

JAERI - M  
90-030

$^{242}\text{Cm}$ 半減期の再測定

1990年2月

白田 重和・鈴木 敏夫・河野 信昭・梅沢 弘一

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。  
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division  
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-  
mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1990

編集兼発行 日本原子力研究所  
印刷 株式会社高野高速印刷

$^{242}\text{Cm}$ 半減期の再測定

日本原子力研究所東海研究所燃料安全工学部  
臼田 重和・鈴木 敏夫<sup>+</sup>・河野 信昭<sup>+</sup>・梅沢 弘一<sup>++</sup>

(1990年1月31日受理)

高純度 $^{242}\text{Cm}$ を調製し、その半減期を再測定した。測定は $2\pi$ 比例計数管検出器による $\alpha$ 放射能測定、低ジオメトリ-Si検出器による $\alpha$ 線スペクトロメトリー及び低エネルギー測定用純Geプレナー型検出器による $\gamma(X)$ 線スペクトロメトリーの独立した3種類の方法を用いて行った。最後は、 $^{242}\text{Cm}$ の半減期測定には今まで報告されたことのない方法である。これらの測定値の荷重平均として、 $161.41 \pm 0.28$ 日を得た。この値は、前回の我々の測定値 $161.35 \pm 0.30$ 日と一致するが、他の文献より1%程度短い値である。

---

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

+ 化学部

++ アイソトープ部

Remeasurement of  $^{242}\text{Cm}$  Half-life

Shigekazu USUDA, Toshio SUZUKI<sup>+</sup>, Nobuaki KOHNO<sup>+</sup>  
and Hirokazu UMEZAWA<sup>++</sup>

Department of Fuel Safety Research  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 31, 1990)

The half-life of  $^{242}\text{Cm}$  has been remeasured by three independent methods. The first method was  $\alpha$ -activity counting with a  $2\pi$  proportional counter which was the same as that previously applied, and the second one was  $\alpha$ -ray spectrometry with an Si detector with relatively low geometry. The third method was  $\gamma(X)$ -ray spectrometry with a pure Ge detector for low energy measurement that has not been applied yet by anyone for the  $^{242}\text{Cm}$  half-life measurement. The overall weighted mean of the measurements was 161.41 d with a standard deviation of the mean 0.28 d. The  $^{242}\text{Cm}$  half-life value remeasured agrees well with our previous measurement result (161.35 $\pm$  0.30 d), but shorter by about 1 % than values reported by the others.

Keywords:  $^{242}\text{Cm}$ , Half-life, Remeasurement, Highly Purified Samples,  
 $\alpha$ -activity Counting,  $2\pi$  Proportional Counter,  $\alpha$ -ray Spectrometry,  
Si Detector,  $\gamma(X)$ -ray Spectrometry, Pure Ge Detector

---

+ Department of Chemistry  
++ Department of Radioisotopes

目 次

1. 緒言 .....	1
2. 高純度 <sup>242</sup> Cmの調製 .....	1
3. 半減期測定方法 .....	2
3.1 2π比例計数管検出器による測定 .....	3
3.2 α線スペクトロメトリーによる測定 .....	3
3.3 γ線スペクトロメトリーによる測定 .....	3
4. 測定結果及び考察 .....	4
5. 結論 .....	5
謝辞 .....	5
文献 .....	6

Contents

1. Introduction .....	1
2. Preparation of Highly Purified <sup>242</sup> Cm Samples .....	1
3. Measurement of the half-life .....	2
3.1 2π Proportional Counting .....	3
3.2 α-ray Spectrometry .....	3
3.3 γ-ray Spectrometry .....	3
4. Results and Discussion .....	4
5. Conclusion .....	5
Acknowledgements .....	5
References .....	6

# 1. 緒 言

キュリウム-242は、使用済核燃料中の主要中性子源となり、使用済燃料のハンドリング及び輸送時の臨界及び遮蔽計算において、また高速炉における超プルトニウム核種の生成消滅の炉物理計算においても精密な崩壊核データが要求されている。

我々は、 $2\pi$ 比例計数管検出器を用いて $\alpha$ 放射能を測定することにより $^{242}\text{Cm}$ の半減期を $161.35 \pm 0.30$  ( $1\sigma$ ) 日であると報告した<sup>1)</sup>。しかし、この値は Table 1に示すように 従来の文献値<sup>2-9)</sup>より約1% 短い値であった。その後、インドの S.K. Aggarwalら<sup>10)</sup>及び英国の R.A.P. Wiltshireら<sup>11)</sup>の報告があるが、いずれも従来の値と一致している。ベルギーの R. Vahinbroux<sup>12)</sup>は、 $^{242}\text{Cm}$ の半減期に関する文献を調査し、推奨値 (recommended value) とその不確かさ (uncertainty) ( $1\sigma$ ) として、 $162.94 \pm 0.06$  日を報告している。すなわち、我々の測定のみが、これまでの多くの測定値より有意の差をもって短い半減期を得ている。その理由は 未だ明らかでないが、 $^{242}\text{Cm}$ の測定試料への長寿命アクチノイド核種の混入、長寿命の親核種 $^{242\text{m}}\text{Am}$ の混入など考えられる誤差要因は、ほとんど全て測定値が真の半減期より長くなる方に作用するものである。

そこで我々は、再度 $^{242\text{m}}\text{Am}$ を含むアメリカシウムを精製後その娘核種 $^{242}\text{Cm}$ をミルクングする方法で高純度の測定試料を調製し、放射能の減衰を追跡し $^{242}\text{Cm}$ の全半減期の精密な測定を試みた。今回は、前回と同様な $2\pi$ 比例計数管検出器を用いたgross $\alpha$ 放射能測定その他、低ジオメトリーでの $\alpha$ 線スペクトロメトリーによる測定、さらには今まで報告されたことのない $\gamma$ (X)線スペクトロメトリーによる測定を行った。

## 2. 高純度 $^{242}\text{Cm}$ の調製

原料のアメリカシウムは、照射されたプルトニウム添加燃料試片 (ハルデン炉照射試験燃料: 約1% FIMA、約1 g) から分離・精製したもの、及びJMTRで1年間照射したアメリカシウム ( $^{241}\text{AmO}_2$ ) を精製したものである。前者は、ウラン、ネプツニウム及びプルトニウムからは塩酸溶液を用いた陰イオン交換法<sup>13)</sup>、核分裂生成物からは塩酸及びクエン酸溶液を溶離液とした陽イオン交換法<sup>14)</sup>、核分裂生成物中の希土類元素からは濃塩酸溶液による陽イオン交換法<sup>15)</sup>により分離した。さらに、キュリウムとの分離は 0.5M 2-ヒドロキシ-2-プロピオン酸溶液 (pH 3.55) [ $\alpha$ -HIB] を溶離液とした陽イオン交換クロマトグラフィ<sup>14)</sup>を数回繰返し行った。このアメリカシウムとキュリウムの分離法については、最後は、蒸留塩酸溶液を用いた陽イオン交換法により $\alpha$ -HIB溶離剤を除きアメリカシウム原液を得た。また、後者のJMTR照射アメリカシウムについても同様なプロセスで精製した。

いずれも、アメリカシウムの $\alpha$ 放射能は 約 $4.4 \times 10^7$  Bqであった。 $\alpha$ 線スペクトルを測定して、当初含まれていた $^{243}$ 、 $^{244}\text{Cm}$ は全く除去されたことを確かめた。また、 $\gamma$ 線スペクトルを測定して、アメリカシウムの崩壊生成物である $^{237}$ 、 $^{239}\text{Np}$ 、 $^{238}\text{Pu}$ 及び核分裂生成物等を除去したことも確認した。

# 1. 緒 言

キュリウム-242は、使用済核燃料中の主要中性子源となり、使用済燃料のハンドリング及び輸送時の臨界及び遮蔽計算において、また高速炉における超プルトニウム核種の生成消滅の炉物理計算においても精密な崩壊核データが要求されている。

我々は、 $2\pi$ 比例計数管検出器を用いて $\alpha$ 放射能を測定することにより $^{242}\text{Cm}$ の半減期を $161.35 \pm 0.30$  ( $1\sigma$ )日であると報告した<sup>1)</sup>。しかし、この値は Table 1に示すように従来文献値<sup>2-9)</sup>より約1%短い値であった。その後、インドの S.K. Aggarwalら<sup>10)</sup>及び英国の R.A.P. Wiltshireら<sup>11)</sup>の報告があるが、いずれも従来値と一致している。ベルギーの R. Vahinbrouckx<sup>12)</sup>は、 $^{242}\text{Cm}$ の半減期に関する文献を調査し、推奨値 (recommended value) とその不確かさ (uncertainty) ( $1\sigma$ ) として、 $162.94 \pm 0.06$  日を報告している。すなわち、我々の測定のみが、これまでの多くの測定値より有意の差をもって短い半減期を得ている。その理由は未だ明らかでないが、 $^{242}\text{Cm}$ の測定試料への長寿命アクチノイド核種の混入、長寿命の親核種 $^{242\text{m}}\text{Am}$ の混入など考えられる誤差要因は、ほとんど全て測定値が真の半減期より長くなる方に作用するものである。

そこで我々は、再度 $^{242\text{m}}\text{Am}$ を含むアメリカシウムを精製後その娘核種 $^{242}\text{Cm}$ をミルクングする方法で高純度の測定試料を調製し、放射能の減衰を追跡し $^{242}\text{Cm}$ の全半減期の精密な測定を試みた。今回は、前回と同様な $2\pi$ 比例計数管検出器を用いたグロス $\alpha$ 放射能測定その他、低ジオメトリーでの $\alpha$ 線スペクトロメトリーによる測定、さらには今まで報告されたことのない $\gamma$ (X)線スペクトロメトリーによる測定を行った。

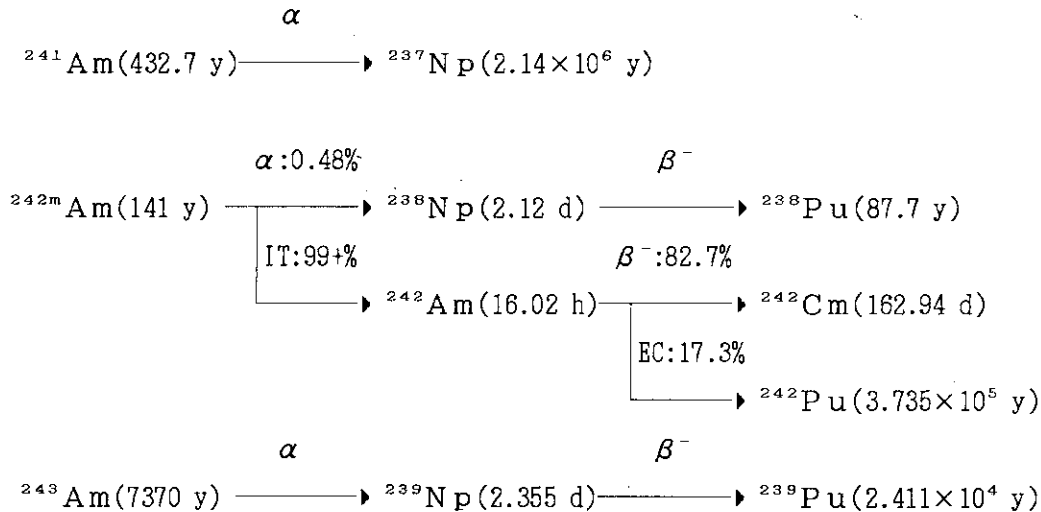
## 2. 高純度 $^{242}\text{Cm}$ の調製

原料のアメリカシウムは、照射されたプルトニウム添加燃料試片 (ハルデン炉照射試験燃料: 約1% FIMA、約1g) から分離・精製したもの、及びJMTRで1年間照射したアメリカシウム ( $^{241}\text{AmO}_2$ ) を精製したものである。前者は、ウラン、ネプツニウム及びプルトニウムからは塩酸溶液を用いた陰イオン交換法<sup>13)</sup>、核分裂生成物からは塩酸及びクエン酸溶液を溶離液とした陽イオン交換法<sup>14)</sup>、核分裂生成物中の希土類元素からは濃塩酸溶液による陽イオン交換法<sup>15)</sup>により分離した。さらに、キュリウムとの分離は0.5M 2-ヒドロキシ-2-プロピオン酸溶液 (pH 3.55) [ $\alpha$ -HIB] を溶離液とした陽イオン交換クロマトグラフィ<sup>14)</sup>を数回繰返し行った。このアメリカシウムとキュリウムの分離法については、最後は、蒸留塩酸溶液を用いた陽イオン交換法により $\alpha$ -HIB溶離剤を除きアメリカシウム原液を得た。また、後者のJMTR照射アメリカシウムについても同様なプロセスで精製した。

いずれも、アメリカシウムの $\alpha$ 放射能は約 $4.4 \times 10^7$  Bqであった。 $\alpha$ 線スペクトルを測定して、当初含まれていた $^{243}$ 、 $^{244}\text{Cm}$ は全く除去されたことを確かめた。また、 $\gamma$ 線スペクトルを測定して、アメリカシウムの崩壊生成物である $^{237}$ 、 $^{239}\text{Np}$ 、 $^{238}\text{Pu}$ 及び核分裂生成物等を除去したことも確認した。

Table 2に、 $\alpha$ 線スペクトル解析結果から算出したそれぞれのアメリカシウム同位体存在比 (Atom %) を示す。

単離されたアメリカシウムは質量数 241, 242, 243の同位体を含み、次のような核種に壊変する (崩壊データは、IAEA Technical Report No.261より引用した<sup>16)</sup>) :



すなわち、原料のアメリカシウムからはキュリウムとしては ${}^{242}\text{Cm}$ だけが生成するので、この精製したアメリカシウムから、数ヶ月経過後化学的にキュリウムのみを単離することにより、高純度 ${}^{242}\text{Cm}$ 同位体を得ることができる。

ハルデン燃料から精製したアメリカシウム原料については、約10ヶ月保存した後、塩酸溶液を用いた陰イオン交換分離法により崩壊生成物であるネプツニウム及びプルトニウム同位体を除去し、さらにアメリカシウムの精製の場合と全く同様な $\alpha$ -HIB溶液による陽イオン交換クロマトグラフィを用いて生成したキュリウムをミルクキングした。この場合の溶離曲線をFig. 1に示す。この陽イオン交換クロマトグラフィによる分離を繰返し行い、 $7.4 \times 10^4$  Bqの ${}^{242}\text{Cm}$ を得て測定試料を調製した (Fig. 1の斜線部分)。照射アメリカシウム原料では、2週間の保存で約 $1 \times 10^5$  Bqの ${}^{242}\text{Cm}$ をミルクキングできた。

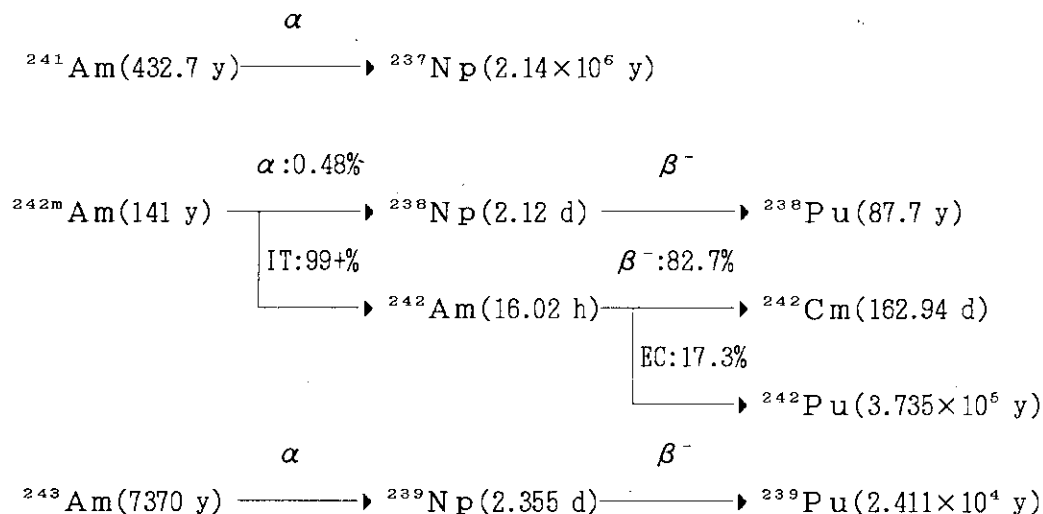
### 3. 半減期測定方法

全半減期を測定するために、 $2\pi$ 比例計数管検出器により ${}^{242}\text{Cm}$ の全 $\alpha$ 放射能強度を測定して求める方法、低ジオメトリーで $\alpha$ 線スペクトルを測定して ${}^{242}\text{Cm}$ に起因する $\alpha$ 放射線ピークのみから求める方法、及び $\gamma$ (X)線スペクトルを測定して ${}^{242}\text{Cm}$ の $\alpha$ 崩壊に伴い発生する幾つかの $\gamma$ 及びX線の強度から求める方法を独立に用いた。それぞれの測定方法に適した強度の測定試料を調製して、130日から160日にわたって $\alpha$ または $\gamma$ (X)放射能をほぼ一定期間毎に追跡した。放射能測定値は、すべて計算コード Frantic-2<sup>17)</sup>を用いて解析した。以下にそれぞれの試料調製と放射能測定について述べる。



Table 2に、 $\alpha$ 線スペクトル解析結果から算出した それぞれのアメリシウム同位体存在比 (Atom %) を示す。

単離されたアメリシウムは質量数 241, 242, 243の同位体を含み、次のような核種に壊変する (崩壊データは、IAEA Technical Report No.261より引用した<sup>16)</sup>) :



すなわち、原料のアメリシウムからはキュリウムとしては ${}^{242}\text{Cm}$ だけが生成するので、この精製したアメリシウムから、数ヶ月経過後化学的にキュリウムのみを単離することにより、高純度 ${}^{242}\text{Cm}$ 同位体を得ることができる。

ハルデン燃料から精製したアメリシウム原料については、約10ヶ月保存した後、塩酸溶液を用いた陰イオン交換分離法により崩壊生成物であるネプツニウム及びプルトニウム同位体を除去し、さらにアメリシウムの精製の場合と全く同様な $\alpha$ -HIB溶液による陽イオン交換クロマトグラフィを用いて生成したキュリウムをミルクキングした。この場合の溶離曲線をFig. 1に示す。この陽イオン交換クロマトグラフィによる分離を繰返し行い、 $7.4 \times 10^4$  Bqの ${}^{242}\text{Cm}$ を得て測定試料を調製した (Fig. 1の斜線部分)。照射アメリシウム原料では、2週間の保存で約 $1 \times 10^5$  Bqの ${}^{242}\text{Cm}$ をミルクキングできた。

### 3. 半減期測定方法

全半減期を測定するために、 $2\pi$ 比例計数管検出器により ${}^{242}\text{Cm}$ の全 $\alpha$ 放射能強度を測定して求める方法、低ジオメトリーで $\alpha$ 線スペクトルを測定して ${}^{242}\text{Cm}$ に起因する $\alpha$ 放射線ピークのみから求める方法、及び $\gamma$ (X)線スペクトルを測定して ${}^{242}\text{Cm}$ の $\alpha$ 崩壊に伴い発生する幾つかの $\gamma$ 及びX線の強度から求める方法を独立に用いた。それぞれの測定方法に適した強度の測定試料を調製して、130日から160日にわたって $\alpha$ または $\gamma$ (X)放射能をほぼ一定期間毎に追跡した。放射能測定値は、すべて計算コード Frantic-2<sup>17)</sup>を用いて解析した。以下にそれぞれの試料調製と放射能測定について述べる。

### 3.1 2 $\pi$ 比例計数管検出器による測定

測定試料は、タンタル円板 ( $\phi 24$  mm $\times$ 0.1 mm) 上に試料溶液を滴下し、蒸発乾燥後強熱して焼付けたものである (試料付着部は径約5 mm)。前回は ほぼ一定の $\alpha$ 放射能強度の測定試料を5個測定に用いたが、今回は種々の強度のものを5個 (約  $4\times 10^2\sim 1\times 10^4$  Bq) 作成した。PRガスフロー型2 $\pi$ 比例計数管検出器を用いて、全 $\alpha$ 放射能を1週間おきに約5ヶ月間にわたって測定した。

LMRI (Laboratoire de Metrologie des Rayonnements Ionisants)の $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 及び $^{241}\text{Am}$ の $\alpha$ 放射能標準線源及び同位体希釈法により較正された $^{238}\text{Pu}$ 線源<sup>18,19)</sup>を用い、検出器の計数効率をモニターした。数え落としについても無視できるほどの量 ( $2.57\times 10^{-6}$  秒)であったが補正した。 $^{242}\text{Cm}$ の壊変生成物 $^{238}\text{Pu}$ の $\alpha$ 放射能については、その半減期が87.74年であるとして $^{242}\text{Cm}$ 試料について測定した $\alpha$ 放射能強度を補正するとともに、ときどき $^{242}\text{Cm}$ 測定試料の $\alpha$ 線スペクトルを測定して $^{238}\text{Pu}$ の蓄積量を確認した。

### 3.2 $\alpha$ 線スペクトロメトリーによる測定

白金円板 ( $\phi 24$  mm $\times$ 0.1 mm) 上に径5 mmの範囲にイソプロピルアルコール中で電着<sup>20)</sup>することにより測定試料を2個 (約  $4.44\times 10^4$  及び  $1.85\times 10^4$  Bq) 調製した。測定には、それぞれ独立した2基の $\alpha$ 線スペクトル測定装置を用いた。測定器は、Si surface barrier検出器(オルテック社製、13-100-100)及び4096 ch PHAを用い、できるだけ低ジオメトリーで測定した。低ジオメトリー放射能測定の利点は、たとえ測定試料から検出器までの距離・方向等の多少のずれ及び測定試料の形状の相違が生じて、放射能測定値への変動を抑えることができることにある。測定にあたっては、放射能の強い試料については特製の真空チェンバーを用い、また弱い試料についてはキャンベラ社製真空チェンバーを用い、Si検出器から試料までの位置 (それぞれ、約13及び5 cm) を固定して測定した。Fig.2に $^{242}\text{Cm}$ 試料の $\alpha$ 線スペクトルの1例を示す。 $^{242}\text{Cm}$ の $\alpha$ エネルギー6.113 MeV (74.2%)及び6.070 MeV (26.0%)に相当する面積のみを半減期の測定に使用し、娘核種 $^{238}\text{Pu}$  (5.499、5.456 MeV)の影響を避けた。

### 3.3 $\gamma$ 線スペクトロメトリーによる測定

アクリル板 (5 cm $\times$ 5 cm $\times$ 3 mm) 上に、約5 $\mu$ lの高純度 $^{242}\text{Cm}$ 塩酸溶液を滴下し、蒸発乾固後アクリル板 ( $\phi 1.5$  cm $\times$ 1 mm) を試料に被せてメンディングテープで固定することにより $\gamma$ 線スペクトル測定用試料 ( $1.85\times 10^5$  Bq) を調製した。Fig.3に示すような配置で、測定試料を低エネルギー測定用純Geプレーナ型検出器に固定した後、 $^{242}\text{Cm}$ の $\gamma$ 線 (44.08 keV) 及びプルトニウムのLX線 (L $\alpha$ : 14.2 keV、L $\beta_2$ : 17.3 keV、L $\beta_1$ : 18.3 keV、L $\gamma$ : 21.4 keV) を測定した。Fig.4に、 $\gamma$ (X)線スペクトルの1例を示す。17.3 keV LX線は、 $^{242}\text{Cm}$ の娘核種 $^{238}\text{Pu}$ からウランのL $\beta_1$ X線 (17.2 keV、Abundance (L $\beta$ として): 7.41%)と重なり、 $^{242}\text{Cm}$ 全半減期を求めらうえでは適当でないので測定対象から除いた。 $^{242}\text{Cm}$ の44.08 keV (Abundance: 0.0325%)  $\gamma$ 線も $^{238}\text{Pu}$ からの $\gamma$ 線 (43.498 keV、Abundance: 0.0395%)と区別できないが、後者の量は無視できる程極めて少ない (約0.3%以下) ので、半減期測定に用いた。

## 4. 測定結果及び考察

全半減期測定結果をまとめて Table 3に示す。2 $\pi$ 比例計数管検出器による測定では、5個の試料の荷重平均及びその standard deviation として 161.86 $\pm$ 0.62 日が得られた。前回に比べ、測定期間が短く（前回540日、今回154日）、従って測定点も少なく（前回59~106点、今回21~26点）ばらつきが若干大きかった。しかし、この値は 前回の値 161.35 $\pm$ 0.30 日と誤差の範囲で一致している。

一方、 $\alpha$ 線及び $\gamma$ (X)線スペクトロメトリーによる測定結果も、それぞれ 161.97 $\pm$ 0.42 日及び 161.11 $\pm$ 0.26 日なる結果が得られ、2 $\pi$ 比例計数管検出器の結果と一致した。これらの3方法の全体の荷重平均は 161.41 日、その standard deviationは 0.28 日であった。

これまで得られた<sup>242</sup>Cm全半減期の文献値<sup>2-11)</sup>は、Table 1 に示されている。再測定の結果も著者らの測定値のみが1%程度低い値であった。半減期が真値より短く測定される理由として、

- ① 目的とする<sup>242</sup>Cmより短い半減期をもつ核種が試料に混入する、
- ② 測定試料中の<sup>242</sup>Cmの1部が、試料表面から少しずつ除去される（剥がれ、こすり取られ等）、
- ③  $\alpha$ 反跳により娘核種<sup>238</sup>Puが試料表面から飛散することがあり、<sup>238</sup>Puの補正が結果として大きくなりすぎる

等が考えられる。①に関しては、2章で述べたように原料のアメリカシウム及び娘核種<sup>242</sup>Cmは十分な精製を行い不純物の除去をしていること且つ $\alpha$ 線及び $\gamma$ (X)線スペクトロメトリーによりそれを確認していることから、そのような核種の混入は考えられない。混入の恐れのある核種は、すべて<sup>242</sup>Cmよりはるかに長寿命のものである。②及び③に関しても、少なくとも $\gamma$ (X)線スペクトロメトリーによる測定は、試料を密封して測定しているのでありえない。2 $\pi$ 比例計数管検出器及び $\alpha$ 線スペクトル測定器を用いる半減期測定においては、②に関し特に注意し、測定時以外は亀甲容器中に保存した。 $\alpha$ 線スペクトロメトリーによる測定においては、<sup>238</sup>Puを除く<sup>242</sup>Cmの寄与分のみから計算したので、③に関する問題はない。

一方、半減期が真値より長く測定される理由として、目的とする<sup>242</sup>Cmより長い半減期をもつ核種の試料への混入が考えられる。例えば、原料のアメリカシウムからキュリウムの分離が不完全であれば、キュリウムの同位体<sup>243,244</sup>Cmの存在が、またミルキングの際原料のアメリカシウム及びその崩壊生成物からの精製が不完全であれば、微量の<sup>241,242m,243</sup>Am及び<sup>237</sup>Np, <sup>238,239,242</sup>Puの存在がそれぞれ考えられる。もし<sup>242</sup>Cmの親核種<sup>242m</sup>Amが混入していれば、測定中常時<sup>242</sup>Cmの生成が起るため $\alpha$ 線スペクトロメトリーにより<sup>242</sup>Cmのみの放射能を測定しても、その減衰曲線は真の<sup>242</sup>Cmの半減期よりは長くなる。

## 5. 結 論

$^{242}\text{Cm}$ の全半減期を再測定した。2 $\pi$ 比例計数管検出器を用いた全 $\alpha$ 放射能測定、低ジオメトリーでの $\alpha$ 線スペクトロメトリーによる測定、さらには $^{242}\text{Cm}$ の半減期測定としては今まで報告されたことのない $\gamma$ (X)線スペクトロメトリーによる測定を行い、 $^{242}\text{Cm}$ 放射能の減衰を追跡した。これらの測定結果は、それぞれ $161.86 \pm 0.62$ 、 $161.97 \pm 0.42$ 及び $161.11 \pm 0.26$ 日であり、それらの荷重平均値として、 $161.41 \pm 0.28$ 日を得た。これらは前回の我々の測定値 $161.35 \pm 0.30$ 日<sup>1)</sup>と一致する結果であるが、この値はこれまでの文献値<sup>2-11)</sup>より1%程度短い値である。

## 謝 辞

照射プルトニウム添加燃料試料の分取及び前処理には、再処理特研燃焼率測定用セルを用い、化学部分析センターの大貫守氏の助力を戴いた。アメリカウム照射試料は、化学部放射化学第1研究室佐川千明氏の御好意により提供された。また、元化学部燃焼率測定開発室長岡下宏氏（現安全管理室次長）から多くの示唆と助力を戴いた。以上の方々に深く感謝します。

## 5. 結 論

$^{242}\text{Cm}$ の全半減期を再測定した。2 $\pi$ 比例計数管検出器を用いた全 $\alpha$ 放射能測定、低ジオメトリーでの $\alpha$ 線スペクトロメトリーによる測定、さらには $^{242}\text{Cm}$ の半減期測定としては今まで報告されたことのない $\gamma$ (X)線スペクトロメトリーによる測定を行い、 $^{242}\text{Cm}$ 放射能の減衰を追跡した。これらの測定結果は、それぞれ $161.86 \pm 0.62$ 、 $161.97 \pm 0.42$ 及び $161.11 \pm 0.26$ 日であり、それらの荷重平均値として、 $161.41 \pm 0.28$ 日を得た。これらは前回の我々の測定値 $161.35 \pm 0.30$ 日<sup>1)</sup>と一致する結果であるが、この値はこれまでの文献値<sup>2-11)</sup>より1%程度短い値である。

## 謝 辞

照射プルトニウム添加燃料試料の分取及び前処理には、再処理特研燃焼率測定用セルを用い、化学部分析センターの大貫守氏の助力を戴いた。アメリカウム照射試料は、化学部放射化学第1研究室佐川千明氏の御好意により提供された。また、元化学部燃焼率測定開発室長岡下宏氏（現安全管理室次長）から多くの示唆と助力を戴いた。以上の方々に深く感謝します。

## 文 献

- 1) S.Usuda, H.Umezawa, J.Inorg.Nucl.Chem., 43, 3081 (1981).
- 2) G.C.Hanna, B.G.Harvey and N.Moss, Phys.Rev., 73, 617 (1950).
- 3) K.M.Glover, J.Milsted, Nature, 173, 1238 (1954).
- 4) W.P.Hutchinson, A.G.White, Nature, 173, 1239 (1954).
- 5) K.F.Flynn, L.E.Glendenin, E.P.Steinberg, Nucl.Sci.Eng., 22, 416 (1965).
- 6) W.J.Kerrigan, C.J.Banick, J.Inorg.Nucl.Chem., 37, 641 (1975).
- 7) H.Diamond, W.C.Bentley, A.H.Jaffey, K.F.Flynn, Phys.Rev., C15, 1034 (1977).
- 8) Chang Huan-Qiao, Xu Jin-Cheng, Wen Tong-Qing, Chinese J.Nucl.Phys., 1, 21 (1979) [in Chinese].
- 9) A.V.Jadhav, K.A.Mathew, K.Raghuraman, C.K.Silvaramakrishnan, Proc. of the Nuclear Chemistry and Radiochemistry Symposium, Waltair, Feb., 25-28, 1980, p.184, Andhra University Waltair (1980).
- 10) S.K.Aggarwal, A.V.Jadhav, S.A.Chitambar, A.R.Parab, P.M.Shah, A.I.Almaula, K.Raghuraman, C.K.Silvaramakrishnan, H.C.Jain, Radiochem.Radioanal., Letters, 54, 99 (1982).
- 11) R.A.P.Wiltshire, T.B.Brooks, A.J.Eccles, private communication from K.M.Glover, AERE-HARWELL (1982).
- 12) R.Vaninbrouks, "Review of the half-lives of  $^{237}\text{Pu}$  and  $^{242}\text{Cm}$ ", Summary Report: Fifth Research Co-ordination Meeting on the Measurement and Evaluation of Transactinium Isotope Nuclear Data, Geel, September 1982, IAEA Rep.INDC(NDS)-138/GE, (1982) 41; Rep. GE/R/RB/10-82 (1982).
- 13) H.Natsume, H.Umezawa, S.Okazaki, T.Suzuki, T.Sonobe, S.Usuda, J.Nucl.Sci.Technol., 9, 737 (1972).
- 14) H.Natsume, H.Umezawa, T.Suzuki, F.Ichikawa, T.Sato, S.Baba, H.Amano, J.Radioanal.Chem., 7, 189 (1971).
- 15) 梅沢弘一、市川進一、夏目晴夫、JAERI-M 5785 (1984).
- 16) IAEA Technical Reports Series No.261, "Decay Data of the Transactinium Nuclides", IAEA, Vienna, 1986.
- 17) P.C.Rogers, NYO-230 (1962).
- 18) N.Shinohara, N.Kohno, Nucl.Instr.Meth., A270, 239 (1988).
- 19) idem, ibid., A270, 243 (1988).
- 20) S.Okazaki, N.Kohno, JAERI-M 85-213, p.293 (1986).

Table 1 Comparison of measured  $^{242}\text{Cm}$  half-life values.

No.	Authors (Reference)	Year	Method	Period of observation (days)	Half-life (days)
1	Hanna et al. (Ref.2)	1950	$\alpha$ spectrometry with low geometry proportional counter	300	$162.5 \pm 2.$
2	Glover and Milsted (Ref.3)	1954	$\alpha$ counting with low geometry proportional counter	210	$162.46 \pm 0.32$
3	Hutchinson and White (Ref.4)	1954	heat output by calorimetry	365	$163.0 \pm 1.8$
4	Flynn et al. (Ref.5)	1965	$\alpha$ counting with $2\pi$ proportional counting	1187	$163.1 \pm 0.4$
5	Kerrigan and Banick (Ref.6)	1975	heat output by calorimetry	287	$163.2 \pm 0.2$
6	Diamond et al. (Ref.7)	1977	$\alpha$ counting with intermediate geometry proportional counter	260	$162.76 \pm 0.08$
7	Huan-Qiao et al. (Ref.8)	1979	$\alpha$ counting with low geomtry proportional counter	308	$163.02 \pm 0.18$
8	Jadhav et al. (Ref.9)	1980	$\alpha$ spectrometry with solid state detector	237	$162.13 \pm 2.25$
9	Usuda and Umezawa (Ref.1)	1981	$\alpha$ counting with $2\pi$ proportional counter	540	$161.35 \pm 0.30$
10	Aggarwal et al. (Ref.10)	1982	1) $\alpha$ counting with proportional counter	250	$163.17 \pm 0.11$
			2) $\alpha$ spectrometry on synthetic $^{242}\text{Cm}$ - $^{244}\text{Cm}$ mixtures with solid state detector	208	$162.82 \pm 0.26$
11	Wiltshine et al. (Ref.11)	1982	$\alpha$ counting with low geometry proportional counter	490	$163.03 \pm 0.16$
12	This work	1990	1) $\alpha$ counting with $2\pi$ proportional counter	154	$161.86 \pm 0.62$
			2) $\alpha$ -ray spectrometry	163	$161.97 \pm 0.42$
			3) $\gamma$ , X-ray spectrometry	133	$161.11 \pm 0.26$

Table 2 Isotope abundance of Am used as source material.

Isotope	Pu-U fuel	Irradiated $^{241}\text{AmO}_2$
$^{241}\text{Am}$	98.0 %	80.2 %
$^{242\text{m}}\text{Am}$	0.14	1.5
$^{243}\text{Am}$	1.83	18.3



Table 3 Experimental data and results of  $^{242}\text{Cm}$  half-life measurements(100-160 days counting).

Methods	Sample name (Bq)	Number of measurments	Half-life (days)
Gross $\alpha$ counting	Cm-10 ( $4 \times 10^2$ )	26	$162.55 \pm 0.66^*$
	Cm-11 ( $4 \times 10^3$ )	21	$161.24 \pm 0.49^*$
	Cm-12 ( $1 \times 10^4$ )	24	$159.13 \pm 0.83^*$
	Cm-13 ( $1 \times 10^4$ )	24	$159.83 \pm 0.80^*$
	Cm-14 ( $2 \times 10^3$ )	23	$162.80 \pm 0.34^*$
	Weighted mean ( n = 5 )		$161.86 \pm 0.62^{**}$
$\alpha$ ray spectrometry	Cm-03 ( $4.44 \times 10^4$ )	21	$162.17 \pm 0.22^*$
	Cm-06 ( $1.85 \times 10^4$ )	21	$161.07 \pm 0.47^*$
	Weighted mean ( n = 2 )		$161.97 \pm 0.42^{**}$
$\gamma$ (X) ray spectrometry	Cm-08 ( $1.85 \times 10^5$ )		
	14.2 keV [ Pu L $\alpha$ ]	20	$160.78 \pm 0.40^*$
	18.3 [ Pu L $\beta$ 1 ]	20	$160.98 \pm 0.46^*$
	21.3 [ Pu L $\gamma$ ]	20	$161.67 \pm 0.61^*$
	44.0 [ $\gamma$ ray ]	20	$162.26 \pm 1.03^*$
	Weighted mean ( n = 4 )		$161.11 \pm 0.26^{**}$
	Overall weighted mean ( n = 3 )		$161.41 \pm 0.28^{**}$

\* : Standard deviation ( $\sigma$ ) for the half-life value of the best-fit decay curve.

\*\* : Weighted mean =  $\Sigma xw / \Sigma w$  (  $w = 1/\sigma^2$  ) ,  
Standard deviation of the mean =  $\sqrt{\Sigma(x-\bar{x})^2 w / (n-1) \Sigma w}$  .

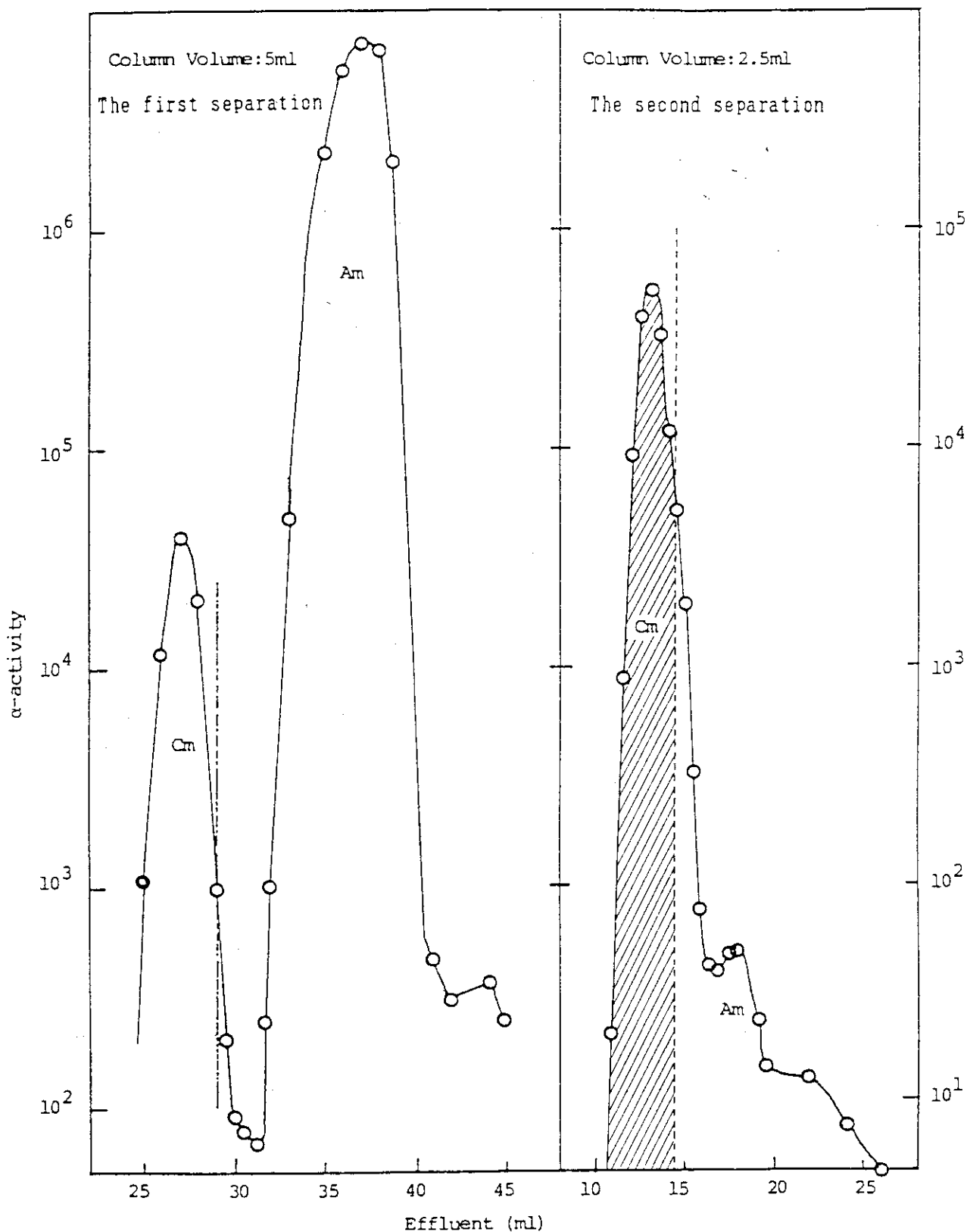


Fig. 1 Purification of <sup>242</sup>Cm by cation-exchange chromatography using DIAION CPK 08 (35 μm) resin and 0.5 M α-hydroxyisobutyrate solution of pH 3.55.

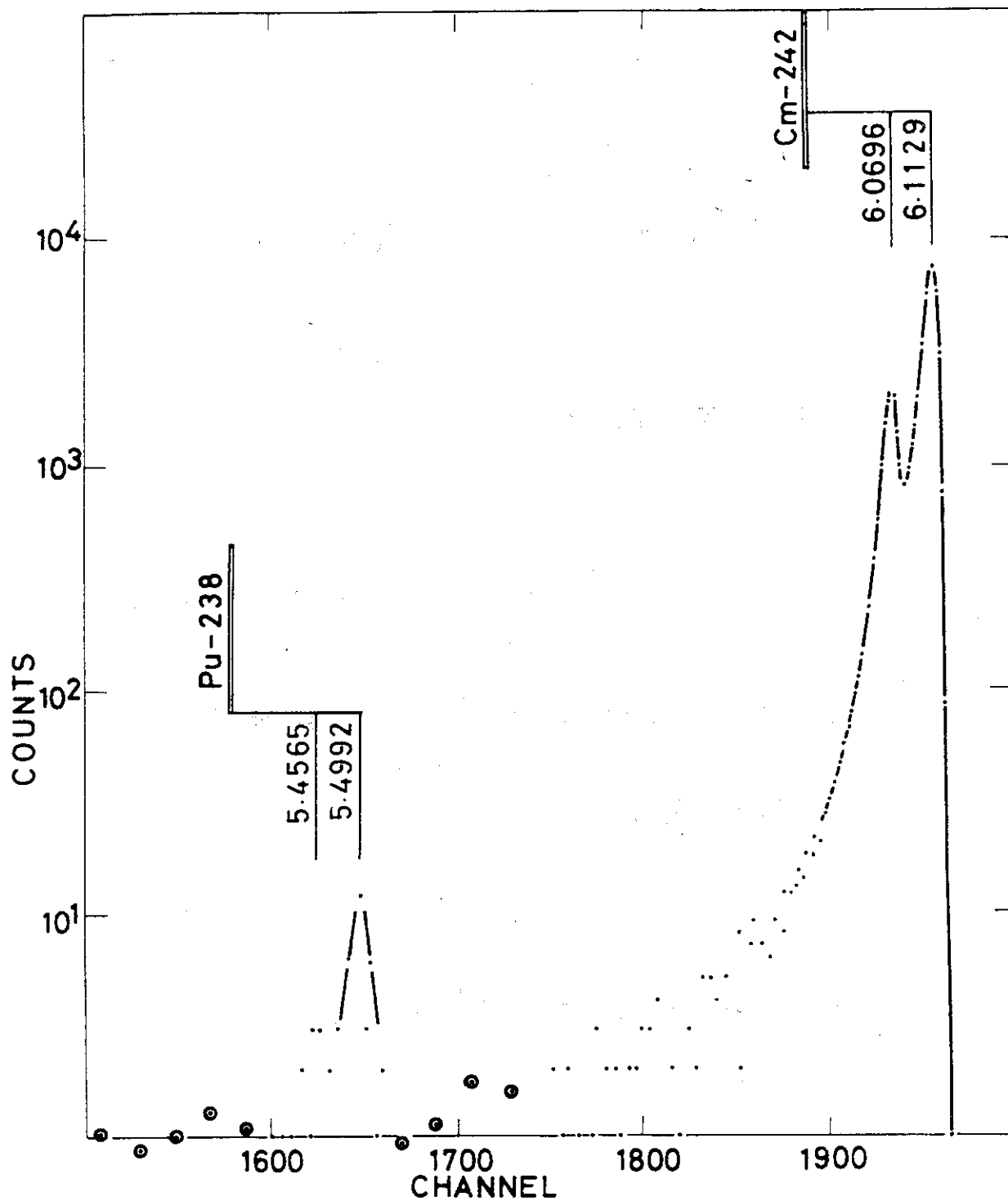


Fig. 2 Alpha-ray spectrum of purified <sup>242</sup>Cm ( The energy values are given in MeV ).

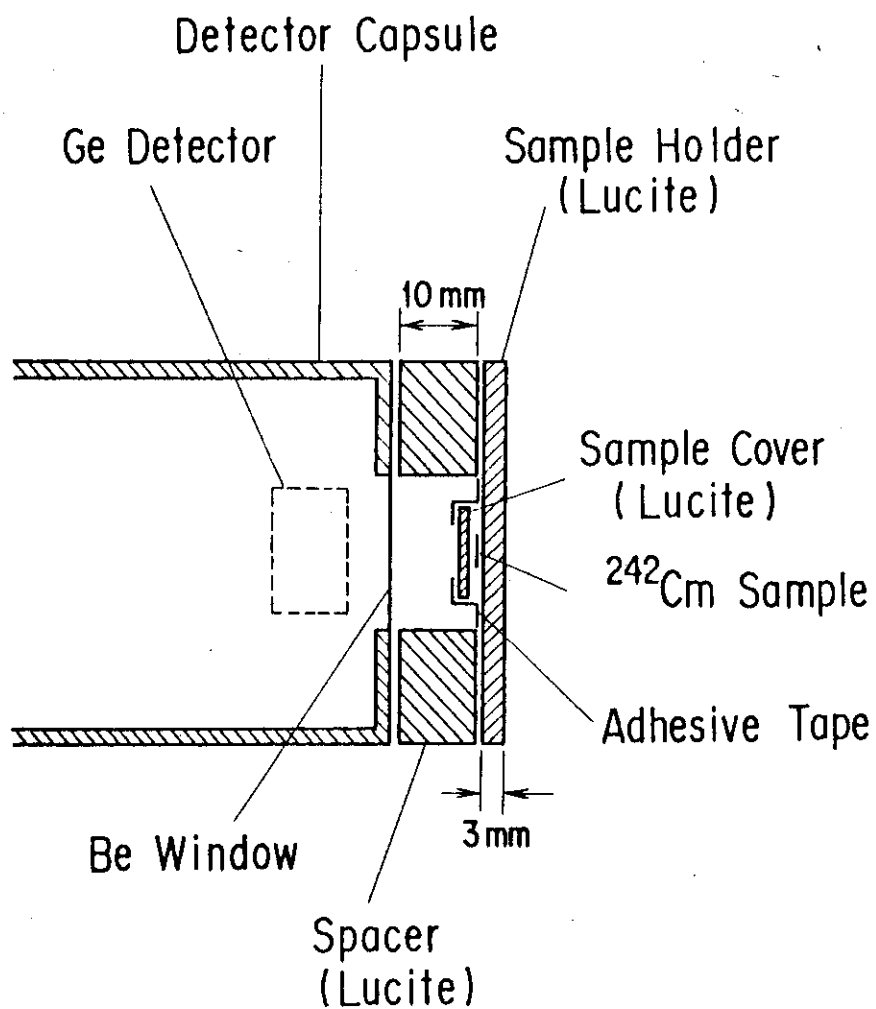


Fig. 3 The arrangement of  $^{242}\text{Cm}$  sample in  $\gamma$ -ray spectrometry.

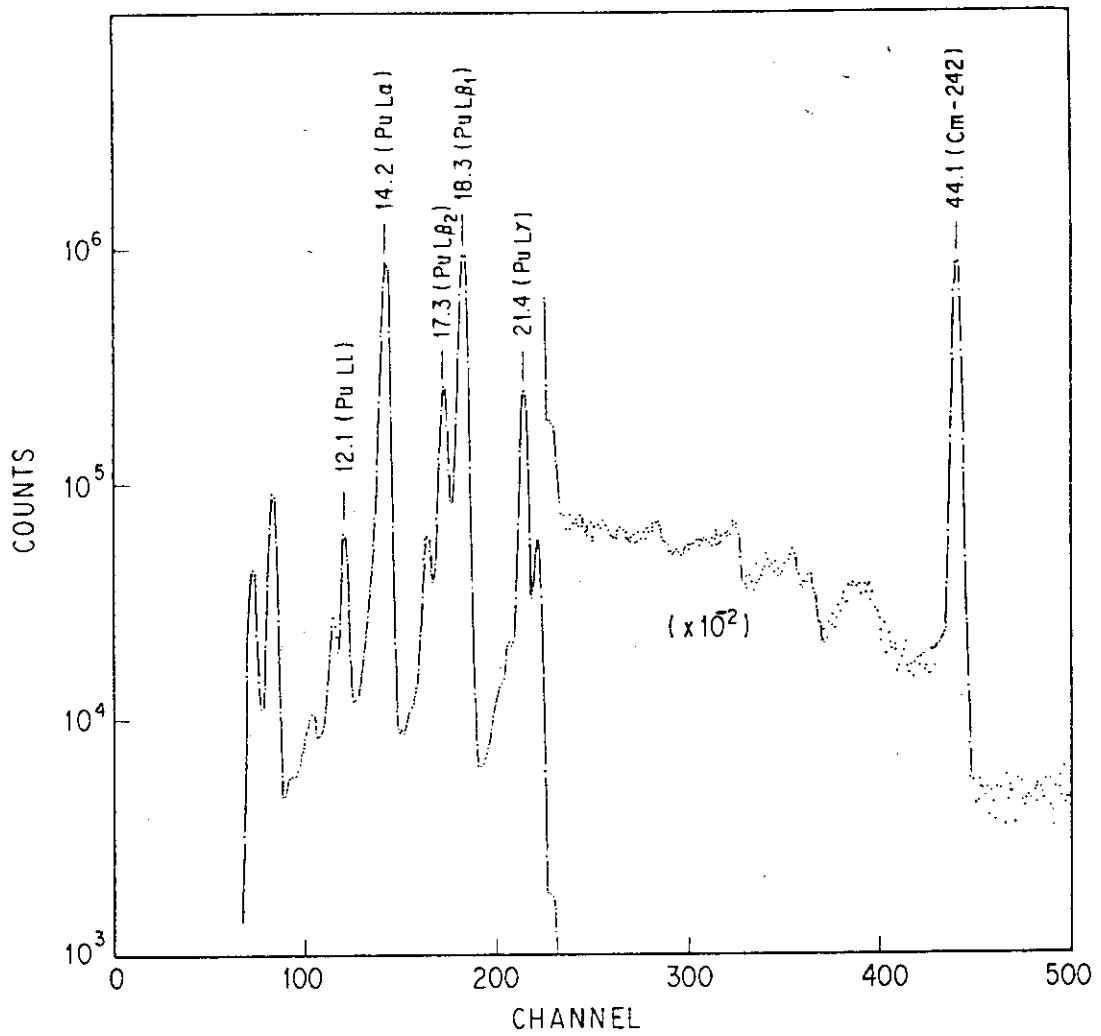


Fig. 4 Gamma(X)-ray spectrum of purified <sup>242</sup>Cm  
 ( The energy values are given in keV ).