The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Development of Liquid Scintillation α/SF Detection System for Aqueous Chemical Studies of Element 106, Seaborgium
Author(s)	Komori, Yukiko
Citation	大阪大学, 2013, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/26248
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

様式 3

論 文 内 容 の 要 旨

〔 題　　名 〕 Development of Liquid Scintillation α/SF Detection System for Aqueous Chemical Studies of Element 106, Seaborgium
（106番元素シーボーギウムの溶液化学的研究に向けた液体シンチレーションα/SF検出システムの開発）

学位申請者　　小森 有希子

本研究では，106番元素シーボーギウム(Sg)を対象として，溶液中でのSgの錯形成反応について調べることを最終的な目的としている。Sgでは、価電子に対する相対論効果の影響が顕著になり、価電子軌道のエネルギー準位が変化することから、同族元素であるMoやWと比較して周期律から逸脱した化学的性質を示すことが期待される。

Sgの同位体 $^{265}Sg^{a,b}$ ($T_{1/2}$ = 8.5 s, 14.4 s)は短寿命であり、生成率も1時間に数原子程度と非常に低いことから、その化学的性質を調べるためには1個の原子を化学分析した後、Sgの崩壊に伴い放出されるα線および自発核分裂片(SF)を検出するという操作を迅速に、多数回繰り返す必要がある。本研究ではSgの化学実験に向け、検出系に液体シンチレーション検出器を用いた迅速化学分析装置の開発とMo, Wを用いた実験条件の検討を行った。

まず、液体シンチレーション検出器を用いたα/SF検出システムの開発を行った。α線とβ線との飛程の違いを利用して妨害となるβイベントを低減する新規α/β弁別法を開発した。また、バッチ型の迅速カラムクロマトグラフィー装置であるAutomated Rapid Chemistry Apparatus (ARCA)と接続するためのバッチ測定型液体シンチレーション検出システムの開発として、ARCAから溶出した水溶液試料を迅速に乳化シンチレータと混合して測定試料調製を行うセルを新規に開発した。これにより、水溶液試料を化学分析終了から1秒後に測定を開始することができるようになった。また、α線とSFの検出効率は100%であることを確認した。本検出システムによりα, SF測定の迅速化および高効率化が達成され、従来超アクチノイド元素の化学実験に用いられてきたSi半導体検出器では観測することができなかったSgの溶液化学的挙動を初めて直接的に観測できると考えられる。さらに、理化学研究所のGARIS gas-jetシステムで分離、搬送された105番元素 ^{262}Db の液体シンチレーション測定とブランク試料の測定を行い、バックグラウンド計数率に関するデータを取得した。ビーム照射中はバックグラウンド計数率が増加し、^{265}Sg の崩壊鎖の検出におけるシグナル対ノイズ比(S/N)は最大でも2程度と見積もられたが、ガスジェット搬送物には副反応生成物はほとんど含まれていないことがわかった。バックグラウンド増加の原因は速中性子であると推定され、検出器の周りの遮蔽を増やすことでS/Nを向上できると考えられる。

本研究ではSgの化学実験に用いる実験系の候補として、ARCAを用いたAliquat 336によるHF、HCl溶液からの抽出クロマトグラフィーを選択した。Mo, Wの4 M HFおよび6 M, 10 M HCl溶液からのバッチ的抽出から、Aliquat 336/CHP20Y樹脂への固液抽出反応はおよそ10秒以内の振盪で平衡状態に到達し、短寿命のSgの実験に用いることができる可能性が示された。ARCAを用いた2–8 M HCl溶液におけるオンライン抽出クロマトグラフィーでは、Aliquat 336/CHP20Y樹脂への抽出率はMo > Wとなった。この条件でSgの実験を行うことにより、Mo, W, Sg間の抽出率の比較から、Sgの塩化物錯体の安定性またはSgの塩化物錯体とAliquat 336との親和性がMo, Wとどの程度異なるかを調べることができると考えられる。

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（ 小森　有希子 ）			
論文審査担当者		（職）	氏　名
	主 査	教授	篠原　厚
	副 査	教授	塚原　聡
	副 査	教授	吉村　崇

論文審査の結果の要旨

本研究では，106 番元素シーボーギウム(Sg)を対象として，溶液中での Sg の錯形成反応について調べることを最終的な目的としている。Sg では、価電子に対する相対論効果の影響が顕著になり、価電子軌道のエネルギー準位が変化することから、同族元素である Mo や W と比較して周期律から逸脱した化学的性質を示すことが期待される。

超重元素は生成率が低く、寿命も数秒～数十秒と短いため、1 度に扱えるのはわずか 1 原子となり、単一原子ベースの特殊な実験技術と化学概念が必要となる。化学分析装置としては 10 秒程度で核反応生成物を溶液化し、カラムクロマトグラフィーを行う ARCA(Automated Rapid Chemistry Apparatus)と呼ばれる装置が開発されており、Rf では定量的なデータを得ることに成功している。Sg に関しては、過去に 2 報の報告があるがいずれも問題点があり化学的性質を議論できる実験とはいえない。その後、現在に至るまで 15 年間 Sg の化学研究の報告はなされていない。この種の研究で α 線測定に用いられている Si 半導体検出器は α 線のエネルギーを高分解能で測定できるが，検出効率は 40%以下と低く，溶液試料を蒸発乾固して線源とするため，測定試料調製に数十秒を要する．この検出効率の低さと線源調製にかかる時間的ロスが，Sg の化学研究の大きな障害となってた。

小森さんの研究では、液体シンチレーション検出器のもつ特長（検出効率 100%、溶液のまま測定可）に着目し、ARCA と連動し α 線および自発核分裂片を高効率に検出するための新規オンライン液体シンチレーション検出システムの開発を行った。また、ARCA を用いて行う Sg の実験系として、HF および HCl 溶液からの Aliquat 336 による抽出クロマトグラフィーに着目し、Sg の同族元素である Mo、W を用い、Sg に適用できる溶液条件を調べた。

一般に、液体シンチレーション検出器には、エネルギー分解能が悪い、α 線と β γ 線のエネルギースペクトルが重なる、クエンチングによる不安定さ、などの課題がありこれまで超重元素の検出にはほとんど適応されていなかった。本研究では、検出システム開発に先立ち、α/β 弁別のために、飛程の違いを利用したマイクロチューブによる全く新しい測定法の開発に成功した。また、強い β バックグラウンドにもなる核反応副製生物を物理的セパレータで除去することを想定することで、実際の Sg 実験が可能な新しい検出システムを完成させ、具体的な化学系について検討がなされた。

以上のように、小森有希子さんの研究は、世界で始めて Sg 化学に適応可能な検出システムの開発に成功し、具体的な化学研究についても検討がなされ、実験の実現に大きく近づくことができた。よって、本論文は博士（理学）の学位論文として充分価値あるものと認める。