

## 九重火山溶岩の感度法によるK-Ar年代測定

山崎誠子・星住英夫・松本哲一

### Unspiked K-Ar Dating for Lavas from Kuju Volcano

Seiko Yamasaki, Hideo Hoshizumi and Akikazu Matsumoto

産業技術総合研究所, 活断層・火山研究部門, Geological Survey of Japan, AIST

#### はじめに

九重火山は、中部九州の火山フロントに位置し、多数の溶岩ドームや小型成層火山からなる複成火山である。黒岩山などからなる西部、中岳や杳掛山などからなる中部、大船山や黒岳などからなる東部の3つに区分され、おおまかに西側が古く、東側が新しい(図1)。約20万年前に活動を開始したと考えられ(K-Ar年代; 星住ほか, 2013), 最近では1995年に小規模な噴火が起こっている。九重火山の活動履歴については、これまでK-Ar年代測定に加え、FT年代,  $^{14}\text{C}$ 年代やテフクロノロジー, 熱ルミネッセンス(TL)年代測定により研究が進められてきた(例えば, Kamata and Kobayashi, 1997; 奥野ほか, 2013; 星住ほか, 2013)。しかし、テフラの有無による解釈と地形による年代推定とが合わないユニットや、年代未詳のユニットも残っている。

本研究では、九重火山の数十万～数万年前の活動履歴をより詳細に復元するため、2～3万年より古いと考えられるユニットを対象に、感度法によるK-Ar年代測定を実施した。いくつかの試料については、従来法(同位体希釈法)で求めたK-Ar年代値との比較を行ない、初生 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比に対する質量分別補正の有効性について検討した。

有意なK-Ar年代値を得る上で注意すべき点として、初生Arの質量分別のほかに、過剰 $^{40}\text{Ar}$ の混入や、試料形成後の変質によるK

やArの逸脱がある。過剰 $^{40}\text{Ar}$ の混入やArの逸脱については、それらの量の推定は不可能であるため、試料の選択や前処理において影響を可能な限り低減させる必要がある。過剰 $^{40}\text{Ar}$ は急冷ガラスや斑晶に含まれると考えられるため、本研究では完晶質の試料を選択し、180-250  $\mu\text{m}$ または250-500  $\mu\text{m}$ サイズに調製した上で石基のみを分離回収して測定試料とした。

#### 感度法によるK-Ar年代測定

K-Ar年代測定において、試料中の放射起源 $^{40}\text{Ar}$ 量は、希ガス質量分析計による同位体組成分析によって求める。試料中の $^{40}\text{Ar}$ には $^{40}\text{K}$ の放射壊変による放射起源 $^{40}\text{Ar}$ のほかに、試料形成時に既に試料内部に含まれていた初生 $^{40}\text{Ar}$ が存在するため、放射起源 $^{40}\text{Ar}$ 量を求めるには、この初生 $^{40}\text{Ar}$ を差し引かねばならない。従来用いられてきたアルゴン同位体希釈法では、既知量の $^{38}\text{Ar}$ を内標準(スパイクと呼ばれる)として測定し、初生 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比を現在の大気比(295.5)と等しいという仮定のもとで年代値を算出してきた。しかし、K-Ar年代がほぼ0と見なせる歴史溶岩のアルゴン同位体比の多くは大気アルゴンの値とは一致せず、従来の仮定が厳密には成立しないことがわかっている(例えば, Dalrymple, 1969)。この初生比のずれは、基本的には質量分別と呼ばれる質量差に比例した同位体変化によるものであり(例えば, Krumpal, 1969)

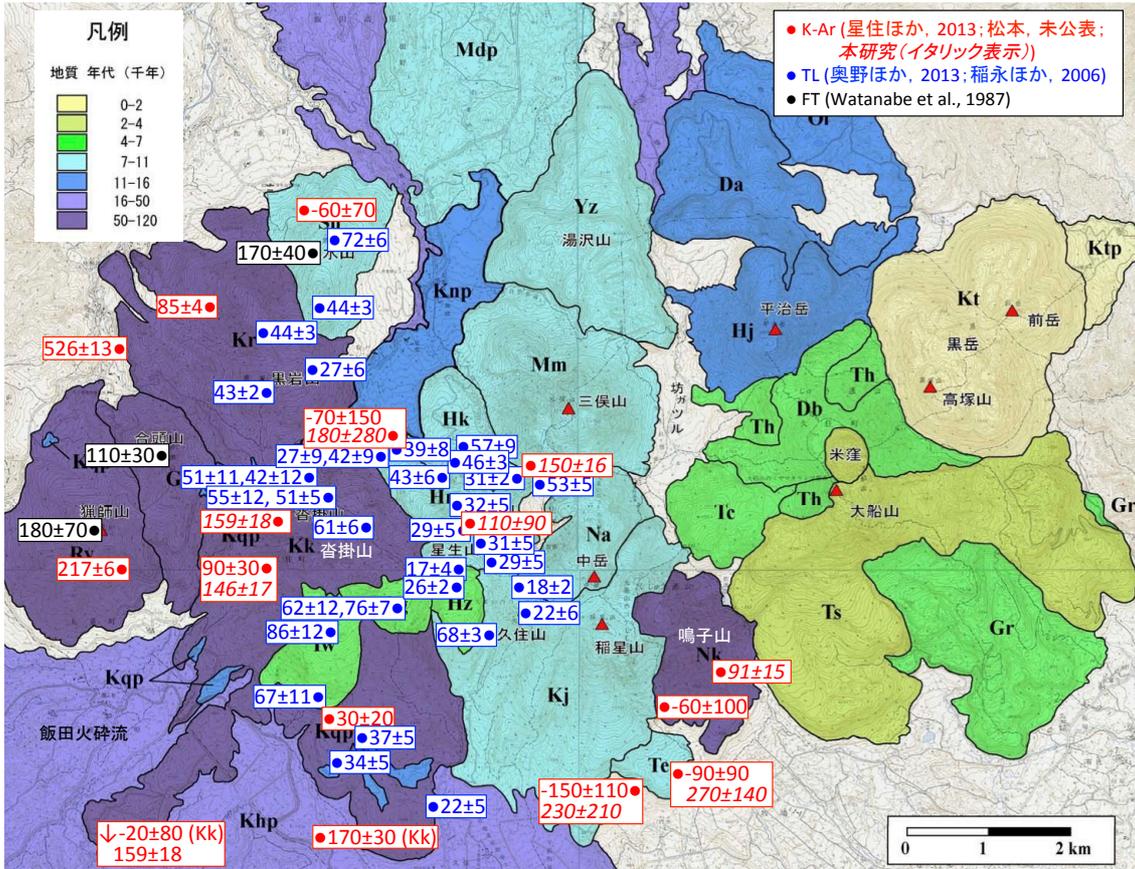


図1. 九重火山の既報年代と本研究の試料採取点。地質図は鎌田ほか(1997)をもとに大分県が作成。

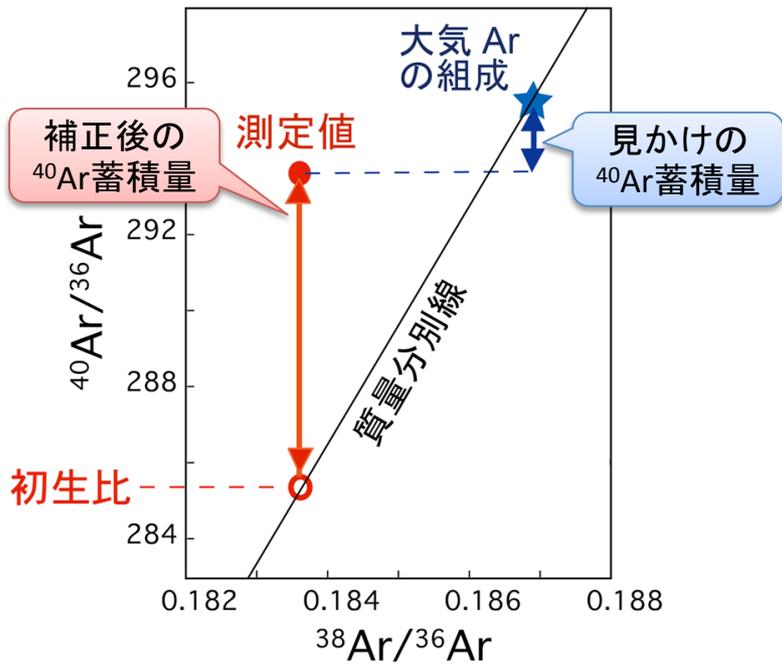


図2. アルゴン同位体比の質量分別補正の概要。初生 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比が現在の大気の組成と等しいと仮定する従来法では、見かけの放射起源 $^{40}\text{Ar}$ 蓄積量がマイナスになる場合があるが、感度法により $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ を同時に測定して質量分別直線に基づき補正することで、特に10万年未満の若い試料について、より正確な年代を算出することが出来る。

1970), 大気アルゴン同位体比を通る理論的な質量分別直線の上に分布することが分かっている (例えば, 松本ほか, 1989). そこで,  $^{38}\text{Ar}$ スパイクを添加しない感度法によって, 試料中に含まれる $^{40}\text{Ar}$ ,  $^{38}\text{Ar}$ ,  $^{36}\text{Ar}$ を直接定量し, 安定同位体である $^{38}\text{Ar}$ と $^{36}\text{Ar}$ の比と理論式である質量分別直線を用いて初生 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比を補正する方法が開発された (高岡ほか, 1989). 特に, 数十万年より若い試料やカリウム含量の少ない試料は, 放射起源 $^{40}\text{Ar}$ の蓄積量が極微量であるため, 初期比の大気値からのずれがK-Ar年代測定結果に及ぼす影響は大きい. 例えば,  $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比が大気値よりも低い(すなわち, 初生 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比が大気値よりも低い)場合には, 質量分別の補正なしでは計算上マイナスの年代となってしまう (図2).

本研究では, 産業技術総合研究所の炎光光度計(ヘキサ科学製FP-33型), および希ガス質量分析計(MM5400Ar)を用いて, カリウム定量とアルゴン同位体組成分析を実施した. アルゴン同位体測定においては, 全 $^{40}\text{Ar}$ 量と $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比をHigh Faradayを用いて測定し,  $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比はHigh FaradayまたはElectron Multiplierによって測定した. 今回, 得られた $^{40}\text{Ar}$ 強度が5V以上(アルゴン導入手量  $\sim 3.8 \times 10^{-7}$  cc STPに相当)の試料については, High Faradayで測定し, 5V以下の

ものは, Electron Multiplierで測定した結果を用いて, 試料ごとに初生 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比を補正したK-Ar年代を計算した. 試料の選択方法や一連の測定法にも, さらなる検討が必要な部分が一部残るが, 予想的にこれまでに得られた年代測定結果を紹介する. なお, 年代値の誤差は全て1 $\sigma$ で示す.

## K-Ar年代測定結果と考察

鳴子山溶岩:

久住山の東に位置し, 開析された成層火山体である鳴子山溶岩(図1)は, 山麓部において飯田火砕流堆積物(53 ka; 奥野ほか, 2013)およびKj-P1降下軽石に覆われるため, 約5万年前よりも古いと考えられている(小野, 1963; 鎌田, 1997). 同位体希釈法によるK-Ar年代では, 大気混入率が高く,  $-60 \pm 100$  kaとマイナスの年代値(松本, 未公表)を示し, 有意な年代値が得られていなかった. 今回, 鳴子山中腹部において, より新鮮な試料を採取し, 感度法を用いて測定したところ,  $91 \pm 15$  kaという年代値( $n=2$ , 加重平均)が得られた(表1). 大気混入率は94%であり年代誤差は大きいものの, 大気混入量の目安となる $^{36}\text{Ar}$ は $0.38 \times 10^{-9}$  cc/gと低く, 結果も層序と調和的である.

展望台溶岩:

久住山南方に分布する展望台溶岩は約1

表1. 九重火山溶岩のK-Ar年代測定結果

Sample ID	Sampling point	LOI (%)	K <sub>2</sub> O (wt.%)	Sample wt. (g)	$^{40}\text{Ar}$ Int. (V)	$^{36}\text{Ar}$ ( $10^{-9}\text{cc/g}$ )	$^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar} \pm 1\sigma$	$^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar} \pm 1\sigma$	$^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar} \pm 1\sigma$ initial	$^{40}\text{Ar}$ rad. ( $10^{-9}\text{cc/g}$ ) $\pm 1\sigma$	Atm. Ar (%)	Age (ka) $\pm 1\sigma$	Uncor. Age* (ka) $\pm 1\sigma$	Ref. age $\pm 1\sigma$ (ka)	Method (Ref.)							
KJ8931	鳴子山溶岩	0.26	2.36	0.630	1.17	0.38	0.1883	0.0008	318.2	1.9	299.8	2.4	7.0	1.1	94.2	91	15	93	3			
KJ8729	展望台溶岩	-	2.57	0.341	5.93	4.1	0.1847	0.0009	294.0	0.4	288.4	2.9	21.8	12.5	98.2	270	140	-60	20	-90	90	同位体希釈法(3)
KJ8730	展望台溶岩	-	2.70	0.252	5.78	5.3	0.1849	0.0010	292.8	0.3	289.1	3.3	20.0	17.5	98.7	230	210	-150	20	-150	110	同位体希釈法(3)
MY8338	香掛山下部	0.08	2.03	0.484	6.01	2.9	0.1849	0.0007	296.0	0.5	289.3	2.3	19.3	6.6	97.7	250	90	19	17	-20	80	同位体希釈法(1)
MY8947	香掛山下部	0.11	2.12	0.653	2.20	0.70	0.1855	0.0005	306.9	0.8	291.2	1.6	11.1	1.2	94.9	159	18	130	5			
MY8922	香掛山山頂	0.77	1.96	0.609	1.69	0.55	0.1864	0.0004	312.8	1.0	294.0	1.2	10.3	0.8	94.0	161	13	147	5			
MY8608	香掛山	1.17	2.70	0.653	3.30	1.1	0.1855	0.0004	302.6	0.5	291.1	1.2	12.9	1.5	96.2	146	17	102	4	90	30	同位体希釈法(1)
MY8925	星生山山頂	0.52	2.41	0.648	5.13	1.8	0.1845	0.0011	292.9	0.5	288.0	3.6	9.0	6.7	98.3	110	90	-69	7	29-31	5	TL法(2)
MY8588	星生山	1.04	2.34	0.213	6.48	6.5	0.1857	0.0010	293.9	0.3	291.7	3.2	14.0	21.1	99.3	180	280	-140	30	-70	150	同位体希釈法(1)
MY8915	硫黄山	0.43	2.59	0.655	2.44	0.85	0.1837	0.0005	300.4	0.6	285.4	1.5	12.7	1.4	95.0	150	16	67	5			

\*質量分別未補正年代

Refs: (1)星住ほか(2013) 同試料, (2)奥野ほか(2013) 別試料, (3)松本(未公表) 同試料

万年前の久住山溶岩に直接覆われる(鎌田, 1997). 約5万年前に噴出したKj-P1降下軽石(奥野ほか, 2013)は展望台溶岩の上には見られないが, 展望台溶岩の分布域の南に発達する平坦面に認められることから, Kj-P1の上位に位置するとされていた(Kamata and Kobayashi, 1997)が, Kj-P1が堆積後に浸食された可能性もある. 同位体希釈法によるK-Ar年代測定では2試料について, -90, -150 kaと有意な値が得られていなかった(松本, 未公表). 今回, 同試料について, 感度法により測定を実施した. その結果,  $270 \pm 140$ ,  $230 \pm 210$  kaという年代が得られたが誤差が大きい. 大気混入率が高く(>98%), 変質の過程で吸着した大気混入量の指標となる $^{36}\text{Ar}$ 量が4.1,  $5.3 \times 10^{-9}$  cc/gと高いため, より新鮮な試料を採取し, 再測定することが望ましい.

#### 杳掛山溶岩:

杳掛山は山頂から北西, 南方向に分布する複数の溶岩流で構成される(図1). 同位体希釈法によるK-Ar年代は90~170 kaの幅広い値を示す(星住ほか, 2013). また, 奥野ほか(2013)により, 北部の溶岩流について50~60 ka, 南部の溶岩について35 ka前後のTL年代が得られている(図1). 本研究では感度法により4試料の年代測定を実施した. 南方の溶岩流は飯田火砕流堆積物に覆われ, 断片的に露出している. 山頂から南西に約5 km離れた池山水源付近で露出する溶岩試料についての同位体希釈法による測定では,  $-20 \pm 80$  ka(星住ほか, 2013)と測定下限を下回っていた. 同試料について感度法により再測定したところ,  $250 \pm 90$  kaの年代値を得た. 高い大気混入率(97.7%)および $^{36}\text{Ar}$ 量( $2.9 \times 10^{-9}$  cc/g)を示し, 変質の影響が考えられたため, 付近の露頭で再度より新鮮な試料を採取し, 測定したところ,

$159 \pm 18$  kaの年代値が得られた. これは杳掛山山頂付近の溶岩の年代( $161 \pm 13$  ka,  $146 \pm 17$  ka)とよく一致する. これらの年代から, 杳掛山の主な活動は約15~16万年前と考えられる. 北部の溶岩流のTL年代よりも約10万年古い結果であるが, 採取場所が異なるため直接比較することができず, 複数回の活動を示している可能性もある.

#### 星生山溶岩および硫黄山溶岩:

星生山は九重火山の中央部に位置し, その中腹の硫黄山は1995年に噴火した後, 現在も噴気が見られる. 層序および地形判読から星生山溶岩は約7~10 ka前後と考えられていた(鎌田, 1997)が, TL年代からは山頂部は30 ka前後, 山麓部で40~50 kaが得られている(奥野ほか, 2013). 同位体希釈法によるK-Ar年代ではマイナスの年代( $-70 \pm 150$  ka; 星住ほか, 2013)を示した試料については, 感度法を用いても $180 \pm 280$  kaと誤差が大きく, 高い大気混入率(99%)および $^{36}\text{Ar}$ 量( $6.5 \times 10^{-9}$  cc/g)を示した. 山頂付近から再度試料を採取し, 測定したところ $110 \pm 90$  kaの年代結果となった.  $^{40}\text{Ar}$ 強度が5Vを超えたためHigh Faradayの値を用いた計算であり, 試料量を減らして再測定することで誤差の低減が見込まれるが, 中心値はTL年代より古く, 2.4V程度でElectron Multiplierを用いて測定した硫黄山溶岩の結果も,  $150 \pm 16$  kaと古い. その原因としては, 過剰 $^{40}\text{Ar}$ の影響よりも, 低い $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比による質量分別補正の影響が大きいように思われる. 今回測定した試料のうち,  $^{36}\text{Ar}$ 量が $2.0 \times 10^{-9}$  cc/gを超えるものの多くは $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比が低く0.1850を下回っていた. 硫黄山溶岩の試料は $^{36}\text{Ar}$ 量が $0.85 \times 10^{-9}$  cc/gと通常の範囲内であるにもかかわらず, 低い $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比(0.1837)を示す. 測定開始時のスキャン時に塩素等の妨

害ピークは見られず、精製が不十分のように見えないが、 $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比の測定と質量分別の影響については今後さらに検討が必要である。

## まとめ

感度法K-Ar法による直接年代測定により、九重火山の各ユニットの噴出年代を決定し、評価したところ、鳴子山は約9万年前、杓掛山は約15~16万年前にそれぞれ活動したと考えられる。

感度法によるK-Ar年代測定で質量分別補正を実施することにより、同位体希釈法では測定下限以下であった10万年未満の年代測定が可能となり、 $^{14}\text{C}$ 法の測定範囲と重なる年代まで拡大できるようになりつつある。しかし、試料自体の問題や測定条件にも課題が残るため、今後、試料選択の基準や再測定による検討が必要である。また、試料採取場所の違い等で詳細に比較ができなかったが、熱ルミネセンス年代よりも古い年代値が得られる場合があり、同試料を用いたクロスチェックが今後必要と考えられる。

## 文献

Dalrymple, G. (1969) Potassium-argon ages of Recent rhyolites of the Mono

and Inyo Craters, California, EPSL, 3, 289-298.

星住英夫・松本哲一・川辺禎久・廣田明成 (2013) 九重火山中西部の発達史とK-Ar年代, 火山学会講演予稿集, 136.

鎌田浩毅 (1997) 宮原地域の地質. 地域地質研究報告(5万分の1地質図幅), 地質調査所, 127p.

Kamata, H. & Kobayashi, T. (1997) The eruptive rate and history of Kuju Volcano in Japan during the past 15,000 years. Jour. Volcanol. Geotherm. Res., vol.76, 163-171.

Krummenacher, D. (1970) Isotope composition of argon in modern surface volcanic rocks. EPSL, 8, 109-117.

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比補正の重要生——, 質量分析, 37, 353-363.

小野晃司(1963) 5万分の1地質図幅「久住」及び同説明書, 地質調査所, 124p.

奥野 充・高島 勲・長岡信治・鮎沢潤・稲永康平・今里 博・大淵真吾・葺本信太郎・兼田大道・小林哲夫 (2013) 九重火山中西部の熱ルミネセンス年代. 月刊地球号外, 62, 32-36.