総 説

K-Ar, $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 法による第三紀火山岩の
年代測定の現状と将来*

宇都 浩三**・石塚 治**

(Received September 24, 1998; accepted November 26, 1998)

The current state and the future of K-Ar and $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ dating of volcanic rocks

Kozo Uto and Osamu Ishizuka

Abstract: Current situation and future possibility of the K-Ar and $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ dating methods are reviewed focusing their utilization to the Tertiary volcanic rocks. As Tertiary volcanic rocks in general are not completely free from weathering and alteration, special attention should be made in choosing appropriate samples for age analyses. K-Ar and $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ analytical results are shown for two contemporaneous rocks of Middle Miocene age, one is a porphyritic intrusive rock with holocrystalline groundmass and the other is an extrusive lava with glassy groundmass. The former gives concordant K-Ar and $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ ages, while the latter shows considerably younger K-Ar and $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ total gas ages with the obviously disturbed $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ age spectra in the low temperature fractions. These results suggest that holocrystalline rocks are preferable to glassy rocks in K-Ar and $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ dating, because glass tends to easily lose the accumulated radiogenic ^{40}Ar not only by decomposition but also by hydration. Accurate and precise age determinations can be achieved by the $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ incremental heating experiments along with the age spectrum and isochron interpretations. Total fusion $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ dating for single to a few grains of fresh K-bearing phenocrysts like biotite, sanidine and plagioclase is also useful in knowing the ages for glassy and/or altered rocks. Multiple analyses on such mineral separates ensure the reproducibility of the analyses and reduce the analytical uncertainty by statistical treatments. Systematic $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ studies are now underway to construct the accurate and precise tectonic history of the Japanese island arc.

Key words: K-Ar dating, $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ dating, review, Tertiary volcanism

1. はじめに

K-Ar, フィッシュントラック法などによる火山岩の放

*平成10年6月2日, 平成10年度石油技術協会春季講演会地質・探鉱部門シンポジウム「年代層序の多様化と石油探鉱への応用」にて講演 This paper was presented at the 1998 JAPT Geology and Exploration Symposium entitled "Diversified chronostratigraphic tools and their application to petroleum exploration" held in Sapporo, Hokkaido, Japan, June 2, 1998.

**地質調査所地殻化学部 Geochemistry Department, Geological Survey of Japan

射年代測定は, 火成活動史の解明だけでなく, 生層序の確立, テクトニクス解明, 環境変動解明など幅広い地質学的問題解決に有用である。そのため, 大学や研究所などの年代測定研究機関のみならず商業的測定機関により出された年代値が, 学会誌, 報告書類などで広く流通している。商業的測定機関による年代値を用いた論文, 報告類の場合, 年代測定を依頼し公表する人の圧倒的多数が, 自身で年代測定をした経験のない人であり, 測定試料の吟味, 測定結果の解釈の点で, 必ずしも適切な判断がなされているとは言い難いことが少なからず認められる。放射年代は, さまざまな仮定を元に計算される物理学的年代であるにもかかわらず, 得られる年代を無批判

に地質学的に意味のある年代と断定する議論すらある。特に、K-Ar 年代、フィッシュトラック年代の場合、3 個以上の試料がアイソクロンを形成するか否かで、ある程度年代値の意味を議論できる Rb-Sr, Nd-Sm 年代などとは違い、1 個の試料で必ず 1 つの年代が得られるわけで、得られた年代値の地質学的解釈においては、年代測定法の原理や問題点についての十分な知識が必要とされる。本総説においては、第三紀火山岩への応用に限定して、K-Ar 年代測定法の原理、注意すべき問題点などを紹介し、レーザ加熱法による $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定法の現状と将来について概観する。なお、K-Ar, $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 法の原理、概要、応用の全般については、すでに兼岡 (1988 a, 1988 b), 柴田 (1985), 板谷・長尾 (1988), 宇都 (1993, 1996), 宇都・石塚 (1996) などの和文の総説が、また英文では Dalrymple and Lanphere (1969), McDougall and Harrison (1988) の教科書があるので、参考にされたい。

2. K-Ar 法の原理と問題点

K-Ar 法は、 ^{40}K が電子捕獲壊変して ^{40}Ar に変化する物理現象を用いた年代測定法である (図 1)。娘核種の ^{40}Ar が不活性な気体であるため、マグマが噴出・冷却する時にマグマ中の ^{40}Ar は大気に放出され、大気アルゴンと同位体平衡に達するとはほぼ仮定できるため (Dal-

rymple, 1969), 1 回の測定で 1 つの年代を求めることができる。これは、Rb-Sr 法などで 3 試料以上の測定結果からアイソクロン年代を求める方法とは異なり、モデル年代と呼ばれるものである。この簡便さが K-Ar 法の普及に役立っているが、大きな 2 つの仮定の上に得られるということはあまり理解されていない。

1. 初生 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比が大気アルゴンの値 (= 295.5) に等しい
2. 放射時計がスタート (溶岩が噴出冷却) してから現在まで、試料の閉鎖系が保たれている (カリウム、アルゴンの出入りがない)

この仮定の妥当性について、単なるアルゴンとカリウムの定量分析の結果である年代測定結果は、何の客観的証拠も提出しえない。したがって、火山岩の K-Ar 年代が直ちに噴出年代をあらわす保証は全くなく、すべての場合において、得られた年代値について何らかの主観的あるいは客観的吟味が必要となる。ほとんどの場合は、年代値の地質学的解釈は、解釈する人の主観的判断にゆだねられているのが現状である。しかし、これまでの多くの事例研究や室内実験の結果を参考にすれば、ある程度客観的かつ論理的な判断に基づいて、測定年代値を合理的に解釈することが可能である。以下に、その合理的判断基準を示す。

仮定 1. の初生 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比の問題については、過剰

図 1 K-Ar, $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定法の原理

^{40}Ar の存在と大気アルゴンからの質量分別の 2 つの問題がある。前者は、 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比の高いマグマ中のアルゴンが溶岩噴出時に大気中に逃げ切れず、溶岩中に取り込まれたまま固結した場合に問題となる。水中噴出の溶岩の急冷縁部に存在する (Dalrymple and Moore, 1968) ほか、マントルや深部地殻起源の異質結晶や大型斑晶に含まれる。このため、急冷したガラス質岩石の測定は避けたほうがよいし、径数 mm を超す大型斑晶や異質岩片、結晶は取り除いたうえで年代測定することが望ましい。しかし、マントル起源のかんらん石や輝石の異質結晶はさておき、地殻内マグマ溜り起源の斜長石、輝石、角閃石などの斑晶では、マグマ噴出時の $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比は高くても 350–370 程度であり (高岡, 1989; Hanyu and Kaneoka, 1997), 十分な量の放射起源 ^{40}Ar ($^{40}\text{Ar}^*$) が蓄積し、高い $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比を持つ第三紀火山岩類では大きな影響は与えない。一方、後者は、溶岩の冷却固結時に保持されるアルゴンが、大気アルゴンと同じ同位体比を示さず、それから質量分別しているという問題で、 $^{40}\text{Ar}^*$ の蓄積が少ない数十万年より若い火山岩において重要な問題となる (Kaneoka, 1975; 高岡, 1989; 松本ほか 1989)。しかし、斑晶鉱物の場合と同様に高い $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比を持つ第三紀火山岩類では、初生 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比が 295.5 から多少ずれていても計算される年代値のずれは大きくなく、あまり問題が生じない。以上から、仮定 1. の問題は、その影響を無視することはできないが、第三紀火山岩類の年代測定においては比較的問題が少ないと結論づけられる。

一方、仮定 2. の測定試料が噴出固結後に閉鎖系を保っていたかどうかは、逆に古い岩石ほど変質・変成作用を被る機会が多いので、第三紀火山岩の年代測定においては大きな問題となる。したがって、多少なりとも風化や変質作用の影響を被っている第三紀火山岩について K-Ar 年代測定を行い、その結果を地質学的に解釈する場合、慎重な取り扱いが必要であり、何らかの主観的あるいは客観的吟味が必要となる。第三紀以前の火山岩類について K-Ar 年代測定し、その結果について意味づけをする場合、以下のような点に留意する必要がある。

1. カリウムを含む鉱物・相が変質していない試料を選ぶ
2. 石基が粗粒で完晶質な岩石を選ぶ
3. 石基ガラスに富む岩石は避ける
4. 灼熱減量の大きい試料は避ける
5. 同時代で同程度の K_2O 量を持つ他試料に比べ大気混入率が著しく高い年代は要注意
6. 同層準あるいは連続層準の複数試料について年代測定しクロスチェックする

7. 1 つの K-Ar 年代のみに基づいて時代を議論しない

まず当然ながら、カリウムを多く含む鉱物相が変質している岩石は、 $^{40}\text{Ar}^*$ が散逸している可能性が大きい。しかし、逆にカリウムを含まないかんらん石、輝石などの苦鉄質鉱物が粘土鉱物に変質していても K-Ar 時計への影響は無視できる。火山岩の場合、黒雲母やカリ長石の斑晶は例外として、カリウムは石基に濃集している。したがって、石基の結晶度、粒径、鉱物組み合わせは、測定試料を選定するうえで重要な観察事項となる。石基が粗粒で完晶質な岩石では、カリウムは長石、角閃石、雲母に存在するので、 $^{40}\text{Ar}^*$ はしっかり結晶内に保持され散逸する可能性は低い。一方、石基ガラスは不安定な相であり、容易に風化変質あるいは加水作用を受けやすい。アルゴンと水の分子の大きさはほぼ同じであるので、ガラスに水が入りやすいということは、逆に $^{40}\text{Ar}^*$ が系外に逃げやすいことを意味する (Dalrymple and Lanphere, 1969; Kaneoka, 1972)。Mankinen and Dalrymple (1972) は、石基が完晶質な試料とガラスに富む試料について、EPMA を用いて岩石中でのカリウム分布を示しながら K-Ar 年代の信頼性を議論し、ガラス質な石基を持つ岩石はたとえ見かけ上新鮮でも $^{40}\text{Ar}^*$ を失っており、地質学的に意味のある年代が得られなかったことを明らかにした。また、Kaneoka (1972) は、黒曜岩の含水量と K-Ar 年代の相関を議論し、加水するほど $^{40}\text{Ar}^*$ の散逸が大きいことを示した。したがって、ガラスに富む試料の K-Ar 年代測定は、極力避けるかあるいは測定に当たって十分な記載岩石学的検討が必要である。この問題については、1 事例を後述する。ガラスの水和や粘土鉱物の生成により、風化変質した岩石は H_2O に富む。したがって、灼熱減量の多少は、K-Ar 年代測定試料判別の一種の客観的指標であり、灼熱減量が 1–2 % を超える岩石は年代測定に適しない (Kaneoka, 1972)。また、変質作用により形成された粘土鉱物には大量の大気アルゴンが吸着している。新鮮な岩石における大気アルゴンの混入量は、 $5 \times 10^{-7} \text{ ml/STP/g}$ 程度以下である (Dalrymple and Lanphere, 1969) ので、 $^{40}\text{Ar}^*$ が $1 \times 10^{-7} \text{ ml/STP/g}$ を超える第三紀火山岩では大気混入率は 80% 以下であるはずである。もし、得られた K-Ar 年代の大気混入率がそれより高い場合、測定試料に問題があることになり、要注意である。最後に、当然のことながら、年代未知試料の形成年代をただ 1 つの K-Ar 年代で判断するのは危険であり、常に他の年代情報とクロスチェックすることは重要である。できれば、同一あるいは連続層準の複数試料について年代測定を行い、年代結果が矛盾しないことを確認す

ることが望ましい。

3. $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 法の原理とメリット

$^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 法は、K-Ar 法と同じ物理時計、すなわち ^{40}K の電子捕獲壊変による ^{40}Ar の生成という現象を用いながら、多くのメリットを有している。大きな違いは、原子炉において測定試料に速中性子を照射し、 ^{39}K を ^{39}Ar に変換することである(図1)。天然の岩石中の $^{40}\text{K}/^{39}\text{K}$ 比は一定であるので、原子炉における ^{39}K からの ^{39}Ar の生成率が分かれば、中性子照射後の試料中の $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 比を測定することで試料の年代を知ることができる。 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 法の詳しい原理、利点については、兼岡(1988a)、宇都(1993)、宇都・石塚(1996)に詳しいので、ここでは省略するが、第三紀火山岩の正確で精密な年代測定に最も有効なのは段階加熱法である。それにより、得られる年代値をかなりの程度客観的に評価することが可能である。段階加熱法とは、測定試料を低温から高温にかけてある一定時間ずつ段階的に加熱し、各温度ごとに試料から放出されるアルゴンの同位体比測定を行い、おのおのの温度フラクションの年代を求める測定法である。その結果を用いて行う客観的判断手法として、年代スペクトル図を用いたプラトー年代の認定(図2)と、アイソクロン図によるアイソクロン年代の計算の2種類がある。この2つの図を用いることでK-Ar 年代における2つの仮定が成り立っているかどうかの判断ができるばかりか、成り立たない場合には、真の初生 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比の推定あるいは閉鎖系の保たれている部分のみの抽出を行うことが可能である。例えば、変質作用や再加熱により容易にアルゴンを放出しやすい不安定な鉱物相は、段階加熱により比較的低温でアルゴンを放出するが、高温まで安定な鉱物相は段階加熱でも主に高温部でアルゴンを放出する。したがって、変質作用に

より ^{40}Ar が多少散逸している岩石を年代測定した場合、低温部分では乱れた年代スペクトラを示すが、中温—高温部分では安定した年代スペクトラが得られる。年代プラトーの認定は、高温部分の連続した3ステップ以上の加熱年代値が95%信頼限界の範囲で一致し、かつ全体の ^{39}Ar の50%以上を含むことであり、プラトーを構成する年代値すべての加重平均値をプラトー年代とする(Dalrymple et al., 1980 など)。一方、アイソクロン図では、プラトーを構成する温度フラクションの測定データを通常のアイソクロン図($^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ — $^{39}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$)あるいは逆アイソクロン図($^{36}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ — $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$)にプロットし、アイソクロンを計算するものであり、初生 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比を295.5と仮定することなく計算で求めることができる。そのため、過剰 ^{40}Ar の存在の有無をチェックすることが可能である。しかし、 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 段階加熱法によるアイソクロンでは、鉱物からの拡散による脱ガスプロセスを再現しているの、実験上の見せかけのアイソクロンが得られることがある(Lanphere and Dalrymple, 1978)。したがって、初生 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比が295.5から著しく外れるものは、注意して吟味する必要がある。以上の点から、信頼性の高い $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 段階加熱年代とは以下のように定義されている(Lanphere and Dalrymple, 1978; Dalrymple et al., 1980): 1. 前述どおりのプラトー年代が得られること、2. プラトー部分のデータでアイソクロンが引けること、3. プラトー、アイソクロン両年代が95%信頼限界の範囲で一致すること、4. アイソクロンの初生 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比が295.5と著しく異なること。

4. 第三紀火山岩への $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定の応用

近年、連続レーザを用いて数 mg 以下の極めて少量の岩石・鉱物試料を加熱融解するレーザ加熱 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定技術が開発され、なるべく変質していない数 mm 角以下の岩石・鉱物試料を選び出し、迅速に年代測定できるようになった(宇都・石塚, 1996; Uto et al., 1997)。これにより、変質作用の影響を免れえなかった第三紀火山岩類の正確で精密な年代が得られるようになりつつある。以下に、火山岩石基の段階加熱年代測定の具体例を2例と、斑晶鉱物1—数粒子を用いた全融解年代測定1例を紹介し、レーザ加熱 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定の有用性を述べ、将来を展望する。以下の具体例は、著者と共同研究者たちにより現在進行中の研究の一部であり、今後の測定などにより年代や地質解釈が多少変更される可能性があることをあらかじめ断っておく。

4.1 高洪山層火山岩

図3は、島根半島の先端部に分布する中期中新統高洪

図2 火山岩全岩試料によく見られる模式的な段階加熱年代スペクトラ

山層中の玄武岩質安山岩溶岩 (K-Ar 年代: 9.7 ± 1.6 Ma) の段階加熱年代測定結果である (Uto *et al.*, 1997)。全体を13のステップに切って、レーザの出力を徐々に上げて段階加熱を行い、各ステップごとに得られる年代を $\pm 68\%$ 信頼限界の幅で示したものである。最初の1ステップを除き、残りの12ステップの年代はすべて95%信頼限界の範囲で一致しており、その加重平均として 12.29 ± 0.15 Ma のプラトー年代が得られる。また、アイソクロン、逆アイソクロン年代は、共に 12.5 ± 0.5 Ma で、プラトー年代に一致する。この試料は完晶質で石基にわずかに粘土鉱物が生じているだけであり、K-Ar 年代測定に適した試料である。そのため、年代スペクトラもごく低温部以外は乱されていない。したがって、既存の K-Ar 年代とプラトー年代は誤差 (2 σ) の範囲で一致するが、後者のほうが誤差が10分の1以下と精度の高い年代値である。高浜山層の対比については、松江市周辺に分布する松江層 (11–12 Ma) に対比する説 (鹿野・吉田, 1985) と、牛切層 (14–15 Ma) に対比する説 (Morris *et al.*, 1990) が存在したが、本年代測定の結果、年代的には松江層に対比されることが確認された。

4.2 高山斑れい岩および山島火山岩

山口県北東部須佐地域の高山岬および周辺部には、中期中新統の須佐層群を貫く苦鉄質貫入岩体、高山斑れい岩とその噴出岩相と推定される山島火山岩が分布する

(今岡ほか, 1997)。高山斑れい岩については、これまで 14.0 ± 0.7 Ma (Matsumoto and Itaya, 1986), 14.5 ± 2.1 Ma, 14.8 ± 0.8 Ma (Uto, 1989), 14.1 ± 0.3 Ma (今岡ほか, 1997) の比較的良好に一致した年代が得られている。一方、同斑れい岩の噴出岩相と推定される山島火山岩については、 5.5 ± 1.3 Ma (Uto, 1989), 13.4 ± 0.4 Ma, 14.2 ± 0.5 Ma (今岡ほか, 1997)、同火山岩を貫く岩脈は 12.1 ± 0.6 Ma (今岡ほか, 1997) と斑れい岩と一致するものから著しく若いものまで幅広い範囲の年代が得られている。今岡ほか (1997) は、測定した火山岩試料にはわずかの緑泥石が形成されているのみで、 $^{40}\text{Ar}^*$ の散逸はなく、火山活動が約 13 Ma まで継続したと主張している。一方、Uto (1989) が測定した試料は新鮮であり、顕微鏡下では変質鉱物は認められない。しかし、斑れい岩の2試料が粗粒完晶質であるのに対し、誤差を超えて若い年代を示す噴出岩 (G31) は石基の褐色ガラスが多い。前述した Mankinen and Dalrymple (1972) に従えば、G31 はガラスからの $^{40}\text{Ar}^*$ の散逸により噴出年代より若い年代を与えている可能性が高い。このことを確かめるために、G31 と斑れい岩の周縁部から採取した斑状で粗粒完晶質な G64 の2試料について $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 段階加熱年代測定を行った (図4)。粗粒完晶質な G64 は、全9ステップ中最初の1ステップを除き残り8ステップにおいて一致する年代が得られ、これらの加重平均として 14.41 ± 0.11 Ma のプラトー年代が計

図3 島根半島高浜山層安山岩溶岩の段階加熱 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代スペクトラおよびアイソクロン (Uto *et al.*, 1997)。

アイソクロン図中の+は、プラトーを構成しないデータで、アイソクロン計算からは除外。プラトーを構成する部分 (●) のみを用いて年代を計算。

算される。アイソクロン図中の波線および斜め文字の数字は、プラトーを構成するすべての段階実験結果を用いて計算した結果であり、最も信頼性の高い高 $^{39}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比のフラクションでのフィッティングが悪い。また、フィッティングのよさを示す $\text{SUM}/(\text{N}-2)$ 値も19と極めて悪く、この回帰計算に意味がないことを示している。一方、実線で示したものは、低温部分（黒三角）を

はずして計算したもので、プラトー年代や逆アイソクロン年代との一致がよい。逆アイソクロンでは、そのような差異は生じない。逆アイソクロンが年代解析に優れていることを示すよい例である。これらの年代は、前述のよい $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代の条件をすべて満たしており、K-Ar 年代とも誤差の範囲で一致している。年代測定結果の客観的評価ができるばかりか、K-Ar 年代に比べて、

図4 山口県須佐地域高山斑れい岩 (G64) と山島火山岩 (G31) の段階加熱 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定結果。

G64 のアイソクロンの波線および斜め文字は、プラトー部分全部を含めて計算した結果。実線で示したものは、低温部分 (▲) をはずして計算したもの。+, ● は、図4に同じ。

分析誤差は7分の1と著しく小さくなった。一方、石基ガラスに富む G31 においては、低温の2ステップでは ^{39}Ar 起源の ^{39}Ar ($^{39}\text{Ar}_K$)が全体の約35%が脱ガスしたにもかかわらず、 $^{40}\text{Ar}^*$ はほとんど放出されず、計算される年代は3Ma以下である。しかし、高温側の7ステップでは、急激に $^{40}\text{Ar}^*$ が脱ガスされ、全体の $^{39}\text{Ar}_K$ の約65%で定義上の $12.2 \pm 0.4 \text{ Ma}$ のプラトー年代が得られた。全ステップのアルゴンの合計で計算される全ガス年代は $8.2 \pm 0.4 \text{ Ma}$ と著しく若く、K-Ar年代 $5.5 \pm 1.3 \text{ Ma}$ に測定上の問題があったわけではないことを示す。 ^{40}Ca 起源の ^{37}Ar ($^{37}\text{Ar}_{Ca}$)と $^{39}\text{Ar}_K$ の比の脱ガスパターンを見ると、温度が上がるにつれ次第にCa/Kが上がり、Ca/K比の低い褐色ガラスからCa/K比の高い斜長石へと、 $^{40}\text{Ar}^*$ と $^{39}\text{Ar}_K$ の主たる放出源が変化したことが示される。これらから、全体のカリウムの約40%以上を保持している火山ガラスが $^{40}\text{Ar}^*$ を保持しえなかったため、噴出年代より若いK-Ar年代が得られたことが示唆される。前述の定義どおりの、すなわち連続7ステップが誤差の範囲で一致し、全 $^{39}\text{Ar}_K$ の65%を占めるプラトー年代が得られているが、この年代はG64や前述の既存K-Ar年代より明らかに若い。プラトー年代をよく見ると、2ステップめの $2.1 \pm 0.9 \text{ Ma}$ から3ステップめの $11.1 \pm 0.7 \text{ Ma}$ と急に年代が変化するが、3ステップめは低温の $^{40}\text{Ar}^*$ が散逸した部分と高温の保持部分の混合である可能性がある。もし、3ステップめをはずして残りの高温6ステップでの加重平均を取ると、 $^{39}\text{Ar}_K$ が45%で $12.7 \pm 0.5 \text{ Ma}$ と若干古めの年代がえられるが、それでも依然として若い年代であることに変わりない。アイソクロン、逆アイソクロン年代は、いずれも $14.7 \pm 1.6 \text{ Ma}$ で斑れい岩と一致する年代を与えるが、初生 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比が $271 \pm 14, 272 \pm 14$ と大気アルゴンより低い値を示し、信頼性に多少の問題が残る。本実験は、原子炉中で中性子照射から約1年後に測定したもので、妨害核種である ^{40}Ca 起源の ^{36}Ar ($^{36}\text{Ar}_{Ca}$)と ^{42}Ca 起源の ^{39}Ar ($^{39}\text{Ar}_{Ca}$)を補正する $^{37}\text{Ar}_{Ca}$ (半減期35.1日)が減衰しすぎており、測定値の誤差が大きいばかりか、補正上で多少の問題がある可能性が高い。本試料は再測定を準備中であり、ここでは上記のプラトー、アイソクロン年代の地質学的意義については議論をしない。いずれにせよ、山島火山岩の $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 段階加熱年代測定から、たとえ見かけ上新鮮でも石基ガラスに富む火山岩のK-Ar年代測定は避けるべきであり、なるべく結晶質な岩石を選ぶことが重要であることが明らかとなった。

4.3 歌長流紋岩

レーザ加熱 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定法のもう一つのメリットは、結晶を1-数粒子ずつ迅速に年代測定できる点で

ある。K-Ar法の場合、試料をカリウムの定量とアルゴンの定量に二分割しなければならないので、原理的に結晶1粒子ごとの年代測定はできないが、 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 法では可能である。第三紀火山岩では、石基が変質作用を被っていても斑晶鉱物、特に斜長石は未変質のまま残っていることが多い。また、K-Ar法では全岩年代測定ができないガラスに富む火砕物中にも、斜長石、黒雲母、角閃石などの新鮮な斑晶鉱物が含まれている。これらの斑晶鉱物1粒子ごとの年代測定を可能にすることで、これまでK-Ar年代測定できなかった多くの火山物質の年代を決定することができると期待される。その一例として山陰地方東部の鮮新世後期の歌長流紋岩から分離した黒雲母の年代測定結果を示す(図5)。本溶岩については、すでに $2.48 \pm 0.02 \text{ Ma}$ (黒雲母 K-Ar 年代)、 $1.94 \pm 0.14 \text{ Ma}$ (サニディン K-Ar 年代)、 $2.72 \pm 0.11 \text{ Ma}$ (ジルコンフィッシュントラック年代)が得られている(宇都ほか, 1994)。黒雲母8測定のうち誤差の小さい6測定は、 2.5 Ma 前後に集中し、他の2測定も誤差の範囲で一致する(図5)。誤差を考慮した相対頻度分布は、8測定の加重平均値 $2.52 \pm 0.02 \text{ Ma}$ をピークとした両対称なパターンを示し、すべての測定がいずれも問題がないこと、誤差の見積もりが妥当なことを示唆する。加重平均値 $2.52 \pm 0.02 \text{ Ma}$ は、この試料のK-Ar年代($2.48 \pm 0.02 \text{ Ma}$)と誤差範囲で一致する。以上から、結晶1粒子ごとの $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定の信頼性が高いことが示される。カリ長石、斜長石斑晶についてそれぞれ3測定ずつ予備的な $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代を行ったところ、 $2.44 \pm 0.05 \text{ Ma}$ および $2.47 \pm 0.14 \text{ Ma}$ と、いずれも黒雲母年代とよく一致する加重平均年代が得られている。カリ長石は著しくカリウムに富む鉱物であるが、高融点であるた

図5 山陰地方照来層群歌長流紋岩の黒雲母斑晶1粒子ごとの全融解 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定結果。

太線は、測定誤差を考慮に入れた相対確率密度曲線を示す(Uto *et al.*, 1997)。

め $^{40}\text{Ar}^*$ を完全に抽出することが困難で、しばしば若い K-Ar 年代を示すことが指摘されており（宇都ほか、1994）、本試料でも K-Ar 年代は $1.94 \pm 0.14 \text{ Ma}$ と黒雲母に比べて有意に若かった。しかし、 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 測定を用いれば、信頼性の高い年代が得られることが明らかであり、斜長石とともに今後の応用が期待できる。

5. おわりに

本総説においては、風化変質作用を少なからず被っている第三紀火山岩類の K-Ar 年代測定を行う際、測定試料の十分な記載岩石学的検討が重要であることを示した。特に、石基ガラス質に富む岩石は放射起源 ^{40}Ar を散逸させている可能性が高いので、年代測定を避ける必要があることを、山島火山岩の例を上げて示した。K-Ar 年代値は、カリウムとアルゴンの化学分析値を元に、いくつかの仮定をおいて算術的に計算される数値であるので、その地質学的解釈にあたっては、1つの年代値のみを無批判に用いることはせず、できれば同一あるいは連続層準の複数試料の年代の整合性を吟味することが重要である。その点で、分析結果の客観的な検討が可能である $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 段階加熱年代測定法は、第三紀火山岩類の正確で精密な年代測定においては、大変に有用であることを、最近のレーザ加熱年代測定結果を用いて紹介した。また、黒雲母斑晶の1-数粒子年代測定の有用性も示した。

現在、筆者たちは、日本海の拡大前後に噴出した火山岩類の系統的なレーザ加熱 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 段階加熱年代測定を実施中である。それによれば、西南日本の時計回り回転後に噴出したとされる山陰地方大森層火山岩類の噴出年代が、K-Ar 年代測定に基づく 14 Ma 前後 (Otofui *et al.*, 1991) ではなく、15-16 Ma であることが明らかになりつつある。すると、西南日本の回転運動は、これまで考えられてきたより 200 万年以上前に終了したことになる。また、ODP で掘削された大和海盆の火山岩の噴出、貫入年代についても測定中であり、Kaneoka *et al.* (1991) の結果と調和的な 17.5-18.5 Ma 前後の年代がえられつつある。これらのことから日本海の拡大は、16 Ma ころにはほぼ終了していた可能性が強くなりつつある。今後、 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定に基づくより正確な時代論を元に、日本列島の構造発達史を明らかにできると期待している。

謝 辞

石油技術協会シンポジウムでの講演および本論文執筆の機会を与えてくださったシンポジウム企画委員会の各位、特に石油資源開発株式会社の秋葉文雄氏に深謝する。三井石油開発株式会社探鉱部の笹岡 健氏には丁寧

な査読をしていただいた。高山斑れい岩および山島火山岩の年代学は、千葉大学理学部地球科学科の津久井雅史助教授との共同研究であり、本論文での一部公表を認めていただいた。また、大森層火山岩については地質調査所地質部鹿野和彦氏、大和海盆火山岩については東京大学地震研究所兼岡一郎教授とそれぞれ共同研究である。K-Ar 実験において、地質調査所地殻化学部内海茂氏と同大阪地域地質センター青山秀喜氏にご援助いただいている。記してお礼申し上げる。

引用文献

- Dalrymple, G.B., 1969 : $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ analyses of historic lava flows. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **6**, 47-55.
- Dalrymple, G.B. and Lanphere, L.A., 1969 : *Potassium-Argon Dating*. Freeman and Co., San Francisco, 258 pp.
- Dalrymple, G. B., Lanphere, L. A. and Clague, D. A., 1980 : Conventional and $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ K-Ar ages of volcanic rocks from Ojin (Site 430), Nintoku (Site 433) seamounts and the chronology of volcanic propagation along the Hawaiian-Emperor chain. *Initial Rep. Deep Sea Drill. Proj.*, **55**, 54-76.
- Dalrymple, G. B. and Moore, J.G., 1968 : Ar gon-40 : Excess in submarine pillow basalts from Kilauea Volcano, Hawaii. *Science*, **161**, 1132-1135.
- Hanyu, T. and Kaneoka, I., 1997 : Magmatic processes revealed by noble gas signatures: the case of Unzen Volcano, Japan. *Geochem. J.*, **31**, 395-405.
- 今岡照喜・西村裕二郎・後藤芳彦・中島和夫・斎藤和男・板谷徹丸, 1997 : 山陰西部山島火山岩の産状と K-Ar 年代. 岩鉱, **92**, 302-315.
- 板谷徹丸・長尾敬介, 1988 : 100 万年より若い火山岩の K-Ar 年代測定. 地質学論集, No. 29, 143-161.
- Kaneoka, I., 1972 : The effect of hydration on the K/Ar ages of volcanic rocks. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **14**, 216-220.
- Kaneoka, I., 1975 : Non-radiogenic argon in terrestrial rocks. *Geochem. J.*, **9**, 113-124.
- 兼岡一郎, 1988 a : $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 法による年代測定—基礎とその問題点—. 地質学論集, No. 29, 23-36.
- 兼岡一郎, 1988 b : $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 法による火山岩類の年代測定—地球科学への応用—. 地質学論集, No. 29, 163-175.
- Kaneoka, I., Takigami, Y., Takaoka, N., Yamashita, S. and Tamaki, K., 1992 : $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ analysis of volcanic rocks recovered from the Japan Sea floor : Constraints on the age of formation of the Japan Sea. *Proc. Ocean Drilling Rept., Sci. Results*, **127/128**, 819-836.
- 鹿野和彦・吉田史郎, 1985 : 境港地域の地質. 地域地質研究報告 (5 万分の 1 地質図幅), 地質調査所, 57 p.
- Lanphere, M. A. and Dalrymple, G. B., 1978 : The use

- of $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ data in evaluation of disturbed K-Ar systems. *U. S. Geol. Surv. Open-File Rept.*, **78-701**, 241-243.
- Mankinen, E. A. and Dalrymple, G. B., 1972 : Electron microprobe evaluation of terrestrial basalts for whole-rock K-Ar dating. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **17**, 89-94.
- Matsumoto, H. and Itaya, T., 1986 : Chronological study of contact metamorphic rocks in Susa-Koyama area, Yamaguchi Prefecture. *Bull. Hiruzen Res. Inst., Okayama Univ. Sci.*, **12**, 9-17.
- 松本哲一・宇都浩三・柴田 賢, 1989 : 歴史溶岩のアルゴン同位体比—若い火山岩の K-Ar 年代測定における初生値補正の重要性—. 質量分析, **37**, 353-363.
- McDougall, I. and Harrison, T. M., 1988 : *Geochronology and Thermochronology by the $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ method*. Oxford Univ. Press, Oxford, New York, 212 pp.
- Morris, P. A., Itaya, T., Watanabe, T. and Yamauchi, S., 1990 : Potassium/argon ages of Cenozoic igneous rocks from eastern Shimane Prefecture-Oki Dozen Island, southwest Japan and the Japan Sea opening. *J. Southeast Asian Earth Sci.*, **4**, 125-131.
- Otofujii, Y., Itaya, T. and Matsuda, T., 1991 : Rapid rotation of southwest Japan-paleomagnetism and K-Ar ages of Miocene volcanic rocks of southwest Japan. *Geophys. J. Intl.*, **105**, 397-405.
- 柴田 賢, 1985 : 地質年代学に関する技術的進歩と日本における年代学的研究. 地質学論集, No. 25, 391-405.
- 高岡宣雄, 1989 : 百万年より若い火山岩の K-Ar 年代測定における問題点. 質量分析, **37** (6), 343-351.
- Uto, K., 1989 : *Neogene volcanism of Southwest Japan : its time and space based on K-Ar dating*. Ph.D. Thesis, 184 pp., Univ. Tokyo.
- 宇都浩三, 1993 : 極微量 ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代測定にむけて—斜長石一粒の精密年代測定法を目指す—. 地質ニュース, No. 461, 32-39.
- 宇都浩三, 1996 : 火山と年代測定 : K-Ar, $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定の現状と将来. 火山, **40**, S27-S46.
- 宇都浩三・石塚 治, 1996 : レーザ融解法による極微量 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定法の開発. 地質ニュース, No. 504, 7-18.
- Uto, K., Ishizuka, O., Matsumoto, A., Kamioka, H. and Togashi, S., 1997 : Laser-fusion $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ dating system of the Geological Survey of Japan : System outline and preliminary results. *Bull. Geol. Surv. Japan*, **46** (1), 23-46.
- 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 およびフィッシュントラック年代. 地質雑, **100** (10), 787-798.