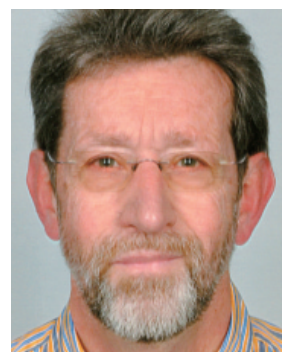


# 超重元素研究グループの主な成果

## Highlights of Research Group for Superheavy Elements

マチアス シェーデル グループリーダー  
Matthias Schädel Group Leader



### 概要

本研究グループは、元素の周期表において最下端に、また核図表の上限に位置する、近年新たに発見されてきた超重元素の化学的・核的な性質の理解を目的として研究を進めてきた。本研究における最も大きな成果は、最も重いアクチノイドであり、超重元素の境界に位置する103番元素ローレンシウム (Lr) の第一イオン化エネルギーの測定である。この結果は、理論が期待してきたように、Lrの価電子がこの領域のどの元素より緩やかに結合していることを明確に表すものである。

また、原子核構造に関する研究では、中性子過剰なノーベリウム (No,  $Z = 102$ )、Lr、ラザホージウム (Rf,  $Z = 104$ ) 同位体の基底状態の陽子・中性子軌道配位を決定する事に成功した。その結果、陽子数と中性子数が最大の原子核領域において、陽子と中性子の一粒子軌道に関する殻構造と原子核の変形状態の進化に関する新たな知見を得ることができた。

更に、国際的な視点に立ち、研究全体にわたって新たな国際協力研究を展開し、その成果を得てきた。特に、注目すべき成果としては115番元素と117番元素の合成と追試の成功が上げられる。また、シーボーギウム (Sg,  $Z = 106$ ) のカルボニル化合物の合成と、その化学的な性質に関する国際共同研究では、超重元素の有機金属化合物という新たな研究領域を開拓することができた。これは超重元素の化学研究において、重要な成果である。

本研究では、独創的な研究手法の開発と国際的な視野に立った共同研究が、注目すべき成果をもたらし、超重元素に関する知識と理解を深めるとともに、超重元素領域における新たな研究分野の創出に貢献することができた。

### 1. 研究の背景・経緯

新しい元素の探索とその未知なる性質の探求は、日々進歩する化学及び核物理学において興味深くかつ挑戦的な課題である。存在限界に近い元素の化学的性質は周期律から予想できるのか？原子核の安定性はどのような性質が決めるのか？このような疑問は、科学における最も基本的な問いの一つである[1]。

本グループ発足時には、重アクチノイドから超重元素へ移る領域における詳細な研究に興味を向けていたが、より大きなインパクトがある研究を対象にするべく、研究テーマは元素の周期表 (図1) の最下端に位置し、ほ

### Abstract

The research program aims at understanding chemical, atomic and nuclear properties of superheavy elements (SHEs) placed at the farthest reach of the Periodic Table of the Elements (PTE) as well as on the heaviest frontier of the nuclear chart.

The highlight of our program was the first-time measurement of the first ionization potential of lawrencium (Lr,  $Z = 103$ ). Lr is the heaviest actinide element and is located at the transition into the SHEs. The result clearly reveals, in agreement with theoretical expectations, that the valence electrons of Lr are most weakly bound.

From nuclear spectroscopy experiments we determined the ground-state configuration of neutron-rich isotopes of nobelium (No,  $Z = 102$ ), Lr, and rutherfordium (Rf,  $Z = 104$ ). The results provide new insights into the proton and neutron single-particle structure and the evolution of nuclear deformation for nuclei with the highest proton and neutron numbers.

On a worldwide scale, we significantly extended our international collaborations and contributions in all fields of our research. Experiments on the synthesis and confirmation of elements 115 and 117 are showcases as well as the SHE chemistry highlight: opening up the path into the new field of metal-organic compounds of SHEs with the first synthesis and investigation of a carbonyl compound of seaborgium (Sg,  $Z = 106$ ).

All these results are important contributions to advance our knowledge and understanding of SHEs.

### 1. Background

Exploring the frontiers and basic properties of matter are among the most fundamental quests in science. Here, examining the limits of existence of chemical elements and clarifying their basic properties are key topics in both chemistry and physics [1].

1																	18	
H											B	C	N	O	F	Ne		
Li	Be											Al	Si	P	S	Cl	Ar	
Na	Mg	3	4	5	6	7	8	9	10	11	11	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr	
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	In	Sn	Sb	Te	I	Xe	
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn
Cs	Ba	La*	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn	
Fr	Ra	Ac <sup>+</sup>	Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt	Ds	Rg	Cn	113	Fl	115	Lv	117	118	

*Lanthanides	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
+Actinides	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr

図1 元素の周期表  
Fig.1 Periodic Table of the Elements

とんど性質が理解されていない超重元素の化学、原子、そして核的性質を、独創的で、挑戦的な実験によって解明し、かつ未開拓の研究分野を切り開くことを目標にした。

超重元素の実験的研究を行うに当たって、最も困難な点は、超重元素の原子の生成量が極めて少なく、しかも数分以下という短い寿命で崩壊することであり、生成した原子は次の原子が合成される前に崩壊してしまう。つまり、「単一原子」を対象にするため、迅速かつ高効率で厳選された手法が、実験的研究の推進には欠くことが出来ない。また、研究に際しては原子力科学研究所タンデム加速器を主に使用したが、国際的な共同研究の下、他の重イオン加速器を有効に利用した実験も積極的に行った。

実施した研究テーマは大きく二つに分けられる。一方は、化学的性質に直接影響し、かつ相対論効果の影響を強く受けている超重元素の価電子に着目したテーマである[1]。特に、実験的に未だ測定されていなかった、Lrの第一イオン化エネルギー ( $IP_1$ ) を探る試みを精力的に行った。これは最も重い元素の  $IP_1$  を知ることであり、同時に、オンライン質量分離装置 (ISOL) [2,3]の表面電離型イオン源を用いて、初めてLrのような重アクチノイドのイオン化と質量分離を行う実験であった。更に、フロー電解セルを用いた超重元素の酸化・還元電位に着目した実験装置開発を進めることも行った [4]。

他方、重い原子核の安定性と存在限界を明らかにするため、超重核の殻構造を、陽子・中性子一粒子軌道を実験的に同定することによって調べた。特に中性子数  $N =$

Originally oriented towards detailed investigations of elements in the transition region from heavy actinides to light SHEs, our research to elucidate chemical, atomic, and nuclear properties of SHEs is now focusing on opening up new frontiers with novel type and most challenging experiments at the limits of matter and technical feasibility. These experiments at the uppermost end of the PTE (Fig. 1) are mostly performed in worldwide collaborations at heavy-ion accelerators with, still, the JAEA Tandem accelerator being a major component.

Because of short half-lives and low production rates, each SHE atom produced decays before a new one is synthesized. Therefore, automated, rapid, highly efficient, and selective procedures are indispensable to determine desired properties on an “atom-at-a-time” basis [1].

We focus on the valence electronic structure, which is strongly influenced by relativistic effects [1]. Experimentally we explored it by the first-ever measurements of the first ionization potential ( $IP_1$ ) of lawrencium; the heaviest element an IP has been determined. It was also the first time Lr was successfully ionized and mass separated with a surface ionization method as part of an Isotope Separator On-Line (ISOL) [2,3]. In addition, we initiated developments and pursuit redox potential measurements of SHEs with a flow electric column [4].

To elucidate the limits of stability of the heaviest

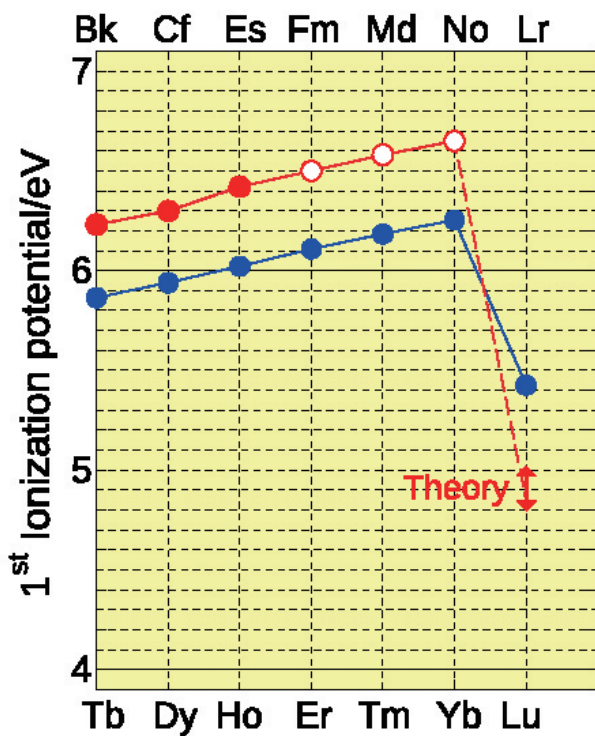


図2 重ランタノイドと重アクチノイド領域の第1イオン化エネルギー [2]

●は実験値、○は推定値。Lrに対するIP<sub>1</sub>の幅は最近の理論計算値。

Fig.2 Ionization potential of heavy lanthanides and actinides [2]

Closed and open symbol indicate experimental and estimated value, respectively. For Lr the range of IP<sub>1</sub> values from recent theoretical calculations is shown.

157[5]の原子核をはじめとする中性子過剰No, Rf同位体の $\alpha$ 崩壊核分光実験の結果から、 $Z > 102$ ,  $N > 155$ 領域の中性子一粒子軌道のエネルギー間隔と順序が軽い核とは異なることを明らかにした。これらの発見は、超重核の安定性と殻構造に関するより深い知見を与えるものとなった。

## 2. 研究の内容

### (1) Lrの第一イオン化エネルギー測定

重アクチノイドLrは、アクチノイド系列の終端に位置し、その原子の基底状態における電子配置は、ランタノイド系列で同じ位置にあるルテチウム(Lu)の電子配置が[Xe] 4f<sup>14</sup>6s<sup>2</sup>5dであることと異なり、[Rn]5f<sup>14</sup>7s<sup>2</sup>7p<sub>1/2</sub>と予想されている[1]。これは中心電荷の増大によって、内殻の電子軌道が収縮し、軌道上の電子が光速に近づくため、相対論効果によって、電子軌道の再配置が起こることによる。Lrの場合、6d軌道が不安定化し7p<sub>1/2</sub>軌道が安定化するために、7p<sub>1/2</sub>が最外殻電子軌道となる。この結果、Lrは周期表上で初めて7p軌道が価電子軌道に現れる元素と考えられている[1]。

価電子軌道の安定性を直接反映する原子の性質のひとつ

nuclei, we investigate the shell structure of superheavy nuclei (SHN) through experimental assignments of proton and neutron single-particle orbitals. Our results on the  $\alpha$ -decay spectroscopy of neutron-rich No and Rf isotopes, specifically at  $N = 157$  [5], establish the energy spacing and the order of neutron single-particle orbitals in  $Z > 102$  and  $N > 155$  nuclei, which are different from those of lighter nuclei. These findings provide further insights into the shell structure and stability of SHN.

## 2. Contents of the study

### (1) The first ionization potential of <sup>103</sup>Lr

Relativistic effects are strongly affecting the electron configuration of the heaviest elements [1]. In the actinides, the relativistic expansion of the 5f orbital contributes to the actinide contraction. Together with direct relativistic effects on the 7s and 7p<sub>1/2</sub> orbitals, this influences the binding energies of valence electrons and the stabilities of electron configurations. It is, however, difficult to directly measure energetic levels of the heaviest actinides with  $Z > 100$  by any spectroscopic method as these elements are not available in macro amount.

In comparison with theory, the measurement of the IP<sub>1</sub> (Fig. 2), a fundamental physical property of an element, provides a test of relativistic effects which are significantly noticeable in heavy elements. The ground state electronic configuration of lawrencium is expected to be [Rn]5f<sup>14</sup>7s<sup>2</sup>7p<sub>1/2</sub>, which is different from that of the lanthanide homolog Lu [Xe]4f<sup>14</sup>6s<sup>2</sup>5d. The reason for this change is the stabilization of the 7p<sub>1/2</sub> orbital of Lr below the 6d orbital by strong relativistic effects. Lr, therefore, is anticipated to be the first element with a 7p orbital in its electronic ground state.

As the first ionization potential directly reflects the binding energy of a valence electron under the influence of relativistic effects, its experimental determination provides direct information on the energetics of the electronic orbitals of Lr, including relativistic effects, and a test for modern theories. However, this measurement cannot answer any question about the electronic configuration itself.

To determine the IP<sub>1</sub> of Lr, we applied a surface ionization process. Here, an atom is ionized via interaction with a solid surface kept at a high temperature. In this process, the ionization efficiency ( $I_{\text{eff}}$ ) depends on a material sensitive work function, the surface temperature, and the IP<sub>1</sub> of the element. We utilized the relation between IP<sub>1</sub> and  $I_{\text{eff}}$  to determine the IP<sub>1</sub> of Lr.

In order to perform the IP<sub>1</sub> measurement for short-lived isotopes of Lr, we have developed and optimized a novel method based on the surface ionization process. The pivotal part of this multi-stage system is our highly

つが $IP_1$ である。 $IP_1$ は元素の基本的な物理的・化学的性質のひとつであり、これを実験的に決定することにより、Lrの電子配置に関する知見を得ることができ、超重元素原子における相対論効果や電子殻構造の効果がどのように影響をもたらしているか理解することにつながる。しかしながら、原子番号が100を超える元素は、その同位体がすべて短寿命であり、加速器でしか生成できず、さらにその生成断面積が非常に小さいために、実験対象とすることができるのは1度に1個ないし数個のみである。従って、従来法による $IP_1$ 決定は困難であった(図2)。

我々は、Lrの $IP_1$ を実験的に決定するために、表面電離過程に着目した。表面電離過程は、高温の金属表面において、金属表面と原子との相互作用により、原子がイオン化される過程である。表面電離過程では、対象原子のイオン化効率は、金属表面の温度、仕事関数、そして原子の $IP_1$ に依存する。本研究では、これを応用し、 $IP_1$ -イオン化効率間の相関関係が既知である系においてLrのイオン化効率を求め、実験的にLrの $IP_1$ を決定した。

実験は原子力科学研究所タンデム加速器実験施設にて行った。用いた実験装置は、核反応槽とガスジェット搬送システムからなる核反応部、表面電離型イオン源を備えたオンライン質量分離器(JAEA-ISOL)、ならびに測定系からなる。タンデム加速器で加速した $^{11}\text{B}$ ビームを核反応槽に設置された標的に照射することで生成した核反応生成物は、新たに開発したHe/CdI<sub>2</sub>ガスジェット搬送法[3]により、表面電離型イオン源へと運ばれる。表面電離型イオン源はタンタル製のイオン化室(アイオナイザー)を備えており、二本のフィラメントからの電子衝撃によって最高約2900 Kまで加熱することが可能である。イオン化室へと運ばれた核反応生成物は、表面電離過程によってイオン化され、引き出し電圧によって引き出されたのち、30 kVで加速され、電磁的に質量分離される。質量分離された目的イオンは、ISOL末端で捕集され、 $\alpha$ または $\gamma$ 線測定によって、同定・定量される。また、イオン化効率測定の分母は、ガスジェット搬送された核反応生成物を別途直接捕集し測定した。

短寿命Lr同位体として、 $^{249}\text{Cf}(^{11}\text{B}, 4n)$ 反応により生成する $^{256}\text{Lr}$ (半減期27秒)を用い[6]、Lrのイオン化を行った[2]。その結果、 $^{256}\text{Lr}$ およびその娘核種である $^{256}\text{No}$ 、ならびに $^{252}\text{Fm}$ 由来の $\alpha$ 線がはっきりと確認でき、短寿命Lrのイオン化・質量分離に初めて成功し、2800Kにおけるイオン化効率を求める事が出来た。

Lrのイオン化に先立ち、本実験系における $IP_1$ -イオン化効率間の相関関係を求めるため、 $^{136}\text{Ce}/^{141}\text{Pr}/^{142}\text{Nd}/^{147}\text{Sm}$ 、 $^{159}\text{Tb}/^{162}\text{Dy}/^{163}\text{Eu}$ 標的を用いて、 $^{11}\text{B}$ ビームとの反応により、 $^{142,143}\text{Eu}$ 、 $^{143}\text{Sm}$ 、 $^{148}\text{Tb}$ 、 $^{153,154}\text{Ho}$ 、 $^{157}\text{Er}$ 、 $^{165}\text{Yb}$ および $^{168}\text{Lu}$ を生成し、イオン化を行った。 $\text{Ge}+^{11}\text{B}$ で生成する $^{80}\text{Rb}$ も同様にイオン化し、イオン化効率算出のための基準物質として用いた。得られたイオン化効率と $IP_1$ の関係は、近似曲線として表面電離過程を記述するSaha-Langmuir式を元に導出した。

本実験系において得られた $IP_1(IP_1^*)$ -イオン化効率相関関係を元に、Lrの $IP_1$ は約5.0 eVであることがわかった。

efficient surface ionization ion-source [3]. The entire setup consists of a  $^{249}\text{Cf}$ -target and recoil chamber, a gas-jet transport system, the above mentioned surface ion-source as part of the JAEA-ISOL (Isotope Separator On-Line), a mass-separator, and  $\alpha/\gamma$  detection systems. Along this chain, Lr, recoiling from the target, was transported to the ion-source by a He/CdI<sub>2</sub> gas-jet, was ionized to Lr<sup>+</sup> in the ion-source, and was extracted and mass-separated with the mass-separator in the JAEA-ISOL [3].

The ionization experiments were performed at several temperatures of the ion-source. The number of ions collected at the end of the ISOL was determined by  $\alpha$ -particle or  $\gamma$ -ray measurements. To determine the 100% value of products entering the ion-source, which is required to calculate the  $I_{\text{eff}}$ , all reaction products transported from the target recoil chamber were collected directly from the jet and were measured. The isotope  $^{256}\text{Lr}$  ( $T_{1/2} = 27$  s), produced in the reaction of  $^{11}\text{B}$  on  $^{249}\text{Cf}$  [6], was used in these studies. To determine the value of  $I_{\text{eff}}$  as a function of the  $IP_1$ , several short-lived lanthanide isotopes were produced by irradiating mixed lanthanide targets with a  $^{11}\text{B}$  beam. We successfully ionized  $^{256}\text{Lr}$  at 2800 K, mass-separated  $^{256}\text{Lr}^+$ , and detected it [2]. By applying our established  $I_{\text{eff}}$  vs.  $IP_1$  relationship using lanthanide isotopes, we determined an accurate  $IP_1$  value of Lr which confirms state-of-the-art relativistic quantum calculations giving values in a narrow range around 5.0 eV.

## (2) Shell structure of $Z > 102$ and $N > 155$ nuclei

Many theoretical studies have predicted the stability and shell structure of superheavy nuclei. However, the locations of proton and neutron closed shells in SHN, providing the stability to these nuclei and ultimately determining the limits of existence of nuclear matter, have not finally been established. One of the most sensitive probes to clarify the shell structure is energy spacing and the order of proton and neutron single-particle orbitals. These are extracted from experimental excitation energies, spin-parities, and single-particle configurations of ground states and excited states in odd-mass SHN. For  $Z > 102$  and  $N > 155$  nuclei, so far, nothing was known about spin-parity and single-particle configuration experimentally.

To reveal the shell structure of SHN, we performed  $\alpha$ - $\gamma$  coincidence and  $\alpha$  fine-structure spectroscopy of neutron-rich No, Lr, and Rf isotopes [5,7,8]. For the  $N = 157$  nucleus  $^{259}\text{No}$ , produced in the reaction of  $^{18}\text{O}$  on  $^{248}\text{Cm}$  using the JAEA tandem accelerator, three  $\gamma$  transitions were observed for the first time in the  $\alpha$  decay of  $^{259}\text{No}$  and its decay scheme was established [5]. The neutron  $9/2^+[615]$  configuration was assigned to the ground state of  $^{259}\text{No}$  as well as to the 231.4 keV level in the daughter nucleus  $^{255}\text{Fm}$ . For the  $N = 155$  nucleus  $^{259}\text{Rf}$ ,

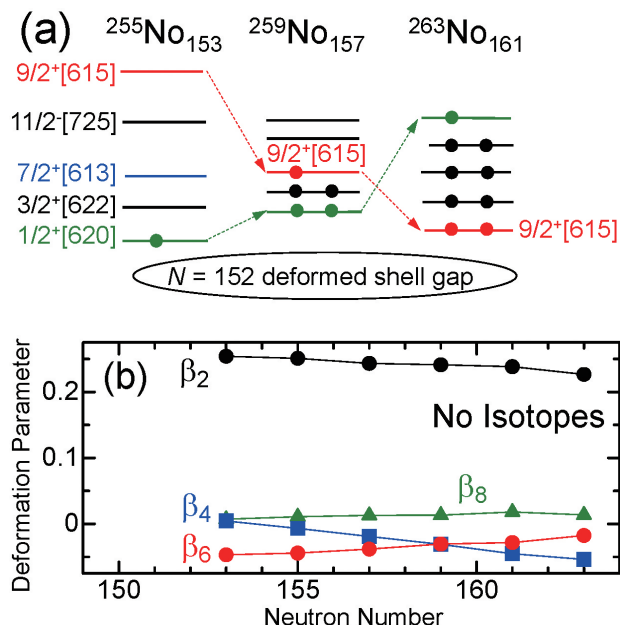


図3 (a)  $^{255}\text{No}_{153}$ ,  $^{259}\text{No}_{157}$ ,  $^{263}\text{No}_{161}$  における中性子一粒子軌道エネルギーの概略図

中性子数 152 変形閉殻の上に存在する 5 つの中性子軌道のエネルギー間隔と順序がこれらの No 同位体の中で大きく変化している。

(b) 巨視的・微視的模型で計算した No 同位体に対する変形パラメータの中性子数依存性 [5]

Fig.3 (a) Schematic drawing of neutron single-particle energies in  $^{255}\text{No}_{153}$ ,  $^{259}\text{No}_{157}$ , and  $^{263}\text{No}_{161}$

Energy spacing and the order of five neutron orbitals located above the  $N = 152$  deformed shell gap drastically change among these No isotopes.

(b) Deformation parameters calculated with a macroscopic-microscopic model [5] for No isotopes as a function of the neutron number

この結果は、電子配置  $[\text{Rn}]5f^{14}7s^27p_{1/2}$  を仮定して計算された、最新の原子軌道計算結果と非常によく一致した。このように、本研究において、開発した表面電離型イオン源および周辺システムを用い、表面電離過程を  $\text{IP}_1$  決定に応用することで、原子番号が 100 を超える超重元素領域に適用可能な独創的で新しい  $\text{IP}_1$  測定手法の確立に成功した。

(2) 陽子数 102, 中性子数 155 を超える原子核の殻構造  
 超重核の安定性と殻構造に関しては、これまで多くの理論的予測がなされてきた。しかし、超重核の安定性や存在限界を決定付ける陽子・中性子の閉殻の位置は未だ最終的には確立されていない。殻構造を明らかにするうえで、陽子と中性子の一粒子軌道のエネルギー間隔や順序は、最も直接的な指標のひとつである。一粒子軌道に関する情報は、奇質量数の原子核における基底状態や励起準位のエネルギー、スピン・パリティ、一粒子軌道配位から実験的に得ることができる。しかし、陽子数 102、中性子数 155 を超える原子核のスピン・パリティや一粒子軌道配位は、これまで実験的に何も知られていない。

我々は、超重核の殻構造を明らかにするため、中性子過剰 No, Lr, Rf 同位体の  $\alpha$ - $\gamma$  同時計数測定及び  $\alpha$  線微

the  $3/2^+[622]$  configuration was assigned to the ground state. These results reveal that the order of neutron orbitals drastically changes between the lighter  $N = 153$  isotones and the heavier  $N = 157$  ones (Fig. 3(a)). This results from the evolution of higher-order deformations in these isotones; the hexadecapole deformation ( $\beta_4$ ) decreases, while the hexacontatetrapole deformation ( $\beta_6$ ) increases from  $N = 153$  to 163. Results from a theoretical prediction are shown in Fig. 3(b). This evolution in deformation also influences the size of the shell gap of deformed nuclei at  $Z = 108$  and  $N = 162$ , which is responsible for the strong stabilization of SHN in this region.

(3) International collaborations on chemical and nuclear studies of SHE

In the extremely demanding field of superheavy element chemistry and physics, worldwide unique and high-risk forefront experiments can only be performed in international collaborations. We actively initiated and participated in experiments to contribute the unique and sometimes crucial experience from our group to the international community. In return, such collaborations extended the range of our own experimental possibilities and gave us a word-wide perspective.

Essential for the most recent highlight in SHE chemistry [9] was the joint effort of an international collaboration with 14 institutes from five countries. Based on preparatory studies [10], the Institute for Nuclear Chemistry at the Johannes Gutenberg-University Mainz, the Helmholtz Institute Mainz, the GSI Helmholtz Center for Heavy-Ion Research in Darmstadt, the Paul Scherrer Institute in Villigen, the University of Bern, RIKEN's Nishina Center for Accelerator-Based Science in Wako, and our group played a leading role to achieved the synthesis of a new class of chemical compounds for superheavy elements [9].

For the first time, a chemical bond was established between a superheavy element – seaborgium (Sg,  $Z = 106$ ) in the present study – and a carbon atom. One atom-at-a-time, a total of 18 atoms of Sg formed seaborgium hexacarbonyl complexes; each one having six carbon monoxide molecules bound to a neutral seaborgium atom. Its volatility and its adsorption on a silicon dioxide surface were studied (Fig. 4), and were compared with properties of similar compounds of the lighter homologs of seaborgium in the same group of the Periodic Table.

This study opened up the path towards the completely new field of metal-organic compounds of SHE. The first synthesis and investigation of  $\text{Sg}(\text{CO})_6$  establishes perspectives for much more detailed investigations of the chemical behavior of elements at the end of the Periodic Table, where the influence of effects of relativity on

細構造測定を行った[5,7,8]。中性子数157の原子核である $^{259}\text{No}$ は、原子力科学研究所タンデム加速器を用いて $^{18}\text{O}$ ビームと $^{248}\text{Cm}$ 標的の核反応で合成した。 $^{259}\text{No}$ の $\alpha$ 崩壊に伴う3本の $\gamma$ 線を初めて観測し、その崩壊図式を構築した。その結果 $^{259}\text{No}$ の基底状態と娘核 $^{255}\text{Fm}$ の231.4 keV励起準位の中性子軌道配位を $9/2^-[615]$ と同定した。また中性子数155の $^{259}\text{Rf}$ に関しては、基底状態の配位を $3/2^-[622]$ と初めて同定した。これらの結果から中性子数153の軽い核と157の重い核の間でFig. 3(a)に示すように中性子軌道の順序が大きく変化していることが判った。理論計算によると、中性子数が153から161へと増えるにつれて図3(b)に示すように原子核の変形状態を表す16重極変形度( $\beta_4$ )が大きく減少し、一方64重極変形度( $\beta_6$ )が増加する。この変形進化によって、上記のような中性子軌道順序の変化が生じ、同時に陽子数108、中性子数162に現れる変形閉殻の大きさを増大させ、この領域の超重核を大きく安定化させていることが判った。

### (3) 超重元素の化学的・核的研究における国際共同研究

前述したように実験的に難しい研究分野である超重元素の化学的及び核的研究においては、高いリスクを伴う最前線の研究が、国内のみならず国際的な共同研究になることは必至である。我々は、このような国際共同研究に我々の知識と経験を基に寄与するために積極的に参加してきた。また、このような共同研究への参加とその経験は、我々自身の知識や研究分野を広げると共に、国際的な視点を磨くためにも重要である。

超重元素領域において、最近、最も注目された化学研究が、5カ国14機関の国際協力で推進した以下の成果である。マインツ大による準備実験の下[10]、ドイツ重イオン研究所、スイスポールシェラー研究所、ベルン大学、理化学研究所と我々の研究グループが実験を主導し、超重元素領域における新たな化合物の合成に成功すると共に、新たな研究領域を創成することができた[9]。これは超重元素であるシーボーギウム(Sg,  $Z = 106$ )と炭素原子間における初めての化合物形成であり、中性のSg原子が6個の炭素原子と結合したヘキサカルボニル化合物の形成を確認することに初めて成功した。実験では合計18個のSgがカルボニル化合物を形成し、その揮発性や $\text{SiO}_2$ 表面への吸着が観測でき(図4)、Sgは周期表上の同族元素と同様の挙動を取ること、すなわちSgが6族元素の典型的な性質を示すことが明らかになった。

この $\text{Sg}(\text{CO})_6$ の合成とその吸着挙動に関する成果は、周期表において最下端に属する超重元素の有機金属化合物研究という新たな研究領域の開拓につながった。今後、相対論効果の影響が化学的挙動に反映すると指摘されている超重元素の化学的挙動に関して、より詳細な研究が進みその理解につながる事が期待できる。

一方、我々は超重元素の合成、存在限界、核的性質に関する研究を進めることを目的に、様々な国際協力研究を進めてきた。主な成果としてGSIにおいて実施したガス充填型反跳分離器TASCAを用いた115番元素と117番

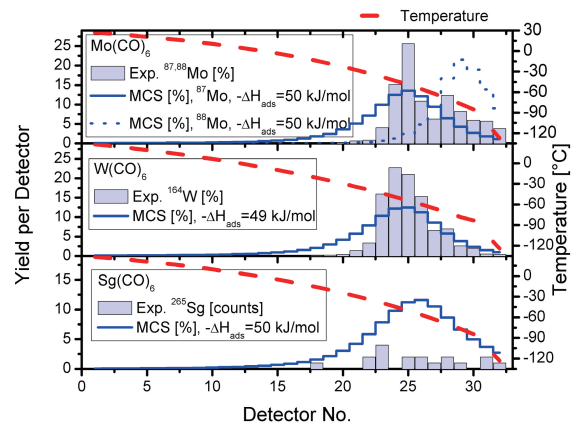


図4 熱クロマトグラフィー検出器COMPACTの温度勾配に対する、揮発性を持つMo, W及びSgのヘキサカルボニル錯体の吸着パターン

Fig.2 Deposition patterns of volatile hexacarbonyl complexes of Mo, W, and Sg along the negative temperature gradient of the thermochromatography detector COMPACT; Courtesy J. Even, see [9] for more details

chemical properties is most pronounced.

We significantly extended our international collaborations and contributions in studies aiming at the synthesis of SHEs at the limits of existence, their identification, and studies of nuclear properties at the farthest reach of SHN. Experiments on element 115 and 117 at the gas-filled recoil separator TASCA at the GSI are the two showcase projects which we like to briefly outline here.

Under the leadership of the Lund University, with a worldwide contribution from ten institutes, element 115 was produced by bombarding a  $^{243}\text{Am}$  target with  $^{48}\text{Ca}$  beams [11]. Thirty correlated  $\alpha$ -decay chains were detected in a high-resolution  $\alpha$ , x-ray, and  $\gamma$ -ray coincidence spectroscopy experiment. This included first candidates for Z fingerprinting; i.e., uniquely identifying the atomic number of an element through its characteristic K-x ray potentially emitted along  $\alpha$ -decay chains starting from element  $Z = 115$ . This paper was selected among “the Top Ten Physics Newsmakers of 2013” by APS News.

In the context of pushing and probing the limits of existence and production of SHEs, involving 17 institutes from nine countries, a collaborative experiment was performed which successfully confirmed earlier reports on the synthesis of element 117 produced in the reaction of  $^{48}\text{Ca}$  on  $^{249}\text{Bk}$  [12]. Two decay chains consisting of seven  $\alpha$  decays and a spontaneous fission each were identified and were assigned to the isotope  $^{294}117$  and its decay products. In addition, the hitherto unknown  $\alpha$ -decay of  $^{270}\text{Db}$  ( $Z=105$ ) was observed. The identification of the long-lived ( $T_{1/2} \approx 1.0$  h)  $\alpha$ -emitter  $^{270}\text{Db}$  was an important step towards the observation of even long-lived nuclei of superheavy elements.

元素元素に関する実験について、以下に述べる。

Lund大の主導による10研究機関の国際協力において、 $^{243}\text{Am}$ と $^{48}\text{Ca}$ の核融合反応による115番元素の合成、高分解能 $\alpha$ 線測定、X線および $\gamma$ 線同時計測を実施し、30の $\alpha$ 崩壊連鎖が観測した[11]。その結果、初めて $Z = 115$ を始点とする $\alpha$ 崩壊連鎖中に特性K-x線が観測され、超重元素の陽子数同定の初めての例として期待されている。本論文は注目度が高くAPS ニュースの“the Top Ten Physics Newsmakers of 2013”に選出された。

また、超重元素の存在と合成の限界に関する探索実験が進む中で、9カ国17の研究機関が参加して、先に報告されていた $^{249}\text{Bk}$ と $^{48}\text{Ca}$ の核融合反応における117番元素の合成実験が共同で行われ、その再現に成功した[12]。2つの壊変連鎖中に7つの $\alpha$ 壊変と1つの自発核分裂が観測され、 $^{294}117$ の壊変であると結論した。更にこれまで確認されていなかった $^{270}\text{Db}$ の $\alpha$ 壊変も確認した。この $^{270}\text{Db}$ は半減期約1時間と考えられ、超重元素領域に、更に長い半減期の核種が存在する可能性を示した。

### 3. 成果の意義と波及効果

我々は、重元素の化学的・核的性質に関して、最先端の実験手法を独自に開発しつつ成果を得てきた。これらの成果は、超重元素の性質を探求する研究領域を拡張し、新たな知識と理解を深めるなど、重要な貢献ができたと考えている。特に、半減期が短くたった一つの原子を対象とし、存在する時間が極端に短い超重元素化学種の研究を可能にする、独創的で迅速かつ高効率な厳選された実験手法を、独自にあるいは国際協力を通じて開発できたことは、今後、超重元素に限らず重元素の未開拓な研究分野に研究領域を押し広げることが可能であると期待している。

### 4. 今後の予定

重元素や超重元素の化学、原子及び核的研究の成果は、限界領域における物質や物質の構成要素の構造や性質に対して更なる知識と理解をもたらす、今後の研究は未開拓な分野を切り開くであろう。また、国際的な共同研究における我々の役割も、より重要になると期待している。

Lrを超える超重元素の原子状態研究は、我々が開発した実験手法とJAEA-ISOLを、更に活用することで、より興味深い結果を得ることが可能である。これらはこれまで到達できなかった超重元素の原子状態に関して新たな理解をもたらすことが期待される。

超重元素の化学的性質に対する相対論的影響に関する研究は、今後も我々の研究の中心テーマである。これは更なる実験手法の開発によって、将来より詳細に実験され証明されていくであろう。特に、超重元素の有機金属化合物のような新しい化合物において、金属-炭素結合の特性を測定することは、とても興味深く、カルボニル化合物の分解実験のような、結合の安定性をより詳細に研究する事も重要である。更に、Sgを超えるより重い元素のカルボニル化合物に関する研究が期待される。

### 3. Importance of the result and its impact

In frontier experiments we elucidated chemical, atomic, and nuclear properties of the heaviest elements. This significantly contributed to the advancement of the knowledge and understanding of SHEs. Novel, rapid, highly efficient, and selective techniques were developed which are now at hand to push the frontiers even further in chemical and physical studies when probing short-lived species of SHEs one atom-at-a-time.

### 4. Perspectives

The results of chemical, atomic, and nuclear studies of heavy and superheavy elements provided new insights into the structure and properties of matter and their constituents at the limits and opened up new frontiers for future experiments. Our role in international collaborations revealed new perspectives which will be of importance in the future.

Studies of atomic properties of SHEs, i.e., elements beyond Lr, now seem to be within reach exploiting the capabilities of our most powerful JAEA-ISOL system. They can provide new insights into atomic properties of SHEs which, up to now, were not accessible.

The influence of relativity on SHEs remains a central topic. It will be probed in future detailed experiments following the path of new and recently very successful approaches. Among these are studies of new compound classes related to metal-organic compound of SHEs. Measuring the characteristics of the metal-carbon bond would be highly interesting. One direction can be the investigation of even heavier elements beyond Sg or more detailed studies of the stability of bonds in single molecules applying decomposition experiments.

### 参考文献 References

- [1] M. Schädel, Phil. Trans. R. Soc. A in print (2014), DOI 10.1098/rsta.2014.0191, and M. Schädel, D. Shaughnessy (Edts.), *The Chemistry of Superheavy Elements*, 2<sup>nd</sup> Edition, Springer, Heidelberg (2014).
- [2] T. K. Sato *et al.*, Rev. Sci. Instrum. 84, 023304 (2013).
- [3] T. K. Sato *et al.*, J. Radioanal. Nucl. Chem. in press (2014).
- [4] A. Toyoshima *et al.*, Inorg. Chem. 52, 12311 (2013).
- [5] M. Asai *et al.*, Phys. Rev. C 87, 014332 (2013).
- [6] N. Sato *et al.*, Radiochim. Acta 102, 211 (2014).
- [7] M. Asai *et al.*, Phys. Rev. C 83, 014315 (2011).
- [8] M. Asai *et al.*, Phys. Rev. Lett. 95, 102502 (2005).
- [9] J. Even *et al.*, Science 345, 1491 (2014).
- [10] J. Even *et al.*, Inorg. Chem. 51, 6431 (2012).
- [11] D. Rudolph *et al.*, Phys. Rev. Lett. 111, 112502 (2013).
- [12] J. Khuyagbaatar *et al.*, Phys. Rev. Lett. 112, 172501 (2014).