

| | |
|---------|--|
| 氏名・(本籍) | ウチダ ナ 内田 乃 (岡山県) |
| 学位の種類 | 博士(理学) |
| 学位記番号 | 甲第理110号 |
| 学位授与の日付 | 平成29年3月20日 |
| 学位授与の要件 | 学位規則第4条第1項該当(課程博士) |
| 学位論文題目 | 海底熱水性重晶石の放射非平衡年代測定 |
| 論文審査委員 | 主査 教授 豊田 新 副査 教授 蛭川 清隆 教授 西戸 裕嗣 教授 板谷 徹丸 (特定非営利活動法人地球年代学ネットワーク) 教授 石橋 純一郎 (九州大学大学院理学研究院) |

論文内容の要旨

申請者氏名 内田 乃

論文題目

海底熱水性重晶石の放射非平衡年代測定

地球、惑星の過去の環境変動を調べることは、その変動の中をどのように人類や生物が生き抜き、進化してきたか、という我々の過去を知りたいという根源的な知的好奇心のためのみではなく、将来における環境変化を予測し、いかに対応していくべきであるかを知るためにも重要な課題である。

また年代が求められると、それを実際に地質学、考古学などに応用すること、及び新たな指標を用いることで気候変動や惑星形成初期の環境の再現が可能になる。

年代測定には、岩石や化石に含まれる放射性同位体やこれらの試料に放射線によって与えられた照射効果を利用する。ここで、U系列、Th系列、 ^{40}K など自然界に存在する放射性同位体を正確に定量することが重要である。

本論文では低バックグラウンド純 Ge 半導体検出器を使用して、 γ 線分光測定を行い放射性核種の定量を行った。

低バックグラウンド純 Ge 半導体検出器を用いた測定において精度の高い定量性を確保するために U, Th, K の標準試料を作成した。U 標準試料についてはコンゴ共和国のピッチブレンドを SiO_2 に混合して作成した。Th 標準試料については硝酸トリウム四水和物を NaCl に混合して作成した。K 標準試料については KCl 試薬を固めて試料とした。

得られた γ 線スペクトルのうち、 ^{238}U の娘核種である ^{214}Pb (295, 352 keV), ^{214}Bi (610, 1120, 1765 keV), ^{232}Th の娘核種である ^{212}Pb (239, 300 keV), ^{228}Ac (338, 911, 969 keV), ^{208}Tl (583, 2614 keV), ^{212}Bi (727.2 keV), ^{40}K (1460 keV) のピーク部分のチャンネルにおけるカウント数を求めた。

ピッチブレンドを使用して作成した U の標準試料の ^{214}Bi の 1120 keV でのカウント数は、濃度に比例して増大して最小二乗法によって得られた直線にすべて乗った。他のエネルギーのピーク部分のチャンネルにおけるカウント数についても同様に濃度に比例して増大した。硝酸トリウム四水和物を使用して作成した Th 標準試料の ^{228}Ac の 969 keV でのカウント数は、U と同じように濃度に比例して増大して最小二乗法によって得られた直線にすべて乗った。他のエネルギーのピーク部分のチャンネルにお

けるカウント数についても同様に濃度に比例して増大した。

次に標準試料との比較から U, Th, K の濃度を求めた。放射平衡を仮定すると各ピーク部分のチャンネルにおけるカウント数から得られた濃度が一定となった。国立研究開発法人産業技術研究所地質調査総合センターの岩石標準試料に含まれる U, Th, K は JR-1 以外が誤差の範囲で一致した。JR-1 については流紋岩であり、採取場所によって濃度が不均一である可能性が考えられる。

以上より、正確に U, Th, K が測定できるようになったといえる。U の標準試料として今後は SiO₂ で作成された 110ppm の試料を使用すること、Th の標準試料として NaCl で作成された 125ppm の試料を使用すること、K₂O の標準試料として KCl を使用することとした。

このように定量性の確得された低バックグラウンド純 Ge 半導体検出器システムを用いて海底熱水性硫化物堆積物に含まれる重晶石の非平衡年代測定を行った。

海底熱水活動による海底地殻内から海洋への物質循環や化学物質をエネルギー源とする生態系の進化や海底熱水鉱床の形成を解明するために熱水活動の時間変動の詳細を明らかにすることは重要な課題である。

放射性同位元素の非平衡を用いて年代を得る方法は、硫化物を用いた ²³⁸U-²³⁰Th 法 (Lalou et al., 1993), バライト(BaSO₄)を用いた ²²⁶Ra-²¹⁰Pb, ²²⁸Ra-²²⁸Th 年代測定法がある。

本章は ESR 年代測定法で年代算出に使用した重晶石と同じ試料を用いて ²²⁶Ra-²¹⁰Pb, ²²⁸Ra-²²⁸Th 測定を行い、得られた年代を比較した。過去に同じ海域で得られた試料から異なる年代測定法を用いて年代を確認した例はあるが、全く同じ試料を用いて ESR 年代測定と非平衡年代測定で得られた年代を比較した例はない。

先行研究により、陸上の石油鉱床で産出する重晶石について、結晶から ²²²Rn が損失しているという報告があった。非平衡年代測定は閉鎖系を仮定しているため Rn が損失しては正しい年代が得られない。ステンレス製の容器を作成し、片側のふたを開放した状態で低バックグラウンド純 Ge 半導体検出器を用いて γ 線分光測定を 24 時間行い、²¹⁴Pb ピーク(295keV), ²¹⁴Bi ピーク(610keV)を定量した。24 時間後ふたを取り付け密閉状態にして、同様の測定を 24 時間ごとに 9 日間繰り返しピーク強度の時間変化を確認した。核種ごとの違いはなく放射能に時間変化はなく一定であることが確認できた。よって、実験中に ²²²Rn の損失はないことを確認できた。

海水熱水性重晶石について、閉鎖系が確認できたので沖縄トラフとマリアナ海峽で採取された硫化物堆積物中の重晶石を用いて非平衡年代測定を行った。

マリアナ海峽の試料については年代が古く 150 年程度までしか遡れない非平衡年代測定では年代を算出することができなかったが、沖縄トラフの鳩間海丘、伊是名海穴、与論海丘の試料については年代を算出することができた。本研究では沖縄トラフの重晶石は与論海丘>鳩間海丘>伊是名海丘と古い。

多くの試料について、年代は ESR, U-Th 年代測定法で得られた年代より非平衡年代測定法で得られた年代の方が若い。また ^{226}Ra - ^{210}Pb 年代測定法で得られた年代の方が ^{228}Ra - ^{228}Th 年代測定法で得られた年代より古い傾向が確認できた。

次のように考察した。ESR 年代は、試料平均の総被曝線量を年間線量率で割ることで年代を算出している。よって、異なる年代の試料が混ざっていた場合、それらを平均した年代となることが考えられる。一方、非平衡年代測定法については、異なる年代の試料が混ざっていた場合、若い年代の試料のほうが、親核種の減衰のために寄与が大きくなることが考えられる。

例えば、年代の異なる試料が 50%ずつ 2 種類混ざっていると仮定した場合、若い試料を 5 年古い試料を 1000 年とすると ESR 年代測定法では平均された 503 年という値が、 ^{226}Ra - ^{210}Pb 年代測定法では 2 種類の試料が寄与するので 21 年という値となり、 ^{228}Ra - ^{228}Th については 1000 年の試料は親も娘もなくなっていて寄与しないので 5 年という結果が得られる。このように非平衡年代測定法の場合は若い試料の寄与が大きい。

与論海丘(HPD#1333G07a)の試料について、90 年と 10 年の試料が 50%ずつ混ざっていると仮定すると、計算で ^{228}Ra - ^{228}Th 年代は 10 年、 ^{226}Ra - ^{210}Pb 年代は 29 年、ESR 年代は 50 年となる。実際の測定で得られた値とは誤差の範囲でだいたい一致した。

年代の一致した若い試料は 1 回の熱水活動でできた試料であると考えられる。古い試料については 2 回以上の熱水活動でできた試料である可能性がある。

また ESR 年代測定法と非平衡年代測定法を組み合わせることで、熱水活動が一度でないものがあることがわかり、海底熱水鉱床の形成過程が復元できる可能性があることが示された。

発表論文：

A. Uchida, S. Toyoda, J. Ishibashi, S. Nakai (2015) ^{226}Ra - ^{210}Pb and ^{228}Ra - ^{228}Th dating of barite in submarine hydrothermal sulfide deposits collected at the Okinawa Trough and the Southern Mariana Trough, In, J. Ishibashi, K. Okino, M. Sunamura, eds., Subseafloor Biosphere Linked to Global Hydrothermal Systems; TAIGA Concept, Springer, Tokyo.

S. Toyoda, F. Sato, A. Uchida, J. Ishibashi (2015) Immediate change of radiation doses from hydrothermal deposits, In, J. Ishibashi, K. Okino, M. Sunamura, eds., Subseafloor Biosphere Linked to Global Hydrothermal Systems; TAIGA Concept, Springer, Tokyo.

V. Varma, S. Toyoda, Y. Isono, A. Uchida, D. Banerjee, A. K. Singhvi, J. Ishibashi (2015) OSL dating of sea floor sediments at the Okinawa Trough, In, J. Ishibashi, K. Okino, M. Sunamura, eds., Subseafloor Biosphere Linked to Global Hydrothermal Systems; TAIGA Concept, Springer, Tokyo.

内田乃, 豊田新, H. Tissoux, C. Falguères, 蛭川清隆, D. Miallier (2014) Threshold 法を用いたアロカ社製 NaI(Tl)シンチレーション検出器による年間線量率の測定, ESR 応用計測, 30, 12-15.

豊田新, 内田乃, 高橋真由美 (2012) 屋外のふき取りによって検出された福島第一原子力発電所事故に伴うさいたま市民家への降下放射能, Proceedings of the 13th Workshop on Environmental Radioactivity, KEK Proceedings 2012-6, 87-92.

T. Okumura, S. Toyoda, F. Sato, A. Uchida, J. Ishibashi, and S. Nakai (2010) ESR dating of marine barite in chimneys deposited from hydrothermal vents, Geochronometria, 37, 57-61, DOI:10.2478/v10003-010-0091-z.

内田乃, 豊田新, H. Tissoux, C. Falgueres, 蛭川清隆 (2009) 低バックグラウンド純ゲルマニウム半導体検出器による地球化学標準試料中の放射性核種濃度の研究室間相互比較, ESR 応用計測, 25, 4-6.

審査結果の要旨

本論文では、低バックグラウンド純ゲルマニウム半導体ガンマ線検出器を用いて、試料からの自然放射線をエネルギー分光して定量することにより、低レベルの自然放射能を定量するシステムを構築し、産業技術総合研究所の作成した岩石標準試料を測定することによって定量性を確認した。この上で、この構築したシステムを用いて、沖縄海底熱水域を中心として海底熱水活動の年代を、硫化物堆積物中の重晶石について放射性核種の非平衡を用いて系統的に求めた。海底熱水活動の年代測定は、島嶼にある火山帯の火成活動の歴史を求められるという地球科学的側面のほか、海底と海水の間の物質循環、これらの熱水域にある生態系の進化、海底資源の評価のために重要である。

一連の研究の中で、まず、低バックグラウンド純ゲルマニウム半導体ガンマ線検出器を用いた低レベルの自然放射能の定量システムの構築をするにあたって最も重要な標準試料の作成を行った。適切な試料を選択し、試料の形状、測定条件を決め、測定方法を工夫した。作成した標準試料を用いて産業技術総合研究所の作成した岩石標準試料を測定することによって定量性を確認した。

次にこの構築したシステムを、海底熱水性重晶石の放射非平衡年代測定に応用した。この放射非平衡年代測定においては、壊変系列の中におけるラドンの漏出が問題である可能性が指摘されていたが、当該の海底熱水性重晶石においてこの問題は生じていないことを、実験を工夫して確認した。さらに、広範囲の沖縄海底熱水域の放射非平衡年代を初めて系統的に求めるとともに、多くの試料において、複数の熱水活動によって堆積物が生成したことを定量的に初めて示した。

本論文が学術的に価値があると認められること、これらの一連の研究を行う際に必要とされる高度な知識、技術を習得していること、標準試料の作成や年代測定に応用する際の問題点を工夫して解決する能力を持っていること、一連の研究成果について英文、和文で学術論文を執筆し、国内学会、国際学会で発表していること、社会において有用となる学識、倫理観を持っていると判断されること等、学位授与の基準を満たしていることを確認した。

また、これらの点をすべて整理した上で、順序立てて学位論文を執筆し、公聴会において発表を行い、質問に対する受け答えを適切に行うことができた。以上のことを認めて、最終試験に合格と判断し、学位を授与するのにふさわしいと認める。