

ラグビーボール型ウラン原子核の融合過程を解明

日本原子力研究所

物質科学研究部

西尾 勝久

nishio@popsvr.tokai.jaeri.go.jp

池添 博

ikezoe@popsvr.tokai.jaeri.go.jp

研究の背景

近年、アクチノイド原子核を標的とした反応において、クーロン障壁近傍での核分裂片の角度分布が盛んに測定されるようになった[1~8]。これは、クーロン障壁以下のサブバリヤエネルギー領域において、核分裂片の角度分布の異方性 $A = W(180^\circ)/W(90^\circ)$ がサドル点モデル (Transition State Model : TSM) [9] に比べて異常に大きな値を示し、この現象が研究者の興味をひいたためである。

さて、A. Bohr の核分裂モデル[10]によれば、核分裂ポテンシャルのサドル点上にも基底状態と同様な振動準位や 1 粒子準位が存在する。ひとたび、系がこの状態に遷移すれば、その後に原子核が核分裂して核分裂片が放出される方向が決まる。すなわち、核分裂片の角度分布 $W(\theta)$ は、サドル点でのスピン I と量子数 K (I の対称軸への射影) で特徴づけられる分布に従う。サドル点を越えて原子核が切断するまでの原子核のふるまいは、この角度分布になんら影響を与えない。この考えは、中性子、陽子、アルファ粒子などの軽粒子衝突で誘起される核分裂現象に適用され、成功を収めた。重イオン加速が行われるようになって、Back らはさまざまな重イオン反応に伴って放出される核分裂片の角度分布を調べた結果、入射粒子のエネルギーを高くすると、角度分布の異方性が TSM の予想値に比べて大きくなることを発見した[11]。この現象は、たとえば $^{28}\text{Si}+^{208}\text{Pb}$ や $^{32}\text{S}+^{208}\text{Pb}$ など、質量数が 24 より重い入射核による反応で観測された。これを解釈するために、Back らは大きい角運動量が持ち込まれると核分裂障壁が消えると考えた。核分裂障壁が消えるような大きい角運動量領域では複合核が形成されても平衡状態になる前に

すぐ分裂するであろう。したがって、観測される核分裂片の多くは非平衡状態にある複合系から分裂した破片であると考えた。このような反応を fast-fission (速い核分裂) という。この fast-fission に伴って核分裂片が飛び出す方向は、TSM で予想される分布より大きな異方性を示すと解析した。

TSM で説明できない核分裂現象が、質量数が 24 より軽い入射核とアクチニド標的との反応で生成される核分裂片の角度分布の測定で見つかった。角度分布の異常が見つかった例として、Hinde らが測定した $^{16}\text{O}+^{238}\text{U}$ のデータを図 1 に示す。横軸は重心系のエネルギーを表す。説明のため、図 1(a) に核分裂断面積を示す。また、この断面積から決定された融合障壁の分布を図 1(b) に示す。図(c) が角度分布の異方性 A であるが、この図から明らかかなように、融合障壁より十分高いエネルギー領域では核分裂片の角度分布は TSM の予想値に近づく (実線) もの、クーロン障壁より低いサブバリアー領域では、エネルギーが低くなるにつれて TSM の予想値からずれて大きな値を示す。この反応では、核分裂障壁が消滅するほど大きい角運動量は持ち込まれないので、複合核の核分裂障壁は存在している。Hinde らは ^{238}U がラグビーボール型に変形していることに着目し、サブバリアー領域で生成される核分裂片の多くは、複合核を形成することなく分裂した破片であると考え、この現象を解釈した。1次元障壁透過モデルによれば、融合障壁を通過する断面積¹と融合障壁の分布は、 ^{238}U の変形を考慮しない場合それぞれ点線で表した値を与え、明らかに実験値とは異なっている。(a)と(b)の実線は、筆者らが ^{238}U の変形を取り入れて計算した結果であり(後述)、 ^{238}U の変形の効果がサブバリアー領域で顕著に現れている。先端部衝突 ($\theta = 0^\circ$ 近傍) により、障壁分布が低エネルギー側に成長するのがわかる。このため、サブバリアー領域における融合断面積が 3 桁近く増加する。角度分布の異常は、サブバリアー領域、すなわち、先端部衝突で起こっているのがわかる。この比較から、Hinde らは、サブバリアー領域の反応は、 ^{16}O が ^{238}U の先端部と衝突することによって起こるが、このような配置から反応がスタートすると、たとえ融合障壁を通過しても、その後に複合核を形成することができず、途中から原子核が分裂する方向へ反応が進行すると考え、これを角度分布の異常の原因と考えた。このような反応を quasi-fission (準核分裂) という。複合核を形成することなく分裂するという意味においては Back らの考えと共通しているが、 $^{16}\text{O}+^{238}\text{U}$ 反応系で異なるのは、複合核の核分裂障壁は消えていない点である。アクチニド原子核を標的としたときの角度分布の異常は、その他 $^{12}\text{C}+^{236}\text{U}$ 、 $^{16}\text{O}+^{232}\text{Th}$ 、 $^{19}\text{F}+^{232}\text{Th}$ 等で見つかっている。

しかし、核分裂片の角度分布測定だけから、平衡状態にある複合核の形成を伴う完全融合が起きるかどうかを結論することはできない。完全融合が起きるかどうかは証拠となる蒸発残留核を直接測定することが重要である。アクチニド原子核を標的とする反応

¹ 融合障壁を通過したのち、融合して複合核を形成すれば融合断面積とすることができるが、重イオン融合反応では、必ずしも複合核が形成されるとは限らない。

の蒸発残留核断面積の測定は古くからあるが、多くはクーロン障壁より高いエネルギー領域で行われ、サブバリア領域で詳細なデータがとられた例はない。本研究は、 $^{16}\text{O}+^{238}\text{U}$ のサブバリアエネルギー反応における蒸発残留核断面積を測定し、サブバリア領域での融合反応機構を明らかにするために行われた。実験では、フェルミウム同位体 ($^{248,249,250}\text{Fm}$) をサブバリアエネルギー領域にわたって詳細に調べた。

実験

実験は、日本原子力研究所のタンデム加速器施設で行われた。加速した ^{16}O をウラン標的に当てた。天然ウランを Be バッキング (1.7 mg/cm^2) に電着することで標的とし、厚さを ^{238}U 換算で $320 \text{ }\mu\text{g/cm}^2$ とした。ウラン試料に含まれる鉛不純物を取り除くため、試料はイオン交換法によって精製された。融合反応によってウラン標的から飛び出した Fm 同位体は、KCl エアゾールを含むヘリウムガス中に止められ (97 kPa)、ヘリウムガスジェットシステムで別の真空槽に搬送された。ここに α 崩壊を検出する回転円盤システム MAMON[12]が設置されており、崩壊数を測定することで反応率を決定した。搬送された生成物は、まず $120 \text{ }\mu\text{g/cm}^2$ のポリエステルフィルム上に捕獲される。これは、直径 80cm の回転円盤の周囲に、連続的に取り付けられている。150 秒ごとに順次、円盤を回転することで、捕獲部分は 18 個連続して並べられたシリコン PIN ダイオード検出器の直下に移動し、それぞれの検出器で α 線を検出した。18 個の検出器は、 ^{250}Fm (半減期 30 min) 崩壊曲線を描くために必要である。ガスジェットシステムの輸送効率を調べるため、 $^{16}\text{O}+^{197}\text{Au}$ で生成された ^{204}At をターゲット直後で捕獲して α 線を測定し、これをガスジェット搬送先での ^{204}At 捕獲量と比べた。その結果、輸送効率は 0.369 ± 0.019 であった。

図 2 に α 線のエネルギースペクトルを示す。図中の数字は、重心系でのエネルギーを表す。 $^{250}\text{Fm}(4n)$, $^{249}\text{Fm}(5n)$, $^{248}\text{Fm}(6n)$ の崩壊 α 線のエネルギーピークがはっきり区別できる。ここで括弧内の数字は複合核から蒸発する中性子数を示す。特に $E_{c.m.} = 73.5\text{MeV}$ はサブバリアエネルギーに相当するが、この領域でも ^{250}Fm が生成されている事がわかる。図 3 は、Fm 同位体の崩壊曲線を表す。得られた半減期は $20.1 \pm 8.0 \text{ m}$ (^{250}Fm)、 $1.95 \pm 0.25 \text{ m}$ (^{249}Fm) 及び $31.6 \pm 4.2 \text{ s}$ (^{248}Fm) であり、文献[15]の 30 m , 2.6 m , 36 s とほぼ一致している。

結果

実験結果を図 4 に示す。 $^{250}\text{Fm}(4n)$, $^{249}\text{Fm}(5n)$, $^{248}\text{Fm}(6n)$ ごとに断面積を示した。融合過程を考察するために、統計モデル計算を行った。まず、図 1 にすでに示したように、Hinde らが測定した核分裂断面積及び融合障壁の分布を再現できるように、融合断面積の計算を行った。この計算結果を図 4(a)と(b)の細線で示す。計算はチャンネル結合法による CCDEGEN コード[13]で行われた。このコードは、CCFULL コード[14]をベースにしている。融合過程における変形効果を取り入れるため、CCDEGEN は部分波 L と角度 θ に対

するトンネル確率 $P_L(E_{c.m.}, \theta)$ を計算する。反応エネルギー $E_{c.m.}$ に対するトンネル確率 $P_L(E_{c.m.})$ は、すべての入射角に対する積分で得られる。生成される複合核 ^{254}Fm は高励起状態にあり、仮に複合核が生成された場合、多くが核分裂として崩壊する。そこで、融合障壁を通過する断面積は核分裂断面積で近似できる。計算では、 ^{238}U の変形パラメータとして $(\beta_2, \beta_4) = (0.275, 0.05)$ [1] を用いた。また、 ^{238}U の 8 重極振動状態として、励起エネルギー 0.73 MeV [15]、変形パラメータ β_3 として 0.086 [16] を用い、2 光子状態まで考慮した。計算結果は、核分裂断面積及び融合障壁分布ともによく再現している。

CCDEGEN コードで得られた部分断面積 $\sigma(L)$ を、統計モデル計算コード HIVAP [17] に入力することで、蒸発残留核断面積を計算した。計算結果を太線で示す。計算値は、サブバリアエネルギー領域を含め、実験データをよく再現している。前述したように、サブバリアでの断面積の増加は、 ^{16}O が ^{238}U の先端部と反応することに起因する。そして、測定した蒸発残留核断面積は、先端部衝突も完全融合すると仮定した計算でよく再現される。すなわち、先端部衝突でも完全融合が起きていることが明らかである。

比較のため、Hinde の quasi-fission モデルにしたがって解析を行った [1]。これによれば、 ^{16}O の入射角 θ が $30^\circ \pm 5^\circ$ より小さい先端部衝突では、完全融合はおこらないとしている。そこで、計算では θ が 30° より小さい入射角度に対して $P_L(E_{c.m.}, \theta) = 0$ とした。これに相当する融合断面積と障壁分布を、図 4 の細い破線で示す。障壁分布に着目すると、低エネルギー側への広がり $E_{c.m.} = 77 \text{ MeV}$ で終端しているのがわかる。この計算による蒸発残留核断面積の値を太い破線で示す。エネルギーの高い領域では、実験値とほぼ一致するが、サブバリア領域では、実験値にくらべてはるかに小さな値を与え、実験値に合わない。

考察

アクチノイド原子核を標的とした核分裂片角度分布の異常を説明するために提案された quasi-fission モデルは、サブバリア領域では完全融合が起こらないとする。この考えは本研究で否定された。すなわち、サブバリアエネルギー領域における蒸発残留核断面積は ^{16}O と ^{238}U が完全融合すると考えて初めて説明できる。この実験結果は、すでに文献 [19] にまとめた。

A. Bohr による核分裂片角度分布の概念は、サドル点で K 分布が決定すれば、その後の核分裂軸（核分裂片の放出方向）は固定されると考える。もし、サドルを越えてからも核分裂軸が変化すると考えれば、角度分布の異常を説明できる可能性がある。まず、角度分布を決める K 分布が、サドル点を越えてからも変化すると考える。 K 分布の分散値を K_0 とすれば、角度分布の異方性 A は

$$A = 1 + \langle L \rangle^2 / (4K_0^2)$$

で近似できる。ここで、 $\langle L \rangle^2$ は、系のもつ角運動量の 2 乗平均である。 K_0^2 は原子核の温

度 T と実効慣性モーメント I_{eff} を用いて

$$K_0^2 = T I_{\text{eff}} / (\hbar^2)$$

で与えられる。 I_{eff} は核分裂軸まわりの慣性モーメント I_p と、垂直軸まわりの慣性モーメント I_v を使って $I_{\text{eff}}^{-1} = I_p^{-1} - I_v^{-1}$ と表される。原子核が伸びるほど I_{eff} は小さな値を持つ。すなわち、原子核がサドルを超えて、切断点に近いような場所で K 分布が決まると考えれば、異方性 A は大きな値をとりうる。サドルを超えてから切断点に至る間で K 分布が決まるという考え方は、重イオン反応の核分裂片角度分布の解析から、Freifelder らによって提案された[18]。サドル点を超えて分離点に向かう運動はゆっくりしたものと考えれば、 K 分布がサドル点を越えてからも変化できると考えられる。 $^{16}\text{O} + ^{238}\text{U}$ 反応に関する Hinde らの核分裂片の角度分布データと筆者らの蒸発残留核断面積データは Freifelder らの考えを強く支持している。また、核分裂に伴って放出される中性子多重度の測定データも、サドル点を超えて分離点に向かう運動はゆっくりしていることを示している[20]。サドル点で核分裂特性が決まるというのが A. Bohr のモデルで、これは中性子などの軽粒子衝突で誘起される核分裂現象で成功を収めた。しかし、重イオン反応では、必ずしも成り立たない場合があるというのが我々の主張である。 $^{16}\text{O} + ^{238}\text{U}$ などのサブバリヤエネルギー反応領域で、サドルを超えてからの核分裂過程の運動とそれに伴う K 分布の変化を説明する核分裂理論が期待される。

本研究は永目諭一郎氏、浅井雅人氏、塚田和明氏、光岡真一氏、鶴田薫氏（原研）、佐藤健一郎氏（筑波大）、C.J. Lin 氏（中国）、大澤孝明氏（近畿大学）との協力研究で行われた。また、質の高いビームを供給していただいたタンデム加速器施設の方々に感謝します。

参考文献

- [1] D.J. Hinde *et al.*, Phys. Rev. Lett., **74**, 1295 (1995).
- [2] J.C. Mein *et al.*, Phys. Rev. C **55**, R995 (1997).
- [3] H. Zhang *et al.*, Phys. Rev. C **49**, 926 (1994).
- [4] N. Majumdar *et al.*, Phys. Rev. C **51**, 3109 (1995).
- [5] A. Karnik *et al.*, Z. Phys. A, **351**, 195 (1995).
- [6] Z. Liu *et al.*, Phys. Lett. B, **353**, 173 (1995).
- [7] J.P. Lestone *et al.*, Phys. Rev. C **56**, R2907 (1997).
- [8] B.K. Nayak *et al.*, Phys. Rev. C **62**, 031601(R), (2000).
- [9] R. Vandenbosch and J.R. Huizenga, *Nuclear Fission* (Academic Press, New York, 1973).
- [10] A. Bohr, Proceedings of the United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, Switzerland, 1955 (United Nations, New York, 1956), Vol. 2, p.

- [11] B.B. Back *et al.*, Phys. Rev. C **31**, 2104 (1985).
 [12] Y. Nagame *et al.*, J. Nucl. Radiochem. Sci., **3**, 85 (2002).
 [13] K. Hagino (unpublished).
 [14] K. Hagino, N. Rowley, A.T. Kruppa, Computer Phys. Comm. **123**, 143 (1999).
 [15] R.B. Firestone, Table of Isotopes, edited by V.S. Shirley (Wiley, New York, 1996).
 [16] R.H. Spear, At. Data and Nucl. Data Tables **42**, 55 (1989).
 [17] W. Reisdorf and M. Schädel, Z. Phys. A **343**, 47 (1992).
 [18] R. Freifelder *et al.*, Phys. Rep. **133**, 315(1986).
 [19] K. Nishio, H. Ikezoe, Y. Nagame, M. Asai, K. Tsukada, S. Mitsuoka, K. Tsuruta, K. Satou, C. J. Lin, and T. Ohsawa, Phys. Rev. Lett. **93**, 162701 (2004).
 [20] D.J. Hinde *et al.*, Phys. Rev. C **39**, 2268 (1989).

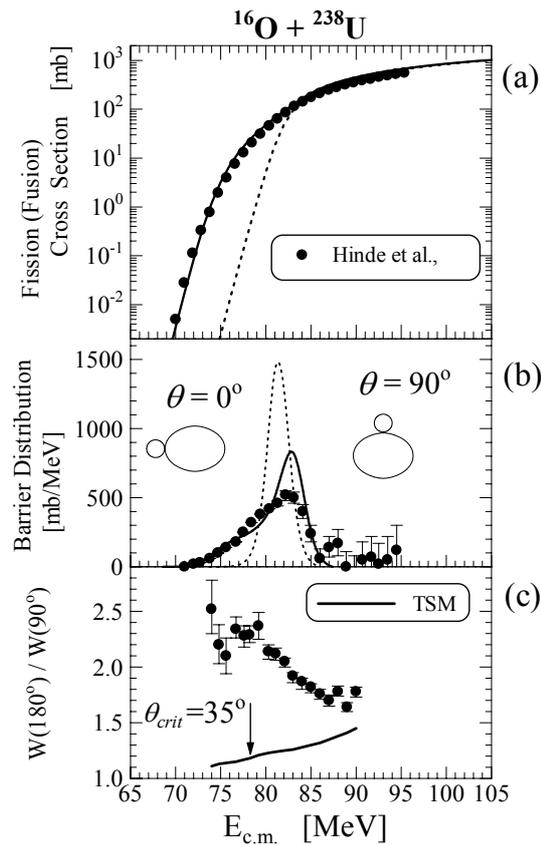


図1 $^{16}\text{O}+^{238}\text{U}$ の核分裂断面積、融合障壁分布、核分裂片角度分布の異方性。
 実験データと TSM 計算は文献[1]から引用。(a)と(b)の計算値は、筆者らによる。

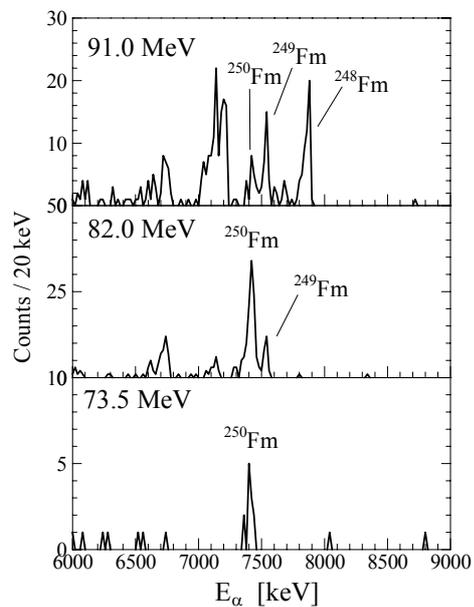


図 2 $^{16}\text{O}+^{238}\text{U}$ 反応で生成される Fm 同位体の α エネルギースペクトル。
 図中の数字は重心系での反応エネルギーを示す。

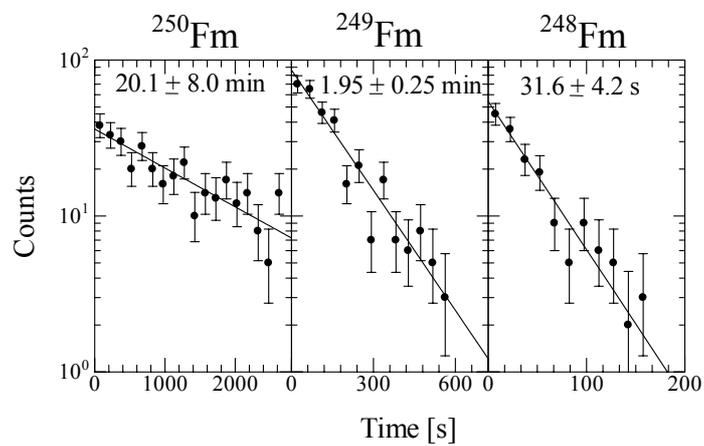


図 3 $^{250,249,248}\text{Fm}$ の崩壊曲線

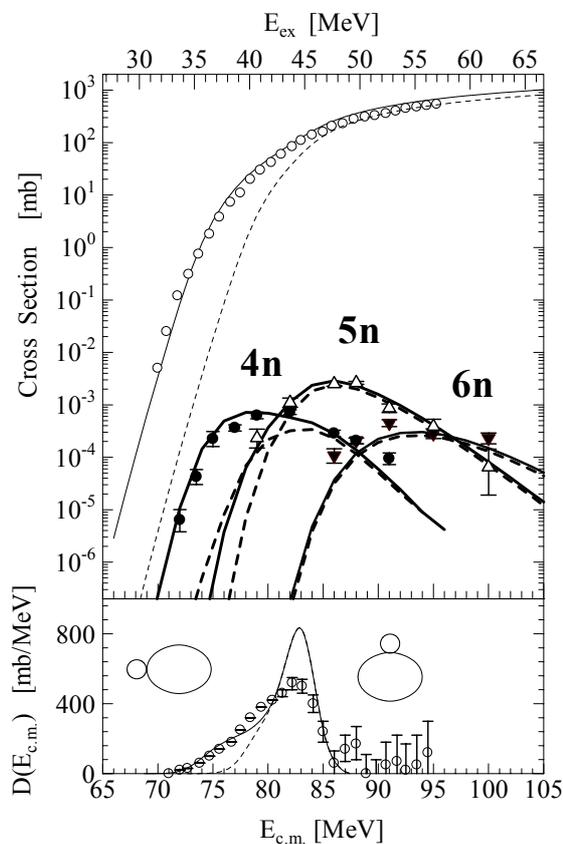


図4 (a) $^{16}\text{O}+^{238}\text{U}$ の蒸発残留核断面積の実験結果。図中の白丸は、核分裂断面積(文献[1])。細線は CCDEGEN コードによる融合断面積の計算結果で、この断面積で融合が起こると太線の蒸発残留核断面積(太線)を与える。先端部衝突 ($\theta < 30^\circ$) では融合しないと過程すると、破線で示した値となる。(b) 先端部から完全融合する場合(実線)としない場合(破線)の融合障壁分布を示した。白丸は文献[1]から引用。