

Title	Chemical effects on the internal conversion processes of ^{235}mU and $^{229\text{mTh}}$
Author(s)	重河, 優大
Citation	大阪大学, 2019, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/72654
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について <a>〉 をご参照ください。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

論文内容の要旨

氏名 (重 河 優 大)

論文題名

Chemical effects on the internal conversion processes of $^{235\text{m}}\text{U}$ and $^{229\text{m}}\text{Th}$
($^{235\text{m}}\text{U}$ と $^{229\text{m}}\text{Th}$ の内部転換過程に対する化学効果)

論文内容の要旨

【緒言】

原子核と軌道殻電子は空間的広がりやエネルギーレベルが大きく異なるため、一般的に、両者は互いに独立したものとして考えられる。しかし、内部転換過程のように、原子核と軌道殻電子の相互作用を伴う現象も存在する。内部転換過程では、励起状態の原子核が励起エネルギーを軌道殻電子に受け渡すことで脱励起し、エネルギーを受け取った電子が内部転換電子として放出される。ほとんどの原子核の励起エネルギーは非常に高く、内殻電子と高い確率で相互作用するため、内部転換過程は化学状態にほぼ依存しない。しかし、ごくまれに、原子核の励起エネルギーが非常に低く、外殻付近の電子のみと相互作用し、内部転換過程が化学状態に応じて変化する核種が存在する。特に、原子核の壊変定数（半減期）が変化するという現象が知られている。本研究では、励起エネルギーの極端に小さい $^{235\text{m}}\text{U}$ （励起エネルギー：76.7 eV）と $^{229\text{m}}\text{Th}$ （励起エネルギー：約8 eV）について、化学状態に依存した壊変定数の変化を観測し、変化の起源を解明することを目的として研究を行った。

【化学状態に依存した $^{235\text{m}}\text{U}$ の半減期および内部転換電子エネルギースペクトルの測定】

過去の研究では、 $^{235\text{m}}\text{U}$ の半減期の酸化数依存性や基板金属依存性が報告されていたが、半減期変化の原因については理解が進んでいなかった。本研究では、半減期に加えて内部転換電子のエネルギースペクトルを様々な化学状態について取得し比較することで、 $^{235\text{m}}\text{U}$ の半減期変化の起源の解明を目指した。まず、高検出効率・高エネルギー分解能・低ノイズを実現可能な阻止電場—磁気ボトル型電子分光装置を開発した。開発した装置を用いて3種類の化学状態における $^{235\text{m}}\text{U}$ の半減期とエネルギースペクトルを測定し、試料間で明確な違いを観測することに成功した。エネルギースペクトルから分子軌道図を推定し、分子軌道図の変化と壊変定数の変化を比較したところ、壊変定数の変化に大きく寄与するのは6p電子軌道の変化であり、結合性軌道を形成する6p電子の数が増加するほど壊変定数が減少することが初めて明らかとなった。

【 ^{229}Ac の β^- 線—電子同時計数測定による $^{229\text{m}}\text{Th}$ の内部転換電子の測定】

$^{229\text{m}}\text{Th}$ は特異な核現象が観測される可能性や原子核時計への応用などで長年注目を浴びてきたが、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ の壊変の明確な観測例はなかった。最近、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ 由来の内部転換電子が初めて検出され、Ni合金表面における半減期が報告された。本研究では、先行研究とは別の化学状態における半減期の取得を目指して、 ^{229}Ac の β^- 線—電子同時計数測定法を考案し実施した。 ^{229}Ac を加速器により製造し、化学的に精製した後、 ^{229}Ac 電着線源を作製した。 ^{229}Ac から $^{229\text{m}}\text{Th}$ に壊変する際に発生する β^- 線をトリガーとして電子の検出時間分布を測定したところ、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ の内部転換電子に対応した減衰曲線が観測され、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ の半減期を決定することに成功した。今後は、今回確立した手法を用いて様々な化学状態について半減期を取得することで、化学状態に依存した $^{229\text{m}}\text{Th}$ の内部転換過程を解明できると期待される。

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (重 河 優 大)	
	(職) 氏 名
論文審査担当者	主 査 教授 篠原 厚 副 査 教授 中澤 康浩 副 査 教授 奥村 光隆
<p>論文審査の結果の要旨</p> <p>原子核と軌道殻電子は空間的広がりやエネルギーレベルが大きく異なるため、一般的に、両者は互いに独立したものとして考えられる。しかし、内部転換過程のように、原子核と軌道殻電子の相互作用を伴う現象も存在する。内部転換過程では、励起状態の原子核が励起エネルギーを軌道殻電子に受け渡すことで脱励起し、エネルギーを受け取った電子が内部転換電子として放出される。ほとんどの原子核の励起エネルギーは非常に高く、内殻電子と高い確率で相互作用するため、内部転換過程は化学状態にほぼ依存しない。しかし、ごくまれに、原子核の励起エネルギーが非常に低く、外殻付近の電子のみと相互作用し、内部転換過程が化学状態に応じて変化する核種が存在する。特に、原子核の壊変定数（半減期）が変化するという現象が知られている。本研究では、励起エネルギーの極端に小さい^{235m}U（励起エネルギー：76.7 eV）と^{229m}Th（励起エネルギー：約 8 eV）について、化学状態に依存した壊変定数の変化を観測し、変化の起源を解明することを目的として研究を行った。</p> <p>【化学状態に依存した^{235m}Uの半減期および内部転換電子エネルギースペクトルの測定】</p> <p>過去の研究では、^{235m}Uの半減期の酸化数依存性や基板金属依存性が報告されていたが、半減期変化の原因については理解が進んでいなかった。本研究では、半減期に加えて内部転換電子のエネルギースペクトルを様々な化学状態について取得し比較することで、^{235m}Uの半減期変化の起源の解明を目指した。まず、高検出効率・高エネルギー分解能・低ノイズを実現可能な阻止電場-磁気ボトル型電子分光装置を開発した。開発した装置を用いて3種類の化学状態における^{235m}Uの半減期とエネルギースペクトルを測定し、試料間で明確な違いを観測することに成功した。エネルギースペクトルから分子軌道図を推定し、分子軌道図の変化と壊変定数の変化を比較したところ、壊変定数の変化に大きく寄与するのは6p電子軌道の変化であり、結合性軌道を形成する6p電子の数が増加するほど壊変定数が減少することが初めて明らかとなった。</p> <p>【^{229}AcのB線-電子同時計数測定による^{229m}Thの内部転換電子の測定】</p> <p>^{229m}Thは特異な核現象が観測される可能性や原子核時計への応用などで長年注目を浴びてきたが、ほとんどの実験は失敗に終わってきた。最近、^{229m}Th由来の内部転換電子が初めて検出され、Ni合金表面における半減期が報告された。本研究では、先行研究とは別の化学状態における半減期の取得を目指して、^{229}AcのB線-電子同時計数測定法を考案し実施した。^{229}Acを加速器により製造し、化学的に精製した後、^{229}Ac電着線源を作製した。^{229}Acから^{229m}Thに壊変する際に発生するB線をトリガーとして電子の検出時間分布を測定したところ、^{229m}Thの内部転換電子に対応した減衰曲線が観測され、^{229m}Thの半減期を決定することに成功した。今後は、今回確立した手法を用いて様々な化学状態について半減期を取得することで、化学状態に依存した^{229m}Thの内部転換過程を解明できると期待される。</p> <p>よって、本論文は博士（理学）の学位論文として十分価値あるものと認める。</p>	