

トラック法による ウラン系列非平衡年代測定

糟谷正雄・池田すみ子

(大阪大学理学部物理学科)

天然に存在するウラン・トリウムは α 、 β 、 γ 壊変を繰り返し、最終的に鉛の安定同位体になる。壊変系列中の親・娘核種間に放射平衡が成り立っている場合両者の放射能比は1になるが、放射非平衡の場合放射能比は1からずれる。閉鎖系内では、時間の経過に伴って非平衡から平衡へと推移する。非平衡の程度から年代を推定するのが、ウラン系列非平衡年代測定である。親・娘核種の組合せ方は色々あるが、 $^{238}\text{Th}/^{234}\text{U}$ が代表的である。この方法では1-30万年の範囲をカバーできる。

従来のウラン系列非平衡年代測定では、主として α スペクトル法が用いられてきた。 α 放射体から放出される α 線を半導体検出器等で測定すれば、 α 線のエネルギーの違いから核種を識別できる。 α スペクトル法では、ウランとトリウムを化学処理によって分離する必要がある。化学分離が不必要な γ スペクトル法もあるが、 α スペクトル法に比べて感度が落ちる。

今回新手法として、トラック法によるウラン系列非平衡年代測定を試みた。この方法では、 α 放射体総体を α トラック法で評価し、親元素であるウランの濃度をフィッショントラック法で評価する。すなわち、自発的な α 壊変による α 粒子をCR-39で検出し、熱中性子照射による誘発フィッショントラックを白雲母で検出する。サンゴのようにトリウム濃度がウラン濃度(約3ppm)に比べてはるかに小さい試料では、トリウム系列の効果は無視できる。サンゴが最初に取り込む主な α 放射体は ^{238}U 、 ^{235}U 、 ^{234}U であり、時間の経過に伴ってそれらが壊変して α 放射体が増加し、やがて放射平衡に達する。単位ウラン濃度あたりの α トラック形成効率を調べれば、放射非平衡の程度がわかり年代が推定できる。

トラック法には次のような利点がある。(1)感度が高く、試料が少量でよい(サンゴの場合100mg程度)、(2)化学分離が不要、(3)顕微鏡1台あればできるので経済的、(4)核種の空間分布がわかる。短所としては、(1) α トラックを作るための待ち時間が必要、(2) α トラック検出効率が条件により異なる、(3)核種の同定が困難、(4)親核種と娘核種の検出方法が異なるので年代既知試料による較正が必要、などが

あげられる。

図1に示した理論曲線は、 α トラック形成効率が時間経過に伴ってどう変化するかを示す。縦軸は単位ウラン濃度、単位待ち時間あたりの α トラック密度で、放射平衡時を1とした相対的な値である。この理論曲線を得るために、ウラン系列とアクチニウム系列の各 α 放射体の放射能を時間の関数として求めた。 α 線の飛程はエネルギーの1.5乗にほぼ比例するという経験則も考慮した。 ^{234}U の ^{238}U に対する初期放射能比は1.15とした。 ^{230}Th と ^{226}Ra の ^{238}U に対する初期放射能比(それぞれ A_0 、 B_0 とする)は試料によって変動するので、次の3つの場合についてそれぞれ理論曲線を描いた:(1) $A_0=0$ 、 $B_0=0$ 、(2) $A_0=0.015$ 、 $B_0=0.027$ 、(3) $A_0=0.030$ 、 $B_0=0.054$ 。図1から読み取れるように、この手法が有効な年代測定の範囲はおおよそ1-25万年である。

トラック法の有用性を確かめるために、次の3グループの未変質サンゴ試

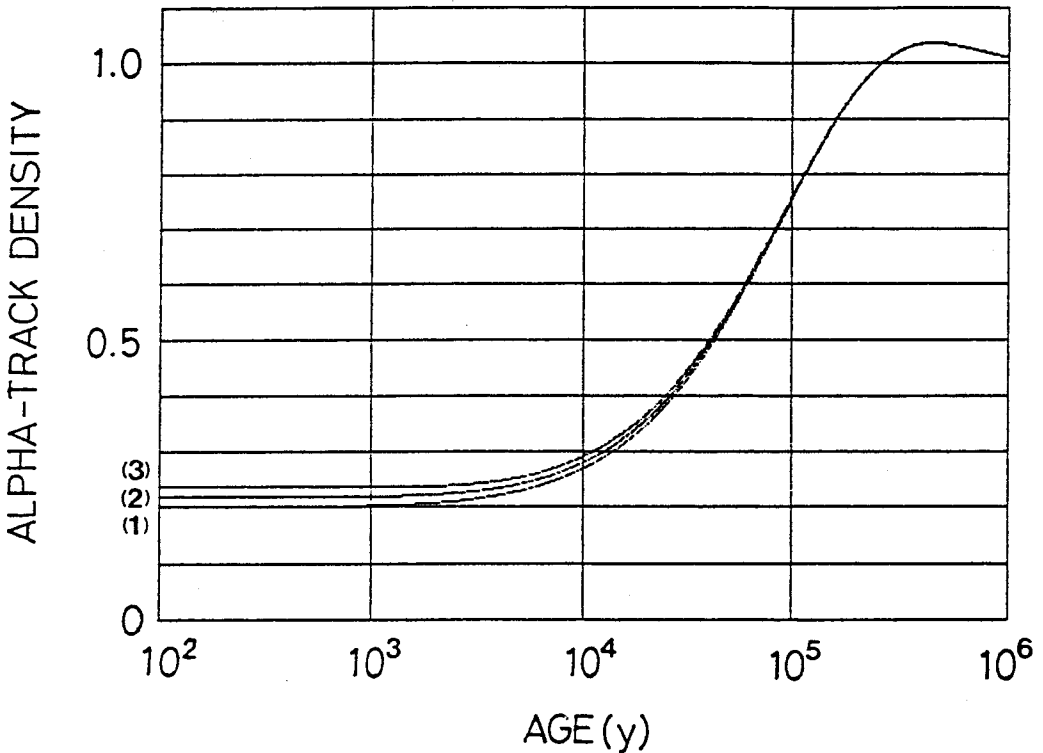


図1: α トラック形成効率の時間経過に伴う変化。3つの異なる初期条件での理論曲線を示す。縦軸は平衡時を1とした相対値。

料で α トラック形成効率を調べた。(A) 近似的に年代ゼロとみなし得る現世試料(奄美大島・沖永良部島)、(B) 年代5-6万年と考えられる試料(喜界島)、(C) 年代50万年前後と考えられるほぼ放射平衡下にある試料(沖永良部島琉球層群最下部)。各試料を 1cm^2 程度の面積が得られるようにスライスし、CR-39を当てたまま約3カ月間放置した。CR-39は5N NaOH 70°C 5hの条件でエッチングした。さらに試料に白雲母を当てて熱中性子照射をし、 ^{235}U による誘発フィッション・トラックを検出した。またクロス・チェックのために、同じ試料でESR年代測定も行った。

上述の条件で得られた α トラックの密度は $600\text{-}3,300\text{ cm}^{-2}$ であった。 α トラック検出効率のエッチング依存性を知るために、テスト・サンプルで段階エッチングを行い、ほぼ円形なエッチ・ピットの平均径とトラック密度の関係を調べた(図2)。エッチ・ピット直径が $4\text{-}5\ \mu\text{m}$ のとき検出効率は最大になる。各試料について平均エッチ・ピット径を測定し、図2の回帰曲線をもとに検出効率の違いを補正した。また、バック・グラウンドとして約 90 cm^{-2} の α トラックが見いだされたので、その分は差し引いた。

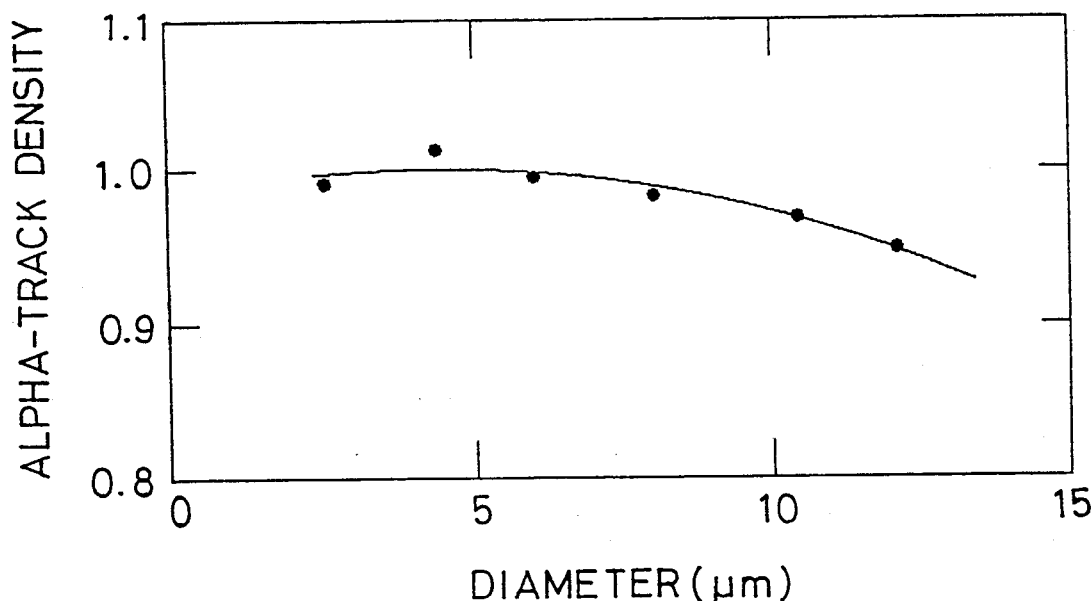


図2: α トラックの直径とトラック密度の関係。縦軸は最大密度を1とした相対値。

図3に、ESR年代と α トラック形成効率の関係を示す。前述のA、B、Cグループの α トラック形成効率は地質学的状況証拠から考えられる年代を採れば、理論曲線によくフィットする。すなわち、トラック法のシステム内では矛盾のない妥当な結果が得られた。しかしESR年代は、Bグループが約1万5千年という異なる結果になった。この不一致の原因は現在追求中である。最近の実験結果からひとつの可能性を示唆すると、サンゴのESR年代測定に用いられている信号は格子間に位置する有機ラジカルに起因するもので、有機物の分解の進行に伴って信号の γ 線に対する感度が増加するのかもしれない。

トラック法をさらに使いやすくするためには、エッチング条件をコントロールして、 α トラックのエッチング効率を安定させる必要がある。また

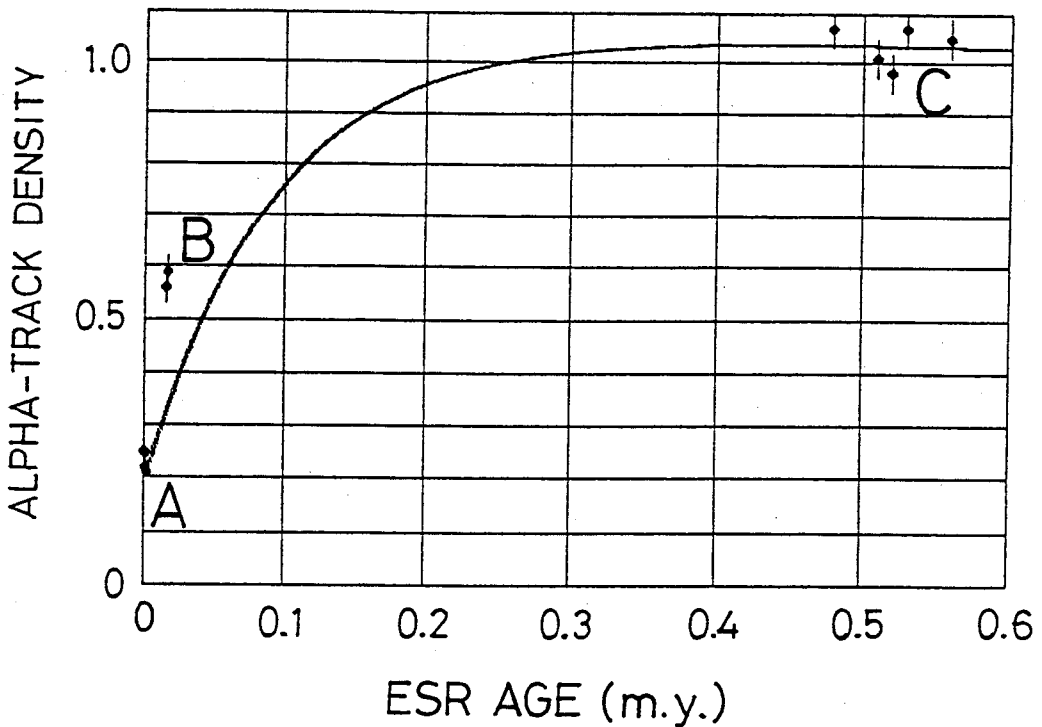


図3：ESR年代と α トラック形成効率の関係。実験結果をプロットするにあたり、縦軸はCグループの平均値が1.035になるようにした。Cグループの真の年代が35-60万年の範囲内であれば、理論値は1.030-1.037である。曲線は図1の理論曲線と同じ。

広い面域でトラックを計数するので、自動計測による省力化が望まれる。新手法の信頼性を高めるためには、従来の α スペクトル法とのクロス・チェックが不可欠である。今回はウラン系列非平衡年代測定にとって特に条件のよいサンゴ試料を用いたが、今後適用対象物を拡大すると面白いだろう。凝灰岩中の火山ガラスや鉱物の場合はThの寄与が多くなるので、Th濃度も知る必要が生じる。あくまでもトラック法にこだわれば、速中性子照射による ^{232}Th のフィッション・トラックを検出する方法もあるが、一般的な手法ではない。試料が少量でも良いという利点を活かすのであれば、放射化分析が妥当であろう。

謝辞：武蔵工業大学の本多照幸博士には、CR-39の提供と中性子照射をして頂いた。京都フィッション・トラックの檀原徹氏にも中性子照射の便宜を図って頂いた。大阪大学理学部地球物性学講座のメンバーとの討論は有益であった。以上の諸氏に深謝する。ウラン系列非平衡年代測定法の原理を理解する上で、大村（1988）ウラン系列年代測定法、地質学論集、29、107-127. が有用であったことを付記する。