

令和 2 年 5 月 29 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K05468

研究課題名(和文) 超重元素領域における原子番号の直接測定

研究課題名(英文) Direct Measurement of Atomic Number for Super Heavy Elements

研究代表者

藤田 訓裕 (Fujita, Kunihiro)

国立研究開発法人理化学研究所・光量子工学研究センター・研究員

研究者番号：60532364

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：現在、国際的な競争が行われている新元素探索実験においては、信頼性の高い原子番号の同定法が求められているが、本研究はブラッグカーブ検出器を用いた原子番号同定法の確立を目標とした。ブラッグカーブの分布を電子の時間分布から得る新たな手法を考案し、かつ読み出し回路に高速なデジタル変換器を用いることで、従来では不可能であった低エネルギー重イオン(1.6MeV/u以下)に対しての原子番号同定に成功した。本研究期間では原子番号が50近傍の中重核において性能評価実験を行い、十分な性能を発揮していることが確認されている。今後は新元素領域の核種の同定が可能になることが期待される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現在、理化学研究所の超重元素研究グループの他、ロシア・アメリカ共同チーム、ドイツ等の研究グループらで新元素の発見を目指した国際競争が行われているが、発見を主張するにあたっては発見の速さもさることながら、データの信頼性が重要視される。従来行われている超重元素のアルファ崩壊を利用した間接的な原子番号同定法では信頼性には限界があるが、本研究で用いられたブラッグカーブを使った直接測定法を用いることでより高い信頼性が得られる可能性が示された。特に、従来では不可能と思われていた低エネルギー領域での重元素の原子番号同定も可能であることが示されたので、今後の研究開発がより進むようになった。

研究成果の概要(英文)：A direct measurement of the atomic number is demanded for the experiments of the superheavy nuclei synthesis such as 119th element search, since the conventional method of analyzing the alpha-decay chain have a limitation of identification for spontaneous-fission nuclei. We have developed a Bragg curve detector(BCD) employing a digital signal processing technique to improve the separation efficiency especially for low-energy superheavy ions. Although the height of Bragg peaks are not proportional to the incident energy, the waveform analysis makes it possible to identify the nuclei having the different atomic number. The performance tests of the detector with heavy ion beams supplied from the Tandem accelerator were performed. The measured waveforms of the BCD well matched to the simulation results using Garfield++ with a field map obtained from Gmsh and Elmer. A sufficiently high separation efficiency was achieved at the same energy particles with different atomic number.

研究分野：実験核物理

キーワード：ブラッグカーブ 超重元素 原子番号

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

超重元素と呼ばれる原子番号が104番以降の元素は核融合反応により人工的に合成される。現在は119、120番元素の合成実験が理化学研究所(理研)の超重元素研究グループの他、ロシア(FLNR)・アメリカ共同チーム、ドイツ(GSI)等の研究グループらで計画されており、命名権をめぐる国際競争の中にある。どのグループに元素の命名権が認められるかは、発見の早さもさることながらデータの信頼性が重要である事は113番元素ニホニウム(No)の命名権争いで示された通りである。

超重元素の性質を解明することは原子核の安定性に関する知見を与え、重イオン融合反応のメカニズムを解明する手段となるため、世界各地の加速器施設で研究が行われている。現在、理研ではバナジウム($Z=23$)、クロム($Z=24$)のビームとキュリウム($Z=96$)標的を用いた119、120番元素の合成実験が計画されている。2017年度から本格的な測定に入る予定で、それまでには融合反応における障壁分布の測定など基礎データを取得する実験が行われており、代表者が所属していた九大グループも共同実験グループとして参加していた状況であった。119、120番元素の生成確率は非常に小さく、数イベントのデータを取得するために少なくとも5年の実験期間が必要であると考えられる。その期間内のより早期に、信頼性の高いデータを多く取得することが求められていた。

合成に必要なビームや標的の準備は完了しており、また超重核を質量分析する気体充填型反跳分離装置(GARIS-II)も十分な性能が得られていると確認できている。超重核は質量分析された後、焦点面検出器で速度やエネルギーが測定されるが、当初の計画では従来使われてきた飛行時間(TOF)測定器とシリコン半導体を用いたエネルギー検出器が使用される予定であった。

超重核はシリコン半導体検出器に埋め込まれた後、 α 崩壊を連続で行いながら原子番号を小さくしてゆく。核分裂が起こるまで、 α 線のエネルギーと崩壊時間を測定して、途中から既知の同位体と同じ崩壊パターンで有ることを確認することで、最初の崩壊前には未知の新元素であったと証明できる。すなわち、実際には原子番号を直接測定するわけではない。

しかしながら、119、120番元素だけでなく、その娘核や孫核には未発見の同位体が含まれており、 α 崩壊と核分裂のどちらが起こるかは不明である。また、発見済みの α 放出核であっても発見イベント数が少ないため、これまでにたまたま核分裂が観測できていなかった可能性も否定できない。崩壊系列の途中で核分裂が起こってしまうと、既知核とのつながりが証明できず、新元素発見の証明ができない可能性が生じる。例として、120番元素($^{298}120$, $^{299}120$)の崩壊系列上には未発見の同位体(^{295}Og)や核分裂を起こす同位体(^{286}Fl , ^{282}Cn , ^{283}Cn)が含まれていることが分かっている。119番元素についても同様の状況である。

そこで、国際的にも従来の測定方法に加えて、超重元素の原子番号および質量を精密測定し、新元素やその娘核、孫核が核分裂イベントであった場合でも合成に成功したという強い証拠を与える測定システムの確立が求められていた。

2. 研究の目的

本研究は理研で行われる予定の119、120番元素合成実験を見越して、従来の核種の同定方法に加えて、ブラッグカーブ検出器を用いた原子番号の直接測定システムを確立させ、データの信頼性を向上させる事を目的とする。

超重元素の核種を同定する方法は以下の3つが挙げられる

1) 崩壊系列を測定し、途中から既知核と同じ崩壊様式である事を用いる方法

これまで理研やドイツ(GSI)、ロシア(FLNR)で行われてきた手法である。5つのシリコン半導体検出器を蓋のない6面体の形に配置して、超重核の入射と崩壊・核分裂のエネルギーを測定する。前述の通り、既知核につながらない場合には核種が同定できないこと以外にも、入口方向に線が飛び出した場合には全エネルギーが測定できないという欠点がある。

2) MR-TOF やベニングトラップ等、超重核を電磁場で閉じ込めた後、質量を精密測定する方法

質量を6桁以上の精度で測定し、質量欠損の値から原子番号を導出する手法である。ただし、どちらの方法も現状では検出効率が低いことと、測定時間が数ミリ秒程度必要であるため、生成数が年に1個程度で、半減期が100マイクロ秒以下と予想されている119、120番元素の測定には用いることが出来ない。

3) 超重核の質量や原子番号を検出器で直接測定する方法

高速で飛来する超重核の速度、エネルギー、エネルギー損失を検出器で測定し、原子番号や質量を直接的に求める。短寿命の核でも測定できるが、従来の半導体やガス検出器では分解能が不足しており、核種を同定することは出来なかった。

本研究では、1)と3)の方法を組み合わせた方式を採用する。3)の方法で、従来は不足していた分解能を新たな測定原理の検出器を開発することで解決し、1)の方法である崩壊系列の測定システムと組み合わせる。つまり、超重核の崩壊系列だけでなく、原子番号や質量を直接測定する事により核種同定の信頼性を高めるシステムを開発する。

超重核の原子番号を高分解能で測定する方法の中では、エネルギー損失の空間分布(ブラッグカ

ープ)を測定する手法が最も実現可能性が高い。そこで、電離箱(イオンチェンバー)を基にしたガス検出器を新規開発する事で達成する。粒子の速度情報も必要なので、既存のマルチチャンネルプレートを利用した TOF 測定器をより高分解能に改良することも行う。検出器と測定回路の開発は九大で行い、基本的な性能の評価は九大所有のタンデム加速器を用いたイオンビームで行う。その後、理研において開発された既存の飛行時間測定器と組み合わせ、システムを完成させる。研究期間内にシステムを完成させた後、九州大学のタンデム加速器を用いたビーム実験を行い、119,120 番元素の核種同定に十分な性能が有ることを証明することが目的である。

3. 研究の方法

本研究での最終目的は理研の線形加速器施設において、開発した検出システムを用いて超重元素実験を行い、原子番号を直接測定することである。核融合反応で生成した 110 番近傍の超重元素を GARIS-II で質量分析した後、検出器で原子番号と質量の測定を行い、分解能を評価する。119, 120 番元素の測定においても十分な精度で核種の同定を行えることを証明することが目的である。それまでに、検出器の開発、性能データの取得や改良を九州大学の加速器・ビーム科学応用センターで行う。性能データの取得はタンデム加速器から得られるイオンビームと汎用ビームラインに設置された大型真空槽を用いる。超重核の核種を同定するためには全エネルギーおよびエネルギー損失を測定する検出器の開発が必要である。また、従来の TOF 測定器の分解能を向上させる必要もある。これらを以下の手順で行っていく。

研究計画

1) ブラッグカーブ検出器の開発

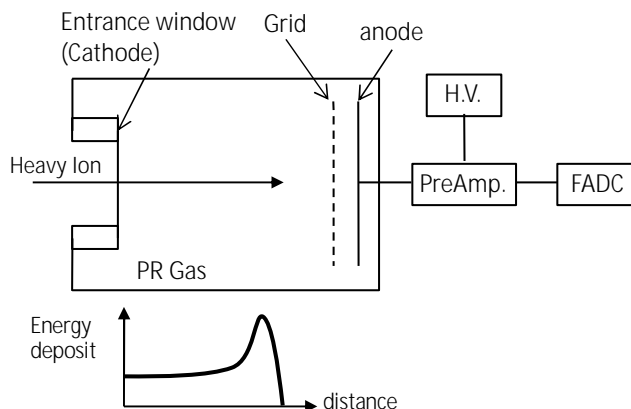


図 1: ブラッグカーブ検出器の原理図および読み出し回路系のブロック図

超重核の原子番号(Z)を測定するために、粒子が気体を通過した際のエネルギー損失の差で識別する方法を採る。その測定器として、エネルギー損失の空間分布を時間情報に変換し、測定するブラッグカーブ検出器を用いる。図 1 に検出器の概略図と得られる信号の様子を示す。

この検出器は重イオンの軌跡に沿って発生した電離電子の空間分布(図 1 左下)をアノード電極から収集する際に、電荷を到着時間の関数で取得することにより、ブラッグカーブを算出することが出来る。

先行研究では、 $Z=20$ 程度の重イオン粒子に対して分解能(ΔZ)、 $Z/\Delta Z=50$ ($\Delta Z=0.4$)を達成している。本研究ではより原子番号の大きな核を測定するので、以下の案の通りに改良を施し、さらなる高分解能、 $Z/\Delta Z > 100$ ($Z > 100$ の核で $\Delta Z < 1$)の達成を目指す。

高速な波形読み出し回路(フラッシュ ADC)を用いた測定

先行研究ではブラッグカーブのピーク部分と全体の積分値を測定し、その比から Z を算出していたが、フラッシュ ADC 回路を用いて波形全体を精密測定することで分解能を向上させる。

エネルギーストラグリングの抑制

重イオンが有感領域以外でエネルギーを失う量を極力減らすことが重要で、ガスをより低圧で使用し、入口窓をより薄い $1\mu\text{m}$ 以下の PET 膜にすることで分解能の向上が見込める。

2) 性能テスト実験

九大タンデム加速器を用いて、ブラッグカーブ検出器の性能評価を行う。タンデム加速器からの陽子ビームと金などの重イオン標的との弾性散乱で放出された標的イオンを検出する。ブラッグカーブの他に既存の TOF 検出器を用いて速度の測定も行い、原子番号を求める。標的に様々な核種を用いてデータを取得し、分解能を評価する。その際、分解能向上のために、従来法よりガス圧をより低くする対策を講じる。入口窓の薄膜化が可能になり、また不感層のエネルギー損失が減少するため分解能は向上する。

3) ブラックカーブ検出器・飛行時間測定器の改良

作成したブラックカーブ検出器にシリコン半導体検出器を組み合わせ、崩壊 α 線と核分裂片を測定できる検出器に改良する。ブラックカーブ検出器の内壁に既製品のシリコン半導体検出器を設置するだけなので、大きな問題は無いと考えている。

4) 全システムを使ったテスト実験

九大のタンデム加速器を用いて重イオンを発生させ、検出器に照射するテストを行う。加速された陽子ビームを大型真空槽に設置した金などの重イオン標的と弾性散乱させる。散乱された重イオンの速度をTOF検出器とブラックカーブ検出器で測定し、原子番号と質量(M)の分解能を評価する。

ZやMの分解能が不足した場合はブラックカーブ検出器のカソード側からも時間情報を取得し、超重核の入射角度依存性を補正することを試みる。また、アノードを分割することでバックグラウンドとの分離能力を向上させることも試みる。

5) 理研でのテスト実験

開発した検出器を使い、超重元素生成実験を理研の線形加速器施設で行う。ビームには使用実績のあるアルミニウムやシリコン等の重元素を、標的にはキュリウムを用いて110番近傍の超重元素を合成し、検出器の評価を行う。Z>100の核においても $\Delta Z < 1$, $\Delta M < 1u$ を達成していることを確認することに加えて、超重核から放出される α 線や核分裂片のエネルギーが十分な精度で測定できることを確認する。

これらの成果から、このシステムは119, 120番元素の測定実験において十分な精度で崩壊系列を測定できるだけでなく、原子番号と質量を直接測定することで核種を同定することが出来ることを証明する。

4. 研究成果

将来の超重元素合成実験に向けて、従来の α 線による核種同定だけでなく、入射粒子のブラックカーブを測定することで原子番号を直接同定することを目的とした検出器を制作し、その性能評価を行った。

検出器制作にあたっては、まずシミュレーションを用いて設計の最適化と得られる信号の確認を行った。用いたツールは、GmshおよびElmerと呼ばれる3次元メッシュ制作ソフトおよび有限要素法を用いた電場計算コード、およびGarfieldと呼ばれるガス検出器シミュレーションコードである。

検出器本体は既存の電離箱の改造により作成した。重イオン入射で生成される電子についてイオンの入射軸方向の空間分布が得られるような電極を新規制作した。電荷の読み出しにおいて、従来法では2種類の積分時間を持ったアンプを用いることでブラックカーブのピーク部分と全体それぞれの積分値を得ていたが、この方式では低エネルギー重イオンの分離は難しいことが判明した。そこで、前置増幅器の後段に高速アナログ・デジタル変換器を用いて、全波形をデジタル的に取り込むことを行った。ブラックカーブの全波形を得ることが出来るため、たとえブラックカーブのみでは分離が難しい低エネルギー領域においても、全波形を比較することで原子番号起因の差を見ることが出来るようになった。その結果、従来では不可能であった極めて低いエネルギーの重イオン(1.6MeV/u以下)の原子番号が識別できるようになった。

マイクロチャンネルプレートを用いた飛行時間測定器の開発も行われた。2次電子を発生する薄膜、電子を輸送する三角屋根構造を持った電場発生器、電子を増幅するマイクロチャンネルプレートで構成された検出器を開発し、九州大学のタンデム加速器施設においてヨウ素ビームを用いた実験を行い、規定の性能が発揮できていることを確認した。

検出器の性能評価実験は九州大学の加速器・ビーム応用科学センターにあるタンデム加速器を用いて行った。測定は重イオンの種類を変化させながら2回に分けて行われた。

1. Z<10領域の重イオンを用いた性能評価

比較的軽い重イオンを用いたテストとして、炭素や酸素(原子番号6, 8)のイオンをアルミ標的に照射し、弾性散乱された炭素、酸素イオンをブラックカーブ検出器で計測した。それぞれのイオンが同じエネルギーであっても別のブラックカーブを描くことが確認され、2種のイオンを99%以上の精度で識別できることが確認できた。ここで、Z=8に対して $\Delta Z < 2$ 、すなわち $Z/\Delta Z > 4$ で有ることが確認された。

2. Z>50領域の重イオンを用いた性能評価

中重核領域でのテストとして、ヨウ素(原子番号53)のビーム、および錫、テルル、セシウム、ヨウ素、金(原子番号50, 52, 53, 55, 79)の標的を用いた測定を行った。ヨウ素ビームの入射により反跳された標的原子核が検出器内に入射し、生成するブラックカーブを測定した。得られたブラックカーブ波形および、分離能力の値を図2, 3に示す。この測定の結果、ヨウ素と金の分離は90%以上の精度で可能であることが示された。すなわち、中重核領域においても $Z/\Delta Z > 3$ で有ることが確認された。なお、ヨウ素(Z=53)とセシウム(Z=55)の分離については現状の装置ではバックグラウンドノイズがシグナル差よりも大きいため不可能であった。今後はこのノイズを低減させる読み出し回路系の開発が必要になると考えられる。

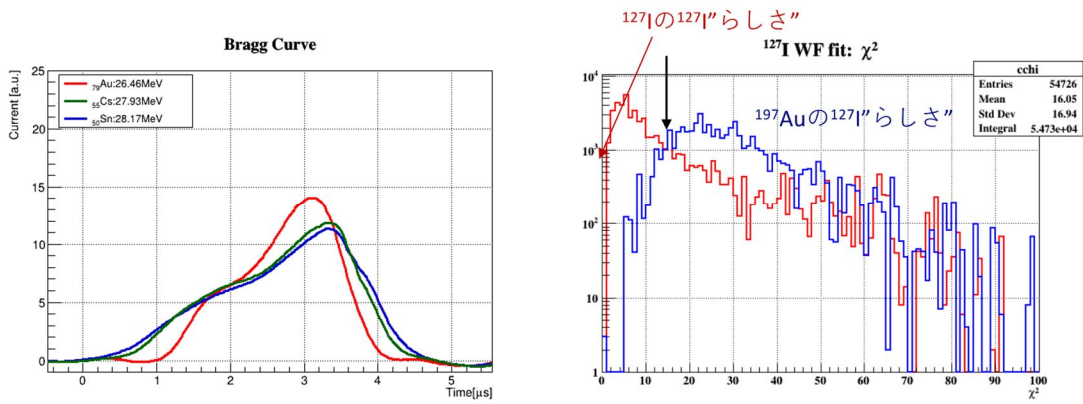


図 3(左図): 中重核領域での実験で得られたブラッグカーブの波形、横軸が時間分布(空間分布に相当する)で縦軸が時間あたりの電荷量である。3本の線(赤、緑、青)は ^{79}Au , ^{55}Cs , ^{50}Sn の入射粒子に対して、それぞれ 1000 イベントの平均を取ったもの。

図 4(右図): ^{53}I と ^{79}Au の分離能力を示した図。横軸はヨウ素の平均波形からのズレを表しており、ブラッグカーブの波形がずれているほど大きな値を取る。1 イベントごとにノイズによって波形はばらつくため、ヨウ素のビームであっても横に広がりを持つ。

最終年度には、波形データ解析の高度化や、これまでの実験で得られたデータの取りまとめを行った。なお、最終年度に研究代表者の所属変更が生じたため、理研の加速器を用いた実験計画に遅れが出てしまった他、データ解析の取りまとめ・論文執筆が完了していないが、検出器開発・性能評価データの測定に関しては予定通り完了している。開発・基本性能の結果については、これまでの学会・研究会で発表済である。最終結果を取りまとめた論文については、現在執筆中で、今後 1 年内の投稿を目標としている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 藤田 訓裕、齋藤 堯夫、坂東 慶伍、真部 健太、白坂 和也、末川 慶英、森田 浩介、若狭 智嗣、寺西 高、坂口 聡志、郷 慎太郎
2. 発表標題 九大タンデムにおける重元素用ビームラインと検出器の開発
3. 学会等名 第31回 タンデム加速器及びその周辺技術の研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 藤田 訓裕、齋藤 堯夫、庭瀬 暁隆、坂東 慶伍、真部 健太、白坂 和也、末川 慶英、森田 浩介
2. 発表標題 ブラッグカーブ測定による超重核の原子番号同定
3. 学会等名 2018日本放射化学会年会・第62回放射化学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Fujita, T. Saito, T. Niwase, K. Bando, K. Manabe, K. Shirasaka, Y. Suekawa, K. Morita
2. 発表標題 Direct Measurement of Atomic Number for Superheavy nuclei search
3. 学会等名 Fifth Joint Meeting of the Nuclear Physics divisions of the APS and JPS (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 藤田 訓裕、齋藤 堯夫、庭瀬 暁隆、坂東 慶伍、真部 健太、白坂 和也、末川 慶英、森田 浩介
2. 発表標題 ブラッグカーブ測定による超重核の原子番号識別
3. 学会等名 日本物理学会 第74回年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 齋藤 堯夫
2. 発表標題 超重元素領域における核種同定用イオンチェンバーの開発
3. 学会等名 第123回日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 藤田 訓裕、齋藤 堯夫、庭瀬 暁隆、光岡 駿、平野 剛、板東 慶伍、真部 健太、森田 浩介
2. 発表標題 超重核領域でのプラグカーブ検出器を用いた原子番号の直接測定
3. 学会等名 日本物理学会 第73回年次大会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----