



3. 108 番元素以上を対象にした化学実験計画の現状

—GSI, PSI, LBL, JINR など各研究機関の実験計画から—

Status and Prospects of Chemical Study of Superheavy Elements

塚田和明

Kazuaki TSUKADA

原研先端基礎研究センター

Advanced Science Research Center

Japan Atomic Energy Research institute (JAERI)

【はじめに】

超重元素と呼ばれる重い原子系では、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]。また、図 1 の周期表のように理論的には superactinide の存在も予測できる。Keller らはこのような理論を元に実際の化学的性質がどのようになるか予測している[2]。しかし、現実的には他報告でも触れられたように 107 番元素ボーリウム(Bh)の化学的性質が報告されているにすぎない[3]。107 番元素を超える元素の化学的性質は様々な研究機関が幅広い国際協力の下で基礎実験を展開しており、将来的には 108 番元素ハッシュウム(Hs)を初め、より重い元素を対象にした研究が進められるであろう。ここでは各研究機関の年次報告などを参考に、

Periodic Table of the Elements

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	
I	II	IIIb	IVb	Vb	VIb	VIIb	VIIIb	IXb	Xb	XIb	XIIb	III	IV	V	VI	VII	VIII	
H	Alkali Earth Metal										Non Metal						Halogen	
Li	Be											Metalloid		B	C	N	O	F
Na	Mg	Transition Metal										Other Metal		Al	Si	P	S	Cl
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br		
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I		
Cs	Ba	La	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At		
Fr	Ra	Ac	Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt	110	111	112	114		116		118		
Transactinide																		
119	120	121	122	123	124	125	126	127	128	129	130	131	132	133	134	135	136	
Alkali Metal																		
Noble Gas																		
Lanthanide*																		
Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu					
Actinide*																		
Superactinide*																		
137	138	139	140	141	142	143	144	145	146	147	148	149	150	151	152	153	154	
5d6f																		

図 1 周期表

今後どのような研究が進められていくかをまとめ、今後新たな実験を進めていく際の参考としたい。

【108番元素以上の超アクチノイド元素の化学の現状と計画】

表1に超アクチノイド元素の化学挙動研究において利用あるいは計画されている合成反応を示した。ここに示した114番元素を除く反応系は、測定までの全効率を30%、ビーム電流500 pAの照射において10日で3イベントが期待できる系であり、ビーム電流の増加など、新たな技術の進歩があれば、より多くの実験系を対象にした研究が期待できる。しかし、現在のガスジェットを中心とした手法ではビームラインとターゲットチェンバー間のフォイルへの負担などから、加速器側がビーム量を増強しても、増強されたビームをすべて利用できる環境にない。

表1 化学実験の対象となる超アクチノイド元素とその合成反応。

Element	Prod. Rate (atoms/h)	Half Life (s)	Reaction
^{104}Rf	30	75 s	$^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O}, 5\text{n})^{261}\text{Rf}$
^{105}Db	30	34 s	$^{249}\text{Bk}(^{18}\text{O}, 5\text{n})^{262}\text{Db}$
^{106}Sg	2	7 s	$^{248}\text{Cm}(^{22}\text{Ne}, 5\text{n})^{265}\text{Sg}$
^{107}Bh	0.3	17 s	$^{249}\text{Bk}(^{22}\text{Ne}, 5\text{n})^{267}\text{Bh}$
^{108}Hs	0.005*	9 s*	$^{248}\text{Cm}(^{26}\text{Mg}, 5\text{n})^{269}\text{Hs}$
112	0.005	180 s	$^{238}\text{U}(^{48}\text{Ca}, 3\text{n})^{283}112$
114	0.001	10~20 s	$^{244}\text{Pu}(^{48}\text{Ca}, 3\text{n})^{289}114$

*predicted

超アクチノイド元素の化学的性質に関する研究は、これまでに液相化学反応あるいは気相化学反応に基づくクロマトグラフ的手法が用いられてきた。両手法それぞれに長所と短所が存在するが、その効率と実験時間を考慮すると、108番元素以上の実験系では気相反応を用いることが有利である。気相系では対象とする元素が属すると考えられる周期律上の性質から、表2に示すような化学形で高い揮発性を有すると期待でき、その化学形を対象にした実験が期待できる。これまでの実験例では104番元素ラザホージウム(Rf)は塩化物あるいは酸化塩化物として議論され[4]、105~107番元素は酸化塩化物と予測されて分離されている[5,6,3]。108番元素Hsは酸化物の揮発性を利用した研究が期待でき、現在、後述する様にドイツ重イオン研究所(GSI)あるいはスイスポールシェラー研究所(PSI)において基礎研究が進められている。また、112番元素以上では水銀、鉛あるいは希ガスなどの性質を期待した基礎実験が、PSIおよびロシア原子核合同研究所(JINR)において進められている。

具体的には、GSIにおいてマインツ大学との協力のもと、ターゲットチェンバーに

酸素ガスを導入して Hs の酸化物 ($_{108}\text{HsO}_4$) を合成し、ヘリウムガス流で移送後、Na 表面への吸着の有無を調べ 8 族元素である Os とその挙動を比較するという実験を計画している (CALLISTO: Continuously Working Arrangement for Clusterless Transport of In-site Produced Volatile Oxides) [7]。Hs は化学分離実験が可能な寿命をもつ同位体は未だ同定されていないが、 ^{26}Mg を利用することで 5 pb 程度の断面積で比較的長い半減期 (10 秒程度と予測されている) をもつ ^{269}Hs が合成できると期待されている。GSI ではターゲットおよび真空フォイルを回転させビームによる発熱を拡散させる照射システムを開発し、1 pμA 以上の $^{26}\text{Mg}^{4+}$ ビームの利用を試みる予定である。実験は 2001 年 4 月に予定されている。また、PSI でも同様に IVO (In-site Volatilization and On-line detection) という実験装置を開発し、Hs の酸化物を対象にした基礎研究が進められている[8]。IVO の実験は 2001 年 3 月から 4 月にかけてロシア JINR で、そして GSI において 2001 年 5 月に実験が行われる予定である。

表 2 超アクチノイド元素の気相系化学分離実験が期待できる揮発性の高い化学形

	Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt	110	111	112-118
Elemental								○	○
Chlorides	○	○					○	○	
Oxychlorides	(○)	○	○	○					
Oxides					○	○	○		
Hydroxides			○	○		○			

112 番元素は 12 族水銀との化学的性質の比較が期待できる。PSI では 112 番元素金属と水銀金属の揮発性との比較を行うために、前述した実験装置 IVO に還元ガスとして水素ガスを導入し 112 番元素を金属化した後にその揮発性を観測する実験を計画し、Hg を利用した基礎研究を進めている[9]。112 番元素実験の問題点は、対象とする同位体 $^{283}112$ が自発核分裂すると報告されており[10]、その同定が難しいことである。この点を考慮して、ロシア JINR では自発核分裂を効率良く測定するシステムを構築し、PSI と同様に 112 番元素の化学的性質を水銀と比較する実験装置を開発中である[11]。両研究所では 114 番元素についても同様な実験系で 14 族鉛金属との比較をおこなう基礎実験を進めている。

実験的に有利であることから気相系を中心に様々な計画をレビューしてきたが、液相系の実験にも、新たな展開が見られる。米国ローレンスバークレー国立研究所 (LBL) では、気体充填式の質量分離装置 (BGS: Berkeley Gas-filled Separator) の後段にガスジェットシステムを接続することに成功し、大強度のビームを低いバックグラウンドで利用することに新しい道筋を開いた[12]。そして、北欧のオスロ大とマインツ大グループが共同で開発している連続溶媒抽出分離装置 SISAK をガスジェット装置の後段に接続し、 $_{107}\text{Bh}$ および $_{108}\text{Hs}$ の液相での分離実験を計画している。特に、Bh を対

象にした基礎実験では 7 族元素である Tc を対象に CHCl_3 溶媒のもとで TPAC (tetraphenylarsonium chloride) を利用した分離が有効であることを見いだした [13]。BGS を利用した実験は液相系の実験に限らず他のどの実験系にも有効であり、今後は他の物理的分離装置と化学分離実験装置の結合も期待できる。GSI では速度フィルター型分離装置 SHIP の後段に TRAP をつける計画も議論されており [14]、このような議論の中で、超アクチノイド元素の化学的性質に関する研究がどのように進められるか注目したい。

国内では、現在、日本原子力研究所のタンデム加速器が超アクチノイド元素の化学研究に利用できる唯一の加速器であるが、最近、理研ライナック改造に伴い気体充填型反跳分離器 GARIS を移転し、超重核探索実験を集中的に行う計画が進んでいる。ここでは BGS の様に化学分離装置との結合した実験も期待したい。また、東北大サイクロトロン of 整備や、原研タンデム加速器では大型の ECR イオン源の開発も期待される。

【おわりに】

本講演にあたって多くの研究機関の年次報告を見てきたが、各研究機関が 5 年後あるいは 10 年後を見越して基礎研究を進めてきたことが印象的である。このような取り組みを進めるにあたって、以下のような点が重要であり、今後の参考にしたい。第 1 に基礎研究を行う底辺の広さであり、実際に実験を行う研究機関だけではなく多くの大学が基礎研究から実験に参加し、その研究の中から取捨選択され、実験に至っていること。そして、それぞれの大学でも原子炉 (マインツ大の TRIGA Reactor など) や加速器、自発核分裂線源 (PSI およびベルン大学の $4 \mu\text{g}$ の ^{252}Cf など) などを駆使し十分に基礎実験の時間を確保していることである。このように基礎研究には常時利用可能な設備が必要であることは言うまでもない。国内でも理研や東北大サイクロトロン、阪大 RCNP そして京大および原研の原子炉など、有効にそして効率良く利用していけるように、それぞれの施設や支援体制が整うことも期待したい。

参考文献

- [1] B. Fricke and W. Greiner, Phys. Lett. 30B, 317 (1969).
- [2] O.L. Keller, Jr and G.T. Seaborg, Ann. Rev. Nucl. Sci. 27, 139 (1977).
- [3] A. Tueler et al. Nature 407, 63 (2000).
- [4] I. Zvara et al., Sov. Radiochem. 11, 161 (1969). など
- [5] I. Zvara et al., Sov. Radiochem. 16, 709 (1969); H.W. Gaeggeler et al., Radiochim. Acta 57, 93 (1992). など
- [6] M. Schaedel et al., Nature 388, 55 (1997).
- [7] A. Zweidorf et al., GSI Sci. Rep. 1999, 236 (2000).
- [8] Ch.E. Duellmann et al., PSI Annual Rep. 1999, 13 (2000); Ch.E. Duellmann et al., Ext. Abstracts of NRC5, 199 (2000).
- [9] R. Eichler and B Eichler, PSI Annual Rep. 2000, 9 (2001); B Eichler, Ext. Abstracts of NRC5, 203 (2000).

- [10] Y.T. Oganessian et al., Eur. Phys. J. A5, 63 (1999); Y.T. Oganessian et al., Phys. Rev. Lett. 83, 3154 (1999); Y.T. Oganessian et al., Nature 400, 242 (1999).
- [11] A.B. Yakushev, et al., PSI Annual Rep. 2000, 8 (2001); A.B. Yakushev, et al., Ext. Abstracts of NRC5, 233 (2000).
- [12] J.P. Omtvedt et al., LBNL NSD Annual Report 2000 (2001).
- [13] E.J. Langrock et al., Ext. Abstracts of NRC5, 222 (2000).
- [14] D. Ackermann et al., GSI Sci. Rep. 1999, 106 (2000).