フィッション・トラック年代測定法

——その原理と実験手法——

玉 生 志 郎*

Fission Track Dating Method

—— Its Principles and Laboratory Procedures ——

Shiro TAMANYU

Abstract

The purpose of this report is to outline the principles and laboratory procedures of fission track dating.

Initial discoveries of tracks were reported by YOUNG (1958) and SILK and BARNES (1958). Since PRICE and WALKER (1962) discovered that fission tracks could be made visible in a optical microscope by chemical etching, the researches of solid state track recorder (FLEISCHER, *et al.*, 1975) have been remarkably developed. Fission track dating method is one application of these researches. PRICE and WALKER (1962) and FLEISCHER and PRICE (1963) tried firstly fission track dating using micas and natural glasses respectively. FLEISCHER, *et al.* (1965) also suggested the ion explosion theory as track formation mechanism considering that the each detector has a threshold of primary ionization rate for track formation to each charged particle energy (Fig. 1, 2).

Last 15 years fission track dating method have been grown up to the very important tools for Geochronologist. Nevertheless, the primary and technical data are little reported in most papers. NAESER, *et al.* (1979) offered the original proposal for standardization of fission track data. They recommended that ten column table be used (Table 1, as an example) and five items such as decay constant, neutron fluence monitor, dating technique standard error and annealing correction, should be mentioned.

The practical procedures for fission track dating are as follows. (1) Rock sampling, (2) Rock crushing, (3) Mineral separation, (4) Mounting minerals in FEP teflon or Epoxy resin, (5) Polishing minerals, (6) Chemical etching, (7) Preparing samples for irradiation, (8) Post irradiation procedures, (8) Counting of fission tracks, (10) Statistic calculation, (11) Drawing data tables.

I. はじめに

フィッション・トラック年代測定法は PRICE and WALKER (1962) および FLEISCHER and PRICE (1963) により、各々、白雲母、天然ガラスを用いて初めて試みられた。それ以降、本方法は地質学や考古学の分野で多くの測定結果を出し重要な研究手段としての地位を確立した。この手法は高価な質量分析器

* 地質調査所地殻熱部 Geothermal Research Department, Geological Survey of Japan

を必要とせず割合簡便にできるということと、従来放射年代測定が困難とされていた第四紀更新世を測定できるという理由から多くの期待がよせられている。ただ多くの測定結果がでてくると、その測定手法の標準化ということがデータの信頼性、再現性という観点から重要になる。現時点においてはこの手法の標準化というものは正式にはまだ確立されていない。そのため1978年米国コロラド州スノーマスで開催された第4回地質年代・宇宙年代・同位体地質学に関する国際会議でのフィッション・トラック年代測定分科会席上では測定結果の公表形式に関する勧告を出すことについて議論がなされた。これを受けて NAESER, *et al.* (1979) により原案としてフィッション・トラック年代値の公表に関する標準化についてという論文が提案された。この原案を次回 (1982年, 日本) までに検討し結論を出すことになっている。このようにフィッション・トラック年代測定も質が問われる時代となりつつある。1982年には第5回地質年代学・宇宙年代学・同位体地質学に関する国際会議が日本で開催されることになっている。日本でのフィッション・トラック年代測定がより一層盛んになることを期待して、ここに現在多くの研究者が用いている実験手法について紹介する。この論文を書くにあたり原理については坂上 (1973), FLEISCHER, *et al.* (1975) を、実験手法については NAESER (1976) を参考にした。

II. フィッション・トラックに関する理論

(1) 研究史

フィッション・トラックとは核分裂片が飛んだ跡という意味で核分裂片の重い荷電粒子が絶縁体中を通過したときつくる損傷のことをいう。フィッション・トラックは核分裂トラック (または核分裂飛跡) と和訳されている。似た言葉として荷電粒子がつくるトラックという意味で粒子トラック (particle track), の粒子がつくるトラックという意味でのトラックなどという呼び方がある。これらを総称してトラックと呼ぶ。

フィッション・トラックの最初の発見は YOUNG (1958) と SILK and BARNES (1959) で、各々、弗化リチウム、白雲母で行われた。SILK and BARNES (1959) の場合電子顕微鏡を用いたため、トラックは電子線ビームにより急速に消滅してしまつて長時間観察は不可能であつた。これを可能にしたのは PRICE and WALKER (1962) により試みられたトラックの化学腐食法である。トラックの形成されている試料を適当な酸またはアルカリでエッチング (腐食) すると、トラック部分は基質部よりも急速にエッチングが進行するため、トラックを固定化できるとともに光学顕微鏡でも観察可能となる。

フィッション・トラック年代測定の試みは PRICE and WALKER (1962) により白雲母で、FLEISCHER and PRICE (1963) により天然ガラスで各々実施された。その後種々の鉱物で試みられた結果、年代測定に適するものはジルコン、スフェーン、アパタイト、白雲母、ガラスなどであることが判った。トラックを記録できるものとしては鉱物などの無機物の他、プラスチックなどの有機物もあるので数は多い。これらの検出材全体を総称して solid state track recorder (SSTR) と呼ぶようになった (FLEISCHER, *et al.*, 1975)。このようにトラック法は単に年代測定のみならず、トレーサーの検出やオートラジオグラフィーとして生物学、医学に、元素のエネルギー分析や超重元素の研究として化学、物理学などに、そしてその他広範な分野で様々に利用されている。これらトラック法については FLEISCHER, *et al.* (1975) により集大成された Nuclear Tracks in Solids-principles and applications という単行本に詳しく述べられている。

(2) フィッション・トラックの生成機構

フィッション・トラックとは核分裂片が固体に対してつくる放射線損傷のことである。この損傷があとでエッチングされて検出可能なトラックになりうるか否かは、核分裂片が固体の各箇所にとどの程度のエネルギーを付加するかによって決まる。FLEISCHER, *et al.* (1965) により提唱された ion explosion 説によるとトラック生成機構は第1図のように説明されている。結晶中を通過する核分裂片は自分の軌道電子

第1図 トラックの生成機構
(FLEISCHER, *et al.* 1965の ion explosion 説による)

(3) フィッション・トラック年代測定の実理

PRICE and WALKER (1962) は天然に生ずる自発核分裂が天然物の中に化石トラック*1として記録されることを明らかにした。そのため自発核分裂の壊変定数を知れば化石トラック密度をしらべることにより年代測定できることが判った。この年代測定法は他の放射年代測定と同様に放射性物質の壊変率が一定であることを利用して年代測定を行なう方法である。但し他の放射年代測定が親元素と娘元素の量比を直接質量分析器で測定するのに対して、フィッション・トラック年代測定では核分裂するとき生ずるトラックの単位面積あたりの数を測定する。この化石トラックをつくる原因としては ^{238}U 及び ^{232}Th の自発核分裂、天然に生ずる中性子による誘導核分裂、宇宙線の影響など種々のものが考えられうるが、特異なサンプル ($\text{Th} \gg \text{U}$, Pb , Bi など $\gg \text{U}$ など) 以外では ^{238}U の自発核分裂のみを考えればよい (PRICE and WALKER, 1963)。それ故自発核分裂トラック密度 (ρ_s) はトラックが記録されていた期間 (T) と ^{238}U

と結晶をつくっている原子の軌道電子とをともにはぎとる。そのため核分裂片自体は正荷電粒子となる。一方、核分裂片の通過した周辺の原子は正荷電イオンとなり相互にクーロン反発を起こし結晶格子中に損傷を生ずる。そのためこの損傷生成の基準は荷電粒子の通路に沿って単位長さあたりに生成するイオン対の数、すなわち一次イオン化率 $J \left(= \frac{dI}{dx} \right)$ によって決まる。

$$J = \frac{dI}{dx} = \left(\frac{\alpha Z_1^2}{I_0 \beta^2} \right) \left[\ln \left\{ \frac{2 m_e c^2 \beta^2}{(1 - \beta^2) I_0} \right\} - \beta^2 + 3.04 \right] \quad (1)$$

但し α : 物質によってきまる定数

Z_1 : 入射粒子の有効電荷

I_0 : 検出材物質を構成する原子の外殻電子のイオン化エネルギー

β : v/c (但し v : 粒子速度, c : 光速度)

m_e : 電子の質量

FLEISCHER, *et al.* (1967) は実際種々の物質に重イオンを照射してエッチング・トラックを観察した。その結果を (1) 式から求めた曲線上に、エッチング・トラックのできたものを黒丸、できなかったものを白丸として第2図に表示した。このような図からわかることは検出材により物質固有のエッチング・トラック生成の一次イオン化率臨界値 (J_c) が決まっているということである。それは各検出材の損傷度がその物質の引張り強さに応じて異なるためである。

*1 自発核分裂トラックが鉱物やガラス中に化石のように保存されているのでこのように呼ぶ (fossil track の和訳)

第2図 トラック生成に関する一次イオン化率のしきい値について
(FLEISCHER, *et al.*, 1967)

の濃度 (^{238}C) の積に比例する。 ^{238}U の濃度は $T \leq 10^8$ yr ならば U 同位体比 ($^{238}\text{C}/^{235}\text{C}$) はほぼ一定であるから ^{235}U の濃度がわかれば求められる。 ^{235}U の濃度は熱中性子線量 (ϕ) の照射による ^{235}U の誘導核分裂トラック密度 (ρ_i) から知ることができる。 $T < 10^9$ y の場合、近似的に

$$\rho_s = (T \cdot \lambda) (N_v \cdot ^{238}\text{C} \cdot ^{238}\text{R} \cdot ^{238}\eta) \quad (2)$$

但し

T: 自発核分裂トラックが保存されていた期間

λ : ^{238}U の自発核分裂定数

N_v : 検出材の単位体積あたりの原子数

^{238}C : ^{238}U の濃度

^{238}R : ^{238}U の自発核分裂片のエッチング可能なトラック長

$^{238}\eta$: エッチング効率

一方

$$\rho_i = (\sigma \cdot \phi) (N_v \cdot ^{235}\text{C} \cdot ^{235}\text{R} \cdot ^{235}\eta) \quad (3)$$

但し

σ : ^{235}U の誘導核分裂の核分裂断面積

ϕ : 熱中性子線量

N_v : 検出材の単位体積あたりの原子数

^{235}C : ^{235}U の濃度

^{235}R : ^{235}U の誘導核分裂片のエッチング可能なトラック長

$^{235}\eta$: エッチング効率

として求められる。

ここで (2), (3) 式より

$$T = \zeta (\rho_s / \rho_i) \phi$$

但し

$$\zeta = \frac{\sigma}{\lambda} \cdot \frac{{}^{235}\text{C}}{{}^{238}\text{C}} \cdot \frac{{}^{235}\text{R}}{{}^{238}\text{R}} \cdot \frac{{}^{235}\eta}{{}^{238}\eta}$$

ここで $T \lesssim 10^8$ y. であるならば ${}^{235}\text{C}/{}^{238}\text{C} \approx 1$ と考えて

$$\sigma = 577 \times 10^{-24} \text{ (cm}^2\text{)}$$

$$\lambda = 6.85 \times 10^{-17} \text{ (y}^{-1}\text{)}$$

$${}^{235}\text{C}/{}^{238}\text{C} = 7.26 \times 10^{-3}$$

$${}^{235}\text{R}/{}^{238}\text{R} = 1$$

$${}^{235}\eta/{}^{238}\eta = 1 \text{ (同一エッチング条件下で)}$$

$$\text{よって } \zeta = 6.12 \times 10^{-8} \text{ (cm}^2 \cdot \text{y)}$$

$$\text{故に, } T = 6.12 \times 10^{-8} \times (\rho_s/\rho_i) \times \phi \quad (4)$$

ここで注意しておきたいことは、 ${}^{238}\text{U}$ の自発核分裂定数 (λ) については測定法により種々の値が報告されている (WAGNER, *et al.* 1975, NISHIMURA 1975, THIEL and HERR 1976) ことである。サンドウィッチ法では $7.0 \times 10^{-17} \text{ (y}^{-1}\text{)}$ 前後の値、バブル・カウンター法では $8.42, 8.46 \times 10^{-17} \text{ (y}^{-1}\text{)}$ という値、また年代のわかっているガラスを用いた方法では $8.5 \times 10^{-17} \text{ (y}^{-1}\text{)}$ 前後の値、そして K-Ar 法など他の放射年代測定で年代のわかっている鉱物を用いた方法では $6.9 \times 10^{-17} \text{ (y}^{-1}\text{)}$ 前後の値が得られている。現段階ではフィッション・トラック年代測定を行なう上で、 6.85×10^{-17} , 7.03×10^{-17} , 8.42×10^{-17} , などの値が使われている。それ故、測定値には必ず λ 値としてどの値を使用したか明記しておく必要がある。

(4) フィッション・トラック法によるウラン濃度測定の実理

鉱物中の ${}^{235}\text{U}$ の濃度 (${}^{235}\text{C}$) は (3) 式より

$${}^{235}\text{C} = \left(\frac{\rho_i}{\phi} \right) \cdot \left(\frac{1}{N_v \cdot \sigma \cdot {}^{235}\text{R} \cdot {}^{235}\eta} \right)$$

U 全体の濃度 C は

$$C = \left(\frac{\rho_i}{\phi} \right) \cdot \left(\frac{1}{N_v \cdot \sigma \cdot I({}^{235}\text{U}) \cdot {}^{235}\text{R} \cdot {}^{235}\eta} \right) \quad (5)$$

但し $I({}^{235}\text{U})$ は ${}^{235}\text{U}$ の同位体存在比とする。体積ウラン濃度 $C(\text{atom/atom})$ と重量ウラン濃度 $C_w(\text{g/g})$ の関係は

$$C_w = \frac{N_v \cdot U}{N_A \cdot d} \cdot C \text{ となる。}$$

但し、 N_v : 検出材の単位体積中の原子数、 N_A : アボガドロ数、 U : ウランの質量数、 d : 検出材の密度とする。ここではジルコン結晶の場合を考えると

N_v : ジルコン結晶の単位体積中の原子数

$$(\approx 9.3 \times 10^{22} \text{ atom/cm}^3)$$

N_A : アボガドロ数 ($= 6.023 \times 10^{23}$)

σ : ${}^{235}\text{U}$ の核分裂断面積 ($= 577 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$)

$I({}^{235}\text{U})$: ${}^{235}\text{U}$ の同位体存在比 ($= 0.714\%$)

${}^{235}\text{R} \cdot {}^{235}\eta$: ジルコン結晶中でエッチングされる平均トラック長 ($\approx 4 \mu\text{m}$)

ρ_i : 1 cm^2 あたりの誘発核分裂トラック密度

ϕ : 1 cm^2 あたりの全熱中性子線量

U : ウランの質量数 ($= 238$)

d : ジルコンの密度 ($= 4.6$)

とすると

$$C_w \text{ (ppm)} \approx 5 \times 10^{10} \times (\rho_i/\phi) \quad (6)$$

となる。

III. フィッション・トラック年代測定の実験手順

フィッション・トラック年代測定を行うための手順を以下に示し、各々の内容については後に項目別に詳述する。

- (1) 岩石試料採集 (岩塊数kg)
 - (2) 岩石粉碎
 - (3) 鉱物分離
 - (4) 鉱物の埋込み (FEP テフロンまたはエポキシ樹脂)
 - (5) 研磨
 - (6) エッチング
 - (7) 熱中性子線照射の試料作成
 - (8) 照射後の処理
 - (9) フィッション・トラックの計数
 - (10) 統計処理
- (1) 岩石試料採集 (岩塊数 kg)

フィッション・トラック年代測定に用いる鉱物として種々の鉱物やガラスが考えられるが、一般に用いられるジルコン、スフェーン、アパタイト、白雲母、ガラスについて述べる。

[ジルコン]

ウラン濃度が高くそのトラックが熱・圧力に安定しているため最も普通に用いられる。ジルコンはマグマからの晶出の時期がほぼ角閃石と同じなため、デイサイトより酸性の岩石では副成分鉱物としてかなり含まれる。両輝石安山岩中にも含まれるが細粒で少量である。玄武岩中には微量含まれる程度である。

[スフェーン]

ジルコン同様、ウラン濃度が高くそのトラックが熱・圧力に安定である。チタンの珪酸塩鉱物のため一般には多量に産しないが、火成岩にはひろく認められる。

[アパタイト]

リン酸塩鉱物でジルコンより晶出時期が早いので安山岩などでひろく認められる。そのトラックが割合低い温度で消滅することから熱史の研究などに利用されている。

[白雲母]

ウラン濃度が低いため中生代以前の古い岩石の年代測定に用いられる。そのトラックは大変明瞭であり誘導核分裂トラックの外部検出材としてよく使われている。

[ガラス]

人工ガラスとしてはウランなどにより着色されたものが、天然ガラスとしては黒曜石、テクタイト、真珠岩、火山灰中のガラス片、溶結凝灰岩中の本質レンズなどが用いられる。ガラス中のトラックは最もアニリングしやすいので、一般に補正が必要である。

以上のような鉱物やガラスを採集するにあたり注意すべき事項を以下に述べる。

(i) これらの鉱物がマグマから直接晶出した本質結晶なのか、または外来結晶なのか区別する必要がある。特に加熱されずにとり込まれた異質岩片の混入には特に注意を払わねばならない。水中堆積の凝灰岩などでは多量の外来結晶が含まれているので、本質岩片中の鉱物のみを集めるようにしなければならない。

(ii) 岩体が形成されて以後に蒙った熱履歴を吟味しておく必要がある。岩体が形成された後化石トラックが消滅する程の高温を受けたとすると、得られるフィッション・トラック年代は本来の岩石の形成年代より若い熱変質を受けた年代を示すことになる。

(iii) 特にガラスに関しては脱ハリ作用を受けやすいので新鮮な部分を探すようにする。

(2) 岩石粉碎

鉱物分離のための岩石粉碎の手順はジルコン、スフェーン、アパタイトなどの鉱物の場合次のようなものである。白雲母、ガラスの場合は一般に必要なない。

(i) 岩塊数kgをギロチン、ハンマーで約2～3cm角の岩片に割る。柔らかい凝灰岩などはミキサーで十分粉碎できるので粉碎機を使用する必要がない。

(ii) 約2～3cm角の岩片はジョー・クラッシャーで粉碎し、80メッシュで篩い分けする。そして粗いものはディスク・クラッシャーで再び粉碎し、細かいものは250メッシュでの水洗いにまわす。

(iii) ディスク・クラッシャーで粉碎し、80メッシュで篩い分けする。そして粗いものはもう一度ディスク・クラッシャーにかける。これでも80メッシュより粗いものは廃棄する。細かいものは250メッシュでの水洗いにまわす。

(iv) 80メッシュより細かいものはすべて250メッシュで水を用いて篩い分けして、80～250メッシュのものを集める。

(v) 乾燥器(80℃以下)で乾燥させる。

(vi) 次の試料にとりかかる前に試料間の混合が起こらないよう粉碎機や篩の清掃を念入りに行う。

(3) 鉱物分離

(i) (重液分離) 300～500ml ビーカーにプロモフォルム試薬を $\frac{1}{3}$ 程度入れて、これに粉碎試料を10～20g程度入れる。数分間隔で3度攪拌し、軽鉱物を浮かせて、重鉱物をビーカー底に沈澱させる。その後軽鉱物は口紙の上へかき出し、また残りの粉碎試料をプロモフォルム中へ入れる。試料がなくなるまで繰り返し、最後にビーカーの底にたまった重鉱物を回収する。

(ii) (磁選) まず磁石で磁鉄鉱などをとり除いた後、アイソダイナミック・セパレーターをside slope 20°にして電流を0.4, 0.8, 1.2mAに順次あげていって磁性鉱物をその都度とり除き最後に反磁性鉱物をつめる。試料は十分磁選できるように少量ずつ処理する。

(iii) (重液分離) ヨウ化メチレン(比重3.3)を50mlビーカーに $\frac{1}{3}$ 程度入れて、試料を数g入れて攪拌する。その後は(i)と同様とする。軽鉱物として主にアパタイトなどが集まり、重鉱物としてジルコン、スフェーンなどが集まる。

(iv) (洗浄) 鉱物表面についているガラスなどをとり除くため2N HClで80℃20分程度処理する。その後よく水洗いする。

(v) (手選) ジルコン、スフェーンなど各々の鉱物だけを集めるには実体顕微鏡下で観察しながら、楊枝の先端を細くさせて水をつけて1ヶ1ヶ結晶を拾い上げる。

(4) 鉱物の埋め込み (FEP テフロンまたはエポキシ樹脂)

ジルコン、スフェーンなどの鉱物をFEP テフロンへ埋め込める場合の手順は以下の通りである。

(i) ホットプレートで310℃に熱し、この上にスライドガラス(A)をのせる。

(ii) 実体顕微鏡下で鉱物結晶を10ヶ程度並べたスライドガラス(B)を用意する。

(iii) FEP テフロンシート(0.25mm)を直径約1cm程度の円形に切って、面のそりをなくすように2枚の凹面同士をくっつけて、スライドガラス(B)上の鉱物結晶にかぶせる。

(iv) FEP テフロンをかぶせたスライドガラス(B)をホットプレート上にのせ、温度上昇を待つてすでのせておいたスライドガラス(A)をかぶせて、上からピンセットのうしろで押しつける。

(v) FEP テフロンが溶けて透明になった後数秒間押しつけ、ホットプレートからおろす。

(vi) FEP テフロンは冷えるとガラスからはずれるので、鉱物を埋め込んだ反対の面に千枚通しのようなもので試料番号を書き込む。

アパタイト、ガラスなどをエポキシ樹脂へ埋め込める場合は次のような手順である。

(i) ホットプレートで100℃にし、その上に時計皿などの容器をのせてエポキシ樹脂(二液混合型)を

混合する。

(ii) プラスチック管やガラス管を輪切りにしたものを準備する。

(iii) スライドガラス上にアパタイトやガラスを並べて、(ii) で用意した輪切りをかぶせる。

(iv) この輪切りにエポキシ樹脂数滴たらす。

(v) たいていのエポキシ樹脂は常温で十分固化するためには18時間程度かかる。十分固結した後、研磨作業にとりかかる。

(5) 研磨

(i) 鉱物試料を埋め込んだ FEP テフロンまたはエポキシ樹脂を 研磨用の 把手にシアノボンドまたは両面テープで粘着させる。

(ii) シリコンカーバイト研磨紙1500番を用いて反射顕微鏡下で観察しながら鉱物の表面を 10μ 以上削り落とす。

(iii) ダイヤモンドペースト (A), (C) を用いて DP クロス上で各々数分ずつ研磨して、擦痕のない研磨面を作成する。

(6) エッチング

代表的な鉱物のエッチング条件は下記の通りである。

[ジルコン]

腐食液: NaOH (7.2g) と KOH (10g) の共融体

温 度: 200°C

時 間: 4~48時間 (トラック密度の高いもの程短時間)

容 器: テフロンビーカーなど

[スフェーン]

腐食液: 50M NaOH (NaOH 40g, H_2O 20g)

温 度: 130°C

時 間: 10~60分

容 器: ステンレスビーカーなど

[アパタイト]

腐食液: 7 % HNO_3

温 度: 25°C (または室温)

時 間: 20~40秒

容 器: ガラスビーカーなど

[白雲母]

腐食液: 48% HF

温 度: 25°C

時 間: 5秒~15分

容 器: プラスチックビーカーなど

[ガラス]

腐食液: 48%, 24% HF

温 度: 25°C (または室温)

時 間: 5秒~1分

容 器: プラスチックビーカーなど

(7) 熱中性子線照射の試料作成

(i) 白雲母結晶をまず厚さ0.05~0.1mm にしてから、埋め込んだ鉱物をおおいかくす程度の大きさに

切る。その時、あとの観察の時便利のように不等辺台形に整形しておくといよい。

(ii) 鉱物を埋め込んだ FEP テフロンまたはエポキシ樹脂を石けん水、蒸留水、アルコールで順次洗浄する。

(iii) マジックテープを実験台の端につけ長さ20~30cm に切る。これに不等辺台形に整形した白雲母片を粘着させ、ピンセットで劈開を利用して薄く剥がすときれいな面をもつ白雲母片がとれる。この面を下にして試料台（鉱物を埋め込んだ FEP テフロンまたはエポキシ樹脂）に被せる。

(iv) 白雲母と試料台とを密着させるためマジックテープ（2~3 cm 長）を上から押しつける。試料台からはみだした余分なテープは鋏で切り落とす。

(v) 熱中性子線量モニター用として照射容器の頂面と底面に入れる標準ガラスも同様に洗浄し白雲母を密着させる。

(vi) 安全ピンで白雲母と試料台に2列に3ヶずつの穴をあけておく。これは後で顕微鏡下で鉱物を探す上で役に立つ。

(vii) 各々の照射容器に入れた試料の番号、厚さ、照射条件などを記録しておく。

(viii) 日本国内で熱中性子照射できる施設は立教大学、京都大学、日本原子力研究所の各原子炉である。

(8) 照射後の処理

(i) 原子炉で熱中性子線照射した直後の試料は高い放射能がある。これはたいてい半減期の短い元素が放射化された結果なので、数週間程度放射線管理区域に保管する。原子炉の管理者に試料の放射能が零になったことを確認してもらった後、試料を持ちかえる。

(ii) 実験室に持ち返った照射試料を紙タオルの上に置き、蓋を開けて、標準ガラス、白雲母、試料台を取り出す。白雲母についているマジックテープはエッチングの際ははずれるのでそのままにしておく。

(iii) 標準ガラスに密着させた白雲母をエッチングする。プラスチック容器に白雲母をテープ側を下にして置き、48% HF を注いで25°C、1時間の条件でエッチングする。

(iv) 白雲母を蒸留水とアルコールでよく洗った後、ホットプレート上で残っている HF を蒸発させる。

(v) きれいなスライドガラスの上に標準ガラスに密着させた白雲母をエポキシ樹脂ではりつけ、スライドガラスの端に標準ガラスの番号と照射容器の番号を記入しておく。

(vi) 鉱物を埋め込んだ FEP テフロンに密着させた白雲母は、テフロン、テープとともに端をカットする。するとテフロンとテープのついた白雲母に分かれる。

(vii) 白雲母を48% HF で25°C、11分間エッチングする。

(viii) 白雲母を(iv)と同様に洗う。

(ix) スライドガラス上に FEP テフロンシートと白雲母を左右対象の関係になるように並べてシアノボンドではりつける。

(9) フィッション・トラックの計数

(i) トラック数を測定する場合、試料が透過光のものであれば生物顕微鏡（偏光顕微鏡でも可）を、不透過光であれば反射顕微鏡を用いる。各々の顕微鏡の接眼レンズに1mm²を100等分した方眼マイクロメーターを入れて、単位面積あたりのトラック数を測定する。

(ii) 鉱物およびその外部検出材としての白雲母のトラック計数は生物顕微鏡で対物レンズ100倍（浸液使用）接眼レンズ10倍を用いて行うといよい。

(iii) 標準ガラス及びその外部検出材としての白雲母のトラック計数は落射顕微鏡で400~600倍で行うといよい。

(iv) 熱中性子線量を決めるためには測定誤差の上から1000ヶ以上のトラックを測定した方がよい。線量は照射容器の底部と頂部でかなりの差があるので、底部、頂部においた標準ガラスのトラック密度差から線量勾配を求める。照射容器の中間部の試料の線量はその比例配分から求めることができる。標準ガラス

としては National Bureau of Standards glasses (SRM 961, 962, 963, 964) を用いるとよい。

(v) トラック数を測定する場合、自発核分裂トラック数と誘導核分裂トラック数は同じ結晶粒の同じ場所と同面積測定する。外部検出材としての白雲母には鉱物結晶の周辺から低角で入射した誘導核分裂トラックが分布しているため、この部分は測定面積から除外しなければならない。

(10) 統計処理

フィッション・トラックは極めて稀にしか起こらない事象なので、フィッション・トラックの起こる確率はポアソン分布に従うと考えられる。ポアソン分布は次のような数式で表現できる。

$$f_a(n) = \frac{a^n e^{-a}}{n!} \quad (7)$$

但し

n : サンプル数

a : 平均値

$f_a(n)$: n が起こる確率

McGEE and JOHNSON (1979) は外部検出材を用いる方法の年代誤差を以下のよう に 4 つの部分に分けて考察した。

(i) 全測定トラック数による測定誤差 E_o は以下のように求められる。

$$E_o = \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \quad (8)$$

但し

$$\alpha = \frac{1}{\sqrt{\sum f}} \quad (\sum f = \text{全自発核分裂トラック数})$$

$$\beta = \frac{1}{\sqrt{\sum i}} \quad (\sum i = \text{全誘導核分裂トラック数})$$

(ii) 自発核分裂トラックと誘導核分裂トラックはともにウラン濃度分布に規制される。そこで同結晶粒内での両者のトラックの対応関係を相関係数 r として求める。

(iii) 第 3 図に示した “Magic Ratio Graph” を用いて E_o を補正し E_r を求める。 V は自発核分裂トラック数と誘導核分裂トラック数の比率を示している (相対的に小さい方を分母とする)。

(iv) 年代誤差は以下のように求める。

$$E_a = \sqrt{(E_r)^2 + (E_g)^2} \quad (9)$$

但し

$$E_g = \frac{1}{\sqrt{g}} \quad (g = \text{標準ガラスの全測定トラック数})$$

E_a = 年代誤差の標準偏差値

第 3 図 Magic Ratio Graph (NAESER, 1976)

IV. フィッション・トラック年代値の公表に関する標準化

第 4 回地質年代学・宇宙年代学・同位体地質学に関する国際会議ではフィッション・トラック分科会が初めて開かれた。その時フィッション・トラック年代値の発表において、その記載型式がばらばらであったり不完全なものが多いので、データの標準化に関する勧告を出そうということが討議された。これを受けて NAESER, et al. (1979) は表題のような論文を勧告文の原案として提出した。この原案ではフィッション・トラック年代値の発表においては第 1 表に示したような表をつけるよう勧告している。表の記載項目は以下の通りである。

- (1) 試料番号または登録番号
- (2) 測定試料の鉱物名

第1表 フィッション・トラック

(1)	(2)	(3)		(4)	
Sample code	Mineral	ρ_s		ρ_i	
		tracks/cm ²	tracks*	tracks/cm ²	tracks*
1. 72N8	zircon	4.77×10^6	(1061)	11.13×10^6	(1237)
2. 72N8	apatite	1.71×10^5	(357)	3.79×10^5	(789)
3. FT-2	apatite	4.44×10^5	(926)	2.49×10^5	(518)
4. Moldavite (natural state)	glass	9.57×10^3	(521)	1.06×10^5	(750)
5. Moldavite (after 1hr at 350°C)	glass	4.83×10^3	(269)	4.98×10^4	(307)

$\lambda_f = 7.03 \times 10^{-17} \text{ yr}^{-1}$; $^{235}\text{U}/^{238}\text{U} = 7.252 \times 10^{-3}$; $\sigma_f = 580 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$.

* Number of tracks actually counted to determine the reported track density (or the

† This notation indicates that different numbers of fields of view were counted in determination of second number), respectively.

(3) ρ_s (自発核分裂トラック密度 トラック/cm² と実測トラック数)。もしアニーリング補正を行った場合は使用した方法(プラトー法, トラック径・トラック長測定法)を明記する。

(4) ρ_i (誘導核分裂トラック密度 トラック/cm² と実測トラック数), 外部検出材を用いた場合は 2π Geometry となるので注意する。

(5) Φ (熱中性子線量 neutrons/cm² と標準ガラスの誘導核分裂トラックの実測数)

(6) T (年代) 普通百万年単位で表示する。

(7) S (算出年代の誤差の標準偏差値) であれば $\pm 2S$ で表わした方が望ましい。

(8) 試料の大きさ: 年代を決めるために測定した結晶数または面積, ρ_s , ρ_i を求める結晶数または面積は同じである方がよいが, 異なる場合は第1表の sample 4, 5 のように表現する。

(9) r , $\bar{s}'$: 外部検出材を用いた場合は 自発核分裂トラックと誘導核分裂トラックの相関係数 r を求める。ポピュレーションの場合は誘導核分裂トラックの計測における平均値の相対標準誤差 $\bar{s}'$ で表示することとする。

$$\bar{s}' = \frac{S/\sqrt{n}}{\bar{x}} \times 100 \quad (10)$$

但し

$\bar{x}$: 平均値

s : 標準偏差

n : 結晶数

(10) U (ppm): 試料全体の真のウラン濃度は求められないが, 参考値としてつけ加えておく。

NAESER, *et al.* (1979) はまた上記の表の他に次の事項についても論文に明記するよう勧告している。

(1) 試料の年代を算出するにあたり λ_F (^{238}U の自発核分裂定数), I (ウランの同位体比) σ_F (^{235}U の誘導核分裂の核分裂断面積) としてどんな数値を採用したか明記する。

(2) 中性子線量はどのようにして決められたか明記する。

(3) 年代測定法としてどの方法を採用したか。

a. ポピュレーション法

b. ひき算法

c. 外部検出法

d. 再エッチング法または再研磨法

年代測定表の例 (NAESER, *et al.*, 1979)

(5)		(6)	(7)	(8)	(9)	(10)
Φ		T	$\pm 2s$	Number of	r, s	U
neutrons/cm ²	tracks*	Myr	Myr	grains or fields		ppm
1.05×10^{15}	(2216)	26.9	1.2	6	0.989(r)	310
1.13×10^{15}	(2345)	30.5	3.9	50	4.8% (s)	11
1.03×10^{15}	(2163)	109	12	50	14.9% (s)	7
2.68×10^{15}	(2832)	14.5	1.7	200/100†	3.63% (s)	
2.68×10^{15}	(2832)	15.5	2.6	299/50†	6.88% (s)	

neutron fluence).

mining the fossil track density (the first number) and the induced track density (the

(4) 年代誤差はどのようにして算出したか。

(5) 自発核分裂トラックのアニーリングについて吟味したか否か (トラックの長さ, 幅の測定)

引用文献

- FLEISCHER, R. L. and PRICE, P. B. (1963) : Charged particle tracks in glass. *Jour. Appl. Phys.*, **34**, 2903-2904.
- , —and WALKER, R. M. (1965) : The ion explosion spike mechanism for formation of charged particle tracks in solids. *Jour. Appl. Phys.*, **36**, 3645-3652.
- , —and— (1967) : Criterion for registration in dielectric track detectors. *Phys. Rev.* **156**, 353-355.
- , —and— (1975) : Nuclear Tracks in Solids; Principles and applications. *Univ. of Calif. Press, Berkeley*, 605p.
- MCGEE, V. E. and JOHNSON, N. M. (1979) : Statistical treatment of experimental errors in the fission track dating method. *Math. Geol.*, **11**, 255-268.
- NAESER, C. W. (1976) : Fission track dating. *USGS Open file report.*, **76-190**, 1-17 and 1-28.
- , GLEADOW, A. J. W. and WAGNER, G. A. (1979) : Standardization of fission-track data report. *Nuclear Tracks*, **3**, 133-136.
- NISHIMURA, S. (1975) : On the value of the decay constant for spontaneous fission of uranium-238. *Mem. Fac. Sci., Kyoto Univ., Ser. Geol. & Mineral.*, **41**, 15-19.
- PRICE, P. B. and WALKER, R. M. (1962) : Chemical etching of charged particle tracks. *Jour. Appl. Phys.*, **33**, 3407-3412.
- and— (1963) : Fossil tracks of charged particles in gneiss and the age of minerals. *Jour. Geophys. Rev.*, **68**, 4847-4862.
- 坂上正信 (1973) : 粒子トラックとその応用, 化学の領域選書, 6, 南江堂, 206p.
- SILK, E. C. H. and BARNES, R. S. (1959) : Examination of fission fragment tracks with an electron microscope. *Phil. Mag.*, **4**, 970-971.
- THIEL, K. and HERR, W. (1976) : The ²³⁸U spontaneous fission decay constant re-determined by fission tracks. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **30**, 50-56.
- WAGNER, G. A., REIMER, G. M., CARPENTER, B. S., FAUL, H., VAN DER LINDEN, R. and GIJBELS, R. (1975) : The spontaneous fission rate of U-238 and fission track dating. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **39**, 1279-1286.
- YOUNG, D. A. (1958) : Etching of radiation damage in lithium fluoride. *Nature*, **182**, 375-377.

(1980年7月28日受理)