



JP0050560

JAERI-Conf
2000-002



重元素核科学ワークショップ
— 超アクチノイド・超重元素科学の展望 —
1999年7月21日-22日、日本原子力研究所、東海村

2000年3月

(編) 永目諭一郎・羽場宏光・池添 博

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問い合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2000

編集兼発行 日本原子力研究所

重元素核科学ワークショップ —超アクチノイド・超重元素科学の展望—

1999年7月21日—22日, 日本原子力研究所, 東海村

日本原子力研究所先端基礎研究センター
(編) 永目諭一郎・羽場 宏光・池添 博

(2000年1月26日受理)

重元素核科学ワークショップ—超アクチノイド・超重元素科学の展望—が, 先端基礎研究センター第163回基礎科学セミナーとして超アクチノイド元素核化学研究グループの主催で, 1999年7月21日と22日の両日, 日本原子力研究所東海研究所で行われた。今年, 原子番号114を超える超重元素合成に関する報告がいくつかなされ, また9月には第1回超アクチノイド元素の化学と物理に関する国際会議 (1st International Conference on the Chemistry and Physics of the Transactinide Elements: TAN99) がドイツで開催されるなど重元素科学の分野では大きな進歩の年といえるとともに新たな出発の年ともいえる。こういう世界情勢の中で, 原研においてもタンデム加速器施設を用いて諸大学との研究協力により反跳生成核質量分離装置 (JAERI-RMS) による106番元素 Sg 核の合成実験やオンライン同位体分離器を用いた新アクチノイド核種の発見, さらにアクチノイドの核分裂機構の研究等に成果を取ってきている。また超アクチノイド元素の化学挙動研究のプロジェクトも新たにスタートし, 実験装置の整備などを開始したところである。本ワークショップでは, 重元素核科学の最近の状況を把握するとともに, 今後原研のタンデム加速器施設を, あるいは我が国の他の加速器施設を用いた今後の重元素核科学の展望について, 理論と実験の両面から活発な討論が行われた。参加者は所外の大学, 研究所から35人, 所内から23人であった。なかでも多くの大学院生の参加を得られたことは, 今後のこの分野の発展を期待させるものと考えられる。本稿は, このワークショップで発表された講演の報告集である。最後に, 特別講演として重元素科学の総合報告をしていただいた, ドイツ・カッセル (Kassel) 大学の Fricke 教授に感謝する。

Proceedings of the Workshop on the Nuclear Sciences of the Heaviest Elements

July 21-22, 1999, JAERI, Tokai, Japan

(Eds.) Yuichiro NAGAME, Hiromitsu HABA and Hiroshi IKEZOE

Advanced Science Research Center
(Tokai Site)
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 26, 2000)

The workshop on the nuclear sciences of the heaviest elements took place on July 21-22, 1999 at the Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI), Tokai. Approximately 40 scientists and 15 graduate students participated in the workshop which was organized by the Advanced Science Research Center, JAERI. The successful syntheses of three new super-heavy elements in 1999, $Z=114$ at the Joint Institute for Nuclear Research in Dubna, Russia, and $Z=118$ (with $Z=116$ following from α -decay of $Z=118$) at the Lawrence Berkeley National Laboratory (LBNL) in USA, are tremendous progress in the field of the heavy element research. The 1st International Conference on the Chemistry and Physics of the Transactinide Elements (TAN99) was held in Germany from September 26 to 30, 1999 to discuss in a larger context all scientific aspects of the heaviest elements. Thus, it was timely to hold the present domestic workshop to summarize what has been done in recent years, to see what has come true, and to discuss the perspectives in the near future. The subjects in the workshop were classified into; (1) synthesis of heavy elements, (2) decay properties of heavy nuclei, (3) chemistry of the heaviest elements, and (4) future plans of the heavy element research in Japan. This volume contains the papers presented in the workshop.

We are grateful to all the participants for their stimulating contributions, and especially we are indebted to Prof. B. Fricke of Univ. Kassel for his excellent review talk on the heaviest elements.

Keywords: Workshop Proceedings, Transactinide Elements, Super-heavy Elements, Synthesis of Heavy Elements, Decay Properties of Heavy Nuclei, Chemical Behavior of the Heaviest Elements

目 次

1. Frontiers of the Heaviest Elements -towards an Understanding of the Physical and Chemical Behaviour of the Elements-	1
B. Fricke (Univ. of Kassel)	
2. 観測可能な超重原子核の予測	7
太田 雅久 (甲南大理学部物理学科)	
3. 原研での重元素・重核合成	43
池添 博 (原研先端基礎研究センター)	
4. 中性子過剰核を用いた $^{11,10,9}\text{Be}+^{209}\text{Bi}$ 融合反応断面積の測定	51
吉田 敦 (理研放射線研究室)	
5. 重核の崩壊特性と質量公式	55
宇野 正宏 (文部省初等中等教育局)	
6. 超重元素の電子状態	64
斎藤 晋 (東工大理学部物理学科)	
7. 超アクチノイド元素化合物の電子状態—理論 —Rf 元素の化学挙動実験への理論的アプローチ	67
平田 勝 (原研先端基礎研究センター)	
8. 重・超アクチノイド元素の化学—実験 — $_{104}\text{Rf}$ のイオン交換挙動を中心に原研の現状と計画—	71
塚田 和明 (原研先端基礎研究センター)	
9. 重核の核分裂特性—核分裂障壁はどうやって求めるか—	75
岩本 昭 (原研物質科学研究部)	
10. ドゥブナでの長寿命 Sg 核種探索実験	82
小林 義男 (理研応用原子核物理研究室)	
11. アクチノイド内包フラーレンの化学	86
末木 啓介 (都立大院理学研究科)	
12. 原研における重元素核化学—今後の計画	90
永目 諭一郎 (原研先端基礎研究センター)	
13. 理研における重元素研究計画	94
工藤 久昭 (新潟大理学部化学科)	
14. KUR-阪大「重元素の核化学」研究プロジェクト	99
篠原 厚 (京大炉原子炉安全管理研究部門)	
付表	101

Contents

1. Frontiers of the Heaviest Elements -towards an Understanding of the Physical and Chemical Behaviour of the Elements-	1
B. Fricke (Univ. of Kassel)	
2. On the Optimum Entrance Reaction Channel for the Synthesis of Superheavy Elements	7
M. Ohta (Konan Univ.)	
3. Fusion of Heavy Deformed Nuclei	43
H. Ikezoe (JAERI)	
4. Fusion Cross Section of Neutron Rich RI Beam $^{11,10,9}\text{Be}+^{209}\text{Bi}$	51
A. Yoshida (RIKEN)	
5. Decay Properties of Heavier Nuclei and Mass Formula	55
M. Uno (Ministry of Education, Sci., Sport, and Culture)	
6. Electronic Structure of Superheavy Elements	64
Susumu Saito (Tokyo Inst. of Technol.)	
7. Electronic Structure of Transactinide Compounds -Theory -Theoretical Approach to the Experimental Chemistry of Rf-	67
M. Hirata (JAERI)	
8. Chemistry of Heavy- and Trans-actinide Elements -Experiment-	71
K. Tsukada (JAERI)	
9. Characteristics of the Fission of Heavy Nuclei -How to Obtain the Fission Barriers?-	75
A. Iwamoto (JAERI)	
10. Experiments on Synthesis of Sg Isotopes with Relatively Long Half-lives in Dubna	82
Y. Kobayashi (RIKEN)	
11. Chemistry of Endohedral Actinoids Metallofullerene	86
K. Sueki (Tokyo Metropolitan Univ.)	
12. Reseach Plans of Heavy Element Nuclear Chemistry in JAERI	90
Y. Nagame (JAERI)	
13. Heavy Element Research Plan at RIKEN	94
H. Kudo (Niigata Univ.)	
14. Reseach Plans for Nuclear Chemistry of Heavy Elements at KUR and Osaka Univ.	99
A. Shinohara (KUR)	
Appendix	101



**1 . Workshop on
Nuclear Chemistry and Physics of Heavy Elements
JAERI, Tokai 21.7.1999**

Summary of the Talk by B. Fricke, University of Kassel / Germany on
"Frontiers of the heaviest elements - towards an understanding of the physical and chemical behaviour of the elements"

The description of the chemical behaviour of the heaviest elements has directly to do with a good relativistic description. In the limit of very low charges (at the beginning of the Periodic System) the non-relativistic description looks of course very much like the relativistic description and the problem is that we have learned to think in terms of the solution of the non-relativistic Schrödinger equation.

In the first part I will therefore try to discuss the difference between the non-relativistic and the relativistic description. The talk has been structured as follows: first a brief discussion is given for the relativistic effects of 1-electron atoms which then will be extended to many-electron atoms. In the third section relativistic calculations of molecules will be discussed.

I. One-electron-atoms

non-relativistic
Schrödinger-equation

relativistic
Dirac-equation

The radial-equation is one
differential equation of second order

The radial-equations are two
differential equations of first order

One radial function P
Radial density has (n-l-1) nodes

Two radial functions
Radial density has no "exact" nodes

Angular function has l nodes

Angular function has no "exact" nodes

Good quantum numbers:
n, l, m_l, parity

n, j, m_j, parity

for l > 0 there is only
one state for a given n and l

for l > 0 there are two states j₁ = l + 1/2
and j₂ = l - 1/2 (spin-orbit splitting)

The comparison between the non-relativistic and relativistic calculations can be summarized as follows:

- strong radial contraction of the density $|P|^2 + |Q|^2$, especially for s and p states
- strong increase of the electron density near the nucleus

These are the direct relativistic effects

In addition the indirect relativistic effects are showing up. They arise in many-electron systems when the inner electrons shield the outer electrons due to the direct relativistic effect stronger than in the non-relativistic case. This effect can best be seen in the case of the outer d and especially the f wavefunctions.

"Frontiers of the heaviest elements - towards an understanding of the physical and chemical behaviour of the elements"

B. Fricke, University of Kassel / Germany on

The description of the chemical behaviour of the heaviest elements has directly to do with a good relativistic description. In the limit of very low charges (at the beginning of the Periodic System) the non-relativistic description looks of course very much like the relativistic description and the problem is that we have learned to think in terms of the solution of the non-relativistic Schrödinger equation.

In the first part I will therefore try to discuss the difference between the non-relativistic and the relativistic description. The talk has been structured as follows: first a brief discussion is given for the relativistic effects of 1-electron atoms which then will be extended to many-electron atoms. In the third section relativistic calculations of molecules will be discussed.

I. One-electron-atoms

<u>non-relativistic</u>	<u>relativistic</u>
Schrödinger-equation	Dirac-equation
-----	-----
The radial-equation is one differential equation of second order	The radial-equations are two differential equations of first order
-----	-----
One radial function P Radial density has (n-l-1) nodes	Two radial functions Radial density has no "exact" nodes
-----	-----
Angular function has l nodes	Angular function has no "exact" nodes
-----	-----
Good quantum numbers: n, l, m _l , parity	n, j, m _j , parity
-----	-----
for l > 0 there is only one state for a given n and l	for l > 0 there are two states j ₁ = l + ½ and j ₂ = l - ½ (spin-orbit splitting)
-----	-----

The comparison between the non-relativistic and relativistic calculations can be summarized as follows:

- strong radial contraction of the density $|P|^2 + |Q|^2$, especially for s and p states
- strong increase of the electron density near the nucleus

These are the direct relativistic effects

In addition the indirect relativistic effects are showing up. They arise in many-electron systems when the inner electrons shield the outer electrons due to the direct relativistic effect stronger than in the non-relativistic case. This effect can best be seen in the case of the outer d and especially the f wavefunctions.

II. Many-electron-atoms

One has to solve the stationary Schrödinger- resp. Dirac-equation $\mathbf{H}_e |\Psi\rangle = \mathbf{E} |\Psi\rangle$

In order to solve this equation one has to choose:

- 1) Ansatz for the Hamiltonoperator $\mathbf{H}_e = \dots$
- 2) Ansatz for the wavefunction $|\Psi\rangle = \dots$

In the relativistic case the Hamiltonian is

$$\mathbf{H}_e = \sum_i (\alpha p_i) + (\beta - 1) mc^2 + V_n(r_i) + \sum_{ij} \frac{e^2}{|r_i - r_j|}$$

2a) With the ansatz of one Slater-determinant $|\alpha\rangle$ for the wavefunction one gets the averaged Dirac-Fock equations after the variational procedure.

2b) A linear combination of Slater-Determinants allows to construct wavefunctions with good angular momenta. This kind of functions are usually called: Configuration State Functions (CSF) $|\Psi\rangle = |\text{CSF}\rangle = \sum_i a_i |\alpha_i\rangle$.

After the variational procedure this leads to the Dirac-Fock (DF) equations which have good quantum numbers J , M_j and Parity

Procedures to go beyond Hartree- or Dirac-Fock

The additional energy which goes beyond HF or DF is defined as correlation energy: $E_{\text{corr}} = E_{\text{exact}} - E_{\text{HF or DF}}$

There are two general options to perform such calculations:

- a) using the variational principle and
- b) using perturbation theory

Here, I just would like to name the methods:

- aa) Configuration interaction method (CI)
- ab) Multiconfiguration Hartree- or Dirac-Fock method (MCDF)
- ba) Many Body Perturbation Theory (MBPT)

First atomic calculations for the heaviest elements:

Atomic Dirac-Fock-Slater (DFS) calculations

1967 to 1972 for all elements above 100 up to 172

A complete first survey of the calculations and their chemical interpretation are given by B. Fricke, W. Greiner and J.T. Waber in: *Theor. Chim. Acta* **21**, 235 (1971)

The Periodic System in its continuation till element 172 is attached as Figure.

Atomic Dirac-Fock Calculations (DF)

1973 for Element 111, Eka -Gold

1974 for Element 103 (Lawrencium)

(the general accuracy $\approx \pm 1$ to 2 eV)

Atomic Multiconfiguration Dirac-Fock (MCDF) Calculations

1980 Element 103 (Lawrencium)

(general accuracy $\approx \pm 0,5$ to 1 eV)

Atomic large scale Multiconfiguration Dirac-Fock (MCDF) Calculations

1990 Element 104

1993 Element 105

(general accuracy $\approx \pm 0,3$ to 0,5 eV)

Atomic Many Body Perturbation Theory (MBPT) Calculations

since 1992 results on the elements 104, 105, 111, 118

(accuracy $\approx \pm 0,1$ eV)

III. Molecular Calculations

There exist many thousands of non-relativistic (quantum chemical) calculations of all sorts of molecules in many approximations. The most famous code is: Gaussian 98.

But there is not so much work on full relativistic calculations.

The general procedure to describe molecules is very much the same as for atoms:

- choice of the Hamiltonian
- choice of the wavefunctions

Usually Slaterdeterminants or sums of Slaterdeterminants built out of symmetry-orbitals are used which are constructed from basis functions.

In the non-relativistic molecular calculations on the level of HF, HF-CI or MBPT usually basis functions are used which are of Slater orbital or Gaussian orbital type.

Scalar relativistic calculations

In this type of calculations the relativistic effects (usually the mass-velocity term) are added in perturbation theory. The wavefunctions are either one- or two-component approximations (instead of the 4-component full relativistic wavefunction). A few examples are the Baerends Code (ADF, Amsterdam Density Functional Code) and the calculations by Hess in Bonn since around 1992 with the possibility to continue with CI- and Coupled Cluster calculations. Results for large clusters are achieved by the group of Rösch in Munich.

Relativistic Molecular Calculations

Since 1973 Ellis, Rosen and Adachi have been developing the DVM (Discrete Variational) $X\alpha$ -code with numerical basis functions on a Dirac-Fock-Slater level of the density functional theory. The problem with this code is the numerical inaccuracy which up to now did not allow to calculate the Total Energy.

In 1980 first DF calculations for a few diatomic molecules in the monopole approximatin by Pyykkö (AuH).

Since 1989 DF calculations of small molecules by Dyall, Faegri, Malli with Gaussian functions.

Since 1993 we have been improving the DVM $X\alpha$ -code so that now Total Energies and Geometries can be calculated (with improved integration scheme and improved density functionals (GGA))

a) Molecular Dirac-Fock-Slater Discrete Variational Calculations (DVM- $X\alpha$)

A very first attempt for the actinides and transactinides was 1978 for (E110) F_6 and 1979 for UF_5 by Rosen et al.

Since 1990 systematic studies for Halides, Oxi-Halides and Di-Oxi-Halides of the elements 104, 105 and 106 by V. Pershina, T. Bartug et al.

Parallel H. Nakamatsu, M. Hirata, J. Onoe et al. performed a large number of DVM $X\alpha$ -calculations for actinides and started for transactinides.

But: all these calculations are not Total Energy calculations!

b) Molecular Dirac-Fock-GGA Total Energy Calculations

Since 1993 we have been developing and improving the code (Kassel group plus T. Bartug, M. Hirata, H. Nakamatsu...) to calculate potential energy curves, dissociation energies, total bond energies, bond distances and geometries, effective charges, overlap population, etc)

But: still a number of problems have to be solved and approximations have to be improved (especially the exchange correlation potentials).

Summary

Achievements for the ab-initio full relativistic LCAO calculations of molecules during the last 15 years:

- much bigger and faster computers
- very accurate numerical integration routines (the accuracy is now better than 10^{-7} ; DVM only $\approx 10^{-3}$)
- much improved density functionals (in DVM simple Slater approximation $\approx p^{1/3}$; now full relativistic general gradient approximation (GGA) is included)

The Figure which is included here is the Continuation of the Periodic Table of the Elements up to Element 172.

This is taken from: B. Fricke et al., Theor. Chim. Acta. **21**, 235 (1971), where the Chemistry of all elements above 100 is discussed for the first time.

Das Periodensystem der Elemente in der Erweiterung bis $Z = 172$

B.Fricke, W. Greiner und J.T. Waber, *Theor. Chim. Acta* **21**, 235 (1971)

3	Na 11	Mg 12																	Al 13	Si 14	P 15	S 16	Cl 17	Ar 18																						
4	K 19	Ca 20	Sc 21											Ti 22	V 23	Cr 24	Mn 25	Fe 26	Co 27	Ni 28	Cu 29	Zn 30	Ga 31	Ge 32	As 33	Se 34	Br 35	Kr 36																		
5	Rb 37	Sr 38	Y 39															Zr 40	Nb 41	Mo 42	Tc 43	Ru 44	Rh 45	Pd 46	Ag 47	Cd 48	In 49	Sn 50	Sb 51	Te 52	I 53	Xe 54														
6	Cs 55	Ba 56	La 57															Hf 72	Ta 73	W 74	Re 75	Os 76	Ir 77	Pt 78	Au 79	Hg 80	Tl 81	Pb 82	Bi 83	Po 84	At 85	Rn 86														
7	Fr 87	Ra 88	Ac 89															Rf 104	Db 105	Sg 106	Bh 107	Hs 108	Mt 109	Uu 110	Uub 111	Uuc 112	Uud 113	Uue 114	Uuq 115	Uur 116	Uus 117	Uut 118														
8	119	120	121	122	123	124	125	126	127	128	129	130	131	132	133	134	135	136	137	138	139	140	141	142	143	144	145	146	147	148	149	150	151	152	153	154	155	156	157	158	159	160	161	162	163	164
9	165	166															167	168	169	170	171	172																								





2. 観測可能な超重原子核の予測
On the optimum entrance reaction channel
for the synthesis of superheavy elements

太田 雅久

Masahisa OHTA

甲南大学 理学部 物理教室

Department of Physics, Konan University,

Okamoto, Kobe 658-0072, Japan

Keywords : Evaporation Residue Cross Section, Superheavy Element

Abstract: Using the three-dimensional Langevin equation and the one- or two-dimensional Smoluchovski equation, a time development of a nuclear shape of reaction system including the configuration concerning with the process of kinetic energy dissipation, has been calculated to get the evaporation residue cross section for several reaction channels in superheavy mass region around $Z = 114$. The calculation is extremely time consuming and it is not easy impossible to search systematically the optimum reaction channel for the of new elements. In order to contribute to the effective preliminary investigation which entrance channele is more suitable for the synthesis of elements in superheavy mass region, we propose an empirical cross section formula which is derived from the knowledge obtained so far in our calculations. This formula is a kind of extrapolation from region around $Z = 114$ to the other mass region, and is usefule for not only experimentalists but theoreticians to proceed their investigation to the next step. The validity and the essential point of the open problem concerning with the fusion-fission dynamics in superheavy mass regin are reported. This formula will be a great help for understanding which quantities determine the evaporation residue cross section and how the behaviour of there quantities connect with the physical concept.

1. はじめに

超重原子核領域（定まった定義はないが、陽子数114を中心とする原子核の領域）で新しい原子核、或るいは元素を合成しようとする実験はドイツのGSI[1]、ロシアのドゥブナ[2]、アメリカのバークレーや日本の理化学研究所、原子力研究所で計画或るいは実行されている。断面積はほとんどがピコバーン程度であるため、現在の実験技術の限界である。合成に用いられる方法は二つの原子核の融合反応で、断面積が最も大きいと予想される標的核と入射核の組み合わせと同時に断面積が最大と予想される入射エネルギーを選ぶのが決め手となる。従って、超重原子核領域での原子核どうしの衝突における融合反応機構及び形成された複合核が分裂或るいは中性子を放出する崩壊機構の理論的研究が重要となる。

超重原子核領域に複合核をつくる融合反応機構は、入射チャネルの質量対称性に強く依存するが、質量対称性 ($\alpha = (A_1 - A_2)/(A_1 + A_2)$, A_1 及び A_2 は衝突する原子核の質量数) が0に近い場合（質量対称性が良い場合）、複合核の陽子数がおおよそ90を境にして大きく異なる。陽子数が少ない場合、二つの入射核の接触点での中心間距離が、複合核の分裂に対する鞍部点での分裂断片間の相対距離より内側にあるため、相対的なクーロン障壁（融合障壁）を越えてしまうと非常に大きな確率で融合してしまう。これに反して、陽子数が多くなると、融合障壁を越えても、まだ鞍部点を分裂過程と逆の方向で越えないと融合領域に入らない。いわゆる融合妨害（fusion hindrance）による融合確率の極度の低下に直面する。この妨害の程度は入射チャネルの質量対称性がおおよそ $\alpha = 0.6$ の附近にあるブジナロ・ギャロン点を越えて大きくなると消滅してしまう。従って、任意の α の値に対応する複合核形成確率を正しく評価する必要がある。

陽子数が114に近い複合核を合成するのに、もう一つ重要な因子は分裂による崩壊と中性子放出による崩壊の競合である。蒸発残留核を得るためには分裂する前に冷却しなければならない。この附近の原子核は古典的な液滴模型での分裂障壁はほとんど存在せず、基底状態で、或るいは低い励起状態（中性子放出の閾値よりも低い励起状態）で原子核を

分裂から守っているのはシェル効果による分裂障壁である。この分裂障壁は変形度の違いによるシェル効果エネルギーの差によって生じる。シェル効果は、一般に原子核の温度に依存する。二つの原子核が接触し、相対運動エネルギーが内部エネルギーとして散逸した状態では比較的温度が高く、シェル効果による分裂障壁は消えている。中性子が分裂の前に放出され、原子核を十分に冷却させ、シェル効果による発生する分裂障壁を回復させないと原子核は分裂に対して安定化されず、新しい超重核の観測は困難である。従って、分裂過程と粒子放出過程の競走を正しく評価し、複合核の分裂からの生き残り確率を正確に求める必要がある。

超重原子核合成確率は上記の二つの要素、即ち、複合核形成確率と複合核の蒸発残留核としての生き残り確率の積から評価される。この物理的描像自体は非常に簡潔なものであるが、これらの確率の評価に関してはほとんど未知と言っていい程多くの物理的な問題が残っている。より信頼性の高い理論計算や、新元素発見という劇的な実験だけでなく、超重原子核領域での地道な実験等で融合・分裂の動的機構を解明してゆく分野が今後大きくなってゆくことは、構成要素数の大きい有限多体系の動力学を明らかにしてゆく上で意義深いものである。

先ず、融合確率の評価に関して問題となるのは、次節で述べる模型とも関係するが、融合障壁の高さの正しい計算と、入射核-標的核間ポテンシャルで記述される段階から相対運動エネルギーの散逸により一体の液滴ポテンシャルで記述されるに至るシナリオの確定である。以下に述べる我々の模型計算では、二つの核の接触点から一体へと変形してゆく形状の変化をより現実的に記述できる変形パラメータの選択も重要な要素である。

次に、一旦形成された複合核が分裂過程との競走の中で、蒸発残留核として生き残る確率に関して、シェル効果により生じる分裂障壁の温度依存性が解明されなければならない重要な問題である。分裂障壁の温度依存性は、中性子放出速度による冷却の速さと結合して分裂障壁回復の速さを決めるため、蒸発残留核断面積に大きく関係する。そして中性子

放出速度は中性子の結合エネルギーに関係するため、より現実的な質量表が必要となる。分裂過程の時間依存性や分裂幅を制御する核摩擦力も明らかな点が少ない。また、シェル効果による分裂障壁の大きさを決めるより信頼できる計算もこの超重原子核領域で必要となる。

この報告では、次節に述べるフォッカー・プランク方程式の強い摩擦の極限を記述するスモルコフスキー方程式や三次元ランジュバン方程式を使って求めた融合確率や分裂からの生き残り確率のデータ（質量対称な系は有友ら [3, 4, 5] が、質量非対称な系は岡崎ら [6] の計算による。また関連する文献として Ref.[7, 8, 9] を参照）をパラメータ化し、任意の入射チャンネルでの蒸発残留核断面積を推測することのできる関数系を作り、どの入射チャンネルのどの入射エネルギーで断面積が実験可能な値を与えるかを議論する。この種の計算は一つの系で断面積の励起関数を得るのに膨大な計算時間を必要とする。現在までに蓄積された計算結果にもとづくこの公式は、いわば断面積の内挿及び外挿公式である。一つの超重原子核を合成する場合、何通りも考えられる入射チャンネルの組と入射エネルギーの中から、最適な系の当たりをつけるということは理論にとっても実験にとっても重要なことだし、パラメータ化することによって平均化された基本的な融合反応の特徴が浮かび出し、出てくる利点もある。その意味でこの公式は、我々の模型計算の条件とパラメータ化の手法の限定された条件を十分にふまえた上で、今後この分野の発展にとって有用なものであると考えられる。尚、この報告を書くにあたって参考にしたレビューは Ref.[10, 11, 12, 13] である。

この研究を含む一連の超重元素合成にかかわる融合分裂機構の研究は甲南グループ（太田、和田、有友、岡崎、市川、福島及び徳田）と京都大学基礎物理学研究所、阿部の共同によるものである。

2. 融合・分裂機構に対する物理描像と解析方法

超重原子核領域における融合・分裂機構に対する我々の物理描像を説明する。衝突する二つの原子核の配位の時間発展を、その接触点から融合して複合核を形成したり、深部非弾性散乱のように融合途上で再び二つの核断片に分離したり、また融合したあとでも再び分裂障壁を越えて分裂したり、或るいは、分裂との競合に打ち勝って蒸発残留核として残るなどのさまざまな過程を考慮に入れ、この系の多次元変形パラメータ空間での一つの点の時間発展としてとらえる。

どの過程がどれ位の確率で起こるのかは、或る初期変形（例えば二つの原子核の接触配位）から出発して、配位又は形状の時間発展を多次元ランジュバン方程式か、多次元拡散方程式を用いて解析することで推測する。詳しい計算処方是我々の文献[1,2,5]を参考にさせていただくことにして、ここではその概略と基本的な問題点を指摘することにする。

二つの原子核の接触配位から相対運動エネルギーが内部エネルギーに散逸されるまでの間は（ $\sim 10 \times 10^{-21}$ 秒程度のかかなり短い時間間隔）、変形空間各自由度の運動量が緩和されていないため多次元ランジュバン方程式を解くことになる。

$$\begin{cases} \frac{dq_i}{dt} = (m^{-1})_{ij} p_j \\ \frac{dp_i}{dt} = -\frac{\partial V}{\partial q_i} - \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial q_i} (m^{-1})_{jk} p_j p_k - \gamma_{ij} (m^{-1})_{jk} p_k + g_{ij} R_j(t) \end{cases}$$

ここで q_i は変形座標 ($i = 1, 2, \dots, N$, N は変形空間の次元数) で、ここでは二中心模型のパラメータ化[14, 15]に従って (Z_0, δ, α) である。 Z_0 は分裂断片間の距離で、 δ は変形度を表す。 α は入射チャンネルの質量非対称を示すパラメータである。 p_i はそれに対応する運動量である。乱雑な力の集団平均及び異なる時刻での相関関係は

$$\begin{cases} \langle R_i(t) \rangle = 0 \\ \langle R_i(t_1) R_j(t_2) \rangle = 2\delta_{ij} \delta(t_1 - t_2) \end{cases}$$

乱雑な力の強さは温度及び摩擦テンソルと揺動散逸定理から導かれる関係を満たす。

$$\sum_k g_{ik} g_{kj} = T \gamma_{ij}$$

$m_{ij}(\vec{q})$ は流体力学的質量テンソル [16]、 $\gamma_{ij}(\vec{q})$ は摩擦力でここでは一体の Wall-and-Window 公式 [17, 18] から計算したものを使っている。 V は \vec{q} と角運動量 $\vec{\ell}$ に依存したポテンシャルエネルギーで

$$V(\vec{q}, \vec{\ell}) = E_S(\vec{q}) + E_{Coul}(\vec{q}) + E_{rot}(\vec{q}, \vec{\ell})$$

有限範囲の効果を含む一般的な表面エネルギー、拡散した表面の効果を入れたクーロン斥力及び回転エネルギーの和である。原子核の温度は T で表され Toke-Swiatecki [19] の状態密度パラメータ a を用いており、核の励起エネルギーと $E^* = aT^2$ の関係にある。今回のランジュバン方程式による計算では V にシェル効果を取り入れていない。

衝突する二つの原子核の相対運動エネルギーが内部エネルギーに変換された後は、例えば二次元スモルコフスキー方程式を解くことになる。この式はフォッカー・プランク方程式の強い摩擦力の存在する場合の極限に対応している。

$$\frac{\partial P}{\partial t} = (\gamma^{-1})_{ij} \left\{ \frac{\partial}{\partial q_i} \left(\frac{\partial V}{\partial q_j} P \right) + T \frac{\partial^2 P}{\partial q_i \partial q_j} \right\}$$

ここで $P(\vec{q}, t)$ は確率密度関数である。 γ_{ij} 、 \vec{q} は先程の説明と同じであるがポテンシャル項は温度に依存したシェル効果の項をつけ加えている。

$$V(\vec{q}, \vec{\ell}, T) = V_{macro}(\vec{q}, \vec{\ell}) + V_{shell}(\vec{q}, T)$$

シェル補正エネルギー $V_{shell}(\vec{q}, T)$ の温度に関する依存性は Ignatyuk 等 [20] の関数形を用いている。

$$V_{shell}(\vec{q}, T) = V_{shell}(\vec{q}, T = 0) \Phi(T)$$

$$\Phi(T) = \exp(-E^*/E_D)$$

ここで E_D は shell damping energy で 20MeV がとられている。中性子放出による複合核の温度の時間依存性 $T(t)$ は統計コード SIMDEC[21] によって計算している。

蒸発残留核の生成確率は ($t = 2000 \times 10^{-21}$ 秒で評価している)

$$d(E^*, \ell; t) = \int_{\text{inside saddle}} P(\vec{q}, \ell; t) d\vec{q}$$

$$E^* = E_{cm} + Q$$

で表され、充分長い時間のあとの鞍部点よりも内側の確率密度を加え合わせることで求まる。従って、蒸発残留核の生成断面積は

$$\sigma_{ER} = \frac{\pi \hbar^2}{2\mu E_{cm}} \sum_{\ell} (2\ell + 1) d(E^*, \ell; t = 2000)$$

で与えられる。

もし、入射エネルギーが融合障壁 (我々は Bass のポテンシャル障壁 [22] を用いている) よりも下になれば、逆放物線ポテンシャル障壁の透過係数 $P_{penet.}(\ell)$ が σ_{ER} を求める式の d に掛かる。

$$P_{penet.}(\ell) = \frac{1}{1 + \exp \frac{2\pi(E_{cm} - E_B(\ell))}{\hbar\omega}}$$

ここで $E_B(\ell)$ は Bass のポテンシャル、 $\hbar\omega$ は放物線の幅の尺度で、我々は 3.5MeV を用いている。

3. 経験的公式の導出

ここで述べたモデルによる計算結果は、使用する質量データ、シェル効果による補正エネルギー、核摩擦力の大きさ、シェル効果の温度依存パラメータ (shell dumping energy) 等によって大きく左右され、信頼度が ± 1 桁でおさまるかどうか不明確ではない。従って以下の経験的公式の導出は、そのような精度を考えに入れた扱いをしている。

3-1. 質量対称の入射チャンネルでの融合確率 $P_{for}(\alpha = 0)$

図1に複合核が $(Z, N) = (102, 166), (108, 176), (114, 184)$ になるような質量対称な入射チャンネル ($\alpha = 0$) からの融合確率が示されている。

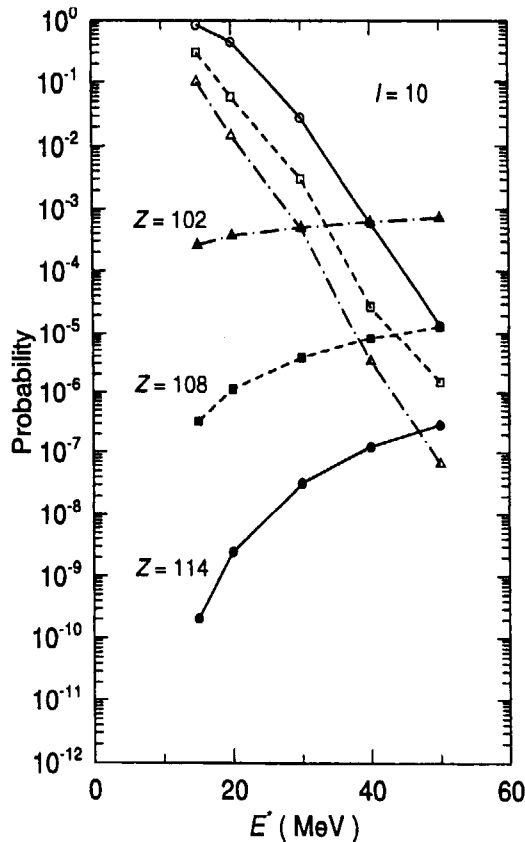


図1: 複合核 $(Z, N) = (102, 166), (108, 176), (114, 184)$ に対する融合確率と生き残り確率。いずれも一次元スモルコフスキー方程式による計算。(from Aritomo's Doctor Thesis[5])

衝突核の接触点近くから計算をはじめ、球形核附近に蓄積される確率が十分に安定する時刻 ($t = 2000 \times 10^{-21} \text{sec}$) まで一次元スモルコフスキー方程式で確率分布を計算したものである [5]。Z の値が大きくなると急速に確率が減少する。エネルギーが充分散逸したとする接触点近く $x = 6.0 \text{fm}$ から球形附近 $x = 0$ まで、どれ程の古典的なポテンシャルエネルギー差があるのかが、Z とともに急速に減少する融合確率の傾向と強い関係にある。

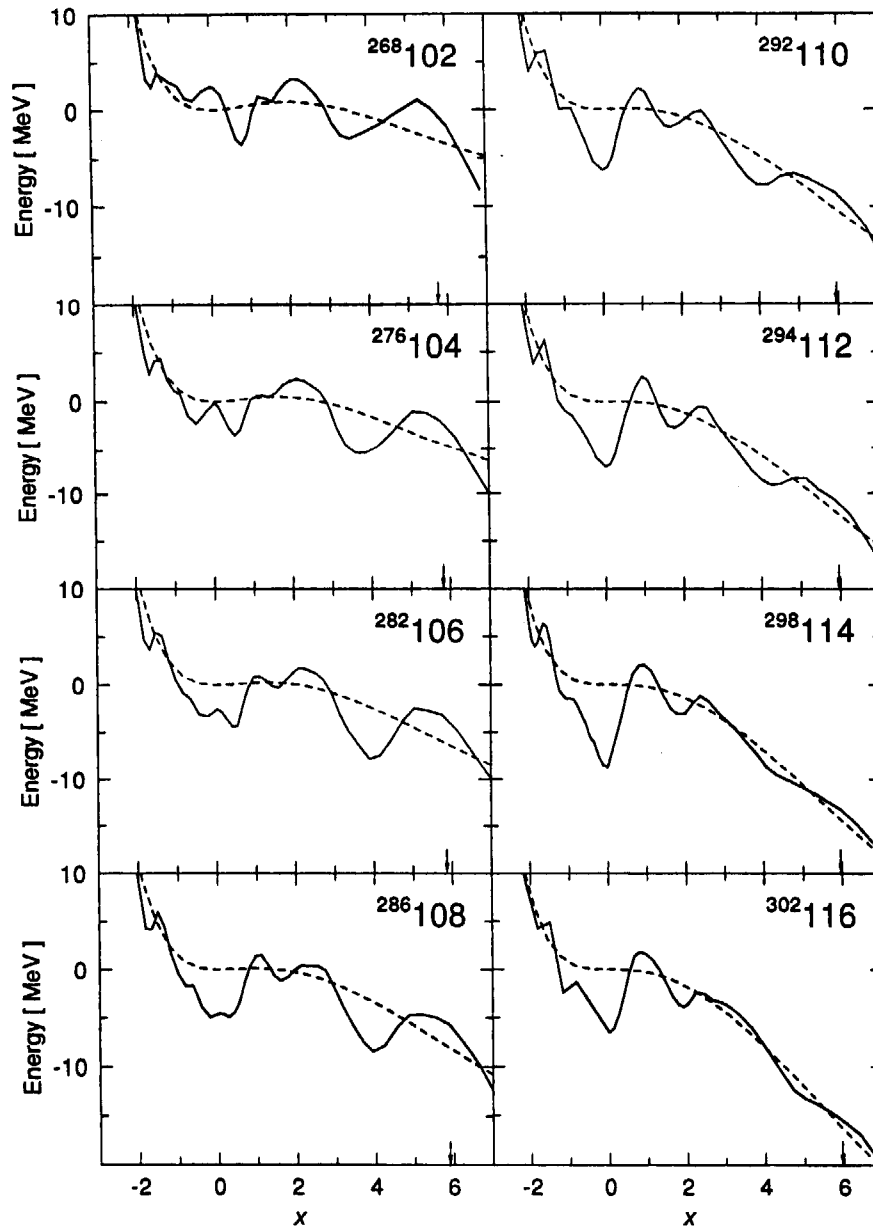


図2: 対称分裂経路に沿ったポテンシャルエネルギー曲線。(from Aritomo's Doctor Thesis[5])

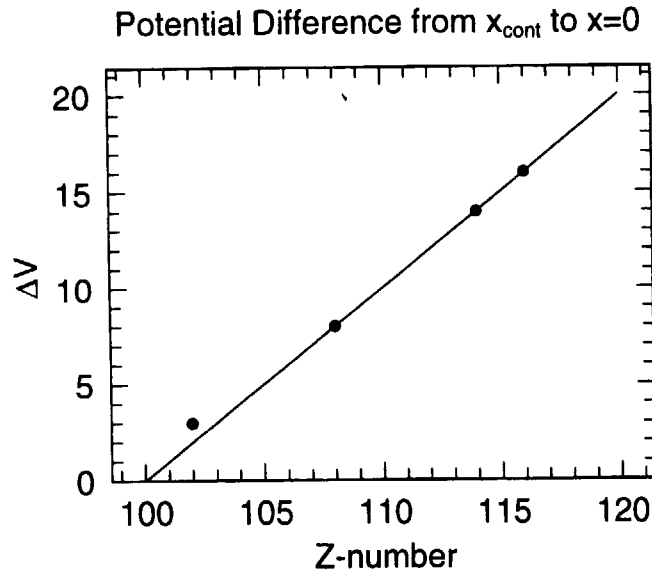


図 3: $x = 6.0$ と $x = 0$ での古典的なポテンシャルの差 ΔV 。

図2に $Z = 102$ から $Z = 116$ までの特定の原子核に対するポテンシャルエネルギー曲線が分裂断片間の相対距離 x (球形では $x = 0$ に調整されている) の関数として描かれている。破線が古典的なポテンシャル (液滴模型) で、実線はシェル効果を加えたものである。 $x = 6.0$ と $x = 0$ での古典的なポテンシャルの差 ΔV は Z の関数として $\Delta V = Z - 100$ で再現される (図3)。融合確率は $e^{-\Delta V/T}$ に関係するので、この ΔV は P_{for} のパラメータ化に重要な因子である。

図1に示した $Z = 102, 108, 114$ の三通りの融合確率を Z の関数として各々の励起エネルギー $E^* = 15, 20, 30, 40$ 及び 50 MeV についてプロットすると、図4に示したように、指数プロットに対して直線になる。これらの直線は $(Z - 100)$ の一次関数として近似される。

$$\log_{10} P_{for}(\alpha = 0) = -2.6 - \left(\frac{4.6}{E^*} + 0.195 \right) (Z - 100) \quad (1)$$

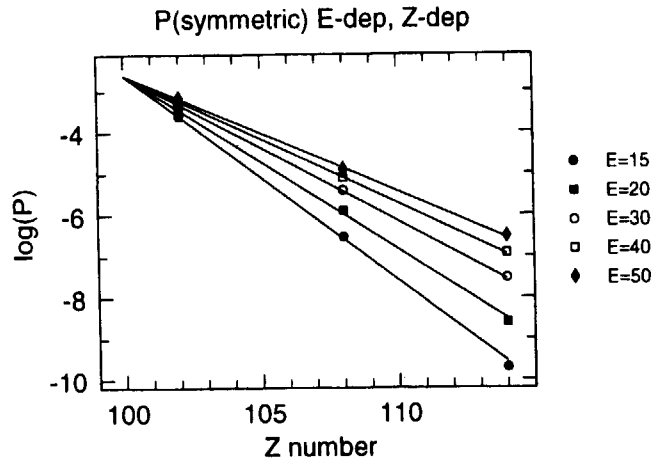


図 4: 融合確率の励起エネルギー及び原子番号依存性。

3-2. 質量非対称の入射チャンネルでの融合確率 $P_{for}(\alpha)$

複合核 $(Z, N) = (114, 184), (114, 176)$ の融合確率を 5 つの異なる人工的な質量非対称入射チャンネルより計算した結果が図 5 に示されている [23]。 α の値は 0.5, 0.55, 0.6, 0.65 及び 0.7 をとっている。これらの計算はすべて 3 次元ランジュバン方程式に従って系の形状の時間変化を追跡した結果によるものである。矢印で示されているエネルギーは Bass ポテンシャルぎりぎりに入射したときに対応する励起エネルギー E_B^* である。そのエネルギー以下では、融合するためにはクーロン障壁を透過しなければならないのでさらに逆放物線型ポテンシャルの透過確率を考慮しなければならない。 $\hbar\omega = 3.5\text{MeV}$ にとられていて対数表示では確率は直線になっている。非対称性が小さくなると融合妨害が強くなり同時に Q 値の関係で Bass 障壁での複合核の励起エネルギーが低くなるのが特徴である。

この Bass 障壁に対応する入射エネルギーでの融合確率を質量非対称パラメータ α について内ぬきの四角印でプロットしたのが図 6 に示されている。質量対称性の異なる入射チャンネルが数字で区別されている。黒丸印は図 5 の $A_{CN} = 298$ の E_B^* での融合確率の値を、またプラス印は $A_{CN} = 290$ の場合を示している。また同じ図の $\alpha = 0$ の軸上に丸印

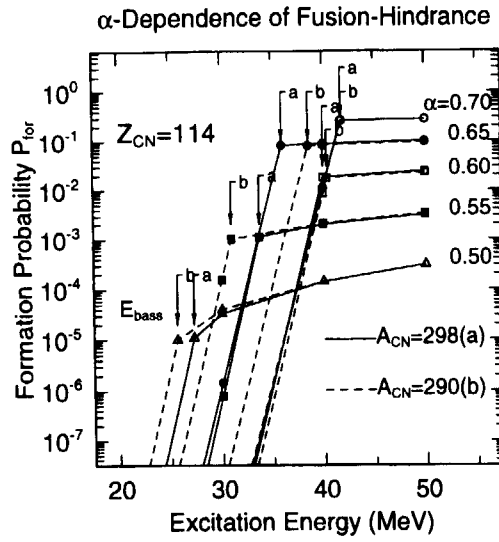


図 5: 融合確率の質量非対称パラメータ依存性。

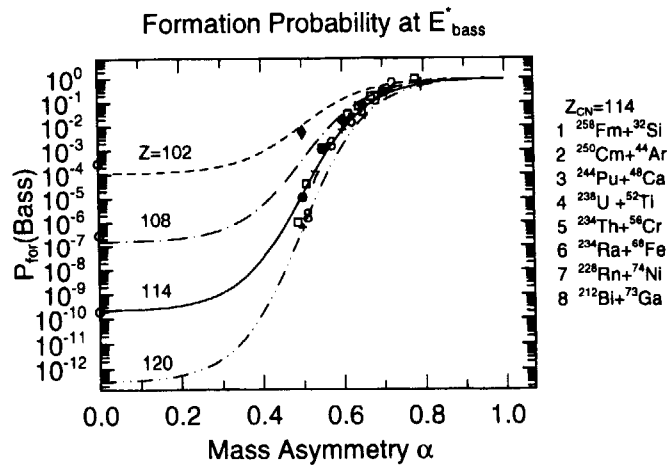


図 6: Bass 障壁に対応する入射エネルギーでの融合確率。いろいろな原子番号に対する質量非対称パラメータ依存性。

で示されているのが前の節で述べた質量対称である入射チャンネルからの融合確率であり、これを E_B^* での融合確率をみなす。これらの点をフェルミ分布型の関数で近似する。

$$\log_{10} P_{for}(\alpha) = \frac{P_{for}(\alpha = 0)}{1 + \exp\{(\alpha - 0.5)/\Delta\}} \quad (2)$$

ここで Δ は経験的に 0.08 を用いている。式 (2) の関数による計算結果が $Z = 102, 108$ 及び 114 についてそれぞれ破線一点鎖線及び実線で図 6 に示されている。 $\alpha = 0.5$ 近くの塗りつぶされたダイヤモンド印は式 (2) を導出した後、その妥当性を調べるために、3次元ランジュバン計算で得た結果であり、満足のゆくパラメータ化になっている。これらの値は、任意の α の値に対する E_B^* での融合確率の値を表すもので、 $E^* > E_B^*$ の励起エネルギーに対する融合確率は式 (1) のエネルギー依存性に従うものとみなす。

融合確率の入射チャンネル質量対称性に関する依存性及び Z の変化による融合妨害の程度がこの図 6 より大局的に理解できる。質量非対称パラメータ α がおよそ 0.6 より小さくなると急速に融合妨害が大きくなる。この経験公式では $\alpha < 0.3$ で妨害の程度はほぼ一定になることを示している。また、 $\alpha < 0.3$ の領域では Z が 2 増える毎に約 1 桁ほど融合確率が減少している。 $Z = 114$ の場合で、 $\alpha = 0.5$ に対応する融合確率が 10^{-6} であり、3次元ランジュバン方程式による試行回数から考えて、これがこの処方による計算の限界であることが予想される。それよりも小さな確率は 2次元又は 3次元のスモルコフスキー方程式を解くことに頼らねばならない。

ここで問題は、一次元スモルコフスキー方程式による $\alpha = 0$ でのデータと、 $\alpha > 0.5$ における 3次元ランジュバン方程式によるデータを一つの関数で表現することに少々考えなければならない点があるかも知れないということである。それは、計算の処方が異なるということである。式 (2) を用いるにはこのことを念頭に置いておく必要がある。 $Z = 102$ において、3次元ランジュバン方程式を用いて $\alpha = 0$ まで計算することが検証の一つの方法である。

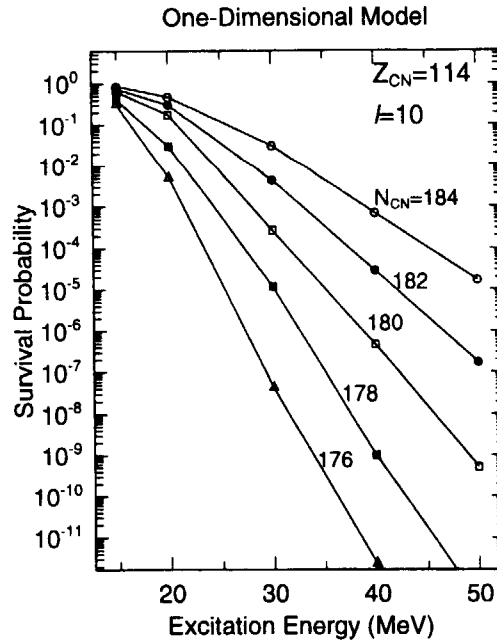


図7: $Z=114$ のアイソトープの分裂からの生き残り確率。核運動量は10。(from Aritomo's Doctor Thesis)

3-3. 複合核の生き残り確率 P_{sur}

複合核が核分裂との競走の中で中性子を放出して蒸発残留核となる確率を、3次元ランジュバン方程式にもとづいてシミュレートするには膨大な計算時間を必要とする。複合核の崩壊に関しては分裂径路に沿った変形一次元空間での拡散方程式（ここではスモルコフスキー方程式）を解く近似を採用している。

$Z = 114$ で中性子数が184,182,180,178,176の5つのアイソトープの分裂からの生き残り確率が、それらの励起エネルギーの関数として図7に示されている。中性子が過剰になると、中性子の分離エネルギーが小さくなり、中性子放出による冷却速度が速くなる。従って、分裂過程にチャンスを与える前にシェル効果による分裂障壁が十分に回復し、複合核を分裂から守ることになる。この崩壊機構が図7の傾斜の違いとなって現れている。上記の中性子数のアイソトープにおける平均的な中性子の分離エネルギーは、それぞれ5.24,5.62,5.99,6.43及び6.70MeVである。

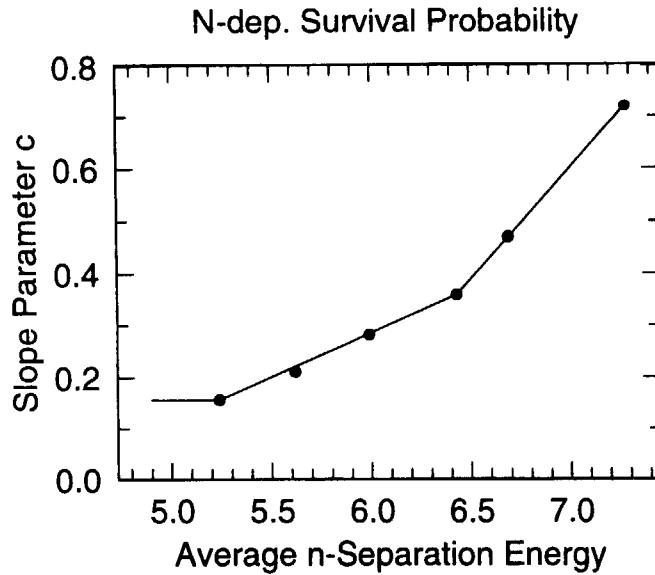


図 8: 生き残り確率の傾斜の平均中性子分離エネルギー依存性。

図7の5つのアイソトープの生き残り確率の傾斜を、上記のそれぞれの平均中性子分離エネルギー $\bar{\epsilon}_n$ に対してプロットすると図8のようになる。生き残り確率の励起エネルギー依存性は、平均中性子分離エネルギーに強く依存しており、図1に示された Z の異なる3つの複合核の生き残り確率の様子からもよくわかる。図1の3つの複合核は、いずれも平均中性子分離エネルギーが等しくなるような中性子数が選ばれており、励起エネルギーに対するその傾斜はほぼ等しい。絶対値の違いは後で述べるシェル効果によるエネルギー補正の違いによるものである。図8より傾斜 c の値を次のように関数化した。

$$\begin{aligned}
 c &= 0.15 (\text{一定}), & \bar{\epsilon}_n \leq 5.2 \\
 c &= 0.17 \bar{\epsilon}_n - 0.734, & 5.2 < \bar{\epsilon}_n < 6.43 \\
 c &= 0.42 \bar{\epsilon}_n - 2.34, & 6.43 \leq \bar{\epsilon}_n
 \end{aligned} \tag{3}$$

次に生き残り確率はまた、複合核のシェル効果による補正エネルギーの大きさ、つまり分裂障壁の高さに左右される。これは図1の Z の異なる3つの複合核の生き残り確率の様子からおし測ることができる。この場合、3つの複合核ともに同じ平均中性子分離エネルギーをもっているため、生き残り確率に現れる違いはシェル効果による補正エネルギーの差が出ているものと判断できる。 $Z = 114$ の複合核の生き残り確率を基準にして、相対比を補正エネルギー δ_{shell} に対してプロットしたのが図9に示されている。この比 R を次

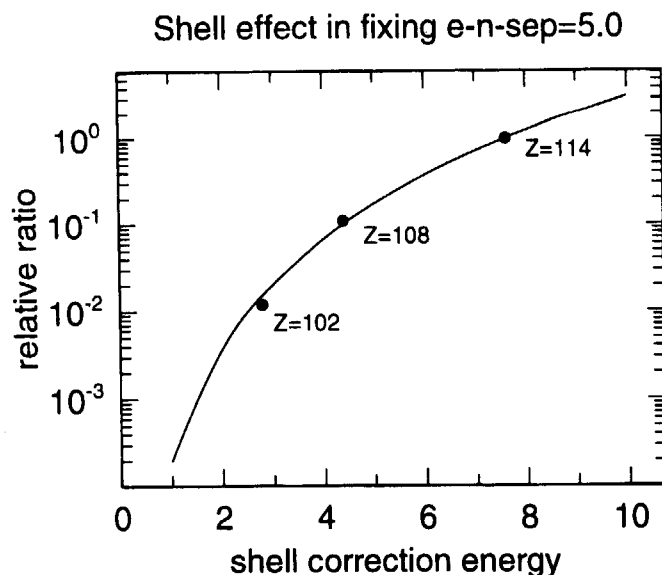


図 9: $Z=114$ の場合を基準にした、融合確率のシェル補正エネルギーに対する相対比。

のように関数化する。

$$R = 10^{4.2 \log_{10} \{1 + (\delta_{shell} - 7.6) / 7.6\}} \quad (4)$$

図7の生き残り確率の高エネルギー側での傾斜を低エネルギー側に伸ばしてゆくと、近似的に $E^* = 12.5 \text{ MeV}$ の所で一点に収束していると見ることができる。そもそも、生き残り確率が $E^* = 15 \text{ MeV}$ 付近で1に近い所に集まるのは、shell dumping factor E_D を 20 MeV にとっていることによる。 $\exp(-E^*/E_d)$ の値は $E^* = 15 \text{ MeV}$ で 0.47 、つまり、およそ50%のシェル効果による分裂障壁が回復していることを示している。従って、 $E^* = 15 \text{ MeV}$ まで冷却すると、分裂が押さえられて生き残り確率が大きくなる。この E_D の値は最も議論されなければならない問題点の一つで、もし、 $E_D = 12.5 \text{ MeV}$ とすると [24]、 $15.0/20.0 = E^*/12.5$ より $E^* = 9.4 \text{ MeV}$ となって、分裂障壁が50%回復するのは励起エネルギーが 9.4 MeV になるまで冷却しなければならない。その場合には図7のグラフそのものが約 5 MeV だけ左に平行移動することになり、同じ励起エネルギーの場合に、生き残り確率は大きく変わってくる。このことを念頭に置いて、 $E_D = 20 \text{ MeV}$ に対する生き残り確率の関数化を次のように決める。

$$10^{1.079-c(E^*-12.5)} \quad (5)$$

従って、生き残り確率は次のようになる。

$$P_{sur} = \min\{1.0, R \times 10^{1.079-c(E^*-12.5)}\} \quad (6)$$

この関数化では、明らかに、 $E^* < 20\text{MeV}$ で少々過大評価になっていることに注意しておく。

3-4. 角運動量分布と蒸発核残留断面積

今までに議論してきた融合確率や生き残り確率は複合核の角運動量が $\ell = 10$ の場合であった。これらの積である $P_{for} P_{sur}$ の ℓ 依存性は入射エネルギーによって異なる。図10は $La + La$ で、励起エネルギーが 30MeV の $Z = 114, N = 184$ の複合核を作った場合の $P_{for} P_{sur}$ の ℓ 依存性を示したものである。この報告での断面積の計算は、式(2)、式(6)を用い、 $\ell = 10$ で sharp cut off して求めている。

$$\sigma_{ER} = \frac{\pi}{k^2} \sum_{\ell=10}^{10} (2\ell + 1) P_{for} P_{sur} P_{pen} \quad (7)$$

ここで P_{pen} は

$$P_{pen} = \frac{1}{1 + \exp \frac{2\pi(-E_{cm} - V_B)}{\hbar\omega}} \quad (E_{cm} < V_B) \quad (8)$$

V_B は Bass ポテンシャルの高さで E_{cm} は重心系での入射エネルギー、 $\hbar\omega$ はここでは 3.5MeV がとられている。 k は入射チャンネルの波数である。 $\ell = 10$ での $P_{for} P_{sur}$ の計算値を使ったために、 σ_{ER} の ℓ に関する和は制限されているが、図10を参考にして、ここでの結果は場合に応じて因子倍されることを念頭におく必要がある。

式(7)は複合核の Z と N 及び入射核の Z_p と N_p 、及び任意の励起エネルギー（これは Bass 障壁に対応する入射エネルギーによる励起エネルギーが計算されるので、そこからの修正分として入力される）が与えられると蒸発残留核断面積が計算できる式になっている。この値は、図1及び図7に示されたデータをもとにした、任意の融合反応への外挿である。従って、式(7)は $Z = 114$ を中心として、第二章に述べた我々の模型計算の結果を因子倍の精度の範囲で再現している。また、もともと我々の模型は Bass 障壁よりも上の入射エネルギーに対して考えられたもので、Bass 障壁以下の入射エネルギーに対する計算は単に逆放物線型の障壁透過率を掛け合わせただけになっている。障壁の幅や相対エネルギーの散逸によって二体の相対ポテンシャル描像から一体の液滴ポテンシャル描像に移行する過程に未知の点が多く、現在、精度を上げる努力がなされている。

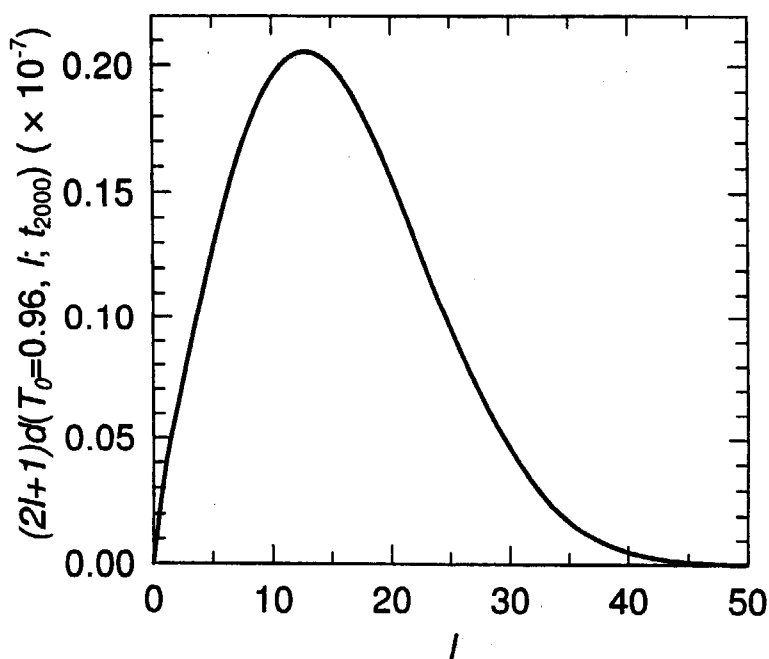


図10: $La + La$ で、励起エネルギーが 30MeV の $Z = 114$ 、 $N = 184$ の複合核を作った場合の P_{for} P_{sur} の l 依存性。(from Aritomo's Doctor Thesis [5])

3-5. 生き残り確率に関する考察

図7に示した複合核の生き残り確率は $t = 2000 \times 10^{-21}$ 秒の時点で拡散方程式を解く

ことをやめ、球形核領域に残った確率密度を積分したものである。かつ、その時点での励起エネルギーは、温度にして0.5MeV程度になっており、中性子をさらに放出するのに $10^{-16} \sim 10^{-18}$ 秒を必要とする[25]。従って、特に20MeV以下の励起エネルギーでは図7の生き残り確率は大きく見積もり過ぎている。

10^{-6} 程度までの生き残り確率は通常の統計モデルコードで100万回の事象を計算すれば求められるが、それより小さい確率は計算時間の点でも困難である。

生き残り確率を評価するもう一つの方法は、古くから知られている中性子崩壊幅と分裂幅の比[26]

$$\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f} = \frac{8mr_0^2 A^{2/3} a_f (E - B_n)}{\hbar^2 a_n [2\sqrt{a_f (E - E_f)} - 1]} \times \exp[2\sqrt{a_n (E - B_n)} - 2\sqrt{a_f (E - E_f)}]$$

を用いて、シミュレーションを行うものである。ここで r_0 は核半径パラメータ、 a_n 及び a_f はそれぞれ球形近く及び鞍部点近くでの複合核の準位密度パラメータで $a_f \sim 1.2a_n$ の関係にあることが知られている。 B_n は中性子の分離エネルギー、 E_f は温度に依存した分裂障壁で、液滴模型による部分 E_f^{LDM} と殻補正による部分の和である。

$$E_f = E_f^{LDM} + V_{shell}(T=0)\exp(-E/E_D)$$

中性子を1回放出して生き残る確率は従って、

$$\frac{\Gamma_n}{\Gamma_n + \Gamma_f} = \frac{(\Gamma_n/\Gamma_f)}{(\Gamma_n/\Gamma_f) + 1}$$

となり、この因子を掛け合わせてゆくことにより多数個の中性子放出に対して生き残る確率が求まる。

放出される中性子の運動エネルギー分布は温度によって決まり、

$$f(\epsilon) \sim \epsilon^{1/2} e^{-\epsilon/T}$$

であるので、乱数により適当な放出エネルギーを決めることにより、励起エネルギーが B_n よりも小さくなるまでの生き残り確率を求めることができる。しかし、励起エネルギーが、その時点で E_f よりも大きいと、 γ 線放出と分裂の競走の中で生き残り確率を求めなければならない。

今回の報告では、励起エネルギーが充分小さくなると ($E^* \leq B_n$) 殻補正エネルギーは 70~80%回復しており、GSIで行われている一連の実験の場合でも基底状態の殻補正エネルギーは 7MeV 以上あることから、 γ 線放出の効果は次の問題として、無視することにした。

4. 計算結果

式(7)で示される断面積は、公式導出に用いた我々の今までの具体的な計算結果を因子倍の範囲で再現する。元来、我々の模型は融合障壁よりも高い入射エネルギーで、かつ複合核の励起エネルギーが30MeV以上のいわゆる hot fusion において蒸発残留核断面積がどれ程期待できるかを調べる目的で考えられた。そのため、融合障壁よりも低い入射エネルギーの反応に対しては附加的に逆放物線型の障壁の透過度を考慮して対処する。

ここでは、Pb及びBiを標的核とした $Z=104$ から $Z=112$ までの原子核を合成する GSI のデータを再現するようにパラメータを固定し、そのパラメータの組を用いて、 $Z=110$ 及び $Z=112$ の原子核を合成する際に最も断面積を大きくする入射チャネルの評価を行う。

Bass のポテンシャル障壁に関しては、阿部の提案により相互作用障壁 [22] を用いている。

$$B_{int} = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{R_{12} + 2.7} - 2.9 \frac{A_1^{1/3} A_2^{1/3}}{A_1^{1/3} + A_2^{1/3}}$$

$$R_{12} = 1.07(A_1^{1/3} + A_2^{1/3})$$

また、障壁の形状は、上記の障壁高の所でカットし、従って実効的な障壁の厚さとして $\hbar\omega = 10.0\text{MeV}$ を用いた。障壁高の所でカットする方法は Smolanczuk の論文 [24] における透過確率の計算方法と同じ考え方である。

巨視的な分裂障壁の大きさは次の式を用いた [27]。

$$B_f^{LDM} = 0.7332 \frac{Z^2}{A^{1/3}} 10^u$$

$$u = 0.368 - 5.057 x_{fis} + 8.93 x_{fis}^2 - 8.71 x_{fis}^3$$

$$x_{fis} = 1/[49.22(1 - 0.3803 I^2 - 20.489 I^4)]$$

$$I = \frac{N - Z}{A}$$

我々は殻補正を考慮する際、基底状態の補正エネルギーをとり込むが、鞍部点での補正エネルギーは無視している。従って、この B_f^{LDM} に 0.5MeV 程度の人工的な変化を加えても物理的に不適切な扱いではないと判断した。

以下に示す図の見方について述べる。励起関数の図の見出し部分の数字は ($\hbar\omega$; B_{int} での励起エネルギー; 反応の Q-値) を意味する。組になっている図で右側の見出しには E_D と B_f^{LDM} の値が示されている。右側の図で、黒丸は融合確率を、白丸は有友らの計算による生き残り確率を、またプラス印は Γ_n/Γ_f の公式よりシミュレートした生き残り確率を意味する。このシミュレーションでは 200 サンプルの計算から各励起エネルギーでの生き残り確率を求めている。

4-1. GSIの実験データの再現

最初に GSI で行われた $^{208}\text{Pb} + ^{50}\text{Ti}$, $^{208}\text{Pb} + ^{54}\text{Cr}$, 及び $^{208}\text{Pb} + ^{58}\text{Fe}$ 等の実験結果から我々の公式のパラメータを一応固定することにした。

- (1) 入射チャンネルで相互作用障壁 B_{int} を用いる。
- (2) 相互作用障壁の幅を $\hbar\omega = 10\text{MeV}$ とする。(これらは Smolanczuk の扱いに近いものである)
- (3) 質量公式は Möller[28] のものを用いる。
- (4) $E_D = 20\text{MeV}$ を用いる。
- (5) 巨視的な分裂障壁は $\pm 0.5\text{MeV}$ の修正を許す。

この条件で上記 5 つの反応における実験データの励起関数はほぼ再現される。(図 1 から図 16、左側の図で白丸は GSI のデータをしめしている。)

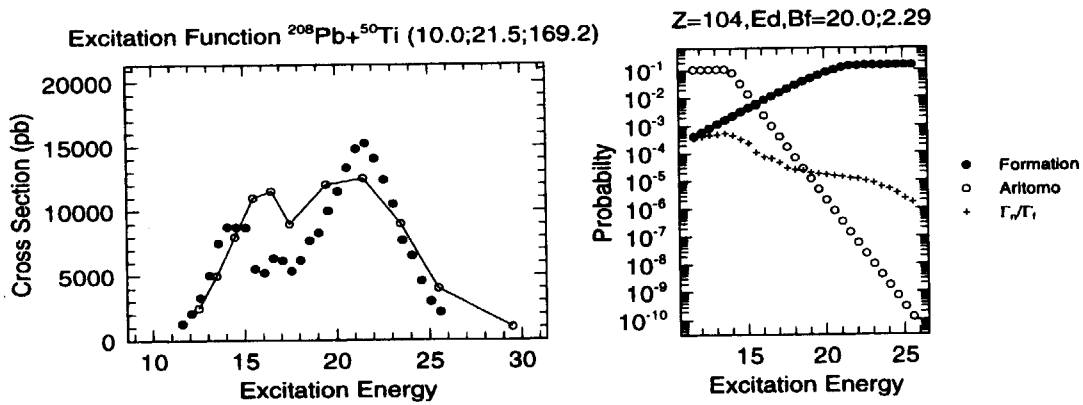


図 11:

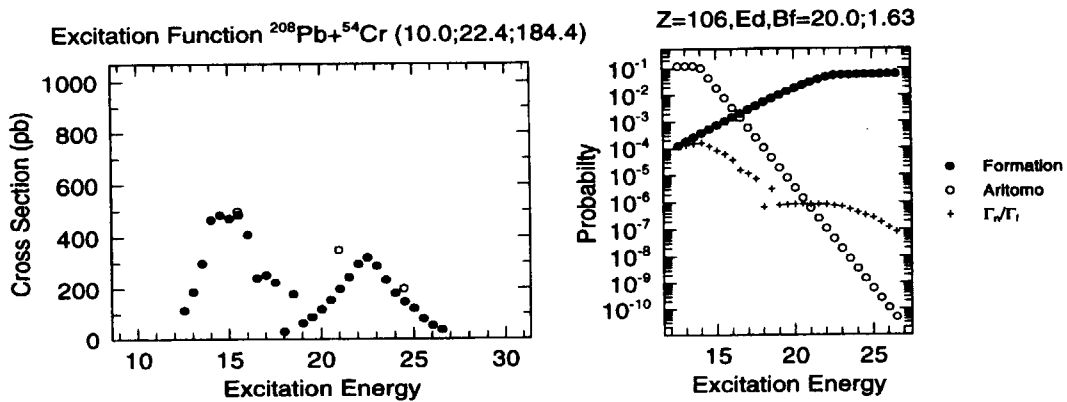
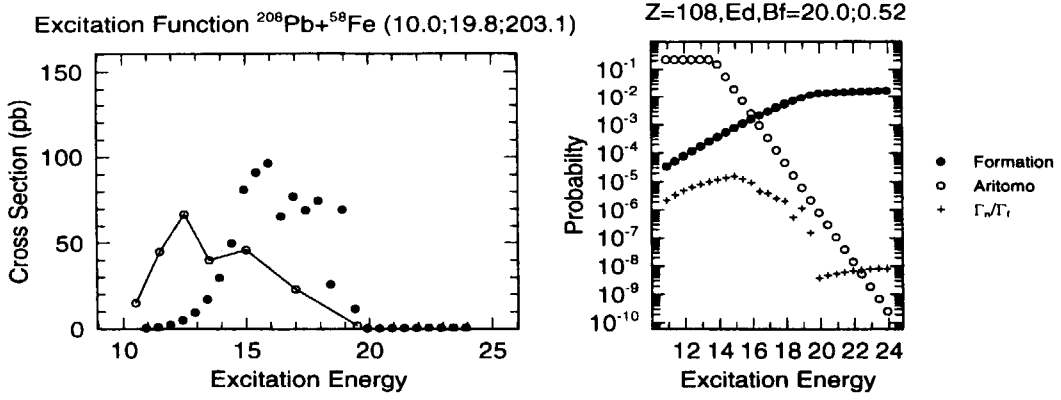


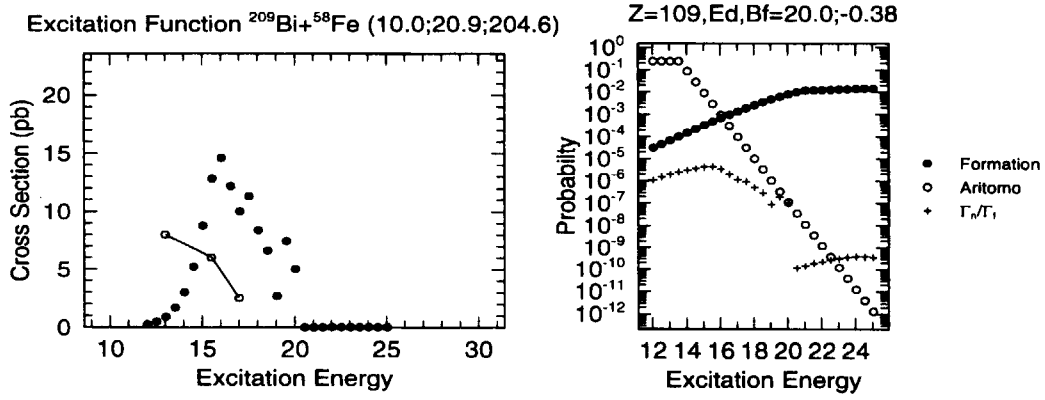
図 12:

4-2. Möllerの質量テーブルを用いた場合

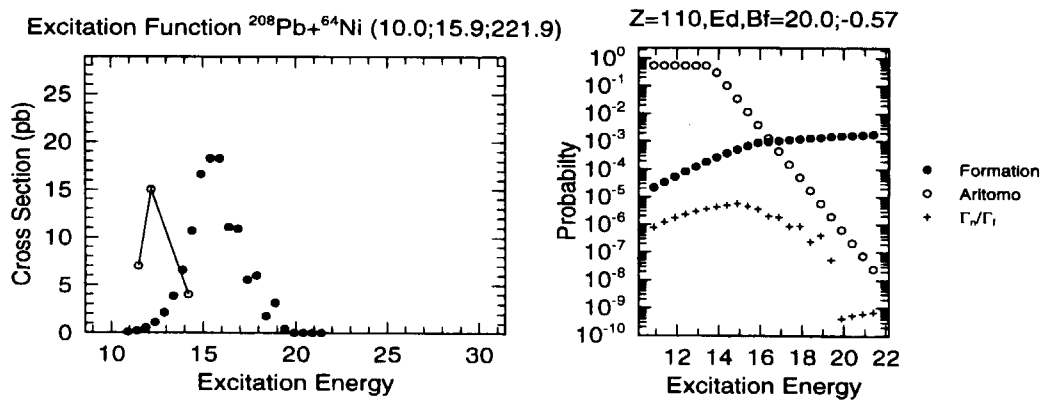
Möllerの質量テーブルを用いて、Q-値に対して修正を加えず、また、巨視的な分裂障壁 B_f^{LDM} にも修正を加えずに、前節のGSIでの反応系について計算を行うと次のようになる。Zによってかなり実験データとの差が見られる。以下の節でZ=110及びZ=112の合成に対して種々の入射チャンネルに対する予測が示されているが、ここで示した実験データとの差はそれらの予測の確実性を議論していく上で有用なものと考えた。(図17から図22)



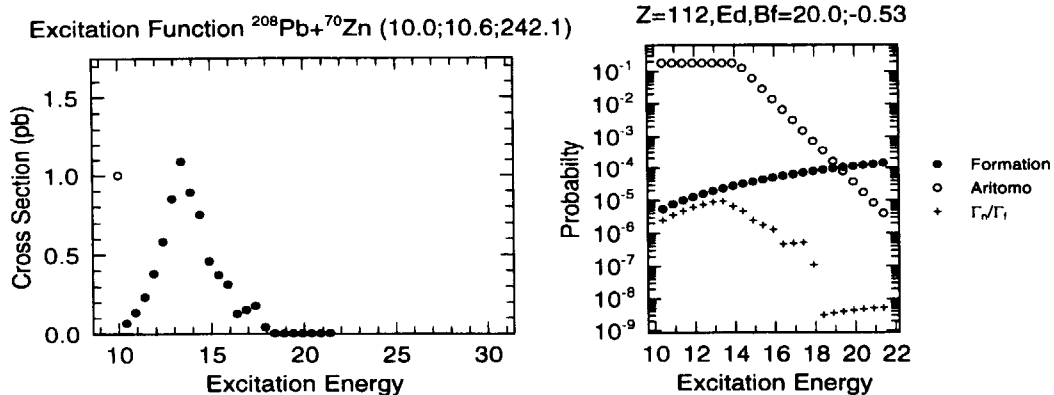
☒ 13:



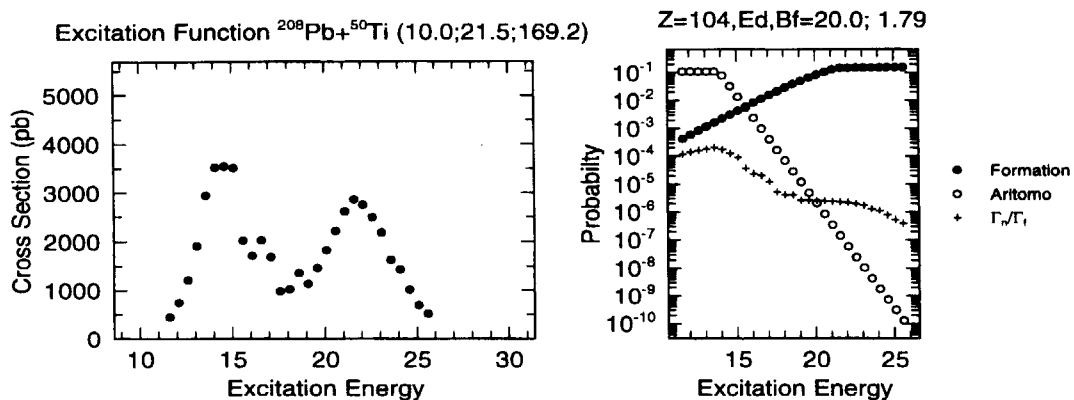
☒ 14:



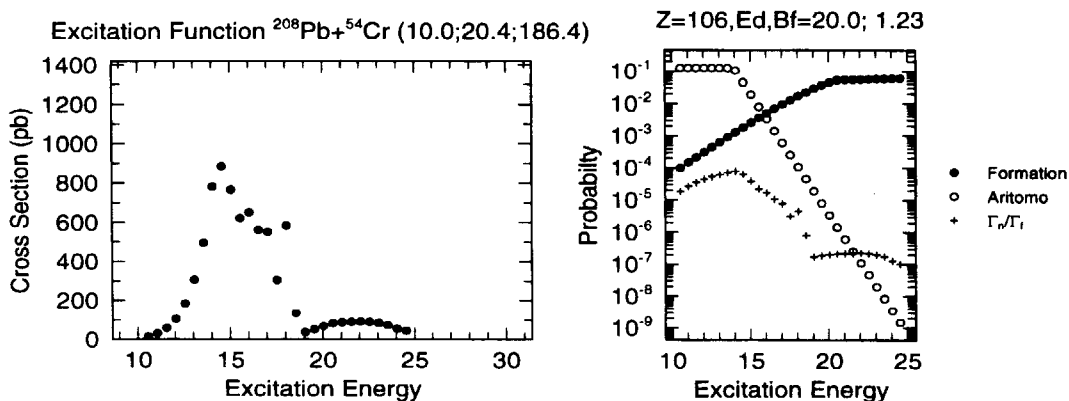
☒ 15:



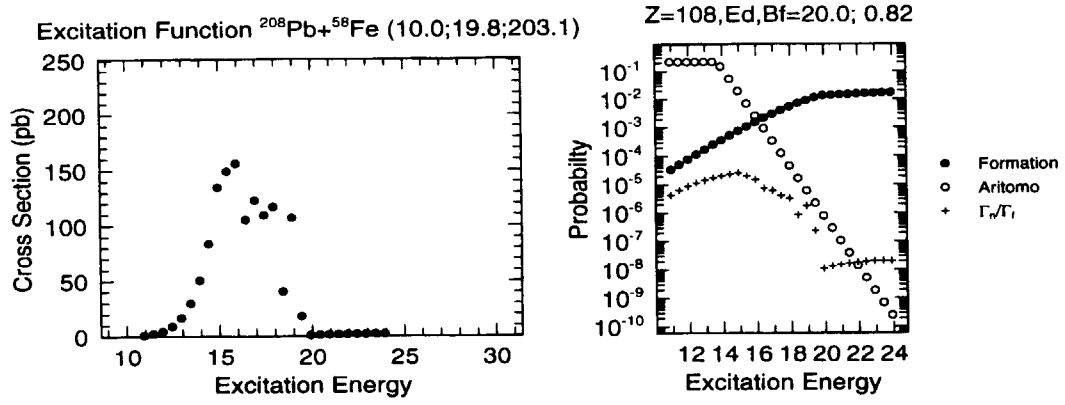
☒ 16:



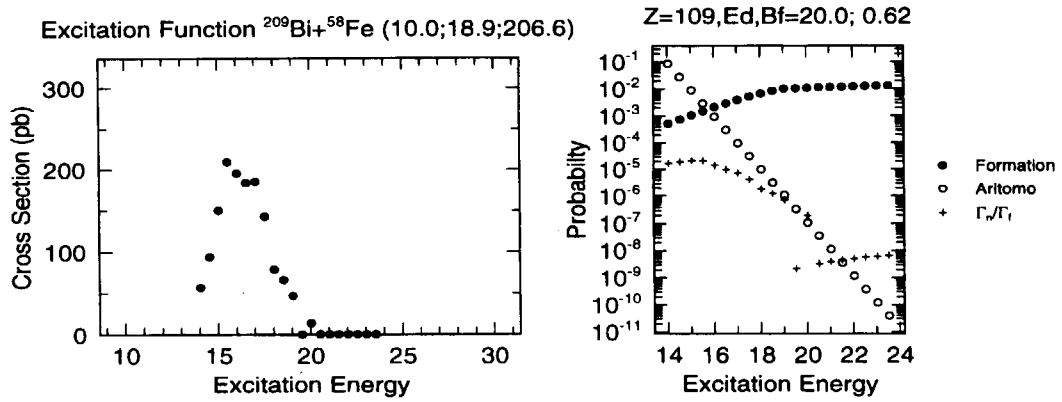
☒ 17:



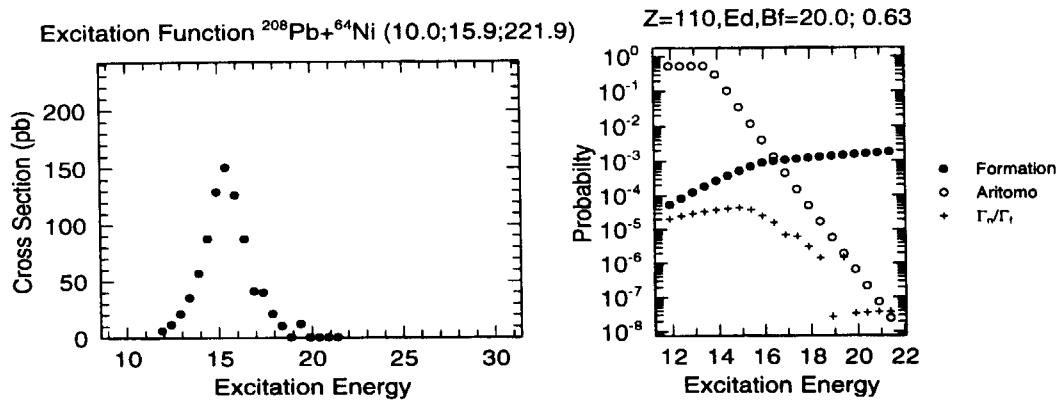
☒ 18:



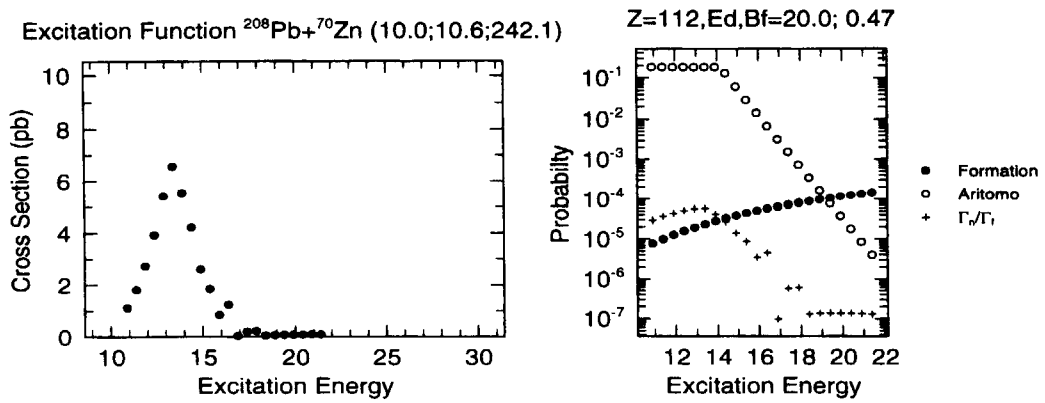
☒ 19:



☒ 20:



⊗ 21:



⊗ 22:

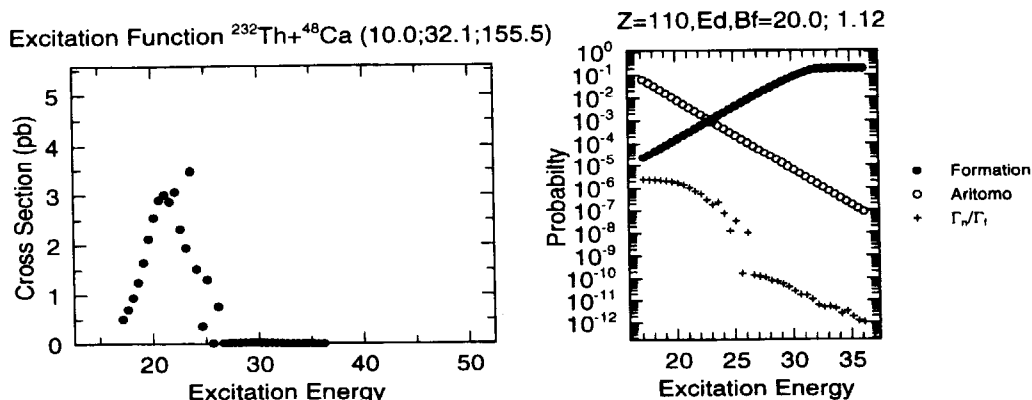
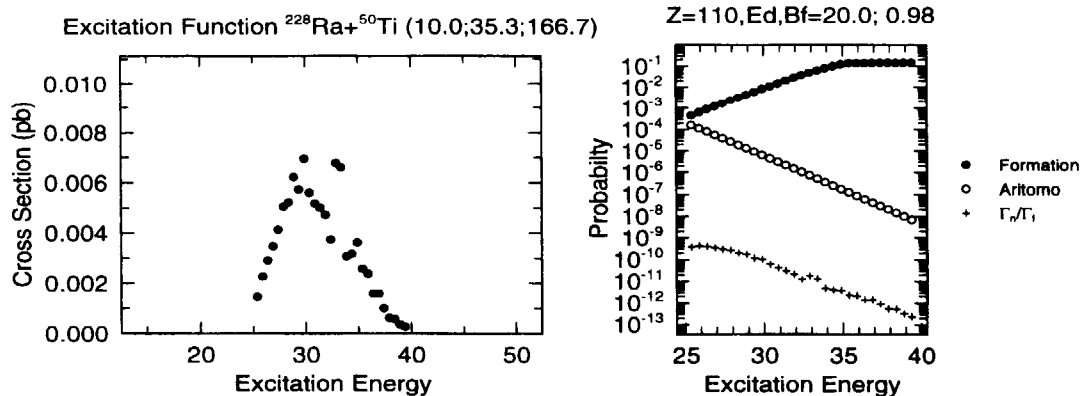


図 23:

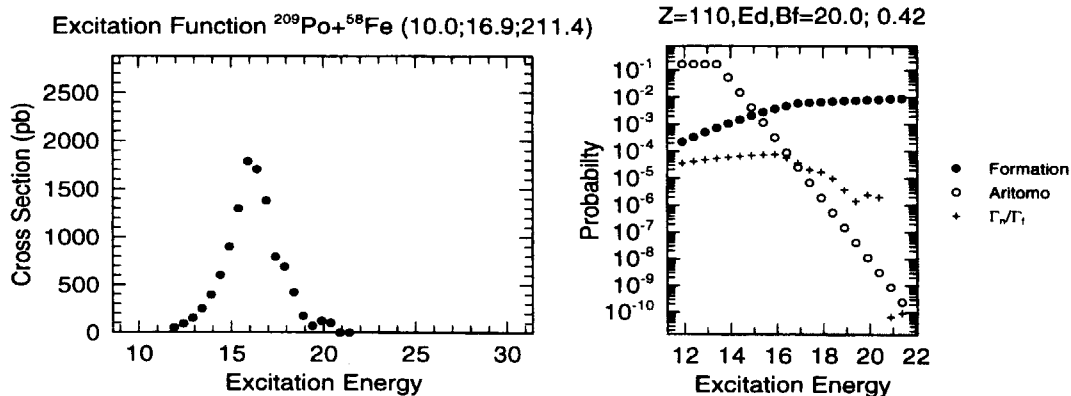
4-3. Z=110

原子番号が 110 番の複合核を作る実験的に可能と思われる反応について、以下の表に示す反応系で残留核断面積を計算してみた。励起エネルギーが 15MeV 近くのピークは、fusion hindrance (入射チャンネルの質量対称性が良いと小さく、非対称になると 1 に近づく。) と、(HI,1n) 反応による生き残り確率のピークとの関係で断面積が決まっている。入射核が Fe, Ni の近くで大きくなる。Ca のように非対称になると (HI,2n)、(HI,3n) 反応を強調することができる。Ca の場合、 $\hbar\omega$ が 7MeV 程度だと、(HI,3n) を pb オーダーで拾える。

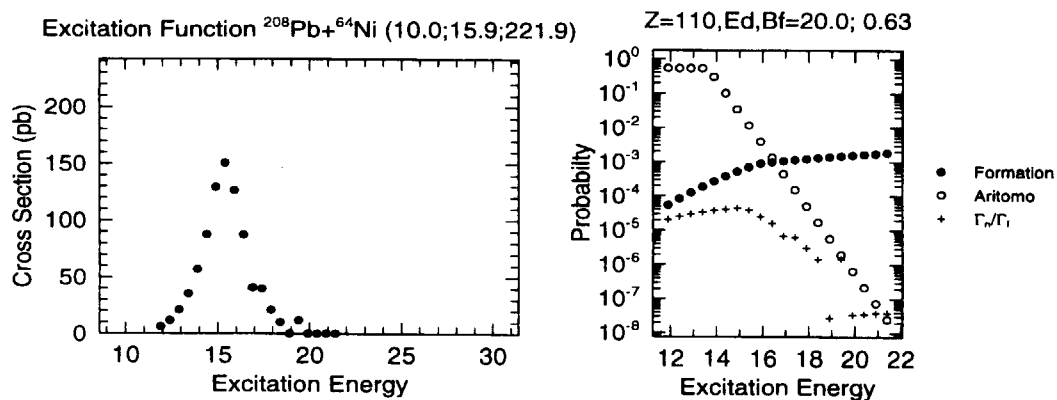
1	$^{48}_{20}\text{Ca} + ^{232}_{90}\text{Th}$	図 2 3
2	$^{50}_{22}\text{Ti} + ^{228}_{88}\text{Ra}$	図 2 4
3	$^{58}_{26}\text{Fe} + ^{209}_{84}\text{Po}$	図 2 5
4	$^{64}_{28}\text{Ni} + ^{208}_{82}\text{Pb}$	図 2 6
5	$^{70}_{30}\text{Zn} + ^{204}_{80}\text{Hg}$	図 2 7
6	$^{76}_{32}\text{Ge} + ^{198}_{78}\text{Pt}$	図 2 8
7	$^{82}_{34}\text{Se} + ^{194}_{76}\text{Os}$	図 2 9



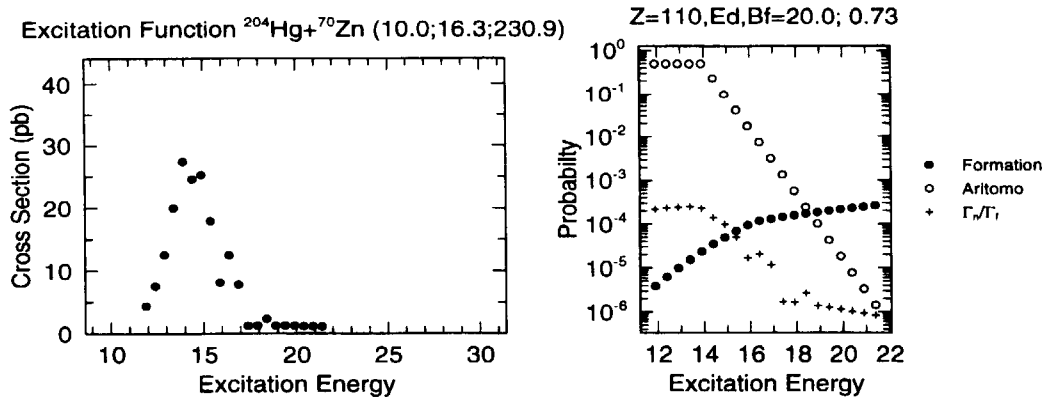
☒ 24:



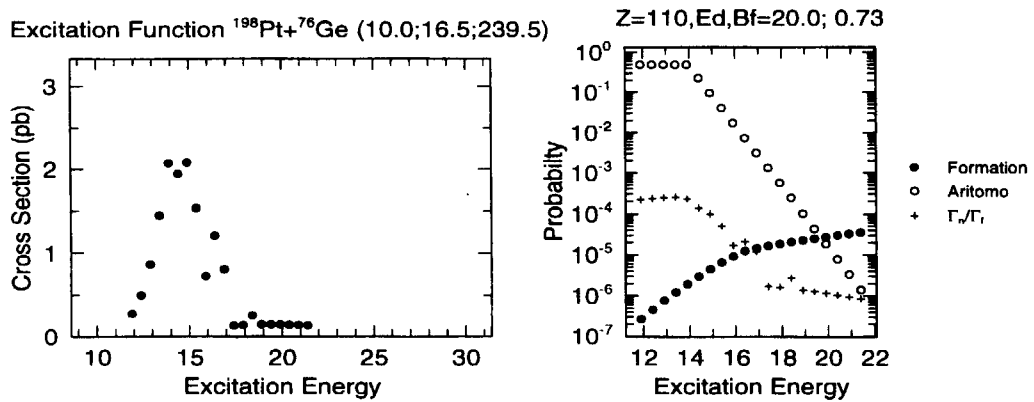
☒ 25:



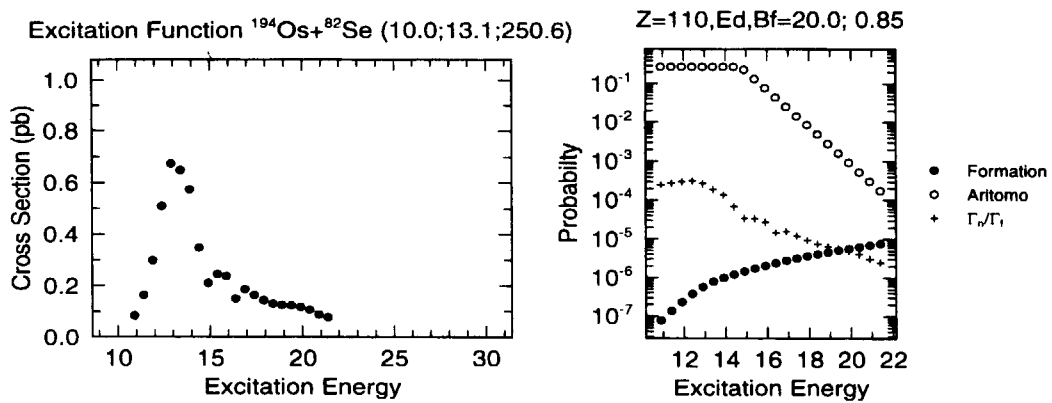
☒ 26:



☒ 27:



☒ 28:



☒ 29:

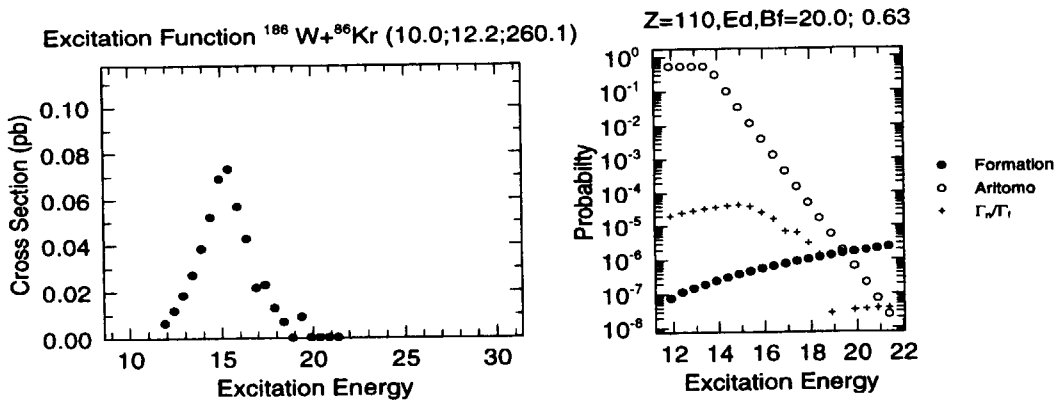
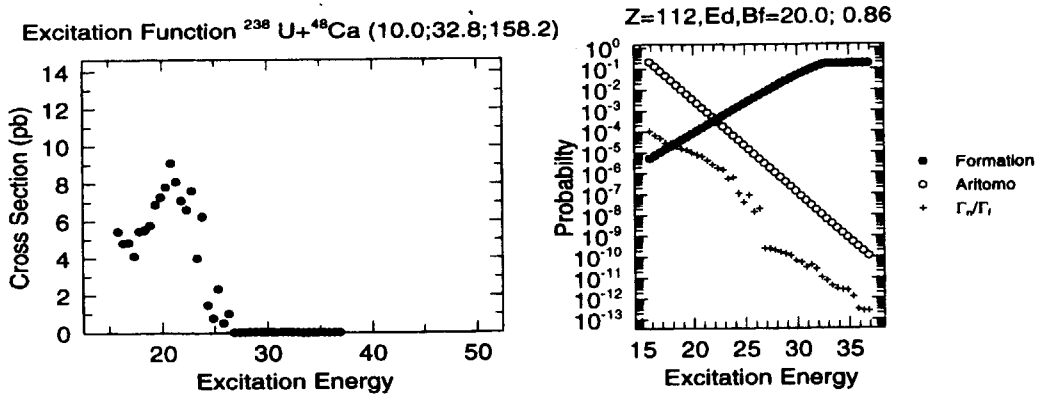


図 30:

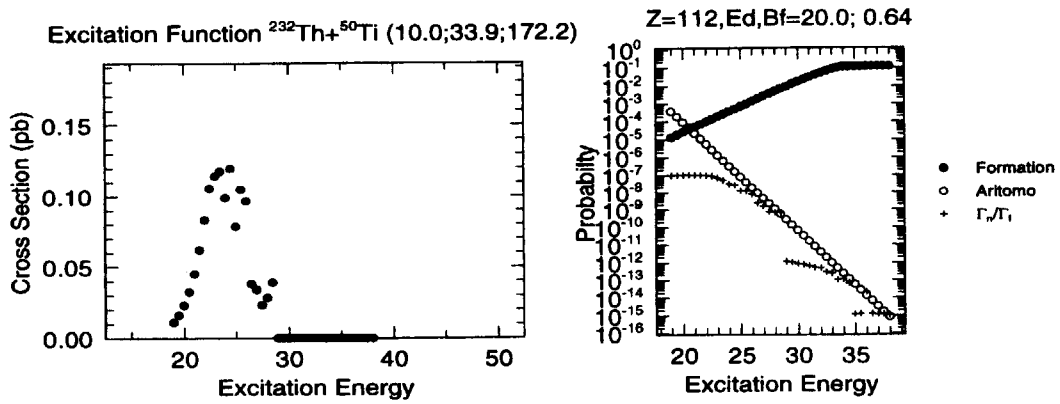
4-4. $Z=112$

原子番号が112番の複合核を作る実験的に可能と思われる反応について、以下の表に示す反応系で残留核断面積を計算してみた。前節と同様入射核がNiの近くで大きくなっている。 $Z=110$ の場合も含めて、この模型計算で分かることは、入射核がFe, Ni, Znよりも重くなると急激に断面積が小さくなることである。生き残り確率は中性子数によって変動はあるものの殆ど等しいが、入射核が重くなり質量対称性がよくなると、fusion hindranceの影響を強く受けて融合確率が小さくなっているのがこの模型の特徴である。融合確率を求める岡崎らの三次元ランジュバン計算にはシェル効果が入っていないので、今後この点を改良して行くことは興味深い。特にKr近傍の入射核は中性子数のマジックで、融合渓谷[29]による融合確率の強調が期待される。

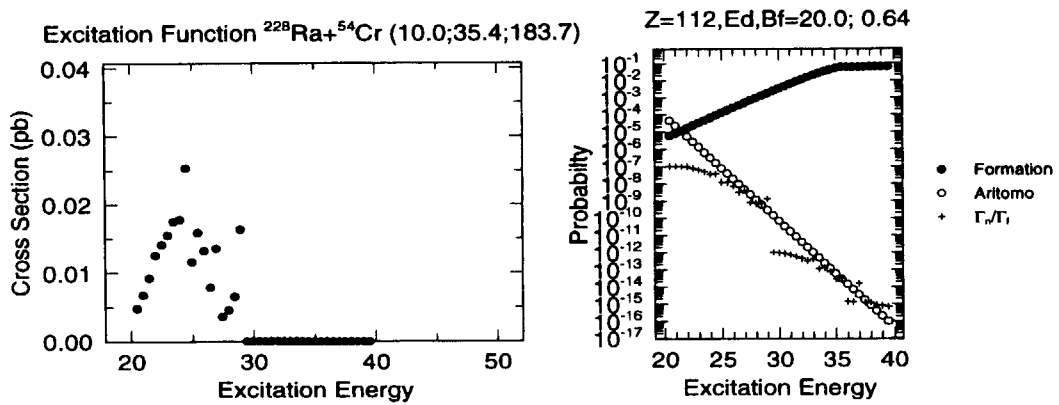
1	$^{48}_{20}\text{Ca} + ^{238}_{92}\text{U}$	図 3 0
2	$^{50}_{22}\text{Ti} + ^{232}_{90}\text{Th}$	図 3 1
3	$^{54}_{24}\text{Cr} + ^{228}_{88}\text{Ra}$	図 3 2
4	$^{64}_{28}\text{Ni} + ^{209}_{84}\text{Po}$	図 3 3
5	$^{70}_{30}\text{Zn} + ^{208}_{82}\text{Pb}$	図 3 4
5	$^{76}_{32}\text{Ge} + ^{204}_{80}\text{Hg}$	図 3 5
6	$^{82}_{34}\text{Se} + ^{198}_{78}\text{Pt}$	図 3 6
7	$^{86}_{36}\text{Kr} + ^{194}_{76}\text{Os}$	図 3 7
8	$^{88}_{38}\text{Sr} + ^{186}_{74}\text{W}$	図 3 8



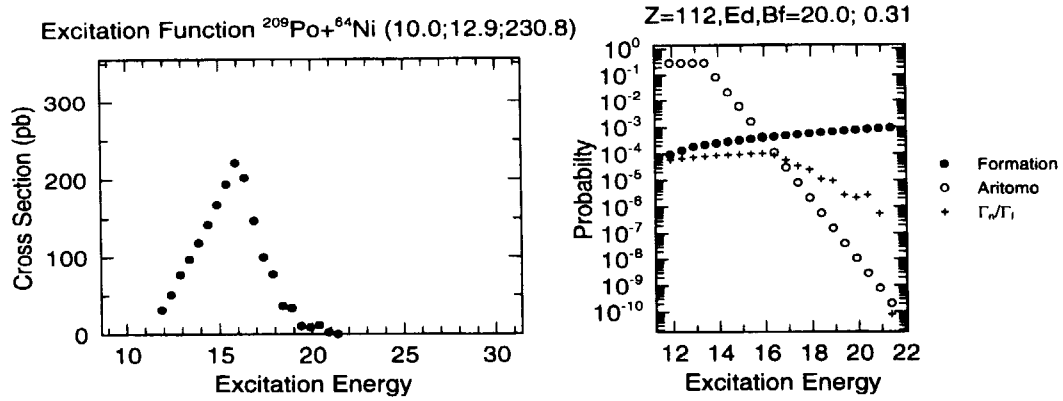
☒ 31:



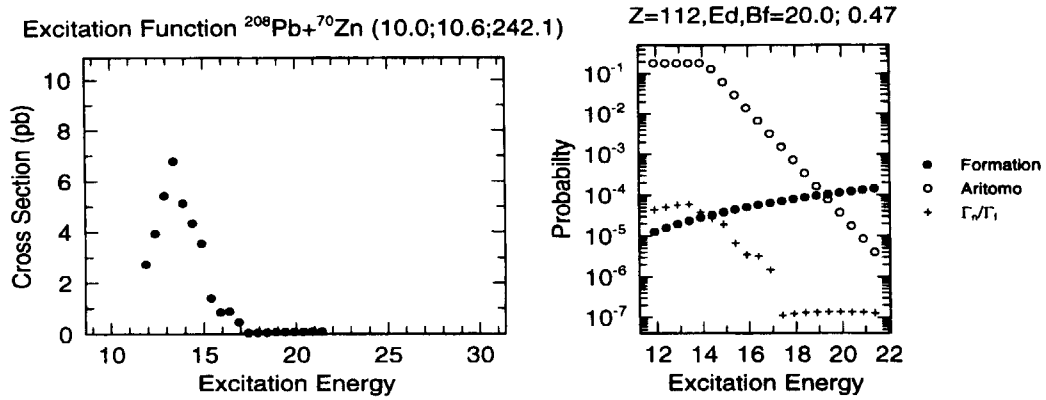
☒ 32:



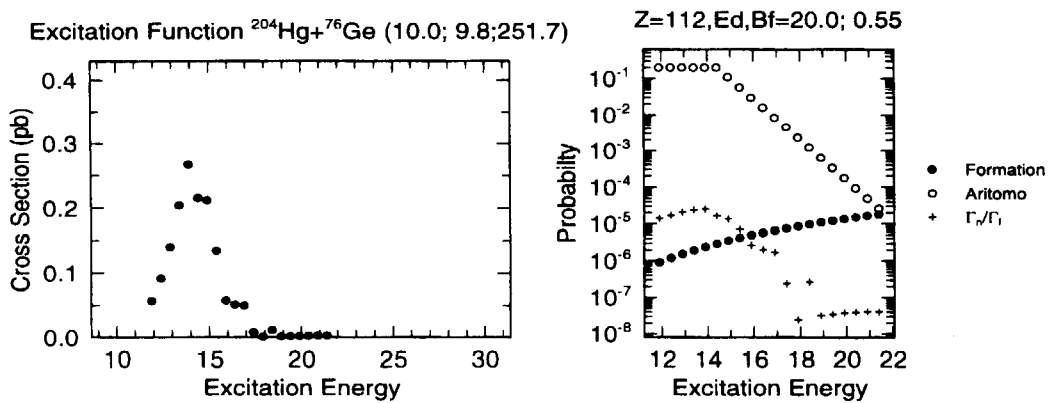
☒ 33:



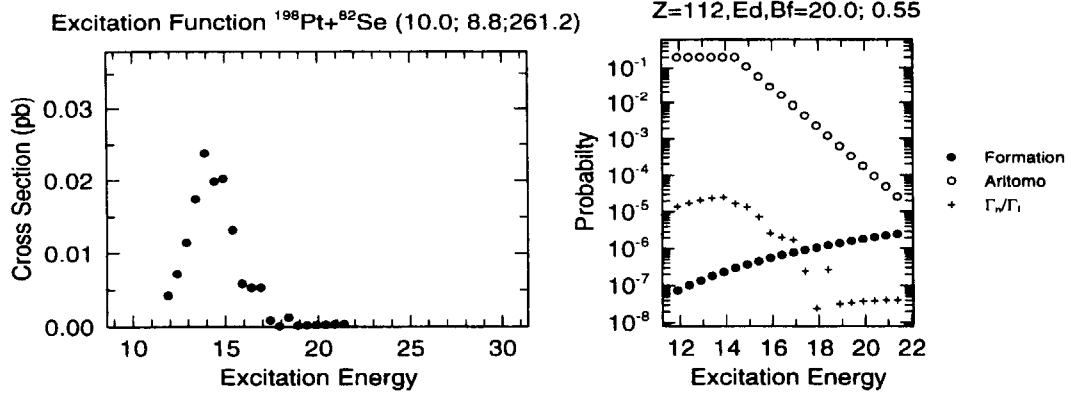
☒ 34:



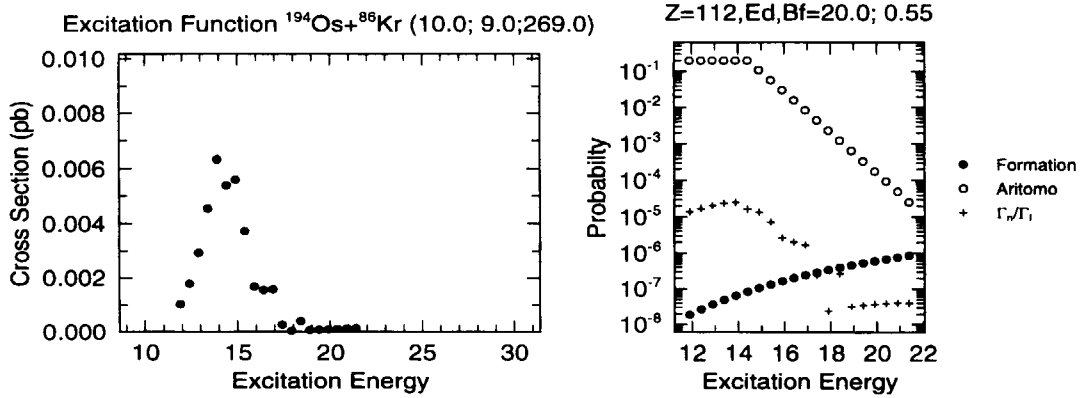
☒ 35:



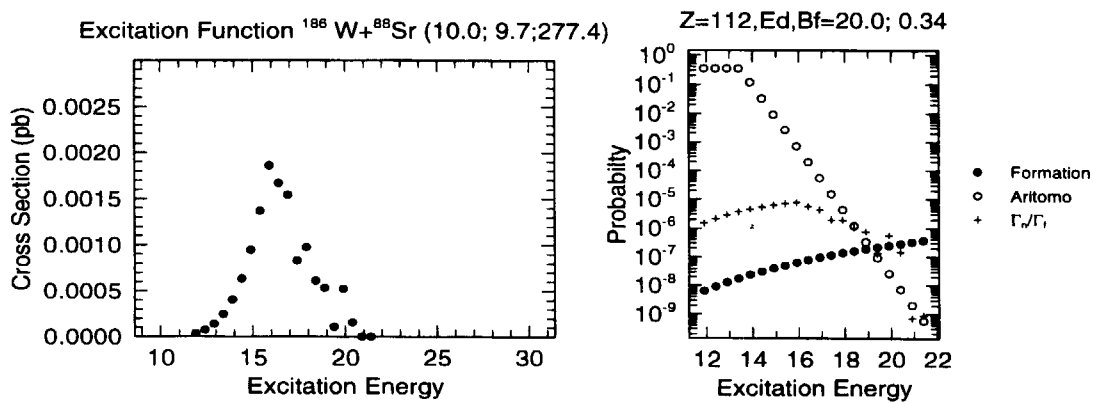
☒ 36:



☒ 37:



☒ 38:



☒ 39:

参考文献

- [1] S.Hofmann *et al.*, Z.Phys. A**350**, 277(1995);**350**, 281(1995).
- [2] Yu.Ts.Oganessian *et al.*, Eur.Phys. J.A in press. (JINR E7-98-212,Dubna).
- [3] Y.Aritomo, T.Wada, M.Ohta and Y.Abe, Phys.Rev. C **55**, R1011(1997).
- [4] Y.Aritomo, T.Wada, M.Ohta and Y.Abe, Phys.Rev. C **59**, 796(1999).
- [5] Y.Aritomo, Doctor Thesis (Konan University)1998.
- [6] T.Wada, T.Tokuda, K.Okazaki, M.Ohta, Y.Aritomo and Y.Abe, Proceedings of DANF98, Slovakia 1998(World Scientific in print).
- [7] T.Wada, Y.Aritomo, T.Tokuda, M.Ohta, and Y Abe, Nucl. Phys., A**616**, 446c(1997).
- [8] Y.Abe, Y.Aritomo, T.Wada and M.Ohta, J.Phys., G**23**, 1275(1997).
- [9] Y.Aritomo, K.Okazaki, T.Wada, M.Ohta and Y.Abe, in *Proceedings of Tours Symposium on Nuclear Physics III*, edited by M.Arnoold, M.Lewitowicz, Yu.Ts.Oganessian, M.Ohta, H.Utsunomiya and T.Wada, AIP Conf.Proc.No.425(AIP, New York, 1998), p.61.
- [10] P.Armbruster, Annu. Rev.Nucl. Sci., **35**, 135(1985).
- [11] G.Münzenberg, Rep.Plog.Phys., **51**, 57(1988).
- [12] Yu.Ts.Oganessian and Y.A.Lazarew, in *Treatise on Heavy-Ion Science*, edited by D.A.Bromley (Plenum, New York, 1985), p.3.
- [13] P.Armbruster, to be published in Rep.Progr.Phys., IOP. (GSI-Preprint-98-66).
- [14] J.Maruhn and W.Greiner, Z.Phys., **251**, 431(1972).
- [15] K.Sato, A.Iwamoto, K.Harada, S.Yamaji and S.Yoshida, Z.Phys., A**288**, 383(1978).

- [16] K.T.R.Davis, A.J.Sierk and J.R.Nix, *Phys.Rev.*, **C13**, 2385(1976).
- [17] J.R.Nix and A.J.Sierk, *Nucl.Phys.*, **A428**, 161c(1984).
- [18] Y.Abe, S.Ayik, P.G.Reinhard and E.Suraud, *Phys.Reports*, **C275**, 49(1996).
- [19] J.Töke and W.J.Swiatecki, *Nucl.Phys.*, **A372**, 141(1981).
- [20] A.V.Ignatyuk, G.N.Smirenkin and A.S.Tishin, *Sov.J. Nucl.Phys.*, **21**, 255(1975).
- [21] M.Ohta, Y.Aritomo, T.Tokuda and Y.Abe, in *Proceedings of Tours Symposium on Nuclear Physics II*, edited by H.Utsunomiya, M.Ohta, J.Galin and G.Münzenberg (World Scientific, Singapore, 1995), p.480.
- [22] R.Bass, *Nuclear Reactions with Heavy Ions* (Springer-Verlag, Berlin, 1980)
- [23] M.Ohta, K.Okazaki, T.Wada, Y.Aritomo and Y.Abe, to be published in *Heavy Ion Physics* (Budapest).
- [24] R.Smolańczuk, *Phys.Rev.*, **C59**, 2634(1999).
- [25] H.Delagrange, C.Gregoire, F.Scheuter and Y.Abe, *Z.Phys.*, **A323**, (1986)437.
- [26] R.Vandenbosch and J.R.Huizenga, *Nuclear Fission* (Academic Press, New York, 1973), p.233.
- [27] K.H.Schmidt and W.Morawek, *Rep.Prog.Phys.*, **54**, (1991)949.
- [28] P.Möller, J.R.Nix, W.D.Myers and W.J.Swiatecki, *Atomic Data Nucl.Data Tables* **59** (1995) 185.
- [29] P.Möller, J.R.Nix, P.Armbruster, S.Hofmann and G.Münzenberg, *Z.Phys.*, **A359** (1997)251.



3. 原研での重元素・重核合成

Fusion of heavy deformed nuclei

池添 博、光岡 真一、西尾 勝久、Jun Lu、佐藤健一郎

Hiroshi IKEZOE, Shin-ichi MITSUOKA, Katsuhisa NISHIO, Jun Lu and Ken-ichiro SATO

原研 先端基礎研究センター

Advanced Science Research Center, JAERI

Keywords: Deformed Nuclei, Fusion, Evaporation residues, Statistical Model

Abstract: Evaporation residues produced in the fusion reactions of $^{60,64}\text{Ni}$ on ^{154}Sm and ^{76}Ge on ^{150}Nd were measured near Coulomb barrier energy by using JAERI-RMS. It was found that the fusion probability depends on the orientation of the deformed targets. When the projectiles collide at the tip of the deformed nuclei, the fusion probability is considerably reduced to the amount of 1/100–1/1000 of the predictions. On the other hand, when the projectiles collide at the side of the deformed nuclei, the fusion occurs without any hindrance. This phenomenon was understood qualitatively by comparing the distance between mass centers of two colliding nuclei at the touching configuration with the position of the saddle point of the compound nucleus. When the distance is longer than the saddle position, the fusion is hindered and an extra-extra push energy is needed to evolve into the formation of the compound nucleus.

1. はじめに

最近ロシアの Dubna で $Z=114$ 、米国バークレーで $Z=118$ の合成に関する報告があった[1,2]。Dubna では $^{48}\text{Ca} + ^{244,242}\text{Pu}$ 融合反応で $3n$ チャンネルを観測し、 $A=289$ と 287 からの α 崩壊と核分裂を観測したと報告している。生成断面積は 1 pb から 4 pb である。この反応は励起エネルギーが $30-35\text{ MeV}$ で、熱い融合反応といわれる。一方バークレーでの実験では ^{86}Kr ビームが使われ、 $^{86}\text{Kr} + ^{208}\text{Pb}$ 融合反応で $1n$ チャンネルでできる $A=293$ の α 崩壊を観測した。実験では $Z=118$ から $Z=106$ に至る 6 個の α 崩壊を観測したと報告している。この反応は冷たい融合反応と呼ばれ、生成断面積は 2 pb 程度であった。ドイツ GSI では冷たい融合反応を使って $Z=112$ の合成まで成功しており[3]、 $Z=102$ から $Z=112$ に至る生成断面積の減少傾向から $Z=118$ の場合、生成断面積は fb 程度になると予想されていた。今回のバークレーの結果はこの傾向を完全に覆すもので、超重元素合成に大きな弾みを与える結果である。

なぜ、バークレーの結果は GSI の予想の 1000 倍も大きかったのか。これに関して、Smolanczuk [4] は融合確率と生き残り確率を簡単なモデルで計算し $1n$ チャンネルについて、 $^{86}\text{Kr} + ^{208}\text{Pb}$ 反応の場合 670 pb を予言していた。彼は、融合確率を簡単なカットオフクーロンポテンシャルの透過確率で見積もり、生き残り確率 Γ_n/Γ_f はシェル減衰ファクターを 12.5 MeV にとり、変形核の集団運動による準位密度の増大を考慮して通常予想される値よりも 1桁程度小さな値を見積もっている。 Γ_n/Γ_f の値は複合核の中性子結合エネルギーとシェルエネルギーの大きさに強く依存する。 $^{86}\text{Kr} + ^{208}\text{Pb}$ 反応の場合、複合核 $Z=118$ 、 $A=294$

は中性子結合エネルギーが小さく、さらにシェルエネルギーが大きい核分裂障壁も大きい原子核と予想され、これが生き残り確率を大きくし、大きな生成断面積を与えている。ただ、融合確率をシンプルなポテンシャルの透過確率で置き換えたため、接触した位置からサドル点に至るポテンシャルを乗り越える過程が見えなくなっている。この点に関しては甲南大の有友らの拡散モデルに基づく計算がある[4] (太田氏による報告参照)。また、 ^{86}Kr と ^{208}Pb の中性子数が 50 と 126 のマジック数であることが融合確率の増大に関係している可能性もある。Möller 等は殻構造の強い原子核同士が衝突する場合、エネルギーギャップが近距離まで存在して原子核が励起しにくい構造が出来るという[6]。殻構造を考慮した原子核融合のダイナミックスの計算が望まれる。

熱い融合反応や冷たい融合反応の他に変形核同士の密着融合で超重元素を合成する可能性が理論的に提案されている[7]。この反応では、変形核の対称軸が互いにクロスする向きで衝突すると最もコンパクトな衝突形状ができ、融合しやすいと予想されている。さらに、衝突形状が軸対称性を持たないため、反応の過程で複合核を形成しないで核分裂過程へ向かう確率も小さいと予想されている。

この密着融合の可能性を探るために、希土類核の標的核に球形の入射核を当てて重イオンの融合確率が核の変形度や変形の向きにどのように依存するかを調べたので報告する。入射核が小さいとき変形核の長軸側で衝突するとクーロン障壁が低いため、この障壁を越えるに十分な入射エネルギーがあれば、入射核は容易に内部に入り融合する。たとえば、 $^{16}\text{O} + ^{154}\text{Sm}$ [8] や $^{40}\text{Ar} + ^{154}\text{Sm}$ [9] などの場合がこれに当たる。これらの融合断面積データはサブバリアー領域で ^{154}Sm が変形していることによる融合断面積の増大を示している。もっと入射核が重くなった場合、すなわち入射核の原子番号 Z_1 と標的の原子番号 Z_2 の積 $Z_1 Z_2$ が大きくなったとき、変形核の関与する融合反応がどうなるのかに注目した。実験では $^{63,64}\text{Ni} + ^{154}\text{Sm}$ 融合反応 (複合核 $^{214,218}\text{Th}$) と $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ 融合反応 (複合核 ^{226}U) での生成核断面積を原研タンデム・ブースター加速器と反跳生成核分離装置 [10] を使って測定した。

2. 実験概要と実験結果

濃縮された ^{150}Nd と ^{154}Sm を 1 ミクロンのアルミニウム箔にアルゴンスパッター法で着け、回転ターゲットに装着した。回転ターゲットは 10 回転/秒で回転させ、約 20 p nA の $^{63,64}\text{Ni}$ 、10-20 p nA の ^{76}Ge ビームで照射した。融合生成核はビーム方向 (ゼロ度) に置かれた反跳生成核分離装置でビームから分離し、焦点面に置かれた 2 次元位置エネルギー検出器に埋め込まれた。2 次元位置エネルギー検出器は前面 15 ストリップで後面は 128 ストリップから構成されている。2 次元位置エネルギー検出器の前面にチャンネルプレート検出器を 2 台置いて、入射粒子の飛行時間を測定した。飛行時間とエネルギーから入射粒子の質量を見積もり、生成核を反跳された標的核や散乱ビームから区別した。さらに、2 次元位置エネルギー検出器で検出されたが飛行時間の検出されなかったイベントはこの検出器に埋め込まれた融合核の崩壊イベントとみなした。生成核の測定効率は $^{63,64}\text{Ni} + ^{154}\text{Sm}$ 反応の場合 xn と pxn 反応で 0.25、 α xn 反応で 0.18、 $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ 反応の場合 xn と pxn 反応で 0.18、 α xn 反応で 0.16 とそれぞれ見積もられた。

ビーム方向から 40 度近辺に置かれたモニター用 SSD での弾性散乱の測定と反跳生成核分離装置のファラデーカップでのビーム電流値の測定から断面積の絶対値を求めた。

融合反応における入射チャンネルの効果を引き出すためには出口チャンネル (蒸発過程) を正確に押える必要がある。そのために、同じ複合核を形成する異なる反応系で $Z_1 Z_2$ の値が小さい反応系 ($^{32}\text{S} + ^{182}\text{W} \rightarrow$

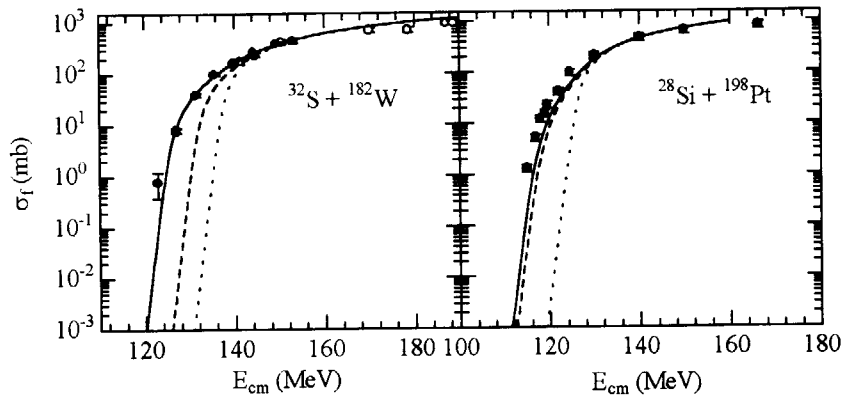


図1 融合断面積の計算値と測定値(核分裂断面積で近似)。実線は核の変形と非弾性励起を考慮し、破線は変形度のみを考慮し、点線は球形の場合の計算結果を示す。

^{214}Th と $^{28}\text{Si} + ^{198}\text{Pt} \rightarrow ^{226}\text{U}$ の融合生成核の測定も平行して行った。これらの反応での核分裂片の角度分布の測定が電離箱検出器を用いて行われた。散乱角度で積分した核分裂断面積の測定結果を図1に、生成核の断面積の測定結果を図2～図6に示す。

2. 1 理論計算

測定データは理論計算と比較された。融合断面積の計算は標的核や入射核の表面振動状態の励起 (2^+ および 3^- 状態) と標的核の変形 (4重極および8重極変形) によるクーロン障壁の衝突角度依存性を考慮したカップルチャンネル計算 CCDEF コード [11]で行い、複合核の蒸発過程は統計モデルコード HIVAP [12]で計算した。CCDEF で計算された融合断面積は図1の実線で示されているように $^{32}\text{S} + ^{182}\text{W}$ 反応および $^{28}\text{Si} + ^{198}\text{Pt}$ 反応で測定された核分裂断面積とよい一致を示した。 ^{182}W ($\beta_2 = 0.276$, $\beta_4 = -0.089$) と ^{198}Pt ($\beta_2 = -0.113$, $\beta_4 = 0$) は変形しているため、計算値は球形の場合 (点線) よりもサブバリアー領域で増大する (破線)。 $^{32}\text{S} + ^{182}\text{W}$ の場合は核の表面振動の励起を考慮すると融合断面積がさらに増大する (実線)。これら2つの反応系で示されているように、核の変形と表面振動状態の励起の効果はサブバリアー領域での核融合断面積 (核分裂断面積で近似) の増大に寄与している。ただし、測定された核分裂断面積が複合核形成後の核分裂と複合核を形成しない準核分裂の両方を含んでいること注意しなければならない (実験的には区別できない)。複合核を形成しているかどうかは蒸発残留核 (生成核) を測定して明らかになる。

CCDEF で計算された角運動量毎の融合断面積を HIVAP に入れて生成核の断面積を計算した。HIVAP 計算では、準位密度パラメータ a_n と a_f は

$$a = \tilde{a} \{ 1 + (1 - \exp(-E^*/18)) E_f/E^* \}$$

$$\tilde{a} = 0.069A + 0.165A^{2/3}B_s + 0.175A^{1/3}B_k$$

で計算された[13,14]。ここで E^* は励起エネルギー、 E_f はシェル補正エネルギー、 B_s と B_k はそれぞれ規格化された核の表面積と integrated curvature を表す。 B_s と B_k は核の変形度が与えられれば計算できる量で、液滴モデルで計算された。さらに角運動量によるサドル点形状の変化も考慮された。 E_s は Audi and Wapstra [15]の質量表から Myers and Swiatecki の液滴モデル計算[16]で計算される質量との差として与えられた。こ

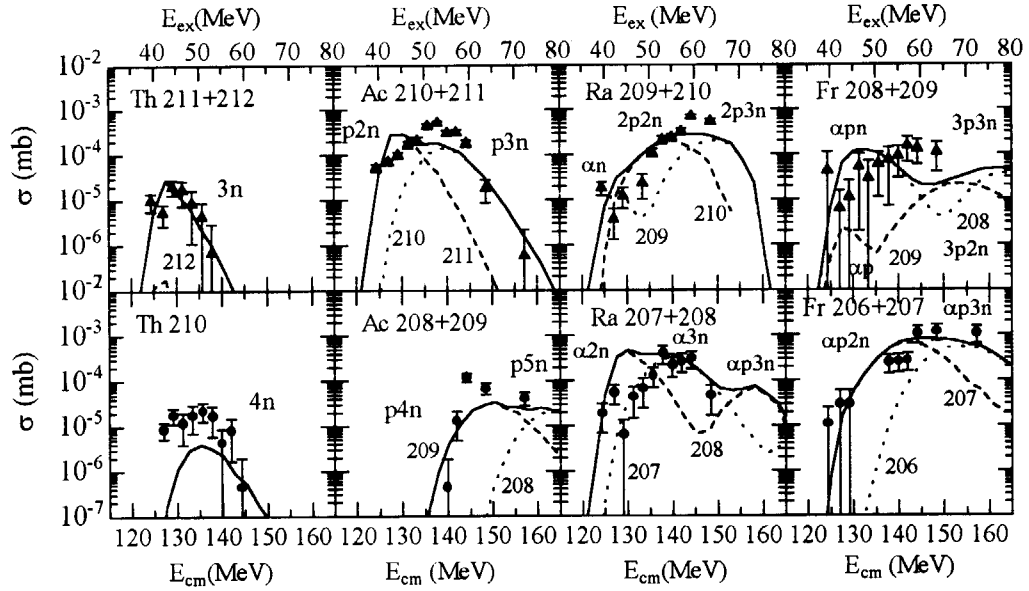


図2 $^{32}\text{S}+^{182}\text{W}$ 融合反応における蒸発残留核断面積 (実線は計算値)

ここではシェル減衰ファクター18 MeVが仮定された。また準位密度 $\rho(E^*)$ には回転や振動など集団運動の励起による準位密度増大も考慮した[17]。

$$\rho(E^*) = K_{\text{rot}} K_{\text{vib}} \rho_{\text{shell}}(E^*)$$

ここで4重極変形度 $\beta_2 \geq 0.17$ のとき $K_{\text{rot}} = (\sigma_{\perp}^2 - 1)(E^*) + 1$, $K_{\text{vib}} = 1$, $\beta_2 < 0.17$ のとき $K_{\text{vib}} = \exp(0.0555A^{2/3}T^{4/3})(E^*) + 1$, $K_{\text{rot}} = 1$. T は核温度で $f(E^*) = (1 + \exp(E^* - 40)/10)^{-1}$ [17], $\sigma_{\perp}^2 = J_{\perp}^2 / I^2$. ここで J_{\perp} は核の慣性モーメントの対称軸に垂直な成分を表す。核分裂障壁 B_f は $B_f = B_{LD} - E_s$ で与えられる。ここで B_{LD} は液滴モデル[18]で計算され、さらにシェル補正エネルギーが励起エネルギーの上昇とともに減衰する効果が考慮されている。

2. 2 $^{32}\text{S}+^{182}\text{W}$ と $^{60,64}\text{Ni}+^{154}\text{Sm}$

図2に示されたように、生成核断面積の理論計算は測定データと良く一致している。 $^{32}\text{S}+^{182}\text{W}$ 反応ではバスバリアー ($V_{\text{Bass}} = 135.9 \text{ MeV}$) 以下のエネルギー領域で生成核が検出されており、原子核同士は完全に融合していることを示している。計算ではバスバリアー以下のエネルギーでの融合断面積は ^{182}W の変形、特に長軸側で ^{32}S が融合した場合に対応する。したがって、この測定データは ^{182}W 核の変形の効果がサブバリアーエネルギー領域で融合確率の増大に寄与している事を示している。

一方 $^{60}\text{Ni}+^{154}\text{Sm}$ 反応の場合(図3)、 $E_{\text{cm}} \geq 200 \text{ MeV}$ のエネルギー領域で計算値(破線)は測定データを再現しているが、バスバリアー ($V_{\text{Bass}} = 192.8 \text{ MeV}$) 近傍のエネルギー領域で期待される2n, p2n, α , αn , $\alpha 2n$, αp , αpn チャンネルに対応する生成核の計算値が測定データより100-1000倍大きくなっている。統計モデルによるとこれらの生成核は主に ^{154}Sm の長軸側から ^{60}Ni が衝突してできる励起エネルギーの低い複合核の脱励起によって生成される。したがってこの測定結果は、このような低励起状態の複合核の形成が阻害されていることを示している。このことを裏付けるために、仮に衝突角度に依存したエキシ

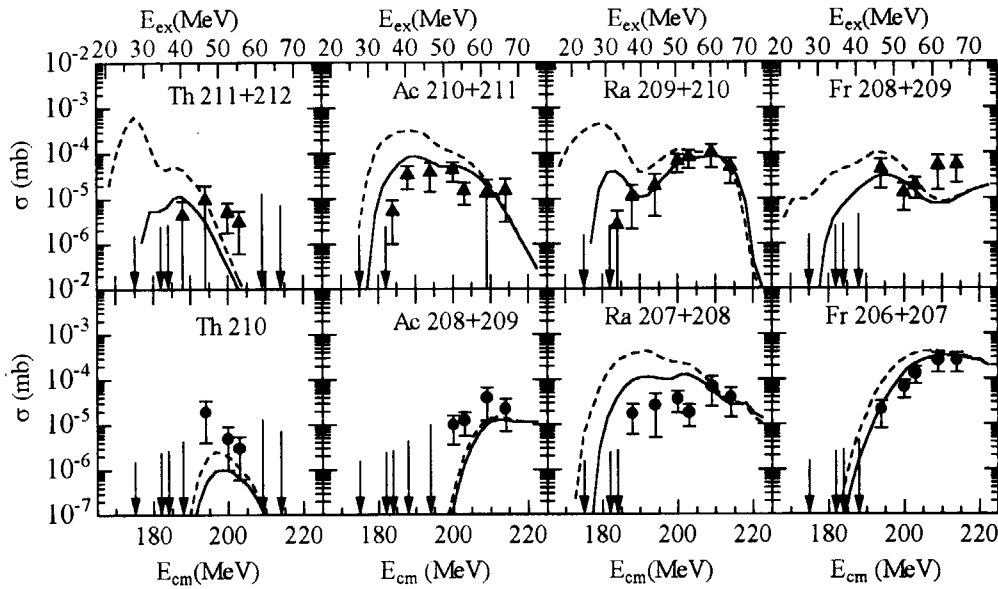


図3 $^{64}\text{Ni} + ^{154}\text{Sm}$ 融合反応における蒸発残留核断面積 (矢印は測定値の上限値)。

トラップシュエネルギーを $\Delta E = 11(1 - (\theta/90)^\theta)$ MeV と仮定して通常の障壁に加算したときの計算結果を図3の実線で示す。ここで $\theta = 0$ 度は長軸方向、 $\theta = 90$ 度は短軸方向である。計算結果は低エネルギー側で融合断面積が減少し測定データとよい一致を示している。 ΔE のとり方はいろいろあり確定できないが、ここで言えることは長軸方向からの衝突で10 MeV以上のエキストラップシュエネルギーが必要であり、短軸側からの衝突では ΔE は小さい(≈ 0)ということである。短軸側 $\theta = 90$ 度でのクーロン障壁は198.8 MeVであり、 $E_{cm} \geq 200$ MeVのエネルギー領域でデータが計算値と一致していることから、短軸側での衝突では通常の融合障壁を越えれば融合することがわかる。

$^{64}\text{Ni} + ^{154}\text{Sm}$ 融合反応の測定結果を図4に示す。計算(細い実線および破線)では入射核の中性子数が多

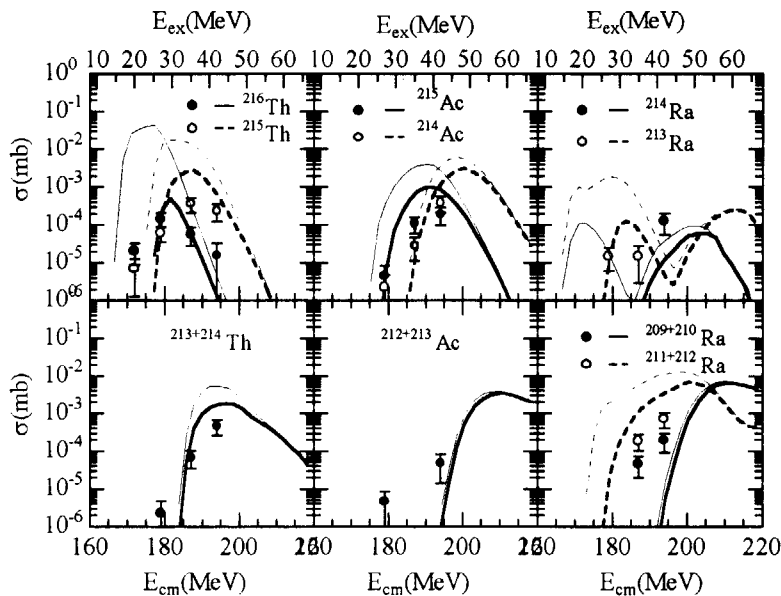


図4 $^{64}\text{Ni} + ^{154}\text{Sm}$ 融合反応の蒸発残留核断面積 (実線および破線は本文参照)。

いため複合核からの中性子放出確率が大きくなり、2n、3n、p2n、p3n チャンネルなどの生成核断面積が低励起エネルギー側で大きくなる。測定データはこのエネルギー領域で計算値の 100 - 1000 分の 1 であった。この結果は、変形核の長軸側で衝突する場合、完全に融合しないのではなくわずかではあるが融合する確率があることを示している。 $^{60}\text{Ni} + ^{154}\text{Sm}$ 反応の解析で仮定した ΔE を使った計算 (太い実線および破線) で実験値との一致は良くなった。したがって、これらの反応系では変形核の長軸側で入射核が衝突した場合、融合確率は計算値の 100 - 1000 分の 1 に減少するが、短軸側で衝突する場合はクーロン障壁を越えれば融合すると結論される。

2. 3 $^{28}\text{Si} + ^{196}\text{Pt}$ と $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ 反応

図 1 に示したように、融合断面積の計算値は核分裂断面積の測定値とほぼ一致している。すなわち ^{196}Pt の変形効果はサブバリアー領域で融合断面積に寄与している。さらに、生成核断面積の計算結果 (図 5 の実線) は測定値とよい一致をしている。このことから、 $^{28}\text{Si} + ^{196}\text{Pt}$ 融合反応では $^{32}\text{S} + ^{182}\text{W}$ 融合反応の場合と同様に、複合核を形成した完全融合反応であるといえる。

$^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ 反応の場合 (図 6)、 $E_{\text{cm}} \geq 210$ MeV では計算値 (破線) は測定データと一致しているが、低エネルギー $E_{\text{cm}} \leq 210$ MeV では ^{224}U 、 ^{225}U に対する計算値は測定上限値の 10 - 500 倍大きい。この低エネルギー領域は励起エネルギー 20 MeV 程度に相当し、 ^{150}Nd の長軸側から ^{76}Ge が衝突した場合に対応する。ここでも $^{60}\text{Ni} + ^{154}\text{Sm}$ の場合と同様に、融合確率が小さくなっている。仮に $\Delta E = 13 (1 - (\theta/90)^\alpha)$ MeV のエキストラプッシュエネルギーを仮定すると実線で示したように、計算値は測定データを良く再現する。このことから ^{150}Nd の長軸側で ^{76}Ge が衝突する場合、13 MeV 程度のエキストラプッシュエネルギーが必要であるが、短軸側での衝突ではエキストラプッシュエネルギーは必要とせず、この位置でのクーロン障壁 (214.4 MeV) を越えれば融合すると結論される。

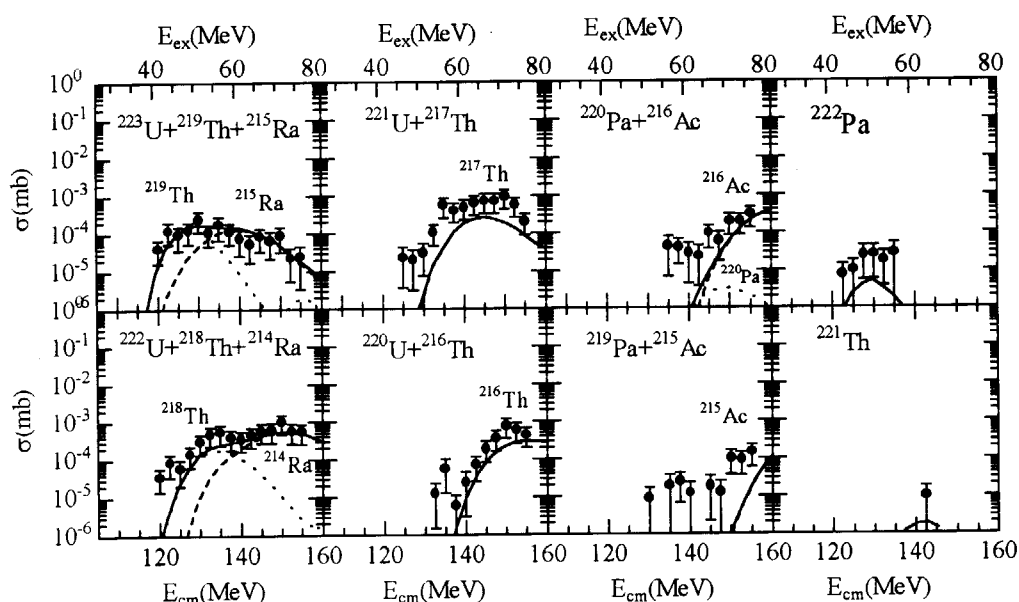


図 5 $^{28}\text{Si} + ^{196}\text{Pt}$ 融合反応の蒸発残留核断面積 (実線は計算値)。

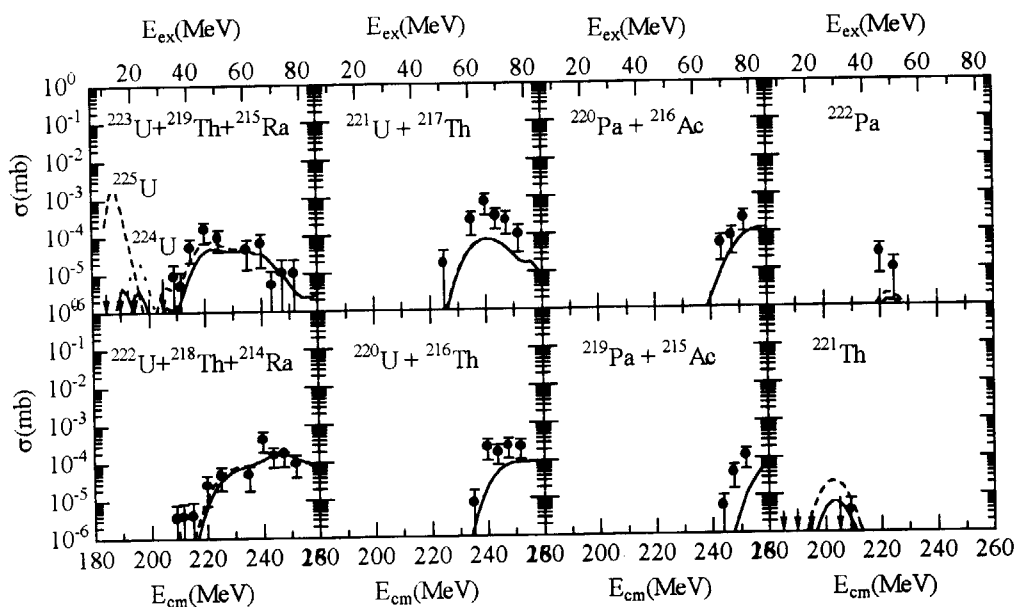


図6 $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ 融合反応の蒸発残留核断面積 (実線および破線は計算値)。

3. まとめ

Z_1Z_2 が小さい反応系 $^{32}\text{S} + ^{182}\text{W}$ ($Z_1Z_2 = 1184$) や $^{28}\text{Si} + ^{198}\text{Pt}$ ($Z_1Z_2 = 1092$) の場合、入射核と変形した標的核との衝突角度に関係無く、複合核を形成した完全融合反応がおきる。 $^{60}\text{Ni} + ^{154}\text{Sm}$ 反応 ($Z_1Z_2 = 1736$) や $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ 反応 ($Z_1Z_2 = 1920$) の場合のように Z_1Z_2 が大きくなると、変形核の長軸側での衝突では融合が著しく阻害されるが、短軸側での衝突では融合は阻害されない。このことは、2つの原子核が衝突したときの中心間距離 r/R_0 (R_0 : 複合核の半径) と複合核のサドル点の位置を比較することで理解される。図7に示したように、 $^{32}\text{S} + ^{182}\text{W}$ 反応系や $^{28}\text{Si} + ^{198}\text{Pt}$ 反応系では衝突角度によらず r/R_0 はサドル点の位置 (太い実線[19]) より内部であるが、 $^{60}\text{Ni} + ^{154}\text{Sm}$ 反応系や $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$ 反応系では長軸側の衝突位置が複合核のサドル点より外に出ており、短軸側の衝突位置はサドル点の内部に位置する。したがって、短軸側での衝突では障壁を越えれば

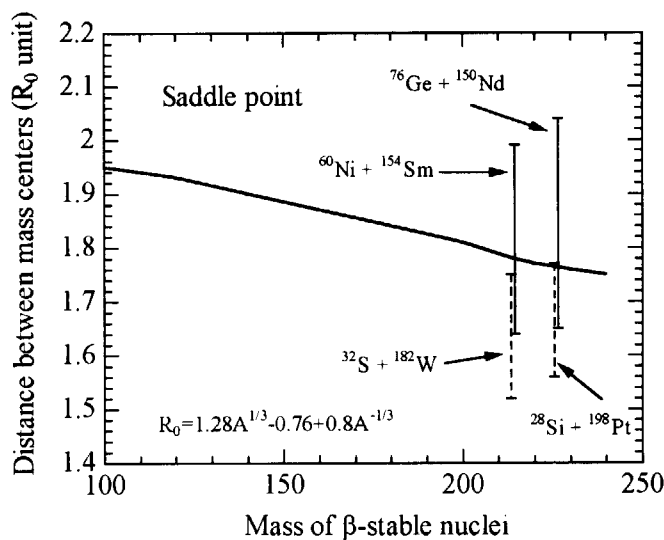


図7 複合核のサドル点と融合障壁の位置の関係。

即融合するが、長軸側での衝突では融合障壁を越えてもさらにサドル点に達するためにエキストラプッシュエネルギーが必要になる。ここで得られた実験結果は、原子核同士の衝突した形状がよりコンパクトなものほど融合しやすいことを示しており、理論的に予想されている変形核同士の密着融合の可能性を示唆するものである。

参考文献

- [1] Yu. Ts. Oganessian et al., Preprint JINR, E7-99-53.
- [2] V. Ninov et al., Phys. Rev. Lett. 83 (1999) 1104.
- [3] S. Hofmann, Rep. Prog. Phys. 61 (1998) 639.
- [4] R. Smolanczuk, Phys. Rev. C 59 (1999) 2634.
- [5] Y. Aritomo et al., Phys. Rev. C 59 (1999) 796.
- [6] P. Möller et al., Z. Phys. A 359 (1997) 251.
- [7] A. Iwamoto et al., Nucl. Phys. A 596 (1996) 329.
- [8] R.G. Stokstad and E.E. Gross, Phys. Rev. C 23 (1981) 281.
- [9] W. Reisdorf et al., Nucl. Phys. A 438 (1985) 212.
- [10] H. Ikezoe et al., Nucl. Inst. And Meth. A 376 (1996) 420.
- [11] J. fernandez et al., Comp. Phys. Comm. 54 (1989) 409.
- [12] W. Reisdorf and M. Schädel, Z. Phys. A 343 (1992) 47.
- [13] W. reisdorf et al., Z. Phys. A 300 (1981) 227.
- [14] A.V. Ignatyuk et al., Sov. J. Nucl. Phys. 21 (1975) 255.
- [15] G. Audi and A.H. Wapstra, Nucl. Phys. A 595 (1995) 409.
- [16] W.D. Myers and W.J. Swiatecki, Ark. Fys. 36 (1967) 343.
- [17] A.R. junghans et al., Nucl. Phys. A 629 (1998) 635.
- [18] S. Cohen et al., Ann. of Phys. 82 (1974) 557.
- [19] G. Royer et al., Nucl. Phys. A 634 (1998) 267.

4. 中性子過剰核を用いた $^{11,10,9}\text{Be} + ^{209}\text{Bi}$ 融合反応断面積の測定

吉田 敦 (理研放射線研究室)

1. はじめに

不安定核 ^{11}Be は、中性子解離エネルギー(S_n)が 0.5MeV と安定核の $S_n=6\sim 8\text{MeV}$ と比べて極端に小さいため、過剰中性子が核表面に低い密度で存在する中性子ハロー核である事、及び相互作用断面積の測定から平均自乗半径

(R_{ms})がBe安定同位体の系統性($R_{ms} \sim A^{1/3}$)からずれ 0.5fm 程増大していることが知られている¹⁾。そして融合反応のような核表面のクーロン障壁の変化に敏感な核反応では、上記性質を持った過剰中性子が重要な役割を持つことが期待されている。

しかし理論の予想は、 ^{11}Be の低い解離エネルギーのために中性子移行や集団運動励起による動的変形が促進され融合反応断面積が増大するというものや、過剰中性子は融合前に解離してしまい融合反応断面積は減少するという相反するものなど諸説紛々とした状況であり、中性子過剰核ビームを用いた実験的研究が待たれていた。そこで我々は安定核 ^9Be からハロー核 ^{11}Be までの融合反応断面積を同じ実験セットアップで統計精度よく系統的に測定した²⁾。本稿ではこの測定結果をもとに、クーロン障壁(V_c)より高い励起エネルギー領域での融合反応断面積の比較を行ってみた。

しかし理論の予想は、 ^{11}Be の低い解離エネルギーのために中性子移行や集団運動励起による動的変形が促進され融合反応断面積が増大するというものや、過剰中性子は融合前に解離してしまい融合反応断面積は減少するという相反するものなど諸説紛々とした状況であり、中性子過剰核ビームを用いた実験的研究が待たれていた。そこで我々は安定核 ^9Be からハロー核 ^{11}Be までの融合反応断面積を同じ実験セットアップで統計精度よく系統的に測定した²⁾。本稿ではこの測定結果をもとに、クーロン障壁(V_c)より高い励起エネルギー領域での融合反応断面積の比較を行ってみた。

2. 実験

実験は理化学研究所加速器施設の入射核破砕片分離装置(RIPS)を用い、1次ビーム $^{13}\text{C}(100\text{A.MeV})$ から2次ビーム $^{9,10,11}\text{Be}$ (約45A.MeV) をそれぞれ生成し、そのエネルギーを4~5 A.MeV まで減速した後、 ^{209}Bi 標的($0.7\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$)に照射した。検出効率を向上させるため標的を4

層にし、それらを半導体検出器8枚で囲み、融合核からの特性 α 線と核分裂片を測定した。ビーム強度損失と他の不純物原子核の混入を少なくなるようにビーム減速方

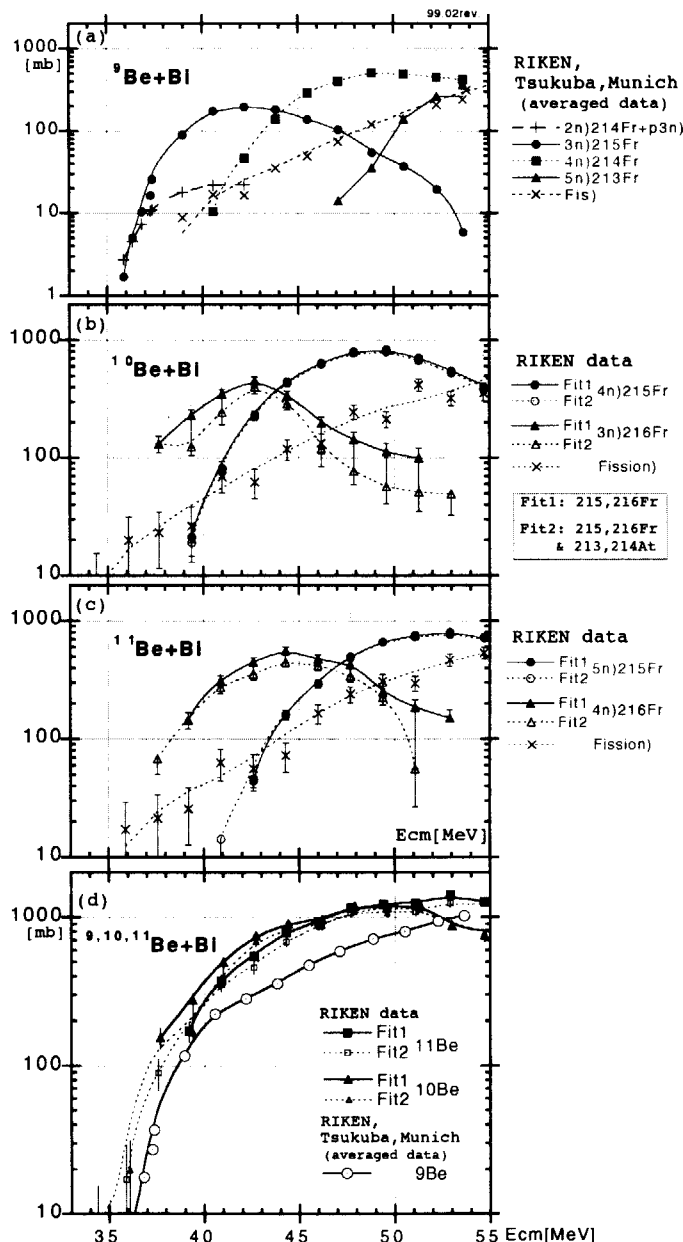


図1 (a)~(c)図: $^{9,10,11}\text{Be} + \text{Bi}$ の融合反応で測定された短寿命 α 崩壊と核分裂片の励起関数。(d)図: これらを足し合わせた全融合反応断面積。図中の Fit1, Fit2 はそれぞれ $^{215,216}\text{Fr}$ の α 崩壊ピークの fitting において別種の α 崩壊 $^{213,214}\text{At}$ からの寄与を考慮しない場合とした場合。

法を最適化し、また減速後に約±40%に広がったビームエネルギーを飛行時間測定法で精度よく測定する事で、融合反応断面積を広範囲のエネルギー範囲で一度に測定できるようにした。核分裂片測定には標的を囲む2面の半導体検出器の同時計測法を用い、またα崩壊測定にはその崩壊の間に次のビーム粒子が照射しないような回路構成を組み S/N を向上させた。この回路によるイベントトリガー損失を軽減するため、短寿命α崩壊核 ^{215}Fr (半減期 86ns)、 ^{216}Fr (同 700ns)を生成する反応系を選び遅延α線同時計測を行った。 $^{10,11}\text{Be}$ の系では、この2核種生成と核分裂反応が障壁近傍での全融合反応断面積を与える。その結果、有効ビーム強度は減速前の約1桁落ちで済ますことができ約 150 kcps の強度で測定を行うことができ、2次不安定核ビームによる全融合反応断面積が 100mb 領域まで約±20%以下の精度で得られた。

3. 結果と考察

測定した短寿命α崩壊と核分裂反応の融合断面積を 図1-(a)~(c) に示す。先ず安定核 $^9\text{Be}+\text{Bi}$ データに関しては、理研実験の他に筑波大学及び Munich 大学のタンデム加速器施設にて1次ビームとして ^9Be を加速し、上記と同じ反応を十分なビーム強度とエネルギー精度で測定した。その結果双方のデータは、2次ビーム及び1次ビーム実験とともに測定可能な短寿命α崩壊核 $3n)^{215}\text{Fr}$ において、融合反応断面積が良く一致し、理研データの測定値が妥当であることを確認した。図中の ^9Be のデータ点は、これら3つの実験の平均値でありそのエラーバーは小さい。また $^{215,216}\text{Fr}$ のα崩壊半減期は上記の値とほぼ一致する事を確認した。またこれらのα崩壊ピーク近傍には、隣接したα崩壊エネルギーを持つ $^{213,214}\text{At}$ (pxn) 蒸発残留核か不完全融合反応生成核と思われる)の混入も考えられた為、崩壊寿命ゲートをかけて慎重に解析を行った。図中には $^{213,214}\text{At}$ からの寄与を除いた解析結果も併記してある。

これらの短寿命α崩壊核と核分裂片を生成する断面積を足し合わせて、クーロン障壁近傍での $^{9,10,11}\text{Be}+\text{Bi}$ 全融合反応断面積 σ_{fus} を 図1-(d) のように求めた。本稿では統計精度が良い 100mb 以上の領域($E_{\text{cm}}=39\sim 50\text{MeV}$)での比較を行ってみた。この領域は障壁より高いエネルギー領域 ($E_{\text{cm}}/V_b = 1.0\sim 1.3$) なので、融合反応断面積を古典的な核反応の描像

$$\sigma_{\text{fus}}(E_{\text{cm}}) = \pi R_b^2 * (1 - V_b/E_{\text{cm}}), \quad V_b(r) = V_n(r) + V_c(r) \quad \text{--- (1)}$$

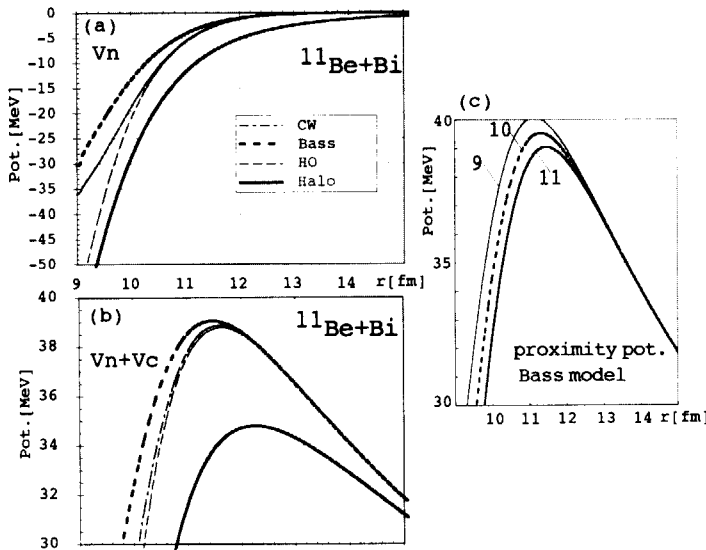


図2 (a)図: $^{11}\text{Be}+\text{Bi}$ の核間ポテンシャルモデルの比較。(b)図:これから求めたクーロン障壁。CW, Bass, H.O., Haloの4つのポテンシャルモデル(本文参照)を比較した。(c)図:このうち Bass モデルについて、 $^{9,10,11}\text{Be}$ それぞれの同位体による障壁の違いを示した。

で扱うことができるであろう。ここで R_b は s-wave 障壁 $V_b(r)$ の最大値における核間距離である。指標とする R_b, V_b を、クーロンポテンシャル $V_c(r)$ と2つのアプローチで求めた核間ポテンシャル $V_n(r)$ を用いて計算してみた。1つは、液的モデルから導かれた半経験的近似核間ポテンシャルモデル Christensen-Winther(C.W.)ポテンシャル³⁾(CCFUSコード等で用いられている)と、Bassポテンシャル⁴⁾である。もう1つは、核子密度をパラメータとして代入できる M3Y-Double Foldingポテンシャルモデルを用いた。ここで ^{209}Bi には、電子散乱データから得られた Fermi 型の核子密度分布⁵⁾を用

いた。また ^{11}Be の核子密度分布は2通りの方法を比較してみた。1つは ^9Be の電子散乱データから得られた調和振動子(H.O.)型密度分布⁵⁾をもとに過剰中性子の分だけスケールした中性子密

度分布である。もう1つはハロー中性子の効果を取り入れるために、 ^{11}Be の核構造を考慮した Skyrme-Hartree-Fock 計算コード⁶⁾から求めた密度分布に、相互作用断面積データ⁷⁾をほぼ再現するように中性子密度分布に $|\psi(2S_{1/2})|^2$ を人為的に加え中性子数で規格化した分布である。計算で求めた $^{11}\text{Be}+\text{Bi}$ の核間ポテンシャル $V_n(r)$ の比較を図 2-(a) に、これにクーロンポテンシャル $V_c(r)$ を加えて求めたクーロン障壁の比較を図 2-(b) にそれぞれ示した。2種類の半経験的近似核間ポテンシャル(C.W., Bass)及び、安定核 ^9Be からスケールした密度分布を用いた Folding ポテンシャル(H.O.)は、ほぼ同じクーロン障壁を与える。これに対し、同じ Folding ポテンシャルでもハロー中性子効果を考慮した中性子密度分布(Halo)を用いた場合は、障壁は高さで約 4MeV 低下し核間距離で約 0.8fm 大きくなるが予測された。

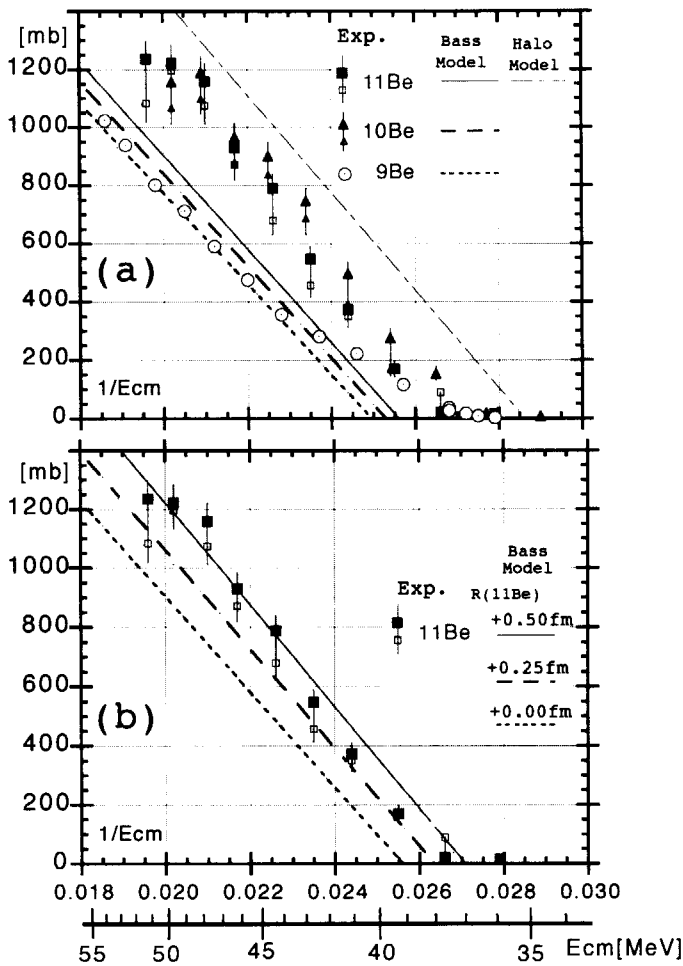


図3 図(a): $^{9,10,11}\text{Be}+\text{Bi}$ 全融合反応断面積の実験値とクーロン障壁モデル(Bass, Halo)による計算値の比較。図(b):このうち $^{11}\text{Be}+\text{Bi}$ データについて、(2)式を仮定してクーロン障壁での核間距離の増大量 dR_b を人為的に与えた場合の比較。横軸は $1/E_{cm}$ 、縦軸は全融合断面積 σ_{fus} をリニアスケールでプロットしてある。

我々の実験データとの比較を行うにあたり、以下の議論では、ほぼ同じクーロン障壁を与える $V_n(r)$ モデルの中から(Bass) を一つの基準としてみることにした。(Bass)モデルでの $^{9,10,11}\text{Be}$ それぞれの同位体によるクーロン障壁の違いは図 2-(c) に示した程度である。他のモデル(C.W., H.O.)でもこれとほぼ同じ障壁の差異がみられた。この図からクーロン障壁の最大値 $V_b(r = R_b)$ を求め、これらを上式(1)に代入して古典的な全融合反応断面積の計算値とした。

実験データと(Bass)モデルの比較を図 3-(a)に示した。図中のデータ点は、 ^{10}Be の場合 $E_{cm} < 50\text{MeV}$ ($4n$) ^{215}Fr のピークまで、 ^{11}Be の場合 $E_{cm} < 53\text{MeV}$ ($5n$) ^{215}Fr のピークまで)の範囲についてプロットしてある。これより高エネルギー側では ^{214}Fr が未測定なためである。 ^9Be では $\sigma_{fus} > 200\text{mb}$ の高いエネルギー領域において、(Bass)モデルの予測と良く一致した。これに対し $^{10,11}\text{Be}$ では、(Bass)モデルの予測より顕著に大きな融合断面積の増大がみられた。図中には図 2-(b) で示した ^{11}Be (Halo)モデルの予測線も示した。 ^{11}Be の実験値はこれよりは小さな値であった。そこで試みとしてその融合断面積の増大量を、次式を仮定してクーロン障壁における核間距離の増大量 dR_b として見

てみる。

$$\sigma_{fus}(E_{cm}) = \pi (R_b + dR_b)^2 * (1 - V_b/E_{cm}) \quad \text{--- (2)}$$

V_b は ^{11}Be の(Bass)モデルを用いて、 dR_b を $0 \sim 0.5\text{fm}$ の範囲で変化させた場合の ^{11}Be データとの比較を図 3-(b)に示した。増大量 dR_b は、 $200 \sim 600\text{mb}$ の領域では約 0.25fm 、 $600 \sim 1200\text{mb}$ の領域では約 0.5fm に相当する。データ点をより正しく fit するには傾きに相当する V_b を大きくしなければならないが、図 2-(b)に示したように一般にはクーロン障壁が低下すると R_b は増加

し V_0 は減少する相関があり、このような古典的全融合反応断面積の式では単純な fit はできない。

まとめとして、クーロン障壁より高いエネルギー領域における ${}^{9,10,11}\text{Be}+\text{Bi}$ の全融合断面積に着目した場合、安定核 ${}^9\text{Be}$ では一般に用いられている幾つかの核間ポテンシャルから予測される断面積と値及び傾きが良く一致したが、中性子過剰な ${}^{10,11}\text{Be}$ ではこれらの予測より顕著な増大がみられた。そしてその増大は、単純な核間ポテンシャルモデルのみでは説明が困難であり、例えば結合エネルギーの小さな過剰中性子の Breakup 反応等が競合して、 $1/E_{\text{cm}}$ プロットの傾きを大きくしているということも考えられる。

一方、今回測定した Be 同位体の中では ${}^{10}\text{Be}$ が中性子解離エネルギー $S_n({}^{10}\text{Be})=6.8\text{MeV}$ と最も安定であり、 ${}^9\text{Be}$ では $2\alpha+n$ というクラスター的な核構造を持つために $S_n({}^9\text{Be})=1.7\text{MeV}$, ${}^{11}\text{Be}$ ではハロー中性子のために $S_n({}^{11}\text{Be})=0.5\text{MeV}$ と不安定である。よって本稿で述べたような単純な核間ポテンシャルにとらわれずに ${}^{10}\text{Be}$ を基準として再解釈する必要もあると思われる。最近 100mb 以下の領域の統計精度を上げるために、同じセットアップで追試実験を行い現在解析中である。低エネルギーのクーロン障壁近傍での全融合断面積が ${}^{9,10,11}\text{Be}$ とともに似通っていることにも着目して更に解析を進めている。

(参考文献)

- 1) I.Tanihata, T.Kobayashi, O.Yamakawa, S.Shimoura, K.Ekuni, K.Sugimoto, N.Takahashi, T.Shimoda, and H.Sato, *Phys.Lett.* **B206** (1988), 592.
- 2) A.Yoshida et al., 2nd Japan-Italy Joint Sympo.'95, "Perspectives in Heavy Ion Physics", World Scientific, pg.19.
- 3) P.R.Christensen, A.Winther, *Phys.Lett.* **B65** (1976) 19.
- 4) R.Bass, *Phys.Rev.Lett.* **39** (1977) 265.
- 5) H.de Vries, C.W.de Jager, C.de Vries, *Atom.Data and Nucl.Data Tabl.* **36** (1987) 495.
- 6) P.G.Reinhard, *Computational Nuclear Physics 1*, Springer-Verlag, New York(1991) 28.
- 7) M.Fukuda, et.al., *Phys.Lett.* **B268** (1991), 339.



5. 重核の崩壊特性と質量公式

宇野正宏 (文部省初等中等教育局)

要旨： 超重元素を含む重核の安定性を決定する上で、主要な役割を果たすのは α 崩壊および核分裂である。一方、安定性を左右するほど高い確率では起こらないが、重クラスター崩壊のようなエキゾテックな崩壊様式もいくつか観測されている。本稿の前半では各種崩壊の半減期予測について概観するとともに、主に重クラスター崩壊について、質量公式から求めたQ値を示すことにより、崩壊の可能性を議論する。また、これ以外のエキゾテックな崩壊についても話題を提供する。

後半は、質量公式研究の最近の動向について、歴史的視点から概観し、今後の発展の展望について議論する。

1. α -、 β -崩壊、核分裂の概観

超重元素を含め重核の安定性については、 β 崩壊に加えて α 崩壊および核分裂が顕著な役割を果たす。

β 崩壊の半減期計算法については、山田、橘らによる大局的理論¹⁾やKlapdor、武藤らによる微視的理論(Quasi-particle RPA)²⁾などがあり、未知核種に対してある程度の信頼度をもった半減期予測値を得ることができる。参考までにやや古いバージョンではあるが、大局的理論による半減期鳥瞰図を図1に示しておこう。

α 崩壊の半減期については、WKB法によるトンネル透過率の計算や、それに諸種の補正を施したものなどを使うことにより、半減期予測値をやはりある程度定量的に求めることができる。参考までに有馬、吉田の方法によって計算された半減期の鳥瞰図³⁾を、図2に示しておこう。

α 崩壊、 β 崩壊では崩壊半減期決定のかなりの部分を支配するのがQ値、すなわち親核の基底状態エネルギー(質量といってもよい)と娘核の基底あるいは励起状態エネルギーの差に相当する量である。勿論、どのような崩壊メカニズムを考えるかによる依存性、つまり模型依存性がないわけではないが、それによって半減期の計算値が数桁変わるといようなことは、めったに起こらないことである。

一方、核分裂について見ると、事情は大きく異なっていると言わなければならない。Q値が分裂半減期決定を支配するのとほぼ同程度、場合によってはそれ以上に、分裂のメカニズムに対する依存度が大きいことが、他の崩壊の場合と決定的に違うところだと言っても過言ではなかろう。つまり、分裂メカニズムのモデルを変えると、半減期の計算値は簡単に数桁変わってしまうという状況なのである。これは裏を返せば核分裂メカニズムのモ

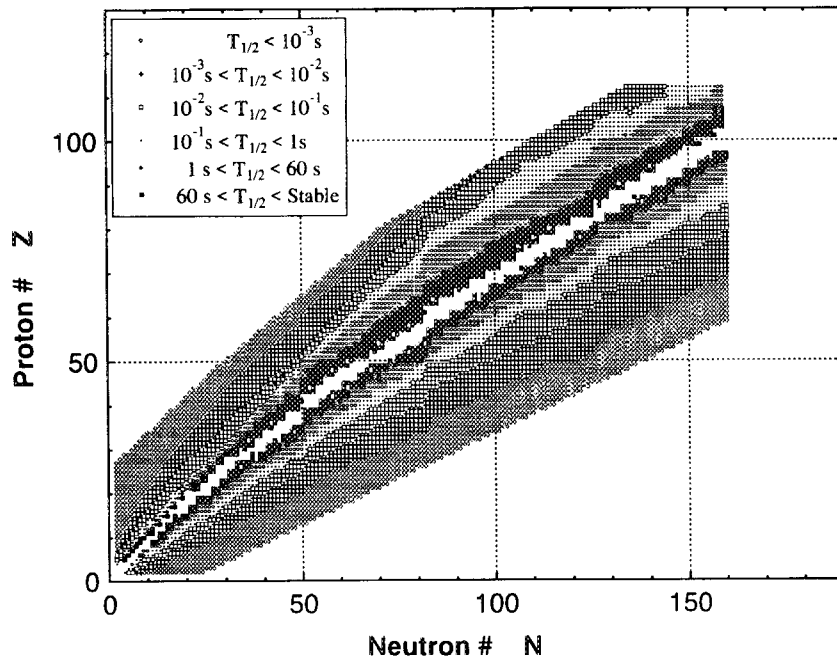


図1 ベータ崩壊の半減期鳥瞰図
(大局的理論による計算値)

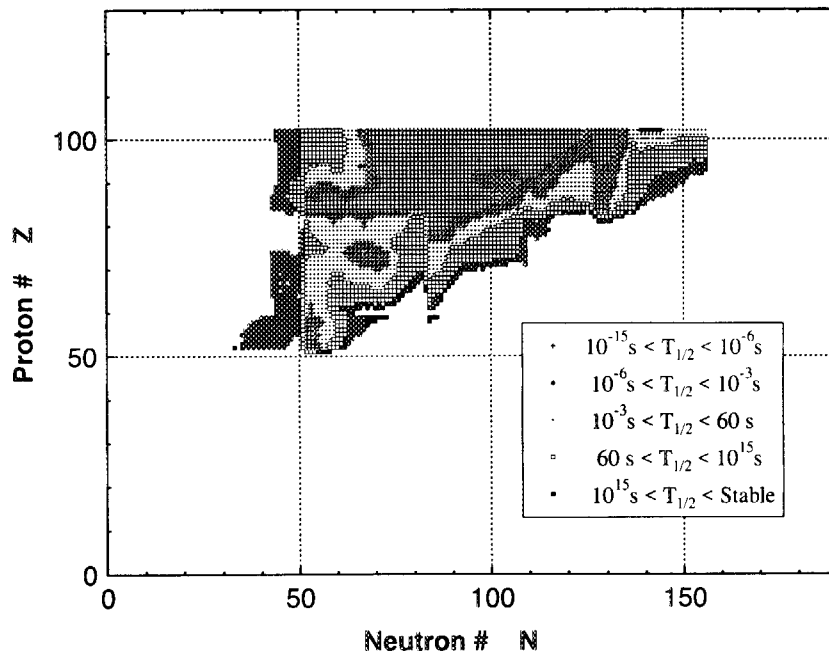


図2 アルファ崩壊の半減期鳥瞰図
(有馬一吉田の方法による計算値)

デルが、今もって確たる方向に収束していないことを示しているということもできそうである。Hahn, Strassmann による核分裂現象の発見⁴⁾以来、60余年たった現在の状況であることを考え合わせると、問題の難しさ如何ばかりかである。

やや言い訳めいてしまったが、この場に核分裂についての半減期鳥瞰図を並べ提示することができない所以である。かわりにここでは、この問題を解く上でのキーポイントを上げるに止める。

核分裂のメカニズムを大雑把に表現すれば、もともと球形あるいはわずかに変形していた原子核が、次第に変形の度合いを強めつつネックを形成し、ついに一体性を保ち得なくなったところで、二つの原子核に分かれる過程と言ってもよからう。そこでこのメカニズムを追いつつ半減期を計算するためには、変形度を変数とした核のポテンシャルエネルギー面を正確に知る必要がある。これ自体、大変難しい問題であり、現時点でこの種の計算を系統的に行っている研究グループは、世界中を見渡しても数えるほどしかない。最も有名などころでは P. Möller らのグループが、質量公式の研究と合わせて古くから研究を進めていることは周知であろう⁵⁾。また、やや微視的な立場からの研究として、Sobiczewski らのグループも長い研究歴を持っている⁶⁾。また、主に90年代に入ってから研究であるが、著者を含む早稲田グループが質量公式研究のなかで同様の研究を進めている⁷⁾。

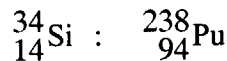
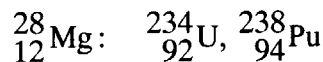
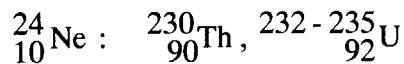
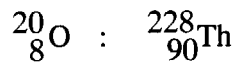
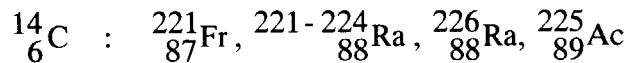
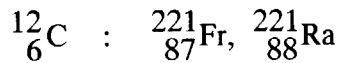
こうして仮にポテンシャル面が定まったとすると一仮にと言ったのは、未だ確たる結果が得られている訳ではないから、つぎにはこのポテンシャル内での集団運動を解くことになる。微視的にきちんと解くとなると、たとえば時間依存 Hartree-Fock 法などが考えられるが、大変形を扱うための理論の枠組みを整えること自体きわめて難しく、わずかな試みはあるものの現実的な計算は皆無という状況である。また、微視的な扱いを避けると、WKB法による障壁透過率の計算などが考えられる。この場合には、 α 崩壊のときのように固定したポテンシャルでの障壁透過という静的描像には、やはり無理があるように思われる。過程が断熱的であるか否かとも関係するかもしれないが、障壁通過中の運動エネルギーとの関係で有効質量などを導入する必要もありそうである。また、変形パラメーター空間をある程度制限しなければならないなどの困難もある。こうしたどちらかと言うと現象論的な研究は、核物理や核化学の両面から世界的に進められており、two-mode fission、multi-mode fission、あるいは輸送方程式を用いる方法など諸々のアイデアが提出されてきているが、なかなか決定打に至らない状況のようである。

以上は核分裂の理論面であるが実験面に目を転じると、過去30年ほどの間にそれ以前とは比較にならないほど、様々な側面からの大量の核分裂データが蓄積されている。Mass yield, kinetic energy distribution, neutron multiplicity などなど、しかも熱中性子ばかりでなく陽子誘発の核分裂についても、これらに関するデータが提供されるようになってきている。しかしながら著者の目から見ると、現状では残念なことにそれらの大量なデータが、あまり整理もされずに雑然と置かれているという印象を拭えないのである。核分裂発見60周年を過ぎた今、これら諸々のデータを系統的に整理し、もう一度この現象の全体

像を捉え直す作業がぜひとも必要なのではないかと感じる次第である。

2. エキゾティック崩壊

1980年代はじめに ^{223}Ra からの ^{14}C 放出が始めて発見された⁸⁾。その後、原子番号87のFrから94のPuにかけて、 $^{12,14}\text{C}$, ^{20}O , ^{24}Ne , ^{28}Mg , ^{34}Si などを放出する同種の崩壊が十数例観測され⁹⁾、重クラスター崩壊と呼ばれるようになった。この現象は α 崩壊と核分裂の中間に位置することから、核分裂研究に新たな知見を提供するものとして、また核内でのクラスター形成のメカニズムを知る上で、重要な役割を果たすことが期待される。以下に現在までに観測されている重クラスター崩壊を、放出クラスター毎にまとめて示した。



またこの種の崩壊の生起可能性をさぐる意味で、この表に上げた親元素と娘クラスターの組み合わせについて、崩壊のQ値を質量公式から求め図3に示した。ここで用いた質量公式は、参考文献7)に報告された著者らのグループの公式である。

図から見られるようにQ値には必ずピークがある。ピークの位置はどれも娘核が二重魔法核 ^{208}Pb のところであるのは、閉殻構造からして当然とは言え興味深いところである。それを越えた安定近傍あるいは中性子過剰側の核種では、重クラスター崩壊が起りにくいことを示している。一方、陽子過剰側ではQ値だけから見ると、上に掲げた既知の観測例以外にも重クラスター崩壊を起こす核種が見つかってよさそうだが、今度は α 崩壊や β 崩壊との競合が起るので、それらについてのQ値あるいは半減期をも考慮した議論が必要になる。

ここでは既に観測例のある重クラスターについてだけ、親核を変えたときのQ値を示すに止めた。勿論、これら以外の親娘の組み合わせも、可能性として十分ありえるものと思われる。様々な組み合わせに対するQ値を質量公式から計算することは、さほど労を要す

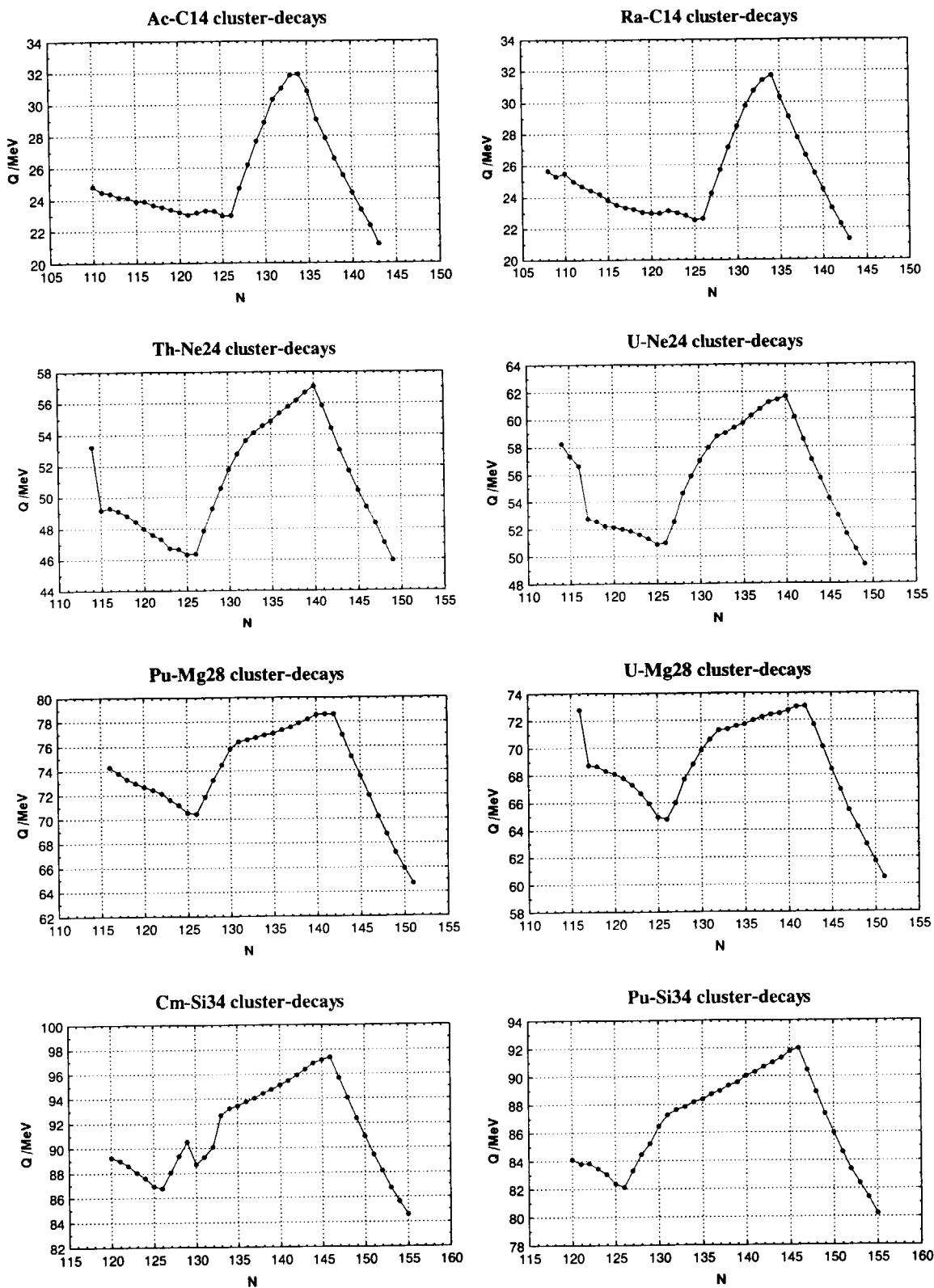


図3 重クラスター崩壊のQ値 (質量公式による計算値)

ることではないが、そこからさらに半減期を求めることは核理論の一つの課題となろう。これらの研究が、ひいては核分裂半減期の新しい計算法の開発につながると期待するものである。

重クラスター崩壊以外のエキゾチックな崩壊として、「冷たい核分裂 (cold fission)」や「サテライト核分裂 (satellite fission)」などの話題もある。前者は分裂片の一つが ^{132}Sn の低い励起状態に行く、(その意味で冷たい) アクチナイド核あるいは超アクチナイド核の核分裂であり、重クラスター崩壊発見以前に数例が確認されていた。また後者は分裂片が直線状に並ぶ三体核分裂 (colinear tripartition) であり、ごく最近その例が報告されたものである。これらについてここでは、その名前を紹介するに止める。

3. 質量公式研究の最近の動向

既に見てきたとおり、各種崩壊の半減期を計算する上で崩壊の Q 値は大変重要な量である。この値を予測するのにしばしば質量公式が用いられる。一口に質量公式と言っても、比較的最近のものだけでも十ほどの公式が提案されており、Q 値の予測にあたってどの公式を使えばよいか迷うところであろう。実際のところ現段階でも、これは絶対と言える公式を指名することは大変難しく、また使う目的によっても公式による向き不向きがあるのが現状である。ここでは質量公式研究の最近の動向を示すことにより、選択判断の参考に供したいと思う。

はじめに質量公式研究の歴史を振り返ってみよう。図 4 はこれを年表風に示したものである。この図には主要な原子核模型の提出年代もあわせて記してある。1930年代半ばの Weizsäcker¹⁰⁾ あるいは Bethe & Bacher¹¹⁾ による液滴模型公式の提出に始まる研究の歴史のなかで、これまでに三つのエポックを画する段階があった。第一は Levy¹²⁾, Cameron¹³⁾, Zeldes¹⁴⁾ らが殻効果の導入を提案した時期であり、核構造論における殻模型の提出に呼応している。この動きはその後の研究の潮流を大きく方向づけ、殻効果を取り入れた公式が多く提出された。この流れの中には有名な Garvey-Kelson の質量関係式¹⁵⁾ があり、Kelson や Jänecke らによってその流れは継がれてきている。

第二は Myers & Swiatecki¹⁶⁾ が殻効果に加えて核変形の効果を取り入れた公式を提出した時期である。集団模型提出から遅れること 10 年ほどであるが、これに対応した動きであった。

第三は第二とほぼ時を同じうしているが、Strutinsky¹⁷⁾ が Nilsson ポテンシャルのような変形一粒子ポテンシャルから殻エネルギーを導出する、極めてスマートな処方案を提案した時期である。これは Nilsson 模型に対応した動きといえることができよう。この処方案の提案により、殻効果と変形効果を首尾一貫して取り扱うある意味でお墨付きの方法が与えられたと見做され、現在に至る研究の一大潮流を形成してきた。

このような歴史を通して、現在は第三の潮流から発する流れが、質量公式研究の中樞を

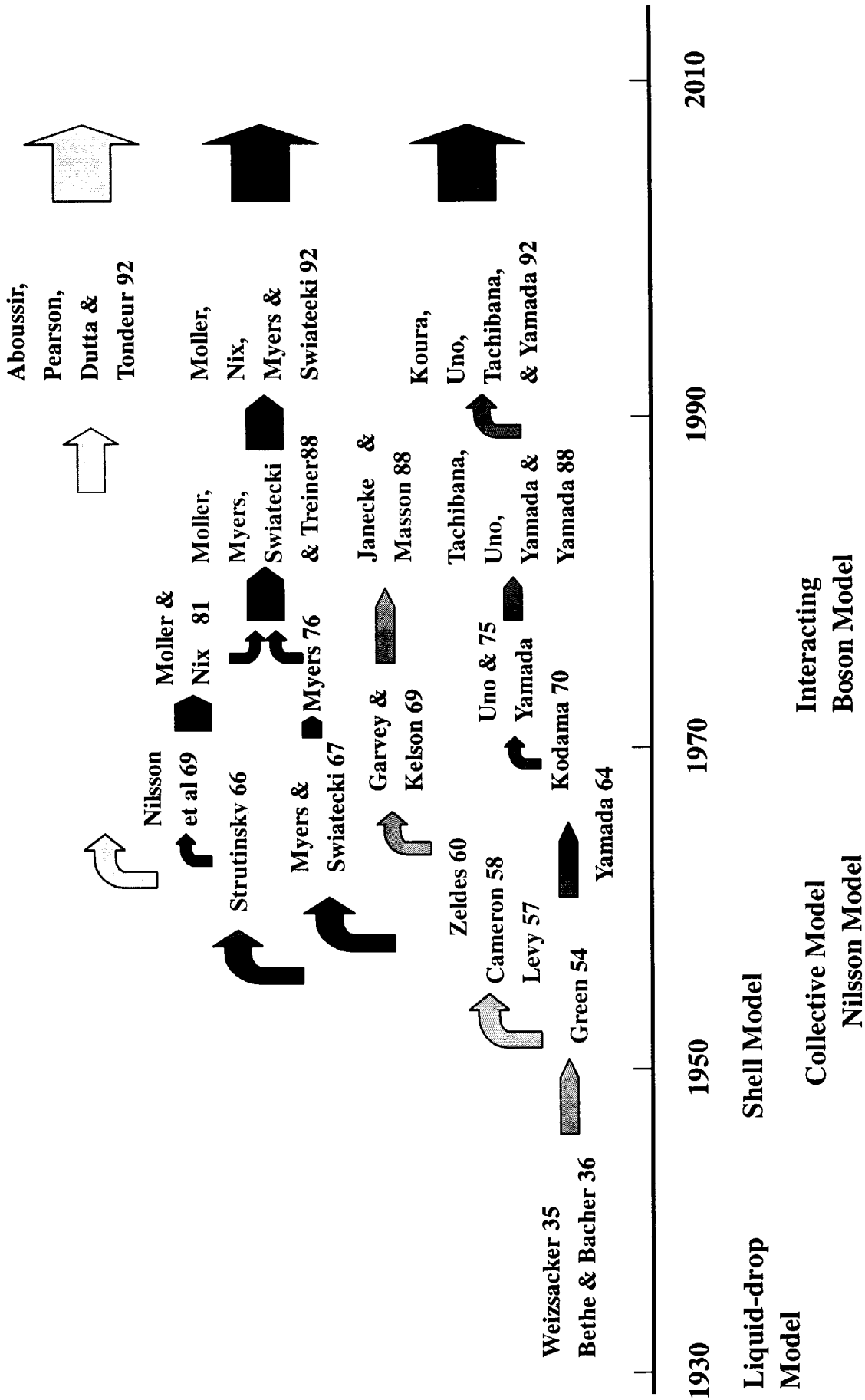


図4 原子質量公式の研究年代記

占めていると言ってもよかろう。これらの内で Möller & Nix らは、この流れの正統派とも言うべきグループであり、ごく最近は第二の動きと合流して Möller, Nix, Myers & Swiatecki 公式を提出している¹⁸⁾。彼らの公式は質量面の大局的傾向を表すものとして、小液滴模型から導かれる陽子数 Z と中性子数 N の滑らかな関数部分を持っている。また殻部分としては、folded-Yukawa single-particle potential に通常の Strutinsky 処方を施して得られる殻エネルギーが用いられている。

第三の潮流から発する他のグループに、Pearson & Tondeur らがある。彼らは質量を大局的部分と殻部分に分けて求めることを批判する立場から、Strutinsky 処方を別のかたちで適用する公式を提出している¹⁹⁾。その方法は Thomas-Fermi 計算を拡張して、Skyrme 型 Hartree-Fock 力と δ 関数型対形成力に適用可能なものとし、これに Strutinsky 積分を結合させるというものである。

以上は欧米での動向であるが、一方、目を東洋に転じると、著者を含む山田らの研究グループが1960年代半ばから、これらとはほぼ独立に質量公式研究を開始している²⁰⁾。彼らは、液滴模型を拡張した大局的部分と経験的殻項として表される殻部分をもつ公式の長い研究の後に、90年代に入って現在に至るまで、殻効果と変形効果を首尾一貫して取り扱う Strutinsky 処方とは別の方法を開発し研究してきた。この新しい方法では、球形単一粒子ポテンシャルから出発して、対形成をも考慮した球形殻エネルギーを最初に求める。この球形殻エネルギーを適切に求めた混合比にしたがって混ぜ合わせることにより、変形核についての殻エネルギーを求めるものである。これらを殻部分として用い、大局的部分には従来から彼らが用いている関数型を採用し、パラメーターを再決定した新しい公式を提出している。既に国際会議等で中間結果は報告しているが⁷⁾、その最終版を近々論文発表するので詳しくはそちらを参照していただきたい²¹⁾。

以上、著者の独断に基づく質量公式研究の動向である。大雑把にまとめれば、殻効果と変形効果をどのように首尾一貫して取り扱うかが、現在の主要課題であり、この方向に向かって三つほどの研究グループが精力的に研究を行い、それぞれ新しい質量公式を提出しているといったところであろうか。ご参考になれば幸いである。

参考文献

- 1) 例えば、T. Tachibana, M. Yamada and Y. Yoshida, Prog. Theor. Phys. **84**, 641(1990)
- 2) 例えば、A. Staudt, E. Bender, K. Muto and H.V. Klapdor, At. Data and Nucl. Data Tables **44**, 79(1990)
- 3) A. Arima and S. Yoshida, Nucl. Phys. **219**, 475(1974); 佐藤 竝, 宇野正宏, 日本物理学会誌, **39**, 892(1984)
- 4) O. Hahn and F. Strassmann, Naturwissenschaften **27**, 11(1939)
- 5) 例えば、P. Möller and J.R. Nix, Nucl. Phys. **A361**, 117 (1981)

- 6) 例えば、A. Sobiczewski, *ENAM98 Exotic Nuclei and Atomic Masses*, B.M. Sherrill, D.J.Morrissey and C.N. Davids(Edts), AIP Conference Proceedings **455**, 639 (1998)
- 7) H. Koura, M. Uno, T. Tachibana and M. Yamada, *ENAM98 Exotic Nuclei and Atomic Masses*, B.M. Sherrill, D.J.Morrissey and C.N. Davids(Edts), AIP Conference Proceedings **455**, 114 (1998)
- 8) H.J. Rose and G.A. Jones, *Nature* **307**, 245 (1984); S. Gales et al, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 759 (1984)
- 9) R.B. Firestone et al (editors), *Table of Isotopes, Eighth Edition* (1997)
- 10) C.F. von Weizsäcker, *Z. Phys.* **96**, 431 (1935)
- 11) H.A. Bethe and R.F. Bacher, *Rev. Mod. Phys.* **8**, 82(1936)
- 12) H.B. Levy, *Phys. Rev.* **106**, 1265(1957)
- 13) A.G.W. Cameron, *Can. J. Phys.* **35**, 1021(1957)
- 14) N. Zeldes, *Nucl. Phys.* **7**, 27(1958)
- 15) G.T. Garvey, W.J. Gerace, R.L. Jaffe, I. Talmi and I. Kelson, *Rev. Mod. Phys.* **41**, S1(1969)
- 16) W.D. Myers and W.J. Swiatecki, *Nucl. Phys.* **81**, 1(1966)
- 17) V.M. Strutinsky, *Yad. Fiz.* **3**, 614(1966); *Nucl. Phys.* **A95**, 420(1967)
- 18) P. Möller, J.R. Nix, W.D. Myers and W.J. Swiatecki, *At. Data and Nucl. Data Tables*, **59**, 185 (1995)
- 19) Y. Aboussir, J.M. Pearson, A.K. Dutta and F. Tondeur, *At. Data and Nucl. Data Tables* **61**, 127(1995)
- 20) M. Yamada, *Prog. Theor. Phys.* **32**, 512(1964); T. Kodama, *ibid.* **45**,1112(1970); M. Uno and M. Yamada, *ibid.* **53**, 987(1975)
- 21) H. Koura, M. Uno, T. Tachibana and M. Yamada, in preparation



6 . Electronic Structure of Superheavy Elements

Susumu SAITO

Department of Physics, Tokyo Institute of Technology
2-12-1 Oh-okayama, Meguro-ku, Tokyo 152-8551, JAPAN

Abstract – The electronic structure of superheavy elements, from element 121 to 131, studied using the relativistic density-functional theory with quantum electrodynamical corrections (Breit interaction) by MacDonald and Vosko, is reported. These corrections give rise to a modification to previous results, and the *g* electron is found to appear from element 126. Since a recent study on molecular systems has clarified the surprising accuracy of the density-functional approach in evaluating the relative energy difference of ground and excited states, a further study of the electronic configuration of heavy elements using the relativistic density-functional theory and the further improvement of the theory are both awaited.

The density-functional theory, which was originally devised as the theory to be applied to describe ground-state properties of interacting many-electron systems [1,2], has been applied to the excited states during last two decades and has proven to give highly accurate relative energies of ground and excited states [3-8]. Its accuracy is now known to be in the order of a couple of tenth of eV for molecular, multi-center systems [8], being in the same order as the most elaborated quantum-chemical approach, i.e. the multireference coupled cluster singles and doubles.

On the other hand, an extension of the density-functional theory to the relativistic version was achieved twenty years ago [9] but its application has been rather limited to, for example, the construction of pseudopotentials for heavy elements, because the density-functional theory was widely used in the condensed-matter physics in which highest-energy electrons to be treated nonrelativistically play a decisive role. Therefore, the application of the relativistic density-functional theory to atomic and molecular systems including heavy elements is now of high interest and importance.

In our recent work [10], we have applied the relativistic density-functional theory to the study of the electronic configuration of so-called superheavy elements, from element 121 to 131. The exchange-correlation formula used is the parametrized form for the quantum Monte Carlo result by Ceperley and Alder [11]. As for the distribution of protons in each nuclei, we use the Fermi distribution function. Results are given in Table I together with previous results by using the Dirac-Fock calculation [12] and those by Slater's $X\alpha$ method [13]. It is interesting that, the first *g* electron appears in element 126 which is the element considered to be highly stable due to its shell closing nature in both proton and neutron states. Such *g*-electron elements are considered to have interesting magnetic properties being different from *d* and *f* magnetic elements.

Table I. Ground-state electronic configurations of superheavy elements; (a) our results [10] obtained by using the relativistic density-functional theory with quantum electro-dynamical correction, (b) results by Dirac-Fock method [12], and (c) Slater's $X\alpha$ method [13].

Element	(a) Our results [10]	(b) Reference 12	(c) Reference 13
121	(118) $8s^2$ $8p$	(118) $8s^2$ $8p$	(118) $8s^2$ $8p$
122	$8p^2$	$8p7d$	$8p7d$
123	$8p7d6f$	$8p7d6f$	$8p7d6f$
124	$8p^26f^2$	$8p6f^3$	$8p6f^3$
125	$8p6f^4$	$8p6f^35g$	$8p6f^35g$
126	$8p6f^45g$	$8p^26f^25g^2$	$8p7d6f^25g^2$
127	$8p^26f^35g^2$	$8p^26f^25g^3$	$8p^26f^25g^3$
128	$8p^26f^35g^3$	$8p^26f^25g^4$	$8p^26f^25g^4$
129	$8p^26f^35g^4$	$8p^26f^25g^5$	$8p^26f^25g^5$
130	$8p^26f^35g^5$	$8p^26f^25g^6$	$8p^26f^25g^6$
131	$8p^26f^35g^6$	$8p^26f^25g^7$	$8p^26f^25g^7$

There are several differences between our results and previous results. From the detailed study, the origin of these differences has been identified to be the effect of the quantum electro-dynamical corrections (Breit interaction) proposed by MacDonald and Vosko [9] and included in our calculation. Otherwise the results by Slater's $X\alpha$ method are rather similar to our results. Although Slater's $X\alpha$ method was often classified as the simplified version of the Hartree-Fock method, its computational scheme is the same as those of the standard density-functional calculations and therefore the method can be regarded as one of the density-functional approaches in which electron correlation is taken into account. The similarity of the $X\alpha$ result on the electronic configuration of element 111 and that by the coupled-cluster method has been also reported [14].

Recent exciting news on the production of superheavy elements have triggered renewed interests on them in the field of nuclear physics and chemistry. Now the production of superheavy elements with g electrons is awaited in the field of atomic physics and chemistry, and condensed-matter physics.

The computation reported here was partly performed at the Supercomputer Center of the Institute for Solid State Physics, University of Tokyo, and the Computer Center of the Institute for Molecular Science, Okazaki National Institute.

REFERENCES

1. P. Hoehnberg and W. Kohn, Phys. Rev. **136**, B864 (1964).
2. W. Kohn and L. J. Sham, Phys. Rev. **140**, A1133 (1965).

3. M. J. Stott, and E. Zaremba, Phys. Rev. A **21**, 12 (1980); A. Zangwill and P. Soven, Phys. Rev. A **21**, 1561 (1980).
4. W. Ekardt, Phys. Rev. B **29**, 1558 (1984).
5. S. Saito, G. F. Bertsch, and D. Tománek, Phys. Rev. B **43**, 6804 (1991).
6. A. Rubio, J. A. Alonso, X. Blase, L. C. Balbás, and S. G. Louie, Phys. Rev. Lett. **77**, 247 (1996).
7. K. Yabana and G. F. Bertsch, Phys. Rev. B **54**, 4484 (1996).
8. M. E. Casida, C. Jamorski, K. C. Casida, and D. R. Salahub, J. Chem. Phys. **108**, 4439 (1998).
9. A. H. MacDonald and S. H. Vosko, J. Phys. C **12**, 2977 (1979).
10. K. Umemoto and S. Saito, J. Phys. Soc. Japan **65**, 3175 (1996).
11. D. M. Ceperley and B. J. Alder, Phys. Rev. Lett. **45**, 566 (1980); J. P. Perdew and A. Zunger, Phys. Rev. B **23**, 5048 (1981).
12. J. B. Mann and J. T. Waber, J. Chem. Phys. **53**, 2391 (1970).
13. B. Fricke and G. Soff, At. Data Nucl. Data Tables **19**, 83 (1977).
14. E. Eliav, U. Kaldor, P. Schwerdtfeger, B. A. Hess, and Y. Ishikawa, Phys. Rev. Lett. **73**, 3203 (1994).



7. 超アクチノイド元素化合物の電子状態 - 理論
Rf 元素の化学挙動実験への理論的アプローチ

平田勝
先端基礎研究センター
超アクチノイド元素核化学研究グループ

Electronic structure of transactinide compounds - theory
Theoretical approach to the experimental chemistry of Rf

Masaru HIRATA
Research Group for Nuclear Chemistry of Heavy Elements
Advanced Science Research Center

Abstract:

We have applied the relativistic density functional method to the chemistry of rutherfordium (Rf: element 104). We used $M(\text{NO}_3)_4(\text{H}_2\text{O})_4$ [where $M=\text{Zr}$, Hf and Rf] cluster to compare the electronic structure between Rf nitrate and Zr, Hf nitrates. The number of d electron decrease in the order of $\text{Rf} > \text{Zr} > \text{Hf}$ and s electron occupation decrease $\text{Rf} > \text{Hf} > \text{Zr}$. $\text{Rf}(\text{NO}_3)_4(\text{H}_2\text{O})_4$ is found to be more stable than $\text{Zr}(\text{NO}_3)_4(\text{H}_2\text{O})_4$ and $\text{Hf}(\text{NO}_3)_4(\text{H}_2\text{O})_4$.

Keywords: *Rf, nitrate complex, relativistic density functional method*

e-mail: hirata@popsvr.tokai.jaeri.go.jp

1. はじめに

計算化学の分野には、大きく分けて2つの流れがある。その一つは、分子軌道計算法であり、もう一つは分子動力学計算法である。分子動力学計算法のうち、特に古典的分子動力学法と呼ばれている手法は、原子もしくは分子自体をニュートンの運動方程式にもとづいて動かすことで多体系の統計量を求め、その系の構造を予測したり、様々な物性と関連づけさせて議論することができる。一方、分子軌道計算法では、原子核位置を固定してその周辺の電子の運動をシュレディンガー方程式もしくは重元素の場合にはディラックの相対論的波動方程式を用いて求めることにより様々な化学的性質を予測することができる。

超アクチノイド元素の化合物の電子状態計算からその化学的性質を予測するためには、相対論的な効果を取り扱うことのできるディラック方程式に基づく計算が不可欠である。今回の報告では、Rf 元素を取り上げその化学的性質を予測する計算について解説する。

2. 計算方法

計算に用いた手法は相対論密度汎関数法でありカッセル大学の B. Fricke, T. Bastug らによって開発されたものである。[1-4]

系の全エネルギー、 E は電荷密度 $\rho(\mathbf{r})$ を用いて以下のように書き表すことができる。

$$E[\rho] = \sum_i n_i \langle \phi_i | \mathbf{t} | \phi_i \rangle + \int \rho V^n d^3r + \frac{1}{2} \int \rho V^c d^3r + \frac{3}{4} \int \rho V^{ex} d^3r + \sum_{p \neq q} \frac{Z_p Z_q}{|R_p - R_q|} , \quad (1)$$

ここで \mathbf{t} はディラックの運動エネルギー演算子であり、 $\phi_i(\mathbf{r})$ は i 番目の分子軌道の基底関数である。 ρ で表された電荷密度は、

$$\rho(\mathbf{r}) = \sum_i n_i \phi_i^*(\mathbf{r}) \phi_i(\mathbf{r}) , \quad (2)$$

で表される。ここで n_i は i 番目の分子軌道の占有電子数であり、 V^n は原子核と電子のポテンシャルエネルギーである。 V^c は電子間のクーロン反発ポテ

ンシャルである。

$$V^C(\mathbf{r}) = \int \frac{\rho(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d^3\mathbf{r}' \quad (3)$$

(1)式での最後の2つの項は、電子間の交換相関ポテンシャルと核間クーロン反発ポテンシャルである。この式の中で、交換相関ポテンシャルは単純なスレータ型のポテンシャルを用いている。

$$V^{ex}(\mathbf{r}) = -3\alpha \left(\frac{3}{8\pi} \rho(\mathbf{r}) \right)^{1/3}, \quad (4)$$

ここで α はスレータパラメータであり、0.7 に固定している。基底関数としては、数値基底関数を用いており、Rf については 1s - 7p 軌道を、O, N については、1s - 2p 軌道を、H については 1s 軌道のみを用いた。硝酸錯体の構造は、4価の $\text{Th}(\text{NO}_3)_4(\text{H}_2\text{O})_4$, $\text{Ti}(\text{NO}_3)_4$ などを基にして、Fig.1 に示すモデルクラスタを選んだ。

3. 結果および考察

Fig.2 に $\text{Zr}(\text{NO}_3)_4(\text{H}_2\text{O})_4$, $\text{Hf}(\text{NO}_3)_4(\text{H}_2\text{O})_4$ および $\text{Rf}(\text{NO}_3)_4(\text{H}_2\text{O})_4$ の価電子帯のエネルギーレベル構造を示す。HOMO 近傍の被占軌道は硝酸の酸素の 2p 軌道が主成分であり、LUMO は、Zr 系、Hf 系については、Zr 4d および Hf 5d 軌道が主成分であった。しかしながら、Rf 系では硝酸および水分子の酸素の 2p 軌道が主成分であり、Rf 6d 軌道はやや高いエネルギー位置に現れることが分かった。また、HOMO-LUMO 間のエネルギーギャップは、Zr=2.95eV, Hf=3.11eV, Rf=3.04eV であり、Hf > Rf > Zr の順に僅かながら減少する。4A 族の基底状態での電子配置は、(core)d²s² であり、これらの d²s² 電子を失って 4 価のイオン ((core)d⁰s⁰) を形成する。錯体を形成した時のこれらの d 軌道、s 軌道への電子の流れ込み方は、それらのイオン性を特徴づけており大変興味深い情報である。セルフコンシステント計算後の d 電子数は、Rf (2.832) > Zr (2.814) > Hf (2.664) の順に減少し、s 電子数は、Rf (0.325) > Hf (0.279) > Zr (0.199) の順に減少することから、Zr, Hf と比較して Rf はより Fig.1 のような錯体構造が安定であることが予測できた。

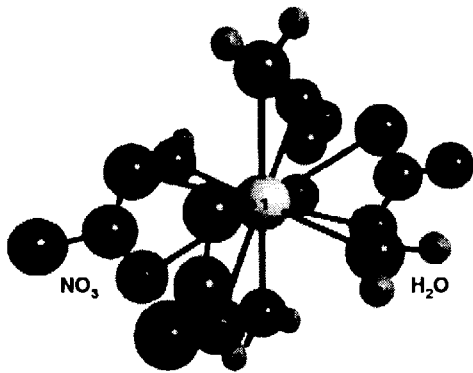


Fig. 1 Model cluster of $\text{Rf}(\text{NO}_3)_4(\text{H}_2\text{O})_4$

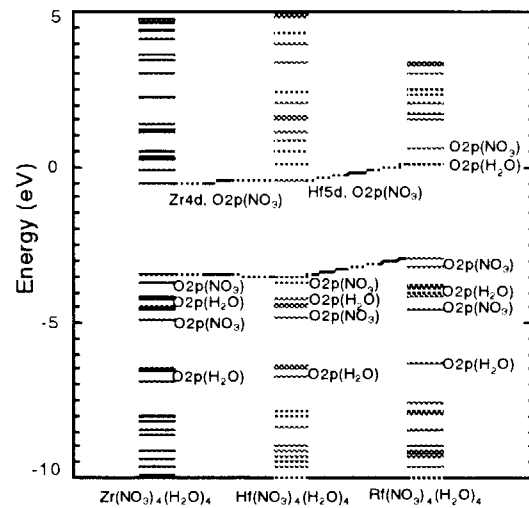


Fig. 2 Valence energy level structures for $\text{M}(\text{NO}_3)_4(\text{H}_2\text{O})_4$ complexes

参考文献

- [1] A. Rosen and D.E. Ellis, J. Chem. Phys., **62**, 3039 (1975).
- [2] H. Nakamatsu, H. Adachi and T. Mukoyama, Bull. Inst. Chem. Res. Kyoto Univ., **70**, 16 (1992).
- [3] T. Bastug, D. Heinemann, W.-D. Sepp, D. Kolb and B. Fricke, Chem. Phys. Lett., **211**, 119 (1993).
- [4] T. Bastug, W.-D. Sepp, D. Kolb, B. Fricke, G. Te Velde, E. J. Baerends, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., **28**, 1833 (1995).



8. 重・超アクチノイド元素の化学—実験

¹⁰⁴Rfのイオン交換挙動を中心に原研の現状と計画Chemistry of Heavy- and Trans-Actinide Elements
-Experiments-

塚田和明

Kazuaki TSUKADA

原研 先端基礎研究センター

Advanced Science Research Center, JAERI

Experimental results on the chemical properties of the transactinide element, Rf (Z=104), on an atom-at-a-time base are reviewed. Status and future plans for the study of chemical behavior of transactinide elements with the JAERI tandem accelerator are reported.

Keywords: Transactinide Elements, Chemical Behavior of Rf

【はじめに】

超重元素などの重い原子系では、電子軌道に対する相対論効果により化学的性質が周期性からずれると理論的に予想されている[1]。超重元素の化学挙動研究は実現していないが、周期表(図1)の一番下に位置する超アクチノイド元素の¹⁰⁴Rf、¹⁰⁵Db、¹⁰⁶Sgおよび¹⁰⁷Bhを対象にして欧州・ロシアそしてアメリカなどを中心に国際的な協力研究が進んでいる。いくつかの報告が周期性からのずれを指摘しているが十分な議論が進んでいるとは言い難い[2]。

近年、我々のグループではGSIおよびマインツ大核化学グループとの研究協力を通じて¹⁰⁴Rfおよび¹⁰⁶Sgの溶液化学に関する実験に参加してきた。また、原研タンDEM加速器施設で超アクチノイド元素の化学挙動研究を行うための整備を行い、¹⁰⁴Rfの溶液化学研究を行

Periodic Table of the Elements

1																			18	
1	2																			2
3	4																			
5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18							
19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32	33	34	35	36			
37	38	39	40	41	42	43	44	45	46	47	48	49	50	51	52	53	54			
55	56	57	72	73	74	75	76	77	78	79	80	81	82	83	84	85	86			
87	88	89	104	105	106	107	108	109	110	111	112	114	116	118						
+Actinides		90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	100	101	102	103					
*Lanthanides		58	59	60	61	62	63	64	65	66	67	68	69	70	71					

図1 周期表

うための基礎研究を進めている。ここでは GSI との協力研究で進めている $_{104}\text{Rf}$ のイオン交換挙動に関する実験を中心に一般的な実験手法の紹介および原研での現状について報告する。

【超アクチノイド元素の化学挙動研究に用いられる実験手法】

超アクチノイド元素を対象にした化学挙動実験は図2に示すように照射装置、ガスジェット搬送装置そしてオンライン化学分離装置と測定装置を効率よく組み合わせて行われている。化学分離には主にガスクロマトグラフィーと液体クロマトグラフィーが用いられている。超アクチノイド元素は一般に短寿命であり、扱える量も極めて少量で、ほとんどの場合一度に扱えるのは原子の数にして1つである。このよ

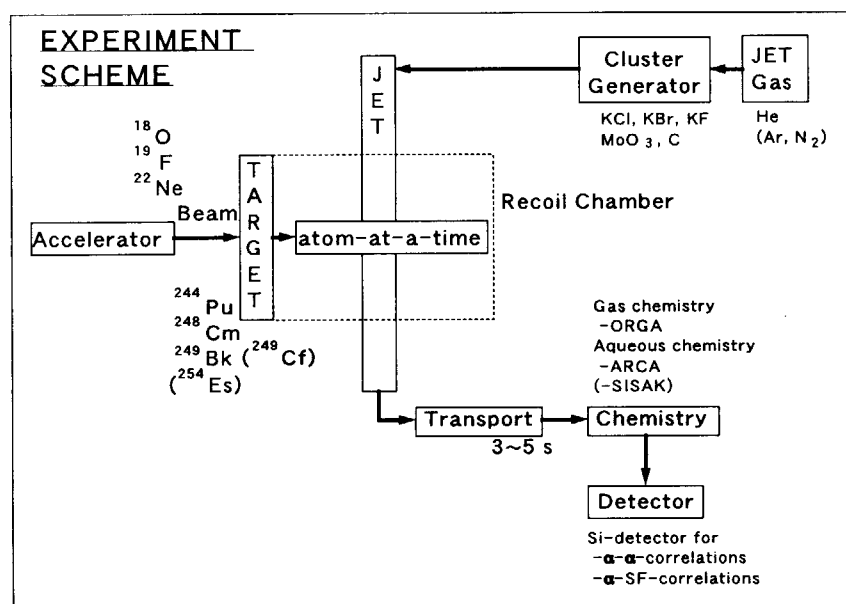


図2 超アクチノイド元素の化学挙動研究の実験の流れ

うな化学分離を「Atom at a Time Chemistry」と呼ぶ[3]。このような系では当然、質量作用の法則が適応できない。そこで何段階もの交換を経ることで原理的には1個の原子でも統計的な挙動を反映すると考えられるクロマトグラフ法が利用されてきた。ターゲットは様々な高放射性的のアクチノイド核種が使われている。厚さは $0.5\text{--}0.7\text{mg/cm}^2$ 程度で一般に Be 箔に電着し使用している。使用するガスジェット用反応槽は汚染防止および真空系への安全を考慮してガスジェットおよび放射性ターゲットとビームラインを HAVAR または Be 箔で2重に隔てている。

【 $_{104}\text{Rf}$ に関する GSI との協力研究】

GSI 核化学研究グループではガスジェット搬送装置と組み合わせたオンライン迅速液体クロマトグラフ(ARCA)[4]を開発し、このような超アクチノイド元素の溶液化学研究に応用してきた。この装置は1分程度で分離・測定が可能であり、 ^{261}Rf (半減期約65秒)や ^{265}Sg (同約7秒)などを対象とすることができる。このオンライン迅速液体クロマトグラフィー(ARCA)の主な特徴は連続的に迅速な実験を行うために、複数のカラムを利用することと、装置を小さくし生成物の捕集位置とカラムの距離を極端に短くし溶出時間を短縮したことである。その概略を図3に示す。生成物はガスジェット装置によって slider と呼ばれる板に捕集され一定時間捕集後、カラムの上部に移動し溶解されカラムに導入される。分離後は蒸発乾固し、 α 線測定を行う。現在、この測定試料調製はオフラインであり、迅速に溶液系の実験を行う際の問題点となっている。

^{104}Rf は1970年代に4族元素であることが確認されているが[5]、ZrやHfといった他の4族元素との化学挙動とは十分に比較されていない。そこで硝酸・希フッ酸の混合溶液を溶離液にした陽・陰イオン交換挙動を同族のZr, Hfおよび擬4族のThと比較した。特にそれぞれの元素が示す分配係数のフッ素イオン濃度変化(0.1M硝酸溶液中)に

ARCA - Automated Rapid Chemistry Apparatus

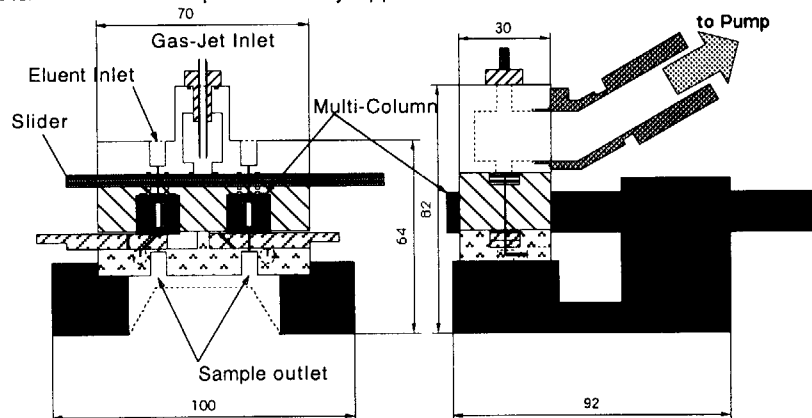


図3 液体クロマトグラフ分離装置(ARCA)の概略

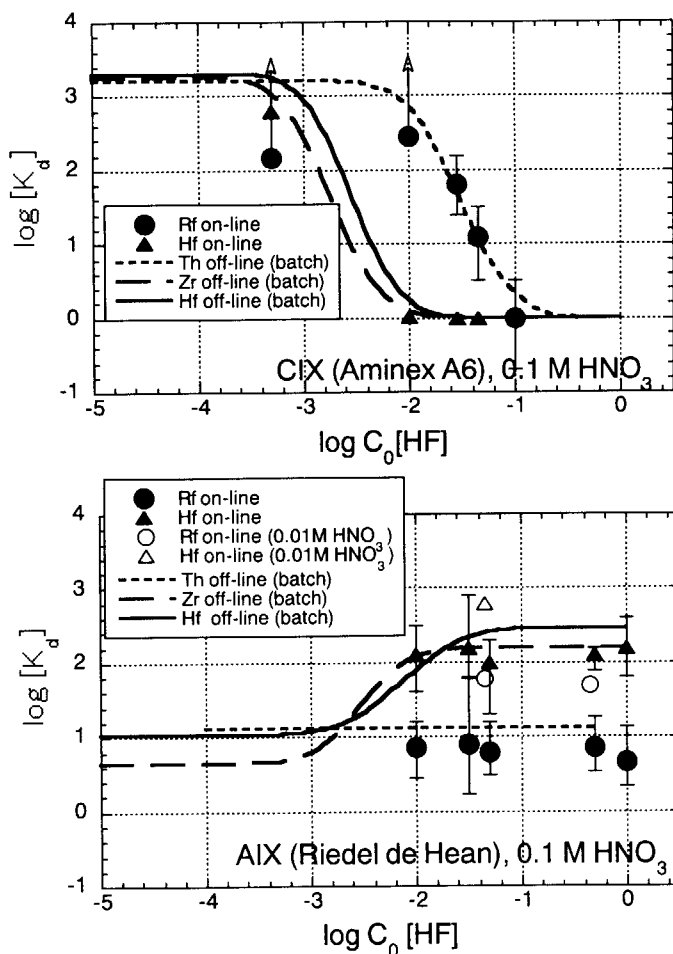


図4 0.1M硝酸中のフッ酸濃度に対する陽・陰イオン交換分離の分配係数(K_d)の変化。

ついて比較を行った。実験はオフライン(バッチ法)でZr, HfおよびThの溶離挙動を観測し、その実験データとオンライン実験で観測したRfとHfの溶離挙動を比較した。このオンライン実験がRfの挙動を正確に表しているかどうかは、オンライン・オフライン実験でのHfの挙動が一致することで判断した。

図4に示したように両実験[6]からこの硝酸・希フッ酸の混合溶液系ではRfは同族のZrおよびHfよりむしろThに近い挙動を示すことがわかった。これまでには塩酸によるTBPからの溶媒抽出実験において、本実験結果とは異なりRfの挙動がHfとZrの間にあたるという報告もある[7,8]。また、同様の実験系でHfとZrと異なる挙動を示すという実験結果も報告されている[9]。しかし、このような報告ではRfがどのような化学状態で溶液中に存在するかはっきりしていないことなど、Rfの挙動には良く理解されていないことが多く、今後より単純な系での実験が期待される。

【原研の現状と計画】

原研タンデム加速器施設でもこのような超アクチノイド元素の化学挙動研究を進めるために整備を進めてきた。図5に実験室の概略を示す。ターゲットチェンバーを含むガスジェット搬送装置はこれまでに運用の実績があり技術的な問題はない。また、化学分離装置はGSIと協力してARCAの改良版を製作しており、この装置を利用した ^{104}Rf の溶液化学研究を行うための基礎研究を進めている。特にZrやHf,Thと比較した ^{104}Rf のイオン交換挙動実験では、フッ酸溶液系や硝酸溶液系のようなより純粋な系で実験を行い、理論計算との比較などからRfの溶存状態を確認することを検討している。また、 ^{104}Rf などの実験対象核種の壊変特性研究や生成条件検討のためにガスジェット搬送装置と直結したオンライン連続 α 線測定装置も平行して製作し、次期実験期間中にRfの生成テストを行う予定である。また、タンデム加速器の改良も同時に進んでおり、今後、ターミナルECRイオン源から ^{18}O および ^{22}Ne ビームの供給も期待できる。

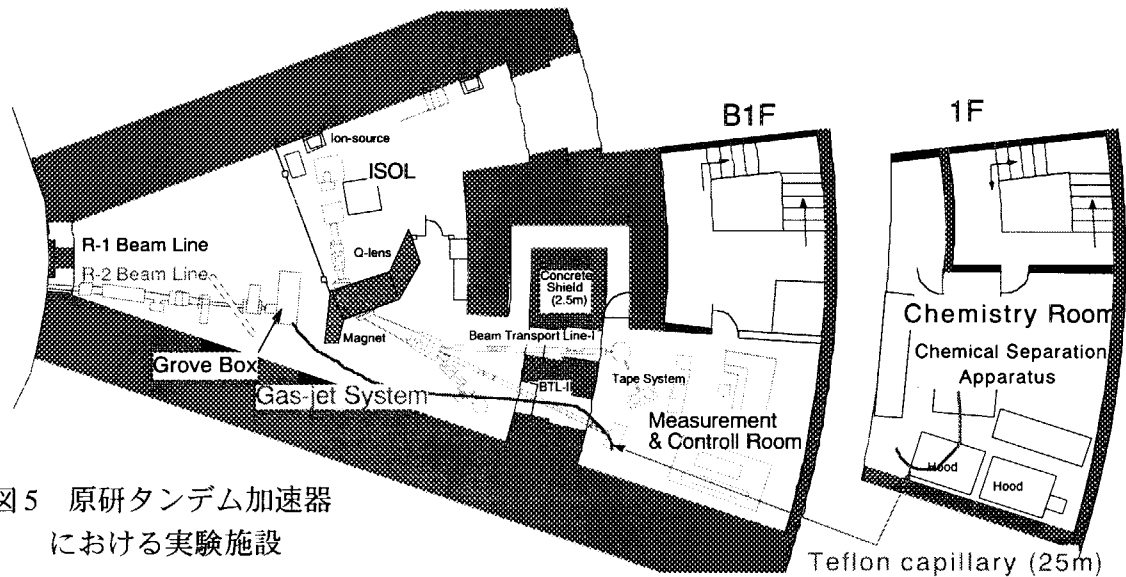


図5 原研タンデム加速器
における実験施設

【参考文献】

- [1] B. Fricke and W. Greiner, Phys. Lett. B30, 317 (1969).
- [2] J.V. Kratz et al., Radiochim. Acta 48, 121(1989).
- [3] B.Guillaumont et al., Radiochim. Acta 46, 169 (1989).
- [4] M. Schaedel et a l., Radiochim. Acta 48, 171 (1989).
- [5] R. Silva et al., Inorg. Nucl. Chem. Lett. 6, 871 (1970).
- [6] E. Strub et al., GSI Scient. Rep. 98, GSI 99-1, 15 (1999).
- [7] K.R. Czerwinski et al., Radiochim. Acta 64, 23 (1994); ibid., 29 (1994).
- [8] C.D. Kacher et al., Radiochim. Acta 75,127 (1996).
- [9] R. Guenther et al., Radiochim. Acta 80, 121 (1998).



9. 重核の核分裂特性

—核分裂障壁はどうやって求めるか—

岩本 昭

日本原子力研究所物質科学研究部

Abstract:

A realistic determination of fission saddle-point shapes and their energies requires an exploration of a sufficient large deformation space so that all a priori reasonable candidates for saddle-point shapes are included in the calculation. Until now, no calculation has explored, in a proper way, a deformation space that is sufficient to determine realistic fission saddle-point. Using three-quadratic-surface parametrization, we performed a five-dimensional calculation for the grid of 1,020,000 deformation points. To determine the saddle-points, we used the numerical methods which are free from any approximation. We find that the fission fragments that result from the breakup of the nucleus in some situation establish their identity already at the saddle-point.

Keywords: Fission, Deformation, Saddle-point

1 はじめに

核分裂を記述する場合に最も最初に必要となる物理量が、核分裂を記述するポテンシャルエネルギーである。このポテンシャル計算法としては、液滴模型やその拡張としての巨視的模型、これに殻補正エネルギー計算を加えた巨視的—微視的研鑽模型、制限付きハートレー・フォック法等の自己無撞着場の方法などが行われている。最終的に核分裂の寿命や質量分布といった物理量を計算するためには、半古典的立場からは核分裂経路を決定する必要がある。実際の核分裂経路を半古典的に決定するためには、自発核分裂の場合には虚時間での作用積分極小の条件を適当な境界条件の下で探せばよいことが分かっているが、この場合にはポテンシャル以外に質量テンソル等を含めた計算が必要である。ここでは問題を静的な面に限って、基本となるポテンシャルエネルギーの計算で問題となる核分裂障壁を如何に決定するかを論じる。

ここで問題となるのは、誰も前もって核分裂経路を知っているわけではないので、原子核がその親核の状態から最終的に核分裂片に分かれるまでの間にとりうる様々な形の可能性を網羅しないと、正確な核分裂障壁等を決定できないことである。この為にもどうしても数種類の形のパラメータを導入する必要に迫られる。形のパラメータという観点からは、原子核の基底状態の場合にも球関数展開の高次の項までが必要になる場合があることが知られているが、核分裂の外側の鞍部点の場合には遙かに大きな変形が現れ、球関数展開とは異なる展開法が要求される。さてこのように扱う空間が高次元になった場合でも、基底状態であるとか、第2極小点と言った局所的なエネルギー最小状態の決定は、数値計算上は余り問題が生じない。一方、核分裂の鞍部点のような場合には数値計算でこれを

求める場合に様々な問題が生じる [1]。

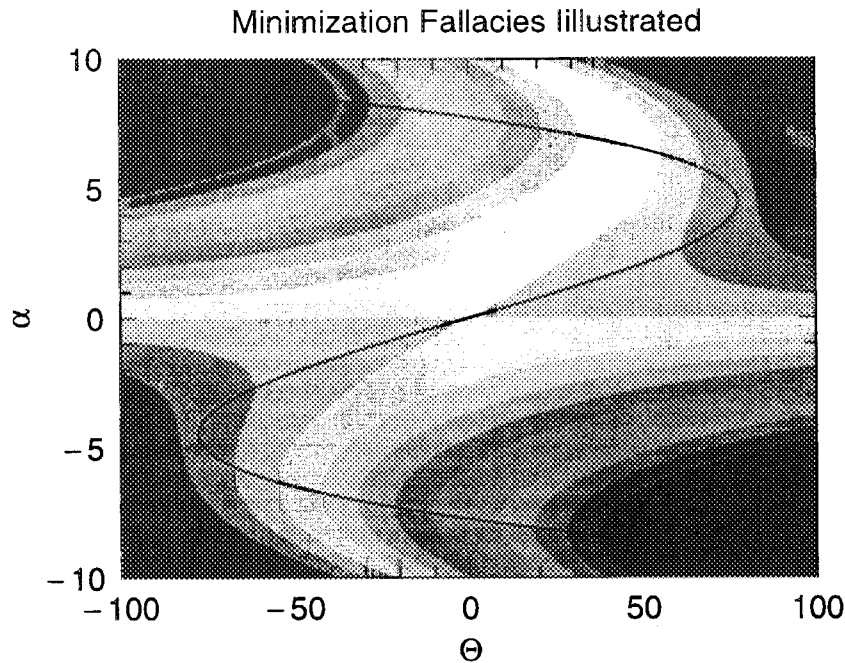


図1. 2次元の場合の核分裂ポテンシャルエネルギー表面の例。

どのような問題が生じるかを、図1に示した2次元問題で考えてみる。この図に示されているのは仮想的な核分裂ポテンシャルの等高線であり、左上から右に核融合の谷、右下から左へ核分裂の谷が発達している。ここで横軸 Θ は核分裂を記述するために最終的に残すパラメータ、縦軸 α はそれ以外の形のパラメータと考える。2次元の場合にはこのようなポテンシャルの全体図が示されれば、この図の中心付近にある核分裂の鞍部点を特定することは容易である。しかし実際の数値計算の場合しばしば用いられるのは、残りの変数（この場合には α ）についてあらかじめ極小値を求めて1次元化してその上で Θ についてのポテンシャルの極大値をもって鞍部点とする手法である。この手順で求まるのは、出発点が核融合の谷であれば図の左上から右に向かう実線の部分、核分裂の谷から出発すれば図の右下から左へ向かう実線部分である。両者ともあるところで途絶えて、この途絶えた2点を結ぶ右上から左下へ向かう実線部分は谷ではなく尾根であり、 α に関して極大になっている。よってこの部分は通常行うように、最も重要な核分裂パラメータ以外は極小値をとるという手順では決して求まらない部分である。結果的に通常の手順で求まるのは、2本の独立した交差する曲線で、鞍部点はこの2曲線のどこにもない。（交差する点も鞍部点とは何の関係もない）これより分かることは、本来2次元であったものを、一つのパラメータについて変分（極小）をとるという通常的手法では、本当の鞍部点が求まらないことを示す。この例は2次元の場合であり、且つポテンシャルが巨視的模型のみの単純な場合であるが、より高次元となり（後の我々の計算は5次元）且つ微視的エネ

ルギーがある場合にはこの簡単な例に比べて遙かに物事は複雑で、"幾つかの自由度については変分して極小をとっておく"という近似は全く信用できなくなる。

一方、ハートレー・フォック法の様な、自己無撞着な模型ではこのような問題が起こらないのでは、という誤解が広く行き渡っているので一言注意したい。制限条件付きの HF 法の場合、図 1 の Θ を制限パラメータとすると、 α に当たるのは他の全ての形の自由度を表し、HF で求まるのはやはりこの α に関して変分した解のみが求まる。よって前述の問題点は同じように生じる。制限パラメータを二つにとれば図 1 と同様な図が得られるが、この場合も他の全ての自由度に関して変分をとったもののみが求まるので、問題の解決にはなっていない。

今まで核分裂に関して行われてきた多次元の計算は全て前述の問題点から自由でない。我々は、この問題とまともに立ち向かうために 5 種類の形のパラメータを導入して、核分裂鞍部点の決定に何ら近似を用いない手法を確立できたので以下にそれを報告する [2]。

2 形のパラメータ化とポテンシャルの計算

核分裂鞍部点付近の形を十分正確に記述しうる模型として、我々は 3 つの 2 次曲線をスムーズに繋ぐことにより原子核の形を記述する。円筒座標を用いるとこの形は以下のように記述さえる。

$$\rho^2 = \begin{cases} a_1^2 - \frac{a_1^2}{c_1^2}(z-l_1)^2, & l_1 - c_1 \leq z \leq z_1 \\ a_2^2 - \frac{a_2^2}{c_2^2}(z-l_2)^2, & z_2 \leq z \leq l_2 + c_2 \\ a_3^2 - \frac{a_3^2}{c_3^2}(z-l_3)^2, & z_1 \leq z \leq z_2 \end{cases} \quad (1)$$

ここで現れる 9 個のパラメータのうち、 z_1 と z_2 で表面がスムーズに繋がる条件と全体の体積保存条件より、3 個のパラメータは消去できる。残された 6 個のパラメータを以下に示すが、このうち α_1 は全体の重心の位置保存により落とすことができ、最終的に残るパラメータは 5 個となる。

$$\sigma_1 = \frac{(l_2 - l_1)}{u}$$

$$\sigma_2 = \frac{a_3^2}{c_3^2}$$

$$\sigma_3 = \frac{1}{2} \left(\frac{a_1^2}{c_1^2} + \frac{a_2^2}{c_2^2} \right)$$

$$\alpha_1 = \frac{1}{2} \frac{(l_1 + l_2)}{u}$$

$$\alpha_2 = \frac{(a_1^2 - a_2^2)}{u^2}$$

$$\alpha_3 = \frac{a_1^2}{c_1^2} - \frac{a_2^2}{c_2^2}$$

ここで u は次式で与えられる。

$$u = \left[\frac{1}{2} (a_1^2 + a_2^2) \right]^{\frac{1}{2}}$$

これらのパラメータに関してより直感的な理解を得るために、入力パラメータとしては新たに以下のものを定義する。先ず変形パラメータ σ_3 と α_3 は左右の分裂片の変形を表す ε_{f1} と ε_{f2} を用いて次のように書ける。

$$\sigma_3 = \frac{1}{2} \left[\left(\frac{3 - 2\varepsilon_{f1}}{3 + \varepsilon_{f1}} \right)^2 + \left(\frac{3 - 2\varepsilon_{f2}}{3 + \varepsilon_{f2}} \right)^2 \right]$$

$$\alpha_3 = \left[\left(\frac{3 - 2\varepsilon_{f1}}{3 + \varepsilon_{f1}} \right)^2 - \left(\frac{3 - 2\varepsilon_{f2}}{3 + \varepsilon_{f2}} \right)^2 \right]$$

我々は、 ε_{f1} と ε_{f2} に関して各々 10 個の値を以下のメッシュ点で用いる。

$$\varepsilon_{f1} = -0.05 \dots (0.05) \dots 0.40 \quad \text{and} \quad \varepsilon_{f2} = -0.05 \dots (0.05) \dots 0.40$$

一方質量非対称に関しては通常用いられる定義は以下のものである。

$$\alpha = \frac{M_1 - M_2}{M_1 + M_2}$$

ここで定義の補助として、左右の回転楕円体の体積の比として α_g を定義する。

$$\alpha_g = \frac{a_1^2 c_1 - a_2^2 c_2}{a_1^2 c_1 + a_2^2 c_2}$$

これを用いると元々のパラメータ α_2 は以下のように書ける。

$$\alpha_2 = 2 \frac{\left(\frac{(\alpha_g + 1)^2 (\alpha_3 + 2\sigma_3)}{(\alpha_g - 1)^2 (\alpha_3 - 2\sigma_3)} \right)^{1/3} + 1}{\left(\frac{(\alpha_g + 1)^2 (\alpha_3 + 2\sigma_3)}{(\alpha_g - 1)^2 (\alpha_3 - 2\sigma_3)} \right)^{1/3} - 1}$$

我々は α_g の値として、以下のメッシュ点での値 20 点を用いる。

$$\alpha_g = -0.02 \dots (0.02) \dots 0.36$$

さらに系の伸びを表すパラメータ σ_1 に関しては 34 のメッシュ点、ネックパラメータ σ_2 に関しては 15 のメッシュ点を用いる。これにより全体で 1,020,000 点のメッシュを計算することとなる。

3 洪水法、揺動法、ダム法

5次元空間での鞍部点を決定するために、ダム法とな数値計算上の手法を用いる。この手法は A.Mamdouh 達 [3] により始められたものである。その手法に依ると、先ず通常的手法により局所的

エネルギー極小値を求める。例えばこれを基底状態としよう。ここに少しずつ水を注いで行く。極小点から出発してその周りの水面以下になる点を増やして行き、それらの点には“濡れ”というマークを付ける。このようにして水面の高さを徐々に高めると当然“濡れ”の点が増えて行き、ある値を越すと突然“濡れ”の点が爆発的に増加する。このとき、前もって計算して於いた第2極小点も“濡れ”となるはずである。このエネルギーレベルが内側の障壁の高さとなることはほぼ自明であろう。

次にこの第2極小点を出発点として、同じアルゴリズムを走らせると同様にして外側の障壁の高さを求めることができる。この操作を物理的に必要な領域全てに行うことにより、必要とされる障壁の高さを求めることができる。

以上述べた手法では、障壁のエネルギーの高さを決定することができるがそのときの系の形を定めることはできない。これを定めるためのアルゴリズムを揺動法と呼ぶ。ここでは洪水法により水があふれ出す直前と直後の二つの水面の間にあるメッシュ点が鞍部点の候補であるが、一般に低い水面の周辺にこのような条件を満たすメッシュ点は幾つも存在しうが、そのほとんどは鞍部点とは何の関係もない。真の鞍部点を自動的に求めるために、先ず水面を変化させるエネルギー幅を十分小さくとして、このエネルギー幅に入るメッシュ点を特定する。次にこのメッシュ点のエネルギーに小さな乱数を加えて揺動させる。この乱数の絶対値は上述のエネルギー幅の大きさ以下として、次にこの乱数の揺動よりもさらに小さいエネルギー幅で、この揺動を加えられたポテンシャル面の鞍部点を洪水法で求める。このときに、洪水の前後のエネルギー幅に入るメッシュ点を求め、それらの中で揺動を与える以前の候補点と一致するものがあればそれが鞍部点である。この方法に依ると、暗部点と全く同じエネルギーの点があってもそれらを弁別して正しい点を選ぶことができる。

次に、一般にある2点を結ぶ間に複数の鞍部点がある場合にこれらを全て求めるためのアルゴリズムとしてのダム法を導入する。先ず洪水法と揺動法により最も低い鞍部点を求める。次にそのように求めた鞍部点に対応するメッシュ点のエネルギーを人為的に非常に大きい値に変える。このような仮想的なポテンシャル表面で洪水法と揺動法を組み合わせると再び鞍部点を求めると、通常先の鞍部点のすぐ隣の点が新しい鞍部点として求まる。これらの点がもとの鞍部点に隣接している場合には、新たにこれらの点のエネルギーを前と同じく人為的に非常に大きな値とする。このようにして求めて行く鞍部点のエネルギーを非常に大きい値にすることは、あたかも高いダムを築きその幅を徐々に広げて行くことに対応する。この操作を続けて行くと、もし物理的に独立な鞍部点が違った形に存在すると、ダムの幅を広げていく途上で全く新しい変形（今までのダムの隣接点でない形）に鞍部点が求まる。このようにして求まる鞍部点は物理的に意味のあるものでこれが2番目に低い鞍部点である。次にこのようにして求めた2番目の鞍部点にもダムを築き、1番目のダムと共にその幅を広げて行く。この手続きを繰り返すことにより3番目、4番目、の鞍部点を決定することができる。

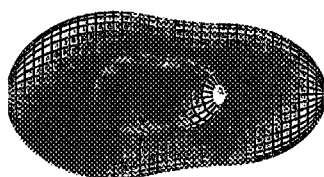
4 数値計算結果と今後の課題

図2に示すのは、 ^{232}Th の第2障壁領域の形である。この核の場合には、第2障壁がさらに二つに分裂するが、そのうち内側の障壁に対応する鞍部点が図の上段に、外側の障壁に対応するものが下段に、その中間の極小点が真ん中に示されている。各々のエネルギーは、上から順に4.87MeV, 4.01MeV, 5.11MeVである。この様な第2障壁付近の様相は以前の計算で求めたものと本質的には同じであるが、大きな違いが二つある。一つはそのエネルギーの値であり、ここで与えたエネルギー

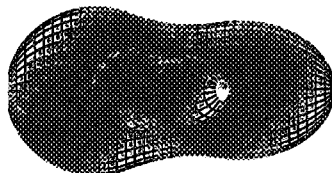
は以前の計算で与えられたものより軒並み1~2.5MeV低くなっている。もう一つは形で、特に外側の鞍部点の形は非常にはっきりとしたネックインが見られる。先ずエネルギーの点であるが、今回のように十分細かいメッシュ点で近似なしに鞍部点を探すことにより、従来の計算と比べてそのエネルギーが低くなることは十分考えられることである。我々はこれを十分根拠ある結果であると考えているが、一方実験値との比較に於いては今回の計算により求めた値はやや低すぎる傾向をもつ。この点に関しては、従来の巨視的模型でのパラメーターが従来の巨視的-微視的手法による計算が実験値に合うように決められていること関係していると考えている。すなわち、本格的には巨視的模型で使われるパラメーターの値を再検討する必要があると思われる。これは今後の課題として残されている。

²³²Th: Second-Saddle Region

Inner Saddle: $\epsilon_{11} = 0.25$ $\epsilon_{12} = 0.35$ $M_H/M_L = 139.2/92.8$



Central Minimum: $\epsilon_{11} = 0.05$ $\epsilon_{12} = 0.30$ $M_H/M_L = 134.6/97.4$



Outer Saddle: $\epsilon_{11} = -0.05$ $\epsilon_{12} = 0.20$ $M_H/M_L = 134.6/97.4$

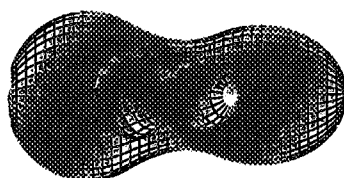
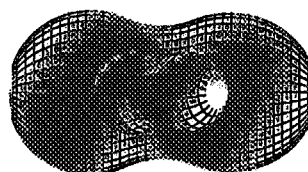


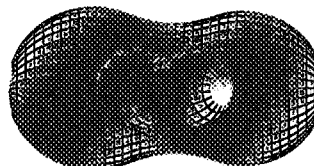
図2. ²³²Th の第2障壁付近での形状。第3極小点が生じて、そのため障壁は二つに分かれる。

²⁵⁸Fm: Bimodal Saddle-Point Shapes

New-Path, High-TKE Saddle: $\epsilon_{11} = 0.00$ $\epsilon_{12} = 0.10$ $M_H/M_L = 129.0/129.0$



Switchback, Low-TKE Saddle: $\epsilon_{11} = 0.05$ $\epsilon_{12} = 0.05$ $M_H/M_L = 139.3/118.7$



Old-Path, Low-TKE Saddle: $\epsilon_{11} = 0.10$ $\epsilon_{12} = 0.10$ $M_H/M_L = 152.2/105.8$

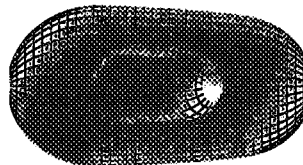


図3. ²⁵⁸Fm の第2極小点より分離点に至る間に現れる3つの鞍部点。

一方、ネックインが強い形に関しては我々の計算の中身を見ると、外側の鞍部点に於いては非常に殻補正エネルギーがマイナスで大きくなっており、非常に強いフラグメントの殻効果が利いていると結論づけられる。この点に関しては既に様々な研究の中で議論されているところであるが、今回の計算で用いたパラメトリゼーションを用いた以前の計算では [4]、外側の障壁に於いても著しいネックインは認められなかったこととは大きな違いである。

図3に示すのは²⁵⁸Fmの2重モード核分裂に対する計算である。ここでは以前に議論された [5] 二

つの核分裂経路とその二つを繋ぐ第3の経路が、5次元の一般的な計算から自然に生じている。上段はいわゆる質量対称で高い運動エネルギーをもつモードに対応する鞍部点であり、中間はいわゆるスイッチバック経路、下段は非対称の低い運動エネルギーのモードに対応する鞍部点である。それぞれのエネルギーは順に3.35, 3.57, 3.73MeVである。非常に狭いエネルギー領域に、3種類の鞍部点が生じることが、非対称変形の自由度もきちんと入れた計算で初めて示され、実験 [6] と対応して質量対称で高い運動エネルギーをもつモードがエネルギー的に最も有利であることに矛盾しない結果が得られた。この高い運動エネルギーに対応する鞍部点はやはりかなり強いネックインの形を示しており、フラグメントの殻効果が強い影響を及ぼしていることが分かる。重要なことは、 ^{256}Fm についても同じ計算をすると、この図の下段に相当する鞍部点が最もエネルギー的に低いものとして得られる。すなわち ^{256}Fm については非対称核分裂が好まれ、一方 ^{258}Fm は対称核分裂を好むという性質が核分裂の鞍部点の性質として理解できることが分かった。ほんの中性子数2の違いで、大局的な様子までが変わってしまう非常に興味深い事例である。

以上二つの核に対する計算を中心に、この新しい手法で得られた核分裂の鞍部点の性質について幾つか述べた。この計算結果の解析は現在も進行中であり、より多くの核に対する系統的な計算を目指す一方、鞍部点の形状のみでなくそれから先の分離点へ向かう途中でのポテンシャルエネルギーの構造も大事であることなども分かりつつあり、これらの研究を通して核分裂の質量分布、運動エネルギー分布について統一的理解が得られることを期待して解析を継続中である。

参考文献

- [1] W.D. Myers and W.J. Swiatecki, Nucl.Phys.**A601** (1996) 141.
- [2] P. Möller and A. Iwamoto, submitted to Phys.Rev.C.
- [3] M. Mamdouh, J.M. Pearson, M. Rayet and F. Tondeur, Nucl.Phys.**A644** (1998) 389.
- [4] P. Möller and J.R. Nix, Nucl.Phys.**A229** (1974) 269.
- [5] P. Möller, J.R. Nix and W.J. Swiatecki, Nucl.Phys.**A492** (1989) 349.
- [6] E.K. Hulet et.al. Phys.Rev.Lett.**56** (1986) 313.



10. ドゥブナでの長寿命 Sg 核種探索実験 Experiments on synthesis of Sg isotopes with relatively long half-lives in Dubna

小林義男
Y. Kobayashi

理化学研究所
RIKEN (The Institute of Physical and Chemical Research)

Abstract

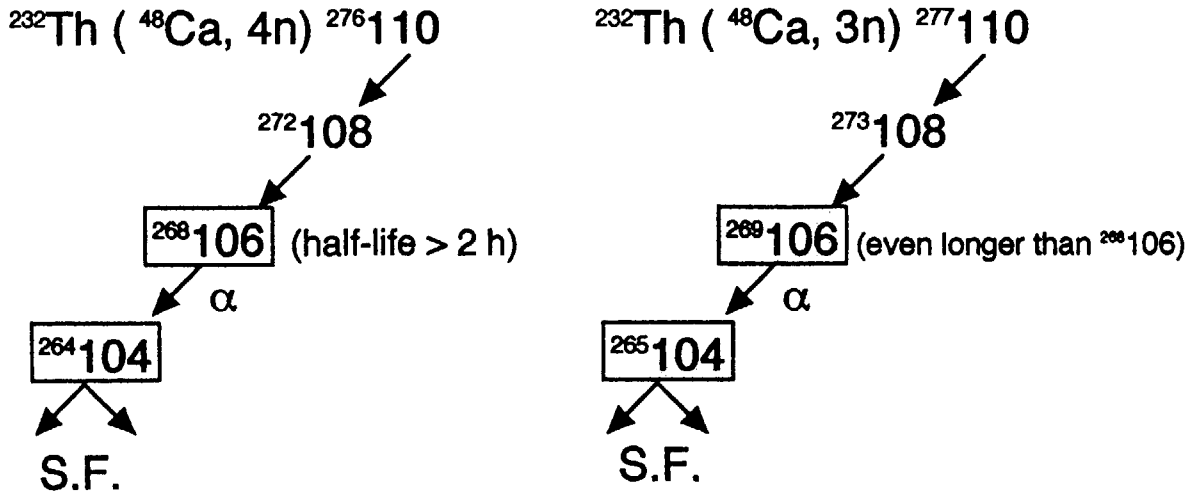
The studies of the decay properties and the formation cross-section of the super heavy isotopes, $^{276,277}110$ or $^{282,283}112$ produced by ^{48}Ca beam and ^{232}Th or ^{238}U targets respectively, were carried out at FLNR (Flerov Laboratory of Nuclear Reactions) in JINR (Russia). In the investigation using ^{232}Th target, the experiments were performed with the internal beam of ^{48}Ca with high intensity and the use of fast chemistry for extraction of the fractions containing Sg ($Z = 106$) element. After fast chemical separation, the off-line measurements of the possible correlation chains from α -decays of $^{268,269}\text{Sg}$ and spontaneous fission fragments of $^{264,265}\text{Rf}$ ($Z = 104$) were done in order to find the Sg isotopes with relatively long half-lives. This paper shows the procedure of chemical separation of Sg fraction from Th target and the preliminary results.

Keywords : $^{48}\text{Ca} + ^{232}\text{Th}$ reaction, fast chemistry, $^{268,269}\text{Sg}$, $^{264,265}\text{Rf}$

1. Introduction

^{48}Ca ビームと 2 種類のターゲット (^{232}Th , ^{238}U) を用いて、110 番と 112 番元素の合成実験をドゥブナ (ロシア) の Flerov 研究所で 97 年 11 月、98 年 5 月、98 年 10 月に行なった。それぞれの実験から、4n-または 3n-channel で生成する $^{276,277}110$ あるいは $^{282,283}112$ の壊変様式と生成断面積を求めることが、本プロジェクト研究の目標の一つである。Th ターゲット実験では照射後化学分離をし、そのオフライン測定を行ない、一方 U ターゲット実験では、recoil separator VASSILISSA を用いてオンラインで行なった。

理論計算 [1, 2] によれば、 $^{232}\text{Th} (^{48}\text{Ca}, 4n) ^{276}110 \xrightarrow{\alpha} ^{272}108 \xrightarrow{\alpha} ^{268}\text{Sg}$ から生成する ^{268}Sg は α 壊変および自発核分裂に対して約 2 時間以上の半減期を持ち、また一方、 $^{232}\text{Th} (^{48}\text{Ca}, 3n) ^{277}110 \xrightarrow{\alpha} ^{273}108 \xrightarrow{\alpha} ^{269}\text{Sg}$ で生成する ^{269}Sg は、 ^{268}Sg よりさらに長い半減期を有すると予想されている。したがって、適切かつ迅速な化学操作を行なうことで、長寿命 Sg 同位体を分離、同定することが可能であると考えた。本稿では、 ^{232}Th ターゲット実験における Sg 同位体の迅速化学分離の操作と分離後の off-line 測定についての結果を記す。



2. Experiments

実験は、FLNR (Flerov Laboratory of Nuclear Reactions, JINR, Dubna, Russia)で行なった。hot fusion 反応による 110~112 番元素の合成に、きわめて有用な原子核である中性子過剰核でダブルマジックの ^{48}Ca (濃縮度 $\approx 70\%$) をビームとして利用した。ECR イオン源からの $^{48}\text{Ca}^{5+}$ を U-400 サイクロトロンで加速し ($E=260\text{ MeV}$, $I=2\text{ pA}$)、 ^{232}Th (8 mg/cm^2 厚) ターゲットに照射した。このターゲット厚の値は、110 元素の evaporation residue の飛程より大きく、transfer reaction の生成物のそれよりは小さい。照射後、ターゲットを溶解して、迅速な放射化学的手法で化学分離を行ない、Sg フラクシオンを分離し $^{268}, ^{269}\text{Sg}$ からの α 壊変と Sg の娘核種 $^{264}, ^{265}\text{Rf}$ の自発核分裂のエネルギーを長時間のオフラインで観測した。

2-1. Chemical Separation

^{48}Ca で照射した ^{232}Th ターゲット ($30\sim 40\text{ mg}$) を 8M-HCl に溶解し、 $^{99}\text{Mo} + ^{178}\text{W}$ トレーサーを加え、未溶解のものはテフロン・フィルタにより取り除いた。溶液を希釈後、 HCl 酸性で調整した陰イオン交換樹脂により、 2M-HCl で Th フラクシオン (+Ra, Ac, Pa, U, Mn など) を、 0.2M-HCl で Pb フラクシオン、 1M-HF で Bi フラクシオン (+Tl, Cd, In, Hg など) を洗い流した後、 7M-HNO_3 で Sg フラクシオン (+Mo, W) を分離した。この分離液を蒸発乾固させた後、 0.1M-HCl に溶解し、再度イオン交換法により微量の不純物の分離、精製をした。

この溶液 ($200\text{ }\mu\text{l}$) を細いキャピラリーに注ぎ入れ、Ta ワイヤを細管先端まで挿入した。Ta ワイヤに約 5 kV の電位をかけ、溶液をスプレー状に均一に噴射させ、厚さ $0.2\text{ }\mu\text{m}$ の炭素薄箔表面に直径 20 mm 程度の大きさに収まるように電着し、これを測定試料とした。

迅速化学分離では、Th ターゲットの溶解からスプレー式電着での試料作製まで、 $1.5\sim 2$ 時間を要した。

2-2. Measurement

炭素薄箔に電着された試料を Fig. 1 に示す検出装置に入れ、 α 粒子と娘の Rf の自発核分裂の同時計数測定をした。検出装置には直径 28.5 mm の SSD が 2 mm 間隔で対面して設置しており、検出の立体角 4π の 90% を保証してある。測定時間は $3\sim 10$ 日連続で行なった。

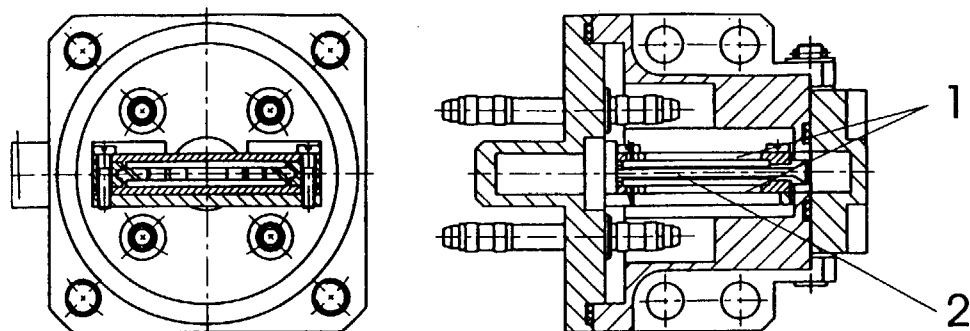


Figure 1: The schematic view of the chamber for off-line measurements of the sources with fractions of ^{106}Po element. 1 - semiconductor detectors, 28.5 mm in diameter, distance between detectors 2 mm; 2 - supporting frame with source onto carbon foil ($40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ thick).

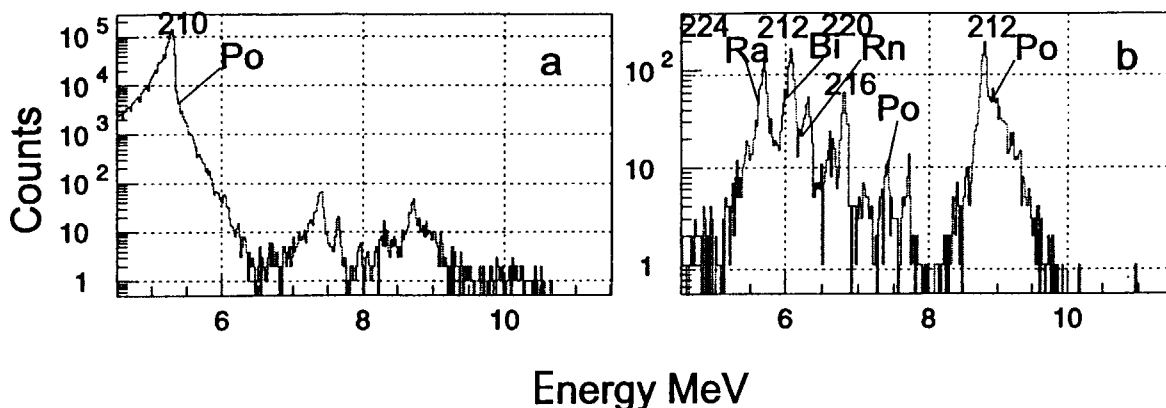


Figure 2: An example of α spectra recorded during off line measurements in October 1998. The beam dose collected - 4.5×10^{17} . Measuring time - 97 hours. a) Spectrum for the source with ^{106}Po element fraction, measurement starts 2 hours after stop of irradiation; b) Spectrum for ^{104}Po element fraction, measurement starts 12 hours after stop of irradiation.

3. Results and Discussion

得られた結果の一例を Fig. 2 に示す。1 回につき照射は約 8~9 時間行ない、照射線量は $\sim 5 \times 10^{16}$ で、これを数回繰り返して行った。照射における ^{48}Ca のエネルギー損失は 40 MeV 程度で、これは 4n-または 3n-channel の励起関数の広がりを十分補償されている。

97 年 11 月の実験では、4 つのターゲットを照射 (線量: $\sim 2.4 \times 10^{17}$) した。すべてのターゲットを化学分離し、照射終了後 40 時間後の試料について、1 個の自発核分裂片を観測した。そのエネルギーは、40 MeV と 70 MeV であった。2 度目の実験 (98 年 10 月) では、5 つのターゲットを照射し化学分離を行なった。照射終了後 92 時間後に 1 個 (82 MeV + 54 MeV) を、また 126 時間後に 1 個 (50 MeV + 7 MeV) の自発核分裂片を観測した。3 度目の実験はビーム強度の増強に伴い、回転式ターゲットが採用された。5 つのターゲットを照射し、うち 2 つのターゲットはより慎重な化学分離操作を約 8 時間かけて行ない、

測定は照射終了から 30 時間後に開始した。また、3つのターゲットでは Rf フラクションの分離も行い、 α 粒子と自発核分裂の測定をした。これらすべての試料では自発核分裂は観測されなかった。

以上の3回の実験結果で得た3個のイベント数は4n-channelで生成する $^{276}110$ の α -chainにある ^{264}Rf 起因のものではないと考えている。Smolanczuk [1]によれば、 ^{264}Rf の自発核分裂に対する半減期は数秒であるので、3n-channelから生成する ^{269}Sg または ^{265}Rf の自発核分裂片を観測したと解釈している。3個のイベントから反応断面積を計算すると、おおよそ3~5 pbと見積もられた。

最後に本研究プロジェクト参加メンバーを以下に記す。

(JINR, Russia) Yu.Ts. Oganessian, A.V. Yeremin, V.I. Chepigin, M.G. Itkis, A.P. Kobachenko, O. Konstantinesky, M. Konstantinesky, O.N. Malyshev, A.G. Popeko, J. Rohac, R.N. Sagaidak, I.V. Shirokovsky, V.K. Utyonkov,

(RIKEN, Japan) K. Morita, N. Iwasa, A. Yoneda, Y. Kobayashi

(GSI, Germany) S. Hofman, G. Münzenberg

(Comenius Univ., Slovakia) M. Veselsky, S. Saro

(INP, France) M. Hussonnois

Reference:

[1] R. Smolanczuk, *Phys. Rev.*, C **56**, 812 (1997).

[2] P. Möller et al., *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, **59**, 185 (1995).



11. アクチノイド内包フラーレンの化学 Chemistry of Endohedral Actinoids Metallofullerene

末木啓介
Keiusuke Sueki

東京都立大学理学研究科
Graduate School of Science, Tokyo Metropolitan University

Abstract

This paper proposed studies of metallofullerenes of encapsulated actinoids, for example Th, U, Np, Pu and Am. The proposal tries to produce its using by dc-arc discharge method and to investigate HPLC elution behavior.

Keywords: Endohedral actinoids metallofullerene, Dc-arc discharge method, HPLC elution behavior

はじめに

C_{60} , C_{70} 等の炭素だけで籠状のネットワークを組むフラーレン類がKroteらによって1985年に発見されており、さらに1990年に大量合成の道が開かれ²⁾、フラーレン(Fullerene)と一般的に呼ばれるようになり、物質として物理的、化学的研究が様々行われてきました。また、金属が内包されているフラーレンも合成されてその超原子的な性質が期待されてきた。この金属内包フラーレンについては現在までにアルカリ土類および希土類元素が内包されている報告が多数されてきた。私たちの研究グループは金属内包フラーレンについて、放射化学的手法の有利さを利用して様々な研究を行ってきたが、更に研究を発展させるためにアクチノイド内包フラーレンの研究を開始することを検討し初めた。今回は、今までの研究成果とアクチノイド内包フラーレン研究への期待について触れたいと考えている。

金属内包フラーレンとは

Chiら³⁾によって有機溶媒に可溶性な LaC_{82} が見出されてから様々な研究が行われてきた。当初のESRの測定によって $La@C_{82}$ は金属が $3+$ で C_{82}^{3-} の状態が存在していることが示され⁴⁾、電荷が分子内で移動している珍しい分子であることが分かった。多くの研究の中で、 $Y@C_{82}$ を用いたMEM法による解析から金属が炭素の籠の中に存在しておりその位置は中心ではなくあるケージの壁に沿って存在していることが示された⁵⁾。また、なぜ C_{82} ケージに安定な金属内包フラーレンが存在するのか、 C_{60} ケージに内包される分子は存在しないのかが当初から問題になった。最近、岡山大および名古屋大のグループはアニリンやピリジンに可溶性分子として $M@C_{60}$ の存在を明確に示してきたが、その性質は空気中では不安定な分子であるようで今後の化学的性質の解明が期待される。

$M@C_{82}$ 以外に見出された分子は Sc, Y および La の 2 個以上内包した分子であった。その内、 $La_2@C_{80}$ は対称性が I_h のケージに 2 つの La が NMR では全く等価な状態で存在しており、なおかつケージ内で運動していることが示され⁶⁾、内包される原子が持つ特徴としても独特な物質であることが示された。

また、Ca などのアルカリ土類を中心にした金属内包フラーレンでは $M@C_{82}$ だけではなく $M@C_{74}$ から様々な数の炭素ケージに存在していることが分かってきている。

この様に金属内包フラーレンはその分子としての性質が化学的安定性からその分子の運動まで様々な点で興味ある結果を与えてきている。

今までに行われたアクチノイドへの応用

Guo らによって U を含む炭素棒をレーザー蒸発させてススを作り、そのススを昇華した成分の中に特異的に UC_{28} が生成していることを質量分析の結果から求めた⁷⁾。これは Ti, Zr, Hf 等に共通の性質であることを示した。舟坂らはトリウム、ウランについてアーク放電法でフラーレン合成を試みたが、金属フラーレンについては見いだせなかった⁸⁾。そのかわりにトリウムやウランの炭化物の結晶をグラファイトで何重にもおおわれたナノパーティクルを見出した。現在のところ、具体的に有機物に可溶な状態でのアクチノイド金属内包フラーレンはまだ見出されていない。

放射化学的手法によって明らかにしてきた金属内包フラーレンの性質

(1) ランタノイド内包フラーレンに関する中性子放射化による系統的な研究

得られる金属内包フラーレンの量は非常に少なくその量を定量的に検討することはそれまで行われていなかった。この点に関して放射化分析することによって定量を容易にした。その結果を図 1 に示す、希土類の金属フラーレンの合成において希土類元素がフラーレン類に取り込まれる率は Eu, Yb を除いてあまり大きく変わらないことを示した。さらに、放射化した金属フラーレンをトレーサーとし化学挙動（特に HPLC 溶出挙動）の検討を容易に行うことができた。これらの実験によって希土類元素で Sm, Eu, Tm, Yb は他の希土類と異なる性質を持っていることが示され、その性質はアルカリ土類の金属フラーレンと非常に似ていることがわかった。

(2) マルチトレーサーを用いた金属内包フラーレンの合成

理研リングサイクロトロンで生成した Au を標的核にしたマルチトレーサーを用いて、La をホストにアーク放電法で金属内包フラーレンを合成した。これによって、トレーサー量の金属元素でもマクロ量の金属と同じ化学挙動を示すことが分かり、さらに、HPLC で展開実験した結果は図 2 に示すように 4 族の Zr, Hf と 5 族の Nb について金属内包フラーレンが合成している証拠を見出した。また、図 3 にはその時の 2 族のアルカリ土類から 5 族の Nb までに有機溶媒に可溶性金属フラーレンの生成量を示したが、その生成量は系統的な変化が観測された。

アクチノイド内包フラーレンへの興味

「アクチノイド内包フラーレンは合成できるのか？」という単純な疑問が存在している。今まで

に金属内包フラーレンから単層ナノチューブの合成に関する研究が多数なされてきた。その中で明らかになってきたことは、アルカリ土類および希土類は金属内包フラーレンを合成すること、これに対してNi, Pdなどの遷移金属が触媒として働いて単層ナノチューブの合成に役立っていることである。これらの異なる合成物が生じる理由はどのような金属元素の性質によるのでしょうか。これについて、一つはそれぞれの元素が作る炭化物の性質に違いがある可能性がある。アルカリ土類、希土類の炭化物はC=Cのカーバイトを含む構造である。つぎに生成量は金属の蒸発温度と深い関わりがあり、合成時の温度に強く依存している様に観測される。さらに、Guoらは図4に示すような金属内包フラーレンの生成にはポーリングの電気陰性度の大きさが関わっていることを指摘している。これらの指摘から、アクチノイド内包フラーレンは合成可能なのか、答えは今の所「ハイ」である。しかし、金属内包フラーレンが合成される条件は別にあるかも知れない。出来るか出来ないかをハッキリすることもとても重要な研究である。

では、出来るはずのアクチノイド内包フラーレンはどのような科学を示してくれるのだろうか？まず、軽アクチノイドにおける取りうる酸化数の多様性は、フラーレンケージ内での金属元素の価数は非常に重要な情報を与えてくれると考えられる。今までに見出されたアルカリ土類は+2であり、希土類の内ほとんどは+3を示すが、Sm, Eu, Tm, Ybは+2であることが分かっている。自然界でTmの+2状態は存在の可能性は示されているが非常に不安定であることが知られている。ところがフラーレンケージの中ではとても安定に存在していることがわかった。では、軽アクチノイドは何価を与えるのでしょうか、とても興味がある問題です。

アクチノイド内包フラーレンはどのように合成するか

どのようにしてこの実験を試みるのか？動燃の舟坂らの実験結果からは単純にマクロ方法を試みても、そのほとんどは別の過程に費やされてしまうことを意味しています。トレーサーを用いて金属フラーレンが生成する条件でまず合成する。マルチトレーサーの実験結果から合成できればその化学的挙動はその元素特有な特徴を示すことが理解されている。つぎに、トリウム、ウランのマクロ合成を行うが、アクチノイドフラーレンの存在を検討するには中性子放射化やトレーサーを用いて確認していく。これらで確認できた後に通常良く行われている質量分析などを行う。

参考文献

- 1) H. W. Kroto et al., Nature 318, 165 (1985).
- 2) W. Kratschmer et al., Nature 347, 354 (1990).
- 3) Y. Chai et al., J. Phys. Chem. 95, 7564 (1991).
- 4) R. D. Johnson et al., Nature 355, 239 (1992).
- 5) M. Takata et al., Nature 377, 46 (1995).
- 6) T. Akasaka et al., Angew. Chem. Int. Ed. Engl. 36, 1643 (1997).
- 7) T. Guo et al., Science 257, 1661 (1992).
- 8) H. Funasaka et al., J. Appl. Phys. 78, 5320 (1995).

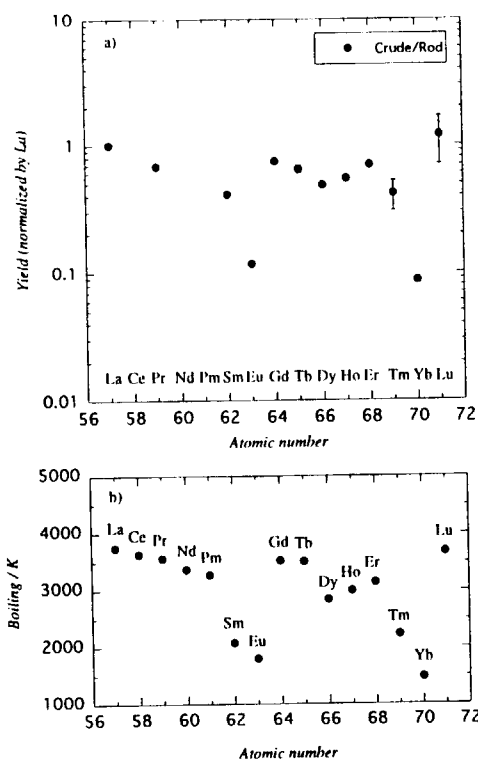


図1 (a)粗抽出物中への金属の取り込まれ方と(b)各元素の金属の沸点
 図3 金属フラーレンの収率。HPLCで溶離時間が12分以上のフラクションを積算した放射能を全ス中の放射能で割ったもの。MnとFeは上限値を求めた。

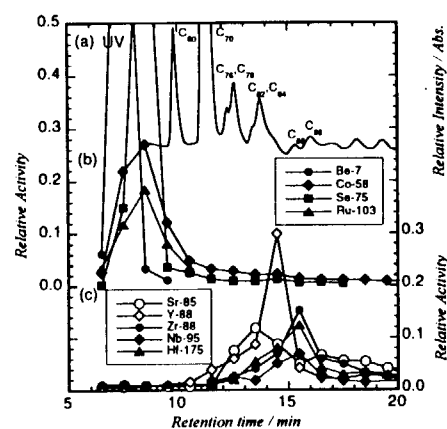


図2 マルチトレーサーを用いた放射性金属フラーレンの HPLC 溶離曲線。HPLC カラム:5PBB、展開液:CS₂、流速 2 mL/min.

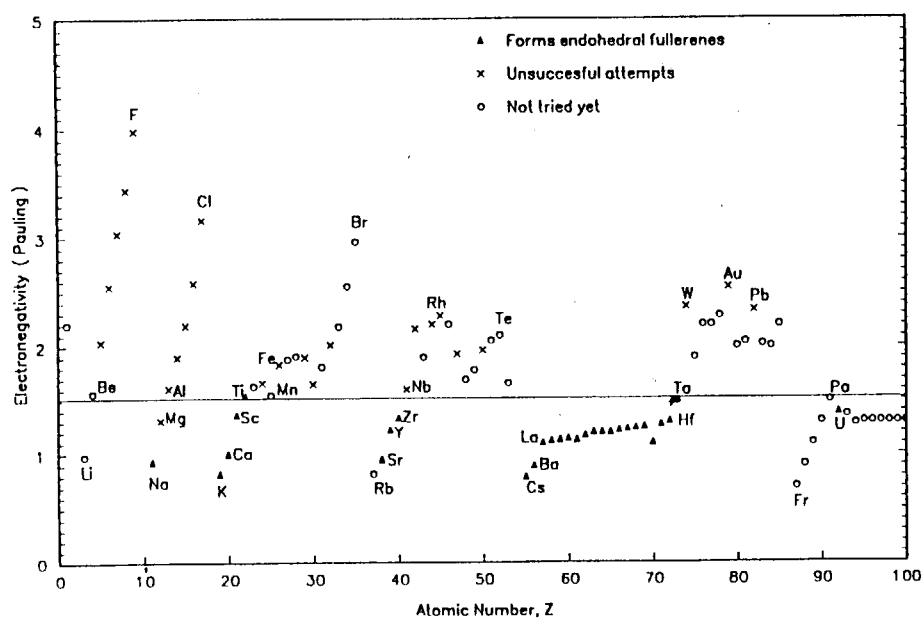
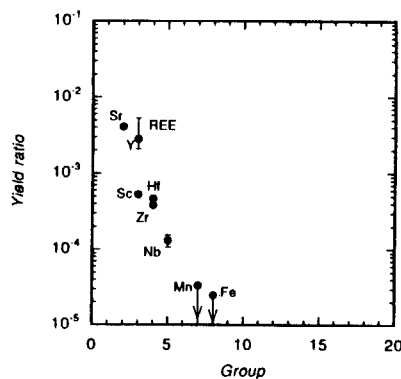


図4 ポーリングの電気陰性度を原子番号に対して図示した。記号は *Ab initio* 計算によって M@C₂₈ が出来るかどうかを計算した結果。(参考文献 T. Guo et al.: J. Chem. Phys. 99, 352 (1993))



12. 原研における重元素核化学—今後の計画

Research Plans of Heavy Element Nuclear Chemistry in JAERI

永目諭一郎

Yuichiro Nagame

日本原子力研究所

Japan Atomic Energy Research Institute

概要

Research in nuclear chemistry of heavy elements in JAERI is briefly introduced. Status and future prospects for studies of chemical and nuclear properties of the transactinide elements with the JAERI tandem accelerator are presented.

keywords: *Transactinide elements, Atom-at-a-time-chemistry, Nuclear decay property, JAERI tandem accelerator*

1 はじめに

1896年に放射能が発見されてから100余年経過しているが、その間に数多くの人工元素が合成されてきた。とりわけ今年にはロシアDubnaで114番元素[1, 2]が、また米国LBNLで118, 116番元素[3]が立て続けに合成されるなど、重元素科学研究にとっては飛躍の年といえる。

超アクチノイド元素（原子番号 $Z=104$ のラザホージウム(Rf)を超える元素）の合成は、実験技術の飛躍的な進歩によりわずか数個の原子の生成でも既知の原子核の情報と壊変系列から生成原子核を確認できるようになっている。しかし化学的な性質に関しては以下に述べるようにきわめて実験的に困難なためまだほとんど理解されるに至っていない。さらに重い元素に特有な相対論効果[4]も化学的性質に期待され、実験、理論の両面からも非常に興味深い研究分野である。

原研重元素核化学グループは、アクチノイドを含む重元素の化学的・核的性質を調べ、重い極限領域下での原子核の安定性や大きな原子核電荷と電子との特異な相互作用（相対論効果）を解明する目的で、主として以下の研究を行っている。

1. 重・超アクチノイド元素の化学的・核的特性の研究
2. 新アイソトープの探索とその壊変特性の研究
3. 核分裂機構の研究。

本稿では、この中で特に超アクチノイド元素の化学研究と重核の壊変特性研究を中心に現状と今後の計画について概要を述べる。

2 超アクチノイド元素の合成

超アクチノイドをふくむ重い元素は、キュリウム (Cm) やカリホルニウム (Cf) といったアクチノイド元素ターゲットを、酸素やネオンなどの重イオンビームで照射して合成される。しかし重い元素では、入射した重イオンとターゲット核が融合してできる核は、ほとんどが核分裂してしまう。このため中性子などを放出して、重い元素(核)として生き残る確率は非常に小さく、原子番号が増えるとともに急に小さくなることが知られている。例えば、104番元素ラザホージウム (Rf) の生成断面積は、約5 nbと報告されている。

原研グループではまず、タンデム加速器から得られる ^{18}O ビームを用いて ^{248}Cm ターゲットを照射し、 $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O},5n)$ 反応で生成する ^{261}Rf の合成を行う計画である。 ^{261}Rf は半減期が78秒と比較的長く、化学操作を行うには適した核種である。ちなみに生成断面積、タンデム加速器から得られるビーム強度ならびにターゲット厚などを考慮すると ^{261}Rf の生成率はおよそ1原子/5分程度である。また最近の重い核の安定性に関する理論計算 [5] では、数十秒程度の寿命をもつ核が、原子番号 $Z=106-108$ 、中性子数 $N=162$ 近くに存在するだろうと予測されている。我々は、こういった比較的安定な核種の探索とその核的性質— α 崩壊エネルギー及び半減期、自発核分裂 (SF) 特性—の研究も行う計画である。

3 シングルアトム化学

上で述べたように、重イオン核反応で合成される超アクチノイド原子の生成量は非常に小さく、1時間に数個程度の割合である。しかも数分以下の短い寿命でしか存在しえず、次の原子が生成されるまで生き残ることができない。このため生成される1個の原子を対象に、すばやく分離分析して化学的性質を決める必要がある。このような化学をシングルアトム化学、あるいは one-atom-at-a-time-chemistry と呼んでいる。ここでは、通常のマクロ量で扱われる化学反応の考えは適用できない。しかし速い化学平衡が成立し、多数回の交換過程を経由するようなクロマトグラフ法などでは、原理的に1個の原子でも熱力学的な性質を論じることが示されている [6]。

実験方法としては、高い効率で選択的に迅速分離が可能な高速イオン交換クロマトグラフ法によるラザホージウム元素 (^{261}Rf) の溶液中での化学挙動を調べる計画である [7]。実験の概略を図1に示す。合成された生成物は、ターゲットから反跳で飛び出し、ヘリウムガス中のクラスター粒子 (塩化カリウムなど) に付着してジェット気流 (1-2秒) で化学分離系へと導かれる。分離系への導入部で溶液化した後、陽イオンや陰イオン交換樹脂あるいは有機抽出剤をとおしてイオン交換や錯形成 (抽出) 挙動を調べることができる。溶出してきた成分は、放射線 (主に α 線) 測定にかけられ核種が同定される。これを数千回と繰り返し行い、数個の Rf 原子 (分子) の化学挙動を調べる。このような化学挙動から Rf 原子の最も安定な酸化状態、イオン半径、錯形成定数などの情報が得られる。

一方、超アクチノイド元素のように大きな原子では、中心の核電荷が大きくなるため周りの電子との相互作用が強くなる。すると内殻にある $s, p_{1/2}$ 軌道電子の速度が光速に近づき、質量が静止質量よりも重くなるために軌道半径が小さくなる。これにより外側の電子配置に変化を生じ、化学的性質が周期表から推定される性質にしたがわない可能性がでてくる。これを電子構造および化学結合における相対論効果という [4]。たとえば周期表第IV族に属すると予想されるラザホージウム (Rf) は、この効果で軽い同族のジルコニウム (Zr) やハフニウム (Hf) とは質的に異なる化学的性質を示すことが期待される。

従って、Rfで得られたデータを周期表の軽い同族元素 Zr や Hf, アクチノイドの擬4族元素 Th の化学挙動と比較したり、あるいは相対論的效果を考慮した化合物の電子状態計算から予測される性質 [8, 9] と比較することで、超アクチノイド元素における相対論効果の検証を行うことができる。特に軽い同族元素との比較は重要なポイントである。マクロ量、トレーサー量、ならびにシングルアトムでそれぞれの元素が同じ挙動を示すとはかぎらないため、同じ実験条件下でそれぞれの元素の化学挙動を調べなくてはならない。またいかにして溶存化学種を決定するかも大きな問題である。現在マクロ量を対象としてではあるが、Rfの実験条件下での Zr, Hf の溶存状態を XAFS などを用いて調べる計画である。

これまでに、タンデム加速器施設で放射性 Cm ターゲットを照射するためのビームラインならびにターゲットチェンバー用グローブボックスの整備、ガスジェット搬送装置の高効率化を進めてきた。現在は迅速化学分離装置の製作、ならびに放射線測定系の整備を進めており、次年度から本格的に超アクチノイド元素化学の実験に着手する予定である。

4 重核の壊変特性

ガスジェット搬送装置で運ばれてきた生成物からの放射線を、化学分離を経由せずに直接測定するための反跳生成核連続測定装置 (図1) も現在製作中で、これを用いて先に述べた重・超アクチノイド核の合成条件や壊変特性を調べる予定である。とりわけ自発核分裂 (SF) 特性—質量収率、運動エネルギー分布、半減期—に関しては、軽アクチノイドから重アクチノイドへの核分裂モードの系統性という観点からも興味深い研究対象である [10]。また $^{248}\text{Cm}(^{20}\text{Ne}, 4n)$ 反応で生成する ^{264}Sg の半減期決定 (SF, α 崩壊) は、これまでに得られているデータ [11] とともに、 $N=162$ の安定性を検証する貴重なデータとなりうる。

一方ガスジェット搬送装置とオンライン同位体分離器 (ISOL) を組み合わせた複合系の開発 [12] も進めており、主として EC 壊変する中性子欠損アクチノイド領域の新アイソトープ探索を行ってきた。これまでに $^{235}\text{U}(^6\text{Li}, 5n)$ 反応を用いて ^{236}Am [13], $^{233}\text{U}(^6\text{Li}, 6n)$ 反応で ^{233}Am [14] という二つの新しいアイソトープを合成、確認するとともに、 ^{235}Am の半減期を精度良く決定するなどの成果を得ている。今後は Bk などの高融点物質のイオン化を目指して、新たなイオン源の開発を進めるとともに、Cm, Bk 領域の新アイソトープ探索と微弱 α 壊変過程の検出を行う計画である。この領域の核は、超アクチノイド核の α 壊変系列に属しており α 壊変エネルギー等の情報は超アクチノイド核の質量決定にもつながり、基礎的核データの蓄積という意味でも重要な研究課題である。

5 おわりに

超重元素を含む超アクチノイド元素の合成は周期表 (核図表) の極限への挑戦であると同時に、化学的・核的研究はそれら生成元素 (核種) を同定する上では欠かせない情報を与える。なかでも化学的性質に関しては、one-atom-at-a-time-chemistry といわれるように、1個1個の原子 (分子) を対象に化学操作を行わなければならない。したがって分離した後の化合物の化学種決定など、まだ未知の部分が多く残されている。今後は、同族元素との詳細な化学挙動の違いや、理論計算から予想される重元素特有の化学的性質を系統的に調べていく必要がある。

これらの研究は、タンデム協力研究、原研・大学プロジェクト共同研究などを通して全国の核・放射化学関連研究者とともに協力して進めていきたい。またドイツ重イオン研究所 (GSI) とは平

成9年より国際協力を行っており、RfやSgの溶液化学挙動の実験を行っている。今後も、原研では製造困難な超アクチノイド元素Sg, Hs等の実験が計画されており、積極的に参加協力していく予定である。

参考文献

- [1] Yu. Ts. Oganessian *et al.*, Nature **400**, 242 (1999).
- [2] Yu. Ts. Oganessian *et al.*, Phys. Rev. Lett. **83**, 3154 (1999).
- [3] V. Ninov *et al.*, Phys. Rev. Lett. **83**, 1104 (1999).
- [4] B. Fricke and W. Greiner, Phys. Lett. **30B**, 317 (1968).
- [5] R. Smolańczuk, Phys. Rev. C **52**, 1871 (1995).
- [6] B. Guillaumont *et al.*, Radiochim. Acta **46**, 169 (1989).
- [7] 塚田和明, 本研究会報告.
- [8] 平田勝, 本研究会報告.
- [9] V.G. Pershina, Chem. Rev. **96**, 1977 (1996).
- [10] 永目諭一郎 他, J. Nucl. Radiochem. Sciences, **1**, 57 (1999).
- [11] A. Türler *et al.*, Phys. Rev. C **57**, 1648 (1998).
- [12] S. Ichikawa *et al.*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A **374**, 330 (1996).
- [13] K. Tsukada *et al.*, Phys. Rev. C **57**, 2057 (1998),
- [14] 阪間稔 他, J. Nucl. Radiochem. Sciences, **1**, 53 (1999).

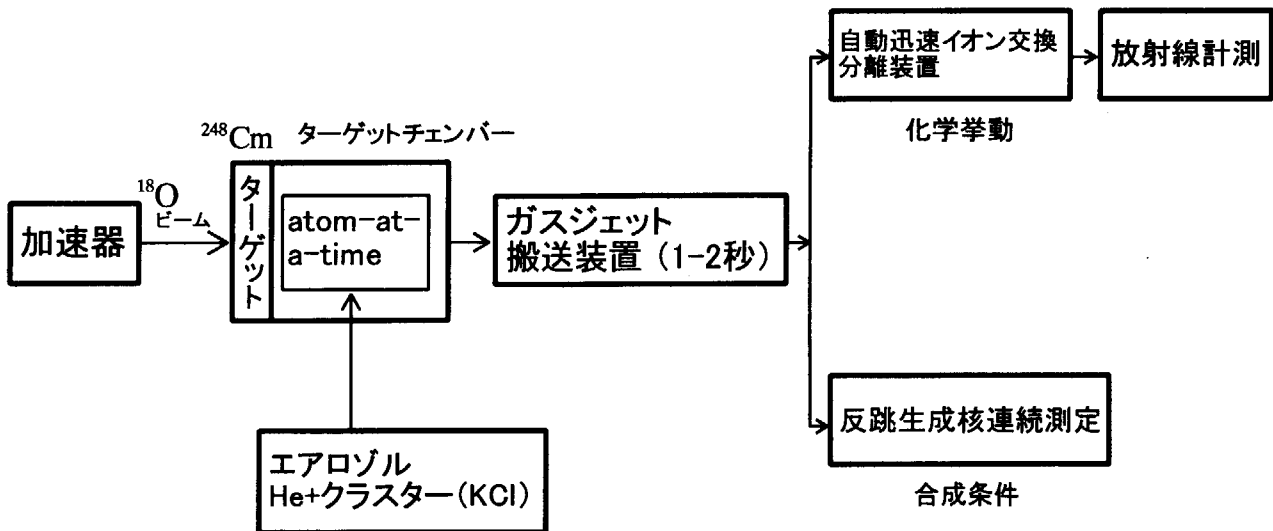


図1 超アクチノイド元素²⁶¹Rfの化学挙動実験の概要。



13. 理研における重元素研究計画 Heavy Element Research Plan at RIKEN

工藤久昭

Hisaaki KUDO

新潟大学理学部化学科

Department of Chemistry, Faculty of Science, Niigata University

[Abstract] Syntheses of new isotopes of heavy elements and study of chemical properties of trans-actinides are intended at RIKEN near future. The scientific goal is (1) systematic understanding of nuclear properties of heavy nuclei, such as deformation, beta-delayed fission and (2) clarification of the chemical properties of trans-actinide elements which are expected to strongly deviate from their light homologs because of the relativistic effect of orbital electrons.

Keywords: actinides, transactinides, GARIS, gas-jet, chemistry

1 研究目的

i) 重核の核的性質の理解

重元素の新同位体を中性子欠損側及び中性子過剰側にわたって合成し、その崩壊特性を調べることにより重核の核的性質を理解することを目的とする。アクチニド及び超アクチニド重核においては、アルファ崩壊および核分裂が特徴的な崩壊様式であり、その検出感度は非常に高い。さらに偶偶核においては、主遷移のエネルギーより容易に質量差を求めることができる、つまり親核の質量を得ることが可能である。しかしその一方で分解能の限界もあり、核分光的研究はあまり多くない。原研の初川らはアインスタイニウムおよびカリフォルニウム同位体のニルソンレベルの同定をおこない、興味ある結果を見いだしている [1]。

また重核の崩壊様式として自発核分裂が知られており、自然界における重元素及び超重元素の合成経路上で重要な役割を果たしているものと考えられているが、実験的には現在までに発見されている同位体からの遅発核分裂の分岐比はわずかでありその詳細な研究はあまりなされていない。遅発核分裂が起こる条件として $Q_\beta > B_f$ が必要であるが、当然のことながら Q_β は β 安定より離れるほど大きくなり、一方 B_f は Z の大きな核で低くなり、特にアクチニド領域の核種は小さな B_f を持っているので、遅発核分裂が観測しやすい。残念ながら中性子過剰アクチニドの合成は後述するように困難であるが、中性子欠損核を合成しその崩壊特性を調べることにより、これまで知られていない核の遅発核分裂が特に奇奇核において数多く観測されることが予想されるので、系統的な議論ができることになると予想される。

ii) 重元素の化学的性質の理解

元素の理解という意味において、超アクチニド元素の化学的性質を調べることは非常に重要である。重い原子系においては、核電荷と軌道電子の相互作用が相対論的になり、軽い原子系から予想される性質すなわち周期律表での族の類似性から外れてくることが予想される。これは原子核近傍の存在確立が大きい s , $p_{1/2}$ の球形電子が強い核電荷のため速度が大きくなり、相対論効果により軌道半径が小さくなり、結合エネルギーが増大することと、内殻電子による遮蔽が大きい d , f 電子は軌道半径が大きくなり結合エネルギーが減少することによって化学的性質の変化によると考えることができる。

超アクチノイド元素は一般にほとんど全て短寿命核種であり、扱える量も極めて少量である。ほとんどの場合一度に扱える量は原子の数にして数個である。当然のことながら、質量作用の法則は適用できない。従って、通常の化学で使われる平衡定数のような量を導き出すためには、速い化学平衡が成立し、一つの原子が多数回異なる化学状態の間を変遷し、確率分布として多数個の原子がある場合と同じ状況にすることが必要となる。

2 研究の方法

理研 RIBF では、サイクロトロン入射のためにリニアックの後段に、CSM(Charge State Multiplier) を設置し、加速と減速を行うことにしているが、CSM 加速後のビームエネルギーは最大 6.24 MeV/u と予定されている。このエネルギーは融合反応には十分であり、リングサイクロと並行して実験が行えるので、非常に効率的である。またビーム強度も世界最高が期待できるので、このビームを用いて実験を行うこととする。

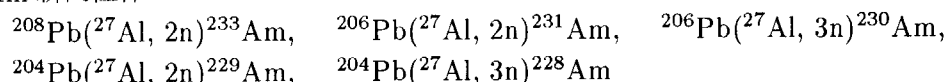
2.1 重核の新同位体の合成

[中性子欠損重核の新同位体合成]

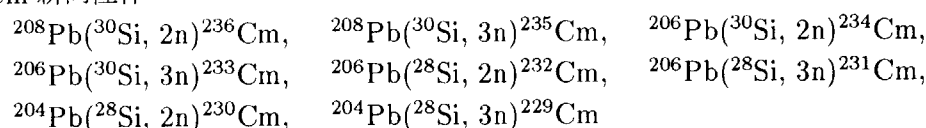
いわゆる cold fusion を用いた方法により合成を行うことを考える。

$^{208}\text{Pb}(^{40}\text{Ar}, 2n)^{246}\text{Fm}$ の反応断面積は約 25 nb であり [2]、 $^{207}\text{Pb}(^{40}\text{Ar}, 3n)^{244}\text{Fm}$ では約 6 nb [2]、また、 $^{208}\text{Pb}(^{50}\text{Ti}, 2n)^{256}\text{Rf}$ の反応断面積は約 5 nb と報告されていることから [3]、Pb 標的に対してより軽い入射粒子を照射した際は同様の反応により、少なくとも同程度或いはより大きな生成断面積を期待することができる。この程度の生成断面積の大きさがあれば、理研 GARIS を用いて十分測定できる範囲にある。具体的な候補としては次の反応が考えられる。

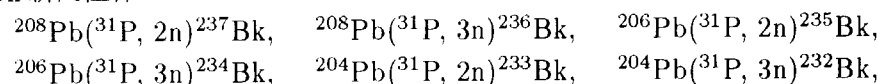
Am 新同位体



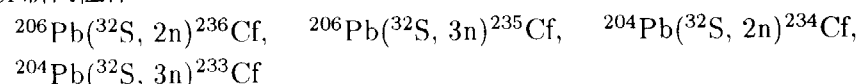
Cm 新同位体



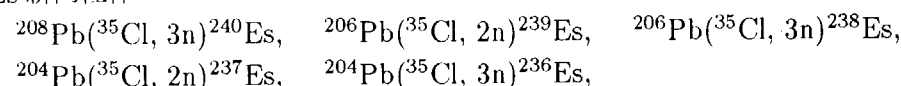
Bk 新同位体



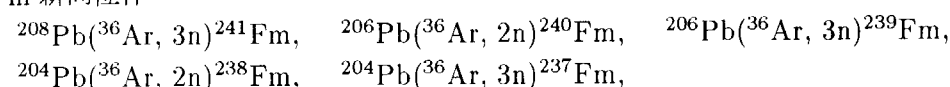
Cf 新同位体



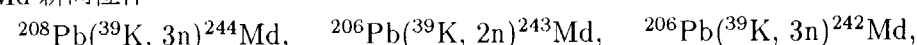
Es 新同位体

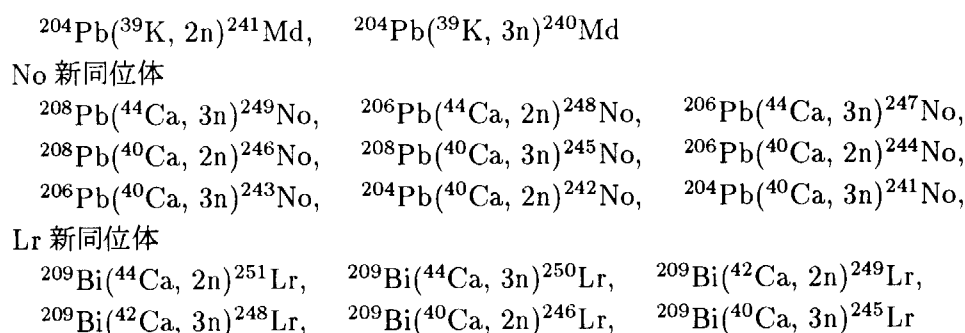


Fm 新同位体



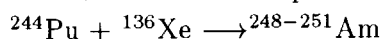
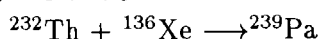
Md 新同位体





[中性子過剰側の重核の新同位体合成]

中性子過剰側の同位体の合成には核子移行反応が考えられるが、あまり多くの報告はなされていなく、反応系の選択が難しい。その中で、 $^{249}\text{Cf} + ^{136}\text{Xe} \rightarrow ^{248-256}\text{Es}$ の生成断面積が正しいものとして [4]、同様の反応を考えると、新同位体の合成が可能と思われる候補としては次の反応が考えられる。



これらの反応でできる新同位体の半減期は、数分から数日と予想されるので、gas-jet で輸送した後、化学分離を行い測定することを考える。

2.2 超アクチニド元素の化学

これまでにこの方面で行われている研究の全般的状況については、Ref.[6] に述べられている。

イオン交換等の溶液化学による研究については、原研基礎研究センターが中心となって計画しているのでここでは省略する。

ここでは気相反応について述べる。現在行われている方法は2種類で、一つは、元素間の吸着エンタルピーの差異を利用する熱クロマトグラフ法である。この方法では、核反応箱あるいはその出口直後に反応ガスを導入し、目的の化合物を形成させた後、逆温度勾配をかけたカラムを通してその沈着位置より化学的性質を調べる。軽い同族体の放射性トレーサーを用いることにより、目的元素との類似性から化学的性質を類推することになる。Zvara を中心として、トラック検出器による自発核分裂する核種の検出に利用されている [7]。この方法では、短半減期の核種に使用できるが、自発核分裂のみ測定しているので核種を特定することが難しいのと、モデルに依存した解析が必要である。

一方、等温ガスクロマトグラフにおける保持時間 (retention time) の測定をオンラインで行う方法がある。ORGA(On-Line Gas Chemistry Apparatus)[8] や HEVI(Heavy Element Volatility Instrument)[9] と呼ばれるこの方法では、核反応生成物は gas-jet 輸送系により連続的に石英カラムに運ばれ、いったん石英ウールで捕獲される。高温でエアロゾル粒子から脱離した後、反応ガスを導入し、揮発性化合物を形成する。次に、温度可変な等温カラムを通り、再びエアロゾルに付着させた後、測定位置まで運ばれる。測定位置では、回転円盤あるいはテープシステムにより、時間情報と共に α 線や自発核分裂生成物が半導体検出器によって測定される。

いずれの方法においても、揮発性化合物として用いられているのは塩化物や臭化物のような無機化合物であり、元素の選択性が乏しいことに加え、高温での反応を必要とするので、コールド

スポットによる捕獲に対する注意が必要であり、操作が著しく煩雑になることと信頼性にも問題がある。また、これらの方法では、化学種の同定がなされていない。

本研究では有機金属化合物の形での分離を行うこととする [5]。元素の選択性の観点からみてキレート錯体のような有機金属化合物の方がはるかに優れているので、これを有効に利用することで格段に選択性のよい分離法となる。錯形成は、それに関与するオービタルの性質を直接に反映するものであるため、重元素の化学的性質で非常に興味のある相対論効果を明確に示すことになる。従って、これまでに行われている分離法に比べて、より直接的に超アクチニド元素の化学的性質の知見が得られることになる。また、質量分離装置を用いることにより、これまで推定の域を出なかった化学種の同定が可能であり、これまでに行われている方法に比べて格段に優れていると考えられる。

この方法は溶媒抽出や高速液体クロマトグラフィーとの連結も容易に可能であり、将来的には2段階分離による選択性の向上と明確な化学的性質の特定が可能となることが考えられる。

具体的な核反応の系の選択については、共同研究者らが現在行っている ($HI, \alpha n$) 反応による重核の合成の結果を見て決めるが、 $N=162$ の変形殻近傍の核を主として用いることにしたい。標的には同族の元素 (例えば、 ^{248}Cm に対して ^{152}Gd) を加えておき、同族体の化学組成を質量分離によって確認しながら実験を行うこととする。生成物は GARIS の後段からの gas-jet 輸送系でホットラボへ輸送し、化学分離をすることとする。

3 建設が必要な実験装置

- ガスジェット輸送システム

ガスジェット輸送システムの製作に関してはすでに経験がある。

- 気相化学分離装置

現在新潟大学で開発中。

- 質量分析装置

市販の化学分析用の二重収束質量分離装置の検出器部分に放射線検出器を配置する。このテスト機については、新潟大学 RI センターに設置予定 (平成 11 年度) の質量分離装置について ^{252}Cf 線源を用いて行うこととする。

- 検出系

GARIS での直接測定に関しては、現在すでに使用中の位置感応型半導体検出器を用いることとする。

詳細はまだ決定していないが、Berkeley の rotating wheel [9] と類似のものを考えている。

- その他 ^{232}Th , ^{238}U , ^{244}Pu , ^{248}Cm 等の α 放射体が使用できるホットラボが必要であり、ドラフトフード 2 台、ガスジェット輸送システム、気相化学分離装置、質量分析装置等を配置するため 10m x 10 m 程度の広さが最低限必要である。

参考文献

- [1] Y. Hatsukawa et al., Nucl. Phys. **A500**, 90(1989)
- [2] H. Gäggeler et.al., Z. Phys. **A316**, 291(1984)
- [3] Y. Ts. Oganessian et., al. Nucl. Phys. **A239**, 157(1975)
- [4] K. E. Gregorich et al., Phys. Rev. **C35**, 2117(1987)
- [5] T. Kaneko et al., Radioanal. Nucl. Chem. **240**, 53(1999)
- [6] 工藤久昭, ぶんせき, **7**, 546(1996)
- [7] I.Zvara et. al., Sov. Radiochem. **11**, 161 (1969), I.Zvara et. al., Inorg. Nucl. Chem. Lett. **7**, 1109 (1971), I.Zvara et. al., J. Inog. Nucl. Chem. **32**, 1885 (1970), B.L.Zhuikov et. al., Radiochim. Acta, **46**, 113 (1989), S.N.Timokhin et. al., J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett. **212**, 31 (1996)
- [8] H.W.Gäggeler et. al., Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. **A309**, 201 (1991)
- [9] B.Kadkhodayan et al., Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. **A317**, 254 (1992)



14. KUR-阪大「重元素の核化学」研究プロジェクト

篠原 厚

京都大学原子炉実験所・原子炉安全管理研究部門

KUR と阪大が中心となり立ち上げつつある「重元素の(核)化学的研究」の計画の概要を紹介する。本研究は原研や理研と連携して進めることになるが、KUR の有効利用やその将来計画も踏まえた計画により、上記の研究に大きな貢献が期待できる。

キーワード：重元素、超アクチニド、迅速化学装置、1原子の化学、KUR

1. 目的・背景

無機化学（中でも核・放射化学）の21世紀に向けての大きなテーマの一つは、(超)重元素の化学である。本研究グループでは、その化学の遂行に必要な迅速化学操作の技術開発といわゆる Atom at a time chemistry の化学的基盤を確立すること、及びアクチニド後半や Rf、Db、Sg、等、等の化学を幅広く確実に積み上げ、さらに将来の長寿命超重元素(SHE)の量産時代に備えることを目指した計画を進めている。

我が国は、まだ超アクチニウム元素(TRA)の製造もおぼつかない状態であるが、近い将来、不安定核ビームの利用等も KEK-JAERI や理化学研究所で計画されており、この分野での貢献が期待されている。このような中で、TRA の化学を本格的に進めることが、我が国の化学（特に核・放射化学）の重要な役割と考えている。

しかしながら、アクチニド元素やTRA元素の研究には、製造のための大型の加速器以外に、放射性がゆえの種々の制約と相当の設備を要する。さらにアクチニド元素の後半やTRA元素は寿命も非常に短くなり、生成量も極端に少なくなるため、1原子の化学とその検出のための特別な迅速化学技術を要する。それ故、このプロジェクト全体は、全日本的規模の核・放射化学者の連携で進める必要があるが、その中で、京大原子炉実験所（KUR）の現有設備はこれらの技術的基盤を作るには適しており、さらに、将来計画を念頭に置くと、atom at a time chemistry自身の化学的基盤固めという基礎研究面で重要な貢献が出来ると考えている。

2. 研究計画の概要

本計画は、重アクチニドから超アクチニド元素の化学を広範囲、ルーチン的に行うことを最終的目的とする。その場合、必然的にトレーサー量から1原子が対象となるため、いわゆる atom at a time chemistry を扱うことになる。そのため、まず、各種迅速化学操作装置や1原子測定法の開発、atom at a time chemistry の化学的基盤作り（トレーサー量から1原子における化学挙動とマクロ量化学の違い）、重元素製造法の核化学・物理的研究が必要となる。KUR と阪大Gの協同で特に前者2つについて行い、製造法に関しては原研との共同研究で進める。

KUR で行う atom at a time chemistry の化学的基礎研究として、トレーサー（キャリアーフリー）利用による装置テスト、ISOL による1原子化学の基礎実験（テスト、同族比較実験）、及び加速器利用（将来計画第1期）によるオンライン実験を順次行う。次に（もしくは平行して）原研での重アクチニド、Rf、Db、Sg、等の実験に進む。

具体的手順として、以下のことを計画している。

- ① 化学分離装置の導入・開発、検出法の開発
 - ・迅速自動溶媒抽出装置の導入 (ex.SISAK)、開発 or 改良 [KUR]
 - ・迅速イオン交換分離装置の開発 (GIS-原研 Ver.を元にして) [KUR&阪大]
 - ・迅速ガスクロマトグラフィー、、、その他?の開発 [阪大&KUR]
- ② トレーサー量RIによる基礎実験
 - ・テスト実験 (KUR or RCPN でトレーサーを製造)
 - ・検出系の開発、テスト
- ③ atom at a time chemistry の基礎実験
 - ・ISOL 利用による短時間RIの1原子化学 [KUR]
 - ・加速器利用による反跳生成核のオンラインテスト、基礎実験 [KUR 第1期将来計画]
- ④ アクチニド後半の実験、Rf実験、、、[at JAERI and RIKEN] ①～③と並行して進める。

3. 現状

本プロジェクトは、まだまだ机上のものであるが、KURと阪大を中心に関西地区の有志を募り、鋭意、計画の具体化を進めている。以下、プロジェクトの現状を列記する。

① 「重元素の核化学」KUR 専門研究会の発足

世界の現状把握、全日本的な研究グループの体制作り、及び具体的研究テーマの検討を目的とし、今年度以下の2回(核分裂研究会と合同開催)を予定している。

10/19-20 : KUR 専研 (1)、 1/19-20 (予定) : KUR 専研 (2)

② 迅速イオン交換装置の開発検討、検出器系の整備 ——> 阪大にて開始予定

迅速自動溶媒抽出装置 ——> KUR で導入を検討中

③ KUR 将来計画の現状

KURの将来計画は、現在、原子炉燃料の低濃縮化と並行して検討が進められている。基本的計画は、加速器駆動未臨界炉の建設と、それによる実用炉への基礎実験、及び新しい中性子源としての高度利用である。本研究グループでは積極的に計画立案に関わり、加速器の有効利用の一貫として、荷電粒子及び中性子の照射設備(非密封RI、核燃などを含む)とオンライン化学操作装置の設置を提案している。また、周辺の放射性物質使用環境の充実も念頭に置いて、概念設計を進めている。下図に現時点での KUR 将来計画の概念図を示す。図中の第1期加速器棟に上記の設備を備える予定である。[平成9年度、10年度 将来計画小委員会報告書(京都大学原子炉実験所)を参照]

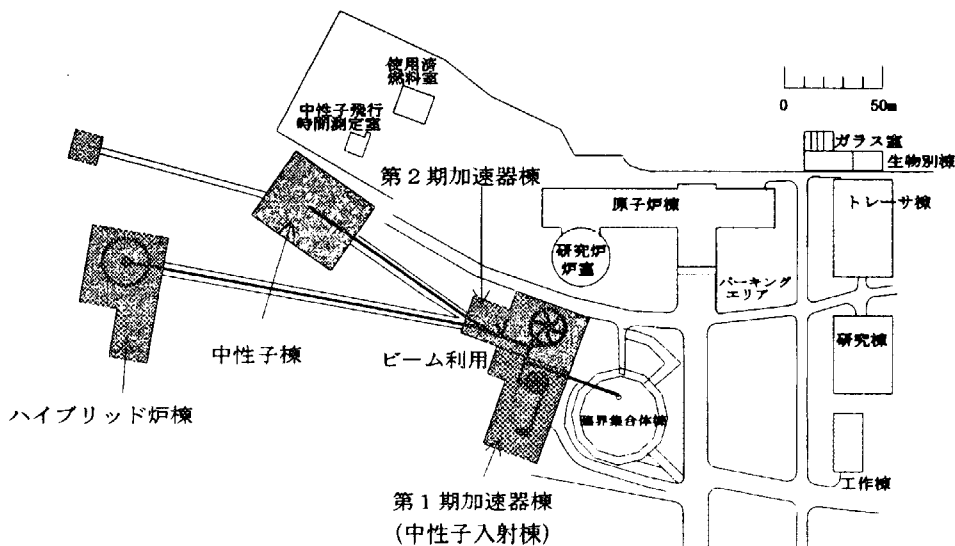


図 KUR 将来計画の概略

付表

重元素核科学ワークショップ
—超アクチノイド・超重元素核科学の展望—プログラム

7月21日(水)

座長 永目諭一郎(原研)

10:00-10:10 / 安岡弘志(原研) —あいさつ

セッション1—特別講演

10:10-11:10 / B. Fricke (Kassel Univ.) - Frontiers of the heaviest elements

セッション2—重元素・重核合成(1)

11:10-12:00 / 太田雅久(甲南大) —観測可能な超重原子核の予測

12:00-13:00 昼食

座長 工藤久昭(新潟大)

13:00-13:50 / 池添 博(原研) - 原研での重元素・重核合成(RMS, RIビーム計画)

13:50-14:40 / 吉田 敦(理研) —中性子過剰核ビームを用いた重核の合成

セッション3—重核の崩壊特性(1)

14:40-15:30 / 宇野正宏(文部省) —重核の崩壊特性と質量公式

15:30-15:50 コーヒーブレイク

座長 篠原厚(京大炉)

セッション4—重元素の化学(1)

15:50-16:40 / 齋藤 晋(東工大) —超重元素の電子状態

16:40-17:20 / 平田 勝(原研) —超アクチノイド元素化合物の電子状態—理論
Rf元素の化学挙動実験への理論的アプローチ

17:20-18:00 / 塚田和明(原研) —超アクチノイド元素の化学—実験
Rf元素の溶液化学を中心に原研での現状と今後の計画

18:15 阿漕浦クラブ行きバス 交流棟前より

18:30—懇親会(於 阿漕浦クラブ)

7月22日(木)

座長 池添博(原研)

セッション5 - 重元素・重核合成(2)

9:00-10:00 / 森田浩介(理研) - ドブナでの114番元素合成実験

10:00-10:20 コーヒーブレイク

セッション6 - 重核の崩壊特性(2)

10:20-11:00 / 岩本 昭(原研) - 重核の核分裂特性

座長 横山明彦(阪大院理)

11:00-11:30 / 小林義男(理研) - ドブナでの長寿命Sg核種探索実験

セッション7 - 重元素の化学(2)

11:30-12:00 / 末木啓介(都立大) - アクチノイド内包フラレンの化学

12:00-13:30 昼食

セッション8 - 全体討論, 今後の計画

13:30-16:00 / 永目諭一郎(原研) - 原研
工藤久昭(新潟大) - 理研
篠原 厚(KUR) - KUR-阪大
全体討論

重元素核科学ワークショップ出席者名簿

1999年7月21, 22日
於 日本原子力研究所先端基礎研究交流棟

No.	氏名	所属	E-mail
1	秋山和彦	都立大院理	aki@comp.metro-u.ac.jp
2	浅井雅人	原研 超アクチノイド元素核化学研究グループ	asai@tdmalph1.tokaijaeri.go.jp
3	池添 博	原研 変形核重元素合成研究グループ	ikezoe@popsvr.tokaijaeri.go.jp
4	市川進一	原研 超アクチノイド元素核化学研究グループ	sichi@popsvr.tokaijaeri.go.jp
5	岩本 昭	原研 物質科学部	iwamoto@hadron01.tokaijaeri.go.jp
6	臼田重和	原研 環境技術開発グループ	usuda@sngsun.tokaijaeri.go.jp
7	宇野正宏	文部省 初等中等教育局	unom@tanashi.kek.jp
8	大浦泰嗣	都立大院理	oura-yasuji@c.metro-u.ac.jp
9	大釜和也	都立大院理	kazuya.o@comp.metro-u.ac.jp
10	大澤孝明	近畿大理工	ohsawa@mvg.biglobe.ne.jp
11	太田雅久	甲南大理	masaota@konan-u.ac.jp
12	大槻 勤	東北大 核理研	ohtsuki@ins.tohoku.ac.jp
13	加治大哉	新潟大院自然科学	daiya@curie.sc.niigata-u.ac.jp
14	片倉純一	原研 原研核データセンター	katakura@ndc.tokaijaeri.go.jp
15	金子哲也	新潟大院自然科学	tetsuya@curie.sc.niigata-u.ac.jp
16	菊永英寿	金沢大理	hkiku@nihonkai.kanazawa-u.ac.jp
17	工藤久昭	新潟大理	hkudo@sc.niigata-u.ac.jp
18	後藤真一	原研 超アクチノイド元素核化学研究グループ(新潟大院自然科学)	goto@curie.sc.niigata-u.ac.jp
19	小林義男	理研 応用原子核物理研究室	kyoshio@postman.riken.go.jp
20	斎藤 晋	東工大理	saito@stat.phys.titech.ac.jp
21	阪間 稔	原研 超アクチノイド元素核化学研究グループ(都立大院理)	sakama@tdmalph1.tokaijaeri.go.jp
22	篠原伸夫	原研 原子核科学研究グループ	shino@popsvr.tokaijaeri.go.jp
23	篠原 厚	京大 原子炉	shino@rri.kyoto-u.ac.jp
24	新中浩介	金沢大理	shinnaka@yu.incl.ne.jp
25	末木啓介	都立大院理	sueki-keisuke@c.metro-u.ac.jp
26	関根 勉	東北大院理	tsekine@mail.cc.tohoku.ac.jp
27	高岸仁人	金沢大理	yuina@yu.incl.ne.jp
28	高橋成人	阪大院理	naruto@chem.sci.osaka-u.ac.jp
29	高宮幸一	京大 原子炉	takamiya@HL.rri.kyoto-u.ac.jp
30	棚瀬正和	原研 先端基礎研究センター	tanase@popsvr.tokaijaeri.go.jp
31	趙 宇亮	都立大院理	zhao-yuling@c.metro-u.ac.jp
32	塚田和明	原研 超アクチノイド元素核化学研究グループ	ktsuka@popsvr.tokaijaeri.go.jp
33	豊嶋厚史	阪大院理	toyosima@chem.sci.osaka-u.ac.jp
34	永目諭一郎	原研 超アクチノイド元素核化学研究グループ	nagame@popsvr.tokaijaeri.go.jp
35	西尾勝久	原研 変形核重元素合成研究グループ	nishio@tdmalph1.tokaijaeri.go.jp
36	西中一朗	原研 超アクチノイド元素核化学研究グループ	ichiro@popsvr.tokaijaeri.go.jp
37	野村 亨	KEK	
38	羽場宏光	原研 超アクチノイド元素核化学研究グループ	haba@popsvr.tokaijaeri.go.jp
39	平田 勝	原研 抽出分離化学研究グループ	hirata@popsvr.tokaijaeri.go.jp
40	T. Bastug	原研 抽出分離化学研究グループ	bastug@matres.tokaijaeri.go.jp
41	廣瀬由紀子	金沢大院自然科学	yukiko@nihonkai.kanazawa-u.ac.jp
42	M. I. U. Bhuiyan	金沢大院自然科学	
43	福田共和	KEK 素粒子原子核研究所	fukuda@jhfc1.kek.jp
44	B. Fricke	原研 抽出分離化学研究グループ(Kassel Univ.)	fricke@physik.uni-kassel.de
45	細谷梨沙	金沢大院自然科学	hosotani@mbe.sphere.ne.jp
46	間柄正明	原研 環境技術開発グループ	magara@analchem.tokaijaeri.go.jp
47	松村 宏	金沢大院自然科学	matsu@kenroku.kanazawa-u.ac.jp
48	三浦 優	都立大院理	miurayu@comp.metro-u.ac.jp
49	光岡真一	原研 変形核重元素合成研究グループ	mitsuoka@nucleus3.tokaijaeri.go.jp
50	三頭聰明	東北大 金研	mitsug@ob.imr.tohoku.ac.jp
51	宮本ユタカ	原研 環境技術開発グループ	miyamoto@sngsun.tokaijaeri.go.jp
52	室山俊浩	金沢大学理 LLRL	muroyama@po3.nsknet.or.jp
53	森田浩介	理研 サイクロトロン研究室	morita@rikxp.riken.go.jp
54	安岡弘志	原研 先端基礎研究センター	
55	安田健一郎	原研 環境技術開発グループ	yasuda@sngsun.tokaijaeri.go.jp
56	横山明彦	阪大院理	yokoyama@chem.sci.osaka-u.ac.jp
57	吉田 敦	理研 放射線研究室	ayoshida@rikxp.riken.go.jp
58	鷺山幸信	金沢大学医	kwashi@mhs.mp.kanazawa-u.ac.jp

(五十音順)

This is a blank page.

国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	N·m
工率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	A·s
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光度	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV=1.60218×10⁻¹⁹J
1 u=1.66054×10⁻²⁷kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オンGSTローム	Å
バーン	b
バル	bar
ガリ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å=0.1nm=10⁻¹⁰m
1 b=100fm²=10⁻²⁸m²
1 bar=0.1MPa=10⁵Pa
1 Gal=1cm/s²=10⁻²m/s²
1 Ci=3.7×10¹⁰Bq
1 R=2.58×10⁻⁴C/kg
1 rad=1cGy=10⁻²Gy
1 rem=1cSv=10⁻²Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

(注)

- 表1-5は「国際単位系、第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1 eV および1 uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクターも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- bar は、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令では bar, barn および「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N(=10 ⁻⁷ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s(N·s/m²)=10 P(ポアズ)(g/(cm·s))

動粘度 1 m²/s=10⁶St(ストークス)(cm²/s)

圧	MPa(=10bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062×10 ¹	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10 ⁻¹	1.35951×10 ⁻¹	1.31579×10 ⁻¹	1	1.93368×10 ⁻²
	6.89476×10 ⁻¹	7.03070×10 ⁻²	6.80460×10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778×10 ⁻⁷	0.238889	9.47813×10 ⁻⁴	0.737562	6.24150×10 ¹⁸
	9.80665	1	2.72407×10 ⁻⁶	2.34270	9.29487×10 ⁻⁴	7.23301	6.12082×10 ¹⁹
	3.6×10 ⁶	3.67098×10 ⁷	1	8.59999×10 ⁷	3412.13	2.65522×10 ⁶	2.24694×10 ²⁵
	4.18605	0.426858	1.16279×10 ⁻⁶	1	3.96759×10 ⁻³	3.08747	2.61272×10 ¹⁶
	1055.06	107.586	2.93072×10 ⁻¹	252.042	1	778.172	6.58515×10 ²¹
	1.35582	0.138255	3.76616×10 ⁻⁷	0.323890	1.28506×10 ⁻³	1	8.46233×10 ¹⁵
	1.60218×10 ¹⁹	1.63377×10 ²⁰	4.45050×10 ⁻²⁶	3.82743×10 ⁻²⁰	1.51857×10 ⁻²²	1.18171×10 ¹⁶	1

1 cal= 4.18605J (計量法)
= 4.184J (熱化学)
= 4.1855J (15°C)
= 4.1868J (国際蒸気表)
仕事率 1 PS(仏馬力)
= 75 kgf·m/s
= 735.499W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270×10 ⁻¹¹
	3.7×10 ¹⁰	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58×10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

重元素核科学ワークショップ ― 超アクチノイド・超重元素科学の展望 ― 1999年7月21日―22日、日本原子力研究所、東海村