CHIME の現状と稼働状況(2008年度)

加藤丈典^{a*}·鈴木和博^a

*名古屋大学年代測定総合研究センター

(*連絡先:E-mail: kato@nendai.nagoya-u.ac.jp; Phone: 052-789-2598)

1. はじめに

名古屋大学年代測定総合研究センターには、CHIME 年代測定(Suzuki & Adachi, 1991a & 1991b)を実施するため、電子プローブマイクロアナライザー(EPMA)が2台設置されている。いずれも、日本電子株式会社製 JCXA-733 で、1984 年製と 1985 年製である。1 台を CHIME 年代測定専用機とし、もう1 台を CHIME 年代測定も可能な汎用機として運用している。CHIME 年代測定専用機は4 台の波長分散型分光器を備え、汎用機は3 台の波長分散型分光器を備えている。1 台の分光器には、2 つの分光結晶を取り付けることが可能である。それぞれの分光結晶の構成は、表1の通りである。すべての分光器は垂直型で、X 線取出し角は40 度である。

CHIME 年代測定装置専用機では、4 個の PET(Pentaerythritol)の 002 面を用いて Th・U・Pb 及び Y を同時に計測でき、1 点の分析時間は約 17 分である。一方、汎用機で CHIME 年代測定を行うときは、2 個 の PET を用いて測定し、1 点の分析時間は約 45 分である。分析時間が短いため、年代測定はもっぱら CHIME 年代測定専用機で実施している。そして、汎用機は CHIME 年代と岩石の組織の関係を研究する場合の主要 造岩鉱物の定量分析や、状態分析及び標準物質や測定法の研究開発のために用いている。さらに、後述の改 造など技術開発を行う場合は、まず汎用機を用いて開発・試験を実施し、実用化後に CHIME 専用機に実装 するようにしている。

いずれの装置も独自の改造が施してあったり、CHIME 年代測定に特化するためメーカーの仕様とは異な る調整を行ったりして、メーカーの仕様を超える性能を実現している。代表的な改造については、後述する。 独自の改造を施しているため、点検や修理については原則として保守業者の技術者に依頼せずに実施してい る。ただし、時間がかかる大規模な工事については、保守業者に依頼してメーカーの基準での調製を実施し た後、CHIME 年代測定及び関連する研究に最適な条件となるよう調整しなおしている。さらに、定量分析

·	CHIME 専用機	汎用機
Ch. 1	PET / TAP	TAP / Pb-STE 又は TAP / LDE1
Ch. 2	PET / LiF	PET / LiF*
Ch. 3	PET / LiF	LiF / PET*
Ch. 4	PET / LiF	-

表1 年代測定総合研究センターに設置されている EPMA の分光結晶の構成。1 つの分光器に2つの分 光結晶が装着されている。TAP: thallium acid phthalate、LDE: layered dispersive element、LiF: lithium fluoride、STE: stearate。*: 高分解能化改造(本文参照)。汎用機の Ch.1 では、分光結晶フォルダーを 交換することによって組合せを変更している。 における補正係数の独自開発(Kato, 2005)や標準物質に関する研究開発(加藤ほか 2005 や Cho *et al.*, 2006) などを行い、高精度 CHIME 年代測定を実現している。

2. 主要な改造

名古屋大学年代測定総合研究センターでは、EPMA を独自に改造し高性能化をはかっている。また、高性 能化のみならず、電子部品等が生産中止となったためにメーカーでは修理不可能になってしまった部分を設 計しなおすことも行っている。

2.1. 分光器の高波長分解能化

CHIME 年代測定で用いる鉱物の中には、モナズ石のように複雑な組成をもつものがある。そのような試料の EPMA 分析では、X 線の干渉が問題となる。高次線による干渉は波高分析によって解決できるが、1 次線では干渉補正(Åmli & Griffin, 1975; Donovan *et al.*, 1993)を行うしか解決方法がない。誤差伝搬を考慮すると、干渉補正の量は少ないほうが望ましいため、高精度 CHIME 年代測定を実現するには分光系の分解能を向上させて干渉の影響をできるかぎり小さくすることが理想的である。そこで、汎用機の分光結晶を改造して高分解能を実現した。図1は、PET におけるリンの Ka 線のスペクトルである。無改造で分光器をメーカー仕様で調整した場合、FWHM は 3.8 eV である。改造した上で、分光器を高角側に最適化して調整した場合、FWHM は 2.9 eV に向上する。無改造では Ka 線とサテライトピークが分離されていないが、改造した分光結晶ではこれら2つのピークが分離されている。

汎用機で CHIME 年代測定を行う場合は、この改造した PET で鉛を測定することにより、X 線の干渉の軽 減及び P/B 比の向上を図っている。このことにより、X 線の計数時間を CHIME 専用機よりも長くしなくて も十分な精度で X 線強度を測定できるようになり、約 45 分の測定で CHIME 年代測定専用機と同等の精度 を実現できている。測定時間が 45 分程度であれば、測定試料に表面損傷を与えることがないことは Suzuki & Kato (2008)で示されている。2 個の PET で高精度 CHIME 年代測定を実施する場合は、分光結晶の改造が 重要であると考えられる。



図1 無改造の状態の PET 分光結 晶(左)と改造した PET 分光結晶 (右)によるリンの Kα 線のスペク トル。



図2 高速スキャンモードで反射電子像を 観察した時のディスプレー*をデジタルカメ ラで撮影したもの。高速スキャンでも、鉱物 の外形などを十分識別することができる。

*: イメージ系をデジタル化した後の液晶デ ィスプレー

2.2.反射電子像の高速化

JCXA-733 で反射電子像を観察するためには、ビームスキャンの速度を遅くする必要がある。これは反射 電子のアンプの速度が遅いためで、高速スキャン(JCXA-733の場合は RAPID 1)に設定すると像が流れて 反射電子像を観察することができなくなる。

一般的な岩石においては、CHIME 年代測定に用いる鉱物は、他の構成鉱物に比べて平均原子番号が著し く大きいため、反射電子像で最も明るく見える。このことを利用して、反射電子像で明るい鉱物を探すと試 料中の分析点の決定が極めて容易になる。しかし、従来は高速スキャンで反射電子像を観察できなかったた め、ステージを高速で移動させながら対象とする鉱物を探すことができなかった。視野の狭い倍率約 400 倍 の光学顕微鏡で鉱物を探して位置決定を行うため、測定点の決定に半日から1日を費やす必要があった。そ こで、反射電子像系を高速化し、ステージを高速で移動させても反射電子像を十分観察できるように改造し た(図2)。その結果、測定点の決定を2時間から半日程度で行うことが可能になり、CHIME 年代測定の効 率化が図られた。

2.3. イメージ系のデジタル化

JCXA-733 のイメージ撮影はブラウン管に映し出された像を、引延し用レンズを通してフィルムに結像さ せる構造となっている。フィルムには、120 サイズフィルムとポラロイド社のインスタントフィルムを用い ることが可能である。現像とプリントの手間及び時間を節約するため、年代測定総合研究センターではこれ まで 120 サイズフィルムではなくインスタントフィルムを用いてきた。

フィルムを用いていたため、アーカイブの作成が困難で後からフィルムを探すのに時間がかかったり、画像が経年劣化したりする問題があった。特に、測定後1~2年以上経過してから反射電子像を求められた場合に支障が生じていた。そこで、2008年3月のポラロイド社のインスタントフィルム販売中止を機に、2台の EPMA のイメージ系をデジタル化することにした。

デジタル化のために既製品を利用することを検討したが、(1) JCXA-733 に接続するためには、インター フェイスを独自に設計する必要があることと、(2) CHIME 年代測定や関連する研究に用いるために必要な 機能が実装されていないという問題が明らかになった。そこで、すべてのシステムを独自に設計し作成する ことにした。設計段階では、CHIME 年代測定で必要な機能を実装すること、後から機能を容易に追加でき



図3 設計したイメージ系のブロッ クダイアグラム。µP: 組込みマイコ ン、DAC: DA コンバーター、ADC: AD コンバーター、WS: 制御用ワークス テーション。実際に制作したシステム では、これらに加え、倍率制御も組込 マイコン経由で行っている

るようにすること、及び自作可能な規模であることを考慮した。

設計したシステムは、FPGA などの再プログラム可能なロジックや組込マイコンを用いることによって、 バージョンアップを容易に行えるようにした(図3)。電子ビームのスキャン系には、12 ビットの DA コン バーターを用いて 2560×1920 画素まで対応できるようにした。イメージデータは、Image Selector (733-IMS) ユニットの出力を 8 ビットの AD コンバーターで取り込むようにした。取り込んだ画像は、640×480 画素の VGA 仕様で出力し、これまで同様に高速スキャン時も含めてリアルタイムで画像を観察することが可能にな っている。通常の観察時は FPGA のみで制御を行い、スキャン速度などの動作モード変更や、画像データー の取り込みを行う場合には、組込マイコンを用いてイーサネット経由でワークステーションと通信するよう にした。実際に取り込む画像は、1280×960 画素(1,228,800 画素)とし、AD コンバーターの出力を 4 回取 り込むことによりノイズ低減を行っている。取り込んだ画像は、日時、倍率及びスケールバーを加えた TIFF 形式で保存される。取り込む画像はグレースケールなので、実際にはベイヤー配列 RGB の 500 万画素相当 の解像度になり、A4 サイズに引き延ばしても十分実用になる。

デジタル化したことにより、フィルムよりもダイナミックレンジが小さくなっていわゆる白とびや黒つぶ れの問題が発生しやすくなった。そこで、白とびする部分を赤で、黒つぶれする部分を青で表示することに よって識別可能なモードを実装した。これにより、適切なコントラストの画像を容易に得ることができるよ うになった。

イメージ系システムの操作は、すべて制御用ワークステーションで行うようにした。制御用ワークステー ションの OS には FreeBSD/i386 を採用した。画像を確認したり分析ポイントなどのメモとして使ったりで きるように、画像を取得したらただちにプリンターに出力するようにした。操作は、コンソール上からのコ マンドライン入力に加え、USB 接続したゲームパッドからも行えるようにしてあり、容易に操作することが 可能である。ゲームパッドは、アナログスティック 2 個、ハットスイッチ 1 個及びスイッチ 12 個以上のも のであれば接続可能である。

3. 2008年度の稼働状況

EPMAの設置されている古川記念館では、2008年5月まで耐震改修工事がおこなわれていたため、EPMA

を使用することができなかった。耐震改修工事完了後の6月から、日本電子データム株式会社(JEOL DATUM) による点検・調整や、CHIME 年代測定のための調製及びテストを実施した。2008 年 4 月から 2009 年 1 月 までの状況を図4に示した。日本電子データム株式会社による点検・調整は、まず汎用機について約 2 週間 かけて実施し、その後 CHIME 年代測定専用機で約 2 週間実施した。また、改修工事で RC 壁が新設された り、エレベーターが汎用機の設置されている部屋の近傍に設置されたりしたため、磁場キャンセラーの再調 整も実施した。再調整のため調査していたところ、磁気センサーの位置を変更しなければならないことが明 らかになったため、センサーを鏡筒架台上に移動させた。しかし、コイルの再設計など、大規模な工事は不 要であったため、すぐに調整して使用することが可能になった。

CHIME 年代測定専用機では、レンズ冷却オイルの漏れによるトロコイドポンプの交換を行う必要があったものの、装置を長期間止めなければならなくなるような不具合は発生していなかった。そのため、JEOL DATUM による点検調整の後すぐに CHIME 年代測定用に調整することが可能となり、8 月から CHIME 年 代測定を開始することができた。しかし、12 月に不具合が発見されたため測定を中止し、不具合箇所の特定 と修理を実施した。

一方、汎用機では多くの不具合が発生した。まず、制御用の LSI-11 の Quniverter と EPMA の制御部分 をつないでいる UNIBUS ケーブルと、制御部分のプリント基板のパターン面がショートして焼損した。そ して、焼損したプリント基板に接続されていた X 線カウンターが故障した。プリント配線板が傾いていたの が原因であるが、これが改修工事の振動に起因するものであるかどうかまでは特定することができなかった。 ケーブル、基板及び X 線カウンターをすぐに交換して対応した。次に、制御用ワークステーションのシステ

月	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1
CHIME 専用機	耐震改	' 修工事							故障・	修理
							,	,		
			点検	• 調整					, ,	
			-		Y.					
		試験	• 調整	試験・	調整			, ,	-	
		N					 測定			
									,	5
汎用機	耐震改	' 修工事 				- 故障・修 -	' 理 			
		点検	・調整 	I			т. А. Р.			
						÷.,				*
		1	試	験・調整 	<u> </u>		「「」「」「」「」」	、験・調整 		
									Sec	-
A				: *		, ,				É

図4 2008 年度における EPMA の稼働状況。



図5 1995年から 2008年までの CHIME 年代測定専用機の年間測定時間。

ムボードが故障してビデオキャプチャーボードを認識しなくなり、光学顕微鏡を使用することができなくなった。ワークステーションのシステムボードを交換したところビデオキャプチャーボードが再び認識されるようになった。これらに加え、対物レンズ冷却用のオイル漏れが見つかった。ジョイント部分から徐々にオイルが漏れ、タンクにほとんど残っていない状態にまでなってしまった。オイルが無くなると対物レンズを焼損させてしまう恐れがあるため、ただちに装置を停止し、JEOL DATUM に修理を依頼した。冷却オイル系統のジョイント部分に漏れ対策を実施した結果、オイル漏れはかなり低減された。しかし、トロコイドポンプのシール部分からわずかにオイルが漏れていることが明らかになった。そこで、トロコイドポンプの交換を行った。これらの故障のため、汎用機は10月末まで使用することができず、11月に調整を行い、12月からしか測定を開始することができなかった。

大きな故障以外にも、ステージ制御用ジョイスティックの可変抵抗が不良となったり、経年劣化した比例 計数管を交換したりするなどの小さなトラブルも発生したが、保守部品の在庫があったため、すぐに対応す ることができた。

上述のように、2008 年度は耐震改修工事や汎用機の故障などがあったため、CHIME 年代の測定時間が通常の半分以下になっている(図5)。通常 CHIME 年代測定専用機では年間 2000 から 4000 時間の測定を実施しているのに対し、2008 年は約 1000 時間となっている。本稿執筆時点では致命的な不具合は見つかっておらず、さらに、通常の予防保守も実施しているため、2009 年は従来通りの測定が実施可能であると予想される。

謝辞

反射電子系の高速化には、科学研究費補助金(萌芽研究 No. 20654051)を用いた。イメージ系のデジタル 化には、科学研究費補助金(基盤研究(B) No. 19340149)を用いた。

引用文献

- Åmli, R. and Griffin, W.L. (1975) Microprobe analysis of REE minerals using empirical correction factors. American Mineralogist, 60, 599 – 606.
- Cho, D.L., Kato, T. and Suzuki K. (2006) A working standard technique for determination of interference correction factors and preparation of standard materials for CHIME dating. *Journal of Korean Earth Science Society*, 27, 521 – 527 (in Korean with English abstract).
- Donovan, J.J., Snyder, D.A. and Rivers, M.L. (1993) An improved interference correction for trace element analysis. *Microbeam Analysis*, 2, 23 28.
- Kato T. (2005) New accurate Bence-Albee α-factors for oxides and silicates calculated from the full-PAP procedure. *Geostandards and Geoanalytical Research*, 29, 83 94.
- 加藤丈典, 趙騰龍, 鈴木和博(2005) 「ワーキング・スタンダード」を用いた, CHIME 年代測定用標準物質 及び干渉補正係数の決定方法. 名古屋大学博物館報告, 21, 43 49.
- Suzuki, K. and Adachi, M. (1991a) Precambrian provenance and Silurian metamorphism of the Tsubonosawa paragneiss in the South Kitakami terrane, Northeast Japan, revealed by the chemical Th-U-total Pb isochron ages of monazite, zircon and xenotime. *Geochemical Journal*, 25, 357 376.
- Suzuki, K. and Adachi, M. (1991b) The chemical Th-U-total Pb isochron ages of zircon and monazite from the Gray Granite of the Hida terrane, Japan. Journal of Earth and Planetary Sciences, Nagoya University, 38, 11 – 37.
- Suzuki, K. and Kato, T. (2008) CHIME dating of monazite, xenotime, zircon and polycrase: protocol, pitfalls and chemical criterion of possibly discordant age data. *Gondwana Research*, 14, 569 586.

Status report on the CHIME dating system at Center for Chronological Research, Nagoya University in 2008

Takenori KATO*a and Kazuhiro Suzukia

^aCenter for Chronological Research, Nagoya University, Chikusa, Nagoya, 464–8602, Japan (*corresponding author e-mail: kato@nendai.nagoya-u.ac.jp; Phone: +81-52-789-2598)

The CHIME dating is performed using two electron microprobe (EMP) equipments (JCXA-733, JEOL, Tokyo) at Center for Chronological Research, Nagoya University. The one equips four wavelength dispersive spectrometers (WDS) and the other does three WDS. Those EMP equipments have been customized by the authors for improvement: stability, sensitivity, wavelength resolution *etc.* Two customized analyzing crystals are installed the EMP to improve wavelength resolution. The customized PET crystal achieves 2.9 eV FWHM for P Ka line while normal crystal does 3.8 eV. This improvement significantly reduces uncertainty from X-ray interference correction. The backscattered electron image (BEI) system of EMP has been improved to obtain clear BEI in the rapid scan mode. The improved system provides quick search of target minerals in a thin section sample during the course of determination of analysis positions. The scan and image systems have completely replaced with the digital system developed by the authors. The new system supports up to 2560 x 1920 pixels image capture (secondary electron, backscattered electron *etc.*) with 8-bits resolution. A captured image is stored in the TIFF format with date, magnification and scale bar.

Until the end of May 2008, we were not able to use EMP because the building is closed for quake-proof engineering. The EMP equipments was overhauled and configured for the CHIME dating in June and July. The one EMP showed no serious problem and we have restarted the CHIME dating from August. The other EMP showed serious problems: cable damage, leakage of lens-cooling oil, system board crash of controlling workstation etc. Therefore, we were not able to use this EMP until the end of October. For above conditions, the uptime of EMP in 2008 is about 1000 hours while normal uptime is 2000 – 4000 hours a year.