

高速中性子源炉（弥生）を用いた フィッション・トラックの生成

本多照幸*、雁沢好博**、野崎徹也*、

岡本孝司***、班目春樹***

（*武蔵工大・原研、**北海道教育大、

***東大・工・原施）

I. はじめに

フィッション・トラック（FT）年代測定法は、地球の歴史や岩石、鉱物の地質年代を知る手段として、1960年代の初頭に開発され、70～80年代に広く使われるに至った。

現在、鉱物（ジルコン、アパタイト等）中に含まれるウランの検出は、自発核分裂（トラック）片の検出と同様、原子炉で照射して生成するトラック片を化学エッチングした後、光学顕微鏡下で観察して行うため、個々のトラック片が熱及び熱外中性子によって生成したのか、（高）速中性子により生成したのか区別がつかない。そこで、本研究では、FT年代測定に高速中性子の影響がどの程度あるのか見積り、より正確な年代値を算出することを目的とする。

今回は、その第一歩として、高速中性子源として用いた東大・弥生炉（グローリー孔）の高速中性子束及びフルエンスの絶対測定と、それにより生成するフィッション・トラックの凡その関係を求めたので報告する。

II. 実験

1. 試料

本研究において、中性子照射に供した試料は、ウラン入り標準ガラスSRM 961、年代標準試料 Fish Canyon tuffのジルコン（FC-T-Zr）及び中性子フラックス・モニター用の箔検出器・インジウム箔（In）である。このうち、前二者には、FTの転写・検出のためにマイカ箔が貼付してある。

ガラス及びジルコン試料とその特性を表1に、中性子モニター（In）の形状及び重量を表2に、Inの核データを表3¹⁾に示す。

表1 照射試料（ガラス及びジルコン）とその特性

試料	U濃度 (ppm)	Th濃度 (ppm)	同位体存在比 238U, Atom%	形状	備考
SRM 961 (マイカつき)	461.5	457.2	99.7624	1/4 円状	
FCR-Zr (マイカつき)	413±7	302±5	99.2747	正方形	埋め込みに エポキシ樹脂使用

表2 中性子モニターの照射*及び測定条件**

試料	形状	重量 (mg)	照射積算出力 (KWH)	冷却時間 (日)	検出核種	半減期	γ線エネルギー, KeV (絶対放出率)
In	0.01mm ² , 3mmφ (2枚)	1.23	5.53 (断続)	0.9	^{115m} In	4.5 h	336 (0.458)

* 標準ガラス (SRM961) 並びにジルコン試料 (FCR-Zr) はいずれも
28.65 KWHの積算出力 (断続) で照射した。

** γ線の測定時間は 1000 secである。

表3 本研究で使用した箔検出器とその核データ

元素	標的核種	天然存在比	反応	生成核種	放射化 断面積 (barn)	実効 断面積 (barn)	しきい エネルギー (MeV)
In	¹¹⁵ In	0.9577	(n, n')	^{115m} In	0.177	0.310	1.3

2. 中性子源

本研究の中性子源として、高速中性子源炉・弥生（東大）を用いた。

弥生炉の最大熱出力は2 kWであり、本研究で使用した照射場（グローリー孔）の中性子束（公表値）は、 $7.5 \pm 0.5 \times 10^{11} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ （2 kW時）、平均エネルギーは、0.8～1.5 MeV、冷却方式は空冷である¹⁾。

弥生炉・グローリー孔中心部の中性子スペクトル¹⁾を lethargy unit で図1に示す。

3. 中性子照射

中性子照射は、弥生炉・グローリー孔で標準ガラス（SRM 961）並びにジルコン試料（FCT-Zr）については、何れも28.65 kWh、Inについては、5.53 kWhの積算出力（断続）で行った（表2参照）。

4. モニター及びFTの計測

中性子モニター（In）の γ 線計測は、照射終了後、適当な冷却時間を経て、高純度Ge半導体検出器及びパソコン連動の4096チャンネル波高分析器を用いて行った。

Inの γ 線計測についての測定条件を表2に記載する。一方、マイカに転写されたFTの計数は、マイカを48%HFにより室温で22分エッチングした後、総合倍率600Xの透過型光学顕微鏡を用いて行った。

III. 結果及び考察

本研究において中性子フラックス・モニターに使用したInは、しきい値検出器であり、そのしきいエネルギーは表3に記載したように、1.3 MeVである¹⁾。InのCross section curve²⁾を図2に示す。また、本実験における測定により得られた γ 線スペクトルを図3に示す。

図3の γ 線スペクトルを解析することにより、しきい値1.3 MeV以上の実効中性子束（ $\phi_{1.3}$ ）を求めることが可能となる。（1）にその一般的な算出式を示す。

$$\phi_{\text{eff}} = \frac{\lambda N c e^{\lambda t_w}}{\sigma_{\text{eff}} n (1 - e^{-\lambda t_i}) \epsilon_p \eta (1 - e^{-\lambda t_c}) A c} \quad (1)$$

ここで、 ϕ_{eff} : 実効中性子束 ($\text{n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$)

σ_{eff} : 実効断面図 (cm^2)

n : 標的核数

$\phi(u) = a\phi_i(u) + b\chi(u)$
 $\phi_i(u) = 1.1782E^{13} e^{-37378 E}$
 $\chi(u) = 0.7770E^{13} e^{-3778 E}$
 $a = 0.4324, b = 0.5676$ E: Me 単位
 (a, bは fission-chamber で決めた値)

χ の平均エネルギー = 1.921 Mev
 ϕ_i の \bar{u} = 0.4873 Mev
 ϕ の \bar{u} = 1.297 Mev
 又 Total Flux は
 $7.5 \pm 0.5 \times 10^{11}$ nu/2kw

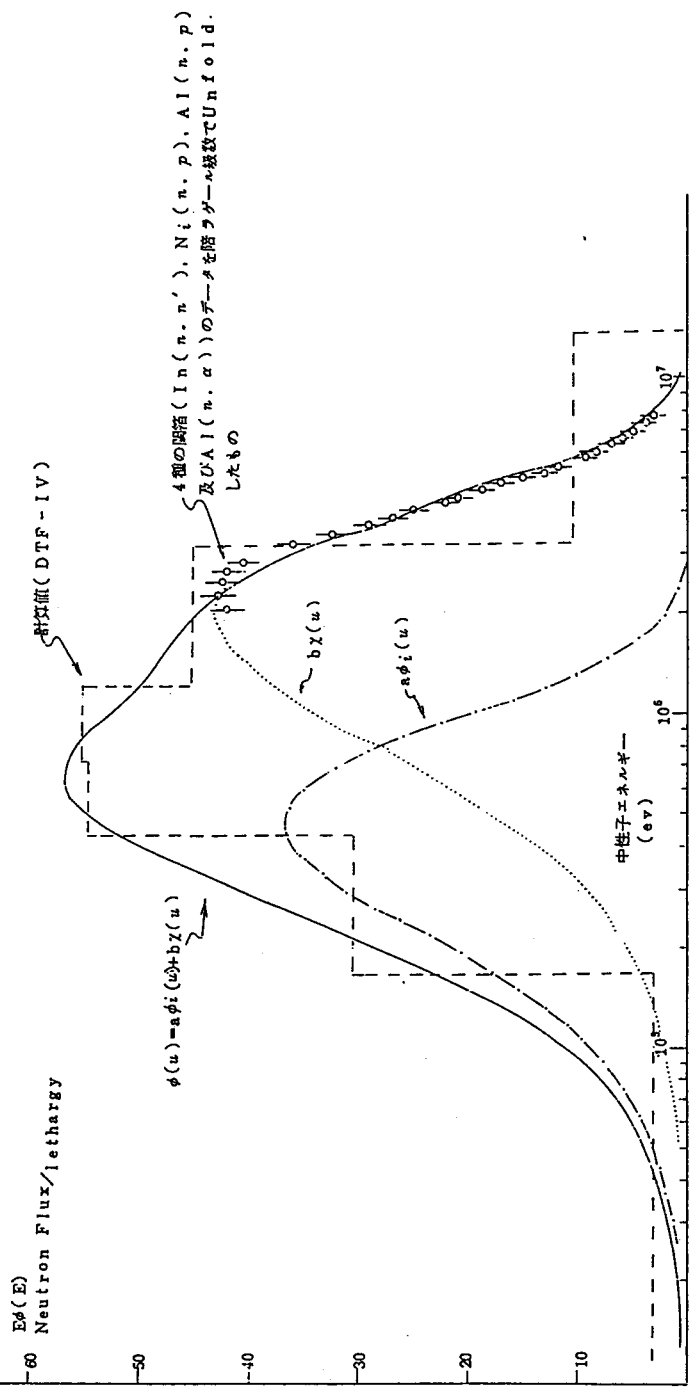


図1 弥生炉グローリー-孔中心部の中性子スペクトル

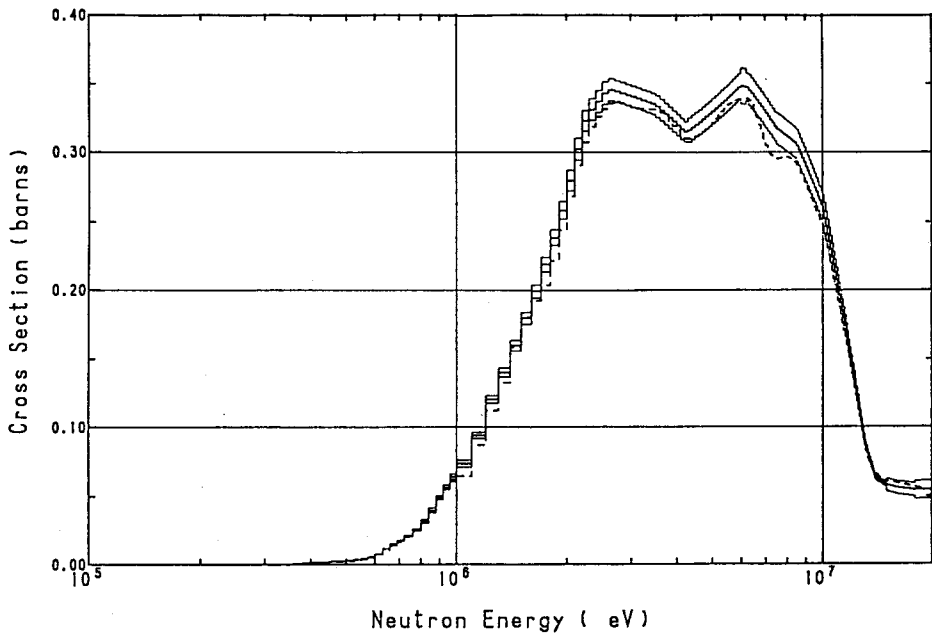


図2 $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ cross section

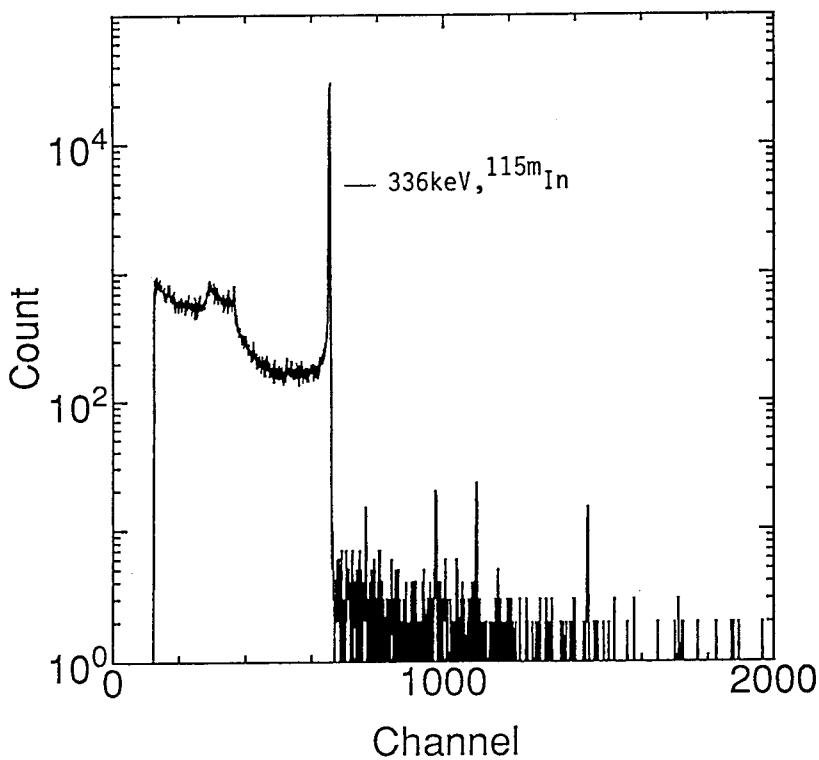


図3 In モニターのガンマ線スペクトル

- λ : 壊変定数 (sec⁻¹)
 t_i : 照射時間 (sec)
 ϵ_p : 光電ピーク効率
 η : 検出放射線の放出率
 A_c : 自己吸収係数
 N_c : 真の係数值
 t_w : 冷却時間 (sec)

また、自己吸収係数は(2)式で求められる。

$$A_c = \frac{1 - e^{-\mu T}}{\mu T} \quad \text{..... (2)}$$

- ここで、 μ : 線吸収係数 (cm⁻¹)
 T : モニターの厚さ (cm)

(1)、(2)式より $\phi_{1.3}$ が求められ、

$$\phi_{1.3} = 5.4 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$$

となった。

しかしながら、²³⁸U、²³²Thの(n, f)反応は、各々図4²⁾、図5²⁾に示すように何れも1.5MeVのしきい値を持っているため、1.5MeV以上の実効中性子束 $\phi_{1.5}$ に変換しなければならない。この変換は、東大で公表している中性子スペクトルを表す式¹⁾、

$$\phi(u) = a \phi_i(u) + b x(u) \quad \text{..... (3)}$$

(ただし、uはlethargy unit)

より求めることができる。(3)式の詳細な説明は、ここでは省くが、第1項は非弾性散乱の、第2項は核分裂のスペクトルを各々表している(図1参照)。

以上のようにして得られた $\phi_{1.5}$ 及びフルエンス $\Phi_{1.5}$ は、

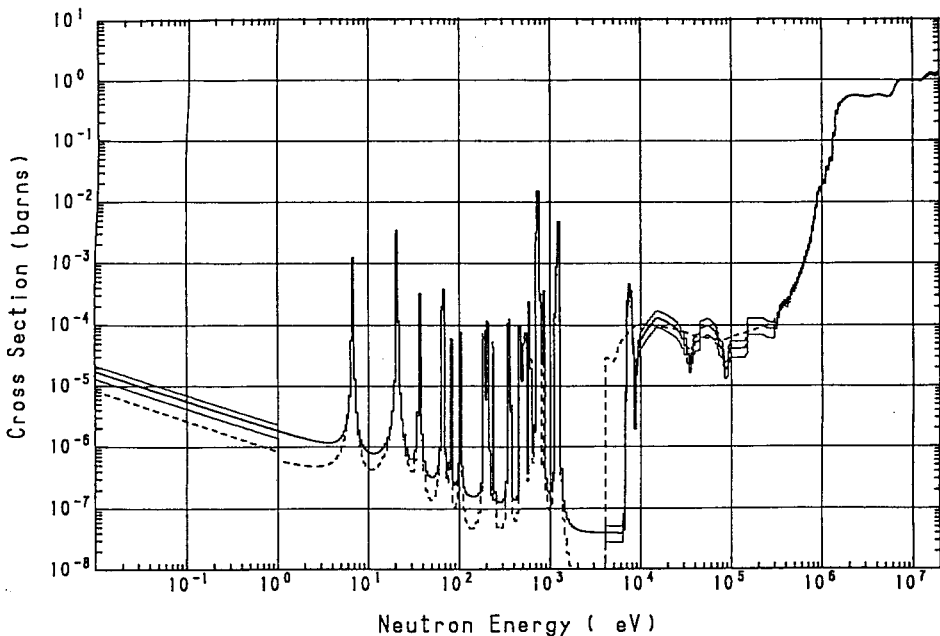
$$\phi_{1.5} = 4.7 \times 10^{11} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1} \quad (2 \text{ kW時})$$

$$\Phi_{1.5} = 2.4 \times 10^{16} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2}$$

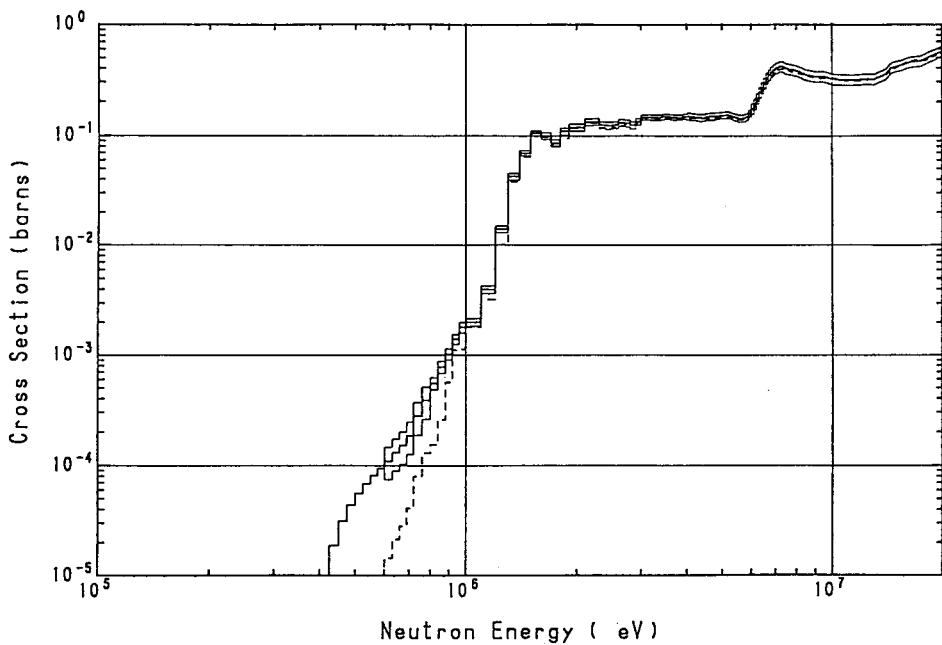
となった。

一方、標準ガラス並びにジルコン試料より転写されたマイカ中のFTの密度(ρd)は、U濃度が両試料とも400ppm程度であるため、以下のようにほぼ同じ値となった。

$$\rho d = 1 \sim 1.5 \times 10^7 \text{ t} \cdot \text{cm}^{-2} \quad -36-$$



4 ^{238}U fission cross section



5 ^{232}Th fission cross section

ただし、この ρd 値は、照射フルエンスが大き過ぎたため高い値となり、正確な値とは言い難い。従って、本稿では参考値として扱い、詳細な検討は今後の実験結果に譲ることとする。

高速中性子により核分裂を引き起こす主な核種は、 ^{238}U 、 ^{232}Th 及び ^{235}U の3つである。これらの核種が本実験において、各々どの程度の生成割合を有するかは、実効断面積または平均断面積を用いて求めることができる。これらの断面積¹⁾は既に東大によって求められており、 ^{238}U の $\sigma_{\text{eff}} = 0.587 \text{ barn}$ 、 ^{232}Th の $\sigma_{\text{eff}} = 0.131 \text{ barn}$ 、 ^{235}U の平均断面積 $\bar{\sigma} = 1.27 \text{ barn}$ となっている。これらの値を用いて反応率(ϕn)の比を算出すれば、それが即ちF Tの生成割合である。

このようにして得られた生成割合は、全体を1とした場合、

$$^{238}\text{U} : ^{232}\text{Th} : ^{235}\text{U} = 0.805 : 0.183 : 0.012$$

となった。従って、前述の ρd 値の中で ^{238}U 起源は80.5%、 ^{232}Th 起源は18.3%
 ^{235}U の起源は1.2%各々含まれていることになる。

F T年代測定では、通常熱中性子を用いた $^{235}\text{U}(n, f)$ 反応により試料中のU濃度を求める方法が採用されている。標準ガラスSRM 962a及び613を用いた B_{th} 値(カドミ・カバー実験により、熱中性子のみで補正したもの)として以下の値が本多、雁沢ら³⁾⁻⁵⁾によって求められている。

$$B_{\text{th}} = \frac{\Phi_{\text{th}}}{\rho d \cdot t_{\text{th}}} = 7.45 \pm 0.29 \times 10^9$$

この値と $\Phi_{1.5}$ 及びガラス中のU濃度、同位体比、実効断面積の比から ^{238}U の ρd を算出すると、 $\rho d = 1.57 \times 10^7 \text{ t} \cdot \text{cm}^{-2}$ となる。同様に ^{232}Th は $3.6 \times 10^6 \text{ t} \cdot \text{cm}^{-2}$ 、 ^{235}U は $2.3 \times 10^5 \text{ t} \cdot \text{cm}^{-2}$ となり、 ρd の総和は $1.95 \times 10^7 \text{ t} \cdot \text{cm}^{-2}$ と算出される。この値は、前述の実測値 $\rho d = 1 \sim 1.5 \times 10^7 \text{ t} \cdot \text{cm}^{-2}$ とほぼ近似である。先述した通り、 ρd の実測値は正確な値とは言い難く、しかも中性子モニターの生成放射能が多かったことを考慮に入れるならば、両者は良く一致していると見ることができる。

本稿では、今のところこれ以上の議論はできないので、今後、照射条件を最適にして、高速中性子照射による $\Phi - \rho d$ の関係を ^{238}U 、 ^{232}Th について詳細かつ正確に求める予定である。

IV. まとめ

今回、はじめて高速中性子源（弥生）を用いて、得られたフルエンスとF Tの生成との凡その関係を求めた。その結果、以下のことが明らかとなった。

- (1) I_n を用いた絶対測定により、高速中性子束を求めることができた。
- (2) $\Phi - \rho d$ の相関は、熱中性子で得られている値とほぼ近似であった。
- (3) 今後、照射条件を最適にすることにより、高速領域での照射フルエンスとF T生成の関係がより詳細かつ正確に求まるものと思われる。

V. 参考文献

- (1) 中沢正治，関口 晃，“「弥生」線量測定データ集 [1]”，
東京大学工学部附属原子力工学研究施設，1976.
- (2) JAERI 1325，“JENDL Dosimetry File”，
日本原子力研究所，1992.
- (3) 本多照幸，雁沢好博，野崎徹也，地球科学，41巻5号（1987）
281-289.
- (4) 雁沢好博，本多照幸，野崎徹也，地球科学，42巻3号（1988）
137-146.
- (5) Y. GANZAWA, T. HONDA, T. NOZAKI,
Nucl. Tracks Radiat. Meas., vol. 17
No. 3 (1990) 273-276.