

[19009]

## 熱水生成鉱物起源 ESR 信号のガンマ線照射効果と断層年代測定への応用その 1

### Gamma-irradiation Effect on ESR Signals Derived from Hydrothermal Minerals and Its Application to Fault Dating Part 1

福地龍郎<sup>#,A)</sup>

Tatsuro Fukuchi <sup>#,A)</sup>

<sup>A)</sup> Faculty of Education, Graduate Faculty of Interdisciplinary Research, University of Yamanashi

#### Abstract

A new dating method is needed to evaluate the activity of faults in the region with unclear tectonic landform or without Quaternary overlying sediments. The ESR (electron spin resonance) dating technique is an applicable dating method to hydrothermal minerals in fault gouge formed by faulting. I carried out hydrothermal reaction experiments for 1-2 weeks under 240°C using the Nojima granite powder sample and detected FMR (ferrimagnetic resonance) signal derived from ferrimagnetic mineral newly generated in the hydrothermal reaction material. The characteristic of this FMR signal is the same as those detected from fault gouge subjected to natural hydrothermal reaction by seismic frictional heating. Gamma irradiation experiments show that the FMR signal increases with radiation dose although at this stage it is unclear whether the FMR signal is applicable to fault dating or not. On the other hand, the E' center intrinsic to quartz increases and is saturated due to heating during the hydrothermal reaction, however it decays by gamma irradiation. Moreover, the Al and Ti centers derived from impurity lattice defects in quartz, which are available for ESR dating, decay after the hydrothermal reaction and increase with gamma irradiation. These results indicate that the state of saturation of the E' center and the formation of FMR signal are available to the judgement of the resetting state of the Al and Ti centers by frictional heating.

**Keyword:** ESR dating, quartz, radical center, FMR signal, Nojima granite, active fault, smectite

#### 1. はじめに

2018 年大阪府北部の地震 (M6.1) や 2018 年北海道胆振東部地震 (M6.7) など、未知の活断層を震源とする最大震度 6 弱~7 の地震が近年頻発しており、未認定活断層の活動性評価の重要性が益々高まっている。現在、断層活動性評価法として最も活用されている上載地層法は、放射性炭素 14 法による年代測定可能な有機物が断層母岩や上載地層に含まれていない場合や有機物の年代が 6 万年よりも古い場合には適用することはできず、上載地層法以外の断層活動性評価法の開発が期待されている。

ESR 年代測定法 (ESR 法) は、断層母岩に含まれる鉱物中の ESR 信号が断層摩擦熱によりリセットされることを前提として断層活動の絶対年代を求める断層活動性評価法であるが、地表付近の断層活動では断層摩擦熱があまり上昇せず、ESR 信号のリセットが実現しないため、実際の活動年代よりも古い年代値が得られてしまうという問題点がある<sup>[1-3]</sup>。そこで本研究 (研究期間: 令和元年度~3 年度) では、断層破碎作用に伴う熱水反応で生成される鉱物起源の ESR 信号のガンマ照射効果を調べ、断層活動年代測定への適用の可能性を検討することを目的とする。

#### 2. 研究結果

##### 2.1 熱水反応実験

令和元年度 (2019 年度) は、野島断層岩 (断層ガウジ) の源岩である野島花崗岩試料を用いた予備的な熱水反応実験を行った。野島花崗岩を粉末状にすり潰した試料を純水と共に熱水反応容器に入れ、

240°C で 1~2 週間の熱水反応実験を行った。熱水反応前後の試料から検出される X 線回折 (XRD) パターンを Fig.1 に示す。X 線回折分析は、山梨大学機器分析センターの Rigaku 製全自動多目的 X 線回折装置 SmartLab を使用して行った。熱水反応後の試料からは、粘土鉱物であるスメクタイトの微弱な XRD ピークが検出されている。加熱期間 1 週間と 2 週間の

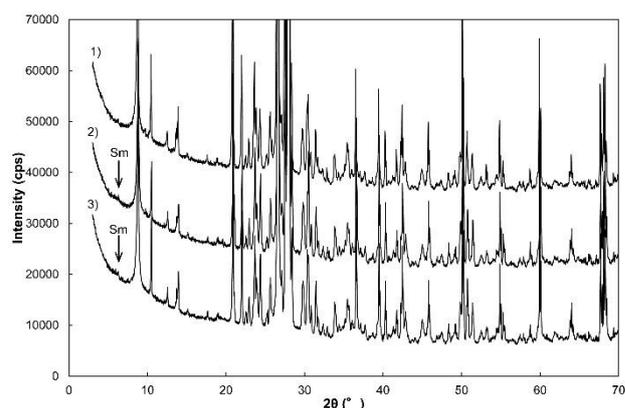


Figure 1. X-ray diffraction patterns obtained from the Nojima granite powder and the hydrothermal reaction samples. 1) Nojima granite powder, 2) sample heated for one week at 240°C, 3) sample heated for two weeks at 240°C. Measurement conditions are as follows: Target Cu, Voltage and current 40kV 30mA, Goniometer Rigaku SmartLab (Inplane), Detector D/teX Ultra, Scan speed 2°/min., Scan step 0.02°. Sm: smectite.

[19009]

試料から得られる XRD ピークを比較すると、加熱期間 2 週間の試料でピーク強度が幾分大きくなっているが、著しい増大は認められなかった。

## 2.2 ガンマ線照射実験

野島花崗岩粉末試料及び熱水反応試料から検出される ESR スペクトルとガンマ線照射による ESR スペクトルの変化を Fig.2~4 に示す。ガンマ線照射は、高崎量子応用研究所食品照射棟 2 セルにおいて、線量率 9.16 C/kg/h で実施した。ESR 測定には、山梨大学大学院総合研究部教育学域科学教育講座福地研究室の日本電子製電子スピン共鳴装置 (JEOL RE3X) を使用した。測定条件は以下の通りである。測定温度: RT (室温) あるいは 77K (液体窒素温度), マイクロ波周波数: 9.11 あるいは 9.44 GHz, マイクロ波出力 1 mW, 変調磁場: 100 kHz 0.05 mT, 応答時間: 0.3 s, 磁場掃引速度: 8 min./scan, コンピュータ積算回数 3 回。

掃引磁場範囲 0~800mT で検出される ESR スペクトルを Fig.2 に示す。野島花崗岩粉末試料からは反磁性効果によると思われる下に凸の大きな吸収が現れた他、常磁性 Fe<sup>3+</sup> イオンの信号が検出された (Fig.2A)。なお、スペクトルの中央に検出され常磁性 Mn<sup>2+</sup> イオンの 6 本の信号は、信号強度を比較するためのマンガマーカである。

これに対して、240°C で 1~2 週間熱水反応を行った熱水反応試料からは、反磁性効果による吸収は弱くなり、常磁性 Fe<sup>3+</sup> イオンの信号の他に、フェリ磁性鉱物起源のフェリ磁性共鳴 (FMR) 信号が検出された<sup>[4]</sup> (Figs.2B and 2C)。従って、熱水反応により試料中にフェリ磁性鉱物が新たに形成されたこととなるが、XRD 分析では多数の鉱物のピークが重なり、フェリ磁性鉱物のピークを確認することは出来なかった (Fig.1)。熱水反応で新たに生成された FMR 信号は、天然の断層作用による摩擦熱で熱水反応が進行した断層ガウジ試料 (例えば、台湾チェルンブ断層の深部掘削コア試料など) から検出される FMR 信号と同じ特徴をしていることが今回判明した<sup>[4]</sup>。また、常磁性 Fe<sup>3+</sup> イオンの信号強度については、熱水反応前後で特に変化は認められず、熱水反応実験中に酸化反応は進行しなかったことが分かる。

熱水反応前後の試料に対して、ガンマ線照射前と照射後の ESR スペクトルを比較した。その結果、熱水反応前の野島花崗岩粉末試料ではガンマ線照射による変化は特に認められなかったのに対し、熱水反応後の試料ではガンマ線照射後の FMR 信号がいずれも増大していることが判明した (Fig.2)。また、常磁性 Fe<sup>3+</sup> イオンの信号強度は、全ての試料でガンマ線照射による変化は認められなかった。

次に、掃引磁場範囲 331~342mT で検出される ESR スペクトルを見ると、野島花崗岩粉末試料から検出されなかった石英 E' 中心の信号が、熱水反応後の試料から検出されることが判明した (Fig.3)。石英 E' 中心には、機械的剪断作用によって石英結晶表面に

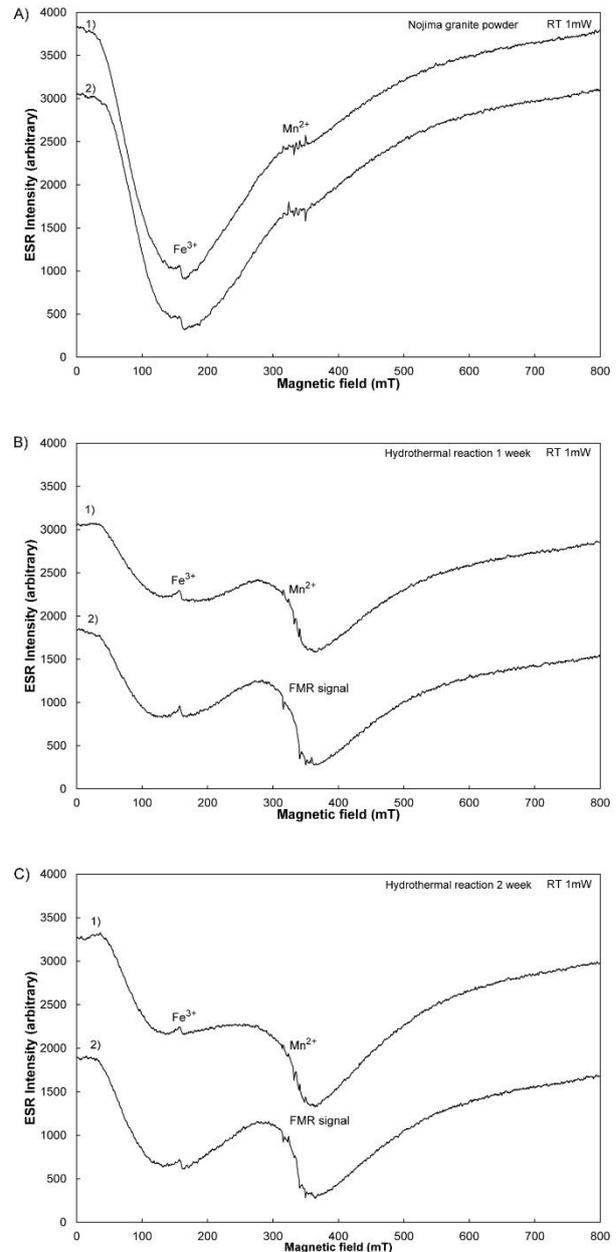


Figure 2. ESR spectra obtained from the Nojima granite powder and the hydrothermal reaction samples before and after gamma-rays irradiation. A) Nojima granite powder, B) sample heated for one week at 240°C, C) sample heated for two weeks at 240°C. The radiation dose is 0 Gy (1) and 3.7643 kGy (2), respectively. The Mn<sup>2+</sup> ion signal is derived from a manganese marker. Measurement conditions are as follows: Microwave frequency 9.44 GHz, Microwave power 1mW, Measurement temperature room temperature, Modulation width 100kHz 0.05 mT, Response 0.3 s, Sweep width 0-800 mT, Scan speed 8 min./scan., Computer accumulation 3 times.

[19009]

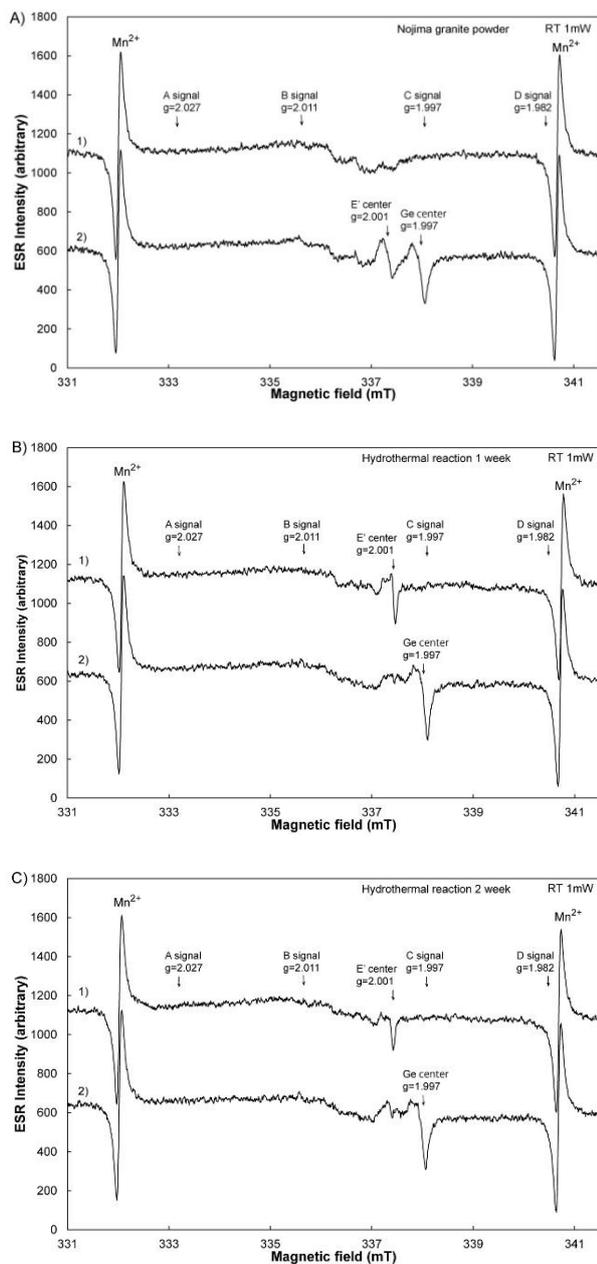


Figure 3. ESR spectra obtained from the Nojima granite powder and the hydrothermal reaction samples before and after gamma-rays irradiation. A) Nojima granite powder, B) sample heated for one week at 240°C, C) sample heated for two weeks at 240°C. The radiation dose is 0 Gy (1) and 3.7643 kGy (2), respectively. The  $Mn^{2+}$  signal is derived from a manganese marker. The measurement condition is as follows: Microwave frequency 9.44 GHz, Microwave power 1mW, Measurement temperature room temperature, Modulation width 100kHz 0.05 mT, Response 0.3 s, Sweep width 331-342 mT, Scan speed 8 min./scan., Computer accumulation 3 times.

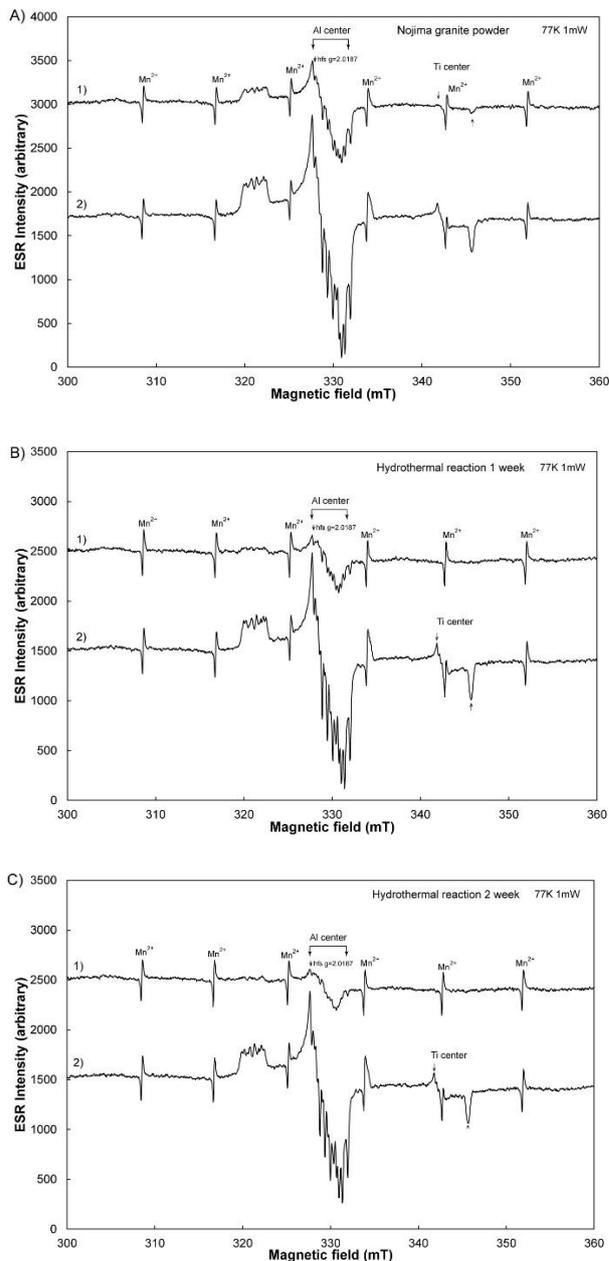


Figure 4. ESR spectra obtained from the Nojima granite powder and the hydrothermal reaction samples before and after gamma-rays irradiation. A) Nojima granite powder, B) sample heated for one week at 240°C, C) sample heated for two weeks at 240°C. The radiation dose is 0 Gy (1) and 3.7643 kGy (2), respectively. The  $Mn^{2+}$  signal is derived from a manganese marker. The measurement condition is as follows: Microwave frequency 9.11 GHz, Microwave power 1mW, Measurement temperature 77K, Modulation width 100kHz 0.05 mT, Response 0.3 s, Sweep width 300-360 mT, Scan speed 8 min./scan., Computer accumulation 3 times.

[19009]

形成される surface E'中心と石英結晶内部で酸素原子のノックオンにより形成される E<sub>1</sub>'中心の2種類が存在する<sup>[1]</sup>。surface E'中心は加熱により規則的に減衰して行くのに対し、E<sub>1</sub>'中心は加熱により一旦増大した後に減衰して行くことが知られている<sup>[1]</sup>。今回の熱水反応後の試料ではいずれもE'中心は増大しており、E<sub>1</sub>'中心が存在することを示しているが、ガンマ線照射で減衰していることから、E<sub>1</sub>'中心の信号強度は熱水反応により既に飽和していると考えられる(Figs.3B and 3C)。これに対し、熱水反応前の野島花崗岩粉末試料ではガンマ線照射によりE'中心が出現・増大している(Fig.3A)。E'中心はガンマ線照射により増大する場合と減衰する場合があり、信号の飽和状態によりガンマ線照射に対する挙動は異なるので、年代測定に用いる際には注意が必要である。

Fig.3では、全ての試料でガンマ線照射後に石英Ge中心(g=1.997)が検出されているが、Ge中心は天然状態では検出されないことが多く、年代測定に用いる際には注意が必要である。また、今回の熱水反応試料からは、ESR年代測定に使用できるスメクタイトの一種であるモンモリロナイトに固有の四重信号(Fig.3中のA~D signal)がガンマ線照射後も検出されていない<sup>[1]</sup>。X線回折分析によると、スメクタイトのXRDピークは微弱であり、熱水反応により生成されたスメクタイトの量が少ないために四重信号が検出されなかったと考えられる(Fig.1)。

Fig.4には、77Kの低温下において掃引磁場範囲300~360mTで各試料から検出されるESRスペクトルを示す。全ての試料から年代測定に利用できる石英の不純物ラジカル信号であるAl中心とTi中心<sup>[1]</sup>が検出され、両信号とも熱水反応により減衰していることが確認できる。また、熱水反応後の試料では、ガンマ線照射により、野島花崗岩粉末試料と同程度まで信号強度が回復・増大しており、両信号とも断層年代測定に有効であることが分かる。

### 3. 考察及び今後の課題

今回、天然の断層ガウジから検出されるフェリ磁性鉱物起源のFMR信号を、野島花崗岩粉末試料を用いた熱水反応実験により再現することができた。また、ガンマ線照射実験の結果、FMR信号の信号強度がガンマ線照射により増大することが判明した。FMR信号強度の増大が年代測定に使用できるかどうかは現時点では不明であり、今後更に詳細な熱水反応実験及びガンマ線照射実験が必要である。

石英E'中心は、熱水反応により増大し、ガンマ線照射により減衰することが確認できた。石英E'中心は年代測定に使用されることも多いが、ガンマ線照射により減衰する場合は、E'中心の信号強度が飽和している可能性が高いので、注意が必要である。また、E'中心が加熱により飽和している時には、石英Al中心やTi中心は大きく減衰あるいは消滅していることから、E'中心の飽和状態を調べることにより、ESR信号の断層摩擦熱によるリセット状態を判定で

きる可能性がある。

熱水反応によりFMR信号が生成される場合には、石英Al中心やTi中心が大きく減衰あるいは消滅していることから、FMR信号生成の有無もE'中心の飽和状態と同様に、ESR信号のリセット状態の判定に利用できる可能性がある。なお、Al中心とTi中心は断層年代測定に有効であると考えられるが、地下深部における信号の安定性については不明な点も多い。今後、より低温状態(100~200°C)における熱水反応実験を行い、両信号の安定性を調べる必要がある。

今回実施した熱水反応実験による反応試料からは、粘土鉱物であるスメクタイトや年代測定に利用できるモンモリロナイト四重信号は検出されなかった。今後、熱水鉱物の生成を促進するために加熱期間や加熱温度を更に大きくした反応実験や熱水鉱物が生成し易いpH条件下での反応実験を行う必要がある。

### 4. 謝辞

本研究で実施したガンマ線照射では、高崎量子応用研究所の八木紀彦氏及び山縣諒平氏、大学開放研究室の大工原和子氏に大変お世話になった。以上の方々に深く感謝する。

### 参考文献

- [1] 福地龍郎 (2004) ESR法による断層活動年代測定—その原理と実践—。深田研ライブラリー, No.63, 45pp.
- [2] 福地龍郎 (2015) ESR年代測定法による断層活動性評価。日本地球惑星科学連合 2015年大会講演要旨, SGL39-01.
- [3] T. Fukuchi & N. Imai (1998) *In: Parnell, J. (ed.) Dating and Duration of Fluid Flow and Fluid-Rock Interaction. Geological Society, London, Special Publications, Vol.144, p.261-277.*
- [4] T. Fukuchi (2012) ESR techniques for the detection of seismic frictional heat. *In: D'Amico Sebastiano (ed.) Earthquake Research and Analysis: Seismology, Seismotectonics and Earthquake Geology. InTech-Open Access Publisher, Chapter 16, p.285-308.*