



原研における重元素核化学

日本原子力研究所先端基礎研究センター
超アクチノイド元素核化学研究グループ
永目諭一郎
e-mail: nagame@popsvr.tokai.jaeri.go.jp

1. はじめに

我々は、日本原子力研究所東海研究所のタンデム加速器施設を用いてアクチノイドを含む重元素の化学的・核的性質に関する研究を行っている。特に重い極限領域下での原子核の安定性や大きな原子核電荷と電子との特異な相互作用（相対論効果）に注目して、主として以下の研究を進めている。

1. 重・超アクチノイド元素の化学的・核的特性の研究
2. 新アイソトープの探索とその壊変特性の研究
3. アクチノイドの核分裂機構に関する研究。

本稿では、この中で超アクチノイド元素の合成と化学的性質の研究、ならびに重核の壊変特性研究を中心に現状と今後の計画について概要を述べる。

2. 超アクチノイド元素の合成

超アクチノイド元素（原子番号 $Z=104$ のラザホージウム(Rf)を超える元素)をふくむ重元素は、キュリウム(Cm)、カリホルニウム(Cf)、バークリウム(Bk)といった放射性的のアクチノイド元素ターゲットを、酸素やネオンなどの重イオンビームで照射して合成される。しかし重い元素では、入射した重イオンとターゲット核が融合してできる複合核は、ほとんどが核分裂してしまう。このため中性子などを放出して、重い元素（核）として生き残る確率は非常に小さく、原子番号が増えるとともに急激に小さくなることが知られている。例えば 104 番元素ラザホージウム(Rf)の生成断面積は、数 nb と見積もられている。

我々はまず、東海研タンデム加速器施設に、超アクチノイド元素の合成実験を行うため、 ^{248}Cm ターゲットを安全に取り扱うための照射装置ならびにガスジェット搬送装置と組み合わせた連続回転 α 線測定装置を製作した。昨年本装置を用いて、超アクチノイド元素 ^{261}Rf を日本で初めて合成することに成功した。以下に実験の概要を述べる。図 1 に

示すようにタンデム加速器から得られる ^{18}O ビーム (ビーム強度約 200 pA) を用いて ^{248}Cm ターゲット ($590\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚) を照射し, $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O},5\text{n})$ 反応で生成する ^{261}Rf を合成した. 生成物は, 塩化カリウム (KCl) のクラスター微粒子を含んだ He ガス中に捕獲され, ガスジェット気流で連続回転 α 線測定装置に導かれる. ここでは, ^{261}Rf の壊変に伴う α 線を連続的に, また引き続き生じる娘核 ^{257}No からの α 壊変との相関 ($^{261}_{104}\text{Rf} \rightarrow ^{257}_{102}\text{No} \rightarrow$) も測定することができる. この結果 ^{261}Rf および娘核種 ^{257}No が放出する α 線のエネルギー領域に 84 事象を, またこの核種の壊変に特有な 18 個の α 壊変連鎖 ($^{261}_{104}\text{Rf} \rightarrow ^{257}_{102}\text{No} \rightarrow$) を確認した. 生成断面積としては, ^{18}O のビームエネルギーが 94 MeV で約 10 nb という値を得た[1]. ^{261}Rf は半減期が 78 秒と比較的長く, 化学的性質を調べるには適した核種である.

また ^{19}F ビーム (ビーム強度約 300 pA) を用いた $^{248}\text{Cm}(^{19}\text{F},5\text{n})$ 反応で生成する 105 番元素ドブニウム, ^{262}Db , も同様な方法で合成することができた. 同じく $^{262}_{105}\text{Db} \rightarrow ^{258}_{103}\text{Lr} \rightarrow$ の α 壊変連鎖の測定から, ^{262}Db の生成断面積を 1.5 nb と決定した[1]. ^{262}Db の半減期は 34 秒で, 105 番元素 Db の中では最も長い寿命をもっている.

図 2(a), 2(b)にそれぞれ $^{261}_{104}\text{Rf} \rightarrow ^{257}_{102}\text{No} \rightarrow$ および $^{262}_{105}\text{Db} \rightarrow ^{258}_{103}\text{Lr} \rightarrow$ の α 壊変で観測された α 線スペクトルを示す. 生成率としては, ^{261}Rf が約 1 原子/分, ^{262}Db は約 1 原子/4 分であった. 今後は, 超アクチノイド元素 (核) ^{261}Rf を対象にした初めての α - γ 核分光の実験などを計画している. またタンデム加速器に設置してある ECR イオン源が増強され, Ne ビームが使用できるようになれば, $^{20,22}\text{Ne} + ^{248}\text{Cm}$ 反応により 106 番元素シーボーギウム (Sg)の合成も可能になる.

3. 超アクチノイド元素のシングルアトム化学

上で述べたように, 重イオン核反応で合成される超アクチノイド原子の生成量は非常に小さく, 1 時間に数十個程度の割合である. しかも数分以下の短い寿命でしか存在しえず, 次の原子が生成されるまで生き残ることができない. このため生成される 1 個の原子を対象に, すばやく分離分析して化学的性質を決める必要がある. このような化学をシングルアトム化学, あるいは one-atom-at-a-time-chemistry と呼んでいる. ここでは, 通常のマクロ量で扱われる化学反応の考えは適用できないが, 速い化学平衡が成立し, 多数回の交換過程を経由するようなクロマトグラフ法などでは, 統計的に 1 個の原子でも熱力学的な性質を論じることが示されている.

このため現在, 高い効率で選択的に迅速分離が可能な高速イオン交換クロマトグラフ法によるラザホージウム元素 ^{261}Rf の化学挙動を調べる準備を進めている. 実験装置 (自動迅速イオン交換分離装置) の概略を図 3 に示す. 生成物は, 合成実験と同じくガスジェット搬送装置を用いるが, この場合は化学分離系へと導かれる. 分離系の導入部で溶液化した後, 陽イオンや陰イオン交換樹脂あるいは有機抽出剤をとおしてイオン交換や

錯形成（抽出）挙動を調べることができる。溶離してきた成分は、放射線（主に α 線）測定にかけられ核種が同定される。これを数千回と繰り返し行い、数個の Rf 原子（分子）の化学挙動を調べる。このような化学挙動から Rf 原子の最も安定な酸化状態、イオン半径、錯形成定数などの情報が得られる。

一方、超アクチノイド元素のように大きな原子では、中心の核電荷が大きくなるため周りの電子との相互作用が強くなる。すると内殻にある s, $p_{1/2}$ 軌道電子の速度が光速に近づき、質量が静止質量よりも重くなるために軌道半径が小さくなる。これにより外側の電子配置に変化を生じ、化学的性質が周期表から推定される性質にしたがわない可能性がでてくる。これを電子構造および化学結合における相対論効果という。たとえば周期表第 IV 族に属すると予想されるラザホージウム(Rf)は、この効果で軽い同族のジルコニウム(Zr)やハフニウム(Hf)とは質的に異なる化学的性質を示すことが期待される。

従って、Rf で得られたデータを周期表の軽い同族元素 Zr や Hf、アクチノイドの擬 IV 族元素トリウム(Th)の化学挙動と比較したり、あるいは相対論効果を考慮した化合物の電子状態計算から予測される性質と比較して、Rf の化学的性質を明らかにしていく必要がある。2001 年 5 月頃から本格的に Rf の化学挙動実験に着手する予定であ

4. 重核の壊変特性

重核の壊変特性に関する研究は、主として EC 壊変する中性子欠損アクチノイド領域の新アイソトープ探索と壊変特性に着目して行っている。これまでに、ガスジェット搬送装置とオンライン同位体分離器(ISOL)を組み合わせた複合系の開発を行い[2]、 $^{235}\text{U}(^6\text{Li},5\text{n})$ 反応を用いて ^{236}Am [3]、 $^{233}\text{U}(^6\text{Li},6\text{n})$ 反応で ^{233}Am [4]、 $^{237}\text{Np}(^6\text{Li},6\text{n})$ 反応で ^{237}Cm [5]という3つの新しいアイソトープを合成、確認した。また ^{235}Am からの初めての α 壊変の観測や、 ^{236}Am における核異性体の確認、ならびに $^{235,236}\text{Am}$ の EC 壊変に伴う崩壊図式の構築[6]などの成果を得ている。一方、このガスジェット結合型オンライン同位体分離装置を用いて、 ^{238}U の陽子誘起核分裂で生成する中性子過剰なランタノイド領域でも $^{166,167,168}\text{Tb}$ [7]、 ^{166}Gd 、 ^{162}Sm [8]といった新しいアイソトープの確認に成功している。

以下に最近同定した新アイソトープ ^{233}Am の確認実験について簡単に述べる。図4に示すように、生成物をガスジェット搬送装置でオンライン同位体分離器へと搬送し、イオン化した後、質量分離して α 線検出器へと導く。分離に要する時間は、1~2秒程度である。この装置により、目的の ^{233}Am だけが選択的に分離され、 ^{233}Am からの微弱な α 線の検出が可能となった。ここでターゲットチェンバーは、目的生成物の生成量を増やすために、多層箔のターゲットを同時に照射できるよう工夫されている(図4参照)。

図5に質量数233で分離した成分中に検出した α 線のスペクトルと生成した ^{233}Am からの α 壊変系列を示す。 ^{229}Np から ^{213}At までの5つのアイソトープについては半減期と

放出される α 線のエネルギーはすでにわかっている。測定したスペクトルには、これら 5 つの同位体の壊変で放出される α 線に加えて 6.72 MeV に新しい α 線が確認された。この新しい α 線は、半減期 3.2 分で減衰しており、新アイソトープ ^{233}Am から放出されたものと判断した。

表 1 に、これまで調べてきた中性子欠損アクチノイド核種の壊変に関する情報を文献値ならびに計算値と比較してまとめている。今後は Bk などの高融点物質のイオン化を目指して、新たなイオン源の開発を進めるとともに、Cm, Bk 領域の新アイソトープ探索と微弱 α 壊変過程の検出を行う計画である。先に述べたように、この領域では主たる壊変過程が EC 壊変であるため検出が困難で、まだ未発見の核種が多数残されており、質量などの情報も得られていない。従って α 壊変エネルギー等の情報は質量決定にもつながり、基礎的核データの蓄積という意味でも重要な研究課題である。一方中性子過剰領域のアクチノイド核種は、合成方法が限られており、この領域でも多くの未知核種が残されている。今後重イオン多核子移行反応などを利用して、 ^{248}Am , ^{252}Bk などの探索を行っていく予定である。

謝 辞

これらの研究は、タンデム協力研究、原研・大学プロジェクト共同研究などを通して全国の核・放射化学関連研究者（大阪大学、東京都立大学、徳島大学、名古屋大学、新潟大学、広島大学）とともに協力して進めている。ドイツ重イオン研究所（GSI）とは平成 9 年より「イオンビーム照射利用分野の研究開発における日本原子力研究所と重イオン研究所との科学協力に関する覚書」にもとづき国際協力を行っている。これまでに Rf や Sg の溶液化学挙動に関する研究協力を行ってきた。またドイツマインツ大学やスイスポールシェラー研究所（PSI）とも、それぞれ Rf の溶液化学や Rf, Db の合成に関して研究協力を進めている。多くの研究協力者の方々に謝意を表します。

またタンデム加速器管理室の方々には、安定で十分な強度のイオンビームを提供していただき、上記のような成果を得ることができたことに深く感謝いたします。

参考文献

- [1] H. Haba *et al.*, to be published in *Radiochim. Acta*.
- [2] S. Ichikawa *et al.*, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* **374**, 330 (1996).
- [3] K. Tsukada *et al.*, *Phys. Rev. C* **57**, 2057 (1998).
- [4] M. Sakama *et al.*, *Eur. Phys. J A* **9**, 303 (2000).
- [5] K. Tsukada *et al.*, to be submitted.
- [6] M. Asai *et al.*, to be submitted.

[7] M. Asai *et al.*, *J. Phys. Soc. Japan*, **65**, 1135 (1996); *Phys. Rev. C* **59**, 3060 (1999).

[8] S. Ichikawa *et al.*, *Phys. Rev. C* **58**, 1329 (1998).

表 1 中性子欠損アクチノイド核種の EC/ α 壊変特性

| Nuclide | Half-life (min) | | α -energy (keV) | | α branching ratio (%) | |
|--------------------|-----------------|-----------------|------------------------|---------------|------------------------------|-------------------|
| | Present | Ref. | Present | Ref. | Present | Ref. |
| ^{233}Am | 3.2 ± 0.8 | (1.72)* | 6780 ± 17 | (7100)* | > 3 | |
| ^{234}Am | | 2.32 ± 0.08 | - | 6460 | < 0.04 | 0.039 ± 0.012 |
| ^{235}Am | 10.3 ± 0.6 | 15 ± 5 | 6457 ± 14 | 6700 | 0.40 ± 0.05 | |
| ^{236g}Am | 3.6 ± 0.2 | 4.4 ± 0.8 | 6150 | 6410 | < 0.004 | 0.042 ± 0.006 |
| ^{236m}Am | 2.9 ± 0.2 | | | | | |
| ^{237}Cm | ≈ 10 | (15)* | 6660 ± 10 | (6800)* | | |
| ^{238}Cm | | | 6560 ± 10 | 6520 ± 50 | | |

* Predicted

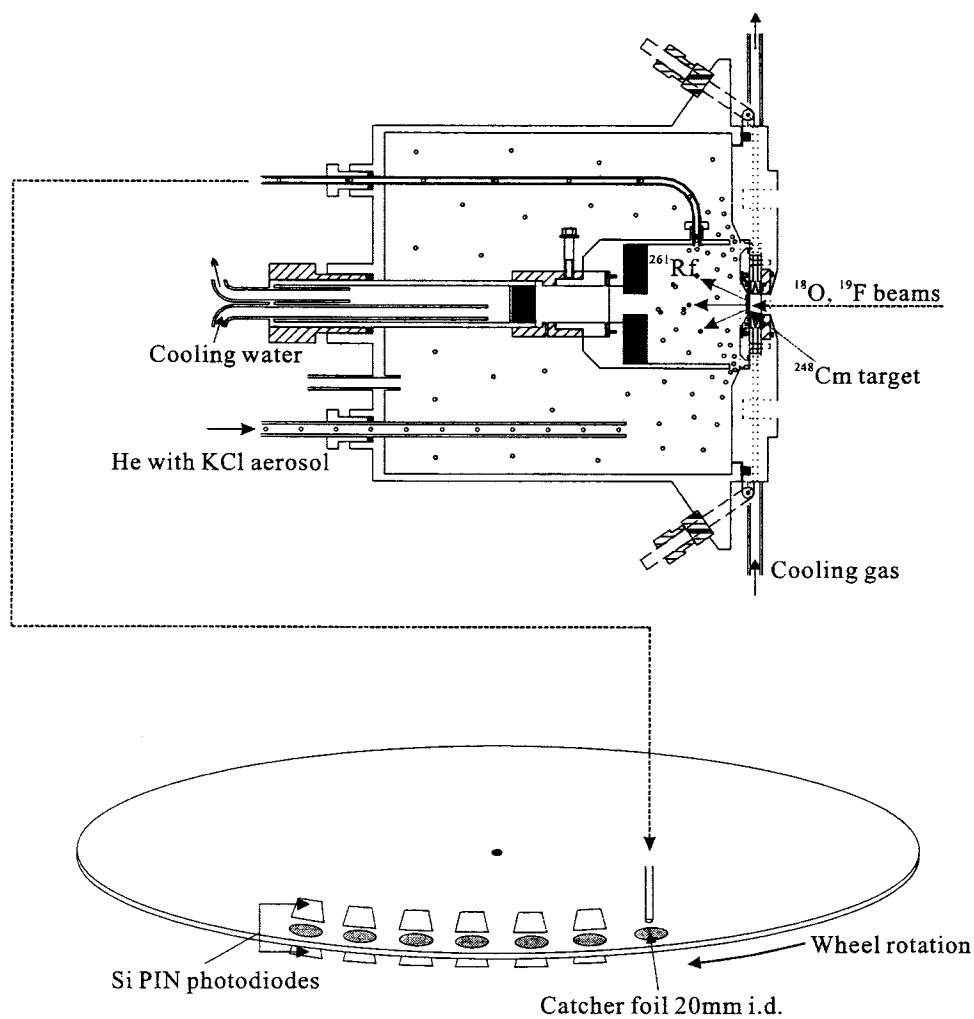


図 1 ^{261}Rf および ^{262}Db 製造の実験概要.

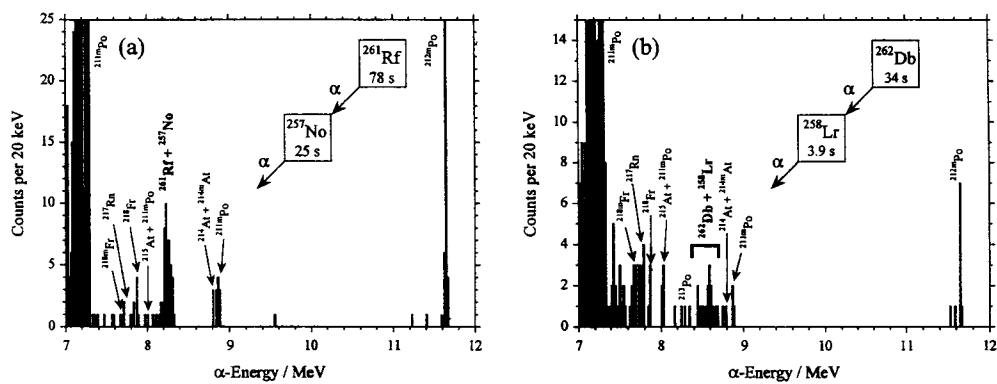


図 2 (a) ${}^{261}_{104}\text{Rf} \rightarrow {}^{257}_{102}\text{No} \rightarrow$, (b) ${}^{262}_{105}\text{Db} \rightarrow {}^{258}_{103}\text{Lr} \rightarrow$ の α 壊変連鎖で確認された α 線スペクトル。

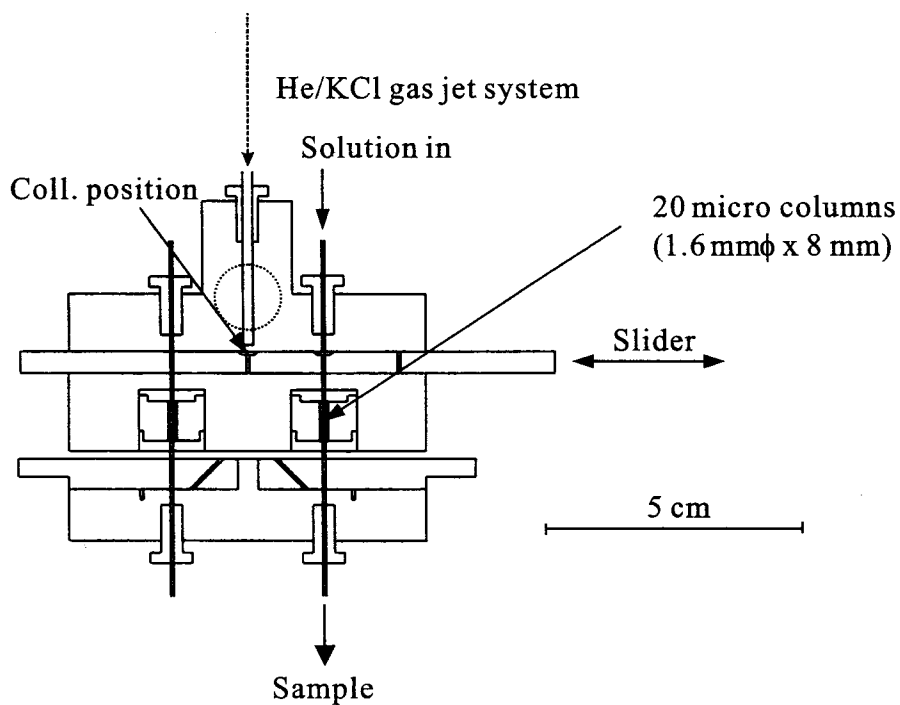


図 3 自動迅速イオン交換分離装置の概要。

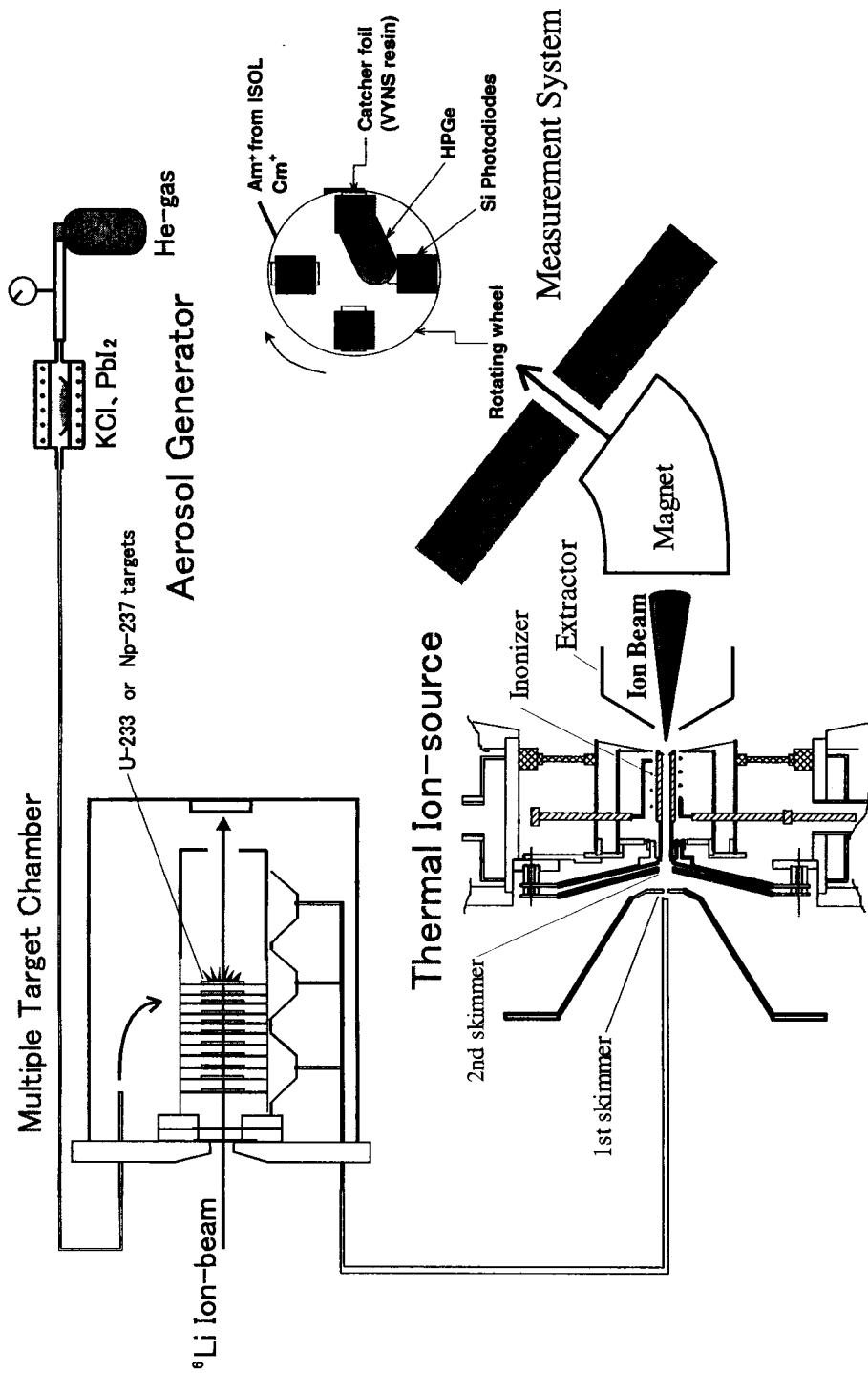


図4 ガスジェット結合型オンライン同位体分離装置の概要.

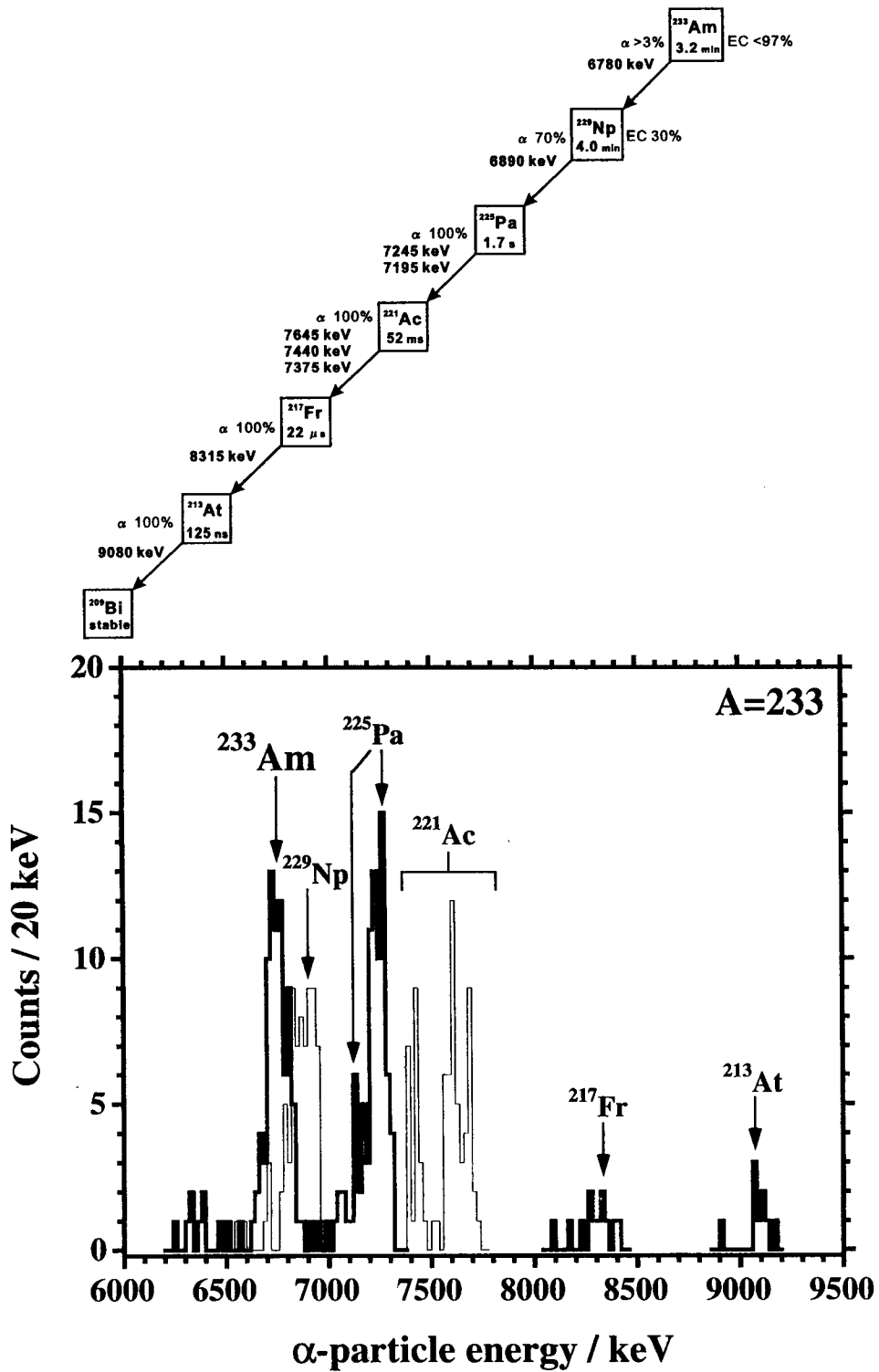


図5 ^{233}Am の α 壊変にもとづく α 壊変連鎖ならびに質量数233で分離された成分の α 線スペクトル。