

氏 名	間 崎 啓 匡 ま ざき ひろ まさ
学 位 の 種 類	工 学 博 士
学 位 記 番 号	工 博 第 108 号
学位授与の日付	昭 和 41 年 9 月 27 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 5 条 第 1 項 該 当
研 究 科 ・ 専 攻	工 学 研 究 科 原 子 核 工 学 専 攻
学 位 論 文 題 目	EFFECT OF CHEMICAL STATE ON THE DECAY CONSTANT OF $^{235m}_{92}\text{U}$ ($^{235m}_{92}\text{U}$ の崩壊定数に対する化学結合の影響)
論文調査委員	(主 査) 教 授 清 水 栄 教 授 向 坂 正 勝 教 授 大 石 純

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は著者の考案した新しい装置を用いて、 ^{235}U の核異性体である ^{235m}U の崩壊定数がウラン原子の化学的結合の状態によって変化することに関する研究の結果をまとめたものであって、本文5章および付録4章からなっている。

第1章は本研究に関連のある放射性崩壊の基礎的現象および概念を検討し、ある特定の核崩壊に対しては、崩壊の確率が該放射性原子のおかれている環境あるいは外的作用により変化し得ることを指摘している。

第2章は放射性原子の崩壊のうちで、核外電子の関与するもの、すなわち外殻電子捕獲型崩壊および内部転換を伴う核転移においては、該放射性原子の化学結合あるいは他の外的条件によりその崩壊定数が変化し得る可能性のあることを考察している。そして、今迄にかかる効果が実験的に見出された ^7Be , ^{99m}Tc , ^{125m}Te および ^{90m}Nb についての研究を検討している。

第3章は本研究の中心をなすもので、第1章および第2章での基本的考察を基にして、著者は上記放射性原子以外に ^{235m}U が異った化学的状态においては異った崩壊定数を持ち得ることを理論的に推察した。 ^{235m}U はその核転移のエネルギーが極めて小さいため、ほぼ100%内部転換され、しかも最も外側のP殻またはQ殻電子のみが放出され得る。しかるに一方では、いくつかの実験上の困難さを伴うために新しい実験方法の開発が要求された。本章では著者の考案した新しい実験上の工夫および技術的問題を詳細に述べている。

まず、出来るだけ強い ^{235m}U の放射線源を得るために、極めて薄い ^{239}Pu 源より反跳法により ^{235m}U を捕集する技術が検討された。反跳法とは、 ^{239}Pu が α 崩壊する際に娘核の励起状態にある ^{235}U が約 90 keV の反跳エネルギーをもらって ^{239}Pu 源より放出されるのを捕集する方法であるが、最も有効に ^{235m}U を捕集するために種々の条件が検討された。すなわち反跳法を空气中、純アルゴン瓦斯中および真空中で行い、かつ ^{239}Pu 源と ^{235m}U の捕集板との幾何学的配置、捕集時間並びに捕集板に印加すべき電圧を変

えて実験的に研究し、最上の収量を得る条件として、1気圧の空気または純アルゴン瓦斯中で ^{239}Pu 源より6mmの距離で、捕集板に600Vの負電圧を印加して、3時間捕集した場合が最良なることを見出した。得られた ^{235}mU 源を用いてその半減期が正確に測定され、 26.05 ± 0.05 分なる結果を得た。 ^{235}mU の核転移では、僅か20乃至30eVの内部転換電子のみが放出されるので、崩壊定数の測定にはこの極めて低いエネルギーの電子を能率よく測定する必要がある。このため著者は、特にこの目的のために設計、製作した二次電子増倍管を使用して、その第1ダイノードに ^{235}mU を直接捕集し、これよりの弱いエネルギーの内部転換電子を直接検出し増巾することを考案した。また僅かに異なる半減期の差を正確に測定するために平衡法といわれる方法を適用した。すなわち構造が全く同じ2本の二次電子増倍管を用い、その各第1ダイノードに比較するべき2種類の ^{235}mU 化合物を置き、その出力を特に設計、試作された差動増巾器に入れる。最初、2本の増倍管からの出力を差動増巾器内で平衡させておく。もし2つの ^{235}mU 源の半減期が僅かでも異なるならば、時間の経過とともに増巾器の平衡がくずれてくる。これをデジタル電圧計および記録計で測定した。この測定法の原理および測定値の解析法についても詳細に検討している。

比較すべき ^{235}mU の試料としては、金属ウラン、ウラン-炭素化合物およびウラン-硅素化合物を用いた。本研究の場合のように、極微量のウランを短時間に化学処理し、必要な形態の ^{235}mU 源にすることは不可能に近いと考えられるので、ウランの物質中への拡散効果を利用して ^{235}mU の外殻電子の状態を変える方法が考案された。金属ウランは白金電極上に ^{235}mU を捕集することにより出来たが、ウラン-炭素化合物およびウラン-硅素化合物は各々、炭素の蒸着膜、硅素の単結晶上に ^{235}mU を捕集し、純アルゴン瓦斯中で加熱することによりウラン原子を拡散させ、炭素および硅素と固溶体を作らせることにより試料の作成に成功した。

^{235}mU は半減期が僅か約26分なので、試料作成後出来るだけ迅速に二次電子増倍管内に第1ダイノードとして装填して、管内を高真空にしなければならない。このため装置の構成には特に留意し、また大型イオンポンプの使用によって、短時間に高真空を得ることに成功している。また被測定量がきわめて微弱であるため測定器系の動作がきわめて微妙であり、著者はこの安定性を得ることに種々の工夫をこらしている。最終的に得られた測定値の正確度を確認するために、測定過程で導入されることが予想される誤差については測定の段階において特に留意し、総括的に実験誤差の解析を行い、これに関する検討を行っている。

この章の最後に、かかる実験の結果として、 ^{235}mU の崩壊定数は金属ウランとウラン-炭素化合物の間で $(3.18 \pm 0.50) \times 10^{-3}$ 、金属ウランとウラン-硅素化合物の間で $(2.21 \pm 0.36) \times 10^{-3}$ の相対的差異があることを結論するとともに、この差異をウラン、炭素および硅素の電気陰性度が異なることより定性的に説明している。

第4章では ^{235}mU の試料を作成するために応用されたウランの拡散現象について、やや詳しく記述している。 ^{235}mU を炭素の蒸着膜および硅素の単結晶の上に捕集し、温度および加熱時間の関数としてウラン原子の拡散の様子を調べている。捕集された ^{235}mU は、炭素、硅素の原子の数に比べて非常に少ないので、各ウラン原子は互いにはほぼ完全に孤立していると考えられる。このような特殊な場合の拡散現象を ^{235}mU

からの弱いエネルギーの内部転換電子を観測することにより研究することは、固体の最上層近傍の構造を知る有力な新しい手段になるかも知れないと著者は指摘している。

第5章には、二次電子増倍管を利用して非常に低い運動エネルギーを持つ電子のエネルギー決定の方法を記述してある。測定原理は第1ダイノードと第2ダイノードの間に逆電位を印加して、第1ダイノードから放出される電子流を制御するのである。2次電子増倍管をこのように利用して低エネルギー電子のスペクトルを観測した例は今までになく、本研究で開発されたこの方法により、著者は ^{235}mU の核転移エネルギーを31 eV以下と結論した。ただしこの方法にはまだ改良の余地があることを付言している。

本論文の最後に付した4章の付録には、本研究の過程で必要であった崩壊定数測定 of 最適時間、 ^{235}mU の内部転換係数および τ 半減期、反跳法による ^{235}mU の捕集に関する知見、参考として ^{210}Po の α 線反跳法捕集に対する気圧の影響などについて述べている。

論文審査の結果の要旨

放射能の発見以来放射性原子の崩壊定数はそれぞれの原子に固有一定のもので、如何なる外部よりの物理的あるいは化学的作用によっても変化させることが不可能であると一般に信じられてきた。ところが近年外殻電子が関与する型の放射能崩壊、すなわち外殻電子捕獲型崩壊および内部転換を伴う核転移においては放射性原子の化学結合あるいは外的作用により崩壊定数が変化し得る可能性のあることが指摘され注目されるに至った。今日まで既に4種の放射性核について実験が行われたが、著者はこれ以外に ^{235}mU がきわめて低いエネルギーの内部転換型核転移をなすことに注目し、この転移にはP殻あるいはQ殻電子のみが関与することを知った。従ってこの励起ウラン原子と他の原子との化学結合の状態を変化することが出来れば、この核転移の崩壊定数を変化させることが出来ることを検討して、 ^{235}mU について実験を行った結果、この変化を見出すことに成功したものである。

著者はまず、 ^{235}mU 試料の調製法としてきわめて薄い ^{239}Pu 源より α 線反跳法によって ^{235}mU を捕集する方法について種々実験を行い、捕集収量の最適条件を求めている。最上の収量を得る条件として、1気圧の空気または純アルゴン瓦斯中で ^{239}Pu 源より6 mmの距離で金属捕集板に600 Vの負電圧を印加して、3時間捕集した場合が最良であることを見出している。 ^{235}mU の核転移は20乃至30 eVのきわめて低い内部転換電子の放出を検出することによってのみ可能であるので、著者は新たに設計製作した二次電子増倍管の第1ダイノードに ^{235}mU 源を付着させる方法を考案して測定器とした。全く同一の構造を有する2本の二次電子増倍管を使用し、それぞれの内部に異なる種類の ^{235}mU の化合物を置いて、各々の出力を差動増巾器で平衡させるいわゆる平衡法を適用して、両化合物内での ^{235}mU の崩壊定数が変化することを測定することに成功した。

著者は ^{235}U の試料として純ウラン原子、ウラン-炭素化合物およびウラン-硅素化合物の3種を調製している。調製法としては純アルゴン瓦斯中でそれぞれ白金板、炭素の蒸着膜および硅素の単結晶上に ^{235}mU を α 線反跳法で ^{239}Pu より捕集し、基板へのウランの拡散効果を利用して ^{235}mU の外殻電子の状態を変える方法を考案している。すなわち、炭素および硅素と固溶体を作らせることに成功したものである。 ^{235}mU の半減期が約26分なので、試料調製後これを迅速に二次電子増倍管内に装填し、管内を短時間

に高真空にして測定を開始しなければならない。このため著者は排気系に強力なイオン・ポンプを使用するなどの苦心をはらっている。

この一連の実験操作および測定はきわめて微妙であり、かつ測定器系の高度の安定性が要求されるので、著者は最終結果を求める前に実験の各段階で導入されるおそれのある誤差について理論的および実験的に多くの検討を行っている。このことはこの研究および最終結果の信頼性を著しく高めているものである。

最終結果として著者は崩壊定数は金属ウラン—炭素化合物の間で $(3.18 \pm 0.50) \times 10^{-3}$ 、金属ウラン—硅素化合物の間で $(2.21 \pm 0.36) \times 10^{-3}$ の相対的差異があることを結論している。この差異について、著者がウラン、炭素および硅素の電気陰性度の差より定性的に説明されることを指摘したことはまことに興味あることである。

なお、著者は ^{235}mU の白金、炭素および硅素内への拡散現象について観測した結果を述べている。この場合基材原子の数に比してウラン原子の数が非常に少く、ウラン原子は互いに完全に孤立していると考えられる。観測は放出される弱いエネルギーの内部転換電子を検出することによって行っている。このような方法によって ^{235}mU の拡散を観測することは、固体の最上層近傍の構造を探る一方法として固体物性学上の興味ある研究手段になることを指摘している。このことは重要な知見である。更に著者は二次電子増倍管を利用して、低エネルギーの電子のエネルギー決定の方法も考案した。この方法は測定される電子源の形状に制約があるが、低エネルギー電子のスペクトルの測定法としては簡易かつ信頼性のある方法として注目される。この方法により ^{235}mU の核転移エネルギーを測定し、約 31 eV という結果を得ている。

これを要するに、本研究は一定不変と考えられていた放射性原子の崩壊定数が特殊な放射性核においてはその化学結合の状態により変化し得るものであることを ^{235}mU を使用して実証したものであり、また ^{235}mU を利用すれば固体の最上層近傍の構造を知る有力なる研究手段が開発出来ることを示したものであって、学術上、工業上寄与するところが少なくない。よって本論文は工学博士の学位論文として価値あるものと認める。