

# 高速中性子源炉（弥生）照射による

## F T の生成とその評価

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・原研）

### I. はじめに

既報（本誌第6号、1993）のとおり、本研究ではフィッション・トラック（F T）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標とし、高速中性子源炉（弥生）を用いて、照射中性子フルエンスとF Tの生成とのおおよその関係を求めることができた。

そこで今回は、

- (1) 弥生炉（グローリー孔）の照射高速中性子束、フルエンス及びカドミウム比を正確に求めること、
  - (2) 反応率（ $\phi\sigma n$ ）から算出される  $^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}$ 及び  $^{235}\text{U}$ の生成比を求め、ウラン同位体比並びにTh/U比の異なる試料について比較、検討すること、
  - (3) 熱中性子のみにも補正された $\phi_{th} - \rho d \cdot \phi_{th}$ の相関（ $B_{th}$ ）を用いて算出される $\rho d \cdot r$ とその実測値を比較、検討すること、
- を目的とし、満足できる結果が得られたので報告する。

### 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(FCT-Zr)、同じくDurango アバタイト(DRG-Ap)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、中性子フラックス測定用)と金箔(Au、カドミウム比測定用)である。このうち、標準ガラスと年代標準試料には、F Tの転写・検出のためにマイカ箔が貼付してある。

ガラス及び鉱物試料とその特性を表1に、中性子モニター(In並びにAu)の形状及び重量を表2に、In並びにAuの核データを表3<sup>1)</sup>に示す。

#### 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。

表 1 照射試料（ガラス及び鉱物）とその特性

試料	U濃度 (ppm)	Th濃度 (ppm)	同位体存在比 $^{238}\text{U}$ , Atom%	形状	備考
SRM 961 (マイカつき)	461.5	457.2	99.7624	1/4 円状	
FCT-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
DRG-Ap (マイカつき)	7.9±1.1	183±2	99.2747	正方形	

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	$\gamma$ 線エネルギー (keV) (絶対放射率)
In	0.01mm <sup>3</sup> , 3mm $\phi$ (各2枚)	1.2~1.3	0.75 1.1	0.7	$^{115m}\text{In}$	4.5h	336 (0.458)
Au	0.10mm <sup>3</sup> , 3mm $\phi$ (各1枚)	13.8~ 14.1	0.75 1.1	7	$^{198}\text{Au}$	2.7d	412 (0.986)

\* 標準ガラス (SRM961) 並びに鉱物試料 (FCT-Zr, DRG-Ap) は  
いずれもモニターと同時に2回照射した。

\*\*  $\gamma$ 線の測定時間は、2000秒である。

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	平均 断面積 (barn)	実効 断面積 (barn)	しきい エネルギー (MeV)
In	$^{115}\text{In}$	0.9577	(n, n')	$^{115m}\text{In}$	-	0.310	1.3
Au	$^{197}\text{Au}$	1.0	(n, $\gamma$ )	$^{198}\text{Au}$	0.145	-	-

弥生炉の最大熱出力は2kW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、 $7.5 \pm 0.5 \times 10^{11} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ （2kW時）、平均エネルギーは、0.8~1.5MeV、冷却方式は空冷である<sup>1)</sup>。

### 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、鉱物試料及び中性子モニターの何れについても 0.75kWhと 1.1kWhの2種類(ただし、0.75kWhのときはアバタイト試料を除く)の積算出力で行い(表2参照)、何れの積算出力においても、カドミウムカバーをして熱中性子をカットする照射とカバーをしない通常の照射を実行した。

### 4. モニター及びFTの計測

中性子モニター(In及びAu)の $\gamma$ 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及びAuの $\gamma$ 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により室温で約50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、1.3MeVである<sup>1)</sup>。得られた $\gamma$ 線スペクトルを解析することにより、しきい値1.3MeV以上の実効中性子束( $\phi_{1.3}$ )を求めることが可能となる。使用した算出式は既報(本誌第6号、1993)のとおりである。

しかしながら、<sup>238</sup>U、<sup>232</sup>Thの(n, f)反応は、何れも1.5MeVのしきい値を持っている<sup>2)</sup>ため、1.5MeV以上の実効中性子束 $\phi_{1.3}$ 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<sup>1)</sup>、

$$\phi(u) = a\phi_i(u) + bx(u) \dots\dots\dots (1)$$

(ただし、uは unit lethargy)

より求めることができる。(1)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。

以上のようにして得られた $\phi_{1.3}$ 及びフルエンス $\Phi_{1.3}$ 並びに全中性子束 $\phi_{tot}$ 及び全フルエンス $\Phi_{tot}$ をカドミ比と共に表4に記載する。表4から明らかなように、本研究で得られた $\phi_{tot}$ は、 $8.26 \times 10^{11} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ (0.75kWh)及び $6.83 \times 10^{11} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ (1.1kWh)となり東大で公表している  $7.5 \pm 0.5 \times 10^{11} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ とよく一致している。また、カドミ比(Au)は0.996(0.75 kWh)及び1.10(1.1kWh)となり、1.0に極めて近い値(1.0以下はあり得ない)であることから、熱中性子の存在は事実上無視できることが分かる。

表4 箔検出器により得られた中性子束(2 kWh), フラックス及びカドミウム比  
4-a 積算出力0.75 (kWh)

検出器	$\phi_{1.5}$ ( $\times 10^{11} \text{n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ )	$\Phi_{1.5}$ ( $\times 10^{14} \text{n}\cdot\text{cm}^{-2}$ )	$\phi_{\text{tot}}$ ( $\times 10^{11} \text{n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ )	$\Phi_{\text{tot}}$ ( $\times 10^{15} \text{n}\cdot\text{cm}^{-2}$ )	カドミウム比
In	2.43	3.28	8.26	1.12	-
Au	-	-	-	-	0.996

4-b 積算出力1.1 (kWh)

検出器	$\phi_{1.5}$ ( $\times 10^{11} \text{n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ )	$\Phi_{1.5}$ ( $\times 10^{14} \text{n}\cdot\text{cm}^{-2}$ )	$\phi_{\text{tot}}$ ( $\times 10^{11} \text{n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ )	$\Phi_{\text{tot}}$ ( $\times 10^{15} \text{n}\cdot\text{cm}^{-2}$ )	カドミウム比
In	2.01	4.04	6.83	1.37	-
Au	-	-	-	-	1.10

一方、標準ガラス並びに鉍物試料より転写されたマイカ中のFTの密度( $\rho_d$ )は、表5-aに示すようにU濃度が両試料(SRM 961とFCT-Zr)とも400ppm程度であるため、ほぼ近似の値となった。また、表5からトラック密度のカドミウム比( $\rho_d/\rho_d\cdot\text{cd}$ )は、標準ガラスについては1.02と1.04、ジルコン試料については、0.973と1.02、アパタイト試料については1.03~1.09と何れも1.0に極めて近い値となり、中性子モニター(Au)同様、弥生炉の中性子スペクトルが高速中性子源炉として理想的であることを示している(表4参照)。

高速中性子により核分裂を引き起こす主な核種は、 $^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}$ 及び $^{235}\text{U}$ 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<sup>1)</sup>は既に東大によって求められており、 $^{238}\text{U}$ の $\sigma_{\text{eff}} = 0.587\text{barn}$ 、 $^{232}\text{Th}$ の $\sigma_{\text{eff}} = 0.131\text{barn}$ 、 $^{235}\text{U}$ 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( $\phi \sigma_n$ )の比を算出すれば、それが即ちFTの生成割合である。

このようにして得られた生成割合を、全体を100%として表6に示す。表6から明らかなように、標準ガラスとジルコン試料は、 $^{238}\text{U}$ からの寄与が何れも80%以上であるのに対し、アパタイト試料では、 $^{232}\text{Th}$ からの寄与が80%以上となっている。このことは、表1に示したU濃度とTh濃度の比較から、Th濃度の比が大きい試料(DRG-ApのTh/U=23)では、高速中性子の影響をThの方が受けやすいことを明示している。従って、このようにTh/U比が大の試料を年代標準試料とすることは、極めて不適切と言わざるを得ない。

表5 標準ガラス (SRM961) 並びに鉍物よりマイカに転写されたFT密度  
5-a 積算出力 0.75 (kWh)

試料	$\rho_d^{*1}$ ( $\times 10^5 \text{t} \cdot \text{cm}^{-2}$ )	$\rho_{d \cdot cd}^{*2}$ ( $\times 10^5 \text{t} \cdot \text{cm}^{-2}$ )	カドミウム比 ( $\rho_d / \rho_{d \cdot cd}$ )
SRM961	3.37 (2044)	3.30 (2006)	1.02
FCT-Zr	3.62 (1300)	3.72 (1336)	0.973

5-b 積算出力 1.1 (kWh)

試料	$\rho_d^{*1}$ ( $\times 10^5 \text{t} \cdot \text{cm}^{-2}$ )	$\rho_{d \cdot cd}^{*2}$ ( $\times 10^5 \text{t} \cdot \text{cm}^{-2}$ )	カドミウム比 ( $\rho_d / \rho_{d \cdot cd}$ )
SRM961	4.51 (1364)	4.35 (1316)	1.04
DRG-Ap-1	ex <sup>*3</sup> in <sup>*4</sup>	0.421 (1271) 0.371 (1121)	1.09 1.06
DRG-Ap-2	ex <sup>*3</sup> in <sup>*4</sup>	0.390 (1178) 0.387 (1168)	1.08 1.03
FCT-Zr	(2824)	(2782)	1.02

\*1 カドミウムカバーなしの照射により得られたFT密度

\*2 カドミウムカバーありの照射により得られたFT密度

\*3 結晶の外表面を使用

\*4 結晶の内表面を使用

表6 反応率 ( $\phi \sigma n$ ) から求めた<sup>238</sup>U, <sup>232</sup>Th及び<sup>235</sup>Uの生成比  
(%)

試料	<sup>238</sup> U	<sup>232</sup> Th	<sup>235</sup> U
SRM961	80.3	18.3	1.4
FCT-Zr	81.8	13.8	4.4
DRG-Ap	15.7	83.5	0.8

F T年代測定では、通常熱中中性子を用いた  $^{235}\text{U}$  (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 962 a及び613を用いた $B_{th}$ 値(カドミ・カバー実験により、熱中中性子のみ補正したもの)として以下の値が本多, 雁沢ら<sup>3)-5)</sup> によって求められている。

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

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 $^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}$ 及び $^{235}\text{U}$ の $\rho d \cdot t_f$ (高速中中性子によって生成するトラック密度)を算出し、総和求めた結果を実測値とともに表7に示す。表中の $\rho d \cdot t_f$ の計算値と実測値は0.75kWh、1.1kWhともによく一致(0.75kWh時ではほぼ同一)しており、高速中中性子フルエンスとF Tの生成の関係が正確に求められたことを示している。この結果は、F T年代への原子炉照射による高速中中性子の影響を正確に評価し得ることを明示している。

表7  $B_{th}^{*1}$ から計算により求められた $\rho d \cdot t_f^{*2}$ とその実測値

ガラス	$\rho d \cdot t_f$ (計算値) ( $\times 10^5 \text{t} \cdot \text{cm}^{-2}$ )	$\rho d \cdot t_f$ (実測値) <sup>*3</sup> ( $\times 10^5 \text{t} \cdot \text{cm}^{-2}$ )	積算出力 (kWh)
SRM961	3.31	3.30	0.75
SRM961	4.08	4.35	1.1

\*1 SRM962 aより求められた熱中中性子のみ値 ( $B_{th}=7.45 \pm 0.29 \times 10^9$ )を使用

\*2 高速中中性子のみから生成するF T密度

\*3 弥生炉(グローリー孔)においてカドミウムカバーつき照射したときの实測値

#### IV. まとめ

本研究により、以下のことが明らかとなった。

- (1) Inを用いた絶対測定により、高速中中性子束を求めた結果、東大の公表値とよく一致した。
- (2) Auモニターから得られたカドミ比は0.996、1.10であり、標準ガラス(SRM 961)及び鉱物(ジルコン、アバタイト)からも1に近似の値が得られ、弥生炉が極めて理想的な高速中中性子源炉であることが本研究からも確認された。
- (3) 反応率( $\phi \sigma n$ )から算出される $^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}$ 及び $^{235}\text{U}$ の生成比を比較すると、Durango アバタイトのようにTh/U比が大の試料は、 $^{232}\text{Th}$ の生成比が $^{238}\text{U}$ の生成比よりも大きくなるのが定量的に確認された。

- (4)  $\Phi - \rho d$  の相関は、熱中性子で得られている値とよく一致し、高速中性子の FT 年代への影響を正確に評価し得ることが判明した。

#### 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.