

■ 超重元素の化学

— 周期表上で原子番号の上限に位置する 元素の化学的性質を 単原子レベルで明らかにする —



重元素単一原子化学研究グループ ■ 永目 諭一郎

1. はじめに

自然界に存在する元素は原子番号92のウラン(U)までであるが、人工的に合成してその存在が確認された元素としては、93番のネプツニウム(Np)から109番のマイタネリウム(Mt)が報告されている。110から116番元素までの合成(図1)も報告されているが、国際純正応用化学連合IUPAC(The International Union of Pure and Applied Chemistry)が認めているのは109番元素までである。しかし最近110番元素合成に関するデータの信頼性が評価され、darmstadtium(Ds)という名前と元素記号が提案されている。2003年夏のIUPAC総会で承認される予定である[1]。

93番のNpから100番のフェルミウム(Fm)までは、 ^{238}U を出発核種として原子炉内で合成できるが、101番のメンデレビウム(Md)以上の元素は加速器を用いた荷電粒子による核反応でしか合成できない。新元素発見の歴史を振り返ってみると、過去250年の間に、約2.5年に1個の割合で新しい元素が発見されてきた[2]。一方、人工元素は1940年にNpが発見されてから、110番元素が1994年に合成されるまで約3年に1元素である。自然界には存在しない元素をほぼ同じペースで合成してきたことになる。特にMdより重い元素は、1度に数個の原子(核)しか合成できず、しかも短い半減期で壊変してしまう。このため1個の原子核の壊変でも新元素を同定するという実験技術が開発されてきた。

104番元素のラザホージウム(Rf)以降は、アクチノイド系列を終えて新たに6d電子が関与する遷移元素

として位置づけられつつあり、超アクチノイド元素と呼ばれる(最近では超重元素と呼ばれるようになってきているので、本稿では超重元素と表記する)。しかし後述するように非常に難しい実験が要求されるため、化学的性質はほとんどわかっていない。周期表はどこまで延長できるのだろうか? 周期表の先端に位置する超重元素はどのような化学的性質を示すのだろうか? そして周期表のどこに位置するのか? 超重元素化学は21世紀における新しい最先端の化学研究の一つとして位置づけられる。

2. 単一原子化学

超重元素は、プルトニウム(Pu)やキュリウム(Cm)などのアクチノイドターゲットに酸素(O)、ネオン(Ne)、マグネシウム(Mg)などの重イオンビームを衝突させて合成される。例えば104番元素のRfは、 ^{248}Cm (^{18}O , 5n) ^{261}Rf という核反応で合成することができる(104番元素の同位体では ^{261}Rf が最も長い半減期を持つ。超重元素の化学的性質を調べるには、化学操作を行う間、対象とする核種が生存していなければならない。このためより長い寿命をもった核種を合成する必要がある)。 ^{261}Rf 生成の割合はイオンビームの強度やターゲットの量によって多少の違いはあるが、1分間に2原子程度である[3]。しかも ^{261}Rf は半減期78秒で壊変してしまう。さらに重い元素の核種になると、もっと少ない生成率で、短い時間しか生存できない。Rfより一つ原子番号の大きいドブニウムは、 ^{248}Cm (^{19}F , 5n) ^{262}Db という反応で合成されるが、生成率は約4

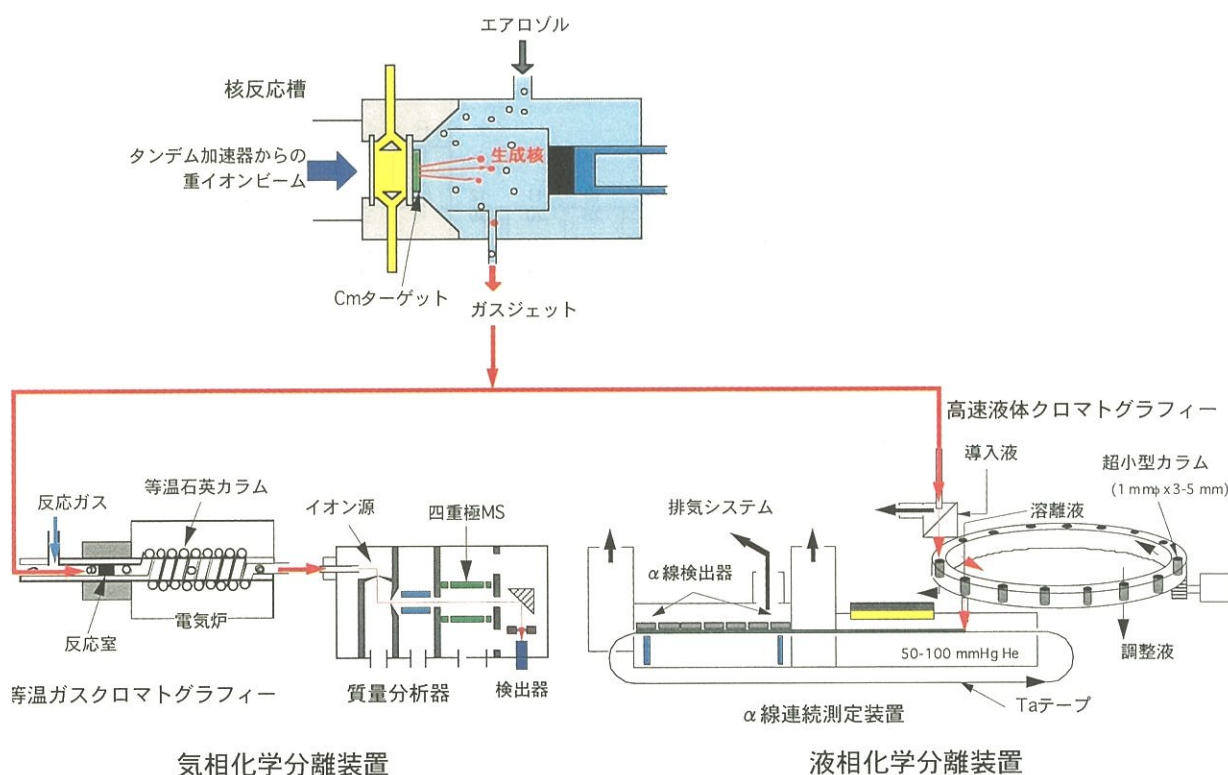


図2 単一原子化学の実験概要。核反応で合成される超重元素は、ガスジェットと呼ばれる装置を用いて、ジェット気流で2～3秒のうちに化学実験室へと運ばれ、気相系、液相系の化学分離装置へと導かれる。そこで単原子を対象に迅速な化学分離操作が行われる。

また上記実験と平行して、相対論効果を考慮した化合物の電子状態計算を進め、実験結果との比較などから超重元素の化学的性質における相対論効果の寄与を明らかにしていく。

3. 重核の壊変研究

超重元素の化学挙動を調べる際は、核種の壊変に伴う放射線（主として α 線か自発核分裂片）を観測する。従って超重核やその娘核の半減期や α 線エネルギー、自発核分裂片運動エネルギーなどを、精度よく正確に測定する技術とともに、正確な壊変情報が不可欠となる。重核の壊変研究も超重元素化学にとっては重要な研究課題の一つである。

また先に述べたように、化学挙動を調べるには長い寿命を持った核種を合成する必要がある。最近の理論的研究をもとに、中性子数 $N=162$ を持つ重核での変形殻構造が明らかになりつつあり、比較的長寿命（10秒）の核種が $N=162$ 近傍核で確認されている。殻構造はさらに重い超重元素の安定性にも重要な役割を果たすため、殻構造に基づく核分裂障壁、多重極変形度や慣性モーメントなどの核データはきわめて貴重な情報であ

る。しかし、これまではほとんど α 線のエネルギーや半減期をもとに議論されているに過ぎず、 γ 遷移の観測から単位構造やスピン・パリティといった物理量が決定されている核種は数例しか存在しない。本研究では102番元素ノーベリウム (No) や104番元素 Rf (中性子数 $N=157-159$) の核分光実験から、重核領域での核構造を明らかにしていく計画である。

一方、Sg や Rf の正確な壊変データは原子番号110を超える超重核の確認にも欠かせない情報である。すなわち、超重核の合成を確認するには、合成された核種が放射壊変（主に α 壊変）を続けていく過程で、既知の核種を検出することが必須条件となっている。つまり既知の核種から壊変の系列を遡ることで、最初の核種を推定することができるからである。超重核からの壊変は Sg, Rf, No などの核種に壊変していくが、これら核種の核データが不十分であると超重核生成そのものが怪しくなってくる。例えば112番元素は、 $^{208}\text{Pb} (^{70}\text{Zn}, n)^{277}\text{112}$ という反応で合成される。そして、 $^{277}\text{112} \rightarrow ^{273}\text{(Ds)} \rightarrow ^{269}\text{Hs} \rightarrow ^{265}\text{Sg} \rightarrow ^{261}\text{Rf} \rightarrow ^{257}\text{No}$ という α 壊変連鎖が確認され、既知の ^{261}Rf や ^{257}No の壊変が観測されて初めて $^{277}\text{112}$ の存在が証明されたことになる。しかし上記系列では ^{261}Rf の壊変に既知の様式とは違う壊変が

観測されており、 ^{261}Rf のより詳しい壊変情報が求められている。

実験は化学挙動研究と同じく、合成した短寿命の核反応生成物をガスジェット搬送装置で実験室へと導き、必要に応じてオンライン同位体分離装置あるいは迅速化学分離法により目的核種（元素）を選択的に分離する。そして α - γ 核分光測定装置、あるいは α /SF（自発核分裂）連続測定装置へと導き、放射線計測から詳しい壊変データを取得していく。

4. おわりに

超重元素の化学研究には、放射性的アクチノイドターゲットを使用して元素合成を行う重イオン加速器施設、特殊な迅速化学分離装置、ならびに単一の原子核の壊変で核種を同定するための計測技術の開発などを必要とする。このため世界的にはヨーロッパ、ロシア、米国の限られた研究所でしか行われていない。国内では、このような実験が行えるのは現在東海研究所タンデム加速器施設だけである。国内外の研究機関と積極的に研究協力を進め、超重元素化学研究の国際拠点(COE)の形成を目指すとともに、さらに重い元素の化学研究へ向けた実験的基盤を構築していきたい。

参考文献

- [1] http://www.iupac.org/reports/provisional/abstract03/corish_300603.html.
- [2] P. J. Karol, J. Chem. Educ. **79**, 60 (2002).
- [3] Y. Nagame et al., J. Nucl. Radiochem. Sci. **3**, 85 (2002).
- [4] B. Fricke and W. Greiner, Phys. Lett. **30B**, 317 (1969); 重元素のように重い原子系では、中心にある原子核の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。すると原子核の近くにある電子（内殻電子）の速度は光速に近づき、相対論効果で質量が重くなるため軌道半径が小さくなる。一方外側に位置する電子の軌道半径は、内殻電子により原子核電荷の影響が遮へいされるため大きくなる。その結果、化学結合に関与する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従わない可能性がでてくる。例えば周期表第4族に属する104番元素ラザホージウムは、この相対論効果のため、軽い同族のジルコニウムやハフニウムとは異なる化学的性質を示すことが期待される。
- [5] H. Haba et al., J. Nucl. Radiochem. Sci. **3**, 143 (2002); 羽場宏光 他、基礎科学ノート, **9**, 9 (2002).