

超重元素同位体の精密質量測定



和田 道治
Wada Michiharu

1 はじめに

新元素ニホニウム (Nh, 原子番号 $Z=113$) の発見¹⁾ は一般のニュースでも大きく取り上げられ話題となった。この新元素は理化学研究所 (理研) の加速器施設における 10 年間のプロジェクトで 3 個の原子を確実に観測したことで命名権を獲得した。実は同じ時期に 118 番元素までの命名権が確定しており^{2,3)}、現在 119, 120 番元素発見の競争が理研とロシアのフレロフ核反応研究所 (フレロフ研究所) との間で繰り広げられている。新しい超重元素の探索は、原子核の存在限界の解明、とりわけ現在見つ

ている超重元素よりはるかに重い領域にあり、長い寿命を持つと予測されている「安定の島」の発見等、極めて挑戦的な課題である (図 1)。

一方、「発見」の次の段階の課題は、「なぜ超重元素が存在できるか」の解明である。陽子数の大きい原子核ではそのクーロン反発により安定に保つことが難しく、単純な球形の原子核モデルではウランでさえ安定に存在できないとされている。その解明には、超重元素同位体の分光学的研究、とりわけ原子の全結合エネルギーを決定する質量測定が最も有効である。更に、宇宙における爆発的元素構成過程では、中性子過剰な超重元素まで到達していたはずで

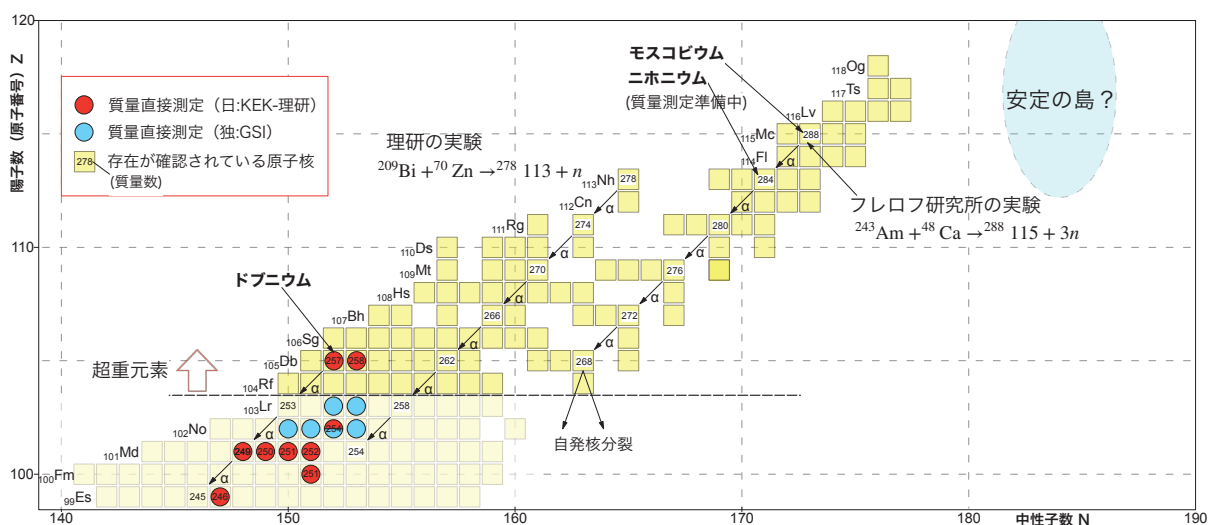


図 1 超重元素領域の核図表

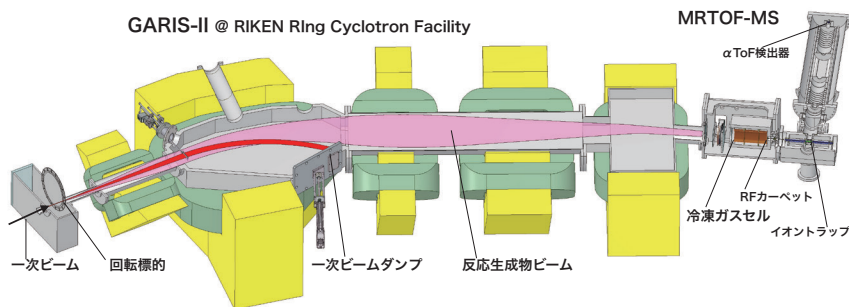


図2 理研 GARIS-II 施設に設置した SHE-Mass 装置

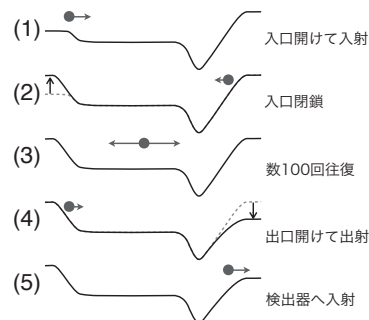


図3 MRTOF-MS の飛行時間測定順序

あり、それを検証するためには、この領域の質量公式の精度を実験データの蓄積によって高める必要がある。

2 超重元素の質量測定

超重元素同位体の質量測定研究を始めた動機は、新しい元素の確実な同定をすることであった。ニホニウムには理研で発見された ^{278}Nh の他に、フレロフ研究所で発見された、より中性子数の大きな同位体 ($^{282-286}\text{Nh}$) がある。前者は原子3個しか観測していないのに対して、後者は複数の同位体について多数の事象を観測している。しかも最初の報告はフレロフ研究所のほうがかつたにも関わらず、理研に命名権が与えられた。これには明確な理由がある。理研の実験は $^{209}\text{Bi} + ^{70}\text{Zn} \rightarrow ^{278}\text{Nh} + n$ という「冷たい融合反応」でニホニウム同位体を生成し、それが検出器中で連続 α 崩壊して α 線エネルギーが良く分かった原子核に到達している ($^{278}\text{Nh} \rightarrow ^{274}\text{Rg} \rightarrow ^{270}\text{Mt} \rightarrow ^{266}\text{Bh} \rightarrow ^{262}\text{Db} \rightarrow ^{258}\text{Lr} \rightarrow ^{254}\text{Md}$) (図1)。それに対して、フレロフ研究所の実験はその400倍もの断面積を持つ「熱い融合反応」によって生成している。例えば、 $^{243}\text{Am} + ^{48}\text{Ca} \rightarrow ^{288}\text{Mc} + 3n$ 反応でモスコビウム ($Z=115$) を生成し、その α 崩壊でニホニウム同位体を観測している。これも $^{288}\text{Mc} \rightarrow ^{284}\text{Nh} \rightarrow ^{280}\text{Rg} \rightarrow ^{276}\text{Mt} \rightarrow ^{272}\text{Bh} \rightarrow ^{268}\text{Db}$ と連続的に α 崩壊しているが、最後の ^{268}Db は自発核分裂してしまい(図1)、既知の原子核とはつながっておらず、従来の定義による新元素の同定には相当していない。そのため、新元素の認定を行う IUPAC, IUPAP の合同委員会においてもなかなか決着がつかなかったのである。

筆者らの計画は、この熱い融合反応で生成された ^{288}Mc , ^{283}Nh を直接精密質量測定して、質量数と同時

に原子番号まで正確に同定しようとして提案した。そのような状況の中、合同委員会は、熱い融合反応で生成された Cn ($Z=112$) 及びその系列の $Z=114, 116$ 元素を先に、既知のアンカーと接続していないにも関わらず先に認定してしまっていたため⁴⁾、矛盾を抱えながらも、113番は理研に、115, 117, 118番はフレロフ研究所を中心とする共同研究に命名権を与えるという決着をつけたが、より正確な原子番号同定法を開発してほしいと結んでいる²⁾。新しい同定法として、 α 崩壊に伴う特性 X 線測定を試みや⁵⁾、自発核分裂する前の元素の化学的特性測定計画⁶⁾、質量数を決めたとする実験⁷⁾ 等があるが、依然として精密質量測定の意義は高く、同定のみならず準魔法数の検証等の核構造研究から超重元素が存在できる理由の解明にもつながる研究となる。

3 質量測定装置

超重元素同位体の質量測定のために、反応生成物を効率良くイオントラップするガスセル装置⁸⁾と、短寿命かつ重い原子核を能率良く高精度・高確度で質量測定可能な多重反射型飛行時間測定式質量分光器 (MRTOF-MS)⁹⁾ を組み合わせた SHE-Mass 装置を開発した(図2)。理研の加速器施設にある気体充填型反跳イオン分離器 (GARIS-II) で分離された超重元素同位体イオンビームは、70 K 以下に冷凍したヘリウムガスセル中で低価のイオン状態を保ちながら停止する。そのイオンは、DC 電場と RF カーベットによる高周波電場の組み合わせにより、陰極面に衝突して失われることなくイオントラップに導かれる。MRTOF-MS は1対の静電ミラーからなり、図3に示すような手順で2~10数 m 秒間イオンを往復させて、その飛行時間から質量を決定する。質量が精密に分

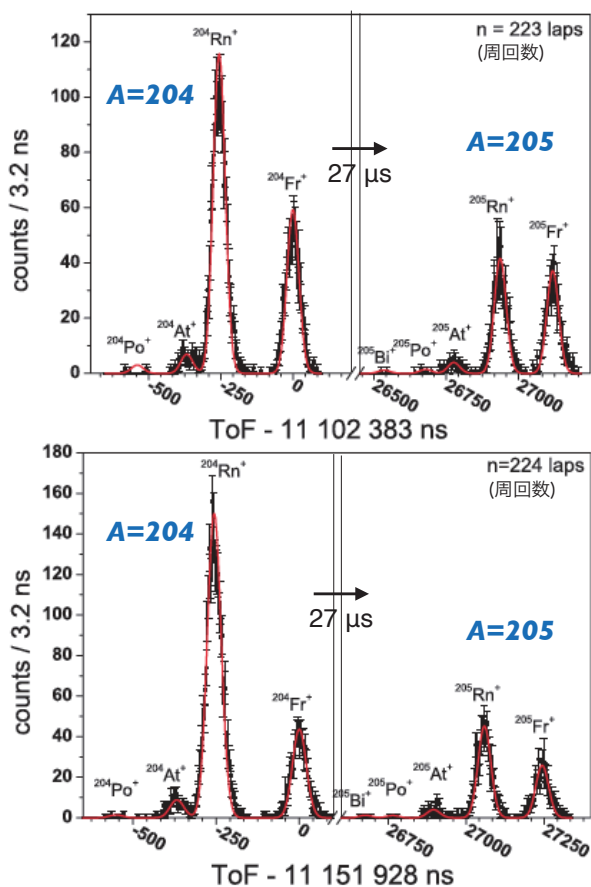


図4 MRTOFによる質量測定例

かっている参照イオン（原子質量 m_r , 荷電 q_r ）の飛行時間 t_r と、目的のイオン（原子質量 m_x , 荷電 q_x ）の飛行時間 t_x から、

$$m_x = q_x \frac{m_r - q_r m_e}{q_r} \rho^2 + q_x m_e, \quad \rho = \frac{t_x - t_0}{t_r - t_0}$$

によって質量が決定できる。ただし、 m_e は電子質量で t_0 は飛行時間の原点オフセットで他の測定から求められる。図4に示す飛行時間スペクトルは、SHE-Mass装置で最初に測定した結果で、質量数 204, 205 の9個の同重体が同時に測定できている¹⁰⁾。このように、複数の質量数の複数の同重体の測定を同時に実行することができるのはMRTOF装置の重要な特徴である。この測定の段階では質量分解能が20万だったので、100イベントの測定で0.5 ppmの精度で質量を決定することができた。現在は質量分解能100万を達成できているので10イベントでも0.3 ppmで決定できる¹¹⁾。

4 ドブニウムの質量測定

初の超重元素同位体の測定として、まず²⁵⁷Dbの測定を実施した。 $^{208}\text{Pb} + ^{51}\text{V} \rightarrow ^{257}\text{Db} + 2n$ という反応を用いて生成したドブニウム同位体ビームは、ガスセルで熱化した後に2価ないし3価のイオンとして引き出された。できるだけ不純物分子イオンによるバックグラウンドが少ない飛行時間帯に目的の²⁵⁷Db³⁺イオンのToFが来るように周回数を設定し、測定を行った。それでも1日に2イベント程度のごく低い計数率なので、真の事象の弁別のために、飛行時間測定の検出器を改造してイオン飛来後に α 崩壊する信号を検出する α ToF検出器を開発した。これは、市販のイオン検出器MagneToFのイオン衝撃板を、Si検出器と入れ替えたものであり、飛行時間信号とその後の α 線のエネルギーを測定することが可能であり、希事象の同定ばかりでなくアイソマー準位の分光研究が可能だ¹²⁾。図5は、実際に測定した2020年1月18日から24日の間の検出時刻に沿った飛行時間スペクトルで、横軸は異なる周回数での測定を統一的に扱うため参照イオン(⁸⁵Rb⁺)との飛行時間比 ρ を用いて表示している。このE1-E14が α 線と相関のある事象であるが、その中から真の事象を確認するために、 α 線のエネルギーとイオン飛来から α 線検出までの時間間隔（崩壊時間）の相関を調べた（図6）。その結果、E4, E7, E10の3事象は不純物の²¹¹Poによる事象と判断することができ、除外された。残る11事象は²⁵⁷Dbもしくはその娘核である²⁵³Lr, ²⁴⁹Md, ²⁴⁵Esの α 線と相関した事象であると判断できた。これらの事象の飛行時間比 ρ の平均値から、²⁵⁷Dbの質量を257.1074(4)uと1.5 ppmの精度で決定できた¹³⁾。

最初の実験では、金属鉛標的を用いたため、ビーム強度を 4×10^{12} 粒子/秒程度に制限させられたが、2回目の実験では硫化鉛標的を開発し2.5倍の強度の照射を可能にした。更にMRTOFの飛行管内にIn-MRTOFデフレクタを設置して、目的外の質量の不純物イオンを能率良く削減できるようにした¹¹⁾。その結果、図7に示すような明瞭な飛行時間スペクトルが得られ、²⁵⁷Db²⁺, ²⁵⁸Db²⁺の2つの超重元素同位体を同時に高精度で質量測定することができた。

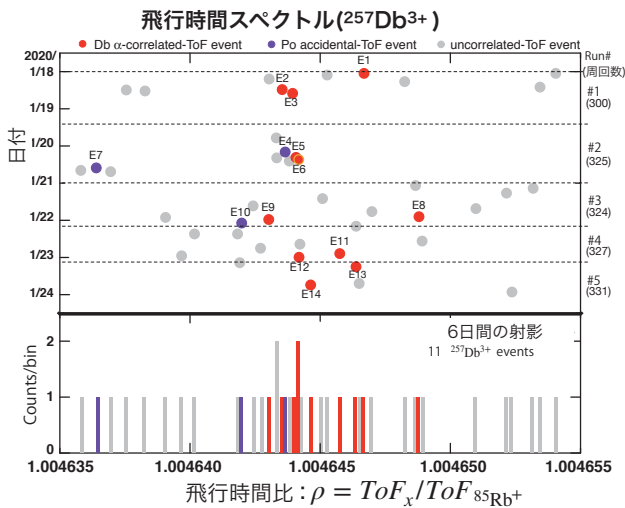


図5 $^{257}\text{Db}^{3+}$ イオンの飛行時間スペクトル
赤印の事象が α 線と相関がある真の事象と判断された

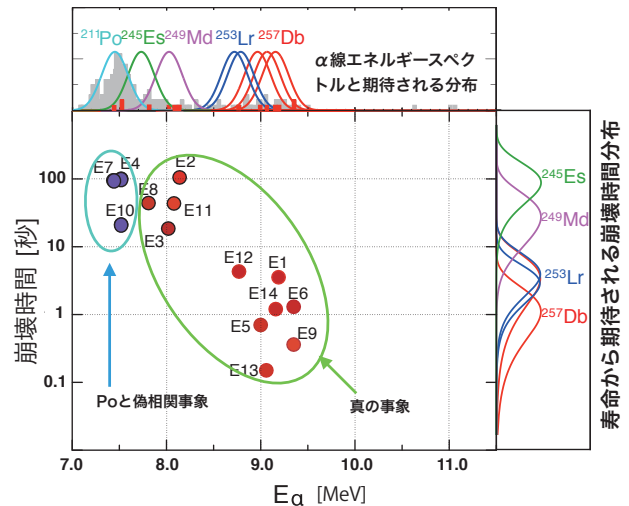


図6 飛行時間信号と相関した α 線のエネルギーと崩壊時間の相関分布

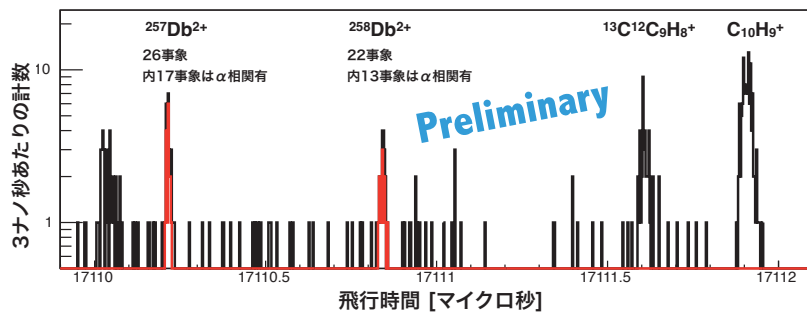


図7 高強度一次ビームと In-MRTOF デフレクタを使用して 46 時間の測定で得られた $^{257}\text{Db}^{2+}$, $^{258}\text{Db}^{2+}$ の飛行時間スペクトル

5 ニホニウムの質量測定状況

超重元素同位体の初の直接精密質量測定に成功したことは、モスコビウム、ニホニウムの質量測定計画を大きく前進させた。実績のある $^{243}\text{Am} + ^{48}\text{Ca} \rightarrow ^{288}\text{Mc} + 3n$, $^{287}\text{Mc} + 4n$ 反応を用いてモスコビウム同位体の質量測定をするばかりでなく、寿命の短い ^{287}Mc ($T_{1/2} = 32$ ms) がガスセル中で α 崩壊した娘核 ^{283}Nh の質量測定も予定している。現性能から期待できる ^{288}Mc の観測率は 2~3 日に 1 事象程度と予測され、1 か月のマシンタイムで 10 事象観測して 0.5 ppm の精度で質量測定が見込まれ、十分に実験可能である。標的のアメリシウムは準備できているが、残念なことに、加速ビームの安定同位体 ^{48}Ca (同位体存在度 0.187 %) が世界市場で全く入手できなくなり、実験計画は中断状態である。自前の同位体精製装置に挑戦しているが、実用的な量を得るにはもう少し時間がかかる見込みである。

6 結語

超重元素の質量測定計画は、多年に渡る高周波イオンガイドガスセル技術と、MRTOF 質量分光器開発の成果の結実である。ガスセル開発は 1987 年に東京大学原子核研究所で開始し、理研原子物理研究室、仁科加速器科学研究センター SLOWRI チームに引き継がれ、今日も石山博恒氏、高峰愛子氏を中心に開発が進められている。

MRTOF 質量分光器は、1980 年代に原理を考案した H. Wollnik 氏 (Giessen 大 - ニューメキシコ州立大, KEK) と共に 2001 年にプロトタイプ開発を石田佳久氏 (理研) と始めた¹⁴⁾。その後現行機の開発は 2007 年から P. Schury 氏 (理研 - 筑波大 - KEK) を中心に開始し、2010 年からは伊藤由太氏 (筑波大 - 理研 - MacGill 大 - 原研) が加わり、2012 年には理研 RIPS のプロトタイプ SLOWRI で最初のオンライン測定に成功した¹⁵⁾。2014 年からは理研 RILAC の

GARIS-II に SHE-Mass 装置の整備を開始し、2015 年に ^{205}Fr の質量測定に成功し¹⁰⁾、2017 年には $Z=101$ のメンデレビウム同位体の初質量測定に成功している¹⁶⁾。2019 年に GARIS-II が理研リングサイクロトロンに移転したのに伴い、現在の位置に SHE-Mass 装置を移設した。そこには木村創太氏（筑波大-KEK-理研）、M. Rosenbusch 氏（理研-KEK）、庭瀬暁隆氏（九州大-理研-KEK）が加わり、MRTOF の改良、検出器開発及び実験を推進した。現在は GARIS-II の他に KEK の KISS 施設、RIBF の BigRIPS-SLOWRI の 2 か所にガスセル+ MRTOF 質量分光器を整備し、広範囲の短寿命原子核の精密質量測定を並行して進めており、これまでに 400 余核種の測定に成功している。

GARIS-II の運用及び標的開発は理研仁科加速器科学研究センター超重元素研究開発部の羽場宏光氏、森本幸司氏、加治大哉氏の寄与が大きい。また同センター加速器チームによる線形加速器及びリングサイクロトロンの円滑な運用なしには実験は成立し得なかった。ここに感謝申し上げる。

なお、超重元素質量測定計画は、科研費基盤研究 (S) (2012-16) 24224008 で開始し、科研費特別推進研究 (2017-2021) 17H06090 及び科研費基盤研究 (S)

(2022-26) 22H04946 の一部で実施している。

参考文献

- 1) Morita, *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **81**, 103201 (2012)
- 2) P.J. Karol, *et al.*, *IUPAC Technical Report, Pure Appl. Chem.*, **88**, 139 (2016)
- 3) P.J. Karol, *et al.*, *IUPAC Technical Report, Pure Appl. Chem.*, **88**, 155 (2016)
- 4) R.C. Barber, *et al.*, *IUPAC Technical Report, Pure Appl. Chem.*, **83**, 1485 (2011)
- 5) D. Rudolph, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **111**, 112502 (2013)
- 6) J. Evan, *et al.*, *Science*, **345**, 1491 (2014)
- 7) J.M. Gates, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **121**, 222501 (2018)
- 8) M. Wada, *et al.*, *Nucl. Inst. Meth.*, **B204**, 570 (2003)
- 9) P. Schury, *et al.*, *Nucl. Inst. Meth.*, **B335**, 39 (2014)
- 10) P. Schury, *et al.*, *Phys. Rev.*, **C95**, 011305 (R) (2017)
- 11) M. Rosenbusch, *et al.*, arXiv:2110.11507 (2021)
- 12) T. Niwase, *et al.*, *Phys. Rev.*, **C104**, 044617 (2021)
- 13) P. Schury, *et al.*, *Phys. Rev.*, **C104**, L021304 (2021)
- 14) Y. Ishida, *et al.*, *Nucl. Inst. Meth.*, **B241**, 983 (2005)
- 15) Y. Ito, *et al.*, *Phys. Rev.*, **C88**, 011306 (2013)
- 16) Y. Ito, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **120**, 152501 (2018)

(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)