

CHIME 연대 측정의 간섭 보정 계수 결정과 표준 물질의 준비를 위한 실험실 표준법

조등룡^{1,*} · Takenori Kato² · Kazuhiro Suzuki²

¹한국지질자원연구원 지질기반정보연구부, 305-350 대전광역시 유성구 가정동 30

²Center for Chronological Research, Nagoya University, Chikusa-ku, Nagoya, 464-8602, Japan

A Working Standard Technique for Determination of Interference Correction Factors and Preparation of Standard Materials for CHIME Dating

Deung-Lyong Cho^{1,*}, Takenori Kato², and Kazuhiro Suzuki²

¹Geology and Geoinformation Division, Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources, 30 Gajeong-dong Yuseong-gu, Daejeon 305-350, Korea

²Center for Chronological Research, Nagoya University, Chikusa-ku, Nagoya 464-8602, Japan

Abstract: The EPMA analysis for CHIME dating requires standard materials, which include nuclear fuel materials that are rare and sensitive to handle. Any laboratory that does not meet these standards has had difficulties adopting the CHIME dating method. We have developed a working standard technique for CHIME dating to prepare standard materials without use of nuclear fuel materials. Mineral samples, such as small pieces of monazite that are homogeneous in X-ray intensities, are calibrated using well-characterized primary standards in one laboratory. Once this procedure is done, they can be readily usable as working standards in the other laboratories, only with measurement of X-ray intensities. This method is applicable in preparing standard materials for both chemical compositions and determination of X-ray interference correction factors, and it is independent from chemical composition of mineral standard.

Keywords: working standard, CHIME dating, EPMA, interference correction factor, X-ray spectrometry

요약: CHIME 연대측정을 위한 전자현미분석(EPMA)에서는 통상적으로 핵 연료 물질 등 구하기 어렵고 관리에 민감한 표준 물질을 사용하므로 이를 구하지 못하는 실험실에서는 적용에 어려움이 있다. 이 연구에서는 이러한 표준 물질을 대신할 수 있는 새로운 실험실 표준법을 제시한다. CHIME 연대 측정이 원활하게 이루어지고 일련의 표준 물질이 잘 구비된 실험실에서 X선 세기가 균질함이 확인된 모나자이트와 같은 광물편을 대상으로 보정 상수를 정확히 구하고, Th, U 등의 특성 X선 세기를 측정해두면, 다른 실험실에서는 단지 광물편의 특성 X선 세기를 측정하는 것만으로 바로 사용할 수 있는 표준 물질로 활용할 수 있다. 이 기법은 전자 현미 분석에서 화학성분과 X선 간섭 보정 계수의 결정에 필요한 표준 물질로 모두 활용이 가능하며, 광물 표준 물질의 복잡한 화학 성분에 대해 독립적이다.

주요어: 실험실 표준법, CHIME 연대 측정, 전자 현미 분석기, 간섭 보정 계수, X선 분광계

서론

CHIME 연대측정은 Chemical Isochron Method의 약어로서 Suzuki and Adachi(1991a, 1991b)에 의해

처음 제안되었으며, 방사선동위원소 분석에 의존하지 않고 전자현미분석기(EPMA)로 광물의 U, Th과 Pb 함량을 결정하여 광물의 연대를 계산하는 혁신적인 방법이다. 이는 (1) Th과 U의 방사성동위원소붕괴에 의해 형성된 Pb에 비해 광물형성시 인입된 Pb (common Pb)의 함량이 무시할 수 있을 정도로 적고, (2) 광물형성 후 폐쇄계가 유지되어 이차적인 Pb 손실이 일어나지 않은 것을 전제로 성립한다. CHIME

*Corresponding author: dlcho@kigam.re.kr
Tel: 82-42-868-3040
Fax: 82-42-861-9714

연대측정은 1990년대 이래로 폭 넓게 적용되어 모나자이트, 저어콘, 제노타임, 육세나이트(euxenite) 등의 광물로 변성작용의 시기, 화성암의 결정화작용 시기 혹은 퇴적암의 근원암의 시기를 구하는데 성공적으로 이용되었다(Asami et al., 2002; Suzuki et al., 2006; Mezeme et al., 2006; Kusiak et al., 2006). 이는 수 μm 의 고분해능으로 아입자(subgrain)의 연대를 구할 수 있는 장점이 있으나 정확한 연대는 EPMA (Electron Micro-Probe Analyser) 분석의 정확도에 크게 의존한다. 즉 광물에 수 십 ppm 수준으로 함유되어 있는 U, Th과 Pb의 함량을 정확히 분석하지 못하면 신빙성 있는 연대를 구하는 것이 불가능하다.

EPMA 정량분석에서는 표준물질의 선택과 X선의 간섭보정이 매우 중요한 요소이고 CHIME 연대측정의 경우 $\text{PbM}\alpha$ 선에 $\text{ThM}\zeta$ 선, $\text{PbM}\beta$ 선에 $\text{UM}\zeta$ 선, 그리고 $\text{UM}\beta$ 선에 $\text{ThM}\gamma$ 선이 각각 겹치는 X선의 간섭이 문제가 된다(Suzuki, 2005). CHIME 연대측정에서는 U과 Th의 표준물질로 여러 가지 합성물질과 광물이 사용되고 있다. 광물을 표준물질로 사용하는 경우 일반적으로 U, Th과 Pb가 공존하므로 단독으로는 X선의 간섭보정이 불가능한 단점이 있다. 또한 광물은 작은 규모에서는 균질한 것처럼 보여도, 통상의 정량화학분석이 가능한 크기에서는 각 부분의 조성차가 나타날 수 있어 EPMA 표준물질로 적절하지 못한 경우가 종종 있다. 한편 U 혹은 Th의 어느 쪽을 함유한 합성물질이 표준물질인 경우 X선의 간섭보정은 용이하나, 이들의 일부는 핵연료물질 혹은 핵연료 물질에 해당하여 쉽게 구하거나 취급할 수 없는 경우가 발생한다. 따라서 CHIME 연대측정에서 이러한 구하기 어렵고 사용에 민감한 물질 대신에 광물의 소편만을 사용해 X선 간섭보정을 하는 방법이 확립된다면 매우 편리할 것이다.

이 연구의 목적은 U, Th과 Pb가 공존하는 광물도 정확한 화학조성과 복수 시료간의 X선 세기 비를 미리 안다면 간섭보정과 화학조성의 표준물질로 사용할 수 있다는 가능성을 제시하는데 있다. 또한 특성 X선의 세기가 균질한 광물의 소편을 정확히 분석된 합성물질을 이용해 교정한 후 이를 EPMA 분석의 표준물질로 사용하는 방법에 대해 보고한다.

CHIME 연대 측정의 표준 물질

CHIME 연대측정을 위한 EPMA 분석에서는 화학

조성분석을 위한 표준물질과 X선의 간섭보정계수를 구하기 위한 표준물질이 모두 필요하다. U과 Th 화학조성분석의 표준물질로는 순수 산화물, ThSiO_4 , 합성유리(glass) 또는 광물이 사용되고 있다(예: Smellie et al., 1978의 육세나이트; Kato, 2002의 모나자이트). 일반적으로 측정하고자 하는 미지시료의 함량과 유사한 화학조성을 갖는 표준물질을 사용하면 보다 높은 정확도의 EPMA 분석치를 얻을 수 있다. 또한 미지시료의 함량에 가까운 농도의 표준물질은 순수 금속과 순수 산화물 같은 고농도의 표준물질에 비해 보정계산모델에서 기인하는 CHIME 연대의 오차를 작게 한다. 따라서 실용적인 X선 세기를 얻을 수 있는 범위 내에서 가능한 한 미지시료의 함량에 가까운 조성의 표준물질을 사용하는 것이 이상적이다.

CHIME 연대측정의 EPMA 분석에서 문제가 되는 X선 간섭은 Suzuki et al.(1999)와 Suzuki(2005)에 의해 토의된 바 있으며, 일반적으로 이의 보정은 Åmli and Griffin(1975)의 특성 X선 세기를 보정하는 방법과 Donovan et al.(1993)의 화학조성을 보정하는 방법으로 행해지고 있다. 전자는 방해 원소만을 함유한 시료를 사용해 간섭보정계수를 구하는 반면, 후자는 정확한 화학조성이 구해진 시료를 사용해 간섭보정계수를 구한다. 어느 쪽이든 간섭보정계수는 EPMA 분석기의 특성에 의존하기 때문에 같은 장치를 사용해 정기적으로 계속 검정해야 하고, 이에 필요한 표준물질을 항상 준비해 놓아야 한다.

CHIME 연대측정에서 보정해야 하는 특성 X선의 간섭 중 $\text{PbM}\alpha$ 선에 대한 Th의 간섭보정계수는 매우 작은 값이다(Fig. 1). 따라서 오차의 확대를 고려하면 간섭보정의 계수를 측정하는 표준물질은 (1) Åmli and Griffin(1975)의 방법에서는 Pb이 없거나 함량이 극히 작은 반면 Th의 함량은 충분히 큰 것, (2) Donovan et al.(1993)의 방법에서는 Th과 Pb의 함량이 크고, 그 분석오차가 충분히 작은 것이 필요하다. 그러나 자연산의 시료에서 전자의 조건을 만족하는 물질을 얻는 것은 쉽지 않다.

Suzuki(2005)는 $\text{PbM}\alpha$ 선과 $\text{PbM}\beta$ 선의 세기비가 일정한 것을 가정하여 $\text{PbM}\alpha$ 선에 대한 $\text{ThM}\zeta$ 선의 간섭보정계수를 구하였다. 그러나 이 방법은 $\text{PbM}\beta$ 선에 대한 U의 간섭보정의 정도에 크게 의존하기 때문에 U을 함유하고 있는 광물시료를 사용하여 정확하게 구하는 것이 쉽지 않다. Pb을 함유하지 않는 합성광물을 이용하면 보정계수 측정은 용이하나 이를 얻는

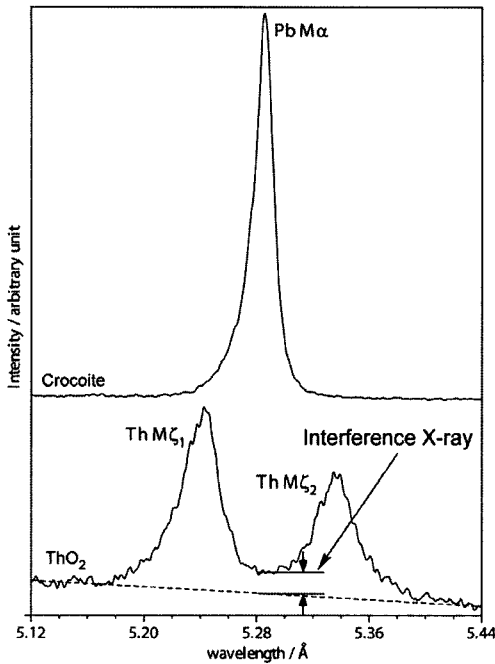


Fig. 1. EPMA X-ray spectra of crocoite and ThO₂. Dotted line in the ThO₂ spectrum indicates background level, and tail of the Th characteristic X-ray line interferes in the PbMα line.

것이 전술한 것처럼 쉽지가 않다. 한편 Donovan et al.(1993)에서 요구한 조건을 만족시키기 위해서는 습식분석 등으로 전체 구성원소를 표준물질의 광물로부터 분리해서 정량분석치를 구해야 할 필요가 있다. 그러나 순도와 양에 따라 U과 Th과 같은 민감한 원소를 분리한다는 것은 법적으로 매우 큰 문제가 될 수 있으므로 균질한 광물을 얻는다고 해도 이를 간섭보정용 표준물질로 마련하는 것은 많은 문제점을 내포한다. 이상의 제약으로 인해 차선책으로 균질한 광물의 소편을 이미 표준물질이 잘 구비되어 원활하게 사용하고 있는 실험실에서 보정한 후 이를 간섭보정용 표준물질로 사용하는 방법을 고려할 수 있다.

실험실 표준법

이 연구에서 실험실표준법(working standard method)이라 함은 Pb, Th, U 등을 위한 표준물질을 잘 구비한 EPMA 실험실(실험실A)에서 정확하게 보정한 미량의 광물시료편(예를 들어 모나자이트 혹은 우라니아이트)을 다른 EPMA 실험실(실험실B)의 표준물질로 사용하는 것으로 정의한다. 여기에는 (1) 실험실A

에 이미 조성이 잘 알려진 표준물질이 존재하는 것, (2) 실험실A에 U, Th 및 Pb가 공존하지 않는 표준물질이 있는 것, (3) 실험실A와 B에 설치된 EPMA가 서로 가속전압과 X선 탈출각(take-off angle)이 동일한 것, (4) 특성 X선 세기가 균질한 광물시료편이 준비된 것을 전제로 한다.

X선 간섭 보정

실험실표준법에 의한 X선 간섭 보정 계수의 결정 방법 중에서 먼저 PbMα선에 대한 ThMζ선의 간섭에 대해 서술한다. 이 방법에는 Th을 함유한 균질한 광물시료 외 U과 Th이 전혀 없는 Pb 표준물질이 필요하다.

광물시료의 PbMα선의 X선 세기는

$$I_{\text{Min}}(\text{PbM}\alpha) = I_{\text{Min}}(\text{app}) - I_{\text{Min}}(\text{ThM}\zeta)$$

로 나타낼 수 있다. 여기서,

$I_{\text{Min}}(\text{PbM}\alpha)$: 광물시료의 실제 PbMα선 세기

$I_{\text{Min}}(\text{app})$: 광물시료의 외견 PbMα선 세기

$I_{\text{Min}}(\text{ThM}\zeta)$: 광물시료의 PbMα 피크 위치에서의 Th의 특성 X선세기이다.

PbMα선에 대한 ThMζ선의 간섭 보정 계수를 $f_{\text{Pb-Th}}$ 로 정의하고 하고, $I_{\text{Min}}(\text{ThM}\zeta) = f_{\text{Pb-Th}}[I_{\text{Min}}(\text{ThM}\alpha)]$ 로 놓으면

$$I_{\text{Min}}(\text{ThM}\alpha) = I_{\text{Min}}(\text{app}) - f_{\text{Pb-Th}}[I_{\text{Min}}(\text{ThM}\alpha)]$$

가 된다. 실험실A에서 측정된 간섭 보정 계수를 $I_{\text{Min}}^{\text{A}}(\text{ThM}\zeta) = f_{\text{Pb-Th}}^{\text{A}}[I_{\text{Min}}^{\text{A}}(\text{ThM}\alpha)]$ 로 정의하고, 실험실A에서 측정된 Pb 표준물질의 X선 세기를 $I_{\text{Pb-std}}^{\text{A}}(\text{PbM}\alpha)$ 로 표시하면

$$\frac{I_{\text{Min}}^{\text{A}}(\text{PbM}\alpha)}{I_{\text{Pb-std}}^{\text{A}}(\text{PbM}\alpha)} = \frac{I_{\text{Min}}^{\text{A}}(\text{app}) - f_{\text{Pb-Th}}^{\text{A}}[I_{\text{Min}}^{\text{A}}(\text{ThM}\alpha)]}{I_{\text{Pb-std}}^{\text{A}}(\text{PbM}\alpha)}$$

가 된다. 마찬가지로 실험실B의 경우

$$\frac{I_{\text{Min}}^{\text{B}}(\text{PbM}\alpha)}{I_{\text{Pb-std}}^{\text{B}}(\text{PbM}\alpha)} = \frac{I_{\text{Min}}^{\text{B}}(\text{app}) - f_{\text{Pb-Th}}^{\text{B}}[I_{\text{Min}}^{\text{B}}(\text{ThM}\alpha)]}{I_{\text{Pb-std}}^{\text{B}}(\text{PbM}\alpha)}$$

라고 나타낼 수 있다. 만약 실험실B에서 동일한 광물 시료와 Pb 표준 물질을 가속 전압과 X선 탈출각이 같은 EPMA로 측정했다면

$$\frac{I_{\text{Min}}^{\text{A}}(\text{PbM}\alpha)}{I_{\text{Pb-std}}^{\text{A}}(\text{PbM}\alpha)} = \frac{I_{\text{Min}}^{\text{B}}(\text{PbM}\alpha)}{I_{\text{Pb-std}}^{\text{B}}(\text{PbM}\alpha)}$$

가 성립된다. 따라서

$$\frac{I_{\text{Min}}^{\text{A}}(\text{app}) - f_{\text{Pb-Th}}^{\text{A}}[I_{\text{Min}}^{\text{A}}(\text{ThM}\alpha)]}{I_{\text{Pb-std}}^{\text{A}}(\text{PbM}\alpha)} = \frac{I_{\text{Min}}^{\text{B}}(\text{app}) - f_{\text{Pb-Th}}^{\text{B}}[I_{\text{Min}}^{\text{B}}(\text{ThM}\alpha)]}{I_{\text{Pb-std}}^{\text{B}}(\text{PbM}\alpha)}$$

가 되고,

$$f_{\text{Pb-Th}}^{\text{B}}[I_{\text{Min}}^{\text{B}}(\text{ThM}\alpha)] = I_{\text{Min}}^{\text{B}}(\text{app}) - I_{\text{Pb-std}}^{\text{B}}(\text{PbM}\alpha) \left\{ \frac{I_{\text{Min}}^{\text{A}}(\text{app}) - f_{\text{Pb-Th}}^{\text{A}}[I_{\text{Min}}^{\text{A}}(\text{ThM}\alpha)]}{I_{\text{Pb-std}}^{\text{A}}(\text{PbM}\alpha)} \right\}$$

로 나타낼 수 있다. 그러므로 실험실A에서 Pb가 전혀 없고 Th만을 함유한 표준물질을 이용해 보정계수 $f_{\text{Pb-Th}}^{\text{A}}$ 를 정확히 구하고, 광물의 ThM α 선과 PbM α 선, 그리고 Pb 표준물질의 PbM α 선과의 세기 관계를 결정해놓으면 실험실B에서는 소량의 광물시료와 Pb 표준물질을 측정하는 것만으로 $f_{\text{Pb-Th}}^{\text{B}}$ 을 구하는 것이 가능하게 된다.

UM β 선에 대한 ThM γ 선의 간섭의 경우도 이론적으로 PbM α 선에 대한 ThM ζ 선의 간섭과 같은 방법이 적용 가능하다. 그러나 이를 위해서는 U의 표준물질로 Th를 전혀 함유하지 않는 시료를 사용해야 한다. 여기서 U와 Th의 농도비가 서로 다른 두 개의 광물시료(Min1과 Min2)를 이용하는 방법에 대해 설명하면 다음과 같다.

PbM α 선에 대한 ThM ζ 선의 간섭의 경우와 같은 방

$$\frac{I_{\text{Min1}}^{\text{A}}(\text{app}) - f_{\text{U-Th}}^{\text{A}}[I_{\text{Min1}}^{\text{A}}(\text{ThM}\alpha)]}{I_{\text{Min2}}^{\text{A}}(\text{app}) - f_{\text{U-Th}}^{\text{A}}[I_{\text{Min2}}^{\text{A}}(\text{ThM}\alpha)]} = \frac{(I_{\text{Min1}}^{\text{B}}(\text{UM}\beta) = I_{\text{Min1}}^{\text{B}}(\text{app}) - f_{\text{U-Th}}^{\text{B}}[I_{\text{Min1}}^{\text{B}}(\text{ThM}\alpha)])}{(I_{\text{Min2}}^{\text{B}}(\text{UM}\beta) = I_{\text{Min2}}^{\text{B}}(\text{app}) - f_{\text{U-Th}}^{\text{B}}[I_{\text{Min2}}^{\text{B}}(\text{ThM}\alpha)])}$$

가 된다. Amli and Griffin(1975)의 간섭보정에는

$$\frac{f_{\text{U-Th}}^{\text{B}}[I_{\text{Min1}}^{\text{B}}(\text{ThM}\alpha)]}{f_{\text{U-Th}}^{\text{B}}[I_{\text{Min2}}^{\text{B}}(\text{ThM}\alpha)]} = \frac{I_{\text{Min1}}^{\text{B}}(\text{ThM}\alpha)}{I_{\text{Min2}}^{\text{B}}(\text{ThM}\alpha)}$$

가 되는 것보다

$$f_{\text{U-Th}}^{\text{B}}[I_{\text{Min1}}^{\text{B}}(\text{ThM}\alpha)] = \frac{I_{\text{Min1}}^{\text{B}}(\text{app}) - \frac{I_{\text{Min1}}^{\text{A}}(\text{UM}\beta)}{I_{\text{Min2}}^{\text{A}}(\text{UM}\beta)} I_{\text{Min2}}^{\text{B}}(\text{app})}{1 - \frac{I_{\text{Min1}}^{\text{A}}(\text{UM}\beta)}{I_{\text{Min2}}^{\text{A}}(\text{UM}\beta)} \cdot \frac{I_{\text{Min2}}^{\text{B}}(\text{ThM}\alpha)}{I_{\text{Min1}}^{\text{B}}(\text{ThM}\alpha)}}$$

가 되어 실험실B에서 간섭보정계수를 구하는 것이 가능하다. 따라서 실험실A에서 핵연료물질을 이용해 $f_{\text{U-Th}}^{\text{A}}$ 를 정확히 구하고, Min1과 Min2의 ThM α 선과 실제의 UM β 선의 특성 X선 세기를 측정해두면, 실험실B에서는 ThM α 선과 외견 UM β 선의 X선 세기를 측정하는 것만으로 $f_{\text{U-Th}}^{\text{B}}$ 를 구할 수 있게 된다.

법으로

$$I_{\text{Min1}}^{\text{A}}(\text{UM}\beta) = I_{\text{Min1}}^{\text{A}}(\text{app}) - f_{\text{U-Th}}^{\text{A}}[I_{\text{Min1}}^{\text{A}}(\text{ThM}\alpha)]$$

$$I_{\text{Min2}}^{\text{A}}(\text{UM}\beta) = I_{\text{Min2}}^{\text{A}}(\text{app}) - f_{\text{U-Th}}^{\text{A}}[I_{\text{Min2}}^{\text{A}}(\text{ThM}\alpha)]$$

$$I_{\text{Min1}}^{\text{B}}(\text{UM}\beta) = I_{\text{Min1}}^{\text{B}}(\text{app}) - f_{\text{U-Th}}^{\text{B}}[I_{\text{Min1}}^{\text{B}}(\text{ThM}\alpha)]$$

$$I_{\text{Min2}}^{\text{B}}(\text{UM}\beta) = I_{\text{Min2}}^{\text{B}}(\text{app}) - f_{\text{U-Th}}^{\text{B}}[I_{\text{Min2}}^{\text{B}}(\text{ThM}\alpha)]$$

로 표시하는 것이 가능하다. 여기서 광물시료를 같은 가속전압과 X선 탈출각의 EPMA로 측정했다면,

$$\frac{I_{\text{Min1}}^{\text{A}}(\text{UM}\beta)}{I_{\text{Min2}}^{\text{A}}(\text{UM}\beta)} = \frac{I_{\text{Min1}}^{\text{B}}(\text{UM}\beta)}{I_{\text{Min2}}^{\text{B}}(\text{UM}\beta)}$$

가 되므로

표준 물질의 X선 세기

간섭보정에서 설명했던 것처럼 EPMA 분석에서 동일한 가속전압과 X선 탈출각의 조건에서 두 시료 간의 특성 X선 세기비는 일정하다. 균질한 광물시료와 조성을 알고 있는 표준물질의 특성 X선 세기를 실험실A에서 측정한다면,

$$k^A \equiv \frac{I_{Min}^A}{I_{Std}^A}$$

로 한다. 여기서 I_{Min}^A 과 I_{Std}^A 는 각각 실험실A에서 측정된 광물시료와 표준물질의 특성 X선 세기이다. 실험실B에서 광물시료를 표준물질로 사용해 보정계수를 구하는 경우

$$k_0^B \equiv \frac{I_{Unk}^B}{I_{Min}^B}$$

가 구해진다. 여기서 I_{Unk}^B 과 I_{Min}^B 는 각각 실험실B에서 측정된 미지시료와 광물시료의 특성X선 세기이다. 이 경우

$$\begin{aligned} k_{Unk}^B &\equiv \frac{I_{Unk}^B}{I_{Std}^B} \\ &= \frac{I_{Unk}^B}{I_{Min}^B} k^A \\ &= k_0^B \cdot k^A \end{aligned}$$

가 된다. 따라서 실험실A에 사용한 표준물질의 화학조성과 k_{Unk}^B 을 사용해 보정계산을 할 수 있다.

이 방법에서 광물을 U의 표준물질로 사용하는 경우 공존하는 Th이 문제가 된다. 이에 대한 간섭보정을 하는 것이 가능하지만, 우리나라나이트처럼 U/Th의 비가 수 백 이상 매우 큰 광물을 사용하면 실질적으로는 이를 무시해도 상관없다.

Table 1. Summary of EPMA experimental result on the interference correction factors

Interference correction factors (real measurement)			Demonstrations (Sp1: Lab. A, Sp3: Lab. B)		
	Sp1	Sp3	Determination of interference factor: Th on PbMα		
				Sp1	Sp3
Y on PbMα	0.00846	0.01226	Use Monazite X1		
Th on PbMα	0.00069	0.00055	I_{Min}^A (app)	453.1	
Th on UMβ	0.00667	0.00786	$I_{Pb-Th}^A [I_{Min}^A (ThMα)]$	11.85	
X-ray intensities (cps/μA)			$I_{Pb-std}^A (PbMα)$	41694	
	Sp1	Sp3	$I_{Pb-std}^B (PbMα)$		35360
Crocoite			I_{Min}^B (app)		382.9
PbMα	41694	35360	$I_{Pb-Th}^B [I_{Min}^B (ThMα)]$		8.68
Monazite X1			Correction factor		0.00057
YLα	862.8	485.8	Use Monazite X4		
ThMα	17167	15323	I_{Min}^A (app)	476.1	
UMβ(app) ⁽¹⁾	636.9	621.8	$I_{Pb-Th}^A [I_{Min}^A (ThMα)]$	14.13	
PbMα(0) ⁽²⁾	460.4	388.9	$I_{Pb-std}^A (PbMα)$	41694	
PbMα(app) ⁽³⁾	453.1	382.9	$I_{Pb-std}^B (PbMα)$		35360
UMβ ⁽⁴⁾	522.4	501.4	I_{Min}^B (app)		401.8
Monazite X4			$I_{Pb-Th}^B [I_{Min}^B (ThMα)]$		10.01
YLα	746.8	414.4	Correction factor		0.00054
ThMα	20482	18402	Determination of interference factor: Th on UMβ		
UMβ(app) ⁽¹⁾	742.7	726.5		Sp1	Sp3
PbMα(0) ⁽²⁾	482.4	406.9	I_{Min1}^A (UMβ)	522.4	
PbMα(app) ⁽³⁾	476.1	401.8	I_{Min2}^A (UMβ)	606.1	
UMβ ⁽⁴⁾	606.1	581.9	I_{Min1}^B (app)		621.8
			I_{Min2}^B (app)		726.5
			I_{Min1}^B (ThMα)		15323
			I_{Min2}^B (ThMα)		18402
			$I_{U-Th}^B [I_{Min1}^B (ThMα)]$		124.61
			Correction factor		0.00813

- (1) UMβ intensity before interference correction.
- (2) PbMα intensity after Y interference correction.
- (3) PbMα intensity before interference correction.
- (4) UMβ intensity after Th interference correction.

토의 및 결론

이상에서 언급한 CHIME 연대측정의 실험실표준법이 유용한지 검증하기 위해 한국지질자원연구원에 설치된 CAMECA SX-50 EPMA를 사용하여 실험하였다. 이를 위한 Pb 표준물질로 크로코아이트(crocoite: $PbCrO_4$)와 서로 성분이 다른 모나자이트의 소편 2개(X1과 X2라 칭하며 이는 각각 Min1과 Min2에 해당)를 준비하였다. 실험방법은 1) 서로 다른 분광계 Sp1과 Sp3를 사용해 필요한 특성 X선을 모두 측정하여 간섭보정계수를 실제로 구하고, 2) Sp1과 Sp3를 실험실A와 실험실B로 가정하여 이 연구에서 제안된 방법처럼 Sp1로 측정된 표준물질과 모나자이트 소편의 X선 세기를 사용해 Sp3의 간섭보정계수를 계산한 다음, 1)과 2)의 결과를 서로 비교하는 것이다. 실험 조건은 빔전류 200 nA과 빔경 20 μm 이었고, 측정시간은 크로코아이트 $PbM\alpha$ 40초, 모나자이트의 $YL\alpha$ 150초, $ThM\alpha$ 40초, $PbM\alpha$ 300초, $UM\beta$ 300초였다. 실험결과는 Table 1에 요약되었다. 실험결과에서 Sp3(실험실B)의 $PbM\alpha$ 선에 대한 $ThM\zeta$ 선의 간섭보정계수는 실제 측정에 의한 것이 0.00055이고, 실험실표준법에 의한 모나자이트 X1과 X2의 결과가 각각 0.00057과 0.00054이다. $UM\beta$ 선에 대한 $ThM\gamma$ 선의 간섭보정계수는 실제 측정에 의한 것이 0.00786이고 실험실표준법에 의한 값이 0.00813이다(Table 1). 즉 약 4% 미만의 오차로 실험실표준법에 의한 간섭보정계수가 실제 측정에 의한 값과 잘 일치하는 것을 검증할 수 있다.

이 연구에서의 실험실표준법으로 광물시료를 사용할 때 이의 화학조성은 전혀 상관이 없다. 따라서 자연산 광물의 복잡한 정량 화학분석치가 필요 없고, 단지 이의 특성 X선 세기가 균질하다는 것만 확인하면 표준물질로 이용하는 것이 가능하다. CHIME 연대측정이 활발하게 진행되는 실험실의 협조를 얻어 그곳에서 이미 화학조성이 잘 알려진 일련의 표준물질을 사용할 수 있다면 이 연구에서 제시한 방법을 적용할 경우 핵연료물질 등 구하기 어렵고 취급이 용이하지 않은 표준물질이 없는 다른 실험실에서도 매우 정확한 CHIME 연대측정을 실시하는 것이 가능해진다. 따라서 이 연구에 제시된 실험실표준법은 국내의 여러 EPMA실험실에서 CHIME 연대측정법을 실시하는데 좋은 길잡이가 될 수 있을 것이다.

사 사

이 연구는 한국지질자원연구원과 일본 나고야대학교 연대측정연구센터의 협동연구로 수행되었으며, 한국지질자원연구원의 기본사업인 '광물감정' 과제와 나고야대학교의 2005년도 총장재량경비 'CHIME 연대측정법의 정도 향상과 국제적 비교기준의 확립' 과제의 연구비에 의해 지원되었다. 투고원고를 심사하여 미진한 부분을 보완할 수 있도록 지적해준 이석훈 박사, 이승구 박사과 익명의 심사자에게 감사한다.

참고문헌

- Åmli, R. and Griffin, W.L., 1975, Microprobe analysis of REE minerals using empirical correction factors. *American Mineralogist*, 60, 599-606.
- Asami, M., Suzuki, K., and Grew, E.S., 2002, Chemical Th-U-total Pb dating by electron microprobe analysis of monazite, xenotime and zircon from the Archean Napier Complex, East Antarctica: evidence for ultra-high-temperature metamorphism at 2400 Ma. *Precambrian Research*, 114, 249-275.
- Donovan, J.J., Snyder, D.A., and Rivers, M.L., 1993, An improved interference correction for trace element analysis. *Microbeam Analysis*, 2, 23-28.
- Kato, T., 2002, A new EPMA standard for CHIME dating: chemical compositions of monazite grains from Madagascar. Joint Meeting of Earth and Planetary Science, 2002 Joint Meeting (abstract). J027-007.
- Kusiak M.A., Kędzior, A., Paszkowski, M., Suzuki K., González-Álvarez, I., Wajsprych, B., and Doktor, M., 2006, Provenance implications of Th-U-Pb electron microprobe ages from detrital monazite in the Carboniferous Upper Silesia Coal Basin, Poland. *Lithos*, 88, 56-71.
- Mezeme E.B., Cocherie A., Faure M., Legendre, O., and Rossi, Ph., 2006, Electron microprobe monazite geochronology of magmatic events: Examples from Variscan migmatites and granitoids, Massif Central, France. *Lithos*, 87, 276-288.
- Smellie, J.A., Cogger, N., and Herrington, J., 1978, Standards for quantitative microprobe determination of uranium and thorium with additional information on the chemical formulae of davidite and euxenite-polycrase. *Chemical Geology*, 22, 1-10.
- Suzuki K., 2005, CHIME (Chemical Th-U-total Pb isochron method) dating on the basis of electron microprobe analysis. *Journal of Geological Society of Japan*, 111, 509-526.

- Suzuki, K. and Adachi, M., 1991a, Precambrian provenance and Silurian metamorphism of the Tsubonosawa paragneiss in the South Kitakami terrane, Northeast Japan., revealed by the chemical Th-U-total Pb isochron ages of monazite, zircon and xenotime. *Geochemical Journal*, 25, 357-376.
- Suzuki, K. and Adachi, M., 1991b, The chemical Th-U-total Pb isochron ages of zircon and monazite from the Gray Granite of the Hida terrane, Japan. *Journal of Earth and Planetary Sciences*, Nagoya University, 38, 11-37.
- Suzuki K., Adachi, M., Kato T., and Yogo, S., 1999, CHIME dating method and its application to the analysis of evolution history of orogenic belts. *Chikyugaku (Geochemistry)*, 33, 1-22.
- Suzuki, K. Dunkley, D., Adachi, M. and Chwae U., 2006, Discovery of 370 Ma granitic gneiss clast from the Hwanggangri pebble-bearing phyllite in the Okcheon metamorphic belt, Korea. *Gondwana Research*, 9, 85-94.

2006년 3월 29일 접수
2006년 7월 27일 수정원고 접수
2006년 8월 8일 채택