

平成23年 5 月 31 日現在

機関番号： 82401

研究種目： 若手研究(B)

研究期間： 2008~2010

課題番号： 20750053

研究課題名(和文)

反跳核分離装置直結型気相化学分析装置の開発と112番超重元素の化学

研究課題名(英文)

Development of a gas-chromatograph apparatus coupled to a recoil separator and chemistry of element 112

研究代表者

羽場 宏光 (HABA HIROMITSU)

独立行政法人理化学研究所・森田超重元素研究室・専任研究員

研究者番号： 60360624

研究成果の概要(和文):本研究では,理化学研究所重イオンリニアック施設に設置された気体充填型反跳核分離装置(GARIS)に低温ガスクロマトグラフ装置を結合し,超重元素(原子番号104以上)の化学的性質を調べるための新しい元素分析システムを開発した.GARIS直結型ガスジェット搬送装置と回転式 α 線連続測定装置を用いて,化学実験の対象となる長寿命の ^{261}Rf (104番元素ラザホージウム)や ^{265}Sg (106番元素シーボーギウム)を製造し,超重元素合成のための基礎データを取得した.

研究成果の概要(英文): A novel elemental analysis system for superheavy elements (SHEs, atomic numbers $Z \geq 104$) has been developed by directly coupling a cryogenic gas-chromatograph apparatus to the gas-filled recoil ion separator (GARIS) at the RIKEN linear accelerator facility. The productions and decay properties of ^{261}Rf (element 104, rutherfordium) and ^{265}Sg (element 106, seaborgium) were investigated for the future SHE chemistry using the GARIS gas-jet system and a rotating wheel system for α -spectrometry.

交付決定額

(金額単位:円)

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|--------|-----------|-----------|-----------|
| 2008年度 | 1,900,000 | 570,000 | 2,470,000 |
| 2009年度 | 700,000 | 210,000 | 910,000 |
| 2010年度 | 800,000 | 240,000 | 1,040,000 |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 総計 | 3,400,000 | 1,020,000 | 4,420,000 |

研究分野: 化学

科研費の分科・細目: 基礎化学・無機化学

キーワード: 超重元素、重イオン加速器、気体充填型反跳核分離装置、単一原子化学、相対論効果

1. 研究開始当初の背景

104番元素ラザホージウム(Rf)以降の非常に重い元素群を,超アクチノイド元素,最近では,超重元素と呼ぶ. 超重元素は,重イ

オン加速器を利用し,核融合反応によって人工的に合成される.もちろん化学的性質は未知で,我々化学者にとっては魅力あふれる新元素である. 超重元素領域では,大きな原子核電荷によって電子

軌道が大きく変化し（相対論効果）、周期表の位置からは予測もつかない性質の出現も期待されている。しかし、超重元素の生成率は極めて低く [例えば、Rf で 1 原子/分, 108 番元素ハッシウム (Hs) で数原子/日], 寿命は 1 分間にも満たないくらい短いため、一度にわずか 1 個の原子しか取り扱うことができない。超重元素の化学は、単一原子の化学とも呼ばれ、まさに究極の微量元素分析である。この分野の実験的研究は、大強度重イオン加速器や放射性同位元素取扱施設などの特殊な設備を要するため、米国、ロシア、ドイツ、スイス、日本の数ヶ所の研究所でのみ実験が行われてきた。溶液系の化学で、Rf から 106 番元素シーボーギウム (Sg) まで、気相系で Rf から Hs までと、112 番元素コペルニシウム (Cn) と 114 番元素についての報告がある。我が国では、日本原子力研究開発機構先端基礎研究センターを中心とする核化学研究グループによって、イオン交換法による Rf と 105 番元素ドブニウム (Db) の系統的な溶液化学研究が行われている。

化学実験の対象となる超重元素核種は、キュリウム (^{248}Cm) やバークリウム (^{249}Bk) などのアクチノイド元素の標的に加速器で加速した酸素 (^{18}O) やネオン (^{22}Ne) などの重イオンビームを衝突させ、核融合反応によって製造される。これまでの超重元素化学実験では、標的から反跳分離された超重核をガスジェット法によって気体あるいは液体クロマトグラフ装置にオンライン搬送することによりその化学的性質が調べられてきた。核種の同定は、超重核の放射性壊変に伴って放出される固有の α 線や核分裂片を測定することによって行われてきた。しかし、この実験手法では、標的構成物質から生成する大量の副反応生成物もすべて化学分析装置に導入されるため、目的核種の放射線計測が妨害され、研究対象とできる元素種や化学実験系が著しく制限される。さらに、近年、 $1\text{ p}\mu\text{A}$ (6.25×10^{12} 粒子/秒) を超える大強度の重イオンビームを利用できるようになってきたが、標的チャンパー内に生じるプラズマが原因となりガスジェット搬送効率が激減するという深刻な問題も生じている。超重元素の化学研究は、上に述べた着実な進歩と成果はあるものの、実験手法におけるブレイクスルーが切望されている。

2. 研究の目的

近年、ドイツ重イオン研究所 (GSI) やロシア合同原子核研究所 (JINR) を拠点として、Cn や 114 番元素 (単体) の気相化学研究が脚光を浴びている。しかし、これらの化学実験では、標的から反跳分離された生成核すべてをガスジェット法によってガスクロマトグラフ装置に搬送し、高い放射線バックグラウ

ンドの下で化学分析を行っている。Cn や 114 番元素の同定は核分裂 (SF) 壊変に基づいているが、核分裂片のエネルギー分布は幅広く、妨害核種の SF 壊変との区別は非常に困難である。こうして Cn や 114 番元素の化学研究は、未だに信頼性のある結果は得られておらず、統計精度も不十分で、実験法のブレイクスルー、別の研究施設での再実験もしくは別の角度からの検証が強く望まれている。そこで本研究では、理化学研究所 (理研) の重イオンリニアック施設 (RILAC) に設置された気体充填型反跳核分離装置 (GARIS) に低温ガスクロマトグラフ分析装置を結合することによって、超重元素の化学的性質を解明するための新しい元素分析システムを開発する。反跳核分離装置は、重イオンビームと標的核との核融合反応で生成した超重核を、磁場や電場の組み合わせで数マイクロ秒のうちに選択的に焦点面に取り出すことができる。この反跳核分離装置を超重元素化学研究の前段分離装置として利用できれば、目的とする超重元素核種を極低バックグラウンドの下で化学分析することができる。大強度重イオンビームを利用でき、ガスジェット引き出し効率を増大できる。さらに重イオンビームの分離除去によって、多様な化学系での実験が可能となる。

3. 研究の方法

本研究では、GARIS の焦点面にガスジェットチャンパーを取り付け、これに低温ガスクロマトグラフ装置を結合する。本システムでは、まず RILAC で加速された重イオンと標的核の核融合反応によって超重核が合成される。標的から反跳分離された超重元素イオンは、GARIS の 4 つの電磁石 D1-Q1-Q2-D2 (D: 双極子磁石; Q 四重極磁石) によってビームや副反応生成物から質量分離され、GARIS の焦点面に収束させられる。続いてマイラー (ポリエチレンテレフタレートフィルム) の真空隔壁を通過し、ガスジェットチャンパー内でヘリウムガス中に捕獲され、テフロン細管を通過して低温ガスクロマトグラフ装置に導入される。ガスクロマトグラフカラムは、超重元素の α 壊変と SF 壊変を効率良く検出するため、16 対のシリコン PIN フォトダイオード検出器を用いて構成される。さらに、液体窒素冷却を利用し、カラム (検出器) には室温から -196°C までの温度勾配がかけられる。ヘリウムキャリアガスとともにカラムに導入された揮発性の超重元素原子が吸着する固定相と検出器位置 (温度) から、それら元素の固定相に対する吸着エンタルピーを導出できる。具体的には、実際の実験条件下においてカラムを移動する超重元素原子をモンテカルロシミュレーションし、吸着エンタルピーをフリーパラメーターとして、実験で得られた収率分布をフィットする。この手法は、Rf から Hs の揮発性化合物の気相化学研究で実績がある。こうして得られた吸着エンタルピーを相対論的量子化学計算と比較することから、超重元素の電子状態ならびに相対論効果が化学結合に与える影響を考察できる。さらに、本研究では、

それぞれ $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O}, 5n)^{261}\text{Rf}$, $^{248}\text{Cm}(^{22}\text{Ne}, 5n)^{265}\text{Sg}$ 反応によって生成する化学実験の対象となる長寿命の ^{261}Rf と ^{265}Sg の製造を行い、回転アクチノイド標的照射システム, GARIS の磁場設定やヘリウムガス充填圧力など、超重元素合成に必須の基礎データを蓄積する。

4. 研究成果

本研究では、超重元素の気相化学研究に向けて、GARIS 直結型ガスジェットチャンバーならびに低温ガスクロマトグラフ装置の開発を行った。超重核の反跳エネルギーは非常に小さいため (例えば、 ^{261}Rf は 6.3 MeV)、薄いマイラー箔をガスジェットチャンバーの真空隔壁として使用しなければならない。しかし、GARIS とガスジェットチャンバーの圧力差は約 0.1 MPa もある。我々は、開口率 84% のハニカムグリッドを開発し、最薄で厚さ 0.5 μm のマイラー箔を真空隔壁として使用することに成功した。さらに、RILAC と GARIS 直結型ガスジェット搬送装置を用いて、それぞれ $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O}, 5n)^{261}\text{Rf}$, $^{248}\text{Cm}(^{22}\text{Ne}, 5n)^{265}\text{Sg}$ 反応によって ^{261}Rf と ^{265}Sg の製造を行った。GARIS によって質量分離された ^{261}Rf と ^{265}Sg をガスジェットチャンバー内でヘリウムガス中に捕獲し、塩化カリウムのエアロゾルとともにテフロン細管を通して化学実験室にガスジェット搬送した。ここに回転式 α 線連続測定装置を設置し、14 台のシリコン PIN フォトダイオード検出器を用いて放射線計測した結果、 ^{261}Rf と ^{265}Sg を極低バックグラウンド下で検出することに成功した。 ^{261}Rf については、GARIS の最適磁場 (1.75Tm)、GARIS の輸送効率 (8%) や化学実験室へのガスジェット搬送効率 (50%) などを決定することができた。既知の $^{261}\text{Rf}^a$ (半減期 68s) に加えて、核異性体 $^{261}\text{Rf}^b$ (半減期 2s) の直接合成にも成功し、その半減期、 α エネルギーや α /SF 分岐比などの核データを取得できた。一方、 ^{265}Sg については、42 個の ^{265}Sg 原子の観測に成功し、2 つの核異性体 $^{265}\text{Sg}^{a,b}$ について核反応断面積や壊変特性を精度良く決定できた。

以上の結果から、本研究で開発した GARIS 直結型の低温ガスクロマトグラフ装置は、将来、生成率が極めて小さくかつ短寿命の超重元素の気相化学研究において、極低バックグラウンド下における化学実験、大強度ビームの利用とガスジェット搬送効率の増大、さらに多様な化学反応系の実現など、数々のブレイクスルーを期待できる。

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 9 件)

- ① H. Haba, D. Kaji, Y. Kasamatsu, H. Kikunaga, Y. Komori, H. Kudo, Y. Kudou, K. Morimoto, K. Morita, K. Ooe, K. Ozeki, R. Sakai, N. Sato, A. Shinohara, T. Sumita, K. Tsukada, and A. Yoneda, Production and decay properties of ^{265}Sg , RIKEN Accel. Prog. Rep. **44**, (in press), 査読無
- 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}Rf , Phys. Rev. C **83**, 034602-1-7 (2011), 査読有
- ③ H. Haba, D. Kaji, Y. Kasamatsu, H. Kikunaga, Y. Komori, Y. Kudou, K. Morimoto, K. Morita, K. Ooe, K. Ozeki, A. Shinohara, T. Sumita, and A. Yoneda, Production of an isomeric state of ^{261}Rf by the $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O}, 5n)^{261}\text{Rf}$ reaction, RIKEN Accel. Prog. Rep. **43**, 265 (2010), 査読無
- ④ H. Haba, D. Kaji, Y. Kasamatsu, H. Kikunaga, Y. Komori, Y. Kudou, K. Morimoto, K. Morita, K. Ooe, K. Ozeki, N. Sato, A. Shinohara, A. Toyoshima, A. Yokoyama, A. Yoneda, and T. Yoshimura, Superheavy element nuclear chemistry at RIKEN, AIP Conf. Proc. **1235**, 356-362 (2010), 査読無
- 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}Rf , using the GARIS/gas-jet system-, Chem. Lett. **38**, 426-427 (2009), 査読有
- ⑥ H. Haba, K. Akiyama, K. Tsukada, M. Asai, A. Toyoshima, T. Yaita, M. Hirata, K. Sueki, and Y. Nagame, Chloride complexation of Zr and Hf in HCl investigated by extended X-ray absorption fine structure spectroscopy -Toward characterization of chloride complexation of element 104, rutherfordium (Rf)-, Bull. Chem. Soc. Jpn. **82**, 698-703 (2009), 査読有
- ⑦ H. Haba, D. Kaji, Y. Komori, Y. Kudou, K. Morimoto, K. Morita, K. Ooe, K. Ozeki, N. Sato, A. Shinohara, and A. Yoneda, Production of ^{261}Rf for chemical studies using the gas-jet transport system coupled to GARIS, RIKEN Accel. Prog. Rep. **42**, 266 (2009), 査読無
- ⑧ H. Haba, H. Kikunaga, D. Kaji, T. Akiyama, K. Morimoto, K. Morita, T. Nanri, K. Ooe, N. Sato, A. Shinohara, D. Suzuki, T. Takabe, I. Yamazaki, A. Yokoyama, and A. Yoneda, 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**, 27-31 (2008), 査読有

- ⑨ H. Haba, T. Akiyama, D. Kaji, H. Kikunaga, K. Morimoto, K. Morita, T. Nanri, K. Ooe, N. Sato, A. Shinohara, D. Suzuki, T. Takabe, I. Yamazaki, A. Yokoyama, and A. Yoneda, Production of ^{255}No via the $^{238}\text{U}(^{22}\text{Ne}, 5n)^{255}\text{No}$ reaction using the gas-jet transport system coupled to GARIS, RIKEN Accel. Prog. Rep. **41**, xii (2008), 査読無

[学会発表] (計16件)

- ① H. Haba, D. Kaji, Y. Kasamatsu, H. Kikunaga, Y. Komori, H. Kudo, Y. Kudou, K. Morimoto, K. Morita, K. Ooe, K. Ozeki, R. Sakai, N. Sato, A. Shinohara, T. Sumita, K. Tsukada, and A. Yoneda, Production of ^{265}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, Sep. 5-11, 2011 (発表予定), Sochi, Russia
- ② 羽場宏光, 新元素の化学—気体充填型反跳核分離装置を用いた新展開—, 2011年秋第72回応用物理学会学術講演会, 2011年8月29日 (発表予定), 山形市
- ③ H. Haba, D. Kaji, Y. Kasamatsu, H. Kikunaga, Y. Komori, H. Kudo, Y. Kudou, K. Morimoto, K. Morita, Y. Nagame, K. Ooe, K. Ozeki, N. Sato, A. Shinohara, T. Sumita, A. Toyoshima, K. Tsukada, A. Yokoyama, A. Yoneda, and T. Yoshimura, Superheavy element nuclear chemistry at RIKEN, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACIFICHEM 2010), Dec. 18, 2010, Hawaii, USA
- ④ 羽場宏光, 超重元素合成用アクチノイド標的の研究開発, 平成22年度大洗研究会(アクチノイド分野), 2010年11月30日, 中央区京橋
- ⑤ H. Haba, SHE researches at RIKEN, 9th Workshop on Recoil Separator for Superheavy Element Chemistry (TASCA10), 18 Nov., 2010, Darmstadt, Germany
- ⑥ 羽場宏光, 大江一弘, 大関和貴, 笠松良崇, 加治大哉, 菊永英寿, 工藤久昭, 工藤祐生, 小森有希子, 佐藤 望, 篠原 厚, 住田貴之, 塚田和明, 森田浩介, 森本幸司, 米田 晃, $^{248}\text{Cm}(^{22}\text{Ne}, 5n)^{265}\text{Sg}$ 反応による ^{265}Sg の合成, 2010 日本放射化学学会年会・第54回放射化

学討論会, 2010年9月27日, 吹田市

- ⑦ H. Haba, Present Status of RIKEN Facilities for SHE chemistry -Facility information for beam time proposals-, RIKEN Workshop on Superheavy Element Chemistry 2010, Feb. 2, 2010, Wako, Japan
- ⑧ 羽場宏光, 新元素の化学—反跳核分離装置を用いた新たな展開—, 平成21年度大洗研究会, 2009年12月7日, 千代田区丸の内
- ⑨ H. Haba, D. Kaji, Y. Kasamatsu, H. Kikunaga, Y. Komori, H. Kudo, Y. Kudou, K. Morimoto, K. Morita, Y. Nagame, K. Ooe, K. Ozeki, N. Sato, A. Shinohara, T. Sumita, A. Toyoshima, K. Tsukada, A. Yokoyama, A. Yoneda, and T. Yoshimura, Present status and perspectives of superheavy element chemistry at RIKEN, Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry '09 (APSORC '09), 1 Dec., 2009, Napa, USA
- ⑩ H. Haba, Superheavy element nuclear chemistry at RIKEN, The 7th Japan-China Joint Nuclear Physics Symposium, 13 Nov., 2009, Tsukuba, Japan
- ⑪ H. Haba, D. Kaji, Y. Kasamatsu, Y. Komori, Y. Kudou, K. Morimoto, K. Morita, K. Ooe, K. Ozeki, N. Sato, A. Shinohara, T. Sumita, K. Tsukada, A. Yoneda, RIKEN GARIS as a promising interface for superheavy element chemistry -Production of ^{261}Rf using the GARIS/gas-jet system-, Seventh Workshop on the Chemistry of the Heaviest Elements, 13 Oct., 2009, Mainz, Germany
- ⑫ 羽場宏光, 大江一弘, 大関和貴, 笠松良崇, 加治大哉, 工藤祐生, 小森有希子, 佐藤 望, 篠原 厚, 森田浩介, 森本幸司, 米田 晃, 超重元素の化学 - 反跳核分離装置を用いた新たな展開 -, 2009 日本放射化学学会年会・第53回放射化学討論会, 2009年9月30日, 世田谷区桜上水
- ⑬ 羽場宏光, 超重元素の化学 - 反跳核分離装置を用いた新たな展開 -, 2009 日本放射化学学会年会・第53回放射化学討論会, 2009年9月29日, 世田谷区桜上水
- ⑭ 羽場宏光, 国外の超重元素化学研究の現状—TASCA08 報告—, 理研超重元素化学ワークショップ2008, 2008年11月12日, 和光
- ⑮ 羽場宏光, 超重元素化学研究に利用できる理研の実験設備, 理研超重元素化学ワークショップ2008, 2008年11月12日, 和光
- ⑯ H. Haba, RIKEN GARIS for superheavy element chemistry, 7th Workshop on Recoil Separator for Superheavy Element Chemistry (TASCA08), 31 Oct., 2008, Darmstadt, Germany

[図書] (計2件)

- ① H. Haba, S. Motomura, S. Kamino, and S. Enomoto, Tracer technique, In *Handbook of Nuclear Chemistry* (2nd ed.), edited by A.

Vértés, S. Nagy, Z. Klencsár, R. G. Lovas, and F. Roesch, Vol. 3, 1761-1792, Springer, 2010

- ② 羽場宏光 (監修), イラスト図解 元素, 日東書院, 288 (総ページ数), 2010年

[その他]

新聞発表

- ① 羽場宏光, 短寿命・微量元素の化学的性質を解く, 日刊工業新聞, 19面, 2011年4月26日

6. 研究組織

(1) 研究代表者

羽場 宏光 (HABA HIROMITSU)

独立行政法人理化学研究所・森田超重元素研究室・専任研究員

60360624

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者