タンデム加速器を利用した 超重元素の化学挙動研究の進展

先端基礎研究センター

塚田 和明



超重元素の化学研究

ー 理解・到達したい事実 ー <u>最も重い極限元素の化学的性質</u>

(原子炉・加速器で生成する極限の人工元素の化学)

<u>元素の存在の限界</u>

(元素の存在限界と相対論効果)

極限元素への周期律の適応と周期表の拡張性 (第7周期の遷移金属の化学的性質と、その特異性の有無)

一波及一

理科・化学の基礎としての周期律と周期表の拡張性の検証 極限元素の性質の理論による検証が、 ウラン・超ウラン元素等の抽出剤あるいは材料設計等に、 利用され始めた理論の精度向上につながる

ー研究の進め方 ー 現在の技術で実験的検証がどこまで可能か (理論の進歩と予測に対して何が言えるか) 未だに完全な予測 はできていないか らこそ

存在限界への相対 論効果の影響

第7周期に特有な 現象が見られる か?



超重元素研究の現状

• 物理的研究 •化学的研究 (周期表上の同族元素との比較) ~118番元素の合成 •気相における化学挙動研究 α壞変特性
安定性 104Rf~108Hs、112、114番元素 (~118番元素) •液相における化学挙動研究 •γ線核分光(104Rf, 106Sg) ₁₀₄Rf~₁₀₆Sg 周期表 义 н He Be Cr Mn Fe Co Ni Cu Zn Ga Ge Ru Rh Pd Ag Cs Ba La' Pb Bi Po At Rn 118 Chem 118

Ce Pr Nd PmSm Eu Gd Tb Dy Ho Er Tm Yb

*ランタノイド

超重元素を対象にしたこれまでの化学実験と 得られた結果、その到達点

報告されてきた実験

- 気相における化学挙動研究
 - 104Rf~108Hs、112、114番元素
- 液相における化学挙動研究
 - $-_{104}$ Rf \sim_{106} Sg
 - → 周期表上の同族元素との比較から

ー「理解したいこと」ー

- ・最も重い極限の元素の化学的性質

・元素の存在の限界

存在限界に大きな影響を与える相対論効果の影響の検証

(理論的予測の検証)

理論予測が先行する まで発達していない

信頼できる定量的な

値が得られていない

・極限元素への周期律の適応と周期表の拡張性

同族元素との比較:第7周期の遷移金属の化学的性質の系統性

到達した元素までは族としての大ま かな性質が報告されているが

実験が未だに極限ま で到達していない?

水溶液中におけるRfの錯イオン形成

フッ化水素酸・硝酸混合溶液系陰イオン交換分離実験



合成反応: ²⁴⁸Cm(¹⁸O,*5n*) ²⁶¹Rf (T_{1/2}=68 s) Gd(¹⁸O,*xn*) ¹⁶⁹Hf (Ge(¹⁸O,*xn*) ⁸⁵Zr)

陰イオン交換樹脂: 三菱化学製CA08Y (粒径23 µm) (1) **1.6 mm**φ **x 7 mm** (14 μL) (2) **1.0 mm**φ **x 3.5 mm** (2.7 μL) 第1溶液(Fraction 1): 65 s 第2溶液(Fraction 2):105 s 陰イオン交換樹脂への吸着率 %ads. = $\frac{100 A_2}{A_1 + A_2}$ A1: 溶出放射能(Fraction 2) A₂: 樹脂への吸着放射能(Fraction 1) 分配係数(Kd)の導出

固定相(樹脂)と液相へのイオンの分配の度合

オンライン実験手法



Micr

full-a

Robo

<u>A</u>utomated <u>lon</u> exchange separation apparatus coupled with the <u>D</u>etection system for <u>A</u>lpha spectroscopy (AIDA)





 K_{d} vs. [NO₃]⁻ in HF/HNO₃



HF/HNO₃水溶液中におけるRfの陰イオン交換挙動



フッ化水素酸・硝酸混合水溶液中における Dbの陰イオン交換挙動

105番元素Dbと同族元素(Nb, Ta)のフッ化物錯体形成を 比較し検証中



K. Tsukada et al., Radiochim. Acta 97 (in press)

新実験システムの開発・照射系の改良と 水溶液中でのDbのフッ化物錯イオンの形成研究

☆新実験システムの開発 (AIDA-II)

- →より生成量が少なく短い半減期の核種に対応
 - ・試料調整時間の短縮:より短い半減期の核種に対応
 - ・溶液量の増加:化学効率の改善

☆照射系の改良

- →ビーム量の増強による生成量の増加を目指して
 - ・ビーム量の増強:

イオン源の最適化により~1 pµA(¹⁹F)のビーム加速へ ・真空窓及びターゲットの過熱防止

ビーム励振システムの導入:ビーム拡散による過熱防止 He冷却ガス循環システムの導入:ガス流量増強による過熱防止 x2

<u>**Dbの検出:10 events / 日**</u> (←1 - 5 events / 日)

x2



システム概略図

Comparisons of the experimental condition

using AIDA-II and AIDA

	AIDA	AIDA	AIDA-II	AIDA-II
	Rf	Db	Db	(Sg)
Preparation time for	65 s	48 s	22 s	11 s
15t II.ac.			(14 - 30 s)	(7 - 14 S)
Preparation time for 2nd frac.	90 s	65 s	43 s (38 - 57 s)	20 s (15 - 22 s)
Volume of 1st frac.	240 μL	110 μL	220 μL	110 μL
Volume of 2nd frac.	250 μL	140 μL	220 μL	110 μL
Available <i>K</i> _d value in HF solition	10-400	40-120	15-400	40-120

フッ化物イオン濃度及び硝酸イオン濃度 に対するDbの分配係数(*K*_d値)

Fig. Nb, Ta, Pa, Dbの陰イオン交換でのK_d 値のフッ化物イオン濃度依存性 Fig. Nb, Ta, Pa, Dbの陰イオン交換 でのK_d値の硝酸イオン濃度依存性

<u>陰イオンフッ化物錯体の形成</u> Ta >> Nb <u>></u> Db <u>></u> Pa ?

これまでの成果と今後の展開

- Rfの錯イオン形成と化学種決定
 - 実験手法の確立

- 初めて実験的に 化学種を予測した
- 塩酸あるいはフッ化水素酸系イオン交換分離
- 塩酸系水溶液からのTBPによる抽出
- Dbの錯イオン形成
 - Rfで確立した実験手法の応用とフッ化物イオンとの錯イオン形成 (フッ化水素酸系のイオン交換分離)
 - 上記問題点の抽出と新たな実験システムの開発
- 研究対象核種の合成手法開発
 - 放射性ターゲットの取扱い
 - 加速器における照射系の開発

開発 Sg研究に利用可能な

実験手法の開発

生成量の増加とより 重い元素の合成(Sg など)

 他の実験系の検討(気相系化学分離法など)
 超重元素の化学的性質を研究する為に、進歩してきいる分析 技術の、超重元素領域への応用の可能性の検討とその展開

Temperature

■ カラム内での滞在時間(通過率に関係) から, 吸着エンタルピーを得る。

4族塩化物の気相化学実験の現状

A. Türler et al. (PSI), B. Kadkhodayan et al. (LBL)

■ KClにより石英管が劣化

Dbの気相化学

Fig. NbおよびDbの塩化物およびオキシ塩化物について得られたカラム温度-収率曲線。HClを反応剤として使用。

開発中の気相実験システム

カーボンクラスタ搬送気相化学実験システム(新潟大):4族元素
 特徴:カーボンによる酸素抑制で四塩化物を生成
 反応ガス:HCIガス
 全効率:<u>4%</u>
 (搬送効率:35%、化学収率:40%、リクラスタ効率:40%、検出器効率:80%)
 ビームライン直結型オンライン気相分離システム:4~6族元素

積極的な酸素導入と効率の向上

全効率:**16**%

(搬送・化学収率:50%、リクラスタ効率:40%、検出器効率:80%)

参考(現在の溶液系の効率)

全効率:**3**%

(搬送効率:35%、化学収率:50%、減衰:50%、検出器効率:35%)

Dbの気相化学実験装置概要

