

## 大分県野矢地熱地域の火山岩の熱ルミネッセンス法による年代測定

高島 勲\*

TAKASHIMA, Isao (1982) Thermoluminescence dating of volcanic rocks from Noya geothermal area, Kyushu, Japan. *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol. 33 (3), p. 125-131.

**Abstract:** The thermoluminescence (TL) properties of 7 plagioclases separated from Quaternary andesite and rhyolite lavas, and welded tuffs from Noya geothermal area were studied for the purpose of developing a TL dating method. The ages are obtained from the reference curve drawn from the standard samples of known ages and their specific TL values. TL ages are obtained for 5 samples as 2 of 7 plagioclases show TL saturation. The ages are 0.27 to 0.78 Ma and coincide with K-Ar and FT ages within the limits of  $\pm 20\%$ . Although some uncertainties exist mainly in the estimation of annual dose rate and fading rate in plagioclase crystals, total errors for the measurement of TL glows,  $\gamma$ -ray radiation rate and U, Th, K analysis are less than  $\pm 15\%$ . Then, the accuracy of the TL ages of plagioclases may be  $\pm 30\%$ .

### 要 旨

ほとんどすべての火山岩に含まれている長石を用いた熱発光年代測定法 (TL) の実用性を検討するため、野矢地域の第四紀安山岩及び流紋岩溶岩、同質溶結凝灰岩中の斑晶斜長石について測定を行った。年代は熱発光測定及び放射性元素分析値から単独に算出するのではなく、年代既知の試料との比較から相対的に求められた。測定した7個の試料のうち5個について年代を求め、0.24-0.78 Ma という値を得た。残り2個は熱発光の飽和現象が見られたため、参考値を示すにとどめた。これらの値を既存の K-Ar, FT 年代と比較したところ、一部を除き  $\pm 20\%$  の範囲で一致した。熱発光測定、元素分析の誤差は最大  $\pm 15\%$  であり、この値と既存年代との比較結果を総合すれば、年代測定の精度として  $\pm 30\%$  程度が見込まれる。

### 1. ま え が き

地熱活動の時代的变化を求める研究の一環として、変岩質と火山岩の年代測定の検討を進めてきた。前者については変質岩中の残存石英斑晶や変質鉱物そのものについての熱発光年代測定が進められ、一応の成果が得られている (TAKASHIMA, 1979; 高島, 1980 a)。後者については、一般に、K-Ar 法、フィッション・トラック (FT) 法などが行われているが、100万年より若い岩石については測定精度が低下し、測定不能となる場合も多い。そ

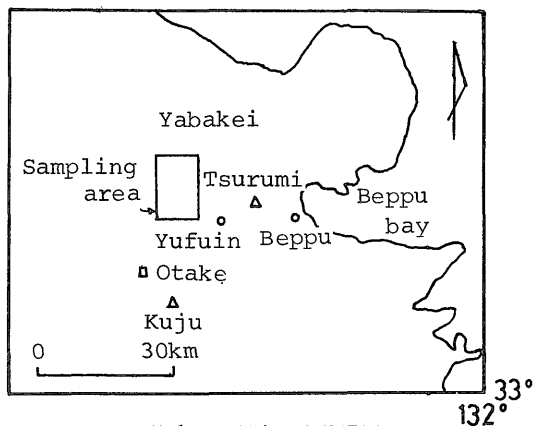
こで、火山岩についても熱発光法の検討を行った。

ほとんどすべての火山岩に含まれている長石を用いた熱発光 (Thermoluminescence-TL) 年代測定法は、数千年から数10万年の年代を求めるのに適した方法として多くの研究がなされているが (MAY, 1977; GUÉRIN and VALLADES, 1980など)、日本の火山岩に適用された例は少ない。

ここでは、大分県野矢地熱地域周辺 (第1図) に分布する第四紀火山岩について測定した結果について述べる。

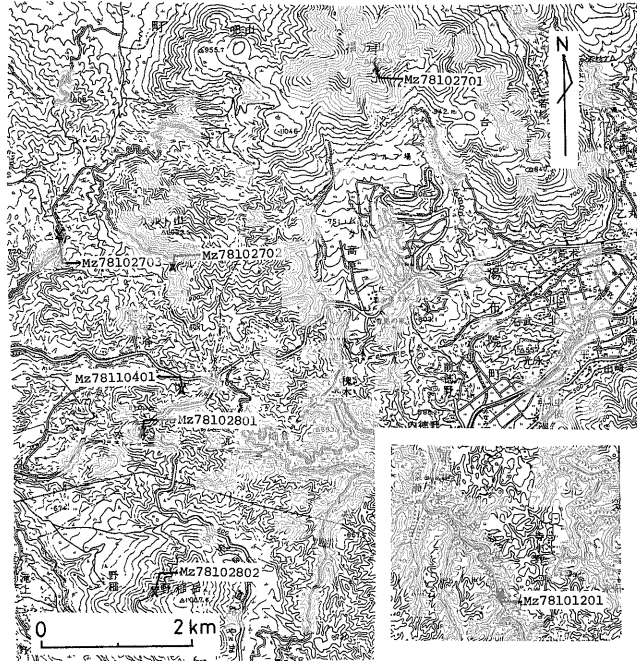
### 2. 試 料 採 取

試料は第2図に示した地点から7点採取した。この地域の層序は第1表のようにまとめられているが (高島・



第1図 調査地点位置図

\* 地 熱 熟 部



第2図 試料採取地点図 ×印試料採取地点

「この地図は、国土地理院発行の5万分の1(別府)及び(耶馬溪-右下部分)を使用したものである」

第1表 野矢周辺地域の第四紀地質層序及び年代(高島・村岡, 1980年を一部修正)

時代	地質系統	岩石種	測定試料	年代 (Ma)			
				T	L	その他	
沖積世	沖積層	礫・砂及び粘土					
	山麓堆積物	岩屑及び砂					
第四紀	飯田軽石流堆積物	黒雲母普通輝石紫蘇輝石石英含有角閃石 デイサイト					
		阿蘇火砕流堆積物	角閃石含有普通輝石紫蘇輝石安山岩				
	山陰系旧期 火山岩類	福万山火山岩	角閃石安山岩	MZ 78102701	A 0.66	B 0.78	
		野稲岳火山岩	かんらん石含有角閃石安山岩	MZ 78102801 MZ 78102802	>0.37 >0.41	>0.43 >0.48	0.40 (FT, 同一試料) (高島, 1980b)
		カルト山火山岩	黒雲母含有角閃石安山岩	MZ 78102702	0.23	0.27	1.9 (K-Ar) (渡辺ほか, 1981)
	耶馬溪火砕流堆積物	角閃石安山岩	MZ 78101201 MZ 78102703	0.30 0.20	0.35 0.24	0.40 (FT) (松本ほか, 1977)	
		万年山溶岩類	溶岩類	黒雲母角閃石流紋岩~黒雲母角閃石 デイサイト	MZ 78110401	0.40	0.47
	凝灰角礫岩層		紫蘇輝石角閃石デイサイト				
	日向神溶岩	溶岩類	角閃石安山岩				
		凝灰角礫岩層	角閃石安山岩				
豊肥火山岩類	溶岩碎屑岩層	角閃石含有普通輝石紫蘇輝石安山岩~ 角閃石普通輝石紫蘇輝石安山岩					
	水底堆積層	凝灰岩・シルト岩及び砂岩					

TL年代Aは玉川のT-2, T-6を, Bは野矢のM-4を基準とした値である。

村岡, 1980), 同質の火山岩が複雑に入り組み, 確実な層序は立てられていない。試料の多くは地熱開発基礎調査において採取されたもので, FT年代測定も進められている。以下に各試料の肉眼的特徴を簡単に述べる。

Mz78102701: 福万山の山頂付近で採取。灰色を呈し,

わずかに角閃石を含む安山岩溶岩。斑晶は小さく少ない(福万山溶岩)。

Mz78102801: 豊肥線水分トンネル通過部の上, 別府-阿蘇横断道路沿いで採取。暗灰-紫色の角閃石安山岩溶岩で, 斑晶は小さく, かつ少ない(野稲岳溶

岩)。

Mz78102802: 野稻岳の西側山腹で採取。灰-紫色の角閃石安山岩溶岩で、斑晶としては黒雲母、角閃石、やや大型 (5 mm) の斜長石が認められる (野稻岳溶岩)。

Mz78102702: カルト山の南斜面を通る林道上で採取。灰-青灰色を呈し、斑晶として角閃石、大型 (5-10 mm) 斜長石、そして少量の黒雲母を含有する緻密な安山岩溶岩 (カルト山溶岩)。

Mz78101201: 深耶馬溪深瀬温泉付近で採取。白灰色の弱溶結凝灰岩。斑晶として黒雲母、角閃石、斜長石が認められるが、その量は少ない。軽石片の偏平度も低い (耶馬溪溶結凝灰岩)。

Mz78102703: カルト山の西方、やや平坦な谷で採取。灰-暗赤色の溶結凝灰岩。斑晶としては黒雲母、角閃石、斜長石が見られ、その量もかなり多い (耶馬溪溶結凝灰岩)。

Mz78110401: 水分峠の西、小さな独立山体の中腹から採取。暗赤色を呈し、弱い流理構造の認められる流紋岩溶岩。斑晶としては黒雲母、角閃石、斜長石が認められる (万年山溶岩)。

なお、年代の基準として秋田県八幡平の玉川溶結凝灰岩 6 個についても測定を行ったが、その試料は TAKASHIMA (1979) で報告したものと同一である。

### 3. 測定方法

試料は径 0.5-2 mm 程度に粉砕した岩石粒から手選で、300 mg 以上の長石を拾い出し、実験に使用した。鉱物粒は 270 メッシュ以下に粉砕し、その 30-40 mg をヒータ上に刻まれた径 10 mm の試料設置部に直接入れ、表面を平らな円盤で押さえ、平滑化した。測定は原岩中の長石、その  $\gamma$  線照射物、そして加熱後試料の  $\gamma$  線照射物の三種についてそれぞれ 3 回行い、得られた発光曲線の面積平均をその試料の発光量とした。  $\gamma$  線源は 3000 Ci の  $^{60}\text{Co}$  であり、線量率約 50 kR/h のところに 12 分間置き、10.35 kR の線量を照射した。この線量はすべての照射物について同一とし、その値は TLD 素子により求めた。  $\gamma$  線照射後の試料は、低温の発光ピークを消去するため、130-150°C、4 時間の前処理を行った。

測定装置は市販の熱蛍光線量計を 550°C の高温まで使用できるように改造したものであり、測定条件の主なものは次のとおりである。

- (1) 昇温速度・測定範囲: 200°C/分・室温—550°C
- (2) 最大感度波長: 340 nm
- (3) 感度校正:  $^{14}\text{C}$  で標識された内部標準

(4) 使用雰囲気: 室温、大気、白熱灯条件

試料が天然の下で受けた放射線量は岩石中の放射性元素 (U, Th, K) の含有量から算出されるが、今回の実験では、BELL (1976) が提案した値を使用し、 $\alpha$  線の寄与がないとして年間被曝線量を求めた。なお、放射性元素の分析は  $\gamma$  線スペクトロメトリー法によって行った。

### 4. 実験結果とその処理

第 3 図に代表的長石試料の熱発光曲線を示した。天然の試料は 450°C 付近にピークのある比較的単純な発光を示し、 $\gamma$  線照射物ではその (TL) ピークが 10-20°C 低温側に移動している。熱発光はある限度以上には増加しないという飽和現象があり、限界に達した試料は測定に使用できない。この点を吟味するため、天然の試料と、加熱により全量を放出した基底状態の試料に同一量の  $\gamma$  線を照射したときの発光量の増加と新たに生じた発光量の比率 (飽和度) を求めた。今回の試料は数 10 万年と古いため、天然の長石に 10.35 kR 程度の  $\gamma$  線照射を行っても増加する発光量は天然の発光量の約 10% 増と少なく、天然発光量そのものの測定値に 5% 程度の変動があるという状況では、増加分の算定には誤差が多い。このため、今回の実験では、一応の目安として、増加分が基底状態から新たに獲得した発光量の半分以上の試料の年代値のみ採用し、その他は参考値として得られた値より古いことを表す不等号を付して示した。このような処理の結果、年代値が算定できるものとして野矢地域で 5 試料、基準として加えた玉川で 2 試料が選び出された (M-7 は得られた年代も若く、係数も小さいことから飽和の可能性がある)。

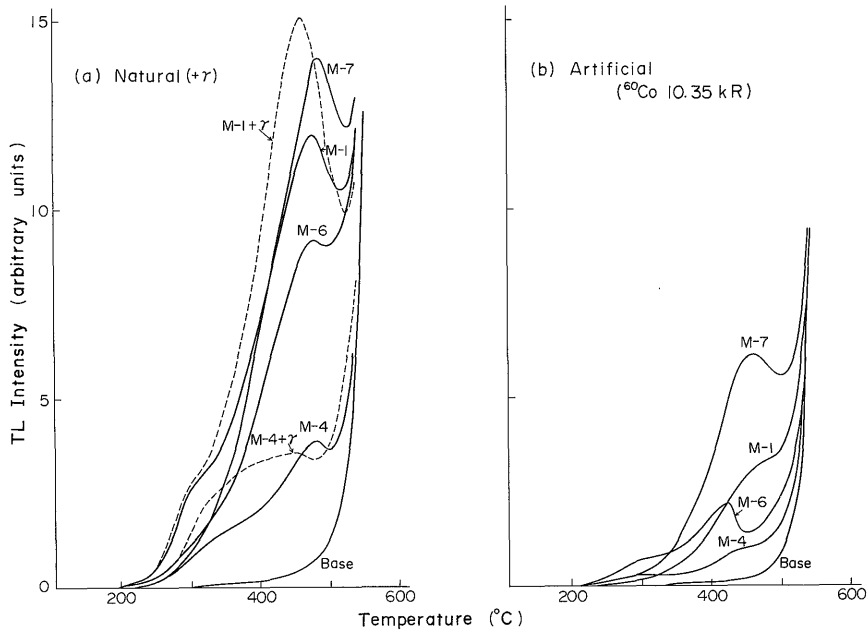
年代値  $t$  は、天然状態で得た発光量  $T_n$ 、年間被曝量  $R_n$ 、人工照射による発光量  $T_a$ 、そしてその照射量  $R_a$  から次式で求められる。

$$t = \frac{T_n}{T_a \cdot R_n} R_a \cdot k$$

この式で  $k$  は天然と人工の線源の違い、照射時間の差などによる発光能率、エージング効果の差異、人工照射後の試料熱処理方法などによって決まる係数であり、現在のところ正確に求められる段階には至っていない。一例として、玉川の T-2 試料について、 $k=1$  として求めた年代は 0.49 Ma となり、FT 法で決定された 1.2 Ma という年代の半分弱となる。この違いの大部分はおそらく、100 万年を越える長期の間に受ける弱い放射線によるトラップ電子の蓄積 (この量が発光量に比例する)、自発的減少 (エージング) が、大量、短時間 (12 分間) の照射、短時間の熱処理では再現できないことによるも

第2表 熱発光年代

No.	Sample No.	Mineral	U (ppm)	Th (ppm)	K <sub>2</sub> O (%)	(T) Total* <sup>1</sup> Radiation Dose (rad/y)
M-1	MZ 78102701	Plagioclase	0.9	3.7	1.65	0.2036
2	" 102801	"	1.4	6.2	2.42	0.3080
3	" 102802	"	1.2	4.9	1.87	0.2418
4	" 110401	"	1.4	5.5	2.06	0.2693
5	" 102702	"	1.2	5.2	2.01	0.2572
6	" 101201	"	1.4	7.5	2.28	0.3082
7	" 102703	"	2.0	8.6	2.74	0.3739
T-1	TM-1	Quartz	1.2	4.0	1.48	0.1957
2	TK-4	"	0.8	2.7	1.11	0.1416
3	TM-2	"	2.2	6.8	2.37	0.3240
4	TM-3	"	1.2	4.8	1.62	0.2144
5	TM-4	"	1.4	4.7	1.48	0.2066
6	TM-5	"	1.3	4.4	1.55	0.2078



第3図 代表的試料の発光曲線

(M-1等は試料の番号で第2表と同じ)

(a) 天然長石及びそのγ線照射物。照射量は10.35 kR

(b) 加熱後試料のγ線照射物。照射量は10.35 kR

のであろう。従って、一定の照射量(今回の実験では10.35 kR)であるRaを含めた、 $Ra \cdot k$ を定数とし、 $Tn/Ta \cdot Rn$ (補正TL強度—Specific TL)が年代に比

例するとして、年代既知の試料との比較で未知試料の年代を求めるのが実際的である。

第4図の直線Aは飽和が無い試料でかつ年代既知の

測定結果の総括

TL glow intensity (Average)			C/(B-A)	Specific TL A/C/T	Age*2 (Ma)		Comments
(A) origina	(B) $\gamma$ -assist	(C) Artificial			A	B	
791.2	906.4	155.2	0.74	25.04	0.66	0.78	Bの年代基準
529.6	539.6	123.9	0.08	13.88	>0.37	>0.43	
845.0	866.4	226.3	0.10	15.44	>0.41	>0.48	
213.2	268.7	52.4	1.06	15.11	0.40	0.47	
530.0	712.6	230.2	0.79	8.95	0.23	0.27	
595.2	704.4	168.2	0.65	11.48	0.30	0.35	
831.6	992.4	281.4	0.57	7.90	0.20	0.24	
1324.5	1327.3	153.8	0.02	44.01	(1.1)*3	Aの年代基準	
774.4	867.6	114.8	0.81	47.64	(1.2)		
1594.4	1641.0	152.8	0.30	32.21	(1.2)		
1153.3	1195.6	108.1	0.39	49.76	(1.7)		
1713.3	1699.2	184.7	—	44.90	(1.7)		
1694.1	1797.6	110.5	0.94	73.78	(1.8)	Aの年代基準	

\*1 BELL (1976) による値を利用し、 $\alpha$ 線の寄与率を0として求めた。

\*2 年代 A は T-2, T-6 を, B は M-4 を基準とした値である。

\*3 玉生・須藤(1978)によって求められた FT 年代であり, 試料も T-2 を除いて同一である。

T-2, T-6 から求めた補正 TL と年代の関係である。年代不明の野矢地域の試料はその補正 TL の値をこの図に入れることにより, 0.20-0.66 Ma という年代が求められる。一方, 野矢地域には今回測定した火山岩と同一層準に K-Ar, FT 年代の測定値があり, TL 年代が相対であることからその値を基準に取ることもできる。一例として, 万年山溶岩 M-4 の TL 年代を既知年代 0.41-0.53 Ma の中間値, 0.47 Ma とした場合の TL 年代は 0.24-0.78 Ma となる。この関係は第 4 図の直線 B として示した。これらの結果は熱発光量, 放射性元素の分析結果等と合わせて第 2 表に示した。この結果はまた, 30 万年程度が古い側の限界といわれている長石の TL 年代測定法 (GUÉRIN and VALLADES, 1980) でも, 試料さえ選べば 50 万年より古い年代の測定が可能であることを示している。

5. 測定精度

熱発光年代測定は主として考古学分野で研究が進められ, 土器の年代測定法としてはほぼ確立されているが, 岩石の年代測定法としてはいくつかの問題が残されている。本測定法の誤差の原因としては次のような事項が考えられる。

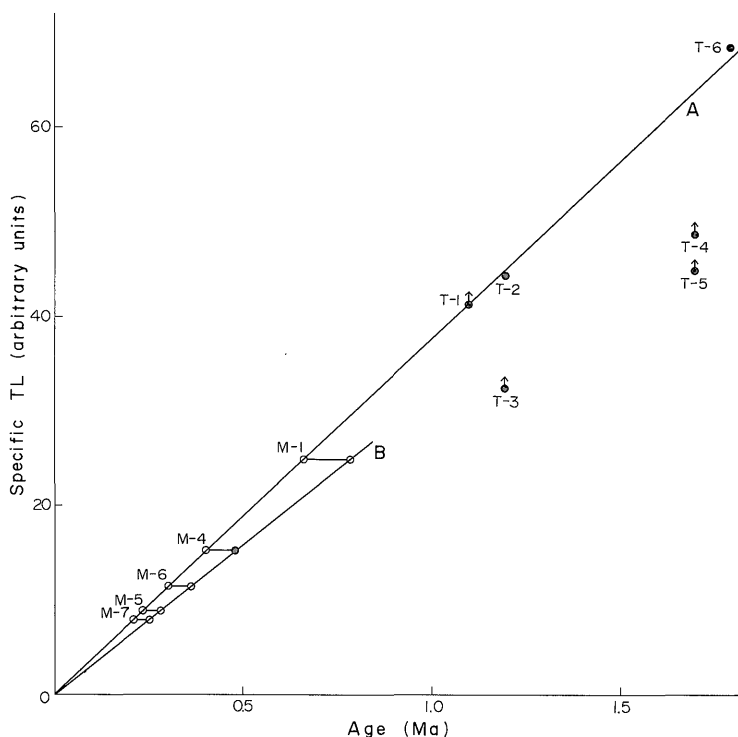
- (1) 熱発光測定上の誤差
- (2) 岩石中の放射性元素分析上の誤差
- (3) 前項の分析値から, 対象鉱物に対する被曝量見積

りの適否

- (4) 天然放射線と<sup>60</sup>Coの放射線( $\gamma$ 線)に対する鉱物の反応の違い, 照射後のエージングの差異

(1)については, 測定時の粒度, 重量, 昇温速度などの影響について検討して (TAKASHIMA, 1979), さらに粉砕や光に対する反応なども予備的にいくつか実験した結果, 全体として, ほぼ±10%以内の精度で求められている。(2)についても, 誤差は±5%以内である。この(1), (2)の項目の誤差については別に報告する予定であるが, いずれにしても全体で15%を越えることはない。一方, (3), (4)の項目は, 本測定法の基本的部分であるが, 今のところ正確に評価する方法は発表されていない。従って, 当面, K-Ar 法, FT 法など他の方法との相互比較によりその値を見積ることになるであろう。ただし, この(3), (4)の効果は同じ様な組織を持った岩石中の同じ粒度の鉱物に対しては, ほぼ等価と考えられるので, そのような岩石相互の相対的年代比較はかなりの意味を持つものと思われる。

今回の実験に使用した試料は玉川の石英, 野矢の長石とも数 mm 以上の径を持つ斑晶であり, 岩石中での $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ 線の寄与はほぼ同じであるという前提に立っている。玉川の石英を基準として得られた野矢地域の岩石の年代は, これまでに他の方法で求められた値と比較して 20-30%若い傾向を示すものの, ほぼ妥当な値であり(カルト山火山岩を除く), この前提が一応満たされているも



第4図 補正熱発光強度と年代の関係  
(M-1, T-1 等は試料の番号で第2表と同じ)

縦軸は放射性元素の含有量、鉱物の熱発光感度により補正した熱発光強度、横軸は K-Ar, FT により求められた年代である。直線 A は T-2, T-6, 直線 B は M-4 の年代を基準としたときの各試料の年代を示す。矢印を付した点は飽和現象により、年代から予想されるより少ない発光であることを表す。

のと考えられる。玉川と野矢という異なった場所の、岩種も対象とする鉱物も違った試料の年代測定値が同一の検量線で説明できることは、本方法の今後に明るい見通しを与えているものと思われる。しかし、長石から求められた年代が一方的に若い値を示すことは、長石が石英に比較して飽和しやすいことを表わしているとも考えられ、石英の TL を基準として長石の TL 年代を求める場合には注意を要するものと思われる。

一方、同じ地域の万年山溶岩を基準とした場合には、TL 年代と既和年代の違いは M-5, M-7 を除き ±20% 以内となっている。年代の基準としてはこのような同地域の同種の、岩石の測定値を使用するのが望ましいと考えられるので、この値を今回の TL 年代として採用した。

以上述べてきたような既知年代との比較、そして測定誤差の値から、適切な年代基準を選択することにより、長石の TL 年代の精度として ±30% 程度が考えられる。

## 6. 考 察

得られた TL 年代は第1表の地質層序に既存の年代値と併せて示した。本地域では年代測定値はあまり多くなく、対比可能な層準として、カルト山溶岩、耶馬溪溶結凝灰岩、万年山溶岩があげられる。

カルト山溶岩については K-Ar の測定値と全く一致せず、今後、同一試料での再測定・相互比較、野外調査による確認が必要である。ただし、ボーリング結果等から本溶岩が地下広く分布するのではなく、カルト山周辺にのみ分布する小岩体であることが確かめられている。そして、そのような小火山が現在も地形的に高い山地を形成していることから見て、1.9 Ma という K-Ar 年代には疑問が残る。

現在のところ野外調査のデータが不足しており、TL 年代も単独でその値を議論できる程の信頼性は持っていないので、これ以上の考察は差し控えたい。今後、TL 年代測定例を増加させるとともに、他の方法で求められ

た結果とのクロスチェックにより信頼性、誤差の確認を進め、層序調査と合わせて、総合的な解析を行う予定である。

#### 謝辞

本研究での $\gamma$ 線照射は工業技術院共同利用施設で行った。使用に当っては繊維高分子研究所の山内愛造、山本正秀、伊藤昭二の各技官の援助を受けた。また、本研究に使用した年代既知の玉川溶結凝灰岩の試料は地殻熱部玉生志郎技官の提供されたものである。物理探査部金谷弘技官には $\gamma$ 線スペクトロメトリー法により U, Th, K の分析をしていただいた。記して深謝の意を表します。

#### 文 献

- BELL, W. T. (1976) The assessment of the radiation dose-rate for thermoluminescence dating. *Archaeometry*, vol. 18, p. 107-111.
- GUÉRIN, G. and VALLADES, G. (1980) Thermoluminescence dating of volcanic plagioclases. *Nature*, vol. 286, p. 697-699.
- 磯 望・池田安隆 (1979) 中部九州万年山周辺の万年山溶岩のフィッシュン・トラック年代. 第四紀研究, vol. 18, p. 165-168.
- 松本徂夫・西村 進・田島俊彦 (1977) 九州の新生代火成岩の fission-track 年代. 長崎大教養部紀要自然科学, vol. 17, p. 63-75.
- MAY, R. J. (1977) Thermoluminescence dating of Hawaiian alkalic basalts. *Jour. Geophys. Research*, vol. 82, p. 3023-3029.
- TAKASHIMA, I. (1979) Preliminary study on the determination of alteration age by a thermoluminescence method. *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol. 30, p. 285-295.
- 高島 勲 (1980 a) 熱発光による地熱変質帯の年代決定法の基礎的研究. 日本地熱学会誌, vol. 2, p. 81-86.
- (1980 b) 地熱開発基礎調査変質帯調査報告「湯の平」. 地熱開発基礎調査報告書 No. 22, 資源エネルギー庁・地質調査所, p. I-1—I-20.
- ・村岡洋文 (1980) 地熱開発基礎調査変質帯調査報告「水分峠」. 地熱開発基礎調査報告書 No. 17, 資源エネルギー庁・地質調査所, p. I-1—I-20.
- 玉生志郎・須藤 茂 (1978) 八幡平西部の玉川溶結凝灰岩の層序と年代. 地調月報, vol. 29, p. 159-169.
- 渡辺公一郎・林 正雄・山崎達雄 (1981) 大分県野矢地熱帯の火山層序とフィッシュン・トラック年代. 地質学会第88年学術大会講演要旨, p. 311.

(受付: 1981年8月10日; 受理: 1981年10月5日)