

段階エッチングを用いた第四紀火山ガラスの
フィッション・トラック年代測定の試み
伊藤健太郎*・長谷部徳子**

Fission-track dating of Quaternary volcanic glass
using stepwise etching procedures
Kentaro Ito* 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.

はじめに

日本には様々な広域テフラが存在しており、この中に含まれる火山ガラスは噴火様式やマグマの化学組成などに対応して形態・色・屈折率などに特徴を示し、テフラの同定に役立つ(町田・新井, 1992)。この広域テフラを同時期面として用いることで空間的に離れた地層同士の層序関係を読み解くことが可能となる。このテフラの年代決定には火山ガラスを利用したフィッション・トラック(以下 FT)年代測定法が利用されてきた(Westgate, 1989; Walter, 1989)。しかし、火山ガラスは常温下でトラックが小さくなるという性質がある。そのため、観察面に交差するトラック数の減少を引き起こし、結果として平面観察で行われていた従来の FT 年代は真の年代よりも若くなる。その補正方法として代表的なものが Isothermal plateau (ITP)-FT 法である(Westgate, 1989 など)。しかし、この方法は補正に長時間(30~90 日間)必要なことや熱中性子照射による放射能物質を取り扱うため、決して使い勝手が良いと言うわけではない。そのため、ガラスの FT 年代の補正法は利用する研究者にとって常に議論的であった。そこで観察面を交差するトラック数を計測するのではなく、単位体積当たりのトラック密度を測定することで FT 年代が求められるかどうかを議論することとした。

実験方法

使用した試料は長野県和田峠産の黒曜石である。

①ウラン 238 濃度を測定するための LA-ICP-MS 分析②単位体積当たりのトラック数を求めるための段階エッチング実験を行った。

①化学分析: LA-ICP-MS 分析はレーザー径を 40 μm 、1 秒間に 5 回レーザーを照射し測定時間は 25 秒とした。測定は 5 点で行い、内部標準元素には事前に行った SEM-EDAX 分析結果から ^{29}Si を使用した。

②段階エッチング実験: 実験の都合上、観察トラック数を増やすために黒曜石の熱中性子照射を行った。エッチングに使用した溶液はフッ化水素酸(HF)でその濃度は 24%HF、12%HF の 2 種類で行った。エッチング時間は 24%HF が 15 秒、12%HF が 90 秒で温度は共に 30°C とした。エッチング後に光学顕微鏡下でそれぞれ 100 μm 四方の範囲を 4 画面ずつ観察し、トラック数を測定した後、写真を撮り、次のエッチングを行うことを繰り返した。また、エッチング前後のガラスの厚さをマイクロメーターで直接測定した。

結果と考察

①化学分析: LA-ICP-MS 分析からウラン 238 濃度は測定したどの点でも 9.18ppm 前後であり、均一であった。

②段階エッチング実験: 12%HF と 24%HF と

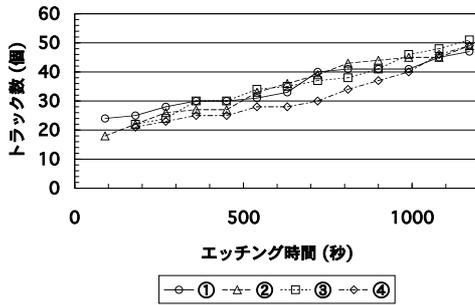


図1 エッチング時間とトラック数の関係(12%HF)

もエッチングを繰り返すごとにトラック数の増加が観察された(図1)。

次にエッチングされた体積の見積もりを行った。バルクエッチング速度 V_g を求めるために k 回目と $k+1$ 回目のエッチング後の観察面におけるトラック半径 R_k と R_{k+1} を測定した。このトラック半径の測定には写真を使って米国国立衛生研究所が無料で配布している ImageJ という画像処理ソフトを用いた。この測定においてトラック半径を直接求めることは出来ないため、トラック直径を求めた後、その直径の半分をトラック半径として利用した。その際、トラックの長径と短径の両方で半径を測定した。

次に3種類のトラック形状モデルを考えた(筒状, 半球状, 三角形)。このモデルではガラスは等方体であるためエッチングも等方的に進み、か

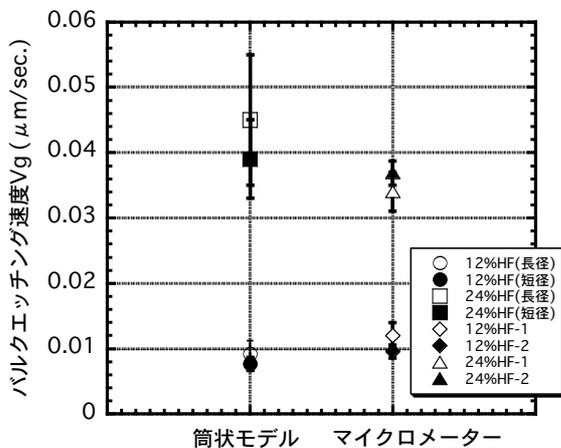


図2 半径を用いてモデルから求めた V_g とマイクロメーターから求めた V_g の比較。

つ観察面に対してウランの核分裂片が垂直に入射した場合を考えた。以下の式にある t_e は単位エッチング時間である。筒状モデルは $V_g =$

$$(R_{k+1} - R_k) / t_e$$

、三角形モデルでは $V_g =$

$$(R_{k+1} - R_k) / t_e \cdot \tan \theta$$

(任意角 θ)、半球状モデルでは $V_g = \{X \cdot (R_k - R_{k+1})\} / t_e \cdot (R_{k+1} \cdot k - R_k \cdot k - R_k)$ (X は最初のトラック半径とエッチング速度に依存する距離) となった。任意のパラメータを含まない筒状モデルから求めた V_g とマイクロメーターから求めた V_g を比較した(図2)。この結果、長径と短径の値を使ったモデル値のどちらもマイクロメーターから求めた値にあまり差はない。そのため、バルクエッチング速度 V_g の見積もりには筒状モデルで十分であると考えられる。さらに求めた V_g から単位体積当たりのトラック数を計算した。今回の試料中の観察トラックは中性子照射により生じたものであるため、以下の式からおおよその数を計算することが出来る。

$$N_i = {}^{238}\text{N} \cdot I \cdot \sigma \cdot \phi \cdot \dots (1)$$

ここで ${}^{238}\text{N}$ はウラン 238 量で LA-ICP-MS 分析から求めた濃度 (ppm)、 I はウラン 235 とウラン 238 の同位体比、 σ は核分裂断面積 (cm^2)、 ϕ は熱中性子線量 ($/\text{cm}^2$) である。この式より求めた値と、段階エッチングで求めた値を比較したところ、誤差範囲でおおむね合っている(図3)。

年代式の構築

上記で求めた単位体積当たりのトラック密度の式や LA-ICP-MS を使用して求めたウラン 238 濃度を用いて、FT 年代式を導く。まず年代の基本式より

$$t = 1 / \lambda_\alpha \cdot \ln (\lambda_\alpha / \lambda_f \cdot N_s / {}^{238}\text{N} + 1) \dots (2)$$

エッチング時間の増加に伴ってトラック数も増加するので、そのトラック増加速度を V_{track} (個/sec.) とする。トラック数の測定を $A \text{ cm}^2$ 四方で行い、バルクエッチング速度を V_g ($\text{cm}/\text{sec}.$) とすると、エッチングにより削られた単位体積 U は、

$$U = V_g \cdot A \text{ (cm}^3/\text{sec.)} \dots (3)$$

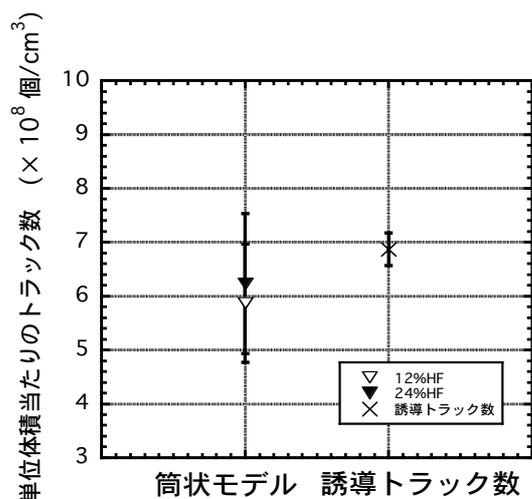


図 3 V_g から求めた単位体積当たりの個数と誘導トラック数の比較.

となる. すると, 単位体積当たりの自発トラック密度 N_s (個/cm³) はトラック増加速度 V_{track} を単位体積 U で割ることによって求められる.

$$N_s = V_{track} / U = V_{track} / V_g / A \quad \dots (4)$$

また, LA-ICP-MS から求めたウラン 238 濃度を用いると (Hasebe et al., 2003)

$$^{238}N = ^{238}U \cdot 10^{-6} \cdot (N_A / M) \cdot d \quad \dots (5)$$

よって式 (5) と式 (1) を式 (2) に代入すると,

$$t = 1 / \lambda_\alpha \cdot \ln \left(\lambda_\alpha / \lambda_f \cdot \left[\left(V_{track} / V_g \right) \cdot 10^8 \right] / \left[^{238}U \cdot 10^{-6} \cdot (N_A / M) \cdot d \right] + 1 \right)$$

$$t = 1 / \lambda_\alpha \cdot \ln \left(\lambda_\alpha / \lambda_f \cdot (V_{track} \cdot M) / \left(V_g \cdot ^{238}U \cdot N_A \cdot d \right) \cdot 10^{14} + 1 \right) \quad \dots (6)$$

これにより段階エッチング実験により求めたトラック増加速度, バルクエッチング速度 V_g および LA-ICP-MS から求めたウラン 238 濃度から FT 年代を求めることが出来る.

結論

LA-ICP-MS で火山ガラスのウラン 238 濃度を直接的に測定することが出来た. 段階エッチング実験によりエッチング時間の増加と共にトラック数の増加が確認された. 観察したトラック数とトラックの半径の差 ($R_{k+1} - R_k$) を利用した筒状モデルから単位体積当たりのトラック密度を測定出来た. この 2 つを組み合わせた新たな FT 年代式を使うことで火山ガラスを使った迅速かつ, 精度の良い FT 年代測定が可能である.

引用文献

- 長谷部徳子, Jocelyn Barbarand, Andrew Carter, Tony Hurford (2003), LA-ICP-MS FT 年代測定法のための年代式の展開, フィッション・トラック ニュースレター, 16, 1-5.
- John A. Westgate (1989), Isothermal plateau fission-track ages of hydrated glass shards from silicic tephra beds, Earth and Planetary Science Letters, 95, 226-234.
- 町田洋, 新井房夫 (1982), 新編火山灰アトラス [日本列島とその周辺].
- Robert. C. Walter (1989), Application and limitation of Fission-track geochronology to Quaternary tephra. Quaternary International, Volume 1, 35-46.