

令和 6 年 6 月 12 日現在

機関番号：82118

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2020～2023

課題番号：20H00169

研究課題名（和文）r過程終焉部の解明へ向けた中性子過剰アクチノイド同位体の研究

研究課題名（英文）Study of neutron-rich actinide isotopes toward elucidation of the r-process termination

研究代表者

渡邊 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・教授

研究者番号：50353363

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 34,400,000円

研究成果の概要（和文）：多核子移行反応による原子核合成、アルゴンガスセルによる反応生成核の収集、レーザーイオン化による元素選択、双極電磁石による質量分離、多重反射型飛行時間測定式質量分光器による精密質量測定を組み合わせることで、従来の方法では困難であった中性子過剰領域のアクチノイド核を合成、分離して質量を測定する手法を確立した。未知の同位体である $^{241}\text{U}$ を初めて同定し、 $^{241}\text{U}$ と $^{242}\text{U}$ の質量を初めて測定することができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

鉄より重い元素のおよそ半分は天体での元素合成過程の一つである速い中性子捕獲過程(r過程)で合成されたと考えられている。r過程は非常に中性子が過剰な未知の原子核を合成して進行し、アクチノイドや超アクチノイドまでの原子核に至って核分裂により終焉する。中性子過剰なアクチノイドの質量などの原子核の性質はr過程を包括的に理解する上で重要であり、この領域の原子核を合成・分離して精密に質量を測定する手法を確立したことの学術的意義は大きい。

研究成果の概要（英文）：Combining nucleus synthesis by multinucleon transfer reactions, collection of reaction products using an argon gas cell, element selection by laser ionization, mass separation using a dipole magnet, and precise mass measurement using a multi-reflection time-of-flight mass spectrograph, a method to synthesize, separate, and measure the mass of neutron-rich actinide nuclei was established, which was difficult with conventional methods. We discovered the unknown isotope  $^{241}\text{U}$ , and measured the masses of  $^{241}\text{U}$  and  $^{242}\text{U}$  for the first time.

研究分野：原子核実験

キーワード：ガスセル 多核子移行反応 中性子過剰核 アクチノイド

### 1. 研究開始当初の背景

現存する鉄より重い元素のおよそ半分は天体での元素合成過程の一つである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(引用文献)。r過程は安定な原子核に比べて中性子が過剰な原子核を合成して進行し、現存するウランやトリウムを生成する唯一の元素合成過程であるが、関与する原子核の多くは未知の原子核であり、その詳細は未だ分かっていない。r過程が起こるためには高温で中性子数密度の高い爆発的天体環境が必要であり、超新星爆発や連星中性子星合体がその天体サイトとして有力視されているが、天体サイトの特定には関与する原子核の性質を考慮したr過程元素合成のシミュレーションが必須である。r過程は中性子誘導核分裂、ベータ遅延核分裂、および自発核分裂により終焉してその分裂片のリサイクルが重元素の存在比に大きな影響を及ぼすことが近年の計算で示唆されている(引用文献)。原子核の質量はr過程に関与する原子核の崩壊様式の決定に重要な役割を果たし、r過程のシミュレーションにとって特に重要なパラメータとなっている。しかしながらr過程で合成される原子核は極端に中性子過剰であり、特に終焉部に関与するアクチノイド・超アクチノイドの領域の原子核は実験的な合成が困難であるため、原子核の理論模型による予測値をシミュレーションに使用せざるを得ない。r過程元素合成をその終焉部も含めて包括的に理解するためには、終焉部での分裂障壁の高さやベータ崩壊のQ値を決定することが必須であり、そのためには中性子過剰なアクチノイド・超アクチノイド核に対する理論模型による質量予測の精度を向上させることが不可欠である。

### 2. 研究の目的

原子核の理論模型への重要なインプットとなるアクチノイド同位体の質量の測定を中性子過剰領域に拡大する研究手法を確立して、中性子過剰アクチノイド同位体の質量を測定する。アクチノイドはウランやトリウムのごく少数の同位体が天然に存在するのみで、アクチノイド核の実験的研究を行うためにはそれらを合成する必要がある。しかしながらこの領域の原子核の合成に従来使用されてきた融合反応や中性子捕獲反応では中性子の欠乏した同位体や、ベータ安定核の極近傍の中性子過剰核しか合成できず、研究の対象は限られていた。本研究では中性子過剰アクチノイド同位体の新たな合成法、収集法、分離法を確立し、精密質量測定器と組み合わせることで中性子過剰アクチノイド同位体の質量測定を進展させる。

### 3. 研究の方法

#### (1) 中性子過剰アクチノイドの合成

中性子過剰アクチノイドは多核子移行反応によって合成する。多核子移行反応は核子当たり10電子ボルト程度に加速した重イオンビームを標的に照射し、ビーム核と標的核の間で中性子や陽子を移行させて天然に存在しない同位体を合成することができる(引用文献)。多核子移行反応では合成された原子核が低く幅の広いエネルギー分布と有限で幅の広い角度分布で放出されるため、質量測定などの核分光を行う上で実験的な困難がある。私たちは理化学研究所のRIBF加速器施設内に多核子移行反応による原子核合成に特化したKEK元素選択型質量分離装置(KEK Isotope Separation System, KISS)を開発してきた(引用文献)。図1にKISSの概略図を示す。これまでにキセノンのビームと白金の標的を用いた多核子移行反応によって原子番号76周辺の

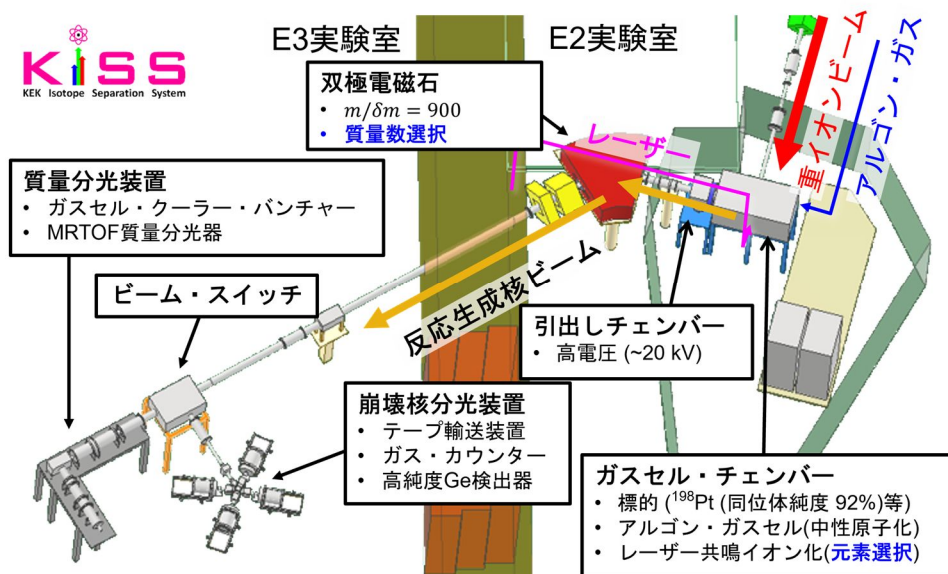


図1 KEK 元素選択型質量分離装置(KISS)。

高融点元素の中性子過剰同位体を合成し、崩壊核分光、レーザー核分光、質量分光実験を実施してきた。本研究では、ウランのビームや天然ウランの標的を用いた多核子移行反応により中性子過剰アクチノイド同位体を合成する手法を確立する。

### (2) 中性子過剰アクチノイドの収集と分離

KISS では多核子移行反応で標的から放出された反応生成核はポリイミド膜を通してアルゴンガスで満たされたガスセルに入射する。反応生成核はアルゴンの原子と衝突することでエネルギーを失い、中性な原子となってアルゴンガス中で停止する。これらの中性な原子はアルゴンガスの流れによって輸送され、ガスセルの出口直前で二色のレーザーに照射されることでイオン化される。一つ目のレーザーで原子を励起し、二つ目のレーザーでイオン化する。原子の励起エネルギーは元素に固有なため、励起レーザーの波長を調整することで特定の元素のみをイオン化することができ、多核子移行反応で合成される様々な原子核の中から特定の元素を選択することができる。ガスセルの出口から取り出されたイオンは高周波イオンガイドによって輸送され、20 キロボルトの電圧によって加速される。双極電磁石で質量数が選択されて崩壊核分光装置や質量測定装置に輸送される。このようにアルゴンガスセルでの反応生成核の捕集とレーザーによる元素選択、双極電磁石による質量数選択を行うことで、多核子移行反応で合成される様々な反応生成核の中から研究対象の原子核を効率よく引き出すことを可能とするのが KISS の特徴である。本研究では多核子移行反応で合成したアクチノイド同位体に対するアルゴンガスセルでの収集と、レーザーによる中性子過剰アクチノイドのイオン化を最適化する。

### (3) 中性過剰アクチノイドの精密質量測定

図2に質量分光装置を示す。ISSで引き出された中性子過剰アクチノイド同位体は1ミリバール程度のヘリウムガスで満たされたガスセルに入射してイオンのまま停止する。イオンは静電場と高周波電場によって輸送され、ガスセルから引き出された後、高周波イオンガイドで輸送されて高周波トラップにより冷却されてバンチビームとして多重反射型飛行時間測定式(Multi-Reflection Time-Of-Flight, MRTOF)質量分光器で精密に質量測定される(引用文献)。MRTOF 質量分光器は二つのミラー電極とイオンが飛行するスペースから構成され、バンチビームが入射すると入口のミラー電極の電圧を上げて二つのミラー電極間でイオンを数百回往復させる。その後出口のミラー電極の電圧を下げてイオンを取り出して検出する。仮想的に長い距離を飛行するイオンの飛行時間を測定することで原子の質量を数十万分の一の精度で測定することができる。本研究では、アクチノイド同位体に対して、ヘリウム・ガスセルによるイオンの停止と引き出し、MRTOF 質量分光器での質量測定の最適化を行う。

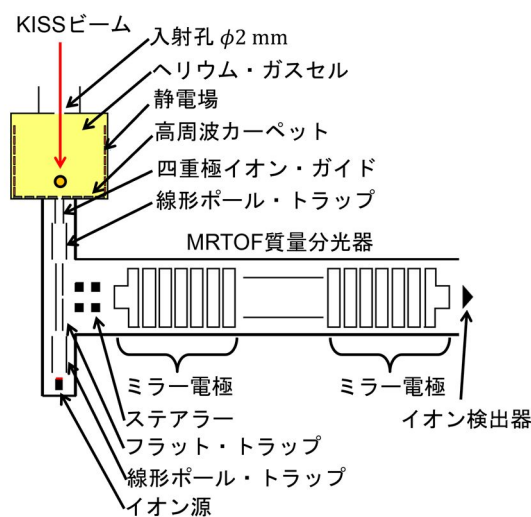


図2 質量分光装置。

## 4. 研究成果

理化学研究所 RIBF 加速器施設の線形加速器とリングサイクロトロン加速器を用いて核子当たり 10.75 メガ電子ボルトまで加速した  $^{238}\text{U}$  ビームを用いて実験を実施した。 $^{238}\text{U}$  ビームを1平方センチメートル当たり 12.5mg の  $^{198}\text{Pt}$  標的に照射し、多核子移行反応によって  $^{238}\text{U}$  から中性子過剰アクチノイド核を合成した。ビーム核から生成される中性子過剰核は核子当たり 5~6 メガ電子ボルトと比較的高いエネルギーを持つため、1 気圧程度のアルゴンガスで停止させるためにガスセルの入射窓の上流にチタン箔を挿入して反応生成核を減速させた。チタン箔の厚さを変えた測定を繰り返してアルゴンガス中でのアクチノイド同位体の停止効率を最大化した。

アクチノイドをイオン化するために適したレーザー波長に合わせて KISS のレーザーシステムを整備した。原子の励起エネルギーは元素に固有であるが、同位体によってわずかに異なることが知られており、同位体シフトと呼ばれている。プロトアクチニウムやネプツニウムについて本研究で用いる励起エネルギーに対して同位体シフトが知られていないため、特定の同位体を効率的にイオン化するために同位体シフトの測定を行った。図3の左はレーザーの波長を変えて MRTOF 質量分光器で  $^{237}\text{Pa}$  を検出した数を示している。レーザー波長が 387.4556nm 付近で検出数が最大となっている。図5の右は本測定で最適化した  $^{237}\text{Pa}$  の励起レーザーの波長と  $^{231}\text{Pa}$  に対するレーザー波長の文献値(引用文献)から未知のプロトアクチニウムの同位体シフトを求めたものである。これにより収量の少ないプロトアクチニウムの同位体に対しても最適なレーザー波長を計算することができる。ネプツニウム同位体についても同様に同位体シフトを測定して、目的的同位体に合わせてレーザー波長を最適化した。

KISS で元素選択的にレーザーイオン化して双極電磁石で質量分離された中性子過剰アクチノイド同位体はヘリウムガスで停止させて、バンチビーム化して MRTOF 質量分光器で精密質量測定を行った。ヘリウムガスで停止させて引き出したイオンは二価のイオンになっていること

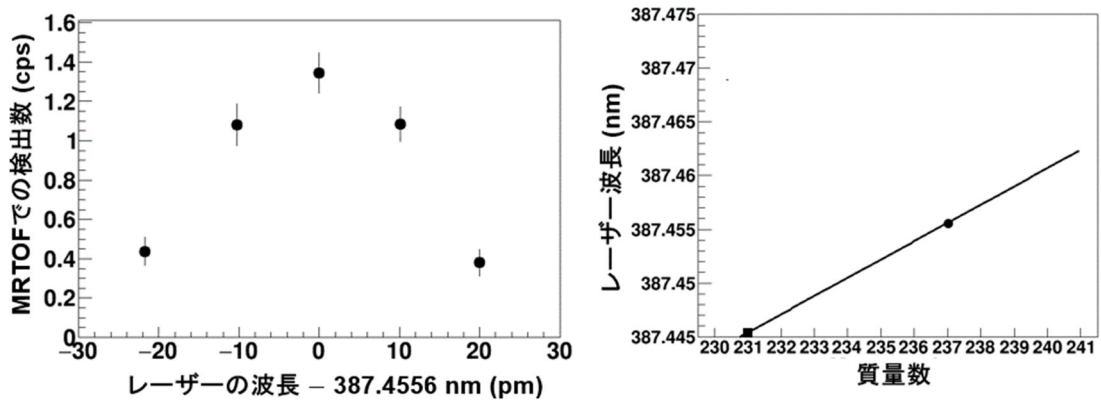


図3 (左) レーザーの波長を変えて測定した  $^{237}\text{Pa}$  の検出数。(右)測定したパラジウムの同位体シフト。

が分かった。これは、ヘリウムのイオン化ポテンシャルが高いため、アクチノイドの一種のイオンがヘリウムの原子と衝突して二価のイオンに変換されたものと考えられる。図4は  $^{241}\text{U}$  と  $^{241}\text{Np}$  の励起用レーザーとしてそれぞれ波長 387.217 nm と 385.062 nm を用いて MRTOF 質量分光器で測定した  $^{241}\text{U}^{2+}$  と  $^{241}\text{Np}^{2+}$  に対する飛行時間スペクトルを示す。励起用レーザーの波長を変えることでそれぞれ  $^{241}\text{U}$  と  $^{241}\text{Np}$  が選択されていることが分かる。 $^{241}\text{U}$  はこれまでに発見されていない同位体であり、多核子移行反応による原子核合成、アルゴンガスセルによる反応生成核の収集、レーザーイオン化による元素選択、双極電磁石による質量分離、MRTOF 質量分光器による精密質量測定を組み合わせることで未知の中性子過剰アクチノイド同位体を合成して精密に質量を測定する手法が確立できた。本研究では 19 種類のアクチノイド同位体を合成して質量測定を行った。図5に測定した質量を AME2020[13]の値からのずれとして示す。枠無しと枠有りの四角形はそれぞれ AME2020 での質量の実験値と外挿値の誤差を表している。 $^{241}\text{U}$  と  $^{242}\text{U}$  に対して初めて実験的に質量を決定し、 $^{241}\text{Np}$  と  $^{242}\text{Np}$  に対して質量の誤差を向上させた。

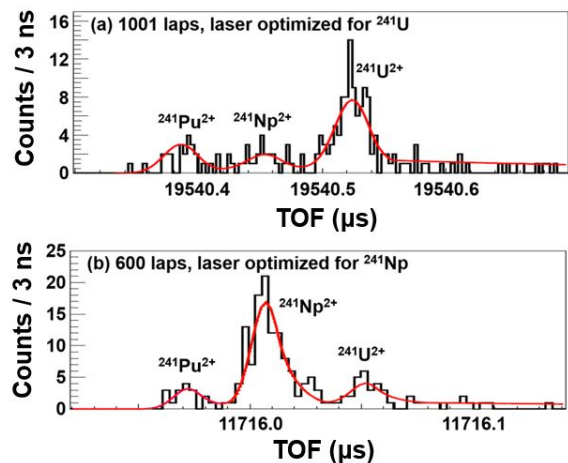


図4 励起レーザーの波長を(a) $^{241}\text{U}$ と(b) $^{241}\text{Np}$ にそれぞれ最適化した時のMRTOF質量分光器で測定された飛行時間スペクトル(引用文献)。

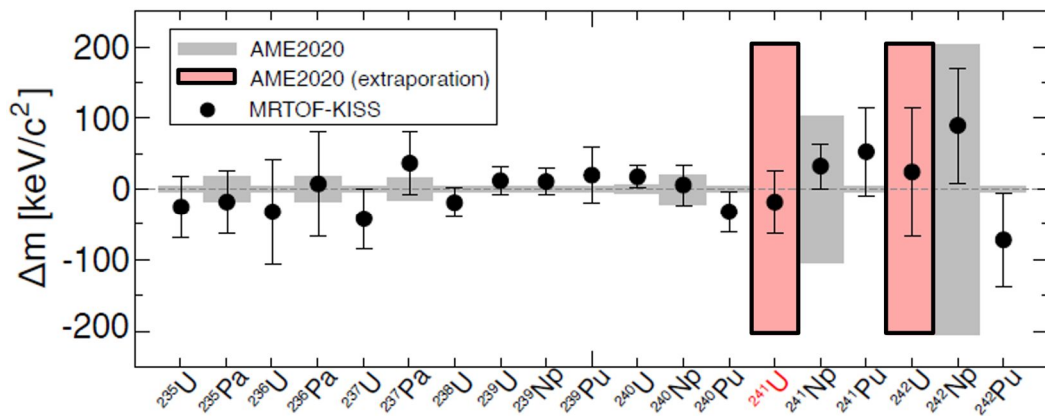


図5 測定された質量の AME2020 の値からのずれ(引用文献)。

<引用文献>

E.M. Burbidge *et al.*, Rev. Mod. Phys. 29 (1957) 547.  
M. Eichler *et al.*, Astrophys. J. 808 (2015) 30.

- Y.X. Watanabe *et al.*, Phys. rev. Lett. 115 (2015) 172503.  
Y. Hirayama *et al.*, Nucl. Instrum. and Methods B 353 (2015) 4.  
J. Y. Moon *et al.*, RIKEN Accel. Prog. Rep. 52 (2018) 138.  
J. E. Sansonetti and W. C. Martin, J. Phys. Chem. Ref. Data 34 (2005) 1559 - 2259.  
T. Niwase *et al.*, Phys. Rev. Lett. 130 (2023) 132502.  
M. Wang *et al.*, Chinese Physics C 45 (2021) 030003.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Niwase T., Watanabe Y.X., Hirayama Y., Mukai M., Schury P., Andreyev A.N., Hashimoto T., Iimura S., Ishiyama H., Ito Y., Jeong S.C., Kaji D., Kimura S., Miyatake H., Morimoto K., Moon J.-Y., Oyaizu M., Rosenbusch M., Taniguchi A., Wada M.	4. 巻 130
2. 論文標題 Discovery of New Isotope <sup>241</sup> U and Systematic High-Precision Atomic Mass Measurements of Neutron-Rich Pa-Pu Nuclei Produced via Multinucleon Transfer Reactions	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 132502
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.130.132502	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計20件（うち招待講演 14件/うち国際学会 12件）

1. 発表者名 庭瀬暁隆、渡辺裕、平山賀一、向井もも、P. Schury, A. N. Andreyev、飯村俊、石山博恒、鄭淳謙、宮武宇也、M. Rosenbusch、谷口秋洋、和田道治
2. 発表標題 精密質量測定による新同位体 <sup>241</sup> Uの発見
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yutaka Watanabe
2. 発表標題 Gamma-ray spectroscopy of neutron-rich nuclei produced in multinucleon transfer reactions at KISS
3. 学会等名 The workshop on frontier nuclear studies with gamma-ray spectrometer arrays (gamma24) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 渡辺裕
2. 発表標題 多核子移行反応で拓く中性子過剰核研究
3. 学会等名 研究会「低エネルギー重イオン反応と超重元素の科学」(招待講演)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Yutaka Watanabe
2. 発表標題 Production of neutron-rich nuclei by multinucleon transfer reactions and nuclear spectroscopy at KISS
3. 学会等名 3rd RIKEN-IBS Joing Convergence on Nuclear Physics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 渡辺裕
2. 発表標題 KEK元素選択型質量分離装置(KISS)の紹介: 多核子移行反応によるRI合成と核分光実験
3. 学会等名 研究会「放射線検出器とその応用」(第38回) (招待講演)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 渡辺裕
2. 発表標題 KISSでの多核子移行反応を用いたRI生成と核分光
3. 学会等名 東海・重イオン科学シンポジウム -タンデム加速器成果報告会- (招待講演)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Yutaka Watanabe
2. 発表標題 Decay spectroscopy of neutron-rich nuclei produced in multinucleon transfer reactions at KISS
3. 学会等名 6th Joint Meeting of the APS Division of Nuclear Physics and the Physical Society of Japan (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yutaka Watanabe
2. 発表標題 Spectroscopy of neutron-rich nuclei produced by multinucleon transfer reactions at KISS
3. 学会等名 FUSION23 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 渡辺裕
2. 発表標題 多核子移行反応による中性子過剰アクチノイド実験への展望
3. 学会等名 理研RIBFミニワークショップ「理論と実験で拓く中性子過剰核の核分裂」(招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 渡辺裕
2. 発表標題 KISSでの核分光実験
3. 学会等名 令和4年度専門研究会「短寿命RIを用いた核分光と核物性研究IX」
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yutaka Watanabe
2. 発表標題 Spectroscopy of neutron-rich nuclei produced in multinucleon transfer reactions at KISS
3. 学会等名 Physics with SPIRAL2 Heavy Ion Beams (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年



1. 発表者名 Yutaka Watanabe
2. 発表標題 Experimental studies of neutron-rich nuclei around $N = 126$ and beyond at KEK Isotope Separation System
3. 学会等名 The 16th International Symposium on Origin of Matter and Evolution of Galaxies (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yutaka Watanabe
2. 発表標題 Present status and future plan of KISS
3. 学会等名 RIBF Users Meeting 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yoshikazu Hirayama
2. 発表標題 In-Gas-Cell Laser Ionization Spectroscopy at KISS
3. 学会等名 International Conference on Hyperfine Interactions and their Applications (HYPERFINE2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Michiharu Wada
2. 発表標題 Precision mass measurements of superheavy and other exotic nuclides
3. 学会等名 7th International Conference on the Chemistry and Physics of the Transactinide Elements (TAN23) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yoshikazu Hirayama
2. 発表標題 Present status and future plan of KISS
3. 学会等名 RIBF Users Meeting 2023 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 庭瀬暁隆
2. 発表標題 MRTOFを用いた質量測定と核反応研究
3. 学会等名 第12回停止・低速RIビームを用いた核分光研究会(12th SSR)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Toshitaka Niwase
2. 発表標題 High-precision mass measurement of the actinide nuclides via MRTOF-MS of the KEK Isotope Separation System
3. 学会等名 14th International Conference on Stopping and Manipulation of Ions and Related Topics (SMI-2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Toshitaka Niwase
2. 発表標題 High-precision direct mass measurement of (super)heavy nuclides with MRTOF via GARIS-II and KISS setups
3. 学会等名 TASCA23, 20th Workshop on Recoil Separator for Superheavy Element Chemistry & Physics (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 平山 賀一
2. 発表標題 KISSでの核分光実験と元素合成
3. 学会等名 中性子捕獲反応で迫る宇宙の元素合成（招待講演）
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

プレスリリース「40年ぶりに中性子過剰なウラン同位体を新発見 ～ウランの起源解明に期待～」、KEK、理研、2023年3月31日
---

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
研究分担者	平山 賀一  (Hirayama Yoshikazu)  (30391733)	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・准教授    (82118)	

	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
研究協力者	庭瀬 暁隆  (Niwase Toshitaka)		
研究協力者	向井 もも  (Mukai Momo)		

6. 研究組織（つづき）

	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
研究協力者	木村 創大  (Kimura Sota)		
研究協力者	ローゼンブッシュ マルコ  (Rosenbusch Marco)		
研究協力者	シュリー ピーター  (Schury Peter)		
研究協力者	和田 道治  (Wada Michiharu)		
研究協力者	宮武 宇也  (Miyatake Hiroari)		
研究協力者	羽場 宏光  (Haba Hiromitsu)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------

英国	ヨーク大学			
韓国	基礎科学院			