

SHRIMP によるジルコン U-Pb 年代測定: 試料調製法及び標準試料測定結果

荒岡大輔^{1,*}・昆 慶明¹・江島輝美¹

Daisuke Araoka, Yoshiaki Kon and Terumi Ejima (2016) Zircon U-Pb dating by SHRIMP: sample preparation procedure and result of reference material measurements. *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol.67 (2), p.59-65, 3 figs, 1 table.

Abstract: U-Pb zircon dating is a useful method for determining precise ages of solidification of igneous rocks within a wide range of geological time scale. Thus, we set up SHRIMP (Sensitive High Resolution Ion MicroProbe) U-Pb zircon dating method and sample preparation procedure for SHRIMP analysis in a laboratory of the Geological Survey of Japan, AIST. First, zircons in the samples were separated effectively using SHLFRAG Lab (high voltage pulse power fragmentation), heavy liquid, and so on. The separated zircons were mounted on resin followed by polishing, Au-coating, and cathodoluminescence observation. Then, SHRIMP U-Pb ages of zircon reference materials (R33, OG1, and 91500) with Paleozoic to Eoarchean Era were determined. All dating results were corresponding to the reference ages within the analytical error, indicating that accurate SHRIMP U-Pb zircon dating could be established in AIST.

Keywords: SHRIMP, U-Pb dating, zircon

要 旨

ジルコンのU-Pb年代測定法は、火成岩の固化年代を幅広い年代で高精度に決定できる手法として有用である。そこで本研究では、高感度・高解像度イオンマイクロプローブSHRIMPを用いたジルコンのU-Pb年代測定法、およびSHRIMP測定用の試料調製法を産業技術総合研究所にて立ち上げた。まず、高電圧パルス選択性粉砕装置SELF-RAG Labや重液等を用いて岩石試料からジルコンを効率的に単離した。その後、単離したジルコンを樹脂封入し、鏡面研磨、洗浄、金蒸着、カソードルミネッセンス像の観察を行うことで、SHRIMP測定用の試料調製手順を確立させた。また、古生代から原太古代にかけての年代値をもつジルコン標準試料3種(R33, OG1, 91500)について、SHRIMPによるU-Pb年代測定を行った。全ての測定結果が先行研究の年代値と誤差範囲内で一致していたことから、産業技術総合研究所のSHRIMPにおいて正確なU-Pb年代測定法を確立できた。

1. はじめに

産業技術総合研究所地質調査総合センター地圏資源環境研究部門鉱物資源研究グループでは、金属・非金属鉱床の資源ポテンシャル評価および成因解明に関する研究を進めている。鉱化年代や鉱床タイプを決定する上

で、放射年代測定による絶対年代や鉱物・鉱液の同位体情報は有益である。そのため、本グループは2013年に二次イオン質量分析計である高感度・高解像度イオンマイクロプローブSHRIMP (Sensitive High Resolution Ion MicroProbeの略)を導入し、2014年に検出部のアップグレード(マルチコレクター化)を行った。この装置は、酸素やセシウム等の一次イオンを試料表面に照射し、発生した二次イオンを質量分析することで、試料の局所領域(〜20 μm)での元素・同位体分析を可能にしている。

SHRIMPはオーストラリア国立大学で1970年代後半から開発が始められ(Clement *et al.*, 1977)、その後Australian Scientific Instruments Ltdにより市販されている。現在は世界中で20台ほどが稼働している装置であり(堀江, 2012)、日本では広島大学に1台、極地研究所に2台、そして産業技術総合研究所に1台導入されている。SHRIMPによる代表的な成果としては、例えばカナダ北西部の片麻岩において39.6億年という当時世界最古の岩石を発見したり(Bowring *et al.*, 1989)、富山県黒部市宇奈月の花崗岩から「日本最古の砂粒」を発見するなど(Horie *et al.*, 2010)、主にジルコン粒子のU-Pb年代測定で威力を発揮している。また、近年はジルコン以外にも燐灰石やモナズ石などのU-Pb年代測定や、鉱物中の酸素同位体比などの安定同位体分析も行われている(堀江, 2012)。

SHRIMPを用いた当グループの研究目標は、鉱石への

¹産業技術総合研究所 地質調査総合センター 地圏資源環境研究部門 (AIST, Geological Survey of Japan, Research Institute for Geo-Resources and Environment)

*Corresponding author: D. Araoka, Central 7, 1-1-1 Higashi, Tsukuba, Ibaraki 305-8567, Japan. Email: d-araoka@aist.go.jp

局所軽元素同位体分析法を確立することであるが、その前段階として、SHRIMPの一般的な応用法であるジルコンのU-Pb法による放射年代測定に取り組んだ。また当グループでは合わせて、岩石試料からのジルコンの単離や、ジルコンを樹脂で封入したSHRIMP測定用試料調製法についての研究を進めてきた。そこで本論文では、測定用試料の調製方法について述べると共に、現状でのSHRIMPによるジルコン標準試料の測定結果を報告する。

2. ジルコンの U-Pb 年代測定法の概要

U-Pb年代測定法は、天然に存在するウラン(^{238}U および ^{235}U)が最終的に安定な鉛(^{206}Pb および ^{207}Pb)に放射壊変する性質を利用した放射年代測定法であり、鉱物中の $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ や $^{207}\text{Pb}/^{235}\text{U}$ から年代値が算出できる。火成岩の放射年代測定法は、角閃石や黒雲母のK-Ar法やAr-Ar法、ジルコンや燐灰石のフィッシュトラック(FT)法やU-Pb法など、様々な手法が挙げられる(兼岡, 1998)。これらの年代測定法は、閉鎖温度や適用年代範囲が異なるため、目的に応じた年代測定法を選ぶ必要がある。近年では、以下の利点を持つジルコンのU-Pb法が、火成岩の固化年代を決定する適切な年代測定法として広く認知されてきている。

閉鎖温度：ジルコンのU-Pb系の閉鎖温度は900℃以上であり(Cherniak and Watson, 2001)、斑レイ岩のソリダス温度(おおよそ900℃以下; Vielzeuf and Schmidt, 2001)や花崗岩のソリダス温度(約600℃; Johannes, 1984)に比べて高い。したがって、これら火成岩の固化年代を決定するにはU-Pb法が最適である。一方、火成岩の冷却年代を決定するためには、より低温の閉鎖温度をもつK-Ar法やAr-Ar法、FT法が有用となる。近年では、単一のジルコン粒子に対し、U-Pb法とFT法の両者を行うダブルデーティング法(例えば、伊藤ほか, 2010; 岩野ほか, 2012)により、花崗岩の固化-冷却過程の解明が進んでいる。

適用年代範囲： ^{238}U はウラン系列により半減期約45億年で ^{206}Pb へ、 ^{235}U はアクチニウム系列により半減期約7億年で ^{207}Pb へそれぞれ放射壊変する。そのため、U-Pb年代測定法の適用範囲は、地球が形成された46億年前から100万年前程度と幅広く、地球科学的に極めて有用である。また、 ^{238}U は ^{206}Pb へ、 ^{235}U は ^{207}Pb へそれぞれの半減期で放射壊変するため、ジルコン中の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ はU-Pb系の閉鎖からの経過年代によって一意に決定される。一般に、化学的挙動の近い同位体比の測定は元素比に比べて高精度であるため、特に5億年よりも古いジルコンについては $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ より計算されるPb-Pb年代によって精度良く年代が決定できる。さらに近年では、高感度の分析装置を用いて、かつU-Th放射非平衡補正計算を行うことにより、100万年よりも若いジルコンに対

しても年代決定が可能となってきた(Sakata *et al.*, 2014)。

初期鉛：U-Pb年代の算出に際しては、晶出時に結晶中に取り込まれた初期鉛の同位体比が必要になり、例えばアイソクロン法により複数の分析点から初期鉛の同位体比を評価する必要がある。しかし、多くの火成ジルコンは晶出時に取り込まれる鉛は無視できる量であるため、初期鉛の影響は少なく、1つの分析から1つの年代値が算出可能である。

複数のU-Pb年代の調和性(コンコーダンス)：測定により得られた $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ 、 $^{207}\text{Pb}/^{235}\text{U}$ 、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ より個々に計算されたU-PbおよびPb-Pb年代は、全て同一の年代値であることが期待される。一方、ジルコン晶出後の変成・変質作用により鉛が失われた場合、これらの年代値が不一致となる。したがって、U-PbおよびPb-Pb年代が一致しないジルコンを除外して計算することで、変成・変質作用による影響の少ない年代値を得ることが可能である。

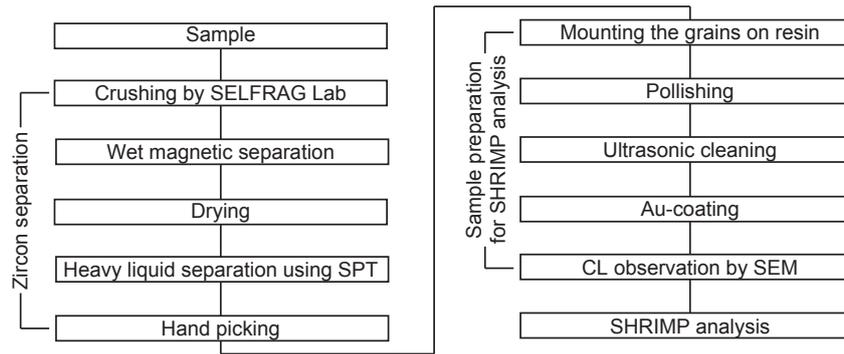
3. 試料調製法

3.1 岩石試料からのジルコンの単離

SHRIMPによるジルコンのU-Pb年代測定のために、まずは岩石試料からのジルコンの単離作業が必要となる(第1図の左の工程)。一般に、粉碎、水篩、磁選、重液分離、ハンドピック等により、ジルコン粒子が単離できる(第1図の左の工程)。檀原ほか(1992)では、ポリタングステン酸ナトリウム水溶液(SPT)を用いた重鉱物分離工程が詳細に記述されており、本稿で紹介する手法も多くの部分でこれに倣っている。

まず、試料の過粉碎と片葉粒子形成を抑制し、ジルコン回収率を向上させるため、高電圧パルス選択性粉碎装置SELFRAG Lab (SELFRAG社製)による岩石粉碎を行った。この装置は、水中に沈めた岩石試料に高電圧パルスを繰り返し照射し、試料の選択的粉碎が可能である。そのため、通常の振動ミルを用いた粉碎法に比べ目的鉱物の単体分離度が高く、鉱物分離過程での回収率の向上が期待できる。また、目的鉱物の過粉碎を防ぐため、試料は金属メッシュ上で粉碎し、メッシュの目開き(200 μm)以下まで粉碎されメッシュ下に溜まった試料を回収した。

次に、SELFRAG Labから回収した試料に対し湿式磁力選別を行った。ステンレス製の碗の裏側からネオジム磁石を近づけ、試料スラリーを碗内で回し、スラリー内から磁性鉱物を選択的に取り除いた。作業は、磁石に吸引される磁性鉱物がなくなるまで繰り返した。回収した試料には、赤外線乾燥用電球(イエスランプ 100V 500W E26)2個を用いて照射し、迅速な乾燥を行った。乾燥した非磁性鉱物から、飽和SPTを用いて重鉱物の分離を行った後、実体鏡下でジルコン粒子を手選により回収した。



第1図 SHRIMP測定用の試料調製フローチャート.

Fig. 1 A flowchart of sample preparation for SHRIMP analysis.

3.2 SHRIMP測定用の樹脂封入試料調製

単離したジルコンは、樹脂封入後に鏡面研磨、洗浄、金蒸着を行い、カソードルミネッセンス(CL)像の観察を経てSHRIMPによるU-Pb年代測定を行う(第1図の右の工程)。まず、ガラス板に両面テープを張付け、その中心部に単離したジルコン粒子およびジルコン標準試料を並べた。両面テープは、表面の平滑性に優れた特殊ポリイミドフィルムであるカプトン®(デュボン社製)を使用した。円筒型の樹脂型(内径1インチ, 30 mm, または35 mm)を両面テープに貼付け、2液混合型樹脂であるエポフィックス(Struers社製)を注ぎ、約3°Cの冷蔵庫内にて1晩放置した後、40°Cのオープン内で加熱・固化した。

樹脂の試料面出しには粒度6 μmのダイヤモンドペーストを用い、琢磨布はMD-Mol(Struers社製)を使用した。樹脂の試料面の鏡面研磨には粒度3 μm および1 μmのダイヤモンドペーストを用い、琢磨布はMD-Dur(Struers社製)を使用した。その後、沸点40~60°Cの石油ベンジン(メルクミリポア社製)、PCC-54合成洗剤(Thermo Scientific社製)、超純水の順に超音波洗浄を行い、試料表面に付着する鉛を除去した。

鏡面研磨後には試料表面の導電性を高めるため、抵抗加熱式真空蒸着器SVC-700TMSG(サンヨー電子社製)を用いて試料表面への金蒸着を行った。蒸着膜厚計SQM-160(INFICON社製)を用いて膜厚をモニターしながら、蒸着膜厚をCL像観察用に際しては70 Åに、SHRIMP測定用に際しては350 Åにそれぞれ設定して金蒸着を行った。また、CL像観察には走査型電子顕微鏡JSM-6610LV(JEOL社製)に搭載のCL検出器miniCL(Gatan社製)を用いた。

4. SHRIMP IIeによるU-Pb年代測定法

本グループ設置のSHRIMP IIeは最初の市販品であるSHRIMP IIの後継であり、各種電子機器や真空系などの

ハード面や測定オペレーションなどのソフトウェア面共に改良されているが、イオン光学系の基本構造はほぼ同じである。なお、SHRIMPの基本構造や特性は原著論文や過去の解説を参照されたい(Clement *et al.*, 1977; 日高・佐野, 1997; 堀江, 2012; Matsuda, 1974)。

SHRIMPによるU-Pb年代測定手法や測定条件はWilliams(1998)や日高・佐野(1997)などによって詳細に述べられているため、ここではSHRIMPに特有な条件などについて簡潔に記載する。U-Pb年代測定の場合には、デュオプラズマトロン内に約300 mTorrで高純度酸素ガスをリークさせ、アーク放電させて酸素イオンを発生させる。酸素イオンの中でもO₂⁻イオンのみをWienフィルターマグネットによって一次イオンとして選別し、一次イオン調整カラムにて一次イオンを収束させた後、あらかじめ試料チャンバー内にセットした測定試料に照射した。試料表面に照射される一次イオンのスポット径は、Köhlerアパーチャーにより可変であるが、今回の測定ではおよそ20 μmに設定した。生成された二次イオンを約10 kVで加速し、四重極レンズ等による二次イオン調整カラムにおいて収束させた。その後、収束された二次イオンは静電場アナライザー(ESA)およびマグネットを通過してエネルギー幅や質量数が調整され、最終的にファラデーカップおよびイオンマルチプライヤーによって検出した。

未知試料の測定の際には、試料表面をラスタリングして清浄な分析面を出した後に、設定した核種(⁹⁰Zr₂¹⁶O, ²⁰⁴Pb, ²⁰⁶Pb, ²⁰⁷Pb, ²⁰⁸Pb, ²³⁸U, ²³²Th¹⁶O, ²³⁸U¹⁶O)を測定した。また、未知試料の濃度の定量および年代値の算出は、同じ樹脂に埋め込まれた濃度および年代既知の試料を測定し参照することで行った。なお、U-Pb年代を求める際には、²⁰⁶Pb/²³⁸Uの存在比と二次イオンの強度比(²⁰⁶Pb⁺/²³⁸U⁺)の間に成り立つ以下の関係式を用いる。

$$\left(\frac{^{206}\text{Pb}}{^{238}\text{U}}\right)_{\text{未知試料}} / \left(\frac{^{206}\text{Pb}}{^{238}\text{U}}\right)_{\text{標準試料}} = \left(\frac{^{206}\text{Pb}^+}{^{238}\text{U}^+}\right)_{\text{未知試料}} / \left(\frac{^{206}\text{Pb}^+}{^{238}\text{U}^+}\right)_{\text{標準試料}}$$

ここで、SHRIMPなどの二次イオン質量分析によるU-Pb年代測定特有の注意点として、スパッタリングの際の二次イオン発生効率の違いに伴って、 $^{206}\text{Pb}^+ / ^{238}\text{U}^+$ が分析点によって大きく異なってしまうことが挙げられる。しかし、Compston *et al.* (1984)によって、 $^{206}\text{Pb}^+ / ^{238}\text{U}^+$ の変動が $^{238}\text{U}^{16}\text{O}^+ / ^{238}\text{U}^+$ の関数として近似できることが経験的に見いだされている。そこで、標準試料を複数回測定し $^{206}\text{Pb}^+ / ^{238}\text{U}^+$ と $^{238}\text{U}^{16}\text{O}^+ / ^{238}\text{U}^+$ との関係式を得た後、未知試料の $^{206}\text{Pb}^+ / ^{238}\text{U}^+$ と $^{238}\text{U}^{16}\text{O}^+ / ^{238}\text{U}^+$ を測定することで、未知試料の $^{206}\text{Pb} / ^{238}\text{U}$ の存在比を正確に求めることができる(Williams, 1998)。一方、Pb-Pb年代については測定値($^{207}\text{Pb}^+ / ^{206}\text{Pb}^+$)が鉛同士の二次イオン強度比であるため、スパッタリング時の分別が少ないことから、 $^{207}\text{Pb}^+ / ^{206}\text{Pb}^+$ の測定値をそのまま用いて年代値を算出可能である。

5. 標準試料のU-Pb年代測定結果

設定した測定条件におけるU-Pb年代測定結果の確度・精度を検証するため、年代既知のジルコン標準試料3種(R33, OG1, 91500)を未知試料として繰り返し測定を行った。未知試料のウラン濃度の定量には、ウラン濃度が238 ppmで均質なジルコン標準試料であるSL13を用いた。測定時の参照試料には、別の年代既知のジルコン標準試料であるTEMORA 1またはTEMORA 2を用いた。測定結果からのU-Pb・Pb-Pb年代値の算出にはSQUID 2(Ludwig, 2009)を用いた。また、年代結果の加重平均値の算出およびコンコーディア図の作成にはIsoplot 3(Ludwig, 2003)を使用した。標準試料のU-Pb・Pb-Pb年代値は、 ^{204}Pb で補正した値を採用し、コンコーディア線から外れた値は除外して年代の加重平均値を計算した。ここで、ジルコン標準試料R33, OG1, 91500, SL13, TEMORA 1・2はそれぞれ、アメリカ・バーモント州ブランイントリー複合岩体中のモンゾ閃緑岩のジルコン(Black *et al.*, 2004)、オーストラリア西部マウントエドガー複合岩体中の石英閃緑岩のジルコン(Stern *et al.*, 2009)、カナダ・オンタリオ州クール湖で採取されたジルコン単結晶(Wiedenbeck *et al.*, 1995; Wiedenbeck *et al.*, 2004)、 $^{206}\text{Pb} / ^{238}\text{U}$ 値および感度調整用に広く用いられているスリランカ産のジルコン巨晶(Compston *et al.*, 1992; Roddick and van Breemen, 1994; Lee *et al.*, 1997)、オーストラリア西部ラクラン造山帯 Middledale Gabbroic Diorite貫入岩体中のジルコンである(Black *et al.*, 2003; Black *et al.*, 2004)。また、年代値にはそれぞれ419.3 Ma(Black *et al.*, 2004)、3465 Ma(Stern *et al.*, 2009)、1065 Ma(Wiedenbeck *et al.*, 1995)、572 Ma(Compston *et al.*, 1992; Roddick and van Breemen, 1994; Lee *et al.*, 1997)、416.75 Ma(TEMORA 1: Black *et al.*, 2003)および416.78 Ma(TEMORA 2: Black *et al.*, 2004)が提唱されている。

標準試料のU-Pb・Pb-Pb年代測定結果は第1表の通り

となり、3種類の標準試料とも測定結果はすべて先行研究の年代値の誤差範囲内となった。また、各測定回における個々の年代値もすべて先行研究の年代値の誤差範囲内であった(第2図)。さらに、各測定回におけるコンコーディア図では、個々の測定結果が全てコンコーディア線における先行研究の年代値部分にプロットされることから、U-Pb年代、Pb-Pb年代共に正確な年代値が算出できていることが確かめられた(第3図)。よって、本手法により古生代から原太古代にかけての幅広い年代範囲で正確な測定が行えていることが確かめられた。一方で、SHRIMPによる先行研究結果と比較して測定精度は劣っており、今後は試料の表面状態や装置のチューニング方法などの改善による精度向上が課題となっている。また、本研究で測定した標準試料は全て古生代以前の年代値をもつジルコンであるため、今後はOD-3(年代値: 33.0 Ma; Iwano *et al.*, 2013)などの比較的若い年代値をもつジルコン標準試料に対しても検討が必要であろう。

6. まとめと展望

産業技術総合研究所に導入されたSHRIMPを用いて、ジルコンのU-Pb年代測定法の立ち上げた。合わせて、岩石試料からのジルコンの単離や、SHRIMP測定用の樹脂封入試料調製法を立ち上げた。ジルコン標準試料3種のU-Pb年代測定の結果、古生代から原太古代にかけての幅広い年代範囲で正確な測定が行えることが確かめられた。今後、これらの試料調製法および測定条件によって効率的なU-Pb年代測定が可能となるが、年代測定精度の向上や、より若い年代範囲での測定方法などさらなる検討が必要である。また、本装置はマルチコレクター化によって高精度での局所安定同位体分析も可能であるため、今後は安定同位体用標準試料の作成も含めた分析法の確立を行っていく予定である。

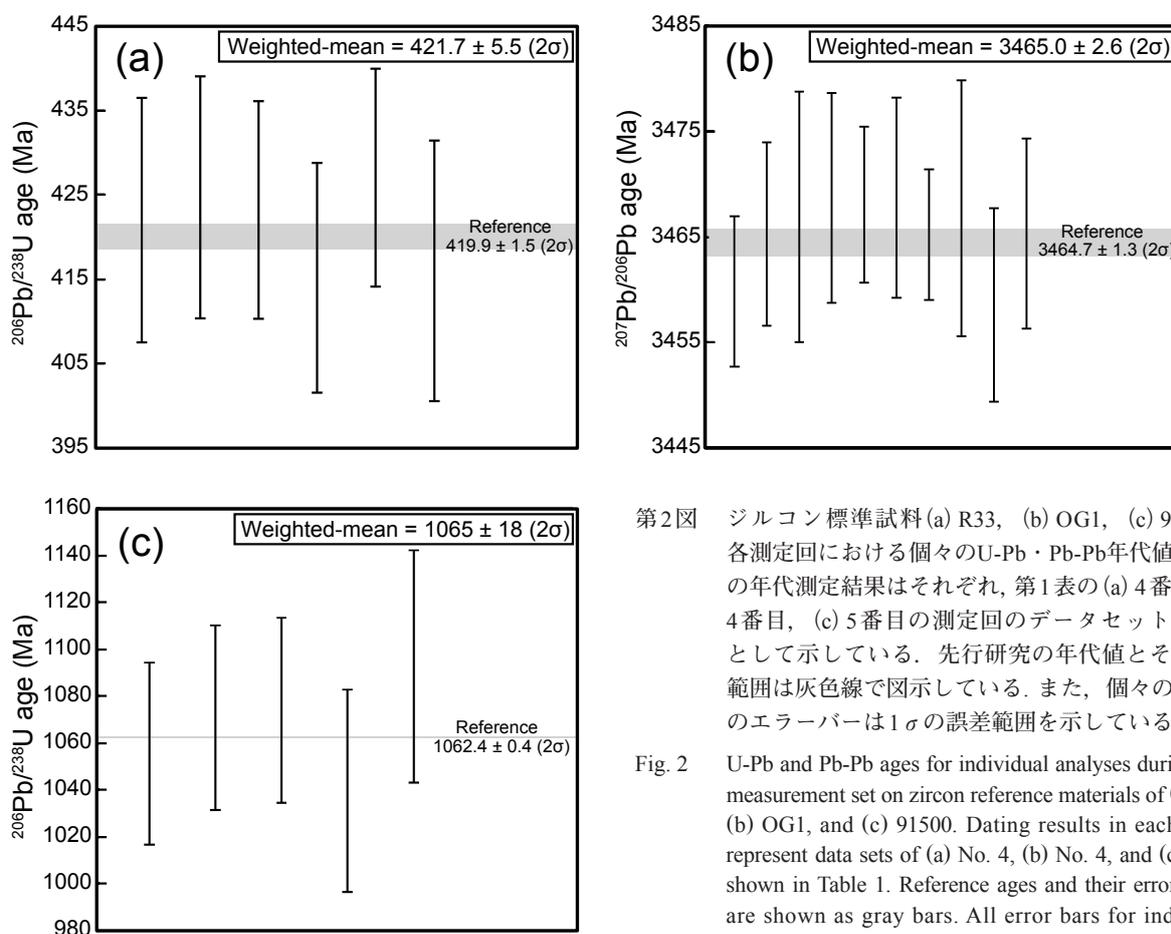
謝辞: Charles Magee Jr.氏, Ian S. Williams氏, およびJohn Hyder氏をはじめとするAustralian Scientific Instruments Ltd.のメンバーには、SHRIMPのセットアップをはじめ、分析手法や装置のメンテナンスに関する各種レクチャーをしていただきました。地質情報研究部門資源テクニクス研究グループの下田 玄博士および地圏資源環境研究部門鉱物資源研究グループの高木哲一博士には、SHRIMPのセットアップに関してご助力いただきました。地質情報基盤センター地質試料調製グループの皆様には、樹脂封入試料の作製に関して技術指導をいただきました。編集担当委員の地質情報研究部門海洋環境地質研究グループの鈴木 淳博士、および匿名の査読者からは、本稿を改善するための有益な指摘をいただきました。本研究を行うにあたり、地圏資源環境研究部門による平成26年度研究力強化のための競争グラント(課題名: SHRIMP

第1表 SHRIMPによるジルコン標準試料のU-Pb・Pb-Pb年代測定結果

Table 1 Result of U-Pb and Pb-Pb dating of zircon reference materials by SHRIMP.

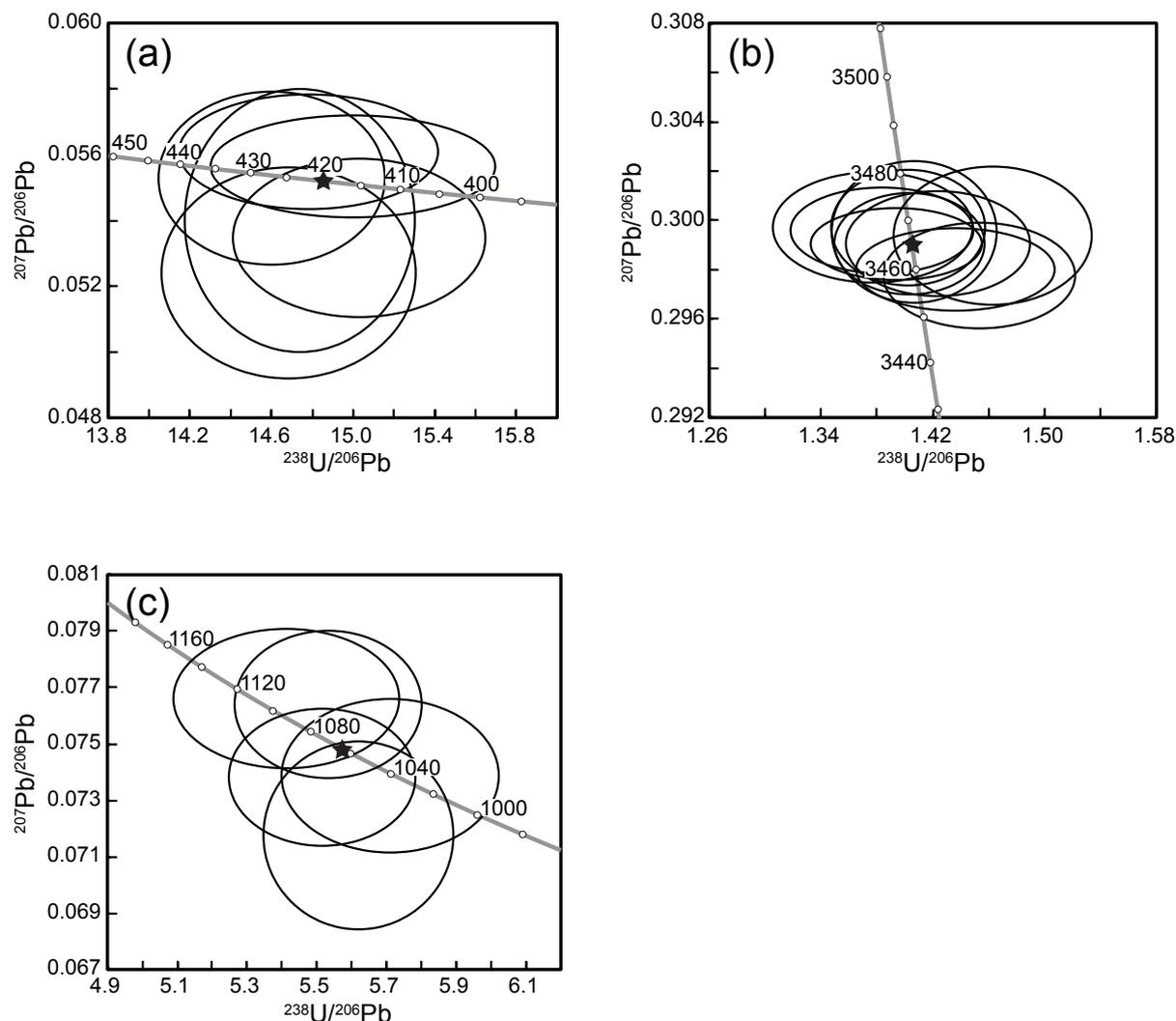
Data set	R33		OG1		91500	
	Weighted-mean $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U} \pm 2\sigma$ age	Number of spots	Weighted-mean $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb} \pm 2\sigma$ age	Number of spots	Weighted-mean $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U} \pm 2\sigma$ age	Number of spots
This study						
1	417.0 \pm 3.3 Ma	21				
2	417.9 \pm 3.8 Ma	16	3466.7 \pm 1.7 Ma	30		
3			3468.2 \pm 3.1 Ma	4		
4	421.7 \pm 5.5 Ma	6	3465.0 \pm 2.6 Ma	10		
5	420.8 \pm 9.7 Ma	3			1065 \pm 18 Ma	5
6	415.9 \pm 5.8 Ma	10	3464.7 \pm 4.5 Ma	9		
7			3464.6 \pm 2.5 Ma	9		
Reference ^a	419.9 \pm 1.5 Ma	–	3464.7 \pm 1.3 Ma	–	1062.4 \pm 0.4 Ma	–

^aReferences are as follows: R33, Black *et al.* (2004); OG1, Stern *et al.* (2009); 91500, Wiedenbeck *et al.* (1995). Ages on R33 and OG1 were determined by SHRIMP; age on 91500 was determined by Isotope Dilution-Thermal Ionisation Mass Spectrometry (ID-TIMS).



第2図 ジルコン標準試料(a) R33, (b) OG1, (c) 91500の各測定回における個々のU-Pb・Pb-Pb年代値. 各図の年代測定結果はそれぞれ, 第1表の(a) 4番目, (b) 4番目, (c) 5番目の測定回のデータセットを代表として示している. 先行研究の年代値とその誤差範囲は灰色線で図示している. また, 個々の年代値のエラーバーは1σの誤差範囲を示している..

Fig. 2 U-Pb and Pb-Pb ages for individual analyses during each measurement set on zircon reference materials of (a) R33, (b) OG1, and (c) 91500. Dating results in each figure represent data sets of (a) No. 4, (b) No. 4, and (c) No. 5 shown in Table 1. Reference ages and their error ranges are shown as gray bars. All error bars for individual analyses represent $\pm 1\sigma$ precision.



第3図 ジルコン標準試料 (a) R33, (b) OG1, (c) 91500 の $^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$ – $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ コンコーディア図. 各図の年代測定結果はそれぞれ、第1表の (a) 4番目, (b) 4番目, (c) 5番目の測定回のデータセットを代表として示している. 灰色線は $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ および $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ から計算される年代値が一致する線 (コンコーディア線) であり, その年代値を併記している. 星形の点は, コンコーディア線における先行研究の年代値部分を表す. 全ての楕円は 1σ の誤差範囲を示している.

Fig. 3 $^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$ – $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ concordia diagrams for zircon reference materials of (a) R33, (b) OG1, and (c) 91500. Dating results in each figure represent data sets of (a) No. 4, (b) No. 4, and (c) No. 5 shown in Table 1. Gray lines mean concordia curves determined by $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ and $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ ages. Reference ages on concordia curves are shown as black stars. All ellipses for individual analyses represent $\pm 1\sigma$ precision.

による局所マルチ同位体分析技術の開発)を使用しました. ここに深く感謝いたします.

文献

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. *Chem. Geol.*, **200**, 155–170.

Black, L. P., Kamo, S. L., Allen, C. M., Davis, D. W., Aleinikoff, J. N., Velley, J. W., Mundil, R., Campbell, I. H., Korsch, R. J., Williams, I. S. and Foudoulis, C. (2004) Improved $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ microprobe geochronology by the monitoring of a trace-element-related matrix effect; SHRIMP, ID-TIMS, ELA-ICP-MS and oxygen isotope documentation for a series of zircon standards. *Chem. Geol.*, **205**, 115–140.

Bowring, S. A., Williams, I. S. and Compton, W. (1989)

- 3.96 Ga gneisses from the Slave province, Northwest Territories, Canada. *Geology*, **17**, 971–975.
- Cherniak, D. J. and Watson. (2001) Pb diffusion in zircon. *Chem. Geol.*, **172**, 5–24.
- Clement, S., Compston, W. and Newstead, G. (1977) The design of a large, high resolution ion microprobe. *Proc. Int. Conf. on SIMS*.
- Compston, W., Williams, I. S. and Meyer, C. (1984) U-Pb geochronology of zircons from lunar breccia 73217 using a sensitive high mass resolution ion microprobe. *J. Geophys. Res. Suppl.*, **89**, B525–B534.
- Compston, W., Williams, I. S., Kirschvink, J. L., Zichao, Z. and Guogan, M. (1992) Zircon U-Pb ages for the Early Cambrian time-scale. *J. Geol. Soc.*, **149**, 171–184.
- 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.
- 日高 洋・佐野有司 (1997) 高感度・高分解能イオンマイクロプローブ (SHRIMP) を用いた地球惑星科学. *地球化学*, **31**, 1–16.
- 堀江憲路 (2012) 高感度高分解能イオンマイクロプローブ (SHRIMP II) を用いたU-Pb同位体年代分析. *フィッシュン・トラック ニュースレター*, **25**, 32–34.
- Horie, K., Yamashita, M., Hayasaka, Y., Katoh, Y., Tsutsumi, Y., Katsube, A., Hidaka, H., Kim, H. and Cho, M. (2010) Eoarchean-Paleoproterozoic zircon inheritance in Japanese Permo-Triassic granites (Unazuki area, Hida Metamorphic Complex): Unearthing more old crust identifying source terranes. *Precambrian Res.*, **183**, 145–157.
- 伊藤久敏・田村明弘・森下知晃・荒井章司 (2010) 野島断層およびその周辺の花崗岩質岩から得られたジルコンのU-PbおよびFT年代— LA-ICP-MSによるU-Pb年代測定法の新たな展望—. *地質学雑誌*, **116**, 544–551.
- 岩野英樹・折橋裕二・檀原 徹・平田岳史・小笠原正継 (2012) 同一ジルコン結晶を用いたフィッシュン・トラックとU-Pbダブル年代測定法の評価—島根県川本花崗岩閃緑岩中の均質ジルコンを用いて—. *地質学雑誌*, **118**, 365–375.
- Iwano, H., Orihashi, Y., Hirata, T., Ogasawara, M., Danhara, T., Horie, K., Hasebe, N., Sueoka, S., Tamura, A., Hayasaka, Y., Katsube, A., Ito, H., Tani, K., Kimura, J., Chang, Q., Kouchi, Y., Haruta, Y. and Yamamoto K. (2013) An inter-laboratory evaluation of OD-3 zircon for use as a secondary U-Pb dating standard. *Isl. Arc*, **22**, 382–394.
- Johannes, W. (1984) Beginning of melting in the granite system Qz-Or-Ab-An-H₂O. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **86**, 264–273.
- 兼岡一郎 (1998) 年代測定概論. 東京大学出版会, 東京, 315p.
- Lee, J. K. W., Williams, I. S. and Ellis, D. J. (1997) Pb, U and Th diffusion in natural zircon. *Nature*, **390**, 159–162.
- Ludwig, K. (2003) User's manual for Isoplot 3.00. *Berkeley Geochron. Ctr. Spec. Pub.*, **4**, 70p.
- Ludwig, K. (2009) SQUID 2: a user's manual, rev. 12 Apr. 2009. *Berkeley Geochron. Ctr. Spec. Pub.*, **5**, 110p.
- Matsuda, H. (1974) Double focusing mass spectrometers of second order. *Int. J. Mass Spect. Ion Phys.*, **14**, 219–233.
- Roddick, J. C. and van Breemen, O. (1994) U-Pb dating: A comparison of ion microprobe and single grain conventional analyses. *Radiogenic Age and Isotope Studies: Report 8; Geological Survey of Canada Current Research, 1994-F*, 1–9.
- Sakata, S., Hattori, K., Iwano, H., Yokoyama, T. D., Danhara, T. and Hirata, T. (2014) Determination of U-Pb Ages for Young Zircons using Laser Ablation-ICP-Mass Spectrometry Coupled with an Ion Detection Attenuator Device. *Geostand. Geoanal. Res.*, **38**, 409–420.
- Stern, R. A., Bodorkos, S., Kamo, S. L., Hickman, A. H. and Corfu, F. (2009) Measurements of SIMS instrumental mass fractionation of Pb isotopes during zircon dating. *Geostand. Geoanal. Res.*, **33**, 145–168.
- Vielzeuf, D. and Schmidt, M. W. (2001) Melting relations in hydrous systems revisited: application to metapelites, metagreywackes and metabasalts. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **141**, 251–267.
- Wiedenbeck, M., Alle, P., Corfu, F., Griffin, W. L., Meier, M., Oberl, F., Quadt, A. V., Roddick, J. C. and Spiegel, W. (1995) Three natural zircon standards for U-Th-Pb, Lu-Hf, trace element and REE analyses. *Geostand. Newslett.*, **19**, 1–23.
- Wiedenbeck, M., Hanchar, J. M., Peck, W. H., Sylvester, P., Valley, J., Whitehouse, M., Kronz, A., Morishita, Y., Nasdala, L., Fiebig, J., Franchi, I., Girard, J. P., Greenwood, R. C., Hinton, R., Kita, N., Mason, P. R. D., Norman, M., Ogasawara, M., Piccoli, P. M., Rhede, D., Satoh, H., Schulz-Dobrick, B., Skår, Ø., Spicuzza, M. J., Terada, K., Tindle, A., Togashi, S., Vennemann, T., Xie, Q. and Zheng, Y. F. (2004) Further characterisation of the 91500 zircon crystal. *Geostand. Geoanal. Res.*, **28**, 9–39.
- Williams, I. S. (1998) U-Th-Pb geochronology by ion microprobe. In McKibben, M. A., Shanks III, W. C. and Ridley, W. I., eds., *Applications of microanalytical techniques to understanding mineralizing processes*, Rev. Econ. Geol., **7**, 1–35.

(受付 : 2016年2月17日 ; 受理 : 2016年5月9日)

