

学位論文概要紹介

2種類のディテクターを用いた U-238 の自発核分裂壊変定数(λ_f)の測定 吉岡 哲***・鶴田隆雄***・岩野英樹*・檀原 徹*

Measurements of the spontaneous fission decay constant (λ_f) of U-238 using two kinds of solid state nuclear track detectors

Tetsu Yoshioka*, Takao Tsuruta***, Hideki Iwano*, Tohru Danhara*

* (株)京都フィッション・トラック, Kyoto Fission-Track Co.,Ltd.

** 近畿大学大学院総合理工学研究科, Interdisciplinary Graduate School of Science and Engineering, Kinki University

***近畿大学原子力研究所, Atomic Energy Research Institute, Kinki University

はじめに

フィッショントラック(FT)年代測定法において、 ^{238}U の自発核分裂壊変定数(λ_f)の決定は長年解決されていない問題である (Bigazzi, 1981)。 λ_f については1940年代より、さまざまな手法を用いて約60の測定結果が報告されている。その結果は広い範囲にばらつき、また ~ 7.0 および $\sim 8.5 \times 10^{-17} \text{ yr}^{-1}$ の2つのピークを持つ傾向がある。前者は主に固体飛跡検出器を使った手法で、後者は直接測定による手法で強く支持される。この問題が1つの要因として、現在ゼータ年代較正法が導入されている (Hurford, 1990)。

λ_f 問題の解決によって、ジルコン、アパタイト、スフェン、ガラスの4鉱物種にしか応用できないゼータ法の現状を打破し、多様な鉱物を対象とした年代測定法、すなわち独立したFT法を再構築できる。また、物理定数を確定することは自然科学の中で重要な貢献と考えられる。

本研究の目的は、新しいより信頼性のある λ_f 値の決定である。

原理

本研究では λ_f 値を測定するため薄いウラン線源と2種類の樹脂板を利用した単純な方法を開発した。この方法では、薄いウラン線源中の ^{238}U から生ずる α 粒子と自発核分裂片をそれぞれ対応する樹脂検出器で検出し(図1)、 α 粒

子の放射能面密度 (specific activity: $A_{238\alpha}$) が α 壊変定数 (λ_α) に、自発核分裂片の放射線面密度 (specific activity: A_{238f}) が λ_f に比例することを原理とする。つまり次式の関係が与えられる:

$$\frac{A_{238\alpha}}{\lambda_{238\alpha}} = \frac{A_{238f}}{\lambda_{238f}}$$

ここで、 $\lambda_{238\alpha}$ は $1.55125 \times 10^{-10} \text{ yr}^{-1}$ (Steiger and Jäger, 1977) を用いる。また、 λ_f を求める方程式は最終的に次のようになる:

$$\lambda_{238f} = \frac{\lambda_{238f}}{A_{238\alpha}} A_{238\alpha} = \frac{\lambda_{238\alpha}}{A_{238\alpha}} \frac{\rho_f}{t_f \cdot E_f} = \frac{\lambda_{238\alpha}}{0.974} \frac{\rho_f}{\rho_\alpha} \frac{t_\alpha}{t_f} \frac{E_\alpha}{E_f}$$

ρ は検出器上の飛跡密度、 t はウラン線源に検出器を密着させた時間、 E は検出効率である。0.974はウラン同位体 (^{238}U , ^{235}U , ^{234}U) の補正係数である。この方法では、原子炉での熱中性子照射を要しないが検出器の飛跡検出効率が

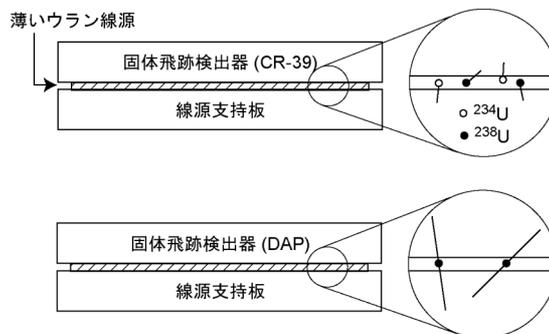


図1 本研究で提案する λ_f 測定方法

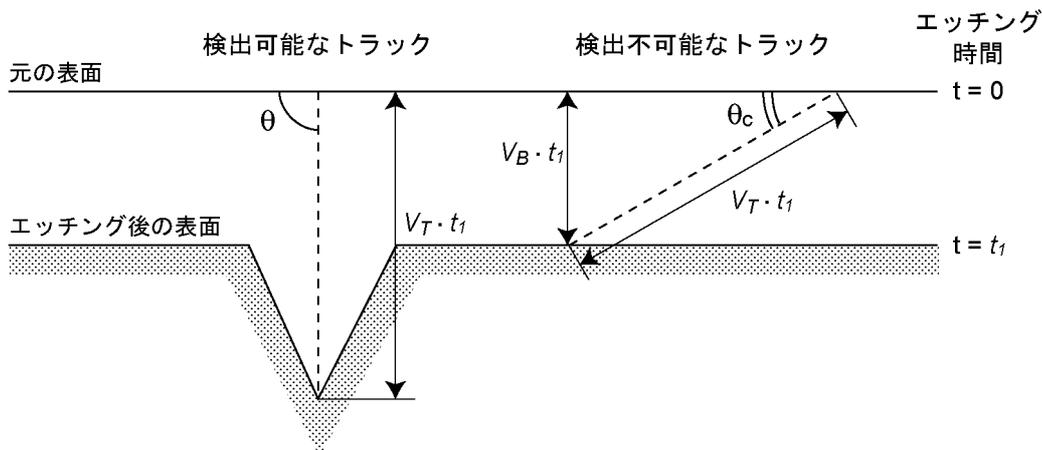


図2 臨界角 (θ_c), バルクエッチング速度 (V_B) およびトラックエッチング速度 (V_T) の関係を示す概念図. エッチング後には $V_T \sin \theta > V_B$ のトラックのみが検出され, $V_T \sin \theta = V_B$ となる時の θ が臨界角 (θ_c) と定義される.

重要な要素となる. 検出器の検出効率は, それぞれの検出器上の α トラックおよび自発 FT の臨界角 (θ_c) に依存し (図 2), 臨界角はバルクエッチング速度 (V_B) およびトラックエッチング速度 (V_T) から与えられる.

実験

本研究では, CR-39 樹脂板および DAP 樹脂板を用いて, 以下の 3 つの実験を行った.

各検出器のバルクエッチング速度の測定

バルクエッチング速度の測定は, エッチングによる板の厚さの変化を測定することで行った. 樹脂板は水を含んで厚さが増すため, 事前に 60°C の蒸留水に 40 時間浸しておいた. その後, 段階エッチングを行い, 板の厚さをマイクロメーターで測定した. エッチング溶液は 30% KOH 水溶液 (90°C) を使用した.

各検出器のトラックエッチング速度の測定

トラックエッチング速度の測定には, CR-39 板には ^{241}Am からの α 粒子を, DAP 板には

^{252}Cf の自発核分裂片を照射し, それぞれのトラックを段階エッチングし, 測定を行った. α 粒子トラック長の変化は CR-39 板の断面を観察し, 測定した. 自発 FT 長の変化はレーザー変位計を用い, 3 次元長として測定した. エッチング溶液は 30% KOH 水溶液 (90°C) を使用した.

ウラン線源からの α 粒子および自発核分裂片の照射とそのトラック密度の測定

ウラン線源には, 日本アイソトープ協会で作成された標準ウラン面線源を使用した. この線源は, 10cm 角のステンレス板に硝酸ウラン溶液を薄く塗り, 焼き付けたものであり, 使用されているウランは精製された天然ウランである. ウラン線源には線源 A (^{238}U の放射能面密度 $6.03\text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$) と線源 B (^{238}U の放射能面密度 $8.88\text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$) の 2 種類を用意した. 検出器には α トラックの検出のための CR-39 樹脂板と FT の検出のための DAP 樹脂板を使用した. 2 種類の検出器はそれぞれ 10cm 角に整形した. 2 つの線源に対して, CR-39 板は 120–426 分間, DAP 板は 50–238 日間, 室温で密着させた.

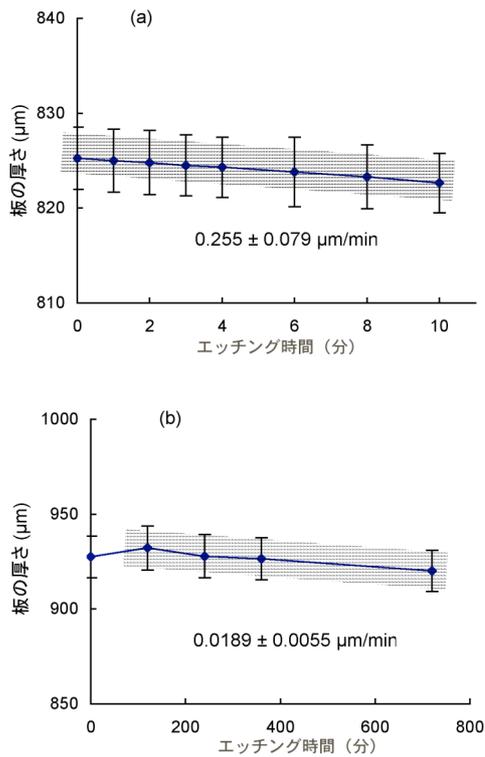


図3 エッチング時間に対する板の厚さの変化 [(a) CR-39 樹脂板および (b) DAP 樹脂板]

2 種類の線源とそれぞれ複数回の照射から、CR-39 板では 7 種類の試料を、DAP 板では 6 種類の試料を準備した。照射後、CR-39 および DAP 板をそれぞれ 5cm 角に切断し 4 片に分け、1-4 象限として識別した。エッチング溶液は 30% KOH 水溶液 (90° C) を使用し、CR-39 は 10-20 分間、DAP は 2-4 時間エッチングを行った。

結果

バルクエッチング速度

CR-39 樹脂板および DAP 樹脂板の厚さの変化を図 3 に示した。CR-39 板の厚さは 0 分から 10 分の間とそれ以降とで傾きが変化し、10 分以降は値が大きくなった。これは、調製された板の表面と内部で重合度が異なっているからだと考えられる。CR-39 樹脂上の α トラックの

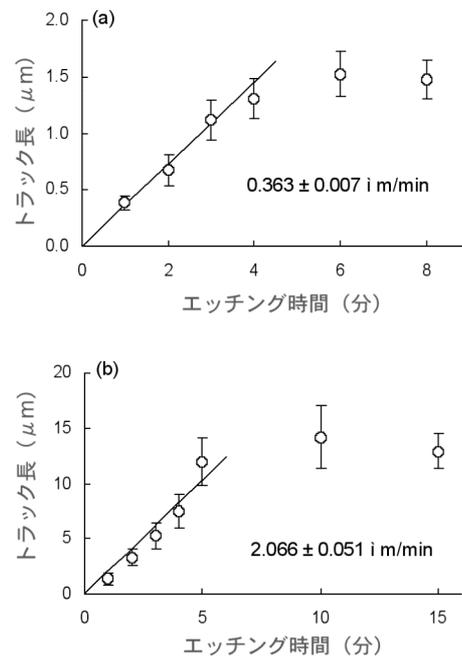


図 4 エッチング時間に対するトラック長の変化 [(a) CR-39 樹脂板中の α トラックおよび (b) DAP 樹脂板中の FT]

長さの増加は 10 分以内で終了するため、CR-39 樹脂板の厚さの変化速度として、0-10 分間の近似直線から $0.255 \pm 0.079 \mu\text{m}/\text{min}$ を得た。一方、DAP 樹脂板では 120 分で一旦厚さが増加したものの、120 分から 720 分まで直線的に変化し、 $0.0189 \pm 0.0055 \mu\text{m}/\text{min}$ が得られた。板の厚さの減少量はバルクエッチング量の 2 倍となるので、バルクエッチング速度は CR-39 では $0.127 \pm 0.039 \mu\text{m}/\text{min}$ 、DAP では $0.0095 \pm 0.0028 \mu\text{m}/\text{min}$ と計算された。

トラックエッチング速度

エッチングによる CR-39 樹脂板と DAP 樹脂板上のトラック長の変化を図 4 に示した。CR-39 上の α トラック長は時間に比例して長くなるが、途中から直線的な増加から外れる。平均トラック長は最大約 $1.5 \mu\text{m}$ となった。

表1 CR-39樹脂板上の α トラック計数結果(斜体で表示された結果は、エッチング時間が長すぎたため加重平均計算から除外した)。

試料名	エッチング		測定			$A_{238\text{a}} \pm 1\sigma$ ($\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$)	
	時間 (分)	測定者	トラック 数	測定面積 ($\times 10^{-3}\text{cm}^2$)	トラック密度 $\pm 1\sigma$ ($\times 10^5\text{cm}^{-2}$)		
CR-A2	-1	20	<i>Iwano</i>	1595	4.80	<i>0.332 ± 0.008</i>	<i>6.07 ± 0.61</i>
	-2	20	<i>Iwano</i>	1568	4.80	<i>0.327 ± 0.008</i>	<i>5.97 ± 0.60</i>
	-3	20	<i>Yoshioka</i>	1572	4.80	<i>0.328 ± 0.008</i>	<i>5.98 ± 0.61</i>
	-4	20	<i>Yoshioka</i>	1579	4.80	<i>0.329 ± 0.008</i>	<i>6.01 ± 0.61</i>
CR-A3	-1	20	<i>Yoshioka</i>	3074	4.80	<i>0.640 ± 0.012</i>	<i>5.85 ± 0.58</i>
	-2	20	<i>Iwano</i>	3197	4.80	<i>0.666 ± 0.012</i>	<i>6.08 ± 0.61</i>
	-3	20	<i>Yoshioka</i>	3093	4.80	<i>0.644 ± 0.012</i>	<i>5.89 ± 0.61</i>
	-4	20	<i>Yoshioka</i>	3158	4.80	<i>0.658 ± 0.012</i>	<i>6.01 ± 0.60</i>
CR-A4	-1	10	<i>Yoshioka</i>	2852	2.80	1.019 ± 0.019	5.73 ± 0.57
	-2	10	<i>Iwano</i>	2525	2.40	1.052 ± 0.021	5.41 ± 0.54
	-3	10	<i>Iwano</i>	2492	2.40	1.038 ± 0.021	5.34 ± 0.53
	-4	10	<i>Yoshioka</i>	2529	2.40	1.054 ± 0.021	5.42 ± 0.54
CR-A5	-1	10	<i>Iwano</i>	3256	4.80	0.678 ± 0.012	5.51 ± 0.55
	-2	10	<i>Iwano</i>	3065	4.80	0.639 ± 0.012	5.18 ± 0.52
	-3	10	<i>Yoshioka</i>	2153	3.36	0.641 ± 0.014	5.20 ± 0.52
	-4	10	<i>Yoshioka</i>	2245	3.36	0.668 ± 0.014	5.42 ± 0.54
加重平均値						5.39 ± 0.19	
CR-B2	-1	20	<i>Iwano</i>	2314	4.80	<i>0.482 ± 0.010</i>	<i>8.81 ± 0.88</i>
	-2	30	<i>Iwano</i>	2383	4.80	<i>0.496 ± 0.010</i>	<i>9.07 ± 0.91</i>
	-3	20	<i>Yoshioka</i>	2318	4.80	<i>0.483 ± 0.010</i>	<i>8.82 ± 0.88</i>
	-4	20	<i>Yoshioka</i>	2314	4.80	<i>0.482 ± 0.010</i>	<i>8.81 ± 0.88</i>
CR-B3	-1	10	<i>Yoshioka</i>	2625	2.80	0.938 ± 0.018	8.56 ± 0.86
	-2	10	<i>Yoshioka</i>	3135	3.36	0.933 ± 0.017	8.52 ± 0.85
	-3	10	<i>Yoshioka</i>	2628	2.80	0.939 ± 0.018	8.57 ± 0.86
	-4	10	<i>Yoshioka</i>	2550	2.80	0.911 ± 0.018	8.32 ± 0.83
CR-B4	-1	10	<i>Iwano</i>	4009	2.40	1.670 ± 0.026	8.62 ± 0.85
	-2	10	<i>Yoshioka</i>	4640	2.80	1.657 ± 0.024	8.55 ± 0.85
	-3	10	<i>Yoshioka</i>	3997	2.40	1.665 ± 0.026	8.59 ± 0.85
	-4	10	<i>Yoshioka</i>	4033	2.40	1.680 ± 0.026	8.67 ± 0.86
加重平均値						8.55 ± 0.30	

表2 DAP樹脂上のFT計数結果および $\lambda_{238\text{a}}$ 値の計算結果

試料名		測定者	測定			$A_{238\text{a}} \pm 1\sigma$ ($\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$)	$\lambda_{238\text{a}} \pm 1\sigma$ ($\times 10^{17}\text{yr}^{-1}$)
			トラック 数	測定面積 (cm^2)	トラック密度 $\pm 1\sigma$ (cm^{-2})		
DAP-A1	-1	<i>Iwano</i>	279	24.35 ± 0.05	11.46 ± 0.69	5.61 ± 0.40*	7.41 ± 0.74
	-2	<i>Yoshioka</i>	319	24.30 ± 0.05	13.13 ± 0.74	5.29 ± 0.37*	9.00 ± 0.87
DAP-A2	-1	<i>Danhara</i>	1561	23.75 ± 0.05	65.73 ± 1.67	5.61 ± 0.40*	8.86 ± 0.74
	-2	<i>Iwano</i>	1541	24.35 ± 0.05	63.28 ± 1.62	5.29 ± 0.37*	9.05 ± 0.75
DAP-A3	-1	<i>Yoshioka</i>	1275	24.35 ± 0.05	52.35 ± 1.47	5.61 ± 0.40*	8.98 ± 0.75
	-2	<i>Yoshioka</i>	1220	24.40 ± 0.05	49.99 ± 1.43	5.29 ± 0.37*	9.09 ± 0.77
	-3	<i>Yoshioka</i>	1259	24.45 ± 0.05	51.49 ± 1.45	5.27 ± 0.37*	9.40 ± 0.79
	-4	<i>Iwano</i>	1232	24.45 ± 0.05	50.38 ± 1.44	5.42 ± 0.38*	8.94 ± 0.75
DAP-B1	-1	<i>Yoshioka</i>	397	24.30 ± 0.05	16.33 ± 0.82	8.59 ± 0.60*	6.90 ± 0.65
	-2	<i>Yoshioka</i>	496	24.43 ± 0.05	20.30 ± 0.91	8.53 ± 0.60*	8.64 ± 0.78
DAP-B2	-1	<i>Iwano</i>	2282	24.53 ± 0.05	93.04 ± 1.96	8.59 ± 0.60*	8.20 ± 0.67
	-2	<i>Yoshioka</i>	2341	24.48 ± 0.05	95.64 ± 1.99	8.53 ± 0.60*	8.48 ± 0.69
DAP-B3	-1	<i>Yoshioka</i>	1836	24.50 ± 0.05	74.93 ± 1.76	8.59 ± 0.60*	8.40 ± 0.69
	-2	<i>Yoshioka</i>	1873	24.38 ± 0.05	76.83 ± 1.78	8.53 ± 0.60*	8.66 ± 0.71
	-3	<i>Iwano</i>	1873	24.45 ± 0.05	76.60 ± 1.78	8.58 ± 0.60*	8.59 ± 0.71
	-4	<i>Yoshioka</i>	1826	24.45 ± 0.05	74.67 ± 1.75	8.49 ± 0.60*	8.47 ± 0.70
*: ウラン線源AおよびBの各象限ごとの加重平均値						加重平均値	8.51 ± 0.18

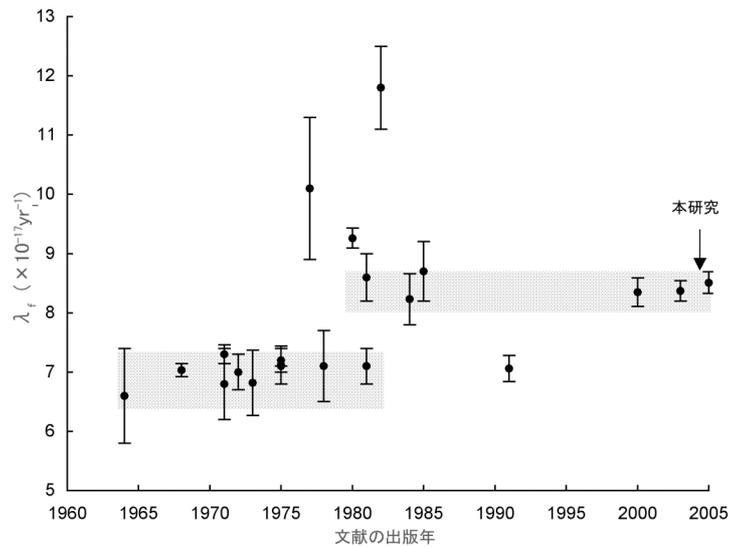


図5 文献の出版年に対する λ_f 値の報告値の変遷

0-3分間で直線性が得られ、近似直線からみかけのトラック長変化速度として $0.363 \pm 0.007 \mu\text{m}/\text{min}$ が得られた。板表面のバルクエッチングを考慮し、トラックエッチング速度を $0.490 \pm 0.047 \mu\text{m}/\text{min}$ と補正した。

DAP板上のFTもCR-39板上のFTと同様に初めは時間に比例して長くなるが、その後直線増加の傾向から外れる。平均トラック長は最大約 $14 \mu\text{m}$ となった。0-5分間で直線性が認められ、近似直線からみかけのトラック長変化速度として $2.07 \pm 0.05 \mu\text{m}/\text{min}$ が得られた。バルクエッチングを考慮し、トラックエッチング速度を $2.08 \pm 0.05 \mu\text{m}/\text{min}$ と補正した。

臨界角と検出効率

上述のバルクエッチングおよびトラックエッチング速度に基づいて、CR-39樹脂板およびDAP樹脂板におけるトラック検出効率を計算した。臨界角 θ_c はCR-39板で 15.1° 、DAP板で 0.26° 、検出効率 E は、CR-39板で 0.740 ± 0.072 、DAP板で 0.995 ± 0.035 と計算された。検出効率の測定精度は、CR-39板で9.7%、DAP板で3.6%であった。

トラック密度

CR-39板上の α トラック計数結果を表1に

示した。また、DAP板上のFT計数結果を表2にまとめた。CR-39樹脂板のバルクエッチング速度の変化明らかになったことから、CR-39板のデータとして10分間エッチングのもののみを採用した。各CR-39板の4つの象限毎の α トラック密度に違いは見られなかった。DAP板の、FT密度についても、同様に4つの象限で一様であった。

放射能面密度と λ_f 値

CR-39板の α トラック密度および(3)で決定した検出効率から、線源の放射能面密度を求めた。放射能面密度の計算結果は表1にまとめられている。線源A、Bの ^{238}U の放射能面密度は、それぞれ $5.39 \pm 0.19 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、 $8.55 \pm 0.30 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ となり、日本アイソトープ協会の検定値とほぼ調和的であるが、線源Aの値はやや小さかった。CR-39板から求めた放射能面密度とDAP板のFT密度・検出効率から、核分裂壊変定数 λ_f を計算した。 λ_f の計算結果は表2にまとめられている。測定データは、各板の4つの象限ごとに分析されている。16個の測定結果はすべて誤差範囲内で一致し、すべての加重平均として $(8.51 \pm 0.18) \times 10^{-17} \text{ y}^{-1}$ が得られた。また、これらの値に対して χ^2 検定を行い、 χ^2 値として12.4が得られた。自由度15の χ^2 確

率 65% で合格した。

考察

本研究で得られたデータを含め、SSNTD 法で得られたデータを再検討した。SSNTD 法のデータを時系列に図 5 に示す。1980 年以前の λ_f 値は $7.0 \times 10^{-17} \text{ y}^{-1}$ に集中する。最近 Guedes et al. (2000, 2003) は, Roberts et al. (1968) の結果 ($7.03 \times 10^{-17} \text{ yr}^{-1}$ を支持する mica-sandwich 法を用いた代表的な研究例) を分析し, 彼らの値は原子炉照射時の ^{238}U の速中性子核分裂の影響のために過小評価されていることを明らかにした。それに対して, 1980 年以降データは大きい値に集中することがわかる。これらのデータは SSNTD 法の値のずれの要因とされた中性子線量測定を用いない手法, あるいは, 天然ウランモニターを用いて熱中性子線量測定に依存しないよう特別の配慮を施している研究である。このことから, 1980 年以前の λ_f 値は中性子線量測定の偏倚あるいは他の理由から不正確な値であると判断した。一方, 1980 年以降の SSNTD 法による一連の測定値の加重平均は $(8.30 \pm 0.08) \times 10^{-17} \text{ y}^{-1}$ となり, IUPAC による推奨値 $(8.5 \pm 0.1) \times 10^{-17} \text{ y}^{-1}$ (Holden and Hoffman, 2000) を支持する。

まとめ

本研究の方法は, 壊変定数のよく知られた α 壊変のトラック密度と, FT 密度との比較から自発核分裂の壊変定数を求める方法である。この方法の特徴は, 単純で, すべての誤差が数値化され, これまでの SSNTD 法や FT 年代測定法にあった問題点 (FT の部分的な消滅や中性

子線量測定の不正確さなど) を含まない。本研究の実験結果や最近の SSNTD による λ_f 値は, ionization chamber や bubble chamber を用いた直接決定法から得られる高い値 ($8.5 \times 10^{-17} \text{ y}^{-1}$) と一致した。すなわち, 異なる方法で統一した値が支持されることを意味する。この事実は, 大きい λ_f 値を基準とした FT 年代測定法の独立した年代較正の実現 (Iwano and Danhara, 1998; Van den haute et al., 1988) に寄与すると期待される。

参考文献

- Bigazzi, G., 1981, *Nucl. Tracks*, **5**, 35-44.
- Guedes, S., Hadler, J.C., Iunes, P.J., Paulo, S.R.,
Zuñiga, A., 2000, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*,
245, 441-442.
- Guedes, S., Hadler, J.C., Iunes, P.J., Zuñiga, A.,
Tello, C.A., Paulo, S.R., 2003, *Nucl. Instr. and
Meth. in Phys. Res. A*, **496**, 215-221.
- Holden, N.E., Hoffman, D.C., 2000, *Pure Appl.
Chem.*, **72**, 1525-1562.
- Hurford, A.J., 1990, *Chem. Geol. (Isot. Geosci.
Sect.)*, **80**, 171-178.
- Iwano, H. and Danhara, T., 1998, *Van den haute, P.
and De Corte, F. (eds), Advances in
Fission-Track Geochronology*, Kluwer
Academic Publishers, 47-66.
- Roberts, J.H., 1968, *Physical Review*, **174**,
1482-1484.
- Steiger, R.H., Jäger, E., 1977, *Earth Planet. Sci.
Lett.*, **36**, 359-362.
- Van den haute, P., Jonkheere, R., De Corte, F.,
1988, *Chem. Geol. (Isot. Geosci. Sect.)*, **73**, 233.