

審査の結果の要旨

氏名 千葉邦彦

本論文は鉄酸化物表面への水の吸着状態と、エネルギー粒子照射による水の脱離メカニズムを解明するため、光電子分光法による表面電子状態観察、赤外吸収分析による OD 観察とエネルギー粒子照射による脱離種の分析を行ったものであり、核融合炉におけるトリチウム除染の基礎研究としての意味だけでなく、金属酸化物表面と水の相互作用の解明という意味を有する。論文は7章より構成される。

第1章は研究の背景と研究目的を述べている。

第2章では、水に曝露した鉄酸化物表面の電子状態観察結果について説明している。水に曝露後の価電子スペクトルで、水酸基の 3σ 電子($\sim 10\text{eV}$)と 1π 電子(7eV)のピークを観測し、水に曝すことにより水は表面に解離吸着し、水酸基を形成することを明らかにしている。

第3章では、光照射により脱離した粒子の分析を行っている。脱離した粒子の入射エネルギー依存性と、第2章で観察した表面電子状態との比較から、脱離メカニズムを検討し、水酸基の O-H 間結合に寄与する結合軌道の 3σ 電子を励起することにより水素が脱離し、鉄酸化物表面と水酸基との結合に寄与する結合電子である 1π 電子の励起により水が脱離することを明らかにしている。さらに鉄酸化物のバンドギャップ(2.2eV)以上のエネルギーを持つ光を照射することにより、鉄酸化物の電子が価電子帯から伝導帯に励起され、鉄酸化物表面から水が脱離することを明らかにしている。

第4章では、電子照射により脱離した粒子の分析について述べている。脱離した粒子の入射エネルギー依存性と、第2章で観察した表面電子状態との比較から、脱離メカニズムを検討し、 20eV 以上の電子照射により、表面水酸基の 2σ 電子を励起し、 H^+ や OH^+ が脱離することを明らかにしている。

第5章では、重水蒸気に曝露した試料の赤外吸収分析を行い、鉄酸化物表面の OD の観察を行っている。OD のピークは5種類観察され、周りの表面水酸基と水素結合相互作用した表面水酸基が2種類、孤立状の表面水酸基が3種類存在することを明らかにしている。エネルギー粒子照射下での赤外吸収スペクトル測定により、 $200\text{-}2000\text{nm}$ の光や 200eV の電子を照射することにより、非熱的な過程により表面水酸基から水が脱離することが示されている。また、表面水酸基のエネルギー粒子照射下での減少の挙動から、光照射や電子照射による脱離の素過程を明らかにしている。 $200\text{-}2000\text{nm}$ の光照射では、水素結合に寄与した水酸基が孤立状の水酸基よりも容易に脱離し、電子照射での脱離は水酸基の吸着状態に依存しないことが示唆されたとしている。

第6章では、第2章から第5章までの議論を踏まえて、エネルギー粒子照射による脱離

メカニズムの検討を行っている。光照射により鉄酸化物の電子が励起され、励起電子を表面水酸基が捕捉することにより表面に水酸基ラジカルが生成し、他の水酸基と反応することで水が脱離することを示している。さらに、電子照射による内殻電子の励起が誘起する脱離は、水酸基、あるいは水素の陽イオンが形成され、陽イオンが脱離することを示している。さらに、エネルギー粒子照射から脱離に至るまでの素過程を明らかにし、おのおの素過程の検討を行っている。また、定量的な評価からエネルギー粒子照射から脱離に至るまでの効率の評価を行った結果、光照射による鉄酸化物中の電子励起が誘起する水の脱離は、光子1個で 10^5 個程度の水分子が脱離し、電子照射による表面水酸基の価電子、あるいは内殻電子の励起により誘起される脱離は、電子1個で 10^3 個程度の水素あるいは水が脱離することが示されている。

以上要するに、本論文はエネルギー粒子照射により鉄酸化物から水が脱離するまでの素過程の解明を行ったものであり学術的価値が高いのみでなく、エネルギー粒子照射によるトリチウム除染についての基礎的知見を与えるものでありシステム量子工学特に核融合工学、表面科学に対する貢献が小さくない。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。