating target と標的 ID 化技術を組合せた効率的な励起関数測定法の確立

円盤を挟み込むようなサンドイッチ構造をとることで、ホイールに扇状標的を設置できるような Double layered rotating target を開発した(図④)。これにより、多様な標的使用法が可能になった。従来の利用法として複数設置した標的を平均的に取り扱っていたものを標的の一つにタグをつけることで、標的個々を ID 化できるようにした。

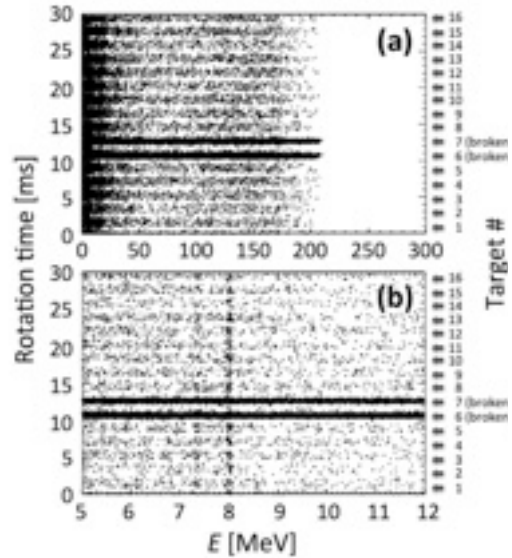


図④：本研究で開発した標的 ID 化技術の概要。3 モードの使用法が可能[(A)従来型モード(B)厚標的モード(C)励起関数測定モード]。(D)作成する標的 ID タグ付ホイール。(E)標的 ID 化により得られる励起関数(F)標的 ID 化により標的の状態が個々にモニター可能になった。

③ 超重核実験特有の長期実験に対応するため、大強度重イオンビーム照射に対する標的の健全性を評価する標的健全性モニターシステムの開発

標的の ID 化技術と焦点面検出器に搬送さ

れる荷電粒子起源の観測事象を関係づける事で、大強度重イオンビーム照射に対する標的の健全性を評価できるようになった(図⑤)。



図⑤：標的健全性モニターの一例。標的番号#6,#7 にピンホールが生じたため、焦点面検出器の搬送されるビーム起源の荷電粒子が増加することが示されている。

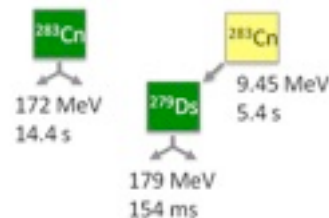
4. 研究成果

本研究で開発したアクチノイド標的照射システムならびに標的 ID 化法により実験の効率化・多様化が図られ、数多くの研究成果が得られた。

主要論文[2]の概要

新元素探索へ向けて気体充填型反跳分離器 GARIS-II が始動 -112 番元素コペルニシウム合成の検証に成功-

新しく開発した超重元素実験装置の気体充填型反跳分離器「GARIS-II」を用いて原子番号 112 のコペルニシウム同位体 ^{283}Cn を合成し、その崩壊エネルギーと崩壊時間の検証に成功した(図⑥)。



図⑥：観測された ^{283}Cn の崩壊連鎖。崩壊様式による分類を色分けで示している。黄色：アルファ崩壊(α)、緑：自発核分裂(SF)。今回行ったコペルニシウム合成実験では、コペルニシウム同位体(^{283}Cn)に起因する崩壊連鎖を観測した。観測された各核種からの崩壊エネルギー、崩壊時間を示している。

GARIS-IIは、今後の新元素探索で必須となる熱い融合反応を用いる研究に特化した気体充填型反跳分離器である。ロシア・米国、ドイツによる二つの先行研究で確認されている ^{283}Cn の生成を検証することで、GARIS-IIの性能評価を行った。その結果、GARIS-IIの高い分離・収集能力が実証され、熱い融合反応研究において先行するロシア・米国の共同研究グループに対して、共同研究グループが十分な競争力を持つこと示した。

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] Y. Ito, P. Schury, M. Wada, F. Arai, H. Haba, Y. Hirayama, S. Ishizawa, D. Kaji, S. Kimura, H. Koura, M. MacCormick, H. Miyatake, J. Y. Moon, K. Morimoto, K. Morita, M. Mukai, I. Murray, T. Niwase, K. Okada, A. Ozawa, M. Rosenbusch, A. Takamine, T. Tanaka, Y. X. Watanabe, H. Wollnik, and S. Yamaki, Phys. Rev. Lett. 120, pp. 152501 1-6 (2018). [査読有]
First Direct Mass Measurements of Nuclides around $Z=100$ with a Multireflection Time-of-Flight Mass Spectrograph
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.152501>

[2] D. Kaji, K. Morimoto, H. Haba, Y. Wakabayashi, M. Takeyama, S. Yamaki, Y. Komori, S. Yanou, S. Goto, and K. Morita, J. Phys. Soc. of Jpn. 86, pp.085001 1-2 (2017). [査読有]
Decay Measurement of ^{283}Cn Produced in the $^{238}\text{U}(^{48}\text{Ca},3n)$ Reaction Using GARIS-II
<https://doi.org/10.7566/JPSJ.86.085001>

[3] P. Schury, M. Wada, Y. Ito, D. Kaji, H. Haba, Y. Hirayama, S. Kimura, H. Koura, M. MacCormick, H. Miyatake, J.Y. Moon, K. Morimoto, K. Morita, I. Murray, A. Ozawa, M. Rosenbusch, M. Reponen, A. Takamine, T. Tanaka, Y.X. Watanabe, H. Wollnik, Nucl. Instr. and Methods, B407, pp.160-165 (2017). [査読有]
Observation of doubly-charged ions of francium isotopes extracted from a gas cell
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2017.06.014>

[4] M. Takeyama, D. Kaji, K. Morimoto, Y. Wakabayashi, F. Tokanai, and K. Morita, JPS Conf. Proc. 11, pp.030004 1-6 (2016). [査読有]
Detector Calibration to Spontaneous Fission for the Study of Superheavy Elements Using Gas-Filled Recoil Ion Separator
<https://doi.org/10.7566/JPSCP.11.030004>

[5] D. Kaji, K. Morita, K. Morimoto, H. Haba, M. Asai, K. Fujita, Z. Gan, H. Geissel, H. Hasebe, S.

Hofmann, M. Huang, Y. Komori, L. Ma, J. Maurer, M. Murakami, M. Takeyama, F. Tokanai, T. Tanaka, Y. Wakabayashi, T. Yamaguchi, S. Yamaki, and A. Yoshida, J. Phys. Soc. of Jpn. 86, pp.034201 1-7 (2017). [査読有]
Study of the Reaction $^{48}\text{Ca}+^{248}\text{Cm}\rightarrow^{296}\text{Lv}^*$ at RIKEN-GARIS
<https://doi.org/10.7566/JPSJ.86.034201>

[6] D. Kaji, K. Morimoto, H. Haba, E. Ideguchi, H. Koura, and K. Morita, J. Phys. Soc. of Jpn. 85, pp.105002 1-2 (2016). [査読有]
Decay Properties of New Isotopes ^{234}Bk and ^{230}Am , and Even-Even Nuclides ^{234}Cm and ^{230}Pu
<https://doi.org/10.7566/JPSJ.85.015002>

[7] P. Schury, M. Wada, Y. Ito, D. Kaji et al., Phys. Rev. C95, pp.011305(R) 1-6 (2017). [査読有]
First online multireflection time-of-flight mass measurements of isobar chains produced by fusion-evaporation reactions: Toward identification of superheavy elements via mass spectroscopy
<https://doi.org/10.1103/PhysRevC.95.011305>

[8] D. Kaji and K. Morimoto, Nucl. Instr. and Methods, A792, pp. 11-14 (2015). [査読有]
Double-layered target and identification method of individual target correlated with evaporation residues
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2013.05.085>

[学会発表] (計 6 件)

[1] D. Kaji, SHE2017 (2017).
Hot fusion study using a new separator GARIS-II

[2] 加治大哉, 第 61 回放射化学討論会 (2017).
スパッタ法による厚い金属ウラン標的の調整と照射試験

[3] 加治大哉, 第 60 回放射化学討論会 (2016).
GARIS-II を用いたホットフュージョン反応 $^{48}\text{Ca}+^{238}\text{U}\rightarrow^{286}\text{Cn}^*$ に関する研究

[4] 加治大哉, 第 60 回放射化学討論会 (2016). [招待講演]
GARIS を用いた超重元素研究の最前線 –新元素認定までの道のり、周期表の拡張をめざした挑戦–

[5] D. Kaji, The 5th International Conference on the Chemistry and Physics of Transactinide Elements (TAN15) (2015)
GARIS-II: New Gas-filled Recoil Ion Separator at RIKEN

[6] D. Kaji, *Pacificchem* 2015 (2015)
Heavy element study using a new separator
GARIS-II

〔その他〕

ホームページ等

[1] メンデレビウム同位体を始め 6 個の超ウラン元素同位体の直接質量測定に初めて成功 – 質量測定による新超重元素の質量数、原子番号の決定に道筋 –

<https://www.kek.jp/ja/newsroom/2018/03/29/1000/>

http://www.riken.jp/pr/press/2018/20180329_1/

[2] 新元素探索へ向けて気体充填型反跳分離器 GARIS-II が本格始動 – 112 番元素コペルニシウム合成の検証に成功 –

http://www.riken.jp/pr/press/2017/20170721_2/

<http://www.nishina.riken.jp/news/2017/20170721.html>

[3] 116 番元素リバモリウム合成の検証に成功 – 熱い融合反応による 119 番以降の新元素探索へ向けて前進 –

http://www.riken.jp/pr/press/2017/20170301_2/

<http://www.nishina.riken.jp/news/2017/20170307.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

加治大哉 (KAJI, Daiya)

国立研究開発法人理化学研究所・仁科加速器研究センター・仁科センター研究員

研究者番号：00391912

(2) 研究協力者

森本幸司 (MORIMOTO, Kouji)

国立研究開発法人理化学研究所・

仁科加速器研究センター・チームリーダー

研究者番号：00332247