Rb-Sr 法

柴 田 賢*

Rb-Sr Method

Ken SHIBATA

I. はじめに

Rb-Sr 法は ^{87}Rb が β 壊変して ^{87}Sr になることを利用して年代を測定する方法である。Rb が放射能をもつことは 1906 年 CAMBELL and WOOD によって発見されたが、それが ^{87}Rb によることがわかったのは 1937 年であった。そしてその直後から Rb-Sr 法による年代測定の可能性が検討され始めた。しかし Rb-Sr 法が実用化されたのは質量分析計の開発が進んだ 1950 年代のことである。小論では Rb-Sr 法の原理、試料、問題点などについて解説する。

II. 測定原理

天然における Rb の同位体組成は ^{85}Rb 72.1654%, ^{87}Rb 27.8346% であり, Sr のそれは ^{88}Sr 82.53%, ^{87}Sr 7.04%, ^{86}Sr 9.87%, ^{84}Sr 0.56% である。ただし Sr 同位体組成は ^{87}Rb の壊変により加わる ^{87}Sr (放射性起源の ^{87}Sr という) のため一定ではない。年代測定の計算式を本法にあてはめると,

$$^{87}\text{Sr} = ^{87}\text{Sr}_0 + ^{87}\text{Rb}(e^{\lambda t} - 1) \quad (1)$$

となる。ここで ^{87}Rb , ^{87}Sr は岩石・鉱物中に現在存在する同位体の数, $^{87}\text{Sr}_0$ は岩石・鉱物が生成された時に存在した数, λ は ^{87}Rb の壊変定数, t は生成されてからの年数である。ここで壊変に関係しない同位体 ^{86}Sr で両辺を割れば,

$$\frac{^{87}\text{Sr}}{^{86}\text{Sr}} = \left(\frac{^{87}\text{Sr}}{^{86}\text{Sr}} \right)_0 + \frac{^{87}\text{Rb}}{^{86}\text{Sr}} (e^{\lambda t} - 1) \quad (2)$$

という式が得られる。これが Rb-Sr 法による年代測定の計算式である。この式によって年代を求めるにあたっては、岩石・鉱物中の Rb, Sr に関して出入りがなかった、すなわち閉鎖系 (closed system) であることが前提となっている。この前提が成立しないと意味のある年代は求められない。

(2) 式の中の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ と $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ は岩石・鉱物について直接測定される値である。 $(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_0$ は $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 初生値 (initial $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio) と呼ばれる値で、岩石・鉱物ができた時に存在していた Sr の同位体組成である。年代の計算においては $(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_0$ の適当な値を仮定するか、同じ起源で Rb/Sr 比の異なる 2 個以上の試料を測定することにより年代と $(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_0$ とを同時に求めることができる。ところで $(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_0$ は岩石成因を議論する際のきわめて重要な値であることがわかってきたため、最近ではほとんどの場合後者、すなわち 2 個以上の試料によって年代と $(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_0$ を求める手法がとられる。この方法はアイソクロン法と呼ばれているが、(2) 式の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ と $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ との関係を示す図 (アイソクロン図, 第 1 図) として表現すると理解しやすい。すなわち複数の岩石あるいは鉱物の測点によって作られる直線の勾配から年代が、また縦軸との交点から $(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_0$ が求められる。

第 1 図では同じ起源をもつ複数の岩石の全岩試料によって作られる直線 (全岩アイソクロン) と、1 個

* 工業技術院地質調査所 Geological Survey of Japan, Tsukuba.

第1図 Rb-Sr アイソクロン図

全岩 (W1, W2, W3) を結ぶ直線が全岩アイソクロン、鉱物 (B, K, P と W1) を結ぶ直線が鉱物アイソクロン。年代は直線の勾配から求められ、縦軸との交点から $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 初生値が求められる。

第1表 岩石・鉱物中の Rb・Sr 含有量

試料	Rb(ppm)	Sr(ppm)
花崗岩	150	285
花崗閃緑岩	120	450
玄武岩	30	465
頁岩	140	300
レピドライト	~1%	0-5
黒雲母	300-1000	5-20
白雲母	200- 500	10-500
カリ長石	200- 400	150-2000

岩石のデータは平均値で TAYLOR(1965) による。

同位体希釈法における測定精度は Rb で 1~2%, Sr で 0.5% 程度である。一方 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比の方は、最近質量分析計の精度が著しく向上したため 0.01% 以下の誤差での測定が可能となった。第2図に地質調査所における Sr 同位体比用標準試料 E&A の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比の最近における測定例をヒストグラムで示した。この場合の測定結果は正規分布に近く、200回の平均で 0.70808 ± 0.00011 (1 σ) で標準偏差は 0.016% である。しかし同位体比の測定においては、一般に誤差を平均値の標準誤差の2倍 (two standard errors

の岩石の構成鉱物によって作られる直線 (鉱物アイソクロン) との二つを示してある。花崗岩が貫入後比較的急速に冷却した場合は、全岩の測点と鉱物の測点は同じ直線上に乗る。これに対して、花崗岩が貫入後、何らかの熱的事変、例えば変成作用を受けた場合は、第1図のように全岩アイソクロンが貫入の年代を、鉱物アイソクロンが変成作用の年代を示す、という事も起りうる。全岩アイソクロンについては後節で詳しく解説する。

III. 試料と測定法

1. 試料

Rb-Sr 法による年代測定においては、一般的には Rb が多く Sr の少ない試料がよく利用される。第1表に主な岩石及び造岩鉱物の Rb と Sr の含有量を示した。鉱物では雲母類、カリ長石がよく用いられるが、この場合でも、鉱物と全岩との両方を測定して、いわゆる鉱物アイソクロンから年代を求めるのが一般的である。特にカリ長石は Rb/Sr 比がそれほど高くないので全岩と組み合わせなければ正確な年代は得られない。全岩試料の場合はなるべく Rb/Sr 比にばらつきのある試料を選び、誤差を少なくするため3個以上使用することが望ましい。全岩アイソクロン法は火成岩、特に Rb/Sr 比の比較的大きい花崗岩に対して最も広く利用されるが、最近では Rb/Sr 比の小さい苦鉄質岩石にも利用の範囲が広がっている。火山岩については珪長質岩石が主な対象となる。Rb/Sr 法は変成岩にも広く利用されており、前述のように原岩や変成作用の年代に関して重要な情報を提供してくれる。一方堆積岩については、特に地質年代尺度に関連して堆積年代を求める目的で、測定が試みられてきた。

2. 測定法と測定誤差

Rb-Sr 法による測定法は、Rb と Sr の定量と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比の測定に分けられる。Rb と Sr の定量は ^{84}Sr , ^{87}Rb をスパイクとして用いる同位体希釈法が標準的な方法であるが、蛍光 X 線分析による定量も比較的よく用いられる。分析法については兼岡 (1976), 加々美ほか (1982) などに詳しいので、ここではふれない。

$$Av. = 0.70808 \pm 0.00011 (1\sigma) \\ (N = 200)$$

第2図 標準試料 E & A の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比測定結果

on the mean: $2\sigma_m$ 又は 2σ mean) という値で示することが多く、この表現に従えば上記の標準偏差の $\frac{2}{\sqrt{200}}$ 倍すなわち 0.70808 ± 0.00002 と小さくなる。また E & A の長期間にわたるくり返し測定の結果は、 0.708083 ± 0.000017 (1σ , 測定回数60) である。なおこの E & A は NBS 987 と共に Sr 同位体比測定における質量分析計の校正に使用される標準試料で、論文中にその値が記載され同位体比の相互比較のための重要な規準値となっている。

Rb-Sr 法による年代値の誤差は、上にのべた測定誤差が関係してくる。Rb/Sr 比が30以上の黒雲母については、年代が10Ma より古ければ、誤差 (1σ) は $\pm 3\%$ である。この雲母の年代が1Ma としても、その誤差は10% 程度である。多数の試料を用いてアイソクロン法で年代を求める場合には、MCINTYRE *et al.* (1966) や YORK (1969) らが開発した最小二乗法を用いて年代と誤差が計算される。この方法は個々の測点 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$) に伴う測定誤差の逆数の2乗を重みとして、測点からのずれが最小になるような直線 (アイソクロン) を求める方法であり、複雑な計算を必要とするので、コンピューターが利用される。求められたアイソクロンからの測点のずれが、測定誤差の範囲内にあるかどうかの判定のために、MSWD (Mean Square of Weighted Deviates, 加重偏差の2乗の平均) という値が計算されている。この値がある一定の基準値 (10前後の測定数の場合は2.5) をこす場合には、測定誤差以外の誤差が含まれるものと判断される。そしてこの直線のことをエラクロン (errorchron) と呼ぶことがある。この原因は測点の中に起源 (年代、あるいは初生値) を異にするものが混じっているためであり、それを除いて再計算し正しい年代を求めるということが行われる。

3. 壊変定数

測定精度には直接関係はないが、壊変定数 λ の問題は重要である。 ^{87}Rb の λ は現在 $1.42 \times 10^{-11}/\text{年}$ が広く使用されている。これは1977年に IUGS 年代学小委員会 (STEIGER and JÄGER 1977) が統一使用のために勧告した値である。しかしそれ以前は $1.39 \times 10^{-11}/\text{年}$ と $1.47 \times 10^{-11}/\text{年}$ という2つのかなり異なった値が使用されていた。従って古い定数による年代値を新しい定数による値と比較する場合には、一定の係数をける必要がある。すなわち1.39の場合は0.9789を、1.47の場合は1.035をかけなければならない。

IV. Rb—Sr 全岩法の問題点

Rb—Sr 全岩アイソクロン法により意味のある年代を求めるためには、次の点が満たされなければならない。

1. 一組の岩石試料が同じ $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 初生値と年代をもつ。
2. Rb, Sr 比に関して閉鎖系であったこと。
3. Rb/Sr に適当なばらつきがあること。

ところで、1と3とはあい反する条件である。すなわち Rb/Sr 比にある程度のばらつきをもたすためには広い範囲を対象としなければならず、そうすると初生値が同じという条件が満たされない場合も生じ得る。最近大きな花崗岩体では場所によって初生値が異なるということが、しばしば発見されるようになった (例 RODDICK and COMPSTON 1976)。大きな岩体では Sr 同位体の完全な均質化が起るということの方が、むしろ考えにくいとされるようになったが、このことは $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 同位体比の測定精度が格段に向上したため、その現象が確認された結果といえる。

それでは具体的にはどのような基準で全岩試料を採取したらよいか、について考える。まずできるだけせまい範囲 (たとえば大きな露頭) で Rb/Sr 比に差が出そうな試料を選ぶ。採取する試料の量は、岩質、粒度によって異なるが、一応の目安として 2~3 kg と考えてよい。その根拠は、岩石生成後の冷却の過程あるいは後の変成作用による温度上昇の際に、たとえ放射性起源の ^{87}Sr の移動が起っても鉱物間 (mm 単位) での現象であり、10cm 角程度の全岩試料の単位では閉鎖系とみなされる、という判断にもとづいている。これは丁度第1図における全岩及び鉱物アイソクロンがそれぞれ花崗岩生成、変成作用の年代に対応する場合にあてはまる。

全岩試料では試料の調製法も重要であり、できるだけ全岩試料を代表する均質な細粉試料を作らなければならない。そのためには岩石試料全部を 200 メッシュ以下に粉碎・混合するのが理想的であるが、多数の試料を取り扱う場合には手間の点で問題がある。簡単にはジョークラッシャーで全部を ~5mm 以下にくだき、縮分器でいいいに量をへらし、最後に少なくとも 100g 以上を細粉するという方法がよくとられる。

変成岩については原岩の年代や初生値が同じであるという条件を必ずしも満たしていないこと、変成作用の程度と均質化の関係という点で全岩アイソクロンの意味は複雑である。かつては角閃岩相以上の高度の変成作用の元では Sr 同位体は均質化し、従ってアイソクロンは変成作用の年代を示すという考え方が支配的であった。しかし最近では大規模な均質化は起りにくいという考え方が有力になってきている。たとえば世界最古の岩石である西グリーンランドのアミツォク片麻岩は、2700~2800 Ma の角閃岩相の変成作用をうけているにもかかわらず 3800Ma の全岩年代を示す。またグラニユライト相の変成岩でも均質化は起らず原岩の年代を示す例も報告されている。一方層状変成岩の研究からは、cm オーダーでの均質化が起り、変成作用の年代を示すこともよく知られている。変成岩の全岩アイソクロンが変成作用の年代を示すかどうかの判断の一つとして、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 初生値が参考になる。初生値がかなり高ければ変成岩はアイソクロンが示す年代より以前の地殻物質としての歴史をもつことを物語り、変成年代であるといえる。しかし初生値が高くなることはむしろ少ないので、この値による判定は一般には困難である。一方全岩年代が鉱物年代に等しい場合は、変成年代である可能性が高い。これは結晶片岩などで時々みられるケースである。

いずれにせよ変成岩の全岩アイソクロン年代の解釈については、年代値だけで判断することは困難であり、岩質、変成度、初生値などの情報を考慮して総合的に判断する必要がある。最近では Nd 同位体比も合わせて測定されるようになり成因を考える上での重要なデータとなっている。

火山岩については、たとえ全岩試料であっても一般に変成作用等による熱的影響を受けやすいことが知られている。これは放射性起源の ^{87}Sr が細粒の基質から逃げ易いためと考えられ、特に Rb/Sr 比の大きい

珪長質岩石について、予想より若い年代値を示すことがある。雲母類の年代の方が全岩アイソクロン年代よりも古いという例も報告されている。また、火山砕屑岩については変質を受け易いという点と、外来岩片の混入という問題もある。これらのことから火山岩の Rb-Sr 全岩年代の測定においては、試料の選択と結果の解釈について特に慎重な配慮が必要である。

堆積岩中の自成鉱物である海緑石は、堆積年代を直接測定できるという点で、特に年代尺度作成のために重要である。しかし海緑石の Rb-Sr 年代測定の結果は予想される年代よりも 10~20% 低いとされてきた。最近の研究結果においても Rb-Sr 年代は K-Ar 年代よりも信頼性が低い。そこで海緑石の年代は結晶度のよい、K 含量の高い (7% 以上) 試料について K-Ar 法と Rb-Sr 法とを併用することが望ましいとされている (ODIN 1982)。堆積岩の Rb-Sr 全岩年代の測定については、主に頁岩、粘土岩などの細粒岩について研究が行われ、アイソクロン年代が求められた例も多い。ただその年代がいかなる地質現象の年代を示すかについては、古い砕屑物や同位体均質化などの問題がからみ、解釈が困難な場合が多い。SHIBATA and MIZUTANI (1982) は化石で時代のわかった 美濃帯の珪質頁岩・チャートの年代測定結果から、アイソクロン年代は堆積後の化学的な続成作用がほぼ終了した年代を示すものであらうと考えた。この種の研究は今後の発展が大いに期待される。なお、わが国における Rb-Sr 年代研究については、柴田 (1985) にまとめられているので参照されたい。

V. あとがき

Rb-Sr 年代測定における技術的問題、特に Sr 同位体比の測定については、現在の形の質量分析計の改良という点からみれば、ほぼ限界に達していると思われる。ただその限界に挑戦するという点で、100 万年以下の若い岩石の年代測定は盛んになるものと思われる。しかし Rb-Sr 法は試料の問題、例えば全岩試料における異質性の程度や代表試料の抽出法などが年代測定において考慮しなければならない重要な問題となる。逆にこの分野の研究は岩石の成因や Rb・Sr の移動という興味あるテーマにも関係している。今後 Rb-Sr 全岩法はよりきめの細かい研究へと進展してゆくであらう。そして Nd 同位体の研究もあわせて試みられるようになるであらう。

文 献

- 加々美寛雄・岡野 修・須藤 宏・本間弘次 (1982) : MAT 260 による Sr 同位体比測定及び Rb・Sr 定量分析. 岡山大温研報告, No. 52, 51-70.
- 兼岡一郎 (1976) : 地球年代学. 新実験化学講座, 10 (宇宙地球化学), 352-376.
- MCINTYRE, G. A., BROOKS, C., COMPSTON, W. and TUREK, A. (1966) : The statistical assessment of Rb-Sr isochrons. *J. Geophys. Res.*, **71**, 5459-5468.
- ODIN, G. S. (1982) : How to measure glaucony ages, In *Numerical Dating in Stratigraphy*, ODIN, G. S. (ed.), Wiley, 387-403.
- RODDICK, J. C. and COMPSTON, W. (1976) : Radiometric evidence for the age of emplacement and cooling of the Murrumbidgee Batholith. *Jour. Geol. Soc. Australia*, **23**, 223-233.
- 柴田 賢 (1985) : 地質年代学におけ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.
- SHIBATA, K. and MIZUTANI, S. (1982) : Isotopic ages of Jurassic siliceous shale and Triassic bedded chert in Unuma, Central Japan. *Geochem. Jour.*, **16**, 213-223.
- STEIGER, R. H. and JÄGER, E. (1977) : Subcommission on Geochronology : convention on the use of decay constants in geo- and cosmochronology. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **36**, 359-362.
- TAYLOR, S. R. (1965) : The application of trace element data to problems in petrology. In *Physics and Chemistry of the Earth*, AHRENS, L. A., PRESS, F., RUNCORN, S. K. and UREY, C. (eds.), Pergamon, 133-214.
- YORK, D. (1969) : Least-squares fitting of a straight line with correlated errors. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **5**, 320-324.