

ジルコンの迅速分離手法とU-Pb年代測定への適用例

北野, 一平

九州大学大学院比較社会文化学府日本社会文化専攻地域資料情報講座

小山内, 康人

九州大学大学院比較社会文化研究院環境変動部門地球変動講座

中野, 伸彦

九州大学大学院比較社会文化研究院環境変動部門地球変動講座

足立, 達朗

九州大学アジア埋蔵文化財研究センター

他

<https://doi.org/10.15017/1456056>

出版情報 : 比較社会文化. 20, pp.1-10, 2014-03-25. 九州大学大学院比較社会文化学府
バージョン :
権利関係 :

論文

ジルコンの迅速分離手法とU-Pb年代測定への適用例

Rapid techniques for zircon separation and the application for U-Pb dating

2013年11月7日受付、2013年11月23日受理

北野 一平¹・小山内 康人²・中野 伸彦²・足立 達朗³・吉本 紋¹

Ippei KITANO¹, Yasuhito OSANAI², Nobuhiko NAKANO², Tatsuro ADACHI³, Aya YOSHIMOTO¹

キーワード: ジルコンの迅速分離手法、ジルコン、レーザー溶出型誘導結合プラズマ質量分析計、ウラン—鉛年代測定

要 旨

本稿では、ジルコンの迅速分離手法とLA-ICP-MSを用いたU-Pb年代測定の実例を報告する。ジルコンは岩石中には副成分鉱物として産するため、その量的な問題から多くの場合、試料からの分離が必要となる。ジルコンの分離には、現在においても重液を用いた分離法が一般的である。しかしながら、重液の使用に対する非効率性や人体に及ぼす危険性、高コストが指摘されてきた。そこで、小論ではこれらの問題を解決するために、重液を用いないジルコンの迅速分離手法を考案した。本手法では、粉末試料をビーカーや時計皿による水簸および椀掛けをすることでジルコンを30分以内に抽出することが可能であり、重液分離と比べると極めて迅速で効率よく、低コストで安全な手法といえる。ジルコンはU-Pb年代測定のほかにも、包有物解析や化学組成から様々な地質事変を制約できる鉱物である。本手法は膨大なジルコン分析に対応した地質学的研究に非常に有用な手法であるとともに考古学などの他分野への応用も期待される。

1. はじめに

近年の分析機器の発達、特に空間分解能に著しく優れた装置の出現は、一鉱物粒子から複数点の年代測定を可能とした(兼岡、1998)。鉱物粒子単位の局所分析による年代測定は、従来の特定鉱物を集積したものを試料とする年代測定法(アイソクロン年代法やK-Ar年代法など)に比べて、いくつかの利点が挙げられる。同一粒子内に異なる時期に形成したドメインを含む鉱物に対して、サブグレインでの年代値の取得は、その複数の年代値に対する地質学的解釈に大きな威力を発揮する。代表

的な例として、高感度二次イオン質量分析計(SHRIMP)やレーザー溶出型誘導結合プラズマ質量分析計(LA-ICP-MS)を用いたジルコンのU-Pb年代測定は、地球最古の鉱物粒子や岩石の発見を含め、地質学的に革新的な成果をもたらした(例えば、Froude et al., 1983)。

ジルコンはウランを多く含み鉛をほとんど含まない、火成岩、変成岩および堆積岩に普遍的に含まれる副成分鉱物である。また、強い物理的・化学的耐性を有するため、多くの場合初生的な組成を保持したまま変成作用や火成作用などの地質学的イベントによって新たに成長する(兼岡、1998; 鈴木、2005; 加々美ほか、2008)。

¹ 九州大学大学院比較社会文化学府日本社会文化専攻地域資料情報講座
Division of Regional Material Information, Graduate School of Social and Cultural Studies, Kyushu University.

² 九州大学大学院比較社会文化研究院環境変動部門地球変動講座
Division of Earth Sciences, Department of Environmental Changes, Faculty of Social and Cultural Studies, Kyushu University.

³ 九州大学アジア埋蔵文化財研究センター
Advanced Asian Archaeological Research Center, Kyushu University.

したがって、ジルコンU-Pb年代は、ある地域に分布する岩石が経てきた地質学的イベントの履歴を制約するための非常に強力なツールとなる(例えば、Osanai et al., 2013)。

ジルコンU-Pb年代測定を行う場合、一般に岩石粉末試料から重鉱物を分離し、ジルコンを抽出する。重鉱物分離の手法はいくつか挙げられるが、重液を用いた分離が最も普及している手法である。重液分離とは比重が3~4前後の重液を用いて、粉末試料を重液よりも比重の小さい軽鉱物と比重の大きい重鉱物に分離する手法である(例えば、檀原ほか、1992)。本手法は、目的の鉱物に応じて重液の比重を調整できることから、重鉱物のみではなく様々な鉱物の分離に使用されている。その一方で、重液中から細粒な粒子を取り除くためのフィルタリングに手間がかかることや、有機溶媒である重液の人体に及ぼす毒性・危険性および高コストが問題点として指摘されてきた(佐藤、1971; 小沼ほか、1974; 檀原ほか、1992)。これに対して、富田・唐木田(1956)は重液を用いず、水簸および椀掛けのみによって、ジルコンの分離が可能であることを示した。本論では、富田・唐木田(1956)の手法を改良したジルコンの迅速分離手法を解説し、LA-ICP-MSを用いたジルコンU-Pb年代測定の適用例を紹介する。

2. ジルコン分析のための試料作成および前処理

分析試料の作成は①ジルコンの分離・抽出と②ジルコンのマウント作成、分析の前処理は③マウントの鏡面研磨と④ジルコンのカソードルミネッセンス(CL)像の観察の工程からなる(Fig. 1a)。本論で解説するジルコン迅速分離法は、(1)鏡下観察および粉砕のためのスラブ作成、(2)粉砕および篩掛けによる粉末試料の作成、(3)ピーカー水簸・椀掛けによる重鉱物と軽鉱物の分離、(4)磁選および時計皿椀掛けによるジルコンの抽出という工程に分けられる(Fig. 1b)。以下に順を追って解説する。

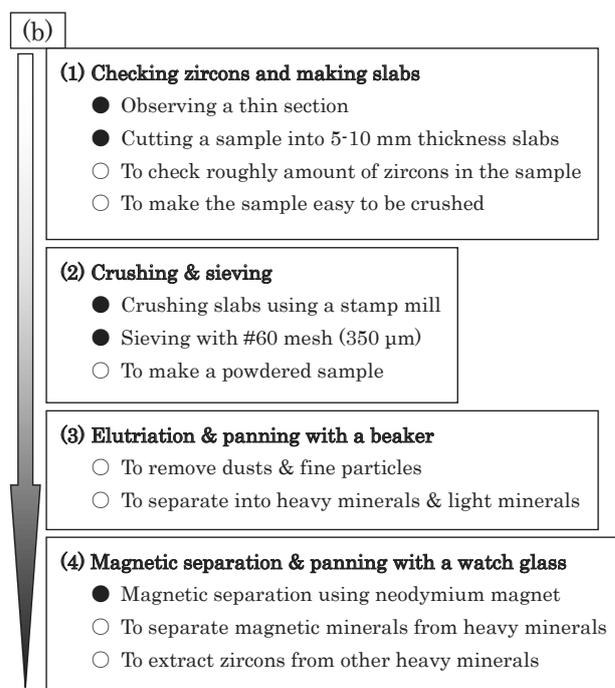
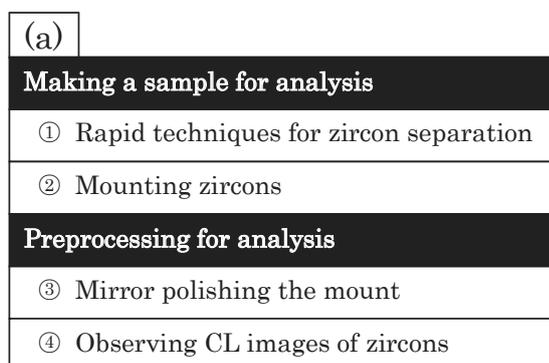


Fig. 1. Flow chart of the procedure. (a) Whole procedure before analyzing zircons. (b) The procedure of the rapid techniques for zircon separation. Solid and open circles show additional information about the operation and the purpose, respectively.

2. 1. ジルコンの迅速分離手法

2. 1. 1. 鏡下観察および岩石スラブの作成

まず、ジルコン分離を行う試料の薄片を作成し、その試料の構成鉱物を把握する必要がある。試料の薄片に含まれるジルコンの量および粒径から、測定可能なジルコン(直径30 μm以上の領域を持つ)を得るために十分な粉砕量を見積もる。また、ルチルやモナザイト、アパタイト、不透明鉱物などの重鉱物の有無を確認することで、重鉱物分離の度合いや最終的にジルコンとともに集積する鉱物を推定する。

次に、粉砕のために5~10mmの厚さの板状スラブを作成する。少なくとも握り拳1つ分(約200g)の試料を用い、試料中に含まれるジルコンの量を考慮して粉砕する量を決定する。板状スラブは試料番号を書いた1Lガラスピーカーに入れ、試料表面に付着したゴミや塵を取り除くために、試料が完全に浸かるまで水道水を入れ超音波洗浄を行う。5分間超音波洗浄し、その後ピーカー中の水を入れ替える。基本的に、5分間の超音波洗浄を3回行えば十分だが、水の濁りがとれない場合は追加で数回行う。洗浄後、異物の混入を防ぐためにピーカーの口をアルミホイルで覆う。完全に乾燥させるために、110℃恒温器の中に試料を入れ、半日放置する。

2. 1. 2. 粉碎および篩掛け

試料の粉碎には、九州大学大学院比較社会文化研究院環境変動部門のNitto製スタンプミル ANS-143型を使用した (Fig. 2)。また、粉末試料の篩分けは飯田製作所製篩枠および受け器 (ϕ 150mm \times 45mm) およびニチカ製 #60メッシュ (目開き 350 μ m) を用いた。粉碎および篩掛けの工程では、粉碎用試料の他に、篩枠・受け器、スタンプミル用ステンレスウス (以後、ウス)、スタンプミル用ステンレスハンマー (以後、ハンマー)、ステンレスウスのゴム蓋 (以後、ゴム蓋)、#60メッシュ、キムタオル、ジッパー付きポリ袋、エアダスターを用いる (Fig. 3)。



Fig.2. Photograph of the stamp mill used in this study.

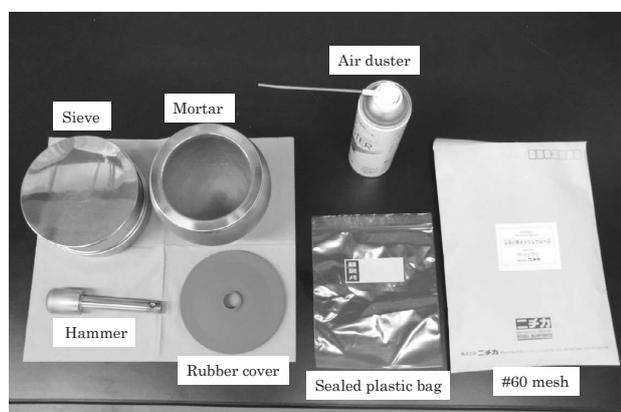


Fig.3. The tools for crushing with the stamp mill and sieving.

清浄な机上にキムタオルを敷き、その上に篩枠・受け器およびウスを置く。ハンマーおよびゴム蓋をスタンプミルに取り付ける。ウスの内側について汚れの有無を確認した後、5~10mm厚の板状スラブを3~4枚入れてスタンプミルにセットする。スタンプミルのタイマーを15分 (固い試料の場合は20分) に合わせ、粉碎を開始する。5分後に、スタンプミルを一時停止させ、試料が均等に粉碎されているかを確認する。大きな試料片が残っている場合は、ウスを傾けるなどして大きな試料片

を中央に寄せる。確認後、粉碎を再開する。粉碎終了後、スタンプミルを停止させてウスを取り出す。

次に、#60メッシュを篩枠より少し大きめのサイズに切り、メッシュが張るように篩枠に完全に挟み込む。受け器と組み合わせて篩を作り、ウス中の粉碎した試料を篩に移し、蓋をして十分に篩に掛ける。メッシュを通らず残った粒子はウスの中に戻し、新たに同じ試料の板状スラブを2~3枚ウスに入れ、上述した方法と同様に粉碎を行う。板状スラブを全て粉碎できるまで粉碎と篩掛けを繰り返し行う。

粉碎および篩掛け後、A4用紙を用いて粉末試料を1Lガラスビーカーに移す。ガラスビーカーにはゴミが混入しないように、すぐにアルミホイルで蓋をする。余った試料片は使用した#60メッシュとともに、試料番号を書いたジッパー付きポリ袋に入れ保管する。

2. 1. 3. ビーカー水簸およびビーカー椀掛け

粉末試料は1Lのポリエチレンビーカー (以後、PEビーカー) と2Lガラスビーカーを用いて水簸および椀掛けを行う (Fig. 4)。

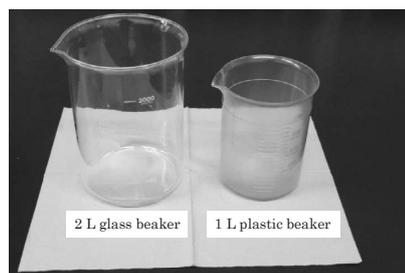


Fig.4. The tools for the elutriation and panning.

粉末試料約200gをPEビーカーに移し、流しに2Lガラスビーカーを置く。まず、微細な粒子を除去するために水簸を行う。粉末試料を攪拌するために、水道水を蛇口から勢よくPEビーカーに注ぎ込み、水が溢れる前に注水をやめる。微細な粒子以外の鉱物を完全に沈下させるために50秒間待った後、濁った上澄みだけを静かに流し捨てる。この操作を上澄みが濁らなくなるまで繰り返す。50秒間待って上澄みが濁らなくなったら、同様に注水して30秒間待った後、上澄みを捨てる。

次に、軽鉱物と重鉱物を大まかに分離するためにPEビーカーで椀掛けする。試料が完全に浸るくらい水道水を静かにPEビーカーに注水する。重鉱物をPEビーカーの底面中央に集めるために、Fig. 5aのようにPEビーカーの口を片手で鷺掴みし、直立を保ったまま円を描くようにPEビーカーを40周程度回転させる。次に、重鉱物を底に集めるために、Fig. 5bのようにPEビーカーの側面を持ち、斜め45°に傾けたまま約2分間小さく細か

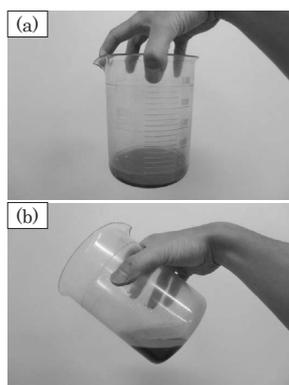


Fig. 5. Photographs showing how to hold a plastic beaker during panning. (a) In case of spinning a beaker. (b) In case of shaking a beaker.

く左右に揺動する。この時、不透明鉱物が多く含まれている試料では底に黒色鉱物が溜り、分離の進行を確認できる。そして、上に押し退けられた軽鉱物をPEビーカーから分離する。PEビーカーを約45°斜めに傾けたままの状態の水を少し加えて渦をつくるようにPEビーカーを回し、2Lビーカーの中へ勢いよく軽鉱物とともに水を捨てる。この時、PEビーカーを90°以上傾けて試料を捨て過ぎないように注意する。試料が少なくなる(10g程度)までこの操作を繰り返す。この工程で試料を多く残し過ぎると、次の工程で数回に分けて分離を行うなどの悪影響が出るので注意する。

2. 1. 4. 磁選および時計皿椀掛け

本工程では、ネオジウム磁石、時計皿、蒸発皿、スポイト、ポリ手袋、キムタオル、水道水の入った1Lノズル付ポリボトル(以後、ポリボトル)を用いる(Fig. 6)。

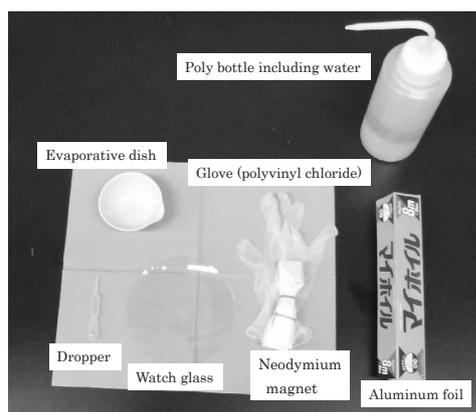


Fig. 6. The tools for magnetic separation and panning with a watch glass.

まず、ポリボトルを使って、ビーカー椀掛けを行った試料全てを水で時計皿に押し流し、キムタオルを敷いた机の上に置く。時計皿に移した試料が完全に浸かるように水を加え、蒸発皿にも3分の1くらいまで注水する。磁

性鉱物を円滑に取り除くためにネオジウム磁石をポリ手袋で覆い、ポリ手袋を張ってネオジウム磁石の底面が平らになるようにする。時計皿を少し回して試料を広げてから、ネオジウム磁石をゆっくり試料に近づける。磁性の強い鉱物が含まれる場合、ネオジウム磁石の底面が水面につく前に、それらの鉱物がネオジウム磁石に引き寄せられて付着する。付着した磁性鉱物は、ポリ手袋をネオジウム磁石から外し蒸発皿の水に浸して除去する。その後、再びネオジウム磁石をポリ手袋で覆う。ネオジウム磁石は試料に押し付けず、試料の表面をなぞる様にして動かし、まんべん無く磁性鉱物を付着させる。この操作を試料中に磁性鉱物がなくなるまで繰り返し行う。

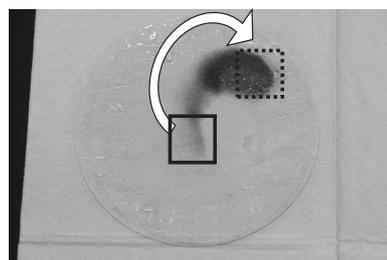


Fig. 7. Photograph showing how to separate heavy and light minerals using a watch glass. White arrow shows the movement of light minerals after panning. The areas surrounded by a dash line and a solid line are mainly composed by light and heavy minerals, respectively.

次に、時計皿で椀掛けを行う。時計皿の水の量をスポイトやポリボトルで調整した後、時計皿を回しながら少しずつ傾けて、弧を描くようにして試料を広げる(Fig. 7)。この操作において、大きく動く鉱物は主に軽鉱物からなり、中心に残存する鉱物は主に重鉱物からなる。良く揺動した先端部分の一部をスポイトで吸い取り磁性鉱物が入っている蒸発皿に移す。ポリボトルで少し水を加え、試料を再び中央に集める。試料が少なくなるまでこれらの操作を丹念に繰り返す。その後、顕微鏡の透過光でジルコンが集まっているか、磁性鉱物や軽鉱物を取り除けているかを確認する。最後は中心部分に残存した鉱物粒をスポイトで吸い取り、別の時計皿に移し顕微鏡下で観察する。モナザイト、ルチル、スフェーン、黄鉄鉱については、時計皿椀掛けで取り除くのは困難である。そのため、ジルコンの他に上記の重鉱物しか認められない場合は時計皿椀掛けを終了しても良い。この手法により、椀掛け開始から約30分で抽出したジルコンの例をFig. 8に示す。

最後に、これまでの工程で分離したものを乾燥させて保管する。2Lガラスビーカー中の軽鉱物は1Lガラスビーカーに、ジルコンを含む重鉱物は蒸発皿に移す。



Fig. 8. Photograph of separated zircons from a metaigneous rock. Scale bar is 0.5 mm.

試料番号とともに、軽鉱物の入ったピーカーには「軽」、磁性鉱物を含む重鉱物が入っている蒸発皿には「重」、ジルコンが入っている蒸発皿には「Zrn」と書く。アルミホイルで少し隙間が空くように蓋をし、110℃恒温器に入れて乾燥させる。半日以上は放置し、完全に乾燥させる。乾燥させた後、ジルコンは薬包紙に、その他の重鉱物はサンプル管瓶に、軽鉱物はジッパー付きポリ袋に移し保管する。

2. 2. マウント作成

ジルコンのマウントを作成するために、まず、双眼実体顕微鏡下でハンドピックによりジルコンのみを集める。双眼実体顕微鏡は九州大学大学院比較社会文化研究院環境変動部門のOlympus製SZX12を用いた。この工程で他に必要なものはFig. 9aに示す通りである。ジルコンを並べる範囲を決めるために、マウントの型をガラス板(約 $5 \times 5 \times 1 \text{ cm}^3$)の中央に置き、型の内側をマジックでなぞる。通常、複数の試料中のジルコンをマウントするため、ガラス板上での各試料のジルコンの配置を把握しなければならない。そのために、ガラス板の右上隅に「↑上」と書いて上下方向を決め、ハンドピックの際は必ずジルコンの配置図をノートに記す。透明両面粘着シールをマウントの型よりも大きいサイズに切り、気泡が入らないようにガラス板に貼る。ジルコンを並べるために $1 \times 10 \text{ mm}^2$ の穴を開けたマスクを用意し、ガラス板に貼る。ゴミや別試料からのジルコンの混入を防ぐため、シャーレの内側を、エタノールを付けたキムワイプで拭き、その後乾拭きをする。エアダスターを十分吹きかけた後、双眼実体顕微鏡下でゴミなどが残っていないか確認する。小筆の先をエアダスターで十分吹きかけた後、薬包紙に保管したジルコンを小筆でシャーレに広げるように慎重に移す。そして、柄付き針でジルコンをハンドピックし、ガラス板の上に並べる。この時、柄付き針の先に鼻の油をつけるとジルコンを拾いやすくな

る。ジルコンは基本的に無色透明で非常に高い屈折率を示す。また、紫外線を当てるとジルコンは蛍光するので、紫外線ライトはジルコンの選別に非常に有用である。ハンドピック終了後、残りの粒子を小筆で薬包紙に戻す。シャーレや小筆を先述した方法でゴミやジルコンを排除する。別の試料のジルコンをハンドピックする場合は、各試料のジルコンを混同しないように、マスクを別の位置に動かしてから同様に上記の操作を行う。最後に、マスクを取り、マウントの型をなぞった線に合わせてマウントの型をガラス板に隙間なく密着させる。

次に、樹脂を用いてマウントを作成する。樹脂はStruers製Specifix-40を用いた。その他に、電子天秤、紙コップ、攪拌棒(木製)、爪楊枝を用いた(Fig. 9b)。電子天秤を用いて紙コップにSpecifix-40の樹脂5gと硬化剤2gを入れて、攪拌棒で数分間十分に攪拌する。約5分間自然と気泡が抜けるのを待った後、樹脂をマウン

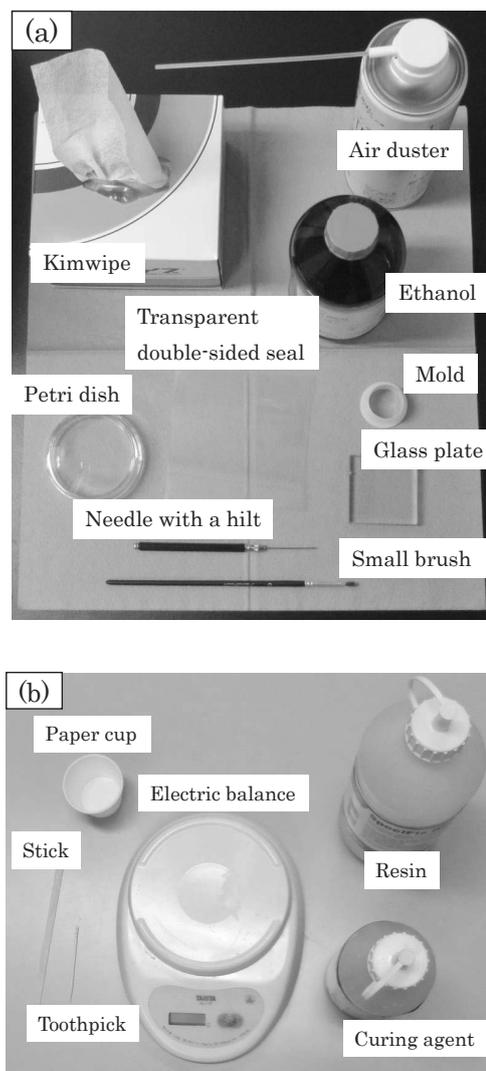


Fig. 9. The tools for mounting zircons. (a) The tools for handpicking zircons. (b) The tools for making a mixed resin to mount zircons.

トの型に流し込む。ジルコンの周囲の気泡を取り除くために、双眼実体顕微鏡で見ながら爪楊枝で気泡を取り除く。その後、樹脂を固めるために、50℃恒温器の中にガラス板を入れる。この際、マウントの型の接着が弱い場合は樹脂が漏れるため、アルミホイルで受け皿を作った方がよい。半日以上置き、完全に固化しているのを確認した後、マウントを型から取り出す。この際、マウント表面にシールが付着することが多い。そのため、市販のシールはがしてマウントからシールを可能な限り除去する。

2. 3. マウントの鏡面研磨

透過光や反射光、電子顕微鏡下でジルコンを観察するために、マウントの両面を鏡面研磨する。まず、マウントを厚さ4mmに切り、その切断面を800#と1200#の研磨布紙で平坦になるまで研磨する。超音波洗浄後、3μmダイヤモンドペースト(DPペースト; Struers製)と琢磨布(MD/DP-Dur)を使用し研磨した後、1μm DPペーストと琢磨布(MD/DP-Mol)を使用し鏡面研磨する。次に、ジルコンのある面を鏡面研磨するが、ジルコンが割れたり削られ過ぎたりしないために、この面を研磨する間は常に低速(30r/min)で力を加えないように研磨する。また、反射光での観察により、研磨の進行度を確認する。まず、6μm DPペーストと琢磨布(MD/DP-Largo)を用いて、ジルコンの中央断面が出る前まで研磨する。次に、3μm DPペーストとMD/DP-Largoで研磨し、大部分のジルコンの中央断面が出るまで研磨する。最後に、1μm DPペーストとMD/DP-Molで研磨して仕上げる。鏡面研磨後、透過光と反射光でジルコンの写真を撮り、ジルコンの包有物の有無や表面に出ている領域を確認する。

2. 4. ジルコンのカソードルミネッセンス像の観察

ジルコンの内部組織を確認するために、ジルコンのカソードルミネッセンス(CL)像を観察する。CL像観察には、九州大学大学院比較社会文化研究院環境変動部門にあるエネルギー分散型X線分析装置を装着した走査型電子顕微鏡(日本電子社製 JSM5310S-JED2140)(SEM-EDS)およびGatan製Mini CLを用いた。鏡面研磨したマウントを超音波洗浄後、サンヨー電子製真空蒸着装置(SVC-700TM/700-2(TMP+RP))で炭素蒸着し、SEM-EDS-CLを用いてジルコンのCL像を撮影する。一般に、CL像から鉱物の成長過程を観察することが可能である(廣井、2002)。その一例をFig. 10に示した。本論で示したジルコンは、火成起源のものに特徴的なオシラトリー累帯構造(波動累帯構造)を示す。また、明る

いコア部と暗いリム部が認められるジルコンは多段階の成長、すなわち複数回の地質学的イベントが生じたことを示唆する(Fig. 10)。CL像観察の他に、表面に出ているジルコンの包有物があればSEM-EDSによる定性分析で鉱物同定をする。

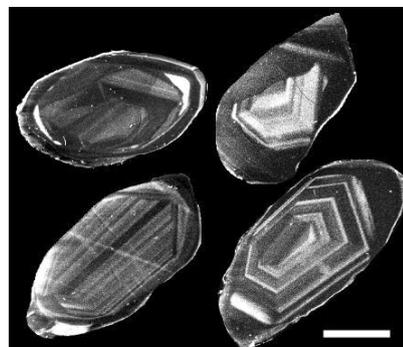


Fig. 10. Cathodoluminescence (CL) images of zircons. CL images provide some information about the process to form minerals. Scale bar is 50μm.

3. LA-ICP-MSによるジルコンU-Pb年代測定の適用例

分析試料は東南極セールロンダーネ山地南東部のブライクスコールターネに分布する黒雲母片麻状花崗岩(試料番号: 90010918)である。この試料の主な構成鉱物は、黒雲母、カリ長石、斜長石、石英である。副成分鉱物としてジルコン、アパタイト、不透明鉱物が認められる(Fig. 11)。半自形～他形の黒雲母は定向配列し、片麻状構造をなす。粗粒で半自形を示すカリ長石が認められる。薄片上では自形～半自形で粗粒なジルコンが5粒以上認められ、主に黒雲母、斜長石、カリ長石、石英中の包有物として産している。

年代測定には九州大学大学院比較社会文化研究院環

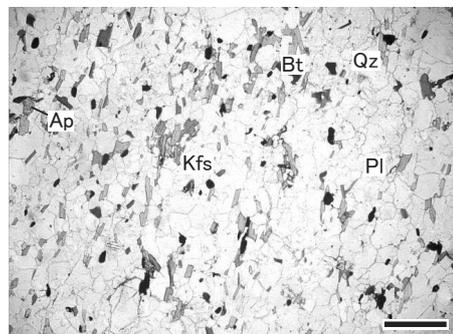


Fig. 11. Photomicrograph of sample 90010918. Subhedral to anhedral biotites show gneissose texture. Scale bar shows 1 mm. Abbreviations of minerals are as follows: Bt, biotite; Kfs, K-feldspar; Pl, plagioclase; Qz, quartz; Ap, apatite.

境変動部門のAgilent製7500cx四重極型ICP-MSおよびNew Wave Research製UP-213 Nd-YAGレーザーを使用した。分析手法はAdachi et al. (2012) に従った。測定点の径は30 μmである。スタンダードジルコン Temora (417 Ma; Black et al., 2003) を同位体比の補正のために用い、スタンダードジルコンFC1 (1099 Ma; Paces and Miller, 1993) を同位体比や年代値の正確さを

確認するために用いた。NIST SRM-611 ガラススタンダードはTh/U比を決定するために用いた。同位体比や誤差(2σ)の計算はGLITTER (Griffin et al., 2008) を用いた。なお、コンコーディア図およびコンコーディア年代の算出はIsoplot 3.70 (Ludwig, 2008) を用いた。

代表的な測定粒子およびコンコーディア図、測定結果をFig. 12、Table 1にそれぞれ示す。分析試料中のジルコンは長軸長が約20-120 μmあり、無色透明で両長錐形や丸みを帯びた形を示す。CL像では火成起源のジルコンに特徴的なオシラトリ帯構造がほとんどのジルコンで認められた (Fig. 12)。ジルコン25粒から25点測定し、568.1 ± 4.2 Ma (MSWD = 0.21) のコンコダント年代が得られた (Fig. 12)。岩石記載、ジルコンの形状や内部組織から、この年代は分析試料が形成した火成活動の年代であると考えられる。東南極セールロンダネ山地において、今回得られた火成年代はShiraishi et al. (2008) およびAdachi et al. (2013) の報告と調和的である。

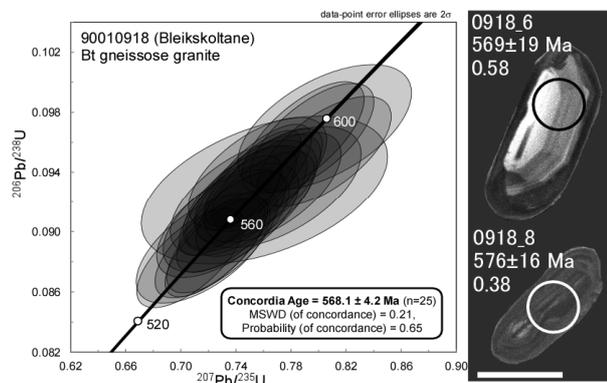


Fig. 12. Concordia diagram with CL images for representative zircon grains analyzed by LA-ICP-MS U-Pb dating. Each analysis spot is labeled with analysis number, $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ age with 2σ error and Th/U ratio. Scale bar is 50 μm.

Table 1. LA-ICP-MS U-Pb isotope ratios and calculated ages of zircons from sample 90010918.

Analysis No.	Isotopic ratios and errors (2σ)				Calculated ages and errors (Ma, 2σ)				Th/U	Discordant (%)
	$^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$	error	$^{207}\text{Pb}/^{235}\text{U}$	error	$^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$	error	$^{207}\text{Pb}/^{235}\text{U}$	error		
0918-1	0.08937	0.00280	0.72998	0.03286	552	17	557	19	0.32	1
0918-2	0.08899	0.00270	0.72589	0.03050	550	16	554	18	0.46	1
0918-3	0.09291	0.00298	0.75620	0.03728	573	18	572	22	0.70	0
0918-4	0.09633	0.00304	0.78882	0.03636	593	18	591	21	0.42	0
0918-6	0.09229	0.00316	0.74568	0.04356	569	19	566	25	0.58	-1
0918-7	0.09178	0.00274	0.73599	0.03038	566	16	560	18	0.72	-1
0918-8	0.09346	0.00274	0.75191	0.02902	576	16	569	17	0.38	-1
0918-9	0.09233	0.00284	0.74371	0.03296	569	17	565	19	0.68	-1
0918-10	0.09098	0.00298	0.73648	0.04036	561	18	560	24	0.55	0
0918-11	0.09068	0.00276	0.73667	0.03244	560	16	560	19	0.44	0
0918-15	0.09377	0.00282	0.75622	0.03176	578	17	572	18	0.23	-1
0918-16	0.09188	0.00288	0.75402	0.03522	567	17	571	20	0.36	1
0918-17	0.09391	0.00308	0.75579	0.04106	579	18	572	24	0.50	-1
0918-19	0.08827	0.00270	0.70712	0.03194	545	16	543	19	0.39	0
0918-20	0.09350	0.00282	0.76268	0.03292	576	17	576	19	0.25	0
0918-21	0.08893	0.00300	0.71633	0.03980	549	18	548	24	0.30	0
0918-22	0.09059	0.00296	0.73070	0.03938	559	17	557	23	0.57	0
0918-23	0.09300	0.00332	0.77052	0.04950	573	20	580	28	0.56	1
0918-24	0.09630	0.00298	0.79521	0.03696	593	17	594	21	0.38	0
0918-25	0.08894	0.00272	0.72144	0.03282	549	16	552	19	0.27	0
0918-26	0.09299	0.00302	0.76698	0.04046	573	18	578	23	0.68	1
0918-28	0.09282	0.00404	0.76084	0.07316	572	24	574	42	0.50	0
0918-29	0.09701	0.00342	0.80455	0.05162	597	20	599	29	0.56	0
0918-30	0.09538	0.00302	0.80418	0.03982	587	18	599	22	0.38	2
0918-31	0.09225	0.00290	0.74676	0.03678	569	17	566	21	0.38	0

4. まとめと今後の展開

地質学分野においてジルコンの局所分析が導入されて約30年が経過した。この30年間で装置の精度や空間分解能の向上が図られるとともに、より低コストの装置の出現により、ジルコンの局所分析は現在欠かすことのできない手法として地質学に急速に根付きつつある。冒頭でも述べたが、この局所分析装置や手法の開発・改良は、地球科学に対する我々の認識を大きく発展させた。本論では、ジルコン分析の前処理にあたる部分を解説したが、この手法によって誰もがジルコンの抽出を容易、安全かつ迅速に極めて低コストで行うことが可能であり、U-Pb年代測定だけでなくジルコンの内部包有物、希土類元素組成およびHf同位体比測定に対しても極めて有用である。加えて、環境変動部門ではジルコンの局所分析の考古学資料への応用を進めている。同部門では現在、石器や土器の解析に、従来の形態学的な解析に加えて微量元素を含めた化学組成からアプローチし、その産地同定や物流に関して画期的な成果を残しつつある（例えば、田尻ほか、2012；石田ほか、2013）。これらの解析に、ジルコンの局所分析手法を加えることによって原石や胎土に年代値を与えることが可能となり、より厳密な科学的根拠を与えることに寄与する。また、地質学が経験してきたように、考古学的に全く予期されなかった結果が得られることも期待される。このジルコン局所分析の考古学分野への導入に際し、本論で解説した極めて経済的・時間的パフォーマンスの高い前処理ルーチンの普及と各分析機関の協力は、人類史の常識を覆すための第一歩となる。

謝辞

本稿で記した重鉍物迅速分離法は、2003年に横山義人氏（当時岡山県立津山高等学校教諭）に教授していただいた手法を改良したものである。また、本稿の分析試料は第31次日本南極地域観測隊（JARE-31）によって採取されたものである。以上の方々に深く感謝申し上げます。なお、本研究には平成22-23年度九州大学P&P（代表：田中良之）、日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究A（22244063：代表、小山内康人；23242049：代表、田中良之）の研究費用を使用した。

文献

Adachi, T., Osanai, Y., Nakano, N. and Owada, M. (2012) LA-ICP-MS U-Pb zircon and FE-EPMA U-Th-Pb

monazite dating of pelitic granulites from the Mt. Ukidake area, Sefuri Mountains, northern Kyushu. *The Journal of the Geological Society of Japan*, 118, 39-52.

Adachi, T., Osanai, Y., Hokada, T., Nakano, N., Baba, S. and Toyoshima, T. (2013) Timing of metamorphism in the central Sør Rondane Mountains, eastern Dronning Maud Land, East Antarctica: Constraints from SHRIMP zircon and EPMA monazite dating. *Precambrian Research*, 234, 136-160.

Black, L.P., Kamo, S.L., Allen, C.M., Aleinikoff, J.N., Davis, D.W., Korsch, R.J. and Foudoulis, C. (2003) TEMORA 1: a new zircon standard for Phanerozoic U-Pb geochronology. *Chemical Geology*, 200, 155-170.

檀原 徹・岩野英樹・糟谷正雄・山下 透・角井朝昭 (1992) 無毒な重液SPT（ポリタングステン酸ナトリウム）とその利用. *地質ニュース*, 455, 31-36.

Froude, D.O., Ireland, T.R., Kinny, P.D., Williams, I.S., Compston, W., Williams, I.R. and Myers, J.S. (1983) Ion microprobe identification of 4,100-4,200 Myr-old terrestrial zircons. *Nature*, 304, 5927, 616-618.

Griffin, W.L., Powell, W.J., Pearson, N.J. and O'Reilly, S.Y. (2008) GLITTER: Data reduction software for laser ablation ICP-MS. In *Laser Ablation ICP-MS in the Earth Sciences: Current practices and outstanding issues* (Sylvester, P. Ed.) . pp. 348, Series 40. Mineralogical Association of Canada, Vancouver, B.C., 308-311.

廣井美邦 (2002) 最近の走査電顕カソード・ルミネッセンス像観察事情. *地質ニュース*, 573, 35-41.

石田智子・米村和紘・足立達朗・中野伸彦・小山内康人・田中良之 (2013) カラカミ遺跡・原の辻遺跡出土弥生土器の胎土分析. 壱岐カラカミ遺跡Ⅳ, 183-197.

加々美寛雄・周藤賢治・永尾隆志 (2008) 同位体岩石学 *Isotope Petrology*. 共立出版, 245.

兼岡一郎 (1998) 年代測定概論. 東京大学出版会, 255-256.

Ludwig, K.R. (2008) Isoplot 3.70: A Geochronological Toolkit for Microsoft Excel. *Berkeley Geochronology Center Special Publication No.4*, 1-77.

小沼直樹・二宮修治・五藤周一・安藤智美・小山睦子・真田佳子 (1974) 細分画重液による造岩鉍物分離法. *東京学芸大学紀要 第4部門 数学・自然科学*, 26, 140-148.

Osanai, Y., Nogi, Y., Baba, S., Nakano, N., Adachi, T.,

- Hokada, T., Toyoshima, T., Owada, M., Satish-Kumar, M., Kamei, A. and Kitano, I. (2013) Geologic evolution of the Sør Rondane Mountains, East Antarctica: Collision tectonics proposed based on metamorphic processes and magnetic anomalies. *Precambrian Research*, 234, 8-29.
- Paces, J.B. and Miller, J.D.J. (1993) Precise U-Pb ages of Duluth Complex and related mafic intrusions, northeastern Minnesota; Geochronological insights to physical, petrogenetic, paleomagnetic, and tectonomagmatic processes associated with the 1.1 Ga midcontinent rift system. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 98, 13997-14013.
- 佐藤良昭 (1971) 重鉱物研究の現状と問題点. 地質調査所月報, 22, 9, 487-499.
- Shiraishi, K., Dunkley, D.J., Hokada, T., Fanning, C.M., Kagami, H. and Hamamoto, T. (2008) Geochronological constraints on the Late Proterozoic to Cambrian crustal evolution of eastern Dronning Maud Land, East Antarctica: a synthesis of SHRIMP U-Pb age and Nd model age data. In: Satish-Kumar, M., Motoyoshi, Y., Osanai, Y., Hiroi, Y., Shiraishi, K. (Eds.), *Geodynamic evolution of East Antarctica: a key to the East-West Gondwana connection*. Geological Society, London, Special Publication, 308, 21-67.
- 鈴木和博 (2005) 電子プローブマイクロアナライザを用いたCHIME年代測定. 地質学雑誌, 111, 9, 509-526.
- 田尻義了・足立達朗・中野伸彦・米村和紘・小山内康人・田中良之 (2012) 弥生時代北部九州における鋳型石材の原産地同定と鋳型素材の加工と流通. 日本考古学, 33, 95-112.
- 富田 達・唐木田芳文 (1956) 副成分ジルコンの簡易分離法, 地球科学, 29, 20-26.

Rapid techniques for zircon separation and the application for U-Pb dating

Ippei KITANO, Yasuhito OSANAI, Nobuhiko NAKANO, Tatsuro ADACHI, Aya YOSHIMOTO

Abstract

This report provides the rapid separation techniques of zircons and an example of U-Pb dating of the zircons using LA-ICP-MS. Zircons have been commonly separated from a sample using heavy liquid. However, previous reports have pointed out the inefficiency, harmful effect and high cost of the heavy liquid method. In this report, we provide the rapid techniques for zircon separation without using heavy liquid, and procedures just before zircon analysis, including separation, hand picking, mounting, and observation under cathodoluminescence image. In the method introduced here, the zircons can be separated only for 30 minutes per one sample just by panning with a beaker and watch glass. Therefore, this method is more efficient, quicker, lower cost and safer compared with heavy liquid separation.

Keywords: The rapid techniques for zircon separation, zircon, laser ablation-inductively coupled plasma-mass spectrometry (LA-ICP-MS), Uranium-lead age (U-Pb age)