

令和 5 年 3 月 31 日

報道関係者各位

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構
国立研究開発法人理化学研究所

40年ぶりに中性子過剰なウラン同位体を新発見 ～ ウランの起源解明に期待 ～

本研究成果のポイント

- 天然に存在するウランやトリウムは星での元素合成過程の一つである r 過程によって作られたと考えられていますが、その詳細は分かっておりません。
- ウランやトリウムの起源を解明するためには中性子過剰なアクチノイドの性質を調べる必要がありますが、それらの原子核を実験で合成することは困難でした。
- 多核子移行反応によって中性子過剰なアクチノイドを合成する手法を確立し、40年ぶりに中性子過剰なウランの同位体を新たに発見しました。
- 本研究手法を発展させることで、ウランの起源解明に向けてこれまで合成することができなかった中性子過剰なアクチノイドに対する実験研究が進展することが期待できます。

【概 要】

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構（KEK）素粒子原子核研究所と光原子核科学センターの庭瀬暁隆博士研究員と国立研究開発法人理化学研究所（理研、埼玉県和光市）仁科加速器科学研究センターの向井もも基礎科学特別研究員を中心とする国際共同研究グループ（※）は、理研の重イオン加速器施設「RI ビームファクトリー（RIBF）」の KEK 元素選択型質量分離装置（KISS）と多重反射型飛行時間測定式質量分光器（MRTOF-MS）^{（※1）}を用いて、ウランの中性子過剰な同位体 ^{241}U （ウラン）^{（※2）}の合成と同定に初めて成功しました。ウランの中性子過剰な同位体の発見は 1979 年以降実に 40 年ぶりであり、これは多核子移行反応による原子核合成に特化した KISS と高精度の質量測定を可能にする MRTOF-MS という 2 つの最先端の実験装置を組み合わせることで初めて可能になった研究成果です。

中性子過剰なアクチノイド^{（※3）}は天然に存在するウランやトリウムを合成した星の中での元素合成過程の一つである r 過程を解明する上でその性質の情報が重要であるにも関わらず、合成が困難であったためにこれまで実験的な研究が進んできませんでした。本研究の成果は従来合成が困難であった中性子過剰なアクチノイドの

領域へアクセスする実験手法を確立し、この手法を発展させることで r 過程の解明に向けて当該領域の原子核に対する実験研究の進展が期待できます。

本研究の成果は、物理学の国際的な専門誌である「Physical Review Letters」に 3 月 31 日（米国東部時間）に掲載されました。また本論文は、「Physical Review Letters」において、特に注目すべき論文（PRL エディターズ・サジェスション）として紹介されました。

【背景】

身の回りの元素はどこでどのように作られたのか、それは自然科学の根源的な問いの一つです。1957年にシェフリー・バービッジ、マーガレット・バービッジ、ウィリアム・ファウラー、フレッド・ホイルの4人は、星の中での様々な原子核反応によって宇宙にある多様な元素が作られたことを共著論文で提唱しました。その中でも速い中性子捕獲^(※4)とそれに続くベータ崩壊^(※5)で元素を形成するr過程はアクチノイドまでの非常に重い元素を合成できる唯一の過程であり、天然に存在するウランやトリウムもこの過程によって作られたと考えられています。r過程が起こるためには、非常に温度が高く（10億度以上）、極端に中性子の数が多い（1立方センチメートル当たり1兆個の1億倍以上）環境が必要になります。2017年に重力波の観測によって発見された中性子星同士の合体では、それによって発生するキロノバ^(※6)からの電磁波の観測により、r過程元素合成が起こっていることが確認されました。しかしながらr過程のメカニズムを解明するためにはそれに関与する原子核の性質に関する情報が必要になります。r過程の速い中性子捕獲で合成される原子核の大部分は天然に存在する原子核やこれまでに人工的に造られた原子核に比べてはるかに中性子が多く、その性質が実験的に知られていないだけでなく、理論的な予測も困難です。特に中性子過剰なアクチノイドの研究はその合成の難しさから進んでおらず、たとえば天然に存在する²³⁸Uに対して中性子過剰な同位体は²³⁹U、²⁴⁰U、²⁴²Uの3種類が人工的に合成されているのみです。1979年にハウスタインらが²⁴⁴Pu（プルトニウム）に中性子を照射して²⁴²Uを合成して以降、新たな中性子過剰なウランの同位体は発見されておりませんでした。このような中性子過剰なアクチノイド核に対する実験データの欠如がr過程を理解する上でのボトルネックとなっています。

衝突する2つの重イオンの間で多数の核子が交換される多核子移行反応が1959年に発見されて以降、この反応は実験と理論の両面から精力的に研究が行われてきましたが、多数の自由度が関与する複雑さのために反応の全貌は未だ明らかになっておりません。しかしながらこの多核子移行反応は融合反応^(※7)や破砕反応^(※8)などの2つの重イオンの単なる足し合わせや引き算では合成の難しい中性子過剰な原子核を生成する手法として近年注目を集めております。多核子移行反応は同時に多種類の原子核が生成され、それらが低いエネルギーで比較的広いエネルギー分布と角度分布で放出されるという特徴があります。この特徴は、反応で生成された原子核を収集して興味のある原子核のみを取り出すことを困難にしています。KEK和光原子核科学センターは理研仁科加速器科学研究センターとの共同研究により、多核子移行反応で合成された原子核を収集して選別することに特化したKISSを開発しております。本研究は、中性子過剰なアクチノイドの同位体の実験研究を進めるために、KISSを用いてこれらの原子核を多核子移行反応によって合成することの有効性を実証することを目的に実施されました。

【研究内容と成果】

本実験は、2022年2月と7月に理研仁科加速器科学研究センターのRIビームファクトリーにおいて、KISSと研究グループが開発したMRTOF-MSを組み合わせて実施しました。 ^{238}U ビームと ^{198}Pt （白金）標的との多核子移行反応で生成された多様な原子核は、アルゴンガス中で停止し、中性な原子になります。これらの中性な原子はガス流によって輸送され、レーザーが照射されてレーザー共鳴イオン化法^(※9)により特定の元素がイオン化されます。ガス中から引き出されて高電圧によって加速されたイオンは、双極電磁石で質量分離^(※10)された後、ヘリウムガス中で減速・冷却されてイオントラップ^(※11)に捕集され、MRTOF-MSで精密質量測定されます。

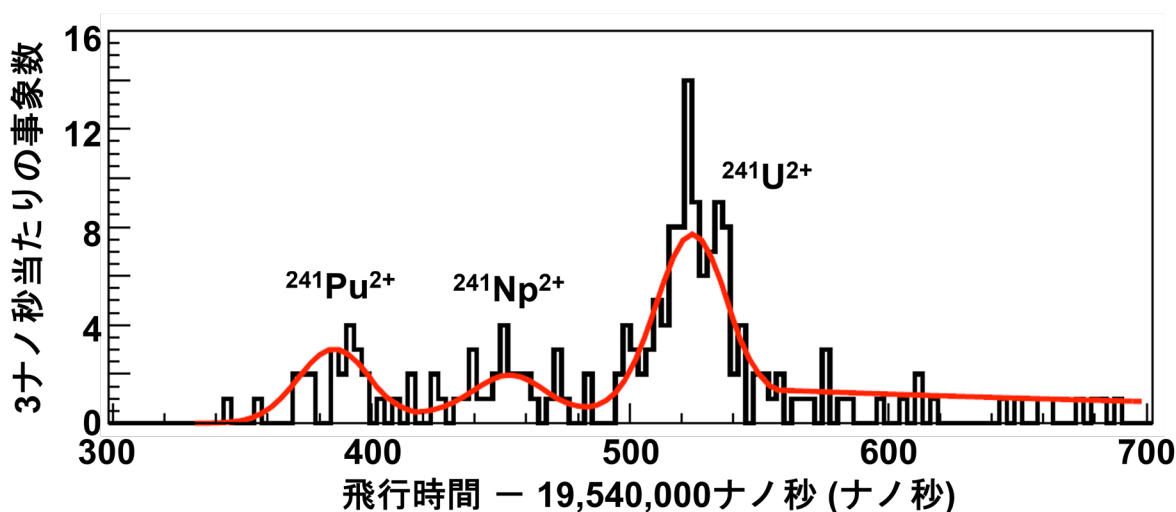


図1 MRTOF-MSの飛行時間スペクトル

双極電磁石で質量数が241のイオンを選択して ^{241}U をレーザー共鳴イオン化した時の飛行時間スペクトルを示しています。ヘリウムガス中で2価のイオンに変換されてMRTOF-MSで質量測定されます。赤い線はピークのフィッティング結果を示しています。

図1は双極電磁石で質量数が241のイオンを選択し、 ^{241}U をレーザー共鳴イオン化した時のMRTOF-MSで測定した飛行時間スペクトルを示しています。アルゴンガス中で中性化せずにイオンのまま引き出されたネプツニウムとプルトニウムも同時に測定されましたが、本研究で26万の質量分解能を達成しており、 $^{241}\text{U}^{2+}$ 、 $^{241}\text{Np}^{2+}$ （ネプツニウム）、 $^{241}\text{Pu}^{2+}$ に対応するピークがはっきりと分かれています。MRTOF-MSによる高精度の質量測定により、中性子過剰なウランの同位体 ^{241}U の合成を初めて確認することができました。

図2は本研究で質量の測定に成功したPa（プロトアクチニウム）、U、Np、Puの19種類の同位体を示しています。多核子移行反応により中性子過剰なアクチノイド核が合成されていることが分かります。図3は測定された原子質量を文献値（2020年原子質量編纂：AME2020）との差として示しています。質量はエネルギーとの等価性^(※12)からキロ電子ボルト^(※13)という単位で表されています。たとえば原子質量が2億2千万キロ電子ボルトの ^{238}U は、MRTOF-MSで20キロ電子ボルトの精度で測定されており、これは質量を1100万分の1という高精度で測定できたことを示しています。図3で赤い帯は質量がこれまでに測定されていない核種に対する外挿値を示して

おり、本研究で新たに発見された ^{241}U と既に発見されている ^{242}U に対して初めての質量測定に成功しました。また、 ^{241}Np と ^{242}Np に対しては文献値に比べて質量の測定精度を向上することができました。

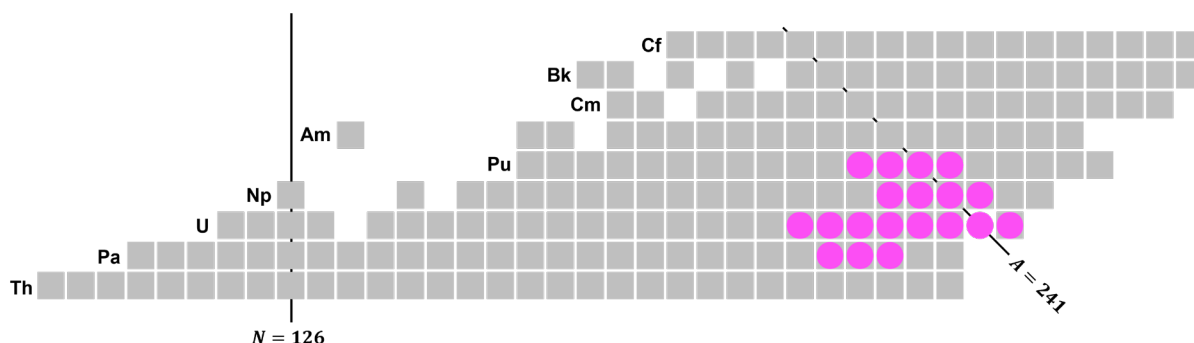


図2 本研究で精密質量測定した19種類のPa、U、Np、Puの同位体(紫丸印)
横軸を中性子数(N)、縦軸を陽子数(Z)で表示した核図表に本研究で質量を測定した核種を示しています。灰色のマスはこれまでに発見されている核種を示します。

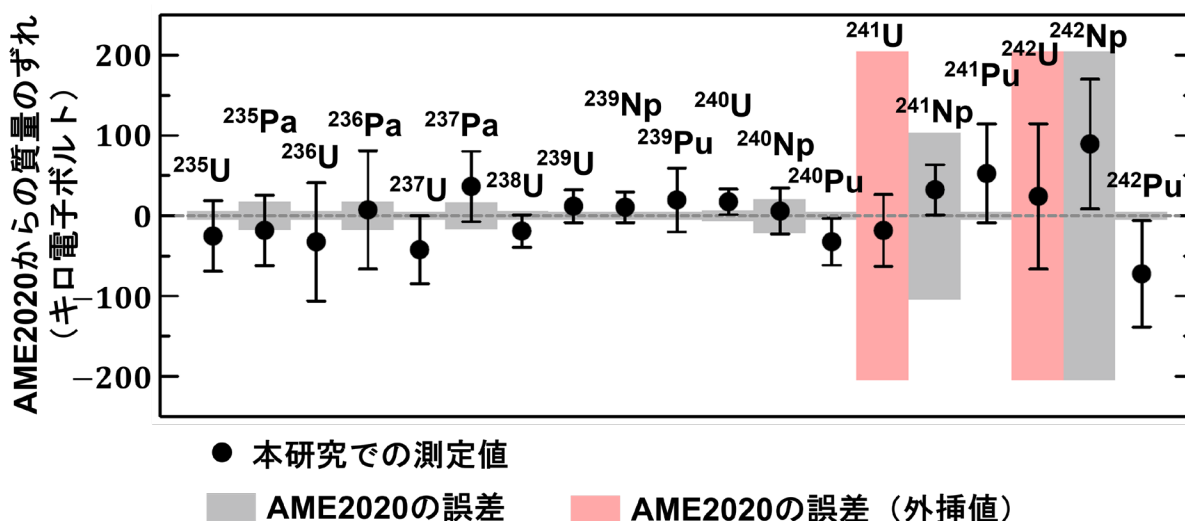


図3 本研究の質量測定結果と文献値(2020年版原子質量編纂: AME2020)との質量の比較

^{241}U および ^{242}U で初めて質量測定が行われました。 ^{241}Np と ^{242}Np では文献値に比べて高精度のデータが得られました。本研究で用いたMRTOF-MSの測定では、同時に校正用イオンを測定できるため、高確度の測定が可能です。

【本研究の意義、今後への期待】

1979年以来新たに発見されてこなかったウランの中性子過剰な同位体が本研究で40年ぶりに発見されました。これはKISSを用いた多核子移行反応による生成核の収集・選別とMRTOF-MSを用いた高精度質量測定という最先端の実験技術を組み合わせることで初めて可能になった研究成果です。本研究で確立した手法を発展させ、目的核種に最適な反応系の採用、大強度ビームへの適応、測定装置の開発などにより、これまで研究が困難であった中性子過剰アクチノイド核に研究領域を大幅に拡大することが可能になります。こうして同定された未知の中性子過剰アクチノイド核に対して質量測定のみならず、寿命の測定や崩壊核分光など測定対象を多様化することで、当該領域の原子核の性質に関する情報が豊富に獲得でき、天然に存在するウランやトリウムを合成したr過程の解明に向けた

理解が進むと期待できます。

※国際共同研究グループ

- ・ 高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所 和光原子核科学センター
- ・ 理化学研究所 仁科加速器科学研究センター
- ・ ヨーク大学 (イギリス)
- ・ 基礎科学院 (韓国)
- ・ 立教大学
- ・ 日本原子力研究開発機構
- ・ 京都大学 複合原子力科学研究所

【論文情報】

<タイトル>

Discovery of new isotope ^{241}U and systematic high-precision atomic mass measurements of neutron-rich Pa-Pu nuclei produced via multi-nucleon transfer reactions

<著者>

T. Niwase, Y. X. Watanabe, Y. Hirayama, M. Mukai, P. Schury, A. N. Andreyev, T. Hashimoto, S. Iimura, H. Ishiyama, Y. Ito, S. C. Jeong, D. Kaji, S. Kimura, H. Miyatake, K. Morimoto, J.-Y. Moon, M. Oyaizu, M. Rosenbusch, A. Taniguchi, M. Wada

<雑誌>

Physical Review Letters

<DOI>

10.1103/PhysRevLett.130.132502

【お問い合わせ先】

<研究内容に関すること>

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構
素粒子原子核研究所 和光原子核科学センター 准教授 渡邊 裕
Tel: 048-466-1125
Fax: 048-466-1125
E-mail : yutaka.watanabe@kek.jp

国立研究開発法人理化学研究所
仁科加速器科学研究センター 核分光研究室 室長 上野 秀樹
E-mail: ueno@riken.jp

<報道担当>

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構 広報室
Tel: 029-879-6047
Fax: 029-879-6049
E-mail : press@kek.jp

国立研究開発法人理化学研究所
広報室 報道担当
Tel: 050-3495-0247
E-mail : ex-press@ml.riken.jp

【用語解説】

※1 多重反射型飛行時間測定式質量分光器 (MRTOF-MS)

決まったエネルギーを持つイオンが一定の距離を飛行する時の飛行時間から質量を分析する装置の一種。電気のでイオンを反射させることにより、10 ミリ秒程度の飛行時間で装置内を数百回往復させ、80 万から 100 万の分解能で質量を測定することができます。複数の種類のイオンに対して同時に質量の測定を行うことができます。

※2 ^{241}U (ウラン)

ウランは原子番号 (陽子の数) が 92 の元素ですが、中性子の数の異なるものが存在します。それらは同位体と呼ばれ、中性子の数が 149 の場合には原子番号と中性子の数の和 (質量数) が 241 となり、 ^{241}U と表記します。

※3 アクチノイド

原子番号 89 のアクチニウムから 103 のローレンシウムまでの 15 種類の元素の総称。

※4 中性子捕獲

原子核が 1 個または複数個の中性子を吸収して、より重い原子核に変わる反応。

※5 ベータ崩壊

弱い力によって起きる原子核の放射性崩壊。原子核の中の中性子が電子と反電子ニュートリノを放出して陽子に変わる崩壊を β^- 崩壊、陽子が陽電子と電子ニュートリノを放出して中性子になる崩壊を β^+ 崩壊、陽子が原子軌道上の電子を捕獲して中性子に変わり、電子ニュートリノと特性 X 線を放出する崩壊を軌道電子捕獲と呼ぶ。r 過程では速い中性子捕獲によって合成される中性子過剰な原子核が β^- 崩壊を繰り返して天然に存在する元素が形成される。

※6 キロノバ

新星の 1000 倍の明るさに達する爆発現象。2017 年 8 月 17 日に中性子星同士が合体してキロノバが発生したことが重力波と電磁波により観測された。

※7 融合反応

比較的低いエネルギーで 2 つの重イオン核が衝突して一つの原子核を形成する反応。

※8 破砕反応

高エネルギーの粒子が原子核に衝突することで、原子核が砕けて複数の軽い原子核が生成される反応。

※9 レーザー共鳴イオン化法

中性の原子や分子にレーザー光を照射し、イオン化ポテンシャル以上のエネルギーに励起させてイオンを生成する方法。本研究では 2 つのレーザー光を用いてイオン化を行っています。1 つ目のレーザー光で原子を励起状態にし、2 つ目のレーザー光でイ

オン化します。元素によって励起状態のエネルギーが変わるため、1つ目のレーザー光の波長を変えることでイオン化する元素を選択することができます。

※10 双極電磁石で質量分離

磁場中を飛行する荷電粒子はローレンツ力によって曲がります。同じエネルギーを持つ荷電粒子は質量によって曲がり方が異なるため、双極電磁石を使って質量を分けることができます。KISSでは同じ質量数（陽子数と中性子数の和）の原子核を分けることはできず、MRTOF-MSで同時に質量が測定されます。

※11 イオントラップ

電場や磁場によってイオンを空間中に留める装置。

※12 質量とエネルギーの等価性

アインシュタインの公式 $E = mc^2$ で表される質量とエネルギーの関係。ここで E 、 m 、 c はそれぞれエネルギー、質量、光の速さを示している。

※13 キロ電子ボルト

電子を1キロボルトの電圧で加速した時のエネルギー。