

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) (要約)

新潟大学大学院自然科学研究科

氏名 村上昌史

(以下要約を記入する)

原子番号が 104 以上の元素は超重元素とよばれ、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。これらの元素は合成の際の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く、非常に興味深い元素群である。本研究では、超重元素の性質の解明に向け、(1) ^{248}Cm 標的を利用した、超重元素の化学実験対象核種 ^{261a}Rf (半減期 68 秒), ^{262}Db (半減期 33.8 s) ならびにそれらの周辺核種の合成、(2) Db の化学実験に向けた、同族元素 Nb, Ta の放射性トレーサーの製造、そして(3) 5 族元素 Nb, Ta, Db のフッ化水素酸からの逆相抽出実験を行った。

(1) 近年、 ^{261a}Rf には半減期が数秒の自発核分裂性の核異性体があるとされているが、このような壊変特性の核種は以前より ^{262}Rf (半減期 47 ミリ秒) の核異性体であるとされてきていたため、この核種の同定を試みた。理研の線形加速器から供給される ^{18}O ビームを、電着法により調製した ^{248}Cm 回転式標的に照射し、 $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O}, xn)$ 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(PSD)と周りを取り囲むシリコン検出器により生成核の壊変事象を測定した。 ^{261a}Rf の励起関数は 94.8 MeV でピークを示し、これまでの報告とよく一致した。半減期数秒の自発核分裂性核種の励起関数も同じ 94.8 MeV でピークを示した。一方で、 ^{262}Rf と ^{260}Rf (半減期 21 ミリ秒) と帰属される自発核分裂事象を観測し、これらの励起関数は半減期数秒の自発核分裂性核種のものとは異なる形を示した。これにより、半減期数秒の自発核分裂性核種は ^{262}Rf の核異性体ではなく、 ^{261a}Rf の核異性体であると結論付けた。また、現在のところデータのばらつきが大きい $^{248}\text{Cm}(^{19}\text{F}, xn)$ 反応による ^{262}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}Db (半減期 27 秒) の合成を試みた。理研 AVF サイクロトロンから供給される ^{19}F ビームを ^{248}Cm 固定標的に照射して合成される生成核を、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。測定した $^{248}\text{Cm}(^{19}\text{F}, 5n)^{262}\text{Db}$ の励起関数は報告値と矛盾しなかったが、低い入射エネルギー 96.2 MeV においても、 ^{263}Db の壊変事象がはっきりとは観測できなかった。

(2) 105 番元素 Db の同族元素である Nb, Ta の化学実験に使用するため、比較的長寿命の核種である ^{95g}Nb (半減期 34.991 日), ^{179}Ta (半減期 1.82 年) の製造を行った。AVF サイクロトロンから供給される 14 MeV の陽子ビームを用い、 $^{\text{nat}}\text{Zr}(p, x)^{95g}\text{Nb}$ 反応ならびに

【別紙 2】

${}^{\text{nat}}\text{Hf}(p,x){}^{179}\text{Ta}$ 反応の励起関数をスタックホイル法により測定した。特に、 ${}^{\text{nat}}\text{Hf}(p,x){}^{179}\text{Ta}$ 反応についてはこれまでに報告されていた断面積より 40 倍近く高い値が得られたが、理論計算の結果は実験結果とよい一致を示した。24 MeV の重陽子ビームを用いても同様に ${}^{\text{nat}}\text{Zr}(d,x){}^{95}\text{Nb}$ 反応ならびに ${}^{\text{nat}}\text{Hf}(d,x){}^{179}\text{Ta}$ 反応の励起関数を測定した。 ${}^{\text{nat}}\text{Zr}(d,x){}^{95}\text{Nb}$ 反応の断面積はこれまでの報告より低い値を示し、 ${}^{\text{nat}}\text{Hf}(d,x){}^{179}\text{Ta}$ 反応の断面積データを初めて得ることができた。陽子ビームについて 14 MeV、重陽子ビームについて 24 MeV までの ${}^{95}\text{Nb}$, ${}^{179}\text{Ta}$ の積算収率を比較したところ、 ${}^{95}\text{Nb}$, ${}^{179}\text{Ta}$ ともに 24 MeV の重陽子ビームのほうが高いことが分かった。さらに、長寿命かつ γ 線放出核種である ${}^{182}\text{gTa}$ (半減期 114.74 日) を担体無添加の状態で行うことができるかを検討するために、50 MeV の α 粒子ビームを用いた ${}^{\text{nat}}\text{Hf}(\alpha,x){}^{182}\text{gTa}$ 反応の励起関数を測定し、断面積データを得た。 ${}^{182}\text{gTa}$ の低い積算収率のため、大強度ビームによる長時間の照射が必要になるものの、担体無添加の ${}^{182}\text{gTa}$ が製造可能であることがわかった。

(3) Nb, Ta の種々の濃度のフッ化水素酸からの溶媒抽出挙動を、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)を用いて調査したところ、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 $[\text{NbOF}_5]^{2-}$ からフッ化物 $[\text{NbF}_6]^{-}$ への変換、Ta についてはフッ化物錯形成 $[\text{TaF}_6]^{-} \rightarrow [\text{TaF}_7]^{2-}$ によるものと推測した。同様の挙動は TBP を担持させた樹脂を用いたバッチ固相抽出実験においても見られた。さらに、加速器で製造し、ガスジェット搬送してきた ${}^{90}\text{gNb}$ (半減期 14.60 時間)、 ${}^{178}\text{aTa}$ (半減期 2.36 時間) を用いて、自動迅速化学実験装置(ARCA)によるオンラインカラムクロマトグラフィーを行った。この実験による Ta の分配係数の値はバッチ実験を再現し、カラム実験において抽出平衡に達することが分かった。ここまでの結果を踏まえ、 ${}^{262}\text{Db}$ について、ARCA を用いて、TBP 樹脂により 1.0 M フッ酸からの抽出を試みたが、Db の抽出率は Nb と同様に、Ta よりかなり低い値を示した。これにより、Db は 1.0 M フッ酸中で Ta のようなフッ化物錯体をとらない可能性が示唆された。