

## フィッション・トラック年代に及ぼす高速中性子の影響 ( I )

— Th/U比の変化による影響—

本多照幸\*・岸本克己\*\*@・野崎徹也\*

Study on the influence of fast neutrons on the fission track dating ( I )

-influence of the change in the Th/U ratios-

Teruyuki HONDA, Katsumi KISHIMOTO and Tetsuya NOZAKI

### 1. 本研究の目的

本研究は、標準ガラス、天然ガラス、年代標準試料を東大弥生炉、立教大炉の各照射場で照射し、誘発フィッション・トラック (FT) 生成に及ぼす高速中性子、熱外中性子による影響を定量的に求め、より正確なFT年代を算出することを目的とする。

そのうち今回は、

- (1) 反応率 ( $\phi \sigma_n$ ) の比より誘発FT密度 ( $\rho_i$ ) を算出し、その計算値が実測値と一致するかどうか比較検討し、
  - (2) 試料の Th/U 比を変化させたときのFT年代に及ぼす影響をシミュレーションした結果、
- について報告する。

### 2. 実験

#### 2. 1 中性子照射試料

標準ガラスには、NBS から提供されている SRM961, SRM962a, 天然ガラスには、JR1 (地調標準ガラス) を用いた。年代標準試料には、メキシコの Durango で産出される Durango Apatite (以後 DRG-Ap と記す) 及び米国コロラド州に分布する Fish Canyon Tuff の Zircon, Apatite (以後各々 FCT-Zr, FCT-Ap と記す) を用い、Zircon, Apatite は各々テフロン、エポキシ樹脂に埋め込んだ。各試料は表面研磨した後、外部検出器としてマイカを貼付した。各試料中の既知の U, Th の特性を表 1 に示す。

#### 2. 2 中性子照射

高速中性子源である東大弥生炉グローリー孔では、1.11kWh, 10.6kWh, 3.28kWh の積算出力 (断続) で計 3 回照射した。この照射をそれぞれ Y-93b, Y-93c, Y-94a と呼ぶ。

熱中性子源である立教炉熱中性子柱 (TC) では、中性子フルエンスモニターに Co-wire を用いて 48 時間 (断続) 裸照射を 3 回行った。

FT 年代測定に一般に利用されている照射場の立教炉 f-ring, RSR では、各々 24c, (A) の底で中性子フルエンスモニターに Co-wire を用いて照射した。

### 2. 3 マイカのエッチング及び誘発FTの計数

照射終了後、各試料に貼付したマイカは、誘発FTを得るため、46% HF により 25°C で 40~60 分エッチングを行った。誘発FTは、光学顕微鏡画像をモニターに映し出して (x1800) 計数した。

### 3. 結果及び考察

#### 3. 1 反応率によるFT密度 $\rho_i$ の算出

中性子フルエンス  $\Phi$  ( $\text{cm}^{-2}$ ), 核分裂断面積  $\sigma$  ( $\text{cm}^2$ ), 目的核種数  $n$  の積である反応率 ( $\Phi \sigma n$ ) を各FT ( $^{235}\text{U}+t$ ,  $^{235}\text{U}+e$ ,  $^{238}\text{U}+f$ ,  $^{232}\text{Th}+f$ ,  $^{235}\text{U}+f$ ) 毎に算出することにより、各FTの生成割合が得られる。なお、 $t$  は熱中性子、 $e$  は熱外中性子、 $f$  は高速中性子を各々表す。立教炉TCで熱中性子を照射した標準ガラスを基準試料として、その反応率と各照射場における目的核種の各FT生成に対する反応率の比より、各照射における  $\rho_i$  を算出し、それらの和から得られる計算値

\* 武蔵工業大学原子力研究所 Atomic Energy Research Laboratory, Musashi Institute of Technology

\*\* 武蔵工業大学大学院工学研究科原子力工学専攻 Division of Nuclear Engineering, Graduate school, Musashi Inst. Tech.

@ 現所属：日本原子力研究所 Japan Atomic Energy Research Institute

表1 各試料中のU, Th特性

区分	試料	同位体存在比 $^{238}\text{U}$ atm%	U濃度 (ppm)	Th濃度 (ppm)	Th/U
標準ガラス	SRM961 <sup>*1</sup>	99.7624	461.5	457.2	0.9907
	SRM962a <sup>*1</sup>	99.7608	37.38	37.79	1.011
天然ガラス	JR1 <sup>*2</sup>	99.2742	10.3±4.3	26.9±0.1	2.61±1.09
年代標準 試料	DRG-Ap <sup>*3</sup>	99.2747	7.6±1.2	162±2	21±3
	FCT-Zr <sup>*3</sup>	99.2747	413±7	302±5	0.731±0.017
	FCT-Ap <sup>*3</sup>	99.2747	22±2	61±1	2.8±0.3

\*1 データはNBS 推奨値 \*2 データは地調公表値 (上岡 他, 1989)

\*3 濃度は本多らによる値(本多 他, 1990)

の $\rho_i$ を, 実測値の $\rho_i$ とともに表2~表4に示す.

TC48時間照射(R943)のSRM961( $\rho_i=(7.75\pm 0.16)\times 10^5\text{t}\cdot\text{cm}^{-2}$ )を基準としたとき, 表2より弥生炉照射では計算値が実測値とよく一致していることが分かる. また, 表3, 表4より立教炉f-ring, RSR照射でもおおよそ一致している. このように実測値と計算値が一致したことにより, 反応率( $\Phi\sigma_n$ )によるFTの生成割合が正確であることが実証された. この結果は, 熱中性子フルエンスとそれによるFT密度を用いて, 高速及び熱外中性子フルエンスとそれによるFTの生成の関係が正確に求められることを示している.

### 3. 2 Th/U比の変化によるFT年代への影響

立教炉f-ring, RSR各照射場で試料のTh/U比の変化がFT年代にどのような影響を及ぼすか, 反応率を用いて算出した. その結果を, 絶対測定法(本多他, 1987)については図1に, zeta法(Hurford and Green, 1982; 本多 他, 1987)については図2に示す. 両図とも, 横軸は未知年代試料のTh/U比, 縦軸は年代のずれを示す. 年代のずれとは,  $^{235}\text{U}+\text{t}$ のFTから算出されるFT年代の真値からのずれであり, +表示は年代を大きく算出し, -表示は小さく算出していることを示す. 年代のずれは,  $\rho_i$ を, 全FT生成反応による値と $^{235}\text{U}+\text{t}$ 以外のFTの生成割合の分だけ除いた値にしたときの各々のFT年代の差より得られる. zeta法では, DRG-Ap, FCT-Zrを年代標準試料に採用して算出し, 最も年代への影響が大きいf24cと最も影響が小さいRSR(B)について示している.

図2において, DRG-Apを年代標準試料に用いたときの年代のずれの誤差がかなり大きくなっている. これは, 表1から分かるように, DRG-ApのU濃度誤差が16%と大きいためである.

図1, 図2より明らかなように, 照射場の中性子スペクトルが同一であれば, 絶対測定法では未知年代試

料の, zeta法では, 未知年代試料と年代標準試料のTh/U比を求められれば, 年代のずれの補正が可能であることを示している.

FT年代に適した未知年代試料, 年代標準試料のTh/U比について考えてみる. 絶対測定法では, 図1より未知年代試料のTh/U比が小さくなると年代のずれが小さくなっていることが分かる. これは, Th/U比が小さいと $^{232}\text{Th}+\text{f}$ によるFTの影響が小さくなるからであり, 年代のずれが小さくなるとずれの誤差の絶対値は小さくなり年代補正の精度が高くなる. zeta法では, 図2より未知年代試料と年代標準試料のTh/U比が一致すれば年代のずれが無くなっていることが分かる. これは, zeta法では年代のずれが $^{232}\text{Th}+\text{f}$ のみに起因し, 両試料のTh/U比の差によって生じるので, 両試料のTh/U比が一致すれば $^{232}\text{Th}+\text{f}$ による影響が相殺されるからである.

図1, 図2より両手法とも, 未知年代試料のTh/U比が小さくなると, その変化に対して年代のずれが一定となっていることが分かる. 絶対測定法では, 図1よりTh/U比がf24a, RSR(A), RSR(B)では2以下,

表2 熱中性子照射された標準ガラスを基準にして算出された弥生炉グローリー-孔照射における $\rho_i$ とその実測値

照射番号	積算出力 (kWh)	試料	$\rho_i$ (実測値) ( $\times 10^5\text{t}\cdot\text{cm}^{-2}$ )	$\rho_i$ (計算値) <sup>*1</sup> ( $\times 10^5\text{t}\cdot\text{cm}^{-2}$ )
Y93-b	1.11	SRM961	4.35±0.12	4.62±0.08
		DRG-Ap	0.350±0.011	0.357±0.012
		FCT-Zr	5.63±0.12	4.04±0.09
Y94-a	3.28	SRM961	12.9±0.3	12.9±0.2
		SRM962a	1.20±0.03	1.05±0.02
Y93-c	10.6	SRM962a	3.99±0.09	3.90±0.07
		JR1	1.48±0.03	1.42±0.36
		CN4	1.23±0.03	1.32±0.04
		DRG-Ap	3.74±0.08	3.71±0.13

\*1 立教炉TC48時間照射(R943)のSRM961を基準試料として使用  
 $\rho_{i, \text{STD}}=(7.75\pm 0.16)\times 10^5\text{t}\cdot\text{cm}^{-2}$

表3 熱中性子照射された標準ガラスを基準にして算出された

立教炉 f24c 裸照射(R953)における  $\rho_i$  とその実測値

照射時間 (分)	試料	$\rho_i$ (実測値) ( $\times 10^4 \text{ t} \cdot \text{cm}^{-2}$ )	$\rho_i$ (計算値)*1 ( $\times 10^4 \text{ t} \cdot \text{cm}^{-2}$ )
6	SRM961	$7.86 \pm 0.21$	$8.49 \pm 0.35$
30	SRM962a	$3.28 \pm 0.09$	$3.43 \pm 0.17$
	JR1	$2.15 \pm 0.06$	$2.25 \pm 0.86$
	DRG-Ap	$2.99 \pm 0.08$	$2.59 \pm 0.31$

\*1 立教炉TC48時間照射(R943)のSRM961を基準試料として使用

$$\rho_{i,STD} = (7.75 \pm 0.16) \times 10^4 \text{ t} \cdot \text{cm}^{-2}$$

表4 熱中性子照射された標準ガラスを基準にして算出された

立教炉 RSR(A)裸照射(R955)における  $\rho_i$  とその実測値

照射時間 (分)	試料	$\rho_i$ (実測値) ( $\times 10^4 \text{ t} \cdot \text{cm}^{-2}$ )	$\rho_i$ (計算値)*1 ( $\times 10^4 \text{ t} \cdot \text{cm}^{-2}$ )
15	SRM961	$7.90 \pm 0.20$	$7.48 \pm 0.33$
	FCT-Zr	$24.2 \pm 0.24$	$20.5 \pm 1.00$
90	SRM962a	$4.72 \pm 0.11$	$3.93 \pm 0.19$
	JR1	$3.28 \pm 0.09$	$3.23 \pm 1.32$
	DRG-Ap	$3.41 \pm 0.09$	$3.02 \pm 0.38$

\*1 立教炉TC48時間照射(R943)のSRM961を基準試料として使用

$$\rho_{i,STD} = (7.75 \pm 0.16) \times 10^4 \text{ t} \cdot \text{cm}^{-2}$$

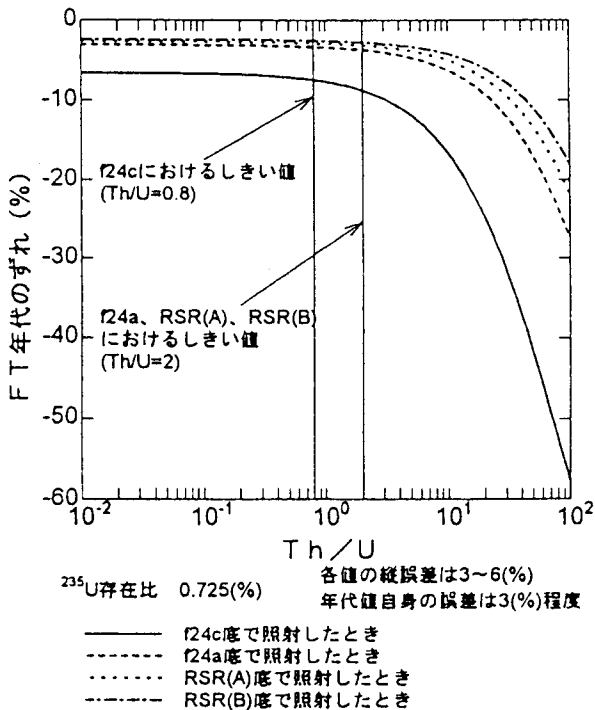


図1 Th/U比が変化したときの立教炉 f-ring、RSRにおける FT 年代への影響(絶対測定法)

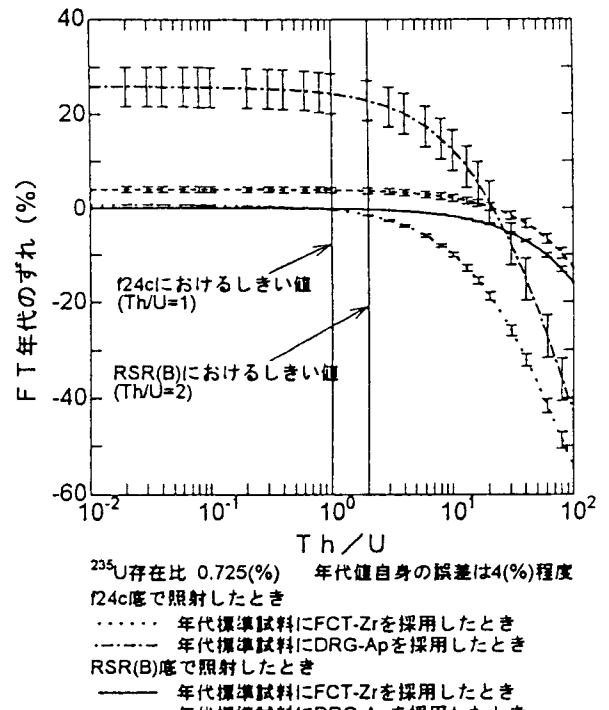


図2 Th/U比が変化したときの立教炉 f-24c、RSR(B)における FT 年代への影響(zeta法)

f24c では 0.8 以下で, zeta 法では, 図 2 より RSR(B) では 2 以下, f24c では 1 以下で各々年代のずれがほぼ一定となっていることが分かる. それらの Th/U 比をしきい値とする. 絶対測定法では, 未知年代試料の Th/U 比が小さいと前述したように  $^{232}\text{Th}+f$  による FT の影響が小さくなり, その他の FT に対して無視できるようになる. 即ち, FT 年代に及ぼす影響は  $^{238}\text{U}+f$ ,  $^{235}\text{U}+e$  による FT のみを考慮すればよいことになる.  $^{235}\text{U}+t$  に対する  $^{238}\text{U}+f$ ,  $^{235}\text{U}+e$  による FT の生成比は, Th/U 比に依存せず, 各照射場毎に一定になる. 従って, 年代のずれが一定となる. zeta 法では, 前述したように, 未知年代試料と年代標準試料の Th/U 比の差によって年代のずれが生じているため, 未知年

代試料の Th/U 比が小さくなれば, 年代標準試料の  $^{232}\text{Th}+f$  の影響だけを考慮すればよいことになるので年代のずれが一定となる. これらのことは, 未知年代試料の Th/U 比がそのしきい値より小さいことだけでも判明すれば, 両手法とも年代の補正が可能であることを示している. そのときの年代のずれは, 絶対測定法では照射場毎に, zeta 法では照射場と年代標準試料によって決定される.

さらに zeta 法については次のことが言える. 図 2 より, Th/U 比が 21 と大きい DRG-Ap を年代標準試料に使用した場合, 両試料の Th/U 比の差が大きくなるため, Th/U 比のしきい値以下では年代のずれがかなり大きな値で一定化している (f24c では 25%程度).

それに対して、Th/U 比が 0.73 と小さい FCT-Zr を年代標準試料に使用した場合、Th/U 比のしきい値以下では年代のずれがほとんど生じていない値で一定化しており（1%以下、特に RSR(B)）、年代値自身が誤差を持つことを考慮すると補正の必要性が無くなっている。これは未知年代試料の Th/U 比がしきい値以下であると、両試料の Th/U 比を一致させなくても年代標準試料の Th/U 比が小さければ、年代のずれがほとんど生じなくなることを示している。

また、両手法ともに、図 1、図 2 より Th/U 比がしきい値より大きくなると年代のずれの勾配が急激に大きくなり、Th/U 比の小さな相違により年代のずれが大きくなり異なっていることが分かる。従って、未知年代試料の Th/U 比が大ききときには、正確な Th/U 比が分かっていないと、正しい F T 年代を算出することが、両手法ともに困難になる。

なお、絶対測定法では、年代のずれは年代を小さくする方向に生じる（図 1 参照）。zeta 法では、Th/U 比が未知年代試料より年代標準試料の方が大きいと年代を大きくする方向にずれが生じ、その逆では、年代を小さくする方向にずれることに注意が必要である（図 2 参照）。

#### 4. まとめ

本研究により、以下のことが明らかとなった。

(1) 反応率 ( $\Phi \sigma n$ ) の比を使用していくつかの照射場毎に求めた誘発 F T 密度  $\rho_i$  (計算値) が、実測

値とほぼ一致した。このことにより、反応率の比による F T の生成割合が正確であり、高速及び熱外中性子フルエンスとそれによる F T の生成の関係が正確に求められることが明らかとなった。

(2) 試料の Th/U 比を変化させたときの F T 年代に及ぼす影響について検討した結果、以下の知見を得た。

① 絶対測定法では未知年代試料の、zeta 法では未知年代試料と年代標準試料の Th/U 比を求めれば、Th の影響による年代のずれを補正することが可能である。

② F T 年代を正確に求めるには、絶対測定法では未知年代試料の Th/U 比が小さいこと、zeta 法では未知年代試料と年代標準試料ともに Th/U 比が小さいことが望まれる。

また、照射場と手法により決定される Th/U 比のしきい値より未知年代試料の Th/U 比が小さいと、両手法とも年代のずれは一定化する。その大きさは、絶対測定法では各照射場毎に、zeta 法では照射場と年代標準試料により決定される。

#### 文 献

本多照幸, 檀原 徹, 野崎徹也, 1990, 武蔵工大原研所報, 16, 138-146.

本多照幸, 雁沢好博, 野崎徹也, 1987, 地球科学, 41 (5), 281-289.

Hurford A.J. and Green P.F., 1982, Earth. Planet. Sci. Lett., 59, 343-354.

上岡晃, 田中剛, 1989, 地質雑, 95, 835-850.