

氏 名	垣 内 俊 二 かき うち しゅん じ
学位の種類	工 学 博 士
学位記番号	工 博 第 701 号
学位授与の日付	昭 和 56 年 3 月 23 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	CHEMICAL OR SUPERCONDUCTING EFFECT ON THE DECAY CONSTANTS OF ^{99m}Tc AND ^{51}Cr (^{99m}Tc 及び ^{51}Cr の崩壊定数に及ぼす化学的效果ないし超伝導効果)

論文調査委員 (主 査) 教 授 向 坂 正 勝 教 授 兵 藤 知 典 教 授 星 崎 憲 夫

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は原子核崩壊定数に及ぼす核外電子状態の影響を明らかにする目的で、 ^{99m}Tc (半減期 6 h) 及び ^{51}Cr (半減期 28d) の崩壊定数が異なった環境の下で変化することについて研究した成果をまとめたものであって、6章より成っている。

第1章は序論で、軌道電子が遷移に直接関係する軌道電子捕獲 (EC) と内部転換 (IC) の場合、その崩壊定数 λ が核表面に於ける電子密度 ρ_0 に依存することを指摘している。従って様々な状態下での λ の変化を研究することが、 ρ_0 の変動やそれをもたらし電子状態の摂動を調べる上で有効な方法であることが述べられている。EC や IC により崩壊する核種としてそれぞれ ^{51}Cr 及び ^{99m}Tc をとりあげ、それらの λ に対する環境の影響を実験と理論の両面から研究することの必要性が指摘されている。

第2章では EC と IC の両過程における λ の変化の可能性と大きさを理論的に考察するとともに、従来の研究を総括している。

第3章では ^{99m}Tc と ^{51}Cr の λ (それぞれ λ_{Tc} , λ_{Cr} と記す) に対する化学的效果を理論的に計算している。本研究で用いたモデルでは、HFS 型ポテンシャル (Hartree-Fock-Slater) の下で波動関数を計算し、化学的状态の差異は交換ポテンシャルの変化を通して考慮されている。 ^{99m}Tc に関しては、 TcO_4^- , Tc_2S_7 , 金属 Tc の3種の化合物について計算を行い、 λ_{Tc} の相対的变化は、 TcO_4^- - Tc_2S_7 間で 3.25×10^{-3} , Tc_2S_7 -金属 Tc 間で 3.15×10^{-4} であることを予想している。また、この結果から類推して λ_{Tc} に対する超伝導効果の上限を 10^{-7} 程度と予測している。 ^{51}Cr に関しては、中性、3価、6価の3種のイオン価状態について基底状態の電子配置を仮定して λ_{Cr} の相対的变化を計算し、中性—3価間で $1.22 \sim 1.65 \times 10^{-3}$, 中性—6価間で 2.63×10^{-3} であることを予測している。

第4章では本研究で用いた試料の調整法が述べられている。そのうち、金属 Tc は電着—還元法によって作成され、X線解析により金属構造を確認するとともに、6.82 K で超伝導状態に転移することが観測されている。

第5章では、 λ_{Tc} 及び λ_{Cr} の微小な変化を測定する方法と装置が述べられている。測定法は二槽電離箱を用いた差動法である。出力は振動容量型電位差計でアナログ量として検出されるが、サンプリング法によりデジタル化して処理する装置を開発し、測定精度を上げることに成功している。

第6章ではデータ処理の方法と測定結果について述べるとともに、理論計算と対比しつつ議論がなされている。

λ_{Tc} に対する化学的効果の測定結果は

$$\lambda_{Tc}(TcO_4^-) - \lambda_{Tc}(Tc_2S_7) = (3.18 \pm 0.7) \times 10^{-4} \lambda_{Tc}(Tc_2S_7),$$

$$\lambda_{Tc}(Tc_2S_7) - \lambda_{Tc}(\text{金属}) = (5.6 \pm 0.3) \times 10^{-4} \lambda_{Tc}(\text{金属})$$

であった。この結果は理論的予想値や従来の報告と良く一致している。結論として λ_{Tc} の変化は主に 4p, 4d 電子の核表面に於ける存在確率の変化によることが判明した。

λ_{Tc} に対する超伝導効果の測定結果は誤差 ($\pm 0.5 \times 10^{-4}$) の範囲内で 0 であり、従来の報告 (6.4×10^{-4}) と大きく矛盾するが、上限を 10^{-7} と予想した理論とは矛盾しない。本研究の結果は BCS 理論 (Bardeen-Cooper-Schrieffer) によって支持されると結論している。

λ_{Cr} に対する化学的効果の測定結果は

$$\lambda_{Cr}(Na_2CrO_4) - \lambda_{Cr}(CrCl_3) = (5.3 \pm 2.1) \times 10^{-4} \lambda_{Cr}(CrCl_3)$$

で、理論的予想値と定性的に一致している。結論として、 λ_{Cr} の変化は主に 3s 電子の核表面に於ける存在確率の変化に起因することが明らかとなった。

論文審査の結果の要旨

放射性核種の半減期或いは崩壊定数は一定不変であると思われていたが、1947年に、軌道電子捕獲及び内部転換を伴う核異性体遷移では核外条件によって変化し得ることが指摘された。以来多くの核種の崩壊定数に対する化学的ないし物理的效果が測定されて来た。この研究は、原子核の位置における電子密度が外的条件によってどのように変わるかを調べる上で興味深い手段となっている。しかし実験例が比較的多いにも拘らず、実験結果を定量的、系統的に説明できる理論は極めて少ない。この原因は、化合物原子の電子波動関数を正確に記述したり、外的条件を正確に評価することが困難であることによる。

本論文は、崩壊定数の微小な変化を精密に測る装置を開発することによって、 ^{99m}Tc に対しては化学的及び超伝導効果を、 ^{51}Cr に対しては化学的效果をそれぞれ測定するとともに、理論的検討を加えたもので、次のような新しい結果を得ている。

1. 崩壊定数の 10^{-4} 程度の差を測るために、特殊な二槽電離箱を差動的に働かせる装置を開発し、さらに出力電流をサンプリング法でデジタル化した処理する工夫を加え、測定精度を従来より格段に向上させた。
2. ^{99m}Tc については、3種の化合物 (ϕ_4AsTcO_4 , Tc_2S_7 , 金属 Tc) において明らかに崩壊定数が $(3 \sim 6) \times 10^{-4}$ 程度の差をもつことを見出した。
3. これを理論的に説明するため、 Tc 原子の電子波動関数を HFS 型ポテンシャルの下で求め、とくに化学状態の違いを交換ポテンシャルの差として導入し、各軌道電子に対する内部転換係数を計算した。

その結果、4p 及び 4d 電子の寄与が大きいことを明らかにした。

4. ^{99m}Tc の崩壊定数に対する超伝導効果は、測定誤差以内で認められなかった。これは BCS 理論が本質的に正しいことを証明したもので、超伝導効果ありとする従来 of 測定が誤りであることを示した。
5. ^{51}Cr の $\text{Cr}^{6+}(\text{Na}_2\text{CrO}_4)$ と $\text{Cr}^{3+}(\text{CrCl}_3)$ とを用いて、その崩壊定数の差を初めて測定し、 5.3×10^{-4} の値を得た。さらに上記の理論を適用して説明を試みるとともに、崩壊定数の差が Cr の 3s 電子の摂動差に起因することを明らかにした。

以上要するに本論文は、 ^{99m}Tc 及び ^{51}Cr の崩壊定数の変化を精度よく測定することに成功し、さらに物理的、化学的效果を巧妙に理論計算中に導入して、変化の主因となっている軌道電子の摂動を具体的に指摘したものであって、学術上寄与する所が少なくない。

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。