

## 資 料

546.815.02 : 550.4

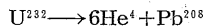
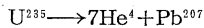
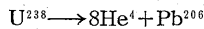
### 鉛のアイソトープとその地球化学的意義について\*

A. P. Vinogradov

小 西 善 治 訳

鉛が人類に知られてから6千年以上になる。がしかし鉛は数種の鉛の混合物であり、RaG, AcD, ThD の最終崩壊産物であるとともに、この種鉛の原子量が異なっていることが確かめられたのは、U, AcU, Th 放射能元素が発見された今世紀の初頭のことである。

ウラン系鉛とトリウム系鉛の原子量の研究は、化学的元素のアイソトープに関する考え方に大きな寄与をなした。この種研究によつて、4種の鉛の安定なアイソトープ、すなわち  $Pb^{204}$ ,  $Pb^{206}$  (RaG),  $Pb^{207}$  (AcD),  $Pb^{208}$  (ThD)註1) が自然に存在することが確かめられた。そのうち  $Pb^{206}$ ,  $Pb^{207}$ ,  $Pb^{208}$  は放射性鉛である。



$Pb^{204}$  は、最古期の鉛鉱石および隕鉄の鉛中に比較的多量に含まれている。普通の鉛には、現在の約1.5 at % が知られている。トリウム鉱物の鉛ではこの種アイソトープは%の  $1/100$  か  $1/1000$  が含まれている。 $Pb^{204}$  は次第に鉛中に蓄積されなくなる。

$Pb^{204}$  は放射源のものでなく、宇宙源のものであろう。すなわち  $Pb^{204}$  は遊星が生成されるまで宇宙中に存在していたものである。したがつて  $Pb^{204}$  は、宇宙の生成で消滅したと考えられる放射性物質の最終壊変産物である。この種アイソトープは、 $Pb^{208} \rightarrow \alpha + Pb^{204}$  の壊変で生成されると仮定されている。しかしこの壊変過程は立証されていない。

$Pb^{208}$  は、鉛のアイソトープの分布中では卓越した位置を占めている。普通の鉛中における  $Pb^{208}$  の含有量は50 at % を超えている。しかし岩石中の Th の含有量 (約  $1 \cdot 10^{-3}$  %) が低く1半減期が長い ( $T/2 = 1,39 \cdot 10^{10}$  年) 点を考へに入れ、岩石中の  $Pb^{208}/Th^{232}$  比によつて地球上の全  $Pb^{208}$  が放射線源であると仮定して、地球の年代決定することは、不合理な結果が求められる。 $Pb^{208}$  のある部分は放射線源であるが、他の部分は宇宙源すなわち地球の生成以前の化学元素生成過程において発生したものであることが知られている。元素の分布曲線上では、特殊の位置を占め、大ピークを形成し、この曲線上の隣接4化学元素と著しく異なる挙動を示す。 $Pb^{208}$  は周知のように、陽子数ならびに中性子数についても、magic 数を示す。したがつて  $Pb^{208}$  のおもなものが放射線源でないとは仮定することは、既知の科学的データと矛盾しない。

$Pb^{207}$  と  $Pb^{206}$  は以下で述べるように、まったく放射性源である。

鉛のアイソトープ源を理解するためには、岩石および地殻における親の元素、U, Th の分布状態を知ることが必要である。地球上の岩石中におけるこの種元素の分布状態を示す立派なモデルは、隕石の鉄、珪酸塩相(硫化物相)における分布、または Slag と鉄との間における分布である。第1表は種々の岩石および隕石中のこの種元素の分布状態が示されている。

\* Виноградов, А. П. : ИЗОТОПЫ СВИНЦА И ИХ ГЕОХИМИЧЕСКОЕ ЗНАЧЕНИЕ, Сессия Академии Наук СССР по мирному использованию атомной энергии, 1-5 июля 1955 г., Заседания отделения химических наук, p. 320-360, Москва, 1955.

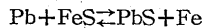
註 1)  $Pb^{210}$  (RaD) は半減期22,5年の放射性アイソトープであつて、ウラン鉱物の  $Pb^{206}/Pb^{210}$  の比によつて岩石の地質年代が決定されるから興味がある。

第1表 種々の岩石および隕石中における Pb, U, Th の含有量

岩 石	Pb (%)	U (%)	Th (%)	Pb/u	Th/u
酸性岩石 (花崗岩)	$2 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-4}$	$1,3 \cdot 10^{-3}$	3-4	3,5
塩基性岩石 (玄武岩)	$9 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-4}$	9	4,0
超塩基性岩石	$n \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-4}$	(10?)	3-4
石質隕石	$2 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-4}$	(10?)	3
隕鉄	$10^{-5}-10^{-6}$	$1 \cdot 10^{-6}$	$10^{-6}$	?	(4?)
単硫鉄鉱	$n \cdot 10^{-4}$				

この平均データから、まず U, Th は典型的な親石元素であることがわかる。このデータは、Th がいわゆる地球の鉄質核に集まっているという考え方をくつがえしている。Brown の分布表では、Pb が隕石の鉄相中に珪酸塩相の 30 倍以上含まれていることが示されているが、これはまったく信じられないことを強調しておく必要がある。例えば Sikhote-allin の隕石中における Pb の含有量の決定データによれば、その含有量は約  $1 \cdot 10^{-6} \%$  である。周知のように、Pb は Fe に狭い温度範囲で溶解するから、Ni および他の金属と異なつて Fe と連続溶解を示さない。Pb の沸点は約  $918^{\circ}$  であつて、容易に昇華する。Pb は、隕石の硫化物相で若干富化されている。単硫鉄鉱中では Pb の含有量は約  $10^{-3} \%$  である。さらに第1表からみられるように岩石中における Th/U の比は変動範囲が狭く、約 4 であるが、Pb/U の比は著しい変動を示す。

地球の珪酸塩殻(皮殻)と鉄質殻との重さが同一であると仮定すると、U の大多数は皮殻中に存在し、鉄質殻中の U の含有量は前者の  $1/30 \sim 1/50$  にすぎないことが容易に考えられる。Pb の大多数も地球の皮殻中に存在し、鉄質核中の Pb はこの含有量の約  $1/5 \sim 1/10$  である。したがつて U, Pb は鉄質核(隕石の鉄相)中に分布し、珪酸塩相では同一比率で存在しない。珪酸塩相(皮殻)では、岩石圏(花崗岩)に比較して Pb の含有量が比較的上昇する傾向があるが、鉄相ではさらに著しく上昇を示す。鉄相中の Pb には、物質の凝固以前に存在していた初成の Pb が含まれ、そのうえ凝固物体の存在時に生じた放射線の Pb 量の増加率はきわめて低い。この事実、第2表に掲げられている鉄質隕石の Pb アイソトープの組成をみれば明らかである。しかし Pb は親鉄元素ではない。Pb は親石元素であるか親銅元素かである。したがつて鉄相における Pb の存在は次の平衡式で決定される。



温度が  $1,000^{\circ}$  を超すと Pb の生成側へ移行する。したがつて隕鉄が同一条件で 1 時期に生成されるならば、隕鉄中の Pb の含有量が著しく変わらないことが考えられる(単硫鉄鉱における PbS の含有量のように)。

しかし U, Th と Pb とは、岩石圏の上部、主として花崗岩殻中に多量に濃縮している。しかしこの種元素が岩石圏の岩石(範囲)に分布する機構は謎である。しかし U, Pb, Th が花崗岩・玄武岩および他種岩石にこのような分布様式を示す場合には、岩石自体、岩石族、花崗化作用を蒙つた堆積岩間におけるこの種岩石の分布比は、アイソトープ組成、とくに鉛鉱物に影響を及ぼすはずである。

一般化するには、次のような仮定をおいている。すなわち(1) 岩石中におけるこの種元素の平均含有量を求め、(2) 岩石中の Pb, U, Th の間には定比例関係を示し、その比は地質年代を通じて、いかなる自然過程——U, Th の放射性壊変過程を除く——にも乱されないものと仮定している。しかしこの仮定は、重要な一般化が行えるが、以下に述べるようにあまり観念的すぎる。

Holmes は、すべての鉛が 1 つの源から誘導されるという考え方を発展させている。さらに

この種鉛は同一原子量をもち、地表から割れ目を伝わって地下深所に滲入し、鉛鉱石、例えば方鉛鉱を生成する。しかし 1938~41 年には Niev は、種々の鉛鉱床およびウラン・トリウム鉱床から採取された鉛が種々のアイソトープ組成を示すことを明らかにした(質量分析による)。そこで Holmes の考え方に代つて新しい一層根拠のある考え方が生まれてきた。この考え方は次のように要約される。鉛鉱石は、放射源鉛が混在する初成鉛であるが、鉱石の生成年代が新しくなると放射源鉛の割合が増す。すなわち一層古期の鉛のアイソトープ組成をみると、 $Pb^{206}$ 、 $Pb^{207}$ 、 $Pb^{208}$  の含有量は相対的に低く、多くの学者の見解によると、鉛鉱石中の初成鉛の割合が減っている。

次に種々の成因をもつ鉛のアイソトープ変化の性質をみてみよう。

地殻が凝固する以前には鉛は同一のアイソトープ組成をもっていたことが考えられる。したがって地殻が凝固した際には、同一アイソトープ組成の鉛が地球上に分布した。これが初成鉛である。岩石の U、Th の放射性壊変が進むにしたがつて、放射源アイソトープ  $Pb^{206}$ 、 $Pb^{207}$ 、 $Pb^{208}$  の混合物が初成鉛に附加された。さらに現在知られていない条件の下で、鉛が岩漿からまた岩石から誘導され、種々のアイソトープ組成をもつ鉛鉱石——生成過程の地質学的時間の長さで左右される——が生成された。火成岩中に含まれている鉛は一般に鉛岩石 (rocklead) と呼ぶことにする。鉛鉱石または鉛岩石の混合物は普通鉛と呼ばれる。現在出会う鉛の典型的なアイソトープ混合物は、太平洋底の堆積物中の鉛——沿岸から物質の搬入影響を受けない地域——である。第 2 表にはこの種鉛のアイソトープ組成が示してある。

第 2 表 種々のアイソトープ組成をもつ普通鉛  
(1 に取られた  $Pb^{204}$  の含有量に対する比)

鉛 源 泉	$Pb^{206}$	$Pb^{207}$	$Pb^{208}$
鉄 質 隕 石	9,41	10,27	29,6
最 古 期 鉛 石 Pb	12,65	14,27	32,78
赤 色 粘 土	18,95	15,76	38,92
花 崗 岩	26,40	17,40	46,0

これには含 U、Th 鉱物の壊変で生じた鉛の特有なアイソトープ組成が加わるから、天然に産する Pb のアイソトープ組成の変動の幅がきわめて大きいことが認められるはずである。

次に鉱床周辺の岩石中の鉛をとりあげてみよう(第 3 表参照)。

鉛の生成年代が鉱石を圍繞する岩石の生成年代に比較して常に新しいことが知られている。第 3 表からみられるように、鉛鉱石には、錳石鉛に較べ放射源アイソトープの蓄積量の低いことを示している。しかし鉛鉱石と錳石鉛の間には成因的に結び付きがあると考えられる。すなわち鉛鉱石のアイソトープ組成、例えば Pitkeranta 産のものが花崗岩中に含まれている鉛に、花崗岩中に含まれている鉛のアイソトープ組成が鉛鉱石にそれぞれ属しているならば、この結び付きが否定されるであろう。したがって錳石鉛と鉛鉱石とが同一アイソトープ組成をもっていた時代が考えられるであろう。例えば、Pitkeranta 産花崗岩、アルタイ産石英曹長石斑岩、Porugino 産の花崗閃緑岩があげられる。

アルタイ産の含鉛岩石(錳石)と鉛鉱石(方鉛鉱)とのアイソトープ組成は興味がある。アルタイ産方鉛鉱のアイソトープ組成はバラツキが小さい。したがってアルタイ産の鉛が単一の造山運動期に生成されたという印象を受ける。放射源鉛の濃集状態からみると、曹長石斑岩は Polugunsk 花崗閃緑岩より古い。約 2 億 8 千万年~3 億万年前の曹長石斑岩は、アルタイ産方鉛鉱の Pb のアイソトープ組成に対応する鉛のアイソトープ組成をもっている。

最も興味があるのは、アルタイの lenigorsk 地域産鉛のアイソトープ組成である。この鉛はアルタイの他の地域と異なり、深所の坑道から試料採取を行つたので異常な組成、すなわち放射源 Pb を多量に含んでいる。この異常組成は、放射源 Pb の含有量の高い岩石——U、Th

第3表 種々の岩石中の鉛のアイソトープ組成  
(1単位にとられた Pb<sup>204</sup> 含有量に対する比)

岩石種	U (%)	Pb (%)	Pb <sup>206</sup>	Pb <sup>207</sup>	Pb <sup>208</sup>
花崗岩 (Pitkeranta, Karero-Finskaya. SSR)	7,5 · 10 <sup>-4</sup>	2,7 · 10 <sup>-3</sup>	26,40	17,40	46,0
Galena (Pitkeranta)	—	—	14,26	14,77	33,23
花崗岩 (Mutuche 極東)	3,5 · 10 <sup>-4</sup>	1,5 · 10 <sup>-3</sup>	20,5	17,10	42,25
Galena (Sinancha 極東)	—	—	18,60	16,11	38,95
花崗閃緑岩 (Porugino アルタイ)	2 · 10 <sup>-4</sup>	8 · 10 <sup>-4</sup>	17,90	14,90	37,40
方鉛鉱 (Porugino)	—	—	17,98	15,56	37,20
石英曹長石斑岩 (Zuryanov) Skoe, 鉱床 (アルタイ)	1,7 · 10 <sup>-4</sup>	3 · 10 <sup>-4</sup>	19,15	15,20	37,35
方鉛鉱 (同一鉱床)	—	—	17,67	15,30	36,90
玄武岩 (カムチャッカ 1937年に噴出したもの)	2 · 10 <sup>-5</sup>	2,2 · 10 <sup>-4</sup>	17,40	14,90	36,60

に比較的富む——から生成されたことで説明できるであろう。

このような鉛アイソトープの異常現象は、Sudbery, カンタガ等でみられる。Sudbery 鉱山では鉱床の地表附近の地産の鉛は普通の Pb アイソトープの組成に近いが、深所では放射源 (Pb) アイソトープを多量に含む新しい Pb が出現する。したがって深所では、地表近い地産でみられない一層新しい、アイソトープ組成の Pb が存在することが推定される。すなわちこの鉛は、U, Th に富む岩石から誘導されたことが考えられる。

したがって種々岩石 (岩漿) は生成年代によつて異なる種々のアイソトープ組成をもっているから、鉱石中の Pb は種々岩石 (岩漿) から誘導されたものである。しかし類似の鉱石生成過程は他の鉱石元素 (ore-element) と相関関係があるが、たゞ遊離に伴う物理的、化学的過程が異なっている。

次に玄武岩中のアイソトープ組成について述べよう。玄武岩中における U に対する Pb の含有量は、花崗岩中における U に対する Pb の含有量に比較して高い。第1の比は約9, 第2の場合には約4である。岩漿分化が行われていると、U と Pb の不均衡の分布が岩漿誘導物の間に起こり、そのために多様な Pb/U 比をもつ岩石が混在していることがある。これとともに興味があるのは、現代のカムチャッカ産の Pb<sup>206</sup>/Pb<sup>204</sup>, Pb<sup>207</sup>/Pb<sup>206</sup>, と Pb<sup>208</sup>/Pb<sup>204</sup> の比が、われわれの研究した花崗岩中の Pb のそれに較べて著しく低いことである。岩石 (鍾石) と鉱石とのアイソトープ組成を対比すれば、鉱床生成過程——あらゆる地質データを背景として——の研究を深めることができるであろう。

鉛鉱石の問題にかえらう。鉛鉱石のアイソトープ組成については、約250が知られている。研究された主要鉱物は galena と例外として白鉛鉱・水鉛鉛鉱および褐鉛鉱とである。次に Pb のアイソトープ組成の変化の性質を知るために、また1つには地質年代を知るために、第4表には、各造山運動期別の鉛アイソトープ組成の平均値が掲げられている。

この表からみられるように、アイソトープの組成と鉛の生成年代との間に周知の相関関係がよく知られる。したがってこの法則性は、Pb<sup>207</sup>/Pb<sup>206</sup> の比による鉱物および岩石の生成年代を決定する基礎となつている。しかし、すべての鉛のアイソトープ組成が地質年代の対比に用いられるとはいえない。このことは上述の Sudbery およびアルタイ産の鉛のアイソトープ組成をみれば明らかである。これらの場合には生成地質年代と対応しないので、平均アイソトープ組成と異なる鉛の分布異常が現われる。統計的に処理された資料中に普通認められるアイソトープの含有量の比例関係は、ときには、Pb<sup>206</sup> と Pb<sup>208</sup> との異常な増加によつて乱されること

第4表 方鉛鉱の鉛の平均アイソトープ組成

造山運動期	造山運動期の時代間隔 (単位百万年)	Pb アイソトープの含有量 (Pb <sup>204</sup> の含有量を1にとる)			確実回数
		Pb <sup>206</sup>	Pb <sup>207</sup>	Pb <sup>208</sup>	
アルプス造山運動期	25~180	18,22	15,57	38,22	42
バリスカン "	200~260	18,16	15,70	38,17	85
カレドニヤ "	280~400	17,32	15,23	37,27	7
原生代	600~1200	16,62	15,56	36,77	32
上部始生代	1400~2000	15,28	15,18	34,69	10
下部始生代	2000~3000	13,97	15,00	33,96	19
				総計	195

がある。次に偶然的性質をもたない相似の異常現象の原因を検討しよう。しかし Pb アイソトープの質量分析による分析誤差について問題が起こらないようにするために、まず次のことを附言しておく。著者によると、質量分析の誤差は小さく、1%以下である。

分析値の比較と精度は第5表に示しておく。この表には世界各地の学者が行った同一試料のアイソトープの分析結果が掲げられている。この表にみられるように質量分析誤差は Negligible である。

第5表 Jopln rigion の鉛のアイソトープ組成  
(Pb<sup>204</sup>を1にとつた場合の含有量)

Pb <sup>206</sup>	Pb <sup>207</sup>	Pb <sup>208</sup>	
22,38	16,15	41,6	Nier
22,42	16,01	41,5	Vinogradov および協力者
22,35	16,15	41,8	Collins および協力者
21,65	15,74	40,4	Nier
21,78	15,72	40,8	Vinogradov および協力者

150の鉛山地帯から種々の成因の鉛試料250以上(現在300以上になっている)を採取した結果によると、アイソトープ組成の偶然性異常は18~20%である。そのうえアイソトープ組成の異常は、1鉛床地区の全鉛についてもみられた。これは確かに偶然性によるものでない。ここで、鉛石と錳石とのアイソトープ組成の比に対する一般の考察を想起してみる必要がある。これらの考察は鉛物および岩石中の U, Th, Pb 原子間の比が放射性壊変過程以外にはいかなる過程によつても乱されないという法則に基づいている。さらにあらゆる岩石を通じて Th/U 組成が平均して一定であると仮定されている。しかしこの仮説は補正する必要がある。鉛床学者があげる鉛鉛石の生成年代の決定は一般的に信用できない。この場合には鉛鉛石の生成年代と岩石の生成年代とが同一であると仮定されている。鉛物の生成年代については、鉛が岩漿および岩石を遊離してから凝固が始まる瞬間が問題となり始めている。Mc. Crady は次のように考えている。鉛石生成過程はきわめて長く、Pb 鉛石の沈澱時が決められないので、Pb が岩石から抽出される平均時間をとつている。一般には、Pb の遊離と沈澱とが一作用で形成されるものと仮定されている。しかし岩石から Pb の遊離が数作用で形成されることを否定できない。したがつて鉛のアイソトープ組成がこの作用過程で影響を蒙ることは当然である。最後に Th および U の含有量についてみれば、岩石は平均含有量と比較して著しい偏差を示している。ここで Pb のアイソトープ組成が乱される主要な原因があるようである。Th の含有量が高いと、Pb<sup>208</sup> の含有量が高くなる。Th 源 Pb, U 源 Pb または普通にみられる Pb が鉛鉛石に添加されることは、Pb のアイソトープ組成に異常が起きる一主原因となる。換言

すれば天然産鉛の混合性は、鉛のアイソトープ組成の形成に大きな影響を及ぼす。どのような Pb のアイソトープ組成 (成生年代) が鉛鉱石に附加されるかは無視できない問題である。一般にいえば、普通の鉛の鉛鉱石に附加される量が増すと、アイソトープ組成 ( $Pb^{207}/Pb^{206}$  比) がそれに対応して著しく変動を示す。すなわちアイソトープ組成の異常は、鉛の生成年代が新しくなるにしたがつてとくに顕著に現われる。このような現象 (地質年代決定の歪み) は、普通の鉛または他の鉛の添加だけで起きるものではない。反対の場合も可能である。すなわちウラン、ラジウム、ラドンおよび鉛の岩石および鉱物からの喪失である。このような可能性を示すものとしては、ラジウムに富む天然水、含ラドン水、または U の含有量の高い水の存在する場合があげられる。もちろんきわめて明白なこれらの諸例は本問題に直接関係がない。しかしこのような現象は、鉛の年代決定方法の可能性ある元素の喪失と、その結果の解析に自然に目を向けるようになる。Th に対しては、他の放射性元素と無関係に (ある程度) 著しい移動を起こすことはほとんどないものと考えてさしつかえないようである。Rn、または U が著しく喪失する問題に関しては様々な見解がある。例えば Kulp は、Rn の喪失が鉛のアイソトープ組成を乱し異常分布がその組成に起きる主要原因と考えている。Russel は U の著しい喪失を重視している。ウラン鉱物の Rn 喪失 (エマネシヨンの型) はよく知られた事実である。Rn は鉱物の毛細管状亀裂に沿って放散される。しかし非分解鉱物にあつては喪失 (放散) はきわめて小さい。Rn の放散は、温度の上昇に伴つて増加するが、このような現象は、天然の条件で起こりうる。このような場合には、 $Rn^{222}$  の T/2 は 3,825 日であるが、 $Th^{230}$  の T/2 は 54,53 秒、 $An^{219}$  は 3,19 秒であるから、Rn 気体の放散は例えば An、または Tn の喪失よりも大きいことが考えられる。Rn の喪失は  $Pb^{206}$  の含有量の低下を招く。したがつて  $Pb^{207}/Pb^{206}$  比は小さくなる。この  $Pb^{207}/Pb^{206}$  比は鉛鉱物の生成年代の決定に利用できるであろう。こゝで次のことを思い起こすべきである。すなわち放射性鉱物の生成年代の決定は、 $Pb^{207}/Pb^{206}$  の比ばかりでなく、 $Pb^{206}/U^{238}$ 、 $Pb^{207}/U^{235}$ 、 $Pb^{208}/Th^{232}$  の比かまたはすべての 4 つの比の値について同時に行ふこと註2)ができるであろう。したがつて鉱物のアイソトープ組成および  $Pb^{207}/Pb^{206}$  の値に及ぼす影響 (添加と喪失) は無視できる。これらのデータをそれぞれ比較すると、鉛の異常組成の出現原因が明らかになる。第6表には、鉛および放射性元素のアイソトープの相関関係による地質年代を掲げてある (単位百万年)。

第6表 鉛と放射性元素の比による放射性鉱物の生長年代

鉱物	$Pb^{206}/U^{238}$	$Pb^{207}/U^{235}$	$Pb^{208}/Th^{232}$	$Pb^{207}/Pb^{206}$
サマルスキ石 Gleistonbery				
コネティカット州 Cleveite	253 ± 3 1070 ± 5	255 ± 4 1077 ± 6	275 ± 4 855 ± 8	293 ± 20 1098 ± 20
ノールウェ 閃ウラン鉱	1056 ± 10	1055 ± 15	1000 ± 20	1041 ± 20
オンタリオ モナズ石				
南ロデシヤ	2675	2680	2645	2680

上述の諸データ (“良いデータ”と“異常データ”) から一つの法則が求められる。第1には、 $Pb^{207}/Pb^{206}$  比は他のアイソトープ比に比較して値が大きい。したがつてこの方法によつて求められた地質年代は最も大きくなる。Rn の喪失は、 $Pb^{207}/Pb^{206}$  比が大きくなるばかりか、 $Pb^{206}/U^{238}$  の比が若干低くなる。そのうえその値 (後者) は、鉱物の生成年代と事実において相関関係を示さない。 $Pb^{207}/Pb^{206}$  の場合には、Rn の放散に基づく年代決定の誤差は、鉱物

註2) U および Rn の喪失影響の少ない  $Pb^{206}/Pb^{210}$  比についても年代決定ができる。

の年齢が若くなるにつれて(指数法則によつて)増大する。 $Pb^{207}/U^{235}$  の比は平均して  $Pb^{206}/U^{238}$  比に比較して若干高い。 $Pb^{207}/U^{235}$  の比では An の喪失はきわめて僅かである。しかし  $U^{235}$  の崩壊定数の精度が低い。したがつて  $Pb^{207}/U^{235}$  比は、欠陥があるから、Pb 対 U の種々の比に関する現在のデータは、Rn の潜在放散を指摘している。Rn の起こりうる喪失は将来的に計算できるようになるであろう。

U の喪失は、 $Pb^{206}/U^{238}$  と  $Pb^{207}/U^{235}$  に基づく生成年代を大きくとる結果となる。しかし実際上では  $Pb^{207}/Pb^{206}$  の値には反映していない。

Pb 喪失も除外できないが、 $Pb^{207}/Pb^{206}$  の変化の基にはならない。Po, I o  $Ux_1$  および他の元素の挙動に関してはあまり知られていない。著者は、 $U^{238}/U^{235}=138$  のアイソトープ比または (Pb のアイソトープ比が放射性壊変を除く) 天然過程では乱されないと述べている。理論的には、天然過程で H と D との分裂の可能性が指摘されている。事実上においても、例えば海水の蒸発によつて H の選択的逸散 (Selected dispartion) か、H と D との部分分裂が起きるのが認められている。確率度は劣るが、C, N, O, S およびその他の元素も天然 (物理的) 過程で核分裂を起こす。この種のアイソトープ組成に少量の混合物 (天然) が認められるのは、アイソトープの交換反応によるものである。

鉱物および岩石の生成年代を  $Pb^{207}/Pb^{206}$  に基づいて決める 場合には (1) Rn の喪失確率、(2) 普通の Pb に添加 (混合) される U, (3)  $\frac{Th}{U}$  比の偏差をまず考慮に入れる必要がある。これを避けるためには鉱物資料を綿密に選ぶとともに一方ではデータの精度を評価するにあつてはあらゆる判断基準を利用することにある。しかし “鉛年代決定法” は、種々の鉱床から産出する種々の地質年代に属する鉛のアイソトープ組成の研究にはとくに興味がある。

$Pb^{207}/Pb^{206}$  に基づく地質年代の決定には、放射源 Pb の周知の濃集式 (accumulation) を利用する。

$$nPb^{206} = nU^{238} (e^{\lambda_{238}t} - 1);$$

$$nPb^{207} = nU^{235} (e^{\lambda_{235}t} - 1);$$

$$\frac{nPb^{207}}{nPb^{206}} = \frac{nU^{235}}{nU^{238}} \left[ \frac{e^{\lambda_{235}t} - 1}{e^{\lambda_{238}t} - 1} \right];$$

$$\frac{nU^{235}}{nU^{238}} = \frac{1}{138} \cdot$$

$$\lambda_{235} = 9,722 \cdot 10^{-10}/\text{年}^{-1}$$

$$\lambda_{238} = 1,541 \cdot 10^{-10}/\text{年}^{-1}$$

$$\lambda_{232} = 4,987 \cdot 10^{-11}/\text{年}^{-1}$$

$$\frac{T}{2} (U^{238}) = 4,50 \cdot 10^8/\text{年}$$

$$\frac{T}{2} (U^{235}) = 7,1 \cdot 10^8/\text{年}$$

$$\frac{T}{2} (Th^{232}) = 1,39 \cdot 10^{10}/\text{年}$$

t 濃集期間

$\lambda$  崩壊定数

n, 原子数

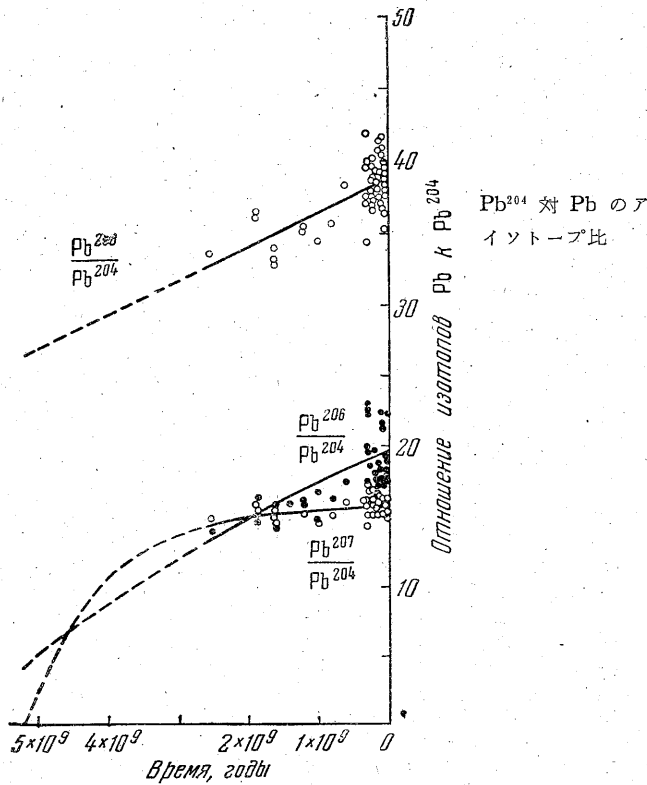
Wickman, Kulp のノモグラフを利用すれば、 $\frac{nPb^{207}}{nPb^{206}}$  の値から生成年代が直接求められるであろう。

著者は世界各地の鉛のアイソトープ資料を集めて次のように述べている (第7表, 印刷省略)。サクソニヤ産の鉛は放射源の鉛、とくに  $Pb^{206}$  と  $Pb^{208}$  が比較的多量に濃集している均一な “若い” アイソトープ組成をもっている。しかし、アルタイ (ソ連) 産の鉛は、これより若干古い、Kareli, オンタリオ地域および北西部カナダ産の鉛はさらに古く、最古期の鉛は、ローデシヤ (南アフリカ) 産の鉛で、25 億万年以上と推定されている。

これらのデータには、異常アイソトープ組成をもつ鉛が明らかに現われている。とくにソ連のデータでは、 $Pb^{208}$  と  $Pb^{206}$  には最大の異常(アイソトープ組成)が認められる。 $Pb^{208}$  量の増進が  $Pb^{207}$  より著しく迅速に行われている現代においては、 $Pb^{208}$  と  $Pb^{206}$  アイソトープの添加が起こっていることを意味している。

鉛および母岩の生成年代を  $Pb^{207}/Pb^{206}$  およびその他の類似の対比方法で決定されたデータによれば、地球上における古期岩石の最古期核(中心)が求められる基礎が与えられる。“鉛年代決定法”は、アイソトープを利用する他の地質年代の決定方法と比較して多くの長所をもっている。現在、“鉛およびその他の地質年代決定法”によつて、古期岩石地帯が、Kaleri, ウクライナ, マイスウル(インド, デカン高原), オーストラリア, ニュージーランド, オンタリオ, yellow knife(カナダ), ウガダン, ケニヤ, 南ローデシヤ, transvaal(南アフリカ)で発見されている(約25億万年)。

地殻の構造を理解するためにはこのファクターがどんなに重要であるかを理解するのは容易である。例えば地殻を構成する岩石の地質年代の%は先カンブリア代の岩石で占められている。科学には、始生代の岩石の歴史とその解明に関する課題が課せられている。“鉛地質年代決定法”によれば、種々の大陸にみられるこの種の岩石の識別、対比が行えるであろう。



第1図 時間の函数としての鉛のアイソトープ含有量  
 上方曲線  $Pb^{203}/Pb^{204}$  中央曲線  $Pb^{206}/Pb^{204}$   
 下方曲線  $Pb^{207}/Pb^{204}$

Pbのアイソトープ組成は時間の連続函数である。換言すれば鉛のアイソトープ組成とその生成年代に関するあらゆるデータは、グラフで表わすことができる。このグラフによると鉛の親元素の1つが0になるまでの地質時代における現在のPbアイソトープ組成を外挿法で求められる。例えば  $Pb^{206}$  と  $Pb^{207}$  の平均存在量(abundance)とその生成年代(t), 現在にお



る  $U^{238}$  と  $U^{235}$  の存在量とその崩壊定数を知れば、最小自乗法を利用して、 $Pb^{206}$ 、 $Pb^{207}$ 、 $Pb^{208}$  の存在量時間曲線が求められる。

現在の  $Pb$  は、 $Pb^{204}$  の含有量を 1 にとれば、次のようなアイソトープ組成からなっているであろう。 $Pb^{206}$ —18,45  $Pb^{207}$ —15,64  $Pb^{208}$ —38,34 第 1 図の示されてある存在量時間曲線は、この組成に基づいている(この場合、全資料の約 18% の異常比は計算から除外された)。

この曲線は、(1) とくに新しい鉛のアイソトープ組成の分散度の幅が相対的に大きいこと、(2) 古期鉛の生成年代に対する  $Th/U$  比の影響が少ないこと、(3) 地質年代とアイソトープ組成との対比に既知の乱れがみられることを示している。さらに  $Pb^{206}$  曲線は  $O$  点の時間座標軸と交らない。 $Pb^{207}$  の生成開始期(地球上で放射性壊変の始まる時代)を  $0$  時とすると、この現象は  $Pb^{207}$  の一部に宇宙源のものが存在することが考えられる。Mc. Crady は  $Pb^{207}/Pb^{206}$  に基づく  $Pb$  の地質年代の決定が存在量時間理論曲線で求められると述べている。Crady によれば、例えば全地質年代を通じて  $Th$  と  $Pb$  との比は不変として、現在のアイソトープ組成および生成年代によつて求められた曲線によればよい。

しかし現在の諸経験によれば、種々の鉛のアイソトープ組成による地質年代データを直接対比すれば一層正しい実際的な基準が得られる。存在量時間曲線(abundance-time)は、良い統計的データによつて始めて求められるであろう。このようにして求められた曲線は科学的にもまた実際的にも大いに役立つであろう。

Holmes は初めて地殻の生成年代、すなわち地球の凝固期を決定した。Nier は、種々のデータによつて約 1,500 にのぼる生成年代の決定を行い、“最も信頼度の高い”数値を求めた。その値は  $2 \cdot 10^9$  から  $6 \cdot 10^9$  にわたっているが、Nier は、地殻の生成年代として  $3,35 \cdot 10^9$  年を選んでゐる。

Bullard と Stanely は、Holmes の求めた地殻の生成年代を基にして、一層数学的に厳密な方法で計算し、補正を加えている註 3)。Jeffreys は Holmes の仕事に批判的な検討を加えている。すなわち、

$$x_m = a_0 + aV_m(e^{\lambda_{238}t_0} - e^{\lambda_{238}t_m})$$

$$y_m = b_0 + V_m(e^{\lambda_{235}t_0} - e^{\lambda_{235}t_m})$$

$$x_m = nPb^{206}/nPb^{204} \quad t_m \text{ 年}$$

$$y_m = nPb^{207}/nPb^{204} \quad t_m \text{ 年}$$

$$a_0 = nPb^{206}/nPb^{204} \quad \text{初成鉛}$$

$$b_0 = nPb^{207}/nPb^{204} \quad \text{〃}$$

$t_0$  — 地殻凝固期(地殻の生成年代)

$$V_m = \frac{U^{235}}{nPb^{204}}$$

$$a = \frac{nU^{235}}{nPb^{204}} \text{ 現在}$$

$n$  — 原子数、 $\lambda_{238}$  と  $\lambda_{235}$  は  $U^{238}$  と  $U^{235}$  の放射性崩壊定数

各項を統一すると次の方程式が求められる。

$$\frac{x_m - a_0}{y_m - b_0} = a \left( \frac{e^{\lambda_{235}t_0} - e^{\lambda_{235}t_m}}{e^{\lambda_{238}t_0} - e^{\lambda_{238}t_m}} \right)$$

$t_0$  を求めるためには、 $a_0$ 、 $b_0$  を知ることが必要である。計算にあつては、いわゆる初成鉛のアイソトープ組成に関する実験データと喰い違いが生じない信頼度の高い  $b_0$  と  $a_0$  値とを選び出す。すでに指摘したように初成鉛のアイソトープ組成に関しては類似のデータが若干ある。新データが求められるにしたがつて、その組成の変化は  $Pb^{204}$  の含有量の増加を示す傾向がある。隕鉄産の最古期鉛のアイソトープ組成が現在知られているからこの数値を方程式に代入すべきである。

註 3) Bullard, E. C. a. I. P. Stanely: The age of the Earth. Ver. Finn, Geodäs inst. 36, 33, 1949

最後に Houterman は、ウランによつて地球の生成年代を  $2,9 \pm 0,10^9$  年と決定している(第8表参照)。さらに Houterman は隕石の初成鉛のアイソトープ組成をとりあげ、地殻の生成年代を  $4,46 \cdot 10^9$  と決定している(註4)。

第8表 初成鉛のアイソトープ組成による地殻の生成年代

Pb アイソトープ ( $Pb^{204}$ の含有量=1)			生成年代	決 定 者	
$Pb^{206}$	$Pb^{207}$	$Pb^{208}$			
12,50	14,28	31,82	$3,0 \cdot 10^9$	Holmes	1946
11,52	14,03	31,6	$2,9 \cdot 10^9$	Houtermans	1946
10,95	13,51	—	$3,35 \cdot 10^9$	Holmes	1947
11,86	13,86	—	$3,49 \cdot 10^9$	Bullard, Cotp	1949
11,33	13,55	31,10	$3,5 \cdot 10^9$	Collins, Cotp	1952
9,41	10,27	29,16	$4,46 \cdot 10^9$	Houtermans	1953

著者は、これら数値は疑問の点が多いから、地殻の生成年代は  $3-4,5 \cdot 10^9$  ととるべきであると述べている。現在の熱力学的データによれば、凝固時、すなわち固い地殻が形成された時間は地質学的にはきわめて短時間 ( $n \cdot 10^6$  年以下) であることが考えられる。したがつて地殻の生成年代は地球の生成年代に近いはずである。Holmes その他の著者が地殻の生成年代決定に利用した方法はこの点を考慮に入れていないので、信頼度が低い。地殻の生成年代は、Pb のアイソトープ組成から地殻の凝固時を求めれば一層厳密な裏付けが求められるであろう。

次に隕鉄の鉛の組成——初成鉛のアイソトープ組成——について述べておこう。隕石に含まれている元素のアイソトープ組成は地球の元素のアイソトープ組成に対応している。しかし地球と隕石との U, Th, Pb の生成の歴史は異なっている。この現象は、隕石の物質が地球中でみられる岩漿分化作用に類似する過程を蒙らない点を考えれば明らかになるであろう。

地球上における岩石の U と Pb との平均含有量(放射性崩壊を除く)が変化しないものとみなし、次に地球の生成年代を  $Pb^{206}$  か  $Pb^{207}$  の存在量が0の時の時代と条件的に決めるならば、第1図で地球の生成年代が求められる。すなわち  $Pb^{207}$  曲線と座標軸との交点 ( $5 \cdot 10^9$ ) が地球の最低生成年代となるであろう。第9表には実験データで計算された地球の生成年代が示されてある。

第9表 鉛のアイソトープ組成による地球生成年代

アイソトープの資料数	地球生成年代	著 者
23	$5,3 \cdot 10^9$	Alpher, a Herman 1951
57	$5 \cdot 10^9 \pm 0,5 \cdot 10$	Vinogradov Zadovozhnyi Zykov 1952
11	$5,5 \cdot 10^9$	Collins, Russell 1953

したがつて地球の生成、すなわちアイソトープの生成初期は約  $5 \cdot 10^9$  である。著者は現在までの地質年代決定方法では地殻の生成過程、とくに花崗岩化作用が U, Th, Pb の比に及ぼす複雑な影響を考えに入れていないのでこの点を考慮に入れて、Pb アイソトープの濃集階梯を2階梯に分ち、地殻の生成前と地殻生成後とについて地殻の生成年代を計算した。しかしこの

註4) (Houtermans, F.G.: Das alter des Urans. Zeitschr. f. Naturforschung, B. 2a, H. 6, 322 (1947).

Houtermans, F. G.: Determination of the Age of the Earth from the Isotopic Composition of Meteoritic Lead II Nuovo cimento, X ser. nova, No. 7, 1623 (1953).

ように生成階梯を区分しても、地球の生成年代の数値には実際上変わらない。また地球の生成年代が長くなるのは  $U^{235}$  の爆発的な増加 (Catastrophic increase) によつて起きる。これは、 $U^{235}$  による生成年代と地球上の物質 (元素) の生成年代を対比すれば明らかになる。

Koczy は、地球上の岩石における Pb/U の平均含有比でこの問題を解決しようとした (註5)。

Koczy はこの方法によつて約  $5,3 \cdot 10^9$  年を求めている。著者は、Pitkerant, Mutuche の花崗岩とアルタイの花崗閃緑岩とによつて生成年代を約  $5,1 \sim 5,3 \cdot 10^9$  年を求めている。

著者は結論として次のように述べている。種々の成因をもつ鉛のアイソトープ分析を利用すれば、鉛物、岩石、地殻の生成年代および地球の生成年代を知ることができる。さらに最古期岩石、すなわち始生代の岩石——Rb-Sr 方法も大きな意味をもっている——の決定には、この方法はとくに重要である。鉛物と母岩との鉛アイソトープ組成を利用すれば、この種の鉛の相互関係が明らかとなり、鉛鉛物の生成過程が明らかとなるであろう。とくにペグマタイトの鉛のアイソトープ組成、アルプス型鉛脈の鉛のアイソトープ組成の研究に、この方法を用いるならば鉛床の生成過程を知るみちが開かれるであろう。

註 5) Koczy, F. F.: The "Age" of Terrestrial Matter and Geochemical U/Pb Ratio. *Nature*, **151**, 24 (1943)