

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 20 日現在

機関番号：82118

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2012～2016

課題番号：24224008

研究課題名(和文)革新的低速RIビーム生成法による超重元素の直接質量測定

研究課題名(英文) Direct mass measurements of super heavy elements using a novel low-energy RI-beam production method

研究代表者

和田 道治 (Wada, Michiharu)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核研究所・教授

研究者番号：50240560

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 106,500,000円

研究成果の概要(和文)：革新的な低速RIビーム生成技術である冷凍型RFカーペットイオンガイド法と多重反射型飛行時間測定式質量分光器を用いて、核融合反応で生成された超ウラン元素や半減期10msのRa同位体を始め80余核種の直接精密質量測定に成功した。最高精度は0.03 ppmに達し、質量が既知の核種では幾つかの例外を除きよく一致し高精度測定が確認できた。幾つかの核種では過去の間接測定の誤りを見出し、網羅的な直接測定の必要性を示唆した。Es, Mdの4個の同位体は初の質量測定であり、それから超重元素Mt同位体まで7核種の間接質量決定が成され、理論モデルとの比較や中性子数152の魔法数の検証を実施した。

研究成果の概要(英文)：With a novel ion trapping method, cryogenic rf-carpet ion guide, and a multi-reflection time-of-flight mass spectrograph, the masses of more than 80 nuclear fusion reaction products including short-lived Ra isotopes ($T_{1/2} = 10$ ms) and several trans-uranium isotopes of Es, Md were measured. The highest precisions of ~ 0.03 ppm were achieved for Ga isotopes and most of well-known nuclides, our masses agree with the literature values. However, some discrepancies were found in old indirect measurements. It suggested that such indirect measurements must be revised with comprehensive direct mass measurements. The masses of four isotopes in Es and Md were measured for the first time. From them, the masses of 7 isotopes in super-heavy elements up to Mt were indirectly determined and comparison with various nuclear models and confirmation of $N=152$ shell closure were performed.

研究分野：原子核物理学

キーワード：短寿命原子核 質量 イオントラップ 超重元素 MRTOF

1. 研究開始当初の背景

ウランより原子番号が大きい原子核は、なぜその強いクーロン反発力下でも安定な状態で存在できるか明確には解明されていない。原子核の存在・安定性を決定しているのは原子質量であるが、超ウラン元素領域の原子核は少数の核種しか直接質量測定されていない。生成量が少ない重い短寿命原子核を高効率で能率よく、精密に直接質量測定する実験技法の開発が期待されていた。また、現在の超重元素よりさらに遠方にあると予言されている長寿命の原子核(安定の島)の一般的同定法も未開拓であった。

2. 研究の目的

新しい質量測定法と高速 RI ビームの減速捕集法によって、あらゆる元素の短寿命原子核の質量を、高効率かつ高精度な測定が数ミリ秒で可能になるようにし、これまで未開の地であった重い元素の同位体の質量を高確度で決定する。これによって、原子核の存在の重い極限における質量公式の確度を高め、既知の魔法数の破れの実証と新しい魔法数の発見をめざし、将来の安定の島探索の道筋をつける。

3. 研究の方法

多重反射型飛行時間測定式質量測定器(MRTOF-MS)は、1対の静電ミラーからなり、入射させたイオンを多数回往復させた後に全飛行時間を測定することでイオンの質量を決定する装置であり、本研究の研究協力者である Wollnik によって 1990 年代初頭に考案された。この原理を用いて、実際に加速器施設で生成される極少量しか得られない短寿命原子核の測定に使用可能な測定器として開発する。

加速器で生成される新しい原子核は一般に高エネルギーイオンビームとして得られる。これを減速・冷却してイオントラップに捕集する技術は、本研究代表者らによって 1990 年代末に開発された高周波イオンガイド法が広く使われるようになった。高エネルギーイオンはヘリウムを充填したセル中で熱化され、その熱化イオンはセル内に配置された高周波カーペットによって生成される直流電場と不均一交流電場によってセル内壁に失われることなく真空中に引き出される。この技法を発展させ、より高効率・高純度・高速に低エネルギーイオンに変換する機構を実現させる。

これらの二つの装置を組み合わせることにより、理化学研究所の加速器施設の気体充填型反跳核分離器(GARIS-II)で生成分離される超ウラン元素同位体イオンの質量の直接精密測定を実現させる。

4. 研究成果

理化学研究所加速器施設の気体充填型反跳核分離器(GARIS-II)で分離された核融合反応生成物、核子移行反応生成物を、冷凍型高周波イオンガイドガスセルで減速・冷却して真空中に高速で引き出し、イオントラップでパ

ンチ化した後、MRTOF-MS によって超ウラン元素を始め 80 核種の質量測定に成功した。

(1) 冷凍型 He ガスセルに進行波型 RF カーペットイオンガイドの開発

反跳核分離器からの高速短寿命核イオンは 100mbar の He ガスを充填したガスセル内でイオン状態を保ちつつ熱化される。この短寿命核イオンは静電場で陰極まで輸送され、陰極を構成している RF カーペットの不均一高周波電場により陰極に触れることなく真空中に引き出される。高周波電場に音響周波数の進行波を重畳させることでカーペット上を高速に出口ノズルまで輸送できる[1]。不純物分子と荷電変換で失われることを避けるため、ガスセル全体を 70 K まで冷凍して運用する。超ウラン元素 ^{254}No による試験において、入射されるビームの 40% を真空中に導き出すことに成功した。常温時に大量に見られた不純物イオンは殆ど無くなり高純度の短寿命核イオンビームが得られた。オンラインで進行波型 RF カーペットによる引き出しは世界初であり、40% の効率は新記録である。

(2) MRTOF 質量分光器の質量校正法と電子スプレーイオン源による参照イオン生成法の開発

一般に飛行時間測定式の質量分析では、複数の種類の参照イオンが必要だが、MRTOF-MS では、飛行開始時間決定の系統誤差が全飛行時間に比べて圧倒的に小さいため、単一参照イオンで正確な質量校正が可能であることを実証した[2]。さらに、その参照用イオンを別のイオン源から安定かつ高統計で供給し短寿命核イオンと交互に飛行させて、長時間の測定で生じるドリフトも補正し、高確度で質量決定する機構を発明した[3]。また、超重元素のような重い原子核の良い参照用イオン源として電子スプレーイオン源からの微弱分子イオンを高効率で捕集し、質量数 200-300 の領域で満遍なく参照イオンを得る方法を開発した[4]。

(3) 同重核、近傍同位体の同時質量測定

最初の核融合反応生成物の質量測定は、Fr 同位体およびその近傍核に於いて成された。ガスセルから引き出された短寿命核イオンは、

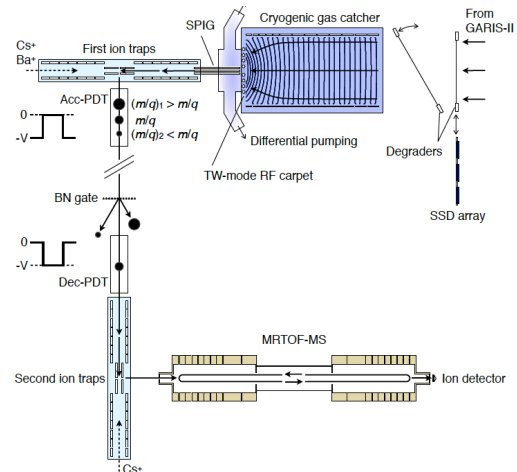


図 1 オンライン質量測定装置概念図

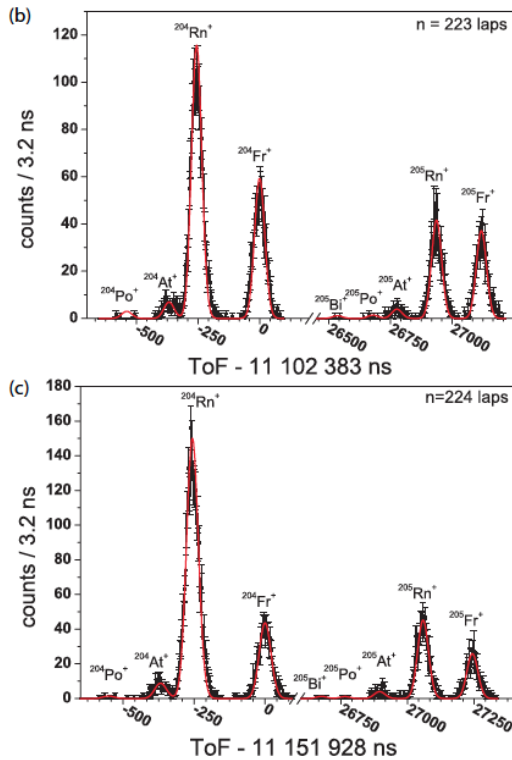


図 2 A=205, 206 同重体の TOF スペクトル

第一のイオントラップ群でバンチ化され、地下階に 2 keV 程度の運動エネルギーで輸送し、そこで再度第二イオントラップ群に捕集し冷却して MRTOF 飛行管に入射される(図 1)。このイオントラップ間の飛行時に BN ゲートという装置を使って大きく質量が異なる不純物を除去する。図 2 は質量数 204, 205 の同重体イオンが同時に測定された MRTOF 内の周回数が 223 回および 224 回の飛行時間スペクトルである。周回数を変えて測定することで周回の異なる不純物イオンが偶偽のピークを造ることを避けている。この例では同時に 9 核種の測定が可能であることを示した[5]。

(4) 最高精度、最短寿命核の質量測定
本研究で開発した短寿命核の質量測定において、最も高精度な測定は中性子欠損側の中重核の測定で示された。この領域の核融合反応では、一般に一次ビームの混入が激しく測定が困難とされていたが、分離機の 2 箇所にビ

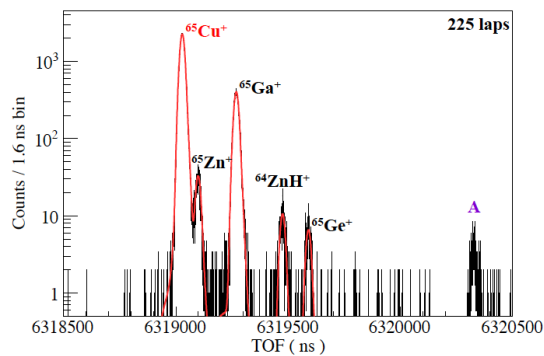


図 3 A=65 同重体の TOF スペクトル

ームストッパーを配置することにより、反応生成物は 50%以上の透過率を保ちつつ混入ビームを 1%以下に軽減する仕組みを開発し、測定が可能になった[6]。図 3 は質量数 65 の同重体の TOF スペクトルであり、これから ^{65}Cu を参照イオンにして ^{65}Ga の質量の 3.5×10^{-8} ($2.1 \text{ keV}/c^2$) の高精度測定を達成した[6]。この ^{65}Ga を含めてこの領域の 14 核種を $\approx 10^{-7}$ の高精度で測定したが、文献値がペニングトラップ質量測定器による高精度測定の場合よく一致しており、MRTOF の高精度性を示した。一方、 ^{67}Ge , ^{81}Br は文献値と有意の差異があった。その文献値は反応の閾値か β 崩壊の Q 値を用いた間接測定であることから、 ^{81}Br のような安定核であっても、間接測定値には誤りがあることがかなりの頻度で起こることを示し、網羅的高精度測定の意義を示した。

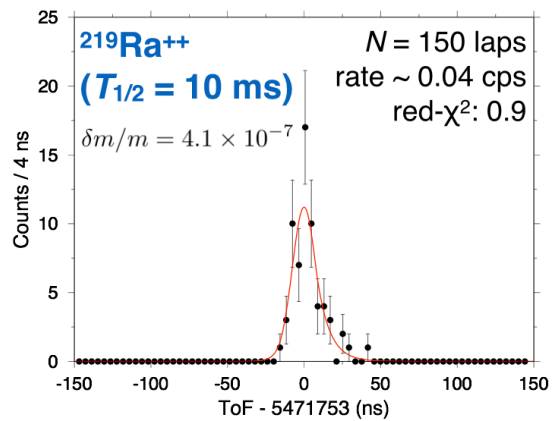


図 4 $^{219}\text{Ra}^{++}$ の TOF スペクトル

MRTOF の特徴である数ミリ秒の短い飛行時間で高精度測定ができることは、Ra 同位体の測定で示された(図 4)。半減期 10ms の $^{219}\text{Ra}^{++}$ の質量を 100 イベントの測定で 4.1×10^{-7} の精度で決定できた[7]。この精度は半減期で制限されているわけではなく、統計量で決まっている。

(5) 超ウラン元素の質量測定

中重核の質量測定による成果によって、2 価のイオンが優勢であること、イオンビームの輸送光学系の改善が成されたことにより、GARIS-II から MRTOF の検出器までの全効率 1-2% が達成できたことから、生成断面積 50nb 級の超ウラン元素の質量測定が可能になった。 ^{48}Ca ビームを用いた冷たい核融合反応により、 $^{249-251}\text{Md}$, ^{254}No を、 ^{19}F , ^{18}O ビームを用いた熱い核融合反応により ^{246}Es , ^{251}Fm , ^{252}Md をそれぞれ生成し質量測定に成功した[8]。この内、Es と ^{251}Md を除く 3 つの Md 同位体は初めて質量測定が成された。 ^{254}No はドイツ GSI でペニングトラップを用いた高精度測定があるが本研究の結果とよく一致している。 ^{254}No には励起エネルギー 1.1 MeV のアイソマーの存在が知られている。ペニングトラップでは異種粒子の存在が害を起すため高純化の過程が必要となる。MRTOF では異種粒子が同時に存在できるため基底状態とアイソマー状態を質量ス

ペクトルに同時に見ることができた (図 5)。

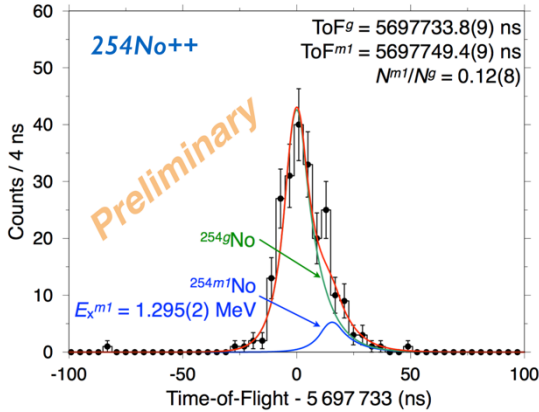


図 5 ^{254}No とアイソマーの TOF スペクトル

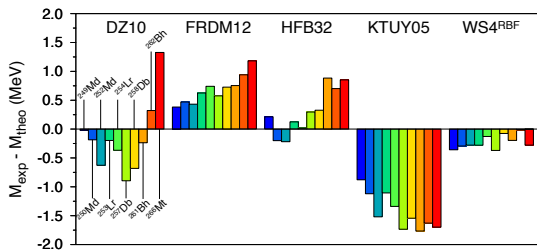


図 6 質量測定結果と理論計算との比較

Md 同位体は α 崩壊の分岐比が小さく β 崩壊が優勢であるため、 α 崩壊連鎖の Q 値による間接質量測定をブロックしていた。今回の測定を用いて $^{253, 254}\text{Lr}$, $^{257, 258}\text{Db}$, $^{261, 262}\text{Bh}$, ^{266}Mt の質量を間接的に決定できた。この結果を幾つかの理論計算と比べると、図 7 に示すとおり、WS4^{RBF} というマクロ・マイクロ質量モデルがこの領域では優れていることを示した (図 6)。さらに、今回の Md 同位体の質量測定結果を用いて 2 中性子分離エネルギーの差分 (δS_{2n}) をプロットすることで中性子数 152 の閉殻を支持した結果が得られた [8]。

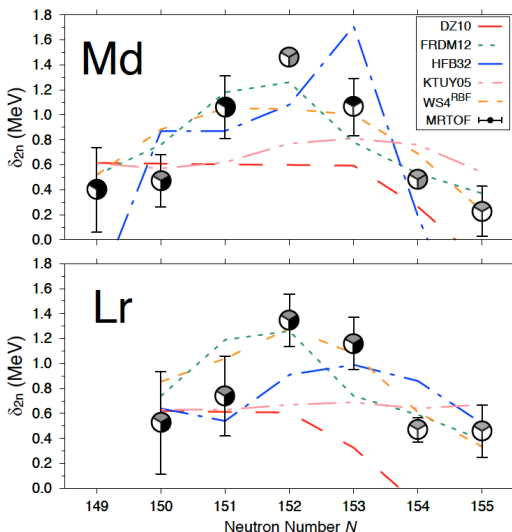


図 7 2 中性子分離エネルギーの差分

(6) まとめ

冷凍型 RF カーペットガスセル装置と MRTOF を組み合わせることで、能率よく高精度・高確度で寿命が 10ms の短寿命核や生成量が極端に小さい超ウラン元素の質量測定が可能となった (図 8)。これまで質量測定をリードしてきたペンニングトラップや蓄積リングで容易にたどり着けなかった領域、半減期 10-100ms の原子核を 10^{-7} 代の精度で測定できるのは MRTOF であることを示した。全効率 1-2% は超元素の直接質量測定には未だ十分ではない。これは 2 段階にイオントラップしなければならない実験室の構造に起因している。次期装置では広い部屋に GARIS-II が移動するので一段階のイオントラップで MRTOF に導くことが可能となる。そこでは全効率 20% 以上が期待でき、中性子過剰ニホニウム同位体の質量測定による元素同定も夢ではない。

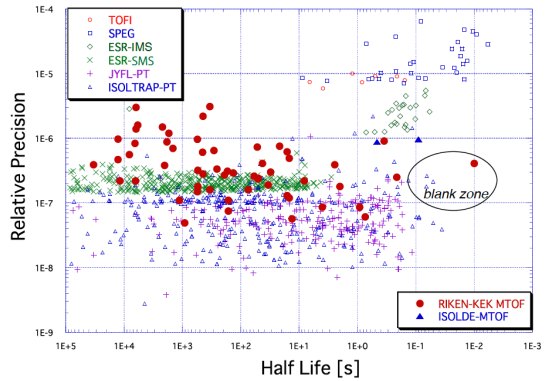


図 8 質量測定精度と半減期の依存性

<引用文献>

[1] F. Arai et al, Int. J. Mass Spectrom., 362 (2014) 56
 [2] Y. Ito et al, Phys. Rev. C 88 (2013) 011306(R).
 [3] 和田道治 他、特願 2016-037629 (2016)
 [4] S.Naimi et al., Int. J. Mass Spectrom., 337 (2013) 24.
 [5] P.Schury et al, Phys. Rev. C 95 (2017) 11305(R).
 [6] S. Kimura et al., submitted to Phys. Rev. C.
 [7] Y.Ito et al., in preparation.
 [8] Y.Ito et al., submitted to Phys. Rev. Lett.

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 11 件)

①“Observation of Doubly-Charged Ions of Francium Isotopes Extracted from a Gas Cell”, P.Schury, M.Wada, Y.Ito, D.Kaji, H.Haba, Y.Hirayama, S.Kimura, H.Koura, M.MacCormick, H.Miyatake,

J.Y.Moon, K.Morimoto, K.Morita, I.Murray, A.Ozawa, M.Rosenbusch, M.Reponen, A.Takamine, T.Tanaka, Y.X.Watanabe, H.Wollnik, Nucl. Inst. Meth. B, (2017), accepted for publication. 査読有

② “First online multireflection time-of-flight mass measurements of isobaric chains produced by fusion-evaporation reactions: Toward identification of superheavy elements via mass spectroscopy”, P. Schury, M. Wada, Y. Ito, F. Arai, D. Kaji, S. Kimura, K. Morimoto, H. Haba, S. Jeong, H. Koura, H. Miyatake, K. Morita, M. Reponen, A. Ozawa, P-A. Soederstroem, A. Takamine, T. Tanaka, H. Wollnik, Phys. Rev. C 95 (2017) 11305(R). 査読有

③ “Status of the low-energy super-heavy element facility at RIKEN”, P. Schury, M. Wada, Y. Ito, F. Arai, D. Kaji, S. Kimura, K. Morimoto, H. Haba, S. Jeong, H. Koura, H. Miyatake, K. Morita, M. Reponen, A. Ozawa, T. Sonoda, A. Takamine, H. Wollnik, Nucl. Inst. Meth B 376 (2016) 425-428. 査読有

④ “Wide-band mass measurements with a multi-reflection time-of-flight mass spectrograph”, P. Schury, Y. Ito, M. Wada, H. Wollnik, Int. J. Mass Spectrom. , 359 (2014) 19-25. 査読有

⑤ “Investigation of the ion surfing transport method with a circular rf carpet”, F. Arai, Y. Ito, M. Wada, P. Schury, T. Sonoda, H. Mita, Int. J. Mass Spectrom., 362 (2014) 56-58. 査読有

⑥ “A high-resolution multi-reflection time-of-flight mass spectrograph for precision mass measurements at RIKEN/SLOWRI”, P. Schury, M. Wada, Y. Ito, F. Arai, S. Naimi, T. Sonoda, H. Wollnik, V.A. Shchepunov, C. Smorra, C. Yuan, Nucl. Inst. Meth. In Phys. Res. B, 335 (2014) 39-53 査読有

⑦ “Genealogy of gas cells for low-energy RI-beam production”, M. Wada, Nucl. Inst. Meth in Phys. Res. B, 317 (2014) 450-456. 査読有

⑧ “A novel ion cooling trap for multi-reflection time-of-flight mass spectrograph”, Y. Ito, P. Schury, M. Wada, S. Naimi, C. Smorra, T. Sonoda, H. Mita, A. Takamine, K. Okada, A. Ozawa, H. Wollnik, Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. B 317 (2013) 544-549. 査読有

⑨ “A multi-reflection time-of-flight mass spectrograph for short-lived and super-heavy nuclei”, P. Schury, M. Wada, Y. Ito, S. Naimi, T. Sonoda, H. Mita, A. Takamine, K. Okada, H. Wollnik, S. Chon,

H. Haba, D. Kaji, H. Koura, H. Miyatake, K. Morimoto, K. Morita, A. Ozawa, Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. B, 317 (2013) 537-543. 査読有

⑩ “An rf-carpet electrospray ion source to provide isobaric mass calibrants for trans-uranium elements”, S. Naimi, S. Nakamura, Y. Ito, H. Mita, K. Okada, A. Ozawa, P. Schury, T. Sonoda, A. Takamine, M. Wada, H. Wollnik, Int. J. Mass Spectrom. 337 (2013) 24-28. 査読有

⑪ “Single-reference high-precision mass measurement with a multireflection time-of-flight mass spectrograph”, Y. Ito, P. Schury, M. Wada, S. Naimi, T. Sonoda, H. Mita, F. Arai, A. Takamine, K. Okada, A. Ozawa, H. Wollnik, Phys. Rev. C, 88 (2013) 011306(R) 1-5. 査読有

[学会発表] (計 10 件)

① “First direct mass measurements on Mendeleevium with an MRTOF mass spectrograph”, Y. Ito, M. Wada, P. Schury et al, Advances in Radioactive Isotope Science (ARIS2017), May 28-June 2, 2017, Keystone, Colorado, USA.

② “About possible ambiguities from alpha spectroscopy and direct mass measurements of neutron-deficient actinium and radium isotopes”, M. Rosenbusch, P. Schury, M. Wada, Y.Ito et al, Advances in Radioactive Isotope Science (ARIS2017), May 28-June 2, 2017, Keystone, Colorado, USA.

③ “MRTOF 質量分析器による八重極変形核 $^{223,224}\text{Th}$ の精密質量測定”, 伊藤由太、和田道治、他、日本物理学会、Mar. 17-20, 2017、大阪大学豊中キャンパス(大阪府・豊中市)

④ “重元素の網羅的質量測定の可能性と応用”, 和田道治、日本物理学会、Mar. 17-20, 2017、大阪大学豊中キャンパス、豊中市、大阪府

⑤ “革新的質量分光器を用いた重元素の起源の研究”, 和田道治、東海・重イオン科学シンポジウム、Jan. 5-6, 2017, 日本原子力機構(茨城県・東海村)

⑥ “MRTOF を用いた重い不安定核の直接質量測定” P. Schury, 和田道治、伊藤由太、他、日本物理学会、Sept. 25-28, 2015, 大阪市立大学(大阪府・大阪市)

⑦ “MRTOF mass measurements at GARIS-II: Toward SHE identification via mass spectroscopy”, P. Schury, M. Wada et al., JCNP2015, Nov. 7-12, 2015, RCNP, 大阪大学(大阪府・吹田市)

⑧ “Toward high precision spectroscopy at SLOWRI, RIKEN RIBF”, M. Wada et al., JCNP2015, Nov. 7-12, 2015, RCNP, 大阪大学(大阪府・吹田市)

⑨ “SHE-mass project at RIKEN RIBF”, M. Wada et al., TAN2015, May 25, 2015, Urabandai, Fukushima, Japan.

⑩“Status of the low-energy Super-Heavy Element Facility at RIKEN”, P. Schury et al., EMIS2014, May 11-15, 2015, Grand Rapids, MI, USA.

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計 1 件)

名称：飛行時間測定式質量分析装置および方法

発明者：和田道治、P. Schury, 伊藤由太, H. Wollnik

権利者：和田道治、P. Schury, 伊藤由太, H. Wollnik

種類：特許

番号：2016-037629

出願年月日：2016年2月19日

国内外の別：国外

○取得状況(計 0 件)

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

取得年月日：

国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

和田 道治 (WADA, Michiharu)

高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核研究所・教授

研究者番号：50240560

(2) 研究分担者

森本 幸司 (MORIMOTO, Kouji)

国立研究開発法人理化学研究所・仁科加速器研究センター・チームリーダー

研究者番号：00332247

加治 大哉 (KAJI, Daiya)

国立研究開発法人理化学研究所・仁科加速器研究センター・仁科センター研究員

研究者番号：00391912

小浦 寛之 (KOURA, Hiroyuki)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門・先端基礎研究センター・研究主幹

研究者番号：50391264

羽場 宏光 (HABA, Hiromitsu)

国立研究開発法人理化学研究所・仁科加速器研究センター・チームリーダー

研究者番号：60360624

園田 哲 (SONODA, Tetsu)

国立研究開発法人理化学研究所・仁科加速器研究センター・仁科センター研究員

研究者番号：60525583

(3) 連携研究者

小澤 顕 (OZAWA, Akira)

筑波大学・数理物質科学研究科・教授

研究者番号：80260214

高峰 愛子 (TAKAMINE, Aiko)

国立研究開発法人理化学研究所・仁科加速器研究センター・研究員

研究者番号：10462699

岡田 邦宏 (OKADA, Kunihiro)

上智大学・理工学部・教授

研究者番号：90311993

宮武 宇也 (MIYATAKE, Hiroari)

高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核研究所・教授

研究者番号：50190799

Schury Peter (SCHURY, Peter)

高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核研究所・助教

研究者番号：30462724

(4) 研究協力者

Wollnik, Hermann (WOLLNIK, Hermann)

ニューメキシコ州立大学・教授