

## 学位申請論文要約

ウラン-トリウム-鉛壊変系列における初生放射非平衡の補正及びレーザーアブレーション誘導結合プラズマ質量分析法を用いた第四紀ジルコン年代測定法の開発

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

宇宙地球化学分科 坂田周平

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。

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。

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 ( $99.1 \pm 6.6$  ka) とトリウム-鉛年代 ( $94.3 \pm 8.4$  ka) 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”疑似”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。

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 0.2Ma 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。