

## 2. 佐渡鉛に含まれるアルファ線放出体の測定 (アルファ線放出体の同定)

平成8年4月30日  
東北大学金属材料研究所  
付属材料試験炉利用施設  
三頭聰明

本年3月に真空冶金株式会社開発本部東口安宏部長の御好意で、佐渡・相川町教育委員会所有の佐渡金山遺物の鉛資料を実験資料として提供された。(以下、佐渡鉛と記す。)当初、露天に放置された鉛であると推定し、かなりの $^{210}\text{Po}$ の汚染があるものと考え、アルファ線の測定とサーベイを行ったが、今日一般に流通している鉛金属より1桁以上低いレベルの信号が得られたにすぎなかった。そこで、現在所有する最もバックグラウンド計数の小さいシリコン半導体検出器で、通常のアルファ線エネルギースペクトル測定装置を組み立て、アルファ線を放出する放射性同位体の同定を試みた。

### 1、測定資料の作成

提供された佐渡鉛の資料は、厚さ約1.5mmの板状資料で、その表面には、砂粒と思われる汚染物が付着していた。砂粒が目視できなくなるまで、両面をエメリーペーパーで磨いた後、次の手順でアルファ線測定用の薄い線源を作成した。

- 1、約5gの試料を切り取り、予め作成した厚さ0.5mmの高速度鋼の板2枚で挟み、ローラーを用いて約0.3mmに圧延した。
- 2、圧延した試料を50×50mmに切り出し、アルミニウム板上に両面テープで固定する。
- 3、鉛の表面をアルミナペーストで鏡面研磨し、超音波洗浄した後乾燥し、厚さ約0.05mm(50mg/cm<sup>2</sup>)のアルファ線測定線源とする。線源の鉛の厚さは、500万ボルトのアルファ線の飛程の約3倍である。従って、測定されるアルファ線のエネルギースペクトルは、鉛中でのエネルギー損失が大きく、本来のエネルギー値から低エネルギー側に幅広く裾を引いた形状となる。

### 2、測定装置

アルファ線は有効表面積900mm<sup>2</sup>のシリコン半導体検出器で検出し、その信号をプリアンプ、主増幅器で比例増幅して、アルファ線エネルギーに比例する電圧パルスに変換する。得られたパルスをパーソナルコンピュータに組み込んだ1024チャンネルパルス波高分析装置(以下、PC-MCAと記す。)で分析し、エネルギースペクトルを得た。測定装置の構成と仕様は下記の通りである。

- ・シリコン半導体検出器：EG&GORTEC製 BU-033-900-100
- ・バイアス電源：EG&GORTEC製 428 Detector Bias Supply
- ・主増幅器：EG&GORTEC製 570 Amplifier
- ・PC-MCA・ADC：Labo.Eq.製 ウィルキンソン型200Mhz-8192ch(1024chで使用)

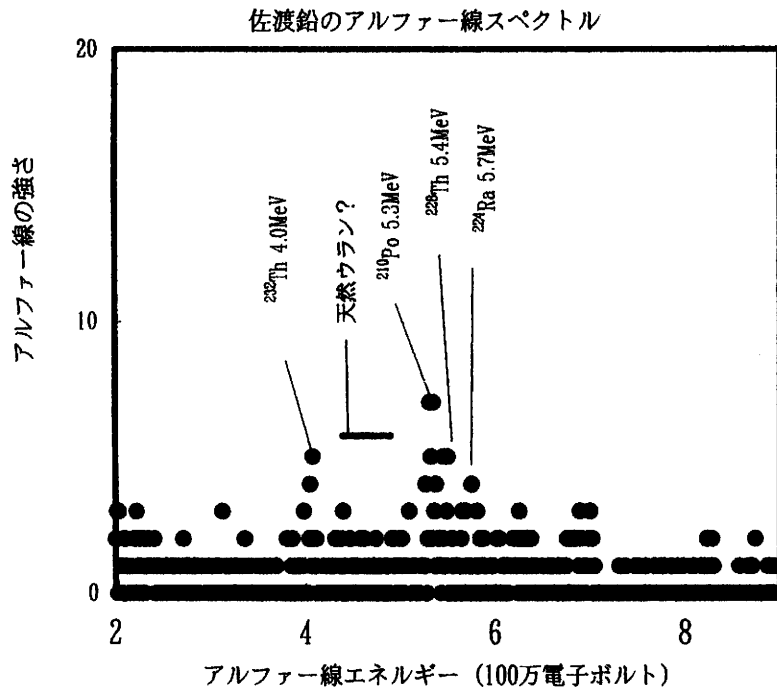
PC：Dell Optiplex466/Le (Windows-95) 24MB-Ram 1GB-HD

測定電源は、ロータリーポンプで排気された真空槽の中で検出器表面より5mmの距離に置いて、1000000秒連続測定を行った。尚、測定装置の自然放射線に基づくバックグラウンドは、200万ボルトから900万ボルトの範囲で毎秒  $(2.02 \pm 0.35) \times 10^{-4}$  カウントであり、そのスペクトルには有意なピークは見られず、ベータ線と宇宙線がバックグラウンドの主成分である。

### 3、測定結果

上記の線源を1000000秒測定した結果を下図に示す。200万電子ボルトから900万電子ボルトの範囲の全計数値は280カウントであり、バックグラウンドより明らかに大きな値である。そのうちアルファ線のピークに相当する部分の計数は約75カウントである。係数効率率は18.8%であるので、佐渡鉛の表面1cmあたり10万秒に1~2個のアルファ線が放出されていることを示す。

そのスペクトルには、 $^{232}\text{Th}$ 、 $^{228}\text{Th}$ 、 $^{224}\text{Ra}$ と $^{210}\text{Po}$ のアルファ線エネルギーに相当するピークが認められる。このうち $^{232}\text{Th}$ 、 $^{228}\text{Th}$ 、 $^{224}\text{Ra}$ に相当するピークの大きさはほぼ等しく、これらの核種が放射平衡にあると考えて差し支えない。アルファ線のエネルギー分解能が充分でないので、 $^{210}\text{Po}$ と $^{228}\text{Th}$ のピーク強度を正確に把握することは困難であるが、 $^{210}\text{Po}$ は $^{232}\text{Th}$ 系列核種の約2倍の放射能強度を持つと判断できる。



### 4、 $^{210}\text{Po}$ が含まれる原因について

$^{210}\text{Po}$ の半減期は138.8日であり、佐渡鉛は20年以上放置されていたとして、それに $^{210}\text{Po}$ が含まれている原因としては、次の三つの可能性が考えられる。

- 1、半減期22.3年のウラン系列核種の $^{210}\text{Pb}$ が佐渡鉛に含まれており、それと放射平衡にある $^{210}\text{Po}$ が検出された。
- 2、ウラン系列の $^{210}\text{Po}$ の先行核種で、より半減期の長い $^{238}\text{U}$ 、 $^{234}\text{U}$ 、 $^{230}\text{Th}$ 、 $^{226}\text{Ra}$ が含まれており、それと放射平衡にある $^{210}\text{Po}$ が検出された。

3、空気中に存在する<sup>222</sup>Rnの放射性壊変で生じる<sup>210</sup>Poが佐渡鉛に沈着し、それが検出された。

スペクトル図において、ウランと示した領域には、ウラン系列核種が存在すれば<sup>238</sup>U、<sup>234</sup>U、<sup>230</sup>Th、<sup>226</sup>Raアルファ線が観測されなければならない。しかし、スペクトル図に示されているように、ウラン系列の有意なアルファ線は検出されなかった。このことは、現在の佐渡鉛中の<sup>238</sup>U、<sup>234</sup>U、<sup>230</sup>Th、<sup>226</sup>Raの含有量がトリウム系列に比べてはるかに小さいことを意味する。従って、今回見出された<sup>210</sup>Poの全てを上記2で説明することはできない。

<sup>210</sup>Pbはアルファ線を放出しないので、今回の測定だけでは<sup>210</sup>Pbの有無について直接の情報は得られない。<sup>210</sup>Pbの寿命は地質年代に比べれば非常に短いので、<sup>210</sup>Pbの存在は、原料鉛又は鉱石中にウラン系列の<sup>238</sup>U、<sup>234</sup>U、<sup>230</sup>Th、<sup>226</sup>Ra等の先行核種が存在していて、それが鉛の精製過程で除去されたことを意味する。しかも、<sup>210</sup>Pbが放射性壊変で減衰消滅していないことは、精製の時期が100～200年以上古くないことを意味する。

しかし、今回観測された全ての<sup>210</sup>Poが佐渡鉛中の<sup>210</sup>Pbと放射平衡にあるとすると、その放射能は強すぎると考えられる。佐渡鉛が製造された時期は明らかでないが、少なくとも佐渡金山閉山後でないことは明確であろう。そうすると20年以上は十分に経過しており、閉山当時には今回の含有量の2倍の<sup>210</sup>Poが存在することになり、製造時期を遡ればその値はより大きくなる。即ち、今回観測された<sup>210</sup>Po含有量に匹敵する原料中のウラン系列の含有量は、トリウム系列よりはるかに大きくななければならない。スペクトル図にはトリウム系列の<sup>232</sup>Thと<sup>228</sup>Thがはっきり認められる。ウラン系列には、半減期75400年の<sup>230</sup>Thが存在するので、佐渡鉛原料中にウラン系列が存在していたのであれば、精製工程で<sup>232</sup>Th、<sup>228</sup>Thと同じ科学的挙動を示す<sup>230</sup>Thの470万電子ボルト（4.7MeV）のアルファ線が現在の佐渡鉛中に見出されなければならない。しかし、そのアルファ線は観測されていない。

このことは、今回測定された<sup>210</sup>Po含有量の全てを、佐渡鉛原料中に含まれていたウラン系列起源の<sup>210</sup>Pbから生成したものとすると、<sup>210</sup>Poの含有量は大き過ぎる。

佐渡鉛の保存状態に関する知見が全くないので推定に過ぎないが、露天、坑道、或いはコンクリート造の建家（密閉されている場合にはなおさら）に保存されていた場合には、<sup>222</sup>Rnの壊変で生じる<sup>210</sup>Poが高濃度に空気中に存在するので、3の可能性はかなり大きいと考えられる。その場合には、佐渡鉛中の<sup>210</sup>Poのアルファ線強度が半減期138.38日で減少することが観察されると期待できる。

より明確な結論を得るには、保存状態に関する情報と、<sup>210</sup>Poの放射能強度の減衰があるかどうかを検討する追加測定が必要である。