

論 文 内 容 の 要 旨

固体飛跡検出器は、重荷電粒子の飛跡を固体中に記録する検出器で、1958年のYoungによるフッ化リチウム中の核分裂片の飛跡(Fission Track; FT)の発見以降さまざまな検出器が開発されてきた。DAP(diallyl phthalate)樹脂は、眼鏡レンズや工業部品などに使用されているプラスチック素材であるが、近年では核分裂片のような電荷および質量の大きな重荷電粒子のみを検出する固体飛跡検出器として注目されてきている。DAP樹脂はFTに対してほぼ100%の検出感度を持ち、耐熱性や耐 γ 線性にも優れていることが確認されている。本論文は、DAP樹脂の更なる改良を目指し、また、検出器としてのDAP樹脂をFT年代測定分野の研究に応用したものである。本論文は全5章で構成されている。それぞれの章の概要は以下のとおりである。

第1章(フィッシュントラック年代測定法の現状)では、FT年代測定法の歴史的背景、原理および問題点について述べている。FT年代測定法は、世界で広く用いられている放射年代測定法の一つであるが、最近まで以下の問題点が残されてきた。まず、FT法で一般に用いられる白雲母検出器は原子炉照射後の誘導放射能濃度が高いことが挙げられる。次に、全てのFTを人間が計数するFT法では、測定精度が低くなりがちであるということがある。最後に、最大の問題点として、FT法の年代値計算の基準となるU-238の自発核分裂壊変定数(λ)が確定されていないということがある。これまでの主な報告例は約 $7.0 \times 10^{-17} \text{ yr}^{-1}$ または約 $8.5 \times 10^{-17} \text{ yr}^{-1}$ の2つのグループに大きく分かれ、その各々を用いた年代値は約20%異なることになる。そのため、他の年代測定法(K-Ar法、Ar/Ar法など)で正確に年代値を決められている標準試料を用いた相対年代測定が行われてきている。

第2章(固体飛跡検出器としてのDAP樹脂の特性)では、これまでに行われているDAP樹脂のFT検出器としての特性についての研究結果を紹介し、更に、3種類のDAPモノマーの異性体およびその混合物からDAP樹脂板を調製し、それぞれのFT検出器としての特性を明らかにした。

調製したDAP樹脂板に ^{252}Cf 標準線源を用いてFTおよび α トラックを形成させ、エタノールと水の混合溶媒中にKOHを溶解させたPEW溶液およびKOH水溶液の2種類でエッチングを行った。その結果、全てのDAP樹脂板においてほぼ100%のFTが検出され、 α トラックは検出されなかった。したがって、調製したDAP樹脂板はどれもFT検出器としての基本的な特性を満足していることが明らかになった。

調製したDAP樹脂の強度、加工の容易さの点では、オルソ型のDAPモノマーを主成分とした樹脂板とメタ型のDAPモノマーを100%使用した樹脂板が優れていた。エッチング速度はオルソ型のDAP樹脂板が最も速かった。また、エッチング前にオープンでDAP樹脂板を加熱し、FTの熱安定性を調べた結果においてもオルソ型のDAP樹脂板が最も優れていた。

氏 名	吉 岡 哲
学位の種類	博 士 (工学)
学位記番号	工 第 1 6 4 号
学位授与の日付	平 成 1 8 年 3 月 2 2 日
学位授与の要件	学位規程第4条第1項該当
学位論文題目	DAP樹脂のフィッシュントラック年代測定法への応用に関する研究
論文審査委員 (主 査)	教 授 鶴 田 隆 雄
(副主査)	教 授 大 澤 孝 明
(副主査)	教 授 内 田 熊 男

以上の結果から、FT を検出するための検出器としては、オルソ型モノマーを用いた樹脂板が最も優れていることが確認された。次章以降において記述の無い DAP 樹脂板は全てオルソ型モノマーを材料としたものである。

第 3 章(フィッシュトラック年代測定法への DAP 検出器の適用)では、FT 年代測定法において、上記の DAP 樹脂を外部検出器として利用するため、いくつかの基礎実験を行い、その特性を明らかにした。その結果、以下のことが確認された。

原子炉内で熱中性子照射を行った DAP 樹脂板を KOH 水溶液でエッチングしたところ、FT に加えて高速中性子による反跳粒子飛跡(リコイルトラック)が出現したが、PEW 溶液を用いてエッチングすることでリコイルトラックを検出せずに FT のみを検出することができた。

原子炉照射後の DAP 樹脂板を KOH 水溶液および PEW 溶液で段階エッチングを行い、最適エッチング時間を決定した。この時のエッチングに要する時間は、原子炉で照射を行っていない DAP 樹脂板に比べて短くなったが、これは原子炉の照射場での γ 線の影響であると考えられる。

また、DAP 樹脂板と従来 FT 法の外部検出器として使用されてきた白雲母の FT 検出効率を比較し、DAP 樹脂板の FT 検出効率は白雲母のそれに比べてわずかに高いことが確認された。

更に、PEW 溶液でエッチングした DAP 樹脂板上の FT は自動計測に適した形状をしており、自動測定が十分に実用的であることが確認された。これによって測定対象が視認できるという FT 年代測定法の特長を生かしたまま年代値の精度を向上させる道が開かれた。

第 4 章(フィッシュトラック年代測定法で用いられる材料の中性子誘導放射能の検討および年代測定手順の改良)では、従来の白雲母検出器、本論文で提案した DAP 検出器、年代測定に用いる 3 種類の鉱物(ジルコン、アパタイトおよびスフェーン)、年代測定時に用いるウラン入り標準ガラスについて原子炉で熱中性子照射を行い、照射後に試料表面の実効線量率の測定および試料の放射化分析を行った。

一般に取り扱う量について、照射物から取扱者が受ける被曝量を算出すると、照射直後には白雲母と標準ガラスによる実効線量率が最も高く、3 種類の鉱物がそれに続き、DAP 樹脂による実効線量率はそれらより 2 桁以上低かった。約 1ヶ月後では、アパタイトが $31.4\mu\text{Sv/h}$ と最も高く、白雲母、標準ガラス、ジルコンおよびスフェーンは約 $3\sim 5\mu\text{Sv/h}$ 、DAP 樹脂では $0.8\mu\text{Sv/h}$ と最も低かった。

放射化分析の結果、DAP 樹脂には極めて微量(約 44ppt)の Br-82 が不純物として含まれていることが確認された。白雲母には半減期の長い Sc-46 や Ta-182 などが検出された。また、ジルコンから Hf-181, Zr-95, Sc-46 などが、アパタイトから La-140, Se-141, Sc-46 などの希土類が、スフェーンからは Os-191 や Pa-233 などが主に検出された。

これらの結果を基に年代測定従事者が 1 年間に受ける実効線量を評価し、照射後に測定を行う必要がある外部検出器としては、DAP 樹脂は従来の白雲母に比べて優れた材料であることが確認された。また、測定手順を再検討し、鉱物の自発 FT 測定は照射前に行うことが理想的であると判断された。

第 5 章(CR-39 および DAP 検出器を用いた U-238 の自発核分裂壊変定数の決定)では、FT 年代測定法における最も重要な要素の一つである U-238 の自発核分裂壊変定数(λ_s)を決定した。これまでの固体飛跡検出器を用いた λ_s 研究では、ウランの量を求めるために原子炉での中性子照射が必要となる。しかし、本研究では、CR-39 樹脂板と DAP 樹脂板を用いて α トラックと FT を検出することで原子炉照射を行うことなく λ_s を決定する方法を開発し、その方法を用いて λ_s 値を決定した。

本研究で用いた方法は、これまでに大変高い精度および確度で決められている U-238 の α 壊変定数に対して λ_s を相対的に決定する方法である。本方法では、薄いウラン標準線源に CR-39 樹脂板または DAP 樹脂板を一定時間密着させ、その間にそれぞれに α 粒子と核分裂片を照射させた。その後、CR-39 および DAP 検出器をエッチングし、CR-39 樹脂板上の α トラックおよび DAP 樹脂板上の FT を計数することによって λ_s を決定した。

この方法では、原子炉での中性子照射が必要でない代わりに、各検出器のトラック検出効率の決定が重要な要素となる。検出効率の決定には、バルクおよびトラックエッチング速度の測定が必要である。トラックエッチング速度はエッチングによるトラックの長さの変化を測定することで得ることができる。一方、バルクエッチング速度は、エッチング前後の樹脂板の厚さの変化から求めることができる。

ここで得られた α トラックおよび FT の密度と各樹脂の検出効率を用いることで、 λ_s 値として $(8.51 \pm 0.18) \times 10^{-17} \text{ yr}^{-1}$ を得た。固体飛跡検出器を用いた λ_s 研究では、1980 年ごろまでは約 $7.0 \times 10^{-17} \text{ yr}^{-1}$ の値が報告されていたが、それ以降は約 $8.5 \times 10^{-17} \text{ yr}^{-1}$ の値の報告が多い。その理由としては、原子炉の中性子フラックスを求めるために天然ウランモニターを用いて熱中性子測定に依存しないよう特別の配慮を施しているからだと考えられる。本研究で得られた λ_s 値も、これらの最近の研究と調和的な結果となった。

以上の結果より、DAP 樹脂板を検出器として使用する FT 年代測定法を確立し、これまでに使用されていた白雲母検出器に対する利点を明らかにした。さらに、CR-39 樹脂板と DAP 樹脂板を併用することで U-238 の核分裂壊変定数を決定することが出来た。これらの成果を用いることで、今後、他の年代測定法への依存を排除した FT 絶対年代測定への可能性が開かれた。

論文審査結果の要旨

本研究は、質量および電荷の大きい重荷電粒子のみを検出する固体飛跡検出器として近年注目されてきている DAP 樹脂を用い、フィッシュトラック(FT)年代測定法の改良およびその応用研究を行ったものである。本論文は 5 章より構成されており、それぞれの章の概要は以下の通りである。

第 1 章では、放射年代測定法の一つである FT 年代測定法の歴史的背景、原理および問題点について言及している。FT 法は約 10 万年から 10 億年程度の広い年代幅を持ち、石油探鉱や大規模建造物の建築事前調査などに幅広く利用されている。本章では、物理現象から式の展開を行い、放射壊変および年代算定式導き出し記述している。また、FT 年代測定法の問題点として、放射化の問題、測定精度の問題および U-238 の自発核分裂壊変定数が未確定である問題を挙げている。

第 2 章では、これまでに行われている DAP 樹脂の FT 検出器としての研究結果を紹介している。また、オルソ、メタおよびパラ型の 3 種類の DAP モノマーの異性体およびその混合物から DAP 樹脂板を調製し、それぞれの FT 検出器としての特性を明らかにしている。調製後の板の取り扱い、加工の容易さ、エッチング速度および板上の FT の熱安定性について調べ、オルソ型 DAP モノマーを主成分とした DAP 樹脂板が最も優れていることを明らかにしている。

第 3 章では、FT 年代測定法の外部検出器に DAP 樹脂板を適用するための基礎実験を行い、従来使用されてきた白雲母検出器に比べて DAP 樹脂検出器が高い性能を発揮することを明らかにしている。また、PEW 溶液でエッチングを行った DAP 樹脂板上の FT について、画像処理による自動計数が実用的であることを明らかにしている。この成果により、FT 年代測定法の測定対象物が顕微鏡下で確認できるという特徴を保ったまま測定精度を向上させることが可能となる。

第 4 章では、FT 年代測定法で用いられる材料(外部検出器として使用される白雲母および DAP 樹脂、測定対象鉱物のジルコン・アパタイト・スフェーンおよび照射線量

測定用のウラン入り標準ガラス)について試料表面の実効線量率の測定を行い、DAP 樹脂の実効線量率が白雲母、標準ガラスおよび 3 種類の鉱物に比べて 2 桁以上低いことを明らかにしている。また、 γ 線スペクトル分析を行い、それぞれの材料に含まれる核種を明らかにしている。さらに、これらの結果から、FT 年代測定従事者が 1 年間に受ける実効線量を評価し、より放射線被曝の恐れが少ない改良された測定手順を提案している。

第 5 章では、FT 年代測定法の年代算定式において重要な要素である核分裂壊変定数(λ_f)に対して、前述の DAP 樹脂板と CR-39 樹脂板を用いた新しい測定方法を提案し、その方法を用いて独自に λ_f 値を測定している。本論文で提案された方法では、従来の固体飛跡検出器を用いた λ_f 測定法において、ウラン濃度を求めるために必須であった原子炉での照射を必要としないという特徴がある。その代わりに各検出器のトラック検出効率の決定が重要な要素となる。トラック検出効率はバルクおよびトラックエッチング速度を用いて求められており、詳しく議論されている。 λ_f 値としては $(8.51 \pm 0.18) \times 10^{-17} \text{ yr}^{-1}$ という値が得られており、これまでの研究結果と比較、検討されている。また、この値を用いた FT 絶対年代測定の可能性についても言及されている。

以上、提出された論文に基づいてその研究成果に対する審査を行った結果、本研究で得られた知見は学術的および工学的にも有意義であり、博士(工学)の学位論文として十分に価値のあるものと認めた。