

■ 原子 1 個で化学挙動を調べる



超アクチノイド元素核化学研究グループ ■ 永 目 諭一郎 ■

1. はじめに

周期表はどこまでつづくのであろうか？ 周期表の先端に位置する元素は、どのような化学的性質を示すのであろうか？ はたして超重元素は周期表に適合するのであろうか？ このような疑問を核化学の立場から明らかにするのが、本グループの主な研究テーマである。

1896年に放射能が発見されてから約100年、現在ま

でに周期表は図1に示すように112番元素まで延長されている¹⁾。5f軌道に電子が入るアクチノイド系列は原子番号103のローレンシウム(Lr)で終了し²⁾、104番のラザホージウム(Rf)より重い元素は超アクチノイド元素と呼ばれ、いまのところ周期表では6d遷移元素として扱われている(図1)。しかしこれら超アクチノイド元素は、原子核としての存在は確認されていても、化学的な性質に関しては以下に述べるようにきわめて実験的に困難なためほとんど調べ

1																	18
H 1	2											B 5	C 6	N 7	O 8	F 9	Ne 10
Li 3	Be 4											Al 13	Si 14	P 15	S 16	Cl 17	Ar 18
Na 11	Mg 12	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	Ga 31	Ge 32	As 33	Se 34	Br 35	Kr 36
K 19	Ca 20	Sc 21	Ti 22	V 23	Cr 24	Mn 25	Fe 26	Co 27	Ni 28	Cu 29	Zn 30	In 49	Sn 50	Sb 51	Te 52	I 53	Xe 54
Rb 37	Rb 38	Y 39	Zr 40	Nb 41	Mo 42	Tc 43	Ru 44	Rh 45	Pd 46	Ag 47	Cd 48	Tl 81	Pb 82	Bi 83	Po 84	At 85	Rn 86
Cs 55	Ba 56	La 57	Hf 72	Ta 73	W 74	Re 75	Os 76	Ir 77	Pt 78	Au 79	Hg 80						
Fr 87	Ra 88	Ac 89	Rf 104	Db 105	Sg 106	Bh 107	Hs 108	Mt 109	110	111	112						
Actinides		Th 90	Pa 91	U 92	Np 93	Pu 94	Am 95	Cm 96	Bk 97	Cf 98	Es 99	Fm 100	Md 101	No 102	Lr 103		
Lanthanides		Ce 58	Pr 59	Nd 60	Pm 61	Sm 62	Eu 63	Gd 64	Tb 65	Dy 66	Ho 67	Er 68	Tm 69	Yb 70	Lu 71		

図1 周期表(104番元素Rf以降を超アクチノイド元素と呼ぶ)

られていない。さらに重い元素に特有な相対論効果³⁾も期待されるので非常に興味深い研究分野である。

2. 重原子系における相対論効果

超アクチノイド元素のように大きな原子では、中心の核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。すると内殻にあるs, p軌道電子の速度が光速に近づき、質量が静止質量よりも重くなるために軌道半径が小さくなる。これにより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したがわない可能性がでてくる。これを電子構造および化学結合における相対論効果という³⁾。たとえば周期表第IV族に属すると予想されるラザホージウム(Rf)は、この効果のために軽い同族のジルコニウム(Zr)やハフニウム(Hf)とは質的に異なる化学的性質を示すことが期待される。

3. 超アクチノイド元素の合成

超アクチノイドをふくむ重い元素は、キュリウム(Cm)やカリフォルニウム(Cf)といったアクチノイド元素ターゲットを、酸素やネオンなどの重イオンビームで照射して合成される。しかし重い元素では、入射した重イオンとターゲット核が融合してできる核は、ほとんどが核分裂してしまう。このため中性子などを放出して、重い元素(核)として生き残る確率は非常に小さく、原子番号が増えとともに急に小さくなることが知られている。例えば、106番元素シーボーギウム(Sg)の生成断面積は、数100ピコバーン(10^{-34}m^2)と報告されている⁴⁾。

本グループではまず、タンデム加速器から得られる ^{18}O ビームを用いて ^{248}Cm ターゲットを照射し、 $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O}, 5n)$ 反応で生成する104番元素 ^{261}Rf の合成を行う。 ^{261}Rf は半減期が65秒と比較的長く、化学操作を行うには適した核種である。また最近の重い核の安定性に関する理論計算では、数十秒程度の寿命をもつ核が、原子番号106–108、中性子数162近くに存在するだろうと予測されている⁵⁾。本研究では、こういった比較的安定な核種の探索とその核的性質の研究も行う計画である。

4. 1個の原子の化学挙動

先に述べたように、重イオン核反応で合成される超アクチノイド原子の生成量は非常に小さく、1時間に数個程度の割合である。しかも数分以下の短い寿命でしか存在しえず、次の原子が生成されるまで生き残ることができない。このため生成される1個の原子を対象に、すばやく分離分析して化学的性質を決める必要がある。このような化学をシングルアトム化学、あるいはatom-at-a-time-chemistryと呼んでいる。ここでは、通常のマクロ量で扱われる化学反応の考えは適用できない。しかし速い化学平衡が成立し、多数回の交換過程を経由するようなクロマトグラフ法などでは、原理的に1個の原子でも熱力学的な性質を論じることが示されている⁶⁾。

実験方法としては、高い効率で選択的に迅速分離が可能な高速イオン交換クロマトグラフ法によるラザホージウム(^{261}Rf)の化学挙動を調べる計画である。実験の概略を図2に示す。合成された生成物は、ターゲットから反跳で飛び出し、ヘリウムガス中のクラスター粒子(塩化カリウムなど)に付着してジェット気流(1–2秒)で化学分離系へと導かれる。分離系への導入部で溶液化した後、陽イオンや陰イオン交換樹脂あるいは有機抽出剤をとおしてイオン交換や錯形成(抽出)挙動を調べることができる。溶出してきた成分は、放射線(主に α 線)測定にかけられ核種が同定される。これを数千回と繰り返し行い、数個のRf原子(分子)の化学挙動を調べる。

このような化学挙動からRf原子の最も安定な酸化状態、イオン半径、錯形成定数などの情報が得られる。またこれらのデータは周期表の軽い同族元素ZrやHfの化学挙動と比較したり、あるいは相対論的效果を考慮した化合物の電子状態計算⁷⁾から予測される性質と比較することで、超アクチノイド元素における相対論効果の検証を行うことができる。

現在これらの実験を行うため、タンデム加速器施設で放射性Cmターゲットを照射するためのビームラインの整備、ガスジェット搬送装置の高効率化、迅速化学分離装置の設計・製作、ならびに放射線測定系の整備を進めている。

これらの研究は、タンデム協力研究、バックエンド共同研究を通して全国の核化学関連研究者とともに協

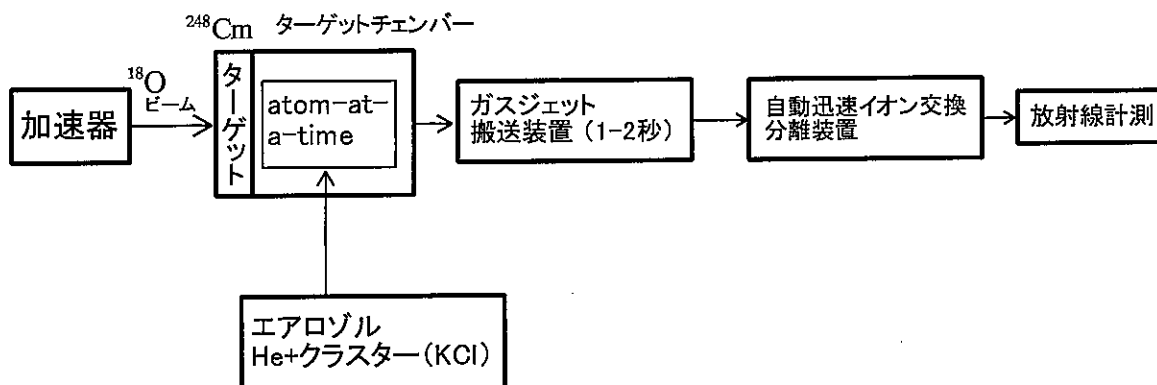


図2 タンデム加速器施設における実験の概要

力して進めている。さらにこの分野では、既に実験を始めている⁹⁾ ドイツ重イオン研究所 (GSI) と国際協力を行っている。

原子番号114近くに存在が期待される超重元素の半減期はかなり長いという予測もある。その場合は、予想される化学的性質をもとに原子1個ずつを分離する方法と、それを検出するためのきわめて高感度な分析法の開発が不可欠である。このためイオントラップ技術などを併用した高い感度をもつ化学分析法の開発をも目指している。

その他、本研究グループでは、独自に開発したガスジェット結合型オンライン同位体分離装置を用いて、新しいアイソトープの探索⁹⁾や、重い核に特有な核壊変過程である核分裂機構の研究¹⁰⁾も平行して進めており、今後も継続して更に発展させていく計画である。

参考文献

- 1) S. Hofmann et al., Z. Phys. A354(1996) 229.
- 2) G.T. Seaborg, Chem. Eng. News 23(1945) 2190.
- 3) B. Fricke and W. Greiner, Phys. Lett. 30B (1969) 317.
- 4) A. Tuerler et al., Phys. Rev. C 57(1998)1648.
- 5) R. Smolanczuk, Phys. Rev. C 56(1997)812.
- 6) B. Guillaumont et al., Radiochim. Acta 46 (1989)169.
- 7) V.G. Pershina, Chem. Rev. 96(1996)1977.
- 8) M. Schaedel et al., Nature 388(1997)55.
- 9) K. Tsukada et al., Phys. Rev. C 57(1998)2057, S. Ichikawa et al., Phys. Rev. C 58(1998)1329.
- 10) Y. Nagame et al., Phys. Lett. B 387(1996)26, I. Nishinaka et al., Phys. Rev. C 56(1997)891.