核データニュース, No.98 (2011)



超重元素合成における標的原子核の変形効果

日本原子力研究開発機構 西尾 勝久 <u>nishio.katsuhisa@jaea.go.jp</u>

概要

超重元素を合成する反応として、現在アクチノイド原子核の標的に入射重イオンを融 合させる反応が積極的に用いられている。これは、(1)ロシア・ドブナにおいて⁴⁸Ca ビー ムとアクチノイド原子核との組み合わせにより 118 番元素までを合成し[1]、その結果生 成断面積がピコバーン程度あり、これは鉛やビスマスを標的に用いたいわゆる '冷たい 融合反応'[2]で達成された 113 番元素[3]の生成断面積にくらべ大きいこと、(2)冷たい融 合反応に比べて中性子数が多く、より球形閉殻 (Z=114, N=184) に近い超重元素同位体が 生成できること、(3)シングルアトム化学を適用しうるに十分な寿命を持つ同位体が合成 できること、などの理由による。今後、アクチノイド原子核を用いた反応が、超重元素 研究分野を開拓するための中心的な方法になると考えられる。しかし、アクチノイド原 子核を用いた融合反応機構の理解はまだ浅いと考えている。アクチノイド原子核はラグ ビーボール型に変形しており、その形状が反応に大きく関与すると考えられる。本研究 では、アクチノイド原子核の例として²³⁸U に着目し、入射イオンと²³⁸U の反応で生成さ れる核分裂片の質量数分布を測定し、反応における標的原子核の変形効果を調べた。ま たドイツ重イオン研究所と協力して 106、108 番元素の合成実験を行い、未知同位体を含 むこれら原子核の生成断面積を測定した。両データを合わせて反応機構の考察を行った。

1. はじめに

超重元素合成においてその生成断面積を評価することは、標的原子核、入射原子核及 び衝突エネルギーのうち最適な組み合わせを選び、実験計画を立てるために重要である。 このためには、反応過程を理解する必要がある。超重元素の合成過程を3つのステップ に分けて考える。まず(1)クーロン障壁を透過し、原子核どうしが接触する過程。(2)接触 した原子核が完全に融合して複合核を生成する過程。このとき、超重元素を生成するよ うな重い反応系では、準核分裂が競合し、複合核をつくる確率を低下させる。(3)複合核 が核分裂して崩壊することなく、中性子など軽粒子を出して冷却する過程。(1)の過程は、 かなり理解されてきている。標的となるアクチノイド原子核に入射核を衝突させる場合、 標的核の対称軸に対する入射重イオンの入射角度に応じてクーロン障壁の高さが変わる。 たとえば、²³⁸U の先端部への衝突ではクーロン障壁を低く感じるため、低い衝突エネル ギーでも反応がおこる。一方、赤道面衝突が起こるためには、衝突エネルギーを上げる 必要がある。課題は(2)の過程である。先端部からの衝突と赤道面からの衝突で、それぞ れどの程度の割合で複合核が生成されるか? 超重元素を合成する反応で、これを解明 した研究例はなく、本研究ではこれを目指した。なお、複合核を生成する断面積が決ま れば、これに中性子蒸発確率を統計モデルによって計算することで、目的とする超重元 素同位体の生成断面積を決定することができる。すなわち、(3)の物理過程は、基本的に 理解できていると考える。

原子核が接触してから、複合核の形状に至る割合を実験的に調べるため、まず反応で 生成される核分裂片の質量数分布を測定することにした。図1は、衝突した点における 原子核の形状が、その後どのような反応過程を経由するかを模式的に示したもので、³⁶S + ²³⁸U で生成される²⁷⁴Hsのポテンシャルエネルギーと、このポテンシャル面での系の動き を示している。³⁶S が²³⁸U の赤道面に衝突すると、衝突点における核間距離が短く、複合 核に向かう割合が高いと推測される。複合核の多くは、核分裂として崩壊するが、この 場合、質量対称な谷間を抜けて分裂が進む。すなわち、質量対称な分裂になると考えら れる。一方、先端部への衝突では、核間距離が長く、複合核を形成することなく再び分 離して質量非対称の谷に沿って崩壊すると考えられる(準核分裂)。この非対称な谷は、 2 重閉殻⁷⁸Niと²⁰⁸Pb の近傍核につながるものである。一方、質量対称な核分裂の谷は、 ¹³²Sn 近傍核の生成につながる構造である。



図1²⁷⁴Hsのポテンシャルエネルギー曲面。質量非対称度、原子核の伸びに対してプロットした。³⁶Sが²³⁸Uに接触した点と反応の進み方を模式的にした。²³⁸Uの先端部への衝突では準核分裂として崩壊し、赤道面への衝突では複合核に至る様子を示す。

このように、核分裂片の質量数分布を測定すれば、融合-核分裂と準核分裂を区別でき、 結果として複合核を生成する確率(融合確率)に関する情報が得られる。そこで、タン デム加速器から供給される多種の重イオンと²³⁸Uとの反応で生成される核分裂片の質量 数分布を測定することにした。

2. 実験方法

実験は、原子力機構・原子力科学研究所に設置されたタンデム加速器施設で行った [4,5,6]。入射イオン³⁰Si,^{34,36}S,³¹P,⁴⁰Ar と²³⁸Uの反応で生成される核分裂片の質量数分布 の測定を行った。核分裂片測定装置の様子を図2に示す。核分裂片を検出するため、ガ ス検出器である多芯線比例計数管 (MWPC)を開発した(有感面積 200mm(X)×120mm(Y))。 中心電極をカソードとし、ここからタイミング信号を得た。カソードの両側はワイヤー 電極面(アース電極)とし、ガス増幅で誘起された電荷が集まるワイヤーの位置から核 分裂片の入射位置を読みとった。2つの MWPC 間の時間差と、核分裂片の飛行方向から、 運動学的に核分裂片の質量数を決定した。²³⁸U のようなアクチノイド原子核を用いる場 合、図2に示すように2つの反応の起源の核分裂片が生成される。一つは、入射核の運 動量が系にすべて持ち込まれてから核分裂が起こるもので、これを Full-momentum transfer (FMT) fission と呼ぶ。もう1つは²³⁸U と入射核との間で核子移行反応が起こり、 励起状態にある²³⁸U の近傍核が核分裂するものである。これら2 種類の核分裂片は、実 験室系におけるフォールディング角度(θ_{fold})を測定することで分離した。この様子を図 2 のスペクトルとして示してある。以後、データ解析には、FMT の核分裂が混在している。 この FMT の核分裂の中には、後で述べるように、融合-核分裂と準核分裂が混在している。



図2 原子力機構タンデム加速 器ビームラインに設置した核 分裂実験装置(左上の写真)、 及び多芯線比例計数管 (MWPC)(左下の写真)。右の スペクトルは、核分裂片の フォールディング角度依存性 を示す(³⁰Si+²³⁸U反応)。異 なる反応起源による2種類の 核分裂が分離できている

製作したMWPC

3. 実験結果

 30 Si + ²³⁸U[6]及び ³⁴S + ²³⁸U反応[5]で得られた核分裂断面積の結果をそれぞれ図 3(a)と 図 4(a)に示す。横軸は、重心系での衝突エネルギーである。これらの反応における核分裂 断面積は、入射核と標的核がクーロン障壁を超える断面積に近似できる。実験データを 3 種類の曲線と比較した。点線は 1 次元障壁透過モデルで、²³⁸U の変形を無視した計算で ある。この計算が与えるクーロン障壁より低いエネルギー領域をサブバリアエネルギー 領域と定義する。この 1 次元モデルは、実験データを再現しない。破線は、²³⁸U の変形 を取り入れた計算である。図の上には、赤道面衝突に相当するクーロン障壁の位置と、 先端部衝突での障壁の位置を示した。先端部衝突ではクーロン障壁が下がるため、低い 衝突エネルギーでも反応が起こる。このため、1 次元モデルに比べて断面積が高くなる。 なお、実験データを再現するため、入射重イオンの ²³⁸U の振動状態(³⁴S+²³⁸U ではさら に ³⁴S の振動状態も)へのカップリングを取り入れる必要があることが分かった。この結 果をそれぞれ実線で示す。



図 3 (a) ³⁰Si + ²³⁸U における核分裂断面積。 曲線はモデル計算値。(b) ³⁰Si + ²³⁸U 反応 で合成した Sg 同位体(Z=106)の生成断面 積。曲線は統計モデル計算値。



図 4 (a) ³⁴S + ²³⁸U における核分裂断面積。 曲線はモデル計算値。(b) ³⁴S + ²³⁸U 反応 で合成した Hs 同位体(Z=108)の生成断 面積。曲線は統計モデル計算値。

図 5 に(a) ³⁰Si + ²³⁸U 及び(b) ³⁴S + ²³⁸U 反応で得られた核分裂片の質量数分布を示す[5,6]。 ³⁰Si + ²³⁸U を見ると、重心系の衝突エネルギー E_{cm} =139.0 MeV 以上ではガウス型の分布を 示しているのに対し、サブバリアエネルギーに相当する 134.0 MeV と 129.0 MeV で質量 非対称な成分が現われている。この核分裂チャンネルの質量非対称度は A_L / A_H = 90 / 178 であった。サブバリア領域での質量数分布の顕著な変化は、分布の標準偏差 σ_m に表れて おり、衝突エネルギーの最も低い 2 つのスペクトルの σ_m = 37 ~ 38 u (図中の数字) は、 衝突エネルギーの大きい他の分布の 25~26 u より大きな値を示した。衝突エネルギーに 対する質量数分布の変化は、³⁴S + ²³⁸U ではさらに激しい。図 5(b)に示すように、高エネ ルギー側では質量対称な核分裂が主な成分であるのに対し、サブバリアエネルギーでは A_L / A_H = 68 / 204 にピークを持つ質量非対称な分布となった。図5の質量数分布の変化は、 標的原子核の変形効果を表すものと解釈される。低エネルギー側では先端部衝突だけが 起こる。この場合、系は質量非対称なチャンネルに沿って準核分裂として崩壊する(図1 を参照)。エネルギーが高くなると、赤道面衝突の寄与が大きくなる。この場合、質量非 対称な準核分裂成分が消えていく一方、対称な核分裂成分が成長して融合確率が増加す ると考えられる。



図5 核分裂片の質量数分布で、(a)³⁰Si+²³⁸U及び(b)³⁴S+²³⁸Uにおける核分裂片の質量 数分布。●は実験データを表す。図中に重心系での衝突エネルギーと、スペクトル の標準偏差 omを示した。ヒストグラムは散逸揺動理論によるモデル計算を表す。こ こで、塗りつぶしたスペクトルは融合-核分裂を表す。

図6は入射核を³⁰Si, ³¹P, ³⁶S, ⁴⁰Arと変化させた時の質量数分布の変化を示す[7]。衝突エネルギーの高い方から 3 列までについて、複合核の励起エネルギーをほぼ揃えてある。 図から、入射核が重いほど準核分裂の成分が増えること、また標的の変形の効果が入射 核によらず共通した現象であることを示している。

図5と図6の結果で注目すべき点は準核分裂の質量非対称度である。³⁴S+²³⁸Uでは A_L / A_H =68/204、³⁶S+²³⁸Uでは A_L/A_H =74/200、⁴⁰Ar+²³⁸Uでは A_L/A_H =76/202とほぼ同様の値を有している。一方、³⁰Si+²³⁸Uでは A_L/A_H =90/178と非対称度が小さく、³¹P+²³⁸Uでは中間の A_L/A_H =81/188となっている。入射核の質量数が小さくなるに従って対称分布に近い質量比に分割されていることから、質量非対称度は、系がどの程度複合核に接近して準核分裂したかを表す指標と考えられる。

さらに注目すべき点は、たとえば ³⁰Si + ²³⁸U と ³⁶S + ²³⁸U の励起エネルギー61 MeV のス ペクトルを比較すると、後者の方がガウス型の分布の σ_m が大きいことが分かる。³⁴S + ²³⁸U (図 5(b))の $E_{c.m}$ =170.0 MeV (励起エネルギー = 58.2 MeV)も ³⁶S + ²³⁸U と同様に広い対 称核分裂成分を有している。後述するように、³⁴S + ²³⁸U の蒸発残留核断面積の測定から、 ³⁴S + ²³⁸U の質量対称核分裂の中には準核分裂成分が多く含まれることがわかった。



図 6³⁰Si, ³¹P, ³⁶S, ⁴⁰Ar + ²³⁸U 反応で生成された核分裂片の質量数分布。 図中の数字は、複合核が生成された場合の励起エネルギー。

4. 蒸発残留核断面積の測定

図 5(a)と(b)に示した ³⁰Si + ²³⁸U と ³⁴S + ²³⁸U の質量数分布の変化は、融合-核分裂と準核 分裂の競合を顕著に表したものである。融合-核分裂は、質量対称成分を構成すると考え られる。一方、高い衝突エネルギーに注目すると、質量対称成分の幅は ³⁰Si を入射する 場合よりも ³⁴S を入射するほうが広いことが分かった。これは、³⁴S + ²³⁸U の対称核分裂成 分の中には、複合核の核分裂とは異なる起源の核分裂が含まれていることを示している。 また、サブバリアエネルギー領域に着目すると、³⁰Si + ²³⁸U が質量対称な成分を有してい るのは明らかだが、³⁴S + ²³⁸U の $E_{c.m}$ =152.0 MeV のスペクトルは、サブバリアエネルギー 衝突であるが質量対称な成分が存在することがわかる。これは、この領域でも超重元素 同位体が生成できる可能性を示唆している。これを明かにするため、融合反応が起こっ た証拠となる蒸発残留核の生成断面積を測定し、この実験値を用いて融合確率について 考察を行うとともに、サブバリアエネルギー反応での超重原子核の合成を試みた。

³⁰Si + ²³⁸Uの融合反応による 106 番元素同位体の合成実験と³⁴S + ²³⁸Uの融合反応による 108 番元素同位体の合成実験を、ドイツ重イオン研究所(GSI)と協力して行った。実験 結果の詳細は文献[8]と[5]で示したが、ここでは断面積の結果を示す。³⁰Si + ²³⁸U反応では、 赤道面衝突の寄与が大きい高い衝突エネルギー($E_{c.m.}$ =144.0 MeV)で 5n 蒸発チャンネル の²⁶³Sg(5n)を、サブバリアエネルギー($E_{c.m.}$ =133.0 MeV)で ²⁶⁴Sg(4n)を合成し、それぞれ 67 (⁺⁶⁷-₃₇) pb と 10 (⁺¹⁰-₆) pb を得た。実験値を図 3(b)にプロットした。同様に ³⁴S + ²³⁸U反 応において、 $E_{c.m.}$ =163.0 MeV で ²⁶⁷Hs(5n)を、 $E_{c.m.}$ =152.0 MeV で ²⁶⁸Hs(4n)をそれぞれ 1 イ ベント合成し、それぞれについて断面積 1.8 (^{+4.2}-1.5) pb と 0.54 (^{+1.3}-0.45) pb を得た。結果を 図 4(b)にプロットした。

SgとHs同位体の生成断面積を、統計モデル計算と比較することで、融合確率について 考察した。³⁰Si+²³⁸U反応の図3(b)における実線は、クーロン障壁を透過して原子核どう しが接触すれば必ず融合すると仮定した場合の計算結果で、融合断面積として図3(a)の実 線を用いた。5n チャンネルの²⁶³Sgは実験値を再現している。しかし、サブバリアエネル ギーで取得した4n チャンネル同位体²⁶⁴Sgの断面積は、実線より低い。このことは、こ のエネルギー領域で準核分裂と融合反応が競合し、一部が準核分裂に流れていることを 表している。これに近い反応エネルギーの質量数分布(図5(a)のE_{cm}=134.0 MeV)を見 ると、実際に分布が広がっており、準核分裂の存在を示唆している。

³⁴S + ²³⁸U 反応についても同様の考察を行った。統計モデル計算(実線)と実験値の比 較を図 4(b)に示す。ここでも同様に、融合断面積は図 4(a)の実線に従うと仮定した。 ²⁶⁷Hs(5n)と ²⁶⁸Hs(4n)の実験値は、計算値よりも低いことがわかる。赤道面への衝突の寄与 が多い $E_{c.m}$ =163.0 MeV の衝突エネルギーでも、準核分裂として崩壊する割合が大きいこ とを示している。この衝突エネルギーに近い $E_{c.m}$ =164.0 MeV での質量数分布(図 5(b)) を見ると核分裂片は広い質量範囲に分布し、³⁰Si + ²³⁸U の 5n チャンネルに相当するエネ ルギー $E_{c.m}$ =144.0 MeV よりも大きな半値幅を示し、準核分裂によって分布が広がること と一致している。一方、³⁴S + ²³⁸U のサブバリアエネルギー($E_{c.m}$ =152.0 MeV) でも、超 重元素同位体 ²⁶⁸Hs が合成された。これに対応する質量数分布(**図**5 の $E_{c.m}$ =152.0 MeV) は質量非対称な分布を示しており準核分裂成分が支配的であるが、蒸発残留核断面積の 結果は核分裂のうち約 8 (⁺²⁰-6) %は融合-核分裂を含むことを示している。

5. 考察

実験で得られたデータを揺動散逸理論によるモデル計算[9,10]と比較した。まず、モデ ル計算では 2 中心殻模型により原子核のポテンシャルエネルギーを計算した。入射核と 標的核どうしが衝突した位置からの原子核の形状の時間変化を、原子核が分裂するまで 追跡した。原子核の動きを記述するため、ランダム力項と摩擦項を含むランジェバン方 程式を適用した。計算では、最初の衝突点における標的原子核の変形の効果を取り入れ た。低エネルギー側では、先端部からの衝突が支配的となる。軌道計算のイベント数を 蓄積することで、質量数分布が構築される。

計算結果を図5の(a) 30 Si + 238 U [6]と(b) 34 S + 238 U [5]にヒストグラムで示す。ここでは比較のため、全核分裂断面積が実験値に一致するように規格化してある。全体の形状をみると、いずれも実験データをほぼ良く再現している。特に、 30 Si + 238 U 反応での低い衝突エネルギーでの分布の広がり、 34 S + 238 U における対称核分裂から非対称核分裂への変化を再現している。計算では、原子核の衝突形状が複合核の領域に到達してから核分裂に至るもの、すなわち融合-核分裂の事象と、複合核領域に達しない核分裂、すなわち準核分裂を分けることができる。図5の塗りつぶしたヒストグラムが融合 - 核分裂を表す。この融合-核分裂事象を全核分裂事象で割った値が融合確率を与える。

 ${}^{30}Si + {}^{238}U の計算で得られた融合-核分裂の質量数分布は <math>\sigma_m = 21 \sim 25 u e f l$ 、すべてのエネルギーにほぼ共通した値となった。この値は、2 つのサブバリアエネルギー ($E_{c.m} = 134.0 \text{ MeV} \ge 129.0 \text{ MeV}$)の実験で得られた値 37~38 u と比べて小さい。さらに、計算による融合-核分裂のスペクトルは、質量非対称な核分裂成分を持たなかった。すなわち、 ${}^{30}Si + {}^{238}U$ のサブバリアエネルギーで見られた質量非対称な核分裂チャンネルが準核分裂であることを理論が示唆している。

 $^{34}S + ^{238}U$ 反応でも同様の結論を得た。実験データの質量数分布は $\sigma_m = 47 \sim 55$ u という 大きな値を有するのに対し、理論計算が与えた融合-核分裂の σ_m は $16 \sim 20$ と低かった。 また、計算による融合-核分裂の質量数分布は、非対称な成分を持たなかった。計算は、 実験で観測された $A_L/A_H = 68/204$ を中心とする非対称チャンネルが準核分裂であること を示した。

質量対称分裂に注目すると、 ${}^{30}Si + {}^{238}U$ の計算イベントの多くは融合-核分裂を示しているのに対し、 ${}^{34}S + {}^{238}U$ では多くが準核分裂片であることを示している。準核分裂の中に

は、標的核と入射核の接触の直後、図1に示すように質量非対称な谷に沿って崩壊する ものがある一方、比較的内部に侵入しながらも複合核を作ることなく質量対称に崩壊す る成分があることを示している。これは計算の中で見られたが、³⁴S + ²³⁸Uの実験データ からも考察される。

図5の計算で導かれる以下の2つの結果は、実験データの考察と一致している。

- (1) サブバリアエネルギーでの融合確率は、30% (³⁰Si + ²³⁸U)及び 5% (³⁴S + ²³⁸U)程度の値 を持つ。これは、先端部衝突であっても、ランダム力項のために融合にたどりつくも のが存在することを示している。
- (2) 赤道面衝突がおこる衝突エネルギーでは、³⁰Si + ²³⁸U は 45%程度の融合確率が示唆さ れるのに対し、³⁴S + ²³⁸U では 15%程度しかない。

揺動散逸理論で決定した融合確率を、チャンネル結合法で求めた融合障壁の透過断面 積に掛けることで、融合断面積が計算できる。この値を図3(a)と図4(a)に、それぞれ一点 鎖線で示す。³⁴S + ²³⁸U は、³⁰Si + ²³⁸U に比べて融合断面積が全体的に低下している。これ は、準核分裂の割合が増加するためである。揺動散逸理論が与える融合断面積に、中性 子蒸発確率を掛けることで蒸発残留核断面積(この場合超重元素の生成断面積)が得ら れる。これを図3(b)と図4(b)に一点鎖線で示した。計算は、実験の蒸発残留核断面積(^{263,} ²⁶⁴Sg と^{267,268}Hs)を再現している。

6. まとめ

核分裂片の測定から重イオンの融合過程を考察した。この結果、核分裂片の質量数分 布には反応が経由した履歴が顕著に現れることを示した。核分裂片の質量数分布は、衝 突エネルギーと入射核に応じて大きく変化し、標的原子核の変形が融合と準核分裂の競 合に影響を与えることを示した。サブバリアエネルギーでは、準核分裂の割合が増加す るものの、融合-核分裂の成分が見られた。これは、この領域でも超重元素同位体を合成 できることを示している。実際に 4n 蒸発チャンネルによって 106 及び 108 番元素の同位 体を合成して確かめた。また、³⁴S+²³⁸U による ²⁶⁷Hs (5n)の生成断面積から、²³⁸U の赤道 面への衝突が起こる高エネルギー衝突でも準核分裂が多く存在することを示唆した。

揺動散逸理論を適用して実験データを考察した。このモデル計算は核分裂片の質量数 分布及びこの衝突エネルギー依存性を再現した。このモデルは反応の全過程を統一的に 記述しているため[9,10]、同時に予測される融合確率の信頼度は高いと言える。実際に、 実験で取得した蒸発残留核の生成断面積は、揺動散逸理論が与えた融合確率を支持した。 核分裂特性の測定と揺動散逸理論によって超重元素の生成断面積を評価する方法は、原 理的にあらゆるアクチノイド原子核、入射核、及び衝突エネルギーに適用可能である。 超重元素合成実験では、生成断面積が小さいため必然的に長期のビームタイム時間が必 要になる。目的とする原子核を生成するための最適な反応の組み合わせをより正確に予 測することは、超重元素合成実験にとって不可欠であり、本アプローチはこれに指針を 与えるものと考えている。現在、筆者らはタンデム加速器を使って⁴⁰Ca+²³⁸Uと⁴⁸Ca+²³⁸U の測定を行い、ドブナのデータの解釈も含めて、反応過程を調べている。

7. 謝辞

本研究は、原子力機構、東北大学、KEK、ドイツ・重イオン研究所、ミュンヘン工科 大学、ロシア・フレーロフ研究所、スロバキア・コメニウス大学、中国・原子能科学院 と共同で行った成果である。

参考文献

- [1] Yu.Ts. Oganessian, J. Phys. G 34, R165 (2007).
- [2] S. Hofmann and G. Münzenberg, Rev. Mod. Phys. 72, 733 (2000).
- [3] K. Morita et al., J. Phys. Soc. Jpn. 73, 1738 (2004).
- [4] K. Nishio et al., Phys. Rev. C 77, 064607 (2008).
- [5] K. Nishio et al,. Phys. Rev. C 82, 024611 (2010).
- [6] K. Nisho et al., Phys. Rev. C 82, 044604 (2010).
- [7] K. Nishio *et al.*, International Nuclear Physics Conference, INPC2010, Vancouver, Canada, 4-9,July,2010.
- [8] K. Nishio et al., Eur. Phys. J. A 29, 281 (2006).
- [9] V. Zagrebaev and W. Greiner, J. Phys. G 31, 825 (2005).
- [10] 計算は Y. Aritomo, *Phys. Rev. C* 80, 064604 (2009)と同様であるが、標的核の変形効果を 取入れてある。