

理化学研究所における超重元素の研究 (113番元素の発見)

理化学研究所 仁科加速器研究センター 超重元素研究グループ



作成(森本幸司)

1. はじめに

元素周期表が年々拡張されている事を御存じでしょうか。**どこまで重い元素が存在しうるのか**?これまで自然界に存在しない重い元素は原子炉や加速器等を使って人工的に合成されてきた。理論的には原子核の存在限界は更に大きな原子番号まで存在し得る事が予測されている。質量公式の一つであるKUTY公式による予測によれば、**陽子数126と中性子数228に二重**閉殻構造があり、比較的寿命の長い"安定の島"が存在する可能性がある。人類が到達しうる最も重い原子核を合成する試みは、原子核物理研究における最大の興味の一つであると言える。

理研を中心とする研究グループは、理研線形加速器(RILAC)とガス充填型反跳分離装置(GARIS)を用いて、2012年までに、3例の113番元素の合成に成功した[1-3]。合成には、亜鉛(Zn:原子番号30)とビスマス(Bi:原子番号83)の冷たい核融合反応(209Bi(70Zn,n)278113)を用いた。2015年12月、これらの成果と孫娘核である266Bhの合成の成果[4]に対し、国際純正・応用化学連合(IUPAC)と国際純粋・応用物理学連合(IUPAP)が推薦する委員で組織された合同作業部会(JWP)は、278113を正式に新元素であると認定し、発見者である理研の研究グループに命名権を与えるという決定がなされ[5]、アジア初、日本初の元素が周期表に誕生する事になった。2015年4月1日までに、研究グループにより元素名と元素記号が提案される。また、113番元素と同時に115,117,118番元素も新元素として認定され[5,6]、ロシアとアメリカの共同研究グループに命名権が与えられた。図1に2016年2月時点の元素周期表を示す。これで、元素周期表は第7周期まですべて埋まることとなった。

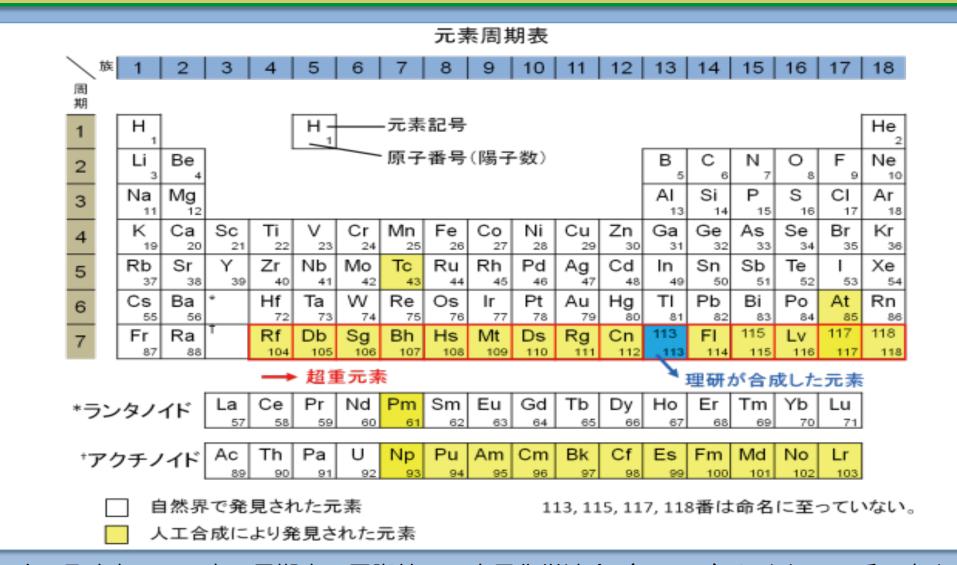


図1 2016年2月時点での元素の周期表。国際純正・応用化学連合(IUPAC)により118番元素まで承認され、第7周期まですべて埋まることとなった。

2. 核図表上の2つの研究領域

現在の新元素探索は、加速された重イオンビームを標的核に照射し融合(重イオン核融合)させる事により新元素を合成する手法が主流となっている。この重イオン核融合は、照射する核と標的に用いる核の組み合わせにより、さらに2つの手法に分類される。図2の核図表最先端部に、その2つの手法により研究されている領域を示した。

青い楕円で囲まれた領域は、日本、ドイツ、アメリカの研究グループにより研究されている領域である。この領域は、中性子数や陽子数が魔法数であり安定度の高い²⁰⁸Pbまたは²⁰⁹Biを標的として用いることにより、融合した複合核の励起エネルギーを低く合成する、いわゆる冷たい核融合(Cold fusion)反応を用いて研究されている。この手法で合成される原子核は、その崩壊チェーンが既知の原子核につながり、生成した原子核の原子番号と質量数を実験的に決定する事が出来る我々の研究グループは、このCold fusion反応を用いて113番元素を合成する事に成功した。その崩壊は既知の原子核に到達し、その既知核の崩壊データと良く一致している。

赤い楕円で囲まれた領域は、ロシアとアメリカの国際共同グループにより研究されている領域である。この領域は、²³⁸U、²⁴⁴Pu、²⁴⁸Cm等のアクチノイドの標的に⁴⁸Caのビームを照射して<mark>励起エネルギーの高い複合核を合成</mark>する、いわゆる**熱い核融合(Hot fusion)**反応を用いて研究されている。 この手法で合成される原子核は、その崩壊チェーンが未知核の自発核分裂で終了する。

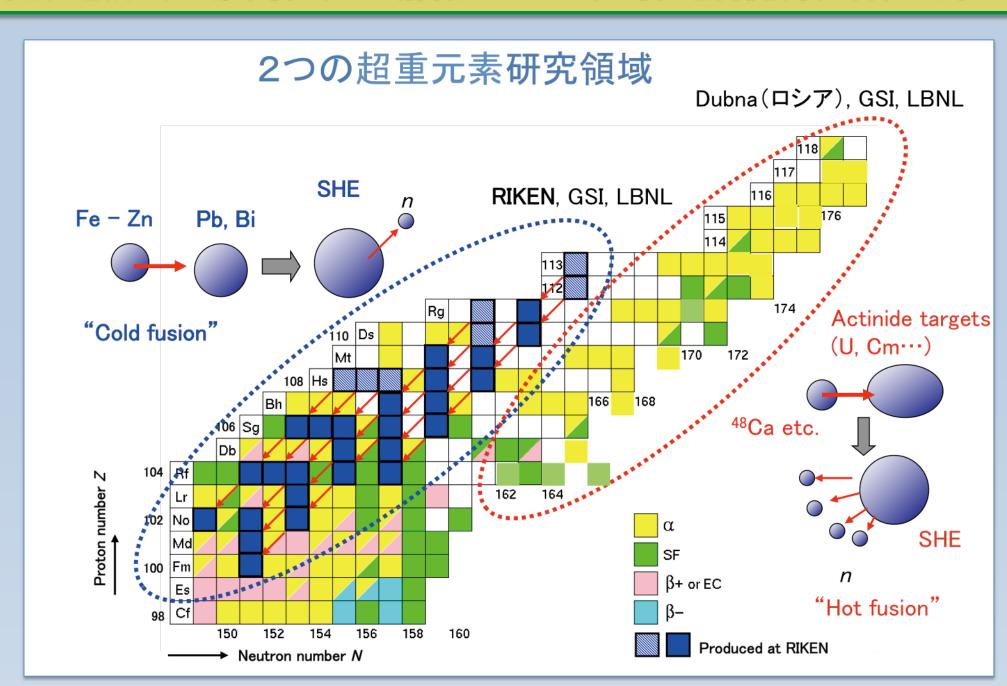


図2 超重元素の核図表上での研究領域。青い楕円で囲まれた領域は、日本、ドイツ、アメリカの研究グループにより、Cold fusion反応を用いて研究さている領域。赤い楕円で囲まれた領域は、ロシアとアメリカの国際共同グループにより、Hot fusion反応を用いて研究されている領域。

3. 実験の概要

理研における超重元素の研究は、重イオン加速器と気体充填型反跳分離器Gas-filled Recoil Ion Separator (GARIS)と呼ばれる装置を用いて行われます。GARISは森田浩介博士により開発され、 当初理研リングサイクロトロンRIKEN Ring Cyclotron (RRC)と組み合わされ重元素合成の研究が 行われ、新同位体¹⁹⁷Rn, ¹⁹⁶Rn, ²⁰⁰Fr, ¹⁹⁹Fr等の発見で主な成果をあげました。しかし、超重元素 の融合反応にはRRCでは加速可能な最低エネルギーが高すぎる事や反応断面積が小さい事から、よ り最適なエネルギーかつより大強度のビーム供給が渇望されていました。そこで、RIKEN Linear Accelerator (RILAC)の最高エネルギー向上と大強度ビーム化への対策として18GHz-ECRイオン源、 周波数可変RFQ加速器、Charge State Multiplier(CSM)加速器が新たに開発されRILACに付与さ れました。GARISはRILAC照射室へ移設され、同時に各電磁石間距離が最適化され収集効率の改善 がなされ、大強度重イオンビームを利用した効率の高い超重元素探索が可能となりました。図3に、 理研RIBF加速器施設の概略図を示しました。2001年までに移設作業および基礎データの蓄積を終 え、2002年よりRILAC+GARISを利用して113番新元素の発見を目標とした実験が開始された。 融合反応には鉛やビスマスを標的とするCold fusion反応を採用した。この方法はロシアとアメリカ の共同研究グループが採用しているHot fusion反応よりも<u>融合断面積の観点では不利</u>と予想されて いたが、合成された核の**α崩壊が既知の核に到達する可能性が高い**事を重視し採用しました。まず、 ドイツ重イオン科学研究所(GSI)のグループによって行われた108番,110番,111番,112番元素実験 の追試を行ない、報告されている崩壊連鎖の確認、**複合核の励起エネルギー依存性の確認**そして GARISの中を飛行する超重元素の**平衡電荷の実験式の導出**を行ないました。特に、112番元素の追 試実験の成功によりGSIが報告していた112番元素が新元素として認定されました。そして2003年、 ついに113番新元素探索の準備がすべて整い長期にわたる実験が開始されたのです。

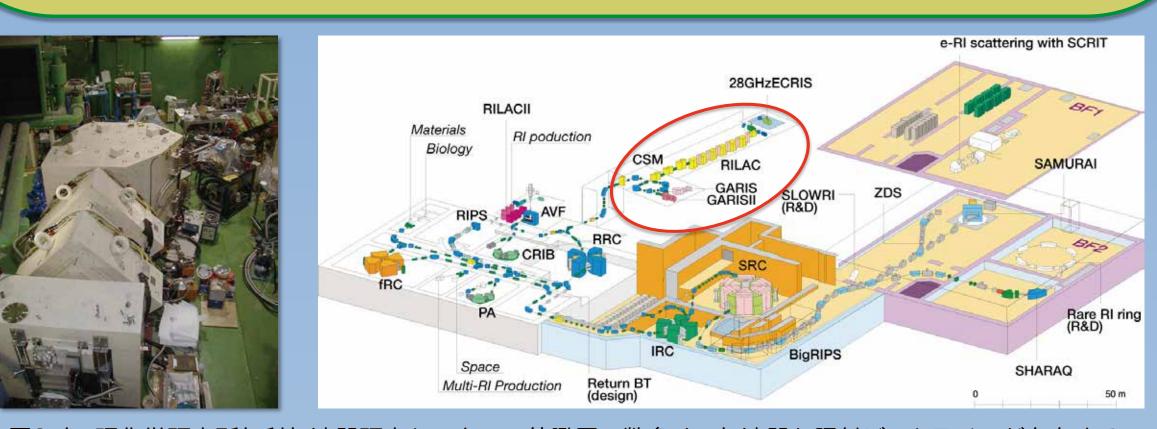


図3 右: 理化学研究所仁科加速器研究センターの俯瞰図。数多くの加速器と照射ビームラインが存在するが、超重元素探索実験は赤丸で示された重イオン線形化加速器(RILAC)施設を利用している。左: RILAC 照射室に設置されているGARIS。

4. 実験装置

実験は、重イオンビーム(70 Zn)を標的核(209 Bi)に照射し融合反応を起こさせて超重元素を合成し、GARISを用いて目的としない粒子から分離し、検出器へ導入して崩壊過程を観測する事により行われる。図4に、 278 113が合成される過程を示した。融合した重い核(複合核)は、通常励起状態にあり、1個ないし数個の中性子放出によって脱励起する。脱励起した蒸発残留核は入射粒子とほぼ同じ運動量をもって標的から飛び出す。飛行している蒸発残留核は、ビームやその他の目的としない粒子からGARISによりバックグランドとなる粒子と分離され、飛行時間検出器で飛行時間を測定された後、焦点面検出器内に打ち込まれ運動エネルギーが測定される。測定された飛行時間と運動エネルギーから、大まかな質量が導出される。焦点面検出器に打ち込まれた蒸発残留核は、検出器の同じ場所に留まり崩壊する。その場所で連続的に崩壊する α 線のエネルギーと崩壊時間を検出する事によって、一連の崩壊連鎖の測定が行われる。未知の崩壊エネルギーと崩壊時間を持った核種が崩壊して、既知の崩壊エネルギーと崩壊時間を持った核種が崩壊して、既知の崩壊エネルギーと崩壊時間を持った核種が崩壊して、既知の崩壊エネルギーと崩壊時間を持った核種が高速して、既知の崩壊エネルギーと崩壊時間を持った核種が高速して、既知の崩壊エネルギーと崩壊時間を持った核種が高速して、既知の崩壊エネルギーと崩壊時間を持った核種にした実験セットアップを示した。



図4 113番元素が合成される過程。²⁰⁹Bi標的に⁷⁰Znビームを照射して²⁷⁸113を合成した。 この時の原子核反応を²⁰⁹Bi(⁷⁰Zn, n)²⁷⁸113と表記する。

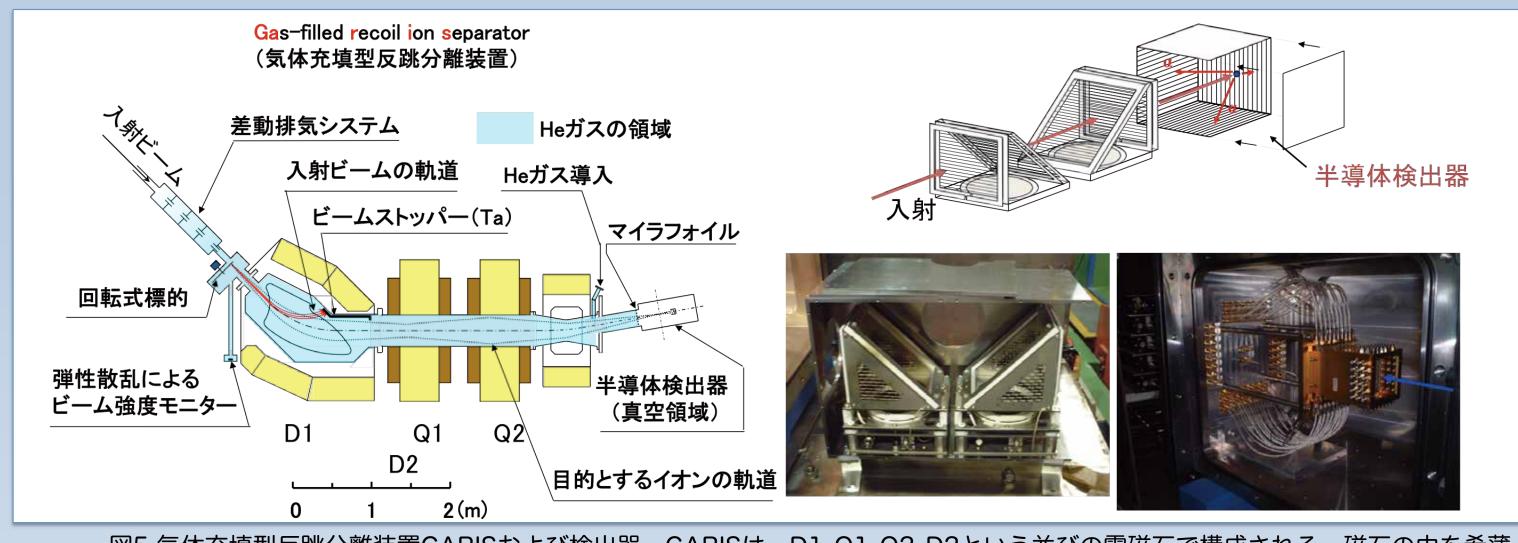
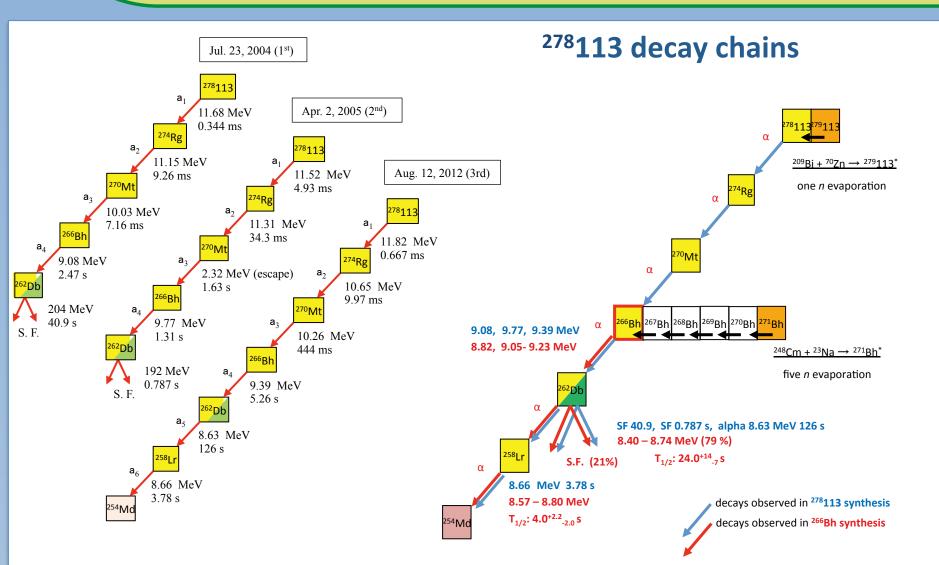
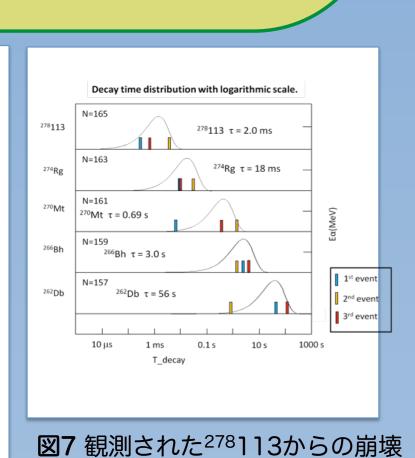


図5 気体充填型反跳分離装置GARISおよび検出器。GARISは、D1-Q1-Q2-D2という並びの電磁石で構成される。磁石の中を希薄な気体(He)で満たして使用するのが特徴。磁石の下流に、飛行時間検出器と半導体検出器 5 枚を箱状に配置した焦点面検出器が設置される。また、大強度ビームにより標的が溶解したり破壊したりするのを避けるために回転式標的が採用されている。

5. 実験結果

理研における113番元素探索実験には、²⁰⁹Bi標的に⁷⁰Znビームを照射しその融合核である²⁷⁸113 番元素を生成する反応が選択された。前述したCold fusion反応である。生成された融合核が α 崩壊 を繰り返し既知の原子核にたどり着く可能性が高い事が予測されていたからである。113番元素 ²⁷⁸113が合成される様子を図4に示した。実験は、2003年9月に開始され、3例の崩壊チェーンを 観測し、2012年10月に終了した。延べ照射日数は576日におよび、22fb(フェムトバーン)という 原子核実験としては史上最小の生成断面積を記録する実験となった。 まず、209Bi(70Zn, n)278113 反応により新元素である 278 113を起点とした 4 つの 2 線崩壊と自発核分裂からなる崩壊連鎖が 2004,2005年にそれぞれ確認された[1.2]。 崩壊連鎖は既知の核である²⁶⁶Bhと²⁶²Dbに到達して いる。しかしながら、既知核である²⁶⁶Bhと²⁶²Dbの報告例の統計が少ない事、2例の崩壊連鎖では 統計が少ない事から、²⁷⁸113の孫娘核である²⁶⁶Bhを生成する実験が計画され実行された。実験は 2009年に、²⁴⁸Cm(²³Na,5n)²⁶⁶Bh反応を用いて行われた。この実験により**14例の²⁶⁶Bhを起点とす る崩壊連鎖を観測**し、²⁶⁶Bhとその娘核である²⁶²Dbを十分な統計量を観測することにより<u>既知核と</u> <u>して確立</u>させた[4]。 その後、²⁷⁸113の3例目を狙う実験を継続し、2012年8月に6つのα崩壊から なる崩壊連鎖を観測した[3]。新たに観測された崩壊連鎖は、**既知核である**²⁵⁸Lr, ²⁵⁴Mdに到達し、 先に観測された²⁷⁸113を起点とする崩壊連鎖および²⁶⁶Bhを起点とする崩壊連鎖とも良く一致して おり、²⁷⁸113の生成を確固たる物とした。図6に²⁷⁸113を起点とした3つの崩壊連鎖と、²⁶⁶Bhを 起点とする崩壊連鎖との崩壊様式の比較を図示した。図7には観測された3つの崩壊連鎖の崩壊時間 分布を示した。**3つの崩壊時間分布の系統性が良く一致**している事から、<u>3つの崩壊が同一の原子核</u> からの崩壊であると結論した。





連鎖の各アイソトープ別の崩壊時

間分布。横軸は崩壊時間。上から、3っつのチェーンで観測され、 それぞれ²⁷⁸113, ²⁷⁴Rg, ²⁶⁶Bh, ²⁶²Dbと同定した核種からの崩壊時

図6 (左) ²⁷⁸113を起点とする3例の崩壊連鎖。2012年8月12日に、6つのα崩壊からなる崩壊連鎖を観測した。(右)²⁷⁸113を起点とする崩壊様式と、²⁶⁶Bhを起点とする崩壊様式の比較。相方の²⁶⁶Bh, ²⁶²Dbおよび²⁵⁸Lrの崩壊様式に矛盾が無い事が確認された。

6. さらに重い元素へ

当研究グループは、さらなる新元素の発見を目指し準備を進めている。113番元素の生成・分離に使用されたGARISは仕様上、原子番号116の収集が限界であるため、新たなガス充填型反跳核分離装置GARIS-II[5]を開発した。GARIS-IIは、GARISより<u>蒸発残留核の速度が遅い領域において収集</u>効率が高く、かつバックグランドが少ない設計となっている。すでにビームを使用した性能試験は終了しており、今後2年以内をめどに、新たな新元素の探索を開始する予定である。248Cm(51V,xn)^{299-x}[119]反応を用いて119番新元素、²⁴⁸Cm(54Cr,xn)^{302-x}[120]反応を用いての120番新元素の探索を検討している。



図8 新たに開発された ガス充填型反跳分離装 置(GARIS-II)。5つの電 磁石(Q1-D1-Q2-Q3-D2)で構成されている。

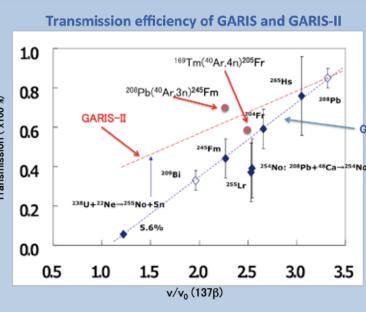


図9 GARISとGARIS-IIの収集効率の比較。横軸は蒸発残留核の速度。縦軸は収集効率。速度が遅い領域(hot fusion方により合成される蒸発残留核の速度領域)において効率が向上している。

7. 最後に

本研究は、理化学研究所、東京大学、大阪大学、新潟大学、山形大学、埼玉大学、東京理科大学、東北大学、筑波大学、日本原子力研究開発機構、中国科学院近代物理研究所、中国科学院高エネルギー研究所の共同研究者や大学院生が参加し遂行されました。CSMを建設するにあたり、東京大学原子核科学研究センターからの資金協力を得ています。また、113番元素合成に関する研究の一部は文部科学省科学研究費補助金19002005(特別推進研究)の助成によって実施されました。

References

- 1) K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **73**, 2593(2004).
- 2) K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 045001(2007).
- 3) K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 103201(2012).
- 4) K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 064201(2009).
- 5) D. Kaji, K. Morimoto, *et al.*, Nucl. Inst. Meth. **B**317, 311(2013)