

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 2 日現在

機関番号：13301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2014

課題番号：24654173

研究課題名(和文)原子間力顕微鏡を利用した放射線損傷年代測定法の開発

研究課題名(英文)Development of radiation damage dating by AFM

研究代表者

長谷部 徳子(Hasebe, Noriko)

金沢大学・環日本海域環境研究センター・准教授

研究者番号：60272944

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：ウランの自発核分裂によって鉱物中に残される傷(フィッショントラック、以後FT)は、放射年代測定に利用されている。しかし傷の数が多くなると傷が重なり合って観察ができなくなり、1億年より古い試料の場合は技術的に困難である。そこで原子間力顕微鏡(AFM)を利用する新たなフィッショントラックの観察法を開発した。試料の研磨法や、AFMによる画像の取得法を吟味・確立し、実践試料の年代決定を試み概ね成功した。しかし10億年より古い試料ではエッチングを弱く行う必要があり、その際はFTとそれ以外の傷の区別がつきにくくなるという問題があり、AFM観察によっても測定年代値に上限があった。

研究成果の概要(英文)：The number of fission tracks (FT) is counted under an optical microscope after etching. However, as FT density per unit area rises, it becomes difficult to count the number of tracks because tracks overlap one another and are unable to be readily distinguished. The atomic force microscope (AFM) has a potential to observe fission tracks with high density after a short time etching. This research developed sample preparation techniques (e.g., polishing and etching) for AFM observation, established equipment settings for image capturing, and applied to date practical samples. The results were satisfactory, though the sample as old as 1 Ga is the oldest limit to be dated because the weak etching prevents extraction of FT from other structures. High resolution of AFM enables observation of possible alpha recoil tracks in zircon.

研究分野：地球年代学

キーワード：放射線損傷 フィッショントラック ジルコン

1. 研究開始当初の背景

ウランの自発核分裂によって鉱物中に残される傷(フィッシュトラック, 以後FT)は, ウラン濃度測定や, 地球環境の変動史を編む上で重要な年代決定に用いられている。年代測定にはジルコンやアパタイトなどの普遍的に存在する微量鉱物が利用され, 閉鎖温度が, 他の放射年代測定に比して低いため, 地殻上部の上昇削剥史を見積もるのによく利用されている。通常法では鉱物に化学処理(エッチング)を施し FT を拡大して光学顕微鏡下で計数し(娘元素量測定に相当), その後, 原子炉にて熱中性子照射をしてウランの核分裂を誘導しその数を計数する(親元素であるウラン濃度の決定)ことにより年代を求めていた。しかし傷の数が多くなると傷が重なり合って観察ができなくなり, 1 億年より古い試料の場合は技術的に困難であった。そのため, 特に安定陸塊に分布する岩石の古い時代のテクトニックなもしくは気候に依存する削剥上昇プロセスの理解に空白が生じていた。

2. 研究の目的

通常用いられる光学顕微鏡より, さらに高倍率の観察手法を用いる事により, トラックの重なり合いを避け係数が可能となる可能性がある。高倍率の映像を得られる手法のひとつである電子顕微鏡では, 電子線をあてている間に FT が損なわれ(構造の修復)不適であった。そこで天然の鉱物中に存在する FT を原子間力顕微鏡 (AFM) により観察する方法を考案し, FT 法の適用範囲を広げることが目的とした。AFM による観察では試料に電子線などのエネルギーを与える必要がないため, FT の修復などが発生しない点が優れている。さらに高倍率で観察することによって, 線を出した反跳による傷を確認することが可能であれば, これまで実用化されていない, リコイルトラック年代測定を新規開発できる。

3. 研究の方法

ウラン濃度の高いジルコンを対象に以下の内容について実験を行った。

- (1) AFM で観察する試料の準備方法の吟味を行う。
- (2) AFM による画像取得条件を吟味・決定を行う。
- (3) 画像上に見られる構造のうちどれが FT であるかを判断する指針・基準を理解する。
- (4) FT の計数方法を吟味する。
- (5) 実際の年代測定に利用する。
- (6) 並行して リコイルトラックの観察が可能であるか吟味を行い, その実用化について考案する。

4. 研究成果

(1) 試料調整法の確立

研磨方法; AFM の観察では表面が平滑であることが重要である。研磨材として 0.125 μm のダイヤモンドペーストに加え新たに通常 FT 法では利用されていない 0.02-0.06 μm のコロイダルシリカの利用を試みた。その結果, コロイダルシリカによる研磨はダイヤモンドペーストによる研磨傷を目立たなくする効果があり, 有効であることが示された。

エッチング: 段階的にエッチングした試料を観察した結果, 通常の光学顕微鏡下での観察同様に, ある程度エッチングしないと FT が全て観察できない漸移帯があることがわかった。かつ, AFM では FT 密度が高い試料を観察することを前提としているが, そのような試料では AFM の高解像でもトラックの観察面での連結がみられた。また 10 億年くらいの古い試料では, リコイルトラックと思われる損傷と区別がつきにくくなる問題が生じた。

(2) AFM による画像取得条件

画像取得モードのうち, コンタクトモード, タッピングモードを試用した。どちらのモードでもジルコンの観察は問題なく可能であり, どちらかといえばコンタクトモードの方がより鮮明な画像が取得された。しかしその差は観察結果を大きく変えるほどではなく, 探針の経時劣化を考慮するとタッピングモードでの観察で十分であった。画像取得の解像度はあとで記述する リコイルトラックと思われる凹構造を観察するためにも 0.016 μm 毎に画像を取得する事が推奨された。

(3) 画像上の構造物の認定および FT 年代測定

通常の光学顕微鏡における映像と, AFM により取得した画像を比較する事で, FT が AFM 画像にてどのような特徴を示すのかを明らかにした。その上で, FT の数を計数して実際に年代測定を行ったところ, 段階エッチングをして観察 FT 数の補正をすることが望ましいと思われた。補正を行うと, 年代値は, トラック密度の低い粒子のみ選択して通常法で求めた既報とよく一致した。補正を行わないと, 10%弱値を小さく見積もる事になった。通常法で実施する 較正を AFM-FT 年代測定でも実施する事も視野に入れる必要がある事が分かった。また AFM による年代値はトラックの計測数を増やせるため, 誤差の小さい値を提供できるという利点があった。

(4) リコイルトラック

地質試料の AFM 観察では表面に波状構造がみられた。この構造が リコイルトラックによるものである可能性を吟味した。現世の試料で観察したところ波状構造はなく, 幅 0.2 μm , 深さ 10nm 程度の凹状の構造が存在していた。

FT と比較すると、この凹構造は FT より直径が小さく、かつ FT の場合探針が届かないくらいまで深さが達している事が多い点で明らかに FT とは異なっていた。AFM による繰り返し測定でこの構造は安定的に観察され、ノイズではないことがわかった。この構造が多くなると波状構造を成すと思われる。波状構造は試料を 1000 度 C で加熱すると見られなくなった。熱ルミネッセンス法で年代測定を行った白山火山から採取したジルコンで、この凹みの数の面密度を計数する事ができた。今後様々なウラン濃度と既知年代の試料を用いて、この計数値が年代値を表すものかどうかさらに吟味する必要がある。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 6 件)

(1) 本田千晶・長谷部徳子・松木篤・水上知行・田村明弘・伊藤健太郎・岩田尚能・石川尚人、原子間力顕微鏡を用いた東南極リュツォ・ホルム岩体のジルコン FT 年代測定 フィッション・トラック ニュースレター, 27, 2-3, 2014 査読無
<http://ftrgj.org/FTNLs/FTNLparts/honda14.pdf>

(2) Noriko Hasebe, Akihiro Tamura, Shoji Arai, Zeta equivalent fission-track dating using LA-ICP-MS and examples with simultaneous U-Pb dating, Island Arc, 22, 280-291, 2013 査読有
doi:10.1111/iar.12040

(3) Hideki Iwano, Yuji Orihashi Takafumi Hirata, Masatsugu Ogasawara, Tohru Danhara, Kenji Horie, Noriko Hasebe, Shigeru Sueoka, Akihiro Tamura, Yasutaka Hayasaka, Aya Katsube, Hisatoshi Ito, Kenichiro Tani, Jun'ichi Kimura, Qing Chang, Yoshikazu Kouchi, Yasuhiro Haruta, & Koshi Yamamoto, An inter-Laboratory Evaluation of OD-3 Zircon for Use as a Secondary U-Pb Dating Standard, Island Arc, 22, 382-394, 2013 査読有
doi:10.1111/iar.12038

(4) 長谷部徳子, 伊藤健太郎, 福間剛士, 大石新之介, 金周龍, フィッショントラック年代測定における多様化する観察法, Advances in observation methods for fission track dating, 号外地球 62「第四紀研究における高精度年代測定法の新展開: 最近 10 年間の進展」124-128, 2013 査読無
<http://www13.atpages.jp/pettswood/index.html>

(5) Shinnosuke Ohishi and Noriko Hasebe (Corresponding Author), Observations of Fission-tracks in Zircons by Atomic Force Microscope, Radiation Measurements, 48, 554-556, 2012 査読有
doi:10.1016/j.radmeas.2012.04.019

(6) 大石新之介・長谷部徳子・福間剛士, 短時間エッチングジルコンの原子間力顕微鏡 (AFM) による高解像度観察, フィッショントラックニュースレター, 25, 43-45, 2012 査読無
<http://ftrgj.org/FTNLs/FTNLparts/ohishi12.pdf>

[学会発表](計 15 件)

(1) 小坂明弓 長谷部徳子 松木篤 伊藤健太郎, 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、平成 26 年度 FT・ESR・ルミネッセンス合同研究会山形大学, 2015 年 2 月 27 日 - 3 月 1 日

(2) Noriko Hasebe, Kentaro Ito, Atsushi Matsuki, Takeshi Fukuma, AFM observation of natural zircon: Is alpha recoil dating possible?, The 14th International Conference On Thermochronology, Chamonix, France, 8-12 September 2014

(3) 長谷部徳子・伊藤健太郎・大石新之介・本田千晶・松木篤・福間剛志, 原子間力顕微鏡によるジルコンの観察: フィッショントラック? それとも リコイルトラック? 日本地球惑星科学連合 2014 年大会, 横浜, 2014.4.27-5.1

(4) 本田千晶, 長谷部徳子, 松木篤, 水上知行, 田村明弘, 伊藤健太郎, 岩田尚能, 石川尚人, 原子間力顕微鏡を用いた南極大陸の FT 年代測定, フィッショントラック研究会, ルミネッセンス年代測定研究会, ESR 応用計測研究会合同研究会, 2014.2.16-18

(5) N. Hasebe, S. Ohishi and T. Fukuma, Fission track observation and dating of zircon by atomic force microscope, 13th International Conference on Thermochronology, Guilin, 2012.8.24-28, Invited

(6) K. Ito and N. Hasebe, Improvement of automatic FT counting in glass using image processing, 13th International Conference on Thermochronology, Guilin, 2012.8.24-28

(7) 長谷部徳子・伊藤健太郎, 火山ガラスのフィッショントラック年代測定法, 日本第四紀学会 2012 年大会, 熊谷, 2012.8.20-22 招

待講演

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

長谷部徳子 (Noriko Hasebe)

金沢大学・環日本海域環境研究センター・准
教授

研究者番号：60272944

(3) 連携研究者

福間 剛士 (Takeshi Fukuma)

金沢大学・理工学域電子情報学系・教授

研究者番号：90452094