

博士論文の要旨及び審査結果の要旨

氏名	村上 昌史
学位	博士 ( 理学 )
学位記番号	新大院博 (理) 第 395 号
学位授与の日付	平成 27 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
博士論文名	Studies on Production of Superheavy Elements, Rutherfordium and Dubnium, and Chemical Property of Dubnium (超重元素ラザホージウムとドブニウムの合成及びドブニウムの化学的性質に関する研究)
論文審査委員	主査 教授・工藤 久昭 副査 教授・大鳥 範和 副査 准教授・丸山 健二 副査 准教授・後藤 真一 副査 チームリーダー・羽場 宏光(理化学研究所)

博士論文の要旨

原子番号が 104 以上の超重元素は、重イオン核反応によってのみ合成される人工放射性元素であるが、極めて低い生成率と短い寿命のために、実験的な取扱いが困難なことから、その核的・化学的性質については不明な点が多い。また、超重元素の化学実験では用いる同位体に特有の放射線の測定によって元素の同定が行われる。従って、それらの同位体の壊変特性をあらかじめ調べておく必要がある。

本研究では、化学実験で用いられている  $^{261a}\text{Rf}$  (半減期 68 秒),  $^{262}\text{Db}$  (半減期 33.8 s) ならびにそれらの同位体の合成条件や壊変特性を調べている。 $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O},\text{xn})$  反応で生成する Rf 同位体を気体充填型反跳核分離装置 GARIS を用いてビーム粒子や副生成物から分離し、GARIS 焦点面に設置した位置感応型検出器によって生成核の壊変事象の入射エネルギー依存性を測定し、これまで  $^{262}\text{Rf}$  (半減期 47 ミリ秒) の核異性体であるとされてきた半減期数秒の自発核分裂性核種は  $^{262}\text{Rf}$  の核異性体ではなく、 $^{261a}\text{Rf}$  の核異性体であることを見出した。

また、現在のところデータのばらつきが大きい  $^{248}\text{Cm}(^{19}\text{F},5\text{n})$  反応による  $^{262}\text{Db}$  の生成断面積を測定するとともに、この反応において合成が確認されていない  $^{263}\text{Db}$  (半減期 27 秒) の合成を試みた。 $^{263}\text{Db}$  の壊変生成物である  $^{259}\text{Lr}$  は  $^{262}\text{Db}$  と同じエネルギーの  $\alpha$  線を放出するので、化学実験に  $^{262}\text{Db}$  を用いる場合は、 $^{263}\text{Db}$  の生成が問題とならない条件で  $^{262}\text{Db}$  を合成する必要がある。核反応生成物を He/KCl ガスジェット搬送法により回転ホイール型検出システムに搬送後、壊変事象を測定した。その結果、 $^{248}\text{Cm}(^{19}\text{F},5\text{n})^{262}\text{Db}$  の励起関数は報告値と矛盾なかったが、 $^{263}\text{Db}$  の  $\alpha$  崩壊分岐比は観測されるほど大きくはないことが分かった。

105 番元素 Db の化学実験に関しては、同族である Nb, Ta の無担体放射性同位体の合成条件を求めるとともに、その同位体を用いてこれらの元素の分離・生成に用いられるリン酸トリブチル(TBP)を用いてフッ化水素酸からの溶媒抽出挙動を調査した。その結果、Ta の分配比は 0.27 M で最大になった後、フッ酸濃度の増加とともに減少していったのに対し、Nb の分配比はフッ酸濃度とともに増加した。これらの挙動の違いは Nb と Ta の錯形成の違い、すなわち、Nb についてはオキシフッ化物[NbOF<sub>5</sub>]<sup>2-</sup>からフッ化物[NbF<sub>6</sub>]<sup>-</sup>への変換、Ta についてはフッ化物錯形成[TaF<sub>6</sub>]<sup>-</sup> → [TaF<sub>7</sub>]<sup>2-</sup>によるものと推測され、この系での Db の挙動に興味を持たれた。オンライン実験条件を確立したのち、<sup>262</sup>Db について、自動迅速化学実験装置を用いて、TBP 樹脂により 1.0 M フッ酸からの抽出を行った。その結果、Db の分配係数は Nb と同様に、Ta よりかなり低い値を示し、Db は重い同族体である Ta よりも軽い同族体の Nb に類似しているという興味ある結果が示された。

#### 審査結果の要旨

104 番元素 Rf の化学実験で用いられている <sup>261</sup>Rf(T<sub>1/2</sub>=68 s)には、自発核分裂する半減期数秒の同位体があることがわかってきたが、質量数が 1 上の <sup>262</sup>Rf にも同様な同位体があるとされてきた。申請者は、理化学研究所の重イオン線形加速器と気体充填型反跳核分離装置を用い、<sup>261</sup>Rf と周辺核種の励起関数を測定し、<sup>261</sup>Rf と <sup>262</sup>Rf の壊変特性について明確に区別することができ、以前から知られていた <sup>262</sup>Rf の壊変特性に誤りがあることを明らかにした。この結果は申請者が第一著者として論文にまとめられている。(Phys. Rev. C88, 024618-1-8, 2013)

また、化学実験に用いられる <sup>262</sup>Db の合成に関して、<sup>248</sup>Cm(<sup>19</sup>F,5n)反応による最適生成エネルギーの確認とともに、化学実験で妨害となりうる <sup>263</sup>Db(半減期 27 秒)の合成を試みた。その結果、<sup>248</sup>Cm(<sup>19</sup>F,5n)<sup>262</sup>Db の最適合成エネルギーでは、<sup>263</sup>Db の妨害は問題とならないことを見出している。

105 番元素 Db の溶液化学的性質に関する研究では、Db は生成率が非常に低く、寿命も短いため、その化学実験は非常に困難である。このため、あらかじめ同族元素である Nb、Ta の放射性トレーサを用いて、Db についての最適な実験条件を検討する必要がある。申請者は、放射性トレーサの最適合成法の検討から(Appl. Radiat. Isot. 90, 149-157, 2014)、種々の化学実験系の構築まで検討・考案し、予備的なデータではあるが Db は重い同族体である Ta よりも軽い同族体の Nb に類似しているという興味ある結果が示された。

よって、本論文は博士（理学）の博士論文として十分であると認定した。