原子核乾板中の放射性元素

天白一馬・一之瀬匡興

Kazuma TENPAKU, Masaoki ICHINOSE : On the Radioactive Elements in Nuclear Plates.

(1957年9月20日受理)

原子核乾板を用いて地下宇宙線をしらべる目的で松代地震観測所内に原子核乾板を露出中であり，その一部を目下測定中である。今回の実験はこの乾板の性質をあらかじめしらべておくためと，地下宇宙線との対比のため山上における宇宙線を記録しておく必要から先ず山上における実験条件の適否をしらべるためである。

実　　験

われわれの使用した乾板は「さくら原子核乾板，乳剤番号 NR-M1, No. 135」であつて，エマルジョンの厚さ 100μ のものである（地下に露出中のものは厚さ 200μ である)。乾板の現像，定着はすべて製作所の処方にしたがつた。また Scanning にはオリンパス双眼顕微鏡を用いた。

まず α-particle に対する stopping power, grain density などを求めるため，既知の α-particle の track を記録して測定した。α-線源としては，手近にあつた Ra を含む夜光塗料（時計の文字板に使用するものであるが輸入先が不明のため成分など明かでない）を用いることとし，最初この資料中に含まれる放射性元素を確認する必要から下のような測定を行つた。

密閉したガラス容器の中に少量の資料をいれ，容器の中にエマネーションを発生させる。エマネーションの中におかれた物体にはエマネーションの崩壊によつて生じた放射性元素が沈積して，活性化されることはよく知られた事実である。いまエマネーションの中に小さい銅板をおき，これを活性化したのち，容器からとりだし，これを陽極とし他の金ぞく小板を陰極として 10mm の距離に対置して，10分間，200ボルトの電圧をかける。このような処置によつて，もしエマネーションが予想される Rn であれば陰極板には Ra B が集められることになる。Ra B は崩壊系列

$$\begin{array}{l} \text{Ra B}\rightarrow\text{Ra C}\rightarrow\text{Ra C}'\rightarrow\text{Ra D}\rightarrow\text{Ra E}\text{—}\text{Ra F}\text{—}\text{Ra G} \\ \qquad\qquad\searrow\text{Ra C}''\nearrow \end{array}$$

にしたがつて崩壊する。そこで Ra B の集められた小板の放射線を β-線用 G・M・カウンターを用いて測定し，その減衰を理論計算と比較することによつて，エマネーションが Rn であることを確かめることにした。この場合，β-崩壊だけがかぞえられることになるから，Ra B→Ra C, Ra C→Ra C′, Ra C″→Ra D, Ra D→Ra E, Ra E→Ra F の崩壊数が問題であるが，このうち Ra C→Ra C″ の比率は極めて小さいし，Ra C′ の半減期は22年の長いものであるから，Ra C″→Ra D, Ra D→Ra E, Ra E→Ra F の崩壊数はほとんど無視してもよい。したがつて，かぞえられる β-崩壊はほとんど Ra B→Ra C および Ra C→Ra D の二つだけと考えてさしつかえない。そこで，いま電圧 200 ボルトをかける最初の時，銅板上に Ra A 原子が N 個あつたとし，Ra B に壊変したものが順次陰極板に集められてゆくとすると，電圧をかけ始めてから 10 分後に陰極板にある Ra B および Ra C の原子の数 〔nB〕 および 〔nC〕 はそれぞれ

$$[nB]=N\frac{\lambda A}{\lambda B-\lambda A}(e^{-10\lambda_A}-e^{-10\lambda_B})$$

$$[nC]=N\frac{\lambda A\cdot\lambda B}{\lambda B-\lambda A}\left[\frac{e^{-10\lambda_A}-e^{-10\lambda_C}}{\lambda C-\lambda A}-\frac{e^{-10\lambda_B}-e^{-10\lambda_C}}{\lambda C-\lambda B}\right]$$

となる。崩壊常数 $\lambda A=0.23\text{min}^{-1}$ $\lambda B=0.026\text{min}^{-1}$ $\lambda C=0.035\text{min}^{-1}$ を代入して計算するとつぎのようになる。

$[nB]=0.756\,N$, $[nC]=0.125\,N$.

10分間電圧をかけた後，ただちに減衰の測定を始めたとすれば，それ以後の Ra B, Ra C の原子の数 N_B およ

び N_C はそれぞれ

$$N_B=[n_B]e^{-\lambda_B t}=0.756Ne^{-0.026t}$$

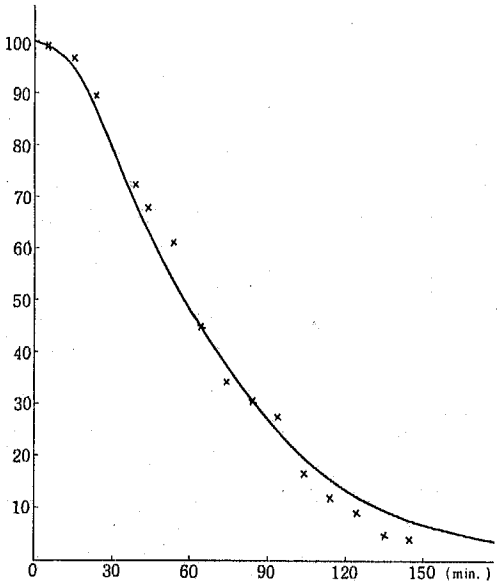
$$N_C=[n_C]e^{-\lambda_C t}+N\frac{\lambda_A\lambda_B(e^{-10\lambda_A}-e^{-10\lambda_B})}{(\lambda_B-\lambda_A)(\lambda_C-\lambda_B)}\times(e^{-\lambda_B t}-e^{-\lambda_C t})$$

$$=N(2.185e^{-0.026t}-2.06e^{-0.035t})$$

となる。したがつて G·M カウンターの計数の割合は崩壊の割合

$$\lambda_B N_B+\lambda_C N_C=N(0.096e^{-0.026t}-0.072e^{-0.035t})$$

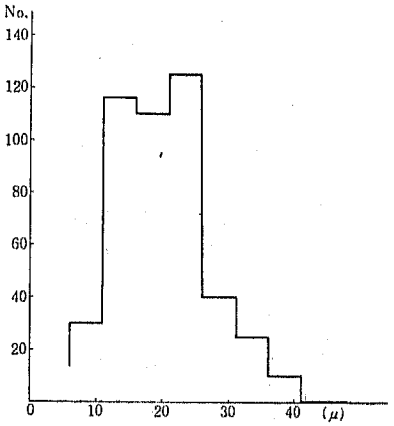
に比例することになる。この計数の割合を $t=0$ の時の値を 100 としてグラフにしてみると第1図の曲線のようになる。



第1図

これに実測値（$t=0$ の点を一致させる）をプロットすると誤差内で一致していることがわかる。さらに念のため上に得た放射性沈積物について，ローリッチェン検電器を用いて減衰曲線をつくつてみると，これもよく測定されている Rn エマネーションの中での沈積物の減衰に一致することがわかる。もしエマネーションが Tn であれば ThB の半減期が長いため，ずつとゆるやかな減衰になり明かにちがつた曲線になるはずである。〔Ac-系列は天然においても極めて少い存在比しかないから，これが資料の主成分になつているはずがないから考えない〕以上の結果からわれわれが用いた資料の中の放射性元素は，少くとも大部分は Ra-系列のものであるといつてよい。

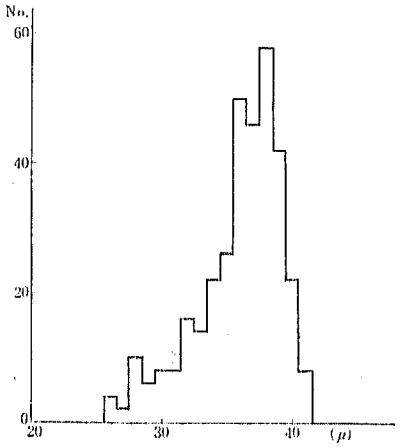
上の Rn エマネーションの中に原子核乾板をさらし，または，放射性沈積物によつて活性化した銅板を乾板に密着させて α-particle の track を記録した。まず乾板をじかにエマネーションにさらした場合に記録された α-track の長さを測定して，長さと頻度との関係をグラフにしてみると第2図のようになる。これらの track



第2図

の中には Rn，Ra A，Ra C，Ra C′，Ra F の放出する α-particle が含まれるはずであるが，放射原子は α-particle を放出するとき，エマルジョンの表面にあるとは限らないから，track は α-particle の飛跡の全長とは限らない。したがつてグラフのピークの位置をそのまま各原子の α-particle の track length に対応させることはできない。しかし，図において 42μ 以上の track が全く含まれていないことから，2％の誤差を見込んで（Demers によると 4～8.5 Mev の α-particle に対しては2％以上の精度で決定できる），40μ が最大エネルギーの α-particle の全長を示すものとみることができる。この限界をもう少し明確にするため，エマネーションの中にさらし，活性化した銅板を乾板に密着させて α-track をつくり，その中からできるだけ長い track だけを拾いだして track length と頻度との関係をグラフにした。その結果は第3図のようになり，やはり 40μ のところに track length の最大がはつきりでる。それ故，最大値 40μ が最大エネルギーの Ra C′ の α-particle の全長であるということができる。そこで Ra C′ の α-particle の mean range 6.91 cm からこれに対する

stopping power は $6.91/40\times10^{-4}=1720$ となる。こ

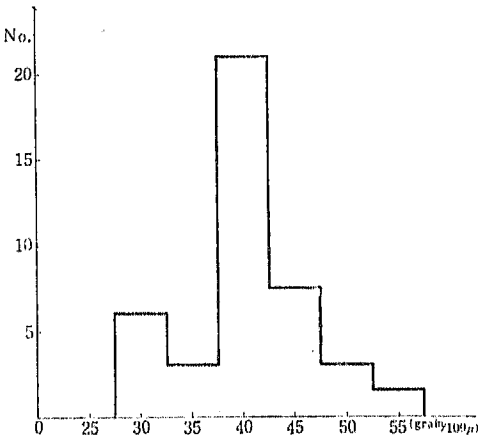


第3図

の値は他の種類の原子核乾板のそれとほとんど変りはなく，したがつて妥当な値とみるならば，40μ を大きく越える α-track が全く見当らないことは，用いた放射性物質の中に Th-系列の放射性原子が含まれていないことを同時に証明するものである。もし Th-系列の原子が入つていれば ThC′ の α-track として 50μ 近くのものが入つてこなければならぬからである。

つぎに track の grain の大きさについてみるに，α-track はほとんど連続していて，grain を一つずつ見ることは困難であるが，宇宙線の track について grain の大きさの平均を求めると大体 0.3μ 程度である。この値を基礎にして α-track の grain density を求めると平均 190 grains per 100μ となる。また乾板の minimum grain density を求めるため宇宙線スターの中の thin trackに近いと思われるものだけを40本あまり拾いだし，その grain density と頻度をグラフにしてみると第4図のようになる。これからこの乾板の minimum grain density は大体 40 grains per 100μ であることがわかる。

以上は放射性物質を用いてしらべた乾板の性質の一部であるが，つぎに乾板のバックグラウンドについてしらべた結果をのべることにする。宇宙線を記録して他の地点におけるものと比べ，乾板の性質や実験条件について検討するため，高度 2100m の山頂（長野県，小県郡，烏帽子）に約2ケ月間，乾板を露出した。この乾板をしらべた結果，宇宙線の track と共に天然放射性元素に



第4図

よる α-track が数多く見出された。乾板中の放射性元素についてはすでによく知られた事実であるが，われわれの乾板でもその頻度や種類について一応しらべておく必要があつた。まず乾板の露出条件から説明すると，乾板は遮光用の黒紙に一枚ずついれ，6枚を一組として気密にしたセルロイドの箱の中に，ほぼ鉛直の姿勢で固定した。箱はさらにビニールの袋によつて二重につつみ，外部からの湿気の侵入を厳重に防止したうえ，山頂に露天のまま設置した。この場所の気温は日中平均 15°C 程度であるが，日中と夜間との気温の差は相当はげしいと思われる。しかし正確な測定はできなかつた。また湿度については，乾板の設置に際して外からの湿気の侵入を厳重に防いだはずであつたが，なお不完全であつたため多少の湿気が侵入したことが後でわかつた。これらの点から考えて気温，湿度が乾板の fading にある程度えいきようがあつたと思われるが正確なことはいまのところ不明である。得られた track の集計は第1表の通りである。

第1表

(Single Tracks)

plate の番号	Ⅰの1	Ⅵの2	Ⅵの4
track の 総 数	4666	4693	1755
観測したエマルジョンの体積 (mm³)	169.4	153.0	133.0
track 数 /cc·day	458.7	510.7	219.7

(Stars)

	prong	Ⅱ	Ⅲ	Ⅳ	Ⅴ	Ⅵ	Ⅶ	Ⅷ	Ⅸ
Ⅵの2	star の 総 数	811	463	102	16	1	2	0	0
	宇宙線 star (n)	270	82	25	10	1	2	0	0
	n / cc ・ day	23.7	7.2	2.2	0.9	0.1	0.2	0	0
Ⅵの4	star の 総 数	354	249	51	15	1	0	0	1
	宇宙線 star (n)	64	56	13	9	1	0	0	1
	n / cc ・ day	6.4	5.6	1.3	0.9	0.1	0	0	0.1
計	宇宙線 star (n)	334	138	38	19	2	2	0	1
	n / cc ・ day	28.0	12.6	3.3	1.7	0.2	0.2	0	0.1

第2表

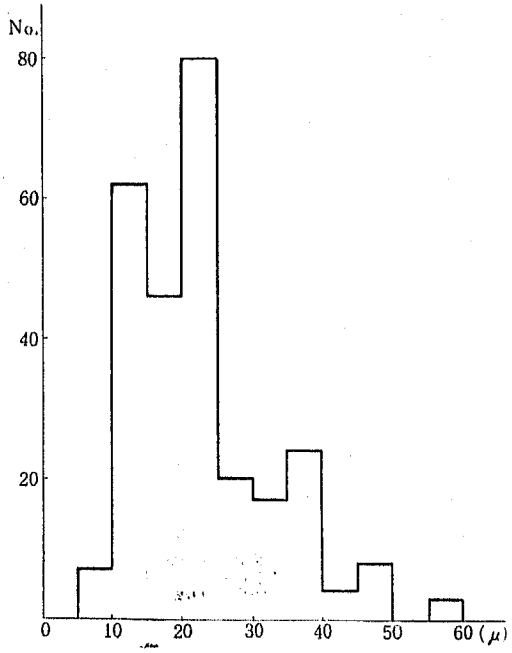
(n/cc・day)

prong	Ⅱ	Ⅲ	Ⅳ	Ⅴ	Ⅵ	Ⅶ	Ⅷ	Ⅸ	Ⅹ	計
烏帽子 (%)	28.0 (60.8)	12.6 (27.3)	3.3 (7.2)	1.7 (3.6)	0.2 (0.4)	0.2 (0.4)	0 (0)	0.1 (0.2)	0 (0)	46
乗鞍 (%)	10.9 (19.8)	16.4 (29.9)	15.6 (28.4)	9.3 (16.9)	2.1 (3.8)	0.21 (0.37)	0.21 (0.37)	0.21 (0.37)	0	54.93
富士山 (%)	31.0 (31)	34.0 (34)	27 (27)	7 (7)	0.7 (0.7)	0 (0)	0 (0)	0 (0)		99.7

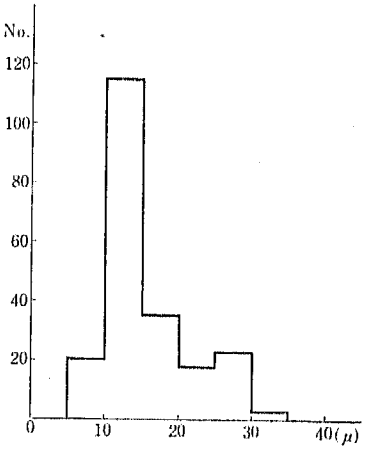
これらの結果を総計したうえ，乗鞍，富士山におけるデーターと比較してみると第2表のようになる。

表によると総計においては prong Ⅱ，Ⅲ のものが極めて多いことと prong が Ⅳ 以上のものが急げきに減少していることがわかる。prong Ⅱ，Ⅲ のものが多い原因は乾板中の放射性物質の崩壊による α-particle のためであることは容易にわかる。それで 50μ（天然放射性原子の α-particle による track length の限界とみてよい）程度を越える prong を1本も含まず，しかもどの prong も α-track であることが明瞭なものだけを拾つて track length と頻度との関係をグラフにしてみると第5図のようになる。このグラフの大体の傾向は第2図と類似しているが，放射性原子による α-track であることがはつきりしているもので 50μ前後のものも含まれているところから ThC′ も含まれていることがわかる。また，50μ 以下の single track について同様のグラフをつくると第6図のようになる。

single track の方は頻度の maximum が 15μ近くに移り，lengh の maximum も 30μ を少し越す程度になつている。single track が一般に短いのは，これら放射性原子がガラスの中にあつて，何本かの α-track の



第5図



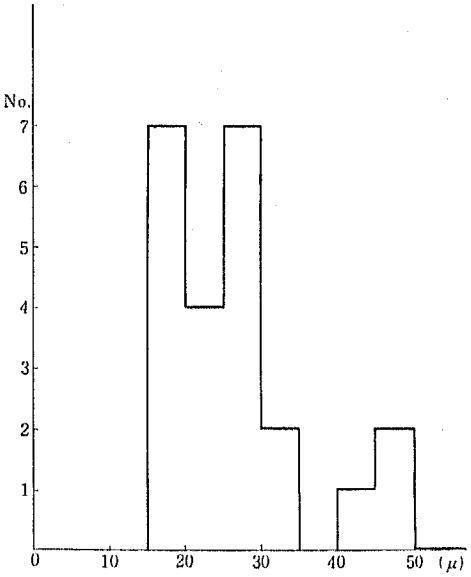
第6図

うちの一本がエマルジョンに入つたためであると思われる。第一表から放射性原子による α-track の密度を求めると plate により多少違うが大体 100〜150 tracks/cm² 程度となる。

第2図と第4図は傾向の類似したグラフであるが，このような分布状態になるのは天然放射性物質の場合の傾向であるように思われる。この点について考えて見るに，乾板の中に含まれる放射性原子の種るい，および割合は不明であるが天然に存在するこれら原子の存在比からみて Ac-系列のものは Ra，Th 系列のものに比べて無視できるほど少いと思われる。それで Ra および Th 系列の原子だけがあるとして，これらが仮りに天然に存在する時の放射性平衡の状態の割合を乾板中でも推持していると仮定するならば，各系列の各種原子が一定期間中に壊変する数はほぼ等しいはずである。すると各系列の α-track の長さと頻度との関係は α-particle のエネルギー (mean range) の分布状態できまることとなる。いま，stopping power を一定値1720として，各系列について α-particle の track legth を mean range から計算して，これを横座標としてプロットし，第5図との比較のため 5μ ずつの間かくに区切つて各区間に含まれるプロットの数を縦座標としてグラフをつくる。Ra 系列および Th 系列についてつくつた両グラフを適当な weight で重ね合せて第5図の形に近づけることができるかどうかをみるため Th-系列を Ra-系列の2倍の weight をつけて試みた。それが第7図である。第7図と第5図とは類似の傾向を示しているとみられるが，この比較から Th-系列の原子の崩壊数の方が Ra-系列の原子の崩壊数の2倍程度であると結論するには，第5図をつくるためのデーターが少なすぎる。したがつて今の比較は乾板中の放射性原子の存在を確認する側面的な証明にすぎない。しかしデーターを多くして第5図の統計的精度をあげれば，乾板の混入物としての放射性元素ばかりでなく，人工的に混入させて研究する場合にも上のような比較の方法で放射性物質の系列の崩壊数割合を算定できることも考えられる。

乾板中の放射性原子によるとみられるバックグラウンドの α-track を除いた宇宙線だけの track についてみると，第2表でもわかるように鳥帽子とあまり高度のちがわない乗鞍，其他の地点におけるデーターと比較して，なお，prong Ⅱ のものが不自然に多く，prong Ⅳ 以上が少なすぎる傾向がある。これは prong の多い star の thin track が fading によつて消失し prong の少い方にかぞえられたためではないかと考えられる。このように考えられるのは，star 全体の頻度 46/cc·day は乗鞍の 55/cc・day，富士山の 100/cc・day に比べて高度の差を考慮して，ほぼ妥当な値とみられるにも拘らず prong の少い方のパーセンテージが大きすぎるからである。この fading effect については次回の実験ではつきりさせたい。

われわれの用いた乾板はエマルジョンの厚さ 100μ の比較的うすいものであつたため，single track も star もエマルジョンの中で止つている track が極めて少く，



第7図

したがつて particles の性質を詳しく分析することはできなかつた。現在地下に露出中のものは 200μ であるから，この点は多少有利なはずである。single track の中に $\pi \rightarrow \mu \rightarrow e$ decay と思われるものは1本も含まれなかつたが star の中に $Li^8 \rightarrow 2He^4 + \beta^- + \nu$ の Hammer track が1本あつた。

摘　　要

地下宇宙線を記録するため目下使用中の原子核乾板について，あらかじめその性質を知る必要から，放射性元素の α-particle を用いて stopping power, grain density および minimum grain density を求めておいた。またバックグラウンドを知るため，山上で宇宙線を記録した乾板についてしらべた結果，天然放射性原子の α-track が数多く見出された。それらの頻度をしらべると共に track length の頻度分布から，崩壊系列の比率が推定できるか否かをみた。しかしこの種の測定に必要と思われる充分のデーターが不足していたため決定的な結果は得られなかつたが，データーを充分増せば可能であることを認めた。

山上における宇宙線の実験条件はほぼ良好であることがわかつたので実験を続行する予定であるが，fading を極力へらす条件を考えねばならぬことがわかつた。この点は次回の実験でたしかめることにした。

最後に乾板を無償で提供して下さつた小西六写真工業 K・K・化学研究所の若林康夫氏に厚く感謝すると共に，乾板の scanning に努力してくれた内藤勝之君に厚くお礼を申し上げる。

参 考 文 献

H. YAGODA : Radioactive Measurements with Nuclear Emulsion.

素粒子論研究会：原子核宇宙線の実験

C. F. POWELL, G. P. S. OCCHIALINI & D. L. LIVESY : J. Sci. Instruments, 23, 102～106 (1946).

H. YAGODA, N. KAPLAN : Phys. Rev., 71, 910 (1947).

G. P. S. OCCHIALINI, C. F. Powell : Nature, 159, 189 (1947).

W. KNOWLES, P. DEMERS : Phys. Rev., 72, 535 (1947).