

令和 元年 6 月 7 日現在

機関番号：82110

研究種目：国際共同研究加速基金（国際共同研究強化）

研究期間：2016～2018

課題番号：15KK0175

研究課題名（和文）113番元素の第一イオン化エネルギー決定に向けた新しい測定手法の開発（国際共同研究強化）

研究課題名（英文）Development of Novel Method for Measurement of the First Ionization Potential of Element 113(Fostering Joint International Research)

研究代表者

佐藤 哲也 (Sato, Tetsuya K.)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 先端基礎研究センター・研究副主幹

研究者番号：40370382

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 9,900,000円

渡航期間： 10ヶ月

研究成果の概要（和文）：原子番号が100を超える超重元素領域において、その原子の電子構造を実験的に明らかにすることは、元素周期表の極限領域の理解のために有用な情報を与える。大きな中心電荷の影響により、最外殻電子配置が初めて周期表からの類推から逸脱することが期待される103番元素ローレンシウムについて、マインツ大学およびポール・シェラー研究所と協力して、価電子構造の実験的な決定に必要な不可欠な、高品質な低速原子ビーム生成法開発を行うとともに、シミュレーションコード開発を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

化学のもっとも根幹をなす元素周期表の理解は、元素の化学的性質の周期性を理解する上で必要不可欠である。最近のニホニウムなどをはじめ周期表が拡張されていく中、元素周期表がどこまで周期表たりうるかを議論するためには、超重元素という極限領域の元素の性質を知る必要がある。化学的性質の周期性は、原子の価電子配置の周期的変化に起因する。本研究成果により、超重元素の原子の価電子構造の直接決定に必要な不可欠な原子ビーム生成法開発を推し進めることができた。これをさらに推進することで、未だ未知な超重元素領域を開拓することができる。と期待できる。

研究成果の概要（英文）：In the superheavy element region whose atomic number is greater than 100, experimental determination of the electronic structure of the atom provides useful information for understanding the extreme region of the periodic table of the elements. The outermost electronic configuration of element 103, lawrencium (Lr) is expected to deviate from the analogy from the periodic table for the first time under the influence of a large central charge. In addition to a generation method for a high-quality low-speed atomic beam that is essential for experimental determination of an atomic spin measurement, we also developed simulation code for experimental determination of the valence electronic structure of Lr in cooperation with the Mainz University and Paul Scherrer Institute.

研究分野：核化学

キーワード：アクチノイド 超重元素 原子ビーム イオンビーム

様式 F-19-2

1. 研究開始当初の背景

超重元素という元素周期表の極限領域で、原子の電子配置を実験的に決定できれば、「周期表はどこまで“周期律”をもつのか」という疑問に答える端緒となる。採択者は、基課題「113番元素の第一イオン化エネルギー決定に向けた新しい測定手法の開発」において、従来法では不可能だった原子番号が100を超える元素（超重元素）のひとつである103番元素ローレンシウム(Lr)の第一イオン化エネルギー測定に成功し、理論計算との比較からLrの電子配置を類推することに成功した。この結果は、最外殻電子配置が周期表からの予想と食い違うことを強く示唆するものだった[1]。このことは、ランタノイドおよびアクチノイドを含む周期表第3族の周期表上での構造の見直しの議論に発展し、推移が注目されている(48th IUPAC Council Meeting Final Agenda Book)。

超重元素領域における周期表の理解には、超重元素原子電子構造の決定が直接的な情報を与える。しかしながら、半減期も短く、生成量も非常に少ないために、原子一個の取り扱いをしなければいけない超重元素原子の電子構造決定は、従来法では非常に困難であるために、新しい手法開発が必要となっている。

2. 研究の目的

原子一個の取り扱いが求められる超重元素原子の電子構造決定に有望な手法の一つに、原子スピン測定があげられる。この手法では、原子ビームを不均一磁場中に入射し、このときのビーム軌道の変化から原子のスピンを決定することにより、対象原子の電子構造を決定することができる。

研究対象とするLrは、加速器からの重イオンビームとアクチノイド標的をもちいた核融合反応によって合成される[1,2]が、このとき生成するLr同位体²⁵⁶Lrは、半減期が27秒であり、数秒に1個程度しか得られない。原子スピン測定には、高品質な原子ビームが必要不可欠であるが、このような短寿命・低生成率の短寿命元素に適用可能な原子ビーム生成技術はこれまでに実現されていない。

本研究課題では、基課題で確立した超重元素イオンビーム発生法を発展させることで、超重



写真1. 原子ビーム発生装置テストベンチ

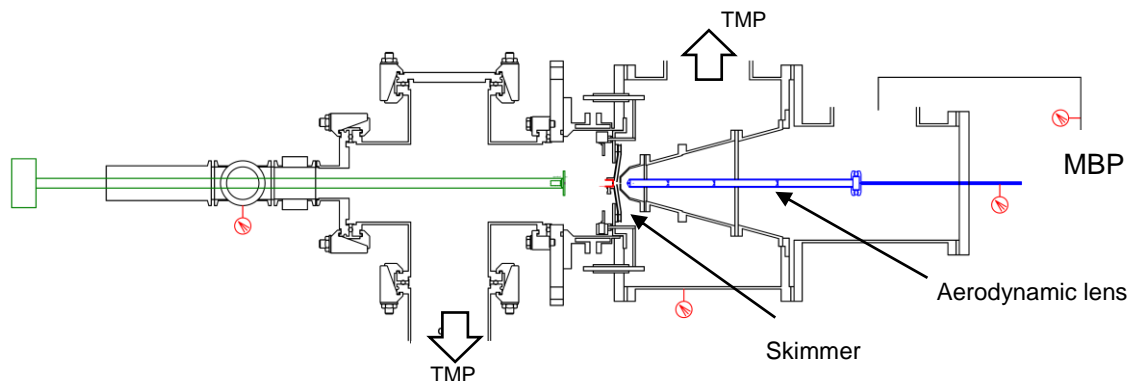


図1. 原子ビーム発生装置概略図 (エアロダイナミックレンズ試験用)

元素に適用可能な原子ビーム生成を達成可能であるという発想のもと、**Lr** を含む超重元素原子の電子配置を直接決定するための新規な原子ビーム生成法を確立することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 基課題で開発したガスジェット結合型表面電離イオン源は、イオン源温度 2800K で一週間以上の安定連続運転を実現した。これをもとに **He/CdI₂** ガスジェット搬送法で運ばれた核反応生成物を中性原子ビームとして引き出す高温ノズル型原子ビーム源および周辺システムを開発する。

(2) 原子ビーム生成効率に大きな影響を与える吸脱着プロセスを考慮にいた、対象原子の高温ノズル内挙動をシミュレーションするためのモンテカルロシミュレーションコードを開発する。

4. 研究成果

(1) 原子ビーム発生装置の開発

構築した原子ビーム発生装置を写真 1 および図 1 に示す。本装置では、ステンレスキャピラリーまたはエアロダイナミックレンズを通して、**He/CdI₂** ガスジェット搬送法により、核反応生成物を原子ビーム源へと導入する。原子ビーム源内には金属タンタル製の高温ノズルが設置されている。開発実験にあたっては高温ノズルから放出された原子/分子ビームを、捕集プレート位置で捕集し、ビーム径およびビームの分布、ならびにビーム収量を調べた。原子ビーム品質には、高温ノズル形状が大きく影響を与えること

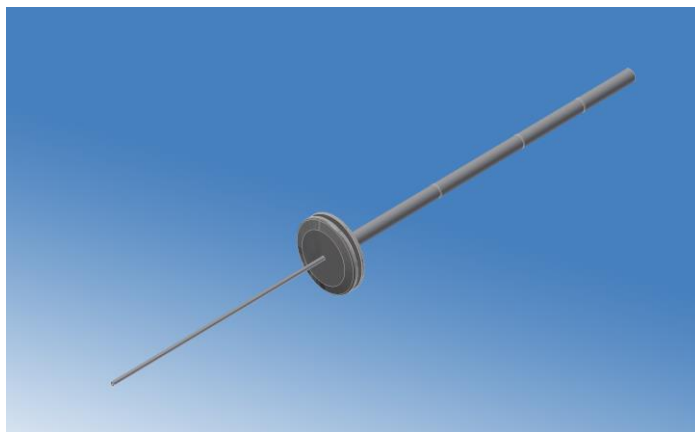


図 2. エアロダイナミックレンズ概略図

ことが予想されるため、欧州原子核研究機構(CERN)で開発された中性粒子の真空容器中での運動シミュレーションコードである Molflow+[3]を用いて選定を行った。

現在までに、温度 2600K において原子ビーム源を安定に運転できることを確認した。さらに、温度 1000K から 2200K の温度範囲で、**CdI₂** を用いて原子ビーム生成を試みたところ、原子ビーム源先端から 125 mm 離れたところで、3 mmφ の原子ビームを 0.1% の効率で生成できる見込みを得た。

一方、**He/CdI₂** ガスジェット搬送法により連続的に導入された核反応生成物を原子ビームとする場合、導入ポートからの対象原子の流出の抑制が、原子ビーム生成の高効率化に直結する。この目的のために、マインツ大学 Ch. E. Düllmann 教授らと協力して、エアロダイナミックレンズを新たに開発した。エアロダイナミックレンズを用いてエアロゾル粒子流を収束させることにより、従来核反応生成物導入に必要とした直径 4 mmφ の導入ポートを、直径 1 mmφ 以下にすることができる。

従来エアロダイナミックレンズは、低流量(0.4 L/min 前後)で用いられてきたが、**He/CdI₂** ガスジェット搬送法の最適条件である 1.2 L/min 前後で使用できるよう、数値シミュレーション[4]を行い、構造を決定した。製作したエアロダイナミックレンズの概略図を図 2 に示す。**CdI₂** エアロゾルを用いて粒子流収束の様子を調べたところ、**He** 流量 1.0~1.2 L/min で 0.5 mmφ 程度まで収束させられることを確認した。

(2) シミュレーションコード開発

スイス ポール・シェラー研究所 R.Eichler 博士とともに、同博士が開発した超重元素用オンライン真空クロマトグラフ分離装置用モンテカルロシミュレーションコードをもとに新規に開発した。

原子ビーム生成のための高温ノズル内では、金属表面における原子の吸脱着挙動および表面電離プロセスによるイオン化および中性化が起きる。吸脱着挙動については、吸着エンタルピー ΔH_{ads} に依存する

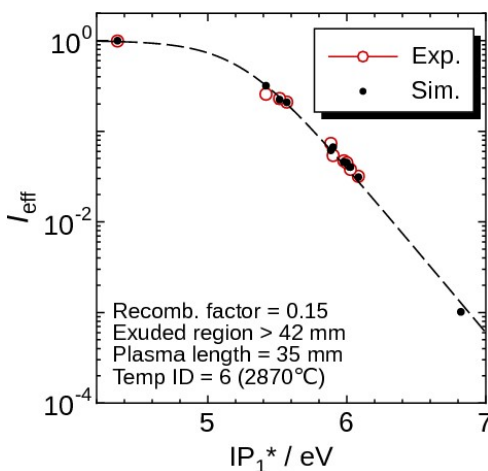


図 3. 第一イオン化エネルギーに対する表面電離イオン化効率変化のモンテカルロシミュレーション結果

表面滞留時間の累積と対象短寿命同位体の半減期との比較を用い、表面電離プロセスは Saha-Langmuir 式[5]による記述を利用することで、原子の挙動を記述した。このときの表面電離イオン化効率のシミュレーション結果を図 3 に示す。図に示すように、金属表面における再結合確率などのチューニングを行った結果、シミュレーション結果は実験値をよく再現することができた。

以上のように、ドイツ マインツ大学およびスイス ポール・シェラー研究所と共同で原子ビーム発生装置の開発を進めた。現在、 ^{252}Cf からの核分裂生成物を用いたエアロダイナミックレンズ動作の最適条件探索を進めている。2019 年度前半に加速器を用いたオンライン実験をおこなう予定であり、そこで得られた結果をもとに、論文化を進めることとしている。また、同じくこのときに、核反応で生成する短寿命イッテルビウムおよびルテチウムを用いて原子ビーム発生装置のテスト実験を行い、ローレンシウム実験に向けた最終確認を行う予定である。

単一原子レベルに適用可能な原子ビーム生成法の開発は、世界でも例がなく、本研究課題をさらに推進することで、独自技術の獲得につながると確信する。

[1] T. K. Sato et al., Rev. Sci. Instrum., **84** (2013) 023304.

[2] T. K. Sato et al., Nature, **520** (2015) 209-211.

[3] R. Kersevan and M. Ady, website: cern.ch/molflow

[4] X. Wang and P. H. McMurry, Aerosol Sci. Tech., **40** (2006) 320-334.

[5] R. Kirchner, Nucl. Instrum. Methods A **292** (1990) 203-208.

5. 主な発表論文等

(研究代表者は下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

- ① "First Ionization Potentials of Fm, Md, No, and Lr: Verification of Filling-Up of 5f Electrons and Confirmation of the Actinide Series" T. K. Sato, M. Asai, A. Borschevsky (他 23 名). J. Am. Chem. Soc., **140**, 14609–14613 (2018) 査読あり DOI: 10.1021/jacs.8b09068

[学会発表] (計 5 件)

- ① 超重元素の価電子構造決定に向けた低速原子ビーム取り出し技術の開発、富塚知博、床井健運、佐藤哲也 (他 8 名) 日本化学会第 99 春季年会 (2019 年)
- ② Atomic/Chemical Properties of the Heaviest Actinide Element Lawrencium, T. K. Sato, ARCEBS2018, インド(2018 年) 招待講演
- ③ Present Status of SHE Chemistry at JAEA, T. K. Sato, TASCA2018、ドイツ (2018 年)
- ④ 超重元素を対象とした低速原子ビーム源の開発、富塚知博、床井健運、佐藤哲也 (他 8 名)、2018 日本放射化学会年会・第 62 回放射化学討論会 (2018 年)
- ⑤ 103 番元素ローレンシウムの価電子構造決定に向けた低速原子ビーム取り出し技術の開発、富塚知博、床井健運、佐藤哲也 (他 7 名)、2017 日本放射化学会年会・第 61 回放射化学討論会(2017 年)

6. 研究組織

研究協力者

[主たる渡航先の主たる海外共同研究者]

研究協力者氏名：Christoph E. Düllmann

ローマ字氏名：Christoph E. Düllmann

所属研究機関名：ドイツ マインツ大学

部局名：原子核化学研究所

職名：教授

研究協力者氏名：Robert Eichler

ローマ字氏名：Robert Eichler

所属研究機関名：スイス ポール・シェラー研究所

部局名：重元素研究グループ

職名：グループリーダー

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。