

【本件リリース先】
4月7日(火) 15:00
(レク付資料配付)
文部科学記者会、科学記者会
(資料配付)
原子力規制庁記者会(仮称)、
茨城県政記者クラブ



【取扱い】新聞は4月9日(木)の朝刊から、

テレビ・ラジオは4月9日(木)

平成27年4月9日
国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

103番元素が解く、周期表のパズル

ーローレンシウム(Lr)のイオン化エネルギー測定に成功ー

【発表のポイント】

- 103番元素ローレンシウムの最も外側の電子がとても緩く結合していることを発見。
- 103番目の元素でアクチノイド元素群が終了する事を初めて実験的に証明。
- アクチノイドの元素としての振る舞いのより深い理解に向けた新たな手がかりを提供。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構(理事長 児玉敏雄。以下「原子力機構」という)先端基礎研究センター重元素核科学研究グループ佐藤哲也研究員、浅井雅人研究主幹、塚田和明研究主幹及び永目諭一郎副センター長らの研究グループは、ドイツ・マインツ大学、スイス・欧州原子核研究機構の研究チーム等との国際共同研究^[1]において、103番元素「ローレンシウム(Lr)」のイオン化エネルギー^[2]測定に世界で初めて成功しました。

元素の周期表上で、原子番号100を超える非常に重い元素「超重元素」は、自然界に存在しないため核反応により人工的に作り出します。しかし、合成される割合が少なく、その寿命が数秒～数分程度であることから、1度に1個あるいは数個の原子しか扱えず、その化学的性質はほとんど明らかにされていません。この中で、103番元素ローレンシウムが、周期表上で「アクチノイド」と呼ばれる15の元素群の最後に位置することは理論上予測されていましたが、実験的な裏付けはなされていませんでした。

今回、当研究グループは、原子力機構原子力科学研究所のタンデム加速器^[3]施設に設置したオンライン同位体分離器^[4]を改良し、その性能を向上させ、ローレンシウムのイオン化エネルギーの測定に世界で初めて成功しました。その結果、ローレンシウムの原子核の周りを運動している最も外側の電子が、極めて緩く結合していることがわかりました。このことは、同じく周期表上で「ランタノイド」と呼ばれる15の元素群に見られる傾向と一致し、1940年代にノーベル化学賞受賞者のシーボルク博士が提唱した、「アクチノイド」元素群が103番元素で終了するとの予測を、半世紀以上経てようやく実証したことになります。

これは理論によって推測された周期表のパズルが一つ解けたとも言えます。

このような最も重いアクチノイドであるローレンシウムを含む超重元素の化学的振る舞いに関する研究は、原子力に重要なウランを含むアクチノイド元素群の全体像を明らかにして行くと共に、他の元素との反応性といった化学的な性質のより深い理解に貢献します。

本研究成果は、英国科学誌「Nature」(4月9日号)に掲載され、同誌上の「News&Views」で紹介されると同時に、同号の表紙を飾る予定です。

【本件に関する問い合わせ先】

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
(研究内容について)先端基礎研究センター 重元素核科学研究グループ 塚田和明 TEL:029-282-5491
(報道担当) 広報部報道課長 中野裕範 TEL:03-3592-2346, FAX:03-5157-1950

1. 背景

元素の周期表において、原子番号 89 から 103 まで、すなわちアクチニウム(Ac)からローレンシウム(Lr)までの 15 の元素群を「アクチノイド」と呼びます(図1)。原子力発電所の燃料として使われているウラン(U)も原子番号 92 の「アクチノイド」に属する元素の1つです。さらに、「アクチノイド」の一部を含んだ原子番号 100 を超える非常に重い元素を「超重元素」と呼びます。超重元素は、自然界には存在しないため、加速器を利用して人工的に作り出されます。しかし、核反応で生成する原子の数が少ないことや、その寿命が数秒～数分程度であるため生成してもすぐに崩壊してしまいます。したがって、一度に扱うことのできる原子は1個あるいは数個しかなく(「単一原子」の化学とも言う)、元素としての振る舞い(化学的性質)はほとんど明らかにされていません。

The image shows a standard periodic table of elements as of March 2015. The elements are arranged in rows and columns, with their atomic numbers and symbols. The Lanthanoid and Actinoid series are shown as separate rows below the main table. The element Lr (Lawrencium, atomic number 103) is circled in red. A line connects the Lanthanoid and Actinoid series to their respective positions in the main table.

1																	18		
1	H																	He	
2	Li	Be											B	C	N	O	F	Ne	
3	Na	Mg											Al	Si	P	S	Cl	Ar	
4	K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr	
5	Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe	
6	Cs	Ba	ランタノイド 57-71	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn	
7	Fr	Ra	アクチノイド 89-103	Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt	Ds	Rg	Cn	113	Fl	115	Lv	117	118	
ランタノイド			La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu		
アクチノイド			Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr		

図1 元素の周期表 (2015年3月現在)
今回、研究グループは、103番元素 Lr のイオン化エネルギー測定を行った。

103番元素のローレンシウムは、15番目の「アクチノイド」だと考えられており、「超重元素」でもあるため、その化学的性質の解明はアクチノイドを含む重元素の化学的性質を理解する上で、重要な鍵となる元素です。

2. 研究手法

当研究グループは、このローレンシウムの化学的性質として重要な意味をもつ、「イオン化エネルギー」に注目し、「表面電離過程」を用いた測定に成功しました。「表面電離過程」は、高温の金属表面と原子との間の電子のやり取りによって、原子がイオン化される過程のことであり、金属表面の種類や温度、原子のイオン化エネルギーに依存します。

実験は、原子力機構原子力科学研究所タンデム加速器実験施設にて行いました。ローレンシウムはタンデム加速器から得られるホウ素ビームをカリホルニウム標的に衝突させて合成しました。そして、ガスジェット法^[5]と呼ばれる方法で生成したローレンシウムをガス

気流にのせて、新たに開発した表面電離型イオン源^[6]へと搬送し、迅速にイオン化して取り出しました(図2)。

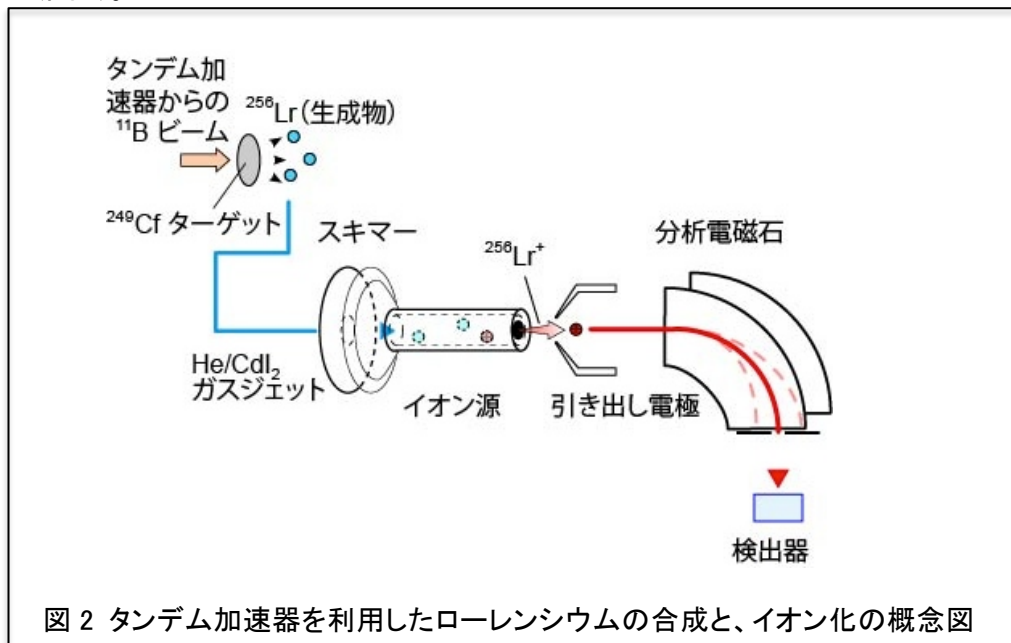


図2 タンデム加速器を利用したローレンシウムの合成と、イオン化の概念図

3. 成果

この実験の結果、ローレンシウムの短寿命同位体 ^{256}Lr (半減期 27 秒)のイオン化・質量分離に成功しました。そして、このデータから、ローレンシウムのイオン化エネルギーの値を導き出すことに世界で初めて成功しました。得られた値は、ローレンシウムの原子核の周りを運動している最も外側の電子がとても緩く束縛されており、あらゆる元素の中でも特別にイオン化されやすい元素の一つであることを示しています。

この緩い結合は、「アクチノイド」と同じく 15 の元素群で構成される「ランタノイド」の 15 番目のルテチウム(Lu)でも見られる現象で、ランタノイドの最後であるルテチウムはローレンシウムと同じように、他のランタノイドと比べて明らかに低いイオン化エネルギーの値を示します(図3)。この最も外側の電子が、原子核に対して極端に緩く結合していることが、ランタノイドそしてアクチノイドがこの元素で終わるという直接的な証拠になるのです。つまり、今回の発見は「アクチノイド」も 15 番目のローレンシウムで終わることを初めて実験的に示すことができた成果ともなりました。これは、1940 年代にノーベル化学賞受賞者のシーボルグ博士が提唱したアクチノイド系列の周期表上における位置づけを半世紀以上の時を経て実証したことになります。

これは、理論によって推測された周期表のパズルが一つ解けたとも言えます。

また、この極端に低いイオン化エネルギーの値は、元素周期表で第1族に整理されるアルカリ金属元素の値に匹敵します。また、今回新たに計算した理論値は、ローレンシウムが周期表から単純に期待される電子配置と、異なる電子配置をとるであろうと示唆しています。つまり、ローレンシウムがアクチノイドとしての性質に加えて、周期表上の他のグループに区分される性質や電子配置を持つという、化学的に多面性を持った実に興味深い元素であることも我々に示しています。

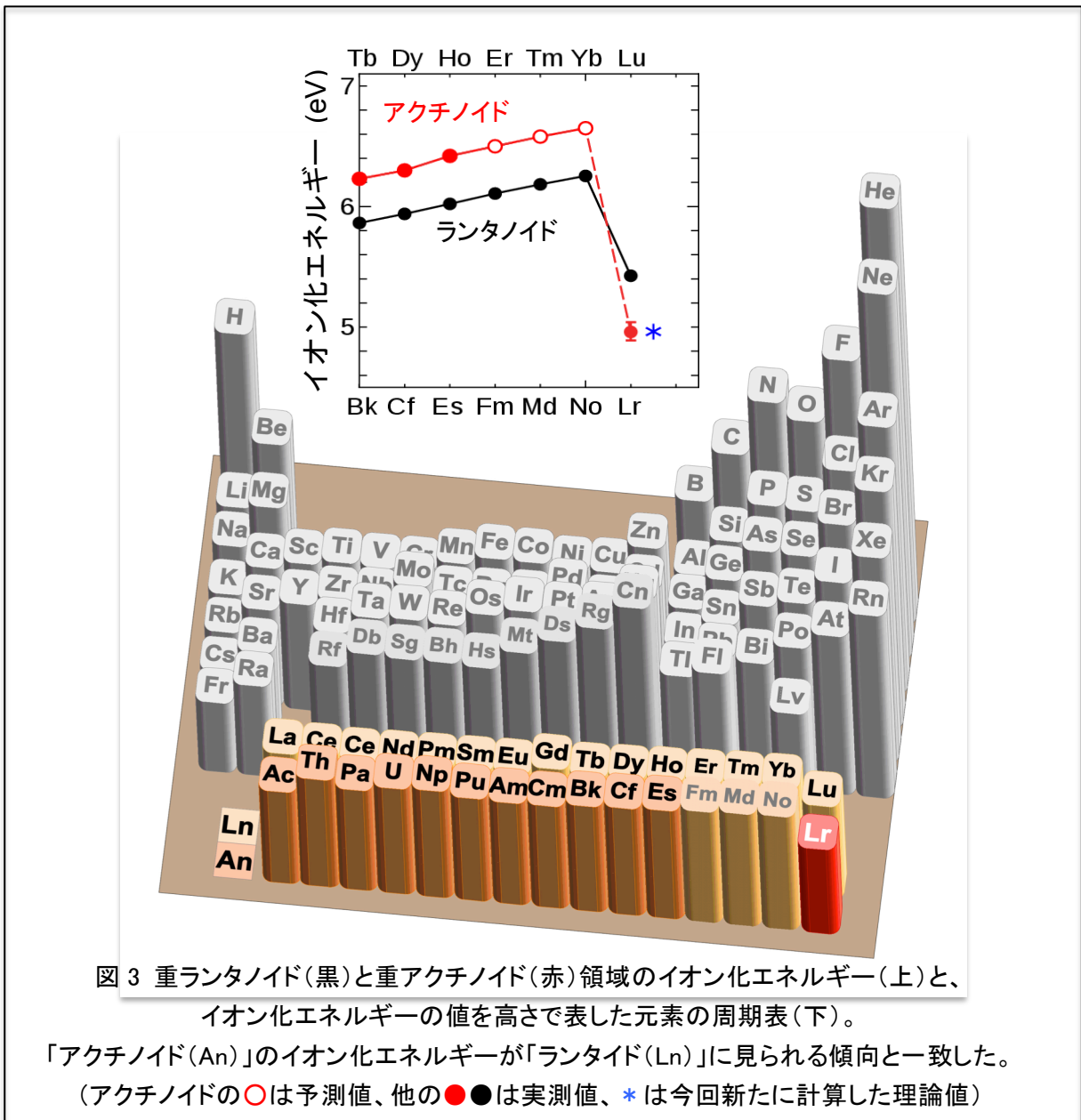


図3 重ランタノイド(黒)と重アクチノイド(赤)領域のイオン化エネルギー(上)と、イオン化エネルギーの値を高さで表した元素の周期表(下)。

「アクチノイド(An)」のイオン化エネルギーが「ランタノイド(Ln)」に見られる傾向と一致した。
(アクチノイドの○は予測値、他の●●は実測値、*は今回新たに計算した理論値)

4. 今後の期待

今回、これまで取り扱いが難しいとされていた原子番号が 100 を超える超重元素に適用可能な新しいイオン化エネルギー測定手法を確立し、ローレンシウム(Io)のイオン化エネルギーの測定に成功したことは、化学の基礎としての元素の周期表に関する新たな事実を示しただけでなく、原子力に重要なウランを含むアクチノイド全体の化学的性質のより深い理解に大きく貢献することが期待できます。また、今後、更に重く未開拓な元素に研究領域を押し広げることも期待できます。

【論文名・著者名】：

T. K. Sato, M. Asai, A. Borschevsky, T. Stora, N. Sato, Y. Kaneya K. Tsukada, Ch. E. Düllmann, K. Eberhardt, E. Eliav, S. Ichikawa, U. Kaldor, J. V. Kratz, S. Miyashita, Y. Nagame, K. Ooe, A. Osa, D. Renisch, J. Runke, M. Schädel, P. Thörle-Pospiech, A. Toyoshima, and N. Trautmann

“Measurement of the first ionization potential of lawrencium (element 103)”

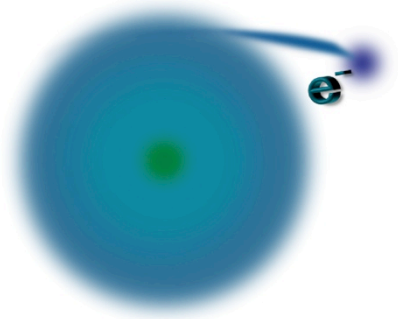
【用語説明】

[1] 国際共同研究 (グループ)

日本原子力研究開発機構、マッセイ大学 (ニュージーランド)、マインツ大学 (ドイツ)、ヘルムホルツ研究所マインツ (ドイツ)、欧州原子核研究機構 CERN (スイス)、茨城大学、テルアビブ大学 (イスラエル)、広島大学、新潟大学

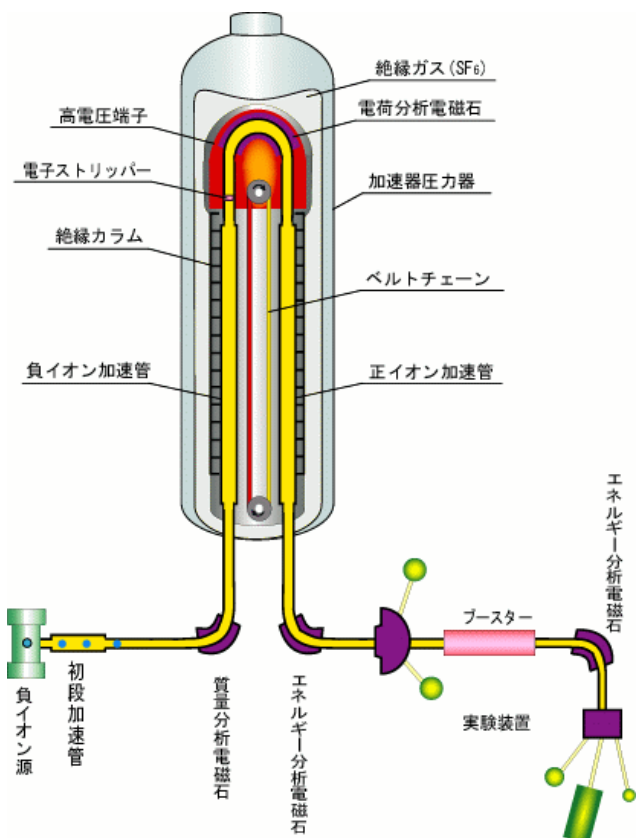
[2] イオン化エネルギー

原子、イオンなどから電子をはぎ取り陽イオンにするために必要なエネルギー。イオン化ポテンシャルあるいはイオン化電位とも言う。電子が原子やイオンなどとどれだけ強く結び付いているかを示す。中性原子から1個の電子を取り去る場合を第1イオン化エネルギーという。このイオン化エネルギーは元素の周期表上では、右上に当たる第18族のヘリウムから左下の第1族のアルカリ金属であるフランシウムに向かって、低くなる傾向が見られる。



[3] タンデム加速器【原子力機構原子力科学研究所】

タンデム加速器とは、ベルトチェーンなどに電荷を乗せて高電圧端子(ターミナル部)に運び上げ高電圧を発生させてイオンを加速する装置で、一つの高電圧で加速イオンの電荷を負から正へ変換して2回加速する装置を総称してタンデム(TANDEM=馬を二頭ならべる馬車)加速器という。負イオン源では原子に電子を結合させ負イオンを生成し、これを加速するため超高真空に保たれた初段加速管に入射し負イオン加速管入口まで到達させる。負イオン加速管まで到達した負イオンは、正の高電圧端子にむけて加速され、高電圧端子に到達した負イオンは電子ストリッ

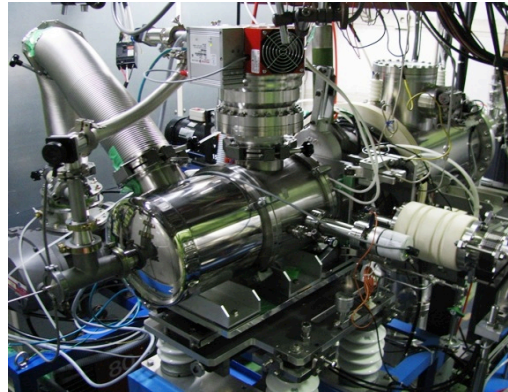


パー(炭素薄膜または窒素ガス層)で多数の電子をはぎ取られ正イオンに変換後、正イオン加速管で再び加速され高エネルギーになる。タンデム加速器から得られるイオンビームは、

そのエネルギー、イオン種、量を正確に制御できるため精密な原子核物理、物質科学などの研究に利用される重要な役割を担っている。原子力機構原子力科学研究所のタンデム加速器は、現在運用されている世界最大の静電加速器で、最大 1800 万ボルトの加速電圧を発生させることが出来る。これはタンデム加速器に入射された水素イオンが、光速の約 27%まで加速されることに相当する。原子力機構のタンデム加速器では、エネルギー、イオン種、量を正確に制御できる特徴に加えて、核燃料物質や α 放射性的のアクチノイドなど、特殊な標的を利用した研究が行われている。

[4] オンライン同位体分離器 (ISOL)

加速器から得られたイオンビームの照射で生成した大量の核反応生成物から目的とする核種のみを迅速に同位体分離するために用いる装置。①ターゲットで生成した核種をイオン化室に導入する部分、②導入された核種をイオン化する部分、③イオン化した核種を磁場によって分離する部分、④分離された核種を集めて測定する部分などからなる。本装置を用いると半減期が数秒程度の核種分析が可能であり、放射性核種の核データ測定などに利用されている。



[5] ガスジェット法

原子核反応の結果、照射の際に持ち込まれるエネルギーによって高いエネルギーを持って弾き出された核反応生成物（反跳原子核）を、ヘリウムなどの気体中で減速し、塩化カリウムなどのエアロゾルに吸着させ、ジェット気流にのせて迅速かつ連続的に標的位置から実験装置へと運ぶ手法。本研究ではイオン源を長期に安定して運用可能なようにエアロゾルとしてヨウ化カドミウム (CdI_2) を利用した手法を新たに開発した。

[6] 表面電離型イオン源

表面電離は熱した金属表面に原子又は分子を接触させると熱イオン化が起きる現象で、その効率は金属の仕事関数、その表面温度、試料のイオン化エネルギーなどに依存する。金属の仕事関数より原子のイオン化エネルギーが小さい場合に電離が効率良く起きるので、同手法はアルカリ金属元素、アルカリ土類金属元素、ランタノイドを含む希土類元素の分析等に良く用いられる。

【参考資料】

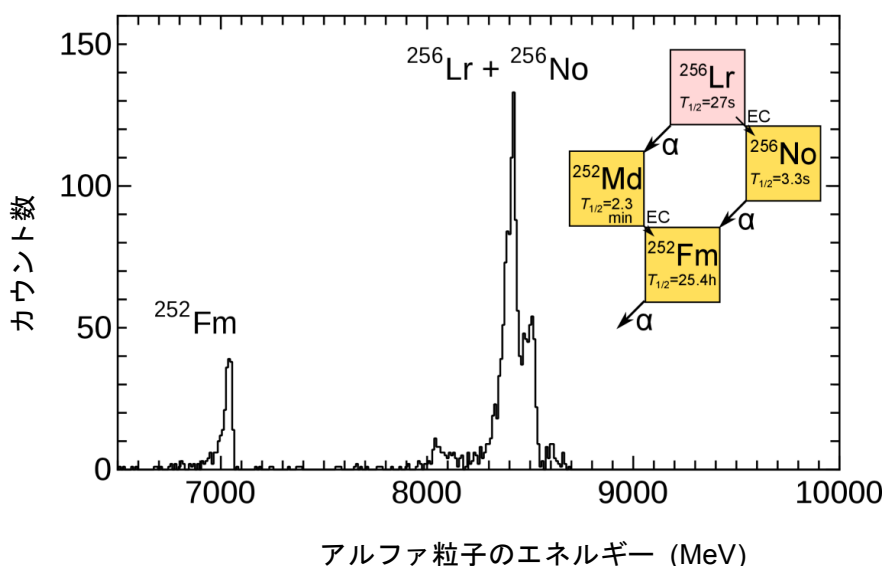


図 1 質量分離された ^{256}Lr のアルファ粒子のエネルギースペクトル

原子力機構オンライン同位体分離器（JAEA-ISOL）を用いて質量分離された質量数 256 の核種から放出されたアルファ粒子のエネルギースペクトルです。副反応生成物である他の同位体などから JAEA-ISOL によって選択的に分離され、 ^{256}Lr とその壊変生成物 ^{256}No と ^{252}Fm のピークが明確に観測されています。この実験で同位体分離された ^{256}Lr は、質量数を直接同定された最も重い同位元素となりました。

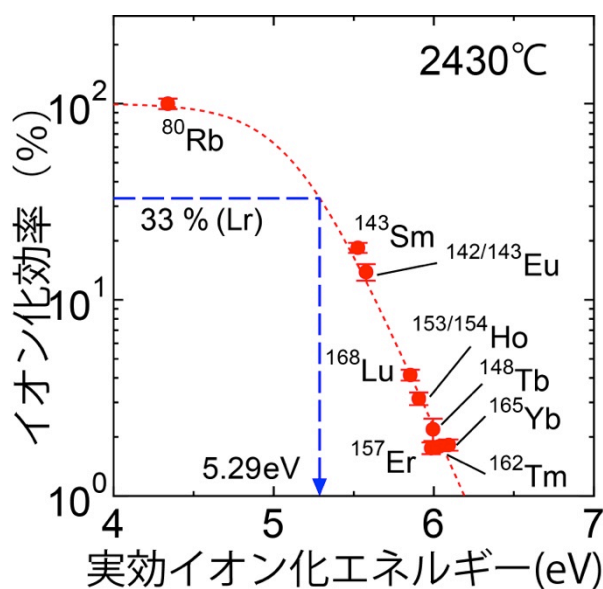


図 2 イオン化エネルギーとイオン化効率の相関図

Lr のイオン化に先立ち、本実験系におけるイオン化エネルギーとイオン化効率間の相関関係を求めるため、様々な短寿命ランタノイド同位体を生成し、イオン化を行いました。アルカリ金属である ^{80}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ました。得られた実効イオン化エネルギーとイオン化効率の関係は、表面電離過程を記述する Saha-Langmuir 式を元にフィッティングを行い求めました(点線)。本実験で得られた Lr の

イオン化効率(2430°Cの条件では 33%)から得られた実効イオン化エネルギーに、各準位の統計的重率を考慮して、Lr のイオン化エネルギーは 4.96 ± 0.8 eV であることが明らかになりました。

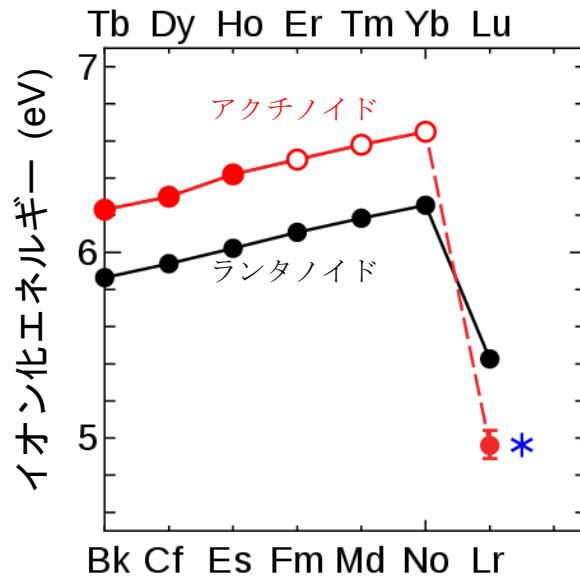


図 3 重ランタノイドと重アクチノイド領域のイオン化エネルギー

本研究で明らかになった Lr のイオン化エネルギー (4.96 eV) は、アルカリ金属を除く元素中で、最も小さい値であることが明らかになりました。これは、ローレンシウム原子核の周りを運動している最も外側の電子が、極めて緩く結合していることを示し、同じく周期表上で「ランタノイド」と呼ばれる 15 の元素群の最後の元素 Lu に見られる傾向と一致します。つまり、1940 年代にノーベル化学賞受賞者のシーボルク博士が提唱した、「アクチノイド」元素群が 103 番元素で終了するとの予測を、半世紀以上経てようやく実証したことになります。また、Lr の値が最もイオン化エネルギーが低いアルカリ金属に匹敵するという事実は、最外殻電子が相対論効果の影響によって、周期表から予測される傾向より、更に緩く結合している電子であることも示します。この結果は電子配置 $[Rn]5f^{14}7s^27p_{1/2}$ 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することから、最外殻電子が周期表から予想される 6 d 軌道ではなく、相対論効果によって不安定化された 7 p 軌道であることも高い信頼度で実証され、超重元素である Lr がこのような特殊な性質も持つことを見出すことが出来ました。