

Title	Development of analytical technique for precise age determination of Quaternary zircons with the correction of the initial disequilibrium on U-Th-Pb decay series using a laser ablation-ICP-mass spectrometry( Abstract_要旨 )
Author(s)	Sakata, Shuhei
Citation	Kyoto University (京都大学)
Issue Date	2015-03-23
URL	<a href="http://dx.doi.org/10.14989/doctor.k18803">http://dx.doi.org/10.14989/doctor.k18803</a>
Right	学位規則第9条第2項により要約公開; 許諾条件により要約は2015/07/01に公開
Type	Thesis or Dissertation
Textversion	none

( 続紙 1 )

京都大学	博士 ( 理学 )	氏名	坂田 周平
論文題目	Development of analytical technique for precise age determination of Quaternary zircons with the correction of the initial disequilibrium on U-Th-Pb decay series using a laser ablation-ICP-mass spectrometry		
(論文内容の要旨)			
<p>レーザーアブレーションICP質量分析法(LA-ICP-MS法)を用いたジルコンのウラン-トリウム-鉛放射年代測定法は、正確な絶対年代を通じて地質学的イベントに時間的制約を与える重要なツールとなっている。質量分析法の飛躍的な進歩により、その年代精度の向上と測定レンジの拡大が進み、最近では第四紀における地質学的イベントの年代学的研究や熱的進化過程に関する議論にも活用されつつある。その一方で第四紀に属する若いジルコン試料に関しては、主として初生放射非平衡の影響と分析的困難の問題から、得られる年代データの信頼性は地質学的議論に耐え得るものではなかった。そこで本研究では第四紀のジルコン試料から正確な年代情報を引き出すことを目的に、同位体分析法の開発と初生放射非平衡の補正法の開発を行った。</p> <p>分析技術に関しては、従来のイオン検出器にアッテネータと呼ばれるイオンフィルタ装置を組み合わせることで8桁以上の広いダイナミックレンジでイオン信号を計測することが可能となった。また微弱な鉛の信号強度の計測に際しアブレーションブランク・ベースライン補正法を開発し、若いジルコン試料から高精度なウラン・鉛同位体情報を引き出すことが可能となった。</p> <p>同位体分析技術の改良に続き、初生放射非平衡の補正法の開発を行った。本研究では先行研究で採用された近似手法を用いず、現段階での計測技術の限界と考えられる数万年の年代レンジまで拡張した近似計算を取り入れ、鉛の同位体成長を定式化した。さらに補正に必要なパラメータ(補正係数)の決定に際して、見かけのウラン-鉛年代とトリウム-鉛年代を対比する方式を採用した。年代標準試料として用いられている5つの第四紀ジルコン試料から補正係数を決定したところ、従来の手法、すなわちジルコン結晶と火山ガラス中のトリウム・ウラン存在比分析に基づく補正係数の決定法、により得られた補正係数と誤差範囲で一致した。本研究で開発した補正法および本研究で求めた補正係数を用いて三部木次軽石より分離したジルコン試料に対して年代測定を行った。得られたウラン-鉛年代(9.91 ± 0.66万年)とトリウム-鉛年代(9.43 ± 0.84万年)は良い一致を示し、10万年より若いジルコン試料に対しても信頼性の高い年代情報を得ることができた。さらに本研究では、トリウム系列を横軸に、ウラン系列を縦軸にとる”擬似”コンコーディア図を提案した。疑似コンコーディア図を利用することで、時計の閉鎖系を検証できるとともに、非放射壊変起源鉛からの寄与を評価・補正することが可能となった。</p> <p>本研究で検討した初生放射非平衡は、若い試料だけではなく古い試料に対しても重要である。初生非平衡の影響は、例えば45億年の試料に対して20万年程度の系統誤差の原因となる。これは太陽系進化初期における惑星集積過程のタイムスケールと同等であり、隕石あるいは惑星成長過程の年代学を取り扱う際には注意が必要である。これらの結果から、LA-ICP-MSによるジルコンのウラン-トリウム-鉛年代測定法は地質・地球化学的高精度年代学において汎用性のある重要な年代測定手法になるものと結論づけることができる。</p>			

( 続紙 2 )

(論文審査の結果の要旨)

申請者の博士論文は全4章からなり、第1章では研究背景を概説し、第2章では高精度年代分析の基軸となる質量分析計の開発、第3章では年代測定法の高精度化、特に若い試料の年代測定において大きな分析誤差の要因となる初生同位体非平衡効果に対して新しい補正法を確立するとともに、実試料への応用分析を通じて実用性の評価を行い、総括として第4章で本研究を通じて開発した質量分析法およびウラン-鉛年代測定法の第四紀年代学をはじめとした様々な分野への応用展開とその波及効果を論じている。申請者は、質量分析法の改良、特にイオン検出器のダイナミックレンジの拡大と、様々な質量スペクトル干渉の低減、初生同位体非平衡効果のより厳密な補正法を確立、さらには様々な試料の系統的分析を通じて非平衡効果の補正に必要な補正係数を実験的に観測し、これまで年代分析が困難であった非常に若い鉱物試料から信頼性の高い年代情報を引き出すことに成功している。この研究を通じて、申請者は従来の非平衡補正法では特に若い試料においては年代値に系統誤差が生じることを見だし、これまで報告されている年代データの一部については再検討が必要なことも指摘している。本研究の成果は、精密かつ独創的な分析手法の開発を通じて局所精密同位体分析を実現し、放射同位体年代測定法の拡張性・応用性を飛躍的に拡大し、地質学あるいは地球化学のみならず、幅広い地球惑星科学分野に強い波及効果を示す内容を含んでいる。

申請者は、最も正確な絶対年代を決定できるウラン-鉛放射年代測定法に注目し、普遍的な鉱物の一種であるジルコン（ジルコニウムを主成分とするケイ酸塩鉱物）から正確な年代分析を行い、地質試料からマグマ活動、造山活動を含む様々な地質現象に対して正確かつ厳密な年代学的記載を行うことを目的とした。この目的のためには特に若い試料から正確な年代情報を引き出す必要があり、極微量の鉛の正確な計測が必要となる。申請者は新しいイオン検出法を導入するとともに、装置内の鉛の汚染の除去や様々な干渉信号の低減、さらには計測条件の最適化を図り、微量の鉛を正確に計測することに成功した。また申請者は、年代測定の系統誤差の原因となる初生非平衡に対し独自の補正法を確立するとともに、その補正に必要な補正係数を精密な観測を通じて実験的に決定し、補正係数の信頼性や試料形成過程を反映した変動性について議論している。また申請者は、試料が形成されて以来、ウランや鉛に関して試料が閉鎖系を保持していたかどうかを調べる手法も考案し、得られた年代データの信頼性を評価することにも成功した。この評価法は、ジルコン以外の様々な試料にも適用が可能であり、その応用展開性は非常に大きい。

このように申請者は独創的な発想で新しいイオン計測法や分析手法を開発するとともに、開発した手法を用いて広い年代範囲で形成されたジルコンから正確な年代情報を引き出すことに成功した。これらの手法は、様々な地質イベントの記載に直接的に応用可能であるだけでなく、第四紀という非常に若い試料の年代学測定を通じて古環境の変遷や、隕石の高精度年代学への応用を通じて原始太陽系形成過程の研究に展開できるものと期待できる。申請者による博士論文は、京都大学大学院理学研究科における博士論文に相応しい内容と独創性を備えている。よって、本論文は博士（理学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成27年1月15日、論文内容及びそれに関連した口頭試問を公開で行い、博士論文の内容についての質疑応答において、専門的議論に十分に耐える実力のあることも確認し、合格と認めた。

要旨公表可能日：                      年                      月                      日以降