

JAERI-Conf
97-009



「重元素の核融合・核分裂」研究会報告集
1997年3月24日～25日、東海研究所、東海村

1997年7月

(編) 光岡真一・池添 博・岩本 昭・永目論一郎

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の間合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.
Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1997

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷(株)

「重元素の核融合・核分裂」研究会報告集
1997年3月24日～25日、東海研究所、東海村

日本原子力研究所先端基礎研究センター
(編) 光岡真一・池添 博・岩本 昭・永目諭一郎*

(1997年7月1日受理)

研究会「重元素の核融合・核分裂」は、先端基礎研究センター第89回基礎科学セミナーとして重イオン未知重核研究グループの主催で、1997年3月24日と25日の両日、原研東海研究所において行われた。主題は、低エネルギー重イオンの核融合・核分裂反応を用いた重元素の合成研究であった。日本原子力研究所タンデム加速器実験施設では、超電導ブースター加速器ビームラインに新しく反跳生成核分裂装置が完成し、重元素領域における新同位体合成についての実験研究がはじまった。昨年G I Sにおいて、冷たい核融合反応を用いて原子番号112が合成されたが、殻効果による殻分裂障壁が最も高いと予想されている二重閉核（陽子数114、中性子数184）まで同じ方法で到達するのは容易ではないと思われる。研究会では、これらの問題に焦点を絞り、重元素および超重元素領域における核分裂障壁や複合核の生成と崩壊の機構などについて、実験と理論の両面にわたり活発な討論を行った。参加者は所外の大学や研究所から18人、所内から12人であった。本稿は、この研究会において発表された講演の報告集である。

Proceedings of the Symposium on Nuclear Fusion and Fission of Heavy Elements
March 24~25, 1997, JAERI, Tokai, Japan

(Eds.) Shin-ichi MITSUOKA, Hiroshi IKEZOE,
Akira IWAMOTO and Yuichiro NAGAME*

Advanced Science Research Center
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received July 1, 1997)

The JAERI Recoil Mass Separator (JAERI-RMS) has been constructed at the JAERI tandem-booster facility. Recently several experimental results using the JAERI-RMS have been reported on the productions of new isotopes in light actinide mass region. Over the years many calculations and experiments have been developed to investigate the nuclear properties of heavy- and superheavy-elements and to synthesize those by low energy heavy-ion reactions. The known heaviest element up to now is 112 which has been produced and identified in an experiment at GSI Darmstadt. Since the production cross sections were the order of subpicobarn and the cross sections of heavier elements might decrease rapidly, it is considered to be difficult to search superheavy elements towards the predicted double magic element ($Z=114$, $N=184$) with the standard method. To break through the unsettled problems, it is important to understand the fusion and fission mechanisms of heavy nuclei near the Coulomb barriers and the decay process of excited heavy compound nuclei. In order to discuss recent experimental and theoretical developments, the symposium on Nuclear Fusion and Fission of Heavy Elements was held at Tokai Research Establishment of JAERI on March 24 and 25, 1997. The numbers of participants were 18 from universities and 12 from JAERI. This proceedings accumulate the reports presented at the symposium.

Keywords: Symposium Proceedings, Tandem-booster Accelerator, Recoil Mass Separator, Fusion, Fission, Heavy-ion, Heavy Element, Superheavy Element, Radioisotope

*Department of Chemistry and Fuel Research

目 次

1. 原子核質量の推定と質量公式	1
橋 孝博 (早大高等学院)	
2. 京大原子炉における新同位元素探索の成果と今後の展望	8
谷口 秋洋 (京大原子炉)	
3. 原研高崎及び東海ISOLによる未知核種探索	15
浅井 雅人 (名大原子核工学)	
4. 原研ガスジェットISOLを用いたEC崩壊する未知アクチノイド核種の探索	20
塚田 和明 (原研燃料研究部)	
5. JAERI-RMSを用いた重核合成と新同位元素探索の現状	28
生田 智彦 (原研先端基礎研究センター)	
6. 重・超重元素領域での質量予測	34
宇野 正宏 (文部省初等中等教育局)	
7. 密着核融合とその周辺	42
岩本 昭 (原研先端基礎研究センター)	
8. 中性子過剰核のバリア近傍での融合反応	48
吉田 敦 (理研放射線研究室)	
9. 超重核合成の散逸動力学	52
和田 隆宏 (甲南大理学部物理)	
10. アクチノイド核分裂への実験的アプローチ	59
馬場 宏 (阪大理学部化学)	
11. 遅発核分裂	66
初川 雄一 (原研燃料研究部)	
12. 軽アクチノイド核の核分裂描像	70
大槻 勤 (東北大原子核理学研究施設)	
13. 核分裂片と中性子の同時計測による熱中性子核分裂過程の実験的研究	76
西尾 勝久 (京大工学研究科)	
14. 超アクチノイド元素の核化学	84
永目諭一郎 (原研燃料研究部)	
15. オクロ天然原子炉の地球化学的特徴と核化学的特性	93
日高 洋 (広大地球惑星科)	
16. E アレナの現状と計画	100
久保野 茂 (東大核研)	

17. スポレーションRIの利用計画	102
池添 博（原研先端基礎研究センター）	
付 録	105

Contents

1. Review of Atomic Mass Formula	1
T. Tachibana	
2. Status and Future Plan of KUR-ISOL for New Isotope Search	8
A. Taniguchi	
3. Search for Unknown Isotopes Using the TIARA-ISOL and the JAERI-ISOL	15
M. Asai	
4. Search for EC-decayed Neutron-deficient Actinide Isotopes Using Gas-jet Coupled JAERI-ISOL	20
K. Tsukada	
5. Production of Heavy Element and Search for New Isotopes at JAERI-RMS	28
T. Ikuta	
6. Estimation of Atomic Masses of Heavy and Superheavy Elements	34
M. Uno	
7. Hugging Fusion and Related Topics	42
A. Iwamoto	
8. Fusion Reaction around the Coulomb Barrier with Neutron-rich Nuclei	48
A. Yoshida	
9. Dissipative Dynamics of the Synthesis of Superheavy Elements	52
T. Wada, Y. Aritomo, T. Tokuda, K. Okazaki, M. Ohta, Y. Abe	
10. Experimental Approach to Fission process of Actinides	59
H. Baba	
11. Delayed Fission	66
Y. Hatsukawa	
12. Binary Scission Configurations in Fission of Light Actinides	70
T. Ohtsuki, Y. Nagame, I. Nishinaka, H. Ikezoe, M. Tanikawa, Y.L. Zhao, K. Sueki, H. Nakahara	
13. Experimental Study of Fission Process by Fragment-Neutron Correlation Measurement	76
K. Nishio, H. Yamamoto, I. Kanno, xI. Kimura, Y. Nakagome	
14. Nuclear Chemistry of Transactinide Elements	84
Y. Nagame	
15. Geochemical Properties and Nuclearchemical Characteristics of Oklo Natural Fission Reactors	93
H. Hidaka	
16. New ISOL-Based RNB Facility at INS: The Present and the Plan	100
S. Kubono, T. Nomura, S. Arai, M. Fujioka, Y. Hashimoto, A. Imanishi, S.C. Jeong, I. Katayama, T. Katayama, S. Kato, H. Kawakami, H. Masuda, T. Miyachi, H. Miyatake, K. Niki, M. Oyaizu, T. Shinozuka, Y. Shirakabe, P. Strasser, Y. Takeda, J. Tanaka, M.H. Tanaka, E. Tojyo, N. Tokuda, M. Tomizawa, M. Wada, H. Wollnik, K. Yoshida, M. Yoshizawa	
17. The Future Plan for the Applications of RI Produced in the Proton-induced Spallation-reaction	102
H. Ikezoe	
Appendix	105

1. 原子核質量の推定と質量公式

橋 孝博 (早稲田大学高等学校
早稲田大学理工学総合センター)

(1) はじめに

重元素の合成や研究に欠かせない原子核質量について、とくに未知核種の質量推定で良く用いられるいくつかの質量公式の有効性について考察する。また、実験で求められた質量値のデータセットと、質量公式による理論値のデータセットを併用する時に有効な手法も簡単に紹介する。

まず始めに、原子核質量の実験値の評価について考察する。質量評価は古くから行われていて、多くの質量表にまとめられてきた。近年は Wapstra と Audi によるものが有名で、最新版は1993/1995年版(文献1)である。そこには約2000核種という膨大な量の質量値が評価されていて、それらの値からシステムティクス的手法を用いて推定された質量値も、便利な表としてまとめられている。その質量表の前版は1988年版(文献2)であるが、安定核から遠く離れた核種以外は、評価質量値の違いはあまりなく、全体的に見ても表価値は収束している。これは、実験装置および技術の進歩のおかげであり、ここ10年で、特に質量数 $A \leq 40$ の核種では実験誤差が大まかに言って1/5 ~ 1/10 と非常に小さくなっている。

一方、ごく一部ではあるが表1にまとめたように、まだ評価値が十分な精度では定まらない核種も数種ある。さらに、ひどい場合には数年たつと評価済みの「お墨付き」が取り下げられて、「評価済み質量表」から外されるものもある。彼等の質量表を使うにあたっては、このような点に関して注意が必要であろう。参考までに、1988年版と1995年版で質量評価値が0.5 MeV以上違う核種を表1に挙げたわけだが、最近よく使われる質量公式の誤差は0.3 MeV ~ 0.8 MeVである。質量公式のパラメータ値を決める時に、評価済み質量値はinput dataとして用いられるが、公式の誤差より大きく不安定なものは除くなどの注意が必要であろう。とくに、Na アイソトープはまだ評価値が安定していない。

表1. 1988年版と1995年版を比べたとき、評価済み質量値が0.5 MeV以上違う核種。
表中の誤差は1 σ である。単位はMeV。

Z	N	1988年版		1995年版		質量値の違い
		質量値	誤差	質量値	誤差	
3	7	33.84	0.25	33.05	0.02	0.79
4	9	35.00	0.50	33.66	0.50	1.34
11	20	11.83	0.58	12.66	0.16	0.83
11	21	16.55	0.74	18.30	0.48	1.75
11	22	21.47	1.14	25.51	1.49	4.04
12	20	-1.75	1.58	-0.79	0.10	0.96
17	26	-23.13	0.06	-24.03	0.16	0.90
20	31	-35.01	0.08	-35.89	0.09	0.88
26	37	-55.19	0.06	-55.78	0.19	0.59
57	91	-63.81	0.15	-63.16	0.13	0.65

(2) 質量公式による推定

ここでは、よく使われる質量公式として次のものを取り上げる。どれも前述の Audi 達の質量表（主に1988年版、またはそれにその時点での最新の実験値を加えたもの）を input data にしている。各公式の諸性質（パラメータ数、誤差等）は、表2にまとめた。

- (ア) JM 公式 (Jänecke and Masson, 文献3) : Garvey-Kelson 流のシステムティクスを基にした質量公式。陽子数、中性子数および質量数ひとつひとつにパラメータ値をきめるので、多パラメータ公式である。
- (イ) TUYU 公式 (Tachibana, Uno, Yamada and Yamada, 文献4) : 質量の大局的部分を表わす macroscopic 項と empirical な shell 項の和。Shell 項の相乗効果で原子核の変形効果なども考慮した。
- (ウ) FRDM 公式 (Möller, Nix, Myers and Swiatecki, 文献5) : 原子核の変形効果を含む大局的部分 (macroscopic 項) と一粒子変形ポテンシャルから作った shell 項 (microscopic 項) の和。
- (エ) ETFSI 公式 (Aboussir, Pearson, Dutta and Tondeur, 文献6) : Hartree-Fock の半古典的近似計算。Macroscopic 項と microscopic 項のコンシステントを取ることに注意を払っている。

以上の (ア) から (エ) 以外にも、Skyrme SIII force を用いた Hartree-Fock (+BCS Pairing) を正方メッシュ表現で解く手法 (文献7) や相対論的平均場近似を用いた原子核研究 (文献8) など、これから有望な研究方法もある。さらに Duflo 達の最近の質量公式の研究 (文献9) などもあるが、まだ質量表として公にされていないこともあり、文献を挙げるだけとする。

また、われわれのグループでは、Woods-Saxon 型の一粒子ポテンシャルを改良し、それを用いて求めた一粒子エネルギーから Strutinsky の手法を使わないで球形の shell 項を導出した。さらに、それら球形 shell 項の混合で pairing 効果と変形核にも使える shell 項を出す方法を考えている。(文献10)

表2 1988年版および1993年版の評価済みデータに対する質量公式の誤差 (標準偏差)。

「核種数」とは標準偏差を求めるときのデータ数である。1993年版に含まれるデータのうち1988年版にはないものを「新測定」とした。

各公式名の下の[]内の数値は公式のパラメータ数である。誤差は keV 単位で表示した。

質量公式	1988年版に対する		1993年版に対する		新測定のみに対する		誤差の比 (2) / (1)
	誤差 (1)	核種数	誤差	核種数	誤差 (2)	核種数	
JM [928]	339	1633	301	1884	673	280	1.99
TUYY [281]	538	1657	576	1909	864	283	1.61
FRDM [16]	670	1593	690	1837	810	275	1.21
ETFSI [9]	730	1492	748	1716	871	252	1.19

表2に示したように、パラメータ数が多い公式、例えば JM 公式の方が (当然だが) 誤差が小さい。一般的に言って、実験値が存在する領域近くでの未知核種の質量推定には、この JM 公式のようにシステムティクスを用いた方法が適している。その典型的な例を図1に示した。この図1には ^{165}Gd のベータ崩壊半減期の実験値 (文献11) とベータ崩壊の大局的理論で推定した値が示されている。その大局的理論での計算にはベータ崩壊のQ値が必要だが、それを各種の質量公式 (TUYY, FRDM, ETFSI) やシステムティクスの手法 (JM, Syst. (Audi), Syst. (Yamada)) で推定している。つまり、ベータ崩壊の理論には問題がないと仮定し、計算される半減期を実験値と比べることで、input data であるQ値の正しさを調べたものである。結果は、質量公式 TUYY, FRDM,

ETFSI を用いた場合よりシステムティクス (JM, Syst. (Audi), Syst. (Yamada)) を用いた方が実験値の半減期に近い計算値を与える。このように、実験値が存在する領域近くではシステムティクスの手法はかなり有効であると言える。

しかし、一方で表2の一番右の欄にあるように、システムティクスの手法でない質量公式 FRDM, ETFSI の方が、新しい測定値に対する誤差はあまり増えない。つまり、これらの公式で外挿した場合には、誤差の急激な増加の可能性が小さいと考えられる。これはパラメータの数が少ない、いわゆる微視的モデルに共通する性質のようである。

(ただし、ここで比べているのは誤差の絶対値ではなく、変化した割合である。誤差の絶対値はシステムティクスの方 (JM公式) がまだ小さい。) われわれの TUYU 公式はシステムティクスの手法ではないが、empirical な shell 項を含むので中間的な性質を示す。

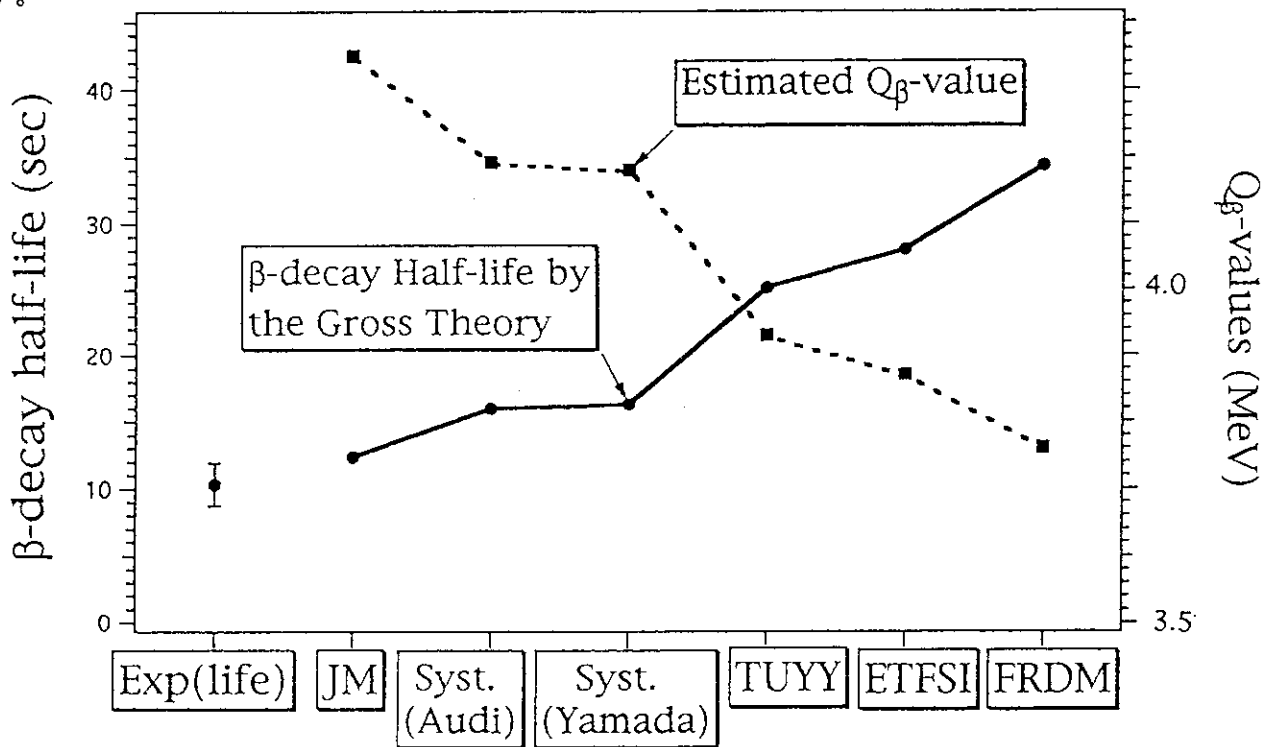


Fig.1 Estimated Q_{β} -values and half-lives of ^{165}Gd

実験値の存在する領域からさらに離れると、状況はどうなるであろうか。ひとつの例として、天体におけるr-過程元素合成での応用を例として挙げる。r-過程は、適当な温度 ($\sim 10^9$ K) と中性子密度 ($10^{22}\sim 10^{26}$ 個/cm³) が適当な時間 (数秒間) つづく天体環境の中で中性子捕獲とベータ崩壊を繰り返しながら、鉄より重い重元素の合成が進むというシナリオである。その経路はN-Z平面上で中性子分離エネルギー Sn が約 2~3 MeV のところを通過することになる。ただし、その環境が宇宙空間のどのような天体現象で実現されるのかは、まだ十分に明らかになっていない。Sn=2~3 MeV のような中性子過剰領域では、ごく一部を除いて質量の実験値はなく、質量公式による推定しか道はない。質量公式の TUYU, FRDM および ETFSI を用いた計算例を図2に示した。

ここで、たとえば、 $\Delta(Z_2, N_2)$ は陽子数 $=Z_2$ 、中性子数 $=N_2$ の核の質量の理論誤差である。

この式の意味は、ある核の質量に関する理論誤差を、その核の周りにある別な核の理論誤差で推定するというものである。(式の具体的な解説については、文献13を参照されたい。)

パラメータ a, b の値は、実験値の存在する全領域に上式を適用して決める。そのパラメータ値を、実験値がない領域にも使い、質量公式の理論誤差を推定してTUY Y公式の値を改めて描いたのが、図3の細い実線である。TUY Y公式をこの方式で改めたものをmodified TUY Yと呼ぶと、このmodified TUY Yはスムーズに実験値に繋がり、やがて本来のTUY Y公式に収束して行く。

つまり、質量実験値がある領域では実験値を用い、その先はmodified TUY Yの値を使うと良いといわけである。図3で示した系統的な誤差は、他の質量公式にもあり、なにもTUY Y公式固有のものでないことは、当然である。つまり、この方法は、他の質量公式に対しても同様に使える一般的な手法であり、質量公式の理論誤差を考慮することができる。

(4) まとめ

以上、評価済み質量値に対するコメントを述べ、未知核種の質量推定に欠かせない質量公式について考察した。さらに、公式の理論誤差を推定する簡単な手法も紹介した。

参考文献

[1] G. Audi and A. H. Wapstra, Nucl. Phys. A565, (1993) 1 and

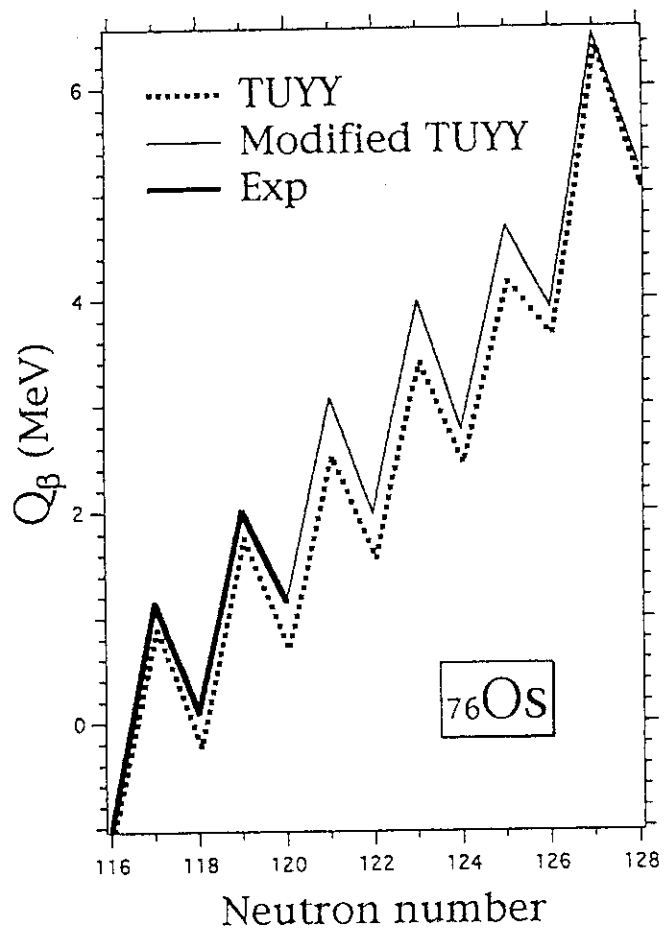


Fig.3 Experimental and estimated Q_{β} -values of Os isotopes

- A595, (1995) 409.
- [2] A. H. Wapstra, *et al.*, Atomic Data and Nuclear Data Tables 39 (1988) 281.
- [3] J. Jänecke and P. J. Masson, Atomic Data and Nuclear Data Tables 39 (1988) 265.
- [4] T.Tachibana, *et al.*, Atomic Data and Nuclear Data Tables 39 (1988) 251.
- [5] P.Möller, *et al.*, Atomic Data and Nuclear Data Table 59 (1995) 185.
- [6] Y.Aboussir, *et al.*, Atomic Data and Nuclear Data Table 61 (1995) 127.
- [7] N.Tajima, *et al.*, Nucl. Phys. A603, (1996) 23 .
- [8] Y.Sugahara, *et al.* Nucl. Phys. A579, (1994) 557.
- [9] J.Duflo and A.P. Zuker, Phys. Rev., 52 (1995) R23.
- [10] T. Tachibana, M. Takano, and M. Yamada, JAERI-M 91-032 (1991) 395 ;
M. Uno, T. Tachibana, M. Takano, H. Koura and M. Yamada, Nuclei Far From Stability / Atomic Masses and Fundamental Constants 1992 edited by R. Neugart and A. Wöhr (Institute of Physics Pub., 1993), P.117
H.Koura, M.Uno, T.Tachibana and M.Yamada, Technical Report No.95-25, Advanced Research Center for Science and Engineering, Waseda Univ.
- [11] 市川進一氏（原研）からの私信。
- [12] T. Tachibana *et al.*, Capture Gamma-ray Spectroscopy and Related Topics 1993, Ed. by J. Kern (World Scientific1994), p.768
- [13] M.Yamada, *et al.* , Nuclei Far From Stability / Atomic Masses and Fundamental Constants 1992 edited by R. Neugart and A. Wöhr (Institute of Physics Pub., 1993), P.121

2. 京大原子炉における新同位元素探索の成果と今後の展望

谷口 秋洋 (京大原子炉)

1. はじめに

1976年に、名大工学部と旧京大原子エネルギー研究所の協力の下に、京大原子炉に付置するガスジェット型オンライン同位体分離装置の予備実験が開始された。その3年後、原子炉 T-1 孔に He ガスジェット型 ISOL(KUR-ISOL : Kyoto University Reactor-Isotope Separator On-Line)が設置された。以来、KUR-ISOLは、短寿命中性子過剰核の核物理・核構造の系統的研究に利用されると共に、装置自体の継続的な研究開発により、生成可能な核種の拡大やそのビーム強度の増強が行われてきた。

現在、KUR-ISOLを利用して行われている研究は、①新同位体元素探索、②原子核分光による質量数 150 近傍の中性子過剰核種の核構造研究、③不安定核種生成装置に関する研究開発、④不安定核種をプローブに用いた物性研究であり、名大、姫工大、阪大の協力を得て研究が進められている。今回は、これらの研究課題の内、新同位体元素探索を中心に KUR-ISOL の現状と将来計画について紹介を交えて報告する。

2. KUR-ISOL

KUR-ISOL では、ターゲットである ^{235}U から原子炉の熱中性子により核分裂生成物を生成し、これをエアロゾルが混入されたガス流で約 11m 離れたイオン源まで輸送する方式 (ガスジェット型) が採用されている [1]。ガスジェット型 ISOL は 1970 年代中頃の当時としては、世界的にも確立された方式ではなかったが、放射化やそれによる被爆が比較的少ないことや原子炉の実験孔が利用可能であること等の理由から、この型が採用された。

Fig. 1 に KUR-ISOL の概略図を示す。まず、ターゲットであるが、93%濃縮された ^{235}U (30 mg) が、内径 36 mm、長さ 50 mm のターゲットチェンバー内壁に、厚さ 0.7 mg/cm^2 で蒸着されている。原子炉の起動後、このチェンバーを T-1 と呼ばれる実験孔から原子炉中央まで挿入し、原子炉の熱中性子を照射することにより ^{235}U の核分裂生成物をチェンバー内に生成させる。T-1 孔中心部での熱中性子束は約 $3 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ であり、毎秒約 1.3×10^{11} の核分裂が起こる。生成した核分裂生成物は、ターゲットチェンバー内にキャリアガスとして導入されるガスとの衝突により熱化され、キャリアーガスに混入されたエアロゾル物質 (PbI_2) により捕獲される。この後、核分裂生成物はガス流によりチェンバー外に出て、表面電離型イオン源まで輸送される。核分裂生成物が付着したエアロゾルはイオン源の手前のスキマーによりガスと分離されイオン源に入射する。生成した核分裂生成物がターゲットチェンバーからイオン源まで到達するのに要する時間は 1 s 以下であり [2]、生成直後にチェンバーから吸い出されてしまえば、半減期 ~ 1 s 程度の核種も取り出すことが可能である。核分裂生成物は酸化法 [3] 等により +1 価にイオン化された後、30 keV まで加速され質量分解能約 600 の電磁石に入射し質量分離される。質量分離された不安定核ビー

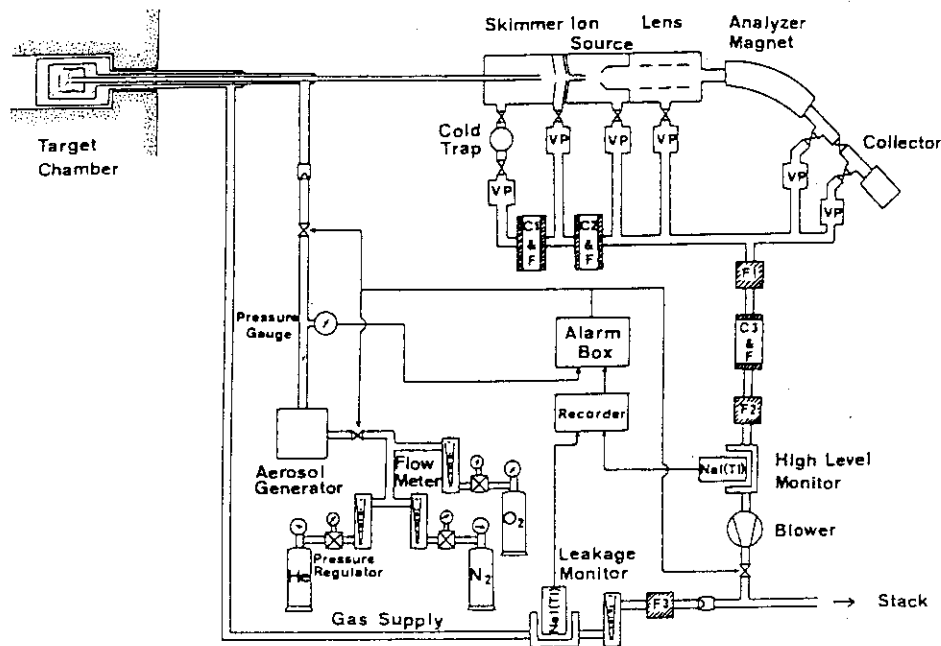


Fig. 1 Schematic diagram of the gas-jet type KUR-ISOL.

ムは、焦点付近に置かれたスリットにより、目的とする質量数の核種のみが選択され、コレクションテープ上に収集される。収集された核種は、対象とする核種やその親核種・娘核種の半減期に応じて設定される測定モードで検出器の位置まで移動し、核分光的測定が行われる。現在、ビームとして取り出し可能なイオン量は、例えば、 $^{140}\text{Cs}^+$ で約 10^7 個/s のオーダーであり、全効率は 1~2% 程度となっている。

1976 年から京大原子炉における ISOL 開発が開始されて以来、KUR-ISOL をよりビーム強度が強くと、より β 安定曲線から離れた中性子過剰核が取り出せる装置にするために、これまでイオン源や核分裂生成物の輸送法の開発が行われてきた。Table 1 に KUR-ISOL の装置の沿革とそれにより測定可能となった核種、特に KUR-ISOL で同定された新同位体元素を示すが、装置の性能向上と共に新同位体元素の発見がなされてきたことが分かる。

3. 新同位体元素の探索

KUR-ISOL ではこれまでに ^{156}Pm [4]、 ^{155}Nd [5]、 ^{154}Pr [6]、 ^{152}Ce [7] の 4 核種の新同位体元素の同定と ^{150}La の β 崩壊の同定が行われた。この一例として、Fig. 2 には、最近確認された ^{150}La の β 崩壊で観測された X 線と γ 線の崩壊曲線を示す。 ^{150}La は、近年、質量数 150 における半減期 0.85(5) s の遅発中性子の先行核として報告されていたが[8]、その β 崩壊については確認されていなかった核種である。これらの崩壊曲線から、この核種の β 半減期の値として 0.51(3) s を決定した[9]。この核種の半減期に関する理論値は、microscopic theory では、0.771 s (Hiff 達の質量公式)、1.46 s (Groote 達の質量公式)、0.405 s (Möller 達の質量公式) となっている[10]。一方、大局的理論では 1.10~2.68 s と計算されている[11]。双方の理論は、 Q_β 値の依存性が大きいと、 ^{150}La の場合、どちらかといえば、microscopic theory による理論値の方がより実験値に近いといえる。

Fig. 3には、 ^{235}U の熱中性子による核分裂で得られる核種の累積核分裂収率を示す。この図が示すように、これまでKUR-ISOLで新同位体元素として同定された核種の収率は0.01%の領域であり、今後の新同位体元素の探索は、収率0.001%の領域に踏み入る事になる。この領域における新同位体元素は、最近開発されたHe- N_2 混合ガスジェット方式[12]により、ビーム強度を10~20倍程度の増強に成功したので、その発見が期待されており、現在、 ^{151}La 、 ^{153}Ce 、 ^{155}Pr 、 ^{157}Nd の探索が行われている。

4. その他の核分光実験

冒頭で述べたように、KUR-ISOLでは、新同位体元素の探索やISOLの装置に関する開発研究の他に、核分光学的手法を用いた核構造研究と不安定核種をプローブに用いた物性研究が行われている。この内、最近の核分光実験に関する成果と現況について述べる。

現在、我々は、主に質量数150近傍の希土類核種を対象とした実験を行っている。この領域の核種は遷移領域核と呼ばれており、原子核構造が大きく変化するので、これらの核種の系統的な研究により、核構造に関するより深い知見が得ることができると考えられる。最近の研究成果としては、 ^{153}Nd [13]、 ^{152}Ce [14]、 ^{154}Pr [15]の β 崩壊の測定から、これらの崩壊図式等が作られ、回転-振動結合モデルやIBMモデルとの比較や核種間の系統的比較等により、核構造に関する議論が行われた。この内、例えば、 ^{153}Nd の崩壊の研究においては、 ^{153}Pm における鏡映非対称変形状態の存在の可能性が示唆された。アクチノイド領域の核種から始まったこの状態に関する研究は、最近、ランタノイド領域でも行われ始めており、 ^{153}Pm にもこの状態が存在であろうと予測されていたが、本実験での非常に強いE1遷移の観測から、この状態の存在の可能性を示唆した。そして、現在、 ^{153}Pr 、 ^{152}Pr と $^{149,150}\text{Ce}$ の実験が進行中である。

高純度ゲルマニウム(HPGe)半導体検出器を用いた Q_β 値の測定は、名大グループにより精力的に行われており、これまでに ^{147}La 、 $^{147-152}\text{Pr}$ 、 ^{152}Nd 等の Q_β 値が測定された[16]。この測定に関しては、向かい合わせた2台のHPGe検出器を用いた測定法を開発中である。これは、一方の検出器で後方散乱された β 線をもう一方の検出器で捕まえ、その2台の検出器のエネルギーの和をとることにより、理論的な β 線のエネルギースペクトルにかなり近いスペクトルが得られるというものであり、より精度の高い Q_β 値の測定が可能となると思われる。

Table 1 Development and identification of new isotopes at KUR-ISOL

年代	KUR-ISOL	ターゲット・測定核種
1964	KUR 1MW	
1969	KUR 5MW	
1972	オンライン照射装置	^{108}Ag , ^{110}Ag , $^{104\text{m}}\text{Rh}$, ^{112}In
1976	ISOL予備実験 (名大、京大原工研)	^{252}Cf , ^{235}U
1978	ガスジェット型ISOL 試作開始	
1979	Heジェット型ISOL Nielsen型イオン源	^{235}U (1mg→10mg)
1986	表面電離型イオン源 酸化法	^{156}Pm ($T_{1/2}=27\text{s}$) ^{155}Nd ($T_{1/2}=8.9\text{s}$) ^{94}Sr , 希土類核種
1988		^{154}Pr ($T_{1/2}=2.3\text{s}$)
1990		^{152}Ce ($T_{1/2}=1.4\text{s}$)
1991		^{235}U (10mg→30mg)
1992	フッ化法	Ba, Sr
1994	He- N_2 混合ガス ジェット型ISOL	
1995		^{150}La ($T_{1/2}=0.5\text{s}$)

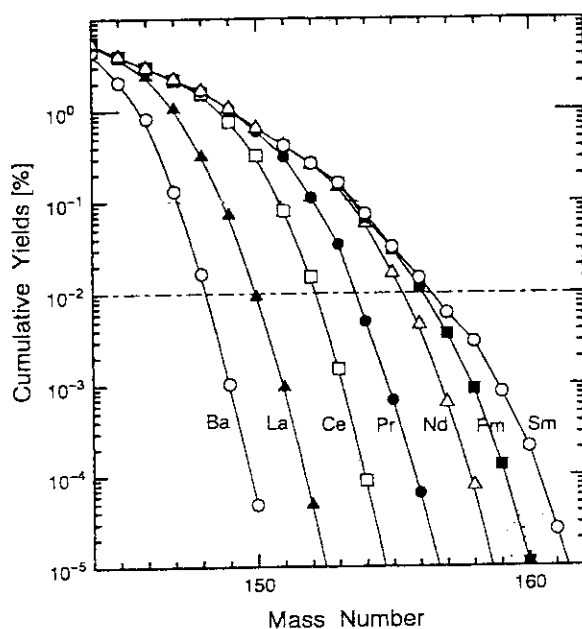
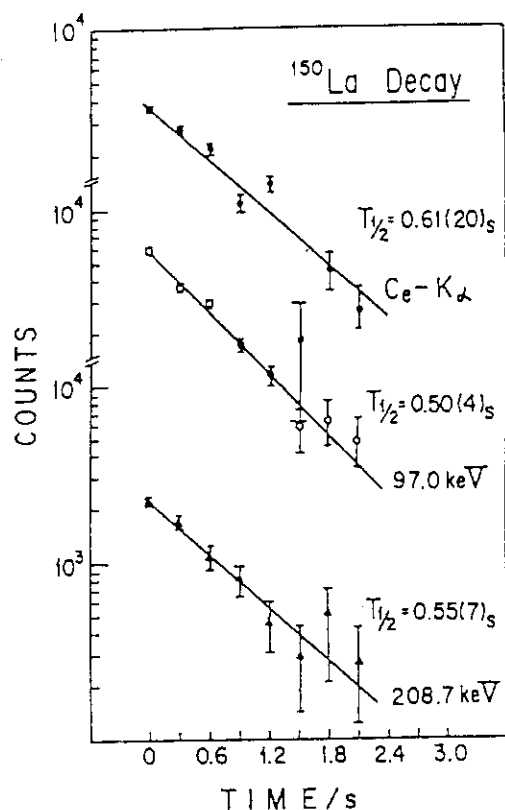


Fig. 2 Decay curves of Ce K_α X-rays and two γ-ray lines originating from the decay of ¹⁵⁰La. Fig. 3 Cumulative fission yields for the thermal fission of ²³⁵U.

5. 今後の計画

以上述べてきたように、KUR-ISOL が原子炉に付置されて以来、その性能向上が着実になされ、現性能は開発当初の計画の約 2000 倍のビーム強度にまで達している。そして、京大原子炉実験所自体の将来計画の進展に依るが、今後も KUR-ISOL では、「短寿命中性子過剰核種の生成とその核構造研究」と「不安定原子核の高度利用」を研究テーマの中心に据え、広範囲の領域に渡ってより中性子の多い原子核をより強いビーム強度で得られるように、KUR-ISOL を整備していきたい。また、取り出された核種に対する様々な測定を効率良く行えるような設備を整えることも重要である。以下に、今後の計画として行いたいものを 2 つ程述べる。

ビームラインの新設—現在、KUR-ISOL に設置されているビームラインは一本であり、多様な実験に対して柔軟に対応しにくい面がある。現状の実験エリアの広さに限りがあるため大がかな変更は難しいが、Fig. 4 に示すように、質量分析用電磁石を極性の可変なタイプに変更し、ビームラインをもう一本設置することを予定している。現在、ビームラインのスペースを確保するために、加速電源等が置かれている 2 階部分の拡張作業に入るところであり、来年度には新たなビームラインを設置する予定である。

超ウラン元素を用いた新ターゲットの開発—現在、KUR-ISOL のターゲットには 30mg の ²³⁵U が使用されている。ビーム強度を増すためには、この ²³⁵U を増量するのが確実な方法であろう。しかし、ガスジェット型 ISOL で取り出すことが可能である核種はその半

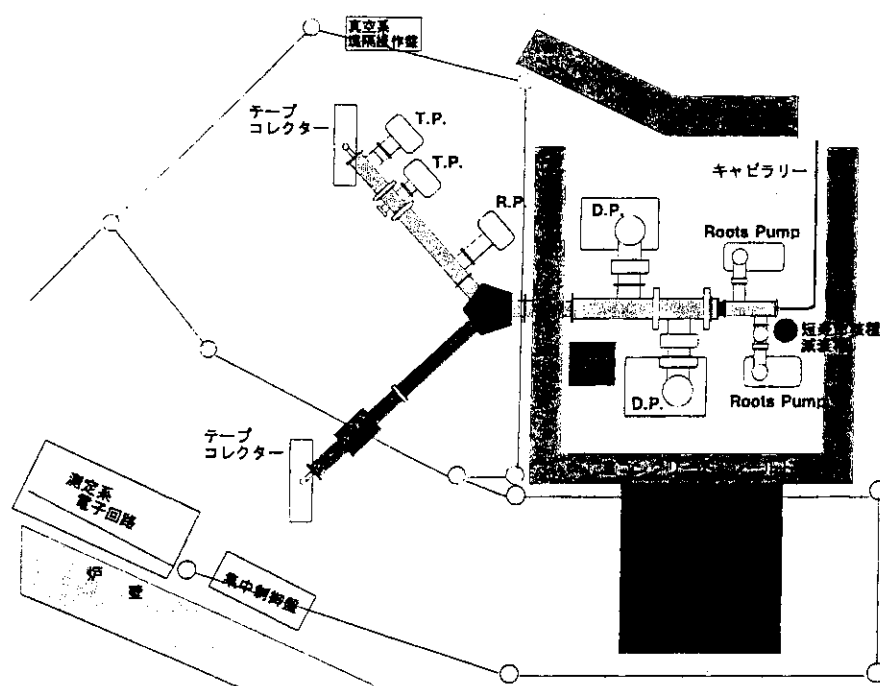


Fig. 4 New layout of the KUR-ISOL.

減期が ~ 1 sのものが限界であり、 ^{235}U をターゲットに用いている現在の KUR-ISOLでの新同位体元素探索は、限界に近づきつつある。したがって、今後はその探索領域を広げなければならない。この点、質量数 160 \sim 170 領域では、中性子ドリップライン近傍の核種でもその半減期は 1 s 程度あると予測されているので[17]、ガスジェット型 ISOLでも十分に核分光実験が可能であり、新同位体元素探索のみならず中性子数の非常に多い原子核の知見を得ることも可能であると思われる。

Fig. 5に示したように、質量数 160 以上の中性子過剰核種を得るためには、 ^{235}U の量を 10^3 倍にしなくてはならず、ガスジェット型 ISOLではこのようなターゲットを製作するのは困難である。これに代わる方法としては、超ウラン元素をターゲットにするのが効果的であり (Fig. 5)、超ウラン元素の中でも核分裂断面積や核分裂収率等を考慮したところでは、 ^{249}Cf が有望である。Table 2に ^{235}U 、 ^{239}Pu と ^{249}Cf を KUR-ISOL(熱中性子束 $\sim 3.0 \times 10^{12}/\text{cm}^2 \cdot \text{s}$)のターゲットにした場合の核分裂生成物の生成率を見積もった。質量数 140 \sim 150 近傍では、 ^{249}Cf (1mg)より ^{235}U (30mg)の方が生成率は大きいですが、質量数 160 以上では、圧倒的に ^{249}Cf の方が有利であることが分かる。以下に、 ^{249}Cf をターゲットにした場合の利点と問題点を挙げる。

[利点] ①非核燃料物質である。②質量数 160 以上の核種に対する核分裂収率が非常に大きい。③ ^{249}Cf の熱中性子による核分裂断面積が ^{235}U のそれに比べ 3 倍程度大きく、よりターゲットの量を少なくすることが可能となる。④これにより廃棄時の廃棄物の量が少ない。⑤超ウラン元素を取り扱える大学の研究機関としての当実験所の特徴を生かせる。

[問題点] ①強い α 線放出核種のため取り扱いに注意を要す。② ^{249}Cf は当実験所の使用承認核種となっていない(現在、使用承認核種の見直し作業が行われており、これに申

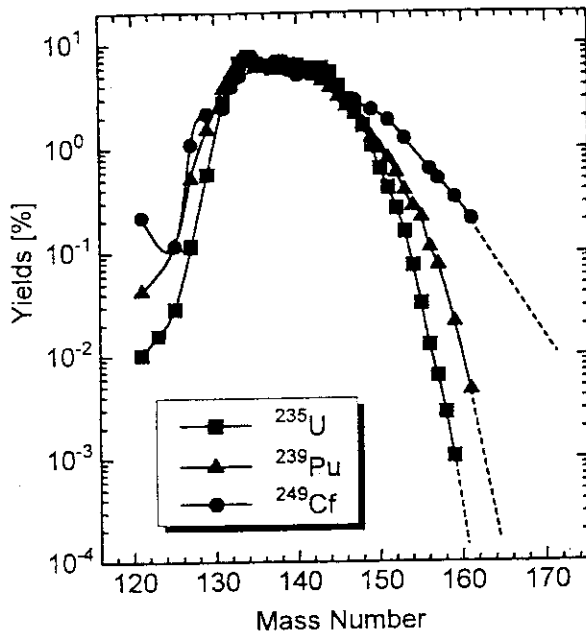


Fig. 5 Fission product yields for the thermal fission of ^{235}U , ^{239}Pu and ^{249}Cf [18].

Table 2 Production rates(/sec) of the fission productions.

	^{141}Ce	^{151}Pm	^{157}Eu	^{158}Gd	^{161}Tb
$^{235}\text{U}(1\text{mg})$	2.6×10^8	1.9×10^7	2.8×10^5	4.7×10^4	3.6×10^3
(30mg)	7.8×10^9	5.7×10^6	8.4×10^6	1.4×10^6	1.1×10^5
(100mg)	2.6×10^{10}	1.9×10^9	2.8×10^7	4.7×10^6	3.6×10^5
$^{239}\text{Pu}(1\text{mg})$	3.0×10^8	4.2×10^7	4.3×10^6	1.2×10^6	2.6×10^5
$^{249}\text{Cf}(1\text{mg})$	6.5×10^8	2.2×10^8	6.1×10^7	4.0×10^7	2.5×10^7

請している)。③高額な費用（見積もりを取ったところ、 $^{249}\text{Cf}(1\text{mg})$ が輸送料込みで3200万円とのことであった）。このように、費用等の面でかなり困難があるが、原子炉で重い希土類元素を得る方法としての超ウラン元素ターゲットは有効であり、実現させたい計画である。

6. まとめ

KUR-ISOLの現状と将来計画をKUR-ISOLの紹介を交えて述べた。上述したように、KUR-ISOLでの研究課題をまとめると「より中性子過剰な核種の生成とその核構造研究および不安定核種の高度利用」となるだろう。ここ1~2年の間でのビームラインの新設に関してはほぼ目途がついており、これに向けて具体的な作業が始まっている。超ウラン元素ターゲットのISOLに関しては使用承認の手続きや費用の問題があり、直に実現するのは難しそうではあるが、実現に向けて努力していきたいと思っている。その際、本研究会に参加された皆さんには、御助言・御助力をお願いすることがあると思いますが、その折りにはよろしく願います。

References

- [1] K. Okano and Y. Kawase, Bull. Inst. Chem. Res., Kyoto Univ., Vol.68(1990)139
- [2] K. Kawade *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. 200(1982)417
- [3] Y. Kawase and K. Okano, Nucl. Instr. and Meth. B37/38(1989)116
- [4] K. Okano, Y. Kawase and Y. Funakoshi, J. Phys. Soc. Jpn. 55(1986)715
- [5] K. Okano and Y. Kawase, Radiochimica Acta 40(1986)57

- [6] Y. Kawase and K. Okano, Z. Phys. A330(1988)231
- [7] I. Tago, Y. Kawase and K. Okano, Z. Phys. A335(1990)477
- [8] G. Rudstam, K. Aleklett and I. Sihver, Atomic Data and Nucl. Data Tables 53(1993)1
- [9] K. Okano *et al.*, Z. Phys. A351(1995)243
- [10] A. Staudt *et al.*, Atomic Data and Nucl. Data Tables 44(1990)79
- [11] T. Tachibana, M. Yamada and K. Nakata, Report of Sci. and Eng. Res. Lab. Waseda Univ. No.88-4(1988)
- [12] A. Taniguchi *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. A351(1994)378
- [13] A. Taniguchi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. Vol.65(1996)3824
- [14] S. Yamada, A. Taniguchi and K. Okano, J. Phys. Soc. Jpn. Vol.64(1995)4047
- [15] Y. Toh *et al.*, Z. Phys. A355(1996)345
- [16] T. Ikuta *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. Vol.64(1995)3244
- [17] T. Tachibana, M. Yamada and Y. Yoshida, Prog. Theor. Phys. 84(1990)641
- [18] E.A.C. Crouch, Atomic Data and Nucl. Data Tables 19(1977)417

3. 原研高崎及び東海ISOLによる未知核種探索

浅井 雅人 (名大原子核工学)

Abstract

Search for unknown isotopes using the TIARA-ISOL and
the JAERI-ISOL

Masato Asai

Department of Nuclear Engineering, Nagoya University

The new neutron-deficient isotopes ^{127}Pr and ^{125}Pr , and the new neutron-rich isotopes ^{166}Tb , ^{165}Gd and ^{161}Sm were identified using the TIARA-ISOL with $^{36}\text{Ar} + ^{92,94}\text{Mo}$ reactions, and the gas-jet coupled JAERI-ISOL with a proton-induced fission of ^{238}U , respectively. The element-selective oxidation technique was used to reduce large contamination from isobars and molecular ions with production cross sections about one or two orders of magnitude as large as those of the new isotopes. The good signal-to-noise ratios achieved in the present measurements were essential to observe and identify weak X/r rays from the new isotopes.

1. はじめに

近年分離装置や測定装置の性能向上に伴って β 安定領域から遠く離れた原子核の存在の確認及び半減期等の核的特性の測定がなされている。これらの核種の生成断面積は同じ反応系で同時に生成されるその他の核種に比べて小さく、測定には核反応生成物からの目的核種の分離が不可欠である。オンライン同位体分離装置 (ISOL) は対象とする質量数の原子核のみを迅速に分離することができ、核種の質量数を特定できることから短寿命未知核種の測定には不可欠ともいえる装置である。しかし同重核の分離は困難であり、それが測定の際の Signal-to-Noise ratio (S/N) を悪化させ未知核種探索の制約となる。今回は最近数年間に原研高崎及び東海の ISOL を用いて行われた未知核種探索の成果について、主に同重核に起因する S/N の観点から報告する。

2. 高崎 ISOL (TIARA-ISOL) による未知核種探索

原研高崎 AVF サイクロトロンに付設された TIARA-ISOL では、195 MeV ^{36}Ar と Mo ターゲットによる重イオン核融合-粒子蒸発反応で生成される La, Ce, Pr 等の中性子欠損核の β 崩壊核分光を行っている。そのうちこれまで崩壊特性が報告されていない未知核種 ^{127}Pr , ^{125}Pr の探索を行った。

La, Ce, Pr 等の希土類元素は TIARA-ISOL に導入された表面電離型イオン源 [1] によって一酸化イオンとして高効率でイオン化される。一酸化イオンとしてイオン化することで、単体イオンとしては非常に高いイオン化効率を持つが一酸化イオンとしてはイオン化されない Cs, Ba の同重核を分離することができる。このことは特に Pr の崩壊で放出される Ce K_{α} X 線を測定するとき、同じエネルギーを持つ Cs K_{β_1} X 線が重なるのを防ぐ意味で重要である。しかし一方で Pr の一酸化イオンとしてのイオン化効率は La, Ce に比べて一桁程度低く、断面積の大きい La, Ce の同重核の γ 線により S/N が悪化する。

^{127}Pr は $^{94}\text{Mo}({}^{36}\text{Ar}, p2n)$ 反応により生成し、一酸化イオンとして分離し測定した。Ce K_{α} X 線及び 3 本の γ 線の時間減衰から半減期を 7.7(6) s と決定した [2]。その後更に測定を行い、詳しい崩壊図式を得た [3]。一方 ^{125}Pr は $^{92}\text{Mo}({}^{36}\text{Ar}, p2n)$ 反応により生成し、同じく一酸化イオンとして分離し測定したが、X 線も γ 線も確認することはできなかった。理由は ^{125}Pr と同重核の La, Ce の生成断面積の比が、 ^{127}Pr の場合に比べて更に 1/5-6 程度小さいためと思われる。単純な X 線の強度比でみると、 ^{127}Pr からの X 線は La, Ce からの X 線に比べて 1/370 の強度でしか観測されていない。 ^{125}Pr では更に 1/5-6 になるとすると、その S/N は約 1/2000 となり観測は極めて困難となる。そこで ^{125}Pr は一酸化イオンとしてではなく、単体イオンとして分離し測定することにした。単体イオンとして分離するとイオン化効率の非常に高い Cs, Ba が強く観測され、Ce K_{α} X 線の観測は不可能となる。しかし La 及び Ce の M^+/MO^+ 比はそれぞれ 1/18, 1/11 であり、一方 Pr の M^+/MO^+ 比は 1/1.4 であることから、全体として相対的な γ 線のバックグラウンドレベルが 1/5 程度に低下し、 ^{125}Pr の崩壊に伴う微弱な γ 線が観測できると期待される。Figure 1 にその様子をスペクトルで示す。一酸化イオン ($A=125+16$) では γ 線のバックグラウンドに隠れて見えなかった 135.8 keV の γ 線が $A=125$ では現れている。 γ - γ 同時計数測定でこの γ 線と Ce K_{α} X 線が同時計数することを確認し、 γ 線の時間減衰から ^{125}Pr の半減期を 3.3(7) s と決定した [3]。

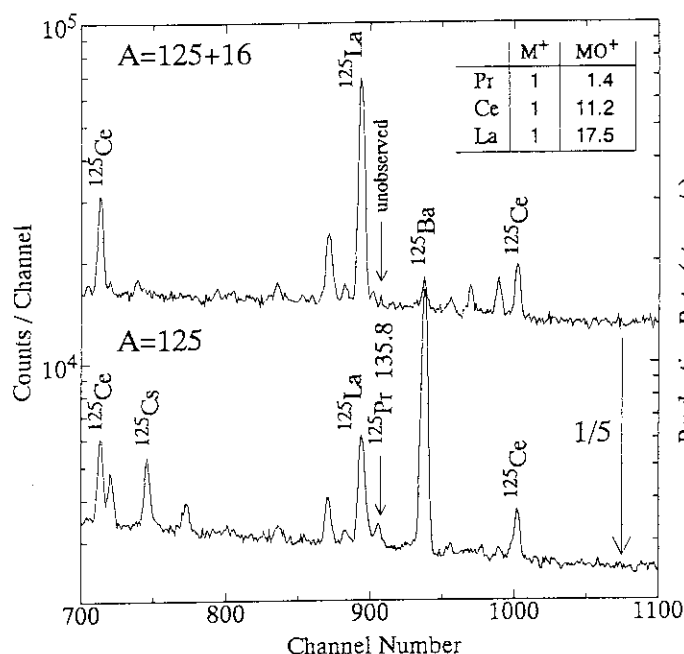


Fig. 1. Gamma-ray spectra for the search for ^{125}Pr obtained in the A=125+16 and A=125 fractions.

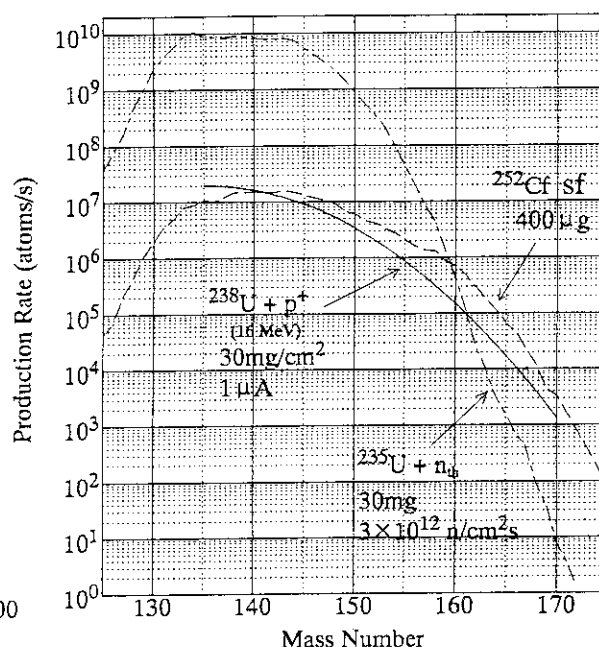


Fig. 2. Production rates of fission fragments for the $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ reaction, the spontaneous fission of ^{252}Cf and the $^{238}\text{U}(p, f)$ reaction.

3. 東海ISOL(JAERI-ISOL)による未知核種探索

JAERI-ISOLではガスジェット結合型イオン源の開発を行っており[4]、それを用いて原研東海タンデム加速器からの16-20 MeV陽子ビームと ^{238}U ターゲットによる陽子誘起核分裂反応で生成される質量数160近傍の中性子過剰未知核種の探索を行った。

中性子過剰核は通常原子炉を用いて $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ 反応で生成される。これまで質量分離、化学分離の手法でA=162までの未知核種がこの反応を用いて同定されてきた[5]。一方 $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ 反応はA>150で急激に核分裂収率が低下することから、A≥153の多くの未知核種は ^{252}Cf の自発核分裂を用いて同定されてきた[6]。 ^{252}Cf を用いることで、質量分離では ^{164}Gd 、化学分離では ^{168}Dy まで同定された。今回用いた $^{238}\text{U}(p, f)$ 反応は、Fig. 2に見られるように質量数160以上ではこれらの反応とほぼ匹敵する収量が得られ、ガスジェット-イオン源系の効率及び分離・測定のS/N改善によってさらに中性子過剰な未知核種の同定が可能になるとと思われる。

今回の実験では質量分離はすべて一酸化イオンで行った。La, Ce, Prなどの軽希土類元素と違って、中重希土類元素は単体イオンとしての方がイオン化効率が高い。しかし例えば未知核種 ^{166}Tb を測定する場合、核分裂収率が2桁以上大きい ^{150}Ce , ^{150}Pr の一酸化イオン(A=150+16)が同時に分離され、微弱な ^{166}Tb の観測を妨害する。 ^{166}Tb を一酸化イオン(A=166+16)として分離することでほぼ同重核による妨害だけに押さえることができる。Figure 3にA=166とA=166+16のγ線スペクトルを示す。測定は部屋のバックグラウンドを除くため及びβ崩壊で放出されたX/γ線であることを確認するために、β線との同時計数をとっている。 ^{166}Tb の場合、娘核の ^{166}Dy の半減期が3.40 dと長いことほとんど純粋な ^{166}Tb のスペクトルが得られた。半減期は21(6) sと求まった[7]。同様に未知核種 ^{165}Gd についても測定し、半減期10.3(16) sが得られた。

未知核種 ^{159}Pm の測定では、 ^{159}Pm の崩壊によって放出されるSm K_αX線は確認できたが、生成断面積が約10倍大きい同重核の ^{159}Sm からのX/γ線がやはり10倍程度強く観測されてS/N

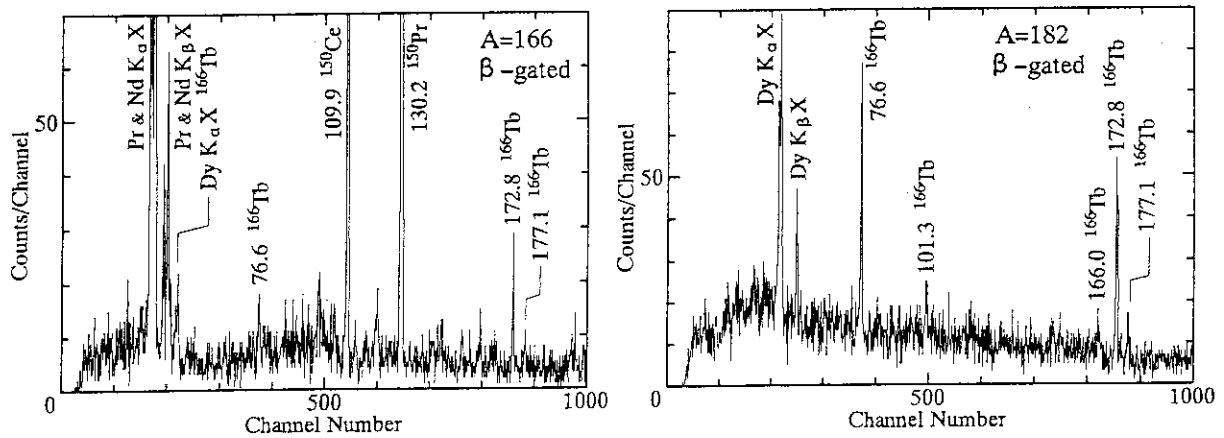


Fig. 3. Gamma-ray spectra for the search for ^{166}Tb obtained in the A=166 and A=166+16 fractions.

を悪化させ、半減期を精度良く求めることはできなかった。予備的な値として2 s程度の半減期であることが判った。未知核種 ^{161}Sm についても同重核 ^{161}Eu の生成断面積は約6倍大きいのが、Euが一酸化物としてはほとんどイオン化されないことから比較的S/N良く測定でき、半減期4.8(8) sが得られた。このほか未知核種 ^{167}Tb についても予備的な測定を行い、25 s程度の半減期であることが判った。

今回測定された核種はどれも生成断面積が $10\mu\text{b}$ 程度のものであるが、同じ断面積であっても同重核との断面積の差が小さい方がS/Nが良くなり、観測しやすい。今回の測定では質量数の大きい核種の方がS/N良く測定されている。一方同じ $10\mu\text{b}$ 程度の生成断面積を持つ未知核種 ^{155}Pr , ^{157}Nd は同重核との断面積の差が2桁近くあり、測定はかなり困難である。同様に酸化物としてイオン化されない ^{163}Eu の測定も難しい。今後同じ反応系でさらに中性子過剰な未知核種探索を行う場合、S/N良く測定できる ^{162}Sm , ^{166}Gd , ^{168}Tb , ^{170}Dy が対象となる。

4. まとめと今後

TIARA-ISOLを用いて中性子欠損未知核種 ^{127}Pr , ^{125}Pr を同定し、半減期をそれぞれ7.7(6) s, 3.3(7) sと決定し、それらの崩壊図式を得た。これら未知核種の分離されて測定ポートまで来たイオンの収量は、約10-70 ions/sである。一方TIARA-ISOLではLa, Ceなどの核種が 10^4 ions/s以上得られ、これまで加速器付設のISOLでは困難であった $\gamma\text{-}\gamma$ 角度相関測定、 Q_{EC} 測定など統計量の必要な詳細な測定が可能となり、系統的な測定を行っている。未知核種探索によるISOLの性能向上、収量増大は、既知核種のそれまで核分光実験が困難であった領域での核構造研究をも可能にする。

JAERI-ISOLでは中性子過剰未知核種 ^{166}Tb , ^{165}Gd , ^{161}Sm を同定し、更に予備的な結果として ^{159}Pm , ^{167}Tb の半減期が求まった。これらの核種の収量は約0.5 ions/sであり、TIARA-ISOLでの実験に比べて2桁程度少ない。測定された γ 線スペクトルのS/Nが良いためにこの程度の収量でも半減期を決定することができた。今後同様の反応系と装置を用いてさらに中性子過剰な未知核種を測定するためには、S/Nを向上させるという意味から、より中性子過剰なターゲット及びビームを使うことが重要となる。具体的には重陽子ビームの使用及び ^{244}Pu , ^{248}Cm ターゲットの使用が考えられ、それによって更に1-2個中性子過剰な核種の測定が可能になると思われる。

これらの実験は以下のメンバーとの共同研究である。
 (名大工) 河出 清, 山本 洋, 柴田理尋, 小島康明, 廣瀬知明
 (原研高崎) 関根俊明, 長 明彦, 小泉光生
 (原研東海) 市川進一, 塚田和明, 篠原伸夫, 永目諭一郎, 飯村秀紀, 初川雄一, 西中一朗,
 大浦泰嗣(現 都立大理)

References

- [1] S. Ichikawa, T. Sekine, H. Iimura, M. Oshima and N. Takahashi, Nucl. Instrum. Methods A **274** (1989) 259.
- [2] T. Sekine, A. Osa, M. Koizumi, S. Ichikawa, M. Asai, H. Yamamoto and K. Kawade, Z. Phys. A **349** (1994) 143.
- [3] A. Osa, M. Asai, M. Koizumi, T. Sekine, S. Ichikawa, Y. Kojima, H. Yamamoto and K. Kawade, Nucl. Phys. A **588** (1995) 185c.
- [4] S. Ichikawa, M. Asai, K. Tsukada, A. Osa, T. Ikuta, N. Shinohara, H. Iimura, Y. Nagame, Y. Hatsukawa, I. Nishinaka, K. Kawade, H. Yamamoto, M. Shibata and Y. Kojima, Nucl. Instrum. Methods A **374** (1996) 330.
- [5] H. Mach, A. Piotrowski, R. L. Gill, R. F. Casten and D. D. Warner, Phys. Rev. Lett. **56** (1986) 1547.
- [6] R. C. Greenwood, R. A. Anderl, J. D. Cole and H. Willmes, Phys. Rev. C **35** (1987) 1965.
- [7] M. Asai, K. Tsukada, S. Ichikawa, A. Osa, Y. Kojima, M. Shibata, H. Yamamoto, K. Kawade, N. Shinohara, Y. Nagame, H. Iimura, Y. Hatsukawa and I. Nishinaka, J. Phys. Soc. Jpn. **65** (1996) 1135.

4. 原研ガスジェットISOLを用いたEC崩壊する未知アクチノイド核種の探索

塚田 和明 (原研燃料研究部)

Search for EC-decayed neutron-deficient actinide isotopes
using gas-jet coupled JAERI-ISOL.

abstract:

To study the nuclear properties of unknown neutron deficient actinide isotopes which decay mainly via orbital electron capture (EC), we have developed a composite system consisting of a gas-jet transport apparatus and a thermal ion-source at the JAERI-ISOL. With this system, search for ^{236}Am produced in the $^{235}\text{U}(^6\text{Li}, 5n)$ reaction has been performed. Pu KX-rays associated with the EC decay of ^{236}Am are observed at the mass-236 fraction. The half-life of ^{236}Am is evaluated to be 4.4 min. The outline of the gas-jet coupled JAERI-ISOL system and typical performance are given.

1. はじめに

安定領域から離れた新核種の探索とその壊変に関する研究は、原子核の存在限界を明らかにすると共に、極限領域での原子核の安定性に関する新しい情報を与える。このようなデータは太陽系生成時における重元素合成過程の究明及び消滅処理システムの基礎データとして重要である。これまでも新元素をはじめとする未発見の核種の探索が各国の研究機関で精力的に行われてきた。アクチノイドを含むような重核領域では、近年探索されてきた核種の多くは α 壊変核種である。これは α 線の検出が比較的容易であり、そのエネルギー予測も割合に正確で、生成し分離された核種の壊変系列を時系列で同定する技術が確立されたことによる。それに対して、主にEC壊変するアクチノイド核種は、その壊変に伴う特性X線の検出がその同定の大きな要素であり、測定時のバックグラウンドとの関係で検出下限が高くなる。そのため新核種の同定には、厚いターゲットが利用でき分離の効率が高い化学分離法が用いられてきた。ただし、特性X線の検出だけでは質量数決定ができないために、その同定には化学分離後の既知の娘核種の成長または生成反応の励起関数測定などを併用する必要がある。この方法は最近、新核種 ^{253}Md および ^{235}Am の同定にも利用された [1, 2]。ただし、化学分離そのものにある程度の時間がかかるために、特殊な場合を除いて短い半減期（数分）の核種同定は難しい。

オンライン質量分離法は迅速な質量数決定が可能である。つまり目的とする核種を他の同位体から短時間で分離し、元素同定をX線測定によって行うことで迅速に核種同定ができる。これまでにアクチノイドのオンライン質量分離はいくつかの研究機関で試みられてきたが [3]、化学分離法に比べ分離効率が低いために、EC壊変するような未知核種探索に利用した報告はない。

我々はガスジェット搬送装置 (GJRT) と結合したオンライン質量分離器 (ISOL) [4, 6, 7] を新中性子過剰希土類核種 ^{166}Tb , ^{165}Gd 及び ^{161}Sm の確認実験に用いてきた [8, 9]。この装置を改良することで、質量同定を必要とする中性子欠損の未知アクチノイド核種の探索をめざした。未知核種の生成に最適な反応系、GJRT の最適条件、同位体分離部におけるアクチノイドのイオン化条件等を検討し、それらの結果を基に未知核種 ^{236}Am の探索を行った。

Am の同位体はこれまでに質量数 232 から 247 まで観測されているが $^{233,236}\text{Am}$ は未だ確認されていない。 ^{236}Am の半減期については化学分離法を利用した Hall ら [10] の報告があるが、その質量数決定の不確定さからその値は評価値として採用されていない。また、長寿命の isomer の存在に関する報告もある [11]。加えて、このような Am の中性子欠損領域では EC 遅発核分裂現象という特異な壊変現象が観測

されており [12]、今回対象とした ^{236}Am にもその可能性が予想されている。

2. 実験方法 (生成と検出)

・生成反応

対象とする中性子欠損領域のアクチノイド核種の生成には ^6Li ビームを用いた重イオン核融合反応を利用した。 ^6Li ビームは比較的に対応断面積が大きいので生成反応として有効であり、原研タンデム加速器で得られ易い。また、ターゲット中の飛程が長く厚いターゲットが利用可能である。

我々は未知核種 ^{236}Am などの生成の際に最適な照射エネルギーや生成断面積の見積を行った。まず、 $^{235,238}\text{U}(^6,^7\text{Li}, xn)$ 反応の励起関数を実験的に求め [13]、得られた励起関数を再現するように統計モデル計算プログラム Alice コード [14] のパラメータを求めた。次に、これらの系統性から $^{235}\text{U}(^6\text{Li}, 5n)$ 反応で生成する ^{236}Am の生成断面積を評価した。この結果、 ^{236}Am の予測される生成断面積は約 $100 \mu\text{b}$ であった。

・ガスジェット搬送装置

ガスジェット装置 (GJRT) はターゲットから反跳してきた原子核をヘリウムガスに KCl 粒子を導入したエアロゾル中で熱化し、その気流 (ガスジェット) によって目的とする場所に迅速に搬送する装置である。 ^6Li ビームを利用した反応系では生成核の反跳エネルギーが小さくターゲットを厚くできないが、複数のターゲットを利用することで生成量を増やすことができる。そこで複数のターゲットから反跳してくる生成核を効果的に捕集できるターゲットチャンバーを製作した。

この装置に対する最適な粒子発生条件や流量などの諸条件は、 ^{225}Ac の α 壊変にともない反跳してくる ^{221}Fr を生成核にみたてたオフライン実験で求めた。この結果をもとに蒸発残留核に最適な GJRT の条件設定を行い、 $^{197}\text{Au}(^7\text{Li}, 5n)^{199\text{m}}\text{Pb}$ 反応系では約 20%の効率を得た。また、搬送効率のターゲット位置による影響はほとんどみられず、20 枚の各ターゲットが同じ効率で利用できることが確認できた。

・Amのイオン化

ガスジェット搬送装置とオンライン質量分離装置を結合し、オンラインのイオン化テストを行った。イオン源は希土類領域の新核種の検出に用いた表面電離型熱イオン源 (約 2400 K) を改良し利用した [8]。実験装置を図 1 に示す。

まず $^{141}\text{Pr}(^6\text{Li}, 4n)^{143\text{m}}\text{Sm}$ 反応を利用してこの複合系での最適条件を検討した。その結果、約 0.15%の分離効率を得た。次に、Amのイオン化を模擬するためにイオン化ポテンシャルが Am (5.99 eV) にほぼ等しい Dy (5.94 eV) や Ho (6.02 eV) のイオン化テストを行い、Amのイオン化が可能であるとの結論を得た。この最適条件下で ^{237}Am をオンライン分離・測定し、Amのイオン化・分離を試みた。 ^{237}Am は、薄いアルミニウム箔 (0.8 mg/cm^2) に電着した約 $200 \mu\text{g/cm}^2$ の ^{235}U ターゲッ

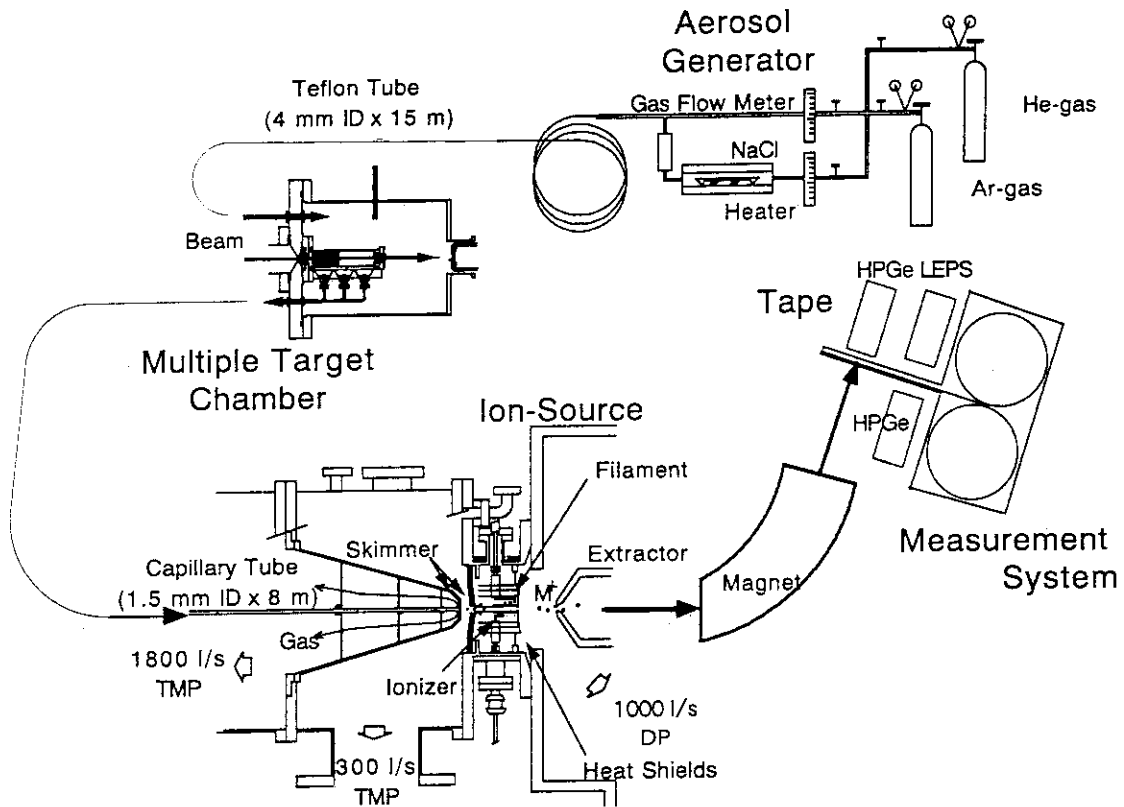


図 1: ガスジェット搬送装置と結合した原研東海研タンデム加速器付設オンライン同位体分離器

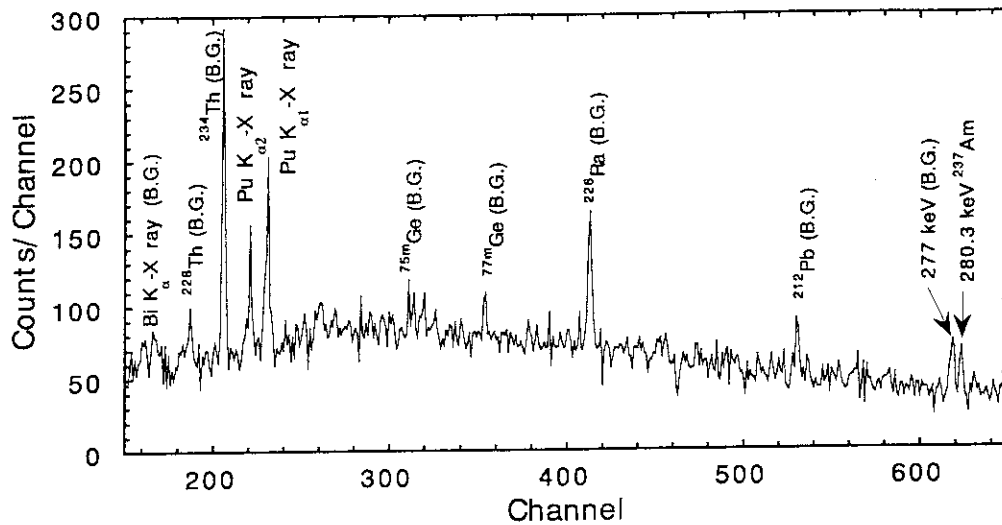


図 2: 質量数 237 における γ 線スペクトル

ト (93%) を 17 枚装着し 47 MeV に加速した ${}^6\text{Li}^{3+}$ を強度 100-200 pA で照射し生成した。GJRT でイオン源へ搬送、イオン化し、質量分離した目的とする質量数 237 のフラクシオンをマイラーテープ上に捕集した。一定時間捕集後、テープを測定位置に移動し、両側に設置した 2 台の Ge 半導体検出器 (直径 51 mm の低エネルギー用検出器と 36% の HPGe) で X または γ 線を測定した。X/ γ 線および γ - γ 同時計数測定データは時間情報を加えてイベントごとに記録した。

図 2 に観測された γ 線スペクトルを示す。図には ${}^{237}\text{Am}$ の EC 壊変に伴う 280.3 keV の γ 線と Pu の X 線が確認できる。また、これらの同時計数も確認でき、X 線の減衰 (半減期約 1.2 時間) は ${}^{237}\text{Am}$ の半減期と一致することから ${}^{237}\text{Am}$ がオンライン分離されたと結論した。この照射エネルギー範囲 (35-43 MeV) での ${}^{237}\text{Am}$ の平均生成断面積は約 300 μb であり [13]、Am のオンライン質量分離の全効率 は約 0.1% であった。また、 ${}^{238}\text{Am}$ 起源の γ 線は検出できないこと (1% 以下の混入) から、十分な質量分解能が確認できた。

3. ${}^{236}\text{Am}$ の検出

${}^{237}\text{Am}$ の検出実験と同様の照射セットに 54 MeV に加速した ${}^6\text{Li}^{3+}$ を強度 200-300 pA で照射した。測定は 640 秒のサイクルで行った。観測された質量数 236 の γ 線スペクトルを図 3 に示す。 ${}^{237}\text{Am}$ の検出実験と同様に Pu の特性 X 線が確認できた。他の γ 線ピークは測定位置でのバックグラウンドであり、本実験の計数統計範囲内では Pu の特性 X 線と同時計数された γ 線は確認できなかった。ここで同位体および同重体からの Pu の特性 X 線への影響を考へてみる。 ${}^{237}\text{Am}$ の γ 線が検出されない

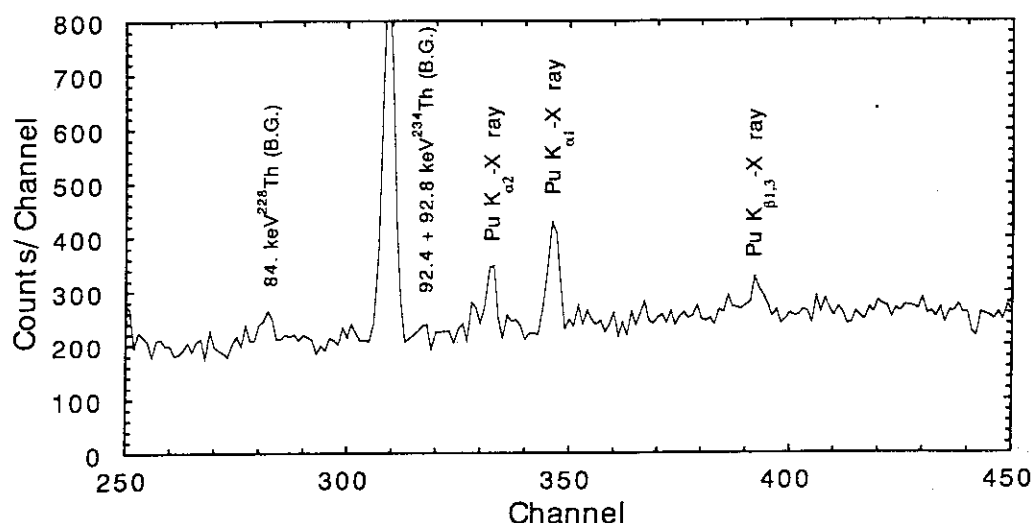


図 3: 質量数 236 における γ 線スペクトル

こと、 ^{235}Am 、 ^{237}Am の生成断面積および収集・測定時間などを考慮すると、Pu の特性 X 線に対するほかの Am 同位体の影響は無視できる。同重体は、 ^{236}Pu についてはよく調べられており核異性体の存在は考えにくい。U の特性 X 線がわずかながら確認できるため ^{236}Np の存在が考えられるが、半減期 22.5 時間の ^{236m}Np からの β -壊変の影響は K-X 線の放出確率から考えて問題ない [15]。このことから、これら同位体および同重体の影響を考える必要はなく、得られた Pu の X 線は ^{236}Am の EC 壊変に伴うものであると結論した。図 4 にこの Pu の X 線の減衰を示す。これより ^{236}Am は 4.4 ± 0.8 分の半減期であると結論した。

Hall らは Am 同位体を化学分離し、検出した X 線の減衰から半減期を求めた [10]。彼らのデータには 2 成分で解析した $^{237,238}\text{Am}$ の影響や ^{235}Am の混入の可能性など、質量数決定が十分でなく評価値として採用されていない。その半減期は我々の実験値よりやや短いが誤差範囲で一致した。

^{236}Am に対する半減期の理論予想値は大局的理論計算では 15.7-32.7 分 (Q 値は 3.06 MeV) [16]、微視的理論計算 (QRPA) では 8.87 m (Q 値は 3.13 ± 0.14 MeV [17]) である [18]。実験値は両理論計算値より短い結果となった。これらの理論値は Q 値に大きく依存するが、最近報告された Möller らの Q 値 3.34 MeV [19] を使うとより実験値に近づくことが予想される。

4. まとめ

EC 壊変する中性子欠損アクチノイド領域の未知核種探索のために改良したガスジェット結合型オンライン同位体分離器を用いて、未知核種 ^{236}Am を検出しその半

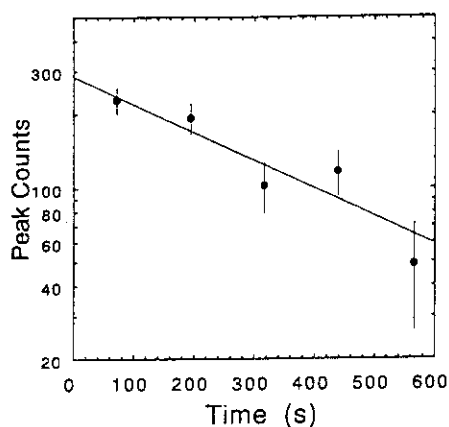


図 4: ^{236}Am の壊変に伴う Pu の特性 X 線の減衰曲線

減期を得た。この装置の開発によって迅速な分離と質量数の同定が容易に行えるようになり、既存のオンライン化学分離法に比べてこのような未知核種の探索の際により精度の高い実験結果を得ることができるようになった。今後、装置の改良による全効率の改善を図ると共に、他の EC 壊変する中性子欠損アクチノイド領域の未知核種探索を行う予定である。また、 α 線および核分裂片の同時観測などによって幅広い実験データを得ることを計画している。

参考文献

- [1] B. Kadkhodayan, et al., *Radiochim. Acta* **56**, 1 (1992).
- [2] J. Guo, et al., *Z phys. A* **335**, 111 (1996).
- [3] J. Nitschke, *Nucl. Instrum. Methods* **206**, 341 (1983).
- [4] J.P. Zirnheld, et al., *Nucl. Instrum. Methods* **158**, 409 (1979).
- [5] F.B Bloennigen, et al., *Nucl. Instrum. Methods B* **26**, 328 (1987).
- [6] R.A. Andel, et al., *Nucl. Instrum. Methods B* **26**, 333 (1987).
- [7] Y. Kawase, et al., *Nucl. Instrum. Methods B* **26**, 341 (1987).
- [8] S. Ichikawa, et al., *Nucl. Instrum. Methods A* **374**, 330 (1996).
- [9] M. Asai, et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **65**, 1135 (1996).
- [10] H.L. Hall, LBL-27878 (1989).
- [11] A. Marinov, et al., *Phys. Lett. B* **191**, 36 (1987).

- [12] H.L. Hall and D.C. Hoffman, *Annu. Rev. Nucl. Part. Sci.* **42**, 147 (1992).
- [13] Y. Hatsukawa, et al., to be published.
- [14] M. Blann and H.K. Vonach, *Phys. Rev.* **C28**, 1475 (1983).
- [15] E. Brown and R.B. Firestone, *Table of Radioactive Isotopes*, J. W. & Sons, Inc., New York (1986).
- [16] T. Tachibana, et al., *Rep. Sci. Eng. Lab., Waseda Univ.*, 88-3 (1988).
- [17] A.H. Wapstra, et al., *At. Data Nucl. Data Tables* **39**, 281 (1988).
- [18] M. Hirsch, et al., *At. Data Nucl. Data Tables* **53**, 165 (1993).
- [19] P. Möller, et al., *At. Data Nucl. Data Tables* **59**, 185 (1995).

5. JAERI-RMSを用いた重核合成と新同位元素探索の現状

生田 智彦 (原研先端基礎研究センター)

Abstract

The new neutron deficient isotope ^{209}Th and ^{212}Pa have been produced in heavy ion induced fusion evaporation reactions. The evaporation residues were separated in-flight by the JAERI recoil mass separator (JAERI-RMS). The α -decay energy of ^{209}Th and ^{212}Pa are 8.080(50) MeV and 8.270(30) MeV, respectively. The corresponding half-lives are $3.8_{-1.5}^{+6.9}$ ms and $5.1_{-1.9}^{+6.1}$ ms.

1. Introduction

The JAERI-RMS was successfully installed at the JAERI tandem-booster facility [1] and a new isotope search program started two years ago. This separator is designed to have a mirror-symmetric dipole configuration (ED-MD-ED ; Electric, Magnetic) which is advantageous for the separation of heavy recoils especially from fusion reactions. The most notable feature of the JAERI-RMS is that the projectile beams can pass through the vertical slit of the splitted anode without hitting the cylindrical anode surface. This makes possible an excellent suppression of background originating from the projectile beams.

The experiments of measuring the fundamental properties of new isotopes, such as masses, decay modes, and the associated half lives have been performed in the translead region and the heavy element region. In the following, we describe experimental results which concern the decay of two new isotopes, ^{209}Th [2] and ^{212}Pa [3].

2. Experiments

The fusion evaporation reactions $^{182}\text{W}(^{32}\text{S},xn)^{214-x}\text{Th}$ and $^{182}\text{W}(^{35}\text{Cl},xn)^{217-x}\text{Pa}$ were used to produce thorium and protactinium isotopes. Beams of 171 MeV ^{32}S and 183 MeV ^{35}Cl were supplied by the JAERI-tandem accelerator. The beam energy in the middle of the target was calculated with the TRIM code [4]. The targets were prepared by spattering of ^{182}W , enrichment 91.6%, onto $30\mu\text{g}/\text{cm}^2$ carbon foils. Typical beam intensity and total data acquisition time were 60 pA and 46 hours for ^{32}S beams, and 10 pA and 124 hours for ^{35}Cl beams.

Fusion evaporation residues were separated in-flight from the primary beam and target-like reaction products using JAERI-RMS. The separated recoils passed through a thin foil ($20\mu\text{g}/\text{cm}^2$ Au evaporated on a $5\mu\text{g}/\text{cm}^2$ thick formvar) of the fast timing detector with a large microchannel plate detector and then implanted into the double sided position sensitive strip detector (PSSD) surrounded by four other single sided strip detectors (PSD) (see Figure 1). The typical energy resolution of the PSSD for ^{241}Am α particles is 80 keV (FWHM). Alpha energy calibration is performed using the strong α lines from (HI, pxn) and (HI, α xn) evaporation reactions. The identification is based on the measured correlations in energy, time and position leading to known alpha-decay chain of descendant nuclei.

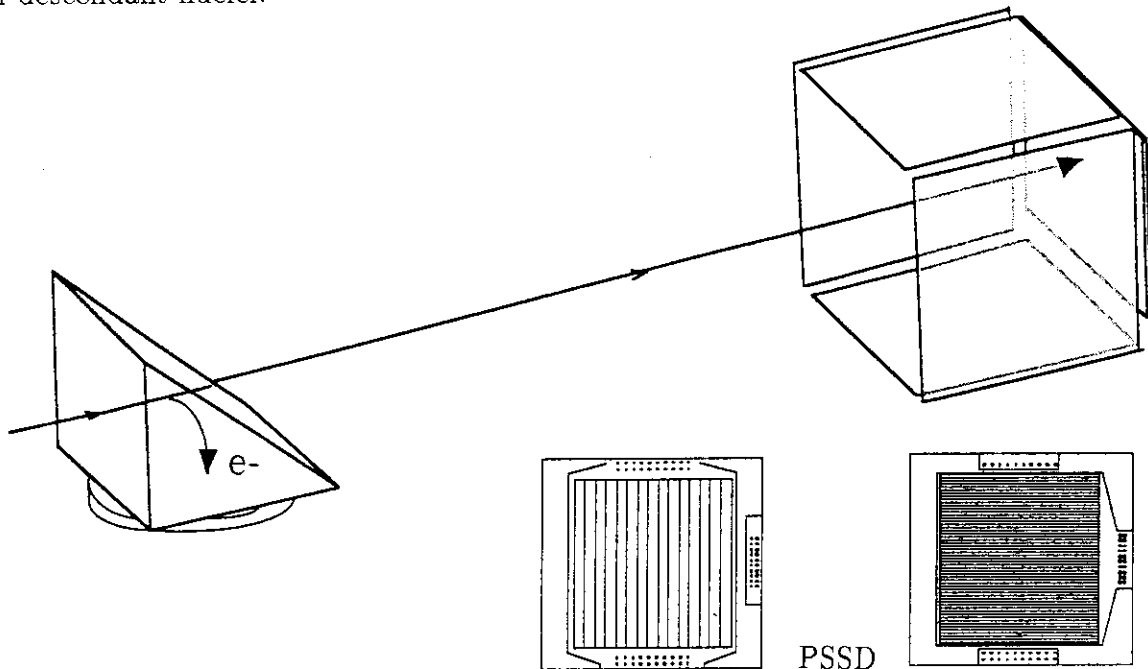


Figure 1: Focal plane detector. The front face of the PSSD is junction side which consists of 15 PSD channels (strips). Each PSD channel is position sensitive in the horizontal direction with a resolution of $250\mu\text{m}$. The back face (ohmic side) of PSSD consists of 128 strips which are divided into 8 blocks of 120Ω inter strip in the vertical direction with the resolution of $500\mu\text{m}$. The inter anode resistance of junction side and the ohmic block resistance are 900Ω and $1.4\text{k}\Omega$, respectively. The PSSD was surrounded by other four single sided strip detectors ($60\text{mm} \times 60\text{mm}$, 12 strips). The solid angle of the present detector arrangement is almost 75% of the total solid angle for decaying α -particles.

3. Results and Discussion

The alpha particle energies for the correlated chains are shown in Figure 2 and Figure 3. The observed decay chains of ^{209}Th and ^{212}Pa are presented in Figure 4 and Figure 5, respectively. The results are summarized in Table 1.

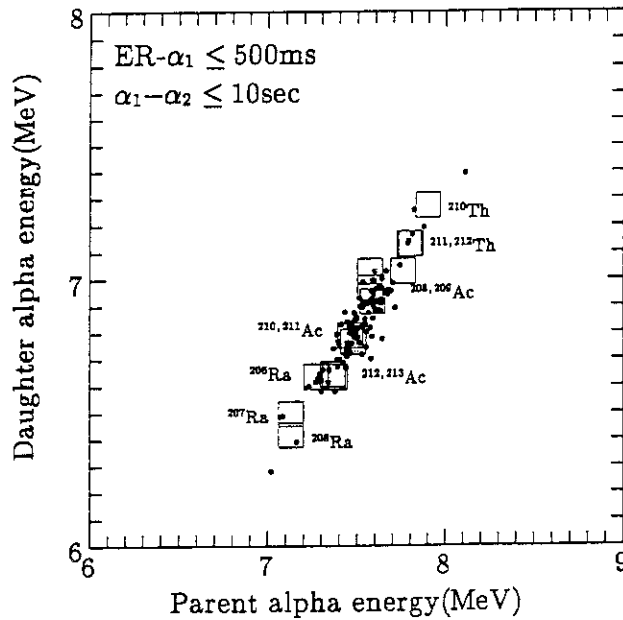


Figure 2: A two-dimensional matrix showing the correlation between energies of parent and daughter α decays in the reaction of ^{32}S on ^{182}W . Maximum search times were 500 ms and 10 s for the evaporation residue- α_1 and α_1 - α_2 , respectively.

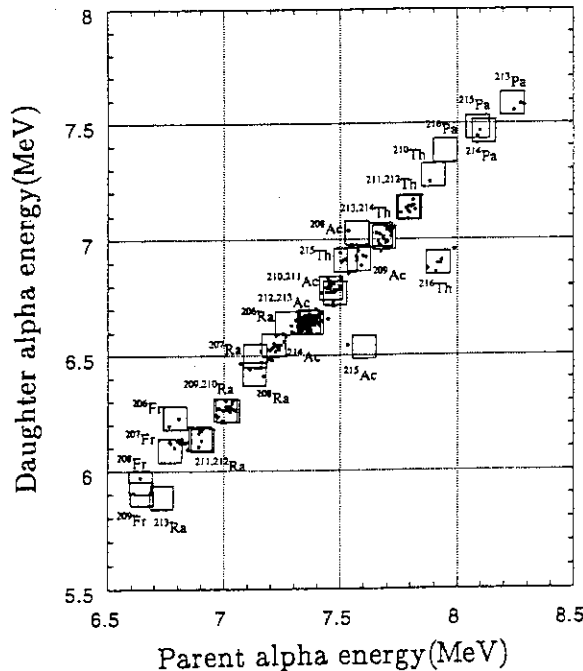


Figure 3: A two-dimensional matrix showing the correlation between energies of parent and daughter α decays in the reaction of ^{35}Cl on ^{182}W . Maximum search times were 50 s and 1000 s for the evaporation residue- α_1 and α_1 - α_2 , respectively.

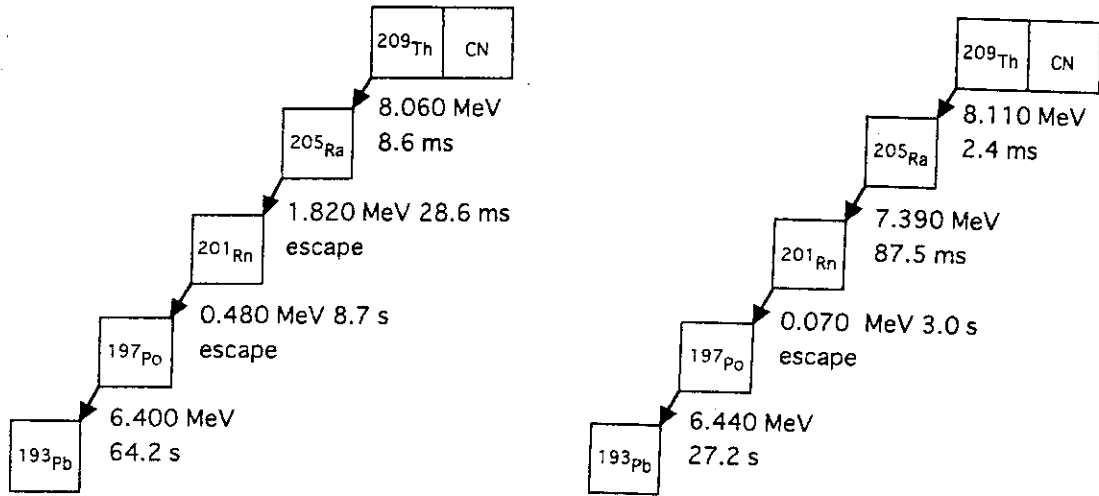


Figure 4: Decay chains assigned to ^{209}Th .

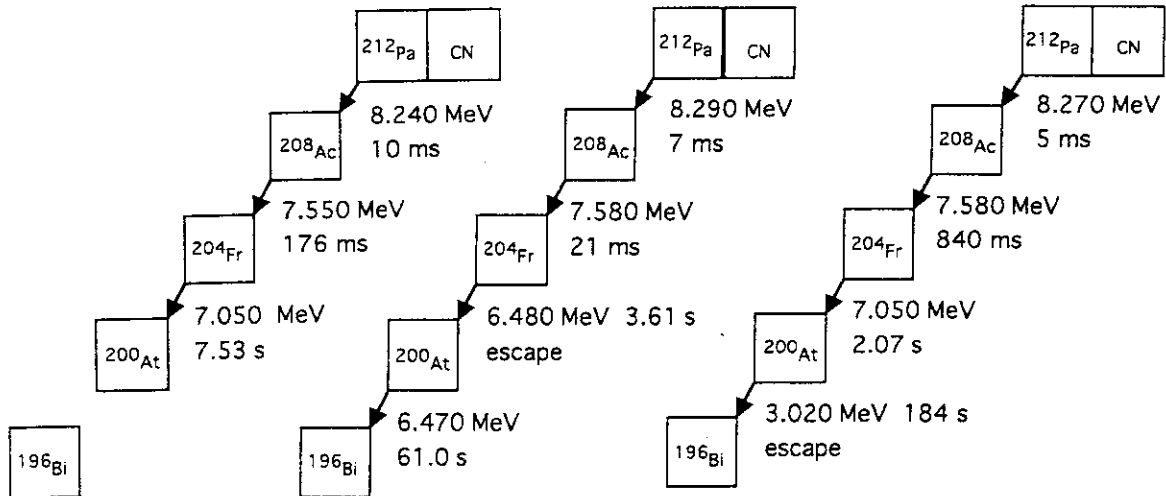


Figure 5: Decay chains assigned to ^{212}Pa .

The measured alpha decay energy of ^{209}Th is higher in some hundred keV than the systematic trend of neighboring isotopes (see Figure 6). This discrepancy is probably due to the observation of isomeric state of ^{209}Th . Although α lines followed by decay of isomeric state ^{205m}Ra and ground state ^{205}Ra could not be resolved in this experiment, the observed decay energy of 6.397(50) MeV is consistent with the α decay from ^{197m}Po .

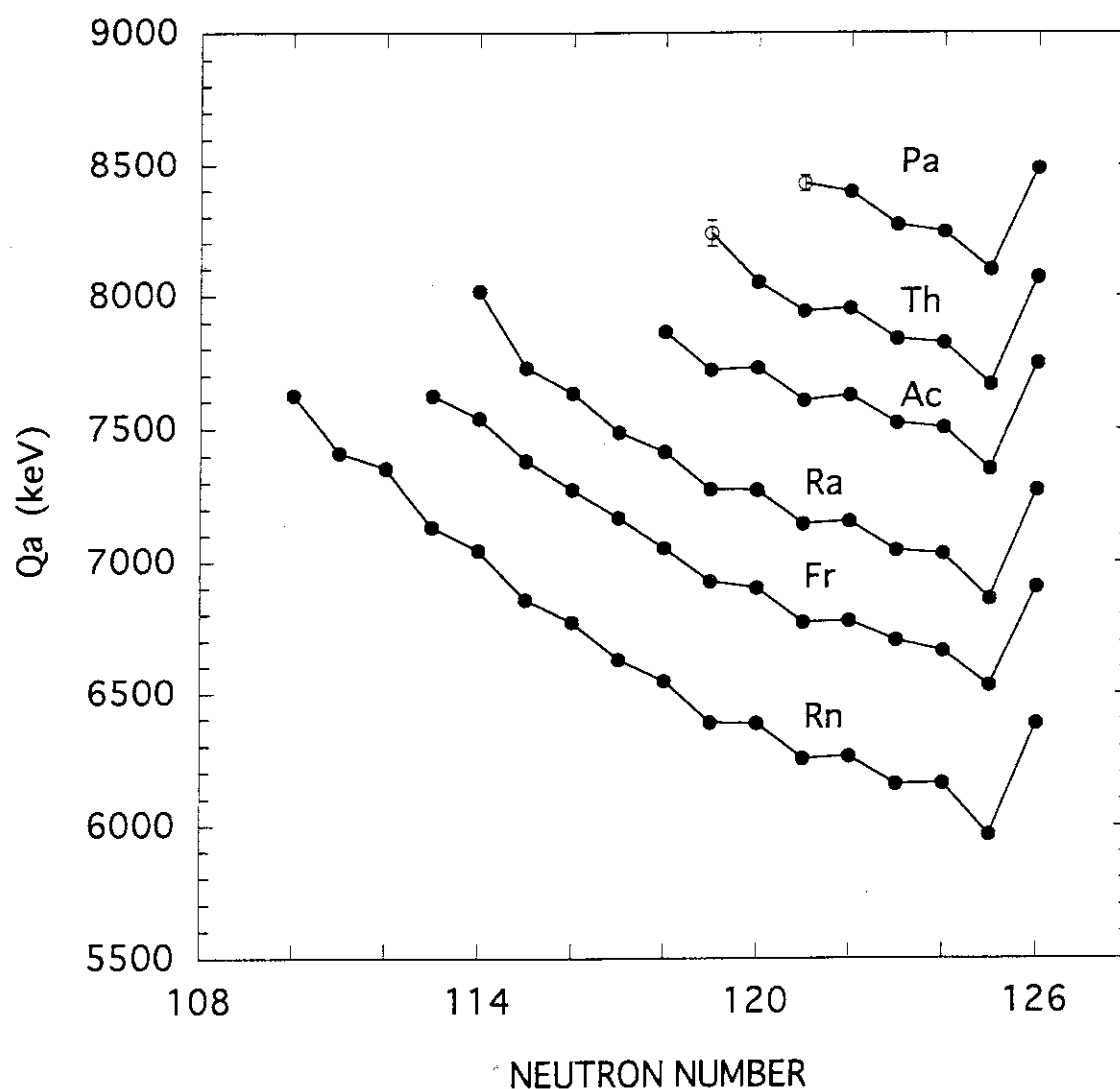


Figure 6: Systematics of Q_α values for Rn, Fr, Ra, Ac, Th and Pa isotopes.

The experimental half-lives are in close agreement with the results of half-life calculation by Rasmussen [5] based on the WKB method, but large discrepancies are observed with the α cluster-core model [6].

Table 1: Q_α values and α decay half-lives of ^{209}Th and ^{212}Pa .

Nuclide	Q_α (MeV)	$T_{1/2}$ (ms)	$T_{1/2}^{wkb}$ (ms)	$T_{1/2}^{clust}$
^{209}Th	8240 ± 50	$3.8^{+6.9}_{-1.5}$	4.3	22
^{212}Pa	8430 ± 30	$5.1^{+6.1}_{-1.9}$	2.6	24

4. Summary

In conclusion, we have identified two new isotopes of ^{209}Th and ^{212}Pa . The production cross section for ^{209}Th and ^{212}Pa were determined to be ~ 1 nb and 0.5 nb, respectively.

References

- [1] H. Ikezoe, Y. Nagame, T. Ikuta, S. Hamada, I. Nishinaka and T. Ohtsuki, Nucl. Instr. & Meth. **A376**, 420 (1996).
- [2] H. Ikezoe, T. Ikuta, S. Hamada, Y. Nagame, I. Nishinaka, K. Tsukada, Y. Oura and T. Ohtsuki, Phys. Rev. **C54**, 2043 (1996).
- [3] S. Mitsuoka, H. Ikezoe, T. Ikuta, Y. Nagame, K. Tsukada, I. Nishinaka, Y. Oura and Y. L. Zhao, Phys. Rev. **C55**, 1555 (1997).
- [4] J. F. Ziegler, J. P. Biersack and U. Littmark, The stopping and range of ions in matter, Vol. I. Pergamon, New York, 1985
- [5] J. O. Rasmussen, Phys. Rev. **113**, 1593 (1959).
- [6] B. Buck and A. C. Merchant, Phys. Rev. **C 45**, 2247 (1992).

6. 重・超重元素領域での質量予測

宇野 正宏 (文部省初等中等教育局)

1. はじめに

未知の原子核の質量を予測する手段には、大別して三通りの方法がある。すなわち、システムティックス、質量公式、そして純理論的計算である。それぞれの方法の有効性は、概ね、予測対象の核種の安定領域あるいは既知核種領域からの距離の近遠に応じている。対象が重・超重元素領域の核種となるとさらに方法は限定されて、システムティックスあるいは経験的な質量公式はあまり有力とは言えず、かわりに単一粒子エネルギーを出発点とするやや理論的な質量公式、あるいは Hartree-Fock のような純理論的計算が力を発揮する。

ここではこのような領域での質量予測という観点から、単一粒子エネルギーに基づくいくつかの代表的な質量公式の紹介、現在この趣旨に沿って我々のグループで進めている質量公式研究の現状、およびそれら公式間の比較について報告する。

2. 単一粒子エネルギーに基づく質量公式

核内核子の単一粒子エネルギーから出発して核の殻エネルギーを求める試みは、60年代半ばに Myers と Swiatecki¹⁾ によって始められた。彼らの方法は、フェルミ気体模型の単一粒子準位を束ね (バンチング)、それから適当な平均エネルギーを差し引いて球形核の殻エネルギーを引き出し、更に核変形の効果をダンプ因子で考慮するというものであった。この方法に基づく質量公式は、 $(Z, N) = (114, 184)$ 近傍に特に安定な超重核種の島の存在を予言し、注目を集めた。

その後 Strutinski²⁾ は、Nilsson ポテンシャルのような変形ポテンシャル中での単一粒子準位から出発し、準位密度の考察を通して、準位の束から適当な平均エネルギーを差し引くことにより、変形核も含めたあらゆる核の殻エネルギーを直接求める、より一般的な処方案を提案した。この処方案は現在最も標準的な方法と看做されており、この線に沿った質量公式の代表的なものとして、Möller ら³⁾ の公式がよく知られている。彼らは、一体ポテンシャルとして folded-Yukawa を仮定し、Strutinski 処方案によって殻エネルギー (microscopic energy) を引き出し、これと macroscopic energy として核力の到達距離の有限性を考慮した Finite Range Droplet Model (FRDM) 公式を組み合わせている。これほど知名度は高くないが、Tondeur, Pearson ら⁴⁾ の ETFSI 公式もある。これは、核質量を macro + micro に分けず、Skyrme 力を用いた拡張 Thomas-Fermi 法に Strutinski 積分を組み合わせて、質量を一気に計算しており、Hartree-Fock 的方法に近いものである。

これらの Strutinski 流公式は一応の成功は収めているものの、問題がない訳でもない。たとえば、中性子過剰領域の核種では、極めて束縛のゆるい単一粒子準位まで核子が詰まることになるが、このような準位をどう扱うのか、またその扱いも含めた場合の Strutinski 処方案の妥当性が、必ずしも明確とは言えないことがある。また、ETFSI 公式では、改善されつつあるようではあるが、ペアリング

効果の扱いが十分とは言えない。こうした問題に対する正攻法的解答は、Deformed Hartree-Fock-Bogoliubov 的計算をせよ、ということになるのかもしれない。Tajima ら⁵⁾は実際にこのような計算を進めているが、N-Z 面上の存在しうるすべての核種について質量を算出するところまでは至っていない。また、Hirata ら⁶⁾は相対論的平均場理論による計算を精力的に進めているが、いずれの場合も質量計算値の精度に関して質量公式の出来の良いものと比べると、今のところ実験値との標準偏差にして数倍大きめのようなのである。

このような状況の中で、我々は単一粒子エネルギーから出発し、Strutinski 処方とは異なる仕方で殻エネルギーを引き出す方法を考案し、新しい質量公式を作り上げる試みを続けている。⁷⁾ 以下でその概要を報告し、最後に暫定的な結果をStrutinski流の公式と比較する。

3. 殻エネルギーを求める新しい方法

我々の方法を一言で表現すると、球形ポテンシャルに対する単一粒子エネルギーからまず球形核の粗い殻エネルギー (crude shell energies) を求め、これらを適当な重み関数を用いて混合 (一種の配位混合) することにより、ペアリングと変形まで考慮した精細な殻エネルギー (refined shell energies) を引き出すものである。その手順を流れ図的に示しておこう。

拡張された球形 Woods-Saxonポテンシャル
での単一粒子エネルギーの計算
↓
単一粒子エネルギーの足し上げ
と
Z、Nについて滑らかな部分の引去り
(Thomas-Fermi エネルギーと残留部分)
粗い殻エネルギー
(crude shell energy)

↓
粗い殻エネルギーを重み関数で配位混合すること
によって精細化
(対相関、高エネルギー成分、変形)
精細な殻エネルギー
(refined shell energy)
↓
質量公式への組み込み
(TUYU公式の大局的部分と結合)

3-1. 拡張された球形 Woods-Saxon ポテンシャル

我々の方法では、出発点にとる球形一体ポテンシャルの良し悪しが、最終的に得られる質量公式の成否を決定する。したがって、球形核の単一粒子準位の実験値を十二分に良く再現する、一体ポテンシャルを用意することが極めて重要である。残念ながら通常の Woods-Saxon ポテンシャルではその用に足りない。そこで中心力部分に Woods-Saxon を拡張した次の形のポテンシャルを用いる。

$$V_{\text{cent}}(r) = V_0 \frac{1}{\{1 + \exp[(r - R_v)/a_v]\}^{a_v/\kappa}} \left\{ 1 + V_c \frac{1}{1 + \exp[(r - R_v)/a_v]} \right\} \quad (1)$$

LS 力部分には、通常の Woods-Saxon をもとにした次の式を使う。

$$V_{ls}(r) = V_{ls0} \frac{k^2}{2m} \frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left\{ \frac{1}{1 + \exp[(r - R_{ls})/a_{ls}]} \right\} l \cdot s \quad (2)$$

係数 (V_0, R_v, a_v, k, V_c) や (V_{ls0}, R_{ls}, a_{ls}) はいずれも質量数 A と $I (= N-Z/A)$ の展開式で表されている。そこに含まれる係数がポテンシャルパラメーターであるが、それらの値は15個の二重魔法核および魔法-準魔法核 $4, 8\text{He}, 12, 14\text{C}, 16\text{O}, 36\text{S}, 40, 48\text{Ca}, 56, 66, 68\text{Ni}, 88\text{Sr}, 90\text{Zr}, 132\text{Sn}, 208\text{Pb}$ の単一陽子あるいは単一中性子準位を参照して決定した。陽子に対しては適当なクーロン項を付加してあるが、それ以外にもクーロンエネルギーについては、中性子が極端にゆるく束縛されていることによる陽子分布への影響を、摂動で扱うなどの工夫をして、準位の再現性の向上を図った。詳しくは、近く論文発表する予定である。8)

3-2. 球形核の粗い殻エネルギー

核種 (Z, N) を決めるとそれに対する球形の陽子ポテンシャルと中性子ポテンシャルが、それぞれ上述の式に従って定まる。球形核の粗い殻エネルギーはそれぞれのポテンシャルを用いて、陽子殻エネルギーと中性子殻エネルギーとして求められる。いずれの手順も同様であるので、以下は中性子の場合について簡単に説明する。

(Z, N) 核の中性子ポテンシャルに n 個の粒子を詰めたときの単一粒子エネルギーの総和 $E_{nSP}(n; Z, N)$ は、 n について見たとき、全エネルギーから見れば微小ではあるが揺れが現れる。この揺れが閉殻効果であり、これを有意に取り出さなければならない。全エネルギーには粒子数 n について滑らかな部分があり、これをうまく引き去ることで正味の殻エネルギーを引き出すことができるはずである。滑らかな部分としてまず Thomas-Fermi エネルギー $E_{nTF}(n; Z, N)$ を引き去る。その後もまだ滑らかな部分が残るが、これについては現象論的に $(\frac{n}{N})^{1/3}$ の多項式 $E_{no}(n; Z, N)$ として表し引き去る。こうして有意な殻エネルギーが図1のように取り出され、この曲線上で $n=N$ としたときの値が、問題の核 (Z, N) に対する球形の粗い中性子殻エネルギー $E_{nCS}(Z, N)$ である。

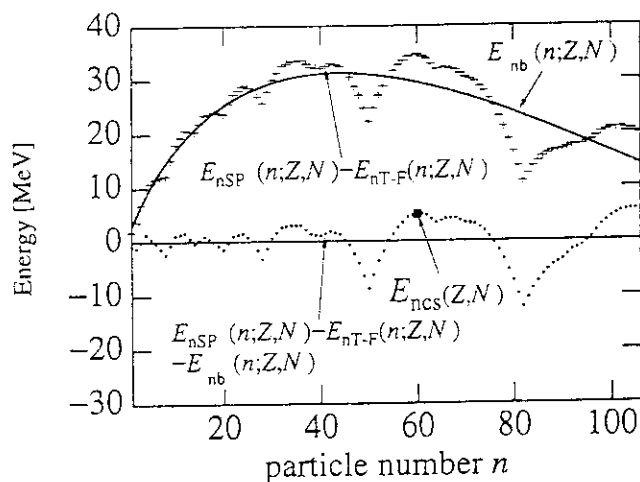


Fig.1 Subtraction of smooth energy parts from the sum of single-particle energies.

3-3. 粗い殻エネルギーの精細化

つぎに残留相互作用の効果を取り入れて、粗い殻エネルギーを精細化する。まずペアリング効果を取り入れて球形核の精細な殻エネルギーを求め、それを基に変形の効果を取り入れた最終的な殻エネルギーを決定する。いずれの段階でも精細化の手順は、前段階で求まっている殻エネルギーを使って、問題の核 (Z, N) の近隣の核に対する殻エネルギーを、適当な重み関数を使って混ぜあわせるという手法を用いる。従って、以下では重み関数をどうとるかが主な問題になる。

3-3-1. ペアリング

BCS理論に従えば、単一粒子準位の占有確率は UV 因子を使って V^2 で与えられる。多少の近似を含む考察により、我々が必要とする重み関数はこの占有確率の差分として求められることが示せる。そこで、BCS方程式をまともに解くのではなく、占有確率の主要部分を図2のようにパラメータを使って近似し、それに対する重み関数 $W_{npr}(N'; Z, N)$ を図3のように求める。

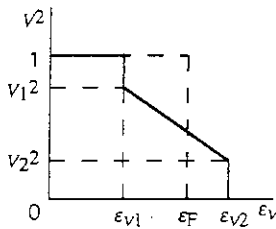


Fig.2 Approximate occupation probabilities.

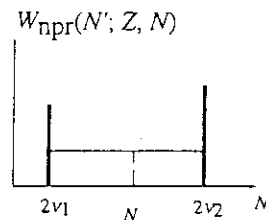


Fig.3 Weight function calculated from Fig.2.

結局、ペアリングまで考慮した球形核の殻エネルギー $E_{npr}(Z, N)$ は、粗い殻エネルギーを次式のよ
うに混ぜ合わせることで得られる。

$$E_{npr}(Z, N) = \overline{\Delta E_{npr}} + \sum_{N'} W_{npr}(N'; Z, N) E_{nps}(Z, N') \quad (3)$$

ここで付加されている第一項は、いわゆるペアリングエネルギーの内、単一粒子準位の二重縮退に起因する古典的な対エネルギー部分を差し引いた残りの部分で、いわばBCSによって始めて考慮されたエネルギー部分とでもいうべきものである。我々の質量公式では古典的部分は、公式の大局的部分に組み入れられている。

ここでの扱いではフェルミ準位から離れた高エネルギー成分の混ざりを無視したが、これについては上の手続きで得られる殻エネルギーに減衰因子 μ を掛けることで、その効果を取り入れる。

3-3-2. 変形

変形核に対しては、上で得られた殻エネルギーを更に修正しなければならない。その手法はペアリングの場合と基本的には同じであるが、重み関数については前ほど簡単ではない。我々は次のような考察に従って、重み関数を求めることにした。

まず変形核を図4のように球形核の断片から構成されていると考える。それぞれの球形核片が変形

核中に占める割合は、その球形核片が見込む立体角に比例すると考えられる。すなわち、各々の球形核の殻エネルギーを単一粒子準位に見立てると、それらの準位の占有確率が立体角に比例するということになる。核の形状より、重み関数 $W_{\text{ndef}}(N', \alpha_i's; Z, N)$ を決めることができる。図5はこれを模式的に示したものである。

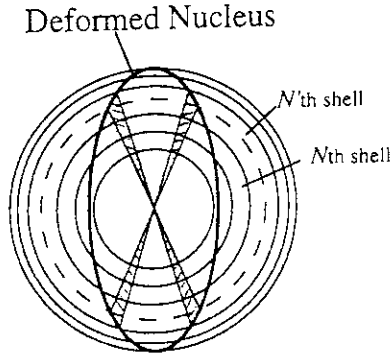


Fig.4 Decomposition of a deformed nucleus into fractional spherical nuclei. The shaded part corresponds to the solid angle.

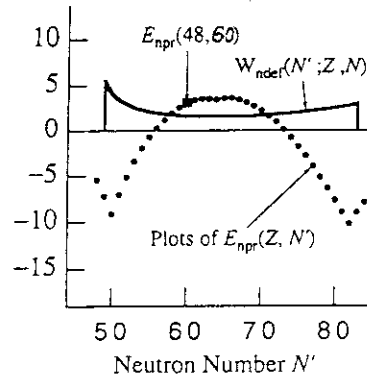


Fig.5 Weight function calculated from the decomposition in Fig.4.

現在の計算では Y_2, Y_4, Y_6 変形まで取り入れて、次式で核の形状を定めている。

$$r(\theta) = \frac{r_0}{\lambda} \left[1 + \alpha_2 P_2(\cos\theta) + \alpha_4 P_4(\cos\theta) + \alpha_6 P_6(\cos\theta) \right] \quad (4)$$

結局、核の変形まで考慮した精細な殻エネルギーは、次の量を変形パラメーター $\alpha_i's$ について最小化することで得られる。

$$E_{\text{def}}(\alpha_i's; Z, N) = \mu \sum_N W_{\text{ndef}}(N', \alpha_i's; Z, N) E_{\text{npr}}(Z, N') + \mu \sum_Z W_{\text{pdef}}(Z', \alpha_i's; Z, N) E_{\text{ppr}}(Z', N) + \Delta E_{\text{def}} \quad (5)$$

ここで、 μ は上述の高エネルギー成分からの寄与を考慮するためのパラメーターであり、その値は質量公式の大局的部分のパラメーターと併せて、調節可能なものとして扱っている。概略値は $\mu \approx 0.65$ である。また、最後に付加されている項は殻効果が無いとしたときの変形エネルギーを表し、ここでは液滴模型によって計算したものを用いている。

こうして、最終的な殻エネルギーと同時に核の平衡変形もあわせて定まる訳である。

この様な変形の取り扱いの妥当性を理論的に厳密に示すことは難しいが、最終的に得られる核の形状つまり変形パラメーターの値と質量値が、実験値と比べてかなり良く一致することから、概ね納得のいくものと考えられる。詳しくは文献7)を見ていただきたい。

4. 質量公式への組み込み

上で得られた殻エネルギーを、Tachibana-Uno-Yamada-Yamada(TUYY)⁹⁾ の経験的質量公式の大局的

部分と組み合わせて、新しい質量公式を作る。大局的部分のパラメータは改めて決め直す。得られる質量公式の精度は、現在までのところ暫定的な結果として、実験値との標準偏差で 699 keV である。

5. 他の質量公式との比較と議論

我々の暫定的公式 Koura-Uno-Tachibana-Yamada(KUTY) 公式を、Strutinski 処方によるものとして典型的な Möller らの Finite-Range-Droplet-Model(FRDM) 公式と比べてみよう。実験値との標準偏差では、KUTY の699 keV に対して FRDM では 669 keV である。FRDM では極端に軽い核 ($Z, N < 8$) を対象から外していることを考慮にいれば、両者は精度としてほぼ同等と言ってもよいであろう。変形度について見ると、ここには図示していないが、質量数 150 から 160 辺りのいわゆる変形領域の始まりのところで、KUTY では四重極変形度がやや不足している点が気になるが、その他の領域ではほぼ同等の合い具合である。

次に、本題である重・超重元素領域での質量を比べてみよう。図6-aおよびbに、UとFmのそれぞれの同位体について、KUTY、ETFSI、FRDM 諸公式の質量計算値および実験値間の比較を、FRDM を基準としてそれとの差で示してある。Uでは、実験値■のあるところでは KUTY と FRDM が実験値をはさんでほぼ同程度に上下に別れているのが分かる。ETFSI は偶奇のがたつきをならずと、比較的实验値に近いように見える。実験値の領域からはずれると、陽子過剰側では KUTY と ETFSI が似た傾向を示し、中性子過剰側では ETFSI と FRDM がやや近く、KUTY は両者から離れる傾向が見える。Fm では、実験値のあるところでの KUTY と FRDM の振る舞いはUの場合と似ているが、ETFSI はやや実験値からはずれているのが分かる。また中性子過剰側では KUTY と ETFSI が比較的似た振る舞いをしている。もう少し広い範囲で見ると、図7にUについて四者の質量超過そのものの値を示した。中性子数 N が 160 より大きいところで、三公式間に明らかな振る舞いの差が見られる。中性子過剰側でのこの傾向は、この核種領域で系統的に見られるため、今後の検討課題とすべきかもしれない。星の中での元素合成に関する r -過程の計算が、目下のところこの領域での唯一の手掛かりであり、現在こちらの面からも検討を進めているところである。

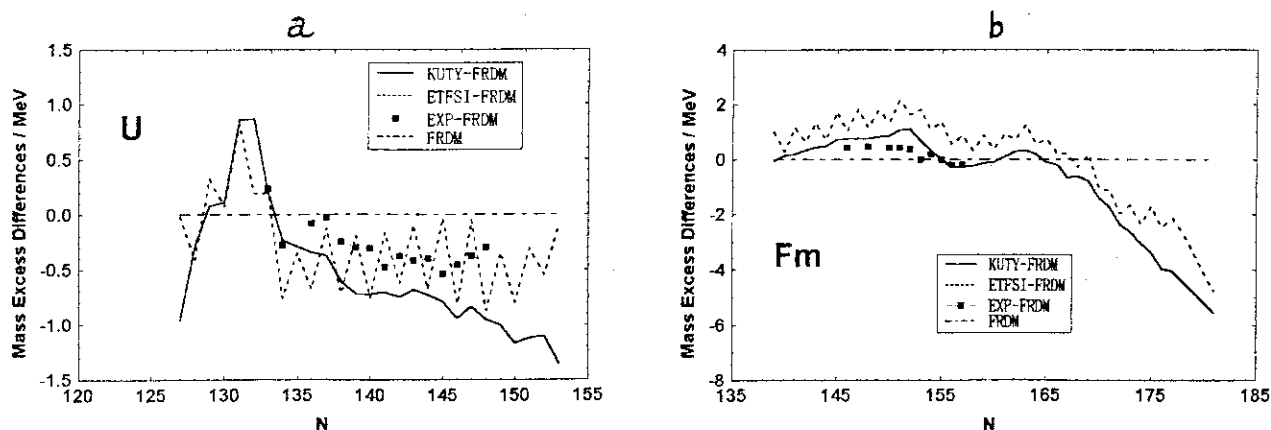


Fig.6 Differences between mass predictions of KUTY, ETFSI and FRDM mass formulas. Plot ■ shows experimental value. The 6-a is for U isotopes, and the 6-b for Fm isotopes.

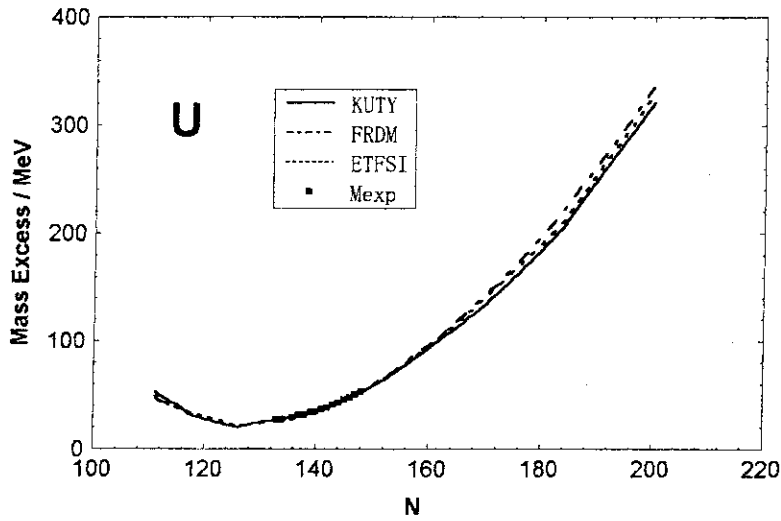


Fig.7 Mass excesses of U isotopes.

超重元素の質量についても見ておこう。図8は $Z=114$ 元素の同位体について質量予測値を比較したものである。図6と同様に FRDM を基準としてそれとの差を示してある。 $N=180$ あたりから予測値に少しずつ開きが出てくるのが見られ、問題の $N=184$ では ETFSI と FRDM が比較的近く KUTY は両者から少し離れている。この結果だけから何かを結論することはできないが、手法を変えるところの程度には予測に開きが出るということは、覚えておいてよいかもしれない。

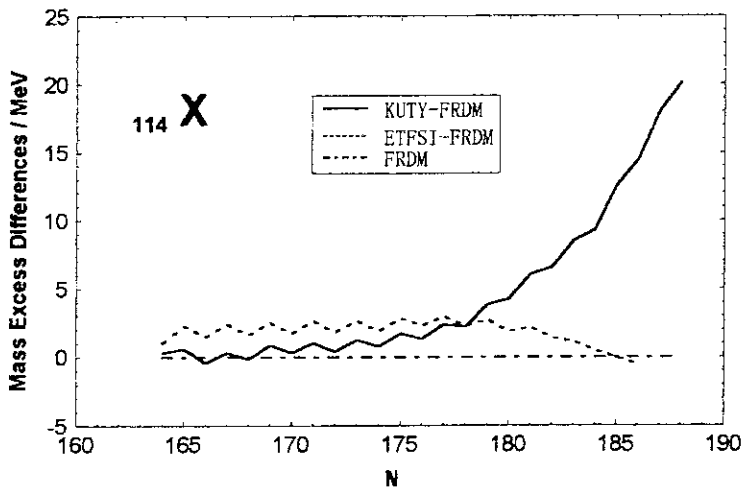


Fig.8 Differences between mass predictions of KUTY, ETFSI and FRDM mass formulas for $Z=114$ element.

参考文献

- 1) W. D. Myers and W. J. Swiatecki, Nucl. Phys. **81**, 1(1966)
- 2) V. M. Strutinski, Nucl. Phys. **A95**, 420(1967)
- 3) P. Möller, J. R. Nix, W. D. Myers and W. J. Swiatecki, At. Data Nucl. Data Tables **59**, 185(1995)
- 4) J. M. Pearson *et. al*, Nucl. Phys. **A528**, 1(1991)
- 5) N. Tajima, S. Takahara and N. Onishi, Nucl. Phys. **A603**, 23(1996)
- 6) D. Hirata, H. Toki, T. Watabe, I. Tanihata and B. V. Carlson, Phys. Rev. **C44**, 1467(1991)
- 7) M. Uno, H. Koura, T. Tachibana and M. Yamada, Proc. of ENAM95, 159(1995); H. Koura, M. Uno, T. Tachibana and M. Yamada, Technical Report No. 95-25(ARCSE, Waseda Univ. 1995)
- 8) H. Koura and M. Yamada, in preparation
- 9) T. Tachibana, M. Uno, M. Yamada and S. Yamada, At. Data Nucl. Data Tables **39**, 251(1988)

7. 密着核融合とその周辺

岩本 昭 (原研先端基礎研究センター)

Hugging Fusion and Related Topics

Abstract: An important problem related to the synthesis of very heavy nuclides by fusion of two heavy-ions is the extra push effect. To avoid it, we propose a hugging fusion, which is the fusion of two well-deformed heavy-ions.

1 密着核融合とは何か？

重イオン反応を用いて超重元素乃至は重い新核種を合成する試みは近年大いに研究され、実際 N_0 より重い元素はすべて重イオン反応により合成された。反応機構としては重イオン同士の核融合とそれに引き続く中性子放出によるものが主要なものである。この核融合のうち、アクチナイド核を標的核として比較的軽い重イオンを融合させるものを熱い核融合反応、これに対して Pb や Bi を標的核として比較的重い重イオンを融合させるものを冷たい核融合と呼ぶ。特に現在最も重い元素 $Z=107-112$ の発見に関しては、ドイツ GSI 研究所で精力的に冷たい核融合反応成が用いられた。しかしながら、 $Z=112$ 番元素に関しては複合核の励起エネルギーが非常に低く、実際放出された中性子は1個に過ぎない。このことから、さらに重い元素合成に関しては中性子を全く放出しない反応機構が重要になると思われる。それにしても、複合核の励起エネルギーが核分裂障壁の高さ以下になると本래の核分裂が抑えられるという点では好都合であるが、核融合断面積は今までのものに比較して非常に小さくなると予想される。いずれにしても、 $Z=113$, $Z=114$ が冷たい核融合による核融合の限界であることは明らかである。

そこで、どうしたらさらに重い核種を合成できるかということが問題となる。本稿のテーマはこのための一つの可能性を提案することにある。ここで提案する核融合の機構を密着核融合と呼ぶことにする。密着核融合という呼び名はここで初めて用いた用語であり、一般に定着した呼び名ではない。元々我々が以前論文のなかで用いた [1] Hugging Fusion という用語を仮に日本語訳したものである。要は、標的核および入射核双方に十分変形した原子核を用いて、しかもそのうち二つの核がある特殊な立体交差を生じる配位に着目して、そのように名付けた。この立体交差の配位は、基本的にはエキストラプッシュ効果を極力少なくすることを狙ったものである。次にこのエキストラプッシュ効果とは何か、それを避けるために何を考えねばならないかを考える。

2 エキストラプッシュを如何に避けるか

先ず、重イオン間のポテンシャルの計算法としてある適当な標準的模型を設定する。その重イオン同士が核融合を起こすのに必要な最小の入射エネルギーを実験的に求めて、(ここではサブバリアー核融合の寄与をしばらく忘れて、核融合断面積が十分に大きくなるエネルギーを考

えることにする)それがこの標準模型による障壁の高さに等しければゼロ、最小の入射エネルギーがこの障壁よりも高ければその差のエネルギーをエキストラプッシュエネルギーと名付ける。物理的には、元々の J.Swiatecki [2] の考えを採用すれば、重イオン核融合を記述するポテンシャル表面の多次元性と、エネルギーの散逸効果の二つの効果にその本質がある。ここでいう多次元性で重要なことは、核融合ポテンシャルと核分裂ポテンシャルとが違った配位をしていてその相対的な関係が入射核と標的核の組み合わせに応じて変化することである。しかし、この Swiatecki の説明は必ずしも明白な事実というほどにははっきりしていない。すなわち、実験事実としてのエキストラプッシュははっきりしているが、この理由については諸説あるというべきであろう。ただ、前述した二つの効果が非常に大事な要素であることは確かと思われる。

次に、如何にしてこのエキストラプッシュを避けるかという議論に移る。元来核融合障壁の山の位置が核分裂障壁の山の位置よりも外側に来る場合にエキストラプッシュの効果が大きいと考えられる。これを避ける手段としては2核の核融合障壁の山の位置、乃至は2核が接触して核融合を起こす配位の変形が全体としてコンパクトなものにすることである。このための手段として有効と思われるのは、強く変形した原子核を使うことである。

原子核の変形の効果として、良く知られているようにサブバリアー領域での核融合断面積の増大効果が挙げられる。この現象自身は、チャンネル結合効果による回転バンドへの励起とも捉えられるし、断熱近似が良い場合には核融合障壁が変形核の回りに分布しているとも解釈できる。実際、この効果自身は密着核融合にとっても非常に大事である。しかしもし双方の原子核が共に変形している場合には、非常に多くの相対的な配位が可能となり、単にコンパクトな配位というだけでなく非常に核分裂障壁の形から遠く離れた接触配位を持ちうるということが分かる。例えば双方の原子核がラグビーボール型に変形しており、一方が正の8重極変形、他方が負の8重極変形をしている場合の双方の代表的な接触配位を図1に示した。この様に様々な配位が考えられるが、この中で密着核融合として定義するのは右下の配位である。すなわち、各々の回転軸が直行しているもののうちで、各々の赤道面が接触しているものを密着核融合の配位と定義する。この形態の特殊性は、非常にコンパクトな形態でありながら核融合障壁の高さを低く抑えることが可能である点である。もう一つの利点はその形状が核分裂障壁の形状から遠く離れており、この2つのカップリングは強くないだろうと考えられることである。

さて、実際の入射核・標的核の組み合わせで適当な密着核融合の候補があるであろうか?その条件としては、それらの強く変形した核が安定に存在すること、超重核領域の複合核を核融合反応で作れること、および作成した複合核を α 崩壊を通して測定可能であることなどが必要となる。最後の条件は、作成された複合核が主として α 崩壊により崩壊すること、及びその崩壊寿命が適当な長さであることを要求する。これは実験技術上の制限であるが、現状では必要な条件である。実際、これらの条件をほぼ満たすものはあり得る。図2に示したのはこの1例である。 $^{110}\text{Pd} + ^{186}\text{W}$ の組み合わせからは複合核として質量数が296、陽子数120の複合核が生じる。この配位では核融合障壁の高さは376.2MeVであり、一方この図のように接触した配置でのポテンシャルエネルギーは374.1MeVであることが計算より分かる[1]。ちなみに、この2核が仮に球形であるとした場合の接触配置でのポテンシャルの高さは361.1MeVであり、密着核融合の場合の接触状態でのポテンシャルは13MeVほど高くなっている。この接触配位でのポテンシャルに対応するエネルギーで入射した場合に複合核は35MeVの励起エネルギーを持つ。この図では、計算された基底状態の変形をもとに接触核融合の配位を幾つかの方向より

見たものを示してある。

この系が仮に2個の中性子を放出したとして、その後の α 崩壊の様子を示したのが3図である。この様に、 α 崩壊の寿命はやや短いものの測定の可能性なしとはいえない。この系以外に考えられる変形核同士の核融合の候補は文献 [1] に与えられており、そこでは種々の配置に対する障壁の高さの計算が与えられている。

実際に核融合を起こすには、上記の議論以外にも幾つか必要なことがあるであろう。それは核融合障壁の山の位置を少し越えたところでの、集団変数が受ける力が適当な強さの引力であり、それにより丸い複合核の方向へ系を進めなければならない。またもう重要な現象として考えるべきは、2核の接近に伴って非断熱的な効果が利かないようにすることである。このことの意味することは2点ある。一つは、集団変数の時間変化をなるべくゆっくりさせて、断熱的な準位間のジャンプを起こさせないことである。もう一つは核子の1粒子エネルギー準位同士が非断熱的に交わることを避けることである。もしこれが生じると、集団変数をゆっくり変化させても必然的に系が励起してしまう。そもそも1粒子準位の交差は、考えている系に何らかの対称性がある場合に生じると考えられる。例えば全体系が回転対称性をもっている場合には、角運動量の回転軸方向への成分は保存され、それ故その値が違うものは変形につれて交差が生じる。この様なことが起こると、系は必然的に励起してしまう。この現象は核融合により超重核を合成する企てに対して妨げとなる。それで、この現象を避けるためには、系が対称性をなるべく持たないように工夫すべきである。この意味でも、上記の密着核融合は非常に対称的な配位から遠いと思われ、準位交差を避ける点で有効であると考えられる。

3 サブバリアー核融合からヒントが得られるか？

変形核同士の核融合断面積の計算を行うには、まず2核のポテンシャルエネルギーを計算する必要がある。双方の原子核が変形している場合には、このポテンシャル計算が非常に高次元となり困難である。仮に双方の原子核に軸対称性を仮定した場合にも、必要となる次元は6次元となり、もしなんら対称性を持たない系では9次元が必要となる。この様な場合に核融合断面積を計算する理論的手法に関しては現在開発中であるが、まだ最終的な結果を得ていない。そこでここでは一方が軸対称変形をしており、他方が球形である場合の例を示し、それを通して今後の研究の一助としたい。図4に示すのは、 $^{16}\text{O} + ^{236}\text{U}$ の系のポテンシャルエネルギーの計算例である [3]。ここで ^{236}U は軸対称性をもつラグビー型の変形をしており、球形の ^{16}O との間のポテンシャルは2次元で表現できる。この様に、 ^{16}O が長軸方向に来るとクーロン力の影響でポテンシャルは低くなり、一方短軸方向より接近するとポテンシャルは高くなる。この図が得られると、適当な断熱近似のもとでは（これは大きく変形した重い核の場合、非常に良い近似となる）各表面要素に対応した局所的なポテンシャル障壁を通しての透過確率を計算することにより、最終的な断面積を得ることが出来る。

ここで注意すべきことは、核融合ポテンシャルを透過するもの総てが複合核形成にはつながらないことである。すなわち、文献 [4] によるとラグビー型原子核と軽い原子核の衝突の場合、長軸方向から入射すると確かにポテンシャルは低くてその点では核融合にとり有利であるが、それらの事象の多くはいわゆる速い核分裂となってしまう、球形の複合核形成には結びつかない

い。もちろんこの結果については更に十分な検討が必要であるが、いずれにしても障壁透過乃至乗り越えの確率にさらにそれが通常の複合核形成にいたる確率を乗じる必要がある。このことが特に要求されるのは入射核が重い場合であり、それがいわゆるエキストラプッシュとなっているのであるが、軽い核でもそれが必要となる場合もあるので注意が必要である。特に密着核融合の場合には具体的な透過乃至は乗り越えに関する断面積計算が未だ出来ない状態であるが、これを行った後にこの確率を乗じることが必要となる。

4 まとめ

現在作られた最も重い元素 $Z=112$ よりも更に先の超重核を合成する為の新しい反応機構として、密着核融合 (Hugging Fusion) を提案した。共に大きく変形した標的核と入射核を使い、特殊な立体交差の配位を通しての融合を目指すものである。具体的な断面積計算等は今後に残されており、強く主張する根拠には未だ乏しい。しかし今までの冷たい核融合による反応の限界が来つつあることは自明であるので、この様な新しい反応機構を実験的に試すのは非常に興味あることである。適当な反応系の選択により複合系の励起エネルギーもかなり低く抑えられる場合があり、一つの可能性として理論的にも今後とも研究を進めて行きたい。幾つかの反応系と典型的な障壁の高さについての計算については、文献 [1] を参照されたい。

参考文献

- [1] A. Iwamoto, P. Möller, J.R. Nix and H. Sagawa, Nucl.Phys. **A596** (1996) 329.
- [2] W.J. Swiatecki, Nucl.Phys. **A376** (1982) 275.
- [3] A. Iwamoto and P. Möller, Nucl.Phys. **A605** (1996) 334.
- [4] D.J. Hinde et al., Phys.Rev. **C53** (1996) 1290.

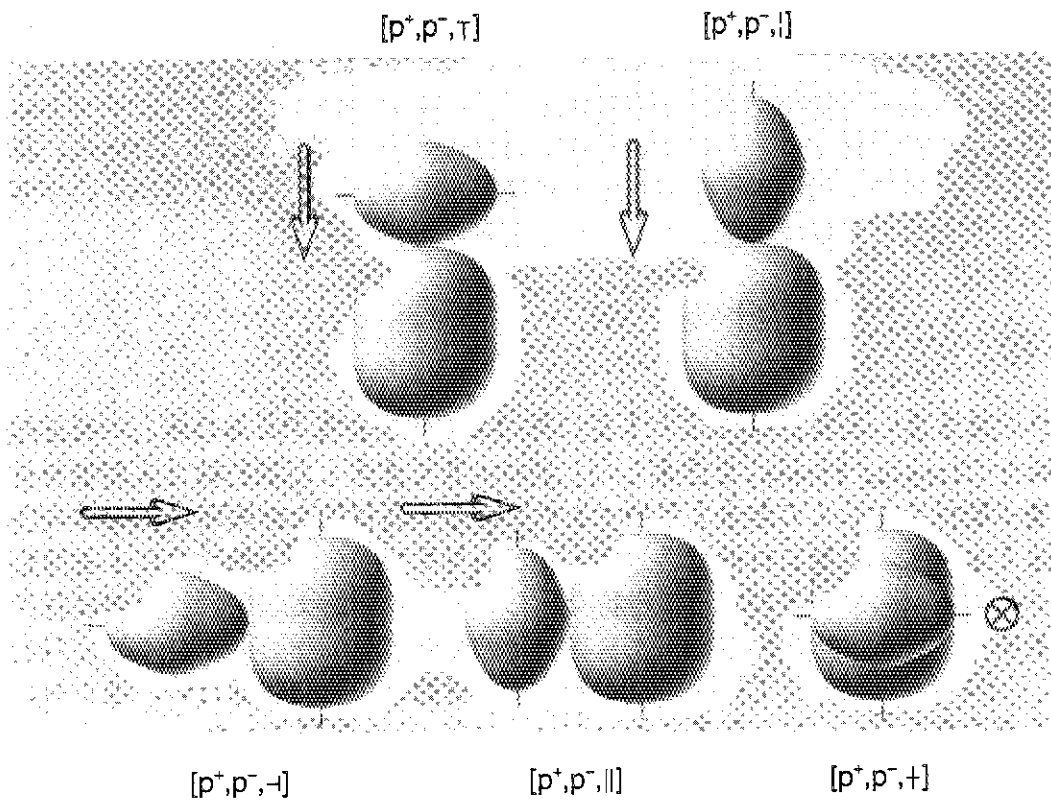


Figure 3

図1 双方ともラグビー型変形をした2つの原子核の典型的な接触配置を示す。一方が正の8重極変形、他方が負の8重極変形をしている場合を描いてある。

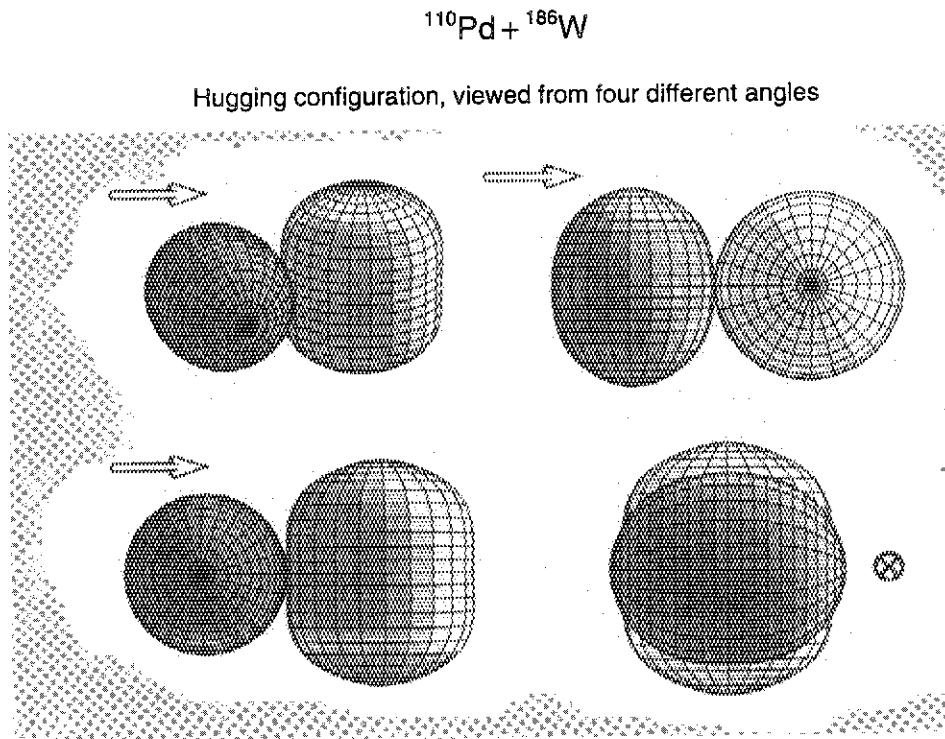


図2 $^{110}\text{Pd} + ^{186}\text{W}$ 系の密着核融合の配置を4方向より見たもの。

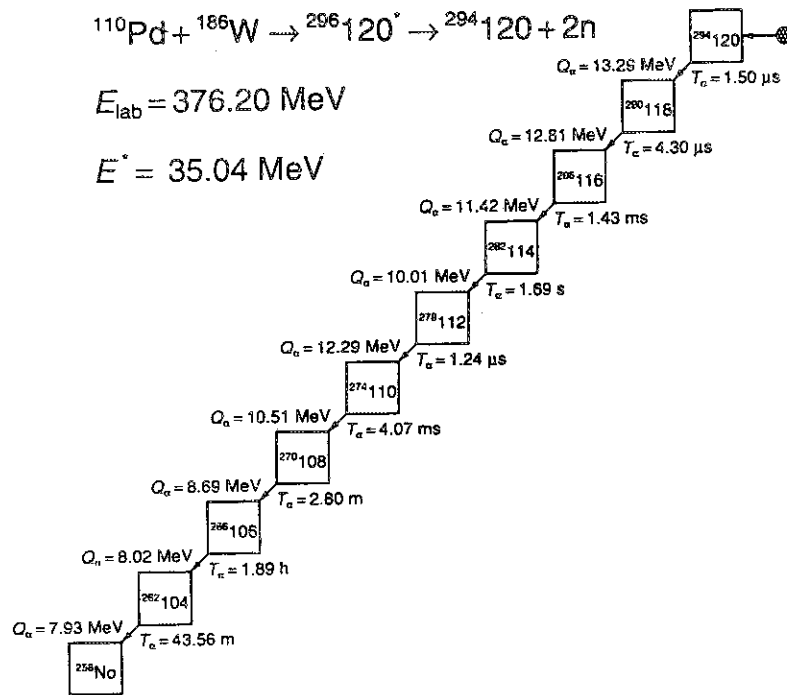


図3 $^{110}\text{Pd} + ^{186}\text{W}$ の核融合の結果、2個の中性子放出が生じたと仮定して、その後の α 崩壊のエネルギー及び寿命を示したもの。

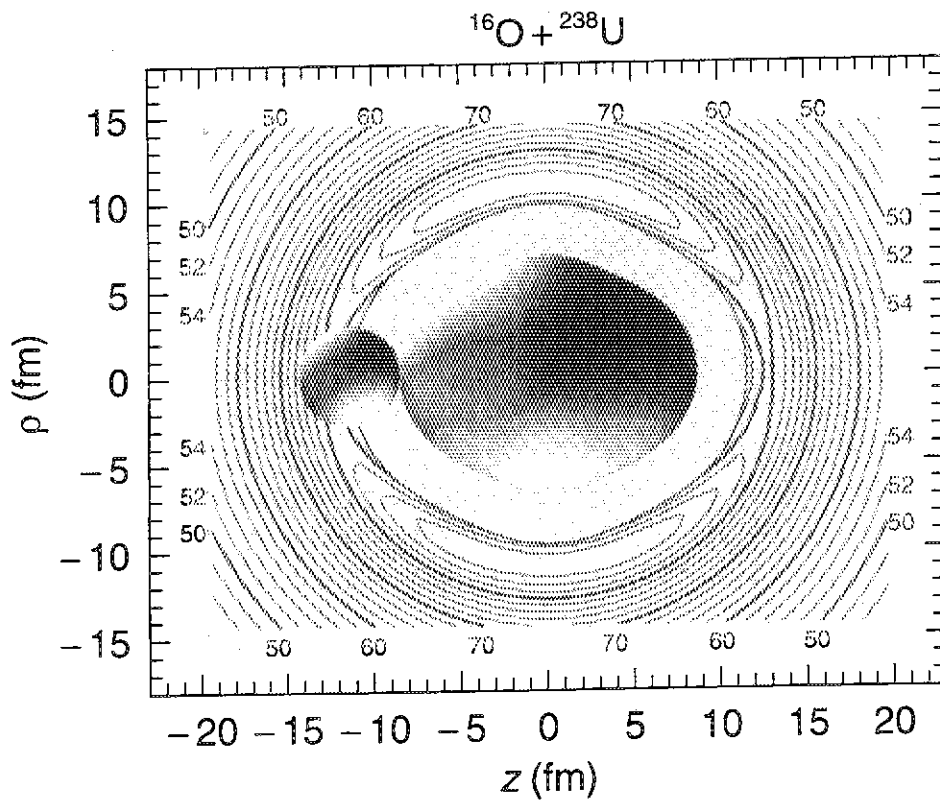


図4 $^{16}\text{O} + ^{238}\text{U}$ 系の核融合ポテンシャルを示す。等高線は各々MeV単位の等エネルギー表面を表す。

8. 中性子過剰核のバリア近傍での融合反応

吉田 敦 (理研 放射線研究室)

1 序

超重元素合成を考えた場合、中性子過剰核を用いれば $Z=114$ $N=184$ 近傍の領域に直接到達しうる点で優れており、また比較的軽い中性子過剰核ビームとアクチナイド系列の重いターゲットを用いれば、fissility パラメータと Extra-push エネルギーが小さく、また複合核の生存確率 Γ_n/Γ_f を大きく保つことができる点で有利であることが指摘されている。

一方、中性子過剰核は 2 次ビームとして生成されるためにビーム強度の点で不利であり、これを補うような、安定核で得られている系統性とは別の融合反応を増大させるメカニズムが望まれている。その候補として、中性子の分離エネルギーが小さい為に、融合反応の際に中性子移行が促進されたり¹⁾、低い励起状態の E_1 偏極によりクーロン障壁が低下するなどの可能性²⁾が予測されている。これらの予測を検証するために、中性子過剰核を用いた実際の融合反応断面積がどのような系統性を持つかを示す実験データが切望されている。

最近の RI ビーム生成技術の進歩により、中性子過剰核を用いた融合反応実験が弱いビーム強度ながらどうにか可能になりつつある。ここでは、理研で行われた中性子過剰核を用いた融合反応実験を 2 例紹介する。

2 ${}^9,{}^{10},{}^{11}\text{Be} + {}^{209}\text{Bi}$ 実験

中性子ハロー核である ${}^{11}\text{Be}$ については、その核半径が大きいために融合反応断面積が増大するという予測や、一方で中性子の結合エネルギーが小さいために、反応時にハロー中性子が breakup し断面積の増大は見られないか、あるいは減少するという予測など諸説紛々としていた³⁾。

そこで我々は ${}^9,{}^{10},{}^{11}\text{Be} + {}^{209}\text{Bi}$ の系について、複合核 Fr からの α 崩壊を検出することで、クーロン障壁近傍の融合断面積の測定を行った⁴⁾。

${}^{13}\text{C}$ 100MeV.A のビーム核破砕反応で、45MeV.A 程度の ${}^9,{}^{10},{}^{11}\text{Be}$ を生成し、これをエネルギー減速板を通してクーロン障壁近傍の 5MeV.A 付近まで減速した後、4 枚の Bi ターゲット (それぞれ $\sim 0.7\text{mg}/\text{cm}^2$) スタックに照射した。この時のビーム強度は約 100~200kcps で、各イベント毎に TOF でビームのエネルギーを測定し、同時計数法によりターゲット内に生成された複合核からの α 崩壊を Si 検出器で測定した。

ビームとの同時計測であるため、測定可能な α 崩壊は寿命の短い ${}^{215}\text{Fr}$ ($T_{1/2}=120\text{ns}$) と ${}^{216}\text{Fr}$ ($T_{1/2}=700\text{ns}$) に限られたが、これらの 2 つの複合核がクーロンバリア近傍での主要な断面積を与える。尚、 ${}^9\text{Be} + {}^{209}\text{Bi}$ については、別途、筑波大のタンデム加速器を用いて長寿命の α 崩壊核も含めたデータを測定し、これとの比較から断面積の絶対値の確認を行った。

クーロンバリア近傍 ($E/V_b = 1.0 \sim 1.3$) での主要な α 崩壊複合核の断面積の和について ${}^9,{}^{10},{}^{11}\text{Be}$ で比較したものを (図.1) に示す。図中には CCFUS コードによる計算値も示した。縦軸のエラーバーは、統計誤差のみを考慮してある。横軸のエラーバーは、TOF で測定したエネルギーを 2ns/bin 毎に区切って断面積を求めた事を意味している。

この結果から、10~500mb 領域においては、 ${}^9,{}^{10},{}^{11}\text{Be}$ とともに殆ど同じ融合断面積を示しており、特に中性子ハロー核である ${}^{11}\text{Be}$ だけが増大、あるいは減少しているという様子は

見られない。

一方で、 $^9,^{10},^{11}\text{Be}$ ともに単純な CCFUS 計算では説明できていない。この点については現在、Be 核の α クラスター構造などの特異性を考慮した説明を考察中である。

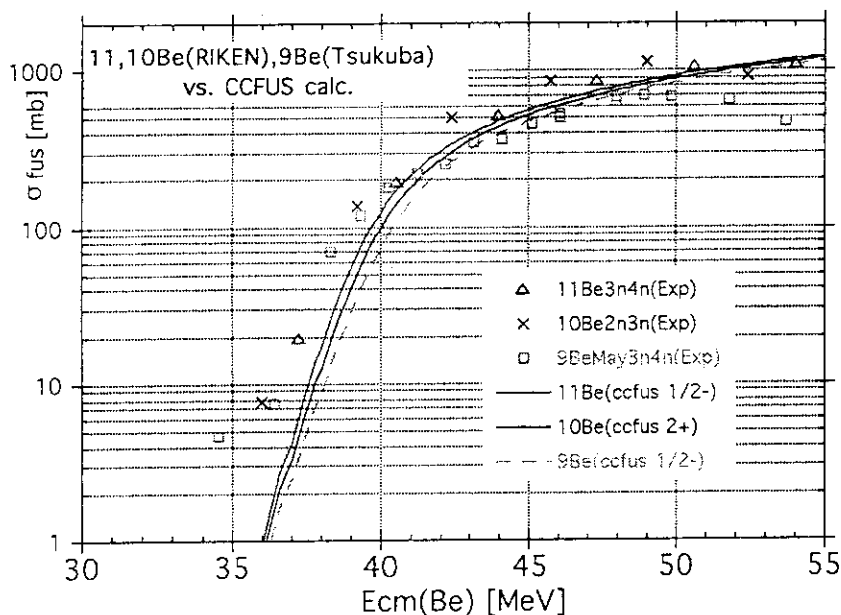


図 1: $^9,^{10},^{11}\text{Be} + ^{209}\text{Bi}$ 融合反応のバリア近傍での主要な α 崩壊複合核の断面積の和について比較した。また、 $^9,^{10},^{11}\text{Be}$ のそれぞれ $1/2+$, $2+$, $1/2-$ の励起レベルを考慮した CCFUS 計算も図中に示した。

3 $^{27,29,31}\text{Al} + ^{197}\text{Au}$ 実験

上記の中性子ハロー核は、He, Li, Be といった軽い核で見られる現象であるが、より重い中性子過剰核では、ハロー核よりも高い中性子密度を保ったまま核半径が大きくなっている中性子スキン核が多く存在するであろうと予測されている⁵⁾。

手始めとして、我々は $^{27,29,31}\text{Al} + ^{197}\text{Au}$ の系について融合反応断面積を測定した⁶⁾。尚、Al の場合は、 ^{33}Al 近傍からスキン核の特徴が現れ始めると予測されているが⁵⁾、ビーム強度の点で、今回は ^{31}Al までに留まった。

^{40}Ar 90MeV.A のビーム核破碎反応で、40MeV.A 程度の $^{29,31}\text{Al}$ を生成し、これを上記同様にエネルギー減速板を通してクーロン障壁近傍の 6MeV.A 付近まで減速した後、10枚の Au ターゲット (それぞれ $\sim 0.4\text{mg}/\text{cm}^2$) スタックに照射した。

この時のビーム強度は $^{29,31}\text{Al}$ でそれぞれ、130kcps, 30kcps であった。各イベント毎に TOF でビームのエネルギーを測定し、同時計数法によりターゲット内に生成された複合核 U からの核分裂片を MWPC 検出器で測定した。

尚、 $^{27}\text{Al} + ^{197}\text{Au}$ については、別途、理研の AVF サイクロで同じ検出器を用いた実験を行い、更に原研のタンデム加速器を用いて核分裂片の角度分布測定を含めた詳細な実験も行い、これとの比較から高エネルギー側で $^{29,31}\text{Al}$ の断面積の絶対値を規格化した。

クーロンバリア近傍 ($E/Vb = 1.0 \sim 1.4$) での $^{27,29,31}\text{Al}$ の融合断面積の測定結果を CCDEF コードによる計算と比較したものを (Fig.2) に示す。

^{27}Al の融合断面積は計算で良く再現されているが、 $^{29,31}\text{Al}$ ではバリア近傍で CCDEF 計算では説明できない増大が観測された。この測定結果は、中性子過剰核を用いた重元素合成研究に関して、興味深い問題を含んでいると思われる。

4 まとめ

中性子過剰核を用いた融合反応実験は、上記の理研の他にも、GANIL では $^{9,11}\text{Be} + ^{238}\text{U}$ について⁷⁾、DUBNA では $^4\text{He} + ^{209}\text{Bi}$ について⁸⁾、MSU では $^{32,38}\text{S} + ^{181}\text{Ta}$ について⁹⁾ 行なわれているが、どの実験結果からも、中性子過剰核を用いた場合安定核から予測される融合断面積より、“低い” という報告はなく、少なくともそれと同程度か何らかの増大がみられている。

但し、どれもまだパイオニアの実験であり、10mb 以下の sub-barrier まで議論できるような説得力のある十分な統計を持ったデータはでてきていない。それは、安定核ビームと比べて6桁以下のビーム強度での実験であるためである。この様な段階において、理研のデータはかなりクオリティの高い初めてのデータと言えるだろう。

いずれにせよ、この分野の実験では、将来的に低エネルギーで、大強度、運動量分散の少ない良質な2次ビームを供給できる、JHP計画や、原研の大強度中性子施設といった2次イオン源タイプの不安定核加速装置が是非とも必要となっている。

この研究は、理研、東大核研、原研の共同研究である。

5 References)

- ¹⁾ P.H.Stelson, Physics Letters B205(1988), 190
- ²⁾ C.H.Dasso, et al., Physics Letters B276(1992),1
- ³⁾ M.S.Fusein et al., Phys.Rev.C46(1992)337; N.Takigawa et al., Phys.Rev.C47(1993)R2470; C.H.Dasso et al., Phys.Rev.C50(1994)R12
- ⁴⁾ A.Yoshida et al., 2nd Japan-Italy Joint Symposium '95, "Perspectives in Heavy Ion Physics", World Scientific, pg.19-30 ; C.Signorini et al., in the same booklet, pg.3-18
- ⁵⁾ N.Fukunishi et al., RIKEN-AF-NP-153
- ⁶⁾ Y.Watanabe et al., RIKEN Acc.Prog.Rep.29(1996)68
- ⁷⁾ V.Fekou-Youmbi et al., "Heavy-ion Fusion", World Scientific, May 1994 Padova, Italy, pg.305
- ⁸⁾ Yu.E.Penionzhkevich et al., Z.Phys.A351(1995)129
- ⁹⁾ K.E.Zyromski et al., Phys.Rev.C55(1997)R562

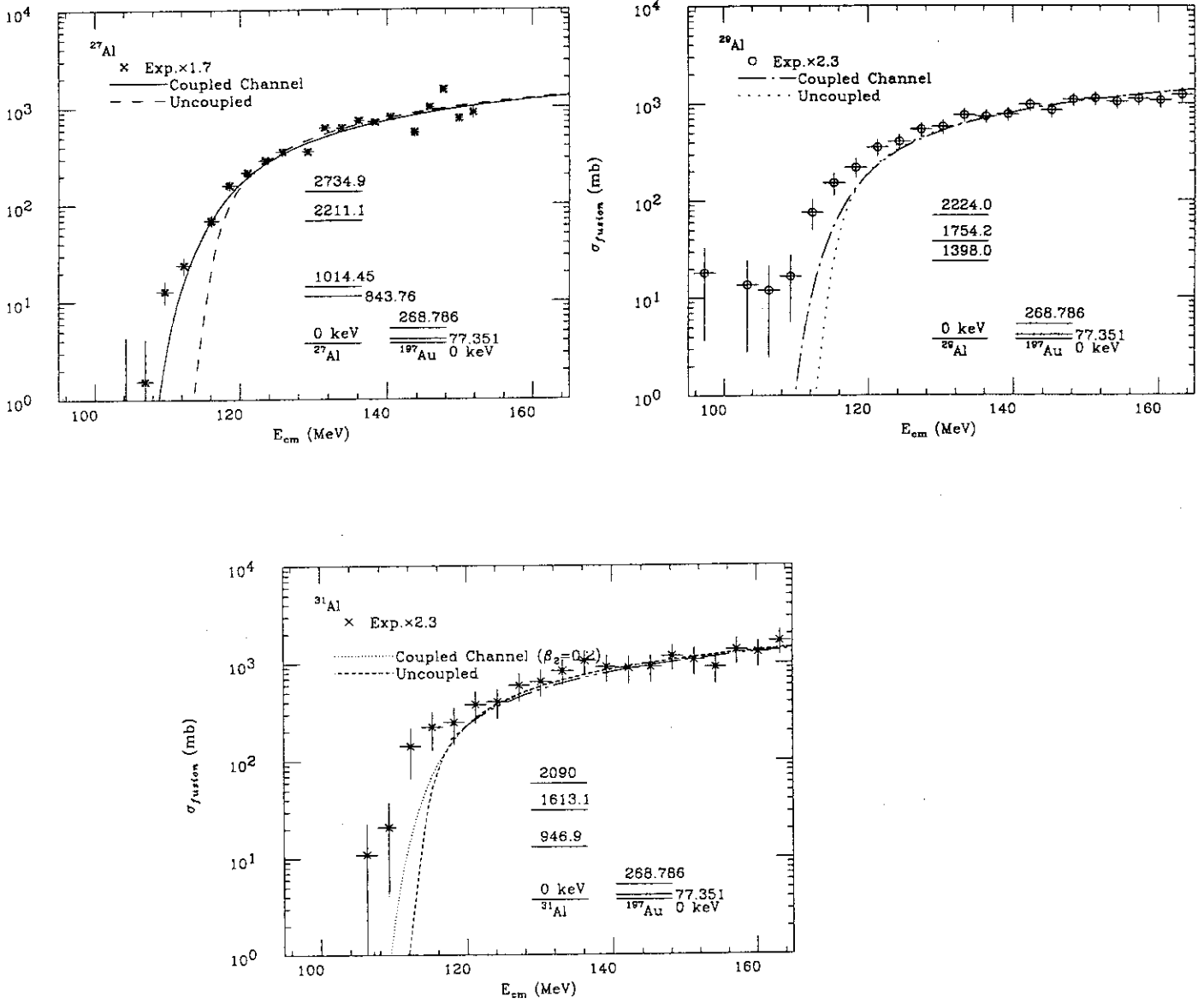


図 2: $^{27,29,31}\text{Al} + ^{197}\text{Au}$ 融合反応の実験データと CCDEF 計算との比較。CCDEF 計算では、図中に示した様な励起レベルを考慮した。

9. 超重核合成の散逸動力学

和田 隆宏 (甲南大理学部物理)

DISSIPATIVE DYNAMICS OF THE SYNTHESIS OF
SUPERHEAVY ELEMENTS

T.Wada, Y.Aritomo, T.Tokuda, K.Okazaki, M.Ohta, and Y.Abe*

Department of Physics, Konan University, Kobe 658, Japan

*YITP, Kyoto University, Kyoto 606-01, Japan

Abstract

Fusion-fission process in heavy systems are analyzed by Smoluchowski equation taking into account the temperature dependent shell correction energy. The evaporation residue cross sections of superheavy elements have been shown to have an optimum value at a certain temperature, due to the balance between the diffusibility for fusion at high temperature and the restoration of the shell correction energy against fission at low temperature. The isotope dependence of the evaporation residue cross section is found to be very strong. Neutron rich compound system with small neutron separation energy is favorable for larger cross section because of the quick restoration of the shell correction energy. The Z -dependence is discussed for the formation of the compound nuclei with $Z = 102$ to $Z = 114$.

Introduction

Recent several years, new heavy elements have been synthesized by the so called *cold fusion* reaction [1] in which the target of Pb or Bi isotopes near doubly magic nucleus are bombarded by Ni or Fe isotopes, and the findings of the heaviest elements from 110 to 112 are reported with the cross section of several picobarns [2]. The cold fusion reaction is aimed to obtain a high survival probability against fission, but it suffers a great loss of fusion probability into compound nuclei. On the other hand, a symmetric target-projectile combination can produce a rather cold heavy compound nucleus due to the interplay of the potential barrier and the Q -value [3]. But it turned out that there is a fusion hindrance, *i.e.*, a necessity of extra- push energy [4]. Therefore, also in those systems, there are the conflicting requirements of high fusion probability and high survival probability. The purpose of the present work, thus, is to find out an optimum condition compromising the two requirements for synthesis of superheavy elements with massive target-projectile combinations [5, 6, 7].

Since there is no pocket around the spherical shape in the potential of the liquid drop model, and thereby no barrier, there is no formula for fusion probability, neither for fission decay probability of superheavy elements (remind that Bohr- Wheeler [8] as well as Kramers [9] formulae are not valid for cases without barrier). Therefore, we have to employ a new

dynamical description at least for the early stage from the di-nucleus complex to the spherical compound nucleus formation [5, 6, 7] and for its decay before the temperature becomes low enough for the barrier to appear. In this paper, we describe the whole process by dissipative dynamics from the contact of two incident nuclei to the formation of the compound nucleus as well as to the reseparation, namely, fission back into the symmetric fragments. From the analysis of pre-fission neutrons and fragment kinetic energies, a strong dissipation comparable to one-body model is recommended [10], which permits us to use Smoluchowski equation for fusion-fission dynamics as an approximation of Kramers or Langevin equation.

With this diffusion model, we can immediately expect that an optimum condition exists for residue cross sections. Qualitatively, in formation process, higher temperature is favorable due to large diffusibility into the compact configuration from the di-nucleus one at contact, while in decaying process, lower temperature is favored for larger residue probability because of the higher fission barrier caused by the restored shell correction energy as well as smaller diffusion coefficient. Therefore, a balance between the above two requirements give rise to an optimum temperature or excitation energy of compound system for the synthesis of superheavy elements.

The position of the optimum energy crucially depends upon how fast the cooling due to the neutron evaporation is. If the cooling is fast, so the restoration of the shell correction energy is, and thus the fission barrier arises rapidly to prevent fission decay of the superheavy compound nucleus. On the contrary, if it is slow, so the growth of the fission barrier due to the restoration of the shell correction energy is, and thus the compound nucleus decays through fission according to the barrier height at the initial temperature. In the former case, the evaporation residue cross section is mainly controlled by the formation process, namely higher temperature is preferable. In the latter case, it is mainly controlled by the decaying process, namely lower temperature is preferable. The neutron evaporation width is determined by the neutron separation energy. Thus, it is very interesting to investigate the isotope dependence of the evaporation residue cross section in the present framework.

Formulation

The evolution of the probability distribution $P(x, l; t)$ in the collective coordinate space is assumed to follow Smoluchowski equation;

$$\frac{\partial}{\partial t} P(x, l; t) = \frac{1}{\mu\beta} \frac{\partial}{\partial x} \left\{ \frac{\partial V(x, l; t)}{\partial x} P(x, l; t) \right\} + \frac{T}{\mu\beta} \frac{\partial^2}{\partial x^2} P(x, l; t). \quad (1)$$

The coordinate x is defined as $x = R_{cm} - \frac{3}{4}r_0A^{1/3}$ so that $x = 0$ corresponds to the spherical shape, where R_{cm} denotes the separation distance between the center-of-mass of the nascent fission fragments in the case of symmetric fission, A the mass number of the nucleus, and $r_0 = 1.16$ fm. The angular momentum of the system is expressed by l . Both the inertia mass parameter μ and the reduced friction β are assumed to be independent of the shape of nucleus in the present calculations. The parameter μ is taken to be the reduced mass for the symmetric separation and β is $5 \times 10^{21} \text{sec}^{-1}$ corresponding to the weakest value of one-body dissipation in a series of shapes.

The time dependent potential energy curve appeared in Eq. (1) is defined as follows;

$$V(x, l; t) = V_{DM}(x; t) + \frac{\hbar^2 l(l+1)}{2I(x)} + V_{shell}(x)\Phi(t),$$

$$V_{DM}(x;t) = (1 - \xi T^2(t))E_S(x) + E_C(x), \quad (2)$$

where $I(x)$ is the moment of inertia of the rigid body at deformation x . V_{DM} and V_{shell} are the potential energy of the finite range droplet model and the shell plus pairing correction energy at $T = 0$, respectively. Both are calculated with the code developed by Möller [11]. E_S denotes the sum of the surface and the curvature energy and E_C is the Coulomb energy of the droplet model. The temperature dependence of E_S is introduced with $\xi = 0.014 \text{ MeV}^{-2}$ [12]. The potential energy curve along the minimum valley is calculated with the ϵ -parametrization [13] and is shown in Fig.1 for the nucleus with $Z = 114$ and $N = 184$. The solid and dashed curves denote $V_{shell} + V_{DM}$ and V_{DM} , respectively. When the nucleus is in high temperature, the shell plus pairing correction energy disappears. It, however, restores as the nucleus cools down and the potential energy curve changes gradually from the dashed curve to the solid one. Thus, one of the most important ingredients is the shell and the pairing correction energies depending on shape and temperature of the composite system.

The temperature dependence of the shell correction energy is extracted from the free energy calculated with single particle energies [14]. We assume that both the shell and the pairing correction energies have the same dependence on temperature; hereafter, the term "shell correction energy" is used to refer to the shell plus pairing correction energy. The temperature dependent factor $\Phi(t)$ in Eq. (2) is parametrized as;

$$\Phi(t) = \exp\left(-\frac{aT^2(t)}{E_d}\right), \quad (3)$$

following the work by Ignatyuk *et al.*[15], where a denotes the level density parameter of Töke and Swiatecki [16]. The shell-damping energy E_d is chosen as 20 MeV according to the above results. The cooling curve $T(t)$ is calculated by the statistical model code SIMDEC [14].

Concerning the initial condition, we assume that the kinetic energy of the relative motion in the entrance channel dissipates completely just inside the contact distance. The initial probability distribution $P(x, l; t = 0)$ has a sharp Gaussian shape and is imposed at $x_0 = x_{cont} - 0.5 \text{ fm}$, where x_{cont} is the contact distance evaluated as $x_{cont} = 2r_0 \left(\frac{A}{2}\right)^{1/3} - \frac{3}{4}r_0 A^{1/3}$. Obviously, the present initial condition is crude, but should be allowed for the first preliminary calculations. An extension to multi-dimensional coordinate space including such as the neck degree of freedom from the contact stage with velocity distributions, *etc.* is straightforward and will be made for quantitative calculations of the superheavy elements.

The evaporation residue cross section is defined as the probability which is left inside the

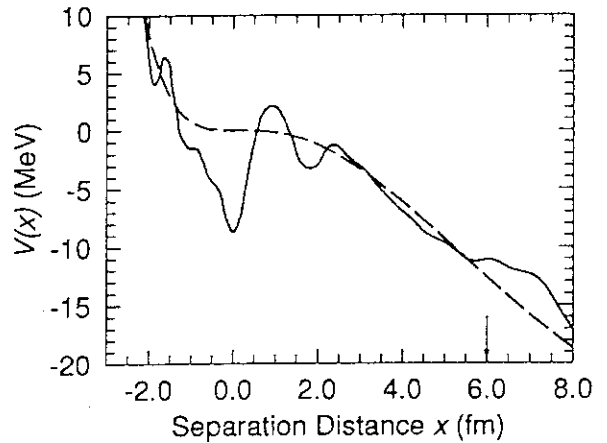


FIG. 1 The finite range liquid drop model potential energy for the element 114 is drawn by the dashed line and the potential energy including the shell and pairing corrections is drawn by the solid line. The initial probability density distribution is settled at x_0 , which is marked by the arrow.

fission barrier in the final stage of the cooling process and is proportional to the quantity $d(T_0, l; t)$ at $t = \infty$;

$$d(T_0, l; t) = \int_{-\infty}^{x_{sad}} P(x, l; t) dx. \quad (4)$$

Here, T_0 is the initial temperature and x_{sad} stands for the first saddle point. The evaporation residue cross section $\sigma_{EV} \equiv \sum_y \sigma(\text{HI}, yn)$ is calculated as;

$$\sigma_{EV} = \frac{\pi \hbar^2}{2\mu_0 E_{cm}} \sum_l (2l+1) d(T_0, l; t = \infty), \quad (5)$$

where μ_0 denotes the reduced mass in the entrance channel and E_{cm} the incident center-of-mass energy.

Excitation function of the evaporation residue cross section

As an example of reactions forming the doubly closed superheavy nucleus, we consider the reaction ${}^{149}_{57}\text{La} + {}^{149}_{57}\text{La} \rightarrow {}^{298}_{114}$. The time dependent feature of the probability $d(T_0, l = 10; t)$ are plotted in Fig. 2 for five different incident energies which correspond to $T_0 = 0.68, 0.79, 0.96, 1.11,$ and 1.24 MeV. Up to the time of around 30×10^{-21} sec, the probability density in the region of the compact configuration is supplied by diffusion from the contact region and its yield increases rapidly. But during that time, the main part of the probability initially at x_0 has descended down the slope of the potential and thus, the supply ceases. After $t \sim 30 \times 10^{-21}$ sec, the probability density accumulated in the compact configuration area diffuses back over the fission barrier arising from the restoration of the shell correction energy. At low temperature such as $T_0 = 0.68$ MeV, 60% of the correction energy is restored and the fission barrier is about 6 MeV. Therefore, the fission width is very small and $d(T_0, l; t)$ becomes flat quickly. On the contrary, in the case of $T_0 = 1.24$ MeV, the restoration takes time for being enough to prevent the system from fissioning, during which the yield accumulated in the compact configuration area diffuses out rapidly as shown in Fig. 2.

The height of the peak around 30×10^{-21} sec is essentially determined by the diffusibility into the compact configuration area, while the decrease from the peak value to the final yield at $t_\infty = 2000 \times 10^{-21}$ sec is determined by how fast the fission barrier grows enough by the restoration of the shell correction energy. Thus, the final yield surviving in the compact configuration area is determined by the two factors; the diffusibility depending on the temperature and the restoration of the shell correction energy.

In terms of the obtained values of $d(T_0, l; t_\infty)$, we can calculate the evaporation residue cross section σ_{EV} with Eq. (5) for several friction parameters; $\beta = 2.5 \times 10^{21} \text{ sec}^{-1}$, $5.0 \times 10^{21} \text{ sec}^{-1}$, and $7.5 \times 10^{21} \text{ sec}^{-1}$ [5]. The excitation function of σ_{EV} for the ${}^{149}\text{La} + {}^{149}\text{La} \rightarrow {}^{298}_{114}$ reaction is shown in Fig. 3. The corresponding excitation energy to the Bass potential [17] is indicated by the arrow and it should be emphasized that the optimum cross section can be realized fairly above the Bass barrier in this reaction system and thereby can be observed experimentally.

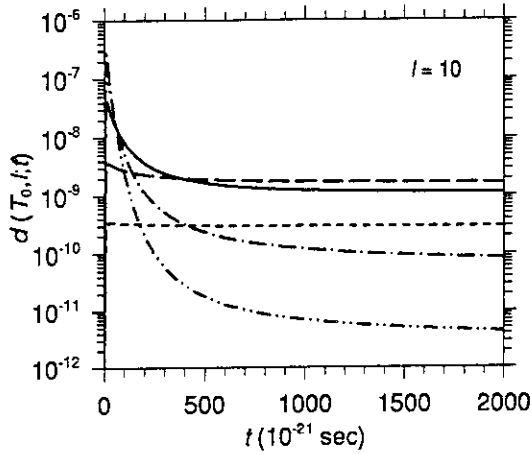


FIG. 2 The time evolution of the probability density in the compact configuration region $d(T_0, l = 10; t)$. The curves for five initial temperatures are plotted; $T_0 = 0.68$ (short-dashed), 0.79 (long-dashed), 0.96 (solid), 1.11 (dot-dashed), and 1.24 MeV (dot-dot-dashed).

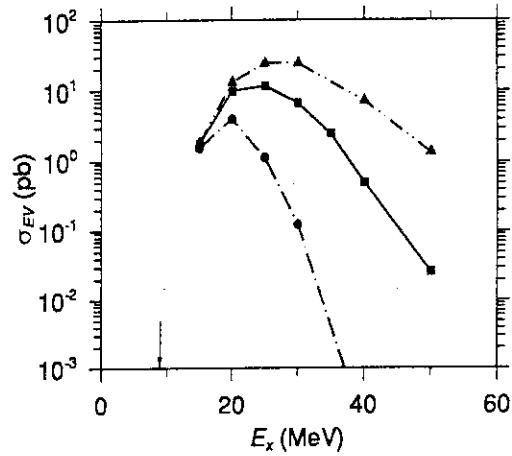


FIG. 3 The excitation function of the evaporation residue cross section for $^{149}_{57}\text{La} + ^{149}_{57}\text{La} \rightarrow ^{298}_{114}$ reaction calculated from $d(T_0, l; t_\infty)$. Results for three values of reduced friction parameter β are plotted: $\beta = 2.5 \times 10^{21} \text{ sec}^{-1}$ (circles), $5.0 \times 10^{21} \text{ sec}^{-1}$ (squares), and $7.5 \times 10^{21} \text{ sec}^{-1}$ (triangles). The corresponding Bass potential barrier is indicated by the arrow.

Isotope and Z dependence

It is commonly accepted that the use of neutron rich beam will enhance the evaporation residue cross section of superheavy elements because of the large Γ_n/Γ_f ratio. The smaller neutron separation energy accelerates the cooling by the neutron emission and enhances the survival probability against fission due to the restration of the shell correction energy.

We calculated the evaporation residue cross section for a series of $Z = 114$ isotopes from $N = 176$ to 184 . We used different cooling curves for each isotope while we neglect the isotope dependence of the energy surface. Figure 4 shows the calculated evaporation residue cross section for $^{145,146,147,148,149}_{57}\text{La} + ^{145,146,147,148,149}_{57}\text{La} \rightarrow ^{290,292,294,296,298}_{114}$ reactions as functions of initial excitation energy. The isotope dependence of evaporation residue cross section is found to be very strong.

The theoretical neutron separation energies averaged over 4 neutron emissions (\bar{E}_n) for the corresponding composite systems, $^{290,292,294,296,298}_{114}$, are 7.0, 6.5, 6.0, 5.5, and 5.0 MeV, respectively. Small neutron separation energy is essential for the appearance of the bell shape structure of the excitation function.

A systematic calculation of the evaporation residue cross sections to form the compound nucleus with the atomic number from $Z = 102$ to $Z = 114$ through symmetric entrance

channel for $\beta = 5.0 \times 10^{21} \text{ sec}^{-1}$ are shown in Fig.5, where the neutron number of the compound nucleus is selected so that the average neutron separation energy becomes about 5 MeV. This means that the cooling curves in these systems are similar each other. We can see that the evaporation residue cross sections decrease as the atomic number of the compound nucleus increases. It is prominent, however, that the enhancement around $E_x \sim 25 \text{ MeV}$ in $Z = 114$ becomes to be distinguished, where the yield of the cross section is reduced up to the pico barns order. This visible enhancement is coming from the strong shell correction energy around the nucleus with $Z = 114$.

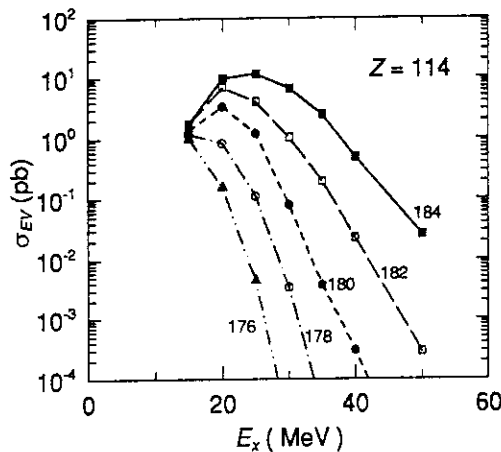


FIG. 4 The isotope dependence of the excitation function of the evaporation residue cross section for $Z = 114$. Figures denote neutron numbers.

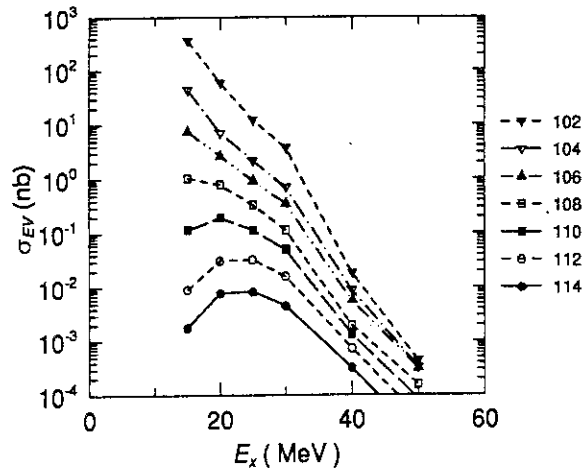


FIG. 5 The excitation function of the evaporation residue cross section that forms the compound nucleus from $Z = 102$ to $Z = 114$ through symmetric entrance channel.

Summary

A diffusion model which takes into account dynamical evolution of a distribution including statistical fluctuations in the deformation parameter space is shown to be a necessary and appropriate way to describe fusion-fission process for systems without, as well as with, pocket. With the model, it is shown for the synthesis of superheavy elements that there exists the optimum temperature or the excitation energy of compound system due to the balance between the diffusibility for fusion and the restoration of the shell correction energy against fission. Roughly speaking, the optimum temperature is around the restoration temperature of the shell correction energy. The absolute value of the cross section, of course, depends on the friction coefficient $\gamma = \mu\beta$ as well as the initial condition, etc. It is confirmed quantitatively that the separation energy of neutron affects the characteristic time of the cooling, therefore the formation of neutron rich composite system is called for decisively in the synthesis of superheavy elements.

References

- [1] P. Armbruster, Ann. Rev. Nucl. Sci., **35** (1985) 135;
G. Münzenberg, Rep. Prog. Phys., **51** (1988) 57.
- [2] S. Hofmann *et al.*, Z. Phys., **A350** (1995) 277; S. Hofmann *et al.*, *ibid.* 281;
S. Hofmann *et al.*, Z. Phys., **A354** (1996) 299.
- [3] Y.T. Oganessian, Lecture Notes in Physics, **33** (Springer-Verlag, Berlin, 1974) p.221.
- [4] W.J. Swiatecki, Phys. Scripta **24** (1981) 113;
W.J. Swiatecki, Nucl. Phys., **A376** (1982) 275.
- [5] Y. Aritomo, T. Wada, M. Ohta and Y. Abe, Phys. Rev., **C55**. (1997) R1011.
- [6] Y. Aritomo, T. Wada, M. Ohta and Y. Abe, Nucl. Phys., **A616** (1997) 446c.
- [7] Y. Abe, Y. Aritomo, T. Wada and M. Ohta, J. Phys., in print.
- [8] N. Bohr and J.A. Wheeler, Phys. Rev., **56** (1939) 426.
- [9] H.A. Kramers, Physica (Utrecht), **7** (1940) 284.
- [10] T. Wada, Y. Abe and N. Carjan, Phys. Rev. Lett., **70** (1993) 3538.
- [11] P. Möller *et al.*, Atomic Data and Nuclear Data Tables, **59** (1995) 185.
- [12] X. Campi and S. Stringari, Z. Phys., **A309** (1983) 239.
- [13] R.W. Hasse and W.D. Myers, *Geometrical Relationships of Macroscopic Nuclear Physics* (Springer-Verlag, Berlin, 1988).
- [14] M. Ohta, Y. Aritomo, T. Tokuda and Y. Abe, Proc. of Tours Symp. on Nuclear Physics II (World Scientific, Singapore, 1995) p.480.
- [15] A.V. Ignatyuk, G.N. Smirenkin and A.S. Tishin, Sov. J. Nucl. Phys., **21** (1975) 255.
- [16] J. Töke and W.J. Swiatecki, Nucl. Phys., **A372** (1981) 141.
- [17] R. Bass, Nucl. Phys., **A231** (1974) 45.

10. アクチニド核分裂への実験的アプローチ

馬場 宏 (阪大理学部化学)

1. はじめに

核分裂機構の解明は 1939 年の Bohr と Wheeler の論文¹⁾の段階で既に終わっていると思っている理論家が多いが、実験屋の立場からは様々な謎が依然として未解決のままであり、到底解明され尽くしているとは云えない状態である。その最たるものが非対称核分裂の質量分布である。この分布は一応重翼側の二重閉殻構造の存在によって説明できるとされているが、観測された質量分布を定量的に再現出来てはいない。又エネルギーが高くなると殻効果は消失すると考えられるが、反面観測データは、この非対称成分が殻効果がなくなるほど高いエネルギーでも依然として残っていることを示している。

質量分布のエネルギー依存性は対称と非対称の 2 モード核分裂を仮定することでよく説明²⁾できる。さらに、核分裂片の角度分布と運動エネルギーの測定から、対称分裂の成分と非対称分裂の成分が異なるサドル点と切断点を持つことが示され³⁾、このことから 2 モード核分裂機構の存在は確実であると結論される。

2. 核分裂機構の遷移とその原因

アクチニド元素の熱中性子誘起核分裂や自発核分裂が複雑な様相を示すのに対して、適度に励起された系の核分裂はむしろ整然とした系統性を示す。その一つの例が質量分布曲線であって、18MeV 以上の励起エネルギーでの ²³⁸U の陽子誘起核分裂の二山の質量分布曲線の外側部分はガウス分布に合致し、その分散 $\alpha = 2\sigma_M^2$ は次の式で表わされるエネルギー依存性を示す。⁴⁾

$$\sqrt{\alpha - 106} = 0.235(E_x - 14.0) \quad (1)$$

このことは上記の系統性を示す核分裂機構は励起エネルギー 14.0MeV 以下では存在しなくなることを示している。次に核電荷分散の幅パラメータは Fig.1 に示すように、やはり 14MeV を境に 2 つの異なるグループに別れる。高エネルギー側では電荷分散の幅はエネルギーに無関係に一定であり、一方低エネルギー側では本質的に熱中性子誘起核分裂や自発核分裂と同じ電荷分散を示すと思われる。

この 14MeV 付近での核分裂機構の遷移の原因としては以下に述べる 4 つの可能性が考えられる。即ち

- 1) 多重チャンス核分裂の寄与
- 2) 殻効果の消失
- 3) 巨大双極子共鳴(GDR)による集団励起に続く核分裂のはじまり
- 4) 核の相転移

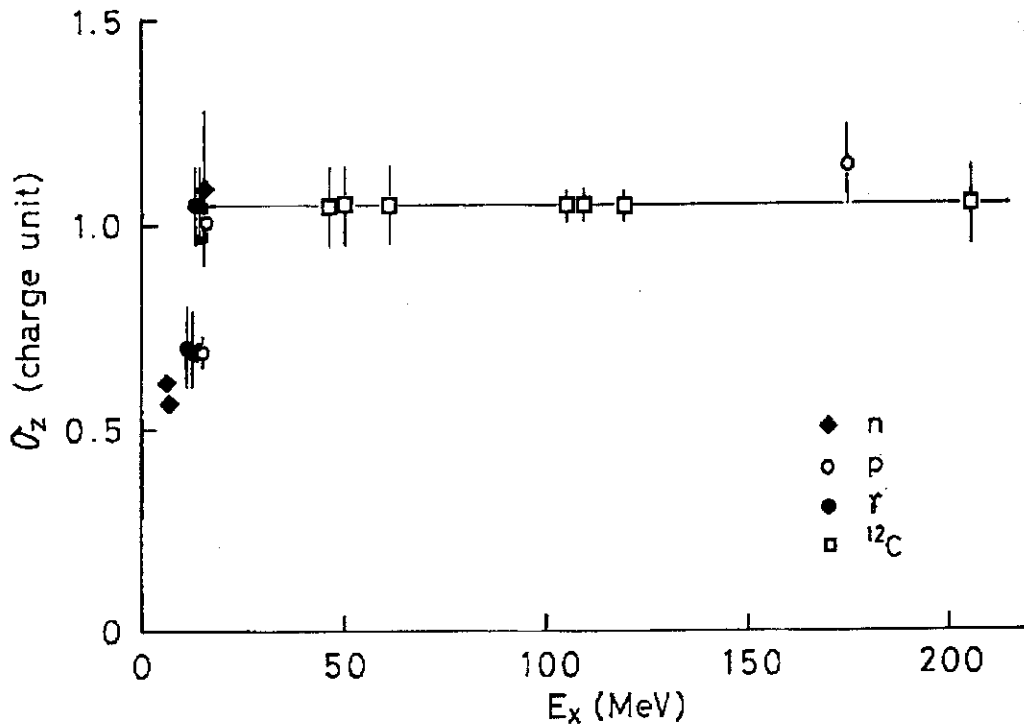


Fig.1 Charge dispersion width of the fission of ^{238}U with various incident beams.

である。先ず1については、多重チャンスの効果がエネルギーと共に連続的に変化するので、Fig.1とは完全に相容れない。次に2については、Fig.2の結果から同様に否定される。Fig.2は、 ^{136}Cs の独立収率から求めた質量鎖136の全鎖列収率を ^{99}Mo の集積収率から求めた質量鎖99の全鎖列収率で割った値である。若し殻効果がなければこの値は1になるはずであるが、殻効果が残っている場合には、 $N=82$ の中性子殻の影響で ^{137}Cs からの即発中性子放出が抑制されると考えられる。Fig.2の結果からは、殻効果の影響が消えるのは18MeV付近ということになり、したがって14MeVでの遷移とは無関係ということになる。

ウランのGDRエネルギー領域は、問題の14MeV付近をカバーしている。核分裂機構の遷移と集団励起との関係を調べる目的で、 ^{238}U の光核分裂の様相を調べた。その結果、GDR領域の中で核分裂機構が変化していることが見出された⁵⁾。したがって3番目の可能性も否定される。

^{238}U の相転移に対して計算された臨界温度は問題の14MeVにほぼ等しい⁶⁾。ところで核の超伝導相が観測される可能性が論じられているのは、核分裂の諸観測量の中で分裂片角度分布パラメーター K_0^2 だけである⁷⁾。低エネルギー光核分裂における角度異方性はKatz⁸⁾らによって系統的に調べられている。それによれば $^{238}\text{U}(\gamma, f)$ 反応における角度異方性はエネルギーと共に急速に減少し、14MeVより下で既に等方的になってしまう。反応系に持ち込まれる角運動量は高々1乃至2 \hbar であることを考慮して異方性から求めた K_0^2 をFig.3に示す。得られた K_0^2 は正常相に対して予想される値⁹⁾よりはるかに小さく、超伝導相の存在を裏付けるものとなっている。このことから、今話題にしている核分裂機構の遷移は相転移と結びついている可能性がある。

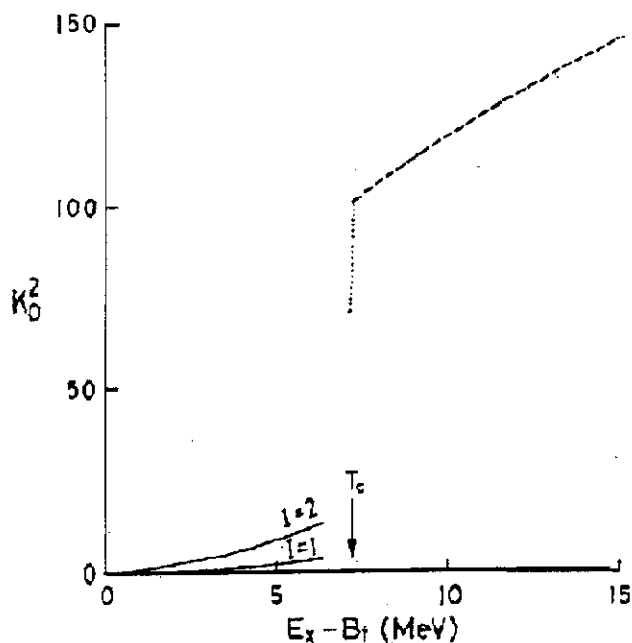
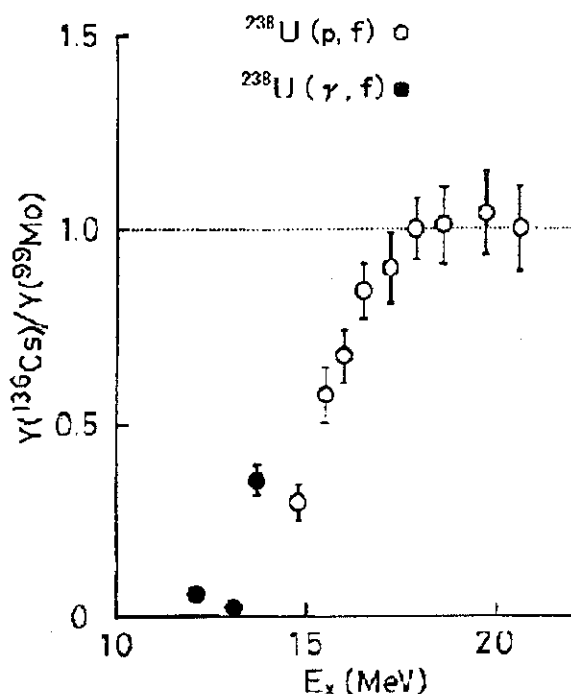


Fig.2 Shell effect revealed in the independent yield of ^{136}Cs .

Fig.3 Energy dependence of K_0^2 in the vicinity of the critical temperature for nuclear phase transition.

3. 低エネルギー核分裂機構とマルチモード仮説

複雑な様相を示す低エネルギー核分裂を説明するものとしてマルチモード核分裂機構が広く採用されているが、まだ若干の問題点がないわけではない。そこで我々も二重エネルギー測定法及び二重速度二重エネルギー測定法により、質量分解能2乃至3 u、時間分解能400ps以下で、 $^{238,235}\text{U}$, ^{239}Pu の熱中性子核分裂及び ^{252}Cf 自発核分裂を測定した (Fig.4)。得られた質量分布の山と谷の比から見て、これまで報告されている直接測定データの遜色のない精度であると判断される。得られた質量と運動エネルギーの相関分布データを解析するにはいくつかの方法が考えられる。

もっとも単純な解析法は、一次元の質量分布及び運動エネルギーを複数のガウス曲線にフィットする方法で、これは折角の情報を殺してしまうので極端に統計の悪いデータ以外では得策でない。それに代わる解析方法は、分裂片の質量毎に分取した運動エネルギー分布を多重ガンマ関数を用いて複数の成分に分割する方法である。しかしながらウラン以上の元素では、このようにして求めた質量毎の運動エネルギー分布に現れる微細構造は非常に僅かで、完全にフリーの最小自乗フィッティングを行うことは不可能で、何らかの束縛条件の下でフィッティングを行うことが必要になる。我々は、マルチモード仮説が与える、いわゆるスタンダードIIなる主成分の占める質量領域で軽核の平均運動エ

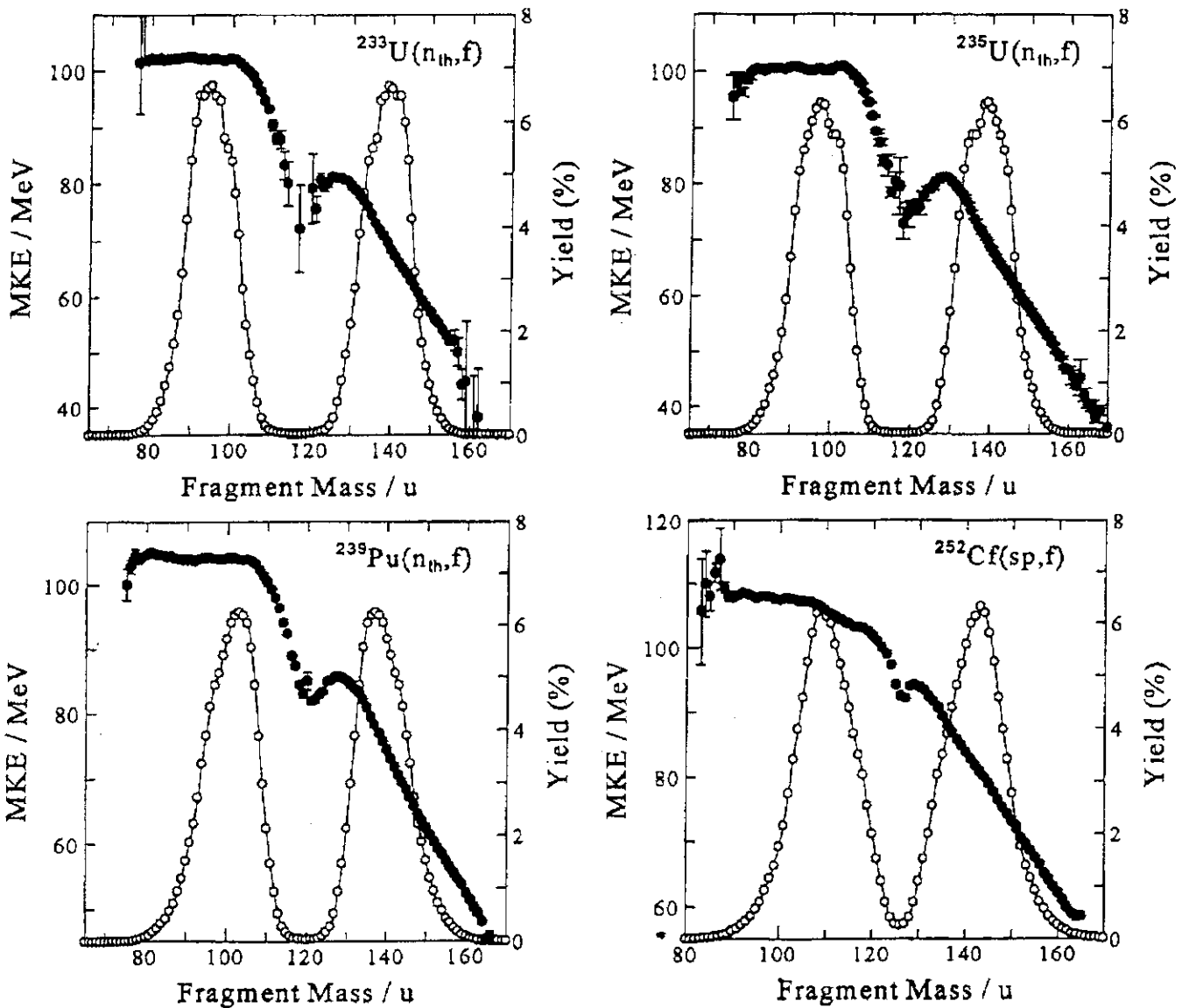


Fig.4 Fragment mass and kinetic energy distributions measured for various low-energy fission.

エネルギーが一定になっていることに着目して、この関係を束縛条件として運動エネルギー分布の分割を行った。その結果は、 $^{233,235}\text{U}$, ^{239}Pu いずれの場合もマルチモード仮説とは明らかに矛盾する結果になった。⁹⁾

これに対して Siegler 等¹⁰⁾は、 ^{257}Np 熱中性子核分裂に対して得られた質量を運動エネルギーの二次元相関分布をそのまま3つの非対称成分と1つの対称成分とに分割フィットすることにより、実験データを極めてよく再現するばかりでなく、理論計算とも良く一致する結果を得た。彼らの結果はマルチモード仮説を極めて強力に支持するものであった。このことをさらに検証するために我々も同じ手法を用いて、我々の測定した ^{252}Cf 自発核分裂と $^{233,235}\text{U}$ 熱中性子核分裂について解析を試みた。その結果 ^{252}Cf については Siegler らと全く同様の満足する結果が得られたが、 $^{233,235}\text{U}$ については、単に良い一致が得られなかったというだけに止まらず、基本関数自体がガウス関数とは異ならねばな

らないことを示した。その上、Fig.4に見られる軽分裂片の運動エネルギーの一定性や重分裂片の直線的な質量依存性を再現することは全く不可能であるという結果になった。このことから、たとえ ^{237}Np や ^{252}Cf に対してマルチモード機構に基づく解析結果が如何に良い一致を与えようとも、それは真実の姿ではあり得ないと結論される。

二重速度二重エネルギー測定法によれば我々はイベント毎に運動エネルギーと即発中性子放出前後の質量を決めることが出来る。さらに中性子放出前後の質量の差から各イベントについて放出中性子数 ν を求めることができる。この結果から各イベントに対して内部エネルギー E_x を次の式によって求める。

$$E_x(A) = E_d(A, Z_p) + \nu \langle \varepsilon_n \rangle + E_\gamma \quad (2)$$

ここで $E_d(A, Z_p)$ はフラグメントの基底状態での変形エネルギー、 $\langle \varepsilon_n \rangle$ は平均の中性子運動エネルギー、又 E_γ は γ 線放出に費やされるエネルギーで中性子結合エネルギーの半分と近似する。変形エネルギーは最適核電荷 Z_p に対応する核に対する値を用いる¹¹⁾。(2)式で求めた内部エネルギーがすべて分裂時の変形エネルギーとして貯えられているとして、その P_2 変形の変形度を一次質量に対してプロットしたものが Fig.5 である。Fig.5 の結果は、重フラグメントが、非常に変形度の大きい成分と殆ど球形の成分に明確に分離しているのに対して、軽フラグメントは変形度の大きい1成分のみから成っていることを示している。この様相は、(2)式中で用いたいくつかの近似を変えても変わる

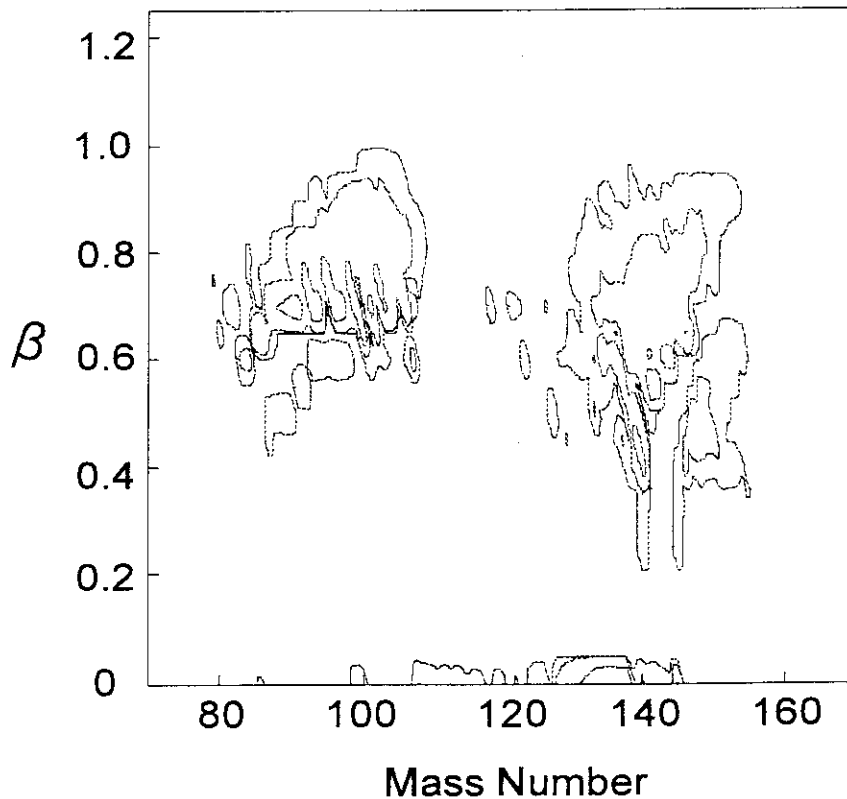


Fig.5 Two dimensional distribution for mass and deformation parameter for the $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ reaction

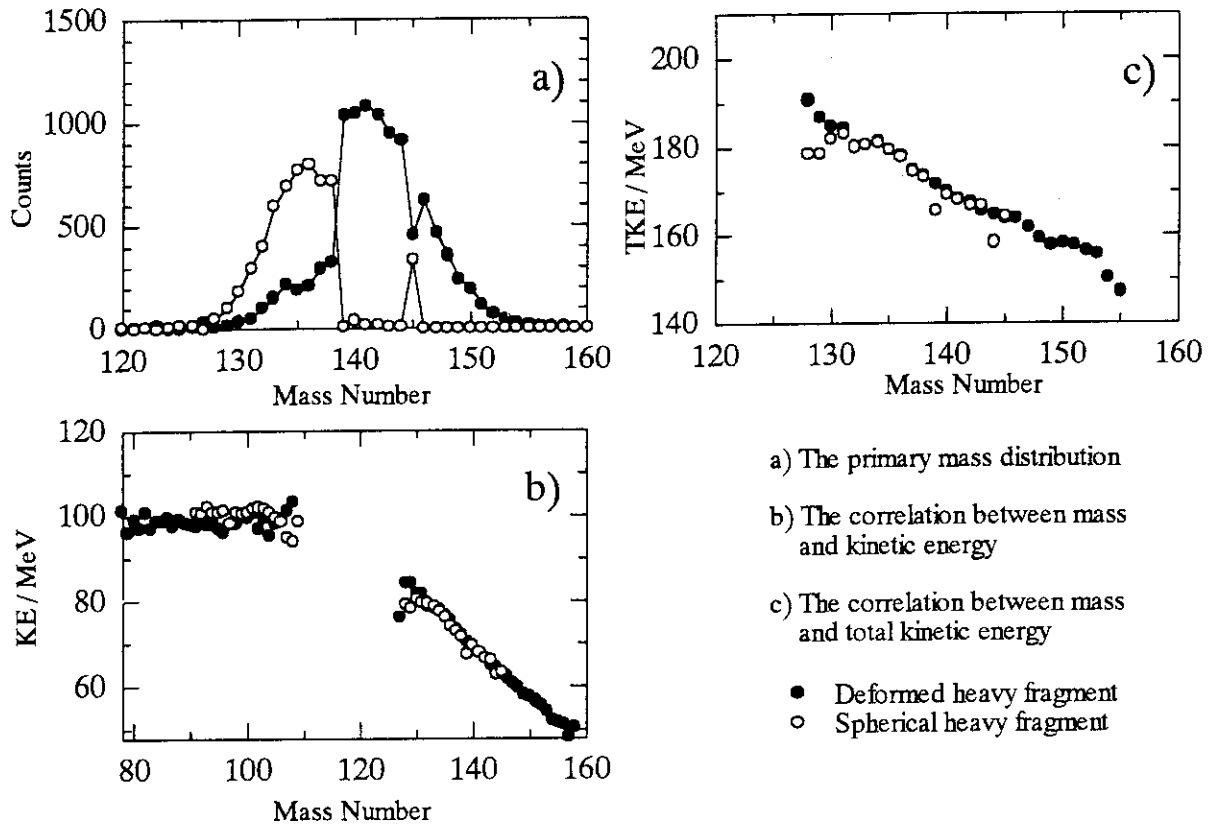


Fig.6 Mass and kinetic energy distributions sorted into two groups according to the magnitude of deformation of the heavy fragment.

ことはない。Fig.6 には、この2つのグループに区分けした時の質量分布、運動エネルギー分布が与えてある。図から見ると、全運動エネルギー TKE が約 10MeV 高いよりコンパクトな成分が質量数 135u 付近に局在しており、これはマルチモード仮説を裏付ける結果であるように見える。しかしながらフラグメント毎の運動エネルギーは軽核分裂側で質量に対して一定且両者の値は約 2% 異なっているのに対し重フラグメント側では両者が完全に一致している。このことは高い TKE 成分はよりコンパクトなのではなく、単に最適質量分割が違っているだけで切断時の configuration は両者で殆ど同じであることを示している。さらに切断時の運動量保存則から同一の軽フラグメント質量に対して重フラグメントの質量は両者で異ならなければならないが、したがって変形重フラグメント成分は少なくとも一個の pre-fission neutron を放出していなければならないと結論される。即ち、主成分は自発核分裂と同じ sub-threshold fission であると結論される。

References

1. N.Bohr and J.A.Wheeler, Phys.Rev. 56 (1939) 426.
2. H.Baba and S.Baba, Nucl.Phys. A175 (1971) 199.
3. N.Takahashi et al., Z.Phys. A 353 (1995) 35.
4. S.Baba et al., Nucl.Phys. A175 (1971) 177.
5. N.Takahashi et al., 核理研研究報告 第 29 卷第 1 号 (1996) 39.
6. M.Sano and S.Yamasaki, Prog.Theor.Phys. (Kyoto) 29 (1963) 397; M.Sano and M.Wakai, *ibid.*, 47 (1972) 880.
7. I.Halpern and V.M.Strutinski, Proc. Second Int. Conf. on peaceful uses of atomic energy, vol.15, p408, Geneva (1958).
8. L.Katz et al., Proc. Second Int. Conf. on peaceful uses of atomic energy, vol.15, p188, Geneva (1958).
9. H.Baba et al., to be published in J.Nucl.Sci.Technol.
10. P.Siegler et al., Nucl.Phys. A594 (1995) 45.
11. P.Moller and J.R.Nix, At.Data Nucl.Data Tables 26 (1981) 165.

11. 遅発核分裂

初川 雄一 (原研燃料研究部)

Abstract

Delayed fission

Delayed fission is a nuclear decay process that couples β decay and fission. In the delayed fission process, a parent nucleus undergoes β decay and thereby populates excited states in the daughter. If these states are of energies comparable to or greater than the fission barrier of the daughter, then fission may compete with other decay modes of the excited states in the daughter. In this paper, mechanism and some experiments of the delayed fission will be discussed.

遅発核分裂は β 壊変に引き続いて核分裂が起きる壊変様式である。親核から β 壊変を経由して娘核の励起状態にフィードするが、このときの励起状態が核分裂障壁と同程度に高ければ、核分裂を生じることが出来る。(図1) これを遅発核分裂(Delayed Fission)と呼ぶ。遅発核分裂は自然界において重元素及び超重元素の生成に重要な役割を果たしているものと考えられている。すべて天然に存在するアクチニドは原子核生

成のうちr-プロセスを経由して生成しているが、これは急激な多重中性子捕獲反応により生成する中性子過剰核が β^- 壊変を連続的に起こす事により、より大きなZを有する原子核を生成する過程である。この過程によりビスマスと、トリウム、ウラン領域の間にある不安定な領域をバイパスすることにより重元素合成が可能になっている。

この時、遅発核分裂は β 壊変の途中で核分裂を起こす

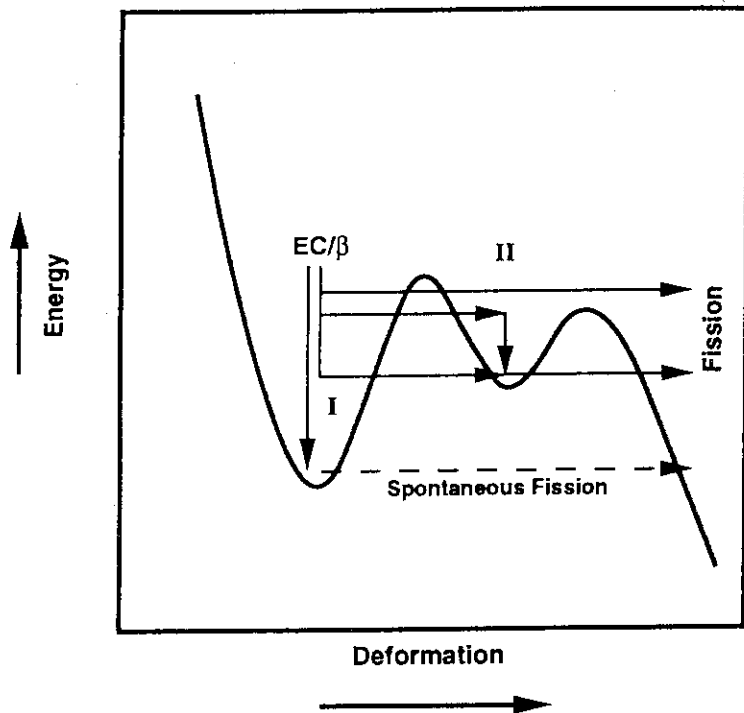


Figure 1 Two-dimensional representation of the delayed fission process. The potential energy of the daughter nucleus as a function of deformation is shown, displaying the double-humped fission barrier prevalent in the actinides. Region I is the inner, or ground-state, well (first minimum); region II is the outer, or shape isomer, well (second minimum).

図1

ことにより、中性子捕獲の理論計算により予想される核種の分布と異なることになる。

このような天体物理学上の問題に答えるためにも遅発核分裂に対するより深い理解が求め

られている。しかし実験的には現在までに発見されている同位体からの遅発核分裂の分岐比はわずかでありその詳細な研究は非常に困難である。

遅発核分裂が起きる条件として、 $Q_\beta > B_f$ が必要であるが、 Q_β は β 安定より離れるほど大きくなり、一方 B_f は Z の大きな核で低くなり、特にアクチニド領域の核種は小さな B_f を持っている。さらに奇奇核は β 壊変により安定な偶偶核に変換するために一般に大きな Q_β 値を有している。事実、確認されている遅発核分裂を引き起こす核種のほとんどはアクチニド領域の奇奇核である。

実験的には遅発核分裂は1966-67年にKuznetsovら^{1,2)}が報告を行ったが、それらはFission Isomerであった。1972年に実際の遅発核分裂が発見され³⁾その後、新しい核種でも遅発核分裂が見出されてきた。(表1)しかしながら得られた情報は部分半減期を含めた半減期の情報に限られていた。最近になってバークレーのグループが遅発核分

Table 1 Reports on delayed fission

Nuclide ^a	$t_{1/2}$	PDF	Measurements	Reference
²⁵⁰ Md	52 sec	2×10^{-4}	$t_{1/2}$ ^b	14
^{256m} Es	7.6 hr	2×10^{-5}	$t_{1/2}$, PDF, levels	18
²⁴⁸ Es	28 min	3×10^{-7}	$t_{1/2}$	14
²⁴⁶ Es	8 min	3×10^{-5}	$t_{1/2}$	14
²⁴⁴ Es	37 sec	10^{-4}	$t_{1/2}$	14
²⁴² Es?	5 - 25 sec	$(1.4 \pm 0.8) \times 10^{-2}$	$t_{1/2}$, PDF	26
²⁴⁰ Bk	4 min	10^{-3}	$t_{1/2}$	14
²³⁸ Bk	144 ± 6 sec	NR	$t_{1/2}$, XF ^d	23
²³⁴ Am	2.6 ± 0.2 min	6.95×10^{-5}	$t_{1/2}$	10 & 32
	2.6 ± 0.2 min	NR ^c	$t_{1/2}$	31
	2.32 ± 0.08 min	$(6.6 \pm 1.8) \times 10^{-5}$	$t_{1/2}$, PDF, KE, MY, TKE, XF, RC	24
²³² Am	1.4 ± 0.25 min	6.96×10^{-2}	$t_{1/2}$	10 & 32
	0.92 ± 0.12 min	$1.3_{-0.4}^{+0.8} \times 10^{-2}$	$t_{1/2}$	16
	1.31 ± 0.04 min	$(6.9 \pm 1.0) \times 10^{-4}$	$t_{1/2}$, PDF, KE, MY, TKE, XF, RC	25
²²⁸ Np	60 ± 5 sec	NR	$t_{1/2}$	10
	64.2 ± 1.8 sec	$\approx 10^{-4}$	$t_{1/2}$, PDF, KE, MY, TKE, RC	28
¹⁸⁰ Tl	$0.70_{-0.09}^{+0.12}$ sec	$\approx 10^{-6}$	$t_{1/2}$	15

^aThe nuclide undergoing β or EC decay is given.

^bPDF for nuclei not marked with "PDF" in the measurements column were obtained from systematics or evaporation codes.

^cNot reported

^dKE: fission fragment (ff) kinetic energy distribution; MY: ff mass yield distribution; TKE: ff total kinetic energy distribution; XF: x-ray -- fission coincidence; RC: radiochemical confirmation of Z.

表1

裂の詳細な研究^{4,5)}を開始した。先ず詳細な遅発核分裂のデータを得るためにいくつかの技術上の改善を行った。その一つはガスジェットシステムのターゲットチャンバーをマルチターゲット用に改良して収率の改善を計った事である。一般に生成反応断面積が大きな軽イオン反応では生成する核種の反跳エネルギーが小さいためガス

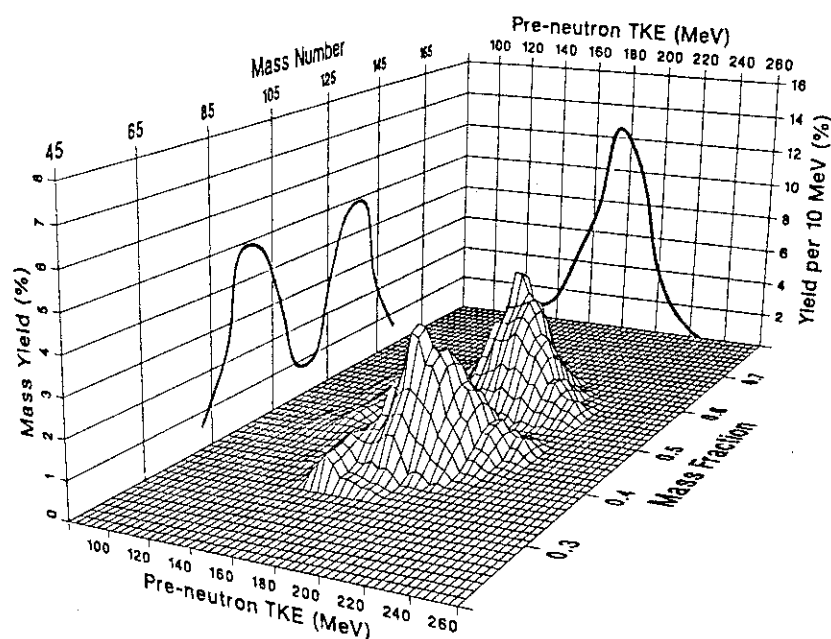


Figure 8 Low-energy fission properties (pre-neutron emission total kinetic energy, and mass-yield distributions) of ^{234}Pu as determined from the ECDF of ^{234}Am . Reprinted with permission.

図 2

ジェットシステムでは有効なターゲット厚が小さくなってしまふ。マルチターゲットにすることにより10倍程度の収率の向上が得られた。またアクチニドターゲットを用いる核反応の実験では、同時に多量の核分裂生成核種が副生成物として発生する。これらを迅速に取り除くためにコンピューター制御の自動イオン交換装置を開発して、数分以内に目的核種を核分裂生成核種から分離精製を可能にした。これにより遅発核分裂核種からのX線、 γ 線の観測が可能になった。その他にガスジェットで搬送した核種をポリピロピレンの薄膜上に捕集することにより2つの核分裂片のエネルギーを同時にSi半導体検出器で同時に測定できるようにして核分裂の全運動エネルギーを得られるようにした。実験はすでに遅発核分裂が報告されている $^{232,234}\text{Am}$ を $\text{Np} + \alpha$ 反応で生成し、これをガスジェットシステムを用いて即座に搬送した後に迅速化学分離を行った。この試料を用いてAmのEC壊変に伴うPuのX線と核分裂片の同時測定に成功することにより、遅発核分裂の直接的な証明を初めて行った。さらに遅発核分裂片の同時計測を行うことにより、核分裂片の質量分布、運動エネルギー分布を得た。(図2)これらは他の手段では観測できなかった $^{232,234}\text{Pu}$ ($^{232,234}\text{Am}$ のEC-娘核)の核分裂特性の研究を可能にした。

将来の展望として、新たな遅発核分裂核種の発見が挙げられる。現在までアクチニ

ド領域の奇奇核の中性子欠損核が良く研究されてきたが、さらにこれらを延長することにより遅発核分裂の観測領域を拡大することが出来る。また多核子移行反応等を用いることにより、中性子過剰核へ研究領域を拡大することが出来る。これにより中性子欠損核領域で見られるEC遅発核分裂ではなく天体物理学において関心の持たれている β^- 遅発核分裂を観測できることになる。また近年発展の著しいクリスタルボールと組み合わせることにより核分裂への移行過程における原子核の形状などの情報が得られることが期待できる。

なお文中の図表はすべて参考文献6)より取りました。

文献：

- 1)V.I. Kuznetsov, N. K. Skobelev, G. N. Flerov, Yad. Fiz. 4: 279-281(1966)(Sov. J. Nucl. Phys. 4:202-3(1967))
 - 2)V.I. Kuznetsov, N. K. Skobelev, G. N. Flerov, Yad. Fiz. 5: 271-73(1967)(Sov. J. Nucl. Phys. 5:191-92(1967))
 - 3)N.K. Skobelev, Yad. Fiz. 15:444-47 (1972) (Sov. J. Nucl. Phys. 15:249-50 (1972))
 - 4)H.L. Hall, et al., Phys. Rev. Lett. 63:2548-50(1989)
 - 5)H.L. Hall, et al., Phys. Rev. C41:618-30(1990)
- 他に参考文献を挙げておく
- 6)"Delayed Fission"
- H.L. Hall and D.C. Hoffman, Annu. Rev. Nucl. Part. Sci. 42:147-175(1992)

12. 軽アクチノイド核の核分裂描像

大槻 勤 (東北大原子核理学研究施設)

Binary scission configurations in fission of light actinides

T. Ohtsuki¹, Y. Nagame², I. Nishinaka², K. Tsukada², H. Ikezoe², M. Tanikawa³, Y. L. Zhao⁴, K. Sueki⁴, and H. Nakahara⁴¹Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, Taihaku-ku, Sendai 982, Japan²Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Ibaraki 319-11, Japan³Department of Chemistry, University of Tokyo, Bunkyo-ku, Tokyo 113, Japan⁴Department of Chemistry, Tokyo Metropolitan University, Hachioji, Tokyo 192-03, Japan

Mass and kinetic energy distributions of fission fragments have been accurately measured by a double velocity time-of-flight technique in the 13 MeV proton-induced fissions of ²³²Th and ²³⁸U. A binary structure is observed in total kinetic energy distributions in the fragments with mass number around A=130 for both the fissions, indicating that there are at least two kinds of scission configurations. A correlation between the scission configurations and mass yield distributions reveals that elongated scission configurations are associated with the symmetric mass distribution and compact scission configurations with the asymmetric mass distribution.

I. INTRODUCTION

Since the discovery of nuclear fission, mass, charge and energy characteristics of fission fragments have been studied in detail for a large variety of fissioning systems at various excitation energies. Especially, total kinetic energy (TKE) and mass distributions in the spontaneous fission of heavy nuclides such as ²⁵⁸Fm, ²⁵⁹Md, ²⁶⁰Md, ²⁶⁸No and ²⁶⁰[104] revealed the existence of two types of scission configurations for the same mass division [1,2], which is called "bimodal fission"; a compact shape corresponding to the observed high-TKE of about 235 MeV and an elongated shape to low-TKE of about 200 MeV. In our previous study, two types of velocity and TKE distributions were also observed in the 13 MeV proton-induced fission of ²³²Th [3] for certain mass division with fragment mass number A=127-132. A similar report on the existence of multicomponents in the TKE distribution has been presented for the fission of pre-actinides [4].

Understanding of the phenomena has been attempted by theoretical calculations of the potential energy surface of extremely deformed nuclei, which shows two deformation paths in the descent from saddle to scission in the fission of heavy actinides [5,6]. Existence of two fission valleys in the potential energy surface has also been predicted even for light actinides and for pre-actinides by some theorists [7-9] although proper dynamical considerations still remain to be given. Presence of two different fission barriers leading to a different mass division mode, "two modes" of fission, was first suggested by Turkevich and Niday [10], and later supported by many investigators to explain the observation of different incident energy dependence of symmetrically and asymmetrically divided products [11-15], and fragment angular distributions [16].

A correlation between the mass distribution and TKE of fragments was studied in the spontaneous fission of the heavy actinides and it was pointed out that the fission events with higher TKE give rise to the sharply symmetric mass distribution whereas those with lower TKE give broad symmetric or asymmetric-like mass distribu-

tion [17]. The aim of the present work is to confirm the binary kinetic energy distributions experimentally in the proton-induced fission of ²³²Th and ²³⁸U, and to understand the correlation between the mass distributions and the scission configurations.

II. EXPERIMENTAL PROCEDURES AND DATA ANALYSIS

Each ²³²Th and ²³⁸U target was prepared by the vacuum evaporation method on 30 μg/cm² carbon foils and their thickness was estimated to be 70 μg/cm². Proton beams with energy of 13 MeV delivered from the JAERI (Japan Atomic Energy Research Institute) tandem accelerator were used to bombard the ²³²Th and ²³⁸U targets. At these energies, the reaction is expected to be sub-Coulomb and the fission cross sections are about 200 mb for the p+²³²Th fission [15] and 320 mb for the p+²³⁸U [18]. The beam current was about 300 nA. Fission fragment velocities were measured by the double velocity time-of-flight (TOF) method in the TOSCA (Time Of flight Scattering Chamber for Actinide fission) apparatus. Each start and stop detector of the TOF1 telescope placed at θ_{lab} = 50° was composed of a carbon foil (30 μg/cm²) and a microchannel plate detector (MCPD). A 250 μm thick Si surface barrier detector (SSD) located behind the stop MCPD was used for the stop and energy signals. The TOF2 telescope was set around θ_{lab} = 130° at the opposite side of the beam direction to detect complementary fragments of TOF1. The start and stop signals of TOF2 were delivered with MCPD and a two-dimensional position sensitive (10 cm x 10 cm) parallel plate avalanche counter (PPAC), respectively. The flight path of each telescope was about 55 and 50 cm with solid angles of 0.17 and 32 msr., respectively. More than 10⁵ fission coincidence events were accumulated in each run.

Velocity calibration was performed using the 240 MeV ¹²⁷I beam to bombard thin calibration targets (70-100 μg/cm²), ¹⁰⁷Ag, ¹¹⁵In, and ²⁰⁹Bi. Each target was evaporated on 30 μg/cm² thick carbon foils. The recoil nuclei and the elastically scattered ¹²⁷I ions were detected with

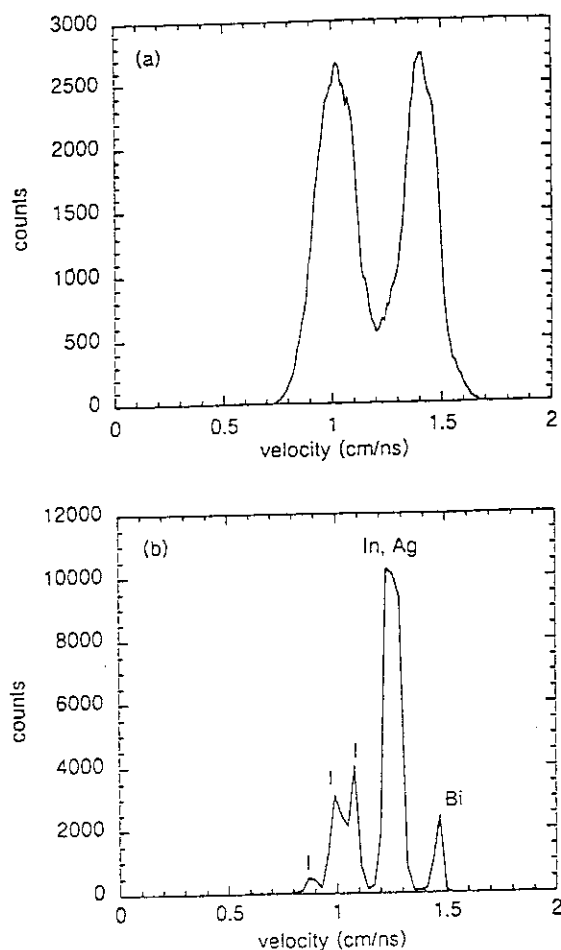


FIG. 1. Velocity distributions in the laboratory system observed in TOF1 at $\theta_{lab} = 50^\circ$: (a) fission fragments in the $p+^{238}\text{U}$, and (b) recoil atoms of Ag, In, and ^{209}Bi , and elastically scattered ^{127}I ions in the velocity calibration.

the present TOF system. Because of the accurate calibration method using the heavy ion beams in the present experiment, the previous results [3] are slightly improved. Figure 1(a) shows the velocity distribution of fission fragments observed with TOF1 for the $p+^{238}\text{U}$ system, and the typical velocities of recoil atoms of Ag, In, and ^{209}Bi , and elastically scattered ^{127}I ions at $\theta_{lab} = 50^\circ$ observed with TOF1 for the calibration are presented in Fig. 1(b).

A primary mass (before neutron emission) of a fission fragment was obtained from the ratio of two velocities of pair fragments with assumptions that no neutron was emitted from the compound nucleus prior to fission (at $E_p=13$ MeV, (p,f) and (p,nf) are energetically allowed and it is likely that (p,f) is the predominant channel according to the previous analysis of the excitation function of fission products [15,19]) and that neutrons from primary fragments were isotropically emitted and did not alter the initial fragment velocity on the average. The conservation of mass and linear momentum for the primary fragments leads to the equations;

$$m_1^* v_1^* = m_2^* v_2^*, \quad (2.1)$$

$$m_1^* + m_2^* = A_f, \quad (2.2)$$

$$m_1^* = A_f(1 + v_1^*/v_2^*)^{-1}, \quad (2.3)$$

where A_f denotes the mass number of the fissioning nuclide and v_1^* and v_2^* are velocities of pair fragments in the center-of-mass system. TKE of fission fragments were calculated from the mass and velocity as;

$$TKE = \frac{1}{2} A_f v_1^* v_2^*. \quad (2.4)$$

Before carrying out the above analysis, the TOF data were corrected for the energy loss caused by the target material, the carbon foil of MCPD and the window of PPAC by use of the energy-loss relationship [20]. The resulting fragment mass and TKE resolution mainly based on the time resolution of 600-700 ps for the elastically scattered ^{127}I ions were estimated to be less than 2.0 u and 2.5 MeV, respectively, in which are included effects of energy loss of fragments passing the target, the backing foil, and carbon foils of MCPD as well as the window foil and the gas layer of PPAC.

III. RESULTS AND DISCUSSIONS

The average velocities of the light and heavy fragments in the laboratory system for the $p+^{232}\text{Th}$ fission were 1.439 cm/ns and 0.9743 cm/ns and those for the $p+^{238}\text{U}$ fission were 1.392 cm/ns and 1.005 cm/ns. The contour maps of primary mass yields v.s. TKE distributions for the $p+^{232}\text{Th}$ and $p+^{238}\text{U}$ fissions are shown in Figs. 2(a) and 2(b), respectively. Although the global features of the contours are almost the same in the both fissions, the symmetric mass division component is clearly seen around $A_f/2$ with $TKE \sim 160$ MeV in the $p+^{232}\text{Th}$ fission.

Mass yield distributions are shown in Figs. 3(a) and 4(a) as a function of heavy fragment mass number for the $p+^{232}\text{Th}$ and $p+^{238}\text{U}$ fissions, respectively. The slope of the heavier wing in the $p+^{232}\text{Th}$ is steeper than that in the $p+^{238}\text{U}$. Average total kinetic energies (TKE), and the variance of the TKE distributions, σ_{TKE} , for each mass split are depicted in Figs. 3(b) and 3(c) for the $p+^{232}\text{Th}$, and in Figs. 4(b) and 4(c) for the $p+^{238}\text{U}$ fission. The peak of $\langle TKE \rangle$ falls at around mass number 132 and that of σ_{TKE} shift toward the lighter mass side at $A=128$ in the fission of $p+^{232}\text{Th}$, while the peaks of $\langle TKE \rangle$ and σ_{TKE} are located around $A=134$ and 131, respectively in the $p+^{238}\text{U}$ fission. The overall average TKEs were 166 MeV and 169 MeV for the $p+^{232}\text{Th}$ and $p+^{238}\text{U}$, respectively, which are in good agreement with those expected from the Viola's systematics [21].

The typical TKE distributions of fragment mass number $A=126-134$ are shown in Figs. 5(a) and 5(b) for the $p+^{232}\text{Th}$ and $p+^{238}\text{U}$ fissions, respectively. It is found that the shapes of the distributions change systematically with mass number and some structures are seen in these mass region, while in other mass regions no such a structure was observed in the TKE distribution.

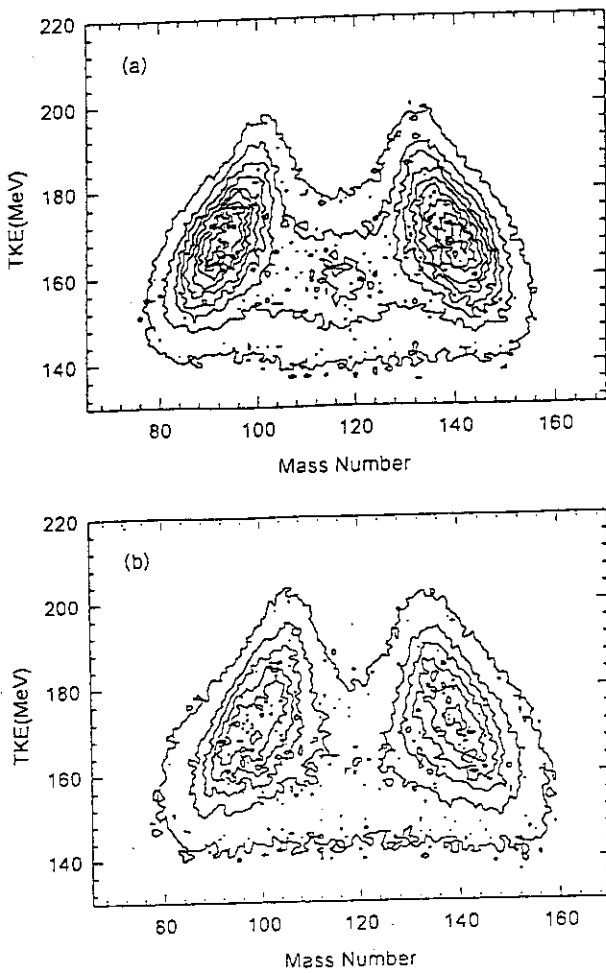


FIG. 2. Contours of the primary mass yield distribution v.s. the total kinetic energy distribution in the (a) $p+^{232}\text{Th}$, and (b) $p+^{238}\text{U}$ fissions.

With an assumption that the total kinetic energy originates from the Coulomb repulsion between two fragments at scission point, the distance (D) between the two charge centers of the complementary fragments is evaluated from (TKE) for each distribution and plotted as a function of heavy fragment mass number for the $p+^{232}\text{Th}$ and $p+^{238}\text{U}$ fissions by the filled circles in Figs. 6(a) and 6(b), respectively. The D values in the $p+^{238}\text{U}$ are slightly larger on average than those in the $p+^{232}\text{Th}$. The trend of D in the both systems is that D for $A < 125$ gradually decreases with A while it increases with the fragment mass number for $A > 135$, and in the region $125 \leq A \leq 135$, D decreases rapidly.

As at least two components are observed in the TKE distribution of each fragment mass number with $A=126-134$ and as discussed in [3], the TKE distributions in Figs. 5(a) and 5(b) could be decomposed into two, low-TKE and high-TKE component. The two-Gaussian analysis of the TKE distributions in $126 \leq A \leq 134$ was carried out using the following prescription; (i) the D value from the low-TKE component for fragment mass larger than $A=125$ lies on the extended line drawn through the closed circles (in Figs. 6(a) and 6(b)) in the symmetric

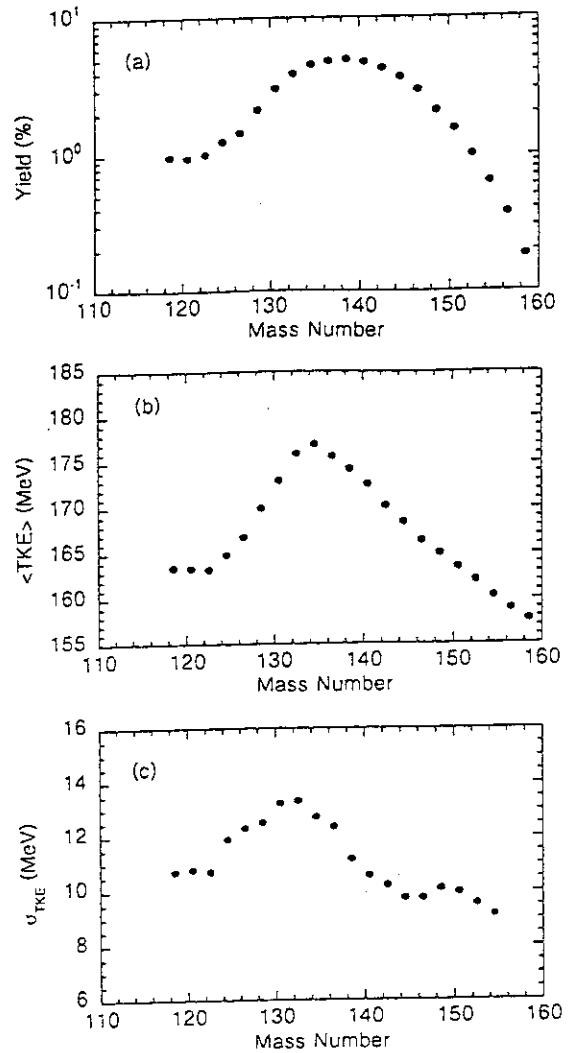


FIG. 3. (a) Mass yield, (b) average total kinetic energy, and (c) variance of the TKE distributions as a function of the heavy fragment mass number for the $p+^{232}\text{Th}$ fission.

mass region while that from the high-TKE component stays on the extended line drawn through the closed circles in the asymmetric mass region, (ii) the widths of the two Gaussians, $\sigma_{TKE}/\langle TKE \rangle$, for low-TKE and that for high-TKE are average values in the mass region $A < 125$ and $A > 135$, respectively. The solid and dashed curves in Figs. 5(a) and 5(b) are the results of a two-Gaussian fit with other two parameters of the heights of the two Gaussians leaving free. The present analysis shows the satisfactory fits to the observed data. It is found that the relative intensity of the high-TKE component increases with A from 126 to 134 while that of the low TKE decreases. The triangles and squares in Figs. 6(a) and 6(b) are the distances used for the two component analysis. The TKE resolution of 2.5 MeV does not affect the results of the decomposition of the TKE distributions by two-Gaussians.

For the $p+^{232}\text{Th}$ fission, the average TKE for the peak positions of the two Gaussians were 160 MeV and 176 MeV for $A=128$ where the yields of the high-TKE and

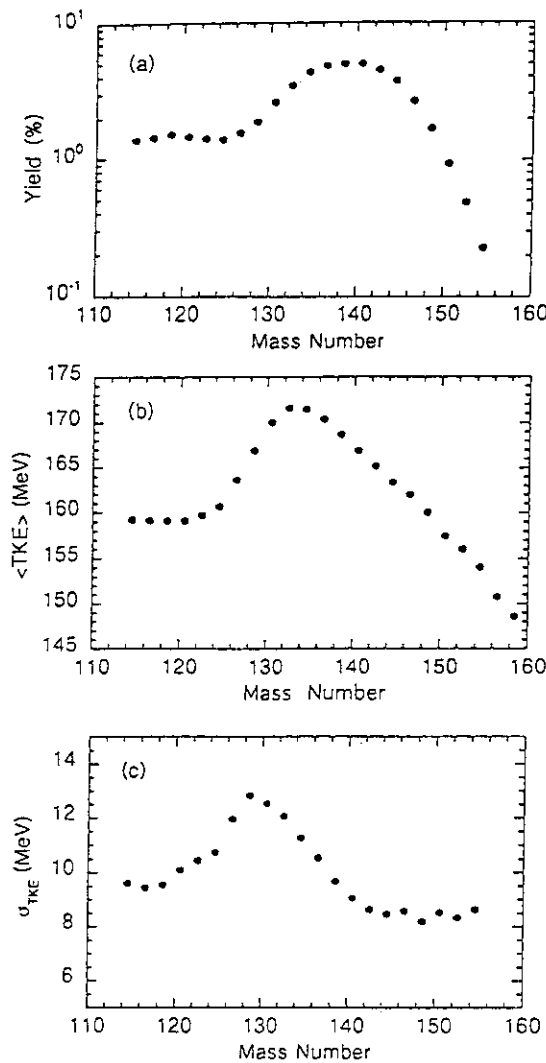


FIG. 4. Same as Fig. 3 but for the $p+^{238}\text{U}$ fission.

the low-TKE components are comparable, while those for $A=128$ in the $p+^{238}\text{U}$ fission were 164 MeV and 180 MeV. The difference between the average high- and low-TKEs in the both cases was about 16 MeV. The present results including the data of the $p+^{238}\text{U}$ fission confirm that there are binary scission configurations in the fragment mass region around $A=130$ even in the low energy proton-induced fission of light actinides as reported in [3]; one is elongated shapes with low-TKE and the other is compact shapes with high-TKE.

The estimated distances between the two charge centers corresponding to the "bimodal fission" reported for the spontaneous fission of ^{258}Fm [1,2,17] are also plotted by the cross symbols in Fig. 6(b). The distance for the high-TKE is much smaller than the others, possibly due to the $N=82, Z=50$ shell effect on both of the complementary fragments in the fission of ^{258}Fm .

The intensity ratios of the two components in the TKE distributions are used to decompose the mass yield distributions and the results are shown in Figs. 7(a) and 7(b) as a function of the heavy fragment mass number

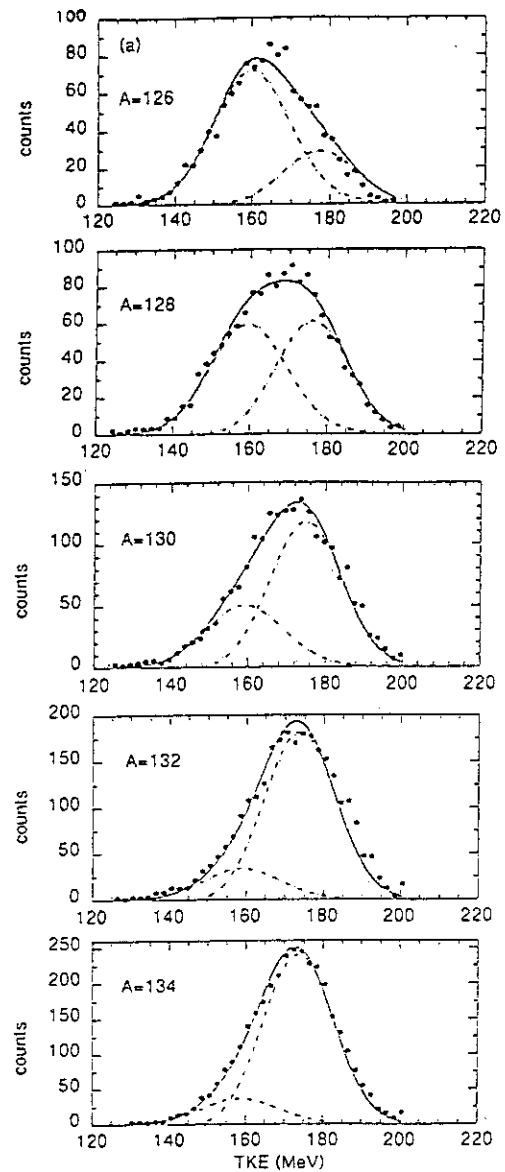


FIG. 5. (a) Total kinetic energy distributions for the fragment mass number $A=126-134$ observed in the $p+^{232}\text{Th}$ fission. The solid and dashed curves indicate the result of a Gaussian fit.

for the $p+^{232}\text{Th}$ and $p+^{238}\text{U}$, respectively. The yields at the peak top of the mass distributions are normalized to unity and the triangles show the mass yields corresponding to the low-TKE component while the squares are those for the high-TKE. The figures show that the overall mass yield curves are smoothly decomposed into two in the mass region $A\sim 130$ where the asymmetric peak merges into the symmetric region. The high-TKE yield seems to be smoothly connected to the asymmetric mass yield peak while the low-TKE yield to the symmetric mass yield curve; two kinds of mass yield distributions could be drawn. There are some interesting features in the decomposed mass distributions based on the present two component analysis of the TKE distributions. The heavy asymmetric mass yield in the $p+^{232}\text{Th}$ has a nearly

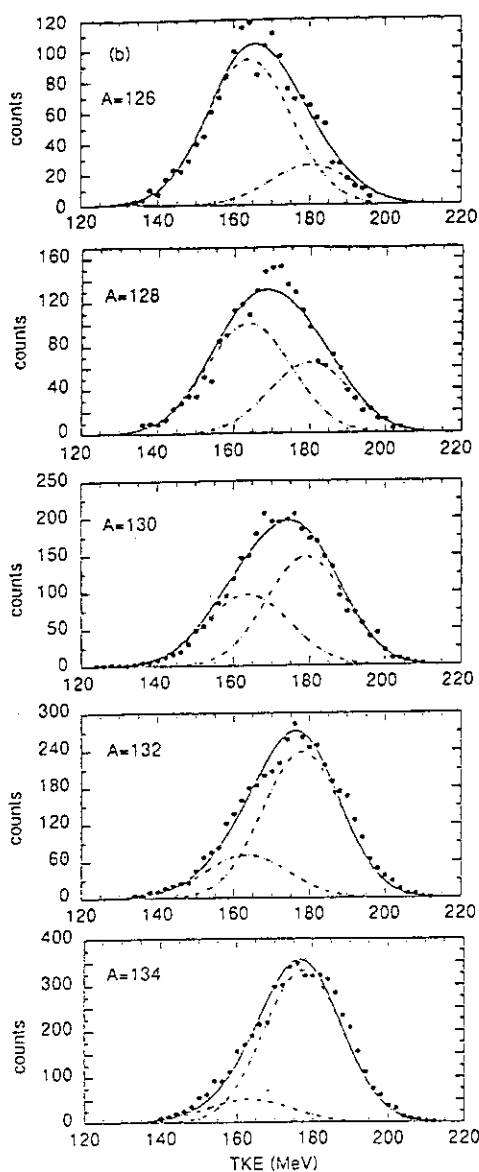


FIG. 5. (b) Total kinetic energy distributions for the fragment mass number $A=126-134$ observed in the $p+^{238}\text{Th}$ fission. The solid and dashed curves indicate the result of a Gaussian fit.

Gaussian distribution, while that for the $p+^{238}\text{U}$ shows a gentle slope in the heavier wing of the mass yield. On the other hand, no clear difference is observed in the lighter mass side of the asymmetric mass yield for the both systems. It should be noted that there is some extra yield which originates from the low-TKE component at around $A=130$ for the $p+^{238}\text{U}$. This component of the extra yield with low-TKE would be different from that of the Standard II mode process, predicted by Brosa *et al* [22], which is expected in the mass region around $A=130$ with high-TKE. To clarify this phenomenon, the excitation energy dependence of the extra yields is needed.

The present results suggest that there are at least two independent scission valleys, one leading to the mass distribution centered around the half of the fissioning

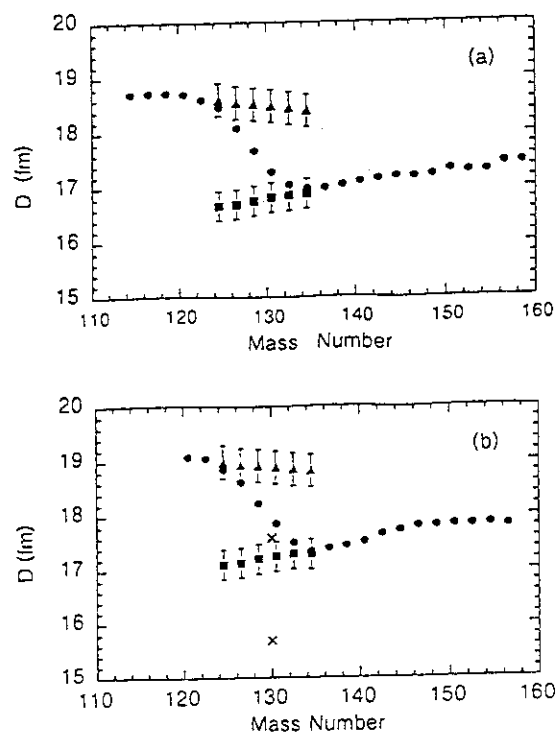


FIG. 7. Distance of two charge centers at scission configurations evaluated from the average total kinetic energy of the fragment mass for the (a) $p+^{232}\text{Th}$, and (b) $p+^{238}\text{U}$ fissions. The filled circles show the distance calculated from the average total kinetic energy values. The filled triangles and squares indicate the distance corresponding to the two types of average kinetic energies. The cross symbols in (b) are the distances of the average low- and high-TKE components evaluated from the data of ^{258}Fm spontaneous fission [1,2,17].

mass number, and the other leading to the mass centered around $A=136 \sim 140$. In support of this result, we like to point out that a potential energy surface containing two deformation paths leading to compact and elongated scission has been presented theoretically by Möller and Nix for the light actinide ^{238}U [23].

IV. CONCLUSIONS

Existence of two kinds of scission configurations has been confirmed experimentally in the fissions of 13.2 MeV $p+^{232}\text{Th}$ and 12.9 MeV $p+^{238}\text{U}$ by using the double velocity time-of-flight technique. It appeared that the elongated scission configurations with the low TKE were associated with the symmetric mass distribution while more compact scission configurations with the high TKE were associated with the asymmetric mass distribution.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors wish to acknowledge the crew of the JAERI tandem accelerator for the accelerator operation. This work was partly supported by the JAERI-University Collaboration Research Project.

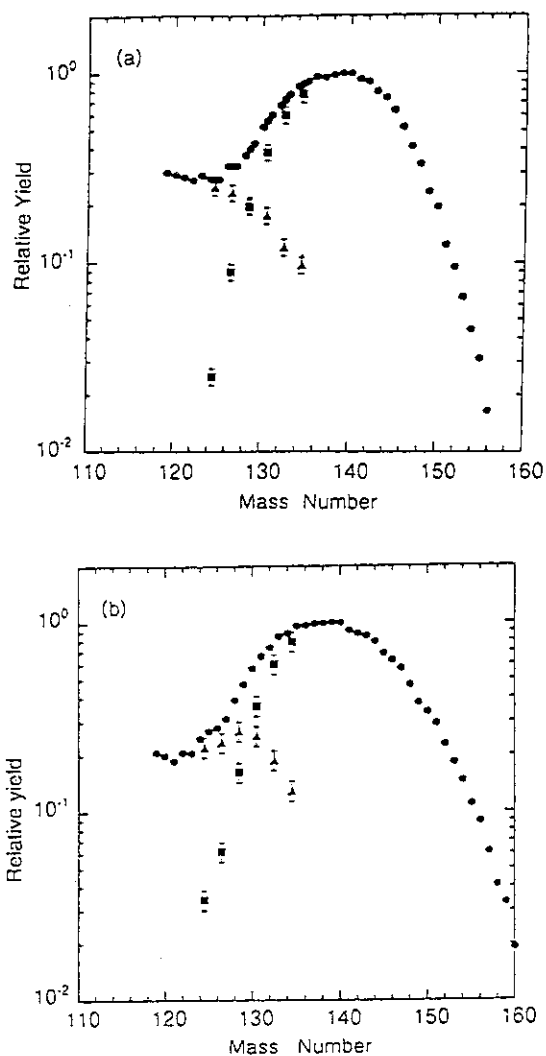


FIG. 8. Mass yield curves for the (a) $p+^{232}\text{Th}$, and (b) $p+^{238}\text{U}$ fissions as a function of heavy fragment mass number. The filled squares and triangles are the decomposed yields corresponding to the high- and low-TKE components, respectively.

- [1] E.K. Hulet, J.F. Wild, R.J. Dougan, R.W. Loughheed, J.H. Landrum, A.D. Dougan, M. Schädel, R.L. Hahn, P.A. Baisden, C.M. Henderson, R.J. Dupzyk, K.Sümmerer, and G.R. Bethune, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 313 (1986).
- [2] E.K. Hulet, J.F. Wild, R.J. Dougan, R.W. Loughheed, J.H. Landrum, A.D. Dougan, P.A. Baisden, C.M. Henderson, R.J. Dupzyk, R.L. Hahn, M. Schädel, K.Sümmerer, and G.R. Bethune, *Phys. Rev. C* **40**, 770 (1989).
- [3] T. Ohtsuki, Y. Nagame, H. Ikezoe, K. Tsukada, K. Sueki and H. Nakahara, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 17 (1991).
- [4] M.G. Itkis, V.N. Okolovich, A.Ya. Rusanov, G.N. Smirenkin, *Z. Phys.* **A320**, 433 (1985).
- [5] P. Möller, J.R. Nix, and W.J. Swiatecki, *Nucl. Phys.* **A469**, 1 (1987).
- [6] S. Ówiok, P. Rozmej, A. Sobiczewski and Z. Patyk, *Nucl. Phys.* **A491**, 281 (1989).
- [7] V.V. Pashkevich, *Nucl. Phys.* **A169**, 275 (1971).
- [8] J.F. Berger, M. Girod and D. Gogny, *Nucl. Phys.* **A428**, 23c (1984).
- [9] U. Brosa, S. Grossmann, and A. Müller, *Z. Phys.* **A325**, 241 (1986).
- [10] A. Turkevich and J.B. Niday, *Phys. Rev.* **84**, 52 (1951).
- [11] E. Konecny, H.J. Specht, and J. Weber, in *Proceedings of the Third IAEA Symposium on the Physics and Chemistry of Fission, Rochester, 1973* (IAEA, Vienna, 1974), Vol. 2, p. 3
- [12] T. Ohtsuki, Y. Hamajima, K. Sueki, H. Nakahara, Y. Nagame, N. Shinohara, and H. Ikezoe, *Phys. Rev.* **C40**, 2144 (1989).
- [13] T. Ohtsuki, H. Nakahara, and Y. Nagame, *Phys. Rev.* **C48**, 1667 (1993).
- [14] T. Ohtsuki, Y. Nagame, K. Tsukada, N. Shinohara, S. Baba, K. Hashimoto, I. Nishinaka, K. Sueki, Y. Hatsukawa, K. Hata, T. Sekine, I. Kanno, H. Ikezoe and H. Nakahara, *Phys. Rev.* **C44**, 1405 (1991).
- [15] H. Kudo, H. Muramatsu, H. Nakahara, K. Miyano and I. Kohno, *Phys. Rev.* **C25**, 3011 (1982).
- [16] H. Kudo, Y. Nagame, H. Nakahara, K. Miyano and I. Kohno, *Phys. Rev.* **C25**, 909 (1982).
- [17] J.F. Wild, J. van Aarle, W. Westmeier, R. Loughheed, E.K. Hulet, K.J. Moody, R.J. Dougan, E.-A. Koop, R.E. Glaser, R. Brandt, and P. Patzelt, *Phys. Rev.* **C41**, 640 (1990).
- [18] A.T. Kandil, *J. Inorg. Nucl. Chem.* **38**, 37 (1976).
- [19] Y. Hamajima *et al.* to be published.
- [20] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, and U. Littmark, "The Stopping and Range of Ions in Solids: Vol.1 (The Stopping and Ranges of Ions in Matter)", Pergamon Press (1985).
- [21] V.E. Viola, Jr., *Nucl. Data Tables A1*, 391 (1966).
- [22] U. Brosa, S. Grossmann, and A. Müller, *Phys. Rep.* **197**, 167 (1990).
- [23] P. Möller and J.R. Nix, *J. Phys. G: Nucl. Phys.* **20**, 1681 (1994).
- [24] B.D. Wilkins, E.P. Steinberg, and R.R. Chasman, *Phys. Rev.* **C14**, 1832(1976).
- [25] Y. Nagame, I. Nishinaka, K. Tsukada, Y. Oura, S. Ichikawa, H. Ikezoe, Y.L. Zhao, K. Sueki, H. Nakahara, M. Tanikawa, T. Ohtsuki, H. Kudo, Y. Hamajima, K. Takamiya, Y.H. Chung, *Phys. Lett.* **B387**, 26 (1996).
- [26] P. Siegler, F.-J. Hamsch, S. Oberstedt, J.P. Theobald, *Nucl. Phys.* **A594**, 45 (1995).
- [27] S. Pommé, E. Jacobs, M. Piessens, D. De Frenne, K. Persyn, K. Govaert, M.-L. Yoneama, *Nucl. Phys.* **A572**, 237 (1994).
- [28] "The Nuclear Fission Process", Editor C. Wagemans, CRC press (1991).

13. 核分裂片と中性子の同時計測による熱中性子核分裂過程の実験的研究

西尾勝久¹、山本秀樹、神野郁夫、木村逸郎
中込良廣

(京都大学工学研究科原子核工学専攻)
京都大学原子炉実験所

1. 緒言

核分裂過程で放出されるQ値に相当するエネルギーは、核分裂片の全運動エネルギーと、励起エネルギーに配分される。このエネルギー配分を知ることは、核分裂過程を考察する上で重要である。熱中性子核分裂反応など低エネルギー核分裂反応では、励起エネルギーは中性子と γ 線によって放出される。 γ 線のエネルギーは、中性子結合エネルギーの1/2でほぼよく評価されるので、核分裂片の励起エネルギーを知るには中性子放出数(ν)とそのエネルギー(η)を測定すればよい。また、核分裂片重心(c.m.)系での中性子エネルギースペクトルには、核分裂片の核温度(T)についての情報が含まれている。

^{252}Cf 自発核分裂反応では、核分裂片の質量数(m^*)と全運動エネルギー(TKE)に対する ν の変化、およびc.m.系での平均中性子エネルギー分布 $\langle\eta\rangle(m^*)$ が詳細に調べられている[1][2]。一方、熱中性子核分裂反応におけるこれまでの $\nu(m^*, TKE)$ および $\langle\eta\rangle(m^*)$ のデータは[3]-[6]、いずれも統計的に不十分であり、詳細な議論をするに至るものではない。そこで我々は ^{235}U 、 ^{233}U および ^{239}Pu 等の熱中性子核分裂反応において、これらのデータを得ることを目標として実験を行っており、ここでは、 $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ で得られた結果を示す。本解析では、中性子はすべて十分加速した後の核分裂片から放出されるものとし、また中性子は等方向的に放出されるものと仮定した。

核分裂片の励起エネルギー(E_{ex})と T を関係付けるのがレベル密度パラメータ(a)である。Budtz-Jørgensenらは、 $^{252}\text{Cf}(sf)$ の核分裂片と中性子の同時計測から、核分裂片の m^* に依存した $a(m^*)$ を導いた[2]。この結果、 $a(m^*)$ の分布は130 uで極小値をとる鋸歯状波分布を示した。これは、核分裂片の殻効果の現れと考えられる。我々も同様の方法で、熱中性子反応としては初めて $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ における $a(m^*)$ を求めた。これとは逆に、中性子共鳴実験等から a を得る場合、その値はモデル依存となる。特に、集団運動による準位の増加を考慮するか否かでその値は1.5倍の違いを生ずる[7]。本研究のような測定法は、 a の絶対値が得られる特徴がある。そこで、本文では、核分裂片の殻効果と集団運動を取り入れたIljinovの経験式[7]を用いて考察を行い、核分裂片の殻効果および集団運動について議論を行う。

2. 実験

2.1 実験配置

実験は、京大炉(KUR)のスーパーミラー中性子導管設備からの中性子を利用して行った。実験配置を図1に示す。アルミニウムでできた真空チェンバ中に ^{235}U ターゲットと2つの核分裂片検出器をセットした。ターゲット(TG)はニッケル箔上に $\text{UO}_2(\text{SO}_3)_2$ を電着して作成した。厚

¹ E-mail : krushi@rri.kyoto-u.ac.jp

さは $140 \mu\text{g}^{235}\text{U}/\text{cm}^2$ とした。

一方の核分裂片(FF1)の運動エネルギーを 900 mm^2 のシリコン検出器(SSBD)で求めた。もう一方の核分裂片(FF2)は平行平板型アバランシェ検出器(PPAC)で検出し、SSBD と PPAC 信号の時間差からエネルギーを決定した。なお、TG-SSBD および TG-PPAC 間の距離をそれぞれ 2.0 cm 、 31.9 cm とした。作成した PPAC は直径 22 cm の円形をしており、PPAC の時間分解能は 890 ps (FWHM) より優れる。PPAC は電荷分割方式で核分裂片の入射位置を決定でき、核分裂片の飛行角度 θ を求める。核分裂片の最大飛行角度 θ_{max} は、PPAC の半径で決まり $\theta_{\text{max}} = 19^\circ$ とした。なお、PPAC の詳しい構造と実験方法については、文献[8][9]に示した。

核分裂に伴う中性子を、液体シンチレータ(NE213)で検出した。このシンチレータは直径 12.8 cm 、厚さ 5.1 cm の大きさを持つ。図1の検出器配置の場合、測定される中性子のほとんどはFF1からのものであり、FF2からの中性子は多くて2から3%と評価した[8]。中性子のエネルギーは、SSBD の信号をスタートとする飛行時間(TOF)法で決定した。中性子TOF法の時間分解能は、即発 γ 線の半値幅から決定し、 1.5 ns (FWHM) であった。この配置において、FF1からの中性子の放出角は θ に等しい。シンチレータのディスクレベルは ^{22}Na の γ 線を使って決定し、検出効率はVerbinskiらの応答関数から求めた[10]。中性子とバックグラウンド γ 線を分離するために、パルス波形信号を取り込んだ。

2つの核分裂片がコインシデンスしたデータ、および核分裂片と中性子がコインシデンスしたデータを、リストモードでコンピュータに取り込んだ。

2.2 データ解析

2つの核分裂片のエネルギーおよび質量数は、運動量と質量数保存則から決定した。FF1のエネルギー較正は、Schmittの式を使って較正した。FF2の飛行時間は、軽および重核分裂片の平均速度がそれぞれ 1.420 、 0.983 cm/ns [11]であることを使った。解析では、以下の補正を考慮した。(1) FF1の速度の違いによるTG-SSBD間の時間のずれを補正した。(2) FF2の飛行距離をPPACの位置から決定して補正した。(3) SSBDにおけるプラズマ遅れを、中性子TOFスペクトルに現れる即発 γ 線のピーク位置から調べた。この結果、 m^* に対する変化は 100 ps 以下であり[8]、この補正はしなかった。(4) ターゲット内とNi箔内でのエネルギー損失を補正した。(5) FF1からの中性子放出数(ν_1)の値をWahlの評価値[12]を用いて補正した。この結果、得られた質量数と運動エネルギーの平均値は、軽核と重核でそれぞれ $(m_L^*, m_H^*) = (96.1 \pm 0.7, 139.9 \pm 0.7)u$ および $(E_L^*, E_H^*) = (101.3 \pm 1.0, 69.8 \pm 1.0) \text{ MeV}$ であり、他のデータ[11][13]と一致した。なお、質量分解能は、Geltenbortら[11]の質量数分布との比較から、約 $6u$ (FWHM) と評価した。

核分裂片とコインシデンスした中性子イベントは、中性子TOFとパルス波形との2次元分布から分離して取り出し、解析に用いた。飛行時間を決めるのに、即発 γ 線のピーク位置を時間ゼロとした。波形弁別で分離出来なかったバックグラウンド γ 線を差し引いた。波形弁別により分離される中性子と γ 線イベントの割合は、中性子のエネルギーに依存するので、これを補正した。核分裂片と中性子が同時計測した場合、FF1については、中性子放出前後で速度が変化しない、という仮定が成り立たないため、この補正を行った[14]。核分裂片が動くことによる中性子の検出効率を、あらかじめモンテカルロ計算で求めておき、この補正を行った。

中性子のエネルギーは、FF1の速度と θ を用いてFF1の静止(c.m.)系に変換し、エネルギースペクトル $\phi(\eta)$ を決定した。また、中性子放出数は、核分裂片-中性子のコインシデンス数を核分裂片コインシデンス数で割ることで求めた。ただし、核分裂あたり 2.43 個の中性子が出るとして規格化した[15]。

3. 実験結果

3.1 中性子エネルギー

核分裂片からの中性子エネルギースペクトル $\phi(\eta)$ の例を図2に示す。図の数値は、核分裂片の質量数 m^* を示す。この図から、スペクトルは実効核温度 T_{eff} を用いて

$$\phi(\eta) = \text{const. } \eta^{1/2} \exp(-\eta/T_{eff}) \quad (2)$$

なる Maxwellian 型の分布で表されることがわかる。これは、カスケード的に中性子が放出されることを示している [16]。

図3は、エネルギーの平均値 $\langle \eta \rangle$ を核分裂片質量数に対してプロットしたものである。図から、対称分裂を軸にほぼ左右対称であることが分かる。また、 $m^* = 90$ および 145 で極小値を持つことが分かった。この分布傾向は、 $^{252}\text{Cf}(s.f)$ と同じである [2]。

3.2 中性子放出数

核分裂片質量数に対する平均の中性子数 $\langle \nu \rangle(m^*)$ を図4に示す。軽および重核分裂片で平均した中性子数 ($\langle \nu \rangle_L, \langle \nu \rangle_H$) は、(1.42, 1.01) 個であり、軽核から多く放出されることが分かった。本実験結果を、他のデータと比較してある。重核領域で、Apalin のデータ [4] は他と大きく異なる。4つの分布とも軽核の $100 u$ 近傍でくぼみが見られる。一方、我々の結果は $140 u$ でくぼみが観測された。この傾向は Maslin らの結果 [5] には見られるが、他の2例には観測されていない。

図5は、大小のペアをなす核分裂片からの中性子数の和 ($\langle \nu^{tot} \rangle$) を、重核に対してプロットしたものである。我々の結果は、Maslin らに近い。

図6は、全運動エネルギー (TKE) に対する $\langle \nu^{tot} \rangle$ の変化を示している。 $TKE > 155$ MeV のデータ点を直線フィットして $-dTKE/d\nu^{tot} = 17.1$ [MeV/n] を得た。 $TKE < 155$ では、この直線から下方へずれてゆくことが分かった。この傾向は Maslin らのデータと良く似ている。

TKE に対する ν の変化を個々の核分裂片について調べたのが図7である。図中の数値は質量数の範囲を示している。 TKE と ν の直線関係は、いずれの核分裂片でも見られるが、傾き $-d\nu/dTKE$ は、質量数ごとに異なる。そこで、 $-d\nu/dTKE$ を m^* についてプロットしたのが図8である。全体として鋸歯状波の分布をとり、 $m^* = 130 u$ 近傍で極小値を取る。また、 $140 u$ でくぼみがあり、この場所は図4の盛り上がりの場所に相当する。 $-d\nu/dTKE$ の物理的な意味について考える。分離点において、2つの核分裂片が変形して接しているとする。この時、 $dTKE$ は電荷中心間の距離の変化によってもたらされる。一方、 $d\nu$ は核分裂片の伸縮によるものであり、このことから $-d\nu/dTKE$ は、分離点における核分裂片の伸びやすさ(軟らかさ)を与える指標といえる。図8から、 $130 u$ の核分裂片は硬く、これに対応する $106 u$ の核分裂片は軟らかいと言える。原子核の軟らかさ(スティフネス)は、その殻補正エネルギーを用いて表すことができる [17][18]。 $130 u$ の $-d\nu/dTKE$ が小さい値を持つのは、この原子核の強い負の殻補正エネルギーによるものと考えられる。

4. レベル密度パラメータ

4.1 実験データからの導出

本実験値を用いて、レベル密度パラメータ a を決定した [19]。 a は、核分裂片の励起エネルギー E_{ex} と核温度 T を以下の式で関係付ける。

$$E_{ex} = aT^2 \quad (2)$$

E_{ex} は、次式で評価した。

$$E_{ex} = \langle v \rangle \{ \langle \eta \rangle + \langle B_n \rangle \} + E_\gamma \quad (3)$$

第1項は中性子により失われる励起エネルギーであり、 $\langle v \rangle$ と $\langle \eta \rangle$ として本実験値を用いた。第2項は γ 線によるエネルギー放出で、中性子結合エネルギー $\langle B_n \rangle$ を用いて次式で表される。

$$E_\gamma = (1/2) \langle B_n \rangle \quad (4)$$

$\langle B_n \rangle$ は、Möller の質量テーブル[20]から求めた。

中性子スペクトル $\phi(\eta)$ が(1)式で表される場合、 T は中性子平均エネルギー $\langle \eta \rangle$ から次式で表される。

$$T = (3/4) \langle \eta \rangle \quad (5)$$

式(2)-(5)を用いて求めた a の結果を図9に示す。黒丸が今回の $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ のデータである。この $a(m^*)$ は質量数に対して鋸歯状波の分布を示し、また2重魔法数に近い130u近傍で極小値を取った。 $a(m^*)$ の分布は、主として $\langle v \rangle(m^*)$ のそれを反映している。比較のために、Jørgensen らが $^{252}\text{Cf}(s,f)$ から求めた結果を波線で示した。 $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ と $^{252}\text{Cf}(s,f)$ の分布傾向は、ほぼ一致している。

4.2 経験式による実験値の解釈

原子核のレベル密度 $\rho(E_{ex})$ は、次式で与えられる[7]。

$$\rho(E_{ex}) = K_{rot} K_{vib} \rho_{int}(E_{ex}) \quad (6)$$

K_{rot} と K_{vib} は、それぞれ回転と振動による内部準位 $\rho_{int}(E_{ex})$ の増加である。 $\rho_{int}(E_{ex})$ は、

$$\rho_{int}(E_{ex}) = (1/12) \pi^{1/2} a^{-1/4} E_{ex}^{-5/4} \exp[2(aE_{ex})^{1/2}] \quad (7)$$

で表される。レベル密度パラメータ a は、殻補正エネルギー $\delta W(Z, N)$ を用いて経験的に次式で表される。

$$a(E_{ex}, Z, N) = \bar{a}(A) [1 + \delta W(Z, N) f(E_{ex}) / E_{ex}] \quad (8)$$

式(8)で、 $f(E_{ex})$ は核の励起による殻効果の低下を表す関数で、次式で与えられる。

$$f(E_{ex}) = 1 - \exp(-\gamma E_{ex}) \quad (9)$$

E_{ex} が上昇すると、 $a(E_{ex}, Z, N)$ は次の漸近値 $\bar{a}(A)$ へ近づく。

$$\bar{a}(A) = \alpha A + \beta A^{2/3} \quad (10)$$

K_{rot} と K_{vib} の表現は、論文[7]にある。注意すべき点は、原子核が球形の場合 $K_{rot} = 1$ であり、変形した場合に限って $K_{rot} = 10 \sim 100$ の値をとる。また、 K_{rot} の値は、 $K_{vib} \approx 3$ に比べて、準位増加に対する寄与が大きい。

Iljinov は、中性子共鳴等の実験データを最も良く再現するパラメータ (α, β, γ) を決定した。その結果、集団運動する場合 ($K_{rot} \neq 1, K_{vib} \neq 1$) としない場合 ($K_{rot} = K_{vib} = 1$) で、それぞれ (0.090, -0.040, 0.070) と (0.114, 0.098, 0.051) を得た。ただし、この値は $\delta W(Z, N)$ として Myers と Swiatecki の値[21]を用いた場合の結果であることに注意する必要がある。

$^{235}\text{U}(n_{th},f)$ について式(8)-(10)から求めた $a(m^*)$ の結果を図10(b)に示す。Myers と Swiatecki の計算による $\delta W(m^*)$ を図10(a)に示した。図10(b)の菱形(\diamond)と四角(\square)は、それぞれ集団運動の存在する場合としない場合の結果である。また、一点鎖線と実線は、 E_{ex} が大きくなる場合の \diamond と \square の漸近値 $\bar{a}(A)$ を表している。軽核と重核領域で、それぞれ漸近値より大きな値と小さな値をとるのは、 $\delta W(m^*)$ から容易に理解できる。特に、130u近傍の極小値の傾向が再現されている。従って、実験で観測された $a(m^*)$ の鋸歯状波の分布は、核分裂片の殻効果

によるものと言える。また、集団運動を入れるか否かで、計算値が大きく異なることが分かる。重核領域を再現するには、集団運動による準位増加があると解釈しなければならない。軽核領域では、◇ と □ のいずれに近いかは結論しにくい、この領域で $\delta W(m^*) > 0$ であることを考えれば、集団運動していると考えの方が、このモデルの立場からつじつまがあう。さらに、 K_{vib} よりも K_{rot} による準位増加が大きいことを考慮すると、2重魔法数に近い核分裂片でさえ、変形していると考えられる。

5 まとめ

$^{235}\text{U}(n_{th},f)$ において、核分裂片と中性子の同時計測を行った。得られたデータは、熱中性子反応としては、これまでの報告以上に統計精度が良い。実験と解析の結果から、以下のことが分かった。

- (1) $\langle \eta \rangle(m^*)$ 対称分裂を軸として、左右対称の形をとり、90 と 145 u 近旁で極小値を持つ。この傾向は $^{252}\text{Cf}(s,f)$ の分布傾向と似ている。
- (2) $-dv/dTKE(m^*)$ は $\langle v \rangle(m^*)$ と似て鋸歯状波の分布を示す。この分布は、殻効果を受けた核分裂片のスティフネスによるものと考えられる。
- (3) $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ で得られた核分裂片のレベル密度パラメータ $a(m^*)$ は鋸歯状波の分布を示し、 $^{252}\text{Cf}(s,f)$ の分布と似ている。この分布は、殻効果の核分裂片依存性と集団運動を考慮した経験式で説明できる。

謝辞

近畿大学原子力研究所の大沢先生にはいろいろと御助言を頂きました。阪大理学部の高橋成人氏にターゲットの作り方を教えて頂きました。また、京大原子炉の代谷誠治、小林捷平、市原千博、海老沢徹、山本修二の各氏には、実験に際して御協力を得ました。ここに謝意を表します。実験は京大炉共同利用により行われました。また、文部省科学研究費を受けて行われました。

参考文献

- [1] H.R. Bowman, J.C.D. Milton, S.G. Thompson and W.J. Swiatecki, Phys. Rev. **129** (1963) 2133.
- [2] C. Budtz-Jørgensen and H.-H. Knitter, Nucl. Phys. **A490** (1988) 307.
- [3] J.C.D. Milton and J.S. Fraser, in Symposium on the Physics and Chemistry of Fission, 1965 (IAEA, Vienna, 1965), Vol. 2, p.39
- [4] V.F. Apalin, Yu.N. Gritsyuk, I.E. Kutikov, V.I. Lebedev and L.A. Mikaelian, Nucl. Phys. **71** (1965) 553.
- [5] E.E. Maslin and A.L. Rodgers, Phys. Rev. **164** (1967) 1520.
- [6] J.W. Boldeman, A.R. DE L. Musgrove and R.L. Walsh, Aust. J. Phys. **24** (1971) 821.
- [7] A.S. Iljinov, M.V. Mebel, N. Bianchi, E. De Sanctis, C. Guaraldo, V. Lucherini, V. Muccifora, E. Polli, A.R. Reolon and P. Rossi, Nucl. Phys. **A543** (1992) 517.
- [8] K. Nishio, H. Yamamoto, I. Kanno, I. Kimura and Y. Nakagome, Nucl. Instrum. Meth. A **385** (1997) 171.
- [9] K. Nishio, Y. Nakagome, H. Yamamoto and I. Kimura, Submitted to Nucl. Phys. A.
- [10] V.V. Verbinski, W.R. Burrus, T.A. Love, W. Zobel, N.W. Hill and R. Textor, Nucl. Instrum. Meth. **65** (1968) 8.

- [11] P. Geltenbort, F. Gönnerwein and A. Oed, Radiation Effects 93 (1986) 393.
- [12] A.C. Wahl, At. Data and Nucl. Data Table 39 (1988) 1.
- [13] G. Simon, J. Trochon, F. Brisard and C. Signarbieux, Nucl. Instrum. Meth. A286 (1990) 220.
- [14] A. Gavron, Nucl. Instrum. Meth. 115 (1974) 99.
- [15] C. Wagemans, " The Nuclear Fission Process ", CRC Press, (1991) p.514.
- [16] D.G. Madland and J.R. Nix, Nucl. Sci. Eng. 81 (1982) 213.
- [17] M. Kildir and N.K. Aras, Phys. Rev. C 25 (1982) 365.
- [18] A. Ruben, H. Märten and D. Seeliger, Z. Phys. A338 (1991) 67.
- [19] K. Nishio, I. Kimura and Y. Nakagome, J. Nucl. Sci. Technol. 34 (1997) 439.
- [20] P. Möller and J.R. Nix, At. Data and Nucl. Data Tables 26 (1981) 165.
- [21] W.D. Myers and W.J. Swiatecki, Ark. Phys. 36 (1967) 343.

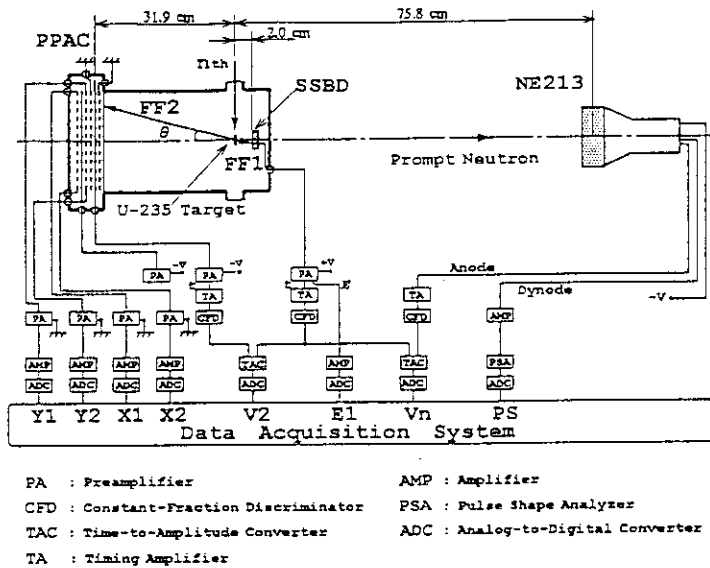


図1 実験配置図

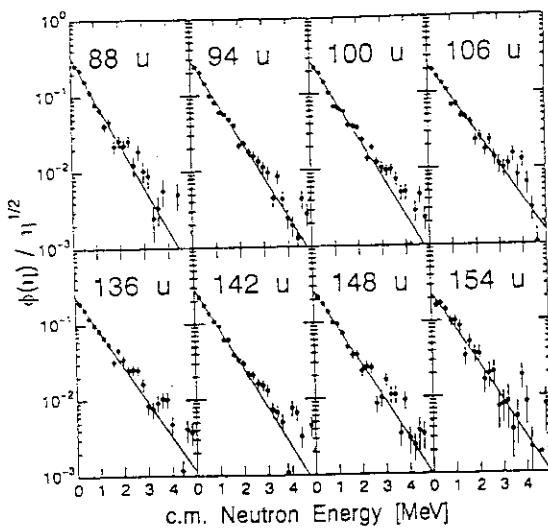


図2 中性子エネルギースペクトル $\phi(u)$

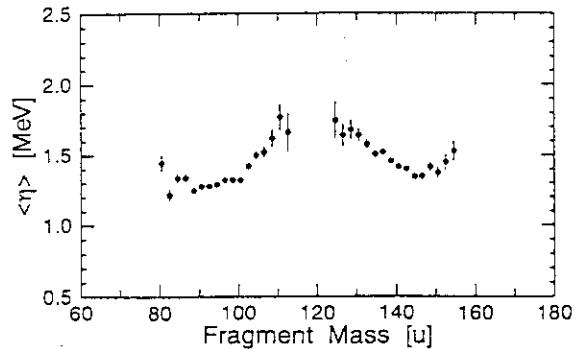


図3 中性子の平均エネルギー $\langle \eta \rangle(m^*)$

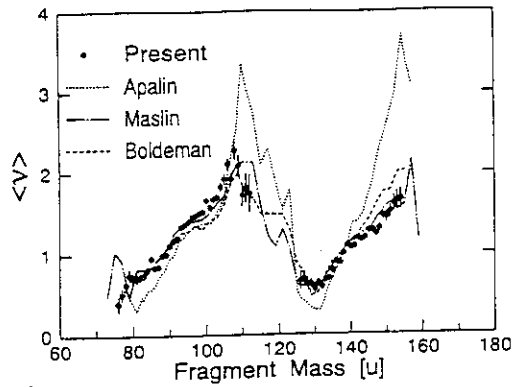


図4 平均中性子放出数 $\langle \nu \rangle(m^*)$

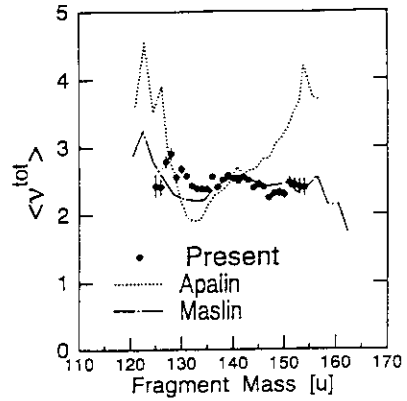


図5 全中性子放出数 $\langle \nu^{tot} \rangle(m_H^*)$

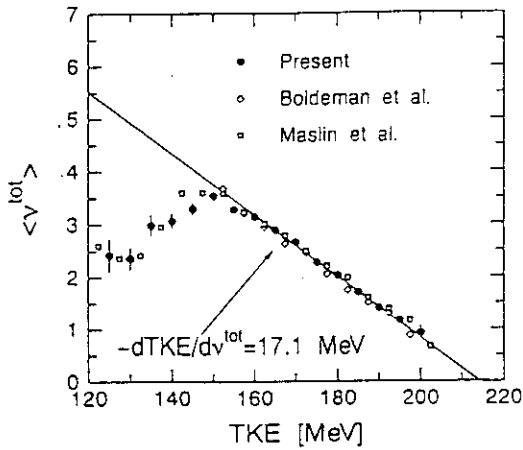


図6 全中性子放出数 $\langle \nu^{tot} \rangle(TKE)$

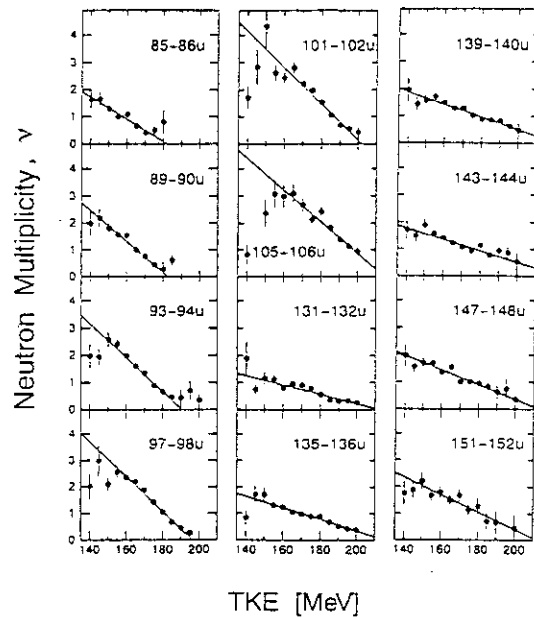


図7 質量数ごとの $\nu(TKE)$

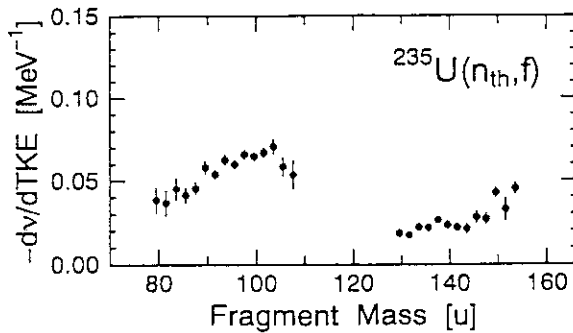


図8 $-\text{d}\nu/\text{dTKE}(m^*)$ の分布

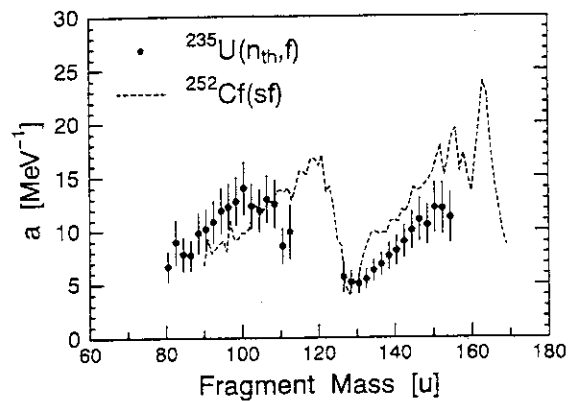


図9 核分裂片のレベル密度パラメータ $a(m^*)$

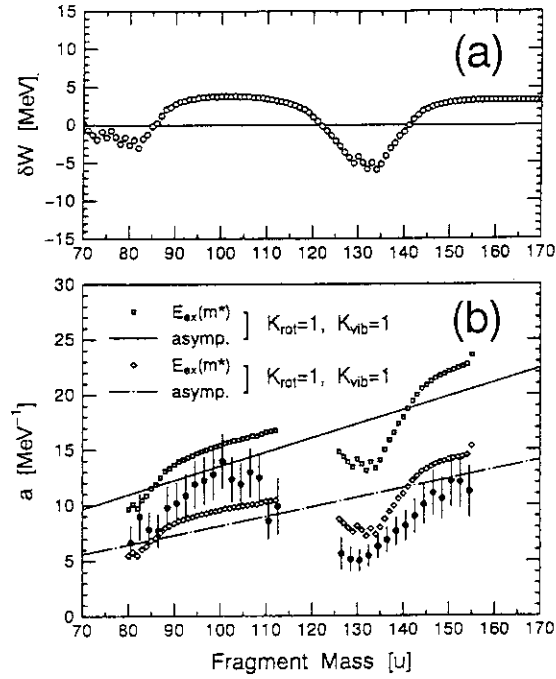


図10 (a) Myers と Swiatecki の計算による $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ 核分裂片の $\delta W(m^*)$
 (b) Iljinov の式による $a(m^*)$ の解析結果。
 □は集団運動なし、◇は集団運動ありの場合で
 実線は励起が無限大の場合の漸近値。

14. 超アクチノイド元素の核化学

永目諭一郎 (原研燃料研究部)

Nuclear Chemistry of Transactinide Elements

Yuichiro NAGAME

Division of Nuclear Chemistry

Japan Atomic Energy Research Institute

E-mail address : nagame@popsvr.tokai.jaeri.go.jp

Abstract

The current status on the nuclear chemistry studies of transactinide elements is reviewed. The production of transactinides in heavy ion reactions is briefly discussed, and nuclear properties on the stability of transactinides are presented. Chemical properties of the trans-actinide elements 104, 105 and 106, and a typical experimental technique used to study these properties on an atom-at-a-time base are introduced.

1 はじめに

1886年に放射能が発見されてから約100年、現在までに周期表は図1に示すように112番まで延長されている。その間 Seaborg によって 5f 電子軌道を持つアクチノイドの概念が導入され、103番のローレンシウム (Lr) 元素で終了することが示された [1]。このアクチノイド系列の概念は確率されつつあり、新たな 6d 電子軌道を持つ遷移金属元素が 104番元素から始まることが証明されてきており、これらを超アクチノイド元素と呼んでいる。したがって現在知られている超アクチノイドの9元素はそれぞれ周期表の 5d 遷移元素の下に配置されている (図1)。また重元素の存在に関しては、以前から安定な超重元素の存在が予言されており [2]、重核の安定性に関するさまざまな研究が行われてきた。これら超重元素を含む超アクチノイド元素の合成及びその核的・化学的性質の研究は、重い極限での元素の性質を明らかにするという意味で極めて重要な研究課題である。

本稿では、超アクチノイドに属する 104番元素以降を取り上げ、合成法や核的・化学的性質に関する最近のトピックスの一部を紹介する。また超アクチノイド元素の命名に関しては、正式名が決定されていないため、原子番号で表記するが、参考のため IUPAC の推奨名 [3] を図1に付記しておく。

																		18
1																	2	
1	2											13	14	15	16	17	18	
H	He											B	C	N	O	F	Ne	
3	4											5	6	7	8	9	10	
Li	Be											Al	Si	P	S	Cl	Ar	
11	12	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	
Na	Mg											Ga	Ge	As	Se	Br	Kr	
19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32	33	34	35	36	
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr	
37	38	39	40	41	42	43	44	45	46	47	48	49	50	51	52	53	54	
Rb	Rb	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe	
55	56	57	72	73	74	75	76	77	78	79	80	81	82	83	84	85	86	
Cs	Ba	La	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn	
87	88	89	104	105	106	107	108	109	110	111	112							
Fr	Ra	Ac	Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt										
Actinides																		
		90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	100	101	102	103			
		Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr			
Lanthanides																		
		58	59	60	61	62	63	64	65	66	67	68	69	70	71			
		Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu			

図1 周期表.

2 超アクチノイド元素の合成

1940年にネプツニウム (Np), プルトニウム (Pu) が人工放射性元素として発見されて以来, 周期表の極限への挑戦として新元素合成の歴史は半世紀を越える. 原子番号 100 のフェルミウム (Fm) 元素以上は, 中性子捕獲反応に基づく原子炉での製造は不可能で, ほとんどの場合重イオン核融合反応を用いて合成される. しかし重元素領域では, 複合核はほとんどが核分裂してしまうため蒸発残留核として生き残る確率は非常に小さく, 原子番号の増加とともに急激に減少する. 例えば, 110-112番元素の生成断面積は, 数ピコバーンと報告されている. また生成核種の半減期もマイクロ秒からミリ秒程度と極めて短い [4-7].

現在 107 番元素以降の重元素は, ^{208}Pb , ^{209}Bi など二重魔法数近傍のターゲットを鉄やニッケルなど大きい重イオンビームで照射して合成されている. この組み合わせで生成する複合核の励起エネルギーは約 20 MeV と比較的小さく, 核分裂しないで重核として生き残る確率が大きいと考えられた (冷たい核融合反応). しかしこの合成法では, 比較的長寿命 (数十秒程度以上) 核の生成が期待できる超重元素領域や, 変形した閉殻構造を持つと予想される中性子数 $N=162$ 近傍核の合成は困難である. このため, ^{248}Cm や ^{249}Bk など超ウラン元素ターゲットと ^{18}O や ^{22}Ne など比較的軽い重イオンビームを用いた合成法も検討されている. この場合複合核の励起エネルギーは 40-50 MeV と高く熱い核融合反応と呼ばれている.

図 2(a) は, ウラン (U) ターゲットを種々の重イオンビームで照射した場合, $\text{U}(\text{HI}, 4n)$, $\text{U}(\text{HI}, 5n)$ 反応で生成する蒸発残留核の生成断面積を生成元素 Z_{CN} の関数として示したものである. また図 2(b) は, $\text{U}(\text{HI}, 4n)$ 反応で生成するそれぞれの生成物の断面積を複合核の中性子過剰度 (neutron excess), $(N_{\text{CN}} - Z_{\text{CN}})/Z_{\text{CN}}$ の関数として表したものである. 同じ生成元素 Z で見てみると, $(N_{\text{CN}} - Z_{\text{CN}})/Z_{\text{CN}}$ の増加とともに断面積が大きくなっていることがわかる. これは, わずかではあるが

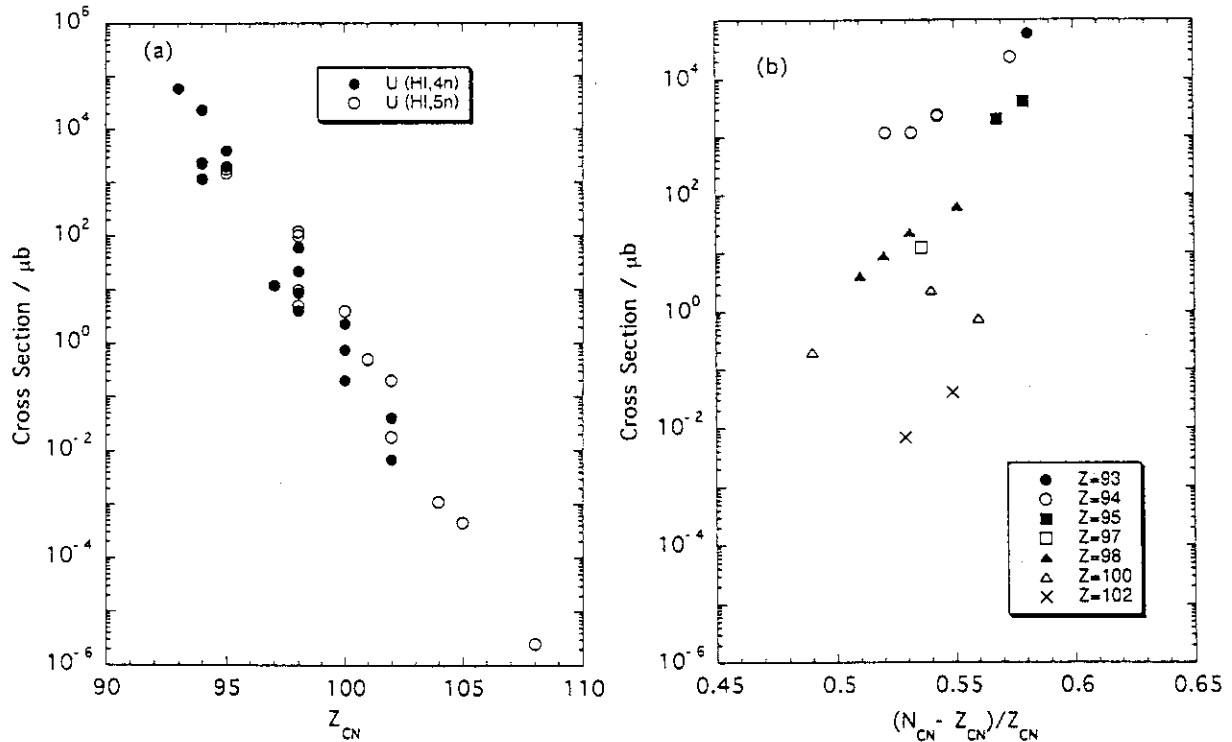


図 2 U(HI,4n), U(HI,5n) 反応で生成する重核の生成断面積と生成元素の関係 (本文参照).

核融合時におけるクーロン斥力の低下や幾何学的核融合断面積の増加にも関係していると思われる。さらには生成した複合核は、蒸発残留核生成と核分裂で崩壊していくが、その際の競争過程を表す Γ_n/Γ_f が中性子の増加とともに大きくなるため、図 2(b) の傾向が得られていると考えられる。この事実は、110 番元素合成にも顕著に現れている [5]。すなわち $^{208}\text{Pb}(^{62}\text{Ni},n)^{269}110$ と $^{208}\text{Pb}(^{64}\text{Ni},n)^{271}110$ 反応では、後者の方が約 5 倍も大きい生成断面積を示している。このことから重元素合成には、より中性子過剰な入射粒子とターゲットの組み合わせが有利であることがわかる。

3 超アクチノイド元素の核的性質

図 3 は重核の安定性に関するポテンシャルエネルギーを、縦軸に Z、横軸に N として示したものである。Z=114, N=178-184 近くに球形な安定核として超重元素の存在が予測されている [8]。ここで、四角印はこれまでに確認された超アクチノイド核種である。しかし現実には既存の安定核ビームを用いてもこの領域まで到達することは困難で、中性子過剰な放射性ビームが不可欠となる。

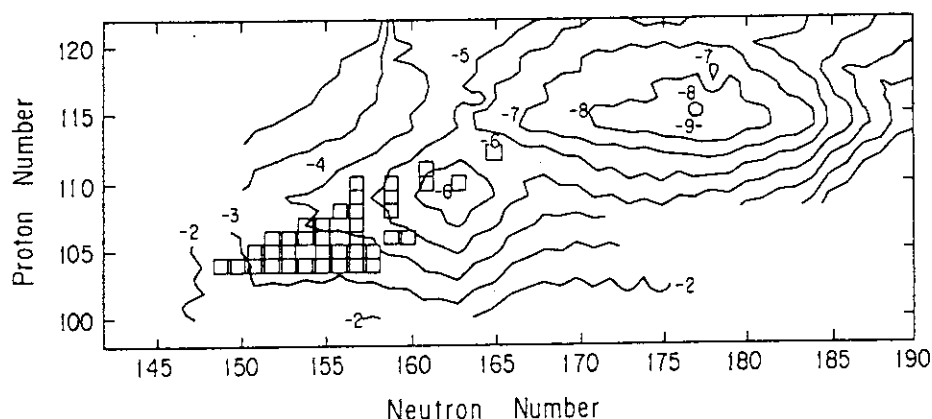


図 3 重核の安定性に関するポテンシャルエネルギー面。四角印はこれまでに確認された核種を示す [8]。

現在は、Z=108, N=162 近傍に変形した閉殻構造を持つ原子核の存在が期待されており [9]、この存在確認が精力的に行われている。最近ロシアの Dubna グループが $^{248}\text{Cm}(^{22}\text{Ne},4n)$, $^{248}\text{Cm}(^{22}\text{Ne},5n)$ 反応を用いて $^{266}106$, $^{265}106$ の確認に成功し、2-30 秒という比較的長い半減期を実験的に見積もった [10]。その後 GSI でも同様の実験が行われ、 $^{265}106$ に関しては約 7 秒という半減期が得られている [11]。理論から予測される値と比較したのが図 4 である [12]。白抜きの数値は理論値で黒塗りが実験値である。丸印及び四角印はそれぞれ α 崩壊と自発核分裂の部分半減期を示す。N=162 でその安定性が実験的に証明されつつあり、この事実は超重元素存在の可能性を示唆するデータとして注目されている。

一方重核特有の性質である核分裂、特に自発核分裂収率に関しても興味ある結果が得られつつある。当初 Fm やメンデレビウム (Md) などの重アクチノイド核の自発核分裂で、中性子や陽子数の変化とともに、核分裂収率曲線が二つ山から一つ山へと急激に変化することが実験的に示された [13]。この現象が最近 104 番元素の自発核分裂収率でも確認されつつある [14]。この現象の解釈としては、核分裂片の殻構造や、核分裂障壁とくに非対称核分裂収率に関与していると考えられ

4 超アクチノイド元素の化学的性質

超アクチノイドを含む重元素の化学的研究では、重原子系における相対論的效果に大きな関心を持たれている。重原子の内殻電子の速度は、大きな原子核電荷との相互作用により通常の原子の場合と比較して非常に速くなり、相対論的效果を考慮しなければならない。このため、質量が大きくなり軌道収縮が生じた内殻電子により、原子核電荷の影響が遮蔽され、外殻の電子軌道が膨張して非相対論的な場合とは異なる電子配置をとることが予想されている [16, 17]。

例えば周期表第 V 族のニオブ (Nb)、タンタル (Ta) 及び第 V 族に属するであろうと期待される 105 番元素について、外殻電子の結合エネルギーを相対論的效果を導入して計算すると、非相対論の場合と比べて、105 番元素では 7s と 6d 軌道電子のエネルギー準位が逆転することが予測されている。この効果は、図 6 に示すように臭化物の揮発挙動に大きな違いとして反映される [18]。ここでは蒸気圧と温度の関数で示してあるが、軽い同族の NbBr_5 や TaBr_5 に比べて $[\text{105}]\text{Br}_5$ は大きな揮発度を示すことがわかる。このように周期表の軽い同族元素の延長から予測される化学的性質と著しい違いを観測することで相対論的效果の検証を行うことができる。超アクチノイド元素の化学的性質に関する最近の研究成果は総説にまとめられている [19, 20] ので、ここでは代表的な実験例を、気相及び液相に関して一例ずつ取り上げて紹介する。

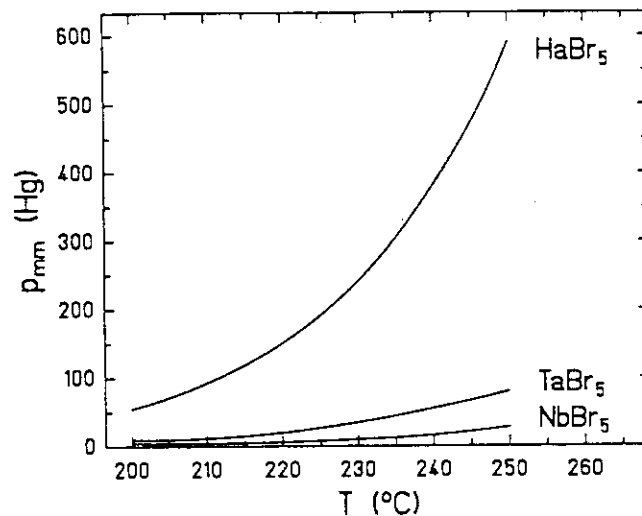


図 6 第 V 族元素の臭化物の揮発度。[105]Br₅ は相対論的效果に基づく計算値 [18]。ここでは 105 番元素をハーンニウム (Ha) として記述してある。

等温ガスクロマトグラフを用いた気相迅速化学分離法の実験例を図 7 に示す [22, 23]。これは OLGA (On-Line Gas Chemistry Apparatus) と呼ばれる装置でガスジェット法で搬送されてきた生成物は、ガスクロマトグラフ入口の高温部でクラスターエアロゾルから分解され、ハロゲンガスと反応し揮発性のハロゲン化物を生成する。そして一定温度に設定されたガスクロマトグラフへと導入される。ここで分離された揮発性化合物はリクラスターチェンバー内で再度クラスターエアロゾルに付着して測定系へと導かれる。本装置では半減期 1-4 秒程度の核種の分析を可能にしている。測定系では半導体検出器を用いて核種から放出される α 線エネルギーや自発核分裂の運動エネルギーを測定するとともに、生成核の崩壊系列を調べることで、核種の同定ならびに半減

期を求めている。

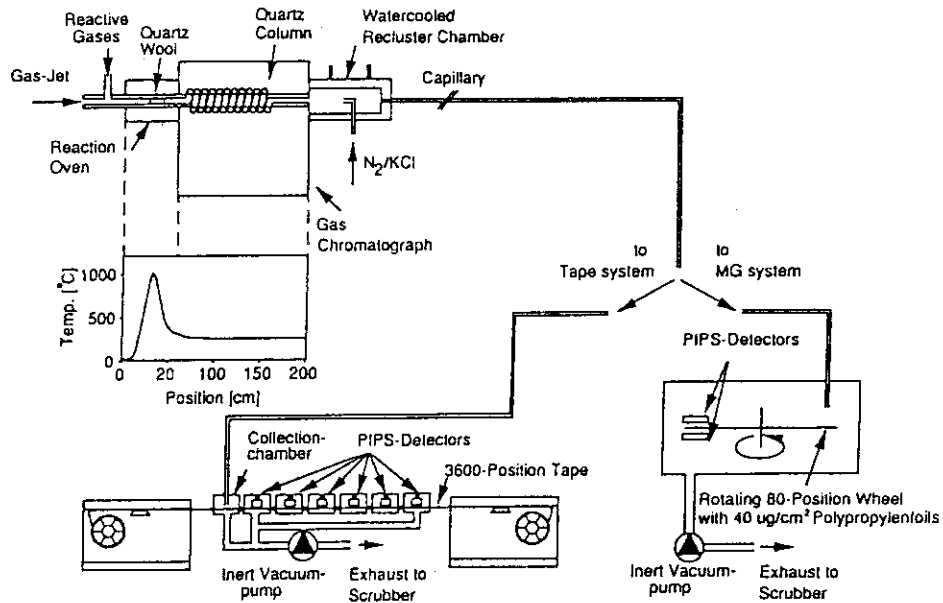


図7 気相迅速化学分離装置 OLGA (On-Line Gas Chemistry Apparatus) 及び検出器系の概要 [22].

気相反応に基づく 105 番元素の化学挙動の結果を図 8 に示す [23, 24]. $^{249}\text{Bk}(^{18}\text{O}, 4, 5n)$ 反応を用いて比較的長寿命の $^{263}\text{105}(t_{1/2}=27 \text{ 秒})$ と $^{262}\text{105}(t_{1/2}=34 \text{ 秒})$ を合成し、臭化物の揮発挙動が調べられた。Nb と Ta の臭化物は同じような揮発挙動をとるが、105 番元素の臭化物は低い揮発度を示すことがわかる。しかしこれは図 6 で示した相対論的予測とは逆の結果となっており、単純な臭化物ではなく、 $[\text{105}]\text{OBr}_3$ を形成している可能性も指摘されている。計算でも 105 番元素は Nb や Ta 元素よりもオキソ臭化物をより形成しやすいことが予測されているが結論はまだ得られていない。これまでの実験では軽い元素の化学挙動を基に超アクチノイドのハロゲン化物の化学種を類推しているが、今後は質量分離法などを組み合わせて、直接化合物を同定するような実験系の開発が望まれる。

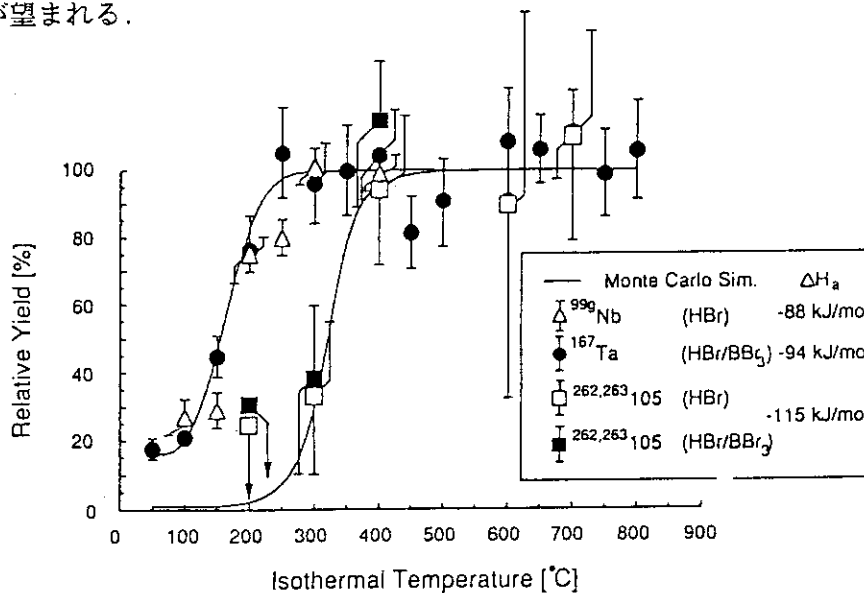


図8 等温ガスクロマトグラフにおける温度と Nb, Ta, [105] 臭化物の相対収率に関する関係。 ΔH_a はモンテカルロシミュレーションに基づく吸着エンタルピーの計算結果 [23, 24].

次に ARCA(Automated Rapid Chemistry Apparatus)[25] と呼ばれる液体クロマトグラフ分離に基づく迅速化学分離装置を用いて行われた 105 番元素の液相化学挙動の例を示す。ここでは 105 番元素とともに第 V 族元素 Nb, Ta 及び擬似第 V 族元素プロトアクチニウム (Pa) の陰イオン交換体 TIOA(チオオキソアミン) カラムからの分離条件が 塩酸-フッ酸系で検討された (図 9)。105 番元素 (縦棒で示してある) は Nb, Pa 元素と似た挙動をとり、最も近いであろうと予測される Ta とは全く違うことがわかる。Nb, Pa は $[\text{NbOX}_4]^-$ ($X=\text{Cl}, \text{F}$) タイプのオキソハロゲン化物を形成し、Ta は強い共有結合性のハロゲン化物 $[\text{TaX}_6]^-$ を形成することが知られている。このことから 105 番元素は Nb, Pa と同じくオキソハロゲン化物を形成していると結論づけられている [26]。

その他 104 番元素に関しては、気相系では揮発度が同族の Zr と Hf の中間的な性質を示し、液相では Zr^{4+} や Hf^{4+} よりもむしろ Pu^{4+} に似た挙動を示すことが調べられている [19, 20]。最近 106 番元素の化学挙動実験が GSI グループを中心に開始された。この場合は $^{248}\text{Cm}(^{22}\text{Ne}, 5n)$ 反応で生成する $^{265}_{106}$ (約 7 秒) を対象に気相、液相実験が行われている。ARCA を用いた液体クロマトグラフ実験では、0.1 M HNO_3 - 5×10^{-4} M HF 溶液系で最も安定な酸化状態は 6+ で、 $[[106]\text{O}_4]^{2-}$ のような陰イオンのオキソ化合物を形成している可能性が示唆されている [12]。気相系の実験 [11] も始まっており、今後の成果が待たれる。

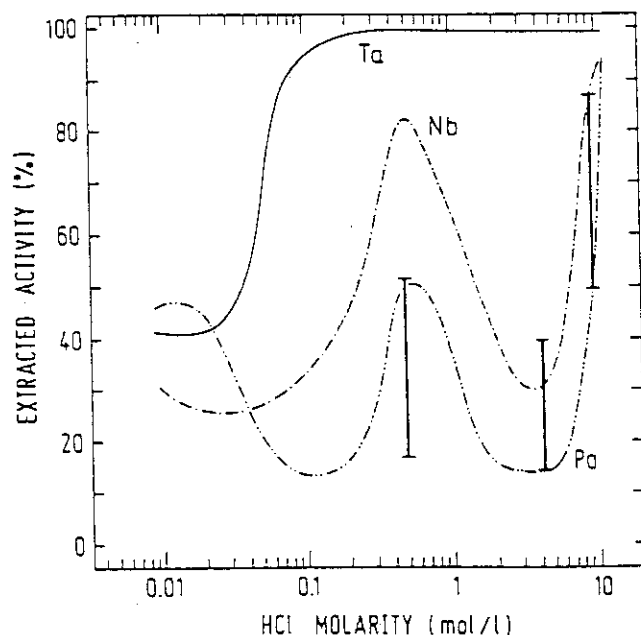


図 9 TIOA-HCl/0.03 M HF 系における Nb, Ta, Pa, 105 番元素の塩酸濃度と抽出率の関係。縦軸は 105 番元素の上限、下限を示す [26]。

このように超アクチノイド元素の化学研究は、まだ最近開始されたばかりでようやくデータが出始めたところでもあり、まだ相対論的効果を議論できる状況にはいたっていないが、6d 遷移元素としての性質は徐々に解明されつつある。

5 おわりに

超重元素を含む超アクチノイド元素の合成は周期表 (核図表) の極限への挑戦であると同時に、核的・化学的研究はそれら生成元素 (核種) を同定する上では欠かせない情報を与える。極限領

域の元素合成は、実験技術の飛躍的な進歩によりわずか数個の原子の生成でも既知の原子核の情報と崩壊系列から生成原子核を確認できる段階に達している。しかし化学的性質に関しては、分離した後の化合物の化学種決定など、まだ未知の部分が多く残されており、これからの進展が期待される。また、超重元素や化学分離分析を適用できるより長寿命の原子核は中性子過剰領域に期待されている。既存の安定核ビームではこのような領域には到達できなく、中性子過剰な放射性ビームの利用に向けた実験技術の開発が必要となっている。

参考文献

- [1] Seaborg, G.T. : Chem. Eng. News **23**, 2190 (1945).
- [2] Flerov, G.N., Ter-Akopian, G.H. : Rep. Prog. Phys. **46**, 817 (1983).
- [3] Liu, Y.F. : 私信 (1997).
- [4] Hofmann, S., et al. : Z. Phys. **A350**, 277 (1995).
- [5] Hofmann, S., et al. : GSI Nachrichten **02-95**, 4 (1995).
- [6] Hofmann, S., et al. : Z. Phys. **A350**, 281 (1995).
- [7] Hofmann, S., et al. : Z. Phys. **A354**, 229 (1996).
- [8] Möller, P., Nix, J.R. : J. Phys. G: Nucl. Phys. **20**, 1681 (1994).
- [9] Smolańczuk, R. et al. : Phys. Rev. C **52**, 1871 (1995).
- [10] Lazarev, Yu.A., et al. : Phys. Rev. Lett. **73**, 624 (1994).
- [11] Türler, A. : Proc. Int. Workshop XXIV on Gross Properties on Nuclei and Nuclear Excitation, Hirschegg, Jan. 15-20, 1996, p.29.
- [12] Schädel, M., et al. : Radiochim. Acta, in press.
- [13] Balagna, J.P., et al. : Phys. Rev. Lett. **26**, 145 (1971).
- [14] Lane, M.R. : Phys. Rev. C **53**, 2893 (1996).
- [15] Randrup, J., et al. : Phys. Rev. C **13**, 229 (1976).
- [16] Fricke, B., Greiner, W. : Phys. Lett. **30B**, 317 (1969).
- [17] Pershina, V., et al. : J. Alloys and Comp. **213/214**, 33 (1994).
- [18] Pershina, V., et al. : J. Chem. Phys. **97**, 1116 (1992).
- [19] Kratz, J.V. : J. Alloys and Comp. **213/214**, 20 (1994).
- [20] Schädel, M. : Radiochim. Acta, **70/71**, 207 (1995).
- [21] Gäggeler, H.W., et al. : Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. **A309**, 201 (1991).

- [22] Gäggeler, H.W. : J. Radioanal. Nucl. Chem. **183**, 261 (1994).
- [23] Türlér, A. : Radiochim. Acta, **72**, 7 (1996).
- [24] Schädel, M., et al. : Radiochim. Acta, **48**, 171 (1989).
- [25] Zimmermann, H.P., et al. : Radiochim. Acta, **60**, 11 (1993).

15. オクロ天然原子炉の地球化学的特徴と核化学的特性

日高 洋

(広島大学理学部地球惑星システム学科)

[はじめに]

1956年黒田和夫博士は地球化学的・核化学的見解から「天然原子炉理論」を説いた。天然におけるウラン鉱床を20億年以上前に形成されたものと仮定して、ウラン鉱床の生成過程に天然水が関与していたとすると、水とウランの比率によっては中性子増倍率が1以上になり、いわゆる核分裂の臨界に達することがあり得るといえるものである。半減期から逆算すると、20億年以上のウラン鉱床はウラン同位体中の ^{235}U の比率が相対的に3.5atomic %以上を占め、現在の濃縮ウラン並の組成を持っている。大規模なウラン鉱床は堆積性のものが多く、天然水に溶出した可溶性のウラン種(UO_2^{2+})が堆積物中の有機物に固定・還元されて不溶性のウラン種(UO_2)となって濃集していくことから、ウラン鉱床生成の過程においては十分な水の存在はあり得ることである。さらに、ウラン鉱床内に核分裂連鎖反応の妨げとなるような中性子毒となる元素が少なければ少ないほど中性子は有効に使われることができ、連鎖反応が円滑に進むことになる。このような条件が偶然にも全て整ったウラン鉱床が実存していた。アフリカ・ガボン共和国のウラン鉱床である。

中央アフリカの赤道直下に位置するガボン共和国の南東にあるフランスヴィル盆地には6つのウラン鉱床がある。その中のオクロ、オケロポンド、バゴンベ鉱床の一部には、今から約20億年前に核分裂連鎖反応を起こした「原子炉ゾーン」と呼ばれている箇所が存在する。1972年にフランス原子力庁によってオクロ鉱床内で最初の原子炉ゾーンが発見されて以来、現在に至るまでに16の原子炉ゾーンが発見されている。その間、オクロに隣接するウラン鉱床オケロポンドで1箇所、オクロから南東に約30km離れたバゴンベ鉱床で1箇所の原子炉ゾーンが発見されている。

1991年よりフランス原子力庁(CEA)が中心となりオクロ鉱床・バゴンベ鉱床の地球化学的研究が開始されている。主な目的は、原子炉ゾーン内に多量に存在している核分裂生成物が長期的にどのような地球化学的挙動をしてきたかを調べることにある。これまでの研究の中からオクロ鉱床の地球化学的特徴・核化学的特性をここでまとめてみたい。なお、本文中の一部はRADIOISOTOPES, Vol.46, No.2,p96-107にある総説「安定同位体から見た天然原子炉の地球化学的特徴と核化学的特性」に記載されている内容と重複があることをあらかじめご了承ください。

[地球化学的特徴]

オクロ鉱床のあるフランスヴィリアン盆地は先カンブリア紀の花崗岩を基盤岩に、下層から砂岩(通称FA層)、黒色頁岩(同FB)、泥岩(FC)、凝灰岩(FD)、火砕質砂岩(FE)を主とする5つの堆積層から成る(図1)。ウランが濃集している部分はFA層上部およびFB層下部にある。通常、ウランは4価、6価の原子価をとりやすく、しかも前者は不溶性、後者

は水溶性という全く異なる化学的性質を示す。すなわち、ウランは酸化的雰囲気では水溶性、還元的雰囲気では不溶性を示すと言える。20~23億年前においては地球表層の大気中の酸素分圧がある程度まで上昇し、ある程度の酸化雰囲気が保たれる場所ではそれまで存在が困難であった水溶性のウラン種の存在が可能となった。溶出したウラン種(UO_2^{+2})は砂岩や黒色頁岩などの堆積岩中に含まれる有機物に接触することで還元され、水に溶けにくいウラン種(UO_2)となり比較的大規模に濃集していったと考えられる。

約20億年前のウランの同位体組成は現在核燃料として使用されている濃縮ウランの組成とほぼ同じ(^{235}U の相対存在度が約3.5%)であったと考えられる。つまり、オクロ鉱床が原子炉となり得た時期がそれにあたる。さらにオクロをはじめとするこの周辺のウラン鉱床は堆積性ウラン

鉱床であったため、天然水が大きく関与する系におかれていた。つまり、核分裂の臨界に達する条件が揃っており、中性子の減速剤としての大量の水が存在していた。また、一般的にウラン鉱床は多量に希土類元素を含むことが知られているが、希土類元素には ^{149}Sm , ^{155}Gd , ^{157}Gd をはじめ中性子捕獲反応断面積の大きな核種が多いため、これらは中性子吸収剤(中性子毒)として作用しやすい。しかし、オクロ鉱床はその化学的特徴のひとつとして一般のウラン鉱床と比べて希土類元素の存在度が低く、特にSm, Gdといった中希土類元素の存在度が低い。

図2にオクロ鉱床と他のウラン鉱床(オーストラリア北部ナバルレク)の希土類元素存在度パターンを示した。両者の希土類元素存在度に大きな違いが見られることがわかる。原子炉ゾーン内で発生した中性子は天然水の関与のもとで減速され、しかも中性子毒に妨害されることなく効率よく

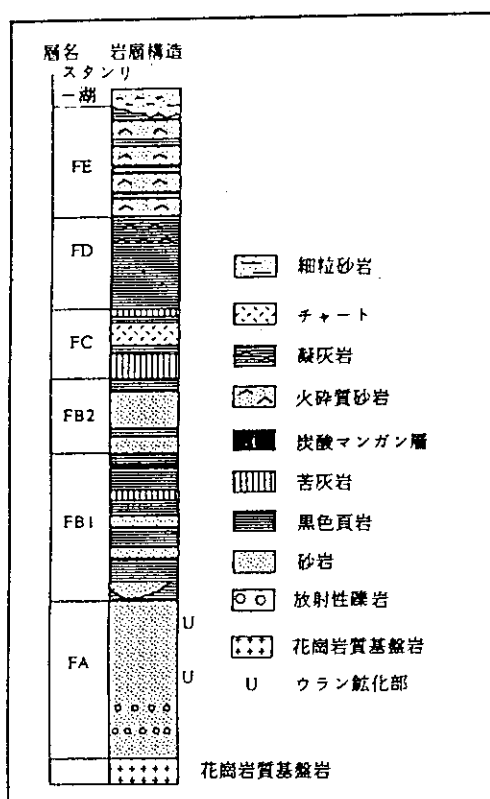


図1. フランスヴィル盆地の堆積層の断面図

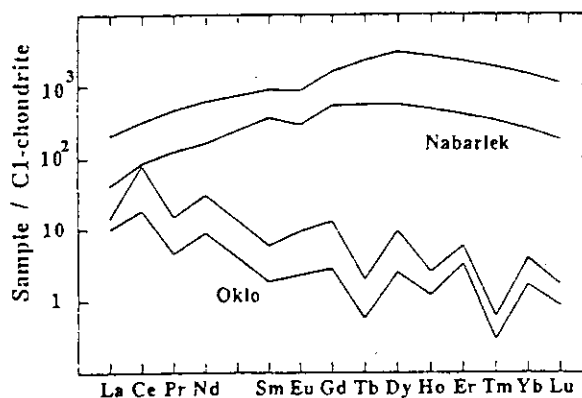


図2. オクロ鉱床とナバルレク鉱床の希土類元素パターン
各定量値はClコンドライト隕石の値で規格化してある

核分裂連鎖反応がすすんだと考えられる。オクロ鉱床では複数回にわたるウランの溶出・還元・濃集が繰り返され、堆積層中でウランの天然精製がなされ、その間にウラン-希土類元素の化学分別が起こり、希土類元素存在度の比較的少ないウラン鉱床が生成されていったと思われる。

以上オクロ鉱床の地球化学的特徴を総括すると、(i)大規模なウランの濃集がある、(ii)当時は現在の濃縮ウラン並みの ^{235}U 存在度であった、(iii)天然水の関与があった、という20億年前の堆積性のウラン鉱床の典型的な特徴に加え、(iv)希土類元素存在度が低い、というオクロならではの特徴が加わり、これらの要因が全て偶然に重なったために天然原子炉として存在し得たと考えられる。

[核化学的特性]

天然原子炉内で起こったであろう核反応のサイクルを図3に示す。原子炉内で起こった核反応は主として核分裂生成反応、中性子捕獲反応であり、そのために原子炉ゾーン内の元素の安定同位体組成は大きく変動している。元来鉱床内に存在していた異常のない同位体組成を持った元素に核分裂生成による組成を持った元素が加わり、同時に中性子捕獲反応が起こり、大きな中性子捕獲反応断面積を持った核種の存在度は極端に小さくなる。このように、天然中に存在する一般の物質中の元素安定同位体組成と天然原子炉内のそれとは大きく異なり、原子炉内での反応が激しいほどその異常は大きくなる。したがって、原子炉ゾーンにおける元素の安定同位体組成に着目することにより過去20億年前に起こった核反応のスケールについて推定することができ、ゾーンがどのように原子炉として機能していたかのキャラクタリゼーションを行うことができる。天然原子炉のキャラクタリゼーションに用いるパラメータは以下の通りである。

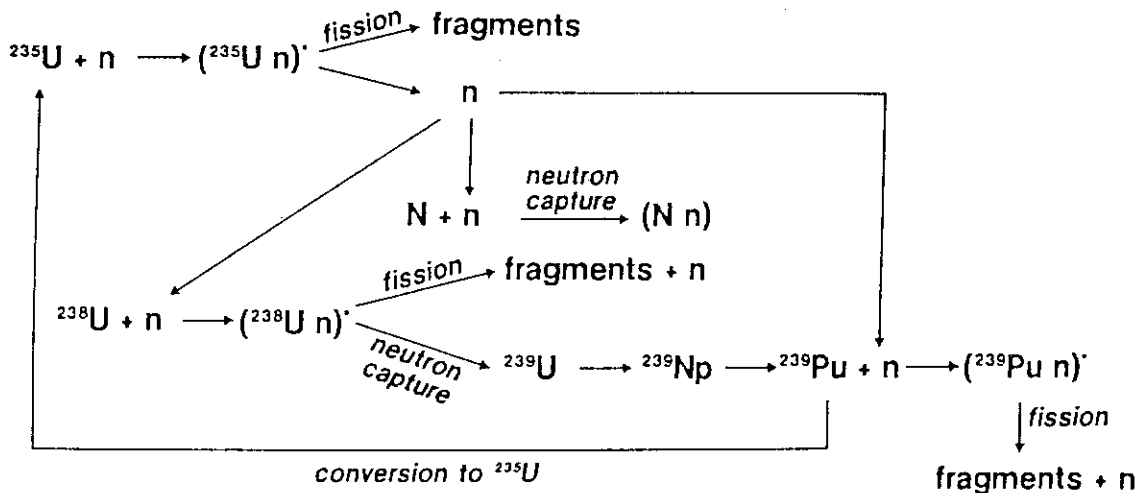


図3. 天然原子炉内で起こったと考えられる核反応サイクル

(1)核分裂性核種の全核分裂に対する寄与率

原子炉ゾーンにおいて核分裂を起こす主な核種は ^{235}U であるが、その他に ^{238}U 、 ^{239}Pu の2核種も核分裂を起こすことが考えられる。したがって原子炉ゾーン内のそれぞれの核分裂生成核種は ^{235}U 、 ^{238}U 、 ^{239}Pu による核分裂生成物が混じりあったものと考えてよい。図4に ^{235}U 、 ^{238}U 、 ^{239}Pu の核分裂生成収率曲線を示す。核分裂性核種の違いによって収率曲線は異なることがわかるが、特に曲線の極大から極小にかけての部分 (peak to valley)における核種の収率は大きく異なることがわかる。この部分に属する元素としてRu, Pd, Teが挙げられる。さらに都合のよいこ

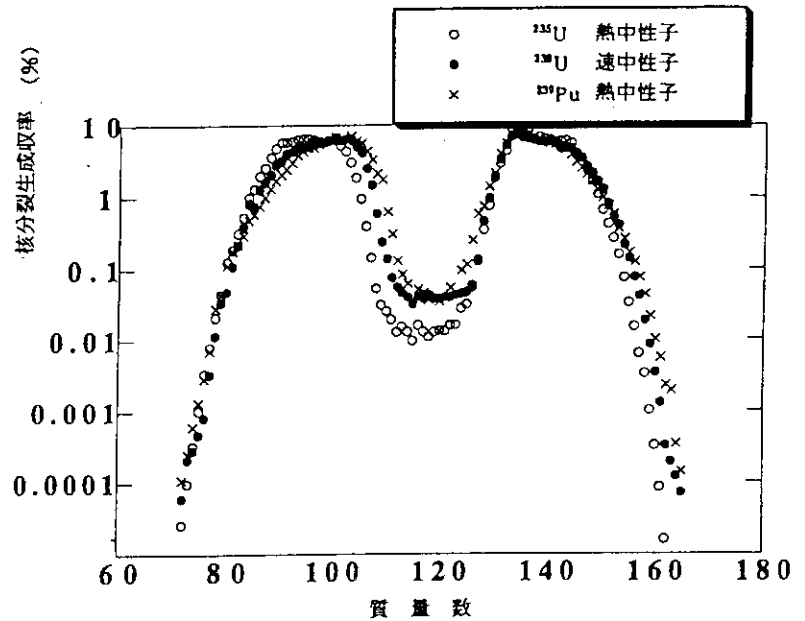


図4. ^{235}U 、 ^{238}U 、 ^{239}Pu の核分裂収率曲線

とにRu, Pd, Teの一般の地殻物質中の存在度は数ng/g(ppb)以下と極めて低いので、原子炉ゾーンの試料から検出されるこれらの元素はほとんど核分裂生成物である。したがってRu, Pd, Teの同位体比を測定することで ^{235}U 、 ^{238}U 、 ^{239}Pu それぞれの核分裂全体に対する割合を見積もることが可能となる。

以下にRuの同位体比を例にとってその割合の見積もりを示す。

Ruには ^{96}Ru 、 ^{98}Ru 、 ^{100}Ru 、 ^{101}Ru 、 ^{102}Ru 、 ^{104}Ru の7つの安定同位体が存在する。このうち核分裂生成されるのは ^{98}Ru 、 ^{101}Ru 、 ^{102}Ru 、 ^{104}Ru の4核種であるが、天然原子炉内では $^{99}\text{Ru}(n, \gamma)^{100}\text{Ru}$ あるいは $^{99}\text{Tc}(n, \gamma\beta)^{100}\text{Ru}$ という反応により、わずかながら ^{100}Ru も存在する。 ^{99}Ru は安定核種となる前に比較的長寿命の ^{99}Tc (半減期)を経験するため、原子炉内における酸化還元雰囲気の違いに応じてRu-Tc間に化学分別を起こす可能性があり、核分裂起源 ^{99}Ru の存在度は必ずしも他の核分裂起源Ruの存在度と完全なコヒーレンスを保てない場合も生じてくる。したがって測定によって得られる $^{102}\text{Ru}/^{101}\text{Ru}$ 、 $^{104}\text{Ru}/^{101}\text{Ru}$ の二つの同位体比を用いて ^{235}U 、 ^{238}U 、 ^{239}Pu の核分裂全体に対する割合を見積もることを考える。 ^{238}U 、 ^{239}Pu の核分裂全体に対する割合を α 、 β とおく。このとき ^{235}U の割合は、 $1 - \alpha - \beta$ とおける。

$$^{102}\text{Ru}/^{101}\text{Ru} = [\rho_{235} \cdot (1-\alpha-\beta) + \rho_{238} \cdot \alpha + \rho_{239} \cdot \beta] / [\rho'_{235} \cdot (1-\alpha-\beta) + \rho'_{238} \cdot \alpha + \rho'_{239} \cdot \beta]$$

$$^{104}\text{Ru}/^{101}\text{Ru} = [\rho''_{235} \cdot (1-\alpha-\beta) + \rho''_{238} \cdot \alpha + \rho''_{239} \cdot \beta] / [\rho'_{235} \cdot (1-\alpha-\beta) + \rho'_{238} \cdot \alpha + \rho'_{239} \cdot \beta]$$

上記において ρ_{235} 、 ρ_{238} 、 ρ_{239} はそれぞれ ^{235}U 、 ^{238}U 、 ^{239}Pu の ^{102}Ru に対する核分裂収率を、同様に ρ'_{235} 、 ρ'_{238} 、 ρ'_{239} および ρ''_{235} 、 ρ''_{238} 、 ρ''_{239} は ^{101}Ru 、 ^{104}Ru に対する収率を表わす。

この2つの連立一次方程式を解くことにより未知数 α , β を得ることができる。

(2)核分裂反応を起こしていた期間

天然原子炉が機能していた期間 Δt については、 ^{235}U の原子数の時間変化に着目する。 ^{235}U は消耗する一方、原子炉内の ^{238}U の中性子捕獲反応で生じる ^{239}Pu の α 壊変によって生成される。

$$dN_{235}/dt = -(1-C)N_{235} \cdot \sigma_{235} \cdot \phi = -N_{235} \cdot \sigma_{235} \cdot \phi + N_{239} \cdot \lambda_{239}$$

N_{235} , N_{239} は ^{235}U , ^{239}Pu の原子数； C は ^{235}U が再生する割合； σ_{235} は ^{235}U の反応断面積； ϕ は中性子フラックス； λ_{239} は ^{239}Pu の壊変定数。

^{239}Pu も核分裂に対して寄与しており、その ^{235}U の核分裂に対する割合は

$$\beta / (1-\alpha-\beta) = N_{239} / N_{235} \cdot \sigma_{f239} / \sigma_{f235}$$

となる。これらを考慮に入れて

$$\Delta t = \sigma_{f239} \cdot \sigma_{235} / \sigma_{f235} \cdot (1-\alpha-\beta) / \beta \cdot C \cdot \tau / \lambda_{239}$$

によって見積もることができる。ここで $\tau = \phi \cdot \Delta t$ を意味する。

(3)原子炉ゾーン内に発生した中性子の総量および中性子エネルギーのインデックス $1/v$ 則に従う核種の中性子捕獲反応断面積はWestcott(1958)の近似式により

$$\sigma_{\text{eff}} = \sigma_0 \cdot (g+r) \cdot I$$

と表わすことができる。

ここで、 σ_{eff} , σ_0 , g , r , I はそれぞれ有効中性子捕獲反応断面積、熱中性子捕獲反応断面積、核種固有の補正係数、エピサーマルインデックス、共鳴積分を意味する。

中性子捕獲断面積を中性子エネルギーに関する一次式としていくつかの核種について中性子捕獲反応に由来する同位体組成の変動を利用し、 $^{143}\text{Nd}(n, \gamma)^{144}\text{Nd}$, $^{145}\text{Nd}(n, \gamma)^{146}\text{Nd}$, $^{147}\text{Sm}(n, \gamma)^{148}\text{Sm}$ によって中性子フラックス ($\text{n}/\text{cm}^2 \cdot \text{s}$)の総量 (n/cm^2 : 中性子フルエンス)を見積もることが可能となる。上記の反応系を組み合わせ、図5に示すように中性子フルエンスとエピサーマルインデックスのダイアグラムにプロットすることで両者の最適値が求められる。

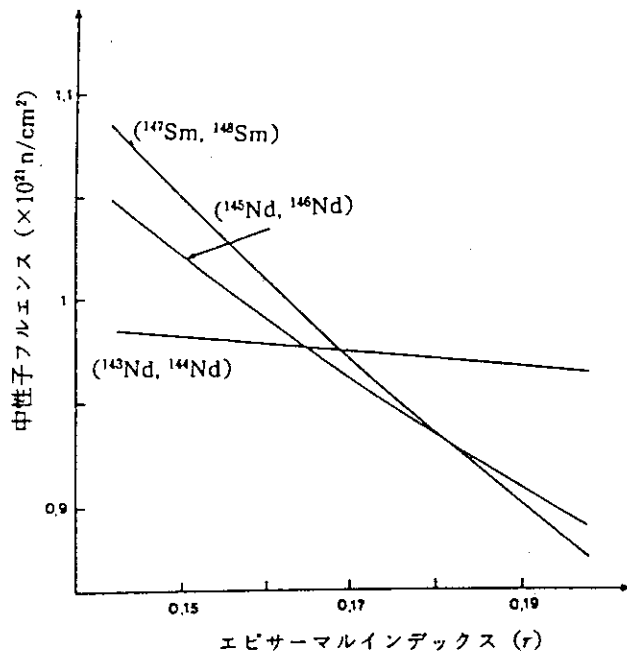


図5. 中性子フルエンスとエピサーマルインデックスのダイアグラム
各反応により求められる交点が最適値と考えられる

その他、 $^{155}\text{Gd}(n, \gamma)^{156}\text{Gd}$, $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)^{158}\text{Gd}$ あるいは $^{162}\text{Dy}(n, \gamma)^{163}\text{Dy}$ の中性子捕獲反応を利

用した中性子フルーエンスの見積り方法もある。

(4)原子炉内の平均反応温度

図6に示すように ^{176}Lu は、作用する中性子のエネルギーによってその中性子捕獲反応断面積を大きく変えるという核的性質を持つ。 ^{176}Lu の中性子捕獲反応 $^{176}\text{Lu}(n, \gamma)^{177}\text{Lu}$ に伴うLu同位体組成の変動を求めることによって原子炉ゾーン内部での中性子のエネルギーすなわち反応温度を推定することが可能となる。また、原子炉内にある粘土鉱物イライト、クロライト、カルサイトの酸素同位体比の変動からも反応温度を見積もることができる。Luならびに酸素同位体比から見積もられた原子炉内の平均温度は200~300°Cであるが、原子炉ゾーンによっては温度の見積もりができない部分もある。この理由としては、(i)原子炉ゾーン内でLuが部分的に移動を起こし同位体平衡が保たれていない、(ii) ^{176}Lu の中性子捕獲反応断面積の温度依存性に関する核的データが特に500°Cを超える高温領域において信頼性に欠ける、などが考えられる。

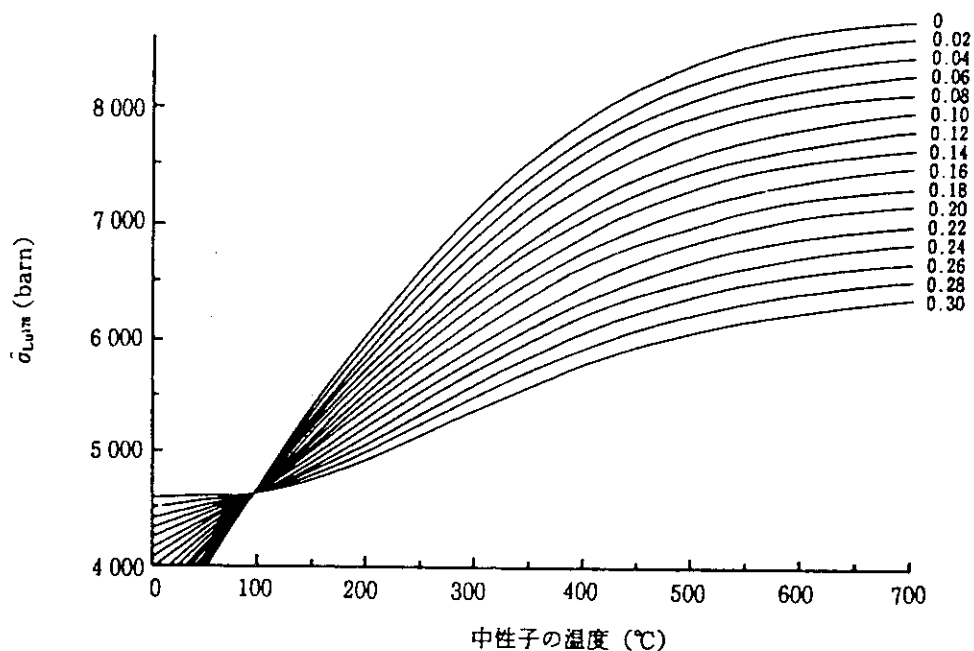


図6. ^{176}Lu の中性子捕獲反応断面積の温度依存性

中性子捕獲反応断面積の温度による変化をエピサーマルインデックス(β)の違いごとに示した

以上の方法によって見積もった各パラメータを原子炉ゾーンごとにまとめて表1に示す。必ずしも均一な核分裂連鎖反応が起こっていたわけではなく、原子炉ゾーンによってその特性が異なっていることがわかる。したがって原子炉ゾーン内で生成された核分裂生成核種の地球化学的挙動を調べるにあたっては、各原子炉の特性を把握したうえで、原子炉の置かれていた状態と核分裂生成核種の保持の度合いとの関連性を知ることが重

表1. 原子炉の特性を表すパラメーター

Sample	KN50-3548	SC55-1852	KN245-2674	SF84-1492	SD37-S2/CD	BA145 TER
Reactor zone	2	3	5	10	13	Bangombe
$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	0.004650	0.006940 \pm 8	0.006703 \pm 7	0.005793 \pm 18	0.004630 \pm 6	0.006616 \pm 16
U content (wt. %)	55.2	48.0	50.7	24.3	59.4	45.0
Fission proportion						
^{235}U ($1-\alpha-\beta$)	0.945	0.945	0.950	0.924	0.749	0.923
^{238}U (α)	0.025	0.025	0.025	0.049	0.179	0.042
^{239}Pu (β)	0.030	0.030	0.025	0.027	0.072	0.035
Duration time ($\times 10^5$ yr)	8.00	2.00	1.70	1.98	0.242	
Neutron fluence ($\times 10^{21}$ n/cm 2)	1.25	0.12	0.20	0.564	0.780	0.308
Temperature ($^{\circ}\text{C}$)		290	360			
Restitution factor of ^{235}U (C)	0.490	0.45	0.38	0.382	0.111	0.484
Epithermal index (r)	0.183	0.130	0.122	0.155	0.241	0.196

要になってくる。オクロ鉱床においては特に原子炉ゾーン10についてボーリングによる詳細な試料採取が行われており、現在、原子炉特性と核分裂生成核種の保持の状態についてのデータがまとめられつつある。

[おわりに]

天然原子炉における安定同位体を中心とした研究は放射性廃棄物の地層処分に関するナチュラルアナログ研究を行ううえで基礎的かつ重要なデータを与えてくれるものである。また、日本原子力研究所の黎明研究課題の一つ「オクロ・ルネッサンス-物理定数の再検討」としてもオクロ研究は取り上げられ、物理学における基本定数の経時変化率を検討するうえで興味深い対象と考えられている。

16. E アレナの現状と計画

久保野 茂 (東大核研)

New ISOL-Based RNB Facility at INS: The Present and the Plan

S. Kubono, T. Nomura, S. Arai, M. Fujioka^{a)}, Y. Hashimoto, A. Imanishi, S. C. Jeong, I. Katayama, T. Katayama, S. Katob^{b)}, H. Kawakami, H. Masuda, T. Miyachi, H. Miyatake, K. Niki, M. Oyaizu, T. Shinozuka^{a)}, Y. Shirakabe, P. Strasser, Y. Takeda, J. Tanaka, M. H. Tanaka, E. Tojyo, N. Tokuda, M. Tomizawa, M. Wada, H. Wollnik^{c)}, K. Yoshida, M. Yoshizawa

Institute for Nuclear Study, University of Tokyo, Tanashi, Tokyo, 188 Japan.

- a) Tohoku University, Sendai, 980-77 Japan.
- b) Department of Physics, Yamagata University, Yamagata, 990 Japan.
- c) Department of Physics, Giessen University, Giessen, Germany.

Radioactive nuclear beams (RNB) of high intensity and good emittance is the key for the new radioactive beam facilities. We presented here the present status of the INS-RNB project^{1,2)}, of which setups is one of the first extensive facilities that equipped the ISOL + post accelerators, aiming at a high-quality RNB facility, and discussed research programs with the radioactive nuclear beams as well as a future plan of the project.

The absolute efficiency of the ion sources for radioactive nuclei is the key factor for the performance of the ISOL-based RNB facilities. The ECR ion source and the surface ionizing ion source have been successfully developed on line, especially for radioactive isotopes of K, Na, and Ne. The isotope separator and the 60-m long low-energy beam transport line have been assembled and tested. The efficiency of the beam transport is greatly improved recently nearly up to 90 % for the ions of 2 keV/u.

The first radioactive nuclear beam, $^{19}\text{Ne}^{2+}$ from the ISOL, was successfully accelerated by two linear accelerators middle of March, 1997, where the accelerators consist of Split-Coaxial RFQ Linac for the first stage and IH Linac for the second³⁾. The IH linac was completed recently, giving roughly the designed values in all aspects. The maximum energy attained was $E/A = 1.05$ MeV. The detailed tuning is in progress. The beam intensity of $^{19}\text{Ne}^{2+}$ was not so high in the first try, but is being developed in all stages from the ion source to the target of experiment.

The low-background gamma-ray detector system, consisting of a recoil mass separator and a well shielded NaI(Tl) detector, has been also completed for nuclear astrophysics experiments, and the tuning with the stable beams is in progress. Experimental feasibility of studying nuclear reactions of astrophysical interest is being studied, such as $^{19}\text{Ne}(p,\gamma)^{20}\text{Na}$ stellar reaction that is relevant to explosive hydrogen burning process⁴⁾.

A laser-spectroscopy setup is also completed for precision spectroscopy of unstable nuclei, specifically for investigation of Bohr-Weisskopf effect.

Other research capabilities of the facility and a possible extension to make up E-Arena⁵⁾, an extensive ISOL-based RNB facility, were also discussed, that uses the present facility for the first stage and add a second IH linac to boost up RNBs up to 6.5 MeV/u.

A detailed discussion will be found elsewhere^{2,5)}.

References:

- 1) T. Nomura, Proc. First Int. Conf. on Radioactive Nuclear Beams, ed. W.D. Myer, J.M. Nitschke, and E.B. Norman, World Scientific, 1990, 13.
- 2) S. Kubono, et al., Proc. Fourth Int. Conf. on Radioactive Nuclear Beams, ed. S. Kubono, T. Kobayashi, and I. Tanihata, Nucl. Phys. A616 (1996) 11c - 20c.
- 3) S. Arai, et al., to be published in Nucl. Instr. Meth.
- 4) S. Kubono, Prog. Theor. Phys. 96 (1996) 275.
- 5) E-arena in the JHF proposal, KEK report, 1997, to be published.

17. スポレーションRIの利用計画

池添 博 (原研先端基礎研究センター)

Abstract

The future plan for the applications of RI produced in the proton-induced spallation-reaction.

A plan of research facilities (transmutations of minor actinides and neutron scatterings for material and life sciences) has been proposed in JAERI. This plan is based on a proton lineac with an energy of 1.5 GeV and a beam current of several mA. Among these facilities, we are planning to accelerate neutron-rich radioactive nuclei (RI) produced in the fission and spallation reactions of thorium or uranium bombarded by the intense high energy proton beams. The RI produced in an ion source are separated by a high resolution isotope separator and their charge states are changed to be negative to inject into the existing tandem-booster accelerator. Main purpose of this plan is to study the nuclear and chemical properties of neutron rich transactinium elements not yet synthesized and the nuclear structures of neutron rich nuclei far from the nuclear stability line.

原研では放射性廃棄物消滅処理の基礎研究と中性子散乱研究を主目的にした大強度陽子加速器の建設を計画している。この計画の一部として、陽子ビームによる核破碎反応や中性子によるウランなどの核分裂反応で生成される中性子過剰な放射性同位体 (RI) をタンデム加速器で再加速して核物理や核化学等の基礎研究に利用することを考えている。この中性子科学研究施設 (図1) では1.5 GeVで数mAの陽子ビームを加速する。RIの生成には0.01-1 mAのビームを炭化ウラン等融点の高い物質に照射し、できた核種をイオン源でイオン化して取り出す。その後、高分解能の質量分離器で核種を分離した後、既存のタンデム加速器+ブースター加速器で加速する (図2)。

長さ20 cm程度の炭化ウランを1.5 GeV陽子ビームで照射すると核破碎反応と中性子による核分裂反応で質量数が60-160の中性子過剰核が大量に生成される (Snのアイソトープ分布を図3に示す)。この内、タンデムで加速できる粒子は負イオンになるものでなければならない。Cu、Ge、As、Ag、Sn、Pb等が高率良く加速できる粒子になる。大電流の陽子ビームで照射する場合は、放射線の強度が高くなるので標的部とイオン源部を分離し、生成されたRIはガスジェット搬送法でイオン源に移送してイオン化する。ガスジェット搬送法は現在タンデムの実験で利用されている。

このスポレーションRI (核破碎RI) 利用計画には中性子過剰核を使った重元素領域の核物理や核化学、中性子過剰核の構造や崩壊様式さらに中性子吸収確率等の研究、RIを物質中に埋め込み物質の性質を核物性の手法で研究する事などが含まれている。超アクチノイド領域の核種は現在40程度が知られている。この領域には原子番号114で中性子数184の超重核が殻構造的に準安定であると予想されている。現在、112番の中性子欠損核がGSI (ドイツ重イオン研究所) で合成に成功しているが中性子数は165で超重核の領域から離れている。中性子の多い超重核を合成するためには、中性子過剰核が必要である。中性子過剰核を使えば重イオン核融合反応で合成される確率が大きくなることも予想されている。重元素の核化学では、核が重くなることによる電子の相対論的效果で元素の性質が変化する可能性が言われている。現在、重元素の核化学は106番程度まで行われているが、中性子の多い長寿命の核種が合成される必要がある。

中性子過剰核は星の中での元素合成 (R-過程) に関係して重要である。この計画では中性子過剰核の崩壊特性や中性子吸収断面積の測定などが可能になる。また、中性子が多くなる事による核構造の変化、特にエキゾチックな変形状態や新マジック数の発現等も期待されている。

この中性子科学研究計画は平成19年度の完成を目指している。加速器の入射系・低エネルギー加速部のR&Dはすでに進行中である。スポレーションRI利用関連でも、正イオンを負イオンに変換する荷電変換装置を作り変換効率の測定に取り掛かっている。また、高放射線場での遠隔操作関係やRI加速上の問題点などの検討をすすめている。

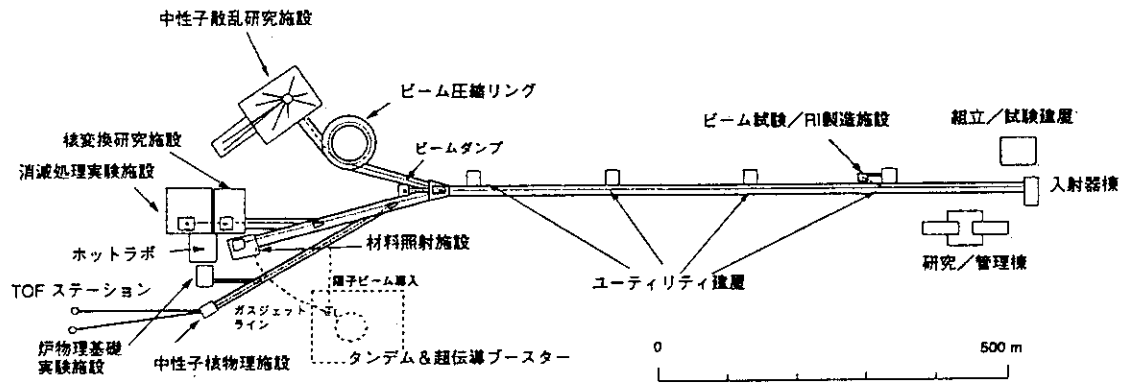
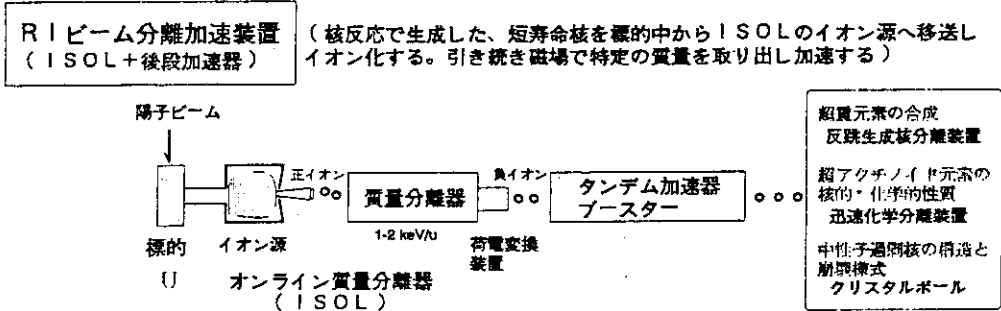


図1 施設配置案

図2 RIビームの取り出しと加速



- RIの取り出し**

 1. 陽子ビーム電流値 10 μA 程度での照射
標的内蔵型イオン源を使用
 2. 大電流陽子ビーム 10 μA ~1 mA での照射
標的部とイオン源は分離し、RIはガスジェット搬送法でイオン源部に輸送しイオン化する

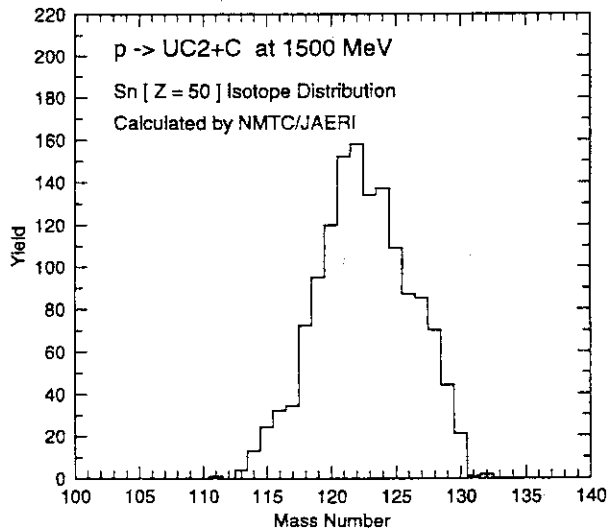


図3 1.5 GeV陽子ビームで炭化ウランを照射したときのSnのアイソトープ分布の計算結果。

付録

日本原子力研究所 第89回基礎科学セミナー
「重元素の核融合・核分裂」研究会プログラム

日時： 平成9年3月24日（月）～25日（火）

場所： 日本原子力研究所 東海研究所 第一研究棟1階 第7会議室

3月24日（月）

セッション1：新アイソトープ合成（1）

13：00～14：45 座長 宇野（文部省）

はじめに（5分）

伊達 宗行（原研先端基礎研究センター長）

原子核質量の推定と質量公式（40分）

橘 孝博（早大高等学院）

京大原子炉における新同位元素探索の成果と今後の展望（30分）

谷口 秋洋（京大原子炉）

原研高崎及び東海ISOLによる未知核種探索（30分）

浅井 雅人（名大原子核工学）

休憩（15分）

セッション2：核化学

15：00～16：10 座長 馬場（阪大）

超アクチノイド元素の核化学（30分）

永目 諭一郎（原研アイソトープ部）

オクログ天然原子炉の地球化学的特徴と核化学的特性（40分）

日高 洋（広大地球惑星科）

休憩（10分）

セッション3：将来計画

16：20～17：30 座長 森田（理研）

Eアレナの現状と計画（40分）

久保野 茂（東大核研）

スポレーションRIの利用計画（30分）

池添 博（原研先端基礎研究センター）

見学会（タンデムブースター加速器施設と反跳生成核分離装置）

17：30～18：00

懇親会（阿漕ヶ浦クラブ）

18：00～19：30

3月25日(火)

セッション4：新アイソトープ合成(2)

9:00~10:40 座長 永目(原研)

- 原研ガスジェットISOLを用いたEC崩壊する未知アクチノイド核種の探索 (30分)
 塚田 和明(原研アイソトープ部)
- 理研GARISを用いた重核合成と新同位元素探索の現状 (40分)
 森田 浩介(理研サイクロ研究室)
- JAERI-RMSを用いた重核合成と新同位元素探索の現状 (30分)
 生田 智彦(原研先端基礎研究センター)
- 休憩 (10分)

セッション5：核分裂

10:50~12:00 座長 岩本(原研)

- アクチノイド核分裂への実験的アプローチ (40分)
 馬場 宏(阪大理学部化学)
- 遅発核分裂 (30分)
 初川 雄一(原研アイソトープ部)
- 12:00~13:00
 昼休み (60分)
- 13:00~14:10 座長 和田(甲南大)
- 軽アクチノイド核の核分裂描像 (30分)
 大槻 勤(東北大原子核理学研究施設)
- 核分裂片と中性子の同時計測による熱中性子核分裂過程の実験的研究 (40分)
 西尾 勝久(京大工学研究科)
- 休憩 (10分)

セッション6：超重元素

14:20~17:30 座長 池添(原研)

- 重・超重元素領域での質量予測 (40分)
 宇野 正宏(文部省初等中等教育局)
- 密着核融合とその周辺 (40分)
 岩本 昭(原研先端基礎研究センター)
- 休憩 (10分)
- 中性子過剰核のバリア近傍での融合反応 (40分)
 吉田 敦(理研放射線研究室)
- 超重核合成の散逸動力学 (40分)
 和田 隆宏(甲南大理学部物理)
- 閉会のあいさつ
 池添 博(原研先端基礎研究センター)