

5 α 線検出による天然放射性核種の同定

1 目的

身の回りの土壌や岩石には原子核が放射線を出して崩壊し、より安定な原子核へと変わる反応を起こす核種が存在する。これまで先輩たちが岩石から出る γ 線や β 線を検出して、放射性核種の同定を行った。 α 線を出して崩壊する岩石や土壌も多く、 α 線の飛跡を霧箱で観察することはできても、 α 線を出す放射性核種を特定することは難しかった。 α 線は透過力が弱く紙 1 枚程度で止まってしまうためである。私たちは原子核乾板という放射線に感度を持つ写真フィルムで環境放射線を捉まえ、乾板中に記録された α 線の飛跡を観察して放射性核種を同定することに挑戦する。原子核乾板で α 線の飛跡を検出し、飛跡の濃度、飛跡の長さ(飛程)、連続して出ている α 線の数などの情報を分析し、 α 線を出す元の放射性核種の種類を同定する。紙面の枚数の都合で研究の要旨を示す。

2 方法

(1) 原子核乾板

原子核乾板は荷電粒子の飛跡に感度を持つ写真フィルムで、臭化銀結晶をゼラチン中に分散した写真乳剤をプラスチックのベースの両面に塗布した構造を持つ。この原子核乾板は製造後から半年間感度を持った後に現像処理をした。この半年間の荷電粒子の飛跡を蓄積している。原子核乾板の現像は暗室で、予浸液、現像液、停止液、定着液、水洗、乾燥の順に処理液に浸していく。

(2) スキャニング

現像後の原子核乾板を光学顕微鏡で観察する。接眼レンズ 15 倍、対物レンズ 40 倍を使用する。ステージを動かして α 線の飛跡を見つけ、スケッチを取る。飛跡の長さ、濃さを写し取る。接眼マイクロメータで x 軸、y 軸の長さを測る。z 軸の長さはステージの目盛を読み取る。飛跡の長さ L は次式により算出する。

$$L = \sqrt{(x_2 - x_1)^2 + (y_2 - y_1)^2 + (f \times (z_2 - z_1))^2}$$

ここで f をシュリンケージファクターと呼ぶ。原子核乾板は現像の過程で感光していない臭化銀結晶を取り除くので乳剤層の膜厚が薄くなる。正確な飛跡の長さを求めるために、現像後の膜厚を放射線が通過した時点の膜厚で割った値 f を測定時の z 軸の長さに乗じて補正する。図 1 に光学顕微鏡で観察した原子核乾板中の α 線の飛跡を示す。

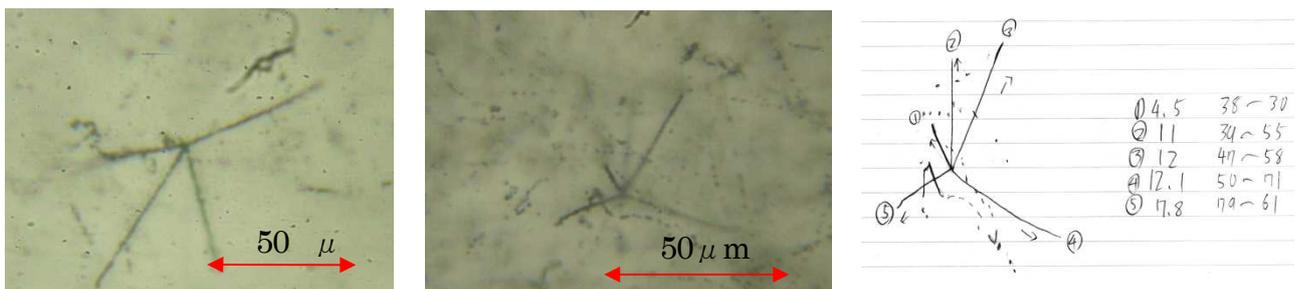


図 1 原子核乾板中に記録された α 線の飛跡(光学顕微鏡 600 倍)

左上は1点から4本の α 線が出ている4-prong事象。中央上は5本の α 線が出ている5-prong事象。濃い銀粒子の連なりからなるのが α 線の飛跡で、細い点線で記録されているのが β 線の飛跡である。右上は4-prong事象で1本の α 線の始点が約 $10\mu\text{m}$ 離れている拡散事象である。

不安定な原子核が放射線を放出してより安定な原子核へ放射性崩壊していくときに、崩壊した先の原子核が不安定な場合、放射性崩壊を繰り返す。放射性崩壊には α 粒子を出して崩壊する α 崩壊、電子を出して崩壊する $\beta(-)$ 崩壊、陽電子を出して崩壊する $\beta(+)$ 崩壊、 γ 線を出す γ 崩壊などがある。 α 崩壊では α 線しか出さないので崩壊のエネルギーは崩壊元の原子核の種類に固有の値をとる。このため α 線のエネルギーを測れば、崩壊先の原子核の種類がわかる。一方 β 崩壊では、電子の他にニュートリノがエネルギーの一部を持っていくので、 β 線の値は連続分布になり1つに定まらない。 α 崩壊が1回起こり1本の α 線の飛跡が単独で存在している事象を1-prong事象と呼ぶ。同様に α 崩壊が2回起こり2本の α 線が乾板中の1点から発生している事象を2-prong、5本の α 線が出ている事象を5-prongなどと呼ぶ。表1に観察した全事象の数を示す。

表1 原子核乾板で観測した α 崩壊事象

1-prong	2-prong	3-prong	4-prong	5-prong	6-prong	合計
449	64	303	994	1479	28	3317 事象

(3) パターンマッチ法の開発

スキヤニングによって3317個の α 崩壊事象を見つけ、全事象のスケッチデータと飛跡の長さを測定する。 α 線の飛跡の長さ(飛程)は α 線のエネルギーと正の相関がある。1点から発生している複数の α 線は元々1つの放射性核種が連続的に放射性崩壊を繰り返している事象である。そこで、同一地点から発生している α 線の本数(prong数)と、飛跡の長さの関係から放射性核種の反応を同定する。本研究で使用した原子核乾板は環境放射線を記録しているので、自然界に存在するトリウム系列、ウラン系列、アクチニウム系列、ネプツニウム系列4つの崩壊系列が検出される可能性がある。各系列の放射性核種がどのように原子核乾板中で観測されるかを、次で述べる。今回の実験に使用した原子核乾板は、製造後から現像処理により感度を持たなくなるまでに、約1年経過している。この間に崩壊がどこまで進むかを考える。放射性核種のエネルギー、寿命等のデータは本論文の最後に記す文献類から引用した。

ネプツニウム系列は半減期が全体的に短く、最も長い連続崩壊でも230万年程度しかない。地球は46億年前に誕生したので、既にほとんどのネプツニウム系列が ^{207}Nb まで崩壊していると考えられ、この系列の核種は観測されない。

アクチニウム系列は天然存在比が0.72%の ^{235}U から崩壊が始まっているので、自然界に存在する量自体が少ないと考えられる。

トリウム系列では始めの ^{232}Th の半減期が141億年と地球寿命の46億年に比べて十分に長いので、地球誕生時に生成した ^{232}Th は崩壊せずにまだ存在している。トリウム系列の場合はいずれも5-prongになり、5本の α 線のうち最初の4本5.423MeV、5.685MeV、6.288MeV、6.779MeVは共通で、最後の5本目のみ8.784MeVと6.051MeVの2種類の崩壊様式に、64.0%と36.0%の崩壊割合で分岐する。この過程で同定できる放射性核種は ^{228}Th 、 ^{224}Ra 、 ^{220}Rn 、 ^{216}Po 、 ^{212}Bi 、 ^{212}Po の6種類である。また、トリウム系列は1-prongもしくは5-prongとして観察され、トリウム系列全体の0.57%が6-prongとなる。

ウラン系列では最初の ^{238}U の半減期は44.7億年であるので、地球誕生時の ^{238}U は十分地球上に存在している。ウラン系列は ^{226}Ra から ^{214}Po までの4.784MeV、5.490MeV、6.003MeV、7.687MeVの4-

prong か、1-prong となる。 この過程で同定できる放射性核種は ^{226}Ra 、 ^{222}Rn 、 ^{218}Po 、 ^{214}Po 、 ^{210}Po の 5 種類である。

α 線の飛跡の長さは α 粒子のエネルギーと正の相関がある。 エネルギーの大きい α 粒子ほど原子核乾板中の飛程が長くなる。飛程を測ることにより、 α 線が放出された元の放射性核種を同定することができる。 飛跡の長さ(飛程)と α 線のエネルギーの関係を求めるために、先行研究として得た 160 個の 5-prong 事象を使って飛跡の長さ順に 5 種の分布を求めた。

α 崩壊する元の核種	^{212}Po	^{216}Po	^{220}Rn	^{212}Bi	^{224}Ra	^{228}Th	^{214}Po	^{226}Ra	^{218}Po	^{222}Rn
飛跡の長さ [μm]	50.17	31.05	27.05	26.12	21.05	18.72	40.02	29.84	19.66	13.18
α 線のエネルギー [MeV]	8.785	6.779	6.288	6.051	5.685	5.423	7.687	4.784	6.003	5.490

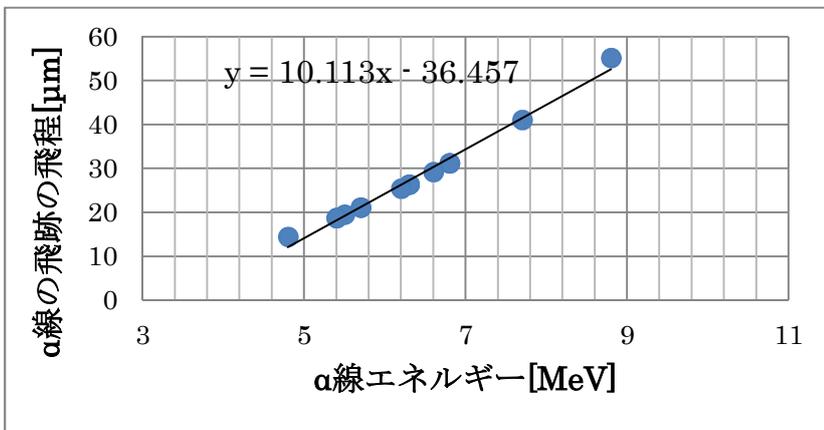


図 2 α 線のエネルギーと飛跡の長さの関係
5-prong 160 事象、4-prong 184 事象の計 433 事象の統計的な結果を利用して求めている。各点が 1 つの核種に相当する。本研究に使用した原子核乾板では、 α 線のエネルギーと飛跡の長さは比例関係があることがわかった。1 次関数として近似したときの直線の傾きおよび切片の値は、文献によると、原子核乾板の種類によって決まる定数とされている。

α 線のエネルギーと原子核乾板中の飛跡の長さの関係が完璧に求まったので、原子核乾板中で α 線の飛跡の長さを測定すれば、 α 線のエネルギーに換算できるようになった。しかしながら表 2 と図 2 から明らかなように、多くの放射性核種で、 α 線のエネルギー値が似ていて大きな差はないため、原子核乾板中の飛跡の長さの差も小さい。飛跡の長さエネルギーの関係が正確に求まっても、1 本の α 線の測定だけでは、崩壊元の放射性核種の同定は、同定ミスをする可能性を含む。

(4) パターンマッチ法

4-prong や 5-prong 事象の場合、これらはウラン系列やトリウム系列の候補となる。これらの系列は文献から連続しておこる α 崩壊で出る 4 本、5 本の α 線のエネルギー値が求まっている。従ってこれらの α 線のエネルギー値に対応する長さの飛跡が原子核乾板中の同一地点から発生していれば、一連の崩壊に伴う核種同定の精度が格段に上がる。

先に述べた「人為的なミス」を回避する方法について述べる。

ア 5-prong 事象の 1 本を見落として 4-prong 事象に分類された場合、4-prong の 4 本のエネルギー値のパターン(文献の値)に一致しない。これを 5-prong の 5 本のパターンの中の 4 本に一致するはずである。

イ 本来 4-prong の事象のものに 1 本の他の α 線が入り込んでいる場合、顕微鏡観察で 5-prong と判断され、5-prong のパターンとは一致しない。これを 5 本のうち 1 本を除いて 4-prong のパターンでマッチングを調べるとある 1 本を除いたときに 4-prong と合致すると、除いた 1 本の α 線が別事象の α 崩壊で、残り 4 本はウラン系列の事象として正しく評価できる。

このように複数の α 線の飛跡の長さとエネルギーのパターンが文献の値とどの程度一致するかを判断の基準にする方法を「パターンマッチ法」と名付けた。基準値とのズレの程度を次式で示すRMS(平均2乗平方根)によって定量する。

$$RMS = \sqrt{\frac{(x_1 - \bar{x}_1)^2 + (x_2 - \bar{x}_2)^2 + (x_3 - \bar{x}_3)^2 + \dots + (x_N - \bar{x}_N)^2}{N}}$$

5本の α 線からなる5-prongの場合 $N=5$ となる。 x_1 は5本のうち最長の飛跡の長さ(実測値)、 x_2 は2番目に長い飛跡の長さの実測値、 x_5 は5本の中で最短の飛跡の長さの実測値を表す。 \bar{x}_1 、 \bar{x}_2 、などは基準値(文献値)の長さを表す。

RMSのヒストグラムから、「基準値と一致して解析が正しい」か、「基準値と一致せず解析が間違っている」かの、閾値を決定する。図3は4-prong事象として観測された集団について、ウラン系列の4-prongのパターンと比べた際の、ズレのRMSのヒストグラムである。RMSが小さいほど基準値がとする許容範囲を決定する。本研究では、図3より求めた4-prongであるU系列の基準値に対するRMSのヒストグラムから、RMSが6 μ m以下を許容範囲とした。6 μ m以下の場合は4-prongとして基準値と一致しているとして解析完了で、RMSが6 μ m以上の場合は4本の基準値からのズレが平均して6 μ m以上ずれていることを意味し、「一致せず、基準の系列ではない」と判断する。

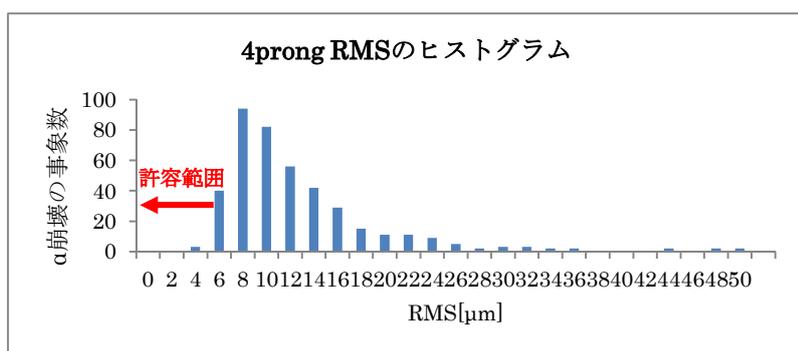


図3 ヒストグラムによるRMSの許容範囲の決定

ウラン系列の4-prongの基準値とマッチングさせたときのRMSのヒストグラム。横軸は1事象4本ごとの基準値とのずれのRMSを表す。

6 μ m以下の場合は4-prongとして基準値と一致しているとして解析完了で、RMSが6 μ m以上の場合は4本の基準値からのズレが平均して6 μ m以上ずれていることを意味し、「一致せず、基準の系列ではない」と判断する。

3 結果

パターンマッチ法により放射性核種の同定の解析をした事象数を表3に、見つけた事象の結果を図4に示す。

表3 パターンマッチ法によって解析した全 α 崩壊事象

1-prong	2-prong	3-prong	4-prong	5-prong	6-prong	合計
262	30	114	415	713	19	1553 事象

図4はそれぞれのprong数ごとのパターンマッチ法による解析の結果である。枠内の数字はその枠の上に表記されている事象の数で、枠上部にどのパターンでの解析であるかを表記している。「抜き」というのは飛跡の除外で、「落ち」というのは飛跡の見落としを意味している。

全てのprong数の事象におけるトリウム系列と特定できた事象のうち36%トリウム系列が404事象、64%トリウム系列が599事象となり、分岐比は40.0% : 60.0%と理論値に非常に近い精度で一致した。パターンマッチ法が精度良く機能していることを実証した。

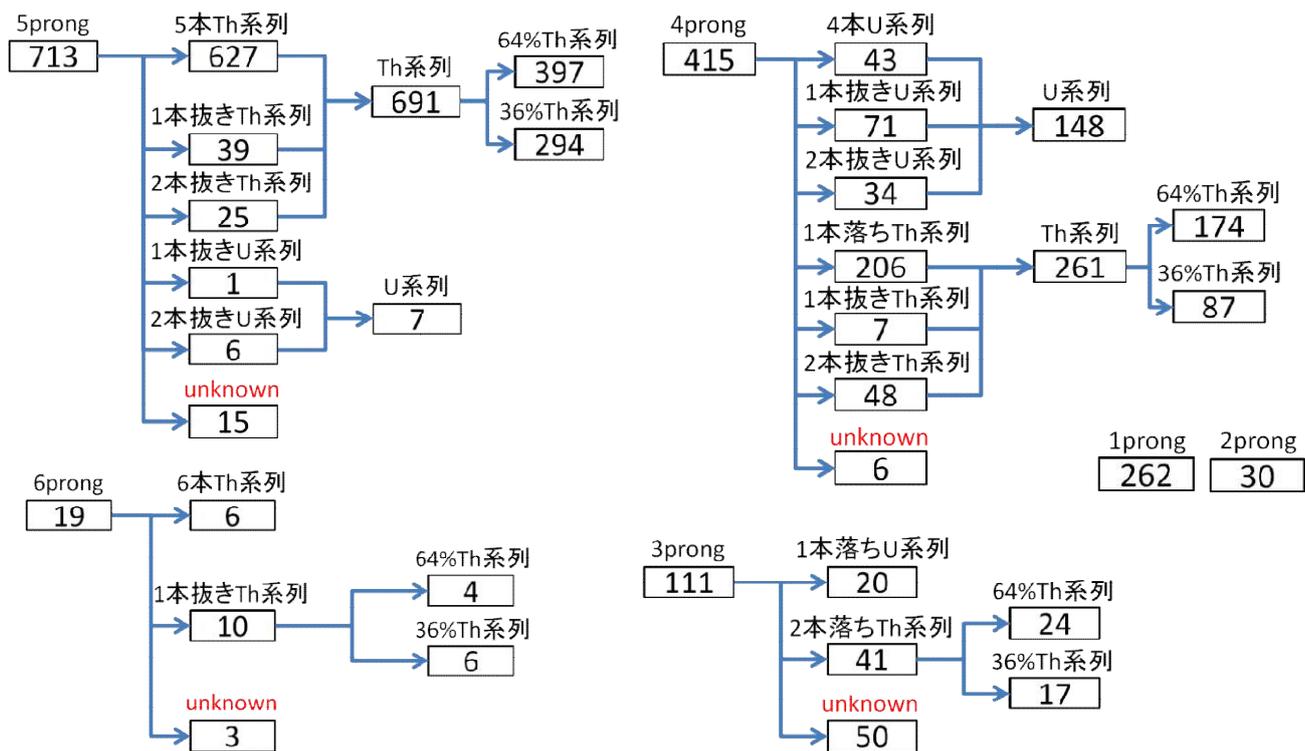


図4 パターンマッチ法による放射性核種同定の解析結果

4 結論

天然に存在する放射性核種から出る α 線を原子核乾板という写真フィルムで捉え、 α 線の飛跡の長さとのエネルギーの対応関係が比例関係であることを大統計で求めた。連続的に起こる放射性崩壊に着目し、飛跡の長さのパターンからパターンマッチ法を開発し、ウラン系列およびトリウム系列の放射性核種を同定した。

5 今後の研究

パターンマッチ法で検証できていない、3-prong、2-prong、1-prong 事象の解析を行う。原子核乾板を用いて β 線の検出を伴う事象の検出を行う。身近な土壌中に含まれる放射性核種の同定をこれまでの研究手法で試す。

参考文献

- [1] 中田祥順, 他, 岐阜県土岐市の花崗岩に含まれる放射性核種同定(2010年, 静岡北高等学校科学部放射線班) [2] 松田茂, 他, 岩石の放射能と応用~岩石から出る放射線で物の内部構造を見る~ (静岡北高等学校科学部) [3] C. F. Powell, The Study of Elementary Particles by the Photographic Method, PERGAMON PRESS., 1959. [4] Radioisotope Pocket Data Book, Ten ed., 日本アイソトープ協会 [5] Richard B. Fire Stone. Table of Isotopes. Volume I, II. Eight ed., 14,000 p. [6] 元素111の新知識(講談社ブルーバックス) [7] Table of Isotopes, Volume I, Volume II (Richard B. Fire stone, Eight Editon) [8] 理科年表(丸善) [9] 放射線概論(通商産業研究社) [10] 放射線管理実習(静岡大学理学部) [11] 理化学辞典 第5版(岩波書店) [12] 放射線計測学(物理学選書7, 裳華房) [13] アイソトープ便覧(日本アイソトープ協会) [14] T. Nakamura, et al., Nucl. Instr. And Meth. A566 (2006) 80 [15] 大規模実験用原子核乾板 OPERA Filmの開発(2005年, 名古屋大学) [16] 高等学校 物理II 教科書(数研出版)