

12. フィッション・トラック標準年代試料中のトリウム並びにウラン含有量とそのzeta値に与える影響

本多照幸^{*}、檀原 徹^{**}、野崎徹也^{*}

(^{*}武蔵工大・原研、^{**}(株)京都フィッション・トラック)

I. 緒言

およそ分析法に関する限り、標準化への道は避けて通れない関所のようなものかも知れない。ただし、その関所は一つや二つではなく、いくつも待ち構えているにちがいないし、また、そうでなければならぬ。1989年に勧告されたフィッション・トラック(FT)年代測定法に関するそれも、その一回の抜け道だらけの関所で終わってはならない。科学である限り、我々は常に次の関所に向かって歩を進めよう。

昨年勧告されたzeta法(比較法)では、標準年代試料と未知試料が可能な限り同じ性格を有していることが望まれる。例えば、鉱物の生成年代が大幅に異なることや、トリウムとウランの含有比(Th/U比)が無視できないほど大きいこと等は、今回勧告されたzeta法では誤差を生ずる要因となるであろう。また、エッチング特性に明かな相違が認められるにもかかわらず、同一条件でエッチングを施すことも避けなければならない誤差の原因となろう。

トリウムは、²³²Th(同位体比100%)の速中性子に対する核分裂断面積が約0.12barn(2MeV中性子)であり、²³⁵U(同位体比0.72527%)の熱中性子に対するその582.2barnと比べて極めて小さいが、同位体比は逆に前者の方が2桁以上大きい。したがって、原子炉で中性子照射した場合、照射場所における速中性子の存在割合の程度によっては、誘発核分裂数全体に占める²³²Th起源のそれを無視することはできなくなる。zeta法を採用する場合には、利用原子炉の熱化状態が理想的(例えばカドミウム比が100以上)でない限り、標準年代試料と未知試料間のTh/U比が同一に近いことが要求される。

そこで、本報告では第一段階として、標準年代試料を中心としたトリウム並びにウランの含有量を中性子放射化分析(NAA)により正確に求め、Th/U比を算出し、その比がzeta値、したがってFT年代値に与える影響について検討を加える。

II. 実験

1. 試料

標準年代試料のFish Canyon tuff zircon、apatite及びDurango apatite、それに、参考として馬場タフ(Baba tuff) zircon並びにFish Canyon tuff spheneを鉱物試料として選定した。また、本分析法の正確さを確認するために、地調の標準岩石試料JG-1aを加えた。

2. 照射試料の作製

標準年代試料を含む鉱物の分離操作は、Durango apatiteを除いて、Fig.1のとおりである。Durango apatiteは結晶自身が大きいので、柱面をスライスしたものの一部を切り取り、7% HNO_3 溶液でエッチングを施した。JG-1aについては何ら手を加えることはしなかった。

Durango apatite試料は2種類の結晶から2試料を用意し、Fish Canyon tuff sphene試料も2試料を用意した。

いずれの照射試料も12~50mg程度を正確に秤量し、ポリエチレン袋に二重に密封して照射試料とした。

3. 中性子照射

中性子源として、武蔵工大炉 (TRIGA II型、100kW) を使用した。

すべての照射試料をTh並びにUの比較標準試料 (各々1.96 μg 、1.94 μg) とともに同一カプセルに詰め、Fリング管 (熱中性子束密度 $1.8 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 、カドミウム比5.8) で5時間連続照射した。照射試料は、カプセル内で一段にまとめたので、フラックス・モニターは必要なかった。

4. ガンマ線の測定

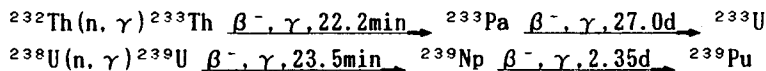
γ 線の測定には、高純度Ge半導体検出器 (相対計数効率13.0%、1332keVにおける半値幅1.8keV) と4096チャンネル波高分析器 (MCA)、それにパソコンを用いて行った。パソコンは、測定系の制御とともに γ 線スペクトルのフロッピーディスクへの格納のために用いた。

中性子照射後の冷却時間は、1週間、2週間、1カ月、2カ月の4回であった。測定時間は、前二者が3000秒、後二者が4000~30000秒であった。

III. 結果及び考察

γ 線測定によって得られたスペクトルのうち、典型例としてFish Canyon tuff zircon並びにDurango apatiteについて各々Fig.2、Fig.3に示す。その他の試料の測定も含めて、不感時間率が大きかったため分析に供する試料量は、1~5mgで十分であると思われる。

Th並びにUの定量のために用いた核反応を、以下に示す。



本研究では、Thの定量のために ${}^{233}\text{Pa}$ (半減期27.0d)、Uの定量のために ${}^{239}\text{Np}$ (半減期2.35d) を各々検出目的核種とした。

Fig.2とFig.3を比較すると、 ${}^{233}\text{Pa}$ の312keV、300keVはいずれのスペクトルにおいても明瞭に観察されるが、 ${}^{239}\text{Np}$ の228keV、278keVはFig.2 (Fish Canyon tuff zircon) にしか現われていない。このことは、Durango apatite (Fig.3) のU含有量はFish Canyon tuff zirconのそれより小さいことを示唆している。しかしながら、前者のU (${}^{239}\text{Np}$) ピークは1週間冷却では検出されていたので定量は可能であった。

Fig.2のスペクトルにおける顕著なピークは、 ${}^{181}\text{Hf}$ 、 ${}^{95}\text{Zr}$ 、 ${}^{46}\text{Sc}$ 等であり、Fig.3のそれは、 ${}^{153}\text{Sm}$ 、

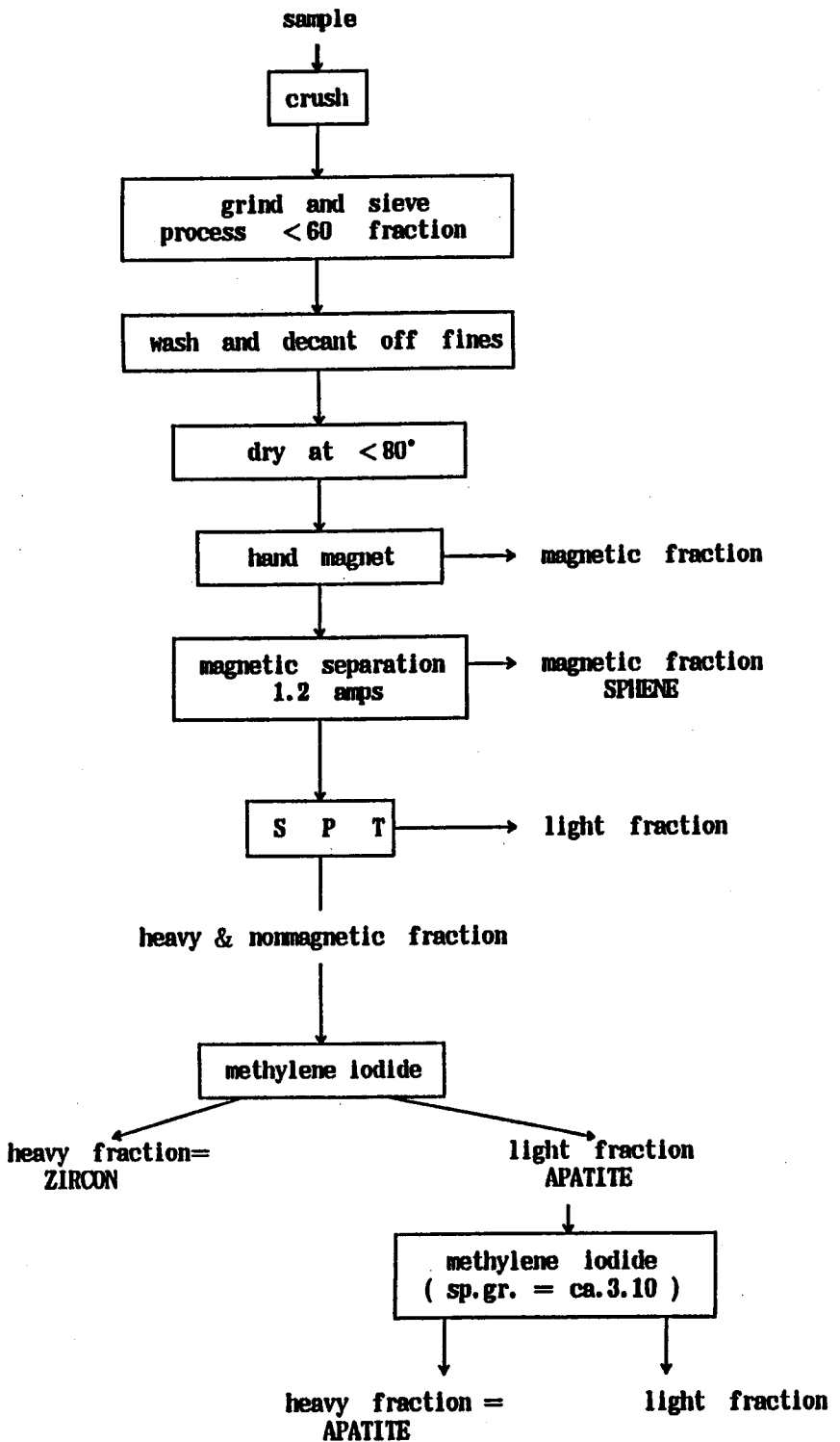


Fig.1 flow chart of mineral separation

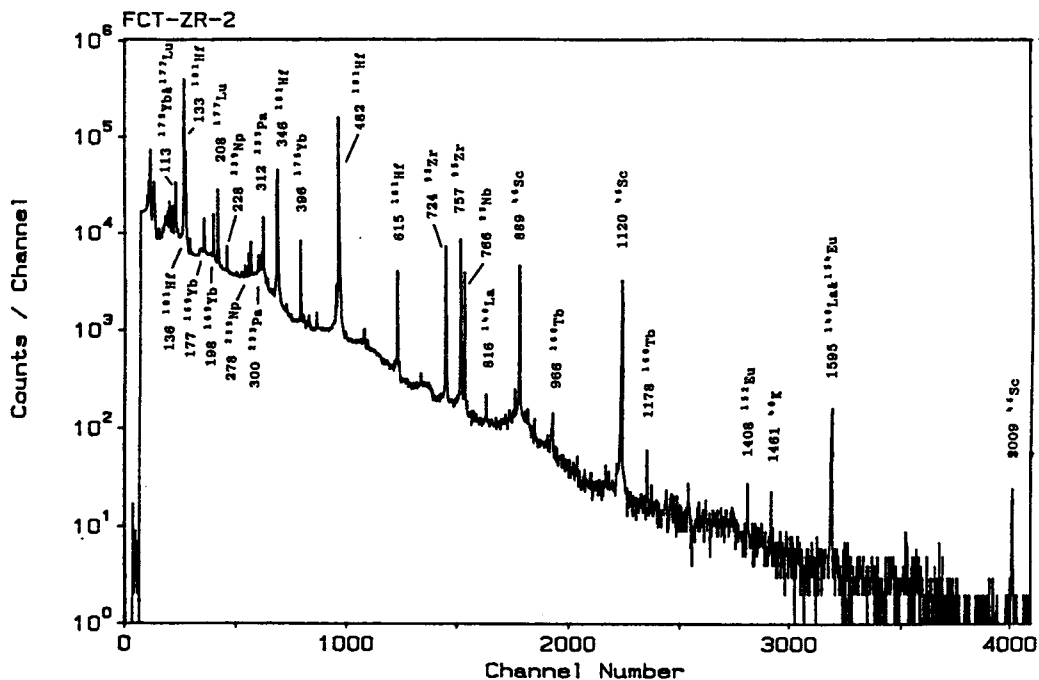


Fig.2 The gamma-ray spectrum obtained for the Fish Canyon tuff zircon sample by the present NAA, irradiation site is the F-ring tube (1.8×10^{12} n/cm²·sec), irradiation time 5 hours, cooling time 2 weeks and measuring time 2000 seconds

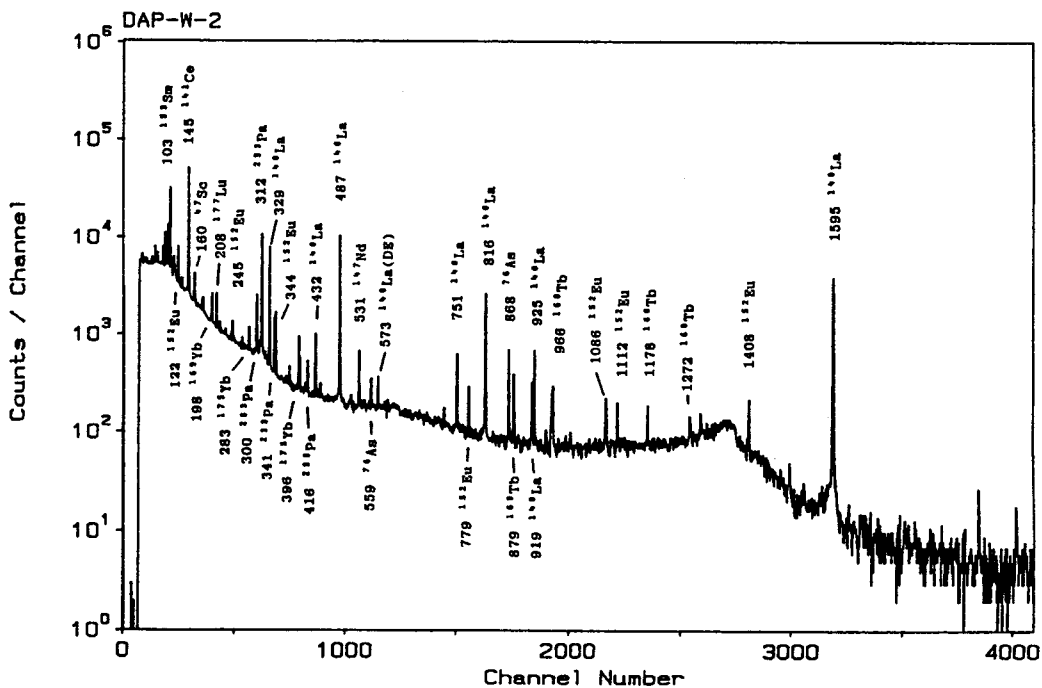


Fig.3 The gamma-ray spectrum obtained for the Durango apatite sample by the present NAA, irradiation site is the F-ring tube (1.8×10^{12} n/cm²·sec), irradiation time 5 hours, cooling time 2 weeks and measuring time 2000 seconds

^{141}Sc 、 ^{140}La 等である。この両者の相違は、マトリックス元素の違いに依存している。zircon中のZrは、同族のHfを取り込み易く、一方、apatite中のPは希土類元素(REE)と化合物をつくり易く、かつ、CaはREEと置換し易い。

γ 線スペクトルを解析して得られた、Th並びにUの定量結果をTable 1に示す。同時に、ThとUの含有量の比(Th/U)も併記する。表に示したように、岩石標準試料(JG-1a)の定量結果は、地調の推奨値と極めて良く一致しており、本分析法の精確度の高さを証明している。

Table 1から明らかなように、zircon試料中のTh並びにU含有量は、両者間で大きな差は認められないが、apatite試料では、Fish Canyon tuffとDurangoの間で顕著な差を生じている。即ち、Th含有量は後者の方が前者に比べて約3倍大きい、U含有量は逆に、前者の方が約3倍大きい。このことは、Th/U比に明瞭に表われており、両者間で約1桁の違いが存在する。

Durango apatiteとFish Canyon tuff sphene試料は、各々2試料を分析に供した。前者は異なる結晶から分取したものだが、含有量、比ともに大差はない。後者は同一の岩石から分離したものだが、これも良く一致している。

Th/U比は、zirconで1以下と最も低く、それ以外は1以上である。したがって、zeta法(比較法)に依らず絶対法でFT年代値を算出するには、zirconはTh/U比の見地からすると最も適した鉱物と言える。

武蔵工大炉照射溝で鉱物を照射した場合の、 ^{235}U (熱中性子)及び ^{232}Th 、 ^{238}U (いずれも高速中性子)起源の全生成FT密度に対する ^{232}Th 並びに ^{238}U 起源のFT密度の比をTable 2に記載する。本研究で分析に供した試料に関する限り、Thが全FT密度に与える影響は鉱物の種類により異なり、zirconがその影響を最も受けにくいことがわかる。いずれにせよ、鉱物ごとにzeta calibration factorを決定すべきであろう。

しかしながら、同種の鉱物(apatite)でもThの与える影響がFish Canyon tuffとDurangoでは約1桁異なり、件のzeta法では誤差の要因となる。特にDurangoはThの与える影響が3%程度と大きく、この値がそのままfactor(したがって年代値)に含まれるのでこれを標準年代試料に使用するには注意を要する。

Table 2から明らかなように、 ^{238}U 起源の全FT密度に対する比は、0.53~0.55%とほぼ一定しており、 ^{238}U の同位体比が大幅に変動していない限りzeta calibration factor(年代値)に大きな影響を与えることはない。

誘発FTにおいて、Thの影響が無視できないとすれば、どの様な対処法があるのだろうか。Fig. 4に ^{235}U の、Fig. 5に ^{232}Th の核分裂断面積を示す。両者の大きな違いは、 ^{235}U については熱中性子領域で大きな断面積を有しているが、 ^{232}Th については逆に、高速中性子領域で大きなそれを有していることにある。したがって、高速中性子のみを吸収し、熱中性子のみを透過させるような材料があれば、それで鉱物試料を覆って中性子照射すればよい。しかしながら、そのような夢の材料は地球上には存在しない。が、その逆に近いものならば存在する。Fig. 6に、原子炉の制御棒に使われる中性子吸収体の吸収断面積を記載する。図から明示されるように、Cdの断面積は熱中性子領域で極めて大きく、

Table 1 Determined Th and U contents (ppm) in various (standard) minerals for fission track dating and their ratios (Th/U)

mineral	Th (ppm)	U (ppm)	Th/U
Fish Canyon tuff-Zr	302 ± 5	413 ± 7	0.73
Baba tuff-Zr	361 ± 5	535 ± 8	0.67
Fish Canyon tuff-Ap	61 ± 1	22 ± 2	2.8
Durango-Ap-1	162 ± 2	7.6 ± 1.2	21
Durango-Ap-2	183 ± 2	7.9 ± 1.1	23
Fish Canyon tuff-Sp-1	271 ± 5	77 ± 3	3.5
Fish Canyon tuff-Sp-2	272 ± 5	73 ± 5	3.7
JG-1a	12.2 ± 0.1 (12.1)	4.8 ± 0.1 (4.7)*	2.5

*Numbers in parentheses are certified values by Geological Survey of Japan.

Table 2 Ratios of fission track densities originating from ^{232}Th and/or ^{238}U to corresponding all those from ^{235}U , ^{232}Th and ^{238}U in various (standard) minerals induced by neutron flux of the Musashi Institute of Technology Reactor (irradiation pit)

mineral	^{232}Th (%)	^{238}U (%)	$^{232}\text{Th}+^{238}\text{U}$ (%)
Fish Canyon tuff-Zr	0.099	0.55	0.65
Baba tuff-Zr	0.091	0.54	0.63
Fish Canyon tuff-Ap	0.37	0.54	0.91
Durango-Ap-1	2.8	0.53	3.3
Durango-Ap-2	3.0	0.53	3.5
Fish Canyon tuff-Sp-1	0.47	0.54	1.0
Fish Canyon tuff-Sp-2	0.50	0.54	1.0

*Ratios were calculated from the reaction rate ($n\sigma_f\phi$) by using ① $8.0 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ for thermal neutron flux density and $3.7 \times 10^{10} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ for fast neutron flux density and ② 582.2 barn for ^{235}U thermal neutron fission cross section, and 0.12 barn and 0.50 barn for ^{232}Th and ^{238}U fast neutron fission cross sections, respectively.

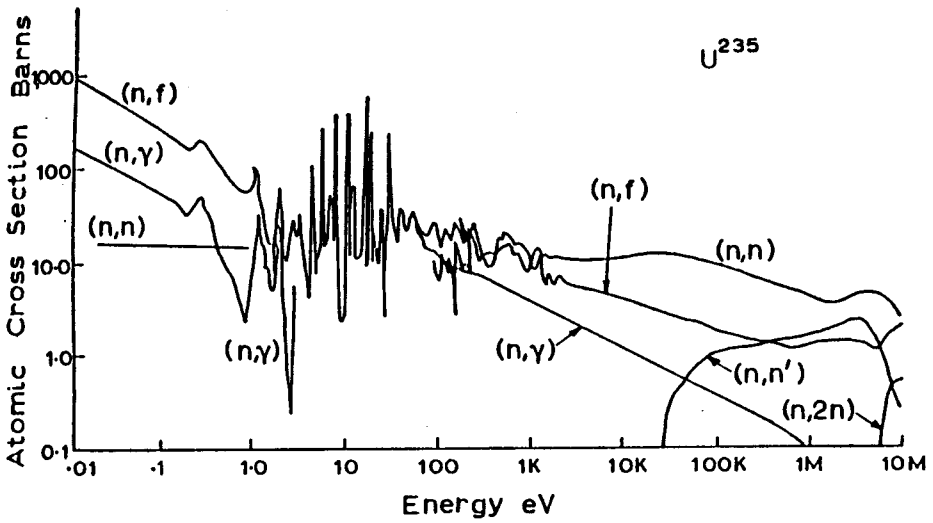


Fig. 4 Atomic cross sections of U^{235} . (n, n) refers to the elastic scattering collisions and (n, n') refers to inelastic scattering collisions. Data taken from BNL 325 and AWRE-0-28.

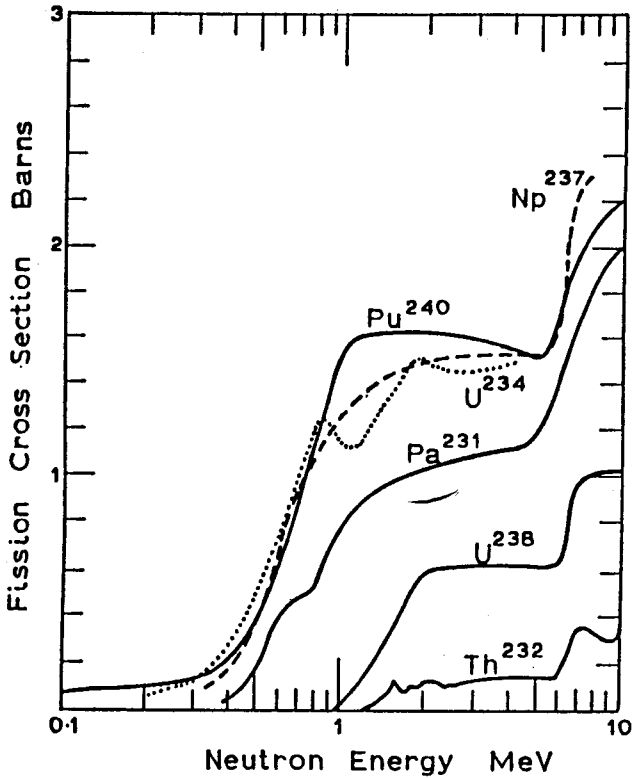


Fig. 5 Cross sections of fission threshold detectors

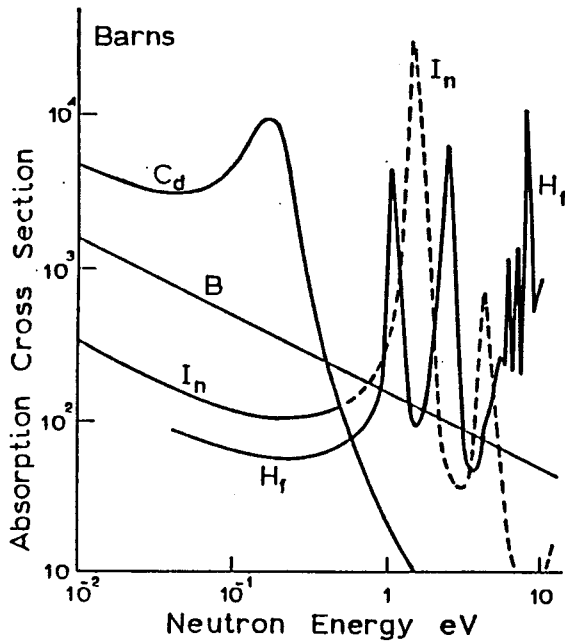


Fig. 6 Cross section of absorbers which can be used in control rods

熱外領域から急激に減少する。したがって、1mm厚程度のCd金属で鈷物試料を覆って照射すれば、熱外領域以上のエネルギーを有する中性子はほぼ透過させるが、熱領域のそれはほとんど吸収される。そこで、原子炉で中性子照射する際にCdカバーをした場合としない場合の両方を試みれば、両者のFT密度の差からThの影響をなくすことができる。ただし、Cdカバー照射すると熱外中性子の一部も吸収してしまうので、通常の照射法（Cdカバーなし）のみで算出されるzeta calibration factorと異なるため、この方法によるfactorと定義しなければならない。

本小論で新しく定義したzeta calibration factorについての詳細は、今後譲ろう。