総説

長半減期核種による年代測定

—— 最近の発展 ——[†]

兼岡一郎

東京大学地震研究所

113 東京都文京区弥生 1-1-1

Key Words: age determination, long-lived radionuclide, decay constant, SIMS, laser ablation, *in-situ* analysis

1. はじめに

自然界に存在する各種の放射性核種のうちでその半減期が数億年を超えるものは、元素生成終了後、現在までもその核種が地球を構成する岩石や鉱物中に含まれている。その壊変定数は地球の条件下では温度圧力によらず一定と見なされているので、親核種および娘核種の存在比が年代の関数であることを利用して、岩石や鉱物の年代測定に用いられる。表1に、現在岩石や鉱物の年代測定に用いられている主な放射性核種を挙げる。

長半減期核種を用いた年代測定は、1896年に放射性元素が発見されて以来、今世紀初めにはすでに U-He や U-Pb などの組合せによって試みられた¹⁾。長半減期核種を用いた年代測定では、親核種 P が時間とともに壊変して娘核種 D* に変わるが、その両者の存在比から年代を推定する。その原理を図1に示す。ここで年代 $t=0$ 、すなわち年代測定の対象となる事象が生じた時点における、娘核種 D と同じ種類の同位体 D_0 とそれに対応させる同種の元素の安定同位体 D_s との比、 D_0/D_s を初生比と呼ぶ。

初生比と現在の親核種 P と娘核種と同種の安定同位体 D_s との量比 P/D_s 、現在の娘核種同位体を含む安定同位体との比 D/D_s から年代値 t が計算できる。

初生比が未知数であるとき、同じ D_0/D_s と年代 t をもち、異なった P/D_s をもつ複数の試料の間では、 D/D_s と P/D_s の間に直線関係が成り立つ。この直線をアイソクロン（同時線）

(放射性親核種)

$$\frac{dP}{dt} = -\lambda P$$

$$\frac{D}{D_s} = \frac{D_0}{D_s} + \frac{P}{D_s} \{ \exp(\lambda t) - 1 \}$$

図1 年代測定の原理 (アイソクロン法)

[†] Age Determination by Long-lived Radionuclides—Recent Developments—. Ichiro KANEOKA: Earthquake Research Institute, University of Tokyo, Yayoi 1-chome, Bunkyo-ku, Tokyo 113, Japan.

表 1 年代測定に用いられる主な長半減期核種と年代測定法の種類

親核種	同位体存在比 (%)	壊変形態	娘核種	半減期 (年)	年代測定法
^{87}Rb	27.83	β^-	^{87}Sr	4.88×10^{10}	Rb-Sr
^{238}U	99.28	α, β^-	^{206}Pb	4.4683×10^9	^{238}U - ^{206}Pb Pb-Pb
		SF*	$^{131-136}\text{Xe}$	$(8.2-10) \times 10^{15}$	コンコーディア フィッシュン トラック
^{235}U	0.72	α, β^-	^{207}Pb	7.038×10^8	^{235}U - ^{207}Pb Pb-Pb コンコーディア
^{232}Th	100	α, β^-	^{208}Pb	1.401×10^{10}	^{232}Th - ^{208}Pb
^{40}K	0.01167	(β^-)	(^{40}Ca)	1.25×10^9 **	(K-Ca)
		EC*	^{40}Ar		K-Ar, Ar-Ar
^{147}Sm	15.1	α	^{143}Nd	1.06×10^{11}	Sm-Nd
^{187}Re	62.6	β^-	^{187}Os	4.2×10^{10}	Re-Os
^{176}Lu	2.6	β^-	^{176}Hf	3.6×10^{10} **	Lu-Hf
		EC*	(^{176}Yb)		
^{138}La	0.089	β^-	^{138}Ce	9.9×10^{10} **	La-Ce
		EC*	^{138}Ba		La-Ba

* SF：自発核破砕反応，EC：電子捕獲

** 親核種の壊変形式全体としての半減期
消滅核種を用いた年代測定は省略してある。

と呼び、アイソクロンの傾きから年代 t が計算できる。このような方法で年代を求める方法をアイソクロン法と呼び、標準的な年代測定法となっている。それぞれの壊変系に対して用いられる一般的な P, D, D_s の組合せも、表 1 に示している。これらのうち、U-Pb, Th-Pb, Rb-Sr, K-Ar などによる方法は 1950-60 年代には年代測定法として確立したが、Sm-Nd 法は 1970 年代後半になってから実用化された。また Re-Os, Lu-Hf, La-Ce, La-Ba 法などは、1980 年代に入ってからようやく必要な精度をもった年代測定が可能となった。これらはいずれも原理的には早くから年代測定法としての可能性が指摘されてきているが、対象となる同位体の岩石・鉱物試料などに含まれている量が少なく、また同位体比の変化量がわずかなため、年代測定として有用な精度をもった測定ができるまでの技術的な面での開発に時間を要したためである。

現在では、地球の年齢の基礎となる太陽系で最も始源的な部類に属すると言われるアエンデ

隕石中の、高温で生成されたと見なされる包有物の年代が、 $4566 \pm 2 \text{ Ma}$ ($1 \text{ Ma} : 10^6$ 年前)と報告されるようにまでなっている²⁾。この年代につけられた測定精度の意味は後に触れることにして、現在の年代測定技術は 20-30 年前に比べて非常に精度が向上し、また測定法に関しても新しい技術が導入されてきていることを指摘しておきたい。本稿ではその一端を紹介する。

2. 地球の年齢と隕石の年代測定

地球がいつ生まれたかということは、私達人類にとって大きな関心と呼ぶ問題である。実際放射壊変の原理を利用した年代測定法が可能になる以前の 19 世紀末頃までは、溶けた地球が熱伝導によって現在の温度までに冷えたとする物理学的な計算や、地層の堆積速度を適当に仮定して求める方法などにより推定されていた。前者からは数千万年オーダーの値が報告され³⁾、後者によっても 10-20 億年程度の年代

が推定されてきた。

現在考えられている数値とほとんど変わらない値は、1953年に Patterson⁴⁾ によって Pb-Pb 法を用いて得られた。彼は ^{238}U - ^{206}Pb 系と ^{235}U - ^{207}Pb 系とを組み合わせ得られる $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ - $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 図におけるデータプロットから (Pb-Pb 法)、隕石および海底泥のデータが 4.53 ± 0.06 Ga (1 Ga: 10^9 年前) の年代を示すアイソクロン上にのることを示した。この値は、現在用いられている U の壊変定数で計算すると、4.55 Ga に相当する。この値は、隕石の年代をアイソクロンで求め、その上に地殻の平均値としての海底泥がのるので地球の年代もほぼこの値と等しいと推論している。しかしその後海底泥の値には地域差があることもわかり、このことが地球の年代と隕石の年代を結びつける理由にはならないことが明らかになった。しかし、消滅核種の ^{129}I (半減期: 17 m.y.) から生じた ^{129}Xe などを用いて推定される異なった種類の隕石等の形成年代の差や、惑星の形成モデルから導かれる各惑星の形成期間がい

ずれも数千万年程度以内であること、地球と類似の起源をもつと考えらる月の岩なども同様の年代を示すことなどから、結果的には地球の年齢もほぼこの程度の数値をもつと考えられてきている。

Allègre らはこのような背景を踏まえた上で、Pb-Pb 法の最近の結果や I-Xe 年代に基づいて、太陽系における各隕石のもつ年代や地球の年齢について検討した²⁾。その結果、太陽系では最も初期に形成されたと考えられているアエンデ隕石の高温凝縮物中の Pb-Pb モデル年代は、 $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ が 150 以上のものについては図 2 に示すように $4.566 \pm {}^{0.002}_{0.001}$ Ga の間におさまることを示した。ここで Pb-Pb モデル年代は、太陽系形成時の Pb 同位体比は鉄隕石であるキャニオンディアブロのトロイライトと呼ばれる硫化鉛の値と等しいと仮定して、隕石中の Pb 同位体比の測定値から年代を計算したものである。この鉄隕石の Pb 同位体比は、立本らによって非常に高精度をもって分析されたものである⁵⁾。また各種隕石について Tera-Was-

図 2 アエンデ隕石の高温凝縮包有物に対する Pb-Pb 年代²⁾
 $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb} > 150$ (すなわち $^{238}\text{U}/^{204}\text{Pb}$ が大きい試料) に対する
 Pb-Pb 年代が、 $4.566 \pm {}^{0.002}_{0.001}$ Ga であることを示す。

serburg によるコンコーディアプロット⁶⁾上で年代を求めると、図3のような範囲におさまる。図3で星印をつけたものは放射性起源同位体を表し、その計算のためには前述した鉄隕石のキャニオンディアブロのPb同位体比をもつPbが各隕石形成時から存在したとして計算している。図3で見られるようにPb同位体比の測定誤差は非常に小さいので、コンコーディアと呼ばれる年代一致曲線上での年代につけられている誤差も4540 Ma付近の値でも2-3 Ma程度にしかない。すなわち相対誤差として0.1%以下ということになる。

一方で、地球の各大洋底の海嶺と呼ばれる部分からは、MORB（海嶺玄武岩）と呼ばれる溶岩が噴出して新しい海底をつくっている。このPb同位体比に関するPbモデル年代の検討や、 ^{129}I から生じたと考えられる大気中にある過剰の ^{129}Xe の量から、地球は隕石などよりも0.1 Ga程度、大気は約100 Maほど遅く形成されたとAllègreらは考察している²⁾。

このようにU-Pb系を用いた年代測定においては、そのモデル年代を採用することによりきわめて細かい分解能をもつ年代測定がされている。一方で、最初に紹介したアイソクロンを用いる方法でも、図4に示すRb-Sr法の場合には0.2-3%程度の測定誤差で年代値が得られている⁷⁾。この場合、 ^{87}Rb の壊変定数として国際地質年代委員会から用いることを推奨された値 $1.42 \times 10^{-11}/\text{年}$ ⁸⁾を用いると各種コンドライト隕石に対するアイソクロン年代値は $4498 \pm 0.015 \text{ Ga}$ となり、U-Th-Pb系を用いて得られた値よりも若い年代を示す。そのため、Allègreらは ^{87}Rb の壊変定数としてはむしろU-Th-Pb系による値と一致するような $1.402 \times 10^{-11}/\text{年}$ の方が妥当である可能性を指摘した⁷⁾。しかしU-Th-Pb系により得られる年代とRb-Sr系により得られる年代が同じである必然性もない。一般的には前者の系が閉鎖系になる温度は後者の系よりも高いので、それぞれの経た熱史の状況によって、年代差が生じることも否

図3 $^{207}\text{Pb}^*/^{206}\text{Pb}^* - ^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}^*$ コンコーディア図における各隕石の年代²⁾

図3(b)の拡大図中におけるコンコーディア上の数値がGaを単位とした年代を示す。

図 4 コンドライト隕石 (H■, LL△, E●) に対する Rb-Sr 全岩アイソクロン⁷⁾

通常用いられている ^{87}Rb の壊変定数 $1.42 \times 10^{-11}/\text{年}$ を用いると、アイソクロンの示す年代 T は $4.498 \pm 0.015 \text{ Ga}$ で $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の初生比 i は 0.69885 ± 0.00010 となる。もし T を Pb-Pb 年代で得られている値 $4.555 \pm 0.010 \text{ Ga}$ と仮定すると、それに対応する ^{87}Rb の壊変定数は $(1.402 \pm 0.008) \times 10^{-11}/\text{年}$ に相当する。

定できない。

しかし、現在では個々の年代測定精度よりも放射年代に用いる放射性核種の壊変定数（ないし半減期）の確度の不確定さの方が大きいという状態になっている。すなわち最も信頼のおける壊変定数が得られているとされる ^{238}U や ^{235}U に対しても、実験室で得られた測定値そのものは 0.1% 以下の測定精度をもったものとして報告されてはいても、その確度が 0.1% 以下の信頼度をもっていか否かには問題が残っている。したがって表 1 に示した ^{87}Rb や ^{147}Sm の壊変定数に関しては、0.1% 以上の不確定さは当然含まれていると考えた方が妥当である。すなわち現在の測定技術では、惑星形成当時の記録を反映していると考えられている個々の隕石などの相対的な年代差に関しては、同じ方法を用いている場合には数 Ma 程度の差を議論することが可能となってきた。しかし年代の

絶対値に関しては、用いる長半減期核種の種類によりその壊変定数の方に大きな不確定さがあるので、異なった年代測定法によって得られた年代値の比較に際しては、そのことを十分に考慮しなければならない。

3. SIMS を用いた年代測定

表 1 に示されている長半減期核種を用いた年代測定は、基本的には放射壊変を行う親核種と生じる娘核種の量を求める。そのためには同位体測定を必要とするので、それぞれに適した質量分析計を用いる。最近では従来からの表面電離や電子衝撃による方法以外にも、プラズマ発光やレーザーを用いた新しいイオン化の方法が開発され、イオン化の効率などを含めて質量分析計は非常に高感度の性能をもつようになってきた。そのために年代測定法の種類にもよるが、測定に用いる試料自体の量は数十 mg から数

mg 以下でも可能となり、個々の鉱物粒を用いた測定も行われるようになってきている。

それらの中でも、最近わが国でもいくつかの研究機関で行われるようになってきた SIMS によれば、鉱物粒子の局所分析が可能であり、それを利用した年代測定を紹介する。SIMS は secondary ion mass spectrometry の略で、二次イオン質量分析法を意味する。この方法では、電子線プローブマイクロアナライザが加速した電子線を表面に照射して発生する X 線を検出して元素分析する代りに、高エネルギーのイオンビームを固体表面に照射し、スパッタリングにより放出された表面物質の二次イオンを質量分析する。1960年代後半から実用化されるようになり、特に 1980-1990 年代にかけて急速に用いられるようになってきた。まだ技術的には未解決の問題も少なくないが、元素分析のみでなく同位体分析が可能であることに大きな特徴がある。イオン化された同位体の量がきわめ

て限られ、同重元素などの分離に高分解能を必要とするなどの理由により、表面電離型質量分析などと同じ測定精度を要求することにはまだ無理があるが、ジルコン粒子を用いた U-Pb 年代測定などに対して非常に有効な手段となっている。

オーストラリア国立大学 (ANU) の Compston らは、特にジルコンなどの U に富んだ鉱物粒子を用いて U-Pb 年代を行うことを主目的とした SHRIMP (sensitive high-resolution ion micro-probe) と名づけられた SIMS を開発した。それを用いて、それまで地球最古と言われていた 38 億年の年代をもつ西グリーランドの深成岩や変成岩などよりも古い 39-42 億年の年代をもつジルコン粒子を、オーストラリア西部や南極、カナダ楕状地などから見だし、地球史を論じる上での重要な情報を提供してきた⁹⁾。この方法では、個々のジルコン粒子表面の局所部分に対するイオン照射を少しずつ

図 5 オーストラリア西部、ナリア山地から採取されたジルコン粒子に対する SIMS による分析結果のコンコードディア図⁹⁾
コンコードディア上の数値は年代 (Ma) を示す。■は 4 000 Ma 以上の年代を示す試料。比較のため、3 800 Ma の年代をもつ西グリーンランド、イスア地域のジルコンの分析結果も示されている。

位置をずらして行うことにより、複数のデータをとることができる。その粒子が二次的な熱などの影響を受けていると、1個の粒子内でも異なった値を示す。図5には、そのようにして得られたジルコン粒子の中に、41-42億年に相当する年代を示すものを示したコンコーディア図である。

図5中に引かれた曲線は、 ^{238}U - ^{236}Pb 法および ^{235}U - ^{237}Pb 法のそれぞれで、同じ年代を示すときにのるべき線で、コンコーディア曲線（同時線）と呼ばれる。しかし二次的な影響を受けて元のU-Pb系が乱されたような場合には、実際の試料から得られるデータは図5に見られるようにある線上に並ぶ傾向が見られる。このような線はディスコーディア（年代不一致線）と呼ばれ、コンコーディアとディスコーディアの交点、特にその古い方の年代は、二次的な影響がまったく見られず、試料の生成年代に相当するものと考えられている。一方若い年代を示す交点は、二次的な影響を受けた年代に相当すると考えられるが、この場合の解釈には異論もあり、古い年代を示す方の交点ほどには重視されない傾向がある。図5に示されたデータは、西オーストラリアのナリア山地から36億年の変成年代を示す変成岩中のジルコン粒子に対して、SHRIMPによって得られたものである。さまざまな年代を示すジルコン粒子が存在していることがわかるが、塗りつぶした四角形で示されるデータは、41-42億年を示すディスコーディアの存在を示している。比較のために、それまでに地球上で最古の年代と知られていた西グリーンランドのイスア地域からのジルコン粒子では、ほぼ38億年の年代を示し、分析上からは問題がないことを確かめている。このようなデータは、SIMSによる粒子の局所部分の同位体分析が可能になったことにより初めて得ることができたもので、従来の質量分析法では困難な手段である。現在までに得られた地球上の試料としては、この年代値が最古のものである。

これまでのところ、SIMSにより年代測定が行われているのは、ジルコンや燐灰石などUに富んだ鉱物粒子に対してのコンコーディア図を用いた方法のみである。通常のアイソクロン法を用いた年代測定に利用するためには、現在以上の測定精度の向上が必要である。しかし局所分析が可能であるという特性を利用して、他の手段では困難な試料の年代測定などに利用することが今後さまざまな形で試みられていくことが予想される。わが国では、現在東京工業大学、広島大学、地質調査所などでSIMSを用いた年代測定が試みられている。

4. レーザー加熱を用いたAr-Ar年代測定

微量の固体試料に対する年代測定法として、前述のSIMSによるのとは異なった方法で、現在非常によく用いられるようになっていく方法がある。レーザー加熱によりArを固体試料から脱ガスして同位体分析を行う、Ar-Ar法である。

Ar-Ar法は、年代測定に用いる放射壊変系はK-Ar法と同様であるが、K-Ar法ではKおよび放射起源 ^{40}Ar ($^{40}\text{Ar}^*$)の定量により年代測定をするのに対し、試料に速中性子照射を行って人工的に ^{39}K から ^{39}Ar （半減期：269年）をつくり、 $^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}$ の測定によって年代を求める点に大きな違いがある¹⁰⁾。この方法では、同一条件で速中性子照射された試料とK-Ar年代のわかった標準試料のAr同位体比の測定から、年代値を計算できる。すなわちArの定量は必要としない。そのために異なった温度で岩石や鉱物から脱ガスしたArの同位体比のそれぞれから年代が計算でき、段階加熱による年代パターンが得られる。同位体比のみの測定なので測定精度もよく、用いる試料の量が少なくてすむ。また段階加熱法を用いることにより、試料の変質などにより $^{40}\text{Ar}^*$ などが一部失われていても $^{40}\text{Ar}^*$ をきちんと保持している部分からの成分（高温で脱ガスされる場合が多い）を見れば、意味のある年代値を得ることが

できるという利点が Ar-Ar 法にはある。そのため、速中性子照射を要し、それに応じた補正も必要という厄介さはあるにしても、従来の K-Ar 法に加えて Ar-Ar 法による年代測定は非常に広く用いられるようになってきている。特に試料からの Ar の脱ガスをレーザー加熱で行い、その Ar 同位体測定を高感度の気体質量分析計で行う方法は、鉱物粒子の局所分析なども可能にしてその応用範囲は広い。

レーザー加熱を用いた Ar-Ar 法は、1970 年代にすでに月の岩の年代分布を調べることに用いられた¹¹⁾。しかし York らにより連続レーザーを用いての段階加熱に対応した方法が開発され、地球物質について応用されるようになったのは 1980 年代に入ってからである¹²⁾。レーザー加熱によっても段階加熱に相当する脱ガス操作が可能になったことで、Ar-Ar 法の多くの利点を失うことなく微量の試料によつての年代測定が行えるので、その意義は大きい。

レーザー加熱を用いて行われた Ar-Ar 年代測定の一例として、メキシコ、ユカタン半島から採取された衝撃により溶融した岩石試料と、同地域に分布するテクタイトの Ar-Ar 年代スペクトルの結果を示す (図 6)。これらは、地質年代の大きな境界である白亜紀と第三紀の境界 (いわゆる K-T 境界) の生じた原因とし

て、巨大隕石が地球上に落下して世界的な気候変動を起こしたという説が有力視されているが、その隕石の落下地点を同定する目的で年代測定が用いられた例である。すなわち、隕石が落下して形成されたと推定されるクレーター周辺部からその落下の際の衝撃により放出された熱で溶かされた岩石と、その際に溶けた岩石の一部は大気中に放出されてテクタイトと呼ばれる物質になったと予想して、それらの年代が K-T 境界の年代に一致することを示したものである¹³⁾。テクタイトは黒曜石に似たガラス状物質で、大気中を高速で飛翔したことを予想させる紡錘や涙状の独特の形状を示すものが多く、その分布地域が限られ、同じ地域のものは同じ生成年代を示す。K-T 境界を生じた巨大隕石は中南米のユカタン半島に存在する径が 180 km もあるクレーターがその落下跡であり、その際に生じたのがメキシコやキューバなどに分布するテクタイトと考えて、それらの年代をレーザー加熱を用いて Ar-Ar 年代が求められた。その際に用いられた個々の試料は、0.2 - 0.3 mg 程度である。その結果は図 6 に見られるように、いずれも 64.9 - 65.0 Ma の年代を示した。現在 K-T 境界は 65.0 ± 0.5 Ma とされているので¹⁴⁾、これらの年代はまさにその境界の年代に相当する。すなわちユカタ

図 6 メキシコ、ユカタン半島にあるクレーター周辺部から採取された溶融岩石 (A, B, C) とハイテクタイト (D) に対する、レーザー加熱により得られた Ar-Ar 年代¹³⁾

ン半島に落下したと推定されるこの巨大隕石が、K-T境界を生じるもととなった隕石であるというのが結論である。ここで報告されている年代値につけられている測定誤差は、0.1-0.2% 程度の相対誤差に相当する。しかし現在用いられている ^{40}K の壊変定数のもつ不確定さの方がそれよりも小さいという保証はないので、それ以上の細かい年代の一致等を議論するのは無意味であろう。しかし Ar-Ar 年代で比較する限り、相対的な年代差の有無については 0.1-0.2% 程度のきわめて小さい相対誤差での議論が可能となっていることを示唆している。

別の応用例として、1 粒の試料内で異なった年代の分布が見られる例を示す。図 7 は、南スペインの変成岩地域の変成岩体中から分離された白雲母の一種であるフェンジャイト粒子に対して、レーザー加熱による Ar-Ar 年代を求めた結果である¹⁵⁾。図 7 に見られるように 1 個の粒子であるにもかかわらず、その中心部では 30-31 Ma、周辺部では 25-26 Ma の年代を示し、この粒子は約 30 Ma 以前に形成され、その後二次的な加熱作用を受けたことを示している。またこれらの年代分布は、二次的な加熱による放射起源 ^{40}Ar の熱拡散による損失としてよく説明できることも示された。これらの Ar-Ar 年代は段階加熱ではなく、1 回で各部分

図 7 南スペインの変成岩中より分離されたフェンジャイト(白雲母の一種)粒子中の Ar-Ar 年代の分布¹⁵⁾

をレーザーで溶融させた結果としてその年代分布を見ている。それらの結果を平均した値としては、 29.3 ± 0.2 Ma と報告されている。一方、同じ粒子から分離された半片に対してレーザーを用いた段階加熱も試みられ、図 8 に示すような結果が得られている¹⁵⁾。この結果も、全体を平均した値としては 29.3 ± 0.2 Ma となるが、その年代パターンから、約 25 Ma 頃に二次的な加熱を受けたことが示唆される。

このようにレーザー加熱を用いた Ar-Ar 年

図 8 図 7 と同じフェンジャイト粒子の半片に対する Ar-Ar 年代図¹⁵⁾
最初の段階加熱部分に相当する Ar-Ar 年代から、約 25 Ma にこの試料に対して再加熱があったことが推定される。

代測定は、個々の粒子の受けた熱史をも明らかにすることが可能となっており、今後さらにその応用範囲を拡大していくだろう。

5. その他の年代測定法

最初に紹介したように、現在では質量分析計やその他の測定機器の発展により、従来では困難とされてきた年代測定法の実用化が進み、しかも微量の試料での測定が可能となってきた。

たとえば Re-Os 法では、Re が親鉄元素、Os が親銅元素なので、この系に関する元素は金属相や硫化物などに伴って産出する。そのため、鉄隕石やモリブデナイトなど、他の方法では対象とならないような試料の年代測定ができるという特色をもつ。この方法では Os のイオン化エネルギーが 9 eV と大きいために、表面電離法による質量分析が非常に困難だった点にある。ようやく 1980 年代になって、パリ大学のグループにより Os をイオン化させやすい酸化物の形による化学操作法の開発により精度の高い分析が可能となった¹⁶⁾。その後 Re-Os 法に関しては、表面電離質量分析計 (TIMS; thermal ionization mass spectrometer) の他に、イオンプローブ (SIMS; secondary ion mass spectrometry), イオン化にプラズマを用いる ICP 質量分析計 (ICP-MS), 加速器を用いた質量分析計 (AMS; accelerator mass spectrometer), レーザーによりイオン化を行う共鳴イオン質量分析計 (RIMS; resonance ion mass spectrometer) などさまざまな方法を用いて Os などの同位体比測定が試みられきている。いずれも Os などに対する効率よいイオン化を目指したものである。その分析手段が確立すれば、Re-Os 法は今後さらにいろいろな目的に応用される可能性がある。

また希土類元素を用いた年代測定法としては、現在 Sm-Nd, Lu-Hf, La-Ce, La-Ba 法などが開発されている。またこれらはその化学的特性を活かし、娘核種の同位体比を組み合わせ

た地球化学的トレーサーとして、地球内部の進化やマグマ形成過程などを探るのに用いられてきている。特に Sm-Nd 法は 1973-1974 年頃にその分析手段に関しての基礎が確立されて以来¹⁷⁾、現在では Rb-Sr 法と並んできわめて一般的な年代測定法となっている。また Sr 同位体比と Nd 同位体比を組み合わせ、マグマ源や地球内部の進化など非常に広く応用されている。希土類元素は、Rb-Sr 系や U-Pb 系などに比べて、熱や地下水などの二次的影響を受けにくい傾向がある。そのため、Rb-Sr 法ではきちんとしたアイソクロンが得られなかった試料に対しても、Sm-Nd 法では年代が決まることも少なくない。北アメリカ、モンタナ州に存在する、北東-南西方向に約 80 km も伸びた巨大な貫入岩体である Stillwater Complex の場合は、その典型的な例と言えよう¹⁸⁾。この岩体は先カンブリア紀にマントル内で形成され、その後の侵食などのより現在地表に露出したと見なされている超塩基性岩を主体とした複合岩体である。K-Ar, U-Pb, Rb-Sr 法などを用いてその形成年代を求める試みが行われてきたが、二次的な影響が強いためにきちんとしたアイソクロンが得られず、20-30 億年程度のおおよその年代が推定されていたものである。しかるに Sm-Nd 法では図 9 に示すようにきれいなアイソクロンが得られ、Sm-Nd 系は二次的な影響に対して乱されにくいことをはっきりと実証した。このように、他の方法では年代がきちんと決められない場合でも Sm-Nd 系は乱されずに残っている場合も少なくない。このことは、希土類元素が二次的な影響を受けにくいことを反映しているので、他の希土類元素を用いた年代測定法でも同様の特徴をもつ。La-Ce¹⁹⁾, La-Ba 法²⁰⁾については、その元素の岩石・鉱物中における含有量と親核種の半減期の長さなどの関係から、Sm-Nd 法ほど一般的には用いられてきていない。しかしその特徴を活かして、年代測定よりもむしろ地球化学的なトレーサーとしての活用法などが、今後さらに試みられてい

図 9 北アメリカ、モンタナ州の Stillwater Complex の試料に対する Sm-Nd アイソクロン年代¹⁸⁾

くであろう。Lu-Hf 法についても、同様に用いられていく可能性が大きい。

6. 今後の展望と問題点

これまで見てきたように、長半減期の核種を用いた年代測定についての分析方法については、この 10 - 20 年間の間に大きな進歩をしてきている。その特徴は、化学操作および質量分析計の精度の向上により、従来は測定が困難であった核種についても応用が可能になったこと、微量の試料の分析が可能となり、特に SIMS やレーザーを用いての局所分析などが可能になったこと、などである。これらの分析技術については、さらに微量の試料を扱えるような方向での努力がされていき、局所分析による年代測定を行うことがより一般化することが予想される。

一方で年代測定法としては、同位体比の分析

精度に比べて、その用いる放射性核種の壊変定数などの不確定さの方が大きいままに残されている傾向がある。これらの壊変定数などについてより信頼性の高い値を得ることが、さしあたっての大きな問題であろう。さもないと、異なった方法を用いて得た年代の比較の際などに、混乱を生じる恐れがあるからである。

文 献

- 1) Rutherford, E.: "Radioactive Transformations", p.187, Charles Scribner's Sons, New York (1906)
- 2) Allègre, C. J., Manhès, G. and Göpel, C.: *Geochim. Cosmochim. Acta*, **59**, 1445-1456 (1995)
- 3) たとえば, Kelvin, Lord (W. Thomson): Annual Report of the Smithsonian Institution, 337-557 (1897)
- 4) Patterson, C. C.: Report by the Subcommittee on Nuclear Processes in Geological Settings, National Research Council, National Academy of Sciences, Washington, D. C., 36 (1953)
- 5) Tatsumoto, M., Knight, R. J. and Allègre, C. J.: *Science*, **180**, 1279-1283 (1973)
- 6) Tera, F. and Wasserburg, G. W.: *Earth Planet. Sci. Lett.*, **14**, 281-304 (1972)
- 7) Minster, J.-F., Birck, J.-L. and Allègre, C. J.: *Nature*, **300**, 414-419 (1982)
- 8) Steiger, R. H. and Jäger, E.: *Earth Planet. Sci. Lett.*, **36**, 359-362 (1977)
- 9) たとえば, Froude, D. O., Ireland, T. R., Kinny, I. S., Williams, I. S. and Compston, I.: *Nature*, **304**, 616-618 (1983)
- 10) Sigurgeirsson, T.: Physics Laboratory Report, p.9, Univ. Iceland (1962)
- 11) Megrue, G. H.: *J. Geophys. Res.*, **78**, 3216-3221 (1973)
- 12) York, D., Hall, G. M., Yanase, Y., Hanes, J. A. and Kenyon, W. J.: *Geophys. Res. Lett.*, **8**, 1136-1138 (1981)
- 13) Swisher III, C. C. et al.: *Science*, **257**, 954-958 (1992)
- 14) Odin, G. S.: *C. R. Acad. Sci. Paris*, **318**, 59-71 (1994)
- 15) Koen de Jong, Wijbrans, J. R. and Feraud, G.: *Earth Planet. Sci. Lett.*, **110**, 173-191 (1992)

- 16) たとえば, Luck, J. M., Birck, J. L. and Allègre, C. J. : *Nature*, **283**, 256-259 (1980)
 - 17) Notsu, K., Mabuchi, H., Yoshioka, O., Matsuda, J. and Ozima, M. : *Earth Planet. Sci. Lett.*, **19**, 29-36 (1973) ; Lugmair, G. W. : *Meteoritics*, **9**, 369 (1974)
 - 18) DePaolo, D. J. and Wasserburg, G. J. : *Geochim. Cosmochim. Acta*, **43**, 999-1008 (1979)
 - 19) Tanaka, T. and Masuda, A. : *Nature*, **300**, 515-518 (1982)
 - 20) Nakai, S., Shimizu, H. and Masuda, A. : *ibid.*, **320**, 433-435 (1986)
-