

鉱物中 Th/U 存在比の変動について

本多照幸*・大平寛人**・大木新彦*

Fluctuation of Th/U abundance ratios in various minerals for fission track dating

Teruyuki HONDA, Hiroto OHIRA and Arahiko OHKI

1. 本研究の目的

フィッション・トラック (FT) 年代測定において誤差の原因となる、鉱物 (ジルコン, アパタイト, スフェーン) 中 Th/U 存在比の変動について、

①中性子放射化分析 (NAA) により得られた新たなデータを加えて変動幅等を検討し、

②それにより年代値にどの程度の誤差を生じるのか、定量的に考察することを目的とする。

2. 誘発 FT の生成

誘発 FT は、次の5通りの反応によって生成される。

- (a) $^{235}\text{U} + \text{thermal neutron}$ (以下, $^{235}\text{U} + \text{t}$)
- (b) $^{235}\text{U} + \text{epithermal neutron}$ (以下, $^{235}\text{U} + \text{e}$)
- (c) $^{238}\text{U} + \text{fast neutron}$ (以下, $^{238}\text{U} + \text{f}$)
- (d) $^{232}\text{Th} + \text{fast neutron}$ (以下, $^{232}\text{Th} + \text{f}$)
- (e) $^{235}\text{U} + \text{fast neutron}$ (以下, $^{235}\text{U} + \text{f}$)

年代測定で必要となる誘発 FT は、(a) だけであるが、各 FT を計数時に区別することは不可能である。絶対測定法では、(b), (c), (d), (e) の誘発 FT が未知年代試料の誘発 FT 密度 (ρ_i) に影響を与え、年代値を若く算出することになる。それに対して zeta 法では、照射中性子スペクトルが常に一定であれば (b) は問題にならないが、未知年代試料と年代標準試料のトリウム/ウラン存在比 (Th/U 比) が異なれば (d) が影響し、U 同位体比が異なれば、(c), (e) が影響してくる。一般に U 同位体比が異なっていることは極めて稀なため、照射中性子スペクトルが常に一定であれば、zeta 法では特に (d) が問題となる。

なお、各エネルギーの中性子の境界は本研究では次のようにとっている。

thermal neutron	~0.5eV
epithermal neutron	0.5eV~0.1MeV
fast neutron	0.1MeV~

ただし、 $^{238}\text{U} + \text{f}$, $^{232}\text{Th} + \text{f}$ は、1.5MeV にしきい値を持っている。

3. 中性子放射化分析 (NAA)

今回新たに Th 並びに U 濃度を求めるため NAA に供した試料は、谷川岳から採取されたジルコン4試料 (TG1101, TG1103, TG1204, TG1306) である。

それに米国コロラド州に産する Fish Canyon Tuff ジルコンと地調の標準岩石試料 JG1a, それに Th, U の標準溶液を濾紙に浸み込ませて乾燥させた標準試料を加えて中性子照射試料とした。照射試料量は、ジルコンで 3mg~13mg, 岩石試料で約 60mg であった。

中性子源には立教大原子炉 (TRIGA II 型, 100kW) を用い、F 孔 ($1.7 \times 10^{12} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$) で断続 12 時間照射した。

γ 線の測定には、武蔵工大原子力研究所の高純度 Ge 半導体検出器 (相対計数効率 11.6%, 1332keV の半値幅 1.6keV) および 4096 チャンネル波高分析器を用いた。

4. 結果及び考察

本研究の NAA により新たに定量された谷川岳ジルコン試料中の Th, U 濃度 (ppm, 以下同じ) 並びに Th/U 比を、Fish Canyon Tuff ジルコンおよび JG1a の値とともに、Table 1 に示す。

分析の信頼性は、JG1a の地調推奨値と本研究による定量結果がほぼ一致していることから、十分保証されているものと考えられる。Table 1 から明ら

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

** 島根大学総合理工学部 Interdisciplinary Faculty of Science and Engineering, Shimane University

Table 1 Th and U contents (ppm) and Th/U ratios in zircon samples (Tanigawa-dake, TG, and Fish Canyon Tuff, FCT) determined by Neutron Activation Analysis (NAA).

Sample	U (ppm)	Th (ppm)	Th/U
TG1101	780±40	890±40	1.1
TG1103	1050±50	760±40	0.72
TG1204	490±30	390±20	0.80
TG1306	1500±80	1420±60	0.95
FCT	430±10	280±20	0.65
JG1a*	4.7±0.6 (4.69)	12.4±0.3 (12.8)	2.6 (2.7)

*JG1a is the Japanese granitic standard sample and numbers in parentheses are values certified by Geological Survey of Japan.

かなように、谷川岳ジルコン中の Th 濃度は 390ppm～1420ppm, U 濃度は 490ppm～1500ppm と比較的高い値を示しているが、Th/U 比は 0.72～1.1 と JG1a の 2.6 より低い値を示している。

以上の結果を含めて、NAA によりこれまで筆者らにより得られたジルコン、アパタイトおよびスフェーン試料中の Th, U 濃度並びに Th/U 比を Table 2 に記載する。

Table 2 より、ジルコン試料中の Th 濃度は 180ppm～1420ppm, U 濃度は 413ppm～1500ppm, Th/U 比は 0.30～1.1, アパタイト試料中の Th 濃度は 19ppm～183ppm, U 濃度は 7.6ppm～169ppm, Th/U 比は 0.11～23, さらにスフェーン中の Th 濃度は 57ppm～679ppm, U 濃度は 37ppm～640ppm, Th/U 比は 0.089～4.0 の範囲にあることがわかる。

Th/U 比に注目してみると、ジルコン試料では 1.1 以下と全体的に低い値を示しており、アパタイト試料では Durango Apatite (DRG) のように 23 と高い値を示すものがあるが、一方で低い値 (0.11) を示すものもありばらついている。スフェーン試料では 0.089 と極めて低い値のものもあるが、他は全て 1 以上である。

例として、立教大原子炉の RSR (B) (熱中性子束密度 $5.5 \times 10^{11} \text{n/cm}^2 \text{sec}$, 高速中性子束密度 $4.7 \times 10^{10} \text{n/cm}^2 \text{sec}$) で中性子照射した場合に誘発されるジルコン、アパタイト、スフェーン各試料中の ^{235}U , ^{238}U および ^{232}Th 起源のフィッション・トラック (FT) 密度の割合を Table 3 に示す。

Table 3 から明らかなように、 ^{235}U の割合は DRG の 94%前後以外は全て 98%以上であり、 ^{238}U の割合は DRG の 0.95%以外は全て 0.99～1.00%である。 ^{232}Th の割合は、ジルコンについては 0.07%～0.28% と比較的低い値で推移しているが、アパタイトについては 0.03%～5.44%と大きくばらついている。

Table 2 Th and U contents (ppm) and Th/U ratios in various zircon, apatite and sphene samples determined by Neutron Activation Analysis (NAA).

Sample	Th (ppm)	U (ppm)	Th/U
(Zircon)			
FCT-1	302±5	413±7	0.73
FCT-2	280±20	430±10	0.65
Baba tuff	361±5	535±8	0.67
HD101	180±10	600±20	0.30
HD402	260±10	498±7	0.52
TG1101	890±40	780±40	1.1
TG1103	760±40	1050±50	0.72
TG1204	390±20	490±30	0.80
TG1306	1420±60	1500±80	0.95
(Apatite)			
FCT	61±1	22±2	2.8
DRG-1	162±2	7.6±1.2	21
DRG-2	183±2	7.9±1.1	23
HD101	19±1	169±2	0.11
(Sphene)			
FCT-1	271±5	77±3	3.5
FCT-2	272±5	73±5	3.7
FCT-3	274±5	72±7	3.8
FCT-4	269±5	68±4	4.0
MDC	679±8	198±6	3.4
HW2	57±4	640±20	0.089
HW9	177±3	106±5	1.7
HW12	176±3	88±4	2.0
HW9101	103±2	37±2	2.8
HW9102	260±4	186±4	1.4

スフェーンについては、0.02%～0.9%とジルコン、アパタイトの中間に位置している。

^{238}U と ^{232}Th を合わせた割合は、ジルコンで 1.07%～1.28%, アパタイトで 1.03%～6.39%, スフェーンで 1.02%～1.96%となり、アパタイトでの割合が極めて大きな変動を示している。アパタイトを年代測定に利用する場合は特に注意を要する。

以上のように、一般的に年代測定によく使われてきた立教大原子炉の RSR (B) を例にとり検討した結果、 ^{238}U と ^{232}Th を合わせた FT 密度の割合は、1.02%～6.39%とばらついていることが判明し、年代測定における Th の影響が無視できないことが定量的に明らかとなった。

5. まとめ

本研究により、以下のことが明らかとなった。

- ① 鉱物 (ジルコン, アパタイト, スフェーン) 中に存在する Th 並びに U の含有量は、これまで筆者らによって NAA により定量された限りでは、各々 19ppm (Ap)～1420ppm (Zr) /Th および 7.6ppm (Ap)～1500ppm (Zr) /U

Table 3 Ratios(%) of fission track densities originating from ^{235}U , ^{238}U and ^{232}Th in zircon, apatite and sphene samples induced at RSR (B) of Rikkyo Reactor.

Sample	^{235}U (%)	^{238}U (%)	^{232}Th (%)	$^{238}\text{U} + ^{232}\text{Th}$ (%)
(Zircon)				
FCT-1	98.81	1.00	0.19	1.19
FCT-2	98.84	1.00	0.16	1.16
Baba tuff	98.83	1.00	0.17	1.17
HD101	98.93	1.00	0.07	1.07
HD402	98.87	1.00	0.13	1.13
TG1101	98.72	1.00	0.28	1.28
TG1103	98.82	1.00	0.18	1.18
TG1204	98.80	1.00	0.20	1.20
TG1306	98.77	1.00	0.23	1.23
(Apatite)				
FCT	98.32	1.00	0.68	1.68
DRG-1	94.02	0.95	5.03	5.98
DRG-2	93.61	0.95	5.44	6.39
HD101	98.97	1.00	0.03	1.03
(Sphene)				
FCT-1	98.14	0.99	0.87	1.86
FCT-2	98.09	0.99	0.92	1.91
FCT-3	98.07	0.99	0.94	1.93
FCT-4	98.04	0.99	0.97	1.96
MDC	98.16	0.99	0.85	1.84
HW2	98.98	1.00	0.02	1.02
HW9	98.59	1.00	0.41	1.41
HW12	98.51	1.00	0.49	1.49
HW9101	98.32	0.99	0.69	1.68
HW9102	98.66	0.99	0.35	1.34

Ratios were calculated from the reaction rate ($n\sigma_1\Phi$) by using (1) $5.5 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ for thermal neutron flux and $4.7 \times 10^{10} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ for fast neutron flux and (2) 582.2 barn (Mughabghab-Garber, 1973) for ^{235}U thermal neutron fission cross section and 0.12 barn and 0.50 barn (Stehn et al., 1965) for ^{232}Th and ^{238}U fast neutron fission cross sections, respectively.

であった。

- ②Th/U存在比は、0.089 (Sp) ~ 23 (Ap) であった。
 ③立教大原子炉 RSR (B) で照射した場合、生成する全トラック密度における Th 起源並びに ($^{238}\text{U} + ^{232}\text{Th}$) 起源のトラック密度の割合は、各々
 0.02% (Sp) ~ 5.44% (Ap) / Th および
 1.02% (Sp) ~ 6.39% (Ap) / ($^{238}\text{U} + ^{232}\text{Th}$)
 であった。

文 献

- 本多照幸, 岸本克己, 野崎徹也, 1998, フィッション・トラック ニュース レター, 11, 19-22.
 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.
 Imai N., Terashima S., Itoh S. and Ando A., 1995, Geochem. J., 29, 91-95.