研究ノート

アパタイトの confined トラック増加のためのエッチング条件：四万十帯中のアパタイトへの適用

荒田孔明*・長谷部徳子**

Apatite etching condition to increase the number of confined tracks: Application to the Shimanto Belt

Komei Arata* and Noriko Hasebe**

*　金沢大学理学部地球学教室，Dept. Earth Sciences, Kanazawa Univ.

**　金沢大学自然計測応用研究センター，Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa Univ.

Abstract

Track length distributions of apatite provide a thermal history of a rock at a temperature regime of around 100°C, useful to discuss uplift and erosion processes of upper crustal rocks. To overcome the experimental difficulties arising from low fission-track densities in apatite, etching condition is investigated to increase the number of measurable horizontal confined tracks using the Fish Canyon Tuff apatite. Samples were etched stepwisely using three type of etching conditions and increase in the size of tracks at the surface (etch pit) and within the crystal (width) was observed and compared. When the sample was re-etched with the 5 M HNO_3 at 20°C, width of tracks observed within the crystal were most expanded, so that the effective increase in the number of measurable horizontal confined tracks (HCT) is expected. This etching approach was applied to samples from the Shimanto Belt, and the number of HCT is as many as double of the number of HCT observed after the conventional one-time etching.

Key words: fission-track, apatite, stepwise-etching

はじめに

年代測定法の一つであるフィッション・トラック（以下 FT）法は鉱物内に存在する ^{238}U が自発核分裂を起こした際に，結晶中に残した傷跡（自発トラック）を利用するものである．自発トラックは時間の経過とともに増加し，加熱により短縮・消滅する（アニーリング）という性質をもつ．このことから FT 法は年代測定に用いられるだけでなく，自発トラック長を測定することで得られた長さ分布から，鉱物が経験してきた温度履歴の評価に利用することが可能である(e.g., Gleadow et al., 1983)．特にアパタイトは約 100℃の閉鎖温度をもち（Green et al., 1986），地殻上部の岩体の熱史や，堆積岩の比較的浅部での上昇・削剥史を論じることに応用されている（Fitzgerald et al., 1988）．

しかしアパタイトはジルコンに比べウラン含有量が低くトラック密度が低いため，トラック長測定に利用される，観察面に水平な confined トラック（Horizontal Confined Track: HCT）が検出される頻度が低い．この問題を克服するためにいくつかの手法が考案されている（Watanabe et al., 1991; Ohira et al., 1994; 伊藤，2004）．本研究ではもう一度原点に立ち返りアパタイトのエッチング条件を吟味することによって，トラック長測

表1．アパタイト標準試料（FCT）の測定結果

Mean track length (μm)	Standard deviation (μm)	Number of tracks	Reference
14.93	**0.87**	**105**	this study
15.60	0.91	100	*1
15.00	1.14	100	*1
15.30	1.00	100	*1
15.75	0.87	100	*2
15.85	0.73	99	*2

*1: Gleadow et al. (1986)
*2: Barbarand et al. (2003b)

定に利用できるHCTの増加を試みた．さらにその手法を四万十帯中のアパタイトへ適用した．

標準試料の測定

はじめにトラック長の測定精度の検証として，アパタイトの標準試料（Fish Canyon Tuff: FCT）を5 M HNO_3で20秒エッチング後，トラック長測定を行った．測定は，Nikon 光学顕微鏡に取り付けた，計測機能をもった200万画素カメラFocus Studio 2100（株式会社ナカデン）を使用してPC画面上でトラックの両端の距離を測ることで行った．測定は，結晶方位を考慮せず，幅が約1±0.5 μmのHCTを用いて行った．

測定結果は平均トラック長が参考文献による報告値（Gleadow et al., 1986; Barbarand et al., 2003b）と誤差の範囲でよく一致したが（表1），報告値の中では最も短い値となった．測定トラック長を短くする要因として，Donelick（1991）ではトラックの先端部に水分が残り（residual liquid），見かけ上短く測定する例が紹介されたが，本研究ではエッチング後に50℃で約1時間乾燥させてすぐに測定しており，この影響は少ないと思われる．他には，試料の違い，カメラのスケール較正値のずれ，トラック長測定時の癖等が考えられるが，誤差の範囲で一致しているため，トラック長の測定に問題はないものと考えた．

また，測定者によるトラック長測定時の癖の違いを検証するために，著者らも含め7人の測定者により5つの典型的なトラックについて長さを測定し，その平均値，標準偏差を比較した（表2）．7人の平均長は15.12 μm，標準偏差は0.55 μmであった．測定に経験のない被験者がほとんどであったが測定者間のばらつきは ±0.3 μmほどであった．筆頭著者の測定では，平均長 15.04 μm，標準偏差0.53 μmとなり，特に短くトラックを測定する癖があるわけではないことがわかった．

エッチング実験

アパタイトのエッチングには硝酸（HNO_3）溶液を用いる．HCTの検出効率を向上させるためのエッチング条件を決めるために，アパタイトの標準試料（FCT）を用いて，3種類の溶液と温度でエッチングを施したトラックを観察し比較した．エッチング時間はまずトラック密度測定に適切になるようエッチングしその後さらに倍の時間エッチングを行った（表3）．

0.6%（0.13 Mに相当）・33℃のエッチングはアパタイトの FT 年代測定に使用されるエッチング条件であり（Tagami et al., 1988），0.8 M・20℃と5 M・20℃はBarbarand et al.（2003a）でトラック長の測定のために示されたエッチング条件である．エッチング時に20℃の条件をつくるために，室温が20℃より著しく高い場合はエッチング溶液，試料ともに冷蔵庫で冷やした後，室温で放置し 20℃になるのを待ってエッチングを行った．室温より多少高い場合はエッチング溶液を容器ごと水で冷やすことで20℃に調整した．室温が著しく低い場合は恒温槽（ウォーターバス）で20℃に調整し，エッチングを行った．33℃のエッチングは恒温槽で行った．

熱史モデリングに関しては5.5 M・21℃の条件も広く利用されている（Carlson et al., 1999）が，本研究では条件が5 M・20℃と近いことから特に実験を行わなかった．他にも7%（1.1 Mに相当）・25℃等（例えば 大平ほか，2005）あるが，今回

表2．測定者によるトラック長の違い

Analyst	Author1	Author2	A	B	C	D	E	Average
Mean length (μm)	**15.04**	**15.08**	15.24	15.11	15.02	15.38	14.96	15.12
Standard deviation (μm)	**0.53**	**0.50**	0.60	0.58	0.56	0.56	0.51	0.55

表3. エッチング条件に対する D_{par} とトラック幅(Width)の平均値（誤差は1σ）

Etching condition	D_{par} (μm)	Width (μm)
0.6%, 33℃, 2 m.	1.87 ± 0.51	0.63 ± 0.32
0.6%, 33℃, 4 m.	3.91 ± 0.79	0.88 ± 0.36
0.8 M, 20℃, 45 s.	1.55 ± 0.24	0.61 ± 0.18
0.8 M, 20℃, 90 s.	3.12 ± 0.38	1.32 ± 0.34
5 M, 20℃, 20 s.	1.65 ± 0.33	0.73 ± 0.26
5 M, 20℃, 40 s.	3.90 ± 0.40	1.87 ± 0.58

は行わなかった.

エッチングされることでトラックは拡大するが，エッチング条件によってその拡大状況が異なってくる．今回は表面と交差している，さまざまな結晶学的方位の典型的なトラックを1試料あたり15個選び，結晶学的 c 軸に平行なエッチピット長（D_{par}: Burtner et al., 1994）と，トラックの先端の幅（Width）について測定を行った．Width は，FT の先端部が丸みを帯びた形状を示すために，丸みを帯びる手前のほぼ平行な部分で測定した．さらにそれぞれの試料を，同じ濃度・温度のエッチング条件で追加エッチングを施し，同一のトラックで測定を行った（図1）．また，顕微鏡下での測定について，本来反射光と透過光を併用すべきか

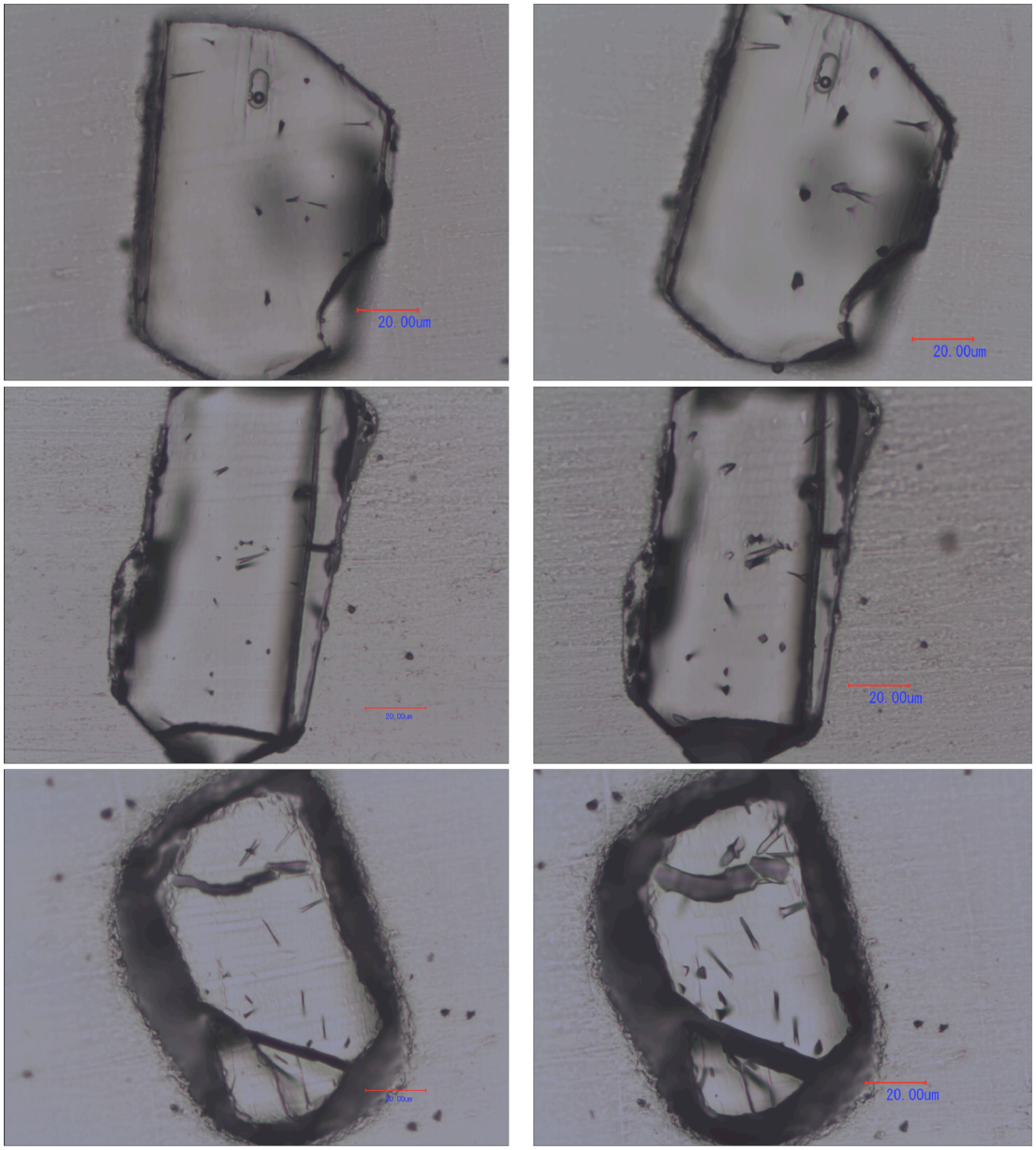

図1. エッチングを施したアパタイト FT の形状変化. 上段は 0.6% HNO_3, 中段は 0.8 M HNO_3, 下段は 5 M HNO_3. それぞれ左は1回目のエッチング，右は2回目のエッチング後の様子．スケールバーは 20 μm.

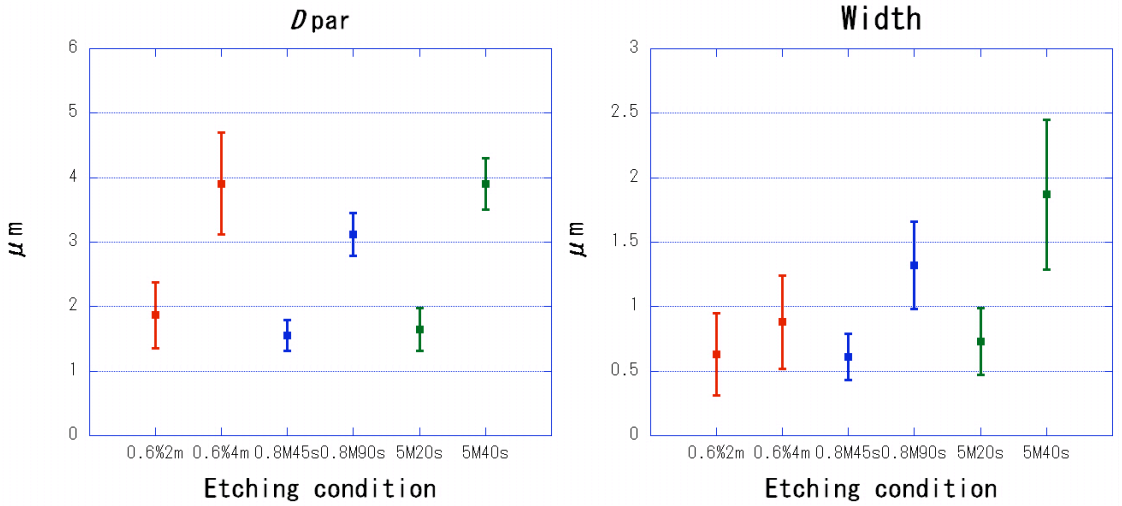

図２．D_{par} と Width の測定結果（誤差は１σ）

もしれないが，今回は透過光を用いて測定した．

D_{par} の値はどのエッチング条件であっても２倍エッチング時間を施すことでほぼ２倍になった（表３，図２）．しかし Width は５ M 溶液で再エッチングを施した場合に最も拡大され，先端まで明瞭にエッチングされた．0.6％や 0.8 M 溶液の場合，先端部が不明瞭であることも多かった．すなわち最も濃い５ M 溶液では，他の条件に比べ，鉱物内部へのエッチングがより広範囲に及ぶことで新たな HCT が発見される期待が高まる．Barbarand et al.（2003a）は，トラック長測定のためのエッチング条件を吟味した際に，５ M 溶液の方がより薄い溶液に比べはっきりとトラックをエッチングし，測定しやすいことを示した．本研究はそれと整合的で，測定し易いトラックのエッチング条件と，新たな HCT を観察できる条件が一致していることを示している．

このことから，HCT 増加のためには，５M 溶液でエッチングを施し測定を行った後，再エッチングを施し新たに観察された HCT を測定するといった手順が適していると考えられる．また，３回以上のエッチングは測定面が著しく乱れ，観察面積も減少することから適当でない．

四万十帯への適用

トラック密度の低い試料への，このエッチング手法の有効性を検証するために，四万十帯中の砂岩からアパタイトを鉱物分離し，HCT の測定を行った．20℃の５ M HNO_3 で 20 秒エッチングを行い，１回目の測定を行った．その後，同条件で追加エッチングを施し，２回目の測定を行った．測定は１± 0.5 ㎛幅の全結晶学的方位の HCT で行った．２回目のエッチングの後は，１回目のエッチング後に測定したトラックの幅が条件に合わなくなるために，１回目と２回目のエッチング後において，同じ HCT は測定せず，それぞれ新たに確認できた HCT の測定を行った．

全体として，四万十帯試料から 968 粒子のアパタイトを観察し，HCT が測定されたアパタイトは 212 粒子であった．各試料で２回目のエッチングの後に，新たに多数の HCT を測定できており，エッチング手法の有用性が示された（表４，図３，

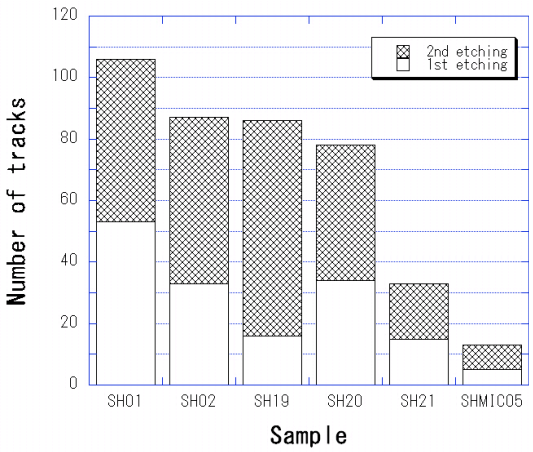

図３．四万十帯試料において，各エッチング後に新たに生じた HCT の数．白抜きは１回目のエッチングによって，網目状は２回目のエッチングによって観察されたトラックを示す．

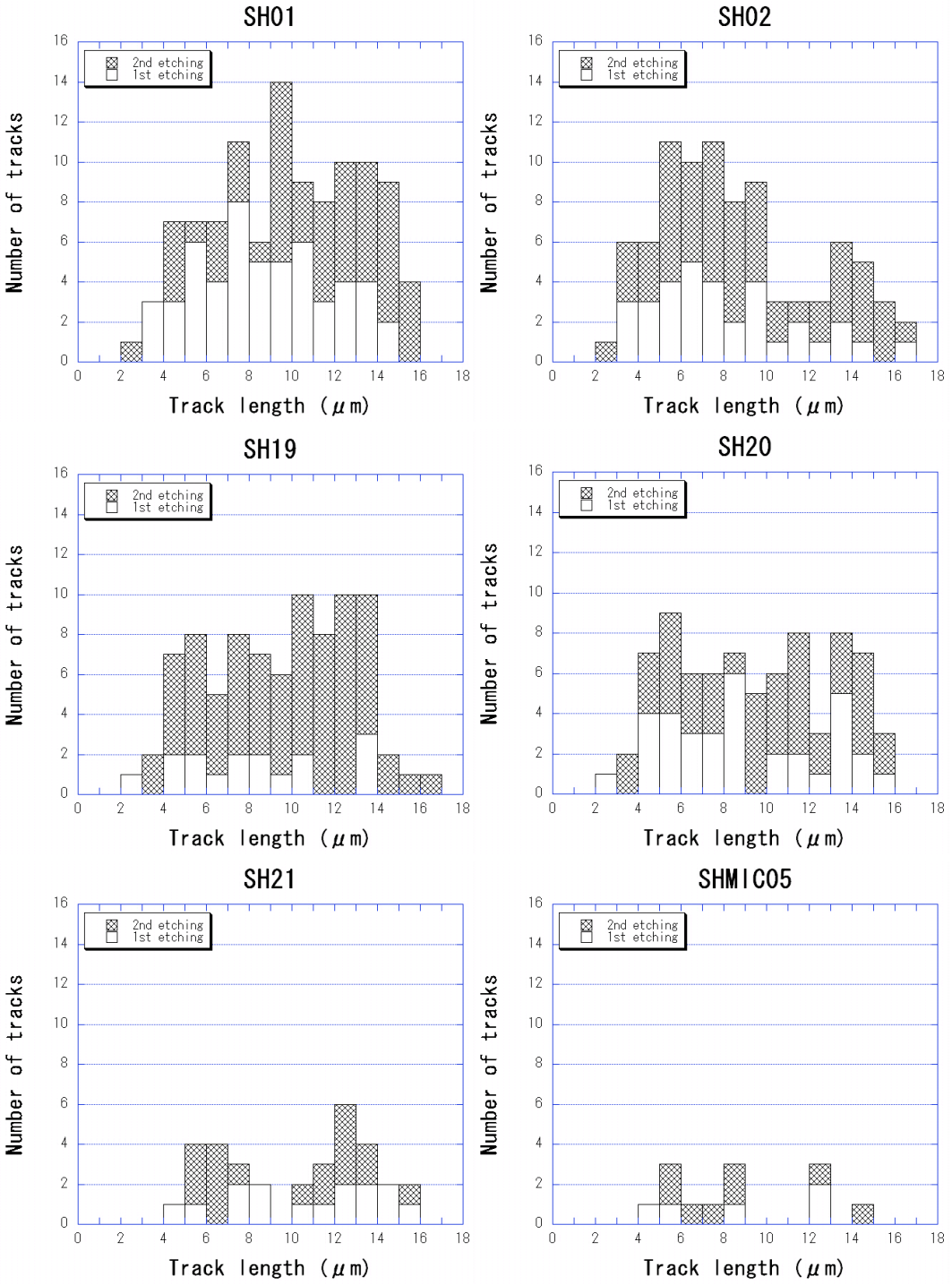

図４．四万十帯各試料から得られたトラック長分布．白抜きは１回目のエッチングによって、網目状は２回目のエッチングによって観察されたトラックを示す．

４）．エッチングを追加することで，得られたトラック長の平均が若干長くなる傾向はある（表４，図４，５）が，FCT の測定で明らかになった試料毎のばらつきや（± 0.5 ㎛），同一トラックを測定する際に現れる個人差（± 0.3 ㎛）を考慮すると，その後の解析に大きな影響を与える可能性は小さい．

まとめ

トラック長測定のために，アパタイトの HCT 増加のためのエッチング条件を吟味した．３つのエッチング条件下で，段階エッチングによるトラッ

表４．四万十帯試料におけるアパタイトの粒子数、各エッチング後に測定できた HCT の個数，平均長（カッコ内は標準誤差 1σ）と標準偏差

Sample	Number of apatites	Number of tracks			Mean track length (μm)			Standard deviation (μm)		
		1st	2nd	Sum	1st	2nd	All	1st	2nd	All
SH01	149	53	53	106	8.79 (0.43)	10.72 (0.46)	9.76 (0.33)	3.11	3.36	3.40
SH02	272	33	54	87	8.02 (0.58)	8.91 (0.50)	8.58 (0.39)	3.36	3.70	3.62
SH19	166	16	70	86	8.36 (0.83)	9.64 (0.39)	9.40 (0.36)	3.32	3.23	3.30
SH20	185	34	44	78	8.91 (0.60)	9.66 (0.53)	9.33 (0.40)	3.49	3.49	3.53
SH21	144	15	18	33	10.60 (0.87)	9.70 (0.79)	10.11 (0.60)	3.36	3.35	3.43
SHMIC05	52	5	8	13	8.92 (1.54)	8.60 (1.12)	8.73 (0.91)	3.45	3.17	3.28

クの形状の変化を観察した．トラックの先端の幅（Width）を測定することによって，5 M の濃いエッチング溶液で再エッチングを施すことが，トラック内部へのエッチングを急速に行い，新たな HCT 発見の可能性を向上させる結果を得た．また，四万十帯中のアパタイトに適用した場合，上の条件で再エッチングを行うことで，1 回のみエッチングした場合の約 1-4 倍のトラック長を測定することができた．

測定 HCT を増やす試みとして，これまで ^{252}Cf 線源による核分裂片照射（Donelick and Miller, 1991）やタンデム加速器による Ni イオン照射（Watanabe et al., 1991）が行われてきたが，放射性物質を扱うことや，大がかりな装置を必要とするなどの難しい点がある．また伊藤（2004）で提案された方法は，実験そのものは簡便であるが，測定後，自発トラックと誘導トラックを分別する必要がある．それらと比較すると，この方法は簡便であるという利点がある．

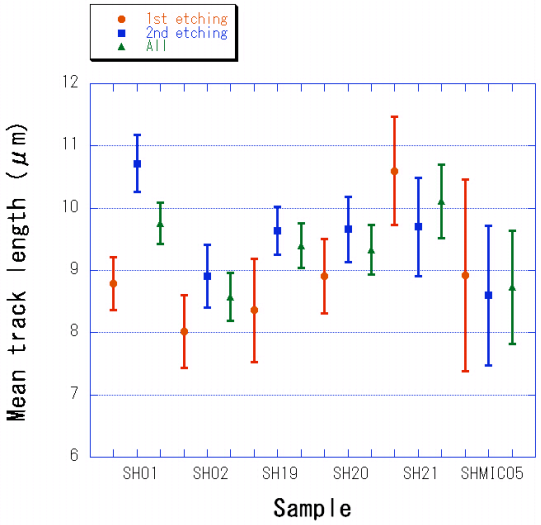

図５．各試料における段階エッチングで新たに生じた HCT の平均長と，測定 HCT の平均長（誤差は 1σ）

謝辞

伊藤久敏博士と，匿名の査読者，および編集担当の山田国見博士から有益な助言を頂き，本論文は改善された．ここに記してお礼申し上げます．

文献

Barbarand, J., Hurford, T. and Carter, A., 2003a, Variation in apatite fission-track length measurement: implications for thermal history modeling. Chemical Geology, 198, 77-106.

Barbarand, J., Carter, A., Wood, I. and Hurford, T., 2003b, Compositional and structural control of fission-track annealing in apatite. Chemical Geology, 198, 107-137.

Burtner, R.L., Nigrini, A. and Donelick, R.A., 1994, Termochronology of lower Cretaceous source rocks in the Idaho-Wyoming thrust belt. Am. Assoc. Pet. Geol. Bull., 78, 1613-1636.

Carlson, W.D., Donelick, R.A. and Ketcham, R.A., 1999, Variability of apatite fission-track annealing kinetics: I. Experimental results. American Mineralogist, 84, 1213-1223.

Donelick, R.A., 1991, Crystallographic orientation dependence of mean etchable fission track length in apatite: An empirical model and experimental observations. American Mineralogist, 76, 83-91.

Donelick, R.A. and Miller, D.S., 1991, Enhanced TINT fission track densities in low spontaneous track density apatites using 252Cf-derived fission fragment tracks: A model and experimental observations. Nuclear Tracks, 18, 301-307.

Fitzgerald, P.G. and Gleadow, A.J.W., 1988, Fission-track geochronology, tectonics and structure of the transantarctic mountains in Northern Victoria land, antarctica. Chemical Geology: Isotope Geoscience section, 73, 169-198.

Gleadow, A.J.W., Duddy, I.R. and Lovering, J.F., 1983, Fission track analysis: A new tool for the evaluation of thermal histories and hydrocarbon potential. Australian Petroleum Exploration Association Journal, 23, 93-102.

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. Contributions to Mineralogy and Petrology, 94, 405-415.

Green, P.F., Duddy, I.R., Gleadow, A.J.W., Tingate, P.R. and Laslett, G.M., 1986, Thermal annealing of fission tracks in apatite: 1. A qualitative description. Chemical Geology (Isotope Geoscience Section), 59, 237-253.

伊藤久敏，2004，アパタイトの TINT の数を簡便に増やす試みについて．フィッション・トラックニュースレター，17，1-7.

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 252Cf source-. The Geological Society of Japan, 100, 2, 129-135.

大平寛人，大久保進，高須晃，渡辺公一郎，吉村尚久，2005，基礎試錐「富倉」におけるアパタイトのフィッション・トラックのアニーリング―粘土鉱物から見た上昇削剥との関連―．石油技術協会誌，70，196-206.

Tagami, T., Lal, N., Sorkhabi, R.B., Ito, H. and Nishimura, S., 1988, Fission track dating using external detector method: A laboratory procedure. Mem. Fac. Sci., Kyoto Univ., Ser. Geol. Min. 53, 1-30, 1988.

Watanabe, K., Izawa, E., Kuroki, K., Honda, T. and Nakamura, H., 1991, Detection of confined 238U fission tracks in minerals and its application to geothermal geology. Annual Report of Tandem Accelerator Laboratory, Kyushu Univ., 1991, 3, 151-155.