

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月31日現在

機関番号：82401

研究種目：特別推進研究

研究期間：2007～2011

課題番号：19002005

研究課題名（和文） 新元素の探索と超重元素の化学

研究課題名（英文） Searching for new elements and chemistry of superheavy elements

研究代表者

森田 浩介 (MORITA KOSUKE)

独立行政法人理化学研究所・森田超重元素研究室・准主任研究員

研究者番号：20250110

研究成果の概要（和文）：(1) 3原子目となる113番元素の同位体 $^{278}113$ の合成を目指し実験を継続したが観測には至らず、生成断面積が当初予想より低いことが確認された。(2) 超重元素化学研究に特化した新気体充填型反跳分離器の設計製作を行いその性能評価を実施。予定通りの性能が出ていることを確認した。(3) 本研究課題開始以前に我々が観測した113番元素の同位体 $^{278}113$ の $\alpha$ 崩壊のひ孫核である $^{266}\text{Bh}$  ( $Z=107$ )の分光学的性質を明らかにすることにより113番元素の同定をより確かなものとした。

研究成果の概要（英文）：(1) We conducted the experiment searching for the third atom of the 113<sup>th</sup> element  $^{278}113$  which we observed twice before. We did not observe the atom during the period of this project. It was shown that the production probability of the atom is smaller than we expected at the beginning of the project. (2) We designed and constructed a new device for chemistry study of superheavy elements. We commissioned the device resulting that the performance of the device achieves the designed one. (3) We conducted the experiment to study nuclear spectroscopic properties of  $^{266}\text{Bh}$  ( $Z=107$ ) which is a great grand-daughter of the isotope  $^{278}113$ , and was not well studied before. The result provided further confirmation of the production of the isotope  $^{278}113$  of element 113.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	163,700,000	49,110,000	212,810,000
2008年度	238,800,000	71,640,000	310,440,000
2009年度	42,200,000	12,660,000	54,860,000
2010年度	25,800,000	7,740,000	33,540,000
2011年度	20,700,000	6,210,000	26,910,000
総計	491,200,000	147,360,000	638,560,000

研究分野：数物系科学、化学

科研費の分科・細目：物理学・素粒子・原子核・宇宙線・宇宙物理

キーワード：超重元素、反跳分離器、113番元素、超重元素の化学、新同位体、加速器

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 理化学研究所加速器施設では、1986年のリングサイクロトロン稼働以来、重元素合成に関する実験的研究を行ってきた。2004

年7月と2005年4月にそれぞれ1原子ずつ113番元素を世界に先駆けて合成し、その確認に成功した。これにより重元素合成と低バックグラウンド条件下での検出についての

能力が世界トップレベルであることを示した。この重元素合成、分離収集に関する技術的ノウハウを最大限に利用して、新元素探索、新超重元素の同位体の探索、および核分光学的研究、さらに重元素の化学的性質の次世代の研究が可能である。

(2) 非常に重い元素（以後超重元素とよぶ）の研究において最大の困難さは、その生成確立の小ささにある。合成実験においては世界最高の感度を有する理研の施設において、113番元素の同位体2原子を合成する実験には、ビーム照射時間だけで約5800時間（240日以上）を費やしている。また日本原子力研究開発機構において行われた、原子番号104ラザホージウム（Rf）の最新の化学的性質の研究に際しては、数分に1原子のRfが取り扱われた。

(3) このように超重元素の研究には大強度ビームと長時間のビームタイムが不可欠になる。多様な研究分野への供用を目的とした仁科加速器研究センターにおいて、メインストリームである研究施設の超伝導リングサイクロトロン（SRC）を用いて、限られた分野の研究に非常に長期のビームタイムを供することは得策とはいえない。113番元素合成実験には理研の線形加速器（RILAC+CSM）が用いられ、メインストリームである理研リングサイクロトロン（RRC）はAVFサイクロトロンを入射器として用い、独立に運転されていた。新研究施設であるRIビームファクトリー計画では、新元素探索の実験においては現在使われているRILAC+CSMは後段の加速器の入射器を兼ねており、超重元素研究のためにビームタイムを占有することは不可能に近い。幸いRIBF専用の新入射器の計画が進んでおり、5年後以降、現有のRILAC+CSMが超重元素研究にビームタイムを多く注ぎ込むことのできる加速器として復活することが予定されている。

(4) ドイツの重イオン科学研究所GSIやアメリカのローレンスバークレー国立研究所LBNL等で、反跳分離器による前段分離をされた重元素の核化学的研究を精力的に行おうとしている施設があるが、長期のビームタイムを獲得できる状況にはない。このような状況で、理研において超重元素の核化学専用施設を作り、そこに日本の核化学研究者（理研、原子力機構、大阪大学、金沢大学、新潟大学等）に研究の場を提供することによって、ビーム強度の高さ、分離装置の効率の高さをもって世界的に他を圧倒する成果を達成することが期待できる。

## 2. 研究の目的

(1) 重イオン核反応によって、未発見の非常に原子番号の大きな元素の原子核を合成し、

その核崩壊を観測することにより、日本初となる新元素の発見を目指す。

(2) 現在までほとんど研究がなされていない、原子番号104以上の元素の化学的性質の研究を行い化学における新領域の開拓を目指す。

(3) 仁科加速器研究センターの有する諸加速器と周辺技術を最大限に利用し、世界最高レベルの超重元素科学の基幹施設を構築する。

## 3. 研究の方法

(1) 理化学研究所の加速器から供給される大強度重イオンビームと、現在研究に供されている気体充填型反跳分離器GARISを主実験装置として用い、 $^{209}\text{Bi} + ^{70}\text{Zn} \rightarrow ^{278}113 + n$  反応によって3個目となる113番元素の同位体 $^{278}113$ を合成する。

(2) 超重元素化学研究用として、それに特化した新反跳分離器GARIS-IIを新たに建設し実験に供する。

(3) 化学操作を行った後迅速に $\alpha$ 崩壊や自発核分裂(spontaneous fission S.F.)を検出するための装置開発を行う。

## 4. 研究成果

(1) 113番元素同位体 $^{278}113$ の探索

本研究期間を通じて5800時間を超える実験時間を費やし3個目となる $^{278}113$ 核に起因する事象を観測することを試みた。結果的には現象の観測には至らず生成断面積が当初予想より小さいことが判明した。

(2) 超重元素化学用新気体充填型反跳分離器(GARIS-II)の完成と性能評価

超重元素化学に特化した新気体充填型反跳分離器GARIS-IIは平成20年度に詳細設計を終え、発注、製作を完了した。平成21年度には磁場測定と設置を完了させ、平成22年4月初頭、性能評価実験を行った。その結果核化学研究に必要な低速重元素に対する透過効率が、現GARISの2倍程度と設計通りの性能を発揮することが示された。

(3) 超重元素化学研究のためのGARISと結合したガスジェットシステムの諸条件の最適化と崩壊特性の研究

本研究テーマにおいて次世代超重元素化学研究の方法として、物理的セパレーターによってビームを除去した条件で、核反応による生成元素核をガス中に止め、ガスジェットにより引き出して実験に供することを提案している。本格的な実験は上記GARIS-IIを物理的セパレーターとして用いるが、ガスジェットシステムの諸条件の最適化を行うことを行うことを目的とし、現GARISに結合して実験を行った。用いた反応は $Z=104(\text{Rf})$ については $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O}, 5n)^{261}\text{Rf}$  反応、 $Z=106(\text{Sg})$

については  $^{248}\text{Cm}(^{22}\text{Ne}, 5n)^{265}\text{Sg}$  反応を用いて行った。この実験でガスジェットシステムの最適化が行われたのみならず、上記 GARIS + Gas-jet の方法が、超低バックグラウンド  $\alpha$  核分光を可能にすることを実証した。

また超重元素化学研究は、合成された超重元素核を化学実験装置に導入し、抽出された原子の核崩壊を観測することによって行われる。すなわち元素種の決定は目的元素の特定の同位体の崩壊特性（崩壊モード、崩壊エネルギーおよび寿命）に依っており、化学研究のためには目的元素核の崩壊特性がよく知られていることが前提となる。106 番元素の同位体  $^{265}\text{Sg}$  には短寿命核異性体の存在の可能性等、崩壊特性が特定されていない点が指摘されていたが、本実験により、より確実な崩壊特性が明らかになった。

#### (4) $^{266}\text{Bh}$ の崩壊の研究

本科研費による研究の目的の一つは、理研で 2004 年および 2005 年にそれぞれ 1 原子ずつ合成し、その崩壊が観測された 113 番新元素の同位体  $^{278}113$  について、その確証を与えることである。

理研で観測した 2 つの崩壊は、どちらも連続した 4 回の  $\alpha$  崩壊の後、自発核分裂を起こすというものであった。4 回目の  $\alpha$  崩壊とそれに続く自発核分裂が、既に報告のある  $^{266}\text{Bh}(\alpha) \rightarrow ^{262}\text{Db}(\text{S.F.})$  (S.F. : 自発核分裂) と同定され、先立つ 3 回の  $\alpha$  崩壊 (1 回の  $\alpha$  崩壊によって原子番号が 2 減り、質量数が 4 減る) を逆にたどって、合成された核が原子番号 113 質量数 278 の  $^{278}113$  であるという同定の根拠とした。

我々の核種同定の根拠となっている、 $^{266}\text{Bh}(\alpha) \rightarrow ^{262}\text{Db}(\text{S.F.})$  という崩壊が既に報告されている点について、その報告がわずか 1 例 (1 事象) であるという弱さを補強することを目的として、初年度に購入した  $^{248}\text{Cm}$  標的を用い  $^{248}\text{Cm}(^{23}\text{Na}, 5n)$  反応によって  $^{266}\text{Bh}$  を直接合成し、その崩壊を観測した。その結果、崩壊特性が十分詳しく知られている  $^{262}\text{Db}$  核 ( $^{258}\text{Lr}$  への  $\alpha$  崩壊と自発核分裂が混在し、全半減期は  $34 \pm 4$  s) につながる  $\alpha$  崩壊が確実なものだけで 14 事象観測された。その中の 1 事象は  $^{278}113$  からの 4 回目の  $\alpha$  崩壊と崩壊エネルギーが検出器の分解能の範囲で一致しており、我々が観測したものが  $^{278}113$  からの崩壊連鎖であることの確証が得られた。

#### (5) 超重元素溶液化学研究用迅速 $\alpha$ 線計測装置の完成

平成 21 年度、本研究費を使い、超重元素溶液化学研究用迅速  $\alpha$  線計測装置の設計、製作を行った。これは溶液化学研究の際、溶液とともに抽出される目的同位体を金属皿の上に受け、溶液を蒸発乾固させ、高分解能  $\alpha$  線計測に供するための全自動式装置である。平成 22 年度は装置の調整を行い、実際の実験

に使用する。

(6) 理研仁科センターの加速器グループの尽力により、SRC への新入射器 RILAC-II が完成し、旧来の RILAC を独占的に使うことがかのようにになった。これによって長期ビームタイムの取得が現実のものとなった。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 38 件)

[1] H. Haba, D. Kaji, Y. Kudou, K. Morimoto, K. Morita, K. Ozeki, R. Sakai, T. Sumita, A. Yoneda, Y. Kasamatsu, Y. Komori, A. Shinohara, H. Kikunaga, H. Kudo, K. Nishio, K. Ooe, N. Sato, and K. Tsukada:

“Production of  $^{265}\text{Sg}$  in the  $^{248}\text{Cm}(^{22}\text{Ne}, 5n)^{265}\text{Sg}$  reaction and decay properties of two isomeric states in  $^{265}\text{Sg}$ ”,

Phys. Rev. C **85** (2012) 024611-1-11.

[2] H. Haba, D. Kaji, H. Kikunaga, Y. Kudou, K. Morimoto, K. Morita, K. Ozeki, T. Sumita, A. Yoneda, Y. Kasamatsu, Y. Komori, K. Ooe, and A. Shinohara:

“Production and decay properties of the 1.9-s isomeric state in  $^{261}\text{Rf}$ ”,

Phys. Rev. C **83** (2011) 034602-1-7.

[3] N. Sato, H. Haba, T. Ichikawa, D. Kaji, Y. Kudou, K. Morimoto, K. Morita, K. Ozeki, T. Sumita, A. Yoneda, E. Ideguchi, H. Koura, A. Ozawa, T. Shinozuka, T. Yamaguchi, and A. Yoshida:

“Production and Decay Properties of  $^{264}\text{Hs}$  and  $^{265}\text{Hs}$ ”

J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 094201-1-7.

[4] K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji, H. Haba, K. Ozeki, Y. Kudou, N. Sato, T. Sumita, A. Yoneda, T. Ichikawa, Y. Fujimori, S. Goto, E. Ideguchi, Y. Kasamatsu, K. Katori, Y. Komori, H. Koura, H. Kudo, K. Ooe, A. Ozawa, F. Tokanai, K. Tsukada, T. Yamaguchi, and A. Yoshida:

“Decay Properties of  $^{266}\text{Bh}$  and  $^{262}\text{Db}$  Produced in the  $^{248}\text{Cm} + ^{23}\text{Na}$  Reaction”,

J. Phys. Soc. Jpn. **78** (2009) 064201-1-6.

[5] H. Haba, D. Kaji, Y. Komori, Y. Kudou, K. Morimoto, K. Morita, K. Ooe, K. Ozeki, N. Sato, A. Shinohara, and A. Yoneda:

“RIKEN Gas-filled Recoil Ion Separator (GARIS) as a Promising Interface for Superheavy Element Chemistry-Production of Element 104,  $^{261}\text{Rf}$ , Using the GARIS/Gas-jet System”,

Chem. Lett, **38** (2009) 426-427.

[6] D. Kaji, K. Morimoto, N. Sato, T. Ichikawa, E. Ideguchi, K. Ozeki, H. Haba, H. Koura, Y. Kudou, A. Ozawa, T. Sumita, T. Yamaguchi, A. Yoneda, A. Yoshida, and K. Morita:

“Production and Decay Properties of  $^{263}\text{Hs}$ ”,  
*J. Phys. Soc. Jpn.* **78** (2009) 035003-1-2.  
 [7] H. Haba, H. Kikunaga, D. Kaji, T. Akiyama, K. Morimoto, K. Morita, N. Sato, A. Yoneda, K. Ooe, A. Shinohara, T. Takabe, T. Nanri, D. Suzuki, I. Yamazaki, and A. Yokoyama:  
 “Performance of the Gas-jet Transport System Coupled to the RIKEN Gas-filled Recoil Ion Separator GARIS for the  $^{238}\text{U}(^{22}\text{Ne},5n)^{255}\text{No}$  Reaction”,  
*J. Nucl. Radiochem. Sci.* **9** (2008) 27-31.  
 [8] H. Haba, T. Akiyama, D. Kaji, H. Kikunaga, T. Kuribayashi, K. Morimoto, K. Morita, K. Ooe, N. Sato, A. Shinohara, T. Takabe, Y. Tashiro, A. Toyoshima, A. Yoneda, and T. Yoshimura:  
 “Startup of superheavy element chemistry at RIKEN”,  
*Eur. Phys. J. D* **45** (2007) 81-86.  
 [9] H. Haba, D. Kaji, H. Kikunaga, T. Akiyama, N. Sato, K. Morimoto, A. Yoneda, K. Morita, T. Takabe, and A. Shinohara:  
 “Development of Gas-jet Transport System Coupled to the RIKEN Gas-filled Recoil Ion Separator GARIS for Superheavy Element Chemistry”,  
*J. Nucl. Radiochem. Sci.* **8** (2007) 55-58.

[学会発表] (計 162 件)

国際会議 (69 件)

[1] K. Morita: (Invited)  
 “Search for superheavy elements in RIKEN”,  
 32nd Mazurian Lake Conference on Physics, 'Legacy of Maria Skłodowska-Curie – 100 years after discovery of atomic nucleus' September 11 – 18, 2011 Piaski, Poland.  
 [2] K. Morita: (Invited)  
 “Study of the heaviest elements at RIKEN, status and perspective”,  
 The 4th International Conference on the Chemistry and Physics of the Transactinide Elements (TAN 11), 5 - 11 September 2011, Sochi, Russia.  
 [3] H. Haba:  
 “Production of  $^{265}\text{Sg}$  for chemical studies using the gas-jet transport system coupled to the RIKEN gas-filled recoil ion separator”,  
 The 4th International Conference on the Chemistry and Physics of the Transactinide Elements (TAN 11), 5 - 11 September 2011, Sochi, Russia.  
 [4] K. Morita:  
 “Recent results on SHE at RIKEN”,  
 The 4th International Conference Fusion11, 2011/5/5 Saint-Malo, France.  
 [5] D. Kaji et al.:

“New gas-filled recoil ion separator GARIS-II developed for SHE study”,  
 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACIFICHEM 2010), Dec.19, 2010, Hawaii, USA.  
 [6] K. Morimoto et al.:  
 “Confirmations of the synthesis of  $^{278113}$  produced by the  $^{209}\text{Bi}(^{70}\text{Zn},n)^{278113}$  reaction”,  
 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACIFICHEM 2010), Dec.19, 2010, Hawaii, USA.  
 [7] Y. Kudou et al.:  
 “FIA-based continuous extraction system for superheavy element chemistry”,  
 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACIFICHEM 2010), Dec.18, 2010, Hawaii, USA.  
 [8] H. Haba et al.:  
 “Superheavy Element Nuclear Chemistry at RIKEN”,  
 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACIFICHEM 2010), Dec.18, 2010, Hawaii, USA.  
 [9] K. Morita:  
 “Superheavy Element Chemistry at RIKEN”,  
 International Nuclear Physics Conference (INPC2010), 2010/7/7 Vancouver, Canada.  
 [10] K. Morita et al.:  
 “Decay Properties of  $^{266}\text{Bh}$  and  $^{262}\text{Db}$  Produced in the  $^{248}\text{Cm} + ^{23}\text{Na}$  Reaction”,  
 Third Joint Meeting of the Nuclear Physics Division of the American Physical Society and the Physical Society of Japan, 2009/10/16, Waikoloa, Hawaii.  
 [11] H. Haba et al.:  
 “Superheavy Element Nuclear Chemistry at RIKEN”,  
 7th Workshop on the Chemistry of the Heaviest Elements 2009/10/13 Mainz, Germany.  
 [12] H. Haba: (Invited)  
 “RIKEN GARIS as a Promising Interface for Superheavy Element Chemistry -Production of  $^{261}\text{Rf}$  Using the GARIS/Gas-jet System”,  
 7th Japan-China Joint Nuclear Physics Symposium 2009/11/13 Tsukuba Japan.  
 [13] N. Sato:  
 “Production and decay properties of  $^{263}, ^{264}, ^{265}\text{Hs}$ ”,  
 7th Workshop on the Chemistry of the Heaviest Elements 2009/10/12 Mainz, Germany.  
 [14] K. Morita: (Invited)  
 “Superheavy Research at RIKEN”,  
 The 10th International Conference on Nucleus-Nucleus Collisions (NN2009) 2009/8/18 Beijing China.  
 [15] K. Morita: (Invited)  
 “Synthesis of the heaviest elements at RIKEN”,

International Symposium "Periodic Table of D.I. Mendeleev. The new superheavy elements" Dubna, January 20-21, 2009.

[16] K. Morita: (Lecture)

"Superheavy research in Japan",

INTERNATIONAL SCHOOL OF NUCLEAR PHYSICS 'Heavy-Ion Collisions from the Coulomb Barrier to the Quark-Gluon Plasma' 17 Sept. 2008 Erice, Italy.

[17] K. Morita: (Invited)

"Experiments on searching for the heaviest elements",

Nuclear Cluster Conference (Cluster'07) 2007/9/5 Stratford-upon-Avon, England.

[18] K. Morita: (Invited)

"Experiments on searching for the heaviest elements",

International Nuclear Physics Conference (INPC2007), 2007/6/5 Tokyo, Japan.

国内会議 (93 件)

[1] 森田浩介:

"新元素の探索－113 番元素発見－", 豊橋技術科学大学セミナー 2011/6/23 豊橋愛知.

[2] 村上昌史 他:

" $^{248}\text{Cm} + ^{18}\text{O}$  反応による Rf 同位体の励起関数の測定",

2011 日本放射化学会年会・第 55 回放射化学討論会 2011 年 9 月 22 日 長野市.

[3] 武山美麗 他:

"超重核の  $\alpha$  (e)- $\gamma$  核分光研究を目的とした Si-CdTe 検出器アレイの開発",

2011 日本放射化学会年会・第 55 回放射化学討論会 2011 年 9 月 20 日 長野市.

[4] 加治大哉, 羽場宏光, 笠松良崇, 工藤祐生, 森本幸司, 森田浩介, 大関和貴, 住田貴之, 米田晃, 佐藤望, 若林泰生, 村上昌史, 門叶冬樹, 生井沙織:

"GARIS-II 開発の現状と初動試験", 第 65 回日本物理学会(春季) 2011/3/ 新潟大学.

[5] 加治大哉, 羽場宏光, 笠松良崇, 工藤祐生, 森本幸司, 森田浩介, 大関和貴, 住田貴之, 米田晃, 佐藤望, 若林泰生, 村上昌史, 門叶冬樹, 生井沙織:

"GARIS-II commissioning #1", 第 54 回放射化学討論会 2010 年 9 月 27 日～29 日大阪大学.

[6] 住田貴之, 大関和貴 他:

"超重元素領域における核種同定のための電離箱の開発",

2010 日本放射化学会年会・第 54 回放射化学討論会 2010 年 9 月 27 日 吹田市.

[7] 羽場宏光 他:

" $^{248}\text{Cm}(^{22}\text{Ne}, 5n)^{265}\text{Sg}$  反応による  $^{265}\text{Sg}$  の合成",

2010 日本放射化学会年会・第 54 回放射化学討論会 2010 年 9 月 27 日 吹田市.

[8] 森田浩介: (特別講演)

"新元素発見一周期表を埋める 113 番元素 -",

日本化粧品学会第 34 回年会 2009/6/11.

[9] 加治大哉, 森本幸司, 佐藤望, 羽場宏光, 市川隆俊, 井手口栄治, 小浦寛之, 工藤祐生, 小沢顕, 大関和貴, 住田貴之, 山口貴之, 米田晃, 吉田敦, 森田浩介:

"新同位体  $^{263}\text{Hs}$  の生成および壊変特性", 第 53 回放射化学討論会 2009 年 9 月 28 日 日本大学.

[10] 羽場宏光: (招待講演)

"新元素の化学－反跳核分離装置を用いた新たな展開－",

第 53 回放射化学討論会 2009 年 9 月 29 日 世田谷区桜上水.

[11] 工藤祐生:

"GARIS 用回転式 Cm-248 標的の作成", 第 52 回放射化学討論会 2008 年 9 月 27 日 広島大学.

[12] 羽場宏光:

"超重元素化学研究に向けた理研加速器施設の準備状況",

京都大学原子炉実験所第 3 回「核化学・核物理の新領域としての重元素科学」専門研究会 2007 年 12 月 12 日 大阪.

[13] 佐藤望, 加治大哉, 森田浩介, 森本幸司, 羽場宏光, 米田晃, 菊永英寿, 市川隆敏, 秋山隆宏:

"理研における新たな反跳分離装置の開発",

日本物理学会第 62 回年次大会 2007 年 9 月 21～24 日 北海道大学.

[その他]

ホームページ等

<http://www.riken.jp/r-world/research/lab/nishina/element/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

森田 浩介 (MORITA KOSUKE)

独立行政法人理化学研究所・森田超重元素研究室・准主任研究員

研究者番号: 20250110

(2) 研究分担者

なし。

(3) 連携研究者

なし。