

放射年代測定におけるいくつかの課題

兼岡一郎*

Some issues to be considered in radiometric dating

Ichiro Kaneoka*

* 東京大学地震研究所, Earthquake Research Institute, University of Tokyo

1. はじめに

最近の質量分析など分析技術の進歩は目覚しく、そのために従来では困難だった極微量の各種同位体の測定が可能になった。そのため、長半減期核種を用いる各種の年代測定法、たとえばU-Pb年代測定法などでも以前では考えられないほどの若い試料の年代測定が行われるようになり、最近では1 Maより若い試料の年代測定が試みられてきている(例, Sano et al. 2002)。しかし、きわめて微量の放射性起源同位体を対象とすることにより、分析精度とは異なった要素による年代値への影響が生じてくることに対しては、必ずしも十分な考慮がされているとはいえない。そのため、地学的にも意味のある放射年代を得るためには、分析精度の向上に伴いそれに対応した注意が必要になってくる。

放射年代値の不確定さを生じる要因としては、

(1) 実験室内で生じる測定などに関する要因、(2) 試料自体に関する要因、(3) 測定法の原理に関する要因、などに大別できる。

ここでは、各種の放射年代法でそれぞれ最新の分析技術による測定が行われた場合に、得られた年代数値が地学的な意味をもつために注意すべき点につき、いくつかの例を紹介する。

2. 実験室における測定及びデータの取り扱いなどに関する要因

この題目に関する要因としては、年代値の決め手となる放射壊変生成物(放射性起源同位体・フィッシュン・ほか)の推定(測定と補正)、測定データの取り扱い、精度・確度・誤差などの見積もりの妥当性、試料の扱い方、などが対象となる。

測定と補正に関しては、近年の年代測定法の進歩は、高精度測定、用いる試料の微量化(鉱物1粒子で測定)、局所分析、年代測定可能範囲の拡張(特に若い年代に対して)などを可能としてきている。それと共に、それらに対応した補正法や放射性起源同位体量を推定する際に用い

る数値の吟味、有効数字の取り扱い方や得られた数値の意味などについての吟味が重要になる。

例えば、K-Ar、Ar-Ar法において放射性起源 $^{40}\text{Ar}^*$ 量を推定するためには、通常、試料中に含まれるArとしては ^{40}K の壊変により生じた放射性起源 $^{40}\text{Ar}^*$ 以外には大気Arのみが含まれるとし、さらに大気Arの $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ は現在の大気値である295.5として、 $(^{40}\text{Ar}^*) = (^{40}\text{Ar}) - 295.5 (^{36}\text{Ar})$ の関係から $^{40}\text{Ar}^*$ を計算する。しかし海洋底で急冷した火山ガラスやマントル捕獲岩中ではいわゆる過剰 ^{40}Ar が存在し、この関係は成り立たない。また大気Arが同位体質量分別を起こしていて、 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ が295.5とは明らかに異なっている場合があることも明らかになっている。同位体質量分別の補正は、 $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ を同時に測定して大気Arからのずれを用いて補正することも行われるが、過剰 ^{40}Ar の影響は補正できない。これらの影響は、放射性起源 $^{40}\text{Ar}^*$ 量の少ない試料の場合に影響が大きい。現在、分析技術的には1万年より若い火山岩試料のK-Ar年代測定も可能になってきているが、これらの問題が地学的な意味を与えるための重要な制約条件になっている。

また最近ではICP-MSやSIMS(二次イオン質量分析計)を用いて、1 Maより若いジルコンを対象としたU-Pb年代測定も技術的には可能になってきている。ジルコンはその形成時のPb/Uは非常に小さいので、ある程度古い試料では放射性起源Pbの存在が圧倒的に多くcommon-Pbの補正は実際上必要とされず、またUの壊変に関する非平衡の問題についてもその影響を考慮する必要性はないとされている。しかし1 Maより若い年代の試料になると、こうした問題についても避けて通るわけにはいなくなる。Common-Pbの補正には ^{204}Pb の測定が必要になるが、ジルコン中の量は非常に少ないため、それを精度よく測定することは必ずしも容易でない。またcommon-Pbとしてどのような同位体比を用いるかも問題になる。非平衡の問題も含めて、これらの影響をきちんと見積もることや、それらを考慮した上での誤差など

についての検討も必要になろう。

また年代値としてどのような種類の年代（形成年代・二次的な年代・熱史など）を対象にするかによって、年代測定に用いる方法論も異なってくる。近年では、SIMSやレーザーアブレーション法の使用などにより、鉱物中の局所分析が可能になり、1粒子からそれが受けた熱史などの解析も可能になってきた。また年代値を推定する際に、複数の鉱物粒子の年代分布からその平均としての年代に意味づけをするか、試料中での最大値ないし最小値などの極値に意味をつけるかでその考え方には大きな違いが生じる。

例えばFT法や、鉱物粒子などで段階加熱法を用いないAr-Ar法の場合、測定された試料の年代分布に適切な統計処理を施して得た値を年代として用いることが多い。その際、年代のばらつきは自然界および実験の際にもたらされた統計的なものを前提としている。しかしその年代分布が、統計的処理の前提となる母集団として扱ってよいかの妥当性は慎重に吟味する必要がある。このことは、多数のジルコン粒子のU-Pb年代測定値の年代分布を議論する際にも同様に当てはまる。

一方、地球物質としてこれまで知られている最古の年代としてはAustralia, Jack Hillsのジルコン粒が示している4,400Maの値 (Wilde et al. 2001) があるが、これはジルコン粒子の一部にその痕跡が残されているのをSIMSの一種であるSHRIMPで測定したものであり、ジルコン粒子自体がその年代を残しているわけではない。また段階加熱法を用いたAr-Ar年代の場合、低温段階で若い年代を示しても、連続した高温段階で脱ガスされる成分がプラト年代と呼ばれる一定のAr-Ar年代値を示し、一般的にはそれが試料の形成年代と解釈される。一方、場合によっては最初の温度段階で得られる年代が二次的にその試料に熱的影響を与えた年代に相当することもある。さらに各温度段階を平均した値はプラト年代より若い年代になるが、これは一般的なK-Ar年代に相当する。このように、試料の示す年代数値を解釈する際、そのデータの取り扱いや地学的な意味づけには十分な注意をする必要がある。

3. 試料自体に関する要因

年代測定に携わる研究者は、得られた年代数値がどのような地学的現象に相当する年代に対応しているかをきちんと把握しておくことが重要で

ある。試料の示す年代としては、岩石・鉱物の形成年代、二次的な（熱的）影響を受けた年代、マグマの形成年代、マグマの地表噴出年代、混合年代などさまざまな場合が考えられる。それらを区別するためには、異なった試料や年代測定法、試料の産出状況などを総合して考えることが必要になる。

その際、放射年代が示す年代の起点となる事象としては、いわゆる放射壊変に伴う生成物が鉱物などの閉鎖系に蓄積されはじめたときに相当するが、その際の温度を閉鎖温度 (closure temperature) と呼んでいる。閉鎖温度は鉱物の種類や年代測定法によって異なるので、それを利用して岩体などの熱史を調べることが熱年代学として盛んに行われてきている。FT法などによる閉鎖温度は他の年代測定に法より概して低く、300-200°C以下の鉱物が多い。一方、K-Ar法などでは500-300°Cくらいの閉鎖温度が多いのに対し、ジルコンの場合にはU-Pb法で700<~1000°Cで、他の鉱物や年代測定法に比べてかなり高い。すなわち、用いる試料鉱物や年代測定法の種類によって閉鎖温度が異なるので、特に変成岩のように冷却速度が遅い試料の場合には鉱物ごとに年代値にも差が生じる。また風化を含めた試料の変質が生じた場合には、同位体系に関する閉鎖系の条件が崩れているので、得られた数値が地学的な現象に相当する年代を示さない。

ジルコンは他の鉱物に比べて変質に強く、塩基性岩から酸性岩と広い組成範囲の火成岩中に見出され、その測定対象とする年代も数十億年から最近では1 Maより若い年代までと非常に適用年代範囲が広がった。またICP-MS, SIMSなどの活用により以前よりはるかに容易にU-Pb年代などが得られるようになり、最近ではジルコンによる年代測定が急速に広まっている。若いジルコンのU-Pb年代測定で、注意すべき点については前述した。

一方、ジルコンはU含有量が多いことから、これまでFT法にもよく用いられてきており、U-He法などにも用いることが可能である。分析技術の進歩により、U-Pb法とこれらの年代測定法との年代測定可能範囲も重なるようになってきた。そのため同じジルコンを用いて、年代のクロスチェックなども計画されるようになってきているが、注意すべきはこれらの方法間における大きな閉鎖温度の差である。例えば1991年に噴出した雲仙岳火山弾中のジルコンは約90kaのU-Pb年代を示し、ジルコンの示す年代は噴出年代ではな

くマグマ中での滞留期間を示している可能性がある (Sano et al. 2002) . 一方閉鎖温度の低い FT, U-He法によるジルコンの年代値はマグマ噴出年代を示すことになるので, ジルコンを用いての年代のクロスチェックは慎重な扱いを要する.

また実際の地学的事象では, 800-300°Cくらいで生じる現象が少なくないので, ジルコンによる年代測定のみで地学的現象を読み解こうとしても, 閉鎖温度の関係からきちんと対応した年代が得られない場合もでてくる可能性がある. 要は, 対象とする地学的事象に即した閉鎖温度をもつ試料と年代測定法を考慮して, それらを使い分けることが大切である.

4. 測定法の原理に関する要因

放射年代測定に関する原理的な面で, その信頼性に大きな影響を与える要素としては標準試料と壊変定数の問題がある.

年代の標準試料は, 年代測定を行う実験室間の確度チェックなどに欠かせない. さらにAr-Ar法やゼータ値を用いたFT法では, 用いる年代標準試料の年代値を基として年代数値を決めているので, その値の不確定さは測定された年代数値のすべてに及ぶ. しかしそうした標準試料の年代値に対しても, 十分に満足された年代として公認されているものは少ない.

例えばAr-Ar法やFT法によく用いられる標準試料として約28Maの年代をもつFish Canyon Tuffがあるが, その報告されている年代値は27.5-28.3Ma程度の幅があり, 用いた鉱物試料, 研究者などによって異なっている. 同種類の鉱物に対しても, 研究室間で系統的な違いを生じているが, その原因のひとつとしては年代数値を産出する際にさらに別の標準試料の年代値に依拠している場合も含まれる. しかし少なくとも標準試料の年代数値の比較に対しては, 他の標準試料の値に左右される方法は避けるべきであろう. また用いている鉱物中では, 火山ガラス, 斜長石, ジルコンなどがあり, ジルコンに対してのU-Pb年代はやや古い値を示す傾向がある. この場合なども, 前述したように用いている鉱物や年代測定の方法の違いで閉鎖温度も異なっているので, それらの影響の吟味が重要である. こうした際に, いわゆるミランコヴィッチ・サイクルを前提として求められる天文年代との一致を重視する立場もある. しかし天文年代は, ミランコヴィッチ・サイクルと気候変動などを結び付けたモデルに基づいて求めたモデル年代である. そのような

モデルの妥当性を, 独立した立場からチェックをするのが年代学としての役割であるはずだが, それに頼ってしまえばすでにその役割を放棄しているといわざるを得ない. 結局, 標準試料の年代としては, 同種の鉱物試料に対して異なった研究室間で測定された値を, それぞれの測定誤差などを含めて統計的処理をして得られた, 誤差の許容範囲内での有効数字をもった値を採用すべきである.

またFT法では, こうした標準試料の年代値に左右されるゼータ法ではなく, ^{238}U の自発核分裂に関する壊変定数の正確な値を求めて, それ自体で年代が計算できるような手法に戻りつつある.

さらに原理的な問題としては, 各放射性同位体の壊変定数の値についての問題がある. 現在, 年代学で用いられている壊変定数は, IUGS傘下のSOG (Subcommission on Geochronology)が推奨したもので (Steiger and Jaeger, 1977), それ以前ではそれぞれの放射性同位体に対して複数の値が用いられて混乱した状況にあった. その時点でも ^{87}Rb の値などに対して不満が見られたが, 1990年代頃からはさらに ^{40}K の壊変定数に対しても, 現在物理学などで採用されている値を用いるべきと主張している研究者グループが存在している.

現在用いられている ^{87}Rb の壊変定数は 1.42×10^{-11} /年であるが, この値では普通隕石のRb-Srアイソクロン年代は4.50Gaとなり, Pb-Pb年代が示す4.55 Gaとは明らかに差がある. そのため, 両者の差は各系における閉鎖温度の違いとして解釈されるのが一般的である. しかし ^{87}Rb の壊変定数として 1.40×10^{-11} /年を用いると, Rb-Srアイソクロン年代は4.55GaとなってPb-Pb年代と差がなくなり, 両者は同じ事象を記していることになる. 1977年以前には隕石などを対象としていた研究者は, ^{87}Rb の壊変定数として 1.39×10^{-11} /年を用いていた研究者が多く, このような僅かな値の違いで解釈にも差が生じてくるので, この問題はいまだに大きな課題として残っている.

注意すべきことは, 年代学で用いている壊変定数の値は定めた当時においては最良の値ということで採用され, 各研究者が異なった壊変定数を用いることによって生じる混乱を避けることを一番の目的としていたことである. それはある種の約束ごとであり, 現在, 壊変定数として物理学, 化学などで標準的な値として示されている数値と, ある程度のずれが見られてもそれらと調整するこ

とはされてこなかった。しかし、現在年代学で用いられている放射性同位体の壊変定数を再検討する動きもあるので、そのことを十分念頭においておく必要がある。

5. 今後の課題

放射年代測定に関して、今後の留意すべき例としては以下のようなことが挙げられる。

- ・分析精度の向上にあわせて、補正などに用いている定数などの確度・精度などを再検討すること（絶対測定などを含む）。
- ・年代における精度・確度を明確化。
- ・対象とする年代の意味を明確化。
- ・異なった手法間の年代の比較に際しては、用いる試料の特性を十分に考慮する。
- ・標準試料の年代は、その特性を明らかにしておくこと。
- ・放射性同位体の壊変定数には不確定さが存在。SOGの推奨値 (Steiger and Taeger, 1977) は、当時における混乱を避けるために設定されたもの。それらの改訂には、きわめて慎重な吟味と十分な数の賛同者を必要とする。
- ・ほか

放射年代測定に関しての目覚ましい分析技術的發展にともない、それに対応した各測定法におけ

る前提条件を満足しているか否かを常に検討していくことが、一層重要になっている。

謝辞

岩野英樹日本フィッション・トラック研究会会長から、第36回日本フィッション・トラック研究会で講演をする機会を与えていただいたことを感謝致します。

文献

- Sano, Y., Tsutsumi, Y., Terada, K. and Kaneoka, I. 2002, Ion microprobe U-Pb dating of Quaternary zircon: implication for magma cooling and residence time. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 117, pp. 285-296.
- Steiger, R.A. and Jaeger, E. 1977, Subcommission on Geochronology – convention on the use of decay constants in geo- and cosmochemistry. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 36, pp.359-362.
- Wilde, S.A., Valley, J.W., Peck, W.H. and Graham, C.M. 2001, Evidence from detrital zircons for the existence of continental crust and oceans on the Earth 4.4 Gyr ago. *Nature* 409, pp.175-178.