

[2024202001]

ESR 信号強度を利用した石英の供給源、熱履歴の推定 Estimation of Quartz Provenance and Thermal History using ESR Signal Intensity

多田賢弘^{A)}, 多田隆治^{A, B)}, Paul A. Carling^{C)}, Wickanet Songtham^{D)}
Toshihiro Tada^{A)}, Ryuji Tada^{A, B)}, Paul A. Carling^{C)}, Wickanet Songtham^{D)}

A) Institute for Geo-Cosmology, Chiba Institute of Technology

B) Department of Earth and Planetary Science, Graduate School of Science, The University of Tokyo,

C) Geography and Environment, University of Southampton,

D) Northeastern Research Institute of Petrified Wood and Mineral Resources, Nakhon Ratchasima Rajabhat University

Abstract

The Electron Spin Resonance (ESR) signal intensity of quartz reflects the concentration of paramagnetic defects, especially oxygen vacancies, which are induced by natural radiation and reduced by heating above 430°C. Additionally, quartz crystallinity serves as an indicator of formation temperature, crystallization rate, and subsequent thermal history. In this study, these ESR and crystallinity measurements were applied to investigate the thermal history of ejecta deposits associated with the Australasian tektite impact event, dated approximately 0.79 million years ago. Samples were collected from ejecta layers at three locations (SNM-D in southern Laos, Huai Om, and Yasothon in northeastern Thailand) at distances of approximately 60 km, 130 km, and 250 km from the estimated impact site at the Bolaven Plateau, southwestern Laos. ESR signal intensities decreased upward within the stratigraphic sequence from Units 1 to 3, accompanied by increasing quartz crystallinity at Huai Om and Yasothon, suggesting greater heating experienced by upper ejecta deposits. This trend is consistent with an ejecta dispersal model proposing that materials originating closer to the impact center, subjected to higher thermal and pressure conditions, are ejected at higher angles and thus deposited higher in the stratigraphy. However, at SNM-D, close to the impact site, quartz crystallinity showed little variation, indicating a possibility of dominance of shock-induced lattice distortions over thermal annealing effects.

Keyword: Quartz, Electron Spin Resonance, Extraterrestrial impact event, Australasian Tektite

1. はじめに

石英の電子スピン共鳴 (ESR) 信号強度は石英中に存在する不対電子の量を反映する。不対電子は主に格子欠陥に存在するため、ESR 信号強度を測定することで、格子欠陥の量(特に酸素空孔量)を間接的に推定できる^[1]。石英中の酸素空孔は、自然放射線によって形成されるが、430°C以上の加熱により減少することが知られている^[2]。また、石英の結晶化度は、晶出温度と晶出速度を反映する指標であるが、その後の変成作用によっても変化し、高温を経験することで結晶化度が増加することが報告されている^[3-5]。したがって、石英の酸素空孔量や結晶化度を測定することにより、試料が高温を経験したかどうかを調べることが可能である。

本研究では、この手法をおよそ 79 万年前に東南アジアで発生した天体衝突イベント(オーストラリア・アジアテクトイトイベント)に適用し、衝突により放出された物質(イジェクタ)が堆積して形成された地層(イジェクタ層)の熱履歴の推定を試みた。オーストラリア・アジアテクトイトイベントは、大規模な地球への天体衝突としては最も新しく、イジェクタの飛散・堆積過程に関する初生的な情報が多く残されていることが期待される。テクトイト(衝突で生成されたガラス質物質)の分布などから、ラオス南西部の Bolaven Plateau 付近が衝突地点と推測されている^[6-8]。近年、このイベントに由来するイジェクタ層がタイ東北部で確認され、タイ・ラオス・カンボジ

ア・ベトナムを含む広域に分布していることが報告された^[7-9]。Tada et al. (2020, 2022) は、詳細な野外調査に基づいてイジェクタ層を下位から順にユニット 1 から 3 までの岩相層序ユニットに区分した。ユニット 1 は基盤岩の破片を含む礫質砂層であり、衝突で発生した風による堆積物、ユニット 2 はテクトイトを含む淘汰の悪い礫層であり、衝突で破碎・放出された礫の堆積物、ユニット 3 は塊状の細粒砂層であり、衝突で巻き上げられた塵が降下した堆積物と解釈されている^[10, 11] (Fig.1)。

天体衝突による物質の飛散・堆積過程を解明するため、衛星画像解析、衝突シミュレーション、室内衝突実験などが行われてきた。しかし、地球上のイジェクタ層の多くは形成後に風化・変質や浸食を受けており、また埋没していることも多いため、野外試料の観察や分析から得られる制約は限られていた。本研究は、天体衝突による物質の飛散・堆積過程の理解を深める新たな制約を与えることが期待される。

2. 手法

調査地点は、ラオス南部の SNM-D セクション、タイ東北部の Huai Om セクションおよび Yasothon セクションである。推定衝突地点(ラオス南西部の Bolaven Plateau)からの距離はそれぞれおよそ 60 km、130 km、250 km である。なお、Huai Om セクションおよび Yasothon セクションにおける測定結果の一部は多田ほか(2019, 2023)において部分的に報告さ

れている^[12, 13]。試料は水中でほぐした後、2 mm メッシュの篩を用いて分級した。篩分け後、2 mm 以下の粒径画分を対象とし、ESR 測定に影響を与える有機物、炭酸塩、鉄マンガ酸化物を化学処理により除去した。有機物および炭酸塩の除去は Nagashima et al. (2007) の方法に従い、鉄マンガ酸化物の除去は Mehra and Jackson (1960) の方法に従った^[14, 15]。

ESR 測定は Toyoda and Ikeya (1991) の手法に従った^[1]。試料には国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・高崎量子技術基盤研究所において、線源として ⁶⁰Co を用いた総線量 2.5 kGy の γ 線を照射した後、300 °C で 15 分間の加熱処理を施した。その後、X-band ESR spectrometer (JEOL, JES-FA100) を用いて ESR 信号強度を測定した。また、Isozaki (2009) の手法に基づき、粉末 X 線回折 (XRD) 分析により、シリコンを内標準として各試料の石英含有量を求め、得られた ESR 信号強度をこの石英含有量で規格化した^[16]。さらに、Murata and Norman (1972) の方法に従い、XRD 分析により石英の結晶化度を算出した^[3]。

3. 結果と考察

各セクションにおいて測定した石英の ESR 信号強度と結晶化度を Figure 1 に示す。いずれのセクションにおいても、石英の ESR 信号強度は Unit 1 から 3 にかけて上位に向かって減少する傾向が見られた。特に Unit 3 では 2-3 spin unit 程度の低い値を示した。また、Huai Om セクションおよび Yasothon セクションでは上位に向かって石英の結晶化度が増加する傾向がみられた。石英の ESR 信号強度の減少と結晶化度の増加は、層序上位のイジェクタほど強い加熱を受けたことを示唆する。この結果は、クレーター中心付近で高温高压を経験したイジェクタが高角度で放出され、上位に堆積するという既存のモデルと一致する^{[17], [18]}。

一方で、推定衝突地点に比較的近い SNM-D セクシ

ョンでは、石英の結晶化度は Unit 1-3 を通じて 8.0-8.4 程度の値を取り、大きな変化はみられなかった。天体衝突による石英の結晶性の変化は、加熱による結晶性の向上^[3-5]と、衝撃波による結晶格子の歪みの増大^[19]や衝撃変成組織 (Planar deformation features や Planar fractures) の形成^[6, 20]による結晶性の低下という相反する効果が考えられる。推定衝突地点に近い SNM-D セクションでは、衝撃波により結晶性が低下する効果が卓越している可能性が考えられる。

参考文献

- [1] S. Toyoda and M. Ikeya, "ESR dating of quartz and plagioclase from volcanic ashes using E'1, Al and Ti centers", International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part D: Nuclear Tracks and Radiation Measurements, 18, 179-184, 1991. [https://doi.org/10.1016/1359-0189\(91\)90110-4](https://doi.org/10.1016/1359-0189(91)90110-4)
- [2] S. Toyoda and M. Ikeya, "Thermal stabilities of paramagnetic defect and impurity centers in quartz: Basis for ESR dating of thermal history", Geochemical Journal, 25, 437-445, 1991. <https://doi.org/10.2343/geochemj.25.437>
- [3] K. J. Murata and M. B. Norman, "An index of crystallinity for quartz", American Journal of Science, 276(9), 1120-1130, 1976. <https://doi.org/10.2475/ajs.276.9.1120>
- [4] M. Domanski and A. Webb, "Effect of Heat Treatment on Siliceous Rocks Used in Prehistoric Lithic Technology", Journal of Archaeological Science, 19(6), 601-614, 1992. [https://doi.org/10.1016/0305-4403\(92\)90031-W](https://doi.org/10.1016/0305-4403(92)90031-W)
- [5] M. Umeda, "Crystallinity index (CI) of quartz in chert and provenance of chert clast", Bulletin of The Fukui City Museum of Natural History, 54, 45-52 (in Japanese), 2007. <https://www.nature.museum.city.fukui.fukui.jp/shuppan/kenpou/54/54-45-52.pdf>
- [6] K. Sieh, et al., "Australasian impact crater buried under the Bolaven volcanic field, Southern Laos", Proceedings of the National Academy of Sciences, 117(3), 1346-1353, 2020. <https://doi.org/10.1073/pnas.19043681>
- [7] K. Sieh, et al., "Proximal ejecta of the Bolaven extraterrestrial impact, southern Laos", Proceedings of the

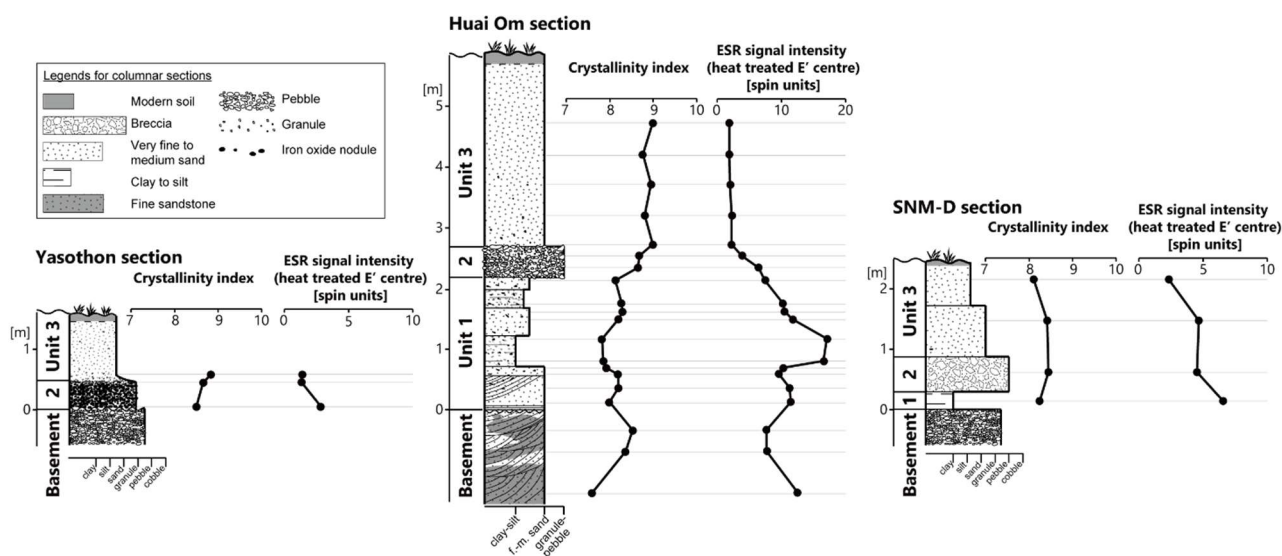


Figure 1. ESR signal intensity and crystallinity index of quartz from the ejecta deposits at Huai Om section and Yasothon section in northeastern Thailand, and SNM-D section in southern Laos.

- National Academy of Sciences, 117(3), 120(50), e2310351120, 2023.
<https://doi.org/10.1073/pnas.2310351120>
- [8] T. Tada, “Australasian Tektite Event: Identification of the On-land Ejecta Deposit and its Distribution across Eastern Indochina”, Doctoral dissertation, The University of Tokyo, 2021. <https://doi.org/10.15083/0002006686>
- [9] P. A. Carling, et al., “Regionally extensive ejecta layer of the Australasian tektite strewn field: the MIS 20/19 large meteorite impact in mainland South-East Asia”, *Progress in Earth and Planetary Science*, 11(1), 58, 2024.
<https://doi.org/10.1186/s40645-024-00660-9>
- [10] T. Tada, et al., “In situ occurrence of Muong Nong-type Australasian tektite fragments from the Quaternary deposits near Huai Om, northeastern Thailand”, *Progress in Earth and Planetary Science*, 7, 1–15, 2020.
<https://doi.org/10.1186/s40645-020-00378-4>
- [11] T. Tada, et al., “Identification of the ejecta deposit formed by the Australasian Tektite Event at Huai Om, northeastern Thailand”, *Meteoritics & Planetary Science*, 57(10), 1879–1901, 2022. <https://doi.org/10.1111/maps.13908>
- [12] 多田賢弘, 他, “石英のESR信号強度を利用した碎屑物の供給源・熱履歴推定と東アジアの古気候復元”, 平成30年度原子力機構施設利用共同研究 一般共同研究成果報告書, 18010, 2019.
https://www.tokai.t.u-tokyo.ac.jp/kaihoken/wp-content/uploads/2018/seika/ippan/18010_tajika.pdf
- [13] 多田賢弘, 他, “ESR信号強度を利用した石英の供給源・熱履歴の推定”, 2023年度日本原子力研究開発機構・量子科学技術研究開発機構 施設利用共同研究 一般共同研究成果報告書, 2023202020, 2023.
https://www.tokai.t.u-tokyo.ac.jp/kaihoken/wp-content/uploads/2023/seika/ippan/2023202020_tada.pdf
- [14] K. Nagashima, et al., “Contribution of aeolian dust in Japan Sea sediments estimated from ESR signal intensity and crystallinity of quartz”, *Geochemistry Geophysics Geosystems*, 8(2), 2007.
<https://doi.org/10.1029/2006GC001364>
- [15] O. P. Mehra and M. L. Jackson, “Iron oxide removal from soils and clays by a dithionite-citrate system buffered with sodium bicarbonate”, *Clays and Clay Minerals*, 7, 317–327, 1958. <https://doi.org/10.1346/CCMN.1958.0070122>
- [16] Y. Isozaki, “Characterization of eolian dust and its sources in the Tarim Basin and their temporal changes during Plio-Pleistocene based on the ESR signal intensity and crystallinity index of quartz”, Doctoral dissertation, The University of Tokyo, 2009.
- [17] H. J. Melosh, “Impact cratering: A geological process”, Oxford University Press, 1989.
- [18] Y. Nakano et al., “PDF orientations in shocked quartz grains around the Chicxulub crater”, *Meteoritics & Planetary Science*, 43(4), 745–760, 2008.
<https://doi.org/10.1111/j.1945-5100.2008.tb00682.x>
- [19] F. Langenhorst, “Shock experiments on pre-heated α - and β -quartz: II. X-ray and TEM investigations”, *Earth and Planetary Science Letters*, 128.3-4, 683–698, 1994.
[https://doi.org/10.1016/0012-821X\(94\)90179-1](https://doi.org/10.1016/0012-821X(94)90179-1)
- [20] B. M. French and C. Koeberl, “The convincing identification of terrestrial meteorite impact structures: What works, what doesn't, and why”, *Earth-Science Reviews*, 98(1-2), 123–170, 2010.