

## 論 説

### アパタイトの TINT の数を簡便に増やす試みについて 伊藤久敏\*

#### On a simple approach to increase TINT numbers in apatite Hisatoshi Ito\*

\* 電力中央研究所, Central Research Institute of Electric Power Industry (CRIEPI)

#### Abstract

A new method to increase TINT (track-in-track) in apatite is proposed. The method uses irradiated apatites and simply re-etches them. Track figures were observed before and after re-etching. It was shown that diameter of etch pits and width of TINT increased considerably while length of TINT increased slightly by the re-etching. The number of spontaneous TINTs and their length distribution were observed for Nojima granodiorite and Kishima Group sandstone. The number of spontaneous TINTs increased greatly (from ~6 to ~20 and from ~5 to ~18, respectively). Although it is difficult to distinguish between spontaneous and induced TINTs of ~15  $\mu\text{m}$  in length, this method increases valuable information on shorter spontaneous TINTs. It also provides information on initial induced track length, which can be used to test the reliability of length measurement procedure.

Key words: fission-track dating, apatite, confined track length, TINT, re-etching

#### 1. はじめに

フィッション・トラック法 (FT 法) は, 年代値情報のみならず, 自発トラック長を含めて解析することで熱履歴解析を行うことができるという利点を有する. トラック長解析を行う上で, 基となる自発トラック長データを精度良く, 多数得ることにより, 熱履歴解析の精度・信頼性の向上に寄与することが期待される.

FT 法では主にアパタイトとジルコンを用いた熱履歴解析が行われている. このうち, アパタイトについては, 一般にウラン含有量が小さいことから, 精度良い解析に必要とされる数 (50-100 本; 例えば Barbarand et al., 2003) の自発トラック長測定を行うことが困難な場合が多い. 特に, 日本のような変動帯のアパタイトは地質学的に最

近まで, アパタイトの閉鎖温度 (約 100°C) 以上の温度を被っているため, 自発トラック密度が低く, トラック長測定を用いた熱履歴解析が採用されない場合が多い. このようなことから, アパタイトを用いた自発トラック長測定データを増やす試みについて検討することは意義が大きい. ここでは, 年代測定用に照射した試料を再エッチングすることで出現する誘導トラックを用いることにより, 自発トラック長測定データを増やすことができた結果を報告する.

#### トラック長測定に関するレビュー

トラック長の測定には, 結晶内部にトラックの全長が保存されたトラック (confined track) を測定する場合と, 結晶表面に現れているトラック

('semi-track'; Laslett et al., 1982) を測定する  
場合がある。後者は容易に多数のデータを取得で  
きるが、分解能の高い解析には前者が適する  
(Laslett et al., 1982; Gleadow et al., 1986) た  
め、実際にモデル計算に用いられるトラック長は  
前者を用いたものに限られている。従って、こ  
こでは前者を対象にする。

confined track には結晶表面に達するエッチ  
ングされたトラックと交叉したトラックである  
TINT (track-in-track) と、結晶表面の傷と交叉  
した TINCLE (track-in-cleavage) がある (Lal  
et al., 1969)。通常、トラック長解析には両方が  
用いられるが、TINCLE のトラック長は短いトラ  
ックを含む試料ではそれらを数え落とすなどの理  
由で TINT よりも長い値のものが相対的に増える  
傾向があるため、TINT のみを測定すべきだと  
の報告がある (Barbarand et al., 2003)。

また、トラック長測定では、顕微鏡のステー  
ジの面と平行なトラック (horizontal track) とそ  
うでないトラック (inclined track) が区別され  
る。後者の測定には、3 次元で測定できるシス  
テムが必要であり (山下ほか, 1992; Iwano et al.,  
1996), 前者の方がトラック長測定を簡便に精度  
良く行えるため、通常は前者を用いたトラック長  
測定が行われている。

以上から、ここでは顕微鏡ステージに平行な結  
晶内部面の TINT のみを対象に議論する。

### トラック長測定データを増やす方法

トラック長測定データを増やす方法として、結  
晶観察面に対して垂直方向に粒子線を照射する方  
法が行われている。粒子 (線) を用いる方法とし  
ては放射線である  $^{252}\text{Cf}$  線源による核分裂片照射  
(Donelick and Miller, 1991; Ohira et al., 1994)  
やタンデム加速器を用いた Ni イオン照射  
(Ohira et al., 1994; Yamada et al., 1998) があ  
る。Ohira et al. (1994) は両者を比較し、後者の  
方が短時間で高密度の照射が行え、飛跡長も揃う  
としているが、より簡便な方法である  $^{252}\text{Cf}$  を用  
いた照射を行った例が多い。このほか、TINCLE

を増やす方法として、人為的に結晶面に傷を作る  
方法 (吉岡ほか, 1994; Yamada et al., 1998) が  
ある。

TINT を増やすために粒子線を照射する方法は、  
効果的ではあるが、特別な装置を必要とする。こ  
こでは、以下のように、簡便に TINT を増やす方  
法を提案する。

FT 法で年代測定を行う場合、通常、外部ディ  
テクター法 (Gleadow, 1981) が採用される。こ  
の方法では、対象鉱物 (アパタイトやジルコン)  
の結晶表面上で自発トラック数の計測を行い、外  
部ディテクター (主に白雲母) 上で誘導トラック  
数を計測する。年代測定に使用した鉱物試料は、  
自発トラック数の計測が終われば、トラック長測  
定に用いられるか、年代値のチェック用に保管さ  
れている場合が多い。年代測定済みの試料を再度  
エッチングすれば、エッチングされた誘導トラ  
ックと交叉する自発トラックの TINT が新たに観  
察されることになり、トラック長解析に利用できる  
ものと期待される。この場合、自発トラックの  
TINT と誘導トラックの TINT を区別できるかど  
うかが問題となる。Gleadow et al. (1986) は、  
アパタイトの誘導トラックの confined track は  
長さの平均が  $\sim 16.3 \mu\text{m}$  で、自発トラックでは、  
試料のタイプ (急冷した火山岩や徐冷した花崗岩  
など) に関わらず、平均長は  $15 \mu\text{m}$  以下である  
としている。このことから、自発トラックと誘導  
トラックの TINT の区別はある程度可能であると  
考えられる。この方法は、特別な装置を必要とし  
ない、極めて簡便な方法である。以下にこの方法  
について検討する。

## 2. 実験

### エッチング条件について

アパタイトは  $5 \text{ M HNO}_3$  を用い、 $20 \pm 1^\circ\text{C}$  で  
20 秒のエッチングを行う場合が多い。筆者はこ  
れまで、アパタイトのエッチング溶液は  $0.6\%$   
 $\text{HNO}_3$  ( $0.13 \text{ M}$  に相当) を用い、 $25^\circ\text{C}$  で 2-4 分  
のエッチングを行ってきた (例えば、伊藤・谷口,  
2004)。Barbarand et al. (2003) は  $5 \text{ M HNO}_3$  と

より濃度の薄い 0.8M HNO<sub>3</sub> を比較し、前者の方はトラックが先端までより明瞭にエッチングされることから、前者を推奨している。従って、今回は年代測定済みの試料 (0.6% HNO<sub>3</sub> でエッチング済み) を用い、5M HNO<sub>3</sub>, 20 ± 1°C で 20 秒の再エッチングを行った。

用いたアパタイト試料は Fish Canyon Tuff, 野島断層近傍の花崗岩 (野島花崗閃緑岩), および長崎県の杵島層群の砂岩 (伊藤・谷口, 2004) から分離したものである。Fish Canyon Tuff は年代標準試料であり, 生成年代 (27.9 ± 0.5 Ma; 誤差は 1σ. 以下, 同様.) 以降, 急冷したものとされている。野島花崗閃緑岩と杵島層群砂岩は, アパタイト年代としてそれぞれ, 82.6 ± 8.8 Ma (著者による測定, 未公表データ.), 23.8 ± 2.6 Ma (伊藤・谷口, 2004) が得られている。すべての試料は, 日本原子力研究所の研究炉 JRR-3 の気送管 PN-2 (下段) で 4 分間照射を行ったものである。この照射の熱中性子束は 4.7 × 10<sup>17</sup> n/cm<sup>2</sup> sec, Au に対する Cd 比は 24 である (日本原子力研究所, 2000)。

### 実験方法

年代測定済みのアパタイト試料を用意する。アパタイト試料はエポキシ系樹脂 (商品名: ペトロ

ポキシ 154) に埋め込まれた 1.5 cm × 1.5 cm のシート状を呈し (Ito, 1998), 両面テープでスライドガラスに接着されている。スライドガラスにはアパタイト試料とマニキュアで接着された外部ディテクター (白雲母) が貼り付けてあるが, アパタイト試料のみがエッチング溶液 (5 M HNO<sub>3</sub>) に浸るようにし, 上述の条件でエッチングを行った。エッチング後, 直ちに十分に水洗したものをトラック長測定に用いた。

トラック長測定は, 光学顕微鏡 (Nikon 社製 OPTIPHOT) 下で倍率 1250 倍 (ドライの対物 100 倍, 接眼 10 倍, drawing tube 1.25 倍) で実施した。この光学顕微鏡に付属している FT STAge システム (Dumitru, 1993) を用い, デジタイザーでトラックの両端をクリックすることでトラック長を測定した。このシステムで測定した場合の誤差は Digital Instruments 社製の原子間力顕微鏡用の標準サンプルを用いて 0.15 μm 以内であることを確認した。

トラック長測定に用いた TINT はアパタイト結晶の柱面に平行に研磨された面において, トラックの両端が明瞭に観察されるものを選んだ (Green, 1981; Donelick and Miller, 1991; Barbarand et al., 2003)。

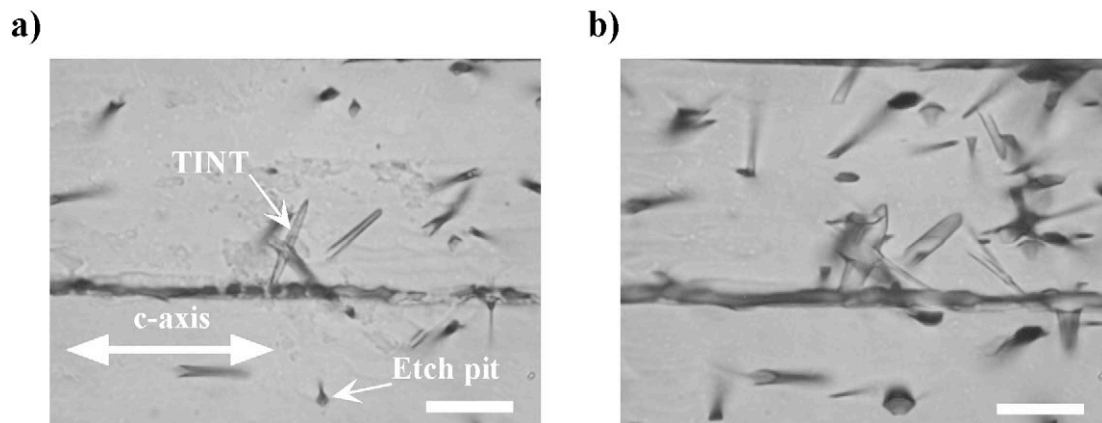


Fig. 1. Photomicrographs of fission tracks in apatite before (a) and after (b) re-etching. a) etchant: 0.6% HNO<sub>3</sub> at 25°C for 3 min., b) etchant used for re-etching: 5M HNO<sub>3</sub> at 20°C for 20 sec. By re-etching etch pits and width of TINT widen greatly while length of TINT increases slightly. Crystallographic c-axis is horizontal direction. The apatite is from Nojima granodiorite. Scale bar is 10 μm.

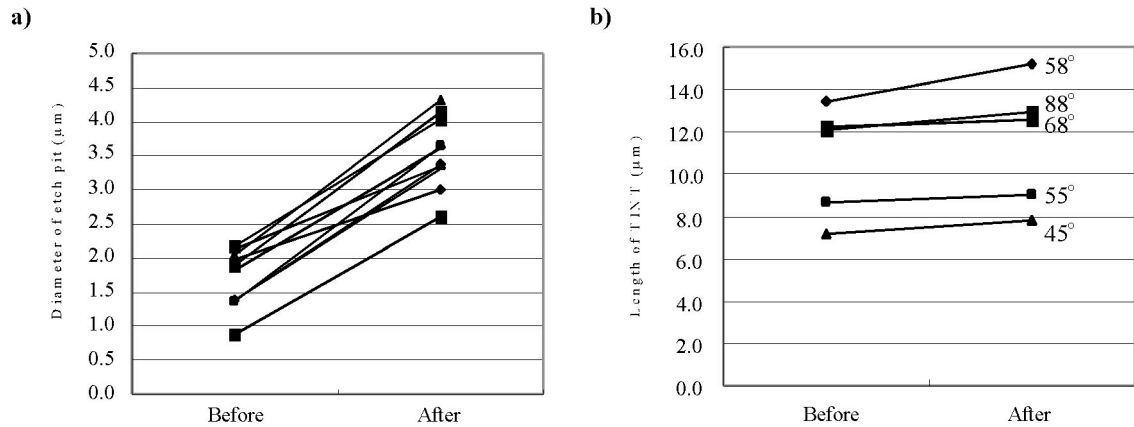


Fig. 2. Changes of diameter of etch pits parallel to the crystallographic *c*-axis (a) and length of TINTs (b) before and after re-etching. a) sample: Nojima granodiorite, b) sample: Nojima granodiorite and Kishima Group sandstone. In (b) angle to *c*-axis is shown for each TINT.

### 3. 結果と考察

#### 再エッチングによるトラック形状の変化

Fig. 1 に再エッチングによるトラック形状の変化を写真で示す。再エッチングによりエッチピットが大きくなり、TINT の幅は拡大するが、TINT の長さはあまり拡大しないことがわかる。Fig. 2 に示すように、エッチピットの径（結晶の *c* 軸方向の径）は平均 1.8 μm 長くなり（データ数: 10）、TINT は平均で 0.8 μm 長くなった（データ数: 5）。すなわち前者の方がエッチングされやすい結果となった。これはエッチピットと TINT の先端を比べた場合、前者の方がエッチング溶液と反応しやすい条件にあるためであると思われる。但し、今回示したデータのうちエッチピットは結晶の *c*

軸方向の径を測定したものであり、TINT の長さは *c* 軸と 45°以上で交わったもの（Fig. 2）を測定したものである。エッチングのされやすさは結晶の方位に関して異方性があるため、*c* 軸と直角する方向のエッチピットの径も測定する等により、より厳密な検討を行う必要がある。

#### 自発トラックと誘導トラックの TINT

Fig. 3 に再エッチングにより新たに出現した Fish Canyon Tuff の TINT を 2 本示す。これらは長さがそれぞれ 17.3 μm と 14.9 μm であった。ここでこれらが自発トラックか誘導トラックかについて検討する。まず、これらの形状は長さ以外に区別しがたいことがわかる。Gleadow et al. (1986) は 6 試料のアパタイトを用いたトラック長測定（TINT と TINCLE を測定）により、アパタイト中の誘導トラック長は平均が ~16.3 μm（標準偏差 0.9 μm）であるとした。さらに、自発トラック長は、急冷した火山岩で 14.5-15 μm（同 1.0 μm）、熱イベントを受けていない花崗岩で 12-13 μm（同 1.2-2.0 μm）とした。このことから Fig. 3 の長いほうの TINT は自発トラックとしては長すぎるので、誘導トラックであると判断できる。短いほうの TINT の長さは急冷した火山岩の平均値と一致するため、自発トラックの可能性が高い。但し、Gleadow et al. (1986) の示した誘導トラックの長さと標準偏差を考慮すると

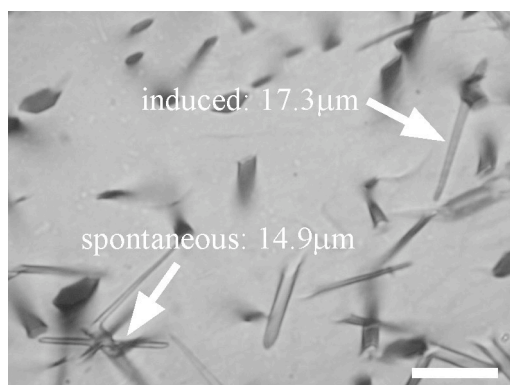


Fig. 3. Photomicrograph of re-etched fission tracks (TINTs) in Fish Canyon Tuff apatite. Scale bar is 10 μm.

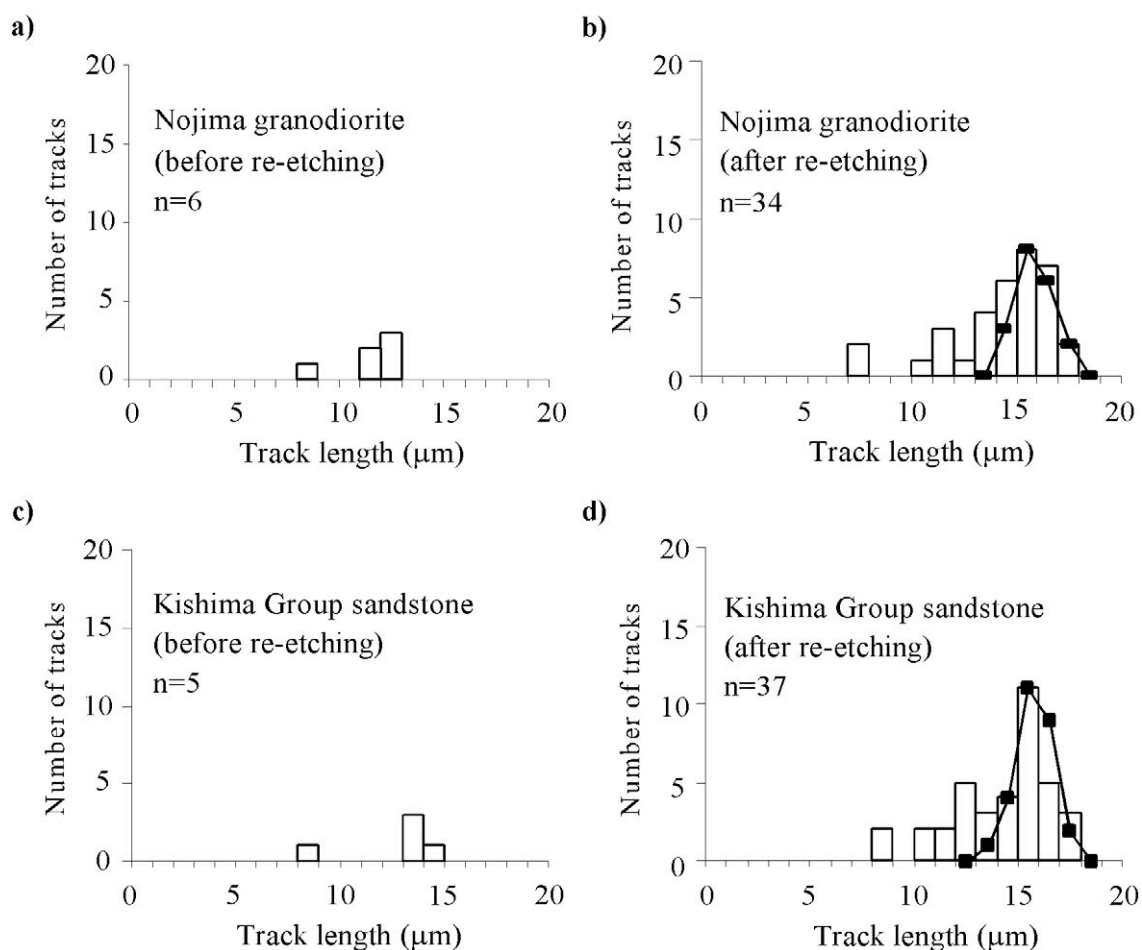


Fig. 4. Fission track (TINT) length distributions for Nojima granodiorite (a, b) and Kishima Group sandstone (c, d). TINTs are shown before (a, c) and after (b, d) re-etching. The line graphs are induced track length distribution obtained by assuming that it has normal distribution with mean track length of 15.8  $\mu\text{m}$  and its standard deviation of 0.9  $\mu\text{m}$ . The peak of the line graph is adjusted to the experimental data. n: total number of tracks measured.

誘導トラックである可能性も否定できない。

### 再エッチングによる TINT の数と長さ分布の変化

照射前と照射後の再エッチングによる TINT の数と長さ分布の変化について野島花崗閃緑岩と杵島層群の砂岩を対象に検討した (Fig. 4)。なお、再エッチングによる TINT (Fig. 4b, d) は再エッチングにより新たに出現したもののみを対象とした。これは照射前の TINT を再エッチングすると、オーバーエッチング状態になり、長さの変化は幅の変化に比べ大きくない (Fig. 1, 2) とはいえ、その変化は無視できない大きさであるためである。

数の変化については、再エッチング前の TINT はそれぞれ、6 本と 5 本であった (Fig. 4a, c) が、再エッチングによりそれぞれ 34 本と 37 本の TINT が新たに出現した。再エッチング後の TINT は自発トラックと誘導トラックを含むが、これらを厳密に識別することは不可能と思われる。そこで以下の手順で誘導トラックの数とトラック長分布を推定した。

[1] 誘導トラック長分布は正規分布をすると仮定し、その平均長と標準偏差を与える。これで、誘導トラック長の分布パターンが得られる。

[2] 次に、誘導トラックの TINT の総数が未知なので、トラック長分布のピークの値 (Fig. 4b,

d でそれぞれ 8 本, 11 本) と正規分布のピークの値が一致するように誘導トラックの TINT の総数を決める。なお, この操作は, ピークを示す区間 (今回の場合, とともに 15-16  $\mu\text{m}$ ) に自発トラックが含まれないことを仮定している。今回の場合, 15  $\mu\text{m}$  以上の自発トラックの TINT は, 再エッチング前には見つかっていないことから, 再エッチング後も, これらは, 存在するとしてもかなり少ないと考えられる。この操作は, これらの極少数と推定される自発トラックを含めて, 正規分布により誘導トラックの数を見積もるため, 誘導トラックの TINT の数は実際よりも過大評価することになる。従って, 再エッチング後に得られた自発トラックの数は実際よりも少なめに見積もることになる。

誘導トラックの平均長と標準偏差は, まず, Gleadow et al. (1986) に従い, それぞれ 16.3  $\mu\text{m}$ , 0.9  $\mu\text{m}$  とした。この場合, ピークの位置が 16-17  $\mu\text{m}$  になり, 実験結果と合わなかったので, 平均長のみを 16  $\mu\text{m}$ , 15.8  $\mu\text{m}$ , 15.5  $\mu\text{m}$  と変化させてトラック長分布パターンを実験結果と比較した。その結果, トラック長の平均長が 15.8  $\mu\text{m}$  の場合で, 実験結果に最も近い分布を示した (Fig. 4b, d)。以上に基つき, 再エッチングにより得られた自発トラックの TINT の数を求めると野島花崗閃緑岩と杵島層群砂岩でそれぞれ, 14 本 (再エッチング前の数と合わせると 20 本), 13 本 (同 18 本) となった。

自発トラック長の分布については, 両試料とも再エッチング前は 10  $\mu\text{m}$  以下の短いトラックをそれぞれ 1 本含むのみであるが, 再エッチングにより 2 本ずつ増えている。従って, 再エッチングにより, 両試料とも 10  $\mu\text{m}$  以下の短縮したトラックを含むことがより確実に推定できる。また, 野島花崗閃緑岩と杵島層群の再エッチング前の段階では, それぞれ 13-15  $\mu\text{m}$  と 10-13  $\mu\text{m}$  の TINT が発見できなかったが, 再エッチング後の結果はそれらが存在することを示している。

以上のことから, 再エッチングにより自発トラックの TINT の数は増え, トラック長分布に関し

ても情報量が増えることが示された。

再エッチングによる TINT の測定には, 以下のメリットも存在する。すなわち, 同時に測定する誘導トラック長を用いて, トラック長測定の実験上の正確さを評価できるという点である。今回の実験では, 誘導トラック長の平均は Gleadow et al. (1986) の 16.3  $\mu\text{m}$  よりはやや短い 15.8  $\mu\text{m}$  程度と推定された。この結果は, 自発トラックの TINT の影響により, やや短くなった可能性を考慮すると, ほぼ妥当な値であると思われる。トラック長測定に関して, 実験上問題のないことを確認することは重要な課題である (例えば, Barbarand et al., 2003) が, この方法によりトラック長測定の正確さを簡便にチェックできることはメリットの一つである。さらに, モデル計算を行う際には, 対象となる試料の誘導トラック長を測定することが望ましいとされている (Ketcham et al., 2000) ことからこの方法は有効であると考えられる。

#### 4. まとめと今後の課題

TINT を増やす方法として年代測定後の試料を再エッチングする方法を提案した。この方法は極めて簡便で, 自発トラック長に関する情報量が増えるとともに, 誘導トラック長を同時に測定することで, トラック長測定に問題がないかどうか等を判断できることがわかった。但し, 自発トラックと誘導トラックを正確には区分できないという問題がある。今回は, 簡単な統計的手法により誘導トラックの分離を試みたが, この手法についても, より高度化することで, 得られたトラック長データをモデル計算にも使えるものにしていく必要がある。

#### 謝辞

株式会社セレスの谷口友規氏には試料の調整等でお世話になった。日本原子力研究所の市村茂樹氏には照射の便宜を図っていただいた。長谷部徳子氏, 渡辺公一郎氏の査読により, 本論文は改善された。以上の方々に記してお礼申し上げます。

## 文献

- Barbarand, J., Hurford, T., Carter, A.,  
2003. Variation in apatite fission-track length measurement: implications for thermal history modelling. *Chemical Geology*, 198, 77-106.
- Donelick, R. A. and Miller, D. S.,  
1991. Enhanced TINT fission track densities in low spontaneous track density apatites using <sup>252</sup>Cf-derived fission fragment tracks: a model and experimental observations. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.* 18, 301-307.
- Dumitru, T. A., 1993. A new computer-automated microscope stage system for fission-track analysis. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 21, 575-580.
- Gleadow, A. J. W., 1981. Fission-track dating methods: What are the real alternatives?, *Nucl. Tracks*, 5, 3-14.
- Gleadow, A. J. W., Duddy, I. R., Green, P. F. and Lovering, J. F., 1986. Confined fission track lengths in apatite: a diagnostic tool for thermal history analysis. *Contrib. Mineral. Petrol.* 94, 405-415.
- Green, P. F., 1981. "Track-in-track" length measurements in annealed apatites, *Nucl. Tracks*, 5, 121-128.
- Ito, H., 1998. Another improved method of mounting apatite grains for fission track analysis. *On Track*, 8, no. 1, 6-7.
- 伊藤久敏, 谷口友規, 2004. 砂岩を用いたフィッシュョン・トラック年代測定法の適用—長崎県の古第三系杵島層群の堆積年代と熱史—. *地質雑*, 110, 197-203.
- Iwano, H., Yamashita, T. and Danhara, T., 1996. Three-dimensional analysis of fission track length in minerals —A measuring system and its application—. *Fission Track News Lett.*, no. 9, 13-22.
- Ketcham, R. A., Donelick, R. A. and Donelick, M. B., 2000. AFTSolve: A program for multi-kinetic modeling of apatite fission-track data. *Geological Materials Research*, 2, 1-32.
- Lal, D., Rajan, R. S. and Tamhane, A. S., 1969. Chemical composition of nuclei of  $Z > 22$  in cosmic rays using meteoric minerals as detectors. *Nature*, 221, 33-37.
- Laslett, G. M., Kendall, W. S., Gleadow, A. J. W. and Duddy, I. R., 1982. Bias in measurement of fission-track length distributions. *Nucl. Tracks*, 6, 79-85.
- 日本原子力研究所, 2000. 研究姫ひろば, no. 1, 通刊 12号, 5.
- Ohira, H., Heiguchi, K., Yoshimura, T., Komatsubara, T., Furuno, K., Kudo, H. and Hashimoto, T., 1994. Comparison of two methods of enhancing detection of confined fission tracks in minerals —Ni ion irradiation using a tandem accelerator and fission fragment irradiation using <sup>252</sup>Cf source—. *Jour. Geol. Soc. Japan*, 100, 129-135.
- Yamada, R., Yoshioka, T., Watanabe, K., Tagami, T., Nakamura, H., Hashimoto, T., and Nishimura, S., 1998. Comparison of experimental techniques to increase the number of measureable confined fission tracks in zircon., *Chem. Geol.*, 149, 99-107.
- 山下 透, 岩野英樹, 糟谷正雄, 檀原 徹, 1992. 三次元トラック長計測システムの試作. *フィッシュョン・トラックニュースレター*, no. 5, 33-36.
- 吉岡 哲, 田上高広, 西村 進, 1994. ジルコン中の TINCLE を増やす試み. *フィッシュョン・トラックニュースレター*, no. 7, 50.

