

ジルコン中のアルファリコイルトラック観察の試み Observation of alpha recoil tracks in zircon: An attempt

長谷部 徳子^{1*}; 小坂 明弓¹; 伊藤 健太郎¹; 福間 剛志¹; 松木 篤¹
HASEBE, Noriko^{1*}; KOZAKA, Ayumi¹; ITO, Kentaro¹; FUKUMA, Takeshi¹; MATSUKI, Atsushi¹

¹ 金沢大学

¹Kanazawa University

重元素が放射壊変する際に結晶中に残される放射線損傷を利用する放射年代測定にフィッショントラック (FT) 法やアルファリコイルトラック (ART) 法がある。ART は ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th やその娘核種が α 線を放出した際に残った原子核がその反動で動くためにできる損傷である。FT に比してサイズが小さいためその観察は難しく、これまでは主として雲母類での観察例があるのみであった。ウラン濃度の高いジルコンで ART 法が確立できれば数千年オーダーの第四紀試料の年代測定を可能にできる。

原子間力顕微鏡を利用し、ジルコン表面を観察したところ、約 33Ma の FT 年代を示す試料で、FT 以外にも 10 ナノ程度の深さの凹みが多く存在し、表面に波状の高低差が生じていた。この波状構造は試料を 600 °C で 1 時間アニーリングしてもなくならないが、1000 °C でアニーリングすると消失した。また現世の火山噴出物から分離したジルコンの表面にも、少数であるが、同様のサイズの凹みが観察された。これらは観察条件を変化させても同じ地点に存在し、測定ノイズではなく確かに凹みであった。これら凹みが ART であるかどうかを確認するために、さらに約 6 万年の年代の火山岩から分離したジルコンの観察を進めた。このジルコンにも同様のサイズの凹みが存在し、エッチングを進めると場所によっては凹みの数が増加した。これらのことからこの凹みが ART である可能性が高いと思われる。

キーワード: 放射線損傷, 原子間力顕微鏡, アルファリコイルトラック, フィッショントラック, ジルコン
Keywords: radiation damage, atomic force microscope, alpha recoil track, fission track, zircon

黒雲母の塑性変形を伴う破砕帯の活動時期：FT 熱年代による年代制約の試み Attempts to date slip event of crush zones associated with plastic deformations of biotite based on FT thermochronology

末岡 茂^{1*}; 島田 耕史¹; 石丸 恒存¹; 丹羽 正和¹; 安江 健一¹; 梅田 浩司¹; 檀原 徹²; 岩野 英樹²
SUEOKA, Shigeru^{1*}; SHIMADA, Koji¹; ISHIMARU, Tsuneari¹; NIWA, Masakazu¹; YASUE, Ken-ichi¹;
UMEDA, Koji¹; DANHARA, Tohru²; IWANO, Hideki²

¹ 日本原子力研究開発機構, ² 株式会社京都フィッション・トラック

¹Japan Atomic Energy Agency, ²Kyoto Fission-Track Co., Ltd.

一般に、断層の活動年代は、断層変位を受けた地形面や地層、または人工物などの変位指標の年代から推定される。しかし、基盤岩中の断層など、変位指標を持たない断層についてはこのような変動地形学的手法は適用できない。上記のような断層に対しては、断層活動時の摩擦発熱や岩石破砕に伴う放射年代のリセット（例えば、Ikeya et al., 1982, *Science*; Murakami and Tagami, 2004, *GRL*; Yamada et al., 2012, *JAES*; 雁沢ほか, 2013, *地質学雑*）や、断層活動後に形成された粘土鉱物や熱水脈の形成年代（例えば、Zwingmann et al., 2004, *JSG*; Watanabe et al., 2008, *Geochem. J.*; Siebel et al., 2009, *IJES*; Yamasaki et al., 2013, *Chem. Geol.*）に基づいた、地球年代学的なアプローチが試みられてきた（Tagami, 2012, *Tectonophys.*）。しかし、断層帯近傍における熱現象や物質移動は単純ではなく、決定的な方法は未だに確立されていない。同手法の今後の発展のためには、さらなる基礎研究と、様々な地形・地質条件と年代測定手法の組み合わせにおける事例研究の蓄積が必要である。

本講演では、基盤岩中の黒雲母の塑性変形を伴う破砕帯に対し、フィッション・トラック（FT）熱年代測定法を用いて、最新活動年代の推定を試みた事例について紹介する。本研究で対象としたのは、敦賀半島北西部の高速増殖原型炉もんじゅ敷地内に露出する、江若花崗岩敦賀岩体中に分布する破砕帯である。原地形面および上載地層は、もんじゅ建設工事に伴い掘削されており、変動地形学的手法による断層活動年代の推定は困難である。観察される破砕帯はいずれも長さ数～10 数 m、幅数 cm 程度と小規模で、網目状の分布を呈し、概して延性的である。破砕帯沿いには、黒雲母粒子の塑性変形が普遍的に観察され、150～250 °C 程度以上（例えば、Lin, 1999, *Tectonophys.*; Passchier & Trouw, 2005, “*Microtectonics 2nd ed*”）での変形が示唆される。母岩である江若花崗岩敦賀岩体は白亜紀末ごろに貫入し、その後の数 100 万年程度で周辺温度まで冷却され、古第三紀初頭以降は岩体スケールでの二次的加熱は受けていない（末岡ほか, 投稿中）。一方、破砕帯の近くには、約 19Ma に玄武岩岩脈が貫入しているように（末岡ほか, 投稿中）、岩体冷却以降でも、破砕帯周辺のみが局所的に加熱されるようなイベントの存在は否定できない。本研究では、破砕帯周辺が最後に 150～250 °C 程度以上に加熱された時期が破砕帯の最新活動年代に一致するという仮定に基づき、破砕帯周辺の花崗岩の FT 熱年代解析を行っている。アパタイト FT 年代のリセットは、 $10^6 \sim 10^7$ 年の長期スケールでは 90～120 °C 程度で起こるが、玄武岩岩脈の貫入や熱水活動のような時間～年単位の短期間の加熱に対しては 200 °C 以上の温度が必要となる（例えば、Laslett et al., 1987, *Chem. Geol.*）。これは、上記の黒雲母の塑性変形温度領域とほぼ一致する。講演当日は、FT 解析結果の速報を報告予定である。

キーワード: フィッション・トラック熱年代, 破砕帯の年代測定, 黒雲母の塑性変形, 江若花崗岩

Keywords: fission-track thermochronology, dating of crush zones, plastic deformation of biotite, Kojaku Granite

石英の OSL 特性変化に関する物理的履歴の影響 Effects of physical aging degradation on OSL properties of quartz

長田 章良^{1*}; 山中 千博¹; 高田 将志²
OSADA, Akira^{1*}; YAMANAKA, Chihiro¹; TAKADA, Masashi²

¹ 大阪大学大学院理学研究科, ² 奈良女子大学文学部人文社会学科

¹Department of Earth and Space Science, Osaka University, ²Department of History, Sociology and Geography, Faculty of Letters, Nara Women's University

光励起発光 (OSL) 年代測定法は、石英や長石が蓄積する自然放射線被曝量の情報を用いた年代測定法である。鉱物の価電子帯の電子や正孔は自然放射線により励起され、不純物センターや酸素欠陥などに捕らえられ、準安定状態を形成する。ルミネッセンス法では、光や熱によってこの準安定状態の電子を伝導帯に励起し、正孔と再結合した際の発光を計測する。こうしたルミネッセンス法の一つである OSL 法では、太陽光への曝露で簡単に起こる発光を観測するため、土砂が堆積した時点から現在までの年代を知ることができる。しかし、試料によって同じ放射線照射量に対しても発光量の違いがあり、また励起光に反応して発光する時間も試料によって異なっている。年代測定には時間が短い成分 (Fast 成分) が卓越した試料が適しており、火成岩質の岩石に由来する石英では、より Fast 成分が見られにくいという報告がある [1]。

本研究では、石英の OSL 特性と物理的機構の関連を解明することを目的としている。特に今回は発光強度・感度の変化について詳しく実験を行った。具体的には、ボールミルで削る時間による発光量の比較、 α 線照射による発光量変化、加熱による発光量・発光感度変化の3つについて調べた。測定機器は RISØ-TL/OSL reader DA-20 を用いた。ボールミルによる比較実験では、試薬石英に対して削る時間 30 分、1 時間、2 時間のものについて粒径 149~250 μ m の粒子を抽出し発光量を比較した。 α 線照射試料は、照射線量 1.3kGy、5.5kGy、63kGy の 3 試料について測定を行った。加熱実験では、上記の 2 パターンの処理を加えた試薬石英の他に、Li を 0.01mol% ドープした試薬石英、そして発光量・感度の良い自然試料として、エアーズロックの石英砂とインド・タール砂漠の石英砂を用意し、300 °C ~800 °C まで 100 °C 毎に 60 分間加熱を施した。

ボールミルによる実験においては、削る時間の増加とともに発光量が増加し、 α 線照射実験では、ボールミルによって削った石英と比較して 100 倍以上の強い発光が観測された。これらの結果は、 α 線の飛程を考えると、発光量変化の要因として石英粒子表面付近の欠陥が発光に大きく関わっているということがわかる。

また加熱実験においては、500 °C 以上の加熱により発光量は最大で約 10 倍に増加し、その傾向はボールミル、 α 線照射を行った試料で顕著であった。しかし逆に、Li をドープした試薬石英では、300 °C 以上の加熱で最小 10 分の 1 程度の発光量まで減少した。エアーズロック試料では 500 °C 以上の加熱で発光量の増加が見られなかったが、インド・タール砂漠試料では最大で約 20 倍と、ボールミル・ α 線照射を行った試薬石英の増加率に比べてもさらに大きな発光量の増加が見られた。これらの加熱による発光量変化の実験結果とはまた異なり、発光感度 (Fast 成分の発光量全体における割合) については、試薬石英で加熱による変化が見られなかったのに対し、発光感度の良い自然試料については最大約 5 倍の感度の増加が見られた。これら加熱実験の結果は、加熱による電子の移動が発光量の増加および発光パターンの変化に関わっていること、そして加熱に対する安定性が Fast 成分の発光とそれ以外の発光を示すセンター、および発光を妨害するセンターで異なっていることを示唆している。

参考文献

[1] Tokuyasu K., Tanaka K., Tsukamoto S., and Murray A., "The characteristics of OSL signal from quartz grains extracted from modern sediments in Japan", *Geochronometria* 2010, vol.37, pp13-19.

キーワード: ルミネッセンス年代測定, 光励起発光 (OSL), 石英
Keywords: Luminescence dating, Optically Stimulated Luminescence, Quartz

安定同位体比質量分析計 IsoPrime100 を用いた高精度・高感度分析システムの開発 High precision and high sensitive stable isotopic analysis by using original CF/DI-IRMS system for IsoPrime100

中根 雅晴¹; 田中 崇史¹; 鐵 智美¹; 高木 悠花²; 石村 豊穂^{1*}

NAKANE, Masaharu¹; TANAKA, Takashi¹; TETSU, Tomomi¹; TAKAGI, Haruka²; ISHIMURA, Toyoho^{1*}

¹ 茨城工業高等専門学校, ² 早稲田大学

¹National Institute of Technology, Ibaraki College, ²Waseda University

[はじめに]

炭酸塩、特に炭酸カルシウム (CaCO₃) の炭素酸素安定同位体組成 ($\delta^{13}\text{C}$, $\delta^{18}\text{O}$) は、生成当時の環境履歴をその同位体値に記録することから、過去 60 年以上にわたり世界中の地球科学研究で活用されてきた。特に生物源炭酸塩殻の安定同位体組成は、海水の $\delta^{18}\text{O}$ (塩分変動・全球氷床量) と水温履歴、そして溶存無機炭素 (DIC) の $\delta^{13}\text{C}$ を記録するので、物質循環や環境変動メカニズムの解明に関わる基礎情報として重要である。また、堆積物中や岩石中で無機沈殿によって形成される炭酸塩の安定同位体組成も、生成に伴う環境履歴を記録していることから、周辺水の温度や流体に含まれる炭素源の推定に活用することができる。この安定同位体値を国際対比するためには、国際標準炭酸塩や標準海水を用いた安定同位体比分析を高精度で安定して行うことが分析の基本となる。同時に、常に同じ基準での分析を維持するためには分析機器の長期安定性を確保する必要がある。しかし最近の商用分析システムは自動化と電子化 (=ブラックボックス化) が進み、結果的に経年劣化への対応に困難を伴う場合があり、常に国際対比に耐えうるだけの分析精度を維持することが容易ではない。

当該研究の進展に伴い、高解像度解析を目的とした微量炭酸塩の「高感度」安定同位体比分析が重要視されている。また、近年注目されている絶対温度指標である clumped-isotope 古水温計 (Gosh et al., 2006 など) の研究には質量数 47 の CO₂ の高精度分析が必須であり、従来よりも「高精度」での分析をおこなう必要がある。これらの問題を解決するために、茨城高専では 2014 年に 2 台の安定同位体比質量分析計 IsoPrime100 を導入し、分析計の高度な調整を進めている。加えて、信頼性と安定性の高い分析を実現するための試料導入システムを独自に構築し、高精度化と高感度化を実現しつつ分析の効率化と透明性の確保を目指した。

[高精度安定同位体比分析の概要]

デュアルインレット式安定同位体比質量分析計と、独自に構築した小型多連式ガス精製・保存システム (SPICAL2) およびガス試料導入システムからなる。100 % CO₂ ガス分析の外部精度は $\delta^{13}\text{C}$ ・ $\delta^{18}\text{O}$ とともに 0.01 ‰前後であり、内部精度とほぼ同等の外部精度を引き出せることがわかった。また、国際標準炭酸塩 NBS19 の外部精度は、短期 (1 日, n=5) で $\delta^{13}\text{C}$ ・ $\delta^{18}\text{O}$ とともに ± 0.011 ‰, 長期 (1 ヶ月, n=36) では $\delta^{13}\text{C}$ ・ $\delta^{18}\text{O}$ それぞれ, ± 0.026 ‰と ± 0.056 ‰であった。

[高感度安定同位体比分析の概要]

連続フロー型安定同位体比質量分析計と自作の前処理システム (Ishimura et al., 2004, 2008) から構成され、炭酸塩試料と海水試料を分析した際の外部精度は $\delta^{13}\text{C}$ ・ $\delta^{18}\text{O}$ とともに ± 0.1 ‰程度であり、0.1 μg 以上の炭酸塩 (CO₂ で 1nmol に相当) でも同位体比を測定できることがわかった。分析に必要な炭酸塩量は、最新の商用分析システムと比べても 1/100 以下での分析が可能であり、ナノグラムオーダーの炭酸塩の安定同位体組成を古海洋学・環境解析学に有用な精度で簡便に分析することが可能である。これまでの安定同位体比分析と比較すると、(1) サンプル量が少なく同位体比分析が困難であった試料を研究対象することが可能で、貴重な測定対象の消失も最小限に抑えることができ、(2) 分析に用いる炭酸塩量を事前に秤量する必要が無く、試料サイズに対する自由度が高い (0.1~500 μg までの分析実績がある)、また (3) 反応した炭酸塩重量を高感度で簡単に定量でき、さらに (4) 質量分析計に導入しなかったガスを保持することによって、複数回の導入・分析が可能で、必要に応じて分析値の検証や分析精度の向上が可能である。

[今後の展望]

精度・感度・安定性に関しては調整を加えることによってさらなる向上が期待できる。高精度分析システムに関しては、質量数 47 の CO₂ の測定精度の検証と実際の試料分析への応用をめざしている。また高感度分析システムは分析方法の基盤を確立し、有孔虫、サンゴ、魚類の耳石、岩石切片試料など多分野に渡っての応用研究を推進している。

キーワード: 安定同位体, 炭酸塩, 開発, 高精度, 微量分析

Keywords: High precision, stable isotopic analysis, carbon and oxygen isotope, carbonate, development

炭酸塩の高精度・高解像度環境解析の進展 -魚類耳石の安定同位体比を用いた環境履歴解析を例に-

High-resolution stable isotopic analysis of CaCO₃ to clarify the life history recorded in fish otolith

鐵 智美¹; 石村 豊穂^{1*}; 尾田 昌紀²; 坂井 三郎³
TETSU, Tomomi¹; ISHIMURA, Toyoho^{1*}; ODA, Masanori²; SAKAI, Saburo³

¹茨城工業高等専門学校, ²鳥取県水産試験場, ³海洋研究開発機構

¹National Institute of Technology, Ibaraki College, ²Tottori Prefectural Fisheries Experimental Station, ³JAMSTEC

炭酸カルシウムで形成される魚類の耳石の酸素安定同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$) は生息環境の温度を反映し、また炭素安定同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$) が餌や代謝といった生体内の情報を反映することが近年の研究にて報告されている (例えば Kitagawa et al., 2013). さらに、耳石の日周輪形成とともにその日の安定同位体組成を記録する特徴を利用して、生態推定や環境指標への活用が期待されている。しかしながら、耳石を高解像度で成長段階ごとに切削し同位体比を定量するには、切削した極微量の粉末試料の回収方法の検討と、微量量での同位体分析の実践が必要であった。

本研究に先立ち、マイクロドリルを用いて耳石の微小領域を手動で切削・回収し、微量炭酸塩安定同位体比質量分析システム (MICAL3, Ishimura et al., 2008) を改良した MICAL3c (茨城高専) を用いて予察的な安定同位体比測定をおこなった。結果、この分析手法を用いて耳石に残された環境情報を数十マイクロメートルオーダーで詳細に分析できる能力があることを確認した。そこで本研究では、微小領域を精密に切削することができる高精度マイクロミルシステム Geomill326 を活用し、すでに回遊経路が解明されているマイワシの耳石を成長段階ごとに切削・回収し、それらの安定同位体比からマイワシの回遊履歴全体を再現できるかどうかについて検討した。

分析の結果、マイワシの耳石中心部・縁辺部の安定同位体組成に明確な違いがあることがわかった。特に縁辺部 $\delta^{18}\text{O}$ 値は、個体が採取された時点の生息環境の $\delta^{18}\text{O}$ を精度良く反映している。また、耳石 $\delta^{13}\text{C}$ 値を見てみると2つのグループに分かれることが明らかとなり、それぞれグループには食性や代謝過程の違いがある可能性が示唆される。この考察に関しては、マイワシの生態をふまえたうえで今後の詳細な検討が必要である。つぎに、一般量販店で購入した1歳魚と推定される千葉県産マイワシの耳石を成長段階ごとに詳細に切削し、それらの安定同位体比を測定した。その結果、成長段階によって安定同位体組成が明瞭に変動することを確認でき、このマイワシ耳石の同位体比の変動幅から北西太平洋を回遊する群集であることが推測された。そこで回遊経路を照合したところ、黒潮から混合域、そして親潮へ移動した情報が耳石に記録されており、実際の回遊経路とも整合性があることが示された。

これらの結果から、Geomill326 と MICAL3c を組み合わせた微小領域における炭酸塩の安定同位体比分析は、今後の高解像度環境解析に有効に活用できることを裏付けた。今後は、より正確に日周輪にそって耳石を切削するためにも、切削深度や切削に用いるサンプルの選定について検討する必要がある。

キーワード: 安定同位体, 微量分析, 炭酸塩, 耳石, 高解像度, 炭酸塩

Keywords: otolith, stable isotope, microscale analysis, high resolution, environmental proxy, carbonate

鍾乳石における地殻変動イベント検出の試み An attempt to obtain earthquake-related events from stalactite

川端 訓代^{1*}; 久保田 好美²; 田中 秀実³; 角森 史昭⁴

KAWABATA, Kuniyo^{1*}; KUBOTA, Yoshimi²; TANAKA, Hidemi³; TSUNOMORI, Fumiaki⁴

¹ 鹿児島大学総合研究博物館, ² 国立科学博物館, ³ 東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻, ⁴ 東京大学大学院理学系研究科地殻化学実験施設

¹The Kagoshima University Museum, ²National museum of nature and science, ³School of Science, The University of Tokyo, ⁴Geochemical Research Center, Graduate School of Science, University of Tokyo

鍾乳石の多くは縞状構造を持ち、鍾乳石の成長過程における何らかの変化が記録されている。縞状の鍾乳石は主に過去の陸域における古環境変遷を明らかにする目的で解析されてきた。我々は、鍾乳石が断層などの亀裂を通る地下水の涵養状態に大きく影響され成長する事に着目し、古環境要因以外の地震など地殻変動によるイベントの検出を試みた。

試料として栃木県葛生地域のつらら石と沖縄県石垣島の石筍を用いた。これらの試料の顕微鏡観察・ICP-MSやEPMAによる元素分析を行い縞状構造の特徴を明らかにし、つらら石については放射性炭素年代測定法によっておおまかな形成年代と成長速度を算出した。

結果、つらら石と石筍の両方において縞を構成している暗色層には、Si, Al, Fe, Mgが濃集し、粘土鉱物が定期的に付着し縞状構造が形成されたと推測される。またつらら石の年代測定によって炭酸塩鉱物は約37000年から33000年(¹⁴C年代)の間連続的に成長した事が明らかになった。しかしこの成長速度には一部に変則的に成長する時期が確認された。これらの結果から本発表では縞状構造形成に関わる環境要因と地殻変動要因それぞれの可能性について議論する。

キーワード: 鍾乳石, 石筍

Keywords: stalactite, stalagmite