

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 13 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26390119

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

研究課題名(英文)Development of novel method for the first ionization potential measurement toward for element 113

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 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) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：第一イオン化エネルギー(以下IP1)は、原子の性質を表すもっとも基本的な物理量の一つであり、価電子の束縛エネルギーを直接反映する。超重元素領域においては、実験の難しさから、原子番号100番のフェルミウム以降の元素のIP1が実験的に決定された例はなかった。本研究において、高温の金属表面で起こる表面電離過程を応用した新しいIP1決定法を確立することができた。本手法を103番元素ローレンシウム(Lr)に適用したところ、超重元素領域で初めてIP1を決定し、その電子配置に関する情報を得ることができた。

研究成果の概要(英文)：The first ionization potential (IP1) is one of the basic properties of atomic properties of elements and reflect to a binding energy of the valence orbital. So far, IP1 values after fermium, element 100, have not determined experimentally due to difficulties of experiments in superheavy element region. In this work we have developed a novel method to determine the first ionization potential (IP1) by an application of a surface ionization which takes place a solid surface at high temperature. We successfully determined IP1 value of lawrencium (Lr, element 103) for the first time using the method and obtained an information on the electronic configuration of Lr atom.

研究分野：核・放射化学

キーワード：アクチノイド 第一イオン化エネルギー ローレンシウム オンライン同位体分離器 超重元素 ニホニウム

1. 研究開始当初の背景

第一イオン化エネルギー(以下 IP_1)は、原子の性質を表すもっとも基本的な物理量の一つであり、価電子の束縛エネルギーを直接反映する。

超重元素領域においては、相対論効果による電子軌道の再配置により、価電子軌道が同族元素から類推されるものと異なることが予想されている。

しかしながら、原子番号が 100 を超える超重元素は加速器でしか合成できず、またその寿命も短い。そのため、一度に化学操作に供することができるのは、わずか原子一個に過ぎない。この実験の難しさから、原子番号 100 番のフェルミウム(Fm)以降の元素の IP_1 が実験的に決定された例はなかった。

2. 研究の目的

先日日本の命名権が認められ、アジア初の超重元素として注目された 113 番元素ニホニウムは、13 族に位置すると予想されている。同族元素からの類推から電子配置が $[Rn]5f^{14}7s^26d^{10}7p$ であると推測されることから、7p 軌道が化学的性質に関わると考えられている。

ところが、最も原子番号の大きいアクチノイド元素であるローレンシウム (Lr, $Z = 103$) の電子配置は、同族からの類推によれば $[Rn]5f^{14}7s^26d$ であるにも関わらず、相対論効果による 6d 軌道の不安定化および $7p_{1/2}$ 軌道の安定化のため、電子配置 $[Rn]5f^{14}7s^27p_{1/2}$ をとることが予想されている。Lr は初めて 7p 軌道が化学的性質に寄与すると考えられ

る興味深い元素である。

本研究では、超重元素の IP_1 決定を実現するため、加速器で合成した超重元素同位体を、表面電離イオン源によりイオンビームとし、このときのイオン化効率から、 IP_1 を決定する手法を確立する。113 番元素のイオン化エネルギー決定に向け、113 番元素と同じく 7p 軌道が化学的性質に寄与すると期待される 103 番元素ローレンシウムのイオン化エネルギーを決定することを目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、高温の金属表面で起こる静的なイオン化現象である表面電離過程に着目した。申請者は、表面電離過程を記述する Saha-Langmuir 式をもとに、表面電離イオン源におけるイオン化効率と IP_1 の関係式(1)を、表面温度(T/K)および IP_1 (eV)の関数として導出した (式(1))。

$$I_{\text{eff}} = \frac{N \exp((\phi - IP_1^*)/kT)}{1 + N \exp((\phi - IP_1^*)/kT)} \quad \dots(1)$$

ただし、 $IP_1^* = IP_1 - kT \ln(Q_i/Q_0)$ 。

N: 原子のイオン源内部での壁面との衝突回数, ϕ (eV): 金属表面の仕事関数, k: Boltzmann 定数, IP_1^* : 実効イオン化エネルギー (eV), Q_i, Q_0 : イオン、原子のもつ励起準位の分配関数。

すなわち、適切な条件を選ぶことで、イオン化効率から IP_1 を決定することが期待でき

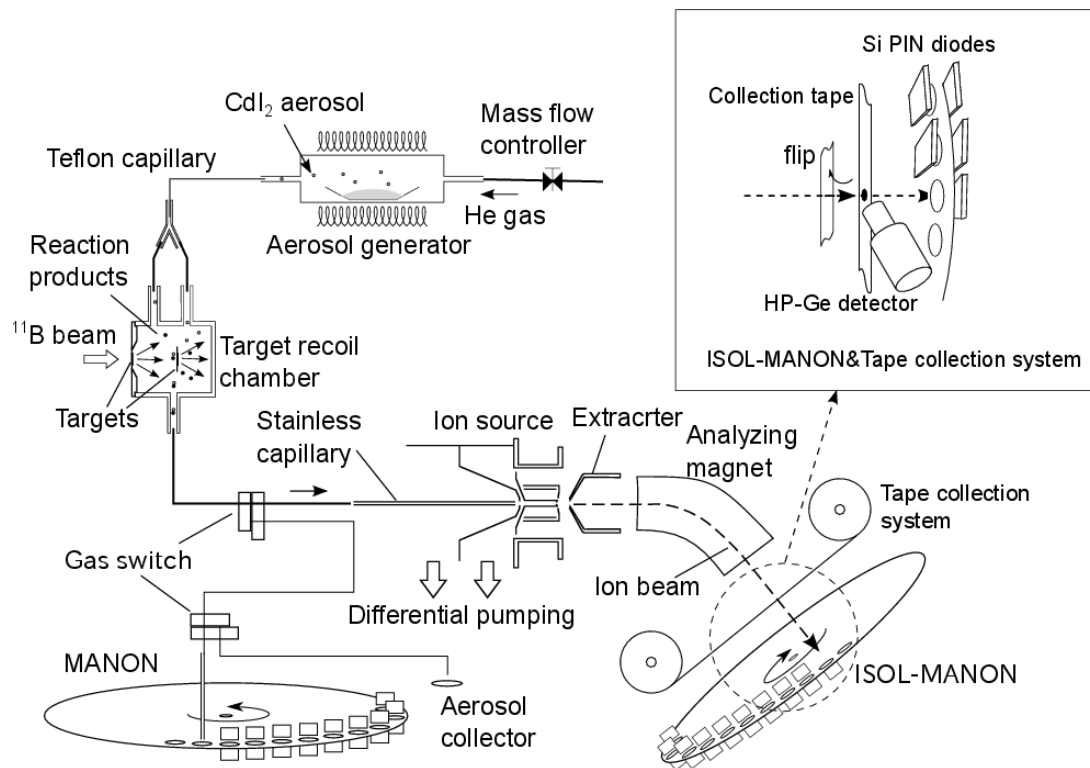


図 1. 実験装置概略図[1-4]

る。

これを踏まえ、原子力機構タンデム加速器で合成した短寿命同位体を、表面電離イオン化した際のイオン化効率を求めた。

実験装置を図1に示す。実験装置は、同加速器施設に設置されているオンライン同位体分離器(JAEA-ISOL)をもとにしており、核反応部、表面電離・質量分離部、および測定部からなる。核反応によって生成した短寿命同位体を、He/CdI₂ガスジェット搬送法を用いてガスジェット結合型表面電離イオン源に迅速搬送し、表面電離したのち、JAEA-ISOLにより、生成したイオンの引出し・質量分離を行った。質量分離されたイオンは、テープ捕集装置または回転円盤型線測定装置(ISOL-MANON)を用いて放射線測定され、イオン化効率が決定される。同様に、²⁴⁹Cf+¹¹B反応で合成した²⁵⁶Lrのイオン化を行い、そのイオン化効率を調べた。また、ニホニウム(IP₁測定)のモデル実験として、同族元素であるタリウムのイオン化を行った。

4. 研究成果

図2に、イオン化温度2800Kのとき、種々の短寿命ランタノイド同位体について得られたイオン化効率を、IP₁*の関数として示した。IP₁*が大きくなるにつれ、イオン化効率が小さくなっている。これは、表面電離過程の典型的な挙動である。さらに、式(1)を実験点にフィッティングしたところ、イオン化挙動をよく説明できることがわかった。

同じイオン化条件で²⁵⁶Lrをイオン化したところ、そのイオン化効率は36%だった。同じく図2に、²⁵⁶Lrのイオン化効率を図示した。図からわかるように、²⁵⁶Lrのイオン化効率から、フィッティング曲線を用いて、Lrの実効イオン化エネルギーが求められる。得

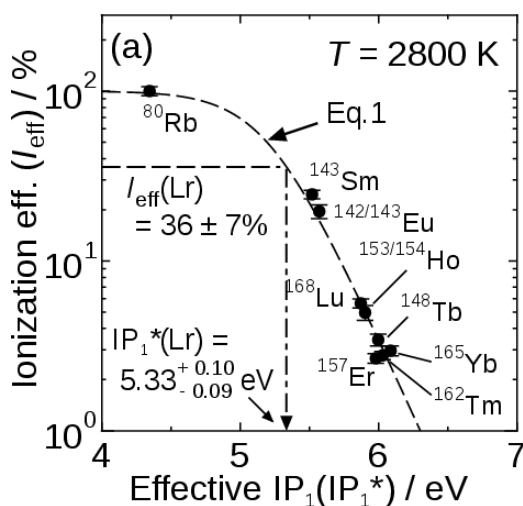


図2. イオン源温度2800Kにおける、種々の短寿命同位体の表面電離イオン化効率の実効イオン化エネルギー(IP₁*)依存性。点線は式(1)の各実験点へのフィッティングにより得られた。

られた値から、Lrの第一イオン化エネルギーIP₁として、4.96 ± 0.08 eVが求められた。

別途、国際共同研究として、ドイツ重イオン研究所の理論系研究者により、相対論効果を考慮したLrの第一イオン化エネルギー計算がおこなわれた。理論計算により得られた値は、4.963 ± 0.015 eVであり、本研究で得られた実験値と非常に良い一致を示した。この一致は、Lr原子が相対論効果の影響によって、113番元素ニホニウムと同様に、最外殻電子を7p軌道にもつことを強く示唆するものである。

この実験結果は、もちろん超重元素領域で初めてIP₁測定に成功したものであり、さらに超重元素原子の電子配置に関する情報を初めてもたらしたものである。このことが評価され、本結果はNature誌に掲載され、さらに同号の表紙を飾ることとなった[3]

また、同手法を利用することにより、102番元素ノーベリウムを初めとする重アクチノイド元素のIP₁測定も進めている。

同様に、スイスポールシェラー研究所と共同し、113番元素のモデル実験を行い、同族元素であるタリウムについてもイオンビーム生成にも成功するとともに、真空・高温環境下での短寿命タリウム同位体の吸着・脱離挙動を明らかにすることに成功した[5]。

<引用文献>

- [1] T.K.Sato, et al., Rev. Sci. Instrum. 84, 023304 (2013).
- [2] T.K.Sato, et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. 303, 1253 (2015).
- [3] T.K.Sato, et al., Nature, 520, 209 (2015).
- [4] T.K.Sato, et al. EPJ Web of Conferences 131, 05001 (2016).
- [5] P. Steinegger, et al., J.Phys.Chem. C, 120, 7122-7132 (2016).

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 4件)

T.K.Sato, M. Asai, A.Borschevsky, T. Stora, 他 19名. "First ionization potential of the heaviest actinide lawrencium, element 103", EPJ Web of Conferences 131, 05001 (2016). 査読有

<https://doi.org/10.1051/epjconf/201613105001>

佐藤哲也, "表面電離法によるローレンシウムのイオン化エネルギー測定", 原子核研究, 61, 96-106 (2016). 査読有

<http://genshikaku.jp/backnumber.php?vol=61&issue=01>

佐藤哲也, "表面電離法によるローレンシウムのイオン化エネルギー測定", 放射化学 32, 34-41 (2015). 査読無(解説論文)
http://www.radiochem.org/pdf/rad_nw3

2.pdf

T.K.Sato, M. Asai, A.Borschevsky, T. Stora, 他 19 名, “Measurement of the first ionization potential of lawrencium (element 103)”, Nature, 520, 209 (2015).
査読有.

<http://www.nature.com/nature/journal/v520/n7546/full/nature14342.html>

〔学会発表〕(計 5 件)

佐藤哲也, 103 番元素でみつけた周期表のほころび～ 元素周期表が書き換わる? ～、2016 年日本放射化学会・放射化学討論会第 60 回記念講演、2016 年 9 月 11 日, 新潟大学(新潟県新潟市)(招待講演)
T. K. Sato, First Ionization Potentials of Heavy Actinides, NRC9、2016 年 8 月 29 日-9 月 2 日, フィンランド・ヘルシンキ (招待講演).

T. K. Sato, Ionization Potentials of the Heaviest Actinides, Nobel symposium (NS160) 、2016 年 5 月 29 日-6 月 3 日, スウェーデン・クリシュンスタード (招待講演).

T. K. Sato, First Ionization Energy Measurements of Heaviest Actinides, Lawrencium and Nobelium 、PACIFICHEM2015、2015 年 12 月 15 日- 20 日, アメリカ・ホノルル (招待講演)

T. K. Sato, First Ionization Potentials of Heaviest Actinides, Lawrencium and Nobelium, The 5 th International Conference on the Chemistry and Physics of the Transactinide Elements (TAN15)、2015 年 5 月 25 日-29 日, 裏磐梯ロイヤルホテル(福島県耶麻郡北塩原村)(招待講演)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<https://www.jaea.go.jp/02/press2015/p15040901/>

6 . 研究組織

(1)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 先端基礎研究センター・研究副主幹

研究者番号：40370382