

話題・解説(I)

超重元素合成研究の現状と展望

理化学研究所仁科センター

森田超重元素研究室

森田 浩介

morita@ribf.riken.jp

1. はじめに

我々の実験グループは、独立行政法人理化学研究所（理研）の線形加速器からの亜鉛ビーム（ ^{70}Zn ：質量数 70 の安定同位体）をビスマス標的（ ^{209}Bi ：質量数 209 の安定同位体）に照射して、両原子核を完全融合反応させることにより、原子番号 113 の同位体 $^{278}113$ を世界に先駆けて合成することに成功した。原子番号 30 の亜鉛の原子核と原子番号 83 のビスマス原子核とを衝突させて核融合を起こさせ、原子番号の足し合わさった原子核を合成する（ $30+83=113$ ）という、非常に単純な方法であるが、実験の実際は 2003 年 9 月 5 日から 2006 年 5 月 15 日まで、3 年弱の間に、延べ 300 日以上加速器を運転させて、わずか 2 原子を確認したに過ぎないという、困難なものであった。現在のところ我々の合成した同位体 $^{278}113$ は、原子番号 Z と質量数 A を実験的に確認したものとしては、 Z 、 A ともに最大のものである。

元素を人工合成しようという試みはすでに、中世の錬金術師によってなされた。それは古代から存在した金属の精錬や合金の製法の発展として、鉛のような安価な金属をより高価な金にかえようとする試みであった。中世の錬金術師たちは「化学反応」によって金を作ることには失敗したが、幾つかの新元素を発見し、また現代の化学の基礎を築いた。1925 年までに原子番号 92 のウランより小さな原子番号を持つ元素はそのほとんどが、天然物質中から発見された。原子番号が 93 以上のいわゆる超ウラン元素はすべて、人工的に合成され、新元素として確認されてきた。現在、117 番元素を除いて、118 番までの元素の合成が報告されている。ただし 93 番元素ネプツニウムと 94 番元素プルトニウムは人工合成による元素発見ののち天然にもわずかながら存在することが確認された。

かつて日本の実験科学者たちが新元素を発見もしくは合成し、周期表の一席を埋めようとする機会が 2 度あった。一度目は約 100 年前、イギリスに留学中の小川正孝博士に

よる 43 番元素の「発見」であり、1909 年に作られた周期表にはニッポニウムという元素が存在した。後の研究で小川博士の発見した新元素は 75 番（新）元素であったことがわかったが、1925 年ノダックらによって（再）発見されたものが新元素と認められたのである。ちなみに 43 番元素は、安定同位体の存在しない元素であったことが後にわかり、1936 年、重陽子（原子番号 1 番、質量数 2）で照射されたモリブデン（42 番元素）（高融点金属であることからサイクロトロン内でビームの偏向板として使われていたものをローレンスから譲り受けた）中からセグレらによって初めて抽出され、テクネチウムと名付けられた。

2 度目の機会は、1939 年頃、理研の大先達である仁科芳雄博士率いるグループがウラン 238 を速中性子で照射し、 $(n,2n)$ 反応によって作られたウラン 237 のベーター崩壊を測定した時である。このときは、娘核としてできているはずの 93 番元素を化学分離しようとしてうまくいかなかったことが報告されている。アクチノイドの化学的性質がまだ良く理解されていなかった時代では無理からぬことであったとされている。

我々の結果は 3 度目の正直となりえるであろうか。本稿では理研での実験を紹介するとともに、世界における超重元素合成の現状と実験方法、将来の展望について概観する。

2. 超ウラン元素合成小史

93 番以降の元素の合成の歴史を駆け足で記す。

人工元素合成の研究は始めの頃、マンハッタン計画で基礎を培ったアメリカの独壇場であった。原子番号 93 から 103 までの新元素は全てローレンスバークレー研究所(LBNL: Lawrence Barkley National Laboratory) を中心としたアメリカのグループによって合成、確認がなされてきた。元素名にも 95 番アメリシウム (Am) (国名から)、97 番バークリウム (Bk) (研究所の所在地バークレーから)、98 番カリホルニウム (Cf) (州名から)、103 番ローレンシウム (Lr) (サイクロトロンの発明者アーネス ローレンスから) などアメリカの地名や人名にちなんだものをつけられている。104 番から 106 番までは米ソの科学者たちの熾烈な競争の時代であった。元素名にも 105 番ドブニウム (Db) (ロシアの研究所の所在地ドゥブナから) や 106 番シーボーギウム (Sg) (アメリカの指導的核化学者シーボールドから) など両国の成果を尊重したものをつけられている。107 番から 112 番にかけて、今度はドイツの独壇場となった。ドイツの重イオン科学研究所 GSI にちなみ 108 番ハッシウム (Hs) (GSI 所在の州名ヘッセンから)、110 番ダームスタチウム (Ds) (GSI 所在の市ダルムシュタットから) などの元素名がつけられている。ロシアでも精力的に研究が行われており、113、114、115、116、118 番元素の合成が報告されている。113 番元素については、2004 年 2 月にロシアの研究所が、「115 番新元素の原子核（質量数 288 と 287）の初合成に成功し、その崩壊連鎖上の原子核として原子番号 113、質量数 284 と 283 の原子核も発見した」と発表しているが、崩壊連鎖が既知の原子核まで到達していな

いため、現在はこれら 115 番、113 番元素の命名権を獲得するに至っていない。ロシアのフレロフ核反応研究所 (FLNR: Frelov Laboratory of Nuclear Reaction) のグループでは、実験データを積み重ね、より確かなものにしようとする努力が払われている。ただすべての崩壊の連鎖が未知の自発核分裂で終わっており、純粋実験的に原子番号 Z と質量数 A を決めることができないのが現状である。元素に命名権を与える、国際純粋応用物理学連合 (IUPAP: International Union of Pure and Applied Physics) と国際純正応用化学連合 (IUPAC: International Union of Pure and Applied Chemistry) の合同ワーキンググループ (JWP: Joint Working Party) の報告によれば実験結果はかなり確実であるとしながらも既

表 1 超ウラン元素の発見、方法、グループ、年

Z	記号	反応	発見者	年
93	Np	$^{238}\text{U}(n,\gamma)^{239}\text{U} \rightarrow ^{239}\text{Np}$	MacMillan	1939-1940
94	Pu	$^{238}\text{U}(d,2n)^{238}\text{Np} \rightarrow ^{238}\text{Pu}$	Seaborg, MacMillan	1940
95	Am	$^{239}\text{Pu}(2n,\gamma)^{241}\text{Pu} \rightarrow ^{241}\text{Am}$	Seaborg et al.	1944
96	Cm	$^{239}\text{Pu}(\alpha,n)^{242}\text{Cm}$	Seaborg et al.	1944
97	Bk	$^{241}\text{Am}(\alpha,2n)^{243}\text{Bk}$	Seaborg et al.	1949
98	Cf	$^{242}\text{Cm}(\alpha,n)^{245}\text{Cf}$	Seaborg et al.	1950
99	Es	$^{238}\text{U} + 15n \rightarrow ^{253}\text{Es}$	Seaborg et al.	1953
100	Fm	$^{238}\text{U} + 17n \rightarrow ^{255}\text{Fm}$	Seaborg et al.	1953
101	Md	$^{253}\text{Es}(\alpha,n)^{256}\text{Md}$	Seaborg et al.	1955
102	No	$^{246}\text{Cm}(^{12}\text{C},4n)^{254}\text{No}$	Seaborg et al.	1958
103	Lr	$^{252}\text{Cf}(^{11}\text{B},6n)^{257}\text{Lr}$	Ghiorso et al.	1961
104	Rf	$^{242}\text{Pu}(^{22}\text{Ne},4n)^{260}\text{Rf}$ $^{249}\text{Cf}(^{12}\text{C},4n)^{257}\text{Rf}$	Flerov et al. Ghiorso et al.	1964 1969
105	Db	$^{243}\text{Am}(^{22}\text{Ne},4n)^{261}\text{Db}$ $^{249}\text{Cf}(^{15}\text{N},4n)^{260}\text{Db}$	Flerov et al. Ghiorso et al.	1967, 1971 1970
106	Sg	$^{249}\text{Cf}(^{18}\text{O},4n)^{263}\text{Sg}$	Ghiorso et al.	1974
107	Bh	$^{209}\text{Bi}(^{54}\text{Cr},n)^{262}\text{Bh}$	Münzenberg et al.	1981
108	Hs	$^{208}\text{Pb}(^{58}\text{Fe},n)^{265}\text{Hs}$	Münzenberg et al.	1984
109	Mt	$^{209}\text{Bi}(^{58}\text{Fe},n)^{266}\text{Mt}$	Münzenberg et al.	1984
110	Ds	$^{208}\text{Pb}(^{62}\text{Ni},n)^{269}\text{Ds}$	Hofmann et al.	1994
111	Rg	$^{209}\text{Bi}(^{64}\text{Ni},n)^{272}111$	Hofmann et al.	1994
112		$^{208}\text{Pb}(^{70}\text{Zn},n)^{277}112$	Hofmann et al.	1996
113		$^{243}\text{Am}(^{48}\text{Ca},3n)^{288}113(\alpha)^{284}113$ $^{209}\text{Bi}(^{70}\text{Zn},n)^{278}113$	Oganessian et al. Morita et al.	2003 2004
114		$^{244}\text{Pu}(^{48}\text{Ca},xn)^{292-x}114 (x=3,4)$	Oganessian et al.	1999-2000
115		$^{243}\text{Am}(^{48}\text{Ca},xn)^{291-x}115 (x=3,4)$	Oganessian et al.	2003
116		$^{248}\text{Cm}(^{48}\text{Ca},4n)^{292}116$	Oganessian et al.	2000
118		$^{249}\text{Cf}(^{48}\text{Ca},3n)^{294}118$	Oganessian et al.	2002

知核への連結がないことをもって、いまだ命名権を与えるに至っていないと報告している。現在名前のついている元素は 111 番レントゲニウム (Rg) (X 線の発見者レントゲンにちなむ) までである。2007 年現在、JWP において 112 番元素の命名についての議論がなされている模様である。93 番以降の元素の生成方法と生成年を表 1 に示す。

3. 実験方法

現在、超重元素の合成には重イオン融合反応が唯一の方法として用いられている。その概略を図 1 に示した。まず、ビームとなる中性原子は、イオン源の中で電子をはぎ取られ陽イオンにされる。イオン源から引き出されたその陽イオンは加速器によって適当な速度にまで加速され、薄膜状の標的中の原子に衝突させられる。ビームイオンの原子核のほとんどは何も反応を起こすことなく標的をすり抜けるが、ごく一部はある確率で標的原子の原子核と衝突して核反応を起こす。またその核反応のほとんどは分裂反応であるが、ごく一部は融合反応を起こして超重核を形成する。合成された超重核は励起し

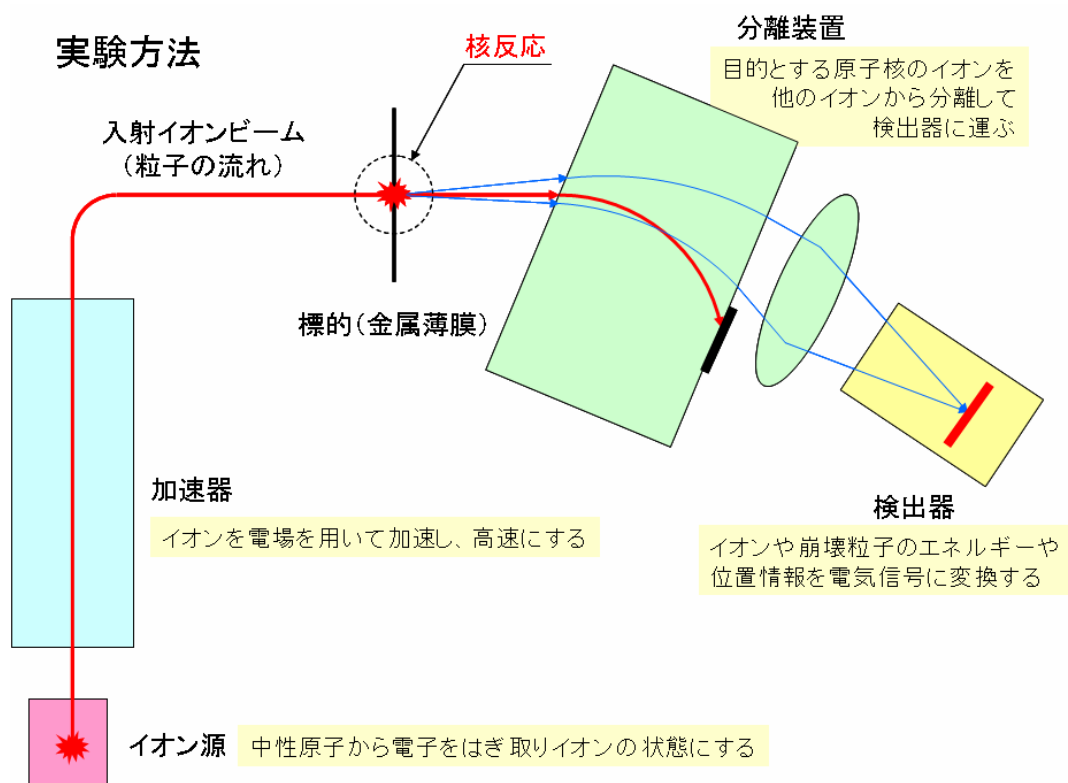


図 1 実験方法の概略図。それぞれのパーツの性能が世界最高であることが求められる。イオン源、加速器による大強度ビーム、大強度ビームによる発熱に耐える標的システム、大効率と高分解力の両方が必要とされる反跳分離装置、エネルギーと位置測定の分解能の良さが求められる検出システムなど等。

ており、脱励起の過程でほとんどが核分裂を起こすが、励起した超重核のごく一部が中性子放出と γ 線放出によって脱励起すると基底状態の超重核が形成されるのである。これら融合及び脱励起は非常に短時間の過程であり、標的薄膜中で起こる。標的膜中で合成された超重核は反跳エネルギーをもって標的膜を飛び出していく。標的膜から飛び出した超重核イオンは、反跳分離装置と呼ばれる装置に導入され、標的から飛び出してくる圧倒的多数のビームイオンや、研究目的ではない核反応生成物のイオンから空間的に分離され、検出装置に運ばれる。標的位置から検出器まで移動するのに掛かる時間は1~5マイクロ秒で、合成された超重核の寿命がこれより長ければ、それは崩壊することなく検出装置に到達する。検出装置に到達した超重核は検出装置内でアルファ崩壊や自発核分裂を起こして安定核へと壊変していく。超重核が検出器に入射したエネルギーと時刻、壊変連鎖のエネルギーと時刻を解析して、できた超重核の核種、寿命、崩壊エネルギーが決定される。以上が、現在世界中の研究施設で行われている超重核合成実験の方法の概略である。以下にもう少し詳しい説明を記す。

加速器によって、標的核と入射核のクーロン障壁近傍にまで加速されたビーム核で標的を照射する。最適なビームエネルギーは、正面衝突が起こった場合に、核表面同士が接触するようなエネルギーであることが多い。入射エネルギーが高すぎると、融合の結果合成された核（複合核と呼んでいる）が高い励起エネルギーになり、融合しても内部エネルギーが分裂障壁を越えていて、たちまち核分裂を起こしてしまう。また入射エネルギーがクーロン障壁よりも低いと核表面同士が接触できなくて融合が起こらない。したがって目的とする超重核を合成するときのエネルギー選択が非常に重要になる。

また一般に融合確率が小さいので、標的と入射核の衝突回数を増やすために、大強度のビームが必要となる。ここで言う「ビーム強度」とはエネルギーのことではなく単位時間当たりのビーム粒子の個数のことである。ビーム強度の世界的スタンダードは約 $5 \times 10^{12} / \text{s}$ (= B) である。標的を厚くすれば標的核の面密度（単位面積当たりの標的核の個数）を上げることができるが、ビームのエネルギーは標的を通過しながら減少していき、かつ融合反応が起こるエネルギーの幅が比較的狭いので、標的の厚さで衝突回数を稼ぐことには限界がある。標的の厚さ（通常面密度で表される）のスタンダードは約 $10^{18} / \text{cm}^2$ (= T) である。原子核を非圧縮性の液滴とみなせば、体積は質量数に比例し、半径は体積の1/3乗に比例する。このとき原子核の半径は $R = r_0 \times A^{1/3} \times 10^{-13} \text{ cm}$ と表される。ここで A は質量数、 r_0 は実験から求められる量で $1.2 \times 10^{-13} \text{ cm}$ 程度である。これを使うと質量数209の原子核の半径 R は $7.0 \times 10^{-13} \text{ cm}$ 、幾何学的断面積 $\sigma_g = \pi R^2$ は $1.6 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ (barn バーン) となる。電荷を持たない中性子を原子核に衝突させた場合の衝突確率は、共鳴がない場合には、原子核の幾何学的断面積程度になる。標的の厚さを $10^{18} / \text{cm}^2$ とし、中性子強度を $5 \times 10^{12} / \text{s}$ とすれば衝突頻度は $\sigma_g TB = 8 \times 10^6 / \text{s}$ となり、毎秒一千万回ほど衝突が起こることになる。原子番号が80程度までの核反応の場合には、これに匹敵する頻

度で融合が起こる。これに比べ、超重元素領域では、標的核とビーム核との静電反発力が大きく、これを超えるエネルギーで衝突を起こした際に、融合が起こらずに、核分裂がおこってしまう場合がほとんどとなり、融合反応の確率が極端に小さくなる。例えば原子番号 112 を合成する場合には断面積で表すと $0.5 \times 10^{-36} \text{ cm}^2$ (pico-barn ピコバーン) 程度になり、通常の核反応断面積の一兆分の 1 程であり、このとき合成頻度は 5 日に 1 個程度である。

融合してできた超重核は入射核と同じ運動量を持って標的から飛び出して行く。つまり入射ビームと同方向に飛び出す。上述のように発生頻度の極端に少ない、目的とする超重核を、同方向に 1 秒間に約 10^{13} 個も飛来するビーム粒子から選り分けるために使われるのが反跳分離装置と呼ばれる装置である。標的から飛び出すときの超重核イオンの速度は光速の 1% 以下である場合がほとんどである。このような速度の重イオンが標的から飛び出すとき、標的原子との原子衝突によって電子をはぎ取られるが、このときにははぎ取られる電子の個数、すなわちイオンの電荷は、確定的な数ではなくて、平均値のまわりにある分散をもって統計的に分布する。また合成された超重核が標的中を走る時に、標的原子との衝突によっていくらかエネルギーを失うが、融合反応が起こった標的の深さの違いによってこのエネルギー損失に不確定さが発生し、標的から飛び出した時の速度は、やはりある平均値のまわりに拡がりをもっている。このように、速度も、電荷状態も拡がりをもった低速重イオンを、効率よくかつ大きな分離能力を持って収集することが反跳分離装置に課された役割である。

このような装置として世界で活躍しているものに大きく分けて 2 つのタイプがある。ひとつは静磁場と静電場を組み合わせるタイプであり、両方の場が運動するイオンに及ぼす力が、どちらもイオンの電荷に比例しており、静磁場の及ぼす力はイオンの速度にも比例し、静電場の及ぼす力はイオン速度には依存しない、という性質を利用して、イオンの電荷状態には依存せず、速度にのみ分散を持たせるイオン光学系を構築するものである。このタイプは Wien filter 型とも呼ばれ、GSI の SHIP という反跳分離装置が有名である。

また別のひとつは静磁場中に希薄なガスを充填して使うタイプで、気体充填型反跳分離装置と呼ばれている。気体中を進行するイオンは、気体原子 (分子) との原子衝突によって、イオン-気体原子間での電子のやり取りを繰り返す。短い距離の間に何度も電子のやり取りを繰り返すので、変化し続ける電荷の平均値がよく定義できて、全体の軌道は、イオンの標的直後の電荷には関係なく、イオン速度と原子番号にのみ依存するという、ややトリッキーな現象を使って低速重イオンを分離収集しようとするものである。ガス中でのイオン電荷の平均値は、第 1 次近似では、イオンの速度と原子番号の 1/3 乗の積に比例する。一方静磁場がイオンに及ぼす力は速度と質量の積に比例し、電荷に反比例するので、運動する 1 個のイオンに平均して働く力は、イオンの原子番号と質量数の

みに依存し、速度には依存しないという性質を利用している。このような動作原理から、気体充填型の分離装置は、イオンの初期電荷にも速度にも依存しない分離が可能であり、そのため大きな効率を持っている。ロシア FLNR の GFRS (Gas Filled Recoil Separator)、アメリカ LBNL の BGS (Berkley Gas-filled Separator)、理研の GARIS (GAs filled Recoil Ion Separator)、GSI の TASCA (Trans Actinide Separator and Chemistry Apparatus) 等が精力的に稼働している。図 2 に理研の GARIS を示す。

反跳分離装置によって選り分けられた超重核のイオンは検出器に導入されるが、シリコンの素材を使った半導体検出器が検出器として主に使われている。特にエネルギーの情報だけでなく、位置情報の読み出しができるものが使われている。超重核はこの位置敏感型の半導体検出器に打ち込まれ、素材であるシリコンの結晶中でほとんどその位置を変えずに崩壊を繰り返す。イオンが最初に入射した位置と崩壊が起こった位置が、検出器の位置分解能の範囲内に入っていることをもって、一連の崩壊が同一起源のものであることを保証するのである。反跳分離装置の分解能力が劣っていると、検出器に目的外の粒子がひっきりなしに入射する。このようなバックグラウンド粒子が偶然に目的核

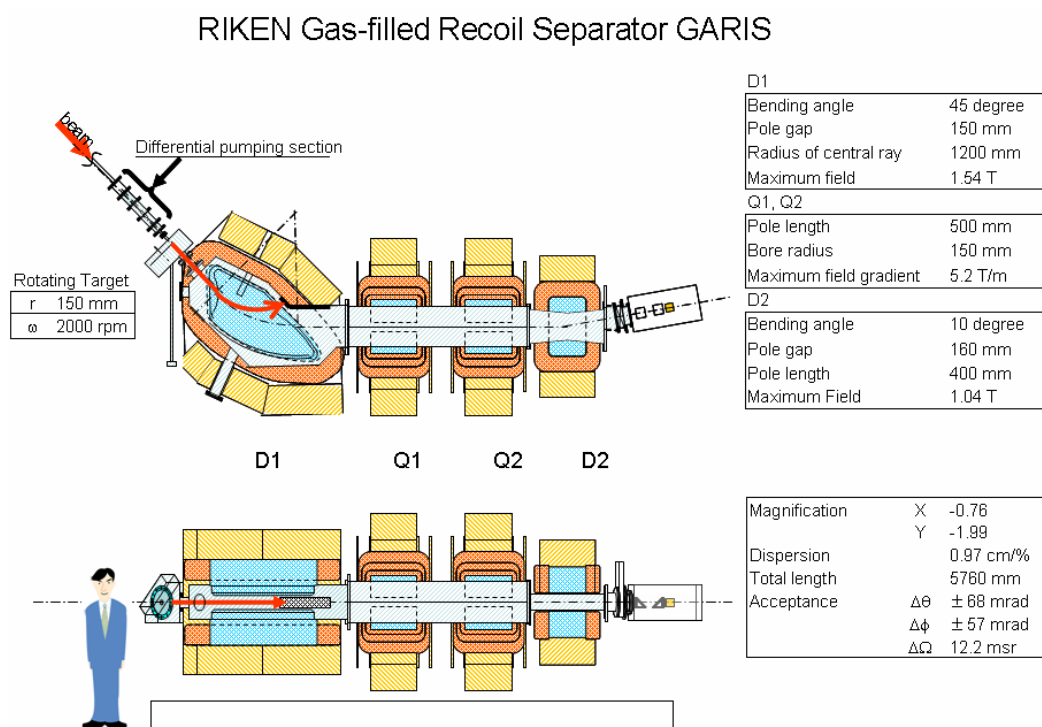


図 2 理研の気体充填型反跳分離装置 GARIS。双極(D1)、4重極(Q1)、4重極(Q2)、双極(D2)の4つの電磁石で構成されている。D1はメインの分離を行い、Q1、Q2は目的核を焦点面に像を結ばせる働きをする。D2はビームが止められる場所(D1のチャンバー内の壁)で発生するバックグラウンド粒子を掃討する働きをする。

と同位置に入射してしまうと、偽の相関を作り出してしまう。バックグラウンド粒子の計測率を下げ、検出器の位置分解能を上げることによって偶然におこる事象を極力小さくする努力がなされている。

4. 理研の実験と結果

理研の 18GHz ECR イオン源から引き出され、周波数可変 RFQ-Linac、理研線形加速器 RILAC によって 353 MeV にまで加速された亜鉛 70 (原子番号 30、質量数 70 : ^{70}Zn) イオンがビスマス 209 (原子番号 83、質量数 209 : ^{209}Bi) を照射した。実験は 2003 年 9 月から 2006 年 5 月にかけて、間に休みをはさみながら、延べ 300 日以上を費やして行われた。照射した亜鉛原子の総量は 6.2×10^{19} 個であった。事象は 2 例が観測にかかった。1 例目は 2004 年 7 月 23 日 18 : 55、2 例目が 2005 年 4 月 2 日 2 : 18 に観測された。どちらの事象も重イオンの検出器への入射の後、4 回の連続した α 崩壊を繰り返したのち、自発核分裂を起こして崩壊の連鎖を終了した。 α 粒子はヘリウム 4 の原子核 (^4He) であり、2 個の陽子と 2 個の中性子からできている。 α 崩壊によって原子核は原子番号を 2 減らし、

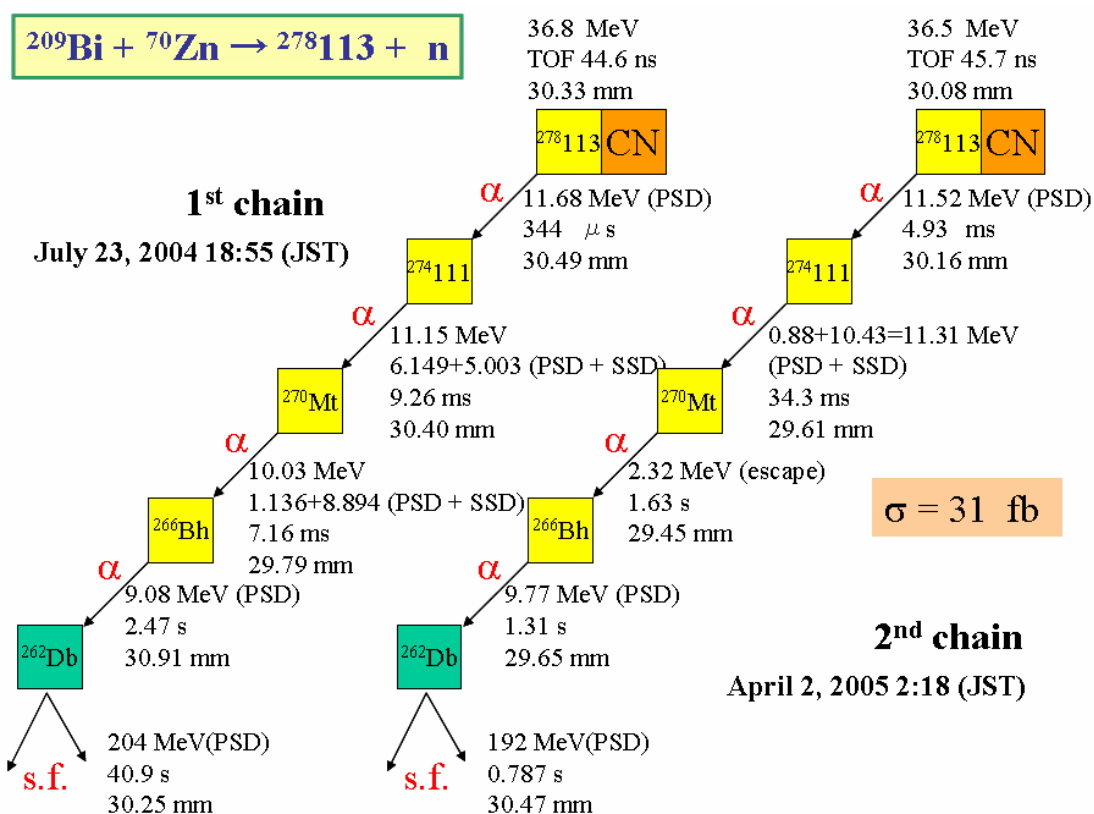


図 3 観測された崩壊チェーン。CN は複合核 $^{279}113$ を表している。入射や崩壊のエネルギー、時刻、位置、が崩壊ごとに記されている。S.f. は自発核分裂を表している。図中に示された $\sigma = 31 \text{ fb}$ は、生成断面積が 31 フェムトバーン (10^{-39} cm^2) であったことを示している。

質量数を 4 減らす。観測された、連続した α 崩壊のうち 4 回目の α 崩壊は、その崩壊エネルギーと崩壊時間が、既に知られた核 ^{266}Bh (ボーリウム 266、原子番号 107) のものと一致しており、さらにそれに引き続く自発核分裂の観測は、 ^{266}Bh の α 崩壊した娘核である ^{262}Db (ドブニウム 262、原子番号 105) の崩壊様式と一致していた。これら親子関係にある既知の崩壊に、崩壊の連鎖が接続したことによって、3 回の α 崩壊を逆にたどって、最初にできた超重核は質量数 278、原子番号 113 の核であることを同定した。一連の崩壊は $^{278}113(\alpha) \rightarrow ^{274}\text{Rg}(\alpha) \rightarrow ^{270}\text{Mt}(\alpha) \rightarrow ^{266}\text{Bh}(\alpha) \rightarrow ^{262}\text{Db}(\text{SF})$ と同定され、最初の 3 つの核種 $^{278}113$ 、 ^{274}Rg 、 ^{270}Mt は未発見核種であり、続く 2 核種 ^{266}Bh 、 ^{262}Db は既知核種である。 ^{262}Db のあとに記してある (SF) は崩壊が自発核分裂 (SF: Spontaneous Fission) であったことを示すために記した。崩壊の様子は図 3 に示してある。

5. まとめと今後

観測された崩壊の様子から新たに 3 核種が発見され、最初に合成された核が 113 番新元素であることを確認した。今後時間はかかるが同じ実験の繰返しを行い 3 原子目となる $^{278}113$ を検出して 113 番元素の合成をより確かなものとするを考えている。また今回合成した $^{278}113$ の α 崩壊の娘核を $^{205}\text{Tl} + ^{70}\text{Zn} \rightarrow ^{274}\text{Rg} + n$ 反応によって直接合成し、その崩壊が $^{278}113$ からの崩壊連鎖と一致することを確認する実験等も計画している。113 番元素に関するこうした一連の実験ののち、原子番号 32 のゲルマニウム 76 を原子番号 82 の鉛 208 に照射して合成されると予想されている 114 番新元素の合成に挑戦したいと考えている。114 番はかつて陽子の魔法数として予想され、超重元素探索の口火となった元素であり、その安定性は原子核モデルに重要な知見をもたらすと期待されている。

さらに将来には現在ロシアで行われ、GSI でも追試が開始された領域である、アクチノイド標的を使ったさらに大きな原子番号の確認実験も行っていきたいと考えている。

また同時に原子番号が 104 以上の超アクチノイド元素の化学的性質を研究するという、化学における新しい領域の開拓を行っていきたいと考えている。