

レーザー融解法による 極微量 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定法の開発

宇都 浩三¹⁾・石塚 治¹⁾

1. はじめに

火成岩の中で最もありふれた鉱物である斜長石1粒を用いて精密な年代測定を可能にする技術を開発したい。それは、3年前の年頭にあって語った夢である(宇都, 1993)。それが、私たち自身が思っていたよりもずっと早く実現しつつある。私たちは、工業技術院特別研究1994-1996年度の3年計画で「火山の形成過程と活動に関する研究」の一部として、「極微量アルゴン・アルゴン年代測定法開発に関する研究」を実施中である。ここでは、私たちが現在開発を進めつつある極微量レーザー融解 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定装置の概要と今得られつつある最新の測定データを紹介し、今後に向けたより現実的な展望を述べる。年代測定法の原理、応用例および手法開発に着手するにあたっての動機などについては、前回の紹介記事(地質ニュースno.461, 1993年1月号)に述べたので、是非参考にして頂きたい。また、本装置の概要を本号の口絵に紹介しています。併せて御覧いただきたい。

2. 年代測定装置の概要

レーザー融解 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定を行うために必要な実験施設・装置は、以下の4つの部分に大別される。まず、原子炉において中性子照射を受けた岩石鉱物試料を使用するためのアルゴン同位体実験室(第1図)、そしてその中に設置されるレーザー抽出系(レーザー融解極微量アルゴン抽出精製装置)、超高真空高感度希ガス質量分析計および操作卓(第2図、口絵1)である。以下に、施設・装置の概要について述べる。

2.1 アルゴン同位体実験室

$^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定に用いる岩石鉱物試料は、測定の前に原子炉に送られ、そこで高速中性子の照射を受けて試料中の ^{39}K を ^{39}Ar に変換する必要がある(宇都, 1993)。中性子照射の後、送り返されてきた試料は、国の定める法律(放射性同位元素等による放射線障害の防止に関する法律)に決められた管理区域内で実験を行わなければならない。 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定専用のアルゴン同位体実験室の概要を第1図に示す。この実験室は、地質調査所内の既存の管理区域である放射化学分析室の隣に増設されたもので、両実験室が合体してひとつの管理区域を構成している。すなわち、出入口、汚染検査室、廃棄物保管庫および排水設備は両実験室で共有している。しかし、両実験室は、独立した吸排気設備を持ち、放射性物質の貯蔵庫、ドラフトチャンバー、流しなども別々であり、実質上独立した施設として使用し、お互いの実験室間での影響はない。

2.2 レーザ抽出系

レーザー抽出系(レーザー融解極微量アルゴン抽出精製装置)は、レーザー発振装置、レーザー光学系、試料チャンバーおよびアルゴン抽出精製ラインにより構成される(第3図、口絵2, 3)。

レーザー発振装置(Coherent社INNOVA300)は、定格10Wのアルゴン連続レーザーである。用いている波長は、488nm(ナノメートル)および514nmと可視光領域であり、青色のレーザービームが発振する(口絵3)。

レーザー光学系は、集光器、光ファイバーおよび光学顕微鏡により構成される。発振されたレーザービームは、集光器を通して直ちに光ファイバーの中に導

1) 地質調査所 地殻化学部

キーワード： $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定、微小領域分析、技術開発

仕切るバルブおよび質量分析計への導入部のバルブの二つには、トルクモーターが取り付けられており、外部信号によりモーターが回転しバルブの開閉が可能となるようにしてある(第4図、口絵10)。

本装置には、上記のレーザ用抽出精製ラインに加え、大量の測定試料を正確な温度コントロールで段階加熱するための抵抗加熱炉の抽出精製ラインも取り付けられている。両ラインは、完全に独立した排気用真空ポンプと精製用ゲッターポンプを有し、別々な導入バルブを介して質量分析計に繋がっており、各々のライン間で不純な気体で汚染し合わないよう設計されている。現在のところ、抵抗炉のラインは主に真空のチェックおよび標準空気アルゴンの作成に用いられており、本格的な活用は今後の課題である。

前述の2つの抽出精製ラインおよび試料チャンバーは、ひとつのオープンの中に収まり300℃まで真空焼き出しをすることができる。

2.3 希ガス専用質量分析計

前述のアルゴン抽出精製装置で精製されたアルゴンは、オンラインで繋がれた希ガス専用のVG ISOTECH社製VG3600型質量分析計(口絵11)を用いて同位体分析を行う。同質量分析計は、デューン検出器とファラデーカップ検出器の2つの検出器を備えており、アルゴン検出のダイナミックレンジが大きいことが特徴である。レーザ融解極微量アルゴン分析には主に前者の検出器を用いている。前者は、VG社が特許を持つ高感度検出器で、アルゴンイオン流を高電圧により90度偏向させるデューン管と光電子増倍管検出器により構成される。この検出器は、極微量イオン検出に通常用いられる2次電子増倍管と異なり、入射するイオン流強度と検出出力との間に完全な直線関係がなりたち、測定強度の違いにより同位体比が変化するということがない。従って、あらゆる測定レンジで精密な同位体測定が可能である。現在、デューン検出器の感度をファラデー検出器の約100倍に調整してあり、検出限界は ^{40}Ar イオンで、約 10^{-15}mlSTP (10^{-18}mol)である。また、レーザ抽出系も含めた装置全体のブランクは、 ^{36}Ar 、 ^{38}Ar 、 ^{39}Ar が $2\sim 5 \times 10^{-14}\text{mlSTP}$ 、 ^{37}Ar が $3 \times 10^{-13}\text{mlSTP}$ 、 ^{40}Ar が $1.8 \times 10^{-12}\text{mlSTP}$ である。100万年前の斜長石($\text{K}_2\text{O}=0.3\text{wt}\%$ 、非放射起源 ^{40}Ar 量 $=5 \times$

10^{-8}mlSTP/g として)1mg中に含まれる ^{36}Ar が $1.6 \times 10^{-13}\text{mlSTP}$ 、 ^{40}Ar が $6 \times 10^{-11}\text{mlSTP}$ であるので、原理的には百万年以下の斜長石1粒子を年代測定可能な性能を有していることが明らかである。

2.4 操作卓

本測定システムは、測定試料が放射性物質であることと、レーザを取り扱っていることの2点で実験者の健康を害する可能性がある。しかし、試料チャンバーに装着される試料の量は、全部合わせてもわずか数十mgで、放出される放射線の量は極めて少ない。また、レーザビームは殆どがレーザ光学系内部を通り、ビームが空気中に剥き出しになるのは対物レンズとビューポートの間のみであり、さらにレーザ光学系全体が安全用カバーで覆われている。従って、2つの要因のいずれかで事故が発生する可能性は殆どない。しかし、実験の安全性をさらに高めるためには、全ての実験操作を、試料およびレーザから離れた場所で行うことが重要である。その目的で、遠隔操作のための操作卓を作り、必要な機器を集めた(第2図)。

まず、CCDカメラに取り込んだ測定試料の画像は、操作卓上のTVモニター上で観察され、XYZステージを遠隔制御して試料の位置決めと試料像の焦点合わせを行う。また、レーザ出力制御も試料の加熱状況をモニターで観察しながら行う。さらに、アルゴンの抽出精製、同位体比測定に必要な3つのバルブ(抽出・精製ラインおよび質量分析計と各々のイオンポンプとの間のバルブ、抽出精製ラインから質量分析計への導入バルブ)の開閉を全て遠隔制御する。これにより、試料上にレーザをあてはじめてからアルゴンガスを質量分析計に導入するまでの全ての実験操作を、全て操作卓上で行うことが可能である。加えて、質量分析計による計測制御も質量分析計の横の専用パソコンで行う。従って、 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定実験を、放射性物質である試料から離れた場所でレーザ光に背を向ける形で安全に行うことが可能である。

操作卓には、その他に、実験中の試料画像を記録するビデオおよび加熱中の試料の表面温度分布を解析するビームプロファイラーが置かれている。ビームプロファイラーは、加熱された試料の表面から放射される熱赤外線のエネルギ分布を解析するため

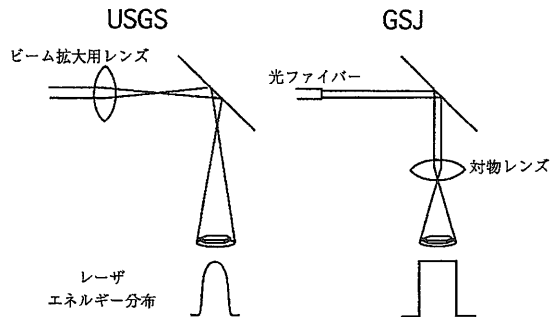
の装置で、エネルギーを8階調に分け、グレースケールもしくは疑似カラーで表現することが可能である(口絵8)。また、任意の点のエネルギーを相対値として求めることができる。現在のところ、試料表面の温度とビームプロファイラの解析値との比較はできていないので、ビームプロファイラの出力から温度を推定することはできない。しかし、試料を段階加熱する際、試料が均質に加熱されているかを確認することができている。

2.5 ⁴⁰Ar/³⁹Ar年代測定システムの特徴 (光ファイバーの採用)

我々のレーザー⁴⁰Ar/³⁹Ar年代測定システムは、アメリカ合衆国地質調査所(USGS)メンロパーク支所のシステム(Dalrymple, 1989)を参考に構築したもので、世界の他の研究所、例えばカナダのトロント大学、アメリカのカリフォルニア大学バークレー校、スタンフォード大学などほぼ似たようなシステムを有している。しかし、ひとつ非常に重要な点で、我々のシステムは他の研究室と異なっており、他の研究機関ではできないあるいは困難な年代測定実験をできる可能性がある。

それは、レーザー発振装置から発振したレーザービームを測定試料上に導く光路システムの違いである。例えばUSGSにおいては、発振されたレーザービームは空気中を剥き出しのまま進み、幾つかのミラーにより曲げられビューポート内の試料に当てられる。試料を観察する双眼実体鏡は、レーザー光路を妨げないように斜めに取り付けられており、レーザーの焦点が結ばれる位置に実体鏡の焦点が合うようあらかじめ位置決めを行っておく必要がある。また、大きな試料全体にレーザービームを当てるためには、焦点をずらしてビームを広げる必要がある。レーザービームのエネルギーは、ガウス分布をしているので、ピンボケの状態では、ビームの中心からはずれるほど試料に当てられるビームのエネルギーが減る。従って、0.1mmを越える径の測定試料については試料全体を均質に段階加熱することは不可能である(第6図)。

一方、我々のシステムにおいては、レーザービームは、光ファイバーを通して光学顕微鏡内に導かれ、対物レンズにより測定試料上にフォーカスされる。このシステムでは、可視光のレーザーが光学顕微鏡の光軸上を通るため、CCDカメラを通してディスプレイ上



第6図 大きい径のレーザービームを作るためのレーザー光学系の比較概念図。従来の方式(USGS)では、ビーム拡大レンズにより広げられたレーザービームは、ミラーで曲げられピントが外れた状態で試料に当てられるため、そのエネルギー分布はガウス分布をしている。従って、中心部と周辺部で試料の加熱温度に差が生じる。一方、光ファイバーと光学顕微鏡を用いた我々の方式(GSJ)では、平行光のレーザービームが対物レンズにより拡大され試料上に焦点を結ぶため、エネルギー分布が平坦になり、試料を均質に加熱できる。

で観察される試料像にピントを合わせることでレーザーもフォーカスでき、かつ常に視野の中心にレーザーが当たる。一方、レーザービームは光ファイバーの中で全散乱するので、光ファイバーの内径に等しい径を持ち、エネルギー分布が均質でかつ裾引きのないレーザービームを顕微鏡内に導入することができる。さらに、その像は、対物レンズにより試料上に結像される。従って、試料上に平坦なエネルギー分布のレーザーを当てることにより試料を均質に加熱することができる。

試料上に照射されるレーザービームの直径は、対物レンズの倍率と光ファイバーの径を変えることで調整できる。すなわち、低倍率のレンズと径の太いファイバーの組み合わせで大きな径のビームを作り、逆に高倍率のレンズと径の細いファイバーの組み合わせで小さく絞られたビームを作ることができる(第1表)。発振されるレーザーの出力が同じなら、当然ビームの径を2倍にすることでエネルギー密度は4分の1になる。

現在は、直径1mm前後の鉋物および岩石試料を均質に段階加熱することを当面の目標にしているので、200または400 μ mのファイバーと $\times 2$ または $\times 5$ 倍の対物レンズを用いて試料より大きな径(0.8-2mm)

第1表 ビームサイズの対物レンズの倍率と、光ファイバーケーブルの径を変えることにより選択できるレーザービーム径。通常は400-1000 μmのビームサイズで使用している。

ビーム径(μm)		光ファイバーの径(μm)			
		400	200	100	50
対物レンズの倍率	×2	4000	2000	1000	500
	×5	1600	800	400	200
	×20			100	50
	×50			40	20

のレーザービームを試料に当て、試料全体を均質に加熱することを試みている。雲母のような平板上の試料はほぼ均質に加熱できていることが、ビームプロファイラーの観察で確認されている。しかし、厚みがあり粒状の形状をした試料では深さ方向でビームの焦点が動くため、当然のことながら完全には均質に加熱できていない。火山岩の全岩試料を段階加熱するためには、平板状に整形した試料を用いるなど今後の工夫が必要である。それにより、数mgを越える量の試料をレーザー段階加熱年代測定するという、他機関では困難な年代測定が可能になると期待される。

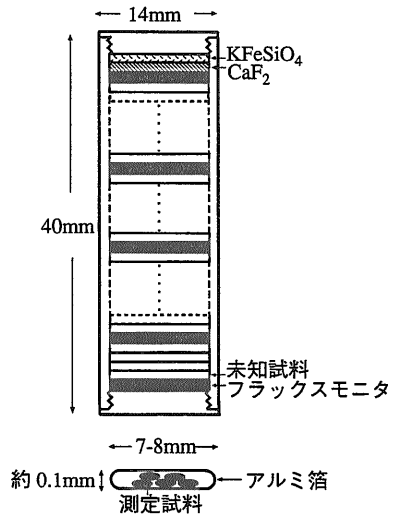
3. 年代測定実験

年代測定に用いる岩石鉱物試料は、通常の方法で粗粉碎され、ふるいがけや鉱物分離により、0.25-1mm程度の大きさのものに揃えられる。その後、以下のような手順で原子炉での中性子照射を経て年代測定される。

3.1 中性子照射

試料の中性子照射は、茨城県大洗町の日本原子力研究所および東北大学金属材料研究所の材料試験炉(JMTR:熱出力50MW)を使用して行っている。

中性子照射する測定試料は、0.25-1mm程度(重量約0.05-3mg)の鉱物あるいは岩石粒子で、これを十数粒ずつアルミ箔に包み、長さ40mm、内径11mmのアルミ製(純度99.5%)円筒型キャプセル内に積み重ねる(第7図、口絵4)。一つのキャプセルには、約30試料を詰めることができる。試料を詰め



第7図 中性子照射用のアルミ製試料キャプセルと測定試料の装填の概要図。内径11mmの円筒形キャプセル内に、フラックスモニタ(標準試料)と未知試料を交互に重ねる。アルミ箔の包みの中には径0.25-1mm程度の試料を数個入れる。

る際、照射時の中性子フラックスの勾配を見積もるために、キャプセル内での試料の位置を計測しておく。中性子フラックスを推定するために、すでにK-Ar年代が正確に求められている標準試料(フラックスモニタ)を未知試料3-4個に1個の割合で間に入れる。フラックスモニタとしては現在のところ、K-Ar年代測定法の日本での標準試料である沢入花こう閃緑岩(地球化学標準試料JG-1の原岩)中の黒雲母(K-Ar年代: 91.2Ma)、および⁴⁰Ar/³⁹Ar年代測定およびフィッシュトラック法の標準試料として世界の多くの実験室で用いられている、アメリカ合衆国コロラド州産のFish Canyon Tuff中の黒雲母およびカリ長石(K-Ar年代: 27.55Ma)を使用している。

中性子照射の際、速中性子と³⁹Kの反応から³⁹Arが生成するという⁴⁰Ar/³⁹Ar年代測定に必要な反応以外に、熱中性子とカルシウムやカリウムとの反応により測定の妨害となるアルゴンの同位体が生成する。この補正のためにKFeSiO₄ガラスとCaF₂人工結晶をキャプセル内に標準試料と共に入れる。

キャプセルは、金属材料研究所において、熱中性子による妨害反応を抑えるために厚さ0.8mmのカドミウム箔を巻かれる。これにより、キャプセルに照射される熱中性子束の98%以上がカドミウム箔に吸

収される。

カドミウム箔を巻いたキャプセルは、ステンレス製のラビットと呼ばれる容器に封入され、水力ラビット照射施設（水流によって試料を炉内に投入する施設）で中性子照射される。照射時間は、24時間で、速中性子束は約 $5 \times 10^{12} \text{n/cm}^2 \text{s}$ である。

照射後、試料は放射能の減衰を待つため、1~2ヵ月間静置された後、地質調査所へ返送される。

3.2 試料装着

照射済み試料は、アルゴン同位体実験室のドラフトチャンパー内に設置したグローブボックス中で開封され、一粒あるいは数粒ずつ、銅製の試料ホルダー上のピットにマウントされる（口絵5, 6）。その後、試料ホルダーは、ガラス製ビューポート付の試料チャンパーにセットされ、真空ポンプにより排気される。その後、オープン被せてライン全体を200-250℃で約30時間真空焼だしを行い、試料および精製ライン内に付着している気体をできる限り取り除く。抽出精製ラインの真空が $5-8 \times 10^{-10} \text{Torr}$ 程度まで下がれば測定準備が完了となる。

3.3 年代測定

アルゴンの同位体分析の場合、極めて少量の気体元素の測定であるため、酸素などの安定同位体やストロンチウムなどの固体元素の同位体分析と異なり、真空ポンプなどの排気系をラインから切り放した状態、すなわち静作動の状態、岩石からアルゴンを抽出精製して分析する。そのため、いくらラインの真空度を高めたとはいえ、排気系を切り放すとライン配管や質量分析計の表面から無視できない量のアルゴンがライン内に放出される。レーザー融解により数mg以下の極微量の試料を加熱しそこから放出されるアルゴンを測定するわけで、ラインから出てくるアルゴン（ブランクという）を正確に差し引く必要がある。そこで、実測定の前に、ラインと質量分析計を合わせた部分のブランク測定を行う。

ブランク測定が終わったら、測定対象となる試料をXYステージを用いてTVモニターの画面中央に来るように移動させ、Zステージを動かして焦点合わせを行う。準備が整ったら、コンピュータによりトルクモーターを操作して抽出精製ラインのイオンポンプ直上のバルブを閉め、排気系を遮断する。レーザー発振

装置の前のシャッターを開け、レーザービームを光ファイバーを通して光学顕微鏡の中に入れる。対物レンズから光学系の外へ出たビームは、ガラス製ビューポートを通して超高真空試料チャンパーに入り、その中のピット内の測定試料上にフォーカスされる。測定試料の加熱状況をTVモニターで観測しながら、徐々にレーザーの出力を上げさらに試料を加熱する。試料の加熱状況は、ビームプロファイラーにより表面温度分布を観察する。段階加熱の場合は所定のレーザー出力値で2分間放置し、全融解の場合は試料が完全に融解し溶融体となるまでレーザーの出力を上げる。試料からはアルゴンを含む気体が脱ガスし、抽出精製ラインに拡散する。気体は直ちに450℃および常温に保たれた2つのゲッターポンプで精製される。試料加熱が終了したら、ビームシャッターを閉じる。発生した気体は、ライン内でそのまま約8分間放置され、活性ガスは2つのゲッターポンプに吸着されアルゴンを含む希ガスだけが残る。アルゴンの抽出精製が完了したら、トルクモーター操作で質量分析計のイオンポンプ上のバルブを閉め、導入バルブを開ける。精製されたアルゴンは、拡散により質量分析計に導入される。気体が完全に平衡になるように20秒待って、質量分析計での計測を開始する。質量数36から40までの5つのアルゴン同位体をバックグラウンドとともに11セット計測して測定は終了する。その後、各々の同位体の11個の測定値を時間を横軸に回帰計算し、アルゴンを質量分析計に導入した時点での各同位体の測定強度を外挿して求める。その値から、前述のブランクを差し引き、妨害核種の補正、大気アルゴンの補正などを行い、試料中の放射起源 ^{40}Ar ($^{40}\text{Ar}^*$)と中性子照射起源の ^{39}Ar ($^{39}\text{Ar}_K$)の比を計算し、次式に代入すれば目的とする年代(T)を求めることができる。

$$T=1/\lambda \ln (1+J^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}_K) \cdots (1)$$

ここで、 λ は ^{40}K の全壊変定数である。また、Jは前述したように測定試料と一緒にキャプセルに封入した年代標準試料の測定結果とその年代(T_m)を用いて次式のように求める。

$$J=[\exp(\lambda T_m)-1]/(^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}_K) \cdots (2)$$

4. 予察的年代測定結果の紹介

これまで2回、東京大学地震研究所兼岡一郎教授

との共同研究として、前述の材料試験炉JMTRを用いて測定試料の中性子照射を行った。いずれも、K-Ar年代が正確に求められている幾つかの年代標準鉱物試料あるいは候補試料(主に黒雲母とカリ長石)を中心に照射し、年代標準試料相互の比較を元に新しい年代測定システムの信頼性のチェックを目的としている。以下に、これまで得られた予察的な結果を紹介する。これらのデータは、まだ年代測定実験を完全に終了しておらず、現在様々な観点で検討中である。特に細かな補正係数がまだ正確に決定されておらず、最終的な年代計算値ではない。従って、論文として出版される時には、年代値が多少変わる可能性があることをあらかじめ断っておく。

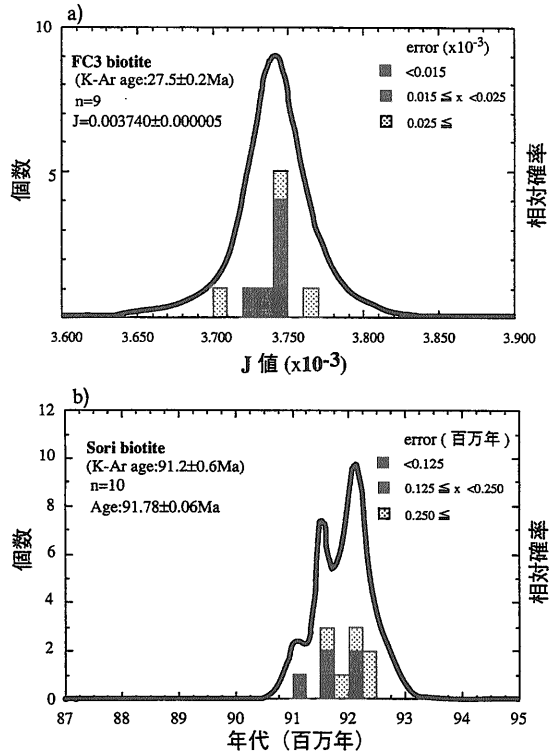
4.1 黒雲母1粒子の年代測定

黒雲母は、 K_2O に富みかつ CaO に乏しい黒色平板状の鉱物なので、レーザ融解法で結晶1粒子毎の $^{40}Ar/^{39}Ar$ 年代測定を行うのに最も適した鉱物試料であり、年代標準試料を含め多くの年代既知試料がある。そのため、レーザ融解 $^{40}Ar/^{39}Ar$ 年代測定の事始めとして、いくつかの年代既知の黒雲母を同時に中性子照射して年代測定を行い、相互矛盾のない測定結果が得られるかどうかの吟味を試みた。

ここでは、粒径約 $300\mu m$ 、重さ約 $50\mu g$ の黒雲母結晶を1ないし2粒子づつ全溶融させ測定を行った。特に、(1)年代の異なる幾つかの黒雲母について、既存のK-Ar年代値と矛盾のない年代が得られるか、(2)同じ岩石試料から分離した結晶について繰返し年代測定し、その測定結果の再現性が見積もられた測定誤差の範囲に収まっているか、を検討した。

これまで測定したのは、地質調査所年代標準鉱物の沢入花こう閃緑岩黒雲母(Sori biotite: $91.2 \pm 0.6 Ma$, 内海・柴田, 1980), Fish Canyon Tuff黒雲母(FC3 biotite: $27.55 \pm 0.16 Ma$, Lanphere et al., 1990), 室生火山岩黒雲母(ISE9404 biotite: $14.44 Ma$, 宇都ほか, 投稿中)および歌長流紋岩黒雲母(TRG04 biotite: $2.48 \pm 0.02 Ma$, 宇都ほか, 1994)である。

年代計算に必要なJ値(第1, 2式参照)は、FC3 biotiteの繰返し測定により算出した。第8図a)は、この試料の1ないし2粒子を9回測定した結果を示し



第8図 結晶1粒子づつの全融解年代測定結果。平均的な測定誤差を1ブロックとして、棒グラフで測定結果の集中度を示した。太線は、個々の測定結果の誤差も考慮して算出した確率密度曲線。a) フィッシュキャニオンタフ黒雲母結晶9個の測定結果で、K-Ar年代 $27.55 Ma$ をもとに計算されるJ値の分散を示す。b) 沢入花こう閃緑岩黒雲母の年代測定結果。a) で得られたJ値(0.003740)を用いて年代を計算した。

たものである。J値は9測定全体で $3.703-3.769 \times 10^{-3}$ と約2%の分散を示すが、うち5測定は $3.741-3.749 \times 10^{-3}$ の狭い範囲に集中する。大きく外れる2試料は、測定誤差が他に比べ大きい。全てのデータの荷重平均値は $(3.740 \pm 0.005) \times 10^{-3}$ である。実線で示した曲線は、relative probability distribution spectrum (相対確率分布曲線)と呼ばれ、個々の測定の分析精度を加味したJ値の相対的頻度分布である。ほぼ左右対称でガウス分布に近い頻度分布を示しており、測定に用いた全粒子が年代に関して均質であること、特におかしな測定結果がないこと、さらに前述の加重平均値およびその誤差が妥当であることを示

している。

第8図b)は, Sori biotite10試料の測定結果である。91Maとやや古いこの黒雲母では, 0.25-0.5mmサイズの結晶1粒子(約50 μ g)中の放射起源⁴⁰Arが高感度ダイリール検出器の最大測定出力に近いので, 低温と高温の2回に分けてアルゴンを抽出して測定した。全てのデータの加重平均値は91.78 \pm 0.06Maであり, 我々が用いている91.2 \pm 0.7MaのK-Ar年代と誤差の範囲で一致する。ただ, 得られた年代の頻度分布および相対確立分布から明らかなように, 加重平均値は91.4-91.7Ma (N=5)と91.96-92.46Ma (N=6)に2分される年代ピークの平均値である。このばらつきの原因については, 2つの可能性がある。ひとつは, Sori biotiteの年代の不均質性, もうひとつは中性子フラックスの不均質性である。Sori biotiteは結晶の劈開沿いに一部が緑泥石化している。その程度は結晶毎に異なるため, 結晶毎にK₂O量や放射起源⁴⁰Ar量が僅かながら異なっている。もしどちらかが選択的に失われれば, 粒子毎に年代が不均質である可能性がある。次の段階加熱法の項で述べるように, この黒雲母は, 低温部で系統的に若い年代を示す。その割合は, 全体に対し極めて小さいが, 積算(全融解)年代が91.2-91.4Maであるのに対しプラトー年代は92.0-92.8Maと100万年程度異なる。もし, 低温部相に富む若い年代の粒子と高温部相に富む古い年代の粒子に2分されるとすれば, この図に示す2つの年代のピークは本当である可能性がある。もうひとつの可能性として, 試料ごとに照射中性子線量が不均質であったことが考えられる。原子炉において試料に照射される高速中性子の量は, 試料の置かれた位置で多少異なるので, 数mm角のアルミ箔の包みの中で中性子フラックスが水平方向に変化すれば, 得られる年代が粒子毎に多少異なる結果となる。具体的には, より多量の中性子が当り, より多くの³⁹K起源の³⁹Ar_Kができれば, 年代はより若くなる。包みの中には試料をランダムに入れてあるので, もしそうだとすれば年代は2つのピークに分かれるのではなく幅広い単一のピークを持つはずである。この問題を解決するために, より多くの試料の分析を行うと共に, 中性子フラックスの水平方向での不均質性の有無を確かめるための実験を準備中である。

このほか, 14.44Maの室生火山岩(宇都ほか, 投

第2表 黒雲母1粒子の⁴⁰Ar/³⁹Ar年代測定結果。径約300~400 μ m, 重さ約50 μ gの粒子を使用して測定した。

沢入花崗閃緑岩

Sori biotite (K-Ar age 91.2 \pm 0.6Ma)				
No.	⁴⁰ Ar/ ³⁹ Ar _K	Age(Ma)	1 σ error(Ma)	Atm. ⁴⁰ Ar(%)
M9661	13.91 \pm 0.04	91.7	0.3	3.0
M9662	13.99 \pm 0.02	92.15	0.12	1.6
M9663	13.89 \pm 0.02	91.51	0.09	1.3
M9664	13.99 \pm 0.02	92.1	0.4	3.7

室生酸性火山岩類

ISE9404 biotite (K-Ar age 14.44 \pm 0.16Ma)				
No.	⁴⁰ Ar/ ³⁹ Ar _K	Age(Ma)	1 σ error(Ma)	Atm. ⁴⁰ Ar(%)
M9649	2.147 \pm 0.014	14.50	0.09	7.4
M9653	2.145 \pm 0.011	14.40	0.07	7.7

歌長流紋岩

TRG04 biotite (K-Ar age 2.48 \pm 0.02Ma)				
No.	⁴⁰ Ar/ ³⁹ Ar _K	Age(Ma)	1 σ error(Ma)	Atm. ⁴⁰ Ar(%)
M9650	0.3966 \pm 0.0105	2.68	0.07	29.9
M9651	0.3640 \pm 0.0092	2.46	0.06	64.0
M9652	0.3734 \pm 0.0134	2.52	0.09	42.6

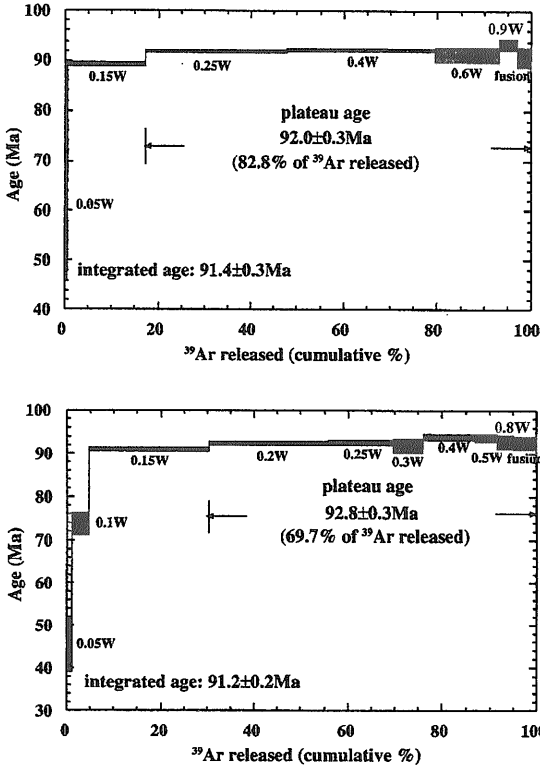
⁴⁰Ar_K: 放射起源 ⁴⁰Ar, Atm. ⁴⁰Ar: 大気起源 ⁴⁰Ar

稿中)と2.48Maの歌長流紋岩の黒雲母(宇都ほか, 1994)についてのレーザ融解⁴⁰Ar/³⁹Ar年代測定結果を第2表に示す。いずれも, K-Ar年代値と良く一致した値が得られた。以上から, 2.5Ma程度まで幅広い年代の黒雲母について1-2粒子で精度の高い⁴⁰Ar/³⁹Ar年代測定を行うことができることが明らかになった。

4.2 黒雲母の段階加熱年代測定

Sori biotite2粒子を用いて, レーザの出力を7-9ステップで徐々に上げて段階加熱法年代測定を行った。一つのステップでは, 一定のレーザ出力(すなわち一定の温度)で試料を2分間加熱し, その温度で抽出されたアルゴンを各々年代測定した。試料を均質に加熱するため, レーザのビーム径を約800 μ mに広げて結晶全体を加熱した。

これまで何回か段階加熱実験を行ったが, いずれにおいても同じような年代スペクトルが得られた。その代表パターンを2つ第9図に示す。すなわち, 低出力の最初の2-3ステップではK-Ar年代より若い年代が得られ, 加熱温度が上がると年代が次第に古くなる。その後, 加熱温度を上げて年代は変化せず平坦な年代パターンが得られる。これらの平坦な部分の加重平均は, プラトー年代と呼ばれ, 真の形成年代を代表すると一般的に考えられている。そして,



第9図 黒雲母2粒子の段階加熱法による年代測定結果。沢入花こう閃緑岩の黒雲母を2粒子(径約300 μm~400 μm, 重さ約50 μg)づつ、レーザ出力を段階的に上げて加熱し⁴⁰Ar/³⁹Ar年代測定した結果であり、2回測定を行った。図中の数字は各加熱ステップでのレーザの出カワットである。

低温部分の若い年代は、形成後の2次的な影響(風化、熱水変質など)を受けたためと考えられている。前述のようにSori biotiteは、一部緑泥石化しているが、その影響によるのかも知れない。積算(全融解)年代91.4 ± 0.3Maと91.2 ± 0.2Maは、K-Ar年代と非常に良く一致するのに対し、対しプラトー年代は92.0 ± 0.3Ma, 92.8 ± 0.3Maと約100万年古い。従って、母岩の沢入花こう閃緑岩体が黒雲母の閉鎖温度(約300℃)以下まで冷却したのは、従来考えられていたより約100万年古い92.5Ma前後であったと推定される。

以上の結果から、少なくとも約90Maの黒雲母2粒子で数段階の段階加熱により地質学的により意味があり、かつ精度も高い年代が得られることが明らかになった。今回は、2粒子を用いたが、測定出力

を検討したところ1粒子でもほぼ同様な結果が得られると推定される。今後、もっと若い黒雲母試料について検討を重ねる予定である。

5. 展 望

これまでに行った予備実験で、250万年前と比較的若い時代の鉱物を1粒子用いて正確に年代測定できることが明らかとなり、3年間の特別研究で達成すべき目標を2年でクリアすることができた。正直な感想をいえば、予想していたよりずっとたやすく目標が達成できたような、しかしながら、きちんと手続きを踏んで実験を進めていけば機械の性能から考えて当然達成可能な目標であったような、一見相反する気持ちを現在持っている。今後しばらくは、より正確で精密な年代を得るための基礎実験を積み重ねて行くことが重要であると考えている。しかし、それと平行して、実用的となった範囲での年代測定を押し進めていく予定である。以下に、これからの数年間に行っていく予定の具体的な年代測定の対象と、技術的に達成すべき課題について簡単に述べる。

5.1 海底の火山岩類の年代測定

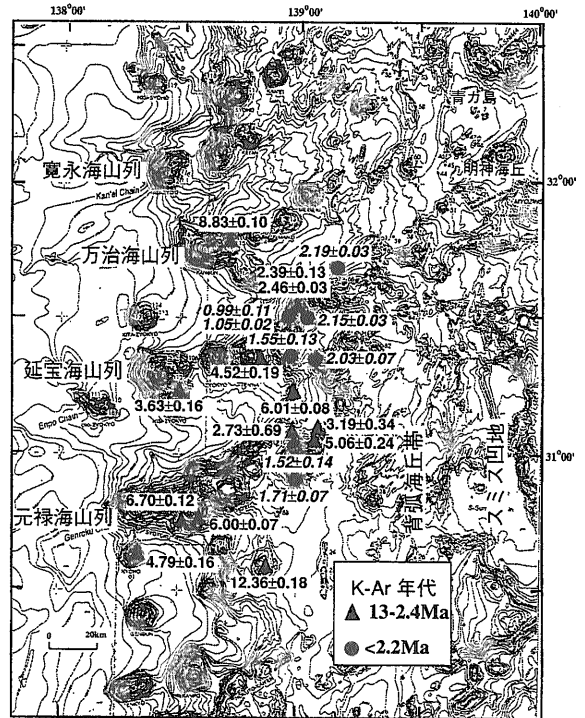
海底に噴出した火山岩類は、水中で急冷されて石基がガラス質になることが多く、その部分が長時間海水と接することで加水作用を受け粘土鉱物化したり、あるいは海底熱水活動による熱水変質を受けたりして、放射起源⁴⁰Arが散逸しやすい。また高い水圧下で噴出するために、マグマ中のアルゴンが完全に脱ガスせず、いわゆる過剰⁴⁰Arが、特に急冷ガラスに存在することも知られている(例えばDarlymple and Moore, 1968)。従来のK-Ar法では、これらの現象が測定試料に関しておきているかどうか、客観的に判断する材料が得られないため、信頼性の高い年代値を得ることが難しかった。これに対し、⁴⁰Ar/³⁹Ar法では、段階加熱法を用いることによりある程度客観的な評価が可能である(宇都, 1993)。

このような⁴⁰Ar/³⁹Ar法自体のメリットに加え、レーザ融解法では、測定に用いる試料の量が数mg程度と極めて少ない量で済むので、少量しか採取できない海底火山岩類の新鮮で結晶質な部分だけを選

んで年代測定することができる。また、石基に比べて変質を受けにくい斜長石を1~数粒ハンドピックして年代測定することができるため、より信頼性の高い年代値が得られる可能性が増し、測定可能な試料も増えることが期待できる。

海底火山岩類の正確な噴出年代を知ることが可能なこの手法の最初の応用例として、伊豆・小笠原弧背弧域の火成活動史の解明する研究を開始した。伊豆・小笠原弧第四紀火山フロントの西側には、スミスリフトを始めとするいくつかの活動的背弧海盆があり、さらにその西側には背弧海丘帯および背弧雁行海山列といった海底地形が存在しているが、これらの大構造がいつどのようなメカニズムでできたのかほとんど知られていない。それを解く鍵は、この地域の火山岩類の正確な年代測定であるが、これまで殆ど年代測定が行われていなかった。地質調査所のこれまでの調査航海で採集された試料に加え、1995年にはハワイ大学の調査船Moana Waveにより多数の火山岩が採取され、上記地域を面的に十分カバーできる密度で試料が得られた。

この地域の火山活動の時期、性格さらに大構造の形成機構を解明することを目的として、現在K-Ar法による予察的年代測定を行っている(第10図)。現在までの測定結果により、雁行海山列では9~4Maの間広い範囲で火成活動がおきていたこと、2.4Ma以降の火成活動は背弧海丘帯のみに限られた(Ishizuka et al., 1996)。さらに背弧海丘帯においては、2.4Maと2.2Maの間に火山岩の化学的特徴が大きく変化したことが明らかになり、しかもこの時期はTaylor (1992)が推定した背弧地域におけるリフティングの開始時期(約2.4Ma)とも一致している。このことから、背弧拡大の開始に伴い、火成活動の場合および化学的特徴が変化したことが推測される。今後、ポイントとなるような年代値および化学組成を示す岩石について、また、量が少なくK-Ar法では測定できなかった試料について、石基あるいは斜長石のレーザ融解法による⁴⁰Ar/³⁹Ar年代測定を行い、信頼度の高かつ精度の高い年代値を得ることを目指している。これにより、火成活動およびテクトニクスの変化の時期等を精密に決定して、主に四国海盆の拡大停止以降現在までの伊豆・小笠原弧背弧地域での火成活動史を明らかにする予定である。



第10図 伊豆・小笠原弧背弧地域の海底地形および予備的K-Ar年代 (Ishizuka et al., 1996)。

青ガ島-スミス島の第四紀火山フロントの背弧側には、背弧海丘帯、雁行海山列などの特徴的で複雑に入り組んだ海底地形が存在する。雁行海山列を構成する火山岩類についての予備的K-Ar年代測定の結果、9~2.4Maの間、火山活動は全域で起こっていたのに対し、2.4Ma以降の活動は背弧海丘帯に接する部分に限られるようになった可能性が示された。

5.2 斜長石の年代測定

宇都(1993)でも展望を述べたように、斜長石は岩石の中で最もありふれた鉱物であり、少なからずの量の K_2O を含んでいる。従って、斜長石1粒子の年代測定をできるだけ若い地質試料まで行うことができるようにするかは、技術的に大変重要な課題と言ってもよく、もし第四紀後半の試料まで測定可能になれば、幅広い地質現象の解明に役立つことになる。

活断層の活動度評価や大規模火山噴火の発生頻度予測など、地球科学の重要課題の解明にとって鍵となる第四紀の広域テフラの噴火堆積年代を知る

ことは、年代測定にとって急務である。これらの第四紀テフラの構成物として、 K_2O に富むカリ長石や黒雲母が含まれることは日本においては極めて少なく、 $^{40}Ar/^{39}Ar$ 年代測定の対象となるのは火山ガラスもしくは斜長石である。従って、斜長石を用いてなるべく若い時代のテフラまで正確に年代測定をできるようにするかは重要な課題である。宇都(1993)でも紹介したように、Pringle et al. (1990)は、ニュージーランド、タウポ火山地域の第四紀テフラ中の斜長石斑晶の $^{40}Ar/^{39}Ar$ 年代測定を行い、 $1612 \pm 31ka$ から $275 \pm 38ka$ までの年代を得ることに成功している。取り敢えずは、Pringle et al. (1990)と同じような実験操作を行ったとして、我々でどこまで若い斜長石まで年代測定可能か推定してみる。

用いる斜長石は、長径1mm、短径0.5mm程度(約1mg)で K_2O が0.3wt%含まれるとする。Pringle et al. (1990)と同様に、まず低出力のレーザービームを用いて約5mg(5-6粒子)の斜長石を数百°Cの温度で加熱し、大気起源アルゴンの約8割を除去する。その後、試料を全融解して測定した場合、100万年以下の試料の場合、測定の見積誤差は年代の違いにかかわらず約10万年とほぼ一定であると推定される。その試料について、1日に5回繰返し測定すれば、年代誤差を約半分の5万年にまで減らすことができる。このことは、第四紀のテフラに±5万年程度の分解能を持って時間軸を入れることが可能なことを示している。この問題については、まだ机上の計算で何の基礎実験も行っていないが、これまでの実験結果を見る限り、十分に実現可能であると思われるので、是非数年以内には成功させたいと思っている。

6. おわりに

現在進行中のレーザー $^{40}Ar/^{39}Ar$ 年代測定事始めについて、装置の概要と実験の手順を中心に述べてきたが、まだまだ改良すべき点が多い。新しい技術開発の場合、一日も早く実用化してデータを量産することと、より高度でこれまでの誰も出したことのないデータを生産することの相反する要求が存在する。これを両立するには、達成できた技術を使ってデータを出しながら、システムの改良を加えてより

優れたデータを出す努力を続けるといった、息の長い取り組みが必要である。 $^{40}Ar/^{39}Ar$ 年代測定の面では、1980-90年代日本は設備的な面で遅れをとっていたが、ようやく世界のトップと肩を並べるようになった気がする。今後の我々の努力を暖かい目で見守っていただければ幸いである。

本技術開発を可能にするために、地質調査所内の多くの方々に大変お世話になった。ここに感謝の意を表します。また、東京大学兼岡一郎教授、関東学院大学瀧上 豊教授には、 $^{40}Ar/^{39}Ar$ 年代測定全般についてご指導、ご助言を頂いている。また、試料の中性子照射において東北大学金属材料研究所の鳴井 實氏に大変お世話になっている。記してお礼申し上げます。

参考文献

- Dalrymple, G. B. (1989) : The GLM continuous laser system for $^{40}Ar/^{39}Ar$ dating: description and performance characteristics. U.S.G.S. Bull., 1890, 89-96.
- Dalrymple, G. B., and Moore, J. G. (1968) : Argon 40: Excess in submarine pillow basalts from Kilauea Volcano, Hawaii. Science, 161, 1132-1135.
- Lanphere, M.A., Dalrymple, G.B., Fleck, R.J. and Pringle, M.S. (1990) : Intercalibration of mineral standards for K-Ar and $^{40}Ar/^{39}Ar$ measurements. EOS, 71, 1658.
- Pringle, M. S., McWilliams, M., Houghton, B. F., Lanphere, M. A. and Wilson C. J. N. (1992) : $^{40}Ar/^{39}Ar$ dating of Quaternary feldspar: Examples from the Taupo Volcanic Zone, New Zealand. Geol., 20, 531-534.
- 内海 茂・柴田 賢(1980) : K-Ar年代測定法における誤差について、地調月報, 31, 267-273.
- 宇都浩三(1993) : 微量 $^{40}Ar-^{39}Ar$ 年代測定にむけて一斜長石一粒の精密年代測定を目指す。地質ニュース, no. 461, 32-39.
- 宇都浩三・田上高広・内海 茂(1994) : 山陰地方東部、鮮新統照来層群火山岩類のK-Arおよびフィッシュトラック年代。地質学雑誌, 100, 787-798.
- 宇都浩三・阿武 賢・周藤正史・内海 茂(投稿中) : 西南日本、中期中新世室生火山岩のK-Ar年代。火山。
- Ishizuka, O., Yuasa, M., Uto, K., Hochstaedter A. G. and Morita, S. (1996) : Preliminary K-Ar and $^{40}Ar/^{39}Ar$ age from the across-arc seamount chains of the Izu-Ogasawara Arc, Proceeding of IBM Arc System Workshop (in press).
- Taylor, B. (1990b) : Rifting and the volcanic-tectonic evolution of the Izu-Bonin-Mariana arc. Proc. ODP, Sci. Results, 126B., 627-651.

UTO Kozo and ISHIZUKA Osamu (1996) : Development of a laser-fusion $^{40}Ar/^{39}Ar$ dating technique in Geoglocal Survey of Japan.

<受付: 1996年7月1日>