

平成22年 6月 16日現在

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2008～2009

課題番号：20740152

研究課題名（和文）気相化学分離法を用いた ^{265}Sg の崩壊研究研究課題名（英文）Studies on decay properties of ^{265}Sg by using gas phase chemistry

研究代表者

佐藤 哲也 (SATO TETSUYA)

独立行政法人 日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・研究員

研究者番号：40370382

研究成果の概要（和文）：

超重元素シーボーギウム(Sg, Z=106)の化学研究に唯一利用可能な ^{265}Sg の崩壊様式は現在までよくわかっていない。本研究では ^{265}Sg の崩壊様式を明らかにするために、気相化学分離法により Sg を迅速に化学分離し、測定へ供するシステムの構築を目的として研究を進めた。オンライン等温ガスクロマトグラフ分離装置を開発し、Sg を模擬して同族元素である Mo, W のオンライン気相化学分離を行った。同様に 5 族元素 Nb, Ta についても気相化学分離挙動を調べた。テスト実験として、超重元素ドブニウム(Db, Z=105)の化学分離を行い、同条件で化学分離できることを確認した。

研究成果の概要（英文）：

To investigate chemical and nuclear properties of the transactinide element seaborgium (Sg, Z=106), we have developed an on-line isothermal gas chromatographic apparatus. The on-line experiments with the group-6 elements using the short lived ^{104}Mo and ^{173}W as the homologues of Sg were conducted. And also online-experiments using short lived Nb and Ta were performed. Online isothermal gas chromatographic behaviors of these elements for oxchlorides were obtained.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,800,000	840,000	3,640,000
2009年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：核化学

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, 気相化学

1. 研究開始当初の背景

超アクチノイド元素シーボーギウム(Sg, Z=106)は、周期表上では 6 族元素第 7 周期に

位置する。超アクチノイド元素領域では、中心電荷の増大により原子核に近い軌道電子の速度が光速に近づくために、化学結合に関

与する外側の電子配置が変化し、化学的性質が周期表から予想されるものと異なる可能性があることが指摘されている（相対論効果）。超重元素の化学研究は、周期表がどこまで拡張できるのか？という基本的かつ興味深い問いに答えるものである。しかしその化学的挙動は、実験対象となる核種の生成・検出の困難さから化学実験の前例が数少なく、ほとんどわかっていない。

これまでに見出されたSgの同位元素のうち、 ^{265}Sg が現在化学研究に適用できるもっとも長い半減期をもつSg同位体である。 ^{265}Sg を検出するためには、崩壊時の α 線を検出するとともに、娘・孫核種に至る崩壊鎖を辿る必要がある。 α 線測定時には、核反応の副生成物による妨害があるため、Sgを何らかの手段で分離し、測定へと供することが必須である。しかしながら、これまでの報告では、得られたイベントのほとんどが不完全な α 線系列のみで、半減期についても整合性に乏しかった。そのため、Sgの化学研究を進めるにあたり、 ^{265}Sg の崩壊様式の決定が求められていた。

2. 研究の目的

^{265}Sg の半減期は、7秒もしくは21秒とされている。また、生成断面積は240pbと報告されており、最大でも一時間あたり5個程度しか生成できない。このようなごく希少かつ短寿命な原子核については、崩壊特性を調べるためには、高効率かつ迅速に大量の副生成物を除去し、放射線測定へと供するシステムが必要である。本研究では、Sgが属する6族元素の塩化物が揮発性であることを利用したオンライン気相化学分離装置を開発して、核反応によって生成した核反応生成物を迅速かつ効率よく化学分離し、測定に供するシステムを開発することとした。

3. 研究の方法

核反応によって生成する不要な副生成物をフィルタリングし、目的の核種を測定系へと供するため、以下の要件で気相化学分離装置を設計・製作した。

- ・ 短時間（数秒）での化学分離の終了

- ・ 長時間の連続実験が可能な安定性

製作した実験装置を図1に示す。核反応槽に設置された標的に重イオンビームを照射し、生成した核反応生成物をキャリアガス流に乗せて、化学分離装置へと運ぶ。キャリアガスはHeまたはAr 1L/minを用いた。いくつかの実験では、飛程調整のため、Heには10%の N_2 を混合した。化学分離装置は、反応室と分離カラム（等温カラム）で構成されている。反応室および分離カラムは石英製である。反応室には、塩素化剤として塩化チオニル蒸気が飽和した窒素ガスが導入されている（ SOCl_2/N_2 ）。窒素ガスは酸素濃度が20%、5%または2%であるものを用意した。

核反応生成物は、高温に保たれた反応室内で反応ガスと反応し、化合物を形成する。生成した化合物は、キャリアガス流によって、そのまま分離カラムへと運ばれる。分離カラムは一定温度に保たれており、十分な揮発性を持つ化合物だけがカラムを通り抜けることができる。カラム温度とカラムを通過できる揮発性化合物収量とは密接な関係があり、対象分子のカラム表面への吸着エンタルピーおよび吸着エントロピーを反映する。これらは昇華エンタルピーなどに対応するため、カラム温度と目的化合物の収量の曲線は、対象化合物の熱力学的量を反映する。

カラムを通過した揮発性化合物は、カラム末端に一体となって接続されているガスジェット槽内でHe/KClガスジェット搬送法により、測定系へと運ばれる。運ばれたKClエアロゾルはガラスフィルターによって捕集され、測定に供される。

実験は、原子力機構タンデム加速器施設で行った。Sgを模擬して、同族元素のMoおよびWを使用した。Moは ^{252}Cf の自発核分裂生成物である ^{10}Mo （半減期1分）および ^{142}Er （ ^{12}C , xn）もしくは ^{142}Tb （ ^{19}F , xn）反応で生成する ^{173}W （半減期7.6分）を用いた。また、6族元素と同様、5族元素も同様の系での化学分離が期待できる。Nb, Taについて短寿命核種 ^{88}Nb （半減期7.8分/14.5分）および ^{170}Ta （半減期6.8分）を用いて検討した。これらの核種はそれぞれ ^{142}Ge （ ^{19}F , xn）反応および

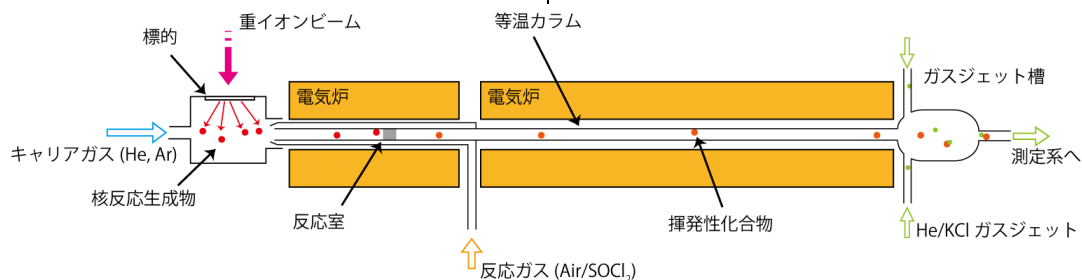


図1. 実験装置模式図

$^{148}\text{Gd}(^{19}\text{F}, \text{xn})$ 反応を用いて生成した。また、超アクチノイド元素 ^{262}Db は $^{248}\text{Cm}(^{19}\text{F}, 5\text{n})$ 反応で生成した。

4. 研究成果

(1) 6 族元素

6 族元素 Mo, W について、反応ガスを酸素濃度 20% 条件下で、反応室温度および反応ガス流量を最適化したのち、カラム温度-収率曲線を取得した。得られた曲線を図 2 に示す。このとき、反応室温度 600°C、反応ガス流量は 160 mL/min である。図より、カラム温度が高くなると Mo は約 50°C 近傍から収量が増加し、120°C 以上で収量は一定となるのに対し、W は 200°C 周辺から立ち上がり、280°C ほどで一定となる。6 族元素の酸素存在下での揮発性化合物は、 Mo_2Cl_2 が想定されている。 MoO_2Cl_2 および WO_2Cl_2 昇華エンタルピーはそれぞれ 92.8 kJ/mol、108.8 kJ/mol である。したがって得られた曲線は、対象化合物の吸着-脱離挙動を反映していると考えられ、本装置が気相化学分離装置として十分に機能していることがわかる。なお、このとき核反応槽からの搬送効率を含めた化学収率として約 60%、ガスジェット効率を含めた全収率として約 20% を得ることができた。

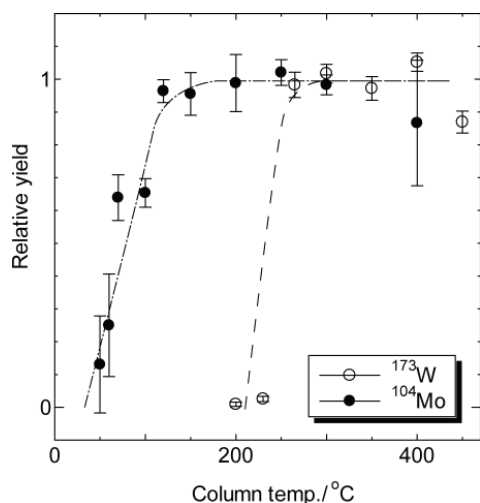


図 2. ^{104}Mo および ^{173}W について得られたカラム温度-相対収率曲線。

(2) 5 族元素

5 族元素 Nb, Ta は、6 族元素と同様に酸素存在下で揮発性の塩化物を形成する。6 族元素に比べ、酸素濃度に敏感であるとされるため、酸素濃度 2% および 5% の場合について、反応室温度の最適化を行った上、6 族元素と同様にカラム温度-収率曲線を取得した (図 3)。このとき反応室温度は 850°C とし、反応ガス

流量は 200 mL/min とした。反応ガス中酸素濃度 5% および 2% とともに、Nb は約 200°C からカラム温度が大きくなるにしたがって、収率

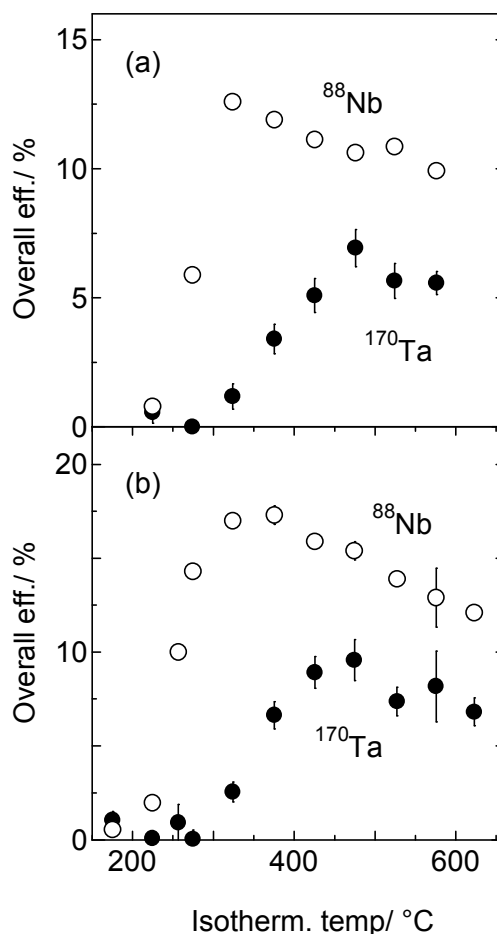


図 3. ^{88}Nb (○) および ^{170}Ta (●) について得られたカラム温度-収率曲線。反応ガスとして 200 mL/min N_2/SOCl_2 を用いた。そのときの反応ガス中酸素濃度はそれぞれ (a) 5% および (b) 2% とした。

が増加し、350°C 近傍で最大となったあと、ゆるやかに減少する。一方、Ta については、約 300°C から増加し、450°C ほどで最大となり、以降 Nb と同様にゆるやかに減少する。高温側でゆるやかに減少する傾向は、6 族元素で取得したカラム温度-収率曲線でも見て取れる。この高温側での収量の減少は、ガスジェット効率が悪化するためであると考えられる。今回得られた Nb の挙動は、Türler らの報告[1]で Nb オキシ塩化物 (NbOCl_3) とされる挙動をよく再現している。一方、Ta については、これまでオキシ塩化物を等温ガスクロマトグラフ分離した報告はなく、今回が初めてとなる。Nb オキシ塩化物および Ta オキシ塩化物の昇華エンタルピーはそれぞれ 128.5 kJ/mol、170.1 kJ/mol である。本結果はこの昇華エンタルピーの大小関係を再現しており、Nb および Ta がオキシ塩化物として

気相化学分離されていると考えられる。
ところで、酸素濃度が 5% のとき、Nb の最大収量は約 13% であり、Ta は 7% ほどである。酸素濃度が 2% であるときそれぞれ 18%, 10% となった。このように系内の酸素濃度が大きくなると、揮発性化合物の生成などにより、全体の収量が下がることがわかる。

以上の結果を元に、超重元素の気相化学分離実験を試みた。Sg に比べて生成断面積の大きい Db について、酸素濃度約 7% の条件下でテスト実験を行ったところ、約 1 日の実験時間で 2 カウントを得た。

以上のように、Sg が属する 6 族元素について気相化学分離条件を求めることができた。さらに、5 族元素について求めた条件をもとに超重元素 Db についての化学分離もおこない、これを確かめた。本研究の結果を元に、Db の気相化学分離挙動を調べることで直ちに 5 族元素間の挙動の違いを知ることができるとともに、当初の目的である Sg の迅速化学分離後の核分光実験も実行可能であることが期待できる。

[1] A.Türler et al., *Radiochim. Acta*, 73 (1996) 55.

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 0 件)

〔学会発表〕 (計 3 件)

- ① 佐藤哲也
「106 番元素 Sg のためのオンライン気相化学分離装置の開発」日本化学会 第 88 春季年会, 2009 年 3 月 29 日, 船橋
- ② 佐藤哲也
「Db を模擬した 5 族元素 Nb ならびに Ta のオンライン等温ガスクロマトグラフ挙動」第 53 回放射化学討論会, 2009 年 9 月 28 日, 東京
- ③ 佐藤哲也
「Development of an On-line Isothermal Gas Chromatographic Apparatus for Db and Sg」APSORC '09 (Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry '09), 2009 年 12 月 1 日, カリフォルニア ナバ

6. 研究組織

(1) 研究代表者

佐藤 哲也 (SATO TETSUYA)
独立行政法人 日本原子力研究開発機構・
先端基礎研究センター・研究職
研究者番号: 40370382

(2) 研究分担者
()

研究者番号:

(3) 連携研究者
()

研究者番号: