



## 8. 重・超アクチノイド元素の化学—実験

<sup>104</sup>Rfのイオン交換挙動を中心に原研の現状と計画Chemistry of Heavy- and Trans-Actinide Elements  
-Experiments-

塚田和明

Kazuaki TSUKADA

原研 先端基礎研究センター

Advanced Science Research Center, JAERI

Experimental results on the chemical properties of the transactinide element, Rf (Z=104), on an atom-at-a-time base are reviewed. Status and future plans for the study of chemical behavior of transactinide elements with the JAERI tandem accelerator are reported.

Keywords: Transactinide Elements, Chemical Behavior of Rf

## 【はじめに】

超重元素などの重い原子系では、電子軌道に対する相対論効果により化学的性質が周期性からずれると理論的に予想されている[1]。超重元素の化学挙動研究は実現していないが、周期表(図1)の一番下に位置する超アクチノイド元素の<sup>104</sup>Rf、<sup>105</sup>Db、<sup>106</sup>Sgおよび<sup>107</sup>Bhを対象にして欧州・ロシアそしてアメリカなどを中心に国際的な協力研究が進んでいる。いくつかの報告が周期性からのずれを指摘しているが十分な議論が進んでいるとは言い難い[2]。

近年、我々のグループではGSIおよびマインツ大核化学グループとの研究協力を通じて<sup>104</sup>Rfおよび<sup>106</sup>Sgの溶液化学に関する実験に参加してきた。また、原研タンデム加速器施設で超アクチノイド元素の化学挙動研究を行うための整備を行い、<sup>104</sup>Rfの溶液化学研究を行

Periodic Table of the Elements

											13	14	15	16	17	18									
1	2												5	6	7	8	9	10							
3	4											13	14	15	16	17	18								
11	12	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18								
19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32	33	34	35	36								
37	38	39	40	41	42	43	44	45	46	47	48	49	50	51	52	53	54								
55	56	57	72	73	74	75	76	77	78	79	80	81	82	83	84	85	86								
87	88	89	104	105	106	107	108	109	110	111	112	114	116	118											
*Actinides		90	91	92											93	94	95	96	97	98	99	100	101	102	103
*Lanthanides		58	59	60	61	62	63	64	65	66	67	68	69	70	71										

図1 周期表

うための基礎研究を進めている。ここではGSIとの協力研究で進めている $_{104}\text{Rf}$ のイオン交換挙動に関する実験を中心に一般的な実験手法の紹介および原研での現状について報告する。

#### 【超アクチノイド元素の化学挙動研究に用いられる実験手法】

超アクチノイド元素を対象にした化学挙動実験は図2に示すように照射装置、ガスジェット搬送装置そしてオンライン化学分離装置と測定装置を効率よく組み合わせて行われている。化学分離には主にガスクロマトグラフィーと液体クロマトグラフィーが用いられている。超アクチノイド元素は一般に短寿命であり、扱える量も極めて少量で、ほとんどの場合一度に扱えるのは原子の数にして1つである。このよ

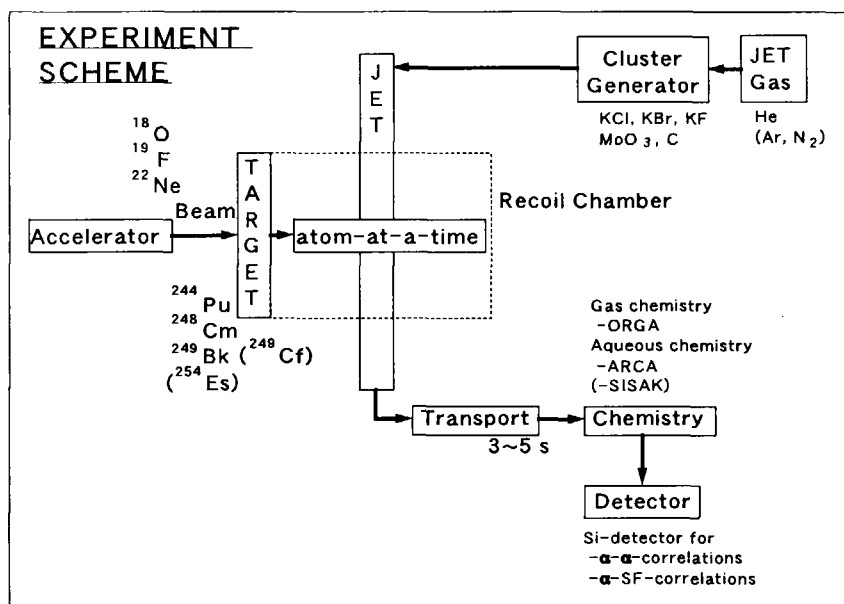


図2 超アクチノイド元素の化学挙動研究の実験の流れ

うな化学分離を「Atom at a Time Chemistry」と呼ぶ[3]。このような系では当然、質量作用の法則が適用できない。そこで何段もの交換を経ることで原理的には1個の原子でも統計的な挙動を反映すると考えられるクロマトグラフ法が利用されてきた。ターゲットは様々な高放射性的なアクチノイド核種が使われている。厚さは $0.5\text{--}0.7\text{mg/cm}^2$ 程度で一般にBe箔に電着して使用している。使用するガスジェット用反応槽は汚染防止および真空系への安全を考慮してガスジェットおよび放射性ターゲットとビームラインをHAVARまたはBe箔で2重に隔てている。

#### 【 $_{104}\text{Rf}$ に関するGSIとの協力研究】

GSI核化学研究グループではガスジェット搬送装置と組み合わせたオンライン迅速液体クロマトグラフ(ARCA)[4]を開発し、このような超アクチノイド元素の溶液化学研究に応用してきた。この装置は1分程度で分離・測定が可能であり、 $^{261}\text{Rf}$ (半減期約65秒)や $^{265}\text{Sg}$ (同約7秒)などを対象とすることができる。このオンライン迅速液体クロマトグラフィー(ARCA)の主な特徴は連続的に迅速な実験を行うために、複数のカラムを利用することと、装置を小さくし生成物の捕集位置とカラムの距離を極端に短くし溶出時間を短縮したことである。その概略を図3に示す。生成物はガスジェット装置によってsliderと呼ばれる板に捕集され一定時間捕集後、カラムの上部に移動し溶解されカラムに導入される。分離後は蒸発乾固し、 $\alpha$ 線測定を行う。現在、この測定試料調製はオフラインであり、迅速に溶液系の実験を行う際の問題点となっている。

<sup>104</sup>Rfは1970年代に4族元素であることが確認されているが[5]、ZrやHfといった他の4族元素との化学挙動とは十分に比較されていない。そこで硝酸・希フッ酸の混合溶液を溶離液にした陽・陰イオン交換挙動を同族のZr, Hfおよび擬4族のThと比較した。特にそれぞれの元素が示す分配係数のフッ素イオン濃度変化(0.1M硝酸溶液中)に

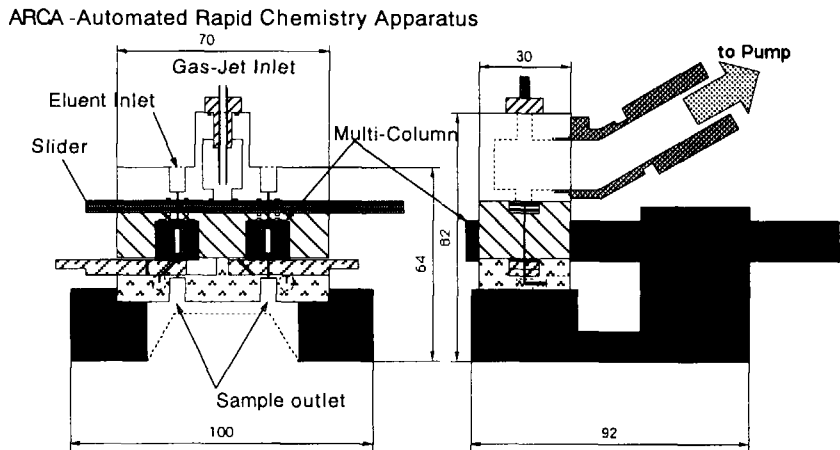


図3 液体クロマトグラフ分離装置(ARCA)の概略

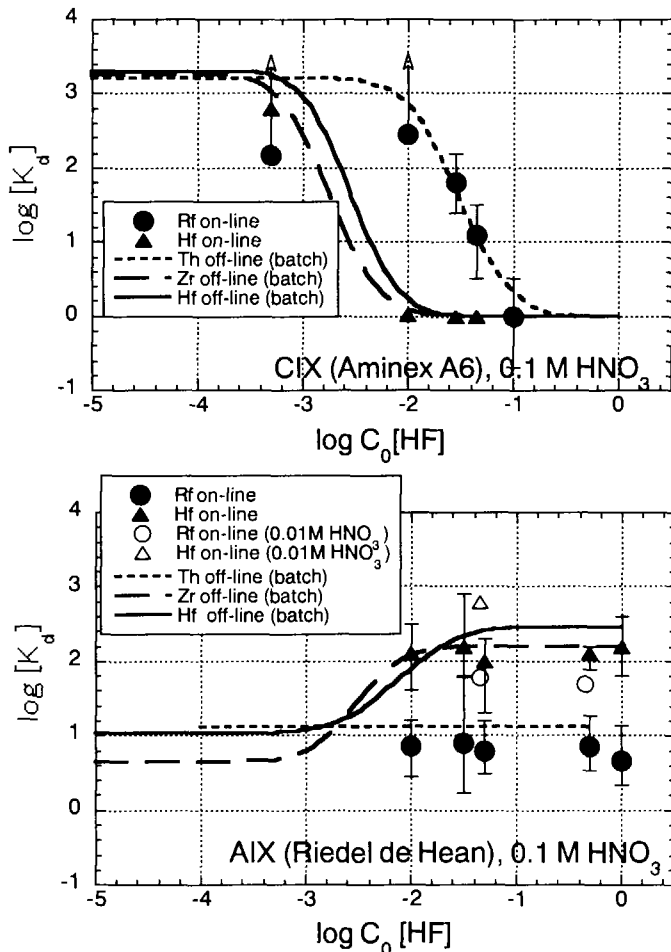


図4 0.1M硝酸中のフッ酸濃度に対する陽・陰イオン交換分離の分配係数( $K_d$ )の変化。

ついて比較を行った。実験はオフライン(バッチ法)でZr, HfおよびThの溶離挙動を観測し、その実験データとオンライン実験で観測したRfとHfの溶離挙動を比較した。このオンライン実験がRfの挙動を正確に表しているかどうかは、オンライン・オフライン実験でのHfの挙動が一致することで判断した。

図4に示したように両実験[6]からこの硝酸・希フッ酸の混合溶液系ではRfは同族のZrおよびHfよりむしろThに近い挙動を示すことがわかった。これまでには塩酸によるTBPからの溶媒抽出実験において、本実験結果とは異なりRfの挙動がHfとZrの間にあたるという報告もある[7,8]。また、同様の実験系でHfとZrと異なる挙動を示すという実験結果も報告されている[9]。しかし、このような報告ではRfがどのような化学状態で溶液中に存在するかはっきりしていないことなど、Rfの挙動には良く理解されていないことが多く、今後より単純な系での実験が期待される。

## 【原研の現状と計画】

原研タンデム加速器施設でもこのような超アクチノイド元素の化学挙動研究を進めるために整備を進めてきた。図5に実験室の概略を示す。ターゲットチェンバーを含むガスジェット搬送装置はこれまでに運用の実績があり技術的な問題はない。また、化学分離装置はGSIと協力してARCAの改良版を製作しており、この装置を利用した $^{104}\text{Rf}$ の溶液化学研究を行うための基礎研究を進めている。特にZrやHf,Thと比較した $^{104}\text{Rf}$ のイオン交換挙動実験では、フッ酸溶液系や硝酸溶液系のようなより純粋な系で実験を行い、理論計算との比較などからRfの溶存状態を確認することを検討している。また、 $^{104}\text{Rf}$ などの実験対象核種の壊変特性研究や生成条件検討のためにガスジェット搬送装置と直結したオンライン連続 $\alpha$ 線測定装置も平行して製作し、次期実験期間中にRfの生成テストを行う予定である。また、タンデム加速器の改良も同時に進んでおり、今後、ターミナルECRイオン源から $^{18}\text{O}$ および $^{22}\text{Ne}$ ビームの供給も期待できる。

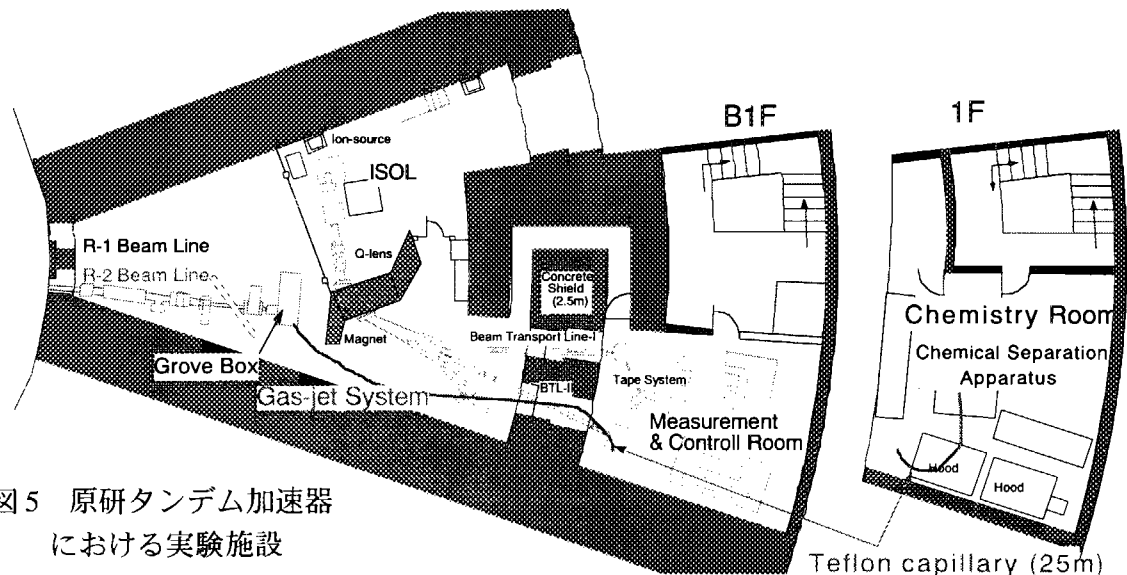


図5 原研タンデム加速器  
における実験施設

## 【参考文献】

- [1] B. Fricke and W. Greiner, Phys. Lett. B30, 317 (1969).
- [2] J.V. Kratz et al., Radiochim. Acta 48, 121(1989).
- [3] B.Guillaumont et al., Radiochim. Acta 46, 169 (1989).
- [4] M. Schaedel et a l., Radiochim. Acta 48, 171 (1989).
- [5] R. Silva et al., Inorg. Nucl. Chem. Lett. 6, 871 (1970).
- [6] E. Strub et al., GSI Scient. Rep. 98, GSI 99-1, 15 (1999).
- [7] K.R. Czerwinski et al., Radiochim. Acta 64, 23 (1994); ibid., 29 (1994).
- [8] C.D. Kacher et al., Radiochim. Acta 75,127 (1996).
- [9] R. Guenther et al., Radiochim. Acta 80, 121 (1998).