超 重 元 素†

長谷部信行, 三好慶典

早稲田大学理工学研究所

162 東京都新宿区喜久井町17

1. はじめに

原子核構造理論の進歩に伴い超重元素の“安定な島”が予言され, これらの超重元素の化学的性質の推定も活発に研究された。この理論に刺激され, 宇宙科学分野の研究者たちは超重元素に関心を高め, 星の進化の終末段階の爆発的現象において超重元素が合成され得るという理論を展開した。これらの理論的研究に力を得て自然界(地球鉱物, 地球外鉱物および宇宙線中)に存在する可能性のある超重元素の検出実験も多く試みられている。また超重元素を発見する別の方法として, 重イオンを加速して重い標的核と核反応を起こさせ人工的に超重元素を合成する実験も盛んに行われている。

ここでは, 超重元素安定性に関する原子核理論および星内合成理論を簡単に述べ, 超重元素の検出実験および重イオン反応による人工合成実験の現状について報告する。

2. 超重元素に関する理論的予言

2.1 物理的性質

原子核の陽子数と中性子数が増大すると β 崩壊に対して安定な核も α 崩壊や自発核分裂を起こして壊変する。原子核の大局的性質は液滴模型によって説明できる。核分裂のさい問題となるポテンシャルエネルギーの変化は, 原子核の変形パラメーターを y として核分裂障壁を表現すると半経験的につぎようになる。

$$E_{LD}(A, Z, y) = E_s(A, Z)[B_s(y) - 1] + E_c(A, Z)[B_c(y) - 1]$$

ここで E_s , E_c は変形していない球形の表面エネルギーとクーロンエネルギーである。 B_s , B_c は表面エネルギーとクーロンエネルギーの変形のための補正項で,

$B_s(y) \geq 1$, $B_c(y) \leq 1$ である。球形のクーロンエネルギーと表面エネルギーはつぎのように表される。

$$E_s = \alpha_s Z^2 / A^{1/3}$$

$$E_c = \alpha_c A^{2/3} / (1 - KI^2 / A^2)$$

α_s , α_c は実験的に決められる定数である。 $I = N - Z$, そして KI^2 / A^2 は表面对称補正項である。自発核分裂の容易さの度合を表すパラメーター (fissility F) は

$$F = E_c / 2E_s \propto Z^2 / A(1 - KI^2 / A^2) \quad (1)$$

と表される。(1)からわかるように原子核(A, Z)の自発核分裂を起こす確率は, Z^2 / A の増加とともに大きくなり, $Z > 100$ の原子核は核分裂障壁がなくなり存在することができない。しかし殻構造の理論的研究から陽子数 $Z = 82$ のつぎは, $Z = 114, 126$, 中性子数 $N = 126$ の次は $N = 184, 196$ が魔法数であると言われている。そこで $^{310}114$ は ^{208}Pb のように二重魔法数をもつ原子核であることが予想される。

Mayer と Swiatecki は液滴模型に現象論的に殻効果を加え核分裂障壁

$$E_{bar}(A, Z, y) = E_{LD}(A, Z, y) + E_{shell}(A, Z, y) + E_{pair}(A, Z, y)$$

を計算した¹⁾。ここで右辺第二項と第三項は, それぞれ殻効果と対効果による補正項である。その結果 ~ 10 MeV というかなり高い値をもち, 超重元素が核分裂に対して安定になることを予言した。

変形の関数としてのポテンシャルエネルギーは Sturutinsky の“殻補正法”を用いて計算される²⁾。この方法は液滴模型で求めた核の平均エネルギーに単一粒子モデルで求めたエネルギーの微視的ゆらぎを合成して全体のポテンシャルエネルギーを得るものである。単一粒子エネルギーを計算する多くの模型が考えられているが, Nilsson らは改良調和振動子模型を用いてとくに核の二重極変形と四重極変形に対する核分裂障壁を計算した³⁾。図1は二重極変形に対する核分裂障壁を示している。

† Superheavy Elements. Nobuyuki HASEBE and Yoshinori MIYOSHI: Science and Engineering Research Laboratory, Waseda University, 17, Kikui-cho, Shinjuku-ku, Tokyo 162.

図 1 四重極変形に関して最小になるような二重極変形度 ε と核分裂障壁との関係。破線は液滴模型の障壁。実線は液滴模型に殻効果と対効果を補正した障壁。

自発核分裂の半減期は核分裂障壁を透過する確率 P と単位時間内の障壁への衝突回数 n の積に反比例する。ここで n は平衡点での β 振動の振動数である。半減期 $T_{1/2}$ はつぎのようになる。

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{n} \cdot \frac{1}{P}$$

また透過確率 P は WKB 法によって近似的に求められ

$$P = \left\{ 1 + \exp \left(\frac{2}{\hbar} \int_{y_1}^{y_2} \sqrt{2M_{\text{eff}}(V(y) - E_0)} dy \right) \right\}^{-1} \quad (2)$$

で与えられる。ここで M_{eff} , $V(y)$ は有効質量とポテ

ンシャルエネルギー, E_0 は基底状態でのエネルギー, y は長さの次元をもつ変形パラメーターで y_1, y_2 は障壁の入口と出口での値である。(2)式よりわかるように半減期の誤差は有効質量とポテンシャルの不確定さに指数関数的に依存し, 有効質量が30%違えば半減期は 10^6 違ってくる。Nix により計算された超重元素の半減期を図2に示す^{4), 5)}。その結果によると $N=184$, $A=294$ 付近の元素の半減期は 10^5 y 以上となり, そのうち最も長寿命と予想される元素は $^{294}110$ で, $\sim 10^9$ y の半減期を有する。

α 崩壊の寿命は偶々核に対してはエネルギーとの間に Geiger-Nuttall の法則がある。Berkeley-Lund-Warshaw グループらの計算では超重元素の α 崩壊半減期は最高 10^{18} y となっているが基底状態間質量差の精度から誤差は3桁以上になると考えられる^{6), 7)}。また α 線のエネルギーも既存の核種のものに比べて大きなものが予想され $^{298}114$ の α 線エネルギーは 16.7 MeV に達するといわれている。

超重元素の核分裂の特徴について簡単に述べよう。分裂する核と分裂片の平均質量の差を ΔM とし, 2つの分裂片の平均運動エネルギーを $\bar{E}_k$ とすると分裂片の平均励起エネルギー $\bar{E}_x$ は, $\bar{E}_x = \Delta M - \bar{E}_k$ となる。自発核分裂で放出される中性子の平均数 $\bar{\nu}$ は $\bar{\nu} = \bar{E}_x / (\bar{E}_n + \bar{E}_n) - 1$ となる。ここで $\bar{E}_n$ は中性子の平均結合エネルギー, $\bar{E}_n$ は平均運動エネルギーである。 γ 線による放出エネルギーは $\bar{E}_n + \bar{E}_n$ と仮定している。Nix の推定によれば $^{294}110$, $^{298}114$ の核種に対してそれぞれ $\Delta M = 290, 317$ MeV, $\bar{E}_k = 216, 235$ MeV, $\bar{\nu} = 10.6, 10.5$ であり Pu, U において $\bar{E}_k \approx 175$ MeV, $\bar{\nu} \approx 2.6$ であることを考えるとかなり大きな値になっている⁸⁾。超重元素の物理的性質を表1にまとめておく。

また3つの分裂片に分かれる3体分裂(T)の2体分裂(B)に対する割合 σ_T/σ_B はアクチノイド元素において

表 1 U/Pu の物理的性質および超重元素の予想される物理的性質

核 種	半 減 期		分 裂 時 の						
	分 裂 (year)	α 崩 壊 (year)	E_{bar} (MeV)	ΔM (MeV)	$\bar{E}_k$ (MeV)	$\bar{E}_x$ (MeV)	$\bar{\nu}$	$\bar{E}_n$ (MeV)	$\bar{E}_b$ (MeV)
$^{310}126$	$>10^{-10}$	10^{-14}	7.2	412	293	119	11.4	3.3	8.4
$^{298}114$	$>10^{13}$	10^2	9.6	317	235	82	10.5	2.8	6.3
$^{294}110$	$>10^7$	10^9	6.8	290	216	74	10.6	2.6	5.6
^{240}Pu	10^{16}	10^4	4.9	205	178	27	2.8	2.0	6.5
^{238}U	10^{17}	10^9	5.3	196	172	24	2.4	1.9	6.5

図 2 超重元素の全半減期。黒丸は 1 年以上の半減期を有する β 安定核。白丸は 1 年以下の半減期を有する β 安定核

は 10^{-8} よりも小さいが, Schultheis の推定によれば超重元素では 3 体核分裂障壁が 2 体核分裂障壁よりも $10 \sim 35\%$ しか大きくならないので崩壊確率の割合は $\Gamma_T/\Gamma_B \sim 1\%$ である⁹⁾。

2.2 化学的性質

未知の元素を化学的に分離したり同定するには元素の化学的性質を予測しておくことが必要である¹⁰⁾。周期律表において, Z の小さい元素は殻の間のエネルギー差が大きいので非相対論的に扱えるが, Z の大きい元素では殻の数が多くなり最後の電子の結合エネルギーが低下してエネルギー差の小さい内部の殻との競合が起きる。また相対論の効果によって, $l \neq 0$ のすべての殻で $j = l + \frac{1}{2}$, $j = l - \frac{1}{2}$ の 2 つの準殻に分裂するので超重元素の化学的性質を予測するためには, 相対論的ハミルトニアンを用いた量子力学的計算が必要である。一般に用いられる電子配置の計算方法には, 非相対論的な Hatree, Hatree-Fock-Slater, Hatree-Fock, および相対論的な Dirac-Slater, Dirac-Fock などがある。

ここでは $Z=104$ から $Z=120$ までの元素について予想される性質を簡単に述べる。

$Z=104$ から $Z=112$ までの元素は $6d$ 準殻の電子軌道を満たし, $5d$ 準殻を満たす Hf ($Z=72$) から Hg ($Z=80$) までの元素に類似している。この遷移元素の

化学的性質は, Z が大きくなるにつれてイオン化エネルギーが増大し元素は貴金属的となり化学形態は金属となる。

$Z=113$ から $Z=120$ までの元素は $7d$ 準殻および $8s$ 準殻の電子軌道を満たしその中には $Z=114$, $N=184$ の二重魔法数で非常に長い寿命が予想されている超重元素がある。114 番元素は 2 価の鉛に類似しているが, 陰イオンと錯塩をつくる傾向がより大きい。イオン化ポテンシャルは鉛よりはわずかに高いが $K_{\alpha_1}X$ 線のエネルギーはかなり高い。また融点と沸点は鉛に比べるとかなり低くなっている。118 番元素は希ガスであるが安定な化合物をつくると考えられている。このように周期律表で同じ族に属する元素でも化学的性質に差が生じるのは, 原子の大きさ, イオン化ポテンシャル, 殻の間のエネルギーなどの相違によると考えられている。

3. 超重元素の合成理論

3.1 星内合成理論

鉄より重い元素を合成する過程には, s 過程 (slow process) と r 過程 (rapid process) とがある¹¹⁾。 s 過程は β 安定線近傍の経路をゆっくりと進行する中性子捕獲過程であり, アクチニド元素は合成されると α 崩壊してしまい Pb, Bi よりも重い元素はつくられない。 r 過程は高密度星において急速に中性子を捕獲し, β 安定線から離れた中性子過剰の経路をたどり元素合成が進行する。原子核はつぎつぎと中性子を捕獲し, その結果中性子の結合エネルギーは小さくなってついには光分解反応 (γ, n) を起こすようになり, これ以上中性子を捕獲できなくなる (休止点)。休止点の核は, β 崩壊して陽子数が増えたりふたたび何個かの中性子を捕獲して休止点に達する。 r 過程の経路の終点がどこになるかは中性子捕獲, β 崩壊, 自発核分裂および中性子誘導核分裂の確率で決定される。

Viola は, 熱核反応実験では ^{257}Fm より重い元素は生成されないことから, r 過程では, (n, f) 反応により $A \leq 275$ で終焉するとした¹²⁾。Schramm と Fowler (以後 SFW と略す) は Mayer らの殻構造を考慮した質量公式を用い, $E_n + E_b - E_{bar} > -0.8 \text{ MeV}$ のときに中性子の誘導核分裂が支配的になると仮定して r 過程の fission cut-off を求めた¹³⁾。 E_n は中性子の運動エネルギー, E_b は $(Z, A+1)$ 核の中性子結合エネルギー, E_{bar} は $(Z, A+1)$ 核の核分裂障壁である。その計算において種となる核が中性子捕獲し重元素が合成されて核分裂で cut-off されるまでの繰返し時間

図3 長寿命核種に関するr過程の元素合成経路

を8秒とし、星の内部の温度および中性子密度をそれぞれ $1.8 \times 10^9 \text{ K}$, 10^{28} cm^{-3} とした。さらに(1)式中の K を1.79とするとときr過程の経路で生成される最も重い核は $Z=104$, $A \sim 307$ であり、この経路で生成した核は β 崩壊あるいは α 崩壊して超重元素の“安定な島”にたどり着く(decay back)という計算結果を得た(図3)。それによると $^{294}110$ の相対存在比は、 $S_1=10^8$ として0.03である。

Brueckner らは、SFW の使用した質量公式とは異なる公式を用いてr過程で超重元素が合成され得るかどうかを求めたところ、SFW の計算で得られた値よりも小さいけれども超重元素は合成されるという結果を得た¹⁴⁾。

Schramm と Fiset の計算結果によると、SFW の結果と同様に元素の生成量は表面对称補正項に強く依存し、 $K \geq 2.3$ では $A \geq 290$ の核は生成されないが $K \leq 2.3$ ではそれらは生成され得る¹⁵⁾。さらにr過程の経路で生じた超重元素が α , β 崩壊して安定な島にたどり着く確率を計算した。その経路の生成核が decay back のさいに最も長寿命と考えられる $^{294}110$ 元素になる確率は、自発核分裂のためにほとんどないという結論を得た。

Howard と Nix は、droplet モデルに基づきr過程の cut-off 領域における中性子過剰核の核分裂障壁と中性子分離エネルギーを求めた¹⁶⁾。その結果を図4に示す。それによると中性子誘導核分裂のために $A=281$ までの元素しか合成されないと報告している。けれどもこれらの計算には、(i)超重元素の“安定な島”

図4 偶核に対する核分裂障壁と中性子分離エネルギーとの差を示す等高線

の存在 ($Z=114$, $N=186$ が魔法数であるのか)、(ii) r過程での cut-off (表面エネルギー、表面对称補正項や星内の中性子密度や温度)、(iii) decay back の可能性 (β 崩壊や自発核分裂の半減期) などの多くの問題点が残っている。

3.2 人工合成理論

重イオン核反応を用いて超重元素を合成する方法には、複合核反応、直接反応、および核分裂を利用するものがある。重イオン反応ではクーロン相互作用の増大とともに質量の増加に伴う軌道角運動量の寄与が問題となり、また反応チャネル数も多くなる。

複合核反応による生成核は中性子不足で β 安定線から遠い。また ^{40}Ar ぐらいまでの重イオン反応での複合核の励起エネルギーは 40MeV となり、その解消のさい数個の中性子が蒸発するが、核分裂崩壊確率も高い。また入射粒子のもち込む角運動量が大いので、二重魔法数付近の超重元素のように分裂鞍部点の変形が小さい核はとくに核分裂を起こす確率が高い。

Nilsson らは、反応断面積は小さいが $^{248}\text{Cm}(^{64}\text{Ni}, 4n)^{308}124$, $^{226}\text{Ra}(^{86}\text{Kr}, 4n)^{308}124$ で生成する $^{308}124$ は急速に α , β 崩壊して $^{298}114$ 付近の長寿命元素になると述べている¹⁷⁾。

Tsang らは超重元素の安定性の理論に従って、 ^{86}Kr を入射粒子とする $^{226}\text{Ra}(^{86}\text{Kr}, 4n)^{308}124$, $^{232}\text{Th}(^{86}\text{Kr}, 4n)^{314}126$, $^{238}\text{U}(^{86}\text{Kr}, 4n)^{320}128$, $^{244}\text{Pu}(^{86}\text{Kr}, 4n)^{326}130$, $^{248}\text{Cm}(^{86}\text{Kr}, 4n)^{330}132$ という反応を提案し、これらの生成核は自発核分裂、 α 崩壊および β 崩壊を起こし $Z=110$ あるいは $Z=112$ の長寿命元素になると予想している⁷⁾。

直接反応による合成は入射イオンとターゲットとの間の核子移行反応の断面積が質量の増加とともに増大し(^{40}Ar で $\sigma=10^{-27}\text{cm}^2$) また移行する核子群も大きくなることを利用している。また反応のさいもち込まれる角運動量が小さいので、生成核の励起エネルギーも小さく核分裂も起こしにくい。このことからNix らは $^{252}\text{Cf}(^{68}\text{Zn}, ^4\text{Be})$, $^{244}\text{Pu}(^{96}\text{Zn}, ^{40}\text{Ca})$ という反応を提唱している¹⁸⁾。またLefort らは、 $^{238}\text{U}(^{86}\text{Kr}, ^{28}\text{Si})^{296}114$, $^{244}\text{Pu}(^{86}\text{Kr}, ^{32}\text{S})^{298}114$ など非常に安定なクラスター移行反応の可能性が高いと述べている¹⁹⁾。

また荷電粒子による誘導核分裂では、入射粒子の質量が大いほど核分裂片の質量収集の幅が広がる。Flerov は $^{244}\text{Pu}+^{244}\text{Pu}$, $^{238}\text{U}+^{238}\text{U}$ のような非常に重いイオン同士の反応における核分裂生成物として、超重元素が生成される可能性があるとして“Fusion-Fission”法を提案している。

4. 超重元素の検出実験

超重元素に関する安定性の原子核理論や元素合成理論には、不確定な要素が多く含まれそれらに対する唯一の解答は実験を通して得られるだろう。これまで行われてきた超重元素の検出実験は3つに大別できる。

i) Counter 法 超重元素は核分裂のさいに約10個の中性子を放出するので、中性子計数管を用いて同時計数する。核分裂の崩壊様式が対称か非対称であるかの問題はあがるが、超重元素の核分裂片の運動エネルギーはUなどのそれに比べて大きいと考えられ

る。このことを利用して fragment counter で測定する。

ii) 固体飛跡検出法 雲母などの結晶やプラスチックフィルム等の絶縁性固体内を重荷電粒子が通過するとその経路に沿って放射線損傷を生ずる。この損傷はエッチングをすることにより拡大され、その飛跡は顕微鏡で観測することができる。

iii) Xe 同位体組成比較法 Xe には9つの安定同位体がある。核分裂生成物は、中性子過剰であるために軽い同位体に比べて重い Xe 同位体は多くなると思われこのことを利用して超重元素の存在有無を調べる。

この章では、これまで行われてきた自然界における超重元素の検出実験を紹介するとともに、加速器を用いた人工合成実験を紹介する。

4.1 地球鉱石中の超重元素

地球の年齢は約 4×10^9 年であるので超重元素の半減期が $\sim 10^9$ 年であるとする、自然界になお超重元素が存在している可能性がある。

Flerov らは鉛ガラスや方鉛鉱を比例計数管を用いて $10^{-3}/\text{h}$ から $10^{-2}/\text{h}$ の計数率に相当する信号を見つけ、それらは鉛やトリウムの誘導核分裂でなく、また不純物として含まれているUの自発核分裂に起因する信号でもないことからそれらの信号は $Z=112$ の原子核に起因するものであろうと述べた。

Price らは fission track 法により、鉛を多く含む鉱物と金を多く含む鉱物を測定し、その結果Flerov らにより報告された超重元素の濃度の1/1000以下という否定的な結果を得た²⁰⁾。金および鉛中に含まれる元素の自発核分裂を起こす割合は、それぞれ $1\times 10^{-25}/\text{y}\cdot\text{Au}\cdot\text{atom}$, $3\times 10^{-24}/\text{y}\cdot\text{Pb}\cdot\text{atom}$ 以下である。またPb, Bi, Tl, Hg や W の重元素を多く含む鉱石も調べたが超重元素に起因する飛跡の過剰は検出されなかった。

超重元素が自発核分裂すると、2~3MeV のエネルギーをもつ即発中性子が平均10個ほど放出される。この中性子を利用して Cheifetz は40以上の試料を測定した²¹⁾。宇宙線による誘導核分裂のバックグラウンドを避けるために250mwe のトンネル中でGdで覆った液体シンチレーター検出器を用いて測定した。調べたすべての試料に対して、半減期(T)/濃度(C)の比は 10^{23}y 以上であった。このことはもしも超重元素の自発核分裂の半減期を 10^9 年とするならば、超重元素の濃度は試料1モルあたり 10^{-14} モル以下であることを意味している。

Grimm らも鉛、水銀などの鉱石、金、白金などの貴金属など 102 個の試料について中性子計測を行ったが否定的な結果しか得られなかった²²⁾。

Nilsson らは ^{234}Th が濃縮されている可能性のある白金鉱石に対して、その半減期を 10^{14}y と仮定して X 線けい光分析、質量分析を行った¹⁷⁾。その結果 ^{234}Th の上限値 $10^{-9}\text{g/g}\cdot\text{Pt}$ を得た。またかれらは中性子、 γ 線、自発核分裂の低バックグラウンド計測を行ったが有意義な値は得られなかった。

Wesolowski らも 110 番元素を白金中にその中性子誘導核分裂を利用して検出しようと試みた²³⁾。かれらは白金を 3000°C 以上に電子衝撃によって熱して蒸着膜を作り、これに中性子を照射して核分裂片の運動エネルギーを測定した。 ^{252}Cf からのバックグラウンドを考慮して ^{234}Th の上限値 $6\times 10^{-12}\text{g/g}\cdot\text{Pt}$ という値を得た。

深海堆積物の Fe-Mn 塊の中から超重元素を検出しようとする試みが Cheifetz らや Flerov らによってなされている。太平洋や大西洋の海底堆積物は大陸からの影響を受けにくく堆積率も $0.1\sim 1\text{mm}/10^3\text{y}$ と小さい。これらの物質中には重元素が濃縮されていることが知られており、揮発性重元素と化学的に類似している超重元素を含んでいる可能性が大きい。Flerov らは 1100mwe の岩塩鉱山の中で ^3He の neutron counter と比例計数管を用いてニュージーランド近くの海底から採集した Fe-Mn 塊を測定した²⁴⁾。その結果 Hg および Tl に対して $5\times 10^{23}\text{y}$ 、Pb に対して $2\times 10^{23}\text{y}$ 、また Bi に対しては $4\times 10^{23}\text{y}$ という T/C の上限値を得た。Cheifetz らによる Mn-Fe 塊の測定結果でも同じような値を得ている²¹⁾。

雲母などの鉱石には α 線による放射線損傷の結果、ハローとよばれる着色斑がみられる。このハローの半径は α 線のエネルギーによって定まり多くは鉱石中の U、Th およびその崩壊系列核の α 線によるものである。

Gentry はマダガスカル島産の黒雲母中に半径が $60\mu\text{m}$ から $110\mu\text{m}$ にわたる巨大なハロー(写真 1)を 172 個発見した²⁵⁾。これは α 線のエネルギー 11.7MeV から 15.1MeV に相当する。U、Th などの三体分裂において放出される α 粒子のエネルギーは 16MeV 付近に peak をもつが、超重元素の α 崩壊においても α 線のエネルギーが 15MeV に達する可能性がある。

Gentry とカリフォルニア、フロリダ州立大学のグループは、バンデグラフ加速器を用いてエネルギー $E_p=4.7, 5.7\text{MeV}$ の陽子を黒雲母中にハローを形

写真 1 マダガスカル産雲母中の巨大ハロー (半径 $\sim 84\mu\text{m}$)

成しているモナザイト $(\text{Ce, La, Th})\text{PO}_4$ に照射し、Si 検出器で放出 X 線を測定した²⁶⁾。その結果巨大ハローを含む試料 (19D と略す) の X 線スペクトルにおける 22keV から 31keV までのエネルギー領域に、U-Th ハローを含む試料 (19B) の X 線スペクトルにはみられない peak を検出した。かれらはその中の $E=27.227\pm 0.03\text{keV}$ の peak は $Z=126$ の L_{α_1} X 線、 $E=27.733\pm 0.04\text{keV}$ の peak は $Z=127$ の L_{α_1} X 線あるいは $Z=116$ の L_{β_1} X 線であると同定した。最も存在の可能性の高いのは $Z=126$ でその L_{α_1} X 線の理論値は $E=27.250\text{keV}$ である。図 5 にエネルギースペクトルの一部を示す。

この報告を受けて各地で追試実験が行われた。Bosh らは $E_p=2.0\text{MeV}$ の陽子をやはり巨大ハローを含むモナザイトに照射したが、23keV から 29keV までの X 線のエネルギー領域において統計的に有意義な値は得られなかった²⁷⁾。また $E_p=5.7\text{MeV}$ の陽子を照射して $E=27.23\pm 0.04\text{keV}$ の低エネルギー γ 線を検出したが、これは $^{140}\text{Ce}(p, n)^{140}\text{Pr}$ で生成される ^{140}Pr の第一励起状態からの転移 γ 線に起因するものであると述べている。また 27.23keV の peak と Ce の $K_{\alpha_{1,2}}$ X 線の強度比を求め、Fox らの Ce_2O_3 をターゲットに用いた実験と同様な値 $I(27.23\text{keV})/I(\text{Ce}K_{\alpha_{1,2}})=(2.5\pm 0.5)\times 10^{-4}$ を得た²⁸⁾。かれらは Gentry らの結論はバックグラウンドの過小評価により生じたものであると反論し、10D の peak も $\text{Ce}K_{\alpha_{1,2}}$ X 線との強度比から ^{140}Pr の γ 線であると結論している。これに対して、Fletcher は新たに $^{140}\text{Ce}(p, n)$ 反応からの寄を含めてバックグラウンドを再評価したが、25keV から 28keV までのエネルギーになお X 線 peak が見い出されると述べている。

図 5 巨大ハローを含む試料と U/Th ハローを含む試料の X 線エネルギースペクトルの比較。

4・2 地球外鉱石中の超重元素

ここでは、2つの検出方法、すなわち fission-track 法と Xe 同位体比較法に分けて話を進める。

(A) fission-track 法

Fleischer らは、鉄質の Toluca 隕石中に含まれる silicate mineral 中の核分裂飛跡を調べたところ、 ^{238}U から期待されるよりも多くの飛跡を見つけた²⁹⁾。この過剰飛跡は消滅核種である ^{244}Pu に起因するものだと解釈した。Price と Fleischer は、Toluca, Odesa と EL Taco の3隕石の飛跡の飛程分布を調べたところ、いずれも $10\sim 11\mu\text{m}$ であった³⁰⁾。また EL Taco および Toluca 隕石に中性子照射して ^{235}U の誘導核分裂の飛跡の長さを調べてみると $10\sim 11\mu\text{m}$ であった。結晶中での ^{238}U , ^{244}Pu の自発核分裂および ^{235}U の中性子誘導核分裂の飛跡の長さの計算値は約 $11\mu\text{m}$ であり、さらに超重元素の飛跡の長さは、U や ^{244}Pu のそれよりも $20\sim 30\%$ 長く $13\sim 16\mu\text{m}$ となる。上述のことならびに隕石中の U 含有量から、3つの隕石に見られる過剰の核分裂飛跡は、 ^{244}Pu に起因するものであり超重元素によるものではないことを示した。

Bhandari らは、TINT 法と TINCLE 法を用いて隕石と月物質中の飛跡を測定して、飛跡を3つに分類した³¹⁾。 $10\sim 13\mu\text{m}$ の飛跡は鉄核の宇宙線によるもので、 $13\sim 16\mu\text{m}$ の飛跡の大半は ^{235}U , ^{238}U と ^{244}Pu のものであり25%以下は Co の宇宙線飛跡である。さらに $16\sim 22\mu\text{m}$ の飛跡のうち18%以下は、Ni と Cu の宇宙線に起因するものであり、残りは超重元素の自発核

分裂飛跡であると判断した。観測した5つの隕石のうち4つの隕石中の U, Pu および超重元素の核分裂の飛跡密度は $\rho_{\text{U}} : \rho_{\text{Pu}} : \rho_{\text{SH}} = 0.03 : 1 : 1$ で、残りの隕石 (Angra dos Reis) のそれは $\rho_{\text{U}} : \rho_{\text{Pu}} : \rho_{\text{SH}} = 1.1 : 200 : 1$ である。Lunar rock 中では、超重元素の飛跡は見られず、Lunar fines 中では $\rho_{\text{SH}}/\rho_{\text{U+Pu}} = 0.13\sim 2.3$ であると報告している。

Fleischer と Hart は Bhandari の超重元素説をつぎのように批判している³²⁾。加速器を利用して lunar pyroxene と meteoritic enstatite 中での Fe イオンの飛跡の長さを調べて見ると、飛程は $12\sim 24\mu\text{m}$ と広範囲に分布している。また lunar fines の feldspar 中で観測された太陽宇宙線の鉄核の飛跡のなかには約 $30\mu\text{m}$ に達するものもあるとかれらは反論している。飛跡の大部分が $13\sim 15\mu\text{m}$ と短いことは、何らかの mechanism で短縮したことが考えられる。たとえば隕石の場合、大気突入や地面との衝突のさいに強い衝撃や熱的变化を受けると思われる。かれらは lunar pyroxene や natural mineral に対して人工的に衝撃を加え、宇宙線飛跡あるいは U の核分裂飛跡の長さが実際に短縮するか若しくは消滅するという事実を確認した。これらの事実から、Bhandari らの主張した長飛程の飛跡は、隕石あるいは月物質が最後の衝撃を受けたのちに形成した宇宙線飛跡であろうとかれらは批判している。

(B) Xe 同位体比較法

Xe には9つの安定同位体がある。最初のXe異常は

^{129}Xe で、これは消滅核種である ^{129}I ($T_{1/2}=1.7\times 10^7$ y) が太陽形成初期に存在しそれが β 崩壊して安定な同位体 ^{129}Xe になったために生じた。同様に消滅核種である ^{244}Pu ($T_{1/2}=8.2\times 10^7$ y) も太陽系初期には存在していたことが予想される。

Rowe らは、U 含有量の多い Pasamonte 隕石 (Carich-achondrite) の中に重い Xe 同位体が軽い同位体に比べて過剰に含まれていることを発見した³³⁾。この観測値は、元素合成理論から推定される ^{244}Pu の存在量とその fission yield から期待される値とよく一致すると報告している。

Alexander らは、130mg の $^{244}\text{PuO}_2$ を使って核分裂生成物 Xe の同位体比を測定したところ、Pasamonte, St. Séverine や Kapoete 隕石中に含まれる重い Xe 同位体比と良く一致しており、過去に ^{244}Pu が存在していたことを確認した³⁴⁾。

Reynolds らは、炭素質隕石 Renazzo 中に含まれる Xe 同位体組成を測定したところ重い Xe 同位体が非常に濃縮していると報告した³⁵⁾。この Xe 異常は ^{244}Pu の核分裂で生じた Xe 成分では説明できず、おそらく他の核種の核分裂に起因するものであろうと述べている。この重い同位体成分の異常は、Renazzo-type Xe あるいは CCF (Carbonaceous Chondrite fission) とよばれている。

このような Xe 異常の核分裂起源説を支持する論文は多い。Anders らは、 ^{132}Xe – ^{136}Xe の相関関係が In, Hg, Bi などの揮発性元素– ^{132}Xe の関係とよく似ているが、U, Th などの非揮発性元素と ^{132}Xe の相関関係とは異なることを示し、このことから隕石中の重い同位体異常は、アクチニド元素 ($Z=89\sim 103$) あるいは遷移元素 ($Z=104\sim 111$) による核分裂 Xe ではなく、揮発性の超重元素 ($Z=112\sim 119$) による核分裂 Xe であろうと報告した^{36), 37)}。

Srinivasan らは、 ^{252}Cf の自発核分裂生成物の Xe 同位体比を測定し、その結果から上述の隕石中に含まれる Xe は、 ^{252}Cf よりも重い元素の崩壊から生じたものだろうと述べている³⁸⁾。また Rao は、CCF をつぎのように説明している。超重元素は $N=126$, $Z=82$ の Pb と $N=90$ の原子核付近とに分かれる非対称分裂と $N=82$, $Z=52$ 付近への対称分裂の 2 つのモードで崩壊する³⁹⁾。この対称および非対称分裂のために、原始隕石中の ^{136}Xe , ^{86}Kr の異常が生ずる。

ところが Kuroda らは、炭素質中の Xe 異常は超重元素の核分裂に起因するものではなく、つぎに述べる 3 つの原因で生じたものであると主張した^{40), 41)}。

i) 惑星ゼノンとよばれるもので、隕石から質量分別過程によって軽い Xe 同位体が逃げ去り、重い Xe 同位体が濃縮した。 $^{134}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$ と $^{136}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$ との関係は、質量分別効果によってよく説明できる。

ii) 太陽 Xe は、質量分別効果は受けないけれども、太陽誕生初期の重陽子燃焼期に発生した中性子を捕獲し、 ^{128}Xe , ^{130}Xe , ^{131}Xe そして ^{132}Xe の同位体組成が増加する。

iii) また宇宙線との核破砕反応により同位体比 (とくに ^{124}Xe と ^{126}Xe) は変動する。

これらの 3 つの原因を組み合わせることで、炭素質隕石の異常はうまく説明できると述べた。

4.3 宇宙線中の超重元素

宇宙線の起源、加速や伝播機構についてはよく理解されていない。しかし宇宙線はどこかの星で生成され、その源かあるいはその周辺で加速されて星間空間を伝播して地球にやってくる。その間に宇宙線は $4\sim 5$ g/cm² の星間物質中を通過する。もしも星間空間の密度を 1cm³ あたり水素 1 個と仮定すると、宇宙線の平均寿命は 10^6 y 程度となる。もしも r 過程で超重元素が合成されて、それらの元素が $\sim 10^6$ y 以上の半減期を有するものとするれば、超重元素が検出可能となる。

宇宙線 (超ウラン元素) 測定は、気球実験と Skylab 実験の 2 つに分類でき、両者とも用いられた検出器は原子核乾板と固体飛跡検出器の Stack から成り立っている。

1970年に Fowler らは、8.7m² の面積をもつ原子核乾板を用いて $3.5\sim 4.0$ g/cm² の大気高度で 18 時間気球を飛翔させた。その結果、超ウラン核 ($Z=105\pm 3$) が 1 event 検出された⁴²⁾。しかしこの実験では、粒子の速度測定が行われなかったために、信頼性が小さい。

Price らは、原子核乾板と固体飛跡検出器と鉄の吸収材から成る Stack (面積 30m²) を $1\sim 3$ g/cm² の高度で 40 時間飛翔させた。その結果超ウラン核が 1 event 検出され、その粒子速度を $\beta=0.95$ とした場合に電荷は $Z\approx 96$ となる⁴³⁾。しかし速度の決定精度が悪く、 $\beta=0.93$ とした場合には電荷は上述の値よりも小さな値となり、その飛跡は U 原子核に起因する可能性を捨てることはできないと Price らは述べている。

Skylab 実験は、Price と Shirk により行われた⁴⁴⁾。250 μ m 厚の Lexan film 32 枚から成る検出器 (面積 1.3m²) を Skylab の壁の内側に配置して 253 日間照射した。その結果超ウラン核を 1 event 見つけた。その核電荷の最確値は 70% の信頼度で $Z=97$ である。

いまで行われてきた気球および Skylab 実験では $Z \sim 110$ の宇宙線は検出されていない。この両者の data を基にして $\sim 500 \text{ MeV}/n$ 以上のエネルギーをもつ超重元素の flux の上限値は 84% の信頼度で $\sim 0.6/\text{m}^2/\text{st}/\text{y}$ である。

4.4 人工合成による超重元素

Xe まで加速できる重イオン加速器が実現し、近い将来には超重元素の研究に適した U まで加速可能な加速器が建設されるだろう。重イオン反応による超重元素合成の計画が世界各国で行われている。ここでは将来の予備実験とも言うべき高エネルギー ($\sim \text{GeV}$ 以上) 陽子と重元素を標的核とした二次核反応を利用した実験について述べる。

Marinov らは、CERN の陽子シンクロトロンを用いて、 24 GeV 陽子を 33 g の W の 2 試料におおの 2×10^{18} , 7×10^{17} 個照射した⁴⁵⁾。化学的に抽出した Hg 試料からの α 線エネルギーを Si 検出器で測定し、さらにポリカーボネイト・フィルムを用いて自発核分裂飛跡の測定を行い、その結果 Hg 試料中に $Z=112$ の *eka*-Hg を検出したと報告している。この報告は、アメリカ、ソ連を初め世界の研究者たちを興奮させた。ただちにアメリカなどで追試実験が行われた。Unik らは、U と W に陽子を照射して化学分離後に核分裂飛跡を観測した⁴⁶⁾。その結果、U を標的核とした二次核反応実験においては、 ^{248}Cf までのアクチニド元素が検出された。しかし W 試料からは超ウラン元素は観測されなかった。

Westgard らも、天然ウランに 24 GeV 陽子を照射して二次核反応により期待される *eka*-Hg や *eka*-Pb の揮発性超重元素を合成しようと試みたが、 ^{248}Cf より重い原子核は生じなかった⁴⁷⁾。この他いくつかの実験によって超重元素合成に必要な運動量を有する反跳核の存在が認められず、また U の高エネルギー照射では、Cf のアクチニド元素までの原子核しか生成されないことがわかった。その後 Marinov らは自発核分裂の分裂片のエネルギーの再測定等の追試実験を行い、その結果以前報告した核分裂の 70% は ^{252}Cf であるが、残りは超重元素による可能性があると訂正した⁴⁸⁾。

最後に加速器実験で作られた最大の原子核は $^{263}\text{106}$ であり Ghiorso らによって行われた⁴⁹⁾。この元素は、二次核反応によるものではなく Super HILAC を用いて 95 MeV の ^{18}O イオンを ^{248}Cf にあてて $^{248}\text{Cf} + ^{18}\text{O} \rightarrow ^{263}\text{106} + 4n$ という核反応により生成した $^{263}\text{106}$ の原子核を、Si(Au)検出器を用いて $^{263}\text{106} \xrightarrow{\alpha} ^{259}\text{Rf} \xrightarrow{\alpha} ^{255}\text{No}$

の α 崩壊で放出される α 線を検出して発見されたものである。この反応の生成断面積 σ は $\sim 0.3 \text{ mb}$ であり、 $^{263}\text{106}$ の半減期は $0.9 \pm 0.2 \text{ sec}$ である。

5. おわりに

世界中の研究者は静穏な大陸からまだ見たこともないもしかしたら幻かもしれない安定な島に向かって不安定な海を航海中である。

$Z=107$ の元素も合成され、航海も半ば過ぎた。重イオン加速器の大型化や飛翔体の進歩を鑑みて、島があるとすればもうすぐ沿岸であろう。もしそうであるとすれば、理論の検討や訂正が行われ核物質の性質や恒星の内部で起きている諸現象の知識が高まるであろう。これまで世界中の関連分野の研究者が取り組んできた航海中の状況を述べてきたが、近い将来には人類の英知とたゆまぬ努力によってその航海の成果が得られるであろう。

文 献

- 1) W.D. Meyers and W.J. Swiatecki: *Nucl. Phys.*, **81**, 1 (1966)
- 2) V.M. Strutinsky: *ibid.*, **A95**, 420 (1976)
- 3) S.G. Nilsson, C.F. Tsang, A. Sobiczewski, Z. Szymanski, S. Wycech, C. Gustafson, I.L. Lamm, P. Möller and B. Nilsson: *ibid.*, **A131**, 1 (1969)
- 4) J.R. Nix: *Phys. Today*, **25**, 30 (1972)
- 5) J.R. Nix: *Ann. Rev. Nucl. Sci.*, **22**, 65 (1972)
- 6) C.F. Tsang and S.G. Nilsson: *Nucl. Phys.*, **A140**, 275 (1970)
- 7) C.F. Tsang, and S.G. Nilsson: *ibid.*, **A140**, 289 (1970)
- 8) J.R. Nix: *Phys. Lett.*, **30B**, 1 (1969)
- 9) H. Schultheis and R. Schultheis: *ibid.*, **58B**, 384 (1975)
- 10) G.T. Seaborg: *Ann. Rev. Nucl. Sci.*, **18**, 53 (1968)
- 11) D.D. Clayton: *Principle of Stellar Evolution and Nucleosynthesis*, New York: McGraw-Hill (1968)
- 12) V.E. Viola: *Nucl. Phys.*, **A139**, 188 (1969)
- 13) D.N. Schramm and W.A. Fowler: *Nature*, **231**, 103 (1971)
- 14) K.A. Brueckner, J.H. Chirico, S. Jorna, H. W. Meldner, D.N. Schramm and P.A. Seegar:

- Phys. Rev.*, **C7**, 2123 (1973)
- 15) D.N. Schramm and E.O. Fiset: *Astrophys. J.*, **180**, 551 (1973)
 - 16) W.M. Howard and J.R. Nix: *Nature*, **247**, 17 (1974)
 - 17) S.G. Nilsson, S.G. Thompson and C.F. Tsang: *Phys. Lett.*, **28B**, 458 (1969)
 - 18) J.R. Nix: Proc. Int. Conf. Prop. Nucl. Far. From Reg. Betastability, Leysin **2**, 605(1970)
 - 19) M. Lefort and M. Riou: *ibid.*, **2**, 723 (1970)
 - 20) P.B. Price, R.L. Fleischer and R.T. Woods: *Phys. Rev.*, **1**, 1819 (1970)
 - 21) E. Cheifetz, R.C. Jared, E.R. Giust and S.G. Tompson: *ibid.*, **C6**, 1348 (1972)
 - 22) W. Grimm, G. Hermann and H.D. Schüssler: *Phys. Rev. Lett.*, **26**, 1040 (1971)
 - 23) J.J. Wesolowski, W.J.R. Jewell and F. Guy: *Phys. Lett.*, **28B**, 544 (1969)
 - 24) G.N. Flerov, V.Y. Vyropae, L.S. Getskin, A.F. Popeko, N.K. Skobelev, G.M. Ter-Akopyan and P.P. Tsyb: *Sov. J. Nucl. Phys.*, **21**, 4 (1975)
 - 25) R.V. Gentry: *Science*, **169**, 670 (1970)
 - 26) R.V. Gentry, T.A. Cahill, N.R. Fletcher, G. C. Kanfman, L.R. Medsker, J.W. Nelson and R.G. Flocchini: *Phys. Rev. Lett.*, **37**, 11 (1976)
 - 27) F. Bosch, A.E. Goresy, W. Krätschmer, B. Martin, B. Povh, R. Nobiling, K. Travel and D. Schwalm: *ibid.*, **37**, 1515 (1976)
 - 28) J.D. Fox, W.J. Countney, K.W. Kemper, A. H. Lumpkin, N.R. Fletcher and L.R. Medsker: *ibid.*, **37**, 629 (1976)
 - 29) R.L. Fleischer, P.B. Price and R.M. Walker: *Geochim. Cosmochim. Acta*, **32**, 21 (1968)
 - 30) P.B. Price and R.L. Fleischer: *Phys. Lett.*, **30B**, 246 (1969)
 - 31) N. Bhandari, S.G. Bhat, D. Lal, G. Rajagopalan, A.S. Tamhane and V.S. Venkatavaran: *Nature*, **230**, 219 (1971)
 - 32) R.L. Fleischer and H.R. Hart: *ibid.*, **242**, 104 (1973)
 - 33) M.W. Rowe and P.K. Kuroda: *J. Geophys. Res.*, **70**, 709 (1965)
 - 34) E.C. Alexander, R.S. Lewis, J.H. Reynolds and M.C. Michel: *Science*, **172**, 837 (1971)
 - 35) J.H. Reynolds and G. Turner: *J. Geophys. Res.*, **69**, 3263 (1964)
 - 36) E. Anders and D. Heymann: *Science*, **164**, 821 (1969)
 - 37) E. Anders and J.W. Larimer: *ibid.*, **175**, 981 (1972)
 - 38) B. Srinivasan, E.C. Alexander and O.K. Manuel: *Phys. Rev.*, **179**, 1166 (1969)
 - 39) M.N. Rao: *Nucl. Phys.*, **A140**, 69 (1970)
 - 40) P.K. Kuroda, J.N. Beck, D.W. Efur and D. K. Miller: *J. Geophys. Res.*, **79**, 3981(1974)
 - 41) P.K. Kuroda, R.D. Snerrill, D.W. Efur and J.N. Beck: *ibid.*, **80**, 1558 (1975)
 - 42) P.H. Fowler, V.M. Clapham, V.G. Cowen, J. M. Kidd and R.T. Moses: *Proc. Roy. Soc. Lond.*, **A318**, 1 (1970)
 - 43) P.B. Price, P.H. Gowler, J.M. Kidd, E.J. Kobetich, R.L. Fleischer and G.E. Nichols: *Phys. Rev.*, **D3**, 815 (1971)
 - 44) P.B. Price and E.K. Shirk: Proc. 14th. Int. Cosmic Ray Conf., Munich, 268 (1975)
 - 45) A. Marinov, C.J. Batty, A.I. Kilvington, G. W.A. Newton, V.J. Robinson and J.D. Hemingway: *Nature*, **229**, 464 (1971)
 - 46) J.P. Unik, E.P. Horwitz, K.L. Wolf, I. Ahmad, S. Frid, D. Cohen, P.R. Fields, C.A.A. Bloomquist and D.J. Henderson: *Nucl. Phys.*, **A191**, 233 (1972)
 - 47) L. Westgaard, B.R. Erdal, P.G. Hansen, E. Kugler, G. Sletten, S. Sundell, T. Fritsch, E. Henrich, W. Theis, G.K. Wolf, J. Campilan, R. Klapisch, R. Meunier, A.M. Poskanzer, C. Stephan and J. Tys: *ibid.*, **A192**, 517 (1971)
 - 48) A. Marinov, C.T. Batty, A.J. Kilvington, J. L. Weil, A.M. Friedman, G.W.A. Newton, V.J. Robinson, J.D. Hemingway and D.S. Mather: *Nature*, **234**, 212 (1972)
 - 49) A. Ghiorso, J.M. Nitschke, J.R. Alonso, C. T. Alonso, M. Nurmia, G.T. Seaborg, E.K. Hulet and R.W. Loughheed: *Phys. Rev. Lett.*, **33**, 1490 (1974)