

2013年7月17日
独立行政法人理化学研究所
国立大学法人筑波大学

短寿命原子核の高精度質量測定法 MRTOF を開発

—数ミリ秒の飛行で数百万分の一の高精度を高効率で実現—

本研究成果のポイント

○MRTOF による高エネルギー短寿命核の精密質量測定を世界で初めて実現

○原子核の存在や安定性を決定する結合エネルギーの正確な把握が可能に

○宇宙における重元素の起源や予言されている超重元素の解明に道筋

理化学研究所（理研、野依良治理事長）と筑波大学（永田恭介学長）は共同で、短寿命原子核の質量を測定できる多重反射型飛行時間測定式質量測定器（MRTOF）を開発し、高エネルギー短寿命イオン（ $^8\text{Li}^+$ ）の質量をわずか 8 ミリ秒の飛行時間によって 150 万分の 1 の高精度で測定できることを確認しました。

これは、理研仁科加速器研究センター（延與秀人センター長）低速 RI ビーム生成装置開発チームの和田道治チームリーダー、筑波大学数理物質系のピーター・シュリー講師（本研究実施当時、理化学研究所協力研究員）らの共同研究グループの成果です。

原子質量の測定から分かる原子核の結合エネルギー^[1]は、原子核の存在や安定性を決定する最も基本的な要素です。

近代物理学が始まって以来さまざまな原子質量の測定方法が開発され、約二千数百核種の質量が測定されてきました。しかし、その多くは、放射性崩壊や原子核反応の熱量から求められた間接的な測定です。間接的な測定法は、未知の崩壊様式からくる不定性や誤差の積み重ねの問題があるため、より確度の高い直接的な測定が望まれています。

安定核や比較的長寿命（1 秒以上）の核種については、ペニングトラップ質量分析器^[2]が最も高精度に測定できる直接的な測定装置として使用されてきました。しかし、寿命が 0.1 秒以下の短寿命原子核や重い原子核では、その性能に限界がありました。

短寿命原子核は、天然には存在せず超新星爆発時など一時的に存在していたと考えられています。この原子質量を測定することは、宇宙における鉄よりも重い元素の合成過程の解明につながると考えられ、物理学において大変重要な課題です。

今回開発に成功した MRTOF は、イオントラップで蓄積・冷却したイオンを、1 対の静電ミラー電極間で数百回往復させ、その飛行時間から質量を測定する装置です。この装置を用いて理研が保有する RI ビームファクトリー（RIBF）^[3]から得られた高エネルギー短寿命 Li 同位体イオン（ $^8\text{Li}^+$ ）を減速・冷却した後、8 ミリ秒間飛行させ、原子質量標準^[4]である炭素同位体イオン（ $^{12}\text{C}^+$ ）の飛行時間と比較することによって、質量を 150 万分の 1 の精度で決定できることを確認しました。これは、原子核の構造や、超新星爆発時の重い元素合成経路を決定するために必要かつ十分な性能です。

本成果は、現在建設中の超低速 RI ビーム生成装置（SLOWRI）^[5]を用いた本格的な短寿命核の精密質量測定による重元素の起源の解明と、気体充填型反跳核分離器（GARIS）^[6]を使用した未知の超重元素の探訪への道筋をつけるものです。

本研究結果は、米国の科学雑誌『*Physical Review C*』に掲載されるに先立ち、オンライン版が近日中に掲載されます。

1. 背景

一般に原子核が原子核として存在できるか、存在できたとしてもある寿命で他の原子核に壊変するか、あるいは永遠に安定に存在できるかは、その原子質量から導かれる結合エネルギーによって決定されます。魔法数や変形などの原子核の構造を特徴づける性質も、近傍の原子核間で結合エネルギーを比較することによって見いだすことができます。

鉄より重い元素である金やウランは、宇宙での超新星爆発の時などに、中性子を多量に吸収し、通常天然には存在しない短寿命原子核を経て、生まれたと考えられています。そのため、この中性子を過剰に含んだ短寿命原子核の質量を測定することは、宇宙における重い元素の起源を探る手掛りとなります。こうした原子核の多くは、半減期が100ミリ秒から10ミリ秒であり、さらに最新の加速器施設を利用しても1時間に1個程度しか生成できません。こうした背景から、短寿命原子核の質量を100万分の1以上の高精度かつ効率的に測定する手法の開発が待ち望まれていました。

短寿命原子核を含む不安定原子核の質量測定には、直接測定法と間接測定法があり、短寿命原子核の多くは β 崩壊の最大エネルギーなどによる間接測定法で決定されました。しかし、間接法は原子核の崩壊様式による不定性^[7]や、誤差の積み重ね^[8]の問題があり、確度の高い直接測定法が求められています。

不安定原子核の直接測定法には、さまざまな方法があり、それぞれ特徴を持っています。しかし、精度が要求に満たないことや、高精度でも測定できる原子核の半減期が長いものに限定され、短寿命原子核が測定できないなどの難点がありました。現在、世界の研究機関で多用されているペニングトラップ質量分析器は、イオンを磁場中にトラップし、その固有回転周波数から質量を決定する方式で数千万分の一の精度で測定が可能です。しかし、固有回転周波数を高精度で測るには、1秒程度の測定時間が必要であり、ほとんど半減期1秒以上の安定核の測定に使用されてきました(図1)。

こうした中、近年注目を浴び始めたのが、より高精度で短寿命原子核が測定可能になるMRTOF質量測定器です。理化学研究所のほかに、ドイツの重イオン研究所、スイスCERNのISOLDE研究施設でオンライン試験が進行しています。

2. 研究手法と成果

MRTOF多重反射型飛行時間測定式質量測定器は、イオンを蓄積・冷却するトラップ、イオンを往復させる1対のイオンミラー、および検出器から構成されています(図2)。数ミリ秒間トラップの中でイオンを冷却し、トラップから1500V程度の電圧で引き出します。その瞬間だけイオンミラーの電位を下げおき(図2の2)、イオンミラー間に導入し、その直後に入り口を閉じます(図2の3)。ミラーの間で加速・減速を繰り返しながら、何回も往復したあと、あるタイミングで出口側のミラーの電位を下げます(図2の4)。するとイオンは外に飛び出し、検出器で到着時刻が測定されます。トラップから引き出した時刻からこの検出されるまでの時間を「飛行時間(TOF)」と呼びます。この飛行時間は、等しいエネルギーで飛行させれば、質量の平方根に比例します。そのため飛行時間を精密に測定し、質量が精密に分かっている参照用のイオンの飛行時間と比べることにより、目的のイオンの質量が決定できます。

イオンミラーで1回だけ反射させて質量を測定するリフレクトロンという装置は古くから使われていましたが、より高精度の測定を実現するためには、より長い飛行距

離が必要なため、ミラー間を数百回往復させる方式が 1990 年代初めに、本研究グループの一員であるウォルニック (Wollnik) 客員研究員 (当時ドイツ、ギーセン大学教授) らによって考案されました。本研究では、その多重反射型飛行時間測定式質量分析法を応用し、加速器施設で生成される高エネルギー RI ビームの質量測定が可能なオンライン質量測定装置 (図 3) として開発し、実際に短寿命原子核の質量測定を初めて実証しました。

理研の加速器施設の入射核破砕片分離器(RIPS) [9]で生成分離された 10 億電子ボルトの ^8Li ビームは、プロトタイプ SLOWRI 装置より低エネルギービームに変換され MRTOF 装置に導かれました。イオントラップ装置に連続ビームを蓄積し、3 ミリ秒間冷却した後、MRTOF のイオンミラーへ導入し、約 8 ミリ秒の間に 880 回往復させたあと、出口ミラーを開放し、検出器で飛行時間を測定しました。約 150 個のイオンでその測定を繰り返し、その時間スペクトル(図 4a)から、飛行時間として $7\,996\,960.8 \pm 1.3$ ナノ秒が得られました。同様の測定を参照イオンである $^{12}\text{C}^+$ に対しても 880 回往復させて測定し (図 4b)、その飛行時間の比から、 ^8Li の質量が 8.0224882 ± 0.0000017 u であることを確かめることができました。この質量決定の相対精度は 0.66 ppm であり、文献値との差は 0.1 ppm です。

本研究で開発し、実際に入射核破砕片分離器で生成分離された 10 億電子ボルトの短寿命原子核の質量測定に成功したオンライン MRTOF は、半減期 10 ミリ秒の短寿命核であっても、数百万分の一の精度で質量測定可能であることを実証したことに相当します。

3. 今後の期待

理研仁科加速器研究センターでは、今回のオンライン質量測定の成功を経て、2 つの本格的質量測定プロジェクトがスタートします。1 つは、理研が保有する気体充填型反跳核分離器 (GARIS) で生成される超重元素の精密質量測定です。この装置は、113 番元素の発見で著名な装置であり、さまざまな超ウラン元素を生成することができます。これらの元素の同位体の多くは質量が直接測定されていません。それらの質量を精密に測定することによって、超重元素が存在できる仕組みを解明する重要な鍵となります。さらに将来、現在の超重元素よりさらに重い超重元素が多数存在すると予測されている「安定の島」 [10] への道筋を決める重要なデータとなります。

もう 1 つのプロジェクトは、2013 年度より整備が始まった超低速 RI ビーム施設 (SLOWRI) における、中性子過剰短寿命核の網羅的質量測定です。SLOWRI は、RIBF の入射核破砕片分離器 (BigRIPS) で生成されるあらゆる元素の RI ビームを減速冷却して低エネルギー RI ビームに変換する機能と、他の実験で捨てられている RI を有効活用して低エネルギー RI ビームに変換する機能を有しており、およそ 1000 種類の質量未知核種を、MRTOF 質量測定装置に提供することができます。これらの核種は中性子過剰短寿命核を多く含んでおり、重元素の合成の仕組みの解明に大きな寄与をすることが期待できます。

さらに MRTOF 質量測定装置の重要な特徴の 1 つは、質量数 1000 以上の分子イオンでも高い質量測定精度を維持できることです。これによって分子イオンの質量を精密測定することにより、質量だけから、その分子の組成を決定することができます。これは生物・化学分野に置ける新しい分析法としての応用に貢献できます。

原論文情報：

Y. Ito, P. Schury, M. Wada, S. Naimi, T. Sonoda, H. Mita, F. Arai, A. Takamine, K. Okada, A. Ozawa, H. Wollnik. "Single Reference High-Precision Mass Measurement with MRTOF Mass Spectrograph". *Physical Review C, Rapid Communications*, 2013

<報道担当・問い合わせ先>

(問い合わせ先)

独立行政法人理化学研究所

仁科加速器研究センター

低速 RI ビーム生成装置開発チーム

チームリーダー 和田 道治(わだ みちはる)

仁科加速器研究推進室

国立大学法人筑波大学

数理解物質系 教授 小沢 顕 (おざわ あきら)

(報道担当)

独立行政法人理化学研究所 広報室 報道担当

<補足説明>

[1] 結合エネルギー

原子質量は、構成している陽子数と陽子の質量の積と、中性子数と中性子の質量の積と、電子の数と電子質量の積を単純に足し算した値に比べて小さくなっている。この「消えた」質量を質量欠損と呼び、アインシュタインのエネルギー・質量等価原理 $E=mc^2$ によって、エネルギーの単位で表したものを結合エネルギーと呼ぶ。この結合エネルギーを近傍の原子核と比較することにより、安定か不安定かが決定される。

例えば、 ^{137}Cs の質量は 136.907089 u (u は原子質量単位)で、 ^{137}Ba の質量は 136.905827 u であるため、 ^{137}Cs は 0.001263 u 分のエネルギーを放射線として発して半減期 30 年で ^{137}Ba に壊変する。一方、 ^{137}La の質量は、136.906493 u と ^{137}Ba に対してわずか 0.000666 u しか重くないため、6 万年の半減期をかけて ^{137}Ba に壊変する。

[2] ペニングトラップ質量分析器

磁場中にトラップされたイオンの固有振動数（サイクロトロン振動数と呼ばれ、質量に反比例する）から、イオンの質量を高精度で決定する装置。振動数を精密に測定するために、その周波数の電波を印加し、共鳴現象をなんらかの方法によって検出する。一般に短寿命原子核の質量測定に使われている方法は、0.1 秒から 1 秒程度の時間電波を印可し、その共鳴によって飛び出したイオンの速度が変化することを利用して共鳴を検出する。質量の測定精度

は電波の印加する時間に比例し、質量に反比例するため、安定な原子核や比較的寿命が長い原子核では、1億分の1という高精度で質量測定が可能。一方、短時間しか電波を印可することができない短寿命原子核や、重い原子核では不利になる。

[3] RI ビームファクトリー(RIBF)

水素からウランまでの全元素の不安定原子核(RI)を世界最大強度でビームとして発生させ、それを多角的に解析・利用することにより、基礎から応用にわたる幅広い研究と産業技術の飛躍的發展に貢献することを目的とした次世代加速器施設。施設は、RI ビームを生成する「RI ビーム発生系施設」と、生成された RI ビームの多角的な解析・利用を行う「基幹実験設備」で構成する。RI ビーム発生系施設は、2007年3月に完成し、2007年6月には新同位元素 ^{125}Pd (パラジウム 125)の生成に成功^{注)}。RI ビームは、原子核の構成メカニズムおよび元素の起源の解明に有用であるとともに、RI 利用による産業発展に寄与することが期待され、ドイツ、アメリカなど世界の主だった重イオン加速器施設でも次世代加速器施設の整備が計画され、国際的にも熾烈な開発競争を展開している。

注) 2007年6月6日プレス発表「ビームファクトリーで新同位元素の発見に成功」

http://www.riken.go.jp/~media/riken/pr/press/2007/20070606_2/20070606_2.pdf

[4] 原子質量基準

国際純粋・応用物理学連合(IUPAP)と国際純正・応用化学連合(IUPAC)で規定された原子質量単位は、炭素の同位体原子 (^{12}C) の質量を 12 u とすると定義されている。

[5] 超低速 RI ビーム生成施設(SLOWRI)

RIBF の基幹実験施設の1つであり、2013年度から整備が開始された。RIBF の入射核破砕片分離器 BigRIPS で生成されるあらゆる元素の高速(光速の40%以上)の RI ビームを減速・冷却し、高純度かつエネルギーのそろった低速(光速の1000分の1以下)の RI ビームに変換する装置。減速冷却する機構は理研で開発された「高周波イオンガイド法」を用いており、プロトタイプ装置において不安定核イオンのレーザー冷却・分光に成功している^{注)}。短寿命核の精密質量測定のほか、レーザー分光による短寿命原子核の半径や電磁モーメントの測定も計画されている。

注) 2008年11月19日プレス発表

http://www.riken.go.jp/~media/riken/pr/press/2008/20081119_1/20081119_1.pdf

[6] 気体充填型反跳核分離器(GARIS)

目的の原子核を、入射ビームやバックグラウンドとなる粒子から、高効率・超低バックグラウンドで分離する装置。ヘリウムガスの充填により、目的とする核が標的膜からどのようなイオン価数で飛び出してきても、収集することができる。理研の GARIS は、113番元素の合成に成功している装置である^{注)}。

注) 2012年9月27日プレス発表

<http://www.riken.go.jp/pr/press/2012/20120927/>

[7] 崩壊様式による不定性

原子核が壊変する際に放出される α 線や β 線のエネルギーから壊変の前後の原子核の質量の

差を導出することができる。原子核の質量は原子核自身が励起されていない、基底準位の質量で定義されているが、壊変は必ずしも基底準位から基底準位へ起るわけではない。準安定準位間の壊変があった場合、その励起エネルギーが分からなければ、質量差を導くことができない。その励起準位の存在やそのエネルギーが不明な場合に質量を間違えて決定することがある。

[8] 誤差の積み重ね

一般に有限の誤差を持った量を足し合わせて行く場合、その誤差は伝搬法則に従って積み重なり、大きくなる。実際に複数の質量差を積み重ねて安定核から遠く離れた短寿命核の質量を決定した例では、統計誤差の範囲を超えた系統誤差による大きな一定方向のずれが報告されている。

[9] 入射核破砕片分離器(RIPS)

加速器を用いて光速の数十%以上に加速された高速の安定核ビームを、標的に衝突させて破砕し、その破砕片を多数の電磁石を用いて分離・収束する装置。理研の既存加速器施設の RIPS や新しい施設の BigRIPS のほかにドイツ・重イオン研究所の FRS や米国ミシガン州立大学の A1800 が著名である。

[10] 安定の島

原子核は、水素からウランまで天然に存在する元素とその同位体から構成されているが、人工的にいくつかの超ウラン元素も合成され、存在可能なことが分かっている。このような重元素は、単純な原子核モデルでは存在を説明できないが、魔法数に代表される「殻効果」でより結合エネルギーが高まり、存在できていると考えられている。その考えをさらに重い原子核に適用すると、次の魔法数があり、今日では全く知られていない安定な原子核が予言されている。これらの原子核は既知の原子核と繋がっていない“飛び地”のような領域にあると予測されることから、「安定の島」と呼ばれ、その探索は現代物理学の大きな課題のひとつである。

質量測定精度と半減期の相関

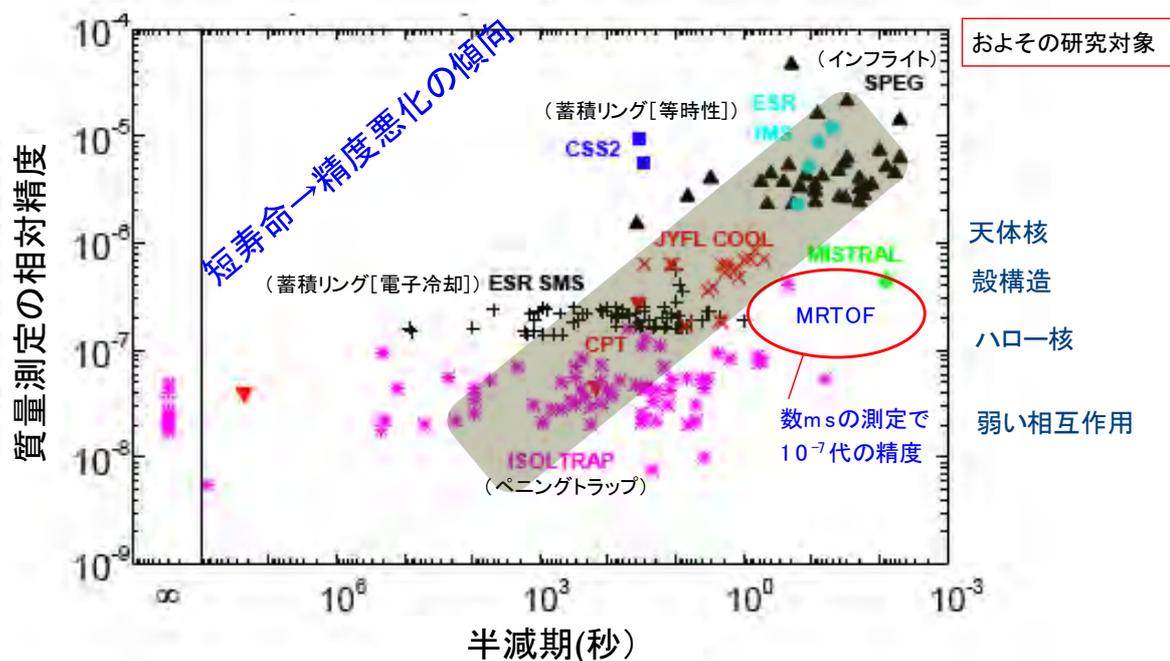


図1 原子核の半減期と質量測定精度の相関

過去にさまざま研究機関で開発された装置で測定された値から、原子核の半減期を横軸、測定された質量の相対精度を縦軸として、プロットした。一般的な傾向として、より寿命が短くなると質量測定精度は低くなる。フランスのSPEGは、短寿命核でも対応できるが精度が数万分の一程度と低い。ドイツの蓄積リング装置は、精度が数百万分の一程度まで上がるが短寿命核には対応できない。ペニングトラップは最も高精度だが、測定時間がある程度必要のため短寿命核は測定できなかった。MRTOFは、数ミリ秒の半減期を持つ短寿命核を 10^{-7} 位の相対精度で測定でき、質量測定手法の飛躍的發展が期待できる。

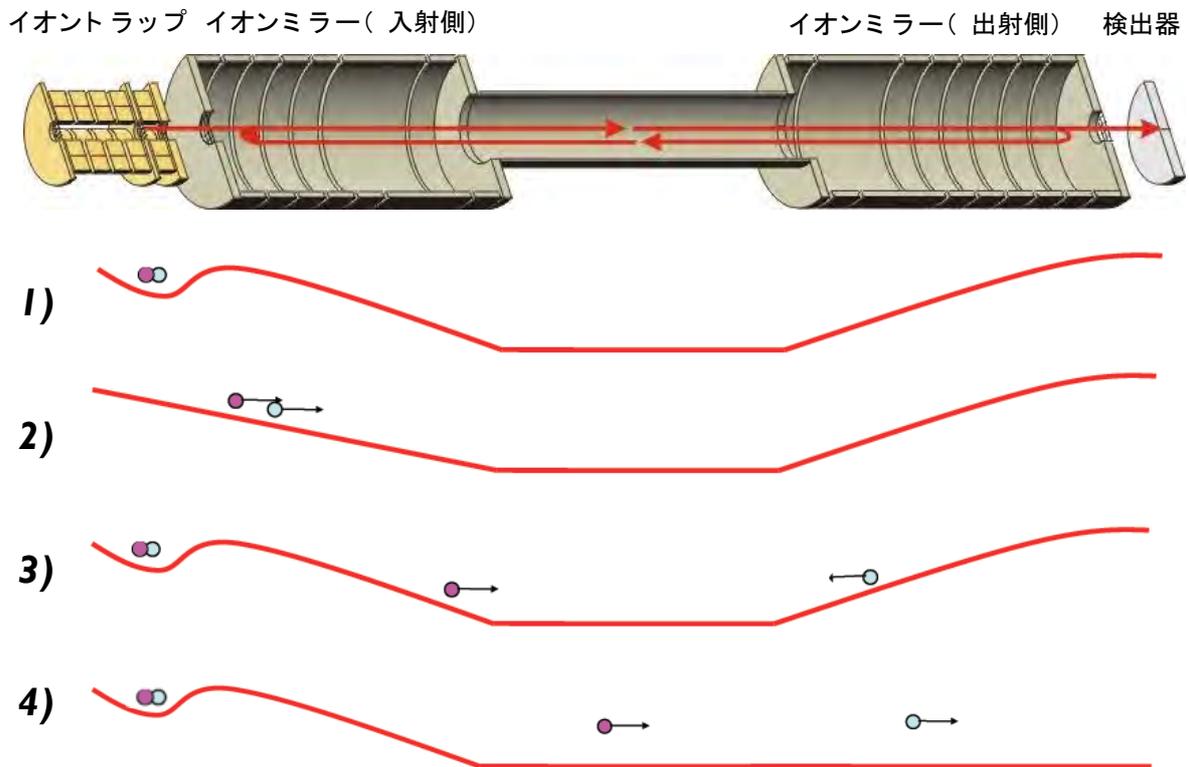


図2 MRTOF 法の原理

MRTOF（多重反射型飛行時間測定式質量測定器）は、イオントラップで冷却したイオンを一对のイオンミラーからなる反射器に入射し、閉じ込めて、多数回往復させてから引き出し、総飛行時間を測定する装置。イオンミラーを使うことで、飛行距離を 1 km 以上に長くするだけでなく、イオンの初期速度の広がりキャンセルできる特徴がある。図の赤線は電位を示し、「坂道」のように高いところから下るときは加速され、逆に登るときは減速される。赤・青の球は質量が異なるイオンを示し、長く飛行すると差がつき、ゴールする時間が異なる。

- 1) 初めにイオントラップにイオンを蓄積し冷却する。
- 2) イオンを引き出す時に入射側イオンミラーを開けておき、飛行開始。
- 3) イオンが戻る前に入射側イオンミラーを閉じ、数百回往復させる。その際、次の測定のためにイオントラップには蓄積を既に開始する。
- 4) あるタイミングで出射側イオンミラーを開放し、検出器で飛行時間測定。

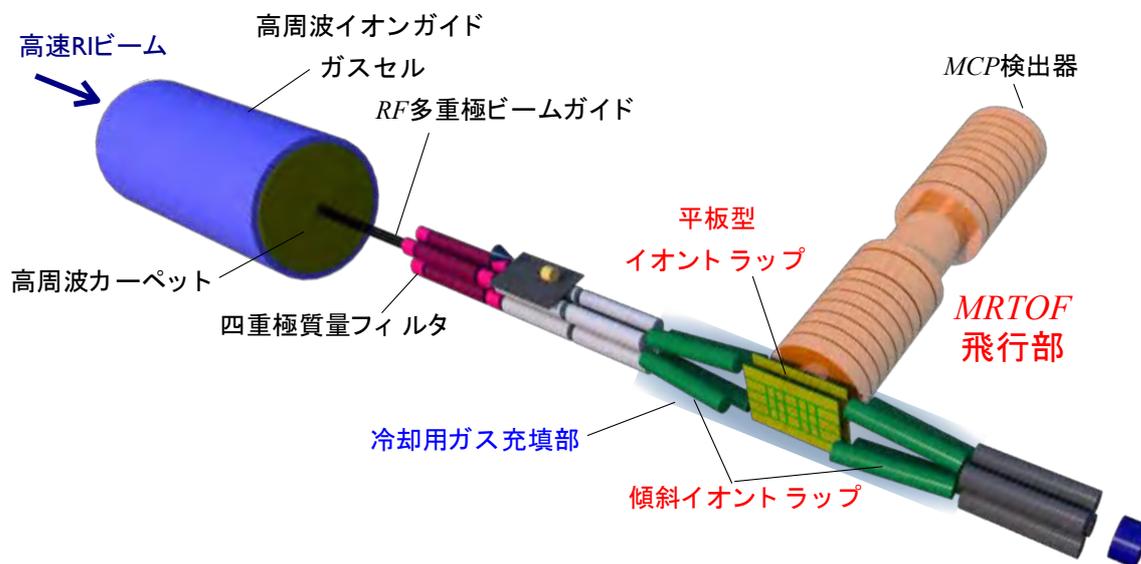


図3 実験装置概念図および MRTOF 飛行部の写真

高エネルギー（10 億電子ボルト）RI ビームは、高周波イオンガイドガスセル中で減速・冷却され、高周波カーペットによって捕集されガスセルから引き出される。低速（5 電子ボルト）RI ビームは、RF 多重極ビームガイド、四重極質量フィルタを経てイオントラップに蓄積される。数ミリ秒ガスで冷却されたあと、MRTOF 飛行部へ入射される。数 100 回反射を繰り返した後、MCP 検出器で総飛行時間が測定される。下部は、真空槽内部に配置された MRTOF 飛行部の写真。リング状の電極が連なり、ミラー電極を形成している。

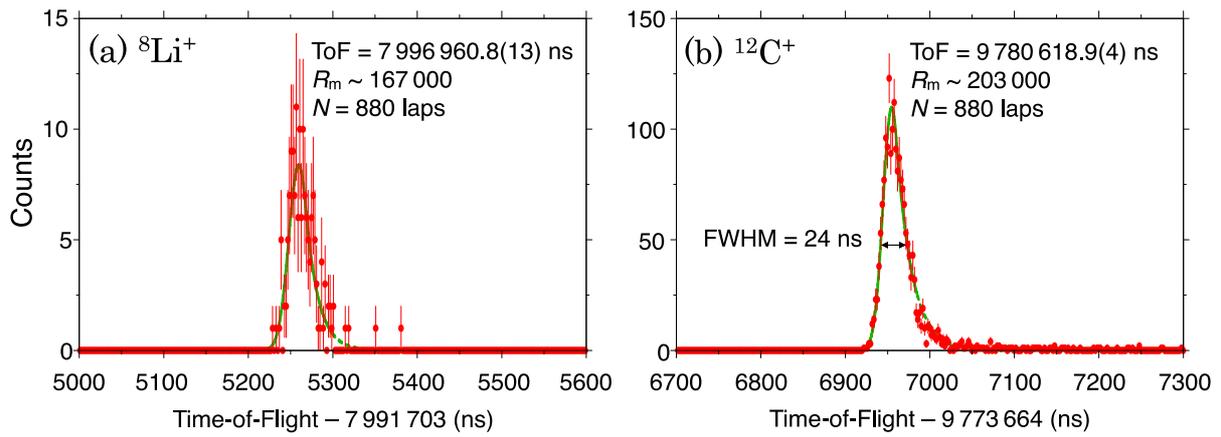


図4 Li-8 イオン(a)と C-12 イオン(b)の飛行時間スペクトル

イオンをイオントラップから引き出した時刻を時刻 0 とし、検出器に到達した時刻をヒストグラムにプロットした飛行時間スペクトル。(a)は、半減期 0.8 秒の短寿命原子核 ${}^8\text{Li}^+$ イオンのスペクトルで、約 150 個のイオンの飛行時間の分布から、飛行時間が $7,996,960.8 \pm 1.3$ ナノ秒と求められた。(b)は、安定な質量標準イオン ${}^{12}\text{C}^+$ のスペクトル。実際には ${}^8\text{Li}$ と ${}^{12}\text{C}$ を交互に複数回測定し、より高精度で双方のイオンの飛行時間の比を求め、質量を決定した。