

原子間力顕微鏡を用いたジルコンの α リコイルトラック年代測定

早坂怜*・長谷部徳子*・松木篤*・福間剛士*・田村明弘*

Alpha recoil track dating on zircon by using atomic force microscope

Rei Hayasaka*, Noriko Hasebe*, Atsushi Matsuki*,
Takeshi Fukuma* and Akihiro Tamura*

* 金沢大学, Kanazawa University

はじめに

ART (Alpha Recoil Track) は ^{238}U やその娘核種 (^{234}U や ^{230}Th 等) が α 崩壊をする際に生じた運動エネルギーにより、残った原子核がその反動で動き残す損傷のことをいう。ART法は α 崩壊によって生じるART数が時間とともに増えることを用い、ART数とウラン・トリウム濃度を測定することで年代値を算出する方法である。ウラン・トリウム濃度が高いジルコンにおけるART法では、第四紀に相当するおおよそ数百年から数万年前の比較的若い試料の年代測定が可能になると考えられており、従来の年代測定法と併用することでクロスチェックにも貢献できると期待される。また第四紀は人類が出現し始めた時代である。例えば第四紀の広域テフラ中のジルコンから年代を決定することができれば、海洋堆積物や湖沼堆積物の層序の理解が深まり、歴史時代の環境変動について考察が深まると予想される。また土器中のジルコンの年代測定を行うことができれば、土器の作られた年代を求めることも考えられる。ジルコンにおけるART法が確立されることで、地学を始めとした多岐にわたる学術分野の発展が見込まれる。

ARTはFT (Fission Track) よりも非常に小さいことから光学顕微鏡での観察が困難であったが、近年ナノオーダーの高い分解能を持つAFM (Atomic Force Microscope) を用いることで観察が可能となった。早坂他 (2016)

では実際にジルコンにおいてARTを計数し年代測定を行ったが、得られた年代値は期待される年代よりかなり若くなってしまった。本研究では引き続き、年代既知のジルコンを用いてARTの観察ならびにART法への適用を行い、得られたデータや課題からART法の確立に向け考察を深めていくことを目的とした。とくにARTの段階エッチング挙動を観察し、ARTのエッチングに関する基礎を深めることを試みた。

研究方法

広域テフラTo-H (年代値約1万3000年; 町田・新井,1992) およびU-Oki (年代値約1万年; 町田・新井,1992) の給源から採集したジルコン (ToH3とUO302) を観察した。また早坂ほか (2016)で観察した、ATテフラの給源である入戸火砕流のジルコン (22ka-25ka ; 町田・新井, 1992, もしくは ~29ka : Miyairi *et al.*, 2004) (ITO) については段階エッチングを通じたARTの形状観察を行った。

結果と考察

ART計数に基づく年代決定

AFM観察の結果、ToH3からは 0.046 個/ μm^2 、UO302からは 0.009 個/ μm^2 のARTトラック密度が得られた。しかしToH3ジルコンには顕微鏡での観察でFTが多く認められたため、基盤から混入したものである可能性がある。

ウラン・トリウム濃度測定を行い、年代を計算したところ、やはりどの粒子も期待年代の10-40%の値となり若くなった。小坂ほか(2015)による白山火山等の結果も合わせ、図1となった。年代値が若く見積られる原因としてARTの認定基準や年代式に入るARTのサイズに依存する係数の問題が挙げられる。またART面密度にはばらつきが見られ、ART観察領域とウラン・トリウム濃度測定領域がうまく一致しないと年代測定結果に大きな誤差をもたらすことになることも懸念される。

段階エッチングによるART形状変化

本研究では観察に際し試料に10時間のエッチングを施しているが、ITO試料に追加エッチング(合計20時間、および合計30時間)を施し、ARTの形状がどのように変化するかAFM観察を行った(図2)。同一のARTを追加エッチング前後で比較したところ、計20時間エッチングでは直径が $0.047\mu\text{m}/\text{h}$ 、深さが $0.49\text{nm}/\text{h}$ の速さで、計30時間エッチングでは直径が $0.025\mu\text{m}^2/\text{h}$ 、深さが $1.41\text{nm}/\text{h}$ の速さで大きくなった。計20時間エッチングと計30時間エッチングの両方においてARTのサイズが大きいくほど、直径や深さの延長率が高くなる傾向がみられた。直径は10-20時間のエッチングの際に高い伸長率を持つ傾向があり、これはART生成時に周辺のジルコン構造に損傷が加わりその領域のエッチングが起りやすくなったためと考えられる。直径が小さく深さが非常に浅いARTは10-20時間のエッチングを通じて直径は大きくなるものの深さはあまり変わらない。このことから、小さなARTのエッチングでは、直径を大きくする初期段階があり、直径が大きくなることでエッチング液がトラックに入り込み易くなり、深さ方向のエッチングが発生すると考えられる。

段階エッチングを通じ、FTが分散してプロットされる一方でARTが直線的に分布することが分かった(図3)。このことから、こ

の直線にプロットされるトラックをARTとして認定に用いることができると考えられる。また当初はARTと認定されたが、段階エッチングを通じ他のARTとは異なる挙動を示したトラックも確認され、トラックに段階エッチングを行い同一トラックが直線的にプロットされるかを確認することで、ARTではないトラックを除くことができる可能性が示された。

むすび

ART法を用いた年代測定では年代値が若く見積られる傾向が見られた。この原因としてARTの認定基準や年代式の誤りが考えられる。また段階エッチングを通じARTが直線的に分布することが分かった。これはFTとは異なる挙動であり、ARTの認定に用いることができると考えられる。ジルコンにおけるART法にはまだまだ不明な点が多いが、ARTの研究をすることは、年代学的・鉱物学的に非常に重要であると思われる。引き続きデータ数を増やしARTの基準や年代式などを考えていくことで、今後の研究発展に大きな期待ができる。

参考文献

- 早坂ほか. 2016. 原子間力顕微鏡による入戸灰砕流ジルコンの観察. フィッショントラックニュースレター, 29, 16-19.
- 小坂ほか. 2015. 原子間力顕微鏡を用いたジルコン中のアルファリコイルトラック観察の試み. フィッショントラックニュースレター, 28, 13-15.
- 町田・新井. 1992. 火山灰アトラス, 東京大学出版.
- Miyairi et al. 2004. Improved ^{14}C dating of a tephra layer (AT tephra, Japan) using AMS on selected organic fractions. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 223-224, 555-559.

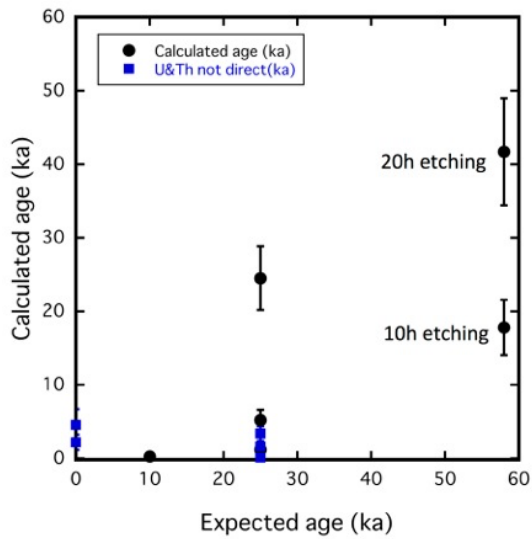


図1. AFM年代測定結果の期待年代に対するプロット。■は直接U・Th測定ができなかったため、平均的な試料のU・Th濃度を利用して年代を計算したもの。白山火山の結果のみ20hエッチング後の値も載せてあるが他は10hエッチング後の観察結果に基づいている。

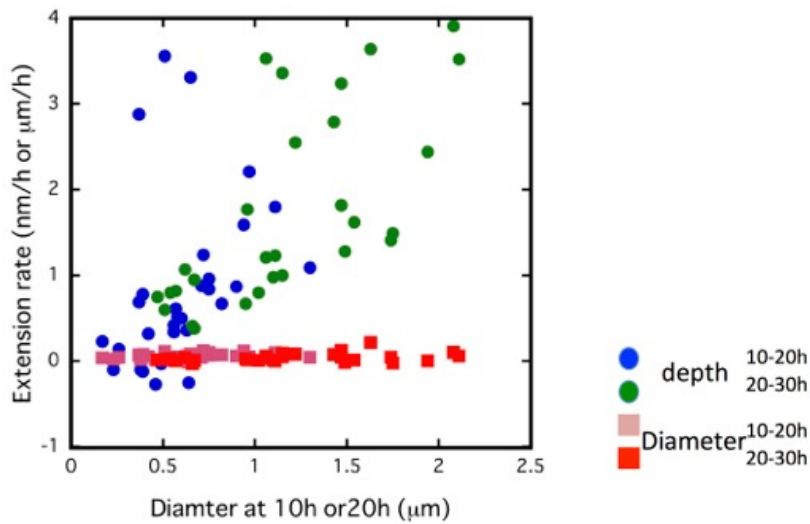


図2. ITOの段階エッチングでみられたエッチピット (ART) の伸張率。

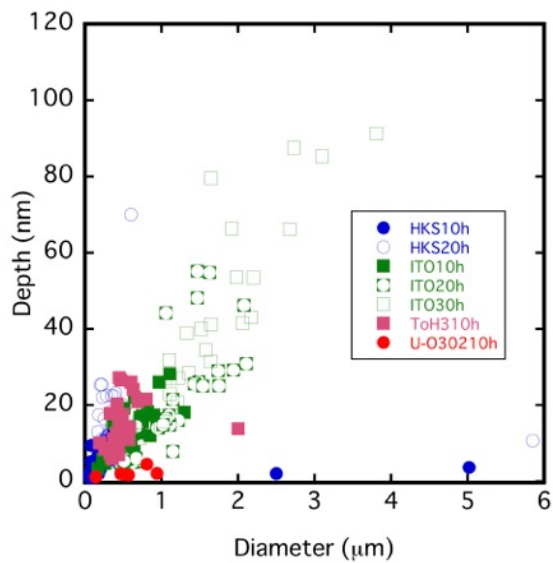


図3. 観察されたエッチピット (ART)の直径と深さの関係。